

図4-2-2 活性炭移動層式吸着塔の構造

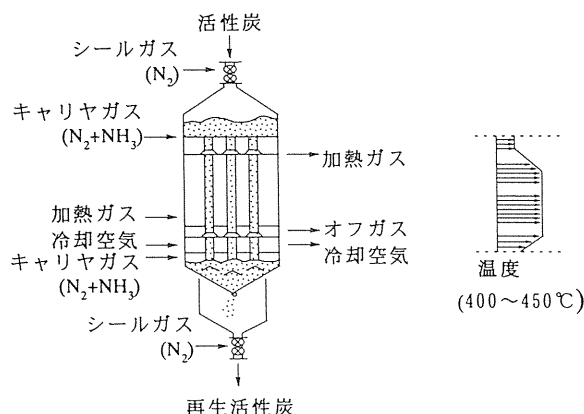


図4-2-3 活性炭再生塔の構造

表4-2-1 実証設備設計値

	吸着塔入口	吸着塔出口	再生塔脱離ガス
湿りガス量 (m ³ N/h)	14,000	14,000	11
乾きガス量 (m ³ N/h)	8,400	8,400	10.4
排ガス温度 (°C)	150	145	450
ばいじん (mg/m ³ N)	30	30	500
硫黄酸化物 (ppm)	30	5	24,000
窒素酸化物 (ppm)	80	80	—
塩化水素 (mg/m ³ N)	100	100	7,000
ダイオキシン類 (ng-TEQ/m ³ N)	20	0.1	—

3. 調査項目

1) ダイオキシン類吸着除去性能

吸着塔入口、出口のダイオキシン類濃度測定値より除去率を算出する。

2) 活性炭再生塔におけるダイオキシン類分解の確認

再生塔入口の活性炭、再生後の活性炭、篩い分け機にて分離した粉状活性炭および再生塔脱離ガス中のダイオキシン類濃度を測定して、それぞれの流量から収支を取り、ダイオキシン類の分解を確認する。

4. その他

調査実験は、通ガスを開始して5ヶ月経過後に行われ、この時点で活性炭は、再生工程を約3回繰り返している。

4. 2. 3 調査結果

排ガス分析結果を表4-2-2に示す。吸着塔入口及び出口の排ガス中ダイキソ類の各同族体毎の濃度と除去率を、表4-2-3に示す。また、活性炭分析結果を表4-2-4に示す。

表4-2-2 排ガス測定結果

(*はO₂=12%換算値)

	単 位	吸着塔入口 (G1)	吸着塔出口 (G2)	再生塔脱離ガス (G3)
湿りガス量	m ³ N/h	11,400	11,500	25
乾きガス量	m ³ N/h	8,130	7,800	23
排ガス温度	℃	151	150	343
O ₂	%	11.8	14.3	0.8
ばいじん	mg/m ³ N	8*	<1*	0.1*
SO _x	ppm	8*	<1*	1,100
NO _x	ppm	63*	52*	<10
HCl	mg/m ³ N	7*	8*	510
PCDDs/DFs	ng-TEQ/m ³ N	18*	0.016*	0.031*

表4-2-3 吸着塔の同族体別除去率

表4-2-4 活性炭分析結果 (単位:ng/g)

	吸着塔 入口 (G1)	吸着塔 出口 (G2)	除去率 [%]
T ₄ CDDs	99	N. D.	>99.9
P ₅ CDDs	47	N. D.	>99.9
H ₆ CDDs	2.2	N. D.	>99.9
H ₇ CDDs	0.82	N. D.	>99.9
O ₈ CDD	0.53	N. D.	>99.9
PCDDs	150	N. D.	>99.9
T ₄ CDFs	1,400	0.57	99.9
P ₅ CDFs	800	0.46	99.9
H ₆ CDFs	14	N. D.	>99.9
H ₇ CDFs	0.13	N. D.	>99.9
O ₈ CDF	N. D.	N. D.	>99.9
PCDFs	2,200	1.0	99.9
I-TEQ	18	0.016	99.9

	再生塔入口 (C1)	再生塔出口 粒状 (C2)	再生塔出口 粉状 (C3)
T ₄ CDDs	64	0.16	3.4
P ₅ CDDs	56	0.12	3
H ₆ CDDs	16	0.1	1.8
H ₇ CDDs	3.8	0.049	0.64
O ₈ CDD	0.5	0.021	0.29
PCDDs	140	0.45	9.1
T ₄ CDFs	220	0.35	23
P ₅ CDFs	130	0.27	14
H ₆ CDFs	41	0.18	5.5
H ₇ CDFs	10	0.076	1.5
O ₈ CDF	0.77	0.015	0.24
PCDFs	400	0.89	44
I-TEQ	7.0	0.021	0.93

(濃度はO₂12%換算値)

4. 2. 4 考察

吸着塔におけるダイオキシン類除去率は、表4-2-3に示すとおり、各同族体毎及び毒性等価換算値ともに99.9%以上であった。十分な厚みと吸着能力を有する活性炭層の働きにより、入口濃度が設計上限値に近かったが、出口濃度は0.016ng-TEQ/m³Nと極めて低く保たれた。

活性炭の分析結果（表4-2-4）より、再生塔内の活性炭再生プロセスにて、明らかにダイオキシン類は分解している。分解率を再生塔まわりのバランス計算から求め表4-2-5に示す。各同族体、PCDDs/Fs及び毒性等価換算値ともに、99%以上の分解率であった。ダイオキシン類のマスバランスを図4-2-4に示す。図4-2-4では、排ガス量と濃度の積から求めた吸着塔インプット量と活性炭移動量と濃度から求めた吸着塔アウトプット量を示した。この両者は、濃度変動や滞留時間の大幅な違い(=測定値が代表している時間帯の違い)などを考えると、オーダーが合えば良い程度のものであるが、今回の調査においては、バランスが取れている。

表4-2-5 再生塔まわりのダイオキシン類マスバランスと分解率。(単位: μg/h)

	インプット	アウトプット				分解	
	再生塔入口 活性炭 (C1)	再生塔出口 活性炭粒状 (C2)	再生塔出口 活性炭粉状 (C3)	再生塔 脱離ガス (G3)	合計 (T0)	分解量 (C1-T0)	分解率 $\frac{C1-T0}{C1}$ [%]
流量	20 kg/h	19.9 kg/h	0.1 kg/h	23 m ³ N/h			
PCDDs	2,800	9.0	0.91	0.013	10	2,790	99.6
PCDFs	8,000	18	4.4	0.067	22.5	7,978	99.7
I-TEQ	140	0.42	0.093	0.0016	0.51	139.5	99.6

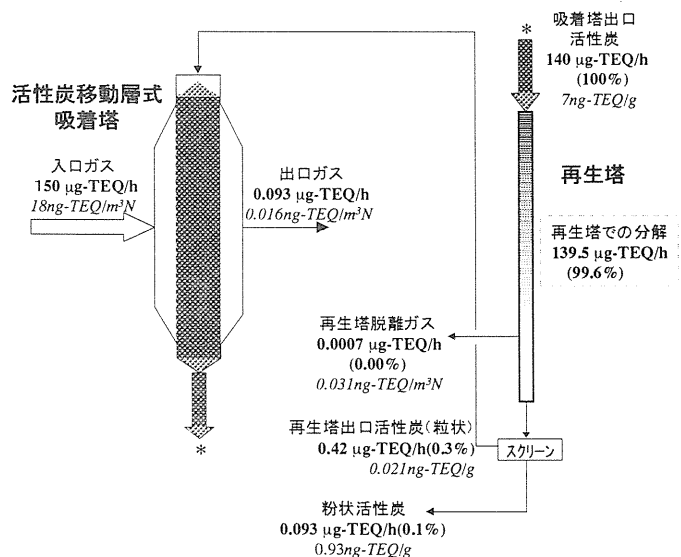


図4-2-4 活性炭移動層式吸着塔と再生塔のダイオキシン類マスバランス

4.3 歴史トレンド解析

4.3.1 調査目的

都市ごみ焼却をはじめとした種々の発生源からの広範な排出により、PCDD_s/DF_sによる汚染が広がっているが、その汚染過程の把握に関する研究は日本ではほとんど行われていない。化学物質の汚染過程を把握するための方法として、重金属や農薬を対象に行われてきた湖沼や湾の底質を用いた歴史トレンド解析がある。過去には大阪湾底質中 PCDD_s/DF_s濃度の深度分布の調査が行われ¹⁾、最近では東京湾の底質中 PCDD_s/DF_sの汚染実態の調査やその発生源に関する研究が行われた例²⁾もあるが、年代特定も含めた本格的なトレンド解析は行われていなかった。

ドイツやスイス、アメリカなどの欧米諸国では、PCDD_s/DF_sによる汚染過程を把握するために、既に底質を用いた歴史トレンド解析が行われており、過去の汚染過程や発生源の推定、近年とられた PCDD_s/DF_s対策の効果などが報告されている。

この底質を用いた歴史トレンド解析を行うことにより、過去からの大気や陸生由来の PCDD_s/DF_sの汚染過程の把握はもとより、発生源の変遷をある程度把握することが可能となる。本調査は海外での研究事例も交え、大阪湾および琵琶湖底質中の PCDD_s/DF_sの歴史トレンド解析結果を考察する。

4.3.2 調査時期

現地調査日：大阪湾神戸沖調査	平成 10 年 7 月 4 日
琵琶湖調査(北湖)	平成 10 年 10 月 3 日
バックグラウンド調査(白池)	平成 10 年 9 月 3 日

4.3.3 調査地点

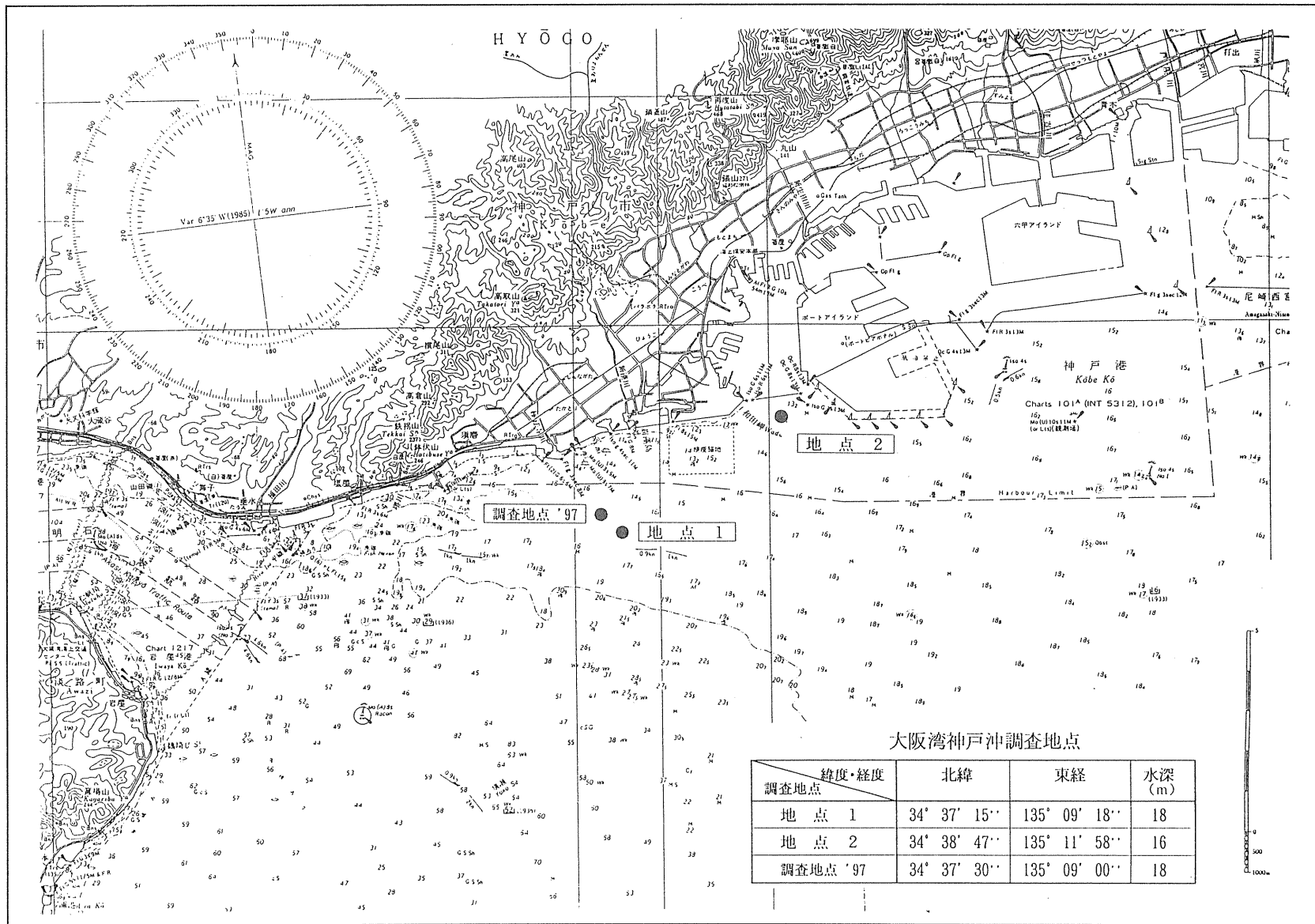
調査地点は、大阪湾神戸沖 2 地点、琵琶湖北湖および白池(新潟県糸魚川)の計 4 地点とした。調査地点を図 4-3-1～図 4-3-3 に示す。

(1) 内海 大阪湾神戸沖

- 地点 1 — 平成 9 年度の追跡調査地点(燃烧系発生源として火災の影響が見られると考えられる地点)
- 地点 2 — 陸からの汚染物質の影響を受けやすい地点で河川からの流れの影響を比較的受けない地点

(2) 淡水湖 琵琶湖北湖(東岸)

- 地点 3 — 平成 9 年度北湖の西岸域で調査した。平成 10 年度は北湖東岸



大阪湾神戸沖調査地点

緯度・経度	北緯	東経	水深 (m)
調査地点			
地点 1	34° 37' 15"	135° 09' 18"	18
地点 2	34° 38' 47"	135° 11' 58"	16
調査地点 '97	34° 37' 30"	135° 09' 00"	18

図 4-3-1 大阪湾神戸沖調査地点

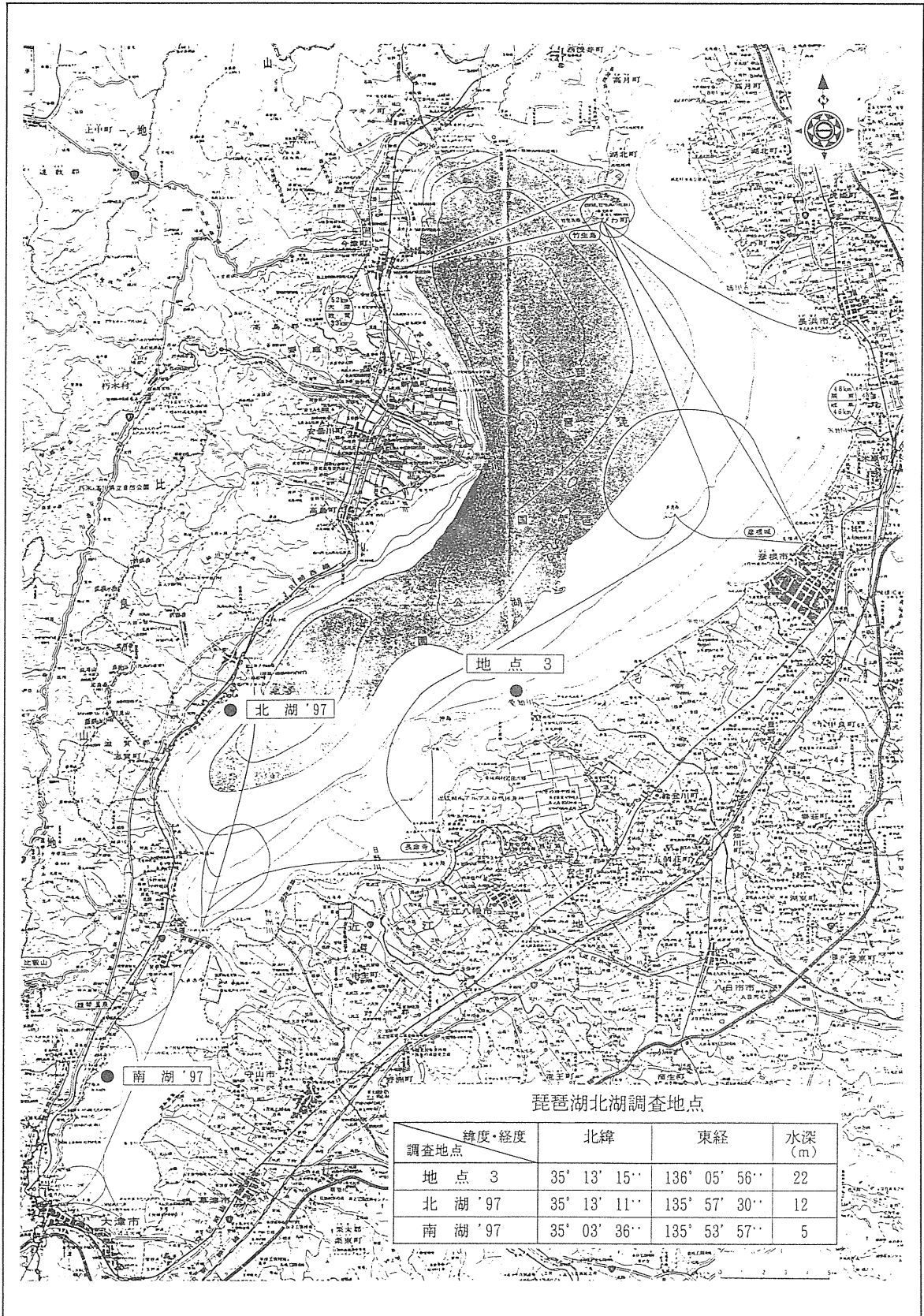


図4-3-2 琵琶湖北湖(東岸)調査地点

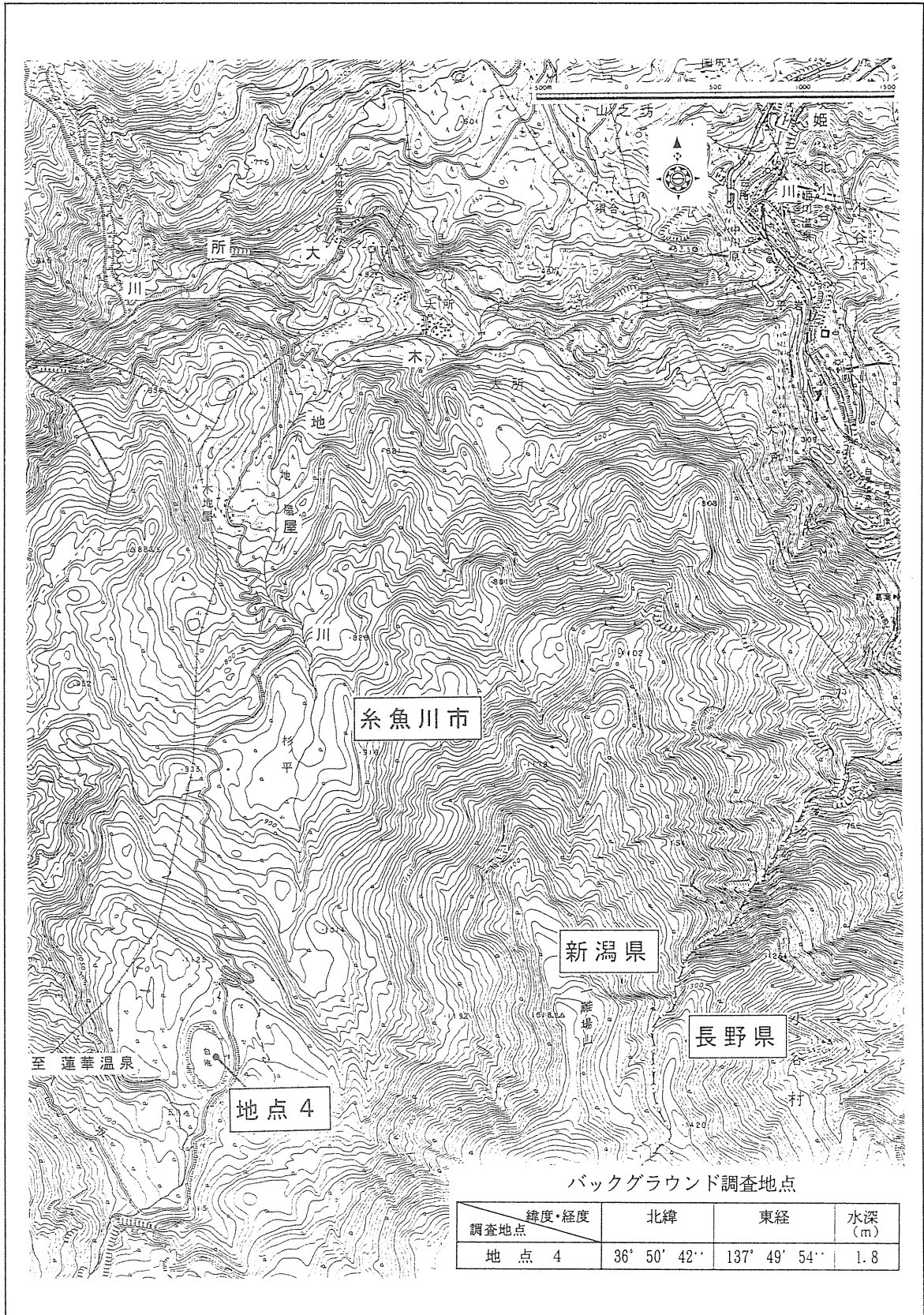


図4-3-3 バックグラウンド調査地点 (新潟県糸魚川市・白池)

域で調査する。

(3) バックラウンド 白池(新潟県糸魚川市)

地点4 — 我が国におけるPCDDs/DFSのバックラウンド地点として調査

4.3.4 分析項目

分析項目は下記の項目とした。

^{210}Pb 、PCDDs、PCDFs、コプラナーPCBs

4.3.5 調査方法および内容

1) サンプリング

前述した調査地点1～3の位置決定はGPS (Global Positioning System)で行った。予め船上よりHR型コアサンプラー(動式採泥器：φ10cm、50cm)で底質を採取し、底質の性状を確認した。底質が粘土質ないしシルト質の地点を試料採取地点として選定した。

分析用試料はダイバーが透明アクリルカラム(φ10cm：120cm)を底質表層から鉛直方向に概ね70～80cm挿入し不攪乱状態の柱状底質として、1地点当たり4本採取した。試料採取方法を図4-3-4に示す。

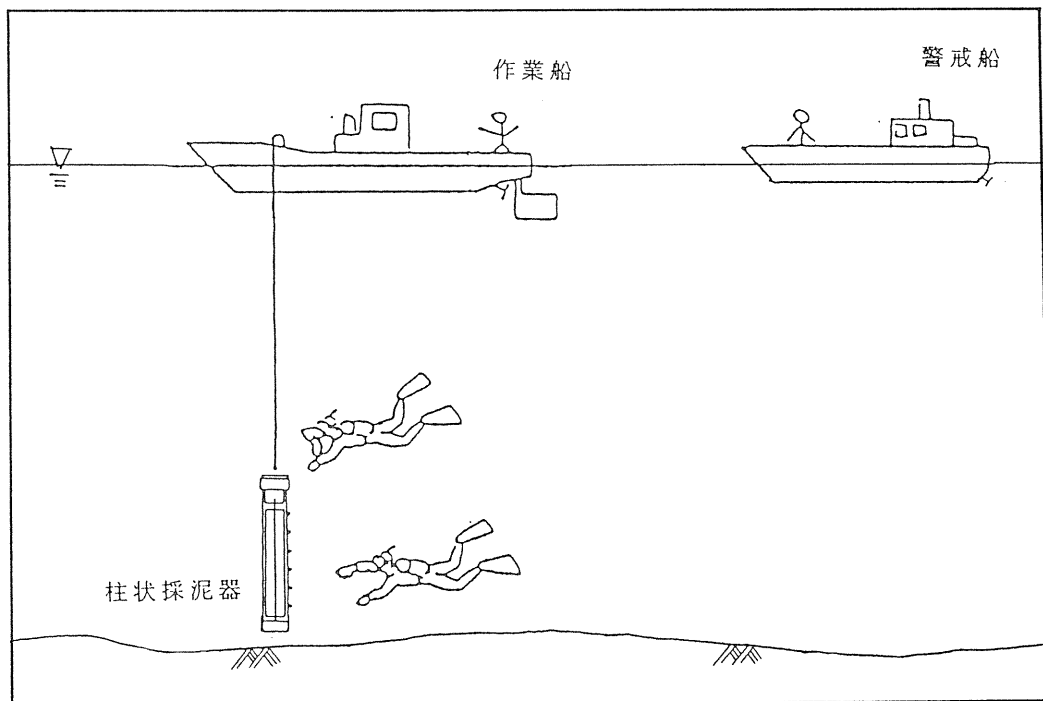


図 4-3-4 柱状底質試料の採取方法

2) 分析試料の調整

採取した4本の底質コアのうち2本を分析に使用し、残りの2本は冷蔵庫に保管した。分析用の底質コアは後日、2 cm間隔でスライスした。スライスの方法は、円筒容器内の底質を下から上へ押し出して2 cmごとに切っていく方法で、スライスした底質は十分に風乾させ、湿重量と乾重量から含水率を求めた。確認のために試料の一部を105°Cで2時間加熱し、加熱前後の重量変化から正確な含水率を求めたが、ほとんど変化はなかった。

3) 底質堆積速度の測定

各々の測定方法は以下の方法によった。 ^{210}Pb を用いた年代測定は、大阪府立大学先端科学研究所アイソトープ総合研究センター 恵 和子教授に依頼した。

(1) 堆積速度の測定方法

歴史的過程を沿岸海域、湖沼堆積物について調べるにあたって、底質の堆積速度を求める必要がある。堆積速度の決定にあたって ^{210}Pb 年代測定法が用いられている。この方法は以下のとおりである。土壌等に含まれている ^{238}U 系列核種のうち ^{226}Ra は壊変し ^{222}Rn が生じ、これは大気中に散逸拡散される。 ^{222}Rn の壊変により生じた ^{214}Pb 、 ^{214}Bi および ^{210}Pb は湿性沈着および乾性沈着により再度地表にもたらされる。 ^{214}Pb 、 ^{214}Bi などは分或いはそれ以下の短い半減期を持つ放射性核種であるが ^{210}Pb は22.3年と比較的長い半減期を持つ。 ^{210}Pb は降水などにより海水、湖水にもたらされ、海水や湖水中 ^{226}Ra より生じた ^{210}Pb と共に水中懸濁物質粒子に吸着されて水底に堆積する。

今、 ^{210}Pb および降下塵の単位面積、年間あたり水底への供給量は一定とする。(過剰) ^{210}Pb は毎年、一定量水底堆積物表面に供給されるとすると、 t 年後には(過剰) ^{210}Pb の堆積物の濃度は t 年間にその半減期22.3年に従って壊変減少するのみである。

$$A(t) = A(0) \cdot \exp(-\lambda \cdot t)$$

$$A(t) = F / \omega \cdot \exp(-\lambda \cdot t)$$

$$A(z) = F / \omega \cdot \exp(-\lambda \cdot z / \omega)$$

$$\omega = -\lambda / m$$

但し $A(0)$: 水底表面における堆積物中(過剰) ^{210}Pb の濃度一定
 $A(t)$: t 年前に水底表面にあった堆積物中(過剰) ^{210}Pb の濃度
 λ : ^{210}Pb の壊変常数 $\lambda = 0.693/22.3$

F : 単位面積当たり年間 ^{210}Pb 供給量 $\text{Bq}/\text{cm}^2 \cdot \text{y}$
 ω : 質量堆積速度 $\text{g}/\text{cm}^2 \cdot \text{y}$
z : 深さ g/cm^2

深さz(g/cm^2)におけるt年前に堆積した堆積物中の(過剰) ^{210}Pb の濃度は $\Lambda(z)$ で表され、従って、質量堆積速度 ω は $\Lambda(z)$ をzに対して片対数プロットした直線の傾きmから算出される。

堆積物表面にあったが堆積物柱状試料の各堆積層に含まれている ^{210}Pb のうち、 ^{226}Ra の濃度を超えて堆積物自体に含まれている以外の、すなわち、 ^{226}Ra の放射平衡量を超えて存在する ^{210}Pb を過剰 ^{210}Pb (降下性 ^{210}Pb)とする。

(2) 放射能濃度測定方法

堆積物乾燥試料20~60 gを円盤状に圧密し、2重の気密性の高いナイロン袋に封入し、これをプラスチック容器に入れ密封した。これらの試料について、平板型Ge検出器および同軸型Ge(Li)検出器に、それぞれ波高分析器をつなぎ γ 線スペクトルを測定した。検出器はバックグラウンドを下げるためにそれぞれの遮蔽内に納められている。 ^{210}Pb は前者の測定器、 ^{208}Tl (^{232}Th)、 ^{226}Ra 、 ^{40}K 、および ^{137}Cs は後者の測定器を用いて定量した。 ^{210}Pb は46.5keVの γ 線から、 ^{208}Tl は583keVの γ 線から、 ^{226}Ra は ^{214}Bi の609keVおよび ^{214}Pb の352keVの γ 線から、 ^{40}K は1.46 MeVの γ 線から、 ^{137}Cs は ^{137}mBa の0.662keVの γ 線から測定した。但し、 ^{214}Bi および ^{214}Pb の測定は試料密封後1ヶ月経過した後、これらが ^{226}Ra と放射平衡に達した後に行った。標準比較のために地質調査所の標準試料を用いた。

なお、これら柱状試料の固相の実効密度は測定されていないが、広く用いられている2.45の値を用いた。

4) PCBおよびダイオキシン類測定方法

PCBおよびダイオキシン類の測定方法は、平成10年7月環境庁水質保全局「ダイオキシン類に係わる底質調査暫定マニュアル」に準拠した。

4.3.6 現地調査結果

柱状底質を採取した位置および採取状況を表4-3-1に示す。いずれの地点とも粘土質ないしシルト質の底質を採取した。採取した柱状底質の長さは大阪湾神戸沖、琵琶湖北湖で概ね70cm、バックグラウンド地点の白池で60cm弱であった。

表 4-3-1 現地調査結果

調査日	平成10年7月4日		平成10年10月3日	平成10年9月3日
調査地点	大阪湾神戸沖		琵琶湖	新潟県糸魚川市
	地点1	地点2	北湖(東岸)	白池
北緯	34° 37' 15"	34° 38' 47"	35° 13' 15"	36° 50' 42"
東経	135° 09' 18"	135° 11' 58"	136° 05' 56"	137° 49' 54"
天候	晴	晴	晴	曇り
水深	18m	16m	22m	1.8m
採取底質	67.5cm	71.0cm	71.5cm	58.5cm

4.3.7 堆積速度解析結果（恵和子教授による）

^{210}Pb 法による年代測定結果から得られた、大阪湾神戸沖および琵琶湖北湖の底質の堆積速度を表 4-3-2 に示す。白池は今回の ^{210}Pb 測定結果からの年代解析は困難であった。

表 4-3-2 底質堆積速度

調査地点		堆積速度	
		mg/cm ² /y	mm/y
大阪湾 神戸沖	地点 1	436	6.3
	地点 2	466	10.9
琵琶湖 北湖	地点 3	271	4.2

1) 大阪湾神戸沖底質の堆積速度

大阪湾神戸沖の地点 1 の試料については資料表 4-3-1 に、調査地点 2 の試料については資料表 4-3-2 に ^{210}Pb ex (過剰 ^{210}Pb)、 ^{228}Th (^{232}Th)、 ^{226}Ra 、 ^{40}K 、 ^{137}Cs の濃度および空隙率を示した。資料図 4-3-1、資料図 4-3-2 に ^{210}Pb ex (過剰 ^{210}Pb)、全 ^{210}Pb および ^{226}Ra の濃度および ^{228}Th 、 ^{226}Ra 、 ^{137}Cs の深度変化を示した。

地点 2 については最表層と次層の間にやや混合が認められるが堆積速度の算定に当たっては誤差範囲内と考えられるため混合を無視した。

大阪湾の試料はいずれも琵琶湖の試料に比較して ^{137}Cs の濃度は低く顕著な深度変化が認められず、年代の検討には寄与しなかった。

2) 琵琶湖北湖底質の堆積速度

琵琶湖北湖の試料の $^{210}\text{Pbex}$ (過剰 ^{210}Pb)、 ^{228}Th (^{232}Th)、 ^{226}Ra 、 ^{40}K 、 ^{137}Cs の濃度および空隙率を資料表 4-3-3 に示した。 $^{210}\text{Pbex}$ (過剰 ^{210}Pb) および全 ^{210}Pb の濃度の深度変化を資料図 4-3-3 に示した。

琵琶湖北湖の試料については大阪湾神戸沖の試料に比較して ^{137}Cs の濃度は高く顕著な深度変化が認められ、約 $9.75\text{g}/\text{cm}^2$ において最高値となった。このピークを核爆発の影響によるフォールアウトの最大期 1963 年に相当すると仮定し、堆積速度の検討に利用できた。

^{210}Pb 法による堆積速度は、 $271\text{mg}/\text{cm}^2/\text{y}$ 、 ^{137}Cs に基づく堆積速度は $279\text{mg}/\text{cm}^2/\text{y}$ と求められ、両者の間に大きな差は認められなかった。

今後堆積物の鉍物組成および ^{210}Pb の年間フラックス、インベントリーを、 ^{137}Cs のインベントリーについても各場所において比較検討を進め堆積速度の信憑性を評価することが必要と考えられる。

3) 白池底質の堆積速度

バックグラウンド地点、白池の試料について $^{210}\text{Pbex}$ (過剰 ^{210}Pb)、 ^{228}Th (^{232}Th)、 ^{226}Ra 、 ^{40}K 、 ^{137}Cs の濃度および空隙率を示した (資料表 4-3-4)。資料図 4-3-4 に $^{210}\text{Pbex}$ (過剰 ^{210}Pb)、全 ^{210}Pb および ^{226}Ra の濃度の深度変化を示した。

堆積速度が非常に小さく柱状試料の最表層部の 2 cm に過剰 ^{210}Pb および ^{137}Cs は凝集されているように考えられる。また、底質の表層部のみが安定した状態になったことも推測される。白池は新潟県であるため大陸の影響をまろに受けて放射性降下物の堆積も近畿圏に比較して大きいであろうと予測したが、予想に反して小さく質量堆積速度も小さいようであった。

白池の堆積物年代測定に関しては火山灰の有無について同定し、年代を検討する必要があると考えられる。

今後、堆積物の鉍物組成および ^{210}Pb の年間フラックス、インベントリーを、また、 ^{137}Cs のインベントリーについても各場所において比較検討を進め堆積速度の信憑性を評価する必要があるだろう。

表 4-3-3 に白池を除く各調査地点の底質堆積速度を示す。

表 4-3-3 大阪湾神戸沖および琵琶湖北湖の底質堆積速度

調査地点	平成10年度調査	平成9年度調査	既応文献値
大阪湾 神戸沖	地点 1 436mg/cm ² /y 0.63cm/y	〈表層以深〉 0.56g/cm ² /y (0.78cm/年)	
		〈表層~6.5cm〉 0.14g/cm ² /y (0.22cm/年)	
		〈11~21cm〉層 0.35g/cm ² /y (0.45cm/年)	
琵琶湖北湖 (地点 3)	271mg/cm ² /y 0.42cm/y	186mg/cm ² /y (0.26cm/年)	(1.0mm/年) 松本英二 ⁴⁻¹⁾ 48mg/cm ² ・年 横山康二他 ⁴⁻²⁾ (1.0mm/年)

4. 3. 8 PCDDs/DFs の歴史トレンド解析

本研究では、過去の日本における PCDDs/DFs の汚染実態の把握を目的に大阪湾および琵琶湖底質コアを用いて、PCDDs/DFs の同族体濃度、異性体濃度、さらに PCBs の同族体濃度分析を行った。

1) 大阪湾神戸沖底質の歴史トレンド

(1) 実測 PCDDs/DFs 濃度傾向

大阪湾神戸沖の地点 1、2 ともに PCDDs/DFs の実測濃度で深度方向の大きな濃度変化が認められず(図 4-3-5)、地点 1 が 2.1~2.7ng/g、地点 2 で 2~5ng/g の濃度レベルであった。

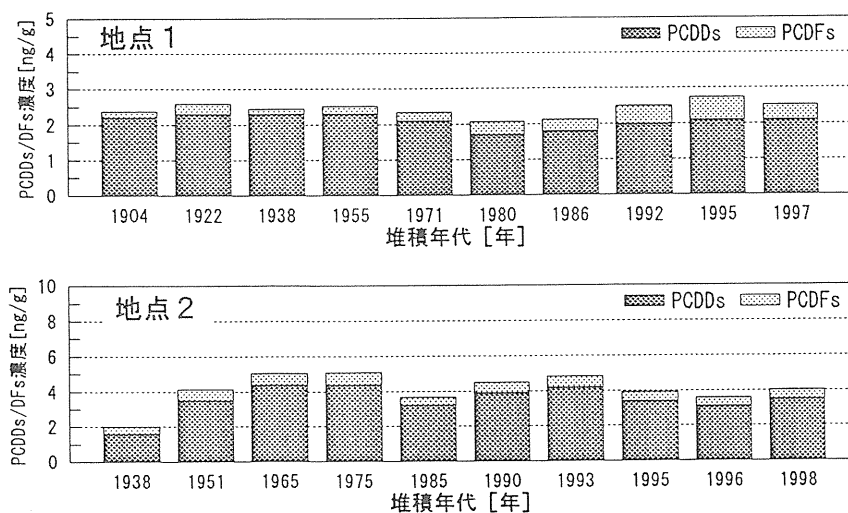


図4-3-5 PCDDs/DFs の歴史トレンド：大阪湾神戸沖

毒性換算濃度では地点1の表層3層が高い値を示した(図4-3-6)。しかし、平成9年度の調査地点の表層底質で確認された38pg-TEQ/gの2分の1程度の濃度であった。

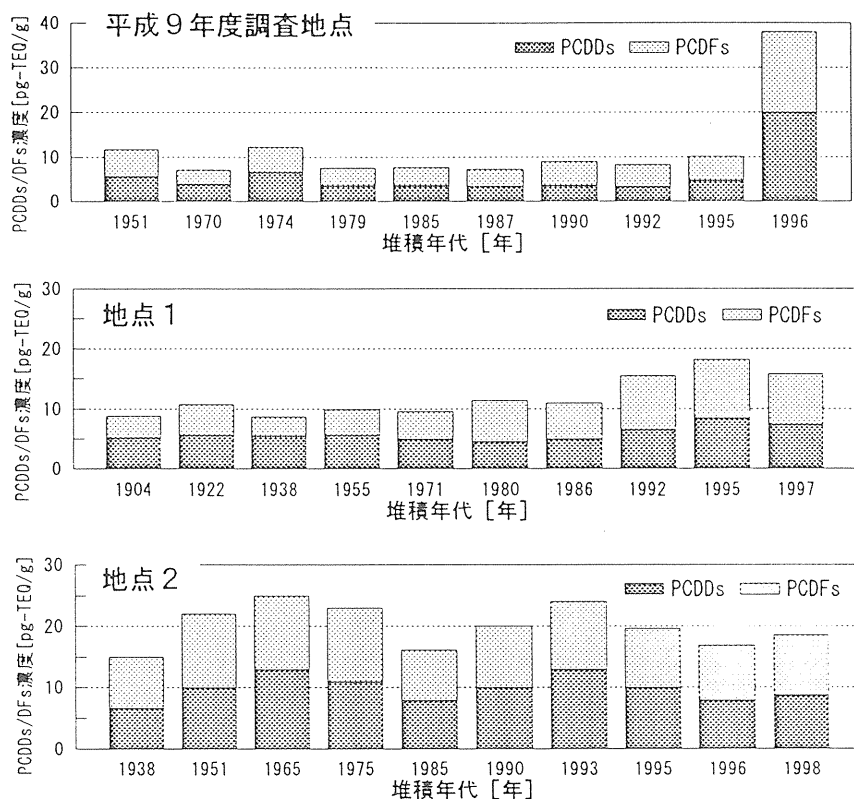


図4-3-6 PCDDs/DFs (TEQ)の歴史トレンド：大阪湾神戸沖

これらのことから、潮流等による底質の流失や擾乱等の影響が考えられた。特にPCDDs/DFsの濃度変化が認められた神戸沖の地点1の底質に関しては、今後、適切なサンプリング地点での再調査が必要であろう。

大阪湾神戸沖の底質表層3層以深のPCDDs/DFs濃度は平成9年度、今年度の調査結果ともにほぼ同程度の濃度レベル(10pg-TEQ/g程度)にあるといえ、両地点に影響を与えている発生源も同じであると考えられる。バックグラウンド調査地点の白池と比較すると、一桁あるいは二桁高い濃度レベルで推移している。したがって、大阪湾神戸沖の底質は少なくとも人為起源の燃焼発生源ならびに除草剤による影響を受けているといえ、このことはダイオキシン汚染が都市型汚染であることを明確に示している。

(2) 同族体分布および異性体分布

大阪湾神戸沖の底質試料については、平成9年度の調査結果と同様、濃度の増減はあったものの、同族体分布および異性体分布にほとんど変化が認められなかった。地点1の1971年および1997年に相当する底質コア試料の同族体分布を図4-3-7に、異性体分布を図4-3-8に示す。同族体分布を比較すると、全体的には高塩素化ダイオキシンが優勢な分布を示し、ダイオキシンと比較してフラン濃度が低い傾向にある。

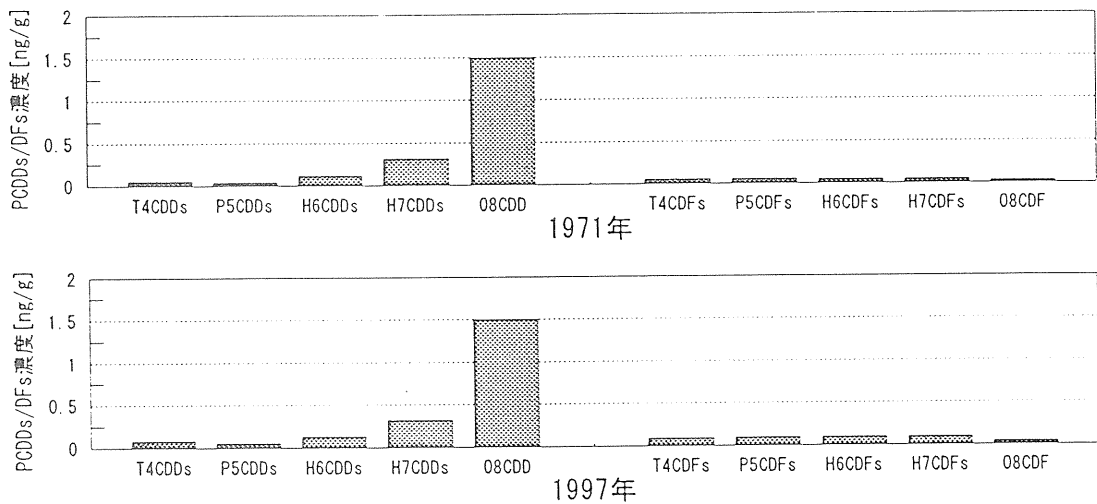


図4-3-7 大阪湾神戸沖(地点1)の同族体分布

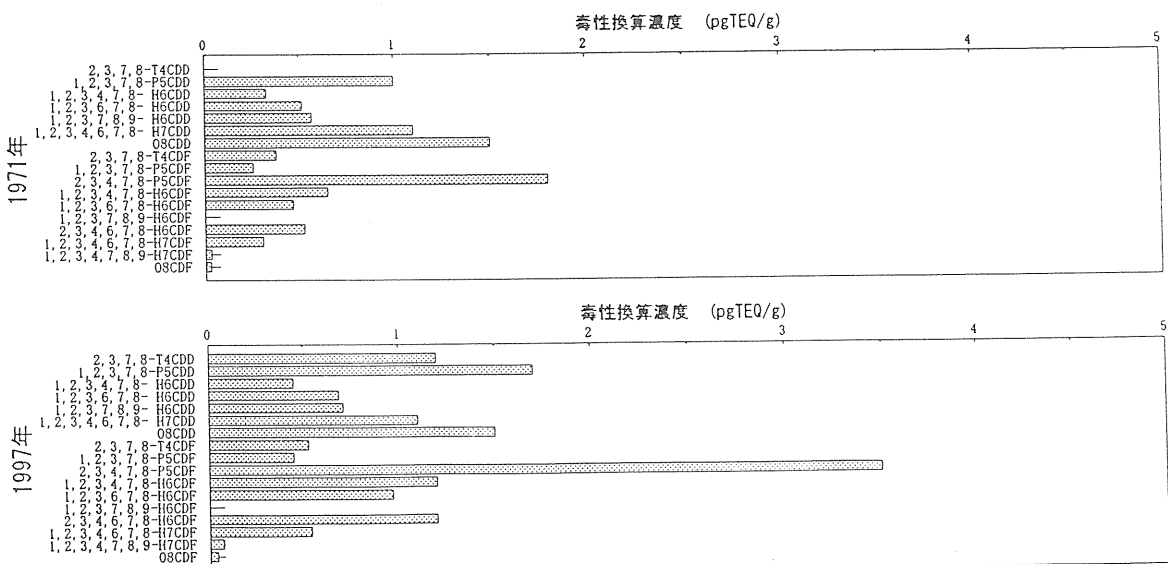


図4-3-8 大阪湾神戸沖(地点1)の異性体分布

異性体分布に関しては 1997 年に相当する底質コアで 2, 3, 7, 8-T4CDD が検出されたこととフラン類が増加していたことが 1971 年に相当するコアとの相違点であった。

以上の歴史トレンドから、PCDDs/DFs 排出量の変化はあったと考えられるが、排出源自身の変化はほとんどなかったことが推定できる。

2) 琵琶湖北湖底質の歴史トレンド

(1) 実測 PCDDs/DFs 濃度傾向

琵琶湖北湖(東岸)の PCDDs/DFs の実測濃度変化を図 4-3-9 に、毒性換算濃度変化を図 4-3-10 に示す。琵琶湖においては、大阪湾よりも堆積速度が小さかったため、1800 年代後半からの濃度変化が明確に示されている。

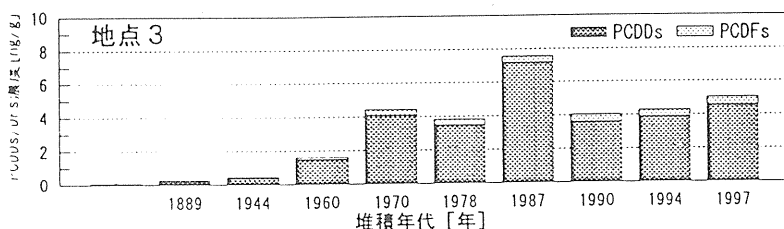


図4-3-9 PCDDs/DFsの歴史トレンド：琵琶湖北湖東岸

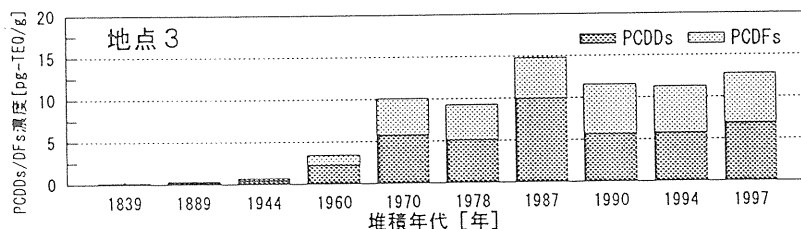
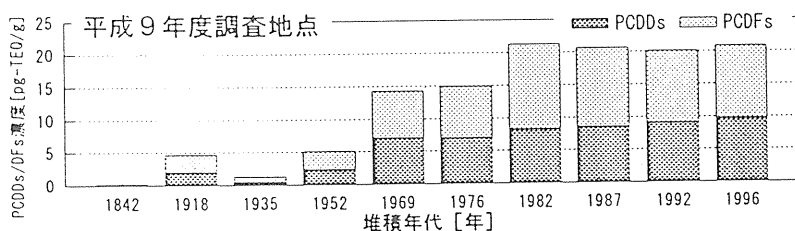


図4-3-10 PCDDs/DFs (TEQ)の歴史トレンド：琵琶湖北湖

1960 年代に PCDDs/DFs 濃度の上昇が見られ、1980 年代後半に最高値 7.5ng/g に急増している。その後減少し、最近は 5 ng/g 程度で横這いとなっている。

毒性等量で見ると、歴史トレンドは実測濃度と同様の傾向を示し、1960 年代に濃度の上昇が見られ、1980 年代後半に最高値 15pg-TEQ/g に急増している。その後減少し、最近は 10pg-TEQ/g 程度で推移している。

平成 10 年度のこれらの調査結果は平成 9 年度の北湖 (西岸)、南湖と同様の傾向を示し、濃度レベルの相違はあるものの、琵琶湖における PCDDs/DFs の歴史トレンドを反映しているものと考えられる。

(2) 同族体および異性体分布

琵琶湖北湖では、年代により同族体分布に変化が認められる (図 4-3-11)。

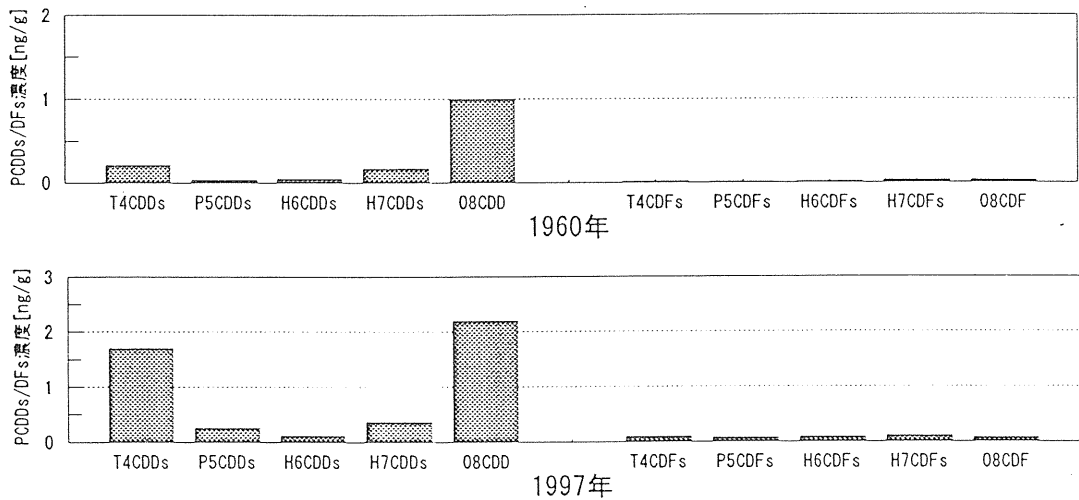


図4-3-11 琵琶湖北湖底質の同族体分布

1960 年に相当するコアでは高塩素化ダイオキシンの存在比率が高く、1997 年に相当する最近のコアでは 4 塩素化ダイオキシンの比率が急激に上昇している。これらの同族体の解析結果は平成 9 年度の調査結果と同様の傾向を示している。

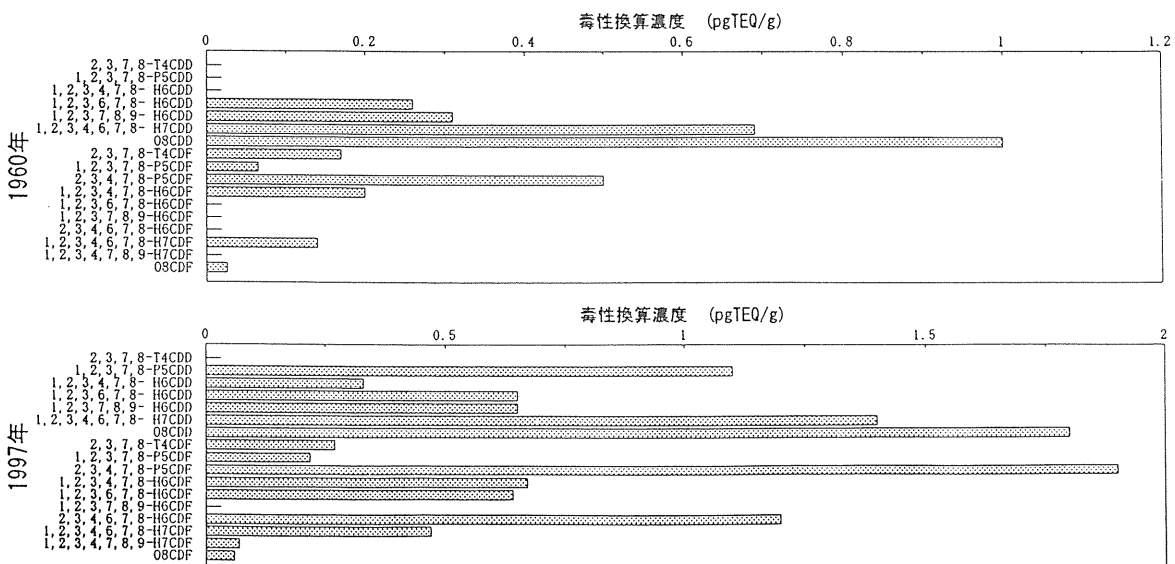


図4-3-12 琵琶湖北湖底質の異性体分布

3) 白池底質の歴史トレンド

日本における PCDDs/DFs のバックグラウンド地点のひとつとして調査した白池の PCDDs/DFs 濃度トレンドを図 4-3-13、図 4-3-14 に示す。

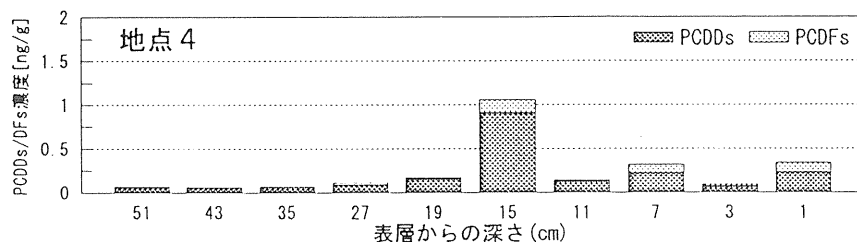


図4-3-13 PCDDs/DFs の歴史トレンド：白池

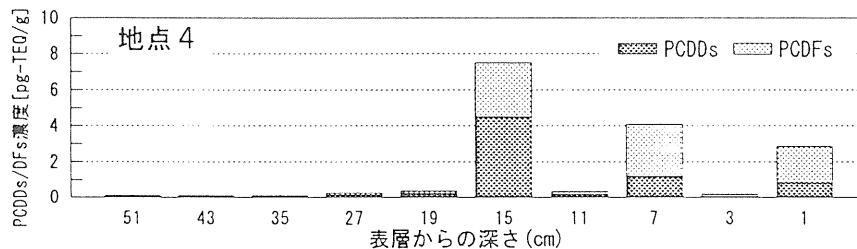


図4-3-14 PCDDs/DFs (TEQ) の歴史トレンド：白池

白池における底質の堆積速度についてはさらに詳細に調査、解析することが必要と考えられるが非常に小さいと推察される。底質中の PCDDs/DFs 濃度はコアの上層部で高い濃度層が確認された。全体的には 65~170pg/g (毒性等量換算で 0.13~0.38pg-TEQ/g) と低濃度レベルを保持していた。

海外で行われた歴史トレンド調査における対照湖の濃度トレンドと比較すると、五大湖の場合、都市から離れた地域に位置し大気由来の負荷のみを受けていると考えられる Siskiwit と Outer Island の調査結果では、ダイオキシン類濃度は 300~1000pg/g と白池よりも高濃度である。ミシシッピ州南部の都市部から離れた地域にある 27 の湖の表層底質では、1.98~63.7pg-TEQ/g のダイオキシン類が検出されている。バイカル湖では北部の過疎地域など人為汚染の少ない地域で 0.03 および 0.05pg-TEQ/g のダイオキシン類が表層底質で確認されており、白池より一桁低い濃度レベルであるといえる。以上のことから白池は PCDDs/DFs のバックグラウンドレベルが低いと考えられるが、その歴史トレンドについてはさらなる確認が必要である。

4.3.9 コプラナーPCBs分析結果

PCDDs/DFsの分析を行った大阪湾神戸沖(2地点)、琵琶湖北湖(東岸)、バックグラウンド地点(白池)の計4地点の底質コアについて、コプラナーPCBsの分析も実施した。各地点の分析結果を資料図4-3-1～資料図4-3-4に示す。

4.3.10 まとめ

平成9年度以降、過去2年の調査結果から、ダイオキシン類歴史トレンドをまとめると、大阪湾では1970年代後半から1980年にかけて少なくとも燃焼由来もしくは製品由来のダイオキシン類の濃度レベルの上昇が見られ、その後は、ほぼ一定量の排出が続いているものと考えられる。平成9年度の調査で確認された神戸沖の底質表層の高濃度のPCDDs/DFsについては、底質の擾乱や潮流による影響のためか、平成10年度の

調査の範囲では確認できなかった。神戸沖については今後の追跡調査が望まれる。

一方、琵琶湖においては過去2年の調査結果とも、1960年代からPCDDs/DFs濃度の上昇が見られ、1970年から1980年代にピークとなり、現在は若干の減少傾向あるいは横這いで推移していた。琵琶湖におけるダイオキシン類の発生源としては、燃焼由来に加え、除草剤等の製品の影響を受けていることが示唆された。

大阪湾と琵琶湖のピーク時期の相違は、排出源の相違が要因として挙げられるが、琵琶湖が閉鎖性水域であるといった地域的な特性やPCDDs/DFsの輸送形態(サンプリング地点と発生源との距離の関係)の影響も考えられるため、今後、近接する発生源との位置関係も含めた調査が望まれる。

【参考文献】

- 1) S. Sakai, S. Deguchi, S. Urano, H. Takatsuki, K. Megumi, T. Sato, and R. Weber, *Organohalogen Compounds* 1998, 39, 359-362
- 2) R. F. Pearson, D. L. Swackhamer, S. J. Eisenreich, and D. T. Long, *Environ. Sci. Technol.* 1997, 31, 2903-2909
- 3) C. Rappe, R. Andersson, K. Cooper, H. Fiedler, C. Lau, and F. Howell, *Organohalogen Compounds* 1997, 32, 88-93
- 4) A. A. Mamontov, E. A. Mamontova, E. N. Tarasova and M. S. McLachlan, *Organohalogen Compounds* 1998, 39, 327-330
- 5) 宮田秀明, 廃棄物学会誌 1997, Vol. 8, No. 4, 301-311
- 6) 新田忠雄, 用水と廃水 1963, Vol. 5, No. 6, 2-8

資料表 4 - 3 - 1 大阪湾神戸沖 地点 1 : 堆積物中の放射能濃度

sample name	depth c m	Pb214 Bq/kg	σ	Th228 Bq/kg	σ	Bi214 Bq/kg	σ	K40 Bq/kg	σ	Cs137 Bq/kg	σ	Pb210 Bq/kg	σ	mean		Pb210ex		porosity	
														Ra226 Bq/kg	σ	Pb-Ra Bq/kg	σ	depth g/cm2	
2-2-1	1	22.50	2.24	37.48	3.23	23.98	2.70	676.5	23.5	2.50	0.76	147.60	10.07	23.24	1.76	124.36	10.22	0.817	0.45
2-2-2	3	23.19	1.71	42.02	2.71	24.53	2.17	673.6	19.6	3.15	0.59	116.23	7.43	23.86	1.38	92.37	7.55	0.770	1.46
2-2-3	5	22.87	1.68	37.93	2.61	24.12	2.13	702.4	19.3	2.67	0.57	129.72	6.79	23.49	1.36	106.22	6.93	0.767	2.60
2-2-4	7	21.93	1.44	34.84	2.28	22.81	1.83	653.5	16.9	3.39	0.55	98.53	5.92	22.37	1.17	76.16	6.04	0.733	3.82
2-2-5	9	20.67	1.45	33.51	2.26	20.83	1.83	662.0	17.1	2.77	0.54	103.57	5.58	20.75	1.17	82.82	5.70	0.738	5.12
2-2-6	11	24.65	1.48	33.69	2.28	23.94	1.88	666.9	17.1	2.03	0.55	90.91	5.56	24.29	1.20	66.62	5.68	0.726	6.44
2-2-7	13	20.46	1.46	36.50	2.32	21.48	1.84	661.9	17.1	1.77	0.55	121.45	5.81	20.97	1.17	100.48	5.92	0.717	7.80
2-2-8	15	22.80	1.47	35.39	2.36	19.77	1.84	648.5	17.1	2.83	0.57	84.37	5.59	21.28	1.18	63.08	5.71	0.738	9.14
2-2-9	17	21.69	1.46	34.16	2.29	21.53	1.84	680.4	17.2	3.82	0.57	75.20	5.46	21.61	1.17	53.59	5.58	0.731	10.44
2-2-10	19	23.54	1.68	34.40	2.64	21.05	2.11	666.2	18.8	2.58	0.63	95.04	6.60	22.30	1.35	72.74	6.74	0.759	11.69
2-2-11	21	21.58	1.45	36.69	2.34	20.31	1.83	674.0	17.0	2.16	0.55	66.30	5.27	20.95	1.17	45.35	5.40	0.727	12.95
2-2-12	23	21.46	1.47	40.19	2.38	21.46	1.83	653.0	16.9	0.54	0.55	61.39	5.37	21.46	1.17	39.94	5.49	0.703	14.35
2-2-13	25	21.52	1.47	44.41	2.40	18.43	1.87	676.0	17.2	1.30	0.53	45.65	5.36	19.98	1.19	25.68	5.49	0.686	15.85
2-2-14	27	22.76	1.49	46.47	2.49	22.05	1.87	657.8	17.2	1.27	0.55	51.12	5.44	22.40	1.19	28.72	5.57	0.708	17.33
2-2-15	29	22.25	1.44	42.62	2.41	24.06	1.85	663.7	17.0	2.12	0.55	54.82	5.34	23.16	1.17	31.66	5.47	0.695	18.79
2-2-16	31	21.13	1.43	44.52	2.42	18.17	1.81	662.4	16.9	1.34	0.53	60.23	5.77	19.65	1.16	40.57	5.89	0.720	20.23
2-2-17	33	19.41	1.42	41.90	2.43	19.59	1.85	644.0	16.7	2.07	0.57	58.76	5.43	19.50	1.17	39.26	5.55	0.699	21.65
2-2-18	35	20.50	1.44	44.35	2.45	23.89	1.87	621.7	16.6	2.02	0.54	51.29	5.38	22.20	1.18	29.10	5.51	0.702	23.12
2-2-19	37	22.45	1.45	45.78	2.45	19.48	1.84	661.0	16.8	1.33	0.53	47.41	4.93	20.96	1.17	26.45	5.07	0.706	24.57
2-2-20	39	20.79	1.47	49.07	2.49	24.68	1.85	665.3	17.0	2.11	0.54	39.67	5.21	22.73	1.18	16.93	5.35	0.705	26.01
2-2-21	41	23.54	1.51	46.84	2.49	25.95	1.93	667.5	17.3	0.59	0.55	39.65	5.52	24.74	1.23	14.90	5.66	0.712	27.44
2-2-22	43	22.98	1.48	47.07	2.51	21.86	1.91	667.0	15.7	0.96	0.53	29.55	5.17	22.42	1.21	7.12	5.31	0.704	28.87
2-2-23	45	23.12	1.48	52.03	2.56	25.41	1.88	662.5	17.1	0.83	0.55	34.84	5.02	24.27	1.20	10.57	5.16	0.724	30.27
2-2-24	47	23.01	1.49	49.95	2.52	26.01	1.91	659.3	17.0	1.22	0.55							0.711	31.66
2-2-25	49	20.64	1.46	48.22	2.49	16.57	1.83	665.9	17.0	0.59	0.53	34.41	4.85	18.60	1.17	15.81	4.99	0.726	33.04
2-2-26	51	21.64	1.47	52.34	2.58	21.55	1.86	670.8	17.2	1.16	0.54	33.95	4.89	21.59	1.18	12.36	5.03	0.692	34.46
2-2-27	53	19.82	1.45	47.65	2.54	19.58	1.84	669.5	17.1	0.00								0.721	35.90