

this model, we cannot derive the *usual* likelihood ratio test since the usual regularity conditions for maximum likelihood estimators do not apply, i.e., the parameter β disappears under the null hypothesis $H_0 : \epsilon = 0$ and, furthermore, we cannot rely on the likelihood to have a unique maximum. Diggle *et al.*^[10] considered a similar decay function with non-regularity conditions in their parametric approach:

$$\theta = \begin{cases} 1 + \epsilon & \text{if } d \leq \delta \\ 1 + \epsilon \exp\{-\left(\frac{d-\delta}{\beta}\right)^2\} & \text{otherwise} \end{cases}$$

Notwithstanding the non-regularity, Diggle *et al.* conducted a simulation study to assess the validity of the usual χ^2 -approximation to the null distribution of the likelihood ratio test statistic and found it reasonably well or its actual size appears to be slightly larger than the nominal values depending on the situations. However, their approach suffered from unreliable standard errors for the maximum likelihood estimates and they considered Monte Carlo standard errors. It seems to me that statistical inference with non-regularity problems should be based upon Monte Carlo simulation rather than relying on the asymptotic approximation, especially in the application to very delicate health-related environmental issues.

The extended score tests introduced here can be considered as to provide a partial remedy to the problems associated with existing methods for the analysis of the spatial relationship between the point sources and the locations of cases. But, they can be improved in several ways. When there are multiple point sources, the proposed methods assume "common λ " for exposure decay function regardless of the point source. We can relax this assumption by using different λ 's for each of the source. Regarding exposure function g_{ij} , the proposed methods adopted relatively simple functions defined in (9), (14) and (15). We have tried several more complex functions but their performance did not show meaningful changes. But our experience is limited and so it will be worth investigating more appropriate exposure function g_{ij} .

We have carried out a simulation study to evaluate the performance of the proposed procedures. Since these Monte Carlo experiments have been based on a relatively small number of sets of parameter values and sample sizes, the conclusions derived here may not be representative. However, as we have examined typical sets of parameter values and sample sizes, we do not expect that drastically different conclusions to be derived for other situations not examined here, although we need a further simulation study for more detailed comparisons.

Bithell's LRS test based on inverse distance rank has been said to have the advantage that it is in-

variant under monotonic transformation of distance since, without this property, the choice of any transformation to achieve a suitable surrogate measure of exposure cause the problem of multiple testing. However, even this procedure is never optimal and so it is worth pointing out that a similar procedure proposed in this paper can easily be applied to Bithell's LRS test. For example, when we consider the excess risk around a single point source and define $T(\epsilon, \lambda) = \sum_{i=1}^m n_i \log(1 + \epsilon \exp\{-4(\frac{d_i}{\lambda})^2\})$, then an extended LRS test for monotone trend can be defined as the maximum of T . A similar peak-decline model also can be derived. Although this procedure requires more computing time, good performance similar to the score test might be expected. Power comparisons will be a subject of future research.

However, all of these analyses still belong to the category of the simplest formulation of their relationship, i.e., *distance-only analysis*. Some epidemiologists disagree on this approach on the ground that it obviously oversimplifies the spatial factors of the aetiology. However, in the absence of exposure information *in the past* around the putative sources under study and as far as the distance from the source can be considered as a primary spatial factor among others, even geographically insufficient distance-only analysis can still provide useful statistical evidence. To incorporate a variety of spatial factors into the analysis such as angular information from the direction of the prevailing wind, we may construct more flexible exposure functions with additional parameters. However, as was seen in the simulation results shown in Tables 5 and 6, a multi-purpose test such as P_{both} is expected to have lower power than a single-purpose test such as P_{mon} against the alternative hypothesis of the latter test. Therefore, unless uniformly most powerful test, overly flexible test against every alternative is useless and a test powerful against moderately restricted class of alternative hypotheses will be welcomed.

For readers who are interested in applying the proposed tests to the analysis of small area statistics, we can provide S-Plus codes upon request.

ACKNOWLEDGEMENTS

The author thanks the editor and three anonymous referees for invaluable comments on an earlier draft of the paper that lead to substantial improvements.

References

- [1] Bithell, J.F., Dutton, S.J., Draper, G.J. and Neary, N.M. 'Distribution of childhood leukaemias and non-Hodgkin's lymphomas near nuclear installations in England and Wales', *British Medical Journal*, **309**, 501-505 (1994).
- [2] Elliott, P., Shaddick, G., Kleinschmidt, I., Jelly, D., Walls, P., Beresford, J. and Grundy, C. 'Cancer incidence near municipal solid waste incinerators in Great Britain', *British Journal of Cancer*, **73**, 702-710 (1996).
- [3] Stone, R.A. 'Investigation of excess environmental risks around putative sources: statistical problems and a proposed test', *Statistics in Medicine*, **7**, 649-660 (1988).
- [4] Waller, L.A., Turnbull, B.W., Clark, L.C., Nasca, P. 'Chronic disease surveillance and testing of clustering of disease and exposure: application to leukaemia incidence and TCE-contaminated dumpsites in upstate New York', *Environmetrics*, **3**, 281-300 (1992).
- [5] Lawson, A.B. 'On the analysis of mortality events associated with a prespecified fixed point', *J. R. Statist. Soc. A*, **156**, 363-377 (1993).
- [6] Tango, T. 'A class of tests for detecting 'general' and 'focused' clustering of rare diseases', *Statistics in Medicine*, **14**, 2323-2334 (1995).
- [7] Bithell, J.F. 'The choice of test for detecting raised disease risk near a point source', *Statistics in Medicine*, **14**, 2309-2322 (1995).
- [8] Diggle, P.J. 'A point process modelling approach to raised incidence of a rare phenomenon in the vicinity of a prespecified point', *Journal of Royal Statistical Society, Series A*, **153**, 349-362 (1990).
- [9] Diggle, P.J. and Rowlingson, B.S. 'A conditional approach to point process modelling of elevated risk', *Journal of Royal Statistical Society, Series A*, **157**, 433-440 (1994).
- [10] Diggle, P.J., Morris, S., Elliott, P., Shaddick, G. 'Regression modelling of disease risk in relation to point sources', *Journal of Royal Statistical Society, Series A*, **160**, 491-505 (1997).
- [11] Lawson, A.B. and Waller, L. 'A review of point pattern methods for spatial modelling of events around sources of pollution', *Environmetrics*, **7**, 471-488 (1996).
- [12] Barlow R.E., Bartholomew, D.J., Bremner, J.M. and Brunk, H.D. *Statistical Inference under Order Restrictions: the Theory and Applications of Isotonic Regression*. Wiley, New York, 1972.
- [13] Waller, L.A. and Lawson, A.B. 'The power of focused tests to detect disease clustering', *Statistics in Medicine*, **14**, 2291-2308 (1995).
- [14] Waller, L.A. 'Statistical power and design of focused clustering studies', *Statistics in Medicine*, **15**, 765-782 (1996).
- [15] Breslow, N.E. and Day, N.E. *Statistical Methods in Cancer Research, Volume II: The design and Analysis of Cohort Studies*, International Agency for Research on Cancer, Lyon, 1987.
- [16] Bithell, J.F. and Stone, R.A. 'On statistical methods for analysing the geographical distribution of cancer cases near nuclear installations', *J. Epidemiol. Community Health*, **43**, 79-85 (1989).
- [17] Bithell, J.F. 'Statistical methods for analyzing point source exposures', in Elliott, P., Cuzick, J., English, D. and Stern, R. (eds). *Geographical and Environmental Epidemiology: Methods for Small Area Studies*, Oxford, 221-230 (1992).
- [18] Tango, T. 'A test for spatial disease clustering adjusted for multiple testing', *Statistics in Medicine*, **19**, 191-204 (2000).
- [19] Wartenberg, D. and Greenberg, M. 'Detecting disease clusters: the importance of statistical power', *American Journal of Epidemiology*, **132**, S156-S166 (1990).

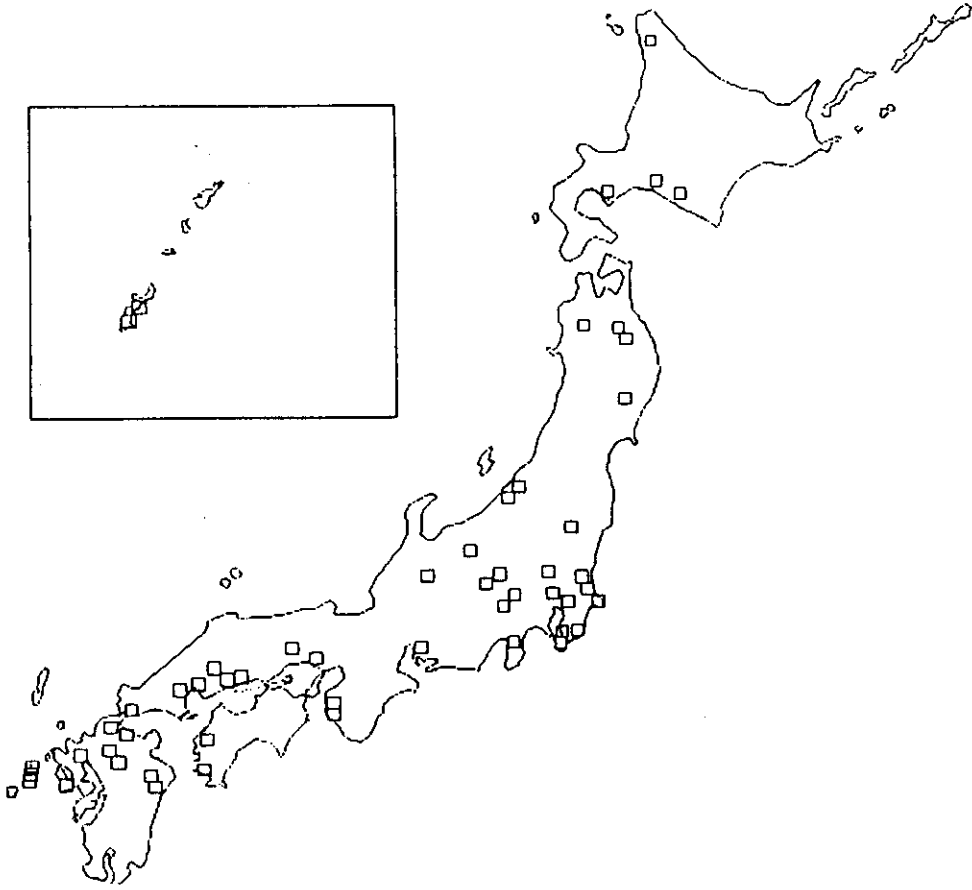


Figure 1 : Selected 73 municipal solid waste incinerator sites in Japan.

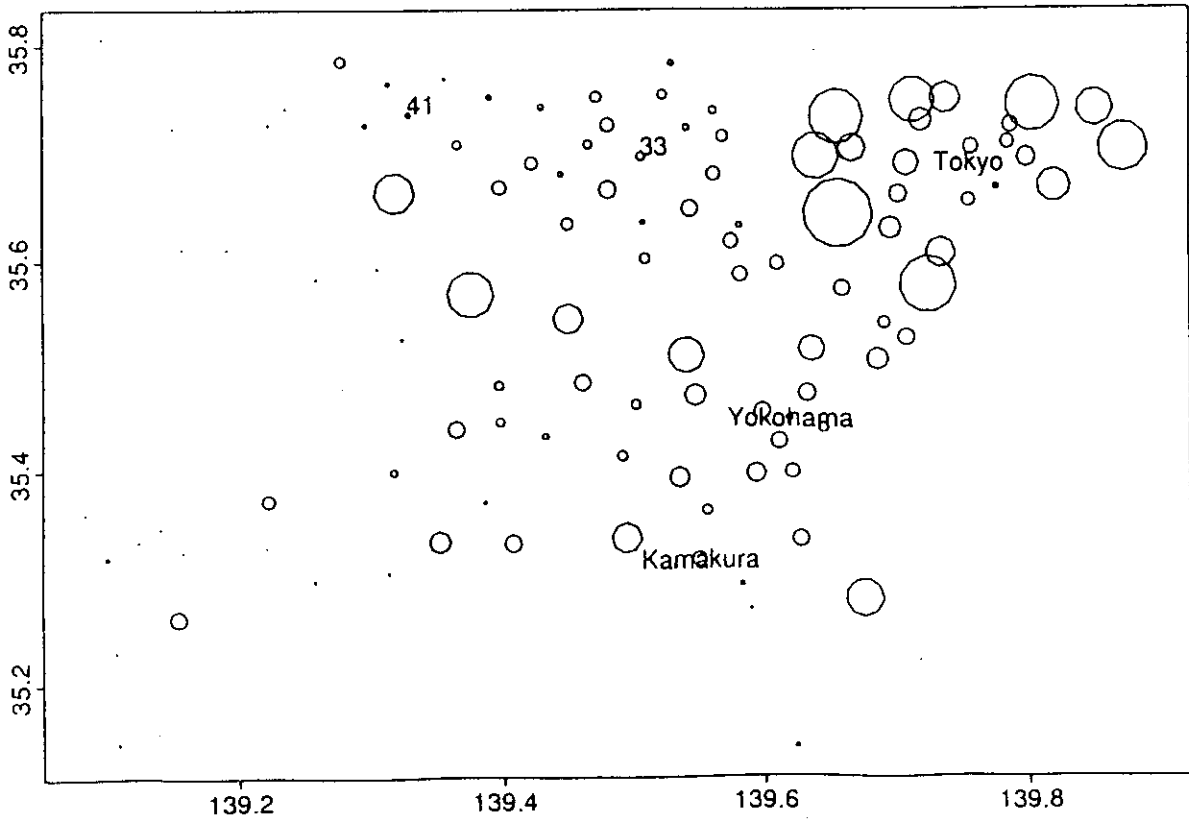


Figure 2 : 113 regions comprising from wards, cities and villages in the area of Tokyo Metropolis and Kanagawa prefecture in Japan. The center of a circle is the location of population centroid of the corresponding region and the radius of circle is set proportional to the population size. Two point sources to be used in the simulation are indicated by region numbers and symbols "33" and "41".

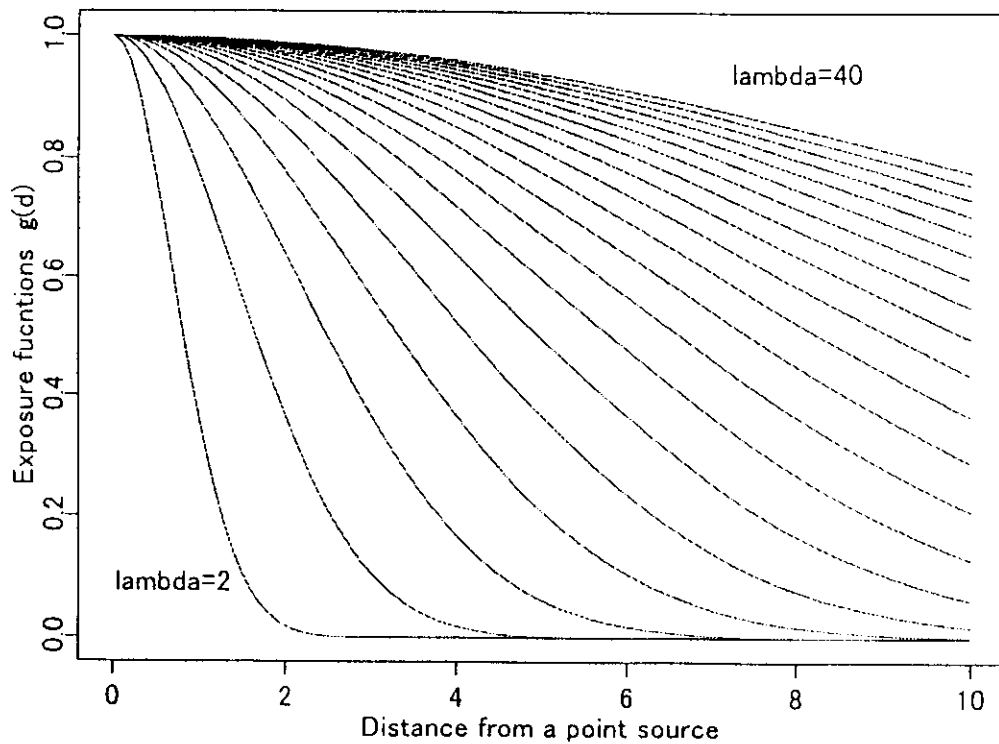


Figure 3 : Exposure functions $g_i(d, \lambda)$, $\lambda = 2, 4, \dots, 40$ with $w = 1$ used for the extended score test for monotone trend.

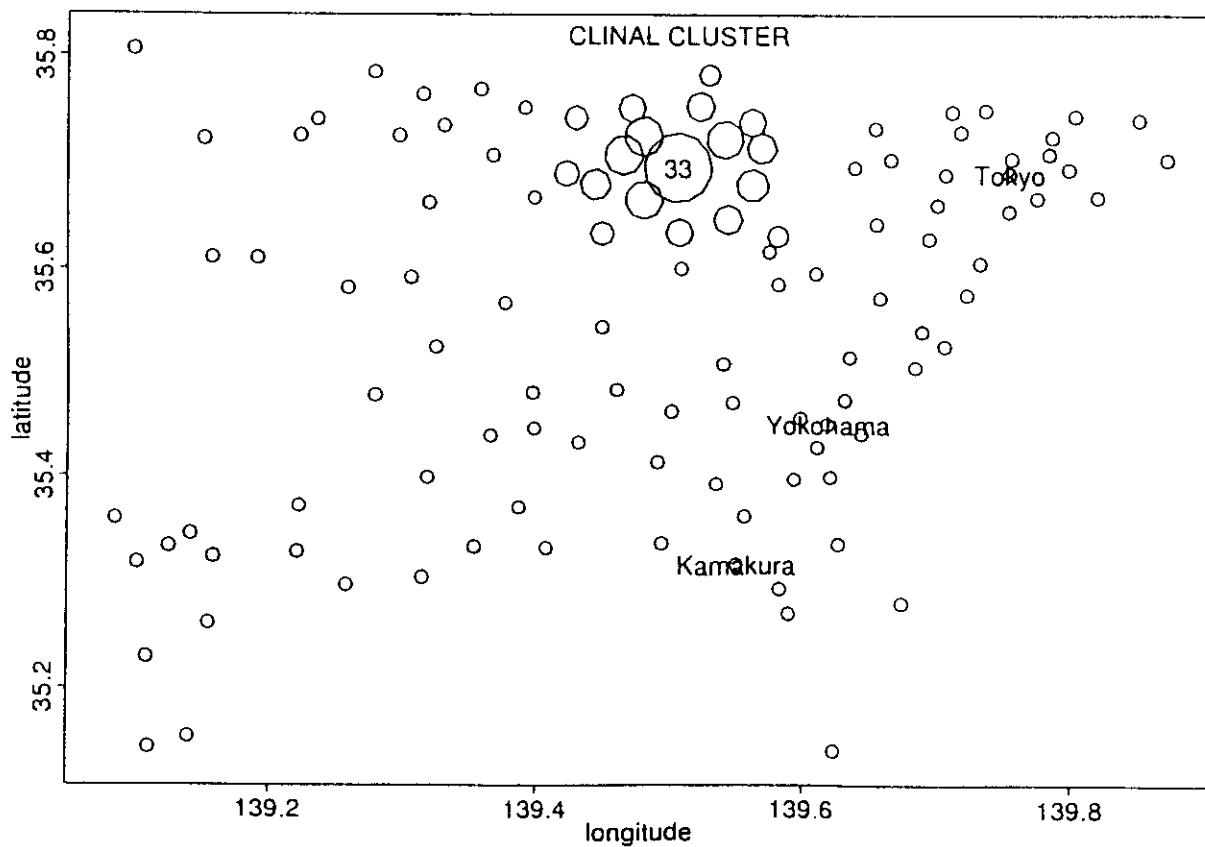


Figure 4 : Hypothesized clinal cluster with relative risks defined in (18) around the region 33. The radius of circle is set proportional to the relative risk assumed.

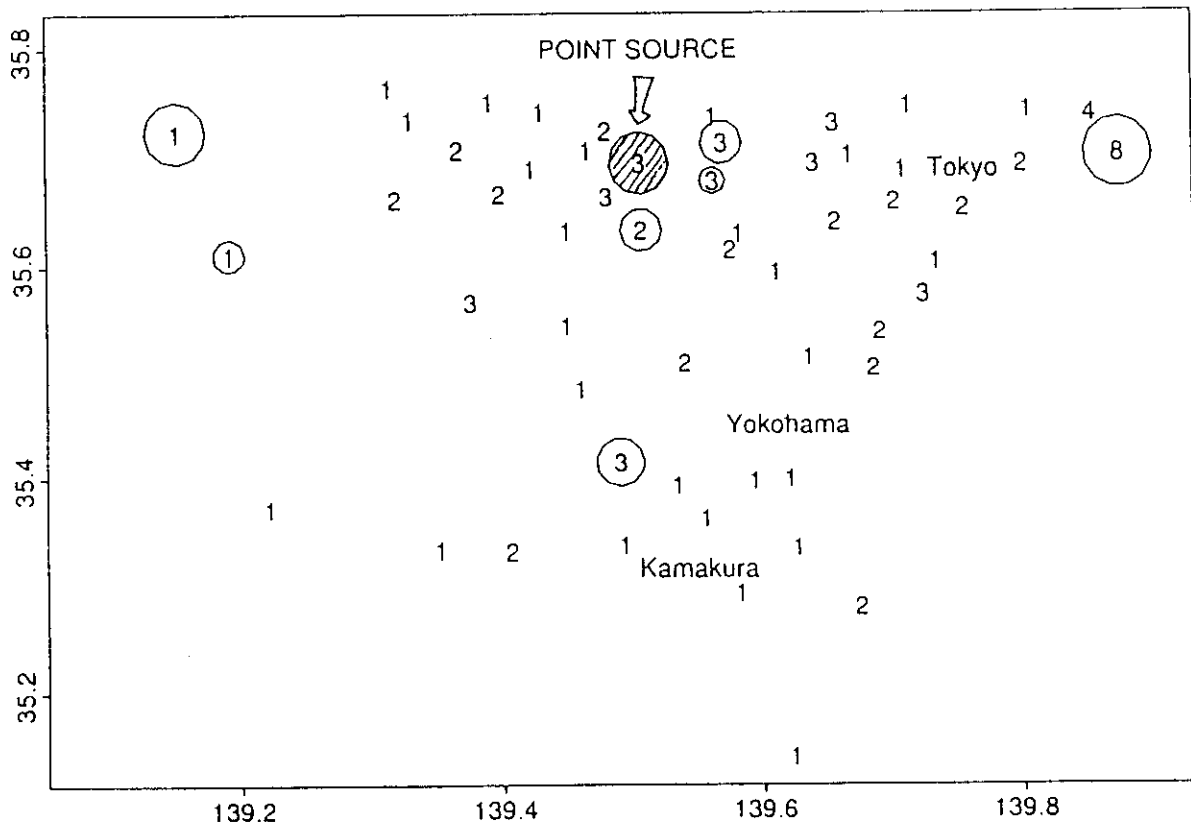


Figure 5 : A random sample from the clinal cluster model illustrated in Figure 3. Circles are drawn only for the regions whose standardized risk ratios are statistically significantly larger than 1 at $\alpha = 0.05$. The radius of circle is set inversely proportional to the tail probability. The number shown in the map indicates the number of observed cases $n_i(> 0)$.

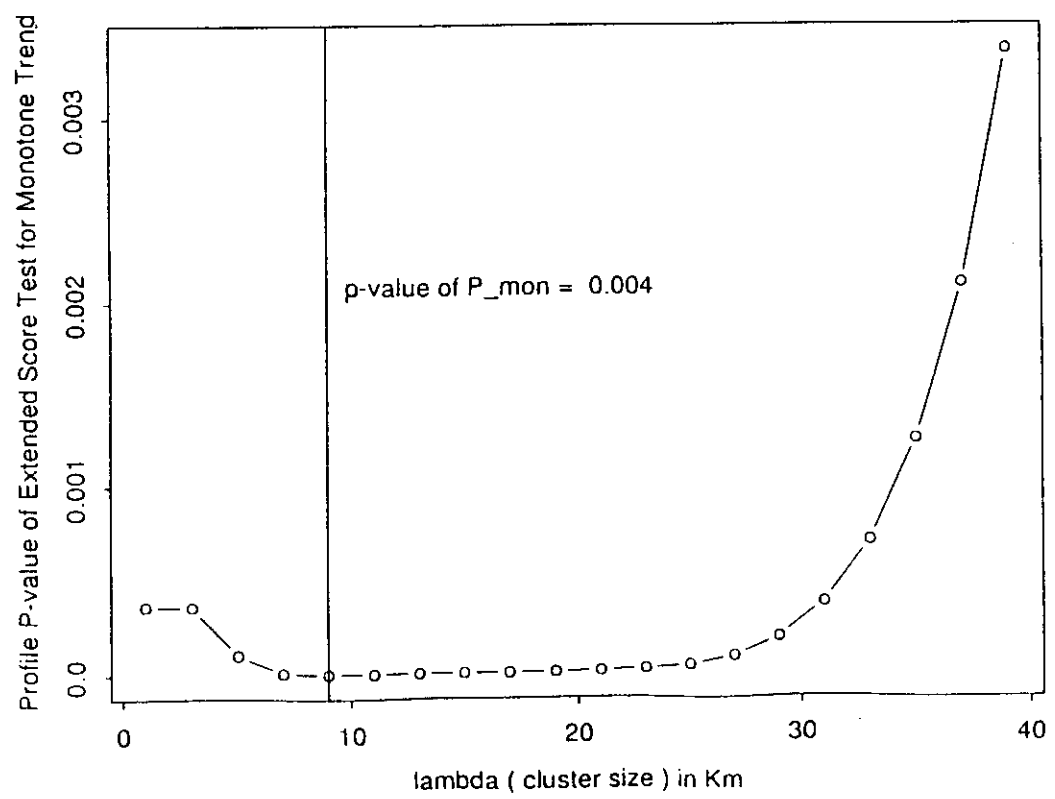


Figure 6 : The profile P-values of C for data illustrated in Figure 4. The vertical line denotes the optimal λ which attains the minimum of the profile P-value. The p -value of P_{mon} is calculated using the null distribution of P_{mon} based on 999 Monte Carlo replicates.

Table 1: Estimated power of tests of nominal α levels of 0.05 and 0.01 from 1000 trials of simulation in the case of one point source.

Cluster type	α level	Test statistics	RR			
			2	3	4	5
Clinal	0.05	Most Powerful ^(a)	33.0	65.2	83.4	94.9
		Extended score ^(b)	28.8	57.5	78.7	92.1
		Stone's MLR	22.2	46.1	67.3	83.9
	0.01	Most Powerful	15.4	38.9	62.0	83.3
		Extended score	11.5	29.8	53.7	75.4
		Stone's MLR	7.3	21.9	45.7	66.4
Hot spot	0.05	Extended score	28.1	54.6	76.0	87.5
		Stone's MLR	13.3	30.0	50.6	67.9
	0.01	Extended score	9.5	28.6	50.8	67.8
		Stone's MLR	3.8	12.7	27.6	47.5

(a): Most powerful test denote Bithell's LRS test (1995) with an *assumed* alternative hypothesis of clustering.

(b): Extended score test for monotone trend.

Table 2: Estimated power of tests of nominal α levels of 0.05 and 0.01 from 1000 trials of simulation in the case of two point sources.

Cluster type	α level	Test statistics	RR			
			2	3	4	5
Clinal	0.05	Most Powerful ^(a)	16.5	35.6	57.3	71.2
		Extended score ^(b)	13.5	28.9	47.8	64.3
		Stone's MLR ^(c)	12.2	24.4	40.5	57.7
	0.01	Most Powerful	5.7	17.0	31.0	50.7
		Extended score	4.8	12.5	25.7	42.7
		Stone's MLR	3.7	8.7	20.8	35.3
Hot spot	0.05	Extended score	13.1	27.5	37.1	51.9
		Stone's MLR	9.6	13.4	25.0	36.7
	0.01	Extended score	2.8	9.1	18.9	26.5
		Stone's MLR	2.0	5.7	10.3	18.0

(a): Most powerful test denote Bithell's LRS test (1995) with an *assumed* alternative hypothesis of clustering.

(b): Extended score test for monotone trend.

(c): Stone's MLR test uses the distance to the *nearest focus*.

Table 3: Risk patterns considered in the power calculation of an epidemiological study currently in progress regarding the excess risk near incinerators.

Relative Risk	Relative Risk Pattern No.									
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
R_1	1.1	1.05	1.00	1.0	1.10	1.05	1.10	1.0	1.2	1.0
R_2	1.0	1.05	1.05	1.1	1.05	1.10	1.10	1.1	1.0	1.2
R_3	1.0	1.00	1.05	1.0	1.00	1.10	1.00	1.1	1.0	1.0

Table 4: A simulated observed and expected number of cases for each of 10 zones under the risk pattern $\{R_1 = 1.0, R_2 = 1.1, R_k = 1.0, k = 3, \dots, 10\}$ and total number of observed cases $n = 10,000$. Also shown are O/E ratio, its Stone's MLE and estimated p -values based on 999 simulations for three tests.

	zones									
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
Observed n_i	96	346	490	722	882	1110	1283	1504	1701	1866
Expected e_i	100	300	500	700	900	1100	1300	1500	1700	1900
O/E ratio	.960	1.153	.980	1.031	.980	1.009	.987	1.003	1.001	.982
Stone's MLE	1.105	1.105	1.010	1.010	.997	.997	.997	.997	.997	.982

- (a): Stone's MLR test : $p = 0.128$,
- (b): Extended score test for monotone trend : $p = 0.117$ ($\lambda^* = 4$),
- (c): Extended score test for both monotone and peak-decline trends: $p = 0.022$ ($s^* = 2, \lambda^* = 40$),

Table 5: Estimated powers (%) of tests of nominal α level of 0.05 from 10,000 trials of simulation to detect the cluster with specified relative risk pattern within 10 km from waste incinerators.

No.	Risk patterns (R_1, R_2, R_3)	Test ^{a)} Test	Total observed number of cases						
			5,000	10,000	20,000	30,000	40,000	50,000	100,000
1	(1.1,1.0,1.0)	T_1	13.1	19.1	29.6	39.8	49.0	57.6	84.9
		T_2	11.5	15.3	23.8	32.1	40.9	48.9	79.1
		S	10.4	15.1	23.5	31.4	39.3	46.8	77.1
2	(1.05,1.05,1.0)	T_1	13.0	18.2	28.4	37.4	46.3	53.9	81.2
		T_2	12.7	17.5	27.8	36.7	45.1	52.9	81.2
		S	11.0	16.0	25.0	33.7	41.6	48.6	77.0
3	(1.0,1.05,1.05)	T_1	13.1	20.3	33.5	46.0	56.3	65.3	90.8
		T_2	16.3	25.3	43.7	58.5	70.3	79.5	97.8
		S	13.3	20.9	34.6	47.5	58.1	67.5	93.0
4	(1.0,1.1,1.0)	T_1	15.2	23.9	39.6	54.4	65.8	74.9	95.8
		T_2	20.2	33.5	58.3	75.0	86.3	92.6	99.9
		S	14.5	24.5	41.3	57.9	70.4	79.4	97.5
5	(1.1,1.05,1.0)	T_1	18.5	28.8	46.5	61.6	72.9	80.9	97.9
		T_2	15.9	25.0	41.6	55.6	66.6	76.3	96.5
		S	15.1	24.5	40.0	54.5	65.0	74.3	95.9
6	(1.05,1.1,1.0)	T_1	20.7	33.8	56.0	72.2	83.8	90.6	99.6
		T_2	22.8	38.0	62.9	79.7	89.4	95.1	99.9
		S	18.7	31.9	54.5	72.1	84.1	90.8	99.6
7	(1.1,1.1,1.0)	T_1	27.4	46.0	71.9	87.2	94.7	97.9	100
		T_2	26.5	45.0	71.9	87.5	94.7	97.9	100
		S	23.7	41.3	67.8	84.7	93.0	97.0	100
8	(1.0,1.1,1.1)	T_1	33.1	55.5	83.1	95.2	98.6	99.6	100
		T_2	42.1	69.4	93.6	99.0	99.9	100	100
		S	33.4	58.5	87.0	97.0	99.3	99.9	100
9	(1.2,1.0,1.0)	T_1	29.6	48.6	75.2	89.6	96.0	98.4	100
		T_2	22.6	41.4	68.5	85.2	93.8	97.4	100
		S	22.0	38.7	65.2	83.1	92.2	96.7	100
10	(1.0,1.2,1.0)	T_1	39.2	64.3	90.8	98.0	99.7	100	100
		T_2	56.5	85.1	99.0	99.9	100	100	100
		S	40.8	69.7	94.3	99.2	99.8	100	100

a) T_1 :=Extended score test for monotone trend;
 T_2 := Extended score test for both monotone and peak-decline trends;
S:=Stone's MLR test.

Table 6: Estimated powers (%) of tests of nominal α level of 0.01 from 10,000 trials of simulation to detect the cluster with specified relative risk pattern within 10 km from waste incinerators.

No.	Risk patterns (R_1, R_2, R_3)	Test ^{a)}	Total observed number of cases						
			5,000	10,000	20,000	30,000	40,000	50,000	100,000
1	(1.1,1.0,1.0)	T_1	3.7	6.3	12.3	19.5	25.0	33.5	66.4
		T_2	2.9	4.5	8.8	14.4	19.9	26.5	58.3
		S	2.7	4.3	8.5	12.8	18.0	23.7	53.8
2	(1.05,1.05,1.0)	T_1	3.6	5.8	11.4	17.3	22.9	29.7	60.6
		T_2	3.4	5.4	10.7	16.8	22.1	28.7	60.4
		S	2.9	4.7	9.0	14.1	19.2	24.9	55.0
3	(1.0,1.05,1.05)	T_1	3.8	6.7	14.6	22.9	31.0	40.6	76.8
		T_2	4.9	9.3	20.8	33.6	45.7	57.2	91.6
		S	3.8	6.6	14.6	23.2	33.5	43.2	80.2
4	(1.0,1.1,1.0)	T_1	4.6	8.6	18.8	30.3	41.9	51.9	87.1
		T_2	7.0	14.8	34.4	53.9	68.1	80.4	99.0
		S	4.6	8.4	19.4	32.0	46.3	58.5	91.1
5	(1.1,1.05,1.0)	T_1	5.8	11.5	23.9	37.0	47.7	60.1	91.2
		T_2	4.9	9.1	19.2	31.3	42.0	53.6	88.3
		S	4.8	8.4	17.1	28.7	39.0	50.3	86.1
6	(1.05,1.1,1.0)	T_1	7.0	14.4	31.7	49.4	63.1	75.3	98.0
		T_2	7.9	17.3	38.8	58.9	72.9	84.2	99.3
		S	6.1	12.7	29.9	48.4	63.3	76.5	98.2
7	(1.1,1.1,1.0)	T_1	10.9	23.0	47.8	70.0	83.1	91.6	99.9
		T_2	10.1	19.3	48.1	70.1	83.1	91.9	99.9
		S	8.4	18.8	42.3	64.7	80.0	89.9	99.8
8	(1.0,1.1,1.1)	T_1	13.5	30.3	62.9	84.8	93.6	98.0	100
		T_2	19.3	44.7	82.1	95.6	99.0	99.9	100
		S	13.7	32.9	69.4	89.3	96.7	99.2	100
9	(1.2,1.0,1.0)	T_1	11.7	26.0	52.8	75.4	86.8	93.9	100
		T_2	8.7	20.3	44.9	68.2	82.8	91.3	99.9
		S	7.8	17.5	40.8	62.4	78.6	88.6	99.7
10	(1.0,1.2,1.0)	T_1	3.9	17.3	39.9	75.5	92.1	98.0	99.6
		T_2	4.6	23.4	53.0	88.5	98.0	99.7	100
		S	3.9	18.5	44.7	83.2	96.5	99.3	99.9

a) T_1 :=Extended score test for monotone trend;

T_2 := Extended score test for both monotone and peak-decline trends;

S:=Stone's MLR test.

ごみ焼却施設由来のダイオキシン類測定調査に関する研究 (生活安全総合研究事業) 分担研究報告書

研究者 国包章一 国立公衆衛生院水道工学部長
研究者 田中勝 岡山大環境理工学部教授
研究者 内山巖雄 国立公衆衛生院労働衛生学部長
研究者 丹後俊郎 国立公衆衛生院附属図書館長

研究要旨： ゴミ焼却施設の煙突から排出される粉塵による「過去から現在まで」の曝露状況を評価するため、全国73施設の焼却施設の中から十数施設を対象候補施設として選定し、それぞれの施設周辺のダイオキシン類排出状況、排出負荷量、地形、土地利用状況、気象観測所からの距離などを調査した。その中から発生源由来の曝露状況を評価する上で適切な数施設を選んで周辺土壌の汚染状況を調査する予定であったが、予算の制約により今年度は1施設に絞り、その周辺20数箇所を選択し土壌サンプルを採取した。測定・分析には時間がかかるため周辺土壌のダイオキシン類濃度は来年度前半に判明する予定である。

A. 研究目的

ごみ焼却施設から排出されるダイオキシンによる健康影響と、施設から住宅までの距離との関係の把握に資するため、本調査では、全国73施設の焼却施設の中から十数施設を対象候補施設として選定し、それぞれのごみ焼却施設周辺の土壌中ダイオキシン類濃度を測定し、施設からの距離とダイオキシンの関係を調査することとする。

B. 研究方法

以下の三つの段階を踏んで検討する。

1) 調査対象地域の選定の検討

選定に当たっては以下のような条件を考慮する。

- a. 土壌中ダイオキシン類濃度と、発生源からの距離との関係を見るためには、ある程度高い土壌中濃度であることが望ましい。このため、排出量が多いとされる施設を選定する。
- b. 急斜面の山などが施設近くにある場合、土壌試料の採取とその評価が難しい。このため、施設周辺はなるべく平坦な地形であることが望ましい。
- c. 風向・風速などの気象データとも関連づけて考察するため、近傍に気象測定点があることが望ましい。

2) 土壌採取地点の選定とサンプリング法の検討

3) ダイオキシン類の測定分析法の検討

C. 研究結果

1. 調査対象地域の選定

1. 1 廃棄物焼却施設の選定

まず、高濃度のダイオキシン類の排出が確認されている一般廃棄物焼却施設を選定し、対象地域の候補とした。厚生省より公表されている廃棄物焼却施設排ガス中のダイオキシン類濃度データを参考に、候補となる9カ所の廃棄物焼却施設が選定された。表3.1に候補の施設を示す。なお、St6とSt8については現在廃止されており、稼働していない。廃棄物焼却施設は、それぞれ、複数の焼却炉をもっており、処理能力や炉の形式も異なっている場合が多い。各焼却施設の焼却炉別の諸元を表3.2に示す。

1. 2 ダイオキシン類排出の状況

(1)濃度

平成8年度より厚生省から発表されている焼却施設の排ガス中ダイオキシン類濃度を表3.3に示す。各候補廃棄物焼却施設とも、平成8年度にはいずれも100pg-TEQ/m³以上の高い濃度であったが、平成9年度以降は、ダイオキシン類排出削減の対策を行った結果、減少している。対策としては、①維持管理の改善(例：ごみ質の均一化、定量供給、燃焼管理の徹底)、②施設改造、等が行われた。

これらを考慮して、表3.7に各廃棄物焼却施設の調査の適合性を検討した。

1. 6 総括

排出量、地形・土地利用、気象観測所の面から見て、調査対象廃棄物焼却施設として、St1、St2、St3、St4の評価が高かった。このうちSt1、St2、St3の現地踏査を行い、詳細に地点の特性を判断して調査対象廃棄物焼却施設を決定することとした。候補施設として絞り込まれたSt1、St2、St3について、実際に現地を踏査して、地域の状況を調査した(図3.1-3.3参照)。この3地点のうち1地点を選び、調査対象地域とした。

2. 土壌採取地点の選定とサンプリング法の検討

採取地点は、廃棄物焼却施設を中心として、それぞれ0.5km、2km、5km離れた点、合計20地点を地図上にプロットし、土壌試料採取地点とした(図3.4参考)。地図上にプロットされた土壌試料採取地点を実際に現地踏査し、土壌の採取が可能な場所が近傍にあるかどうか踏査した。学校のグラウンド、公園等の、土壌の入れ替えや更新が行われていないところを選定した。農薬などの影響を受けそうな畑地や庭などはなるべく避け、また、高い建物が近くにあったり、木や草が生い茂っているところ等も避けた。

サンプリング・分析は、基本的に、環境庁の「ダイオキシン類に係る土壌調査マニュアル」に従った。サンプリングは、原則として5地点混合方式により行う。すなわち、1ヶ所につき、中心1地点及び周辺の4方位の5 m~10 m離れた1地点の合計で5地点で試料を採取する(図3.5参照)。

なお、採取地点の状況により、5地点の間隔が十分にとれない場合は、間隔を小さくして5地点から採取する。

3. ダイオキシン類の測定分析法の検討

ダイオキシン類及び含水率、強熱減量の測定は、『ダイオキシン類に係る土壌調査測定マニュアル』⁹⁾に従い実施した。詳細を以下に示す。

分析対象物質は、表3.8に示すポリ塩化ジベンゾ-パラ-ジオキシン(PCDDs)9化合物、ポリ塩化ジベンゾフラン(PCDFs)11化合物、計20化合物の濃度および各同族体の総和濃度とし、さらに表3.9に示すコプラナーPCB

(Co-PCBs)12化合物も対象とした。

また、これらの濃度に毒性等価係数(以下TEF)を乗じた毒性等量(以下TEQ)を求めた。計算に用いたダイオキシン類のTEFを表3.10と表3.11に示す。ダイオキシン類は、前処理・クリーンアップを行い、高分解能ガスクロマトグラフ/二重収束型高分解能質量分析計(HRGC/HRMS)を用いて定量した。ダイオキシン類の分析フローと操作状況を図3.6、表3.12に示した。

D. 考察

ごみ焼却施設が排出されたダイオキシン類が大气から降下物として周辺土壌へ堆積される実態を調査する場合、該当するごみ焼却施設だけが主要な固定発生源であり、他の発生源の影響がほとんどない地域で、かつ平坦な土地であることが望ましい。しかし、多くの施設は山中にあったり、海辺にあったり、周辺地域に工場があったり、起伏の多い土地であったりと、現実には理想的な調査環境は少ない。その中から、選定条件を満足した数施設から3施設に絞り込み、そのうち1施設周辺を調査することができた。測定・分析には時間がかかり来年度前半に結果が判明する予定である。しかし、1施設の測定・分析値では施設周辺の汚染実態の違いが観測できないため、全国の73施設の周辺における汚染実態の推定値としては極めて不十分であり、選定条件を満足しつつ他に土地環境における調査も必要であると考えている。それは予算が許す限り来年度に実施したい。

E. 結論

全国のごみ焼却施設の中から発生源由来のダイオキシン類濃度と発生源からの距離との関係を推定するのに最適と思われる施設を選定し、その1カ所について合計20カ所の土壌試料を採取した。測定・分析には時間がかかるため周辺土壌のダイオキシン類濃度は来年度に判明する予定である。

F. 研究発表

なし

(協力研究者)

池口 孝(国立公衆衛生院廃棄物工学部室長)

(2) 排出負荷量

厚生省ホームページのデータには、試料がサンプリングされた際のガス排出量等の運転状況が記載されていないため、ダイオキシン類がどの程度排出されたのか（排出負荷量）を算定することは出来ない。このため、ダイオキシン類濃度に焼却炉のごみ処理能力（排出量に比例）を乗じることによって、負荷量的な意味をもつ数値（排出負荷量）を算出した。表3.4に示す。平成8年度が各焼却施設とも高い値となっている。平成8年度のSt6では、排ガス中のダイオキシン類濃度は140pg-TEQ/m³と高かったものの、処理能力が5t/日と小さいため、他の焼却施設に比べて低い値となっている。一番高かったのは平成8年度のSt8で、69,000 pg-TEQ・t/m³・日であったが、その年を最後に廃止されている。また、平成11年度では、St2が9,800 pg-TEQ・t/m³・日であり、一番高かった。

1. 3 周辺の地形、土地利用

焼却施設周辺の地形等の状況によっては、煙突から排出された排ガスの移流拡散をトレースするのが困難であり、ダイオキシン類が土壌に移行する過程を把握することが難しくなる。また、調査実施上も問題がある。土地利用についても、土壌採取がしやすい地点を選ぶ必要がある。表3.5に各廃棄物焼却施設の地形、土地利用状況をまとめた。地形を見ると、以下に示す3つのタイプに分かれることがわかる。①平野型：平野内に位置し、起伏がほとんど見られない（St1、St2、St4）②中間型：平野近くの山の中腹に位置するなど、平野型、山地型の両方の特性を持つ（St3、St5、St9）③山地型：山地内に位置し、起伏が激しい（St6、St7、St8）。また、土地利用では、平野型では周辺に田や住宅地が広がっており、山地型では針葉樹林や広葉樹林などの林が広がっている場合が多い。

1. 4 気象観測所の位置

廃棄物焼却施設と周辺の土壌汚染を検討する際には、その地域の気候条件も大きな要因となる。特に重要なのが風向、風速であり、その地域の卓越する風向きにより、煙突の周辺の土壌濃度は場所により、変わってくる。現地調査の期間中には、調査地点で気象条件（風向、風速、気温、湿度）を毎時測定するが、既往のデータについては、近

傍での気象観測所のデータが必要となる。

気象庁が設置している気象観測所（アメダス）の毎時データは、パソコン上で即時入手することが出来、解析に利用できる。廃棄物焼却施設の近傍の気象観測所を表3.6に示す。なお、表中のアメダス地点での測定項目は降水量、気温、風向、風速及び日照時間であり、毎時24時間の自動測定を行っている。St1が一番近く2.8km、一番遠いSt6では17.8kmである。あまり遠くなると、調査地点の気象と相違していることが考えられるため、望ましくない。

1. 5 候補施設の評価

以上、各候補廃棄物焼却施設について資料調査を行った。これらの結果より、調査対象となる廃棄物焼却施設の絞り込みを行う。

(1) ダイオキシン類の排出量

発生源からの距離と土壌汚染状況を把握するためには、ある程度の土壌汚染がなされていないと、傾向がつかみにくい。そのため、より多くの排出量が見込まれる廃棄物焼却施設が望ましい。St6は、ガス中のダイオキシン類濃度は高かったものの、排出量としてはそれほど多くないと考えられ、不適と判断される。また、St8については平成8年度の排出量は高いものであることが考えられるが、平成9年以降廃止されており、4カ年経っていることを考慮すると、不適と判断される。同様に、対策により排出量が大幅に減少していると考えられるSt1やSt4、St5、St9も、あまり好ましくないものと考えられる。

(2) 周辺の地形・土地利用

起伏の大きい山地型の廃棄物焼却施設は、地形によるガス分布の偏りが考えられるため、好ましくない。そういった意味から平野型の廃棄物焼却施設が好ましいが、別の工場や畑からの農薬など、廃棄物焼却施設以外の発生源からの影響を考慮しなければならない場合もあり、注意が必要である。これらを考慮すると、まず、勾配が著しく激しいSt6、St7、St8は好ましくないと考えられる。また、近くに工場団地があるSt1、St2、果樹園が広がっているSt5は地点選定の際に考慮する必要がある。

(3) 気象観測所の位置

気象観測所はなるべく調査対象地域の近傍にあるのが好ましい。このため、St6、St8は、遠すぎるため好ましくないと考えられる。

表 3.1 候補ごみ焼却施設

施設 No.	都道府県	施設名	住所
St1	群馬県	館林市館林清掃センター	群馬県館林市苗木町2447-20
St2	千葉県	八千代市清掃センター	千葉県八千代市上高野1384-7
St3	千葉県	鴨川市清掃センター	千葉県鴨川市北小町2118
St4	新潟県	三島郡清掃センター組合 ゴミ処理施設	新潟県三島郡寺泊町田頭2359-3
St5	山梨県	山梨市環境センターごみ焼却場	山梨県山梨市南2160
St6	山梨県	小菅丹波山衛生組合 廃棄物焼却炉	山梨県北都留郡丹波山村890
St7	長野県	諏訪市清掃センター	長野県諏訪市上諏訪1338-111
St8	兵庫県	宍粟郡広域行政事務組合 宍粟環境美化センター	兵庫県宍粟郡千草町いわのべ177-157
St9	福岡県	甘木市総合衛生センター	福岡県甘木市堤4-6

表 3.2 候補ごみ焼却施設の諸元

施設 NO.	都道府県	市町村・組合名	施設名	炉型式	処理能力 (t/日)	集じん器	使用開始
St1	群馬県	館林市	館林清掃センター1号炉	准連続炉	50	BF	1986・7
			館林清掃センター2号炉	准連続炉	50	BF	1986・7
St2	千葉県	八千代市	八千代市清掃センター 1号炉	全連続炉	60	EP	1989・4
			八千代市清掃センター 2号炉	全連続炉	60	EP	1989・4
			八千代市清掃センター 3号炉	全連続炉	100	EP	1981・4
St3	千葉県	鴨川市	鴨川市清掃センター 1号炉	准連続炉	31.5	EP	1986・4
			鴨川市清掃センター 2号炉	准連続炉	31.5	EP	1986・4
St4	新潟県	三島郡清掃センター組合	ごみ処理施設 1号炉	准連続炉	30	BF	1991・4
			ごみ処理施設 2号炉	准連続炉	30	BF	1991・4
St5	山梨県	山梨市	山梨市環境センターごみ焼却場	機械化バッチ炉	35	EP	1985・4
St6	山梨県	小菅丹波山衛生組合	廃棄物焼却炉	機械化バッチ炉	5	MC	1980・5
St7	長野県	諏訪市	諏訪市清掃センター 1号炉	准連続炉	40	EP	1987・4
			諏訪市清掃センター 2号炉	准連続炉	40	EP	1987・4
			諏訪市清掃センター 1号炉	機械化バッチ炉	25	EP	1979・3
			諏訪市清掃センター 2号炉	機械化バッチ炉	25	EP	1979・3
St8	兵庫県	宍粟郡広域行政事務組合	宍粟環境美化センター	准連続炉	70	EP	1990・4
St9	福岡県	甘木市	甘木市総合衛生センター	准連続炉	30×2	EP	1981・4

表 3.3 候補ごみ焼却施設の排ガス中ダイオキシン類濃度の経年変化

(単位: pg-TEQ/m³)

施設NO.	都道府県	市町村・組合名	施設名	平成8年度	平成9年度	平成10年度	平成11年度
St1	群馬県	館林市	館林清掃センター1号炉	124.5	0.8	0.28	未測定
			館林清掃センター2号炉			0.23	未測定
St2	千葉県	八千代市	八千代市清掃センター 1号炉	124	9.4	54	140
			八千代市清掃センター 2号炉			24	12
			八千代市清掃センター 3号炉	37	未測定	11	6.6
St3	千葉県	鴨川市	鴨川市清掃センター 1号炉	256.31	23	11	49
			鴨川市清掃センター 2号炉			20	100
St4	新潟県	三島郡清掃センター組合	ごみ処理施設 1号炉	290	5.3	0.63	9
			ごみ処理施設 2号炉			0.73	0.17
St5	山梨県	山梨市	山梨市環境センターごみ焼却場	120	13	未測定	25
St6	山梨県	小菅丹波山衛生組合	廃棄物焼却炉	140	廃止	廃止	廃止
St7	長野県	諏訪市	諏訪市清掃センター 1号炉	130	1.6	0.71	1.1
			諏訪市清掃センター 2号炉			0.57	0.62
			諏訪市清掃センター 1号炉	未測定	未測定	未測定	41
			諏訪市清掃センター 2号炉	未測定	未測定	未測定	43
St8	兵庫県	宍粟郡広域行政事務組合	宍粟環境美化センター	990	廃止	廃止	廃止
St9	福岡県	甘木市	甘木市総合衛生センター	140	12	2.7	未測定

表 3.4 ダイオキシン類濃度×処理能力の算定結果

(単位: pg-TEQ・t/m³・日)

施設 No.	都道府県	施設名	平成8年度	平成9年度	平成10年度	平成11年度
St1	群馬県	館林市館林清掃センター	12,000	80	26	-
St2	千葉県	八千代市清掃センター	19,000	1,100	5,800	9,800
St3	千葉県	鴨川市清掃センター	16,000	1,400	980	4,700
St4	新潟県	三島郡清掃センター組合 ごみ処理施設	17,000	320	41	280
St5	山梨県	山梨市環境センターごみ焼却場	4,200	460		880
St6	山梨県	小菅丹波山衛生組合 廃棄物焼却炉	700	廃止		
St7	長野県	諏訪市清掃センター	10,000	130	51	2,200
St8	兵庫県	宍粟郡広域行政事務組合 宍粟環境美化センター	69,000	廃止		
St9	福岡県	甘木市総合衛生センター	8,400	720	162	

表 3.5 ごみ焼却施設周辺の地形、土地利用状況

施設 No.	都道府県	施設名	地形状況	土地利用状況
St1	群馬県	館林市館林清掃センター	利根川の中流部の平野に位置し、平坦な地形である。周囲5kmに大きな起伏は見られない。	館林市中心部に近いが、周辺は田と住宅地が混在している。北側には工場が多く、住宅も多い。南側は田が中心である。
St2	千葉県	八千代市清掃センター	印旛沼西岸近くの平野部に位置し、ごく平坦な地形である。周囲5kmに大きな起伏はみられない	東京湾沿いの市街地(船橋市、習志野市)からは少し離れており、畑、針葉樹林、住宅地が混在する。北側にはゴルフ場があり、南側には工業団地、京成本線沿いの住宅地がある。
St3	千葉県	鴨川市清掃センター	南房総の房総丘陵を流れる加茂川沿いに位置する。加茂川の東流しているため、東西方向では起伏が少ないが、南北方向では250m程度の起伏がある。	加茂川沿いには田に住宅地が点在し、それより山側になると針葉樹林が存在する。
St4	新潟県	三島郡清掃センター組合 ゴミ処理施設	信濃川沿いの越後平野内に位置する。西側に丘陵部があるが、南北方向ではほぼ平坦である。	北側に若干の住宅地があるほかは大部分を田が占めている。また、西側の丘陵部は針葉樹林として利用されている。
St5	山梨県	山梨市環境センターごみ焼却場	山梨市北部の国道140号沿いに位置する。甲府盆地の北東部で、北部には山が迫っている。縦断図でも北側と西側に大きな山があることがみてとれる。	甲府盆地に多い果樹園が、周囲に広がっており、住宅地が点在している。北側と西側の山では針葉樹や広葉樹が植林されている。
St6	山梨県	小菅丹波山衛生組合 廃棄物焼却炉	東京との県境近くの秩父山地に位置し、勾配も激しく、周囲5kmでも、処理場の位置している標高900mを中心に、800m以上の標高差がある	山地であり、道路沿いに住宅が点在しているほかは、ほとんど針葉樹と二次林として利用されている。
St7	長野県	諏訪市清掃センター	諏訪湖の東岸の山地帯に位置している。諏訪湖のある、西側に向かって高度を下げていくような地形である。北東では霧ヶ峰など2000m近い標高となっている。	広葉樹林、針葉樹林等の林が大部分を占めるが、西側の諏訪湖岸には住宅地が広がっている。
St8	兵庫県	宍粟郡広域行政事務組合 宍粟環境美化センター	兵庫県の丹波山地に位置し、南北、東西ともに起伏が激しい。特に北側に高い山が控え、処理場の標高が650m程度であるのに対し、1500m程度の高度を示している。	住宅地は点在しているだけで、大部分は針葉樹林と広葉樹林である。
St9	福岡県	甘木市総合衛生センター	標高315mの太平山の中腹南側に位置する。太平山は北側に向かって高度を下げ、標高30m程度の平野が広がっている。西側に2kmもいけば甘木の市街地がある	太平山側は針葉樹林として利用されており、平野部は市街地及び田として利用されている。

表 3.6 候補ごみ焼却施設近傍の気象観測所

施設 No.	都道府県	施設名	近傍アメダス地点名	距離 (km)	対象施設からの方角
St1	群馬県	館林市館林清掃センター	館林	2.8	東
St2	千葉県	八千代市清掃センター	佐倉	6.8	東南東
St3	千葉県	鴨川市清掃センター	鴨川	6.2	東南東
St4	新潟県	三島郡清掃センター組合 ゴミ処理施設	三条	5.7	北西
St5	山梨県	山梨市環境センターごみ焼却場	勝沼	4.0	南東
St6	山梨県	小菅丹波山衛生組合 廃棄物焼却炉	大月	17.8	南南東
St7	長野県	諏訪市清掃センター	諏訪	4.0	南西
St8	兵庫県	宍粟郡広域行政事務組合 宍粟環境美化センター	一宮	9.8	南東
St9	福岡県	甘木市総合衛生センター	甘木	2.5	南東

表 3.7 現地調査の適合性

施設 No.	都道府県	施設名	排出量	地形・土地利用	気象観測所の位置	総合評価 備考
St1	群馬県	館林市館林清掃センター	△	○	○	○ 周辺工場、農業の影響に注意
St2	千葉県	八千代市清掃センター	○	○	△	○
St3	千葉県	鴨川市清掃センター	○	△	△	○ 地形に注意
St4	新潟県	三島郡清掃センター組合 ゴミ処理施設	△	○	△	○ 排出量注意
St5	山梨県	山梨市環境センターごみ焼却場	△	△	○	△
St6	山梨県	小菅丹波山衛生組合 廃棄物焼却炉	×	×	×	×
St7	長野県	諏訪市清掃センター	○	×	○	△ 地形注意
St8	兵庫県	宍粟郡広域行政事務組合 宍粟環境美化センター	×	×	△	×
St9	福岡県	甘木市総合衛生センター	△	△	○	△

表 3.8 分析対象物質一覧 (PCDDs 及び PCDFs).

塩素数	ポリ塩化-バラ-ジオキシン (PCDDs)	ポリ塩化ジベンゾフラン (PCDFs)
4	1,3,6,8-TeCDD	1,2,7,8-TeCDF
	1,3,7,9-TeCDD	2,3,7,8-TeCDF
	2,3,7,8-TeCDD	TeCDFs の総和
	TeCDDs の総和	
5	1,2,3,7,8-PeCDD	1,2,3,7,8-PeCDF
	PeCDDs の総和	2,3,4,7,8-PeCDF
		PeCDFs の総和
6	1,2,3,4,7,8-HxCDD	1,2,3,4,7,8-HxCDF
	1,2,3,6,7,8-HxCDD	1,2,3,6,7,8-HxCDF
	1,2,3,7,8,9-HxCDD	1,2,3,7,8,9-HxCDF
	HxCDDs の総和	2,3,4,6,7,8-HxCDF
		HxCDFs の総和
7	1,2,3,4,6,7,8-PeCDD	1,2,3,4,6,7,8-HpCDF
	PeCDDs の総和	1,2,3,4,7,8,9-HpCDF
		HpCDFs の総和
8	1,2,3,4,6,7,8,9-OCDD	1,2,3,4,6,7,8,9-OCDF

表 3.9 分析対象物質一覧 (Co - PCBs).

コプラナーPCB (Co-PCBs)	
non-ortho PCBs	3,3',4,4'-TeCB (#77)
	3,4,4',5-TeCB (#81)
	3,3',4,4',5-PeCB (#126)
	3,3',4,4',5,5'-HxCB (#169)
mono-ortho PCBs	2,3,3',4,4'-PeCB (#105)
	2,3,4,4',5-PeCB (#114)
	2,3',4,4',5-PeCB (#118)
	2',3,4,4',5-PeCB (#123)
	2,3,3',4,4',5-HxCB (#156)
	2,3,3',4,4',5'-HxCB (#157)
	2,3',4,4',5,5'-HxCB (#167)
	2,3,3',4,4',5,5'-HpCB (#189)

表 3.10 PCDDs 及び PCDFs の毒性等価係数 (WHO/IPCS-TEF (1998)).

ポリ塩化-パラ-ジオキシン (PCDDs)	TEF	ポリ塩化ジベンゾフラン (PCDFs)	TEF
2,3,7,8-TeCDD	1	2,3,7,8-TeCDF	0.1
1,2,3,7,8-PeCDD	1	1,2,3,7,8-PeCDF	0.05
		2,3,4,7,8-PeCDF	0.5
1,2,3,4,7,8-HxCDD	0.1	1,2,3,4,7,8-HxCDF	0.1
1,2,3,6,7,8-HxCDD	0.1	1,2,3,6,7,8-HxCDF	0.1
1,2,3,7,8,9-HxCDD	0.1	1,2,3,7,8,9-HxCDF	0.1
		2,3,4,6,7,8-HxCDF	0.1
1,2,3,4,6,7,8-PeCDD	0.01	1,2,3,4,6,7,8-HpCDF	0.01
		1,2,3,4,7,8,9-HpCDF	0.01
1,2,3,4,6,7,8,9-OCDD	0.0001	1,2,3,4,6,7,8,9-OCDF	0.0001
その他の PCDDs	0	その他の PCDFs	0

表 3.11 Co-PCBs の毒性等価係数 (WHO/IPCS-TEF (1998)).

コプラナー-PCB (Co-PCBs)	TEF
3,3',4,4'-TeCB (#77)	0.0001
3,4,4',5'-TeCB (#81)	0.0001
3,3',4,4',5'-PeCB (#126)	0.1
3,3',4,4',5,5'-HxCB (#169)	0.01
2,3,3',4,4'-PeCB (#105)	0.0001
2,3,4,4',5'-PeCB (#114)	0.0005
2,3',4,4',5'-PeCB (#118)	0.0001
2',3,4,4',5'-PeCB (#123)	0.0001
2,3,3',4,4',5'-HxCB (#156)	0.0005
2,3,3',4,4',5'-HxCB (#157)	0.0005
2,3',4,4',5,5'-HxCB (#167)	0.00001
2,3,3',4,4',5,5'-HpCB (#189)	0.0001

表 3.12 HRGC/HRMS の操作条件.

ガスクロマトグラフ (6890 series GC system, Hewlett Packard社製)				
試料注入口温度 : 300°C				
試料注入方法 : スプリットレス (6890 series injector 使用, Hewlett Packard社製)				
試料注入量 : 1.5 µl				
カラム恒温槽温度 :				
TeCDDs~OCDD, TeCDFs~OCDF ;				
130°C(1 min.)--(15°C/min.)-->210°C(0 min.)--(5°C/min.)-->320°C(hold)				
Co-PCBs ;				
130°C(1 min.)--(20°C/min.)-->220°C(0 min.)--(5°C/min.)-->320°C(hold)				
分離カラム : TeCDDs~OCDD, TeCDFs~OCDF ; 溶解シカキビ [®] カラム, BPX5(SGE 社製)				
PeCDFs,HxCDFs ; 溶解シカキビ [®] カラム, RH-17(INVENTX 社製)				
Co-PCBs ; 溶解シカキビ [®] カラム, HT8(SGE 社製)				
質量分析計 (Micromass社製, AutoSpec-Ultima)				
測定方法 : SIM				
インターフェース温度 : 300°C				
イオン源温度 : 320°C				
トラップカレント : 500 µA				
エレクトロンエネルギー : 30~40eV				
分解能 : 10,000以上				
加速電圧 : 約8,000V				
質量数補正 : ロックマス方式 (PFK使用)				
測定質量数				
PCDDs	TeCDDs	319.8965,321.8936	¹³ C-TeCDDs	331.9368,333.9339
	PeCDDs	353.8576,355.8546,357.8516	¹³ C-PeCDDs	367.8949,369.8919
	HxCDDs	389.8157,391.8127	¹³ C-HxCDDs	401.8559,403.8530
	HpCDDs	423.7766,425.7737	¹³ C-HpCDDs	435.8169,437.8140
	OCDD	457.7377,459.7348	¹³ C-OCDD	469.7779,471.7550
PCDFs	TeCDFs	303.9016,305.8987	¹³ C-TeCDFs	315.9419,317.9389
	PeCDFs	339.8597,341.8568	¹³ C-PeCDFs	351.9000,353.8970
	HxCDFs	373.8207,375.8178	¹³ C-HxCDFs	385.8610,387.8580
	HpCDFs	407.7818,409.7789	¹³ C-HpCDFs	419.8220,421.8191
	OCDF	441.7428,443.7399	¹³ C-OCDF	453.7830,455.7801
Co-PCBs	TeCBs	289.9224,291.9194	¹³ C-TeCBs	301.9626,303.9597
	PeCBs	325.8804,327.8775	¹³ C-PeCBs	337.9207,339.9177
	HxCBs	359.8415,361.8385	¹³ C-HxCBs	371.8817,373.8788
	HpCBs	393.8025,395.7995	¹³ C-HpCBs	405.8428,407.8398

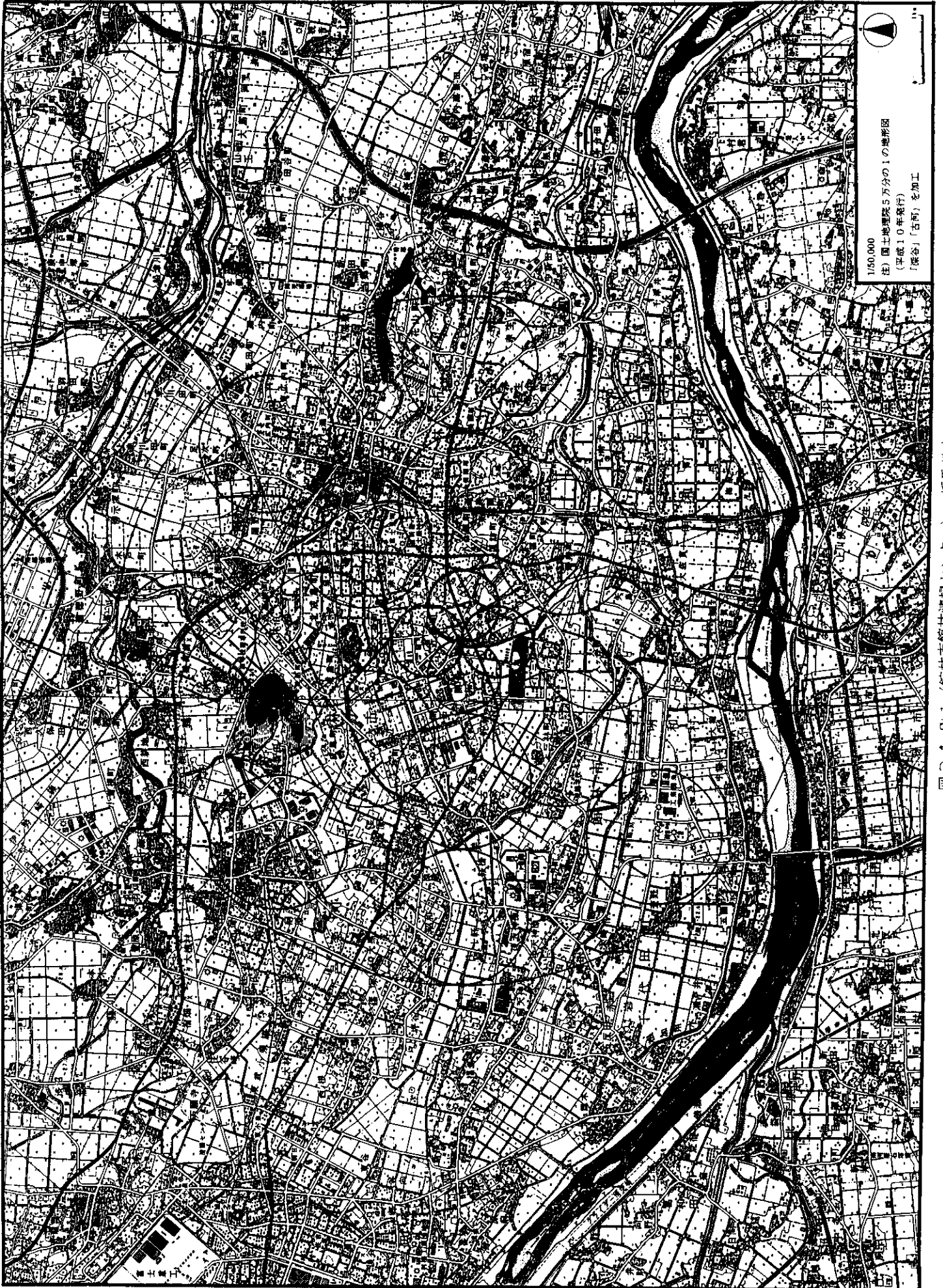


図 3.1 St.1 (館林市館林清掃センター) の採取地点