

図 2.2 調査結果図

表 2.1 平成 16 年度調査地点一覧

地点番号	距離(m)	地点	採取地点
1	1,400	東北東	二ツ掛ため池横
2	4,350	東北東	矢口神社
3	3,550	東南東	出崎森神社
4	4,400	南南東	薬師堂
5	5,250	南南西	横浜公園
6	4,750	西南西	宇品第一公園
7	4,900	北西	早稲田神社
8	4,650	北	上温品小学校
9	1,900	北北西	石井城公園
10	1,500	北西	本明公園
11	2,000	西	大州公園
12	4,300	西	比治山公園展望台
13	450	北	第一児童遊園地
14	400	西	柳ヶ丘公園
15	550	南南西	青崎東上児童公園
16	850	西南西	空城山公園
17	1,450	南南西	堀越集会場横の公園
18	1,850	南南東	港町公園
19	1,000	南東	岩滝神社
20	2050	西南西	ちびっこ広場

表 2.2 平成 16 年度ダイオキシン類測定結果

	PCDDs+PCDFs		Co-PCBs		PCDDs+PCDFs+
	実測濃度 (pg-TEQ/g)	毒性等量 (pg/g)	実測濃度 (pg-TEQ/g)	毒性等量 (pg/g)	Co-PCBs
					毒性等量 (pg-TEQ/g)
st.1	26000	32	320	0.70	33
st.2	2800	2.3	96	0.41	2.7
st.3	840	7.5	250	0.97	8.5
st.4	550	0.24	210	0.36	0.61
st.5	650	1.2	60	0.20	1.4
st.6	780	11	220	0.72	12
st.7	14000	3.3	130	0.32	3.6
st.8	1200	9.8	830	1.6	11
st.9	470	3.0	300	0.72	3.7
st.10	600	13	110	0.45	13
st.11	1900	33	220000	110	140
st.12	1000	5.7	410	1.0	6.7
st.13	790	2.7	150	0.21	2.9
st.14	1800	15	97	0.75	16
st.15	500	4.4	76	0.33	4.8
st.16	1400	17	120	0.58	18
st.17	710	8.9	3500	2.8	12
st.18	850	9.7	170	0.66	10
st.19	1100	6.2	88	0.45	6.6
st.20	710	4.3	110	0.19	4.5

注：実測濃度が N.D. の場合、実測濃度を 0 として計算した。

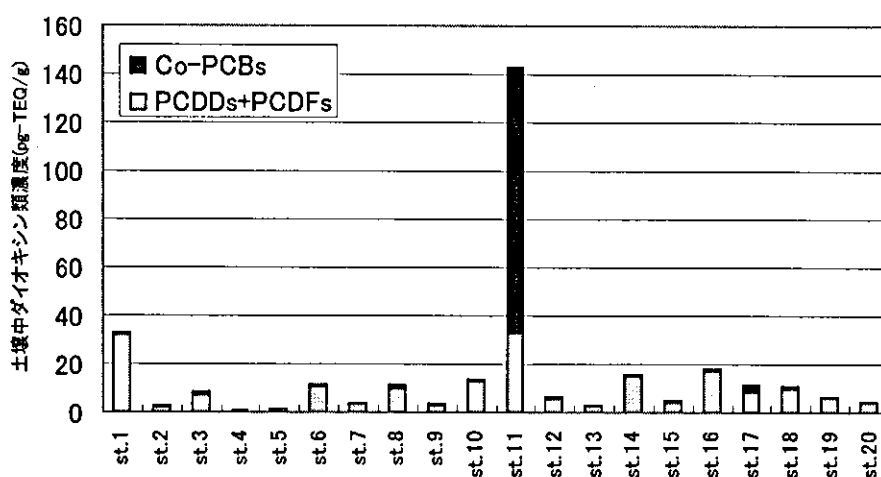


図 2.2 平成 16 年度地点別のダイオキシン類濃度

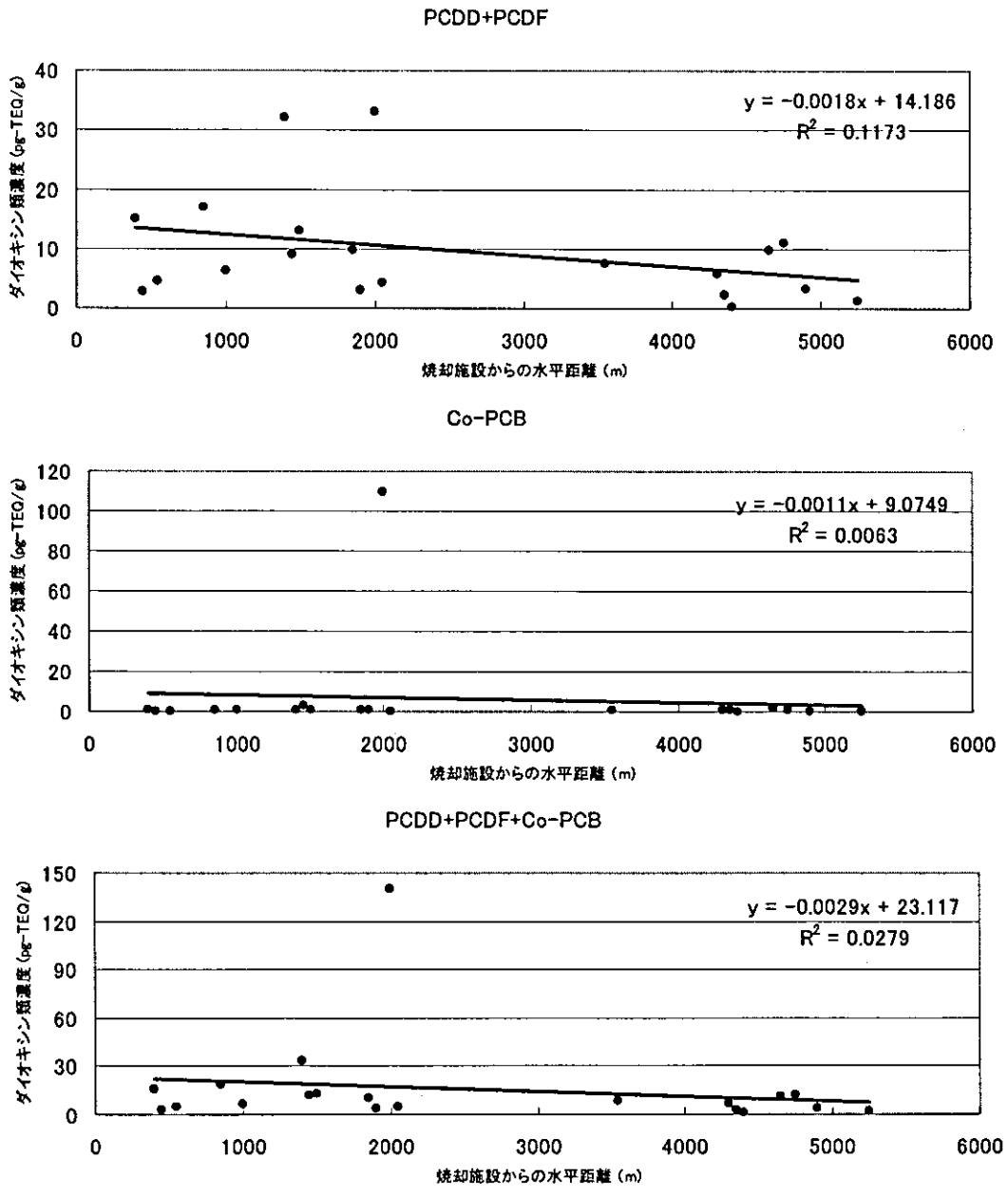


図 2.3(1) 平成 16 年度：施設からの距離と土壤中ダイオキシン類濃度との関係

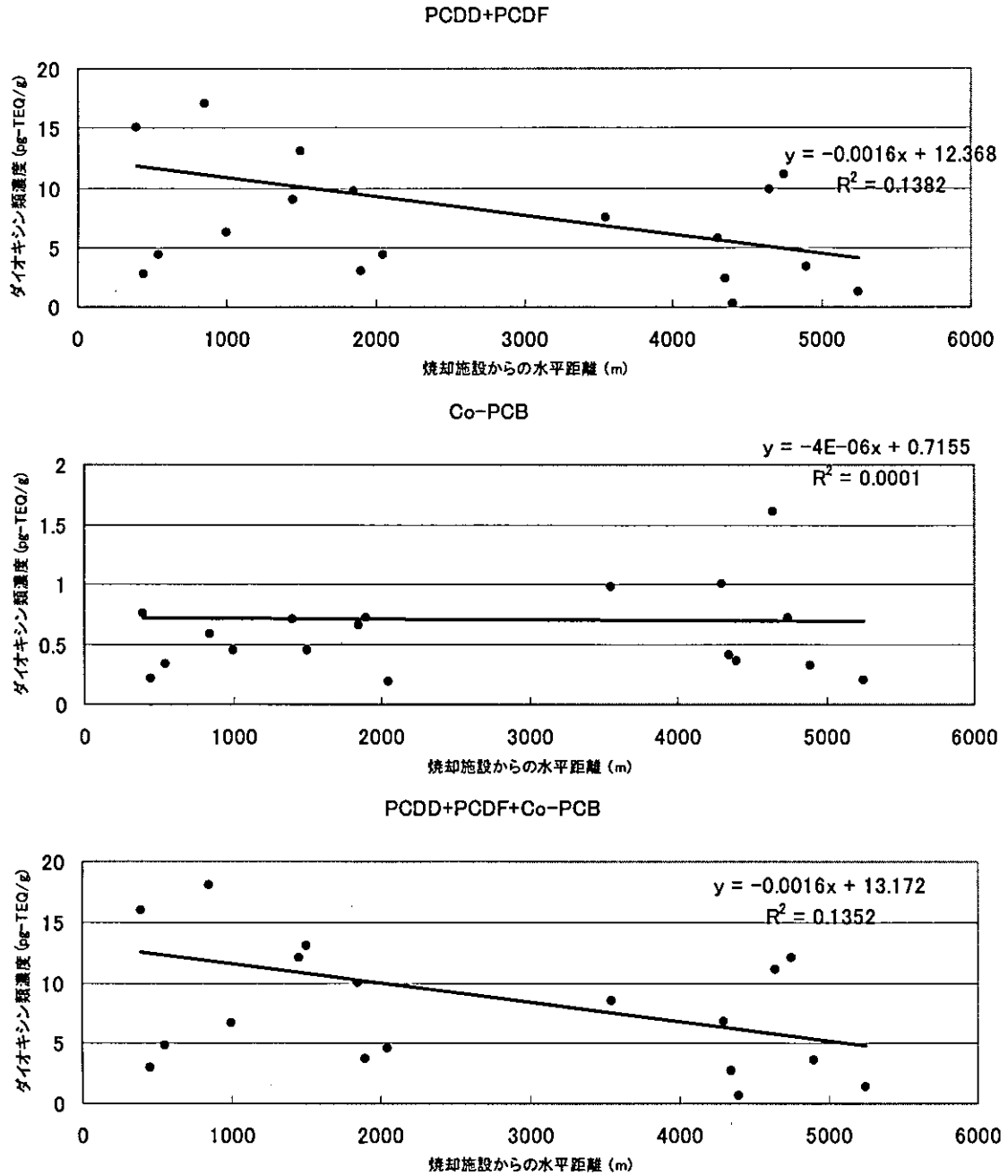


図 2.3(2) 平成 16 年度：施設からの距離と土壤中ダイオキシン類濃度との関係（はずれ値除外）注：St.11 の値を除外した

ごみ焼却施設周辺の湖沼底質年代評価に関する研究
(化学物質リスク研究事業) 分担研究報告書

研究者 内山巖雄 京都大学大学院工学研究科教授
研究者 田中勝 岡山大学大学院自然科学研究科教授
研究者 国包章一 国立保健医療科学院水道工学部長
研究者 丹後俊郎 国立保健医療科学院技術評価部長

研究要旨：ごみ焼却施設周辺に居住している住民の悪性新生物死亡状況の経年的推移と施設との関連性で超過リスクを検討する本研究の目的から、本分担研究ではごみ焼却施設周辺の湖沼底質中のダイオキシン類濃度及び低質項目について年代測定を行うことにより、周辺地域におけるダイオキシン類汚染の経年変化に関する情報を獲得することを目的とする。平成15年度に実施した年代評価の結果が平成16年度前半に遅れて得られたため、ここでは、平成15年、16年の結果を報告する。平成15年度の結果は、もっとも下層である49-50cm層(1976年)で46pg-TEQ/g、その後29-30cm層(1991年)にかけて、71pg-TEQ/gまでゆるやかに上昇し、24-25層で、140pg-TEQ/gと、大幅に濃度が上昇した。その後、濃度はそれほど変わらなかった。平成16年度の結果は、もっとも下層である59-60cm層(1933年)で1.4pg-TEQ/g、その後39-40cm層(1966年)に21pg-TEQ/gへ上昇、その後14-15cm層(1997年)まで不変から緩やかに上昇し、9-10cm層(2000年)に48pg-TEQ/gへと上昇した。その後、0-1cm層(2004年)には37pg-TEQ/gへ下降した。この結果から、平成15年度の調査では1992年に稼動開始されたごみ焼却施設の影響が示唆されたものの、平成16年度の調査では、1986年に稼動されたごみ焼却施設の影響は必ずしも明確ではなかった。

A. 研究目的

ごみ焼却施設周辺に居住している住民の悪性新生物死亡状況の経年的推移と施設との関連性で超過リスクを検討する本研究の目的から、本分担研究ではごみ焼却施設周辺の湖沼底質中のダイオキシン類濃度及び低質項目について測定を行うことにより、周辺地域におけるダイオキシン類の経年変化(時間的分布)を追い、曝露年代を推定することを目的とする。

B. 研究方法

1. はじめに

平成15, 16年の調査方法、年代測定の方法論はいずれも平成15年度の報告書に記載されているのでここでは、その概略を記述するにとどめた。

2. 調査対象湖沼の選定

平成15年度は発生源由来の土壌ダイオキシン類測定調査」と同一とし、君津市清掃工場の南西1kmに位置する「三直大堰」で底質を採取することとした。

平成16年度は同様に広島県府中市の府中町清掃事務所周辺に位置する湖沼で低質を採取した

3. 底質コアの年代測定

3.1 鉛-210法

鉛-210の供給源は地殻であり、空気中に存在するラドンガスから常に生まれ続けている。ラドンガスが大気中に放出される強さは温泉地などで強い。鉛-210は微小粒子の形で風に乗って空気中を循環しており、微小粒子は雨に出会えば洗い落とされるため、気象現象に支配されながら水圏へ移動する。水中で鉛-210は沈降粒子とともに沈降する。だいたい毎年決まった量だけ泥に移行する。

分析手順としては次のとおりである。

1) 一定の厚さにスライスした柱状泥試料の水分

を測定する。

2) スライスした底質を一般の鉛の底質分析と同様に分解し、白金電極を用いて電着を行い、最終的には鉛を硫酸鉛として回収する。

3) その後、低バックグラウンドガスフローカウンターで乾燥泥に含まれる鉛-210 由来のビスマス-210 が壊変する数をカウントし、放射能の強さ(単位: dpm)を求める。半減期 22.3 年と鉛直方向の 1g あたりの放射能の強さ及び圧密効果の補正により堆積年代が推定できる。

3. 2 セシウム-137法

セシウム-137は、大気圏原水爆実験により地球上に放出された放射性物質である。1945年広島・長崎の原子爆弾や1954年のビキニ環礁の水爆実験に始まり、1963年の米英ソ3国の部分的核実験停止条約成立まで大気圏内の実験が行なわれていたため、1950年代後半から1960年代前半にかけて大量の放射性物質が地表に降下してきたと言われている。

また、近年では1986年にチェルノブイリ原子力発電所の事故により放出されたことも知られている。このため、 γ 線測定装置を用いて各層の堆積物(セシウム-137: 放出率84%、662keV)を測定することにより、セシウム-137の検出され始めた1950年代前半や、最大のピークが得られる1950年代後半から1960年代前半の年代、さらにチェルノブイリ原子力発電所の事故により放出された1986年の推定が可能であることから、各層のセシウム-137を測定し、鉛-210を用いた堆積年代測定の結果を検証する。

C. 研究結果

C-1 平成15年度

1. 1 低質の年代測定結果

採取した柱状泥を表層から50cmまでは1cmごと。50cm以降は、2cmごとに層切りを行い、鉛-210法で測定した堆積年数を表1.1に示した。この結果の信頼性を高めるため、セシウム-137(放出率84%、662keV)の測定を行った。測定結果と推定した年代を表1.2、図1.1に示す。

セシウムは全層で検出されているため、一番下の層でも、核実験等によるセシウムの放出が行われ始めた時期(1940年代後半~1950年代前半)よりも、新しい年代の層であることがわかる。

また、ピークは、66-67層で、鉛210法では1962年と計算された層である。普通、ピークは、1950年代後半から1960年代前半に水爆実験が行われていた時期に見られることが多いため、2法の年代測定結果は合致している。

1. 2 ダイオキシン類測定結果

前項において年代が特定された堆積層についてダイオキシン類分析を行った。表1.3に示す10層について、堆積物中のダイオキシン類を測定した。年代が古い順に、1976年、1980年、1984年、1988年、1991年、1994年、1997年、1999年、2000年、2002年である。

表1.4、図1.2に測定結果を示す。もともと下層である49-50cm層(1976年)で46pg-TEQ/g、その後29-30cm層(1991年)にかけて、71pg-TEQ/gまでゆるやかに上昇し、24-25層で、140p-TEQ/gと、大幅に濃度が上昇した。その後、濃度はそれほど変わらなかった。

1. 2 平成16年度

1. 1 低質の年代測定結果

今年度の測定では鉛-210法では分析できなかったためセシウム-137単独での年代測定をおこなった。測定結果と推定した年代を表2.1と図2.1に示す。

1. 2 ダイオキシン類測定結果

前項において年代が特定された堆積層についてダイオキシン類分析を行った。年代が古い順に、1933年、1949年、1966年、1981年、1988年、1993年、1997年、2000年、2003年、2004年である。

表2.2、図2.2に測定結果を示す。もともと下層である59-60cm層(1933年)で1.4pg-TEQ/g、その後39-40cm層(1966年)に21pg-TEQ/gへ上昇、その後14-15cm層(1997年)まで不変から緩やかに上昇し、9-10cm層(2000年)に48pg-TEQ/gへと上昇した。その後、0-1cm層(2004年)には37pg-TEQ/gへ下降し

ている。

D. 考察

1. 濃度、異性体、同族体割合の変化について

平成15年度の調査でダイオキシン類濃度は、1994年より急激に濃度が上昇している。この理由として、君津市清掃工場の稼働が考えられる。稼働開始年は1992年4月である。その後、1997年3月に、厚生省より公表された排ガス中のダイオキシン類濃度は、301.53ng-TEQ/Nm³であった。その後、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）や、大幅な改造（例：炉容積の拡大、バグフィルターの設定、ガス冷却施設の設定など）の対策を行い、1998年3月には、4.1ng-TEQ/Nm³と、濃度は下がっている。本調査でのダイオキシン類調査の1994年の濃度上昇は、君津市清掃工場が稼働を始めた時期と一致している。また、異性体、同族体割合も、1994年において、その下の1991年の層とは若干異なっていた。このため、底質ダイオキシン類の組成変化は、焼却施設の稼働による可能性が考えられる。ただ、焼却施設での対策による排ガス中のダイオキシン類濃度の減少と、本調査での底質中のダイオキシン類濃度の変動は認められなかった。

2. 土壤中ダイオキシン類との関連について

平成15年度に君津市清掃工場周辺の20地点で測定された土壤中ダイオキシン類の同族体分布を示す。同族体分布は、地点によってかなり異なっていた。コアサンプリングを行った三直大堰に一番近い地点は、地点No.19（八雲神社）であった。同族体パターンとしては、すべての同族体が多く検出しており、焼却由来のパターンに近いものと言える。ただし、三直大堰のパターンと比較して、TeCDDsの割合が大きくなっており、パターンは似ているとは言えない。土壤中ダイオキシン類が、その地点に降下した局所的なものであるのに比べ、堆積物中ダイオキシン類は、広い範囲で降下したものが河川により流入したものであるため、直近の地点でも同族体分布が異なることは珍しいことではない。

E. 結論

E-1 平成15年度

千葉県君津市の焼却施設周辺の池で、堆積層の年代測定とダイオキシン類測定を行った。

1) 鉛-210法による年代測定を行った。最も深い層は1953年であった。表層0-2cmまでの平均堆積速度は、1年あたり3.5cmであった。

2) 検証のため、同じ堆積物についてセシウム-137法による年代測定を行った。ほぼ2法の年代測定結果は同じであり、鉛-210法による年代測定は妥当な結果であると考えられる。

3) 堆積層のうち、10層のダイオキシン類を測定した。もっとも下層である49-50cm層（1976年）で46pg-TEQ/g、その後29-30cm層（1991年）にかけて、71pg-TEQ/gまでゆるやかに上昇し、24-25層で、140p-TEQ/gと、大幅に濃度が上昇した。その後、濃度はそれほど変わらなかった。

4) 10層の同族体・異性体分布は1991-1994年間で、若干の差違が認められた。また、同族体分布は、直近の土壤中ダイオキシン類の同族体分布とは異なっていた。

E-2 平成16年度

広島県府中市の府中町清掃事務所周辺に位置する湖沼で堆積層の年代測定とダイオキシン類測定を行った。本年度も堆積層のうち、10層のダイオキシン類を測定した。もっとも下層である59-60cm層（1933年）で1.4pg-TEQ/g、その後39-40cm層（1966年）に21pg-TEQ/gへ上昇、その後14-15cm層（1997年）まで不変から緩やかに上昇し、9-10cm層（2000年）に48pg-TEQ/gへと上昇した。その後、0-1cm層（2004年）には37pg-TEQ/gへ下降した。

この結果から、平成15年度の調査では1992年に稼働開始されたごみ焼却施設の影響が示唆されたものの、平成16年度の調査では、1986年に稼働されたごみ焼却施設の影響は必ずしも明確ではなかった。

F. 健康危機情報

特になし。

G. 研究発表
特になし。

H. 知的財産権の出願・登録状況
特になし。

表 1.1 平成 15 年度堆積年数の結果

層	深さ (cm)	積算重量深度 (g/cm ²)	堆積年数 (年)	*1 西暦 (年)	層	深さ (cm)	積算重量深度 (g/cm ²)	堆積年数 (年)	*1 西暦 (年)
0-1	0.5	0.05	0.1	2004	40-41	40.5	6.86	20.9	1983
1-2	1.5	0.15	0.5	2004	41-42	41.5	7.11	21.6	1982
2-3	2.5	0.27	0.8	2003	42-43	42.5	7.35	22.4	1982
3-4	3.5	0.40	1.2	2003	43-44	43.5	7.59	23.1	1981
4-5	4.5	0.53	1.6	2002	44-45	44.5	7.85	23.9	1980
5-6	5.5	0.66	2.0	2002	45-46	45.5	8.10	24.7	1979
6-7	6.5	0.79	2.4	2002	46-47	46.5	8.36	25.4	1979
7-8	7.5	0.91	2.8	2001	47-48	47.5	8.61	26.2	1978
8-9	8.5	1.04	3.2	2001	48-49	48.5	8.86	27.0	1977
9-10	9.5	1.17	3.6	2000	49-50	49.5	9.11	27.7	1976
10-11	10.5	1.30	3.9	2000	50-51	50.5	9.37	28.5	1975
11-12	11.5	1.41	4.3	2000	51-52	51.5	9.63	29.3	1975
12-13	12.5	1.52	4.6	1999	52-53	52.5	9.89	30.1	1974
13-14	13.5	1.62	4.9	1999	53-54	53.5	10.16	30.9	1973
14-15	14.5	1.73	5.3	1999	54-55	54.5	10.43	31.7	1972
15-16	15.5	1.86	5.7	1998	55-56	55.5	10.70	32.6	1971
16-17	16.5	2.00	6.1	1998	56-57	56.5	10.98	33.4	1971
17-18	17.5	2.15	6.5	1997	57-58	57.5	11.26	34.3	1970
18-19	18.5	2.30	7.0	1997	58-59	58.5	11.51	35.0	1969
19-20	19.5	2.45	7.5	1997	59-60	59.5	11.77	35.8	1968
20-21	20.5	2.61	8.0	1996	60-61	60.5	12.06	36.7	1967
21-22	21.5	2.78	8.4	1996	61-62	61.5	12.35	37.6	1966
22-23	22.5	2.94	8.9	1995	62-63	62.5	12.64	38.5	1966
23-24	23.5	3.11	9.5	1995	63-64	63.5	12.93	39.4	1965
24-25	24.5	3.28	10.0	1994	64-65	64.5	13.22	40.2	1964
25-26	25.5	3.45	10.5	1993	65-66	65.5	13.51	41.1	1963
26-27	26.5	3.65	11.1	1993	66-67	66.5	13.80	42.0	1962
27-28	27.5	3.85	11.7	1992	67-68	67.5	14.10	42.9	1961
28-29	28.5	4.05	12.3	1992	68-69	68.5	14.39	43.8	1960
29-30	29.5	4.27	13.0	1991	69-70	69.5	14.65	44.6	1959
30-31	30.5	4.50	13.7	1990	70-71	70.5	14.89	45.3	1959
31-32	31.5	4.73	14.4	1990	71-72	71.5	15.11	46.0	1958
32-33	32.5	4.96	15.1	1989	72-73	72.5	15.33	46.7	1957
33-34	33.5	5.19	15.8	1988	73-74	73.5	15.55	47.3	1957
34-35	34.5	5.42	16.5	1988	74-75	74.5	15.77	48.0	1956
35-36	35.5	5.65	17.2	1987	75-76	75.5	15.99	48.7	1955
36-37	36.5	5.89	17.9	1986	76-77	76.5	16.21	49.3	1955
37-38	37.5	6.13	18.6	1985	77-78	77.5	16.43	50.0	1954
38-39	38.5	6.36	19.4	1985	78-79	78.5	16.65	50.7	1953
39-40	39.5	6.61	20.1	1984	79-80	79.5	16.86	51.3	1953

表 1.2 平成 15 年度各層のセシウム-137 の測定結果

層	深さ (cm)	Cs137(Bq/kg)		Cs-137からの年代推定	代 (年)
0-1	0.5	33.15	± 3.23		2004
4-5	4.5	56.00	± 4.06		2002
9-10	9.5	44.51	± 3.65		2000
19-20	19.5	55.21	± 3.88		1997
24-25	24.5	59.14	± 3.81		1994
27-28	27.5	69.63	± 4.17		1992
28-29	28.9	66.04	± 4.19		1992
29-30	29.5	65.98	± 3.90		1991
34-35	34.5	55.39	± 4.38		1988
39-40	39.5	54.45	± 3.94		1984
44-45	44.5	50.99	± 3.92		1980
49-50	49.5	59.92	± 4.12		1976
54-55	54.5	73.86	± 4.31		1972
59-60	59.5	73.28	± 4.36		1968
64-65	64.5	109.82	± 5.96		1964
65-66	65.5	129.40	± 5.73	1950年代後半から1960年代	1963
66-67	66.5	167.07	± 7.63	前半の水爆実験によるピーク	1962
67-68	67.5	147.87	± 6.09		1961
68-69	68.5	124.97	± 5.65		1960
69-70	69.5	100.99	± 5.29		1959
74-75	74.5	125.11	± 6.20		1956
76-77	76.5	65.65	± 4.66		1955
78-79	78.5	27.17	± 4.13		1953

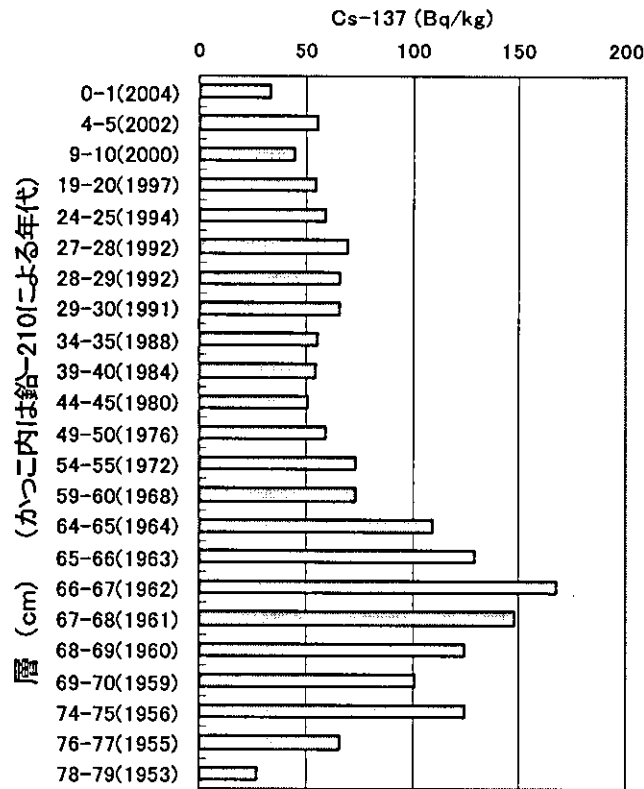


図 1.1 平成 15 年度各層のセシウム-137 の測定結果

表 1.3 平成 15 年度堆積物中ダイオキシン類の分析層

地点	深さ (cm)	年代 (年)	ダイオキシン 測定	地点	深さ (cm)	年代 (年)	ダイオキシン 測定
0-1	0.5	2004		30-31	30.5	1990.31	
1-2	1.5	2004		31-32	31.5	1990	
2-3	2.5	2003		32-33	32.5	1989	
3-4	3.5	2003		33-34	33.5	1988	
4-5	4.5	2002	●	34-35	34.5	1988	●
5-6	5.5	2002		35-36	35.5	1987	
6-7	6.5	2002		36-37	36.5	1986	
7-8	7.5	2001		37-38	37.5	1985	
8-9	8.5	2001		38-39	38.5	1985	
9-10	9.5	2000	●	39-40	39.5	1984	●
10-11	10.5	2000		40-41	40.5	1983	
11-12	11.5	2000		41-42	41.5	1982	
12-13	12.5	1999		42-43	42.5	1982	
13-14	13.5	1999		43-44	43.5	1981	
14-15	14.5	1999	●	44-45	44.5	1980	●
15-16	15.5	1998		45-46	45.5	1979	
16-17	16.5	1998		46-47	46.5	1979	
17-18	17.5	1997		47-48	47.5	1978	
18-19	18.5	1997		48-49	48.5	1977	
19-20	19.5	1997	●	49-50	49.5	1976	●
20-21	20.5	1996		50-51	50.5	1975	
21-22	21.5	1996		51-52	51.5	1975	
22-23	22.5	1995		52-53	52.5	1974	
23-24	23.5	1995		53-54	53.5	1973	
24-25	24.5	1994	●	54-55	54.5	1972	
25-26	25.5	1993		55-56	55.5	1971	
26-27	26.5	1993		56-57	56.5	1971	
27-28	27.5	1992		57-58	57.5	1970	
28-29	28.5	1992		58-59	58.5	1969	
29-30	29.5	1991	●	59-60	59.5	1968	

表 1.4 平成 15 年度堆積物中ダイオキシン類測定結果

測定深 (cm)	堆積 年代	PCDDs+PCDFs		Co-PCBs		PCDDs+PCDFs+	
		Co-PCBs					毒性等量
		実測濃度 (pg-TEQ/g)	毒性等量 (pg/g)	実測濃度 (pg-TEQ/g)	毒性等量 (pg/g)	毒性等量 (pg-TEQ/g)	
4-5	2002	10000	110	1000	2.4	110	
9-10	2000	10000	110	1100	2.4	110	
14-15	1999	11000	120	1300	2.9	120	
19-20	1997	12000	120	1300	2.7	130	
24-25	1994	12000	130	1400	2.7	140	
29-30	1991	9900	69	1300	2.0	71	
34-35	1988	9700	48	1200	1.8	50	
39-40	1984	9900	47	1200	1.7	49	
44-45	1980	9900	43	1300	1.8	44	
49-50	1976	11000	44	1300	1.8	46	

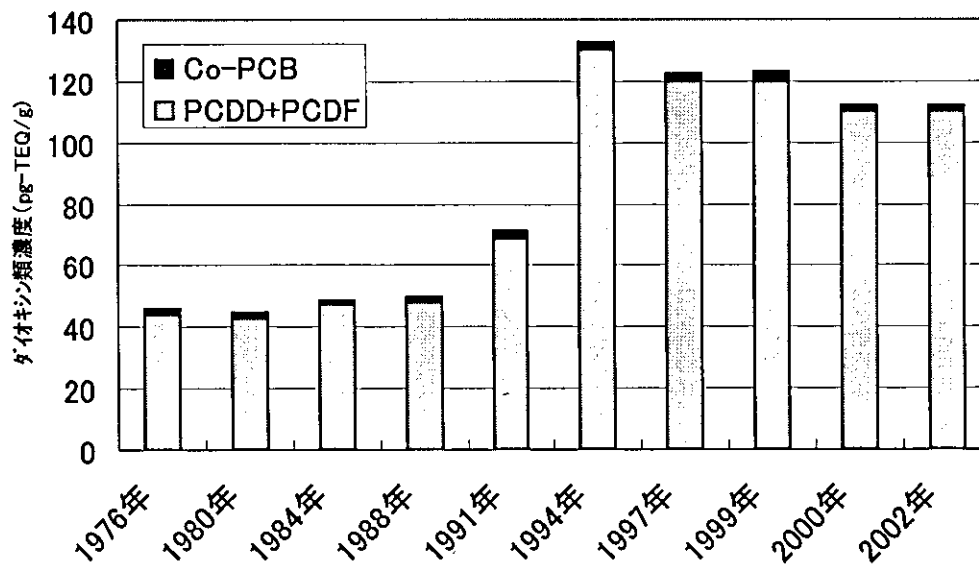


図 1.2 平成 15 年度底質中ダイオキシン類結果 (PCDDs+PCDFs+Co-PCBs)

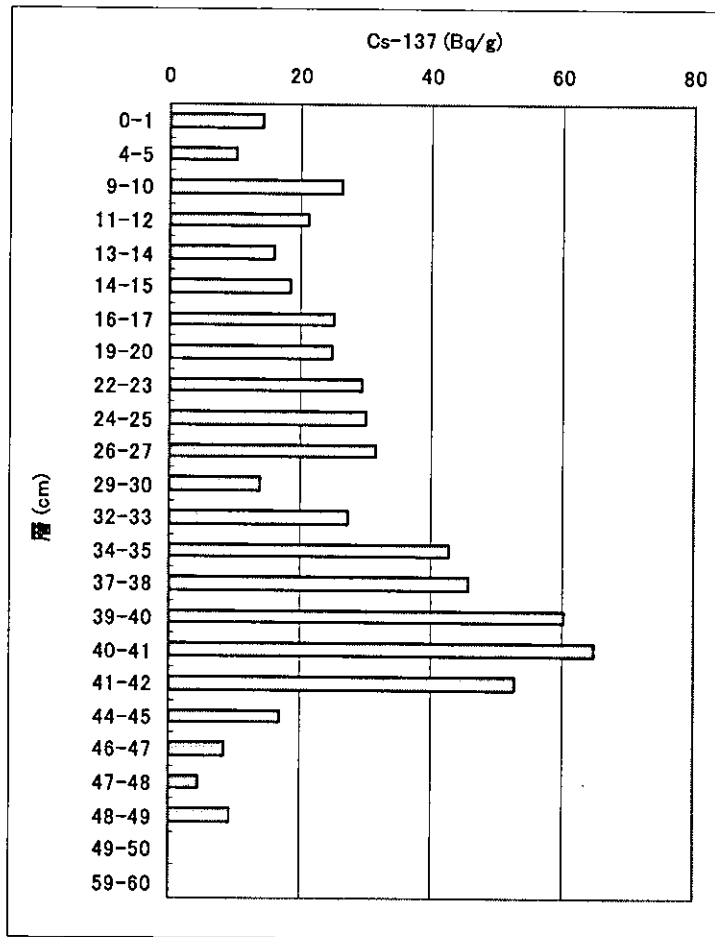


図 2.1 平成 16 年度セシウムの層別濃度

表 2.1

セシウム-137の結果から

40-41cm層を水爆実験が盛んに行われたピークの1964年とすると

40-41cm層は、2004-1964=40年前となる。

40-41cm層の積算重量深度が21.7g/cm²であることから、

40年間に21.7g/cm²堆積することがわかった。

このため、平均重量堆積速度は、21.7(g/cm²)/40(年)=0.5425g/cm²/年とな

平均重量堆積速度 0.5425 g/cm²/年

測定層	積算重量堆積速度 (g/cm ²)	堆積年数 (年)	西暦 (年)
0-1	0.1	0.1	2004
1-2	0.2	0.4	2004
2-3	0.4	0.7	2003
3-4	0.5	1.0	2003
4-5	0.7	1.3	2003
5-6	0.9	1.7	2002
6-7	1.2	2.2	2002
7-8	1.4	2.7	2001
8-9	1.7	3.2	2001
9-10	2.0	3.7	2000
10-11	2.3	4.2	2000
11-12	2.6	4.8	1999
12-13	2.9	5.4	1999
13-14	3.3	6.0	1998
14-15	3.6	6.7	1997
15-16	4.0	7.4	1997
16-17	4.4	8.2	1996
17-18	4.8	8.9	1995
18-19	5.3	9.7	1994
19-20	5.7	10.6	1993
20-21	6.2	11.5	1993
21-22	6.7	12.4	1992
22-23	7.3	13.5	1990
23-24	8.0	14.8	1989
24-25	8.8	16.2	1988
25-26	9.6	17.6	1986
26-27	10.3	19.0	1985
27-28	11.1	20.4	1984
28-29	11.9	21.9	1982
29-30	12.7	23.5	1981
30-31	13.6	25.0	1979
31-32	14.4	26.5	1977
32-33	15.2	28.0	1976
33-34	16.0	29.5	1975
34-35	16.8	31.0	1973
35-36	17.6	32.5	1972
36-37	18.4	34.0	1970
37-38	19.3	35.5	1968
38-39	20.1	37.0	1967
39-40	20.9	38.5	1966
40-41	21.7	40.0	1964
41-42	22.5	41.5	1962
42-43	23.4	43.1	1961
43-44	24.3	44.7	1959
44-45	25.2	46.4	1958
45-46	26.1	48.2	1956
46-47	27.1	50.0	1954
47-48	28.1	51.7	1952
48-49	29.0	53.4	1951
49-50	29.9	55.1	1949
50-51	30.8	56.7	1947
51-52	31.7	58.4	1946
52-53	32.5	60.0	1944
53-54	33.4	61.6	1942
54-55	34.3	63.2	1941
55-56	35.2	64.8	1939
56-57	36.0	66.4	1938
57-58	36.9	68.1	1936
58-59	37.8	69.7	1934
59-60	38.7	71.3	1933
60-61	39.6	73.0	1931

表 2.2 平成 16 年度堆積物中ダイオキシン類測定結果

測定深 (cm)	堆積 年代	PCDDs+PCDFs		Co-PCBs		PCDDs+PCDFs+
		実測濃度	毒性等量	実測濃度	毒性等量	Co-PCBs
						毒性等量
(pg-TEQ/g)	(pg/g)	(pg-TEQ/g)	(pg/g)	(pg-TEQ/g)		
0-1	2004	12000	35	990	2.2	37
4-5	2003	13000	46	1000	2.4	48
9-10	2000	14000	46	1100	2.5	48
14-15	1997	11000	28	1000	1.9	30
19-20	1993	12000	24	890	1.2	25
24-25	1988	13000	15	330	0.39	16
29-30	1981	12000	14	350	0.42	15
39-40	1966	15000	20	390	0.48	21
49-50	1949	2500	2.1	18	0.0022	2.1
59-60	1933	2300	1.4	64	0.0080	1.4

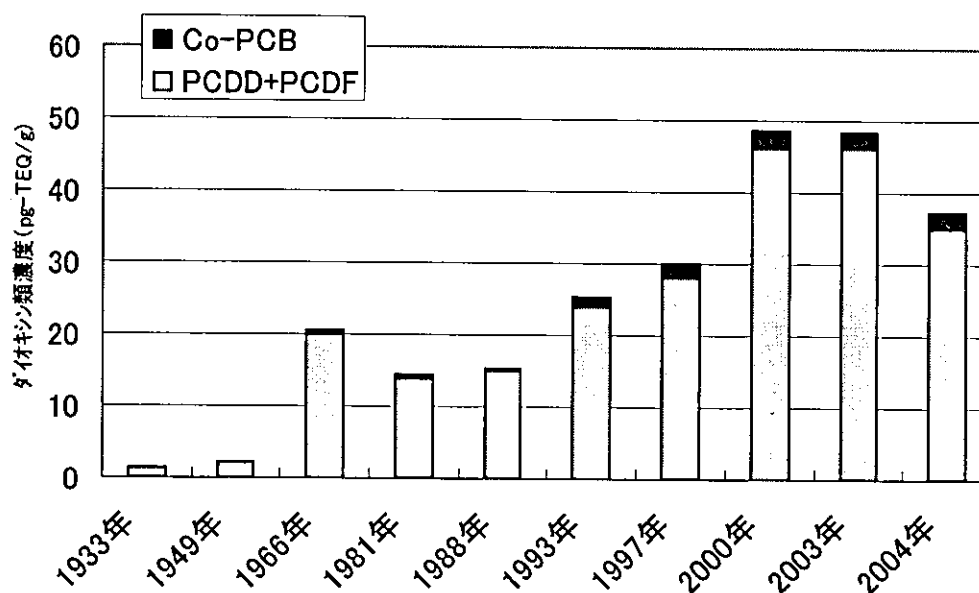


図 2.2 平成 16 年度底質中ダイオキシン類結果 (PCDDs+PCDFs+Co-PCBs)

館林市多々良沼周辺地域におけるダイオキシン類の動態シミュレーション (化学物質リスク総合研究事業) 分担研究報告書

分担研究者 内山巖雄 京都大学大学院工学研究科 教授
研究協力者 西田 薫 京都大学大学院工学研究科 助手
梅津友朗 京都大学大学院工学研究科 修士課程

研究要旨

本研究では、水域へのダイオキシン類の動態をシミュレーションする湖沼モデルを構築した。湖沼モデルでは大気・土壌・水質・底質の4つのコンパートメントを考え、そのモデル化によりダイオキシン類の動態を明らかにするものである。シミュレーション結果から得られた成果を以下にまとめる。大気中濃度は風速による影響をよく反映しており年間の平均濃度も妥当な値を示した。また、降水による大気中からのウォッシュアウトの影響を考慮することができた。水中濃度に関しては、降水時に濃度が上昇する現象を再現でき、その濃度は測定値と同等の値であった。過去の排出量を仮定して行った計算結果では土壌中濃度底質中濃度ともに計算値が測定値の1/2程度になることから湖沼モデルの妥当性が示された。さらに、排出量を規制値とし初期濃度を設定して、将来の土壌中、底質中のダイオキシン類濃度の予測を行ったところ土壌中濃度は5.0pg-TEQ/g-soil程度に、底質中濃度は20pg-TEQ/g-sediment程度に収束する結果になった。また、大気中濃度が減少しても、農薬汚染などで土壌中濃度が高い場合には、底質中濃度は増加し続ける可能性があることが判明した。

A. 研究目的

ダイオキシン類は、強い毒性と高い残留性・蓄積性を持つことから社会的に大きな関心を集めてきた。「ダイオキシン類対策特別措置法」および「廃棄物の処理及び清掃に関する法律」により廃棄物焼却炉等に対する規制が実施された結果、環境中へのダイオキシン類排出量は減少しつつある¹⁾。このことは、平成9年度0.55 pg-TEQ/m³であった大気環境中ダイオキシン類濃度が、平成14年度には0.093 pg-TEQ/m³まで低下したことから明らかである²⁾。

一方で土壌・水質・底質中ではダイオキシン類濃度の明白な減少傾向を確認できず公共用水域におけるダイオキシン類濃度については大気環境よりも環境基準を超過する割合が高い(大気0.3%, 水質2.8%, 底質2.3%)²⁾。わが国におけるダイオキシン類の主要な人体曝露経路が魚介類の摂取であること³⁾を考慮すれば、ダイオキシン類による環境影響について検討するためには、水質・底質

における汚染状況を調べる必要があると言える。そこで、本研究では、ごみ焼却場周辺の水域におけるダイオキシン類の動態をシミュレーションし水域における将来のダイオキシン類の動向を予測することを主な目的とする。対象地域は、施設周辺に湖沼が存在する館林市清掃センターとその周辺地域である。

B. 研究方法

2. 対象領域のモデル化

群馬県館林市清掃センター周辺の大気、土壌、水質、底質の各媒体をモデル化の対象とする。大気、土壌を対象領域の単一のボックスとみなし水域としては施設の北西に位置する多々良沼を対象とし水質底質とも単一のボックスとする。図2.1に館林市清掃センター周辺の地形図を、図2.2にモデルの概念図を示す。

図2.2に示すように対象領域は多々良沼の流域を含む10 km × 10 kmの正方形領域とし、地表面か

ら500mまでを大気コンパートメント、また、地表面から深さ0.05mまでを土壌コンパートメントとする。

多々良沼は施設から北西に3km離れた場所に位置する、面積0.83 km²の沼である。多々良沼には流入河川流出河川ともに本ずつ存在するが、2本の河川の流量を合計して、1本の河川のように扱う。また、流入量と流出量は等しいと仮定し、湖の水深は常に1.0mで一定であるとする。沼の底には、底質を考慮し、底質の厚さは堆積量による変化を考慮する。

降水時の水域への流出水量を決定するためには、対象地域の流域を決定する必要がある。本研究では、雨水の流下方向を決定するために数値地図⁴⁾による標高データを利用し対象領域を200m×200mのメッシュに区切り隣接する格子間の標高差が最大の方へ雨水が流れると仮定する。このようにして流域面積を計算した結果、多々良沼の流域面積は16 km²である。

3. 動態シミュレーションモデル

3.1 大気中の動態

大気中において考慮した媒質は、以下の成分である。

1. ガス状成分
2. 粒子状成分
3. 雨水

汚染物質の発生源であるごみ処理施設から大気中に排出されたダイオキシン類は、まずガス状成分の相と粒子状成分の相とに分配される。

ガス状成分に分配されたダイオキシン類は、乾性沈着で直接土壌・水域へ移動するほか湿性沈着により雨水を通して土壌・水域へと移動する。粒子状成分に分配されたダイオキシン類は、粒子の乾性・湿性沈着によって土壌・水域へと移動する。

また、大気との交換によるダイオキシン類の領域外への移動、大気中でのダイオキシン類の分解も考慮している。

以上の現象を考慮し、大気中におけるダイオキシン類濃度の基礎方程式を式(3.1)に示す。

$$\frac{dC_{air}}{dt} \cdot Vol_{air} = Emi_{air} - (DD + WD) \cdot Area_{air} + Ex \cdot Vol_{air} \cdot (C_{air,bg} - C_{air}) - k_{air} \cdot C_{air} \cdot Vol_{air} \quad (3.1)$$

- C_{air} : 大気中ダイオキシン類濃度 (pg-TEQ/Nm³)
- $C_{air,bg}$: 大気中ダイオキシン類バックグラウンド濃度 (pg-TEQ/Nm³)
- Vol_{air} : 大気コンパートメントの体積 (m³)
- $Area_{air}$: 大気コンパートメントの面積 (m²)
- Emi_{air} : 焼却場から大気へのダイオキシン類排出量 (pg-TEQ/day)
- DD : 乾性沈着によるダイオキシン類の降下量 (pg-TEQ/m²/day)
- WD : 湿性沈着によるダイオキシン類の降下量 (pg-TEQ/m²/day)
- Ex : 大気コンパートメントと領域外の大気との交換係数 (1/day)
- k_{air} : 大気中におけるダイオキシン類の分解速度定数 (1/day)

3.1.1 大気中におけるダイオキシン類の分配

大気コンパートメントにおいては、ダイオキシン類はガス態と粒子結合態へと分配される。各相への分配比を以下のようにして求める。

$$F_{sp} = \phi \quad (3.2)$$

$$F_{fg} = 1 - \phi \quad (3.3)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} K_p = \frac{C_p}{TSP \cdot C_g} \\ \phi = \frac{C_p}{C_p + C_g} = \frac{K_p \cdot TSP}{K_p \cdot TSP + 1} \end{array} \right. \quad (3.4)$$

- F_{sp} : 粒子相に対するダイオキシン類の分配比 (-)
- F_{fg} : ガス相に対するダイオキシン類の分配比 (-)
- ϕ : 粒子結合率 (-)
- K_p : ガス態-粒子結合態分配係数 (m³/μg)
- C_p : 粒子相のダイオキシン類濃度 (pg-TEQ/m³)
- C_g : ガス相のダイオキシン類濃度 (pg-TEQ/m³)
- TSP : 総浮遊粒子状 (TSP) 濃度 (μg/m³)

分配係数 K_p に関しては、Ogura *et al.*⁵⁾の式を用いた。Ogura *et al.*によれば、気温 T (K)の逆数を用いて K_p は式(3.5)のように表される。なお、 m_T 、 b_T は測定値より同族体ごとに求めた係数である。

$$\log K_p = m_T/T + b_T \quad (3.5)$$

TSP濃度は50 μg/m³とする。

3.1.2 乾性沈着

式 (3.1) 中の乾性沈着によるダイオキシン類の降下量 DD は、粒子相のダイオキシン類の沈着とガス相のダイオキシン類の沈着との和として式

(3.6) から求められる。

$$DD = V_p \cdot C_p + V_g \cdot C_g \\ = (V_p \cdot F_{sp} + V_g \cdot F_{sg}) \cdot C_{air} \quad (3.6)$$

V_p : 粒子結合態ダイオキシン類の沈着速度 (m/s)

V_g : ガス態ダイオキシン類の沈着速度 (m/s)

3.1.3 湿性沈着

式 (3.1) 中の湿性沈着によるダイオキシン類の降下量 WD は乾性沈着量と同様に、粒子相の洗浄とガス相の洗浄を考慮して、式 (3.7) から求められる。

$$WD = (W_p \cdot C_p + W_g \cdot C_g) \cdot \frac{Rain}{1000} \\ = (W_p \cdot F_{sp} + W_g \cdot F_{sg}) \cdot C_{air} \cdot \frac{Rain}{1000} \quad (3.7)$$

W_p : 粒子結合態ダイオキシン類の洗浄比 (m/s)

W_g : ガス態ダイオキシン類の洗浄比 (m/s)

$Rain$: 降水強度 (mm/h)

3.1.4 大気の変換係数

式 (3.1) における変換係数 E_x は、対象領域内の大気が単位時間に外気と入れ替わる割合である。対象領域内の大気のうち領域外に出ていく大気は東西方向への流出と南北方向への流出の和と考えた。大気の流出量と領域の体積との比をとることで、変換係数は式 (3.8) で表される。

$$E_x = \frac{u \Delta y \Delta z + v \Delta x \Delta z}{\Delta x \Delta y \Delta z} = \frac{u}{\Delta x} + \frac{v}{\Delta y} \quad (3.8)$$

u : 東西方向の風速 (m/s)

v : 南北方向の風速 (m/s)

3.2 土壌中の動態

土壌中において考慮した媒体は以下の3成分で

ある。

1. 土壌粒子
2. 間隙空気
3. 間隙水

考慮した現象は、乾性・湿性沈着による大気からの移動土壌中の分解土壌の水域への流出による移動である。土壌における基礎方程式を式 (3.9) に示す。

$$\frac{dC_{soil}}{dt} \cdot Vol_{soil} = \{DD + (1-f) \cdot WD\} \cdot Area_{soil} \\ - k_{soil} \cdot C_{soil} \cdot Vol_{soil} \\ - Q_{is} \cdot C_{soil} \quad (3.9)$$

C_{soil} : 土壌中のダイオキシン類濃度 (pg-TEQ/g-soil)

Vol_{soil} : 土壌コンパートメントの容積 (m³)

$Area_{soil}$: 土壌コンパートメントの面積 (m²)

k_{soil} : 土壌中におけるダイオキシン類の分解速度定数 (1/day)

f : 流出係数 (-)

Q_{is} : 土壌流出量 (g/day)

3.2.1 土壌中におけるダイオキシン類の分配

土壌中のダイオキシン類は土壌粒子土壌間隙水土壌間隙空気に分配される。それぞれへの分配比の算出式を式 (3.10) ~ (3.12) に示す。

$$F_{ss} = \frac{K_d \cdot \rho_{soil} \cdot (1 - v_{sw} - v_{sa})}{v_{sa} \cdot K_{AW} + v_{sw} + K_d \cdot \rho_{soil} \cdot (1 - v_{sw} - v_{sa})} \quad (3.10)$$

$$F_{sw} = \frac{v_{sw}}{v_{sa} \cdot K_{AW} + v_{sw} + K_d \cdot \rho_{soil} \cdot (1 - v_{sw} - v_{sa})} \quad (3.11)$$

$$F_{sa} = \frac{v_{sa} \cdot K_{AW}}{v_{sa} \cdot K_{AW} + v_{sw} + K_d \cdot \rho_{soil} \cdot (1 - v_{sw} - v_{sa})} \quad (3.12)$$

F_{ss} : 土壌中の粒子に対するダイオキシン類の分配比 (-)

F_{sw} : 土壌中の間隙水に対するダイオキシン類の分配比 (-)

F_{sa} : 土壌中の間隙空気に対するダイオキシン類の分配比 (-)

K_d : 土壌-水分分配係数 (m³/g)

ρ_{soil} : 土壌密度 (g/m³)

v_{sw} : 土壌中の水相の割合 (-)

v_{sa} : 土壌中の空隙率 (-)

K_{AW} : 大気-水分分配係数 (-)

3.2.2 土壌-水分分配係数

土壌-水分分配係数 K_d によって、平衡状態にある

土壌粒子と土壌間隙水との間の分配現象を表すことができる。

$$K_d = \frac{C_p}{C_d} \quad (3.13)$$

C_p : 土壌中粒子相におけるダイオキシン類濃度 (pg-TEQ/g-solid)
 C_d : 土壌中間隙水におけるダイオキシン類濃度 (pg-TEQ/m³)

化学物質が吸着している浮遊物質および底質の質量は、その有機炭素含有量に還元されることから、 K_d は式 (3.14) のように求められる。

$$K_d = K_{oc} \cdot POC_{soil} \quad (3.14)$$

K_{oc} : 有機炭素-水分配係数 (m³/g)
 POC_{soil} : 土壌粒子の有機炭素の割合 (-)

3.2.3 大気水分配係数

土壌中におけるダイオキシン類の分配を考える場合大気-水分配係数 K_{AW} を求める必要がある。Mackay⁶⁾によると、 K_{AW} はダイオキシン類の過冷却液相における蒸気圧 P_s との間に式 (3.15) のような関係がある。

$$K_{AW} = \frac{P_L^i}{R \cdot T \cdot S_W} \quad (3.15)$$

P_L^i : ダイオキシン類の過冷却液相における蒸気圧 (atm)
 R : 気体定数 (atm · m³/mol/K)
 T : 温度 (K)
 S_W : ダイオキシン類の水溶解度 (mol/m³)

式 (3.15) 中の過冷却液相における蒸気圧 P_L^i は、ダイオキシン類の固相における蒸気圧との間に成立する関係式 (3.16) に従って計算する。

$$\ln\left(\frac{P_L^i}{P_s}\right) = \frac{\Delta S}{R} \cdot \frac{T_m - T}{T} \quad (3.16)$$

P_s : ダイオキシン類の固相における蒸気圧 (atm)
 ΔS : 融解エントロピー (atm · m³/mol/K)
 T_m : ダイオキシン類の融点 (K)

3.2.4 降水によるダイオキシン類の流出

降水時に地表面に湿性沈着するダイオキシン類の一部は土壌に留まらず水域へと流出する。地表面に対する湿性沈着量のうち割合 f に相当する量が水系に流出すると仮定した。したがって湿性沈着により大気から土壌へと移行するダイオキシン類量は $(1-f) \cdot WD$ となる。

一方、降水時には土壌粒子が浮遊物質として水域へと流出する。これに伴いダイオキシン類が水域へと移行する。土壌流出量を Q_{ss} (g/day) とすると土壌流出によるダイオキシン類の移動量は、 $Q_{ss} C_{soil}$ (pg-TEQ/day) となる。

3.3 水中の動態

水コンパートメントにおけるダイオキシン類の動態の基礎方程式を式 (3.17) に示す。

$$\frac{dC_{water}}{dt} \cdot Vol_{water} = \{DD + (1-f) \cdot WD\} \cdot Area_{water} + Q_{is} \cdot C_{soil} - Q_{out} \cdot C_{water} - WaterSed - k_{water} \cdot C_{water} \cdot Vol_{water} \quad (3.17)$$

C_{water} : 水中濃度 (pg-TEQ/L)
 Vol_{water} : 水域の体積 (L)
 $Area_{water}$: 水域の面積 (m²)
 f : 流出係数 (-)
 k_{water} : 水中におけるダイオキシン類の分解速度定数 (1/day)
 WD : 湿性沈着量 (pg-TEQ/m²)
 DD : 乾性沈着量 (pg-TEQ/m²)
 Q_{is} : 土壌流出量 (g/day)
 C_{soil} : 土壌中濃度 (pg-TEQ/g-soil)
 $WaterSed$: 水域から底質へのダイオキシン類の移動量 (pg-TEQ/day)

3.3.1 水-底質間のダイオキシン類の移動

水-底質間のダイオキシン類の挙動に関しては、沈降巻き上げ拡散が考えられるが本モデルでは沈降と巻き上げをまとめて沈降量とする。式 (3.18) により水底質間のダイオキシン類の移動量を計算する。

$$WaterSed = Sink + Dif \quad (3.18)$$

$Sink$: 底質へのダイオキシン類の沈降量 (pg-TEQ/s)
 Dif : 水-底質間の拡散による移動量 (pg-TEQ/s)