

### 3.3.2 沈降・巻き上げ

湖沼底質年代測定調査により多々良沼における底質の堆積速度が測定されている。この測定値を浮遊物質の沈降と底質の巻き上げを含んだ収支であると仮定する。この収支を浮遊物質の沈降量 $SS_a$ に換算し単位水塊内での沈降量とする。したがって浮遊物質の沈降と底質の巻き上げによる移動量 $Sink$ は(3.19)で表される。

$$Sink = F_{sp} \cdot C_{water} \cdot V_{water} \cdot \frac{SS_a \cdot Area_{water}}{SS_m} \quad (3.19)$$

$F_{sp}$  : 水中の浮遊物質に対するダイオキシン類の分配比 (-)

$SS_a$  : 水中の浮遊物質の沈降速度 ( $g/cm^2/s$ )

$SS_m$  : 流入する浮遊物質質量 ( $g/s$ )

### 3.3.3 拡散

水-底質間では、水中と底質間隙水中の溶存態濃度の差を推進力とした対象物質の移動が起こる。これは両方向に向かうことのできる可逆的な過程である。水および浮遊物質、底質間隙水および底質粒子の間では吸着平衡が成立しているものとして、式(3.20)により区間ごとの拡散による移動量 $Dif$ を求めた<sup>7)</sup>。なお、式中では、水から底質へと向かう移動の方向を正としている。

$$Dif(k) = v_d \cdot Area_{water} \cdot (F_{sd} \cdot C_{sediment} - F_{wd} \cdot C_{water}) \quad (3.20)$$

$$v_d = 69.35 \cdot \phi \cdot M^{-2/3}$$

$v_d$  : 拡散混合速度 ( $m/year$ )

$F_{sd}$  : 底質中の溶存態に対する分配比 (-)

$M$  : 対象物質の分子量 ( $g/mol$ )

## 3.4 底質中の動態

底質では、以下の2成分を考慮している。

1. 底質中の土壌粒子
2. 底質間隙水

底質中のダイオキシン類の動態として水域からの粒子の沈着による移動底質からの粒子の巻き上げによる移動、底質間隙水と水域の水相との間における拡散が考えられる。また、底質中のダイオキシン類の分解を考慮している。式(3.21)に底質コンパートメントにおける基礎方程式を示す。

$$\frac{dC_{sediment}}{dt} \cdot Area_{water} \cdot h_{sediment} = WaterSed - k_{sediment} \cdot C_{sediment} \cdot Area_{water} \cdot h_{sediment} \quad (3.21)$$

$h_{sediment}$  : 底質の厚さ ( $m$ )

$k_{sediment}$  : 底質中におけるダイオキシン類の分解速度定数 ( $1/day$ )

### 3.4.1 底質中におけるダイオキシン類の分配

底質中のダイオキシン類は、底質粒子と間隙水に分配される。底質粒子間隙水に対する分配比を式(3.22)(3.23)に示す。

$$F_{sp} = \frac{K_d \cdot \rho_{sediment} \cdot (1 - \phi_{sediment})}{\phi_{sediment} + K_d \cdot \rho_{sediment} \cdot (1 - \phi_{sediment})} \quad (3.22)$$

$$F_{sd} = \frac{\phi_{sediment}}{\phi_{sediment} + K_d \cdot \rho_{sediment} \cdot (1 - \phi_{sediment})} \quad (3.23)$$

$F_{sp}$  : 底質粒子に対するダイオキシン類の分配比 (-)

$F_{sd}$  : 底質間隙水に対するダイオキシン類の分配比 (-)

$K_d$  : 水-底質粒子分配係数 ( $m^3/g$ )

$\rho_{sediment}$  : 底質の密度 ( $g/m^3$ )

$\phi_{sediment}$  : 底質中の水相の割合 (-)

### 3.4.2 水-底質粒子分配係数

底質粒子に対する対象物質の吸着は、底質粒子に含まれる有機物の質量に還元して考えることができる。式(3.24)により、水底質粒子分配係数 $K_d$ を求めた。

$$K_d = POC_{sediment} \cdot K_{oc} \quad (3.24)$$

$$(3.25)$$

$POC_{sediment}$  : 底質粒子中の有機炭素の割合 (-)

## 3.5 計算条件

館林市清掃センター周辺におけるダイオキシン類の動態シミュレーションにおいて、計算に使用した条件について述べる。

### 3.5.1 気象データ

計算に使用する気象要素は風向・風速降水量気温である。これらのデータについては、館林(アメダス観測所<sup>8)</sup>)における2000年月日から12月31日までの一年間の観測データを利用する。図3.1

～3.3 に、年間風配図日平均気温、月間降水量を示す。

### 3.5.2 水域に関するデータ

水域に関するデータは、多々良沼で行われた湖沼底質年代測定調査<sup>9, 10)</sup>、および館林市<sup>11)</sup>の調査を参考にして決定する。表3.1 に水域に関するデータを示す。

### 3.5.3 流入・流出水量

水域への流入水量、流出水量を式 (3.26) で決定する。

$$Q_{in} = Q_{out} = Q_{normal} + Q_{rain} \quad (3.26)$$

- $Q_{in}$  : 水域への流入水量 ( $m^3/h$ )
- $Q_{out}$  : 水域からの流出水量 ( $m^3/h$ )
- $Q_{normal}$  : 水域への平水時の流入水量 ( $m^3/h$ )
- $Q_{rain}$  : 降水による流入水量 ( $m^3/h$ )

降水による流入水量の増加分に関しては、2層のタンクモデル<sup>12)</sup>を適用する。図3.4 に貯留モデルの概略を示す。

1層目には2つの流出孔と2層目への浸透孔を、2層目には1つの流出孔を考えた。それぞれの流量を $q_{11}$ 、 $q_{12}$ 、 $Inf$ 、 $q_2$ とすると、次式が成立する。

$$q_{11} = (h_1 - h_{11}) \cdot A_{basin} \cdot \alpha_{11} \quad (3.27)$$

$$q_{12} = (h_1 - h_{12}) \cdot A_{basin} \cdot \alpha_{12} \quad (3.28)$$

$$Inf = h_1 \cdot A_{basin} \cdot \beta \quad (3.29)$$

$$q_2 = h_2 \cdot A_{basin} \cdot \alpha_2 \quad (3.30)$$

- $q_{11}$ ,  $q_{12}$ ,  $q_2$  : 各流出孔からの流出水量 ( $m^3/h$ )
- $Inf$  : 1層目から2層目への浸透水量 ( $m^3/h$ )
- $h_1$ ,  $h_2$  : 1層目、2層目の水位 (m)
- $h_{11}$ ,  $h_{12}$  : 1層目の流出孔の高さ (m)
- $\alpha_{11}$ ,  $\alpha_{12}$ ,  $\alpha_2$  : 各流出孔からの流出割合 (-)
- $\beta$  : 1層目から2層目への浸透割合 (-)
- $A_{basin}$  : 河川の流域面積

### 3.5.4 土壌流出量

ダイオキシン類は水に対する溶解度が非常に低い物質であり、水中のダイオキシン類は大部分が浮遊物質相に存在する。そのため、水中のダイオキシン類の動態を記述するためには、浮遊物質の流入を考慮する必要がある。館林市<sup>11)</sup>の調査結果によれば、多々良沼に流入する河川の浮遊物質濃度は平水時が8.7 mg/L、出水時が17.4 mg/Lである。水中の浮遊物質に関して、以下のように仮定する。

- ① 河川最上流の区間へ流入する浮遊物質は、基底流入水と降水による河川流域からの流出水に由来する。
- ② 河川最上流以外の区間へ流入する浮遊物質は、上流の区間からの流入水と降水による河川流域からの流出水に由来する。
- ③ 基底流入水に含まれる浮遊物質の濃度は8.7 mg/L、降水による河川流域からの流出水に含まれる浮遊物質の濃度は17.4 mg/Lである。

$$\begin{cases} SS_{c, normal} = 4.2 \text{ mg/L} \\ SS_{c, rain} = 9.8 \text{ mg/L} \end{cases} \quad (3.31)$$

- $SS_{c, normal}$  : 基底流入水中の浮遊物質濃度 (mg/L)
- $SS_{c, rain}$  : 流域からの流出水中の浮遊物質濃度 (mg/L)

- ④ 平水時には、水コンパートメント中の浮遊物質濃度は8.7 mg/L、出水時には17.4 mg/Lである。

$$SS_c(i) = \begin{cases} 8.7 \text{ mg/L} & (\text{平水時}) \\ 17.4 \text{ mg/L} & (\text{出水時}) \end{cases} \quad (3.32)$$

- $SS_c(i)$  : 区間*i*における浮遊物質濃度 (mg/L)

ただし、平水時と出水時は次式のように定義する。

$Q(t)/V_{in} < 2.0$  : 平水時

$Q(t)/V_{in} \geq 2.0$  : 出水時

(3.33)

$V_{in}$  : 基底流入量 ( $m^3/s$ )

- ⑤ 土壌粒子が浮遊物質として水域に移行することで、土壌中のダイオキシン類の水域への移動を考える。土壌の流出量は次式で与えられる。

$$Q_{ss}(t) = Q_{min}(t) \cdot SS_c(t) \quad (3.34)$$

$Q_{ss}(t)$  : 区間  $i$  に流出する土壌量 ( $g/s$ )

### 3.5.5 計算期間と排出源データ

館林市清掃センターの焼却炉は、昭和 61 年 7 月に稼動を開始した処理能力 100 t/day の准連続炉である。厚生省より公表された平成 8 年度の廃棄物焼却施設排ガス中のダイオキシン類濃度データによれば、当施設からは当時の基準値 80 ng-TEQ/ $m^3$  を超える 124.5 ng-TEQ/ $m^3$  のダイオキシン類が検出された。その後、ダイオキシン類の排出量を削減する対策がなされ、平成 9 年 11 月に行われた再測定では、0.8 pg-TEQ/ $m^3$ 、さらに平成 10 年の測定では 0.28 pg-TEQ/ $m^3$  というように既設炉の基準値を満たすまで改善されたという経緯がある。また、多々良沼の底質年代測定調査において、1948 年から 2002 年までの底質中ダイオキシン類濃度が測定されている。

以上のような背景から館林清掃センター周辺地域においては以下の 2 種類の計算期間および排出条件を設定してシミュレーションを行う。なお、大気中への排出ガス速度は  $4.60 \times 10^5 Nm^3/h$  とする。

#### \*計算条件1

底質中濃度が測定された 1949 年から計算を開始し排ガス中ダイオキシン類濃度の調査が行われた 1996 年までの 48 年間は排出濃度を 124.5 pg-TEQ/ $m^3$ 、その後、2002 年までの 6 年間は既設炉の基準値 pg-TEQ/ $m^3$  を排出強度として合計 54 年間の計算を行う。過去に底質中に蓄積されたダイオキシン類

濃度を実測値と比較することを目的とする。

#### \*計算条件2

土壌底質に初期濃度を与え施設が稼動を開始した 1986 年から計算を開始し、1996 年までの 11 年間は排ガス中ダイオキシン類濃度が 124.5 pg-TEQ/ $m^3$ 、その後は既設炉の基準値 1 pg-TEQ/ $m^3$  で 39 年間合計 50 年間の計算を行う。環境中におけるダイオキシン類濃度を将来的に予測することを目的とする。

### 3.5.6 バックグラウンド濃度

大気中のバックグラウンド濃度として環境省が調査した全国大気中ダイオキシン類濃度の平均値 0.093 pg-TEQ/ $m^3$  を用いる。

### 3.5.7 媒体に関するパラメータ

大気土壌水域に関しては、体積の変化はないと仮定しているが、底質については堆積するにしたがって厚さが増すことを考慮する。表 3.2 に、シミュレーションで使用する媒体に関するパラメータを示す。

## 3.6 ダイオキシン類の物性

### 3.6.1 同族体ごとの寄与率

ごみ焼却起源によるダイオキシン類に関して、TEQ 濃度に対する同族体ごとの寄与率の推定値を表 3.3 に示す。本研究では、表 3.3 に示した、PCDDs (TCDDs, PeCDDs, HxCDDs, HpCDDs, OCDDs) および PCDFs (TCDFs, PeCDFs, HxCDFs, HpCDFs, OCDFs) の同族体 10 種類をシミュレーションの対象物質とする。

### 3.6.2 沈着速度

3.1 節で述べた乾性沈着、湿性沈着に関して、25 °C の乾性沈着速度定数および洗浄比の値を表 3.4 に示す。

### 3.6.3 分解速度定数

3.1 節～3.4 節中の基礎方程式で、ダイオキシ

ン類の媒体中における分解の項を示した。本研究で使用した各媒体中におけるダイオキシン類の分解速度定数<sup>13)</sup>を表3.5に示す。分解速度定数は、土壌中の値を基準として、光分解などを考慮し水中では1桁、大気中では2桁大きな値を用い、底質中の値は土壌中の値の1/2とする。

#### 3.6.4 その他のパラメータ

ダイオキシン類の分子量、水溶解度、蒸気圧を表3.6に示す。

### C. 研究結果と考察

本章では、3章で構築したモデルを用いて、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をシミュレーションしその動向を予測した結果および考察について述べる。

## 4.1 大気中濃度

### 4.1.1 年間の濃度変化

大気中濃度は、土壌、水域から大気への移行過程を考慮していないため、大気中へのダイオキシン類の排出量と気象条件のみによって決定される。気象条件として1年間のデータを繰り返し利用しているため、計算条件1, 2に関わらず、年間の大気中濃度変化はダイオキシン類の排出濃度が124.5 pg-TEQ/m<sup>3</sup>の場合と1 pg-TEQ/m<sup>3</sup>の場合との2パターンのみである。図4.1に排出濃度が124.5 pg-TEQ/m<sup>3</sup>の場合の年間の大気中濃度変化を、図4.2に1.0 pg-TEQ/m<sup>3</sup>の場合の濃度変化を示す。排出濃度が大きい場合（図4.1）、バックグラウンド濃度を最小値として大きな変動を示しており、排出濃度が小さくなると（図4.2）、バックグラウンド濃度を最大値として、極小値のピークが現れている。これらの変動の原因は、風速および降水の影響であると考えられる。

大気中濃度の計算結果をみれば、排ガス中のダイオキシン類濃度が124.5 pg-TEQ/m<sup>3</sup>の場合、大気中濃度がバックグラウンド値から大きく変動している。年間の平均濃度は0.29 pg-TEQ/m<sup>3</sup>、変動の範囲は0.077 ~ 1.3 pg-TEQ/m<sup>3</sup>である。大気中の環境基準値は、年平均値0.6 pg-TEQ/m<sup>3</sup>に設定さ

れているが、瞬時値では0.6 pg-TEQ/m<sup>3</sup>を上回ることがみられるものの、基準値は達成されている。ただし、この計算結果は清掃センターを中心とする10km四方の領域に対して行ったものであり、対象領域の濃度分布は考慮されていない。例えば、清掃センターの風下方向においては平均値の2倍以上の高濃度汚染地域が存在することも考えられる。したがって、館林市清掃センター周辺における過去の大気汚染を評価するためには、大気中濃度の分布を推定できるモデルが必要である。本研究の主な目的は、水域へ長期間にわたって蓄積されるダイオキシン類の挙動を調べることであり、大気中濃度に関しては対象領域内の平均濃度を用いる。

### 4.1.2 発生源の寄与

対象領域内の大気中濃度に対する清掃センターからの排出の寄与率について述べる。排出濃度が124.5 pg-TEQ/m<sup>3</sup>の場合における年間の平均濃度および排出由来のダイオキシン類の大気中濃度に対する寄与率を表4.1に示す。バックグラウンドを含めた平均濃度0.29 pg-TEQ/m<sup>3</sup>であるのに対して、ごみ処理施設の排出ガスに由来するダイオキシン類の寄与濃度は0.20 pg-TEQ/m<sup>3</sup>であり、約70%の寄与率である。すなわち、館林市清掃センターが竣工されて以来排出ガス規制が行われるまでの期間は、ごみ焼却施設からの排ガスに起因する大気中ダイオキシン類濃度は先に示したように大きく寄与していることが推定される。

## 4.2 水中濃度

ダイオキシン類の水中への移行過程は、土壌流出による土壌からの移行、水域への直接の沈着による大気からの移行である。したがって、本モデルでは水中濃度に主に影響を及ぼすのは降水であり、大気中濃度と同様に、時刻により濃度が大きく変化し、降水時に濃度が上昇する傾向を示している（図4.3）。

年間の平均濃度は0.043 pg-TEQ/Lとなり、濃度の範囲は0.0047~3.2 pg-TEQ/Lであった。河川と比較すると、湖沼では水域の容積が大きいことから水の滞留時間が長くなるため、本モデルでは、

降雨による濃度上昇率は比較的小さく、平均濃度も小さくなったものと推測される。

### 4.3 過去の汚染との比較

3章で述べた計算条件1に従ってシミュレーションを行い、過去の汚染状態と比較した結果を述べる。前に示したように、大気中濃度、水中濃度は気象条件に左右され、時刻によって大きな変動を示している。これに対して、土壌中、底質中の濃度は、大気あるいは水中から移行してきた汚染物質が蓄積されるため、過去の汚染を反映した濃度になることが予想される。

そこで、館林市清掃センター周辺地域において行われた土壌中ダイオキシン類測定調査<sup>14)</sup> および湖沼底質年代測定調査<sup>10)</sup> により得られた土壌、底質中の実測濃度を計算結果と比較することを試みる。

#### 4.3.1 土壌中濃度

平成14年に行われた土壌中ダイオキシン類測定調査による、清掃センター周辺におけるダイオキシン類濃度の測定結果を表4.2に示す。なお、測定が行われたのは20地点であり、測定点は清掃センターから250 m～5900 mの範囲内に位置する。一方、土壌中濃度の初期濃度を0とした場合のシミュレーション結果を図4.4に示す。土壌中濃度は、計算開始から上昇を続け最高10 pg-TEQ/g-soilに達し、その後排出量が小さくなるために減少に転じている。

実測濃度の平均値19 pg-TEQ/g-soilに対して、計算による現状濃度は8.6 pg-TEQ/g-soilであり、土壌の初期濃度を加えれば、同程度の値である。仮に、土壌中のダイオキシン類は、清掃センター由来のものと農薬由来のものだけであるとすれば、この結果から、館林清掃センター周辺10 km四方の土壌に存在するダイオキシン類の55%は農薬に由来するもので、残りの45%が清掃センターに由来するものであるという結果になる。

#### 4.3.2 底質中濃度

平成14年に行われた湖沼底質年代測定調査では、浚渫記録がなく攪乱がないと思われる多々良沼南

部より測定用コア（柱状コア）を用いて底質を採取し、年代測定を行うとともに、底質に含まれているダイオキシン類が測定されている<sup>10)</sup>。底質の堆積年代とそこに含まれるダイオキシン類濃度を表4.3に示す。この調査では、濃度が1988年までは上昇を続け、それ以降は横這いになるという結果である。

底質中の初期濃度を0としてシミュレーションを行った結果と年代別ダイオキシン類濃度の測定結果を図4.5に示す。計算値は、計算開始直後に急激に濃度が上がり、その後はほぼ直線的に増加を続けている。

測定結果と計算結果を比較すれば、すべての年代で計算値が測定値の1/2程度というように、土壌中濃度と同様に近い値となっている。土壌中濃度、底質中濃度ともに計算値が測定値のおよそ1/2になったことから、底質中の初期濃度を加えれば、本研究のシミュレーションで計算した値は比較的妥当な値であると言えるだろう。

測定値に対してダイオキシン類の同族体の組成を分析した結果、発生源に関する顕著な傾向はなかったことから、測定された濃度は清掃センターからの排出の影響だけでなく、農薬などの要因による汚染の影響を強く受けていることが予想される。底質中のダイオキシン類は、清掃センターと農薬のみに由来すると仮定すれば、2002年の測定結果43 pg-TEQ/gのうち約60%にあたる26 pg-TEQ/gは清掃センターから排出されたものであり、残りの40%が農薬に由来するものであるという結果になる。

本モデルで計算した結果に基づいて、さらに詳しい同族体組成分析および測定値との比較を行うことで、汚染源周辺の水域に蓄積されるダイオキシン類の発生源による寄与率を計算することが可能となるだろう。

### 4.4 ダイオキシン類汚染の将来予測

計算条件2に従ってシミュレーションを行い、ダイオキシン類の土壌、底質中の将来濃度を予測する。計算開始時（1986年）における土壌中、底質中濃度として、以下の2つの組み合わせを試みる。

① 計算条件1で計算を行った場合の1986年の値

( 土壌8.9 pg-TEQ/g-soil, 底質20pg-TEQ/g-sediment)

② 実測データによる濃度

( 土壌19 pg-TEQ/g-soil, 底質40 pg-TEQ/g-sediment)

#### 4.4.1 土壌中濃度

図4.6 に土壌濃度の将来予測をシミュレーションした結果を示す。初期濃度を19 pg-TEQ/g-soilとした場合、計算開始から濃度は減少を始め、ダイオキシン類の排出量が小さくなるとさらに減少率が大きくなる。一方、8.9 pg-TEQ/g-soilの初期濃度を与えた場合、土壌中濃度は計算開始からわずかに上昇するが、排出量が小さくなると減少に転じる。

最終的な平衡濃度でみると、6.9 pg-TEQ/g-soil, 5.2 pg-TEQ/g-soil となり、計算開始時では10 pg-TEQであった濃度差が小さくなり、どちらも平衡濃度に近づいていくと考えられる。図4.6 から外挿すると、土壌中濃度の平衡濃度はおよそ5.0 pg-TEQ/g-soil 程度になると予測される。したがって、排出規制によりダイオキシン類の排出量が削減されたことで、ごみ焼却場の正常な操業では、将来的には大気中への排出による高濃度の土壌汚染が発生することはまずないと考えられる。

#### 4.4.2 底質中濃度

底質中の初期濃度を20, 40 pg-TEQ/g-sedimentとしてシミュレーションを行った結果を図4.7に示す。初期濃度を40 pg-TEQ/g-sedimentとした場合、計算開始から底質濃度が上昇し、排出量が小さくなったあともわずかに上昇を続ける。その後、徐々に濃度は減少に向かい、2035年には44 pg-TEQ/g-sediment となっている。

初期濃度を20 pg-TEQ/g-soilとした場合には、底質濃度は最初わずかに上昇した後、ほぼ横這い状態になり、2035年には26 pg-TEQ/g-sedimentとなる。土壌からの流出を考慮しているため、土壌中濃度が平衡に達してから底質中濃度は平衡に達すると考えられ、平衡濃度に達するまでにはさらに数十年かかるかと推測される。図4.7から正確な平衡濃度を予測することはできないが、20

pg-TEQ/g-soil程度に収束すると推定できる。

以上の結果から、底質の平衡濃度は土壌のそれよりも高く、底質中濃度の増減には、大気へのダイオキシン類の排出量だけではなく土壌濃度の大小が影響していることが考えられる。すなわち、底質中におけるダイオキシン類の汚染を予測するためには、大気中へ排出されたダイオキシン類の環境動態を解析することだけでは不十分であり、他の要因による高濃度土壌汚染の有無を調べる必要がある。高濃度土壌汚染箇所の分布が判明すれば、それを初期濃度として与えて同様のシミュレーションを行うことで、単一汚染源に限らない様々な汚染物質発生源による影響を考慮したダイオキシン類の動態を解析することが可能である。

#### 4.5 水中生物への環境影響

本モデルでは、媒体は大気・土壌・水質・底質までしか考慮されていないため、人体に暴露される前段階として重要な魚介類等の水中生物に摂取される過程を推定するまでには至っていない。水中生物への環境影響を評価する手法として、本研究のモデルに水域相から生物相への分配係数の概念を追加することで、水中生物コンパートメントを考慮したモデルを作成することが考えられる。さらに、水域相からプランクトン等の微生物を経由して魚に至るまでの濃縮経路を考え、水中生物コンパートメントを細かく分類することにより、各媒体に蓄積されるダイオキシン類濃度をより詳しく推定することが可能となる。

このように、本研究で構築したモデルは水中生物の影響を考慮していないことなど、不完全な部分がある一方で、様々な地域に対して適用可能であること、および新たな概念の導入が容易に行えることから、発展性の高いモデルであると言えるだろう。

#### E. 結論

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

イオキシソ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、土壤中濃度、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、将来の土壤中、底質中のダイオキシソ類濃度の予測を行ったところ、土壤中濃度は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、農薬汚染などで土壤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。

#### 参考文献

- 1) 環境省：ダイオキシソ類の排出量の目録（排出インベントリー）（H15.12.5報道発表）
- 2) 環境省：平成14年度ダイオキシソ類に係る環境調査結果（H15.12.5報道発表）
- 3) 厚生労働省：平成10年度食品からのダイオキシソの一日摂取量調査（1999）
- 4) 国土地理院：数値地図50 m メッシュ（標高）（1997）
- 5) Isamu Ogura, Sigeki Masunaga, and Junko Nakanishi：PARAMETER CHARACTERIZING ATMOSPHERIC BEHAVIOR OF PCDDs/PCDFs, Organohalogen Compounds 52, 483-486, 2001
- 6) Donald Mackay：Multimedia Environmental Models, The Fugacity Approach, Second Edition, LEWIS PUBLISHERS
- 7) Di Toro, D.M., O'Connor, D.J., Thomann, R.V., and St. John, J.P.：Analysis of Fate of Chemicals in Receiving Water Phase 1. Chemical Manufact. Assoc. Washington, D.C. Prepared by Hydro Qual Inc., Mahwah, NJ.

(1981)

- 8) 気象業務支援センター：アメダス観測年報
- 9) 内山巖雄, 田中勝, 国包章一, 丹後俊郎：ごみ焼却施設周辺の湖沼底質年代調査に関する研究（食品・化学物質安全総合研究事業）分担研究報告書（2003.3）
- 10) 国土環境株式会社：平成14年度発生源周辺の湖沼底質年代測定調査報告書（2003.3）
- 11) 館林市：館林の環境－平成14年度版－（2002）
- 12) 水村和正：水圏水文学（山海堂）（1998）
- 13) 中央環境審議会大気部会ダイオキシソ類環境基準専門委員会：大気の汚染に係るダイオキシソ類環境基準専門委員会報告（1999）
- 14) 国土環境株式会社：平成14年度発生源由来の土壤中ダイオキシソ類測定

#### 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。

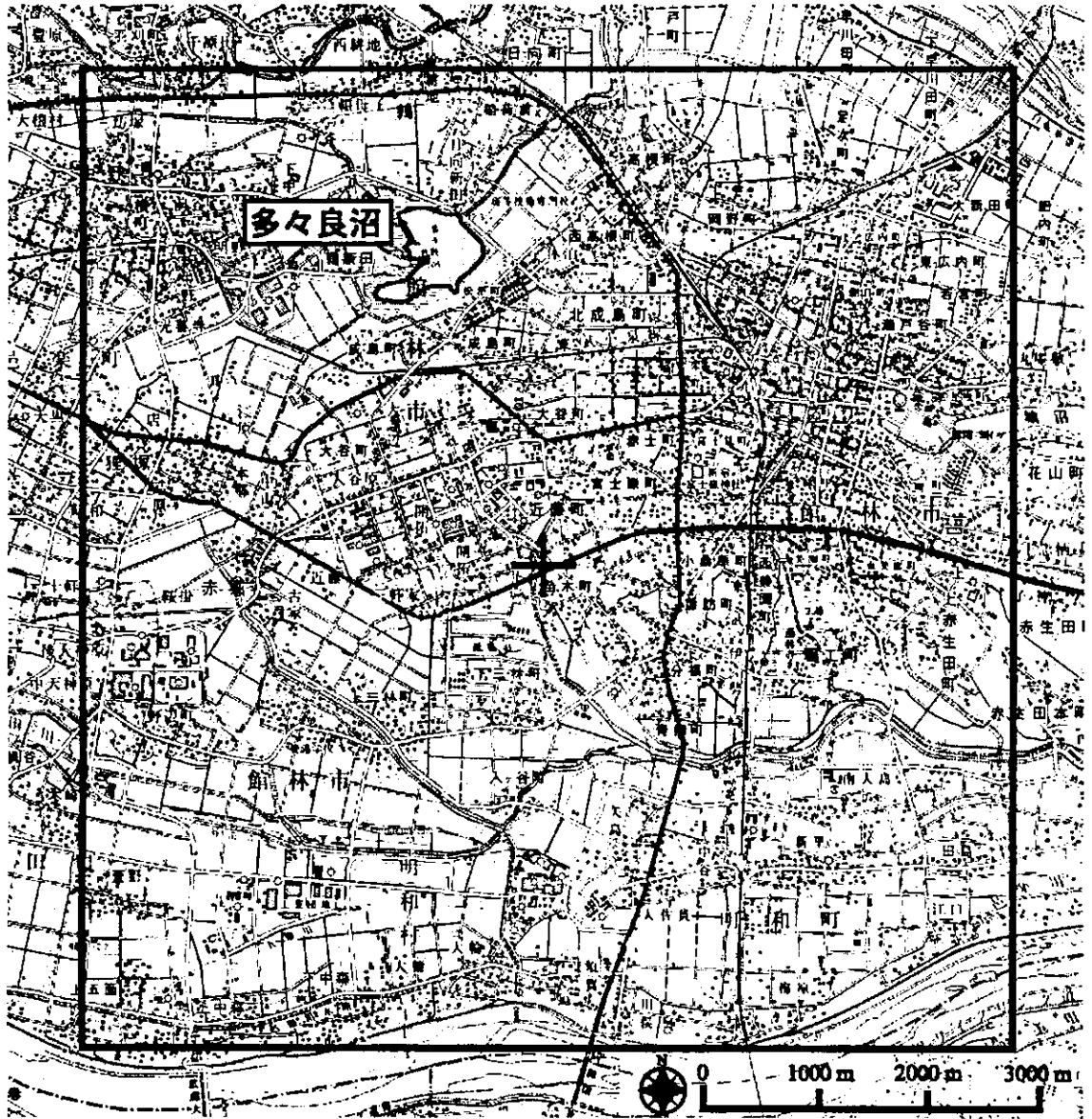


図 2.1 対象領域の地形図 (館林市)



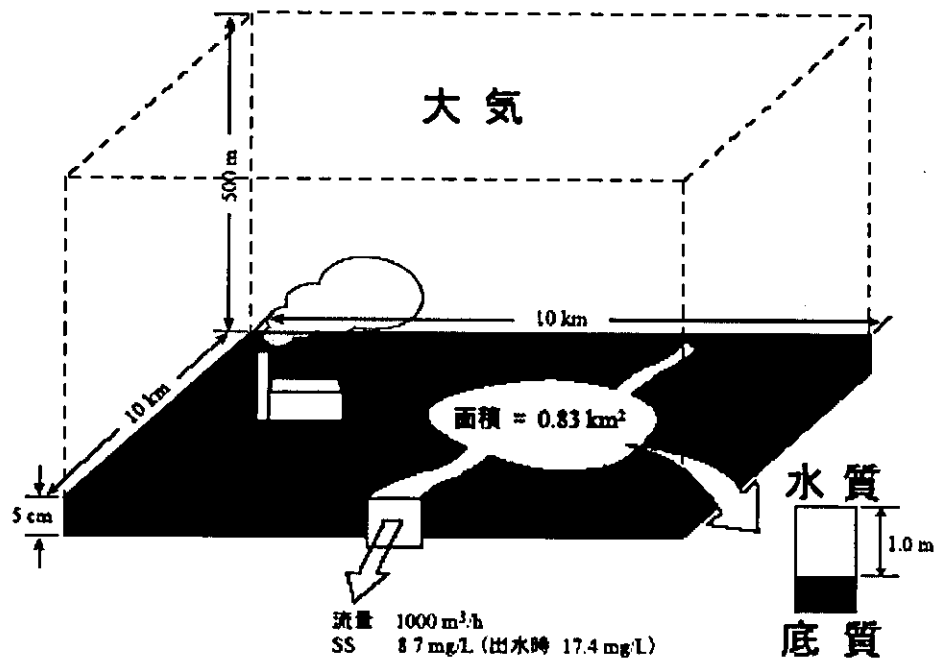


図 2.2 対象領域のモデル化

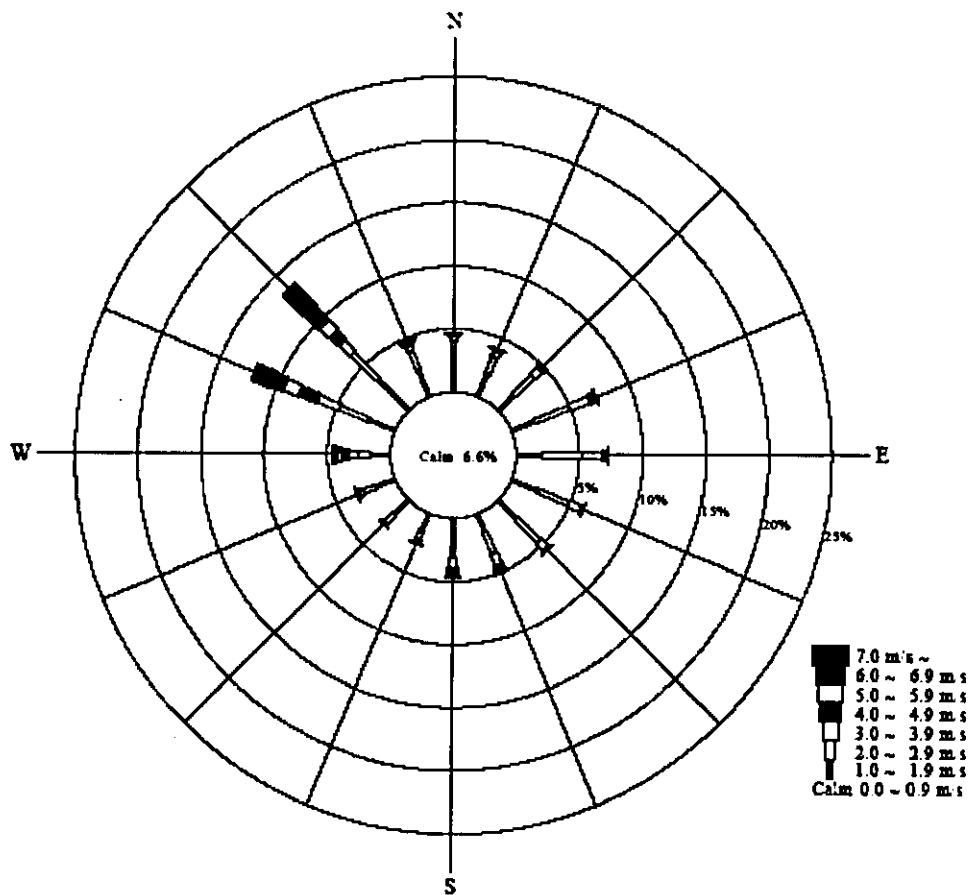


図 3.1 年間の風配図 (館林)

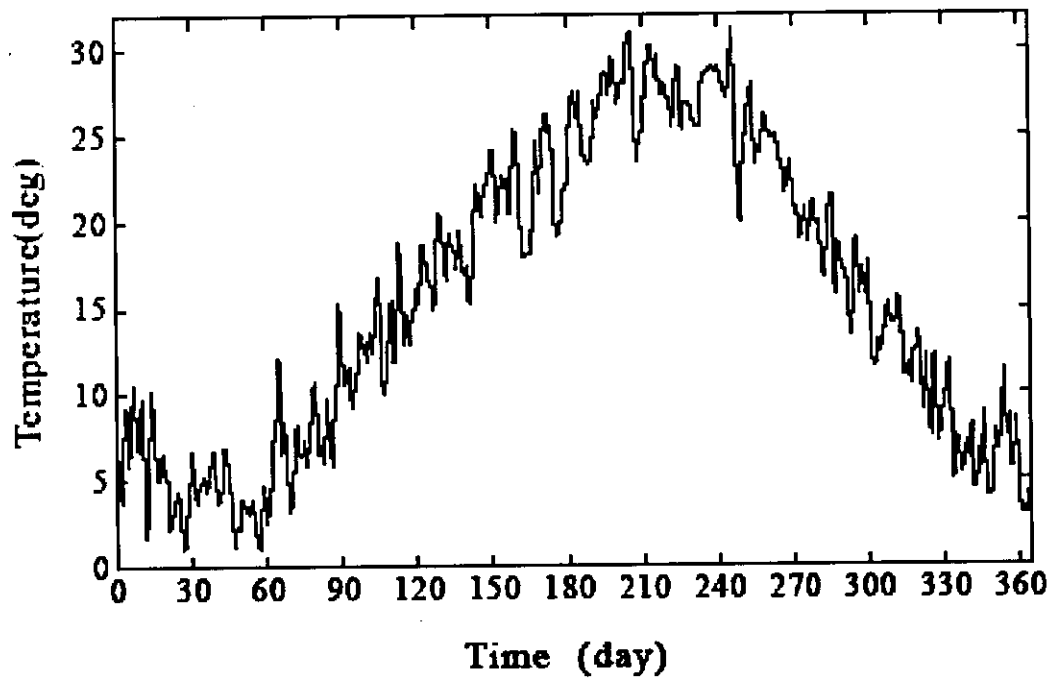


図 3.2 年間の日平均気温 (館林)

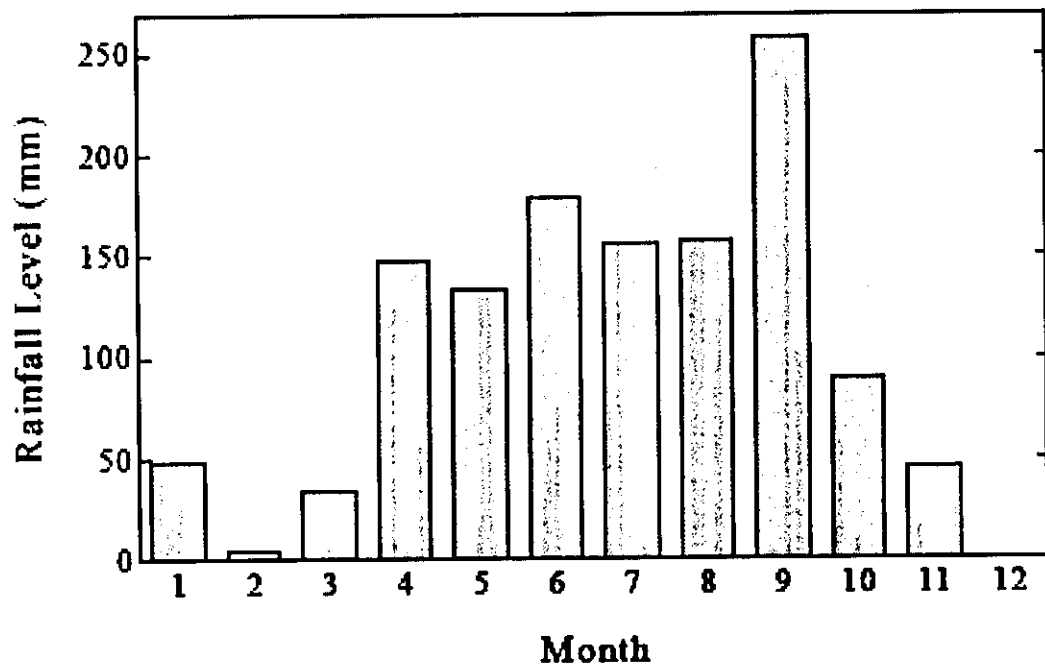


図 3.3 月間降水量 (館林)

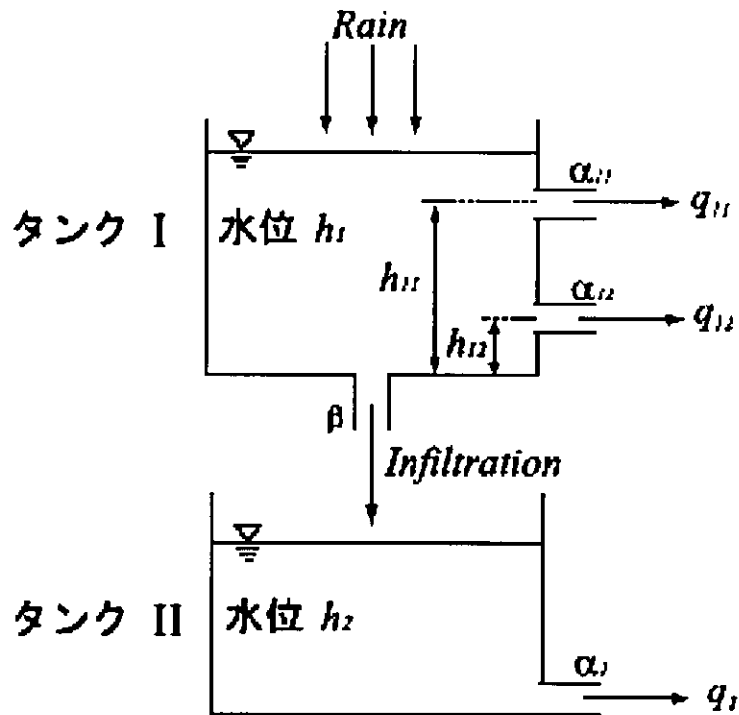


図 3.3 貯留モデルの概略

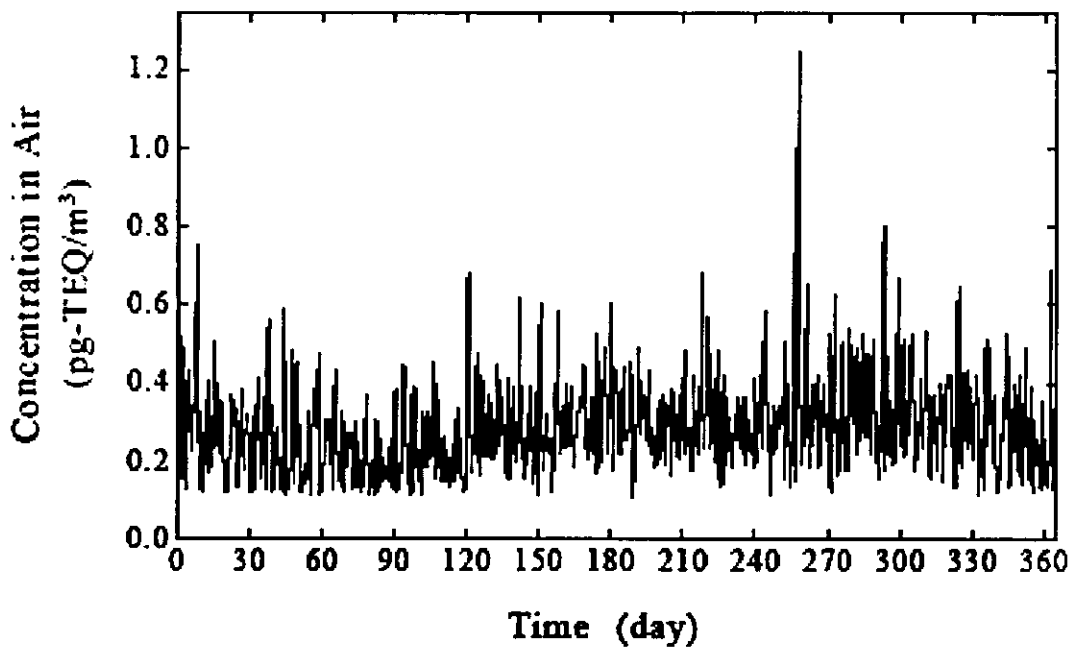


図 4.1 排出濃度が 124.5 pg-TEQ/m<sup>3</sup> の場合の年間の大気中濃度

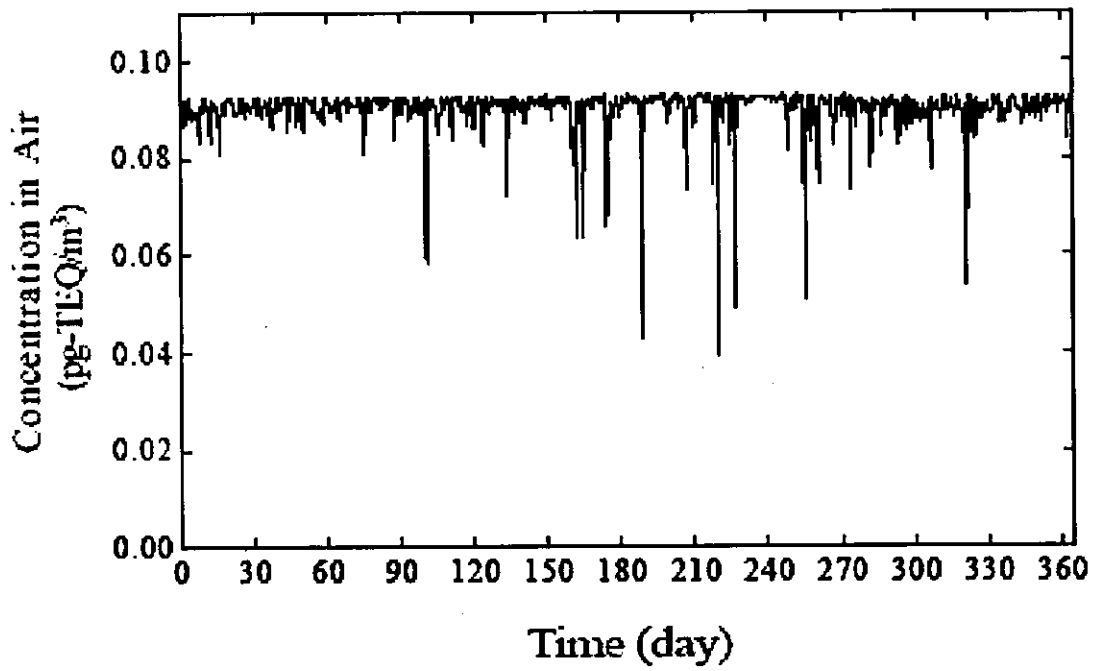


図 4.2 排出濃度が 1 pg-TEQ/m<sup>3</sup> の場合の年間の大気中濃度

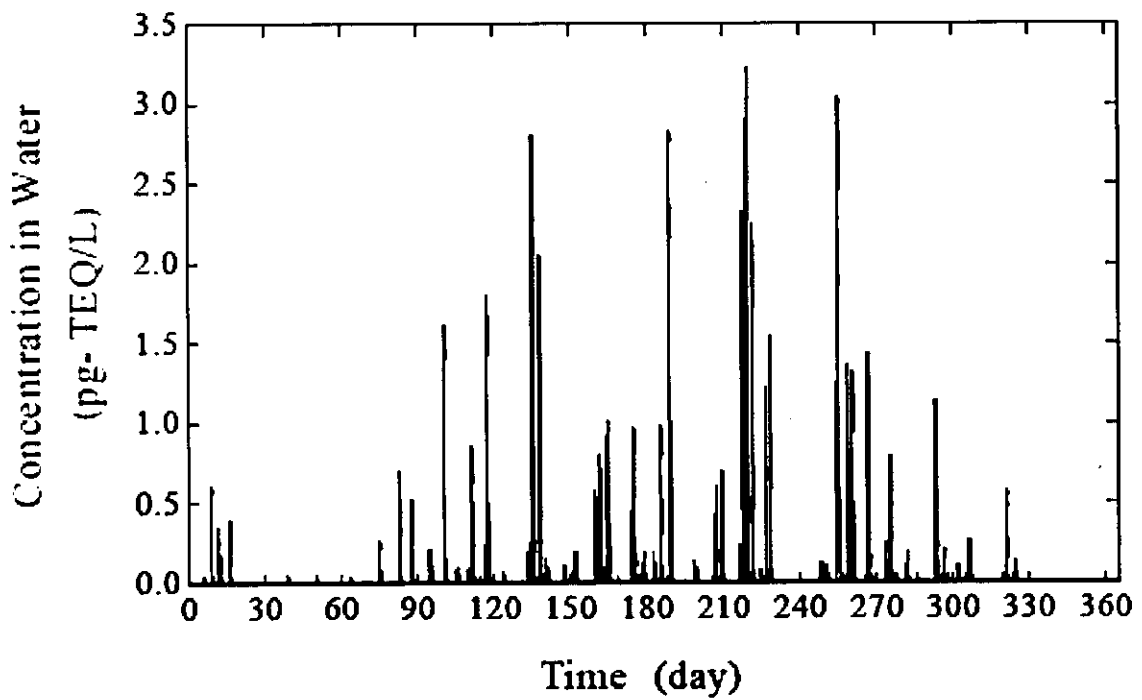


図 4.3 多々良沼における水中の日平均濃度の変化

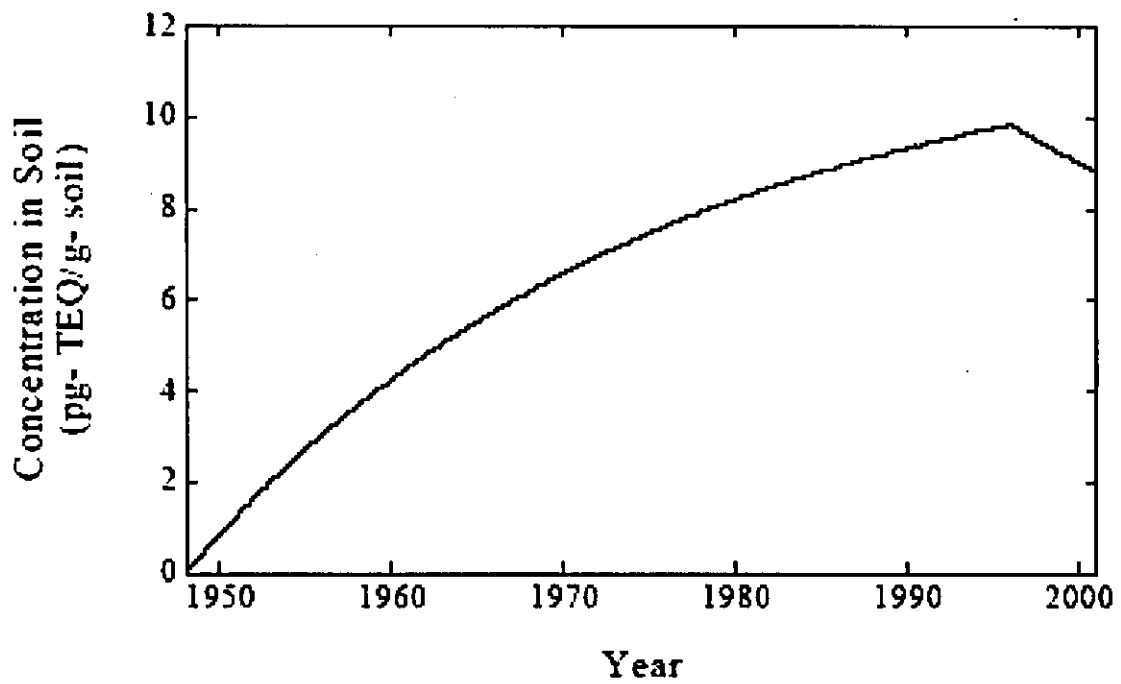


図 4.4 土壤中濃度の経年変化

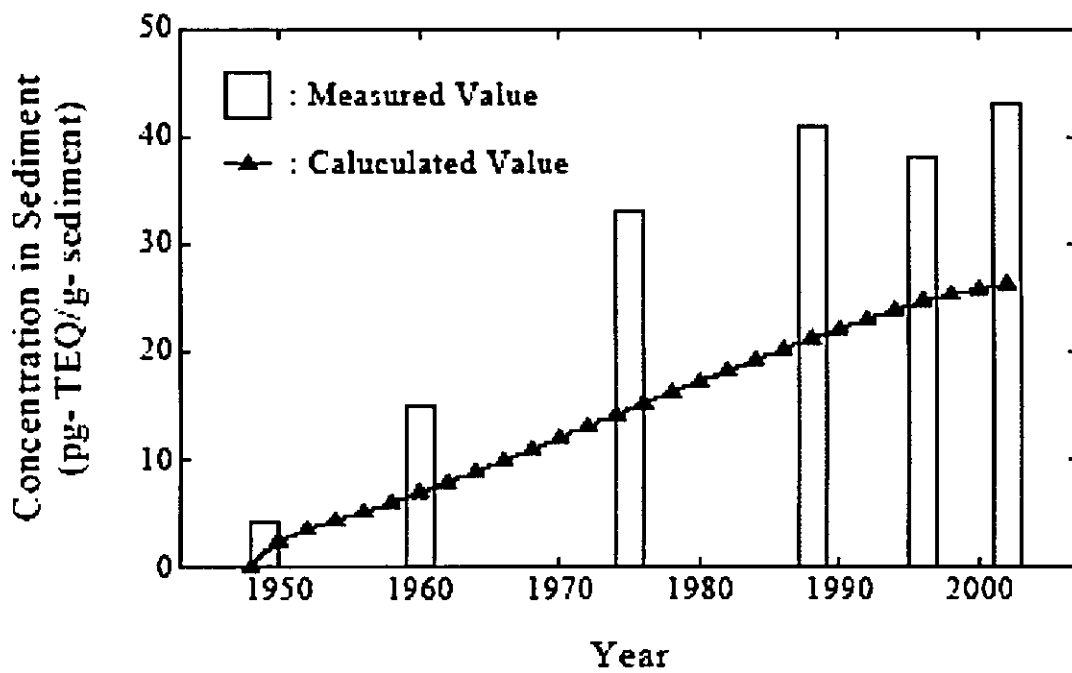


図 4.5 底質中濃度の実測値と計算値

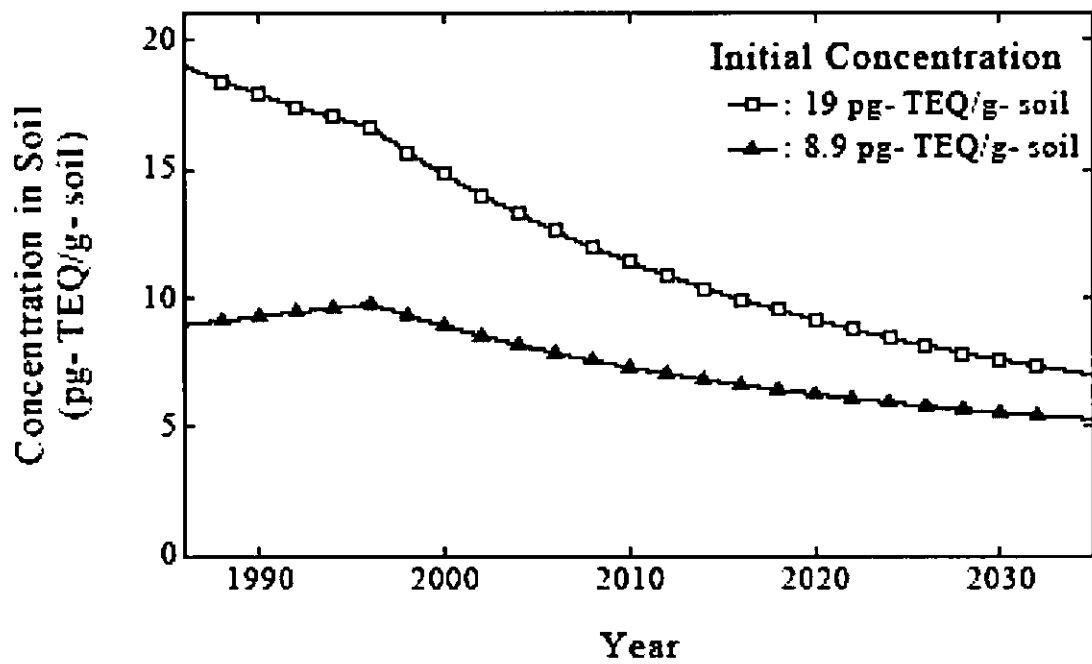


図 4.6 土壌中濃度の将来予測

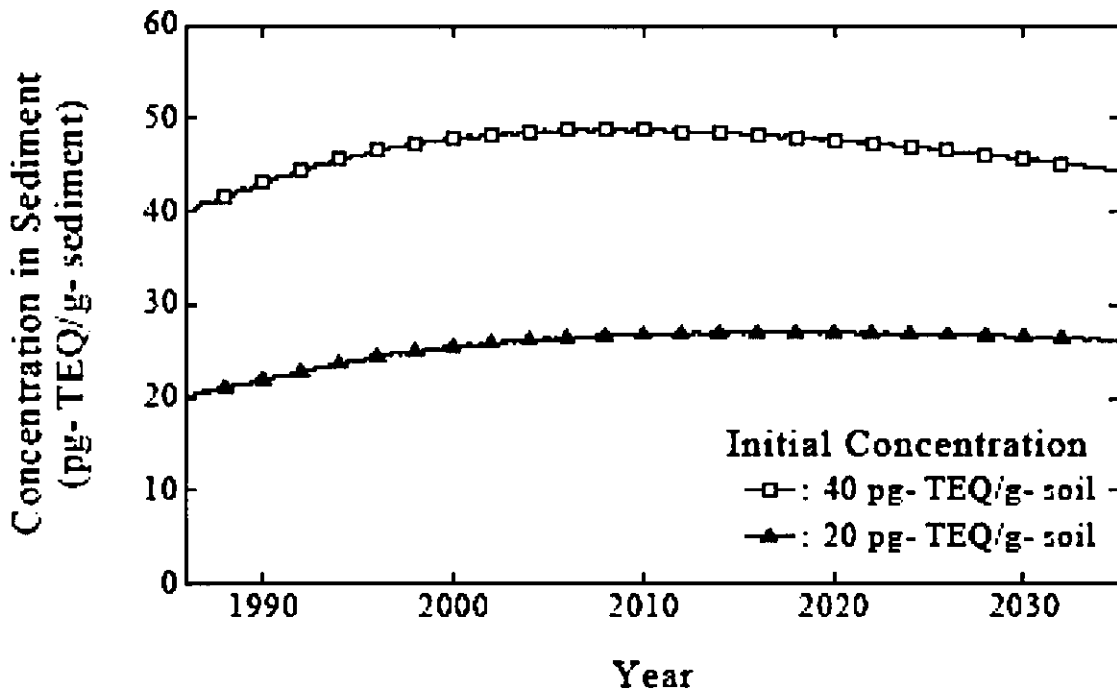


図 4.7 底質中濃度の将来予測

表 3.1 水域に関するデータ

水深 (m)	面積 (km <sup>2</sup> )	流域面積 (km <sup>2</sup> )	SS 濃度 (mg/L)	非降水時の流入量 (m <sup>3</sup> /h)	浮遊物質の沈降速度 (g/cm <sup>2</sup> /year)
1.0	0.83	16	26	1.0×10 <sup>3</sup>	0.83

表 3.2 環境媒体に関するパラメータ

項目	単位	値
大気境界層厚さ	m	500
土壌深さ	m	0.05
水域の深さ	m	1.0
土壌密度	kg/m <sup>3</sup>	1500
底質密度	kg/m <sup>3</sup>	1500
TSP 濃度	10 <sup>-6</sup> g/m <sup>3</sup>	50
土壌中の有機炭素の比率	-	0.024
SS 中の有機炭素の比率	-	0.04
底質中の有機炭素の比率	-	0.04
土壌中の気相の比率	-	0.2
土壌中の水相の比率	-	0.4
底質中の間隙率	-	0.7
SS 濃度	mg/L	26
河川の基底流入量	m <sup>3</sup> /h	1000

表 3.3 焼却発生源からの PCDDs, PCDFs の TEQ 寄与率 (%)

PCDDs	寄与率 (%)	PCDFs	寄与率 (%)
TCDD	1.48	TCDF	2.60
PeCDD	15.0	PeCDF	33.5
HxCDD	7.68	HxCDF	31.8
HpCDD	3.02	HpCDF	3.84
OCDD	0.08	OCDF	0.04

表 3.4 乾性沈着速度定数と洗浄比

	$V_p$ (cm/s)	$V_g$ (cm/s)	$W_p$ $\times 10^3(-)$	$W_g$ $\times 10^3(-)$
TCDD	0.72	0.05	100	1.3
PeCDD	0.34	0.05	48	1.8
HxCDD	0.17	0.05	32	2.2
HpCDD	0.17	0.05	34	2.4
OCDD	0.22	0.05	42	3.1
TCDF	1.20	0.05	120	2.6
PeCDF	0.53	0.05	55	3.4
HxCDF	0.32	0.05	38	4.4
HpCDF	0.33	0.05	48	5.3
OCDF	0.67	0.05	74	4.7

表中の数値はすべて 25 °C における値である

表 3.5 ダイオキシン類の分解速度定数

	$k_{air}$ $\times 10^{-3}$ (1/day)	$k_{soil}$ $\times 10^{-5}$ (1/day)	$k_{water}$ $\times 10^{-4}$ (1/day)	$k_{sediment}$ $\times 10^{-5}$ (1/day)
TCDD	20.0	20.0	20.0	10.0
PeCDD	11.0	11.0	11.0	5.50
HxCDD	6.30	6.30	6.30	3.20
HpCDD	3.60	3.60	3.60	1.80
OCDD	2.00	2.00	2.00	1.00
TCDF	20.0	20.0	20.0	10.0
PeCDF	11.0	11.0	11.0	5.50
HxCDF	6.30	6.30	6.30	3.20
HpCDF	3.60	3.60	3.60	1.80
OCDF	2.00	2.00	2.00	1.00

表 3.6 ダイオキシン類の物性値

	$M$ g/mol	$S_w$ mol/L	$P_s^*$ Pa	$T_m$ °C	$\log(K_{oc})$ °C
TCDD	321.97	$2.50 \times 10^{-10}$	$5.80 \times 10^{-7}$	305.5	5.52
PeCDD	356.42	$3.30 \times 10^{-10}$	$5.80 \times 10^{-8}$	240.0	5.91
HxCDD	390.86	$1.12 \times 10^{-11}$	$9.10 \times 10^{-9}$	264.5	6.30
HpCDD	425.31	$5.64 \times 10^{-12}$	$2.50 \times 10^{-9}$	264.5	6.69
OCDD	459.75	$1.60 \times 10^{-13}$	$2.50 \times 10^{-9}$	325.5	7.08
TCDF	305.98	$1.55 \times 10^{-9}$	$3.30 \times 10^{-6}$	227.5	5.20
PeCDF	340.42	$7.85 \times 10^{-10}$	$3.30 \times 10^{-7}$	211.8	5.59
HxCDF	374.87	$2.49 \times 10^{-11}$	$2.40 \times 10^{-8}$	237.3	5.98
HpCDF	409.31	$3.75 \times 10^{-12}$	$4.70 \times 10^{-8}$	229.0	6.37
OCDF	443.76	$2.96 \times 10^{-12}$	$4.70 \times 10^{-9}$	259.0	6.75



表 4.1 大気中濃度に対する発生源の寄与率

	年間平均濃度 (pg-TEQ/m <sup>3</sup> )	寄与率 (%)
全体	0.29	100
バックグラウンド	0.088	30
ごみ処理施設由来	0.20	70

表 4.2 ダイオキシン類測定結果  
PCDDs + PCDFs (pg-TEQ/g-soil)

平均値	19
標準偏差	16
中央値	15
範囲	5.1 ~ 75

表 4.3 底質中ダイオキシン類測定結果

堆積年代	1949	1960	1975	1988	1996	2002
PCDDs + PCDFs(pg-TEQ/g)	4.2	15	33	41	38	43

# 悪性新生物死亡の超過リスクの統計的評価に関する研究

## (化学物質リスク研究事業) 分担研究報告書

研究者 丹後俊郎 国立保健医療科学院技術評価部長

研究者 谷畑健生 国立保健医療科学院疫学部主任研究官

研究者 藤田利治 国立保健医療科学院疫学部室長

研究者 簗輪真澄 国立保健医療科学院疫学部部長

研究要旨：ごみ焼却施設周辺について、市区町村毎の40-81歳、21年間の死亡データを3歳・3年に分類し、そこで得られる8つのコホートについて死亡率の経年変化を表現するポアソン回帰モデル（経年変化の傾きがコホート効果とごみ焼却施設からの距離に比例する成分との和と仮定したモデルで、もしごみ焼却施設からのダイオキシン類の影響があるとすれば超過リスクは距離に比例する項の係数 $\beta$ が負の値をとる）を適用した。51施設それぞれで推定された超過リスクの推定値を変量効果モデルのメタ・ナリシスにより超過リスクの統合推定値を求めた。結果は、全悪性腫瘍、胃がん結腸がん、肝がん、鼻腔・中耳の悪性新生物、副鼻腔の悪性新生物、上咽頭の悪性新生物、喉頭の悪性新生物、肺・気管支の悪性新生物、膀胱がん、軟部悪性新生物、悪性リンパ腫、多発性骨髄腫、白血病の13死因すべてにおいて、超過リスクがゼロである仮説を棄却できず、有意な超過リスクは検出されなかった。

### A. 研究目的

ダイオキシン類の健康影響として欧米でその影響が示唆されている悪性新生物死亡への超過リスクを人口動態死亡票を利用した日本で初めての大規模後ろ向きコホート研究により推定し、その健康影響を評価する。

### B. 研究方法

#### B-1. 研究対象とデータ

前年度までの研究において、以下の準備を行ってきた。

1. 全国のごみ焼却施設の中から、厚生省が平成9年4月に緊急対策の判断規準として示した「排煙1立方メートル当たり80ng-TEQを越えた施設」の中から51施設を選定した。
2. それぞれのごみ焼却施設周辺の半径20kmの同心円内とその境界に位置する920市区町村を選定した。
3. 本研究で選定されたごみ焼却施設の操業開始時点が1970年代後半から1980年代前半に集中しているので、調査対象地域の悪性新生物死亡の追跡期間として、1980年から2000年までの過去21年間とした。
4. 1980年から2000年までの過去21年間の13死

因の悪性新生物死亡データを人口動態死亡死亡票を申請により取得した。

#### B-2. データの編集

人口動態死亡票を利用して「出生コホート」として解析できるように再編集する方法の一つとして、表1のように「年齢階級3歳、期間3年」でデータを分類する。このようにすることにより「3歳、3年」のセルで定義される同一出生時期をもつ「8つの異なるコホート」が上図のようにA, B, C, …Hと生成され、それぞれのコホートが7期間現れることになる。

次に、国勢調査人口データ（1980年から2000年までの5年毎の国勢調査のデータ、5歳階級）を利用した3歳3年へのデータの再編集の方法については次の方法を採用する。

第 $i$ 年齢階級の記号を $a(i), i = 1, \dots, I$ 、第 $j$ 年の記号を $y(j), j = 1, \dots, J$ とする。例えば $a(i) = 40, 45, 50, \dots$ であり、 $y(i) = 1980, 1985, 1990, \dots$ である。そうすると、現在入手している国勢調査の $y(j)$ 年の5歳階級の人口データは $N_{a(i), y(j)}, (i = 1, \dots, I; j = 1, \dots, J)$ と表現できる。以下の計算は、まず、1年1歳毎の人口 $n_{a(i)+k, y(j)+m}, (k, m = 1, 2, 3, 4)$ の推定方法である。それにより、3年3歳の集計が可能となる。

1.  $N_{a(i),y(j)+m}$ , ( $m = 1, 2, 3, 4$ ) の計算

線形補間により求める。つまり、

$$N_{a(i),y(j)+m} = N_{a(i),y(j)} + mQ$$

$$(m = 1, 2, 3, 4)$$

ここに

$$Q = \left( \frac{N_{a(i),y(j+1)} - N_{a(i),y(j)}}{5} \right).$$

2.  $n_{a(i)+k,y(j)+m}$ , ( $k, m = 1, 2, 3, 4$ ) の計算

5歳階級の人口は、ちょうど中央の年齢（例えば、5-9歳階級であれば、中央は7歳）に「5分の1」を配分し、その他の年齢の人口は中央の年齢を基点とした線形補間により求める。つまり、ある  $m (= 1, 2, 3, 4)$  に対して

$$n_{a(i)+2,y(j)+m} = N_{a(i),y(j)+m}/5$$

$$n_{a(i)+2+k,y(j)+m} = n_{a(i)+2,y(j)+m} + kR$$

$$(k = 1, 2, 3, 4)$$

ここに

$$R = \left( \frac{n_{a(i+1)+2,y(j)+m} - n_{a(i)+2,y(j)+m}}{5} \right).$$

B-3. 解析方針

超過リスク推定の基本的な考え方は、1) ダイオキシン類への曝露量はごみ焼却施設からの距離に反比例する、2) ある一定期間に発生した疾病の発生率の経年的変動の傾きはダイオキシン類の曝露量に比例する、という仮定をおき、ごみ焼却施設周辺の悪性新生物死亡の経年的推移の変化とごみ焼却施設からの距離との関連性を、ごみ焼却施設別に、周辺市区町村の全年齢層の21年間の3歳3年で再編集されたヒストリカル・コホートデータに基づいて、出生コホートの効果を調整したプロスペクティブな Poisson 回帰モデルで検討した。

B-4. 統計モデルと解析手順

以下は、焼却施設  $k (= 1, \dots, K)$  の周辺についての議論であるが、特に焼却施設に番号はつけないで説明する。ごみ焼却施設周辺に  $m$  個の市区町村（以下、地区と呼ぶ）があり、各地区の住民は表1に示すように追跡開始年齢に基づいて  $C$  個のコホートから構成されているとする。第  $i (= 1, \dots, m)$  地区、第  $j (= 1, \dots, C)$  コホート、第  $t (= 1, \dots, T)$  年において、ある悪性新生物による死亡数は Poisson 分布にしたがう確率変数

$D_{ijt}$  と考えられる。ここでその観察死亡数を  $d_{ijt}$  とし、その合計を  $d = \sum_{ijt} d_{ijt}$  としよう。また、 $n_{ijt}$  を人年としよう。さて、なんらかの時間的あるいは空間的変動があるという簡単で自然なモデルは以下に示す対数線形モデルである。

手順 1.1: 施設毎の解析

(a) 次の Model 1 を適用する

$$\log E(D_{ijt}) = \log n_{ijt} + \xi_{ij} + \tau_{ij}t$$

ここで、 $\xi_{ij}$  は  $y$  切片、 $\tau_{ij}$  は時間的変動の傾きである。それぞれのパラメータは次のようにモデル化できる。

$$\xi_{ij} = \alpha_i + \gamma_{0j}$$

$$\tau_{ij} = \theta_i + \gamma_{1j}$$

したがって、Model 1 は次のようになる。

$$\log E(D_{ijt}) = \log n_{ijt} + \alpha_i + \gamma_{0j} + (\theta_i + \gamma_{1j})t$$

(b) Model 1 の推定値のプロットを行う。

地区  $i$  の傾きの推定値  $\hat{\theta}_i$  を  $y$  軸に、施設からの距離（単位、km） $x_i$  を  $x$  軸に、かつ、その単純回帰直線 ( $\theta = a + bx$ ) を描く。なお、 $\{(\hat{\theta}_i, x_i), i = 1, \dots, m\}$  のデータはファイルに保存する。

(c) Model 2 を適用する。

各地区に依存した傾き  $\theta_i$  については主に、焼却施設からのダイオキシン類への曝露量に比例するというモデルを考え、さらに、曝露量は観測できないものの、それは、焼却施設までの距離に反比例するという Model 2 を導入する。つまり、

$$\theta_i \approx a_1 + b_1(\text{曝露量}) \approx a_2 - b_2(\text{距離})$$

$$= \eta + \beta x_i$$

こうすると、Model 2 は

$$\log E(D_{ijt}) = \log n_{ijt} + \alpha_i + \gamma_{0j}$$

$$(\gamma_{1j} + \eta + \beta x_i)t$$

となる。この Model 2 では、超過リスクに関するパラメータは傾き  $\beta$  となり、興味ある帰無仮説は

$$H_0 : \beta = 0, H_1 : \beta < 0 \quad (1)$$

となる。

手順 1.2: 全焼却施設でのメタ・アナリシス

手順 1.1 を施設毎に繰り返し、第  $k$  焼却施設周辺のデータで得られた推定値  $\hat{\beta}_k, k = 1, \dots, K$  を利用し、メタ・アナリシスの手法 ((1) 母数モデル、(2) 変量モデル) を利用して全国の超過リスクの推定を行う。そのために、推定値と標準誤差  $\{(\hat{\beta}_k, SE(\hat{\beta}_k)), k = 1, \dots, K\}$  をファイルに保存し、メタアナリシス用の図を作成。

### C. 研究結果

表 2 に研究対象とした全国 51 焼却施設、その半径 20km 圏内の市区町村のリストを挙げた。また、図 1 にはその所在地の地図を示した。表 3 には、重複を許して (ある市区町村は複数のごみ焼却施設から半径 20km 圏内にある) 延べ 1170 施設のリストを掲載した。表 4 には、施設番号 1 の半径 20km 圏内にある 10 市区町村毎の「年齢階級 3 歳、期間 3 年」でのデータの編集の例を全悪性腫瘍死亡で示した。図 2 には、全悪性新生物死亡について、焼却施設毎に Model 1 での地区  $i$  の傾きの推定値  $\hat{\theta}_i$  を  $y$  軸に、施設からの距離 (単位、km)  $x_i$  を  $x$  軸に、その単純回帰直線 ( $\theta = a + bx$ ) を描した。この傾き  $b$  が負であれば超過リスクが示唆される。表 5 にはごみ焼却施設毎の傾き  $b$  の推定値と、 $p$  値を示した。図 3、表 6 には悪性リンパ腫について同様の結果が示されている。最終的にこれらの結果のメタアナリシスの結果を図 4 に 13 死因について示した。図 4 の左は funnel plot、図 4 の右はメタアナリシスの結果であり、個々の施設毎の推定値、95%信頼区間、母数モデル、変量モデルでの統合値を示す。13 死因いずれも有意な結果は得られなかった (表 7 参照)。

### D. 考察

本研究の目的は、全国にある中規模以上の焼却施設周辺における住民への健康影響、特に、ダイオキシン類の健康影響として欧米でその影響が示唆されている悪性新生物死亡について、これらの超過リスクが焼却施設から排出されるダイオキシン類との関連で現在までにどの程度であるのかを疫学研究により解明する点にあった。本研究で調査対象とした地域は、もしダイオキシン類の影響があるとすればそのリスクが高いと想定される地域、すなわち、平成 9 年に厚生省が公表した排ガス中ダイオキシン類濃度が緊急対策の判断基準を超えた 51 箇所のごみ焼却施設周辺地域であった。これらのハイリスク想定地域において悪性新生物 13 死因すべてにおいて統計学的に有意な超過リスクが観察されなかったという結果

は、日本の他の地域における健康影響はより小さいことを示唆するものであり、したがって、少なくとも大騒ぎをするほどの健康影響はこれまでは観察されなかったと推定できる。

しかし、ごみ焼却施設周辺のダイオキシン類濃度の分布が本研究で調査した 3 施設ともその周辺の土壌中の最大濃度は焼却施設から 1-2km の付近で観察されている。この結果は、1) 焼却施設の煙突から排出される粉塵による最大着地濃度は風の影響にもよるが 1-2km 付近で最大となるシミュレーション結果と一致している、2) ごみ焼却施設周辺の土壌中のダイオキシン類濃度がそれほど高値を示すものではないものの、施設周辺は施設から遠い地域に比較するとダイオキシン類への曝露が大きいことを示唆している、等のダイオキシン類の健康影響を考える上では、興味深い結果が得られている。

ただ、同時に本研究の弱点についても言及しなければならない。その最大のポイントは 1) ごみ焼却施設周辺の詳細な曝露情報がないこと、また、2) 人口動態統計調査票を利用しているため、個人個人の交絡因子の調整には限界があること、などである。曝露情報の欠如により、ダイオキシン類の曝露がごみ焼却施設からの距離に依存するという仮説に基づいた本研究の結果は将来へ向けたダイオキシン対策と継続的な調査研究の必要性を示唆していると言える。つまり、本研究は 1980-2000 年の過去 21 年間の悪性新生物死亡率の経年変化を検討したものであり、曝露から悪性新生物の発現までの潜伏期間の長さが未知であり、超過リスクを十分に検出できるほどの sample size を有しているわけではない。したがって、本研究の結果の妥当性・再現性をチェックし、更なる健康影響に関するエビデンスを獲得するためには本研究と同様の疫学研究の継続と、新たに、ごみ焼却施設の稼働前、稼働後の健康指標の変化を評価できるコホート研究などの縦断的研究が強く求められる。英国では同様のごみ焼却施設周辺の悪性新生物死亡に関する疫学調査が実施されている。

本研究は平成 11-13 年度生活安全総合研究事業「ごみ焼却施設周辺におけるダイオキシン汚染に起因する周産期の健康影響に関する疫学研究」(主任研究者: 上畑鉄之丞) を発展させたもので、焼却施設周辺の焼却施設が稼働する前後から約 20 年間にわたる悪性新生物死亡状況を後ろ向き出生コホートの形で詳細に分析する点に焦点をあてた世界で初めての後ろ向きコホート研究である。この結果は、世界で初めての大規模コホート調査で得られた疫学的証拠であり、