

Third, we shall apply the proposed procedure of combining adjacent small areas by setting that the maximum number of zones is equal to  $K = 15$ . For example, when the study area was divided into  $k = 7$  zones, the annual estimate of relative risk ( $\circ$ ) and the trend in the estimated relative risks over five years (solid line) based upon the model

$$\log(\theta'_{jt}) = \eta_{0j} + \eta_{1j}t, \quad (j = 1, \dots, 7).$$

were shown in each of seven zones in Figure 3. Dashed line indicates the line where the relative risk is equal to 1.0. Zone 1 shows a clear increasing trend. Zone 2 also shows a little bit increasing temporal trend. Temporal trend in zone 7 is seen to be almost parallel to the horizontal line. Estimated parameters ( $\pm$  S.E.) of the proposed model (11) are as follows:  $\hat{\gamma}' = -0.0628(\pm 0.037)$ ,  $\hat{\beta}' = 1.245(\pm 0.425)$ . Figure 4 shows the relationship between distance  $d'_j$  and the estimated slopes  $\hat{\eta}_{1j}$ . A decreasing curve  $\hat{\gamma}' + \hat{\beta}'/d'_j = -0.0628 + 1.248/d'_j$ , estimated from the model (11) was also imposed (dotted line). This result suggests that the slopes of relative risk trend are inversely related to the distance from the nuclear power plants. The deviance was 19.86 with 26 degrees of freedom. The likelihood ratio test for  $H_0 : \beta' = 0$  gives us  $p$ -value = 0.00327. Individual results for each  $k (= 3, \dots, 15)$  was summarized in Table 2. The profile  $p$ -value of LRT for  $k$  is shown in Figure 5 and we found that  $P_{min} = 0.00327$  at  $k = 7$ . This  $p$ -value is the ninth-largest among 999  $P_{min}$ 's calculated by Monte Carlo permutations of distances. Therefore, the adjusted  $p$ -value of  $P_{min} = 9/(999 + 1) = 0.009$ , indicating a significant increasing trend of perinatal deaths around the nuclear power plants.

The results of application to perinatal data are summarize as 1) The spatial consideration could not detect any clustering of perinatal deaths around the nuclear power plants, but 2) The proposed space-time model suggested the recent increase of perinatal deaths around the nuclear power plants in Japan.

Needless to say, the observed association of recent increase of perinatal deaths with distance from nuclear power plants cannot demonstrate causality since several limitations in the data and methods need to be considered. We assumed that a risk of exposure existed if a woman lived in proximity to nuclear power plants at the time she delivered. However, we had no information on each mother's actual exposure to nuclear power plant and her duration of exposure before delivery. Furthermore, maternal address listed on the birth, foetal and death certificates may not be an accurate measure of exposure. The residence at delivery for the mother may not be the residence of the mother during her first trimester which was considered as the period of greatest concern with respect to chemical exposure. Furthermore, no information was available regarding relative mobility of pregnant women around nuclear power plants, e.g., migration of mothers away from nuclear power plants and migration toward nuclear power plants of unexposed mothers. Recent data on mobility during pregnancy suggest that approximately 20 percent of mothers move between the time of conception and birth (Khoury M. *et al.*, 1988). Misclassification of mother's residential exposure due to these imprecise information would be nondifferential and would lead to bias toward the null.

However, we may have a different explanation that if the rates of migration of mothers with relatively high socioeconomic status away from the vicinity of nuclear power plants were recently increasing, we might have a similar association observed in our analysis. Another different story could be produced by socioeconomic status of household that we could not include in the analysis. Because of chosen or imposed circumstances, people

living near nuclear power plants could be subject to social disadvantages. Especially, it is well known that the socioeconomic status of women has a predictive value for low birthweight. It seems to me, however, that recent increase of migration of mothers with relatively high socioeconomic status away from nuclear power plants are unlikely and also socioeconomic difference among people in Japan is not so large as those observed in foreign countries.

## 5 Discussion

In this paper, we proposed a simple space-time model to detect excess risks around putative sources in which the slope of the log-linear trend in mortality (or relative risk) is inversely proportional to the distance from the point source. Further, to cope with longitudinal data with many zero counts per small area, we proposed a simple and easy-to-interpret procedure of combining adjacent small areas, which is free from subjective amalgamation of small areas and from multiple testing problems by searching optimal "quantiles" for combining regions.

Regarding the function of surrogate for the exposure,  $g_i(t, d_i)$ , we considered a very simple form  $\tau/d_i$  among those which is inversely related to distance  $d_i$  from a point source and constant over time. Of course, we can consider several other time-dependent non-increasing exponential functions but we face more difficult estimation problems, i.e., estimability of parameters. Bithell *et al.*(1994) and Bethell(1995) proposed the use of reciprocal of distance rank instead of the reciprocal of distance in his spatial linear risk score test since the former has the advantage that it is less dependent on population distribution.

Combining adjacent small areas assumes that there exist similar exposure pattern in the past and similar mortality trend in time among small areas to be combined. However, due to many zero counts we cannot examine this sort of homogeneity among small areas. In this sense, the proposed procedure might have an undesirable risk of eliminating the *differences* existed among small areas to be combined.

Further, these procedures still belong to the category of the simplest formulation, i.e., *distance-only analysis*. Some epidemiologists disagree on this approach on the ground that it obviously oversimplifies the spatial factors of the aetiology. Nonetheless, in the absence of detailed 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.

If the main directions of wind rose around the point source is another important factor and we could obtain a reliable data on the frequency distribution of wind directions around the point source over several years,  $f(\phi_i)$  where  $0 \leq \phi_i < 360^\circ$  denotes the angle of the  $i$ th small area measured from some standard direction, then we can consider the following model instead of (3)

$$\begin{aligned} \log(\theta_{it}) &= h_i(t) + \log \left( 1 + \epsilon \int_{\alpha_i}^t g_i(u, d_i, \phi_i) du \right) \\ &\approx \alpha_i + (\gamma + \beta f(\phi_i)/d_i)t. \\ &\quad (i = 1, \dots, m, t = 1, \dots, T) \end{aligned}$$

When we consider this model in the case where there are so many zero counts, then the proposed minimum search procedure in section 3.2 can be applied by using "k-tile" of  $f(\phi_j)' / d'_j$ , not  $d'_j$ .

## References

- Bithell, J.F., Dutton, S.J., Draper, G.J. and Neary, N.M. (1994) Distribution of childhood leukaemias and non-Hodgkin's lymphomas near nuclear installations in England and Wales. *British Medical Journal*, **309**, 501-505.
- Bithell, J.F. (1995) The choice of test for detecting raised disease risk near a point source. *Statistics in Medicine*, **14**, 2309-2322.
- Diggle, P.J. (1990) 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.
- Diggle, P.J. and Rowlingson, B.S. (1994) A conditional approach to point process modelling of elevated risk. *Journal of Royal Statistical Society, Series A*, **157**, 433-440.
- Diggle, P.J., Morris, S., Elliott, P., Shaddick, G. (1997) Regression modelling of disease risk in relation to point sources. *Journal of Royal Statistical Society, Series A*, **160**, 491-505.
- Dolk H, Shaddick G, Walls P, Grundy C, Thakrar B, Kleinschmidt I and Elliott P (1997) Cancer incidence near radio and television transmitters in Great Britain. I. Sutton Cordfield Transmitter. *Am J Epidemiol*, **145**, 1-9.
- Dolk H, Elliott P, Shaddick G, Walls P and Thakrar B. (1997) Cancer incidence near radio and television transmitters in Great Britain. II. All high power transmitters. *Am J Epidemiol*, **145**, 10-17.
- Elliott, P., Shaddick, G., Kleinschmidt, I, Jelly, D., Walls, P., Beresford, J. and Grundy, C. (1996) Cancer incidence near municipal solid waste incinerators in Great Britain. *British Journal of Cancer*, **73**, 702-710.
- Khoury M, Stewart W, Weinstein A, et al. (1988) Residential mobility during pregnancy: implications for environmental teratogenesis. *J Clin Epidemiol*, **41**, 15-20.
- Lawson, A.B. (1993) On the analysis of mortality events associated with a prespecified fixed point. *J. R. Statist. Soc. A*, **156**, 363-377.
- Stone, R.A. (1988) Investigation of excess environmental risks around putative sources: statistical problems and a proposed test. *Statistics in Medicine*, **7**, 649-660.
- Statistics and Information Department (1995-1999), Ministry of Health and Welfare. *Vital Statistics of Japan-Volume 2*.
- Tango, T. (1994) Effect of air pollution on lung cancer: a Poisson regression model based on vital statistics. *Environmental Health Perspectives*, **102**(Suppl 8), 41-45.
- Tango, T. (1995) A class of tests for detecting 'general' and 'focused' clustering of rare diseases. *Statistics in Medicine*, **14**, 2323-2334.

Tango, T.(2002) Score tests for detecting excess risks around putative sources. *Statistics in Medicine*, **21**, 497-514.

Waller, L.A., Turnbull, B.W., Clark, L.C., Nasca, P.(1992) 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.

Table 1. A part of the data set described in section 2.

Area No	Observed					Expected					Distance (km)
	Number of perinatal deaths 1995	1996	1997	1998	1999	Number of perinatal deaths 1995	1996	1997	1998	1999	
1	1	0	0	0	0	.11	.09	.10	.07	.11	3.17
2	0	0	0	0	0	.12	.19	.17	.16	.10	27.48
3	1	0	0	0	1	.50	.48	.54	.53	.47	10.30
4	2	0	0	0	3	1.21	1.10	.89	.84	.73	6.38
5	0	0	1	2	0	.42	.35	.41	.39	.28	6.08
6	1	1	0	0	1	.57	.50	.50	.47	.47	8.28
7	0	0	0	0	2	.51	.40	.44	.49	.48	5.75
8	0	0	0	0	1	.51	.43	.41	.52	.41	3.92
9	5	1	4	2	3	6.15	5.82	5.61	5.51	5.16	14.04
10	0	0	0	0	0	.23	.19	.12	.11	.11	11.66
11	0	0	0	1	0	.52	.50	.39	.35	.31	9.57
12	0	0	1	2	0	.97	.81	.83	.71	.82	7.37
13	1	0	0	0	2	.51	.45	.42	.41	.37	13.54
14	0	1	1	0	0	.29	.30	.19	.23	.31	14.59
15	1	0	1	1	0	.76	.74	.63	.63	.52	8.59
16	0	0	0	0	0	.42	.43	.36	.34	.24	4.24
17	0	0	0	1	1	.16	.15	.13	.09	.10	6.55
18	1	3	3	2	1	2.12	2.03	1.90	1.60	1.51	11.07
19	7	3	9	6	4	4.83	4.64	4.64	4.55	4.46	10.52
20	1	1	0	2	0	.36	.26	.24	.23	.21	16.48
21	0	0	0	0	0	.15	.13	.12	.10	.12	9.17
22	0	1	0	0	1	.69	.67	.59	.54	.53	11.36
23	1	1	3	3	5	1.06	.98	.84	.92	.93	5.38
24	1	0	2	3	2	.55	.55	.57	.43	.49	7.43
25	0	0	1	3	2	2.52	2.26	1.94	2.13	1.74	9.94
26	3	4	4	2	1	2.00	2.05	2.09	2.01	1.85	33.48
27	13	8	6	11	9	6.53	6.13	5.89	6.14	5.86	12.13
28	12	11	10	14	11	12.36	12.51	11.18	11.85	10.99	10.06
29	4	3	5	1	5	2.98	2.72	2.67	2.73	2.81	3.55
30	13	11	14	13	10	14.93	14.21	13.97	13.27	12.56	15.18
31	1	1	1	2	3	1.97	1.99	1.72	1.61	1.54	10.32
32	3	6	0	1	3	2.73	2.68	2.51	2.39	2.49	10.62
33	2	1	1	1	0	.96	.84	.73	.69	.65	16.36
34	2	0	0	0	0	.51	.39	.36	.37	.39	11.79
35	1	0	0	2	1	.60	.67	.53	.49	.55	4.58
36	3	2	1	3	0	1.39	1.36	1.15	1.07	1.18	3.02
37	0	6	3	2	0	1.70	1.55	1.34	1.30	1.19	8.52
38	0	0	2	1	1	.82	.84	.78	.65	.64	4.80
39	0	0	2	0	1	.62	.51	.55	.44	.50	3.53
40	1	1	1	1	2	.83	.83	.69	.65	.68	5.91
.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.
.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.
.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.
146	1	0	1	0	0	.57	.49	.52	.44	.43	22.79
147	2	1	1	0	1	.70	.67	.74	.59	.61	24.55
148	0	0	0	0	0	.36	.31	.24	.25	.17	22.84

Table 2: Results of the proposed iterative procedure applied to data on perinatal deaths around nuclear power plants in Japan

$k$	deviance	degrees of freedom	$\hat{\gamma}'$	$\hat{\beta}'$	$p(k)^*$
3	9.11	10	-0.0453	1.030	.0575
4	4.81	14	-0.0694	1.283	.00559
5	11.16	18	-0.0567	1.168	.00939
6	16.90	22	-0.0577	1.183	.00745
7	19.86	26	-0.0628	1.245	.00327
8	20.50	30	-0.0555	1.105	.00491
9	25.57	34	-0.0441	0.993	.0143
10	34.36	38	-0.0362	0.869	.0234
11	29.28	42	-0.0331	0.831	.0263
12	39.10	46	-0.0326	0.817	.0254
13	42.49	50	-0.0276	0.743	.0341
14	57.06	54	-0.0162	0.611	.0883
15	54.29	58	-0.0092	0.512	.141

\*  $p$ -value based on the likelihood ratio test for  $H_0 : \beta' = 0$

Legends for Figures:

- Figure 1 : Location of the 12 major nuclear power plants in Japan. Names of power plant company are indicated with the cite name in the parentheses.
- Figure 2 : Distance (km )from the nuclear power plants and prenatal death rates during 1995-1999 in the 148 municipalities in Japan. Several regression curves drawn are estimated by smoothing splines.
- Figure 3 : Trend in the estimated relative risk (solid line) in each of seven Zones ( $k = 7$ ) and the overall trend in the study area (dotted line).
- Figure 4 : Distance (km) from the nuclear power plants and the estimated slopes of seven independent log-linear trend model (11).
- Figure 5 : The profile  $p$ -value of likelihood ratio test for the hypothesis  $H_0 : \beta' = 0$  for  $k(= 3, \dots, 15)$ . The vertical line denotes the optimal  $k$  which attains the minimum of the profil  $p$ -value. The  $p$ -value of  $P_{min}$  was calculated by Monte Carlo repliactions of 999 random permulation of distances.



Figure 1



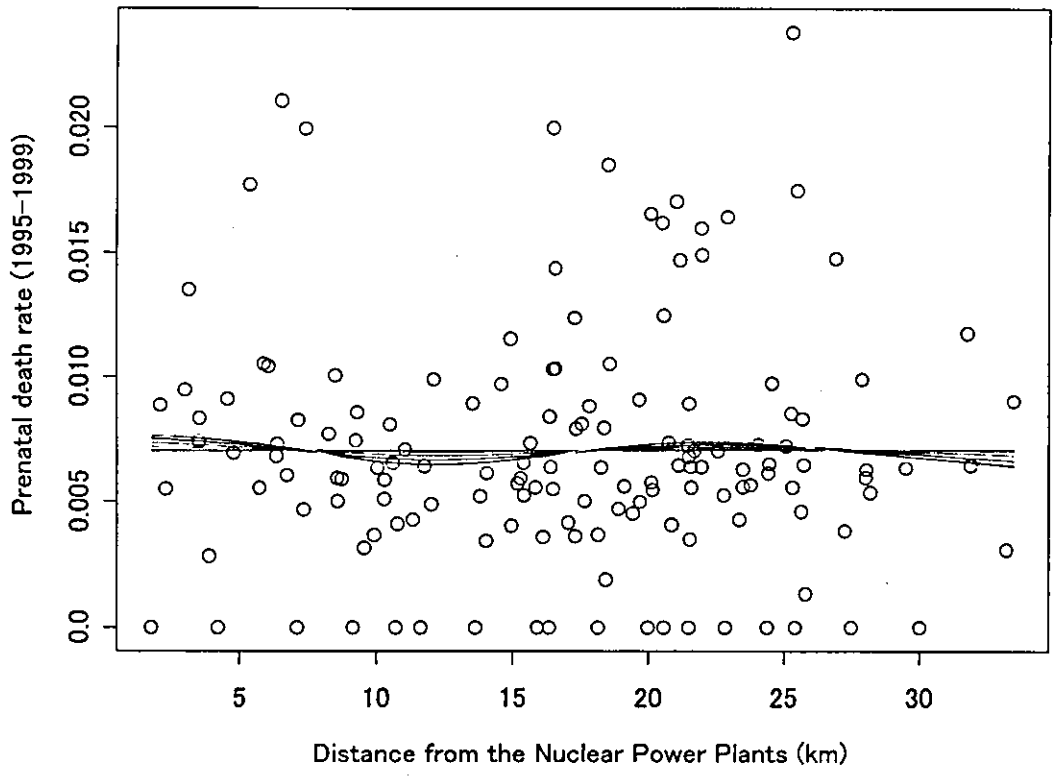


Figure 2

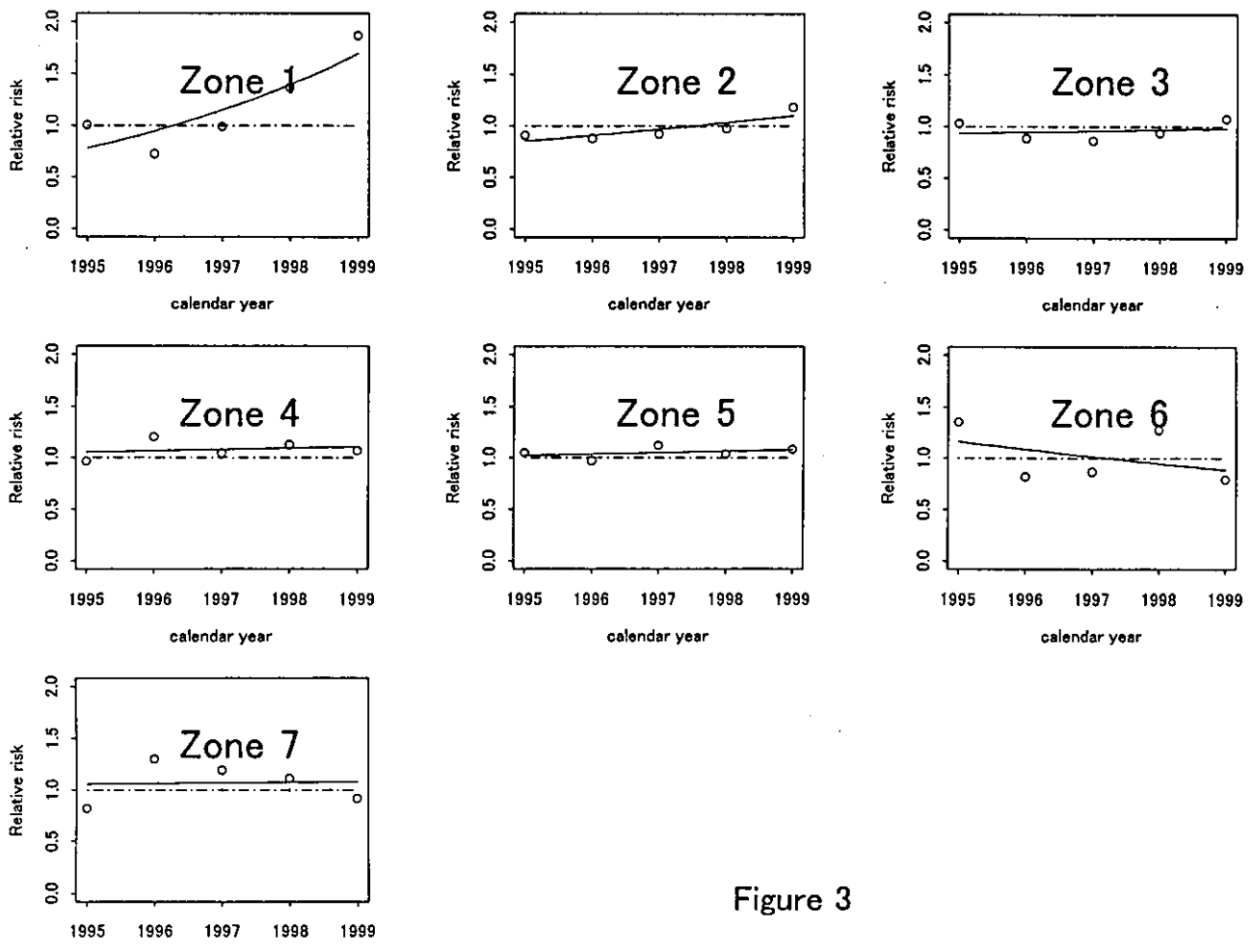


Figure 3

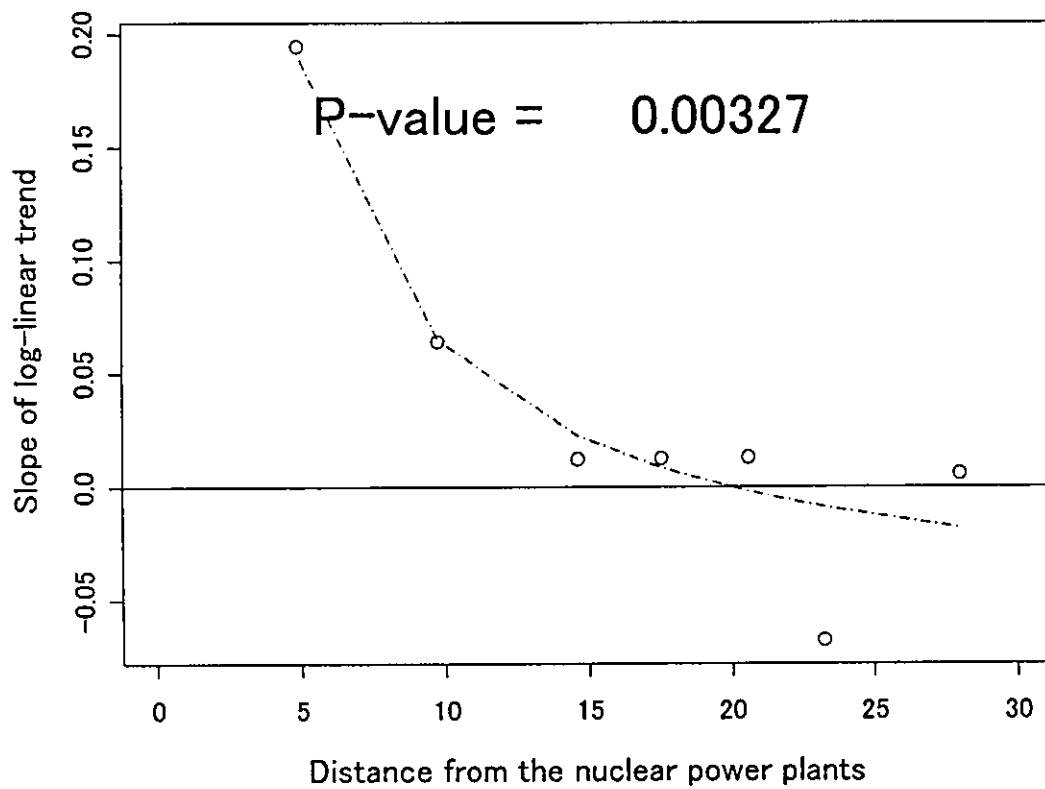


Figure 4

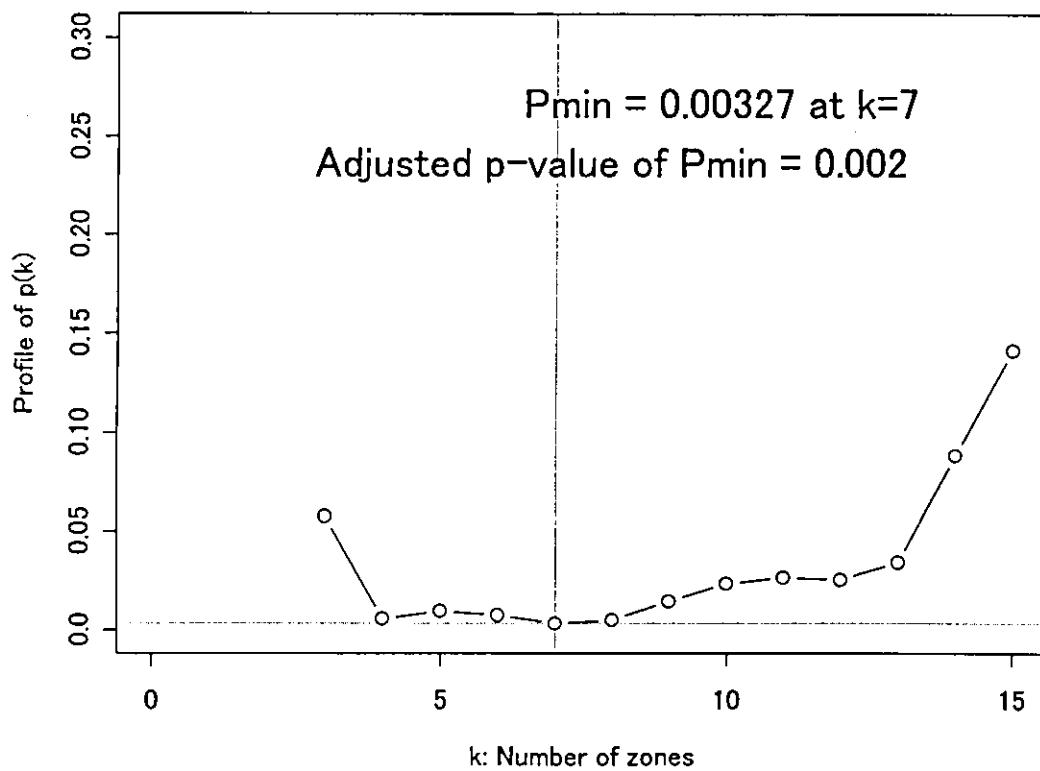


Figure 5

## ごみ焼却施設由来の土壤中ダイオキシン類の曝露評価に関する研究

### (食品・化学物質安全総合研究事業) 分担研究報告書

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 田中勝 岡山大学環境理工学部教授  
研究者 内山巖雄 京都大学工学部教授  
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：悪性新生物の超過リスクとの関連で、ごみ焼却施設周辺のダイオキシン類土壤中濃度の空間的広がりの分布を評価するために代表的なごみ焼却施設を選定し、発生源由来の土壤中ダイオキシン類測定調査（空間的分布）を行った。調査施設の選定については、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」を対象候補施設とし、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検討した。その中から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。測定結果は来年度初期頃に判明する予定。

#### A. 研究目的

高濃度のダイオキシン類排出が確認されたごみ焼却施設周辺の土壤中ダイオキシン類濃度を測定し、施設からの周辺住民の住居までの距離とダイオキシンの関係を調査し空間的曝露状況を評価し、施設周辺ダイオキシン類土壤中濃度の空間的広がりの分布と悪性新生物の超過リスクとの関連を評価するモデルを構築するための有力な情報を得ることを目的とする。

#### B. 研究方法

##### 1. 調査対象地域の選定

調査対象地域の選定に当たっては、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」について、以下の条件を考慮して選定作業を行った。

##### 1. 1 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、平成8年度のダイオキシン類濃度を焼却炉のごみ処理能力に乗じることによって、負荷量的な意味をもつ数値を算出するとともに、平成8年より11年までの排出負荷量の合計を求め、排出負荷量積算量として検討項目に加えた。

##### 1. 2 周辺人口

周辺人口が少ない場合、ダイオキシン類濃度と、その健康影響を評価することが難しくなるため、周辺人口は多いことが望ましい。周辺人口と出生数は比例する可能性が高いため、出生数のデータより、周辺人口を評価した。

##### 1. 3 地形条件

焼却施設周辺の地形が極端な山間地であったり海や湖等があるなどの状況によっては、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。

C. 結果

表1に、各判定基準について検討した結果を示す。

表1(1) 候補地点一覧

県	焼却炉施設	処理能力	排出負荷量 <sup>1</sup>	排出負荷積算量 <sup>2</sup>	出生数 <sup>3</sup>	排ガス中ダイオキシン類濃度 (ng/m <sup>3</sup> )			
						平成8年 <sup>*1</sup>	平成9年 <sup>*1</sup>	平成10年 <sup>*2</sup>	平成11年 <sup>*3</sup>
茨城県	鹿嶋市立衛生センター	50	6500	12307	1322	130	79	29	8.14
茨城県	潮来牛堀クリーンセンター	46	5060	6146	1227	110	12	5.8	
栃木県	清掃センター	80	8800	11472	1286	110	27	6.4	
群馬県	館林市清掃センター	100	12450	12586	2753	124.5	0.8	0.28	
埼玉県	朝霞市クリーンセンター	70	18900	18900	25798	270	廃止	0.00174	
千葉県	君津市清掃工場	120	36183	55349	2059	301.53		4.1	2.8
千葉県	袖ヶ浦クリーンセンター	80	7640	11728	1902	95.5		0.43	2.7
新潟県	巻町三ヶ町鎧潟清掃工場	120	25200	39330	1327	210		6.5	3
新潟県	ごみ処理施設	60	17400	27117	1210	290		5.3	9
山梨県	山梨市環境センターごみ処理施設	35	4200	6195	1441	120	13		25
長野県	諏訪市清掃センター	80	10400	10673	1160	130	1.6	0.71	1.1
静岡県	伊豆長岡町清掃センター	40	11600	17445	2787	290		0.45	
兵庫県	美化センターごみ焼却施設	120	11520	17341	4784	96		0.14	0.3
和歌山県	海南市クリーンセンター	150	12297	16347	2634	81.98	13		5
広島県	廿日市清掃センター	95	8400	54340	2519	360		12	14
広島県	府中町清掃事務所	50	16500	21225	8761	330	17		46
広島県	向島町クリーンセンター	30	2700	4110	1372	90	19	14	
山口県	楠町清掃工場	10	3800	3928	1721	380	2.3	3.9	6.6
福岡県	下田川塵芥清掃センター	40	3800	5570	2457	95	7.5		22
佐賀県	天山地区共同塵芥処理場	50	6000	8790	2054	120	20	27	8.8
佐賀県	川副町・東与賀町清掃センター	35	7350	9170	1869	210	19	16	17
沖縄県	東部清掃施設組合	90	9900	10458	8005	110	1.8	2.2	
沖縄県	中城青葉苑	30	2610	2970	4532	87	3.2	4.4	

1: (焼却炉の処理能力) × (ダイオキシン類濃度)

2: (焼却炉の処理能力) × (平成8年~11年の排ガス中ダイオキシン濃度の合計)

3: 平成12年度 住所情報の2次元情報解析(株) ケー・シー・エス) より抜粋 (平成9年度データ)

\*1~\*3: 厚生労働省ホームページデータより抜粋

\*1: <http://www1.mhlw.go.jp/houdou/0910/h1017-1.html>

\*2: [http://www1.mhlw.go.jp/topics/gomi/tp0601-1\\_14.html#no2](http://www1.mhlw.go.jp/topics/gomi/tp0601-1_14.html#no2)

表1(2) 候補地点一覧

県	焼却炉施設	処理能力	排出負荷積算量	出生数	備考
千葉県	君津市清掃工場	120	55349	2059	端に東京湾有り
広島県	廿日市清掃センター	95	54340	2519	海有り
新潟県	巻町三ヶ町鎧潟清掃工場	120	39330	1327	人口が少ない
新潟県	ごみ処理施設	60	27117	1210	人口が少ない
広島県	府中町清掃事務所	50	21225	8761	海有り
埼玉県	朝霞市クリーンセンター	70	18900	25798	川が縦断
静岡県	伊豆長岡町清掃センター	40	17445	2787	海有り
兵庫県	美化センターごみ焼却施設	120	17341	4784	海有り
和歌山県	海南市クリーンセンター	150	16347	2634	海有り
群馬県	館林市清掃センター	100	12586	2753	比較的平野

注: 表2.1(1)で排出負荷積算量の上位10施設

検討の結果、今年度の調査については、群馬県館林市の館林清掃センターを調査地点とした。

## 2 現地調査

### 2.1 採取地点

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、模式的な土壌試料採取地点とした(図1)。地図上にプロットされた土壌試料採取地点の近傍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。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。表2に実際に決定された20地点の位置と、発生源からの距離を示す。

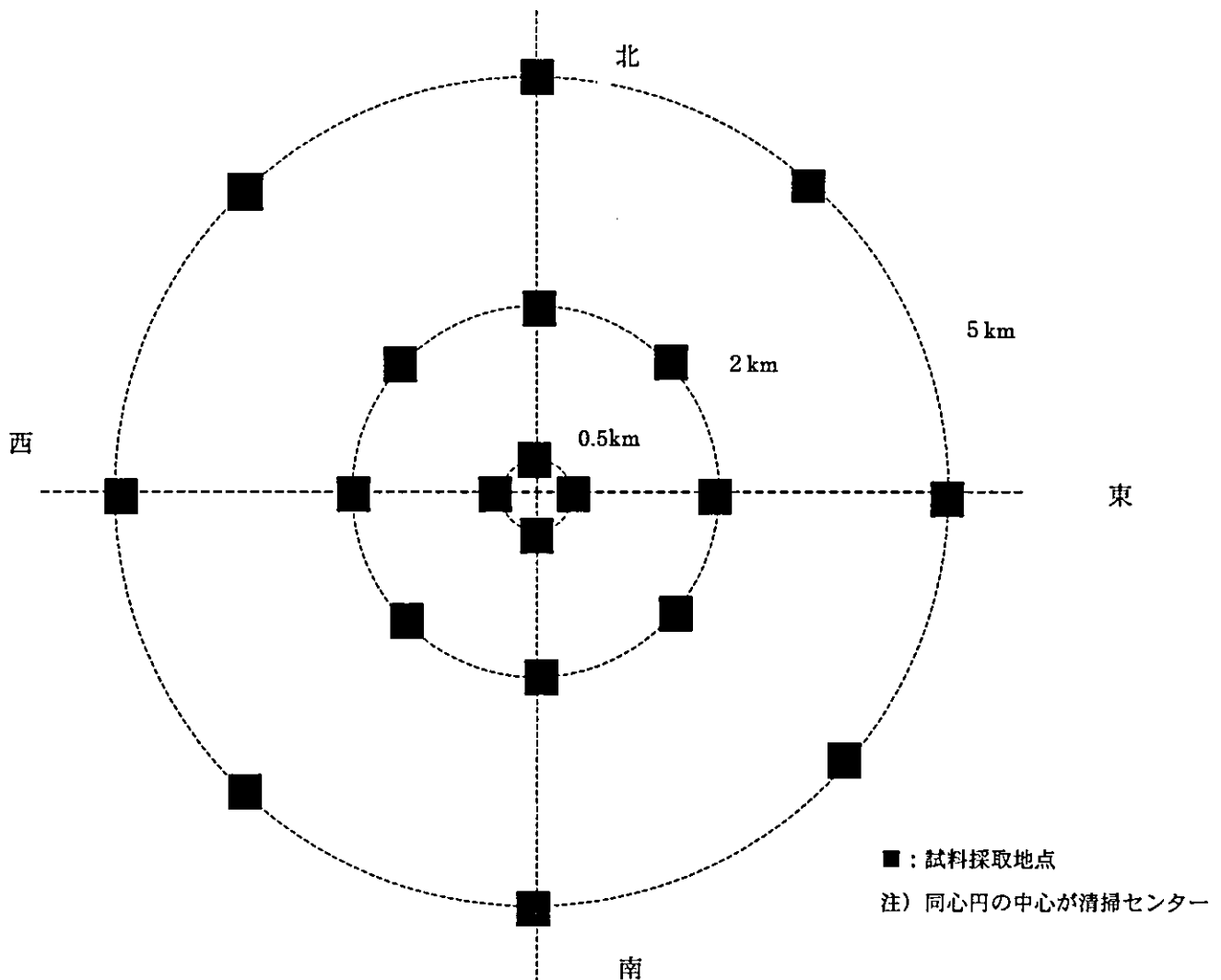


図1 試料採取地点の模式図

表2 調査地点

地点番号	発生源からの距離 (km)	発生源からの 方角	調査地点名
St.1	5850m	北	赤城神社
St.2	5650m	北東	神明宮
St.3	5750m	東	雷電神社
St.4	5750m	南東	諏訪神社
St.5	5650m	南	愛宕神社
St.6	5750m	南西	三橋神社
St.7	5650m	西	くらかけ公園
St.8	5900m	北西	神明神社
St.9	2000m	北	大谷神社
St.10	1550m	北東	富士岳神社
St.11	1750m	東	青柳公園
St.12	1600m	南東	龍積寺付近
St.13	2050m	南	近藤沼橋付近
St.14	2500m	南西	雷電神社
St.15	3000m	西	長良神社
St.16	3000m	北西	多々良沼公園
St.17	1100m	北	第十小横 市営住宅公園
St.18	600m	東	菅原神社
St.19	500m	南	谷田川橋付近
St.20	250m	西	近藤開拓共同墓地



図 2 調査地点位置図

## 2. 2 サンプルング・分析

サンプルング・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。

サンプルングは、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5m～10m離れた1地点の合計で5地点で試料を採取する。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。

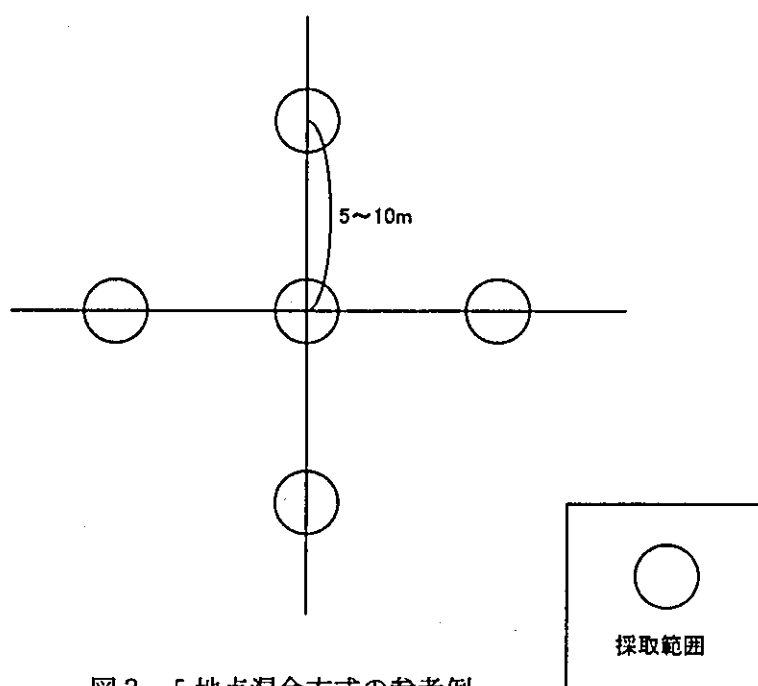


図3 5地点混合方式の参考例



### 3 測定分析

ダイオキシン類の測定は、『ダイオキシン類に係る土壌調査測定マニュアル』<sup>1)</sup>に従い実施した。詳細を以下に示す。

#### 3. 1 分析対象物質

分析対象物質は、表3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4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) <sup>1)</sup>を乗じた毒性等量 (以下TEQ) <sup>2)</sup>を求めた。

計算に用いたダイオキシン類のTEFを表5、表6に示す。

表3. 分析対象物質一覧 (PCDDs 及び PCDFs).

塩素数	ポリ塩化・パラ・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 2,3,7,8-TeCDF TeCDFs の総和
	1,3,7,9-TeCDD	
	2,3,7,8-TeCDD	
	TeCDDs の総和	
5	1,2,3,7,8-PeCDD	1,2,3,7,8-PeCDF 2,3,4,7,8-PeCDF PeCDFs の総和
	PeCDDs の総和	
6	1,2,3,4,7,8-HxCDD	1,2,3,4,7,8-HxCDF 1,2,3,6,7,8-HxCDF 1,2,3,7,8,9-HxCDF 2,3,4,6,7,8-HxCDF HxCDFs の総和
	1,2,3,6,7,8-HxCDD	
	1,2,3,7,8,9-HxCDD	
	HxCDDs の総和	
7	1,2,3,4,6,7,8-PeCDD	1,2,3,4,6,7,8-HpCDF 1,2,3,4,7,8,9-HpCDF HpCDFs の総和
	PeCDDs の総和	
8	1,2,3,4,6,7,8,9-OCDD	1,2,3,4,6,7,8,9-OCDF

<sup>1)</sup> 2,3,7,8-TeCDD 毒性等価係数 ; 2,3,7,8-TeCDD Toxicity Equivalency Factor (WHO/IPCS-TEF(1998)). 1998年にWHO/IPCSから提案された。

<sup>2)</sup> 2,3,7,8-TeCDD 毒性等量 ; 2,3,7,8-TeCDD Toxicity Equivalency Quantity.

表4. 分析対象物質一覧 (Co-PCBs).

コプラナーPCB (Co-PCBs)	
Non- <i>ortho</i> 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- <i>ortho</i> 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)

※カッコ内は IUPAC No.<sup>3</sup>を表す.

表5. 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

<sup>3</sup> IUPAC No. ; International Union of Pure and Applied Chemistry No.

表6. 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

### 3. 2. 分析方法

ダイオキシン類は、『ダイオキシン類に係る土壌調査測定マニュアル』<sup>1)</sup>に従って前処理・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を図3に示す。

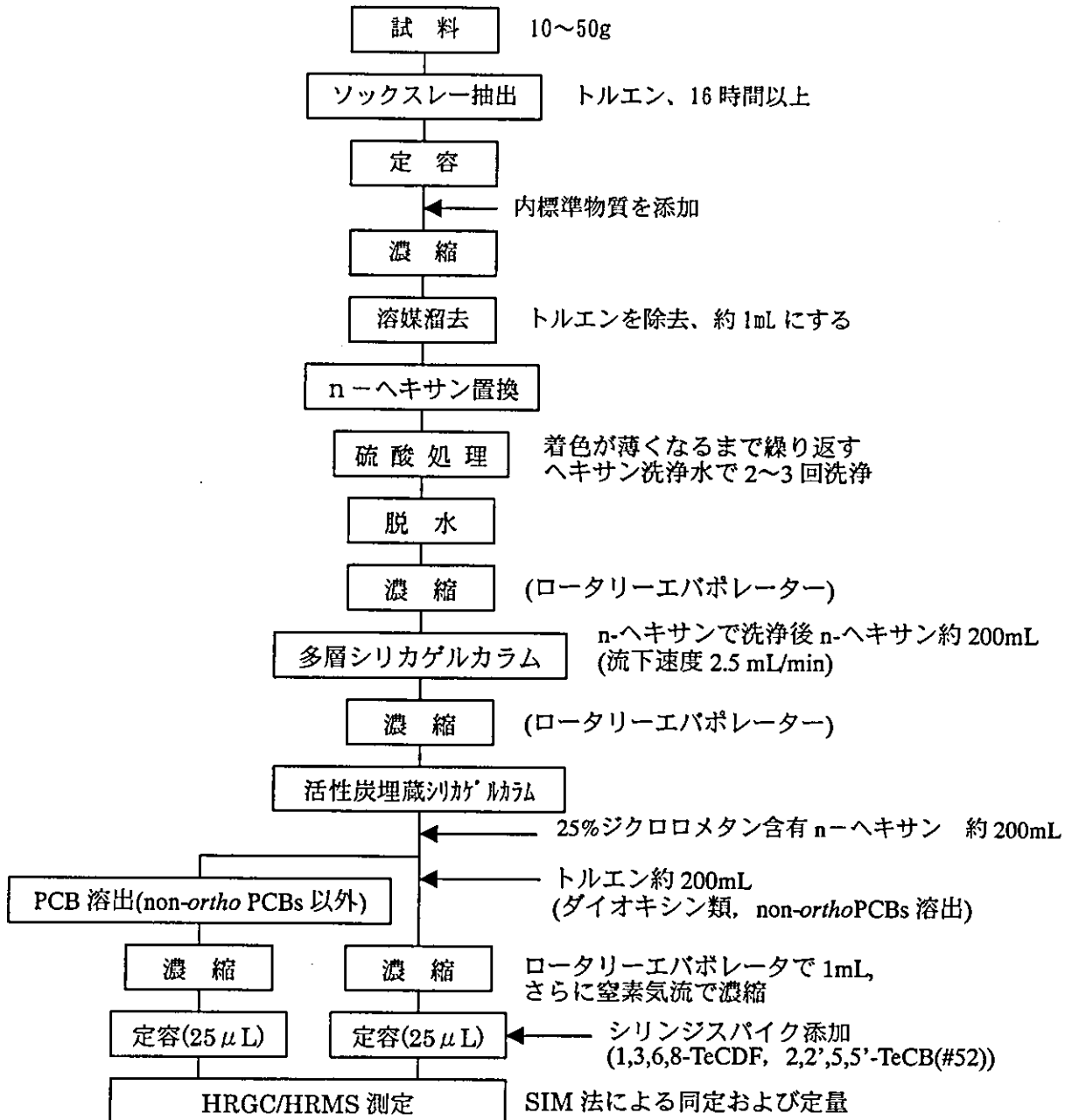


図3. 土壌の前処理フロー.