

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 <sup>2</sup> )	堆積年数 (年)	*1 西暦 (年)	層	深さ (cm)	積算重量深度 (g/cm <sup>2</sup> )	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

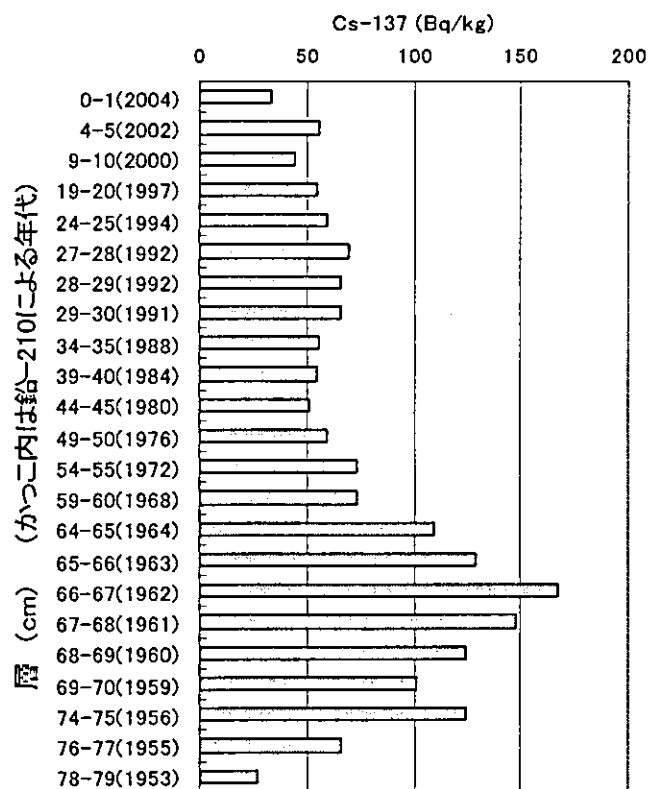


図 1.1 平成 15 年度各層のセシウム-137 の測定結果

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+
		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)
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

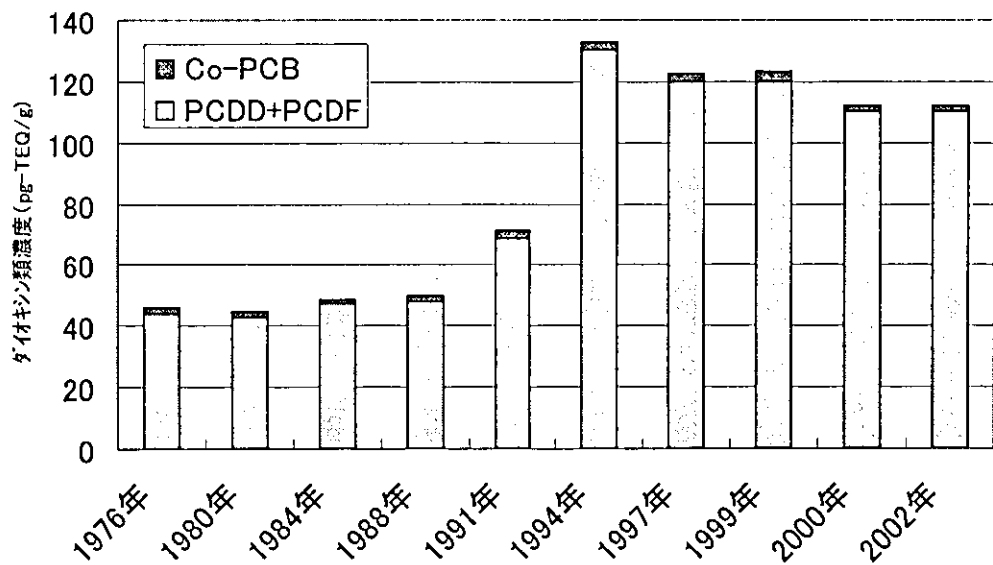


図 1.2 平成 15 年度底質中ダイオキシン類結果 (PCDDs+PCDFs+Co-PCBs)

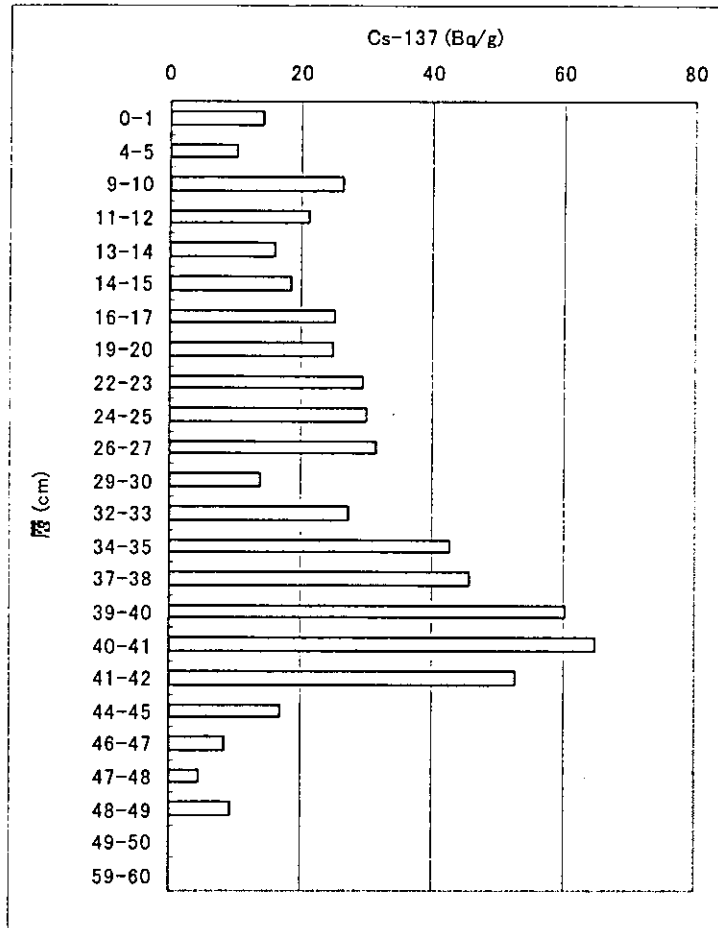


図 2.1 平成 16 年度セシウムの層別濃度

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/cm<sup>2</sup>であることから、

40年間に21.7g/cm<sup>2</sup>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/cm<sup>2</sup>)/40(年)=0.5425g/cm<sup>2</sup>/年とな

平均重量堆積速度 0.5425 g/cm<sup>2</sup>/年

測定層	積算重量堆積速度 (g/cm <sup>2</sup> )	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

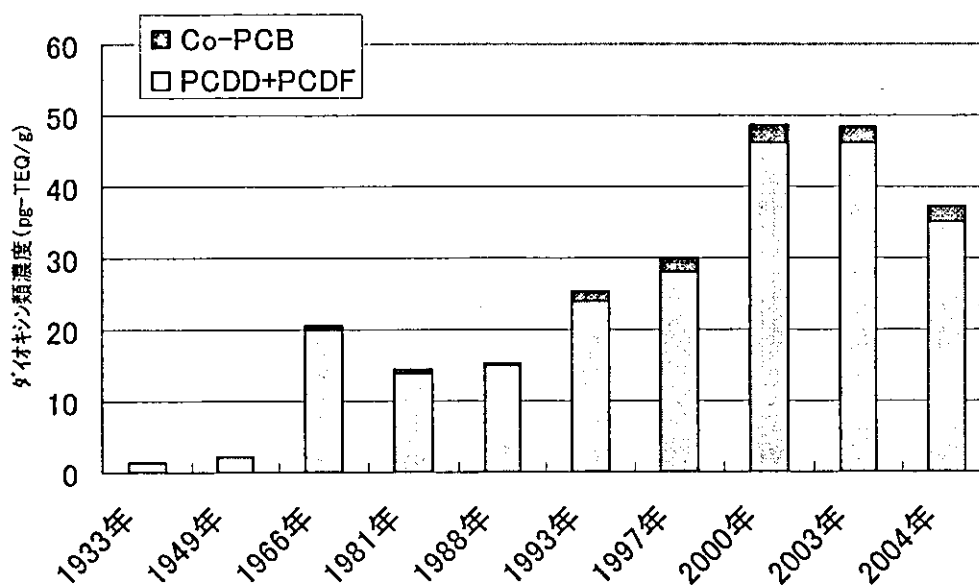


図 2.2 平成 16 年度底質中ダイオキシン類結果 (PCDDs+PCDFs+Co-PCBs)

## 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<sup>1)</sup>。このことは、平成9年度0.55 pg-TEQ/m<sup>3</sup>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/m<sup>3</sup>まで低下したことから明らかである<sup>2)</sup>。

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%)<sup>2)</sup>。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<sup>3)</sup>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 km<sup>2</sup>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<sup>4)</sup>による標高データを利用して対象領域を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向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 km<sup>2</sup>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。

$$\frac{dC_{air}}{dt} \cdot V_{ol_{air}} = Emf_{air} - (DD + PD) \cdot Area_{air} + Ex \cdot V_{ol_{soil}} \cdot (C_{air} t_2 - C_{air}) - k_{air} \cdot C_{air} \cdot V_{ol_{air}} \quad (3.1)$$

- $C_{air}$  : 大気中ダイオキシン類濃度 (pg-TEQ/Nm<sup>3</sup>)
- $C_{air t_2}$  : 大気中ダイオキシン類がラグラント濃度 (pg-TEQ/Nm<sup>3</sup>)
- $V_{ol_{air}}$  : 大気コンパートメントの体積 (m<sup>3</sup>)
- $Area_{air}$  : 大気コンパートメントの面積 (m<sup>2</sup>)
- $Emf_{air}$  : 発生源から大気へのダイオキシン類の移行量 (pg-TEQ/day)
- $DD$  : 乾性沈着によるダイオキシン類の移行量 (pg-TEQ m<sup>2</sup>/day)
- $PD$  : 湿性沈着によるダイオキシン類の移行量 (pg-TEQ m<sup>2</sup>/day)
- $Ex$  : 大気コンパートメントと土壌間の交換係数 (1/day)
- $k_{air}$  : 大気中に於けるダイオキシン類の分解定数 (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。

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

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

$$\left| \begin{aligned} K_p &= \frac{C_p}{TSP \cdot C_g} \\ \phi &= \frac{C_p}{C_p - C_g} = \frac{K_p \cdot TSP}{K_p \cdot TSP + 1} \end{aligned} \right. \quad (3.4)$$

- $F_{sp}$  : 粒子相に対するダイオキシン類の分配比 (-)
- $F_{ag}$  : ガス相に対するダイオキシン類の分配比 (-)
- $\phi$  : 粒子結合率 (-)
- $K_p$  : ガス相-粒子結合態分配係数 (m<sup>3</sup>/μg)
- $C_p$  : 粒子相のダイオキシン類濃度 (pg-TEQ/m<sup>3</sup>)
- $C_g$  : ガス相のダイオキシン類濃度 (pg-TEQ/m<sup>3</sup>)
- $TSP$  : 総浮遊粒子状 (TSP) 濃度 (μg/m<sup>3</sup>)

分配係数 $K_p$ に関しては、Ogura *et al.*<sup>5)</sup>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/m<sup>3</sup>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。

$$DD = \Pi_p \cdot C_p + \Pi_g \cdot C_g$$

$$= (\Pi_p \cdot F_{pp} + \Pi_g \cdot F_{pg}) \cdot C_{air} \quad (3.6)$$

$\Pi_p$  : 粒子相形態ダイオキシン類の沈着速度 (m/s)

$\Pi_g$  : ガス相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。

$$WD = (\Pi_p \cdot C_p + \Pi_g \cdot C_g) \cdot \frac{Rain}{1000}$$

$$= (\Pi_p \cdot F_{pp} + \Pi_g \cdot F_{pg}) \cdot C_{air} \cdot \frac{Rain}{1000} \quad (3.7)$$

$\Pi_p$  : 粒子相形態ダイオキシン類の洗浄比 (m/s)

$\Pi_g$  : ガス相ダイオキシン類の洗浄比 (m/s)

$Rain$  : 降水強度 (mm/d)

### 3.1.4 大気との交換係数

式 (3.1) における交換係数 $Ex$ 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、交換係数は式 (3.8) で表される。

$$Ex = \frac{u \cdot \int y \cdot dz + v \cdot \int x \cdot dz}{\int x \cdot \int y \cdot dz} = \frac{u}{\Delta x} + \frac{v}{\Delta y} \quad (3.8)$$

$u$  : 東西方向の風速 (m/s)

$v$  : 南北方向の風速 (m/s)

## 3.2 土壤中の動態

土壤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・土壌の水相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。

$$\frac{dC_{soil}}{dt} \cdot V_{soil} = \{ DD + (1-f) \cdot WD \} \cdot V_{soil}$$

$$- k_{soil} \cdot C_{soil} \cdot V_{soil}$$

$$- Q_{out} \cdot C_{soil} \quad (3.9)$$

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

$V_{soil}$  : 土壌コンパートメントの容積 (m<sup>3</sup>)

$V_{soil}$  : 土壌コンパートメントの面積 (m<sup>2</sup>)

$k_{soil}$  : 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 (-)

$Q_{out}$  : 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・土壌間隙空気中に分配される。それぞれへの分配比の算出式を式 (3.10) ~ (3.12) に示す。

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

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

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

$F_{ps}$  : 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-水分配係数 (m<sup>3</sup>/g)

$\rho_{soil}$  : 土壌密度 (g/m<sup>3</sup>)

$v_{sw}$  : 土壌中の水相の割合 (-)

$v_{sa}$  : 土壌中の空隙率 (-)

$K_{AW}$  : 大気-水分配係数 (-)

### 3.2.2 土壌-水分配係数

土壌-水分配係数 $K_d$ 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。

$$K_d = \frac{C_f}{C_e} \quad (3.13)$$

$C_f$  : 土壌中粒子相におけるダイオキシン類濃度 (pg-TEQ/g-solid)  
 $C_e$  : 土壌中隙水におけるダイオキシン類濃度 (pg-TEQ/m<sup>3</sup>)

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 (m<sup>3</sup>/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。Mackay<sup>6)</sup>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 $P_s^i$ との間に式(3.15)のような関係がある。

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

$P_s^i$  : 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 · m<sup>3</sup>/mol/K)  
 $T$  : 温度 (K)  
 $S_w$  : ダイオキシン類の水溶解度 (mol/m<sup>3</sup>)

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

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

$P_s$  : ダイオキシン類の固相における蒸気圧 (atm)  
 $JS$  : 融解エントロピー (atm · m<sup>3</sup>/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。

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

$C_{water}$  : 水中濃度 (pg-TEQ/L)  
 $Vol_{water}$  : 水域の体積 (L)  
 $Area_{water}$  : 水域の面積 (m<sup>2</sup>)  
 $f$  : 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/m<sup>2</sup>)  
 $DD$  : 乾性沈着量 (pg-TEQ/m<sup>2</sup>)  
 $Q_{ss}$  : 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)

### 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 $SS_d$ 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。

$$Sink = F_{sp} \cdot C_{water} \cdot V_{water} \cdot \frac{SS_d \cdot d_{sediment}}{SS_d} \quad (3.19)$$

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

$SS_d$  : 水中の浮遊物質の沈降速度 (g/cm<sup>2</sup>/d)

$SS_{in}$  : 輸入する浮遊物質量 (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。

$$Dif(h) = v_d \cdot A_{sed-water} \cdot (F_{sd} \cdot C_{sediment} - F_{wd} \cdot C_{water}) \quad (3.20)$$

$$v_d = 69.35 \cdot \phi \cdot M^{-2.3}$$

$v_d$  : 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。

$$\frac{dC_{sediment}}{dt} = A_{sed-water} \cdot h_{sediment} = Water Sed - K_{desorb} \cdot C_{sediment} \cdot A_{sed-water} \cdot h_{sediment} \quad (3.21)$$

$h_{sediment}$  : 底質の厚さ (cm)

$K_{desorb}$  : 底質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。

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

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

$F_{sp}$  : 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<sup>3</sup>/g)

$\rho_{sediment}$  : 底質の密度 (g/cm<sup>3</sup>)

$\phi_{water}$  : 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。

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

- $SS_c \text{ normal}$  : 基底流入水中の浮遊物質濃度 (mg/L)
- $SS_c \text{ rain}$  : 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。

$$Q(t)/V_{\text{土}} < 2.0 : \text{平水時}$$

$$Q(t)/V_{\text{土}} \geq 2.0 : \text{出水時}$$

$$(3.33)$$

$V_{\text{土}}$  : 土底積入量 (m<sup>3</sup>/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。

$$Q_{\text{土}}(t) = Q_{\text{土}}(t) \cdot SS_{\text{土}}(t) \quad (3.34)$$

$Q_{\text{土}}(t)$  : 区間Lに排出する土壌量 (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<sup>3</sup>を超える124.5 ng-TEQ/m<sup>3</sup>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<sup>3</sup>、さらに平成10年の測定では0.28 pg-TEQ/m<sup>3</sup>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4.60×10<sup>5</sup> Nm<sup>3</sup>/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<sup>3</sup>、その後、2002年までの6年間は既設炉の基準値pg-TEQ/m<sup>3</sup>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<sup>3</sup>、その後は既設炉の基準値1 pg-TEQ/m<sup>3</sup>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<sup>3</sup>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℃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を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、農薬など他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50m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。

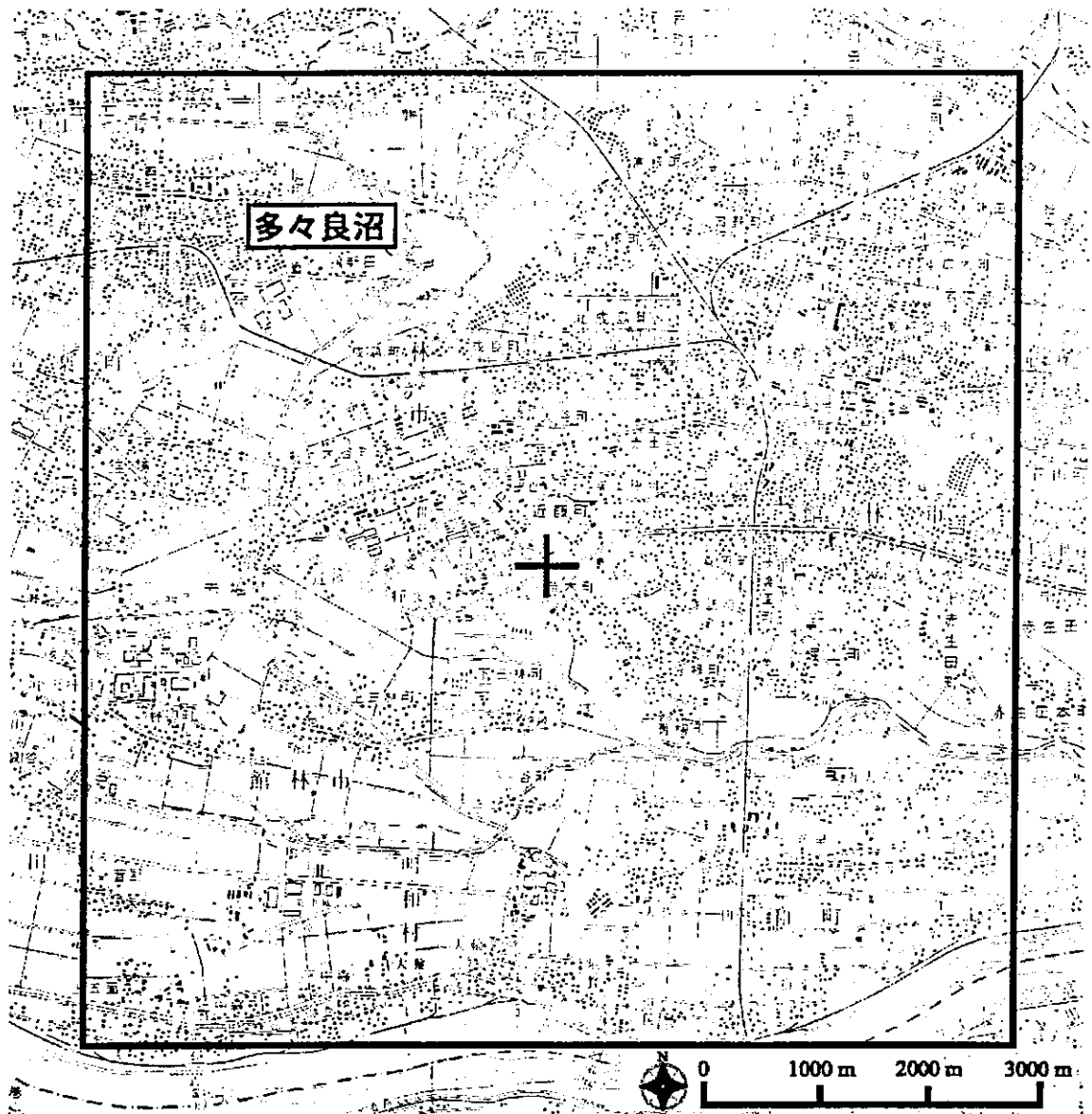


図 2.1 対象領域の地形図（館林市）

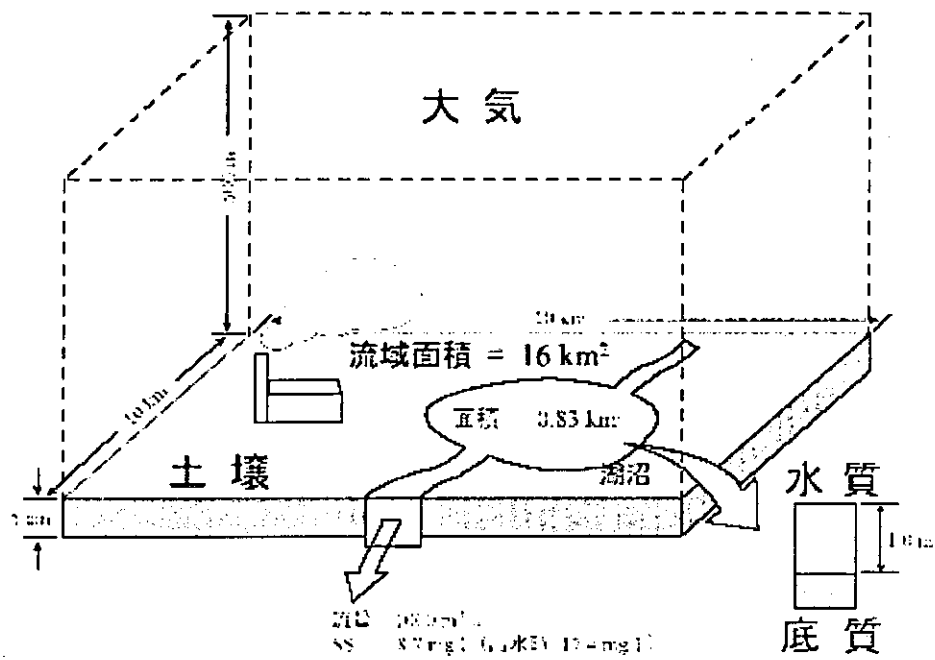


図 2.2 対象領域のモデル化

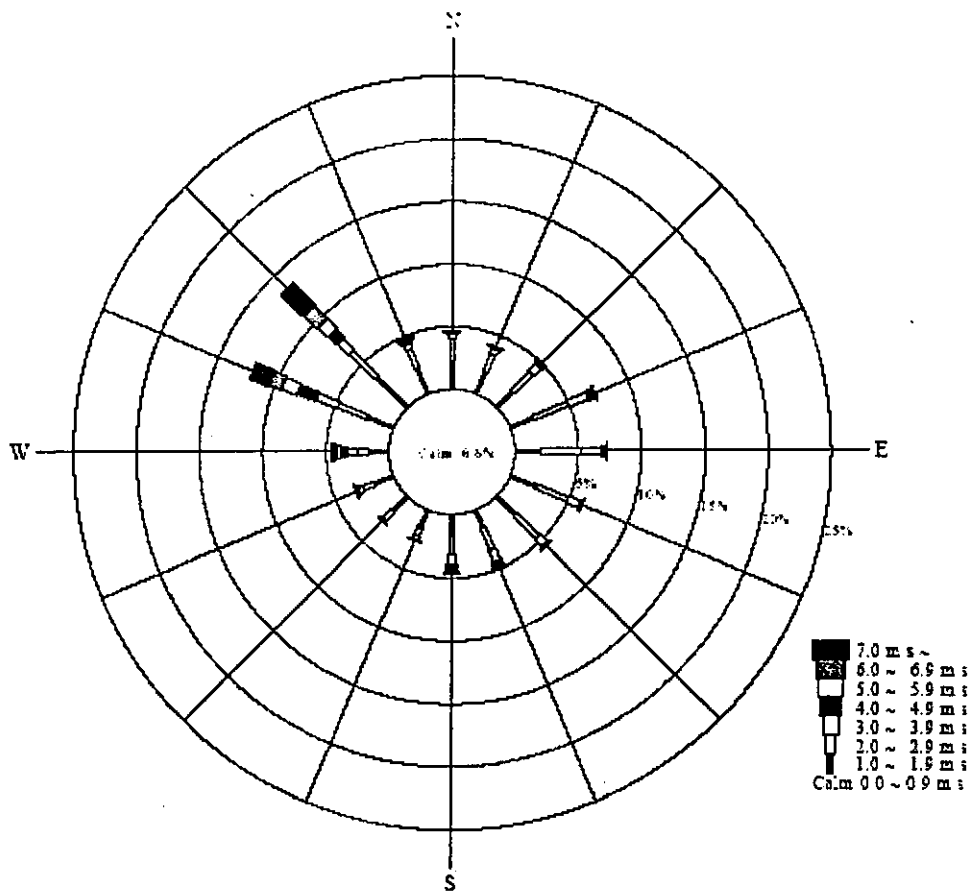


図 3.1 年間の風配図 (館林)