

Fig. 13. Correlation between PCB-187 and 4-OH-PCB187 in serum concentration from Kyoto. ( $r=0.745$ ,  $p<0.001$ )

厚生労働科学研究費補助金（食品の安全確保推進研究事業）  
分担研究報告書

系統的持続的な試料の収集－アジア地域の試料の整備

主任研究者 小泉 昭夫 京都大学大学院医学研究科  
分担研究者 渡辺 孝男 東北文教大学  
分担研究者 原田 浩二 京都大学大学院医学研究科  
研究協力者 人見 敏明 京都大学大学院医学研究科  
研究協力者 新添 多聞 京都大学大学院医学研究科  
研究協力者 藤井由希子 京都大学大学院医学研究科

研究要旨

我々の創設した京都大学ヒト試料バンクには、日本国内のみならず、アジア各国における過去の試料が凍結保存されており、曝露動向を評価することが可能である。ヒト試料でのモニタリングでは全ての地域を把握することはできないまでも、その変遷を知るうえでは不可欠のものである。今後、経済成長に伴い激変するであろう、アジア諸国の環境を過去にわたって再現できるシステムの構築が望まれている。今年度、試料を京都大学生体試料バンクへ受け入れ、血液 992 検体を収納、登録した。また中国で油脂試料 41 検体を収集した。

A. 研究目的

POPs のリスク評価に向けたヒト曝露の長期モニタリングのための試料バンクの創設が 2003 年に行われた。これは日本国内のみでなく、アジア地域で得られた試料も含んでいる。

今後、食品の輸入の増加により、国内のモニタリングのみでは十分に曝露の評価、予測ができなくなることが予想される。そのためにも近隣諸国での試料を得て、各国での食品、母乳を介した化学物質曝露の現状、変遷について情報を得ることが望まれる。

今年度は東北文教大学より血液試料を京都大学生体試料バンクへ受け入れた。

また近年、中国での食品偽装などによりどのような物質に対処すべきかを検討するため、瀋陽市で油脂試料を収集した。

B. 研究方法

京都大学大学院医学研究科の「医の倫理委員会」より、「POPs のリスク評価に向けてのヒト曝露長期モニタリングのための試料バンク創設に関する研究」の承認を得て、本研究は実施された。

血液試料はストレージボックスに収納し、冷凍庫に保管されている。

瀋陽市で、スーパーマーケット、小売店、市場において複数銘柄の油脂試料を購入した。

C. 研究結果

東北文教大学の渡辺により保存されていた血液試料を京都大学生体試料バンクに輸送し、検体の状況を整理し、記録、収納した。992 検体の内訳

は表 1 に示す。

中国のほか、韓国の 1990 年代の試料が寄贈された。

油脂試料 41 検体を採取した。

D. 考察

今回は過去に採取された試料を受け入れを行った。90 年代試料により過去に遡って比較が可能になると考えられる。今後も他機関からの受け入れを続ける予定である。

また中国で脂溶性物質を含むと考えられる個別品目について採取した。

E. 結論

他機関からの試料受け入れを行い、京都大学生体試料バンクへ血液 992

検体を収納、登録した。また中国で油脂試料 41 検体を採取した。

F. 健康危険情報

なし

G. 研究発表

1.論文発表

なし

2.学会発表

なし

H. 知的財産権の出願・登録状況

(予定を含む)

なし

表1. 2011年度の他機関から受け入れた血液試料

Country	Location	Size of population (million)	Male: Female
China	Dehui	1.00	0: 50
	Huludao	2.82	0: 50
	Beijing	19.61	0: 50
	Jinan	6.81	0: 50
	Xian	8.47	0 : 94
	Baoji	3.72	0 : 48
	Shanghai	23.02	0: 50
	Changsha	7.04	0: 50
	Heping	4.60	0: 46
	Nanning	6.66	0: 50
	Tainan	1.88	0: 49
	Total	85.63	0: 587
Korea	Seoul	10.46	80: 25
	Chonan	0.58	0: 29
	Haman	0.06	0: 46
	Pusan	3.60	0: 49
	Jeju-do	0.53	0: 65
	Total	15.23	80: 214

表2. 中国瀋陽市で採取された油脂試料

Sample No.	Sample name	Sampling city	Sampling date
1	peanut seed	Shenyang	20120105-20120107
2	peanut	Shenyang	20120105-20120107
3	sesame	Shenyang	20120105-20120107
4	maize	Shenyang	20120105-20120107
5	soybean	Shenyang	20120105-20120107
6	sunflower seed	Shenyang	20120105-20120107
7	rice	Shenyang	20120105-20120107
8	peanut seed	Fushun	20120109-20120111
9	sesame seed	Fushun	20120109-20120111
10	maize	Fushun	20120109-20120111
11	soybean	Fushun	20120109-20120111
12	sunflower seed	Fushun	20120109-20120111
13	rice	Fushun	20120109-20120111
1	sunflower seed oil	Shenyang	20120105-20120107
2	rice bran oil	Shenyang	20120105-20120107
3	peanut oil	Shenyang	20120105-20120107
4	soybean oil	Shenyang	20120105-20120107
5	maize oil	Shenyang	20120105-20120107
6	mixed oil	Shenyang	20120105-20120107
7	soybean oil	Fushun	20120109-20120111
8	maize oil	Fushun	20120109-20120111
9	Nut blend oil	Fushun	20120109-20120111
10	soybean oil	Fushun	20120109-20120111
11	soybean oil	Fushun	20120109-20120111
12	mixed oil	Fushun	20120109-20120111
13	sesame seed oil	Fushun	20120109-20120111
14	sunflower seed oil	Fushun	20120109-20120111
1	fried cake	Shenyang	20120105-20120107
2	fried vegetable pill	Shenyang	20120105-20120107
3	fried soybean	Shenyang	20120105-20120107
4	fried dough twists	Shenyang	20120105-20120107
5	fried donut	Shenyang	20120105-20120107
6	fried sesame seed balls	Shenyang	20120105-20120107
7	fried mutton slices	Shenyang	20120105-20120107
8	fried vegetable pill	Fushun	20120109-20120111
9	fried dough twists	Fushun	20120109-20120111
10	fried vegetable pill	Fushun	20120109-20120111
11	fried soybean	Fushun	20120109-20120111
12	fried sesame seed balls	Fushun	20120109-20120111
13	fried dough twists	Fushun	20120109-20120111
14	fried peanut	Fushun	20120109-20120111

厚生労働科学研究費補助金（食品の安全確保推進研究事業）  
分担研究報告書

系統的持続的な試料の収集－国内試料の採取

主任研究者 小泉 昭夫 京都大学大学院医学研究科  
分担研究者 原田 浩二 京都大学大学院医学研究科  
研究協力者 新添 多聞 京都大学大学院医学研究科  
研究協力者 人見 敏明 京都大学大学院医学研究科  
研究協力者 藤井由希子 京都大学大学院医学研究科

研究要旨

化学物質曝露を評価し、過去の曝露と現在の曝露を評価するための試料を採取した。今年度、新規に国内各地から試料の提供を受けるため、協力機関へ依頼を行った。試料収集を開始し、京都大学生体試料バンクへ成人男女の血液(血清、全血)91検体、母乳38検体、食品食品204検体を収納、登録した。

A. 研究目的

POPs のリスク評価に向けたヒト曝露の長期モニタリングのための試料バンクの創設が 2003 年に行われた。以降、試料の継続的な収集が続いている。今年度は引き続き国内の成人男女を対象に血液、母乳、食事の各試料を収集し、ヒト生体試料バンクに収納・登録した。

B. 研究方法

京都大学大学院医学研究科の「医の倫理委員会」より、「POPs のリスク評価に向けてのヒト曝露長期モニタリングのための試料バンク創設に関する研究」の承認を得て、本研究は実施された。

試料収集にあたり、採血器具の違いによるコンタミネーションを極力抑え、均一な状態を確保するため、血液採取については同一の採血針、抗凝固剤（エチレンジアミン四酢酸二カリウ

ム塩）入り採血管を使用し、同一規格の凍結保存チューブに分取した。母乳試料はアセトン洗浄したポリプロピレン製チューブを京都大学より送付し、各施設で用いている採乳容器から移すもしくは直接採乳した。

採取された血液はエチレンジアミン四酢酸二カリウム塩により抗凝固処理された。血液は全血 3 mL を分取した後、遠心分離器により 3000 rpm で 10 分間遠心し、血漿成分を分離し、おおよそ 5 mL を分取した。

試料の提供とともに質問紙の回答をお願いし、年齢、転居歴、生活習慣についての情報を得た。

血液試料

血液試料は、これまでの継続性を考慮して、京都府宇治市にて収集した。京都府ではこれまでに 1993 年に血液試料、1996 年から 1997 年に血清試料および陰膳食餌試料が、近年では

2003年から2010年にかけて血清試料および食餌試料に加えて、母乳試料も収集されている。以上の点から今年度も採取対象地域とした。市民を対象とした健康推進企画において、研究の趣旨を説明して、協力を前向きな参加者に、対面での口頭説明を加え、同意書に書面にて同意を頂いた方を対象とした。

#### 母乳試料

母乳試料は、これまでの継続性、また協力機関の状況から、2地点を選定した。母乳の収集においては、各研究協力機関で出産後、母乳外来、乳幼児健診を受診されている母親を対象として説明を行い、書面にて同意書をいただいた方を対象とした。

#### 食事試料

食事検体は成人住民が市場、小売店を利用して一日3食の食事献立とする統一的方法を用い、採取法は買い取り方式および陰膳法でおこなった。買い取り方式では対象者の性別、年齢を想定し、一般市場に出回っている食品、弁当、総菜、飲料を購入し、サンプルバンク事務局のある京都大学へ送付した。

京都においては、これまでに1990年代から2010年にかけて血清試料、食餌試料および母乳試料がバンキングされており曝露の変遷を捉えることを目的としている。

また福島県、ほか全国で陰膳法で1日食の試料を収集した。

調査は、2011年6月30日から7月7日、12月4日に行った。各食事検体は献立票に料理名を記録し、食物・食材毎に仕分けしたものを電子天秤で秤量し、重量を記録した。秤量後、一

日分の全量を大型ホモミキサーで粉碎・ホモジナイズ処理を行なった。各検体は100mL容ポリビン4本に移して-20℃で凍結保存した後、試料バンクに収納した。また凍結乾燥を行い、500mL容ポリビンに移して常温で、試料バンクに収納した。

#### C. 研究結果

##### 血液試料の収集

平成23年度を通じて、宇治市において血清、全血試料各91検体を収集した。

##### 母乳試料の収集

平成23年度を通じて、国内2地域において母乳試料35検体を収集した。

##### 食事検体の収集

買い取り方式では食事者は30代から60代の男性を想定した。福島県55食日分の検体を試料バンクに収納、登録した。

陰膳法では京都府で19日食分、福島県および周辺地域で54食日分の検体を試料バンクに収納、登録した。福島県の野菜52件、牛乳24件を収納、登録した。

#### D. 考察

国内での血液、母乳、食事の各検体の採取は2003年度の試料バンク創設からほぼ同一方法で行われた。2011年度の試料収集ではこれまでの対象地域で継続することを基本とした。協力機関への依頼、参加が得られ、当初の目標通りに収集がなされた。

血液試料は母乳試料からのデータを補完する目的で採取されており京都府で男女を含み、一定の年齢層を対

象に提供を依頼し、当初の予定の通り収集できた。

食事試料は市場、小売店を複数選んで、偏りが少なくなるように努めた。過去の採取地点に合わせて今回実施したことで、過去の曝露との比較が可能となり、有益な情報をもたらすことが期待される。また原子力発電所事故の影響を今後、評価するための試料を収集した。

以上のように検体の収集に当たってはこれまで生体試料バンクに収集された試料を考え、それに相応する機関、個人に協力をお願いしたことで、収集された血液、母乳、食事の各試料のほとんどが目標通りに実施できたことが確かめられた。また、倫理面にも十分に対応を施した検体収集を進めることができた。

#### E. 結論

初期の全体計画に沿って国内試料について、同一の血清と全血が共に 91

検体、母乳 35 検体、食事 204 検体が収集された。検体収集にはそれぞれの専門的な機関に全面的な協力を得て実施できた。その結果、将来のモニタリングの土台となる試料収集と収納および関連するライフスタイル情報が収集できた。

#### F. 健康危険情報

なし

#### G. 研究発表

##### 1. 論文発表

なし

##### 2. 学会発表

なし

#### H. 知的財産権の出願・登録状況

(予定を含む)

なし

厚生労働科学研究費補助金（食品の安全確保推進研究事業）  
分担研究報告書

放射性セシウムの内部被曝の評価

主任研究者 小泉 昭夫 京都大学医学研究科環境衛生学分野  
分担研究者 渡辺 孝男 東北文教大学  
分担研究者 原田 浩二 京都大学大学院医学研究科  
研究協力者 石川 裕彦 京都大学防災研究所  
研究協力者 和田 安彦 高知県立大学  
研究協力者 人見 敏明 京都大学大学院医学研究科  
研究協力者 小林 果 京都大学大学院医学研究科  
研究協力者 新添 多聞 京都大学大学院医学研究科  
研究協力者 藤井由希子 京都大学大学院医学研究科

研究要旨

福島県成人住民の環境を通じたセシウム134、セシウム137（放射性セシウム）への経口、吸入曝露を評価することを目的とした。調査期間は2011年7月2日より8日であった。成人1人の1日量の食事を代表するような55セットの食事（水道水を含む）を福島県内の4地域の商店で購入した。また地域で生産された牛乳（21試料）、野菜類（43試料）を購入した。同時に12地点において、ハイボリウムエアサンプラーを用いた大気中エアロゾル採取を行った。対照となる19セットの食事を京都府宇治市で2011年7月に収集した。セシウム134、セシウム137濃度はゲルマニウム半導体検出器を用いて測定した。福島県では55セットの食事の内、36セットで放射能が検出された。京都府では19セットの内、1セットで検出された。預託実効線量の中央値は $3.0 \mu\text{Sv}/\text{年}$ であり、最小値は検出限界以下（ $1.2 \mu\text{Sv}/\text{年}$ 以下）、最大値は $83.1 \mu\text{Sv}/\text{年}$ であった。牛乳、野菜類のうち、暫定基準値（牛乳 $200\text{Bq}/\text{kg}$ 、野菜類 $500\text{Bq}/\text{kg}$ ）を超えたものは無かった。大気粉じん（ダスト）の吸入による実効線量は9地点で年間 $3 \mu\text{Sv}$ 以下と推定されたが、損壊した原子力発電所から半径20キロメートル地点の近傍では比較的高い線量を示した（飯舘村：年間 $14.7 \mu\text{Sv}$ 、浪江町：年間 $76.9 \mu\text{Sv}$ 、葛尾村：年間 $27.7 \mu\text{Sv}$ ）。

A. 研究目的

2011年3月11日に東北地方で発生した地震と津波によって福島第一原子力発電所に事故が起こった。チェルノブイリ原子力発電所事故につぐ、史上2番目に大きな原子力発電所事故であり、2011年3月11日から4月15日の

期間に環境中に放出されたセシウム137総量は $1.3 \times 10^{16}$ 乗Bqであり、チェルノブイリ事故における放出量の約10%と推測されている(1,2,3)。事故の直後に原子力発電所の20キロメートル圏内の住民に避難指示が出されたが、その圏外には今も福島県の

人々が生活している。現在、原子力発電所からの放射性物質の放出は沈静化しているが、環境中に沈着した放射性物質による被ばくを継続的に評価することは依然重要である。福島県の居住地域におけるセシウム 137 の汚染量はすでに報告されているが(4)、汚染した食品の摂取および大気中に再浮遊する粉じん(5)の吸入による内部被ばく量の評価が必要である。

食品による内部被ばくについては、個々の食品中の放射性物質質量(Bq/kg)以上に、個人が消費する1日量の食事に含まれる放射性物質質量(Bq/日/人)に基づいて評価することが重要である。

本研究では、事故後の内部被ばく量を評価するために、2011年7月時点で現地にて実態調査を行い、食品摂取および大気吸入を通じたセシウム134およびセシウム137の成人住民への曝露に焦点をあてて検討を行った。

## B. 研究方法

1日量の食事セット、野菜類を地域の商店で購入し、また、水道水、大気粉じん試料を検査した。調査地点は原子力発電所の周辺の市町村である(図1)。調査は2011年7月2日から7月8日に行った。図1中の「M」「V」と記載された地域ではそれぞれ1日分の食事セット、野菜類を購入した。この地域では水道水も採取し、食事とともに評価した。図中「A」と記載された地域ではハイボリュームエアサンプラー(柴田科学 HV-1000F)で大気粉じんを採取した。また同時に土壌試料(表面から深さ5cm)を採取した。このほかに、福島市の一箇所で8段式カスケードインパクト(東京ダイレック AN-200)を備えたローボリュームエアサンプラーを用いた。

各市町村の地元住民がよく利用する食料品店を訪れ、1日量の食事セットを収集した(6)。食事の1セットは、調理済みの朝食、昼食、夕食、間食および嗜好品の成人一人当たりの一日消費分からなる。同一地域内の水道水12Lを住民から得た。さらに各地域で生産された野菜類、牛乳を購入した。全ての試料は採取日のうちに4℃の条件で京都大学に輸送された。

間食も含む1日量の食事セットはそれぞれ収集された水道水(およそ1L)を用いてホモジネートを作成した。調製されたホモジネートのおよそ1Lを凍結乾燥処理した。野菜類、牛乳についても凍結乾燥処理を行った。対照となる1日量の食事を2011年7月に京都府宇治市で陰膳法(6)に従い19名の成人女性から集めた。

ハイボリュームエアサンプラーを用いて、大気粉じんを捕集した。全ての地点で地上1.5mにおいて、50 m<sup>3</sup>以上の大気を捕集した。アンダーセン式ローボリュームエアサンプラーを用いて、空気力学的直径の異なる大気粉じんをそれぞれ捕集した。この装置は福島市内に設置された。粉じん試料の粉じん重量を秤量し、放射能を測定した。

1日量の食事セット、牛乳、野菜類試料は乾燥重量で100–200 gを、土壌試料は湿重量で100–200 gを取り分け、円筒形のポリエチレン容器に封入した。核種測定にはゲルマニウム検出器を用いた。マルチチャンネルアナライザー(Princeton Gamma Technologies MCA8000, 4,096チャンネル, range 0–3,000 keV)によりγ線エネルギースペクトルを得て、セシウム 134: 604.7 および 795.9 keV; セシウム 137: 661.7

keVにより放射性核種を同定、定量した。食品、大気粉じん試料は20000秒以上計測し、土壌試料は2000秒以上計測し、スペクトルを得た。最小検出限界は食事セット試料で0.05 Bq/kg、野菜試料で0.2 Bq/kg、牛乳試料で0.2 Bq/kg、粉じん試料で0.2 ミリ Bq/m<sup>3</sup>、土壌試料で1 Bq/kgであった。全ての試料は放射平衡に達していると考えた。放射能強度は半減期(セシウム134 2.06年、セシウム137: 30.1年)に基づいて、2011年3月15日時点の値に換算している。

ICRPの成人での実効線量係数を用いて預託実効線量を計算した。経口摂取においては、セシウム134は0.019  $\mu$  Sv/Bq、セシウム137は0.013  $\mu$  Sv/Bqである(7)。吸入曝露においては、成人の標準1日呼吸量を20 m<sup>3</sup>として、セシウム134は0.02  $\mu$  Sv/Bq、セシウム137は0.039  $\mu$  Sv/Bqの実効線量係数を使用した(7)。

### C. 研究結果

全部で74組の1日量の食事セットが集められ、分析された。1日に摂取される放射エネルギー(Bq/日)を表1に示す。1日量の食事試料中にセシウム134またはセシウム137が検出された件数は、福島県の試料では55件中36件であったのに対し、京都府の試料では19件中1件のみであった。預託実効線量は、京都府の最高線量が年間5.3  $\mu$  Svであるのに対し、福島県では中央値年間3.0  $\mu$  Sv、範囲は検出限界以下(年間1.2  $\mu$  Sv以下)から最高年間83.1  $\mu$  Svであった。

牛乳中と野菜におけるセシウム134とセシウム137放射能強度を表2に示す。福島県産牛乳中の総線量は中央値4.1 Bq/kg、範囲は検出限界以下

(0.2 Bq/kg以下)から10.1 Bq/kgであり、日本の厚生労働省が定めた暫定基準値よりも一桁低い値であった(8)。京都府産の牛乳中には、1件に微量の放射能が検出されたのみであった。福島県産の野菜の試料に関しては、シイタケ(*Lentinula edode*)が暫定基準値の60%に達する比較的高い放射能を含んでいたが、それ以外には100 Bq/kgを超える試料はなかった(表2)。京都府産の野菜からは放射能は検出されなかった。

今回、ハイボリュームエアサンプラーを用いて16件の大気粉じん試料を回収した(表3、図1)。アンダーセン式ローボリュームエアサンプラーから得られたデータから、福島第一原子力発電所由来の放射性核種の大部分は吸入可能画分(空気力学的直径が4.9  $\mu$ m未満)に存在することが示された: セシウム134では全体の74%(吸入可能画分4.8 mBq/全体6.5 mBq)、セシウム137では81%(3.8/4.7)であった(表3)。ハイボリュームエアサンプラーで回収された大気粉じん試料中、全てのセシウム134とセシウム137を呼吸性画分として、最も高い預託実効線量は浪江町で回収された試料の年間76.9  $\mu$  Svであった。しかし、この値は、公衆被ばく限度の年間1 mSvよりも低い値であった(8)。セシウム137の預託実効線量は空間線量率(毎時  $\mu$  Sv)と強い相関を示した( $n=10$ ,  $r^2=0.79$ ,  $p<0.05$ )が、土壌中の平均放射エネルギー(Bq/kg)とは相関を認めなかった( $n=11$ ,  $r^2=0.32$ ,  $p>0.05$ )。

### D. 考察

住民が日常摂取する食事からの放射エネルギーは、規制値よりもはるかに低い値

だった。一方で、現在では様々な食材が世界中から輸入されており、一部は汚染外地域からも流入されていることから、希釈効果が期待される。しかし、毎日の食材の多くを汚染地域内の食材で賄っている汚染地域の住民については、本研究結果は経口摂取による被ばく量を過小評価していると考えられる。そのため、今回の結果は、そのようなライフスタイルの人々には適応できない。

大規模な放射能の放出から約4カ月後の7月上旬の調査であり、大気中の放射能は直接の放出物ではなく、沈着した放射能が再浮遊されたものである可能性が高い。平面からの再浮遊に関する研究報告はいくつか認められるが(5)、森や水田を含む生態系での再浮遊に関する検討は十分に行われていない。福島原発から20kmの圏外における、経口および吸入による合計線量の最高値は年間160 $\mu$ Sv(経口で83.1、吸入で76.9 $\mu$ Sv)と見積もられた。しかし、今回の研究で利用された大気中ダストモニタリングは、少数に限られた地域のものである。大気粉じん試料が少数であることに加え、調査は再浮遊が比較的少ない梅雨のシーズンに行われた。

今後、より正確な被ばく推定値を基にした定量的なリスク評価が行われる必要がある。

#### E. 結論

福島県の住民の経口および吸入における推定被ばく線量は公衆被ばく限度の年間1mSvよりもかなり低い値であった(8)。

#### F. 健康危険情報

なし

#### G. 研究発表

##### 1. 論文発表

Koizumi A, Harada KH, Niisoe T, Adachi A, Fujii Y, Hitomi T, Kobayashi H, Wada Y, Watanabe T, Ishikawa H. Preliminary assessment of ecological exposure of adult residents in Fukushima Prefecture to radioactive cesium through ingestion and inhalation. *Environ Health Prev Med* 2012. doi: 10.1007/s12199-011-0251-9

##### 2. 学会発表・その他

藤井由希子、原田浩二、新添多聞、足立歩、藤井由希子、人見敏明、小林果、和田安彦、渡辺孝男、石川裕彦、小泉昭夫、福島県産野菜・牛乳の放射性セシウム測定,第82回日本衛生学会総会2012年3月24-26日京都大学

新添多聞、原田浩二、藤井由希子、足立歩、人見敏明、石川裕彦、小泉昭夫、福島県下の避難区域での森林天蓋による<sup>137</sup>Cs吸着量の推定,第82回日本衛生学会総会2012年3月24-26日京都大学

足立歩、藤井由希子、人見敏明、小林果、原田浩二、小泉昭夫、和田安彦、渡辺孝男、石川裕彦、福島県成人住民の食事を介した放射性セシウムによる内部被曝の評価,第82回日本衛生学会総会2012年3月24-26日京都大学  
足立歩、藤井由希子、人見敏明、小林果、新添多聞、原田浩二、小泉昭夫、福島県の森林の土壌・樹木の汚染状況と樹木中への放射性セシウムの吸収量の検討,第82回日本衛生学会総会2012年3月24-26日京都大学

#### H. 知的財産権の出願・登録状況

1. 特許取得

なし

2. 実用新案登録

なし

3. その他

なし

I. 文献

1. "Fukushima radioactive fallout nears Chernobyl levels". Newscientist.com. available on <http://www.newscientist.com/article/dn20285-fukushima-radioactive-fallout-nears-chernobyl-levels.html>.

2. Peter Grier. "Was Chernobyl really worse than Fukushima?". The Christian Science Monitor. April 26, 2011.

3. Chino, M, Nakayama H, Nagai H, Terada H, Katata G, Yamazawa H. Preliminary Estimation of Release Amounts of <sup>131</sup>I and <sup>137</sup>Cs Accidentally Discharged from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant into the Atmosphere. J Nuclear Sci Tech. 2011; 48: 1129-1134.

4. Tsuji M, Kanda H, Kakamu T, Kobayashi D, Miyake M, Hayakawa T, Mori Y, Okochi T, Hazama A, Fukushima T. An assessment of radiation doses at an

educational institution 57.8 km away from the Fukushima Daiichi nuclear power plant 1 month after the nuclear accident. Environ Health Prev Med. 2011. DOI: 10.1007/s12199-011-0229-7

5. Ishikawa H. Evaluation of the effect of horizontal diffusion on the long-range atmospheric transport simulation in Chernobyl data. J Appl Meteorol. 1995; 34: 1653-1665.

6. Koizumi A, Harada KH, Inoue K, Hitomi T, Yang HR, Moon CS, Wang P, Hung NN, Watanabe T, Shimbo S, Ikeda M. Past, present, and future of environmental specimen banks. Environ Health Prev Med. 2009;14:307-18.

7. International Commission on Radiological Protection (ICRP). Age-dependent Doses to the Members of the Public from Intake of Radionuclides - Part 5 Compilation of Ingestion and Inhalation Coefficients. ICRP Publication 72. Ann. ICRP 26 (1), 1995.

8. 厚生労働省. 放射能汚染された食品の取り扱いについて. 2011年3月17日.

表1  
福島県内における放射性セシウムの経口摂取量

調査地点	試料数	食事量 (グラム/日)	含水率 (%)	摂取量(ベクレル/日)		預託実効線量 (マイクロシーベルト/年)	
				<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs		
福島県合計	55	検出数 (%)	-	-	36(65.5)	35(63.6)	
		中央値(最小値-最大値)	2053(1,100-3,145)	80.8(73.3-97.6)	0.2(ND-7.2)	0.3(ND-7.0)	3.0(ND-83.1)
		平均±標準偏差	2,178±400	81.9±4.5	0.5±1.1	0.6±1.0	6.4±12.5
いわき市	10	検出数 (%)	-	-	9(90.0)	9(90.0)	
		中央値(最小値-最大値)	2,241(1,879-2,690)	82.1(76.8-86.1)	0.4(ND-2.5)	0.7(ND-1.6)	6.5 (ND-24.7)
		平均±標準偏差	2,238±272	81.5±3.3	0.7±0.8	0.7±0.5	8.6±7.8
相馬市	10	検出数 (%)	-	-	7(70.0)	8(80.0)	
		中央値(最小値-最大値)	2,451(2,044-2,795)	80.5(73.3-87.1)	0.6(ND-7.2)	0.9(ND-7.0)	8.2(ND-83.1)
		平均±標準偏差	2,395±293	80.1±4.2	1.4±2.2	1.6±2.2	17.4±25.3
二本松市	10	検出数 (%)	-	-	5(50.0)	4(40.0)	
		中央値(最小値-最大値)	2,611(1,964-3,145)	79.4(75.1-82.6)	0.1(ND-0.9)	ND(ND-0.9)	1.7(ND-10.4)
		平均±標準偏差	2,529±423	78.9±2.3	0.3±0.4	0.2±0.3	2.9±3.6
福島市	25	検出数 (%)	-	-	15(60.0)	14(28.0)	
		中央値(最小値-最大値)	1,954(1,100-3,051)	83.7(77.9-97.6)	0.1(ND-0.8)	0.2(ND-1.3)	1.3(ND-11.3)
		平均±標準偏差	1,927±308	84.1±4.8	0.2±0.2	0.2±0.3	2.6±3.1
宇治市	19	検出数 (%)	-	-	1(5.3)	1 (5.3)	
		最大値	-	-	0.4	0.5	5.3
		平均±標準偏差	2,955±652	87.2±2.5	-	-	-

ND:検出限界以下(0.2ベクレル/キログラム)

預託実効線量は<sup>134</sup>Csと<sup>137</sup>Csの合計である。

経口摂取による実効線量係数は<sup>134</sup>Csと<sup>137</sup>Csについてそれぞれ0.019 (μSv/Bq)、0.013 (μSv/Bq)である。

表2  
福島県で流通する牛乳、野菜類における放射性セシウム濃度

調査地点	試料数	重量 (グラム)	放射能 (ベクレル/キログラム)			暫定基準値 <sup>a)</sup> (ベクレル/キログラム)
			<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs	合計	
牛乳						
福島県合計						
	21	検出数 (%)	-	20(95.2)	19(90.5)	-
		中央値 (最小値-最大値)	-	1.8(ND-4.9)	1.9(ND-5.5)	4.1(ND-10.1)
		平均±標準偏差	985±119	2.1±1.7	2.4±1.9	4.5±3.6
いわき市						
	3	検出数 (%)	-	3(100.0)	3(100)	-
		中央値 (最小値-最大値)	-	0.9(0.6-1.2)	1.2 (1.1-1.3)	2.0(1.9-2.3)
		平均±標準偏差	752±202	0.9±0.3	1.2±1.1	2.1±0.2
相馬市						
	6	検出数 (%)	-	6(100.0)	6(100.0)	-
		中央値 (最小値-最大値)	-	3.1(1.4-3.8)	3.1(1.9-4.4)	6.1(3.3-8.2)
		平均±標準偏差	1,019±29	2.8±1.0	3.1±1.0	5.9±1.9
二本松市						
	3	検出数 (%)	-	3(100.0)	2(66.7)	-
		中央値 (最小値-最大値)	-	0.2(0.2-1.3)	ND(ND-1.1)	0.2(0.2-2.4)
		平均±標準偏差	1,047±15	0.5±0.7	0.4±0.6	0.9±1.3
福島市						
	9	検出数 (%)	-	8(88.9)	8(88.9)	-
		中央値 (最小値-最大値)	-	3.4(ND-4.9)	3.9(ND-5.5)	7.3(0.2-10.1)
		平均±標準偏差	1,021±18	2.6±2.0	2.3±4.4	5.6±4.4
宇治市						
	3	検出数 (%)	-	1 (33.3)	1 (33.3)	-
		中央値 (最小値-最大値)	-	ND(ND-0.7)	ND(ND-0.7)	ND(ND-1.4)
		平均±標準偏差	1,037±21	0.2±0.4	0.2±0.4	0.5±0.8

ND: 検出限界以下(0.2ベクレル/キログラム)

調査地点	試料名	重量 (グラム)	放射能 (ベクレル/キログラム)			暫定基準値 <sup>a)</sup> (ベクレル/キログラム)
			<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs	合計	
野菜・果物						
宇治市						
	ハウレンソウ	1249	検出せず	検出せず	検出せず	500
	コマツナ	3044	検出せず	検出せず	検出せず	
福島県 (43試料)						
伊達市						
	コマツナ	1828	2.6	2.2	4.8	500
	ハウレンソウ	1677	0.2	0.3	0.5	
	ツルナ	1097	29.9	32.7	62.6	
	ツルムラサキ	826	2.1	3.1	5.2	
	キュウリ	1643	3.4	4.5	7.9	
	ネギ	1770	3.3	2.8	6.1	
川俣町						
	ミズナ	504	5.9	7.7	13.7	
	シイタケ	1012	140.4	164.2	304.6	
	ツルムラサキ	503	4.4	3.0	7.4	
	キュウリ	1007	1.3	1.6	2.8	
	ブロッコリー	831	6.4	6.6	12.9	
	ニラ	704	7.2	4.5	11.7	
	あんぼ柿	332	1.8	1.7	3.5	
	ネギ	1455	5.7	6.6	12.3	
福島市						
	ニラ	436	1.9	2.0	3.9	
	キュウリ	493	2.9	3.9	6.8	
いわき市						
	ハウレンソウ	1903	0.5	0.9	1.4	
	スナックエンドウ	860	3.5	3.6	7.1	
	シイタケ	89	検出せず	検出せず	検出せず	
	青ネギ	571	7.3	8.5	15.8	
	ニラ	615	2.8	3.5	6.3	
	ブロッコリー	1479	0.9	1.1	2.0	
	ツルムラサキ	1079	1.5	2.6	4.0	
相馬市						
	ニンニク	691	0.8	0.5	1.3	
	ネギ	1543	4.1	2.6	6.7	
	モモ	794	9.3	7.9	17.2	
	サクランボ	244	29.3	37.3	66.6	
	ソラマメ	418	4.9	6.0	10.9	
	タマネギ(大)	835	0.5	0.6	1.1	
	タマネギ(小)	430	9.1	9.2	18.3	
	紫タマネギ(大)	589	3.3	5.0	8.3	
	紫タマネギ(小)	524	9.6	11.6	21.3	
	ニンニク	256	9.4	7.2	16.6	
	ジャガイモ	1258	1.0	0.8	1.8	
南相馬市						
	にんじん	1271	1.4	2.1	3.5	
	しいたけ	417	127.1	154.7	281.8	
	ピーマン	502	検出せず	検出せず	検出せず	
二本松市						
	アスパラ	637	1.3	1.5	2.8	
	ピーマン	390	12.0	10.7	22.7	
	ツルムラサキ	1533	1.7	3.2	4.9	
	キュウリ	2064	3.6	4.3	7.9	
	ネギ	1309	5.4	5.0	10.5	
	サクランボ	352	24.5	28.5	52.9	

検出せず: 検出限界以下(0.2ベクレル/キログラム)

表3  
福島県における大気中放射性セシウムの粒度分布と経気摂取量推定

調査地点	緯度・経度	調査日 (2011)	アンダーセン式空気捕集装置使用調査, 224 m <sup>3</sup>			
			粒度 (マイクロ メートル)	粉じん量 (ミリグラム)	放射能 (ミリベクレル/m <sup>3</sup> ) <sup>134</sup> Cs <sup>137</sup> Cs	
福島市	37°45'42" N 140°28'18" E	7/2-7/8	100-11.4	0.7	0.4	0.3
			11.4-7.4	1.1	0.3	0.3
			7.4-4.9	1	1.0	0.4
			4.9-3.3	0.9	0.5	0.6
			3.3-2.2	0.6	0.3	0.2
			2.2-1.1	0.8	0.3	0.2
			1.1-0.7	1.3	0.8	0.4
			0.7-0.46	1.3	1.5	1.1
			0.46>	0.9	1.5	1.3
			合計			8.6
吸入可能分		4.9>	5.8	4.8	3.8	

調査地点	緯度・経度	調査日 (2011) (天候) <sup>b</sup>	大容量空気捕集装置使用調査						空間線量率 (マイクロシーベルト/時)	経気摂取量 <sup>a</sup> (ベクレル)	
			大気採取量 (m <sup>3</sup> )	粉じん量 (ミリグラム)	大気中放射能 (ミリベクレル/m <sup>3</sup> ) <sup>134</sup> Cs <sup>137</sup> Cs		預託実効線量 <sup>a</sup> (マイクロシーベルト/年) <sup>134</sup> Cs <sup>137</sup> Cs				合計
福島市	37°45'42" N 140°28'18" E	2011/7/2 (晴)	473	6.8	1.9	3.0	0.3	0.8	1.1	1.2	NA
伊達市	37°47'10" N 140°33'26" E	2011/7/3 (曇)	94	3.5	7.9	6.4	1.1	1.8	3.0	0.9	3,232±2,666
福島市	37°39'26" N 140°32'11" E	2011/7/3 (曇)	83	1.9	4.7	1.5	0.7	0.4	1.1	1.0	2,515±859
福島市	37°45'42" N 140°28'18" E	2011/7/4 (雨)	450	8	1.6	1.5	0.2	0.4	0.6	1.2	NA
相馬市	37°46'1" N 140°57'2" E	2011/7/5 (晴)	88	0.7	0.6	0.2	0.1	0.1	0.1	0.5	1,710±2,365
南相馬市	37°38'29" N 140°55'30" E	2011/7/5 (晴)	84	2.4	0.7	1.1	0.1	0.3	0.4	0.9	1,772±411
相馬市	37°46'8" N 140°43'1" E	2011/7/5 (晴)	84	1.3	1.1	2.3	0.2	0.7	0.8	1.6	1,723±1,792
福島市	37°45'42" N 140°28'18" E	2011/7/5 (晴)	220	4	2.9	3.4	0.4	1.0	1.4	1.2	NA
二本松市	37°33'21" N 140°27'34" E	2011/7/6 (晴)	93	0.1	0.6	0.6	0.1	0.2	0.3	1.2	12,184±12,170
二本松市	37°33'21" N 140°30'43" E	2011/7/6 (晴)	53	0.3	4.2	7.3	0.6	2.1	2.7	1.9	1,895±674
川俣町	37°36'14" N 140°38'49" E	2011/7/6 (曇)	72	0.4	6.3	6.1	0.9	1.7	2.7	2.0	3,931±4,856
福島市	37°45'42" N 140°28'18" E	2011/7/6 (曇)	246	4	5.3	7.6	0.8	2.2	2.9	1.2	NA
福島市	37°45'42" N 140°28'18" E	2011/7/7 (曇)	259	5.3	1.9	2.5	0.3	0.7	1.0	1.2	NA
飯館村	37°36'44" N 140°44'52" E	2011/7/7 (曇)	84	1.7	24.6	38.9	3.6	11.1	14.7	9.0	18,531±11,235
浪江町	37°33'38" N 140°45'39" E	2011/7/7 (曇)	84	1.7	148.2	194.2	21.6	55.3	76.9	13.0	13,548±10,469
葛尾村	37°31'33" N 140°48'21" E	2011/7/7 (曇)	84	1.5	65.0	64.0	9.5	18.2	27.7	10.0	16,332±11,170

a) 成人の1日標準呼吸量を20m<sup>3</sup>として、吸入可能分画のセシウムを吸入していると仮定している。NA: 利用不可能

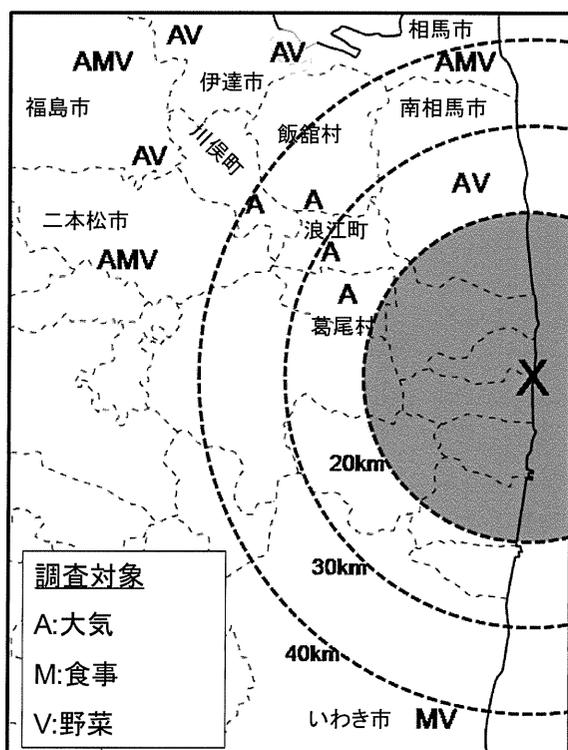


図.1. フィールド調査地点の地図上の位置

“A”は大気粉じん捕集を行った場所を示す。“M”は食事セット、水道水を収集した場所を示す。“V”は野菜類を収集した場所を示す。“X”は東京電力福島第一原子力発電所の位置を示す。各英字はおおよその地理的な位置を示している。

厚生労働科学研究費補助金（食品の安全確保推進研究事業）  
分担研究報告書

大気輸送モデルを用いた短鎖塩素化パラフィン汚染源の推定

主任研究者 小泉 昭夫 京都大学医学研究科環境衛生学分野  
分担研究者 新添 多聞 京都大学医学研究科環境衛生学分野  
研究協力者 原田 浩二 京都大学医学研究科環境衛生学分野

研究要旨

本研究では、短鎖塩素化パラフィンの汚染源を推定することを目的に、大気輸送モデルを用いたシミュレーションを行った。その際、日本、韓国、中国における大気への排出の強度と分布は統計量を基に推定した。また、関西地方の4地点において大気中微小粒子のサンプリングを行い、試料により得られた大気中濃度の実測値とシミュレーション結果を比較することにより汚染源に関する考察を行った。その結果、関西地方における大気中短鎖塩素化パラフィンはほとんどが中国から流入したものであることが示され、中国における環境への排出とそれに伴う食の汚染を強く示唆する結果となった。

A. 研究目的

短鎖塩素化パラフィン (SCCPs) は水域、土壌、大気へ排出され、食を汚染する。SCCPs による食の汚染状況の実態を把握するためには、汚染源に関する知見が必要となるが、ほとんど明らかになっていないのが実情である。一般的に水域、土壌の汚染は、その汚染源の周辺に限定されるが、大気中の汚染物質は大気の流れにより拡散されるため、汚染源が影響を与える地域は広範囲に拡大する。従って、国内外を含む広域スケールにおける汚染源を包括的に推定するには、大気に着目することが有効である。

日本における SCCPs の大気への排出は主に金属加工油の使用によるものであったと考えられてきた (Nakanishi and Tsunemi, 2008)。

しかしながら、業界の自主規制により、現在日本で生産される金属加工油には SCCPs は含まれていないとされている (JALOS, 2007)。筆者らは 2010 年秋に京都市左京区の京都大学医学部構内において予備的に大気サンプリングを行い分析したところ、SCCPs の大気中濃度は数  $\text{ng m}^{-3}$  という値を記録した。これは日本において、環境への SCCPs の明確な排出源が現在でも存在することを示唆する値である。国内に排出源が残っているか、国外から流入していることが可能性として考えられる。

そこで本研究では、経済統計などを基に推定した、日本、韓国、中国における SCCPs の大気への排出の強度と分布を大気輸送モデルに入力して大気中濃度を計算した。さらに、関西地方 4 地点における大気モニタリングを

行い、大気中濃度の実測値とシミュレーションによる計算値を比較することにより、SCCPs の排出源に関する検討を行った。

## B. 研究方法

### B-1. 大気輸送モデルを用いた大気中SCCPsのシミュレーション

SCCPs の環境への排出量については、日本、韓国については平成 22 年度の報告書に記述した通りである。

日本においては、まず金属加工工程からの SCCPs の排出量を見積もった。Nakanishi and Tsunemi (2008) と同様の手法を用いて、塩素化パラフィン (CPs) の国内生産量 (FRCJ, 2003) や金属加工油剤における SCCPs の国内使用量の統計 (JALOS, 2007) などから推定した。排出量の分布については、金属加工製品出荷高および金属加工業事業者数に基づいて推定した。難燃剤あるいは可塑剤としての SCCPs を含有する製品からの排出については、Nakanishi and Tsunemi (2008) と同様に、製品寿命をワイブル関数に従う確率分布として評価し、排出量の分布は人口密度 (MIC, 2005) に依存すると仮定した。

韓国からの排出量は、日本からの排出量に対して、金属加工油の販売高に比例すると仮定した。分布については、金属加工製品出荷高を用いた。中国については、中国内全体の排出量は日本の場合と同様に、塩素化パラフィンの生産量を用いるが、これにスケールファクターを適用することにより大きさを調整した。分布については金属切削機械の販売高を用いた。SCCPs の大気への排出は金属加工工程における油剤使用による大気への排出が支

配的であると考えられていることから (Nakanishi and Tsunemi, 2008; Denier van der Gon et al., 2007)、韓国については、含有製品からの排出は無視できると仮定した。

中国は主に可塑剤および難燃剤としての CPs 生産量が近年激増しており、現在は世界最大の生産国となっている (De Boer et al., 2010)。2007 年には年間生産量が 60 万トンに達した (Wang et al., 2009)。また、土壌や下水中では SCCPs による高レベルでの汚染が確認されているが、中鎖の CPs はほとんど検出されていない (Zeng et al., 2011; Zeng et al., 2012)。そこで、60 万トンの CPs 年間生産量のすべてが SCCPs であると仮定し、排出係数を 2%とした。排出の国内分布については、行政区ごとのプラスチック生産量 (NBS, 2009) および人口密度 (CIESIN and CIAT, 2005) で重みづけして分配した。

大気輸送シミュレーションには気象場の予報と大気中物質濃度計算を同時に行う WRF/Chem (Grell et al., 2005) を用いた。筆者らは既に WRF/Chem を用いて関西を対象とするフッ素化合物の大気拡散シミュレーションを行い、大気中汚染物質濃度を高い精度で再現できることを実証している (Niisoe et al., 2010)。対象領域として日本、韓国、中国を含む東西 4500 km、南北 3600 km、解像度 90 km の domain1 と、関西地方における東西南北 450 km、解像度 9 km の domain2 の 2 つの領域を設定し、一方の domain の計算結果を他方の domain の境界条件として与える 2-way nesting を用いて結合した (図 1)。これにより、domain1 の広域における排出量を反映させつつ domain2 で対象とする関西地方を高解像度で

計算することが可能となる。鉛直方向には地表面の起伏を考慮する $\sigma$ 座標を用い、大気の上端は300 hPaとした。気象場の初期値および境界値は気象庁のJRA-25再解析データを用いた(Onogi et al., 2007)。対象期間は2011年1月から3月である。

## B-2. 大気サンプリング

2011年1月から3月にかけて、京都市左京区(Yoshida)、京都市伏見区(Ujigawa)、兵庫県尼崎市(Amagasaki)、大阪府柏原市(Kashiwara)の4地点において、大気の24時間サンプリングをそれぞれ一週間程度行った。図2は本研究で推定された関西地方における大気へのSCCPs年間排出量の分布と測定地点に相当するグリッドである。京都市においては南区からの排出が高いと推定されるが、YoshidaとUjigawaはそれぞれその北側、および南西側、即ち大阪寄りに位置する。Amagasakiは重工業地帯であり排出量が比較的高いと予想される。また、Kashiwaraは関西で最も排出量が高いと考えられる東大阪市のおよそ10 km南方である。従って、現在でも日本においてSCCPsの排出源が存在し卓越するならば、大気中濃度は国内の排出源の分布を反映するはずであり、4つの測定点における大気中濃度には明確な差があるものと期待される。

SCCPsは大気中においてほとんどが気体として存在するため(Peters et al., 2000)、ハイボリュームエアサンプラーに装着したポリウレタンと活性炭の吸着剤により採取した(図3)。採取した高度はUjigawa、Amagasakiが約1.5 m、Yoshidaが約3 m、Kashiwaraが約20 mである。試料は

常温で保存し、京都大学において抽出、分析し、24時間サンプリングによる結果を日平均濃度とした。

また、2008年において中国北京市(10月)および韓国釜山市(12月)においても同様のサンプリングを行っており、それによる大気中濃度の測定値も比較に用いた。

## C. 研究結果

### C-1. モデルによる大気中SCCPs濃度分布

日本、韓国、中国からのSCCPs年排出量の推定値はそれぞれ $1.1 \text{ t yr}^{-1}$ 、 $14 \text{ t yr}^{-1}$ 、 $12000 \text{ t yr}^{-1}$ となった(図4)。図5は、この排出量をモデルに与えて計算した、2011年2月における地表面大気中濃度の月平均分布である。中国でのSCCPs排出の分布を反映し、北京、天津から上海、福州にかけて、 $50 \text{ ng m}^{-3}$ を超える高濃度の領域が広がっている。日本での大気中濃度は中国よりおよそ1桁小さく、日本全体が1から $5 \text{ ng m}^{-3}$ の領域に含まれている。また、Yoshida、Ujigawa、Amagasaki、Kashiwaraの4地点での濃度に明瞭な地域差は見られない。

### C-2. 大気中SCCPs濃度測定

2011年の関西4地点および2008年の釜山、北京における測定結果を表(obs)に示す。関西4地点では気象条件が異なるために、日々変動により $5 \text{ ng m}^{-3}$ を大きく超える日も見られるが、概ね $3 \text{ ng m}^{-3}$ 前後で推移している。一方、地域による明瞭な差は見られない。釜山での濃度は関西より若干高く、幾何平均値が $5.51 \text{ ng m}^{-3}$ となった。

これに対して北京での大気中濃度は関西、釜山での値よりおよそ2桁大

きい。観測を行った4日間を通して100 ng m<sup>-3</sup>を上回っており、幾何平均値は227 ng m<sup>-3</sup>であった。

### C-3. 計算値と実測値との比較

モデルによる大気中SCCPs濃度の日平均値と測定値との比較を行った(表1、図6)。大気中濃度の測定値は局地的な気象条件や測定場所の周囲の建物などの影響を受けている。そのため、モデルでは測定値の日々変動を再現するまでは至らない。しかしながら、関西、釜山、北京ともに濃度の大きさは概ね一致しており、また関西4地点の濃度において明確な差が見られないという特徴も再現できている。それぞれの測定地点での濃度の幾何平均値と、同期間におけるモデルによる計算結果の平均値とを比較したところ、Ujigawa、Amagasakiでは過少評価となったがfactor 4の誤差に納まっていた。その他の4地点ではfactor 2以下の誤差で一致した。

### C-4. 感度実験

国外から大気を通じて日本へ流入するSCCPsの影響を見るために、日本における排出のみをモデルに与えた場合の結果を図8に示す。値を示した期間は図6と同じである。関西4地点での大気中濃度はおよそ2桁減少し、実測値より遙かに小さな値となる。また、それぞれの期間中の平均濃度は排出分布(図2)を反映し、Kashiwara、Amagasaki、Ujigawa、Yoshidaの順で高くなった。

### D. 考察

推定された関西におけるSCCPs排出分布から(図2)、国内での排出が卓越するのであれば、Yoshida、

Ujigawa、Amagasaki、Kashiwaraの4地点での大気中濃度には明確な差が見られるはずであると予想された。これに対して実際の測定値には差は見られず、幾何平均値はいずれも3 ng m<sup>-3</sup>前後であった。

日本、韓国、中国でのSCCPs排出量はそれぞれ1.1 t yr<sup>-1</sup>、14 t yr<sup>-1</sup>、12000 t yr<sup>-1</sup>と推定された。これをモデルに与えたところ、関西4地点、釜山、北京での濃度と概ね一致した。また、関西4地点で濃度の差がないこと、関西4地点および釜山と北京では濃度におよそ2桁の違いがあるという特徴を再現できていた。

モデルに日本からのSCCPs排出のみを与えた場合、濃度の計算値は実測値より遙かに小さくなり、また関西4地点での濃度差が現れた。

以上の結果はいずれも、大気を通じて中国から日本へ流入するSCCPsの影響が非常に強いことを示唆している。本研究の結果によれば、我々が呼吸により体内に吸い込んでいるSCCPsのほとんどすべてが中国から流入していることになる。

その一方で、モデルによる濃度の日々変化は測定結果とは異なっている。特にUjigawaおよびAmagasakiでは比較した期間のほとんどすべてで計算値は実測値より小さく、期間を通じての平均値もfactor 2を超える過少評価となった。

汚染源が遠方にある場合、そこから排出されたSCCPsは長時間複雑な大気の流れの場を経て関西に到達することになり、高い精度で濃度を再現、予測することは困難になる。図9はモデルによる大気中SCCPs濃度の計算値と実測値に大きな差があった1月24日と2月14日の午前9時における地表面濃度分布と風速場の様子であ

る。1月24日は過大評価、2月14日は過小評価となった(図6)。両日ともに大陸上の高気圧により大陸から日本に向けて季節風が吹き出している。1月24日は日本上空に低気圧が存在し、大陸の高気圧から日本の低気圧への大気の流れにより、東西に広がる帯状の高濃度の領域が日本付近に南下している。これに対して2月14日は日本上空には大陸からの大気の流れを妨害するように高気圧が存在し、日本付近のSCCPs濃度は低くなる。モデルに与えた気象場を見る限り、モデルにより表現されたSCCPs濃度場は整合性のとれたものであるが、これは濃度の測定結果とは食い違っている。この原因がモデルに与えた気象場の再現性が低いためである可能性もあるが、中国からの流入に否定的な示唆を与えるものでもある。従って、国内に未知の排出源が存在する可能性も未だに残る。

近年、中国におけるCPs生産量の激増を受けて、中国における土壌や下水中のSCCPs濃度測定は行われているが(e.g. Zeng et al., 2011; Zeng et al., 2012)、アジアにおける大気中濃度の測定例は皆無と言ってよい。本研究による大気中濃度測定データは極めて貴重な知見を与えるものではあるが、汚染源についての結論を導くにはあまりに乏しい。今後も日本、中国、韓国において、大気中濃度測定を継続していく必要がある。

## E. 結論

本研究では環境中SCCPsの汚染源を推定するため、大気への排出と大気中濃度に着目してきた。日本、中国、韓国における大気へのSCCPs排出の強度と分布を推定し、これを大気輸送

モデルに入力して、地表面大気中濃度を計算した。さらに関西4地点で大気中濃度の測定を行い、2008年の釜山、北京での測定データとあわせてモデルによる計算値との比較を行った。その結果、モデルでは測定値に見られる関西、釜山と北京での濃度の違い、関西での濃度の均一性といった特徴を再現できていた。また、モデルに日本からの排出のみを与えた場合は、測定値の特徴と明らかに異なる結果となった。これらは大気の流れによる中国からのSCCPsの流入を強く示唆するものである。その一方、日平均濃度の変動については計算値と実測値では一致しておらず、より詳細な検討が必要である。

今後、モデルについて検討すべきは以下の2点である。

- (1) 中国でのSCCPs排出の分布。
- (2) 気象場の再現性。

大気中濃度測定については、現在Yoshidaにおいて継続的に実施中である。また、韓国においては現地の研究者と協力してデータを蓄積する計画を立案中である。さらに近日中に上海において測定を行う予定である。中国からの流入に関して、分析を行う上で着目すべきは以下の2点である。

- (1) 濃度の季節的変動。
- (2) SCCPsの成分の特徴。

CPsの世界最大の生産国である中国が、本研究で示唆されるように日本の大気に強い影響を与えているとするならば、中国国内のSCCPsによる環境汚染は深刻なレベルにあると考えられ、中国から多くの食品を輸入する日本の食の安全にとっても重大な問題である。また、大気の流れにより流入する汚染物質は地球表面に沈着して土壌や水を汚染する。今後、中国でのSCCPs生産量が現在のペースで

増加すれば、大気を通じて越境する SCCPs により日本の食品もまた汚染される可能性もある。さらに、SCCPs の難分解性、生物濃縮性を考慮すれば、東アジアに留まらず、世界的かつ長期的な食の安全の問題に発展することも考えられる。従って、今後とも継続的に測定データを蓄積し、モデルの精度を向上させ、汚染源に関する検討を継続する必要がある。

#### F. 健康危険情報

なし

#### G. 研究発表

##### 1. 論文発表

なし

##### 2. 学会発表・その他

新添多聞、原田浩二、人見敏明、石川裕彦、小泉昭夫、大気中短鎖塩素化パラフィンの数値シミュレーション、近畿産業衛生学会、2011年11月5日、奈良県文化会館

新添多聞、原田浩二、人見敏明、石川裕彦、小泉昭夫、日本および中国の大気中短鎖塩素化パラフィンの数値シミュレーション、日本衛生学会、2012年3月25日、京都大学

#### H. 知的財産権の出願・登録状況

##### 1. 特許取得

なし

##### 2. 実用新案登録

なし

##### 3. その他

なし

#### I. 文献

1. CIESIN and CIAT, 2005. *Gridded population of the world version 3 (GPWv3): population density grids*, Palisades, NY. <http://sedac.ciesin.columbia.edu/gpw>.
2. De Boer J., El-Sayed Ali T., Fiedler H., Legler J., Muir D.C., Nikiforov V.A., Tomy G.T., Tsunemi K., 2010. Chlorinated paraffins. In: De Boer J. (Ed.), *The handbook of environmental chemistry. Chlorinated paraffins*, vol. 10. Springer-Verlag, Berlin: Berlin/Heidelberg.
3. Denier van der Gon H., Van het Bolscher M., Visschedijk A., Zandveld P, 2007. Emissions of persistent organic pollutants and eight candidate POPs from UNECE-Europe in 2000, 2010 and 2020 and the emission reduction resulting from the implementation of the UNECE POP protocol, *Atmos. Environ.* **41**, 9245-9261.
4. Grell G.A., Peckham S.E., Schmitz R., McKeen S.A., Frost G., Skamarock W.C., Eder B., 2005. Fully coupled "online" chemistry within the WRF model, *Atmos. Environ.* **39**, 6957-6975.
5. JALOS, 2007. *Report of activities for low-pollution lubricating fluids supported by funds*, Japan Lubricating Oil Society, Funabashi, Japan; [www.jalos.or.jp/jalos/paper/pdf/2006report07.pdf](http://www.jalos.or.jp/jalos/paper/pdf/2006report07.pdf)
6. MIC, 2005. 2005 population census, Statistics Bureau, Ministry of Internal Affairs and Communications, Tokyo, Japan; [www.stat.go.jp/data/kokusei/200](http://www.stat.go.jp/data/kokusei/200)