

Table. 4. 食料・飲料水中鉛含有量の計算式における定数

	Japan	Korea	China	Vietnam
Pb_0 ($\mu\text{g day}^{-1}$)	27.17	36.30	35.46	13.79
k	-5.43×10^{-2}	-3.48×10^{-2}	-1.86×10^{-2}	0.0

Table. 5. 2009年ハノイ市で測定した児童の体重と血中鉛濃度

Age	n	Body weight		Blood Pb	
		GM (kg)	GSD	GM ($\mu\text{g L}^{-1}$)	GSD
7	3	22.6	1.28	31.7	1.12
8	3	24.2	1.23	20.1	1.20
9	4	25.3	1.14	39.6	1.76
10	12	29.1	1.27	28.6	1.50
11	8	29.3	1.12	27.5	1.21
12	3	43.0	*	38.8	1.22
Total	33			29.6	1.44

*Body weight values of two children were not recorded.

Table. 6. 韓国における血液と食料中鉛濃度の測定値

City	Year	n ^a	Job	Pb		Refs
				Food ^b	Blood ^c	
Seoul	1994	24	MH	17.5 (1.7)	46.6 (1.2)	1
Seoul	2001	19 ^d	Teachers	16.4 (2.3)	26.7 (1.5)	2
Seoul	2007	35	MH	14.9 (1.8)	17.5 (1.4)	PW
Busan	1994	47	MH	21.6 (1.7)	46.0 (1.3)	1
Busan	2000	38	Housewives	18.4 (1.8)	37.3 (1.7)	3
S/B ^e	2005	997 ^f	NS	N/A	22.9 (1.0)	4
S/B ^e	2007	1546 ^f	NS	N/A	14.7 (1.0)	5
Chunan	1994	29	MH	21.7 (1.5)	59.9 (1.3)	1
Haman	1994	41	MH	20.2 (1.7)	33.4 (1.3)	1
Yeoju	1986	46	MH	33.1 (1.8)	51.5 (1.3)	6

^aNon-smoking females only.

^bGM in $\mu\text{g day}^{-1}$ with GSD in parentheses.

^cGM in $\mu\text{g L}^{-1}$ with GSD in parentheses.

^dNon-smokers only, gender not stated.

^eNational survey of Korea, assuming average values for Seoul and Busan.

^fFemales only, mainly non-smokers.

MH: mainly housewives.

NS: not stated.

Refs: 1.Moon et al. (1995), 2.Oh et al. (2006), 3.Moon et al. (2003), 4.Kim and Lee (2010), 5.Son et al. (2009), 6.Watanabe et al. (1987)

Table. 7. 中国における血液と食料中鉛濃度の測定値

City	Year	n ^a	Job	Pb		Refs
				Food ^b	Blood ^c	
Beijing	1982	118	Teachers	N/A	56.0 (1.4)	1
Beijing	1993	50	Institute staff	23.9 (2.3)	43.4 (1.4)	2
Beijing	2007	25	MH	19.4 (1.8)	35.1 (1.4)	PW
Chongqing	1981–1983	68	Teachers	N/A	51 (1.6)	3
Shanghai	1981–1983	87	Teachers	N/A	75 (1.5)	3
Shanghai	1995	50	Institute staff	17.2 (1.6)	55.4 (1.5)	2
Hangzhou	1981–1983	120	Teachers	N/A	60 (1.5)	3
Nanning	1994	50	Institute staff	32.3 (2.0)	54.4 (1.4)	2
Jinan	1981–1983	126	Teachers	N/A	63 (1.4)	3
Jinan	1983	110	Teachers	N/A	76.6 (1.6)	4
Jinan	1985	43	Teachers	N/A	76.3 (1.6)	4
Jinan	1991	76	Hospital workers	N/A	71.6 (1.4)	5
Jinan	1996	50	University staff	26.0 (1.6)	35.3 (1.4)	2
Nanjing	1983–1984	121	Teachers	N/A	51.0 (1.7)	6
Nanjing	1985–1986	60	Teachers	N/A	55.0 (1.5)	6
Nanjing	1987–1988	53	Teachers	N/A	58.0 (1.3)	6
Nanjing	1992–1993	60	Teachers	N/A	57.9 (1.3)	6
Nanjing	1994–1995	63	Teachers	N/A	64.8 (1.2)	6
Nanjing	1998	171	Teachers	N/A	68.2 (1.4)	6
Wuhan	1997–1999	105	NSd	N/A	61.8 (1.0)	7
XiAn	1981–1983	118	Teachers	N/A	58 (1.3)	3
XiAn	1997	50	MH	28.1 (1.5)	38.2 (1.5)	8
Harbin	1981–1983	127	Teachers	N/A	56 (2.9)	3
Qingdao	2006	67	NSd	N/A	48.0 (1.3)	9
Baoding	1981–1983	102	Teachers	N/A	64 (1.6)	3
Baoji	1997	50	MH	36.0 (1.5)	21.5 (1.4)	8
Yuyao	2007	218	Farmers	N/A	58.6 (1.7)	10

^aNon-smoking females only.

^bGM in $\mu\text{g day}^{-1}$ with GSD in parentheses.

^cGM in $\mu\text{g L}^{-1}$ with GSD in parentheses.

^dFree from occupational exposure.

Refs: 1.Friberg and Vahter (1983), 2.Ikeda et al. (2000), 3.Zheng and Ji (1987), 4.Yu et al. (1989), 5.Qu et al. (1993), 6.Gue and Jiang (2000), 7.Wang et al. (2004), 8.Watanabe et al. (2000), 9.Wang et al. (2009), 10.Wang et al. (2010)

Table 8. ベトナムにおける血液と食料中鉛濃度の測定値

Year	n ^a	Job	Pb	
			Food ^b	Blood ^c
2007	22	MH	13.8 (2.4)	39.0 (1.3)
2009	33	MH	N/A	28.0 (1.4)

^aNon-smoking females only.

^bGM in $\mu\text{g day}^{-1}$ with GSD in parentheses.

^cGM in $\mu\text{g L}^{-1}$ with GSD in parentheses.

Table 9. 大気モデルのグリッドに格納した、日本における血液と食料中鉛濃度の測定値

Lon	Lat	Year	n ^a	Pb	
				Food ^b	Blood ^c
130.00	33.75	1979	26	31.7 (1.4)	27.1 (1.4)
136.25	36.25	1979	19	41.8 (1.8)	33.0 (1.4)
137.50	36.25	1979	16	50.1 (1.3)	29.5 (1.4)
138.75	37.50	1979	17	43.4 (2.1)	33.3 (1.5)
140.00	37.50	1979	5	29.2 (1.6)	46.0 (1.7)
127.50	26.25	1980	11	28.6 (1.6)	51.4 (1.7)
130.00	28.75	1980	20	25.3 (1.7)	31.3 (1.3)
130.00	31.25	1980	25	22.5 (1.6)	29.0 (1.6)
132.50	35.00	1980	20	31.5 (1.5)	20.6 (1.6)
133.75	33.75	1980	17	36.8 (1.5)	22.3 (1.6)
138.75	36.25	1980	22	31.2 (1.9)	28.3 (1.4)
141.25	38.75	1980	15	25.3 (1.4)	34.5 (1.4)
141.25	42.50	1980	19	38.5 (1.7)	33.6 (1.6)
125.00	25.00	1981	10	17.2 (1.4)	33.0 (1.3)
130.00	31.25	1981	19	18.7 (1.8)	41.3 (1.3)
140.00	36.25	1981	25	55.2 (1.7)	64.5 (1.5)
141.25	38.75	1981	20	22.0 (1.9)	32.6 (1.6)
131.25	33.75	1991	3/10 ^d	4.66 (2.9)	25.1 (1.7)
141.25	38.75	1991	35	4.20 (1.5)	28.1 (1.4)
141.25	38.75	1992	14/31 ^d	3.89 (1.3)	24.9 (1.3)
130.00	33.75	1993	16/17 ^d	8.10 (1.8)	21.7 (1.3)
133.75	33.75	1993	17/20 ^d	5.50 (2.5)	22.7 (1.3)
136.25	35.00	1993	25	16.9 (2.3)	49.5 (1.8)
138.75	37.50	1993	22/24 ^d	3.50 (3.1)	27.3 (1.3)
140.00	36.25	1993	44	6.83 (2.0)	33.8 (1.5)
130.00	28.75	1994	23	19.9 (1.8)	16.7 (1.7)
132.50	35.00	1994	28/27 ^d	11.6 (1.7)	28.3 (1.4)
136.25	35.00	1994	25	8.53 (1.8)	26.0 (1.3)
137.50	36.25	1994	25	10.9 (2.0)	27.6 (1.4)
140.00	37.50	1994	28/27 ^d	18.0 (2.7)	23.1 (1.4)

Table.9. 続き

Lon	Lat	Year	n ^a	Pb	
				Food ^b	Blood ^c
123.75	23.75	1995	23	7.83 (1.9)	20.1 (1.5)
130.00	31.25	1995	28	22.8 (1.8)	30.6 (1.4)
136.25	36.25	1995	24/25 ^d	11.5 (2.6)	25.2 (1.4)
137.50	35.00	1995	21	13.3 (1.7)	24.8 (1.3)
143.75	42.50	1995	19	10.6 (1.8)	24.1 (1.3)
132.50	33.75	1996	25	10.6 (2.4)	10.9 (1.8)
136.25	36.25	1996	31/30 ^d	12.6 (2.0)	13.6 (2.3)
141.25	41.25	1997	30	15.0 (2.2)	17.9 (2.1)
127.50	26.25	2002	250 ^e	N/A	15.9 ^f
130.00	33.75	2002	47 ^e	N/A	13.9 ^f
136.25	35.00	2002	486 ^e	N/A	18.0 ^f
140.00	35.00	2002	100 ^e	N/A	14.3 ^f
138.75	37.50	2002	209 ^e	N/A	14.7 ^f
141.25	38.75	2002	122 ^e	N/A	15.0 ^f
136.25	35.00	2007	20	23.8 (2.0)	12.4 (1.4)
137.50	36.25	2007	20	9.66 (1.3)	14.9 (1.4)
141.25	38.75	2007	20	8.18 (1.9)	11.4 (1.6)
136.25	36.25	2008	106 ^e	N/A	14.2 ^f
141.25	40.25	2008	100 ^e	N/A	13.8 ^f

^aNon-smoking females only, mainly housewives.

^bGM in $\mu\text{g day}^{-1}$ with GSD in parentheses.

^cGM in $\mu\text{g L}^{-1}$ with GSD in parentheses.

^dFood/Blood.

^eNon-smoking females only, free from occupational exposure.

^fGSD is 1.42–1.60 (Ikeda et al., 2010).

^{Refs}Watanabe et al. (1985), Ikeda et al. (1989), Shimbo et al. (2000), Tsukahara et al. (2003), Ikeda et al. (2010).

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 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 σ 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 t yr^{-1} 、 14 t yr^{-1} 、 12000 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 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 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 ng m^{-3} を大きく超える日も見られるが、概ね 3 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 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⁻³を上回っており、幾何平均値は227 ng m⁻³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⁻³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⁻¹、14 t yr⁻¹、12000 t yr⁻¹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
6. MIC, 2005. 2005 population census, Statistics Bureau, Ministry of Internal Affairs and Communications, Tokyo, Japan; www.stat.go.jp/data/kokusei/2005

- [5/index.htm](#).
7. Nakanishi J., Tsunemi K., 2008. *Short chain chlorinated paraffins*; AIST risk assessment document series No. 6, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST), Tsukuba, Japan; <http://unit.aist.go.jp/riss/crm/mainmenu/1-9.html>.
 8. NBS, 2009. *China industry economy statistical yearbook 2009*. Department of Industrial and Transportation Statistics, National Bureau of Statistics of the People's Republic of China, China Statistics Press, Beijing, China.
 9. Niisoe T., Harada K.H., Ishikawa H., Koizumi A., 2010. Long-term simulation of human exposure to atmospheric perfluorooctanoic acid (PFOA) and perfluorooctanoate (PFO) in the Osaka urban area, Japan, *Environ. Sci. Technol.* **44**, 7852-7857.
 10. Onogi K., Tsutsui J., Koide H., Sakamoto M., Kobayashi S, Hatsushika H., Matsumoto T., Yamazaki N., Kamahori H., Takahashi K., Kodokura S., Wada K., Kato K., Oyama R., Ose T., Mannoji N., Taira R., 2007. The JRA-25 reanalysis, *J. Meteorol. Soc. Jpn.* **85**, 369-432.
 11. Peters A.J., Tomy G.T., Jones K.C., Coleman P., Stern G.A., 2000. Occurrence of C₁₀-C₁₃ polychlorinated n-alkanes in the atmosphere of the United Kingdom. *Atmos. Environ.*, **34**, 3085-3090.
 12. Wang Y., Fu J., Jiang G., 2009. The research of environmental pollutions and toxic effect of short chain chlorinated paraffins, *Environ. Chem.* **28**, 1-9 (in Chinese).
 13. Zeng L., Wang T., Han W., Yuan B., Liu Q., Wang Y., Jiang G., 2011. Spatial and vertical distribution of short chain chlorinated paraffins in soils from wastewater irrigated farmlands, *Environ. Sci. Technol.* **45**, 2100-2106.
 14. Zeng L., Wang T., Ruan T., Liu Q., Wang Y., Jiang G., 2012. Levels and distribution patterns of short chain chlorinated paraffins in sewage sludge of wastewater treatment plants in China, *Environ. Pollut.*, **160**, 88-94

表 1 2011年の関西における大気中SCCPs濃度 (ng m⁻³) の測定値とモデルによる計算値。

測定点	測定日	日平均濃度 (ng m ⁻³)	計算値 (ng m ⁻³)
京都市左京区 (Yoshida)	2011/01/24	2.81	7.85
	2011/01/25	4.05	2.16
	2011/01/26	1.80	1.82
	2011/01/27	1.64	1.90
	2011/01/28	1.90	1.16
	2011/01/29	2.58	0.91
	2011/01/30	4.89	0.60
	幾何平均値	2.60	1.68
京都市伏見区 (Ujigawa)	2011/02/10	0.57	1.30
	2011/02/11	1.93	0.63
	2011/02/12	1.73	0.67
	2011/02/13	7.47	1.21
	2011/02/14	13.7	0.57
	2011/02/15	3.26	0.83
	2011/02/16	2.99	0.95
	幾何平均値	2.94	0.84
尼崎市 (Amagasaki)	2011/02/25	3.35	3.88
	2011/02/26	2.99	0.42
	2011/02/27	9.14	1.34
	2011/02/28	8.37	0.78
	2011/03/01	4.85	1.70
	2011/03/02	2.15	1.57
	2011/03/03	2.90	0.69
	幾何平均値	4.20	1.18
柏原市 (Kashiwara)	2011/03/11	2.51	3.04
	2011/03/12	9.83	2.20
	2011/03/13	2.79	1.59
	2011/03/14	1.91	2.57
	2011/03/15	0.963	7.33
	幾何平均値	2.63	2.88
釜山市 (Busan)	2008/12/14	3.78	3.61
	2008/12/15	7.25	10.5
	2008/12/16	6.11	6.73
	幾何平均値	5.51	6.34
北京市 (Beijing)	2008/10/18	242	282
	2008/10/19	166	235
	2008/10/19	348	269
	2008/10/20	190	280
	幾何平均値	227	266

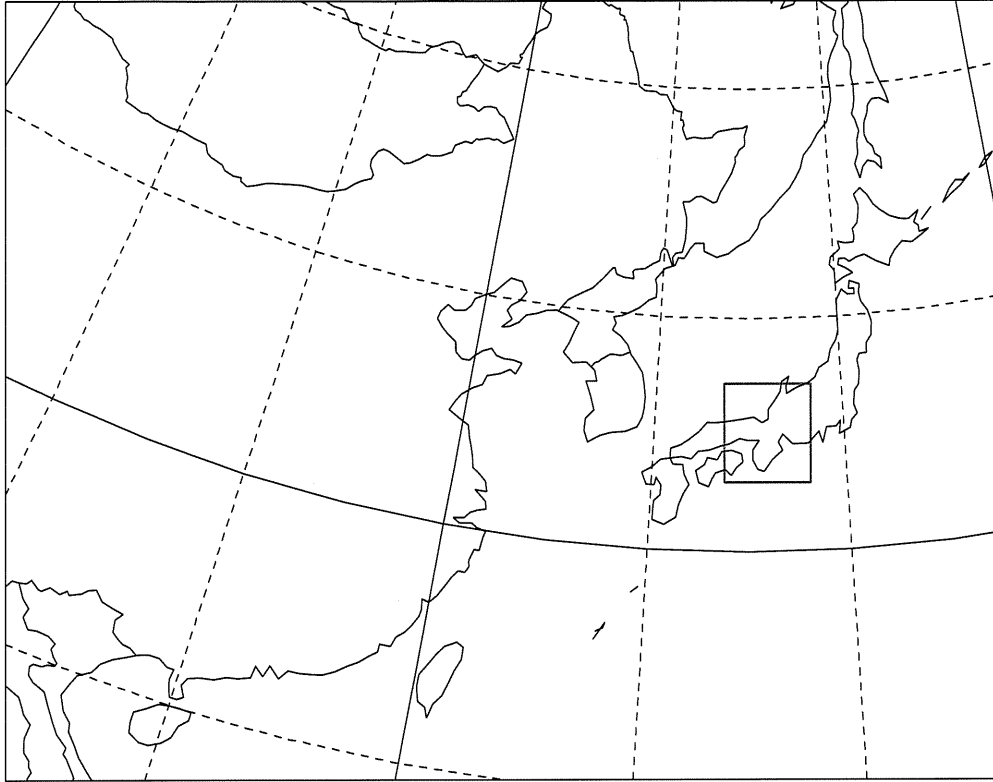


図 1 計算領域。東西 4500km、南北 3600km、水平解像度 90km の領域 1（黒枠）と、東西南北 450km、水平解像度 9km の領域 2（赤枠）を結合した。

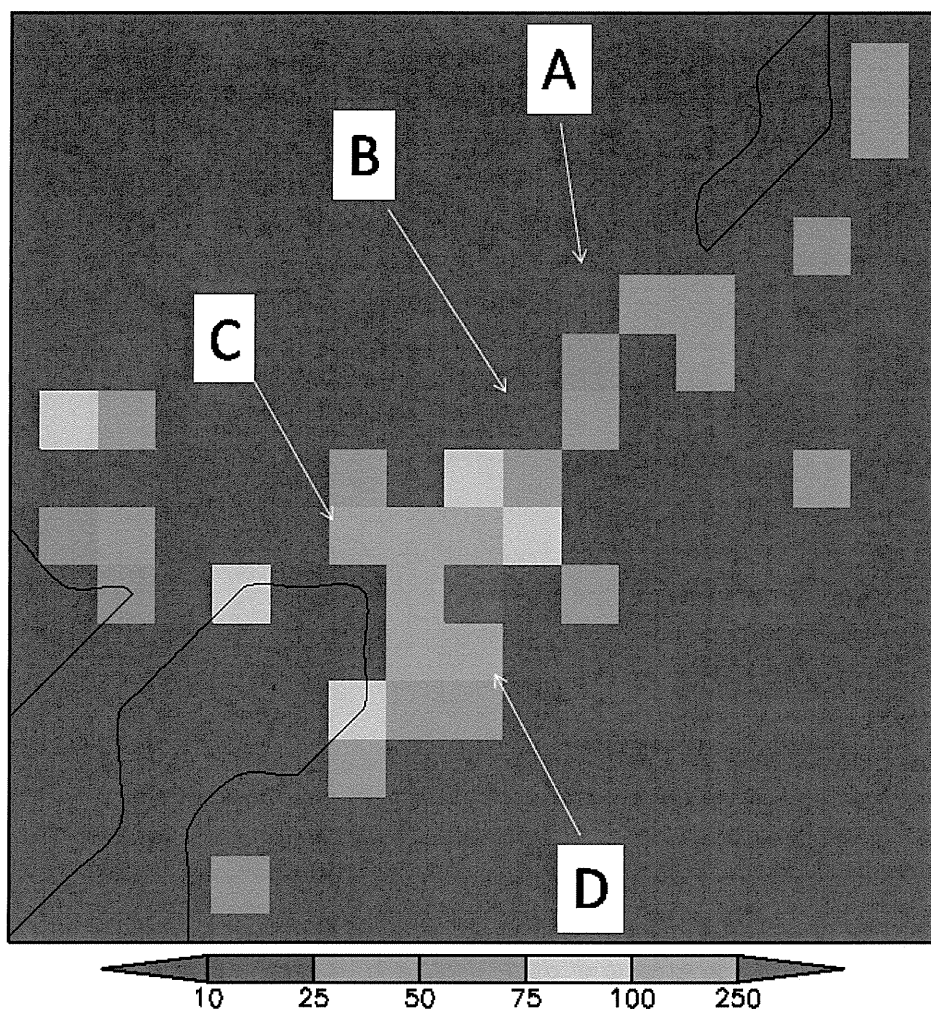


図 2 2006年の関西における大気へのSCCPs排出量の推定分布($\mu\text{g m}^{-2}\text{ yr}^{-1}$)。A: Yoshida、B: Ujigawa、C: Amagasaki、D: Kashiwara。最も高いグリッドは東大阪市。

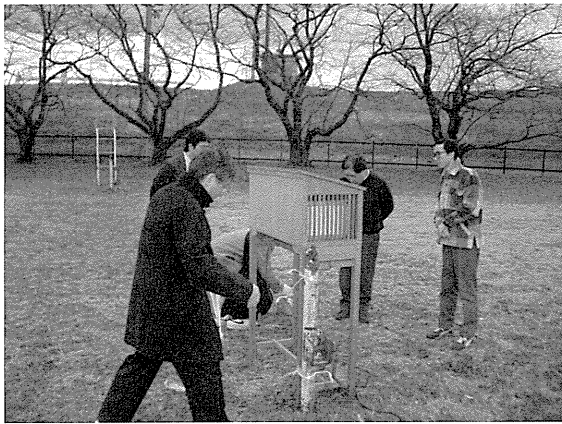
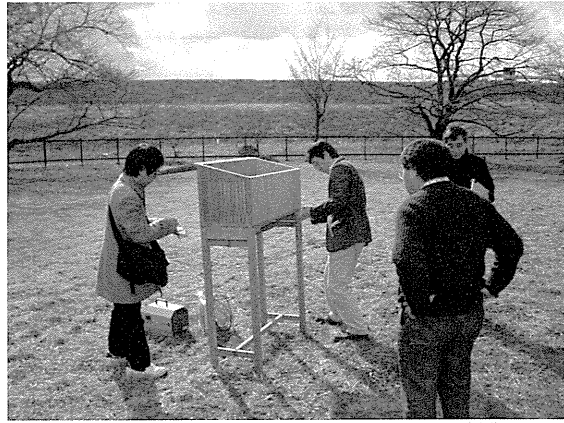
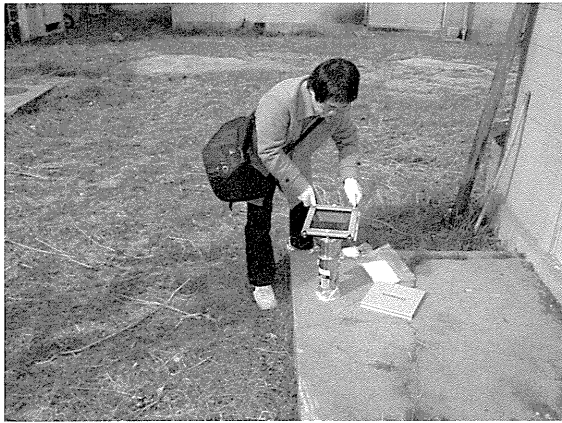


図 3 ハイボリュームエアサンプラー設置の様子。2011年2月10日京都大学防災研究所宇治川オープンラボラトリー構内 (Ujigawa)。

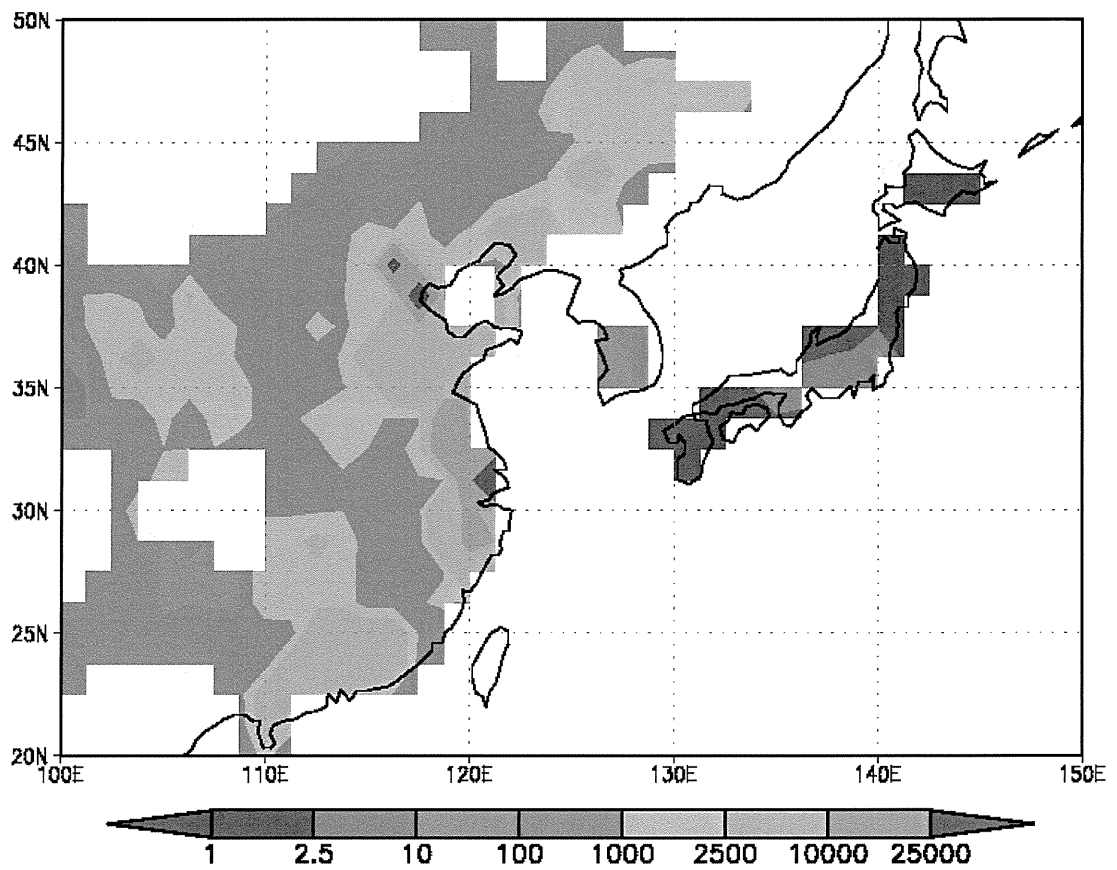


図 4 日本、韓国、中国における大気への SCCPs 推定排出分布。国ごとの排出量はそれぞれ 1.1 t yr^{-1} 、 14 t yr^{-1} 、 12000 t yr^{-1} 。

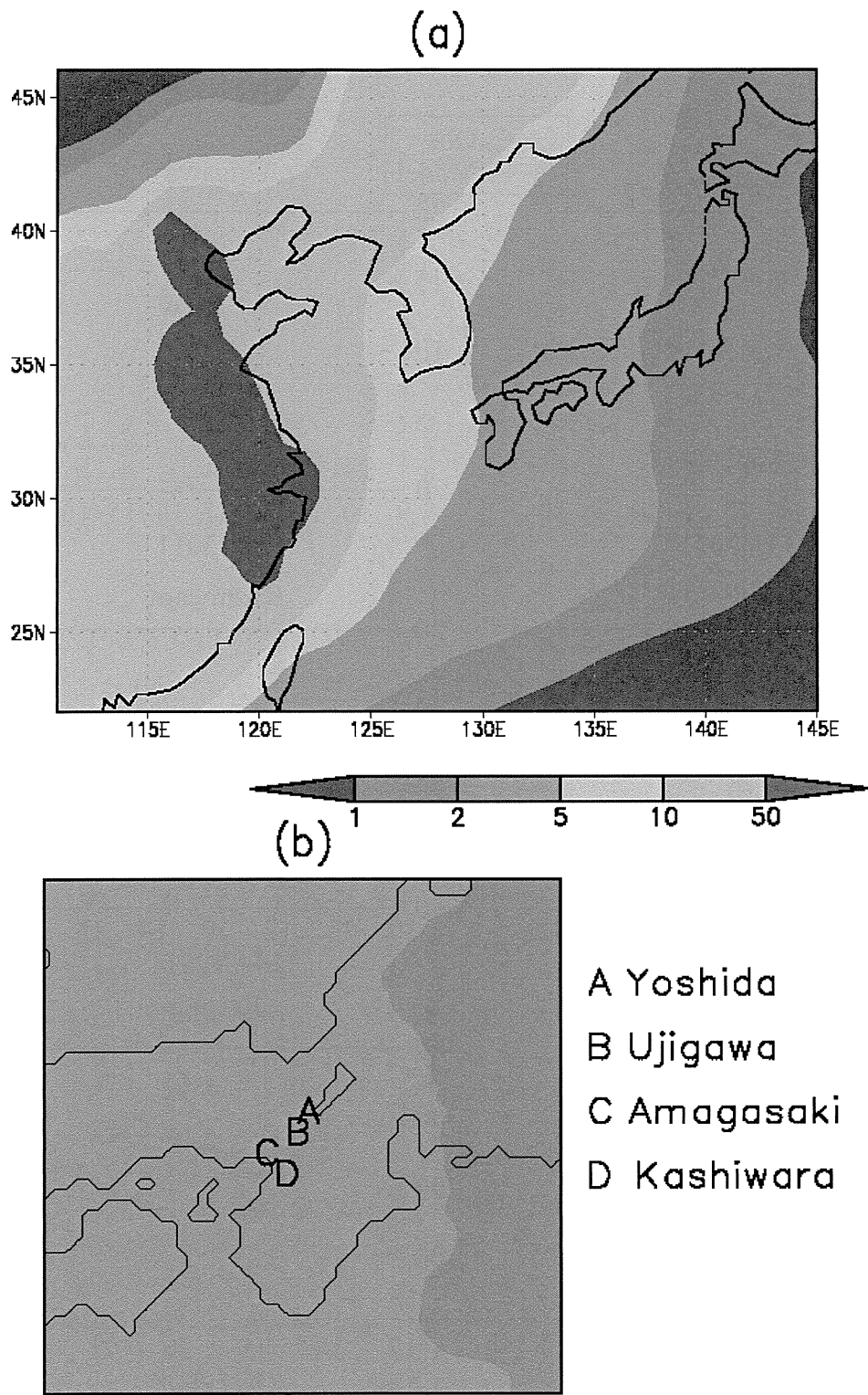


図 5 2011 年 2 月における地表付近の大気中 SCCPs の月平均濃度分布の計算結果 (ng m^{-3})。 (a) 計算領域 1、 (b) 計算領域 2。 Yoshida、 Ujigawa、 Amagasaki、 Kashiwara を含む西日本全体が $2\sim 5 \text{ ng m}^{-3}$ の領域にある。

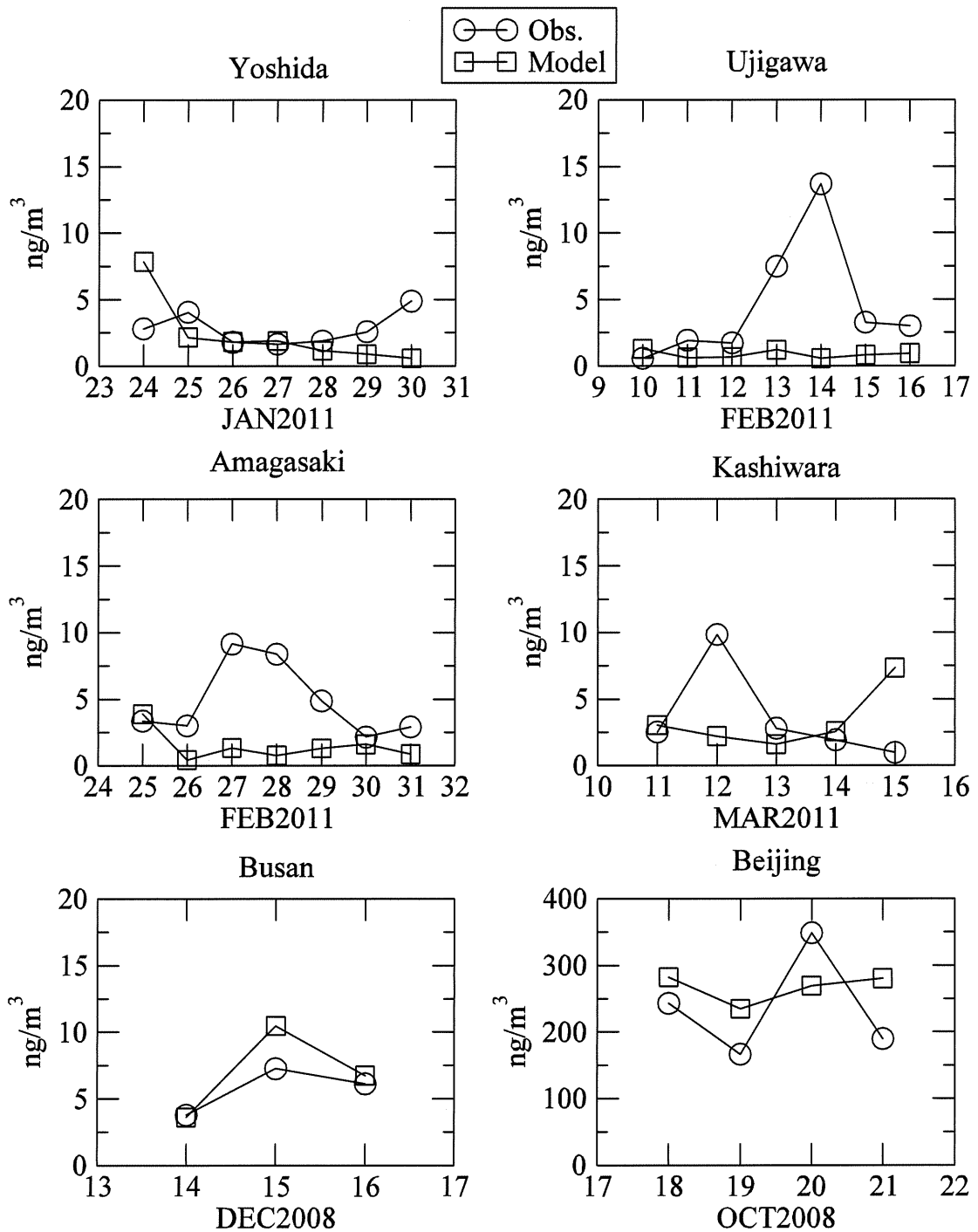


図 6 大気中 SCCPs 濃度の日平均値 (ng m^{-3}) の計算結果 (\square) と実測結果 (\circ) との比較。

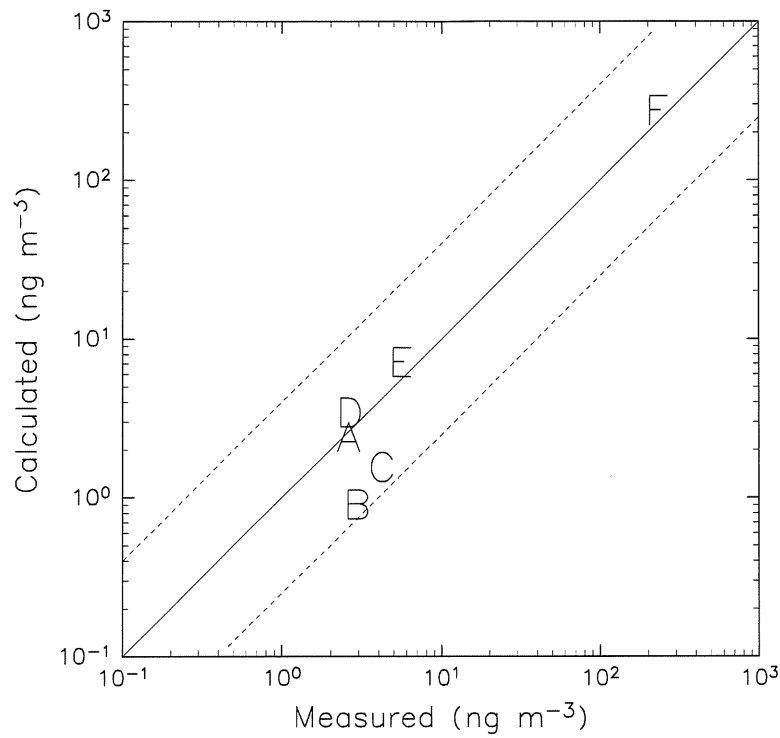


図 7 地表面大気中 SCCPs 濃度 (ng m^{-3}) の計算値と実測値との比較。破線は factor 4 の誤差を表す。A: Yoshida, B: Ujigawa, C: Amagasaki, D: Kashiwara, E: Busan, F: Beijing。