

流域土壌を対象にした焼却に伴うダイオキシン類の空間分布推定に関する研究

Spatial Distribution of Dioxins from Incineration Sources and its Estimation using Atmospheric Dispersion Model

○佐藤圭輔¹⁾, 清水芳久¹⁾, 鈴木祐麻¹⁾, 金秀眞¹⁾, 中村昌文²⁾, 服部一美¹⁾

1) 京都大学大学院工学研究科附属 環境質制御研究センター

2) 株式会社 日吉

○Keisuke Sato¹⁾, Yoshihisa Shimizu¹⁾, Tasuma Suzuki¹⁾, Suejin Kim¹⁾, Masafumi Nakamura²⁾ and Kazumi Hattori¹⁾

1) Research Center for Environmental Quality Control, Kyoto University

2) Hiyoshi Ecological Services Company

Abstract

For Forests, the emission from incinerators is the most important dioxins source. And, the forest soils can hold the large amount of dioxins because of their high organic carbon content. However, very limited investigations with measurement of dioxins have been carried out for forest area (in watersheds). In this research, about 50 forest soils were sampled in the Ado and Yasu river basins, and dioxins TEQ concentration with organic carbon was measured using CALUX bioassay. The spatial distributions of atmospheric dioxins concentration and depositions (dry and wet) were estimated using the atmospheric dispersion model (ADMER Ver.1.0) with the data of dioxins emission (from incinerators). As the result, dioxins concentrations in forest soils were strongly correlated to the organic carbon content, but the slopes of each regression line were different. These differences could be comparable to the dioxins deposition estimated from ADMER.

Key Words : Dioxins, Incineration Sources, Forest Soils, Soil Properties, Atmospheric Dispersion Model

1 研究の背景と目的

大気あるいは土壌に含まれるダイオキシン類の同族・異性体分布については世界各国で様々な調査が実施され、その結果、主な起源は人為的(焼却場からの排出と農薬の副生成物など)なものが多いと言われて^{1)~4)}いる。日本でも特に下流域の水田などにおいて1960年頃から80年代にかけて大量に使用された農薬(PCPやCNPなど)により、当該土壌における深刻なダイオキシン類汚染が指摘され、現在もなお残留していることが報告されている^{5)~7)}。農薬による汚染の影響は大きい、散布される場所が下流域の一部などに限られているため汚染の空間分布は特定しやすい。これに対して、主に大気からの供給を受けている森林域では、焼却場などからの拡散の影響によって広く汚染され、その汚染の程度にはかなりの地域差があると予想される。森林土壌には過去に供給されたダイオキシン類を長期間にわたって蓄積しているため、廃棄物処理の多くを焼却に頼ってきた日本では、場所によっては非常に高濃度に汚染されている可能性もある。

そこで本研究では、琵琶湖に流入する主要な河川流

域(安曇川流域(311km²)と野洲川流域(385km²))の森林域を対象にして、土壌に含まれるダイオキシン類の実測調査を行った。安曇川流域と野洲川流域は、それぞれ琵琶湖の対岸に位置し、周辺の焼却場の数などが大幅に異なることから、森林土壌の汚染度に違いがあると予想した。一方、大気拡散モデル(ADMER: Atmospheric Dispersion Model for Exposure and Risk assessment)⁶⁾を用いたシミュレーションによるアプローチも併行して行った。前述の両流域を含む琵琶湖流域を対象に、焼却に伴うダイオキシン類の大気挙動を計算し、流域土壌への供給量・蓄積量の空間分布を推定した。また、この推定を安曇川流域と野洲川流域で集計し、それぞれの流域で行われた森林土壌の実測調査との比較を行った。

従来の研究では、流域圏全体を対象にダイオキシン類の汚染を評価・解析した例は少なく、それに必要なサンプル数を定量分析することも困難であった。その理由の一つに、ダイオキシン類の煩雑な分析法が挙げられる。公定法(HRMS/MS法)によるダイオキシン類の

定量には、1 検体当たり数万～数十万円のコストと数週間程度の時間・労力を要するため、調査地点数は最低限に限られてきた。そこで、本研究では CALUX Assay によるダイオキシン類の簡易分析法⁷⁾を利用した。紙面の関係で詳細は省くが、公定法に比べてコスト、労力及び分析時間を大幅に節約できるとともに、分解能 (1pgTEQ/g 程度) も高く、公定法による定量値 (TEQ 濃度) との良い相関が確認されている。

2 安曇川流域・野洲川流域の実測調査とその結果

安曇川流域 (2003年, n=24) と野洲川流域 (2002年, n=22) における森林土壌の試料採取地点を Fig.1a と Fig.1b にそれぞれ示した。試料 (表層土壌) の採取方法は、環境省「DXNsに係る土壌調査暫定マニュアル」⁸⁾ に従った。採取した試料は、凍結乾燥後、先に述べた CALUX Assay を用いてダイオキシン類 TEQ 濃度の定量を行い、併行して有機炭素含有率を測定した。有機炭素の測定には、全有機体炭素計 (TOC-5000A) と固体試料燃焼装置 (SSM-5000A) を使用した。

両流域における森林土壌中のダイオキシン類 TEQ 濃度の空間分布を Fig.1a と Fig.1b に示した。濃度は場所によって大きく異なり、高いところでは数百～1,000 pgTEQ/g にも達していた。これは、森林域によるダイオキシン類の収着効果によって、通常人間が出入りしないような場所であっても高濃度に汚染されている可能性があることを示すものである。この収着効果は、樹木や腐葉土壌に含まれている有機炭素成分が高いことによると考えられる。ダイオキシン類濃度と有機炭素含有率との関連性を調べた結果、極めて特徴的な関係が見られた (Fig.2a と Fig.2b)。両流域ともにダイオキシン類濃度は有機炭素含有率に比例する結果が得られたが、この線形性は長期間にわたって大気から供給されるダイオキシン類-有機炭素成分間のフラクションが流域内においてほぼ一定であることを示している。一方、傾きは流域毎に大きく異なっていたが、これは各流域におけるダイオキシン類の大気濃度や沈着量が異なる (異なっていた) ことによると考えられる。これらの推定に関しては、次章で詳しく議論する。

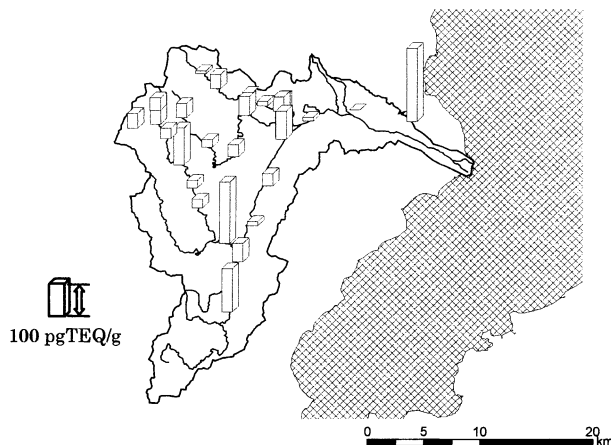


Fig.1a Distribution of dioxins TEQ concentration of the forest soils in Ado river basin

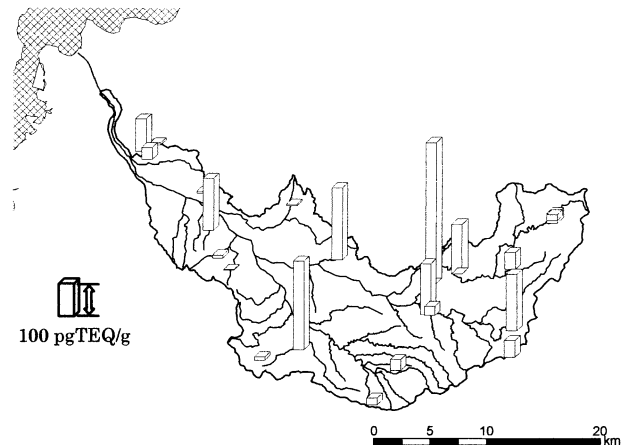


Fig.1b Distribution of dioxins TEQ concentration of the forest soils in Yasu river basin

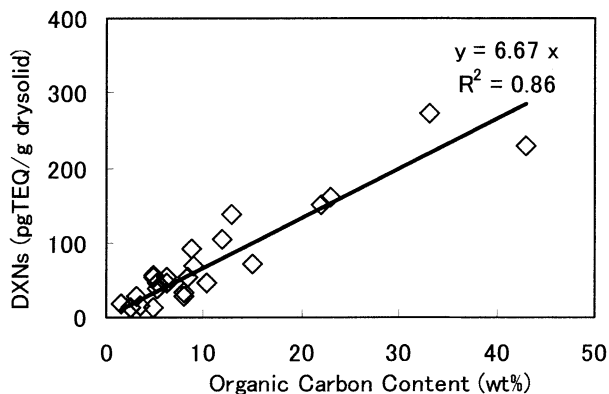


Fig.2a Relationship between organic carbon content and dioxins TEQ concentration of the forest soils in Ado river basin

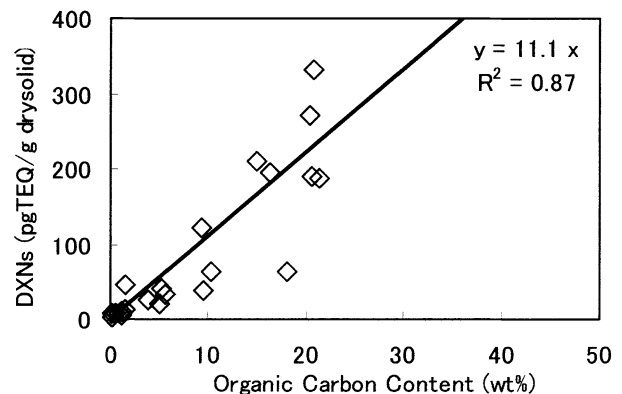


Fig.2b Relationship between organic carbon content and dioxins TEQ concentration of the forest soils in Yasu river basin

3 大気拡散モデルを用いたダイオキシン類の挙動推定

3.1 大気拡散モデルの概要と原理

大気拡散モデル ADMER Ver1.0(産業技術総合研究所で開発)は、化学物質の運命を評価するためのモデルの一つであり、関東地方や近畿地方のような地域スケールでの化学物質濃度の時空間分布の推定を対象としている。濃度と沈着量の計算では、階級に区分された気象条件毎に拡散計算を行い、その各気象区分の月単位出現頻度の重み付け平均値として期間平均値(月平均値など)が計算される。ADMERの移流・拡散過程の基本原理は、プリューム・パフモデルに基づいており、これは発生源近傍における評価によく用いられている。高さ方向の拡散も考慮されるのが一般的だが、広域での濃度評価を目的とした ADMER では、計算時間の短縮のため高さ方向を均一濃度としている。水平方向には約5×5kmグリッド毎での計算を行い、解析領域内すべての発生源グリッドから全グリッドへの寄与を計算し、重ね合わせることで濃度を推定している。その他の仮定や事例は参考文献⁹⁾に詳しい。

3.2 ダイオキシン類排出量の設定

排出源となっている廃棄物焼却場からのダイオキシン類排出負荷量は、地方自治体を中心となっておりまとめた2001年度事業所別ダイオキシン類自主測定データをもとにした。本研究では、滋賀県及びそれに隣接する自治体(滋賀県、京都府、福井県、岐阜県および三重県)のデータを入手し、フォーマットを統一した。次に、各事業所の住所をもとにアドレスマッチングツール¹⁰⁾を用いて十進経緯度系の座標を算定した(Fig.3の○印参照)。一方、各焼却場からのダイオキシン類排出量は、一般的な推定手法¹¹⁾があるが、入手できるパラメータに限界があるため、本研究では単純にEq.1-2に従うこととした。

$$Q_{dxn} = C_{dxn} \times Q_{gas} \tag{Eq.1}$$

$$Q_{gas} = Coef. \times Q_{inc} \tag{Eq.2}$$

Q_{dxn} : ダイオキシン類年間排出量 (tonTEQ/year)
 C_{dxn} : 排ガス中ダイオキシン類濃度 (tonTEQ/m³N)
 Q_{gas} : 年間排ガス量 (m³N/year)
 Q_{inc} : 焼却量 (ton/year)
 $Coef.$: 焼却量当たり排ガス発生量(m³N/ton)=4,880

焼却量については各施設の規模に基づいた平均値を設定し、回帰式(Eq.2)を用いて排ガス量を推算した。ここで、ごみ1ton当たりの排ガス発生量は、厚生省のガイドラインなどで広く利用されている5,000(m³N/ton)¹²⁾などがあるが、本研究では、実測データの相関に基づく結果(4,880(m³N/ton))を用いた。

3.3 計算領域と計算パラメータの設定

ADMERによる計算領域は、安曇川・野洲川流域への拡散の影響を考慮して、琵琶湖流域全体をカバーするように設定した(計算結果のFig.3の分布枠参照)。

入力データとして、3.2で作成した2001年度ダイオキシン類排出量、2001年アメダス気象データおよび大気安定度に関するデータ(放射・雲量)を利用した。ここで、本来ならばダイオキシン類各異性体について、それぞれ個々にパラメータを設定し、排出量・拡散挙動・大気濃度・沈着量などを計算した後でTEQ濃度に重ね合わせる事が厳密であるが、排出から沈着に至るまでにTEQ濃度に与える異性体分布の変化の影響は十分に小さいことを考慮し、本計算に関わるダイオキシン類の異性体分布は一定と仮定してTEQ濃度をそのまま扱って解析を行った。パラメータの設定についても、TEQ濃度ベースで計算することに配慮した。

計算パラメータは、分解速度、乾性沈着速度、バックグラウンド濃度および洗浄比についてTab.1に示すように設定した。分解速度および洗浄比は、一般的な大気中ダイオキシン類の同族・異性体分布などを考慮して重み付き平均値を算定し、その他のパラメータは参考文献(Tab.1に併記)による実測値をもとに設定した。

Tab.1 Parameter setting for ADMER

データ・パラメータ名称	設定値
分解速度 (/sec)	6 × 10 ⁻⁸ *a
乾性沈着速度 (m/sec)	1 × 10 ⁻³ *b
バックグラウンド濃度 (gTEQ/m ³)	4.6 × 10 ⁻¹⁴ *c
洗浄比 (-)	5 × 10 ⁴ *d

*a: 実測の大気中ダイオキシン類同族体分布¹³⁾、同族体別粒子-ガス分配¹⁴⁾、同族体別分解係数¹⁵⁾を考慮し、算定された平均分解係数

*b: 陸上における1μm以下の粒子(1,000kg/m³)の年平均乾性沈着速度¹⁶⁾

*c: 2001年度ダイオキシン類に係る環境調査結果¹⁷⁾、滋賀県付近の測定値

*d: 日本における雨水中ダイオキシン類の実測値¹⁸⁾をもとに算定した平均洗浄比

3.4 土壌蓄積量の評価方法

いったん土壌(落葉樹なども含む)に分配・沈着されたダイオキシン類の多くは粒子に収着した状態で存在し、年々蓄積されるため、森林土壌含有量を推定するためには長期間の影響を考慮する必要がある。これらの影響を考慮するため、幾つかの仮定を設定して大気から供給されるダイオキシン類の経年変化を推定し、森林土壌への蓄積量を評価した。

まず、化石燃料の消費量などが大きく増加した戦後からの影響を想定し、対象期間を過去50年間(1952～2001年)とした。土壌中で生産されるダイオキシン類は無いものとし、大気からのみ供給を受けることとした。供給される系として、大気-土壌間の分配と沈着・沈積とが考えられるが、どちらが律則となるか判断できないため、本報告では後者を考慮した。土壌中の分解速度は極めて遅く、その機構も条件によって複雑に変化するため、適切な設定が難しい。欧米などの報告で、数十年から百年以上とばらつきがあるが、最近の報告

でよく用いられる半減期30年を一律に仮定 (Eq.3) し、排出源の地点 (焼却場) や大気挙動、同族体分布、沈着粒子・土壌生産量などは同一とした。また、ダイオキシン類排出量は近年の排出源対策により激減したため、97年以降はダイオキシン類排出インベントリー (全国平均) の推定結果¹²⁾ に従い、それ以前は97年の排出レベルと同等と見なした。森林土壌へのダイオキシン類蓄積量は、以上の仮定の下での時間積分と予測した。

$$C_t = C_0 \exp(-K_d \cdot t) \quad \text{Eq.3}$$

C_t : t 時間後の粒子中 DXNs 濃度 (pgTEQ/g)
 C_0 : 粒子中 DXNs 初期濃度 (pgTEQ/g)
 K_d : 分解速度 (year)
 t : 経過時間 (year)

4 計算の結果と考察

4.1 ダイオキシン類大気濃度および沈着量の推定結果

計算の結果得られた2001年の大気中平均ダイオキシン類濃度と年間全沈着量分布を Fig.3 に示した。琵琶湖流域では、栗東市や八日市市付近を中心としてやや高い濃度 (大気濃度で約 0.1 pgTEQ/m³、全沈着量で約 5,000 pgTEQ/m²/year) が推定された。これらの結果を実測値¹³⁾¹⁷⁾ と比較すると (Fig.4)、良好な再現性を示していることが確認された。なお、全沈着量の実測値は、排出源対策初期 (98年) の地点値であり、本研究の推測値と比較するには約 3-4 割減じる必要がある。

4.2 森林土壌中ダイオキシン類濃度の推定結果

過去50年間の分解を考慮したダイオキシン類総沈着量の推定値について、安曇川、野洲川および琵琶湖流域で平均した値を Fig.5 に示した。また、2章で得られた回帰直線の傾き (即ち、土壌有機炭素当たりのダイオキシン類濃度) も併記した。この図から、安曇川流域と野洲川流域の実汚染度の異なりが、大気からの総沈着量を再現することによって、推定可能であることが示唆された。また、本結果から琵琶湖流域全体の汚染度は野洲川流域と同程度であること、その他にかなり汚染度の高い流域が存在していることが予想された。

5 結論と今後の展望

本研究では、森林土壌中のダイオキシン類 TEQ 濃度を実測調査した結果、有機炭素含有率に比例すること、またその傾きは流域毎に異なっていることを確認した。

一方、大気拡散モデル ADMER を用いてダイオキシン類の挙動をシミュレートし、大気濃度と沈着量を推定した結果、良好な再現性が示された。これらの結果から、流域毎のダイオキシン類汚染度は長期間の沈着・蓄積量を考慮することによって、さらにダイオキシン類の土壌含有量は有機炭素含有率を用いて推定可能であることが実測値を用いて検証された。今後は、本推定法が局所汚染の推定に有効かを検討すること、また森林域におけるダイオキシン類の長期的運命 (蓄積性) の解明を目指す。

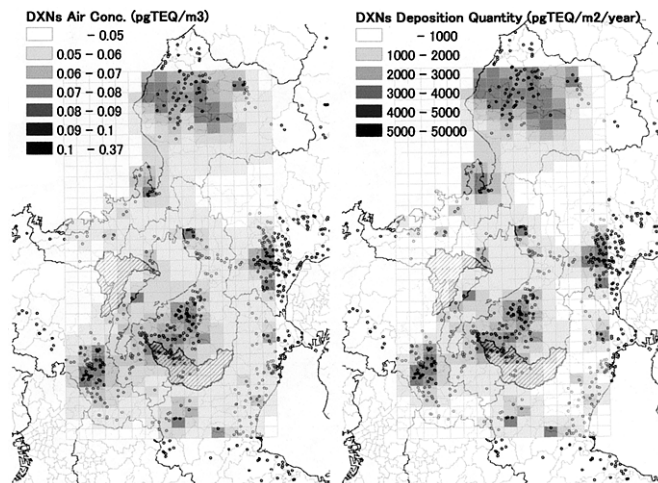


Fig.3 Estimation results of spatial distribution using ADMER

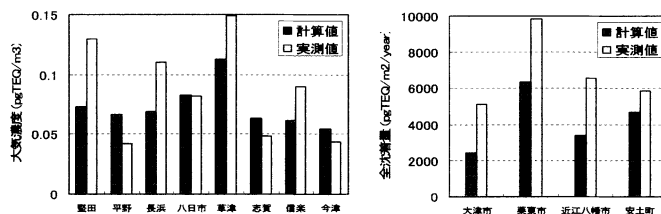


Fig.4 Verification of estimated results on each observation point (Left: air conc., Right: deposition quantity)

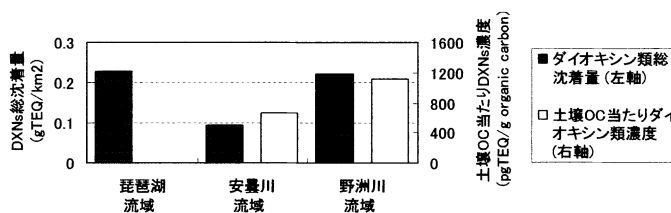


Fig.5 Comparison between estimated value of accumulated dioxins during past 50 years deposition and dioxins conc. per organic carbon from observation

参考文献

- 1) Czuczwa JM and Hites RA (1986): *Environ. Sci. Technol.*, **20**, pp.195-200.
- 2) Eitzer BD and Hites RA (1989b): *Environ. Sci. Technol.*, **23**, pp.1396-1401.
- 3) Tysklind M, Fångmark I, Marklund S, Lindskog A, Thanning L and Rappe C (1993): *Environ. Sci. Technol.*, **27**, pp.2190-2197.
- 4) Creaser CS, Fernandes AR, Harrad SJ and Cox EA (1990): *Chemosphere*, **21**, pp.931-938.
- 5) Sakurai T (2003): *Environ. Sci. Technol.*, **37**, pp.3133-3140.
- 6) URL: <http://www.riskcenter.jp/ADMER/>
- 7) Sato K, Shimizu Y, Takamatsu M, Suzuki T, Kim S, Sogabe H et al (2003): *Advances in Asian Environ. Eng.*, **3**(2), pp.9-21.
- 8) URL: <http://www.env.go.jp/chemi/dioxin/kento/dojo11-15.html>
- 9) Higashino H, Kitabayashi K, Yokoyama O, Takatsuki M and Yonezawa Y (2000): *J. Jpn. Soc. Atmos. Environ.*, **35**(4), pp.215-225. (in Japanese)
- 10) URL: <http://fujieda.csis.u-tokyo.ac.jp/cgi-bin/geocode.cgi>
- 11) 全国都市清掃会議、廃棄物研究財団 (1999): ごみ処理施設整備の計画・設計要領, pp.190-194.
- 12) 環境省 (2001): ダイオキシン類の排出量の目録 (排出インベントリー), 環境省公開資料, 30p.
- 13) 環境庁 (1999): ダイオキシン類緊急全国一斉調査, 環境省公開資料.
- 14) 小倉勇, 益永茂樹, 中西準子 (2001): *環境化学討論会要旨*, p1-2.
- 15) Atkinson R. (1997): *Issues in Environ. Sci. Technol., Chlorinated Organic Micropollutants*, The Royal Society of Chemistry, pp.53-72.
- 16) E. Y. Nho-Kim, M. Michou and V. H. Peuch (2004): *Atmospheric Environ.*, **38**, pp.1933-1942.
- 17) 環境省 (2002): 平成 13 年度ダイオキシン類に係る環境調査結果, 環境省公開資料, p.27.