

研究課題名=非制御燃焼過程におけるダイオキシン類等の残留性有機汚染物質の生成と挙動

研究期間(西暦)=2000-2002

代表研究者名=酒井伸一(国立環境研究所循環型社会形成推進・廃棄物研究センター)

共同研究者名=安原昭夫、橋本俊次、鈴木規之(国立環境研究所)

高月紘(京都大学)、山崎秀夫(近畿大学)、田辺信介(愛媛大学)

研究目的=非意図的副生成物としての残留性有機汚染物質(POPs)の代表例である塩素化ダイオキシン類については、既知の発生源インベントリーにもとづいた削減方策が推進されつつある。このダイオキシン類の既知の発生源に対して、正確に発生量を見積もることが困難で、かつ場合によっては大きな発生源負荷となる可能性があるのが、非制御下の燃焼過程である。具体的には、廃棄物埋立場の自然発火現象や建築構造物の火災といった非制御下の燃焼過程からの発生であり、日本や米国におけるごみの裏庭燃焼のみならず、アジア諸国ではこうした発生源が多くあるものと考えられる。そこで、廃棄物埋立場の自然発火現象に伴うPOPsの発生と影響の実態に関し、フィールド研究を行った。この結果を説明できるかどうかの検討のため、非制御燃焼過程からのPOPs発生源単位を燃焼試験から推定する手法を検討し、発生量の見積りを行った。また、こうした発生源からのPOPs生成と環境蓄積との関係を把握するため、底質コアと海棲哺乳動物を用いた時系列トレンド解析も研究目的の一つとした。

研究方法=アジア途上国の都市ゴミ集積場で採取した土壌のダイオキシン類汚染、母乳のダイオキシン類を含む有機塩素化合物汚染、そして土壌および毛髪微量元素汚染に注目して、その実態解明を試みた。とくに、第3年次においてはインドをはじめとする都市ゴミ集積場の土壌や野生生物を対象に、分析を行った。簡易焼却などの高空気比、低温の非制御燃焼過程を模擬する燃焼試験を、一次燃焼、二次燃焼、廃ガス冷却、排ガス処理の各機能を有するラボスケールシステムを用いて行い、非制御燃焼過程からの塩素化ダイオキシン類(PCDDs/DFs)をはじめとするPOPsの排出係数の見積りを行った。非制御燃焼過程からの排出係数に関する研究成果をもとに、埋立場の非制御燃焼で生成したダイオキシン類ならびに埋立場内の残留量についてモデル計算を行った。モデル解析では、燃焼実験による排出係数と埋立場土壌中濃度の関係を廃棄物燃焼比率と場内沈着率とを用いて記述し、大気拡散モデルと曝露モデルを用いた。大阪湾、広島湾などの堆積物を採取し、堆積物試料の堆積年代は²¹⁰Pb法及び¹³⁷Cs法を併用して特定し、金属類を中心に定量した。また、PCDDs/DFsとCo-PCBs、ヘキサクロロベンゼン(HCB)、新たな環境汚染物質としてポリ臭素化ジフェニルエーテル(PBDEs)濃度を分析し、底質中におけるHCBとPBDEsの垂直方向の濃度分布について検討を行った。さらに、これらの発生源の影響について議論した。

結果と考察=

1) 途上国の都市ゴミ集積場における有害物質の汚染と影響

カンボジアのゴミ集積場内の一部土壌から日本の環境基準値1000pg-TEQs/gを超えるダイオキシン

類が検出され、埋立場の燃焼にともなうダイオキシン類の生成が明らかとなった。ゴミ集積場周辺と対照地域住民の母乳を分析したところ、インドのゴミ集積場周辺住民のダイオキシン類濃度(TEQs)には、先進諸国の一般人に匹敵する値がみられた。ゴミ集積場周辺で飼育されている牛のミルク中ダイオキシン類濃度は、対照地域に比べ高値を示し、ゴミ集積場周辺在住者の主要なダイオキシン類曝露源であることが示唆された。さらに、インドのゴミ集積場で採取したカラスのダイオキシン類濃度も、対照地域と比べ高値を示したことから、ゴミ集積場由来のダイオキシン類汚染が周辺に生息する野生生物にまで及んでいることが推察された。途上国の都市ゴミ集積場周辺に生息する家畜や野生生物は、集積場由来のダイオキシン類に曝露されている可能性があり、今後さらなる汚染実態の調査と野生生物への毒性影響調査が必要であろう。

2)非制御燃焼過程とダイオキシン類の排出係数

一次燃焼、二次燃焼、廃ガス冷却、排ガス処理の各機能を有するラボスケールシステムを用いて、簡易焼却などの高空気比、低温の非制御燃焼過程の模擬実験(今回は一次燃焼炉の燃焼温度600℃、空気比7)を行った。非制御燃焼過程を模擬した燃焼条件での有機臭素化合物の排出係数値は、PBDEsでは2~4オーダー程度、TBBP-Aでは3~6オーダー程度、PBDDs/DFsでは2~7オーダー程度、制御下燃焼過程を模擬した場合に比べて、大きな値を示した。非制御燃焼過程に伴う有機ハロゲン化合物の排出量は、二次燃焼やガス冷却、集塵、ガス吸着などの過程を経ることによって、大きく減少することが確認された。これらの結果を、火災などを模擬した既往研究のダイオキシン類排出係数と比較すると、その絶対値や対塩素濃度との関係で類似の傾向が見られた。

埋立場の非制御燃焼で生成したダイオキシン類ならびに埋立場内の残留量を排出係数をベースに推定し、また埋立場周辺で飼育されている牛のミルク中ダイオキシン類濃度および周辺居住者の母乳中濃度の推定を行った。モデル解析では、燃焼実験による排出係数と埋立場土壤中濃度の関係を廃棄物燃焼比率と場内沈着率とを用いて記述し、埋立場土壤中濃度実測値と予測値との比較から両パラメータの範囲を推定した。曝露モデルでは希釈された燃焼排ガスの吸入、埋立場土壤の直接摂食、埋立場内で飼育された牛のミルクの飲用を想定した。インド埋立場での牛ミルク中ダイオキシン類推定濃度は、水牛と家牛の中間程度の値となり、モデルの不確実性や観測値のばらつきを考慮すれば推定値と実測値はよい一致を見た。埋立場内での曝露においては、土壤直接摂食にくらべ牛ミルクを経由した曝露量の方が大きく、希釈された排ガスの吸入による影響は小さいと推定された。

3)湖沼および沿岸堆積物中に記録された環境汚染の歴史トレンドの解明に関する研究

堆積物の時系列は移流拡散モデルによる堆積層内での物質の鉛直混合の効果を考慮することで、²¹⁰Pb法によって得られる堆積年代を評価した。環境に対する負荷の歴史トレンドがその生産量や使用量の履歴から予測可能な銅、亜鉛、鉛、水銀などの重金属元素および第二次世界大戦後の大気圏内核実験で環境に負荷された¹³⁷Csが堆積物の時系列を評価するためのマーカーとして有効であることを明らかにした。本法によって、大阪湾などから採取した柱状堆積物試料を解析した結果では、戦後の高度経済成長期のみでなく、第二次大戦前後にも汚染物質の環境への大きな負荷があることが推定され、戦乱による生産環境の変化や戦災の影響が堆積物に記録されていることが確認された。また、阪神淡路大地震による負荷の増大も堆積物に記録されている可能性が高いことも示唆された。

残留性有機汚染物質の底質中トレンドを調査したところ、大阪湾底質コア中のPBDEs濃度については、1957年以前の層では検出されず、1984年の層で検出され、その後表層に向かい一貫して増加し、

最表層では 90ng/g-dw であった。PBDEs の濃度トレンドについては、濃度ピークが PCBs より表層側で見られた。さらに、PCBs と PBDEs の製造から廃棄に至るまでのマスフローと排出係数を設定することによって、PCBs 製品からの環境中への排出量を推定したところ、PBDEs に関しては、実環境の底質コアにおける最表層に向かっての濃度上昇がモデルにおいても表現された。

結論=廃棄物埋立場の自然発火現象といった非制御下の燃焼過程からの残留性有機汚染物質の発生が、アジア途上国の都市ゴミ集積場におけるフィールド研究や燃焼過程を模擬したらボプラント研究により明らかになった。つまり、途上国のゴミ集積場内の一部土壌から日本の環境基準値 1000pg-TEQ/g を超えるダイオキシン類が検出されることが確認され、ゴミ集積場由来のダイオキシン類汚染が周辺に生息する野生生物にまで及んでいることが推察された。また、非制御燃焼過程を模擬した燃焼条件での有機臭素化合物の排出係数値は、ポリ臭素化ジフェニルエーテル (PBDEs) では 2~4 オーダー程度、ポリ臭素化ダイオキシン類 (PBDDs/DFs) では 2~7 オーダー程度、制御下燃焼過程を模擬した場合に比べて、大きな値を示した。こうした残留性有機汚染物質は湖沼や海底の底質に蓄積し、その時系列トレンドはそれぞれの物質の使用や発生、環境挙動の影響をうける。埋立場の非制御燃焼で生成したダイオキシン類ならびに埋立場内の残留量を排出係数をベースに推定し、また埋立場周辺で飼育されている牛のミルク中ダイオキシン類濃度の推定を行ったところ、インド埋立場での牛ミルク中ダイオキシン類推定濃度は、水牛と家牛の中間程度の値となり、モデルの不確実性や観測値のばらつきを考慮すれば推定値と実測値はよい一致を見た。途上国の都市ゴミ集積場周辺に生息する家畜や野生生物は、集積場由来のダイオキシン類に曝露されている可能性があり、今後さらなる汚染実態の調査と野生生物への毒性影響調査が必要であろう。