
清掃工場周辺の酪農地域における有害 元素降下物の同定とそのリスク評価

(課題番号 12680560)

平成12年度～平成14年度
科学研究費補助金 基盤研究 (C) (2)
研究成果報告書

平成15年3月

研究代表者

颯 田 尚 哉

(岩手大学農学部助教授)

序

本研究報告書は平成12～14年度科学研究費補助金 基盤研究(C) (2)の交付を得て、清掃工場周辺の酪農地域における有害元素(主として重金属元素)降下物の同定とその起源の推定、並びに有害元素に関わるリスク評価に必要な知見を収集し手法の開発について基礎的な検討を実施した研究の成果をまとめたものである。

研究組織、研究経費および研究発表は下記の通りである。

記

研究組織

研究代表者 颯 田 尚 哉 (岩手大学農学部・助教授)

研究分担者 古 賀 潔 (岩手大学農学部・教授) (平成13, 14年度)

交付決定額 (配分額) (金額単位：千円)

	直 接 経 費	間 接 経 費	合 計
平成12年度	1, 9 0 0	0	1, 9 0 0
平成13年度	1, 0 0 0	0	1, 0 0 0
平成14年度	9 0 0	0	9 0 0
総計	3, 8 0 0	0	3, 8 0 0

研究発表

- (1) 颯田尚哉、宮野千穂、堀内将人、福谷哲、森澤眞輔：清掃工場周辺における土壤中アンチモン分布、平成13年度農業土木学会大会講演会講演要旨集、pp.760-761、2001
- (2) 颯田尚哉、堀内将人、福谷哲、森澤眞輔：清掃工場周辺土壌におけるアンチモンによる土壌汚染、第8回地下水・土壌汚染とその防止策に関する研究集会講演集、Vol.8、pp.261-264、2002

目 次

第1章 緒論	1
1.1 はじめに	1
1.2 本研究の目的と構成	2
参考文献	3
第2章 清掃工場周辺における有害元素分布	4
2.1 調査地域と元素分析方法	4
2.1.1 T村清掃工場と土壌採取地点	4
2.1.2 土壌試料の調整	5
2.1.3 熱中性子の照射とガンマ線の測定	5
2.2 清掃工場周辺における土壌中有害元素濃度の水平分布	7
2.2.1 土壌中有害元素の自然界値	7
(1) 土壌中元素濃度	7
(2) 清掃工場が表面土壌中 Sb 濃度に及ぼす影響	8
2.2.2 T村清掃工場周辺における土壌中有害元素濃度	9
2.3 清掃工場周辺における土壌中有害元素濃度の鉛直分布	9
2.3.1 Sb の鉛直分布	9
2.3.2 C 地点における Cr、Zn の鉛直分布	10
2.3.3 T3 地点における Cr、Zn の鉛直分布	11
2.3.4 Br の鉛直分布	12
2.4 まとめ	13
参考文献	13
第3章 清掃工場近傍における有害元素分布	15
3.1 有害元素の水平分布	15
3.1.1 T村清掃工場と環境試料採取地点	15
3.1.2 試料調整と元素分析	17
3.1.3 清掃工場近傍における土壌中有害元素濃度	18
3.1.4 清掃工場近傍における植物中有害元素濃度	18
(1) 植物中元素濃度	18
(2) 洗浄効果	19
3.1.5 清掃工場近傍における大気中有害元素濃度	20
3.2 有害元素の土壌中鉛直分布	21
3.2.1 土壌の採取と元素分析	21
3.2.2 清掃工場近傍における土壌中有害元素濃度の鉛直分布	21
(1) Sb 鉛直分布	21

(2) Cr の鉛直分布	22
(3) Zn の鉛直分布	23
(4) Br の鉛直分布	24
3.3 有害元素降下物の同定とその特徴	25
3.3.1 Sb の特徴	26
3.3.2 Cr の特徴	26
3.3.3 Br、Zn の特徴	27
3.3.4 U の特徴	29
3.4 まとめ	31
参考文献	31
 第4章 Sb に関わるリスク評価手法の基礎的検討	 32
4.1 Sb の利用と人体への影響	32
4.1.1 Sb の工業的利用	33
4.1.2 Sb の人体への影響	34
4.2 Sb の曝露経路、排泄経路	35
4.2.1 人体内中の Sb	35
(1) 毛髪中 Sb 濃度	36
(2) 爪中 Sb 濃度	36
(3) 尿中 Sb 濃度	36
(4) 血液中 Sb 濃度	37
(5) 臓器中 Sb 濃度	37
4.2.2 吸入摂取	38
4.2.3 経口摂取	39
(1) 農作物中 Sb 濃度	39
(2) 飲料水中の Sb 濃度	40
4.3 牧草による土壌中 Sb の吸収に関するポット試験	41
4.3.1 実験方法	41
(1) 使用した土壌、牧草、Sb 化合物	41
(2) 牧草ポットの作成	42
4.3.2 試料採取方法	43
(1) 牧草飼料	43
(2) 土壌試料	43
4.3.3 牧草中 Sb 濃度と吸収特性	44
4.3.4 土壌への Sb 負荷方法が牧草中 Sb 濃度へ及ぼす影響	45
4.3.5 土壌中 Sb 濃度と土壌中の挙動	45
4.4 体内 Sb 濃度評価モデル	46
4.4.1 体内動態モデル	47

4.4.2 体内代謝モデル(PBPK モデル)	48
4.5 まとめ	48
(1) 生活環境における Sb の分布と人間への曝露	50
(2) 牧草の Sb 吸収特性	50
(3) Sb の体内挙動評価モデル	51
参考文献	49
 第 5 章 結論	 54
5.1 本研究のまとめ	54
5.1.1 野外調査	54
5.1.2 Sb の健康リスクアセスメントの基礎	55
5.2 おわりに	57
参考文献	58
 付録	 59
謝辞	65

第1章 緒論

1.1 はじめに

現代における社会活動では、一般家庭からも事業所からも廃棄物が発生している。人間が使用する全ての物品が時間の長短はあるものの最終的には、廃棄物として排出され環境へなにがしかの影響を及ぼしている。生体物質由来の廃棄物の一部分は、環境へ還元され循環利用される機能が生態系として地上に備わり、人間も堆肥等の肥料として廃棄物を再利用する方策は古くから試みてきている。科学技術の進展による新素材の工業的な大量生産により、生態系が分解再利用し難い廃棄物が増加してきており、近年制定されたいくつかのリサイクル法を一助として、社会的な機能として廃棄物を適正に処理し、環境汚染を低減化させる方策が実施されつつある。しかしながら、消費される物質量が膨大でかつその質が多種多様であることから、自然の浄化・循環機能及び社会的な施策の効果は充分とは言い難く、様々な経路を通じて環境の悪化や汚染を進行させている。

日本において廃棄物の中間処理の主流は焼却であり、これにより、廃棄物の体積や重量の減少さらには有害物質の無害化や安定化などを期待している。同時に近年清掃工場からのダイオキシン類の放出問題等、毒性の強い有害物質の生成も懸念されている。また、新素材の開発により、稀少元素の種類・量ともに利用が増加しており、このような物質が新たな汚染物質となる可能性も高まっている。清掃工場において廃棄物は中間処理(焼却或いは熔融)を施されて処理済み残渣となる。残渣の大部分は地下や海面へ埋立られ、環境へと戻されることになる。日本の場合、特に山間部へ埋立られる場合が多いことを考えると大気へ放出されない有害物質は、ほとんど土壤環境へ排出されることになる。また、清掃工場の稼働にともなって大気へ放出される有害物質も、最終的には土壤表面へ降下し土壤環境へ負荷されることになる。土壤は生物の生存の基盤、物質循環や生態系維持において重要な役割を担っており、食料・木材等生産機能、水質浄化・地下水かん養機能、自然生態系・景観維持保全機能等、数え切れない多くの機能を担っているが、廃棄物問題の深刻化とともに土壤環境の悪化が非常に懸念される状況にある。

土壤はそれ自身が持つ有害物質の吸着・保持能力が環境影響に対して緩衝力として作用するため、有害物質による被害や悪影響の顕在化を遅らせている。特に表層土壤は、核実験や原子力発電所の事故による放射性降下物をはじめ、各事業所や自動車等から大気中に放出された様々な汚染物質が、大気より地表面に降下し蓄積されている。農用地では、これに加えて肥料や農薬などの化学物質を直接かつ多量に負荷される状況にある。このように土壤圏の有害物質による汚染はかなり進行していると考えられ、近年では、企業の工場跡地の等の再開発にともない重金属、揮発性有機化合物等による土壤汚染が顕在化してきている。しかしながら、農用地(田)を除いて土壤汚染対策に関する法制度が無かったことから、土壤汚染による人の健康へのリスク低減や土壤汚染対策の実施を図るため、土壤汚染対策防止法が平成14年5月29日に公布され、平成15年2月15日に施行された。国も土壤汚染状況の把握とその対策の実施を通じて人間への健康被害の防止に真剣に取り組み始めている。

土壌中における汚染物質の分布・挙動を評価、予測することは、埋立地の設計や管理及び地価の評価や土地利用計画の策定に直接役立つばかりでなく、終局的には人間への直接・間接的な健康上のリスクの評価や、動物・植物といった生態系への悪影響の評価を含めた環境影響評価に欠く事のできないものである。

1.2 本研究の目的と構成

近年、新素材の開発が進み古くから利用されている重金属（水銀、鉛、亜鉛、銅、カドミウム、砒素等）に加え、セレン・アンチモン・バナジウムのような希少元素が新たな汚染物質となる可能性が高まっている。希少元素については環境汚染の調査例そのものが十分でない状況にあると考えられる。

日本では廃棄物の中間処理の主流が焼却(火格子炉、流動床炉、熔融炉)であり、ダイオキシン類を筆頭に清掃工場(焼却施設)から放出される有害物質による環境汚染が危惧されている。特に清掃工場は都市郊外に立地することが多く、必然的に清掃工場周辺に農地が存在することになる。このような場合、清掃工場から放出される有害物質による農産物への影響が懸念されるが、調査自体がやっと始められたところである。清掃工場からのダイオキシン類の生成・放出問題が日本各地で顕在化したこともあり、国は農用地と農作物のダイオキシン類濃度を調査報告¹⁾せざるを得ない状況にある。調査地域は発生源周辺と無関係な地域に分けられて行われているが、調査項目はダイオキシン類に限定されており、新素材中に含まれる希少元素等の新たな汚染物質となる可能性がある元素についての調査は国の施策としては実施されていない。また学会等における報告例²⁾も非常に少ない状況にある。新素材の開発と普及の速さや廃棄物処理量の増加を考慮すると、清掃工場周辺における有害元素降下物を同定・定量しその汚染状況を把握すること、並びに有害元素に関わる人間へのリスク評価に資する知見を集積することの必要性和緊急性が高まっている。

そこで本研究においては、清掃工場に起因するダイオキシン類以外の有害元素による周辺環境汚染に注目し、ケミカルフォールアウトとして環境を汚染する清掃工場由来の有害元素を野外調査により同定する。また、食品(農産物)には乳幼児や子供へ影響を考える上で重要になる牛乳(酪農)に注目し、大気－土壌－牧草－牛乳という曝露経路に関わる有害元素の定量結果から、汚染の実態を把握することを試みる。I県は非常に酪農が盛んであり、M市北西部のT村には酪農地域の中に村営の清掃工場が設置されている。本研究の調査地点として最適な条件にあり、T村清掃工場周辺を有害元素分布の調査地域に選定した。これにより収集が待たれている野外環境データを提供することも目的の一部である。

さらに、当該地域では、主要生産物である牛乳及び乳製品の摂取に伴う人間に関する有害元素のリスク評価を行うための数学モデルを構築することが近い将来必要になると予想することは容易である。本研究では、清掃工場から放出される有害元素の人間へのリスクを評価するためのモデル構築に必要な知見を収集するとともに、牛乳摂取に関わる人間への有害元素吸収の最も基礎的な知見として必要とされる有害元素の牧草への経根吸収特性を把握するためのポット実験を行った。

第2章では清掃工場周辺において、土壌中の有害元素を熱中性子放射化分析法で多元素

同時分析する。清掃工場周辺の有害元素土壌中濃度の水平分布と鉛直分布より、清掃工場から大気環境中に放出され、ケミカルフォールアウトとして降下沈着して表層土壌を汚染している可能性の高い元素を同定するとともに高濃度汚染地区を把握する。

第3章では、第2章において把握した高濃度汚染地区において、地区内の酪農家の協力を得て、土壌、大気、牧草中の有害元素濃度を熱中性子放射化分析法で分析する。清掃工場近傍における土壌中の有害元素濃度の水平分布と鉛直分布より、清掃工場から大気環境中に放出され、降下沈着して表層土壌を汚染している元素(ケミカルフォールアウト)を同定する。また、大気や牧草の分析結果より、汚染実態の特徴を把握する。

第4章では、第3章において同定した有害元素であるアンチモン(以下 Sb)に注目し、Sbに関わる人間の健康リスクを評価するための数学モデルに必要な知見を文献学的に集積し、リスク評価モデルを構成するとともに評価手法の問題点を明らかにする。また、調査地域周辺が酪農地域であることから、牛乳摂取にともなう人間への Sb 曝露に関して最も基礎的で重要な情報となる Sb の牧草への経根吸収特性をポット実験により把握した。

参考文献

- 1) 環境省：平成 13 年度農用地土壌及び農作物に係るダイオキシン類実態調査結果、2002
- 2) 西牧研壯 他：有害物質の環境動態に関する研究、～微量元素(Zn,Se,¹⁴C)等の汚染源及び環境中分布に関する研究～、京都大学原子炉実験所第 30 回学術講演会報文集、pp.347-358、1996

第2章 清掃工場周辺における有害元素分布

1996年までに清掃工場の稼働に起因する周辺環境の有害元素による土壤汚染を京都市について野外調査¹⁾した事例がある。これによれば、清掃工場由来の有害元素として、Sb,Br,Znが挙げられる可能性が明らかにされた。京都市のような大都市以外の地域でも同様の汚染が生じている可能性が高く調査の必要性・緊急性も高まっている。ここでは、清掃工場周辺の有害元素による土壤汚染の実態調査を最重要課題として取り組む。

2.1 調査地域と元素分析方法

大都市でない地域においても清掃工場周辺において有害元素による汚染が生じている可能性は大きく、調査データのある京都市¹⁾を大都市と位置づけ、それに対比できるような小都市の清掃工場周辺を土壤中の有害元素濃度調査地域に選定する必要がある。

2.1.1 T村清掃工場と土壤採取地点

I 県M市のベッドタウンであるT村(人口約5万人)の清掃工場(火格子方式)周辺において、山林、農地(所有者の承認済)、路肩等の土壤を採取し、有害元素濃度を熱中性子放射化分析(2.1.3 参照)により測定する。有害元素濃度の水平分布と清掃工場からの距離・方向を比較検討することにより土壤汚染の実態を把握する。

注目している清掃工場(およそ北緯 39:47、東経 141:04)は、I 県T村Y地区にあり、西側は清掃工場との高低差が 120 m 以上の高い山、北側も 50 m 程度の高低差のある高い丘陵、南側は自衛隊射撃場、東側は進入道路と牧草地となっている(図 2-1 参照)。清掃工場の極近傍には民家等人の居住場所はほとんど見られない状況にある。周辺 3 方を山林に包まれつつ、1 方向に牧草地、水田、畑がほとんどを占めて広がる田園丘陵地帯であり、酪農家が多い地域である。有害物質の人為的固定発生源は、清掃工場が最大規模のものである。高速道路は清掃工場の東側へ直線で約 2.8 km の位置に南北方向に通過している。ここは昭

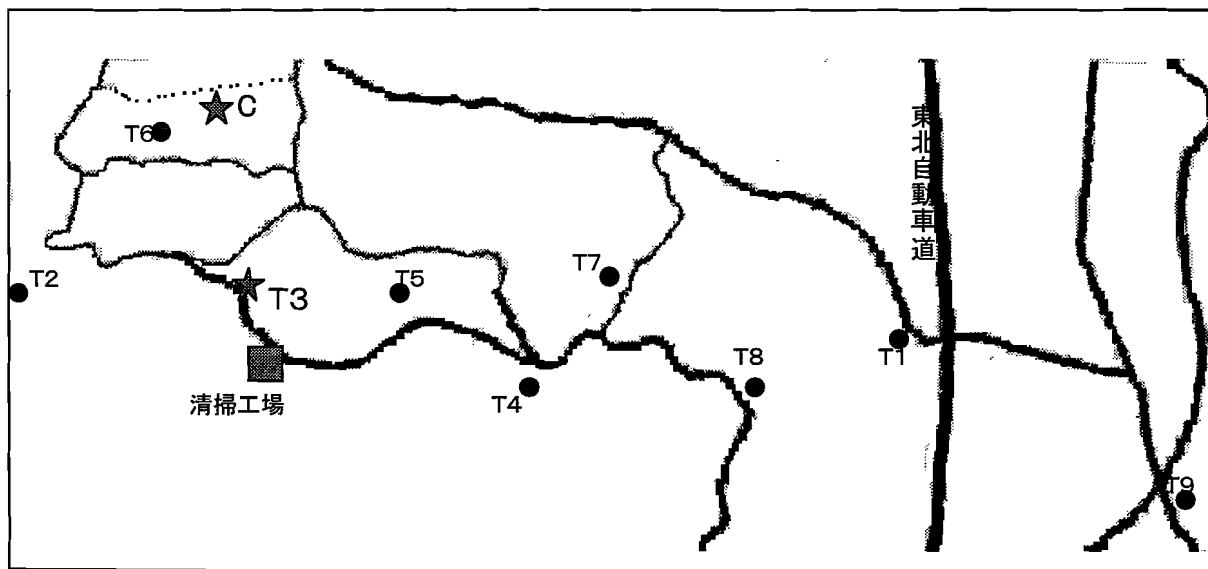


図 2-1 T村清掃工場周辺の土壤採取地点

和 57 年よりごみ焼却炉と不燃物処理、ごみ埋立処理を行っている。ごみ焼却施設については、2 基の焼却炉で 1 日 8 時間、30 t (15 t × 2) のごみを焼却し、年間 300 日稼動している。平成 12 年に清掃センターに搬入された年間ごみ総収集量は 15677 t でこのうち 11533 t が焼却処理された。滝沢村の 1 人 1 日平均ごみ排出量は平成 7 年に 726 g であったものが平成 12 年には 848 g と 1 人 1 日平均ごみ排出量は 5 年間で約 1.2 倍に増えている。

試料土壌は、高速道路と清掃工場周辺までの区域において、路肩、山林(T2,T7)、農地(T6,C)の地表面土壌を、地表面の植生や形状の明確な落葉等を取り除いた後に、表層約 5 cm を移植ゴテで採取した。図 2-1 に清掃工場と高速道路、及びサンプリング地点の位置関係を示す。T1 は高速道路 T インターチェンジ近傍、T9 は国道 4 号線の近傍であり、どちらも自動車の排気ガスの影響を考慮して検討地点に加えた。T6 は清掃工場から 1km ほど離れた牧草地である。また、図示した地点と全く無関係な地点として、岩手大学農学部の植物園を G 地点として選び、清掃工場の影響を全く受けない対照地点とした。

土壌中鉛直分布調査用の試料土壌は、有害元素濃度の水平分布(2 章 2.2)の検討結果を参考にして、清掃工場近傍の T3 地点(水平距離約 0.3 km)と清掃工場からの影響が無くなると考えられた T6 地点近傍の C 地点(水平距離約 1.1 km)の 2 カ所を選んだ。T3 地点は路肩の雑草地で清掃工場直近の牧草地との境界地点である。C 地点は牧草地内である。図 2-1 に水平方向の土壌中濃度測定地点(丸印)と鉛直方向の土壌中濃度測定地点(星印)の位置関係を示した。

鉛直方向の土壌採取に使用した採取器(内径 9 cm、有効長さ 30 cm、ステンレス製)を図 2-2 に示す。金属リングをネジ止めして分割可能なように設計・制作した。この土壌サンプラーを金槌で鉛直に打ち込み、土壌を深さ方向に採取する。土壌採取後のサンプラーは実験室に持ち帰り、深さ方向に土壌を分割採取して、2.1.2 で述べる前処理とポリエチレン袋への溶封を行う。熱中性子放射化分析(2.1.3 参照)によって土壌中全量元素濃度を測定した。

2.1.2 土壌試料の調整

採取した土壌は、実験室に持ち帰り恒温槽内で約 50℃、48 時間以上乾燥させる。その後、2 mm の篩にかけて得られる細土を分析試料とした。調整した試料土壌は、約 100 mg ずつ秤量し、ポリエチレン袋に詰め、できるだけ小さくなるようにシーラーを用いて溶封した。次にそれを二つに折り、さらに試料袋の破損対策のために、もう一度ポリエチレン袋に入れ同様に溶封をした。最後に前 2 回とは性質の異なる合成フィルムを用いて、袋状に溶封した。3 回目の溶封は中性



図 2-2 鉛直方向の土壌採取器



図 2-3 γ 線測定システム

子照射後、開封し易いように余裕のある大きさに成形した。袋詰めした土壌サンプルは、熱中性子照射のために専用のポリエチレン製のカプセルに封入した。

2.1.3 熱中性子の照射とガンマ線の測定

土壌中元素の全量濃度は、熱中性子放射化分析法によって測定した。この分析法は、試料に熱中性子を照射して核反応（主に (n, γ) ）を起こさせ、生成する放射性核種の放射線（ γ 線）のエネルギーや強度を測定することにより、試料中元素の定性、濃度の定量を行う分析法である。図 2-3 に本研究で使用した γ 線計測システムを示す。図中 A で示した鉛ブロック枠中に熱中性子を照射した試料をセットする。 γ 線エネルギー分解能の優れた Ge 半導体検出器を放射線の測定に用いることにより、化学分離を必要とせず多数の元素を同時に分析できるのが利点である。本研究のように土壌中の微量元素の分析には非常に有効な分析法である。

中性子の照射は、京都大学原子炉実験所圧気輸送管 Pn-2 において行った。照射時間は 3600 秒とし、放射能の冷却時間は中寿命核種について約 1 週間、長寿命核種について約 1 ヶ月とした。放射線（ γ 線）の計測には、4096 チャンネル波高分析器付き Ge 半導体検出器(EG&G 社製)を用いた。検出器と照射済み土壌試料の距離は 5 cm(植物は 2 cm)、中寿命核種については 3000 秒、長寿命核種については 7200 秒を計測時間とした。

また、標準試料として BCR176 (Commission of The European Communities, City Waste Incineration Ash)、並びに Co(25 μ g)を試料と同時に照射・計測し、未知試料中元素濃度を京都大学原子炉実験所で開発した計算ソフトを用いて評価する。

主な元素のうちアンチモン(以下 Sb)については、一般的に ^{124}Sb (半減期 60 日)の γ 線(1691keV)を用いて Sb 濃度が評価されるが、本研究では、高感度に Sb を検出できる ^{122}Sb (半減期 2.68 日)の γ 線(564keV)を用いて土壌中 Sb 濃度を評価した。臭素(以下 Br)については、

^{82}Br (半減期 35 時間)の γ 線(554keV)を用いて Br 濃度を評価した。亜鉛(以下 Zn)については、 ^{64}Zn (半減期 243 日)の γ 線(1115keV)を用いて Zn 濃度を評価した。クロム(以下 Cr)については、 ^{51}Cr (半減期 28 日)の γ 線(320keV)を用いて Cr 濃度を評価した。

2.2 清掃工場周辺における土壌中有害元素濃度の水平分布

2.2.1 土壌中有害元素の自然界値

Sb の非汚染土壌中濃度の中央値は $1 \text{ mg/kg}^{2)}$ である。浅見 ³⁾は表土中 Sb 濃度の幾何平均を $0.37(0.13\sim0.91) \text{ mg/kg}$ と報告している。本研究で非汚染土壌とした G 地点の Sb 濃度は 1.14 mg/kg (表 2-1 参照)であった。また、鉛直分布のコントロール地点(C)における土壌中 Sb 濃度の算術平均値は、 $0.92\pm0.13 \text{ mg/kg}$ であった(図 2-5 参照)。これらより本研究では土壌中 Sb 濃度の自然界値を 1 mg/kg とする。なお、福谷 ¹¹⁾は関西の非汚染土壌中 Sb 濃度をもとに、Sb の自然界値を 2 mg/kg 以下と報告している。

Br はハロゲン族であり、土壌中有害物質としての研究例はまれであり、Br の非汚染土壌中濃度についての報告値はみつからない。本研究では土壌中 Br 濃度の自然界値を $10 \text{ mg/kg}^{4)}$ とする。

Zn の非汚染土壌中濃度の中央値として $90 \text{ mg/kg}^{5)}$ 、算術平均値として $86 \text{ mg/kg}^{5)}$ 、幾何平均は、 $59.9 \text{ mg/kg}^{5)}$ や $54.9 \text{ mg/kg}^{5)}$ という値が報告されている。本研究で非汚染土壌とした G 地点の Zn 濃度は 59.1 mg/kg (表 2-1 参照)であった。また、鉛直分布のコントロール地点(C)における土壌中 Zn 濃度の算術平均値は、 59.1 mg/kg であった(図 2-6 参照)。これらより本研究では土壌中 Zn 濃度の自然界値を 60 mg/kg とする。ただし、土壌中の Zn の管理基準値が $120 \text{ mg/kg}^{6)}$ であったこともあり、この値程度の Zn 濃度は土壌汚染と考えることとする。

Cr の非汚染土壌中濃度の中央値として $25\sim60 \text{ mg/kg}^{7)}$ という値が報告されている。本研究で非汚染土壌とした G 地点の Cr 濃度は 45.5 mg/kg (表 2-1 参照)であった。また、鉛直分布のコントロール地点(C)における土壌中 Cr 濃度の算術平均値は、 53.5 mg/kg であった(図 2-6 参照)。これらより本研究では土壌中 Cr 濃度の自然界値を 50 mg/kg とする

2.2.2 T村清掃工場周辺における土壌中有害元素濃度

表 2-1 T村清掃工場周辺におけるCr、Sb、Br、Znの土壌中濃度 (mg/kg)

(1) 土壌中元素濃度

土壌中有害元素濃度のうち、ゴミに特有の含有元素と考えられた Sb, Cr, Br, Zn の土壌中濃度を表 2-1 に示す。

土壌中の Cr 濃度は、T2 地点が他の地点よりもやや小さい値を示したが、大部分の数値は $40\sim47 \text{ mg/kg}$ の狭い範囲にあり、ほぼ同程度の値を示している。Cr の数値はこの地域の地質学的な自然界値である可能性があり、清掃工場に起因する土壌汚染とは無関係と考えられ

	Cr	Sb	Br	Zn
T1	46.4	1.50	34.5	151
T2	31.2	0.81	25.5	173
T3	44.5	2.62	68.9	101
T4	42.6	0.88	38.7	137
T5	43.3	1.39	35.6	121
T6	44.8	0.90	52.9	59.3
T7	39.8	0.76	39.1	132
T8	41.6	1.27	30.5	102
T9	46.9	0.91	59.3	152
G	45.5	1.14	32.9	59.1

る。

T村清掃工場周辺では、T3 地点を除くと調査地点の Sb 濃度(0.75~1.12 mg/kg)はほぼ自然界値を示している。T3 地点の Sb 濃度は、他の地点における Sb 濃度の高々2 倍程度の値であり、極端な高濃度というわけではないが、調査地点中の最高濃度を示し、また清掃工場に最も近い調査地点(図 2-1 参照)であることから、清掃工場に起因する土壤汚染であると考えられる。

Br については、全ての地点において、本研究で設定した自然界値(10 mg/kg)より大きな値を示している。この地域は Br 濃度の比較的高い地質である可能性がある。T3 地点の Br 濃度は、調査地点中の最高濃度を示し、また清掃工場に最も近い調査地点(図 2-1 参照)であることから、Sb と同様に清掃工場に起因する土壤汚染が疑われるが、清掃工場から最も遠い T9 地点でも高濃度を示しており断定はできない。

土壌中の Zn 濃度は、T6(牧草地)と G(植物園)地点が他の地点よりも小さく自然界値(60 mg/kg)と考えられる値を示したが、大部分の数値は 100~170 mg/kg の範囲にあり、値の変動はあまり大きくない。この地域は Zn 濃度の比較的高い地質である可能性がある。Zn は植物の必須元素でもあり、植生の相違等の影響を受けやすい元素である。表 2-1 の調査データからのみでは、清掃工場に起因する土壤汚染の影響を考えることは困難である。

(2) 清掃工場が表面土壌中 S b 濃度に及ぼす影響

地図上(図 2-1)で清掃工場から表面土壌採取地点までの水平直線距離を計算し、清掃工場からの水平直線距離と土壌中濃度を図 2-4 に示す。これによると清掃工場近傍から水平距離でおよそ 1 km までは、急激に土壌中濃度が減少する傾向が見られる。清掃工場に近い 2 地点と 2~2.5 km 離れた 2 地点を除くと調査地点の Sb 濃度はほぼ自然界値(1 mg/kg)を示している。土壌中 Sb の最高濃度は、自然界値の 2.5 倍程度の値であり、極端な高濃度とい

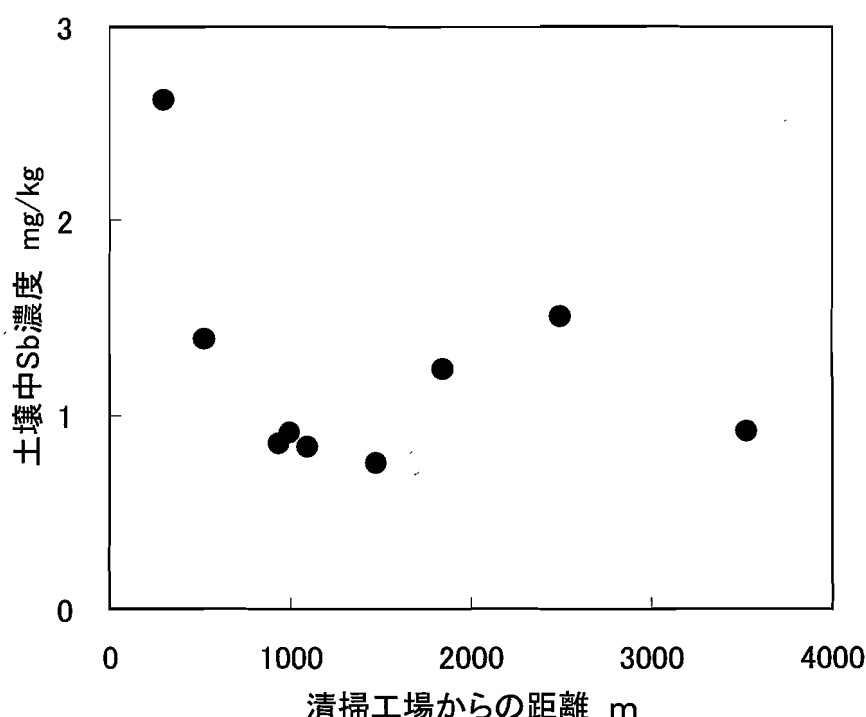


図 2-4 T村清掃工場からの距離と表面土壌中 Sb 濃度

うわけではないが、清掃工場に最も近い調査地点であることから、清掃工場に起因する土壤汚染であると考えられる。図 2-4 は清掃工場が周辺の表面土壌を Sb で汚染していることを強く示唆している。

また、清掃工場からの水平距離がおよそ 2 km を越えるようになると再び表面土壌中の Sb 濃度が大きくなっている。これは、清掃工場から東に約 3 km の地点に高速道路が通過していること無関係でない可能性がある。つまり、水平距離がおよそ 2 km を越えるようになると清掃工場が土壌表面 Sb 濃度に及ぼす影響はほとんどなくなり、他の汚染源の影響をより強く受ける可能性を示している。ただし、この地域で交通量が多く煩雑に渋滞を生じる T9(水平距離 3.5 km)地点の土壌表面において Sb は自然界値(1 mg/kg)を示しており、自動車交通のみが表面土壌中の Sb 濃度を高める要因とは考えられない。

2.3 清掃工場周辺における土壌中有害元素濃度の鉛直分布

2.2 において表面土壌中の Sb、Cr、Zn、Br 濃度の水平分布を検討することにより、大都市でない地域においても清掃工場周辺で Sb 濃度が高まっていることが明らかとなった。土壌表面における Sb 濃度の増加が地質由来でなく、大気由来であることを確認するために、土壌中の Sb、Cr、Zn の鉛直方向の分布を調査し、土壌表面における有害元素の蓄積状況を検討した。

2.3.1 Sb の鉛直分布

非汚染地域の土壌中 Sb 鉛直分布(C 地点)と T 村清掃工場近傍(T3 地点)の土壌中 Sb 鉛直分布を図 2-5 に示す。C 地点では、地表面下 30 cm までの全層において Sb が検出されているが、濃度変動は小さくまた土壌表面への蓄積もみられない。土壌中 Sb 濃度の算術平均値は 0.92 mg/kg であり、C 地点の Sb 濃度は自然界値を示している。京都市における非

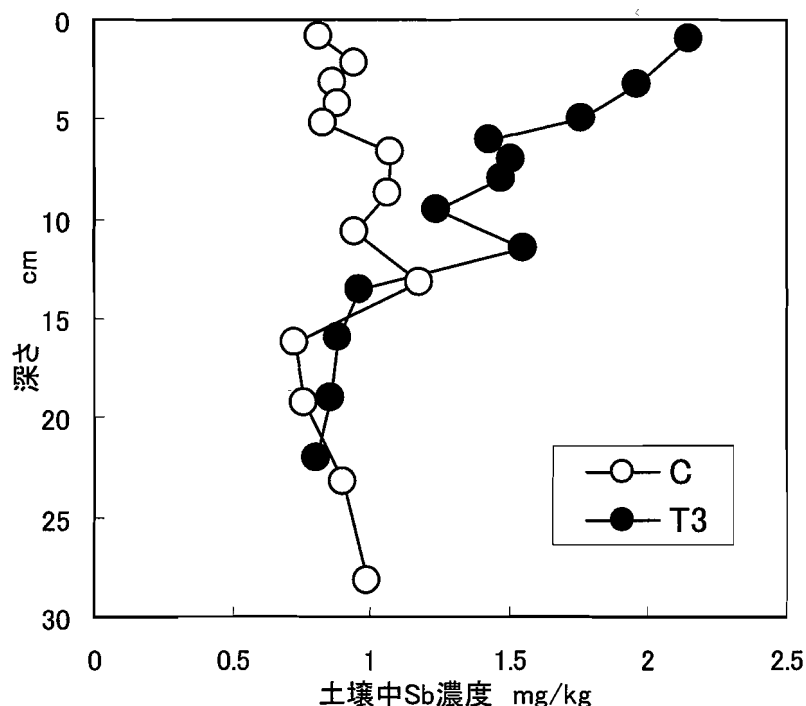


図 2-5 T 村清掃工場周辺の土壌中 Sb 濃度鉛直分布

汚染土壌の Sb 濃度(図 3-8 参照)も、高々 1 mg/kg であることより、C 地点の Sb 濃度は自然界値(1 mg/kg)と同等か表層ではそれよりやや低く、人為的な汚染があれば低レベルでも簡単に検出できるほど、土壌中の Sb 濃度は低いと考えられる。

T 村清掃工場近傍(T3 地点)では、地表面下およそ 25 cm までにおいて Sb は検出され、地表面から深さ方向に Sb 濃度が減少し C 地点の濃度（自然界値）に漸近してゆく分布を示している。深さ 12 cm から表層へ向かうほど Sb の土壌中濃度が高くなっており、大気由来のケミカルフォールアウトとして Sb が蓄積していることを明確に示している。図 2-5 の地表面濃度は、T3 地点の分析値(表 2-1)の再現性の点からも問題のない数値を示している。

T 村のように人口が 5 万人程度の小さなまちであっても、その清掃工場周辺では人口 100 万人を越える京都市¹⁾と同様に Sb の汚染が生じていることが確認された。地質学的な背景や社会経済的な背景とは無関係に、清掃工場の存在は Sb による周辺環境汚染を生じさせていると考えられる。

また、Sb の大気中への放出源が近傍の清掃工場のみであり、土壌中の Sb 濃度の鉛直分布が蓄積の履歴もある程度反映していると考ええると、清掃工場の創業初期は、土壌中の Sb 濃度をやや高める程度の環境放出量であったものが、近年ではかなり増加している可能性が推測される。これは、ゴミ中の Sb 濃度の上昇とゴミ処理量そのものの増加によって起こりうると考えられる。

2.3.2 C 地点における Cr、Zn の鉛直分布

C 地点の Cr、Zn の鉛直方向の濃度を測定した。その結果を図 2-6 に示す。地表面下 30 cm までにおいて Cr、Zn とともに全層で検出されている。濃度変動は Cr のほうが Zn より濃度は小さく、また Cr では土壌表面への蓄積は明確でない。Cr の土壌中濃度の算術平均値は 53.5 mg/kg であり、ほぼ自然界値(50 mg/kg)を示している。

Zn では濃度変動が大きく土壌表面へ Zn が蓄積されているかどうか断定できない。Zn の

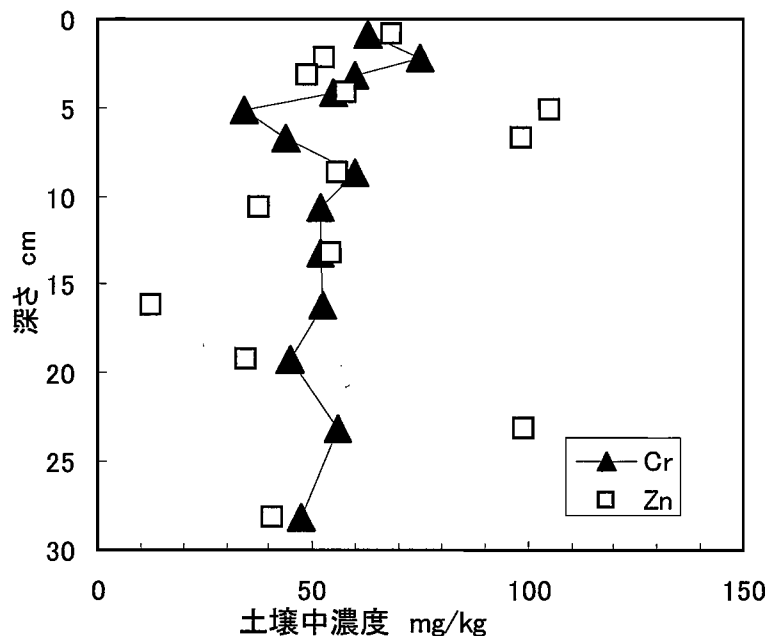


図 2-6 C 地点の土壌中 Cr、Zn 濃度の鉛直分布

土壌中濃度の算術平均値は、59.1 mg/kg であった。Zn の平均値は近傍の T6 地点の濃度(表 2-1)とほぼ等しい値を示しており、この地域としては低い濃度である。自然界値(60 mg/kg) とほぼ同じ値を示している。C 地点では、Cr、Zn の土壌表面への明確な蓄積はみられず、清掃工場に起因する環境汚染の影響は受けていないか、受けているにしても無視できるほど小さいと考えられた。

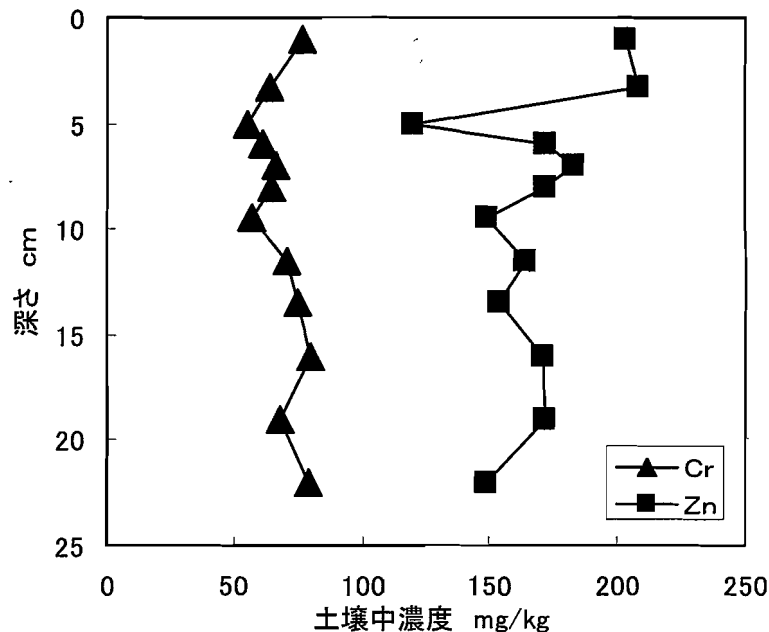


図 2-7 T3 地点の土壌中 Cr、Zn 濃度の鉛直分布

2.3.3 T3 地点における Cr、Zn の鉛直分布

清掃工場近傍(T3 地点)では、Cr、Zn の鉛直分布も測定した。その結果を図 2-7 に示す。地表面下およそ 25 cm までにおいて Cr、Zn とともに検出されている。濃度変動は C 地点と同様に Cr のほうが Zn より小さい。また Cr では土壌表面への蓄積もみられず、清掃工場に起因する土壌表面汚染を支持する結果は得られなかった。土壌中濃度の算術平均値は Cr で 68.1 mg/kg であり、自然界値(50 mg/kg)によりも少し大きな値を示しているが、人為的な汚染よりも地質的な要因と考えられる。

Zn では土壌表面濃度が下層部よりも総じて高く、C 地点よりも平均値で倍以上高い濃度を示しており、Zn が土壌表面へ蓄積されている可能性が考えられる。Zn の土壌中濃度の算術平均値は 168 mg/kg であり、自然界値(60 mg/kg)を大きく越えている。またかつての土壌管理基準値(120 mg/kg)も超えており、Zn に関する環境汚染を受けている可能性を否定できない。地表面下数 cm に濃度の高いピーク値(約 200 mg/kg)を示すようにもみえることから、地表面への Zn の負荷が人為的に行われたと考えられる。T3 地点は農地でないため施肥の影響は無いとすると、近傍の清掃工場に由来するケミカルフォールアウトによる Zn の負荷が汚染経路の一つとして考えられる。

Cr、Zn とともに C 地点よりも大きな平均濃度を示し、特に Zn でその差は大きかった。Zn は植物の必須元素でもあり、C 地点は牧草地、T3 地点は路肩の雑草地という植生の相違が土壌中濃度に寄与している可能性もある。

2.3.4 Br の鉛直分布

非汚染地域の土壌中 Br 鉛直分布(C 地点)と T 村清掃工場近傍(T3 地点)の土壌中 Br 鉛直分布を図 2-8 に示す。C 地点では、地表面下 30 cm までの全層において Br が検出されているが、濃度変動は大きい。また土壌表面への蓄積はみられないが、深さ 5~6cm 付近で最大値(103 mg/kg)を示し、その後、徐々に減少してゆく。土壌中 Br 濃度の算術平均値は 73.3 mg/kg であり、深さ 10cm より下方では、ほぼ平均値を示している。C 地点の Br 濃度は、本研究で設定した自然界値(10 mg/kg)よりも非常に大きく、また、表層付近に濃度のピーク値を持つことから、何らかの人為的な Br の負荷が C 地点ではあると考える方が合理的である。C 地点は牧草地であり、乳牛から発生する尿と糞を原料とする自家製の堆肥を牧草地に大量に還元しており、塩化物を中心とするハロゲン化物を負荷している土地であることが、土壌中 Br 濃度の鉛直分布に寄与している可能性がある。T6 地点は同じ農家の牧草地であり、ここの Br 濃度(52.9 mg/kg)も調査地点の中では高い値を示している。

T 村清掃工場近傍(T3 地点)では、地表面下およそ 25 cm までにおいて Br は検出され、地表面から深さ 12cm まで Br 濃度が上昇し、それより深い位置では Br 濃度が減少してゆく分布を示している。土壌中 Br 濃度の算術平均値は 48.6 mg/kg であり、深さ 20cm より下方では、平均値よりも小さな値を示している。T3 地点の Br 濃度は、本研究で設定した自然界値(10 mg/kg)よりも大きく、また、地表面下に濃度の高いピーク値を持つことから、何らかの人為的な Br の負荷が T3 地点ではあると考える方が合理的である。しかし深さ 12 cm から表層へ向かうほど Br の土壌中濃度は低くなっており、大気由来のケミカルフォールアウトとして Br が蓄積していることを必ずしも支持していない。図 2-8 の地表面濃度は、T3 地点の分析値(表 2-1)と比較すると小さいが、深さ 12cm 付近では、同程度の値を

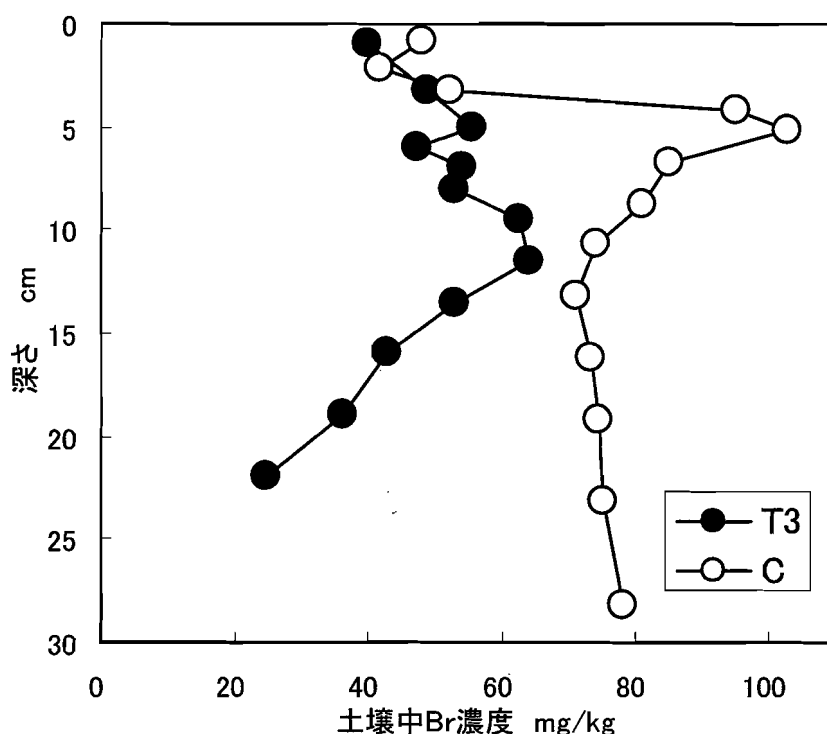


図 2-8 T 村清掃工場周辺の土壌中 Br 濃度の鉛直分布

示している。

Br については、清掃工場の存在が周辺環境汚染を生じさせていると断定できるような知見が鉛直分布からは得られなかった。

2.4 まとめ

T村清掃工場について清掃工場周辺における表面土壌の有害元素濃度を調査した。その結果、清掃工場から 500 m 程度の範囲内において、土壌中 Sb 濃度が自然界値より高くなり、清掃工場に近づくほど高濃度になることが水平方向の濃度分布から把握された。

水平方向の有害元素濃度調査で他地点より高濃度を示した T3 地点における土壌中 Sb 濃度の鉛直分布を調査した。その結果地表面から深さ 10cm 程度に渡って、自然界値(1 mg/kg)を越える Sb 濃度が検出され、地表面から深さ 10～15 cm にかけて直線的に自然界値(1 mg/kg)まで減少する濃度分布が得られた。T3 地点は農地ではなく、また Sb は肥料成分でもないことから、大気から降下沈着した Sb が土壌表面に蓄積していることを明確に示している。清掃工場近傍における Sb の表面土壌への蓄積は、都市(人口)の規模に関わりなく共通して観測され、廃棄物の清掃工場は Sb による周辺環境汚染を生じさせていることがわかった。本研究では、初めて小都市清掃工場周辺の土壌中 Sb 濃度の水平・鉛直分布を把握しており、貴重な野外調査データを提供している。

Cr については、調査した地域で清掃工場に起因する濃度上昇を水平方向の濃度分布から把握することが出来なかった。また、鉛直分布を調査した 2 地点で清掃工場に起因する地表面への蓄積(濃度上昇)を把握することが出来なかった。Cr は清掃工場残渣の元素分析からはゴミに起因する元素^{8,9,10)}と考えられるが、清掃工場から放出されて周辺土壌を汚染させる元素とは考えられなかった。

Zn について、清掃工場に近い地点で高濃度を示すような傾向は、水平方向の濃度分布からみられなかった。しかしながら、鉛直分布を調査した清掃工場近傍の T3 地点において、地表面に高濃度ピーク値を示すことと、T3 地点は農地でないため施肥の影響は無いと考えられることから、近傍の清掃工場に由来するケミカルフォールアウトによる Zn が地表面濃度を高めている可能性が示唆された。

Br について、水平方向の濃度分布からは清掃工場に近い地点で高濃度を示し、Sb と同様に清掃工場から放出され土壌を汚染する元素である可能性が考えられた。しかし、鉛直分布を調査した清掃工場近傍の T3 地点よりも清掃工場から遠く影響を受けない C 地点において、平均的に高い濃度を示した。Br については、ゴミに起因する元素^{8,9,10)}と考えられたが、土壌中 Br 濃度分布からは、清掃工場から放出されて周辺土壌を汚染させる元素とは明確には断定できなかった。

参考文献

- 1) 西牧研壮 他：有害物質の環境動態に関する研究、～微量元素(Zn,Se,¹⁴C)等の汚染源及び環境中分布に関する研究～、京都大学原子炉実験所第 30 回学術講演会報文集、pp.347-358、1996

- 2) 浅見輝男 : 日本土壤の有害金属汚染、アグネ技術センター、p.263、2000
- 3) 浅見輝男 他 : 土壤中のカドミウム、アンチモン、ビスマス等重金属元素の自然界値、日本土壤肥料学雑誌、Vol.59(2)、pp.197-199、1988
- 4) Bowen H. J. 著、浅見輝男 他訳 : 環境無機化学、博友社、pp55-71、1983
- 5) 浅見輝男 : 日本土壤の有害金属汚染、アグネ技術センター、p.20-21、2000
- 6) 浅見輝男 : 日本土壤の有害金属汚染、アグネ技術センター、p.28-31、2000
- 7) 浅見輝男 : 日本土壤の有害金属汚染、アグネ技術センター、p.196、2000
- 8) 高岡昌輝 他 : ゴミ焼却飛灰中元素の定量に関する蛍光X線分析法の適用性、廃棄物学会論文誌、Vol.11(6)、pp.333-342、2000
- 9) 越村英雄 : 廃棄物の燃焼と化学物質の挙動、東京図書出版会、2001
- 10) 颯田尚哉 他 : アンチモンによる土壤汚染調査と影響の低減化手法に関する研究、鉄鋼業環境保全技術開発基金(平成 11~13 年度)研究助成金研究成果報告書、2003
- 11) 福谷哲 : 土壤環境中におけるアンチモンの挙動に関する基礎的研究、京都大学博士学位論文、2000

第3章 清掃工場近傍における有害元素分布

第2章において Sb の表面土壌への蓄積が大都市ばかりでなく、小都市でも共通して観測され、社会の規模に関わりないことがわかった。廃棄物の清掃工場が Sb を環境へ放出し、周辺土壌中濃度を高めていると考えられる。この調査は比較的広い範囲での概略的な調査であり、調査結果をより確実なものとするために、土壌中 Sb 濃度が高い値を示した区域(清掃工場近傍)において、より詳細な調査を実施する必要がある。ここでは、区域内の酪農家の協力を得て、土壌、大気、牧草中の有害元素濃度を熱中性子放射化分析法で分析した。清掃工場近傍における土壌中の有害元素濃度の水平分布と鉛直分布より、清掃工場から大気環境中に放出され、ケミカルフォールアウトとして降下沈着して表層土壌を汚染している元素を同定する。また、大気や牧草中における有害元素の分析結果より、環境汚染実態を把握するとともに同定結果を再確認する。

3.1 有害元素の水平分布

T3 地点(図 2-1)は土壌中 Sb 濃度が高い値を示した地点であり、この地点付近を中心により詳細な調査を実施する。

3.1.1 T村清掃工場と環境試料採取地点

T 村清掃工場近傍で土壌・植物・大気試料を採集する。試料を採取した地点と清掃工場

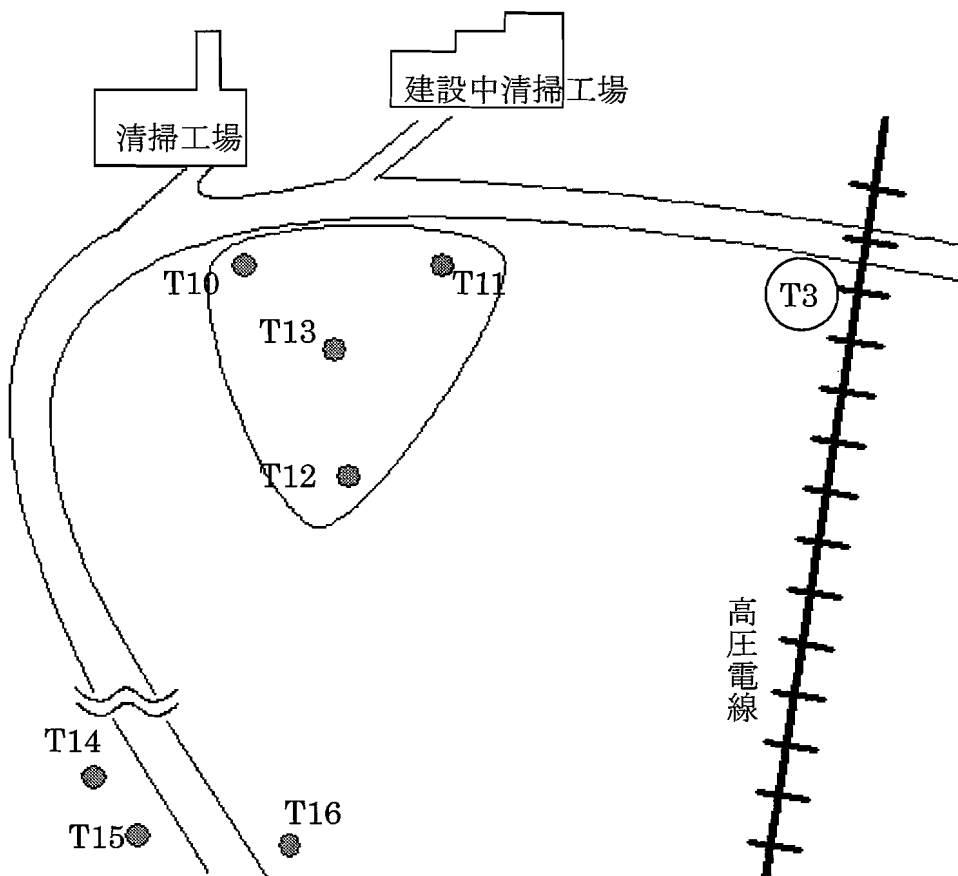


図 3-1 T 村清掃工場近傍の環境試料採取地点

表3-1 清掃工場近傍における土壌採取地点

試料採取地点	標高 (m)	清掃工場から	
		の距離 (m)	備考
T10	307	116	牧草地
T11	315	215	牧草地
T12	315	202	牧草地
T13	309	168	牧草地
T14	280	420	牧草地
T15	273	560	水田 畦
T16	270	720	牧草地

との位置関係を図 3-1 に示す。また、試料採取地点と清掃工場からの距離と標高を表 3-1 に示す。前回の調査地点である T3(清掃工場からおおよそ 300m)地点は、今回の調査地点よりも標高が高い位置にある。ここでも再度土壌を採取し、これを T3s とする。T10,T11,T12 地点は、清掃工場に最も近い面積約 0.45ha の三角形をなす牧草地の頂点部分であり、T11,T12 は T10 よりも標高が高い。T13 地点は三角状牧草地のほぼ中央であり、ここでは鉛直方向の土壌試料を採取した(3.2 参照)。T13 を除いて土壌試料は、スコップを用いて表層土壌(深さ 0~5 cm)を採取した。

植物試料である牧草の種類はリードキャナリーグラスであり、T10,T11,T12 地点において採取した。牧草試料は、カマを用い、根本を切断して採取した。また、T3 地点では路傍のヨモギを手で採取し、これを T3p とした。

表3-2 清掃工場近傍における大気捕集条件

試料採取地点	採集時間 (h)	積算流量 (L)
T10	8	2460
T11	8	2470
T12	8	2440
T3a	4	1196.6
T6a	4	1200

大気試料の採集は、保留粒子径 0.45 μm のセルロース濾紙 (ADVANTEC 社製, 37 mm MONITOR) をセットしたエアサンプラー (SIBATA 社製, MP - Σ 500) を用いて大気中浮遊物を採集した(図 3-2)。エアサンプラーは三脚を用いて屋外の所定位置(T10,T11,T12 地点)に設置し、設置高さは地上から約 1.1m~1.2m とした(図 3-2)。流速を 5.0 L/min に保ちながら、午前 9 時から午後 5 時までの 8 時間、大気中浮遊物を補集した。大気試料は土壌・植物試料と同じ日に採集した。天候は曇りであった。採集した大気試料の採集地点、採集時間および積算流量を表 3-2 に一覧する。また、別の日に T3 地点及び T6 地点(図 2-1)でも流速を 5.0 L/min に保ちながら、午前 9 時から午後 1 時までの 4 時間、大気中浮遊物を補集し、これを T3a、T6a とする。

清掃工場からやや離れた T14,T15,T16 地点において土壌試料を、T14,T16 地点において植物試料(リードキャナリーグラス)を採取した。土壌試料の採集方法は、スコップを用いて表層土壌(深さ 0~5cm)を採集した。牧草試料は、カマを用いて根本を切断し採取した。



図 3-2 T 村清掃工場近傍の環境試料採取風景

T10,T11,T12 地点における環境試料の採取風景を図 3-2 に示す。T12 地点から、清掃工場を写している。清掃工場の近傍に牧草地が広がっていることを示している。

3.1.2 試料調整と元素分析

採集した土壌試料は、実験室に持ち帰り恒温槽内で約 50℃、24 時間以上乾燥させた。その後、2mm のふるいにかけたあとの細土を分析試料とした。

牧草試料は実験室に持ち帰り二等分する。半分はそのまま、もう半分は水道水を用い洗浄し葉と茎をとり分けた。集めた葉を 5cm 程度に切り、恒温槽内で約 60℃、48 時間以上乾燥させた。ヨモギは無洗浄で同様に乾燥した。乾燥後の植物試料はポリ袋に詰め、手でもんで細かくしたものを分析試料とした。調整した土壌試料は、約 100mg ずつ、植物葉試料は約 200～300 mg ずつ量りポリエチレン袋に詰め、できるだけ小さくなるようにシーラーを用いて溶封した。次にそれを二つに折り、さらに試料袋の破損対策のためにもう一度ポリエチレン袋に入れ同様に溶封した。最後に前 2 回とは性質の異なる合成フィルムを用いて溶封した。3 回目の溶封は中性子照射後、開封しやすいように余裕のある大きさに成形した。袋詰めしたサンプルは照射のために専用のポリエチレン製のカプセルに封入した。

大気試料の採取後、エアサンプラーにセットした濾紙を粒子が付着している面が内側になるようにして 4 回ほど折りたたみ、できるだけ小さく成形して、土壌試料と同様にポリエチレン袋のフィルム中に三重に袋詰めした。

有害元素の定量は、第 2 章 2.1.3 に述べたのと同様の方法で行った。

3.1.3 清掃工場近傍における土壌中有害元素濃度

土壌中有害元素濃度のうち、ゴミに特有の含有元素と考えられた Sb, Cr, Br, Zn の土壌中濃度を表 3-3 に示す。

表 3-3 T村清掃工場近傍におけるCr、Sb、Br、Znの土壌中濃度 (mg/kg)

土壌中の Cr 濃度は、清掃工場に寄り近い T10～T13 地点が他の地点よりもやや小さい値を示した。大部分の数値は 50～90 mg/kg の範囲にあり、本研究で設定した自然界値(50 mg/kg)よりやや大きな値を示している。Cr は清掃工場から離れるほうがどちらかといえば高濃度であり、清掃工場に由来する有害元素降下物とは考えられない。

T村において、清掃工場からやや遠い T14～T16 地点では、調査地点の Sb 濃度(0.78～

	Cr	Sb	Br	Zn
T10	56.3	2.17	31.5	157
T11	53.5	1.87	27.8	139
T12	69.3	2.09	46.7	60.9
T13	72.8	2.64	28.0	94.3
T14	64.6	0.78	35.3	121
T15	93.6	1.23	62.5	74.3
T16	89.8	0.96	71	136
T3s	72.7	1.85	53.3	166

1.23 mg/kg)はほぼ自然界値(1 mg/kg)を示している。清掃工場に近い T10～T13 地点と T3 地点において、Sb 濃度は他の地点における Sb 濃度の 2 倍程度の値を示している。極端な高濃度というわけではないが、調査地点のなかでより高い濃度を示し、また清掃工場により近い調査地点(図 3-1 参照)である。これらのことから Sb は、清掃工場に由来する有害元素降下物と考えられる。

Br については、すべての地点において本研究で設定した自然界値(10 mg/kg)より大きな値を示している。しかしながら、清掃工場の影響のない C 地点(図 2-1)の深さ 30cm までの土壌中 Br 平均濃度(73.3 mg/kg)よりも小さな値を示している。清掃工場からやや遠い T14～T16 地点では、和牛の子牛を生産しており、C 地点と同様に土壌中 Br 濃度に家畜の糞尿中のハロゲン化物が影響して、やや高い濃度を示している可能性がある。清掃工場近傍の調査結果(表 3-3)からは、Br について清掃工場からの距離と土壌中濃度に特別な関係がみられず、清掃工場に由来する有害元素降下物とは考えられなかった。

Zn について、T12 地点を除いて検出された値は本研究で設定した自然界値(60 mg/kg)と清掃工場の影響のない C 地点(図 2-1)の深さ 30cm までの土壌中 Zn 平均濃度(59.1 mg/kg)より大きな値を示している。土壌中の Zn 濃度は、T12 地点のように濃度の低い地点もあるが、大部分の数値はかつての土壌管理基準値 120 mg/kg を越えており、Zn の地表面への人為的な負荷がある可能性がある。Zn は植物の必須元素でもあり、植生の相違等の影響を受けやすい元素である。清掃工場に近い T10～T13 地点は牧草地内であり施肥の影響もあるため、表 3-3 の調査結果からのみでは、清掃工場に由来する有害元素降下物と考えることは困難である。

3.1.4 清掃工場近傍における植物中有害元素濃度

(1) 植物中元素濃度

植物中有害元素濃度のうち、ゴミに特有の含有元素と考えられた Sb, Cr, Br, Zn の植物中濃度を表 3-4 に示す。

植物中の Cr 濃度は、全ての地点で 1～3 mg/kg の値を示しており、清掃工場との関連は

みられず、また植物種による差も小さく、清掃工場に由来する有害元素降下物と考える根拠にはならない。

植物中の Sb 濃度は、清掃工場に近い T10～T12 地点と T3 地点において、より遠い T14、T16 地点における Sb 濃度よりも大きな値を示している。このことは、Sb が清掃工場に由来する有害元素降下物であることを支持している。T3p の Sb 濃度が他の地点よりもかなり高いが、T3p の試料が路肩のヨモギであり、他の地点(牧草地)に比べ粉塵にさらされやすいことや、植物種間で葉の形状等に差異があることが一因であると考えられる。

植物中の Br は、全ての試料で検出された。清掃工場からの距離と植物中濃度に明確な一定の関係がみられず、清掃工場に由来する有害元素降下物と考える根拠にはならない。T3p の Br 濃度が他の地点よりもかなり高いが、T3p の試料が路肩のヨモギであり、他の地点(牧草(リトキヤリ)地)に比べ粉塵にさらされやすいことや、植物種間で葉の形状等に差異があることが一因であると考えられる。

植物中の Zn は、全ての試料で検出された。同じ牧草地の牧草中 Zn 濃度は同じ値を示した。清掃工場からの距離と植物中濃度に特定の関係がみられず、清掃工場に由来する有害元素降下物と考える根拠にはならない。T3p の Zn 濃度が他の地点よりもかなり高いが、T3p 地点が路肩のヨモギであり、他の地点(牧草(リトキヤリ)地)に比べ粉塵にさらされやすいことや、植物種が異なることが一因であると考えられる。Zn は植物の必須元素でもあり、環境中濃度の変化が植物中濃度に反映しにくい可能性がある。

(2) 洗浄効果

水道水で洗浄した牧草について、有害元素濃度のうち、ゴミに特有の含有元素と考えられた Sb, Cr, Br, Zn の濃度を表 3-5 に示す。

洗浄後の牧草中の Cr 濃度は、全ての地点で 1～3 mg/kg の値を示しており、洗浄前(表 3-4)とほとんど同じである。ケミカルフォールアウトとして大気から降下し、牧草に付着している Cr はほとんどないと考えられる。清掃工場からの距離との関連はみられず、清掃工場に由来する有害元素降下物と考えられない。

洗浄後の牧草中の Sb 濃度は、清掃工場に近い T10～T13 地点において、より遠い T14、T16 地点における Sb 濃度よりも大きな値を示す傾向がある。このことは、Sb が清掃工場に由来する有害元素降下物であることを示唆している。また、洗浄前(表 3-4)と比較して、濃度はほぼ半分以下となっている。このことは、Sb が大気を経由して牧草表面に付着していることを示しており、Sb が清掃工場に由来する有害元素降下物であることを支持している。

表 3-4 T村清掃工場近傍におけるCr、Sb、Br、Znの植物中濃度 (mg/kg)

	Cr	Sb	Br	Zn
T10	1.29	0.15	4.11	23.8
T11	1.63	0.07	2.52	23.8
T12	2.32	0.07	2.33	23.8
T14	0.93	0.03	7.10	9.60
T16	2.39	0.03	7.37	21.3
T3p	2.56	0.32	23.3	48.9

表 3-5 T村清掃工場近傍におけるCr、Sb、Br、Znの洗浄済み牧草中濃度 (mg/kg)

	Cr	Sb	Br	Zn
T10	1.95	0.07	3.19	27.2
T11	2.00	0.03	2.12	19.2
T12	1.95	0.06	1.78	21.1
T14	2.06	N.D.	6.19	25.6
T16	1.03	0.03	8.00	19.7

洗浄後の牧草中の Br については、全ての地点で Br が検出された。濃度も洗浄前(表 3-4)とほとんど同じである。ケミカルフォールアウトとして大気から降下し、牧草に付着している Br はほとんどないと考えられる。清掃工場からはなれると濃度が増加する傾向があり、Br については植物中濃度を指標にして清掃工場に由来する有害元素降下物と判断することは難しいと考えられる。

洗浄後の牧草中の Zn については、T12 を除いて検出された。濃度も洗浄前(表 3-4)とほとんど同じである。ケミカルフォールアウトとして大気から降下し、牧草に付着している Zn はほとんどないと考えられる。Zn についても植物中濃度を指標にして清掃工場に由来する有害元素降下物と判断することは難しいと考えられる。

3.1.5 清掃工場近傍における大気中有害元素濃度

大気中有害元素濃度のうち、ゴミに特有の含有元素と考えられた Sb, Cr, Br, Zn の大気中濃度を表 3-6 に示す。ろ紙のバックグラウンド値を差し引いて評価した値である。

大気中の Cr 濃度は、清掃工場近傍の全ての地点で検出されなかった。大気から検出されないことから Cr は、清掃工場に由来する有害元素降下物とは考えられない。

大気中の Sb 濃度は、清掃工場近傍の全ての地点で検出された。清掃工場から 1 km 離れた T6 地点では Sb は検出されなかった。清掃工場からの距離や標高と大気中 Sb 濃度には特別な関係はみられないが、清掃工場に最も近い地点と標高の高い地点でより高い濃度を示した。これらのことは、Sb が清掃工場に由来する有害元素降下物であることを支持して

	Cr	Sb	Br	Zn
T10	N.D.	8.09	14.4	316
T11	N.D.	2.51	3.28	N.D.
T12	N.D.	5.82	11.6	N.D.
T3a	N.D.	8.19	10.9	228
T6a	N.D.	N.D.	15.0	N.D.

大気中の Br 濃度は、清掃工場近傍の全ての地点で検出された。清掃工場からの距離や標高と大気中 Br 濃度には特別な関係はみられないが、清掃工場に最も近い地点で高い濃度を示した。このことは、Br が清掃工場に由来する有害元素降下物である可能性を示唆しているが、清掃工場から 1 km 離れた T6 地点でも Br は同程度の濃度で検出されており、Br が清掃工場に由来する有害元素降下物であるとは断定できない。

大気中の Zn 濃度は、不検出か、検出される場合には高濃度で検出された。清掃工場からの距離や標高と大気中 Zn 濃度には特定の関係はみられないが、清掃工場に最も近い地点と標高の高い地点で非常に高い濃度を示した。偶然に土粒子などの Zn を高濃度に含む粒子成分がろ紙に捕集された結果と考えられる。このことは、Zn が清掃工場に由来する有害元素降下物である可能性を否定するものではないが、積極的に支持する結果でもない。

以上のことから Sb については、土壌中濃度の水平分布、植物中濃度とその洗浄効果、さらに大気中濃度から、清掃工場に由来する有害元素降下物であると判断することが妥当である。

3.2 有害元素の土壌中鉛直分布

3.1 において表面土壌中の Sb、Cr、Zn、Br 濃度の水平分布を検討することにより、清掃工場近傍において環境中に Sb が存在し、近傍ほど Sb 濃度が高まっていることが明らかとなった。土壌中 Sb 濃度の増加が地質由来でなく、大気由来であることを再確認することと、清掃工場近傍の牧草地土壌内における Sb の動態を把握することを目的として、土壌中の Sb、Cr、Br、Zn の鉛直方向の分布を調査し、土壌表面における有害元素の蓄積状況を検討した。

3.2.1 土壌の採取と元素分析

有害元素の土壌中鉛直分布調査用の土壌採取地点は、有害元素濃度の水平分布(3章 3.1)の検討結果を参考にし、また清掃工場近傍の牧草地における平均的な有害物質の分布と動態を把握するために T13 地点(水平距離約 168 m)を選んだ。T13 地点は三角形の牧草地のほぼ中央である。図 3-1 に水平方向の土壌中濃度測定地点と T13 地点の位置関係を示す。

鉛直方向の土壌採取には、図 2-2 に示す専用の採取器(内径 9 cm、有効長さ 30 cm、ステンレス製)を使用した。この土壌サンプラーを金槌で鉛直に打ち込み、土壌を深さ方向に採取する。土壌採取後のサンプラーは実験室に持ち帰り、深さ方向に土壌を分割採取して、2.1.2 で述べる前処理とポリエチレン袋への溶封を行う。熱中性子放射化分析(2.1.3 参照)によって土壌中全量元素濃度を測定した。

3.2.2 清掃工場近傍における土壌中有害元素濃度の鉛直分布

(1) Sb の鉛直分布

牧草地内である T13 地点の土壌中 Sb 鉛直分布を非汚染地域(C 地点)と路肩である T3 地点の土壌中 Sb 鉛直分布とともに図 3-3 に示す。C 地点では、全層において Sb の自然界値

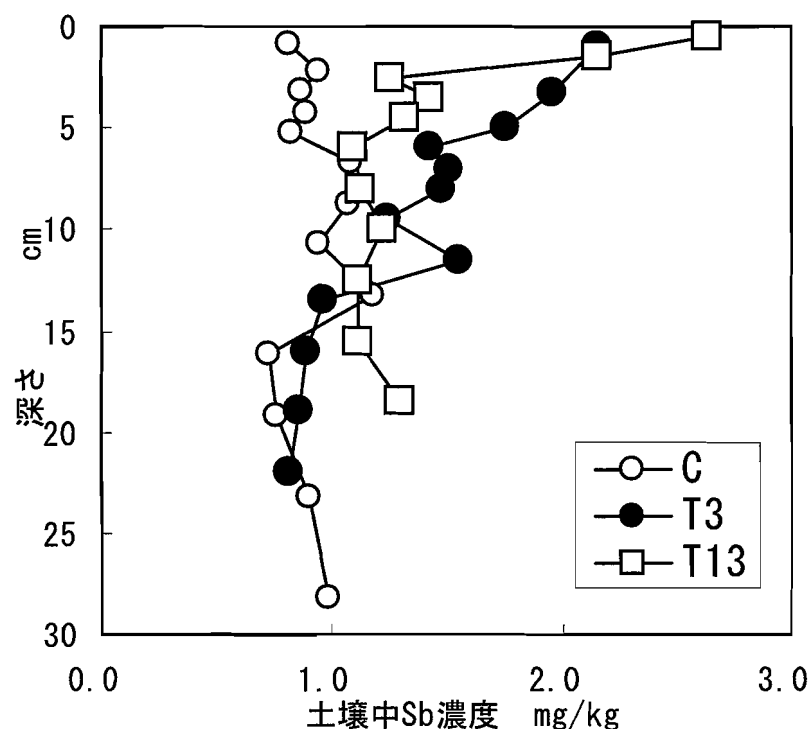


図 3-3 清掃工場近傍牧草地 (T13) の土壌中 Sb 濃度の鉛直分布

(1 mg/kg)を示している。濃度変動は小さくまた土壌表面への蓄積もみられない。

T13 地点では、地表面下およそ 20 cm まで(採取した全層)において Sb は検出され、地表面から深さ方向に Sb 濃度が減少し C 地点の濃度(自然界値)に漸近してゆく分布を示している。深さ 5 cm から表層へ向かうほど Sb の土壌中濃度が高くなっており、大気由来のケミカルフォールアウトとして Sb が蓄積していることを明確に示している。図 3-3 の地表面濃度は、この牧草地(T10,T11,T12)の分析値(表 3-3)の再現性の点からも問題のない数値を示している。また、地表面濃度は T3 地点よりも大きな濃度を示している。

T3 地点でも、地表面から深さ方向に Sb 濃度が減少し C 地点の濃度に漸近してゆく分布を示している。深さ 12 cm から表層へ向かうほど Sb の土壌中濃度が高くなっており、大気由来のケミカルフォールアウトとして Sb が蓄積していることを明確に示している。T3 地点の蓄積深さは、12cm であるのに対して、T13 地点では 5cm 程度である。T13 地点は牧草地であるため、年に 3 回程度の牧草の収穫を受けている。これにより Sb が牧草地外に持ち出されるために、T13 地点では蓄積深さが T3 地点よりも浅くなっていると考えられる。

清掃工場近傍において、土地の利用形態に関わりなく、地表面における Sb の蓄積がみられることから、T村のように人口が 5 万人程度の小さなまちであっても、その清掃工場周辺では人口 100 万人を越える京都市¹⁾と同様に Sb の汚染が生じていることが再確認された。地質学的な背景や社会経済的な背景とは無関係に、清掃工場はその近傍環境中の Sb 濃度を高めていると考えられる。

(2) Cr の鉛直分布

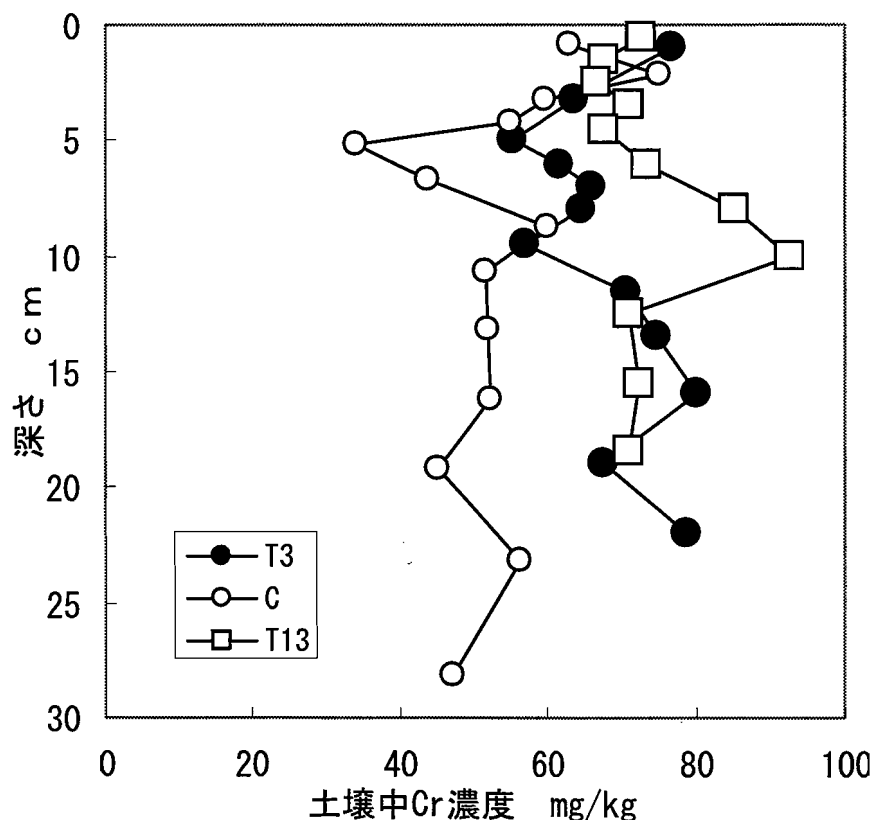


図 3-4 清掃工場近傍牧草地(T13)の土壌中 Cr 濃度の鉛直分布

牧草地内である T13 地点の土壤中 Cr 鉛直分布を非汚染地域(C 地点)と路肩である T3 地点の土壤中 Cr 鉛直分布とともに図 3-4 に示す。C 地点では、地表面付近で濃度変動が多少あるものの土壌表面への蓄積は明確でない。平均すると Cr の自然界値(50 mg/kg)をほぼ示している。

T13 地点では、地表面下およそ 20 cm までにおいて Cr は検出され、地表面から深さ 10cm で最大値を示している。地表面濃度は C 地点とほぼ等しいが、その他の濃度は C 地点よりも大きな値を示している。深さ 10 cm にみられる Cr の大きな土壌中濃度値が、大気由来のケミカルフォールアウトであることを示すかどうかは断定できない。図 3-4 の地表面濃度は、この牧草地(T10,T11,T12)の分析値(表 3-3)よりもやや大きな数値を示している。また、T13 地点の土壌中濃度の算術平均値は 73.8.1 mg/kg であり、T3 地点(68.1 mg/kg)よりもやや大きな濃度を示している。

T3 地点では、鉛直分布に特別な傾向はみられず、土壌表面への蓄積も明確でないことから、清掃工場に起因する土壌表面汚染を支持する結果は得られなかった。

清掃工場近傍において、土地の利用形態に関わりなく、地表面における Cr の蓄積がみられないことから、清掃工場が近傍環境中の Cr 濃度を高めているとは考えられない。

(3) Zn の鉛直分布

牧草地内である T13 地点の土壤中 Zn 鉛直分布を非汚染地域(C 地点)と路肩である T3 地点の土壤中 Zn 鉛直分布とともに図 3-5 に示す。C 地点では、濃度変動があるものの土壌表面への蓄積は明確でない。平均すると Zn の自然界値(60 mg/kg)をほぼ示している。

T13 地点では、地表面下およそ 20 cm までにおいて Zn は検出され、地表面から深さ 8cm で最大値を示している。地表面濃度は C 地点に近いが、その他の濃度は C 地点よりも大き

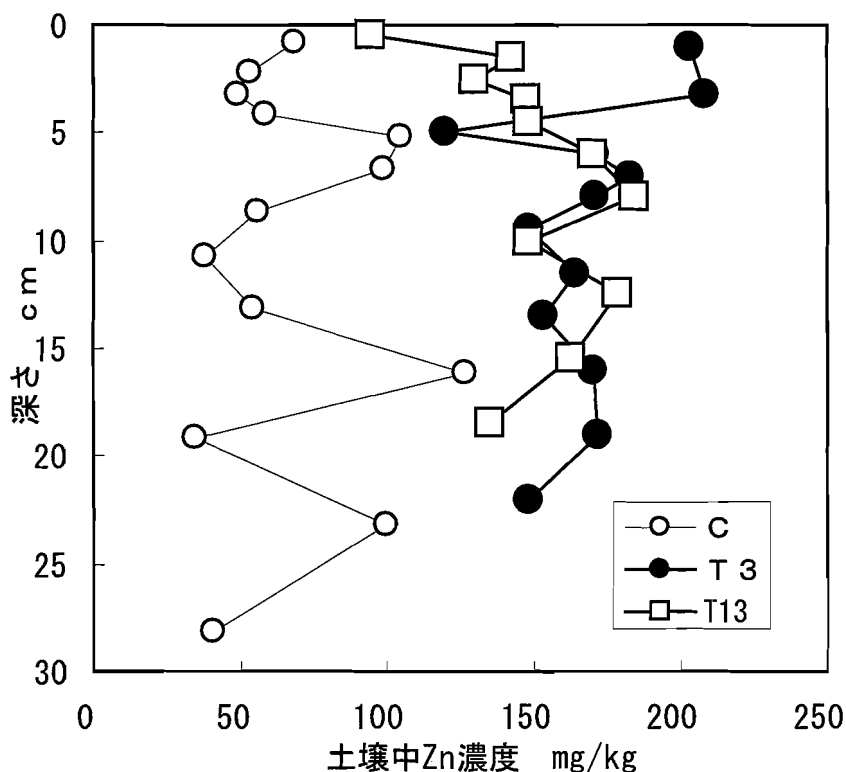


図 3-5 清掃工場近傍牧草地 (T13) の土壌中 Zn 濃度の鉛直分布

な値を示している。深さ 8 cm より下方の Zn 濃度は、T3 地点とほぼ同程度であり、この地域の地質質的な値である可能性が高い。とすると、T13 地点では、地表面ほど Zn 濃度が低下していると考えられ、大気由来のケミカルフォールアウトはみられない。T13 地点は牧草地であるため、年に 3 回程度の牧草の収穫を受けている。これにより Zn が牧草地外に持ち出されるために、T13 地点では蓄積どころか地表面付近の Zn 濃度減少が生じていると考えられる。図 3-5 の地表面濃度は、この牧草地(T10,T11,T12)の分析値(表 3-3)よりも小さな数値を示している。また、T13 地点の土壌中濃度の算術平均値は 150 mg/kg であり、T3 地点(168 mg/kg)よりもやや小さな値を示している。

T3 地点では、土壌表面へ蓄積している傾向がみられ、T13 地点と比較するとより明瞭である。このため、清掃工場に起因する土壌表面汚染が、農地でない土地では生じる可能性を示唆している。

清掃工場近傍においては、土地の利用形態によって地表面における Zn の濃度分布が大きく変化することがわかった。清掃工場が近傍環境中の Zn 濃度を高めているかどうかは断定できなかった。

(4) Br の鉛直分布

牧草地内である T13 地点の土壌中 Br 鉛直分布を非汚染地域(C 地点)と路肩である T3 地点の土壌中 Zn 鉛直分布とともに図 3-5 に示す。C 地点では、深さ 5cm 付近に明確な濃度上昇ピークを示している。平均値は 3 地点で最も大きく、何らかの人為的な Br の付加を考えざるを得ない。

T13 地点では、地表面下およそ 20 cm までにおいて Br は検出され、ほぼ一定値(31.8 mg/kg)を示している。比較・対照とする 3 地点において、もっとも小さい濃度を各層ごと

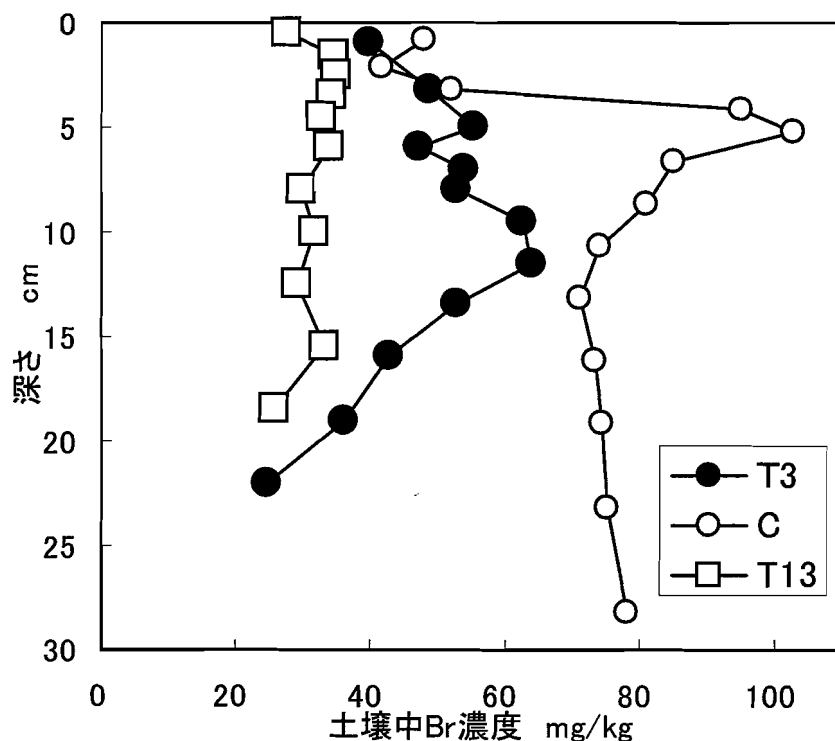


図 3-6 清掃工場近傍牧草地 (T13) の土壌中 Br 濃度の鉛直分布

に示している。深さ 20 cm 付近の Br 濃度は、T3 地点とほぼ同程度であり、この地域の地質的なバックグラウンド値である可能性が高い。とすると、T13 地点では、大気由来のケミカルフォールアウトはみられない。T13 地点は牧草地であるため、年に 3 回程度の牧草の収穫を受けている。これにより Br が牧草地外に持ち出されるために、T13 地点では低濃度の一定値を示していると考えられる。図 3-5 の地表面濃度は、この牧草地(T10,T11,T12)の分析値(表 3-3)とほぼ同程度の数値を示している。また、T13 地点の土壌中濃度の算術平均値は 31.8 mg/kg であり、T3 地点(48.6 mg/kg)よりもやや小さな値を示している。

T3 地点では、深さ 10cm 付近で大きな値を示し、土壌表面へ蓄積している傾向がみられる。濃度ピークが地表面下にみられるのは、降下した Br が土壌中を移行した結果と考え、T3 地点では清掃工場に起因する土壌表面汚染が生じている可能性を否定できない。

清掃工場近傍においては、土地の利用形態によって地表面における Br の濃度分布が大きく変化することがわかった。清掃工場が近傍環境中の Br 濃度を高めているかどうかは断定できなかった。

表層土壌中における元素の蓄積状況からみて、Sb は清掃工場に由来する有害元素降下物であると判断することが妥当である。

3.3 有害元素降下物の同定とその特徴

3.1 及び 3.2 において土壌をはじめとする環境試料中の Sb、Cr、Zn、Br 濃度の分布を検討することにより、清掃工場に由来する疑いのある有害元素の環境中分布を把握した。こ

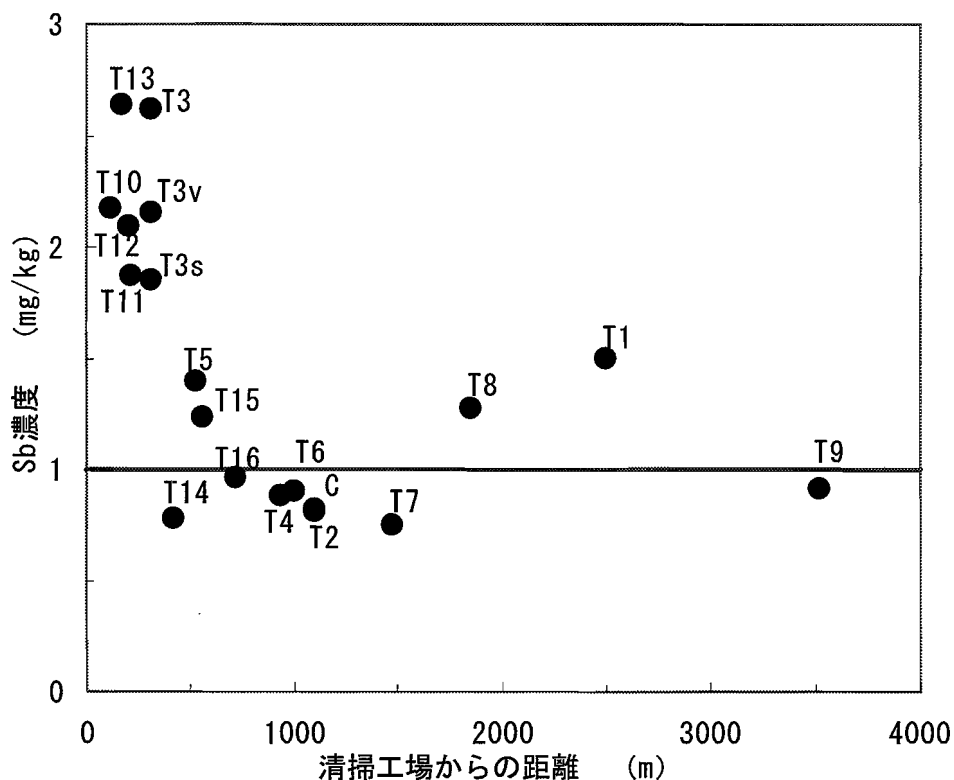


図 3-7 T 村清掃工場からの距離と土壌中 Sb 濃度

ここでは、第2章及びこれまでの調査結果を併せて再検討することで、各元素の環境中分布の特徴を集約するとともに清掃工場に由来する有害元素を同定する。

3.3.1 Sbの特徴

清掃工場から表面土壌採取地点までの水平直線距離を計算し、清掃工場からの水平直線距離と第2章、第3章3.1,3.2で得た土壌中Sb濃度を図3-7に示す。2.3で検討した鉛直分布の地表面濃度をT3v、非汚染地点としたC地点の地表面濃度をCとして、データに加えている。図中の水平線は、自然界値である。これによると清掃工場近傍から水平距離でおよそ500 mまでは、急激に土壌中Sb濃度が減少する傾向が見られる。逆に300 m以内では土壌中Sb濃度が高いといえる。清掃工場から2~2.5 km離れた2地点を除くと調査地点のSb濃度はほぼ自然界値(1 mg/kg)を示している。土壌中Sbの最高濃度は、自然界値の2.5倍程度の値であり、極端な高濃度というわけではないが、地表面Sb濃度は、清掃工場から離れると減少することから、清掃工場が近傍の表面土壌をSbで汚染していることを強く支持している。

また、Sbについては、植物中濃度(表3-4)も清掃工場から離れると減少すること、洗浄することでSb濃度が減少し、清掃工場から離れると牧草中Sb濃度が減少すること(表3-5)、さらに清掃工場近傍の大気中からSbが検出されること(表3-6)から、Sbは清掃工場に由来する有害元素降下物であると判断される。

また、本研究の端緒となった京都市の土壌調査結果¹⁾を図3-8に示す。京都市は人口100万人を超え、調査対象の清掃工場の廃棄物処理能力は最大で1200t/日にも及ぶ大規模工場である。アスファルトにより大気からの地表面への物質沈着を遮断されたR地点の鉛直分布は、C地点と同様にSb濃度はおよそ1 mg/kgを示している。大気からの地表面への物質沈着のあるY地点の鉛直分布は、Sbの地表面への蓄積を明確に示している。今回の調査結果(図3-3)と比較すると地表面濃度はT村よりやや大きい程度である。しかしながら、蓄積深さは20 cmを超えており、今回調査した地域よりも数倍深い位置まで汚染が進行しており強い汚染が生じていることを示している。

上記のことから、清掃工場周辺においてSbによる地表面蓄積が、都市(人口)の規模に関わりなく共通して観測され、廃棄物の清掃工場からSbは放出され、その周辺環境にSb汚染を生じさせていることが明らかとなった。

3.3.2 Crの特徴

清掃工場からの水平直線距離と第2章、第3章3.1,3.2で得た土壌中Cr濃度を図3-9に示す。2.3で検討した鉛直分布の地表面濃度をT3v、非汚染地点としたC地点の地表面濃

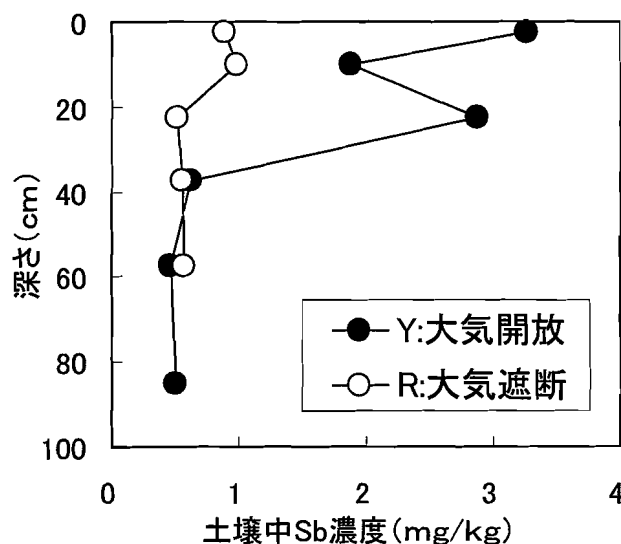


図3-8 京都市清掃工場近傍における土壌中Sb濃度の鉛直分布¹⁾

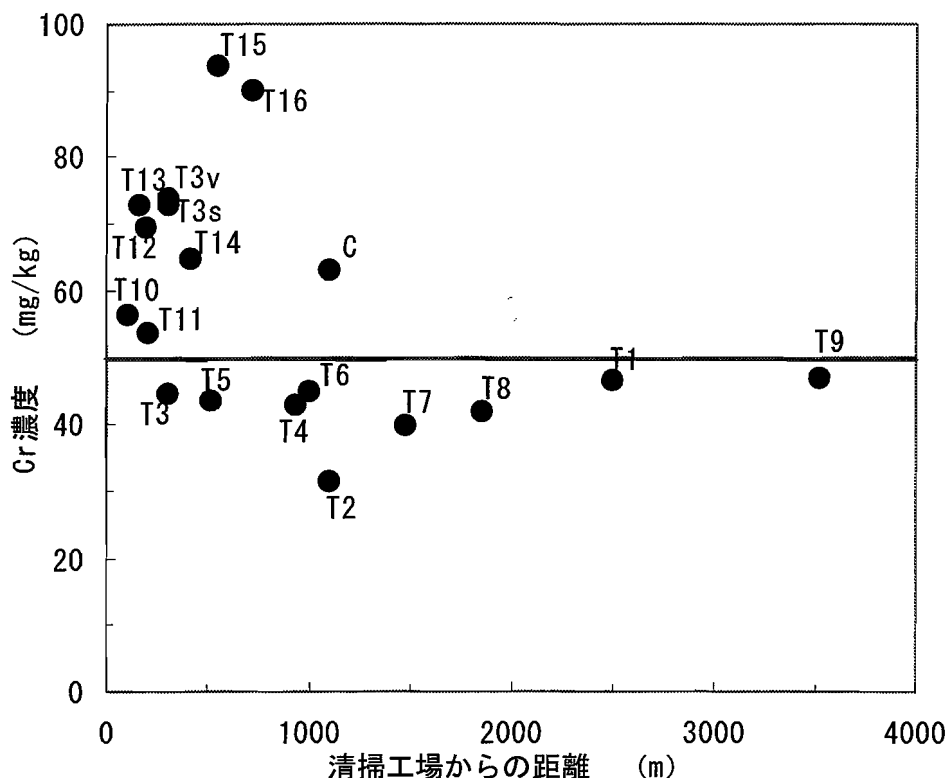


図 3-9 T 村清掃工場からの距離と土壤中 Cr 濃度

度を C として、データに加えている。図中の水平線は、自然界値である。これによると清掃工場近傍から水平距離でおよそ 1000 m までの地域において、表面土壌中 Cr 濃度が自然界値を越える場合があることがわかる。ただし、清掃工場に近づくほど Cr 濃度が高くなるという傾向はみられない。清掃工場から 1 km 離れた地点では、Cr 濃度はほぼ自然界値(50 mg/kg)を示している。濃度の高い地点には、牧草地も多く土壌中 Cr の最高濃度は、自然界値の 2 倍程度の値を示している。地表面 Cr 濃度は、営農状況とも関連があると考えられ、清掃工場が近傍の表面土壌を Cr で汚染しているとは断定できない。

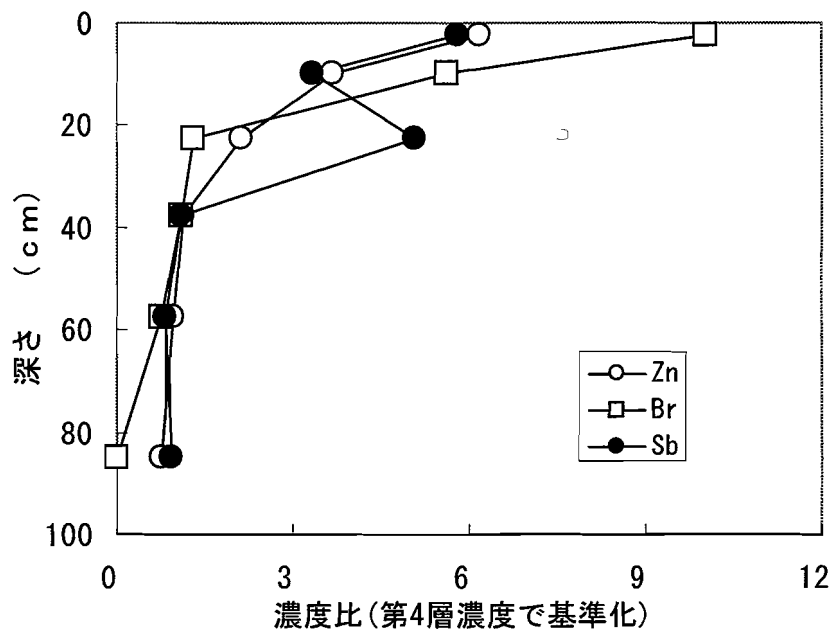
また、Cr については、植物中濃度(表 3-4)も清掃工場とは関連がないこと、洗浄によって牧草中 Cr 濃度が変化しないこと(表 3-5)、さらに清掃工場近傍の大気中から Cr が検出されないこと(表 3-6)から、清掃工場に由来する有害元素降下物ではないと判断される。

3.3.3 Br,Zn の特徴

本研究の端緒となった京都市の調査結果¹⁾のうち Y 地点の Br、Zn 濃度を図 3-10 に示す。京都市は人口 100 万人を超え、調査対象の清掃工場の廃棄物処理能力は最大で 1200t/日にも及ぶ大規模工場である。大気からの地表面への物質沈着のある Y 地点の Br、Zn の鉛直分布は、Sb の分布と同様に地表面への蓄積を明確に示している。清掃工場に由来する有害元素として、Br、Zn が考えられた。

清掃工場からの水平直線距離と第 2 章、第 3 章 3.1,3.2 で得た土壌中 Br 濃度を図 3-11 に示す。2.3 で検討した鉛直分布の地表面濃度を T3v、非汚染地点とした C 地点の地表面濃度を C として、データに加えている。図中の水平線は、自然界値である。これによると調査した全ての地点において、表面土壌中 Br 濃度が自然界値(10 mg/kg)を越えている。低

い値でも 30 mg/kg 程度であり、地質学的な含有量そのものが異なると考えられる。また、清掃工場に近づくほど Br 濃度が高くなるという傾向はみられない。清掃工場から 1 km 離れた地点では、Br 濃度は 40 mg/kg を示している。濃度の高い地点には、牧草地も多く土壤中 Br の最高濃度は、70 mg/kg を示している。地表面 Br 濃度は、営農状況や T9 地点で高濃度を示すように交通量とも関連があると考えら



れ、清掃工場が近傍の表面土壌を Br 図 3-10 京都市清掃工場 Y 地点の土壤中 Sb, Br, Zn
で汚染しているとは断定できない。今
濃度の鉛直分布¹⁾
回の調査結果では、Br について(図 3-6)土壤中の鉛直分布からも清掃工場近傍において明
確な地表面への蓄積を確認することは出来なかった。

また、Br については、植物中濃度(表 3-4)も清掃工場とは関連がみられないこと、洗浄によ
って牧草中 Br 濃度に変化しないこと(表 3-5)、さらに清掃工場近傍の大気中から Br は

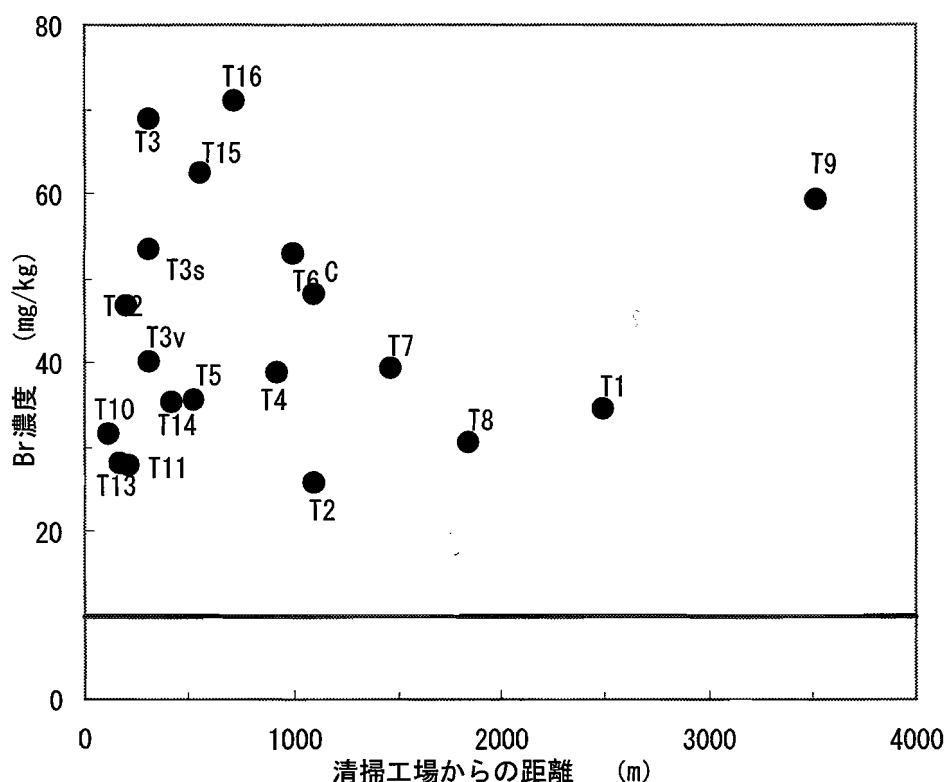


図 3-11 T 村清掃工場からの距離と土壤中 Br 濃度

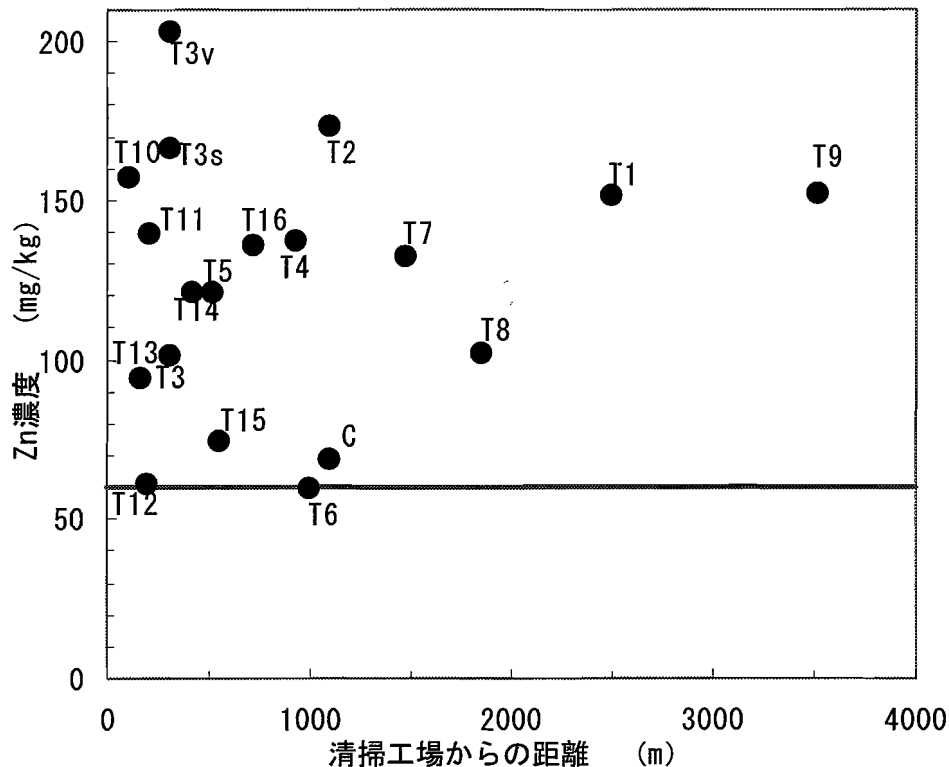


図 3-12 T 村清掃工場からの距離と土壌中 Zn 濃度

検出されるものの、非汚染地点と同等であること(表 3-6)から、清掃工場に由来する有害元素降下物であると断定できなかった。

清掃工場からの水平直線距離と第 2 章、第 3 章 3.1,3.2 で得た土壌中 Zn 濃度を図 3-12 に示す。2.3 で検討した鉛直分布の地表面濃度を T3v、非汚染地点とした C 地点の地表面濃度を C として、データに加えている。図中の水平線は、自然界値である。これによると調査したほとんどの地点において、表面土壌中 Zn 濃度が自然界値(60 mg/kg)を越えている。低い値が 60 mg/kg 程度であり、地質学的な含有量そのものが異なると考えられる。また、清掃工場に近づくほど Zn 濃度が高くなるという傾向はみられない。清掃工場から 1 km 離れた地点において、Zn 濃度は 100 mg/kg を越える大きな値を示している。地表面 Zn 濃度は、T1、T9 地点で高濃度を示すように交通量とも関連があると考えられるが、清掃工場が近傍の表面土壌を Zn で汚染しているとは断定できない。今回の調査結果では、Zn について(図 3-5)土壌中の鉛直分布からも清掃工場近傍において明確な地表面への蓄積を土地利用形態に無関係に確認することは出来なかった。

また、Zn については、植物中濃度(表 3-4)も清掃工場とは関連がみられないこと、洗浄によって牧草中 Zn 濃度が変化しないこと(表 3-5)、さらに清掃工場近傍の大気中から Zn は検出されるものの、不検出地点もあること(表 3-6)から、清掃工場に由来する有害元素降下物であると断定できなかった。

3.3.4 U の特徴

3.1 及び 3.2 において土壌をはじめとする環境試料中の Sb、Cr、Zn、Br 濃度の分布を検討することにより、清掃工場に由来する疑いのある有害元素の環境中分布を把握した。

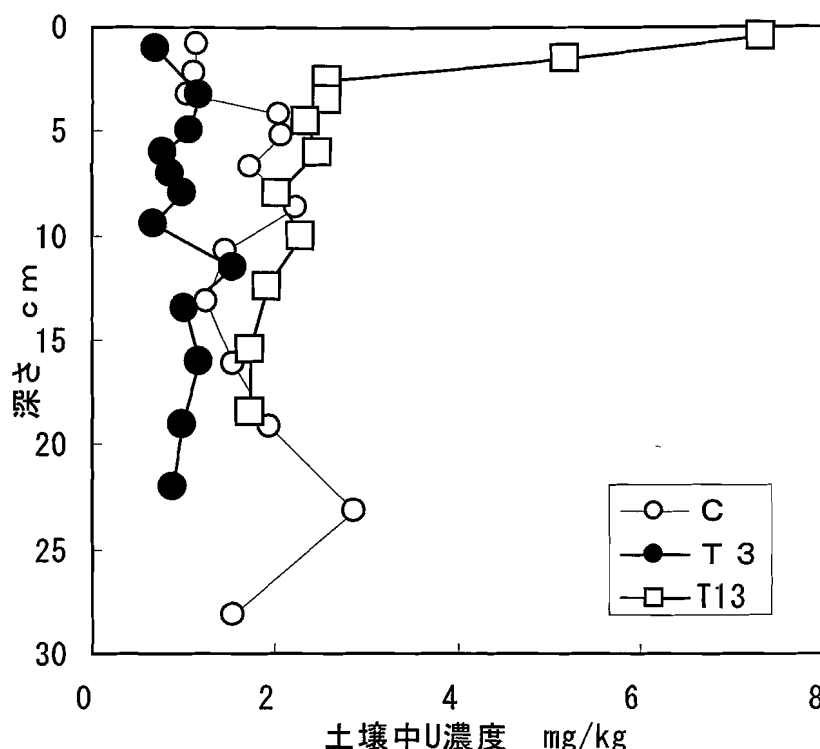


図 3-13 T 村清掃工場からの距離と土壤中 U 濃度

特に 3.2 では土壤中濃度の鉛直分布に注目して、有害元素の蓄積状況を検討した。

本研究では、ゴミに由来する有害元素を検討対象としているが、それ以外にも明確な土壌表面への蓄積を示した元素としてウラン(U)が見つかった。土壤中 U 濃度の鉛直分布を図 3-13 に示す。2.3 で検討した土壤中鉛直分布を T3、清掃工場に対する非汚染地点とした C 地点の土壤中鉛直分布を C、3.2 で検討した牧草地内の土壤中鉛直分布を T13 として示している。路肩であり人為的攪乱受けていないと考えられる T3 地点では、土壤中 U 濃度の変動はほとんどなく、深さ方向に濃度はほぼ一定(平均濃度 1.00 mg/kg)であり、自然界値(2 mg/kg)²⁾とほぼ等しい値を示している。C 地点でも、土壤中 U 濃度の変動は小さく深さ方向に濃度はほぼ一定(平均濃度 1.71 mg/kg)であり、自然界値(2 mg/kg)とほぼ等しい値を示している。T13 地点では、土壤中 U 濃度の土壌表面で非常に大きく、深さ 5cm 程度まで明確な U の蓄積を示している。U は核燃料物質であり、一般の廃棄物の成分とは無関係であり、近傍にある清掃工場はこの U の蓄積に対して無関係であると考えられる。T13 地点は牧草地であり、肥料の施用を受けていると考えるのが合理的である。特に東北地方は黒ボク土に覆われており、黒ボク土はリン酸吸収係数が大きく多量のリン酸肥料が施用されがちである。一般的にリン肥料には、U が濃縮されやすいことが知られており、リン酸肥料中の U 濃度として、40-70 mg/kg が報告³⁾されている。T13 地点における地表面の U の蓄積は、リン肥料の散布によって形成されたと考えられる。T13 地点の算術平均濃度は 2.93 mg/kg であった。T13 地点のある牧草地の牧草や大気からは、U は検出されず、U による環境汚染を懸念する必要性は小さいと考えられる。また、栽培される牧草種は異なるものの、同様の牧草地である C 地点では U の蓄積がみられないことから、肥料の種類や施肥量、施肥方法について、農家への聞き取り調査を行い、地表面 U 濃度との関連を検討

する必要もある。

3.4 まとめ

T村清掃工場について清掃工場近傍における土壌をはじめとする環境試料中の Sb、Cr、Zn、Br 濃度の分布を調査した。その結果、清掃工場近傍において環境中に Sb が存在し、近傍(300 m 程度の範囲内)ほど Sb 濃度が高まっていることが再確認された。清掃工場に近づくほど Sb は高濃度になること、地表面に Sb が蓄積していること、植物中 Sb 濃度も清掃工場から離れると減少すること、洗浄することで Sb 濃度が減少し、清掃工場から離れると牧草中 Sb 濃度が減少すること、さらに清掃工場近傍の大気中から Sb が検出されることから、Sb は清掃工場に由来する有害元素降下物であると判断された。Sb の表面土壌への蓄積が大都市ばかりでなく、小都市でも共通して観測され、社会の規模に関わりないことがわかった。このことは、熔融炉方式の清掃工場や中都市の清掃工場周辺調査⁴⁾でも確認されている。

ここでは、清掃工場近傍の土壌中 Sb 濃度の水平・鉛直分布を再調査しただけでなく、植物中 Sb 濃度や大気中 Sb 濃度を初めて把握しており、貴重な野外調査データを提供している。

Cr については清掃工場に由来する有害元素降下物であることを支持する調査結果は、土壌、植物、大気中の Cr 濃度からは得られなかった。Br についても清掃工場に由来する有害元素降下物であることを明確に支持する調査結果は、土壌、植物、大気中の Br 濃度からは得られなかった。Zn についても清掃工場に由来する有害元素降下物であることを明確に支持する調査結果は、土壌、植物、大気中の Zn 濃度からは得られなかった。

Br と Zn については、環境試料中濃度が高い値を示す場合があり、今後とも清掃工場の影響を調査する必要がある。

参考文献

- 1) 西牧研壯 他：有害物質の環境動態に関する研究、～微量元素(Zn,Se,¹⁴C)等の汚染源及び環境中分布に関する研究～、京都大学原子炉実験所第 30 回学術講演会報文集、pp.347-358、1996
- 2) Bowen H. J. 著、浅見輝男 他訳：環境無機化学、博友社、pp55-71、1983
- 3) 小村和夫 他：リン鉱石およびリン酸肥料中のウラン、トリウム、カリウム含有量とウラン系列、トリウム系列核種の放射平衡、RIDIOIOTOPES、p.529-536、1985
- 4) 颯田尚哉 他：アンチモンによる土壌汚染調査と影響の低減化手法に関する研究、鉄鋼業環境保全技術開発基金(平成 11～13 年度)研究助成金研究成果報告書、2003

第4章 Sbに関わるリスク評価手法の基礎的検討

第2章、第3章の検討により、清掃工場に起因するダイオキシン類以外の有害元素による周辺環境汚染のなかで、ケミカルフールアウトとして環境を汚染している清掃工場由来の有害元素としてアンチモン(Sb)が同定された。ここでは、Sbに注目して人間への影響に関する基礎的な検討を行う。本研究において調査対象とした地域は、酪農地域の中に清掃工場が立地しており、食品(農産物)には乳幼児や子供へ影響を考える上で重要になる牛乳を考えることができる。本研究では大気―土壌―牧草―牛乳という曝露経路に関わるSbの定量結果から、人間へのSbの曝露実態を把握することを予定していた。第3章では、清掃工場近傍の牧草地を所有する農家の協力を得て、牧草地内の大気―土壌―牧草の試料を採取することは可能であったが、当該牧草地の牧草を給餌される乳牛から搾乳される牛乳を分析試料として提供していただくことは不可能であった。

ここでは当該地域における主要農生産物である牛乳及び乳製品の摂取に伴う人間に関するSbのリスク評価を行うことを前提として、大気―土壌―牧草という曝露経路に関するSbの動態について基礎的な検討を行う。そのなかで牛乳摂取に関わる人間へのSb摂取の最も基礎的な知見として必要とされるSbの牧草への経根吸収特性を把握するためのポット実験を行った。また、清掃工場から放出されるSbの人間へのリスクを評価するための数学モデルの構築に必要な知見の収集を行った。

4.1 Sbの利用と人体への影響

同族元素であるヒ素(As)と比較して、Sbは研究の蓄積が少ない。それはAsに比べて環境汚染問題あるいは人間への健康影響として顕在化した事例が少ないこと、微量分析法として確立した方法がないこと、環境中での動態が非常に複雑であること等に起因していると考えられる。Sbによる土壌汚染の実態調査そのものが多くない現在、Sb汚染土壌の修復や悪影響の低減化に関する研究¹⁾やSbの健康リスクに関する研究^{2,3)}は非常に少ない。

これまでにSbが主要な汚染物質であるような環境汚染が問題になった例は少なく、国内における最も有名な事例⁴⁾は、1960年代後半～1970年代における滋賀県S郡M町のSb製錬工場(H金属工業)から排出されたSbによる周辺環境の汚染問題である。この問題を受けて、滋賀県では独自に公害防止条例によりSbに対する規制基準を設定している。この製錬工場は1981年2月末に倒産し、以後は跡地に金属Sbから三酸化アンチモンの精製のみを行う会社(T産業)が設立され現在に至っている。

1999年までの水道水質基準・水質環境基準では、Sbは1993年に要監視項目という区分ながら指針値2 µg/Lという最も厳しい基準が設けられていた。環境基準の健康項目であるAs及びSeの基準値は10 µg/Lである。環境基準のなかで指針値が削除されたのは、「毒性について定量的評価を確立するには十分な試験結果がない状況で指針値を示すことは、不確定な毒性評価を元に環境中の存在状況について適切とはいえない評価を誘導する可能性がある」という理由からである。水道水質基準では、Sbは現在も要監視項目という区分ながら指針値2 µg/Lという最も厳しい基準が設けられている。Sbは年間2万トンが輸入⁵⁾

されており、使用量の多さと基準値の厳しさの両面から、環境中での動態や人間への悪影響を解明することが急務な元素である。

4.1.1 Sbの工業的利用

Sbは、原子番号51、原子量121.75、質量数121(存在比57.36%)と質量数123(存在比42.75%)の2種類の安定同位体と112から130におよぶ20種類以上の放射性同位体が知られている⁶⁾。Sb鉱物は50余種知られているが、資源として最も主要な鉱物は輝安鉱(Sb_2S_3)で、この鉱物は古代から医療、化粧用に用いられる。地殻中存在度は0.2 ppm(クラーク数62位)で、地殻中に存在するSbは主に鉱脈中に濃縮されて見いだされるので採掘は比較的容易に行われる。非汚染土壤中での濃度、すなわち自然界値は1 mg/kg(2.2.1参照)である。通常の金属Sbは菱面体構造で、金属密度 $\rho=6.69\times 10^3\text{kg/m}^3$ 、融点 630.7°C 、沸点 1617°C 、電気導電率 $2.6\times 10^6\text{ s/m}(0^\circ\text{C})$ 、熱伝導率 24.3 W/m/K である⁶⁾。自然界では主に金属、酸化物、硫化物として存在する。典型的な両性元素で半金属元素であるが同族のAsより金属性が高い。第一イオン化ポテンシャル8.64 eV、電子親和力1.05 eV、電気陰性度1.9で、イオン化傾向はPb、Cuの中間にあり、電気化学的系列においてはPb、Biより陰性で、As、P、Se、Teなどより陽性である⁷⁾。

Sb化合物においてSbは、 3^+ 、 5^+ 、 3^- の状態が存在する。見かけ上4価のSbを含むような化合物も多数知られているが、多くの場合3価と5価のSbを同時に含むものと考えられている。酸化アンチモンは3価、5価共に両性で、酸とも塩基とも塩をつくる。酸化物の酸性は5価の方が強く、塩基性は3価の場合の方が強い。酸との塩は水溶液中で容易に加水分解して塩基性塩または酸化物の水和物を沈殿する。酸化Sb(V)は特に塩基性が弱いのでSb(V)の化合物は錯イオンとしてのみ水溶液中に存在する。Sbは比較的陰性の金属であるから非金属元素との結合はかなりの共有結合性を有する。フッ化物、塩化物のような陰性の著しい元素との化合物では5価が安定であるが、臭化物、ヨウ化物、水素化物のように陰性の弱い元素との化合物では5価のものは不安定で知られていない。アルカリ溶液中では5価の化合物が安定で亜アンチモン酸塩は強い還元剤として働く⁸⁾。

Sbは、Sb鉱石、Sb地金、三酸化アンチモンとして、年間約2万トン生産または輸入されている⁹⁾。精鉱を含むSb鉱の輸入は6836 t(1994年度)である⁹⁾。Sb資源のほとんどが中国に賦存しており、日本の輸入も80%以上が中国の鉱山からのものである。Sbの用途の90%以上は三酸化アンチモンの形態で使用され、難燃助剤、触媒、塗料、顔料、ガラスの清澄剤等に用いられている。特に難燃助剤としての需要が多く(1万7千t、1993)⁹⁾、OA機器、家電製品、自動車等に使われるプラスチック、壁紙、繊維(カーテン、絨毯、マット)等の難燃加工を施した製品に用いられている。三酸化アンチモンはポリエステル重合触媒として利用され、染色、原料加工工程で排水中に溶出するほか、ポリエステル繊維製品中にも含まれている¹⁰⁾。純Sbは近年メッキ素材として注目されている。Sbメッキは磨耗に対する耐力、柔らかさで非常に優れた特性を持つ⁸⁾。また合金としてはSn-Sb、Pb-Sb、Pb-Sn-Sb系の形でベアリング、電極、活字合金に用いられ、硫化物はゴム、酸化物は陶器、ガラスに用いられている。光電子倍增管では、SbCs合金やSbNaK合金が用いられている¹⁷⁾。最近半導体材料としての高純度Sbの用途も増加しており、酒石酸アンチモンカリウム

(吐酒石)は昔から住血吸虫症、リーシュマニア症の治療薬として用いられる¹¹⁾など、広く利用されてきた元素である。

4.1.2 Sbの人体への影響

ヒト成人体内の全Sb量は7~9 mgで、その25%は骨に、25%は血中に存在する。今のところ動植物の必須元素ではないとされている¹¹⁾。ヒトの1日平均摂取量は0.15 mg以下とされ、尿中排泄量は1日0.07 mg、汗中排泄量は1日0.01 mg程度である¹¹⁾。酒石酸塩などの水溶性塩は消化管より徐々に吸収され、量により刺激による嘔吐や粘膜壊死を起こす¹¹⁾。ハロゲン化物は加水分解されて酸化物となり、ほとんど吸収されないが刺激性は強い。静脈注射では一部赤血球に取り込まれ、残りは肝臓、副腎、脾臓、甲状腺などに分布する¹¹⁾。3価のものは血漿より尿中に排泄される割合が大きい¹¹⁾。吸入した場合、吸収率は高く、尿中に排泄される¹¹⁾。可溶性のSb塩の毒性は強く、3価のものは5価のものより10倍も毒性が強い¹¹⁾。スチビン(SbH_3)はSb化合物中最も毒性が強い¹¹⁾。また、金属Sb自体の毒性も強い。¹¹⁾

Sbは古くから用いられてきた元素で、人間に対する毒性については多数の報告があるが、それらは事故、あるいは自殺目的の服用、医薬品(住血吸虫症やリーシュマニア症の治療薬)として使用した場合の副作用、製錬工場等Sbを直接吸う労働者に発生した中毒症状、あるいは食品・食器のSb汚染によって発生した中毒症状についてのものであり、Sb濃度が高められた環境中で生活する住民の健康リスクについて触れたもの^{2,3)}は数少ない。

Sb化合物中、最も毒性が強いガス体のスチビン(SbH_3)は、閉鎖空間で蓄電池を充電しているときなどに発生して中毒を起こす。症状は、嘔吐、溶血、血尿、背中の痛み、腹痛、頭痛、タンパク尿、腎臓障害などで死亡することも多い。住血吸虫症やリーシュマニア症の治療のために、酒石酸アンチモンカリウム塩を静脈に注射することがあるが、注射された患者は心臓に対する副作用により急死したり、肝臓障害が生じることがある。金属自体も毒性が強く、経口中毒では、激しい嘔吐、粘膜壊死、下痢、体温低下などがあり、呼吸数低下が続く。慢性経口中毒ではタンパク尿、黄疸、心臓障害、肝臓障害、腎臓障害が見られる。非経口摂取では、呼吸困難、気道への刺激、眼球への刺激(痛み、発赤、結膜炎)、発熱、体重低下、脱毛、心筋障害、脾腫、肺炎、腎炎、皮膚湿疹、粘膜の炎症および過敏症、膿胞性湿疹などの皮膚障害、赤血球増加、白血球減少などが見られ、死因は心筋障害によることが多い。Sb化合物の慢性吸入では、皮膚炎、角膜炎、鼻中隔潰瘍も見られる¹¹⁾。本研究の調査結果(第2,3章)やその他の報告^{20,42,43)}からみて、Sbは微量ながらも既に広域を汚染していると考えられる。このような状況において、Sbの一般人に対する健康影響を検討する場合は、長期微量摂取を想定すべきである。

スチビンがSIDS(Sudden Infant Death Syndrome: 乳児急死症候群)の原因であるという報告^{12,13)}も多いが、その可能性についての研究では現在では確証は困難であると結論づけている¹⁴⁾。

三酸化アンチモンの発ガン性については、国際ガン研究機関(IARC)はグループ2B(ヒトに対して発ガン性があるかもしれない)、EUはカテゴリ3(発ガン影響を及ぼす可能性があるためヒトに対して懸念されるが利用できる情報が十分な評価を行うためには適切では

ない物質)、日本産業衛生学会では第 2 群 B(ヒトに対しておそらく発ガン性があると考えられる物質のうち、その証拠が比較的十分でない物質)、産業衛生専門家会議(ACGIH)では製造工程のみ A2 (ヒトに対して発ガン性が疑われる物質) に分類されている。

京都大学災害研究グループ⁴⁾は、1970～80 年代にかけて、滋賀県の Sb 製錬工場周辺において、製錬工場周辺住民の間で多発した健康障害、特に皮膚発疹(ボロ)についての原因調査を行い、三酸化アンチモンによるアレルギー性接触皮膚炎、Sb と同時に発生するほかの重金属類によるアレルギー、亜硫酸ガスなどの複合的要因など、いくつかの考えうる原因を提示した。また、詳細な文献調査を行い、Sb が原因で引き起こされるヒトの障害として、皮膚発疹、気管支炎、胃潰瘍などの粘膜への障害、心電図異常、肺塵症、疲労感、ショック症状などが挙げられること、また症状のあらわれ方は Sb 化合物の種類、存在形態、摂取方法等によりかなりの違いがあること、を指摘した。

Ainsworth 等^{15,16)}は、英国の Sb 製錬工場周辺において土壤中 Sb の分布や、Sb の動植物への移行・蓄積に関する調査を行い、汚染土壤中の Sb の大半は排出されてから無反応の酸化物として存在すること、植物中の Sb はその大部分が大気からの沈着によるものであること、汚染サイトの哺乳動物の肝臓、肺、腎臓中に高濃度の Sb が認められたが、食物連鎖によって Sb はあまり濃縮されないことを指摘した。

4.2 Sb の曝露経路、排泄経路

一般の生活環境中における Sb への曝露経路としては、経口曝露、経気道(吸入) 曝露、接触(経皮)曝露がある。一般の生活環境中における Sb の使用形態をみる限り、脂溶性の強い有機態 Sb は単体として使用されていないので、Sb への曝露経路は、経口曝露と経気道(吸入) 曝露が支配的であると考えられる。本研究で注目している清掃工場から放出される Sb は、酸化物形態や塩化物形態として環境中に放出されると考えられるが、その原子価は不明である。清掃工場の集塵機で捕集される Sb は、33～74%であるという報告¹⁸⁾があり、26～67%が環境中へ放出されている恐れがある。

Sbによる環境汚染原因として、周辺環境に重篤な汚染を招くものに重金属鉱山、Sb製錬所、蓄電池工場がある¹⁹⁾。汚染源は不明ながらも、都市については道路脇粉塵²⁰⁾を挙げることができる。道路脇粉塵は、経口曝露と経気道曝露に寄与するので、健康リスク評価上重要な汚染形態である。幼児に対しては、Sbで汚染された土壌の摂取や玩具からの曝露にも留意する必要がある。乳幼児については、プラスチック製の玩具が多いことを考えると接触曝露を検討してみることも必要かもしれない。

一般の生活中における人体からのSbの排泄経路としては、糞排泄、尿排泄、汗、毛髪、皮膚の脱落、爪、呼気、その他の腺分泌がある。排泄物の量として重要なのは、糞、尿、汗と考えられる。体内で、水素化物のスチビンが生成することは考えにくいことから、呼気は対象外と考えられる。Sbがヒ素と同属であり、体内での挙動がヒ素と類似であるとするると毛髪、皮膚の脱落による排泄経路は検討の余地がある。

4.2.1 人体内中の Sb

Sb による人の健康影響を考えるに当たって必要となるのが、人体の内外における Sb 濃

表 4-1 毛髪中の Sb 濃度 (mg/kg)				
項目	男	女	性別無し	出典文献
測定値	1.5	4.3		11)
測定値			0～1.36	21)
中央値	0.039	0.035		22)
算術平均	0.058	0.049		22)
幾何平均	0.041	0.036		22)
平均:90 年代			0.04	23)
平均:80 年代			0.0068	24)
平均:80 年代			0.0072	24)
平均:80 年代	0.0076			25)
平均:80 年代		0.0087		25)
平均:80 年代			0.0080	25)
平均			0.08	26)
平均:70 年代	0.17			4)
平均:70 年代		0.26		4)

度である。Sb に関する健康リスクについての研究が少ない原因の一つに基礎となる日本人における体内中の Sb 濃度の報告値が少ないことが挙げられる。ここでは、人体内外試料中の Sb 濃度の知見の収集を試みる。

(1) 毛髪中 Sb 濃度

体内に摂取された物質は、一般的に尿、糞、汗、呼気等により体外に排泄されるが、重金属の場合、毛髪によって体外に排出される経路が重要である。イタイイタイ病や水俣病に関連して、毛髪中の Cd や Hg がモニタリングされたことはよく知られている。

表 4-1 に一般人と考えられる毛髪中の Sb 濃度を示す。毛髪中の Sb 濃度は非常にばらついた値を示している。1970 年代のデータ⁴⁾は、Sb 精錬工場の汚染調査をした人物のものであり、一般人としては不的確と考えると、一般人における毛髪中の Sb 濃度は、0.01～0.1 mg/kg と考えられる。錬工場周辺住民の毛髪中 Sb 濃度は、総じて一般人よりも高く³⁾、毛髪によって体内組織の Sb 濃度モニタリングが可能である。

(2) 爪中 Sb 濃度

表 4-2 に一般人と考えられる毛髪中の Sb 濃度を示す。爪中の Sb 濃度は報告例そのものが非常に少ない。精錬工場周辺住民の爪中 Sb 濃度は、一般人との明らかな差はみられなかった³⁾。同一人物中でも経時変化は大きいこと²⁴⁾が知られており、体内組織の Sb 濃度モニタリングに爪を用いることは難しいと考えられる。一般人における爪中の Sb 濃度も、0.01～0.1 mg/kg と考えられる。

(3) 尿中 Sb 濃度

表 4-3 に一般人と考えられる尿中の Sb 濃度を示す。日本人の尿中の Sb 濃度も報告例そのものが非常に少ない。精錬工場周辺住民の尿中 Sb 濃度は、子供を除いて一般人よりも高

く³⁾、尿によって人体内組織の Sb 濃度モニタリングが可能である。毛髪中 Sb 濃度と尿中 Sb 濃度は比較的高い相関(相関係数 0.72)を示した^{3,23)}。

表 4-3 尿中の Sb 濃度 (μg/L)

項目	性別無し	出典文献
平均:90 年代	0.095.	3、23)
平均:90 年代	0.113.	3、23)

(4) 血液中 Sb 濃度

血液中の正常値として 0.03 から 0.18 μg/dL を下回るという報告¹¹⁾がある。日本人の血液中の Sb 濃度であるかは不明である。また 1970 年代の血液中 Sb 濃度を表 4-4b に示す。血液は人体内の代謝活動の中心であり、Sb の体内動態を解明するにはぜひとも必要な情報である。PBPK モデル(4.4.2)では、人体臓器を血流で結んでおり、モデルの検証のためにも血液中 Sb 濃度は必要不可欠な情報である。ラットにおいてアンチモンは赤血球との結合が強く、それによって血液中のアンチモン濃度が高いと報告²⁷⁾されているようである。毛髪や尿と異なりヒトの血液は医療関係者でなければ入手が困難な試料であり、今後早い段階でデータが収集され、公開されることを待ちたい。

(5) 臓器中 Sb 濃度

日本人の臓器中における Sb 濃度の報告例も少ない。ごく最近の一般人と考えられる臓器中の Sb 濃度報告例^{28,29)}を表 4-4a に示す。文献^{28,29)}は別々に報告されているが、試料の記述及び算術平均値や数値幅が等しく同じ試料のデータと判断した。試料は死後経過時間が短く(死後 18 時間以内もしくは冷凍保存)、生前重金属による曝露を受けず、かつ病院等で重金属を含む薬剤の投与を受けていないと判断された男性(6 歳から 82 歳、滋賀県が中心)57 例^{28,29)}である。これによると Sb 濃度値は非正規分布を示す²⁸⁾。

表 4-4a では、肺中 Sb 濃度が他臓器に比べ高く、曝露経路として吸入経路が重要であることを示唆している。肺以外では腎臓、肝臓で平均値が高く、健康リスクの評価のための決定臓器には腎臓、肝臓を考慮すべきである。このデータには喫煙習慣の有無は区別されていない。タバコは、0.1 mg/kg 乾燥重量の Sb を含有し、そのうちの 20%が喫煙によって吸入摂取される³⁷⁾。また、各臓器中の Sb 濃度は、臓器の部位中濃度であり臓器全体を代表できる値であるかどうかについても議論の余地がある。

表 4-4a のデータは滋賀県を中心とするデータであるが、Sb に関しては日本において数少ない Sb 精錬工場が滋賀県に存在することを忘れてはならない。

1970 年代の一般的な日本人と考えられる臓器中の Sb 濃度報告値³⁶⁾を表 4-4b に示す。表 4-4a と同様に、肺中 Sb 濃度が他臓器に比べ高く、曝露経路として吸入経路が重要であることを示唆しているが、肺中 Sb 濃度は半分ほどである。表 4-4a と表 4-4b には 20 年ほ

表 4-4a 臓器中の Sb 濃度²⁹⁾ (μg/kg)

臓器	試料数	範囲	中央値	算術平均	幾何平均	備考
脳	42	5-124	27.5	27.5	27.5	55.1 ³⁰⁾
心臓	40	3-121	19	16	10	
腎臓	42	2-181	27	69	42	
肝臓	46	3-188	26	52	33	
肺	52	1-1030	105	255	152	
筋肉	46	2-26	18	18	17	

表 4-4b 臓器中の Sb 濃度 ³⁶⁾ (μg/kg)					
臓器	試料数	中央値	平均	標準偏差	備考
脳	—	—	—	—	
心臓	15	25	32	38	
腎臓	23	30	43	41	
肝臓	11	10	23	26	
肺	22	50	62	56	
血液	7	<10	16	22	

どの差があると考えられ、その間における大気環境中の Sb 濃度の上昇を示唆している可能性がある。

4.2.2 吸入摂取

Sb のヒトへの曝露経路のうち経気道による吸入摂取を考えるに当たって必要となるのが、環境大気における Sb 濃度である。Sb に関する健康リスクについての研究が進展しない原因の一つに基礎となる日本における環境大気中の Sb 濃度の報告値が少ないことが挙げられる。データのひとつに都市における道路脇粉塵 ²⁰⁾があり、経口曝露と経気道曝露に寄与するが、Sb 濃度は大気中濃度でなく粉塵中濃度で整理されており、健康リスク評価に利用できない。

日本産業衛生学会は、勧告値の範囲内であればほとんどすべての労働者に健康上の悪い影響がみられないと判断される暫定基準値として、大気中濃度 0.1 mg/m³ を勧告 ³¹⁾している。また、滋賀県は、Sb 精錬工場の敷地境界における排出基準値を 5.0 μg/m³ として ³⁾おり、これは一般大気中の上限値と考えることもできる。

日本では一般環境において組織だって大気中 Sb 濃度が計測・調査されたことはない。本研究では、第 3 章において清掃工場近傍及び汚染のない地区の大気中 Sb 濃度の調査を行った。これと比較対照とするために I 県 M 市(人口およそ 28 万人の中規模の都市)にある住宅開発地(M 地区)、I 大学の構内(U 地区)と周辺に居住する学生の下宿(T 地区)において大気試料を捕集し Sb 濃度の分析を行った。使用した機材及び捕集方法とその後の処理は 3.1.1、3.1.2 と同じであり、Sb の分析は熱中性子分析法(2.1.3 参照)によって行った。試料採取地点と大気捕集条件を表 4-5 に示す。その結果を表 4-6 に示す。また、表 4-6 には一般的な環境における大気中 Sb 濃度の文献値 ³³⁾とその値として適用可能かもしれない Sb 精錬工場周辺の大気中 Sb 濃度の最低値 ^{23,32)}を併記した。

表 4-6 によると明確な汚染源のない居住空間における大気中 Sb 濃度は、不検出～7 ng/m³

表4-5 M市における大気捕集条件		
試料採集地点	採集時間 (h)	積算流量 (L)
M1:M地区A	8	2403
M2:M地区B	8	2400
M3:U地区R	6	1887
M4:U地区A	8	2403
M5:U地区B	8	2393
M6:T地区	8	2439

と考えられる。表 3-6 によれば、清掃工場近傍の大気中 Sb 濃度は、不検出～8 ng/m³ であることから、T 村清掃工場近傍は市街地に比べ大気中 Sb 濃度が高いとはいえないことがわかる。また明確な汚染源のない居住空間においても大気中には Sb が存在し、その濃度は、高くても 10(or 20) ng/m³ と考えられる。表 4-4a に示すように肺中 Sb 濃度が高いことは、大気からの Sb 曝露が無視し得ないこと、明確な汚染源のない大気中にも Sb が含まれていることを支持している。

一般的な大人の一日の呼吸量は 20 m³ と考えられており、明確な汚染源が無く道路近傍でもない環境に居住する住民の経気道による摂取量は 0.2(or 0.4)μg/day 程度と見積もられる。吸入摂取量を 0.76 μg/day²⁾、1 μg/day³⁾としている例もある。

4.2.3 経口摂取

Sb の人への曝露経路のうち食事と水分補給による経口摂取を考えるに当たって必要となるのが、食品中における Sb 濃度と飲料水中における Sb 濃度である。Sb に関する健康リスクについての研究が進展しない原因の一つに、基礎となる日本における食品と水道水中における Sb 濃度の報告値が少ないことが挙げられる。データのひとつとして諸外国の数値を元に経口摂取量を 15 μg/day^{2, 3)}とした例がある。

(1) 農作物中 Sb 濃度

Sb 製錬工場周辺における農作物中の Sb 濃度の調査によれば、可食部中の Sb 濃度は、葉菜、果菜、豆類、根菜の順に濃度が高いと報告^{3, 23)}されている。春菊について洗浄を行った結果、洗浄後の Sb 濃度は 2 分の 1 以下になった^{3, 23)}としている。本研究で対象とする清掃工場周辺においても、Sb の主要な汚染経路は Sb 精錬工場周辺と同様に大気と考えられており、第 3 章で牧草について洗浄を行った結果、洗浄後の Sb 濃度は 2 分の 1 以下になることを把握している(3.1.4 参照)。農作物の可食部中の Sb 濃度は、葉菜、果菜、豆類、根菜の順に濃度が高いことを想定した方が良さそうである。また、インゲン豆では鞘よりも可食部の濃度が高く、部位別の濃縮特性に相異があることや経根吸収の重要性を示唆する結果^{3, 23)}も得られている。

本研究では大気－土壌－牧草－牛乳という曝露経路に関わる Sb の定量結果から、人間への Sb の曝露実態を把握することを

表 4-6 M市におけるSbの大気中濃度 (ng/m³)

	Sb	備考
M1	N.D.	住宅地大規模小売店前
M2	2.71	住宅地大規模小売店前
M3	1.33	建物屋上
M4	0.17	地上
M5	6.64	地上
M6	1.97	学生アパート 2F
T6a	N.D.	T 村、表 3-6
最小値	20	文献 23)
最小値	N.D.	文献 32)
平均値	38	文献 33)

表 4-7 非汚染地域の牛乳中の元素濃度

	Y 牧場 (mg/kg)	食品成分表 ³⁴⁾ (mg/kg)
Sb	N.D.	—
Br	3.8	—
Ca	2080	1100
Cr	0.3	—
Rb	2.2	—
Cs	0.01	—
K	1630	1500
Na	432	410
Zn	4.2	4

当初の目的としていた。第3章では、清掃工場近傍の牧草地を所有する農家の協力を得て、牧草地内の大気－土壌－牧草の試料を採取し、Sb濃度分布を把握することができた。しかしながら、当該牧草地の牧草を給餌される乳牛から搾乳される牛乳を分析試料として提供していただくことはかなわず、牛乳中のSb濃度を把握するには至らなかった。一方、T村清掃工場の影響のない地点と判断されたT6地点とC地点の牧草地を所有する酪農家(Y牧場)からは、当該牧草地の牧草を給餌される乳牛から搾乳される牛乳(ホルスタイン種)を分析試料として提供していただくことができた。牛乳試料は、牛乳をホットプレート上で蒸発乾固し、その一部分を熱中性子放射化分析(2.1.3参照)により元素濃度を同定・定量した。牛乳を灰化しなかったのは、Sbが揮発しやすい金属と考えられたからである。その結果を表4-7に示す。

これによるとY牧場の牛乳の栄養成分は、食品分析表³⁴⁾の値とほぼ同等であることが分かる。また、本研究で注目するSbは検出されず、Y牧場はT村清掃工場の影響のない地域であることが牛乳中濃度からも支持された。

Sbの経口摂取量の評価には、農産物或いは食品中のSb濃度の情報は不可欠であり、今後早い段階でデータが収集され、公開されることを待ちたい。

(2) 飲料水中のSb濃度

日本では一般環境において組織だって飲料水中Sb濃度が計測されたことはない。過去に著者が明確なSb汚染のない地区の飲料水中Sb濃度を測定した結果を表4-8に示す。Sbの分析は、ICP-MS(Agilent: HP-4500)によって分析を行った。

表 4-8 非汚染地域飲用水中のSb濃度 (μg/L)			
		Sb	備考
表 4-8 によると明確な汚染源がなく地下水由来の飲用水における水中Sb濃度は、0.04 μg/L程度と考えられる。公営の水道事業による飲料水の場合は、1桁上の0.4 μg/L程度と考えられる。どちらも水道水質基準の要監視項目であるSbの指針値(2 μg/L)を大きく下回っている。	H1	0.04	地下水
	H2	0.10	水道水
	O1	0.01	地下水+浄水処理
	O2	0.33	水道水

一般的な大人の一日の飲水量は2Lと考えられており、明確な汚染源が無い環境に居住する住民の飲料水による摂取量は大きくても0.8μg程度と見積もられる。Sbの経口摂取量を15μg/day^{2,3)}として考えると飲料水がSbの経口摂取量に及ぼす寄与はかなり小さいと考えられる。

近年は水道水源の汚染により、水道水の嗜好性が悪化し、水道水は生活水としてのみ利用し、飲用にはPETボトルに詰められたボトル水を利用する傾向が強まっている。PETボトルはSbの使用先の一つであり、PETボトル材料中のSb含有量と溶出量は、飲料水経由の健康リスク評価の観点からも重要な項目である。表4-9にPETボトル材料中のSb含有量と溶出濃度を示す³⁵⁾。

表4-9によれば、かなり多量のSbがPET材料中に含まれていることが分かる。溶出基準は、データが取られた当時(1980年)の基準値0.05ppmはクリアしているが、現在の水道水質基準の要監視項目であるSbの指針値(2mg/L)を越えている可能性がある。ボトル水の需要は今後も増加することが予想されることから、ボトル水中へのSb溶出量を正確に再

表 4-9 PET 材料中の Sb 濃度と溶出試験結果 ³⁵⁾

種類	試料 No.	材料試験 Sb	p p m Ge	種類	溶出試験
					Sb ppm
2 軸延伸 フィルム	1	3 1 1	—	フィルム	0.01 以下
	2	2 8 1	—		
	3	2 2 2	—	シート	0.01 以下
	4	1 8 0	—		
2 軸配向 ボトル	1	—	4 3	ボトル	0.01 以下
	2	2 7 1	—		
	3	2 6	2 9	基 準 値	0.05

評価し、Sb 経口摂取量の評価に生かしてゆく必要がある。

4.3 牧草による土壌中 Sb の吸収に関するポット試験

本研究で対象とする清掃工場周辺においても、Sb の主要な汚染経路は Sb 製錬工場周辺と同様に大気と考えられており、第 3 章で路地栽培牧草について洗浄を行った結果、洗浄後の Sb 濃度は 2 分の 1 以下になることを把握している(3.1.4 参照)。従って、牧草中の Sb 濃度は、大気から沈着した Sb によるものが主成分であることを想定することが可能である。

しかしながら、大気経由による牧草の汚染だけではなく、Sb が大気から土壌に降下沈着して土壌が汚染され、清掃工場近傍の土壌表面濃度が、バックグラウンド濃度よりも高濃度になること(図 3-3)、牧草試料を水洗いした後のサンプルからも Sb が検出されること(表 3-5)より、その土壌からの経根吸収による牧草の Sb 汚染も無視することは出来ない。同様の汚染形態である Sb 製錬工場周辺において、インゲン豆では鞘よりも可食部の濃度が高く、部位別の Sb 濃縮特性に相違や経根吸収の重要性を示唆する結果 ^{3,23)} も得られていることから、植物による Sb の経根吸収特性を把握する必要がある。

本研究では、酪農地域内に立地する清掃工場を想定しているため、植物には T 村清掃工場直近の牧草地で栽培されているリードキャナリーグラスを選定した。

4.3.1 実験方法

大気や降水による Sb の影響がない環境中において、土壌にのみ Sb を与え、土壌中 Sb 濃度の相異が植物中 Sb 濃度にどのような影響を及ぼすかを把握するために、Sb の土壌中濃度や土壌への混合付与状態を変化させて牧草をポット栽培した。

(1) 使用した土壌、牧草、Sb 化合物

第 2,3 章の結果から T6 地点の土壌は、T 村清掃工場由来の Sb による影響を受けていない自然界値に近い土壌であることから、供試土壌は T6 地点である Y 牧場の法面のものを使用した。T6 地点の表面土壌は火山灰土を含む黒ボク土であり、供試土壌は黒ボク土に下層の芯土が混合した状態にある。供試土壌はよくほぐし、根や石を取り除き、2mm ふるいにかけた細土を室内で自然乾燥させた。この風乾土壌の含水比は 17%である。

牧草は清掃工場直近の牧草地で栽培されていたリードキャナリーグラス(イネ科)に注目した。リードキャナリーグラスは北陸や東北、それに九州など各地で栽培がふえている多

年生の寒地型牧草である。和名はクサヨシで、湿地で生育がよく丈夫な地下茎によって増殖する。気候や土壤などに対する適応性が大きく、耐雪性や耐暑性にも優れている。出穂期の草高は 1.5～2m と高く、茎葉は粗剛であるが、旺盛な成育のため 5～10 年の連続利用が可能で、永続性が特徴的である。供試土壤を採取した T6 地点(Y 牧場)でもリードキャナリーグラスが栽培されており、ここでは T 村清掃工場の影響を無視できることから、Sb 非汚染株の採取に適している。スコップで牧草の苗を株の状態で採取し、余分な土を取り払い 1 株ずつに分け使用した。

Sb 化合物の中で現在最も多く工業材料として用いられている三酸化アンチモン(Sb_2O_3)を土壤に負荷する Sb に使用した。土壤中 Sb 濃度が土壤 500g に対して 1～1000 mg/kg になるように加える Sb_2O_3 (分子量 291.6)の重量を計算し秤量した。Sb 汚染土壤は、秤量した Sb_2O_3 と土 500g をポリ袋にいれ、均一になるように十分に攪拌して調整した。

(2) 牧草ポットの作成

ポットは、全部で 7 個用意した(A～G)。

ポット A～E は、Sb 汚染土壤として Sb_2O_3 を均一に混合調整した土壤を使用した。6 号ポットを用意し、ポットの底の穴から土が漏れないようにティッシュペーパーを敷いた。そして下部に Sb を混合していない供試土壤(非汚染土壤)500g を入れる。その上に牧草の株を置く。

ポット B～E では株とポット壁の隙間部分に Sb 汚染土壤 500 g を入れる。水の浸透により土壤上部の Sb がどのように下部の土壤に影響を及ぼすのかを把握可能になる。図 4-1 に牧草を植栽後のポットの構成図を示す。株を植え終えた後に 500 mL の水道水を与える。

ポット A,F,G では、下部に Sb 非汚染土壤 500 g を入れ、その上に牧草の株を置き、株とポット壁の隙間部分に再度非汚染土壤 500 g を入れた。図 4-2 に牧草を植栽後のポットの構成図を示す。株を植え終えた後に 500 mL の水道水を与える。

ポット A は、人為的な Sb の付与を行わず、本実験のブランク(コントロール)とした。ポットを作成しておよそ 2 週間後に、F の土壤表面に Sb_2O_3 を 600 mg、G の土壤表面に溶

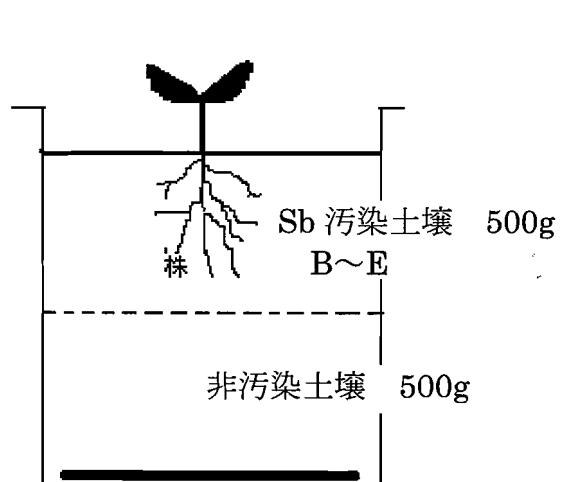


図 4-1 ポットの構成(その 1)

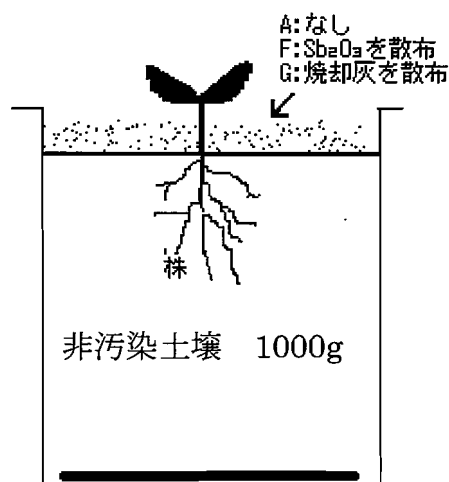


図 4-2 ポットの構成(その 2)

融炉方式清掃工場の飛灰 7.1 g(Sb 濃度 7190 mg/kg)を散布した。

牧草ポットは実験室内の窓際で室温条件において栽培した。水道水は1日おきに 200 mL(11.2 mm)を各ポットに同量与えた。給水量が多いと思われたため、1月経過後は 100 mL(5.6 mm)の給水量とした。

実験は秋に終了し、実験期間中に与えた水の総量は1ポットあたり 8000 mLであり、ポットの断面積で割ると、453

mm である。実験期間中における Y 牧場の降水量は実測されており、558 mm であった。

ポット名、設定した土壌中の Sb 濃度、土壌 500 g に付加した Sb₂O₃ 質量、Sb₂O₃ の土壌への与え方をまとめて表 4-10 に示す。A は土壌中 Sb 濃度を 1 mg/kg つまり自然界値を想定し、Sb₂O₃ を添加しなかった。B は土壌中 Sb 濃度 10 mg/kg、つまり清掃工場近隣を想定した。C は土壌中 Sb 濃度 50 mg/kg を想定した。D は土壌中 Sb 濃度 100 mg/kg、つまり Sb 精錬工場近隣を想定した。E は土壌中 Sb 濃度 1000 mg/kg を想定した。F は表層に E と同量の Sb₂O₃ を土壌表面に散布した。G は清掃工場の焼却灰を D と同じ Sb 濃度に相当するように土壌表面に散布した。

4.3.2 試料採取方法

(1) 牧草試料

牧草の刈り取りは6月3日、7月31日、9月30日の計3回行った。Y 牧場でもほぼ同時期に牧草の刈り取りが行われた。牧草の根元から約 10 cm を残し牧草上部をはさみで切り採取した。1 回目に採取した牧草は 80℃で 3 日間炉乾燥した。2 回目、3 回目に採取した牧草は、100℃で 24 時間炉乾燥させた。

乾燥させた牧草試料は葉と茎に分け、後の袋詰めのために、葉はよくもみほぐし、茎は硬質であるため、はさみで小さく切断した。以後の処理は 3.1.2 の植物試料と同様である。牧草試料のポット名、採取回毎の含水比を表 4-11 に示す。炉乾燥させた後に葉と茎を分けたので葉と茎の含水比は未測定であり、含水比は牧草全体の値である。牧草には肥料を一

切与えなかったため、採取回数を増すごとに生育状況が悪くなった。

(2) 土壌試料

A と E の土壌は Sb と土を混ぜ合わせた直後のものの一部も採取した。3 回目の牧草の刈り取りを終えた2日後の10月2日にポットの土を採取した。市販の直径 5 cm 高さ 5 cm

表 4-10 ポット実験の条件

	土壌 500g に添 加した Sb ₂ O ₃ (mg)	上部土壌中 Sb 濃度 (mg/kg)	Sb 付与法
A	0	1	
B	6	10	混合
C	30	50	混合
D	60	100	混合
E	600	1000	混合
F	600	1000	表面散布
G	飛灰 7.1g	102	表面散布

表 4-11 牧草試料の含水比 (%)

	1回目	2回目	3回目
A	371	83.8	109
B	288	73.4	75.3
C	320	69.1	114
D	328	40.1	95.2
E	334	162	60.9
F	288	223	90.4
G	331	229	100

の土壌サンプラーを縦に3個積み重ね、ビニルテープでしっかりと固定し、高さ15 cmの専用のサンプラーを作り使用した。

ポットに残っている牧草をすべて切り取り土の表面の牧草を取り除いた後に、サンプラーをポットの底までハンマーで打ち込み土壌を採取した。土壌は深さ10 cm程度だったため、サンプラー2個分を上部、下部として2層を採取した。採取した土壌は上

部と下部が混ざらないように分け、それぞれを100℃で24時間炉乾燥させた。以後の処理は2.1.1の土壌試料と同様である。土壌試料の試料名、含水比を表4-12に示す。上部より下部のほうが、やや大きな値を示した。

4.3.3 牧草中Sb濃度と吸収特性

採取した牧草中のSb濃度を熱中性子熱放射化分析法(第2章2.1.3参照)により測定した。表4-13に牧草中Sb濃度を乾燥牧草中Sb濃度として示す。しかし、1回目に採取した牧草試料は、熱中性子照射試料の作成(ポリ袋中への溶封)の際にSbによる汚染生じさせたと考えられた(フラックスモニタのCo試料からもSbが検出された)ため、結果の信頼性が低くここでは示さない。2,3回目に採取した牧草試料は、作業台を十分に清掃したのち、新品の電子天秤とシーラーを用いて、熱中性子照射試料の作成(ポリ袋中への溶封)を行った。ここでは、2,3回目に採取した牧草中のSb濃度のみを示す。

牧草の葉からは測定した全ての試料でSbが検出されることから、Sbが牧草に経根吸収されることがわかる。T村清掃工場近傍の牧草中Sb濃度の最大値は150 µg/kg(表3-4)であり、経根吸収のみによってもこの程度までは、牧草中濃度が上昇しうることを示している。

2回目に収穫した牧草中のSb濃度は、全てのポットで葉中Sb濃度が茎中Sb濃度を上回っている。リードキャナリーグラスにおいてSbは、茎よりも葉において蓄積されやすいことが分かった。このことは3回目に収穫した牧草中Sb濃度からも支持される。

想定土壌中Sb濃度が100 mg/kg以下であるA～Dのポットよりも想定土壌中Sb濃度が1000 mg/kgであるE～Fのポットのほうが、牧草中Sb濃度が高く、土壌中Sb濃度の増加は牧草中Sb濃度の上昇を招くことが分かる。ただし、想定土壌中Sb濃度が100 mg/kg以下であるA～Dのポットでは、土壌中Sb濃度の増加に伴う牧草中Sbの上昇は明確ではない。

表4-12 土壌試料の含水比 (%)

	実験前	実験後上部	実験後下部
A	17.0	27.2	31.3
B		27.0	27.4
C		24.1	26.1
D		24.9	26.9
E	17.0	24.2	25.8
F		27.6	31.6
G		30.1	32.5

表4-13 牧草中のSb濃度 (µg/kg)

	部位	2回目	3回目
A	葉	90	317
	茎	58	—
B	葉	39	261
	茎	49	—
C	葉	80	274
	茎	23	—
D	葉	77	307
	茎	N.D.	88
E	葉	449	444
	茎	190	261
F	葉	573	547
	茎	172	120
G	葉	143	413
	茎	N.D.	—

想定土壌中 Sb 濃度が 100 mg/kg 以下である A～D のポットでは、牧草の収穫回数が増えると葉中 Sb が数倍上昇することがわかる。牧草の収穫回数の増加は、根が Sb に曝露している期間が長くなることとほぼ等しく、経根吸収の場合 Sb 曝露期間が長くなるほど植物中 Sb 濃度が高くなる可能性がある。経根吸収は、1 年草植物よりも多年草植物で重要となる Sb 吸収機構であると考えられる。想定土壌中 Sb 濃度が 1000 mg/kg である E～F のポットの場合、牧草の収穫回数が増えても葉中 Sb 濃度はほとんど変わらないことがわかる。土壌中 Sb 濃度が極端に高い場合には、牧草の収穫を重ねても牧草中 Sb 濃度に変化がないことが予想されることから、牧草が吸収できる Sb の量には上限がある可能性がある。

4.3.4 土壌への Sb 負荷方法が牧草中 Sb 濃度へ及ぼす影響

表 4-14 に牧草中 Sb 濃度を土壌への負荷方法と対比させて示す。想定した土壌中 Sb 濃度は、D,G の場合 100 mg/kg であり、E,F の場合 1000 mg/kg である。

D,G では、表面散布した方が均一混合した場合よりも牧草葉中 Sb 濃度は大きくなった。Sb が土壌に均一に分散しているよりも地表面にのみ存在し、水に溶解した Sb 成分のみが土壌中を浸透移動している状況の方が Sb は吸収されやすいようである。T 村清掃工場近傍の牧草地(T13)では、極表層のみに Sb が蓄積しており、実際の根圏から離れているが、Sb の経根吸収に

ポットと負荷条件	部位	2回目		3回目
D 均一混合	葉	77		307
	茎	N.D.		88
G 表面散布	葉	143		413
	茎	N.D.		—
E 均一混合	葉	449		444
	茎	190		261
F 表面散布	葉	573		547
	茎	172		120

この蓄積層が影響し得ることを表 4-14 は示唆している。また、G には清掃工場の飛灰を散布しており、Sb の存在形態が Sb₂O₃ とは異なる形態の Sb 化合物が含まれていることが、牧草中 Sb 濃度を増加させる要因である可能性もある。

E,F でも、牧草葉中 Sb 濃度は、表面散布した方が均一混合した場合よりも大きくなった。散布した Sb の存在形態は双方とも Sb₂O₃ であることから、Sb 化合物は土壌に均一に分散しているよりも地表面にのみ存在し、水に溶解した Sb 成分のみが土壌中に存在する方が吸収されやすいことを支持している。しかし、牧草茎中 Sb 濃度は、表面散布した方が均一混合した場合よりも小さくなっている。E,F のように想定した土壌中 Sb 濃度が 1000 mg/kg という高濃度の場合には、牧草が吸収できる Sb 濃度には上限がある可能性もあり、今後も検討を継続する必要がある。

4.3.5 土壌中 Sb 濃度と土壌中の挙動

3 回目の牧草収穫後にポットの土壌を採取した。ポット上部 5cm、下部 5cm の土壌中 Sb 濃度を熱中性子放射化分析法(第 2 章 2.1.2、2.1.3 参照)により測定した。その結果を表 4-15 に示す。

	実験前	ポット上部	ポット下部
A	1.32	0.88	—
B	—	10.7	—
C	—	64.7	—
D	—	142	20.2
E	210	1000	174
F	—	975	38.1
G	—	77.8	—

E では土壤中 Sb 濃度を 1000 mg/kg となるよう調整したが、実験前の測定では、210 mg/kg であった。実験後は想定通りの濃度を示したが、大量の土壤に微量の Sb_2O_3 を添加して均質な模擬汚染土壤を調整することの困難さを示している。C では土壤中 Sb 濃度を 50 mg/kg となるよう調整したが、実測ではやや大きめの値であった。D,G では土壤中 Sb 濃度を 100 mg/kg となるよう調整したが、実測の結果 D はやや大きめの値、G はやや小さめの値であった。模擬汚染土壤の調整は不適切ではなかったが、より適切な Sb 汚染土壤の調整方法も今後は再検討する必要がある。

ポット下部の Sb 濃度は、測定した 3 つのポット全てで Sb は検出されており、Sb がポット上部から下部へ水の供給により浸透することが分かる。ポット下部と上部の比をとると、E は上部の 14%、D は 17%、F は 4% を示した。E と D では数値が大きく、上部の Sb 汚染土壤を下部土壤に混入させてサンプリングした可能性も考えられる。Sb 濃度鉛直分布のより正確な評価には、2 段以上の詳細な土壤層の分割が必要である。

同量の Sb_2O_3 を与え散布方法を変えた E と F を比較すると、F の方がポット下部の濃度が小さい。これは E の Sb が土壤上部約 5 cm に均一混合されているのに対し、F は表面のみに散布されているので、下部までの移動距離が長いことが一因であると考えられる。

F のように地表面に Sb_2O_3 を散布させた場合には、上部 5 cm にほとんどの Sb が留まっていた。T 村清掃工場近傍土壤の Sb 濃度鉛直分布(図 3-3)では、土壤表層約 5 cm において特に Sb 濃度が高くなっており、F の鉛直分布と同様の傾向を示している。図 3-3 は地表面への Sb 負荷を強く支持している。

この地区の年間平均降水量が 1250 mm 程度であるのに対し、本研究で浸透させた模擬降雨は 435 mm であった。実際には冬期積雪があること、降水量の一部しか土壤に浸透しないこと、ポット実験では水の流れは鉛直方向しかないが、野外現場土壤では水平方向の流れや再分配があること、さらには土壤の Sb 吸着特性、土壤構造等を考慮して、今後は経根吸収特性を検討する必要がある。

4.4 体内 Sb 濃度評価モデル

有害物質のヒトへの健康影響を考える場合重要になるのが、ヒトが有害物質に曝露する量或いは頻度、有害物質の体内における分布や挙動、ヒトの健康への悪影響(毒性)の種類と程度等である。例えば鉛(Pb)では古くから中毒症状が知られており、鉛曝露量と血液中鉛濃度との関係に注目した疫学調査により、身体的症状と血液中鉛濃度との関係が明らかにされている。そのため鉛では、公衆の構成員(一般人)の健康リスク評価基準として、血圧上昇や聴力低下のような機能障害発現の閾値として示されている 30 $\mu\text{g}/\text{dL}$ を、超過してはならない上限値^{38,39)}として考えることができる。Sb のように、毒性(障害)について定量的評価を確立するには十分な試験結果や研究成果がない場合には、疫学的な調査を待たざるを得ない状況にある。しかしながら、Sb の使用量の増加や廃棄物の焼却に伴う Sb の環境への放出とその増加が容易に予測できる以上、環境中の Sb のヒトへの曝露量の評価と人体内の挙動について知見を集積し、検討を試みるための準備をしておく必要がある。

数学モデルを用いた環境中の有害物質のヒトへの曝露量の評価と人体内の挙動の評価は、

放射線防護の分野を中心に広く応用されており、職業人及び一般的人の健康リスクを評価するために非常に有効で適切な方法であることが知られている。環境中における Sb のヒトへの曝露量や人体内における挙動について、数学モデルを用いて評価を行うことは、 Sb についての数少ない環境データや人体データを有効に適切に利用するためには不可欠な方法である。ここでは、 Sb について、一般的な環境に居住する人への健康リスクを評価するための基本的な数学モデルの構想を練るとともに、今後の課題の集約を試みる。

数学モデルでは、 Sb の環境への放出から人体に至るまでの経路をモデル化(数式で表現する)することが可能であり、大きく分けて

- ① Sb の大気中への放出と地表面への降下及び環境構成要素への移行と蓄積
- ② 農・畜・水産物への移行と蓄積
- ③ 輸入等の食料・飼料作物の流通による人為的輸送や滞留
- ④ 人体への移行と体内での代謝・蓄積

等を個々にサブモデルとして構築することができる。 Sb のように環境モニタリングデータや基礎的な知見に乏しい有害物質について、ヒトに関する何らかのリスク評価を行うためには、人体への移行と体内での代謝・蓄積に関してモデル化をまず行い、他のサブモデルを連結追加してゆく手法が合理的で効率的であると考えられる。

4.4.1 体内動態モデル

有害物質とくに放射性核種の人体内の代謝・蓄積のモデル化⁴⁰⁾は、放射線防護を目的に精力的に行われている。このモデルでは、人体の臓器や組織をコンパートメントで表現し、コンパートメント間の物質の移行を生物学的クリアランス速度を用いた一次反応式群とし

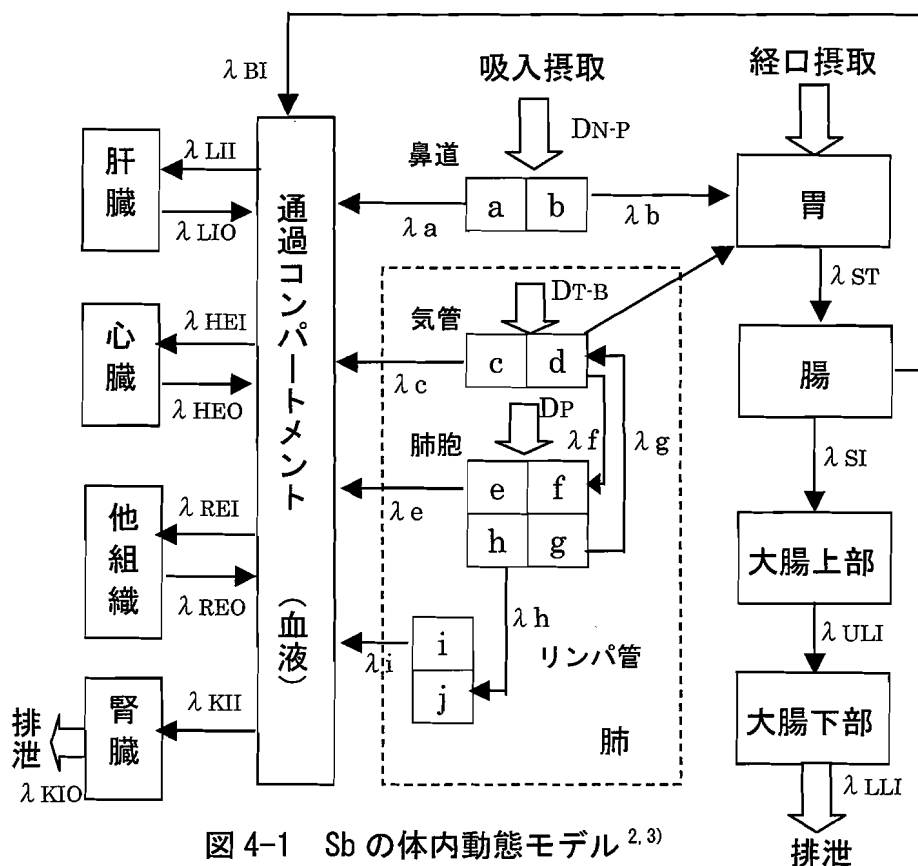


図 4-1 Sb の体内動態モデル^{2, 3)}

て表している。Sb については、ICRP の重金属体内代謝モデル⁴⁰⁾をより実際の体内における排泄形態に近い形で表現できるように改良したモデルが提案^{2,3)}されている。

このモデルの構成を図 4-1 に示す。このモデルでは、Sb のヒトへの健康リスクを評価する決定臓器を心臓と肝臓に設定している。堀内²⁾はこのモデルを体内代謝モデルと呼んでいるが、ここでは次節の生理学的薬物動態モデル(PBPK モデル)を体内代謝モデルと位置づけるため、体内動態モデルと呼ぶことにする。このモデルの計算に必要なパラメタは、消化管と呼吸器系に ICRP⁴⁰⁾のパラメタを適用しつつ、表 4-4b の臓器中濃度に適合するようにフィッティングにより求めている²⁾。鉛蓄電池工場の作業環境における大気中 Sb 濃度と作業者の尿中 Sb 濃度の報告値⁴¹⁾とその大気中濃度を入力した計算結果を比較することにより、モデルは検証されている²⁾。このモデルは一般人の肺中濃度をやや小さめに評価するものの、製錬工場周辺住民の肺中濃度が肺ガン等の健康影響を発現しうる濃度まで高められることを指摘した²⁾。Sb の健康リスク評価には、吸入摂取量と肺中濃度が非常に重要な評価指標となると考えられる。

以上のことと 4.2 の検討結果を踏まえ、体内動態モデルの改良の余地を探ると、Sb のヒトへの健康リスクを評価する決定臓器には、肺、心臓、肝臓、腎臓を設定すべきである。また、排泄経路として、糞、尿に加え、毛髪と皮膚の脱落を検討してみる必要がある。

4.4.2 体内代謝モデル(PBPK モデル)

前節(4.4.1)でみたように、Sb に曝露される経路・頻度・量などの曝露評価について、体内動態モデルを用いて行うことが可能である。Sb における、体内での用量と特定の健康障害についての発現確率の関係、つまり「用量反応関係」がわかれば、健康障害の発現確率を推定することが可能である。しかしながら、Sb については、人間に関する疫学調査のデータが不足しており、また Sb の化学形態が体内での代謝や蓄積などの動態に影響を及ぼすため用量反応関係の評価を非常に困難なものにしている。

このような状況では、動物実験を用いた毒性試験結果をヒトにおける安全性評価(健康リスク評価)に利用することになる。動物で得られた用量反応関係を人間に適用する場合には、「種間における外挿」と「用量間における外挿」は避けて通れない問題であり、この点の処理手法の選択に大きな不確実性が存在すると言われている。

4.4.1 でとり挙げた Sb の体内動態モデルは、原理的には動物にも人間にも適用可能であり、動物実験結果を人間に応用することを可能にする評価手法の一つであるが、主要な計算パラメタであるコンパートメントのクリアランス速度定数や分布容積、コン

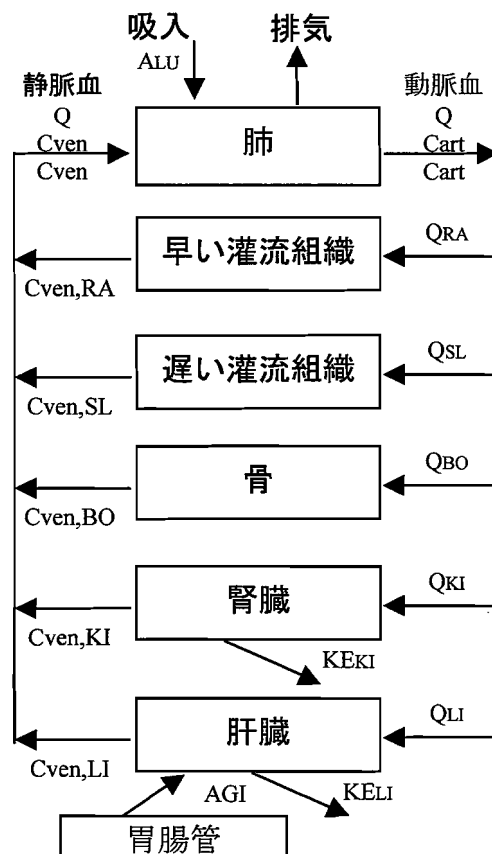


図 4-2 鉛の体内代謝モデル^{38, 39)}

パートメントの生理学的意義が曖昧であるという弱点がある。

この弱点を補えるモデル評価手法に、生理学的薬物動態モデル（PBPK モデル：Physiologically-based Pharmacokinetic Model）がある。このモデルは、

- ① ヒト及び動物のコンパートメントとして、各臓器の重量と血流量を用いるため、生理学的な状況に即して構成されたモデルである。
- ② 速度定数として、実際の物理化学的な情報(組織－血液間の分配率)や生化学的情報(血漿や組織との結合性、代謝、排泄速度)をパラメタとして組み込むことができる。

という利点がある。動物種の生体や検討対象とする有害物質に固有の情報をモデルに組み込むため、同一のモデルを用いて、パラメタ値を対象動物に入れ替えるだけで、異種の動物の体内動態を予測できることになる。ここでは、体内動態モデル(図 4-1)に対比して、このモデルを体内代謝モデルと呼ぶことにする。

体内代謝モデルは、動物実験データからヒトにおける体内代謝を予測する有効な手段であり、動物種間の外挿に内在する不確実性を低減する 1 つの手段として利用できる。

Sb について、体内代謝モデルを用いて検討した例は見あたらないが、鉛について構成された体内代謝モデルの構成を図 4-2 に示す^{38,39)}。鉛ではヒトの血液中濃度と健康障害の間について用量反応関係が疫学的に明らかにされており、このモデルにおける決定器官は臓器ではなく血液である^{38,39)}。Sb についても日本人に対して十分な血液中 Sb 濃度データと健康障害のデータが蓄積されれば、鉛と同様の検討は容易である。

図 4-2 を参考に Sb のヒトへの健康リスクを評価する体内代謝モデルの構成を試みた。決定臓器には、肺、心臓、肝臓、腎臓を設定する必要がある。また、排泄経路として、糞(KE_{LI})、尿(KE_{KI})に加え、毛髪や皮膚の脱落を考慮するための経路(KE_{SL})を遅い灌流組織に組み込んだ。Sb についての体内代謝モデルの構成を図 4-3 に示す。4.2 の検討によって、モデル計算に必要な入力値をある程度収集しており、今後は計算シミュレーションを実施して計算精度を高めるための問題点の抽出とモデルの改良を行う必要がある。

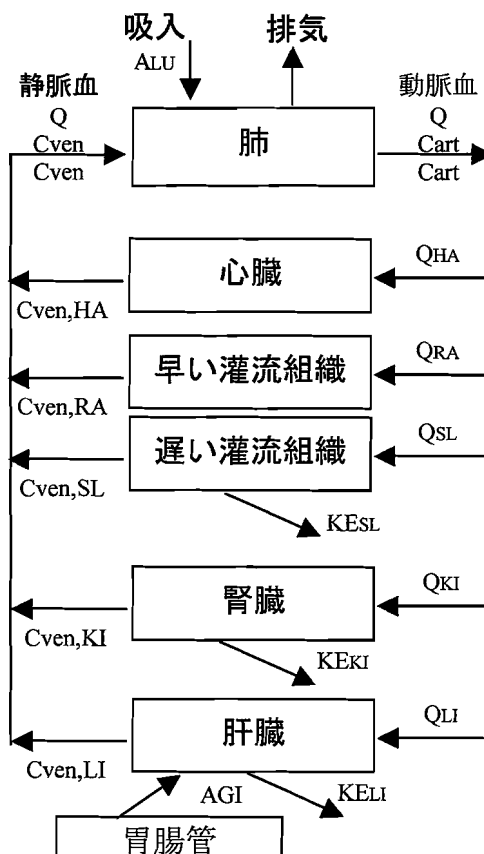


図 4-3 Sb の体内代謝モデル

4.5 まとめ

第 4 章では清掃工場周辺の酪農地域において有害元素降下物と同定されたアンチモン(Sb)について、ヒトへの健康リスク評価をするための基礎的な知見の集約を行った。調査地域における主要農生産物である牛乳及び乳製品の摂取に伴う Sb のリスク評価に役立つ

ことを前提として、大気－土壌－牧草という環境媒体移行に関する Sb の動態および Sb に曝露後の人体中における Sb の代謝挙動についてこれまでの知見の収集と基礎的な検討を行った。

(1) 生活環境における Sb の分布と人間への曝露

Sb の利用について調査した結果、年間 2 万トンが輸入⁵⁾されておりその大部分が難燃剤としての利用であることから、難燃加工された廃棄物の焼却によって、Sb が環境中に放出される環境汚染機構が考えられた。このことは、本研究で実施した清掃工場周辺の酪農地域における環境調査(第 2,3 章)でも支持されている。

Sb に対する行政の対応では、水道水質基準において、Sb は現在も要監視項目という区分ながら指針値 2 $\mu\text{g/L}$ という最も厳しい基準を設けている。Sb は微量ながらも既に広域を汚染していると考えられ、一般人に対する健康影響では長期微量摂取を想定すべきである。このような曝露形態にほぼ等しい慢性経口中毒では、心臓障害、肝臓障害、腎臓障害がみられるようである。このことは、臓器中 Sb 濃度の報告値(表 4-4a,b)において、肝臓、腎臓中の数値が大きいことから支持される。

人体の主要臓器中において Sb 濃度が最も高かったのは肺中濃度であり、報告値(表 4-4a,b)における濃度差は、日本における大気環境中の Sb 濃度の上昇(約 20 年間)を示唆するものである。また、明確な汚染源が無くても高い大気中 Sb 濃度に寄与するものに道路脇粉塵²⁰⁾がある。人口 30 万人程度の中規模の都市における市街地や住宅地において大気中 Sb 濃度を調査した結果、清掃工場近傍の大気中 Sb 濃度(表 3-6)と同程度の値を示すこと(表 4-6)があることから、明確な汚染源のない大気中にも Sb が含まれており、一般人は大気からの Sb 曝露を無視し得ないことを明らかにした。一般的な大人の一日の呼吸量は 20 m^3 と考えられており、明確な汚染源が無く道路近傍でもない居住環境に住むヒトの経気道による Sb 摂取量は、0.2～0.4 $\mu\text{g/day}$ 程度と評価できる。

Sb の経口摂取量を評価するに当たって、清掃工場からの影響のないと考えられる地域で生産される牛乳を測定したところ、Sb は不検出であった。Sb の経口摂取量の評価には、農産物或いは食品中の Sb 濃度の情報は不可欠であり、今後早い段階でデータが収集され、公開されることの必要性を指摘した。飲料水について明確な Sb 汚染のない地区の飲料水中 Sb 濃度を測定し、その結果(表 4-8)から一般人の飲料水による Sb 摂取量は、0.8 $\mu\text{g/day}$ と評価した。

Sb は使用量の多さと利用の広汎さ、基準値の厳しさ、環境中における挙動と人体への影響に関する知見の乏しさの面から、環境中での動態や人間への健康影響を解明することが急務な元素である。

(2) 牧草の Sb 吸収特性

牛乳摂取に関わる人間への Sb 摂取の最も基礎的な知見として必要とされる Sb の牧草(リードキャナリーグラス)への経根吸収特性を把握するためのポット実験を行った。

牧草の葉からは全ての試料で Sb が検出されることから、Sb が牧草に経根吸収されることがわかった。また葉中 Sb 濃度が茎中 Sb 濃度を上回り、Sb は茎よりも葉に濃縮されることがわかった。土壌中 Sb 濃度が 100 mg/kg までは、土壌中濃度と牧草中濃度に明確な

関係はみられないが、これより土壌中濃度が高くなると明確な牧草中濃度の増加を示した。土壌中 Sb 濃度が 1000 mg/kg である場合、牧草の収穫を重ねても牧草中 Sb 濃度に変化がほとんどみられないことから、牧草が吸収できる Sb の量には上限がある可能性が示された。清掃工場近傍の牧草地では、大気を経路とする Sb の牧草への直接沈着と土壌に沈着した Sb の経根吸収による Sb の吸収経路の 2 つを牧草の汚染機構として考慮する必要がある。

Sb を土壌に均一に混合するよりもそれと等量の Sb を地表面に散布するほうが、牧草中 Sb 濃度は高い値を示した。また地表面に Sb_2O_3 を散布させた場合は、上部 5 cm にほとんどの Sb が留まっており、T 村清掃工場近傍土壌の Sb 濃度鉛直分布(図 3-3)でも、土壌表層約 5 cm において特に Sb 濃度が高くなっており、室内実験と野外調査の傾向が相似性を示した。清掃工場近傍の野外土壌における Sb 濃度鉛直分布(図 3-3)は、地表面への Sb 負荷によって形成されたことを強く支持している。

(3) Sb の体内挙動評価モデル

清掃工場から放出される Sb の人間への健康リスクを評価するための数学モデル構築に必要な知見の収集を行った。

Sb については、体内における挙動を評価する体内動態モデル^{2,3)}が提案されているが、旧来型のコンパートメントモデルを改良することで構成されており、コンパートメントのクリアランス速度定数や分布容積、コンパートメントの生理学的意義が曖昧であるという弱点が内在することがわかった。この弱点を補えるモデル評価手法に、体内代謝モデル(PBPK モデルが)あり、鉛についての体内代謝モデルを Sb 独自の決定臓器(標的臓器)や排泄機構を考慮して改良することで、Sb についての体内代謝モデル(図 4-3)を構成した。

今後は計算シミュレーションを実施して計算精度を高めるための問題点の抽出とモデルの改良を行うとともに、動物実験データやヒトに対する疫学データと計算結果を比較することでモデルの検証を行ってゆく必要がある。

参考文献

- 1) 堀内将人、森田真史、原井信明、 颯田尚哉、森澤眞輔：精錬工場周辺土壌におけるアンチモンの存在形態と汚染対策に関する検討、第 1 回環境技術研究協会年次大会研究発表会要旨集、Vol.1、pp.107-11、2001
- 2) 堀内将人、森田真史、森澤眞輔、 颯田尚哉、島田洋子：臓器・組織中アンチモン濃度に注目した製錬工場周辺住民の健康リスク評価、環境工学研究論文集、Vol.37、pp.321-332、2000
- 3) 堀内 将人、隅谷 純子、森田 真史、颯田 尚哉、森澤眞輔：製錬工場周辺環境でのアンチモンによる汚染と健康リスクの評価、環境工学研究論文集、Vol.35、pp.161-170、1998
- 4) 京都大学災害研究グループ；日比野金属による環境汚染 中間報告 災害研雑誌 第 2 号 (1975)、1975
- 5) 資源エネルギー庁長官官房鉱業課監修：鉱業便覧 平成 8 年度版、1996
- 6) 理科年表、1995
- 7) 馬淵久夫：元素の辞典、朝倉書店、1994

- 8) 化学大辞典編集委員会編：化学大辞典、共立出版、1960
- 9) 鉱業年鑑、1995
- 10) 染織経済新聞、1998年8月12日号
- 11) 和田孜：金属とヒトーエコトキシコロジーと臨床ー、朝倉書店、1985
- 12) 毎日新聞朝刊 1994年11月20日
- 13) F.wolff：Antimony and Health, BMJ British Medical Journal, Vol.310, pp.1216-1217, 1995
- 14) P. Blair：(Letters to the Editor) Plastic Mattresses and sudden Infant Death Syndrome, The Lancet, Vol.345, p720, 1995
- 15) N. Airnsworth and J. A. Cooke：Distribution of Antimony in Contaminated Grassland, Water Air and Soil Pollution Vol.65, pp.65-87 1990
- 16) N. Airnsworth and J. A. Cooke：Biological Significance of Antimony in Contaminated Grassland, Water Air and Soil Pollution Vol.57-58, pp.193-199, 1991
- 17) 桜井弘：元素111の新知識、ブルーバックス、講談社、p.237、1997
- 18) 渡辺信久 他：都市ごみ焼却処理工場でのヒ素およびアンチモンのマスバランス、環境衛生工学研究、Vol.13(3)、pp.70-75、1999
- 19) 浅見輝男：日本土壌の有害金属汚染、アグネ技術センター、p.260-287、2000
- 20) 浅見輝男：日本土壌の有害金属汚染、アグネ技術センター、p.362-363、2000
- 21) 山中学 他：生体内金属、金原書店、p.132、1985
- 22) 山中学 他：生体内金属、金原書店、p.192、1985
- 23) 隅谷純子：製錬工場周辺におけるアンチモンの健康リスクに関する基礎的研究、京都大学大学院工学研究科環境地球工学専攻修士論文、1998
- 24) 中明賢二 他：爪中金属類の定量法および経時変化の測定、労働の科学、Vol.66、No.8、pp.353-364、1990
- 25) 深堀すみ江 他：毛髪中テルル、セレン、アンチモン、ヒ素の測定と曝露評価、労働の科学、Vol.66、No.5、pp.218-231、1990
- 26) 大森佐与子：金属汚染モニターとしての毛髪ー鉛作業者についてー、大阪府立公衆衛生研報労働衛生偏、Vol.17、pp.55-60、1979
- 27) <http://www.nihonseiko.co.jp/environ2.htm>：日本鉱業協会アンチモン部会「アンチモン環境安全対策特別協議会」
- 28) 山本好男 他：中性子放射化分析法によるヒト組織の多元素分析、京都大学原子炉実験所第35回学術講演会報文集、pp.106-111、2001
- 29) 山本好男 他：中性子放射化分析法によるヒト組織の多元素分析ー日本人における臓器中核種元素の正常値と基準範囲ー、京都大学原子炉実験所第36回学術講演会報文集、pp.93-98、2002
- 30) N. I. W. and J.P.W.：J. Radioanal Nucl. Chem. 113, 515, 1987
- 31) 日本産業衛生学会：許容濃度の勧告(1991)、産業衛生学雑誌 Vol. 33, pp. 299-305, 1991
- 32) 森田真史：精錬工場周辺におけるアンチモンの動態と制御に関する研究、京都大学大学院工学研究科環境地球工学専攻修士論文、1999
- 33) A. Sugimae：Emission Spectrographic Determination of As, Sb, Cd, Pb, Cu and Zn in Airborne Particulates collected on Glass Fiber Filter, Intern. J., Environ. Anal. Chem., Vol.4, pp.97-108, 1975
- 34) 香川芳子：五訂食品成分表、女子栄養大学出版部、2001
- 35) 厚生省環境衛生局食品化学課：食品用プラスチック衛生学、pp.213-221、1980

- 36) K. Sumino : Heavy Metal in Normal Japanese Tissues, Arch. Environ. Health, Vol.30 pp.487-494, 1975
- 37) T. W. Clarkson *et al.* Biological Monitoring of Toxic Metals, 1988.
- 38) Morisawa S., Hidaka H. and Yoneda M.: Historical review of health risk aspects with the related gasoline regulation in Japan, based on the PBPK model, J. of Global Env. Eng., Vol.7, pp. 63-78, 2001.
- 39) 颯田尚哉 他：マレーシアにおけるガソリン無鉛化政策が健康リスク低減に及ぼす効果の PBPK モデルによる評価、土木学会論文集Ⅶ、2003 年五月号掲載予定
- 40) ICRP : ICRP Publication 30, 作業者による放射性核種の摂取限度、1980
- 41) World Health Organization : WHO Offset Publication No.87, Guidelines for the study of Dietary Intakes of Chemical Contaminants, 1985
- 42) 川西幸子 他：一般廃棄物焼却炉近傍における土壌の中性子放射化分析、第 35 回理工学における同位元素研究発表会要旨集、p.169、1988
- 43) 颯田尚哉 他：アンチモンによる土壌汚染調査と影響の低減化手法に関する研究、鉄鋼業環境保全技術開発基金(平成 11～13 年度)研究助成金研究成果報告書、2003
- 44) 西牧研壯 他：有害物質の環境動態に関する研究、～微量元素(Zn,Se,¹⁴C)等の汚染源及び環境中分布に関する研究～、京都大学原子炉実験所第 30 回学術講演会報文集、pp.347-358、1996

第5章 結論

5.1 本研究のまとめ

本研究では、大きく分けて2つの目標を設定した。1つは、清掃工場に起因するダイオキシン類以外の有害元素による周辺環境汚染に注目し、ケミカルフールアウトとして環境を汚染する清掃工場由来の有害元素を野外調査により同定することである。食品(農産物)には乳幼児や子供へ影響を考える上で重要になる牛乳(酪農)に注目し、大気-土壌-牧草-牛乳という曝露経路に関わる有害元素の定量結果から、汚染の実態を把握することを想定したが、現実には大気-土壌-牧草という経路についての検討に止めざるを得なかった。野外調査は、I県M市北西部に位置する酪農が非常に盛んなT村で行った。ここは酪農地域の中に村営の清掃工場が設置されており、本研究の調査地点として最適な条件にあった。これにより本研究では、収集が待たれている清掃工場に由来する有害元素に関わる野外環境データを少なからず提供し得たと考えている。

目標の2つ目は、当該地域の主要生産物である牛乳及び乳製品の摂取を想定して、Sbの健康リスク評価を行うための数学モデルを構築するのに必要な知見を収集し、体内代謝モデルを構成すること、さらに、牛乳摂取に関わる人間へのSb移行についての基礎的知見として必要とされるSbの牧草への経根吸収特性を把握するためのポット実験を行うことである。

これらの研究目標に対して得られた主な結果及び成果並びに結論は、各章のまとめに述べたとおりである。これらの結果は、非常に重要で新たな知見を数多く含んでいる。以下に本研究で得られた主要な知見を再度集約する。

5.1.1 野外調査

第2章では清掃工場周辺において、土壌中の有害元素(Cr,Sb,Zn,Br)を熱中性子放射化分析法で多元素同時分析した。その結果、土壌中の有害元素濃度の水平分布と鉛直分布が得られた。

清掃工場から500 m程度の範囲内において、土壌中Sb濃度が自然界値より高くなり、清掃工場に近づくほど高濃度になることが水平方向の濃度分布から把握された。水平方向の清掃工場周辺調査で他地点より高濃度を示したT3地点における土壌中Sb濃度の鉛直分布からは、地表面から深さ10cm程度に渡って、自然界値(1 mg/kg)を越えるSb濃度が検出され、地表面から深さ10~15 cmにかけて直線的に自然界値(1 mg/kg)まで低減する濃度分布(図2-5)が得られた。T3地点は農地ではなく、またSbは肥料成分でもないことから、大気から降下沈着したSbが土壌表面に蓄積していることを明確に示し、清掃工場近傍(T3地点)がSbの汚染地区であることがわかった。また清掃工場近傍におけるSbの表面土壌への蓄積は、都市(人口)の規模に関わりなく共通して観測され、廃棄物の清掃工場はSbによる周辺環境汚染を生じさせていることがわかった。本研究では、初めて小規模都市清掃工場周辺の土壌中Sb濃度の水平・鉛直分布を把握しており、貴重な野外調査データを提供している。

Crは、清掃工場から放出されて周辺土壌を汚染させる元素とは考えられなかった。Br

も清掃工場から放出されて周辺土壌を汚染させる元素とは明確には断定できなかった。Zn は、近傍の清掃工場に由来するケミカルフォールアウトによって地表面濃度を高めている可能性が示唆された。

第3章では、第2章において把握した清掃工場近傍の Sb 汚染地区において、地区内の酪農家の協力を得て、土壌、大気、牧草中の有害元素濃度を熱中性子放射化分析法で分析した。その結果、清掃工場近傍における土壌中の有害元素濃度の水平分布と鉛直分布、植物中の有害元素濃度及び大気中の有害元素濃度が得られた。

清掃工場近傍において表面土壌中に Sb が自然界値を越えて存在し、近傍(300 m 程度の範囲内)ほど Sb 濃度が高まっていることが再確認された。清掃工場に近づくほど Sb は高濃度になること、地表面に Sb が蓄積していること、植物中 Sb 濃度も清掃工場から離れると減少すること、洗浄することで Sb 濃度が減少し、清掃工場から離れると牧草中 Sb 濃度が減少すること、さらに清掃工場近傍の大気中から Sb が検出されることから、**Sb は清掃工場に由来する有害元素降下物であると断定できる。**

ここでは、小規模都市清掃工場近傍の土壌中 Sb 濃度の水平・鉛直分布の再調査結果だけでなく、初めて植物中 Sb 濃度や大気中 Sb 濃度を把握しており、貴重な野外調査データを提供している。

Cr,Br,Zn に関して、清掃工場に由来する有害元素降下物であることを支持する調査結果は、清掃工場近傍における土壌、植物、大気中の元素濃度からは得られなかった。しかしながら、Br と Zn については、環境試料中濃度が高い値を示す場合があり、今後とも清掃工場の影響を継続して調査する必要がある。

Sb の表面土壌への蓄積は、溶融炉方式の清掃工場や中規模都市の清掃工場周辺調査¹⁾でも確認されている。第4章において Sb の利用について調査した結果、年間2万トンが輸入²⁾されその大部分が難燃剤としての利用であることから、難燃加工された廃棄物の焼却によって、Sb が環境中に放出される機構が考えられた。以上のことと本研究の野外調査結果から、**廃棄物の清掃工場(焼却施設)は Sb の発生源と位置づけるべきである。**

5.1.2 Sb の健康リスクアセスメントの基礎

第4章では、野外調査において清掃工場に起因するダイオキシン類以外の有害元素として同定したアンチモン(以下 Sb)に注目し、Sb に関わる人間への健康リスクアセスメントに必要な知見を日本及び日本人について集積し、リスク評価モデルの重要な一部分となる人体内の Sb 挙動を評価する数学モデル案を構成した。また、牛乳摂取にともなう人間への Sb 曝露に関して最も重要な基礎資料となる Sb の牧草への経根吸収特性をポット実験により把握した。

Sb に曝露後の人体中における Sb の代謝挙動について従来の知見の収集と環境要素について基礎的な検討を行った。その結果、Sb は微量ながらも既に広域を汚染していることから、一般人に対する健康影響では長期微量摂取を想定すべきであり、このような曝露形態にほぼ等しい慢性経口中毒では、心臓障害、肝臓障害、腎臓障害がみられることが知られている。このことは、臓器中 Sb 濃度(表 4-4a,b)が、肝臓、腎臓で大きいことから支持さ

れる。

人体の主要臓器中において Sb 濃度が最も高かったのは肺中濃度であり、曝露経路として大気的重要性を示唆している。明確な汚染源が無くても高い大気中 Sb 濃度に寄与するものに道路脇粉塵³⁾がある。中規模の都市(M市)における市街地や住宅地の大気中 Sb 濃度を測定した結果、T 村清掃工場近傍の大気中 Sb 濃度と同程度の値を示すことがわかった。明確な汚染源のない大気中にも Sb が含まれており、一般人は大気からの Sb 曝露を無視できないことを明らかにした。一般的な大人の一日の呼吸量を 20 m³とすると、明確な汚染源が無く道路近傍でもない居住環境に住むヒトの経気道による Sb 摂取量は 0.2~0.4 µg/day と評価される。

Sb の経口摂取量を評価するに当たって、清掃工場からの影響のない地域で生産される牛乳を測定したところ Sb は不検出であった。飲料水について明確な Sb 汚染のない地区の飲料水中 Sb 濃度を測定した結果、一般人の飲料水からの Sb 摂取量を 0.8 µg/day と評価した。Sb の経口摂取量の評価には、農産物或いは食品中の Sb 濃度の情報は不可欠であり、今後早い段階でデータが収集され、公開されることの必要性和重要性を指摘した。

Sb に対する行政の対応では、水道水質基準において、Sb には現在も要監視項目という区分ながら指針値 2 µg/L という最も厳しい基準を設けている。**Sb は使用量の多さと利用の広汎さ、基準値の厳しさ、環境中における挙動と人体への影響に関する知見の乏しさの面から、環境中での動態や人間への健康影響を解明することが急務な元素である。**

牛乳による人間の Sb 摂取に関わる最も基礎的な知見として必要とされる Sb の牧草(リードキャナリーグラス)への経根吸収特性を把握するためのポット実験を行った。その結果、ほとんど全ての牧草試料で Sb が検出されることから、Sb は牧草に経根吸収され、葉中 Sb 濃度が茎中 Sb 濃度を上回り、Sb は茎よりも葉に濃縮されることがわかった。土壌中 Sb 濃度が極端に高くなると牧草中 Sb 濃度は明らかに増加する。その場合、牧草の収穫を重ねても牧草中 Sb 濃度に変化がほとんどみられないことから、牧草が吸収できる Sb の量には上限がある可能性が示唆された。

清掃工場近傍の牧草地では、大気を経路とする Sb の牧草への直接沈着と土壌に沈着した Sb の経根吸収による Sb の吸収経路の 2 つを牧草の汚染機構として考慮する必要がある。牧草中 Sb 濃度に及ぼす各経路の寄与の程度や牧草から牛乳への Sb の移行量及び移行機構を今後解明してゆく必要がある。

Sb の健康リスクアセスメントの重要な一部分となる人体内の Sb 挙動を評価する数学モデルの構成を試みた。旧来型のコンパートメントモデルを改良して体内における Sb 挙動を評価する体内動態モデル^{4,5)}が提案されているが、生理学的意義が曖昧であるという弱点が内在するため、鉛についての体内代謝モデル^{6,7)}を Sb 独自の決定臓器(標的臓器)や排泄機構を考慮して改良することで、Sb についての体内代謝モデル案(図 4-3)を構成した。

今後は計算シミュレーションを実施して、モデルの改良およびモデルの検証を行ってゆく必要がある。これには日本における環境中の Sb 濃度データ、動物実験データや日本人に対する疫学データが必要不可欠であり、今後早い段階でデータが収集されて公開されることを期待したい。

5.2 おわりに

清掃工場は、衛生的で快適な社会生活のために重要で、必要・不可欠な施設である。本研究では廃棄物の清掃工場が Sb の発生源であることを指摘しているが、清掃工場の社会における役割と必要性、重要性に疑義を投じるものではない。むしろ、本研究が契機となって、清掃工場のシステムやプラントが改良され、近い将来清掃工場からの Sb の放出量が低減することを切に望んでいる。乾電池等に水銀が使用されなくなったときのように、難燃剤に Sb が使用されなくなるだけでも状況は一変すると期待している。

本研究では、清掃工場から放出される Sb によって周辺環境へ Sb が人為的に負荷されることを「汚染」と表現している。土壌中 Sb 濃度では、自然界値(1 mg/kg)以上に Sb が含まれている状態を指している。これは他に適切な言葉がないからである。「汚染」と表現していても、決して本研究で調査した地域や地点に人間の健康や生態系に影響があるほどの高濃度の Sb が存在することを指し示しているのではないことに留意すべきである。特に土壌では、自然界値を本研究では 1 mg/kg としたものの、これは地質によって大きく異なることに注意する必要がある。本研究の端緒となった報告⁹⁾でも、地質的に 1 mg/kg 以上の値を示す非汚染(コントロール)地点の存在を示している。

研究論文は、他の研究者が追試できることが必要条件であるので、汚染源の名称、所在地などは明記することが原則である。しかしながら、本研究では牧草地の土壌や牧草の提供先を公表しないことを約束して提供を受けていること、汚染源の名称、所在地などを明記することで、協力いただいた農家に風評が起こる可能性を配慮して明記することを避けることとした。

有害物質のヒトへの健康影響の評価(健康リスクアセスメント)は、人間の受ける心身上の障害の種類を明らかにして、その大きさを判断することであり、定性的リスクアセスメントと定量的リスクアセスメントの2段階で構成される。

定性的リスクアセスメントでは有害性確認が行われる。定量的リスクアセスメントでは、

- ① 有害物質の用量と特定の健康障害の発現確率を評価する用量反応評価(量効果評価)
- ② 有害物質に曝露される集団の構成・大きさや曝露の経路・頻度・量などの曝露評価
- ③ 用量反応評価と曝露評価の結果を総合的に判断して現在の或いは将来の健康障害の発現率を推定するリスク判定

が行われる。本研究で清掃工場から放出される有害元素として同定された Sb については、モニタリングデータや科学的な知見が不十分であり、評価の様々な段階で仮定と推論により結果を導かざるを得ない。

一般環境中に存在する Sb に曝露することによるヒトの健康リスク管理のためには、定量的リスクアセスメントを常に新しい知見を取り入れて繰り返し行い、推定の精度や評価の信頼性を高めてゆく必要がある。特に数学モデルによる評価は、Sb による汚染の危険性を定量的に把握することを可能にし、多様な対策案の有効性を評価し、最適対策へ到達する手助けとなる。一般人に対しては、容認できるリスクレベルの評価と提言こそが大事である。最終的には発癌性化学物質の管理でしばしば採用されているような、リスク管理の

目標値として「意に介しないリスクレベル(de minimis level)」を環境中 Sb 濃度や体内の Sb 濃度として提言したいものである。ちなみに水道水中に含まれる発癌化学物質に対する基準値は、生涯発癌死亡リスク 10^{-5} に相当する濃度として設定されている。

参考文献

- 1) 颯田尚哉 他：アンチモンによる土壌汚染調査と影響の低減化手法に関する研究、鉄鋼業環境保全技術開発基金(平成 11～13 年度)研究助成金研究報告書、2003
- 2) 資源エネルギー庁長官官房鉱業課監修：鉱業便覧 平成 8 年度版、1996
- 3) 浅見輝男：日本土壌の有害金属汚染、アグネ技術センター、p.362-363、2000
- 4) 堀内将人、森田真史、森澤眞輔、颯田尚哉、島田洋子：臓器・組織中アンチモン濃度に注目した製錬工場周辺住民の健康リスク評価、環境工学研究論文集、Vol.37、pp.321-332、2000
- 5) 堀内 将人、隅谷 純子、森田 真史、颯田 尚哉、森澤眞輔：製錬工場周辺環境でのアンチモンによる汚染と健康リスクの評価、環境工学研究論文集、Vol.35、pp.161-170、1998
- 6) Morisawa S., Hidaka H. and Yoneda M.: Historical review of health risk aspects with the related gasoline regulation in Japan, based on the PBPK model, J. of Global Env. Eng., Vol.7, pp. 63-78, 2001.
- 7) 颯田尚哉 他：マレーシアにおけるガソリン無鉛化政策が健康リスク低減に及ぼす効果の PBPK モデルによる評価、土木学会論文集Ⅶ、2003 年五月号掲載予定
- 8) 西牧研壮 他：有害物質の環境動態に関する研究、～微量元素(Zn,Se, ^{14}C)等の汚染源及び環境中分布に関する研究～、京都大学原子炉実験所第 30 回学術講演会報文集、pp.347-358、1996

謝 辞

本研究において、第2章、第3章の清掃工場周辺における環境試料の採取には、宮野千穂嬢（現、水資源公団）、桑原千恵嬢（現、JA 甲府）、村木春香嬢（現、青森県庁）、金渕信秋氏（現、大本組）のご協力とご助力を得た。大同工業大学都市環境デザイン学科教授の堀内将人先生、京都大学原子炉実験所助手の福谷哲先生には、暖かいご支援、様々なご指摘・ご助言・御議論を頂き、本報告書の作成に大いに役立させて頂いた。ここに記して深謝の意を表します。京都大学原子炉実験所教授の西牧研壮先生、同助手の高田實彌先生、川本圭造先生には、熱中性子放射化分析をはじめとする原子炉実験所での活動に際して、様々なご配慮、ご支援、暖かい励ましを頂いた。ここに記して厚くお礼申し上げます。

第4章の Sb に関わるリスク評価では、京都大学大学院工学研究科環境地球工学専攻環境リスク講座教授の森澤眞輔先生から、リスク評価の基礎からモデルシミュレーション手法に至るまで懇切丁寧にご指導頂いた。ここに記して深く感謝するとともに厚くお礼申し上げます。京都大学大学院工学研究科環境地球工学専攻環境リスク講座助教授の米田稔先生、同環境工学専攻助教授高岡昌輝先生からは、様々なご助言を頂いた。ここに記して厚くお礼申し上げます。

また、横田宗昭氏、佐藤邦男氏、武井重光氏には、特段のご配慮を頂いた。心よりお礼申し上げます。

最後に、岩手大学農学部農林環境科学科助教授の登尾浩助先生からは、貴重な御討議とご支援を頂いた。ここに記して厚くお礼申し上げます。