

Estimation of Dioxin-Levels in Japanese by Mathematical Models: Time Course from the Past to the Future

数理モデルによる日本人のダイオキシンレ
ベルの推定：過去から将来に亘る変遷

吉田喜久雄^{1,2,3}, 池田詩野¹, 中西準子^{1,2}

¹ 横浜国立大学

² CREST, 科学技術振興事業団

³ 三菱化学安全科学研究所

我が国におけるダイオキシン類調査

環境庁

- ◆ 公共用水域の水質におけるダイオキシン類調査(1990～)
- ◆ 有害大気汚染物質モニタリング調査(1990～)
- ◆ 非意図的生成化学物質汚染実態追跡調査(1993～)
- ◆ 海域中のダイオキシン調査(1995)
- ◆ ダイオキシン類総合パイロット調査(1998)
- ◆ ダイオキシン類緊急全国一斉調査(1999)
- ◆ 農用地土壌及び農作物に係るダイオキシン類調査(1999)

厚生省

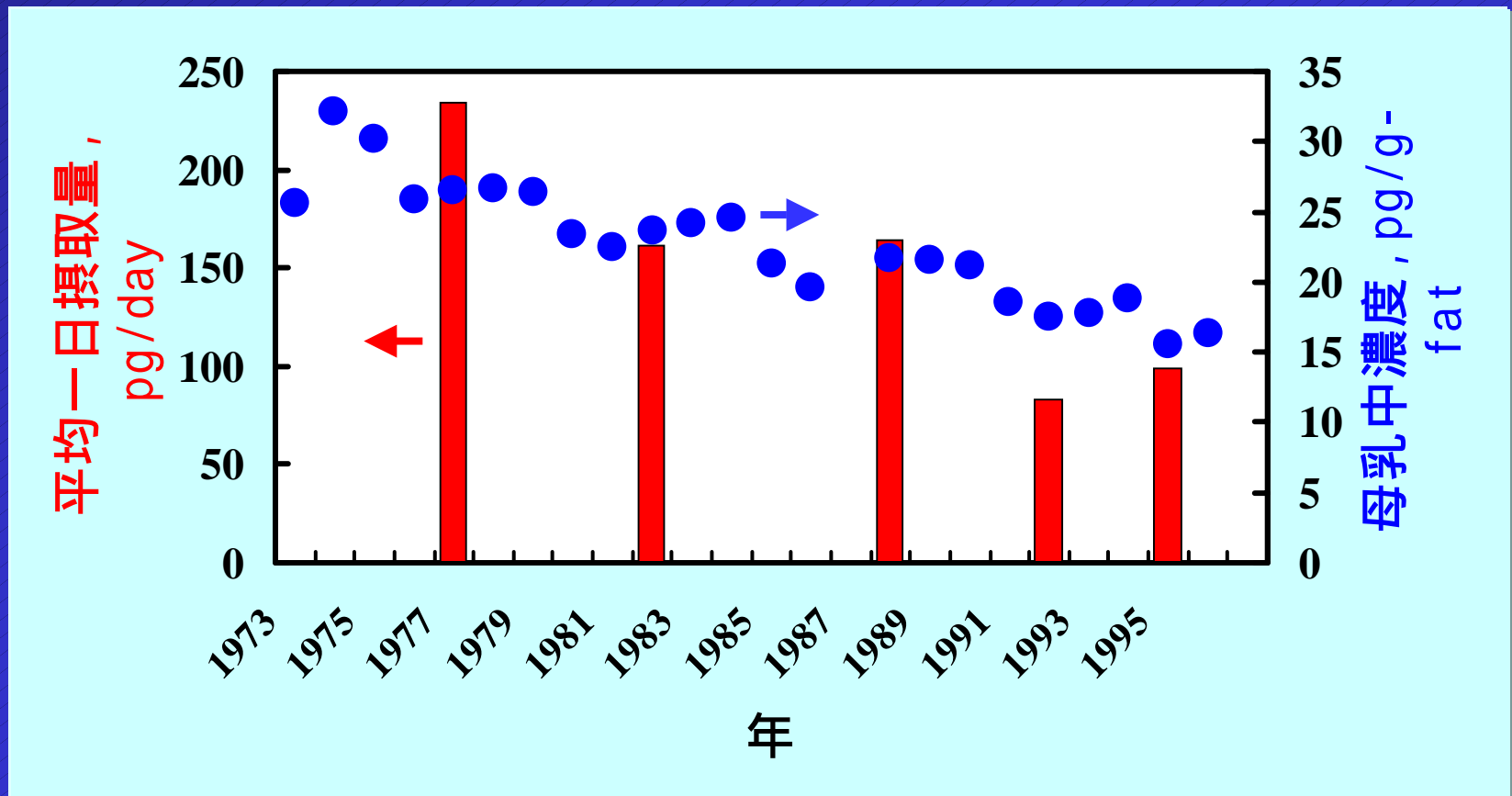
- ◆ 食品中のダイオキシン類等汚染実態調査(1996～)
- ◆ 母乳中のダイオキシン類に関する調査, 中間報告(1998)

東京都

- ◆ 都内大気中のダイオキシン類の調査(1998～)
- ◆ 母乳中ダイオキシン類濃度調査, 中間報告(1998)
- ◆ 食品からのダイオキシン類等摂取状況調査(1998)

PCDD/Fsの平均一日摂取量と母乳中濃度の経年変化

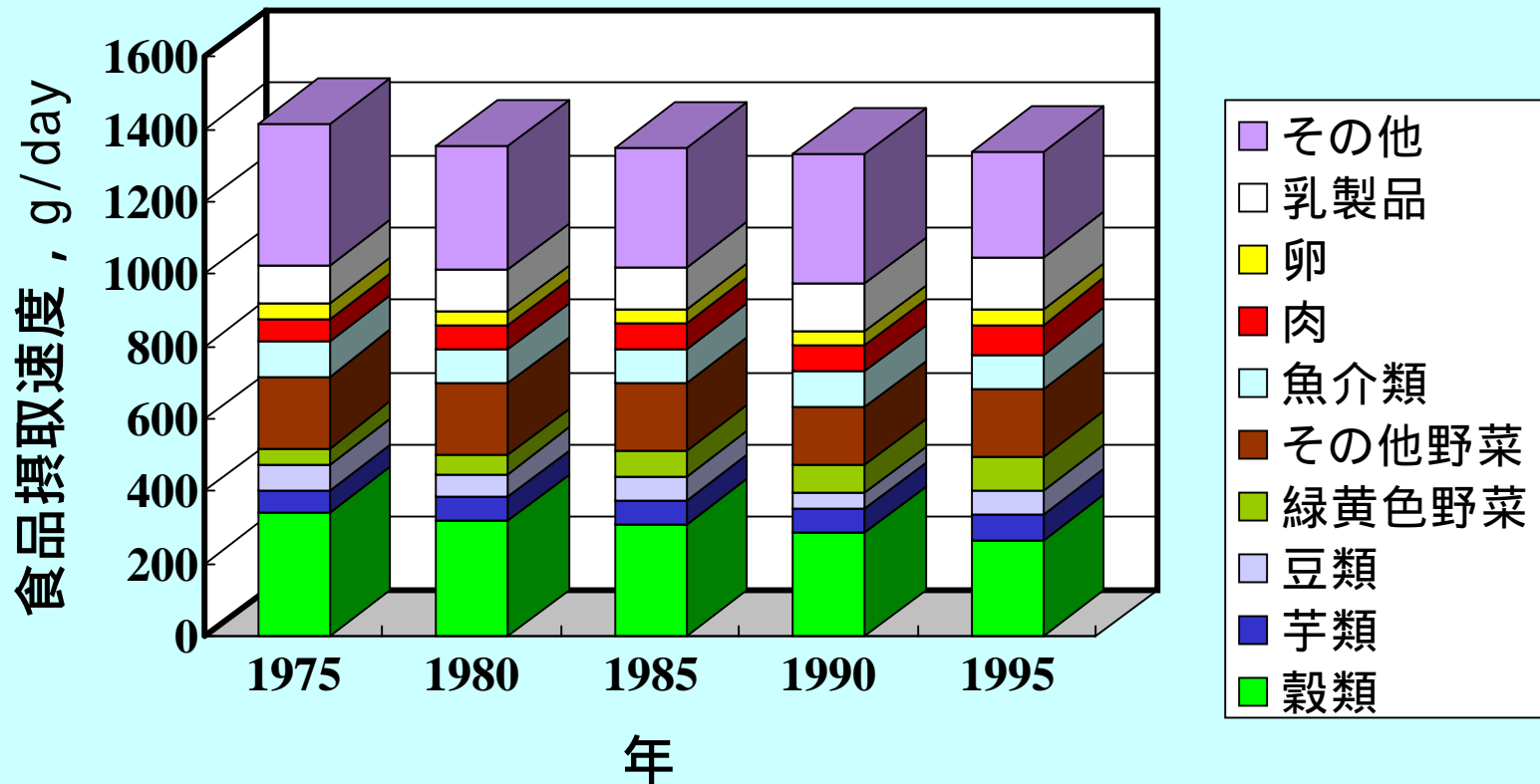
過去におけるPCDD/Fsの平均一日摂取量と体内負荷量は、現在よりも高い



【データ:厚生省, 1998, 1999】

食品摂取速度の経年変化

食品の平均一日摂取速度は、過去30年ほとんど変化がない



【データ:厚生省, 1998】

研究目的

数理モデル

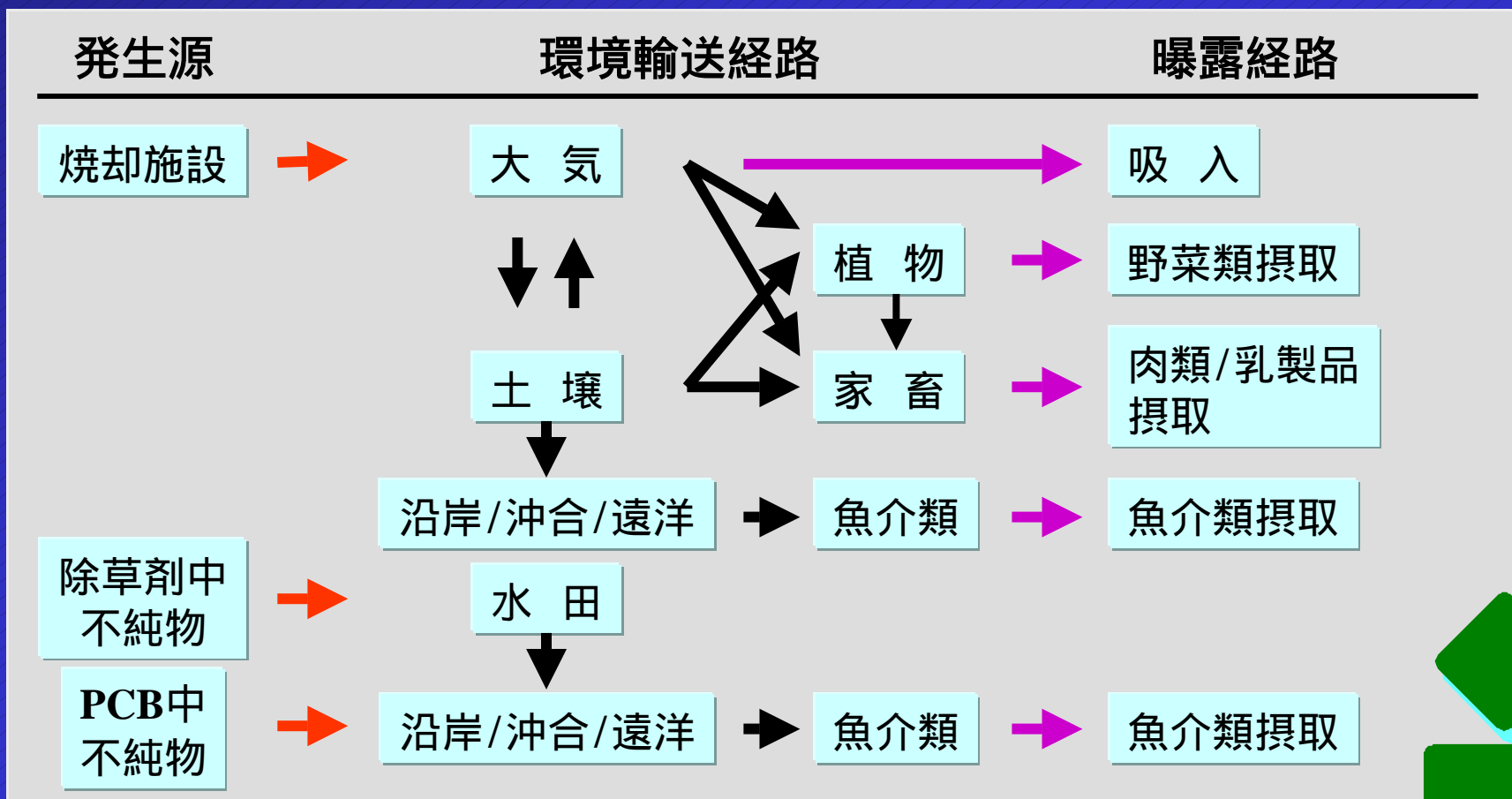
- ◆ 首尾一貫した既存データの統合
- ◆ 既存データからの定量的な外挿
- ◆ 過去から将来に亘る曝露レベルの変化の評価
- ◆ リスク削減対策の有効性の評価



本研究

- ◆ 排出源から人に至るまでの輸送経路と曝露経路のモデル化
- ◆ 過去から将来に亘る日本人のPCDD/Fsレベルの変遷の推定
- ◆ 排出抑制対策の有効性の評価

発生源，環境輸送経路及び曝露経路

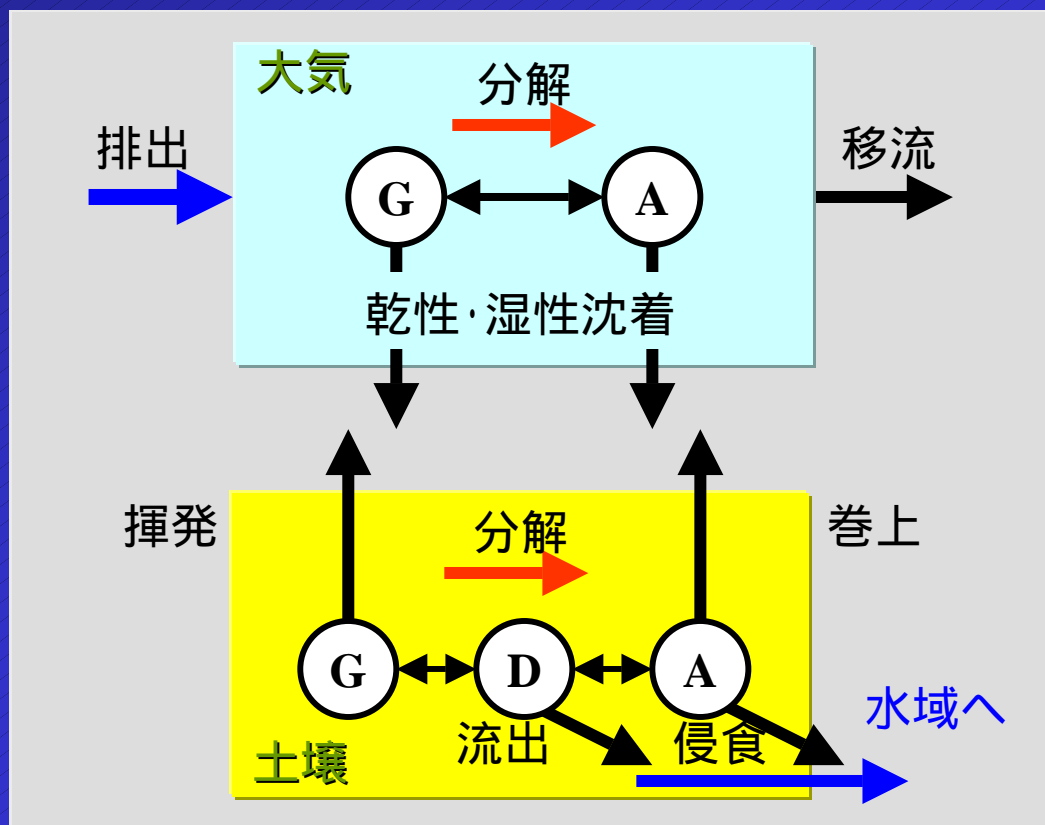


焼却施設から排出されるPCDD/Fsの環境動態推定

大気 - 土壌で構成される2コンパートメントモデル
池田, 吉田, 中西 (1998): 環境科学学会年会

【動態プロセス】

【環境特性】



(大気)

面積	$3.78 \times 10^5 \text{ km}^2$
高さ	1000 m
風速	3.0 m/s
温度	287 K
降雨量	1.50 m/y
浮遊粒子濃度	$30 \mu\text{g}/\text{m}^3$

(土壌)

面積	$3.49 \times 10^5 \text{ km}^2$
深さ	0.05 m
有機炭素含有率	2.4 %
バルク密度	1.00 kg/L
侵食速度	0.0001 m/y
インリッチメント係数	3.0

PCDD/Fsの存在状態 G: ガス態, D: 溶存態, A: 吸着態

焼却施設から排出されるPCDD/Fsの環境動態推定

(大気)
$$Ma(t) = \frac{E(1-k_{22}/\alpha)}{\alpha-\beta} \exp(\alpha \cdot t) + \frac{E(k_{22}/\beta-1)}{\alpha-\beta} \exp(\beta \cdot t) - \frac{E \cdot k_{22}}{\alpha \cdot \beta}$$

(土壌)
$$Ms(t) = \frac{E \cdot k_{21}}{\alpha(\alpha-\beta)} \exp(\alpha \cdot t) - \frac{E \cdot k_{21}}{\beta(\alpha-\beta)} \exp(\beta \cdot t) + \frac{E \cdot k_{21}}{\alpha \cdot \beta}$$

$$\alpha, \beta = \frac{(k_{11} + k_{22}) \pm \sqrt{k_{11}^2 + k_{22}^2 - 2k_{11}k_{22} - 4k_{12}k_{21}}}{2}$$

Ma, Ms : 大気及び土壌(非水田)中の量

E : 大気への排出量

k_{11}, k_{22} : 大気及び土壌中での輸送, 移動, 分解に対する総括1次速度定数

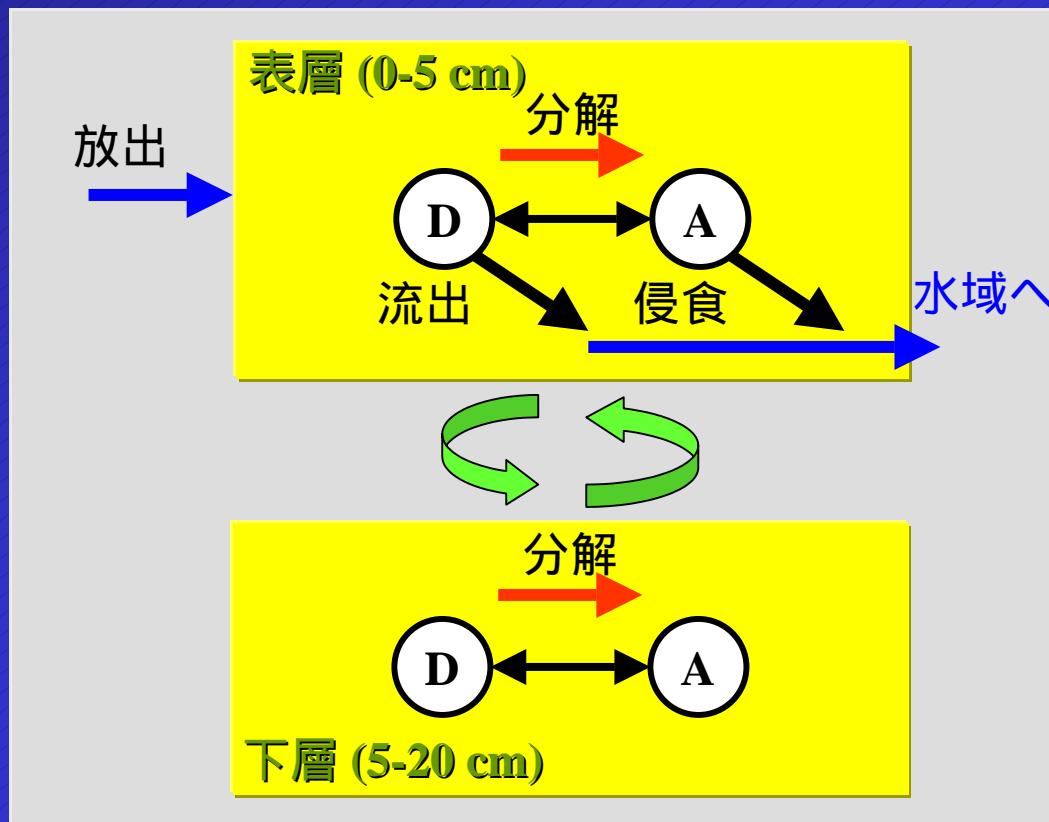
k_{12}, k_{21} : 大気と土壌間の移動に対する総括1次速度定数

水田土壤中の PCDD/Fs の環境動態推定

表層と下層で構成される水田土壌 1コンパートメントモデル
2層は年に一度耕され、両層中の濃度は均一となる

【動態プロセス】

【環境特性】



(水田)

面積	2.89×10 ⁴ km ²
深さ	
表層	0.05 m
下層	0.15 m
灌漑	
水量	0.1 m/day
期間	120 days
有機炭素含有率	2.4 %
侵食速度	0.00025 m/y
インリッチメント係数	3.0

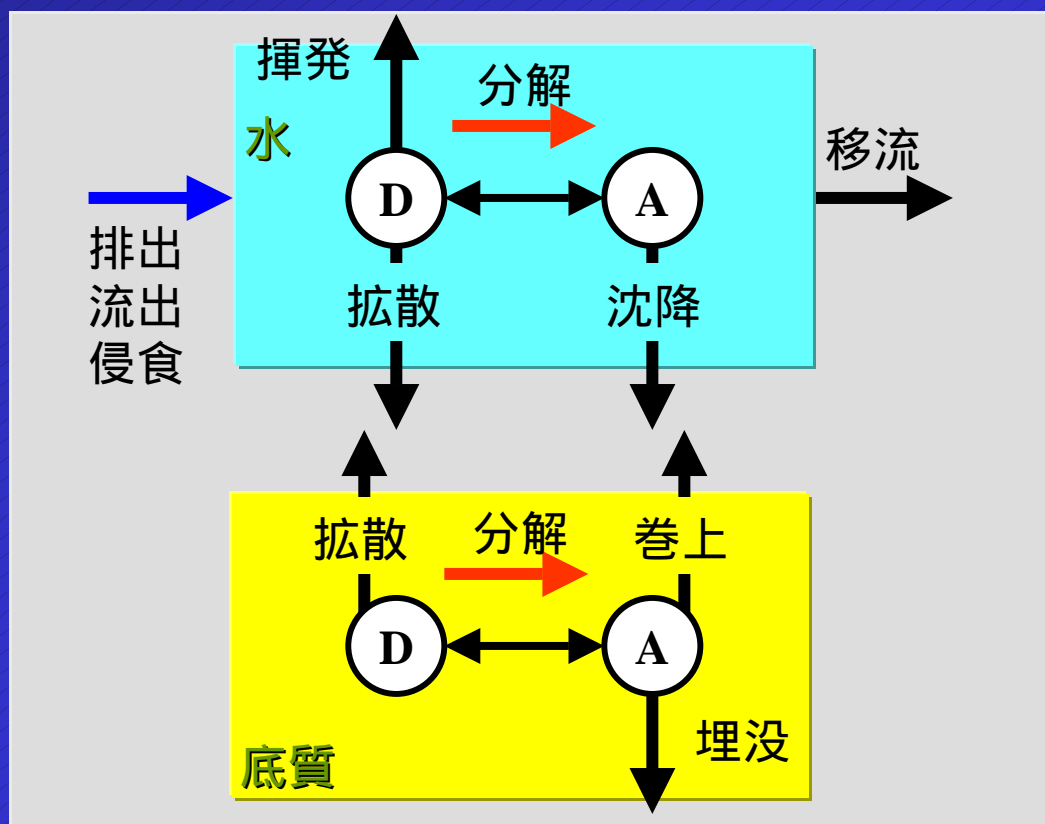
沿岸域におけるPCDD/Fsの環境動態推定

水 - 底質で構成される2コンパートメントモデル

Yoshida, Shigeoka, Yamauchi (1987): *Chemosphere* 16(10-12) 2531

【動態プロセス】

【環境特性】



(水)

面積	6.40×10 ⁴ km ²
深さ	50 m
浮遊粒子濃度	1.0 mg/L
有機炭素含有率	5.0 %
移流速度定数	0.025 1/day
沈降速度	0.48 m/day

(底質)

深さ	0.05 m
有機炭素含有率	5.0 %
間隙率	0.5
粒子密度	1.75 kg/L

沿岸域におけるPCDD/Fsの環境動態推定

- 排出期間中 -

(水)
$$Mw(t) = \frac{I_{sea} (1 - k_{22}/\alpha)}{\alpha - \beta} \exp(\alpha \cdot t) + \frac{I_{sea} (k_{22}/\beta - 1)}{\alpha - \beta} \exp(\beta \cdot t) - \frac{I_{sea} k_{22}}{\alpha \cdot \beta}$$

(底質)
$$Mse(t) = \frac{I_{sea} k_{21}}{\alpha(\alpha - \beta)} \exp(\alpha \cdot t) - \frac{I_{sea} k_{21}}{\beta(\alpha - \beta)} \exp(\beta \cdot t) + \frac{I_{sea} k_{21}}{\alpha \cdot \beta}$$

- 排出停止後 -

(水)
$$Mw(t) = \frac{Mw_{term}}{\alpha - \beta} \{ \alpha \exp(\alpha \cdot t) - \beta \exp(\beta \cdot t) \} + \frac{Mw_{term} k_{22} + Ms_{term} k_{12}}{\alpha - \beta} \{ \exp(\alpha \cdot t) - \exp(\beta \cdot t) \}$$

(底質)
$$Mse(t) = \frac{Mw_{term} k_{21}}{\alpha - \beta} (\exp(\alpha \cdot t) - \exp(\beta \cdot t)) + Mse_{term} \exp(-k_{22} \cdot t) +$$

$$Mse_{term} k_{12} k_{21} \left\{ \frac{\exp(-k_{22} \cdot t)}{(\alpha + k_{22})(\beta + k_{22})} - \frac{\exp(\alpha \cdot t)}{(\alpha + k_{22})(\beta + k_{22})} - \frac{\exp(\beta \cdot t)}{(\alpha + k_{22})(\beta + k_{22})} \right\}$$

$$, \quad = \frac{(k_{11} + k_{22}) \pm \sqrt{k_{11}^2 + k_{22}^2 - 2k_{11}k_{22} - 4k_{12}k_{21}}}{2}$$

Mw, Mse : 水及び性質中の量, I_{sea} : 排出速度
 k_{11}, k_{22} : 水と底質中での輸送, 移動, 分解に対する総括1次速度定数
 k_{12}, k_{21} : 水と底質間の移動に対する総括1次速度定数

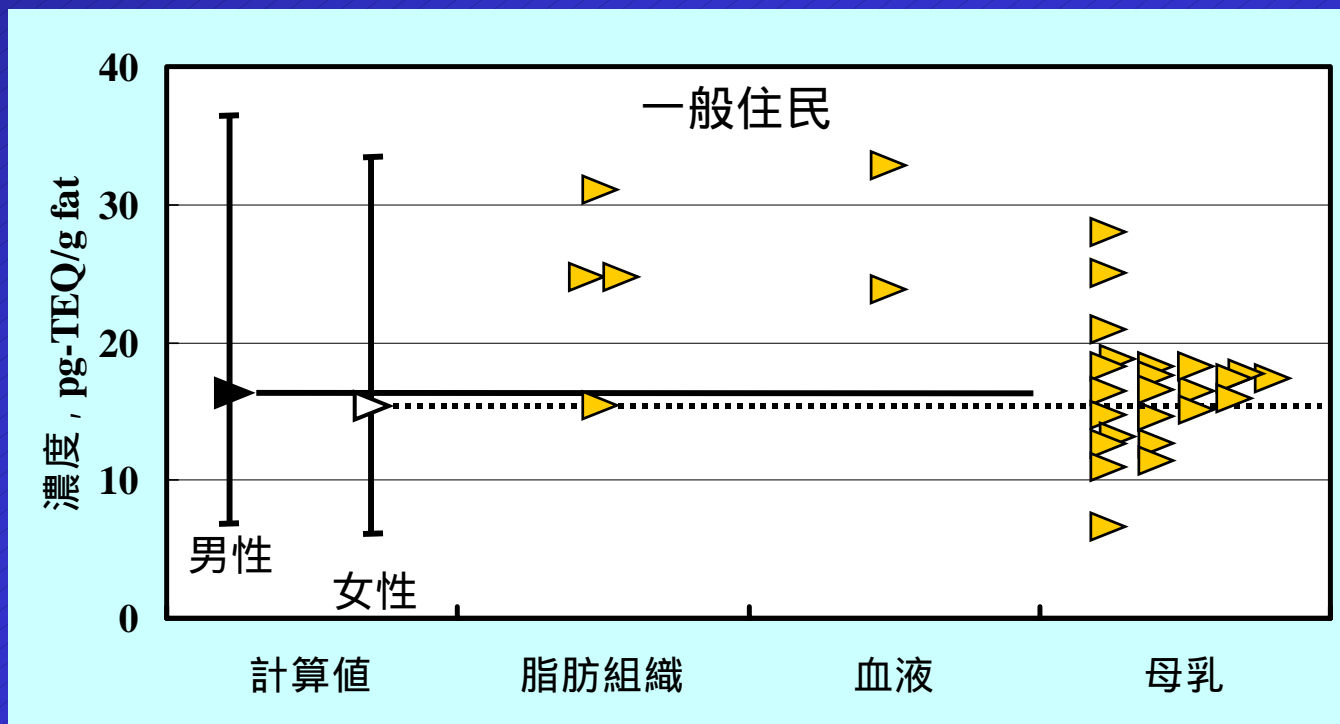
平均一日摂取量の推定

- ◆ 平均一日摂取量: 摂取媒体中濃度とその吸入あるいは食品摂取速度の積として算出
- ◆ 野菜類/肉類/乳製品中濃度: 米国EPAの推算法(1994)を使用
- ◆ 沿岸魚(含養殖魚)中濃度: 魚中濃度と水中濃度が平衡状態にあると仮定して算出
- ◆ 沖合/遠洋魚中濃度: 沿岸魚中濃度の1/2に設定
- ◆ 沿岸魚とその他の魚の摂取速度比: 0.4 (1970年以前), 0.3 (1970年以降)
- ◆ 吸入及び食品摂取速度: 一定と仮定

日本人におけるPCDD/Fsの体内負荷量推定

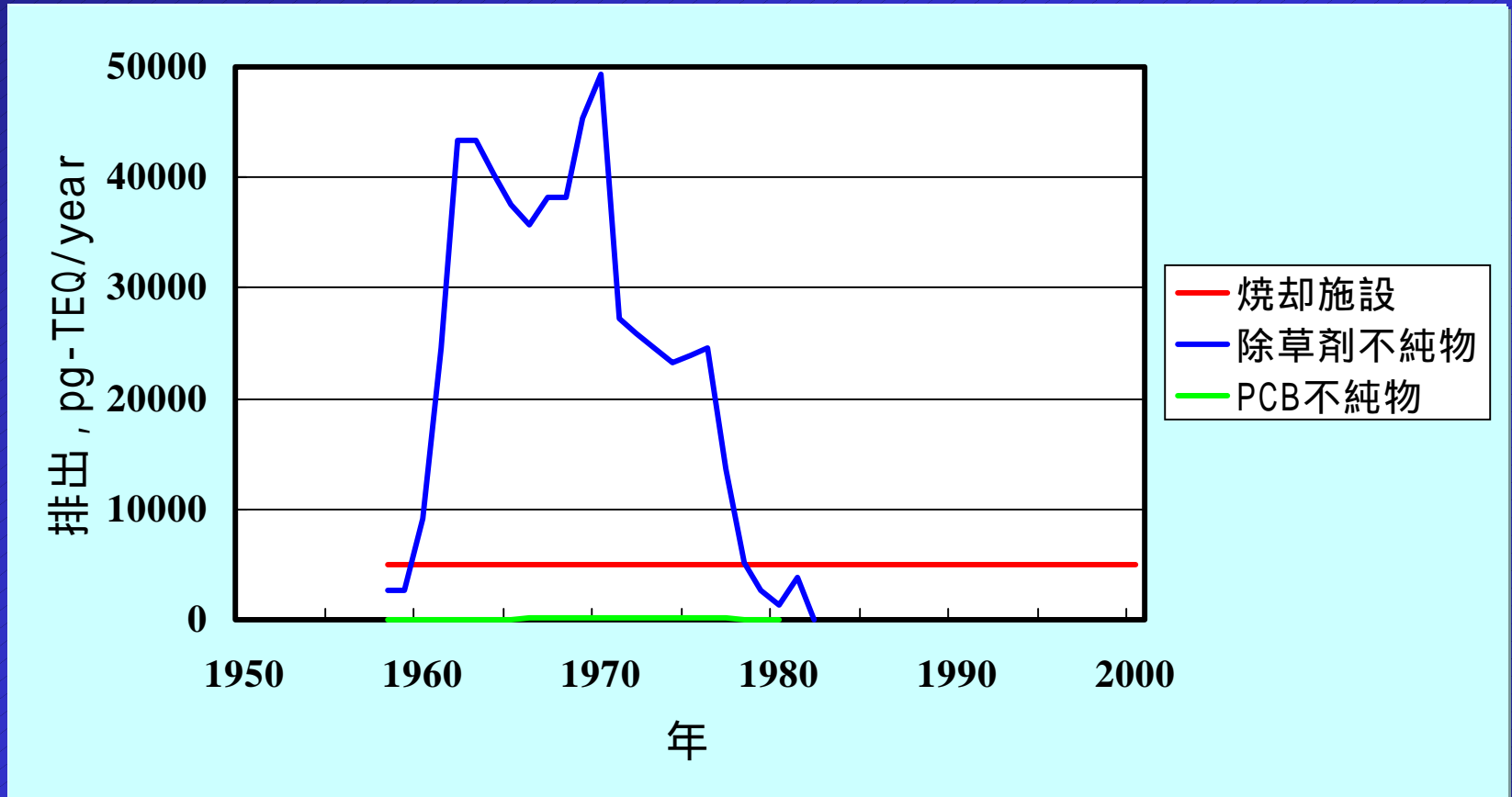
$$C_{\text{human}}(t) = \frac{ID}{ke \cdot BW} \{1 - \exp(-ke \cdot t)\}$$

C_{human} : 体内負荷量, ID : 内部用量, BW : 体重
 ke : 排泄に対する1次速度定数



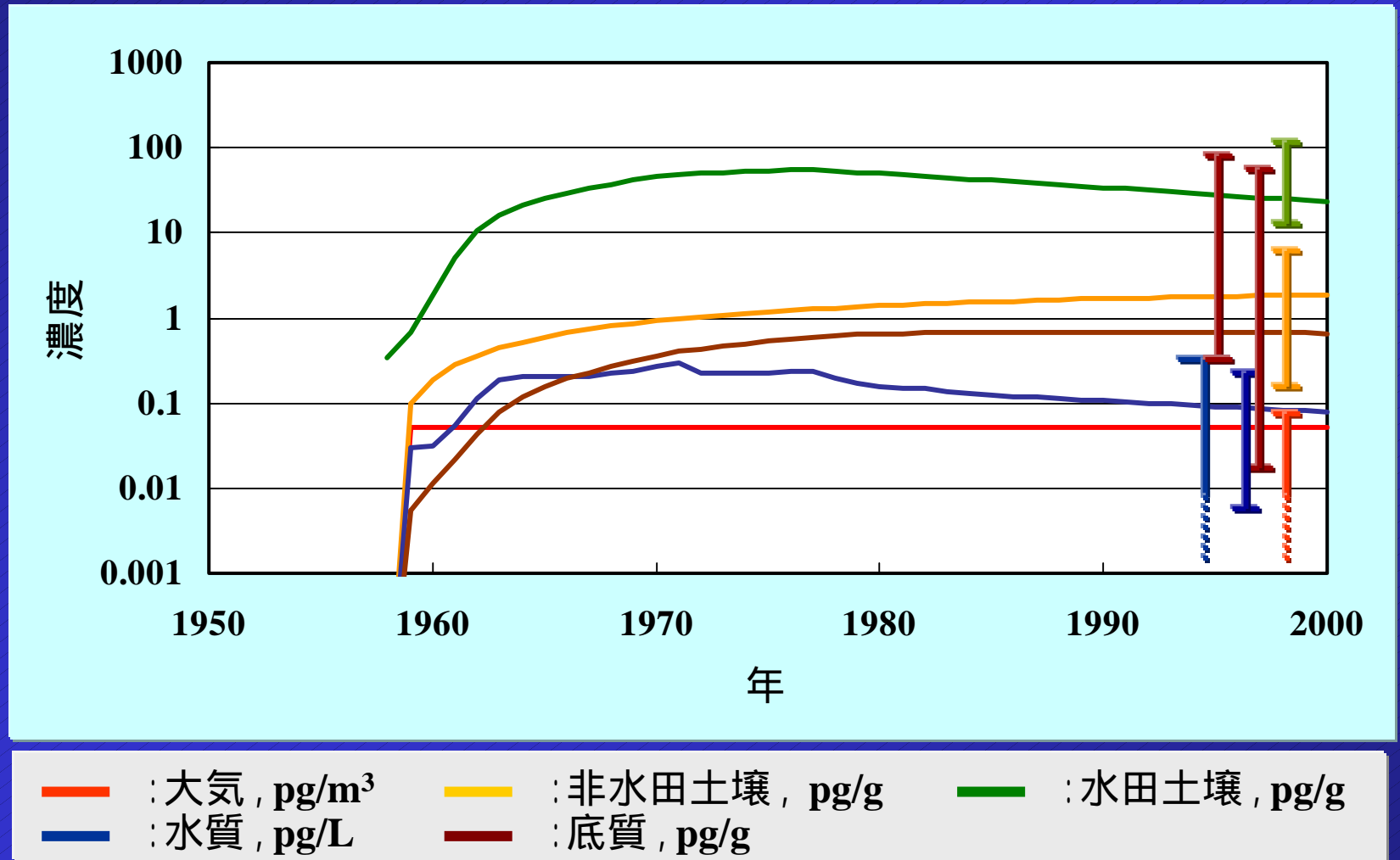
垂線は、不確実性分析に基づく推定値の5及び95パーセンタイル値の範囲を示す

PCDD/Fsの環境排出量



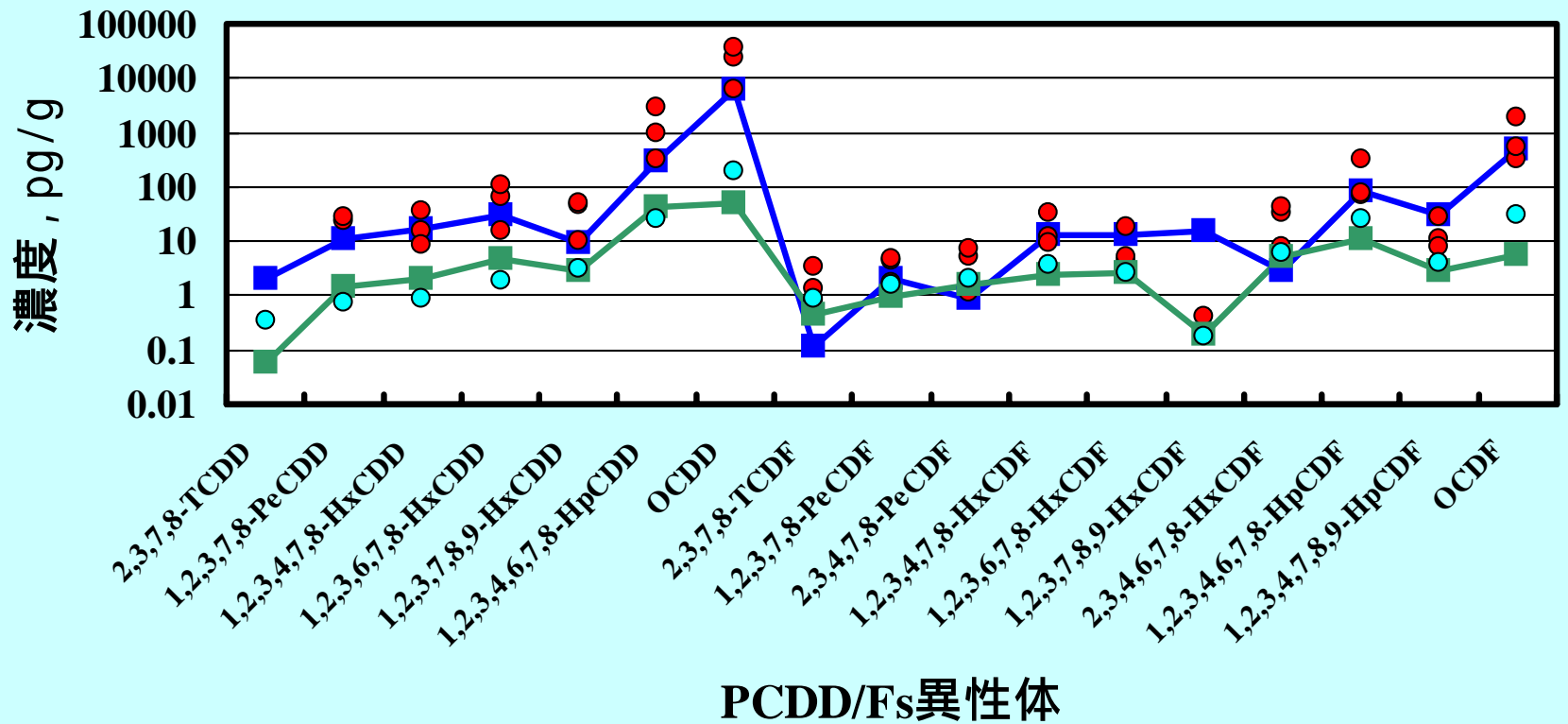
【データ: Masunaga (1999): 2nd International Workshop on Risk Evaluation and Management of Chemicals】

我が国の環境中の PCDD/Fsバックグラウンドレベルの変遷



垂線は環境庁による測定濃度の範囲を示す

水田土壤中の異性体別濃度の推定



水田

焼却施設周辺

計算値

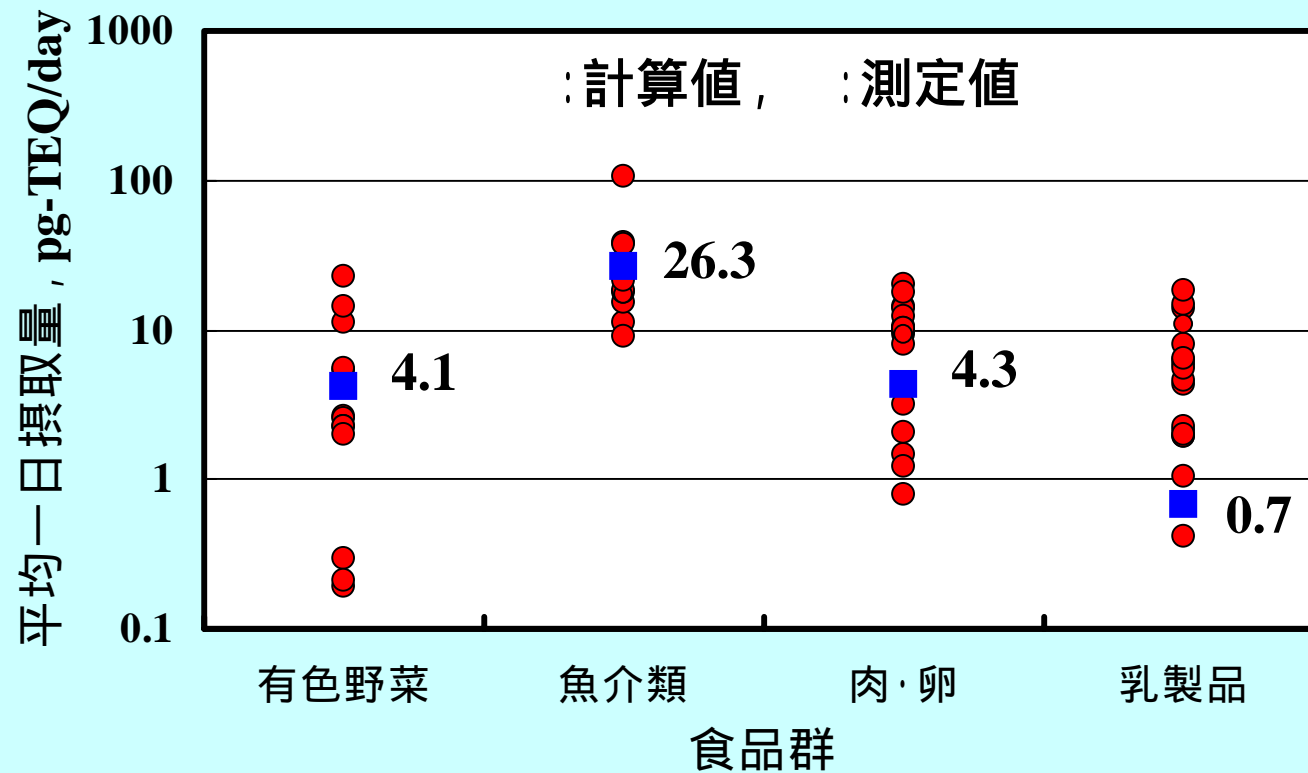


測定値



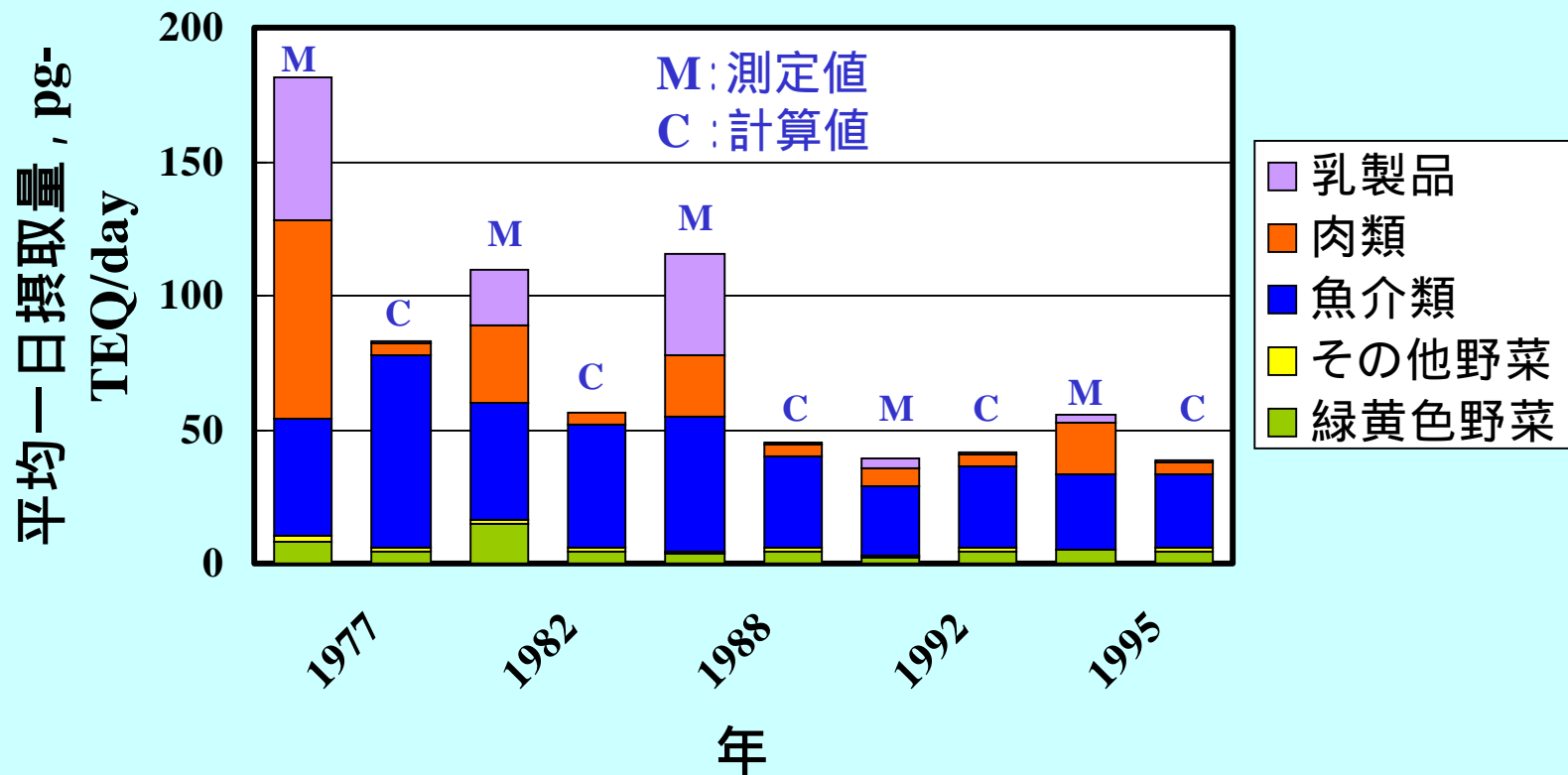
【水田測定値: Suzuki, Tosa, Yasuda, Sakurai, Nakanishi., (1999): *Organohalogen Compounds* 40 267】

平均一日摂取量計算値と測定値の比較



【データ：高山ら，1991；環境庁，1997；厚生省，1997，1998；東京都，1998】

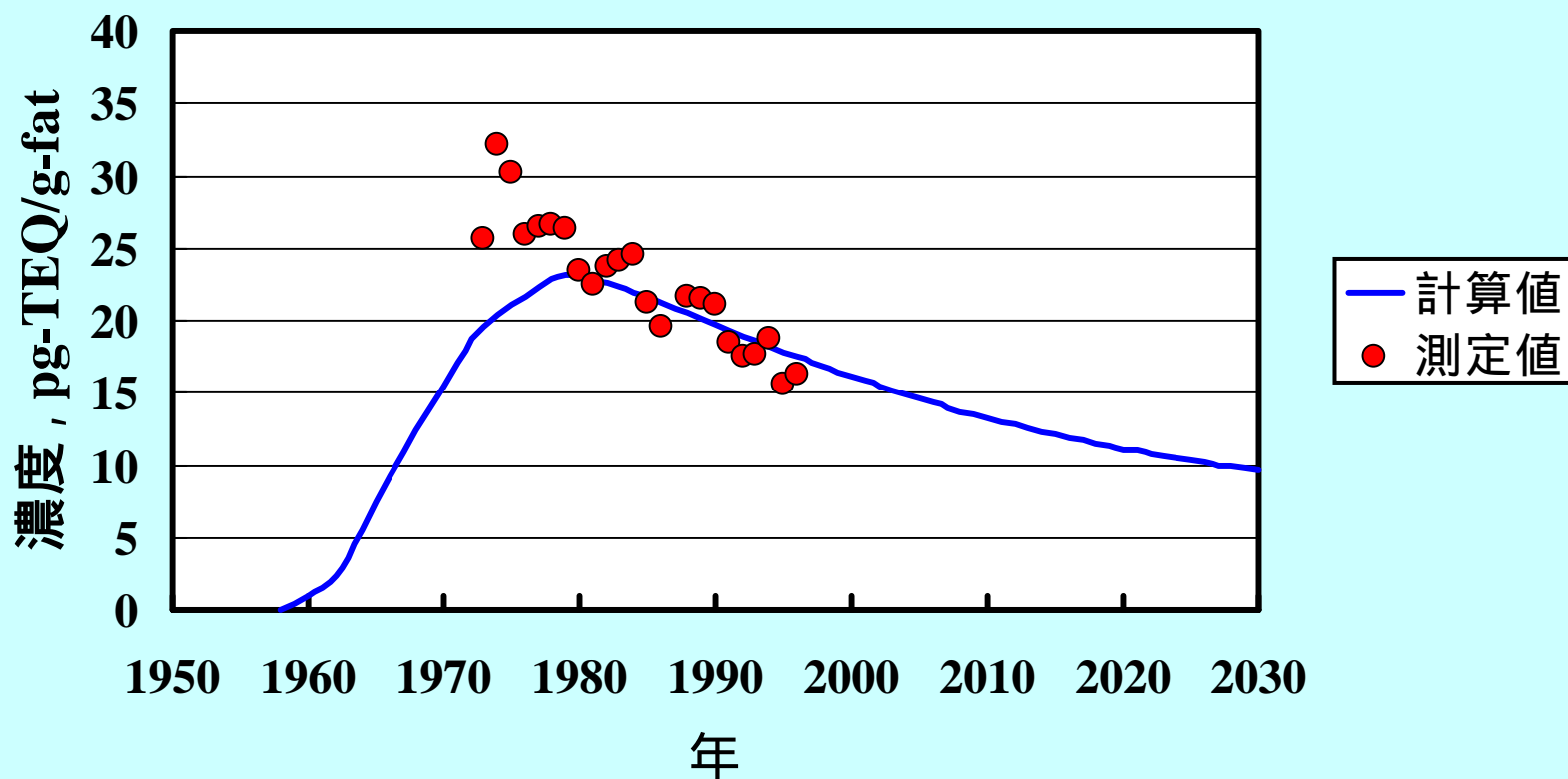
平均一日摂取量計算値と測定値の比較



【データ: 厚生省, 1999】

27歳女性の脂肪中濃度の変遷の推定

27歳女性の脂肪1g当たりの体内負荷量計算値と保存母乳(25~29歳)中のPCDD/Fs測定濃度の比較

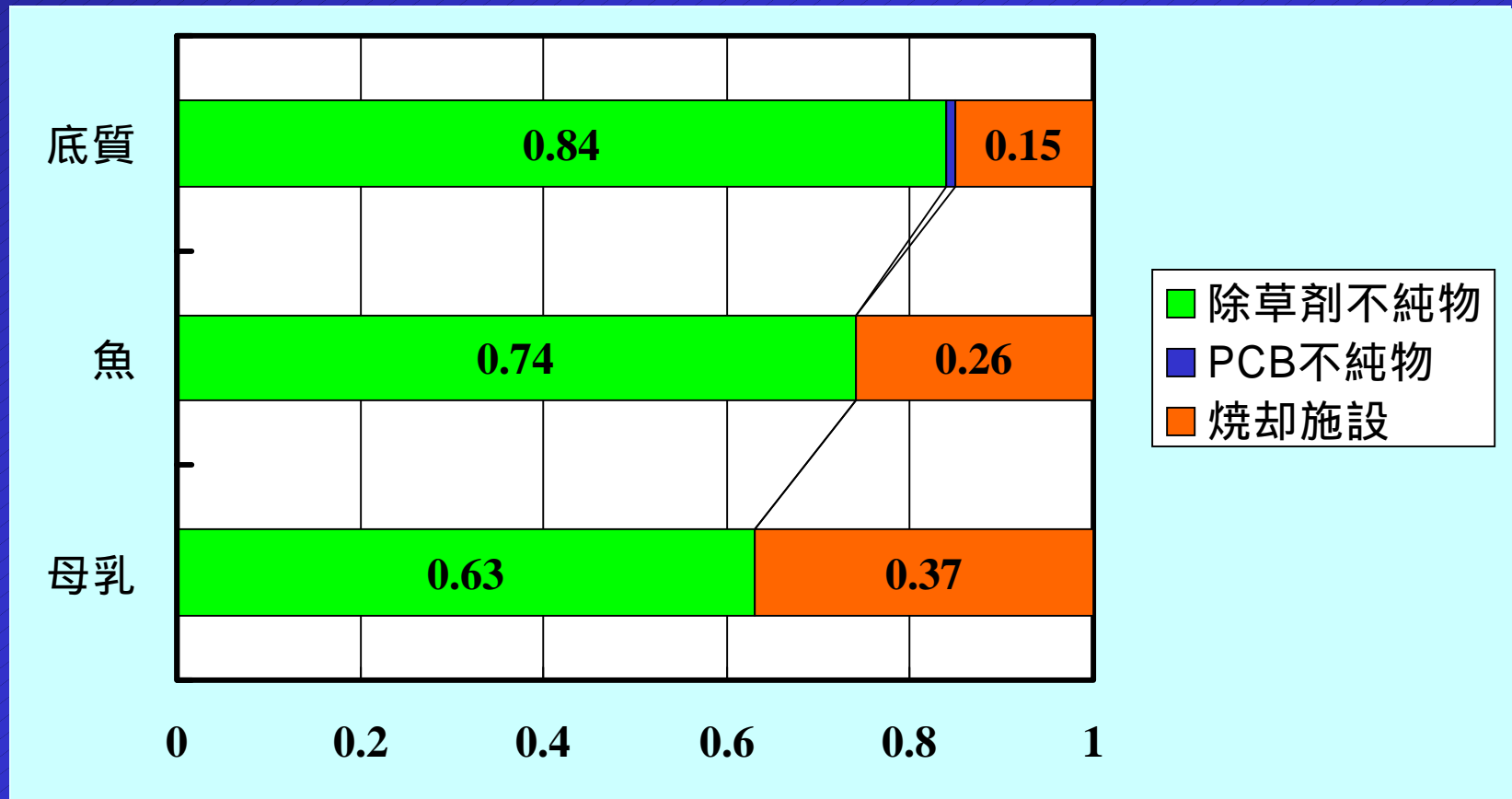


【測定データ:厚生省,1998】

底質，魚及び母乳中PCDD/Fsへの排出源寄与率

1999年に対する計算結果

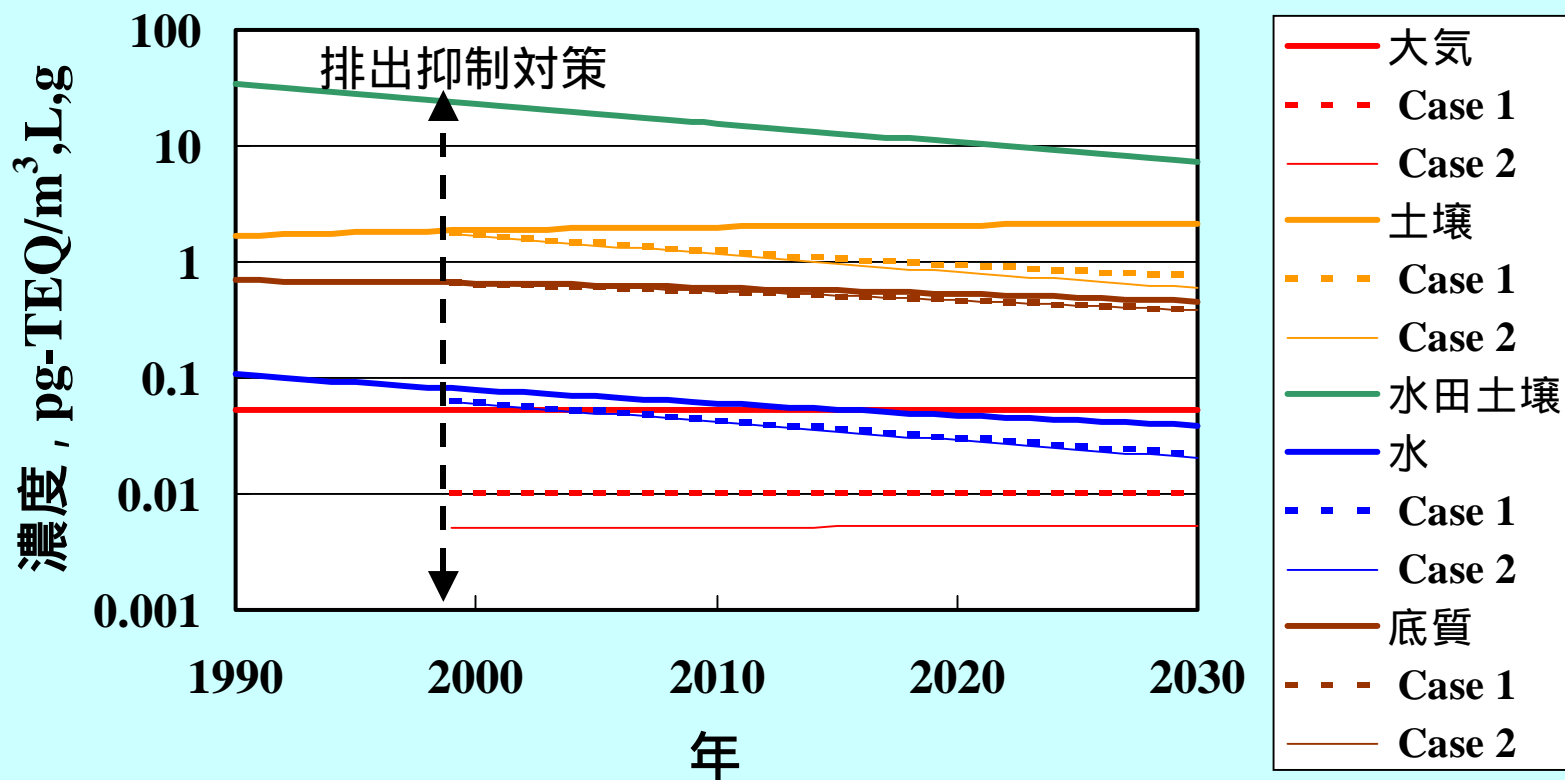
焼却施設からの排出速度が変わらなければ，2014年に母乳中のPCDD/Fsへの焼却施設と除草剤不純物の寄与率が等しくなる



排出抑制対策に伴う環境中PCDD/Fsレベルの推定

Case 1: 焼却施設排出量 5000 g/year ➔ 1000 g/year

Case 2: 焼却施設排出量 5000 g/year ➔ 500 g/year



排出抑制対策に伴うPCDD/Fsの体内負荷量 レベルの推定

27歳女性の脂肪中PCDD/Fs濃度

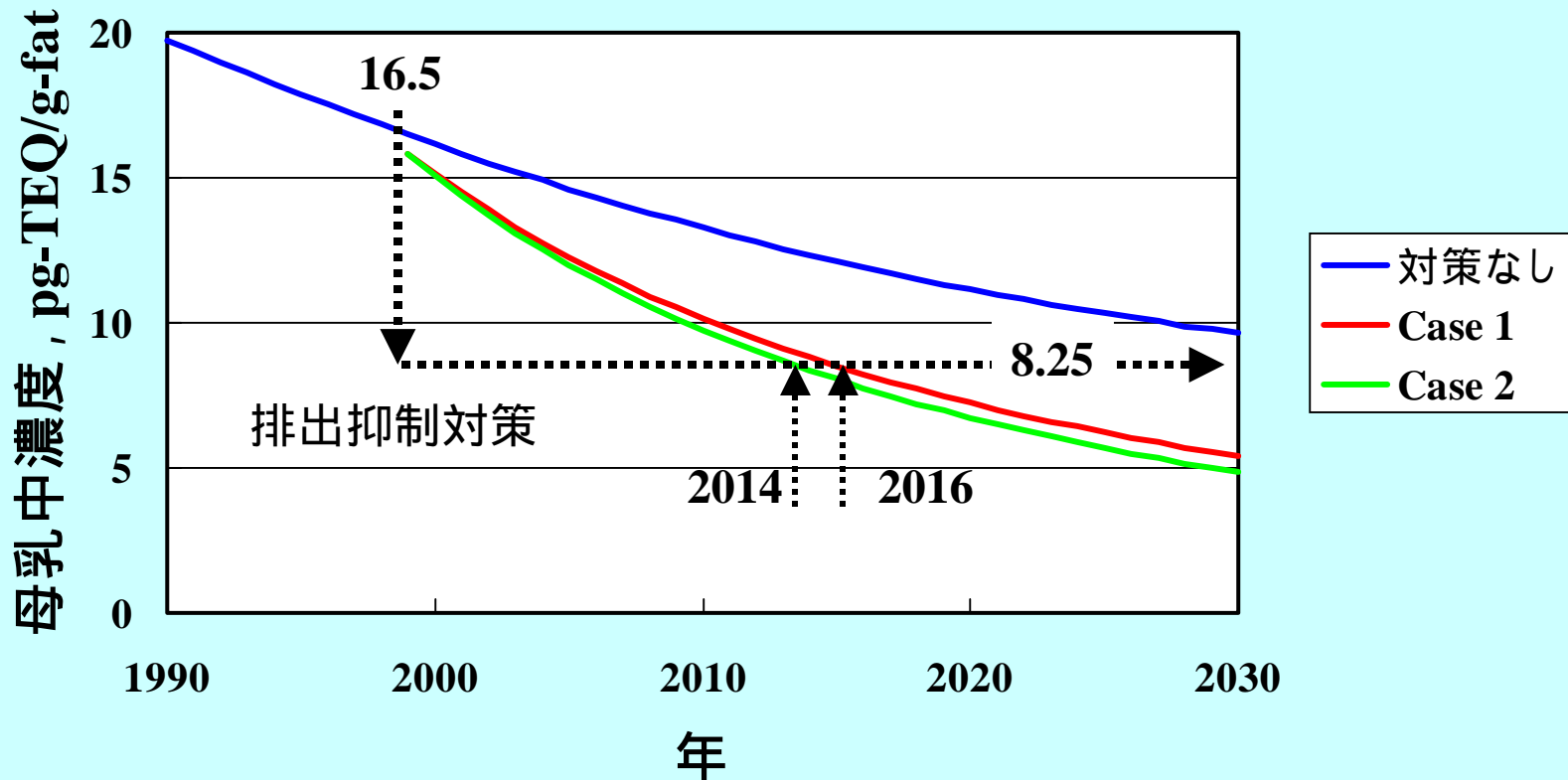
対策なし

:30年以上

Case 1

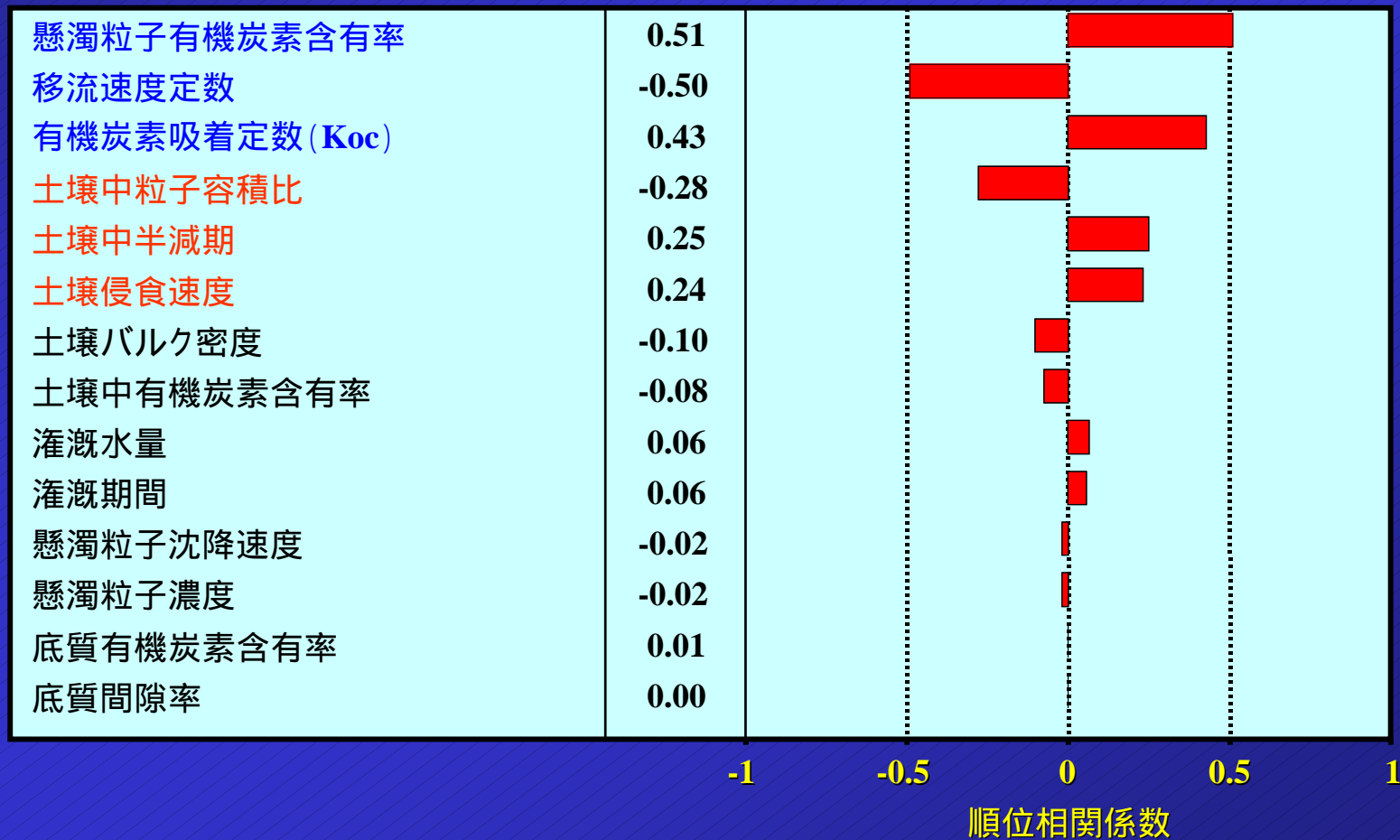
:17年, Case 2

:15年



モデルパラメータの体内負荷量に対する感度解析

水中での懸濁粒子への吸着と移流に関連するパラメータが、PCDD/Fsの現在の体内負荷量に大きな影響を及ぼす



結 論

- ◆ TEQベースのモデリング結果は、PCDD/Fsの環境中濃度、摂取量及び体内負荷量の過去及び現在のバックグラウンドレベルを妥当に推定している
- ◆ また、モデリング結果は、日本人による摂取量と体内負荷量の減少傾向を定量的に表わしている
- ◆ PCDD/Fsの排出速度を1998年の1/5に削減した場合でも、現在の日本人の負荷量を半減するには、10年以上必要と推定される
- ◆ 排出源近傍の曝露と排出源から遠く離れた場所からの曝露を評価するモデルを有効に組合せることにより、評価地域の住民に対する主要な曝露経路を決定でき、さらに、最も有効なリスク削減対策を選択することができる