

# 河川水中ダイオキシン類の発生源寄与率の推定

横浜国立大学 大学院環境情報研究院 小林憲弘, 益永茂樹

横浜国立大学 大学院環境情報研究院, 産業技術総合研究所 化学物質リスク管理研究センター 中西準子

## Source Identification of PCDD/Fs and Coplanar-PCBs in River Water

Norihiro KOBAYASHI, Shigeki MASUNAGA (Yokohama National Univ.) and Junko NAKANISHI (Yokohama National Univ. and CRM, AIST)

**1. はじめに** 近年、ダイオキシン類(PCDD/Fs 及び co-PCBs)による環境汚染が問題となっているが、日本では主要な人体曝露経路が魚介類由来である(厚生労働省, 1998)<sup>1)</sup>ことから、ダイオキシン類の研究においては水環境の調査が最も重要であると考えられる。

本研究では、多摩川および神奈川県内の4つの河川におけるダイオキシン類の測定結果および河川水中における存在形態と挙動について昨年報告した<sup>2),3)</sup>。また、ダイオキシン類の発生源の一つとして考えられている大気沈着物についても採取し、その組成を比較することで河川と大気沈着物の対応を調べた。今回は、ダイオキシン類の組成の情報を利用して、重回帰分析の手法によりその発生源寄与率の推定を行ったので報告する。日本の環境水中におけるダイオキシン類の発生源について、co-PCBsを含めて定量的に推定した例はこれまで無い。ダイオキシン類の効率的な削減には発生源の情報が必要不可欠であることから、発生源解析は非常に大きな意義を持っている。

**2. 分析方法** 試料採取地点について図1に示す。河川水および大気沈着物試料の採取は2000年7月から2002年1月に渡って行った。その採取方法と分析方法については昨年報告した<sup>2),3)</sup>ので省略する。

**3. 重回帰分析 発生源の組成** 重回帰分析には発生源の組成が必要となる。PCDD/Fsの発生源として、燃焼由来と農薬の不純物由来が考えられる。燃焼の組成には本研究により採取した大気沈着物を、農薬(PCP, CNP)の組成には Masunaga et al.(2001)<sup>4)</sup>の報告値を用いた。co-PCBsの発生源としては燃焼由来とPCB製品由来が考えられる。燃焼の組成には焼法排ガスのデータ(東京都, 2001)<sup>5)</sup>を用い、PCB製品(KC300,400,500,600)の組成には高菅ら(1995)<sup>6)</sup>, Boonyathunonondh et al.(1995)<sup>7)</sup>, Kannan et al.(1998)<sup>8)</sup>, Kim et al.<sup>9)</sup>の報告値を用いた。

**推定方法** 発生源寄与率の推定方法は以下に示す式に基づいて、河川水試料中のコンジェナー濃度に応じて加重した残差の2乗和の値を最小にするような各発生源からの寄与率を計算した。

$$\chi^2 = \sum_{i=1}^k \left( \frac{1}{C_i} \left( C_i - \sum_{j=1}^p a_{ij} S_j \right) \right)^2$$

ここで  $C_i$  はコンジェナー  $i$  の河川水中濃度、 $a_{ij}$  はコンジェナー  $i$  の発生源  $j$  ( $S_j$ ) からの寄与率、 $k$  はコンジェナーの数、 $p$  は発生源の数である。

PCDD/Fs については塩素数の違いによる環境中挙動の違いを考慮に入れる為、基本的には同族体毎に重回帰分析し、それらを集計した。co-PCBs については12コンジェナーまとめて一度に重回帰分析した。

**発生源寄与率推定結果** 重回帰分析により推定した発生源寄与率の推定結果をTEQに換算し、PCDD/Fsとco-PCBsを合わせたものを図2に示す。全ての地点において、燃焼からの寄与がTEQの81%以上を占め、その他の発生源からの寄与は非常に低いことが示された。また、地点間での発生源寄与率の違いは見られなかった。同一の河川において、TEQ自体は採取日時によって約10倍近く変動するが、発生源寄与率は殆ど変動しないことがわかった。PCB製品は、co-PCBsのみのTEQに対しては32-98%の寄与があったが、co-PCBsのTEQが

TEQ全体に占める割合は低かった為、PCDD/Fsとco-PCBsのTEQを合計した時、その寄与は2-13%と低い結果となった。

**4. まとめ** 組成情報を利用した重回帰分析によって、河川水中ダイオキシン類の発生源寄与率を明らかにした。測定した河川においては燃焼由来がTEQに対して最も寄与の高い発生源であると推定された。ただし、今回の推定は対象地域が狭く関東地方における代表的な結果を得られたとは言い難い為、今後は調査地域をより拡大し、同様の解析手法を用いて引き続き発生源寄与率推定を行っていく予定である。

**謝辞** 本研究は文部科学省産官学連携イノベーション創出事業費補助金(独創的革新技術開発研究提案公募制度)の支援を受けて行いました。

**参考文献**: 1) 厚生労働省(1999) 平成10年度「食品からのダイオキシンの一日摂取量調査」 2) 小林ら(2002) 第36回日本水環境学会講演集 311 3) 小林ら(2002) 第11回環境化学討論会講演要旨集 256-257 4) Masunaga et al.(2001) Chemosphere 44 873-885 5) 東京都(2001) 平成12年度「ダイオキシン類測定結果報告書」 6) 高菅ら(1995) 環境化学, 647-675 7) Boonyathunonondh et al.(1995) Fresenius J. Anal. Chem. 352, 561-567 8) Kannan et al.(1998) Bull. Environ. Contam. Toxicol. 41, 267-276 9) Kim et al.(in preparation)



図1 試料採取地点

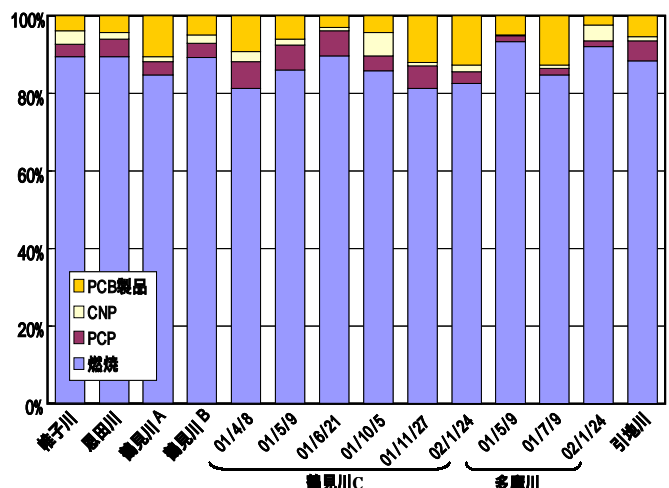


図2 PCDD/Fsとco-PCBsの合計TEQに対する各発生源の寄与率