松葉による大気調査実行委員会 御中

# 2018年度 アカマツの針葉による ダイオキシン類測定分析調査結果報告書

市民参加による松葉ダイオキシン調査実行委員会事務局 株式会社 環境総合研究所

E-mail: office@eritokyo.jp, Web: http://eritokyo.jp/ 〒 152-0033 東京都目黒区大岡山 1-31-9-401 Tel 03-6421-4610, Fax 03-6421-4611

## 1. 調査の目的

本調査の目的は、彩の国資源循環工場が周辺環境にもたらす影響を把握するものである。同工場周辺地域では 2004 年度から市民グループが継続調査を行い施設建設前後の周辺のダイオキシン類の影響を把握してきた。寄居町も 2006 年度、2007 年度に松葉によるダイオキシン調査を実施した。施設は平成 17 (2005) 年度から順次竣工し、平成 17 (2005) 年 5 月から株式会社エコ計画が、平成 18 (2006) 年 2 月からオリックス資源循環株式会社が稼動している。今回は引き続き、その後の状況を把握することを主な目的としている。同時に重金属類 12 項目の含有濃度も測定しサーマルリサイクル等の燃焼施設からの有害物質の把握を行うこととしている。(重金属類については別報告書参照のこと)

#### 2. 調査の内容

- (1)調査対象 アカマツの針葉
- (2) 対象地域 彩の国資源循環工場敷地内 ※周辺地域 (敷地外) は金属類のみ分析
- (3) 分析項目 ダイオキシン類

ポリ塩化ジベンゾパラダイオキシン(PCDD) 7 異性体及び同族体ポリ塩化ジベンゾフラン(PCDF) 10 異性体及び同族体コプラナー PCB(Co-PCB)\* 14 異性体

#### 3. 調査の方法

- 3-1 試料採取
- (1) 採取年月日: 2018年9月16日
- (2)採取者:松葉による大気調査実行委員会

# (3)採取地点:

図3-1に示した地図上の記号の通り、敷地内については A、D、F、G、J、K、H で(H は昨年度は未採取)、周辺地域(敷地外)については、あ、う、え、9、10で松葉試料を採取した。 %ただし周辺地域(敷地外)は金属類のみ分析



図3-1 敷地内サンプリング地点地図(松葉による大気調査実行委員会作成)

### 3-2 分析方法

# (1) 測定分析機関

Maxxam Analytics Inc. (カナダ・オンタリオ州) ISO/IEC Guide 25/17025 取得

Maxxam 社は 1999 年度の第 1 回松葉ダイオキシン調査の時から継続的に日本の松葉のダイオキシン分析を行っており、他地域との比較や継続性の観点からも同ラボで分析することとした。

## (2) 分析方法

本松葉調査では、摂南大学宮田研究室の研究成果から松葉を凍結乾燥し保存する方法を採用している。宮田研究室では、松葉の表皮ワックス層に存在する高塩素化ダイオキシン類が凍結乾燥及び降雨等による影響をどう受けるかについて検討している。

それによると凍結保存試料、水洗試料、未処理試料を比較すると、大きな差異は認められず、採取した松葉試料を一旦凍結乾燥したのち、低温保存することにより、腐敗、カビなどの影響を受けることなく長期保存可能なことが確認されている。カナダの分析機関に送付された松葉試料は凍結保存後、図3-2に示す手順に準拠して順次測定分析されている。

上記の分析方法を採用したのは、先行して宮田研究室が測定した松葉の測定値との整合性を保つこと、また 1999 年度以降、全国で測定された先行データとの整合性を保つことにより、測定分析方法の違いにより結果が異なることを未然に防ぐための措置でもある。

上記の分析手順に準拠すると共に、Maxxam 社が独自に開発したダイオキシン分析プロトコル (BRL SOP-00410) に基づいて分析を行った。

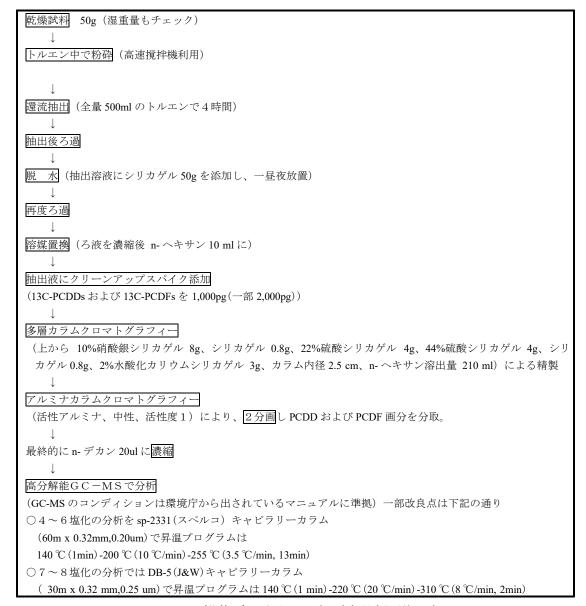


図3-2 松葉ダイオキシン類測定分析手順の概要

#### (3)精度管理·精度保証

分析の精度を管理保証するシステムとして、分析機関では取得している ISO/IEC ガイド 17025 に 準拠すると共に、カナダ政府の精度管理保証のための手順である EPS 1/RM/23 に準拠している。

#### 4. 解析及び評価方法

分析結果は次の視点から解析・評価を行うものとする。

#### (1) アカマツの針葉に含まれるダイオキシン類濃度分析結果の評価(クロマツ換算値による評価)

- ①毒性等量・実測濃度
- ②同族体パターン

## (2) 大気中のダイオキシン類濃度の推定

測定したアカマツの針葉に含まれるダイオキシン類濃度から、採取地域周辺の大気中のダイオキシン類濃度を推定する。(クロマツ換算値による推計)

## 5. 調査結果と評価

# 5-1 測定分析結果

#### (1) 毒性等量・実測濃度結果

アカマツの針葉に含まれるダイオキシン類濃度の測定結果を過去の調査と合わせて表 5-1、図 5-1に示す。本調査はアカマツを用いて行われたため、分析結果をクロマツに換算した値による評価を行う。なお、環境総合研究所が過去に行った調査より、アカマツでの分析結果を 2 倍した値がクロマツでの分析結果に相当することが明らかとなっている。

敷地内は 2009 年度 0.41pg-TEQ/g に対して 2012 年度は 3.4pg-TEQ/g と約 8 倍に大幅に上昇した。 2014 年度以降は低下したものの 2009 年度より依然として高く  $2\sim3$  倍の範囲で推移している。

敷地外は 2009 年度の 0.28pg-TEQ/g に対して、2012 年度は 0.81pg-TEQ/g (定量下限値未満の異性体が多いため定量下限値未満の数値の計上の方法によって  $0.35 \sim 1.27pg$ -TEQ/g と幅が大きい)であり上昇傾向、2014 年度は 0.41pg-TEQ/g と 2012 年度より低下した。2016 年度以降は敷地外のダイオキシン類の分析は行っておらず地域のバックグラウンド(背景)濃度は把握できていない。

敷地内外の比較では 2009 年度は敷地内が敷地外の約 1.5 倍だったのに対して、2012 年度は敷地内が敷地外の約 4.2 倍とその比が大きくなり、2014 年度は約 2.7 倍となっている。

Z Z Z Z Z Z Z Z Z Z Z Z Z Z Z Z Z Z Z										
調査	採取	実測濃度			毒性等量濃度			毒性等量濃度(クロマツ換算)		
年度	地域	[pg/g]			[pg-TEQ/g]			[pg-TEQ/g]		
		PCDD	PCDF	合計	PCDD	PCDF	合計	PCDD	PCDF	合計
2009	敷地内	14	15	30	0.13	0.28	0.41	0.26	0.56	0.82
	敷地外	18	13	31	0.059	0.22	0.28	0.12	0.44	0.56
2012	敷地内	94	90	180	1.4	2.0	3.4	2.8	4.0	6.8
	敷地外	32	34	65	0.32	0.49	0.81	0.64	0.98	1.6
2014	敷地内	43	35	78	0.41	0.69	1.1	0.82	1.4	2.2
	敷地外	26	14	39	0.13	0.27	0.41	0.26	0.54	0.82
2016	敷地内	52	39	92	0.23	0.56	0.80	0.46	1.1	1.6
2018	敷地内	18	19	37	0.44	0.49	0.92	0.88	0.98	1.8

表5-1 アカマツの針葉に含まれるダイオキシン類濃度及びクロマツ換算値

四捨五入し有効数字2桁表記したため合計が一致しない場合がある。

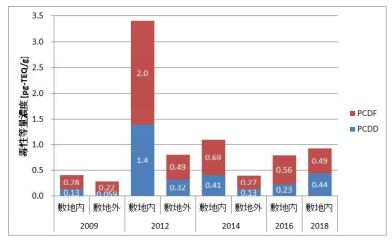


図5-1 毒性等量濃度の比較

次に、PCDD と PCDF の割合を比較する(図 5-2)。2016 年度まで PCDF の割合は約  $60\sim80\%$  と高い。PCDF の割合が高いのは焼却由来を示す特徴である。2018 年度の敷地内は PCDF の割合が低下し焼却由来の特徴が薄まっている。

注) ND 処理方式は、WHO 方式 (ND=1/2MDL)を採用

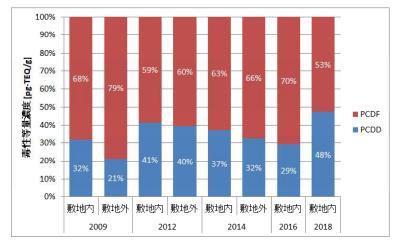
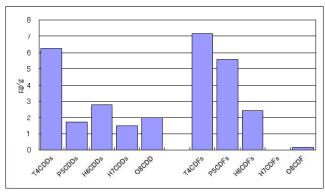
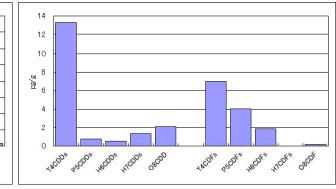


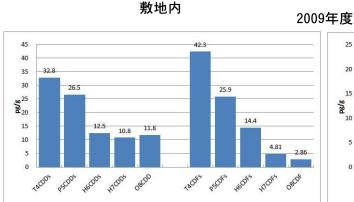
図5-2 PCDDとPCDFの割合

# (2) 同族体パターン分析

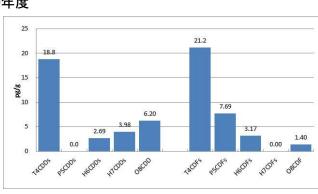
次に、両地域の同族体パターン(塩素数ごとの実測濃度のパターン)を図5-3に示す。



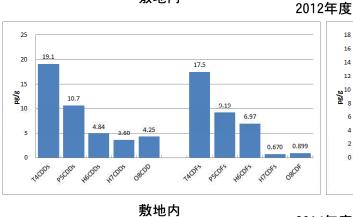


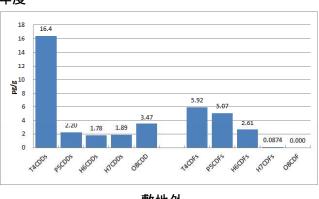


敷地内

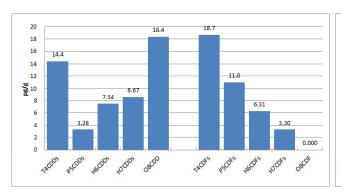


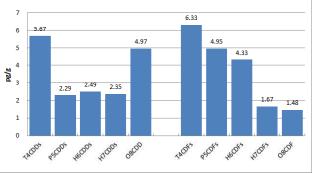
敷地外





敷地外





2016年度 敷地内

図 5 - 3 同族体パターン

2018年度 敷地内

グラフの左側半分が PCDD、右側が PCDF の同族体毎の濃度である。両地域を比較すると PCDD は、2014 度までは敷地内は右肩下がりの傾向を示したが、2016 年度は 4 塩化ダイオキシン(T4CDD)が突出して高くそれ以外は、 5 塩化ダイオキシン(P5CDD)から 8 塩化ダイオキシン(O8CDD)にかけて右肩上がり、2018 年度は O8CDD を除く 3 つが横ばいである点が異なっている。

一方、PCDF は、いずれの年度も敷地内・敷地外ともに、4塩化フラン (T4CDF) から8塩化フラン (O8CDF) にかけて右肩下がりとなっているものの、敷地内の方がより右肩下がりが顕著に見られ、焼却由来であることがより強く表れている。(敷地外は2014年度まで)

全体としてみると毒性等量濃度が最も高かった 2012 年度の敷地内の同族体パターンが典型的な焼却由来であった。2014 年度の敷地内は 2012 年度ほど PCDF が高くないものの、焼却由来の傾向は依然として強い。2016 年度、2018 年度は焼却由来の典型的なパターンから離れ、農薬系等別の要因の影響が推察される。

#### (3) 大気環境濃度の推計

次に、今回測定したアカマツの針葉に含まれるダイオキシン濃度から大気中のダイオキシン類濃度を推計した。クロマツの場合、針葉のダイオキシン類濃度のおよそ 1/10(ただし針葉中の単位は [pg-TEQ/g]、大気換算後の単位は $[pg-TEQ/m^3]$ )として算出する。本調査はアカマツで行ったため、クロマツ換算値(表 5-1)を用いて算出した。

Co-PCB については 2012 年度の敷地内についてのみ調査を実施し、その結果、Co-PCB の割合は一般的な割合と比較して突出して高かったことから、実際に Co-PCB の分析を行った 2012 年度の敷地内は実測した Co-PCB を用い、他はダイオキシン類に占める Co-PCB の割合を 2 割と仮定(一般的な割合の範囲内)した。なお、Co-PCB 濃度のアカマツとクロマツの比は把握していないが、2012 年度はアカマツにおける毒性等量濃度をそのまま用いた。

表5-2 アカマツに含まれるダイオキシン類濃度から推計した大気中のダイオキシン類濃度

調査	採取	松葉中毒性	大気中濃度				
年度 地域		PCDD+PCDF	Co-PCB **	合計	換算值		
		クロマツ換算			[pg-TEQ/m <sup>3</sup> ]		
2009	敷地内	0.82	0.21	1.0	0.10		
	敷地外	0.56	0.14	0.70	0.070		
2012	敷地内	6.8	4.9	12	1.2		
	敷地外	1.6	0.40	2.0	0.20		
2014	敷地内	2.2	0.55	2.8	0.28		
	敷地外	0.82	0.21	1.0	0.10		
2016	敷地内	1.6	0.40	2.0	0.20		
2018	敷地内	1.8	0.45	2.3	0.23		
2010 7525 1 1.0 0.70 2.0 0.20							

注)ND 処理方式は、WHO 方式(ND=1/2MDL)を採用

四捨五入し有効数字2桁表記したため合計が一致しない場合がある。

※ 2012 敷地内は測定値、他は Co-PCB のダイオキシン類合計に対する割合を 2 割とした。

上記より、2018 年度調査の敷地内の大気中のダイオキシン類濃度は 0.23pg-TEQ/m³ 程度と推定される。なお、2012 年度の敷地内は 1.2pg-TEQ/m³ 程度と推定され環境基準(年間平均値で 0.6pg-TEQ/m³ 以下)を大幅に上回っている可能性が高かった。

世界保健機構(WHO)では TDI(耐容1日摂取量)について 4pg-TEQ/体重 kg・日を暫定的な最大耐容摂取量、最終的な目標は 1pg-TEQ/体重 kg・日としている。EU 委員会では 2001 年に TWI すなわち1週間の耐容摂取量を 14pg-TEQ/体重 kg・週としている。1 日換算では 2pg-TEQ/体重 kg・日である。2pg-TEQ/体重 kg・日の場合には大気環境基準は 0.3pg-TEQ/m³、1pg-TEQ/体重 kg・日の場合には 0.15pg-TEQ/m³ に変更されることとなる(日本の TDI が 5pg-TEQ/体重 kg・日から 4pg-TEQ/体重 kg・日に見直された際には、比例して大気環境基準が 0.8pg-TEQ/m³ から 0.6pg-TEQ/m³ に変更となった)。ちなみにアメリカでは食べ物が対象であるが 0.7pg-TEQ/体重 kg・日を参照値としている。

日本が採用している TDI は現行の最も高い値である 4pg-TEQ/体重 kg・日で、最も緩い。 TDI を厳しくすることは予防原則の面からも推奨されるべきである。こういった世界的動向をにらみ、調査対象地域の大気中ダイオキシン類濃度が日本の大気環境基準値未満であったとしても満足せず、少なくとも常に 0.30pg-TEQ/ $m^3$  もしくは 0.15pg-TEQ/ $m^3$  を下回ることを目指すため、監視を行い改善を行うことが重要である。

2018 年度の大気中濃度推計値 0.23pg-TEQ/m³ は、現行の日本の環境基準は下まわっているものの、依然として 0.15pg-TEQ/m³ を超えていることから、これらの点からみると十分に低いとは言えない。

# (4) 大気環境濃度推計値の全国調査との比較

2018 年度の松葉調査 (2018 年 9 月採取) は 2016 ~ 2017 年度 (平成 28 ~ 29 年度) を対象としていることから 1 年ずれるが、現時点で公表されている最新の環境大気中のダイオキシン類濃度である 「平成 28 年度 ダイオキシン類に係る環境調査結果」 (平成 30 年 3 月環境省) (https://www.env.go.jp/chemi/dioxin/report/h30-01.pdf) を参照する。

全国 705 地点のうち、年間 2 回以上測定を行った 642 地点の平均濃度が 0.018pg-TEQ/m³(最小値 0.0034 ~最大値 0.27pg-TEQ/m³)であった。そのうち一般環境は、年 2 回以上測定を行った 493 地点の平均値が 0.017pg-TEQ/m³(最小値 0.0034 ~最大値 0.17pg-TEQ/m³)、発生源周辺は、同じく年間 2 回以上測定を行った地点数 125 地点の平均値が 0.021pg-TEQ/m³(最小 0.0038 ~最大 0.27pg-TEQ/m³)であった。

本調査により松葉中ダイオキシン類濃度から推計した大気中ダイオキシン類濃度、敷地内: 0.23pg-TEQ/m³ は、全国平均と比較して敷地内は約10倍ときわめて高く、発生源周辺の最大値に近いレベルであることがわかる。

同調査より、埼玉県比企郡小川町の測定値を見ると、年2回測定の平均値が0.013pg-TEQ/m³(最小0.010~最大0.015pg-TEQ/m³)と報告されており、調査時期にずれはあるが、これらの調査結果と比較すると、敷地内では比企郡小川町の約18倍程度と高いことがわかる。

一方、発生源周辺調査では、熊谷市三ヶ尻で測定が行われており、その結果は年 4 回測定の平均が 0.058pg-TEQ/m³(最小が 0.017 ~最大 0.10pg-TEQ/m³)となっており、今回の結果は彩の国資源循環工場敷地内の濃度が熊谷市三ヶ尻の平均濃度よりさらに高いレベルであることが分かった。

ただし、行政による大気中ダイオキシン類濃度の測定は年間二季2日あるいは四季4日の調査であるため、必ずしも年間平均値を反映しているとは言えない。また、同調査には寄居町での測定データは記載されていない。

図5-4に全国の大気調査の全国平均と本調査による推計値の経年変化を示す。松葉調査は、実施年の前年度の位置に、定量下限値未満の処理の方法による幅(縦棒)を合わせて示した。

松葉調査からの推計値のうち、敷地外の下限値(縦棒の下端)は、2003 年度の全国平均程度であり、差が小さいことが分かるが、その後全国平均が低下するにつれ、敷地外との差が開いてきた。

ちなみに特定の発生源の影響を受けにくい地域の場合には、大気調査と松葉調査からの推計値はおおむね同程度となることが、他地域の調査等から確認されている。

一方、敷地内は全国平均と比較して突出して高いことが分かる。2011 年に最も高く、その後低下傾向にあるものの依然として全国平均よりはるかに高い濃度である。全国平均は年々低下傾向であるが、敷地内濃度は2013 年以降横ばいであり改善が見られない。

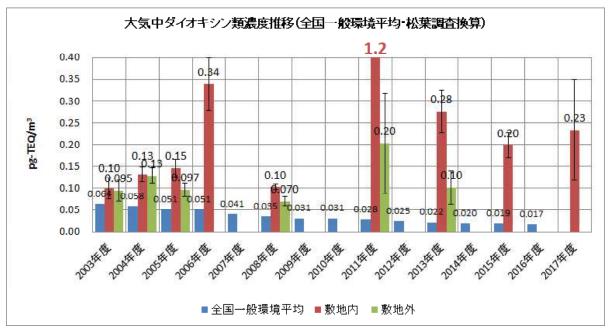


図5-4 全国の大気中ダイオキシン類濃度および本調査による松葉からの推計値推移

資料:全国平均「平成28年度ダイオキシン類に係る環境調査結果報告書」(環境省)

※「敷地内」「敷地外」の縦棒は、定量下限値未満の値の処理方法による幅を示している

#### (5) 大気環境濃度推計値の敷地境界調査結果との比較

なお、埼玉県は、環境整備センター敷地境界上及び敷地境界の外側7地点においても年4回1週間ずつダイオキシン類の測定を行っている。松葉調査に相当する時期(2017年秋から1年間)のデータを表5-3に示す。

表5-3 彩の国資源循環工場運営協定に基づく環境調査結果(2017年度後半~2018年度前半)

	大気中ダイオキシン類濃度						
測定場所	(単位:pg-TEQ/m³)						
	2017年	2017年	2017年	2018年	平均值		
	10 月	1月	5 月	8月			
No.1 オリエンタル火工(株)所有地前	0.0052	0.020	0.0069	0.0071	0.0098		
No.2 蔵田地区内	0.0051	0.022	0.0072	0.0050	0.0098		
No.3 天神社内	0.0050	0.030	0.0080	0.0078	0.013		
No.4 深田地区内	0.0049	0.021	0.0057	0.0074	0.0098		
No.5 埼玉県立小川げんきプラザ内	0.0050	0.024	0.0084	0.0089	0.012		
No.6 五ノ坪集落農業センター	0.0034	0.017	0.0062	0.0073	0.0085		
No.7 平倉住宅脇	0.0049	0.019	0.0035	0.0071	0.0086		

出典:埼玉県 HP (https://www.pref.saitama.lg.jp/b0509/junkankoujou/kekka.html) をもとに作成

7地点の全平均値は 0.010pg-TEQ/m³、濃度範囲は  $0.0085 \sim 0.013$ pg-TEQ/m³ となっている。ただし年間四季 4 日の調査であるため、必ずしも年間平均値を反映しているとは言えない。

今回測定した彩の国資源循環工場敷地内及び周辺地域の大気中ダイオキシン類濃度は、敷地内: 0.23pg-TEQ/m³ と推定され、協定に基づく周辺地域の測定結果の平均値(0.010pg-TEQ/m³)を大幅に超えていることが分かった。

測定方法の差違について言えば、松葉は年間を通じてダイオキシン類を炭酸同化作用により呼吸

し、松葉中に蓄積し大気中濃度に応じて平衡に達していると考えられる濃度を測定しているため、 年4回の測定と比較して、より正確に現状を反映していると考えられる。

## 5-2 発生源との関係

PCDF の割合や同族体パターンなどから今年度の調査結果は焼却の影響を大いに受け、しかも年間平均濃度としては環境基準を上回っている可能性がきわめて高いと言える。

施設内のサーマルリサイクル施設のうち、オリックス資源循環株式会社(以下「オリックス」とする)と株式会社エコ計画(以下「エコ計画」とする)の施設は自身の HP で排ガス中ダイオキシン濃度を公表している。

オリックスでは 0.00000036ng-TEQ/m³N と報告されており、法令規制値 0.1ng-TEQ/m³N を大幅に下回っている。(https://www.orix.co.jp/resource/)

エコ計画は、二ヶ月おきに煙突排気口で排ガス測定を行っている。2018/1/20(2 号炉)および 2018/1/27(3 号炉)のダイオキシン類の測定値は、それぞれ 0.0046ng-TEQ/m³N、0.000029ng-TEQ/m³N と報告されており、規制値を大幅に下まわっている。(https://www.eco.co.jp/nature/)

ただし、これらの濃度はあくまでも排ガス中ダイオキシン類濃度の測定のために排ガスを採取した4時間程度の平均値であり、この方法では日常的にこの排ガス濃度が維持されているか確認することはできない。

## 5-3 まとめ

彩の国資源循環工場敷地内及び周辺地域において松葉(アカマツ)の採取を行い、このうち敷地内のみダイオキシン類の分析を行った。分析結果は毒性等量濃度で 0.80pg-TEQ/g となった。

この結果のクロマツ換算値から推計した大気中濃度が 0.23pg-TEQ/ $m^3$ (WHO 方式の場合)であった。

今回は敷地内のダイオキシン類調査を行わなかったため敷地内外の比較はできないが、敷地内では環境基準相当レベルの2倍となった 2012 年度の後に低下し、2014 年度以降、本年度まで横ばいであるものの、依然として敷地内では顕著に濃度が高く、全国平均や周辺地域と比較して大幅に高いことが分かった。

ただし PCDD・PCDF の割合や同族体パターンや異性体の分布を見ると、調査対象地域は焼却の影響を受けていたのが、直近の 2014 年度 、2018 年度は焼却由来の特徴が弱まり、焼却以外の影響も合わせて受けていることが示唆される同族体パターンであった。

市民グループによる 2009 年度までの調査では焼却の影響は示唆されたものの環境基準を大幅に下回る値であった。しかし 2011 年~ 2012 年にきわめて高濃度のダイオキシンが排出され敷地内のダイオキシン汚染が大幅に上昇し、年間平均では環境基準を上回った可能性がある。この後、大幅に改善されたものの依然として相対的に高い水準にあることが明らかとなった。

敷地における大気汚染濃度調査結果には大きな変化がないことから、常に高濃度のダイオキシン類が排出されていたということではなく、濃度の変化が大きく環境大気調査や排ガス調査を行っていない時に排ガス中のダイオキシン類濃度が非常に高い濃度になっていた可能性が高いものを思われる。

このような高濃度となった原因を焼却物、維持管理、施設の状態等を含めて、施設を一旦停止して早急に解明し根本的な対策を行う必要がある。