

| | |
|----------|-----------------------------------|
| 氏名 | 佐藤圭輔 |
| 学位(専攻分野) | 博士(工学) |
| 学位記番号 | 工博第2640号 |
| 学位授与の日付 | 平成18年3月23日 |
| 学位授与の要件 | 学位規則第4条第1項該当 |
| 研究科・専攻 | 工学研究科環境地球工学専攻 |
| 学位論文題目 | 流域圏を対象にしたダイオキシン類の蓄積量と起源および流出挙動の推定 |

論文調査委員 (主査) 教授 松井三郎 教授 藤井滋穂 教授 中北英一

論文内容の要旨

本論文は、以下に述べる三つの目的について成果をとりまとめたものである。第一の目的は、流域土壌におけるダイオキシン類蓄積量の評価とその起源の推定である。第二の目的は、河川水におけるダイオキシン類の流出負荷量の推定とした。また、第三の目的は、琵琶湖底質におけるダイオキシン類の蓄積量とその起源の推定とした。それぞれの目的に対して琵琶湖流域を対象とした大規模な実測調査が実施され、また、ダイオキシン類の分析手法には主にバイオアッセイ (CALUX Assay) 法を用い、この結果に基づいて解析を行った。本論文は全7章で構成され、各章の内容を以下にまとめる。

第1章は、ダイオキシン類の環境挙動を流域単位で評価することの必要性を述べ、研究の背景、目的および構成を示している。

第2章では、GISの有効性や近年の動向、流域環境データの分類などを説明し、また、流域界については目的に応じて適切に作り分ける方法を示した。本研究の対象流域である野洲川、安曇川および姉川流域の地形・土地特性を抽出した結果、野洲川流域には、その他の流域に比べて水田の占有面積が大きく、焼却施設も多く分布していることなどから、ダイオキシン類の潜在汚染度が大きいと予測された。

第3章では、本研究で実施された多くの実測調査について地点や方法、分析項目などを詳しく説明した。特に、本研究で用いられたダイオキシン類の定量手法 (CALUX Assay 法) については、HRGC/HRMS法との違いについて、分析方法や結果などを比較しながら説明した。

第4章では、琵琶湖流域の陸域土壌 (森林土壌、水田土壌など) を対象にして実施されたサンプリング調査およびその分析結果をもとに、ダイオキシン類の流域土壌への蓄積状況やその起源および空間分布などを定量的に評価した。その結果、水田土壌におけるダイオキシン類濃度は、当該物質を含む農薬の散布によって、森林土壌のそれよりもかなり高い値となった。この起源予測については、HRGC/HRMS法を用いたダイオキシン類の同族・異性体分布の解析結果からも裏付けられた。一方、森林土壌におけるダイオキシン類濃度は有機炭素含有率との間に比例関係が確認されたが、その傾きは、流域ごとに異なっていた (野洲川流域: 約 1,080gTEQ/gOC, 安曇川流域と姉川流域: 約 670gTEQ/gOC)。この傾きの違いはダイオキシン類の大気濃度や沈着量の空間分布 (実測値とモデル推定値) によって説明できることが分かった。

第5章では、野洲川における河川水中ダイオキシン類の流出負荷量 (経時変化) を実測調査と水文水質挙動解析モデル (BASINS-HSPF) による解析結果に基づいて推定した。実測調査は、代掻き時、降雨流出時および晴天時において実施され、ダイオキシン類濃度は懸濁態と溶存態に分画して分析された。一方、水文水質挙動解析モデルについては、野洲川流域への適用を通じてデータ整備からパラメータ推定に至るまでの一連の解析手順がとりまとめられた。推定の結果、ダイオキシン類流出負荷量の予測平均値は 3.33gTEQ/year (2005年, 野洲川中流)、負荷量推定式における各パラメータの設定値によっては 0.57~18.99gTEQ/year 程度の範囲を持つことが分かった。存在形態に着目すると懸濁態ダイオキシン類の占める割合が大きく (>9割)、また、流出形態に着目すると降雨流出の割合 (7~8割) が大きい結果となり、溶存態ダイ

オキシシン類や晴天時の流出負荷量は極めて少ないことが明らかとなった。負荷量の推定に際しては、有機炭素あたりのダイオキシシン類濃度と懸濁物質濃度の推定精度が負荷量推定値を大きく左右するため、その適切な設定が重要であることが分かった。

第6章では、琵琶湖底質（鉛直コア、空間分布など）を対象にして実施されたサンプリング調査およびその分析結果をもとに、ダイオキシシン類の琵琶湖底質への蓄積状況やその起源および空間分布などを定量的に評価した。鉛直コアの分析結果からは、過去（1980年頃から2000年頃）に流出・蓄積したダイオキシシン類の汚染レベルが大きく、近年は減少傾向であることが分かった。過去の汚染起源としては、幾つかの解析結果（①農業由来のダイオキシシン類を考慮した水田土壌濃度の経年変化予測、②水田土壌における有機炭素あたりのダイオキシシン類濃度特性、③水田土壌におけるダイオキシシン類の同族・異性体分布特性）から水田土壌の影響が大きいと予測された。また、湖岸底質のダイオキシシン類汚染レベルは、特定の集水域からの影響を強く受けるために、場所によって異なることが確認される一方、表層底質の分析結果から、沖に出るほど集水域の影響が混合・攪乱されるために、その汚染レベルが類似する傾向も確認された。

これらの結果に基づいて、琵琶湖底質への蓄積量を推定した結果、約9.6kg TEQとなった。一方、森林土壌と水田土壌におけるダイオキシシン類蓄積量は、それぞれ3.1, 14.4kg TEQ程度と推定されたことから、近年の河川流出負荷量や大気排出量・沈着量に比べて大きな蓄積となっていることが明らかとなった。

第7章では、本論文で得られた成果をとりまとめ、今後の展望について示した。

論文審査の結果の要旨

本論文は、流域圏（琵琶湖流域）における様々な媒体を対象にしてダイオキシシン類の蓄積量やその起源、流出挙動などを実測調査とモデル推定によって明らかにしたものであり、得られた主な成果は以下の通りである。

1. GIS（地理情報システム）を用いて、流域界を作成する方法を構築し、野洲川、安曇川および姉川流域において地形・土地特性の抽出を行った。その結果、野洲川流域は、その他の流域に比べて焼却施設が多いなど、ダイオキシシン類の潜在汚染度が高いことを示した。
2. 水田土壌におけるダイオキシシン類濃度は、当該物質を含む農薬の散布によって、森林土壌のそれよりもかなり高い値となった。一方、森林土壌におけるダイオキシシン類濃度は、有機炭素含有率との間に比例関係が確認されたが、この傾きは流域によって異なることが明らかとなった。この傾きの違いはダイオキシシン類の大気濃度や沈着量の空間分布（実測値とモデル推定値）によって説明できることが分かった。
3. 野洲川における河川水中ダイオキシシン類の流出負荷量（経時変化）を実測調査と水文水質挙動解析モデル（BASINS-HSPF）による解析結果に基づいて推定した。その結果、流出負荷量の予測平均値は3.33gTEQ/year（2005年、野洲川中流地点）、パラメータの設定値によっては0.57~18.99gTEQ/year程度の範囲を持つことが分かった。存在形態に着目すると懸濁態ダイオキシシン類の占める割合が大きく（>9割）、また、流出形態に着目すると降雨流出の割合（7~8割）が大きい結果となった。
4. 琵琶湖底質（鉛直コア、空間分布）の分析結果から、集水域汚染の歴史的変遷やその起源影響が地点や深さによって異なることを示した。この結果に基づいて、琵琶湖底質への蓄積量を推定した結果、9.6kg TEQ程度となった。一方、森林土壌と水田土壌におけるダイオキシシン類蓄積量は、それぞれ3.1, 14.4kg TEQ程度と推定されたことから、近年の河川流出負荷量や大気排出量・沈着量に比べて大きな蓄積となっていることが明らかとなった。

以上を要するに、本論文は、流域圏におけるダイオキシシン類の蓄積量や起源を推定し、その挙動を定量的に評価したものである。これらの成果は、ダイオキシシン類問題の将来の動向を予測する上で、学術上、實際上寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士（工学）の学位論文として価値あるものと認める。また、平成18年2月17日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認めた。