

リスクアセスメントに基づいた土壤・地下水複合汚染の現場ごとの浄化目標値設定手法に関する検討

藤長愛一郎¹・松久裕之²・ 笹本謙³・吉田幸司⁴

¹正会員 工修 M.S. 鴻池組 土木本部技術部 (〒541-0057 大阪市中央区北久宝寺町3-6-1)

E-mail : fujinaga_ai@konoike.co.jp

²鴻池組 土木本部技術部 (〒541-0057 大阪市中央区北久宝寺町3-6-1)

³正会員 M.S. 鴻池組 土木本部技術部 (〒541-0057 大阪市中央区北久宝寺町3-6-1)

⁴正会員 工修 鴻池組 土木本部技術部 (〒541-0057 大阪市中央区北久宝寺町3-6-1)

人の健康リスクに基づいた土壤・地下水汚染の浄化濃度レベルを設定する手法について検討した。今回提案した浄化目標値設定手法は、現場に特有の条件、有害物質濃度の土-地下水-表流水中の相関および複数の有害物質による総合のリスクを考慮でき、この手法を用いて複数の有機塩素化合物で汚染された現場を例に各物質の浄化目標値を算出した。算出した浄化目標値は、住宅地で井戸水を飲料水として使用する場合には日本の環境基準値と同等の値となり、井戸水を飲料水として使用しない場合には使用する場合の数十倍以上の値となり、また工場用地の場合には住宅地の数倍高い値となった。

Key Words : remediation goals, risk assessment, site condition, chemical mixtures

1. はじめに

近年、土壤・地下水汚染が、欧米諸国に続き、日本においても注目をあびるようになってきており、対策の必要性が高まっている^{1), 2)}。対策が必要なレベルとは、人の健康や生態系に影響を与えるレベルのことであり、このレベルは有害物質の濃度だけでなく、汚染現場の土地用途（住宅地、工場・商用地など）や条件（地下水の利用、川の有無など）に依存する。

日本の場合、土壤・地下水汚染の有無の基準となるのは環境基準値であり、土地の用途や条件に関係なしに、農地や鉱山などの例を除いて、日本全域で同じ値が適用されている。一方、米国やオランダなどでは、汚染が人の健康に与える影響を、リスクアセスメントによって土地の用途や使用状況を考慮して、現場ごとに浄化の必要性を判断している^{3), 4)}。

日本のような全国一律の環境基準は、有害物質を調査さえすれば汚染の有無を判断できるというメリットがあるが、この基準を用いて浄化対策を行った場合、現場の状況を考慮できないので、過剰な浄化となる可能性があり、コスト面でのデメリットとなる。一方、米国などのように現場ごとにリスクアセスメントを行って汚染の判断をすれば現場の状況を考慮できるが、調査のたびに

リスクの計算を行わなければならない。そこで、リスクアセスメントに基づいた浄化目標値設定手法を確立し、前もって浄化目標値を設定しておけば、その値で汚染レベルを評価することが可能となる。

浄化目標値を算出するには、有害物質の人への許容摂取量を土壤や地下水中の濃度に逆算すればよいが、逆算できるのは単一の媒体が単一の有害物質で汚染されているケースに限られる。土壤と地下水がともに汚染されていたり、複数の有害物質で汚染されていたりする場合には、各々の有害物質の浄化目標値は逆算できない。複数の有害物質の浄化目標値設定方法として、浄化方法ごとに濃度減少を予測して浄化目標値を設定する方法を筆者らが報告している⁵⁾が、この方法は将来の環境リスクを考慮できるものの、浄化工法ごとに数式モデルによる計算が必要となる。

そこで本論文では、リスクアセスメントの概念に基づいた浄化目標値を設定するにあたって、現場ごとにリスク計算を行わなくとも、現場に特異な条件をフロー図から選択することによって浄化目標値が設定できる手法を考案した。また、現場のリスクを計算するうえで、①現場に特有な条件、②有害物質濃度の媒体（土壤、地下水、表流水）中での相関、また③複数の有害物質による総合リスクを考慮した。そして、テトラクロロエチレン

(PCE), トリクロロエチレン(TCE), cis-1,2-ジクロロエチレン(cDCE)で複合汚染された現場を例に、各物質の浄化目標値を算出した。

2. リスクアセスメントの概念

リスクアセスメントとは、有害物質が人の健康に与えるリスクを、有害物質の濃度と曝露経路から計算した摂取量とその毒性から、数値として算出する手法である。その計算・評価方法にはいくつもあるが^{3,4)}、基本的な概念はどれも同じである（図-1）。日本では、ダイオキシン類の土壤環境基準値が、土壤に関するリスクアセスメントの概念に基づいて設定されている⁵⁾。本論分のリスク計算式には、米国環境保護局(USEPA)の手法³⁾を基本として用いた。

(1) 有害物質の摂取量算出

摂取量を計算するためには、汚染現場の有害物質の種類と濃度、およびその有害物質に曝露する経路を調べる必要がある。そして、曝露経路ごとに摂取量を計算してリスクを算出する。例として飲料水による有害物質の摂取量の基本的な計算式を式(1)に示す³⁾。

$$I = \frac{C_{GW} \cdot I_W \cdot Ef \cdot Ed}{Bw \cdot At} \quad (1)$$

ここで、 I ：有害物質の摂取量 (mg/kg·day), C_{GW} ：有害物質の地下水中濃度 (mg/L), I_W ：飲料水の日摂取量 (L/day), Ef ：摂取頻度 (day/year), Ed ：摂取期間 (year), Bw ：体重 (kg), At ：影響期間 (day)

(2) リスク算出

有害物質の摂取量を計算した後は、有害物質に特有の毒性に応じて病気になるリスクを算出する。人の健康に影響を及ぼすリスクは、癌以外の発病危険度と発癌リスクに分けて算出される。

a) 癌以外の発病危険度

癌以外の病気に関しては発病にいたる閾値があるとして、有害物質の摂取量が発病の閾値を超えると発病の危険があると評価する。1種類の有害物質による癌以外

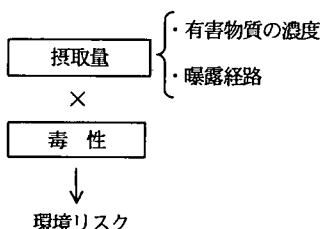


図-1 リスクアセスメントの概念図

の発病の危険度は以下の式(2)で表すことができる³⁾。

$$HQ_i = \frac{I}{RfD_i} \quad (2)$$

ここで、 HQ_i ：有害物質 i による癌以外の発病危険度, RfD_i ：有害物質 i の発病の閾値 (mg/kg·day)

複数の有害物質が存在する場合は、式(2)で計算した各物質の危険度を足し合わせて合計の危険度 (hazard index, HI)を求める(式(3))。 HI が1より大きい場合は、発病する可能性が高いことを示す³⁾。

$$HI = \sum_{i=1}^n HQ_i \quad (3)$$

ここで、 HI ：有害物質 n 種類の合計の発病危険度 (有害指標) である。

b) 癌リスク

発癌のメカニズムは複雑であり、遺伝子に直接作用する場合とそうではない場合、また数段階で作用する場合などがあり、単純な量反応関係で表せない場合も知られている^{7,8)}が、リスクの計算を実行するという目的上、発癌物質による発癌リスクは摂取量に比例するとした式(4)を用いる³⁾。

$$Risk_i = I_i \times Sf_i \quad (4)$$

ここで、 $Risk_i$ ：有害物質 i の発癌リスク, Sf_i ：有害物質 i の発癌係数 (mg/kg·day)⁻¹である。

複数の発癌物質が存在する場合は、式(4)で計算した各々の物質による発癌リスクを足し合わせて合計の発癌リスク($Risk_T$)を求める(式(5))³⁾。

$$Risk_T = \sum_{i=1}^n Risk_i \quad (5)$$

$Risk_T$ が 1×10^{-5} の場合は一生涯において発癌する確率が 10^{-5} （10万人に1人）であることを示し、この値はWHOの飲料水や日本の水道水質基準などを設定する際に使用されている許容リスク値である⁹⁾。米国ではスーパーファンド法によって浄化されるサイトの許容リスク値が 10^{-4} 程度とされている³⁾。

3. 浄化目標値設定手法

(1) 曝露ケースの設定

a) 汚染現場の曝露経路

有害物質の摂取量は曝露経路ごとに計算されるので、まず曝露経路を設定する必要がある。そこで、汚染現場特有の条件（井戸の使用状況、川・湖沼の有無、土壌の露出の有無）に対応する曝露経路をフロー図（図-2）を

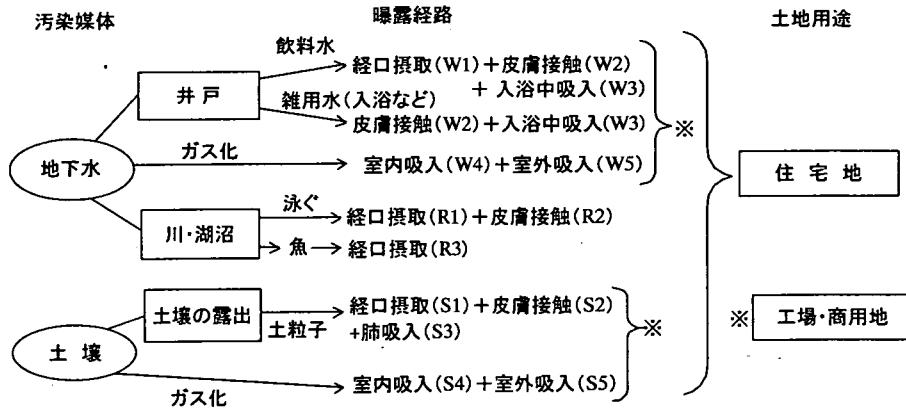


図-2 曝露経路フロー

用いて選択する。そして、土地用途（住宅地や工場・商用地）に応じたパラメーターを用いて摂取量を計算する。

地下水が汚染されている場合、井戸の使用状況によって場合分けを行う。井戸を水道水源として飲料水や入浴等に使用している場合には「飲料水」として、その曝露経路は経口摂取（W1）、皮膚接觸（W2）、入浴中吸入（W3）とする。飲料水を除く入浴用などに使用の場合は「雑用水（入浴など）」として、その曝露経路はW2とW3とする。また、井戸水を使用しない、または使用できない場合は、井戸からの曝露経路はないということになる。以上のケースには、地下水中の有害物質が気化して地上に拡散し、それを室内で吸入する経路（W4）と室外で吸入する経路（W5）が加えられる。W4とW5の計算には、気化した有害物質が、建物の基礎のクラックにより漏洩するモデルや、不飽和層中を拡散して地上に到達するモデル式を使用した^{10,11)}。

また、汚染現場付近に川や湖沼などの表流水があり、地下水中の有害物質が流出する場合には、曝露経路として、住民が年に数回レジャーとして泳ぐ場合、水を口に入れてしまう（R1）、皮膚に接觸する（R2）、および魚釣りをして釣った魚を食べる（R3）ことが考えられる。

また、汚染土壌が地盤表面に露出しているのであれば、曝露経路として土粒子の経口摂取（S1）、皮膚接觸（S2）、肺吸入（S3）が考えられる。また、土壌中の有害物質が気化して地上に拡散し、それを室内で吸入する経路（S4）と室外で吸入する経路（S5）が加えられる。

土地用途には、長期間の曝露を想定して、子供と大人が生活する住宅地と、大人が仕事をする工場または商用地を設定した。なお、公園で幼児が土壌を接觸や摂取する場合など短期間の毒性が問題になる場合や、漁業・農業・家畜の飼育などを行っている地域の食物によるリスクには別途の検討が必要である。

b) 曝露経路の組合せによる曝露ケースの設定

図-2 の曝露経路の組み合わせによる曝露ケースを表-1 に示す。住宅地においては、地下水の使用状況と表流水の有無、表層土壌の露出の有無によって、曝露経路の組み合わせが No.1~12 の 12 ケース設定される。また、工場または商用地においては、井戸の使用の有無、土壌の露出の有無によって、曝露経路を組み合わせが No.13~16 の 4 ケース、合計で 16 通りの曝露ケースを設

表-1 曝露経路の組合せによる曝露ケースの設定

用途	使用条件			曝露 ケース No
	井戸の 使用状況	川や湖沼など の有無	土壌表面の 露出の有無	
住宅	飲料水として 使用: ・W1+W2+W3 +W4+W5	有: +R1+R2+R3	有:+S1+S2 +S3+S4+S5 無:+S4+S5	1 2
		無	有:+S1+S2 +S3+S4+S5 無:+S4+S5	3 4
		雜用水（入浴など）として使用: ・W2+W3 +W4+W5	有: +R1+R2+R3	5 6
			有:+S1+S2 +S3+S4+S5 無:+S4+S5	7 8
	使用しない: ・W4+W5	有: +R1+R2+R3	有:+S1+S2 +S3+S4+S5 無:+S4+S5	9 10
		無	有:+S1+S2 +S3+S4+S5 無:+S4+S5	11 12
		飲料水として 使用: ・W1+W4+W5	有:+S1+S2 +S3+S4+S5 無:+S4+S5	13 14
			有:+S1+S2 +S3+S4+S5 無:+S4+S5	15 16
工場 商用地	使用しない: ・W4+W5	(レジャー 等に使用 しない)		

定した。地下水について、井戸を飲料水として使用する場合は W1, W2, W3, W4, W5 が、雑用水として使用する場合は W2, W3, W4, W5 が、また、井戸を使用しない場合は W4, W5 が設定される。それに、表流水が有る場合は R1, R2, R3 が加えられ、表流水が無い場合は加えられる経路はない。また、土壤の露出がある場合は S1, S2, S3, S4, S5 が、土壤の露出が無い場合は S4 と S5 が加えられる。

(2) 地下水中、表流水中、土壤中濃度の換算

1種類の媒体中に存在する1種類の有害物質の浄化目標値を算出するには、有害物質濃度と H_I や $Risk_T$ の関係式で、許容リスク値 ($H_I = 1$ や $Risk_T = 10^5$) を代入して濃度を計算すればよい。しかし、実際の汚染現場における複数の媒体（地下水、表流水、土壤）中における複数の有害物質による許容リスク値から逆算することは、1つの式に対して複数の変数があるので不可能である。

そこで、変数を1つにするために表流水中濃度 (C_{RW}) や土中濃度 (C_S) を地下水中濃度 (C_{GW}) で表すことを考える。 C_{GW} (mg/L) を C_S (mg/kg) や C_{RW} (mg/L) に換算する式(6), 式(7)で表す。

$$C_{RW}(\text{mg/L}) = a \times C_{GW}(\text{mg/L}) \quad (6)$$

a: 換算係数 (単位なし)

$$C_S(\text{mg/kg}) = b \times C_{GW}(\text{mg/L}) \quad (7)$$

b: 換算係数 (L/kg)

ここで式(6)の換算係数 a は地下水中の有害物質が表流水へ流出したときの希釈率であり、この値を求めるには、地下水と表流水の流速や流量などを測定する必要がある。それらの測定を行わず、デフォルト値を使用する場合は、安全率を見込んだ値を設定する必要がある。通常、地下水の流速は川などの表流水に比べて非常に遅いので、實際にはかなり希釈されることが予想されるが、安全率を考慮して、日本における排水基準が環境基準の10倍であることも参考に a を0.1と設定した。

また、式(7)は地下水中濃度と土壤中濃度の関係を、土壤の吸着・脱着の平衡関係で表したものである。換算係数 b は土壤と有害物質に関する値であり、有害物質が有機化合物である場合、有機物質-水分配係数と土壤の有機炭素含有量の積で表した式(8)を採用した¹²⁾。

$$b = Koc \times f \quad (8)$$

ここで、 Koc : 有機物質-水分配係数 (PCE 155, TCE 166, cDCE 35.5 L/kg)¹³⁾, f : 土壤の有機炭素含有量 (一般的な値として 0.01¹⁴⁾ を使用) である。

有害物質が重金属などの無機化合物の場合は、土-水分配係数 Kd (L/kg) を用いて $b = Kd$ と表される。 Kc や Kd の値は物理的・化学的な実験によって求められている^{15), 16)}。

(3) 各有害物質のリスクの割当

許容リスク値は全ての有害物質のリスクを総合させた値であるので、有害物質が複数ある場合は許容リスク値を割り当てるべきである。そのためには、複数の有害物質による毒性の相互作用を把握しなければならない。しかし、数種の有害物質を混ぜて行った毒性試験のデータは、発表されてはいるものの十分とはいえない¹⁷⁾、混合物質による毒性の相互作用は様々であり^{18), 19)}、濃度比によっても異なる²⁰⁾。また、全ての有害物質を種類別、濃度別に試験することは不可能である²¹⁾。そこで、統計的概念を用いた相関関係を表現するモデル式も考案されているが、データ不足のため実際に使用するのは困難な状況である^{22), 23)}。一方、数少ない例として、PCB 製品の異性体成分や軽油を燃焼した場合の排ガス成分などは、複合物質として毒性試験を行い、そのデータを類似物質のリスク計算に使用している²⁴⁾。USEPA では、複数の有害物質の健康リスクは低濃度であれば足し算で表しており²⁵⁾、オランダでは、同じ化学構造のグループについて、このことが支持されている²⁶⁾。

この様な状況の中、数種類の同属物質による健康リスクを足し算することは、既存の毒性データを使用する上で妥当な方法であると考えられる。ただし、有害物質が数十種以上ある場合や有機化合物と重金属の混在する場合などは、別途検討が必要となる。

以上のことにより、各有害物質のリスクの割当では、許容リスク値を有害物質数で割った値とした。有害物質が n 種類ある場合、 H_I の割当では H_I の許容値 1 を n で割ってそれぞれ $1/n$ となり、 $Risk_T$ の割当では $Risk_T$ の許容値 10^5 を n で割って $10^5/n$ となる。

本研究では、PCE, TCE, cDCE の3種類の有害物質で汚染されている現場の曝露ケースごとの浄化目標値を計算した。PCE, TCE, cDCE の H_I の割当では H_I の許容値 1 を 3 で割ってそれぞれ $1/3 = 0.33$ とした。 $Risk_T$ の割当では、cDCE が発癌物質とされていない^{27), 28)} ことから PCE, TCE の2種類で許容 $Risk_T$ の許容値 10^5 を 2 で割って、 $10^5/2 = 5 \times 10^4$ とした。

なお、 H_I から算出した値と $Risk_T$ から算出した値の2つの浄化目標値が算出されることになるが、2つの値の内、安全側の値すなわち小さい値の方を選択して浄化目標値とした。

4. 有害物質摂取量とリスクの計算

(1) 有害物質摂取量の計算方法

a) 曝露経路ごとの摂取量の計算式

図-2 のフロー図によって選択した曝露経路による有害物質摂取量の計算式を表-2 に、計算で使用したガス濃度計算式および計算値を表-3 に、摂取量計算式で使用した各パラメーターを表-4 に示す。パラメーターには、有害物質に特有の物理・化学的な性質に関するものと曝露する人の体や生活様式に関するものがある。これらの計算式とパラメーターは、U.S.EPA や米国材料検査協会 (ASTM)から出されているガイドライン^{3), 10)} やそれらを補足したオレゴン州環境局 (ODEQ)のガイドライン^{11), 30)}に基づいた。

人の体や生活に関するパラメーターの内、寿命、体重、魚の摂取量については、日本人に特有の値を厚生省の調査より計算に使用した。体重と魚の摂取量については、子供の値として1歳から6歳までの人口の割合による加重平均値を、大人の値として7歳から80歳までの加重平均値を使用した。寿命については、男性と女性の平均

表-2 曝露経路ごとの有害物質の摂取量計算式

媒体	経路	摂取量の計算式 ³⁾ (mg/kg·day)
地下水	W1	$\frac{C_{GW} \cdot Ef}{At} \cdot \left(\frac{Ed_C \cdot Ih_C + Ed_A \cdot Ih_A}{Bw_C} \right)$
	W2	$\frac{C_{GW} \cdot P_c \cdot Et_{Bath} \cdot Ef \cdot 10^{-6}}{At} \cdot \left(\frac{Ed_C \cdot Ss_C + Ed_A \cdot Ss_A}{Bw_C} \right)$
	W3	$\frac{Ca_{GW} \cdot Et_{Bath} / 24 \cdot Ef}{At} \cdot \left(\frac{Ed_C \cdot Ih_C + Ed_A \cdot Ih_A}{Bw_C} \right)$
	W4	$\frac{Ca_{GW} \cdot Ef}{At} \cdot \left(\frac{Ed_C \cdot Ih_C + Ed_A \cdot Ih_A}{Bw_C} \right)$
	W5	$\frac{Ca_{GW} \cdot Ef}{At} \cdot \left(\frac{Ed_C \cdot Ih_C + Ed_A \cdot Ih_A}{Bw_A} \right)$
表流水	R1	$\frac{C_{RW} \cdot Et_R \cdot Ef_R}{At} \cdot \left(\frac{Ed_C \cdot I_R + Ed_A \cdot I_R}{Bw_C} \right)$
	R2	$\frac{C_{RW} \cdot P_c \cdot Et_R \cdot Ef_R \cdot 10^{-6}}{At} \cdot \left(\frac{Ed_C \cdot Ss_C + Ed_A \cdot Ss_A}{Bw_C} \right)$
	R3	$\frac{C_{Fish} \cdot Ef_R}{At} \cdot \left(\frac{Ed_C \cdot I_{Fish_C} + Ed_A \cdot I_{Fish_A}}{Bw_C} \right)$
	S1	$\frac{C_{Soil} \cdot Ef \cdot 10^{-6}}{At} \cdot \left(\frac{Ed_C \cdot Is_C + Ed_A \cdot Is_A}{Bw_C} \right)$
	S2	$\frac{C_{Soil} \cdot Ef \cdot Df \cdot 10^{-6}}{At} \cdot \left(\frac{Ed_C \cdot Af_C \cdot Sa_C + Ed_A \cdot Af_A \cdot Sa_A}{Bw_C} \right)$
土壤	S3	$\frac{C_p \cdot Ef}{At} \cdot \left(\frac{Ed_C \cdot Ih_C + Ed_A \cdot Ih_A}{Bw_C} \right)$
	S4	$\frac{Ca_{Soil} \cdot Ef}{At} \cdot \left(\frac{Ed_C \cdot Ih_C + Ed_A \cdot Ih_A}{Bw_C} \right)$
	S5	$\frac{Ca_{Soil} \cdot Ef}{At} \cdot \left(\frac{Ed_C \cdot Ih_C + Ed_A \cdot Ih_A}{Bw_A} \right)$

ここで C_{GW} は地下水中の濃度、 C_{RW} は川や湖沼などの表流水中の濃度、 C_{Soil} は土壤中の濃度である。

表-3 ガス濃度計算式および計算値

記号	項目	室内			室外
		住宅 (10)(11) ²⁸⁾	浴室 29) ²⁹⁾	工場 (10)(11) ²⁸⁾	
Vf_{GW}	地下水のガス 濃度変換係数 (L/m ³)	4.3×10^{-3}	8.5×10^{-4}	1.4×10^{-3}	2.2×10^{-4}
	cDCE	2.7×10^{-3}	9.4×10^{-4}	8.9×10^{-4}	1.5×10^{-4}
	TCE	1.1×10^{-3}	1.1×10^{-3}	3.5×10^{-4}	9.0×10^{-5}
Vf_{Soil}	土壌のガス 濃度変換係数 (kg/m ³)	2.9×10^{-3}	-	1.0×10^{-3}	3.5×10^{-3}
	cDCE	1.7×10^{-3}	-	5.8×10^{-4}	2.1×10^{-3}
	TCE	2.6×10^{-3}	-	8.9×10^{-4}	3.1×10^{-3}
Ca_{GW} 地下水由来のガス濃度		$Ca_{GW} = Vf_{GW} \times C_{GW} (\text{mg}/\text{m}^3)$ ¹⁰⁾⁽¹¹⁾			
Ca_{Soil} 土壤由来のガス濃度		$Ca_{Soil} = Vf_{Soil} \times C_{Soil} (\text{mg}/\text{m}^3)$ ¹⁰⁾⁽¹¹⁾			

表-4 摂取量計算式の各パラメーター

各パラメーター		設定値	
記号	項目	住宅地	工場・商用地
Ef	摂取頻度 (day/year)	350 ¹⁰⁾	250 ¹⁰⁾
Ed_A	摂取期間 大人	24 ³⁰⁾	25 ³⁰⁾
Ed_C (year)	子供	6 ³⁰⁾	-
Iw_A	水の日摂取量 大人	2.3 ³¹⁾	
Iw_C (L/day)	子供	1.5 ³¹⁾	-
Bw_A	体重 大人	56 ^{32) 33)}	
Bw_C (kg)	子供	14 ^{32) 33)}	-
At	影響期間 (day)	$10,950$ ³⁰⁾ $(30y \times 365d)$	$9,125$ ³⁰⁾ $(25y \times 365d)$
	癌: At_{Can}	29,200 (一生涯: 80 years) ³⁴⁾	
Pc	皮膚透過定数 (cm/hr)	PCE 0.048, TCE 0.016, cDCE 0.01 ³⁵⁾	
Et_{Bath}	日入浴時間 (hr/day)	0.25 ³⁵⁾	-
Ss_A	全身皮膚面積 大人	22,000 ³¹⁾	-
Ss_C (cm ²)	子供	7,300 ³¹⁾	-
Ih_A	日呼吸量 大人	15.2 ³¹⁾	
Ih_C (m ³ /day)	子供	8.3 ³¹⁾	-
Ef_R	水泳の頻度 (day/year)	5 ³⁵⁾	-
I_R	水泳中の水の経口摂取量 (L/hr)	0.050 ³⁾	-
Et_R	日本水泳時間 (hr/day)	1.0 ³⁵⁾	-
I_{Fish_A}	魚摂取量 大人	0.094 ³⁶⁾	-
I_{Fish_C} (kg/day)	子供	0.034 ³⁶⁾	-
C_{Fish}	魚の体内濃度 (mg/kg)	$C_{RW} \times B_{Fish}$ ³⁰⁾	-
B_{Fish}	生物濃縮係数 (L/kg)	$10^{0.76 \log Kow - 0.23}$ ³⁰⁾	
		PCE 63.0, TCE 67.5, cDCE 15.3	
I_s_A	土粒子摂取量 大人	100 ^{3) 6)}	
I_s_C (mg/day)	子供	200 ^{3) 6)}	-
Df	皮膚吸収因子	0.1 (PCE, TCE, cDCE) ¹³⁾	
Af_A	土粒子吸着因子 大人	0.08 ³⁰⁾	
Af_C (mg/cm ²)	子供	1 ³⁰⁾	-
Sa_A	土付着皮膚面積 大人	6,900 ³¹⁾	4,100 ³¹⁾
Sa_C (cm ²)	子供	5,000 ³¹⁾	-
C_p	土粒子からの吸入濃度	C_S / Pe (mg/m ³) ³⁰⁾	
Pe	土粒子から気化因子	1.32×10^9 (m ³ /kg) ³⁷⁾	

値の80年とした。

b) 曝露ケースごとの摂取量

曝露経路ごとに計算した有害物質摂取量を、設定した曝露ケースに応じて足し合わせて、曝露ケースごとの摂取量とした。

(2) リスクの計算式

有害物質摂取量が計算できれば、その次には毒性のデータベース（USEPAのIRIS等^{27) 28)}より、 RfD (mg/kg·day)と Sf (mg/kg·day)⁻¹を検索して、式(2)～式(5)に代入して HI と $Risk_T$ を算出する。 RfD と Sf には胃への経口摂取と肺への吸入とで別々の値が得られている（表-5）。

そして、 HI を有害物質の C_{GW} 、 C_S 、 C_{RW} を変数として、まとめた係数をそれぞれ k_{GW} 、 k_S 、 k_{RW} として表すと HI は式(9)で表される。

$$HI = \sum_{i=1}^n (k_{GWi} \times C_{GWi} + k_{Si} \times C_{Si} + k_{RWi} \times C_{RWi}) \quad (9)$$

この式に、式(6)、式(7)、式(8)を代入すると、式(10)が得られる。

$$HI = \sum_{i=1}^n (k_{GWi} + k_{Si} \times Koc_i \times 0.01 + k_{RWi} \times 0.1) \times C_{GWi} \quad (10)$$

ここで、対象とする有害物質がPCEとTCEの場合は HI の割当てはそれぞれ1/2となるので式(11)が得られる。

$$\frac{1}{2} = (k_{GWi} + k_{Si} \times Koc_i \times 0.01 + k_{RWi} \times 0.1) \times C_{GWi} \quad (11)$$

この式より各物質の C_{GW} が計算でき、その値が癌以外の発病に関する浄化目標値になる。

また、 $Risk_T$ も HI の場合と同様に各媒体の濃度とその係数 k' を用いると式(12)のように表され、対象とする有害物質がPCE、TCE、cDCEの場合は式(13)で表される。

$$Risk_T = \sum_{i=1}^n (k'_{GWi} \times C_{GWi} + k'_{Si} \times C_{Si} + k'_{RWi} \times C_{RWi}) \quad (12)$$

$$\frac{1}{3} = (k'_{GWi} + k'_{Si} \times Koc_i \times 0.01 + k'_{RWi} \times 0.1) \times C_{GWi} \quad (13)$$

表-5 癌以外の発病閾値(HI)と発癌係数($Risk_T$)

物質	HI (mg/kg·d)		$Risk_T$ (mg/kg·d) ⁻¹	
	経口 $RfDo$	吸入 $RfDi$	経口 SfO	吸入 SfI
PCE	0.01 ²⁷⁾	0.114 ²⁸⁾	0.052 ²⁸⁾	0.002 ²⁸⁾
TCE	0.006 ²⁸⁾	0.006 ²⁸⁾	0.011 ²⁸⁾	0.006 ²⁸⁾
cDCE	0.01 ²⁸⁾	0.01 ²⁸⁾	-	-

この式より各物質の C_{GW} が計算でき、その値が発癌に関する浄化目標値ということになる。

5. 浄化目標値の結果および考察

(1) 浄化目標値の算出結果

表-6にPCE、TCE、cDCE、3種類の有害物質で汚染されている現場の曝露ケース（No.1～12は住宅地、No.13～16は工場・商用地）ごとに算出した地下水の浄化目標値を示す。 HI から算出した浄化目標値は、PCE 0.063～35 mg/L、TCE 0.036～3.0 mg/L、cDCE 0.063～15 mg/Lであり、 $Risk_T$ から算出した浄化目標値もPCE 0.0049～7.6 mg/L、TCE 0.023～4.0 mg/Lと差がかなりあった。 HI および $Risk_T$ から算出した浄化目標値を比較すると、PCEについては、全ての曝露ケースにおいて $Risk_T$ から算出した方が小さな値となったので、こちらの方が浄化目標値として採用される。TCEについては、曝露ケースNo.1～4では $Risk_T$ から、No.5～16では HI から算出した方が小さい値であるので、これらの値が浄化目標値として採用される。cDCEについては、癌以外の場合の浄化目標値しかないので、 HI から算出したものが採用される。

今回設定した曝露ケースの中で、浄化目標値に最も影響を与えたのは、地下水を飲料するNo.1～4とNo.13、14

表-6 曝露別の浄化目標値（地下水）

曝露 ケース No	癌以外の病気に関する 浄化目標値* (mg/L)			発癌に関する 浄化目標値** (mg/L)	
	PCE	TCE	cDCE	PCE	TCE
1	0.063	0.036	0.063	0.0049	0.023
2	0.063	0.036	0.063	0.0049	0.023
3	0.063	0.036	0.063	0.0049	0.023
4	0.063	0.036	0.063	0.0049	0.023
5	7.2	0.68	3.2	1.2	0.74
6	7.5	0.69	3.2	1.3	0.75
7	7.5	0.69	3.2	1.3	0.75
8	7.8	0.69	3.2	1.4	0.76
9	7.3	0.68	3.2	1.2	0.74
10	7.5	0.69	3.2	1.3	0.75
11	7.5	0.69	3.2	1.3	0.75
12	7.9	0.69	3.2	1.4	0.76
13	0.12	0.069	0.12	0.011	0.051
14	0.12	0.069	0.12	0.011	0.051
15	34	3.0	15	7.3	4.0
16	35	3.0	15	7.6	4.0
環境 基準値	0.01	0.03	0.04	0.01	0.03

太字の値が、癌と癌以外の病気の両方に関しての浄化目標値として採用される。

*物質1つ当たりの HI の許容値は、 $HI/3=1/3=0.33$ 。

**物質1つ当たりの $Risk_T$ の許容値は、 $Risk_T/2=10^{-5}/2=5 \times 10^{-6}$ 。

で、飲料しない No.5～12 と No.15, 16 に比べて浄化目標値が 1/10 以下となった。また、No.5～12 と No.15, 16 は、川や湖沼などのレジャー利用の有無に関わらず、それぞれの値の差は 1 割程度であり、地下水の飲料の次に、各曝露ケースに共通する地下水や土壌から気化したガス吸入の影響が大きいことが分かる。

さらに、土壌が露出している場合と露出していない場合 (No.1 と 2, 3 と 4, 5 と 6, 7 と 8, 9 と 10, 11 と 12, 13 と 14, 15 と 16) の浄化目標値の差は 1 割未満であり、井戸水飲用の有無の差に比べるとわずかであった。これにより、土粒子が飛散してそれを経口摂取、皮膚摂取、肺吸入することによる影響は、飲料による影響に比べてわずかであるといえる。

同じ曝露ケースの住宅地と工場・商用地の浄化目標値を比較すると、工場・商用地 (No.13～16) は住宅地 (No.3, 4, 11, 12) よりも数倍大きい値となった。

地下水を飲料するリスクを考慮して設定された日本の地下水の環境基準値 (PCE 0.01 mg/L, TCE 0.03 mg/L, cDCE 0.04 mg/L) と比較してみると、井戸水を飲料水として使用する No. 1～4 での PCE の浄化目標値は 0.0049 であり、環境基準値の半分となっている。これは発癌物質が PCE と TCE の 2 種類共存するので、リスク許容値を 2 分したためであり、汚染現場に発癌物質が 1 種類しかない場合は 0.01 mg/L となり日本の環境基準値と一致する。よって、本手法で算出した浄化目標値で最も厳しい値が、日本の環境基準と同程度となる結果となった。TCE の浄化目標値は、0.023 mg/L で環境基準値と同程度となる。また、cDCE の HI から算出した浄化目標値 0.063 mg/L も環境基準値と同程度の値となっている。

なお、土壤の浄化目標値は、地下水中濃度を用いて式(7)と式(8)より換算し、PCE の場合は $C_s \text{ (mg/kg)} = 1.55 \times C_{GW} \text{ (mg/L)}$ 、TCE の場合は $1.66 \times C_{GW}$ 、cDCE の場合は $0.355 \times C_{GW}$ で計算し、No. 1～16 の土壤の浄化目標値は PCE 0.0076～12 mg/kg、TCE 0.038～5.0 mg/kg、cDCE 0.023～5.4 mg/kg となる。また、表流水濃度は、式(6)より No. 1～16 で $C_{RW} \text{ (mg/L)} = 0.1 \times C_{GW} \text{ (mg/L)}$ より、PCE 0.0005～0.76 mg/L、TCE 0.0023～0.30 mg/L、cDCE 0.0063～1.5 mg/L となる。

今回、浄化目標値を計算したのは PCE, TCE, cDCE であるが、本手法を用いることによって、これらの有害物質の組み合わせ以外の浄化目標値をも設定することができる。

(2) 課題

今回提示した浄化目標値設定手法で考えられる不確かさについて、本手法の計算要素である摂取量と毒性に分けて考察する。

a) 摂取量

摂取量の計算に使用した人の体に関するパラメーター

(呼吸量、飲料水量、皮膚面積など) や生活に関するパラメーター (住居年数、労働年数など) は、USEPA の資料に基づき、日本独自のデータは寿命、体重、魚の摂取量しか入手できていない。日本に特有の浄化目標値を設定するには、日本人に特有の値を統計的に求める必要がある。また、地下水や土壌からの揮発や土壌への吸着・脱着は、数式モデルに基づいて計算しているが、これらの誤差がリスク計算値の誤差につながる。

なお、本論分では、汚染現場由来の有害物質について浄化目標値を設定したが、場所によっては非特定汚染源由来のリスクが無視できない場合もあり³⁰⁾、バックグラウンドの取扱いは今後の課題である。

b) 毒性

有害物質の毒性データは、動物実験によって得られたものから妥当性のある値が選択されているが、データの値や解釈には差があり、今後、新たなデータが追加されて毒性の数値が変動することがありえる。また、民族や人種の違いによる毒性影響の違いも考えられる。

なお、複数の有害物質の相互作用については、重金属と有機化合物などの共存や、有害物質が数十種類にもおよぶ場合など、不確かな部分も残されている。

以上の課題から、今回算出された浄化目標値は、科学的根拠に基づいて求めたものの、あいまいさは残る。しかしながら、汚染現場の有害物質による人の健康被害を防ぐという目的は、十分達成できるものと考えられる。今後、上記の課題に対する研究や実験データが積み重ねられることによって、より信頼性の高い浄化目標値の設定が可能であると考えている。

6. おわりに

本論文では、複数の有害物質で汚染されている土壤・地下水の浄化目標値を現場の条件を考慮して設定する手法を検討した。以下に本浄化目標値設定手法の特徴、および、例として算出した PCE, TCE, cDCE で汚染された現場における浄化目標値の特徴をまとめる。

a) 本手法の特徴

- ① 現場の状況として井戸水の使用、表流水の有無、土壤の露出の有無などを区別し、土地用途として住宅地と工場・商用地を区別した曝露ケースを 16 ケース設定し、曝露ケースごとに有害物質濃度を変数としたリスクを計算する式をつくり、許容リスク値 ($HI = 1$ かつ $Risk_T = 10^3$) から浄化目標値を算出した。
- ② 土壤中と地下水中の有害物質の濃度は土壤への吸着・脱着が平衡状態であり、表流水中の有害物質濃度は地下水または土壤から溶出した濃度が 10 倍に希釈されるものと仮定して、各媒体間の濃度を関連付けた。

③複数の有害物質が存在する場合は、許容リスク値を有害物質数で割って、その値から各有害物質の浄化目標値となる濃度を逆算した。

b) 本手法を用いて計算した浄化目標値の主な特徴

① 住宅地で井戸水を飲料水として使用する場合が最も厳しく、環境基準値と同等の値となった。

② 井戸水を飲料水として利用しない場合は、利用する場合の数十倍以上となり、全体の値に最も影響を与えた。

③ 住宅地と工場・商用地を比較すると、土地の状況（井戸の有無、土壤の露出など）が同じ場合、工場・商用地として利用する方が、住宅地として利用するより数倍に高くなった。

以上、現場の状況ごとに浄化目標値を設置する手法と算出例を示した。現在、日本では浄化対策工事をする際に、汚染現場ごとのリスクを評価していないが、本論文で示した手法を用いて、一度、各有害物質について曝露ケースごとの浄化目標値を算出しておけば、調査のたびごとにリスクアセスメントの計算を行わなくても、リスクに基づいた浄化目標値が即座に利用できる。よって、合理的な浄化が行うことができ、全国の汚染現場の浄化が促進されると考えている。

参考文献

- 1) 環境省環境管理局水環境部: 平成11年度土壤汚染調査・対策事例及び対応状況に関する調査結果の概要, 2001.
- 2) 日本政策投資銀行: 調査 わが国環境修復産業の現状と課題－地下環境修復に係る技術と市場－ No.3, p.53, 1999.
- 3) U. S. Environmental Protection Agency: Risk Assessment Guidance for Superfund Volume I. Human Health Evaluation Manual (Part A). Interim Final Exhibit 6-12 (I_R), Exhibit 6-14 (I_S , I_C), EPA/540/1-89/002. Office of Emergency and Remedial Response, Washington DC, 1989.
- 4) National Institute of Public Health and the Environment, the Netherlands: Human Exposure to Soil Contamination: A Qualitative and Quantitative Analysis Towards Proposals for Human Toxicological Intervention Values (partly revised edition), Report no. 725201011, 1994.
- 5) 藤長愛一郎, 松久裕之, 笹本謙, 中馬逸男: リスクアセスメント手法を用いた複数の有害物質による土壤・地下水汚染の浄化目標値設定手法に関する検討, 環境工学研究論文集, Vol.38, 2001.
- 6) 中央環境審議会: ダイオキシン類による土壤の汚染に係る環境基準の設定等及びダイオキシン類土壤汚染対策地域の指定の要件について(答申), 参考4 直接摂取に着目した「1,000pg-TEQ/g以下」の設定手法, 中環審第170号, 1999.
- 7) Kammen, D.M. and Hassenzahl, D.M. (中田俊彦訳): リスク解析学入門, シュプリンガー・フェアラーク, pp.138-141, 2001.
- 8) 環境庁ダイオキシンリスク評価研究会: ダイオキシンのリスク評価, 中央法規出版(株), pp.45-61, 1997.
- 9) 早水輝好: 環境基準と水道水質基準の改定について, 水環境学会誌, Vol.16, No.4, pp.224-242, 1993.
- 10) American Society for Testing and Materials: Standard Guide for Risk-Based Corrective Action Applied at Petroleum Release Sites, Designation, Table X2.4 (C_{GW} , C_S , E_f), Table X2.5 and X2.6 ($V_{f_{GW}}$, V_{f_S}), E 1739-95, p.185-235, 1995.
- 11) Oregon Department of Environmental Quality: Risk-Based Decision Making For the Remediation of Petroleum-Contaminated Sites, Equation B-54 (V_f outdoor), B-63 (V_f indoor), B-79 ($V_{f_{GW}}$ outdoor), and Appendix C, Waste Management & Cleanup Division, Portland, Oregon, USA., 1999.
- 12) Schwarzenbach, R. P., Gschwend, P. M. and Imboden, D. M.: Sorption, solid-aqueous solution exchange, Chapter 11, *Environmental Organic Chemistry*, John Wiley & Sons, Inc, 1993.
- 13) Michigan Department of Environmental Quality: Toxicological Data Table, <http://www.oehha.ca.gov/home.html> accessed in Sep. 2000.
- 14) 地盤工学会: 土質試験の方法と解説(第一回改訂版), p.201, 2000.
- 15) Yaws, C. L., Table 20-1 Soil sorption coefficient, *Chemical properties handbook*, the McGraw-Hill Co, p.447, 1999
- 16) Simmons, J.E.: Chemical mixtures, challenge for toxicology and risk assessment, *Toxicology*, Vol.105, pp.111-119, 1995.
- 17) Smith, F.S., Weil, C.S., West, J.S. and Carpenter, C.P.: An exploration of joint toxic action, *Toxicology and Applied Pharmacology* Vol.14, pp.340-347, 1969.
- 18) Blazka, M.E. and Shaika, Z.A.: Cadmium and mercury accumulation in rat hepatocytes interactions with other metal ions, *Toxicology and Applied Pharmacology*, Vol.113, pp.118-125, 1992.
- 19) Calabrese, E.J.: Toxicological consequences of multiple chemical interactions: a primer, *Toxicology*, Vol.105, pp.121-135, 1995.
- 20) Carter, W.H.: Relating isobolograms to response surfaces, *Toxicology*, Vol. 105, pp.145-156, 1995.
- 21) Gennings, C.: An efficient experimental design for detecting departure from additivity in mixtures of many chemicals, *Toxicology*, Vol.105, pp.145-156, 1995.
- 22) Gessner, P.K.: Isobolographic analysis of interactions: an update on applications and utility, *Toxicology*, Vol. 105, pp.145-156, 1995.
- 23) Rothman, K.J.: The estimation of synergy or antagonism, *American Journal of Epidemiology*, Vol.103, No.5, pp.506-511, 1976
- 24) Teushler, L.K. and Hertzberg, R.C.: Current and future risk assessment guidelines, policy, and methods development for chemical mixtures, *Toxicology*, Vol. 105, pp.137-144, 1995.
- 25) U. S. Environmental Protection Agency: Supplement Guidance for Conducting Health Risk Assessment of Chemical Mixtures, Risk Assessment Forum, EPA/630/R-00/002, Washington DC, USA, 2000.
- 26) Berg, Rand Roels, J.M.: Risk assessment to man and the environment in case of exposure to soil contamination. Integration of different aspects, National Institute of Public Health and Environmental Protection, Report

- No. 725201007, Table 15, Bilthoven, the Netherlands, 1991.
- 27) U.S.EPA IRIS: Integrated Risk Information System, Substance file. U.S. Environmental Protection Agency, Washington DC, USA, <http://www.epa.gov/nispgrm3/iris/index.html> accessed in Sep. 2000.
 - 28) U.S.EPA Region 9: Preliminary Remediation Goals (PRGs) Tables, Toxicity values and Physical-chemical data, Region 9 of the U.S. Environmental Protection Agency, San Francisco, CA <http://www.epa.gov/region09/waste/sfund/prg/index.html> accessed in Sep. 2000.
 - 29) Berg, R., Human Exposure to Soil Contamination: a quantitative and quantitative analysis towards proposals for human toxicological intervention values (partly revised edition), National Institute of Public Health and Environmental Protection, Report No. 725201011, Annex 1.7, the Netherlands, 1994.
 - 30) Oregon Department of Environmental Quality: Guidance For Conduct of Deterministic Human Health Risk Assessments, Table B-1 (Reasonable Maximum Estimates: Ed_A , Ed_C , Af_A , Af_C), Equation A.28 (C_{RH} , B_{RH}), A.52 (C_p), Waste Management & Cleanup Division, Portland, Oregon, USA, 1998.
 - 31) U.S. EPA, Exposure Factors Handbook, Table 3-30 (90 percentile of Iw_A and Iw_C), Table 5-23 (Mean values of Ih_A for adult's males and Ih_C for children (3-5 years old)), Table 6-2 (90 percentile, men, Ss_A for total surface area, Sa_A for residents: head, hands, forearms and lower legs, and Sa_A for workers: head, hands and forearms), Table 6-6 (90 percentile Ss_C for boys (3-4 years old), Table 6-8 (Mean value Sa_C for children (0-5 years old): head, arms, hands, legs and feet), Office of Research and Development National Center for Environmental Assessment, U.S. Environmental Agency, Washington DC, USA. EPA/600/P-95/002Fa, 1997.
 - 32) 厚生労働省統計表データベースシステム, 厚生行政基本統計表, 第2-7表 身長 体重の平均値, 性×年齢別, 資料: 保健医療局「国民栄養の現状（平成9年国民栄養調査成績）」(1歳から体重), 第2-3, 表 日本人の栄養所要量(第六次改定), (表1) 年齢区分別体位基準値(1歳までの体重).
 - 33) 総務省統計局, 資料: 「平成13年10月1日現在推計人口」, 付表 諸率の算出に用いた人口 5歳階級・男女別人口(日本的人口).
 - 34) 厚生省大臣官房統計情報部, 日本人の平均余命 平成9年, 3平均寿命の国際比較.
 - 35) U.S.EPA, Dermal Exposure Assessment: Principles and Applications, Table 5-7(P_c), Table 8-6 (upper event time Ei_B and Ei_R Central value Ej_R), Office of Health and Environmental Assessment, U.S. Environmental Protection Agency, Washington DC, USA, EPA/600/8-91/011B, 1992
 - 36) 厚生労働省, 平成12年国民栄養調査, 第3部 栄養素等摂取状況について, 2.食品群別摂取量 表3-1 年齢階級別 食品群別摂取量(総数).
 - 37) U.S.EPA, Soil Screening Guidance: User's Guide, Equation 5, Office of Solid Waste and Emergency Response, Washington DC, USA, Publication 9355.4-23, 1996.
 - 38) Fujinaga, A., Toccalino, P., Luo, W. and Hollingsworth, J.: Risk evaluation of human health for exposure of volatile organic compounds in air by using U.S.EPA risk assessment methodologies, 環境衛生工学研究, Vol.16, No.2, pp.5-15, 2002.

(2002. 3. 7 受付)

METHODOLOGY TO SET RISK-BASED REMEDIATION GOALS OF CHEMICAL MIXTURES AT A CONTAMINATED SITE

Aiichiro FUJINAGA, Hiroyuki MATSUHISA,
Yuzuru SASAMOTO and Koji YOSHIDA

Methodology to set remediation goals of chemical mixtures in contaminated soil and groundwater was proposed based on risk assessment for human health. The methodology can calculate the remediation goals based on conditions of each individual site, the correlation of concentrations of chemicals in soil - groundwater - surface water, and total toxicity of chemical mixtures. The remediation goals of chlorinated organic compounds were calculated; the goals for residents who drink groundwater were same levels as Japanese environmental standards. Drinking groundwater made the goals several 10 times higher. The goals for industrial area were several times higher than for residential area.