

平成21年5月29日現在

研究種目：基盤研究（B）
 研究期間：2006～2008
 課題番号：18360436
 研究課題名（和文） 残留性化学物質の物質循環フローモデルの開発と検証
 研究課題名（英文） Substance flow model developments of persistent chemicals
 in environmental and social cycles
 研究代表者
 酒井 伸一（SAKAI SHINICHI）
 京都大学・環境保全センター・教授
 研究者番号：90170555

研究成果の概要：

循環型社会における残留性化学物質の制御に向け、社会循環と環境移動を統合した循環系モデルに関する検討を行った。製品使用から廃棄、リサイクル過程における臭素系難燃剤（BFRs）の発生源に係る情報や挙動パラメータについての整備を進め、環境動態モデルを作成、実測環境濃度からの妥当性を確認できた。加えて、カドミウムや鉛については、電池やブラウン管テレビなどの廃棄行動やリサイクル行動の動態を考慮する必要がある。

交付額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2006年度	4,700,000	1,410,000	6,110,000
2007年度	3,700,000	1,100,000	4,800,000
2008年度	3,000,000	900,000	3,900,000
総計	11,400,000	3,410,000	14,810,000

研究分野：環境工学

科研費の分科・細目：総合工学・リサイクル工学

キーワード：残留性化学物質、物質循環フロー、社会行動モデル、リサイクル、環境動態

1. 研究開始当初の背景

循環型社会構築に向けて、循環基本計画や各種リサイクル法等により、廃棄物発生抑制や最終処分量削減が図られているところであった。その一方、製品に含有されている重金属類や難燃剤といった残留性化学物質について、その特性や使用形態を考慮した上での物質循環は十分に考慮されている状況になく、世界的・長期的な制御に向けた展開が必要であり、そうした構想を考えるために、政策的に応用可能な社会循環と環境移動を統合した循環系モデルを構築することが求められていると考えた。とくに、残留性化学物質としては、身近な家電製品や家庭製品等に使用されており、臭素系難燃剤（BFRs：Brominated Flame Retardants）及び重金属

類（特に水銀、鉛及びカドミウム）に対しては、世界的汚染影響が懸念されている。これらは、製品生産、使用、循環・廃棄等の過程で環境排出され、ヒトに対しては、使用等に伴う曝露ルート、及び環境生態系での濃縮を経た食品摂取等に伴う曝露ルートを持つ。このため、社会循環と環境移動を共に見通すべきと考えられる。しかし、現状では人為的な排出目録（排出インベントリ）の作成は予備的な提案に留まっており、加えて曝露源究明及び社会循環・環境移動のモデル化は緒に付いたところであった。

2. 研究の目的

循環型社会における残留性化学物質の制御に向け、政策的に応用可能な社会循環と環

境移動を統合した循環系モデルを構築することをめざした。本研究課題では、社会循環系として、家電製品等の使用環境やリサイクル施設を中心としたフィールド研究に加え、消費者の行動把握を試み、リサイクル行動に関する社会動態を含めたマテリアルフローモデル(社会循環モデル)を構築する。また、環境移動系として、製造・加工・リサイクル施設等を中心とした分析に加え、とくにBFRsについては、室内環境(ハウスダスト等)からの排出・分解変換パラメータ等の取得を行う。そして、社会循環モデルとの統合に向けて重要な排出インベントリを整備・検証し、また、環境移動/動態モデルにも反映させることとした。

3. 研究の方法

1) 残留性化学物質の社会循環と環境移動の統合モデリング研究として、臭素系難燃剤のライフサイクルの各工程を対象とした調査結果に基づいた大気排出インベントリ作成を試みた。引き続き、臭素系難燃剤含有廃プラスチックに着目したテレビバックカバーの各処理方法に対するライフサイクルモデル分析に取り組んだ。環境挙動モデルを用いることで、排出源からの環境中挙動を予測し、環境にどのような影響をもたらすかを推測した。また、環境中へのポリ臭素化ジフェニルエーテル(PBDEs)の排出量から各環境媒体中濃度を算出した。次に環境媒体中濃度から食品濃度を算出し、PBDEs曝露量、摂取比率を求めた。また、PBDEsの副生成物であるポリ臭素化ダイオキシン・ジベンゾフラン(PBDD/DFs)についても同様に環境挙動モデルによる推定を実行した。

2) 臭素系難燃剤フローモデルのパラメータ取得研究として、破碎プラントにおける塩素系/臭素系有機化合物の挙動を把握した。また、難燃製品を多く使用していると予想されるビジネスホテルにおける室内ダスト及び室内空気中のBFRs調査を行った。

3) リサイクル行動の社会動態とモデリングに関する研究として、使用済みとなったニカド電池内蔵製品についての廃棄行動を把握するためにインターネットを利用したアンケート調査を行った。また、それらの結果も用いて、ニカド電池含有製品の循環廃棄に伴うCdフローを推定した。さらに、統計値等も用いて、2001年～2006年の国内Cdらフローを推定した。そして、ライフサイクルでの動きを、国際的な視点からも考察した。

4) 消費者行動との関連が密接なブラウン管テレビ及びレジ袋に焦点をあて、アンケート調査を行うと同時に、その結果も用いて、これらの製品に伴う鉛のフロー解析を行った。

4. 研究成果

1) 臭素系難燃剤の大気排出インベントリ作成、再生プラスチック分析結果を念頭において、ポリ臭素化ジフェニルエーテル(PBDEs)の環境動態モデルを作成、実測環境濃度からの妥当性を検討した。難燃繊維加工プロセスからの大気への国内年間総排出量は0.1 kg/年オーダーと試算され、他の発生源からの排出に比べて小さいが、野焼きからのデカブロモジフェニルエーテル(DBDE)排出量は10 kg/年オーダーとなる可能性があり、制御下の焼却過程からの排出量と同程度の寄与を持つ可能性があることがわかった。また、物質循環の結果、BFRがビデオカセットケースに含有されていること(ポリ臭素化ジフェニルエーテルとして平均2000 mg/kg)を確認した。

環境動態モデルにより、環境中での脱臭素化反応による低臭素化物の濃度は、DeBDE排出の場合、DeBDE濃度に対してNoBDE濃度が2から5オーダー低く、OcBDE濃度は4から8オーダー低くなると推測された。製品中の低臭素化不純物の含有率の方が割合としては高い結果となった(図1)。

環境中濃度予測値は、排出量として発生源インベントリの積み上げによった場合(ケース1)は、大気降下物量から大気排出量を逆算した場合(ケース2)に比べ、2オーダー程度低い値となった。PBDEの環境中実測値とモデル予測値(ケース2)との比較では、大気ではほぼ一致し、土壌と底質ではモデル予測値が実測値よりも1オーダーほど低い値となった。PBDEの既知の発生源の積み上げインベントリでの補足漏れの可能性が高いことが示唆された。

PBDD/DFの環境中実測値とモデル予測値(ケース2)との比較では、PBDDでは大幅に(4オーダー程度)予測値が低く、PBDFでは2オーダー程度予測値が低い結果となった。PBDD/DFの発生源として、PBDE発生源とは異なる発生源からの寄与が大きいことが示唆された。

環境動態モデルと曝露評価モデルを組み合わせることにより、PBDEs排出時のPBDD/DFs摂取比率を求めた。本摂取比率は、PBDEを含有する製品のライフサイクルアセスメントなどにおいて、特性化係数としての活用が期待される。

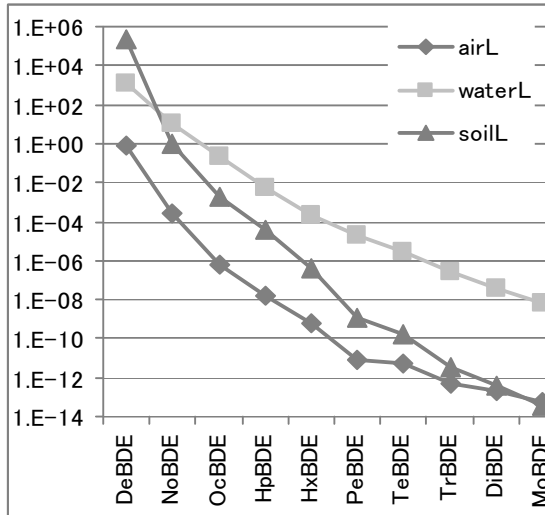


図1 DeBDE 1mol/h 排出時の脱臭素化を考慮した PBDEs 同族体別存在量 (単位: mol)

2) 発生ガスのポリ臭素化ジフェニルエーテル (PBDEs) 濃度として、粗大ごみ実施設における濃度は、臭素系難燃剤 (BFR) 添加有無によるパイロットプラント試験の中間的濃度であった。排ガス処理過程の挙動では、PBDEs で 85%除去されること、活性炭フィルターによる除去効果が大きいことがわかった。内部ダストに含有されるポリ臭素化ジフェニルエーテル 67-500 $\mu\text{g/g}$ (平均 300 $\mu\text{g/g}$)、ポリ臭素化ジベンゾフラン 180-650 ng/g (平均 410 ng/g)であり、一般のハウスダストより 2~3 桁高く、テレビ内部部品からの移行が示唆された。

難燃製品を多く使用していると予想されるビジネスホテルにおける室内ダスト及び室内空气中の臭素系難燃剤 (BFRs) 調査を行った結果、ダスト中 BFRs 濃度は採取したフロア間で異なり、発生源の局在性がダスト中濃度に反映された結果と考えられた (図2)。空気清浄機の設置による室内空气中 BFRs 濃度の低減効果について評価を行ったところ、室内空气中のガス態および粒子態 BFRs の削減が可能なが示唆された。3 年間の調査研究において、製品使用から廃棄、リサイクル過程における BFRs の挙動パラメータが整備でき、併せて集塵による BFRs 制御対策の有効性について検証できた。製品使用から廃棄、リサイクル過程における BFRs の発生源に係る情報や挙動パラメータについての整備が進み、併せて集塵による BFRs 制御対策の有効性について検証できた。

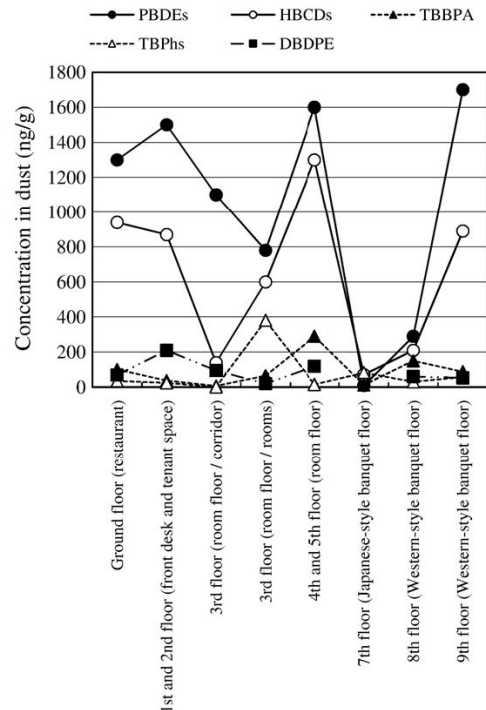


図2 ホテルフロアダスト中の BFRs 濃度

3) ニカド電池について、使用済みとなってから1年後まで退蔵される割合が5~7割と高いこと、関連の対象製品については7割程度が不燃ごみへとして廃棄されており、約1割が可燃ごみとして廃棄されていることが分かった。ニカド電池の回収・リサイクルへの参加を促すためには製品から電池を取り出しやすい設計にすべきこと、小形二次電池の回収に関する配布物を家庭に配布すべきと認識している。また、図3のCdフロー解析等の結果から、国内におけるニカド電池の循環システムの構築が重要であること、Cdは亜鉛鉱石 (Cdはその副産物として得られる) から、最終製品のストックに至るまで、環太平洋域でのダイナミックなフロー制御を考えることが重要であることがわかった。

4) ブラウン管テレビの保有・退蔵の基本的な状況については、1世帯あたり1.63台保管されており、そのうち16.5%は使用されていない（退蔵されている）ものであることがわかった。また、退蔵動向や退蔵からの排出動向は、停波やリサイクル料金を含めたシステム全体の影響を受けて大きく変化する可能性があることが示唆された。レジ袋に関しては、まず使用量は日本で年間400億枚であることがわかった。レジ袋に着色料として含まれる鉛について調査した結果、主に黄色などの袋に含まれることがわかった。京都市内の調査を受けて、鉛が含まれるレジ袋を使っていた市内流通事業者に告知・呼びかけを行った結果、一定、改善・減少傾向が見られた。鉛フロー解析の結果、これらの製品は、全体フローに対して多くを占める訳ではないが、家庭からの排出源や対策の必要性の視点から、重要な製品であると考えられた。今後、アジア各国での循環・廃棄の実態把握が課題と考えられた。鉛もレジ袋やブラウン管テレビなど廃棄行動やリサイクル行動の動態を考慮する必要がある。

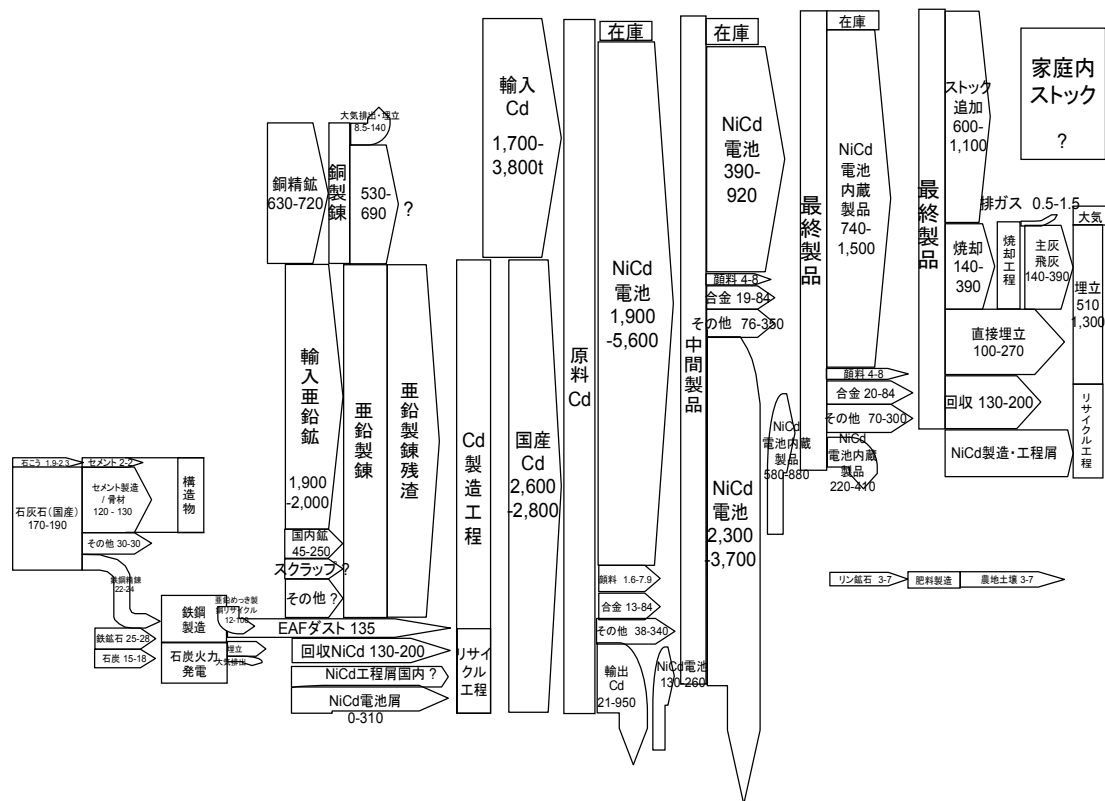


図3 日本におけるカドミウムフローの推定結果 (2001-2006年)

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 8 件)

Sakai, S., Hirai, Y., Aizawa, H., Ota, S., Muroishi, Y.: Emission inventory of deca-brominated diphenyl ether (DBDE) in Japan, *J. Material Cycles and Waste Management*, 8, 2006, 56-62, 査読有

Sakai, S., Yamamoto, T., Noma, Y., Giraud, R.: Formation and control of toxic polychlorinated compounds during incineration of wastes containing polychlorinated naphthalenes, *Environmental Science & Technology*, 40, 2006, 2247-2253, 査読有

Hirai, Y., Sakai, S., Sato, K., Hayakawa, K., Shiozaki, K.: Emissions of Brominated Flame Retardants from TV Sets, *Organohalogen Compounds*, 68, 2006, 1772-1775, 査読有

平井康宏, 酒井伸一: 使用済み自動車用鉛バッテリーのフロー推定, *廃棄物学会論文誌*, 17(6), 2006, 404-415, 査読有

Takigami H., Behnisch PA, Shiozaki K, Ohno M, Sakai S: Bioassay monitoring of waste PCB samples during chemical destruction treatments, *Water Science & Technology*, 53, 2006, 43-50, 査読有

Go Suzuki, Hidetaka Takigami, Kazutoshi Nose, Shin Takahashi, Misuzu Asari, and Shin-ichi Sakai: Dioxin-Like and Transthyretin-Binding Compounds in Indoor Dusts Collected from Japan: Average Daily Dose and Possible Implications for Children, *Environmental Science & Technology*, 41, 2007, 1487-1493, 査読有

Hidetaka Takigami, Toru Etoh, Tsukasa Nishio, Shin-ichi Sakai: Chemical and bioassay monitoring of PCB-contaminated soil remediation using solvent extraction technology, *Journal of Environmental Monitoring*, 10, 2008, 198-205, 査読有

Suzuki G, Takigami H, Watanabe M, Nose K, Takahashi S, Asari M, Sakai S: Identification of Brominated and Chlorinated Phenols as Potential Thyroid-disrupting Compounds in Indoor Dusts, *Environmental Science & Technology*, 42, 2008, 1794-1800, 査読有

[学会発表] (計 4 件)

Yasuhiro Hirai, Shin-ichi Sakai: Brominated Flame Retardants in Recycled Plastic Products, BFR2007, 2007/4/24-27, Amsterdam

Hidetaka Takigami, Go Suzuki, Yasuhiro Hirai, Shin-ichi Sakai: Possibility of Transfer of Brominated Flame Retardants onto Dust from Components of Television Sets, BFR2007, 2007/4/24-27, Amsterdam

滝上英孝, 鈴木 剛, 平井康宏, 酒井伸一: テレビ部材中からダストへの有機臭素系難燃剤の移行可能性について, 第 16 回環境化学討論会, 2007/6/21, 北九州

宮島章, 浅利美鈴, 平井康宏, 酒井伸一: 二次電池のリサイクル・廃棄動向に関する基礎調査, 第 18 回廃棄物学会研究発表会, 2007/11/19-21, つくば市

6. 研究組織

(1) 研究代表者

酒井 伸一、京都大学・環境保全センター・教授、90170555

(2) 研究分担者

滝上 英孝、国立環境研究所・循環型社会形成・廃棄物研究センター、00353540

平井 康宏、京都大学・環境保全センター・准教授、40391148

浅利 美鈴、京都大学・環境保全センター・助教、10432337