One Box 型 Multimedia Model を用いた淀川流域での鉛の挙動評価 Evaluate the behavior of Pb by One Box Multimedia Model in Yodo basin

○山本 恵(大阪大学) 加賀昭和(大阪大学)
 近藤明(大阪大学) 井上義雄(大阪大学)
 Megumi YAMAMOTO^{*1} Akikazu KAGA^{*1} Akira KONDO^{*1} Yoshio INOUE^{*1}
 *¹ Osaka University

In this study, a One Box Multimedia Model for Pb to asses the environmental risk was constructed and applied in Biwa lake and Yodo river basin. The calculated value was compared with the measured values. The amount of Pb emissions was estimated using PRTR data. The historical Pb emission to the atmosphere was estimated. It was found that the Multimedia Model can predict Pb concentration in the atmosphere, solid, water, and also sediment within the facter of 50. The discrepancy between the calculated and measured values may be attributed to the underestimation of the amount of Pb emission.

1. はじめに

近年,我々人間の産業活動に伴い,様々な有害化学物質 が環境中に排出されている。このような化学物質の環境 濃度を推定し,人の健康や生態系へのリスク評価をする ことが求められている。濃度推定の際にモデルシミュレ ーションを行うが,有機物を対象としたもののみで,金 属のモデルはほとんど作られていない。

PRTR 制度の対象となる第一種化学物質に登録されている金属のうち鉛は比較的環境基準超過事例が多く,2003 年欧州で RoHS の採決により全面的に使用禁止にされたこと等から環境中鉛のリスクに対する懸念が高いとされる。

鉛は紀元前から使用された金属であり,融点が低く加工 しやすいため,歴史的にはんだや活字,鉛管など産業界 で幅広い用途を持ち続けている。現在では自動車用の蓄 電池や化学薬品がその主な用途となっている。

その一方で有害性の歴史も古く、日本においては明治時 代から鉛によるヒト健康影響が問題になっている。鉛の ヒトに対する有害性は、貧血、脳症、関節炎、筋力低下 などがある。日本では1923年に、母親が化粧に使用した 鉛白を含んだ白粉を、授乳の際になめた乳幼児が急性鉛 脳症で死亡し、1935年に含鉛白粉の使用が禁止された。 20世紀に入り、有鉛ガソリンの使用により鉛粒子が排 ガスとともに大量に大気中に排出された。しかし、「牛込 柳町鉛中毒事件」が直接の原因となり、有鉛ガソリンの 使用が規制された。これを含め現在では、労働環境の改 善などにより、高濃度の鉛暴露による脳症や貧血は稀に なったが、一方で低濃度長期暴露による不顕性のヒト健 康影響に関心が集まっている。 以上を踏まえて、本研究では、現在一般環境中に存在す る鉛の有害性を評価するため、琵琶湖・淀川流域で鉛の One Box型 Multimedia Model を構築し、濃度計算を行 った。

2. 鉛排出量の推定方法

2.1 PRTR 届出内排出量の推定方法

PRTR(Pollutant Release and Transfer Register)とは、「化学物質排出移動量届出制度」であり、有害性のある多種多様な物質がどのような排出源から、どのくらい環境中に排出されたか、あるいは廃棄物に含まれて事業所外に運び出されたかを集計し公表する仕組みである。

本研究で構築したマルチメディアモデルの計算対象領 域は,琵琶湖・淀川流域とした。琵琶湖・淀川流域は, 日本第2の工業都市圏を含み,有害化学物質による人の 健康への悪影響が懸念されている。

まず, PRTR 届出内排出量の推計フローを Fig.1 に示 す。推定に用いた PRTR データは平成 19 年のもので,

1) 平成 19 年 4 月から翌 20 年 3 月までの 1 年間における,全国の事業所からの排出量(届出排出量)

2) 平成19年4月から翌20年3月までの1年間における,届出対象にならなかった事業所や家庭,自動車等の移動体などからの国が推計した排出量(届出外排出量)を集計したものである。

届出内排出量による対象領域内の排出量の推定は、この 平成19年PRTRデータに含まれる各事業所の排出量と住 所を使用した。東京大学の相良が構築した CSV アドレス マッチングサービス¹⁾を用いて、各事業所の住所データ と排出量データを GIS(地理情報システム)のポイントデ ータに変換した。その後、Arc GIS ver.9 の空間検索機能 を用いて, 琵琶湖・淀川流域に存在するポイントデータ だけを絞り込んだ。琵琶湖・淀川流域に属する, 鉛排出 の届出を行った事業所のポイントデータを Fig.2 に示す。



Fig.1 Procedure of estimating amount of emission using notified PRTR data



Fig.2 Establishments emitting Pb in Biwa lake and Yodo river basin

Fig.2 から鉛の排出届出を行った事業所は、対象領域内の 広範囲にわたって立地しているが、やはり淀川下流域に 多く存在していることが明らかになった。

以上の流れで推定した結果を Table1 に示す。

Table1 Reported emission in Biwa lake and Yodo river basin

	atomosphere	water	soil
reported emission	399.0	2062.3	0.0

(kg/year)

2.2 PRTR 届出外排出量の推定方法

届出外排出量推計方法は、PRTR データに掲載されて いるものを参考にした。届出外排出量による排出量の推 定の推計フローを Fig.3 に示す²⁾。これに沿って届出外排 出量の推定を行った。

Fig.3 において、「大気」にかかる割合は、「大気」、「土壌」、 「埋め立て」の3媒体である。

下水道普及率は面積ベースのものを用いた。PRTR ホームページで公開されている式とデータを基に、対象領域

に含まれている県(滋賀, 三重, 京都, 大阪, 兵庫, 奈良), それぞれで届出事業所外排出量を推定した。さらにこの



Fig.3 Procedure of estimating amount of emission using not notified PRTR data²⁾

値を流域内排出量に換算する際に、届出内排出量割合を 使った。届出内排出量割合とは、都道府県別届出内排出 量に対する都道府県別流域内排出量のことである。「大 気」等へのすそ切り以下排出量は、全て大気に排出され ていると仮定した。届出外事業所からの排出量推定結果 を Table2 に示す。

Table2 Estimated emissions except for reported in Biwa lake

and Yodo river basin

	atomosphere	water	soil
eissions except for reported	930.0	3.0	0.0

(kg/year)

Table2 の結果から分かるように、水域への排出量は、届 出内排出量の1000分の1程度しかなかったが、大気への 排出量は届出内排出量の約2.5倍となり、すそ切り以下 の推定の重要性が明らかになった。

2.3 有鉛ガソリン使用による排出量推定方法

環境中への鉛の排出量のうち、大気への排出について は他のメディアへの排出量に比べて多くの情報がある。 有鉛ガソリン車の使用により 1975 年にレギュラーガソ リンが無鉛化されるまでは、大量に排出され、それが土 壌に沈降していたと考えられる。

そこで、1975年までガソリンから鉛が排出されていた とし、有鉛ガソリン使用による排出量を1969年から1974 年の間で推計を行った。使用したガソリンに含まれてい た鉛は全て大気中に排出されたとすると、排出量は式(1) で求められる。

鉛の排出量[t/year]

=ガソリン使用量[kl]×密度[g/cm³]×鉛含有量[%]…(1) ガソリンの密度は一般に 0.783g/cm³(=t/m3)³⁾であり,鉛 含有量は 0.1(容積%)⁴⁾とした。また,全国の排出量から 対象領域内の排出量を推定するときは,2000年における 人口比率(全国の人口に対する流域内の人口(8%)を用い た。

2.4 一般廃棄物処理場からの排出量推定方法

一般廃棄物処理場において,焼却された鉛の大部分は 焼却灰として捕集され,最終的には埋め立てられるが, その一部は焼却によって揮散し,大気中に排出されると 考えられる。現行の PRTR 法では完全には把握できてい ないと考えられた,鉛の廃棄段階における環境中への排 出量,つまり一般廃棄物の焼却による排出量を推定した。

産業技術総合研究所では、鉛のリスク評価に取り組ん できており、2006年に詳細リスク評価書シリーズ「鉛」 を出版している。ここに記載されている「一般廃棄物処 理場からの推定排出量」に、2000年人口比を用いて、流 域内排出量を推定した。

2.5 その他の排出源からの推定

その他の排出源として、埋立地からの溶出、低含有率 物質の使用による排出(石炭火力発電所からの排出)、塗 料に係る排出を推定した。2003年度の推定値[®]に、2000 年人口割合をかけたものを流域内排出量とした。埋立地 からの浸出水中鉛濃度がおよそ 44µg/L[®]であることから、 埋立地からの溶出はイオンとして河川に流出していると して、埋立地の推定面積×降雨量を流出水量として、流 出量を推定した。石炭火力発電所からは大気と水域へ粒 子として、塗料からは水域と土壌に粒子として排出され ているとした。推定結果を Table3 に示す。

	atomosphere	water(particle)	water(ion)	solid
disporsal site	0	0	0.24	0
generating power plant	0.06	0.02	0	0
paint	0	4	0	4

Table3 Pb emission from other source

(t/year)

3. マルチメディアモデル

3.1 モデルの構造

本研究で構築したモデルでは以下の過程を置いた。

1)実環境は大気,水域,土壌,底質の4つの主要なメ ディアで構成されており,また,水域は液相,浮遊粒子 相(SS),交換性イオンから成り,土壌,底質は液相,交 換性イオン,粒子相から成る。

2) 大気においては風の移流による対象領域外からの 化学物質の流入,又は対象領域外への流出がある。

3) 鉛は、2で推定した排出量結果に基づいて、各媒

体に排出される。

4) 大気粒子は重力および降雨の影響により水域と土 壌へ沈降する。

5) 土壌水と土壌粒子の河川への流出がある。

6) 土壌,水域,底質に関しては,粒子相から液相への金属化学物質の溶出と粒子相 - 液相間の陽イオン交換 平衡がある。

7) 降雨流出などによって,水域に流入した土壌粒子 は SS として浮遊する。

8)降水は降雨強度一定の降水日が,3日間ごとに1日, 規則的に繰り返されるとし,晴れの日と降雨日の移動量 を平均したが,毎日繰り返される。

9) 河川水から底質水への拡散輸送がある。

3.2 モデルの基礎式

モデルの定式化にあたり,変数を設定する必要がある。 本モデルでは、各メディア中の計算対象物質の総量を M [mol]とおき、以下に示す 7 つの変数を設定した。①Mpt [mol]:大気粒子相における総量、②Mslpt [mol]:土壌粒 子相における総量、③Msllq [mol]:土壌液相+粒子相中交 換性陽イオンの総量、④Mwtpt [mol]:水域粒子相におけ る総量、⑤Mwtlq [mol]:水域液相+粒子相中交換性陽イ オンの総量、⑥Msdpt [mol]:底質粒子相における総量、 ⑦Msdlq [mol]:底質液相+粒子相中交換性陽イオンの総量 である。

マルチメディアモデルは前節の仮定によって成り立っ ている。この仮定を基に化学物質の循環過程を定式化し た基礎方程式を式(1)に示す。基礎方程式はメディア間の 平衡フラックス,化学物質の排出フラックス,移流フラ ックス,沈降・流出フラックスから成り立っている。移 流フラックスは流入と流出の差,平衡フラックスと沈 降・流出フラックスは隣り合う各メディア間との総和で 表している。

$$\frac{dM_{i}}{dt} = \sum_{j=1}^{MN} f_{eq_{ij}} + f_{emi_{i}} + f_{fl_{i}} + \sum_{j=1}^{MN} f_{dprs_{ij}} \cdots (1)$$

i, *j* : メディアの識別文字

MN : メディアの総数

M_i : メディア*i* 中の化学物質量 (mol)

: メディア間の平衡による物質移動フラックス

f_{eq} (mol/s)

f_{emi} : 化学物質の排出フラックス (mol/s)

 f_{fl} :移流フラックス (mol/s)

 f_{dprs} : 沈降・流出フラックス (mol/s)

4. 計算結果と考察

4.1 実測値との比較

One Box 型マルチメディアモデルを用いて, 琵琶湖・ 淀川流域における各メディア中の鉛濃度を計算し,計算 値と実測値^{5)~8)}を比較した。大気,水域,土壌に関して, 計算値と実測値を比較した結果を Fig.4 に示す。



Fig.4 Comparison between calculation result and measurement data

比較結果をみると、大気と底質では実測値よりも小さ くなり、土壌と水域は実測値内に収まる結果となった。 土壌>底質>水域>大気の順に分布している傾向は再現 できた。

また各メディアでの鉛濃度の経年変化を Fig.5 に示す。 大気中濃度は、2 段階で小さくなった。これは 1975 年に 有鉛ガソリン使用による排出がなくなったことと、90 年 代からの排出規制の強化により、大気への排出が減少す ると推定した結果による。土壌では 1975 年まで増え続け、 大気からの沈着量の減少によりほぼ横ばいになった。水 域では 1975 年に大気からの沈着が減ったため一度小さ くなりその後横ばいとなった。底質は、現在においても 少しずつだが増え続ける結果となった。

有鉛ガソリンの規制がされた 1975 年の大気濃度の比較を行い,その結果を Table5 に示す。比較結果を見ると 1975 年の値はオーダーレベルで一致する結果となった。

Tables Concentration of the atmosphere in 1975						
concentration	calculation measurement		reference			
atmosphere[ng/m3]	280	379	6)			

Table5 Concentration of the atmosphere in 1975

4.2 考察

計算値が実測値よりも小さくとなった原因としては, One Box 型マルチメディアモデルでは,排出密度の高い 淀川下流域と排出密度の低い地域の濃度が均一の値で計 算されていることが考えられる。さらに実測値も淀川下 流域の比較的高い値の出るところのものが多かったため, このような差が生じたと考えられる。また排出量につい ても,1975年は排出量のほとんどが有鉛ガソリンの使用 によるものであり,ほぼ全排出量の推定ができたと考え られるが,現在についてはPRTRデータに加えて有鉛ガ ソリンの使用や一般廃棄物処理場からの排出を加えて考 えたが,なお補足しきれていない排出源が存在する可能 性も考えられる。



Fig.5 secular change of Pb concentration

5. まとめ

排出量を推定する際に、PRTR データを使用したが、 それだけでは過去にすでに排出されてしまった分の把握 ができないので、今回は有鉛ガソリンの使用による排出 量などの推定により、PRTR データの補足を行った。

本研究で構築したマルチメディアモデルを琵琶湖・淀 川流域で用いて計算を行った結果,土壌>底質>水域> 大気の順に分布する傾向は再現できた。計算結果が小さ くなった原因として,排出量の過小評価や排出密度の空 間分布を表現できないことが考えられる。

参考文献

 東京大学生産技術研究所 附属 戦略情報融合国際研究センター 喜連川研究室: CSV アドレスマッチングサービス http://www.tkl.iis.u-tokyo.ac.jp/~sagara/geocode/
 環境省ホームページ PRTR インフォメーション広場

http://www.env.go.jp/chemi/prtr/result/todokedegai_siryo.html 3) 新日本石油株式会社:バイオガソリン(バイオ ETBE 配合)の 製造方法について

4)秋田穣:オクタン価,p.194

5)大阪府 平成17年度浮遊状粒子物質調査結果報告書
http://www.epcc.pref.osaka.jp/center_etc/spm/h17/pdf/3_1.pdf
6)大阪府 関係機関による測定結果(平成19年度)
http://www.epcc.pref.osaka.jp/center_etc/water/dokuji/index2.html
7)中西準子・小林憲弘・内藤航:詳細リスク評価書シリーズ9
8) Nyein Nyein Aung:首都圏在住小児の鉛曝露アセスメント