

環境多媒体モデルを用いた 琵琶湖・淀川流域における水銀の動態解析

福間 晴亮¹・嶋寺 光²・松尾 智仁³・近藤 明⁴

¹非会員 大阪大学大学院 工学研究科 (〒565-0871 大阪府吹田市山田丘2丁目1)

E-mail:fukuma@ea.see.eng.osaka-u.ac.jp

²非会員 大阪大学大学院 工学研究科

E-mail:shimadera@see.eng.osaka-u.ac.jp

³非会員 大阪大学大学院 工学研究科

E-mail:matsuo@see.eng.osaka-u.ac.jp

⁴正会員 大阪大学大学院 工学研究科

E-mail:kondo@see.eng.osaka-u.ac.jp

一般環境中に存在する水銀の動態を解析するため、大気・土壌・水域・底質の4つの環境媒体を考慮し、対象領域を均一と仮定するOne Box型モデルを作成したのち、精度向上を目的とし、対象領域を約1 km×約1 kmに分割する分布型モデルを作成した。1946～2009年の琵琶湖・淀川流域を対象に、PRTRデータや過去の用途別水銀使用量を基に水銀排出量を推計し、2種類の多媒体モデルを用いて水銀の環境動態解析を行った。One Box型モデルの水銀濃度計算結果は、全ての媒体について日本における実測値の範囲内に収まった。また、分布型モデルの水銀濃度計算結果は、琵琶湖・淀川流域における実測値が得られた大気および底質について、全ての地点で実測値と同じオーダーとなった。また、分布型モデルでは、排出量が集中する都市部でより高濃度となる傾向が表現されていた。

Key Words : *multimedia models, mercury, environmental fate, emission estimate*

1. 背景

産業革命以後、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きた。化学物質が人の健康や生態系へ及ぼすリスクを評価し、適正な管理を行うためには、その環境濃度を把握することが必要である。化学物質の環境濃度の把握においては、実測による特定地点を対象とした現状把握だけではなく、化学物質の環境挙動を表現する多媒体運命予測モデルを活用した時空間的な変動の把握も重要である。先行研究では、有機化合物に対しては時空間変動の適用事例¹⁾があるが、有害金属に対する適用事例は限られている。

1956年に水俣病が魚を媒体とした人為的環境汚染による中毒であることが明らかになり、水銀の有害性は国際的にも注目され、日本のみならず各国において医学的、科学的、生物的研究が盛んとなった。そして2013年に熊本で「水銀に関する水俣条約」が採択・署名され、水銀の一次採掘から貿易、水銀添加製品や製造工程での水銀

利用、大気への排出や水・土壌への放出、水銀廃棄物に至るまで、水銀が人の健康や環境に与えるリスクを低減するための包括的な規制が定められ、2017年8月16日に発行された。

水銀の人為起源の排出量は産業革命以来増加傾向にあり、その中でも54% (2000年) がアジア地域からの排出とされている²⁾。人間活動によって排出される水銀はガス状の金属水銀であるため気団に乗って移動し、排出源から遠く離れた場所にも影響を与える³⁾。そこで、国内外の水銀の排出を考慮したうえで、環境中の大気、土壌、水域等の各媒体に存在する水銀の濃度計算モデルを構築し、人へのリスク評価を行うことが必要となってくる。また、水銀の一部は水域で生物濃縮することから、閉鎖性水域において水銀濃度をモニタリングすることは重要である。閉鎖性淡水域の代表である琵琶湖は日本最大の湖であり、多様な固有生物を有する古代湖である。琵琶湖水の滞留時間は約19年⁴⁾と長く、水生生物に水銀の高濃度蓄積が発現する可能性がある。また、これらの理由

から琵琶湖を水銀の研究対象にしている先行研究が多く存在する^{5,6,7}。

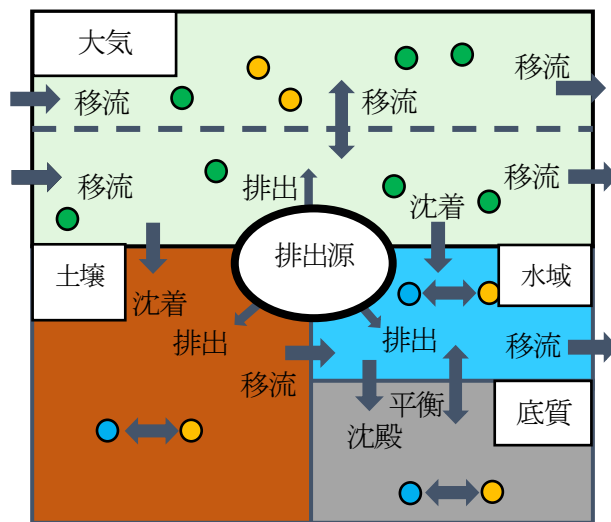
以上を踏まえて、本研究では、一般環境中に存在する水銀の動態を評価するため、琵琶湖・淀川流域で水銀の One Box型と分布型の二種類の多媒体モデルを構築し、濃度計算を行った。また、計算値を実測値と比較し、その妥当性を評価した。

2. モデルの概要

水銀などの残留性の強い化学物質挙動解析を行う場合、単一媒体のみを対象としたシミュレーションでは不十分であり、媒体間の移動を考慮できる多媒体モデルが有用である。

図-1 に多媒体モデルの概要図を示す。本研究では対象領域を1つの箱と仮定し、箱内の4つ媒体における濃度は均一と仮定する One Box 型と、対象領域を約 1 km×約 1 km に分割し、各メッシュを4つの媒体から構成することで計算する分布型の2種類のモデルを作成した。モデル構築に関して以下の仮定をおいた。

- ① 環境は大気（混合層を表現する下層大気と自由大気を表現する上層大気）、水域、土壌、底質の4つの主要な媒体で構成されており、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 それぞれの媒体に於ける物質濃度は均質とする。
- ③ 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。
- ④ 下層大気、土壌、水域において排出源が存在する。
- ⑤ 水銀は推計した排出先に基づいて、各媒体に排出される。水銀はガス状水銀、二価水銀、有機水銀の形状で存在する。
- ⑥ 大気中で水銀はガス状水銀または二価水銀の形で存在していて、ガス状水銀は土壌と水域に沈着する際に二価水銀に形を変える。
- ⑦ 大気ガス状水銀および二価水銀は重力および降雨の影響により水域と土壌へ沈降する。
- ⑧ 土壌、水域で二価水銀の一部は有機化される。
- ⑨ 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。
- ⑩ 河川水から底質水への拡散輸送がある。
- ⑪ 土壌・底質厚さは一定とする。



● ガス状水銀 ● 有機水銀 ● 二価水銀

図-1 多媒体モデルの概要図

3. 水銀の排出量推計

(1) 1991～2009年の排出量

1991～2009年の水銀排出量は PRTR データを基に推計した。PRTR 制度は、人の健康や生態系に有害な恐れのある化学物質が、事業所から大気、水、土壌などの環境へ排出される量及び廃棄物に含まれて事業所外へ移動する量を、事業者が自ら把握し国に届け出をし、国は届出データや推計に基づき、排出量・移動量を集計・公表する制度で2001年から実施されている。

2001～2009年の水銀排出量は、各年の PRTR データを基に推計した。1991～2000年の水銀排出量は、2001～2009年の平均値を使用した。

PRTR 届出内排出量については、PRTR データに含まれる各事業所の排出量と住所を基に、流域内の排出量を推計した。PRTR 届出外排出量については、PRTR データに掲載されている県別排出量に、各府県の事業所数に対する流域内の事業所数の比を掛けることで流域内の排出量を推計した。

(4) 1957～1990年の排出量

1990年以前の水銀排出量に関しては、貴田⁸⁾が推計した多量に使われていた用途の水銀の使用量から、過去の水銀排出量を推計した。まず、貴田が推計した全国における主な用途の水銀消費量を本の事業所数に対する流域内事業所数の比を用いて流域内の消費量に換算した。消費された水銀のうち、クロロアルカリ工業、触媒に用いられた水銀については、消費量の50%が水域に排出されたとした。農薬からの排出量については、当時の水銀輸出割合、農作物への付着割合を考慮し、土壌への排

出量を推計した。それ以外の用途からの水銀の排出量については、水銀が使われた製品の廃棄時に半分は埋め立て処理により土壌に、残りは焼却処理されて大気に排出されるとして推計した。

(5) 1946～1957年の排出量

データが不足していた1956年以前の水銀排出量は大気、水域に関しては、1946年の排出量を0とし、1957年まで線形に増加すると仮定し、土壌は水銀農薬の使用が開始された1952年以前を排出量0とし、1956年まで線形に増加すると仮定した。以上の推計方法で計算に用いた排出量を図-2に示す。

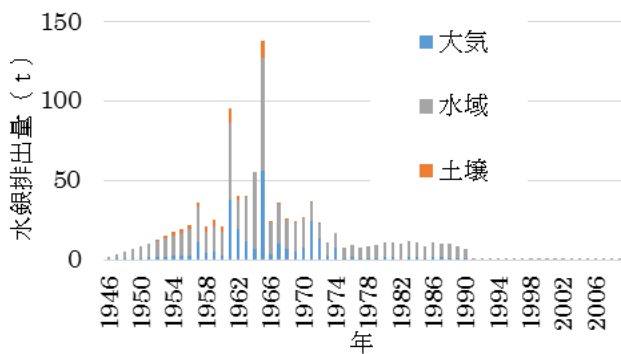


図-2 大気、水域、土壌への水銀の排出推計量(1946-2009)

(2) 分布型多媒体モデルの推計結果

次に分布型多媒体モデルの計算妥当性を評価するため、大気と底質において実測値との比較を行った。これを図-4に示す。大気、底質の2つの媒体において実測値との誤差は一桁以内に収まっており、モデルの計算値は妥当であるという事が分かった。大気においては過小評価の傾向がみられるが、概ね実測値と一致するという事が分かった。底質においてはOne Box型多媒体モデルで過大評価の結果が出たが、分布型多媒体モデルでは過大評価を修正できた。

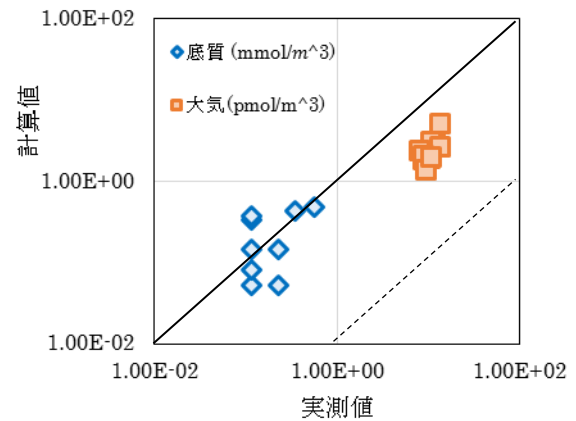


図-4 大気と底質における計算結果と実測値の比較

4. 水銀濃度推計結果

(1) One Box型多媒体モデルの推計結果

One Box型多媒体モデルを用いて1946年から2009年までの各媒体の水銀濃度を出力した。各媒体の2009年におけるOne Box型多媒体モデルの計算結果と実測値の比較を図-3に示す。水域・土壌に関しては流域内の実測値がなかったため、日本で観測された水銀濃度と比較している⁹⁾。底質では計算結果が比較的高い値を示しているが、すべての媒体においてオーダーレベルで計算結果が実測値と同じ値を示した。

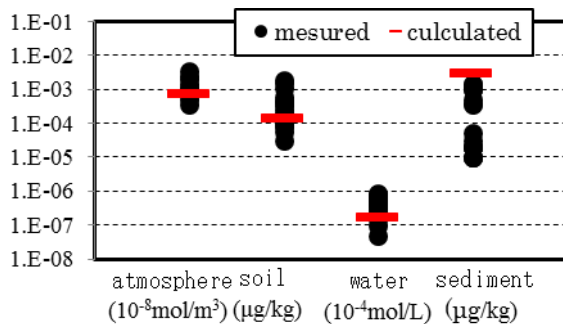


図-3 2009年の各媒体における計算結果と実測値の比較

図-5,6,7,8 に対象領域の 1959 年, 2009 年における大気, 土壌, 水域, 底質の濃度分布を示す。

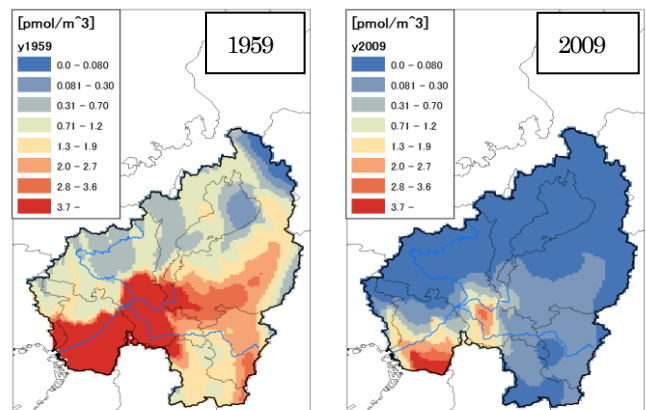


図-5 1959年,2009年における大気の水銀濃度分分布比較

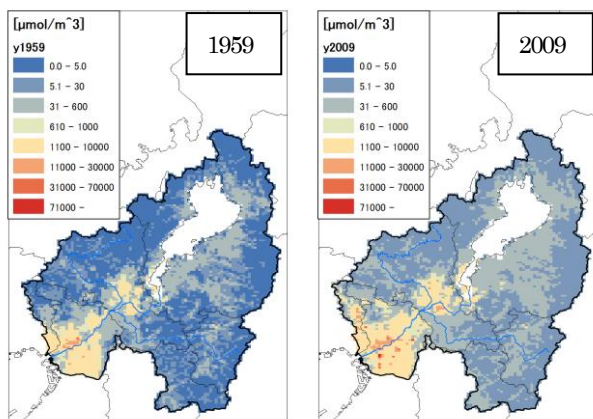


図-6 1959年, 2009年における土壌の水銀濃度分分布比較

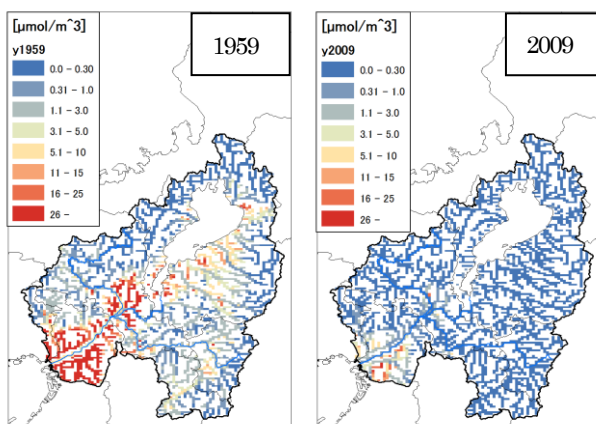


図-7 1959年, 2009年における水域の水銀濃度分分布比較

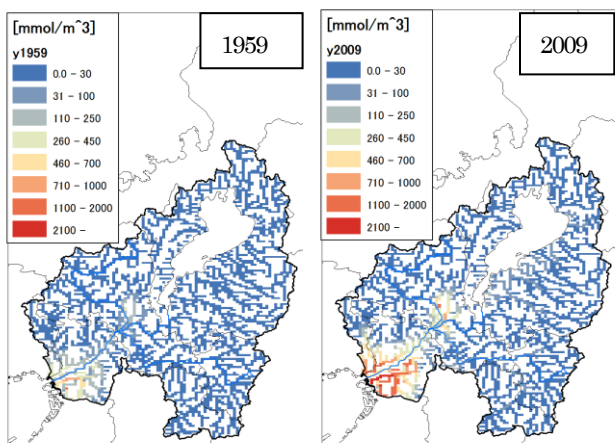


図-8 1959年, 2009年における底質の水銀濃度分分布比較

いずれの媒体も淀川下流域において水銀濃度が高くなっていることが分かる。また、大気は1959年当時の濃度が2009年に比べて非常に高い。また、琵琶湖上空では大気中の水銀濃度が低いという事が分かる。土壌では1959年より2009年に広範囲で濃度が上昇していること

が分かる。これは残留性の高い性質を持つ水銀が土壌に蓄積されている事が原因と考えられる。また濃度上昇は琵琶湖西部より東部でより顕著である。水域では他の媒体と同様に淀川下流域で高い濃度となっている。また、多媒体モデルの概要で述べたように水域は土壌から流入する水銀の影響を受けるので、土壌と同様に琵琶湖の西部より東部の濃度が高い傾向にある。1959年には、土壌の濃度が低い奈良県北東部で水域の濃度が高くなっていることが分かる。底質では水域からの影響が大きく水域で高濃度を示していた領域では同様に高濃度を示した。

5. 結論

One Box型、分布型の両方で水銀の挙動を再現できた。One Box型ではどの媒体に関してもオーダーレベルで再現できた。しかしその中で底質が過大評価傾向にあったが、これは底質粒子径を一定と設定した事が原因だと考えられる。分布型モデルでは大気と底質で実測値と比較したが、どちらもオーダーレベルで水銀挙動が再現できた。また、水銀濃度の分布をみると、大気では偏西風の影響によると見られる北東に向かって濃度が広がる分布がみられ、土壌では人間の産業活動に起因する細かい空間変動がみられた。また水域では下流のほうが濃度が高いという傾向が。底質では水域からの影響を反映した濃度分布がそれぞれ見られた。分布型では上記のようなそれぞれの媒体の濃度分布特徴が観察できた。この濃度分布と経年変化傾向を利用すれば将来予測と共に人的被害への対策も可能である。また、今回構築したモデルは異なる地域や対象物質に対して適用することも可能であると考えられる。

参考文献

- 1) Zhang, Q.-Q. and Ying, G.-G.: Multimedia fate modeling and risk assessment of a commonly used azole fungicide climbazole at the river basin scale in China, *Sci. Tot Env.*, Vol. 520, pp. 39-48, 2015.
- 2) Pacyna, E. G., Pacyna, J. M., Steenhuisen, F. and Wilson, S.: Global anthropogenic mercury emission inventory for 2000, *Atmos. Env.*, 40, 4048-4063, 2006.
- 3) 清水香奈, 山本浩平, 東野達: 東アジア地域における運命予測モデルを用いた水銀の影響評価, 土木学会論文集G, Vol.66, No.3, pp. 136-148, 2010.
- 4) 滋賀県琵琶湖環境科学研究センター, 琵琶湖の概要, <http://www.lberi.jp/root/jp/13biwakogaiyo/bkjindex.htm> (2013年7月時点) .
- 5) 菱田尚子, 永淵修: 琵琶湖集水域における水銀沈着量の空間分布, 水環境学会誌, Vol.37, No.4, pp.155-161, 2014.
- 6) 鈴木由紀子, 大手信人, 谷田幸治, 三条英章, 勝山正則, 伊藤

- 雅之; 森林集水域における水銀動態に関する研究, 日本生態学会全国大会一般講演ポスター発表要旨, 2-277, 2008.
- 7) 橋本尚己, 永淵修, 中澤暦, 國松孝男: 琵琶湖集水域における大気降下物負荷量の時間的空間的な差異の評価, 環境工学研究論文集, Vol. 47, pp. 545-551, 2010.
- 8) 貴田晶子: 我が国及び世界の水銀の使用・排出状況, 水銀条約に関する公開セミナー, 2012.
- 9) 気象庁:
http://www.data.jma.go.jp/kaiyou/db/pollution/archive/d_1/heavymetal/2009/heavymetal2009.html

ANALYSIS OF FATE AND TRANSPORT OF MERCURY IN LAKE BIWA-YODO RIVER BASIN USING MULTIMEDIA ENVIRONMENTAL MODEL

Haruaki FUKUMA, Hikari SHIMADERA, Tomohito MATSUO and Akira KONDO

A one box-type and a distributed-type multimedia models considering the four environmental media (air, soil, water and sediment) were developed in order to analyze the dynamics of mercury in the environment. The one box-type model treats the target area as homogenous and the distributed-type model divides the target area into about 1 km × 1 km. The two model were applied to the Lake Biwa-Yodo River Basin with mercury emissions estimated based on PRTR data and past mercury consumption from 1946 to 2009. The mercury concentrations calculated by the one box-type model were within the range of the measured values in Japan for all the media. In addition, the mercury concentration calculated by the distributed-type model were within the same order as the measured value at all points for the atmosphere and sediment. In the distributed model, the concentration tends to be higher in urban areas with higher emissions.