

環境実測データを用いた 発生源・排出量の検証方法

(独)産業技術総合研究所
化学物質リスク管理研究センター
小倉 勇

はじめに

- 化学物質の環境排出量の推計値(前発表)は、一般に不確実性が大きい。

マテリアルフローや物質収支による推計 ← 生産・使用・廃棄などの全体のフローから見れば、一般に環境排出量は小さく、誤差のレベル

排出係数などによる推計

← 限られた測定

- また、認識していない発生源・排出があるかもしれない。

漏洩、副生成、不法投棄、非定常時、メンテナンス・掃除時など

- そのため、環境実測データから、発生源・排出量をいかに推定し、検証していくかが重要となる。

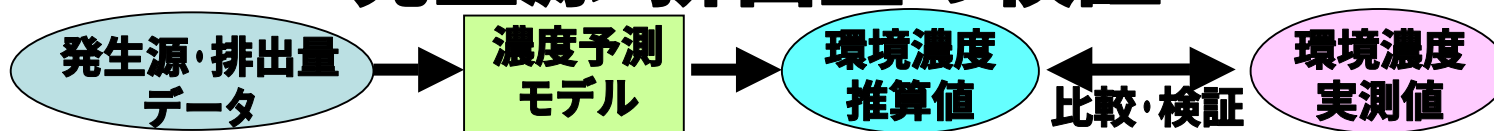
- 本発表の内容

I. 環境濃度予測モデルによる発生源・排出量の検証

既刊のリスク評価書の解析例を紹介：モデルの種類、結果、限界

II. その他の方法による発生源・排出量の推定・検証

I. 環境濃度予測モデルによる 発生源・排出量の検証



既刊の詳細リスク評価書の例

物質	検証方法
1,3-ブタジエン	ADMER
ノニルフェノール	SHANEL
フタル酸エステル	ADMER、SHANEL
1,4-ジオキサン	ADMER
トルエン	ADMER
ジクロロメタン	ADMER
短鎖塩素化パラフィン	マルチメディアモデル
ビスフェノールA	検証なし
p-ジクロロベンゼン	ADMER、METI-LIS、室内モデル
トリブチルスズ	RAMTB
鉛	検証なし

ADMER:

広域大気濃度予測モデル

METI-LIS:

局所大気濃度予測モデル

SHANEL:

河川濃度予測モデル

RAMTB:

東京湾濃度予測モデル

上記のモデルは
化学物質リスク管理研究センター
のホームページより無料で公開

ADMERとは

AIST-ADMER

AIST—Atmospheric Dispersion Model for Exposure and Risk assessment
産総研—曝露・リスク評価大気拡散モデル

日本全土の好きな地域を選択可能

5 km メッシュ単位

各メッシュの大気中濃度

(月平均や年平均),

沈着量, 暴露人口などを計算.

入力:

- ・排出量
- ・物性値
- ・気象データはアメダスのCDより

計算範囲情報

北緯 39° 15' 0"

北緯 32° 30' 0"

東経 141° 37' 30"

東経 129° 22' 30"

メッシュ数

196 × 162

凡例 g/m³

2.1126E-07

2.5013E-08

2.9616E-09

3.5065E-10

4.1517E-11

4.9156E-12

5.8201E-13

0.0000E+00

1.点源(緯度経度)

2.面源

(県別・市町村別排出量)

3.移動発生源

(車種別排出係数)

に対応.

内蔵されている人口データ,
工業統計データ, 交通量
データなどによりグリッド排
出量を作成.

開発者: 東野晴行

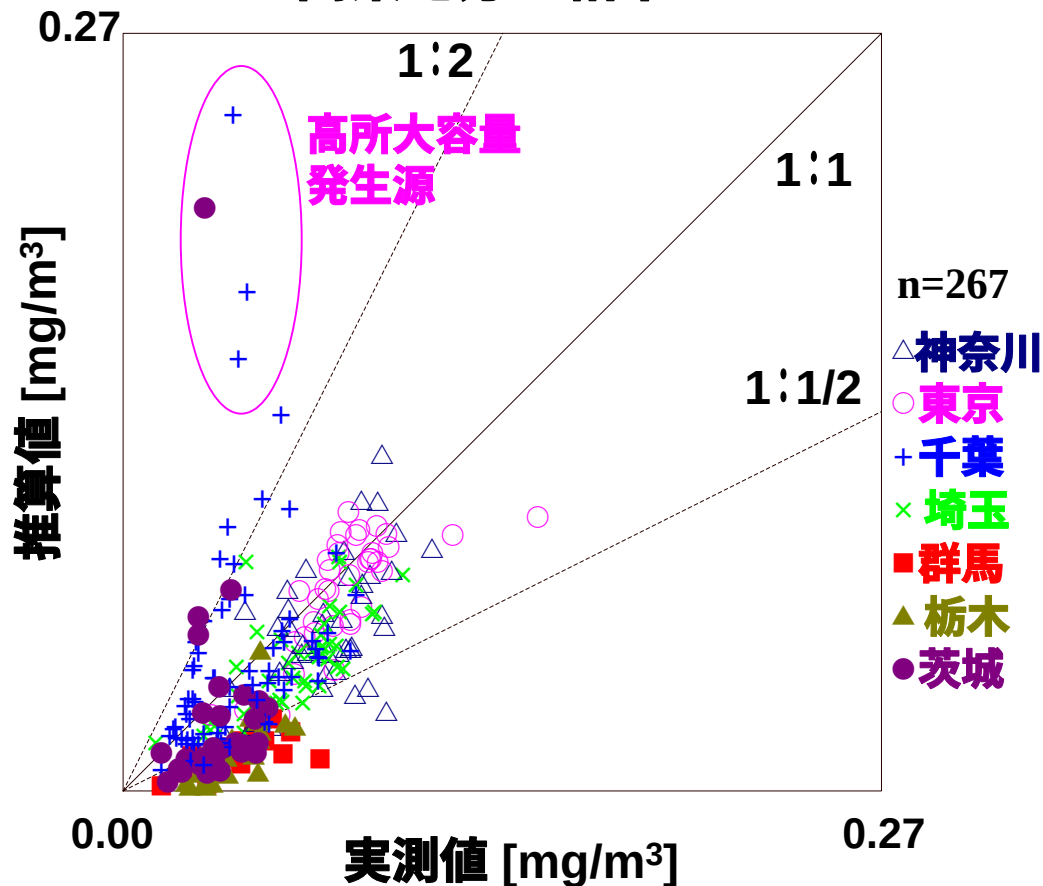
AIST-ADMERのHP

http://www.riskcenter.jp/ADMER/ja/index_ja.html

ADMERによる推算値の特徴と限界

モデルの検証

関東地方の結果



窒素酸化物(NO_x)を対象とした
関東、近畿、東海地方の
モデル推算値と実測値の比較検証

- ・都市部では1/2～2倍の範囲内
(東京、大阪では全て)
- ・地方都市ではファクター3～5の
ところが見られる。
- ・3地域全体では,
1/2～2倍(ファクター2) ……71%
1/3～3倍(ファクター3) ……91%
1/5～5倍(ファクター5) ……97%

*東野ら(2003) 環境管理, 40(12) 1242-1250

ADMERによる推算値の特徴と限界(続き)

実測値>推算値

- ・ 発生源近傍の実測値: 推算値は5kmメッシュ平均濃度
- ・ 比較的人口密度の低いところ: 実測値はヒトが多く住んでいるところで計測される場合が多いのに対し、推算値は人が住んでいないところも含めた5 kmメッシュの平均値
- ・ 発生源から遠いところ: ADMERでは4時間までの拡散のみを計算

実測値<推算値

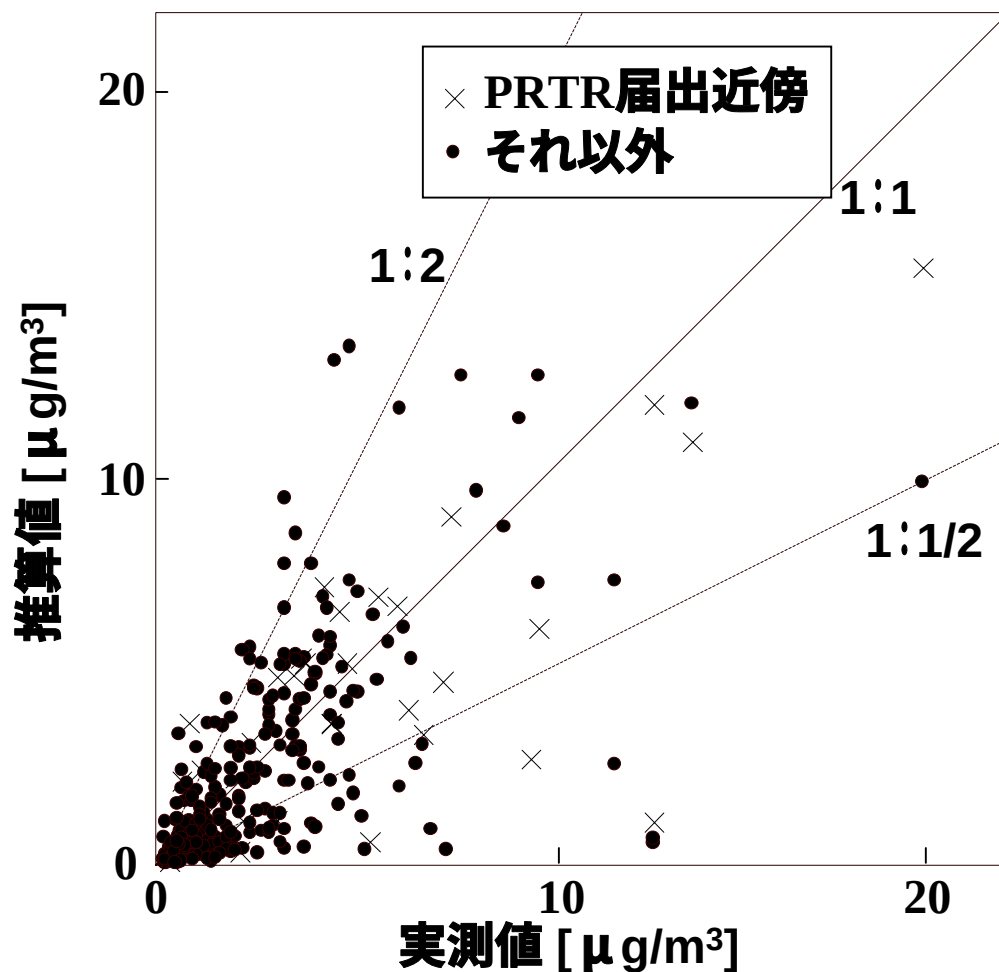
- ・ 高所大容量発生源 (発電所など) の近傍: 煙突が高いと遠くまで拡散
- ・ 都心部: 届出外排出量推計値を工業統計や事業所統計に基づいて割り振った場合、出荷額や従業員数という統計データの性質上、届出外排出量は都心部に集中してしまう場合がある(排出量のグリッドへの割り振りの問題)。

➡ **ADMER2** : 1/11公開 <http://www.riskcenter.jp/ADMER/>
5 x 5kmグリッドの内部をさらに細かいグリッド
(100m~1kmグリッド) で解析する機能がついた(詳細は午後B-4の発表)

ADMERによる推算値と実測値との比較の例

ジクロロメタン

2001年度



- ・実測値は、地方自治体により年間12回の測定を行っている地点の値
- ・発生源・排出量は、PRTRデータ

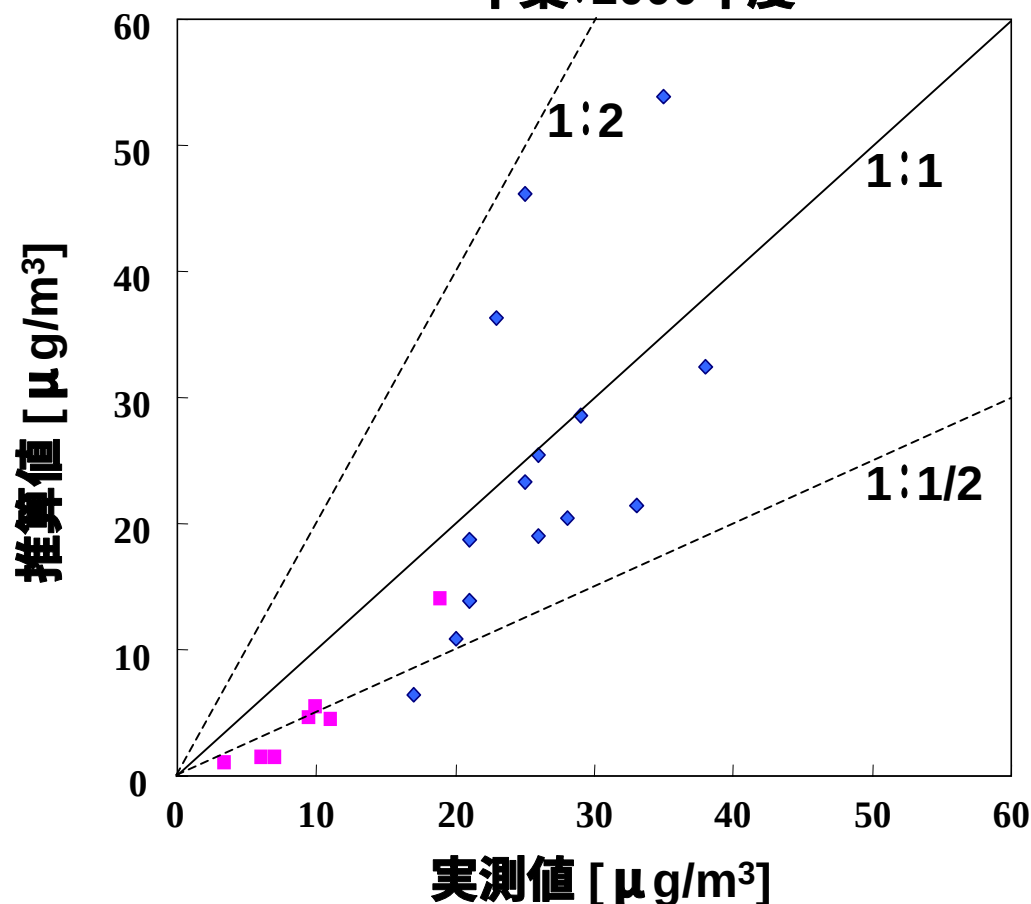
推算値は実測値とほぼ合った。

井上ら 詳細リスク評価書「ジクロロメタン」

ADMERによる推算値と実測値との比較の例

トルエン

推算値 2001年度
実測値 ◆東京:2001年度
 ■千葉:2000年度



・実測値は、年間12回以上の測定の平均値

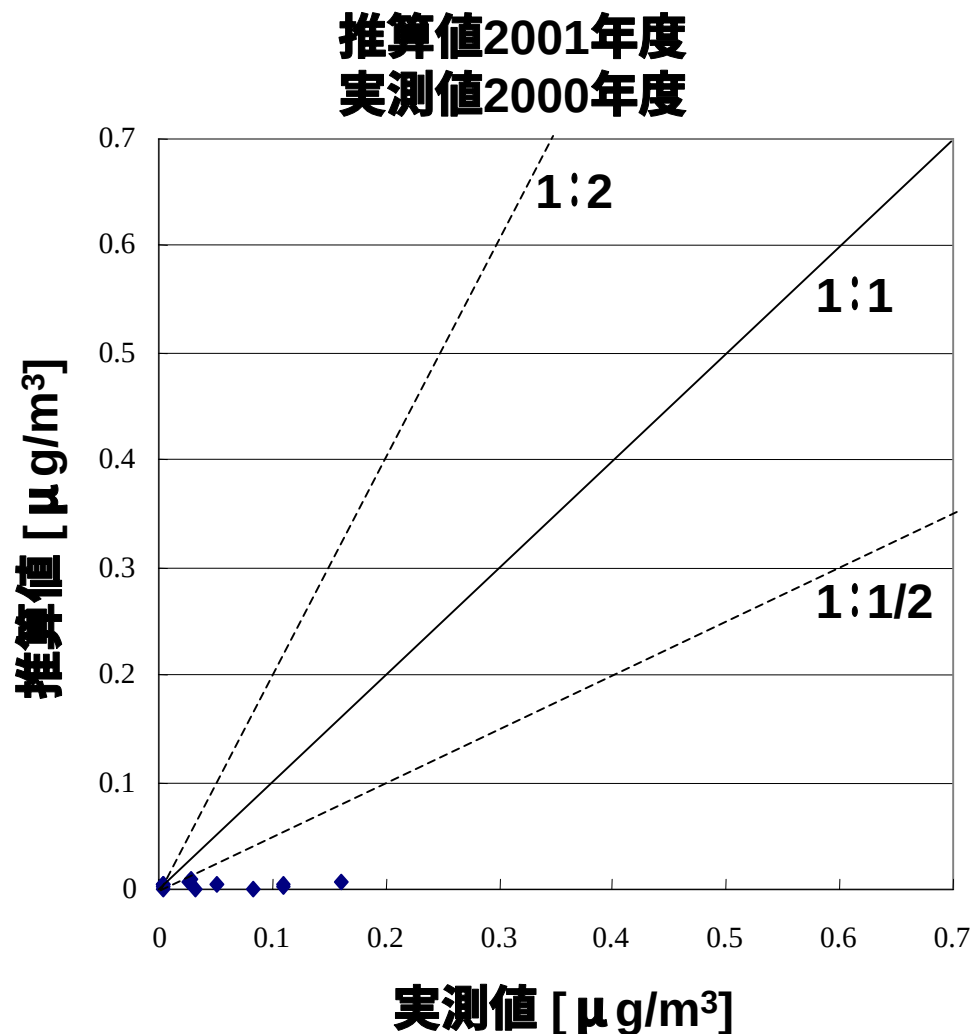
・発生源・排出量は、
PRTRデータ
+ コールドスタート排出量
+ 蒸発ガス排出量

推算値は実測値とほぼ合った。

岸本ら 詳細リスク評価書「トルエン」

ADMERによる推算値と実測値との比較の例

1,4-ジオキサン



・実測値は、地方自治体による年2～3回の平均値

・発生源・排出量は、PRTRデータ

推算値 < 実測値
・PRTRの調査結果が過小？
・未把握の発生源？

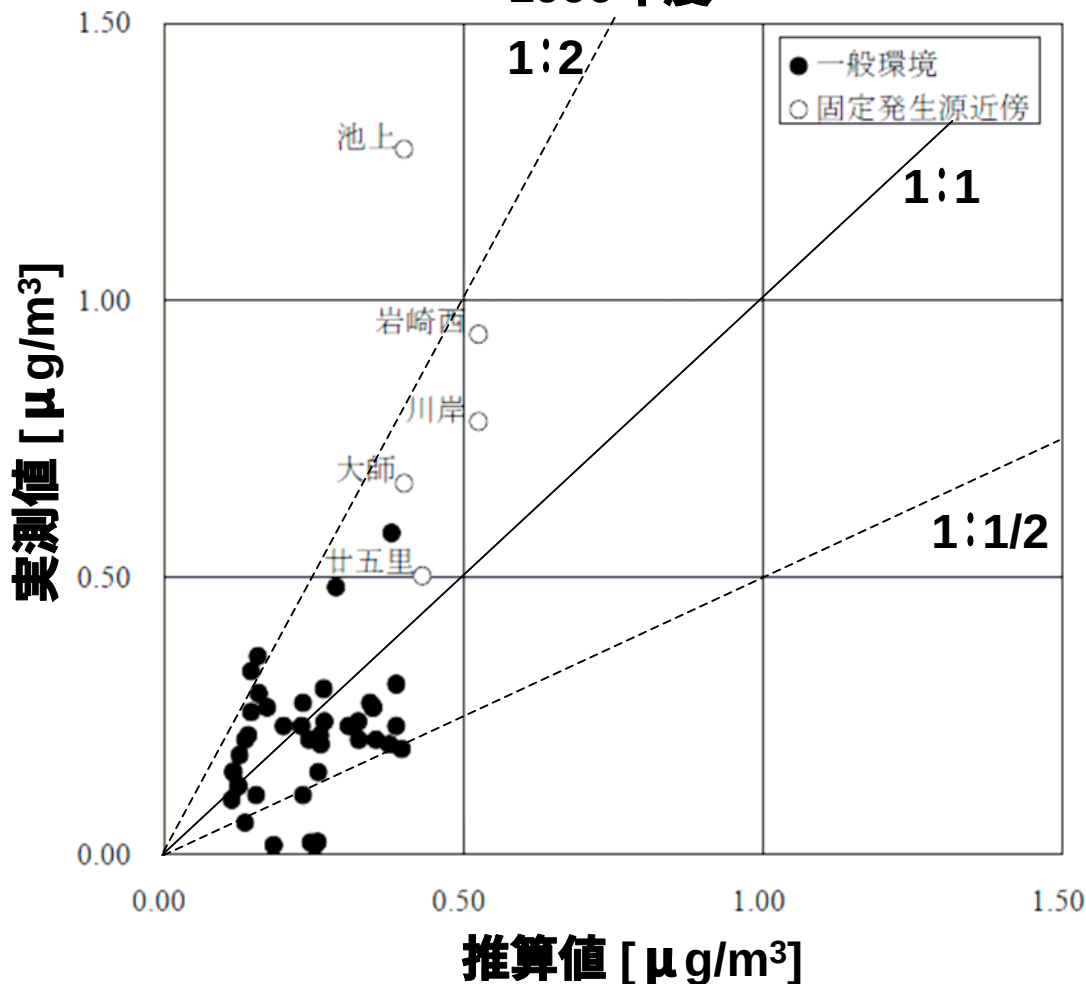
→ **実測値に合うように
排出量を補正**

牧野ら 詳細リスク評価書「1,4-ジオキサン」

ADMERによる推算値と実測値との比較の例

1,3-ブタジエン

1999年度



- ・実測値は、地方自治体により年間12回の測定を行っている地点の値(沿道を除く)
- ・他物質(ブタンやブテン)の影響による誤差を補正
- ・発生源・排出量は、固定発生源+移動発生源(独自推計)

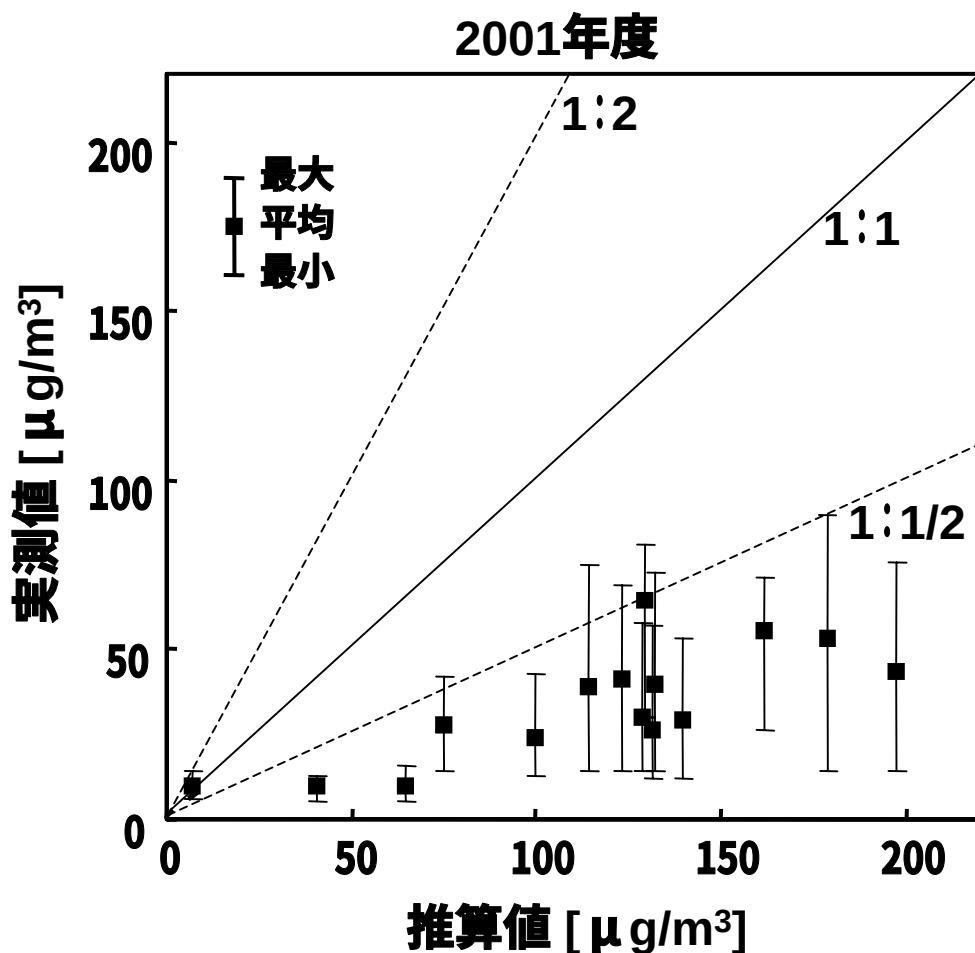
固定発生源近傍で推算値<実測値

・推計値は5kmメッシュ平均濃度

三田ら 詳細リスク評価書「1,3-ブタジエン」

ADMERによる推算値と実測値との比較の例

フタル酸エステル



・実測値は東京都による
年4回の平均値

・発生源・排出量は、
PRTRデータ＋
製品の使用に伴う排出

推算値 > 実測値

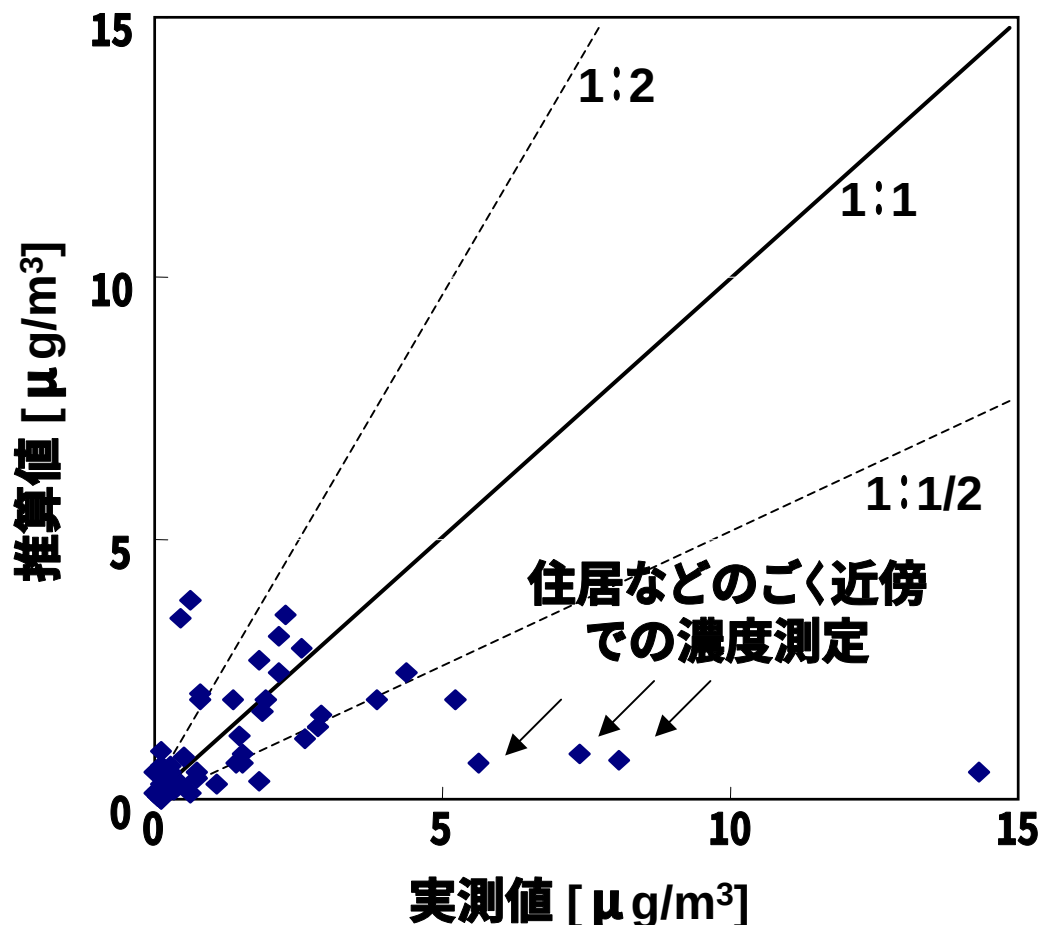
- ・PRTRデータが過大？
- ・出荷額や従業員数に基づく
排出量のメッシュへの割り振りの
問題？

吉田・内藤ら 詳細リスク評価書「フタル酸エステル」

ADMERによる推算値と実測値との比較の例

p -ジクロロベンゼン

推算値2002年度
実測値1983～1999年



・実測値は日本全国の
地方自治体や研究機関
の調査結果

・発生源・排出量は、
PRTRデータ

相関が低い

- ・実測値と推算値の年の不一致
- ・大気中濃度に対して室内濃度が高い

小野ら 詳細リスク評価書「 p -ジクロロベンゼン」

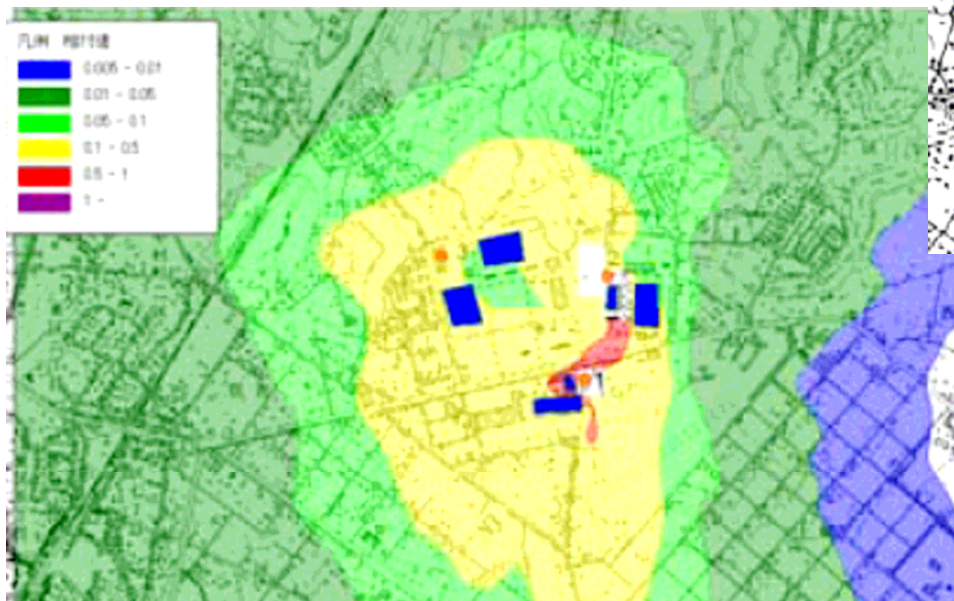
METI-LISとは

METI-LIS

METI-Low-rise Industrial Source dispersion model

(経済産業省－低煙源工場拡散モデル)

- 大気汚染物質の排出源近傍の拡散状況 (10 km圏内) を推定
- 排出源周囲の建物等によるダウンドラフト効果 (気流の巻き降ろし) を考慮
- 線源 (移動源) の影響も併わせて計算可能
- 粒子状物質にも対応 (重力沈降を考慮)



・気象データはアメダスのCDより

開発者: 吉門 洋

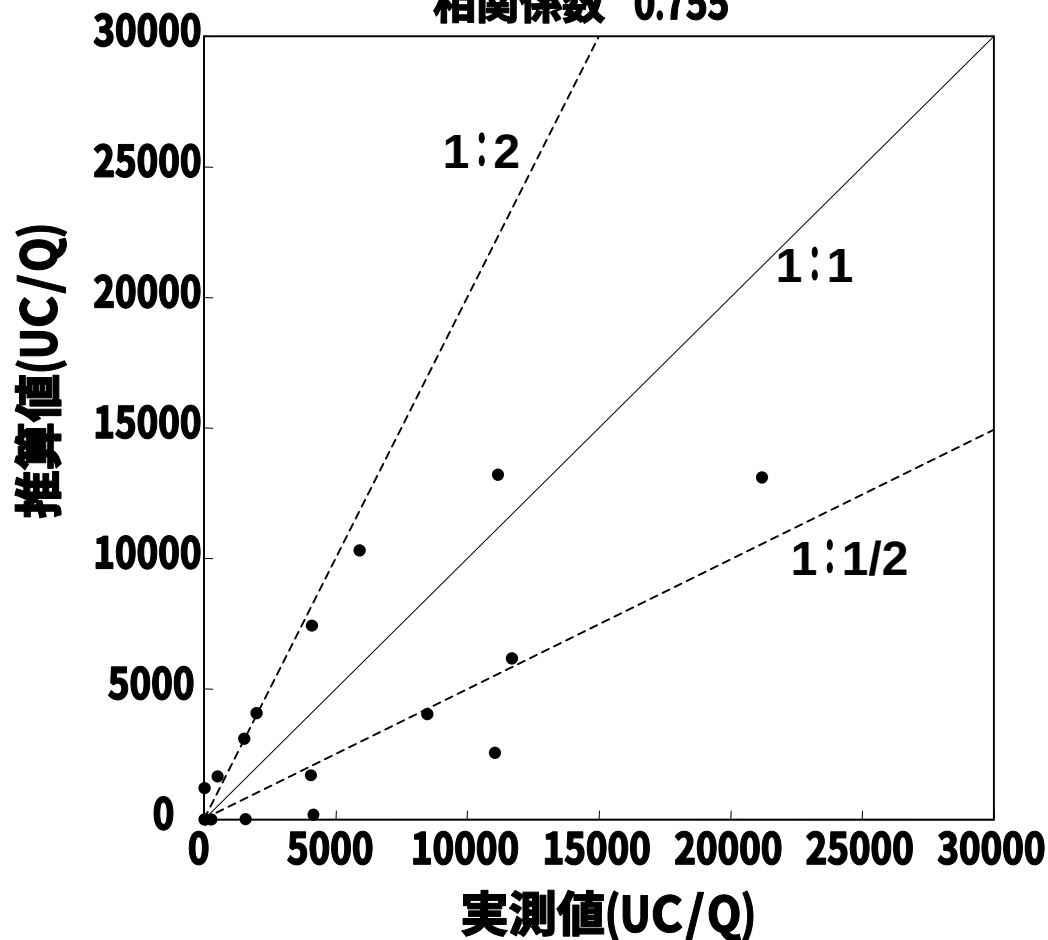
METI-LISのHP

<http://www.jemai.or.jp/ems/meti-lis.htm>

METI-LISによる推算値の特徴と限界

回帰式 $y=0.5812x + 1044.7$

相関係数 0.755



モデルの検証

トレーサーガス (SF6)
野外実測データによる検証

ほとんどの推算値は
実測値の1/2～2倍

出典: 有害大気汚染物質に係る発生源周辺における環境影響予測手法マニュアル

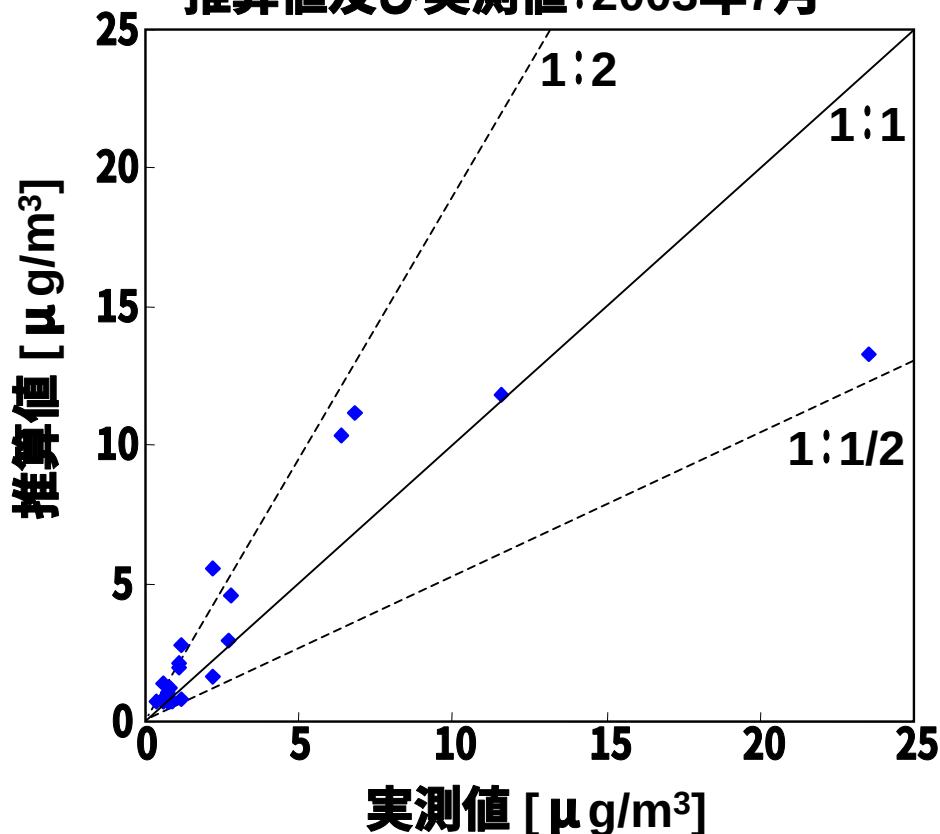
実測データ出典: (社) 産業公害防止協会: 都市型NOx拡散シミュレーション手法開発調査報告書

—トレーサーガス拡散実験—、平成3年

METI-LISによる推算値と実測値との比較の例

p -ジクロロベンゼン

推算値及び実測値：2003年7月



- ・実測値は p -ジクロロベンゼンを排出しているある工場周辺で測定
- ・発生源・排出量は、その工場のPRTRデータ報告値の1時間当りの平均値

推算値は実測値とほぼ合った。

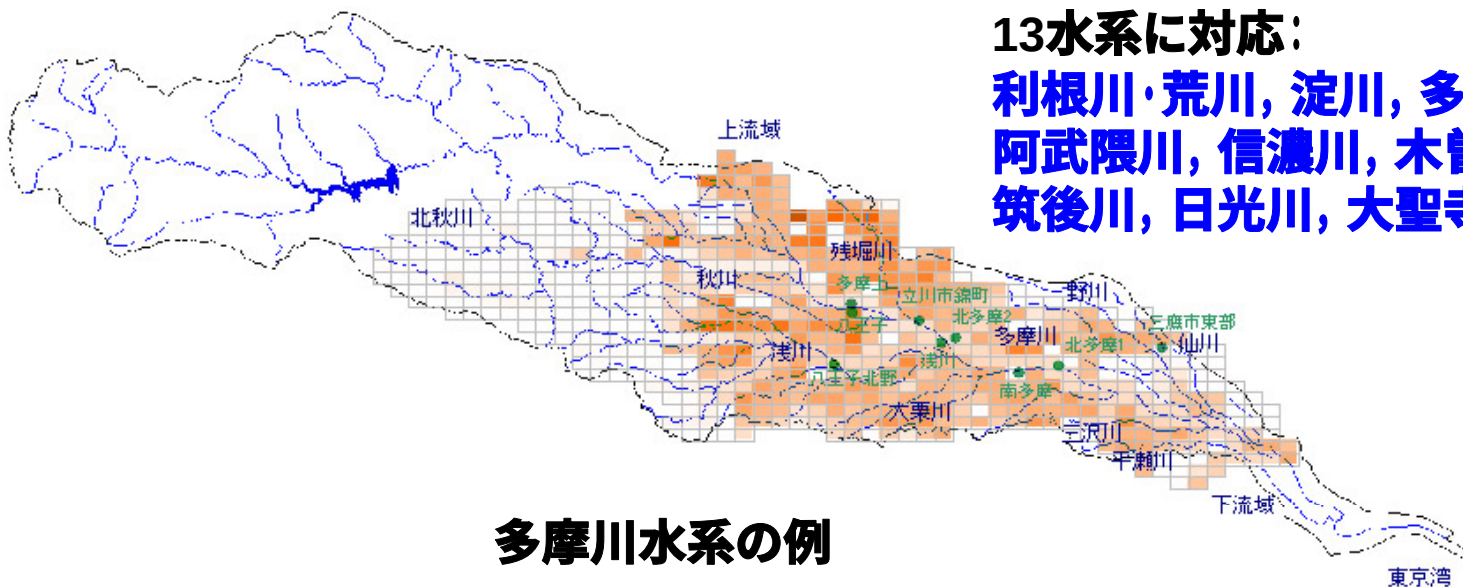
小野ら 詳細リスク評価書「 p -ジクロロベンゼン」

SHANELとは

AIST-SHANEL

AIST—Standardized Hydrology-based Assessment tool for chEmical Load
産総研—水系暴露解析モデル

- データとして、化学物質の排出量を入力 (PRTR集計結果を利用可能)
- 1991年から2003年までの任意の年の河川流量に対応
- 1×1 kmメッシュかつ月単位での流量および河川水中の化学物質濃度を計算
- 大気への揮発および大気からの沈着を考慮



13水系に対応:

利根川・荒川, 淀川, 多摩川, 石狩川,
阿武隈川, 信濃川, 木曾川, 太田川, 吉野川,
筑後川, 日光川, 大聖寺川, 石津川

多摩川水系の例

開発者: 石川百合子

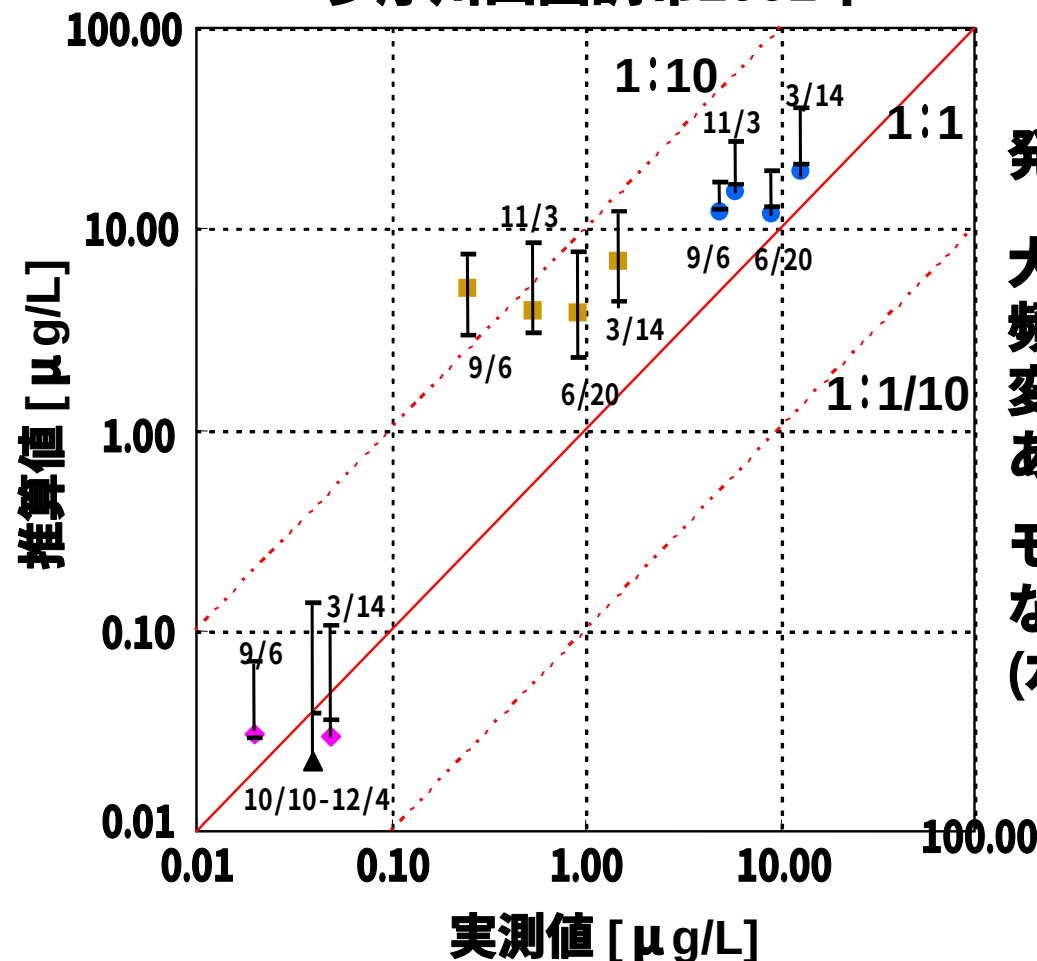
AIST-SHANELのHP

<http://www.riskcenter.jp/SHANEL/index.htm>

SHANELによる推算値の特徴と限界

モデルの検証

多摩川田園調布2001年



- 直鎖アルキルベンゼンスルホン酸
- ◆ ノニルフェノール
- ノニルフェノールエトキシレート
- ▲ ビスフェノールA

発生源・排出量は、PRTRデータ使用

大気と比べて、水系の実測値は、地点、頻度ともに概して少ない。時空間的な変動に対し、実測値の代表性の問題がある。

モデルの不確実性としては、分解速度などの不確実性がある
(水の流量はおよそ再現できている)。

**ほとんどの推算値は
実測値の1/10～10倍**

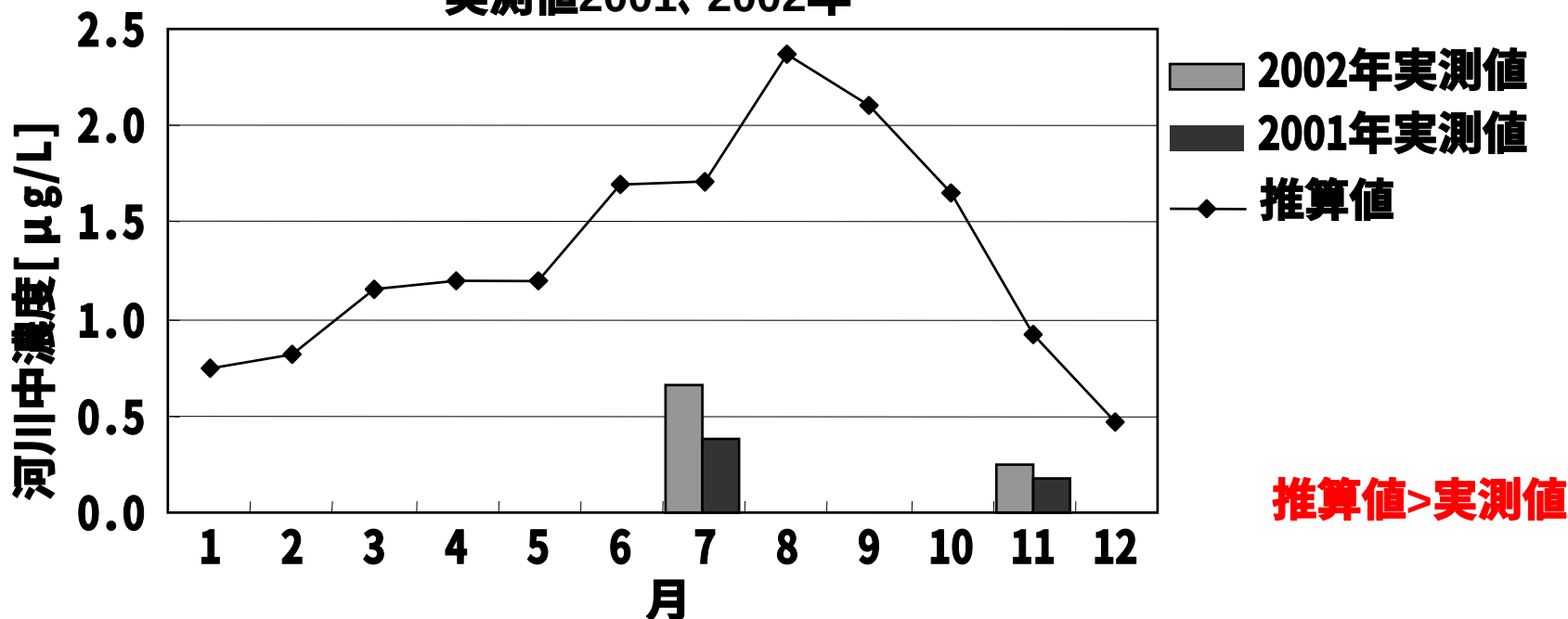
石川 & 東海(2006) 水環境学会誌29:797-807

SHANELによる推算値と実測値との比較の例

フタル酸エステル

多摩川
推算値2001年
実測値2001、2002年

発生源・排出量は、
・家庭排水
・屋外用途製品(雨水流出由来)



吉田・内藤ら 詳細リスク評価書「フタル酸エステル」

I. 環境濃度予測モデルによる 発生源・排出量の検証：まとめ

- ADMER、METI-LIS、SHANELなどの環境濃度予測モデルが発生源・排出量の検証に利用可能。
- 発生源・排出量の検証はモデルの特徴や限界に左右される。大気モデルでは推算値と実測値の比がおおよそ1/2～2倍、河川モデルでおおよそ1/10～10倍に入れば良い一致とみなせる。
→発生源・排出量の完全な検証(特に絶対値の評価)は難しい。
- 推算値と実測値が合わない場合：
モデルの特徴？ 実測値の代表性？ 発生源・排出量の推定？
→フィードバックによりその原因を考えていくことが大事

その他の方法(定性的評価や相対値による評価など)もあわせた複合的な推定・検証が望まれる。

II. その他の方法による発生源・排出量の推定・検証

- (1) 環境濃度測定データの空間分布から発生源を推定・検証
- (2) 環境濃度測定データの時間変動から発生源を推定・検証
- (3) 複数の化学物質の情報を使った多変量解析的発生源推定

(1) 環境濃度測定データの 空間分布から発生源を推定・検証

■ 濃度の高い地点の近くに主要な発生源

沿道？工場地帯？住宅地？焼却場？
点源？面源？局所？遍在？

■ 室内と屋外の濃度差

室内濃度の方が高い物質：トルエン、*p*-ジクロロベンゼン、
ジクロロメタンなど

II. その他の方法による発生源・排出量の推定・検証

- (1) 環境濃度測定データの空間分布から発生源を推定・検証
- (2) 環境濃度測定データの時間変動から発生源を推定・検証
- (3) 複数の化学物質の情報を使った多変量解析的発生源推定

(2) 環境濃度測定データの 時間変動から発生源を推定・検証

■ 日内変動

例) 工場が稼動する昼間ほど濃度が高い
昼間ほど光化学反応による生成が起こる

■ 曜日変動

例) 工場が稼動する平日ほど濃度が高い

■ 季節変動

例) ある時期だけ使う農薬
夏ほど揮発

■ 経年変動

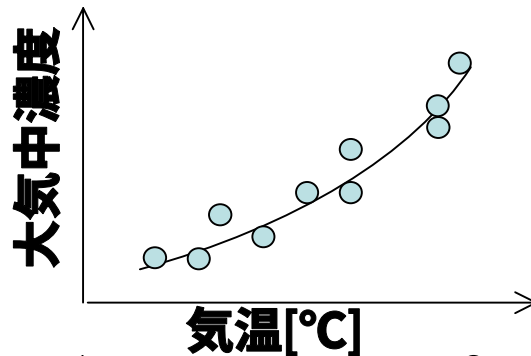
例) 生産量や輸入量、使用量などの経年変化との関連

■ 環境条件との関連

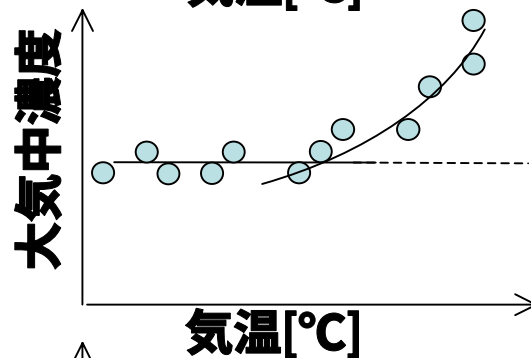
例) 降雨による溶出
気温上昇による揮発
風向と発生源の場所

気温変化に伴う濃度変動に基づく 発生源寄与の推定例

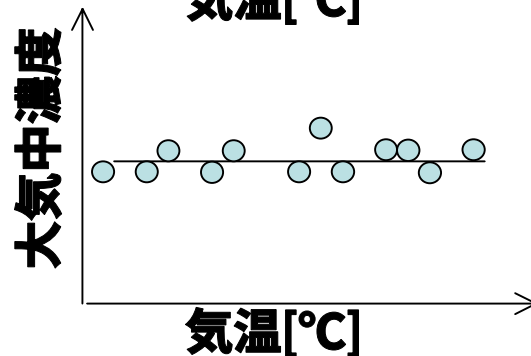
コプラナーPCB



気温に依存するPCB
揮発由来と推定

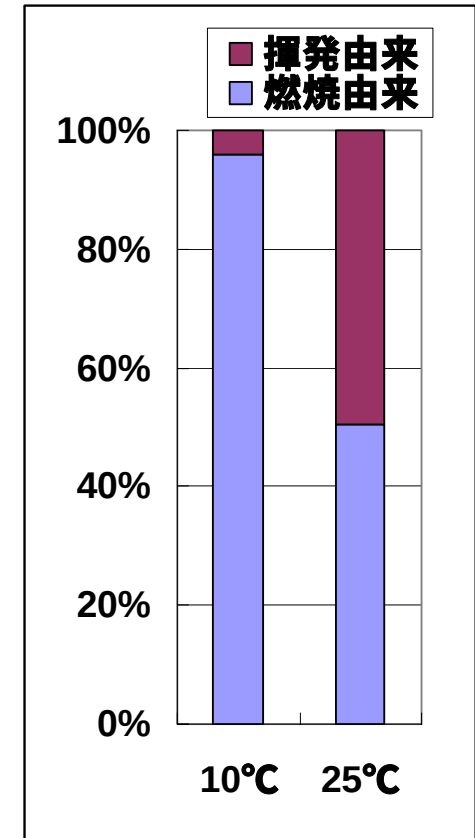


ある気温を境に
気温に依存するPCB
揮発由来+燃焼由来
と推定



気温に依存しないPCB
燃焼由来と推定

揮発の寄与は主に
PCB製品由来の寄与？

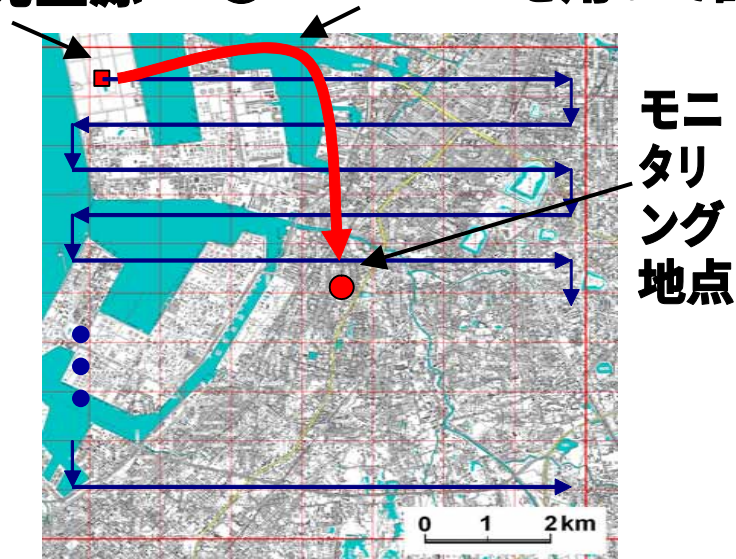


コプラナーPCB全体(TEQ)の
揮発由来と燃焼由来の
寄与率の推定結果

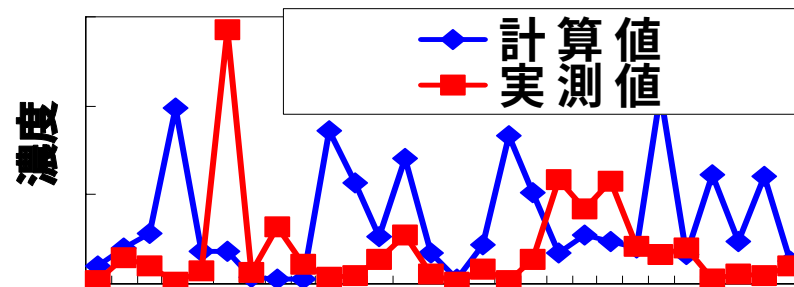
1998~2000年 横浜 (Ogura et al. 2004)

METI-LISを使った時系列実測データからの 排出地点の逆推定の例

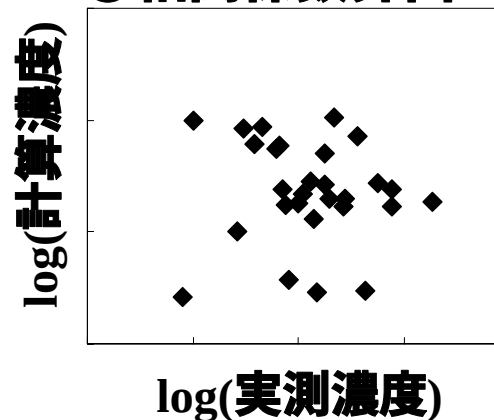
- ① 仮想発生源 ② METI-LISを用いて計算



- ③ 時系列濃度

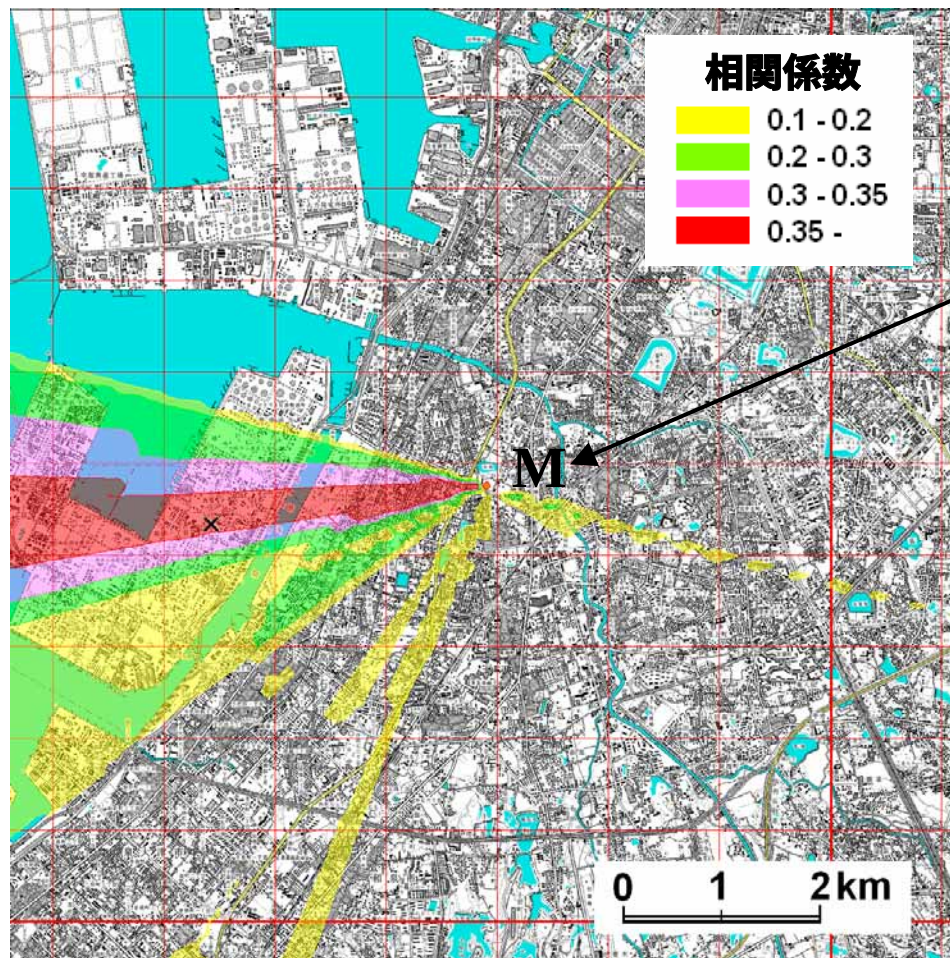


- ④ 相関係数算出



- ⑤ 発生源を移動して繰り返す
⑥ 相関係数の高い地点(推定排出地点)を探す。

METI-LISを使った時系列実測データからの 排出地点の逆推定の例



モニタリング地点

推算値と実測値の相関係数が高いところに発生源が存在する可能性が大

各地点に発生源があったとして計算される
モニタリング地点の推算値と実測値の相関係数

梶原 ポスター発表

II. その他の方法による発生源・排出量の推定・検証

- (1) 環境濃度測定データの空間分布から発生源を推定・検証
- (2) 環境濃度測定データの時間変動から発生源を推定・検証
- (3) 複数の化学物質の情報を使った多変量解析的発生源推定

(3) 複数の化学物質の情報を使った 多変量解析的発生源推定

- 一般に一つの発生源から複数の化学物質が排出されることが多い。もし、排出される複数の化学物質の相対存在比(プロファイル)が発生源ごとに特徴を持つなら、その特徴を使って発生源解析が可能になる。
- 相対値による評価: 絶対値の評価より概して精度が高い。発生源間の相対値、化学物質間の相対値を利用

レセプターモデル

- ・ケミカルマスバランス(CMB)法
- ・因子分析法(または主成分分析法)

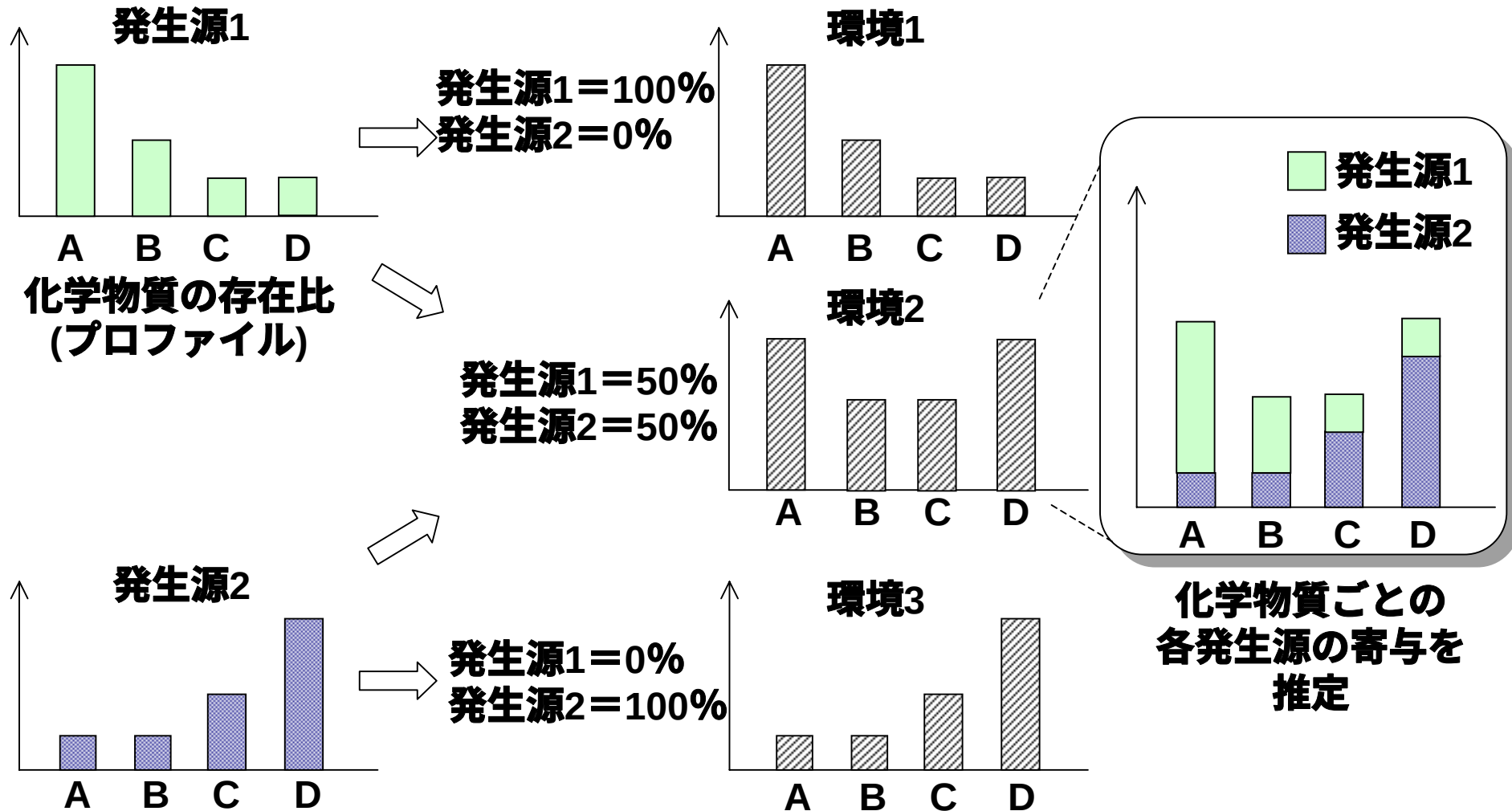
対象とされる化学物質群

- ・共通の発生源から排出される
- ・同時に測定される
- ・環境中での挙動が化学物質間で大きく違わない

浮遊粒子状物質(元素), VOCs, 異性体や同族体(ダイオキシン類やPCB類など)

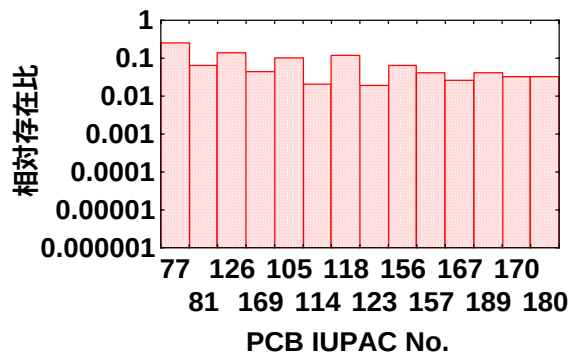
ケミカルマスバランス(CMB)法の概要

予想される発生源をどんな割合で組み合わせれば
環境データと一致するか？

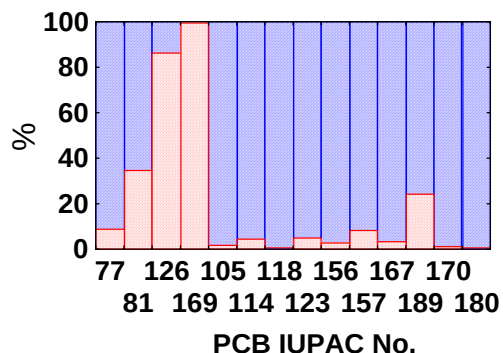


ケミカルマスバランス(CMB)法による発生源解析例

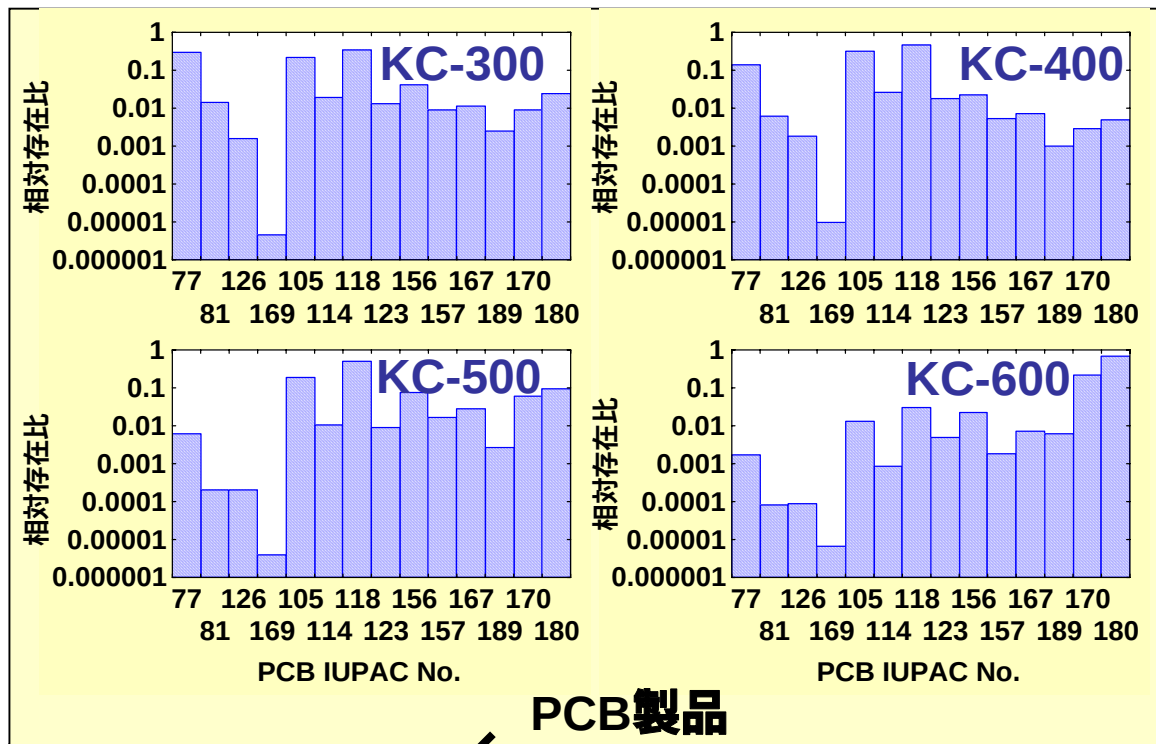
コプラナーPCB 14種のPCB



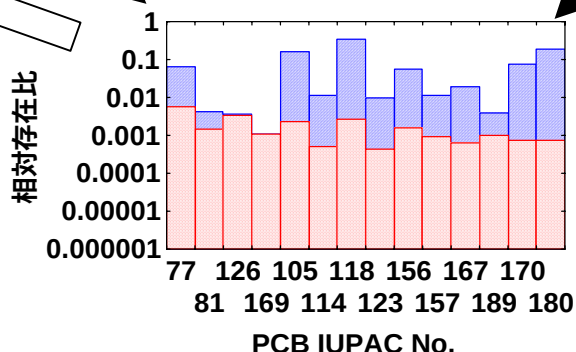
燃焼



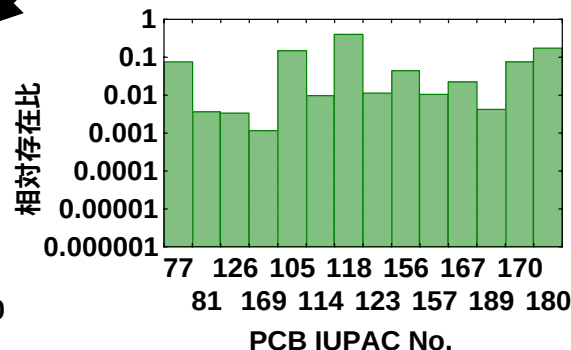
底質中濃度に対する
各発生源の寄与率
の推定値



PCB製品



底質中濃度推定値



底質中濃度実測値(平均値)

1999年度
全国247地点
環境庁&
建設省(2000)

因子分析法による発生源解析の概要1

複数の化学物質の複数の環境データから、
それらの値のばらつきが説明されるように

- 発生源の数
- 各発生源のプロファイル(化学物質の相対存在比)
- 各環境データにおける各発生源の寄与率

を推定する。

ケミカルマスバランス(CMB)法と違い、発生源データを必要としない為、未把握な発生源に関する情報を得ることができる。

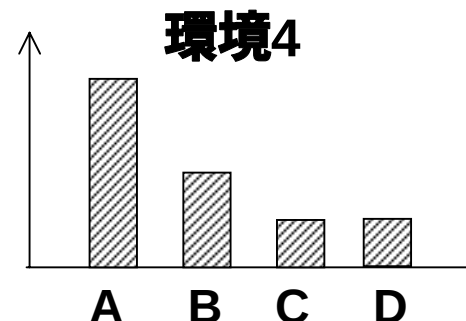
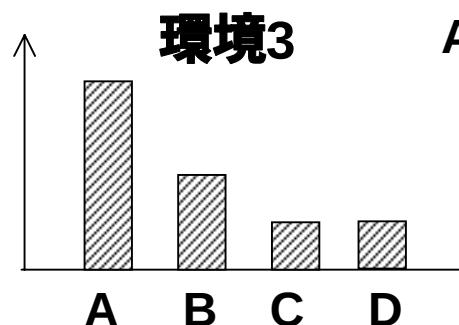
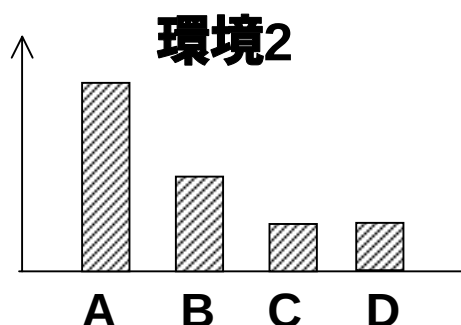
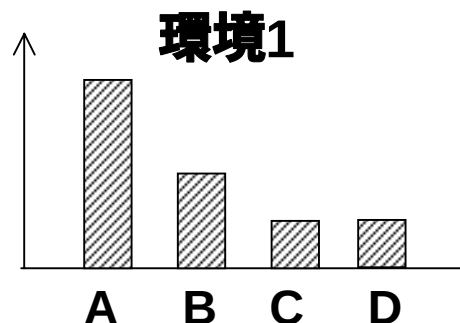
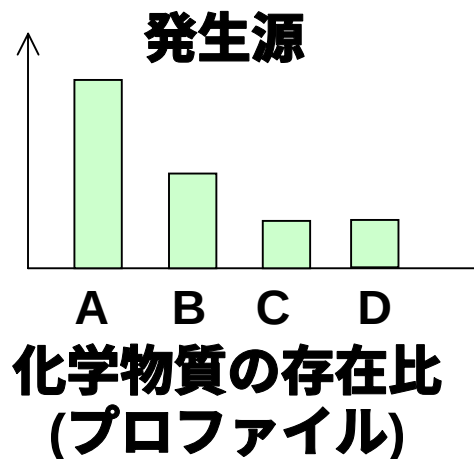
$$\text{環境データ } X = \begin{matrix} & \text{複数の化学物質} \\ \left\{ \begin{array}{l} X_{11} \ X_{12} \ \dots \ X_{1n} \\ X_{21} \ X_{22} \ \dots \ X_{2n} \\ \vdots \\ \vdots \\ X_{m1} \ X_{m2} \ \dots \ X_{mn} \end{array} \right. & \text{複数の環境サンプル} \end{matrix}$$

環境データの
サンプルごとの違いを
基にした解析と、
化学物質ごとの違いを
基にした解析ができる。

因子分析法による発生源解析の概要2

環境データのサンプル間のプロファイルのばらつきを基にした解析

発生源が1つのとき



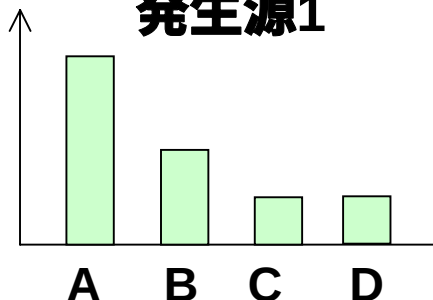
**化学物質の環境中動態が等しいとすれば、
環境中のプロファイルはどこでも一樣**

因子分析法による発生源解析の概要3

環境データのサンプル間のプロファイルのばらつきを基にした解析

発生源が2つのとき

発生源1



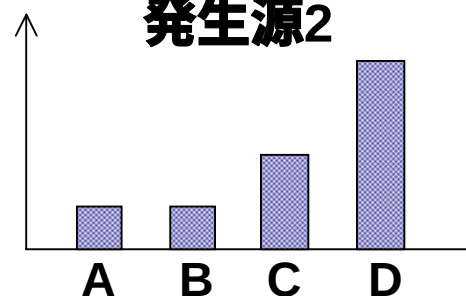
発生源1の寄与(%)

100%

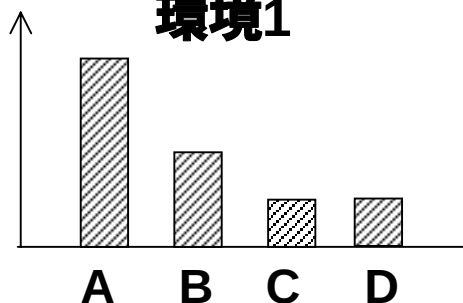
50%

0%

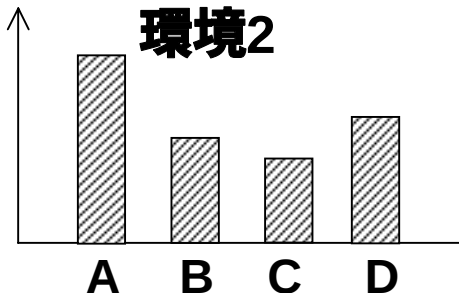
発生源2



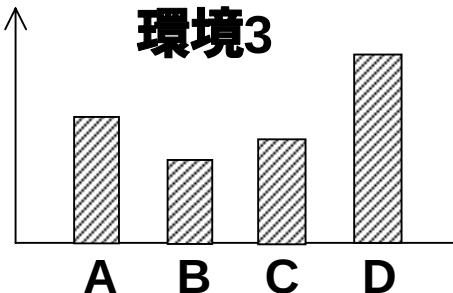
環境1



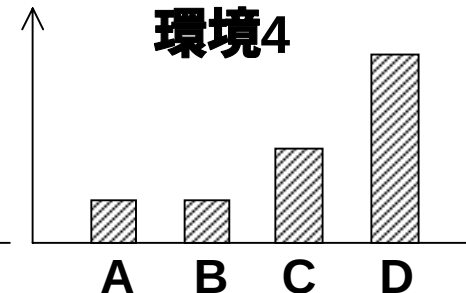
環境2



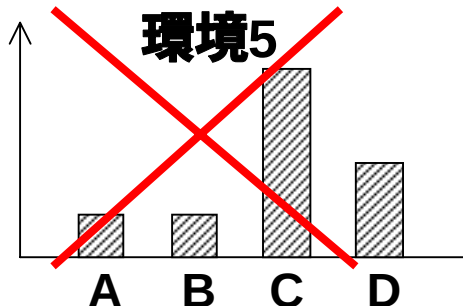
環境3



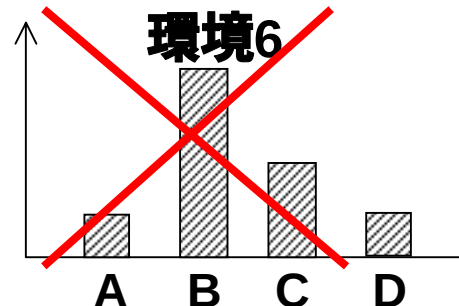
環境4



環境5



環境6

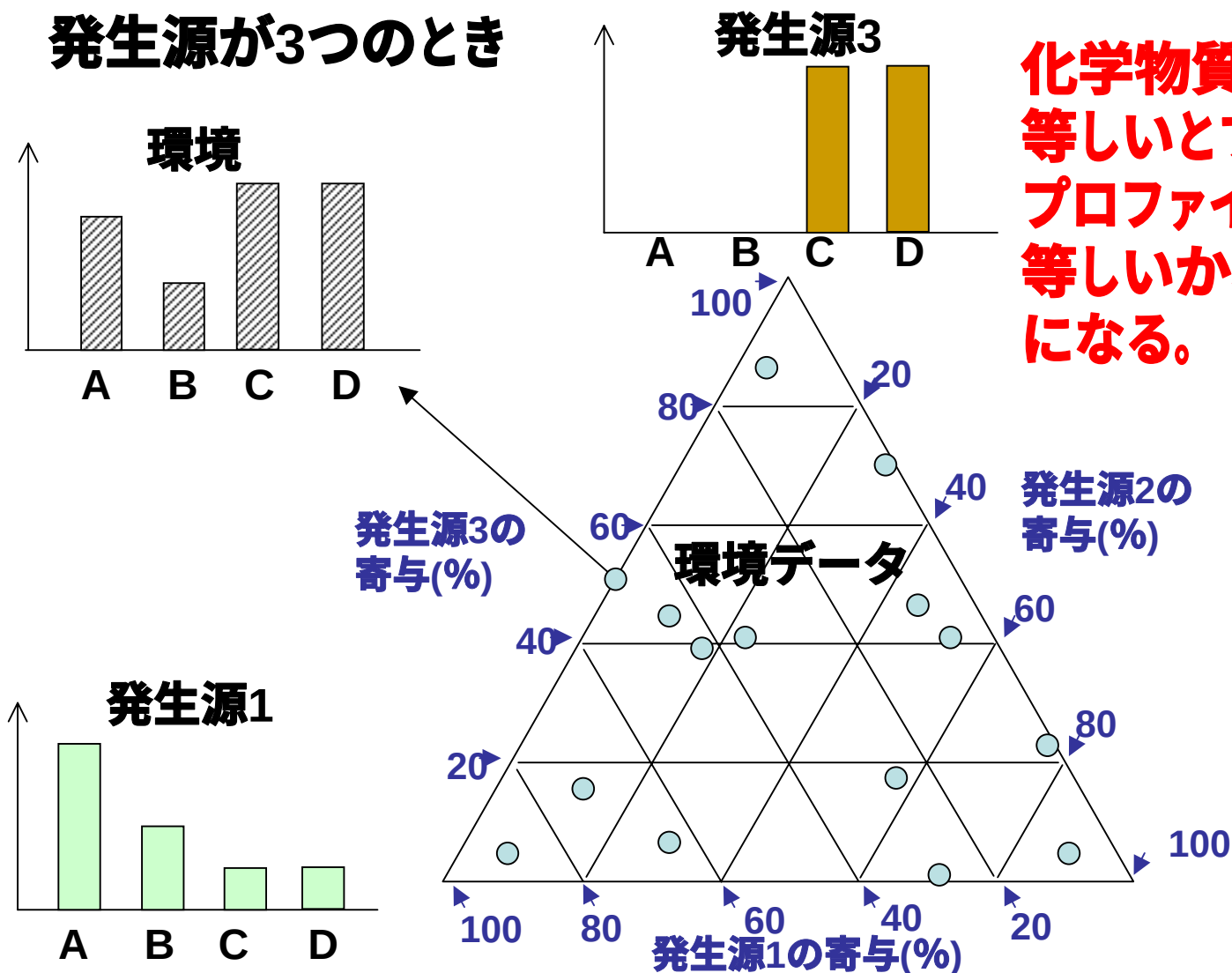


化学物質の環境中動態が等しい
とすれば、環境中のプロファイルは
発生源1や発生源2と等しいか、
またはその中間になる。

因子分析法による発生源解析の概要4

環境データのサンプル間のプロファイルのばらつきを基にした解析

発生源が3つのとき



化学物質の環境中動態が等しいとすれば、環境中のプロファイルは、各発生源と等しいか、またはその中間になる。

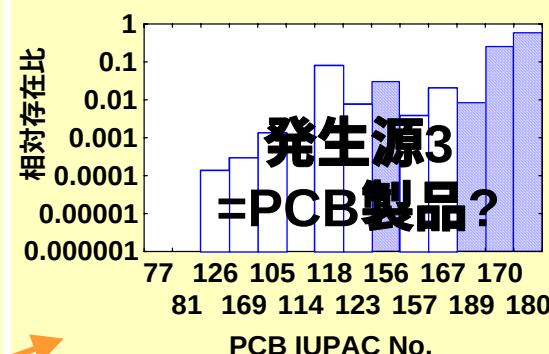
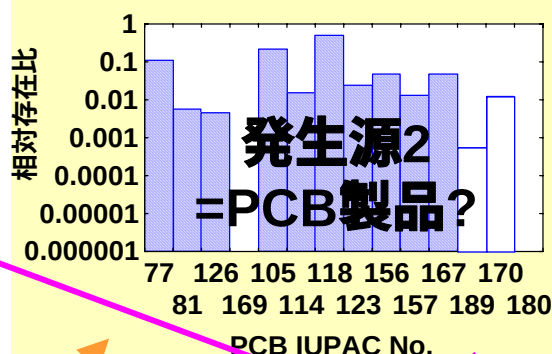
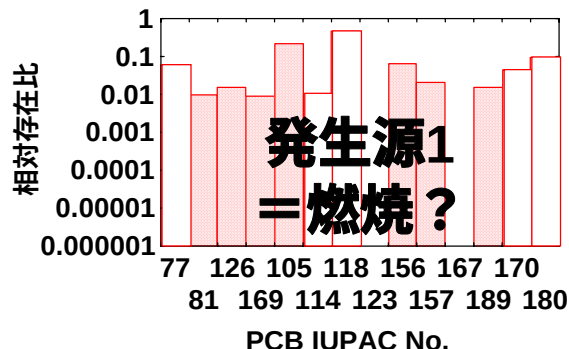
因子分析法による発生源解析例

環境データのサンプル間のプロファイルのばらつきを基にした解析

コプラナーPCB

14種のPCB

塗りつぶしてないバーは寄与が小さい(20%以下)もの(誤差が大きいと考えられる)



推定

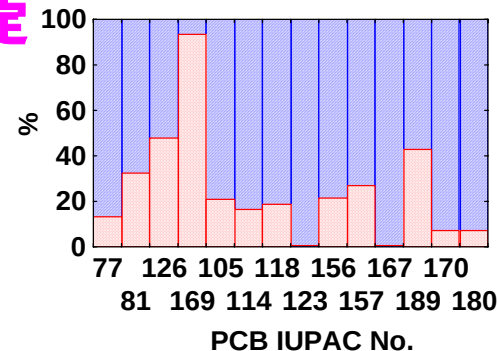
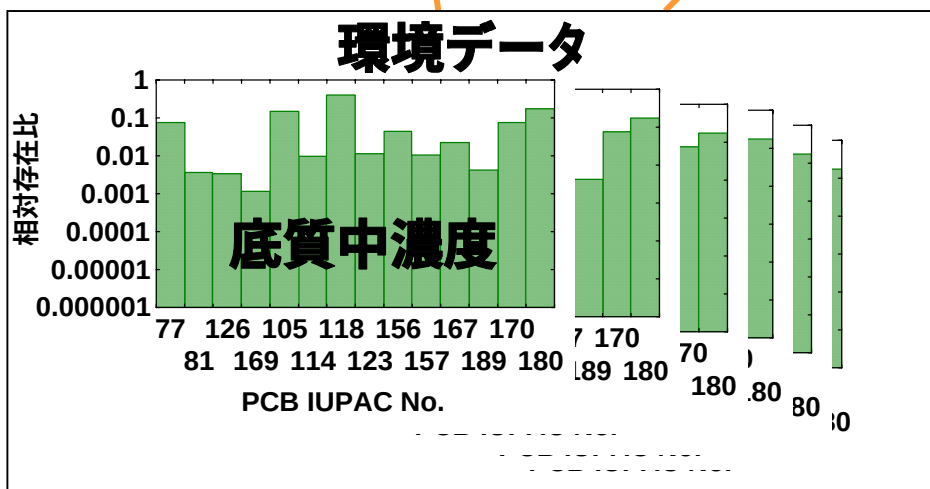
推定

推定

推定

推定

推定

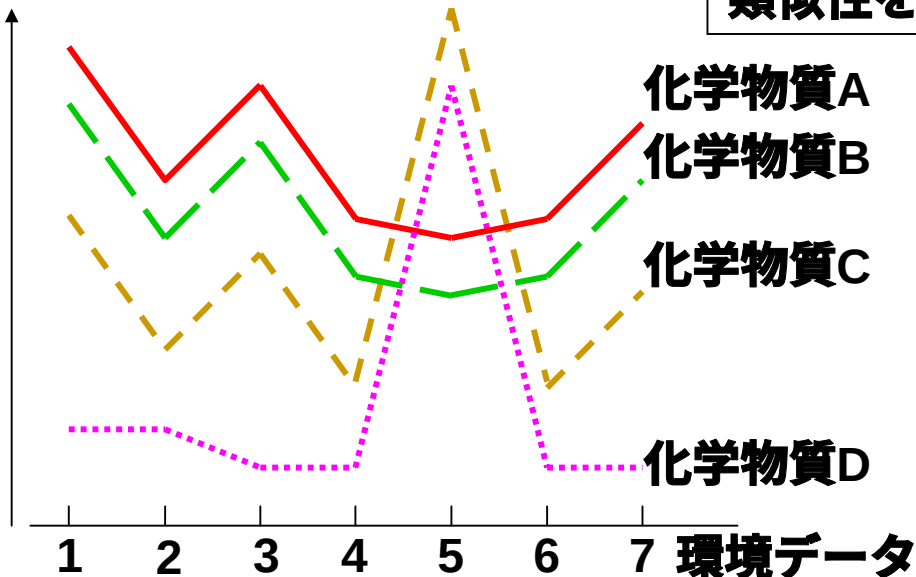


1999年度全国底質247地点 環境庁&建設省(2000)

因子分析法による発生源解析の概要5

環境データの化学物質間の変動のばらつきを基にした解析

濃度

変動の違いや
類似性を解析

複数の化学物質の複数の環境データから、それらの値のばらつきが説明されるように

- 発生源の数
- 各発生源の特徴を表す変動
- 各環境データにおける各発生源の寄与率

を推定する。

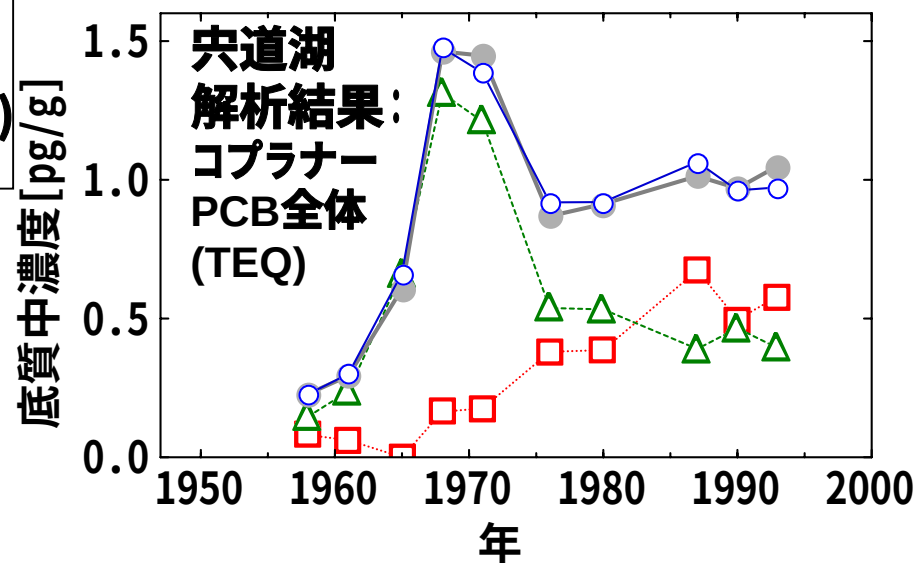
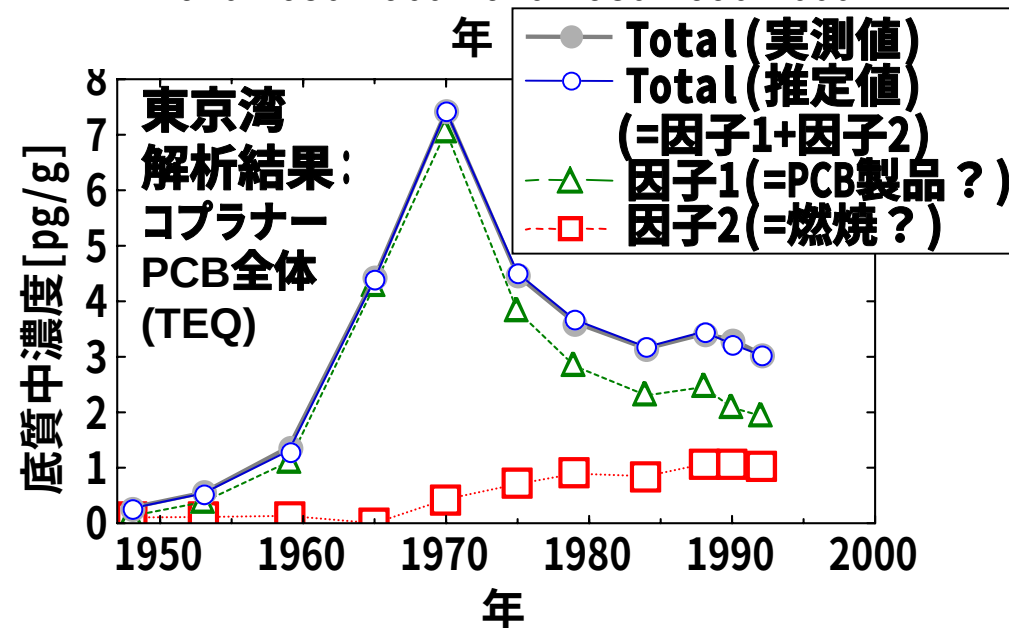
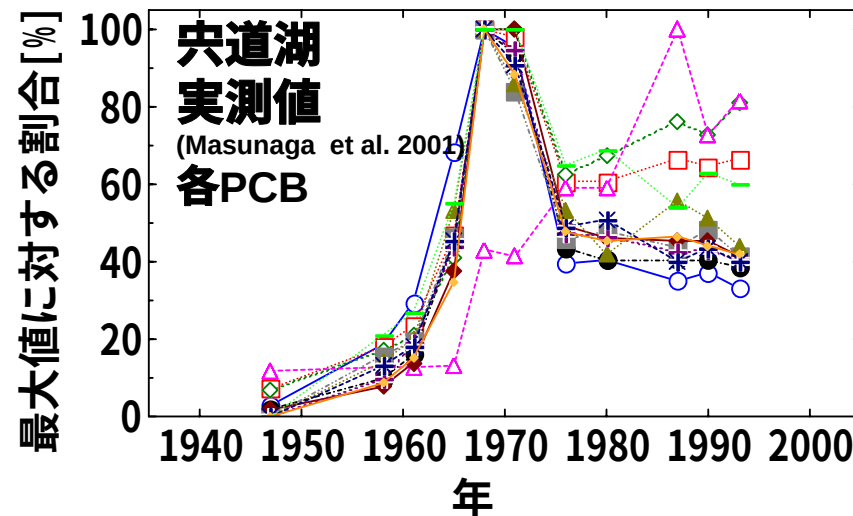
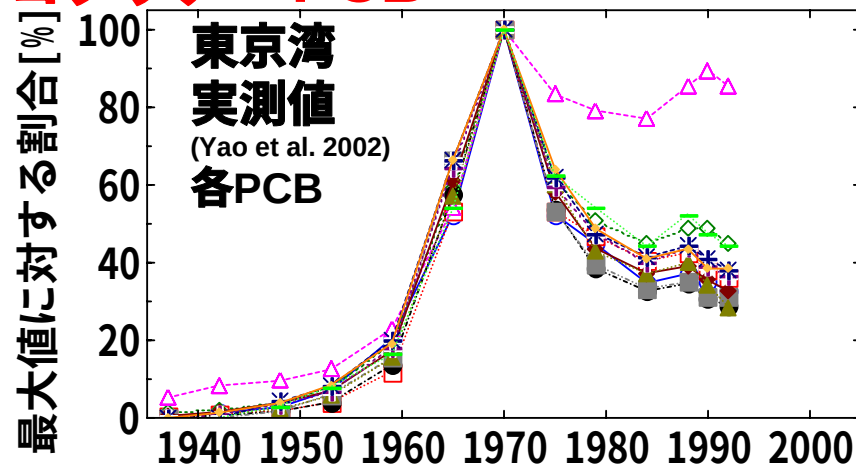
解釈

- 化学物質AとBの値の変動は同じ→AとBは共通の発生源からの影響を受けている。
- 化学物質Dの値の変動は、化学物質AやBの値の変動とは異なる→Dは、AやBとは別の発生源からの影響を受けている。
- 化学物質Cの値の変動は、化学物質AやBの値の変動と化学物質Dの値の変動の両方に似ている(中間)：→CはAやBへ影響を与えている発生源と、さらにDに影響を与えている発生源の両方の影響を受けている。

因子分析法による発生源解析例

環境データの化学物質間の変動のばらつきを基にした解析

コプラナーPCB



ケミカルマスバランス法、因子分析法の参考資料

・総合

- Watson JG, Zhu T, Chow JC, Engelbrecht J, Fujita EM, Wilson WE.(2002). Receptor modeling application framework for particle source apportionment. *Chemosphere* 49(9):1093-136.
- Hopke PK (1991). An introduction to receptor modeling. *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems* 10:21-43.
- Hopke PK ed (1991). Receptor modeling for air quality management. *Data Handling in Science and Technology, Volume 7*. Elsevier Science Publishers B. V., NY, USA.

・ケミカルマスバランス(CMB)法

- Watson JG, Cooper JA, Huntzicker JJ (1984). The effective variance weighting for least squares calculations applied to the mass balance receptor model. *Atmospheric Environment* 18(7): 1347-1355.
- Wang D, Hopke PK (1989). The use of constrained least-squares to solve the chemical mass balance problem. *Atmospheric Environment* 23(10): 2143-2150.
- Watson JG, Chow JC, Fujita EM. (2001). Review of volatile organic compound source apportionment by chemical mass balance. *Atmospheric Environment* 35, 1567-1584
- 早狩 進、花石 竜治(2001). 環境データ解析用表計算マクロの紹介と解析例(II)-CMB法解析マクロ-. 大気環境学会36:39-45.
- 早狩 進、花石 竜治 Excel 97用マクロ:Chemical Mass Balance法解析(CMB8J.xls) Ver.0.93
<http://www.jomon.ne.jp/~hayakari/cmb8j.htm>
- US EPA CMB8 http://www.epa.gov/scram001/receptor_cmb.htm

・因子分析法・主成分分析法

- Henry RC (2002). Multivariate receptor models-current practice and future trends. *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems* 60:43-48.
- Henry RC (2003). Multivariate receptor modeling by N-dimensional edge detection. *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems* 65:179-189.
- US EPA Unmix Receptor Model <http://www.epa.gov/nerl/research/2004/g1-6.html>

・その他

- USEPA Positive Matrix Factorization 1.1 <http://www.epa.gov/heasd/products/pmf/pmf.htm>

まとめ

- ・発生源情報の積み上げ(マテリアルフローなど)からの発生源・排出量推定と、環境データからの発生源・排出量推定の双方向からの推定・検証が大事。
- ・複数の方法(定量的、定性的、相対的方法)で、総合的に発生源・排出量を推定・検証することが重要。
- ・発生源・排出量の推定・検証を考慮して、環境モニタリング計画が立てられるとより良い。

ご清聴ありがとうございました。