

地域水系における化学物質のリスク評価

東海明宏*・福島武彦**・小尻利治***

*北海道大学工学研究科

**広島大学工学部

***京都大学防災研究所

要旨

本研究の目的は、流域における人間活動のうち化学物質によるインパクトを評価するモデルの提案である。このため、環境での化学物質の運命予測、水系における濃度分布の推定、水生生物へのインパクトモデルを統合し、3種類の物性、排出形態等が異なる化学物質に適用し、濃度分布の再現能力、インパクトの説明能力について検討した。

キーワード：化学物質、リスク評価、運命予測

1. 本研究の背景と目的

人間活動に由来する、新規の多様なハザードによる流域水資源へのインパクトの評価が求められてきている。なかでも化学物質によるインパクトの推定には、排出から被影響までに関し、生産・消費からの漏洩過程、環境における濃度分布の推定、水生生物へのインパクトモデルを統合する必要がある。このため、個別の分野において化学物質の環境中での挙動を推定するための素過程の解明とモデル化、事例適用の研究がなされてきた。これらの研究は、流域環境評価モデルとして総合化されることで、目的に適合するツールとなる。本研究の最終目標は、流域の環境評価を行えるモデルを開発することであり、そのため既往の研究をレビューするとともに、現有のモデルを組み合わせることで化学物質の消費に伴う流域の環境状態の評価プロトタイプモデルを構築し、予備的な検討を行った。

近年、流域環境は水量だけで評価するのではなく、水質、生態系への影響、レクリエーションといった広角的な判断が要求されるようになってきた。なかでも日常的に生活で消費される化学物質は、発生源の面的な広がり、そして環境を経由した暴露に由来する影響が懸念されている。一方、こういった他種

類のインパクトを等価に比較することができれば改善方策等の選択において資すると考えられる(東海、2000)。流域情報は数値情報や観測情報の公開によって多くが入手できるようになってきた。そこで本研究では、GISによる流域シミュレーションを用いて、流域からの水分流出、河道での生態系モデル、そして化学物質の動態モデルを組み合わせることによって流域における化学物質の環境運命予測、すなわち動態や生態影響について検討したものである。化学物質の環境中での挙動を記述するモデルは、すでに様々なものが提案されているが、それらは最終的に化学物質が行き着く先の環境媒体を求めることに主眼が置かれており、環境濃度の空間的分布を検討することは必ずしも十分ではない。例えば、何らかの事故時において化学物質が流域に排出された場合、時空間的に濃度が変化する態様は生態系の生物の分布状況や人口の分布を考慮した化学物質の暴露量を求めるというニーズを高めることを意味する。以上の点を踏まえ、本研究では、特に次の点を課題とした。

●影響評価の入力条件として運命予測モデルの出力が使われることから環境濃度の時空間解像度を流域シミュレーションを利用して改善する。

●用途、物理化学的性質の異なる化学物質の挙動を本モデルで追跡し、それを空間的に表示し、濃度

分布、影響範囲を視覚的に判断する。

●影響評価として水生生物の個体数の増減を指標とする。

以上の内容を以下の2章では全体モデルの構成の説明をし、3章では実流域に本手法を適用した結果について説明する。

2. 既往研究のまとめ

2.1 先行研究

本研究に近い観点の代表的な先行研究として、2つの評価システムがあげられる。第1は、主に、マイクロポリュタントを対象に水量、水質、環境評価を統合したモデルとして、USEPAのOffice of Water, Basin ver. 2.0があげられる。合衆国の主たる水系に適用でき、ユーザーインターフェイスやデータベースとの連結の面など完成度の高いものである。ヨーロッパ大陸を対象とした統合モデルのGreaterは生産企業が主体となって産・官・学のコンソーシアムを形成して化学物質のリスク評価を重点目的として構築されたシステムである。中軸に化学会社がはいっており、生産・消費・廃棄の過程で環境へ漏洩して行く化学物質が水循環系に進入することによる影響評価を目的としており、地理情報を活用しつつ、事故による環境への化学物質のインプットの評価などもシナリオとして組み込まれている。Table 1には、代表的なシステムとの比較した結果を示した。適用事例の規模においては、これらの2つのシステムには相当の蓄積がある反面、人間活動系から被影響系までを含むシステムにはなっておらず、モデルをつなぐということが本研究の特徴となっている。

(Tokai, 1999, 東海、他、1990)

Table 1 Comparison among representative evaluation model system.

	Basin ver. 2.0	GREAT-ER	本研究
開発主体	Office of Water USEPA	欧州の化学会社を中心とした産・官・学のコンソーシアム	東海・福島・小尻
目的	汚濁負荷の発生源管理	生産・消費・廃棄に伴う化学物質のリスク評価	流域での水量、水質、水生生物への影響予測
動機	流域の水質管理のためのデータの一元的管理	化学物質のリスクの相对比较	人間活動系・水循環系・被影響系の統合
適用の現状	合衆国の主たる流域	欧州全域を予定	河川流域

Fig.1 に示したのは、ケミカルアブストラクトに

登録された化学物質の数の経年推移をしめしている。うち、10万種程度の化学物質が工業的に生産・消費。廃棄されており、水資源系への潜在的負荷として考慮すべきことが示されている。

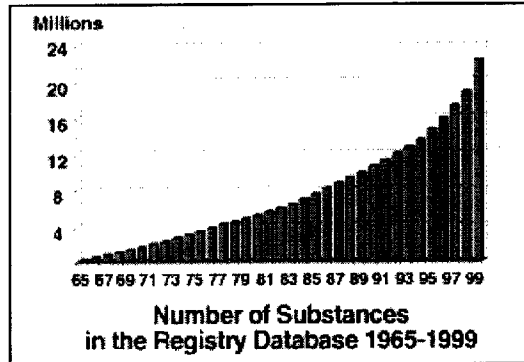


Fig.1 The number of chemical substance registered in CAS.

2.2 プロトタイプモデル

Fig.2 に本研究の検討範囲をしめた。多様なタイプの人間活動が高度に集積した流域の環境評価を可能な限り実態に即した形でおこなうため、次の点をモデル構築・事例適用に反映させた。

- (1)化学物質の消費特性、物理化学性状に対応した推定ができること。
- (2)年間を通じ、晴天時も雨天時も連続的にシミュレーションができること。
- (3)環境評価として適切な（実行可能な）影響判定指標を探索したうえで可能な限りインパクトを定量的に推定すること。

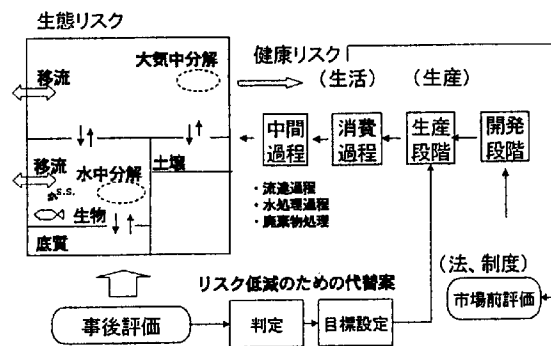


Fig.2 Overview of the process examined in this study.

2.3 全体モデルの構成

Fig.3 に、本研究で用いたデータ・モデルの入出力関係を示す。流域全体を500mメッシュに区切り、各メッシュに水量、水質の計算を行う構造となっている。入力データとしては、メッシュごとの人口、

土地利用、降水量、風向、風速、化学物質使用量である。人口は、平成2年国勢調査の地域メッシュ統計値から利用した。土地利用データは国土数値情報を利用し、降水量、風向、風速は後述する対象地域に近い气象台で測定されているデータを流域全体に代表させた。全体を構成する個々のサブモデルは、メッシュ型多層流出モデル、汚濁負荷流出モデル、化学物質動態モデル、生物濃縮モデル、影響評価モデルである。

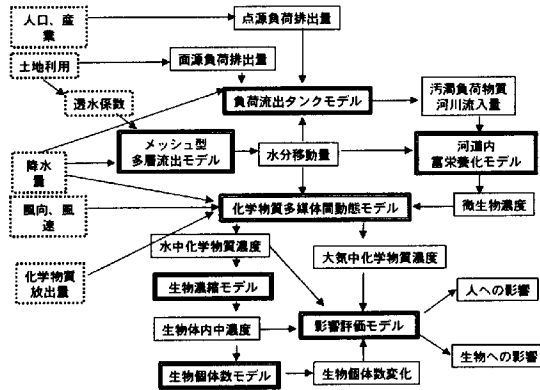


Fig. 3 Model overview.

(1) 流域のモデル化

流域の水分、汚濁負荷物質、化学物質濃度の空間分布を推定するため、流域を1辺が500mのメッシュに区切り、各メッシュにおけるデータを収集した。河道は、各メッシュに存在するとし、対象流域の標高データから作成した落水線図にそとと仮定した。ただし、地図上の実河川と照らし合わせ、補正を行った(中井, 1996)。

Table 2 に示す5つの土地利用分類を水分流出解析、汚濁負荷物質流出解析に用いた。

Table 2 Land surface classification.

分類	土地利用
分類1	山地・荒地等、公園・緑地
分類2	田
分類3	畑地
分類4	造成中地、空地、工業用地、住宅地、商業・業務地域、道路用地、公用・公益施設用地
分類5	河川・湖沼

(2) 流出モデル

流出モデルは、地表層面から鉛直方向へ4層、すなわちA層～D層からなるメッシュ型多層流出モデルを用いた(中井, 1996)。メッシュ型多層流出モデルでは500m四方のメッシュの集合によって流域が構成されている。A層からC層までの水平方向の流出量は河川に流入し、D層は地下水層を想定して流域全体で1層とした。

(3) 汚濁負荷物質流出モデル

汚濁負荷物質は、各土地利用によって流出挙動が異なる。そこで面源の場合は、各メッシュ毎に各土地利用毎の原単位(各土地利用割合考慮している)に面積を乗じて、そのメッシュでの発生負荷量とした。また、生活系から発生する汚濁負荷は、そのメッシュでの人口に、排出原単位を乗じて排出量を求めた。

流出負荷量は、溶存態・懸濁態(点源由来の堆積物、面源由来の堆積物)として水分移動によって流出するものの2つにわけた。基礎式としては、土地利用別タンクモデルを用いた(国松ら, 1989)。

(4) 化学物質多媒体間動態モデル

化学物質の環境媒体間の動態を、各メッシュ内に大気、土壌、地下水、河川水、底泥、水田水、水田底泥の7つのコンパートメント間の物質移動として定式化したモデルを用いた。このモデルにおいて、化学物質の環境中での移動の推進力は、移流による流入出、大気中化学物質の雨滴への溶解、降雨流出、媒体間の濃度差による拡散移動である。各媒体間の化学物質移動は、分配係数や移動速度によって決定される。土壌では土壌液相、土壌気相、土壌固相で構成され、それぞれ濃度差による拡散が生じるものとした。各コンパートメント内で1次反応で分解が進行するとした。各コンパートメントにおける化学物質の収支式を式(1)に示す。また、微生物の増殖・死滅を富栄養化モデルの基本モデルとして、2種の生物の被食-捕食の関係のみからなる生態系モデルを用いた。Fig. 4 に化学物質動態モデルの1メッシュ内で構成されるコンパートメント間の物質移動のプロセスを図で示した(Cohen, 1990, Tokai, 1988)。

$$\frac{dV_i C_i}{dt} = (Q_{i,in} C_{i,in} - Q_{i,out} C_i) - K_i V_i C_i - \sum_{j=1}^N U_{ij} A_{ij} \left(C_i \frac{C_j}{H_{ji}} \right) + \sum_{j=1}^N \Omega_{ij} + S_i$$

(1)

i : 対象のコンパートメント

j : i コンパートメントに接するコンパートメント

V_i : i コンパートメントの体積(m^3)

Q_i : i コンパートメントへの移流量(m^3/h)

$C_{i,in}$: i コンパートメントへの移流流入濃度(mg/m^3)

$Q_{i,out}$: i コンパートメントからの移流量(m^3/h)

C_i : i コンパートメントの濃度(mg/m^3)

K_i : 分解係数($1/h$)

U_{ij} : i から j への移動係数(m/h)

H_{ji} : ji 間の分配係数(-)

Ω_{ij} : ij 間のその他の物理的移動量(mg/h)

S_i : 放出速度(mg/h)

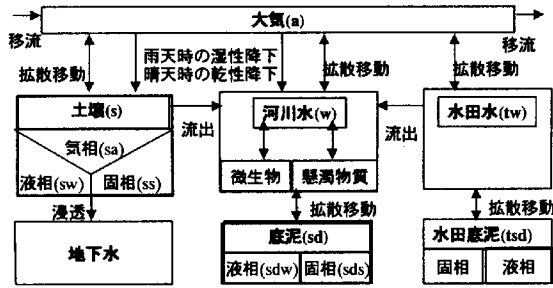


Fig.4 Multi-media compartment environmental fate model.

(5) 水生生物への影響評価モデル

影響評価のために、水中化学物質濃度から指標生物体内中化学物質濃度を求め、さらに体内化学物質濃度が与えられた時の生物の個体数の変動を計算した(Thomann, 1987, Jensen, 1983)。

(a) 生物濃縮モデル

生物体内への化学物質の濃縮過程を鰓からの呼吸、えさの摂取による取り込み、排出・成長による希釈で表現した。ここでは、プランクトンから魚という経路を取り上げた。

$$\frac{dC_f}{dt} = K_u C_w + \sum_{j=1}^n \alpha_{ij} O_{ij} C_{ej} - (K + G) C_f \quad (2)$$

C_{fi} : i 年目の水生生物の体内中濃度 (ng/gwet) t : 日 (day) K_u : 1 日あたりのえらからの摂取速度係数 (1/gwet·day)

α : 化学物質吸収効率 n : 餌の種類の数 O_{ij} : 1 日あたりの水生生物 i による餌 j の消費割合 (gwet 餌 / gwet 水生生物 · day) C_{ej} : 餌 j の体内中濃度 (ng/gwet) K : 1 日あたりの水生生物の排泄速度定数 (1/day) G : 1 日あたりの水生生物の生長速度定数 (gwet/gwet·day)

(b) 生物個体数モデル

化学物質は生物体内中に蓄積され、体内中濃度が増加していく。その体内中濃度によって生存率が変化機構を考慮したモデルを用いた。水中の魚への化学物質の暴露による個体の変動はロジスティック式に化学物質の毒性による個体数減少の項をくわえた式で計算した。

$$\frac{dN}{dt} = rN - \frac{r}{K} N^2 - h(C_f - C_{f0})N \quad (3)$$

N : 生物集団の個体数 r : 集団の増加率 (1/d) h : 毒物の作用による死亡係数 (m3/mg·d) C_{f0} : 毒物の生物への閾値 (mg/m³) K : 環境容量 (-)

(c) 影響の指数化

化学物質の暴露による生物への影響、人への健康影響を判断するための指標として以下 (式(4)、(6)) で算出される指数を定義した。生物への影響としては、水中化学物質暴露による指標生物の個体数の変動を利用した。化学物質に暴露された個体数と化学物質に暴露されていない個体数から変化率を影響指数 R_e とし、次式で算出した。

$$R_e = \frac{N_0 - N}{N_0} \quad (4)$$

N_0 : 化学物質未暴露区の生物個体数

人への健康影響は、環境からの摂取量を ADI (Acceptable Daily Intake, 一日許容摂取量) で除した値を評価指標 R_h とした。

$$Intake = C_w Q_{hw} + C_a Q_{ha} + C_f Q_{hf} \quad (5)$$

$$R_h = \frac{Intake}{ADI} \quad (6)$$

$Intake$: 暴露量 (mg/day) Q_{hi} : i の摂取量 (m³/day) i : 環境媒体

(d) 死滅確率の推定

化学物質の曝露濃度変動と生物の耐性の個体差を考慮した、死滅確率をモーメント法によって推定した。死滅確率は以下の式で推定した。

$$R < C \quad (7)$$

$$P(R < C) = \int_0^{\infty} F_R(c) f_c(c) dc \quad (8)$$

$$P(R < C) = 1 - \phi \left(\frac{\mu_R - \mu_C}{\sqrt{\sigma_R^2 + \sigma_C^2}} \right) \quad (9)$$

3. 実流域への適用

評価対象地域として庄内川の支川である矢田川を取り上げた。また、対象物質として生活系から排出される洗剤に含まれる界面活性剤 LAS (直鎖型アルキルベンゼンスルホン酸)、除草剤として使われるベンチオカーブ、廃棄物燃焼工程から発生するダイオキシンである。矢田川の流域面積は約 120km² であり、計算期間

は 1991 年の 1 年間を対象とし、必要なデータとして土地利用、人口分布等を 500m メッシュ単位で整備した。対象流域の水域の分布図を Fig. 5、水田の分布状況を Fig. 6 に示した。

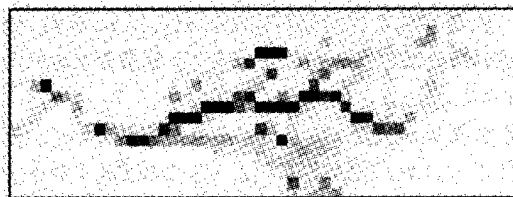


Fig. 5 Spatial distribution of water.

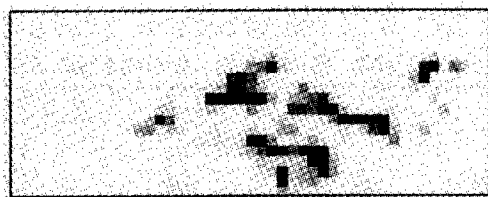


Fig. 6 Spatial distribution of paddy fields.

3.1 計算条件

計算にあたり、LAS、ベンチオカーブの消費速度またダイオキシンの排出速度を文献値を基に原単位としてをた。また、これらの物質の環境での反応係数等も文献値より与えた。気象条件（降雨、風速）、メッシュ毎の土地利用データをあてて流量、化学物質濃度、生物への影響の推定を行った。計算の時間スケールは 1 時間刻みであり、低水時と高水時とを連続的に追跡した。推定された濃度場の表現方法としては、ある時間断面に固定した時の面的分と特定メッシュにおける経時変化に注目した。さらに、エンドポイントとして水生生物の個体数変動、死滅確率を用いた水域の質評価を行った。

3.2 流出モデルの適用と考察

流域最下流点における水分流出量のシミュレーション結果と、流末端部分における流量の実測値と計算値との比較した結果を、Fig. 7 に示す。流出モデルの適用にあたって、土地利用毎の透水係数等は観測流量と計算流量の誤差二乗和を評価基準とした最適手法によって決められた値を参考にした¹⁾。

流量の計算値は、1 年間の流出傾向を比較的良好く再現しており、降雨時における流量の増減等も、比較的良好く再現されている。流出率も実測値において 79%で計算値において 74%と、近い結果となっている。しかし、ピーク時の流量の再現は良くなく、実際に

比べて平滑化された値となった。また、ピークの出現時期は、実測に対して若干遅れており、また出水後の流量の低減も遅かった。

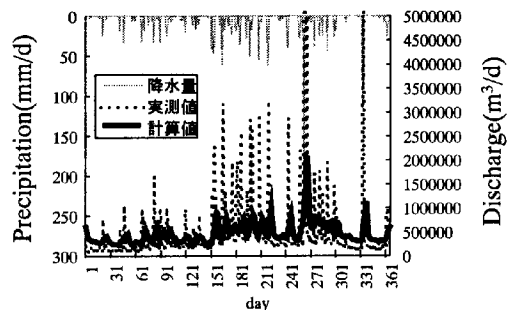


Fig. 7 Estimated and observed flow rate at the mouth of the test basin.

3. 3 化学物質多媒体間動態の適用と考察

(1) 経時変化

化学物質多媒体モデルに入力したパラメータは文献に従った (Tokai, 1987, 東海, 1996)。LAS の人 1 日あたりの使用原単位 4.76g/人・日を各メッシュにおける人口を乗じて、河川に流出するとした。ベンチオンカーブについては、愛知県における年間消費量に、農地面積比を乗じて求め、散布時期は、農作業時期を考慮して与えた。河川水中の LAS、ベンチオカーブ濃度の流末端における時系列変化を Fig. 8 と Fig. 9 に示す。2つの物質ともに消費特性に応じた特徴のある季節的な変動が再現されている。パラメータの調整の問題があるために濃度レベルにおいて実際と対応しうる議論にはまだ十分とは言えないが、濃度のパターンとしては比較的良好く表現されている。LAS の河川中濃度は冬から春にかけて高く、夏から秋にかけて低い値を示している。これらは、気温による分解の効果の反映と思われる。

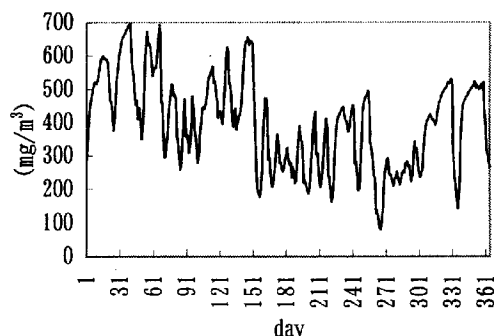


Fig. 8 Time course change of LAS in water.

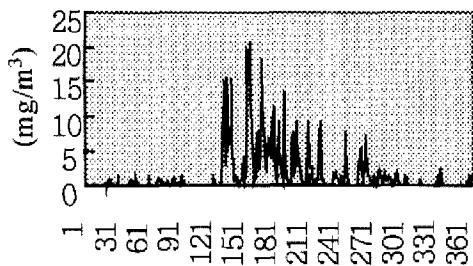


Fig.9 Time course change of Benthocarb in water.

(2) 空間分布

ある時間断面に注目した場合(冬季12月)のLAS、ベンチオカーブ、ダイオキシンの土壤中での分布を Fig.10、Fig.11、Fig.12 に示す。色の濃い部分がより高い濃度を示している。Fig.10 から、土壤中濃度は、流量が多いメッシュにそって高くなっていることがわかる。これは集水と同時に人口密集地からLASも洗浄等によって河川に流入してくるからである。大気中濃度は、土壤中濃度が面的に広がった形となった。

ベンチオカーブの場合では、農地の分布と対応した濃度分布が得られた。また、ダイオキシンは廃棄物の中間処理施設の燃焼排ガスから放出された場合の推定をおこなっている。3つの化学物質を比べた場合、それぞれ排出特性、物理化学特性に応じた分布を表現している。

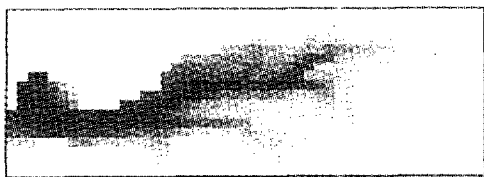


Fig.10 Spatial distribution of LAS

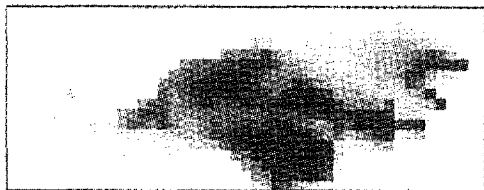


Fig.11 Spatial distribution of benthocarb

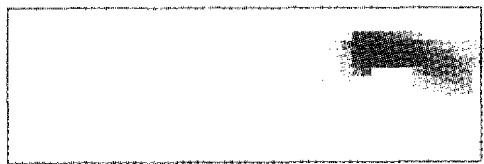


Fig.12 Spatial distribution of dioxin.

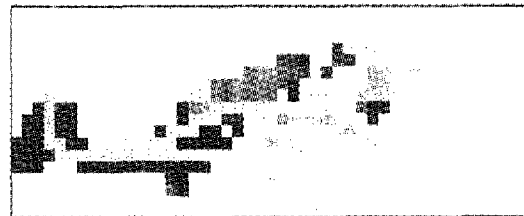
3.4 影響評価

(1)水生生物への評価

(a)インパクトの定量化

LAS の河川中濃度が各メッシュとも下水処理により、90%削減されたとした場合のある時期断面における影響指数 R_e の空間的分布を Fig.13 に示す。色の濃い部分ほど R_e の値は1に近く、影響が大きいことを示している。

R_e の値はメッシュによって非常に差が大きく、上流部で人口が少ない地域では、 R_e の値は低くなっている。逆に流量が少なく、かつ人口密集地において R_e の値は高くなっている。 R_e が1のメッシュでは、その影響は甚大で、生物は全滅していることを意味する。とくに、Y川に流入する側溝などでは影響が大きく出ていることが図示されており、このことは日頃目にする側溝、都市下水路、都市内を流れる小



河川の水質の状況を反映しているといえる。

Fig.13 Spatial distribution of R_e .

(b)水生生物の死滅確率による評価

Fig.14 には、LAS に対する水生生物の用量反応関係とシミュレーションで得られた河川流末端における LAS の濃度分布を示した。ここで取り上げた生物は、対象河川に生息が確認されたものである。これらのデータを入力として、死滅確率を推定したのが Fig.15 である。上流域から下流域にかけて死滅確率が增大することが示されている。

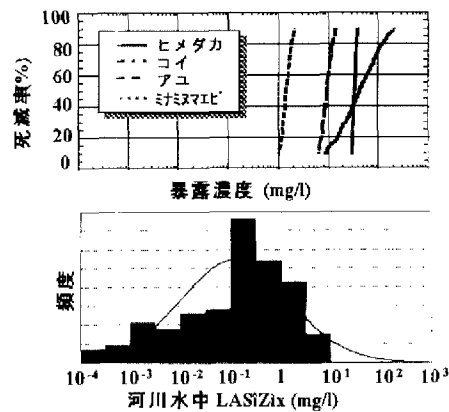


Fig.14 Required data for estimating probability.

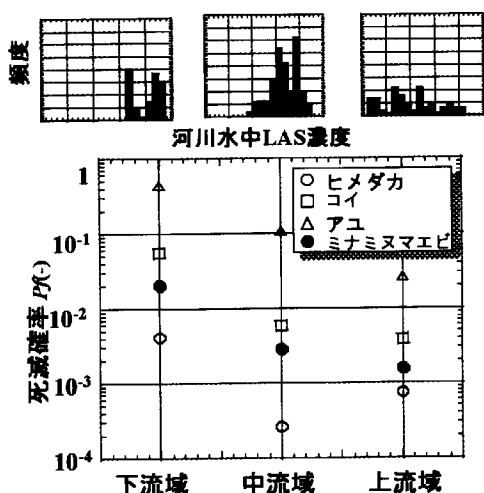


Fig.15 Estimated Probability.

(2) 人に対する評価

人に対する評価結果を、式(12)に示したような暴露量/ADIで表示した。ここでの暴露シナリオは次の通りである。

●各メッシュに居住している人々はそのメッシュの大気を吸い、行動等による屋外・屋内大気、また家屋と勤務先等の区別はしない。

●飲料水としてそのメッシュに存在する河川水を浄化して飲み、また河川に生息する魚を食するとする。魚の摂取量 Q_f は、平均1日1人あたり30gとし、飲料水中におけるLASは、河川水中濃度の90%が浄水処理により削減される。

Fig.16に、LASの R_h の分布を示す。なお、色の濃い部分ほど R_h の値は大きいことを示している。Fig.16は、Fig.13の R_h に分布が比較的似ており、魚からの摂取、または飲水の割合が大きいことが示されている。

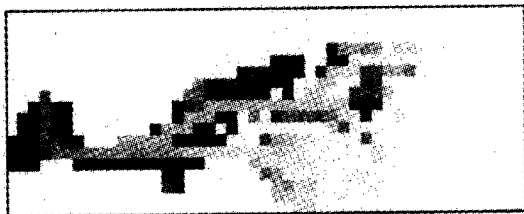


Fig.16 Spatial distribution health impact in terms of R_e .

4. 結論

当初の目的に対し、予備的な段階ではあるが概念レベルのモデルを構築し、事例適用を通じてモデル

の特徴・実用性等を検討した。河川流域において稼動する環境運命予測モデルは、パラメータ決定等に関しての細部には検討の余地を残してはいるものの、シミュレーション結果から流域で消費・排出されるの化学物質の評価についての1方法として、提案するものとする。本研究の結論は次の通りである。

- (1)メッシュ型多層流出モデルをベースにし、化学物質多媒体動態モデルを軸に各種の物質動態モデル統合したモデルによって対象流域での化学物質の挙動を追跡した結果、発生源特性に対応した化学物質の時空間分布を求めることができた。
- (2)河川水中LAS濃度の時空間分布を用いて、水生生物の個体数の変化率、ADIで規準化した暴露量でみた生物への影響を空間的に把握した。

今後の課題としては、モデルの素過程を実態に対応させた形で表現することとモデルシミュレーションに利用可能な地理情報や汚濁の発生源情報を活用した流域環境評価システムとしての高度化、インパクトの定量化に際してのエンドポイントの検索、評価過程の論理性そして環境・水計画モデルへの連結等があげられる。

参考文献

- 国松孝男、村雨浩爾(1989):河川汚濁のモデル解析、技報堂出版、pp.166-171.
- 東海明宏、小尻利治、堀博(1997):流域シミュレーションを利用した流域化学物質の環境運命予測、第5回水資源に関するシンポジウム論文集、pp.139-143.
- 東海明宏、他(1996):化学物質の運命予測モデルにおけるパラメータの不確実性低減の評価、日本水環境学会誌、Vol.19, No.11, pp.897-903.
- 東海明宏(2000)環境リスクの比較、評価、管理～その目的と展望～、第15回環境工学連合講演会論文集、pp.75-80.
- 土木学会環境システム委員会(1999)化学物質利用に伴うリスクと環境システムの接点・課題、第12回環境システムシンポジウム。
- 中井智宏(1996):GISメッシュ型流出モデルを利用した流域水環境シミュレーション、岐阜大学修士論文。
- Cohen, Y., Wangteng Tsai, Chetty S., L., and Maryer, G.(1990)Dynamic Partitioning of Organic Chemicals in Regional Environments: Multimedia Screening-Level Modeling Approach, Environ. Sci. Technol., Vol.24, No 10,24,pp.1549-1558,1990.
- Tokai, A. and Morioka, T.(1988): Application

- of Basin Wide Ecological Models (BAWEMS) to the Fate of LAS in Tokyo Bay, Water Science & Technology, Vol. 20, No. 6/7, pp. 287-294.
- Tokai, A., Fukushima, T. and Kojiri, T. (1999) Chemical Risk Assessment based on the Framework of Basin-wide Ecological Modeling and the Ecotoxicological Index, Proceeding of SRA European section, pp. Rotterdam.
- Thomann, R.V. and Mueller, J.A. (1987): Principle of Surface Water Quality Modeling and Control, pp. 385-489, 1987.
- Jensen, L. (1983): Toxicant-induced fecundity compensation: A model of population response, Environmental Management, Vol. 7, No. 2, pp. 171-175.

Chemical Risk Assessment Based on the Basin Wide Ecological Modeling

Akihiro Tokai^{*}, Takehiko Fukushima^{**} and Toshiharu Kojiri^{***}

^{*}Graduate School of Engineering, Hokkaido University

^{**}Faculty of Engineering, Hiroshima University

^{***}Research Center of Water Resources, Disaster Prevention Institute, Kyoto University

Synopsis

This paper deals with the method and practical application of the basin simulation modeling for environmental assessment with special interest to chemical substances. Integrating emission process, fate and transport process of chemicals, we developed the prototype model for it. Then we applied this method to Yada river basin with the example of LAS, benthocarb and dioxin, fate and risk of these chemicals were characterized.

Keywords: Chemicals; risk assessment; basin simulation; fate analysis