

大気汚染物質の排出源推定法の開発

岡崎聖司^{1,2}、吉田喜久雄^{1,3,4}、中西準子^{1,4}

¹ 横浜国立大学 環境科学研究センター

² 株式会社トクヤマ RC 研究所

³ 三菱化学安全科学研究所

⁴ 科学技術振興事業団

キーワード：曝露アセスメント、プルームモデル、排出源予測、有効煙突高度

概要

排出源周辺に住む人々に対する化学物質のリスクアセスメントを行うために、排出源情報なしに化学物質の長期平均濃度の空間分布を推定する方法を開発した。我々の方法では、たった 5 つの同時に測定した濃度とサンプル採取位置を用いて推定する。最初に測定データから排出源情報を推定した。次に、気象条件によって変動する有効煙突高度を必要な気象条件のものに変換した。最後に、長期平均濃度をプルームモデルによって推定した。排出源情報は風向と濃度を平均値とした正規乱数を用いたプルーム式から得られる連立方程式を解くことにより推定した。有効煙突高度は Briggs の浮力に支配されたプルーム上昇式から相当する大気安定度と風速のものに変換することによって推定した。上述の方法で得られた年間平均分布は排出源情報がわかっている場合に使用される ISCLT3 モデルで推定したものとよい一致を示した。

1. はじめに

排出源、例えば工場周辺に住む人々は工場から排出される有害化学物質に長期間低濃度で曝露されている。これらの人々に対する有害化学物質の健康リスクアセスメントを行うためには化学物質の平均濃度の分布を知る必要がある。

化学物質の濃度を知るために測定とモデルシミュレーションはよく知られた方法である。測定すればいくらかの不確実性は含まれているとはいえ、真値を得ることができる。しかし、大気中の化学物質の濃度は排出源や気象条件により常に変動しているので、得られた値はサンプルを取得した時間と場所の濃度に過ぎない。そのため、測定で化学物質の長期平均濃度分布を得るためには多くの測定が必要となり、多くの時間、費用、人手がかかる。一方、モデルシミュレーションによれば、任意の時間的・空間的位置における濃度が推定できるが、モデルを使用するためには排出源位置や排

出量などの排出条件や気象条件が必要である。しかし、一般に、日本では当事者以外がこれらの情報を入手するのは困難である。

一般に、環境測定は限られた時間内に数少ないデータを取る場合が多い。通常はこれらのデータが曝露評価に用いられる。しかし、濃度の時間的・空間的な変動のため、測定値から直接推定された曝露量は不確実性が大きいと推定される。もし、年間平均濃度が一時の限られた測定値から推定できれば、曝露評価の信頼性は向上するだろう。

そのため、我々は測定とモデルシミュレーションの組合せにより、限定された時間と位置における測定濃度から排出源情報なしで年間平均濃度の空間分布を推定する方法を開発した。

2. 戦略

モデルシミュレーションにより年間平均濃度の空間分布を推定するためには排出源情報が必要である。そのため、一時に測定した濃度とそのときの気象条件から排出源情報を推定する方法を開発した。

しかし、推定された排出源情報は測定サンプルが採取された時間と場所のものである。いくつかの排出源情報は気象条件の変動に伴い変化する。そのため、排出条件をさまざまな気象条件に適応して変換する方法を開発した。

推定された排出源情報を用い、種々の気象条件の頻度を用いて空間分布を推定できる通常の大気拡散アルゴリズムにより年間平均濃度の空間分布を推定することができた。

3. 排出源情報の推定

3.1. モデルの選択

排出源情報を推定するために用いる大気拡散モデルとして、以下の理由によりプルームモデルを選択した。

- プルームモデルは定常状態に適応できる。
- プルームモデルのシグマ式は他の拡散モデルに比べて簡単である。

3.2. サンプル採取時の排出源情報の推定

継続的な排出の場合、風下方向における化学物質の濃度は以下に示すプルームモデルのシグマ式で示される；

$$C = \frac{Q}{2\pi \cdot u_x \cdot \sigma_x \cdot \sigma_y} \exp\left(-\frac{1}{2} \frac{Y^2}{\sigma_y^2}\right) \left[\exp\left(-\frac{1}{2} \frac{(z_r - h_c)^2}{\sigma_z^2}\right) + \exp\left(-\frac{1}{2} \frac{(z_r + h_c)^2}{\sigma_z^2}\right) \right] \quad (1)$$

ここで、 C は測定点における化学物質の濃度、 Q は排出速度、 u_x は煙突高度における風速、 h_c は有効煙突高度、 Y は風向垂直軸の距離、そして z_r は測定点の高さである。 σ_y

および σ_z はそれぞれ水平、鉛直方向の拡散パラメータである。

一般に、煙突高度は人の身長より十分に高い。そのため、人のリスクを考える限りにおいて、 z_r は無視できる。サンプリング点の C と位置は測定により知ることができる。そして、 σ_y および σ_z は風向方向の距離 X の関数である。そのため、空間分布を推定するために知るべきパラメータは X 、 Y 、 Q 、 u_s 、 h_e である。ただし、 Q と u_s は分離することができなかつたため、 Q/u_s をひとつのパラメータとして取り扱った。

ブルーム式から導かれる連立方程式を解くために、同時に測定された 4 つの濃度と位置を用いた。また、1 つのサンプリング点のデータを検証用に用いた。

測定濃度には不確実性が伴う。さらに、16 方向を用いる限り、風向には誤差を含んでいる。そのため、測定値あるいは風向を平均値とした正規分布を定義し、乱数を発生させて用いて排出源の位置の分布を計算した。Fig.1 に ISCST3 で計算した 5 つの濃度とその位置から、排出源位置を推定した例を示した。

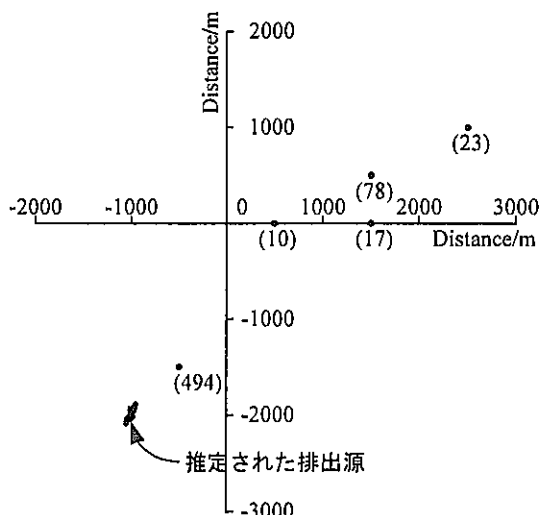


Fig.1 排出源周辺の濃度からの排出源の予測。
 かっこ内は点における測定濃度で単位は $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 。
 パラメータ；領域の型は田園、風速 4m/s、風向は南
 西、大気安定度は C。

排出源位置は、推定された排出源分布から選択することにより、決定される。排出源位置を決定すると、 h_e と Q/u_s が計算できる。

風速べき乗則は、通常、風速測定高度における風速からある特定の高度の風速を計算するために用いられる。べき乗式は以下のとおりである。

$$u_s = u_{ref} \left(\frac{h_s}{z_{ref}} \right)^p \quad (2)$$

ここで u_{ref} は観測された風速、 z_{ref} は風速測定高度、 h_s は風速が必要なある高度、そして

p は風速べき乗側の係数である。

h_e は h_s とプルーム上昇の和であるので、 h_s は h_e よりも低い。そのため、 h_s は h_e からある程度推定できる。そこで我々は評価者が h_e から推定することにより h_s を決定することに決めた。

3.3. 気象条件により変化する有効煙突高度の推定

u_s と h_e の値は気象条件により変化する。このうち、 u_s は風速べき乗則を用いて地上風速から計算することができる。

h_e は h_s と煙突から排出されたガスの上昇量であるプルーム上昇の和からなる。煙突から排出されたガスは排出の運動量とガスの浮力により上昇する。運動量による上昇は気象条件に依存しないが、浮力による上昇は気象条件により変化する。しかし、 h_e は上記で算出されたパラメータのみでは容易に計算することができない。

そのため、さまざまな気象条件における h_e を推定する方法を開発することに決めた。この研究で、 h_e を計算するためにBriggsのプルーム上昇式を用いた。

1) 大気安定度

大気安定度は大気中のガスの浮力や沈降力に影響を与える因子である。そのため、プルーム上昇は大気安定度により影響を与えられる。そこで、中立と他の大気安定度におけるプルーム上昇の関係を調査した。

スタックチップダウンウォッシュが無視され、プルーム上昇が浮力に支配されるとき、中立と他の大気安定度におけるプルーム上昇の関係は以下のように表される。

$$Pe = Pe_D \left(\frac{h_s}{z_{ref}} \right)^{p_D - p} \quad (\text{不安定}) \quad (3)$$

$$\log Pe = \frac{4}{9} \log Pe_D + \left(\log 2.6 - \frac{4}{9} \log 21.425 - \frac{1}{3} \log s + \frac{1}{9} \log u_{ref} \right) + \left(\frac{4}{9} p_D - \frac{p}{3} \right) (\log h_s - \log z_{ref}) \quad (\text{安定で } F_b < 55) \quad (4)$$

$$\log Pe = \frac{5}{9} \log Pe_D + \left(\log 2.6 - \frac{5}{9} \log 38.71 - \frac{1}{3} \log s + \frac{2}{9} \log u_{ref} \right) + \left(\frac{5}{9} p_D - \frac{p}{3} \right) (\log h_s - \log z_{ref}) \quad (\text{安定で } F_b \geq 55) \quad (5)$$

ここで Pe は必要な大気安定度におけるプルーム上昇、 Pe_D は大気安定度中立におけるプルーム上昇、 s は安定度パラメータ、 F_b は浮力フラックスパラメータであり、以下の式で与えられる。

$$F_b = g v_s d_s^2 \left(\frac{\Delta T}{4 T_s} \right) \quad (6)$$

ここで、 g は重力加速度、 v_s は排出ガス速度、 d_s は煙突内径、 $\Delta T = T_s - T_o$ で、 T_s は煙突

ガス温度、 T_g は気温である。

F_b が55以上になる条件を調べたところ、煙突内径が非常に広く、排出速度が非常に早く、排出温度が非常に高いときのみであり、通常の条件では F_b は55未満であることがわかった。

プルーム上昇が運動量に支配されるとき、(3)~(5)の式は使用できない。しかし、排出ガス温度が気温を越えないときのみプルーム上昇は運動量に支配される。普通の条件ではプルーム上昇は浮力に支配される。

スタックチップダウンウォッシュが考慮されるとき、プルーム上昇は高くなる。スタックチップダウンウォッシュは以下の式で計算される。

$$\text{スタックチップダウンウォッシュ} = 2d_s \frac{v_s}{u_s} \quad (7)$$

Briggsのプルーム上昇式ではスタックチップダウンウォッシュは u_s の1.5倍が v_s よりも大きい場合のみ考慮に入れられる。すなわち、スタックチップダウンウォッシュは $3d_s$ よりも小さい値として計算される。ほとんどの場合、煙突高度は $3d_s$ よりも十分に大きいと推定される。加えて、我々は詳細な排出条件を知りえない。そのため、今回開発した方法ではスタックチップダウンウォッシュは無視した。

以上の結果から、大気安定度の変化に伴う有効煙突高度の変換方法は式(3)と(4)を用いることにした。

2) 地上風速

地上風速の効果を考慮するとき、ある風速と他の風速におけるプルーム上昇の関係を調べるべきである。そこで我々はプルーム上昇係数を提起する。プルーム上昇係数は以下のように計算される。

$$\text{プルーム上昇係数} = \frac{\text{当該風速のときのプルーム上昇}}{\text{風速 } 1 \text{ m/s のときのプルーム上昇}} \times u_{ref} \quad (8)$$

スタックチップダウンウォッシュが無視できるとき、例えば、 u_s が v_s よりも十分に遅いとき、プルーム上昇係数は大気安定度が中立あるいは不安定の時には1、安定の時には $u_{ref}^{2/3}$ となる。この研究では、3.3.1)で議論した理由によりスタックチップダウンウォッシュは無視することになっている。そのため、プルーム上昇は上記の係数を用いて推定した。

3) h_e の推定方法

上記の結果から、 h_e の推定方法を以下のように決定した。

- (1) 排出源情報を推定するときのプルーム上昇を有効煙突高度と推測した煙突高度から計算する。
- (2) 風速の関係を用いて、排出源情報が推定された条件で風速1m/sのときのプルーム上昇を計算する。

- (3) 大気安定度の関係を用いて、中立の安定度で風速 1m/s のときのプルーム上昇を計算する。
- (4) 大気安定度の関係を用いて、推定すべき大気安定度で風速 1m/s のときのプルーム上昇を計算する。
- (5) 風速の関係を用いて、推定すべき大気安定度・風速のときのプルーム上昇を計算する。
- (6) 推定すべき大気安定度・風速のときの有効煙突高度を上記のプルーム上昇と煙突高度から計算する。

4. 年間平均濃度の空間分布の推定

空間分布は通常の方法により上記で開発した方法により得られた排出源位置と h_e から推定できる。**Fig.2** に **Fig.1** で得られた排出源情報から年間平均濃度の空間分布を推定した例を示した。さらに、**Fig.1** の推定を行うために ISCST3 を用いて求めた濃度と位置を導いた排出条件を用いて、ISCLT3 で推定した結果をも示した。ISCLT3 は排出条件が知られている場合に用いられるプログラムである。本方法で推定した分布は ISCLT3 で推定したものとよい一致を示した。

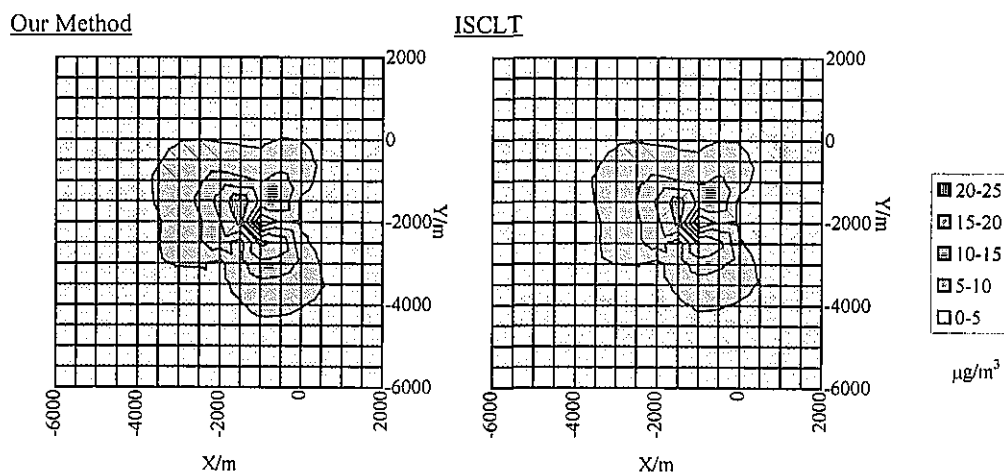


Fig.2 我々が開発した方法と ISCLT3 で推定した年間分布結果
パラメータ

年間気象頻度は市原市環境監視センターから得た。

我々の方法：**Fig.1** に示したパラメータのとおり。

ISCLT3：排出源位置は(-1000, -2000)、排出速度は 20 g/s、煙突高度は 25 m、
排出ガス温度は 400 K、排出ガス速度は 12 m/s、煙突内径は 0.4 m。

5. 同時に測定した濃度と位置から推定された分布の例

上述の方法を用いて、実測データから化学物質の排出条件と年間分布を推定した。

Table I に市原市で 1996 年 3 月 4 日に採取されたエチレンの濃度とサンプリング位置を示した。これらのデータから排出源情報と 1995 年のエチレンの分布を推定した。

Fig.3 に上記のデータを用いた排出源の推定結果と 1995 年のエチレンの年間分布を示した。我々はこの結果から排出源位置を(-6361.62,-5260.75)と推定した。排出源位置を決定することにより、有効煙突高度が 26.92m であることが推定された。これから我々は煙突高度を 25m と推定した。この結果から排出速度は 36.51 g/s と推定された。

この結果を確認するために、プルーム式を用いてこの結果から他の位置の濃度を推定した。5.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ と測定された(-3100, 237.5)の地点のエチレン濃度は 3.65 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ と推定された。推定された濃度は測定値とよい一致を示したと判断した。

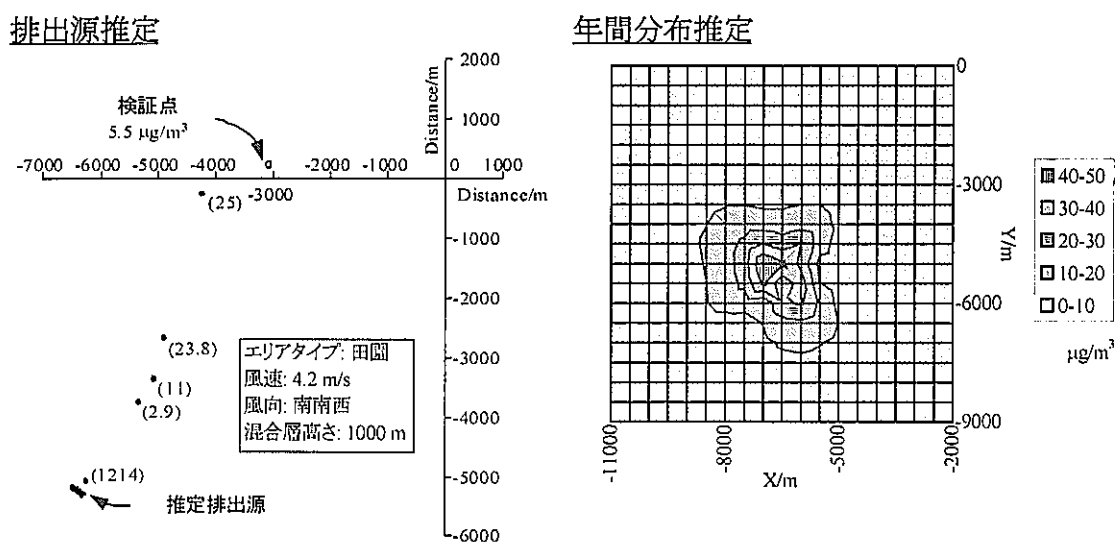


Fig.3 測定データを用いた排出源及び年間分布推定結果
パラメータ; 気象頻度は 1995 年の市原市のものを用いた。

6. 結論

排出源周辺の住民に対する化学物質のリスクアセスメントのため、排出源周辺の化学物質の空間分布を推定する方法を開発した。我々の方法では年間平均濃度の空間分布を排出源情報なしで同時に測定された 5 つの濃度と位置から推定できる。得られた化学物質濃度の空間分布は排出源情報がわかっている場合に用いられる LSCLT3 によって推定されたものとよい一致を示した。

7. 謝辞

この研究は科学技術振興事業団の戦略的基礎研究推進事業の援助を受けた。市原の気象条件は市原市環境監視センターから提供を受けた。