

(17) 統計モデルを用いた優先化学物質選択手法

ENVIRONMENTAL FATE MODEL FOR CHEMICALS PRIORITISATION

中杉修身*

Osami Nakasugi*

ABSTRACTS; The selection of target chemical is the most important key element for effective controls on emission of chemicals. The environmental fate models are constructed for the purpose of using in such selection. Multi-regression equations are obtained by the analyses of the concentration level of selected chemicals in environmental elements. The values of prediction are in good agreement with that of measurement.

KEYWORDS; chemicals, risk assessment, priority setting, statistical model, environmental fate

1. はじめに

1.1 優先化学物質選択の必要性

トリクロロエチレン等による地下水汚染、焼却灰中でのダイオキシンの検出等、近年、化学物質による環境汚染が急激に顕在化している。このため、PCB問題を契機として制定された化学物質の審査及び製造等の規制に関する法律(化審法)が改正され、新たに、蓄積性が低くとも、毒性が高く、難分解性である物質も規制の対象とされることになった。しかし、分解性が高くとも、大量に使用されることによって常に環境中にある濃度レベル以上で存在する物質や、非意図的に生成される物質は、改正された法律でも規制の対象とされておらず、化学物質による環境汚染を防止する体制は、必ずしも十分に整っているとは言い難い。

化学物質による環境汚染は、硫黄酸化物や有機性汚濁等による従来の環境汚染とは異なる、次のような特徴を持っている¹⁾。

- ① 対象となる化学物質の数が非常に多い。——実際に工業規模で生産されているものだけでも数万にのぼり、化審法では約2万、米国のToxic Substance Control Act(TSCA)では約7万の化学物質を対象としている。
- ② 微量の汚染でも深刻な被害をもたらす可能性がある。——水道水の水質基準値は、硝酸性・亜硝酸性窒素が $10\text{mg}/\ell$ であるのに対し、テトラクロロエチレンの暫定基準値は $10\mu\text{g}/\ell$ である。
- ③ 環境汚染の防止やその回復が困難である。——微量の汚染を防ぐ必要があるため、環境への侵入量をわずかなレベルに抑えることが要求される。また、より低い濃度にまで浄化することが要求されるので、汚染の回復は困難である。

②や③の特徴から考えて、化学物質汚染に伴う被害を防止するためには、リスク評価に基づく汚染の未然防止が不可欠となるし、また、モニタリングによる汚染の早期発見が重要となる。

リスク評価には、毒性と暴露量に関する情報が必要となる。毒性に関する情報はUNEPやWHO等の国際機関や各国の政府が精力的に整備しているが、とくに発がん性等の慢性影響に関する情報を得るには、多大な時間と資金を必要とし、その進捗ははかばかしくない²⁾。

一方、暴露量の把握には、環境中での濃度の把握が必要となる。環境濃度の把握は、基本的にはモニタリングによるが、モデルを用いた予測によっても可能である。しかし、このためには、化学物質の生産・使用状況や物理化学的性状等に関わる情報が必要となる。

しかるに、①の特徴から考えて、対象となる化学物質のすべてについて、モニタリングを実施したり、情報整備を行うのは、非現実的である。このため、優先物質を選択して、順次、調査を実施することになり、優先物質の選択は、化学物質の管理を効率的にすすめるために、欠かすことの出来ない手順である。

1.2 優先物質の選択方法

各国での化学物質管理においても、優先的に調査すべき化学物質が選定されている。わが国で昭和54年度から実施されている化学物質の環境安全性総点検調査でも、まず約2万の既存化学物質から約2,000物質のブライオリティ・リストを作成し、毎年、この内の200物質から約50物質を選び、環境調査を実施している²⁾。また、TSCAのもとで、米国では約7万の既存化学物質から優先的に調査すべき物質を選び出して勧告する関係省庁試験委員会(ITC)を設けている。ここでは、生産量、暴露量や毒性についての情報をもとに絞り込んだ物質について危険性評価書を作成し、これを審査して優先物質を選択している²⁾。

優先物質の選択は、基本的には化学物質の環境汚染に伴うリスクの評価に基づくことになる。しかし、この段階では情報が不足していることが前提となる。ITCでは、少ない情報をカバーするために、構造活性相関を活用する等の工夫を行っているが、多くの場合、専門家の主観的な判断に頼っているのが現状である。

優先物質の選択に客観性を導入する工夫は、これまでもOECDや米国環境庁(EPA)等でいくつかの方法が提案されているが、その多くは、化学物質の環境汚染とその影響に係わる多くの要因に評点を与え、それを何らかの方法で集計して優先順位を決定するものである³⁾。暴露量と毒性とに分けて評価されるが、暴露量に関しては、生産・使用量、使用・放出形態と暴露を受ける側の要因(人数、暴露強度等)に与えた評点を加算する方式が採用されている。

本研究の目的は、この暴露量の評価にモデルによる予測を組み込んだ手法を提案することであり、このためのモデルを開発することである。ここでは、優先物質の選択に用いることを主たる目的として開発した化学物質の環境運命予測手法について報告するとともに、これを用いた優先物質選択手法を提案する。

1.3 化学物質の環境運命予測モデル

化学物質の環境運命予測モデルは、これまでも数多くのものが開発されている²⁾。これらのモデルは、仮想的な環境を想定して、その中で化学物質の挙動を予測するものと、実際の環境における化学物質濃度分布までを予測するものに大別される。

仮想的な環境に対するモデルは、環境要素間に平衡を仮定したり、それらの間の移動を速度論的に扱っており、各環境要素間での化学物質の分配を評価している。一方、実際の環境での挙動を記述するモデルは、水系を対象としたものが多く、水域内での物質循環を記述したものと、流域からの物質の流出過程を記述したものがある。

モデルによる予測の精度は、実際の現象をどれだけ忠実に記述できるか、また、どれだけ正確なパラメータを用いることができるかにかかっており、必ずしも複雑であっても、予測結果の精度が高いとは言えない。情報の少ない優先物質選択の段階では、容易に手に入る情報だけで予測できることが重要となってくる。この観点から考えると、モデル構築に用いるパラメータに融通性があり、容易に手に入れることができるパラメータのみで予測できる統計モデルが大きな意味を持つてくる。

統計モデルによる化学物質の環境濃度の予測は、池田⁴⁾や盛岡⁵⁾によって試みられている。これらはいずれも数量化Ⅱ類を用いたものであり、説明変数が定性的な情報ですみ、容易に入手できる利点があるが、予測結果も定性的にならざるを得ない。化学物質毎に毒性が異なることを考えると、優先順位を決定するためには、定量的な予測が必要となってくる。そこで、本研究では重回帰モデルによる環境濃度の予測を試みた。

2. 重回帰モデルによる化学物質濃度の予測

2.1 分析方法

わが国では幸いに、環境庁が特定の発生源の影響を受けない一般環境における体系的な調査を実施しており、この結果を用いてモデルを構築することとした。

まず、地域分布や時間変動等に影響する要因を見出すために、個々の物質毎に分析を行った。分析の対象としては、多くのサンプルで検出された物質を選んだ。また、分析機関間の誤差を排除するため、可能な場合には同一の機関ですべてのサンプルを分析しているものを選んだ。このようにして、大気についてはクロロメタン、ジクロロメタン、クロロホルム、四塩化炭素、1,1,1-トリクロロエタン、トリクロロエチレン、テトラクロロエチレンを、水質についてはフタル酸ジ-n-ブチル、フタル酸ジ-2-エチルヘキシル、ポリオキシエチレン型非イオン界面活性剤を、底質についてはcis-クロルデン、trans-クロルデン、cis-ノナクロル、trans-ノナクロル、ヘキサクロロフェンを選択した。これらの測定結果を被説明変数として、変数選択型重回帰分析を実施した。説明変数には、後述するように地域の人間活動を表す要因と自然条件を表す要因を用いた。人間活動を表す変数は昭和55年度実績を用い、気象条件は化学物質の測定と同時に測定された結果を用いた。

次に、複数の化学物質の環境濃度を予測できるモデルを構築するため、比較的多くのサンプルで検出されている物質を選んで、分析を行った。大気については、個別分析で用いた物質に、クロロベンゼン、o-ジクロロベンゼン、p-ジクロロベンゼンを加えた10物質の昭和58年度調査結果に基づき、変数選択型重回帰分析を行って、モデルを構築した。これを用い、昭和54及び55年度の予測を行って、モデルの有効性を検討した。

水質及び底質については11物質(1,2,3-トリクロロベンゼン、1,2,4-トリクロロベンゼン、ニトロベンゼン、アニリン、o-クロロアニリン、p-クロロアニリン、o-トルイジン、p-トルイジン、フタル酸ジ-n-ブチル、フタル酸ジ-2-エチルヘキシル及びリン酸トリブチル)を対象に変数選択型重回帰分析を行った。次に、モデル構築に用いた11物質に10物質(ビフェニル、メチルエチルケトン、アクロレイン、クロロベンゼン、o-クロロフェノール、p-クロロフェノール、2,4,6-トリクロロフェノール、m-ニトロアニリン、p-ニトロアニリン及びN-メチルアニリン)を加えた21物質の不検出データについて、検出限界との比較を行い、整合性をチェックすることによってモデルの検証を行った。被説明変数には、各測定地点の測定値の中央値の対数を用いた。説明変数には、化学物質の侵入量を表す人間活動に関するものと、環境中での挙動を表す物理化学的性状を用いた。人間活動の内、生産量については測定時点のものを、地域分布を説明する要因は個別物質の分析で用いた昭和55年度実績をそのまま用いている。化学物質の生産量及び物理化学的性状については、環境庁の各種調査結果⁹⁾等、用途については池田⁴⁾が数量化Ⅱ類の分析で用いた定性的データを用いた。

2.2 個別物質ごとの分析結果

(1) 大気濃度の分析

化学物質の大気濃度は時間的な変動が大きく、気象の影響を受けやすいと考え、化学物質の環境への侵入量を表す変数(測定点人口密度、測定点製造品出荷額密度)に加えて、天候、気温、風速と測定点の地形を示すダミー変数を説明変数に加えて分析を行った。

変数選択の結果、気象条件は一部の物質で気温が有意な変数として採用されるのみで、人口密度あるいは製造品出荷額密度の方が大気濃度にきいていと考えられる。しかし、いずれにせよ、重回帰式の重相関係数は、自由度調整済の二乗値で0.4以下と低いものになっている。これは、測定結果の時間及び空間的代表性に問題があり、それらを説明する適切な要因が採用されていないことが一つの原因と考えられる。もう一つは測定機関間の分析誤差が影響していることが、クロルデン類の底質濃度分析結果からも考えられる。

(2) 水質、底質濃度の分析

水質、底質については、対象水域の流域の人間活動と対象水域に面した地点での人間活動の双方が影響する可能性がある。そこで、人間活動に係わる説明変数として、流域の人口及び製造品出荷額と測定水域に面

した自治体の人口密度及び製造品出荷額密度を用いた。また、クロルデン類の分析では、これらがシロアリ駆除に用いられることから、流域の住宅建設面積やシロアリの発生に関連する気温、木材工場数、シロアリ駆除レベルを説明変数に加えた。自然条件としては、ダミー変数を用いて測定水域の形態を区別した。

クロルデン類の底質濃度については、自由度調整済重相関係数の二乗で0.5と比較的説明力の高い回帰式が得られた。これは、クロルデン類は、サンプルの分析を一つの機関が担当しており、機関ごとの分析誤差が少ないことと、底質の測定値は空間的代表性は小さいものの、時間的変動が少ないことによると考えられる。この回帰式では流域人口、流域製造品出荷額密度、測定点人口密度、流域住宅建設面積等が有意な要因として選択されたが、流域の諸活動を表す変数は流域人口を除いて符号が一であり、予想とは逆の結果を与える。これは、説明変数相互の相関が大きいために原因しているものと考えられる。

水質についても大気と同様、重相関係数の大きな回帰式は得られておらず、選択される変数もまちまちである。フタル酸エステル類については、水質に加えて底質濃度も分析しているが、水質濃度と底質濃度の間の相関は低い。これは、底質が過去の水質の履歴をも反映したものであることが原因の一つと考えられる。

2.3 複数物質についての分析

(1) 大気濃度の分析

個別物質毎の分析で有意な要因として選択された測定点人口密度(a_3)、測定点製造品出荷額密度(a_4)に加えて、化学物質の侵入量を表す要因として生産量(a_1)と用途(a_2)を用い、また、環境中での挙動を表す要因として蒸気圧(a_5)、ヘンリー定数(a_6)とOHラジカル反応速度(a_7)を説明変数(用途以外は対数を用いた)とし、大気濃度(C_1)の対数を被説明変数として分析を行った結果、自由度調整済重相関係数が0.67と比較的高い回帰式が得られた。

$$\log(C_1) = -0.27 + 0.71 \cdot \log(a_1) - 0.27 \cdot \log(a_3) + 0.30 \cdot \log(a_4) + 0.32 \cdot \log(a_5) + 0.40 \cdot \log(a_6)$$

この結果を測定値に対してプロットしたものが図1である。また、この式を用いて生産量だけを昭和55年度実績に変えて予測した結果と55年度の測定結果をプロットしたものが図2である。いずれも予測値はおおむね測定値の1/10~10倍の範囲に入っており、大気濃度のオーダーは予測できたものと考えられる。

各変数のt値や偏回帰係数の大きさをみると、有機塩素化合物の大気濃度は主に生産量によって支配されていると言える。

(2) 水質、底質濃度の分析

水質及び底質については、環境への侵入量を表す要因として、生産量(a_1)、用途(a_2)、流域人口(a_8)、流域製造品出荷額(a_9)、流域面積(a_{10})、測定点人口密度(a_3)、測定点製造品出荷額密度(a_4)を用い、環境中での挙動を表す要因として、ヘンリー定数(a_6)、n-オクタノール/水分配係数(a_{11})と生分解性(a_{12})を採用した。通産省での試験の定性的な結果を用いた生分解性と用途を除いて、その他の要因は対数を説明変数に用いた。対象物質の検出されたすべてのデータを用いて分析した結果、水質濃度(C_2)に対しては0.68、底質濃度(C_3)に対しては0.52と、自由度調整済重相関係数が比較的大きな回帰式が得られた。

$$\log(C_2) = -4.81 + 0.45 \cdot \log(a_1) + 0.29 \cdot \log(a_9) - 0.12 \cdot \log(a_{11})$$

$$\log(C_3) = -0.27 + 0.71 \cdot \log(a_1) - 0.27 \cdot \log(a_8) + 0.68 \cdot \log(a_2) - 0.10 \cdot \log(a_{11}) - 0.09 \cdot \log(a_6)$$

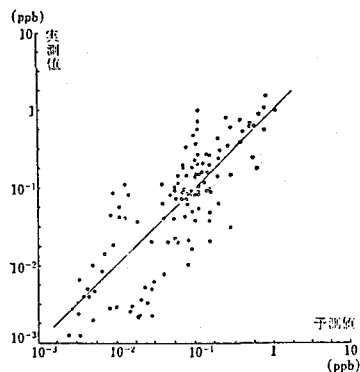


図1 昭和58年度大気濃度の予測(対数値)

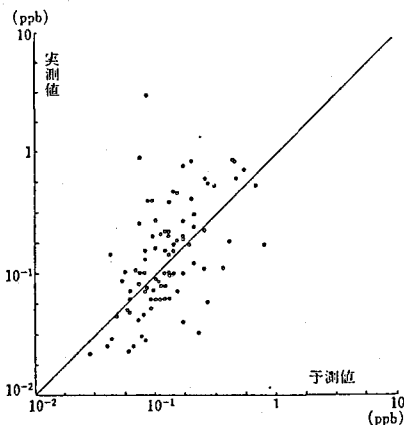


図2 昭和55年度大気濃度の予測(対数値)
モデルの検証

水質及び底質の予測
結果と測定値をプロッ

トしたものが図3及び
4である。底質で若干、
ばらつきが大きいが、
大気の場合と同様、予
測値は測定値の1/10
～10倍の範囲に入っ
ている。

不検出のデータにつ
いて検出限界との整合
性を検討した結果が、
表1及び2である。水

質及び底質でのニトロベンゼン
や底質での1,2,3-トリクロロベン
ゼン、1,2,4-トリクロロベン
ゼン、リン酸トリブチルのよう
に整合の悪い物質もあるが、多
くの物質では予測結果と測定結
果はよく整合していると言え、
水質及び底質濃度についてもオー
ダーの予測は可能であると考え
られる。

水質や底質についても、その
濃度に最も大きく要因は、大気
の場合と同様、生産量である。す
なわち、難分解性でなくとも、
大量に使用される物質の環境濃
度が高い傾向にあることを示し
ていると言える。

3. 優先物質の選択への重回帰 モデルの適用可能性と問題点

3.1 適用可能性

重回帰モデルによる大気、水質、底質濃度の予測では、予測値と測定値の間には10倍程度の開きがあるが、優先物質選択の段階では、少ない情報に基づき、予測できることが重要である反面、予測精度に対する要求はあまり強くないと考えられる。仮想環境に対するモデルでも同程度の精度であると報告されており⁷⁾、必要となる情報の数や入手し易さから考えて、重回帰分析に基づくモデルの有用性は高いと考えられる。

このモデルを用いた予測から得られる大気、水質及び底質濃度と、各種毒性試験結果、たとえばLD₅₀を比較することにより、個々の毒性についての影響の大きさが評価できる。そして個々の毒性の評価を総合化することによって、優先順位を決定することができよう。また、このモデルでは、地域的な分布も予測可能であるので、暴露を受ける側の重みをつけて評価することも可能となるだろう。

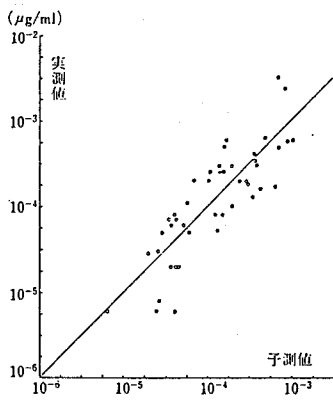


図3 水質濃度の予測（対数値）

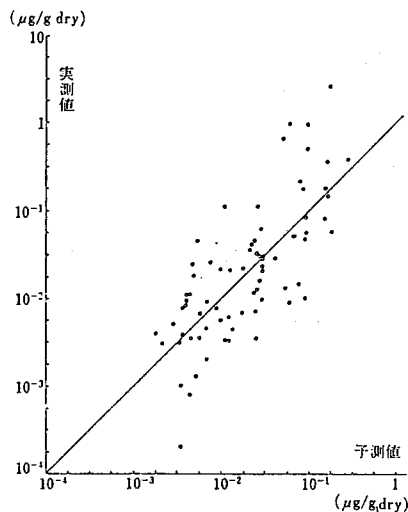


図4 底質濃度の予測（対数値）

表1 不検出データによる水質予測モデルの検証

対象サン プル数	検出データ 測定値-予測値			不検出データ (検出限界-予測値)			
	<0.5	0.5< <1.0	1.0<	0.0<	-0.5< <0.0	-1.0< <-0.5	<-1.0
ビフェニール	2			2			
メチルエチルケトン	6			6			
アクロレイン	7			7			
クロロベンゼン	3			3			
1,2,3-トリクロロベンゼン	31	1		24	5	1	
1,2,4-トリクロロベンゼン	31	1		25	4	1	
ニトロベンゼン	31	5	1	7	6	12	
o-クロロフェノール	8			8			
p-クロロフェノール	8			8			
2,4,6-トリクロロフェノール	7			3	4		
アニリン	4	1	1		2		
o-クロロアニリン	3	1		2			
p-クロロアニリン	5	1		4			
m-ニトロアニリン	8			8			
p-ニトロアニリン	8			8			
N-メチルアニリン	4			3	1		
o-トリイジン	4	1		3			
p-トリイジン	4	1		3			
フタル酸ジ-n-ブチル	12	9	1	1		1	
フタル酸ジ-2-エチルヘキシル	12	7			2	3	
リン酸トリブチル	31	10	3	12	4	2	

暴露量に関する要因に与えた
 評点を加算する方法に比べれば、
 より実際の暴露程度を評価でき
 ると考えられるし、環境濃度と
 毒性が直接に比較評価できる点
 でも有用性は高いと考えられる。

3.2 問題点

ここでは、入手可能なデータ
 に基づいてモデルを構築してい
 るため、モデルは必ずしも化学
 物質の環境中での挙動をバラン
 スよく記述していない。これが、
 オーダーの予測に止まっている
 理由の一つである。

今回の分析でも、大気濃度
 については、測定結果の制約から
 物理化学的性状の似ている有機
 塩素化合物のみを対象としてい

るため、変数選択により重要な要因が落ちる可能性がある。たとえば、塩化ビニルは最も生産量が大きな有機塩素化合物であるが、大気濃度は必ずしも高くない。これは、その用途が主にポリマー原料であるためと考えられ、塩化ビニルを分析の対象に加えると、用途が有意な要因として採用されるものと考えられる。

一方、重回帰モデルでは、少ない要因に基づいて予測を行っているが、必ずしもすべてについて正確な情報が得られたわけではなく、類似物質から類推したものもある。池田⁴⁾の分析でも環境庁が総点検調査を実施した物質のうち、数量化Ⅱ類の分析で用いた5つの要因に関する情報がすべて入手できた物質は1/4に過ぎない。また、統計モデルの基礎となる環境濃度の空間的、時間的代表性と、説明変数として採用したデータの整合がとれていないことが考えられる。底質濃度は過去からの侵入の履歴を反映したものであり、底質についてばらつきが大きかったのは、一年間の侵入量に基づいて予測を行ったためと考えられる。

しかし、化学物質の物理化学的性状、環境中での挙動や濃度についての情報が、徐々に整備されていくに従い、これらを用い、また、新たな物質を加えた分析を行うことによってモデルの精度をより高くすることができると考えられる。この場合にも統計モデルは対応が容易であると考えられる。

引用文献

- 1) 中杉修身(1985)：環境面よりみた化学物質の適正管理。環境情報科学，14，4，59-62。
- 2) 平石尹彦・中杉修身(1986)：微量環境汚染対策の諸課題。環境研究，57，40-51。
- 3) 化学物質要覧等作成調査研究会(1984)：化学物質評点法検討調査。23Ppp。
- 4) 池田正之(1985)：スコアリングを用いた化学物質の環境中運命予測。化学物質環境運命予測手法開発調査昭和59年度報告書，日本環境協会，25-32。
- 5) 盛岡通(1984)：統計的モデルによる地域水系での化学物質の濃度水準の判別。化学物質環境運命予測手法開発調査昭和58年度報告書，日本環境協会，41-54。
- 6) 化学物質要覧作成研究会(1979-1983)：化学物質要覧。921pp。
- 7) 吉田喜久雄(1985)：化学物質の環境中運命予測モデル。第7回日本水質汚濁研究協会セミナー 化学物質による環境汚染 講演資料集，133-156。

表2 不検出データによる底質予測モデルの検証

	対象サン プル数	検出データ 測定値 - 予測値			不検出データ (検出限界 - 予測値)			
		<0.5	0.5< <1.0	1.0<	0.0<	-0.5< <0.0	-1.0< <-0.5	<-1.0
ビフェニル	2				2			
メチルエチルベンゼン	6				6			
アクリレン	7				2	2	1	
クロロベンゼン	3				3			
1,2,3-トリクロロベンゼン	31	1	2		6	11	7	
1,2,4-トリクロロベンゼン	31	6	3	1	7	6	7	
ニトロベンゼン	31	2	2	2	8	3	5	
o-クロロフェノール	6				6			
p-クロロフェノール	6				6			
2,4,6-トリクロロフェノール	7				3	2	2	
アニリン	4	3	1					
o-クロロアニリン	3	2			1			
p-クロロアニリン	5	2	2		1			
m-ニトロアニリン	5				4	1		
p-ニトロアニリン	5				3	2		
N-メチルアニリン	4						3	1
オトリジン	4	3						1
p-トリジン	4	4						
フタル酸ジ-n-ブチル	12	9	1				2	
フタル酸ジ-2-エチルヘキシル	12	8	3					
リン酸トリブチル	31	11	2		8	2	6	2