

Environment Research and Technology Development Fund

## 環境研究総合推進費 終了研究成果報告書

S II-4-1 PRTR データを活用した化学物質の排出管理手法の構築  
(J P M E E R F 1 9 S 2 0 4 1 0)  
令和元年度～令和3年度

An Approach for Management of Chemical Releases and Flows Using PRTR Data

〈研究代表機関〉

国立研究開発法人国立環境研究所

〈研究分担機関〉

国立研究開発法人土木研究所

国立大学法人東海国立大学機構 岐阜大学

〈研究協力機関〉

大阪市立大学

富山県立大学

○図表番号の付番方法について

「Ⅰ. 成果の概要」の図表番号は「0. 通し番号」としております。なお、「Ⅱ. 成果の詳細」にて使用した図表を転用する場合には、転用元と同じ番号を付番しております。

「Ⅱ. 成果の詳細」の図表番号は「サブテーマ番号. 通し番号」としております。なお、異なるサブテーマから図表を転用する場合は、転用元と同じ図表番号としております。

令和4年5月

## 目次

I. 成果の概要	・・・・・・・・・・	1
1. はじめに（研究背景等）		
2. 研究開発目的		
3. 研究目標		
4. 研究開発内容		
5. 研究成果		
5-1. 成果の概要		
5-2. 環境政策等への貢献		
5-3. 研究目標の達成状況		
6. 研究成果の発表状況		
6-1. 査読付き論文		
6-2. 知的財産権		
6-3. その他発表件数		
7. 国際共同研究等の状況		
8. 研究者略歴		
II. 成果の詳細		
II-1 PRTR データを活用した物質フロー・排出インベントリの把握手法の開発	・・・・・・・・	17
(国立研究開発法人国立環境研究所)		
要旨		
1. 研究開発目的		
2. 研究目標		
3. 研究開発内容		
3-1 PRTR データの正確性と捕捉範囲の評価		
3-2 廃棄物の処理・再生利用に伴う化学物質のフロー推計手法の構築		
4. 結果及び考察		
4-1 PRTR データの正確性と捕捉範囲の評価		
4-2 廃棄物の処理・再生利用に伴う化学物質のフロー推計手法の構築		
5. 研究目標の達成状況		
6. 引用文献		
II-2 排出量への寄与が大きい業種における排出量推定手法の高度化	・・・・・・・・	35
(国立研究開発法人土木研究所、国立大学法人東海国立大学機構岐阜大学)		
要旨		
1. 研究開発目的		
2. 研究目標		
3. 研究開発内容		
3-1 下水処理施設に係る排出量の腠液状況の整理と分類		
3-2 下水処理施設における実測データの収集に基づく届出外排出量推計値の検証・高度化		
3-3 下水処理過程で負荷量が増加する物質の挙動の把握と排出量の推計		

## 4. 結果及び考察

4-1 下水処理施設に係る排出量の腭液状況の整理と分類

4-2 下水処理施設における実測データの収集に基づく届出外排出量推計値の検証・高度化

4-3 下水処理過程で負荷量が増加する物質の挙動の把握と排出量の推計

## 5. 研究目標の達成状況

## 6. 引用文献

III. 研究成果の発表状況の詳細	.....	50
-------------------	-------	----

IV. 英文Abstract	.....	54
----------------	-------	----

## I. 成果の概要

課題名 SII-4-1 PRTR データを活用した物質フロー・排出インベントリの把握手法の開発

課題代表者名 小口 正弘 (国立研究開発法人国立環境研究所 資源循環領域  
資源循環社会システム研究室 主幹研究員)

研究実施期間 令和元年度～令和3年度

研究経費

132,087 千円 (合計額)

(各年度の内訳：令和元年度：44,147 千円、令和2年度：44,046 千円、令和3年度：43,894 千円)

研究体制

(サブテーマ1) PRTR データを活用した物質フロー・排出インベントリの把握手法の開発 (国立研究開発法人国立環境研究所) (JPMEERF19S20401)

(サブテーマ2) 排出量への寄与が大きい業種における排出量推定手法の高度化 (国立研究開発法人土木研究所) (JPMEERF19S20402)

研究協力機関

大阪市立大学、富山県立大学

本研究のキーワード PRTR、化学物質、環境排出、物質フロー、正確性、捕捉範囲、廃棄物処理、下水処理、排出量推計、高度化

### 1. はじめに (研究背景等)

第五次環境基本計画で掲げられている化学物質のライフサイクル全体での包括的管理を達成するため、国全体としての化学物質の物質フローや排出インベントリの把握及び管理、地域や事業所レベルの排出管理や環境監視のより一層の促進が求められる。「特定化学物質の環境への排出量の把握等及び管理の改善の促進に関する法律」(化管法)に基づくPRTR制度では、462種(2022年5月時点)の幅広い化学物質について排出移動量を継続的に把握、公表している。それらのデータは化学物質管理のための基盤情報として多方面で活用可能なものであり、PRTR制度はいわば我が国の化学物質管理政策の基盤となる環境情報インフラと位置づけることができる。

しかしながら、このような有用な情報が排出インベントリや物質フローを把握し管理するという観点ではまだ十分に活用されていない状況にある。この理由として、化学物質の環境排出量や物質フローとしてのPRTRデータの正確性の程度や捕捉範囲が明確でなく直ちに活用可能な状態になっていないこと、全体への寄与が大きい可能性がある廃棄物の処理・再生利用や下水処理における化学物質のフローや環境排出の情報が不足、欠落していることなどが挙げられる。PRTRデータの正確性や捕捉範囲の確保については、2019年度の化管法見直しでPRTRデータの蓄積された物質については対象物質選定におけるばく露指標がこれまでの製造輸入量から排出量へ変更されたこと、「化学物質の審査及び製造等の規制に関する法律」(化審法)のリスク評価等においても基礎データとしてPRTRデータが活用されていることなどからも、今後その重要性がより増すものと考えられる。また、廃棄物処理への届出移動量は届出排出移動量全体の6割を占め、PRTR制度開始以降ほぼ横ばいであることから、廃棄物の処理・再生利用における化学物質のフローや環境排出を把握することが必要である。また、下水処理施設については多くの物質の排出量が届出外排出量として推計されているが、その量は公共用水域への排出量に対する寄与が非常に大きい値となっていることから、新たなデータを蓄積しつつその推計について改めて評価を行い、手法の見直しと推計の精緻化を行うことが必要である。

## 2. 研究開発目的

本研究では、化学物質の環境排出および移動量としての PRTR データの質の理解、廃棄物の処理・再生利用や下水処理について環境排出量および物質フローの推計やその精緻化を目指し、以下の2つのサブテーマで研究を実施する。サブテーマ1「PRTR データを活用した物質フロー・排出インベントリの把握手法の開発」では、物質フロー及び環境排出量としての PRTR データの正確性と捕捉範囲の評価、廃棄物の処理・再生利用に伴う化学物質のフロー推計手法の構築を行う。サブテーマ2「排出量への寄与が大きい業種における排出量推定手法の高度化」では、下水処理施設に係る排出量推計手法の高度化を目指し、実測データの蓄積による下水処理施設における流入量と移行率の検証、下水処理過程における非意図的生成物質の挙動解明とそれに対応する排出量推計手法の提案を行う。以上で得られた成果を取りまとめ、国レベルでの化学物質の物質フロー及び排出インベントリ把握における PRTR データの活用に向けた科学的基盤として提示する。これを基に、PRTR 制度におけるデータの正確性と捕捉範囲の向上に向けた課題と方策、化学物質管理の基礎情報として必須である排出インベントリおよび物質フローの把握における PRTR データの活用可能性と活用方法を提示し、化学物質管理における PRTR 制度のより実践的な活用に貢献することを目指す。

## 3. 研究目標

全体目標	数十から 200 程度の物質について PRTR データの正確性と捕捉範囲の評価、廃棄物の処理・再生利用における化学物質フローや下水処理施設における化学物質の流入・排出実態の推計、解明を行い、環境排出を含む化学物質フローの継続的な把握における PRTR データの活用方法を提示するとともに、PRTR データの正確性向上に向けた課題と方策を提案する。
サブテーマ1	PRTR データを活用した物質フロー・排出インベントリの把握手法の開発
サブテーマリーダー /所属機関	小口 正弘/ (国研) 国立環境研究所
目標	PRTR データの届出事業所情報や算出方法等の実態把握、産業連関分析や環境挙動モデル推計を用いたケーススタディを行い、これらに基づいて数十から 200 程度の物質について環境排出量と物質フロー全体における PRTR データの捕捉範囲と正確性を業種、排出源、物質群ごとに評価、整理する。PRTR 届出移動量データと廃棄物統計・行政情報の接続による廃棄物の処理・再生利用における化学物質フローの推計を行うとともに、その手法を提示する。
サブテーマ2	排出量への寄与が大きい業種における排出量推定手法の高度化
サブテーマリーダー /所属機関	對馬 育夫/ (国研) 土木研究所
目標	下水処理施設を対象として、PRTR 届出データや現行の届出外推計手法で扱われているデータを含む公表データについて特性を把握するとともに、実測データの蓄積・解析を行って下水処理施設への化学物質の流入、下水処理施設からの排出、処理施設内における物質挙動の実態を明らかにする。これに基づき、下水処理施設における化学物質流入量の推計及び公共用水域への移行率の改善、精緻化を行い、数十物質について当該施設からの排出量推計を高度化する。

#### 4. 研究開発内容

PRTR 制度で得られている排出移動量データは、業種、排出源、届出要件の該否等によって以下の3つに大別される。

- (a) 対象業種における事業所からの届出排出移動量
- (b) 対象業種におけるすそ切り事業者からの推計排出量（以下、「すそ切り以下排出量」という。）
- (c) その他の届出外推計排出量（非対象業種の事業所、家庭、移動体からの排出量、下水処理施設や廃棄物処理施設の届出対象外物質の排出量等）

本研究（テーマ1）では、これらのうち、環境省において推計手法等の継続的な検討が行われていないデータを対象とし、その正確性や捕捉範囲の評価、推計手法の構築、データ蓄積による推計の高度化を行ったものである。以下に、各サブテーマの実施内容について記述する。

##### （1）PRTR データを活用した物質フロー・排出インベントリの把握手法の開発

###### 1) PRTR データの正確性と捕捉範囲の評価

PRTR データが環境排出・移動量の実態を反映した情報としてどの程度信頼できるか（正確性）、PRTR データが環境排出量を十分捕捉しているか（捕捉範囲）の2つの観点で以下のPRTR データの評価を行った。

###### ①算出方法の実態に基づくPRTR 届出データの正確性評価

個々の届出排出移動量データはあくまで推計値であることから、その正確性は算出方法と算出に用いる根拠データに依存する。そこで、国の算出マニュアルやOECDの技術文書で示されている留意事項や算出方法選択の考え方から、事業所の状況に応じた算出方法の適用性と算出される届出排出移動量の正確性を整理した。その上で、協力が得られた4地方自治体を対象とし、主要業種における届出事業所へのアンケート調査から排出移動量の用いられている算出方法とその詳細を把握した。その結果と先の整理に基づいて、用いられている算出方法が適切かどうかを整理することで、どの程度のPRTR 届出データが環境排出や移動の実態を示す情報として信頼できるかを評価した。

###### ②届出データとの整合性から見たすそ切り以下排出量の評価

すそ切り以下事業者に係る排出量（以下、「すそ切り以下排出量」という。）について、届出データとの整合性から見た評価を行った。すそ切り以下排出量は、対象業種からの総排出量の推計を行い、これにすそ切り以下の割合を乗じて推計されている。そこで、公表されている総排出量からすそ切り以下排出量の推計値を差し引いて届出排出量に相当する値（以下、「推計届出排出量」という。）を求め、実際の届出排出量と比較することで、すそ切り以下排出量が実際のすそ切り以下事業者からの排出量をどの程度反映しているかを評価した。

###### ③産業連関表ベースのハイブリッド勘定表作成によるPRTR データの検証

PRTR 対象物質のフローデータを産業連関表上に記述したハイブリッド勘定表を作成し、これを用いた物質フロー分析を行って、対象物質の国内一次供給量と製品として使用される最終消費量を部門ごとに推計した。対象年次は2015年とし、12物質をケーススタディの対象とした。ハイブリッド勘定表は、PRTR データを使用せず、各種統計や文献資料の公表資料のみに基づいて作成した。これに対し、地方自治体の条例の下で届出されている排出移動量と取扱量のデータから作成した取扱量に対する届出排出移動量の割合を用いてPRTR 届出排出移動量から取扱量を推定し、作成した勘定表の部門とPRTR 制度の対象業種の対応を整理した上で、物質フロー分析との比較を行って、PRTR データの検証を行った。

###### ④環境モニタリングデータと環境中予測濃度モデル計算に基づくPRTR データの捕捉範囲の評価

排出が広範にわたる物質は環境中でも多く検出されるであろうという基本的な考え方に基づき、環境モニタリングデータから整理した環境中検出状況とPRTR 排出量データの多寡の整合性から、PRTR データによる捕捉範囲を評価した。テーマ2で一斉分析手法を用いたモニタリングから蓄積されたデータを含めた実測データを収集し、測定値点数に対する検出地点数（検出割合）を物質ごとに整理した。その検出割合とPRTR データによる排出量の多寡からPRTR 対象物質を分類し、両者の整合性から捕捉範囲を分類評価した。また、両者が整合的であった物質について、PRTR データを入力値としてモデル計算した

環境中予測濃度と実測濃度データの比較を行い、量的な評価を行った。大気中予測濃度はテーマ2において大気拡散モデル AIST-ADMER を用いて計算した結果を活用し、河川水中予測濃度は本サブテーマにおいて多媒体環境動態モデル G-CIEMS を用いて計算を行った。

## 2) 廃棄物の処理・再生利用に伴う化学物質のフロー推計手法の構築

対象業種の事業所からの廃棄物の委託処理に伴って移動する化学物質量を示す PRTR 届出移動量（廃棄物処理）のデータを、産業廃棄物の処理委託に関する行政報告データと接続し、産業廃棄物の処理フローに沿ってその後の化学物質フローを推計する手法を構築した。

### ①アンケート調査による PRTR 届出移動量（廃棄物処理）の実態把握

届出事業所へのアンケート調査により、対象化学物質を含む廃棄物の事業所内自己処理や有価物の売却の有無の実態を把握した。これにより、PRTR 届出移動量が対象業種の事業所から廃棄物の処理・再生利用への化学物質フローの主要な部分を捉えているかを確認した。また、届出移動量データでは、「廃棄物の種類」と移動先での「処理方法」が複数選択されているデータが全体の3割程度あるため、届出事業所におけるその内訳の把握有無と実際の内訳について把握した。

### ②PRTR 届出移動量データと廃棄物行政報告データの突合・接続

2つの都道府県から産業廃棄物処理実績報告データ（以下、「処理実績報告データ」という。）を入手し、これらのデータと PRTR 届出移動量データの事業所レベルでの突合を行った。PRTR 届出移動量データにおける事業所の情報および処理方法、廃棄物の種類の情報を処理実績報告データにおけるそれらの情報と突合し、両データの整合性を整理した。PRTR 届出移動量データにおいて複数の処理方法または廃棄物の種類が選択されているデータについて、アンケート調査で移動量内訳の実態が把握できた事業所のデータは突合作業においてこれを反映した。

### ③廃棄物処理へ移動した後の PRTR 対象物質のフロー推計手法の構築と適用

PRTR 届出移動量データと処理実績報告データの接続によって推計した詳細な処理パターンごとの移動量に対し、処理パターンおよび物質群ごとに各移行先（分解・消失、排ガス、排水、固形残さ物または資源化物）への分配率パラメータを設定することにより、廃棄物処理を経由した PRTR 対象物質のフローを推計する方法を構築した。これを2都道府県のデータに適用し、PRTR 対象物質の届出移動量について廃棄物処理へ移動した後の化学物質のフローを推計した。

## (2) 排出量への寄与が大きい業種における排出量推定手法の高度化

### ①下水処理施設に係る排出量の推計状況の整理と分類

PRTR 届出外排出量推計において下水処理施設に係る排出量の推計値が得られている物質と得られていない物質について、現行の届出外排出量推計方法資料の詳細をもとに、推計の精緻化と追加に向けて着目すべき点を整理した。推計に用いられているデータの特徴を物質ごとに整理するとともに、公共用水域への全排出量に占める下水処理施設に係る届出外排出量推計値の寄与を整理した。

### ②下水処理施設における実測データの収集に基づく届出外排出量推計値の検証・高度化

下水処理施設における実測データを収集し、それに基づいて現行の届出外排出量推計値の検証と高度化を行った。まず、多様な PRTR 対象物質の存在状況の把握と実測データの収集を効率的に行うため、液体クロマトグラフ-四重極飛行時間型質量分析計(LC-QToF-MS)および誘導結合プラズマ質量分析計(ICP-MS)を用いた下水試料中の PRTR 対象物質の一斉分析手法を構築した。次に、構築した分析手法を活用して下水流入水および放流水の PRTR 対象物質濃度の実測データを取得した。また、一部の施設において、下水処理プロセスの各所における試料採取と分析による詳細調査を行い、プロセス内の物質収支を解析した。得られた流入水および放流水の実測データをもとに下水処理施設への流入量および放流水への移行率を算出し、届出外排出量推計において用いられているそれらのデータを検証した。その検証結果をふまえ、本研究で得られた実測データに基づく流入量と移行率から届出外排出量に相当する値を推計し、現行の届出外排出量推計値と比較した。

### ③下水処理過程で負荷量が増加する物質の挙動の把握と排出量の推計

下水処理における前駆体からの生成も示唆されるペルフルオロ（オクタン-1-スルホン酸）（物質政

令番号 396：以下、PFOS) を対象とし、前駆体からの生成を含む下水処理過程における挙動を解析するとともに、前駆体の有無を想定した PFOS のシナリオ別排出量推計を行った。代表的な前駆体として報告されている *N*-EtFOSE を添加した人工下水、前駆体を添加しない実下水を用いた回分式生物処理実験により下水処理施設における前駆体からの PFOS 生成挙動を解析した。また、前駆体を PFOS の生成ポテンシャルと捉え、下水流入水の PFOS 生成ポテンシャル (PFOS-FP) を評価した。これらの結果をもとに、下水処理施設への PFOS 前駆体の流入と返送汚泥を介したプロセス内での循環の条件を設定した 10 のシナリオにおける下水処理施設からの PFOS 排出量を推計した。

## 5. 研究成果

### 5-1. 成果の概要

冒頭で述べた通り、PRTR 制度で得られている排出移動量データは、(a)対象業種における事業所からの届出排出移動量、(b)すそ切り以下排出量、(c)その他の届出外推計排出量に大別される。本研究(テーマ1)では、これらのうち、(a)と(b)、および(c)のうち産業廃棄物処理施設と下水処理施設からの排出量に係る部分について、届出データの正確性と捕捉範囲の評価、すそ切り以下排出量の正確性評価、廃棄物の処理・再生利用における化学物質フロー推計手法の構築、下水処理施設からの排出量に係る実測データの蓄積、流入量および移行率データの検証と精緻化およびそれに基づく排出量の推計について成果を得た。また、これらの成果を踏まえて現在の PRTR データについて留意すべき点を含めた活用方法を示した。また、環境省で継続的に実施されている届出外排出量推計の精緻化に、本研究の成果をふまえた PRTR データの正確性や捕捉範囲の向上、推計の高度化や追加を加えることで、PRTR データが対象範囲とする全体をカバーしたデータ活用、正確性や捕捉範囲の向上や推計の精緻化・高度化を可能とする知見を提示した。

以下に、各サブテーマで得られた成果の概要について述べる。

#### (1) PRTR データを活用した物質フロー・排出インベントリの把握手法の開発

##### 1) PRTR データの正確性と捕捉範囲の評価

###### ①算出方法の実態に基づく PRTR 届出データの正確性評価

国の算出マニュアルおよび OECD 技術文書の留意事項に基づく整理より、PRTR 届出排出移動量が実際の環境排出や移動をどの程度反映しているかは、取扱量に対する排出移動量の割合(以降、「排出移動割合」と呼ぶ。)、排ガス・排水・廃棄物等における対象物質の濃度変動、算出に用いる根拠データの観点から適切な算出方法やデータが用いられているかに依存すると考えられた。届出事業所へのアンケート調査は、対象とした 786 事業所の約 60%、225 物質の届出データについての回答が得られ、そのうち 50 物質については 10 事業所以上からの回答が得られた。調査で得られた届出排出移動量の算出方法の実態(図 0.1)から、各媒体への排出移動量の主要な算出方法は下記の通り整理された。大気と公共用水域については有機化合物と無機化合物で異なる傾向が見られたが、他の媒体では物質による明確な傾向は見られなかった。また、全ての媒体について業種による明確な違いは見られなかった。

- 【大気】 <有機>物質収支、排出係数、「ゼロとしている」  
<無機>主に「ゼロとしている」、一部実測と排出係数
- 【公共用水域】<有機>主に「ゼロとしている」  
<無機>主に「ゼロとしている」と実測
- 【土壌、埋立】主に「ゼロとしている」
- 【下水道】 主に「ゼロとしている」、一部排出係数
- 【廃棄物】 物質収支、排出係数、実測、「ゼロとしている」

アンケート調査結果に基づいて、適切な算出方法が用いられているかという観点から、どの程度の PRTR 届出排出量データが実態を示す情報として信頼できるかを算出方法ごとに評価した。大気排出量と



廃棄物処理について見ると、取扱量に対する届出排出移動量の割合が1%以下と極めて小さいケースで物質収支による方法が用いられているか、排出濃度の変動が大きいとか不明なケースで年1-2回の実測データに基づく排出移動量の算出が行われているために、届出データ全体の10%-15%程度が排出移動の実態から1桁程度乖離している可能性があるか、実態をどの程度反映しているかが不明であった。また、届出データ全体の1割程度は国や業界団体の算出マニュアルまたは根拠不明の排出係数を用いており、その正確性は排出係数の代表性や個別事業所への適用性に依存すると考えられた。これより、届出データにはその正確性が不十分または不明なデータが全体の20%-25%程度は含まれている可能性があることに留意してデータを利用する必要があるとともに、その正確性向上に向けては算出マニュアルにおける適切な算出方法のより明確な推奨、排出係数の点検と見直し等が必要であると考えられた。一方、その他の媒体については、一部を除いて対象物質を取り扱う工程において河川や下水道放流、土壌排出や埋立が行われていないために大部分の届出データがゼロとされており、基本的に実態を反映していると考えられた。

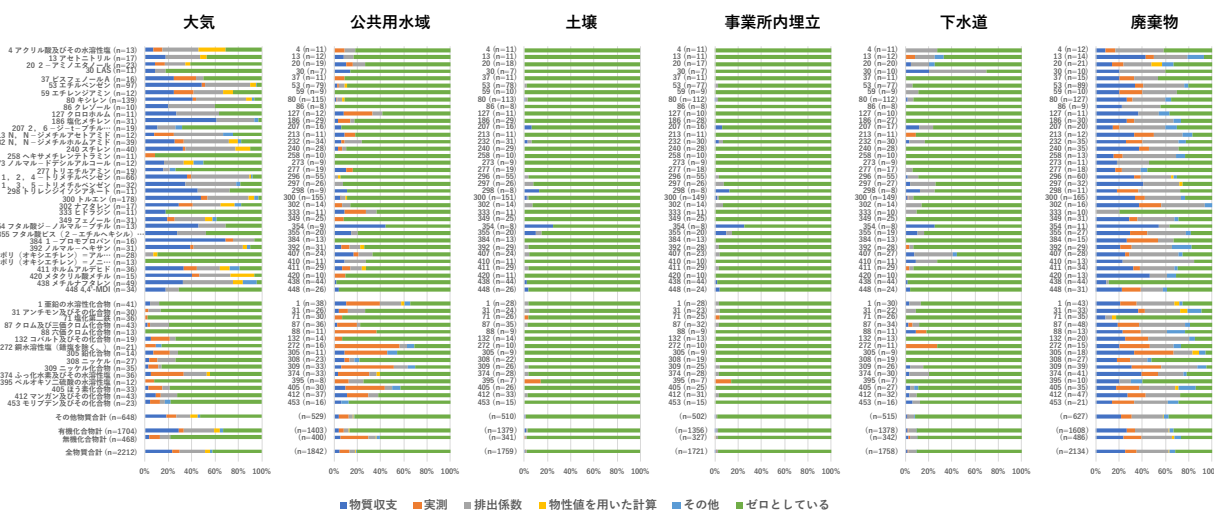


図 0.1 届出排出移動量の算出方法の内訳 (225 物質合計と 10 事業所以上の回答を得た 50 物質)

②届出データとの整合性から見たすそ切り以下排出量の評価

105 物質についてすそ切り以下排出量の推計データから推計届出排出量を計算し、実届出排出量と比較した。推計届出排出量は実届出排出量に対して 63 物質で 1/10~10 倍の範囲に収まった一方、42 物質では 1/10 未満または 10 倍以上であった (図 0.2)。すそ切り以下排出量推計において、14 の排出源のいずれかで業界団体等による全国出荷量等のデータから総排出量が推計されている物質(「ベース物質」と呼ばれる)は推計届出排出量が実届出排出量の概ね 1/10~10 倍の範囲に収まっていた。これより、総排出量推計値は概ね実態を反映しており、すそ切り以下排出量推計値も同様に概ね実態を表していると考えられた。一方、全ての排出源で事業所へのアンケート調査のみから総排出量が推計されている物質(「追加物質」と呼ばれる)は、推計届出排出量が実届出排出量よりも数桁過小である物質が多く、すそ切り以下排出量の推計による環境排出量の捕捉範囲が十分ではないことに加え、PRTR データの中で届出データとすそ切り以下推計データの整合性が確保できていないことが示された。この要因として、総排出量の推計が過小、すそ切り以下の割合の設定が過大の 2 つが考えられたが、後者では数桁の過小評価を説明することが難しいことから、前者が主要な要因である可能性が高いと考えられた。「追加物質」として推計されている物質については、資材等における含有実態をより正確に把握し、それを反映した総排出量の推計を行うことで、実態を反映したすそ切り以下排出量を推計できると考えられる。

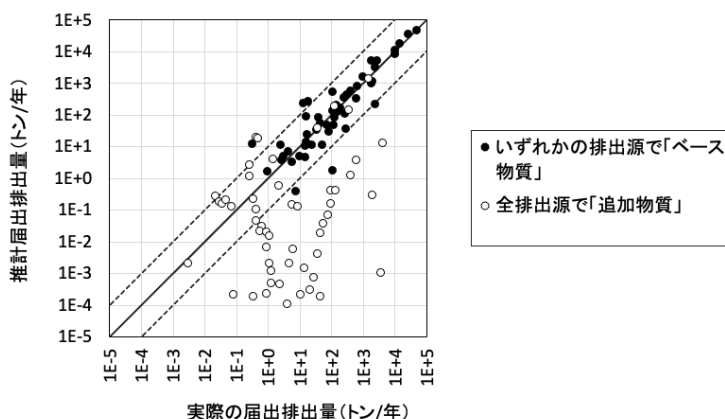


図 0.2 すそ切り以下排出量推計結果に基づく推計届出排出量と実際の届出排出量の比較

### ③産業連関表ベースのハイブリッド勘定表作成による PRTR データの検証

作成したハイブリッド勘定表で推計した一次供給量および最終消費量は、12 のうち 5 物質で概ね整合的であったが、他の物質では差が見られた。この結果より、ハイブリッド勘定表を用いた物質フロー分析が PRTR データの検証において有用な手段となり得ること、最終消費量と取扱量推計値の差が大きい物質は PRTR 届出事業者が捉えている取扱量と公的統計が集計する供給量が同一の物質フローの段階を捉えていない可能性があることが示唆された。一方、業種別の最終消費量と取扱量の推計値を比較すると(図 0.3)、いずれの物質も業者の間業種に正の相関が認められた。これより、PRTR データにおける業種ごとの相対的な寄与の大きさは実態を反映していると考えられた。

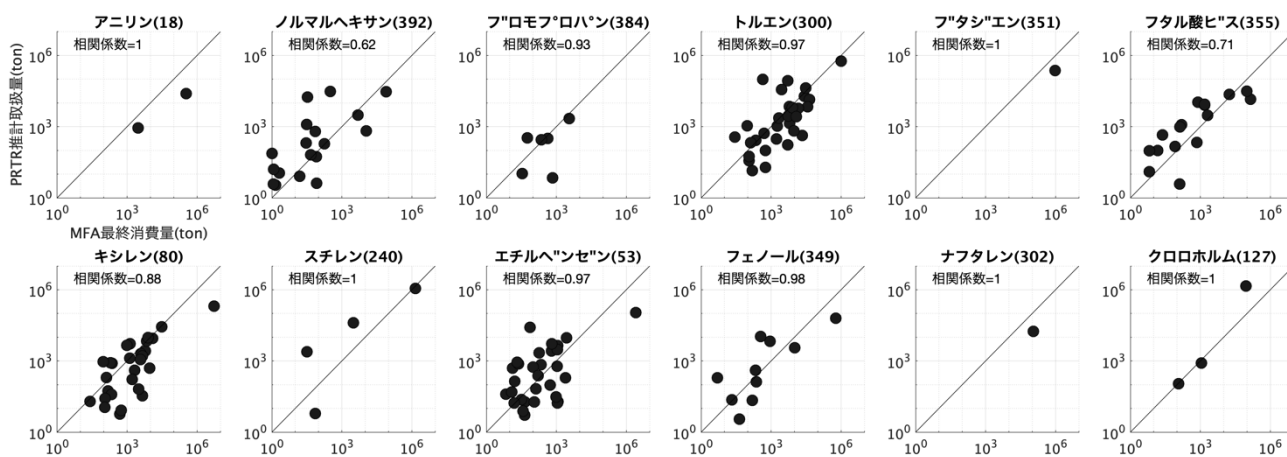


図 0.3 最終消費量と取扱量の推計値の業種別比較 (2015 年値)

### ④環境モニタリングデータと環境中予測濃度モデル計算に基づく PRTR データの捕捉範囲の評価

環境モニタリングデータに基づく検出割合は大気 331 物質、水質 303 物質について、環境中予測濃度の計算結果は大気 49 物質、水質 356 物質についてデータが得られ、これらのデータを PRTR データの評価のための基礎情報として整備した。

検出割合を整理した大気 331 物質、水質 303 物質について PRTR データの届出件数および届出外排出量の多寡で分類した(表 0.1)。ここでは例として、届出件数(排出量>ゼロ)100 件以上または届出外排出量 1 トン以上の物質を排出が広範にわたるとして整理している。大気 76 物質、水質 92 物質は、排出量がゼロであるのに対して検出割合も 10%未満と低く、PRTR データによる排出量の捕捉に大きな漏れはないと考えられた。また、排出が広範にわたると整理した物質のうち大気 58 物質、水質 31 物質は検出割合が 10%以上(うち 52 物質と 21 物質は 50%以上)と多数地点で検出されており、両者の傾向は整合的であった。これらの物質について実測データと環境中予測濃度の比較から量的な評価を試みたところ、

一部の物質は予測濃度がやや過小となり PRTR データが排出量の一部を捕捉できていない可能性が考えられたが、多くの物質は予測濃度と実測濃度が概ね一致し、PRTR データによる捕捉に大きな漏れはないと考えられた。

一方、大気 15 物質、水質 37 物質は PRTR 排出量データがゼロであるにも関わらず検出割合は 10%以上と傾向が整合していなかった。過去の排出や土壌経由の流出等に起因して検出されていると考えられる POPs や CFC、農薬も 10-20 物質程度あったが、それ以外の物質は PRTR データによる排出量の捕捉が十分でない可能性が示唆された。また、大気 9 物質、水質 34 物質は排出が広範にわたる一方で検出割合は 10%未満であり傾向が整合していなかった。これらの物質は、モニタリングの地点数や時期等が不足している可能性が考えられた。以上の結果から、環境中存在状況の的確な把握のためには、PRTR データによる排出量の十分な捕捉とともに、モニタリングを充実することも重要と考えられた。

表 0.1 PRTR 対象物質の環境中検出状況と PRTR 排出量データの多寡による分類（物質数）

		モニタリングデータ検出割合(検出地点数/測定地点数)							
		大気				水質			
		0%	0%-10%	10%-50%	50%以上	0%	0%-10%	10%-50%	50%以上
PRTRデータ	排出量ゼロ	63	13	8	7	55	37	27	10
	届出100件未満 and 届出外排出量1トン未満	48	29	49	47	27	27	26	29
	届出100件以上 or 届出外排出量1トン以上	6	3	6	52	3	31	10	21

## 2) 廃棄物の処理・再生利用に伴う化学物質のフロー推計手法の構築

### ① アンケート調査による PRTR 届出移動量（廃棄物処理）の実態把握

対象化学物質を含む廃棄物の事業所内自己処理と有価物売却（燃料利用、再資源化）のいずれについても、全物質合計で見ると「無」のケースが 9 割以上と大部分を占めた。物質ごとに見ても、一部の物質の再資源化のための有価物売却を除いて「無」のケースが概ね 9 割以上を占めた。これより、PRTR 制度の届出対象業種における事業所で発生する廃棄物等に含まれる PRTR 対象物質のフローの主要な部分は、PRTR 届出移動量の行方を追跡することで把握できると考えられた。

また、処理方法と廃棄物の種類のいずれかまたは両方が複数選択されている届出移動量データについて、有効回答の約 8 割で処理方法および廃棄物の種類別の内訳が把握されており、実際の内訳についても回答が得られた。廃棄物の種類によっては複数の処理方法が選択されていても実際はほぼ単一の処理方法とみなせると考えられた一方で、処理方法ごとの移動量の内訳は事業所や物質によって様々である廃棄物の種類もあった。これより、届出移動量の内訳は個別に把握する必要があるが、調査結果から多くの事業所においてその内訳は把握されていることから、届出様式の改訂等によってその内訳を届出において把握することは可能と考えられた。

### ② PRTR 届出移動量データと廃棄物行政報告データの突合・接続

事業所情報の突合については、突合対象とした 491 の PRTR 届出事業所のうち 488 事業所（99.3%）が処理実績報告データと整合した。ただし、処理実績報告データでは排出事業所の詳細情報が省略されているために機械的な作業では突合が難しいデータもあり、排出事業所情報の確度が高いマニフェストデータを補助的に利用しながら PRTR 届出移動量データと処理実績報告データを接続することが有効であることがわかった。処理方法と廃棄物の種類の情報については、突合対象とした 1634 件の PRTR 届出移動量データのうち 1192 件（73%）が処理実績報告データと整合した。一方、442 件（27%）の届出移動量データは処理方法と廃棄物の種類のいずれかまたは両方が処理実績報告データと整合しなかった。この不整合の要因として、情報の作成方法や担当部署が異なることなどによる PRTR 届出と廃棄物行政報告での不統一や誤り、届出や報告漏れ、各届出や報告様式における選択肢の違いなどが可能性として考えられた。廃棄物処理における化学物質管理のための基盤情報として PRTR データの有用性を向上するためには、PRTR 届出様式やマニュアルの見直しなどによって廃棄物行政報告データとの整合性確保を図ることが必要であると考えられた。

以上の結果から、PRTR 届出移動量データにおける 7 つの処理方法の選択肢に対して処理実績報告デー

タから整理された 28 の詳細な処理パターンを特定し、PRTR 届出移動量データと処理実績報告データを接続して、廃棄物の種類および処理パターンごとの届出移動量を物質ごとに推計した。2 都道府県、全物質合計の結果 (図 0.4) からは、無機化合物の移動先は汚泥の最終処分および廃酸の中和が全体の 9 割以上、有機化合物は汚泥、廃油、廃アルカリの焼却、焙焼が全体の約 8 割と大きな割合を占めていることが示された。また、有機化合物については PRTR 届出移動量データにおける選択肢で「その他」に該当する混合エマルジョン化、蒸留、混合などが一定の割合を占めていることが示された。このように、PRTR 届出移動量データと廃棄物行政報告データの接続によって、現行の PRTR 届出移動量データからは把握できない詳細な処理パターンごとの化学物質フローを把握できることが示された。

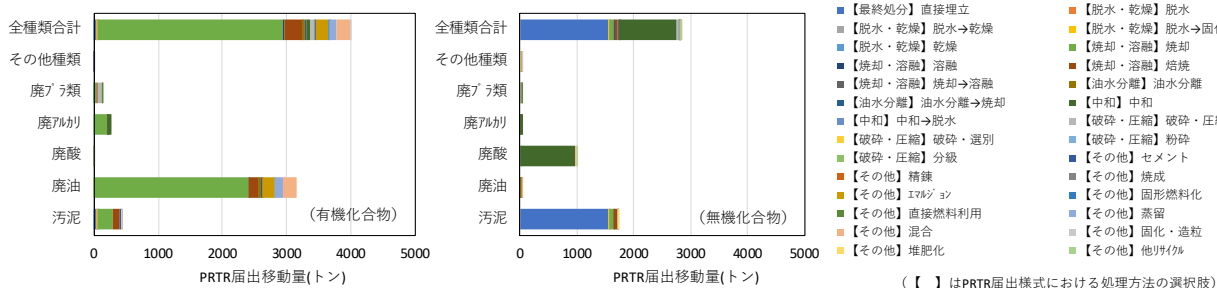


図 0.4 処理パターン別の PRTR 届出移動量の推計結果 (2 都道府県、全物質合計)

③廃棄物処理へ移動した後の PRTR 対象物質のフロー推計手法の構築

2 都道府県、約 150 物質のデータについて、推計した処理パターンごとの移動量に対して設定した分配率パラメータを乗じて PRTR 対象物質のフローを推計した結果 (図 0.5)、産業廃棄物処理を通じて、有機化合物は主に分解・消失と資源化 (生成物)、無機化合物は主に最終処分と排水へ移行していると推計された。廃棄物処理への有機化合物の移動は主に汚泥、廃油、廃アルカリ、廃プラスチック類が占めているが、このうち汚泥と廃アルカリに含まれるものは主に分解・消失で一部は排水と最終処分、廃油と廃プラスチック類に含まれるものは主に分解・消失、最終処分および資源化 (生成物) へ移行していると推計された。無機化合物については汚泥と廃酸の移動に伴う廃棄物処理への移動が主要であるが、処理を通じて大部分がそれぞれ最終処分、排水へ移行していると推計された。PRTR 対象物質全体で見ると、廃棄物処理へ移動した後の行方は分解・消失、排水、最終処分、資源化が主要であり、特に排水と最終処分、資源化についてはその後の管理における PRTR 対象物質の挙動を把握しておくことが重要と考えられる。物質ごとにも同様の推計を行っており、これを参照して廃棄物処理へ移動した後の PRTR 対象物質の管理において特に注視すべき物質と処理パターンの組合せを把握することができる。

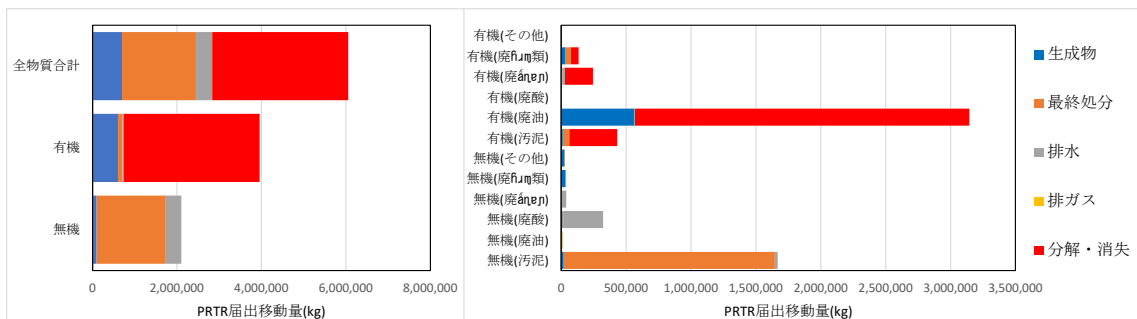


図 0.5 廃棄物処理を通じた PRTR 対象物質の移行先の推計結果 (2 都道府県、約 150 物質合計)

(2) 排出量への寄与が大きい業種における排出量推定手法の高度化

①下水処理施設に係る排出量の推計状況の整理と分類

届出外排出量推計において下水処理施設に係る排出量の推計値が得られている 161 物質のうち、120

物質は PRTR データにおける公共用水域への全排出量に占める下水処理施設の寄与が 10%以上であり、下水処理施設に係る推計排出量の精度は PRTR データにおける排出量全体の正確性に大きく寄与する物質が多く存在すると考えられた。届出外排出量推計値が得られている 161 物質のうち 135 物質は、流入量の設定において上流事業者からの流入以外の流入源が考慮されておらず、施設への流入実態をふまえて流入量データの妥当性を検証することが必要であると考えられた。また、放流水への移行率は、161 物質のうち 29 物質は実測データ、132 物質は物性値に基づく簡易推計式等により設定されており、それぞれについてその妥当性を検証することが必要と考えられた。一方、届出外排出量推計値が得られていない 270 物質の 8 割にあたる 216 物質は、流入量が得られていないために推計が行われておらず、推計の追加には下水流入水の実測データの充実によって流入量を把握することが必要であると考えられた。

## ②下水処理施設における実測データの収集に基づく届出外排出量推計値の検証・高度化

91 の PRTR 対象有機化合物の情報を収録したターゲットスクリーニング DB を構築し、LC-QToF-MS による一斉分析が可能な手法を開発した。これに、ICP-MS の一斉分析による定量が可能な 17 の無機化合物を加え、108 物質のスクリーニング、83 物質の定量分析が可能な下水試料の一斉分析手法を構築した。これを用いてのべ 25 の下水処理施設における試料採取と分析を行い、分析対象とした PRTR 対象物質の流入水および放流水の実測データを蓄積した。

定量データが比較的多く得られた 32 物質について得られた実測値から全国の処理施設への流入量を推計し、現行の届出外排出量推計で用いられている流入量と比較した。本研究の実測値に基づく推計値の方が現行の届出外排出量推計で用いられている値よりも 1 桁程度大きい傾向があり、現行の推計の流入量設定値は過小評価されている可能性が示された。多くの物質の流入量が他業種からの下水道への届出移動量とすそ切り以下の推計値により設定されており、その他の流入源が考慮されていないことが要因である可能性が考えられた。一方、実測値に基づく流入量が現行の推計の流入量設定値を大きく下回った物質もあり、その要因として上流事業者からの流入（届出移動量）以外の流入量が過大である可能性に加え、排出から下水処理施設への流入までの間の減少の可能性が指摘された。これより、現行の推計における届出移動量や家庭排水等のデータに基づく流入量の設定は流入量を過小または過大評価しうると考えられ、施設の流入水の実測データの蓄積によって流入量データの検証、見直しを行うことが、届出外排出量推計の精緻化につながると考えられた。

また、流入水と放流水の実測データから放流水への移行率を求め、届出外排出量推計における設定値と比較したところ、物性値と簡易推計式に基づく設定値は本研究の実測に基づく値と 60%以上の乖離があるものも見られ、実測データに基づく設定により移行率の精緻化が見込めると考えられた。一方、届出外排出量推計において実測データに基づいて設定されている移行率についても、本研究の実測データに基づく移行率と乖離が見られる物質もあった。これは、参照している実測データの平均化等のデータ処理が適切でないことが要因であることがわかり、適切な処理をしたところ、本研究の実測データに基づく移行率との差が低減された。また、2 物質（In、PFOS）については本研究のデータから新たに移行率を設定した。

さらに、4 施設における詳細調査結果から、PRTR 対象物質のプロセス内物質収支を推定したところ、返送汚泥を介して処理施設内で循環、蓄積されやすい物質とされにくい物質があることが明らかとなった（図 0.6）。前者は下水処理において高い除去率が得られる一方で、返送汚泥に含まれて生物反応槽へ再流入し、その一部がまた放流水に移行することで施設からの排出量を増加させる。流入濃度レベルによっては下水処理施設からの排出量が流入量を見かけ上で上回る（放流水への移行率が 100%を超える）こともあり、施設内での循環を考慮した移行率設定が必要であると考えられた。また、それらの物質は移行率の施設間変動係数も大きいことから、移行率を一律に設定した推計では推計の精緻化に限界があると考えられた。推計の高度化のためには、下水処理施設における流入・排出の実測データ充実に加え、処理過程別の挙動をふまえた物質収支データを蓄積し、施設による物質挙動の違いをふまえて移行率の設定を行うことが有効であると考えられた。



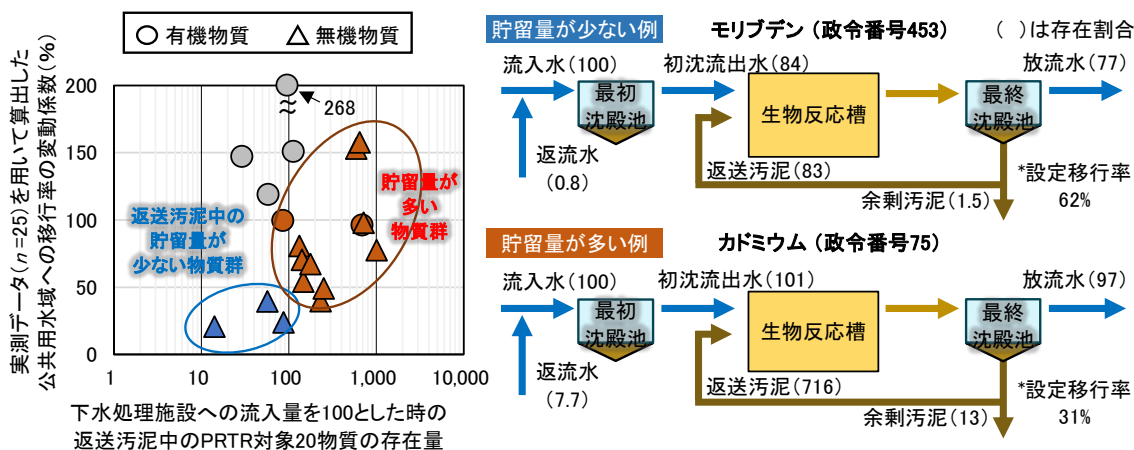


図 0.6 返送汚泥中存在量と移行率の変動（左）および下水処理過程における物質収支の例（右）

上記で得られた実測データに基づく流入量と移行率を用いて届出外排出量に相当する値を推計した（図 0.7）。19 物質については上記の検証結果をふまえて現行の推計から精緻化した流入量や移行率データに基づく推計結果を示した。また、3 物質については、本研究の実測データに基づいて新たに移行率を算出することで、排出量推計値が得られた。また、本研究で開発した分析手法や実測調査に基づいて提示した知見を活用することで、他の物質についても同様に推計の精緻化または追加を行うことが可能であると考えられた。

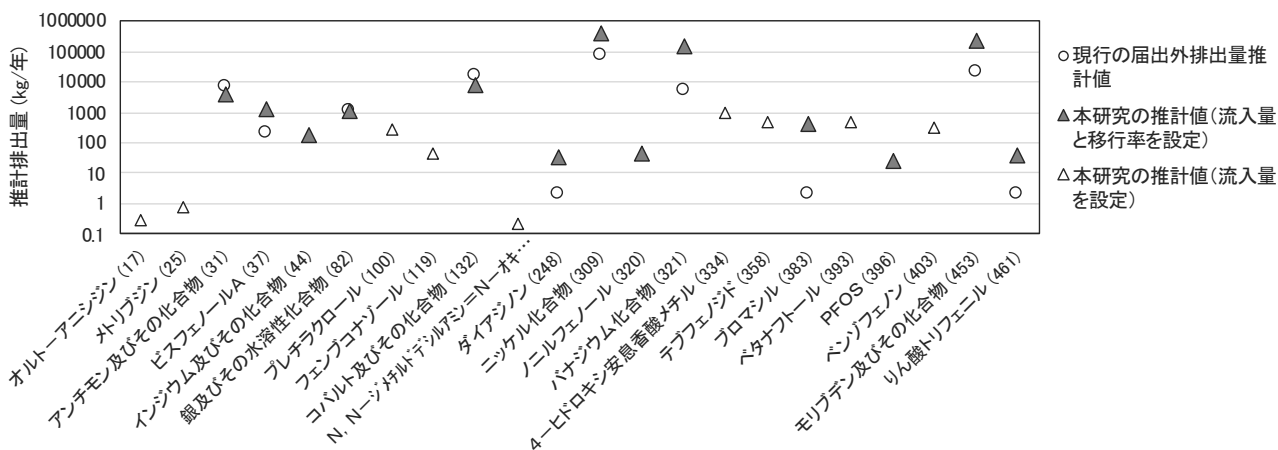


図 0.7 現行の届出外排出量推計値と本研究の結果に基づいて推計した排出量

③ 下水処理過程で負荷量が増加する物質の挙動の把握と排出量の推計

*N*-EtFOSE を添加した人工下水を用いた回分式生物処理実験において、*N*-EtFOSE および PFOS 濃度は時間の経過に伴って 13 時間までそれぞれ減少、増加し（図 0.8 左）、*N*-EtFOSE を前駆体とした PFOS の生成が認められた。Suspect Screening 解析による探索の結果、*N*-EtFOSE からの他の生成体として *N*-EtFOSAA、*N*-EtFOSA、FOSAA、FOSA が検出された（図 0.8 右）。*N*-EtFOSE と PFOS 以外の 4 種の間中生成体はほぼ懸濁態として存在しており、これらの物質は下水処理過程で返送汚泥を介して生物処理プロセスを循環していると考えられた。一方、PFOS の懸濁態存在率は 82.8%~90.2%であり、PFOS は一定の割合で処理水中に存在し、放流水へ排出されることが考えられた。また、実下水を用いた回分式生物処理実験における実験前後の PFOS 濃度および形態別存在比から、放流水へのみかけの移行率はそれぞれ 112%と 369%と計算された。実施設における流入水および放流水の実測結果から、PFOS の公共用水域への移行率は施設間の違いが大きく、移行率が 100%を超えるケースもみられたが、これは前駆体からの生成が影響

していたためであると考えられた。

PFOS-FP の評価について、流入下水では PFOS 濃度に対する PFOS-FP 濃度は  $2.2 \pm 1.7$  であり、PFOS-FP は PFOS の 0.5~4 倍程度の量が下水処理施設に流入していると考えられた。一方、放流水では、PFOS-FP/PFOS 比は  $0.14 \pm 0.07$  であった。PFOS-FP は放流水中にはほぼ残留していないことを示しており、前駆体のほとんどが放流水に移行せずに返送汚泥中に残留しやすいという前述の傾向を説明する結果が得られた。

本研究の実測調査結果を用いて現行の届出外排出量推計に相当する方法で推計した排出量と比較すると、10 のシナリオのうち前駆体の流入をゼロまたは生成ポテンシャルとして PFOS 流入量の 1/10 程度、返送汚泥中の PFOS 貯留量をゼロまたは流入量の 29%としたシナリオの推計排出量がほぼ同程度の値を示した。これより、流入量と移行率から排出量を推計する現行の方法では、下水処理施設からの PFOS 排出量を適切に評価できない可能性が示された。前駆体の流入量と返送汚泥への貯留を考慮するか否かで推計排出量は 1~2 桁異なりうることを示し、前駆体の流入と PFOS の生成、返送汚泥への貯留を考慮した排出量の推計が必要であると考えられた。

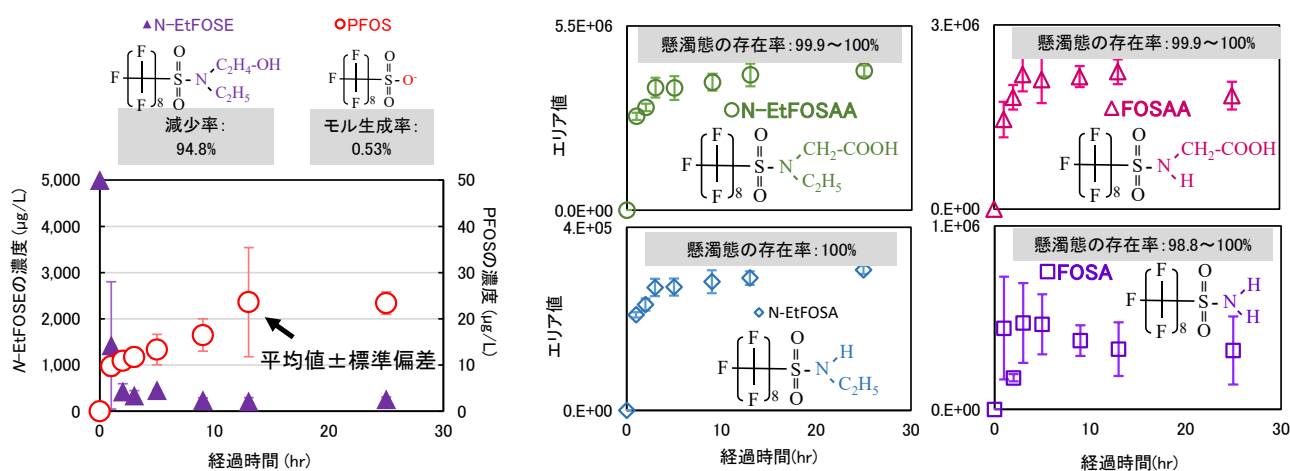


図 0.8 前駆体 *N*-EtFOSE を添加した回分式生物処理実験における前駆体と PFOS の濃度変化

## 5-2. 環境政策等への貢献

### <行政等が既に活用した成果>

届出データの算出方法実態のアンケート調査結果は環境省担当課へ随時提供し、PRTR 排出量等算出マニュアルの改訂を含む届出データの正確性向上の検討やヒアリング調査設計において参考とされた。また、研究代表者は、今後の化管法見直しに向けた課題整理等に関する複数の検討委員会に委員として参画してきており、本研究の成果全体をふまえた助言や情報提供を行うことで、化管法の制度および対象物質選定の次回見直しに向けたロードマップ作成、対象物質選定のための排出係数作成の方針策定に貢献した。さらに、2022年2月に環境省が開催した化学物質アドバイザー制度に関する講習・意見交換会において本研究の成果を紹介し、届出データの適切な算出方法や PRTR データの「質」についての化学物質アドバイザーの知識向上に貢献した。このことは、答申で課題として挙げられている化学物質アドバイザーの活用による適切な届出の励行の促進につながるものである。

### <行政等が活用することが見込まれる成果>

本研究の成果は、環境省において作成された次回化管法見直しに向けたロードマップに沿って継続的に行われる作業のベースとして参照できるものであり、PRTR データの正確性や捕捉範囲の向上、PRTR データの適切な理解のもとでのデータ活用促進に大きく貢献することが見込まれる。化管法見直しの対象物質選定における曝露量根拠の製造輸入数量ベースから排出量ベースへの変更や化審法リスク評価等における PRTR データの活用などを背景とし、PRTR データの正確性や捕捉範囲向上へのニーズはより高ま

ると考えられることから、その意義は大きい。

具体的には、サブテーマ1で示した届出データの正確性の評価結果は、物質や算出方法ごとの正確性の評価結果から、国や業種別の算出マニュアルや排出係数において優先的に見直しを実施すべきケースを示している。モニタリングデータと環境中予測濃度モデル計算を用いたPRTRデータの捕捉範囲の評価は、排出量の捕捉が不十分と考えられるケースを提示している。これらの結果を参照することで、届出データおよび届出外排出量データの正確性と捕捉範囲の向上に向けた効率的な検討が可能になるものと考えられる。また、PRTRデータとモニタリングデータの比較から、環境中存在状況の的確な把握のためにモニタリングデータが不足しているケースも示しており、今後の効率的なモニタリング計画策定にも貢献するものと考えられる。

サブテーマ2では、現行の下水処理施設に係る届出外排出量推計における流入量と移行率について、実測データに基づく検証と精緻化やデータ追加を行い、それに基づく排出量の推計結果を示した。その中で、下水処理施設の流入水および放流水の実測に基づく推計の必要性、施設内での循環、蓄積や前駆体からの生成を考慮した推計の必要性とその方法を示した。また、ターゲットスクリーニング分析の構築により、実測データを効率的に蓄積する手法を提示した。これらの成果は、届出外排出量推計の下水処理施設に係る排出量推計の高度化に直結するものであり、その実現への貢献が見込まれる。

サブテーマ1の廃棄物の処理・再生利用における化学物質のフロー推計手法の構築は、現在実態が明らかになっていない廃棄物の処理や再生利用における化学物質のフローやその先の環境排出を明らかにすることにつながる。廃棄物処理への化学物質の移動量はPRTRデータで見ても届出排出移動量の約6割を占め、その量はPRTR制度開始以降ほぼ横ばいであることから、移動量の管理は政策的にも重要とされており、本研究の成果はその検討に貢献する。また、廃棄物の処理・再生利用における化学物質挙動の把握は化審法リスク評価においても必要とされており、本研究の成果はこの政策ニーズに対しても貢献が見込まれる。また、これまでの成果でPRTR届出データと廃棄物行政報告データの整合性を明らかにしたことは、行政情報間の整合性確保と有用性向上に向けた課題を提示し、化学物質と廃棄物の統合的な管理のための基礎情報としての有用性を高めることに貢献できる。

以上により、我が国の化学物質管理のための環境情報インフラとしてのPRTR制度およびそのデータの有用性向上への貢献が期待される。

### 5-3. 研究目標の達成状況

3. に掲げた全体目標に対し、本研究では以下の通り対応する成果が得られており、設定した目標を十分に達成できたと考えている。

サブテーマ1においては、届出事業所へのアンケート調査から225物質についてのPRTR届出データの算出方法の実態を把握し、これに基づいてどの程度の届出データが実態を反映した情報として信頼できるかという観点でその正確性を評価した結果を得た。また、届出データとの整合性の観点からすそ切り以下排出量の正確性を評価し、105物質についての評価結果が得られた。これらの成果については、いずれも国内の学術雑誌において査読付論文として採択された。なお、届出事業所へのアンケート調査の一部は、推進費S-17-4における調査と共同で実施しており、効率的に調査を実施した。また、12物質について産業連関表をベースに作成したハイブリッド勘定表を用いたPRTRデータの検証を行い、物質フロー分析がPRTRデータの検証において有用な手段となり得ることを示した。

約300物質について、テーマ2で得られた成果を含めた環境モニタリングデータに基づく環境中検出状況の整理を行い、それらの物質についてPRTRデータの排出量との整合性からPRTRデータによる捕捉範囲を評価した結果を得た。また、約350物質についてG-CIEMSによる河川水中予測濃度の計算結果を整備するとともに、約50物質についてテーマ2で得られたAIST-ADMERによる大気中予測濃度の計算結果を整理し、実測データとの比較によってPRTRデータの捕捉範囲の量的な評価を行った。ここではテーマ2の成果を共有してPRTRデータの評価に有効活用しており、効率的に研究を実施するとともに、この成果についてはテーマ2と連名での学会発表を予定している。また、PRTR対象物質の環境中存在状況を的確に把握するためには、PRTRデータの正確性や捕捉範囲の向上とともに、環境モニタリングの充実



を行うことも必要であることを示し、テーマ2において開発された一斉分析手法や効率的なモニタリング手法の重要性も併せて提示できた。

サブテーマ2では、PRTRデータおよびその算出根拠の整理から下水処理施設への流入量情報が十分ではないこと、放流水への移行率の設定情報の妥当性の検証が必要であることを指摘した。109物質を対象とした一斉分析手法を構築し、下水処理施設における流入・排出実態の実測データを蓄積してその実態を明らかにした。この成果については、国内の学術雑誌において査読付論文として発表済みである。この手法を用い、25の下水処理施設における流入水および放流水の実測データ取得、4施設における下水処理プロセス内の詳細調査を実施し、流入水では50物質、放流水では64物質に関する存在実態データを得た。その実測データに基づいて下水処理施設への流入量と放流水への移行率を求め、現行の届出外排出量推計におけるそれらのデータを検証した。その結果をふまえて、得られた実測データから求めた流入量と移行率に基づき、20物質についての改善された推計排出量と現行の推計において推計値が得られていない3物質についての推計排出量を示すとともに、本研究で提示した分析手法や実測調査に基づく知見が他の物質の推計を高度化する上で有効と考えられることを示した。さらに、下水処理施設で非意図的に排出量が増加する可能性のあるPFOSを対象に、回分式生物処理実験および実施施設における実測調査により、下水処理プロセスにおける前駆体からの生成と活性汚泥を介した循環の挙動を明らかにした。これに基づいて前駆体からの生成を考慮したいくつかのシナリオについて排出量推計を行い、現行の届出外排出量推計における流入量と移行率に基づく推計ではPFOS排出量を過小評価する可能性を示した。

以上の成果に基づき、現在のPRTR制度において収集、推計、公表されている届出データや届出外推計データが実際の環境排出量や移動量をどの程度表しているのか、また十分に捕捉しているのかをデータの種類ごとに提示し、環境排出量や物質フローの把握においてデータを活用する上でその質に留意すべきであることを示すとともに、正確性や捕捉範囲の向上や精緻化に向けた課題と方策を提示した。

また、サブテーマ1においては、PRTR届出移動量データと廃棄物行政報告データの接続と廃棄物処理における分配率パラメータの設定によって、廃棄物処理への移動とその後のPRTR対象物質のフローを推計する手法を構築した。これを用いて2つの都道府県のデータを用いた推計を行い、約150物質について産業廃棄物処理を通じた主要な移行先を明らかにした。これにより、廃棄物の処理・再生利用における化学物質フローの把握におけるPRTRデータの新たな活用方法を提示した。

## 6. 研究成果の発表状況

### 6-1. 査読付き論文

<件数>

3件

<主な査読付き論文>

- 1) 小口正弘、大久保伸、谷川昇、中村智：環境科学会誌、採択（2022）  
算出方法の実態から見たPRTR届出排出移動量データの信頼性
- 2) 水谷聡、山崎耕平、小口正弘、早水輝好：環境科学会誌、35(3)、1-10（2022）  
PRTR制度におけるすそ切り以下排出量と届出排出量の整合性
- 3) 高沢麻里、鈴木裕識、小森行也、對馬育夫、山下洋正、小口正弘：環境科学会誌、33(5)、114-125（2020）  
液体クロマトグラフ-精密質量計を用いたPRTR物質の簡易スクリーニング手法の構築と下水試料への適用

### 6-2. 知的財産権

特に記載すべき事項はない。

## 6-3. その他発表件数

査読付き論文に準ずる成果発表	0 件
その他誌上発表（査読なし）	4 件
口頭発表（学会等）	26 件
「国民との科学・技術対話」の実施	11 件
マスコミ等への公表・報道等	0 件
本研究に関連する受賞	3 件

## 7. 国際共同研究等の状況

特に記載すべき事項はない。

## 8. 研究者略歴

## 研究代表者

小口 正弘

横浜国立大学大学院工学研究科博士課程前期修了、博士（工学）、現在、国立研究開発法人国立環境研究所 資源循環領域 資源循環社会システム研究室 主幹研究員

## 研究分担者

## 1) 山田 正人

京都大学大学院工学研究科博士後期課程修了、博士（工学）、現在、国立研究開発法人国立環境研究所 資源循環領域 廃棄物処理処分技術研究室 室長

## 2) 南齋 規介

京都大学大学院エネルギー科学研究科博士後期課程修了、博士（エネルギー科学）、現在、国立研究開発法人国立環境研究所 資源循環領域 国際資源持続性研究室 室長

## 3) 今泉 圭隆

東京大学大学院工学系研究科博士後期課程修了、博士（工学）、現在、国立研究開発法人国立環境研究所 環境リスク・健康領域 リスク管理戦略研究室 主幹研究員

## 4) 對馬 育夫

北海道大学大学院工学研究科博士後期課程修了、博士（工学）、現在、国立研究開発法人土木研究所 水環境研究グループ（水質）主任研究員

## 5) 平山 孝浩

東京工業大学大学院理工学研究科修士課程修了、修士（工学）、現在、国立研究開発法人土木研究所 水環境研究グループ（水質）主任研究員

## 6) 高沢 麻里（令和元年8月～令和4年3月）

中部大学大学院応用生物学研究科博士後期課程修了、博士（応用生物学）、現在、国立研究開発法人土木研究所 水環境研究グループ（水質）専門研究員

## 7) 鈴木 裕識

京都大学大学院地球環境学堂博士後期課程修了、博士（地球環境学）、現在、国立大学法人東海国立大学機構岐阜大学工学部社会基盤工学科 准教授

## 8) 小森 行也（令和元年4月～令和3年3月）

日本大学理工学部工業化学科卒業、学士（工学）、国立研究開発法人土木研究所 水環境研究グループ（水質）総括主任研究員、現在、国立研究開発法人土木研究所 水環境研究グループ（水質）特任研究員

## II. 成果の詳細

### II-1 PRTRデータを活用した物質フロー・排出インベントリの把握手法の開発

国立研究開発法人国立環境研究所

資源循環領域	資源循環社会システム研究室	小口 正弘
資源循環領域	廃棄物処理処分技術研究室	山田 正人
資源循環領域	国際資源持続性研究室	南齋 規介
環境リスク・健康領域	リスク管理戦略研究室	今泉 圭隆

<研究協力者>

国立研究開発法人国立環境研究所

資源循環領域	大久保 伸
資源循環領域	谷川 昇

大阪市立大学

大学院工学研究科都市系専攻	水谷 聡
大学院工学研究科都市系専攻	山崎 耕平

富山県立大学

工学部環境工学科	佐伯 孝
----------	------

#### [要旨]

本サブテーマでは、化学物質管理のための基盤情報である PRTR データの有用性向上のため、環境排出・移動量としての PRTR データの正確性と捕捉範囲の評価、廃棄物の処理・再生利用に伴う化学物質のフロー推計手法の構築を行った。225 物質について得られた PRTR 届出データの算出方法の実態からどの程度の届出データが実態を反映した情報として信頼できるかを評価し、届出データのうち大気と廃棄物処理は 20%-25%程度、公共用水域と下水道は 5%-10%程度のデータは必ずしも算出方法が適切とは言えず、実態と乖離している可能性があることを示した。届出データとの整合性の観点からすそ切り以下排出量の正確性を約 100 物質について評価し、約 60 物質は推計値が実態を概ね反映していると考えられた一方で、主に事業所へのアンケート調査のみによって推計されている約 40 物質は推計値が実際の排出量よりも過小になっていると考えられることを示した。産業連関表をベースとしたハイブリッド勘定表の作成に基づいて 12 物質の部門別需要量を推計し、PRTR データと比較検証した結果、PRTR データにおける業種ごとの相対的な寄与の大きさは実態を反映していると考えられること、生産・供給という統計的に捕捉される数値を参照した物質フロー分析による PRTR データの検証が有効と考えられることを示した。環境モニタリングデータに基づく環境中検出状況と PRTR データの排出量、実測データとモデル計算による環境中予測濃度の整合性から、約 300 物質について PRTR データによる環境排出量の捕捉が十分または不十分と考えられる物質を分類評価した結果を示した。届出移動量データと廃棄物行政報告データとの突合を行い、両データ間で事業所情報はほぼ整合、廃棄物の種類と処理方法の情報は 7 割強が整合することを示した。一方で、3 割弱の届出移動量データはその廃棄物の種類と処理方法の情報が廃棄物行政報告データと整合せず、届出様式等における選択肢の統一や適切な項目選択へ誘導するマニュアル等の改訂の必要性があることを示した。また、整合したデータを接続し、処理方法ごとの分配率パラメータを設定することで、廃棄物の処理・再生利用への化学物質の流入とその後のフローを推計する手法を構築した。これを 2 都道府県のデータに適用して約 150 物質の推計を行い、廃棄物の処理・再生利用を通じて有機化合物は主に分解・消失と資源化、無機化合物は主に最終処分と排水へ移行していると推計した。

## 1. 研究開発目的

本サブテーマでは、化学物質管理のための基盤情報である PRTR データの有用性向上のため、環境排出・移動量としての PRTR データの評価、廃棄物の処理・再生利用に伴う化学物質のフロー推計手法の構築を行う。前者については、PRTR データが環境排出・移動量の実態を反映した情報としてどの程度信頼できるか（正確性）、PRTR データが排出量を十分捕捉しているか（捕捉範囲）の2つの観点で PRTR データを評価する。後者については、届出排出移動量の約6割を占める廃棄物処理への移動量について、その実態を把握するとともに、廃棄物行政報告データとの接続によって廃棄物の処理・再生利用への化学物質流入とその先の物質フローを推計する手法を構築する。

## 2. 研究目標

PRTR データの届出事業所情報や算出方法等の実態把握、産業連関分析や環境挙動モデル推計を用いたケーススタディを行い、これらに基づいて数十から200程度の物質について環境排出量と物質フロー全体における PRTR データの捕捉範囲と正確性を業種、排出源、物質群ごとに評価、整理する。PRTR 届出移動量データと廃棄物統計・行政情報の接続による廃棄物の処理・再生利用における化学物質フローの推計を行うとともに、その手法を提示する。

## 3. 研究開発内容

### 3-1 PRTR データの正確性と捕捉範囲の評価

本研究では、算出方法の実態に基づく届出データの評価、届出データとの整合性から見たすそ切り以下事業者に係る推計排出量（以下、「すそ切り以下排出量」という。）の評価、産業連関表に PRTR 対象物質のフローを記述したハイブリッド勘定表の作成による PRTR データの検証を行った。また、テーマ2の成果も有効に活用し、環境モニタリングデータと PRTR データの傾向の整合性およびモデル計算による環境中予測濃度とモニタリングデータの比較に基づく評価を行った。

#### 3.1.1 算出方法の実態に基づく PRTR 届出データの正確性評価

PRTR 届出排出移動量は「PRTR 排出量等算出マニュアル」<sup>1)</sup>（以下、「国の算出マニュアル」と呼ぶ。）に示された物質収支、実測、排出係数、物性値を用いた計算、その他適切と考えられる方法のいずれかまたは組合せにより算出されている。個別の事業所の届出排出移動量はあくまで推計値であり、実際の環境排出や移動をどの程度反映しているかは用いられる算出方法と算出に用いる根拠データに依存する。本研究では、国の算出マニュアルや OECD の技術文書<sup>2)</sup>で示されている算出方法の選択にあたっての留意事項と考え方をふまえて、算出方法の適用性と算出される届出排出移動量が実態と乖離する可能性があるケースを算出方法ごとに整理した。

次に、PRTR 届出事業所を対象としたアンケート調査を行い、PRTR 届出データの算出方法の実態を把握した。アンケート調査は担当部署の協力が得られた4つの地方自治体（都道府県）において、PRTR データの分析から整理した届出排出移動量全体に対する寄与が大きい主要10業種（化学工業、パルプ・紙・紙加工品製造業、医薬品製造業、プラスチック製品製造業、ゴム製品製造業、鉄鋼業、非鉄金属製造業、金属製品製造業、電気機械器具製造業、輸送用機械器具製造業）の777の PRTR 届出事業所を対象とし、物質ごとの年間取扱量と届出排出移動量の算出方法およびその詳細を質問した。また、777事業所に加え、2020年8-9月に9事業所を対象として同じ内容を含むヒアリング調査を行っており、結果及び考察ではこの9事業所も含めた調査結果を示している。

この調査で把握した PRTR 届出データの算出方法や根拠データ等の実態を、上記で行った整理と比較し、用いられている算出方法が適切かどうかという観点から、どの程度の PRTR 届出データが環境排出や移動の実態を示す情報として信頼できるかを評価した。

#### 3.1.2 届出データとの整合性から見たすそ切り以下排出量の評価

PRTR 制度では、届出対象業種のうち常用雇用者数21人未満の事業者、事業所の年間取扱量1トン未

満（特定第一種指定化学物質は0.5トン未満）の化学物質の排出量は、すそ切り以下排出量として国が推計、公表している。すそ切り以下排出量は(1.1)式で示すように対象業種からの総排出量（届出対象・対象外事業所からの排出量の合計）にすそ切り以下の割合を乗じて推計されている<sup>3)</sup>。

$$\text{すそ切り以下排出量} = \text{総排出量} \times \text{すそ切り以下の割合} \quad (1.1)$$

総排出量は業界団体等による全国出荷量等のデータや事業所へのアンケート調査に基づく推計値、すそ切り以下の割合は経済センサス等の統計データや事業者の取扱量等の調査データに基づく推計値が用いられており、いずれも推計値である。(1.2)式のように総排出量の推計値からすそ切り以下排出量の推計値を差し引くと、届出排出量に相当する値を得ることができる（以下、この値を「推計届出排出量」という）。この値は実際の届出排出量とは独立に推計される値であるから、両者を比較することで推計値を検証することができる。そこで、物質ごとに推計届出排出量の算出を行い、実際の届出排出量と比較することで、すそ切り以下推計排出量が実際のすそ切り以下事業者からの排出量をどの程度反映しているかを評価した。

$$\text{推計届出排出量} = \text{総排出量} \times (1 - \text{すそ切り以下の割合}) \quad (1.2)$$

### 3.1.3 産業連関表ベースのハイブリッド勘定表作成による PRTR データの検証

PRTR 対象物質のフローデータを産業連関表上に記述したハイブリッド勘定表を作成し、これを用いた物質フロー分析を行って、対象物質の国内一次供給量と製品として使用される最終消費量を部門ごとに推計した。対象年次は2015年とし、12物質（現行制度の化管法施行令別表1（第一種指定化学物質）の号番号18、53、80、127、240、300、302、349、351、355、384、392）をケーススタディの対象とした。ハイブリッド勘定表は、PRTR データを使用せず、各種統計<sup>4-6)</sup>や文献資料<sup>7-9)</sup>の公表資料のみに基づいて作成した。物質フローの過程として対象物質の生産量、輸入量、輸出量、用途別需要量、他業種への移動量に着目し、公表資料から作成した値を産業連関表の部門分類に割り付けた。物質単体あるいは製品中に含有されて異なるプロセスに移動する場合はその先の用途を特定して業種間の物質フローも記述した。化学反応プロセスにより異なる化学物質に変化する用途ではその先のフローは追跡しなかった。この推計結果に対し、地方自治体の条例の下で届出されている排出移動量と取扱量のデータから作成した取扱量に対する届出排出移動量の割合を用いて PRTR 届出排出移動量から取扱量を推定し、作成した勘定表の部門と PRTR 制度の対象業種の対応を整理した上で、両者の比較を行って PRTR データの検証を行った。

### 3.1.4 モニタリングデータ、環境中予測濃度モデル計算に基づく PRTR データの捕捉範囲の評価

排出が広範にわたる物質は環境中で多く検出されるであろうという基本的な考え方に基づき、環境モニタリングデータによる環境中検出状況と PRTR 排出量データの傾向、実測濃度とモデル計算による予測濃度の整合性から、PRTR データによる排出量の捕捉が十分と考えられるかを評価した。

まず、テーマ2において一斉分析手法を用いて蓄積された実測データ、環境省の環境モニタリング（化学物質と環境（黒本調査）に加え、水質については要調査項目調査および要監視項目調査、いずれも2014～2018年度を対象）による実測データを大気と水質について収集整理し、物質ごとに測定地点数に対する検出地点数の割合（検出割合）を整理した。

次に、実測データとの比較検証のためのデータとして、モデル計算による環境中予測濃度データを整備した。大気については、テーマ2において PRTR データを入力値として大気拡散モデル AIST-ADMER により計算した大気中予測濃度（川崎市および東京都を対象）を共有し、活用した。水質については、以下の通り、多媒体環境動態モデル G-CIEMS を用いて河川水中予測濃度を計算した。PRTR 対象物質のうち G-CIEMS による予測濃度計算の対象となりうる有機化合物について、計算に必要な物性値等のデータ収集整理を行い、PRTR 届出および届出外推計データを入力値とした予測濃度の計算を行った。最新の G-

CIEMS (Ver. 1.2) では、下水道を経由した下水処理場への移動や下水処理における挙動（分解、大気や表流水への排出等）も考慮できるので、環境排出量に加えて下水道への移動量データも用いて計算した。届出排出量は届出事業所の住所などから大気メッシュ、単位流域、下水処理場に紐付けた。届出外推計排出量は環境省から提供を受けたメッシュデータを用いた。これらの解析には 2015 年度のデータおよび推計方法を利用した。

以上をもとに、環境中検出状況に対して PRTR データにおける大気および公共用水域排出量の届出件数や排出量の多寡が整合的であるかを整理し、PRTR データによる排出量の捕捉が十分と考えられるかを定性的に評価した。さらに、環境中検出状況と PRTR データの傾向が整合的であった物質について、収集整理した実測データとモデル計算による環境中予測濃度を比較し、モデル計算の入力値としての PRTR データによる排出量の捕捉が十分と考えられるかを評価した。

### 3-2 廃棄物の処理・再生利用に伴う化学物質のフロー推計手法の構築

#### 3.2.1 アンケート調査による PRTR 届出移動量（廃棄物）の実態把握

PRTR 届出移動量は、廃棄物の委託処理に伴って移動する化学物質の量である。有価物や事業所内で自己処理される廃棄物が含有する化学物質は定義上計上されないが、それらが廃棄物処理における化学物質のフローにおいてどの程度の寄与があるかは明らかでない。また、届出移動量データには対象物質が含まれる「廃棄物の種類」と移動先での「処理方法」の情報が付属しており、この情報は後述する廃棄物行政報告データとの接続においてキーとなるが、ゼロではない届出移動量データの 32%（2018 年度データ）では複数を選択されており、移動量の内訳が不明である。そこで、届出事業所へのアンケート調査を行い、PRTR 対象物質を含む廃棄物の自己処理と有価物売却の有無、廃棄物の種類と処理方法別の移動量の内訳の把握有無とその実態を把握した。調査は 3.1.1 の調査と合わせて実施し、届出移動量がゼロではない物質について物質ごとに質問した。

#### 3.2.2 PRTR 届出移動量データと廃棄物行政報告データの突合・接続

PRTR 届出移動量データと産業廃棄物の処理委託に関する行政報告データを突合し、両データの整合性を整理するとともに、整合するデータを接続して処理パターンごとの届出移動量を推計した。2 つの都道府県から産業廃棄物処理実績報告のデータ（以下、「処理実績報告データ」と言う。）、産業廃棄物管理票交付等状況報告および電子マニフェスト登録等状況報告のデータ（以下、両者を合わせて「マニフェストデータ」と言う。）を入手し、これらのデータと PRTR 届出移動量データを事業所レベルで突合した。なお、この 2 つの都道府県は 3.2.1 のアンケート調査対象都道府県に含まれている。データは全て 2016 年度のものを用いた。PRTR 届出データから届出移動量がゼロより大きいデータを突合対象として抽出したところ、491 事業所の届出移動量データが対象となった。

データの突合は事業者の名称、事業所の名称と所在地をキーとして行った。処理実績報告データは対象都道府県内の処分業者（中間処理業と最終処分業）と収集運搬業者が処理を受託した産業廃棄物のデータであるため、表 1.1 の項目でデータベース化して排出事業所まで遡り、対象都道府県内で排出された廃棄物のデータを抽出して突合に用いた。また、処理実績報告データでは事業所の名称や所在地の詳細が省略されている場合があるため、以下の 4 つの条件の順で機械的に突合した上で、マニフェストデータも参照し、目視による確認、修正を行った。

条件①：事業者の名称、事業所の名称及び所在地の一致

条件②：事業者の名称及び事業所の名称の一致

条件③：事業者の名称及び所在地の一致

条件④：事業者の名称との一致

また、PRTR 届出移動量データにおいて届出されている処理方法、廃棄物の種類と処理実績報告データで報告されている処理方法、廃棄物の種類との突合を行い、両者の整合性を整理した。なお、PRTR 届出移動量データにおいて複数の処理方法または廃棄物の種類が選択されているデータについて、3.2.1 のアンケート調査における移動量内訳の回答で実際には単一であったデータについては、その処理方法、

廃棄物の種類のみを用いて突合した。

表 1.1 処理実績報告データをもとに作成したデータベースの項目

データベース項目		備考	データベース項目		備考
整理番号	整理番号		排出者情報	排出者名称	排出事業所名
報告者情報	報告固有ID			排出者所在地	排出事業所所在地
	報告者名称	処分/収集運搬業者名	処分情報	処理業者名称	
	報告者許可業種	処分業または収集運搬業		処理業者所在地	都道府県名
廃棄物情報	廃棄物の種類			処理方法	
	委託量(t)				

### 3.2.3 廃棄物処理へ移動した後の PRTR 対象物質のフロー推計手法の構築と適用

PRTR 届出移動量データと処理実績報告データの接続から推計した処理パターンごとの移動量に対し、処理パターンおよび物質（群）ごとに各移行先（分解・消失、排ガス（処理前）、排水等の液相（処理前）、固形残さ物または資源化物）への分配率パラメータを設定することにより、廃棄物処理を経由した PRTR 対象物質のフローを推計する方法を構築した。これを前述の 2 都道府県のデータに適用し、PRTR 対象物質の届出移動量について、廃棄物処理へ移動した後の処理・再生利用における化学物質のフローを推計した。

処理パターンごとの分配率パラメータは表 1.2 の通り設定した。ここで移行先として示した排水と排ガスは、処理プロセスから生じる処理前の排水と排ガスのことを指す。したがって、この割合がそのまま排出されるのではなく、排水や排ガス処理を経る場合には排水や排ガス処理における除去率を乗じる必要がある値であることに注意されたい。また、記号で示されている処理パターンについては、物質の種類や物性に応じて以下の通り分配率を設定した。脱水における排水への分配率は、含水量と水溶解度の積が届出移動量より小さい場合は(1.3)式、大きい場合は(1.4)式で分配率を設定した。また、固形残さ物への分配率は 1 から排水への分配率を差し引いた値とした。処理前の含水率は処理実績報告データから計算される平均的な値である 98%とし、処理後の含水率は埋立基準である 85%とした。

$$\text{排水への分配率} = \frac{\text{廃棄物処理委託量} \times (\text{処理前含水率} - \text{処理後含水率}) \times \text{水溶解度}}{\text{届出移動量}} \quad (1.3)$$

$$\text{排水への分配率} = \text{届出移動量} \times \frac{\text{処理前含水率} - \text{処理後含水率}}{\text{処理前含水率}} \quad (1.4)$$

熱処理（焼却、熔融、焙焼、セメント、精錬、焼成）における分配率は、無機化合物については PRTR 届出排出量推計における産業廃棄物焼却施設からの排出量推計の元データとして使用されている小口ら<sup>10)</sup>による実測調査結果に基づいて設定し、有機化合物については 100%が分解するとした。油水分離における分配率は、オクタノール/水分配係数（LogKow）を油への分配濃度比と見なして、油への分配率は油水分離後に焼却処理される場合は(1.5)式（油/水(v/v)=1 と仮定）、再生利用の場合は(1.6)式（油/水(v/v)=9 と仮定）で算出し、水への分配率は 1 から油への分配率を差し引いた値とした。

$$\text{油への分配率（油水分離後に焼却）} = 10 \text{ Log } K_{ow} / (10 \text{ Log } K_{ow} + 1) \quad (1.5)$$

$$\text{油への分配率（油水分離後に再生利用）} = 10 \text{ Log } K_{ow} \times 9 / (10 \text{ Log } K_{ow} \times 9 + 1) \quad (1.6)$$

中和における分配率は、廃酸・廃アルカリを用いて中和している場合には、中和後の廃棄物全体を汚泥とし、その含水率を 98%として脱水と同じ方法で分配率を設定した。中和剤としての再利用、pH 調整汚泥としての資源化については全量が生成物に移行するとした。蒸留については、蒸留処理による回収量が資源化量に等しいと考えられることから、処理量に対する資源化量を以て設定した。

以上の設定において参照した物性値は NITE 化学物質総合情報システム（NITE CHRIP）から入手した。なお、本研究での主な目的はフロー推計手法の構築であることから、設定した分配率パラメータ値の精

査までは行っていないが、処理方法や物質の物性をふまえて実態の傾向を反映するように設定している。ただし、本研究の結果から特に重要と考えられる処理パターンについては、処理における物質挙動の把握を行い、必要に応じて分配率パラメータの精査と見直しを行うことが必要である。

表 1.2 本研究での推計において設定した処理パターン毎の分配率パラメータ

	分配率						
	無機化合物			有機化合物			
	排水	排ガス	残さ・資源化物	排水	排ガス	残さ・資源化物	分解・消失
直接埋立	-	-	100%	-	-	100%	-
脱水・乾燥	(※2)	-	(※2)	(※2)	-	(※2)	-
焼却・溶融・焙焼	-	(※4)	(※4)	-	-	-	100%
油水分離	(※3)	-	(※3)	(※3)	-	(※3)	-
中和	廃酸・廃アルカリ混合	(※2)	-	(※2)	(※2)	-	(※2)
	その他	-	-	100%	-	-	100%
破碎・圧縮・選別・粉碎・分級	-	-	100%	-	-	100%	-
その他	セメント、精錬、焼成	-	(※4)	(※4)	-	-	100%
	蒸留	(※5)	-	(※5)	(※5)	-	(※5)
	その他(※1)	-	-	100%	-	-	100%

※1 混合エマルジョン化、固形燃料化、混合、固化・造粒、堆肥化、プラ溶融等

※2 脱水における分配率設定方法により設定

※3 油水分離における分配率設定方法により設定

※4 熱処理における分配率設定方法により設定

※5 蒸留における分配率設定方法により設定

## 4. 結果及び考察

### 4-1 PRTR データの正確性と捕捉範囲の評価

#### 4.1.1 算出方法の実態に基づく PRTR 届出データの正確性評価

表 1.3 に、国の算出マニュアルおよび OECD 技術文書で示されている PRTR 届出排出移動量の算出方法ごとの留意事項の要点と、それをふまえて整理した届出排出移動量が排出・移動の実態と大きく乖離する可能性があるケースを示す。この整理から、PRTR 届出排出移動量が実際の環境排出や移動をどの程度反映しているかは、取扱量に対する排出移動量の割合（以降、「排出移動割合」と呼ぶ。）、排ガス・排水・廃棄物等における対象物質の濃度変動と実測頻度、排出係数の代表性や適用性の観点から適切な算出方法やデータが用いられているかに依存すると考えられる。

表 1.3 PRTR 届出排出移動量の算出における留意事項から整理した排出移動量が実態と乖離する可能性があるケース

算出方法	概要	算出にあたっての留意事項 (国の算出マニュアル、OECD 技術文書より整理)	算出される排出移動量が実態と乖離する可能性があるケース
① 物質収支	取扱量から搬出量、他媒体への排出・移動量を差し引く。	・排出量が取扱量のごく一部である場合には使用すべきではない。 ・取扱量や他の媒体への排出移動量の誤差が大き影響することがあるので、その誤差を小さくする。	・取扱量に対して排出移動量の割合が小さい場合 ・取扱量や他の媒体への排出移動量の誤差が大きい場合
② 実測	排ガス等の濃度実測値を排ガス等の量に乘じる。	・連続測定や適切な頻度・長期間の測定によって代表性が向上する。排出濃度に変動がある場合は、複数回測定を行い、平均濃度を用いることが必要。 ・測定値の精度に注意が必要。	・排出濃度の変動が大きく、実測頻度が少ない場合 ・測定値の精度が悪い場合 ・測定値が下限値を下回っている場合
③ 排出係数	取扱量に排出係数（取扱量と排出量の比）を乘じる。	・自社に適した排出係数がある場合にはそれを使用する。 ・文献値を用いる場合は、自社の対象プロセスの技術や条件との慎重な比較、精査が必要。 ・業界団体のマニュアル更新による排出係数の変更がないか毎年確認することが望ましい。 ・排出抑制対策や装置の経年劣化による変動の確認、必要に応じた排出係数の見直しが必要。	・想定されている物質の取扱方法や設備、排出等の状況が事業所の状況と大きく異なる場合（文献の排出係数） ・排出濃度の変動に対して元になる実測データが少ない場合や実測データの精度が悪い場合（実測値に基づく排出係数） ・排出削減対策や原料、プロセスの変更等に応じて排出係数の見直しを行っていない場合
④ 物性値を用いた計算	物性値から排ガス等の濃度を推定し、排ガス等の量に乘じる。	・理論式や計算モデルの不適切な適用、仮定や仮想条件の下での計算、入力データの情報不足により、不正確な値となる可能性がある。	・適切な理論式や計算モデル、計算条件、物性値等の入力データを用いていない場合

届出データの算出方法実態のアンケート調査では、調査対象 786 事業所（ヒアリング調査対象 9 事業所を含む）の約 60%にあたる 473 事業所から回答が得られた。全ての回答を合わせると 225 物質の届出データについての回答が得られ、そのうち 50 物質については 10 事業所以上からの回答を得た。図 1.1



に届出排出移動量の算出方法の内訳を示す。図には、10 事業所以上から回答を得た 50 物質、その他の物質合計、有機化合物と無機化合物および 225 物質合計の内訳を示している。

この結果から、各媒体の排出移動量の主要な算出方法は下記の通りであることがわかった（括弧内は全物質または物質群合計の割合）。大気と公共用水域については有機化合物と無機化合物で異なる傾向が見られたためこれらを分けて整理した。他の媒体では物質による明確な違いは見られず、また、結果は示していないが、全ての媒体について業種による明確な違いは見られなかった。

- 【大気】 <有機>物質収支、排出係数、「ゼロとしている」のいずれか（約 3 割ずつ）  
<無機>主に「ゼロとしている」（8 割）、一部実測と排出係数（約 1 割ずつ）
- 【公共用水域】 <有機>主に「ゼロとしている」（9 割）  
<無機>主に「ゼロとしている」と実測（それぞれ 6 割と 3 割）
- 【土壌、埋立】 主に「ゼロとしている」（97% ずつ）。
- 【下水道】 主に「ゼロとしている」（約 9 割）、一部排出係数（約 1 割）
- 【廃棄物】 物質収支、排出係数、実測、「ゼロとしている」のいずれか（それぞれ 1-3 割程度）

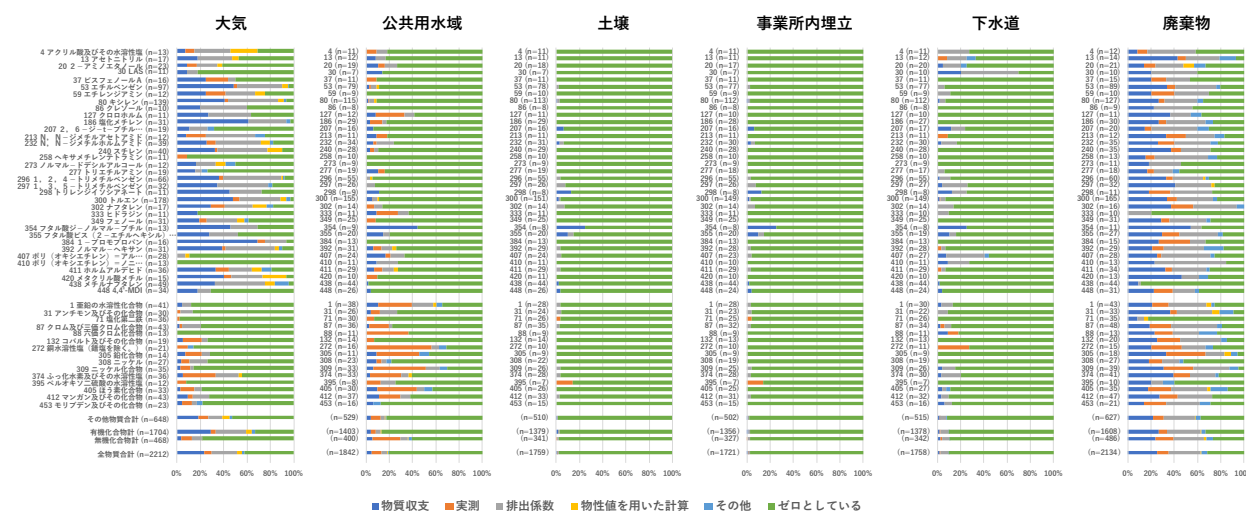


図 1.1 届出排出移動量の算出方法の内訳

以下に、算出方法ごとにそれを主要な算出方法としている媒体について、表 1.3 の「実態と乖離する可能性があるケース」に該当するデータがどの程度あるかを整理し、算出方法の観点から排出移動の実態を適切に反映しているとは言えない届出データがどの程度あるかを考察する。

(1) 物質収支による方法（大気（有機化合物）、廃棄物処理）

物質収支による方法では、取扱量から他の媒体への排出移動量等を差し引いて排出移動量を算出することから、他の媒体への排出移動量等の誤差量がそのまま求める媒体の排出移動量の誤差量となる。例えば、取扱量 100 トン、求める媒体の排出移動割合が 1% のとき、他の媒体への排出移動量等に ±10% の誤差があると、求める媒体の排出移動量は  $1 \pm 9.9$  トンとなり、±1 桁以上の誤差となる。他の媒体への排出移動量等が ±10% 程度の誤差を含むことは十分考えられることから、少なくとも排出移動割合が 1% 以下のケースにおける届出排出移動量は実態と 1 桁以上乖離している可能性がある。調査結果から求めた排出移動割合を見てみると、大気と廃棄物処理について有効回答の 45%-50%（それぞれ回答事業所の届出データ全体の 1 割強ずつに相当）が排出移動割合 1% 以下に該当しており、それらのデータは実態と 1 桁以上乖離している可能性があると考えられた。

(2) 実測による方法（大気（無機化合物）、公共用水域（無機化合物）、廃棄物処理）

排出濃度の変動は、大気と公共用水域（いずれも無機化合物）および廃棄物処理について、「ほぼ一定」との回答がそれぞれ有効回答の約 4 割、約 6 割、約 5 割を占めた（それぞれ回答事業所の届出データ全

体の4%、15%、5%に相当)。回答事業所におけるこの濃度変動の評価が正しいとすれば、これらのケースは実測頻度によらず実態を反映した適切な算出が行われていると考えられる。

一方、「濃度変動の大きさは把握していない」という回答が各媒体についてそれぞれ有効回答の約1～4割を占めた(それぞれ全体の5%程度に相当)。これらの届出データのほとんどは算出根拠となる実測の頻度が年1回であった。また、公共用水域(無機化合物)については約2割(全体の約5%に相当)について実測値が「全て下限値未満」と回答された。これらの届出データは、必ずしも十分とは言えない頻度または分析感度の実測に基づいて排出移動量が算出されており、排出移動の実態を適切に反映しているかが不明であった。

### (3) 排出係数による方法(大気、下水道、廃棄物処理)

大気、下水道、廃棄物処理について、排出係数の根拠は「過去の実測値」がそれぞれ有効回答の約6～7割を占めた(それぞれ回答事業所の届出データ全体の5%～20%に相当)。これらの届出データは事業所における実測に基づくものであることから個別事業所の実態を反映していると考えられる。一方、文献の排出係数が用いられているケースがそれぞれ有効回答の約3～4割を占めた(それぞれ全体の5%～10%程度に相当)。排出係数の出典は、国や業界団体の算出マニュアルが6～9割以上、大気と廃棄物処理については根拠が不明なデータが1～2割と大きな割合を占めた。これらの届出データは、算出マニュアルや根拠が不明な排出係数の妥当性や個別事業所への適用性によっては実態と乖離している可能性があり、その精査が求められる。また、有効回答の8割以上において排出係数の定期的な見直しは行われておらず、大部分の届出データではプロセスの変更等による変化があった場合でもそれによる排出移動量の変化が反映されていないと考えられた。

### (4) 「ゼロとしている」(全ての媒体)

「ゼロとしている」届出データのうち大気では約5割、他の媒体では9割以上が事業所や対象工程において対象化学物質を含む排ガス、排水や放流水、事業所内での土壌排出や埋立、廃棄物の発生がないことを理由としており、それらの届出データは(ゼロであるという)実態を反映していると考えられた。一方、大気については「対象化学物質が揮発性ではないため」という回答も約5割(回答事業所の届出データ全体の約2割に相当)を占めた。低揮発性物質であれば排出量は多くはないと考えられるが、必ずしも実際の排出量がゼロであるとは限らないと考えられた。

以上の評価から、届出排出移動量データのうち、大気と廃棄物処理については20%～25%程度、公共用水域と下水道については5%～10%程度のデータは必ずしも適切ではない方法で算出されており、実態と乖離している可能性があると考えられた。この割合を考えると、個々の届出データが実態と1桁程度乖離していたとしても、排出インベントリや物質フロー把握や地域のリスク評価のためのマクロな情報としての届出排出移動量合計では、実態とせいぜい数割の乖離に収まっていると考えられる。一方、個別事業所の届出データは実態との1桁程度の乖離がある可能性を含む届出データが一定割合存在することから、個別事業所周辺のリスク評価等における入力値等としては特にこの実態との乖離の可能性に留意した上で利用する必要であると考えられた。

また、以上の考察から、届出データの正確性向上に向けては算出マニュアル等において状況に応じた適切な算出方法をより丁寧に推奨することが必要であると考えられた。実測による方法では、実測頻度を増やすことが有効であるが、労力や費用の観点から難しい場合も多いと考えられるので、排出状況に大きな変化がなければ過年度の実測値も含めた平均値を用いることで、濃度変動を平均化したより実態に近い値を得ることができると考えられる。排出係数による方法では、事業者において取得された実測データの収集整理等によって事業所による排出係数の違いを把握し、算出マニュアルにおける排出係数の代表性や個別事業所への適用性を確認することが有効と考えられる。

#### 4.1.2 届出データとの整合性から見たすそ切り以下排出量の評価

図1.2に、105物質についての推計届出排出量と実届出排出量の比較(2017年度データ)を示す。すそ切り以下排出量の推計においては、塗料、接着剤等の14の排出源ごとに推計が行われているが、排出源ごとの総排出量は物質によって業界団体等による全国出荷量等のデータから推計されている物質

（「ベース物質」と呼ばれる）と事業所へのアンケート調査から推計されている物質（「追加物質」と呼ばれる）に大別される<sup>3)</sup>。図 4.1.2 には、「ベース物質」としての推計が行われている排出源の有無で物質を分けて結果を示している。

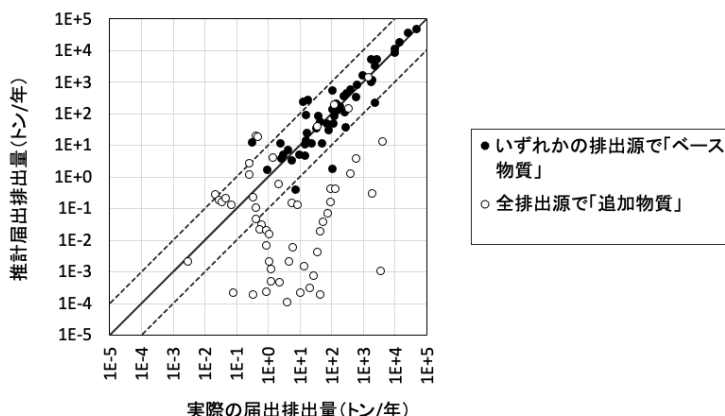


図 1.2 すそ切り以下排出量推計結果に基づく推計届出排出量と実際の届出排出量の比較

実届出排出量に対する推計届出排出量の比は、63 物質について 1/10～10 倍の範囲に収まり、42 物質については 1/10 未満または 10 倍以上であった。実届出排出量に対して推計届出排出量が小さい物質は両者の乖離の程度も大きい物質も多く、19 物質は 3 桁以上乖離していた。この結果を「ベース物質」と「追加物質」のどちらとして推計が行われているかで分類して整理したものを表 1.4 に示す。いずれかの排出源で「ベース物質」として総排出量が推計されている物質は推計届出排出量が実届出排出量の概ね 1/10～10 倍の範囲に収まっていた。これより、総排出量推計値は実際の総排出量を概ね反映しており、すそ切り以下排出量推計値も概ね実態を表している可能性が高いと考えられた。一方、全ての排出源で「追加物質」として総排出量が推計されている物質は、推計届出排出量が実届出排出量よりも数桁過小である物質が多く、これらの物質についてはすそ切り以下排出量の推計による環境排出量の捕捉範囲が十分ではないと考えられた。特に、推計届出排出量と実際の届出排出量の比が 1/100 未満となっているような物質については実際の排出量の多くを捕捉できていない可能性に加え、PRTR 制度の中で届出データとすそ切り以下推計の整合が確保できていないことが示された。

表 1.4 すそ切り以下排出量推計結果を用いた評価結果による物質の分類  
(現行制度の化管法施行令別表 1 (第一種指定化学物質) の号番号で記載)

推計届出排出量/ 実際の届出排出量	2つ以上の排出源でベース物質	1つの排出源でベース物質	追加物質のみ
10～100	30	31, 410	2, 37, 448, 452
0.1～10 (1桁の範囲内)	53, 56, 80, 83, 186, 232, 262, 275, 281, 296, 297, 300, 374, 392, 400, 407	4, 7, 13, 20, 57, 58, 125, 127, 132, 144, 150, 157, 207, 213, 218, 224, 240, 277, 278, 302, 336, 349, 389, 395, 409, 411, 415, 438,	42, 60, 133, 155, 259, 282, 298, 322, 330, 354, 355, 384, 418, 420, 460, 461
1/100～1/10	-	309, 333, 405	6, 71, 88, 237, 239, 268, 304
1/100未満	-	-	1, 11, 18, 59, 65, 73, 75, 82, 86, 87, 134, 149, 181, 234, 258, 272, 273, 305, 316, 317, 318, 321, 342, 356, 412, 414, 453

この要因として総排出量の推計が過小、すそ切り以下の割合の設定が過大、の2つが考えられるが、後者では数桁の過小評価を説明することが難しいことから、前者が主要な要因である可能性が高い。「追加物質」の総排出量は、事業所へのアンケート調査から得られた資材等（塗料等）の使用量、資材の化学物質含有率と環境排出率に基づいて推計されているが<sup>3)</sup>、回答事業所が資材等の化学物質の含有を認識しておらず、含有率が過小に見積もられている可能性がある。これより、「追加物質」として推計されている物質についてより実態を反映した推計値を得るには、資材等における含有実態のより正確な把握を行い、それを反映した総排出量の推計を行うことが必要と考えられる。

#### 4.1.3 産業連関表ベースのハイブリッド勘定表作成による PRTR データの検証

作成したハイブリッド勘定表で推計した一次供給量および最終消費量と PRTR 届出排出移動量から推計した取扱量の比較を図 1.3 に示す。ノルマルヘキサン (392)、プロモプロパン (384)、スチレン (240)、トルエン (300) は両者が近似し、フタル酸ビス (355) は最終消費量との差異はあるが、一次供給量とは概ね整合的であった。一方、他の 7 物質は両者に大きな差が見られた。最終消費量と取扱量の推計値を業種別に比較した結果を図 1.4 に示す。いずれかがゼロの業種は含めていない。両者のピアソン相関係数は最も低い場合でも 0.62 であり、いずれの物質も業種ごとの最終消費量と取扱量に正の相関が認められた。この結果より、PRTR データにおける業種ごとの相対的な寄与の大きさは実態を反映していると考えられた。

この結果は、ハイブリッド勘定表を用いた物質フロー分析が PRTR データの検証において有用な手段となり得ることを示唆する。生産・供給という統計的に捕捉される数値を参照した PRTR データの検証は、その信頼性の向上とともに排出移動量の変化の要因を同定する上でも有益と考えられる。また、最終消費量と取扱量推計値の差が大きい物質の結果は、PRTR 届出事業者が捉えている取扱量と公的統計が集計する供給量が同一の物質フローの段階を捉えていない可能性を示唆している。両者の違いを理解し、取扱量と供給量との関係が確認できる状態を作ることが求められる。

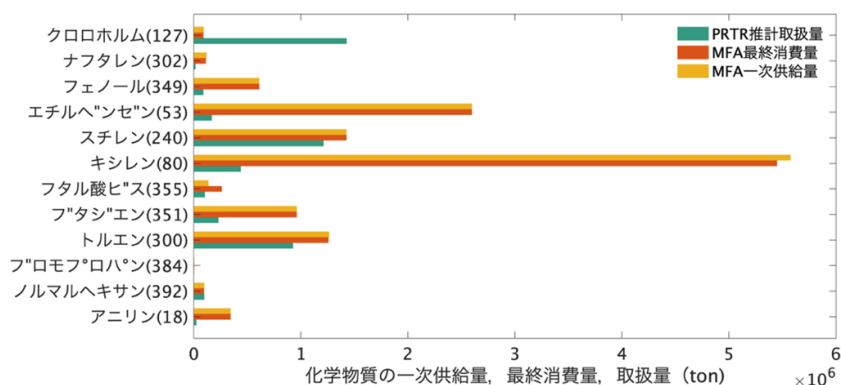


図 1.4 一次供給量、最終消費量と取扱量の推計値の比較 (2015 年値)

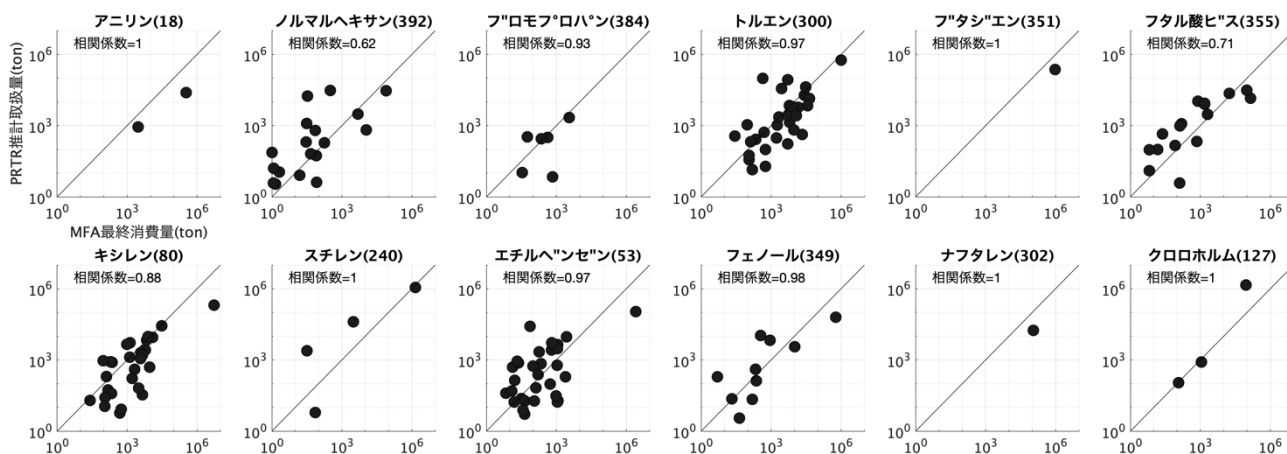


図 1.5 最終消費量と取扱量の推計値の業種別比較 (2015 年値)

#### 4.1.4 モニタリングデータ、環境中予測濃度モデル計算に基づく PRTR データの捕捉範囲の評価

テーマ 2 の一斉分析によるモニタリングおよび環境省の環境モニタリングによる実測データから、大気では 331 物質、水質では 303 物質についての検出割合を整理した。また、水質については、356 の PRTR 対象物質 (CAS 登録番号ベースでは 394 物質) について計算に必要な物性値等入手し、G-CIEMS による

河川水中予測濃度の計算結果を得た。大気については、テーマ 2 において 49 物質の大気中予測濃度の計算結果が得られており、これを PRTR データの評価のための情報として整理した。以上より、PRTR データ、環境モニタリングによる実測データ、モデル計算による環境中予測濃度のデータを相互に比較し、PRTR データを評価するための情報を多数の物質について整備した。

整備したデータに基づき、検出割合と PRTR 排出量データの多寡で物質を分類した結果を表 1.5 に示す。

表 1.5 PRTR 対象物質の環境中検出状況と PRTR 排出量データの多寡による分類  
(現行制度の化管法施行令別表 1 (第一種指定化学物質) の号番号で記載)

大気				
	モニタリングデータ検出割合(検出地点数/測定地点数)			
PRTRデータ	0	0%~10%	10%~50%	50%以上
排出量ゼロ	19, 21, 39, 40, 46, 47, 48, 67, 96, 102, 111, 112, 113, 116, 118, 119, 129, 138, 139, 146, 147, 148, 166, 167, 168, 170, 171, 173, 180, 189, 192, 193, 194, 196, 201, 206, 222, 231, 233, 247, 249, 254, 260, 261, 266, 287, 347, 361, 363, 367, 371, 376, 402, 422, 427, 430, 432, 437, 441, 444, 445, 446, 450	25, 97, 101, 140, 156, 197, 225, 286, 312, 326, 331, 442, 451	121, 215, 311, 365 (農業用途: 50, 182, 370, 426)	269, 344 (残留性物質: 72, 163, 388, 404, 406)
届出100件以上 or 届出外排出量1トン以上	209, 277 (殺虫剤用途: 64, 153, 350, 457)	5, 57, 381	3, 8, 10, 134, 185, 415	4, 7, 9, 12, 31, 36, 53, 56, 75, 80, 83, 86, 87, 94, 103, 104, 125, 127, 144, 150, 161, 164, 176, 178, 181, 186, 232, 240, 242, 262, 281, 288, 296, 297, 300, 302, 305, 309, 321, 332, 349, 351, 355, 384, 386, 392, 399, 400, 411, 412, 420, 438
水質				
	モニタリングデータ検出割合(検出地点数/測定地点数)			
PRTRデータ	0	0%~10%	10%~50%	50%以上
排出量ゼロ	5, 19, 21, 29, 39, 40, 42, 46, 47, 49, 54, 90, 92, 96, 102, 112, 116, 119, 120, 129, 138, 142, 146, 160, 165, 166, 167, 170, 171, 173, 180, 189, 193, 194, 214, 230, 233, 246, 247, 249, 253, 264, 287, 293, 314, 324, 326, 361, 363, 386, 397, 430, 432, 435, 451	15, 25, 34, 74, 97, 111, 118, 140, 148, 162, 190, 192, 197, 212, 222, 250, 254, 260, 265, 289, 311, 312, 331, 339, 347, 357, 369, 371, 376, 388, 402, 427, 431, 441, 443, 444, 445	32, 78, 135, 156, 269, 295, 319, 340, 344, 367, 425, 426, 452 (農業用途: 50, 101, 182, 196, 217, 261, 266, 286, 370, 422, 428, 442, 450) (残留性物質: 72)	208, 219, 223, 359, 365 (農業用途: 41, 175, 191) (残留性物質: 396, 404)
届出100件以上 or 届出外排出量1トン以上	56, 158, 329	9, 51, 127, 132, 300, 346, 453 (殺虫剤用途: 251, 252, 350, 457) (特別要件施設の届出対象物質(下水道業): 48, 75, 88, 113, 144, 147, 149, 150, 157, 159, 179, 186, 237, 242, 262, 268, 279, 280, 281, 400)	31, 64, 297, 299, 302, 332, 405, 407, 455, 461	1, 20, 30, 53, 60, 80, 86, 181, 224, 240, 272, 296, 336, 349, 355, 374, 406, 408, 410, 411, 412

PRTR データにおいて大気と公共用水域への届出および届出外排出量がゼロであり、検出割合が 0% (全地点で不検出) の物質は、PRTR データと環境中検出状況の傾向が整合しており、PRTR データによる排出量の捕捉に漏れはないか、あったとしても大きな漏れではないと考えられる。検出割合を整理した物質のうちこれに該当する物質は、大気と水質についてそれぞれ 63 物質と 55 物質であった。検出割合が 10% 未満までを整合しているケースに含めると、該当する物質は 76 物質と 92 物質まで増える。一方、PRTR データの排出量がゼロであるのに対して検出割合が高い (多数地点で検出) 物質は、両者の傾向が整合していない。検出割合 50% 以上で見ると大気と水質についてそれぞれ 7 物質と 10 物質がこれに該当し、検出割合 10% 以上とした場合はそれぞれ 15 物質と 37 物質となる。これらの物質には残留性の高い POPs や CFC、農薬用途の物質も多く、前者は過去の排出に起因して多数の地点で検出、後者は土壌排出量として推計されている農薬の届出外排出量の一部が土壌からの流出等により環境中で検出されている可能性があり、必ずしも PRTR データによる捕捉が不十分と言うことではないと考えられた。それ以外の物質については、廃棄物処理への移動量が多い物質 (物質政令番号 121, 215, 311, 370)、別の物質の代謝物として報告されている物質 (同 426) もあり、それらに由来する排出の影響も考えられるが、PRTR データによる排出量の捕捉が不十分である可能性があるとして整理された。

次に、排出が広範にわたるのに対して環境中で検出されない物質は両者の傾向が整合していないと言える。届出件数 (大気、公共用水域の届出排出量がゼロではない届出事業所数) 100 件以上、届出外排出量 1 トン以上を排出が広範にわたるとして整理してみると、大気と水質についてそれぞれ 6 物質と 3 物質が検出割合 0% (全地点で不検出) でありこのケースに該当した。検出割合 10% 未満で見ると該当す

る物質は9物質と34物質となる。これらの物質については、モニタリングの地点数や時期、下限値がこれを検出するのに不十分である可能性が考えられた。これに加え、殺虫剤等では分解の影響、特別要件施設としての下水道業からの届出対象物質については下限値未満の実測結果を用いて排出量が過大に算出されている<sup>11)</sup>可能性も考えられた。以上の結果から、PRTR対象物質の環境中存在状況を適切に捉えるためには、本研究(テーマ1)の成果をふまえて必要な物質についてPRTR届出事業所の要件点検や届出外排出量推計の追加によるPRTRデータの充実を図り、PRTRデータによる排出量の捕捉範囲を拡大するとともに、多地点や通年のモニタリングによって実測データを充実することも重要であると考えられた。この点において、テーマ2で開発された一斉分析手法が効率的なデータ蓄積に活用できる。

一方、大気と水質についてそれぞれ52物質と21物質はモニタリングデータにおいて50%以上の地点で検出されており、PRTRデータと環境中検出状況の傾向は整合していた。そこで、これらの物質について、実測データと環境中予測濃度のモデル計算値を比較し、量的な整合性の評価を試みた。

大気について上記52物質のうち、テーマ2において大気中予測濃度と実測濃度の比較が行われた25物質の結果を参照すると、22物質については全球的なバックグラウンド濃度を考慮して補正した予測濃度と実測濃度がほぼ一致していた。これより、PRTRデータにおいて排出源または排出量が多く、多数の地点で検出されている物質の多くは、量的にもPRTRデータによる捕捉に特に大きな不足はないものと考えられた。一方、3物質(物質政令番号9、94、178)は実測濃度に対し予測濃度が過小であった。これらの物質はすそ切り以下排出量が推計されていないか極めて小さい値であるとともに、それ以外の届出外排出量も推計されていないことから、届出外排出量の捕捉が十分でない可能性が考えられた。

同様に、水質について上記21物質のうち、G-CIEMSによる予測濃度計算結果が得られた16物質(G-CIEMSによる計算の対象とならない無機化合物とPCBを除いた物質)について、河川水中の実測濃度と予測濃度を比較した(図1.6)。両者の関係は物質ごとに①全地点で概ね一致(1~2桁の範囲)、②地点ごとの傾向は概ね一致しているが全体的に予測濃度が過小、③概ね一致している地点と乖離している地点の両方が存在、④全地点で大きく乖離、のいずれかに大別された。①には10物質(現行物質政令番号20、53、80、240、296、349、355、408、410、411)が該当し、PRTRデータを入力値とした計算予測濃度が全地点で実測濃度と概ね一致したことから、PRTRデータによる排出量の捕捉に大きな不足はないと考えられた。一方、②には3物質(60、181、336)が該当した。いずれも公共用水域への排出に該当する届出外排出量が推計されている排出源が少ないことから、その推計が不足している可能性が示唆された。また、ジクロロベンゼンについてはすそ切り以下排出量の評価においても届出データとの不整合が見られたことから、すそ切り以下排出量の過少推計も要因であると考えられた。③には1物質(30)が該当した。実測濃度の範囲が比較的狭いことから届出外排出量(非点源または面源)の寄与が大きいと考えられるのに対し、予測濃度の範囲が広いことから、届出外推計データによる排出量の捕捉が十分ではない可能性が高いと考えられた。④には2物質(86、224)が該当した。このうちN,N-ジメチルドデシルアミン=N-オキシド(224)は予想濃度が実測濃度よりも数桁高くなっているが、G-CIEMSの計算で考慮されている大気経由の評価地点への到達の影響が大きいとされ、大気排出量の寄与が大きい物質については量的な評価が困難であった。一方、クレゾール(86)は実測濃度が予想濃度よりも数桁高かった。これは③のケースと同様に届出外推計データによる排出量の捕捉が十分ではない可能性が高いと考えられた。これらの結果から、届出外排出量推計の充実はPRTRデータによる排出量の十分な捕捉に向けて重要な1つの課題であると考えられる。



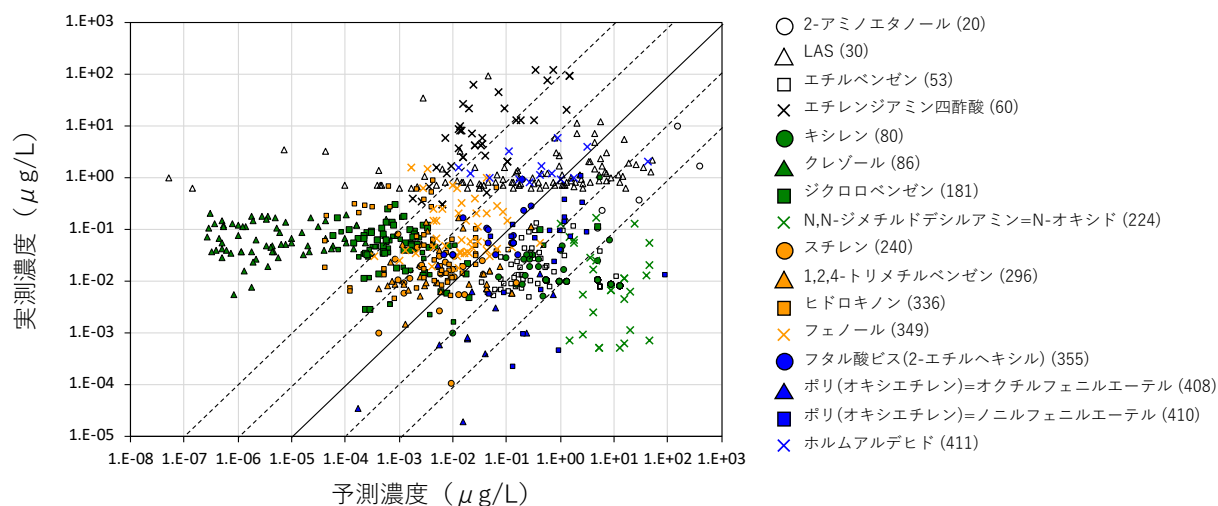


図 1.6 G-CIEMS による河川水中予測濃度と環境モニタリングによる実測濃度の比較

## 4-2 廃棄物の処理・再生利用に伴う化学物質のフロー推計手法の構築

### 4.2.1 アンケート調査による PRTR 届出移動量（廃棄物処理）の実態把握

図 1.7 に、アンケート調査における対象化学物質を含む廃棄物の事業所内自己処理と有価物売却（燃料利用、再資源化）の有無の回答内訳を示す。全物質合計で見ると、事業所内自己処理、有価物売却ともに「無」のケースが 9 割以上と大部分を占めた。回答事業所数 10 以上の 56 物質を例として物質ごとに見ても、一部の物質の再資源化のための有価物売却を除いて「無」のケースが概ね 9 割以上を占めた。これより、PRTR 制度の届出対象業種における事業所で発生する廃棄物等に含まれる PRTR 対象物質のフローの主要な部分は、届出移動量の行方を追跡することで把握できると考えられた。ただし、前述の 56 物質のうち 15 物質程度は再資源化のための有価物売却「有」の事業所が 2~4 割を占めており、有価物の売却に伴う移動が無視できないケースもあると考えられた。有価物としての移動は現在の PRTR 制度では把握されていないことから、その量についての実態把握も今後必要である。

また、処理方法と廃棄物の種類のいずれかまたは両方が複数選択されている届出移動量データについて、有効回答の約 8 割が処理方法および廃棄物の種類別に移動量を把握しているとの回答であった。アンケート調査で回答された実際の内訳を整理すると、例えば廃酸、廃アルカリ、廃プラスチックが選択された届出移動量データについては、複数の処理方法が選択されていても実際はほぼ単一の処理方法（それぞれ中和、中和、焼却・溶融）と見なせると考えられた一方で、汚泥や廃油が選択されたデータについては処理方法ごとの移動量の内訳が事業所や物質によって大きく異なっていた。これより、処理方法および廃棄物の種類ごとの移動量の内訳は、個別に把握する必要があると考えられた。前述の通り、本研究の調査から多くの事業所において届出移動量の内訳を把握していたことから、その内訳を同様の調査や届出において把握することは可能と考えられた。

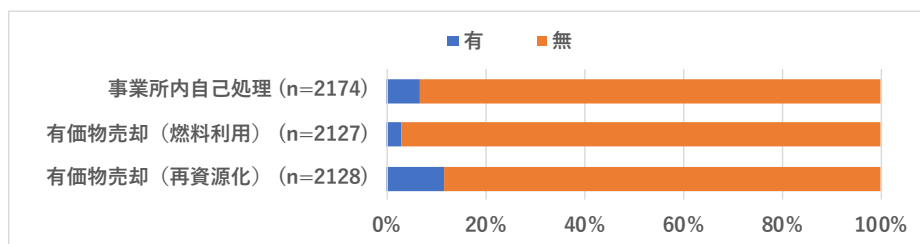


図 1.7 対象化学物質を含む廃棄物の事業所内自己処理と有価物売却の有無（全物質合計、n はアンケート調査における有効回答数）

### 4.2.2 PRTR 届出移動量データと廃棄物行政報告データの突合・接続

事業所の突合について、突合対象とした 491 の PRTR 届出事業所のうち、処理実績報告データとは 488 事業所 (99.3%)、マニフェストデータとは 430 事業所 (87.6%) が整合した。処理実績報告データは処分業者及び収集運搬業者のデータであり、排出事業所の名称や所在地詳細が省略されているケース等があるため、条件①や② (3.1.2 参照) による突合では整合率がやや低かった。ただし、条件③や④で突合した上で目視による確認を行うなど、丁寧な作業を行うことでほぼ全ての事業所を突合することが可能であった。これに対し、排出事業所側のデータであるマニフェストデータは事業所の所在地を含む情報の確度が高く突合作業が比較的容易である一方で、整合しない事業所の割合が 12%とやや高いことがわかった。各データのこの特徴は 2 つの都道府県の間で同様であり、事業所の整合率にも大きな違いはなかった。以上より、廃棄物処理へ移動した対象化学物質のフロー推計においては、マニフェストデータを補助的に利用しながら PRTR 届出移動量データを処理実績報告データと接続することが有効であると考えられた。なお、マニフェストデータとの事業所の整合率がやや低かった原因として、PRTR データの届出誤り、マニフェストデータの報告漏れが考えられるが、マニフェストデータをもとに作成されている処理実績報告データとの整合率が高かったことから、後者が主要な要因であると考えられた。

次に、処理方法と廃棄物の種類については、両データの間で整合した 448 事業所における 1634 件の PRTR 届出移動量データのうち 1192 件 (73%) で処理実績報告データと整合した (表 1.6)。整合したデータのうち 971 件は処理方法が単一であり (うち 928 件は廃棄物の種類も単一)、化学物質の移動量を処理方法ごとに分割することなくそのままフロー推計に利用できる。残りの 221 件は処理方法が複数であり、処理方法によってその後の化学物質のフローが異なることを考えると、処理方法ごとに届出移動量を分割する必要がある。4.2.1 で示したように多くの事業所ではその内訳を把握していることから、調査や届出においてその実態を把握することは技術的には可能である。なお、4.2.1 でアンケート調査において内訳を把握できた事業所については、後述するフロー推計においてその結果を反映した。

一方、突合対象の届出移動量データのうち 442 件 (27%) は処理方法と廃棄物の種類のいずれかまたは両方が処理実績報告データと整合しなかった。この不整合の要因として、情報の作成方法や担当部署が異なることなどによる PRTR 届出と廃棄物行政報告での不統一や誤り、届出や報告漏れ、各届出や報告様式における選択肢の違いなどが考えられる。特に、処理方法や廃棄物の種類が複数である場合は整合率が 33%~69%と低い傾向があり (表 1.6)、PRTR 届出移動量の処理方法や廃棄物の種類の選択において誤りが生じやすい可能性が示唆された。廃棄物処理における化学物質フロー把握に活用しうる基盤情報としての PRTR データの有用性向上のためには、届出様式やマニュアルの見直しなどによって廃棄物行政報告データとの整合性確保を図ることが必要である。

表 1.6 PRTR 届出移動量データと処理実績報告データの処理方法と廃棄物の種類の突合結果

PRTR届出移動量データ			処理実績報告との整合			
処理方法	廃棄物の種類	データ数	整合データ数 (整合率)		不整合データ数 (不整合率)	
単一	単一	1056	928	88%	128	12%
	複数	129	43	33%	86	67%
複数	単一	192	89	46%	103	54%
	複数	192	132	69%	60	31%
いずれかが選択なし		65	-	-	-	-
合計		1634	1192	73%	442	27%

以上の突合結果から、PRTR 届出移動量データにおける 7 つの処理方法の選択肢に対して、処理実績報告データから表 1.7 に示す 28 の詳細な処理パターン (処理方法の組合せ) が特定された。なお、「混合」は発生源が異なる同一種類廃棄物の調合、「固化・造粒」はセメント等を加えた調合、「プラ熔融」は発泡スチロール等の減容化のための熔融である。また、この結果から、PRTR 届出移動量データで「その他」の処理方法が選択されているケースについて、突合結果から処理実績報告データにおける廃棄物の種類と処理方法の情報を参照することで、その具体的な処理方法が特定できることも示された。なお、PRTR 届出移動量データにおいて「その他」の処理方法が選択されていても、突合結果から PRTR 届出様式にお



ける「その他」以外の処理方法に該当すると考えられるケースもあることがわかった（本研究ではそのようなケースは「その他」以外の選択肢による処理方法に修正した）。また、「その他」の処理方法にはセメント、精錬、焼成のように、化学物質の挙動から見ればプロセスとして焼却・溶融と同様と考えられるものもある。これらの結果から、届出マニュアル等における処理方法選択の考え方のより丁寧な説明や届出様式における選択肢の細分化の検討などが必要であると考えられる。

表 1.7 産業廃棄物として移動した PRTR 化学物質の処理パターン

NO	PRTR様式の 処理方法	処理実績報告の処理方法		残さ 最終処分	資源化物	処分実績報告書に記載された具体的な処理方法名
		1次処理	2次処理			
1	最終処分	埋立		●		管理型埋立, 安定型埋立
2	脱水・乾燥	脱水		●	●	脱水
3		脱水	乾燥	●	●	脱水→乾燥
4		脱水	固化・造粒	●	●	脱水→混練
5		乾燥		●	●	乾燥, 天日乾燥
6	焼却・溶融	焼却		●	●	焼却
7		溶融		●	●	溶融
8		焙焼		●	●	焙焼, 還元焙焼・焼却
9		焼却	溶融	●	●	焼却→溶融
10	油水分離	油水分離			●	油水分離
11		油水分離	焼却	●	●	油水分離→焼却
12	中和	中和（廃酸・廃アルカリ混合）		●		中和, PH調整後中和剤としてリサイクル
		中和（その他）			●	
13	破碎・圧縮	破碎・圧縮		●	●	破碎, 圧縮
14		破碎・選別		●	●	選別, 破碎・選別
15		粉碎		●	●	粉碎
16		分級		●	●	分級
17	その他	セメント			●	セメント工場へ
18		精錬			●	非鉄精錬工場へ
19		焼成			●	焼成（セメント以外）
20		エマルジョン			●	エマルジョン化
21		固形燃料化			●	PRF化, 固形燃料の原料
22		直接燃料利用			●	燃料に利用
23		蒸留			●	蒸留
24		混合		●	●	混合
25		固化・造粒		●	●	混練, 造粒固化, セメント固化（建設資材に利用）, 土木資材化（混合）
26		堆肥化			●	堆肥化
27		プラ溶融			●	発泡スチロール等溶融
28	その他リサイクル				●	工業製品にリサイクル

突合できたデータについて、PRTR 届出移動量データと処理実績報告データの接続により推計された廃棄物の種類および処理パターンごとの移動量（2 都道府県、全物質合計）を図 1.8 に示す。無機化合物の移動先は汚泥の直接埋立と廃酸の中和が全体の 9 割以上、有機化合物は汚泥、廃油、廃アルカリの焼却、焙焼が全体の約 8 割と大きな割合を占めた。残りは無機化合物では汚泥の脱水・固化・造粒、焼却、溶融、焙焼、有機化合物では PRTR 届出移動量データにおける選択肢で「その他」に該当する混合エマルジョン化、蒸留、混合などが一定の割合を占めた。これらには、中間処理後に再生利用等されると考えられる処理パターンもあり、PRTR 届出移動量データと廃棄物行政報告データの接続によって、現行の PRTR 届出移動量データからは把握できないそれらの処理パターンへの化学物質フローを把握できることが示された。

図 1.9 に、物質ごとの推計結果の例を示した。ここでは、無機化合物と有機化合物のそれぞれについて、今回の推計対象となったデータ数と届出移動量が比較的多かった各 3 物質の結果を示している。無機化合物については物質ごとにみても直接埋立と中和が主要な処理パターンであったが、その内訳は物質によって異なった。有機化合物については焼却と焙焼を「熱処理」という大きな分類として見れば物質ごとに見ても全物質合計と同様であった。本研究で示した推計は、届出データごと（事業所および物質ごと）に廃棄物行政報告データと接続し、これを積み上げて各処理パターンへの移動量を推計していることから、物質ごとに結果が得られるものとなっており、後述の分配率パラメータを用いたフロー推計を物質ごとに行うことが可能である。

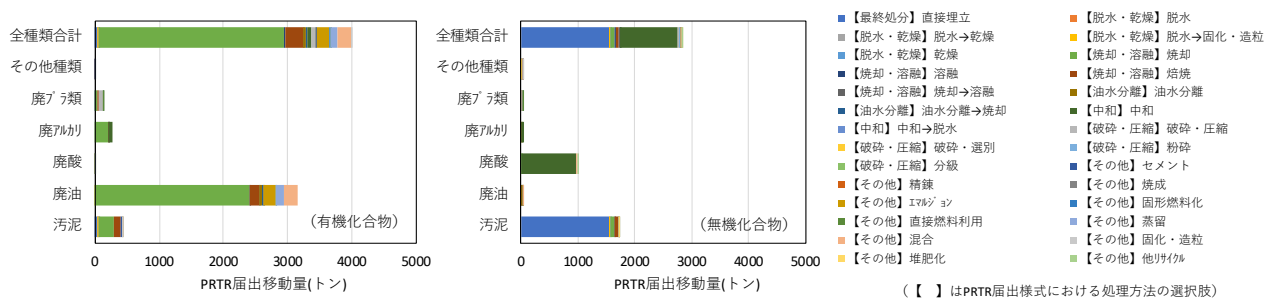


図 1.8 処理パターン別 PRTR 届出移動量の推計結果（2 都道府県、全物質合計）

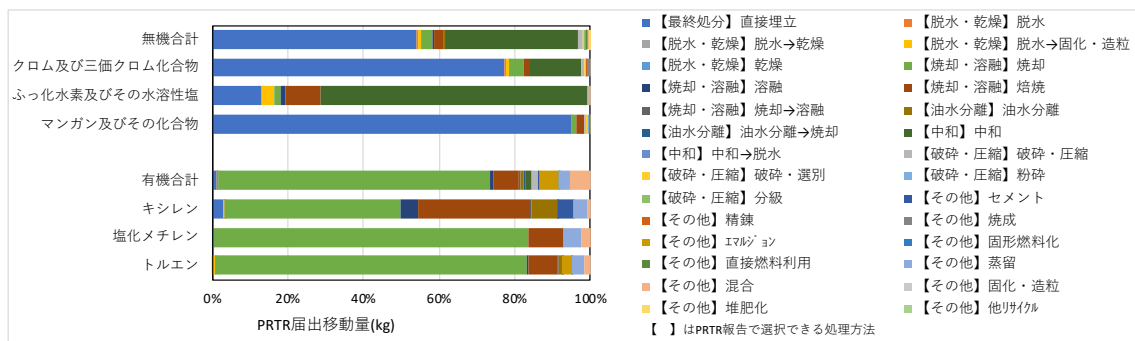


図 1.9 物質ごとの処理パターン別 PRTR 届出移動量の推計結果の例（2 都道府県合計）

#### 4.2.3 廃棄物処理へ移動した後の PRTR 対象物質のフロー推計手法の構築と適用

4.2.2 で推計した処理パターン別の届出移動量に設定した分配率パラメータを乗じて推計した PRTR 対象物質の移行先を図 1.10 に示す。ここでは NITE-CHRIP や文献から分配率が設定できた約 150 物質の合計値を示している。産業廃棄物処理を通じて、有機化合物は主に分解・消失と資源化（生成物）、無機化合物は主に最終処分と排水へ移行していると推計された。廃棄物処理への有機化合物の移動は主に汚泥、廃油、廃アルカリ、廃プラスチック類が占めているが、このうち汚泥と廃アルカリに含まれて移動するものは主に分解・消失で一部は排水と最終処分、廃油と廃プラスチック類に含まれて移動するものは主に分解・消失、最終処分および資源化（生成物）へ移行していると推計された。無機化合物については汚泥と廃酸の移動に伴う廃棄物処理への移動が主要であるが、処理を通じて大部分がそれぞれ最終処分、排水へ移行していると推計された。データ数と届出移動量が比較的多かった物質を例として物質ごとの推計結果を見ると（図 1.11）、主要な移行先は全物質合計で見た場合と同様であった。無機化合物では最終処分と排水への分配が物質によって異なっているが、これは主に最終処分と中和の処理パターンへの移動割合の違いによるものである。

以上より、廃棄物処理へ移動した後の PRTR 対象物質の移行先は分解・消失、排水、最終処分、資源化が主要であると考えられた。排水と最終処分については、事業所の排水や放流水、最終処分場の浸出水など十分な管理がされていると考えられるが、それらの管理によって幅広い PRTR 対象物質の環境排出がどのように管理されているかを把握することは重要と考えられる。また、資源化について、廃油の資源化は主に燃料利用であることから、利用先で有機化合物は分解・消失、無機化合物は焼却と同様の分配ののち、排ガス処理等での除去がなされると考えられるが、廃プラスチック類の資源化についてはマテリアルリサイクルへの混入もあり得ることから、その実態を把握しておくことは重要と考えられる。

本研究で構築した推計手法では、個別物質ごとにこのような結果を得ることができることから、廃棄物処理へ移動した後の PRTR 対象物質の管理において注視すべき物質と処理パターンの組合せを把握することができる。

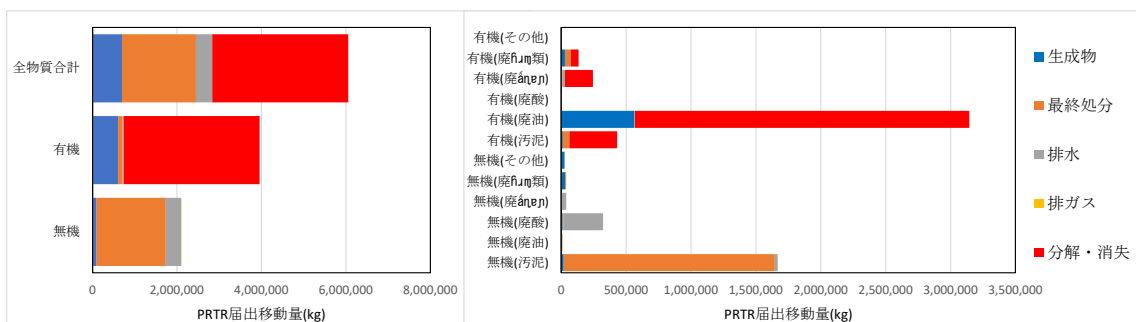


図 1.10 廃棄物処理を通じた PRTR 対象物質の移行先の推計結果 (2 都道府県、約 150 物質合計)

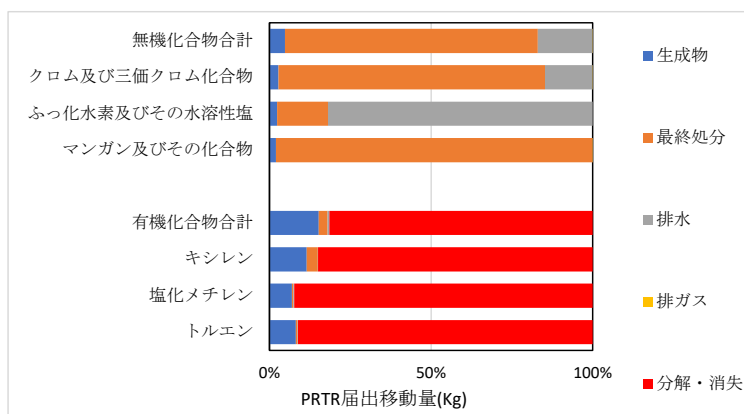


図 1.11 産業廃棄物処理を通じた物質ごとの移行先の推計結果の例 (2 都道府県合計)

## 5. 研究目標の達成状況

PRTR データの捕捉範囲と正確性の評価、整理については、主要 10 業種における 225 物質を含む届出データの算出方法等の実態を明らかにし、それに基づいて届出データの正確性を評価した結果を示した。また、12 物質について産業連関表をベースに作成したハイブリッド勘定表を用いた PRTR データの検証を行って物質フロー分析が PRTR データの検証において有用な手段となり得ることを示すとともに、テーマ 2 で蓄積したモニタリングデータも含めて整理した環境中検出状況の情報と PRTR データを入力値とした環境中予測濃度のモデル計算値を約 300 物質について整備し、それらに基づいて PRTR データによる環境排出量の捕捉範囲を評価した結果を示した。さらに、当初の計画に加えてすそ切り以下推計排出量の正確性を評価した結果も示した。廃棄物の処理・再生利用における化学物質フローの推計と手法提示については、PRTR 届出移動量データの詳細を把握し、廃棄物処理への化学物質フローの実態を明らかにするとともに、マニフェストや処理実績報告といった廃棄物行政報告データと一部の PRTR データにおける廃棄物の種類や処理方法の情報に不整合があることを示した。また、整合するデータの接続と処理プロセスにおける分配率パラメータの設定により、PRTR 届出移動量データを活用し、廃棄物の処理・再生利用における化学物質フローを推計する手法を提示した。以上より、本研究では設定した目標を十分に達成することができた。

## 6. 引用文献

- 1) 経済産業省・環境省 (2019) PRTR 排出量等算出マニュアル第 4.2 版 第 I 部基本編。
- 2) OECD (2005) Framework for Selecting and Applying PRTR Release Estimation Techniques, ENV/JM/MONO(2005)18.
- 3) 株式会社環境計画研究所 (2018) 平成 29 年度化学物質安全対策 (すそ切り以下事業者排出量推計手法、オゾン層破壊物質及び低含有率物質の排出量推計手法に関する調査) 報告書、10pp.
- 4) 経済産業省 (2016) 生産動態統計年報化学工業統計編
- 5) 財務省, 貿易統計, <https://www.customs.go.jp/toukei/srch/index.htm?M=29&P=0>

- 6) 総務省（2019）平成 27 年（2015 年）産業連関表物量表
- 7) シーエムシー出版（2018）内外化学品資料 2018 年度版
- 8) 重化学工業通信社（2016）化学品ハンドブック 2016
- 9) 環境省，揮発性有機化合物（VOC）排出インベントリ
- 10) 小口正弘（2018）廃棄物の焼却処理に伴う化学物質のフローと環境排出量推計に関する研究、環境研究総合推進費補助金（3K153003）総合研究報告書
- 11) 小口正弘・大島一憲（2018）環境排出量としての PRTR 届出排出量の不確実性評価．第 27 回環境化学討論会プログラム集．

## II-2 排出量への寄与が大きい業種における排出量推定手法の高度化

国立研究開発法人土木研究所

水環境研究グループ 水質チーム

對馬 育夫

水環境研究グループ 水質チーム

平山 孝浩

水環境研究グループ 水質チーム

高沢 麻里

水環境研究グループ 水質チーム

小森 行也（令和元年度～令和2年度）

国立大学法人東海国立大学機構岐阜大学

工学部社会基盤工学科

鈴木 裕識

### [要旨]

本サブテーマでは、PRTR 物質の下水処理施設に係る排出量推計手法の高度化のため、実測データの蓄積による下水処理施設における流入量と移行率の検証を行うとともに、これまでに推計値が得られていない下水処理過程で非意図的に生成する物質の推計手法の提案を実施した。PRTR 届出外排出量推計における下水処理施設に係る排出量データとその根拠を整理し、下水処理施設への流入量情報が十分ではないこと、放流水への移行率の設定情報の妥当性の検証が必要であることを整理した。次に、下水処理施設における流入量と移行率の検証を行うための実測データの効率的な蓄積に向けて、有機化合物 91 物質、金属類 17 物質の計 108 物質について下水試料中の存在有無をスクリーニングでき、また、そのうち有機化合物 66 物質、金属類 17 物質の計 83 物質について定量分析が可能な一斉分析手法を構築した。同手法を用いて、25 回の下水処理施設調査における流入水および放流水の採取、測定、4 施設における下水処理プロセス内の詳細調査を効率的に実施して、流入水では 50 物質、放流水では 64 物質に関する存在実態データを得た。その実測データに基づき、現行の届出外排出量推計において用いられている下水処理施設への流入量と放流水への移行率データの検証を行い、流入量が物質により過大・過小評価されているため流入水の実測に基づく継続的な検証が求められること、実測データに基づく移行率は平均値の算出等についてデータ処理を適切に行うことでより適切な移行率が設定できると考えられること、簡易推計式に基づいて設定された移行率は実測データと大きく乖離している場合があり、実測データの蓄積による移行率の設定が必要であることを示した。また、活性汚泥への貯留によって下水処理プロセス内で循環する物質についてはその挙動に留意が必要であり、物質や処理施設の条件によっては一律の移行率設定では排出量推計の精緻化に限界があることを明らかにした。これらの結果をふまえ、現行の推計において推計値が得られていない 3 物質について新たに推計値を算出するとともに、下水処理施設への流入量が把握されていなかった 9 物質と精緻化された移行率が得られた 10 物質の推計排出量を示した。さらに、下水処理施設で非意図的に排出量が増加する可能性のある PFOS を対象に、回分式生物処理実験および実施施設における実測調査により、下水処理プロセスにおける前駆体からの生成と活性汚泥を介した循環の挙動を明らかにした。これに基づいて前駆体からの生成を考慮したシナリオについて排出量推計を行い、現行の届出外排出量推計における流入量と移行率に基づく推計では PFOS 排出量を過小評価する可能性を示した。

### 1. 研究開発目的

本サブテーマでは、下水処理施設に係る排出量推計手法の高度化を目指し、実測データの蓄積による下水処理施設における流入量と移行率の検証と、下水処理過程における非意図的な生成物質の挙動解明とそれに対応する排出量推計手法の提案を行う。前者では、広範囲の物質を一斉に分析し、効率的に実測データを収集する体制を構築し、現行の推計手法で推計に用いられている流入量と移行率を検証して、排出量推計を高度化する。後者では、下水処理施設への流入前後で排出量が増加する可能性のある物質として PFOS に着目し、下水処理過程における挙動を明らかにして、推計値追加のための推計手法を提案する。

## 2. 研究目標

下水処理施設を対象として、PRTR 届出データや現行の届出外推計手法で扱われているデータを含む公表データについて特性を把握するとともに、実測データの蓄積・解析を行って下水処理施設への化学物質の流入、下水処理施設からの排出、処理施設内における物質挙動の実態を明らかにする。これに基づき、下水処理施設における化学物質流入量の推計及び公共用水域への移行率の改善、精緻化を行い、数十物質について当該施設からの排出量推計を高度化する。

## 3. 研究開発内容

### 3-1 下水処理施設に係る排出量の推計状況の整理と分類

PRTR 対象物質の届出外排出量推計において推計が行われている排出源のうち、下水処理施設は推計物質数が最も多く、過去 5 年間（2016～2019 年度）における推計では 176～184 物質について値が得られている。このうち、公共用水域への排出量は 161～169 物質について推計されている。一方、特別要件施設として届出されている 31 物質を除く 262～270 物質（462 の PRTR 対象物質の 6 割弱）については、過去 5 年間において公共用水域への排出量推計が行われていない。

本節では、下水処理施設に係る排出量推計方法の詳細資料<sup>1)</sup>に基づき、推計値が得られている物質について、推計の高度化に向けて着目すべき点を整理した。推計に用いられているデータの特徴を物質ごとに整理するとともに、公共用水域への全排出量（届出および届出外）に占める下水処理施設に係る届出外排出量推計値の寄与を整理した。届出外推計排出量は排出媒体ごとの推計値が示されていないが、届出外排出量推計方法の詳細<sup>1)</sup>から各排出源からの推計値を媒体別に割り付けて公共用水域への届出外排出量を整理し、公共用水域への全排出量を求めた。また、届出外排出量が推計されていない物質について、推計値が得られていない要因を届出外排出量推計の資料を基に整理した。

### 3-2 下水処理施設における実測データの収集に基づく届出外排出量推計値の検証・高度化

#### 3.2.1 下水試料に含まれる PRTR 対象物質の一斉分析手法の構築

下水処理施設からの PRTR 対象物質の排出はそのほとんどが上流事業者等からの施設への流入に由来するものである。したがって、施設や物質によって下水中の存在状況が異なり、特に有機化合物は下水試料中の存在濃度が低く検出頻度が低いことも想定される。そこで本研究では、多様な PRTR 対象物質の存在状況の把握と実測データの収集を効率的に行うため、下水試料中の PRTR 対象物質の一斉分析手法を構築した。

有機化合物については、液体クロマトグラフ-四重極飛行時間型質量分析計（以下「LC-QToF-MS」）を用いた下水試料中のターゲットスクリーニング分析手法を開発した。これは、下水試料に含まれる化学物質の網羅的な精密質量測定データを一斉に取得し、目的化合物の照合情報が収録されたデータベース（DB）と測定データを突合することによって、試料中の化学物質の存在の有無を一斉に把握する手法である<sup>2)</sup>。本研究では、ターゲットスクリーニングの基盤となる DB について、標準品解析手順を検討するとともに、対象物質の不足を補うために既存の外部データからも必要情報を引用し、下水試料中の PRTR 対象物質の検出有無判定のための独自の DB を構築した。これに、誘導結合プラズマ質量分析計（ICP-MS）による金属およびその化合物と無機化合物（以下、「無機化合物」と総称する。）の一斉分析を加え、下水試料の PRTR 対象物質の一斉分析を行う体制を整えた。

#### 3.2.2 実施における実測データの取得

下水処理施設における下水試料の採取を行い、3.2.1 で構築した分析手法を活用して下水試料中の PRTR 対象物質濃度の実測データを取得した。調査は、PRTR 届出移動量（下水道）の移動先施設となっている物質の種類が比較的多い 7 施設（33～175 物質）と少ない 9 施設（3～18 物質）の計 16 施設を対象として実施した。調査対象とした 16 施設は合計で全国の合計下水処理水量<sup>3)</sup>の 6.5%（2016 年度下水道統計から年間処理水量を参照）を占める。事業区分、処理方式の内訳（処理水量ベース）は図 2.1 に示すように全国施設の内訳において代表的である区分および方式を含んでいる。流入下水中の化学物質含

有特性は場所、日時、天候等により大きく異なる点には留意した上で、今回対象とした 16 施設への PRTR 対象物質の流入量および処理後の排出量については、全国の傾向から大きく逸脱していないと考えられる。

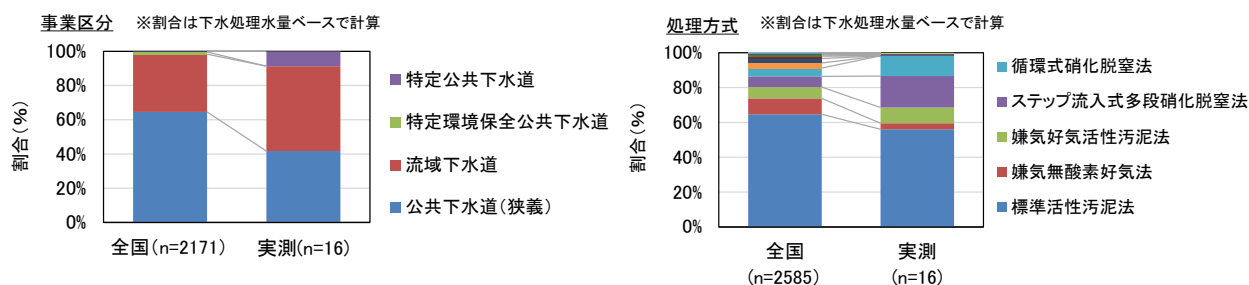


図 2.1 調査対象施設と全国処理施設の事業区分 (左) と処理方式 (右) の内訳

調査対象施設において、のべ 25 の流入水と放流水の試料セットを採取し、分析した。試料前処理は、無機化合物については常圧酸分解 (ホットプレート法) または加圧酸分解 (マイクロ波法)、有機化合物については固液分離後に懸濁態は溶媒抽出法、溶存態は固相抽出法で行った。分析は、無機化合物については ICP-MS による定量分析を、有機化合物についてはターゲットスクリーニングで PRTR 物質のピークの有無を確認後、ピークが確認された物質について定量分析を行った。なお、スクリーニングにおける有無判定は、①シグナル強度が 1000 以上、②質量許容範囲 $\pm 30$  ppm 以内、③保持時間 $\pm 1$  分以内、④フラグメントの一致が 1 つ以上の 4 項目に該当するものを検出ありとした。これに該当しなかった場合は不検出として扱った。また、水銀については一斉分析とは別に、金-アマルガム法によって測定した。

また、一部の施設において、下水処理プロセスの各所における試料採取、分析による詳細調査を行った。採取試料は流入水、返流水、最初沈殿池流出水、最初沈殿池汚泥、活性汚泥混合液、最終沈殿池流出水、放流水であり、これらの分析結果から下水処理プロセスにおける PRTR 対象物質の詳細な物質挙動を把握した。試料前処理および分析方法は前述のものと同様である。

### 3.2.3 実測データに基づく届出外排出量推計の検証と高度化

現行の届出外排出量推計において、下水処理施設に係る公共用水域への排出量は化学物質ごとに「下水処理施設への流入量」に「放流水への移行率」を乗じて推計されている。流入量は上流事業者の届出移動量 (下水道)、すそ切り以下事業者、非点源、家庭排水、路面等からの雨水からの推計流入量に基づいて推計されている。また、移行率は実測値、物性に基づく簡易推計式による推計、標準活性汚泥処理における挙動シミュレーションのいずれかにより設定されている。本研究では、得られた実測データを用い、現行の届出外排出量推計において用いられている流入量と移行率の妥当性を検証するとともに、得られた実測データに基づく排出量推計を行った。

#### ① 流入水の実測データに基づく流入量の検証

得られた流入水の実測データに基づいて下水処理施設への PRTR 対象物質の流入量を推計した。推計は、施設ごとの実測濃度と年間流入水量 (処理水量に等しいと仮定して年間処理水量データ<sup>3)</sup> を引用) から施設ごとの流入量を計算してその総和を求め、調査対象施設の合計処理水量と全国の合計処理水量の比から全国の流入量相当値に換算した。この値を届出外排出量推計において用いられている流入量推計値と比較し、その妥当性を検証した。なお、検出例のみで積算することによる過大評価を避けるため、全国の流入量相当値を求める際には不検出であった処理施設の処理水量も含めて計算した。

#### ② 流入水と放流水の実測データに基づく移行率の検証

通年の全調査 ( $n=25$ ) における流入水と放流水の実測データから放流水への移行率 (1-除去率) を施設および物質ごとに算出し、これを届出外排出量推計で用いられている公共用水域への移行率の設定値と比較した。なお、放流水への移行率の計算において、流入水濃度が定量下限値 (LOQ) 未満であった物質は、移行率算出から除いた。放流水濃度のみが LOQ または検出下限値 (LOD) 未満であった場合、LOQ



未満の濃度は LOQ に 1/2 を乗じた値、LOD 未満の濃度は LOD に 1/2 を乗じた値と仮定して移行率を求めた。

### ③詳細調査に基づく下水処理における物質挙動の把握とそれに基づく流入量と移行率の検証

調査対象施設のうち 4 施設において、処理工程別に下水試料の採取・分析を行った。その結果と処理工程別の処理水量データから、処理プロセス内での物質収支を物質ごとに推定した。詳細調査における試料採取は 24 時間コンポジット採取とし、調査は各施設 1 回ずつ実施した。

### ④本研究で得られた流入量と移行率を用いた下水処理施設に係る排出量の推計

①～③で得られた検証結果をふまえ、本研究で得られた実測データから推計、算出した流入量と移行率を用いて届出外排出量に相当する値を推計した。

## 3-3 下水処理過程で負荷量が増加する物質の挙動の把握と排出量の推計

2010 年に PRTR 対象物質に追加されたペルフルオロ（オクタン-1-スルホン酸）（物質政令番号 396：以下、PFOS）は、追加以降、届出排出量、届出移動量、届出外排出量推計値は全てゼロであり、原体の排出は事業者により管理されていると考えられる。一方で、3-2 の実測調査では放流水から PFOS が定量下限値以上で検出された施設もあった。また、その中には放流水中の濃度が流入水よりも高かったケースもあり、文献<sup>4)</sup>で報告されている 3,000 種程度の類縁化合物や前駆体となる有機フッ素化合物類の存在も示唆される。そこで、本研究では、前駆体を含む PFOS の下水処理過程における挙動を実験的アプローチおよび実測的アプローチによって検討するとともに、前駆体の有無を想定した PFOS のシナリオ別排出量推計を行った。

### 3.3.1 *N*-EtFOSE を用いた活性汚泥処理中における PFOS 生成挙動の解明

下水の活性汚泥処理における前駆体からの PFOS 生成挙動を明らかにするため、人工下水と活性汚泥を用いた回分式生物処理実験により、代表的な前駆体 *N*-EtFOSE からの PFOS 生成挙動を解析した。なお、PFOS は微量ながら環境中に遍在しやすいことから、実験中に添加物質由来を除いて、PFOS が十分に低濃度となるよう実験環境を整備しつつ、実験を行った。

実験には人工下水と下水処理場から採取した活性汚泥を用いた。人工下水の TOC 濃度は 22.5 mg/L、実測に基づく C:N:P 比は 100:16.6:1.5 であり、一般的な有機物濃度と栄養塩組成であった。添加物質 *N*-EtFOSE の濃度は 5,000 μg/L とし、25°C の恒温条件下で 500 mL のフラスコ内で曝気して行い、0、1、2、3、5、9、13、25 時間経過ごとに活性汚泥混合液（MLSS 濃度 1579±56mg/L）を回収して、溶存態と懸濁態の形態別に分析に供した。溶存態試料は希釈およびろ過、懸濁態試料は凍結乾燥後にメタノールを用いた超音波抽出を行い前処理した。測定は 3-1 で構築した分析手法を応用して実施し、*N*-EtFOSE と PFOS は標準品により作成した検量線を用いて内部標準添加法により定量した。さらに、得られた精密質量測定データを用いて *N*-EtFOSE からの中間生成が考えられる類縁化合物を Suspect Screening 解析により探索した。なお、人工下水に PFOS のみを添加（500 μg/L）した実験で、実験開始 25 時間後の PFOS 濃度は添加濃度の 116%±12%と分析誤差範囲の変動であり、前駆体を添加しない人工下水では PFOS の生成がないことを確認した。

### 3.3.2 実下水を用いた活性汚泥処理中における PFOS 生成挙動の調査

実際の下水処理施設では *N*-EtFOSE のような単一の前駆体のみが流入しているとは考え難い。一方で、多くの PFOS 前駆体を特定し、それを用いた 3.3.1 のような実験を行うことも困難である。そこで、実下水（*n*=2）を用いて前駆体 *N*-EtFOSE を添加しない回分式生物処理実験を行い、実下水における PFOS の濃度変化を調べることで、実下水に含まれると考えられる多数の前駆体からの PFOS 生成挙動を解析した。実験は 3.3.1 と同様に行った。

### 3.3.3 下水試料中の PFOS 生成ポテンシャルの評価

前駆体を考慮した PFOS 排出量を推計するためには、下水処理施設への前駆体流入量と PFOS への変換率を実



測により評価することが望ましいが、未知のものも含めた前駆体を個別に評価することは難しい。そこで、前駆体を PFOS の生成ポテンシャルと捉え、PFOS 生成ポテンシャル (PFOS-FP) を包括的に評価する手法を導入し、下水処理施設の流入水 (n=5) を対象に PFOS-FP を分析した。評価方法は既報<sup>5)</sup>の酸化分解法に準拠して行った。溶存態試料は 125 mL の PPCO 製ボトルに入れ、NaOH が 150 mM、ペルオキシ二硫酸カリウム ( $K_2S_2O_8$ ) が 60 mM となるように調整した。その後、95°C、24 時間の条件下でオートクレーブを用いて、加温した。24 時間後に放冷し、得られた試料を 3.3.1 と同様の前処理方法を行った。懸濁態試料は、メタノールを用いて振とうした抽出液を PPCO 製ボトルに入れ残留 PFOS を除去済みの超純水で 250mL にメスアップした。その後、溶存態の PFOS-FP と同様の方法で前処理を行った。測定は 3.3.1 と同様に実施した。なお、本手法により測定される PFOS-FP は、試料中の前駆体を強制的に化学的に酸化させて得られるから PFOS 濃度から算出するものであり、生分解による生成濃度を評価したものではないことに留意が必要である。

### 3.3.4 前駆体の流入と生物処理プロセス内の循環を考慮した PFOS の排出量推計

3.3.1 から 3.3.3 の結果をもとに、下水処理施設への PFOS 前駆体の流入と生物処理プロセス内循環の有無を分けたシナリオにおける PFOS 排出量の推計を行った。前駆体からの生成を考慮した PFOS の排出量推計には、①PFOS 自体の流入量、②前駆体の有無、③前駆体の流入量、④返送汚泥中での PFOS 貯留量の条件が必要である。①については 3.3.2 の結果から設定した。②については前駆体なしと前駆体ありのシナリオを設定した。③の前駆体の流入量については、3.3.2 の結果をふまえて PFOS 流入量と同程度、1/10、10 倍の 3 つのシナリオを設定した。④の返送汚泥中の PFOS 貯留量については、0kg/年、0kg/年を初期条件としてシナリオ計算を開始して定常状態になった時の値、PFOS 流入量の 29%にあたる 71 kg/年 (実測結果に基づく) の 3 つのシナリオを設定した。これらを組み合わせた 10 つのシナリオについて、PFOS の年間排出量を推計した。

## 4. 結果及び考察

### 4-1 下水処理施設に係る排出量の推計状況の整理と分類

#### (1) 届出外排出量推計値が得られている物質

2016 年度の下処理施設からの公共用水域への届出外推計において、推計値が得られている 161 物質のうち、120 物質は PRTR データにおける公共用水域への全排出量 (届出および届出外推計排出量の合計) に占める下水処理施設の寄与が 10%以上であり、このうち 38 物質は PRTR データの排出量の全てが下水処理施設に係る排出量であった。これより、下水処理施設に係る推計排出量の精度は、PRTR データにおける排出量全体の正確性に大きく寄与する物質が多く存在すると考えられた。

161 物質のうち 135 物質は、届出外排出量推計において上流事業者の届出移動量とすそ切り以下のみから流入量が設定されており、多くの物質でその他の排出源が考慮されていない。これに加え、上流事業者の下水道放流から下水処理施設への流入の間の濃度減少等の可能性もある。これより、推計値が得られている物質についても、施設への流入実態をふまえた流入量データの妥当性検証が必要である。また、放流水への移行率については、161 物質のうち 29 物質については実測データに基づく設定が行われている一方、132 物質についてはオクタノール/水分配係数やヘンリー定数といった物性値に基づく簡易推計式等により設定されている。これより、推計高度化に向けては、実測、簡易推計式による設定値のそれぞれについて、その妥当性の検証が必要と考えられた。

#### (2) 届出外排出量推計値が得られていない物質

届出外排出量推計値が得られていない 270 物質については、施設への流入量と放流水への移行率のいずれか、または両方が得られていないことが理由である。270 物質のうち 8 割にあたる 216 物質については、流入量のみ得られていないために届出外排出量の推計が行われていなかった。すなわち、上流事業者の届出移動量 (下水道) もゼロであるということである。しかし、その他の事業者からの流入以外の流入源に関する知見も得られておらず、その実態を把握することが必要である。他の流入源からの流入は届出データ等から把握することは困難であるが、下水流入水の実測データの充実によって把握する

ことができる。

一方、20 物質については移行率のみ設定されていないために届出外排出量の推計が行われていなかった（移行率が 0%とされている場合も含む）。しかし、これらの物質にはアジ化ナトリウム（物質政令番号 11）、塩化第二鉄（71）、二塩化酸化ジルコニウム（307）、ペルオキシ二硫酸の水溶性塩（395）等、水中でのイオン化状態の変化により定量的な捕捉が容易でないものも含まれ、移行率設定のための実測データの取得は容易ではないと考えられる。また、34 物質は流入量と移行率の両方が得られていないために届出外排出量の推計が行われていなかったが、18 物質は HCFC-142b(103)等のフロン類やオゾン層破壊物質の一種である臭化メチル(386)等、水溶性が低く水中での存在可能性が低いと考えられる物質であった。その他にはカルシウムシアナミド(77)やりん化アルミニウム(456)といった水中でのイオン化状態の変化により定量的な捕捉が容易ではない物質が含まれており、移行率と流入量データが得られても推計値の追加は容易ではないと考えられる。これより、推計が行われていない物質について新たに移行率を設定することの優先度は高くはないと考えられた。

#### 4-2 下水処理施設における実測データの収集に基づく届出外排出量推計値の検証・高度化

##### 4.2.1 下水試料に含まれる PRTR 対象物質の一斉分析手法の構築

PRTR 対象有機化合物の情報を収録したターゲットスクリーニング DB 構築のために、図 2.2 の手順で標準品解析を行い、DB へ収録した。メタノールを用いて 3 段階で希釈した標準溶液（0.1、1、10  $\mu\text{g/mL}$ ）を測定し、DB へ登録する  $m/z$  や保持時間（RT）等の情報について、順を追って取得した。標準品の測定から取得したトータルイオンクロマトグラム（TIC）から、目的物質の理論  $m/z$  を用いて質量クロマトグラム（EIC）を抽出後、それぞれの濃度における 3 つのクロマトグラム上で  $m/z$ 、RT およびピーク形状が同一であることを確認し、プリカーサーイオンを決定した（質量誤差： $\pm 1$  ppm）。次に、プリカーサーイオンと同一の RT に検出されたフラグメント（無段階 MS/MS で取得：10 - 40V）を全て抽出し、共通する  $m/z$  のみを抽出した。それらのうち 3 点の異なる濃度に応じて、スペクトル強度に増減がみられた精密質量値（ $r^2 > 0.90$ ）をフラグメントイオン候補とし、それらの精密質量値から組成式を割り出して、プリカーサーイオンと整合性のあるものをプロダクトイオンとして決定した。以上の手順を用い、PRTR 対象有機物質のうち標準品を入手できた 70 物質について DB への登録情報を取得した。

この解析手順による DB 構築手法の利点は、無段階 MS/MS で得られる限りのフラグメントイオン候補を取得しながら、その際に誤って取り込んでしまった候補を複数濃度の標準品測定データを用いて精査し、突合に有力なフラグメントイオン順に情報を DB に登録できる点である。夾雑物が多く含まれることが想定される下水試料中では、同一の RT で溶出され MS 内で生成するイオンが複雑化することで、本来検出されるべき対象物質が見落とされる可能性があるが<sup>6)</sup>、本手法では突合に有力なフラグメントイオンを複数登録することにより、突合妨害のリスクを低減し見落としを最小限に抑えることができる。

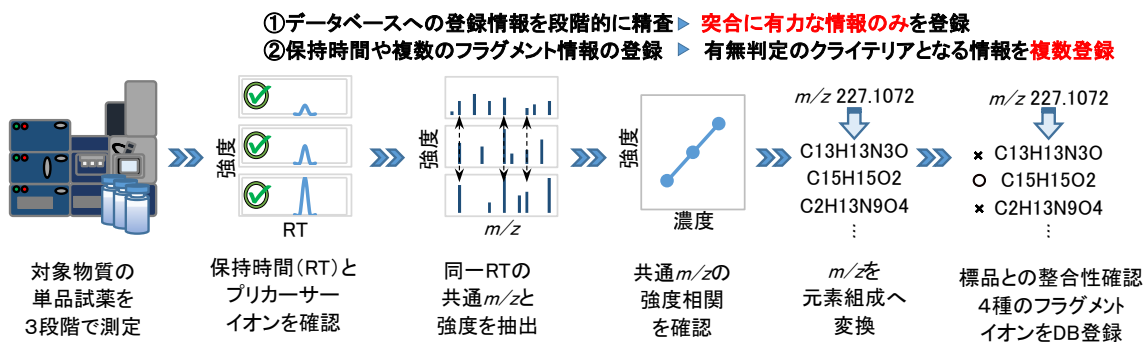


図 2.2 PRTR 対象有機化合物のターゲットスクリーニング DB の構築手順

また、標準品を入手できなかった物質については、既存の DB (Automated Identification and Quantification System with a Database (AIQS-LC)<sup>2)</sup>および公開データ (The Joint Danube Survey

(JDS)<sup>7)</sup>、MassBank Europe<sup>8)</sup> から精密質量値と RT を引用し、本研究で構築した DB と統合した。なお引用データの RT は、本研究で用いた装置による測定結果と比較できるように、相対 RT (RRT) として補正した。これにより、91 の PRTR 対象物質の情報を収録した新たな DB を構築した (表 2.1)。また、検量線の直線性と添加回収率 (再現性を含む) を基準に定量の可否を検討した結果、91 のうち 66 物質が定量可能となった。これに、ICP-MS の一斉分析による定量が可能な 17 の無機化合物を加え、108 物質のスクリーニング、83 物質の定量分析が可能な下水試料の一斉分析手法を構築した。

表 2.1 本研究で構築したターゲットスクリーニング法で分析可能な 91 の PRTR 対象物質

PRTR 政令番号	物質名	PRTR 政令番号	物質名	PRTR 政令番号	物質名
17	オルト-アニジジン	168	イブロジオン	364	フェンビロキシメート
21	クロリダゾン	169	ジウロン	369	プロバルギット
22	フィプロニル	170	テトラコナゾール	370	ピリダベン
25	メトリブジン	171	プロピコナゾール	371	テブフェンピラド
27	メタミトロン	172	オキサジクロメホン	383	プロマシル
30	直鎖アルキルベンゼンスルホン酸及びその塩(アルキル基の炭素数が10から14までのもの及びその混合物に限る。)	174	リニューロン	391	ヘキサメチレン=ジイソシアネート
37	ビスフェノールA	183	ピラゾレート	393	ベタナフトール
40	ピフェナゼート	198	ジメエート	396	PFOS
41	フルトラニル	206	カルボスルファン	402	メフェナセット
46	キサロホップエチル	207	2,6-ジ-ターシャリ-ブチル-4-クレ	403	ベンゾフェノン
52	アラニカルブ	212	アセフェート	422	フェリムゾン
70	エマメクテンB1a安息香酸塩及びエマメクテンB1b安息香酸塩の混合物	221	ベンフラカルブ	425	イソプロカルブ
74	パラ-オクチルフェノール	224	N,N-ジメチルDデシルアミン=N-オキ	426	カルボフラン
90	アトラジン	225	トリクロルホン	427	カルバリル
91	シアナジン	229	チオファネートメチル	428	フェノカルブ
93	メトラクロール	231	オルト-トリジン	429	ハロスルフロメチル
96	ジフェノコナゾール	248	ダイアジン	431	アゾキシストロビン
100	プレチラクロール	252	フェンチオン	434	オキサミル
113	シマジン	267	チオンカルブ	435	ピリミノバックメチル
114	インダノファン	291	1,3,5-トリリス(2,3-エポキシプロピル)-1,3,5-トリアジン-2,4,6(1H,3H,5H)-トリオン	442	メプロニル
116	ヘキシチアゾクス	294	2,4,6-トリプロモフェノール	443	メソミル
117	テブコナゾール	320	ノニルフェノール	444	トリフロキシストロビン
118	ミクロブタニル	323	シメトリン	445	クレソキシメチル
119	フェンコナゾール	326	クロフェンチジン	446	4,4'-メチレンジアニリン
124	クミルロン	334	4-ヒドロキシ安息香酸メチル	449	フェンメディファム
141	シモキサニル	335	N-(4-ヒドロキシフェニル)アセトアミド	452	2-メルカプトベンゾチアゾール
143	4,4'-ジアミノジフェニルエーテル	343	カテコール	459	りん酸トリス(2-クロロエチル)
146	ピリミホスメチル	346	2-フェニルフェノール	461	りん酸トリフェニル
147	チオベンカルブ	356	フタル酸ノルマル-ブチル=ベンジル	462	りん酸トリ-ノルマル-ブチル
155	N-(シクロヘキシルチオ)フタルイミド	357	プロフェジン		
156	ジクロロアニリン	358	テブフェナド		

#### 4.2.2 実施設における実測データの取得

調査対象施設における流入水および放流水の実測の結果を図 2.3 に示す。無機化合物は元素換算濃度で示しており、鉛 (物質政令番号 304、以下同様) と鉛化合物 (305) は Pb、ニッケル (308) とニッケル化合物 (309) は Ni として合計値を示している。

無機化合物については、流入水は全 425 データ (25 施設×17 物質) の 51%にあたる 218 データで、放流水は 187 データで定量値が得られた。物質別にみると、Be は全施設の流入水と放流水の両方で検出下限値未満であったが、他の物質については 10 物質が過半数である 13 施設以上で流入水に検出され、Zn と Cu は全施設において検出された。

有機化合物については、LC-QToF-MS による測定データを 4.2.1 で構築した DB と突合し、試料に含まれる PRTR 対象有機物質の有無判定を行ったところ、DB に収録した 91 物質のうち流入水では 34 物質、放流水では 47 物質がいずれかの施設で検出有と判定された。検出有と判定された物質について定量可能な物質の定量を行い、流入水と放流水ともに 15 物質が定量下限値以上で検出された。全 1,650 データ (25 施設×66 物質) のうち流入水では 61 データ (全体の 3.7%)、放流水では 51 データ (3.1%) について定量データが得られた。物質ごとに見ると、流入水ではビスフェノール A (10 データ)、ノニルフェノール (9 データ)、プロマシル (7 データ)、PFOS (10 データ)、放流水ではビスフェノール A (8 データ)

タ)、ブロマシル (8 データ)、リン酸トリフェニル (7 データ)、PFOS (6 データ)、ノニルフェノール (4 データ) などについて比較的多くの定量データが得られた。このように、特に有機化合物については下水試料から検出されないケースも多いことから、まずはスクリーニング分析で存在有無を判定し、検出有と判定された物質について段階的に定量分析を行うという本研究で構築した分析手法は、効率的なデータ取得・蓄積につながると考えられた。

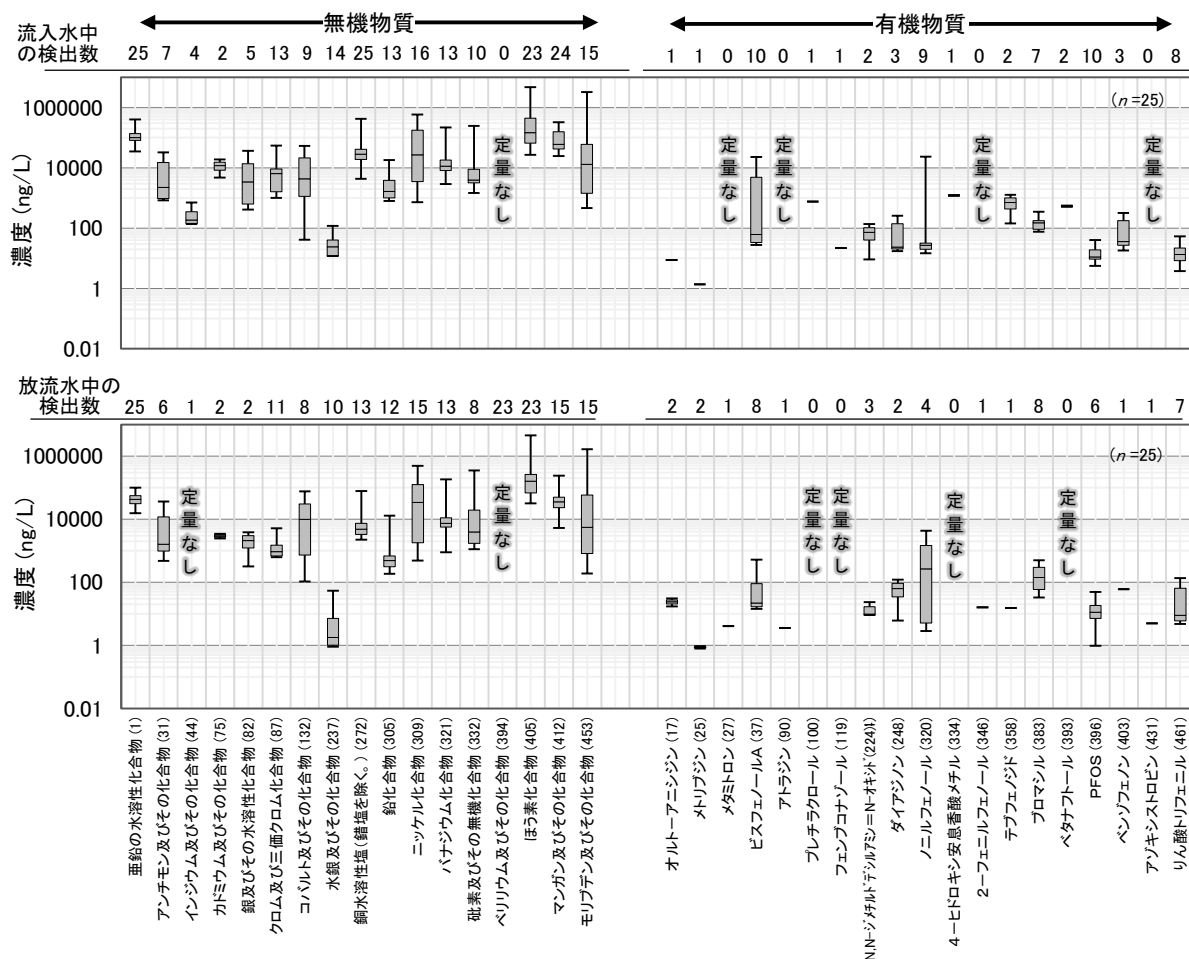


図 2.3 流入水および放流水における PRTR 物質の定量結果

#### 4.2.3 実測データに基づく届出外排出量推計の検証と高度化

##### ① 流入水の実測データに基づく流入量の検証

得られた実測値から推計した全国の処理施設への流入量と現行の届出外排出量推計で用いられている流入量の比較を図 2.4 に示す。なお、施設ごとの実測濃度からその平均値または中央値を求め、その値に流入下水量の全国合計値を乗じて計算した場合でも、施設ごとの計算値の総和から求めた全国拡大推計値と同程度の値が得られたことから、比較検証結果は拡大推計の方法によって大きく変わるものではないことを確認した。

結果が得られた 32 物質について、両者がよく一致する物質もあった一方で、本研究の実測値に基づく推計値が現行の届出外排出量推計で用いられている値よりも 1 桁程度以上大きい物質が多く、現行の推計の流入量設定値は過小評価されている可能性が示された。多くの物質の流入量が他業種からの下水道への届出移動量とすそ切り以下の推計値により設定されており、その他の流入源が考慮されていないことが要因である可能性が考えられる。例えば、As (332) は本研究の実測値に基づく推計値が現行の推計の流入量設定値を大幅に上回っていたが、これは後者の流入量が僅か 8kg/年となっているためである。8kg/年を全国の下水処理水量で除して放流水濃度換算すると 0.52ng/L となるが、これは一般的に想定される分析の検出下限値未満レベルである。本研究で得られた放流水の実測濃度からみても、現行の推

計で用いられている流入量は過小評価されている可能性が高い。他、Cu (272)、Mn (412)、B (405)、Mo(453)、V (321) についても同様であった。

一方、N,N-ジメチルドデシルアミン=N-オキシド (224) は、実測値に基づく流入量が現行の推計の流入量設定値を大きく下回った。この要因の一つには、現行の推計の流入量設定において「非点源・家庭非対象業種」からの流入量が上流事業者の届出移動量の 727 倍に相当する 2,735t/年となっており、これが過大である可能性が考えられた。また、実測データに基づく推計流入量が 69kg/年であったのに対し、届出移動量は 3,764kg/年であった。定量データ数が n=2 と少ないため、更なるデータ追加が必要ではあるが、良分解性物質である N,N-ジメチルドデシルアミン=N-オキシドは排出から下水処理施設への流入までの間に管路内等で減少していることも考えられた。

以上の結果から、現行の推計における届出移動量や家庭排水等のデータに基づく流入量の設定は、流入量を過小または過大評価しうると考えられ、施設の流入水の実測データの蓄積によって流入量データを検証、見直しすることで、届出外排出量推計の精緻化につながるものと考えられた。

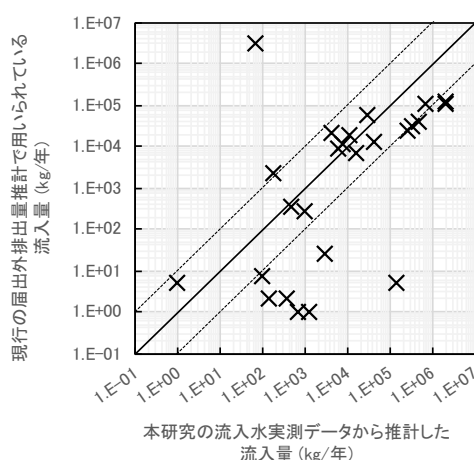


図 2.4 流入水の実測データに基づく流入量推計値と現行の届出外排出量推計における流入量設定値の比較

## ② 流入水と放流水の実測データに基づく移行率の検証

図 2.5 に、届出外排出量推計における放流水への移行率の設定値と、本研究で得られた実測データから算出した移行率を示す。なお算出対象としたデータセットは、流入水において定量下限値以上で検出され、かつ放流水濃度が流入水より低減していたものとした。流入水に対して放流水で濃度の増加が見られた物質については別途整理し、移行率が 100%を超えた回数をカウントした。

本研究の実測から移行率を取得できた物質は 22 物質である。このうち 17 物質は現行の届出外排出量推計において実測データに基づく移行率の設定、3 物質は簡易推計式等による設定が行われており、2 物質 (In (44)、PFOS (396)) は移行率が設定されていない。

移行率が簡易推計式等で設定されている 3 物質を見ると、本研究で取得した移行率と比較して 60%以上の乖離があるものも見られ、実測データに基づく移行率との差が大きい傾向が示された。これは、簡易推計式がオクタノール/水分配係数やヘンリー定数といった基礎的な物理化学的特性により設定されているために、下水や活性汚泥の媒体性状など、変化の大きい実環境での挙動を捕捉しきれていないことが要因と考えられる。これより、実測データに基づく設定により、移行率の精緻化が見込めると考えられた。

また、実測データに基づいて移行率が設定されている 17 物質について本研究の実測データに基づく移行率と比較すると、6 物質は両者がよく一致しており、届出外排出量推計において用いられている実測データに基づく移行率の設定値の妥当性が改めて示された。一方、11 物質については 10%以上の乖離が見られた。ただし、移行率の参照元文献を精査したところ、試料数の多少に関わらず調査毎の平均移

行率を更に平均化されており、設定値が適切に計算されていない可能性が考えられた。そこで、これらの物質についての移行率設定に係る調査のうち、最も多くの試料数から設定された移行率を引用し、再整理すると、例えば Ni (309) は本研究で取得した実測データから算出した移行率との差が+2%となった。このように、移行率の設定においては実測データの平均化等のデータ処理を適切に行うことが必要であり、現行の届出外排出量推計で用いられている移行率についても、この見直しを行うことで推計値の精緻化につながることを示された。

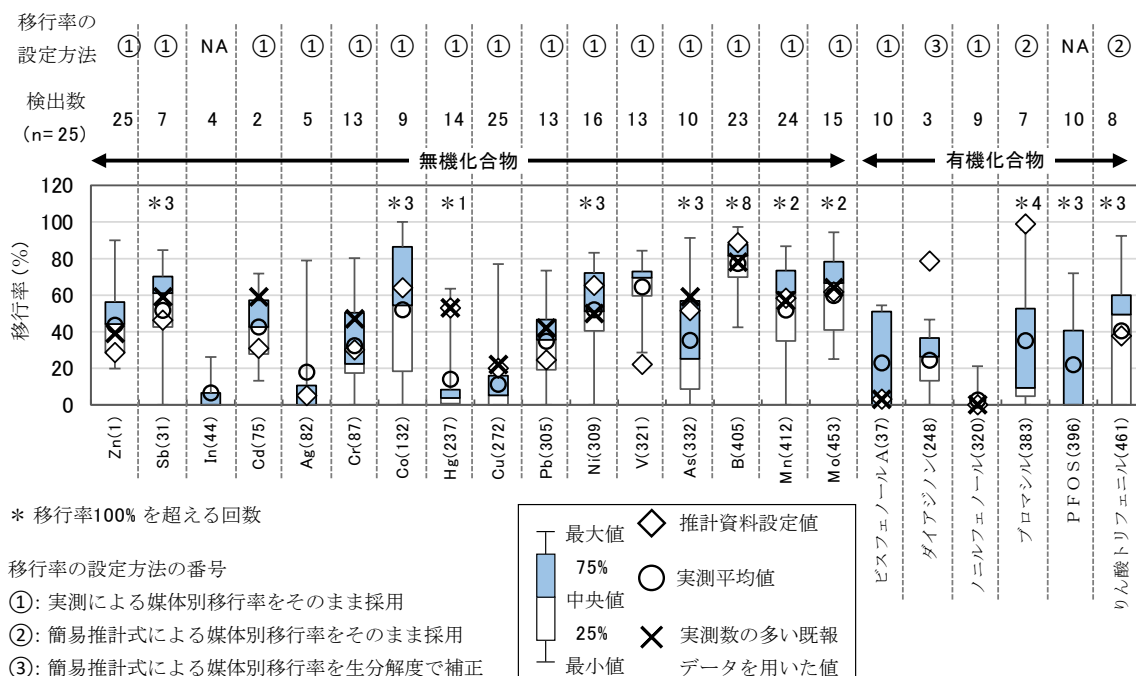


図 2.5 本研究の実測データから算出した移行率と現行の届出外排出量推計における移行率の比較

### ③ 詳細調査に基づく下水処理における物質挙動の解明と流入量および移行率の検証

4 施設における PRTR 対象物質のプロセス内物質収支について、流入量を 100 とした値として整理した。その結果をもとに、横軸に下水処理施設への流入量を 100 とした時の返送汚泥中の存在量、縦軸に実測データを用いて算出した放流水への移行率データの変動係数を示したものを図 2.6 (左) に示す。図の第三象限付近には返送汚泥への存在量が低く、移行率の変動が小さい物質が位置している (V (321)、B (405)、Mo (453))。一方、第一象限付近に位置する 12 物質は、返送汚泥を通じて処理施設内で循環、蓄積されやすく、かつ実測値に基づく移行率の変動が高いものである (Zn (1)、Sb (31)、Cd (75)、Cr (87)、Hg (237)、ダイアジノン (248)、Cu (272)、Pb (305)、Ni (309)、プロマシル (383)、Mn (412)、リン酸トリフェニル (461))。

図 2.6 (右) に例を示したように、下水処理施設の循環システム上、最終沈殿池で分離された活性汚泥の一部は余剰分として引き抜かれ、その他は返送汚泥として生物反応槽へ返送される。上述の 12 物質は下水処理において高い除去率が得られる一方で、汚泥中に存在しながら生物反応槽へ再流入し、その一部がまた放流水に移行することで、施設からの排出量を増加させると考えられる。つまり、外部からの流入量が汚泥中ストック量より小さい場合は排出量に対する流入量の寄与は小さく、汚泥ストック量に大きく依存することとなる。流入濃度レベルによっては下水処理施設からの排出量が流入量を見かけ上で上回る (放流水への移行率が 100%を超える) こともあると考えられる。例えば、施設内で循環しにくい Mo の例では、詳細調査結果から流入量 100 に対して放流水への排出は 77 と届出外推計における移行率設定値 62% と大きな乖離はないのに対し、循環しやすい Cd の例では流入水 100 に対して放流水への排出は 97 と移行率設定値 31% と大きく乖離している。

以上の結果より、特に第一象限に分類された物質については、返送汚泥を介した施設内での循環を考慮した移行率設定を行うことが必要である。また、それらの物質は移行率の施設間変動係数も大きい傾



向が見られたことから、運転条件や処理施設構内の構造の違い等により施設によって挙動が異なると考えられ、移行率を一律に設定した推計では推計の精緻化に限界があると考えられる。これより、下水処理施設における流入・排出の実測データ充実に加え、処理過程別の挙動をふまえた物質収支データを蓄積し、施設による物質挙動の違いをふまえて移行率の設定を行うことが有効であると考えられた。

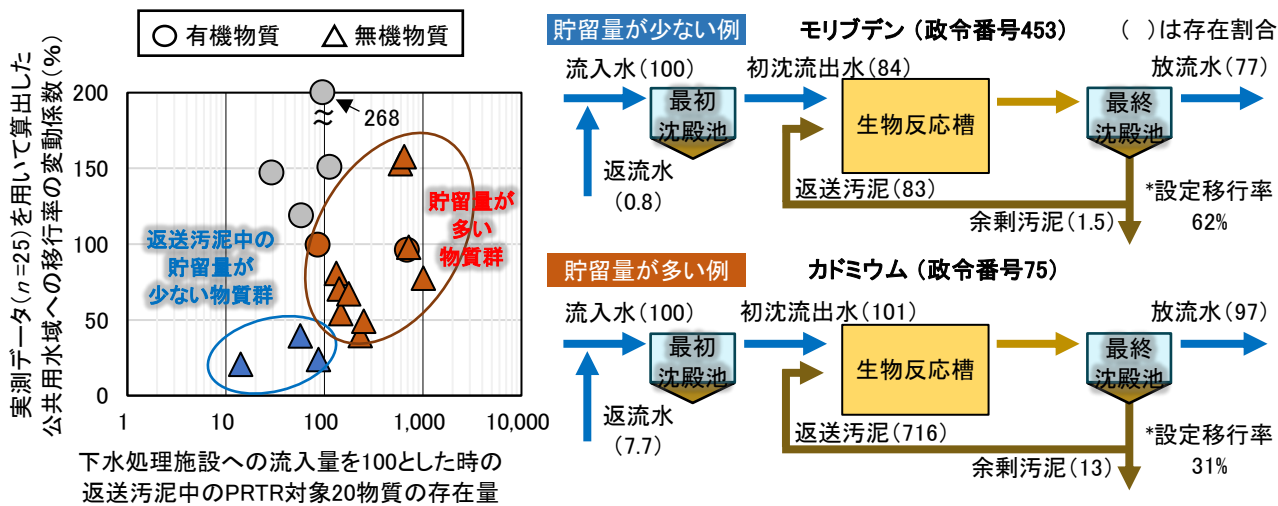


図 2.6 返送汚泥中存在量と移行率の変動（左）および下水処理過程における物質収支の例（右）

④本研究で得られた流入量と移行率を用いた下水処理施設に係る排出量の推計

①～③の結果をふまえて改善した流入量と移行率から届出外排出量に相当する値を推計した。その結果を、現行の届出外排出量推計値と合わせて図 2.7 に示す。10 物質については、実測データに基づいて流入量と移行率の改善を行い、これに基づいて排出量を推計した。加えて、現行の届出外排出量推計において流入量データが得られていないために推計されていない 12 物質について、新たに流入量を推計することで排出量の推計結果が得られた。そのうち 3 物質（In (44)、ノニルフェノール (320)、PFOS (396)) については本研究の実測データに基づいて移行率の設定も行っている。以上より、本研究において 23 物質についての排出量推計値を精緻化または追加した。本研究で開発した分析手法や実測調査に基づいて提示した知見を活用することで、他の物質についても同様に推計の精緻化または追加を行うことが可能であると考えられる。

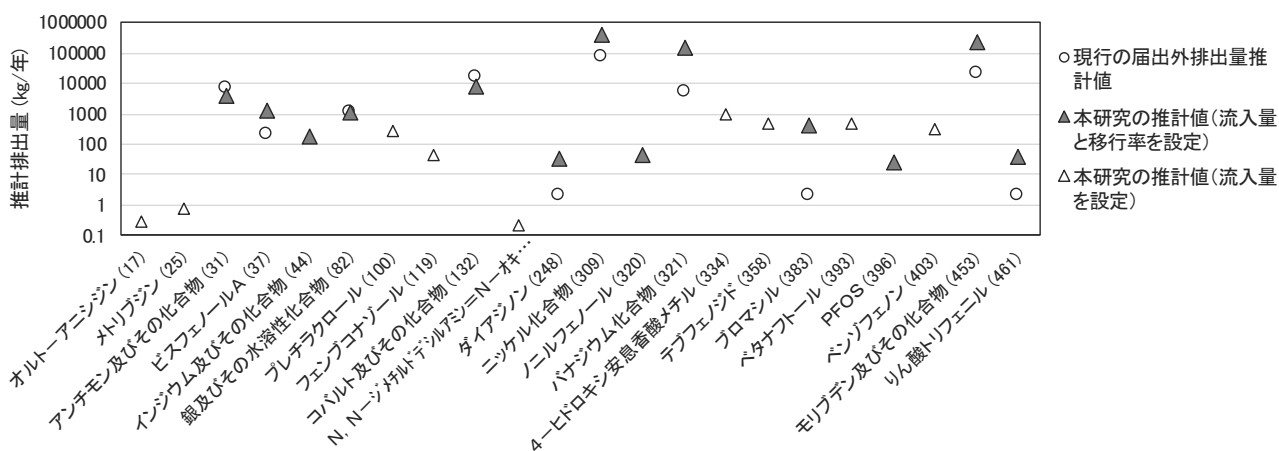


図 2.7 現行の届出外排出量推計値と本研究の結果に基づいて推計した排出量

4-3 下水処理過程で負荷量が増加する物質の挙動の把握と排出量の推計

4.3.1 N-EtFOSE を用いた活性汚泥処理中における PFOS 生成挙動の解明



図 2.8 (左) に *N*-EtFOSE を添加した人工下水を用いた実験の結果を示す。*N*-EtFOSE および PFOS 濃度は実験開始から 13 時間までそれぞれ減少、増加し、*N*-EtFOSE を前駆体とした PFOS の生成が認められた。13 時間経過以降はほぼ濃度変化がみられなかった。下水処理施設における生物処理槽の水理的滞留時間が 6 時間から長くても 12 時間程度であることから 13 時間後の結果に着目すると、*N*-EtFOSE 濃度は添加時の 5,000  $\mu\text{g/L}$  に対して 215  $\mu\text{g/L}$  まで減少していた (減少率 95.7%)。一方、PFOS 濃度は 13 時間で 23.6  $\mu\text{g/L}$  まで増加した。13 時間後における PFOS のモル生成率 (PFOS モル量/*N*-EtFOSE 投入モル量) は 0.54% であり、PFOS 生成量の約 10 倍の *N*-EtFOSE が実験後に残留していたと推察された。

Suspect Screening 解析による探索の結果、*N*-EtFOSE からの他の生成体として *N*-EtFOSAA、*N*-EtFOSA、FOSAA、FOSA が検出された。これら 4 種の化合物の測定エリア値の経時変化を図 2.8 (右) に示す。形態別存在比を見ると、PFOS 以外の 4 種の間中生成体 *N*-EtFOSAA、*N*-EtFOSA、FOSAA、FOSA はほぼ懸濁態として存在していた。また、添加物質 *N*-EtFOSE も全ての分析 (経過時間) において懸濁態存在率が 100% であった。これより、*N*-EtFOSE や中間生成体は下水処理過程で活性汚泥に収着し、返送汚泥を介して生物処理プロセスを循環していると考えられた。一方、PFOS の懸濁態存在率は *N*-EtFOSE や他の中間生成体と比べ低い 82.8%~90.2% であったことから、生成した PFOS は一定の割合で処理水中に存在し、放流水へ排出されると考えられることが示された。

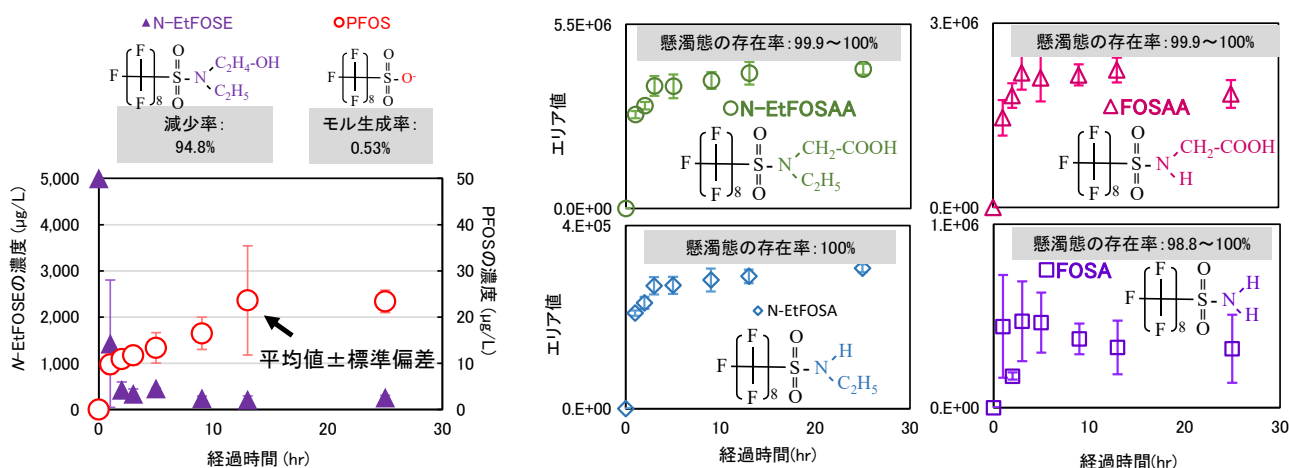


図 2.8 前駆体 *N*-EtFOSE を添加した回分式生物処理実験における前駆体と PFOS の濃度変化

#### 4.3.2 実下水を用いた活性汚泥処理中における PFOS 生成挙動の調査

図 2.9 に、実下水を用いた回分式生物処理実験における PFOS の濃度変化を示す。実験時間は 12 時間までとし、前駆体は添加していない。2 種類の実流入下水の PFOS 濃度は下水 A が 10.1 ng/L、下水 B が 7.5 ng/L であった。12 時間後の活性汚泥中の PFOS 濃度はそれぞれ 33.0 ng/L、180.7 ng/L となり、懸濁態存在比率はそれぞれ 65.7%、84.7% であった。懸濁態存在比から処理水 PFOS 濃度は 11.3 ng/L、27.7 ng/L と推計され、放流水へのみかけの移行率はそれぞれ 112% と 369% と計算された。4-2 で得られた結果では、PFOS の公共用水域への移行率は施設間の違いが大きく (変動係数 147%)、移行率が 100% を超えるケースもみられたが (10 例中 3 例)、これは前駆体からの生成が影響していたためであると考えられた。

#### 4.3.3 下水試料中の PFOS 生成ポテンシャルの評価

流入下水と放流水 (各  $n=5$ ) の PFOS 生成ポテンシャル (PFOS-FP) の分析結果を図 2.10 に示す。流入下水では、PFOS 濃度の  $16.4 \pm 13.6$  ng/L に対して PFOS-FP 濃度は  $24.6 \pm 14.2$  ng/L と評価された。PFOS-FP/PFOS 比は  $2.2 \pm 1.7$  であり、PFOS-FP は PFOS の 0.5~4 倍程度の量が下水処理施設に流入していると考えられた。一方、放流水では、PFOS 濃度の  $17.6 \pm 19.1$  ng/L に対して PFOS-FP の濃度は  $1.0 \pm 0.4$  ng/L と評価された。PFOS-FP/PFOS 比は  $0.14 \pm 0.07$  であった。つまり、PFOS-FP は放流水中にはほぼ残留して

いないことを示しており、4.3.1 で明らかにした、前駆体のほとんどが放流水に移行せずに返送汚泥中に残留しやすい傾向と整合した。また、4.3.2の結果と同様に、流入水より放流水の方が高いPFOS濃度となる程度に流入下水中に前駆体が存在する場合もあることが確認された。

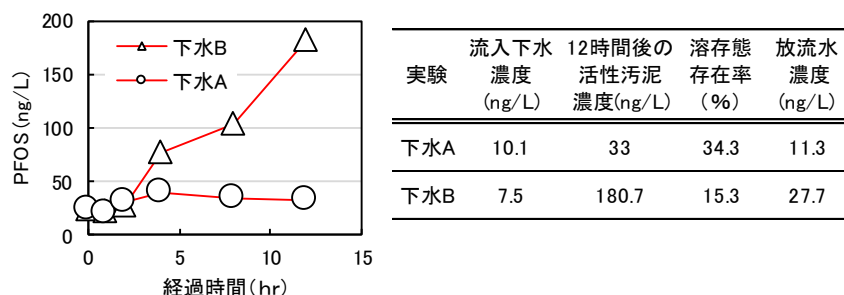


図 2.9 実下水の生分解実験における PFOS 生成の挙動

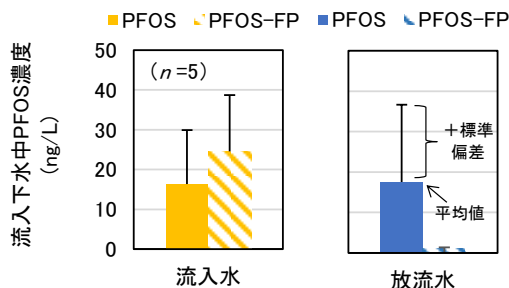


図 2.10 下水処理施設における PFOS 生成ポテンシャル (PFOS-FP) の測定結果

4.3.4 前駆体の流入と生物処理プロセス内の循環を考慮した PFOS の排出量推計

シナリオごとの下水処理施設からの PFOS 排出量推計結果を表 2.2 に示す。4.2 の実測結果 (n=25) を平均化した値を用いて算出した流入量推計値と移行率から推計した PFOS の排出量 26.3 kg/年を基準とすると、シナリオ 1、2、4、5 における推計排出量がそれと同程度の値となった。これらは前駆体の流入をゼロまたは生成ポテンシャルとして PFOS 流入量の 1/10 程度、返送汚泥中の PFOS 貯留量をゼロまたは流入量の 29%としたシナリオである。すなわち、施設への流入量と移行率から現行の届出外排出量推計の方法で PFOS 排出量を推計すると、前駆体からの生成と生物処理プロセス内での循環を考慮しない推計値とよく一致するということである。

表 2.2 前駆体の有無を想定した下水処理施設における PFOS のシナリオ別排出量推計

推計条件	①PFOS流入量 (kg/年)-固定	②前駆体流入の有無	③前駆体の流入量 (kg/年)	④返送汚泥中の PFOS貯留量	条件別のみかけの公共用水域への移行率(%)	排出量推計値 (kg/年)	
シナリオ1	120	前駆体なし	-	0	18.2	21.9	
シナリオ2				35	23.5	28.2	
シナリオ3				419	81.7	98	
シナリオ4		生成ポテンシャルとして PFOS流入量の1/10		0	20.0	24.0	
シナリオ5				35	25.3	30.4	
シナリオ6		前駆体あり		生成ポテンシャルとして PFOS流入量と同程度	460	89.7	108
シナリオ7					0	36.4	43.7
シナリオ8					837	163.3	196
シナリオ9					0	200.2	240
シナリオ10				生成ポテンシャルとして PFOS流入量の10倍	4,605	898.2	1,079
実測調査(n = 25)に基づく流入量推計値 (kg/年) × 本研究で算出した移行率 (%) から算出した排出量推計値						<b>26.3*</b>	

\* 実測に基づくPFOSの排出量推計値。この値に対し、±50%の推計結果となったシナリオに下線を引いた

しかしながら、本研究における実測や実験の結果では放流水へのみかけの移行率が 100%を超えるケースもあり、PFOS 流入量と同程度の PFOS 生成ポテンシャルを有する前駆体の流入や返送汚泥への貯留を考慮すべき施設も存在すると考えられる。実際に、4.2 における放流水の実測結果から PFOS の全国排出量を推計すると 54.8kg/年となり、現行の届出外排出量推計に相当する方法で推計した 26.3kg/年を大きく超えている。例えば、前駆体の流入量と返送汚泥中の PFOS 貯留量が最も多い条件であるシナリオ 10 では排出量が 1,079kg/年と推計され、これは前述の評価基準とした推計値の約 41 倍に相当する。このように、前駆体の流入量と返送汚泥への貯留状況によって、排出量推計は 1~2 桁異なる値となりうることから、施設による前駆体の流入や返送汚泥への貯留の違いについて実態を把握し、その特性を考慮した上で、前駆体からの生成も考慮した排出量の推計を行う必要があることが示された。

## 5. 研究目標の達成状況

PRTR 届出外排出量推計における下水処理施設に係る排出量データとその根拠を整理し、下水処理施設への流入量情報が十分ではないこと、放流水への移行率の設定情報の妥当性の検証が必要であることを整理した。実測データの効率的な蓄積に向けて、有機化合物 91 物質、金属類 17 物質の計 108 物質について下水試料中の存在有無をスクリーニングでき、そのうち有機化合物 66 物質、金属類 17 物質の計 83 物質について定量分析が可能な一斉分析法を構築した。これを用いてのべ 25 の下水処理施設における実測調査および 4 施設における下水処理プロセス内の詳細調査を実施し、流入水では 50 物質、放流水では 64 物質に関する存在実態データを得た。その実測データに基づき、現行の届出外排出量推計において用いられている下水処理施設への流入量と放流水への移行率データの検証結果を得た。また、活性汚泥への貯留によって下水処理プロセス内で循環する物質の挙動を明らかにした。これらの結果をふまえ、本研究で得られた実測データから改善された流入量と移行率を求め、10 物質についての推計排出量と現行の推計において推計値が得られていない 12 物質についての推計排出量を示した。また、これらの検討から、推計の高度化のためには、実測データの蓄積とそれに基づく流入量と移行率の設定が必要であること、物質によっては施設内での循環挙動を考慮した推計が必要であり、一律の移行率設定では排出量推計の精緻化に限界があることを明らかにした。さらに、下水処理施設で非意図的に排出量が増加する可能性のある PFOS を対象に、回分式生物処理実験および実施施設における実測調査により、下水処理プロセスにおける前駆体からの生成と活性汚泥を介した循環の挙動を明らかにした。これに基づいて前駆体からの生成を考慮したシナリオについて排出量推計を行い、現行の届出外排出量推計における流入量と移行率に基づく推計では PFOS 排出量を過小評価する可能性を示した。

以上より、本研究では設定した目標を達成することができた。

## 6. 引用文献

- 1) PRTR 届出外排出量推計方法の詳細, 21. 下水処理施設に係る排出量
- 2) K. Kadokami and D. Ueno (2019) Comprehensive Target Analysis for 484 Organic Micropollutants in Environmental Waters by the Combination of Tandem Solid-Phase Extraction and Quadrupole Time-of-Flight Mass Spectrometry with Sequential Window Acquisition of All Theoretical Fragment-Ion Spectra Acquisition. *Anal. Chem.*, 91(12), 7749-7755
- 3) 公益社団法人日本下水道協会 (2018) 平成 28 年度版下水道統計
- 4) KEMI (Swedish Chemicals Agency) (2015) Occurrence and use of highly fluorinated substances and alternatives, <https://www.enviro.wiki/images/d/df/KEMI2015.pdf>
- 5) 鈴木裕識、田中周平、藤井滋穂、中田典秀、石川一真、齋藤憲光 (2014) 下水処理過程における前駆体からの生成を考慮したペルフルオロカルボン酸類の挙動の検討、土木学会論文集 G (環境)、70(7)、III\_55-III\_64
- 6) E. Rogatsky and D. Stein (2005) Evaluation of matrix effect and chromatography efficiency: new parameters for validation of method development. *J. Ame. Soci. Mass Spec.*, 16, 1757-1759

- 7) Draženka Stipaničev, Siniša Repec, Peter Oswald, Wolfgang Schulz, Manfred Sengl, Jaroslav Slobodnik (2014) Joint Danube Survey 3: Non-target screening of organic pollutants. International Commission for the Protection of the Danube River
- 8) MassBank Europe ウェブサイト, <https://massbank.eu/MassBank/>, 2022年3月10日アクセス

### Ⅲ. 研究成果の発表状況の詳細

#### (1) 誌上発表

##### <査読付き論文>

##### 【サブテーマ1】

- 1) 小口正弘、大久保伸、谷川昇、中村智：環境科学会誌、採択（2022）  
算出方法の実態から見た PRTR 届出排出移動量データの信頼性
- 2) 水谷聡、山崎耕平、小口正弘、早水輝好：環境科学会誌、35(3)、1-10（2022）  
PRTR 制度におけるすそ切り以下排出量と届出排出量の整合性

##### 【サブテーマ2】

- 1) 高沢麻里、鈴木裕識、小森行也、對馬育夫、山下洋正、小口正弘：環境科学会誌、33(5)、114-125（2020）  
液体クロマトグラフ-精密質量計を用いた PRTR 物質の簡易スクリーニング手法の構築と下水試料への適用

##### <その他誌上発表（査読なし）>

##### 【サブテーマ1】

- 1) 小口正弘：化学物質と環境、158、11-12（2019）  
「化学物質排出管理における PRTR データの活用に向けた課題」
- 2) 小口正弘：化学物質と環境、167、7-9（2021）  
「資源循環における有害物質管理の現状と今後」

##### 【サブテーマ2】

- 1) 高沢麻里、鈴木裕識、山下洋正：環境浄化技術、19(6)、36-39（2020）  
「精密質量分析による下水中の PRTR 物質の把握 -LC-QToF-MS を用いたターゲットスクリーニング-」
- 2) 山下洋正、村田里美、高沢麻里：環境と測定技術、48(7)、9-17（2021）  
「下水道と水環境から見た化学物質管理の今後の方向性」

#### (2) 口頭発表（学会等）

##### 【サブテーマ1】

- 1) 小口正弘：環境科学会 2019 年会（2019）  
「PRTR データを活用した物質フロー・排出インベントリの把握手法の開発」
- 2) M. OGUCHI, Y. HORII, Y. MIYAKE, H. OTSUKA, N. TANIKAWA, M. TOKUMURA, S. URANO, Y. WATANABE: Society of Environmental Toxicology and Chemistry North America 40th Annual Meeting, Toronto, Canada, 2019  
“Substance flows and environmental emissions of chemicals associated with industrial waste treatment in Japan.”
- 3) 山崎耕平、水谷聡、小口正弘、貫上佳則、第 20 回環境技術学会年次大会（2020）  
「PRTR におけるすそ切り以下事業者からの化学物質排出量の推計精度のトレンド」
- 4) 佐伯孝、小口正弘、谷川昇、大久保伸、第 31 回廃棄物資源循環学会研究発表会（2020）  
「化学物質排出移動量届出と産業廃棄物管理票交付等状況報告の情報活用の検討」
- 5) 立尾浩一、山田正人、小口正弘、第 31 回廃棄物資源循環学会研究発表会（2020）  
「PRTR 届出移動量データと廃棄物行政報告データの突合について」
- 6) 小口正弘、環境科学会 2020 年会（2020）

- 「環境排出量としての PRTR データの正確性と捕捉範囲の評価」
- 7) 今泉圭隆、小口正弘、鈴木規之、環境科学会 2020 年会 (2020)  
「環境多媒体モデル G-CIEMS と PRTR 排出量による環境動態予測と実測濃度範囲との比較」
- 8) 山崎耕平、水谷聡、小口正弘、早水輝好、貫上佳則、環境科学会 2020 年会 (2020)  
「PRTR 制度におけるすそ切り以下事業者からの化学物質排出量の推計精度」
- 9) 小口正弘、大久保伸、谷川昇：環境科学会 2021 年会 (2021)  
「化学物質のフロー・環境排出量把握における情報基盤としての PRTR データの活用」
- 10) 山崎耕平、水谷聡、小口正弘：環境科学会 2021 年会 (2021)  
「PRTR の届出外排出量推計における試薬に係る総排出量推計方法の検討」
- 11) 大久保伸、小口正弘、谷川昇：第 32 回廃棄物資源循環学会研究発表会 (2021)  
「廃棄物処理への化学物質の移動実態に関する調査研究」
- 12) 山田正人、立尾浩一、小口正弘：第 43 回全国都市清掃研究・事例発表会 (2022) <誌上発表>  
「PRTR データと産業廃棄物処理実績報告データの突合について」
- 13) 今泉圭隆、小口正弘、亀屋隆志、鈴木規之：第 30 回環境化学討論会 (環境化学物質 3 学会合同大会) (2022) <発表予定>  
「PRTR データと多媒体環境動態モデル G-CIEMS (Ver. 1.2) を用いた高頻度検出 19 物質の日本全国での環境動態予測」

## 【サブテーマ 2】

- 1) 鈴木裕識：環境科学会 2019 年会 (2019)  
「下水道における PRTR 対象物質の排出量推定手法の高度化」
- 2) 鈴木裕識、高沢麻里、小森行也、對馬育夫、山下洋正、小口正弘：第 54 回水環境学会年会 (2020)  
<誌上発表>  
「届出情報を用いた PRTR 対象物質の下水道への流入特性解析と実測データによる検証」
- 3) 高沢麻里、鈴木裕識、小森行也、對馬育夫、平山孝浩、山下洋正、小口正弘：第 54 回水環境学会年会 (2020) <誌上発表>  
「精密質量分析を用いた下水中に含まれる PRTR 第一種指定化学物質の一斉ターゲットスクリーニングデータベース作成に関する検討」
- 4) 鈴木裕識、高沢麻里、小森行也、對馬育夫、山下洋正、小口正弘：京都大学環境衛生工学研究会 第 42 回シンポジウム (2020)  
「下水処理場における PRTR 対象物質の簡易一斉スクリーニングの取り組み」
- 5) 高沢麻里、鈴木裕識、小森行也、山下洋正、環境科学会 2020 年会 (2020)  
「下水道における PRTR 対象物質の実測データの取得および公表データとの比較による排出量推定精緻化の取り組み」
- 6) Y. SUZUKI, M. TAKAZAWA, I. TSUSHIMA, H. YAMASHITA, M. OGUCHI：第 68 回質量分析総合討論会 (2020)  
“Attempt on Target Screening and Semi-Quantification of Japanese PRTR Chemicals in Wastewater Samples by LC-QToF-MS”
- 7) 對馬育夫、鈴木裕識、高沢麻里、小森行也、平山孝浩、山下洋正、小口正弘：第 57 回下水道研究発表会 (2020)  
「下水道における PRTR 対象物質の排出量推定手法の現状と高度化に向けた取り組み」
- 8) 小森行也、鈴木裕識、高沢麻里、對馬育夫、平山孝浩、山下洋正、小口正弘：第 57 回下水道研究発表会 (2020)  
「下水処理場における PRTR 対象物質排出量の公表データと実測データの比較」
- 9) 高沢麻里、鈴木裕識、小森行也、對馬育夫、山下洋正、小口正弘：第 57 回下水道研究発表会 (2020)  
「下水試料に含まれる PRTR 物質のターゲットスクリーニングおよび定量分析」

- 10) 高沢麻里、平山孝浩、對馬育夫、鈴木裕識、山下洋正：環境科学会 2021 年会（2021）  
「実測対象 PRTR 物質数の拡充と下水処理施設における排出量推計の高度化」
- 11) 高沢麻里、北村友一、村田里美、鈴木裕識、小森行也、對馬育夫、山下洋正、小口正弘：第 58 回下水道研究発表会（2021）  
「下水処理施設における PRTR 物質の除去率調査および簡易リスク評価」
- 12) 尾川裕紀、鈴木裕識、高沢麻里、阿部翔太、小口正弘、栗栖太：第 56 回日本水環境学会年会（2022）  
「100 種以上の新興汚染物質の河川水ターゲットスクリーニング分析と検出物質の汚染起源解析」
- 13) シティ エズリン ビンティ イスマイル、鈴木裕識、高沢麻里、阿部翔太、小口正弘：第 56 回日本水環境学会年会（2022）  
「活性汚泥を用いた回分式実験による前駆体 N-EtFOSE からの PFOS 生成挙動の検討」

### （3）「国民との科学・技術対話」の実施

#### 【テーマ 1 全体】

- 1) 一般公開セミナー「化学物質管理における PRTR データの実践的活用に向けて」（主催：環境研究総合推進費 SII-4、2021 年 3 月 19 日、オンライン、聴講者約 150 名）にて講演
- 2) 研究成果報告（2022 年 3 月 25 日～5 月末（予定）、YouTube によるオンデマンド配信、初回配信同時視聴者数約 25 名、視聴回数約 250 回）

#### 【サブテーマ 1】

- 1) 国立環境研究所公開シンポジウム 2019「変わりゆく環境と私たちの健康」（2019 年 6 月 14 日、北九州市立男女共同参画センター ムーブ、来場者約 200 名）のポスター発表にて研究成果紹介
- 2) 国立環境研究所公開シンポジウム 2019「変わりゆく環境と私たちの健康」（2019 年 6 月 21 日、東京メルパルクホール、来場者約 500 名）のポスター発表にて研究成果紹介
- 3) 広島大学大学院工学研究科における授業科目「Advanced Environmental Systems Engineering」の招待講義にて研究成果紹介（2019 年 10 月 31 日、受講学生約 20 名）
- 4) 広島大学大学院工学研究科における授業科目「Advanced Environmental Systems Engineering」の招待講義にて研究成果紹介（2021 年 1 月 21 日、受講学生約 20 名）
- 5) 国立環境研究所資源循環領域オンラインマガジン「環環」（2021 年 6 月号）の記事で研究成果紹介
- 6) 日本産業廃棄物処理振興センター機関誌「JW センター情報」（2022 年冬号（1 月））の記事で研究成果紹介
- 7) 広島大学大学院工学研究科における授業科目「Advanced Environmental Systems Engineering」の招待講義にて研究成果紹介（2022 年 1 月 27 日、受講学生約 20 名）

#### 【サブテーマ 2】

- 1) 化学物質の安全管理に関するシンポジウム－化学物質の評価・管理に関する手法やツール等の活用状況－（主催：化学物質の安全管理に関するシンポジウム実行委員会、2019 年 11 月 28 日、東京大学弥生講堂一条ホール、聴講者約 300 名）にて講演
- 2) 化学物質の安全管理に関するシンポジウム－Beyond 2020 の化学物質管理の方向性－（主催：化学物質の安全管理に関するシンポジウム実行委員会、2021 年 2 月 4 日、聴講者約 450 名）にて講演

### （4）マスコミ等への公表・報道等＞

#### 【サブテーマ 1】

特に記載すべき事項はない。

#### 【サブテーマ 2】



特に記載すべき事項はない。

#### (5) 本研究費の研究成果による受賞

##### 【サブテーマ1】

- 1) 環境科学会 2020 年会優秀発表賞（富士電機賞）優秀賞（発表演題「PRTR 制度におけるすそ切り以下事業者からの化学物質排出量の推計精度」）
- 2) 環境科学会 2021 年会優秀発表賞（富士電機賞）優秀賞（発表演題「PRTR の届出外排出量推計における試薬に係る総排出量推計方法の検討」）

##### 【サブテーマ2】

- 1) 第 56 回日本水環境学会年会学生ポスター発表賞（ライオン賞）優秀賞（発表演題「活性汚泥を用いた回分式実験による前駆体 N-EtFOSE からの PFOS 生成挙動の検討」）

## IV. 英文 Abstract

**An Approach for Management of Chemical Releases and Flows Using PRTR Data**

Principal Investigator: Masahiro Oguchi

Institution: National Institute for Environmental Studies, Tsukuba, JAPAN

E-mail: Masahiro.oguchi@nies.go.jp

Cooperated by: Public Works Research Institute, Gifu University

[Abstract]

Key Words: Pollutant Release and Transfer Register (PRTR), Chemical substance, Environmental emission, Substance flow, Reliability, Coverage, Waste treatment, Sewage treatment, Release estimation, Refinement

We evaluated how much of the PRTR-reported data is reliable as information reflecting the actual release and transfer from the viewpoint of the estimation technique. The results showed that the employed estimation technique is not necessarily appropriate for about 5%-25% of the reported data, suggesting that the data may deviate from the actual situation. The accuracy of the estimated "releases from listed industries below the threshold" was evaluated based on the consistency with the PRTR-reported data. The estimated values based only on the questionnaire to facilities were considered underestimated by several orders of magnitude. We evaluated the coverage of actual release by the PRTR data based on the consistency between the detection frequency of the substances in the environment and the number of sources or release amount of the PRTR data, as well as the comparison of the monitoring data and the predicted environmental concentrations models (AIST-ADMER, G-CIEMS). The results suggested that the release to air and public water bodies of the PRTR data may insufficiently capture the actual release amount for several and about 20 substances, respectively.

We proposed a method for estimating the flows of PRTR target substances through waste treatment by connecting the PRTR-reported transfer data to the administrative reporting data on waste treatment. We estimated the amount of transfer for each treatment pattern by connecting these data and multiplied it by the assumed distribution rate of chemicals in each waste treatment pattern to estimate the flows of the substances to each destination through the waste treatment. It was estimated that organic compounds are mainly decomposed by thermal treatments or recycled after treatment, while inorganic compounds are mainly transferred to final disposal and wastewater treatment.

The inflows and distribution rates of PRTR target substances in sewage treatment facilities were verified by the comparative investigation between PRTR published data and the surveyed data of the monitoring of 108 PRTR compounds at actual facilities. Based on the results, the estimated releases were refined for 19 substances and the estimated releases were newly acquired for three substances. In addition, the behavior of perfluorooctane sulfonic acid (PFOS), which is one of the PRTR compounds, during sewage treatment was investigated by lab-scale experiments. It was shown that PFOS increases during biological treatment due to the formation from the precursors. The findings were utilized for suggesting a new estimation of PFOS from sewage treatment.