

4. 分析評価モニタリング4

化学環境のモニタリング: 結果報告

琵琶湖産ウグイにおける残留有機汚染物質 (POPs) 長期モニタリング

津田泰三・井上亜紀子・田中勝美

要約

琵琶湖のウグイにおける PCB、HCH、DDT およびクロルデンの長期モニタリングデータから、これらの経年推移をまとめた。さらに、国内の宍道湖および諏訪湖、国外のスウェーデン王国（以下、「スウェーデン」という。）およびアメリカ合衆国（以下、「アメリカ」という。）の代表的な湖沼についても公表データを収集し、同様に経年推移をまとめた。これらの長期のモニタリングデータに指数近似モデルを適用し、湖沼の魚介類における PCB および有機塩素農薬の半減期 ($t_{1/2}$) を算出した。湖沼魚介類における有機塩素系汚染物質の半減期が湖沼環境におけるこれらの化学物質の減衰速度の評価に適用できると考え、日本の3湖沼間の減衰速度の差および日本、スウェーデンおよびアメリカの湖沼間の PCB、DDT およびクロルデンの減衰速度の差をこれらの湖沼のモニタリングデータから算出した半減期の比較により評価した。例えば、日本、スウェーデンおよびアメリカにおける半減期の順序は PCB について琵琶湖>ストルヴィンデルン湖>オンタリオ湖 および T-DDT についてオンタリオ湖>琵琶湖>ストルヴィンデルン湖となった。T-クロルデンについては、琵琶湖とオンタリオ湖とは同じ半減期を示した。

1. はじめに

本分析評価モニタリングにおいて、環境省が実施する化学物質環境実態調査を受託することにより、PCB 類などの残留性有機汚染物質 (POPs, Persistent Organic Pollutants) の琵琶湖・河川における残留状態を継続して把握するとともに、今後新たに問題になる可能性のある化学物質の琵琶湖・河川における残留調査を実施している。

化学物質環境実態調査は、環境省が化学物質によるリスク評価や汚染対策に資するためのデータの整備を行うことを目的として、地方自治体に委託するなどの方法により実施しているものであり、地方自治体が関与する調査として以下の3つの調査がある。これらの調査では試料採取、一般項目の測定、前処理(調査物質によっては分析も含む)を受託することにより、滋賀県における化学物質の残留状況の把握、分析技術を含めた情報の収集を行っている。

(1) 初期環境調査

環境中における化学物質の残留実態を把握し、「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)」における指定化学物質の指定について検討が必要とされる物質、社会的要因から調査が必要とされる物質等の環境残留状況の把握を目的とする調査選定等の資料となる調査

(2) 詳細環境調査

化学物質の残留実態を把握し、「化学物質の審査及び製造等の規制に関する法律(化審法)」における特定化学物質及び監視化学物質、環境初期リスク評価を実施すべき物質

等の環境残留状況の把握を目的とする調査

(3) モニタリング調査

「残留性有機汚染物質に関するストックホルム条約」の対象物質及びその候補となる可能性のある物質、並びに化審法の第一種特定化学物質、第二種特定化学物質及び監視化学物質のうち、環境基準等が設定されていないものの、環境残留性が高く環境残留実態の推移の把握が必要な物質を経年的に調査することを目的とする調査

(3) モニタリング調査については、現在、琵琶湖の定点において水質、底質および魚類について POPs の経年的なモニタリング調査が継続されている。ウグイを指標とした魚類については1979年以来、約30年間にわたる調査データが蓄積されており、本報告では代表的な POPs である PCB、HCH、DDT およびクロルデンについて魚体中濃度の減衰速度を明らかにするとともに、国内の宍道湖および諏訪湖、さらにはアメリカの五大湖あるいはスウェーデンの湖沼における調査結果と比較することにより、琵琶湖におけるこれらの POPs の減衰速度を評価した。

2. 方法

琵琶湖のウグイにおける PCB、T-HCH、T-DDT および T-クロルデンの調査データについては、環境省により公表された報告書(化学物質と環境、1980~2008)から引用した。また、宍道湖のフナおよびシジミにおける PCB の調査データについては(島根県保健環境研究所報、1985~2006)、

諏訪湖のワカサギにおける PCB の調査データについては（長野県環境保全研究所業務年報、1986～2005）により、それぞれ引用した。また、アメリカのオンタリオ湖のレイクトラウトにおける PCB、T-DDT および T-クロルデンの調査データについては、カナダ環境局および米国環境保護局の報告書（Environment Canada and U.S. Environmental Protection Agency、2007）、スウェーデンのストルヴィンデルン湖のバイクにおける PCB および T-DDT の調査データについては、スウェーデン環境保護局のウェブサイトに公開されたデータ（Swedish EPA、2002）により、それぞれ引用した。

なお、本報告における T-HCH、T-DDT および T-クロルデンの調査データは、それぞれの構成化学物質の総和により算出した。すなわち、T-HCH については α -HCH、 β -HCH、 γ -HCH および δ -HCH の総和、T-DDT については op' -DDT、 pp' -DDT、 op' -DDD、 pp' -DDD、 op' -DDE および pp' -DDE の総和および T-クロルデンは oxy -クロルデン、 $trans$ -クロルデン、 cis -クロルデン、 $trans$ -ノナクロルおよび cis -ノナクロルの総和とした。

3. 結果と考察

琵琶湖のウグイにおける α -HCH、 β -HCH および T-HCH の年度毎の濃度レベル（平均値、 $n=5$ ）について、1979～2006 年度にわたる濃度推移を指数近似モデルに適用して図 1 に示す。モデルパラメーター（ a 、 k ）および R^2 の各数値についても算出し、図に併せて示した。また、 pp' -DDD、 pp' -DDE、T-DDT および $trans$ -クロルデン、 cis -クロルデン、 $trans$ -ノナクロル、 cis -ノナクロルおよび T-クロルデンについても同様に算出した。決定係数 R^2 値は全て 0.5 以上であり、モデルへの高いフィットを示した。それぞれの化学物質について k 値を用いて半減期（ $t_{1/2}$ ）を算出し、 k 値および R^2 値とともに表 1 にまとめた。半減期（ $t_{1/2}$ ）は α -HCH、 β -HCH および T-HCH について 3.5～4.5 年、 pp' -DDD、 pp' -DDE および T-DDT について 7.3～9.1 年および $trans$ -クロルデン、 cis -クロルデン、 $trans$ -ノナクロル、 cis -ノナクロルおよび T-クロルデンについて 5.6～10.1 年となった。T-HCH、T-DDT および T-クロルデンの半減期はそれぞれ β -HCH、 pp' -DDE および $trans$ -ノナクロル（それぞれの主要成分）の半減期にほぼ等しいことがわかった。また、琵琶湖のウグイにおける半減期から、琵琶湖における T-DDT および T-クロルデンの減衰速度がほぼ同じであり、T-HCH より遅いことが推測できた。

琵琶湖のウグイにおける T-HCH、T-DDT および T-クロルデンのそれぞれを構成する化学物質について、構成比率の経年的な変化を図 2 に示す。T-HCH については、1997～2002 年で全く分析されていないか、もしくは α -HCH および β

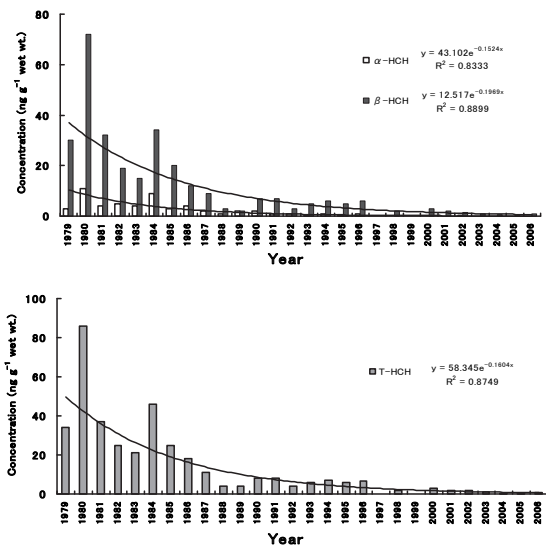


図 1 琵琶湖に生息するウグイにおける T-HCH および構成化学物質の経年推移

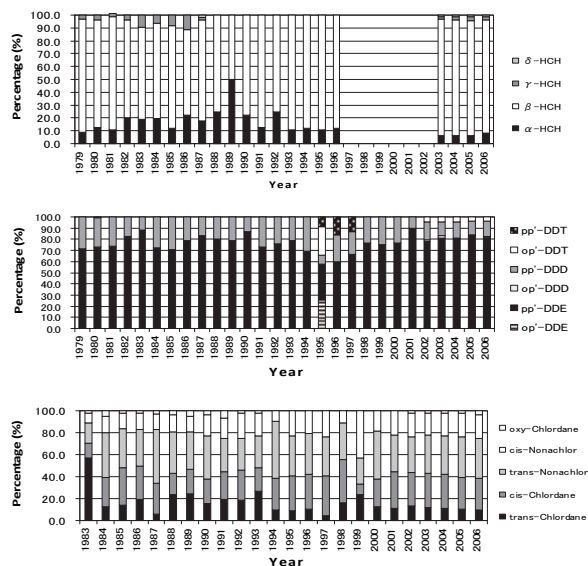


図 2 琵琶湖のウグイにおける T-HCH、T-DDT および T-クロルデンの構成化学物質の経年推移

-HCH しか分析していなかったために、この期間ではデータを欠測とした。T-HCH、T-DDT および T-クロルデンのいずれについても若干の変動を伴っているが、1989 年の T-HCH、1995～1997 年の T-DDT および 1983 年の T-クロルデンを除いてほぼ一定の値を示した。このことは、ウグイの T-HCH、T-DDT および T-クロルデンのそれぞれを構成する化学物質の半減期が大きく異なるためであると考えられた。これらの値は表 1 に示したように T-HCH については α -HCH 4.5 年および β -HCH 3.5 年、T-DDT について

表1 湖沼生息魚介類におけるPCB、HCH、DDTおよびクロルデンの経年推移に関する指数近似モデル適用結果

Lake	Biota		Chemicals	Period	k (y ⁻¹)	t _{1/2} (y)	R ²
	Category	Species					
Lake Biwa	Fish	Japanese dace	α-HCH	1979-2006	0.1524	4.5	0.8333
	Fish	Japanese dace	β-HCH	1979-2006	0.1969	3.5	0.8899
	Fish	Japanese dace	T-HCH	1979-2006	0.1604	4.3	0.8749
	Fish	Japanese dace	pp'-DDE	1979-2006	0.0760	9.1	0.7580
	Fish	Japanese dace	pp'-DDD	1979-2006	0.0950	7.3	0.7797
	Fish	Japanese dace	T-DDT	1979-2006	0.0763	9.1	0.7320
	Fish	Japanese dace	trans-Chlordane	1983-2006	0.1238	5.6	0.6682
	Fish	Japanese dace	cis-Chlordane	1983-2006	0.0834	8.3	0.7700
	Fish	Japanese dace	trans-Nonachlor	1983-2006	0.0908	7.6	0.7801
	Fish	Japanese dace	cis-Nonachlor	1983-2006	0.0683	10.1	0.5594
	Fish	Japanese dace	T-Chlordane	1983-2006	0.0940	7.4	0.8445
	Fish	Japanese dace	PCB	1979-2006	0.0339	20.4	0.2585
Fish	Japanese dace	PCB	1986-2006	0.0372	18.6	0.2088	
Lake Shinji	Fish	Crucian carp	PCB	1985-2006	0.1097	6.3	0.5695
	Bivalve	Corbicula	PCB	1985-2006	0.1024	6.8	0.5912
Lake Suwa	Fish	Japanese smelt	PCB	1986-2005	0.1615	4.3	0.7062
Lake Ontario	Fish	Lake trout	PCB	1977-2005	0.0739	9.4	0.8862
	Fish	Lake trout	T-DDT	1977-2005	0.0627	11.1	0.6971
	Fish	Lake trout	T-Chlordane	1979-2005	0.0940	7.4	0.7825
Lake Storzindeln	Fish	Pike	PCB	1968-1998	0.0434	16.0	0.6373
	Fish	Pike	T-DDT	1968-1998	0.1032	6.7	0.8388

は pp'-DDD 7.3 年および pp'-DDE 9.1 年、T-クロルデンについては trans-クロルデン 5.6 年、cis-クロルデン 8.3 年、trans-ノナクロル 7.6 年および cis-ノナクロル 10.1 年となり、上記のことが確認できた。

日本の代表的な湖沼である琵琶湖、宍道湖および諏訪湖の魚介類における PCB の年度毎の濃度レベルの経年的な推移を指数近似モデルに適用して図 3 に示す。宍道湖および諏訪湖の R² 値は 0.5 以上であり、モデルへの高いフィットを示したが、琵琶湖については 0.5 以下であり、あまり高いフィットを示さなかった。これらの日本の湖沼における魚介類の PCB の半減期についても、図 3 に示した k 値を用いて計算し、表 1 にまとめた。琵琶湖のウグイにおける PCB の半減期は 18.6 年（1986-2006）、宍道湖のフナにおいては 6.3 年（1985-2006）および諏訪湖のワカサギにおいては 4.3 年（1986-2005）となった。宍道湖においては、シジミ（貝類）の半減期 6.8 年とフナ（魚類）の 6.3 年とはほぼ同程度の値を示した。これらの魚介類における PCB の半減期から、琵琶湖における PCB の減衰速度が宍道湖および諏訪湖の場合と比較して遅いことが推察された。

琵琶湖、オンタリオ湖およびストルヴィンデルン湖の魚類における PCB、T-DDT および T-クロルデンの経年的な濃度レベル推移を指数近似モデルに適用して図 4~6 に示す。これら 3 湖沼における PCB、T-DDT および T-クロルデンの R² 値は琵琶湖の PCB を除き、いずれも 0.5 以上の値を示し、モデルへの高いフィットを示した。3 湖沼における PCB、T-DDT および T-クロルデンの半減期を図 4~6 に示した k 値により算出し、表 1 にまとめた。半減期の順序は PCB について琵琶湖（20.4 年，1979-2006）>ストルヴィンデルン湖（16.0 年，1968-1998）>オンタリオ湖（9.4 年，1977-2005）および T-DDT についてオンタリオ湖（11.1 年，1977-2005）>琵琶湖（9.1 年，1979-2006）>ストルヴィンデルン湖（6.7 年，1968-1998）となった。T-クロルデ

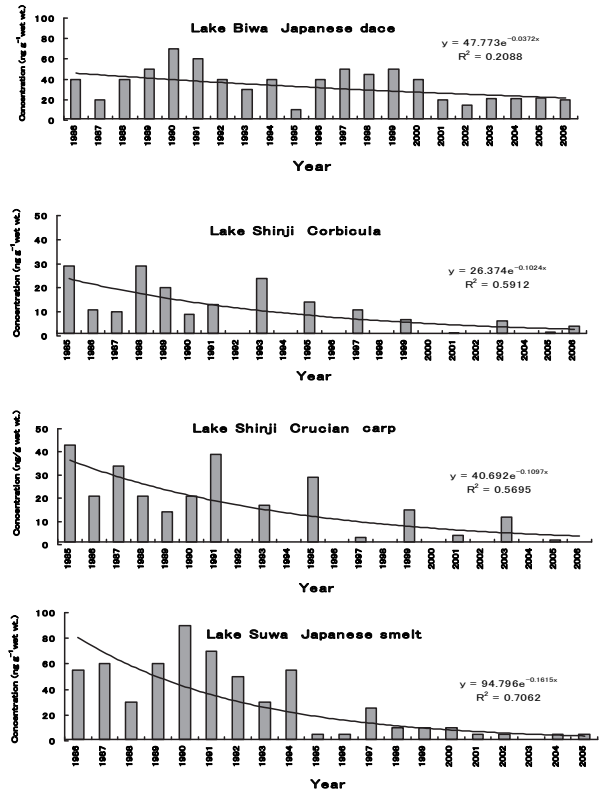


図3 日本の代表的な湖沼に生息する魚介類における PCB の経年推移

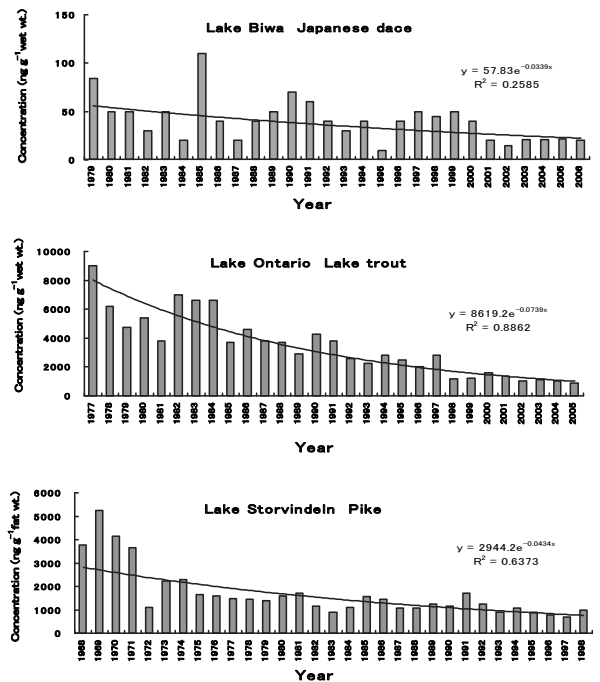


図4 琵琶湖、オンタリオ湖およびストルヴィンデルン湖に生息する魚類における PCB の経年推移

ンについては、琵琶湖とオンタリオ湖とは同じ半減期（7.4 年）を示した。

Hickey らによる同様の研究 (Hickey ら、2006) によれば、オンタリオ湖の魚類における PCB および T-DDT の半減期は、それぞれ 9.1 年および 17.7 年であり、我々の算出した数値である PCB 9.4 年および T-DDT 11.1 年は、それぞれ同程度および若干短い値となった。日本、スウェーデンおよびアメリカの 3 湖沼の魚類における PCB および T-DDT の半減期の比較から、PCB の減衰速度については 3 湖沼の中で琵琶湖がもっとも遅く、また T-DDT の減衰速度についてはオンタリオ湖が最も遅いことが推察された。

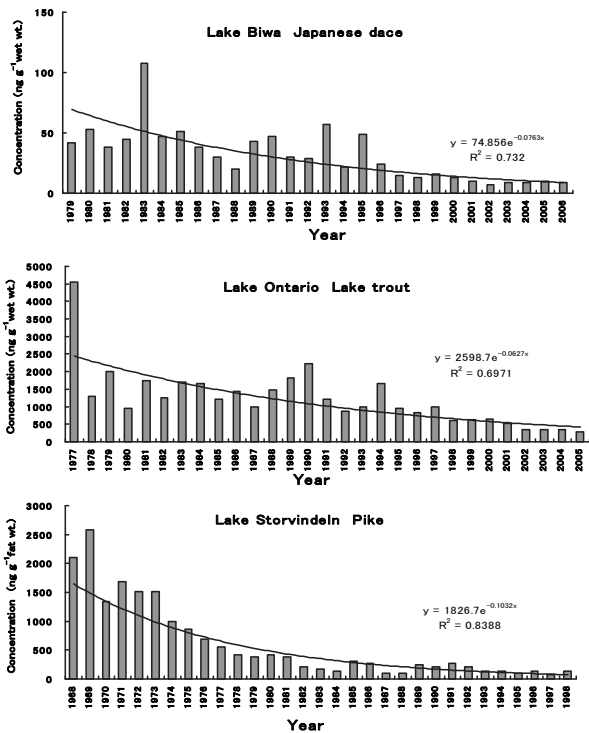


図5 琵琶湖、オンタリオ湖およびストルヴィンデルン湖に生息する魚類における T-DDT の経年推移

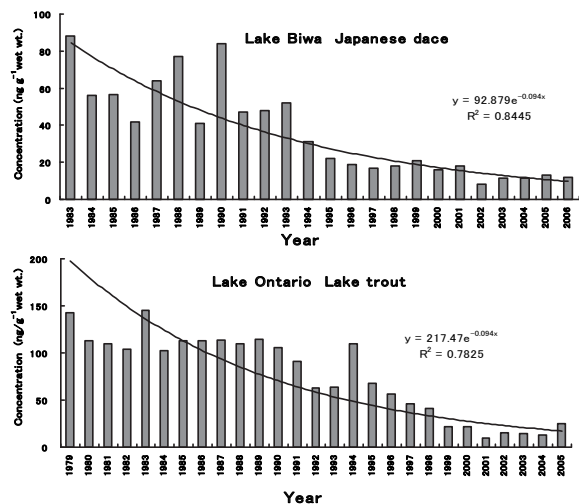


図6 琵琶湖およびオンタリオ湖に生息する魚類における T-クロロデンの経年推移

琵琶湖における PCB の減衰速度が遅いことについては、要因として琵琶湖における PCB の流入速度に対する流出、沈降あるいは分解速度の比率が他の湖沼と比較して低いことが考えられるが、詳細については不明である。

4. まとめ

琵琶湖のウグイにおける PCB、HCH、DDT およびクロロデンの長期モニタリングデータから、これらの経年推移をまとめた。さらに、国内の宍道湖および諏訪湖、国外のスウェーデンおよびアメリカの湖沼についても公表データを収集し、同様に経年推移をまとめた。これらの長期のモニタリングデータに指数近似モデルを適用し、湖沼の魚介類における PCB および有機塩素系農薬の半減期 ($t_{1/2}$) を算出した。湖沼魚介類における有機塩素系汚染物質の半減期が湖沼環境におけるこれらの化学物質の減衰速度の評価に適用できると考え、日本の 3 湖沼間の減衰速度の差および日本、スウェーデンおよびアメリカの湖沼間の PCB、DDT およびクロロデンの減衰速度の差をこれらの湖沼のモニタリングデータから算出した半減期の比較により評価した。日本、スウェーデンおよびアメリカにおける半減期の順序は PCB について琵琶湖>ストルヴィンデルン湖>オンタリオ湖および T-DDT についてオンタリオ湖>琵琶湖>ストルヴィンデルン湖となった。T-クロロデンについては、琵琶湖とオンタリオ湖とは同じ半減期を示した。

5. 引用文献

- Environment Canada and U. S. Environmental Protection Agency (2007) : State of the Great Lakes 2007.
- Environment Canada and U. S. Environmental Protection Agency, ISBN 978-0-662-47328-2, EPA 905-R-07-003.
- 後藤宗彦・原綾子・米田孟弘 (1997) : 食品中の PCB、残留農薬の調査結果について (平成 9 年度). 島根県衛生公害研究所報, 39: 56-57.
- 後藤宗彦・原綾子・犬山義晴 (1999) : 食品中の PCB、残留農薬の調査結果について (平成 11 年度). 島根県衛生公害研究所報, 41: 82-83.
- Hickey, J. P., Batterman, S. A., Chernyak, S. M. (2006) : Trends of chlorinated organic contaminants in Great Lakes trout and walleye from 1979 to 1998. Arch. Environ. Contam. Toxicol., 50: 97-110.
- 犬山義晴・米田孟弘・桐原祥修 (1985) : 食品中の環境汚染物質調査について. 島根県衛生公害研究所報, 27: 67.
- 犬山義晴・米田孟弘・宇谷和重 (1986) : 食品中の環境汚染物質調査について. 島根県衛生公害研究所報,

28:76-77.

- 犬山義晴・宇谷和重 (1987) : 島根県産食品中の PCB、総水銀、残留農薬の調査結果について(62 年度). 島根県衛生公害研究所報, 29: 46-47.
- 犬山義晴・宇谷和重 (1988) : 島根県産食品中の PCB、総水銀、残留農薬の調査結果について(63 年度). 島根県衛生公害研究所報, 30: 69-71.
- 犬山義晴・後藤宗彦 (1989) : 島根県産食品中の PCB、総水銀、残留農薬の調査結果について(平成元年度). 島根県衛生公害研究所報, 31: 86-88.
- 犬山義晴・後藤宗彦 (1990) : 食品中の PCB、総水銀、残留農薬の調査結果について(平成 2 年度). 島根県衛生公害研究所報, 32: 68-70.
- 犬山義晴・後藤宗彦 (1991) : 島根県産食品中の PCB、総水銀、残留農薬の調査結果について(平成 3 年度). 島根県衛生公害研究所報, 33: 66-68.
- 犬山義晴・後藤宗彦 (1993) : 島根県産食品中の PCB、総水銀、残留農薬の調査結果について(平成 5 年度). 島根県衛生公害研究所報, 35: 67-69.
- 犬山義晴・後藤宗彦 (1995) : 食品中の PCB、残留農薬の調査結果について(平成 7 年度). 島根県衛生公害研究所報, 37: 66-69.
- 環境庁 (1980-1999) : 昭和 55 年-平成 11 年版化学物質と環境.
- 環境省 (2001-2008) : 平成 12 年-平成 19 年版化学物質と環境.
- 来待幹夫・榎原恵子 (2005) : 魚介類の PCB 検査結果(2005 年度). 島根県保健環境研究所報, 47: 74.
- 来待幹夫・榎原恵子 (2006) : 魚介類の PCB 検査結果(2006 年度). 島根県保健環境研究所報, 48: 85.
- 村上佳子・岸亮子・犬山義晴 (2003) : 食品中の PCB、残留農薬の調査結果(2003 年度). 島根県保健環境研究所報, 45: 96.
- 長野県衛生公害研究所 (1986-2002) : 長野県衛生公害研究所業務年報, 2: 29-31; 3: 34-35; 4: 34-35; 5: 36-39; 6: 36-39; 7: 37-38; 8: 40-41; 9: 40-41; 10: 39-40; 11: 37-38; 12: 41-42; 13: 39-40; 14: 42-43; 15: 42-43; 16: 35; 17: 32-33; 18: 34-35.
- 長野県環境保全研究所 (2004-2005) : 長野県環境保全研究所業務年報, 1: 39; 2: 31-32.
- Swedish EPA (2002) : <http://www.Internat.environ.se/index.php3>.
- 横手克樹・岸亮子 (2001) : 食品中の PCB、残留農薬の調査結果について(2001 年度). 島根県保健環境研究所報, 43: 128-129.