

令和元年6月19日現在

機関番号：82101

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K00524

研究課題名(和文)メチル水銀を含む水銀動態のモデル化と曝露評価への応用

研究課題名(英文) Application of a dynamic 3-D global model for mercury exposure assessment in fish

研究代表者

河合 徹 (Kawai, Toru)

国立研究開発法人国立環境研究所・環境リスク・健康研究センター・研究員

研究者番号：30512719

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：全球多媒体モデル、全球水産統計データ、発生源寄与率解析を統合し、人為排出量削減に伴う環境・生物中の水銀負荷への応答を定量評価するための数理手法を構築した。人為排出量の長期インベントリを作成し、これを用いて、主要な人為排出の始まった1850年以降160年間のシミュレーションを行った。この結果を用いてソース・レセプター解析を行い、2010年における、魚類中の水銀の起源を推定した。この結果、海洋の全漁業海域において、過去主要な排出地域であった北米・ヨーロッパが、現在における魚類中総水銀の最大の起源となっている結果が得られた。また、全球水産統計データを用いて、漁業による水銀輸送量を推計した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

2017年8月に水銀に関する水俣条約(水銀条約)が発効され、水銀の人為的排出量の削減に向けた国際的な取り組みが進められている。この有効性を定量的に評価するためには数値モデルを用いた検討が不可欠である。本課題は有効性評価のエンドポイントの一つである、水産物経由の水銀曝露量を地球規模で推定するための数理手法を構築するものである。水銀条約の有効性評価は条約発効後6年後までに行う必要があり(水銀条約22条)、この対応に資する成果が得られたと考える。

研究成果の概要(英文)：We combined simulation data from a global 3-D dynamic model for mercury (FATE-Hg), global fishery statistics, and source-receptor analysis results to investigate the response of mercury level reduction in fishery resources to the reduction in anthropogenic mercury emission. We performed past 160 years (1850-2010) simulations with changes in anthropogenic emission. We performed source-receptor (S-R) analyses using the emission sensitivity method and estimated the sources of mercury in fishery resources harvested in several countries. The results of S-R analyses showed that north America and Europe, the past major emission sources, are still the largest source of total mercury in fishes among all receptor fishing areas in the northern hemisphere. We also quantified mercury transport from the ocean to land by the fishing industry using global fishery statistics data and the mercury concentrations in fishes estimated from the FATE-Hg simulation.

研究分野：環境学

キーワード：水銀 生物移行 モデル化 曝露評価 環境政策

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

(1) 2013年10月に水銀に関する水俣条約(以下、水銀条約と記す)が採択・署名された。近い将来条約が発効され、これに伴い、人為的な排出量の削減が見込まれる。この有効性(人為的排出量の削減が環境中や生物中の水銀濃度にどのように応答するのか)を定量評価するためのツールと科学的知見が求められている。

(2) 水銀は地球規模での管理と、大気 海洋 陸域 生物圏に亘る動態評価が求められる物質である。一方、既存の水銀広域モデルの多くは大気質モデル、又は大気大循環モデルをベースに構築されており、実質大気単媒体でのモデリングが主流である。また、メチル水銀が陽的に取り扱われていない。メチル水銀の生成、水産物への移行、人への曝露に至るまでの過程を考慮し、曝露リスクの評価につながるモデル研究を進める必要がある。

(3) これまでに残留性有機汚染物質(POPs)の大気 海洋 土壌 植生 水圏に亘る生物地球化学的物質循環を推定する全球多媒体モデル(FATE)を開発しており、FATEの水銀モデル(FATE-Hg)への拡張を進めている。FATEは大気 海洋結合化学輸送モデルを土台に構築されており、また、衛星データを利用した海洋生態系モデルが導入されている。生物ポンプに伴うPOPsの海洋内部における鉛直循環と、魚類等の中-高次消費者を含む海洋生物への曝露量まで計算される。既に、排出量、気候データ、反応物質濃度などの入力データの整備、形態変化と沈着に関する既存のプロセスモデルの導入を進めており、本課題を実施するための基礎を構築している。

### 2. 研究の目的

(1) 海水と底質中における、メチル化、脱メチル化を含む形態変化と、メチル水銀の海洋生物への移行を計算するサブモデルを作成し、水銀の全球モデル FATE-Hg に導入する。水産統計データと流通経路の調査に基づき、人為的な要因によるメチル水銀の人への曝露経路をモデル化する。海水と水産物中の水銀の発生源寄与率を推定するためのポストプロセッサーを作成する。これらのモデル、データ、知見を統合し、水銀条約の有効性を評価するための方法論を構築する。

### 3. 研究の方法

(1) 水銀の海水中における形態変化と海洋生物への移行を計算するサブモデルを構築し、FATE-Hg に導入した。本サブモデルでは、元素状水銀( $Hg^0$ )、酸化態水銀( $Hg^{II}$ )、モノメチル水銀(MMHg)、ジメチル水銀(DMHg)の4形態が考慮され、これらの水銀形態間の形態変化と、 $Hg^{II}$ とMMHgの粒子状有機物(particle organic matter; POM)への分配とPOMから魚類への食物網蓄積が計算される。

(2) (1)で構築したサブモデルの主要なモデルパラメーターは海水中の形態変化の速度定数、海水-POMの分配係数、POMから魚類への食物網蓄積係数(trophic magnification slope; TMS)である。この内、海水中形態変化の速度定数とTMSについて文献調査を実施した。

(3) 海洋水産物の漁獲と流通に関する統計データを整理した。水産統計データにはFAO(Food and Agriculture Organization of the United Nations)のFishStatJ(FAO, 2016)を用いた。FishStatJには過去約60年間に渡り、水産物の漁獲/養殖量、貿易量について、2119魚種、26漁業海域、245ヵ国別に収集した膨大な統計データがある。魚種についてはISSCAAP(International Standard Statistical Classification of Aquatic Animals and Plants)に基づいて分類した。

(4) 産業革命以降、過去160年間(1850-2010)のシミュレーションを実施した。入力データとなる大気への人為排出量は地域毎の長期排出量推定(Streets et al., 2017)を参照し、地域内の分布が現在と同様であると仮定して、グリッドベースのインベントリに加工した。海洋初期濃度には先行モデル研究(Zhang et al., 2014; Semeniuk and Dastoor, 2017)のシミュレーション結果を設定した。

(5) 発生源の推定(ソース レセプター解析)には排出量感度法を用いた。ソースには、ヨーロッパ、北アメリカ、東アジア、南アジア、中央アジア、アフリカ、南アメリカ、オセアニア、その他の9地域、レセプターにはFAOの主要漁業海域19海域を設定した。排出量に与える変動は20%減少とした。

### 4. 研究成果

(1) 文献調査に基づき、海水中形態変化の速度定数と TMS を設定した。海水中形態変化の速度定数は実測に基づいて設定する必要があるが、無光反応（酸化、還元、メチル化、脱メチル化）の速度定数の実測研究は極めて少ない。本課題では、無光反応の速度定数は、一律、POM の再石灰化率に比例するとした。TMS については、海洋/汽水 33 食物網の実測文献を整理し、平均値 (MMHg : 0.24、Hg<sup>T</sup> : 0.16) を設定した。

(2) MMHg の植物プランクトンへの生物濃縮係数 (bioconcentration factor; BCF) を推定するためのプロセスモデルを FATE-Hg に導入した。本プロセスモデルでは、BCF のプランクトンサイズと溶存有機炭素濃度への依存性が考慮されており、BCF の時空変化が推定される。北大西洋の沿岸と遠洋、赤道太平洋遠洋、亜熱帯太平洋遠洋で取得された BCF の実測値とモデル推定値を比較した結果、おおよそ 1 オーダー以内の相違であった。

(3) モデル検証に用いる、遠洋形態別水銀濃度と大気下層の Hg<sup>0</sup> 濃度のモニタリングデータを整理した。海水中水銀濃度については、地球規模のまとまったデータベースが無く、断片的なデータを取りまとめる必要がある。GEOTRACES などの近年のクルーズデータと計 28 文献のデータを整理し、データベースを構築した。

(4) 取りまとめた遠洋のモニタリングデータを用いて、モデル検証を実施した。モデルと実測の相違は、大気下層の Hg<sup>0</sup> 濃度についてはおおよそ 0.5 オーダー以内、海洋表層 (0-70 m) の総水銀 (Hg<sup>T</sup>) 濃度については、おおよそ 1 オーダー以内であった。大気 Hg<sup>0</sup> 濃度と海洋 Hg<sup>T</sup> 濃度の予測については 100 年スケールの長期シミュレーションにも耐えうることが確認された。

(5) 2010 年の海洋表層 Hg<sup>T</sup> の発生源寄与率を推定した (図 1)。2010 年の年間人為排出量は東アジアからの排出量が最も多く、これは全球排出量の 32%、過去主要な排出源であったヨーロッパ - 北アメリカからの排出量の 2.6 倍である。一方、全海域でヨーロッパ - 北アメリカからの寄与 (31-49%) が東アジアからの寄与 (12-29%) を上回る結果となった。現在の海洋表層の総水銀の相当量が過去排出起源となっていることが明らかとなった。

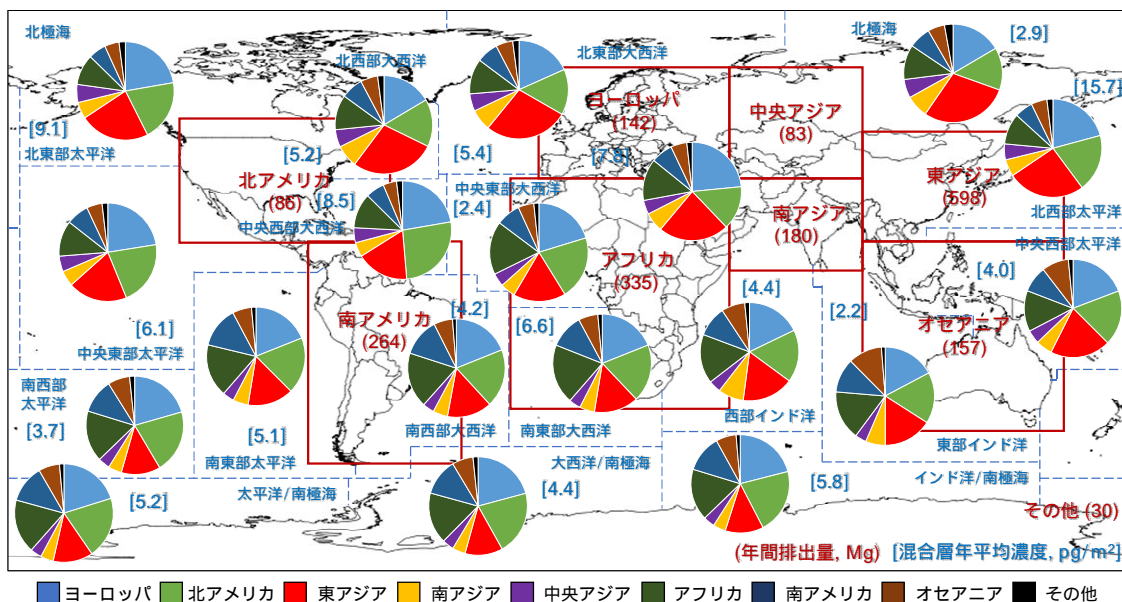


図 1 海洋表層総水銀の発生源寄与率の推定結果 (2010 年)

(6) 発生源寄与率解析の結果と水産統計データを用いて、漁獲される水産物中の水銀起源を推定した。ISSCAAP の魚種分類の内、水銀濃度が比較的高い、マグロ、カツオ、カジキ (分類 36、以降マグロなどと記す) の漁獲について解析した。図 2 (a) はマグロなどの漁獲について、全球および漁獲量の多い 8 地域の漁獲海域の構成、図 2 (b) は漁獲されるマグロなどの総水銀の起源を推定した結果である。マグロなどの漁獲海域は地域毎に異なるが、漁獲されるマグロなど中水銀の起源は地域間で大きく変わらず、東アジア、北米、ヨーロッパからの寄与がおおよそ同程度であり、これらの地域からの寄与が 6 割前後を占める結果となった。

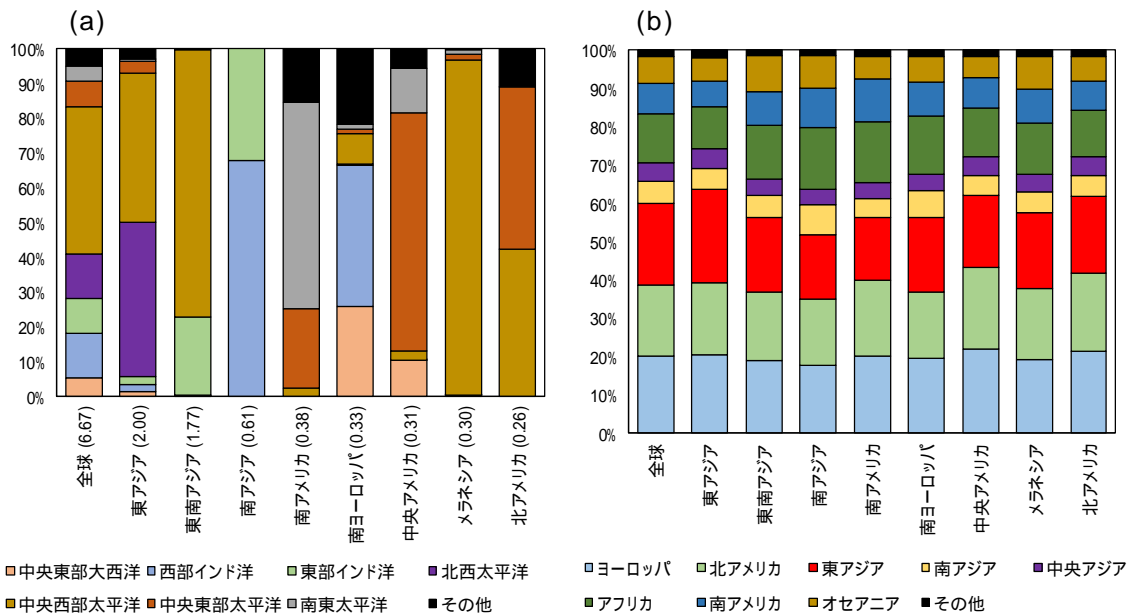


図2 (a) マグロ、カツオ、カジキの漁獲海域の構成、(b)漁獲されるマグロ、カツオ、カジキ中の総水銀の起源

(7) 今後の展望：FATE-Hgによる海水中水銀濃度の予測は、 $Hg^I$ と比べて、MMHgとDMHgのモデル推定濃度に誤差が大きい。これは、海水中のメチル化と脱メチル化の速度定数の設定に課題があるためであると考えられる。海水中の形態変化の速度定数に関する実測研究は不足しており、今後、この実測データの蓄積が必要である。水銀条約の有効性評価に応用するためには、排出インヴェントリの将来シナリオの作成と将来予測が必要である。これらは今後の課題である。

#### <引用文献>

- Fisheries and aquaculture software. FishStatJ - software for fishery statistical time series. In: FAO Fisheries and Aquaculture Department [online]. Rome. Updated 21 July 2016. [Cited 18 June 2019].
- D. G. Streets, H. M. Horowitz, D. J. Jacob, Z. Lu, L. Levin, A. F. H. ter Schure and E. M. Sunderland, Total Mercury Released to the Environment by Human Activities, Environ. Sci. Technol., 2017, 51, 5969-5977.
- Y. Zhang, L. Jaeglé and L. Thompson, Natural biogeochemical cycle of mercury in a global three-dimensional ocean tracer model, Global Biogeochem. Cycles., 2014, 28, 553-570.
- K. Semeniuk and A. Dastoor, Development of a global ocean mercury model with a methylation cycle: Outstanding issues, Global Biogeochem. Cycles, 2017, 31, 400-433.

#### 5. 主な発表論文等

[学会発表](計10件)

- Kawai T., Global-scale modeling on mercury biogeochemical cycles in the ocean, International Workshop on Mercury Science and Minamata Convention, 2019.
- Kawai T., Global-scale modeling on mercury biogeochemical cycles in the ocean, Joint Symposium between Korea and Japan on Mercury Movement in Northeast Asian Countries, 2018.
- 河合徹、櫻井健郎、鈴木規之、全球モデルを用いた水産物中メチル水銀の起源推定に関する研究、メチル水銀研究ミーティング、2017
- Kawai T., Sakurai T., Suzuki N., Mercury sources and budgets in the upper ocean: Results from the global multimedia model FATE-Hg, SETAC NORTH AMERICA 38<sup>TH</sup> ANNUAL MEETING, 2017.
- Kawai T., Sakurai T., Suzuki N., Assessing mercury biogeochemical cycles in the global ocean using a 3D dynamic multimedia model, 13<sup>th</sup> International Conference on mercury as a Global Pollutant (ICMGP2017), 2017.
- 河合徹、櫻井健郎、鈴木規之、全球多媒体モデルを用いた水銀の発生源寄与率解析、第26回環境化学討論会、2017

河合徹、櫻井健郎、鈴木規之、水銀に関する水俣条約の有効性評価に向けた全球多媒体モデルの構築、第 32 回環境研究所交流シンポジウム、2017

Kawai T., Sakurai T., Suzuki N., Development of a New Global Multimedia Model for Mercury, 2<sup>nd</sup> International Forum on Sustainable in ASIA, 2017.

河合徹、水銀の地球規模動態モデルの開発～水銀に関する水俣条約の有効性評価に向けて～、第 25 回環境化学討論会自由集会「微量元素の環境化学研究の新たな展開」、2016

河合徹、櫻井健郎、鈴木規之、全球多媒体モデルを用いた水銀の海洋生物への移行予測、第 25 回環境化学討論会、2016

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。