

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 17 日現在

機関番号：82101

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2013～2014

課題番号：25871087

研究課題名(和文) 全球多媒体モデルを用いた残留性有機汚染物質の海洋水産資源への曝露予測手法の開発

研究課題名(英文) Global-scale prediction of POPs exposure to marine fishery resources using 3D dynamic multimedia environmental fate model

研究代表者

河合 徹 (Kawai, Toru)

独立行政法人国立環境研究所・環境リスク研究センター・研究員

研究者番号：30512719

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：多様な化学物質の内、残留性有機汚染物質(POPs)は広域多媒体に亘って輸送され、かつ高い生物濃縮性を持つ。本課題では研究代表者らが開発してきたPOPsの全球多媒体モデルFATEに、衛星データを利用して海洋生物の生態系構造を推定する生態系モデルと、経験則に基づく生物濃縮モデルを導入した。これを用いて、全栄養段階における海洋水産資源(魚類)へのPOPsの曝露量を地球規模で推定し、さらに、漁業によるPOPsの陸域への輸送量を推定した。

研究成果の概要(英文)：We have developed a 3D dynamic multimedia model, FATE, to quantify the fate and transport of persistent organic pollutants (POPs) in the environment. FATE is capable of predicting global biogeochemical cycles of POPs across the atmosphere, ocean, soil, vegetation, and cryosphere. In this study, we integrated FATE, macroecology, and food-web bioaccumulation models. This improved FATE enabled us to predict POPs contents in marine fishery resources (i.e., fishes) in all body mass or trophic level classes. We also compiled global fishery statistics and estimated POPs piscatorial transports from the ocean to land, which is considered to be a potential source of POPs exposure to terrestrial ecosystems.

研究分野：環境学

キーワード：残留性有機汚染物質 全球多媒体モデル 生物濃縮

## 1. 研究開始当初の背景

(1) 多様な化学物質の内、広域多媒体に亘って輸送され、かつ高い生物濃縮性と毒性を持つものは特に国際社会における関心が高い。このような物質の一つに残留性有機汚染物質 (POPs) が挙げられる。

(2) POPs による地球規模汚染を抑止し、適切に管理していくためには、関連する各国国際条約 (ストックホルム条約等) の有効性評価に用いることができる数値モデルの構築が不可欠である。

(3) 筆者らは POPs の大気と海洋における空間輸送を高い時空間解像度で計算する全球多媒体モデル FATE (Finely-Advanced Transboundary Environmental model) の開発と進めてきた。

(4) POPs の多媒体モデルの開発は広く進められている。ただし、これらの多くは多数の候補物質のスクリーニング評価に適した BOX モデル、または解像度の粗い区画タイプのモデルである。

(5) 近年、大気中の化学輸送モデルを用いた研究も進められているが、陸域や海洋には空間輸送を計算しない簡易的なモデルが用いられている。

(6) さらに、生物移行まで取り扱うモデルはシンプルなモデルも含めて構築されていない。このため人への曝露経路となる、水産資源等の食物中に POPs がどの程度蓄積されているのかについては、地球規模ではほとんど分かっていない。

(7) このように、多媒体モデルにおける生物移行のモデリングが遅れている背景には、生態系構造 (栄養段階や存在量等) を地球規模で推定することが困難なこと、低次消費者から高次消費者への生物濃縮に関する知見が不足していることが挙げられる。

(8) ただし、海洋においては、近年、衛星データのみを用いて生態系構造を推定するモデル研究が進められており、状況を打開するためのツールがそろいつつある。

## 2. 研究の目的

(1) FATE を多数 (1436 種) の塩素・臭素系の POPs、及び POPs 候補物質 (Cl/Br 物質) に拡張し、その後、FATE に、海洋における衛星データベースの生態系モデルと経験則に基づく生物濃縮モデルを導入する。これを用いて、中-高次消費者を含めた海洋生物への Cl/Br 物質の曝露実態を地球規模で推定することを目的とする。

(2) さらに全球水産統計データを整理し、漁業 (人為的要因) による Cl/Br 物質の陸域への輸送量を推定することを試みる。

## 3. 研究の方法

(1) 物質の物理化学的な性質 (分配係数、吸着係数、分解率等) を分子構造の特性より推定する QSPR (Quantitative Structure-Property Relationships) モデルを FATE に導入した。これにより計 1436 種の Cl/Br 物質 (PCNs, PBNs, PCBs, PBBs, PCDDs, PBDDs, PCDEs, PBDEs, PCDFs, PBDFs) のシミュレーションを行うことが可能になった。この中には代表的な POPs である PCBs や PCDD/Fs、および新規の POPs である PBDEs も含まれている。

(2) Cl/Br 物質の基礎的な環境特性を把握するために、スクリーニング指標の一つである長距離輸送特性 (long-range transport potential; LRTP) を評価した。300 種の Cl/Br 物質に対して各 10 年間のシミュレーションを実施し、結果を解析した。

(3) 海洋生物の生態系特性は全て衛星データを用いて推定した。具体的には、低次消費者の指標となる粒子状有機炭素 (POC) の存在量 (Stramska, 2009) と生物ポンプに伴う鉛直炭素循環 (Dunne *et al.*, 2007) は衛星データベースの経験モデルを統合することにより推定し、中-高次消費者 (魚類) の存在量と栄養構造は Jennings *et al.* (2008) のモデルを用いて推定した。このモデルでは、衛星データより推定可能な基礎生産量と海表面温度のみを用いて、マクロ生態系理論に基づき、硬骨魚類と軟骨魚類の存在量が栄養段階毎に推定される。

(4) 低次消費者から中-高次消費者への生物濃縮の計算には経験則に基づくモデル (Trophic Magnification Factor; TMF; Toyoshima *et al.*, 2008) を用い、栄養段階毎に濃度推定を行った。TMF は食物網構造等に依存する。このため、本来、海域毎に異なるが、本課題では一律一定値を用いた。

(5) 漁業による陸域への POPs 輸送量を推定するために、全球水産統計データを整理した。全球水産統計データには FAO の FishStatJ を用いた。FishStatJ では 245 カ国、26 主要漁業海域、2119 魚種別の年間データが利用できる。魚種は ISSCAAP (International Standard Statistical Classification of Aquatic Animals and Plants) に基づき再分類し、海水魚に分類されるデータのみを用いた。

(6) 全球排出量インベントリの整備されている PCBs を取り上げ、PCBs の同族種 9 種 (PCB8, 28, 52, 101, 105, 118, 138, 153, 180) に対して過去約 80 年間 (1931-2007) のシミュレーションを実施した。この内、2007 年の結

果を解析した。

#### 4. 研究成果

(1) 環境動態の観点から化学物質のスクリーニングを行う場合、総括残留性 (overall persistence) と LRTP が用いられる。この内 LRTP の指標は研究者によって異なっており、いずれの指標を用いても恣意的な条件設定に結果が依存する。本課題ではソース-レセプター解析を利用した LRTP の新指標を導入し、Cl/Br 物質 300 種の解析を行った。この新指標は従来の指標に比べて条件設定に依存しづらい。このため、今後の化学物質のスクリーニング評価手法の改善に貢献できるものと期待される。これらの成果の詳細は雑誌論文 にまとめられている。

(2) POC 中の PCBs 濃度に対してモデル検証を実施し、POC 中 PCBs 濃度の鉛直分布と緯度分布が概ね再現できていることを確認した。また、海洋における PCBs の全球収支を算出した。この結果、高塩素化 PCBs (例えば PCB153) の場合、過去に排出されたものの多くが深海に蓄積されていること (PCB153 の場合大気から海洋への年間輸送量の約 20 倍) 及び深海輸送において物理学的プロセス (移流拡散) よりも生物学的プロセス (生物ポンプ) の方が支配的になっていることが示された。これらの成果の詳細は雑誌論文 にまとめられている。

(3) FATE を用いて海水魚 (硬骨魚類と軟骨魚類) 中の PCBs 濃度を推定し (図 1)、水産統計データを用いて、漁業による PCBs の陸域への輸送量を国別に推定した (図 2)。ただしこれらの推定結果には非常に大きな不確実性がある。海水魚中の PCBs 濃度に対するモデル検証を進めた後に定量的な議論を行いたい。

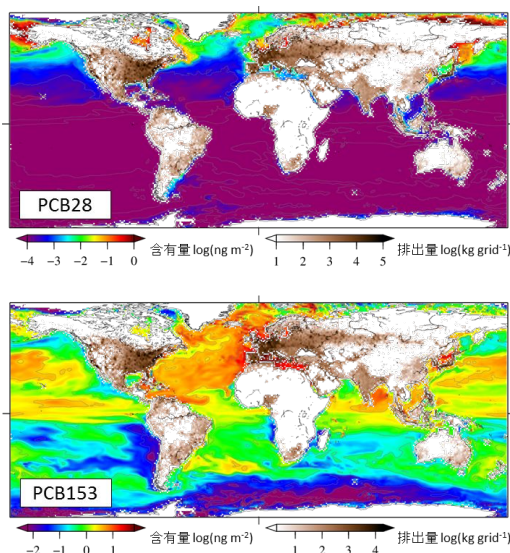


図 1 FATE より推定された PCB28 と PCB153 の全魚類中鉛直積算含有量。その他より引用。

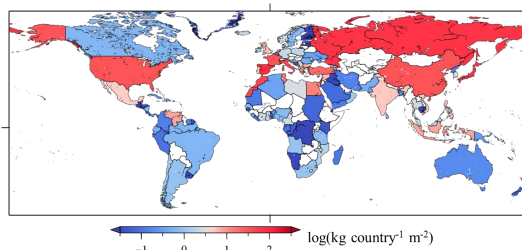


図 2 ΣPCBs の漁業による陸域への輸送量の推定結果。その他より引用。

(4) FATE を用いて海棲哺乳類中の PCBs 濃度を推定し、文献値を用いて検証した。また、海棲哺乳類の大量斃死がもたらされる臨界曝露濃度 (critical exposure level; CEL) を算出した。CEL は「化学汚染に対する地球の限界 (planetary boundary for chemical pollution; Rockström *et al.*, 2009)」の一つとして解釈される。このような定量評価は世界的に前例がなく、重要な成果である。これらの成果の詳細は雑誌論文 にまとめられている。

(5) 以上、本課題では当初設定した研究計画を概ね達成できたと考ええる。ただし、以下については今後の課題としたい。

文献値等を整理して魚類全般中の POPs 濃度を検証する。

中 - 高次消費者への生物濃縮を計算する際に用いるモデルパラメータ (TMF) を精緻化する。本課題では TMF に全球一律一定値を用いたが、これはこの種の実測データが極めて不足しているためである。

PCBs 以外の Cl/Br 物質のシミュレーションを実施する。本課題では PCBs のみを取り上げたが、これは、排出量インヴェントリの整備とパラメータ (TMF) 推定が追いついていないためである。

#### <引用文献>

- Stramska M. Particle organic carbon in the global ocean derived from SeaWiFS ocean color. *Deep-Sea Research Part II*, 56(9), 2009, 1459-1470.
- Dunne J.P., Sarmiento J.L., Gnanadesikan A. A synthesis of global particle export from the surface ocean and cycling through the ocean interior and on the seafloor. *Global Biogeochemical Cycles*, 21(4), 2007, GB2024.
- Jennings S., Melin F., Blanchard J.L., Forster R.M., Dulvy N.K., Wilson R.W. Global-scale predictions of community and ecosystem properties from simple ecological theory. *Proceedings of the Royal Society B*, 275, 2008, 1375-1383.
- Toyoshima S., Isobe T., Ramu K., Miyasaka H., Omori K., Takahashi S., Nishida S., Tanabe S. Organochlorines and brominated

flame retardants in deep-sea ecosystem of Sagami Bay. *Interdisciplinary Studies on Environmental Chemistry – Environmental Research in Asia*, vol 2, 2009, 83-90. FAO Fisheries and Aquaculture Department, Statistics and Information Service FishStatJ: Universal software for fishery statistical time series. Copyright 2011.  
Rockström J., Steffen W., Noone K., Persson Å., Chapin F.S., Lambin E.F., Lenton T.M., Scheffer M., Folke C., Schellnhuber H.J., Nykvist B., Wit C.A., Hughes T., Leeuw S., Rodhe H., Sörlin S., Snyder P.K., Costanza R., Svedin U., Falkenmark M., Karlberg L., Corell R.W., Fabry V.J., Hansen J., Walker B., Liverman D., Richardson K., Crutzen P., Foley J.A. A safe operating space for humanity. *Nature*, 461, 2009, 472-475.

## 5 . 主な発表論文等

### 〔雑誌論文〕(計6件)

Kawai T., Jagiello K., Sosnowska A., Odziomek K., Gajewicz A., Handoh I.C., Puzyn T., Suzuki N. A new metric for long-range transport potential of chemicals. *Environmental Science & Technology*, 査読有, 48(6), 2014, 3245-3252.  
DOI:10.1021/es4026003

Kawai T., Jagiello K., Sosnowska A., Odziomek K., Gajewicz A., Puzyn T., Suzuki N. Handoh I.C. Assessing long-range transport potential and overall persistence of chlorinated and brominated organic compounds using a 3-D dynamic multimedia model and quantitative structure-property relationships. *Organohalogen Compounds*, 査読有, 75, 2013, 792-795.  
<http://www.dioxin20xx.org/pdfs/2013/2202.pdf>

河合 徹、鈴木 規之、半藤 逸樹、海洋を含む化学物質の全球動態モデルの構築、*地球環境*, 査読有, 19(2), 2014, 147-154  
[http://www.airies.or.jp/journal\\_chikyukankyo\\_I8zKhLFFK.html](http://www.airies.or.jp/journal_chikyukankyo_I8zKhLFFK.html)

Handoh I.C., Kawai T. Modelling exposure of oceanic higher trophic-level consumers to polychlorinated biphenyls: Pollution ‘hotspots’ in relation to mass mortality events of marine mammals. *Marine Pollution Bulletin*, 査読有, 85(2), 2014, 824-830.  
DOI:10.1016/j.marpolbul.2014.06.031  
Sosnowska A., Barycki M., Jagiello K., Haranczyk M., Gajewicz A., Kawai T., Suzuki N., Puzyn T. Predicting enthalpy of vaporization for Persistent Organic Pollutants with Quantitative Structure-Property Relationship (QSPR) incorporating the influence of temperature on volatility. *Atmospheric Environment*, 査

読有, 87, 2014, 10-18.  
DOI:10.1016/j.atmosenv.2013.12.036  
Jagiello K., Sosnowska A., Walker S., Haranczyk M., Gajewicz A., Kawai T., Suzuki N., Leszczynski J., Puzyn T. Direct QSPR: the most efficient way of predicting organic carbon/water partition coefficient (log KOC) for polyhalogenated POPs. *Structural Chemistry*, 査読有, 25(3), 2014, 997-1004. DOI:10.1007/s11224-014-0419-1

### 〔学会発表〕(計4件)

河合 徹、残留性有機汚染物質の海洋水産資源への曝露予測手法の開発、第23回環境化学討論会、2014年5月14-16日、京都大学(京都府京都市)

Kawai T., Assessing long-range transport potential and overall persistence of chlorinated and brominated organic compounds using a 3-D dynamic multimedia model and quantitative structure-property relationships., The 33<sup>rd</sup> International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (Dioxin 2013), 26-30 Aug. 2013, Daegu (Korea)

河合 徹、残留性有機汚染物質の海洋水産資源への曝露量を予測する～多媒体モデル-生態系モデル-生物濃縮モデルの統合、日本地球化学会年会、2013年9月11-13日、筑波大学(茨城県つくば市)  
河合 徹、発生源寄与率解析に基づく塩素・臭素系有機汚染物質の長距離輸送特性の評価、第22回環境化学討論会、2013年7月31日-8月2日、東京農工大学(東京都府中市)

### 〔その他〕(計1件)

平成25年度国立環境研究所スーパーコンピュータ利用研究年報 (ISSN 1341-4356) p77-84 .

## 6 . 研究組織

### (1)研究代表者

河合 徹 (KAWAI, Toru)

独立行政法人国立環境研究所・環境リスク研究センター・研究員

研究者番号：30512719