

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成25年5月31日現在

機関番号：82626

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2011~2012

課題番号：23710032

研究課題名（和文） ヒマラヤ氷河融解によるガンジス河生態系への影響評価研究

研究課題名（英文） Possible influence of melting Glacier in the Himalayas to the Ganges River Basin

研究代表者

谷保 佐知 (TANIYASU SACHI)

独立行政法人産業技術総合研究所・環境管理技術研究部門・主任研究員

研究者番号：00443200

研究成果の概要（和文）：Manipal 大学、インド海洋研究所（NIO）、Patna 大学等との研究協力体制を確立し、現地研究者の協力の下、ヒマラヤ周辺より氷河融水とガンジス河流域の環境試料を収集した。また2012年1月および7月に、残留性汚染物質（POPs）や医薬品汚染なども含めた包括的な化学分析を行った。環境試料はガンジス川流域8地域から、水試料30、底質25の試料を採集し化学分析に供した。特に、新たな地球化学トレーサーである PFOS（ペルフルオロオクタンスルホン酸）関連物質と POPs 類等、水資源の地球環境動態解析に必要な環境分析化学・地球化学指標を JISK0450-70-10 および ISO25101 等に準じて測定した。検出感度は数 pg/L であり、インドのようなベースライン汚染を調査する上で十分な高感度分析技術を開発した。ヒマラヤ氷河周辺から、PFOS は<0.01~0.73 ng/L、PFOA は<0.01~0.62 ng/L の濃度範囲で検出された。これは、日本、欧米のような先進国と比べ有意に低く、この地域には直接的な汚染源は存在しないことを示している。一方で、短鎖の化合物である PFBA や PFPeA などの濃度は標高 5000 m の氷河でも検出されており、これらの給源に興味を持たれる。また、氷河が流入しガンジスカワイルカが生息するガンジス川流域において、Delhi など都市域での顕著な濃度上昇が確認された（PFOS：0.325~21.8 ng/L、PFOA：0.098~2.46 ng/L）。インドの都市域での PFASs 汚染組成は日本とインドでは大きく異なり、汚染源や汚染状況が異なることが推測されたが、その濃度レベルは日本に匹敵するレベルであり、これらの化学物質が食物連鎖を通してガンジスカワイルカに高濃度に蓄積され、固体数減少に関係している可能性も指摘できた。全体として、インドでの PFASs 類の使用量は現在急激に増加しており、ストックホルム条約によって国内生産使用が禁止された先進国とは大きく異なった状況が明らかになった。

研究成果の概要（英文）：

Perfluorinated alkylated substances (PFAS) that become temporally popular in recent decades of years are compounds having a perfluorinated carbon chain and the functional end groups including sulfonate or carboxylate and similar chemicals. A physical and chemical persistency of PFAS was considered excellent and in a few decades of years after introduction they become one of a highly problematic matter in nature. The favorable physical and chemical features of PFAS are related to their exceptional surfactant and repellent properties. And at the end of the 20th century was highlighted a global spread of PFAS2. Progress was noted recently in understanding of environmental sources and fate of PFAS. Some of PFAS have acidophilic nature. Nevertheless, apart from hydrophilic properties of PFAS, some individual compounds can be easily released from a product into the atmosphere, e.g. perfluoro-2-butyltetrahydrofuran6. PFOA and its ammonium salt (APFO) actively partitions from water into air, while some fluorinated compounds may sublime from the products. The atmospheric/water circulation and sunlight ryes may induce a photolytic degradation of PFAS seem a dominant force influencing the environmental fate of those substances. Aim of this study was to get insight into the transport and fate of PFAS (15 compounds) possibly impacted by altitudinal and spatial resolution of compounds at the roof of the World and the adjacent area. This was done by examination of the compositional profile of PFAS in the aqueous environment of Tibet (located at 3,650 to 5,000 m a.s.l)

and glacier of the Mt. Gongga (peak at 7556 m a.s.l.) and a surface water and rain collected downwards east in the city of Chengdu (at ca 500 m a.s.l.) in Sichuan, western China, part of the Himalayans. Certainly, the Tibetan Plateau (an average elevation of 4,500 m a.s.l.) and including the region of Lhasa because of altitude, a vast area, volume of water compartment and climate and reference as “the third pole” of the World, is region also experiencing an intense solar radiation with high number of sunshine days (3,000 hours of sunlight annually) gives an unique possibility for studying the environmental chemistry of PFAS. A limited data on PFAS in water compartment of the Tibetan Plateau and adjacent area provided within this study clearly gave some new insight on their global diffusion and fate and underline significance of the place for further studies.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：環境学・環境動態解析

キーワード：環境変動

1. 研究開始当初の背景

地球温暖化によるヒマラヤ氷河・永久凍土の融解・縮小によりインド・ガンジス河生態系は大きく影響を受けつつある。過去 20 年の間にガンジス河流域の淡水供給源は大きく変化しており、特にその 70%以上を占める地下水伏流水の給源はヒマラヤ氷河・永久凍土の融解が起源であると推測されている。主たる産業である紅茶製造・繊維工業に加え、近年急速な発展を遂げつつある IT 先端工業産業のために、北インドを縦断する大規模な工業用水パイプラインの建設も予定されており、現在、淡水供給源・量の急激な変化によってガンジス川生態系は危機的な環境変動を被りつつある。ガンジス河食物連鎖の頂点に立つのは狭義の意味でカワイルカとして地球上に残っている唯一の種、絶滅危惧種であるガンジスカワイルカであるが、食性・生殖・回遊状況等、その生態には未知の部分が多く適切な保護活動を行うことが困難な状況であり、ガンジス河生態系の危機によって絶滅が懸念されている。

提案者は様々な環境中微量化学物質を用いた地球規模環境化学研究を行っており、特にダイオキシン・内分泌攪乱物質等、多くの場合単なる環境汚染物質としてしか研究されてこなかった微量化学物質を「化学トレーサー」として研究することで、環境化学・地球化学に関する一般法則を明らかにしてきた。特にフッ素系新規環境汚染物質であるペルフルオロオクタンスルホン酸(PFOS)関連物質の地球規模環境挙動について、数々の業績を上げ、世界最高感度分析法の開発、ISO 国際標準分析法の確立、全く新しい海洋化学トレーサーとして地球規模海洋大循環の解明にも結びつけている。なかでも 2008 年に公表した日本・インド間の国際共同研究では

ガンジス河流域に負荷される PFOS 類のフラックスモデルを世界で初めて報告、ヒマラヤ氷河起源の淡水と汚染源であるヤムナ河流域の物質循環とガンジスカワイルカへの化学物質暴露について予備研究を行った。この国際共同研究の成果はインド政府・科学者に高く評価されており、2009 年 7 月にインドで開催された国際会議 (The international symposium on environmental pollution, ecology and human health) では本研究グループメンバーがボードメンバーとして招待された。また国内では 2003 年に既に PFOS 国内汚染マップを報告、人体・野生動物・環境媒体の包括的調査を行うとともに、立山連峰より採集した氷雪試料を用いることで過去四半世紀の環境インプットの時系列変動を明らかにしている。これにより低分子有機酸である PFOS 類は一般水・雨水・雪・氷等、水媒体の大規模な地球環境モデルを作成する上で、非常に優れた化学トレーサーであることが判明した。

2. 研究の目的

本提案では、日本・インド・中国の国際共同チームが連携し、ヒマラヤ山脈氷河に蓄積されている残留性有機フッ素化合物を全く新しい化学トレーサーとして用い、地球温暖化による氷河減少速度を考察する。また、地上で放出された化学物質が降雨・氷雪により高山へ負荷され、融雪水・地下水・伏流水としてガンジス河へ流入、最終的にベンガル湾へ流入する過程を解析する。

3. 研究の方法

平成 23 年度は予備研究の結果をもとに、ガンジス河生態系への水資源供給源として高山氷河伏流水とモンスーンの影響を定量

的に評価するために、高度 7000 m を超えるヒマラヤ山脈からベンガル湾まで、全長 250 km に及ぶガンジス河流域の包括的調査をモンスーンの前に行った。Bihar 大学より 50 名以上の現地スタッフをガンジス河流域全域に派遣し、底質・河川水・雨水を採集した。平行してガンジスカワイルカの目視調査、漁師捕殺による死亡個体の収集も行い、過去四半世紀に 100 検体以上収集されている世界最大のガンジスカワイルカスペシメンバンクの拡充を行った。この一部を日本へ輸送し、新たな地球化学トレーサーである PFOS 関連物質(炭素鎖 2 個から 18 個の一連の残留性人工フッ素化合物)と残留性低分子有機酸・POPs 類、水資源の地球環境動態解析に必要な環境分析化学・地球化学指標を ISO25101 および ISO17025 に準じて高度に精度管理がとれた機器分析科学技術を用いて測定した。

平成 24 年度はインド国立海洋研究所チームと中国科学アカデミー・水資源保全省チームによりガンジス河の水源であるヒマラヤ氷河の氷雪試料の採集と海洋への出口であるベンガル湾における環境調査・試料採集を行った。ヒマラヤ高山の氷雪・氷河融雪水・河川水・ベンガル湾沿岸海水の化学分析により、チベット・中国および中東より大気中へ放出された化学物質が降雨・氷雪によりヒマラヤ高山へ負荷され、一部は氷河を形成するとともに融雪水・地下水・伏流水としてガンジス河へ流入、最終的にベンガル湾へと注ぐ過程を解析した。

4. 研究成果

2006 年より開始した日本・インド・中国間の国際共同研究基盤をもとに、本研究で本格的な現地調査を行った。その結果、国際海洋科学の中東、西アジアの中心であるインド国立海洋研究所の Borole 博士、ガンジス河生態学の中心研究機関である Bihar 大学の Sinha 博士、チベット・ヒマラヤ地域の中国側研究を統括している中国科学アカデミー・水資源保全省の Zhang 博士および地球規模の PFOS 汚染を初めて報告した、米国最優秀科学者(環境化学領域)トップ 10 にあげられた米国 Wadsworth Center の Kannan 博士と確固たる国際協力体制を確立することができた。2008 年に予備調査を行ったヤムナ河流域の高濃度化学物質負荷がヒマラヤ氷河起源の莫大な淡水によって希釈され、ベンガル湾へ到達するまでの過程について、PFOS 関連物質を化学トレーサーとして用いることで追跡・挙動解析できることを確認した。またこれらの化学物質が食物連鎖を通してガンジスカワイルカに高濃度に蓄積され、固体数減少に関与している可能性も指摘できた。

表 1 に 24 年度に分析したヒマラヤ氷河周辺の環境試料のリストを示す。これは研究開

始時に中国側研究者の協力の下に標高 5000 m から 500 m の範囲で採集した湖水、河川水、氷河試料である。

表 1 ヒマラヤ氷河周辺環境試料リスト

ID	Material	Site and remarks
<i>Tibet</i>		
A	Lake	Namtso lake; at 4,718 m a.s.l
B	River	La qu river; at 5,000 m a.s.l.
C	River	Lhasa river; at 3,495 m a.s.l
D	River	Lhasa river; at 3,485 m a.s.l
E	River	Xiang Qu River; at 3,800 m a.s.l.
<i>Mt. Gongga (glacier no. 1) in the Eastern Tibetan Plateau; peak at 7556 m a.s.l.</i>		
F	Glacier	- Glacier River; collected river at 3,450 m a.s.l.
G	Glacier	Glacier River; collected river at 3,000 m a.s.l.
H	Glacier	- Glacier; ice collected at 3,000 m a.s.l.
I	Pond	Pond; collected at 2,950 m a.s.l.
J	Glacier	- Glacier; stream E, stream at 3,200 m a.s.l.
K	Glacier	- Glacier; stream SE, stream at 3,100 m a.s.l.
<i>Chengdu city environment; Sichuan</i>		
L	River	Sha He river, at 500 m a.s.l.
M	River	Jin river, Wuhou District at 500 m a.s.l.
N	Rain	Wuhou District, at 500 m a.s.l.
O	Rain	Wuhou District, at 500 m a.s.l.

表 2 ヒマラヤ氷河周辺環境試料中 PFASs 濃度(ng/L)

ID	PFBA	PFPeA	PFOA	PFNA	PFOS
A	0.14	0.87	0.026	0.018	0.044
B	0.54	<0.002	<0.01	<0.01	0.052
C	0.24	0.23	0.023	0.0049	0.017
D	0.22	0.16	0.022	0.018	0.011
E	0.84	<0.002	0.26	0.17	0.58
F	0.38	0.83	0.13	0.096	<0.01
G	0.26	0.64	0.063	0.057	<0.01
H	0.086	0.98	0.12	0.024	<0.01
I	0.39	3.7	0.13	0.085	0.011
J	0.058	0.52	0.015	0.013	<0.01
K	0.068	0.64	0.016	0.014	<0.01
L	0.56	1.0	0.34	0.11	0.73
M	0.35	0.44	0.44	0.092	1.1
N	0.27	<0.002	0.62	0.18	0.084
O	<0.01	0.32	0.4	0.17	0.12

これらに含まれる PFASs の分析結果を表 2 に示す。検出濃度は、PFOS は<0.01~0.73 ng/L、

PFOA は<0.01~0.62 ng/L の濃度範囲であり、日本、欧米のような先進国と比べ有意に低く、この地域には直接的な汚染源は存在しないことを示している。一方で、短鎖の化合物である PFBA や PFPeA などの濃度は標高 5000 m の氷河でも検出されており、これらの給源に興味を持たれる。

仮説としてはに米国ハワイのマウナケア山(標高 4000 m)と富山県、立山・室堂(標高 2500 m)で行った光分解実験の結果から、PFNA 等の長鎖化合物が高山の強紫外線照射下で光分解することでこれらの化合物が生成していることを発見しており(図 1)、ヒマラヤ氷河でも同様の現象が生じている可能性がある。逆にいうと、低地で使用された長鎖の PFASs が大気経由で高山へ輸送され、低地よりも 40% 近く強い高山での紫外線光分解で短鎖化合物が生成、氷河融水に溶けて低地に戻ってくるという、一種の循環過程が存在すると思われる。

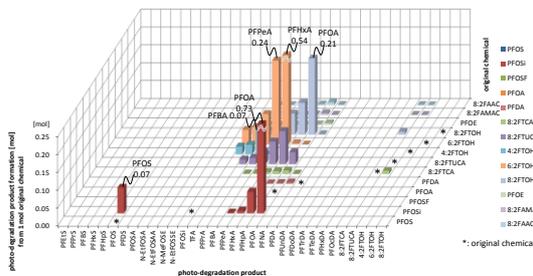


図 1 高山の強紫外線照射下での PFASs 生成割合

次にガンジス川流域の分析結果を図 2 に示す。それぞれインド大都市である Delhi 流域(図 2a)と、ヤムナ川流域(図 2b)での河川水中の PFASs の分析結果を示す。Delhi 流域では PFOS 濃度が比較的高く、0.325~21.8 ng/L の範囲であったが、PFOA については 0.098~2.46 ng/L の範囲であった。これは日本の代表的河川と同レベルであり、2008 年の報告と比較して有意に濃度が上昇している。ただし、日本では PFOA 濃度が PFOS 濃度より高いのに対し、インドでは PFOS 濃度が PFOA 濃度より高く、その組成が逆転していることから、PFOS/PFOA の汚染源や汚染状況が、日本とインドでは大きく異なることが推測された。

また、ガンジス川とヤムナ川を比較すると後者の高濃度汚染が著しく、地点#28~#32 の非汚染河川の水で希釈されてはいるが、ガンジス川の PFASs 濃度を急上昇されているのがヤムナ川との合流であることが新たに確認できた。また日本と比較して PFOA の濃度は比較的低く、PFOS 濃度も 2008 年と比較して急上昇しているため、特に PFOS を使用する産業活動が活発化していると考えられる。

全体としてガンジス川流域における PFASs 類の使用量は現在急激に増加しており、ストックホルム条約によって国内生産使用が禁止された先進国とは大きく異なった状況が明らかになった。

本研究で採集した貴重な環境試料は、インド・日本の両国でスペシメンバンクとして保管しており、現在、抗生物質・医薬品などの分析を継続しており、インド国内における多様な環境汚染状況を明らかにするために有効利用される。また本研究により本格化した日本-インドの共同研究体制により、新たに博士課程研究員二名を日本側で受け入れることが決定し、引き続きインド全域における化学物質汚染を明らかにするための研究協力を継続することが約束されている。

さらに研究成果の一部を平成 25 年に韓国で開催される国際会議において公表することが決定しており(学会発表①)、日本、インド、中国に加え、韓国他の東アジア周辺国の研究者との協力体制を拡充することで、ヒマラヤ・チベット周辺地域での活発な環境研究体制の確立に貢献できると考える。

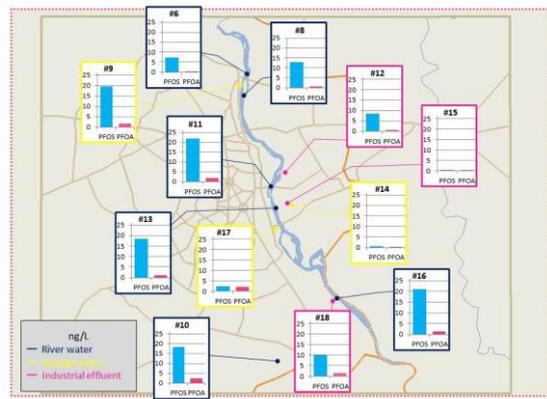


図 2a Delhi 流域の PFOS(■)および PFOA(■)濃度分布(ng/L)

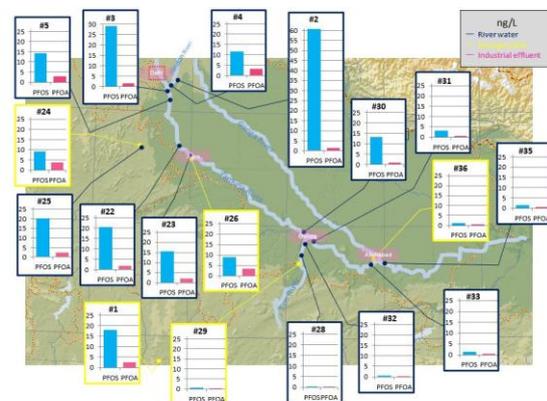


図 2b ヤムナ川流域の PFOS(■)および PFOA(■)濃度分布(ng/L)

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 3 件)

- ① Taniyasu S., Yamashita N., Moon H., Y., Kwok K.Y., lam P.K.S., Horii Y., Petrick G., Kannan K., Does wet precipitation represent local and regional atmospheric transportation by perfluorinated alkyl substances?, *Environment International*, 査読有, 55, 2013, 25-32.
DOI:10.1016/j.envint.2013.02.005
- ② Taniyasu S., Kannan K., Wu Q., Kwok K.Y., Yeung L.W.Y., Lam P.K.S., Chittim B., Kida T., Takasuga T., Tsuchiya Y., Yamashita N., Inter-laboratory trials for analysis of perfluorooctanesulfonate and perfluorooctanoate in water samples: Performance and recommendations, *Analytica Chimica Acta*, 査読有, 770, 2013, 111-120.
DOI:10.1016/j.aca.2013.01.056
- ③ Taniyasu S., Yamashita N., Yamazaki E., Petrick G., Kannan K., The environmental photolysis of perfluorooctanesulfonate, perfluorooctanoate, and related fluorochemicals, *Chemosphere*, 査読有, 90, 2012, 1686-1692.
DOI:10.1016/j.chemosphere.2012.09.065

[学会発表] (計 7 件)

- ① Yamashita N., Yamazaki E., Falandysz J., Taniyasu S., Tsuruta M., Jurkiewicz G., Yang Y., Perfluoroalkyl substances (PFAS) in the water compartments of Tibet, Mt. Gongga and the city of Chengdu, 33rd International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (Dioxin 2013), August 2013, Daegu, Korea.
- ② Yamashita N., Umehara S., Yamazaki E., Taniyasu S., Tanhua T., Petrick G., Kannan K., Gamo T., Perfluoroalkyl substances in the Mediterranean Sea, 32nd International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (Dioxin 2012), 30 August 2012, Cairns, Australia.
- ③ Taniyasu S., Yamashita N., Yamazaki E., Petrick G., Kwok KY, Kannan K., The environmental alteration of

perfluoroalkyl substances by photochemical reaction, 32nd International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (Dioxin 2012), 27 August 2012, Cairns, Australia.

- ④ Yamazaki E, Yamashita N, Taniyasu S., Petrick G, Tanhua T, Kannan K, Gamo T, Accidental input of perfluoroalkyl substances from land to ocean by the disaster of tsunami, EQ3.11, Japan, 32nd International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (Dioxin 2012), 27 August 2012, Cairns, Australia.
- ⑤ 山崎絵理子, 谷保佐知, Petric G., Kannan K., 村野健太郎, 蒲生俊敬, 山下信義, ヒマラヤ氷河、ガンジス川、日本海溝、太平洋深海まで高低差14000m、水平距離12000 kmにわたるPFOS類の地球規模空間変動測定技術の開発, 第72回分析化学討論会, 2012年5月20日, 鹿児島大学(鹿児島).
- ⑥ 山崎絵理子, 山下信義, 谷保佐知, Kwok K.Y., 梅原秀介, 村野健太郎, 蒲生俊敬, ヒマラヤ氷河・日本海溝・太平洋外洋域にわたるPFOS関連物質の空間推移, 環境ホルモン学会第14回研究発表会, 2011年12月2日, 東京大学, 山上会館(東京).
- ⑦ 山崎絵理子, 山下信義, 谷保佐知, Kwok K.Y., 村野健太郎, 陸域から海洋への人工フッ素化合物輸送過程の研究, 第52回大気環境学会年会, 2011年9月13日, 長崎大学(長崎).

6. 研究組織

(1) 研究代表者

谷保 佐知 (TANIYASU SACHI)

独立行政法人産業技術総合研究所・環境管理技術研究部門・主任研究員

研究者番号: 00443200