

2003 年度 卒業論文
指導教官 加賀昭和

環境循環モデルを用いたダイオキシン類の人体暴露量計算

～河川生態系中の食物連鎖モデル構築を中心として～

Estimation to human exposure to Dioxins(PCDDs and PCDFs) using Multi Media Model ,specially focusing Food Chain Model in river.

2004 年 2 月

大阪大学工学部地球総合工学科環境工学科目

4 年 川島元樹

卒業論文目次

1 . 序章	4
1.1 研究背景～環境ホルモンと現代～	4
1.2 研究の目的と経緯	5
1.3 本論文の構成	6
2 . 環境ホルモンとダイオキシン類	7
2.1 環境ホルモンとは	7
2.2 ダイオキシン類と人体への影響	7
2.2.1 ダイオキシン類	7
2.2.2 人体への影響と毒性	8
2.2.2.1 ダイオキシン類の影響と人体影響	8
2.2.2.2 ダイオキシン類の被害実例～ベトナムにおける枯葉剤被害～	9
2.2.3 耐容一日摂取量(TDI)について	9
2.2.4 我が国でのダイオキシン類の暴露状況	10
3 . 環境循環モデル (Multimedia Model)	12
3.1 はじめに	12
3.2 環境循環モデルと構築の目的	12
3.3 環境モデルの構造と物質循環	12
3.4 モデルの基礎方程式	13
3.5 環境循環モデルのパラメータと計算結果	16
4 . 河川食物連鎖モデルの構築(Food Chain Model)	18
4.1 はじめに	18
4.2 食物連鎖モデルの概要	18
4.2.1 河川の生態系	18
4.2.2 河川の生態系におけるダイオキシンの流れと食物連鎖モデルの概念図	19
4.3 ダイオキシン類の食物連鎖中物質循環モデルの基礎方程式	21
4.3.1 モデルの基礎方程式	21
4.3.2 付着藻類の濃度について	25
4.4 入力メータの推定方法	25
5 . 食物連鎖モデルの計算結果と推定パラメータの感度解析	32
5.1 第4章のパラメータを用いた食物連鎖モデルの計算結果	32

卒業論文目次

5.2 推定パラメータの感度解析	33
5.2.1 半減期の感度解析	33
5.2.2 吸収率の感度解析	34
5.3.3 捕食量の感度解析	35
6 . 食物連鎖モデルを用いたダイオキシン類の人体暴露量の計算	37
6.1 人間の一般的な生活環境からのダイオキシン類暴露状況	37
6.2 食物連鎖モデルを用いたダイオキシンの1日摂取量の計算と人体の残留量の計算	38
6.2.1 ダイオキシン類の1日摂取量の計算式	38
6.2.2 ダイオキシン類の人体残留量の計算式	38
6.2.3 ダイオキシン類の1日摂取量の計算と人体残留量の計算のパラメータ	39
6.3 計算結果	39
6.3.1 ダイオキシン類の1日摂取量の計算結果	39
6.3.2 ダイオキシン類の人体残留量の計算結果	40
6.3.3 摂取媒体割合の計算結果	42
7 . 総括	44
8 . 謝辞	46
9 . 参考文献	46

第1章 序章

1.1 研究背景～環境ホルモンと現代～

戦後の日本社会において、産業の高度化、大量生産化により自然界に存在しない化学物質が大量に開発されてきた。ヒトに対して有用である化学物質もそれは正の側面であり、ヒトの健康に対して有害である化学物質も存在する。そのような化学物質は、公害や病気を引き起こし尊い命や人生を奪うという歴史を日本に作り出す結果を招いた。1960年代の四大公害は正にそのような健康被害の典型例であった。

公害対策基本法や環境基準の制定によりそれらの化学物質によるヒトに対する健康被害はいったん収まったかに思われた。しかし、現代になり新たな化学物質による健康被害が問題視されている。

その化学物質は毒性が最も強いダイオキシン類に代表される環境ホルモンと呼ばれるものである。環境ホルモンとは、生物の内分泌機能に影響を及ぼす化学物質である。環境ホルモンの問題は従来の化学物質による健康被害と異なり、非常に微量で作用し体内に蓄積するものがあつたり(生物濃縮)母親から子供に移行したり次世代にわたって影響するなど、環境ホルモンの影響が分かりにくく因果関係がはっきりと解明されていないことである。その中で影響が明らかになっているものは約70種類であり、地球上に存在している化学物質の千分の一に過ぎない。

これらの環境ホルモン等の化学物質によるヒトへの健康影響を知る一つの情報として耐容一日摂取量(TDI)というものがある。これは「ヒトが一日あたり摂取しても長期的健康被害は出ないとされる環境ホルモンの摂取量」を意味する。これを日本では現在、ダイオキシン類で4pg-TEQ/kg/day(一日あたりダイオキシン類を最も毒性の強いTeCDDに換算して体重1kgあたり4pgまでなら摂取しても長期的影響はでない)としている。しかし、環境ホルモンは急性の毒物ではなく日常的に蓄積されていくものであるため短期的な影響だけで判断はできない。さらに他の化学物質の影響も否定できないから、究極的には摂取量は1pg-TEQ/kg/day未満になるように努めるべきである、とWHOの最終報告概要に記されている。日本人の平均摂取量は約2pg-TEQ/kg/dayであるので環境基準を下まわっているがこの報告概要を考慮すると楽観視はできない。

ここで必要となってくるのは、我々は一日あたりどれくらいのダイオキシン類等の環境ホルモンを大気、水、食物などの媒体から摂取しているのだろうかという情報である。現在の摂取量は調査・測定により既に解明されている。しかし、将来の摂取量を予測し、さらにその摂取量に対する体内蓄積・健康影響を将来予測する、または現在の摂取の由来を知るためにはヒトが摂取する媒体中の環境ホルモンを空間的、経年的に解明していくことが必要である。特に、ヒトが日常的に摂取し、ヒトへの汚染の影響が強いとされる食物への汚染の過程が解明されることが望まれる。

1.2 研究の目的と経緯

1.1 で述べた通り、ヒトのダイオキシン類の最大摂取経路は食物からであり、日本ではその中でも魚介類からの摂取が約 70 パーセントを占める¹⁾。本論文では、魚類中のダイオキシン類の循環量を求めるモデル構築を行い、最終的にはヒトの様々な媒体からの一日当たり摂取量、過去の汚染の蓄積をモデル計算によって求めた。

大気、水、土壌などの媒体におけるダイオキシン類の環境中の循環量は兵庫県下において我々の研究室で既に計算されているので、最もダイオキシン摂取量の摂取割合の大きい魚類中のダイオキシン類の循環量を求めるために、兵庫県の河川を対象フィールドとして河川生態系の食物連鎖中におけるダイオキシン類の循環を、空間的・経年的に計算するモデルを作成した。

研究フローを Fig.1.1 に示す。対象物質はダイオキシン類 (PCDDs,PCDFs) 対象地域を兵庫県全域、対象河川生態系は本来兵庫県下の河川であるが、ここでは河川生態系の説明が進んでいる長野県千曲川の研究成果²⁾を使用した。

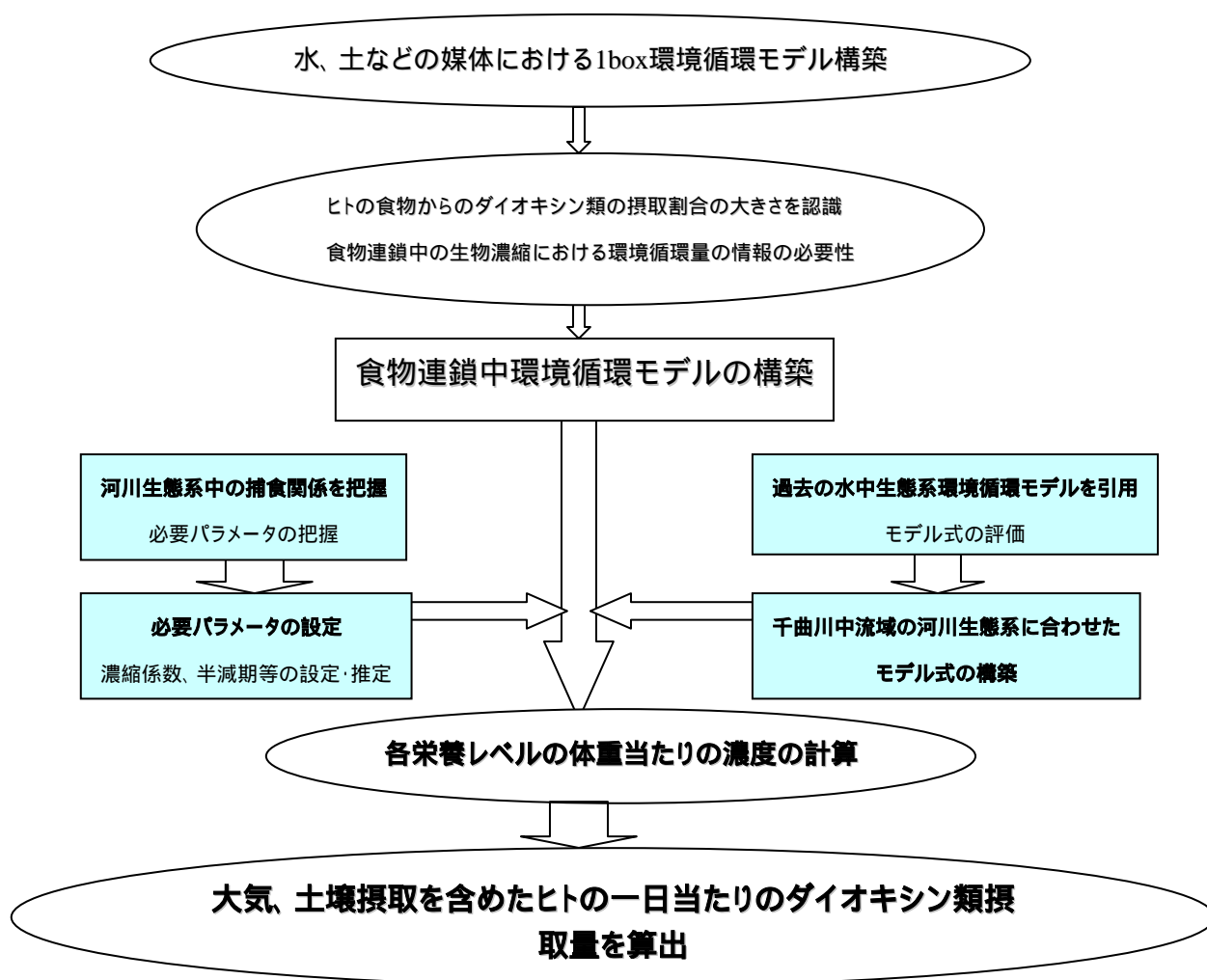


Fig.1.1 Study flow

1.3 本論文の構成

本論文の構成と概要を述べる。本論文は第1章から第7章で構成されている。

まず第1章では、現代の化学物質による人体への健康影響の問題を提起し、食物からの摂取がヒトのダイオキシン類摂取の大部分を占めているという事実を述べた上で、本研究の目的と経過のフローを示した。

第2章では、環境ホルモンの歴史的背景を述べたうえで、特にダイオキシン類の性質、ヒトへの健康影響、耐容1日摂取量に関する考察についての調査した結果を示した。

第3章では、ダイオキシン類の環境循環モデルの概要を示した。モデル構築において用いた基礎式、基礎式に用いたパラメータを簡略にまとめた。

第4章では、河川生態系における食物連鎖中ダイオキシン類の環境循環モデルの構築について述べた。河川生態系の概略を説明し、用いた基礎式、パラメータの設定、推定方法を示した。

第5章では、設定されたパラメータを用いて河川生態系における各栄養レベルの濃度、を計算し、現実の値との比較・評価、パラメータの感度解析を行った。

第6章では、計算された魚類の濃度を用いて、ヒトが大気、土壌、魚類を経年的に摂取するというモデルを構築し、ダイオキシン類の体内蓄積量、一日摂取量、摂取経路別割合を示し、現実に調査された値と比較評価を行った。

第7章では、各章の結果を要約し、本研究をまとめた。

第2章 環境ホルモンとダイオキシン類

2.1 環境ホルモンとは

「環境ホルモン」とは、正式には「外因性内分泌かく乱物質」といわれる化学物質である。環境ホルモンの定義としては次のようなものが一般的である。¹⁾

定義1「外来性物質であり、無処置の生物の内分泌系に対して、その個体もしくはその子孫の世代のいずれかの段階で健康障害性の変化を起こさせる物質。」(1996年2月 欧州委員会)

定義2「環境中の内分泌かく乱物質(ED・Endocrine Disruptor)は、体の中のホメオシタシス(自己恒常性)の維持、生殖、発達および行動を支配している自然ホルモンの生成、分泌、結合、輸送、作用、あるいは消滅(のプロセス)に介入する外因性物質、ホルゲン・ディスラプターと同義で用いるが、EDは単に環境エストロゲンを指すばかりでなく、本来の内分泌システムのどの面であれ悪影響を及ぼす物質を含む。」(1997年7月アメリカ環境保護庁)

定義3「外因性内分泌かく乱化学物質とは動物の生体内に取り込まれた場合に本来、その生体内で営まれている正常なホルモン作用に影響を与える外因性の物質を意味する。」(環境庁検討会 1997年7月)

3つの定義を要約すると「環境中にある化学物質が人体にもともとある本物のホルモンでもないのに、あたかも本物のように振舞って人間を含めた生物の体を騙してしまうもの」となる。環境ホルモンが、外から入ってきて微妙な生体バランスを外から入ってきて乱されることが、様々な生殖にかかわる異常に結びついているのではないかと考えられている。

その中でもダイオキシン類は日常生活で非意図的に生産される環境ホルモンでその毒性は極めて強く、性質や挙動の解明が強く求められている。

2.2 ダイオキシン類と人体への影響

2.2.1 ダイオキシン類

近年、「ダイオキシン」という名称は広く一般的に使われているが、この呼び方は通称であり、この言葉の基となったのはジベンゾ-パラ-ジオキシン(dibenzo-p-dioxin)という骨格名で、2つのベンゼン環が2個の酸素原子によって並列に結合されたものの呼称である。一般に言われる「ダイオキシン」は、ポリクロロジベンゾ-パラ-ジオキシン(PCDDs)のことである。PCDDsの構造をFig.2.1に示す。ベンゼン環についての塩素の数及び位置により同

第2章 環境ホルモンとダイオキシン類

族体、異性体として分けられ、異性体は計75種がある。

このダイオキシンと並んでポリクロロジベンゾフラン(PCDFs)というものがある。PCDFsの構造をFig.2.2に示す。これは2つベンゼン環が1個の酸素原子で結ばれており、塩素による置換はダイオキシンと同様である。異性体は計135種が存在する。²⁾

PCDDs及びPCDFsは構造的に非常に似ており、物理・化学的性質、毒性が互いに類似している。従来、「ダイオキシン類」という用語は、4個以上の塩素を含むPCDDs及びPCDFsを指していた。しかし1998年の世界保健機構(WHO)における耐容一日摂取量(TDI)の見直し、それを受けた日本でのTDIの再検討によってコプラナーPCBsがダイオキシン類に含まれるようになった。コプラナーPCBsの構造をFig.2.3に示す。²⁾

なお本研究ではデータの関係上、コプラナーPCBは除き、主要な10種類のPCDDs、PCDFsを対象物質としている。

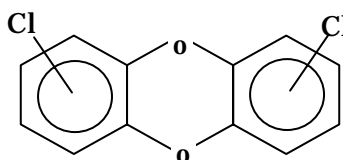


Fig.2.1 Structure of PCDDs

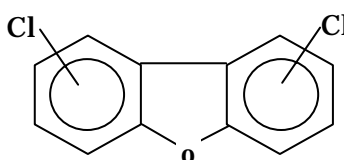


Fig.2.2 Structure of PCDFs

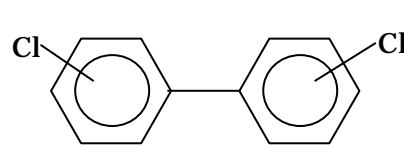


Fig.2.3 Structure of Co-PCB

2.2.2 人体への影響と毒性

2.2.2.1 ダイオキシン類の毒性と人体影響

ダイオキシン類は非常に強い毒性を持っており、2,3,7,8-テトラクロロジベンゾチオキシン(2,3,7,8-TCDD)のモルモットに対する半数致死量は $1\mu\text{g}/\text{kg}$ -体重である。この値はサリンより強い毒性を示すことになり、人間が合成した化合物の中で最強の毒性を示すものとされている。

しかし2,3,7,8-TeCDDの毒性は動物の種類により大きく異なる。たとえば、ハムスターの半数致死量はモルモットの数千倍も多い。

これまで動物実験等により報告されているダイオキシン類の生物への影響の概要は以下のとおりである。³⁾

- ・発癌性
- ・催奇形性
- ・ホルモン分泌の異常
- ・受胎率低下

ダイオキシン類は塩素の置換位置により毒性が異なっている。各物質の毒性はもっとも毒性の強い2,3,7,8-TCDDの毒性を1とした相対的な毒性の強さを表す毒性等価係数

第2章 環境ホルモンとダイオキシン類

(TEF: Toxicity Equivalency Factor) によって表すことが出来る。TEF はダイオキシン類の異性体ごとに設定されており PCDDs では7種、PCDFs では10種設定されている。TEF については Table2.1 に示した。この TEF とダイオキシン量を乗じて求めた値を毒性等価量 (TEQ: Toxicity Equivalency Quantity) という。本研究では特に指定がない場合は TEQ によりダイオキシンの量、濃度を表した。

Table2.1 TEF of ten kind of PCDDs,PCDFs

同族体	TeCDDs	PeCDDs	HxCDDs	HpCDDs	OCDD	TeCDFs	PeCDFs	HxCDFs	HpCDFs	OCDF
TEF	1	1	0.1	0.01	0.0001	0.1	0.5-0.05	0.1	0.01	0.0001

2.2.2.2 ダイオキシン類の被害実例～ベトナムに戦争おける枯葉剤被害～

「ベトナム戦争時、米国を背後に抱える南部の親米政権と、ベトナム解放勢力・旧北ベトナム政府軍との間に激しい戦闘が展開された。解放勢力側は、世界最強と言われていた巨大な米軍の軍事力に対抗するために根強いゲリラ戦で応酬した。このゲリラ作戦に苦しんだ米軍側は、ゲリラが隠れているジャングルを丸裸にして、その動きを封じ込めてしまおうと、61年から約10年間、除草剤を多量に散布する「枯葉剤作戦」を実施した。森に川に湖にと、ベトナム南部には白と黄色の粉の雨が降り注いだ。

こうした「枯葉剤作戦」以降、ベトナムには異常な事態が生じ始めた。多くの兵士が体調の悪化を訴えた。散布地では、流産や胎児の異常、がんなどが急増し始めた。戦後数年経った81年2月25日には、枯葉剤の大量散布地の一つだった中部高原のジャライム・コントゥム地区で一对の足に二つの頭を持った二重胎児・ベトちゃん、ドクちゃん生まれ、その2人の幼子の様子は日本を始め世界に大きな衝撃を与えた。

「枯葉剤」の中には製造過程に非意図的に発生したダイオキシンが混入していた。1gで1万人殺せるというダイオキシン類が少なくとも170kg混入していた。フエでは生まれながらにして障害を持っている子供が生まれる比率は通常の4倍に上るという(宇田川恵著「ダイオキシン百科」p.16⁴⁾から引用、一部改)。

2.2.3 耐容一日摂取量(TDI)について³⁾

上記のベトナム戦争は特殊な事例であり、食事等による通常レベルの暴露において明らかな健康影響を示す知見は報告されていない。しかし、ダイオキシン類は人体に蓄積していき微量であっても長期的に摂取し続けると将来に毒性影響が発現したり、また遺伝子に悪影響を及ぼす可能性があり、現在の影響だけでは評価しきれない側面がある。

よって、ダイオキシン類によるヒトの健康影響を未然に防止する観点からの確に対策を講じる上で重要な指標となるダイオキシン類の耐容一日摂取量(TDI: Tolerable Daily Intake)が、世界保健機関(WHO)や各国において科学的知見に基づき設定されている。

第2章 環境ホルモンとダイオキシン類

1990年のWHO欧州地域事務局専門家会合において、当時知られていた知見を評価した結果、ダイオキシン類の一種である2,3,7,8-TeCDDを用いて実施されたラットの2年間投与試験(Kocibaら1978)の低容量で認められた体重増加抑制、肝障害などを指標とし、ラットに毒性を示さなかった投与量1ng/kg/dayに不確実係数100を適用し、2,3,7,8-TeCDDの耐容一日摂取量(TDI)として、10pg/kg/dayの値を提案した。我が国においても1996年に厚生省が10pg/kg/dayを提案した。

しかし、ダイオキシン類の健康影響については1990年以降も国際的にさまざまな調査研究が実施継続されてきた。このため、WHO欧州地域事務局及び国際化学物質安全性計画(IPCS)は、1990年以降集積された新しい科学的知見に基づき、1998年にTDIを見直した。

会合の結果、毒性試験の結果をヒトにあてはめるに当たって、投与量を直接用いるのではなく、体内負荷量(body burden)に換算してあてはめる考え方を導入した。その上で、最も低い体内負荷量で毒性がみられた毒性試験の結果に基づいて算定された数値をヒトの最小毒性量とみなしこの値に不確実係数(10)を適用して、TDIを1~4pgTEQ/kg/dayとした。

WHOの最終報告概要によれば、現在の先進国における暴露状況が、2~6pg/TEQ/kg/dayのレベルであることを述べたうえで、この暴露レベルにおいても微細な影響は生じているかもしれないが、現時点では明確な毒性影響の発現は報告されておらず、また、観察されている影響についても他の化学物質の影響が否定できないことから、1~4pgTEQ/kg/dayが当面の耐容できる値であると考察している。その上で、結論として、4pgTEQ/kg/dayを当面の最大耐容摂取量(maximal tolerable intake on provisional basis)とし、究極的には摂取量が1pgTEQ/kg/day未満となるように努めるべき、と記されている。

2.2.4 我が国でのダイオキシン類の暴露状況

我が国での平均的な暴露量は、欧米諸国のレベルとほぼ同程度ないし低いレベルにある。厚生省の食品調査(1997年)⁵⁾ではダイオキシン類(PCDDs、PCDFs)への食事による摂取の暴露は0.96pgTEQ/kg/dayとなっている。以下、大気、水、土壌の暴露量を下に記す。

Table2.2 Japanese absorption of PCDDs+PCDFs (1997)

Media	PCDDs, PCDFs Absorption (pgTEQ/kg/day)
Food	0.96
Air	0.17
Drinking Water	Ignorable
Soil	0.0033 ~ 0.019

これらの各経路からの暴露量を合計すると、ダイオキシン類(PCDD+PCDF)で1.15pgTEQ/kg/day程度、Co-PCBを加えると2.60pgTEQ/kg/day程度が日本人の平均的な暴露量と考えられている。

第2章 環境ホルモンとダイオキシン類

このような暴露の結果として、人体の残留レベルは体脂肪中に $10 \sim 30 \text{ pgTEQ/g}$ 脂肪 (体重では $2 \sim 6 \text{ ngTEQ/kg}$ に相当) になっていると考えられる。このレベルも主要工業国と同レベルである。

第 3 章 環境循環モデル (Multimedia Model)

3.1 はじめに

環境媒体中のダイオキシン類の濃度、さらに人への暴露に関する試算を行うためには、非定常多媒体の運命予測等の環境中循環モデルを用いるが必須と考えられる。一方、その結果を慎重に判断すると共に、可能な限り適切な推定を試みる必要がある。

本章では大気、水域、土壌など様々なメディア中の化学物質の挙動解析を目的とした環境循環モデルについて詳細に述べる。食物連鎖中の環境循環モデルに関しては第 4 章で述べる。

まず、3.2 で環境循環モデルの必要性と構築の目的について述べた。

3.3 では、ダイオキシンの循環について検討した後、ダイオキシンの循環の定式化を行う準備として循環についての幾つかの仮定を行った。

3.4 では 3.3 で の仮定を基に、化学物質の循環量を求める基礎方程式を導出した。この基礎方程式は、メディア間の平衡フラックス、ダイオキシンの排出フラックス、移流フラックス、沈降・流出・巻上げフラックス、消滅フラックスからなっている。

3.5 では適当なパラメータ・排出量を設定して計算した結果を示した。

そして第 4 章、5 章、6 章ではこの章とは別個に河川生態系の食物連鎖中のダイオキシン類の運命予測モデルを作成し、第 3 章の結果を用いて魚介類、大気、土壌から人への暴露量の試算を行った。

3.2 環境循環モデルの構築の目的

ダイオキシン類のように難分解性・不揮発性で残留性の強い化学物質はいったん環境中に排出されると環境中の様々なメディア(媒体)中を循環する。たとえば焼却炉の排ガス中に含まれて環境中に排出されたダイオキシンが、大気 水中 藻類 魚類 人体、といった経路で人体に吸収されたりする。このためダイオキシンの環境中における挙動を解明するためには複数のメディアについて同時に計算する必要がある。本研究における環境循環モデルはこのような計算を行う目的で構築されている。

3.3 環境循環モデルの構造と物質循環

Fig.3.1 にモデルの構造を示す。主に大気、水域、土壌の三つがあり、大気は気相と粒子相から構成され、水域は液相、浮遊粒子相(SS)、生物相(Biota)、底質により構成されると仮定し計 7 つのメディアを想定した。生物相に関しては第 4 章で別個にモデルの構築を行った。またダイオキシンの発生源は「ダイオキシン類の排出目録(環境省)¹⁾」をもとに農薬と焼却施設とした。

第3章 環境循環モデル (Multimedia Model)

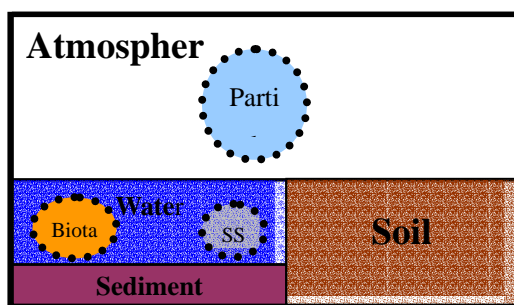


Fig.3.1 Structure of Multi Media Model

続いて Fig.3.2 にダイオキシンの環境中の循環を示す。このモデル化において以下のことを仮定した。²⁾

大気、水域においては移流によるダイオキシンの流入、流出がある。

ダイオキシンの発生源は農薬と焼却炉である。農薬から土壤に、焼却炉から大気と水域にダイオキシンが排出される。

各メディア内ではそれぞれの分解速度に応じてダイオキシンが分解される。

接触しているメディア間(ガス-粒子(大気)、ガス-土壤、ガス-水、水-SS、水-底質、土壤-底質)では平衡定数と物質移動速度によりダイオキシン濃度が平衡する方向に移動する。

接しているメディアのうち、ガス-粒子(大気)、水-SS(水域)はそれぞれ瞬時平衡である。

大気中の粒子は水域と土壤へ、また SS は底質へ沈降する。

土壤から大気へ、また底質から水域(SS)に粒子の巻き上げがある。

土壤粒子は底質へ沈殿する。

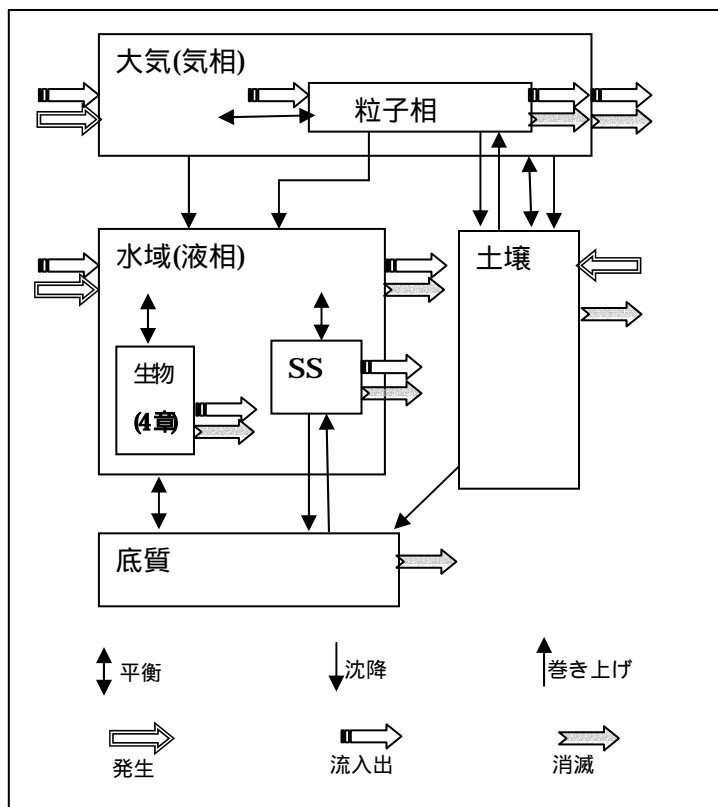


Fig.3.2 Circulation in Multi Media

3.4 モデルの基礎方程式

環境循環モデルは前節での仮定によって成り立っている。本節では、この仮定を基に化学物質の循環の過程を定式化し、化学物質の循環量に関する基礎方程式を導出した。基礎方程式はメディア間の平衡フラックス、ダイオキシンの排出フラックス、移流フラックス、沈降・流出・巻上げフラックス、消滅フラックスからなっている。またフラックスのうち平衡と沈降・流出・巻上げのフラックスは隣接するメディア間での循環なので各メディア間との総和で表してある。

$$\frac{dMM_i}{dt} = \sum_{j=MN}^{j=1} f_{eqij} + f_{emi} + f_{fil} + f_{degi} + \sum_{j=MN}^{j=1} f_{dprsj} \quad (3-1)$$

i, j : メディアの識別文字

MN : メディアの総数

MM_i : メディア i 中のダイオキシン量 (mol)

f_{eq} : メディア間の平衡による物質移動フラックス (mol/s)

f_{em} : ダイオキシンの排出フラックス (mol/s)

f_{fl} : 移流フラックス (mol/s)

f_{deg} : 消滅フラックス (mol/s)

f_{dprs} : 沈降・流出・巻上げフラックス (mol/s)

次に各フラックスの詳細を述べる。

- **メディア間の平衡によるフラックス f_{eq}**

各メディアは隣接するメディアと平衡状態を保つように物質を交換する。今メディア i, j が接しているとすると、平衡に向かうフラックスは、(3-2)式によって表すことができる。

$$f_{eqij} = K_{ij}(C_i - H_{ij} * C_j) * V_i \quad (3-2)$$

C_i, C_j : メディア中のダイオキシン濃度 (mol/m³)

K_{ij} : 物質移動速度 (1/s)

H_{ij} : 平衡定数 (-)

V_i : メディア i の体積 (m³)

- **ダイオキシン排出フラックス f_{emi}**

メディア i 内の発生源を n 個とすると、排出フラックスは (3-3) 式で表される。

$$f_{emi} = \sum_{k=n}^{k=1} E_k \quad (3-3)$$

E_k : k 番目の発生源の排出量 (mol/s)

なお、ダイオキシンの発生源としては前節でも述べたように焼却炉と農薬を想定しており、排出量の算定方法については松本の算定³⁾を参考にした。

● 移流フラックス f_{fi}

大気、水域においては移流による物質の輸送がある。ここで循環量は流入大気中ダイオキシン量と流出大気中ダイオキシン量の差分で与えた。移流フラックス(3-4)式で表される。

$$f_{fi} = C_{ini} * Q_{ini} - C_i * Q_{outi} \quad (3-4)$$

Q_i : メディア i の流量 (m³/s)

ここで、インデックス in、out はそれぞれ流入、流出を表している。

● 消滅フラックス f_{deg}

環境中においてダイオキシンは光分解などにより分解され消滅していく。消滅フラックスは(3-5)式で表される。

$$f_{deg_i} = K_{deg_i} * C_i * V_i \quad (3-5)$$

K_{deg_i} : メディア i における分解速度 (1/s)

◆ 沈降・流出・巻上げフラックス $f_{dprs ij}$

大気中の粒子は土壌・水域へ、また水域の SS は底質へ沈降があり、土壌から水域(底質)へ粒子の流出があり、土壌から大気中の粒子へ、底質から水域の SS へ巻上げがある。メディア i, j 間の沈降・流出・巻上げフラックスは(3-6)式で表される。

$$f_{dprs ij} = [C_j * (\overset{p}{V}_{dd ji} + \overset{p}{V}_{wd ji} + \overset{p}{V}_{rs ji} + \overset{p}{V}_{ro ji}) * S_j]_{j \rightarrow i_i} - [C_i * (\overset{p}{V}_{dd ij} + \overset{p}{V}_{wd ij} + \overset{p}{V}_{rs ij} + \overset{p}{V}_{ro ij}) * S_i]_{i \rightarrow j} \quad (3-6)$$

- $V_{dd,ji}$: 乾性沈降速度 (m/s)
- $V_{wd,ji}$: 湿性沈降速度 (m/s)
- $V_{rs,ji}$: 巻き上げの速度 (m/s)
- $V_{ro,ji}$: 粒子の流出速度 (m/s)
- S_i, S_j : メディア i, j の面積 (m²)

3.5 環境循環モデルのパラメータと計算結果

本節では、前節で述べた環境循環モデルの基礎方程式を用いて各メディアにおけるダイオキシンの運命予測計算を行った。対象フィールドは兵庫県として適当なパラメータを入れて1960年から2010年までの50年までを計算期間とした結果を示す。パラメータの推定・設定は松本³⁾に従った。設定した主なパラメータをTable3.1.1、Table3.1.2に、モデルの計算結果をFig3.3に示す。

Table3.1.1 parametas of Multimedea Model 1

Dioxins	MW(g/mol)	Hlq_sd(-)	Kgs (1/s)	Hgs_pt(-)	Hgs_sl(-)	Hgs_lq(-)
TeCDDs	322	1.02E-05	2.31E-07	1E-10	0.00000006	0.001333
PeCDDs	353.9	2.64E-06	1.27E-07	1E-10	0.00000006	0.000108
HxCDDs	387.8	4.46E-07	7.29E-08	1E-10	0.00000006	0.000500
HpCDDs	421.8	4.46E-07	4.17E-08	1E-10	0.00000006	0.000313
OCDD	455.7	4.46E-07	2.31E-08	1E-10	0.00000006	2.92E-07
TeCDFs	303.9	0.00018	2.31E-07	1E-10	0.00000006	0.000358
PeCDFs	337.9	7.13E-05	1.27E-07	1E-10	0.00000006	0.000258
HxCDFs	371.8	2.51E-05	7.29E-08	1E-10	0.00000006	0.000417
HpCDFs	405.8	2.83E-06	4.17E-08	1E-10	0.00000006	0.000417
OCDF	439.7	1.27E-07	2.31E-08	1E-10	0.00000006	0.000417

MW(g/mol):分子量

Hlq_sd(-):水とセディメントの平衡定数

Kgs(1/s):大気

Hgs_pt(-):大気と粒子の平衡係数

Hgs_sl(-):大気と土の平衡定数

Hgs_lq(-):大気と水の平衡定数

Table3.1.2 parametas of Multimedea Model 2

Dioxins	Kgs_lq(m/s)	Ksl(1/s)	Klq(1/s)	Klq_sd(m/s)	Ksd(1/s)
TeCDDs	2.315E-05	2.31E-09	2.31481E-08	0.0000001	1.16E-09
PeCDDs	2.315E-05	1.27E-09	1.27315E-08	0.0000001	6.37E-10
HxCDDs	2.315E-05	7.29E-10	7.29167E-09	0.0000001	3.65E-10
HpCDDs	2.315E-05	4.17E-10	4.16667E-09	0.0000001	2.08E-10
OCDD	2.315E-05	2.31E-10	2.31481E-09	0.0000001	1.16E-10
TeCDFs	2.315E-05	2.31E-09	2.31481E-08	0.0000001	1.16E-09
PeCDFs	2.315E-05	1.27E-09	1.27315E-08	0.0000001	6.37E-10
HxCDFs	2.315E-05	7.29E-10	7.29167E-09	0.0000001	3.65E-10
HpCDFs	2.315E-05	4.17E-10	4.16667E-09	0.0000001	2.08E-10
OCDF	2.315E-05	2.31E-10	2.31481E-09	0.0000001	1.16E-10

Kgs_lq(m/s) : 大気から水への移動速度 Klq_sd(m/s):水からセディメントへの移動速度

Ksl(1/s) : 土壌中の消滅速度 Ksd(1/s):セディメント中の消滅速度

Klq(1/s) : 水中の消滅速度

Ksscm(1/s)=Klq :SS 中の物質消滅速度 (異性体別に計算)

ramda_gs(-)=1 :洗浄係数

Kptcm(1/s)=1e-2/(3600*24) :粒子中の消滅速度

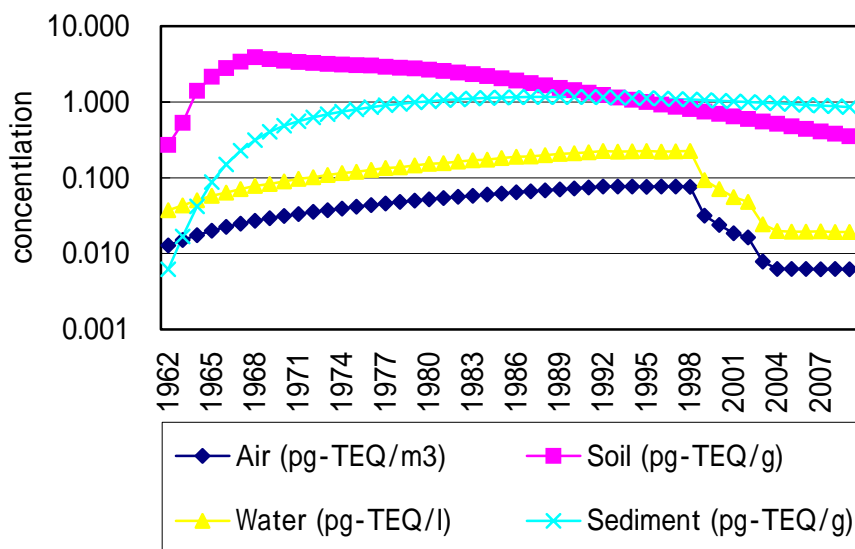


Fig.3.3 The result of calculation in Hyogo

この計算結果(水、大気、土壌)を用いて、第4章の河川生態系の環境循環モデルの計算および、第6章の人間の体内負荷量と1日摂取量の計算を行った。

第4章 食物連鎖モデルの構築(Food Chain Model)

4.1 はじめに

水域は兵庫県の河川を対象としている。この章では、河川生態系の食物連鎖中の挙動解析を目的とした環境循環モデルについて詳細に述べる。

ダイオキシン類の人体摂取割合は80~90%が食品であり、そのうち約7割が魚介類による。都市部における河川は焼却場や農薬散布により発生したダイオキシン類によって汚染されている。魚介類からの取り込みが多い原因は単に河川・海が汚染されている事だけではなく、魚介類は脂肪が多くダイオキシン類を濃縮しやすいことが挙げられる。この河川生態系中における魚介類中の挙動解析は魚介類を多く食べる文化を持つ日本人には非常に有用なモデルとなる。

4.2 では、河川生態系中の循環について検討した後、食物連鎖中のダイオキシン類循環の定式化を行う準備として循環についての幾つかの仮定を行った。

4.3 では、4.2 での仮定を基に、ダイオキシン類の循環量を求める基礎方程式を導出した。この基礎方程式は、栄養レベル間の捕食フラックス、消滅（死亡・排泄フラックス）からなっている。

4.4 では、基礎方程式に用いたパラメータの推定を行った。独自に計算したパラメータについてはその導出過程の詳細を示した。

4.2 食物連鎖モデルの概要

4.2.1 河川の生態系

本研究での河川は人間の生活圏をフィールドとしているため、河川下流域の生態系を考えなければならない。しかし、日本の河川は急流で短いものが多いので、本来の下流に相当する地域に限られるため、ここでは主に河川中流域の生態系を考える。河川中流域には付着藻類、底生動物、魚類、鳥類などが食物連鎖を構成して生態系を形成している。この生態系における、捕食関係と物質の循環の相関図を示すと Fig.4.1 のようになる¹⁾。

この河川生態系の水中の生物群集において付着藻類と水生植物の生産力が基礎となっている。この基礎生産者に対して、水中の消費者の代表は水生昆虫群集であり、これらを餌とする魚類群集へとつながる。水辺で魚類や昆虫類を捕食しながら生活するサギの仲間、水辺では生活をしていないが上空から魚類や昆虫類を捕食するトビやチョウゲンボウなどの鳥類も河川の生態系の一部と見なされる。

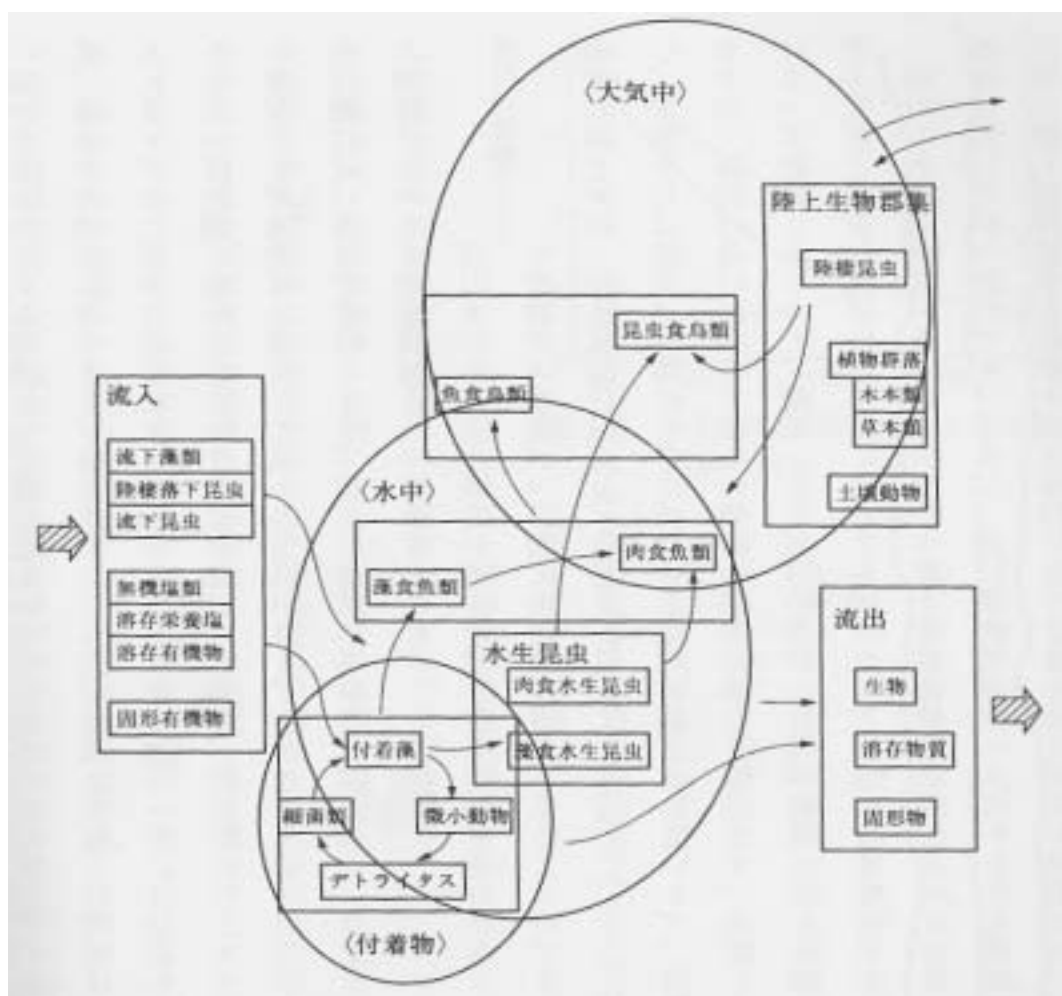


Fig.4.1 水中から陸上、大気中の生物群集をつなぐ河川生態系
(沖野外輝夫「河川の生態学」¹⁾より引用)

4.2.2 河川の生態系におけるダイオキシンの流れと食物連鎖モデルの概念図

Fig.4.1 における各食物レベルの生態特性の詳細を下に記す¹⁾。

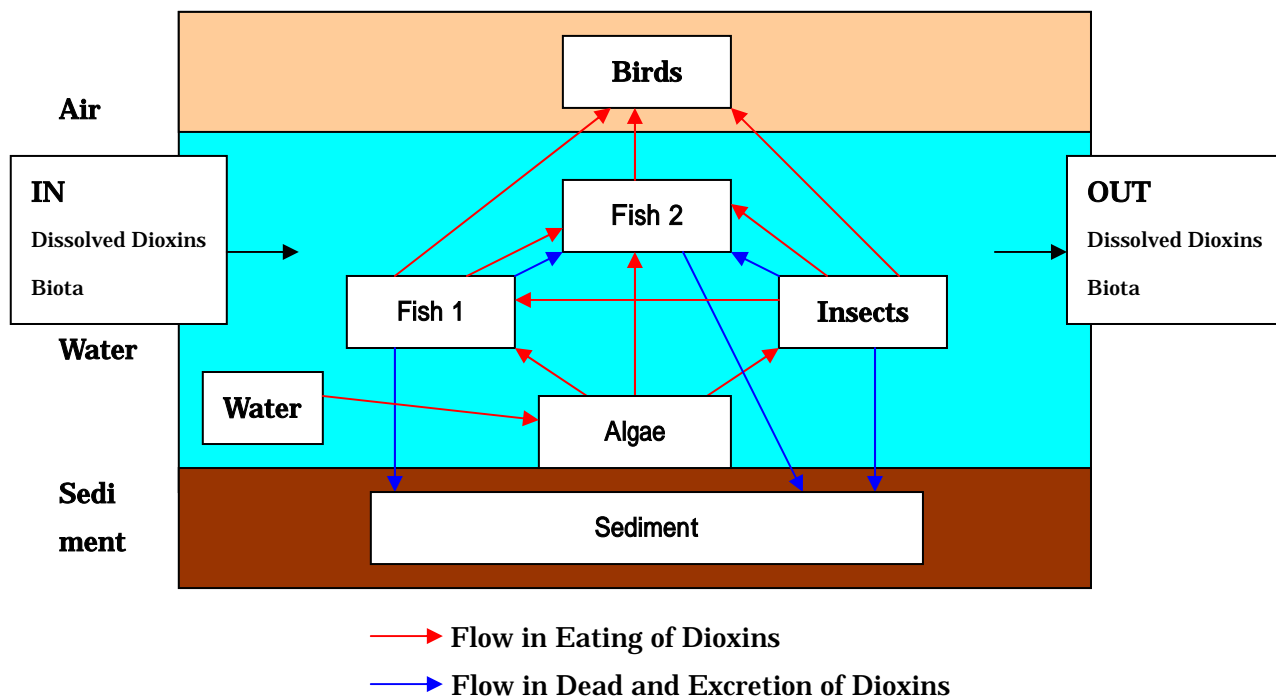
付着藻類・・・河川水中の生物群集の基礎となる生物。その主なものは湖の場合と同様に珪藻類である。光合成により水中の窒素、リンなどの栄養塩を取り込んで成長する。河川下流域には河川特有の浮遊性藻類も存在する。

水生昆虫・・・河川では付着藻類に次いで重要な生物群集は底生動物である。中でも、昆虫類の幼虫を主体とする水生昆虫類は付着藻類の生物量をコントロールし、魚類へ生産物を流す重要な役割をしている。

魚類・・・河川での魚類の生態系というのは意外と知られていない。大きな魚はアユのように早瀬の礫面で増殖する付着藻類を食すために流れの速い瀬の部分でも生活するが、流れを嫌う魚種は淵に集まり早瀬から流下する水生昆虫や陸棲の落下昆虫を食している。当研究は藻食魚類と魚も捕食する肉食魚類とに分類している。

魚食鳥類・・・河川、水辺の鳥には河川敷を利用するタイプと河川敷に依存して生活するタイプがある。いずれの種も河川は河川敷を含めて、その地形、他の生物の存在形態と密接に関連して大切な繁殖の場、採餌の場となっていて、河川中の魚類も捕食する。

上記の生態を考慮して、河川生態系の食物連鎖中のダイオキシン類の挙動の基本構造を Fig.4.2 に示す。



Fish 1: Fish mainly eating algae Fish 2: Fish mainly eating Fish

Fig.4.2 Flow of Dioxins in 5 trophic levels

このモデル化において以下の事を仮定した。

生態系外からのダイオキシン類は付着藻類と水の平衡のみとし²⁾、他の生物群集のダイオキシン類の濃度は水との拡散を考慮せず食物連鎖によるダイオキシンの移行のみとする。付着藻類と水の平衡は瞬時平衡とする。この水からの移行ダイオキシン類は第3章のモデルの水中濃度には影響しないと仮定している。

河川の流れによる生物の流入、流出、下流・上流との拡散はないとする。

第4章 食物連鎖モデルの開発 (Food Chain Model)

生物の現存生物量は変化しないとし、死亡した生物量と誕生した生物量を同じとする。

複数の栄養レベルを捕食する生物は被捕食栄養レベルの存在質量比を万遍なく捕食するとする。

生物の排泄物は全てセディメントに落下するが、微量とし第3章のモデルのセディメントには反映させない。

死亡した水生昆虫、藻食魚類、肉食魚類の8割は肉食魚類が捕食し2割がセディメントに沈殿する³⁾。

各栄養レベルには、様々な生物種が存在するが、簡単のため対象栄養レベルの優先種がその栄養レベルを生物現存量分占めているとする。

4.3 ダイオキシン類の食物連鎖中物質循環モデルの基礎方程式

本節ではこの基本構造と仮定を基に、河川のダイオキシン類の食物連鎖中の挙動を定式化し、物質循環モデルの基礎式を構築した。

4.3.1 モデルの基礎方程式

一般的に生態学の世界では栄養段階の一連の繋がりがあると考えられている。上記の基本構造から、水、付着藻類、水生昆虫、藻食魚類、肉食魚類、魚食鳥類という栄養レベルが存在している。これらの栄養レベル間のマスバランスによってモデルは構築される。一次元の捕食系はどの栄養レベルにおいても一つ下か上の栄養レベルからしか影響がないものとされている。その1次元栄養レベルの基礎方程式を下に示す⁴⁾。移流と拡散は隣接する空間間での循環なので各空間との総和で表している。

$$V_{lq} \frac{dN_k^m M_k^m}{dt} = (K_{k-1,k} M_{k-1} N_{k-1})^m V_{lq} - (K_{k,k+1} M_k N_k)^m V_{lq} - \sum_n Q^{n \rightarrow m} \frac{(N_k^m M_k^m + N_k^n M_k^n)}{2} + \sum_n E^{m \rightarrow m} (N_k^m M_k^m - N_k^n M_k^n) + W_k^m \quad (4-1)$$

k: 各栄養レベルの識別文字

K: 栄養レベル間の移行速度(1/s)

m, n: 空間の位置の識別文字

Q: 水の単位時間当たりの移流量(m³/s)

V_{lq}: 河川水の体積(m³)

E: 拡散係数(m³/s)

M: 単位水体積中の生物量(g/m³)

W: 発生・消滅量(mol/s)

N: 単位生物量当たりのダイオキシン類濃度(mol/g)

次に各係数、フラックスの詳細を述べる。

・単位生物量当たりのダイオキシン類濃度 N_k^m

空間 k における単位生物量当たりのダイオキシン類濃度は (対象毒物物質量 mol/栄養レベル k の生物量 g) となり、(4-2) 式のように示される。

$$N_k^m = \left(\frac{\text{mass toxicant}}{\text{mass trophic level } k} \right) \quad (\text{mol/g}) \quad (4-2)$$

・単位体積中の生物量 M_k^m

空間 k における単位水体積辺りの生物量は (栄養レベル k の生物量 g /水の体積 m^3) となり、(4-3) 式のように示される。

$$M_k^m = \left(\frac{\text{mass trophic level } k}{\text{volume of water}} \right) \quad (\text{g/m}^3) \quad (4-3)$$

よって、単位水体積辺りの対象物質の濃度 (mol/m^3) は $C_k^m = N_k^m M_k^m$ で表される

・下位栄養レベルからのダイオキシン類のフラックス (右辺第1項)

$$(K_{k-1,k} M_{k-1} N_{k-1})^m V_{lq} \quad (\text{mol/s}) \quad (4-4)$$

右辺の第1項は下位栄養レベル $k-1$ からの捕食フラックスを表している。 $K_{k-1,k}^m$ は空間 m における $k-1$ から k への対象物質の移行速度を表している。単位は(1/s)となる。

・上位栄養レベルへのダイオキシン類のフラックス (右辺第2項)

$$-(K_{k,k-1} M_k N_k)^m V_{lq} \quad (\text{mol/s}) \quad (4-5)$$

第2項は栄養レベル k から上位栄養レベル $k+1$ への移行フラックスを表している。 $K_{k,k+1}^m$ は栄養レベル k から出て行く移行速度を表している。単位は(1/s)となる。

一般的に移行速度は色々な要素に作用されるため一定ではないが、簡単のため一定とした。

- ・外部空間 n からの移流、外部空間 n への移流フラックス (右辺第 3 項)

$$-\sum_n Q^{n \rightarrow m} \frac{(N_k^m M_k^m + N_k^n M_k^n)}{2} \quad (\text{mol/s}) \quad (4-6)$$

第 3 項は空間 m を囲む全ての空間 n から空間 m への生物の流出入による移流フラックスを表している。ここでは河川上流から下流への移流フラックスを表す。 $Q^{n \rightarrow m}$ (m^3/s)は河川水の移流量である。

- ・外部空間 n との拡散フラックス (右辺第 4 項)

$$\sum_n E^{n \rightarrow m} (N_k^m M_k^m - N_k^n M_k^n) \quad (\text{mol/s}) \quad (4-7)$$

第 4 項は空間 m を囲む全ての空間 n と空間 m の間の拡散フラックスを表す。 $E^{n \rightarrow m}$ (m^3/s)は拡散係数である。

- ・発生・消滅フラックス (右辺第 5 項)

$$W_k^m \quad (\text{mol/s}) \quad (4-8)$$

は栄養レベル I でのダイオキシン類の生物の排泄、死亡等の発生・消滅フラックスを表す。

ここで (4-1) 式は「一つ前の栄養レベルから次の食物連鎖を上がっていく」としている基礎方程式である。しかし、4.2 節で設定したモデルの基本構造は一次元の捕食系ではなく二次元の栄養レベル間の循環なので、一つの栄養レベルに複数の捕食があるものとして (4-1) 式を拡張した。

設定した基本構造に合わせて拡張して本研究で用いた基本方程式を (4-9) 式に示す。

$$V_{lq} \frac{dN_k^m M_k^m}{dt} = Q(C_k^n - C_k^m) + \sum_{k'=1}^{DTN} (F_{k-k' \rightarrow k} M_k N_{k-k'})^m V_{lq} - \sum_{K'=1}^{UTN} (F_{k+k' \rightarrow k} M_{k+1} N_k)^m V_{lq} - (D_k M_k N_k)^m V_{lq} - (E_k M_{ki} N_k)^m V_{lq} \quad (4-9)$$

k : 栄養レベルの識別文字
m : 空間の識別文字
n : バックグラウンドの識別文字
DTN : 下位栄養レベルの数
UTN : 上位栄養レベルの数
M : 単位水体积あたりの生物の質量 (g/m^3)
N : 生物の単位質量あたりのダイオキシンの物質質量 (mol/g)
V : 対象河川の容積(m^3)
Q : 水の移流量(m^3/s)
C : 単位水体积あたりのダイオキシンの濃度 (mol/m^3)
F : 生物の単位質量あたりの捕食量($g/g/s$)
: 生物のダイオキシンの吸収率(-)
D : 生物の単位時間当たりの自然死亡率($1/s$)
E : 生物の単位時間あたりの排泄速度($1/s$)

k は栄養レベル、 $k+1, k-1$ はそれぞれ上位、下位の栄養レベルでそれぞれ複数存在することがあるので各栄養レベル間との総和で表している。 m は対象領域、 n は対象領域外（バックグラウンド）を表す。

(4-10) 式において、

$$\sum_{k-1=1}^{DTN} (F_{k \rightarrow k-1} M_k N_{i-1})^m V_{lq} \quad \text{は (4-1) 式の第一項、}$$

$$- \sum_{k+1=1}^{UTN} (F_{k+1 \rightarrow k} M_{k+1} N_k)^m V_{lq} \quad \text{は (4-1) 式の第二項、}$$

$$Q(C_k^n - C_k^m) \quad \text{は (4-1) 式の第三項、}$$

$$-(D_k M_k N_k)^m V_{lq} + (E_k M_{ki} N_k)^m V_{lq} \quad \text{は (4-1) 式の第五項に当たる。}$$

(4-1) 式の拡散項は仮定により無いものとする。

付着藻類以外の栄養レベル（底生昆虫、水生昆虫、藻食魚類、肉食魚類、魚食鳥類）に関してこのモデル式 (4-9) を適用して計算を行った。

4.3.2 付着藻類の濃度について

付着藻類に関しては、水の濃度と瞬時平衡しているとして付着藻類の濃度を $Cal(g/g)$ とし、次の (4-10) 式で表す。⁵⁾

$$Cal(g/g) = BCF \times Clq(g/l) \times 10^{-3} \quad (4-10)$$

(4-10) 式中の $Clq(g/l)$ は第3章の環境循環モデルによる水の濃度計算値であり、 $BCF(-)$ (Bio Concentration Factor) とは化学物質が食物以外の経路で、主に呼吸作用と直接皮膚呼吸2つの経路から生物体に取り込まれ、濃縮することを表す濃縮係数である。

BCF は生物体内の化学物質の濃度 $C_B(g/g)$ と水中の濃度 $C_w(g/g)$ の比から計算する。その式を (4-11) 式で表す。ただし、環境中において、生物濃縮が様々な因子に作用されるため、 BCF 値は実験室の投与試験から求める方法が一般的である。

$$BCF = \frac{C_B}{C_w} \quad (-) \quad (4-11)$$

4.3 パラメータの推定方法

本節では、4.2節で述べた仮定に基づいて、前節で述べた食物連鎖モデルの基礎方程式に用いられている各パラメータ値と推定方法について述べる。食物連鎖モデルを動かすために必要なパラメータは以下の通りである。

Table4.1 食物連鎖中物質循環モデルの必要パラメータ一覧

時間に依存しないパラメータ	時間に依存するパラメータ
生物の単位質量当たりの捕食量(g/g/s)	水の濃度(mol/m ³)
	生物の単位時間当たりの自然死亡率(1/s)
	生物の単位時間当たりの排泄速度(1/s)
	生物のダイオキシン類吸収率(-)
	単位水体积当たりの生物量(g/m ³)
	水と付着藻類の濃縮係数 BCF(-)
	ダイオキシン類の分子量(g/mol)
	水の総体積(m ³)

これらは既に判明しているものもあるが、河川生態系のパラメータ値は未解明であるものも多いので、それについては推定した。独自に推定したパラメータについてはその導出過程の詳細を述べて、最後にパラメータを一覧として示した。

なお、本研究では対象となる兵庫県下の河川における河川生態系の研究はまだそれ程進んでいなくデータが集まらなかったため、研究の進んでいる長野県千曲川の河川研究のデータを用いている。千曲川の各栄養レベルの優先種を下に述べる⁶⁾。それら各栄養レベルの写真も Fig.4.3 ~ Fig.4.6 に示す。

Table 4.2 Priority kind in each tropic level in Chikuma river⁶⁾

Tropic level	Priority kind(JAPANESE CALLED NAME)
Insects	Hydropsyche sp(SIMA-TOBIKERA)
Fish eating algae	Zacco platypus(OIKAWA)
Fish eating fish	Tribolodon hakonensis(UGUI)
Birds	Butorides striatus(SASAGOI)



Fig.4.3 SIMA-TOBIKERA(Insects)
(HP 「水生生物図鑑」⁷⁾より引用)



Fig.4.4 OIKAWA(Fish mainly eating algae)
(川那部他、「山溪カラー名鑑 改訂版 日本の淡水魚」⁸⁾から引用)



Fig.4.5 UGUI (Fish mainly eating fish)
(川那部他、「山溪カラー名鑑 改訂版 日本の淡水魚」⁸⁾から引用)



Fig.4.6 SASAGOI(Birds)
(HP 「kei's gallery」⁹⁾から引用)

以下、水生昆虫、藻食魚類、肉食魚類、魚食鳥類と述べている部分は上記の Table4.2 と対応しているとする。

a.) 生物の単位質量当たりの捕食量 F(g/g/s)の推定

「オイカワが藻類を食べた場合、捕食量は体重の 10～20% (W.W.) 程度、ただし冬には 2～3%に減少する」ので¹⁰⁾、付着藻類を捕食する水生昆虫は体重 (湿重量) の 10%を 1 日あたりの捕食量とした。藻食魚類は付着藻類も捕食するが、水生昆虫も捕食する。「動物性の物を食べた場合はもっと少なくて済むと考えられる」²⁾ということから、藻食魚類の捕食量は体重の 6.0%とした (人間は約 2%程度なので水生昆虫の捕食量 10%との平均を取った)、肉食魚類は下位栄養レベルの魚類も捕食するので 4.5%とした。魚食鳥類に関しては「体重 100 g～200 g の猛禽 (肉食の鳥) で 1 日当たり 20%、200 g～800 g で 15%、800 g～1200 g で 10%、1200 g 以上で 6～8%の餌を必要とする (HP「猛禽の森」¹¹⁾から引用)」とあり、ササゴイの平均体重は約 450g¹²⁾であるので、ササゴイの捕食量は体重の 15%とした。

b.) 生物の単位時間当たりの自然死亡率 D(1/s)の推定

各栄養レベルにおける単位秒当たりの自然死亡率は各栄養レベルの寿命^{2) 11) 13) 14)}から (4-12) 式を用いて求めた。

Table 4.3 Life time of priority kinds in Chikuma river(year)

Priority kind	Life time(year)
SIMA-TOBIKERA	1.0 ²⁾
OIKAWA	8.0 ^{2) 13)}
UGUI	16.0 ^{2) 14)}
OIKAWA	10.0 ¹¹⁾

$$\text{死亡率}D(1/s) = \frac{1}{\text{各栄養レベルの優先種の寿命}(\text{day}) \times 24 \times 60 \times 60} \quad (4-12)$$

c.) 単位時間当たりの排泄速度 E(1/s)の推定

単位時間当たりの排泄速度は、各栄養レベル優先種のダイオキシン類の半減期から求めることができる¹⁵⁾。その導出式を次の (4-13) 式に示す。

$$\begin{aligned} \text{排泄速度}E(1/s) &= \frac{\log_e 2}{\text{優先種の半減期}(s)} \\ &= \frac{0.693}{\text{優先種の半減期}T(\text{day}) \times 24 \times 60 \times 60} \end{aligned} \quad (4-13)$$

河川生態系において、半減期が未だ未解明な部分が多い。よって、次のスケーリングという手法を用いて、半減期を推定した。

・ スケーリング¹⁶⁾

「形が同じでも大きさが変わるとどのような変化があるのかを調べる学問。スケールとは物差しや尺度の事。動物の場合、体重を用いて大きさを表す。両対数グラフの横軸に体重(W)をとり、縦軸に問題とする量をとって、大小様々な動物の測定点を打っていくと、直線的に点が並ぶことが多い。つまり、 $Y=aW^b$ という累乗関数で近似できる。b=1なら正比例だが、1にならないことが多く、その場合、この関係式をアロメトリー式と呼ぶ(HP「日立ハイテク」¹⁶⁾より引用)」

ダイオキシン類の半減期が既に推定されている動物種を Table4.4 にあげる。

Table4.4 Weight and half time of experimental animals and human¹⁷⁾

Animals	Weight (g)	Half life (day)
Hamster	150	11
Domestic Guinea Pig	500	94
Rhesus monkey	2500	365
Human	60000	2737.5

これを用いて体重とダイオキシン類の半減期のアロメトリー関係式を求めた

Fig.4.7 は両対数グラフにこれらのダイオキシン類の半減期と体重のデータをプロットして近似累乗関数を書いた図である。

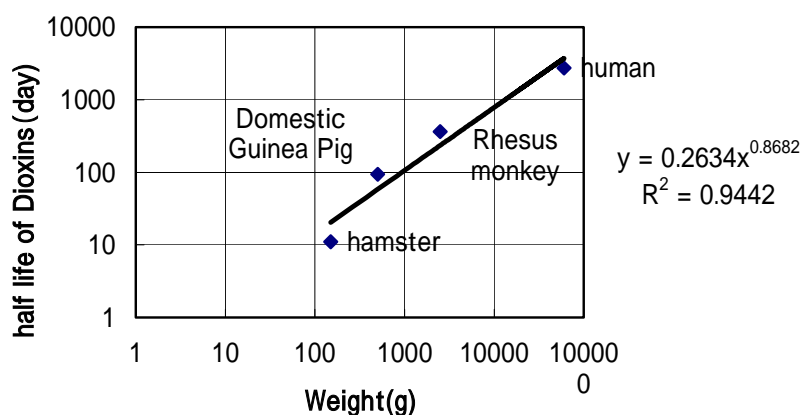


Fig.4.7 Relation of Weight of animal and half life

Fig.4.7 から、半減期を T(day)、体重を W(g)とすると、

$$T = 0.2634W^{0.9682} \quad (4-14)$$

いうアロメトリー式が導かれる。相関係数 R² は 0.9442 なのでこの関係式は有意であると
考えられる。

よって、このアロメトリー式を用いて、各栄養レベルの優先種の体重(g)からダイオキシン
類の半減期(day)を推定し、排泄速度(1/s)を算出した

オイカワ、ウグイに関して体長⁸⁾は判明したが、体重の資料を見つけることができなかった
ので、体重の資料がある他種の魚の体長と体重を用いて推定した。他種の魚類の体長と体
重を Table4.5 に示す。

Table4.5 Length and weight of some kind of fish

Fish name	Length (cm)	Weight (g)
Ayu	60	2200
Chum Salmon	65	3250
Carp	100	13000
Albacore	140	40000
Southern Bluefin Tuna	200	200000

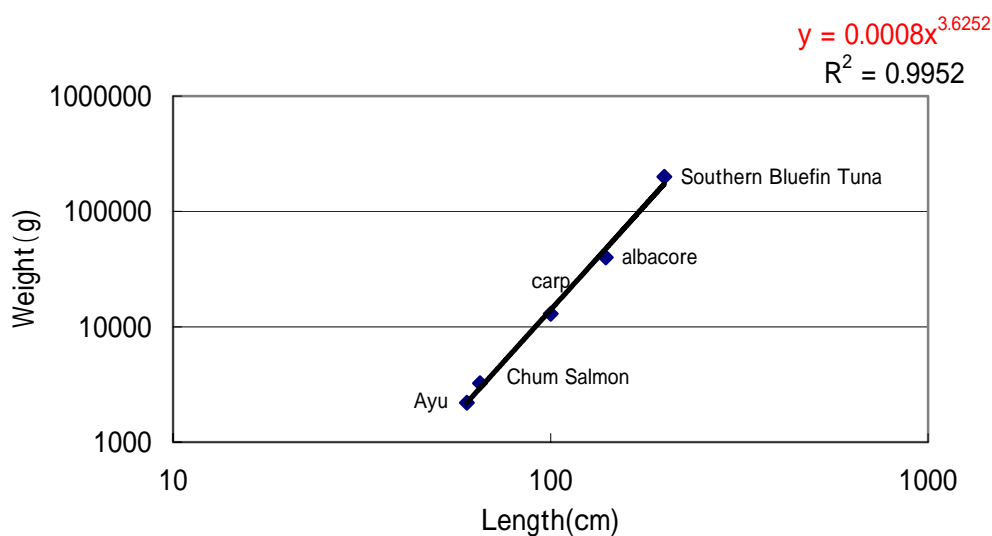


Fig.4.8 Relation of length and weight of fish

ここから、体長を L(cm)、体重を W(g)とすると

$$W = 0.0008L^{3.6252} \quad (4-15)$$

という関係式が導き出された。これを用いて次のようにウグイとオイカワの体重を推定したものを Table4.6 に示す。

Table4.6 Estimation of weight of OIKAWA and UGUI

Fish name	Length (cm)	Estimated weight (g)
OIKAWA	15	14.678
UGUI	30	181.113

この推定体重と (4-14) 式を用いてシマトビケラ、オイカワ、ウグイの半減期を推定したものを Table4.7 に示す。

Table4.7 Estimated half life of SIMA-TOBIKERA, OIKAWA, and UGUI

Fish name	Estimated weight (g)	Estimated half life (day)
SIMA-TOBIKERA	0.122	0.424
OIKAWA	14.678	2.6042
UGUI	181.113	24.042

魚食鳥類の半減期はカワウの半減期の推定を参考にした。次の文章は、飯塚隆「カワウにおけるダイオキシン類の体内挙動について」¹⁸⁾を引用したものである。「飼育試験を行った琵琶湖産カワウから半減期を推定した。半減期の推定には、カワウの体内物質収支（餌摂取、肝代謝、糞排泄、肝臓中蓄積）の関係を用い、肝臓における負荷量の時間変化を考慮した物質収支式を使用し、推定した。2,3,7,8-TCDD についてカワウや他種についての報告値と比較すると同程度の半減期が推定された。」この論文で示された TCDDs の半減期は約 43 日であり、本研究ではこの値を用いた。

d.) 単位水体積当たりの生物量(g/m³)の推定

実際の河川において、生物量は洪水や天候、河川中の窒素量・炭素量などの数々の要因によって絶えず変動している。しかし、当研究では簡単のため仮定において生物密度は一定であるとしている。千曲川において河川の生態系の研究グループが、現存量の調査をしており、その値を適用する⁶⁾。なお、魚食鳥類に関しては、千曲川河川敷内で繁殖している鳥類だけではなく、千曲川の河川敷を利用して、堤防の外で繁殖する鳥類も含んでい

る。この繁殖密度(番数/平方キロメートル)に、優先種ササゴイの1匹当たりの重量450g(ほぼ同程度の体長のハシボソガラスの重量¹²⁾から推定)を乗算することにより、単位水面面積当たりの生物量(g/m²)を求めた。

e.) 水と付着藻類の濃縮係数 BCF (-) の推定

BCFは、環境中において生物濃縮が様々な因子に影響されるため、単純なBCF値を実験室の投与試験から求める方法が一般的である⁵⁾。

しかし水と付着藻類のBCFを投与試験によって求めた事例が筆者が調べた限りでは存在しなかったため、実際の河川の測定値から推定した。長野県内6つの河川のダイオキシン類濃度(Total PCDDs+PCDFs+co-PCB)の各媒体の平均値は河川水25pg/L(0.025pg/g)、付着藻類60pg/gである¹⁹⁾。この測定値からBCFを推定して2600という値を得た。

f.) ダイオキシン類の吸収率(%/100)の推定

河川生態系におけるダイオキシンの吸収率のデータは筆者が探した範囲内では存在しなかった。よって、ヒトの吸収率を用いて推定した。ヒトの食物からの吸収率は経口摂取での2,3,7,8-TCDDの吸収率は、植物油に溶かした場合は90%に近いが、食物と混和した場合は50~60%となり²⁰⁾、ヒトの吸収率は一般的に50%と推定されている。しかし、母乳中のほとんどのダイオキシン類同属体は90%の高い吸収率で乳児に移行し、ダイオキシン類が脂肪や脂肪エマルジョンに溶解している時の吸収率は高くなるので²¹⁾、魚類は脂肪が多く吸収率も高くなると考えられ本研究では藻食魚類、肉食魚類の吸収率は90%、水生昆虫の吸収率はヒトと同じ50%にした。

また、魚食鳥類の吸収率はカワウの吸収率は1,2,3,7,8,9-HxCDFを除けば40~99%程度の範囲をとるので¹⁸⁾、それを適用して40%と100%の平均を取って70%とした。

以上の推定を経て得た入力パラメーター一覧をTable4.8に示す。

Table4.8 Parameters in Food Chain Model (は推定を用いたパラメータ)

Tropic level	Need of food(g/g/day)	Life time (day)	Half life of Dioxins (day)	Absorption rate(%/100)	Density of biota (g/m ³)	BCF (-)
Algae	-	-	-	-	0.3	2600
Insects	0.10	365.25	0.424	0.5	67.8	-
Fish eating Algae	0.06	2922.00	2.6042	0.9	17.41511	-
Fish eating Fish	0.045	5844.00	24.042	0.9	32.58489	-
Birds	0.15	3652.50	40.0	0.7	0.043992	-

これらのパラメータを(4-6)式に適用して兵庫県の河川中のダイオキシン類が食物連鎖に取り込まれるシミュレーションを行った。

第5章 食物連鎖モデルの計算結果と推定パラメータの感度解析

5.1 第4章のパラメータを用いた食物連鎖モデルの計算結果

第3章で計算した環境循環モデルの計算結果を第4章で構築した食物連鎖モデルに適用し、河川生態系食物連鎖中の物質循環の計算を行った。その計算結果を Fig.5.1 に示す。

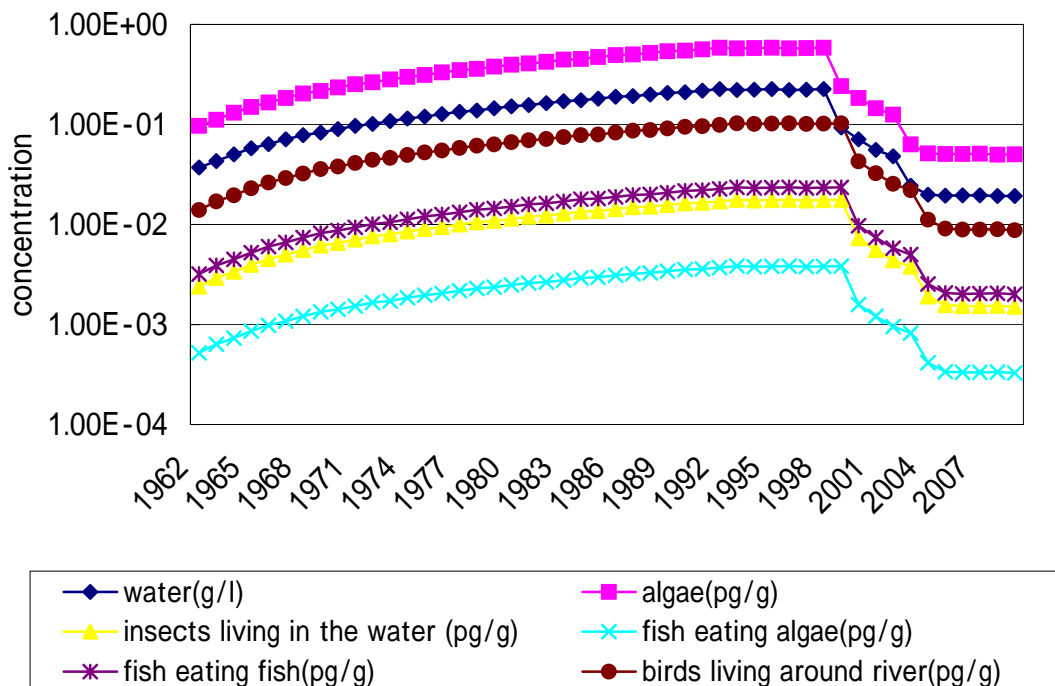


Fig.5.1 Concentration of PCDDs+PCDFs of algae, insects, fish, and birds in Hyogo, calculated by Food Chain model. (using parameters estimated in chap.4)

Fig.5.1を見ると、第4章のパラメータの設定では生物濃縮を全くせず全ての他の栄養レベルで付着藻類 (Algae) よりも濃度が低く、藻食魚類 (オイカワ) に至っては付着藻類よりも2桁も濃度が低くなるという結果になっている。長野県内6河川の実測ダイオキシン濃度(PCDDs+PCDFs+co-PCB)¹⁾の平均値が、付着藻類 60pg/g, サザ虫 650pg/g, アユ 100pg/gとされており、明らかにダイオキシン類は生物濃縮をしている。よって、この計算結果は妥当性を欠くと思われる。

そこで、第4章で設定したパラメータ (Table4.8) の中で推定などを用いた妥当性を比較的欠くパラメータ、半減期、捕食量、吸収率で感度解析を行い、実測に近い生物濃縮をする現時点で妥当性の高いパラメータを推定する。

5.2 推定パラメータの感度解析

5.2.1 半減期の感度解析

Fig.5.1 のように上位栄養レベルに生物濃縮をしないのは、下位栄養レベルから取り込む量が少ないか、体内から外へ出て行く速度が速い事が考えられる。(4-9)式、(4-13)式から、半減期が高いほど排泄が多くなり体内中のダイオキシン類が体内から出て行く速度が速くなる。濃縮をしない原因に半減期の推定の部分で、スケーリングを行ったがここで推定した半減期が低すぎた事が考えられる。スケーリングに関しては、魚類の体長からの体重の推定に関して精度は高いと思われるが、半減期の推定に関しては疑問が残った。スケーリングの定義に「形が同じでも大きさが変わるとどのような変化があるのかを調べる学問」とあり、ヒトやハムスターと魚類は形も生態も全く異なるもので単純なスケールの問題ではないと考えられる。よって、半減期を再考したが、魚類中のダイオキシン類の研究をしている岐阜県保健環境研究所の研究者が「我々も未知であり、極めて関心の高い部分である。」²⁾と述べており、現時点では未解明である。

よって、水生昆虫に半減期をラットの30日³⁾、魚類には脂肪の蓄積性を考慮してその1.5倍の45日を適用し再計算した。その結果を Fig.5.2 に示す。

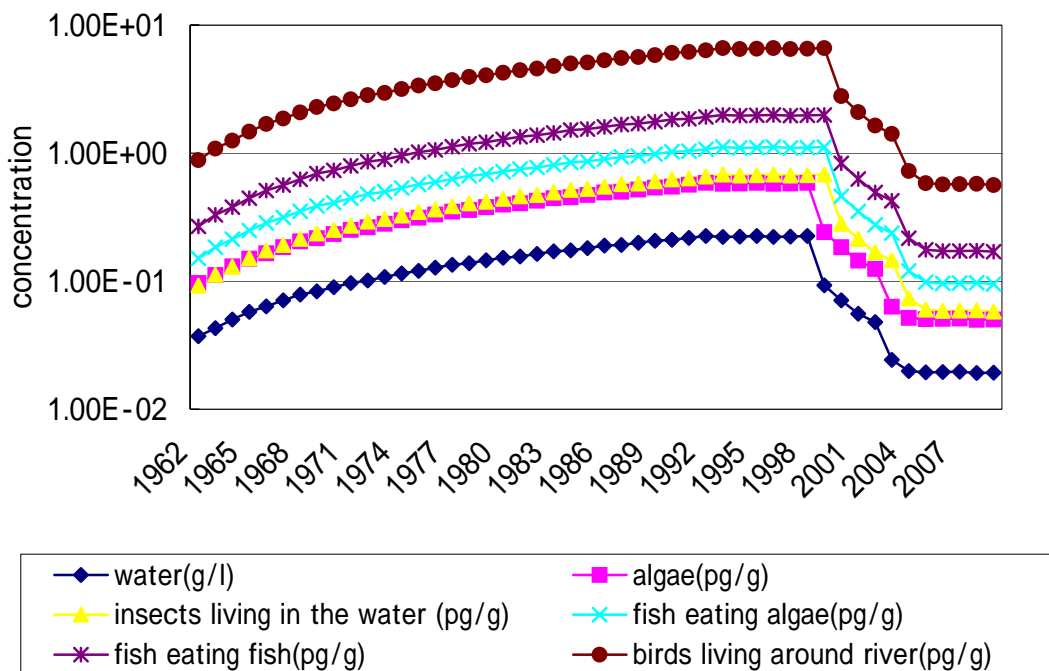


Fig.5.2 Concentration of PCDDs+PCDFs of algae, insects, fish, and birds in Hyogo, calculated by Food Chain model. (changing half time in equation(4-9))

Fig.5.2 の計算結果は、付着藻類から生物濃縮をしており、付着藻類 水生昆虫 藻食魚類 肉食魚類 魚食鳥類と栄養レベルが高くなるほど濃度が高くなっていっている。先述の長野県内6河川の実測ダイオキシン濃度平均値では、2000年度において付着藻類からアユに1.67倍の濃縮をしている²⁾。この計算ではアユは藻食魚類にあたり、2000年度における計算値で付着藻類から藻食魚類に約2.5倍濃縮している。よって、第4章で推定した半減期の値よりも、水生昆虫で30日、魚類で45日という半減期のほうが現実の値により近いと考えられる。

しかし、いずれも根拠の薄い推定値であり、今後河川生態系の生物濃縮を解明する上で水生昆虫、魚類の半減期が解明される必要性は非常に高いと思われる。今後の感度解析、及び第6章では、水生昆虫30日、魚類45日の半減期を用いることとする。

5.2.2 吸収率の感度解析

第4章では、水生昆虫の吸収率に成人の吸収率50%、藻食魚類、肉食魚類の吸収率を胎児の母乳吸収率の90%を用いた。しかし、これらの吸収率も半減期と同様根拠の薄い推定であり、疑問の余地が残る。そこで、藻食魚類、肉食魚類の吸収率も成人男性の吸収率と同じとして50%とし、再計算を行い、感度解析を行った。吸収率は(4-9)式の第4項に存在し、吸収率が下がると取り込み量が減少して体内負荷量が減少すると考えられる。再計算した結果をFig.5.3に示す。

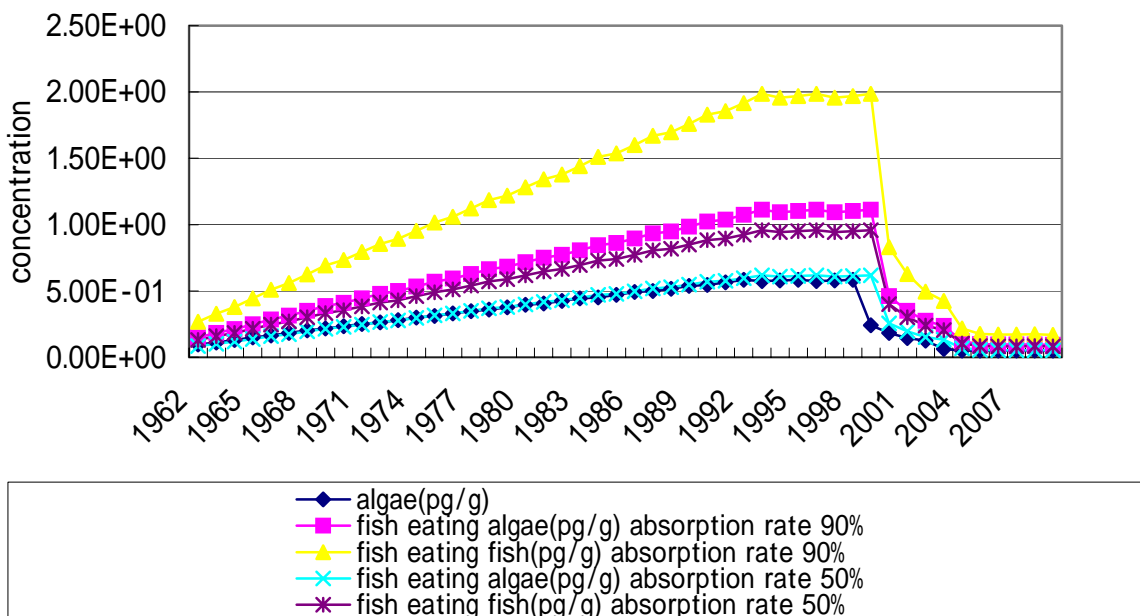


Fig.5.3 Concentration of PCDDs+PCDFs of algae and fish in Hyogo, calculated by Food Chain model. (change half time and absorption rate in equation(4-9))

この吸収率の変更によって2000年度の付着藻類から藻食魚類への濃縮倍率が2.5倍から1.39倍になった。この濃縮倍率の減少率は約5/9であり、丁度吸収率を減少させた割合分、比例的に減少する結果となった。よって吸収率を減少させると、同じ割合だけ体内残存量も減少すると考えられる。

5.2.3 捕食量の感度解析

捕食量は(4-9)式の第2項、第3項に関わってくる。ある栄養レベルAの捕食量がもし減少したとすると、その下位の栄養レベルBではダイオキシン類が取り込まれる量が減少して蓄積量が増え、栄養レベルAでは取り込み量が減少して蓄積量が減少すると考えられる。しかし、下位で濃度が増えるので、比例的に体内負荷量が減少するとは考えがたい。

藻食魚類の捕食量(体重辺りの捕食割合)を0.06(g/g/day)、肉食魚類の単位体重当たりの捕食量を0.045(g/g/day)としている。藻を捕食すると捕食割合は0.1(g/g/day)必要である。しかし、藻を捕食する割合は無視できるくらい小さいと仮定して人間と同じ捕食割合、0.02(g/g/day)だけの捕食を行うとして計算をし、感度解析を行った。その計算結果をFig.5.4に示す。

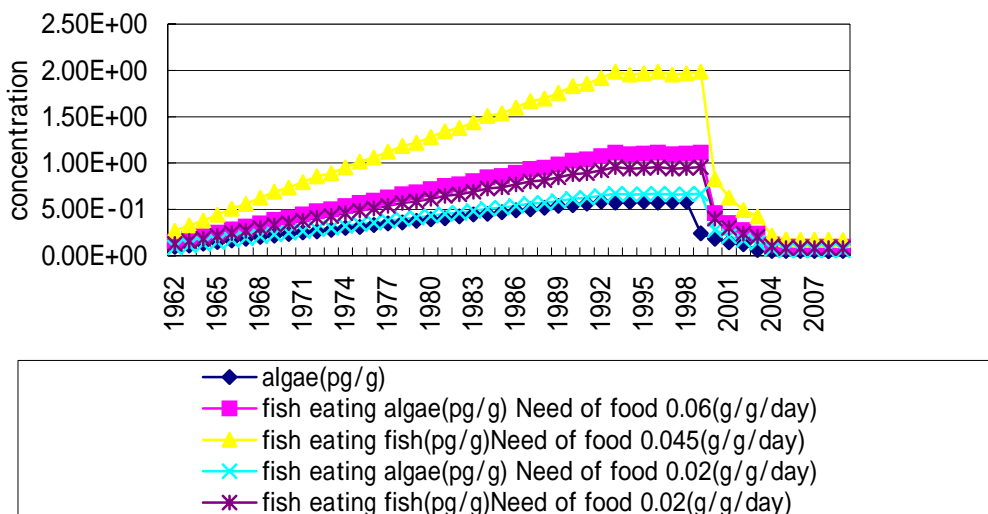


Fig.5.4 Concentration of PCDDs+PCDFs of algae and fish in Hyogo, calculated by Food Chain model. (change half time and need of food in equation(4-9))

この捕食量の変更によって2000年度の付着藻類から藻食魚類への濃縮倍率が2.5倍から1.51倍になった。ある栄養レベルで捕食量が減少すると、生物濃縮の倍率は小さくなると考えられる。

しかし、捕食量を藻食魚類で1/3としたのだが、濃縮倍率の減少率は約3/5であった。捕食量の濃縮に対する感度は吸収率の感度よりも低いと考えられる。

第5章 食物連鎖モデルの計算結果と推定パラメータの感度解析

第6章でヒトのダイオキシン類の暴露量計算を行うにあたって、より現実に近い値を用いたい。そのため、計算結果が長野県内6河川の付着藻類からアユへの実測濃縮率1.67倍により近い、1.51倍となった5.2.3節の結果を使って6章での計算を行うこととする。第6章で用いるパラメータ一覧をTable5.1に示す。

Table5.1 Parameters in Food Chain Model ,improved in Chap.5

Tropic level	Need of food(g/g/day)	Life time (day)	Half life of Dioxins (day)	Absorption rate(%/100)	Density of biota (g/m ³)	BCF (-)
Algae	-	-	-	-	0.3	2600
Insects	0.10	365.25	30	0.5	67.8	-
Fish eating Algae	0.02	2922.00	45	0.9	17.41511	-
Fish eating Fish	0.02	5844.00	45	0.9	32.58489	-
Birds	0.15	3652.50	40	0.7	0.043992	-

第6章で用いるに当たって第4章より変更されたパラメータ

第6章 食物連鎖モデルを用いたダイオキシン類の人体暴露量計算

6.1 日本人の一般的な生活環境からのダイオキシン類暴露状況¹⁾

欧米諸国において、通常生活における暴露のほぼ90%以上が食事を通じて生じ、なかでも肉や乳製品等の動物性食品が主要な摂取源である。

日本での平均的な暴露量は、欧米諸国のレベルとほぼ同程度ないし低いレベルにある。厚生省の食品調査(1997年度)²⁾では、ダイオキシン類(PCDDs+PCDFs)への暴露は0.96pgTEQ/kg/dayである。飲料水からの暴露は無視できるくらい小さい。

大気からのダイオキシン類の暴露量は、1997年度に0.17pgTEQ/kg/day。土壌からの暴露量は、全国的な土壌中濃度の現状、土壌の摂取量や土壌中ダイオキシン類の吸収率等必要な情報が必ずしも十分でなく、正確な推定が困難であるが、PCDDs+PCDFsの暴露量は0.0022~0.019pgTEQ/kg/dayとされている

これらの各経路からの暴露量を合計すると、PCDDs+PCDFsで1.15pgTEQ/kg/day程度、コプラナーPCBを加えると2.60pgTEQ/kg/day程度が日本人の平均的な暴露量と考えられる。暴露量を図化したものをFig.6.1に示す。

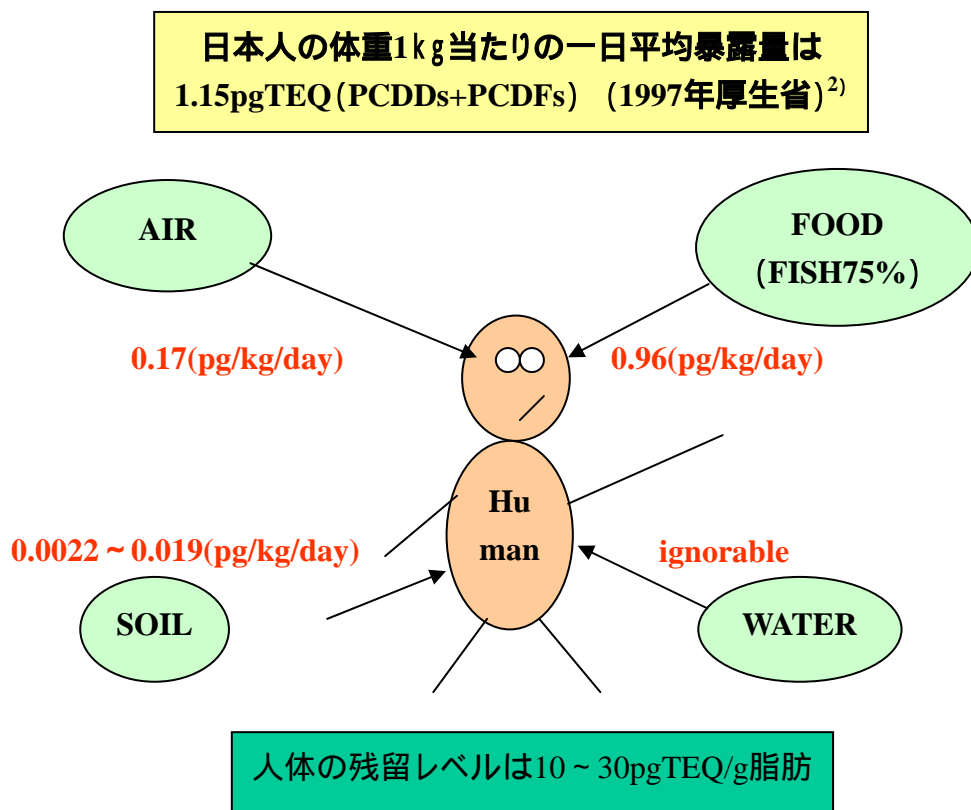


Fig.6.1 Exposure amount to Dioxins(PCDDs+PCDFs)

6.2 食物連鎖モデルを用いたダイオキシンの1日摂取量の計算と人体の残留量の計算

6.2.1 ダイオキシン類の1日摂取量の計算式

第3章の環境循環モデルと第4章の食物連鎖モデルを用いて、ヒトのダイオキシン類の1日摂取量(pgTEQ/kg/day)と人体の残留量(pgTEQ/g)を計算した。ヒトのダイオキシン類の1日摂取量を求める計算式を(6-1)式に示す。

$$SESHDAY = \left(\sum_{f=1}^{Nme} C_f F_f \right) \times (3600 \times 24) \times 10^3 \times 10^{12} \times M_w \quad (\text{pg/kg/day}) \quad (6-1)$$

$SESHDAY$: ヒトの体重 1 kg 当たり の一日ダイオキシン類摂取量 (pg/kg/day)

Nme : 摂取メディアの数

f : 摂取メディアの識別記号

C_f : 摂取メディア f のダイオキシンの濃度 (mol/g) or (mol/m³)

F_f : 人間の摂取メディア f の摂取量 (g/g/s) or (m³/g/s)

α_f : 摂取メディア f のダイオキシン類の吸収率

M_w : ダイオキシンの分子量 (g/mol)

6.2.2 ダイオキシン類の人体の残留量の計算式

人体の残留量(pg/g)に関しては、(4-9)式を拡張して計算した。用いた式を(6-2)式に示す。

$$W_h \frac{dN_h}{dt} = \sum_{f=1}^{Nme} (F_f \alpha_f C_f W_h) - W_h (D_h N_h) - W_h (E_h N_h) \quad (\text{mol/s}) \quad (6-2)$$

W_h : 人間の体重 (g)

N_h : 人体残留量 (mol/g)

Nme : 摂取メディアの数

f : 摂取メディアの識別記号

F_f : 人間の f の摂取量 (g/g/s) or (m³/g/s)

α_f : 摂取メディア f のダイオキシン類の吸収率 (-)

C_f : 摂取メディア f のダイオキシンの濃度 (mol/g) or (mol/m³)

F : 生物の単位質量あたりの捕食量 (g/g/s)

D : 単位時間当たりの自然死亡率 (1/s)

E : 単位時間あたりの排泄速度 (1/s)

6.2.3 ダイオキシン類の1日摂取量の計算と人体の残留量の計算のパラメータ

(6-1)式、(6-2)式の計算に必要なパラメータをTable6.1に示す。

Table6.1 Parameters for calculation of 1 day exposure and human concentration of PCDDs+PCDFs

大気流入速度 (m ³ /day)	20	化学物質データベース ³⁾
土壌摂取量(g/day)	0.05	化学物質データベース ³⁾
魚介類摂取量 (g/day)	100	化学物質データベース ³⁾
ダイオキシン類の食事吸収率	0.5	化学物質データベース ³⁾
ダイオキシン類の大気吸収率	0.85	化学物質データベース ³⁾
ダイオキシン類の土壌吸収率	0.25	化学物質データベース ³⁾
人間の寿命 (day)	29568.81	兵庫県民の0才からの男女の平均余命の平均 ⁴⁾
半減期 (day)	2739.375	人間のダイオキシン類の半減期 7.5年 ¹⁾
日本人の平均体重 (kg)	50	

男 77.57年、女 84.34年

これらを用いて、魚介類由来、大気由来、土壌由来のダイオキシン類の1日摂取量 (pgTEQ/kg/day)と人体の残留量 (pgTEQ/g)を計算した。

6.3 計算結果

6.3.1 ダイオキシン類の1日摂取量の計算結果

(6-1)式で計算したダイオキシン類 (PCDDs+PCDFs) の体重 1kg 当たりの 1日摂取量 (pgTEQ/kg/day) を Fig.6.2 に示す。

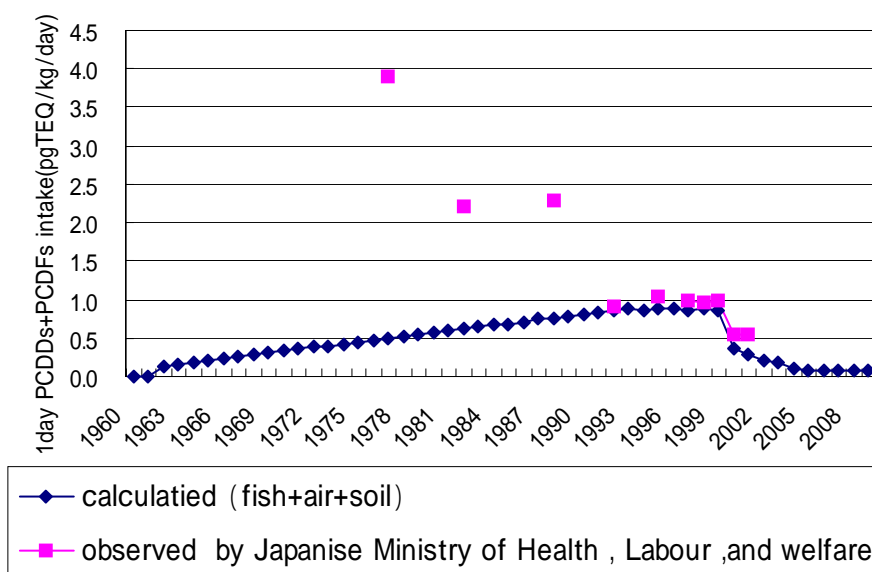


Fig.6.2 Calculated result of 1 day PCDDs+PCDFs intake (pgTEQ/kg/day)

Fig.6.2において、ひし形のプロットが計算値、四角のプロットが厚生労働省における測定値⁵⁾⁶⁾である。魚介類の実測値に関しては、食事によるダイオキシン類(PCDDs+PCDFs)の摂取量に魚介類の摂取量の割合、75%⁷⁾を乗じた。厚生労働省の測定値は1970年代からすでに摂取量が多い傾向にあったが、計算値では1970年代は低い水準にある。一日摂取量で過去の履歴を再現する上では精度が悪いと言わざると得ない。しかし、1990年以降、傾向は概ね一致している。この結果から過去の魚類へのダイオキシン類の蓄積が上手く再現できていないが、近年では概ね再現できていると考えられる。

過去の計算値が上手く再現できていない理由として2つ考えられる。

1つは、環境循環モデルにおける焼却場における排出量の推定方法の不備の可能性である。魚類のダイオキシン類の蓄積は第3章の環境循環モデルでの水の濃度に依存している。その水の濃度は由来は松本⁸⁾の排出由来シミュレーションにより焼却場が主であると考えられている。よって、焼却場の排出量データの推定に問題があるというのが、一つの原因として考えられる。環境循環モデルの計算の焼却場(Incinerator)からのダイオキシン類の排出量データはプラスチックの生産量を基に推定が行われた。⁸⁾ここで焼却場は近年の処理能力を前提としているので、この焼却場からのダイオキシン類の排出のデータは設備の整っている近年に作られた焼却場の排出量データは高い精度が示しているが、過去に作られた昔からあった古い焼却場のデータの制度については疑問が残る。また、野焼きなどが禁止されてなかった時代だったのでその影響も無視できないと思われる。

もう一つの考えられる原因としては、環境循環モデルにおける水とセディメントの平衡定数の推定の誤りの可能性である。この値はセディメントに平衡が極端に移動するように設定されているので、セディメントのダイオキシン類が水に移行する量は極めて小さくなる⁷⁾と考えられている。セディメントのダイオキシン類の由来は土であり、その土の主な由来は農薬(CNP,PCP)である⁸⁾。農薬中のダイオキシン類の濃度は、Fig.6.3に示すように1960年代に高い値を示しており、もし水と魚類中のダイオキシン類の由来で農薬の割合が増加したらFig.6.2の実測値のような計算結果に事も考えられる。

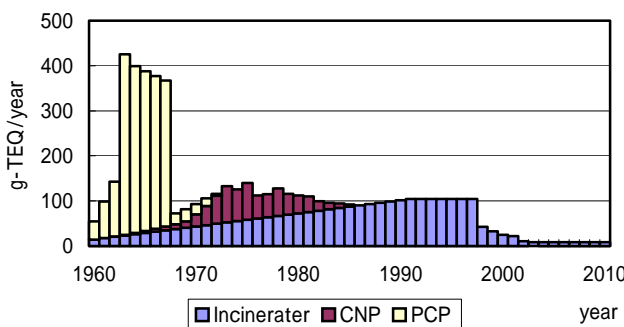


Fig.6.3 Emission from each source (松本³⁾より引用)

よって、一日摂取量の過去の履歴をよく再現するには過去の焼却場の排出量データと水とセディメントの平衡定数を見直す必要があり、環境循環モデルの今後の課題となる。

6.3.2 ダイオキシン類の人体残留量の計算結果

(6-2) 式で計算したダイオキシン類 (PCDDs+PCDFs) の体重 1g 当たりの人体残留量 (pgTEQ/g) と厚生労働省が調査した母乳の脂肪 1g あたりの濃度⁹⁾ を Fig.6.4 に示す。

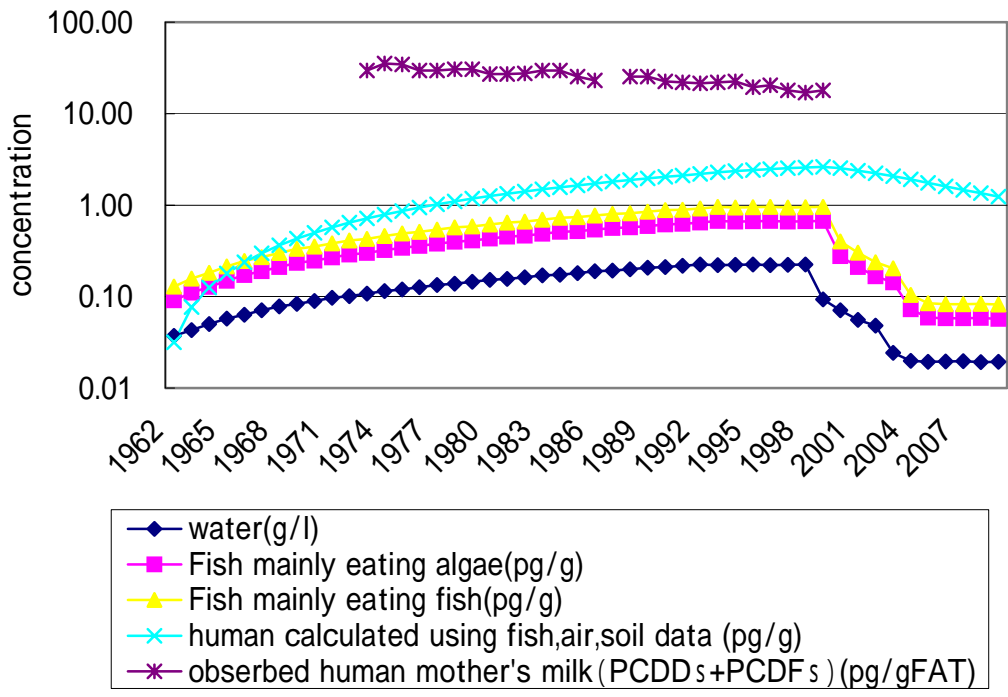


Fig.6.4 Calculated result of human concentration

Fig.6.4 より、魚類は蓄積性が低く水の濃度と同じ経年推移をするが、ヒトは 1998 年あたりに水の濃度が急激に減少してもヒトの濃度は安定的に減少している。これは、ヒトは半減期、寿命ともに魚類等に比べて非常に大きいので (6-2) 式において第 3 項、第 4 項つまり減少ファクターが小さくなり体内に蓄積しやすく、体外に排出しにくいと考えられる。この実測値は母乳中のダイオキシン類の濃度である。母乳中ダイオキシン類の乳児の 1 日摂取量が 60pg/kg/day であり非常に高いオーダーである。よって、実測された母乳には計算値よりも高い濃度でダイオキシン類が濃縮していると考えら、人体内の平均値である計算値と傾向比較はできうるが、オーダーは比較できないと考えられる。

Fig.6.4 で厚生労働省によって実測された母乳の脂肪中ダイオキシンのデータ⁹⁾を米印でプロットしているが、これと計算値を比較すると、6.3.1 と同様、計算では計算前半では実測値の挙動と全く異なる挙動をしている事がわかる。これは 6.3.1 で議論した事と同様、現実のダイオキシン類の摂取量と計算における摂取量とがあまりにかけ離れていることが考えられ、現実のように蓄積しなかったのだと思われる。そして摂取量が 1993 年に現実の値と近くなるまでの蓄積量が小さかったため、1993 年以降も計算では過去の蓄積が足

りずに小さな値になってしまった、と考えられるが母乳濃度の比較のため、体内濃度の平均値の実測値と比較したら計算値と同じオーダーになる可能性はある。

しかし、6.3.1の考察同様、環境循環モデルにおける水の濃度の再考は必要である。

6.3.3 摂取媒体割合の計算結果

(6-1)式において、各摂取媒体(魚介類、大気、土壌)別にダイオキシン類の体重1kgあたりの1日摂取量(pgTEQ/kg/day)を Fig.6.5 に示す。

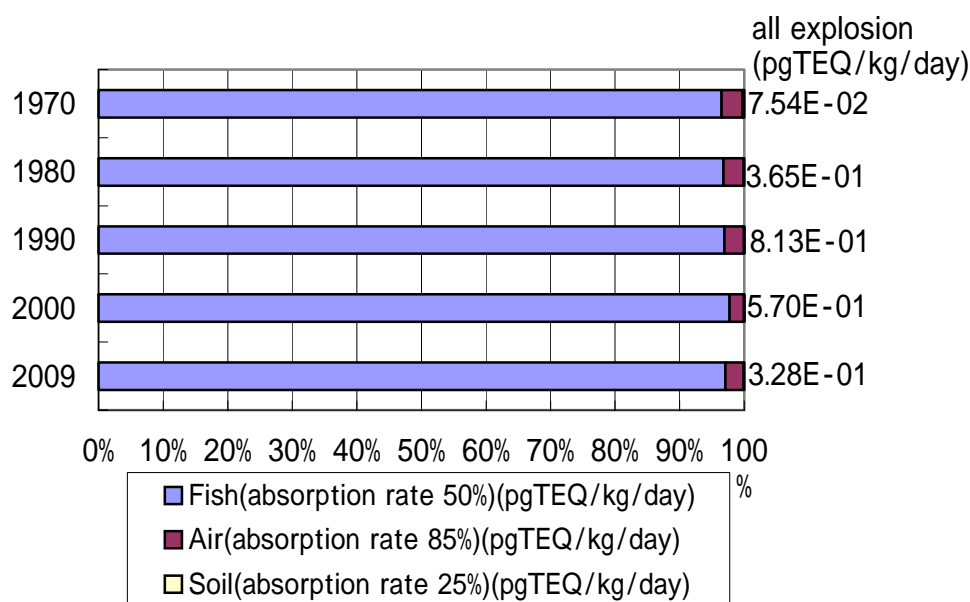


Fig.6.5 PCDDs+PCDFs exposure rate of Fish, Air, and Soil

Fig.6.5 より、ダイオキシン類の摂取媒体割合はどの年代を見ても魚介類、大気、土壌の3媒体では95%が魚介類、5%が大気、土壌は無視できるくらい微量で推移している。魚介類からのダイオキシン類の摂取が大半を占めている事がこの計算よりわかる。

これを1997年の実測値¹⁾と比較すると Table6.2、 Fig.6.5 のようになる。

Table6.2 Comparison of PCDDs+PCDFs exposure rate of Fish, Air, and Soil for calculated value and observed value in1997

	Fish(absorption rate 50%) (pgTEQ/kg/day)	Air(absorption rate 85%) (pgTEQ/kg/day)	Soil(absorption rate 25%) (pgTEQ/kg/day)	sum
calculated value (%)	96.99	2.99	0.02	100.00
observed value (%)	80.45	19.49	0.56	100.00

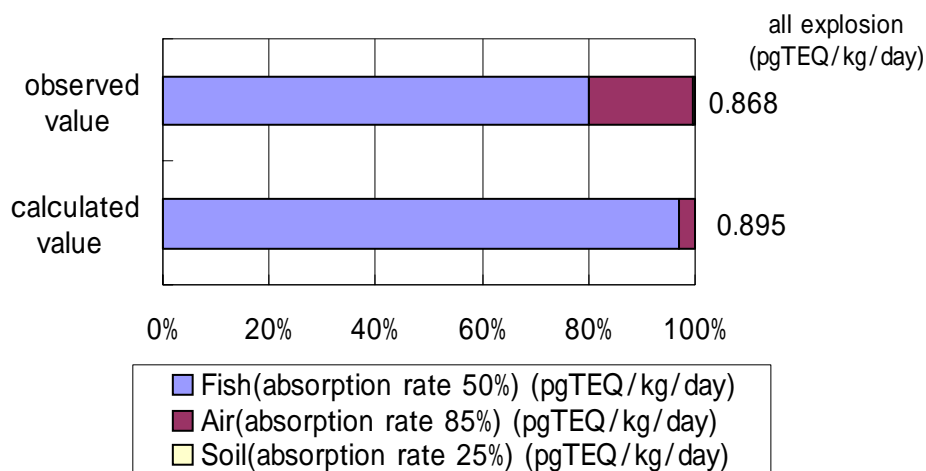


Fig.6.5 Comparison of PCDDs+PCDFs exposure rate of Fish , Air, and Soil for calculated value and observed value in1997

実測値に関しては、1997 年度における日本人の PCDD s と PCDF s の摂取の中で魚介類（食事の摂取の 75%）、大気、土壌の 3 種類の摂取経路のみを示しており、0.895pgTEQ/kg/day を示しているが、全ての摂取経路からの摂取は 1.15pgTEQ/kg/day¹⁾ である。

Table6.2 より魚介類の摂取に関しては実測値においては 80%程度ではあるのだが、計算値では約 97%と大きくなっている。計算値における大気摂取の割合と土壌摂取の割合は実測値に比べて大幅に小さいので、計算値の大気と土壌からの摂取量が低すぎるか、魚介類からの摂取量が多すぎると考えられる。

第7章 総括

本章では、本研究の成果と今後の課題を端的にまとめる。

本研究は第3章での環境循環モデルの成果を用い、第4章、第5章で食物連鎖モデルを構築し、第6章で食物連鎖モデルの計算結果を用いて人体暴露量計算をできるようにする事が主な流れであった。

第4章、第5章についての研究成果を挙げると、河川生態系における食物連鎖中の生物濃縮を再現する基礎的な理論と食物連鎖モデルを構築する事が概ねできたと思われる。この成果により第6章においてダイオキシン類の人体暴露計算が可能になった。さらに、海洋生態系、陸上生態系にも拡張が可能な汎用性のあるモデルを構築することができた。

そして、第4、5章における問題点と今後の課題をまとめる。

- ・ 兵庫県の河川における生態系ではなく、千曲川の生態系の情報を用いた点
(課題)ここでは、河川の生態系が異なっていた事が問題自体は問題ではなく、河川の生態系に関する情報を集める事の難しさを実感させられたことが問題である。沖野¹⁾が「河川という生態学研究では発展途上にあり(沖野外輝夫、「河川の生態学」より引用)」と述べており、河川の生態系をモデルによって再現するのは若干時期尚早であったと考えられる。今後、こういった研究の発展により第4、5章で構築したモデルやパラメータを随時改良していかなければならない。

- ・ ダイオキシン類の吸収率、半減期の推定のあいまいさ
(課題)河川生態系中生物のダイオキシン類の吸収率と半減期は人間や実験動物による成果をほぼそのまま引用して計算を行った。第5章でも述べたが人体や実験動物と魚介類は種も生態も全く異なっているので、種別ごとの半減期がより正確に推定される事が望まれる。また、本県旧ではこれらパラメータは、「ダイオキシン類」として一元的に推定したが、実際は異性体ごとに吸収率、半減期は異なっているので、異性体ごとにパラメータを入力するべきであった。しかし、これも未解明な部分が多いと思われるので今後の研究の発展が望まれるところである。

- ・ Co(コプラナー)-PCBの計算が行われていない
(課題)本研究では環境循環モデルの開発の頃からPCDDsとPCDFsと類似した毒性を持つコプラナーPCBの計算が行われていない。近年ではPCDDsとPCDFsにCo-PCBを加えてダイオキシン類と呼んでいる。Co-PCBは生物に濃縮しやすく、生物体内からCo-PCBは高濃度で検出される傾向にあり、人体への毒性は無視できないほど大きい²⁾。第6章で、人体に摂取されるダイオキシン類の半分以上がCo-PCBであるとも述べた。

第7章 総括

物質循環モデルに取り入れなかった理由として Co-PCB の排出量の推定が困難であることが挙げられる。Co-PCB は過去に大量に製造された化学物質であるが、現在は毒性が解明され使用はされていない。そのため、過去の排出量を生産量などから推定する手段を構築し物質循環モデルに取り入れるのは、人間への摂取・毒性を考慮すると必須の課題である。

第6章についての研究成果を挙げると、人体が一日に摂取するダイオキシン類の経路毎に経年的に計算をする基礎的なモデルが構築されたことが挙げられる。食肉や野菜の食事量のデータは存在するので³⁾、食肉や野菜の体内濃度が分かれば主な摂取経路の全てを考慮して計算することが可能である。

そして、第6章における問題点と今後の課題をまとめる。

- ・ 捕食量、体内残存量共に、1980年以前の過去の履歴を上手く再現できていない。
(課題) この原因として第6章において、環境循環モデルにおけるダイオキシン類の焼却場からの排出量の推定で足りない部分が存在する可能性がある事と、水とセディメント間の平衡定数の推定に誤りがあった可能性がある事の2つを挙げた。詳しい考察は第6章で行ったので省略する。今後はこれらのパラメータを推定し、さらには精度の高い推定手法を確立する必要がある。

- ・ 肉類・乳製品の摂取量を計算に加えていない。
(課題) 人間のダイオキシン類の摂取において、魚介類の次の摂取量が多いのが肉類・乳製品で約魚介類からの1/5の摂取をしている⁴⁾。上記した通り、肉に関する食事量データは既にあり、肉牛・乳牛等の経年計算ができたならそれらからの摂取量を加えた計算を行うことが可能である。しかし、環境循環モデルにおいて肉牛・乳牛等が摂取する穀物、つまりベジテーション(植生)の濃度の計算が環境循環モデルにおいてまだ上手く再現できていない。よって、今後畜産物からのダイオキシン類の摂取を取り入れるためには、植生の食物連鎖を上手く再現できるモデルを作成することが課題となる。

来年、筆者はこの研究をベトナムの森林・土壌に散布された莫大な量のダイオキシン類による現在の人体影響についての研究を行うことを考えている。よって、本研究で行われた環境循環モデル、食物連鎖モデル、人体暴露計算の精度をさらに上げると同時に、おそらくデータ量が日本ほどは無いと考えられるベトナムのような発展途上国においても本モデルを適用できるように、代替的なデータの推定方法を考慮する必要があると思われる。

本研究が様々な有毒化学物質に対する人体への暴露の将来予測や過去の履歴を知るに有効なツールとなる事を強く望む。

第8章 謝辞

本研究を実施するに当たって最後まで丁寧に指導して下さった加賀昭和教授、松本大輔さん、河川生態系のデータを快く無償で提供していただいた(財)リバーフロント整備センターの樋村正雄さん、同じく河川生態系におけるダイオキシン類の生物残存量の実測データを快く無償で提供していただいた岐阜県保健環境研究所環境科学部の村瀬秀也さんをはじめ、本研究を行うに当たって協力していただいた全ての人に感謝します。

第9章 参考文献

第1章

- 1) 厚生省：平成9年度 食品からのダイオキシン類等汚染実態調査報告、1998年
- 2) 沖野外輝雄：河川の生態学、2002年

第2章

- 1) 環境総合研究所：もっと知りたい環境ホルモンとダイオキシン p.4、1999年
- 2) 旧通商産業省環境立地局監修：公害防止の技術と法規 ダイオキシン類 pp.1-11、1999年
- 3) 厚生省・環境省：ダイオキシンの耐容一日摂取量(TDI)について、1999年
- 4) 宇田川 恵：ダイオキシン百科、1999年
- 5) 厚生省：平成9年度 食品からのダイオキシン類等汚染実態調査報告、1998年

第3章

- 1) 環境省：ダイオキシン類の排出量の目録(排出インベントリー)、2003年
- 2) Yoram Cohen , Ellen J.Cooter , **Multimedia Environmental Distribution of Toxics(Mend-Tox) : Part .Hybrid Compartmental-Spatial Modeling Framework,2001**
- 3) 松本大輔：ダイオキシン類の環境循環量の評価手法に関する研究～兵庫県、加古川流域を事例として～、2004年

第4章

- 1) 沖野外輝雄：河川の生態学、2002年
- 2) 私信(財)リバーフロント整備センターに対する質問の回答)
- 3) Schneider, JC : Fate of Dead fish in a Small Lake , AM MIDL NAT, V140, 1, P192-196,1998
- 4) Rovert V.Thomann,A Food Chain Model of Cadmium In Western Lake Erie,Water Reaserch,8,841,1974
- 5) 益永茂樹：水棲生物食物連鎖におけるダイオキシン類の生物濃縮に関する研究、p12、2001
- 6) 河川生態学術研究会千曲川研究グループ：千曲川の総合研究～鼠橋を中心として～、2001

第9章 参考文献

年

- 7) HP「水生生物図鑑、シマトビケラ」http://kasen.eolas-net.ne.jp/suisei/sui_03b.html
- 8) 川那部他：山溪カラー名鑑 改訂版 日本の淡水魚、山と溪谷社、2002年
- 9) HP「kei's gallery」<http://www.wa.commufa.jp/~kei/>
- 10) (財)リバーフロント整備センター編：川の生物図鑑、山海堂
- 11) HP「猛禽の森」http://www.d1.dion.ne.jp/~akaki_ch
- 12) HP「カラス研究室」<http://homepage3.nifty.com/shibalabo/crow/index.htm>
- 13) HP「登亭」<http://www.seaworld.co.jp/~nakaichi/>
- 14) HP「Yachoo!オンライン野鳥図鑑」<http://www.gt-works.com/yachoo/>
- 15) HP「常田@遺愛高校」[「http://www7.plala.or.jp/stokida/」](http://www7.plala.or.jp/stokida/)
- 16) HP「日立ハイテク」<http://www.hitachi-hitec.com>
- 17) HP「環境ナビゲータ」<http://eco.goo.ne.jp/navi/>
- 18) 飯塚隆：カワウにおけるダイオキシン類の体内挙動について
- 19) 村瀬秀也、安田裕、大平武俊：河川におけるダイオキシン類等微量化学物質の評価に関する研究(1) 県内河川環境中のダイオキシン類、2001年
- 20) 中央環境審議会大気部会、ダイオキシン類環境基準専門委員会：大気の汚染に係るダイオキシン類 環境基準専門委員会報告(案) 参考資料1、p22、1999年
- 21) HP「Arie's Home Page ~ Environment」 <http://www.asahi-net.or.jp/~XJ6T-TKD/>

第5章

- 1) 村瀬秀也、安田裕、大平武俊：河川におけるダイオキシン類等微量化学物質の評価に関する研究(1) 県内河川環境中のダイオキシン類、2001年
- 2) 私信(岐阜県保健環境研究所の村瀬さんに対する質問の回答)
- 3) Biranbaum: *Ls. Environ. Health Perspect.* 61, 11-20, 1985
- 4) 私信(財)リバーフロント整備センターの樋村さんに対する質問の回答)

第6章

- 1) 旧厚生省(現厚生労働省)・環境省：ダイオキシンの耐容一日摂取量(TDI)について、1999年
- 2) 旧厚生省(現厚生労働省)：平成9年度食品中のダイオキシン類等汚染実態調査報告、1998年
- 3) 化学物質環境リスクセンター：化学物質データベース、<http://w-chemdb.nies.go.jp>
- 4) 厚生労働省：厚生労働省統計表、第1-48表、2000年
- 5) 厚生労働省：厚生白書、3-3-1、2000年
- 6) 厚生労働省：厚生科学研究「食品からのダイオキシン類一日摂取量調査」、2003年
- 7) 東京都健康局：平成12年度 食品からのダイオキシン類摂取状況調査結果、2001年
- 8) 松本大輔：ダイオキシン類の環境循環量の評価手法に関する研究～兵庫県、加古川流

第9章 参考文献

域を事例として～、2004年

- 9) 厚生労働省：厚生科学研究「母乳中のダイオキシン類に関する調査」、1997年

第7章

- 1) 沖野外輝雄：河川の生態学 p 、2002年
- 2) 益永茂樹：水棲生物食物連鎖におけるダイオキシン類の生物濃縮に関する研究、p69、2001
- 3) 化学物質環境リスクセンター：化学物質データベース、<http://w-chemdb.nies.go.jp>
- 4) 東京都健康局：平成12年度 食品からのダイオキシン類摂取状況調査結果、2001年