

京都大学	博士（工学）	氏名	高部 祐剛
論文題目	二枚貝の濃縮特性を活用した水域での POPs モニタリング手法とリスク初期評価に関する研究		
（論文内容の要旨） 本論文は、「残留性有機汚染物質に関するストックホルム条約」で示されるように、残留性、長距離移動性、生物蓄積性および毒性といった特徴を有し、世界で汚染防止に取り組むべき残留有機汚染物質（POPs）について、二枚貝への濃縮機構の解明とそれに基づくモニタリング手法を提示するとともに、モニタリング結果を用いたリスク初期評価について論じた論文であって、9 章より構成されている。 第 1 章は序論であり、研究の位置づけ、背景および目的について言及し、POPs のモニタリング、特に淡水域でのモニタリングの確立およびそれに基づくリスク初期評価が重要であることを述べ、本論文の構成を示している。 第 2 章では、文献に基づき考察を行い、POPs の濃縮機構に基づいた二枚貝を用いたモニタリング手法、特に早い段階での汚染状況の把握、汚染負荷源の特定等の観点から、淡水域や汽水域でのモニタリング手法の確立と、それを用いたリスク初期評価の課題があることを提示している。また、第 3 章では、POPs の分析方法について、前処理法も含めて、定量下限値や回収率などの観点から論述し、その分析方法を提示している。 第 4 章では、淡水域や汽水域でのモニタリング指標生物として、シジミを提示し、実験室内での飼育実験により、POPs 濃縮特性を把握するとともにその機構を表示する数理モデルを構築した。そして含まれる諸係数値を提示し、ろ水した水中に含まれる POPs の吸収効率は、概ね 1.0 の値となり、また排出速度係数は物質によって異なり、濃縮係数を主として支配する因子は、排出速度係数であることを明らかにした。そして、このモデルは実水域でのシジミへの濃縮応答の調査結果をも表示しうるものであり、シジミ中濃度は約 200 時間程度で環境中濃度と平衡に達することを明らかにした。 第 5 章では、西日本および中国・珠江デルタでの淡水域および汽水域での現地調査を行い、その結果を用いて、シジミを指標生物とした POPs モニタリングの有用性および適用性について検討も行った。その結果、西日本および珠江デルタにおいて、シジミにおける異性体・代謝物組成は、生息する水域での水および底質での組成を、またシジミ中 POPs 濃度は生息する水中濃度をそれぞれ反映していること、DO、VSS 等の環境条件および POPs 使用履歴が異なる西日本および珠江デルタ間では濃縮特性に有意な差はないこと等を明らかにし、淡水域および汽水域でのシジミを用いた POPs モニタリングの有用性を提示した。			

京都大学	博士（工学）	氏名	高部 祐剛
第6章では、二枚貝の種による濃縮特性の差異を検討し、リスク初期評価の基礎資料とするために、日本において、カキ、アサリおよびホタテへの POPs 濃縮の調査を行い、シジミやムラサキイガイでのデータも含めて濃縮特性の検討を行った。その結果、カキ、アサリおよびホタテ中 POPs のうちの有機塩素系農薬（OCPs）の濃度は、生息する水域での水中の濃度を反映し、またそれら貝中の異性体・代謝物組成は、生息する水域での水や底質での組成を反映することを明らかとし、水・オクタノール分配係数値の対数（$\log K_{ow}$）と脂肪あたりの濃縮係数値の対数（$\log BAFL$）の回帰直線を比較することにより、それぞれの二枚貝の OCPs 濃縮特性にオーダーの差がないことを明らかとした。そして、OCPs のモニタリングにおいて、ムラサキイガイおよびシジミを調査することで、食用として重要な二枚貝であるカキ、アサリおよびホタテでの濃縮特性も把握できることを明らかにした。 第7章では、本研究で行った調査結果について、濃度や異性体の観点から考察を行い、調査地点における POPs 汚染特性の検討を行った。その結果、DDTs や HCHs といった物質では、日本において地域間での濃度に 1 オーダー程度の違いが見られ、異性体・代謝物組成にでも若干の違いが見られ、また、日本および珠江デルタ間では、DDTs、Chlordanes および HCHs について、使用履歴の違い、環境条件の違いおよび物質の特性により、異性体・代謝物組成が明らかに異なっていることを明らかにした。そして、日本での HCB、Chlordanes および PCBs、また、珠江デルタでの DDTs 濃度等から、日本および珠江デルタでの今後の継続した POPs モニタリングの重要性を指摘した。 第8章では、貝類摂取を通じた OCPs 曝露量に占める各種二枚貝からの OCPs 曝露量の寄与率を定量的に算出し、リスク初期評価を行い、またモニタリング重要物質のスクリーニングを行った。その結果、貝類摂取によるヒトへの OCPs 曝露における各二枚貝からの寄与率を定量的に算出し、カキの寄与率が全体的に高いこと（平均寄与率：53（範囲：7.7～81）%）を明らかとし、日本および珠江デルタでの各調査地点での非発ガンリスクについての Hazard Quotient は高々 10^{-2} オーダー、また、過剰発ガンリスクが高々 10^{-6} オーダーとなり、貝類摂取によるリスクは低いことを明らかとした。また、他の食品からの曝露を考慮した場合、リスク評価の観点から、日本において特に Dieldrin の、また、珠江デルタにおいて特に DDT のモニタリングの必要性が提示された。 第9章は結論であり、本論文で得られた成果について要約している。			

(論文審査の結果の要旨)

本論文は、残留性、長距離移動性、生物蓄積性および毒性といった特徴を有し、その対策について世界で取り組むべき、残留有機汚染物質 (POPs) について、二枚貝への濃縮機構の解明とそれに基づくモニタリング手法の確立、ならびにモニタリング結果を用いたリスク初期評価を目標に研究した成果をまとめたものであり、得られた主な成果は次のとおりである。

1. 定量下限値や回収率等を含め、POPs の分析方法を提示した。

2. モニタリング指標生物として、シジミを提示し、実験室内での飼育実験により、POPs 濃縮特性を把握するとともにその機構を表示しうる数理モデルを構築し、濃縮係数を支配する因子は、排出速度係数であることを明らかとするとともに、このモデルは実水域でのシジミへの濃縮応答の調査結果をも表示しうるものであり、シジミ中濃度は約 200 時間程度で環境中濃度と平衡に達することを明らかにした。

3. 西日本および中国・珠江デルタでの淡水域および汽水域での現地調査を行い、シジミ中 POPs 濃度は生息する水中濃度を、またシジミにおける異性体・代謝物組成は、生息する水域での水および底質での組成を反映していること、D0、VSS 等の環境条件および POPs 使用履歴が異なる両水域間では濃縮特性に有意な差はないこと等を明らかにし、淡水域および汽水域でのシジミを用いた POPs モニタリングの有用性を提示した。

4. カキ、アサリおよびホタテ中 POPs のうちの有機塩素系農薬 (OCPs) の濃度では、水・オクタノール分配係数値の対数 ($\log K_{ow}$) と脂肪あたりの濃縮係数値の対数 ($\log BAFL$) の回帰直線を比較することにより、それぞれの二枚貝の OCPs 濃縮特性にオーダーの差がないことを明らかとした。

5. DDTs、Chlordanes および HCHs について、使用履歴の違い、環境条件の違いおよび物質の特性により、異性体・代謝物組成が明らかに異なっていることを明らかにした。

6. 日本および珠江デルタでの各調査地点での Hazard Quotient は高々 10^{-2} オーダー、また、過剰発ガンリスクが高々 10^{-6} オーダーとなり、貝類摂取によるリスクは低いことを明らかとした。

以上、要するに、本論文は、二枚貝への POPs の濃縮機構を明らかとし、それに基づき POPs モニタリング手法を確立し、貝類摂取によるリスク初期評価を行ったものであり、学術上、實際上寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士 (工学) の学位論文として価値あるものと認める。また、平成 23 年 4 月 22 日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行って、申請者が博士後期課程学位取得基準を満たしていることを確認し、合格と認めた。