

●参考資料1 継続的調査としての継続性に関する考察

昭和49年度に「化学物質環境実態調査」が実施されて以降、一般環境中に残留する化学物質の早期発見及びその濃度レベルの把握を目的として、種々の対象物質が選定され、調査が実施されてきており、平成23年度においては「初期環境調査」及び「詳細環境調査」として実施されている。こうした年度別の調査とは別に、一定の調査対象物質を経年的に追う継続的調査として、昭和53年度に開始した「生物モニタリング」をはじめ、「水質・底質モニタリング」、「指定化学物質等検討調査」、「非意図的生成化学物質汚染実態追跡調査」及び「指定化学物質等検討調査」等が実施され、平成14年度より「モニタリング調査」として実施されるに至った。こうした継続的調査の実施経過の概要は次のとおりである。

調査名称 ^(注)	実施期間	媒体	調査対象物質
生物モニタリング	昭和53年度～平成13年度	生物(貝類、魚類、鳥類)	総PCB、HCB、アルドリン、ディルドリン、エンドリン、DDT類、クロルデン類、HCH類等
水質・底質モニタリング	昭和61年度～平成13年度	水質、底質	HCB、ディルドリン、DDT類、クロルデン類、HCH類等
非意図的生成化学物質汚染実態追跡調査	昭和60年度～平成13年度	水質、底質、生物(魚類、貝類)、大気	総PCB等
指定化学物質等検討調査	昭和63年度～平成13年度	水質、底質等	トリブチルスズ化合物、トリフェニルスズ化合物等
モニタリング調査	平成14年度～	水質、底質、生物(貝類、魚類、鳥類)、大気	総PCB、HCB、アルドリン、ディルドリン、エンドリン、DDT類、クロルデン類、ヘプタクロル類、トキサフェン類、マイレックス、HCH類等

(注) 調査名称は実施期間中の代表的なものであり、年度によって異なる場合がある。

昭和49年度から平成29年度までのモニタリング調査対象物質の継続的調査における年度別実施状況は表1、継続的調査の年度別調査地点の状況は表2-1から表2-4のとおりである。

また、定量下限値および定量下限値については、平成13年度の検出下限値は後述する「統一検出限界値」であり、平成14年度以降の検出下限値は、分析を担当した民間分析機関における検出下限値である。なお、平成14年度の水質及び底質は装置検出下限値(IDL)を、平成15年度以降の水質及び底質並びに平成14年度以降の生物及び大気は分析方法の検出下限値(MDL)をそれぞれ検出下限値として扱っている。

また、検出下限値の変化に対応した検出状況の変動については表3にまとめた。その際、地点の相違の影響を除外するため、継続して調査されている地点のみをみることにした。

検出下限値については、平成13年度までの値と比べ平成14年度以降の値が大きく改善している。

平成13年度まで実施されていた「生物モニタリング」においては、主として地方公共団体による分析によっていたため、分析機関間の装置の違い等を考慮してデータ処理を行う必要があり、調査に当たりあらかじめ同一の検出下限値(「統一検出限界値」と称していた。)を設定し、データ処理をしてきた。用いていた「統一検出限界値」は、開始当初のGC-ECDによる分析を勘案して設定されたものであり、GC/MSが主流となっている現在の分析法では十分に定量可能な値であり、より高感度の分析を行った地方公共団体からは「トレース値」として別報告を受ける状況が続いていた。平成14年度以降は分析機関が媒体ごとに一機関になったことに加え、高感度のGC/HRMSを用いた分析に移行しており、検出下限値は「統一検出限界値」に比べて一千分の一程度又はそれ以下となっている。

同じく平成13年度まで実施されていた「水質・底質モニタリング」においては、開始当初からGC/MSによ

る分析であり、水質は $0.01\mu\text{g/L}$ (= $10,000\text{pg/L}$)、底質は 1ng/g-dry (= $1,000\text{pg/g-dry}$)を「統一検出下限値」として実施してきた。平成14年度以降は高感度のGC/HRMSを用いた分析に移行し、平成13年度に比べて、検出下限値は水質で一万分の一、底質で一千分の一程度に下がっている。

「非意図的生成化学物質汚染実態追跡調査」における総PCBは、平成8年度及び9年度はGC/MSで測定されたが、平成12年度及び13年度は高感度のHRGC/HRMSにより測定された。このため、平成12年度及び13年度は平成8年度及び9年度の一万分の一程度の検出下限値となっている。平成14年度以降は平成12年度及び13年度と同等の検出下限値であった。なお、コプラナーPCBについては平成8年度よりHRGC/HRMS分析が行われていたため、平成14年度以降とほぼ同等の検出下限値であった。

物質 調査 番号	調査 媒体	昭和												平成																																	
		49	50	51	52	53	54	55	56	57	58	59	60	61	62	63	元	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18	19	20	21	22	23	24	25	26	27	28	29		
[22-1]	水質	△																						△																						■	■
	底質	△																						△																						■	■
	貝類																																											■	■		
	魚類																																											■	■		
	鳥類																																											■	■		
大気																																													■	■	

物質 調査 番号	調査 媒体	昭和												平成																																		
		49	50	51	52	53	54	55	56	57	58	59	60	61	62	63	元	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18	19	20	21	22	23	24	25	26	27	28	29			
[23]	水質																																															■
	底質																																														■	■
	貝類																																													■	■	
	魚類																																														■	■
	鳥類																																													■	■	
大気																																													■	■		

(注) 平成17年度の水質及び底質では[23-1] 塩素化デカン類は塩素数が5のもの、[23-2] 塩素化ウンデカン類、[23-3] 塩素化ドデカン類及び[23-1] 塩素化トリデカン類は塩素数が6のものを、貝類及び魚類では[23-1] 塩素化デカン類は塩素数が4から6までのもの、[23-2] 塩素化ウンデカン類、[23-3] 塩素化ドデカン類及び[23-4] 塩素化トリデカン類は塩素数が5から7までのものをそれぞれ対象とした。
 平成28年度の水質、底質、貝類、魚類及び鳥類では塩素数が5から9までのものを、大気では[23-1] 塩素化デカン類は塩素数が4から6までのもの、[23-2] 塩素化ウンデカン類、[23-3] 塩素化ドデカン類及び[23-4] 塩素化トリデカン類は塩素数が4から7までのものをそれぞれ対象とした。

物質 調査 番号	調査 媒体	昭和												平成																																		
		49	50	51	52	53	54	55	56	57	58	59	60	61	62	63	元	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18	19	20	21	22	23	24	25	26	27	28	29			
[24]	水質				△																																											
	底質				△																																											
	貝類																																															
	魚類																																															
	鳥類																																															
大気																																																■

[22-1] ペンタクロロフェノール、[22-2] ペンタクロロアニソール、[23] 短鎖塩素化パラフィン類、[24] ジコホル (参考)

表2-4 継続的調査の年度別調査地点の一覧（大気）

地方 公共団体	調査地点	平成																											
		12	13	14	15	16	17	18	19	20	21	22	23	24	25	26	27	28	29										
北海道	上川保健福祉事務所（名寄市）					■			■																				
	釧路市立春採中学校（釧路市）			■			■																						
	北海道釧路総合振興局（釧路市）										■			■												■			■
	北海道環境科学センター（札幌市）	◎	◎																										
	北海道渡島合同庁舎（函館市）					■			■			■			■											■			■
	北海道上川合同庁舎（旭川市）												■			■									■				■
札幌市	札幌芸術の森（札幌市）			■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	
岩手県	網張スキー場（雫石市）			■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	
	菓子一般環境大気測定局（滝沢市）																										■	■	
宮城県	宮城県保健環境センター（仙台市）				■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	
	国設仙台測定局（仙台市）	◎		■																									
	宮城県消防学校（仙台市）																								■	■	■	■	
山形県	山形県環境科学センター（村山市）																										■	■	
茨城県	茨城県環境監視センター（水戸市）			■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	
	茨城県霞ヶ浦環境科学センター（土浦市）																												
群馬県	群馬県衛生環境研究所（前橋市）			■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	
千葉県	市原松崎一般環境大気測定局（市原市）	◎	◎	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	
	東京都環境科学研究所（江東区）				■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	
	東京都立衛生研究所（調査当時）（新宿区）				■																								
神奈川県	小笠原父島				■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	
	神奈川環境科学センター（平塚市）	◎	◎	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	
横浜市	旧横浜市環境科学研究所（横浜市）			■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	
	横浜市環境科学研究所（横浜市）																										■	■	
新潟県	大山一般環境大気測定局（新潟市）			■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	
富山県	砺波一般環境大気測定局（砺波市）			■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	
石川県	石川県保健環境センター（金沢市）	◎		■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	
山梨県	富士吉田合同庁舎（富士吉田市）			■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	
	山梨県衛生環境研究所（甲府市）																										■	■	
長野県	長野県環境保全研究所（長野市）	◎	◎	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	
岐阜県	岐阜県保健環境研究所（各務原市）			■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	
名古屋市	千種区平和公園（名古屋市）	◎	◎	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	
三重県	三重県保健環境研究所（四日市市）	◎	◎	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	
京都府	京都府立城陽高校（城陽市）	◎	◎	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	
大阪府	地方独立行政法人大阪府立環境農林水産総合研究所（大阪市）	◎	◎	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	
	大阪合同庁舎2号館別館（大阪市）																										■	■	
兵庫県	兵庫県環境研究センター（神戸市）	◎	◎			■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	
神戸市	葦合一般環境大気測定局（神戸市）			■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	
	神戸市役所（神戸市）																										■	■	
奈良県	天理一般環境大気測定局（天理市）			■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	
島根県	国設隠岐酸性雨測定所（隠岐の島町）			■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	
広島県	広島市立国泰寺中学校（広島市）	◎	◎	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	
山口県	山口県環境保健センター（山口市）	◎	◎	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	
	萩市役所見島支所（萩市）			■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	
	萩市見島ふれあい交流センター（萩市）																										■	■	
	萩健康福祉センター（萩市）																											■	■
徳島県	徳島県保健環境センター（徳島市）			■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	
	徳島県立保健製薬環境センター（徳島市）																										■	■	
香川県	香川県高松合同庁舎（高松市）	◎		■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	
	香川県立総合水泳プール（高松市）																												
愛媛県	愛媛県南予地方局（宇和島市）			■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	
福岡県	大牟田市役所（大牟田市）	◎	◎	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	
北九州市	北九州観測所（北九州市）	◎																											
佐賀県	佐賀県環境センター（佐賀市）	◎		■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	
長崎県	長崎県庁（長崎市）	◎	◎																										
	小ヶ倉支所測定局（長崎市）																												
	北消防署測定局（長崎市）																												
熊本県	熊本県保健環境科学研究所（宇土市）			■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	
宮崎県	宮崎県衛生環境研究所（宮崎市）			■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	
鹿児島県	鹿児島県環境保健センター（鹿児島市）																												
沖縄県	辺野古岬（国頭村）			■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	

(注1) ◎：非意図的生成化学物質汚染実態追跡調査において実施したことを意味する。

(注2) ■：モニタリング調査において実施したことを意味する。

(注3) 「地方公共団体」は、試料採取を実施した地方公共団体の名称であり、複数年度実施している地点にあつては直近の年度に試料採取を実施した地方公共団体の名称を示した。

(注4) ■は非意図的生成化学物質汚染実態追跡調査及びモニタリング調査を継続して実施している地点を意味する。

表3 平成13年度以前の継続的調査と平成14年度以降のモニタリング調査の継続調査地点における検出頻度の比較

物質調査番号	調査対象物質	水質																
		H10	H14	H15	H16	H17	H18	H19	H20	H21	H22	H23	H24	H25	H26	H27	H28	H29
[1]	総 PCB	10/10	14/14	14/14	15/15	15/15	15/15	15/15	15/15	15/15	13/15	15/15	14/14	13/13	13/13	14/14	14/14	14/14
[2]	HCB	0/15	14/14	14/14	15/15	15/15	15/15	15/15	15/15	15/15	12/15	15/15	14/14	13/13	13/13	14/14	14/14	14/14
[4]	ディルドリン (参考)	0/15	14/14	14/14	15/15	15/15	15/15	15/15	15/15	15/15	---	15/15	---	---	13/13	---	---	---
[6]	DDT 類 (参考)																	
	[6-1] <i>p,p'</i> -DDT (参考)	0/15	14/14	14/14	15/15	15/15	15/15	15/15	15/15	15/15	15/15	---	---	---	13/13	---	---	---
	[6-2] <i>p,p'</i> -DDE (参考)	0/15	14/14	14/14	15/15	15/15	15/15	15/15	15/15	15/15	15/15	---	---	---	13/13	---	---	---
	[6-3] <i>p,p'</i> -DDD (参考)	0/15	14/14	14/14	15/15	15/15	15/15	15/15	15/15	15/15	15/15	---	---	---	13/13	---	---	---
[7]	クロルデン類 (参考)																	
	[7-1] <i>cis</i> -クロルデン (参考)	0/15	14/14	14/14	15/15	15/15	15/15	15/15	15/15	15/15	14/15	15/15	14/14	13/13	---	---	---	---
	[7-2] <i>trans</i> -クロルデン (参考)	0/15	14/14	14/14	15/15	15/15	15/15	15/15	15/15	15/15	13/15	15/15	14/14	13/13	---	---	---	---
	[7-4] <i>cis</i> -ノナクロル (参考)	0/15	14/14	14/14	15/15	15/15	15/15	15/15	15/15	15/15	15/15	15/15	14/14	13/13	---	---	---	---
	[7-5] <i>trans</i> -ノナクロル (参考)	0/15	14/14	14/14	15/15	15/15	15/15	15/15	15/15	15/15	13/15	15/15	14/14	13/13	---	---	---	---
[11]	HCH 類																	
	[11-1] α -HCH	0/15	14/14	14/14	15/15	15/15	15/15	15/15	15/15	15/15	15/15	15/15	14/14	13/13	13/13	14/14	14/14	14/14
	[11-2] β -HCH	0/15	14/14	14/14	15/15	15/15	15/15	15/15	15/15	15/15	15/15	15/15	14/14	13/13	13/13	14/14	14/14	14/14

物質調査番号	調査対象物質	底質																
		H13	H14	H15	H16	H17	H18	H19	H20	H21	H22	H23	H24	H25	H26	H27	H28	H29
[1]	総 PCB	24/24	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	15/17	17/17	16/16	15/15	15/15	16/16	16/16	16/16
[2]	HCB	3/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	16/16	15/15	14/15	16/16	16/16	16/16
[4]	ディルドリン (参考)	1/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	16/17	17/17	17/17	---	17/17	---	---	---	---	---	---
[6]	DDT 類 (参考)																	
	[6-1] <i>p,p'</i> -DDT (参考)	2/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	---	---	---	15/15	---	---	---
	[6-2] <i>p,p'</i> -DDE (参考)	7/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	---	---	---	15/15	---	---	---
	[6-3] <i>p,p'</i> -DDD (参考)	5/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	---	---	---	15/15	---	---	---
[7]	クロルデン類 (参考)																	
	[7-1] <i>cis</i> -クロルデン (参考)	3/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	16/16	15/15	---	---	---	---
	[7-2] <i>trans</i> -クロルデン (参考)	5/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	16/16	15/15	---	---	---	---
	[7-4] <i>cis</i> -ノナクロル (参考)	3/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	16/16	15/15	---	---	---	---
	[7-5] <i>trans</i> -ノナクロル (参考)	4/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	16/16	15/15	---	---	---	---
[11]	HCH 類																	
	[11-1] α -HCH	1/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	16/16	15/15	15/15	16/16	16/16	16/16
	[11-2] β -HCH	3/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	16/16	15/15	15/15	16/16	16/16	16/16

物質調査番号	調査対象物質	生物																
		H12	H14	H15	H16	H17	H18	H19	H20	H21	H22	H23	H24	H25	H26	H27	H28	H29
[1]	総 PCB	3/3	16/16	16/16	16/16	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	16/16	12/12	16/16	14/14	13/13	12/12	13/13	13/13
[2]	HCB	3/17	16/16	16/16	16/16	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	16/16	12/12	16/16	13/14	13/13	12/12	13/13	13/13
[4]	ディルドリン (参考)	4/17	16/16	16/16	16/16	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	---	12/12	---	---	13/13	---	---	---
[6]	DDT 類 (参考)																	
	[6-1] <i>p,p'</i> -DDT (参考)	3/17	16/16	16/16	16/16	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	15/16	---	---	14/14	---	---	---	---
	[6-2] <i>p,p'</i> -DDE (参考)	12/17	16/16	16/16	16/16	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	16/16	---	---	14/14	---	---	---	---
	[6-3] <i>p,p'</i> -DDD (参考)	6/17	16/16	16/16	16/16	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	16/16	---	---	13/14	---	---	---	---
	[6-4] <i>o,p'</i> -DDT (参考)	1/17	16/16	16/16	16/16	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	14/16	---	---	14/14	---	---	---	---
	[6-5] <i>o,p'</i> -DDE (参考)	1/17	16/16	16/16	15/16	17/17	17/17	17/17	16/17	17/17	15/16	---	---	14/14	---	---	---	---
	[6-6] <i>o,p'</i> -DDD (参考)	2/17	16/16	16/16	16/16	17/17	17/17	17/17	16/17	17/17	16/16	---	---	14/14	---	---	---	---
[7]	クロルデン類																	
	[7-1] <i>cis</i> -クロルデン	7/17	16/16	16/16	16/16	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	16/16	12/12	16/16	14/14	---	---	13/13	13/13
	[7-2] <i>trans</i> -クロルデン	5/17	16/16	16/16	15/16	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	16/16	12/12	16/16	14/14	---	---	13/13	13/13
	[7-3] オキシクロルデン	3/17	16/16	16/16	16/16	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	16/16	12/12	16/16	14/14	---	---	13/13	13/13
	[7-4] <i>cis</i> -ノナクロル	4/17	16/16	16/16	16/16	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	16/16	12/12	16/16	14/14	---	---	13/13	13/13
	[7-5] <i>trans</i> -ノナクロル	9/17	16/16	16/16	16/16	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	16/16	12/12	16/16	14/14	---	---	13/13	13/13
[11]	HCH 類																	
	[11-1] α -HCH	1/17	16/16	16/16	16/16	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	16/16	12/12	15/16	14/14	14/14	9/12	12/13	12/13
	[11-2] β -HCH	4/17	16/16	16/16	16/16	17/17	17/17	17/17	17/17	17/17	16/16	12/12	16/16	14/14	14/14	12/12	13/13	13/13

物質調査番号	調査対象物質	大気																
		H13	H14	H15	H16	H17	H18	H19	H20	H21	H22	H23	H24	H25	H26	H27	H28	H29
[1]	総 PCB	10/10	10/10	10/10	10/10	10/10	10/10	8/8	9/9	10/10	10/10	10/10	10/10	9/9	9/9	9/9	8/8	8/8

- (注1) 「---」は平成13年度以前からの継続調査地点なし又は調査対象外であることを意味する。
(注2) 水質については、平成11年度から平成13年度に継続的調査が行われなかったため、平成10年度の値と比較することとした。
(注3) 生物については、平成13年度に継続調査地点の一つが調査されていないため、平成12年度調査の値と比較することとした。
(注4) 平成13年度以前から調査が実施されており、比較可能な調査対象物質についてのみ記載した。
(注5) 継続調査地点における検出頻度の比較ができない調査対象物質については記載しなかった。
(注6) 継続地点とは、表2-1から表2-4に示した地点のうち調査実施状況の欄を■で強調した地点を意味する。

平成13年度以前の調査結果を含めた評価を行うに当たっては以下の点を考慮する必要がある。

・総PCB

平成13年度以前に実施してきた総PCBの継続的調査としては、水質、底質及び大気については「非意図的生成化学物質汚染実態追跡調査」、生物（貝類、魚類及び鳥類）については「生物モニタリング」が該当する。これらの調査における総PCBの調査実績は、水質及び大気は平成12年度及び平成13年度の2年間、底質は平成8年度、平成9年度、平成12年度及び平成13年度の4年間、生物は昭和53年度から平成13年度までの24年間である。したがって、生物については経年推移を評価するのに十分な期間にわたっての調査が実施されているといえる。

総PCBの調査地点については、水質及び底質の平成14年度以降の調査地点は平成13年度以前の調査地点を一部引き継いでいるものの、少なくない地点が入れ替わっている。このため、これらの媒体では平成14年度以降と平成13年度以前の残留状況の傾向を経年的に評価する場合には考慮を要する。生物では平成13年度以前の調査地点・生物種の多くが平成14年度以降にも引き継がれたが、平成14年度に2地点・生物種（釧路沖のオオサガ及び祝言島地先のスズキ）が減り、平成15年度に1地点・生物種（三浦半島のムラサキイガイ）が減ったものの、平成17年度に1地点・生物種（釧路沖のシロサケ）の調査が、平成20年度にも1地点・生物種（大分川のスズキ）の調査がそれぞれ再開された。経年的に評価する場合には、この点に留意する必要がある。大気の平成14年度以降の調査地点は、水質及び底質と同様、平成13年度以前の調査地点を一部引き継いでいるものの、少なくない地点が入れ替わっている。このため、これらの媒体では平成14年度以降と平成13年度以前の残留状況の傾向を経年的に評価する場合には考慮を要する。また、大気では平成19年度の温暖期及び寒冷期並びに平成20年度の温暖期にそれぞれ3分の1程度の地点で欠測となっており、経年的に評価する場合には、この点に留意する必要がある。

総PCBの検出下限値については、水質、底質、生物（「生物モニタリング」に係るものを除く。）及び大気ともに平成13年度以前の値は、平成14年度以降の値とほぼ同等であるため経年的な評価に当たり支障はない。一方、「生物モニタリング」に係る検出下限値は、平成14年度以降の検出下限値に比べて到底及ぶレベルではなく、検出頻度や幾何平均値（検出下限値未満の値は検出下限値の1/2として計算）により残留状況の傾向を経年的に評価する場合には考慮を要する。また、検出下限値未満の検体が多いことから、中央値、70%値、80%値等で推移を見ることも困難である。

・総PCB以外のPOPs

平成13年度以前に実施してきた継続的調査としては、水質及び底質については、「水質・底質モニタリング」（平成11年度～平成13年度は「底質モニタリング」）、生物（貝類、魚類及び鳥類）については「生物モニタリング」が該当する。大気について継続的調査は実施していなかった。また、ヘプタクロル類については、全媒体において平成13年度以前に継続的調査を実施していない。なお、平成14年度以降においても、大気の本HCH類は平成14年度の調査では対象外であった。

総PCB以外のPOPs及びHCH類における平成13年度以前の調査実績として、水質及び底質ではHCB、ディルドリン、*p,p'*-DDT、*p,p'*-DDE、*p,p'*-DDD、*cis*-クロルデン、*trans*-クロルデン、*cis*-ノナクロル、*trans*-ノナクロル、 α -HCH及び β -HCHについて昭和61年度から平成10年度までの13年間（底質は昭和61年度から平成13年度までの16年間）モニタリングを実施した。オキシクロルデンについては昭和61年度及び昭和62年度

の2年間のみ実施し、その他の物質（アルドリン、エンドリン、*o,p'*-DDT、*o,p'*-DDE、*o,p'*-DDD、ヘプタクロル類、トキサフェン類、マイレックス、 γ -HCH（別名：リンデン）及び δ -HCH）については水質及び底質の継続的調査は実施していなかった。生物は、アルドリン、エンドリン、 γ -HCH（別名：リンデン）及び δ -HCHについては昭和53年度から開始されたものの平成13年度よりも前に中断され、その他の物質（ヘプタクロル類、トキサフェン類及びマイレックスを除く。）については昭和50年代から平成13年度まで継続的調査を実施した（調査開始年度は物質により異なる。また平成9年度及び平成11年度には調査を実施していない物質がある。詳細は表4を参照のこと。）。

以上より、継続的調査を実施していない物質（ヘプタクロル等）及び媒体（大気等）については平成13年度以前からの経年的な残留状況の傾向を判断できないほか、オキシクロルデンの水質及び底質、アルドリン、エンドリン、 γ -HCH（別名：リンデン）及び δ -HCHの生物については、過去の調査実施から間隔が開いたため平成13年度以前からの経年的な残留状況の傾向を評価する場合には考慮を要する。

総PCB以外のPOPs及びHCH類の調査地点については、水質及び底質の平成14年度以降の調査地点は平成13年度以前にはなかったものが大幅に追加されている。このため、これらの媒体では平成14年度以降と平成13年度以前の残留状況の傾向を経年的に評価する場合には考慮を要する。生物では総PCBと同様、平成13年度以前の調査地点・生物種の多くが平成14年度以降に引き継がれたが平成14年度以降、いくつかの調査地点・生物種に変更があり、経年的に評価する場合には、この点に留意する必要がある。大気では総PCBと同様、HCBが平成19年度の温暖期及び寒冷期並びに平成20年度の温暖期にそれぞれ3分の1程度の地点で欠測となっており、経年的に評価する場合には、この点に留意する必要がある。

総PCB以外のPOPs及びHCH類の検出下限値については、平成14年度以降の値は平成13年度以前の値と比較して、水質では一万分の一程度に、底質及び生物では一千分の一程度に下がっている。これに伴い検出数が増えており、検出頻度や幾何平均値（検出下限値未満の値は検出下限値の1/2として計算）により残留状況の傾向を評価する場合には考慮を要する。生物についても、平成13年度以前は検出下限値未満の検体が多く、中央値、70%値、80%値等での推移を見ることも困難である。

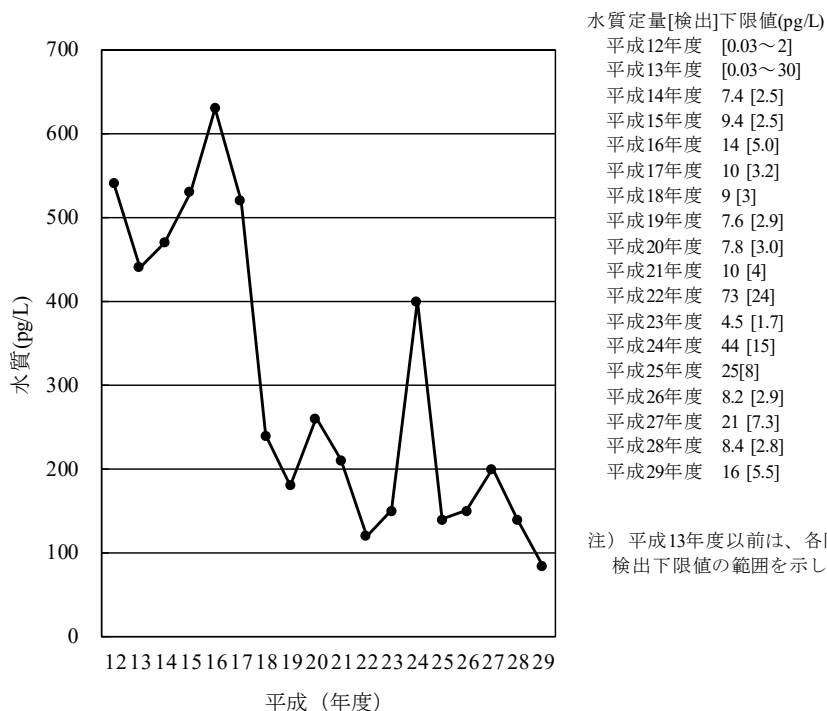
モニタリング調査は長期にわたり実施されてきており、その間に調査地点、分析法、生物種等の変更が行われている。そのため、調査開始当初と最近の調査結果をそのまま比較可能な値として扱うことは困難であるが、共通の調査地点及び分析法が同一である期間ごとにみれば継続性をもって評価を行うことができると考えられる。

特に水質のHCB、ディルドリン、*p,p'*-DDT、*p,p'*-DDE、*p,p'*-DDD、*cis*-クロルデン、*trans*-クロルデン、オキシクロルデン、*cis*-ノナクロル、*trans*-ノナクロル、 α -HCH、 β -HCHについては、平成13年度以前に調査実績はあるものの、検出下限値が高い（10,000pg/L）ため検出頻度が低いことに留意が必要である。

平成13年度以前からの継続的調査実施物質の経年変化は、図1から図7に示すとおりである。

・平成13年度以前からの継続的調査実施物質の経年変化

[1] PCB類

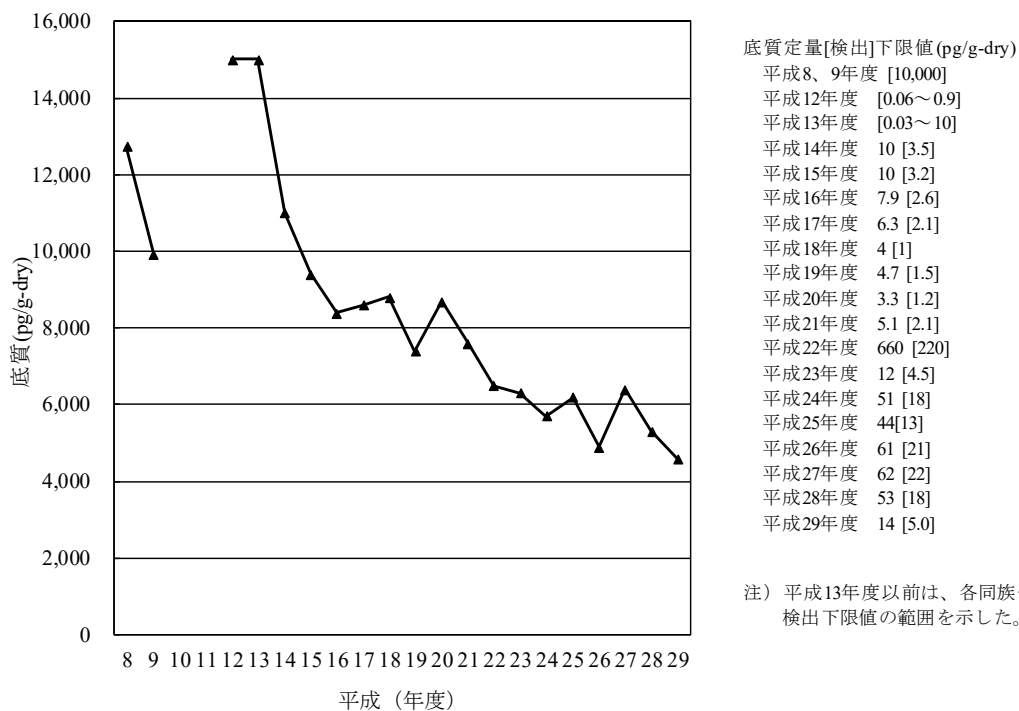


注) 平成13年度以前は、各同族体の検出下限値の範囲を示した。

- (注1) 総 PCB の水質については、継続的調査において平成 11 年度以前に調査が実施されていない。
- (注2) 平成 14 年度は、各地点における算術平均値を求め、その算術平均値から全地点の幾何平均値を求めた。

図 1-1 総 PCB の水質の経年変化 (幾何平均値)

[1] PCB類

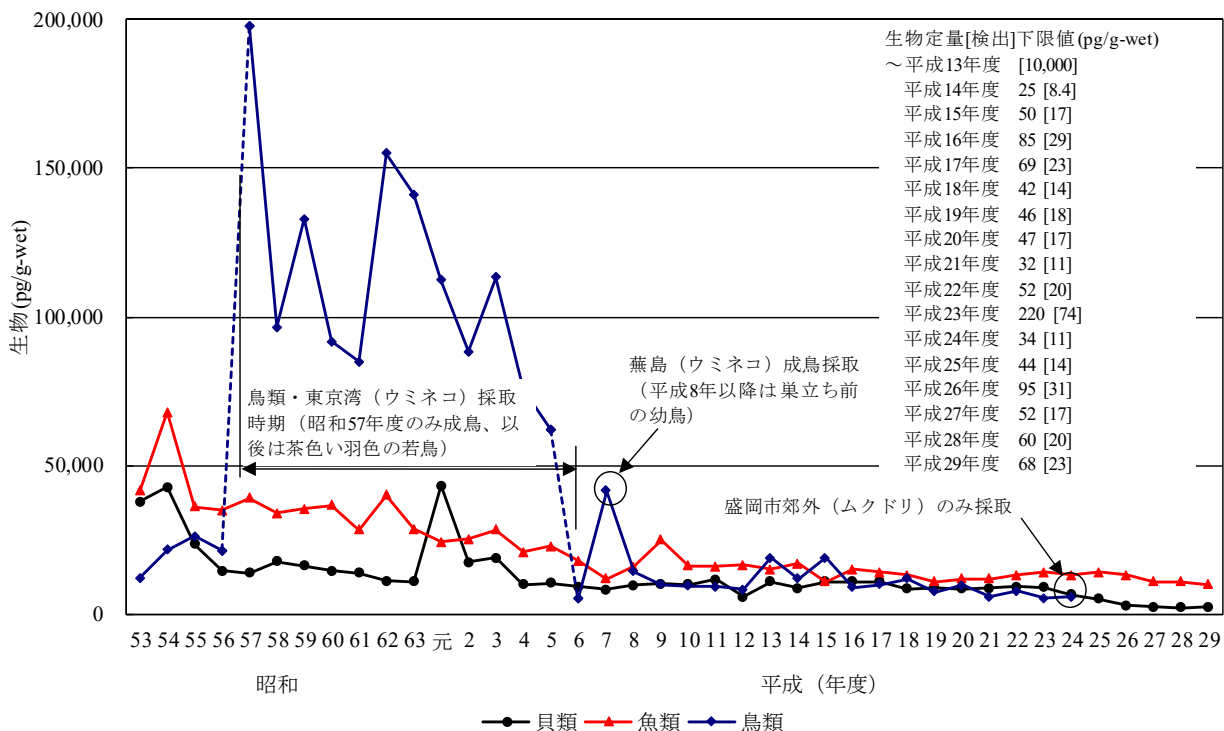


注) 平成13年度以前は、各同族体の検出下限値の範囲を示した。

- (注1) 総 PCB の底質については、継続的調査において平成 7 年度以前に調査が実施されていない。
- (注2) 平成 14 年度から平成 21 年度は、各地点における算術平均値を求め、その算術平均値から全地点の幾何平均値を求めた。

図 1-2 総 PCB の底質の経年変化 (幾何平均値)

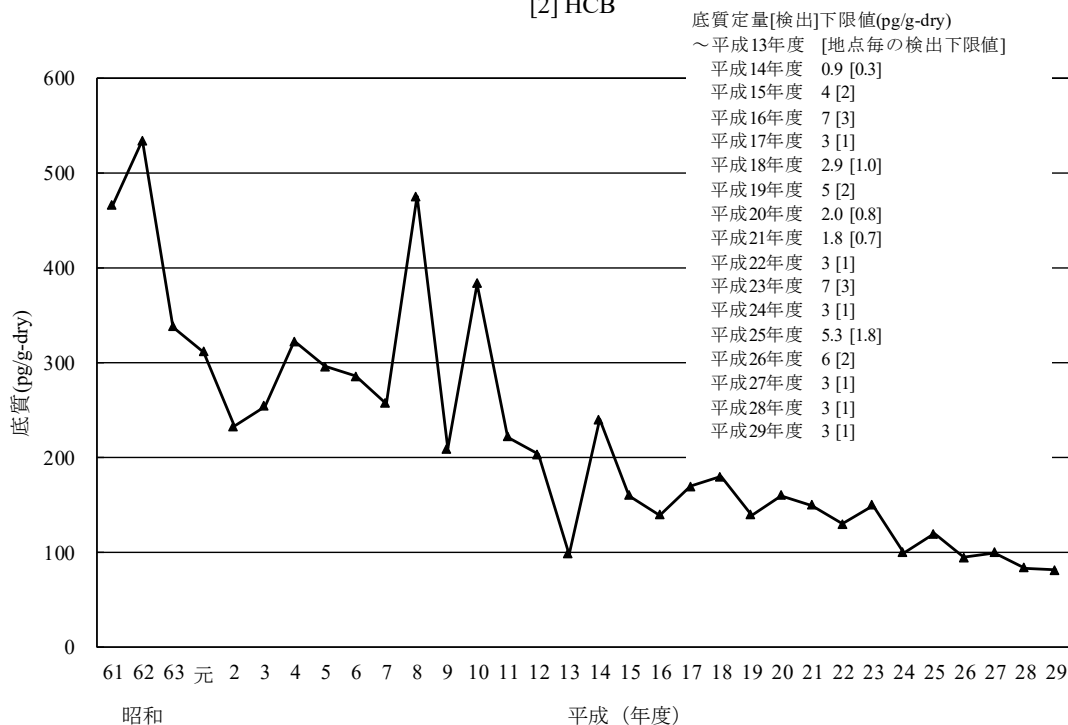
[1] PCB類



- (注1) 平成14年度から平成21年度は、各地点における算術平均値を求め、その算術平均値から全地点の幾何平均値を求めた。
- (注2) 鳥類は平成25年度に調査地点及び調査対象生物を変更したことから、平成24年度までの結果と平成25年度以降の結果に連続性がないため、平成25年度以降の結果を示していない。

図1-3 総PCBの生物の経年変化 (幾何平均値)

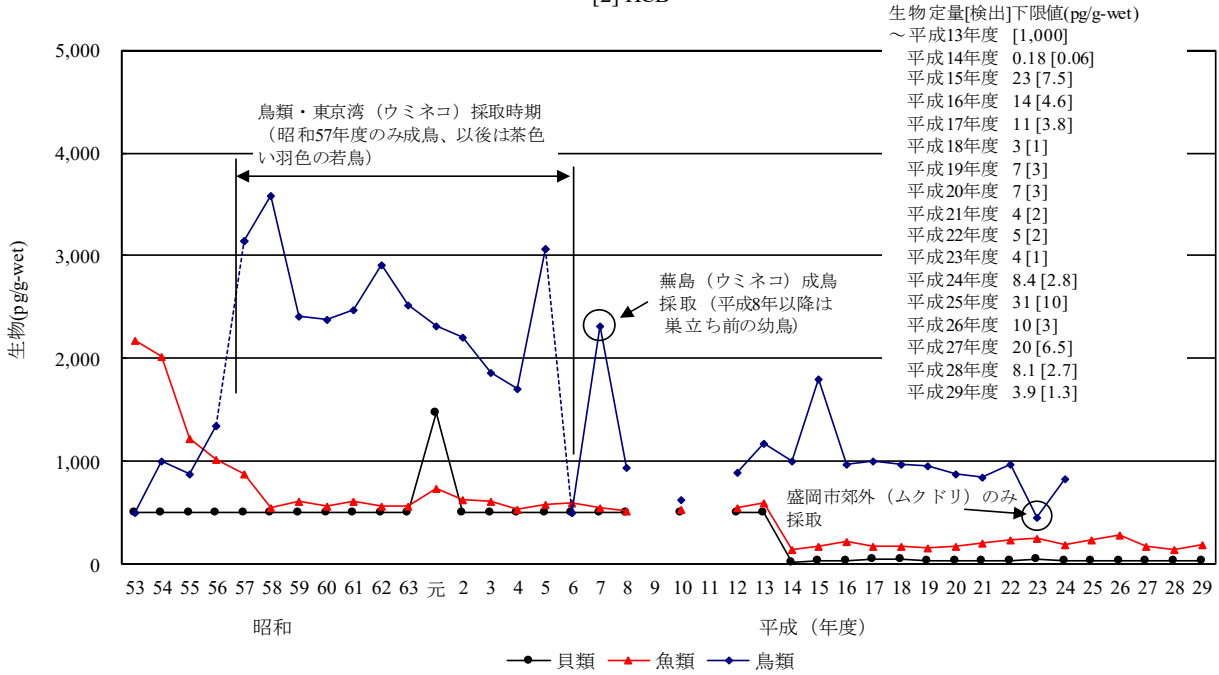
[2] HCB



- (注) 平成14年度から平成21年度は、各地点における算術平均値を求め、その算術平均値から全地点の幾何平均値を求めた。

図2-1 HCBの底質の経年変化 (幾何平均値)

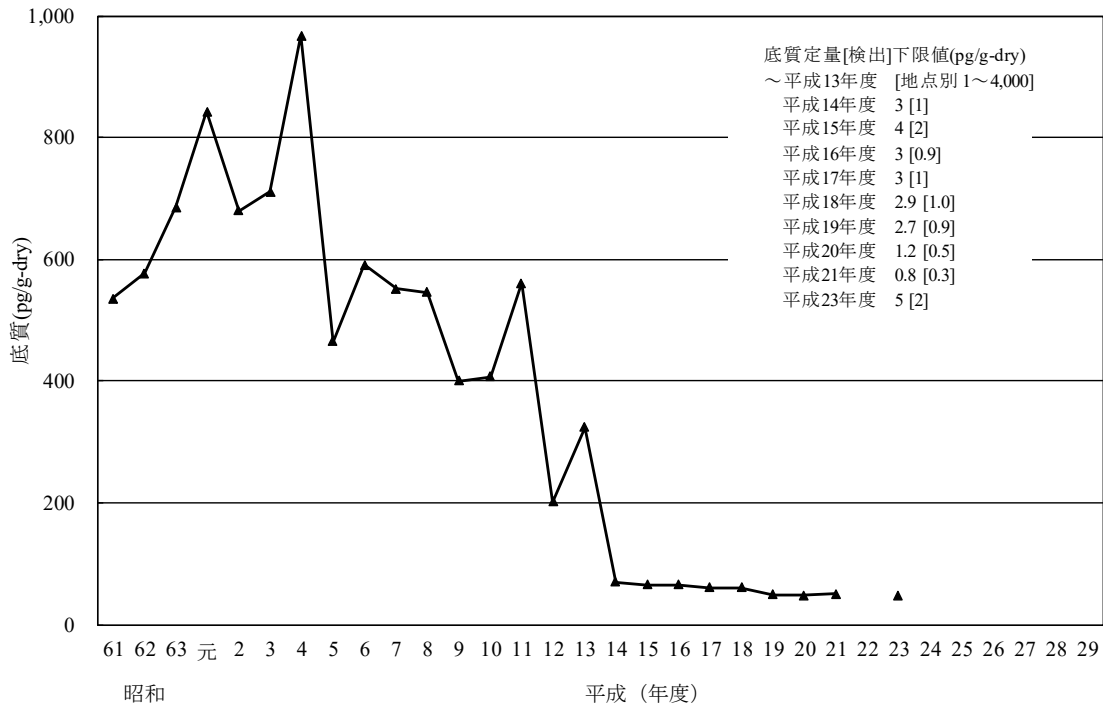
[2] HCB



- (注1) 平成14年度から平成21年度は、各地点における算術平均値を求め、その算術平均値から全地点の幾何平均値を求めた。
- (注2) 鳥類は平成25年度に調査地点及び調査対象生物を変更したことから、平成24年度までの結果と平成25年度以降の結果に連続性がないため、平成25年度以降の結果を示していない。

図 2-2 HCB の生物の経年変化 (幾何平均値)

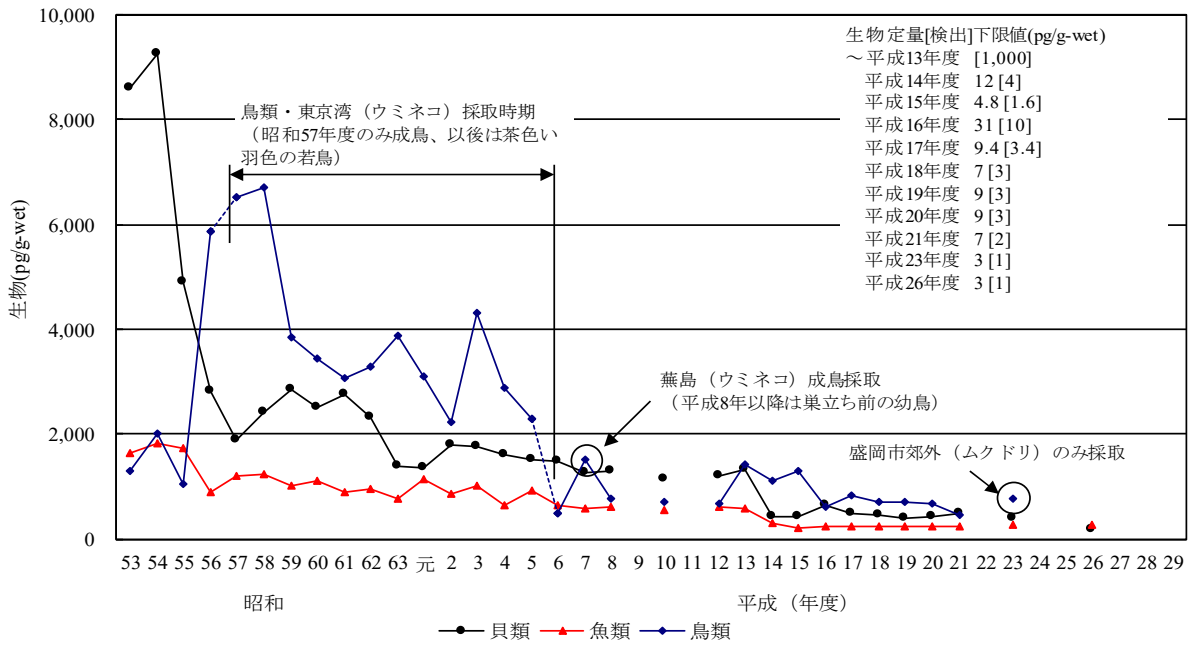
[4] デイルドリン



- (注1) 平成14年度から平成21年度は、各地点における算術平均値を求め、その算術平均値から全地点の幾何平均値を求めた。
- (注2) 平成22年度及び平成24年度から平成29年度は調査を実施していない。

図 3-1 デイルドリンの底質の経年変化 (幾何平均値)

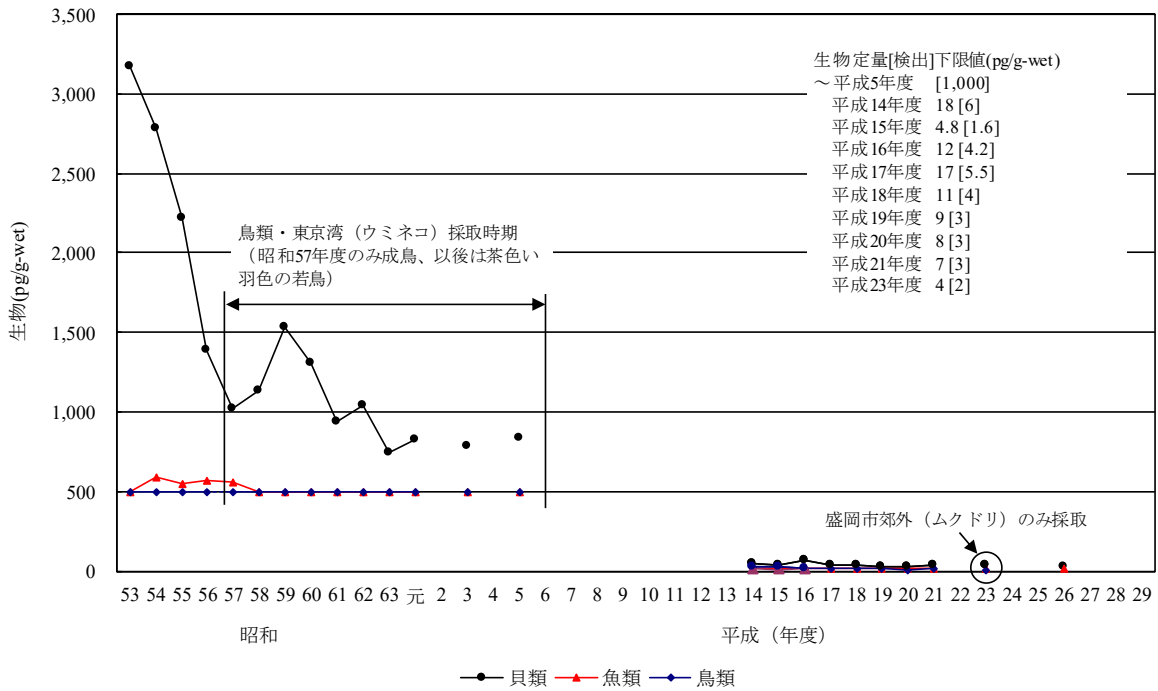
[4] デイルドリン



- (注1) 平成14年度から平成21年度は、各地点における算術平均値を求め、その算術平均値から全地点の幾何平均値を求めた。
- (注2) 鳥類は平成26年度に調査地点及び調査対象生物を変更したことから、平成23年度までの結果と平成26年度の結果に継続性がないため、平成26年度の結果を示していない。
- (注3) 平成22年度、平成24年度、平成25年度、平成27年度から平成29年度は調査を実施していない。

図3-2 デイルドリンの生物の経年変化 (幾何平均値)

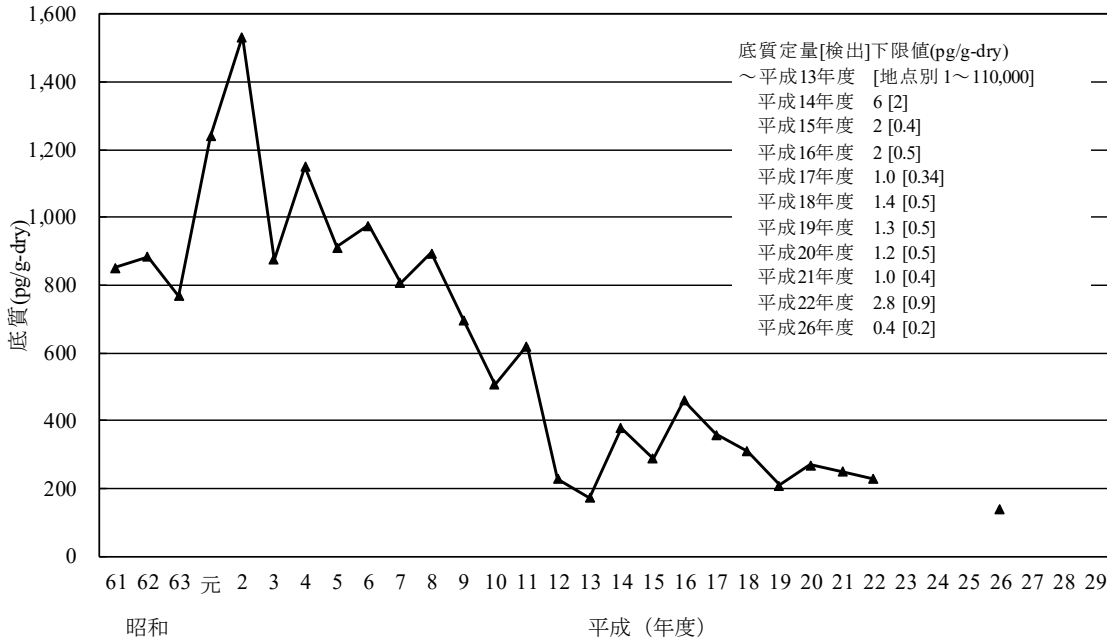
[5] エンドリン



- (注1) 平成14年度から平成21年度は、各地点における算術平均値を求め、その算術平均値から全地点の幾何平均値を求めた。
- (注2) 鳥類は平成26年度に調査地点及び調査対象生物を変更したことから、平成23年度までの結果と平成26年度の結果に継続性がないため、平成26年度の結果を示していない。
- (注3) 平成22年度、平成24年度、平成25年度、平成27年度から平成29年度は調査を実施していない。

図4 エンドリンの生物の経年変化 (幾何平均値)

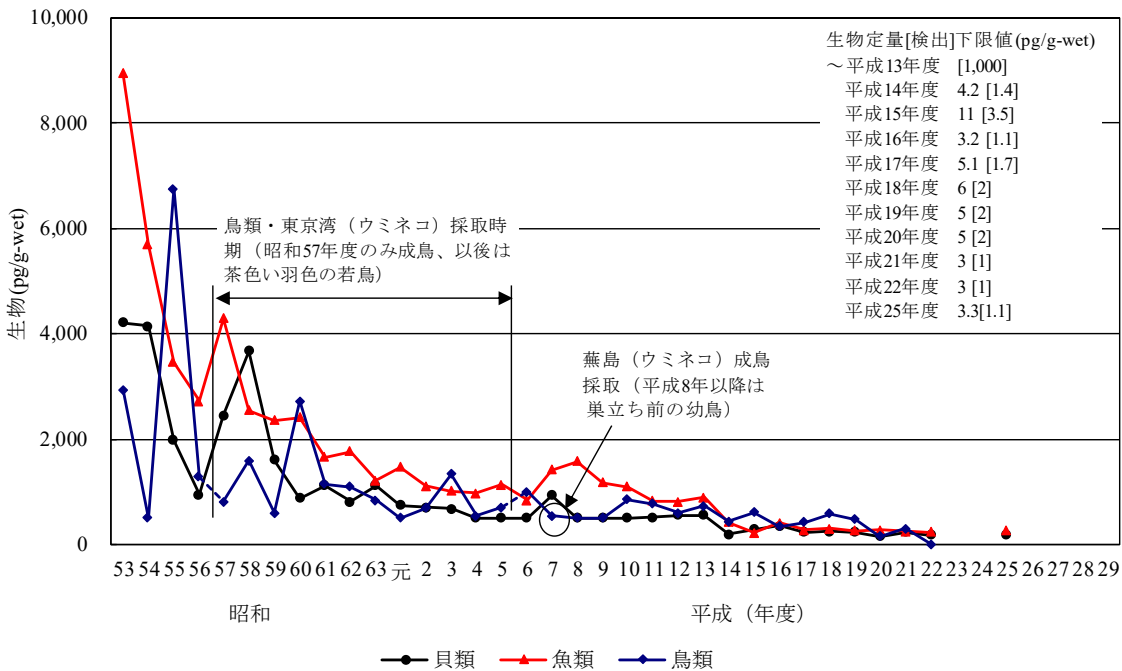
[6-1] *p,p'*-DDT



- (注1) 平成14年度から平成21年度は、各地点における算術平均値を求め、その算術平均値から全地点の幾何平均値を求めた。
 (注2) 平成23年度から平成25年度、平成27年度から平成29年度は調査を実施していない。

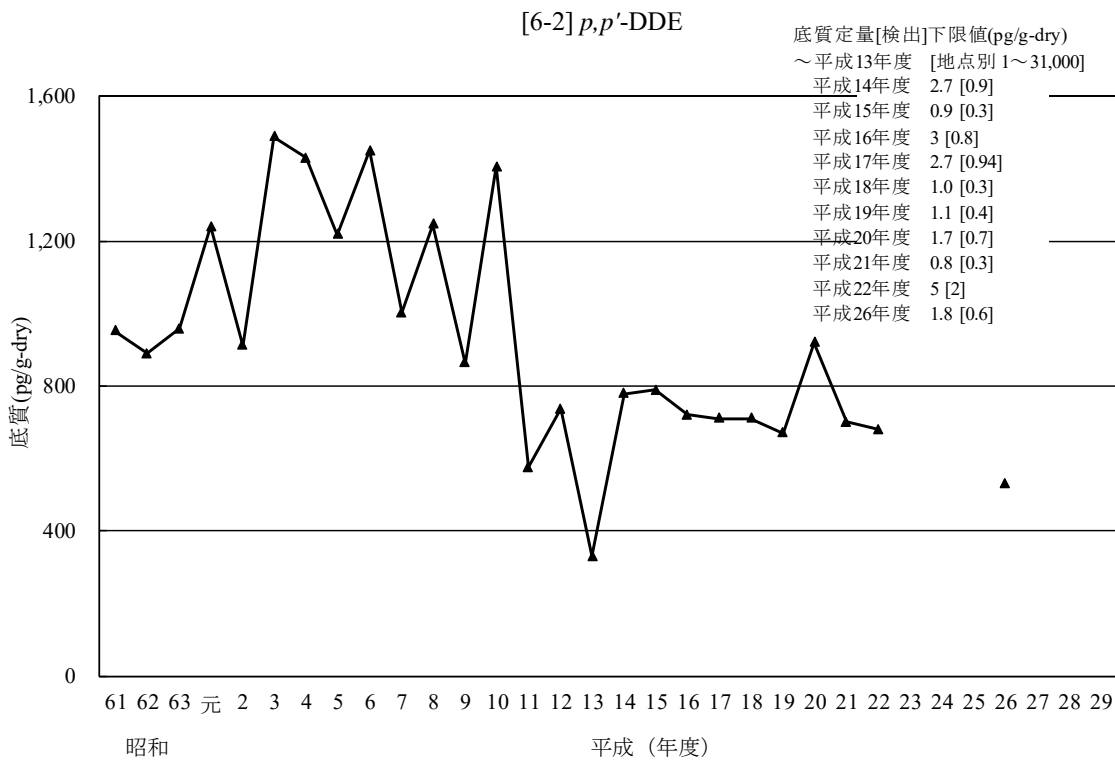
図5-1-1 *p,p'*-DDTの底質の経年変化（幾何平均値）

[6-1] *p,p'*-DDT



- (注1) 平成14年度から平成21年度は、各地点における算術平均値を求め、その算術平均値から全地点の幾何平均値を求めた。
 (注2) 鳥類は平成25年度に調査地点及び調査対象生物を変更したことから、平成22年度までの結果と平成25年度の結果に継続性がないため、平成25年度の結果を示していない。
 (注3) 平成23年度及び平成24年度及び平成26年度から平成29年度は調査を実施していない。

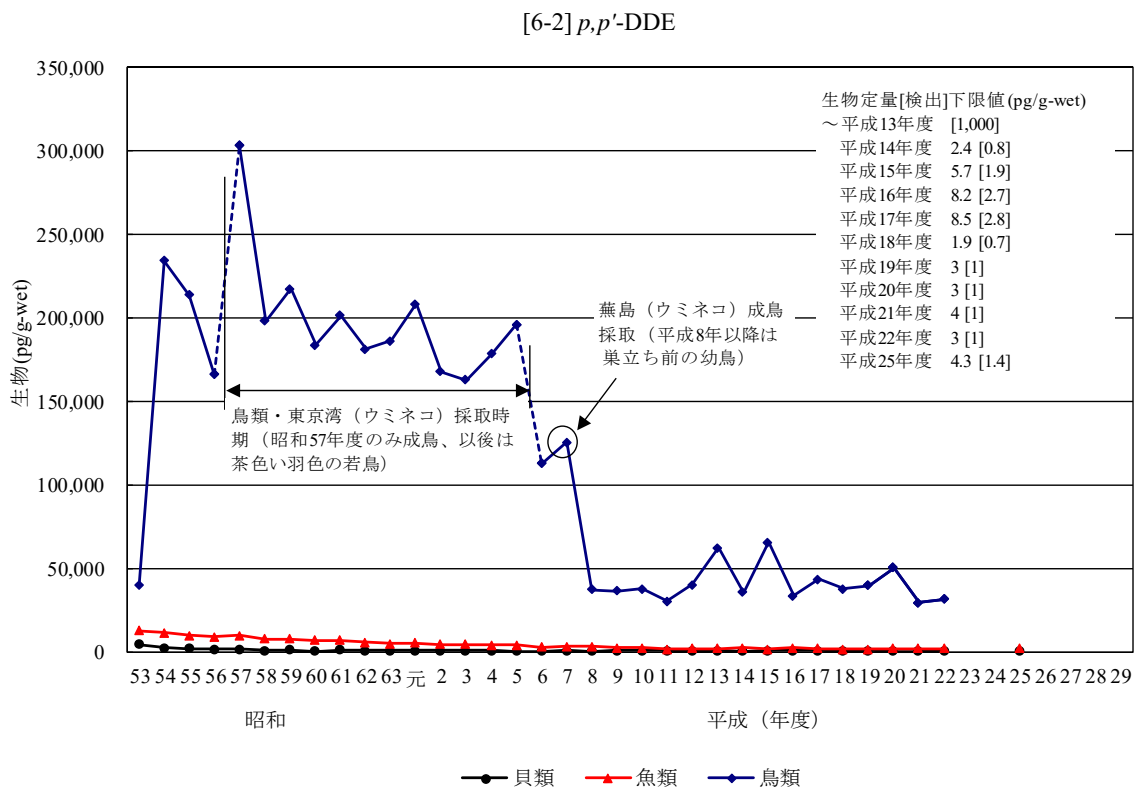
図5-1-2 *p,p'*-DDTの生物の経年変化（幾何平均値）



(注) 平成14年度から平成21年度は、各地点における算術平均値を求め、その算術平均値から全地点の幾何平均値を求めた。

(注) 平成23年度から平成25年度、平成27年度から平成29年度は調査を実施していない。

図 5-2-1 *p,p'*-DDE の底質の経年変化 (幾何平均値)



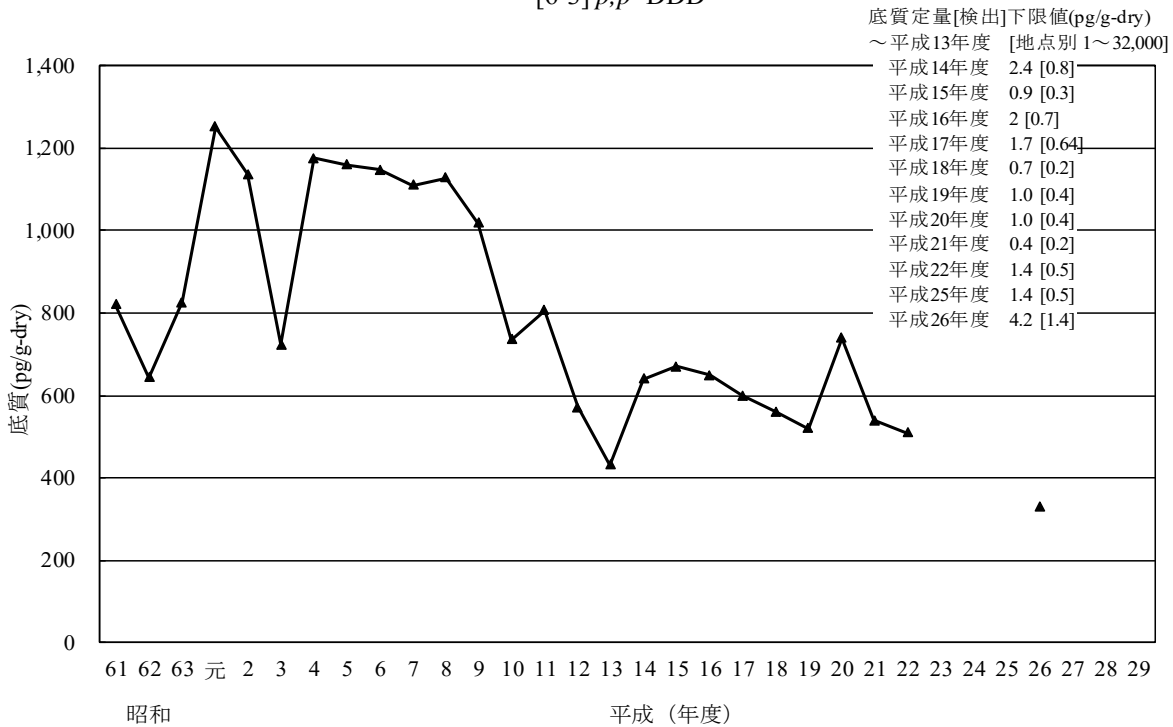
(注1) 平成14年度から平成21年度は、各地点における算術平均値を求め、その算術平均値から全地点の幾何平均値を求めた。

(注2) 鳥類は平成25年度に調査地点及び調査対象生物を変更したことから、平成22年度までの結果と平成25年度の結果に連続性がないため、平成25年度の結果を示していない。

(注3) 平成23年度、平成24年度及び平成26年度から平成29年度は調査を実施していない。

図 5-2-2 *p,p'*-DDE の生物の経年変化 (幾何平均値)

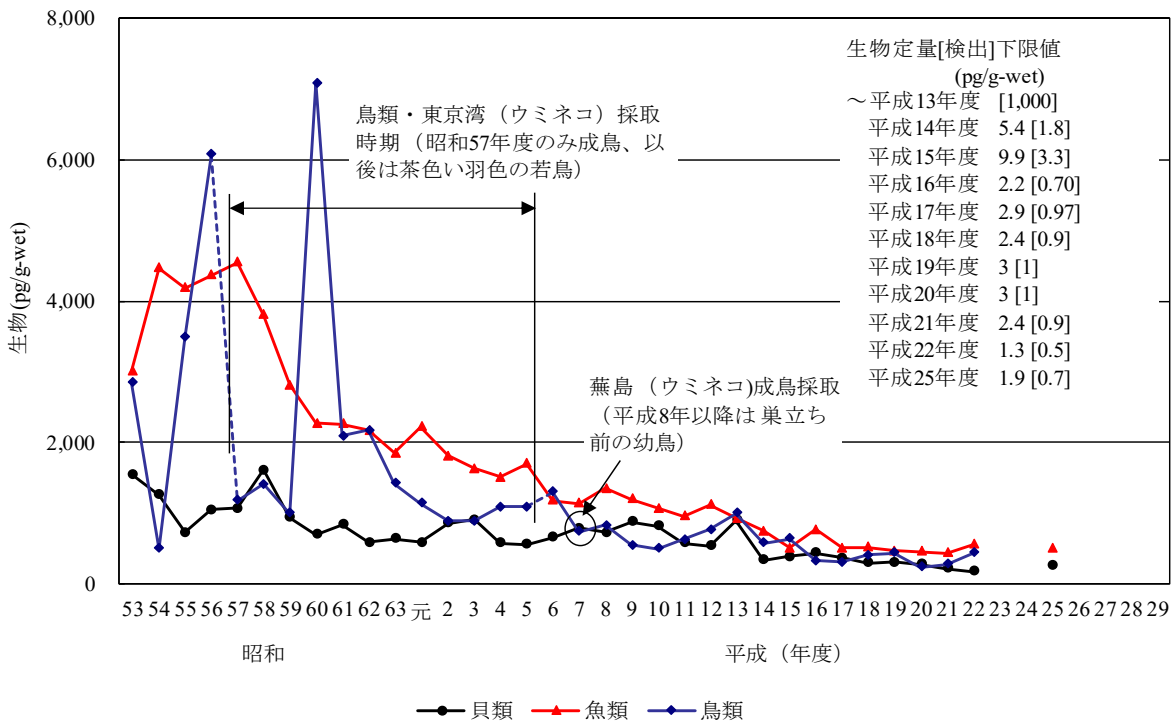
[6-3] p,p' -DDD



(注1) 平成14年度から平成21年度は、各地点における算術平均値を求め、その算術平均値から全地点の幾何平均値を求めた。
 (注2) 平成23年度から平成25年度、平成27年度から平成29年度は調査を実施していない。

図5-3-1 p,p' -DDDの底質の経年変化(幾何平均値)

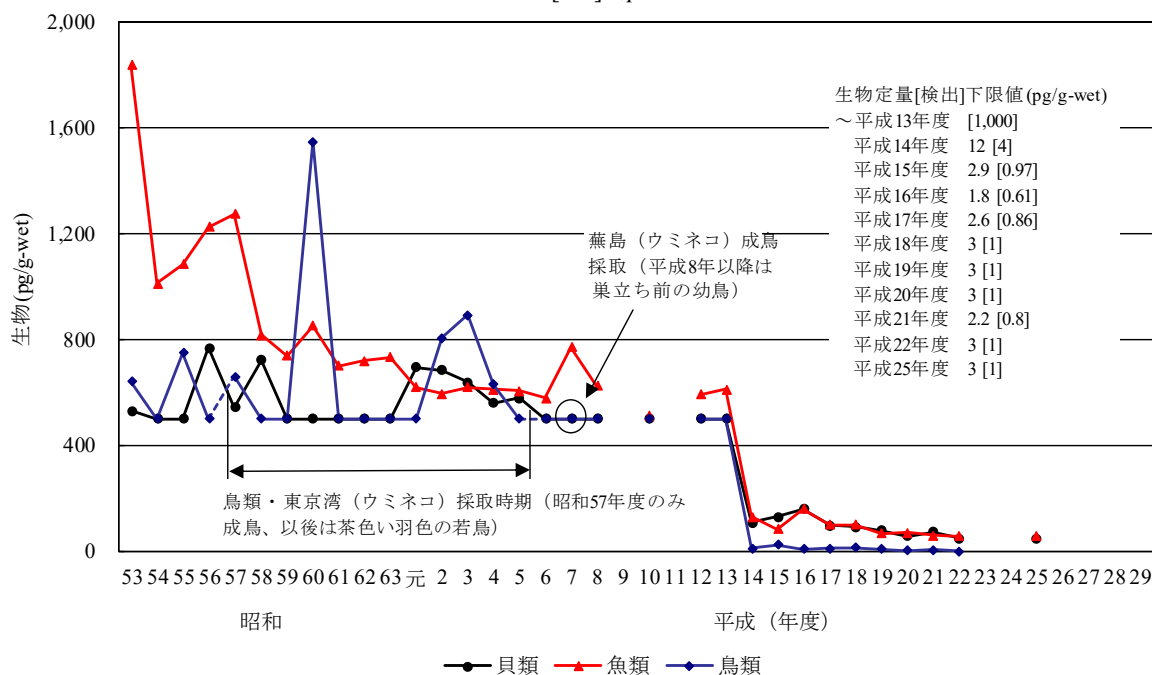
[6-3] p,p' -DDD



(注1) 平成14年度から平成21年度は、各地点における算術平均値を求め、その算術平均値から全地点の幾何平均値を求めた。
 (注2) 鳥類は平成25年度に調査地点及び調査対象生物を変更したことから、平成22年度までの結果と平成25年度の結果に継続性がないため、平成25年度の結果を示していない。
 (注3) 平成23年度、平成24年度及び平成26年度から平成29年度は調査を実施していない。

図5-3-2 p,p' -DDDの生物の経年変化(幾何平均値)

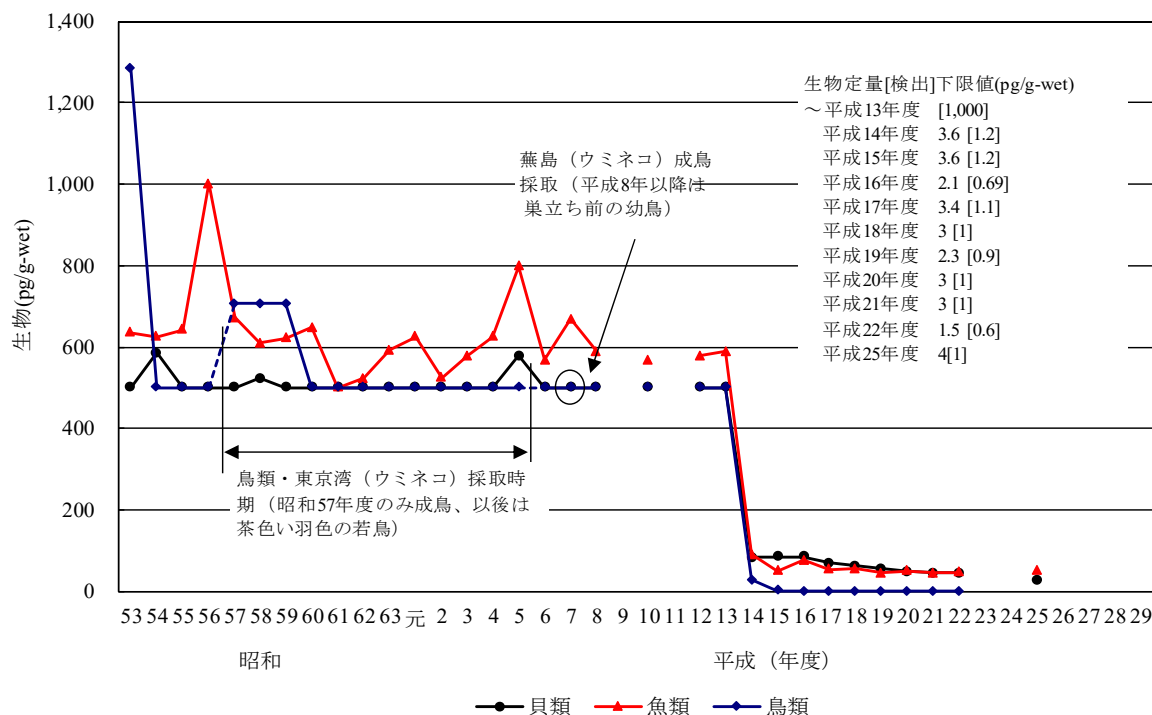
[6-4] *o,p'*-DDT



- (注1) 平成14年度から平成21年度は、各地点における算術平均値を求め、その算術平均値から全地点の幾何平均値を求めた。
- (注2) 鳥類は平成25年度に調査地点及び調査対象生物を変更したことから、平成22年度までの結果と平成25年度の結果に継続性がないため、平成25年度の結果を示していない。
- (注3) 平成23年度、平成24年度及び平成26年度から平成29年度は調査を実施していない。

図 5-4 *o,p'*-DDT の生物の経年変化 (幾何平均値)

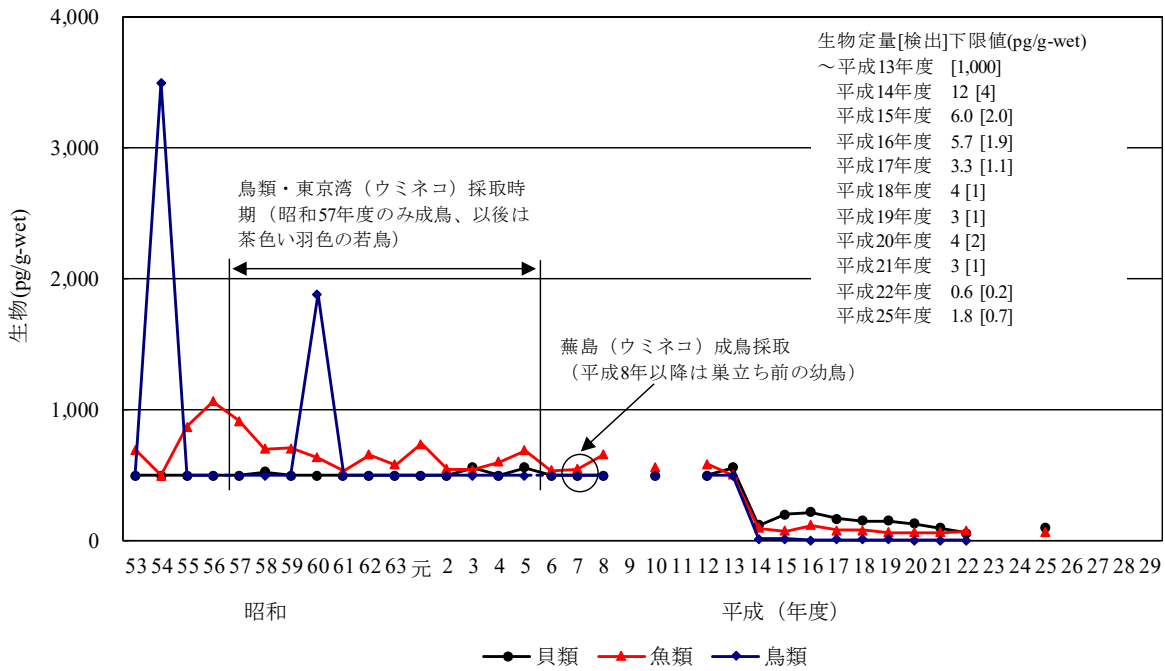
[6-5] *o,p'*-DDE



- (注1) 平成14年度から平成21年度は、各地点における算術平均値を求め、その算術平均値から全地点の幾何平均値を求めた。
- (注2) 鳥類は平成25年度に調査地点及び調査対象生物を変更したことから、平成22年度までの結果と平成25年度の結果に継続性がないため、平成25年度の結果を示していない。
- (注3) 平成23年度、平成24年度及び平成26年度から平成29年度は調査を実施していない。

図 5-5 *o,p'*-DDE の生物の経年変化 (幾何平均値)

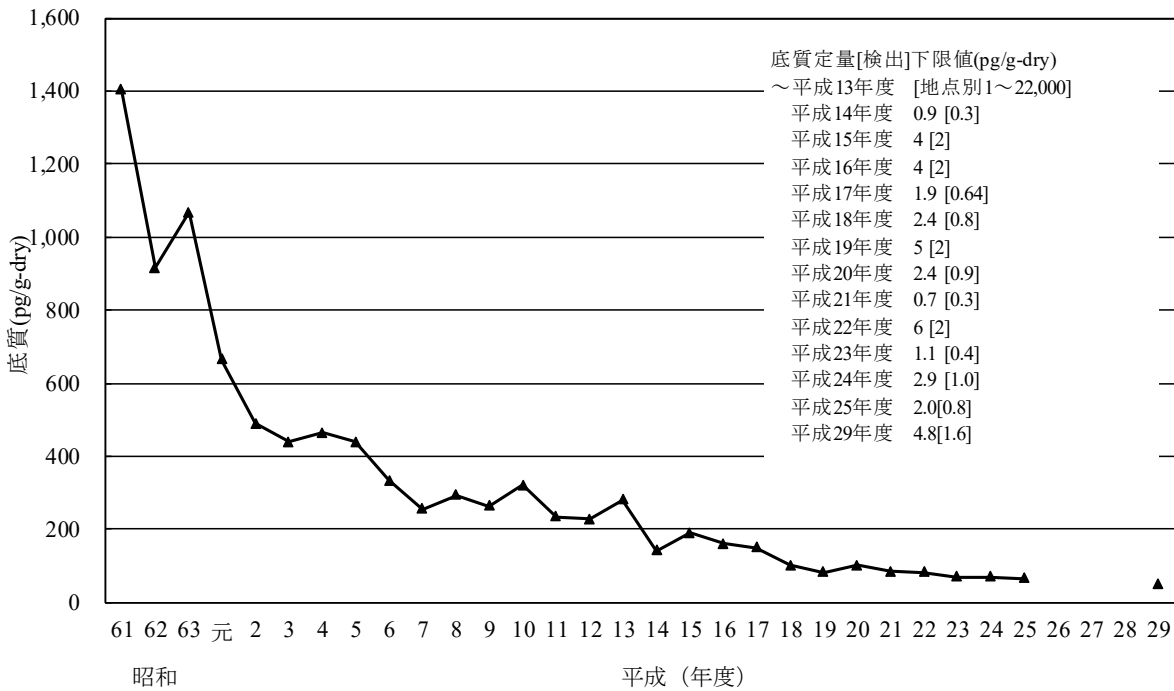
[6-6] *o,p'*-DDD



- (注1) 平成14年度から平成21年度は、各地点における算術平均値を求め、その算術平均値から全地点の幾何平均値を求めた。
- (注2) 鳥類は平成25年度に調査地点及び調査対象生物を変更したことから、平成22年度までの結果と平成25年度の結果に継続性がないため、平成25年度の結果を示していない。
- (注3) 平成23年度、平成24年度及び平成26年度から平成29年度は調査を実施していない。

図 5-6 *o,p'*-DDD の生物の経年変化 (幾何平均値)

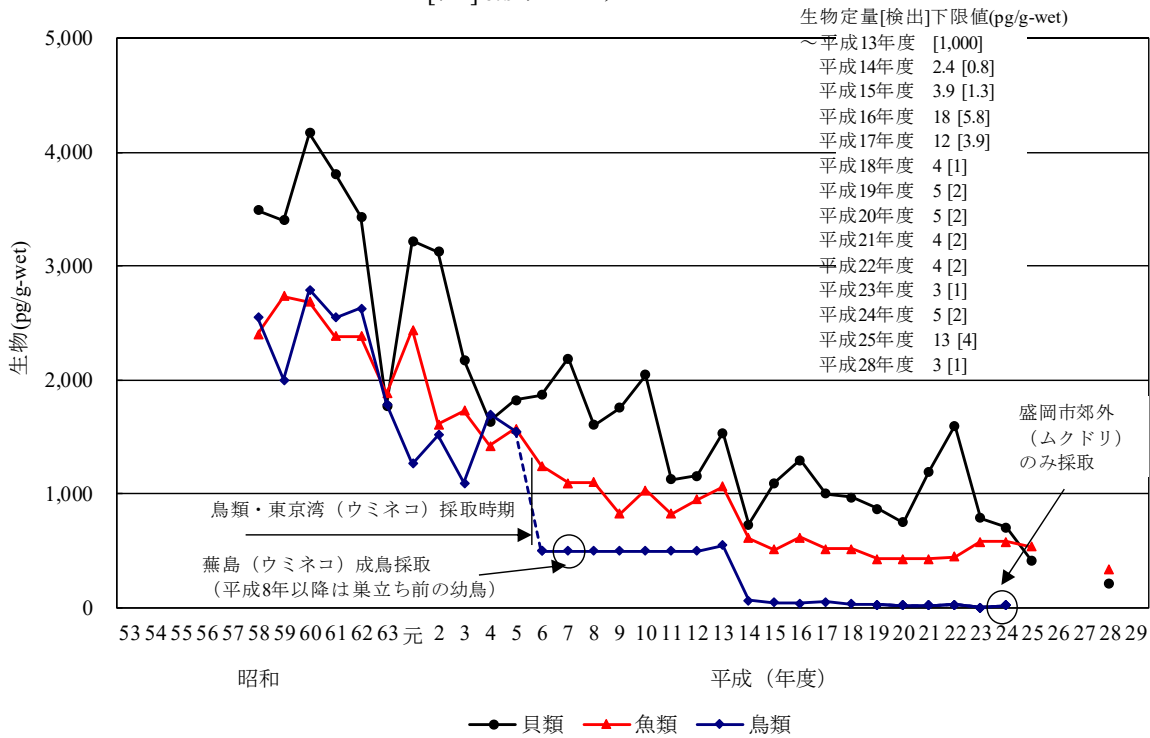
[7-1] *cis*-クロルデン



- (注1) 平成14年度から平成21年度は、各地点における算術平均値を求め、その算術平均値から全地点の幾何平均値を求めた。
- (注2) 平成26年度から平成28年度は調査を実施していない。

図 6-1-1 *cis*-クロルデンの底質の経年変化 (幾何平均値)

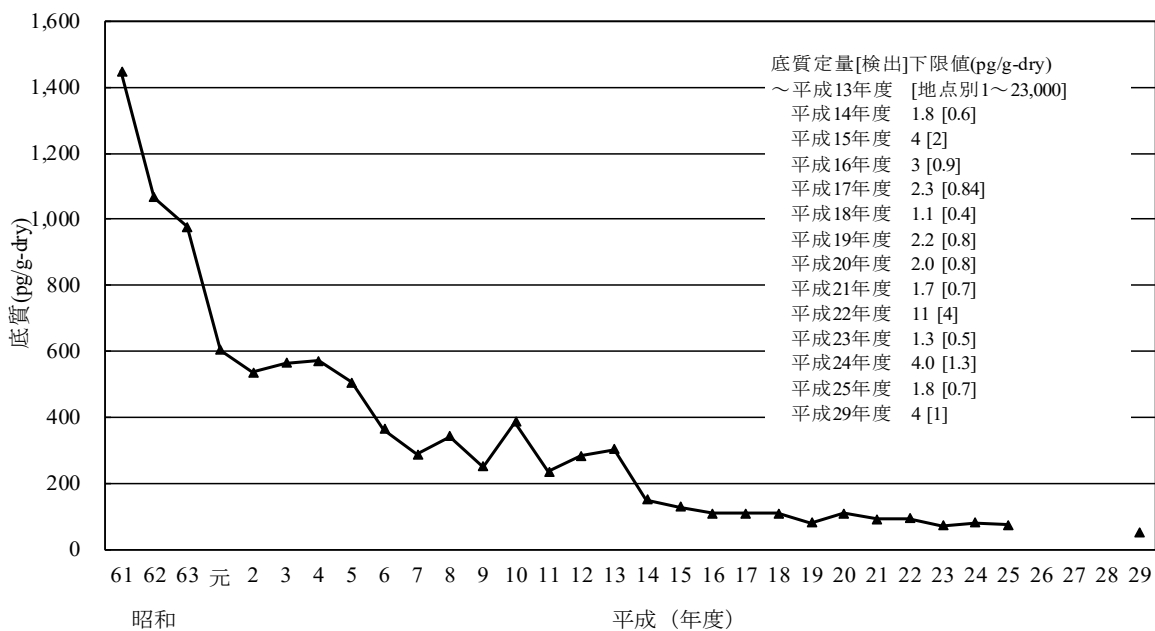
[7-1] cis-クロルデン



- (注1) 平成14年度から平成21年度は、各地点における算術平均値を求め、その算術平均値から全地点の幾何平均値を求めた。
- (注2) 鳥類は平成25年度に調査地点及び調査対象生物を変更したことから、平成24年度までの結果と平成25年度以降の結果に連続性がないため、平成25年度以降の結果を示していない。
- (注3) 平成26年度、平成27年度及び平成29年度は調査を実施していない。

図 6-1-2 cis-クロルデンの生物の経年変化 (幾何平均値)

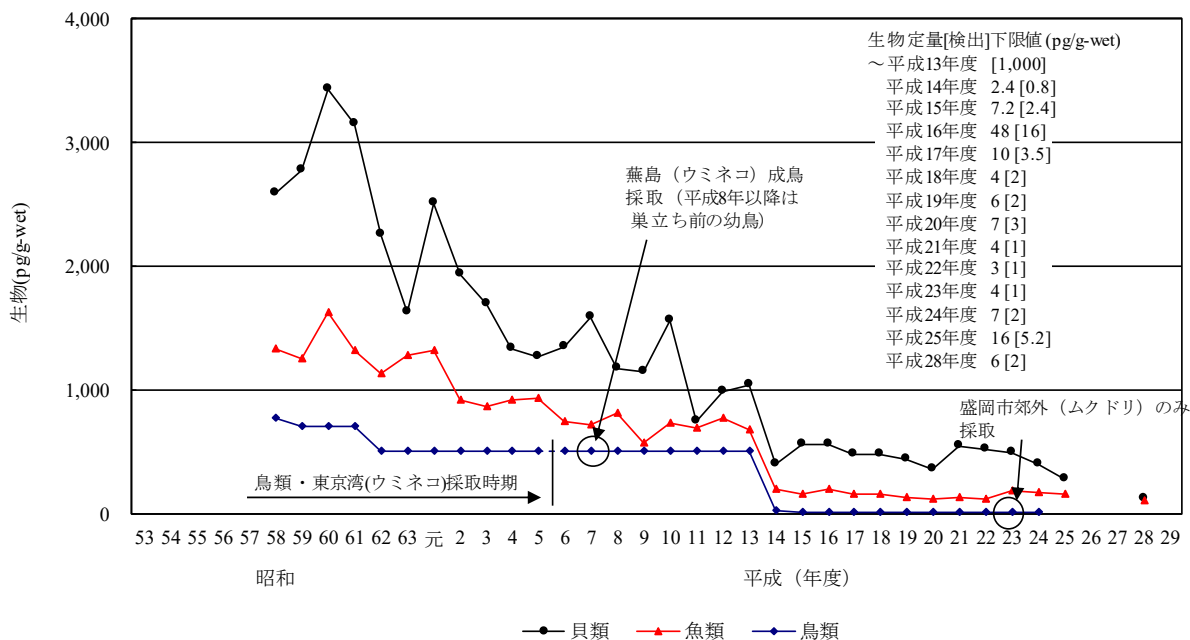
[7-2] trans-クロルデン



- (注1) 平成14年度から平成21年度は、各地点における算術平均値を求め、その算術平均値から全地点の幾何平均値を求めた。
- (注2) 平成26年度から平成28年度は調査を実施していない。

図 6-2-1 trans-クロルデンの底質の経年変化 (幾何平均値)

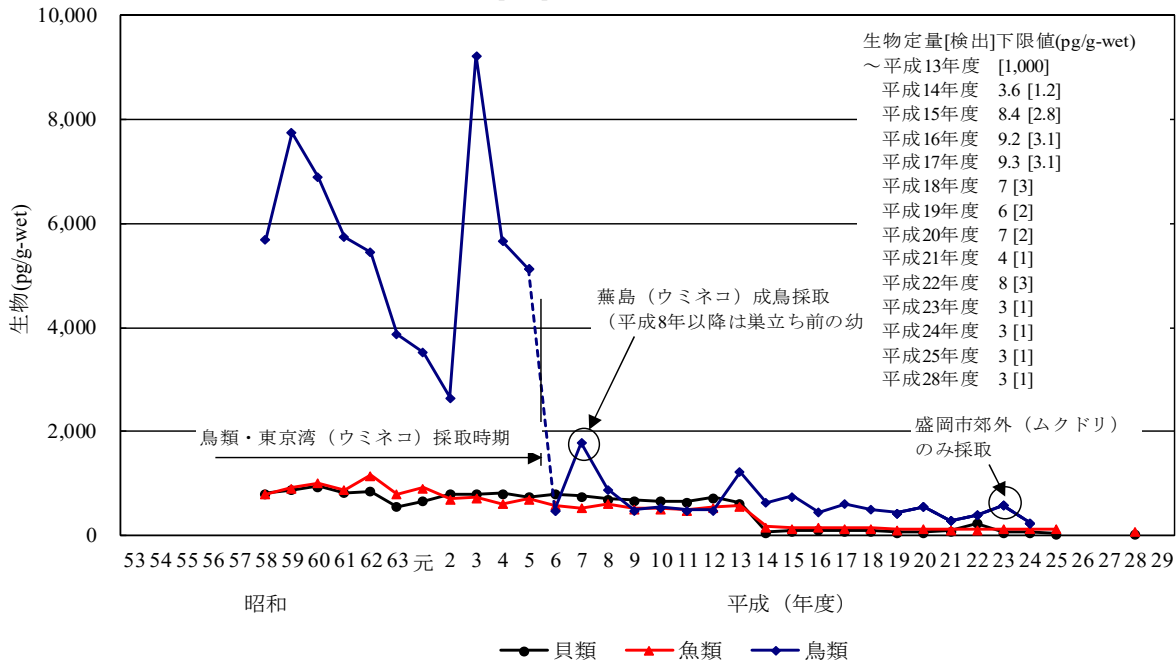
[7-2] *trans*-クロルデン



- (注1) 平成14年度から平成21年度は、各地点における算術平均値を求め、その算術平均値から全地点の幾何平均値を求めた。
- (注2) 鳥類は平成25年度に調査地点及び調査対象生物を変更したことから、平成24年度までの結果と平成25年度以降の結果に連続性がないため、平成25年度以降の結果を示していない。
- (注3) 平成26年度、平成27年度及び平成29年度は調査を実施していない。

図 6-2-2 *trans*-クロルデンの生物の経年変化 (幾何平均値)

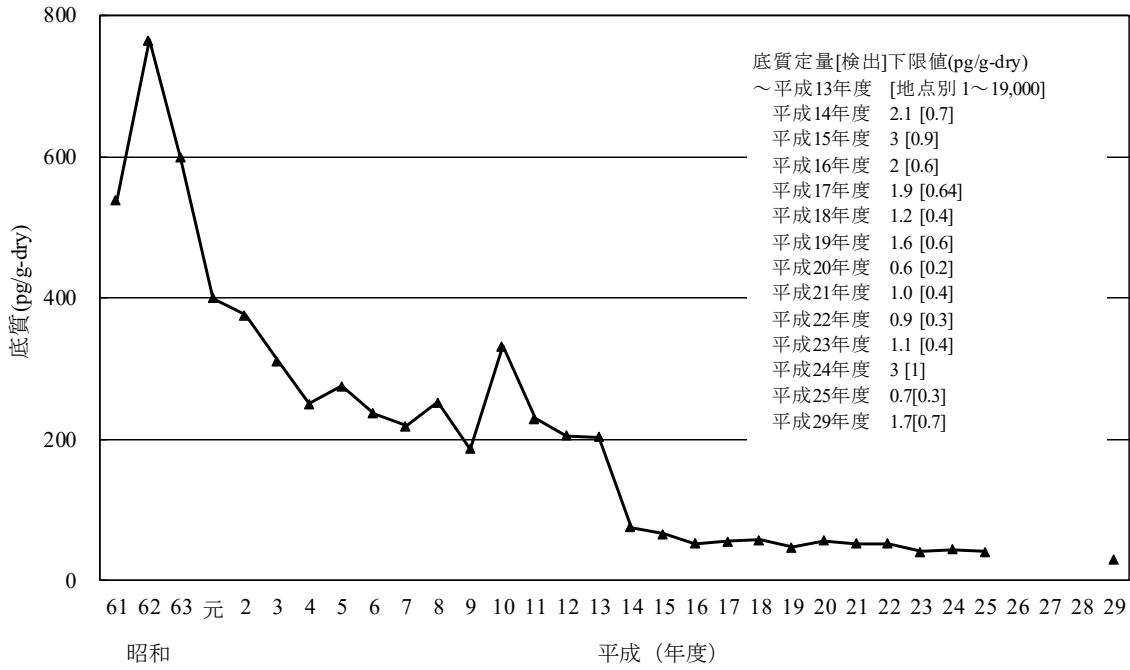
[7-3] オキシクロルデン



- (注1) 平成14年度から平成21年度は、各地点における算術平均値を求め、その算術平均値から全地点の幾何平均値を求めた。
- (注2) 鳥類は平成25年度に調査地点及び調査対象生物を変更したことから、平成24年度までの結果と平成25年度以降の結果に連続性がないため、平成25年度以降の結果を示していない。
- (注3) 平成26年度、平成27年度及び平成29年度は調査を実施していない。

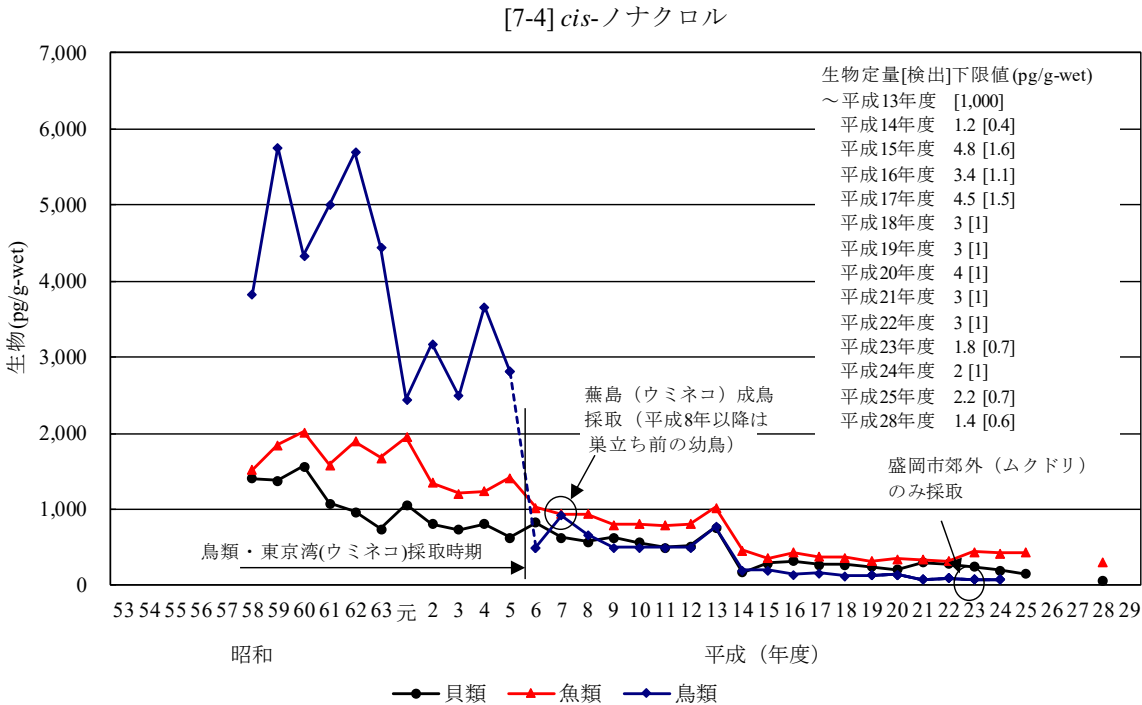
図 6-3 オキシクロルデンの生物の経年変化 (幾何平均値)

[7-4] cis-ノナクロル



(注1) 平成14年度から平成21年度は、各地点における算術平均値を求め、その算術平均値から全地点の幾何平均値を求めた。
 (注2) 平成26年度から平成28年度は調査を実施していない。

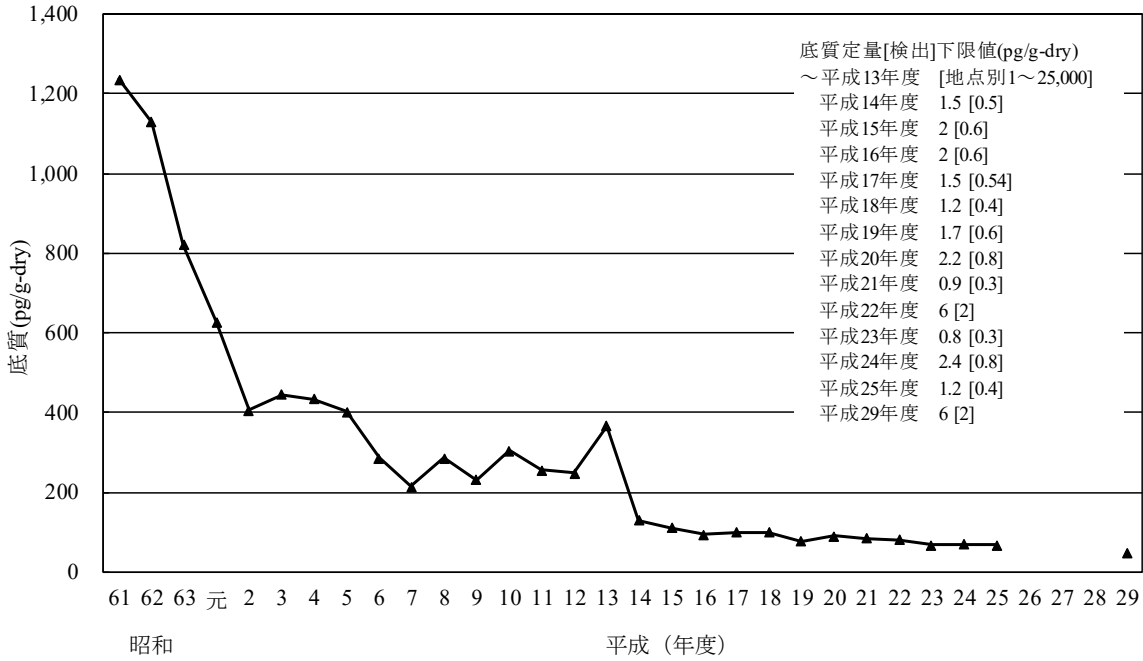
図 6-4-1 cis-ノナクロルの底質の経年変化（幾何平均値）



(注1) 平成14年度から平成21年度は、各地点における算術平均値を求め、その算術平均値から全地点の幾何平均値を求めた。
 (注2) 鳥類は平成25年度に調査地点及び調査対象生物を変更したことから、平成24年度までの結果と平成25年度以降の結果に連続性がないため、平成25年度以降の結果を示していない。
 (注3) 平成26年度、平成27年度及び平成29年度は調査を実施していない。

図 6-4-2 cis-ノナクロルの生物の経年変化（幾何平均値）

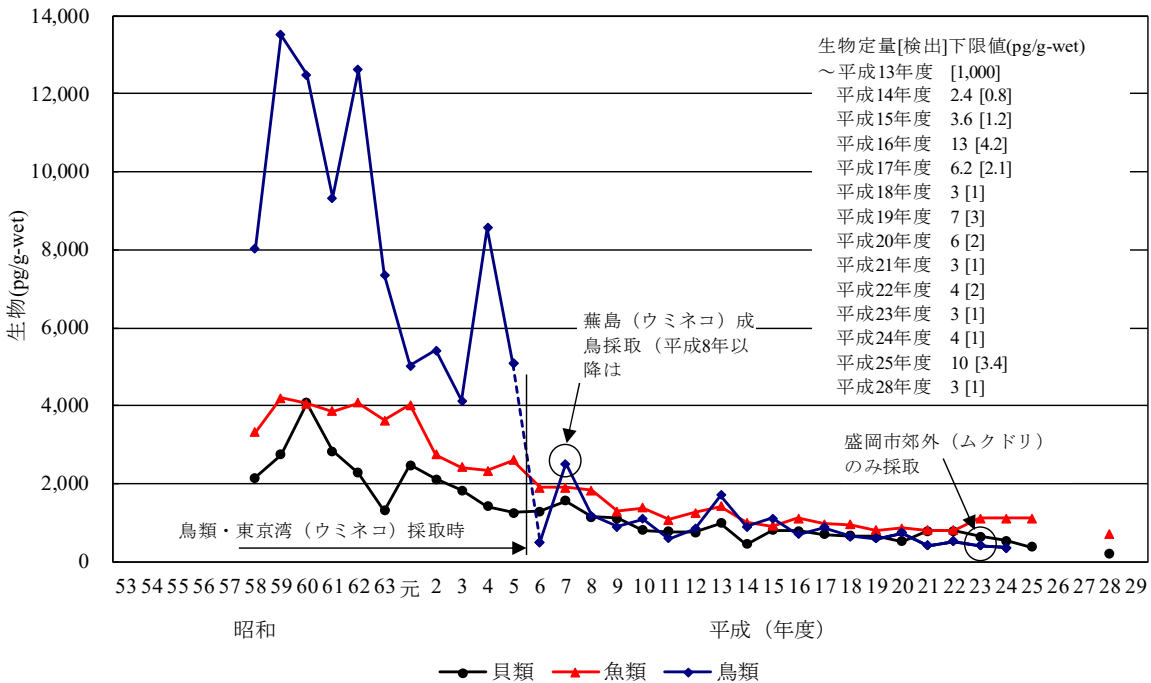
[7-5] *trans*-ノナクロル



(注1) 平成14年度から平成21年度は、各地点における算術平均値を求め、その算術平均値から全地点の幾何平均値を求めた。
 (注2) 平成26年度から平成28年度は調査を実施していない。

図 6-5-1 *trans*-ノナクロルの底質の経年変化（幾何平均値）

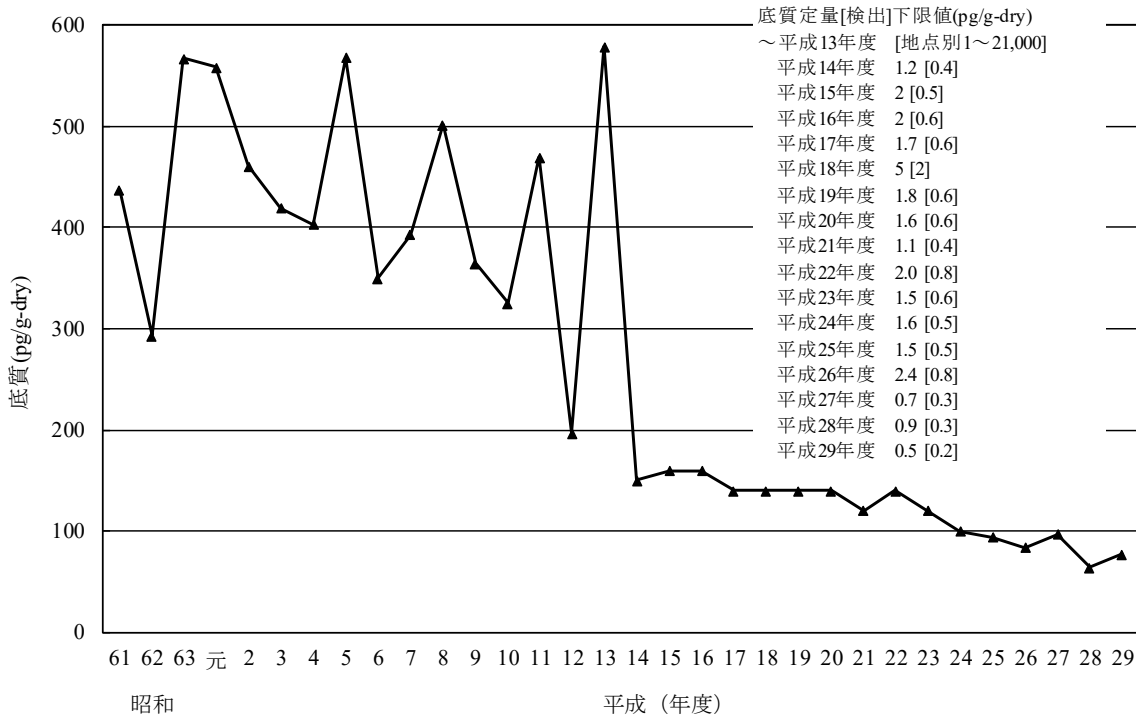
[7-5] *trans*-ノナクロル



(注1) 平成14年度から平成21年度は、各地点における算術平均値を求め、その算術平均値から全地点の幾何平均値を求めた。
 (注2) 鳥類は平成25年度に調査地点及び調査対象生物を変更したことから、平成24年度までの結果と平成25年度以降の結果に連続性がないため、平成25年度以降の結果を示していない。
 (注3) 平成26年度、平成27年度及び平成29年度は調査を実施していない。

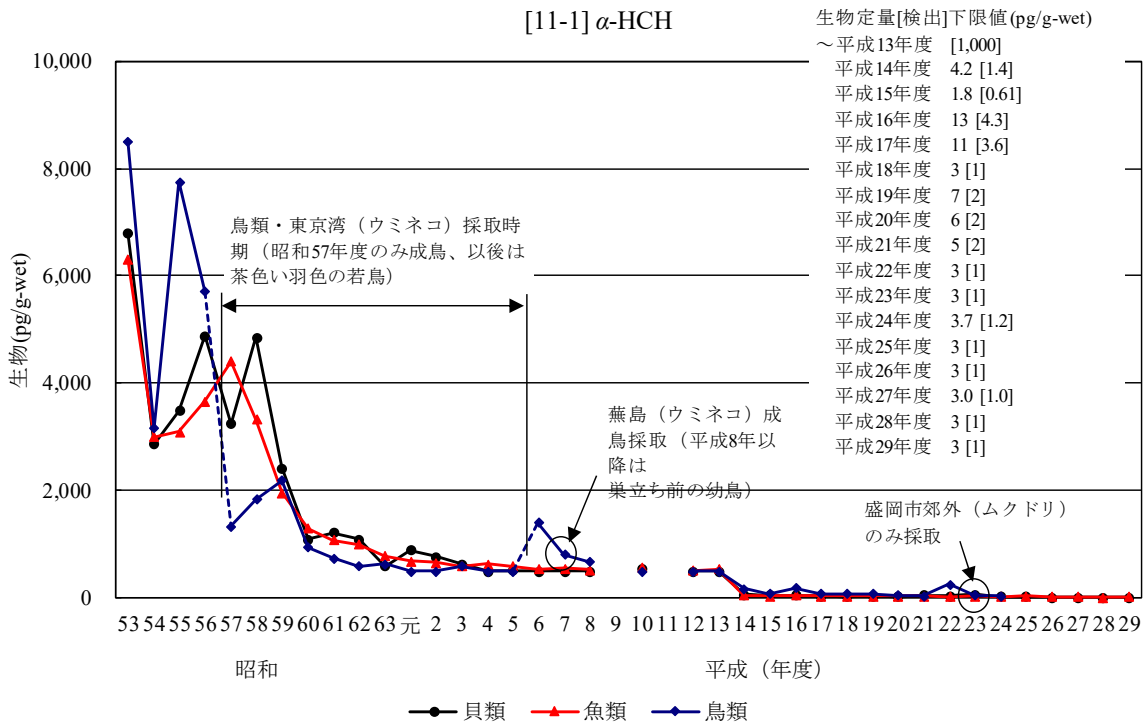
図 6-5-2 *trans*-ノナクロルの生物の経年変化（幾何平均値）

[11-1] α -HCH



(注) 平成14年度から平成21年度は、各地点における算術平均値を求め、その算術平均値から全地点の幾何平均値を求めた。

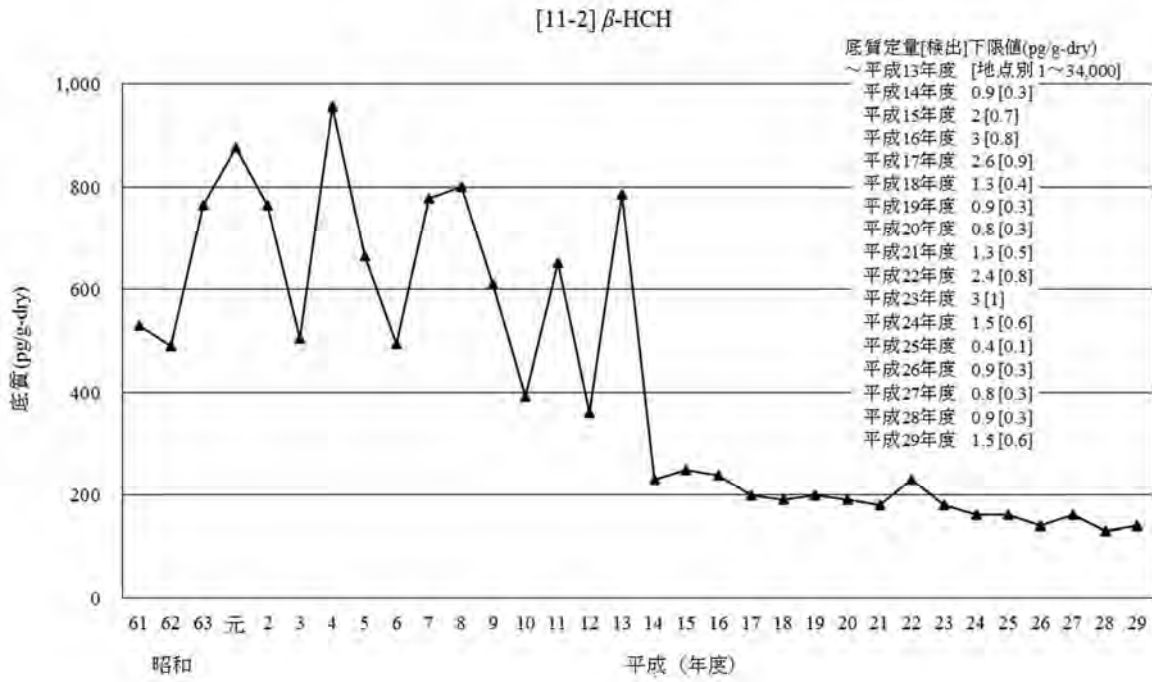
図 7-1-1 α -HCH の底質の経年変化 (幾何平均値)



(注1) 平成14年度から平成21年度は、各地点における算術平均値を求め、その算術平均値から全地点の幾何平均値を求めた。

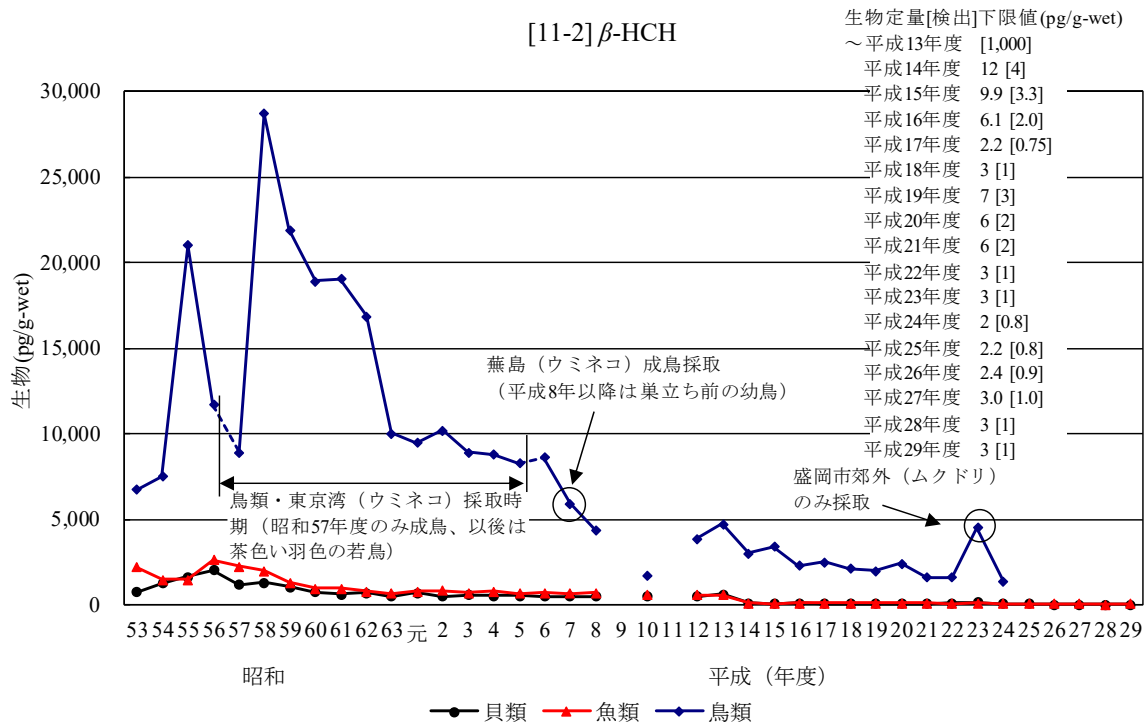
(注2) 鳥類は平成25年度に調査地点及び調査対象生物を変更したことから、平成24年度までの結果と平成25年度以降の結果に継続性がないため、平成25年度以降の結果を示していない。

図 7-1-2 α -HCH の生物の経年変化 (幾何平均値)



(注) 平成14年度から平成21年度は、各地点における算術平均値を求め、その算術平均値から全地点の幾何平均値を求めた。

図 7-2-1 β -HCH の底質の経年変化 (幾何平均値)

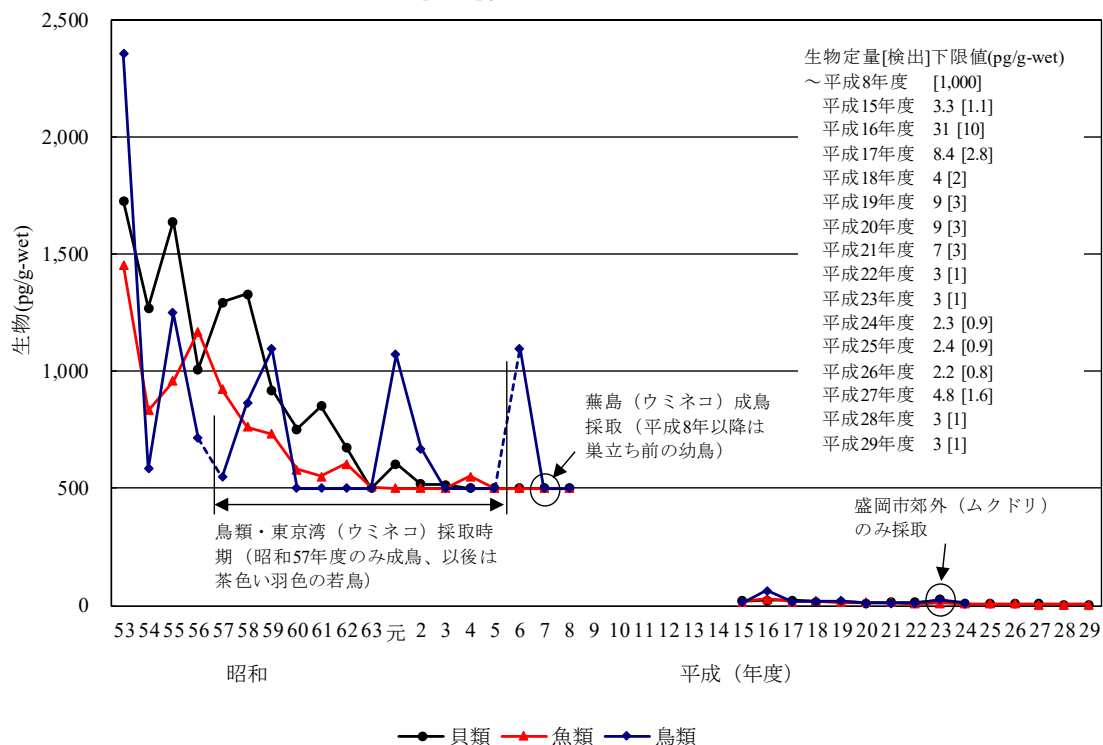


(注1) 平成14年度から平成21年度は、各地点における算術平均値を求め、その算術平均値から全地点の幾何平均値を求めた。

(注2) 鳥類は平成25年度に調査地点及び調査対象生物を変更したことから、平成24年度までの結果と平成25年度以降の結果に連続性がないため、平成25年度以降の結果を示していない。

図 7-2-2 β -HCH の生物の経年変化 (幾何平均値)

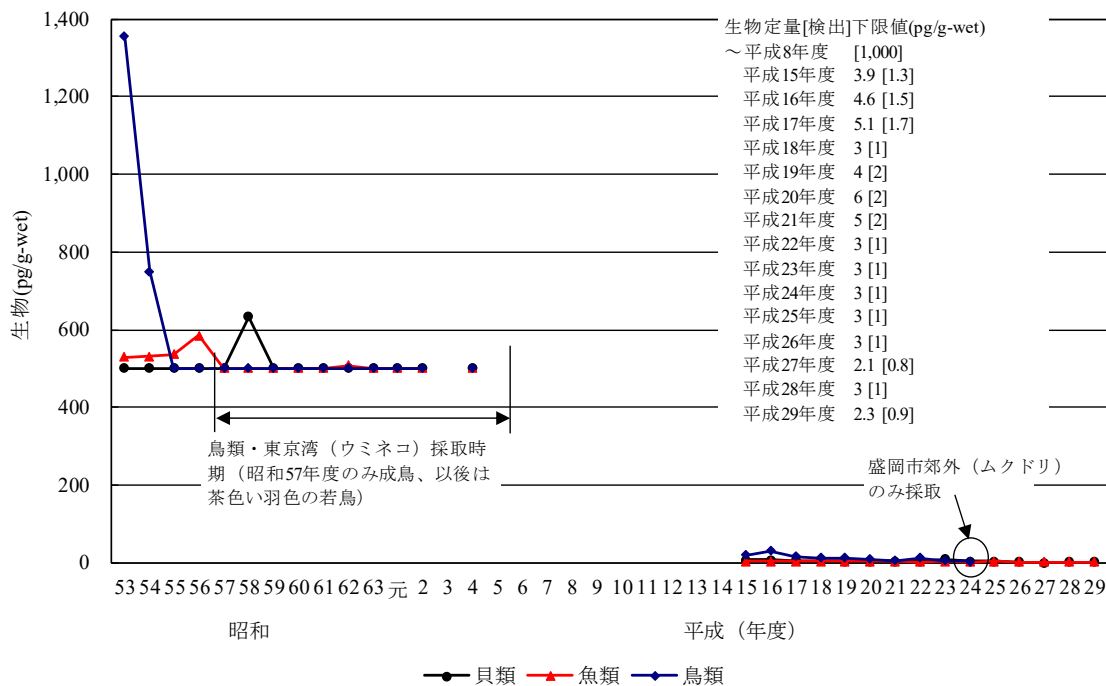
[11-3] γ -HCH (別名：リンデン)



- (注1) 平成14年度から平成21年度は、各地点における算術平均値を求め、その算術平均値から全地点の幾何平均値を求めた。
- (注2) 鳥類は平成25年度に調査地点及び調査対象生物を変更したことから、平成24年度までの結果と平成25年度以降の結果に継続性がないため、平成25年度以降の結果を示していない。

図7-3 γ -HCH (別名：リンデン) の生物の経年変化 (幾何平均値)

[11-4] δ -HCH



- (注1) 平成14年度から平成21年度は、各地点における算術平均値を求め、その算術平均値から全地点の幾何平均値を求めた。
- (注2) 鳥類は平成25年度に調査地点及び調査対象生物を変更したことから、平成24年度までの結果と平成25年度以降の結果に継続性がないため、平成25年度以降の結果を示していない。

図7-4 δ -HCH の生物の経年変化 (幾何平均値)

●参考資料2 経年分析の方法等に関する補足説明

・対数線形回帰モデル

環境中に残留している化学物質の濃度減少は、1次反応（図1（左）：濃度の高低によらず、ある一定の期間において一定の割合で減少する反応）を仮定するとき、図1（右）に示すように濃度の対数と時間との関係は線形で回帰できるため、対数線形回帰モデルを利用することとした。

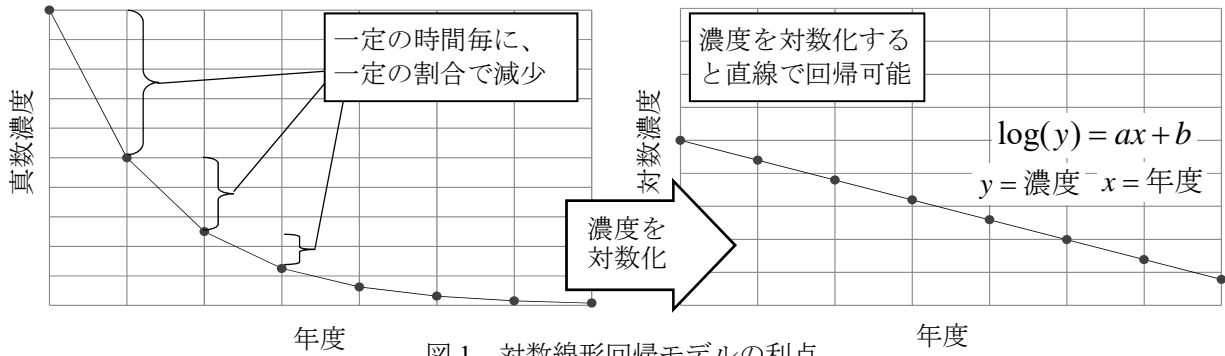


図1 対数線形回帰モデルの利点

環境中に残留している化学物質の濃度分布が、図2（左）に示すような傾向であるとき、図2（右）のように対数正規分布で近似することが出来る。

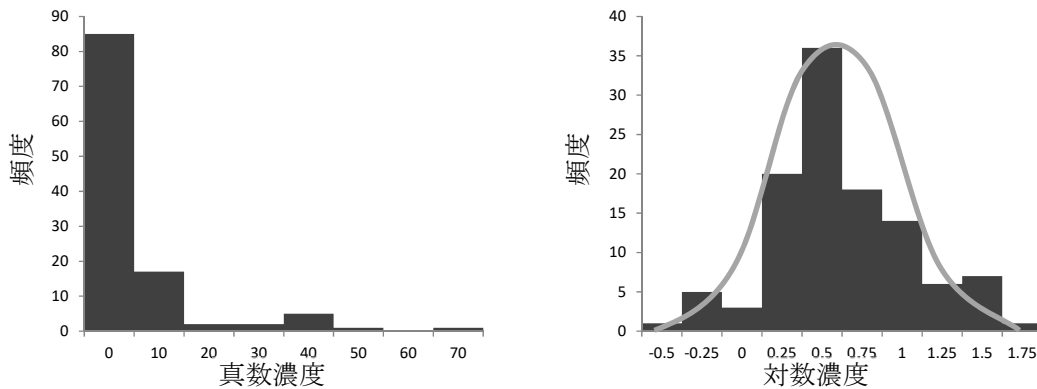


図2 真数及び対数による濃度分布

更に、図3に示すとおり、真数において作成する線形回帰の傾きは時間に対して一定の割合で濃度が減少する場合、低濃度に比べ、より高濃度のデータ変動の影響を受けやすい。しかし、対数濃度では高濃度と低濃度でデータの変動の影響は等価となるため、全体の傾向を一つの傾きで評価できる。

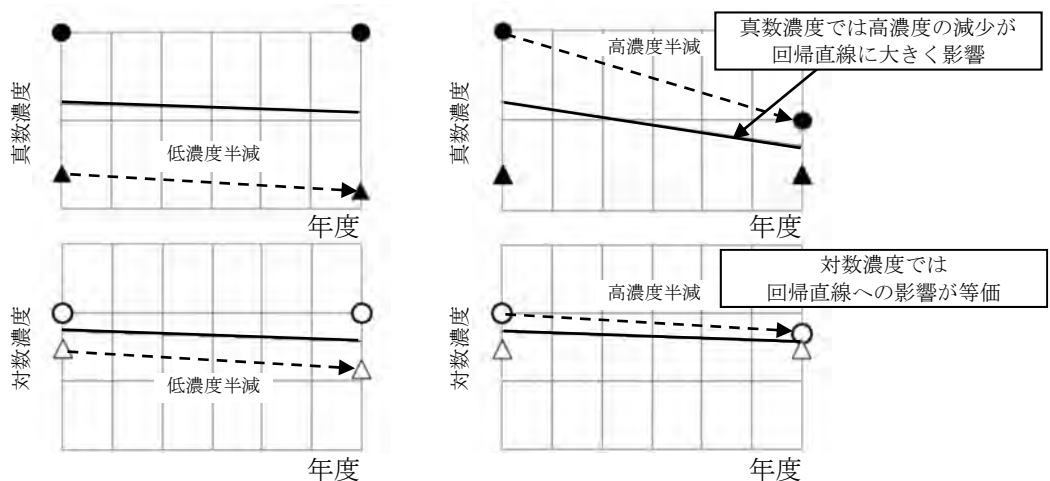


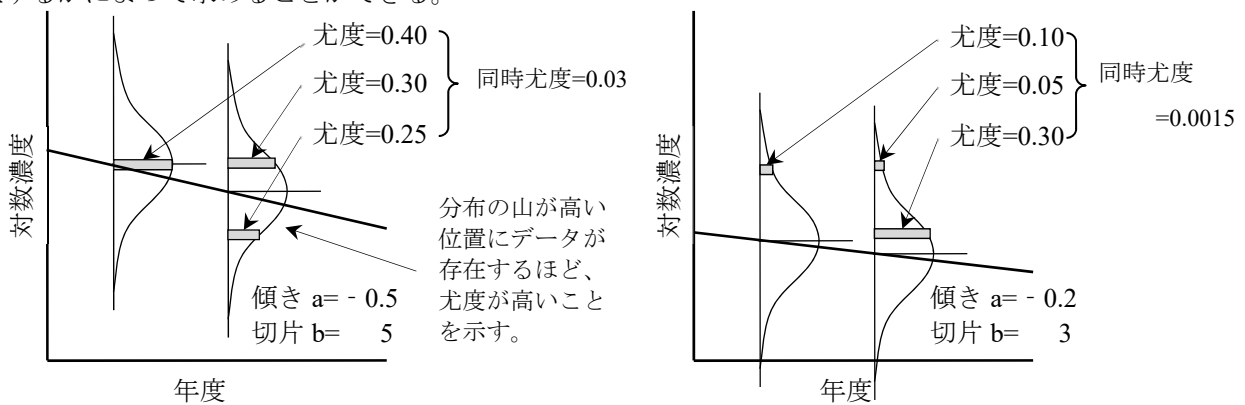
図3 対数線形回帰モデルにおける濃度変動の影響

・パラメトリックな残差分布を仮定しない^{さいゆうすいていほう}最尤推定法

経年変化解析を行うために直線回帰を行う場合には、最小二乗法による回帰直線がよく利用される手法であるが、前提条件として残差分布が正規分布である必要がある。しかし、本手法では、回帰直線を算出する際にパラメトリックな残差分布を仮定せず、正規分布以外のデータについても直線回帰を行うことができる。

最尤推定法とは「最も尤^{もつと}もらしい」パラメータを探索する方法である。回帰直線を算出する場合には傾き a 及び切片 b の2つのパラメータに対して様々な値を代入し、その結果として算出された回帰直線が「最も尤^{もつと}もらしいとき」のパラメータを最も適した回帰直線とすることとした。

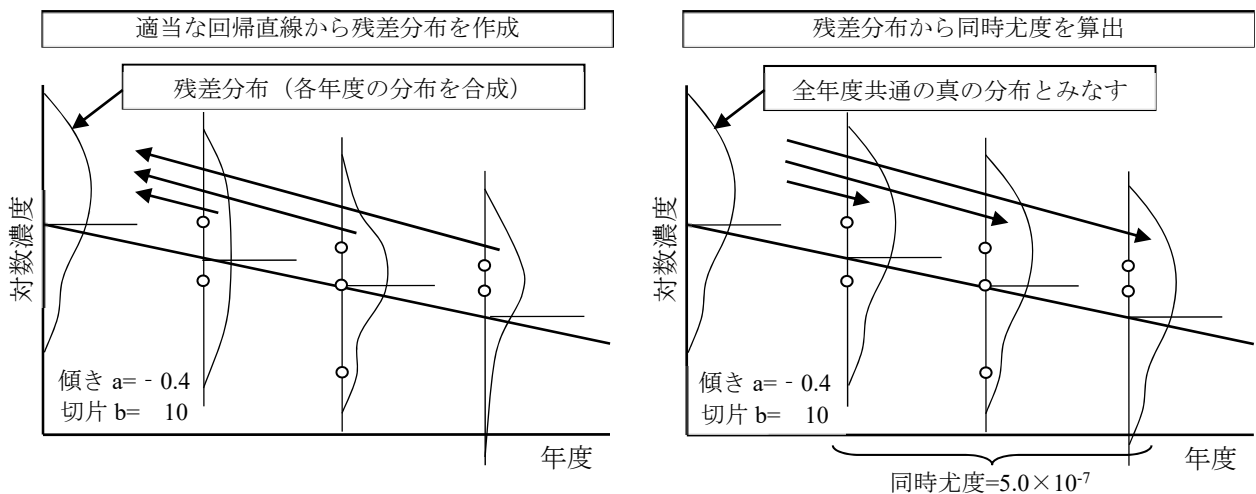
この「最も尤^{もつと}もらしいとき」とは、図4に示すように、回帰直線を算出した際に各データの尤度が最も高くなる事とし、データが複数ある場合には各データの尤度を全て掛け算した値（同時尤度）が最も高くなることとした。また、各データの尤度は、母集団の確率密度分布において、その分布のどの位置にデータが存在するかによって求めることができる。



より同時尤度が高い左図の回帰直線がより適しており、最も尤^{もつと}もらしい回帰直線は、 $a = -0.5, b = 5$ であると判断する。

図4 最尤法による最適な回帰直線の決定方法

各解析データはそれぞれで特徴的な分布を持っている場合が多いため、経年変化解析には図5に示すように、回帰直線からの残差で表した各年度の残差分布を作成し、その後足し合わせた各年度共通の残差分布を用いて解析することとした。



例において、適当な回帰直線 $a = -0.4, b = 10$ による同時尤度は 5.0×10^{-7} である。同様に様々な回帰直線で同時尤度を算出し、最も平均尤度の大きい回帰直線を最適な回帰直線とした。

図5 最尤法に用いる残差分布の算出と最適な回帰直線の決定方法

・ AIC (赤池情報量規準)

AIC (赤池情報量規準) とは、有効なモデルの選択基準の代表的な指標である。

回帰モデルではパラメータを増やすほどデータに対する誤差は小さくなる傾向にあるが、モデルが複雑となるため、必ずしも良いモデルになるとは限らない。AICは、パラメータ数が増えることを不適として評価を修正する性質を持つことから、パラメータ数を考慮してより良いモデルを把握するための指標となる。また、モデルの母集団の分布に制限もない。これらの理由からAICを用いて最適なパラメータ数のモデルを選択することとした。以下にAICの算出式を示す。

$$AIC = -2 \times \text{最大対数尤度} + 2 \times \text{モデルのパラメータ数}$$

最尤法を用いて求めた回帰直線は、図6に示すように年度をパラメータとする1次式である。この対数線形回帰モデルから計算される AIC_1 と、回帰直線の傾きが偶然の変動によるもので全体を代表する一定値から変動しないと考える0次式 (傾き0における対数線形回帰直線モデル) から計算される AIC_0 を比較し、どちらがより適切なモデルであるかを判断した。通常、AICの値の小さいモデルが適切と判断する。更に、AICの差が少ない場合にも安全性を見込んで適切に判断できるよう、ベイズの定理を利用して事後確率の考え方を導入した。

$$p_1 = \exp \{-0.5 AIC_1\} / (\exp \{-0.5 AIC_0\} + \exp \{-0.5 AIC_1\})$$

(p_1 : 1次のモデルの事後確率、 AIC_1 : 1次式におけるAIC、 AIC_0 : 0次式におけるAIC)

1次モデルのAIC事後確率 p_1 は0から1の値をとり、1に近い値ほど1次式に近い事を示す。1次式のAIC事後確率 p_1 が0.950以上の場合には安全性を見込んだ上で、経年変化において傾きを持つことが適切と判断した。また、0.950のしきい値は危険率5%の考え方を参考に設定することとした。

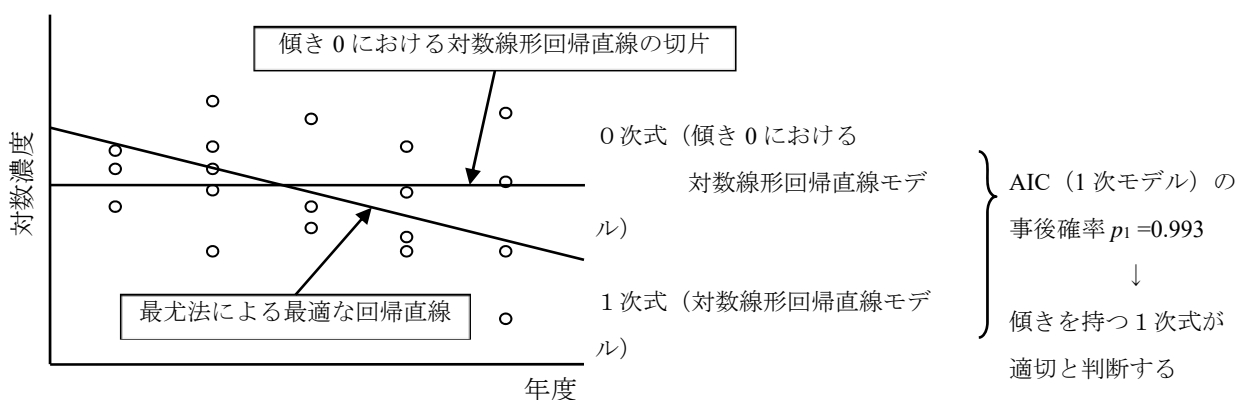


図 6 AIC を利用した傾きの有無の判断方法

・ブートストラップ法による平均値の差の検定

一般的に用いられる t 検定による平均値の差の検定は、前提として正規性が得られている 2 つのデータ群間を比較する場合に用いる手法である。しかし、ブートストラップ法による平均値の差の検定では、ランダムサンプリングによる繰り返し抽出によって正規性のない母集団に漸近正規性を持たせることが可能なため、平均値を比較する 2 群の各データがどのような分布であっても平均値の差の検定を行うことが可能となる。

具体的には図7に示すように、前期5か年 (A群) と後期5か年 (B群) において有意に濃度差があるか確認するために、平均値の差の検定を実施した。2つの標本に対し、それぞれ無作為に抽出した際の平均値を求め、それを繰り返すことにより得られる平均値の分布は t 分布であるが、自由度が極めて大きいことからそれぞれ正規分布とみなすことが出来ることを利用し、標本間で差があるか検定する方法である。

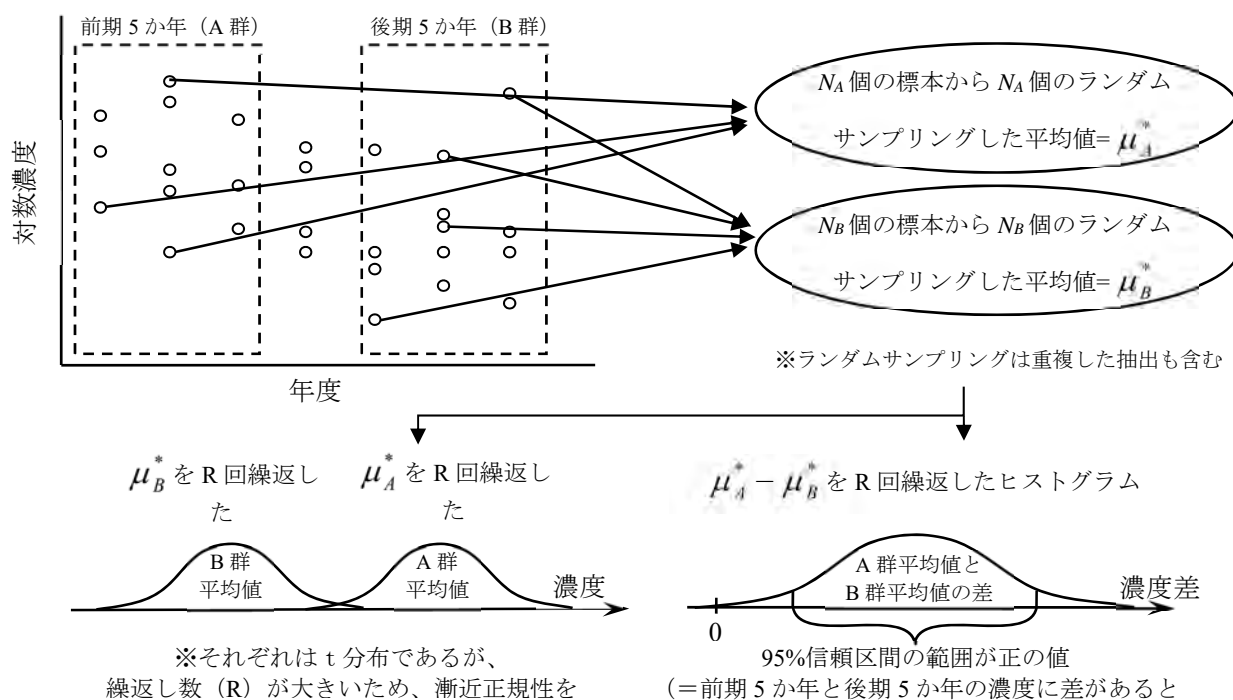


図7 ブートストラップ法による平均値の差の検定手法

繰り返し抽出して算出した平均値の差の分布において、95%信頼区間が正 (負) の範囲にある場合、前期5か年と比較して後期5か年は有意に低 (高) 値であると判断した。

・検出した検体数の割合による経年変化傾向の解析

解析の対象とした期間における最も高い検出下限値に検出した検体数の割合に着目し、その検出下限値を下回る地点を「低濃度地点」と定義し、その低濃度地点数の増加 (または減少) 傾向を確認することとした。各物質の調査結果は、検出・不検出のデータとして考え、二項分布を想定した最尤法による回帰直線を算出することとし、同時尤度の値が最も高い際のパラメータ a, b を尤もらしい回帰直線とした。なお、安全を見込んだ上で事後確率の考え方を利用し、1 次式の AIC 事後確率 P_1 が 0.950 以上の場合に傾きを持つと判断した。

また、各年度で検出下限値が異なることによる影響を除外するため、調査年度で最も高い検出下限値を統一検出下限値とし、統一した検出下限値における各調査年度の低濃度地点数の割合を算出して解析した。

●参考資料3 カワウの卵の測定結果

平成29年度のモニタリング調査において総PCB、HCB、HCH類、ポリブロモジフェニルエーテル類、ペルフルオロオクタンスルホン酸 (PFOS)、ペルフルオロオクタン酸 (PFOA)、ペンタクロロベンゼン、1,2,5,6,9,10-ヘキサブロモシクロドデカン (HBCD)、総ポリ塩化ナフタレン、ペンタクロロフェノール並びにその塩及びエステル類及び炭素塩素化パラフィンの11物質 (群) について、カワウの卵を対象に調査を実施した。山梨県水産技術センターにより笛吹川下曾根橋 (甲府市)、兵庫県農政環境部環境管理局水大気課及び伊丹市市民自治部環境政策室みどり自然課により昆陽池においてカワウの卵を採取し、卵黄と卵白をそれぞれ検体として対象物質濃度の測定を行った。試料採取地点については図1に、検体の概要については表1に、測定結果については表2に示すとおりである。

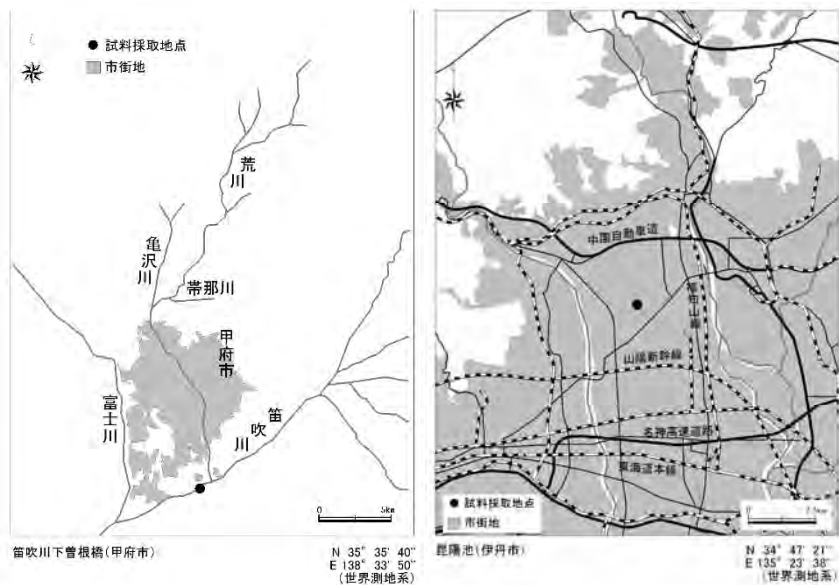


図1 カワウの卵採取地点

表1 平成29年度モニタリング調査 (生物 カワウの卵) 検体の概要

調査地点	検体番号	採取年月	個体数	卵高 (cm) × 卵径 (cm) () 内は算術平均値 () 内は算術平均値	重量 (g)		
					() 内は算術平均値 [] 内は殻なしの重量	() 内は算術平均値 [] 内は殻なしの重量	() 内は算術平均値 [] 内は殻なしの重量
笛吹川下曾根橋 (甲府市)	1	平成28年4月6日	11	5.44×3.44 ~ 6.20×3.91 (5.82×3.73)	34.1 [29.1]	~ 44.8 [38.9]	(41.2 [35.4])
	2	平成28年4月19日	10	5.70×3.65 ~ 6.75×3.98 (6.16×3.82)	45.5 [39.1]	~ 47.9 [41.0]	(46.7 [40.2])
	3	平成28年4月26日	10	5.94×3.87 ~ 6.51×4.08 (6.27×3.98)	48.1 [41.7]	~ 53.7 [45.9]	(51.2 [44.1])
昆陽池 (伊丹市)	1	平成29年5月15日	7	5.00×3.21 ~ 6.18×4.00 (5.59×3.72)	27.3	~ 50.6	(41)

表2 カワウの卵の測定結果

単位：pg/g-wet

物質調査番号	調査対象物質	定量[検出]下限値	カワウの卵				(再掲) カワウの亜成鳥/幼鳥※※	
			笛吹川下曽根橋 (甲府市)		昆陽池 (伊丹市)		琵琶湖北湖 (竹生島 沖)	天神川 (倉吉市)
			卵白	卵黄	卵白	卵黄		
[1]	総 PCB	※68 [※23]	4,800	2,500,000	37,000	14,800,000	380,000	4,000
[2]	HCB	3.9[1.3]	93	35,000	63	24,000	4,900	230
[11]	HCH 類							
	[11-1] α-HCH	3[1]	5	270	7	560	930	7
	[11-2] β-HCH	3[1]	220	8,200	510	17,000	3,500	300
	[11-3] γ-HCH (別名：リンデン)	3[1]	6	510	tr(1)	140	20	tr(1)
	[11-4] δ-HCH	2.3[0.9]	nd	12	tr(1.7)	30	tr(1.0)	nd
[14]	ポリプロモジフェニルエーテル類							
	[14-1] テトラプロモジフェニルエーテル類	16 [6]	160	27,000	32	7,000	660	26
	[14-2] ペンタプロモジフェニルエーテル類	12 [5]	36	20,000	12	5,700	500	12
	[14-3] ヘキサプロモジフェニルエーテル類	17 [7]	34	25,000	tr(11)	10,000	1,000	51
	[14-4] ヘプタプロモジフェニルエーテル類	22 [8]	nd	12,000	nd	8,100	440	tr(18)
	[14-5] オクタプロモジフェニルエーテル類	20 [8]	nd	11,000	nd	12,000	720	25
	[14-6] ノナプロモジフェニルエーテル類	50 [20]	nd	450	nd	160	nd	nd
[14-7] デカプロモジフェニルエーテル	210[80]	nd	680	nd	260	nd	nd	
[15]	ペルフルオロオクタンスルホン酸 (PFOS)	12 [4]	270	53,000	300	21,000	32,000	3,000
[16]	ペルフルオロオクタンスルホン酸 (PFOA)	12 [4]	tr(4)	540	24	1,100	680	85
[17]	ペンタクロロベンゼン	4 [1]	15	5,600	12	3,900	470	35
[19]	1,2,5,6,9,10-ヘキサプロモシクロドデカン類							
	[19-1] α-1,2,5,6,9,10-ヘキサプロモシクロドデカン	24 [9]	390	47,000	170	26,000	2,200	50
	[19-2] β-1,2,5,6,9,10-ヘキサプロモシクロドデカン	23 [9]	nd	nd	nd	nd	nd	nd
	[19-3] γ-1,2,5,6,9,10-ヘキサプロモシクロドデカン	24 [9]	nd	410	nd	79	tr(18)	nd
[20]	総ポリ塩化ナフタレン	※33 [※12]	nd	9,200	nd	7,300	460	tr(18)
[22]	ペンタクロロフェノール並びにその塩及びエステル類							
	[22-1] ペンタクロロフェノール	36 [12]	tr(13)	750	tr(19)	140	300	11,000
	[22-2] ペンタクロロアニソール	4 [1]	tr(2)	570	tr(1)	220	11	47
[23]	短鎖塩素化パラフィン類							
	[23-1] 塩素化デカン類	500 [200]	nd	33,000	tr(400)	34,000	1,600	nd
	[23-2] 塩素化ウンデカン類	800 [300]	tr(600)	200,000	5,300	320,000	31,000	800
	[23-3] 塩素化ドデカン類	900 [300]	tr(700)	170,000	2,700	480,000	25,000	1,200
	[23-4] 塩素化トリデカン類	500 [200]	nd	120,000	nd	100,000	8,100	nd

(注1) ※は同族体ごとの定量[検出]下限値の合計値とした。

(注2) ※※は本編において既出であるが、カワウの卵からの成長段階の参考として再掲載した。琵琶湖北湖 (竹生島沖) のカワウは亜成鳥、天神川 (倉吉市) のカワウは幼鳥である。