

イ 水質調査

水質調査結果を表 8に示した。採水時の水温は10.4～12.6℃であった。

ノニルフェノールの測定値は、1.7～2.1 μg/L (平均 1.9 μg/L)、4-t-オクチルフェノールの測定値は、0.09～0.14 μg/L (平均 0.12 μg/L)、ビスフェノール A の測定値は、0.22～0.29 μg/L (平均 0.26 μg/L)、エストロンの測定値は、3.5～4.3 ng/L (平均 3.9 ng/L)、17β-エストラジオールの測定値は、0.2～0.3 ng/L (平均 0.2 ng/L)、17α-エストラジオールの測定値は、0.9～1.1 ng/L (平均 1.0 ng/L)、エストリオールの測定値は、8～30 ng/L (平均 15 ng/L)であった。エチニルエストラジオールの測定値は、検出限界値 ND=0.1 ng/L 未満であった。なお、平均値の算出に当たっては、測定結果が ND であった場合、濃度を ND 値の 1/2 と仮定し、計算した。

今回の測定結果の平均値と平成 12 年度環境実態調査水質調査結果を比較すると、ノニルフェノール、4-t-オクチルフェノール及びビスフェノール A の平均値は平成 12 年度調査結果を上回り、17β-エストラジオール及び 17α-エストラジオールの平均値は平成 12 年度調査結果を下回っていた。

酵母 two-hybrid 法による女性ホルモン様活性測定結果を表 7に示した。弱い女性ホルモン様活性が認められ、17β-エストラジオール換算平均値は 1～2.7 ng/L であった。各画分における活性はいずれも検出限界値 ND=1 ng/L 未満であった。

表 7 印旛放水路におけるコイの検査結果

検査項目						組織学的検査					血液学的検査			化学的検査		
No.	性別	捕獲日	全長	標準 体長	体重	生殖腺重量			生殖腺 指数	解剖所見	病理所見	ビテロジェニン	テストステロン	17- -エストラジオール	ノニルフェノール	粗脂肪
						右	左	合計								
			cm	cm	g	g			%			μg/mL	pg/mL	pg/mL	μg/kg	g/100g
1		2002/2/26	63.0	50	3,539	61.8	228.8	290.6	8.2	異常なし	異常なし	0.32	7,700	660	110	0.9
2		2002/2/26	59.0	49	3,006	58.0	44.2	102.2	3.4	異常なし	異常なし	0.19	9,000	880	97	1.1
3		2002/2/26	64.0	51	3,343	95.7	49.6	145.3	4.3	異常なし	異常なし	ND	3,700	350	25	0.4
4		2002/2/26	61.0	50	3,400	179.5	129.6	309.1	9.1	異常なし	異常なし	0.37	10,000	780	51	0.8
5		2002/2/26	59.5	49	3,233	130.3	142.6	272.9	8.4	異常なし	異常なし	0.82	5,400	740	82	1.6
6		2002/2/26	49.5	41	1,893	97.0	41.9	138.9	7.3	異常なし	異常なし	ND	6,600	610	98	0.5
7		2002/2/26	49.0	40	1,907	55.8	74.4	130.2	6.8	異常なし	異常なし	0.54	8,700	970	120	2.1
8		2002/2/27	43.0	35	1,150	36.5	20.4	56.9	4.9	異常なし	異常なし	ND	7,000	460	280	0.5
9		2002/2/27	55.0	44	2,485	43.0	78.9	121.9	4.9	異常なし	異常なし	0.053	7,400	610	40	0.6
10		2002/2/27	50.5	43	2,281	55.4	82.6	138.0	6.0	異常なし	異常なし	ND	6,300	1,100	88	0.6
11		2002/2/27	50.5	42	1,955	49.0	72.0	121.0	6.2	異常なし	異常なし	0.12	12,000	640	94	0.6
12		2002/2/27	64.0	52	4,041	119.0	170.5	289.5	7.2	異常なし	異常なし	ND	18,000	1,000	45	0.7
13		2002/2/27	46.0	40	1,558	34.5	44.2	78.7	5.1	異常なし	異常なし	ND	6,800	1,300	150	0.3
14		2002/2/28	54.5	44	2,330	32.0	11.1	43.1	1.8	精巣：左紐状、右瘤状	退縮	ND	7,300	840	130	2.6
15		2002/2/28	54.0	42	1,913	10.3		10.3	0.5	精巣：紐・瘤状・左右連結	退縮・不明細胞増殖	1.9	5,000	440	110	0.5
16		2002/2/26	48.5	40	1,755	99.4	147.2	246.6	14.1	異常なし	退行変性卵	5,500	4,900	1,100	310	1.0
17		2002/2/26	56.5	45	2,220	98.1	95.5	193.6	8.7	異常なし	異常なし	2,100	1,700	1,200	170	0.4
18		2002/2/27	59.0	46	2,772	60.0	191.0	251.0	9.1	異常なし	異常なし	790	1,900	1,300	40	0.8
19		2002/2/27	49.5	39	1,683	60.0	86.8	146.8	8.7	異常なし	退行変性卵	2,100	1,700	1,500	33	1.0
20		2002/2/27	71.0	60	7,400	492.0	582.0	1074.0	14.5	異常なし	退行変性卵	4,300	2,200	2,500	290	6.2

表 8 印旛放水路における水質調査結果

分析項目	4-tert-オクチルフェノール	ノニルフェノール	ビスフェノールA	17-エストラジオール	17-エストラジオール	エストリオール	エストロン	エチニルエストラジオール	
単位	μg/L	μg/L	μg/L	ng/L	ng/L	ng/L	ng/L	ng/L	
検出限界	0.01	0.1	0.01	0.1	0.1	1	0.2	0.1	
採水日時	2/24 21時 (水温10.8)	0.09	1.7	0.28	0.9	0.2	10	3.5	ND
	2/25 3時 (水温10.4)	0.10	1.8	0.29	0.9	0.2	8	4.0	ND
	2/25 9時 (水温10.4)	0.14	2.1	0.26	1.0	0.2	11	4.3	ND
	2/25 15時 (水温12.6)	0.13	2.0	0.22	1.1	0.3	30	3.9	ND
平均	0.12	1.9	0.26	1.0	0.2	15	3.9	ND	
(参考)平成12年度 環境実態調査結果	ND	0.9	0.12	1.1	0.5	-	-	ND	

表 9 印旛放水路における酵母 two-hybrid 法による女性ホルモン様活性

[単位：ng/L (17-エストラジオール換算値)]

画分	全										
含まれる物質		BP, BAP	NP	NP, NP1E0	E1, E2, E3, NP1E0, NP2E0, BPA	NP2E0	不明				
採水日時	2/24 21時	weak	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
	2/25 3時	weak	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
	2/25 9時	weak	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
	2/25 15時	weak	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
平均	weak	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	

検出限界値ND：1 ng/L、Weak：対照に対する発光強度が10倍未満であった場合で17-エストラジオール換算値は1～2.7 ng/L

(3) 手賀沼

ア コイの検査

コイの検査結果を表 10に示した。

オス 15 個体、メス 5 個体の検査を実施した。検査を行ったオスの平均体重は 798 g (487 ~ 1,004g)、平均標準体長は 33 cm (26 ~ 36 cm)、メスの平均体重は 603 g (386 ~ 971 g)、平均標準体長は 29 cm (25 ~ 38 cm)であった。

組織学的検査において、生殖腺指数は、オスの平均値は 4.2 % (0.7 ~ 8.9%)、メスの平均値は 2.0% (0.5 ~ 4.7%)であった。解剖所見では、全ての雌雄とも生殖腺及び他の臓器に異常は認められなかった。病理所見では、オスには異常は認められなかったが、メスの 3 個体に退行変性卵が認められた(写真 5)。

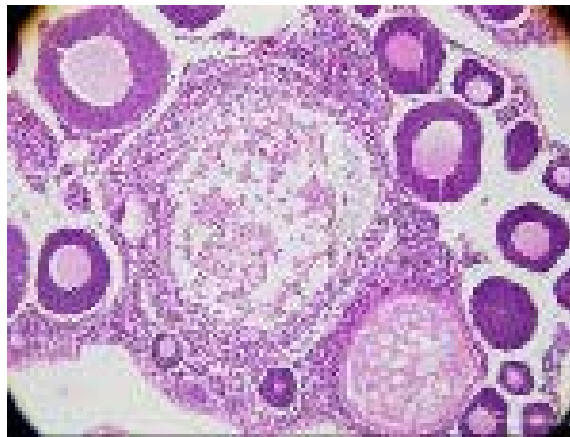


写真 5 退行変性卵が認められた卵巣(手賀沼)

血液学的検査において、ピテロジェニンは全てのオスで検出限界値 ND=0.039 μ g/mL 未満であったが、メスの 100% (全 5 個体)で検出され、0.18 ~ 23 μ g/mL の範囲にあった。テストステロンは全ての雌雄で検出され、オスで 210 ~ 3,800 pg/mL、メスで 180 ~ 350 pg/mL の範囲にあった。

17 -エストラジオールは全ての雌雄で検出され、オスで 60 ~ 550 pg/mL、メスで 180 ~ 340 pg/mL の範囲にあった。

化学的検査において、ノニルフェノールは全ての雌雄で検出限界値 ND=15 μ g/kg 未満であった。

イ 水質調査

水質調査結果を表 11に示した。採水時の水温は 5.0 であった。

ノニルフェノールの測定値は、ND:<0.1 ~ 0.1 μ g/L (平均 ND:<0.1 μ g/L)、4-t-オクチルフェノールの測定値は、ND:<0.01 ~ 0.02 μ g/L (平均 0.01 μ g/L)、ビスフェノール A の測定値は、0.08 ~ 0.15 μ g/L (平均 0.12 μ g/L)、エストロンの測定値は、0.8 ~ 0.9 ng/L (平均 0.9 ng/L)、17 -エストラジオールの測定値は、0.2 ~ 0.3 ng/L (平均 0.2 ng/L)であった。17 -エストラジオール、エストリオール、エチニルエストラジオールの測定値は、それぞれ検出限界値 ND 未満であった。なお、平均値の算出に当たっては、測定結果が ND であった場合、濃度を ND 値の 1/2 と仮定し、計算した。

今回の測定結果の平均値と平成 12 年度環境実態調査水質調査結果を比較すると、4-t-オクチルフェノール及びビスフェノール A の平均値は平成 12 年度調査結果を上回り、17 -エストラジオール及び 17 -エストラジオールの平均値は平成 12 年度調査結果を下回っていた。

酵母 two-hybrid 法による女性ホルモン様活性測定結果を表 12 に示した。全ての試料で、女性ホルモン様活性は検出限界値 ND=1 ng/L 未満であった。

表 10 手賀沼におけるコイの検査結果

検査項目						組織学的検査					血液学的検査			化学的検査		
No.	性別	捕獲日	全長	標準 体長	体重	生殖腺重量			生殖腺 指数	解剖所見	病理所見	ビテロジエニン	テストステロン	17- -エストラジオール	ノニルフェノール	粗脂肪
						右	左	合計								
			cm	cm	g	g			%			μg/mL	pg/mL	pg/mL	μg/kg	g/100g
			0.039	50	50	15	-									
1		2001/12/11	33.0	28	609	6.9	7.0	13.9	2.3	異常なし	異常なし	ND	1,700	390	ND	0.4
2		2001/12/11	42.5	36	1,004	37.9	32.4	70.3	7.0	異常なし	異常なし	ND	2,200	340	ND	0.6
3		2001/12/11	39.5	33	638	12.1	10.4	22.5	3.5	異常なし	異常なし	ND	370	340	ND	0.5
4		2001/12/11	36.5	31	882	35.3	29.5	64.8	7.4	異常なし	異常なし	ND	3,800	190	ND	0.9
5		2001/12/11	39.5	32	799	27.1	18.8	45.9	5.8	異常なし	異常なし	ND	300	550	ND	0.4
6		2001/12/11	37.0	31	659	2.5	2.2	4.7	0.7	異常なし	異常なし	ND	210	160	ND	0.5
7		2001/12/11	44.5	36	876	15.2	23.9	39.1	4.5	異常なし	異常なし	ND	850	170	ND	0.3
8		2001/12/11	40.0	33	759	12.0	8.6	20.6	2.7	異常なし	異常なし	ND	1,200	110	ND	0.6
9		2001/12/11	42.0	35	796	15.0	10.1	25.1	3.2	異常なし	異常なし	ND	830	120	ND	0.6
10		2001/12/11	31.5	26	487	5.3	5.8	11.1	2.3	異常なし	異常なし	ND	320	76	ND	0.5
11		2001/12/11	45.0	34	824	25.3	14.5	39.8	4.8	異常なし	異常なし	ND	1,300	430	ND	0.9
12		2001/12/11	44.0	34	872	20.0	27.2	47.2	5.4	異常なし	異常なし	ND	1,200	76	ND	0.4
13		2001/12/11	46.0	35	918	12.8	10.0	22.8	2.5	異常なし	異常なし	ND	470	60	ND	0.4
14		2001/12/11	44.0	35	843	11.7	6.0	17.7	2.1	異常なし	異常なし	ND	350	180	ND	0.7
15		2001/12/11	41.0	34	1,003	51.1	38.4	89.5	8.9	異常なし	異常なし	ND	1,200	450	ND	0.6
16		2001/12/11	44.0	38	971	22.5	23.5	46.0	4.7	異常なし	退行変性卵	23	240	320	ND	0.5
17		2001/12/11	31.5	26	494	3.2	1.0	4.2	0.9	異常なし	退行変性卵	0.35	180	340	ND	0.3
18		2001/12/11	30.0	25	386	3.9	3.6	7.5	1.9	異常なし	退行変性卵	0.45	240	210	ND	0.4
19		2001/12/11	33.5	29	535	1.0	1.5	2.5	0.5	異常なし	異常なし	0.18	350	180	ND	0.3
20		2001/12/11	34.0	28	631	6.4	5.3	11.7	1.9	異常なし	異常なし	8.1	330	260	ND	0.6

表 11 手賀沼における水質調査結果

分析項目		4-tert-オクチルフェノール	ノニルフェノール	ビスフェノールA	17-エストロジオール	17-エストロジオール	エストリオール	エストロン	エチニルエストロジオール
単 位		μg/L	μg/L	μg/L	ng/L	ng/L	ng/L	ng/L	ng/L
検出限界		0.01	0.1	0.01	0.1	0.1	1	0.2	0.1
採水位置	TB-1 (水温5.0)	0.02	0.1	0.15	0.3	ND	ND	0.9	ND
	TB-2	ND	0.1	0.13	0.2	ND	ND	0.8	ND
	TB-3	0.01	ND	0.12	0.2	ND	ND	0.9	ND
	TB-4	0.01	ND	0.08	0.2	ND	ND	0.8	ND
平均		0.01	ND	0.12	0.2	ND	ND	0.9	ND
(参考)平成12年度 環境実態調査結果		ND	ND	0.04	1.0	0.1	-	-	ND

表 12 手賀沼における酵母 two-hybrid 法による女性ホルモン様活性

[単位：ng/L (17-エストロジオール換算値)]

画分		全										
含まれる物質			BP, BAP	NP	NP, NP1E0	E1, E2, E3, NP1E0, NP2E0, BPA	NP2E0	不明				
採水位置	TB-1	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	
	TB-2	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	
	TB-3	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	
	TB-4	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	
平均		ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	

検出限界値ND：1 ng/L

Weak：対照に対する発光強度が10倍未満であった場合で17-エストロジオール換算値は1~2.7 ng/L

(4) 捕獲調査結果のまとめ

捕獲調査結果の概要を表 13 に示した。

ア コイの検査結果

組織学的検査において、オスの生殖腺指数は、石津川で平均 3.9 % (0.5 ~ 8.1%)、印旛放水路で平均 5.6% (0.5 ~ 9.1%)、手賀沼で平均 4.2 % (0.7 ~ 8.9%)であった。これらの値を建設省が本調査とほぼ同一の季節の平成 10 年 11 ~ 12 月に実施したコイの調査結果⁴⁾と比較すると、平均値 (5.3%) はほぼ同程度で、その変動範囲 (0.2 ~ 13.1%)に含まれていた。

オスメダカ等が女性ホルモン様作用を示す物質に曝露された際に精巢に形成される精巢卵^{5,6)}は今回捕獲されたコイには認められなかった。

オスの解剖所見及び病理所見では、印旛放水路で捕獲された 2 個体に精巢異常が認められ、これらの個体の精巢に退縮、不明細胞増殖が認められた。

メスの生殖腺指数は、石津川で平均 2.6% (0.2 ~ 8.3%)、印旛放水路で平均 11.0% (8.7 ~ 14.5%)、手賀沼で平均 2.0% (0.5 ~ 4.7%)であった。

メスの解剖及び病理所見では、石津川で捕獲された 2 個体、印旛放水路で捕獲された 3 個体及び手賀沼で捕獲された 3 個体に退行変性卵が認められた。

血液学的検査において、オスの血清中ピテロジェニンは、石津川では捕獲された個体の 40%、印旛放水路では捕獲された個体の 53%で検出され、その濃度範囲は、石津川で 0.071 ~ 2 $\mu\text{g/mL}$ 、印旛放水路で 0.053 ~ 1.9 $\mu\text{g/mL}$ であった。手賀沼で捕獲された個体は全て検出限界値 $\text{ND}=0.039 \mu\text{g/mL}$ 未満であった(図 7)。

建設省が平成 10 年 11 ~ 12 月に実施した全国調査結果(参考資料 1)

では、捕獲されたオスコイの 25%で検出され、その濃度範囲は 0.1 ~ 870 $\mu\text{g/mL}$ (検出限界値 $\text{ND}=0.1 \mu\text{g/mL}$)⁴⁾であった。霞ヶ浦で平成 9 ~ 10 年に実施された調査結果では、捕獲された野生のオスの 32%で検出され、その濃度範囲は 0.088 ~ 1.68 $\mu\text{g/mL}$ (検出限界値 $\text{ND}=0.04 \mu\text{g/mL}$)⁸⁾であった。生活排水の流入が多いと考えられた水域で捕獲されたオスでは、0.04 ~ 1.34 $\mu\text{g/mL}$ (検出率 69%、長崎市)、0.5 ~ 39.2 $\mu\text{g/mL}$ (検出率 56%、東京都)等の測定例があった⁹⁾。下水処理排水が流入する水域で捕獲されたオスでは、0.5 ~ 39.2 $\mu\text{g/mL}$ (検出率 83%)¹⁰⁾、 $\text{ND}<0.039 \sim 120 \mu\text{g/mL}$ ³⁾、10 ~ 12,000 $\mu\text{g/mL}$ (検出率 50%)¹¹⁾等の測定例があり、比較的下水道流入水の影響が少ないと考えられた水域で捕獲されたオスでは、 $\text{ND}<0.039 \sim 12 \mu\text{g/mL}$ ³⁾であった。

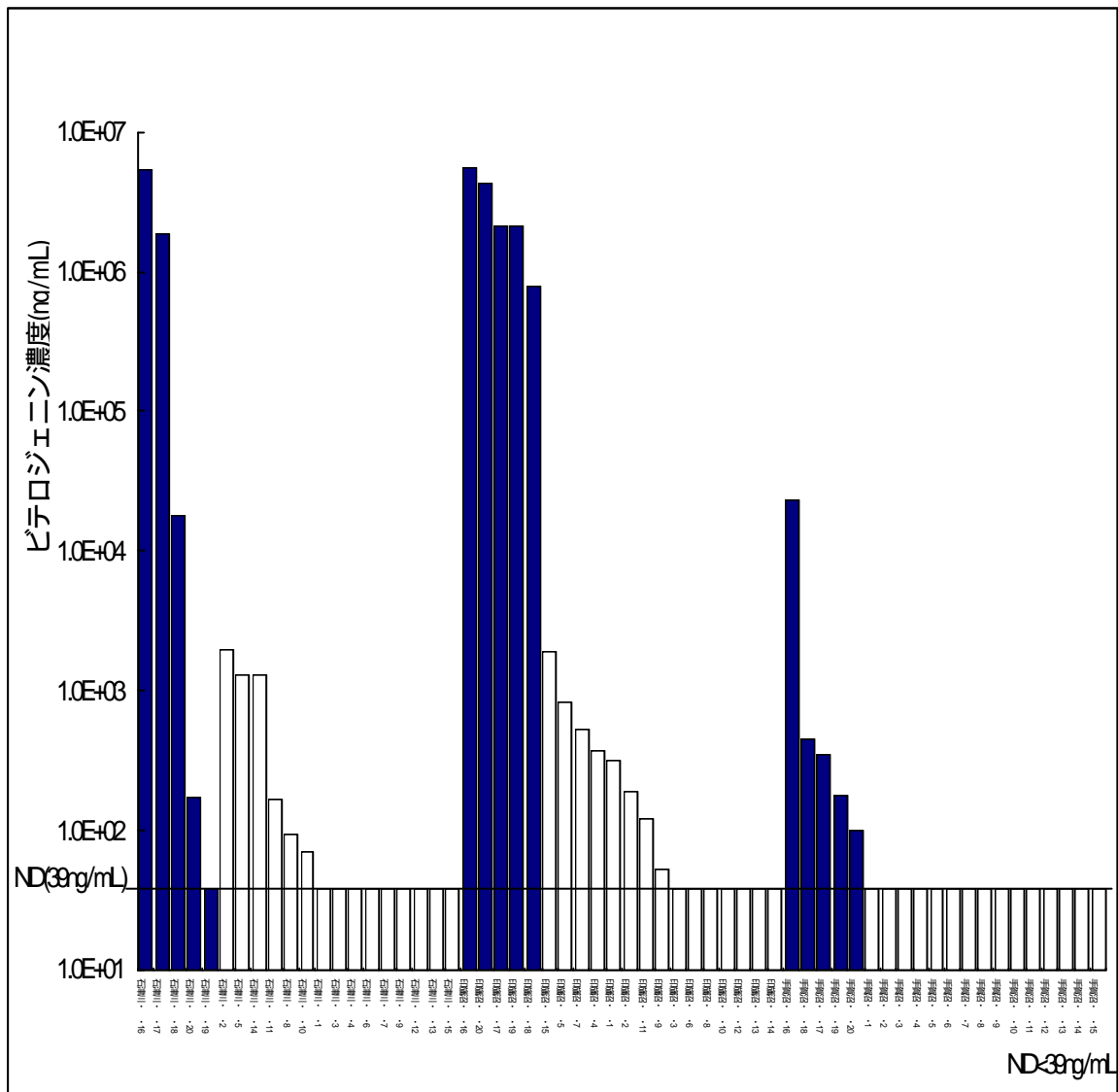
これらの値と今回の測定結果を比較すると、霞ヶ浦での測定結果と同程度であり、下水処理排水が流入する水域での測定結果より低い値であった。

メスの血清中ビテロジェニン¹²⁾は、石津川では、捕獲された個体の 80%、印旛放水路及び手賀沼では検査された全個体で検出され、その濃度範囲は、石津川で 0.17 ~ 5,300 $\mu\text{g/mL}$ 、印旛放水路で 790 ~ 5,500 $\mu\text{g/mL}$ 、手賀沼で 0.18 ~ 23 $\mu\text{g/mL}$ であった(図 7)。

化学的検査において、ノニルフェノールは石津川及び印旛放水路で捕獲された全ての雌雄の筋肉中から検出され、石津川で捕獲されたオスで平均 594 $\mu\text{g/kg}$ 、メスで平均 462 $\mu\text{g/kg}$ 、印旛放水路で捕獲されたオスで平均 101 $\mu\text{g/kg}$ 、メスで平均 169 $\mu\text{g/kg}$ であった。なお、手賀沼で捕獲された全ての雌雄の筋肉中ノニルフェノール濃度は、検出限界値 $\text{ND}=15 \mu\text{g/kg}$ 未満であった。

表 13 捕獲調査結果の概要

調査対象水域 調査期間		石津川		印旛放水路		手賀沼		
		2001.11.28,29		2002.2.24-28		2001.12.11		
		オス(n=15)	メス(n=5)	オス(n=15)	メス(n=5)	オス(n=15)	メス(n=5)	
検査項目								
コイの 検査結果	平均体重(g)	1,013	942	2,536	3,166	798	603	
	平均標準体長(cm)	33	32	45	46	33	29	
	組織学的検査	平均生殖腺指数(%)	3.9	2.6	5.6	11.0	4.2	2.0
		解剖所見	異常なし	異常なし	精巣異常 2 個体	異常なし	異常なし	異常なし
		病理所見	異常なし	退行変性卵 2 個体	退縮 1 個体、 退縮及び不明細 胞増殖 1 個体	退行変性卵 3 個体	異常なし	退行変性卵 3 個体
	血液学的検査	17β-テストステロン(μg/mL) 検出率と濃度範囲	40% 0.071 ~ 2	80% 0.17 ~ 5,300	53% 0.053 ~ 1.9	100% 790 ~ 5,500	0% ND<0.039	100% 0.18 ~ 23
		テストステロン(pg/mL) 検出率と濃度範囲	100% 360 ~ 4,000	100% 360 ~ 1,300	100% 3,700 ~ 18,000	100% 1,700 ~ 4,900	100% 210 ~ 3,800	100% 180 ~ 350
		17β-エストロゲン(pg/mL) 検出率と濃度範囲	100% 200 ~ 1,900	100% 250 ~ 760	100% 350 ~ 1,300	100% 1,100 ~ 2,500	100% 60 ~ 550	100% 180 ~ 340
	化学的検査	17β-エストロゲン平均濃度(μg/kg)	594	462	101	169	ND<15	ND<15
	水質調査結果	水温()	15.6 ~ 16.8		10.4 ~ 12.6		5.0	
17β-エストロゲン平均濃度(μg/L)		6.7		1.9		ND<0.1		
4-t-オキシエストロゲン平均濃度(μg/L)		0.77		0.12		0.01		
17β-エストロゲン A 平均濃度(μg/L)		0.19		0.26		0.12		
17β-エストロゲン平均濃度(ng/L)		21		3.9		0.9		
17β-エストロゲン平均濃度(ng/L)		1.4		0.2		ND<0.1		
17β-エストロゲン平均濃度(ng/L)		4.4		1.0		0.2		
17β-エストロゲン平均濃度(ng/L)		2		15		ND<1		
17β-エストロゲン平均濃度(ng/L)		0.1		ND<0.1		ND<0.1		
女性ホルモン様活性の 17β-エストロゲン換算値の平均値(ng/L)	11		1 ~ 2.7		ND<1			



石津川・					
石津川・					
印旛放水路・					
印旛放水路・					
手賀沼・					
手賀沼・					

図 7 捕獲されたコイの血清中ピテロジェニン濃度

なお、ノニルフェノールの筋肉中濃度測定結果と水質調査結果よりコイのノニルフェノール生物濃縮係数を求めると、石津川のオスで 89、メスで 69、印旛放水路のオスで 53、メスで 89 であった。コイのノニルフェノール生物濃縮係数については、琵琶湖での調査結果として、15 ~ 22^{12,13)}、室内実験結果として、90 ~ 330¹⁴⁾、124⁵⁾等の値が得られており、今回の調査結果は、既存の報告値に類似する値であった。

イ 水質調査結果

ノニルフェノールの測定値は、石津川で平均 6.7 $\mu\text{g/L}$ 、印旛放水路で平均 1.9 $\mu\text{g/L}$ 、手賀沼で検出限界値 $\text{ND}=0.1 \mu\text{g/L}$ 未満であった。4-t-オクチルフェノールの測定値は、石津川で平均 0.77 $\mu\text{g/L}$ 、印旛放水路で平均 0.12 $\mu\text{g/L}$ 、手賀沼で 0.01 $\mu\text{g/L}$ であった。ビスフェノール A の測定値は、石津川で平均 0.19 $\mu\text{g/L}$ 、印旛放水路で平均 0.26 $\mu\text{g/L}$ 、手賀沼で 0.12 $\mu\text{g/L}$ であった。アルキルフェノール類の水中濃度は、石津川、印旛放水路、手賀沼の順で低くなり、ビスフェノール A の水中濃度は 3 水域ともほぼ同程度であった。

エストロンの測定値は、石津川で平均 21 ng/L 、印旛放水路で平均 3.9 ng/L 、手賀沼で 0.9 ng/L であった。17 β -エストラジオールの測定値は、石津川で平均 1.4 ng/L 、印旛放水路で平均 0.2 ng/L 、手賀沼で検出限界値 $\text{ND}=0.1 \text{ng/L}$ 未満であった。17 α -エストラジオールの測定値は、石津川で平均 4.4 ng/L 、印旛放水路で平均 1.0 ng/L 、手賀沼で 0.2 ng/L であった。エストリオールの測定値は、石津川で平均 2 ng/L 、印旛放水路で平均 15 ng/L 、手賀沼で検出限界値 $\text{ND}=0.1 \text{ng/L}$ 未満であった。エチニルエストラジオールの測定値は、石津川で平均 0.1 ng/L 、印旛放水路及び手賀沼で検出限界値 $\text{ND}=0.1 \text{ng/L}$ 未満であった。女性ホルモン類の水中濃

度は、エストジオールを除いて、石津川、印旛放水路、手賀沼の順で低くなり、エチニルエストジオールの水中濃度は3水域ともほぼ同程度であった。

女性ホルモン様活性の測定値(17 β -エストジオール換算値)は、石津川で平均 11 ng/L、印旛放水路で 1~2.7 ng/L、手賀沼で検出限界値 ND=1 ng/L 未満であった。

4 . 飼育調査結果(日光川)

ア コイの検査

コイの検査結果を表 14 に示した。

飼育開始時に 5 個体、飼育 3 週間後に 7 個体、飼育 4 週間後に 8 個体の検査を実施した。飼育開始時の平均体重は 734 g (600~790 g)、平均標準体長は 31 cm (30~33 cm)、飼育 3 週間後の平均体重は 730 g (664~818 g)、平均標準体長は 30 cm (29~33 cm)、飼育 4 週間後の平均体重は 729 g (614~840 g)、平均標準体長は 30 cm (28~31 cm)であった。

組織学的検査において、生殖腺指数は、飼育開始時の平均値は 6.3% (3.1~8.7%)、飼育 3 週間後の平均値は 6.7% (2.5~9.9%)、飼育 4 週間後の平均値は 5.9% (1.8~8.4%)であった。解剖所見及び病理所見では、飼育開始時、飼育 3 週間後及び飼育 4 週間後の全ての個体とも生殖腺及び他の臓器に異常は認められなかった。

血液学的検査において、ピテロジェニン飼育開始時には 100% (全 5 個体)検出され、0.43~1.2 μ g/mL の範囲にあった。飼育 3 週間後には 71% (7 個体中 5 個体)で検出され、0.51~1.2 μ g/mL の範囲にあった。飼育 4 週間後には 75% (8 個体中 6 個体)で検出され、0.3~1.1 μ g/L の範囲にあ

った(図 8)。テストステロンは飼育開始時には 100% (全 5 個体)検出され、1,900 ~ 5,000 pg/mL の範囲にあった。飼育 3 週間後には 100% (全 7 個体)検出され、2,200 ~ 5,500 pg/mL の範囲にあった。飼育 4 週間後には 100% (全 8 個体)検出され、1,400 ~ 6,800 pg/mL の範囲にあった。17 -エストラジオールは飼育開始時には 100% (全 5 個体)検出され、120 ~ 310 pg/mL の範囲にあった。飼育 3 週間後には 100% (全 7 個体)検出され、280 ~ 750 pg/mL の範囲にあった。飼育 4 週間後には 100% (全 8 個体)検出され、200 ~ 980 pg/mL の範囲にあった。

化学的検査において、ノニルフェノールは飼育開始時には全 5 個体とも検出限界値 ND=15 μ g/kg 未満であったが、飼育 3 週間後には 100% (全 7 個体)検出され、350 ~ 530 μ g/kg (平均 426 μ g/kg)の範囲にあった。飼育 4 週間後には 100% (全 8 個体)検出され、170 ~ 620 μ g/kg (平均 259 μ g/kg)の範囲にあった。

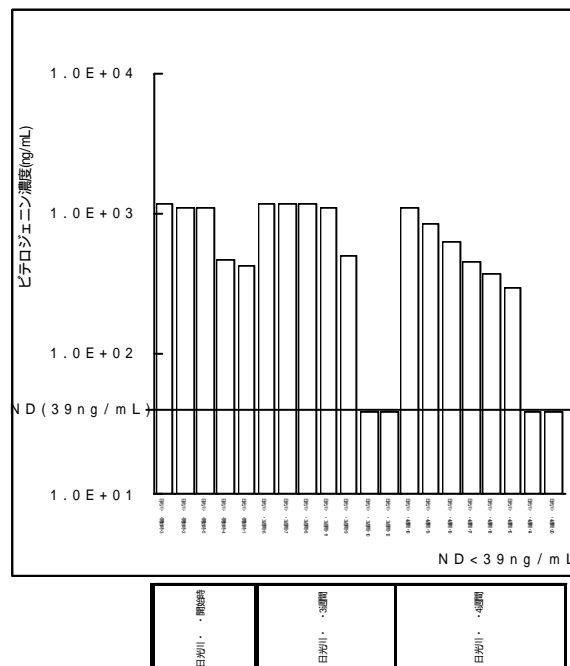


図 8 飼育試験でのコイの血清中ビテロジェニン濃度

イ 水質調査

水質調査結果を表 15 に示した。採水時の水温は 12.1 ~ 14.9 °C であった。

ノニルフェノールの測定値は、0.5 ~ 0.9 $\mu\text{g/L}$ (平均 0.7 $\mu\text{g/L}$)、4-t-オクチルフェノールの測定値は、0.02 ~ 0.08 $\mu\text{g/L}$ (平均 0.05 $\mu\text{g/L}$)、ビスフェノール A の測定値は、0.03 ~ 0.05 $\mu\text{g/L}$ (平均 0.04 $\mu\text{g/L}$)、エストロンの測定値は、5.2 ~ 9.1 ng/L (平均 6.3 ng/L)、17 β -エストラジオールの測定値は、0.3 ~ 0.5 ng/L (平均 0.4 ng/L)、17 α -エストラジオールの測定値は、1.1 ~ 1.9 ng/L (平均 1.3 ng/L)、エストリオールの測定値は、11 ~ 16 ng/L (平均 14 ng/L) であった。エチニルエストラジオールの測定値は、検出限界値 ND=0.1 ng/L 未満であった。なお、平均値の算出に当たっては、測定結果が ND であった場合、濃度を ND 値の 1/2 と仮定し、計算した。

今回の測定結果の平均値と平成 12 年度環境実態調査水質調査結果を比較すると、ノニルフェノール、4-t-オクチルフェノール、ビスフェノール A、17 β -エストラジオール及び 17 α -エストラジオールの平均値は平成 12 年度調査結果を下回っていた。

酵母 two-hybrid 法による女性ホルモン様活性測定結果を表 16 に示した。全ての試料で、女性ホルモン様活性は検出限界値 ND=1 ng/L 未満であった。

ウ まとめ

今回の調査において、飼育試験開始時のコイ血中にビテロジェニンが平均 0.86 $\mu\text{g/mL}$ 検出された。試験用コイの入手に当たっては、試験魚の筋肉中からノニルフェノールが検出されず、また、排水等の流入がないと考えられた養魚場を選定したが、血中にビテロジェニンが検出され

たことから、入手前の餌等の寄与が想定された。

ノニルフェノールの平均水中濃度が $0.7 \mu\text{g/L}$ 及び女性ホルモン様活性が検出限界値 $\text{ND}=1\text{ng/L}$ 未満の日光川で4週間飼育されたコイの筋肉中ノニルフェノール濃度は、検出限界値 $\text{ND}=15 \mu\text{g/kg}$ 未満から平均 $259 \mu\text{g/kg}$ に増加したが、血清中ピテロジェニンの平均濃度は、 $0.86 \mu\text{g/mL}$ から $0.47 \mu\text{g/mL}$ に減少した。

表 14 日光川におけるコイの検査結果

検査項目						組織学的検査						血液学的検査			化学的検査	
No.	飼育 期間	回収日	全長	標準 体長	体重	生殖腺重量			生殖腺 指数	解剖所見	病理所見	ビテロジエニン μg/mL	テストステロン pg/mL	17-エストロジオール pg/mL	ノニルフェノール μg/kg	粗脂肪 g/100g
						右	左	合計								
			cm	cm	g	g			%							
1	開始時	2002/2/10	37.0	30	790	26.3	29.4	55.8	7.1	異常なし	異常なし	0.43	3,700	310	ND	0.9
2	開始時	2002/2/10	37.0	31	770	25.6	27.6	53.2	6.9	異常なし	異常なし	1.1	2,100	120	ND	1.0
3	開始時	2002/2/10	37.0	30	720	28.6	34.1	62.6	8.7	異常なし	異常なし	1.2	3,500	290	ND	1.0
4	開始時	2002/2/10	37.0	31	600	8.9	9.7	18.6	3.1	異常なし	異常なし	0.48	1,900	150	ND	1.8
5	開始時	2002/2/10	38.5	33	790	23.8	19.4	43.2	5.5	異常なし	異常なし	1.1	5,000	240	ND	1.5
6	3週間	2002/3/4	36.0	30	677	36.0	31.0	67.0	9.9	異常なし	異常なし	1.2	2,200	280	530	0.8
7	3週間	2002/3/4	35.0	29	759	35.5	23.1	58.6	7.7	異常なし	異常なし	1.2	2,300	700	350	1.0
8	3週間	2002/3/4	38.0	33	818	23.4	17.4	40.8	5.0	異常なし	異常なし	1.2	2,900	680	470	0.8
9	3週間	2002/3/4	35.5	30	664	8.4	8.4	16.8	2.5	異常なし	異常なし	0.51	5,500	750	430	0.7
10	3週間	2002/3/4	34.5	30	739	26.2	25.1	51.3	6.9	異常なし	異常なし	ND	2,300	510	370	0.6
11	3週間	2002/3/4	35.0	30	745	16.5	38.1	54.6	7.3	異常なし	異常なし	1.11	2,400	730	380	1.6
12	3週間	2002/3/4	37.0	31	708	26.0	28.8	54.8	7.7	異常なし	異常なし	ND	3,500	450	450	0.7
13	4週間	2002/3/9	37.8	30	840	6.1	9.4	15.5	1.8	異常なし	異常なし	0.86	5,800	810	620	2.6
14	4週間	2002/3/9	34.9	27	707	14.8	7.3	22.1	3.1	異常なし	異常なし	ND	6,800	630	280	0.6
15	4週間	2002/3/9	36.4	29	614	21.5	16.3	37.8	6.2	異常なし	異常なし	0.30	3,000	980	180	0.6
16	4週間	2002/3/9	38.0	31	732	15.4	33.0	48.4	6.6	異常なし	異常なし	1.1	1,400	430	200	0.4
17	4週間	2002/3/9	38.0	30	744	28.2	23.1	51.3	6.9	異常なし	異常なし	0.46	1,500	310	190	0.8
18	4週間	2002/3/9	38.5	31	795	23.0	23.9	46.9	5.9	異常なし	異常なし	0.37	1,600	290	140	0.8
19	4週間	2002/3/9	35.4	28	681	35.4	21.6	57.0	8.4	異常なし	異常なし	0.64	3,100	200	290	1.0
20	4週間	2002/3/9	38.0	31	714	31.0	29.0	60.0	8.4	異常なし	異常なし	ND	2,300	440	170	0.6

表 15 日光川における水質調査結果

分析項目		4-tert-オクチルフェノール	ノニルフェノール	ビスフェノールA	17-エストラジオール	17-エストラジオール	エストリオール	エストロン	エチルエストラジオール
単 位		μg/L	μg/L	μg/L	ng/L	ng/L	ng/L	ng/L	ng/L
検出限界		0.01	0.1	0.01	0.1	0.1	1	0.2	0.1
採水日時	2/10 14時 (水温12.3)	0.08	0.9	0.04	1.3	0.3	11	5.5	ND
	2/16 14時 (水温12.1)	0.06	0.8	0.03	1.1	0.3	16	5.4	ND
	2/23 14時 (水温14.7)	0.04	0.7	0.05	1.9	0.5	16	9.1	ND
	3/2 14時 (水温14.9)	0.02	0.5	0.05	1.0	0.3	12	5.2	ND
開始時～3週 平均		0.06	0.8	0.04	1.4	0.4	14	6.7	ND
開始時～4週 平均		0.05	0.7	0.04	1.3	0.4	14	6.3	ND
(参考)平成12年度 環境実態調査結果		0.07	2.4	0.05	1.7	0.6	-	-	ND

表 16 日光川における酵母 two-hybrid 法による女性ホルモン様活性

[単位：ng/L (17-エストラジオール換算値)]

分画		全	BP, BAP	NP	NP, NP1E0	E1, E2, E3, NP1E0, NP2E0, BPA	NP2E0	不明				
含まれる物質												
採水位置	2/10 14時	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	
	2/16 14時	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	
	2/23 14時	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	
	3/2 14時	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	
平均		ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	

検出限界値ND：1 ng/L、Weak：対照に対する発光強度が10倍未満であった場合で17-エストラジオール換算値は1～2.7 ng/L

5 考察

(1) 環境省が実施したメダカを用いた試験⁵⁾において、8.2 µg/L(フルライフサイクル試験 F1:60 日齢)、11.6 µg/L(パーシャルライフサイクル試験 60 日齢)及び 17.7 µg/L(フルライフサイクル試験 F0:60 日齢)以上のノニルフェノール濃度に曝露された際に精巣卵の形成が認められている。本調査結果では、石津川のノニルフェノール水中濃度は平均 6.7 µg/L であり、このいずれの濃度も下回っていた。一方、酵母 two-hybrid 法による女性ホルモン様活性の測定結果から水質が示した女性ホルモン様活性値 11 ng/L は水中のノニルフェノール濃度に換算すると 17.5 µg/L に相当すると考えられ、メダカでの精巣卵形成濃度を上回る。今回の調査結果では、精巣卵は全ての個体で認められなかったこと及びエストロジェン 受容体競合結合試験⁵⁾において、コイはメダカの約 1/100 の相対結合強度であったことからメダカと比較して化学物質の女性ホルモン作用に対する感受性がコイは低いことが考えられた。

印旛放水路で捕獲されたオス 2 個体に精巣異常、精巣組織の退縮、不明細胞増殖が認められた。石津川の女性ホルモン様活性(11 ng/L)と比較して印旛放水路の女性ホルモン様活性(1 ~ 2.7 ng/L)が低かったため、今回認められた精巣異常が水中に含まれる女性ホルモン様作用を示す物質に起因するか否かは不明であった。

メスでは、石津川で捕獲された 2 個体、印旛放水路で捕獲された 3 個体及び手賀沼で捕獲された 3 個体に退行変性卵が認められた。退行変性卵は、産卵できなかった卵の残滓と考えられる¹⁵⁾。石津川及び印旛放水路の捕獲範囲にはコイの産卵に必要なとされる水草⁷⁾が少なく、特に石津川は鋼矢板護岸で、メスコイが適当な産卵場所が見つけられなかった等の原因も想定されることから、今回認められた退行変性卵が水中に含まれる女性ホルモン様作用を示す物質に起因するか否かは不明であった。

(2) 石津川で認められた女性ホルモン様活性における化学物質の寄与を検討すると、ノニルフェノールが含まれる画分の女性ホルモン様活性は、5.7 ~ 6.6ng/L(平均 6.2 ng/L)、エストラジオール等の女性ホルモンが含まれる画分の女性ホルモン様活性は、6.5 ~ 9.5 ng/L(平均 7.9 ng/L)で、それぞれは両者の合計値 13.0 ~ 15.4ng/L(平均 14.1 ng/L)の約 40 ~ 50%(平均 44%)及び約 50 ~ 60%(平均 56%)に相当し、ほぼ同等の寄与と推定された。両者の合計値 13.0 ~ 15.4ng/L(平均 14.1 ng/L)は、水質が示した女性ホルモン様活性 9.6 ~ 16ng/L(平均 11 ng/L)を 4 回の測定例中 3 回で上回り、女性ホルモン様活性に拮抗する作用を示す物質(アンタゴニスト)の溶存の可能性が示唆された。

(3) オスコイの血清中ビテロジェニンについては、石津川及び印旛放水路でほぼ同様の検出率及び濃度範囲であったが、ノニルフェノールの筋肉中濃度、水中のアルキルフェノール類濃度、女性ホルモン濃度(エストリオール濃度を除く)及び女性ホルモン様活性は、印旛放水路における測定値が石津川における測定値を下回っていた(ビスフェノール A 濃度はほぼ同等)。オスコイの血清中ビテロジェニンが石津川及び印旛放水路でほぼ同様の検出率及び濃度範囲であった原因として、測定例数が少ないこと及び採集時期が異なること(石津川は 11 月、印旛放水路は 2 月)を考慮する必要があるが、底質中のアルキルフェノール類濃度、ビスフェノール A 濃度及び女性ホルモン濃度の平成 12 年度の測定値¹⁸⁾が、石津川における値を印旛放水路における値が上回っていたことも考えられる(参考資料 2)。コイは水底の有機物も摂食する⁷⁾ことから、餌として取り入れた底泥の影響が想定され、血清中ビテロジェニン濃度の上昇に及ぼす餌の影響に関する検討を行う必要がある。

(4) 今後、石津川、印旛放水路、手賀沼において夏季の調査を実施し、さらなる知

見の収集を行う。今回、女性ホルモン様活性に拮抗する作用を示す物質(アンタゴニスト)の溶存の可能性が示唆されたため、アンタゴニスト作用活性の測定法の検討を行い、測定を実施する。

なお、日光川におけるノニルフェノール水中濃度が減少傾向にあるため、血清中にビテロジェニンが検出されないオスコイを用いた飼育試験を石津川で実施する。