

D-2. 海洋汚染物質の海洋生態系への取り込み、生物濃縮と物質循環に関する研究

(3) 海洋汚染の生物モニタリング及び汚染メカニズムに関する研究

③ 化学分析システムの開発

研究代表者 愛媛大学 立川 涼

水産庁 遠洋水産研究所

(委託先)

愛媛大学農学部環境化学研究室

立川 涼・田辺信介

平成2年度－6年度合計予算額 20,987 千円

(平成6年度予算額 4,601 千円)

〔要旨〕 有機塩素化合物について化学分析システムの開発を試み、その方法を適用して地球規模での海洋汚染の現状と問題点を明らかにした。XAD-2樹脂やウレタンフォームを用いた大容量の大気・水 捕集装置を開発するとともに、抽出やクリーンアップの方法も検討し、超微量の有機塩素化合物を高精度で測定する計測システムを実用化した。この方法を用いて、沿岸および外洋のモニタリング調査を実施したところ、熱帯・亜熱帯海域の汚染の顕在化やたまり場としての海洋の役割が鮮明となった。また海棲哺乳動物の分析結果では、特異的な生物濃縮機構を持つため有害物質を高濃度で蓄積すること、その毒性影響を示唆する生理機能の変調が認められること、汚染の低減はしばらく望めないことなどが明らかとなった。

〔キーワード〕 有機塩素化合物、化学分析システム、地球汚染、海洋汚染、海棲哺乳動物

1. 序

化学物質の生産・使用量は近年急速な展開をみせ、その全世界の年流通額は1991年に3,000億ドルを突破した¹⁾。この金額がわが国の年間国家予算の半分弱に相当することを考えると、物質文明の急進にあらためて驚かざるをえない。無数ともいえる化学物質の安全性について個別に対応し対策を立てることは不可能に近いが、こうした化学物質を環境汚染の観点から整理分類する作業はいくつかの研究機関によって試みられてきた。ヒトの健康を問題にしたもの、生物蓄積性に注目したもの、海洋汚染を取り上げたものなど視点は様々であるが、共通していえることは、いずれも有機塩素化合物が高い位置にランクされていることである。なかでも、毒性が強く、生体内に容易に侵入し、そこに長期間とどまるPCBやDDTなどは、最も厄介な化学物質として関心を集めてきた。生態系への蓄積や影響を憂慮し、ほとんどの先進諸国ではこの種の有機塩素化合物の生産をすでに規制したが、その環境汚染は依然として続いており学術的・社会的な関心は高い。海棲哺乳動物の大量変死や水鳥類の奇形など、有機塩素化合物が原因と思われる生態系の異常は、今なお先進諸国で発生している。熱帯・亜熱帯の途上国では有機塩素系農薬の使用が続いており、固有な気象条件や化学物質の無秩序な管理は地球規模の海洋汚染を加速する可能性がある。

本研究では、有機塩素化合物の海洋汚染モニタリングを実施する化学分析システムの開発を試み、その方法を適用して地球汚染の現状を明らかにするとともに、鯨類・鰭脚類を中心に生物濃縮の実態や生態影響についても検討したので報告する。

2. 大気・水試料の分析法の開発

有機塩素化合物は多様な環境に分布しているが、海水はその移動・拡散媒体として機能しているばかりでなく、生物濃縮の出発点としての役割も担っており、そこでの動態の理解は海洋生態系保全のための重要な基礎情報となる。一般に有機塩素化合物は水に難溶なため、環境水中の残留濃度はきわめて低い。したがって水試料の分析では、高感度検出法や二次汚染を減らす工夫が必要となる。大容量の水試料を採取して微量の有機塩素化合物を測定しなければならない地球規模の調査では、固相吸着法が適切と考えこれを検討した。

固相吸着法では、有機塩素化合物の吸着剤としてXAD-2樹脂を選択した。市販のXAD-2樹脂には、有機塩素化合物の定量を妨害する物質が含まれているため、あらかじめ洗浄する必要がある。XAD-2樹脂を水道水で洗浄したのちエタノールに浸し、洗浄液が透明になるまで振とうと溶媒の交換を繰り返した。その後、ソックスレー抽出器を用いてエタノール洗浄をさらに数日間続けた。洗浄液は電子捕獲型検出器付ガスクロマトグラフ（GC-ECD）に注入し、溶出物が問題ないレベルまで低減したことを確認した。洗浄したXAD-2樹脂は乾燥後ガラスカラムに充填し、調査に適用した。現場ではこのガラスカラムに海水を通し、有機塩素化合物をXAD-2樹脂に吸着させた。海水の場合、500mlまで効率的に有機塩素化合物を吸着することが確認できた。

抽出から定量に至る有機塩素化合物の分析行程を図1に示す。XAD-2樹脂に吸着された有機塩素化合物は、カラムにエタノールを流下して抽出した。抽出液は、ヘキサンに転溶後KD濃縮器で濃縮し、発煙硫酸を用いてクリーンアップを行なった。このヘキサン抽出液を高速液体クロマトグラフ（HPLC）に供し、有機塩素化合物の分画を行なう。HPLCの移動溶媒はヘキサンとジクロロメタンを用い、溶出速度は0.5ml/分に調節した。HPLCの分離カラムはシリカゲル（島津製 Simpack-SIL、内径4.6mm x カラム長250mm）を用い、オーブンの温度は35°Cに設定した。このHPLC条件下で溶出する有機塩素化合物画分の詳細を表1に示す。HPLCにより得られた各画分はGC-ECDに供し、有機塩素化合物を定量した。分離カラムはDB-1701およびDB-1（J & W社製フューズドシリカキャピラリーカラム、内径0.25mm、長さ30m、膜厚0.25μm）を使用し、カラムオープン温度は160~240°C（2°C/分の昇温）、注入口温度は250°C、検出器温度は300°Cに設定した。キャリアーガスはヘリウム（12ml/分）、メイクアップガスは窒素（30ml/分）を用いた。

大気中の有機塩素化合物の捕集はポリウレタンフォーム（PUF）を吸着材として用い、これをガラスカラムに充填しエアポンプで空気を吸引することにより行なった。円筒状に加工した（直径31mm、高さ50mm）市販のPUF（HA型）を、洗剤とアセトンで搾り洗いしたのちソックスレー抽出器（アセトン溶媒）でさらに数日間洗浄して夾雑物を取り除き、これを6個ずつカラムに充填して使用した。実験室では、PUFをソックスレー抽出器に移しアセトン溶剤で3時間還流することにより有機塩素化合物を抽出した。アセトン抽出液は濃縮しヘキサンに転溶したのち、発煙硫酸処理を行なった。以降の分析は、海水試料と同様にHPLCによる分画後、GC-ECDにより定量した（図1）。なおここで述べた海水および大気試料の捕集・分析法の詳細は、国際誌に公表した²⁾。

本分析システムの開発により、サンプリング操作のかなりな部分が自動化したことに加え、試料抽出液の分離と精製を高い精度と感度で簡便・迅速に行なえるようになった。また本法は従来

法に比べ研究者による定量値のバラツキや二次汚染を減らせたばかりでなく、省力化や試薬節減の面でも大幅に改善された。

3. 沿岸海域の汚染

最近、有機塩素化合物による北極域の汚染の進行が世界的な話題となっている。人間活動や産業活動がほとんど行なわれていない極域は、汚染とはまったく縁のない世界と考えられてきたが、最近になって北極圏の高等動物から高濃度の有機塩素化合物が検出されるようになり、南の国々から長距離輸送によって運ばれ北極域に沈積しているのではないかということが指摘されはじめた³⁾。

言うまでもなく工業用材料や農薬として多用された有機塩素化合物の汚染源は陸上にあり、大気や水を媒体として広域輸送される。かつてこの種の物質の生産と使用は先進工業国に集中したため、北半球中緯度域で最高の汚染が認められた。ところが先進諸国における規制の強化と途上国における産業活動の拡大にともない汚染の南北分布は変化しつつある。図2に示すように、アジア・オセアニアの沿岸域で調査を実施したところ、有機塩素系農薬BHCとDDTによる水質汚染は熱帯・亜熱帯で顕在化していることが判明した。意外なことに、先進国型の汚染物質として注目を集めてきたPCBやCHLも熱帯地域の汚染が進んでいた。こうした傾向は水環境ばかりでなく、大気の汚染分布にも認められた⁴⁾。さらにヒトの母乳⁵⁾や野生の鳥類⁶⁾でも、熱帯や亜熱帯の汚染レベルは高いことがわかった。最近明らかにした食品の調査結果でも、高濃度の汚染が熱帯アジアの途上国で認められている^{7) - 10)}。これらの結果は、有機塩素化合物による地球汚染の発生源が現在熱帯にあることを示唆している。

地図を開いてみればわかるように、途上国の多くは熱帯・亜熱帯地域にある。高温・多雨の低緯度地域における化学物質の利用や廃棄は、当然のことながら温帯や寒帯と異なる汚染様式をもたらす。上述したように、熱帯の途上国では先進国で禁止された有害物質を今なお使用していることがうかがわれる。しかし、一方で熱帯における化学物質の寿命は意外に短く、その大半はすみやかに大気に揮散してしまうことも指摘されている。興味深いことに、沿岸堆積物や魚介類に残留する有機塩素化合物の濃度は、大気や水汚染に比べると南北差の小さいことがわかった^{4)・6)}。また南インドで行なった調査では、水田に散布した殺虫剤HCHの90%以上が二週間で大気に揮散した¹¹⁾。さらにこの地域のベラ川集水域でHCHの環境調査を実施し、その物質収支を計算した結果では、散布した薬剤の99%は大気へ移行し、沿岸域に流入した量は1%以下にすぎないことが明らかとなった¹²⁾。また水圏に流入したHCH量の大半は、さらに水面から大気に揮散したことも判明している。大気に移行した汚染物質は、気流により短時間で世界中に広がる。つまり熱帯地域における化学物質の影響は比較的短命であるが、そこでの無秩序な利用は地球規模の汚染に大きな負荷をもたらすことになる。熱帯固有の自然条件はそこでの化学汚染を軽減する効果はあるが、その環境インパクトはグローバルな規模にならざるをえないことが推察された。

4. 外洋の汚染

熱帯地域で利用された有機塩素化合物がどのように広がり、最終的にどこに到達するのか—残念ながらこうした疑問に応えられる研究は充分ではないが、そのゆくえを示唆する結果が本研究

により得られた²⁾。図3に示すように、農薬HCHの残留濃度は測定した有機塩素化合物の中で最も高い値が認められ、北半球の汚染が顕在化していた。興味深いことに、HCHの高濃度分布は、この殺虫剤の使用が指摘されている熱帯・亜熱帯周辺海域で認められるばかりでなく、北極周辺海域でも観察され、この傾向は表層海水で顕著であった。対照的に、DDTの残留濃度は全体的に低く、熱帯海域周辺のみで高濃度分布がみられ、HCHに比べれば大気により輸送されにくく汚染源周辺にとどまりやすいことがうかがわれた²⁾。ところが、PCB(図4)やCHL²⁾は均質な濃度分布を示し、南北差も小さい。

こうした外洋汚染の現状は、過去のパターンと大幅に異なる。沿岸域と同じように、1980年代前半の外洋汚染は、先進諸国における有機塩素化合物利用の影響が現れ、北半球中緯度域に高濃度分布が存在した¹³⁾。しかし最近の外洋大気・海水の汚染分布には、北半球中緯度域の濃度極大が消え、熱帯域の汚染が顕在化している。Goldberg¹⁴⁾は、DDTの利用域が先進諸国から途上国に移行することを1970年代に予測したが、この使用域の南下はDDTだけでなくHCHやPCBなどの有機塩素化合物でも現実のものとなった。PCBやCHLの汚染が全世界に広がり一様な分布を示すことは、トランスやコンデンサーなどPCBを含む中古の大型電気機器が途上国に輸出され利用・廃棄されていること、DDTやHCH以外の有機塩素系殺虫剤の需要が途上国でかなりあることなど、第三世界を中心に有機塩素化合物の汚染源が今なお拡大していることを暗示している。

外洋環境では、有機塩素化合物の汚染分布と併せて、大気・海水間での物質交換の研究も行ない、その地球規模でのゆくえを明らかにした²⁾。図5に示すように、大気・海水間における有機塩素系殺虫剤HCHのフラックスはいずれも負の値を示し、大気から海水への流入が優先していることをあらわしている。類似のパターンは、他の有機塩素化合物でも観察された。HCHのような農薬の場合、汚染源に近い熱帯海域で大きなフラックスが認められることは当然であるが、北極のような汚染源から離れた海域でも大気から海水へ活発に流入していることがわかった。北極域の海水が大きな負のフラックスを示す傾向はPCBでも認められ、この事実は、外洋の海水がこの種の物質の最終的な到達点として機能していることを示しており、とくに北極周辺の海水は有機塩素化合物のたまり場として重要な役割を演じていることが推察される。

5. 鯨類・鯨脚類の汚染

イルカ、クジラ、アザラシなどの海棲哺乳動物では、南北半球を問わず多様な種で有機塩素化合物による汚染が観察されている。しかしその蓄積濃度は一様ではなく、南半球に比べ北半球の種で汚染が進行しており海水汚染の南北分布とほぼ相応している。もちろん、海水中の有機塩素化合物が直接体内に侵入するわけではない。食う－食われるの関係、すなわち食物連鎖を経て有害物質は高等動物へ濃縮・蓄積していく。海棲哺乳動物は、この過程で驚くほど有機塩素化合物を高濃縮することが知られている。たとえば、西部北太平洋の外洋生態系では、イルカは水の一千万倍もの高濃度でPCBやDDTを濃縮している¹⁵⁾。イルカやクジラ類が有害物質を特異的に蓄積する例は他にもある。一般に化学物質の濃度は、汚染源からの距離に比例して低減するのが普通であるが、イルカやクジラは最も清浄な外洋に生息しているにもかかわらず、そのPCB濃度は沿岸や陸上の高等動物よりもはるかに高いことが判明した(図6)。イルカやクジラ類が有害物質を高濃縮し、異常なほど体内に貯める理由について本研究で検討したところ、以下のよう

な要因が浮上してきた。

第一の要因は、海棲哺乳動物は皮下に厚い脂肪組織があり、ここが有害物質の貯蔵庫として機能していることである。スジイルカの場合、有機塩素化合物の体内総負荷量の90%以上が脂皮に残存していた。有機塩素化合物は脂溶性が高いため、一旦脂肪組織に蓄積すると簡単に出ていかない。寿命の長いイルカやクジラでは、餌から取り込んだ有害物質が徐々に脂皮に蓄積し、結果的にここが大きなたまり場になるものと考えられる。第二点目は、海棲哺乳動物の場合、世代を越えた有害物質の移行量が馬鹿にならないということである。一般に海棲哺乳動物の乳は脂肪含量が高いため、授乳によって多量の有機塩素化合物が母親から乳仔に移行する。

スジイルカでは、体内に残留するPCB総量のおよそ60%が授乳により排泄されるものと見積もられた。このような大量の有機塩素化合物の母子間移行は、たとえ環境の汚染濃度が低下しても、海棲哺乳動物体内の有害物質は、そのまま世代を越えて引き継がれることを意味しており、影響の長期化も避けられないといえよう。第三点目は、海棲哺乳動物とくにイルカやクジラ類は肝ミクロソームに極在するチトクローム P-450系の薬物代謝酵素が発達していないため、有害物質をほとんど分解できないことである。一般に有機塩素化合物を分解する薬物代謝酵素系は、フェノバルビタール(PB)型とメチルコラントレン(MC)型に大別されるが鯨類はPB型の酵素系が遺伝的に欠落しており、陸上や沿岸の哺乳動物、鳥類に比べると格段に有害物質の分解能力が劣ることが判明した(図7)。おそらくこの第三の要因、すなわち弱い分解能力は、イルカやクジラが異常な高濃度で有害物質を蓄積する最も有力な根拠と考えられる。

ところでこうした酵素系の特徴は、汚染物質の長期的な蓄積に影響を及ぼすだけでなく、毒性影響とも関連していることが最近指摘されはじめている。有害物質が蓄積すると肝臓のチトクローム P-450酸化酵素系が誘導され、この酵素系が化学物質を活性化してガンや奇形を引き起こしたり、ステロイドホルモンを代謝し生殖機能を攪乱する。また胸腺に作用して、免疫機能の失調をもたらすこともある。したがって野生の高等動物では、化学物質の蓄積量、薬物代謝酵素の活性、生殖機能の三者の関係を明きらかにし、有害な影響を検証する研究が求められている。この種の研究は始まったばかりであるが、イシイルカではPCBおよびDDTの残留濃度と雄の性ホルモン・テストステロン濃度との間に負の相関関係が認められている¹⁶⁾。また本研究で実施した三陸沖のオットセイ調査では、PCBの残留濃度と薬物代謝酵素活性の間に明瞭な正の相関が認められた(図8)¹⁷⁾。類似の結果は、イタリアおよびスペインの研究者と共同で行なった地中海のスジイルカの測定例でも認められた¹⁸⁾。こうした結果は、現実の有機塩素化合物蓄積濃度で薬物代謝酵素系が誘導され、性ホルモンなどの生理活性物質に作用していることを示しており、化学物質の長期的・慢性的な毒性影響が、野生の海棲哺乳動物で起こりうることを暗示している。

一方、こうした毒性影響の主役を担う物質として最も疑われているのはダイオキシン(PCDD)やダイベンゾフラン(PCDF)であるが、最近PCBに含まれる強毒性成分コプラナPCBの関与も指摘されはじめている。海棲哺乳動物の分析結果では、PCDDやPCDFよりはるかに高い濃度でコプラナPCBが検出されており、ダイオキシン等量の毒性影響評価値(TEQ)を求めてみてもコプラナPCBは高い値を示す¹⁹⁾。図9に示すように、陸上の哺乳動物に比べ海棲のイルカやクジラは、オルソ位に一つ塩素原子が置換したモノオルソコプラナPCBのTEQ値が高い¹⁷⁾。このことは、陸上と海棲の哺乳動物で、PCB毒性のあらわれか

たに微妙な違いがでる可能性を示唆している。いずれにしても海棲哺乳動物の場合、有機塩素化合物の中で毒性影響が最も懸念されるのはモノオルソのコプラナPCBで、2,3,3',4,4' (IUPAC No.105)、2,3',4,4',5 (IUPAC No. 118)、2,3,3',4,4',5 (IUPAC No. 156)の三種類の成分が最も大きなインパクトを与えていると考えられる。

有機塩素化合物の長期的な影響を予測するには、汚染の消長を理解することが必要となる。この場合、保存試料を用いて過去の汚染を復元し、将来を予測することが望ましいが、海棲哺乳動物の場合、有用な試料は少ない。断片的ではあるが北太平洋産のスジイルカを用いた研究では、1978年～1986年の間PCBやDDTの残留濃度が低減していないことを明らかにしている²⁰⁾。また図10に示すように、三陸沖で捕獲したオットセイの保存試料では、1970年代の中頃PCBやDDT汚染の極大がみられ、その後濃度は低減したが1980年代のPCB汚染は定常状態を示している²¹⁾。またHCHの汚染には明瞭な低減傾向が認められていない。こうした過去の汚染の復元は、海棲哺乳動物における有機塩素化合物の暴露と影響が、今後しばらく続くことを暗示している。とくにPCBによる汚染とその毒性影響は深刻で、コプラナPCBを含むモニタリング調査の継続が望まれる。

6. 結論

有機塩素化合物による地球規模の環境汚染とそのゆくえの概要をまとめると、その主な放出源は現在熱帯・亜熱帯に存在し、大気の大距離輸送により地球規模で広がり、外洋とくに北極域の海水がその掃き溜めとなること、換言すれば海洋は有害物質のごみ箱であると結論されよう。一方海洋生態系とくに鯨類・鯨類の汚染は深刻化しており、その原因は他の高等動物ではみられない特異的な生物過程や生理機能があることによる。

途上国における化学物質の生産と利用は急速に拡大しており、たとえば全世界の流通額に占める割合は1980年の時点では7%であったが、1991年には13%に倍増している。先進諸国における化学物質流通額の年成長率が1%程度にとどまっているのに対し、途上国では13%を越える勢いで増大している。注目すべきことに、好調な経済成長をみせるアジアの途上国は、第三世界の中で最高の化学物質輸出額を示し、17%を上回る高い年成長率が報告されている¹⁾。アジアで輸出されている化学物質の約70%はこの地域内で消費されており、途上国における世界最大の化学物質の利用は現在アジアにあるといえてよい。こうした化学物質流通の現状は、相応の環境汚染を予想させ、法的規制の整備が遅れているアジアの途上国ではさまざまな影響が懸念される。とくに熱帯での化学物質使用量の増大は、海洋汚染を加速するため、生態系への蓄積や影響も一層深刻化する恐れがあり、海棲哺乳動物にとってはさらに憂慮すべき事態となりかねない。有機塩素化合物による現在の地球汚染は、様々な有害物質によるアジアの海洋汚染を代弁するものであり、途上国における化学物質の安全な利用と海洋環境保全のための対策や国際協力の拡大を早急に検討しなければならない。

引用文献

- 1) Anderson, E. (1993): Developing nation's chemical exports surge. Chem. Engineer. News, August 2, 14-15.
- 2) Iwata, H., Tanabe, S., Sakai, N. and Tatsukawa, R. (1993): Distribution of

- persistent organochlorines in the oceanic air and surface seawater and role of the ocean on their global transport and fate. *Environ. Sci. Technol.*, 27, 1080-1098.
- 3) Norstrom, R. J. and Muir, D. C. G. (1994): Chlorinated hydrocarbon contaminants in arctic marine mammals. *Sci. Total Environ.*, 154, 107-128.
 - 4) Iwata, H., Tanabe, S., Sakai, N., Nishimura, A. and Tatsukawa, R. (1994): Geographical distribution of persistent organochlorines in air, water and sediments from Asia and Oceania, and their implications for global redistribution from lower latitudes. *Environ. Pollut.*, 85, 15-33.
 - 5) Tanabe, S., Gondaira, F., Subramanian, A. N., Ramesh, A., Mohan, D., Kumaran, P., Venugopalan, V. K. and Tatsukawa, R. (1990): Specific pattern of persistent organochlorine residues in human breast milk from South India. *J. Agric. Food Chem.*, 38, 899-903.
 - 6) Ramesh, A., Tanabe, S., Kannan, K., Subramanian, A. N., Kumaran, P. L. and Tatsukawa, R. (1992): Characteristic trend of persistent organochlorine contamination in wildlife from a tropical agricultural watershed, South India. *Arch. Environ. Contam. Toxicol.*, 23, 26-36.
 - 7) Tanabe, S., Kannan, K., Tabucanon, M. S., Siri Wong, C., Ambe, Y. and Tatsukawa, R. (1991): Organochlorine pesticide and polychlorinated biphenyl residues in food stuffs from Bangkok, Thailand. *Environ. Pollut.*, 72, 191-203.
 - 8) Kannan, K., Tanabe, S., Ramesh, A., Subramanian, A. N. and Tatsukawa, R. (1992): Persistent organochlorine residues in foodstuffs from India and their implications on human dietary exposure. *J. Agric. Food Chem.*, 40, 518-524.
 - 9) Kannan, K., Tanabe, S., Quynh, H. T., Hue, N. D. and Tatsukawa, R. (1992): Residue pattern and dietary intake of persistent organochlorine compounds in foodstuffs from Vietnam. *Arch. Environ. Contam. Toxicol.*, 22, 367-374.
 - 10) Kannan, K., Tanabe, S., Williams, R. J. and Tatsukawa, R. (1994): Persistent organochlorine residues in foodstuffs from Australia, Papua New Guinea, Solomon Islands : concentration levels and human dietary exposure. *Sci. Total Environ.*, 153, 29-50.
 - 11) Tanabe, S., Ramesh, A., Sakashita, D., Iwata, H., Tatsukawa, R., Mohan, D. and Subramanian, A. N. (1991): Fate of HCH (BHC) in tropical paddy field: application test in South India. *Int. J. Environ. Anal. Chem.*, 45, 45-53.
 - 12) Takeoka, H., Ramesh, A., Iwata, H., Tanabe, S., Mohan, D., Subramanian, A. N., Magendran, A. and Tatsukawa, R. (1991): Fate of HCH in the tropical coastal area, South India. *Mar. Pollut. Bull.*, 22, 290-297.
 - 13) Tatsukawa, R., Yamaguchi, Y., Kawamo, M., Kannan, N. and Tanabe, S. (1990): Global transport of organochlorine insecticides - an 11 year case study (1975-1985) of HCHs and DDTs in the open ocean atmosphere and hydrosphere. In, Long Range

Transport of Pesticides, Kurtz, D.A. (Ed.), Lewis, Chelsea, MI, pp.127-141.

- 14) Goldberg, E.D. (1975): Synthetic organochlorines in the sea. Proc. Royal Soc. Lond., Ser. B, 189, 277-289 (1975).
- 15) Tanabe, S., Tanaka, H. and Tatsukawa, R. (1984): Polychlorinated biphenyl, DDT, and hexachlorocyclohexane isomers in the western North Pacific ecosystem. Arch. Environ. Contam. Toxicol., 13, 731-738.
- 16) Subramanian, A.N., Tanabe, S., Tatsukawa, R., Saito, S. and Miyazaki, N. (1988): Reduction in the testosterone levels by PCBs and DDE in Dall's porpoise of north western North Pacific. Mar. Pollut. Bull., 18, 643-649 (1988).
- 17) Tanabe, S., Iwata, H. and Tatsukawa, R. (1994): Global contamination by persistent organochlorines and their ecotoxicological impact on marine mammals. Sci. Total Environ., 154, 163-177 (1994).
- 18) Kannan, K., Tanabe, S., Borrell, A., Aguilar, A., Focardi, S. and Tatsukawa, R. (1993): Isomer-specific analysis and toxic evaluation of polychlorinated biphenyls in striped dolphins affected by an epizootic in the western Mediterranean Sea. Arch. Environ. Contam. Toxicol., 25, 227-233.
- 19) Kannan, N., Tanabe, S., Ono, M. and Tatsukawa, R. (1989): Critical evaluation of polychlorinated biphenyl toxicity in terrestrial and marine mammals: increasing impact of non-ortho coplanar polychlorinated biphenyls from land to ocean. Arch. Environ. Contam. Toxicol., 18, 850-857.
- 20) Loganathan, B.G., Tanabe, S., Tanaka, H., Watanabe, S., Miyazaki, N., Amano, M. and Tatsukawa, R. (1990): Comparison of organochlorine residue levels in the striped dolphin from western North Pacific, 1978-1979 and 1986. Mar. Pollut. Bull., 21, 435-439.
- 21) Tanabe, S., Sung, J., Choi, D., Baba, N., Kiyota, M., Yoshida, K., Tatsukawa, R. (1994): Persistent organochlorine residues in northern fur seal from the Pacific coast of Japan since 1971. Environ. Pollut., 85, 305-314.

研究発表の状況

講演発表

1. Tanabe, S.: Chemical modernization and agony of cetaceans: Increasing toxic threat of organochlorine contaminants. 3rd Annual International Symposium of IBI, Kamogawa. International Conference on Marine Mammals. Kamogawa Sea World, Feb. 2-3, 1991, Kamogawa, Chiba, Japan, Abstract, p.4.
2. 立川 涼・田辺信介・K. Kannan・A. Ramesh: 熱帯地域における農薬の環境動態とその食品および人体汚染への影響, 1991年 3月, 京都, 日本農芸化学会1991年度大会講演要旨集, p.100.
3. 田辺信介: 地球汚染と生態系: 有機塩素化合物のエコトキシコロジー, 1991年 4月, 京都, 日本農芸化学会1991年度大会シンポジウム講演要旨集, p.387.

4. 田辺信介・A. Ramesh・岩田久人・境井典生・西村 淳・武岡英隆・立川 涼：有機塩素化合物による熱帯アジアの水域汚染とその特徴，1991年 4月，東京，日本水産学会春季大会講演要旨集，p.54.
5. 岩田久人・田辺信介・山本義志・藤瀬良弘・立川 涼：有機塩素化合物による外洋大気・海水汚染の南北分布とその特徴，1991年 4月，東京，日本水産学会春季大会講演要旨集，p.55.
6. 田辺信介・A. Ramesh・岩田久人・境井典生・武岡英隆・M.S.Tabucanon・N.D. Hue・A.N. Subramanian・立川 涼：熱帯アジアにおける有機塩素化合物の水域汚染と地球規模でのゆくえ（I）沿岸域での分布と挙動，1991年 4月，東京，日本海洋学会春季大会講演要旨集，p.140.
7. 岩田久人・田辺信介・境井典生・山本義志・藤瀬良弘・立川 涼：熱帯アジアにおける有機塩素化合物の水域汚染と地球規模でのゆくえ（ ）外洋域での動態，1991年 4月，東京，日本海洋学会春季大会講演要旨集，p.141.
8. 岩田久人・田辺信介・境井典生・立川 涼：有機塩素化合物の長距離輸送と外洋における動態，1991年 9～10月，松山，日本地球化学会年会講演要旨集，p.16.
9. 田辺信介・境井典生・西村 淳・A. Ramesh・岩田久人・武岡英隆・立川 涼：熱帯アジアにおける有機塩素化合物の動態，1991年 9～10月，松山，日本地球化学会年会講演要旨集，p.158.
10. Tanabe, S.・Ramesh, A.・Iwata, H.・Sakai, N.・Nishimura, A.・Takeoka, H.・Tatsukawa, R.・Subramanian, A.N.・Tabucanon, M.S.・Hue, N.D. : Distribution, behavior and fate of persistent organochlorines in the tropical Asia. 12th Annual Meeting of Society of Environmental Toxicology and Chemistry. Nov. 3-7, 1991, Seattle, Washington, Japan, Abstract, p.1.
11. Kannan, K.・Tanabe, S.・Tatsukawa, R.・Subramanian, A.N.・Tabucanon, M.・S.Hue, N.D. : Persistent organochlorine residues in foodstuffs of tropical Asian countries. 12th Annual Meeting of Society of Environmental Toxicology and Chemistry. Nov. 3-7, 1991, Seattle, Washington, Abstract, p.1.
12. Iwata, H.・Tanabe, S.・Sakai, N.・Tatsukawa, R. : Distribution, behavior and fate of persistent organochlorines in air and water of western Pacific and Indian Oceans. 12th Annual Meeting of Society of Environmental Toxicology and Chemistry. Nov. 3-7, 1991, Seattle, Washington, Japan, Abstract, p.2.
13. Tanabe, S., Iwata, H. and Tatsukawa, R.: Role of oceans in the fate of persistent organochlorines. International Symposium on Global Change (IGBP), Mar. 27-29, 1992, Tokyo, Japan, Abstract, p.62.
14. 境井典生・岩田久人・西村 淳・田辺信介・立川 涼：アジア・オセアニア沿岸域における有機塩素化合物の分布特性とその地球汚染への影響，1992年 4月，東京，平成4年度日本水産学会春季大会講演要旨集，p.234.
15. 岩田久人・荒本麻里・境井典生・西村 淳・田辺信介・立川 涼：チュクチ海・ベーリング海・アラスカ湾の底質に残留する難分解性有機塩素化合物，1992年 4月，東京，1992年

度日本海洋学会春季大会講演要旨集, p.183.

16. Kannan, K., Tanabe, S., Shrinha, R.K., Ichihashi, H. and Tatsukawa, R.: Heavy metals and organochlorines in the Ganges River dolphins from India: criteria for conservation from the viewpoint of their metabolic potential. 1992年12月, 東京, 1992年大会, 環境科学シンポジウム講演要旨集, p.96.
17. 岩田久人・田辺信介・境井典生・西村 淳・立川 涼: 沿岸・河口域における有機塩素化合物の分布特性からその地球規模でのゆくえを考える, 1992年12月, 東京, 1992年大会, 環境科学シンポジウム講演要旨集, p.98.
18. Tanabe, S.: Toxic contaminants and vulnerability of cetaceans. International Symposium on Marine Pollution: Mammals and Toxic Contaminants, Feb. 6-8, 1993, Kamogawa, Chiba, Japan, Abstract, p.41.
19. Iwata, T. and Tatsukawa, R.: Worldwide pollution by organochlorines and aquatic mammals. International Symposium on Conservation of River Dolphins -Environmental Pollution Perspectives-, Feb. 10-11, 1993, Matsuyama, Ehime, Japan, Abstract, p.10.
20. Kannan, K.: Contamination by heavy metals and organochlorines in Ganges River dolphin. International Symposium on Conservation of River Dolphins -Environmental Pollution Perspectives-, Feb. 10-11, 1993, Matsuyama, Ehime, Japan, Abstract, p.16.
21. Ichihashi, H. and Tanabe, S.: Organochlorines and heavy metals in freshwater seals in the Lake Baikal. International Symposium on Conservation of River Dolphins -Environmental Pollution Perspectives-, Feb. 10-11, 1993, Matsuyama, Ehime, Japan, Abstract, p.19.
22. Tanabe, S. and Tatsukawa, R.: Global contamination and ecotoxicological impacts of persistent organochlorines in the marine environment. Eco-toxicology and Environmental Chemistry - a Global Perspective, First SETAC (Society of Environmental Toxicology and Chemistry) World Congress, Mar. 28-31, 1993, Lisbon, Portugal, Abstract, p.9-10.
23. 岩田久人・田辺信介・立川 涼: 海生哺乳動物に残留する有機スズ化合物分析の試み, 1993年6月, 東京, 第二回環境化学討論会講演要旨集, p.402-403.
24. Kannan, K., Tanabe, S. and Tatsukawa, R.: Persistent organochlorine residues in foodstuffs from tropical Asia and Oceania. 1993年6月, 東京, 第二回環境化学討論会講演要旨集, p.420-421.
25. 田辺信介・K. Kannan・立川 涼・A. Aguilar: 西部地中海で大量死したスジイルカのPCB汚染: コブラナPCBの蓄積特性を中心に, 1993年6月, 東京, 第二回環境化学討論会講演要旨集, p.452-453.
26. 岩田久人・田辺信介・立川 涼: 熱帯アジア・オセアニアにおける有機塩素化合物汚染とその地球規模でのゆくえ, 1993年6月, 鹿児島, 第三回日本熱帯生態学会年次大会研究発表の記録, p.50.

27. Tanabe, S.: Specific accumulation and toxic impact of PCBs in marine mammals.
Symposium on Interactions of Immunology and Toxicology, Tenth Biennial
Conference on the Biology of Marine Mammals, Nov. 12-15, 1993, Galveston,
Texas, U.S.A., Abstract, p.6.
28. 田辺信介: 有害物質による熱帯アジアの汚染とその地球規模での環境インパクト, 環境科学
会1993年会ポスターセッション, 1993年11-12月.
29. Kumaran, P. L., Tanabe, S., Subramanian, A. N., Miyazaki, N. and Tatsukawa, R.:
Persistent organochlorine contamination in the cetaceans from the North
Pacific and nearby Seas. 1993年11-12月, 筑波, 環境科学会1993年会講演要旨集, p.
153.
30. Kannan, K., Tanabe, S., Williams, R. J., Subramanian, A. N., Tabucanon, M. S., Hue, N. D. and
Tatsukawa, R.: Geographical distribution and behavior of persistent
organochlorines in aquatic ecosystems of tropical Asia and Oceania using fish
as an indicator. 1993年11-12月, 筑波, 環境科学会1993年会講演要旨集, p.154.
31. Kannan, K., Corsolini, S., Tanabe, S., Focardi, S., Aguilar, A. and Tatsukawa, R.:
Toxicity risk assessment of PCB isomers including non-ortho coplanar PCBs in
dolphins and fish from the Mediterranean Sea. 1993年11-12月, 筑波, 環境科学会
1993年会講演要旨集, p.158.
32. 田辺信介: 有機塩素化合物による地球規模の海洋汚染と生態影響, 平成6年3月, 筑波, 生
態影響特研セミナー「有害物質の生態系に対する影響評価」.
33. 田辺信介・K. Kannan・立川 涼・S. Corsolini・S. Focardi・A. Borrell・A. Aguilar:
地中海産イルカのPCB蓄積特性とその生態影響, 平成6年4月, 東京, 平成6年度日
本水産学会春季大会講演要旨集, p.305.
34. 岩切良次・田辺信介・立川 涼・菅沼弘行・亀崎直樹: ウミガメ類における有機塩素化合物
の蓄積特性, 平成6年4月, 東京, 平成6年度日本水産学会春季大会講演要旨集,
p.306.
35. 岩田久人・田辺信介・小島英人・立川 涼・宮崎信之: 海棲哺乳類による有機スズ化合物の
蓄積とその体内分布, 平成6年4月, 東京, 平成6年度日本水産学会春季大会講演要旨
集, p.307.
36. 田辺信介・岩田久人・立川 涼: 有機塩素化合物による熱帯アジアの沿岸汚染とその地球規
模での環境インパクト, 平成6年4月, 東京, 平成6年度日本水産学会春季大会講演要
旨集, p.339.
37. 田辺信介: グローバルな海洋汚染の現状ー化学物質, 平成6年4月, 東京, 1994年度日本海
洋学会春季大会講演要旨集, p.427.
38. 岩田久人・田辺信介・立川 涼: 難分解性有機塩素化合物の地球規模でのゆくえ, 平成6年
6月, 大阪, 第3回環境化学討論会講演要旨集, 環境化学, 4(2), 466-467.
39. 岩田久人・田辺信介・小島英人・立川 涼・宮崎信之: 海棲哺乳動物に残留する有機スズ化
合物の蓄積特性, 平成6年6月, 大阪, 第3回環境化学討論会講演要旨集, 環境化学,
4(2), 474-475.

40. 田辺信介：有機塩素化合物による地球規模の海洋汚染とその影響，深海性動物相の解明と海洋汚染特別セミナー，平成6年6月，東京。
41. Tanabe, S.: Specific accumulation and toxic impacts of PCBs in marine mammals. Special Seminar, Woods Hole Oceanographic Institution, Aug. 1, 1994, Woods Hole, MA, U.S.A.
42. 岩田久人・田辺信介・水野恭彦・立川 涼：有機スズ化合物による海棲哺乳動物の汚染，平成6年10月，松山，1994年度日本海洋学会秋季大会講演要旨集，p.363.
43. 岩切良次・田辺信介・立川 涼・菅沼弘行・亀崎直樹：有機塩素化合物によるウミガメの汚染，平成6年11月，日和佐，第五回日本ウミガメ会議，うみがめニュースレター No.23 (1995)，p.37.
44. Tanabe, S.: Necessities and Needs of Monitoring Project of Toxic Contaminants in the Asia and Oceanian Coast. The Annual Conference of the International Ocean Institute, Indian Institute of Technology, Dec. 4-8, 1994, Madras, India.
45. Tanabe, S.: Global Contamination by Persistent Organochlorines and Their Ecotoxicological Impact on Marine Mammals. Special Lecture in Center of Advanced Study in Marine Biology, Annamalai University, Dec. 9, 1994, Porto Novo, India.

学術論文

1. Kannan, K., Sinha, R.K., Tanabe, S., Ichihashi, H. and Tatsukawa, R. (1993): Heavy metals and organochlorine residues in Ganges River dolphins from India. Mar. Pollut. Bull., 26(3), 159-162.
2. Iwata, H., Tanabe, S., Sakai, N. and Tatsukawa, R. (1993): Distribution of persistent organochlorines in the oceanic air and surface seawater and the role of ocean on their global transport and fate. Environ. Sci. Technol., 27(6), 1080-1098.
3. Iwata, H., Tanabe, S. and Tatsukawa, R. (1993): A new view on the divergence of HCH isomer compositions in oceanic air. Mar. Pollut. Bull., 26(6), 302-305.
4. Tanabe, S., Subramanian, A.N., Ramesh, A., Kumaran, P.L., Miyazaki, N. and Tatsukawa, R. (1993): Persistent organochlorine residues in dolphins from the Bay of Bengal, South India. Mar. Pollut. Bull., 26(6), 311-316.
5. Kannan, K., Tanabe, S., Borrell, A., Aguilar, A., Focardi, S. and Tatsukawa, R. (1993): Isomer-specific analysis and toxic evaluation of polychlorinated biphenyls in striped dolphins affected by an epizootic in the western Mediterranean Sea. Arch. Environ. Contam. Toxicol., 25(2), 227-233.
6. Iwata, H., Tanabe, S., Sakai, N., Nishimura, A. and Tatsukawa, R. (1994): Geographical distribution of persistent organochlorines in air, water and sediments from Asia and Oceania, and their implications for global redistribution from lower latitudes. Environ. Pollut., 85(1), 15-33.
7. Kannan, K., Tanabe, S., Tatsukawa, R. and Sinha, R.K. (1994): Biodegradation capacity and residue pattern of organochlorines in Ganges River dolphins from India.

Toxicol. Environ. Chem., 42, 249-261.

8. Kannan, K., Tanabe, S., Williams, R.J. and Tatsukawa, R. (1994): Persistent organochlorine residues in foodstuffs from Australia, Papua New Guinea and the Solomon Islands: contamination levels and human dietary exposure. Sci. Total Environ., 153, 29-49.
9. Tanabe, S., Iwata, H. and Tatsukawa, R. (1994): Global contamination by persistent organochlorines and their ecotoxicological impact on marine mammals. Sci. Total Environ., 154, 163-177.
10. Iwata, H., Tanabe, S., Miyazaki, N. and Tatsukawa, R. (1994): Detection of butyltin compound residues in the blubber of marine mammals. Mar. Pollut. Bull., 28(10), 607-612.
11. Iwata, H., Tanabe, S., Aramoto, M., Sakai, N. and Tatsukawa, R. (1994): Persistent organochlorine residues in sediments from the Chukchi Sea, Bering Sea and Gulf of Alaska. Mar. Pollut. Bull., 28(12), 746-753.

表1. HPLCによる有機塩素化合物の分画システム

画分	溶出時間 min.	溶媒量 ml	有機塩素化合物
1	0-2	0-1	HCB
2	2-9	1-4.5	PCBs, trans-Chlordene, p,p'-DDE, Heptachlor and Toxaphene
3	9-16	4.5-8	Heptachlor, o,p'-DDE, cis-Chlordene, o,p'-DDT, trans-Nonachlor, p,p'-DDT and Toxaphene
4	16-23	8-11.5	cis-Chlordane, trans-Chlordane, Oxychlordane, cis-Nonachlor, α -HCH, o,p'-DDD, p,p'-DDD, γ -HCH, β -HCH, Heptachlorepoide, δ -HCH and Toxaphene

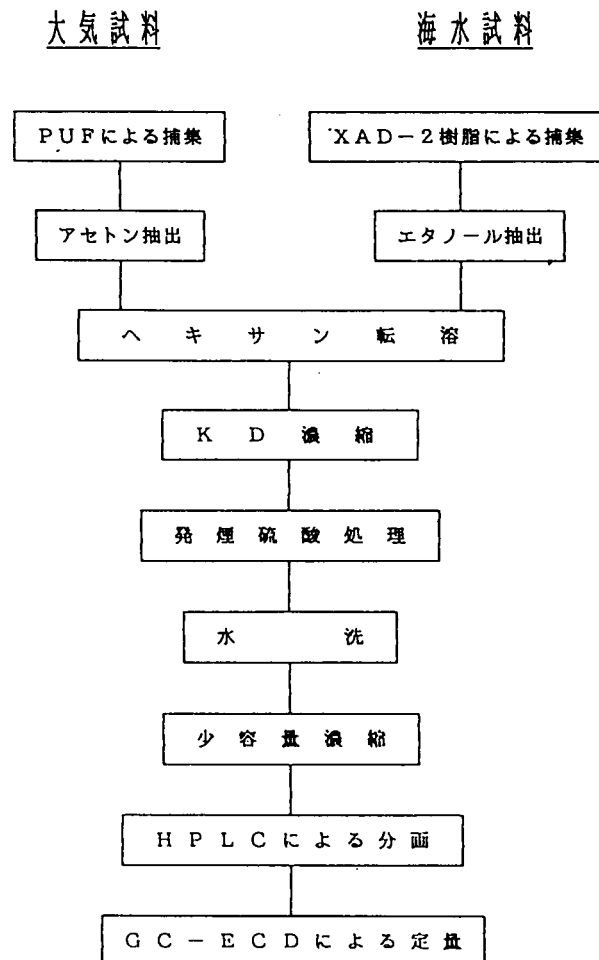


図1: 大気および海水に残留する有機塩素化合物の分析法

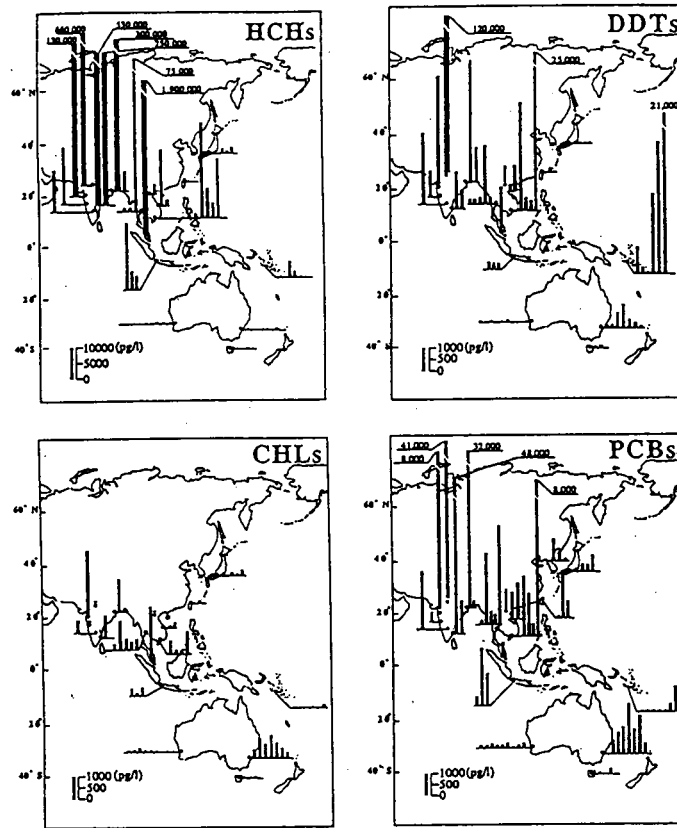


図2： アジア・オセアニアの沿岸・河口域における有機塩素化合物の水質汚染

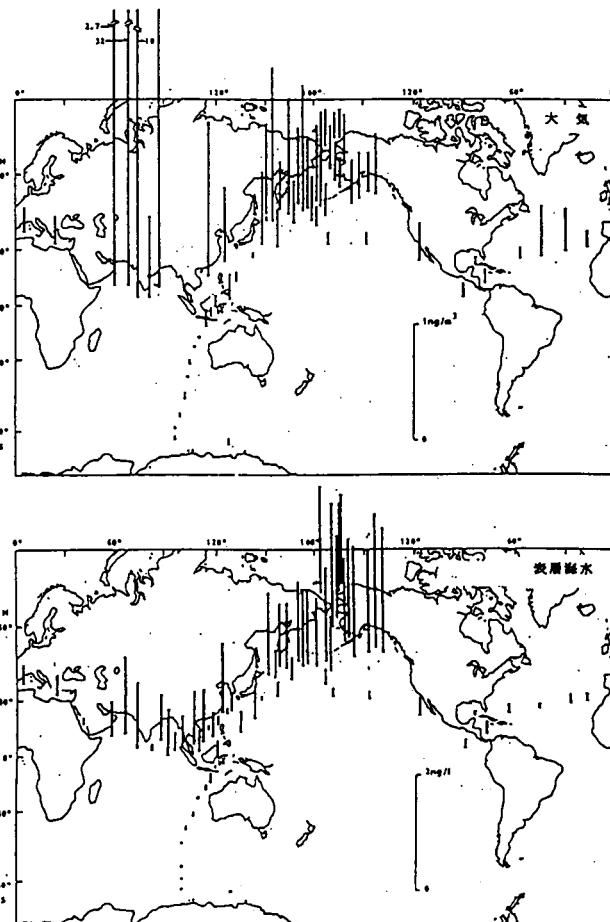


図3： 外洋の大気および表層海水に残留するHCHの濃度分布

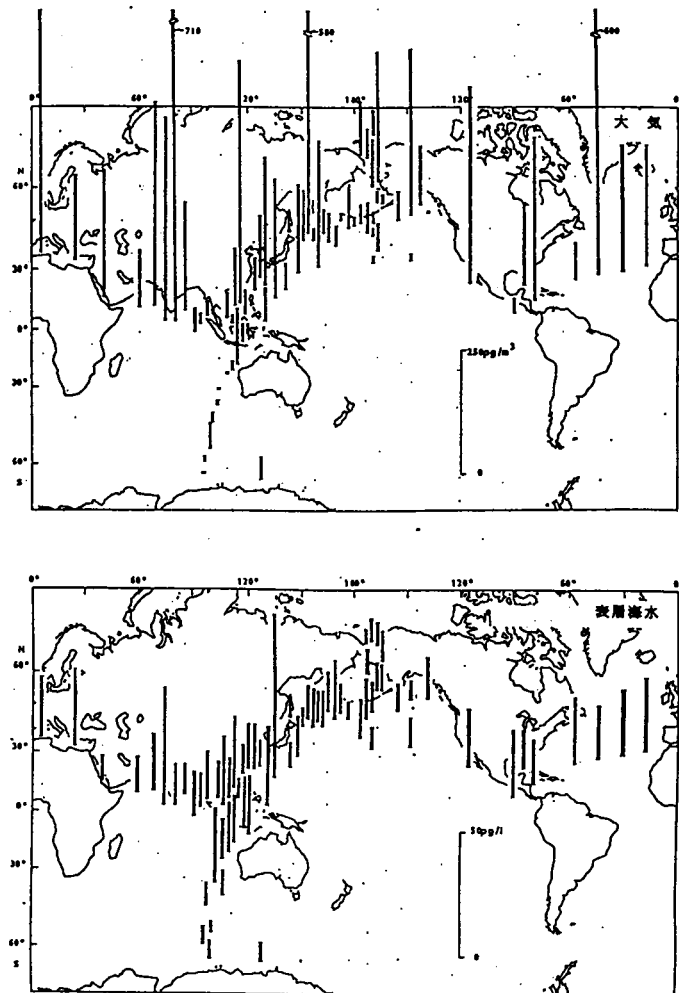


図4： 外洋の大気および表層海水に残留するPCBの濃度分布

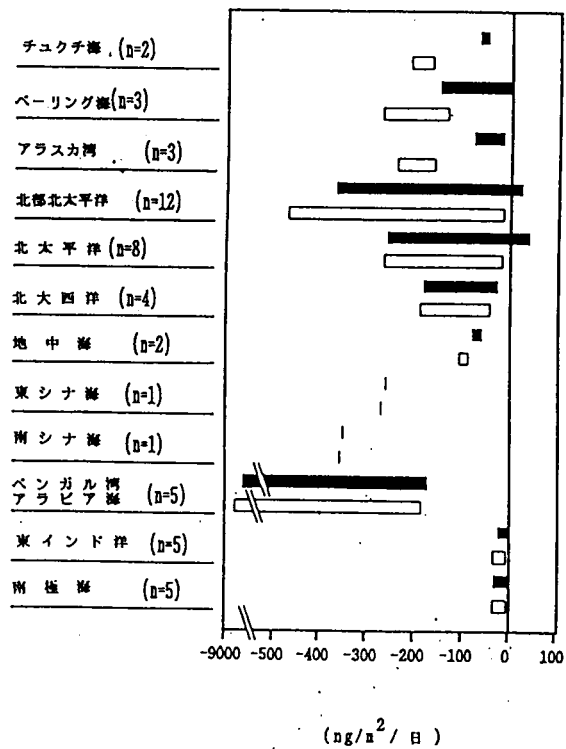


図5： 外洋の大気・表層海水間におけるHCHのフラックス。
黒の棒は水中に溶存態として存在する場合のフラックス、
白の棒は吸着態として存在する場合のフラックスを示す

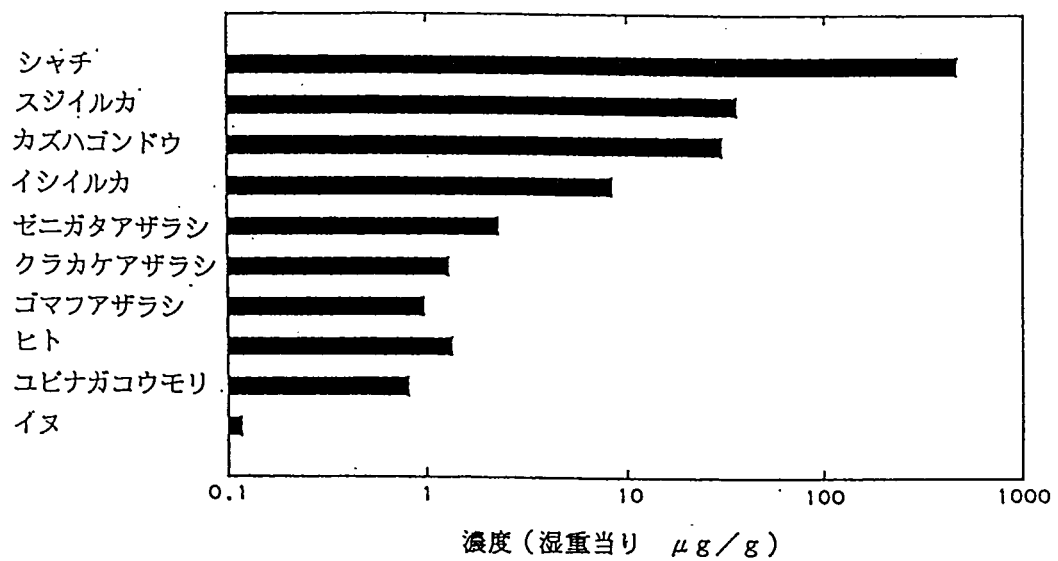


図 6 : 日本産および北西太平洋産の哺乳動物に残留する PCB 濃度

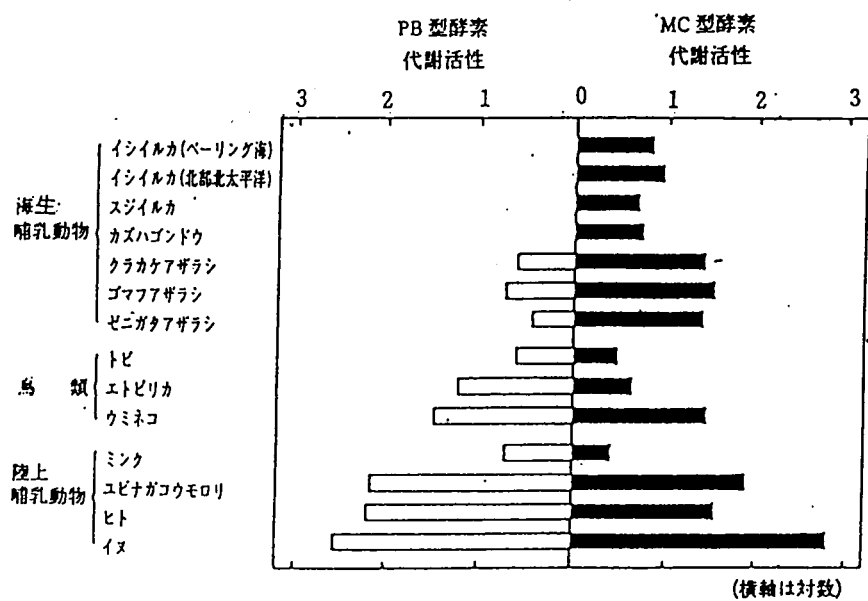


図 7 : 野性動物におけるフェノバルビタール (PB) 型およびメチルコラントレン (MC) 型の薬物代謝酵素活性

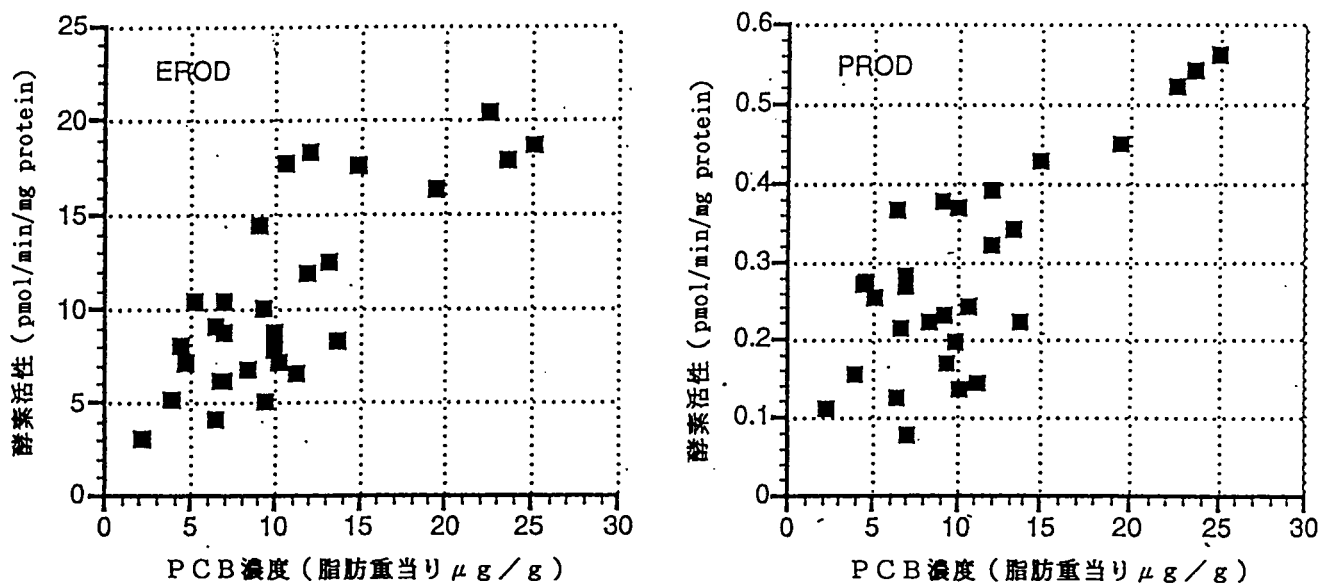


図8： キタオットセイにおけるP C B残留濃度と薬物代謝酵素活性との関係
 EROD: 7-ethoxyresorufin O-deethylase, PROD: pentoxiresorufin O-deethylase

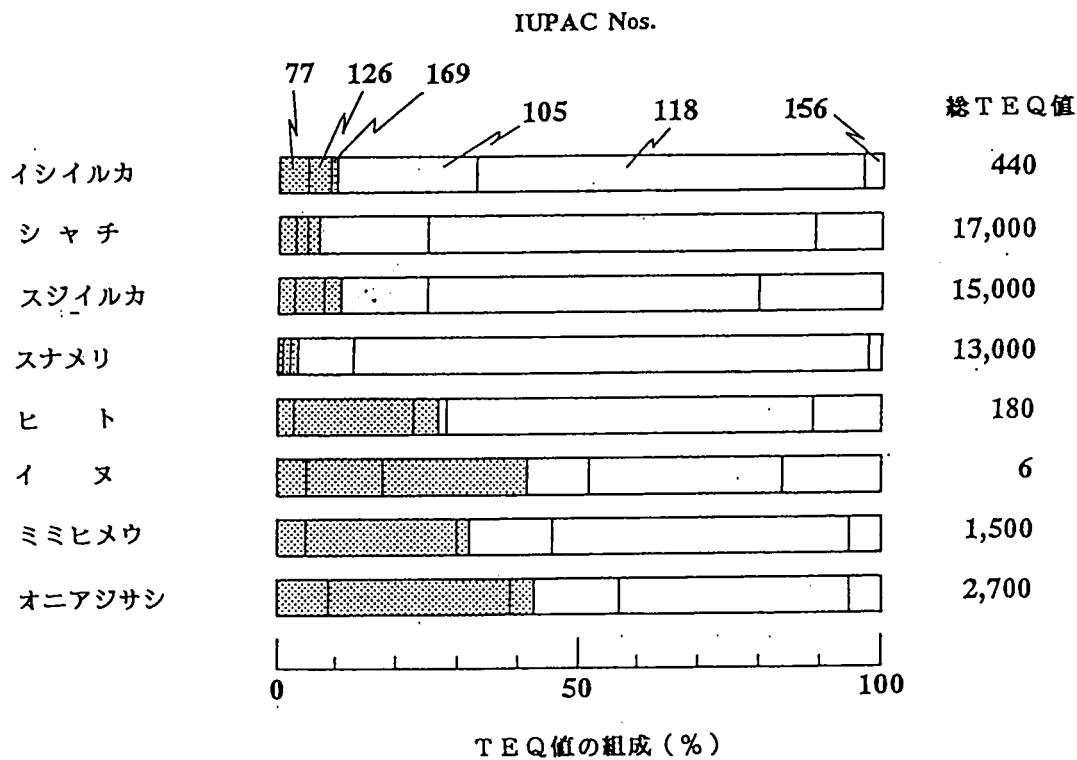


図9： 野性動物から検出したノンオルソ (IUPAC No.77, 126, 169) および
 モノオルソコプラナP C B (IUPAC No.105, 118, 156) のダイオキシン
 等量毒性値 (TEQ: pg/g湿重) とその組成

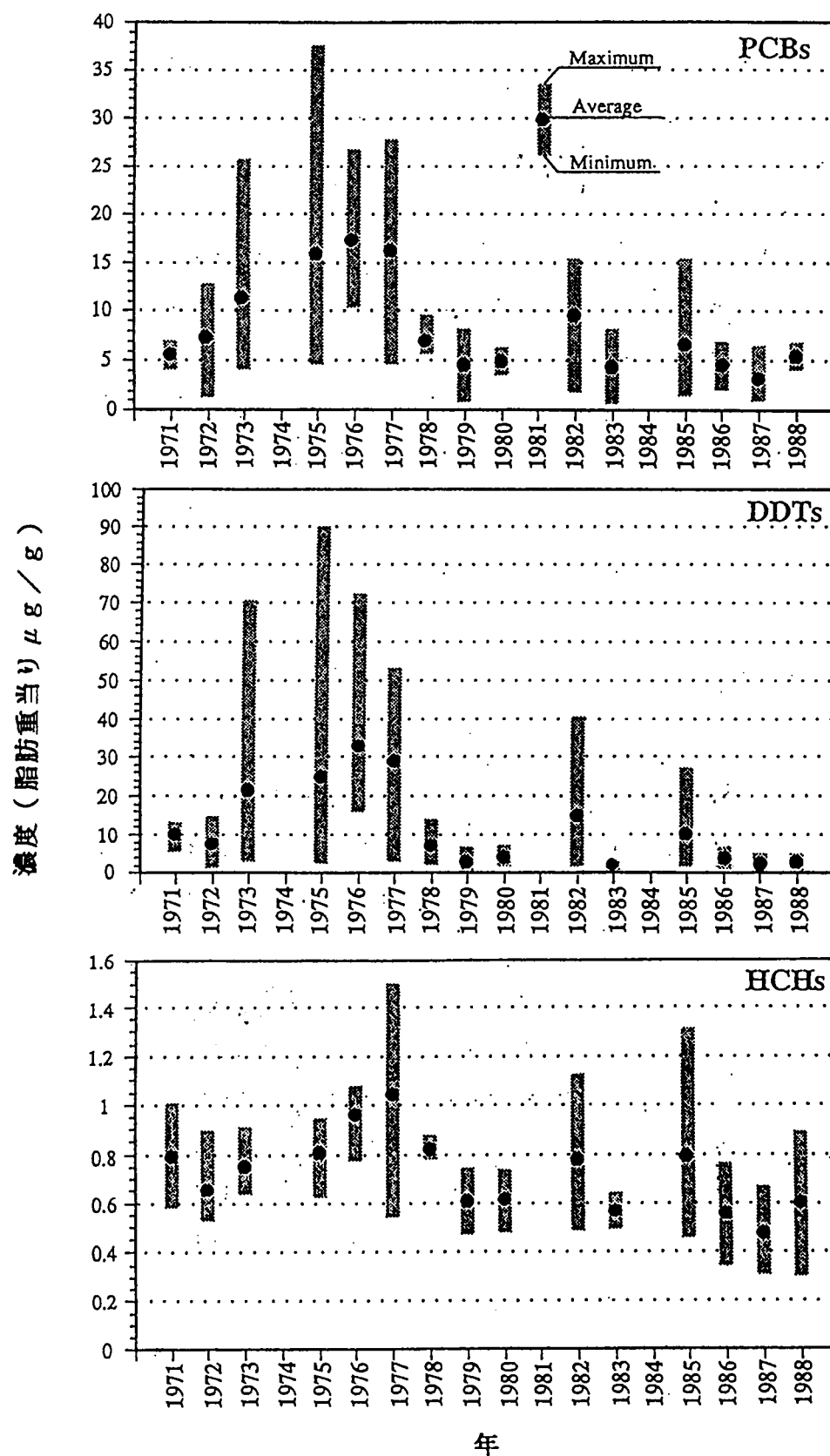


図10： キタオットセイから検出した有機塩素化合物濃度の経年変動 (1971年～1988年)