

博士論文

地域性を考慮した銅の環境リスク評価

-水産養殖が盛んな海域を事例として-

Site-specific ecological risk assessment of copper

- A case study of embayment with active aquaculture industry -

19WA002 田井 梨絵

指導教員

中村由行 教授

横浜国立大学大学院 都市イノベーション学府

都市イノベーション専攻

2021 年 3 月

# 目次

第1章	研究背景	1
1.	持続可能な海域利用を目指す世界の潮流	1
2.	養殖業における持続可能性	2
2.1.	世界の水産業の現状	2
2.2.	日本の水産業の現状	3
2.3.	養殖業の諸課題	4
2.4.	ASC 認証について	4
3.	海域における防汚塗料の使用について	5
3.1.	防汚塗料の効果	5
3.2.	世界における防汚塗料使用の歴史	5
4.	防汚塗料のリスク評価・管理による持続可能性	7
4.1.	TBT の塗装禁止に伴う生態リスク評価の実施例	7
4.2.	銅ピリチオンに対する生態リスク評価の実施例	8
4.3.	諸外国における銅に対する生態リスク評価の動向	9
5.	日本国内の環境基準の設定の動向と日本沿岸域における海水中銅濃度の現状	9
6.	本章のまとめおよび本研究の目的	12
	参考文献	13
第2章	問題設定	16
1.	はじめに	16
2.	対象海域について	17
	参考文献	22
第3章	地域性を考慮しない種々のレベルの生態リスク評価の実施およびその結果の比較	23
1.	はじめに	23
2.	生物利用可能性について	23
3.	生物利用可能性を考慮したリスク評価の現状	24
4.	方法	25
4.1.	曝露評価	25
4.2.	有害性評価	26
4.3.	スクリーニングレベルの評価手法	28
4.3.1.	EU RAR における評価手法	28
4.3.1.1.	一般的な化学物質に対する評価手法（生物利用可能性を考慮しない手法）	28
4.3.1.2.	生物利用可能性を考慮する手法	28

4.3.2.	U.S.EPA における評価手法.....	29
4.3.2.1.	一般的な化学物質に対する評価手法 .....	29
4.3.2.2.	Marine BLM を用いた生物利用可能性を考慮する手法.....	29
4.4.	リスク評価 .....	30
5.	結果および考察 .....	30
5.1.	曝露評価 .....	30
5.2.	有害性評価 .....	32
5.2.1.	日本の環境省における手法.....	33
5.2.2.	EU RAR における手法 .....	33
5.2.2.1.	EU RAR における種の感受性分布による手法 .....	33
5.2.2.2.	EU RAR における DOC 補正を行う手法 .....	34
5.2.3.	米国における手法 .....	35
5.2.3.1.	EPA 水質クライテリアにおける手法.....	35
5.2.3.2.	BLM を用いた手法 .....	35
5.3.	リスク判定 .....	35
5.3.1.	生物利用可能性を考慮しない手法を用いたリスク判定結果.....	35
5.3.2.	すべての手法を用いたリスク判定結果 .....	36
5.3.3.	同じ湾内での複数地点における HQ の比較 .....	37
6.	考察.....	38
6.1.	海水中銅濃度データについて .....	38
6.2.	有害性評価に使用するデータの信頼性について .....	39
6.3.	各有害性評価手法による結果の違い .....	39
6.4.	今後のリスク管理のために .....	41
7.	まとめ .....	41
	参考文献.....	42
第4章	地域性を考慮したリスク評価を行うための生態毒性試験.....	45
1.	はじめに .....	45
2.	対象海域および供試生物 .....	45
2.1.	対象海域 .....	45
2.2.	供試生物 .....	46
2.2.1.	マガキ ( <i>Crassostrea gigas</i> ) .....	46
2.2.2.	エゾアワビ ( <i>Haliotis discus hannai</i> ) .....	46
2.2.3.	キタムラサキウニ ( <i>Strongylocentrotus nudus</i> ) .....	47
2.2.4.	マボヤ ( <i>Halocynthia roretzi</i> ) .....	47
2.3.	各供試生物に対する試薬の調製.....	47
3.	方法および結果 .....	48

3.1. マガキ ( <i>Crassostrea gigas</i> )	48
3.1.1. 試験方法	48
3.1.2. 結果	50
3.2. エゾアワビ ( <i>Haliotis discus hannai</i> )	56
3.2.1. 試験方法	56
3.2.2. 結果	57
3.3. マボヤ ( <i>Halocynthia roretzi</i> )	59
3.3.1. 試験方法	59
3.3.2. 結果	61
3.4. キタムラサキウニ ( <i>Strongylocentrotus nudus</i> )	63
3.4.1. 試験方法	63
3.4.2. 結果	66
3.5. 各生物に対する銅の毒性の種間差	68
4. DOC が銅の毒性へ与える影響	70
5. まとめ	71
参考文献	73
第5章 地域性を考慮したリスク評価を行うための現地調査	77
1. はじめに	77
2. 対象海域の特徴	77
3. 現地調査	77
3.1. 調査時期および調査地点	77
3.2. 調査方法	78
4. 結果	81
5. まとめ	87
参考文献	88
第6章 リスク評価とシナリオ分析	93
1. はじめに	93
2. 現地調査結果を用いた、宮城県志津川湾における生態リスク評価	93
2.1. スクリーニングレベルのリスク評価結果	93
2.2. 生態毒性試験の結果と現地調査結果の比較	94
2.3. Biotic Ligand Model を使用した生物利用可能量と現地調査結果の比較	96
3. シナリオ分析	97
3.1. MAMPEC について	97
3.2. 使用するパラメータの収集	99
3.3. 感度分析	101
3.4. シナリオの設定	105

3.5. シナリオ解析結果.....	106
4. 考察 .....	109
4.1. 海水交換に関する湾内の銅濃度変動の考察 .....	109
4.2. 長期的な関係作りの重要性.....	109
5. まとめ .....	110
参考資料.....	111
第7章 総括・今後の課題.....	112
1. 本研究のまとめ .....	112
2. 今後の「地域性を考慮したリスク評価」のフレームの作成 .....	112
3. 今後の課題.....	114
謝辞.....	116

## 図表目次

図 1-1 Sustainable Development GOALS (SDGs)の各目標（国連広報センターHP から引用 <a href="https://www.unic.or.jp/files/sdg_poster_ja.png">https://www.unic.or.jp/files/sdg_poster_ja.png</a> ） .....	1
図 1-2 World fish utilization and apparent consumption（FAO, 2020. THE STATE OF WORLD FISHERIES AND AQUACULTURE から引用） .....	2
図 1-3 World capture fisheries and aquaculture production（FAO, 2020. THE STATE OF WORLD FISHERIES AND AQUACULTURE から引用） .....	3
図 1-4 持続可能な漁業で獲られた水産物の認証制度である MSC 認証および持続可能 な養殖により生産された水産物の認証である ASC 認証のラベル .....	4
図 1-5 現在登録されている船底塗料（日塗工登録非有機スズ防汚方法リストから作成. 2019 年 6 月 14 日時点） .....	7
図 1-6 水生生物保全に係る環境基準項目の検討状況（環境省, 2009）から作成 .....	10
図 2-1 発生から影響の発現まで（中西ら, 2008 から引用. 筆者作成） .....	17
図 2-2 志津川湾 .....	18
図 3-1 水中における生物利用可能性 (Bioavailability) に関わる金属の存在形態のイメ ージ .....	24
図 3-2 日本沿岸海域について収集した海水中銅濃度データ（1981～2012 年, 総測定値 数=1622）の頻度分布 .....	31
図 3-3 海域別に整理した日本沿岸海域の海水中銅濃度（1981～2012 年, 総測定値数= 1622） .....	32
図 3-4 EU RAR に記載された有害性データ（表 3-1）で作成した種の感受性分布 .....	34
図 3-5 DOC 補正式を用いて有害性データ（表 3-1）を補正し作成した種の感受性分布 .....	34
図 3-6 生物利用可能性を考慮しない 3 手法による全国 1622 データの海水中銅濃度の HQ の累積頻度分布 .....	36
図 3-7 銅濃度および水質データをすべて収集できた海域に対する異なる手法を用いた リスク判定結果の比較（銅濃度の 95 パーセンタイル値とその他の水質の幾何平均 値を代表値として各海域で評価） .....	37
図 3-8 5 手法で算出した PNEC を用いた東京湾におけるリスク判定結果 .....	38
図 3-9 5 手法で算出した PNEC を用いた大阪湾におけるリスク判定結果 .....	38
図 3-10 図 3-4 から日本近海に生息する種のみを抽出して作成した SSD .....	39
図 3-11 各方法による PNEC 算出結果の比較 .....	40
図 4-1 サンプルング地点および試験実施地点 .....	46
図 4-2 <i>C. gigas</i> の幼生の一例 (a) 8 細胞期の幼生 (b) D 型幼生 (c) 異常発生幼生 .....	51
図 4-3 測定された銅濃度の相対誤差 .....	52

図 4-4 <i>C.gigas</i> に対する各試験海水の用量反応曲線.....	53
図 4-5 <i>H. discus</i> の幼生の一例 (a) 受精から 42 時間経過時点の正常ベリジャー幼生 (b) 42 時間経過時点の異常個体 (トロコフォア幼生期で成長が止まり休みなく回転運動を続ける状態) (c) 受精から 42 時間経過時点の正常ベリジャー幼生が蓋を閉めている状態 (d) 42 時間経過時点の異常個体 (発生は途中まで進んでいるが卵膜から出られず膜内で回転運動をしている状態) .....	57
図 4-6 <i>H. discus</i> に対する用量反応曲線.....	58
図 4-7 <i>H. roretzi</i> の受精卵の収集方法 (千葉 (2017) から引用) .....	59
図 4-8 <i>H. roretzi</i> 胚および幼生の写真 (各写真内の格子の 1 辺が 1 mm) (a) 正常に孵化した浮遊幼生 (b) 尾部が折れ曲がった異常幼生(中央) (c) 高濃度に暴露されたときの異常幼生 (d) 発生異常胚を含むふ化直前の未孵化卵 (正常に発生が進行していても試験終了時点では異常として扱う) .....	60
図 4-9 <i>H. roretzi</i> に対する各試験海水の用量反応曲線 .....	61
図 4-10 (a) 未受精卵 (b) 正常に受精膜が上がった直後の受精卵.....	63
図 4-11 ウニの発生過程 (a) 2 細胞期 (b)16 細胞期 (c) 桑実胚 (d) 後期間充細胞胚から初期囊胚 (e) 初期プリズム胚 (f) 後期プリズム胚.....	64
図 4-12 異常胚の一例 (a) 受精後 3 時間の卵. 等卵割にならず大きさに差がある (b) 受精直後 3 時間の卵. 侵入した精子数により分割の仕方は異なる (c) 受精後 19 時間 (d) 受精後 24 時間 (e) 高濃度区での異常受精.....	66
図 4-13 <i>S.nudus</i> に対する各試験海水の用量反応曲線.....	67
図 4-14 生物ごとの EC10 の違い .....	68
図 4-15 第三章で用いた種の感受性分布と本生態毒性試験結果の比較 .....	69
図 4-16 2012 年から 2014 年における日本沿岸域における DOC 濃度.....	70
図 4-17 マガキ、エゾアワビ、マボヤ、キタムラサキウニに対する生態毒性試験方法の違いの概要 .....	72
図 5-1 志津川湾における調査地点.....	78
図 5-2 各調査時における全形態銅濃度の幾何平均値 (最大値-最小値) [μg/L].....	84
図 5-3 各調査時における溶存銅濃度の幾何平均値 (最大値-最小値) [μg/L].....	84
図 5-4 志津川湾における全形態銅濃度の季節変動 (最大値-95%-中央値- 5 %-最小値) .....	85
図 5-5 志津川湾における溶存銅濃度の季節変動 (最大値-95%-中央値- 5 %-最小値) .....	85
図 5-6 志津川湾の全調査日における地点ごとの全形態銅濃度中央値 .....	86
図 5-7 志津川湾の全調査日における地点ごとの溶存銅濃度中央値.....	87
図 6-1 各調査日における全地点幾何平均海水中溶存銅濃度とスクリーニングレベルの予測影響濃度(PNEC)の比較.....	94

図 6-2 海水中平均溶存銅濃度と現場の水産重要種の 10%影響濃度(EC10)の比較.....	94
図 6-3 St.1 の各調査日における溶存銅濃度と各供試生物の EC10 の比較.....	95
図 6-4 St.3 の各調査日における溶存銅濃度と各供試生物の EC10 の比較.....	95
図 6-5 現場調査結果の溶存銅濃度と Marine-BLM を用いた生物利用可能量との比較 .....	96
図 6-6 MAMPEC で用意されている環境タイプ .....	97
図 6-7 MAMPEC で計算される港湾内および周辺海域 .....	98
図 6-8 MAMPEC での計算の流れ .....	98
図 6-9 MAMPEC に使用する志津川湾の湾口部幅、湾奥幅、長さ .....	99
図 6-10 MAMPEC による計算で使用するインプットパラメータ（文献値） .....	99
図 6-11 MAMPEC による計算で使用するインプットパラメータ（現地観測値） .....	100
図 6-12 各調査月の平均風速および最大風速[m/s].....	100
図 6-13 各調査月の平均潮汐（最大－最小） .....	101
図 6-14 総溶出量を 1500 g/日としたときの MAMPEC 計算結果.....	101
図 6-15 総溶出量を 2000 g/日としたときの MAMPEC 計算結果.....	102
図 6-16 総溶出量を 3000 g/日としたときの MAMPEC 計算結果.....	102
図 6-17 総溶出量を 3500 g/日としたときの MAMPEC 計算結果.....	102
図 6-18 総溶出量を 4000 g/日としたときの MAMPEC 計算結果.....	103
図 6-19 総溶出量を 5000 g/日としたときの MAMPEC 計算結果.....	103
図 6-20 総溶出量を 6000 g/日としたときの MAMPEC 計算結果.....	103
図 6-21 現場調査結果および現況解析結果の比較.....	104
図 6-22 宮古における降水量と閉伊川の流量の経時変化（1997 年～2001 年） .....	105
図 6-23 海水中銅濃度のシナリオごとの最大濃度の変化 .....	107
図 6-24 現況解析結果（図 6-16）を元に、生簀を化繊製から銅製へすべて置き換えた場 合の海水中銅濃度の推算結果.....	107
図 6-25 現況解析結果および養殖生簀を銅合金製生簀に置き換えた際のシナリオ解析 結果と各水産重要種における EC10 の比較.....	108
図 7-1 地域性を考慮したリスク評価を実施するためのフレーム（水質について） .	113
図 7-2 地域性を考慮したリスク評価を実施するためのフレーム（対象生物について） .....	114
表 1-1 水域類型ごとの全亜鉛の水質環境基準.....	11
表 3-1 本章におけるスクリーニングレベルのリスク評価の有害性評価に用いた有害性 データ（EU RAR から収集*） .....	27
表 3-2 環境リスク初期評価によるリスク判定結果の分類 .....	30
表 3-3 収集データのうち銅と同時に測定されている水質データ（測定値数＝369）の概	



要	32
表 4-1 各試験生物に対する設定曝露濃度	48
表 4-2 <i>C.gigas</i> 試験における水質パラメータ	50
表 4-3 <i>C. gigas</i> を供試生物とした試験における海水中的設定銅濃度および測定銅濃度	51
表 4-4 <i>C. gigas</i> 毒性試験から算出された影響濃度	53
表 4-5 報告されている <i>C.gigas</i> および近縁種の影響濃度	55
表 4-6 <i>H. discus</i> を供試生物とした試験における海水中的設定銅濃度および測定銅濃度	58
表 4-7 <i>H. discus</i> 毒性試験から算出された影響濃度	58
表 4-8 <i>H. roretzi</i> 試験における水質パラメータ	61
表 4-9 <i>H.roretzi</i> . 毒性試験から算出された影響濃度	62
表 4-10 <i>S. nudus</i> 毒性試験から算出された影響濃度（すべて Nominal concentration）	67
表 5-1 調査日時および地点名	77
表 5-2 各調査日における志津川湾内の水質（中央値）	81
表 5-3 各調査地点における志津川湾内の水質（中央値）	83
表 5-4 各調査時の水質項目および海水中銅濃度の測定結果	89
表 6-1 設定シナリオ	106
表 6-2 各シナリオの総溶出量[g/日]	106
写真 2-1 東日本大震災前の志津川湾（左：宮城県漁協志津川支所提供）と現在の志津川湾．養殖施設が大幅に削減されたことが分かる． （ <a href="https://www.wwf.or.jp/activities/activity/3749.html">https://www.wwf.or.jp/activities/activity/3749.html</a> から引用）	19
写真 2-2 志津川湾で観察される渡り鳥のコクガン（南三陸観光協会 HP（ <a href="https://www.m-kankou.jp/mina_repo/232014.html/">https://www.m-kankou.jp/mina_repo/232014.html/</a> ）から引用）	19
写真 5-1 2018 年 8 月調査時の各調査地点の全景（St.1, 2, 3, 7）	79
写真 5-2 2018 年 8 月調査時の各調査地点の全景（St.8, 11, 12, 13, 14, 15）	80
写真 5-3 濾過作業風景	80

## 第1章 研究背景

### 1. 持続可能な海域利用を目指す世界の潮流

持続可能な社会のための開発（Sustainable Development）を目標とした理念が初めて提言されたのは1980年に国際自然保護連合（IUCN）と国際環境計画（UNEP）などが取りまとめた、「世界保全戦略」である（EIC, 2015）。これは、国連人間会議（1972年）の人間環境宣言や行動計画に示された原理を発展させ、具体的な行動指針として展開したものである。この戦略の中で、人類存続のための自然資源の保全として、「持続可能な開発」と初めて公表された。持続可能な開発は、1992年に開催された国連地球サミットの中心概念として、「環境と開発に関するリオ宣言」や「アジェンダ 21」にも取り上げられており、今では地球環境保全の取り組みに大きな影響を与える基本理念となっている。この定義の初出から30年近くの歳月が流れ、2015年には国連総会において、今後15年間の新たな持続可能な開発の指針として、「持続可能な開発のための2030アジェンダ」が採択された。この中に、2015年までのミレニアム開発目標(MDGs)を継承・発展させた「持続可能な開発目標：Sustainable Development Goals (SDGs;図 1-1)」が含まれている。SDGsは貧困、教育格差といった社会的、経済的な課題から環境的な課題まで広く取り上げられており、それらを「17の目標」と「169のターゲット」としてまとめている。SDGsは、現代では今や当たり前となってきた、「自然環境の保全は人類が生存するために必要不可欠な概念である」という事実を、より日々の生活に落とし込むことができる目標であり、世代を超えて人類を存続させるために、迅速に解決すべき目標群である。



図 1-1 Sustainable Development GOALS (SDGs)の各目標（国連広報センターHP から引用  
[https://www.unic.or.jp/files/sdg\\_poster\\_ja.png](https://www.unic.or.jp/files/sdg_poster_ja.png)）

## 2. 養殖業における持続可能性

### 2.1. 世界の水産業の現状

日本は超少子高齢化社会に突入したことにより人口減少に転じているが、世界全体を鑑みると、人口は増加の一途をたどっている。このまま人口増加速度が緩まなければ、世界人口は2050年までには100億人に達する見込みといわれている（FAO, 2020）。この人口増加に伴う食糧危機への対策として、動物性たんぱく質の重要な供給源としての魚食文化が注目されている。図 1-2 に、世界の漁業および養殖業における魚類利用率および消費量を引用した。国連食糧農業機関（Food and Agriculture Organization of United Nations; FAO）によると、人口および、魚介類の一人当たりの見かけ上の消費量は1950年代から現在に至るまで上昇し続けていることが分かる。

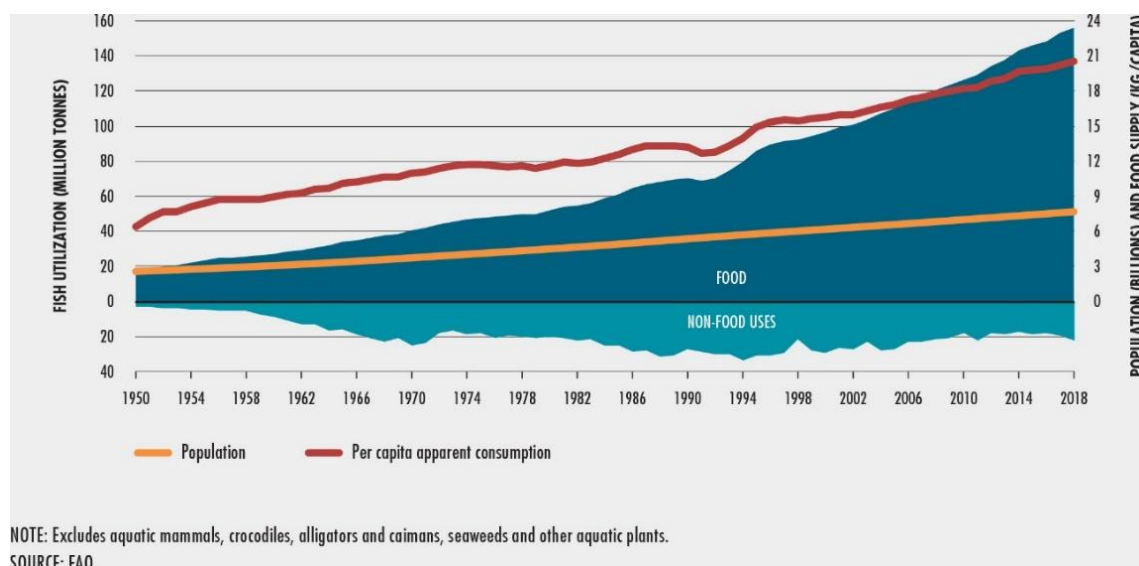


図 1-2 World fish utilization and apparent consumption (FAO, 2020. THE STATE OF WORLD FISHERIES AND AQUACULTURE から引用)

魚介類の供給方法としては、大きく分けて、近海および遠洋における漁獲と、飼育、畜養して成長させたものを漁獲する養殖業にわけられる。その中でも養殖業は野生の海洋生物の漁獲とは異なり、水産資源数の定量的な把握、および人の営みの中でコントロール可能である。FAO は、2020 年 6 月 8 日に世界漁業・養殖白書（The State of World Fisheries and Aquaculture; SOFIA）を公表した。この白書は、エビデンスに基づく施策を支援するために、漁業・養殖セクターに関する最新統計を提供し、現状かつ新規の課題や持続的漁業・養殖を達成するための国際協力推進アプローチの分析を試みている（国際農研, 2020）。図 1-3 に、世界の漁業の規模の推移を示す。近年、世界の漁獲量の中で、養殖業の割合は増加傾向にある（FAO, 2020）。

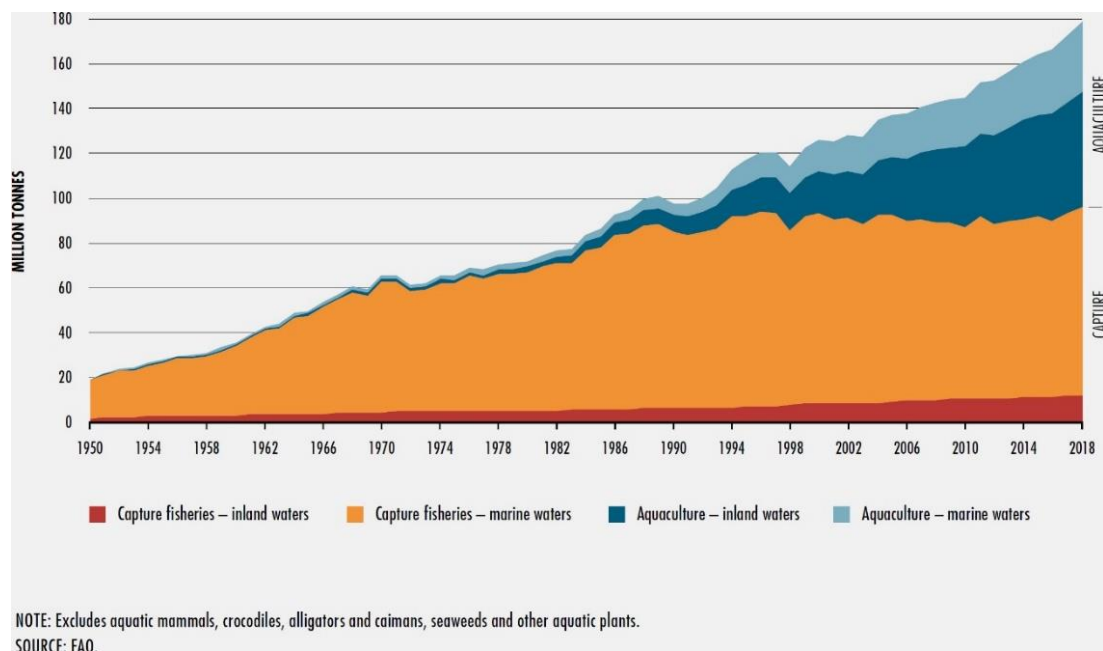


図 1-3 World capture fisheries and aquaculture production (FAO, 2020. THE STATE OF WORLD FISHERIES AND AQUACULTURE から引用)

## 2.2. 日本の水産業の現状

鮨や刺身を代表するように、日本の魚食文化は世界で広く親しまれている文化のひとつである。しかし、日本の水産業は海外諸国と比較して、しばしば持続可能性に対する考慮が不足していると非難されてきた。勝川（2012）によると、日本は島国であるため、魚食文化自体は古くから存在していたが、全国に広まったのは第二次世界大戦後の1940年代後半からである。敗戦直後の日本は深刻な食糧難に見舞われており、たんぱく源を生産する余裕が皆無であったため、国民に動物性たんぱく質を供給するために漁業が発達した。さらに冷蔵庫が普及されてからは、高度経済成長期の影響もあり、魚介類の消費量は緩やかに増加を続け、2001年にピークを迎えた。現在では日本における漁業・養殖業生産量に占める養殖業の割合は20%をわずかに超える水準にとどまっており、沿岸漁船漁業の生産量とほぼ同じ水準となっている。一方、FAOによると、世界の養殖業生産量は平成24(2012)年には9,043万トンとなり、漁業・養殖業生産量に占める養殖業の割合は49%に達している。SDGsの流れも汲んでおり、魚食文化は今後さらに世界的に重要な食糧調達手段とされるであろう。また、日本の魚食文化の継承のためにも、日本においても水産養殖が今後さらに重要な役割を果たすと考えられる。

一方で、日本の水産物の漁獲量は、年々減少傾向である。近隣国との漁獲競争が起こっていることや、日本の公的機関による漁獲規制がほとんど存在しないことによる乱獲による資源量の減少が理由として挙げられるが、養殖業においての大きな理由のひとつとして、超高齢化社会による漁業者の減少が挙げられる。人口の都市集中および漁村の高齢化に伴い、

漁業従事者の数は減少傾向である。後継者を育てるという大きな課題があるが、現在の漁業従事者に対するケアとして、重労働な量や時間の削減、および効率化も重要な課題の一つである。

### 2.3. 養殖業の諸課題

養殖業は世界において重要な食糧供給源となり得るため、年々養殖による漁獲量は増加しているが、現状の養殖において、持続可能な社会を作る視点においては、①養殖場建設による自然環境破壊、②養殖している生物による糞などによる水質汚染、③養殖している生物を病気から守るために投与する抗生物質や栄養剤といった薬物の過剰投与、④餌となる生物の過剰供給による生簀付近の底質の汚染、⑤病害虫の自然界への拡散、⑥養殖場から逃げ出した個体による外来種問題、といった課題が挙げられている（WWF, 2013）。これらの課題を解決するために、近年は世界の養殖貿易市場において、漁業資源の持続性についてのエコラベルや民間規格、食品の安全性や品質に潰えの民間規格などが作られており、重要な役割を果たしている（水産研究・教育機構）。

### 2.4. ASC 認証について

持続可能な漁業の推進のための民間の認定のひとつに、海洋管理協議会（Marine Stewardship Council: MSC）および水産養殖管理協議会（Aquaculture Stewardship Council: ASC）が設定している認証制度がある。この認証制度は、2010年に世界自然保護基金（WWF）とオランダの持続可能な貿易を推進する団体 IDH（Dutch Sustainable Trade Initiative）の支援のもと設立された。持続可能な漁業のため、責任ある養殖水産物のための認証とラベリングの制度で、「海のエコラベル」と呼ばれている。ASC 認証の規格が作成されている養殖水産種は、2016年3月1日現在、ティラピア、バンガシウス（ナマズ類）、二枚貝（カキ、アサリ、ホタテ等）サケ類、淡水マス類、アワビ、エビ、ブリ類・スズキ類である。ASC 認証は生物種ごとに規格が作成されており、他の養殖種についても、順次作成途中である。



図 1-4 持続可能な漁業で獲られた水産物の認証制度である MSC 認証および持続可能な養殖により生産された水産物の認証である ASC 認証のラベル

日本でも ASC 認証の取得が進んでいる。ASC のウェブサイトでは、認証を取得した水産物や水産加工商品がすべて一覧できるが、日本では 2021 年 2 月時点で、328 件の商品がヒットする (ASC, 2021)。例えば、宮城県南三陸のカキ養殖は、2016 年に日本で初めて ASC 認証を取得した。2018 年には、年間 900 トンの認証カキが出荷されている。これは宮城県南三陸で揚げられた養殖カキのうち、総出荷量の半数が認証を受けていることになる (WWF, 2018)。その後、ブリ、カンパチ、マダイ、おおよびギンザケなどの魚類養殖においても全国的に認証取得がすすんでいる。認証取得までには厳しい審査があり、それらが合格基準にまで達成することによって、持続可能性を考慮した自然配慮型の水産物だとはじめて認証される。大手小売企業のイオンや外資系飲食チェーンのマクドナルドでは、ASC および MSC 認証を取得した水産物を優先的に購入することが明言されている。SDGs の目標のひとつである「海の豊かさを守ろう」という標語のもと、海に対する関心が今まで以上に高まってきている昨今、このような民間ラベルの重要性がますます強まっていくと考えられる。

### 3. 海域における防汚塗料の使用について

#### 3.1. 防汚塗料の効果

人が海上を利用するとき、必ず考慮すべきは固着生物との折り合いの付け方である。藻類やカキ類、イガイ類、ホヤ類といった固着性生物は、船舶や洋上構造物に固着し、生涯をそこで過ごす。このような生態学的特徴によって、水中の人工構造物に好ましくない影響を及ぼす生物たちは、まとめて「汚損生物 (Fouling organism)」と称されている (高橋, 2010; Fitridge et al., 2012)。洋上の人工構造物に汚損生物が固着することにより、船舶においては、船底部において表面平滑性が失われ、海水の抵抗が増加することによって運航速度の低下、燃料消費量の増加、汚損生物除去の経済的損失等が発生する。また、生簀においては、網目に藻類等が付着して生簀内外の海水交換が滞ることによって、生簀内で畜養されている生物が酸欠になったり寄生虫被害が増大したりする。生簀を清掃する際は、汚損生物を高圧洗浄で除去するが、その際に洗浄したごみが海に流入することによって、寄生虫や外来種、および汚染地域の拡大などが問題視されている (Floerl et al., 2016)。また、寄生虫駆除のために抗生物質の投与量が増加し、環境汚染につながる。このような諸問題を解決するために、海域での産業において防汚塗料は必要不可欠な存在である。

#### 3.2. 世界における防汚塗料使用の歴史

海域の産業の発展と持続性は、防汚塗料によって担保されてきた。船底防汚塗料の歴史は古く、紀元前には既に、タール、水銀、銅などが用いられていたといわれている (千田, 2005)。1850 年代に、中国から英国へ紅茶を輸送するために開発された快速船のうち現存する唯一の帆船であるカティサーク号も、船底には銅板が貼られている。

海面養殖においても、防汚塗料は重要な役割を果たす。日本において、漁網を用いた養殖業は、戦後 1954 年から、近畿大学白浜臨海研究所にて網生簀養殖試験が開始されたことが

始まりと言われている（原田, 1965）。1954 年当時の生簀には、柿渋などで染められた綿糸製、またはコールタールで染めたシュロ製網が使用されていた。特にシュロ製網は繊維が太いため、生簀内外の海水の交換が悪かったため網目の汚れが早く、頻繁に交換する必要があった。さらに、重くかさばることから、作業には大変な労力が費やされた。その後、化繊網の技術が発達し、現在ではポリエチレン製をはじめとした様々な種類の素材が使用されている。一方、近代になり化学物質の合成の研究が発展すると、防汚塗料の開発も盛んにおこなわれるようになった。1960 年代には、有機スズ化合物の一種であるトリブチルスズ (TBT) の防汚力は重宝され、一躍使用頻度が高まった。わが国においても、外洋航行船舶、漁船、養殖関連施設、および、定置網漁具などの大型漁網に付着する生物の除去のために、TBT 系防汚塗料に依存していた（里見・清水, 1992）。

しかし、世界的に TBT の使用量および使用頻度がともに急速に高まった結果、負の影響が指摘されるようになった。とくに二枚貝に対する影響は深刻で、英国では、ヨーロップチヂミボラ (*Nucella lapillus*) のメスの個体にオスの生殖器が発現する、インボセックスという奇形の発生が観測されるようになった。また、カキ養殖が盛んなフランスのアルカション湾では、養殖業に多大な損失をもたらした。この影響を鑑み、わが国では 1990 年 1 月にビス（トリブチルスズ）＝オキシド (TBTO) が「化学物質の審査および製造等の規制に関する法律」において第一種特定化学物質に、同年 9 月にはその他 13 種類の TBT が第二種特定化学物質に指定され、運輸省や水産庁により使用を自粛する指導が実施された。そして 2001 年には、国際海事機関 (IMO) において、有機スズを禁止する国際条約である AFS 条約 (the International Convention on the Control of Harmful Anti-Fouling System on Ships, 2001; 船舶の有害な防汚方式の規制に関する国際条約) が採択され、2008 年からは船体の塗装が世界的に禁止された。また、漁網への使用は船底防汚塗料に先立って 1987 年に禁止された（里見・清水, 1992）。

現在、多くの船の船底は赤く塗られており、これは防汚塗料として使用されている亜酸化銅 ( $\text{Cu}_2\text{O}$ ) の色である。日本においては、日本塗料工業会が流通している防汚塗料をすべて公開している (<https://www.toryo.or.jp/jp/anzen/imo/index.html>)。図 1-5 に示すように、日本塗料工業会の公開資料によると、現在登録されている船底塗料の約 8 割が  $\text{Cu}_2\text{O}$  および銅化合物を他の物質と混合して調製された塗料である。



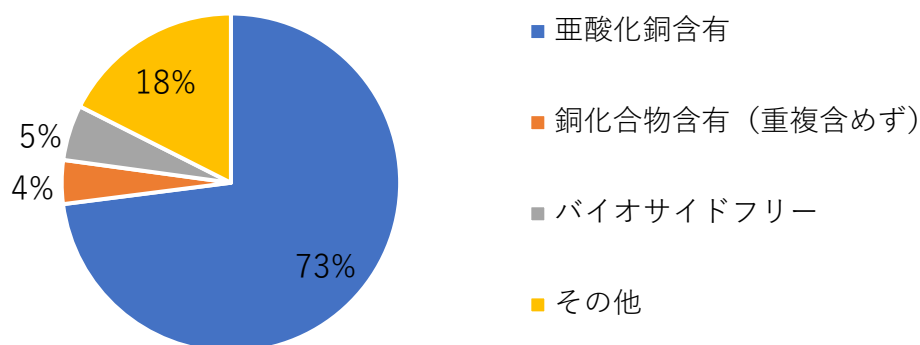


図 1-5 現在登録されている船底塗料（日塗工登録非有機スズ防汚方法リストから作成。  
2019 年 6 月 14 日時点）

#### 4. 防汚塗料のリスク評価・管理による持続可能性

##### 4.1. TBT の塗装禁止に伴う生態リスク評価の実施例

前述のとおり、TBT においては 2008 年に新たな塗装が禁止された。しかし、新規塗装が禁止されたからといって直ちに環境中濃度が減少するわけではない。そのため、特に環境中への残留性が高い TBT については、リスクを把握するための調査やリスク評価が継続的に実施されていた。2006 年には、独立行政法人産業技術総合研究所（当時；現在の国立研究開発法人産業技術総合研究所；産総研）の化学物質リスク管理研究センター（当時 CRM）によって TBT の詳細リスク評価書が刊行された（中西・堀口, 2006）。この詳細リスク評価書では、TBT に対する感受性が極めて高い軟体動物のうち、対象海域である東京湾における水産重要種であるアサリ（*Ruditapes philippinarum*）およびその近縁種であるホンビノスガイ（*Mercenaria mercenaria*）と優占種であるマガキ（*Crassostrea gigas*）を対象に、生態リスク評価を実施している。この評価では、TBT の排出源の検討を行ったうえで、東京湾における 3D の数値計算モデルを用いて、生態リスク評価および対策費用推計を実施している。生態リスク評価の結果、2000 年には一部地点において、*R. philippinarum* に対する成長阻害は起さない濃度レベルであるが、*C. gigas* に対しては切開沈着以上を引き起こすおそれがあることが示唆された。しかし、2007 年には両生物種に対する各リスクは懸念しなくて良いレベルになると示唆された。

その後も TBT に対する生態リスク評価は、いくつかの海域で実施され、報告されている。日本においては、2009 年に山本らによって伊勢湾における生態リスク評価が実施されている（Yamamoto et al., 2009）。伊勢湾における TBT の発生源は商業港および商業船の航路とし、流体力学モデルと生態系モデルを組み合わせ、*C. gigas* に対するリスク評価を実施している。その結果、2008 年における *C. gigas* に対する海水中の TBT のリスクは懸念レベルにないとされているが、底泥中の現存量が 186.8 kg と推定されており、底泥中に蓄積された



TBT による影響がないか監視する必要があるとされている。

海外においても、TBT の生態系に対するリスクは関心が高い。Chien らは、漁師が摂取する TBT、銅、亜鉛、カドミウムおよびヒ素の摂取量を報告している。ここでは、生態系に対して防汚塗料による負荷が高いと、生物濃縮によって私たちヒトに対する健康にも影響を及ぼす可能性が示唆されている (Chien, L. 2002)。

#### 4.2. 銅ピリチオンに対する生態リスク評価の実施例

2001 年に AFS 条約が採択される以前において、防汚塗料における流通の大きな柱であった TBT の代替物質として、非スズ系新規船底塗料 (TF 塗料) が活発に開発されるようになった。銅ピリチオン (Cu-PT) は TF 塗料中の主要な防汚成分であり、現在流通している防汚塗料の 7 割程度に含有されている。銅ピリチオンは有機配位子として 2-pyridinethiol-1-oxide 化合物が導入されており、化学的な活性が高いため非常に分解されやすい。しかし、流通量が非常に多い代替物質は、環境中の挙動や生物への影響を正しく把握するために、リスク評価を実施しておくことは非常に重要である。TBT 同様、CRM から詳細リスク評価書 (中西・堀口, 2006) が発刊されている。ここでは、東京湾での数値モデルを用いたリスク評価が実施されている。Cu-PT の含有率が 3.66 wt% のとき、各港湾の表層水における生態リスクは無視できない程度に高いが、航路におけるリスクは通年で低い結果となった。また、Cu-PT のリスクには季節変動があり、表層水のリスクは秋季から冬季にかけて低くなり、春季から夏季は高い傾向にあった。これは、夏季の植物プランクトンやデトリタスなどの懸濁物質の増加により水中光が低下し、光分解が抑制されたためと考えられている。

環境や産業の持続性は、化学物質の適切な使用と管理によって成り立つ。国内外において、化学物質の排出量の規制量の把握や管理を実施するための法律や、その法律の基準となるような様々なリスク評価が実施されている。日本においては、化学物質の流出の規制に繋がる法律として、「化学物質の審査及び製造等の規制に関する法律」(化審法) がある。化審法では、新規および既存の化学物質を適切に取り扱うために、リスクを定量的に評価するためのリスク評価が行われている。この評価は段階的に行われており、リスクが高い物質を迅速に把握することを目的としている。薬事・食品衛生審議会薬事分科会化学物質安全対策部会化学物質調査会化学物質審議会審査部会中央環境審議会環境保健部会 (厚生労働省, 2010) において、平成 30 年に優先評価化学物質のリスク評価 (一次) の「生態影響に係る評価Ⅱ」において、Cu-PT およびその分解性生物に対するリスク評価の結果が審議された。生態影響に係る有害性評価値として、予測無影響濃度 (生態系に対する無影響濃度予測値; PNEC) が算出されており、Cu-PT においては 0.0000048 mg/L である。Cu-PT について、仮想的排出源 (化審法の製造数量等届出情報に基づく暴露評価において、排出量を推計するために設定する仮想的な排出源のこと。物質別・ライフサイクルステージ別・都道府県別・詳細用途別に設定) ごとの暴露シナリオによる評価では、仮想的排出源の数 9 箇所中 2 箇所がリスク懸念と推定され、船底塗料用防汚剤シナリオによる評価では、10 港湾中 8 か所の港湾部がリ

スク懸念と推定された（環境省, 2019）。今後さらなる詳細なリスク評価の実施が検討されており、養殖漁網用防汚剤シナリオによるリスク水系評価についても議論されている（経産省, 2019）。

#### 4.3. 諸外国における銅に対する生態リスク評価の動向

ほとんどの微量元素は、低濃度では生物にとって必須微量栄養素として作用するが、高濃度では毒性作用を示す（Driscoll et al., 1994）。船底や生簀の防汚塗料に使用されている通り、銅も海洋生物相に有害な影響を与える。特に、イガイ類やカキ類などの軟体動物や、ウニなどの棘皮動物、ホヤなどの脊索動物といった無脊椎動物、および藻類は、銅に対しての感受性が一般的に高い。わが国の近海および沿岸域における銅の生態リスクを評価するためには、まずは当該海域の特徴とそれに伴うリスクを定性的に把握する必要がある。

諸外国において、銅は水生生物に対する毒性が強い物質であるという共通認識のもと、各国の沿岸域における海水中の銅濃度の分析や、様々な生物に対する生態毒性試験が実施されている。また、それらのデータを用いて定期的にリスク評価が実施されている。例えば、Hall ら（1999）は、ヨーロッパの複数の海域において、全形態および溶存態の海水中銅濃度の生態リスク評価を行った。同じ海域内においても、複数地点において、海水中銅濃度と予測無影響濃度（PNEC）の比較を行った。Arnold ら（2007）は、サンフランシスコ湾内の複数地点の海水中銅濃度および溶存有機炭素（Dissolved Organic Carbon; DOC）濃度を測定し、リスク判定を行った。Hall ら（1998）は、河川からの流入負荷が大きいチェサピーク湾において、急性毒性および慢性毒性の有害性データを用いて短期曝露および長期曝露時の生態系への影響を統計的に評価した。Schuler ら（2008）は、フロリダ南部で間隙水を用いたリスク評価を行った。Katrantsas ら（2003）は、船底防汚塗料使用による銅の溶出によって、船底塗料のターゲット生物ではない種に対する毒性評価を実施した。このように、銅に対する生態リスクについては世界中で関心が持たれている。

#### 5. 日本国内の環境基準の設定の動向と日本沿岸域における海水中銅濃度の現状

現在、環境水中における化学物質の規制に係る基準には、化審法のほか、水質汚濁防止法に基づく排水基準や環境基本法に基づく水生生物保全に係る環境基準がある。化審法におけるリスク評価は、この基準と連動して実施されている（環境省環境保健部化学物質審査室, 2019）。水生生物保全に係る環境基準は、平成 13 年から検討対象 787 物質のスクリーニングが開始され、平成 15 年には初めての基準として全亜鉛が設定された（環境省, 2009）。現在は、全亜鉛に加え、ノニルフェノール並びに直鎖アルキルベンゼンスルホン酸及びその塩（LAS）の 3 項目において環境基準が設定されている（環境省, 2017）。今後、当面検討すべき物質として、14 物質が区分されており、銅も含まれている（環境省, 2009）。情報が揃った物質から環境省内検討会において基準化に向けた検討がされているものの、一つ一つの物質に対して時間がかかっている状況であり、銅の基準は、現在はまだ設定されていない。

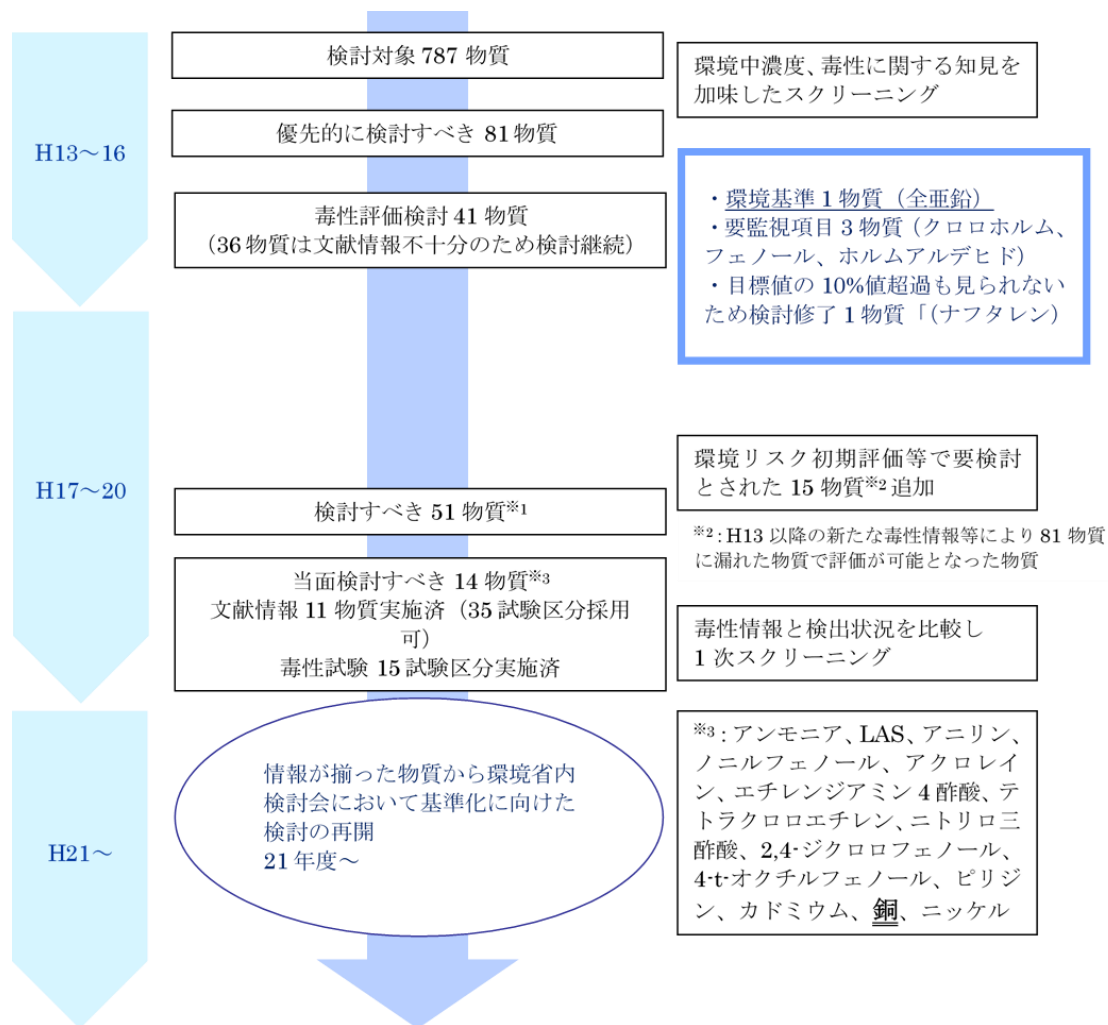


図 1-6 水生生物保全に係る環境基準項目の検討状況（環境省, 2009）から作成

現在、基準が設定されている金属類は全亜鉛のみである。淡水および海水における、生物類型ごとの基準がそれぞれ以下の表のように設定されている。

表 1-1 水域類型ごとの全亜鉛の水質環境基準

水域	類型	類型の説明	基準値
河川及び湖沼	生物 A	イワナ、サケマス等比較的低温域を好む水生生物及びこれらの餌料生物が生息する水域	0.03 mg/L 以下
	生物特 A	生物 A の水域の内、生物 A の欄に掲げる水生生物の産卵場（繁殖場）又は幼稚仔の生育場として特に保全が必要な水域	0.03 mg/L 以下
	生物 B	コイ、フナ等比較的高温域を好む水生生物及びこれらの餌生物が生息する水域	0.03 mg/L 以下
	生物特 B	生物 B のうち、生物 B の欄に掲げる水生生物の産卵場（繁殖場）又は幼稚仔の生育場として特に保全が必要な水域	0.03 mg/L 以下
海域	生物 A	水生生物の生息する水域	0.02 mg/L 以下
	生物特 A	生物 A の水域の内、水生生物の産卵場（繁殖場）又は幼稚仔の生育場として特に保全が必要な水域	0.01 mg/L 以下

このように、水生生物保全に係る環境基準項目の設定のために水域類型が定められているが、全亜鉛に関しては、基準は河川域においてはどの類型も一律の数値となっている。この基準の設定には、淡水魚類の餌料生物の一種であるヒラタカゲロウの急性毒性値を参考に設定された。一方で、パブリックコメントの中には、「最も脆弱な種ひとつに着目して基準値を導出した場合、厳しすぎる基準値となる可能性があるのではないか」、「有用な水生生物にヒラタカゲロウがはいるのはおかしい」といった意見も寄せられている（環境省, 2009）。地域によっては、ヒラタカゲロウに少しの影響も与えてはならないような地域もあれば、もともと亜鉛に対する感受性が低いような生物ばかりが生息しているような地域もあると考えられる。また、ヒラタカゲロウはそもそも海域には生息しておらず、淡水域のデータから得られた基準値を明確な分析結果等がないまま海域に適用することは、不自然とも捉えられる。そのため、どの程度のリスクが許容できるのかを考えた、地域の特徴を考慮した基準の設定方法を考える余地がある。

以上、基準が設定されている亜鉛について述べたが、銅についても同様に考えるべきである。日本が南北に長い島国であり、またリアス式海岸等の入り組んだ閉鎖性が高い海域も多いことから、防汚塗料等の使用量が多い海域とそうでない海域では、海水中の銅濃度に大きく差がある可能性が考えられる。先に述べた有用性の面から、亜鉛と同様に一律の基準を設

定すると、削減対策を実施することが難しい地点も存在すると考えられる。しかし、日本の沿岸域における銅の基準設定を議論するにあたって重要な知見となる生態リスクは、まだ把握されていないのが現状である。

## 6. 本章のまとめおよび本研究の目的

世界の食糧供給課題の解決策として養殖業が期待されている。しかし、持続可能性に対して種々の課題があり、養殖生簀に塗布する防汚剤の流出はその一つと考えられる。防汚剤の利用に対するリスク評価はいくつか実施されているが、銅の溶出に対する海域での生態リスク評価が実施された例はほとんどない。他方、諸外国では、海域ごとの特徴を考慮した基準の設定が行われている。日本においても、銅は環境基準の検討対象物質ではあるものの、まだ日本における環境中の銅の基準設定には至っていない。そこで、本研究は、近年海水中の濃度の上昇が懸念されている銅を対象に、水産重要種に対する生態リスク評価を実施することによって、持続可能な漁業、ひいては、海域ごとの重要種や希少種の保全に資するリスク評価手法の提言とする。

以下に、本論文の構成と概要を示す。

第一章では、現在における持続可能な開発の視点から見る、日本の養殖業の課題や、海水中の防汚塗料濃度および生態リスクの現状をまとめた。第二章では、対象海域である宮城県志津川湾の選定理由、および、宮城県志津川湾における生態リスク評価を実施する背景をまとめる。第三章では、本研究におけるリスク評価の第一ステップとして、地域性を考慮しないいくつかの手法を用いて、日本沿岸域における銅の生態リスク評価を実施する。第四章では、地域性を考慮するために、対象海域である宮城県志津川湾に生息する、水産重要生物を対象とした銅の生態毒性試験を実施した結果をまとめる。第五章では、宮城県志津川湾の現在の海水中銅濃度および水質を把握するために、現地調査を実施した結果をまとめる。第六章では、第四章および第五章で得られた結果をもとに、宮城県志津川湾における生態リスクの現状と、シナリオ分析による将来予測を実施する。第七章に、地域性を考慮した生態リスク評価を実施する際のフロー、および今後の課題をまとめて、本研究の総括とする。

## 参考文献

- Allen, H. E., Hansen, D. J. (1996) The importance of trace metal speciation to water quality criteria. *Water Environment Research*, 68(1), 42-54.
- Aquaculture Stewardship Council (2019) ASC Salmon Standard – version 1.3 URL: [https://www.asc-aqua.org/wp-content/uploads/2019/12/ASC-Salmon-Standard\\_v1.3\\_Final.pdf](https://www.asc-aqua.org/wp-content/uploads/2019/12/ASC-Salmon-Standard_v1.3_Final.pdf)
- Chien, L. C., Hung, T. C., Choang, K. Y., Yeh, C. Y., Meng, P. J., Shieh, M. J., & Han, B. C. (2002)
- ASC (2021) 商品の検索. 2021 年 2 月 8 日時点. <https://www.asc-aqua.org/ja/asc-certification-search/product/>
- Daily intake of TBT, Cu, Zn, Cd and As for fishermen in Taiwan. *Science of the total environment*, 285(1-3), 177-185.
- DePalma, S. G., Arnold, W. R., McGeer, J. C., Dixon, D. G., Smith, D. S. (2011) Effects of dissolved organic matter and reduced sulphur on copper bioavailability in coastal marine environments. *Ecotoxicology and environmental safety*, 74(3), 230-237.
- EIC ネット (2015 年 9 月 28 日) 世界保全戦略. URL: <https://www.eic.or.jp/ecoterm/?act=view&serial=1525>
- FAO (2020) The State of World Fisheries and Aquaculture (SOFIA). Roma. URL: <http://www.fao.org/documents/card/en/c/ca9229en>
- Fitridge, I., Dempster, T., Guenther, J., & De Nys, R. (2012) The impact and control of biofouling in marine aquaculture: a review. *Biofouling*, 28(7), 649-669.
- Floorl, O., Sunde, L. M., & Bloecher, N. (2016) Potential environmental risks associated with biofouling management in salmon aquaculture. *Aquaculture environment interactions*, 8, 407-417.
- Han, S., Zhang, Y., Masunaga, S., Zhou, S., Naito, W. (2014) Relating metal bioavailability to risk assessment for aquatic species: Daliao River watershed, China. *Environmental pollution*, 189, 215-222.
- McGeer, J. C., Szebedinszky, C., McDonald, D. G., Wood, C. M. (2002) The role of dissolved organic carbon in moderating the bioavailability and toxicity of Cu to rainbow trout during chronic waterborne exposure. *Comparative Biochemistry and Physiology Part C: Toxicology & Pharmacology*, 133(1-2), 147-160.
- U.S. EPA (1998) USEPA, Risk Assessment Forum, “Guidelines for Ecological Risk Assessment”, USEPA, EPA/630/R-05/002F
- Tokyo Sustainable Seafood Symposium (2019) C-7 養殖エコラベル：日本が抱える課題と展望. URL: <https://sustainableseafoodnow.com/archive/report/tsss2019/1607/>
- 志田慎太郎 (2004) 米国スーパーファンド法に学ぶ土壌汚染対策. *安全工学*, 43(1), 20-27.
- WWF Japan (2013 年 9 月 24 日) 養殖版海のエコラベル「ASC 認証について」. URL: <https://www.wwf.or.jp/activities/nature/cat1136/asc/>
- WWF Japan (2018 年 5 月 28 日) 日本で広がる ASC 認証の今. URL:

<https://www.wwf.or.jp/activities/activity/8.html>

鹿児島水産技術センター（2011）養殖魚種多様化技術開発事業（オオモンハタ）. URL: <http://kagoshima.suigi.jp/jigyohoukoku/book/h23/shubyo42.pdf#search='%E3%83%8F%E3%83%80%E3%83%A0%E3%82%B7+%E9%8A%85'>

片山知史, 金戸悠梨子（2018）大津波による沿岸資源・沿岸漁業への影響と回復状況. 日本水産学会. 84(6), 1083-1087.

勝川敏雄（2012）漁業という日本の問題. NTT 出版. 東京.

環境省（2019）優先評価化学物質 #84「（ビス（2-スルフィドピリジン-1-オラト）銅）」生態影響に係るリスク評価（一次）評価 II の進捗報告. 資料 1-2-3. URL: <https://www.env.go.jp/press/kagaku/1-2-3.pdf>

環境省（2017）「水生生物の保全に係る水質環境基準の類型指定について（第9次答申）」及び意見の募集（パブリックコメント）の結果について. 平成 29 年 10 月 31 日. <https://www.env.go.jp/press/104735.html>

環境省環境保健部化学物質審査室（2019）環境基本法と化審法リスク評価について. [https://www.meti.go.jp/shingikai/kagakubusshitsu/anken\\_taisaku/pdf/r03\\_02\\_03\\_b01.pdf](https://www.meti.go.jp/shingikai/kagakubusshitsu/anken_taisaku/pdf/r03_02_03_b01.pdf)

京都府立海洋センター(2009)丹後の海の生き物(ハダムシ).(2020年11月10日閲覧) URL: <https://www.pref.kyoto.jp/kaiyo/hadamushi.html>

経済産業省（2019）養殖漁網防汚剤シナリオによるリスク推計手法について（案）. URL: [https://www.meti.go.jp/shingikai/kagakubusshitsu/anken\\_taisaku/pdf/h30\\_05\\_01\\_01\\_03\\_s02.pdf](https://www.meti.go.jp/shingikai/kagakubusshitsu/anken_taisaku/pdf/h30_05_01_01_03_s02.pdf)

厚生労働省（2010）薬事・食品衛生審議会について（概要）. <https://www.mhlw.go.jp/shingi/2010/01/dl/s0126-12a.pdf>

国立研究開発法人 国際農林水産業研究センター（2020年6月11日）Pick Up 62. 食糧農業機関 (FAO) (2020) 2020 年 世界 漁 業 ・ 養 殖 業 白 書 . URL: [https://www.jircas.go.jp/ja/program/program\\_d/blog/20200611](https://www.jircas.go.jp/ja/program/program_d/blog/20200611)

里見至弘, 清水誠(1992)問題の経緯. 有機スズ汚染と水生生物影響. 恒星社厚生閣. 東京. pp9-19.

水産研究・教育機構 増養殖研究所. 世界の養殖業の現状と課題. (2020年11月10日閲覧) URL: <http://nria.fra.affrc.go.jp/kenkyu/sekai/index.html>

千田哲也（2005）なぜ今、防汚塗料が問題か-船底防汚塗料を巡る諸問題とその展望. Journal of JIME. 40(1), 4-6.

高橋一暢（2010）環境に優しい船底防汚塗料の現状と展望. 日本マリンエンジニアリング学会. 45(4). 118-123.

農林水産省（2020）農林水産統計 令和元年漁業・養殖業生産統計. URL: [https://www.maff.go.jp/j/tokei/kouhyou/kaimen\\_gyosei/attach/pdf/index-30.pdf](https://www.maff.go.jp/j/tokei/kouhyou/kaimen_gyosei/attach/pdf/index-30.pdf)

原田輝雄（1965）ブリの増殖に関する研究. 近畿大学農学部紀要. 3, 1-291.

三菱マテリアル（2014年12月19日）プレスリリース. 銅合金線魚網を用いたギンザケ

養殖の支援プロジェクトに参画．2020 年 11 月 18 日閲覧．URL:  
<https://www.mmc.co.jp/corporate/ja/news/press/2014/14-1219.html>

宮下盛（2008）海面後類養殖施設の歴史と網生簀式養殖．水産技術．1(1) 13-19.

山本裕規, 吉木健吾, 小松輝久, 佐々修司, 濱名正泰, 村田裕樹, 柳哲雄 (2017) 志津川湾におけるカキ養殖等の環境容量に関する数値モデル解析-震災前と現在の比較. 土木学会論文集 B2 (海岸工学), 73(2), I\_1339-I\_1344.



## 第2章 問題設定

### 1. はじめに

生態リスク評価を実施する際は、まず、評価対象を明確にする段階として、問題設定を行う。生態リスク評価における問題設定の重要性は、米国環境保護局の環境生態系リスクアセスメントのガイドライン（USEPA, 1981）に記載されている。生態リスク評価においては、魚やプランクトンなど、様々な生物で構成されている生態系の中で、どの生物を優先的に守る必要があるのか議論することが重要である。例えば、ヒト健康におけるリスク評価であれば、ヒトの死亡率や罹患率といった指標が普遍的に使用されるが、自然環境に対するリスク評価は、産業・経済活動と自然環境保全の兼ね合いが重要な視点のひとつとなる。主要な産業は地域によって異なる。さらに、地域ごとに異なる生態系が構築されている。また、漁業や養殖業といった、生物を私たちの食糧とみなす特徴をもつ産業が盛んに行われている地域の場合、その産業の持続可能な発展のためには、漁獲対象生物を地域の重要種とみなす必要がある。各生態系を構成している生物種、および産業の中で重宝すべき生物種の違いは、リスク評価対象である化学物質に対する感受性の高さや、その生態系に対する予測無影響濃度（Predicted No-Effect Concentration：PNEC）に大きく影響を与える。地域ごとの特徴の違いによって、直面している課題が異なるといえるため、自然環境にも配慮した持続的な社会の実現のためには、自然環境と産業の両立にどのように取り組むか、地域ごとに枠組みとして問題設定を実施し、その枠組み（フレーミング）に沿ったリスク評価を実施することが重要である。

化学物質におけるリスクを定量的に把握するためには、まずはシナリオを作成し問題設定を行う。リスク評価においてシナリオとは、対象となる化学物質がなんらかの原因で発生した後、ヒト、生態系、建設物等の設備といったリスクを被る対象（レセプター）に対してどのように関与し、影響を与えるのか、その道筋（pathway）を具体的に示すことを指す。一口にシナリオといっても、対象となる化学物質とレセプターの関係性のどの部分に焦点を当てるかによって、シナリオの定義が変わってくる。図 2-1 は、中西ら（2008）で示された、対象となる化学物質の発生から曝露までを追ったリスク評価におけるシナリオの全体像を示す。本章では、本研究の全体像における問題設定に係るシナリオとして、リスクシナリオを設定する。

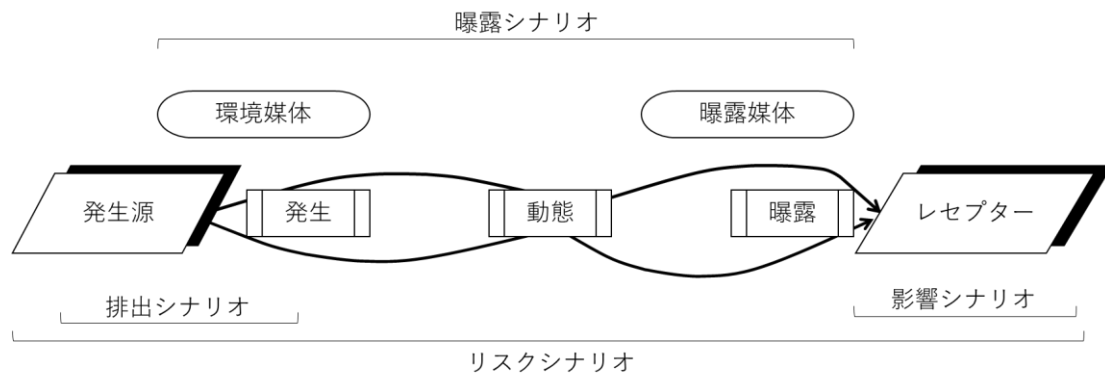


図 2-1 発生から影響の発現まで（中西ら, 2008 から引用. 筆者作成）

## 2. 対象海域について

第一章において、持続可能な養殖業のための国際的な認証制度のひとつとして、ASC 認証を挙げた。現在、日本の様々な養殖業で、この認証取得を目指す試みが行われている（サステナブル・シーフード, 2020）。宮城県志津川湾では、東日本大震災の復興支援の一環として、2015 年の段階でギンザケ養殖において、現在使用している化繊（ナイロン）製の生簀から銅合金製の生簀に変更することによって、ASC 認証の取得が検討されていた。ASC 認証取得のためには、科学的根拠に基づく定量的なデータが必要になる。そこで、漁業関係者、および銅合金製生簀の流通商社の方々などが求める、持続可能な漁業のために現場で必要となるデータを検討、収集、取得、および提示することを本研究の目的の一つとして、対象海域を志津川湾とした。

志津川湾（図 2-2）は、東北地方太平洋側に存在するリアス式海岸の一部で、宮城県南三陸市の中央に位置し、日本の閉鎖性海域 88 ケ所に指定されている（環境省）。岸沿いや島嶼周辺の岩礁域には、アラメ・カジメ、コンブ、ホンダワラ等の藻場が広がるほか、湾奥部を中心にアマモ場も分布している。湾奥南部では潮干狩りも行われる（エメックスセンター, 2019）。



図 2-2 志津川湾

産業では、古くから漁業で栄えた地域である。湾内の漁業は、内湾性漁場と外洋性漁場の二つに大別される。内湾性漁場では、ノリ、カキ、ワカメ、およびホヤ等の養殖が行われ、技術進歩により現在は外海におけるワカメ、ホタテの養殖も盛んに行われている。そのほか、シロザケ、ヒラメ、クロソイ、アワビ等の資源管理型漁業が盛んである 1976 年ごろからは、世界に先駆けてギンザケの養殖がはじまった（山本ら, 2006）。現在でも日本のギンザケ養殖の水揚げ量のうち約 9 割が宮城県産である（農林水産省, 2020）。

一方で、震災前はカキの過密養殖が問題視されていた。2011 年 3 月 11 日の東日本大震災では、養殖筏や生簀、漁具などがすべて海にさらわれてしまうという甚大な津波被害を被った。この震災をきっかけに、宮城県漁業協同組合志津川支所戸倉出張所カキ部会は、生産技術の向上や品質の改善、販売促進などの方策を見直し、過密養殖から脱却し、持続可能な養殖業の追求にむけた取り組みに舵取りをし、見事に成功した組合のひとつである（写真 2-1）。山本ら（2017）によると、養殖生産カキの環境収容量を考慮して筏の設置数を震災前の約半数とした結果、成長スピードが震災前の 2～3 倍となった。カキや環境にかかっていた負荷が解消されたためである。2020 年現在では、湾内の養殖カキの半数以上が ASC 認証を取得している。



写真 2-1 東日本大震災前の志津川湾（左：宮城県漁協志津川支所提供）と現在の志津川湾。養殖施設が大幅に削減されたことが分かる。

（<https://www.wwf.or.jp/activities/activity/3749.html> から引用）

他方、志津川湾は、渡り鳥であるコクガン（写真 2-2）における重要な立ち寄り地点であるとして、平成 30 年 10 月 18 日に「特に水土地の生息地として国際的に重要な湿地に関する条約」、通称ラムサール条約の湿地に登録された。（南三陸町, 2018）。



写真 2-2 志津川湾で観察される渡り鳥のコクガン（南三陸観光協会 HP（[https://www.m-kankou.jp/mina\\_repo/232014.html/](https://www.m-kankou.jp/mina_repo/232014.html/)）から引用）

このように、志津川湾は豊かな自然環境を有する。そのために、志津川湾で養殖を営む漁業者たちは、持続可能な漁業形態にすることをより一層目指しており、現在志津川湾では、カキ養殖以外においても ASC 認証取得を目指す動きがある（Tokyo Sustainable Seafood Symposium, 2019）。ASC 認証を取得するためには、水産種ごとに異なる項目の審査に合格する必要がある。例えば、志津川湾で盛んなギンザケ養殖については、Salmon standard document が適用される（ASC, 2019）。この中において、水質については、様々な水質パラメータ（リンや酸素レベルなど）を定期的に測定し、設定された限度内に収まるように水質を維持することが求められる。また、水中の銅の放出量も定期的にモニタリングする必要がある。

養殖において、銅は重要な役割を果たす。養殖に使用される生簀網は、そのまま海中へ浸漬すると、海藻類およびカキ・イガイ類といった固着動物などの生物が網目に付着することによって、網目の海水交換が少なくなると、飼養されている生物は酸素の体内への供給量が少なくなること等によるストレスが原因で、寄生虫被害や成長率の悪さといった問題が生じる。そのため、養殖に使用される生簀には、生簀表面に固着性生物が付着することによる潮通りの悪化を抑制するために、防汚剤が塗布されている。他方、魚類においては、海水中の銅濃度が一定量、恒常的に維持されているとき、魚類の成長において有益な物質となり得ることも分かっている。銅は付着生物に対する有害性が高いため、それらの生物における被害の忌避要因となる。たとえば、魚類の体表に寄生する寄生虫であるハダムシは、養殖魚の体表に強固に付着し、上皮細胞や粘液などを摂取して成長する生き物である。この虫が大量に寄生すると、宿主は寄生による刺激から、粘液を多量に分泌し、体表がただれ、出血を伴うこともある。生簀網などに体をこすりつけるため、傷口から病原菌が浸入し、死に到る危険性も伴う（日本水産資源保護協会, 2015）。このように、寄生虫被害は、養殖業における天敵であるが、一定の銅濃度が海水中に存在することによって、この被害を減少させることができる（鹿児島水技, 2011）。ただし、従来の防汚塗料は、定期的な陸揚げおよび塗料の塗りなおしといった重労働が、漁業者の負担となっている。近年、この課題を解決する製品として、銅合金製の網で造られた養殖生簀が生産され、使用されている（田中ら, 2012）。銅合金製生簀は、生簀本体から銅イオンが溶出することによって、防汚塗料塗布や陸揚げのメンテナンスの労力を削減できるほか、寄生虫被害が削減され成長率が上がることが分かっている（みなと新聞, 2019）。銅合金線製の網で造られた生簀を使用することにより、環境負荷および漁業者への負担の軽減が見込まれる。

一方で、軟体動物や棘皮動物といった軟体動物や藻類は、銅に対する感受性が高いことが知られている。志津川湾内において養殖されている水産生物種の多くは、銅に対する感受性が高い生物種に該当する。銅に対する感受性が高い水産種を養殖している漁業者の間では、海水中へ溶出する銅の総量が多くなることによって、銅に対する感受性が高い生物に対するリスクが高まるのではないかと懸念されている。持続可能な漁業とは、ほかの養殖業に対する安全性も考慮されている必要がある。そしてそのために、銅に対する生物種ごとのリスクを定量化し、リスクを管理することが望まれている。

そこで、本研究は、宮城県志津川湾における、数種の養殖重要種に対する銅の生態リスク評価を実施することとした。

## 参考文献

- ASC (2019) Document resources, Salmon Standard documents. 2020 年 12 月 23 日閲覧. URL: <https://www.asc-aqua.org/what-we-do/our-standards/farm-standards/the-salmon-standard/>
- Tokyo Sustainable Seafood Symposium (2019) 2020 年 12 月 23 日閲覧. URL: <https://sustainableseafoodnow.com/archive/report/tsss2019/1607/>
- エメックスセンター (2019) 日本の閉鎖性海域 88 ケ所 志津川湾. 2020 年 11 月 5 日閲覧. URL: <https://www.emecs.or.jp/wp-content/uploads/2019/10/025.pdf>
- 環境省東北地方環境事務所 (2018 年 10 月 19 日) 報道発表資料 志津川湾のラムサール条約湿地への新規登録について. 2020 年 11 月 5 日閲覧. URL: [http://tohoku.env.go.jp/pre\\_2018/post\\_109.html](http://tohoku.env.go.jp/pre_2018/post_109.html)
- 環境省 (2009) 水生生物保全に係る環境基準項目の検討状況 <https://www.env.go.jp/council/09water/y090-19/mat06.pdf>
- 環境省 (2001) 日本の閉鎖性海域 (88 海域) 環境ガイドブック.
- 公益社団法人日本水産資源保護協会 (2015) 農林水産省委託業務 魚病情報資料 (寄生虫病・真菌病 増補加筆版). 2021 年 2 月 15 日閲覧. URL: <http://www.fish-jfrca.jp/02/pdf/H26parasitic%20and%20fungal%20diseases.pdf>
- サステナブル・シーフード (2020) 2020 年 12 月 24 日閲覧. URL: <http://sseafood.net/blog-entry-8.html>
- 田中真次; 大石恵一郎; 吉川勉. 養殖用金網材 C45470 「UR30ST」 の開発. まてりあ, 2013, 52.3: 122-124.
- 中西準子, 花井莊輔, 吉田喜久雄 (2008) リスク評価の入口と出口—シナリオとクライテリア—. 丸善.
- 農林水産省 (2020) 海面漁業生産統計調査. 2021 年 2 月 15 日閲覧. URL: [https://www.maff.go.jp/j/tokei/kouhyou/kaimen\\_gyosei/](https://www.maff.go.jp/j/tokei/kouhyou/kaimen_gyosei/)
- みなと新聞 (2019) 三菱伸銅が省力イケス 銅合金線製網 養魚好成長と寄生虫減. 2019 年 8 月 28 日付. 2020 年 12 月 23 日閲覧. URL: <https://www.minato-yamaguchi.co.jp/minato/e-minato/articles/94110>
- 南三陸町 (2018) 行政情報, ラムサール条約, ラムサール条約と南三陸の海. 2020 年 2 月 15 日閲覧. URL: <https://www.town.minamisanriku.miyagi.jp/index.cfm/8,0,111,355.html>
- 山本潤, 田中仁, 高崎みつる, 佐伯信哉 (2006) 志津川湾における貧酸素水塊の発生と台風通過後の西風に伴う水質変動. 水工学論文集, 50, pp. 1399-1404.



## 第3章 地域性を考慮しない種々のレベルの生態リスク評価

### の実施およびその結果の比較

#### 1. はじめに

本研究において実施する生態リスク評価は、対象海域である宮城県志津川湾における持続可能な水産養殖業に、銅の存在が大きく貢献する可能性があるため、宮城県志津川湾の水産養殖業を対象とする。一方で、銅はすでに海域環境において、船底防汚塗料という重要な役割を果たしている。銅の水産養殖業での利用量が多くなれば、海域への環境負荷がさらに上昇する可能性がある。また、銅に対する感受性が高い生物種は海域に多数存在しており、水産重要種の数種は銅に対する感受性が高い可能性が懸念されている。そのため、海洋生物に対する銅の影響は世界的に関心が高い。たとえば、Han ら（2016）は、日本の河川域において生物利用可能性を考慮した生態リスク評価を行っている。日本の沿岸域を対象とした生態リスク評価の例は報告されておらず、日本近海に生息する海洋生物に対する銅の生態リスクの実態は明らかにされていない。このように、我が国においては、海水中の銅およびその化合物に対する知見は現段階では収集段階であり、リスク評価手法においても、方法が確立されているわけではない。まずは我が国における海域における銅の生態リスクがどの程度なのかを把握できていなければ、個別の地域における生態リスクが相対的にどの程度なのか判断することは難しい。また、地域性を考慮したリスク管理を実施する必要があるのか把握するためにも、対象海域以外のデータは重要な知見となる。

そこで本章では、地域性を考慮した生態リスク評価の前段階として、まずは日本全国の沿岸域における生態系全体に対して、銅のリスクがどの程度存在しているかを定量的に把握するために、現在公開されているデータ、および評価手法を用いて、日本沿岸域の銅の生態リスク評価を行った結果をまとめる。

#### 2. 生物利用可能性について

銅を含む金属類は、多様な形態で環境水中に存在し（Kiaune, 2011）、その形態によって生物体内への取り込まれやすさが異なる。生物体内に取り込まれやすい形態で存在する割合、またはその割合の高さは、生物利用可能性（Bioavailability）と呼ばれる。銅の存在形態は水質に依存し、また、その生物の体内への取り込みもまた、水質の影響を受ける。したがって、生物に対する毒性も水質の影響を受けることになる。水生生物に作用可能な金属の量は、その金属の水中イオン濃度に概ね対応することが知られている。銅の生物利用可能量は以下の4つの要因に強く依存することが知られている。（1）銅の化学形態のちがい、（2）溶存態銅、および粒子状物質（懸濁堆積物; SS）に吸着した銅の濃度、（3）地域環境の酸性度、塩基性度、硬度、その他のカチオン、アニオン、錯体（塩化物、硫酸化物等）、溶存有機炭素（Dissolved Organic Compounds）等による化学的要因、および（4）水生生物のエラのよ



うな生物学的受容体 (Biotic Ligand) との相互作用である (Di Toro et al., 2001)。

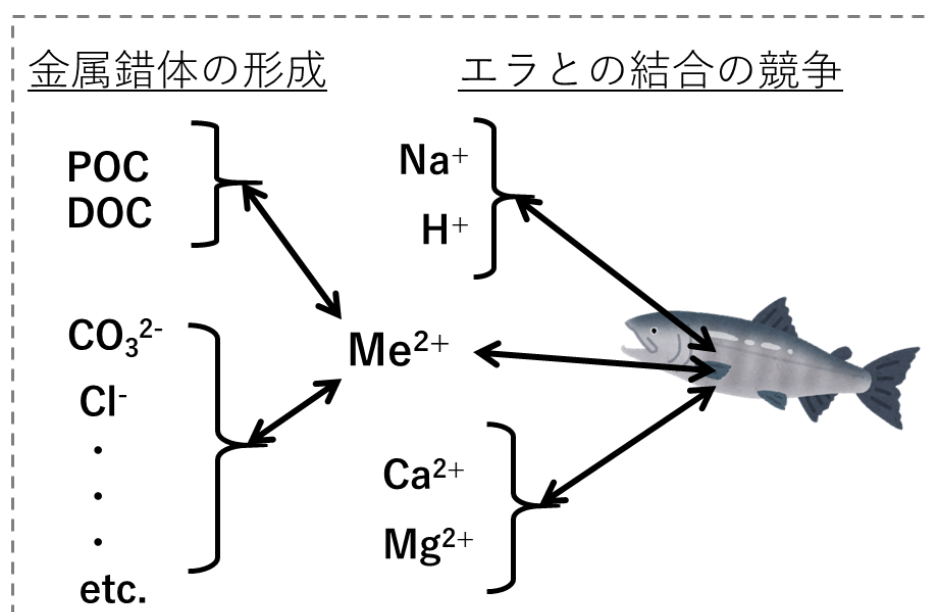


図 3-1 水中における生物利用可能性 (Bioavailability) に関わる金属の存在形態のイメージ

図 3-1 に概念図を示す。このとき、 $Me^{2+}$ は、水中の金属イオンを指す。化学平衡に基づき、水中のカチオン類は有機炭素と金属錯体を形成するが、イオン態や無機錯体の一部は、生物のエラに吸着する。一方で、生物はエラを通して酸素、ナトリウムなどを取り込むが、金属イオンが吸着することによって、その他の物質の吸収が阻害される。この影響に伴い、生物に対する毒性が発現する。このプロセスを考慮して、水質が、水生生物に対する銅の毒性をどの程度変動させるかを検討した研究がいくつか報告され (Arnold et al., 2005; Rosen et al., 2008; Rosen et al., 2005)、銅の毒性が水質に依存することが確認されている。このため、リスク評価を行う際には、現場の水質を考慮することが望ましい (Di Toro et al., 2001)。

### 3. 生物利用可能性を考慮したリスク評価の現状

現在、生物利用可能性を考慮した生態リスク評価は、欧米をはじめ諸外国で採用されており、とくに欧米では、生物利用可能性を考慮した水質クライテリアが設定されている。クライテリアとは、化学的根拠に基づくが法的拘束力がない水質基準の定義のひとつである。欧州では、EU 加盟国において国ごとに対象化学物質を選定し、リスクアセスメントレポート (RAR) を実施している。銅に対する RAR は、2008 年にイタリアで実施され公開された (Van Sprang et al., 2008)。また、米国では、2003 年に淡水における銅のクライテリア設定のためのリスク評価が実施された後、2016 年には、海域および沿岸域におけるクライテリアが設定された (U.S.EPA, 2016)。米国のクライテリアはドラフト版で、数年に一度、実施内容およびクライテリアが見直されており、常に新しいデータ、および、より確からしいリス

ク評価手法を用いた結果にアップデートされている。

日本において実施されている国家レベルの代表的なリスク評価のひとつとして、環境省が実施する環境リスク初期評価が挙げられる。これは、化学物質の環境対策の一環として、平成9年から実施されていきた（環境省, 2006）。この中で評価された物質のうち、「詳細なリスク評価を行う候補」とされた物質については、関係部署や自治体等への情報収集を行い、行政的な対応を進めるように位置付けられている。つまり、各化学物質に対する詳細なリスク評価を実施する前に、高リスクの懸念がある物質を洗い出すための、スクリーニングに利用する。銅及びその化合物については、平成26年環境リスク初期評価が実施されたが、この中では、曝露評価およびヒト健康リスクに対する有害性評価が実施されているが、生態リスク評価は行われていない（環境省, 2013）。（独法）産業技術総合研究所化学物質リスク管理研究センター（当時）によって纏められた銅ピリチオンの詳細リスク評価（中西・堀口, 2007）では、生態リスク評価においては、銅ピリチオンに対する感受性が高い生物の代表として、*C. gigas* およびウニ類における有害性評価結果を用いた、簡易的なリスク評価手法を取り入れている。また、現在、化審法における優先評価化学物質のリスク評価（一次）評価Ⅱにおいて、亜鉛ピリチオンの評価結果が、「評価Ⅱの判断の根拠に足る曝露評価結果が得られていない。今後、銅ピリチオンとの関係性を整理した上でリスク評価やモニタリングの方法について検討する」とされている（経産省, 2017）。

#### 4. 方法

本研究における第一段階の評価であるスクリーニングレベルのリスク評価として、環境省が実施している環境リスク初期評価の手法を用いた。また、海域の生態リスク評価を実施している諸外国のリスク評価として、生物利用可能性を考慮した海域における生態リスク評価を実施しており、評価方法の詳細を一般に公開している、欧州化学機関によって公開されている Voluntary Risk Assessment Report (EU RAR)、および米国環境保護局 (U.S.EPA) によって公開されている Water Quality Criteria (WQC) を参考にした。これらの報告は、海域の生態系に対して生物利用可能性を考慮した銅の生態リスク評価を行っているが、手法はそれぞれ異なっている。EU RAR においては、海水中における DOC 濃度に着目し、生物利用可能性を補正する手法、WQC においては、Biotic Ligand Model (BLM) と呼ばれるモデルを用いた手法が採用されている。本研究では、これらの評価手法を日本沿岸域の評価に援用した。

##### 4.1. 曝露評価

前述の通り、我が国において、海域における銅の生態リスク評価を実施した事例が無いため、リスク評価を実施するために分析された海水中の銅濃度の報告値は存在しない。そのためまずは、日本沿岸域に関するモニタリングデータを、その調査目的に関わらず、収集、整理した。主な収集範囲は、海上保安庁水路部（当時）の「海洋汚染調査報告」（海上保安庁、

1972-1998)、環境省の「海洋環境モニタリング調査」(環境省, 1998-2017)、および、いくつかの論文である(山口ら, 2012; Takata et al., 2012; 中島ら, 2007)。

収集した銅濃度、および水質データは、本来の報告目的がそれぞれ異なるため、海域ごとによって調査地点、同一地点における調査回数、あるいは調査年が異なっていた。また、調査ごとに銅の測定方法は異なっていた。例えば、環境省の海洋環境モニタリングデータ(環境省, 1998-2017)においては、銅は酸分解後に溶媒抽出され、フレイム吸光光度計を用いて原子吸光法で測定されている。海上保安庁水路部が報告している海洋汚染調査報告(海上保安庁, 1972-1998)では、まず海水を中和後にキレートイオン交換樹脂によって吸着し、その後酸分解を行い蒸発乾固し吸光光度計において測定されていた。一方、中島ら(2007)は、金属の分析はプラズマ発光分光分析(ICP-AES)を用いている。どの文献も測定手法について言及されており、質的な管理が行われている。本研究では、収集したデータは日本沿岸域の状況を示す貴重なデータと捉え、分析方法、報告数や調査年にとらわれず全て採用した。

#### 4.2. 有害性評価

本研究における有害性評価は、予測無影響濃度(Predicted No-Effect Concentration: PNEC)を算出することを目的とした。海洋生物の銅に対する有害性は、多くの知見が公表されている。U.S.EPA が公開している化学物質の生物に対する有害性情報を蓄積したデータベース「ECOTOX」を用いて、海洋生物に対する銅および銅化合物の有害性データのうち、1997年から2017年の20年間で、実際に銅濃度が測定された実験値のみを検索すると、銅、亜酸化銅、および塩化銅を対象とした有害性データ2218件がヒットした(2018年12月1日時点)。その膨大なデータから、本研究に必要な項目がそろったデータを収集するのはかなりの作業を要することから、本研究においてはEU RAR内で信頼性が高いと評価されたデータをPNEC算出の基礎データとした。EU RARにおいては、収集された有害性データのうち、エンドポイントが設定され慢性毒性を対象としており、藻類では14~19日、底生生物では24~48時間、魚類では0~32日の曝露期間を設定しており、さらに試験中の銅濃度が測定されているデータを、信頼性が高いデータとして扱っている。それらのデータを表3-1に示す。また、生物利用可能性を考慮したPNECを算出する際は、曝露評価時に収集した水質データを用いて算出した。

表 3-1 本章におけるスクリーニングレベルのリスク評価の有害性評価に用いた有害性データ（EU RAR から収集\*）

生物門	科	生物種	供試物質	指標	銅 [μg /L]	換水方式	試験期間	DOC [mg /L]	pH	塩分濃度 [g /L]	原典
Heterokontophyta	Phaeodactylaceae	<i>Phaeodactylum tricornutum</i>	CuSO <sub>4</sub>	EC10	2.9	止水式	72 時間	1.0m	8.2–8.3	31	Simpson, 2003
Mollusca	Mytilidae	<i>Mytilus galloprovincialis</i>	CuSO <sub>4</sub>	NOEC	5.9	止水式	48 時間	0.9m	–	–	Rosen, 2005
Mollusca	Mytilidae	<i>Mytilus edulis</i>	CuCl <sub>2</sub>	NOEC	6	換水式	10 日	2.0m	–	–	Redpath, 1985
Crustacea	Artemiidae	<i>Artemia franciscana</i>	CuCl <sub>2</sub>	NOEC	6.6	止水式	48 時間	0.48m	7.8–8.1	–	Brix, 2006
Mollusca	Veneridae	<i>Mercenaria mercenaria</i>	Cu(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	NOEC	7	止水式	96 時間	0.5e	8.0–8.5	26.5	LaBreche, 2002
Heterokontophyta	Skeletonemaceae	<i>Skeletonema costatum</i>	CuCl <sub>2</sub>	NOEC	7.5	止水式	72 時間	2.19m	8.2–8.6	31	Smyth, 2006a
Echinodermata	Parechinidae	<i>Paracentrotus lividus</i>	CuCl <sub>2</sub>	NOEC	8.8	止水式	48 時間	1.83m	8.2–8.3	34.4	Hurd, 2006a
Crustacea	Pandalidae	<i>Pandalus danae</i>	CuSO <sub>4</sub>	NOEC	9.9	流水式	>42 日	2.0e	7.9–9.7	29.8–30.6	Young et al., 1979
Mollusca	Pectinidae	<i>Placocopecten magellanicus</i>	CuSO <sub>4</sub>	NOEC	10	流水式	8 週	2.0e	–	25	Gould, 1988
Heterokontophyta	Laminariaceae	<i>Macrocystis pyrifera</i>	Cu	NOEC	10.2	半止水式	19 日	2.0e	7.8–8.3	35–37	Anderson et al., 1990
Mollusca	Ostreidae	<i>Crassostrea gigas</i>	CuCl <sub>2</sub>	NOEC	10.42	流水式	24 時間	3.36m	8.0–8.2	31.1–34.2	Brooks, 2006
Heterokontophyta	Fucaceae	<i>Fucus vesiculosus</i>	CuCl <sub>2</sub>	NOEC	11	流水式	4 日	1.67m	8.1	30.9	Brooks, 2006d
Annelida	Nereididae	<i>Neanthes arenaceodentata</i>	CuCl <sub>2</sub>	NOEC	12.1	流水式	28 日	2.0m	–	32	Pesch et al., 1986
Cnidaria	Merulinidae	<i>Goniastrea aspera</i>	CuCl <sub>2</sub>	NOEC	14.2	止水式	72 時間	2.0e	–	–	Reichelt-Brushett, 2004
Cnidaria	Acroporidae	<i>Acropora tenuis</i>	CuCl <sub>2</sub>	NOEC	17.3	止水式	48 時間	2.0e	–	–	Reichelt-Brushett, 2000
Mollusca	Veneridae	<i>Protothaca staminea</i>	CuCl <sub>2</sub>	NOEC	18	流水式	30 日	2.0e	8.1	32	Roesijida, 1980
Crustacea	Tisbidae	<i>Tisbe battagliai</i>	CuCl <sub>2</sub>	NOEC	18	半止水式	21 日	2.79m	8.1–8.4	35	Williams, 2006
Crustacea	Tisbidae	<i>Tisbe furcata</i>	CuSO <sub>4</sub>	NOEC	19.1	半止水式	最大 100 日	2.0e	8	34	Bechmann, 1994
Crustacea	Penaeidae	<i>Penaeus mergulensis</i>	Cu	NOEC	33	流水式	14 日	2.0e	–	20	Ahsanullah et al., 1995
Cnidaria	Alcyoniina	<i>Lobophytum compactum</i>	CuCl <sub>2</sub>	NOEC	36	止水式	5 時間	2.0e	–	–	Reichelt-Brushett, 2005
Crustacea	Temoridae	<i>Eurytemora affinis</i>	CuCl <sub>2</sub>	NOEC	51.1	半止水式	8 日	2.0e	7.9–8.8	14 – 17	Hall, 1997
Crustacea	Penaeidae	<i>Penaeus monodon</i>	Cu	NOEC	145	流水式	14 日	2.0e	–	20	Ahsanullah et al., 1995

すべて慢性毒性試験の結果; e: Value was estimated; m: Value was measured and reported.

#### 4.3. スクリーニングレベルの評価手法

スクリーニングレベルの評価として、環境省が行っている「環境リスク初期評価」の手法（環境省, 2006）に準じて、PNEC を算出した。環境リスク初期評価では、OECD の評価手法に準じて化学物質の水生生物に対するリスク評価に係る第 1 段階の作業を行い、既存のデータベースにより得られる知見を活用している。なお、データベースにより収集するデータは、対象種、試験内容、実験環境、および出典等の妥当性を考慮している。対象生物群は、各栄養段階を網羅するために、魚類、甲殻類、藻類、およびその他の生物（底生生物）とした。また、複数データが存在する場合は以下のように選定した。同一生物種、および同一生物群で曝露期間も同じものは、最も低い値を採用した。また、収集できなかったデータが存在する場合は、次のような不確実係数（Assessment Factor: AF）を採用した。まず、藻類、甲殻類、および魚類のうち、1~2 種類の生物群で信頼性の高い急性毒性データがある場合は AF=1000、3 生物群すべてにおいて信頼性の高い急性毒性データがある場合、および 2 群について信頼性の高い慢性毒性データがある場合は AF=100、全ての生物群について信頼性の高い慢性毒性データがある場合は AF=10 とした。ここで得られた PNEC は、本評価においては PNEC<sub>JPN</sub> とした。

##### 4.3.1. EU RAR における評価手法

EU RAR において銅は、一般的な化学物質に対する生物利用可能性を考慮しない手法、および生物利用可能性を考慮する手法の 2 手法を用いて、水生生物に対する銅のリスク評価結果を報告している。以下にそれぞれの評価手法の概要を示す。

###### 4.3.1.1. 一般的な化学物質に対する評価手法（生物利用可能性を考慮しない手法）

EU RAR において、化学物質における生態リスク評価を行う際は、種の感受性分布（Species Sensitivity Distribution: SSD）（Posthuma et al., 2001）を描く。SSD 法とは、化学物質から影響を受ける生物種の割合を、対数正規分布を仮定して推定する手法である。PNEC は、SSD によって得られた 5% の生物種に対して影響を与える可能性がある濃度（the Hazardous Concentration for 5% of Species: HC5）に AF を考慮することによって導出されている。EU RAR では、銅は信頼性のある無影響濃度（No Observed Effect Concentration: NOEC）データを 170 個収集しており、データが豊富にあることから、AF=2 と定めている。本研究においてもこの値を採用した。この手法で算出した PNEC を PNEC<sub>EURAR</sub> とした。

###### 4.3.1.2. 生物利用可能性を考慮する手法

EU RAR において行われている生物利用可能性を考慮した手法は、PNEC を求めるために、表 3-1 に示す有害性データを、各試験時に測定された溶存性有機炭素濃度（DOC）で補正する。EURAR の手法では、以下の式を用いて DOC による有害性データの補正を行っている。毒性試験で求められた NOEC は、その毒性試験が行われた試験水の DOC に依存している。毒性試験における DOC が、対象環境水中における DOC であった場合を想定し、毒性試験で得られた NOEC 値を補正することによって、対象環境水における生物利用可能

性を考慮した NOEC 値に換算することができる。生物利用可能性に関する DOC (active DOC) は、実験に基づき、測定された DOC のうちの半分程度の濃度と推定されている (Hiemstra et al., 2006)。

$$\text{active DOC} = \text{DOC} / 2 \quad \dots\dots \text{式 (1)}$$

各毒性試験で得られた NOEC を、生物利用可能性を考慮した NOEC に換算するためには、以下の式を用いる。

$$m = \text{NOEC} / (\text{毒性試験の active DOC}^{0.6136}) \quad \dots\dots \text{式 (2)}$$

(DOC によって補正された NOEC)

$$= m (\text{環境中の active DOC}^{0.6136}) \quad \dots\dots \text{式 (3)}$$

このとき、式 (2) および (3) における  $\text{DOC}^{0.6136}$  は、EU RAR で採用されている有害性データのうち、銅に対する感受性が極めて高い数種の生物に対する EC50 および、その EC50 が取得された実験時における DOC 濃度との回帰直線の式に因って算出された (Van Sprang et al., 2008)。DOC によって補正された NOEC は、前述した SSD 法に用いて HC5 および PNEC を算出する。EU RAR では、外洋の一般的な DOC 濃度である 2.0 mg/L を用いているが、本研究においては、収集した各地点のデータをそのまま使用した。その後、4.3.1.1 節で示した手法によって SSD を描く。AF は 4.3.1.1 節と同様に 2 とした。この手法で算出した PNEC を  $\text{PNEC}_{\text{EU RAR-DOC}}$  とした。

#### 4.3.2. U.S.EPA における評価手法

##### 4.3.2.1. 一般的な化学物質に対する評価手法

米国では、U.S.EPA が水生生物のための銅のクライテリアの推奨事項を含むガイダンス文書を公表している (U.S.EPA, 2016)。2009 年に報告された水質クライテリアのドラフト版には、短時間曝露のためのクライテリアである最大許容濃度 (the criterion maximum concentration: CMC) と、長期間曝露のためのクライテリアである連続濃度 (the criterion continuous concentration: CCC) の算出方法が記載されている。CMC とは、許容できない悪影響を及ぼすおそれがないと考えられる短期曝露の最高濃度の推定値を意味し、CCC は、許容できない悪影響を及ぼすおそれがないと考えられる慢性的な曝露の最高濃度の推定値を意味する。なお、このクライテリアは、一般的な化学物質を対象としたクライテリアであるため、生物利用可能性は考慮されていない。本研究では、他の各評価手法と比較するために、慢性毒性におけるクライテリアに準拠して CCC を算出し、 $\text{PNEC}_{\text{CCC}}$  とした。

##### 4.3.2.2. Marine BLM を用いた生物利用可能性を考慮する手法

U.S.EPA は銅の生態リスク評価を行う際に Biotic Ligand Model (BLM) (Paquin et al., 2002; Niyogi et al., 2004) を用いている。BLM とは生物利用可能性を考慮したリスク評価を行う手法の一つである。水環境中に存在する金属の存在形態を考慮し、生物リガンド (Biotic Ligand:

イオンを取り込む器官として想定された仮想的なイオンチャンネル）に吸着した金属量を算出するモデルで、金属の水生生物への毒性を予測するために用いられる。BLM は近年、海水にも適用範囲が広げられ（DeForest et al., 2018; Tait et al., 2018）、Ambient Water Quality Criteria (AWQC) を決定する際に使用されている（U.S.EPA, 2016）。BLM では計算結果として、CMC および CCC が同時に算出される。本研究では、2016 年に U.S.EPA から公開された海域用の BLM を用いて、前述した日本近海の銅濃度から、生物利用可能な形態である CCC を算出した。4.3.2.1 節で述べた  $PNEC_{CCC}$  と区別するために、ここで算出された CCC を、本研究では  $PNEC_{CCC-BLM}$  とした。

#### 4.4. リスク評価

本研究におけるリスク評価結果は、ハザード比（Hazard Quotient: HQ）法を用いて算出した。一般的に HQ 法は、予測環境中濃度（Predicted Environmental Concentration: PEC）と生態系に対する PNEC の比（ $HQ = PEC/PNEC$ ）で評価する。ただし本研究では、曝露評価において日本近海の実測値を収集できたため、PEC の代わりに、収集した実測値およびそれらの実測値から導出された生物利用可能性を考慮した濃度を用いた。HQ の判断基準は、環境リスク初期評価（環境省, 2006）に準拠し、表 3-2 に従って判定した。

表 3-2 環境リスク初期評価によるリスク判定結果の分類

HQ < 0.1	現時点では作業は必要ないと考えられる
$0.1 \leq HQ < 1$	情報収集に努める必要があると考えられる
$1 \leq HQ$	詳細な評価を行う候補と考えられる
(情報が不十分な場合)	現時点でリスクの判定はできない

### 5. 結果および考察

#### 5.1. 曝露評価

日本沿岸域の海水中銅濃度として、20 海域、396 地点、総計 1622 個のデータを収集した。各地点の銅濃度データの測定年月、報告値、分析機器、および銅の形態は Appendix にまとめた。図 3-2 に、収集したすべてのデータの頻度分布を示した。測定時期は 1981 年～2012 年であった。収集したデータのほとんどが形態を考慮していない全銅濃度で、溶存態濃度のデータは、全データのうち 30 個のみであった。また、データの 99.4% が  $5 \mu\text{g/L}$  以下であった。定量下限値以下の値は、 $0.03 \mu\text{g/L}$  以下のデータが 12 個、 $0.1 \mu\text{g/L}$  以下のデータが 1 個、 $0.2 \mu\text{g/L}$  以下のデータが 16 個、 $2 \mu\text{g/L}$  以下のデータが 36 個、合計 65 個存在し、収集したデータの 4.0% を占めた。統計処理を行う場合は、定量下限値以下のデータを定量下限値/2 として扱った(OECD, 2000)。なお、海洋汚染調査報告（海上保安庁）においては定量下限値に関する言及がなかったが、なるべく収集できた実測値をすべて使用してスクリーニング的なリスク評価を行うために、本研究においてはそのまま使用した。ただし、すべてのデータのうち 2 データが不検出（ND）であったが、検出下限値等の情報が得

られなかったため、 $0.0 \mu\text{g/L}$  とした。すべてのデータの中央値は  $0.47 \mu\text{g/L}$ 、算術平均値は  $0.62 \mu\text{g/L}$ 、幾何平均は  $0.70 \mu\text{g/L}$  であった。

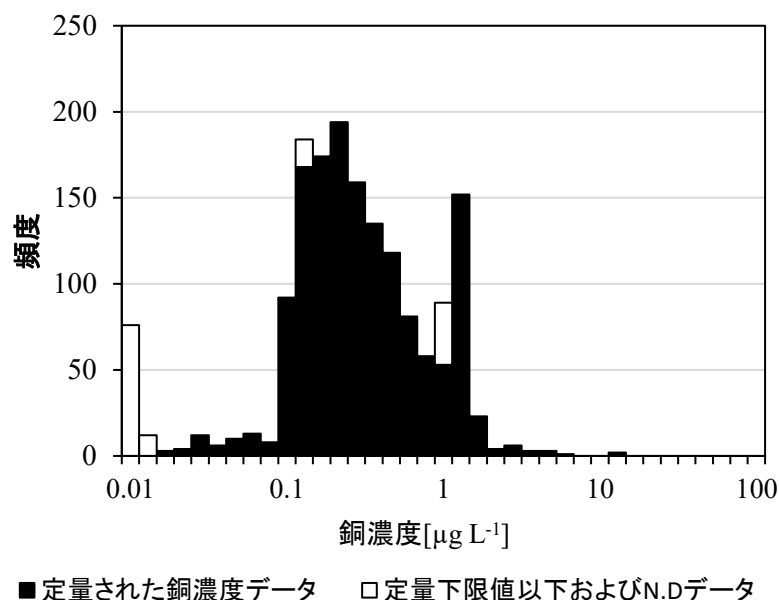


図 3-2 日本沿岸海域について収集した海水中銅濃度データ  
(1981～2012 年、総測定値数=1622) の頻度分布

現存しているデータを海域ごとに整理すると、海域別にどの程度の濃度が報告されているか把握することができる。図 3-3 は、データが収集できた各海域における全ての銅濃度データを表している。環境中濃度は測定値数が多い海域とそうでない海域の差が顕著である。単一測定地点で報告数が 1 データのみの海域や、複数地点を複数年で、なおかつ複数の水深で報告されている海域も存在した。収集できたデータは、原典も測定年代も多様であり、さらに、分析手法も異なっていた。最も高濃度な海域は、2004 年に測定された東京湾で、 $20 \mu\text{g/L}$  であった。ただし、そのような高濃度のデータは一つしか報告されておらず、東京湾における中央値は  $0.60 \mu\text{g/L}$  であった。95 パーセンタイル値が比較的高濃度であった海域は、東京湾の他に、館山湾、相模湾、大阪湾等が挙げられる。これらの海域は日本の主要な港湾やその周辺海域であり、出入港が盛んな海域は海水中の銅濃度が高くなる傾向が確認された。



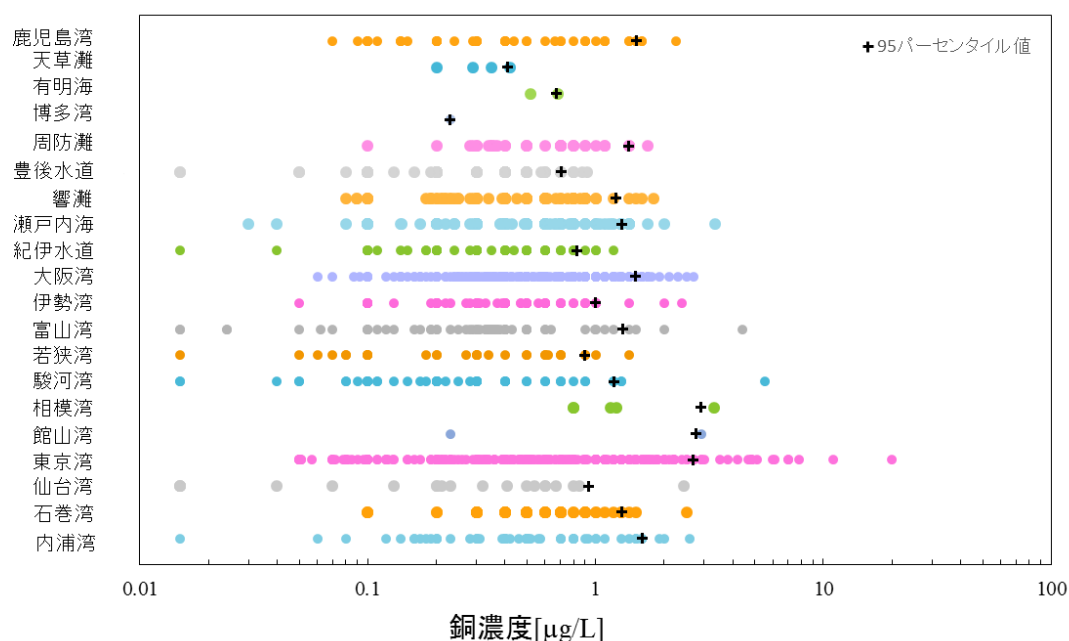


図 3-3 海域別に整理した日本沿岸海域の海水中銅濃度（1981～2012 年，総測定値数＝1622）

生物利用可能性を考慮するために、図 3-2 に示したデータのうち、DOC、pH、塩分、および水温まで同時に報告されているデータのみを抽出した。ただし、DOC が測定されている地点は 1 海域 4 地点（相模湾）のみで、その他のデータでは TOC が報告されていたため、TOC=DOC として扱った。その結果、水質 4 項目すべてのデータが揃った海域は、東京湾、富山湾、大阪湾、周防灘、響灘の 5 海域で、369 データであった。本研究では、4.3 節で記述した、5 つのリスク評価手法を用いた結果をすべて比較するために、必要な水質データが全て報告されている 369 データを、リスク評価に用いる曝露データとした。なお、水質データが収集できなかった海域に関しては、生物利用可能性を考慮しない 3 手法（4.3 節、4.3.1.1 節、および 4.3.2.1 節に記載）を用いて評価を行った。収集した日本沿岸域の水質データの最小値、最大値、および平均値を表 3-3 に示す。

表 3-3 収集データのうち銅と同時に測定されている水質データ（測定値数＝369）の概要

水質項目 (測定数)	TOC [mg L <sup>-1</sup> ] (375)	水温 [°C] (1453)	pH (1141)	塩分 [‰] (1218)
最小値	0.3	0.2	7.7	16.86
最大値	6.0	31.1	8.9	34.68
平均値	1.3	21.2	8.2	32.30

## 5.2. 有害性評価

本研究はリスク評価方法の違いによる評価結果の違いを比較することが目的のため、有害性データは EU RAR から引用し（表 3-1）、各手法で共通にした。EU RAR に記載されている有害性データは 74 個であったが、その中でも信頼性が高く、生物利用可能性を考慮するためのパラメータが存在する、つまり、毒性試験期間中に試験溶液の DOC 濃度が測定されているデータは 22 種の生物に対するものであった。その内訳は、分類学的階級で分けると、環形動物門が 1 種、刺胞動物門が 3 種、節足動物門（甲殻類）が 7 種、棘皮動物門が 1 種、不等毛植物門（藻類）が 4 種、軟体動物門が 6 種であった。有害性値の範囲は、慢性毒性においては、不等毛植物門の一種であるフェオダクチラム（*Phaeodactylum tricornutum*）の 2.9 µg/L から、節足動物門の一種であるウシエビ（*Penaeus monodon*）の 145 µg/L であった。

#### 5.2.1. 日本の環境省における手法

環境省が行っている「環境リスク初期評価」の手法に準拠して評価を行った。評価には他の手法と同様に、表 3-1 の有害性データを用いた。環境リスク初期評価において行われている信頼性評価および採用可能性評価は本研究においては実施しなかった。以下に本研究における手法を示す。まず、生物種を各栄養段階に分け、それぞれの栄養段階で最も低い毒性値を抽出する。この結果、藻類は *Phaeodactylum tricornutum* の 2.9 µg/L、甲殻類は *Artemia franciscana* の 6.6 µg/L、魚類は *Atherinops affines* の 55 µg/L、その他の生物（底生生物）は *Mytilus galloprovincialis* の 5.9 µg/L となった。この中で最も低い値である藻類の代表値 2.9 µg/L を採用した。本研究では、すべての栄養段階の毒性値が得られたため、AF は 10 と設定される。その結果、PNEC<sub>JPN</sub> は 0.29 µg/L と算出された。

#### 5.2.2. EU RAR における手法

##### 5.2.2.1. EU RAR における種の感受性分布による手法

表 3-1 のすべてのデータを対数正規分布にあてはめ、種の感受性分布（Species Sensitive Distribution: SSD）を作成した（図 3-4）。その結果、HC5 は 3.50 µg/L と算出された。EU RAR に従って、AF を 2 とすると、PNEC<sub>EU RAR</sub> は、1.75 µg/L となった。

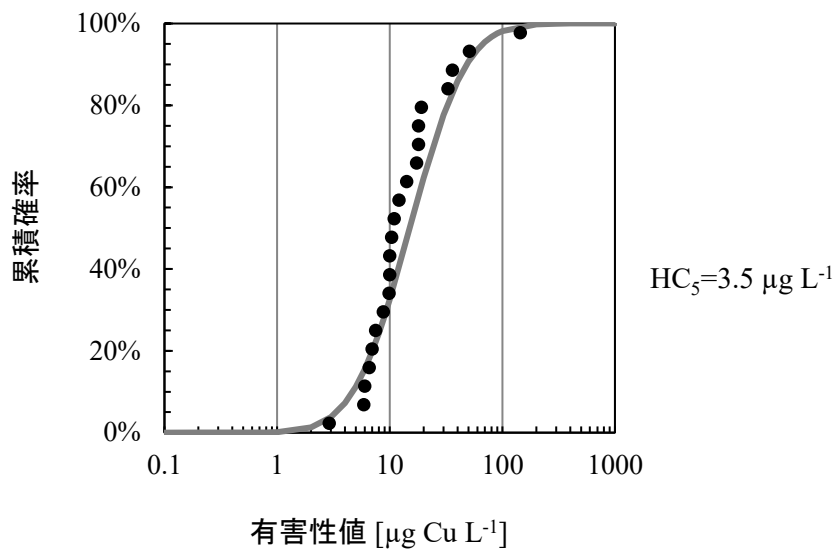


図 3-4 EU RAR に記載された有害性データ（表 3-1）で作成した種の感受性分布

#### 5.2.2.2. EU RAR における DOC 補正を行う手法

$PNEC_{EU\ RAR}$  を算出した後、 $PNEC_{EU\ RAR-DOC}$  を算出した。現場の DOC データ（表 3-3）と、4.3.1.2 節で示した補正式①～③を用いて算出した  $PNEC_{EU\ RAR-DOC}$  の結果から、最小値、最大値、および平均値のみ描画したものを図 3-5 に示す。HC5 は、1.32～8.32  $\mu\text{g/L}$ （平均値: 3.23  $\mu\text{g/L}$ ）と算出された。また、EU RAR に従って AF を 2 とすると、 $PNEC_{EU\ RAR-DOC}$  は 0.66～4.16  $\mu\text{g/L}$ （平均値：1.61  $\mu\text{g/L}$ ）と算出された。

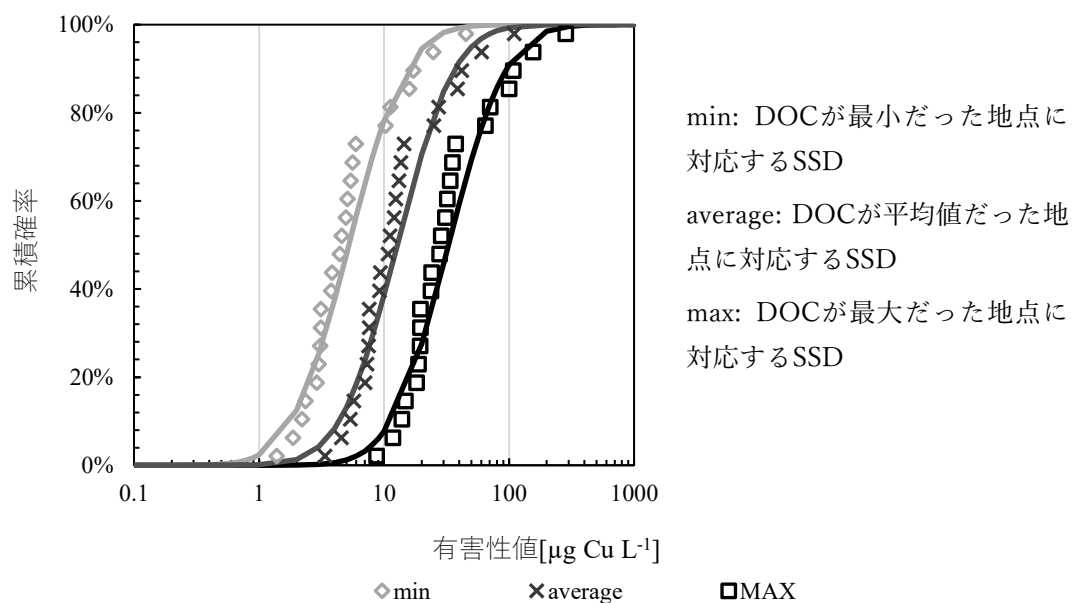


図 3-5 DOC 補正式を用いて有害性データ（表 3-1）を補正し作成した種の感受性分布

### 5.2.3. 米国における手法

#### 5.2.3.1. EPA 水質クライテリアにおける手法

U.S.EPA において CCC 算出方法として定められている、分類階級において 8 科以上の生物に対する慢性毒性試験の結果がある場合の手法を用いて  $PNEC_{CCC}$  を算出した(U.S.EPA, 2018)。まずは種ごとの幾何平均値 (SMCV: Species Mean Chronic Value) を算出し、その後さらに SMCV を用いて、種の上位分類である属ごとの幾何平均値 (GMCV: Genus Mean Chronic Value) を算出する。次に、求められた GMCV の小さい方から 4 つの値の 5 パーセンタイル値を最終的な GMCV (Final GMCV) とする。最後に、Final GMCV を、Water Quality Standards で用いられている AF である 2 で除して CCC とする。本研究において使用したデータ (表 3-1) は、同じ種のデータをいくつも包括していないため、種ごとの SMCV は算出せず、GMCV の算出から行った。表 3-1 に含まれる種は 20 の属に分類され、このうち GMCV の小さい方から 4 属は、*Phaeodactylum* sp. (不等毛植物門珪藻綱ナビキュラ目フェオダクチラム科) の  $2.9 \mu\text{g/L}$ 、*Mytilus* sp. (軟体動物門二枚貝綱イガイ目イガイ科) の  $6.0 \mu\text{g/L}$ 、*Artemia* sp. (節足動物門鰓脚綱無甲目ホウネンエビモドキ科) の  $6.6 \mu\text{g/L}$ 、*Mercenaria* sp. (軟体動物門二枚貝綱マルスダレガイ目マルスダレガイ科) の  $7.0 \mu\text{g/L}$  であった。これらの値の 5 パーセンタイル値である  $3.36 \mu\text{g/L}$  を  $AF=2$  で除した結果、 $PNEC_{CCC}$  は  $1.68 \mu\text{g/L}$  と算出された。

#### 5.2.3.2. BLM を用いた手法

U.S.EPA は、2016 年に海水中の銅に対する BLM をウェブサイト上で公開した (U.S.EPA, 2018b)。本研究ではこの BLM を用いて  $PNEC_{CCC-BLM}$  を算出し、他の手法と比較してどの程度の変動があるかを調査した。パラメータは銅濃度の他に、水温、pH、DOC、および塩分が必要である。BLM を用いることによる生物に対する影響濃度の変動を見るため、表 3-3 の水質データを用いて  $PNEC_{CCC-BLM}$  が取り得る範囲を算出した。その結果、 $PNEC_{CCC-BLM}$  は  $0.39 \sim 7.24 \mu\text{g/L}$  (平均値:  $1.63 \mu\text{g/L}$ ) となった。

### 5.3. リスク判定

#### 5.3.1. 生物利用可能性を考慮しない手法を用いたリスク判定結果

図 3-3 で示した各海域における銅濃度の 95 パーセンタイル値を用いてリスク判定を行った。測定年度や測定手法が異なるデータを使用していることにより、測定精度に差があると考えられるため、最大濃度でなく 95 パーセンタイル値を用いた。図 3-6 に、HQ の算出結果の累積頻度分布を示す。 $PNEC_{JPN}$  を用いると、収集したデータのうち  $70.2\%$  が  $1 \leq HQ$  となり、博多湾以外のすべての海域であった。次に、生物利用可能性による濃度の変動を考慮しない手法の有害性評価結果である、 $PNEC_{EURAR}$ 、および  $PNEC_{CCC}$  を用いると、 $1 \leq HQ$  の地点はそれぞれ  $4.0\%$  および  $3.6\%$  となり、内浦湾、仙台湾、東京湾、館山湾、相模湾、および駿河湾であった。また、 $0.1 \leq HQ < 1$  となったのは、 $PNEC_{EURAR}$  および  $PNEC_{CCC}$  では、石巻湾、若狭湾、伊勢湾、大阪湾、紀伊水道、瀬戸内海、響灘、豊後水道、周防灘、博多湾、有明海、天草灘、鹿児島湾であった。

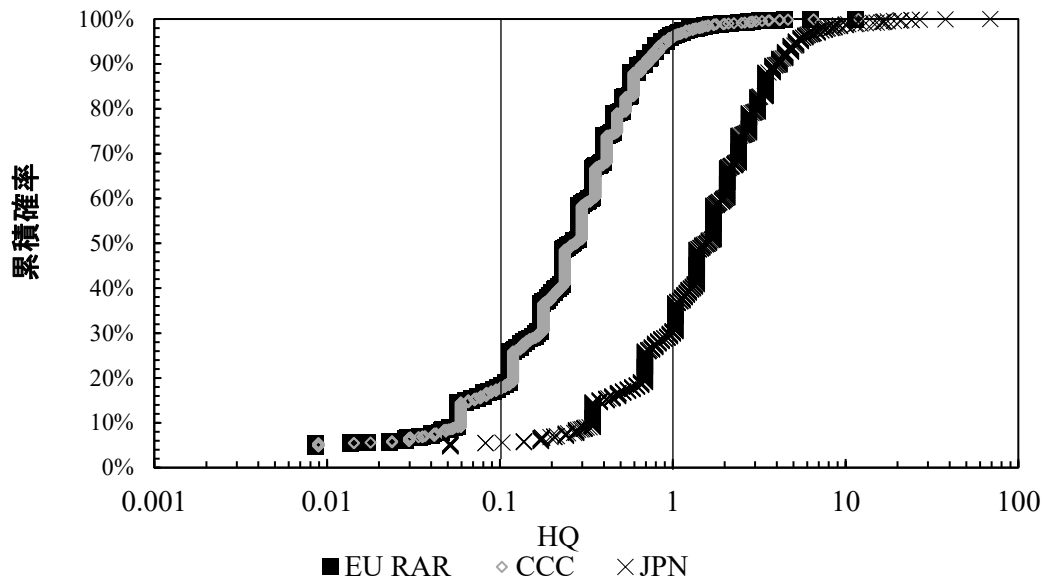


図 3-6 生物利用可能性を考慮しない3手法による全国 1622 データの海水中銅濃度の HQ の累積頻度分布

### 5.3.2. すべての手法を用いたリスク判定結果

各手法で得られたすべての PNEC を用いてリスク判定を行えるように、銅濃度および補正のための水質データである pH、水温、塩分および TOC 濃度がすべて収集できたデータである 369 データのみを用いてリスク判定を行った。また、銅濃度データは 95 パーセンタイル値、その他の水質データは算術平均値を、各海域の代表値として用いた。結果を図 3-7 に示す。PNEC<sub>EU RAR-DOC</sub> および PNEC<sub>CCC-BLM</sub> を用いると、どの海域も  $0.1 \leq HQ < 1$  程度となり、海域の水質に関わらずあまり変化がなかった。特に富山湾においては、生物利用可能性を考慮した 2 手法は、考慮していない 2 手法と比較して、リスクが高い結果となった。富山湾は他の海域と比較して、DOC データは低い値が報告されていた。そのため、生物利用可能性が高い形態の割合が高く見積もられたからである。 $1 \leq HQ$  となった海域は、PNEC<sub>EU RAR</sub> を用いた結果では東京湾、大阪湾、周防灘、および響灘であったのに対し、PNEC<sub>EU RAR-DOC</sub> を用いた結果では東京湾のみとなった。同じデータを用いても PNEC の算出方法が異なることによって、リスク判定結果に影響を及ぼすことが示された。

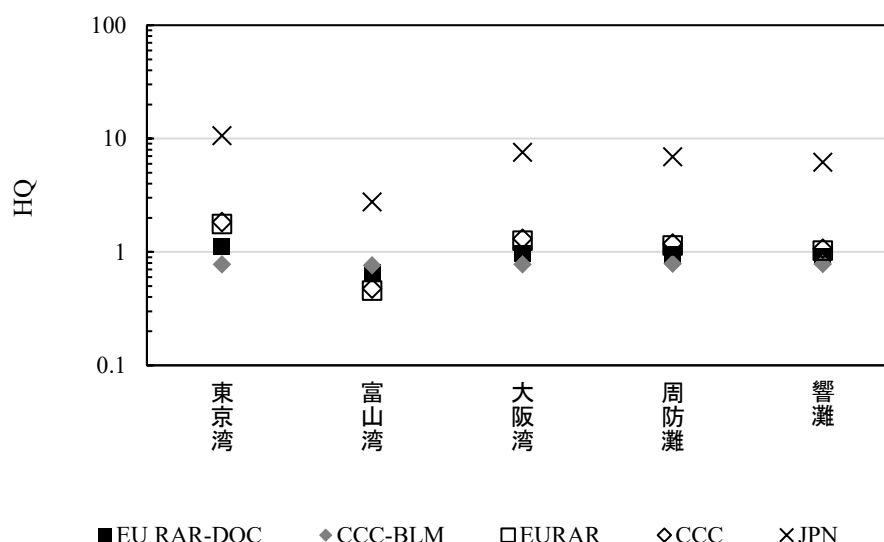


図 3-7 銅濃度および水質データをすべて収集できた海域に対する異なる手法を用いたリスク判定結果の比較（銅濃度の 95 パーセンタイル値とその他の水質の幾何平均値を代表値として各海域で評価）

### 5.3.3. 同じ湾内での複数地点における HQ の比較

同じ海域内でも、地点によって様々な環境があり、産業的な利用も湾内の地点ごとに異なるため、リスクの有無を海域全体で判断するには、範囲が広すぎる可能性がある。そこで、同じ湾内の複数地点における HQ の比較を行った。本報告では、銅濃度データおよび水質データにおいて、地点数と報告数がともに比較的多かった東京湾および大阪湾の結果を図 3-8 および図 3-9 にそれぞれ示す。銅濃度データおよびすべての水質データが収集できた 1981 年から 1993 年にかけてのデータにおいて、東京湾および大阪湾の銅濃度は年々減少傾向にあった。東京湾、大阪湾は共に、他の手法によってリスクが高い海域であると評価されたが、同じ湾内でも地点によっては、 $1 \leq HQ$  になる地点も存在していた。また生物利用可能性を考慮した結果では、考慮していない結果と比較して、リスクの変動がより大きく示された。例えば、図 3-8 の 1982 年をみると、BLM を用いた手法（CCC-BLM）において、 $1 \leq HQ$  となり、他の手法と比較してもリスクが高い結果が得られたが、1988 年の結果をみると、他の手法と比較してリスクが低く見積もられた。生物利用可能性を考慮したもう一つの手法である、DOC 補正を用いた手法（EU RAR-DOC）においても、BLM を用いた手法と同様の傾向を示した。これは 5.2.2.2 節で示した海域ごとの比較と同様に、同海域内においても、地点ごとや年代によって水質が少しずつ異なるため、リスク評価結果に違いが生じたのである。

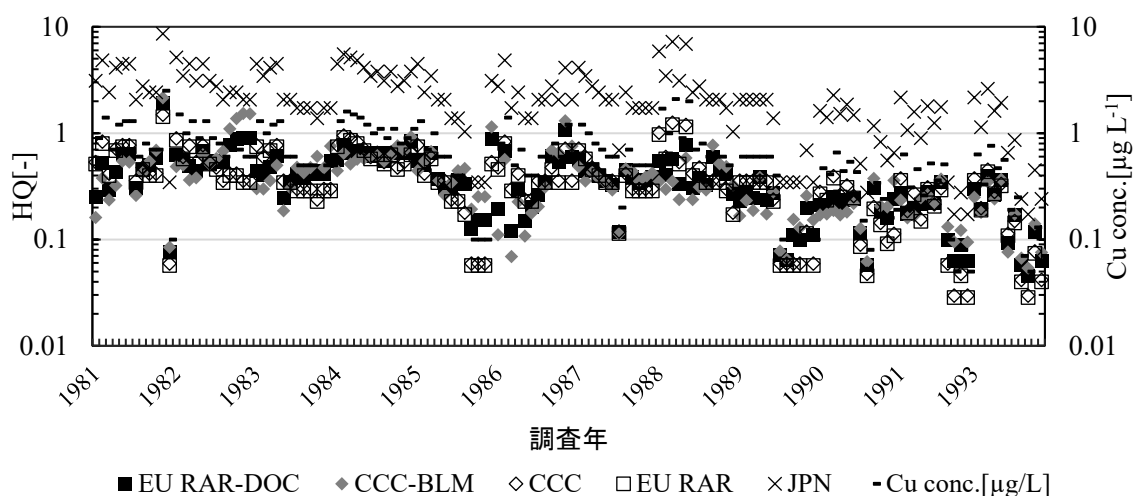


図 3-8 5手法で算出した PNEC を用いた東京湾におけるリスク判定結果

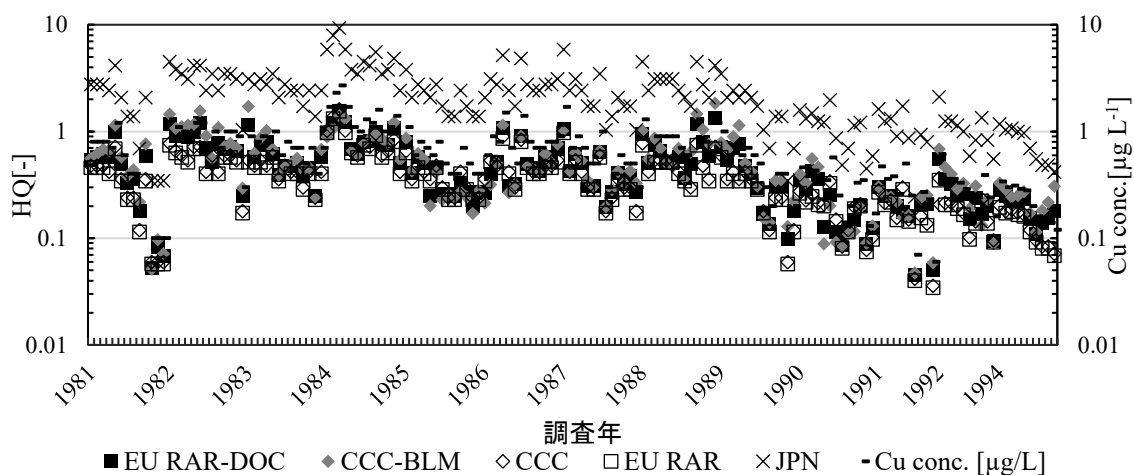


図 3-9 5手法で算出した PNEC を用いた大阪湾におけるリスク判定結果

## 6. 考察

### 6.1. 海水中銅濃度データについて

本研究においては、現在公開されているデータを収集して曝露評価を行った。収集した中で最新の海水中銅濃度データは、環境省から報告されている 2012 年の海洋環境モニタリング調査結果であった。海洋環境モニタリング調査結果は毎年公開されている報告だが、海水中銅濃度は毎年調査されているわけではない。データがごくわずかしき報告されていない湾や、本研究ではデータが収集できなかった湾も存在した。また、様々な報告書からデータを収集したことにより、測定方法や定量下限値が異なっていた。日本沿岸域の銅の生態リスク評価を行うためには、まずは日本沿岸域における近年の海水中銅濃度データ、およびそれと同時に水質データを取得する必要がある。また、海域、さらには地点ごとによって銅濃度や水質が異なっていたことから、地域に特化した、湾内の地点ごとの詳細なリスク管理を行う場合、対象となる地点ごとの海水中銅濃度データを取得する必要がある。

## 6.2. 有害性評価に使用するデータの信頼性について

リスク評価を行う際には、データの信頼性評価を行う。有害性評価における信頼性評価の評価項目は、U.S.EPA では、供試生物の成長段階を考慮していること、エンドポイントが定義されていること、毒性試験の際に対照区が設定されていること、対象物質の有害性と関係するような水質のデータも取得していること、といった項目に加え、自国の生物種を用いた試験であるか、有害性評価のデータには 8 科以上の種が含まれているか等も設定されている(U.S.EPA, 2018c)。図 3-4 の中で、日本近海に生息している種は 8 科 4 属 9 種であった。それらのデータのみを用いて SSD を作成すると、図 3-10 のようになり、HC5 は  $2.72\mu\text{g/L}$  となった。全データを用いた際の HC5 が  $3.50\mu\text{g/L}$  であったため、日本沿岸域の生物のみを抽出すると、HC5 は、感受性がより高い結果となった。ただし、魚類や棘皮動物に対するデータが一切含まれておらず、全体的にデータ数が少ないことに加え、これらの種が日本近海の生態系の代表性を示しているとも言い難い。日本沿岸域や近海における生態リスク評価を行うためには、日本近海に生息している様々な種に対する、信頼性の高いデータを取得・収集することが必要である。

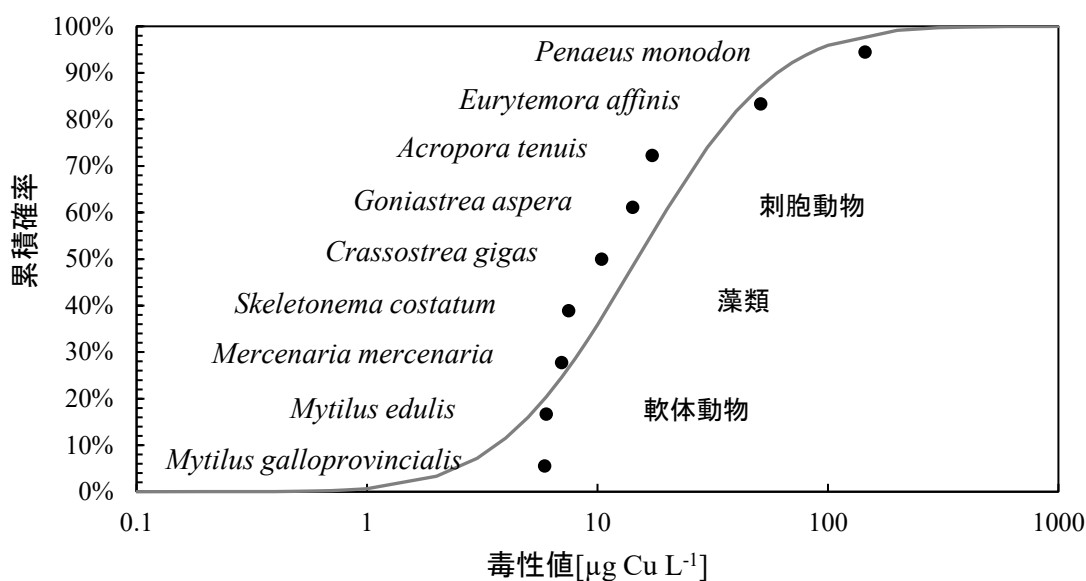


図 3-10 図 3-4 から日本近海に生息する種のみを抽出して作成した SSD

## 6.3. 各有害性評価手法による結果の違い

各手法によって算出された PNEC を図 3-11 にまとめた。このうち、何らかの形で生物利用可能性が考慮されているのは、 $\text{PNEC}_{\text{EURAR-DOC}}$  および  $\text{PNEC}_{\text{CCC-BLM}}$  である。すべての手法の中で、 $\text{PNEC}_{\text{JPN}}$  が突出して低い値となったが、これは  $\text{PNEC}_{\text{JPN}}$  のみ、本来、スクリーニング評価は、数多くの化学物質の中から有害性が高く、管理の優先順位が高い物質を選定することを目的としている。そのため、簡易的でスピーディな選別ができる代わりに、リスクは高く見積もられる傾向がある。一方、他の手法は、既に詳細なリスク評価を行う物質として



選定された上で採用されているリスク評価手法を用いているため、リスク判定結果は差が出る結果となった。PNEC<sub>EU RAR</sub> および PNEC<sub>EU RAR-DOC</sub> の平均値を比較すると、生物利用可能性を考慮しないと 1.75  $\mu\text{g/L}$ 、考慮すると 1.56  $\mu\text{g/L}$  となり、生物利用可能性を考慮した場合、地点ごとの DOC 濃度によっては 0.66  $\mu\text{g/L}$  から 4.16  $\mu\text{g/L}$  の間で変動した。同様に、PNEC<sub>CCC</sub> および PNEC<sub>CCC-BLM</sub> の平均値を比較すると、生物利用可能性を考慮しないと 1.68  $\mu\text{g/L}$ 、考慮すると PNEC の平均値は 1.63  $\mu\text{g/L}$  となった。PNEC<sub>CCC-BLM</sub> は変動幅が PNEC<sub>EU RAR-DOC</sub> よりもさらに広く、0.39  $\mu\text{g/L}$  ~ 7.24  $\mu\text{g/L}$  の間を変動した。これは、DOC をはじめとした水質の違いによるものである。水質によっては、PNEC<sub>JPN</sub> に匹敵するほど低い結果も得られた。PNEC<sub>EU RAR-DOC</sub> および PNEC<sub>CCC-BLM</sub> は、どちらも DOC による補正を行っているが、PNEC<sub>CCC-BLM</sub> は、さらに pH や水温、塩分といった DOC 以外の水質項目も考慮されているため、結果が変化したと考えられる。

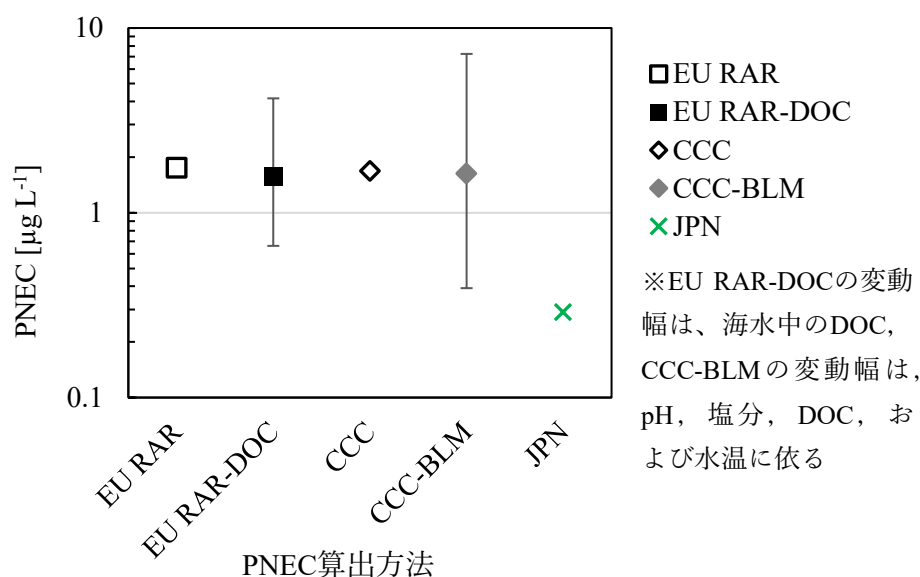


図 3-11 各方法による PNEC 算出結果の比較

先に述べた通り、環境省が実施する環境リスク初期評価とは、相対的に環境リスクが大きいと想定され、詳細なリスク評価を行う必要があると判断される物質を抽出するためのスクリーニング評価の一種である。そのため、本来であればスクリーニング評価が終わった後に行われるような評価手法である PNEC<sub>EU RAR-DOC</sub> および PNEC<sub>CCC-BLM</sub> と比較すると、PNEC<sub>JPN</sub> の評価値が低めになるのは至極当然である。銅のような、環境中に自然に存在する元素は、バックグラウンド濃度に地域性があり、高い地域について一般的なリスク評価を適用すると厳しい評価結果となり易い。そういった地域では、生物利用可能性のような場特異性を考慮した管理手法を適用するなど、柔軟な対応が求められよう。PNEC<sub>JPN</sub> のようなスクリーニング評価を行った結果、さらに詳細なリスク評価を行う必要がある候補と選定された場合、本研究で用いたような、水質を考慮した手法を採用することにより、自

然に存在する銅のような物質に対する実現可能な基準の設定に貢献できる可能性がある。

#### 6.4. 今後のリスク管理のために

図 3-3 において全銅濃度でみると海域ごとの海水中銅濃度の差は小さく見えるが、図 3-7 において生物利用可能性を考慮すると、手法によってはリスク判定の結果が変化する海域も存在した。これは、人為的要因等によって海水中の DOC 濃度が高くなり、海水中銅濃度が高い割にはリスクが低く算出されたことによる。HQ 法でリスクを判定する場合、HQ が 1 を超過するか否かによってその後の対応が変わる。生物利用可能性を考慮することによって、必要以上に厳しい規制や管理を避けることができる可能性がある。そのため、湾ごとの地理的・産業的な特徴および、その海域の海水中銅濃度を加味した上で、リスク評価を行う必要があると考える。ただし、そのようなリスク評価を行う際に、同じ海域内でもリスクが高い地点と低い地点が混在する可能性があることを考慮し、目的に合わせた、求めるリスク管理の在り方に適した評価を選択することが望ましい。

#### 7. まとめ

既存の海水中銅濃度データおよび、欧米で一般的になりつつある生物利用可能性の概念を考慮した手法を含む複数の手法を用いて、日本沿岸域における銅の生態リスク評価を実施した。リスク判定結果は、使用する有害性評価手法によって  $HQ=1$  を挟んで変化した。従って、日本沿岸域の生態リスク評価の現状の課題として、どのような有害性評価手法を用いて評価するのが妥当か検討し、行政施策として取り入れる必要がある。また、採用する方法としては、湾ごとの地理的・産業的な特徴と水質を考慮した上で、場特異的なリスク評価方法を採用することが望ましい。これを可能とするための基盤としての曝露データおよび有害性データについては、日本沿岸域の海水中銅濃度や、日本近海に生息する生物種の有害性データ等が不足しているため、これらのデータ取得にも取り組む必要がある。

## 参考文献

- Arnold, W.R., Warren-Hicks, W.J. (2007) Assessment of aquatic ecological risk and site-specific criteria of copper in San Francisco Bay, California, USA. *Integrated Environmental Assessment and Management* 3 (1) , 32-48.
- Arnold, W.R. (2005) Effects of dissolved organic carbon on copper toxicity: implications for saltwater copper criteria. *Integrated Environmental Assessment and Management* 1 (1) , 34-39.
- C.T. Driscoll, J.K. Otton, A. Iverfeldt Trace metals speciation and cycling B. Moldan, J. Cerny (Eds.) (1994), *Biogeochemistry of Small Catchments: A Tool for Environmental Research*, John Wiley & Sons Ltd. pp. 299-322.
- DeForest, D.K., Gensemer, R.W., Gorsuch, J.W., Meyer, J.S., Santore, R.C., Shephard, B.K., Zodrow, J.M. (2018) Effects of copper on olfactory, behavioral, and other sublethal responses of saltwater organisms: Are estimated chronic limits using the Biotic Ligand Model protective? *Environmental Toxicology and Chemistry* 37 (6) , 1515-1522.
- Di Toro, D.M., Allen, H.E., Bergman, H.L., Meyer, J.S., Paquin, P.R., Santore, R.C. (2001) Biotic ligand model of the acute toxicity of metals. 1. Technical basis. *Environmental Toxicology and Chemistry* 20 (10) , 2383-2396
- Hall, L.W., Anderson, R.D. (1999) A Deterministic Ecological Risk Assessment for Copper in European Saltwater Environments. *Marine Pollution Bulletin* 38 (3) , 207-218.
- Hall, L.W., Scott, M.C., Killen, W.D. (1998) Ecological risk assessment of copper and cadmium in surface waters of Chesapeake Bay watershed. *Environmental Toxicology and Chemistry* 17 (6) , 1172-1189.
- Han, S., Naito, W., Masunaga, S. (2016) Impact of Bioavailability Incorporation on Ecological Risk Assessment of Nickel, Copper, and Zinc in Surface Waters. *Water, Air, & Soil Pollution*, 227 (12) , 1-13.
- Hiemstra, T., Van Riemsdijk, W.H. (2006) Surface complexation at mineral interfaces: Multisite and Charge Distribution approach, Chapter 5, On the Relationship between Charge Distribution, Surface Hydration, and the Structure of the Interface of Metal (hydr) oxides. Wageningen University, Netherlandish. <https://edepot.wur.nl/150908>
- Katranitsas, A., Castritsi-Catharios, J., Persoone, G. (2003) The effects of a copper-based antifouling paint on mortality and enzymatic activity of a non-target marine organism. *Marine Pollution Bulletin* 46 (11) , 1491-1494.
- Kiaune, L., Singhasemanon, N. (2011) Pesticidal Copper (I) oxide: Environmental Fate and Aquatic Toxicity. In: Whitacre, D.M. (Ed.) , *In Reviews of Environmental Contamination and Toxicology* Volume 213, USA, pp. 1-26.
- Niyogi, S., Wood, C.M. (2004) Biotic Ligand Model, a Flexible Tool for Developing Site-Specific Water Quality Guidelines for Metals. *Environmental Science & Technology* 38 (23) , 6177- 6192.
- OECD (2000) Series on Testing and Assessment: Ecotoxicity Testing Number 23. Guidance document on aquatic toxicity testing of difficult substances and mixtures. OECD, Paris, France.
- Paquin, P.R., Gorsuch, J.W., Apte, S., Batley, G.E., Bowles, K.C., Campbell, P.G.C., Delos, C.G., Di Toro, D.M., Dwyer, R.L., Galvez, F., Gensemer, R.W., Goss, G.G., Hogstrand, C., Janssen, C.R., McGeer, J.C., Naddy, R.B., Playle, R.C., Santore, R.C., Schneider, U., Stubblefield, W.A., Wood, C.M., Wu, K.B. (2002) The biotic ligand model: a historical overview. *Comparative Biochemistry and Physiology Part C: Toxicology & Pharmacology* 133 (1-2) , 3-35.
- Posthuma, L., Suter, G.W., Traas, T.P. (2001) *Species Sensitivity Distributions in Ecotoxicology*. CRC Press, London, UK.
- Rosen, G., Rivera-Duarte, I., Chadwick, D.B., Ryan, A., Santore, R.C., Paquin, P.R. (2008) Critical tissue copper residues for marine bivalve (*Mytilus galloprovincialis*) and echinoderm

( *Strongylocentrotus purpuratus* ) embryonic development: conceptual, regulatory and environmental implications. *Marine Environmental Research* 66 (3) , 327-336.

Rosen, G., Rivera-Duarte, I., Kear-Padilla, L., Chadwick, D.B. (2005) Use of laboratory toxicity tests with bivalve and echinoderm embryos to evaluate the bioavailability of copper in San Diego Bay, California, USA. *Environmental Toxicology and Chemistry* 24 (2) , 415-422.

Schuler, L.J., Hoang, T.C., Rand, G.M. (2008) Aquatic risk assessment of copper in freshwater and saltwater ecosystems of South Florida. *Ecotoxicology* 17 (7) , 642-659.

Takata, H., Aono, T., Uchida, S. (2012) Distributions of trace metals Co, Cu and Cd in northern Sagami Bay, Japan and their relationship to estuarine variables. *Estuarine, Coastal and Shelf Science* 111, 84-94.

Tait, T.N., McGeer, J.C., Smith, D.S. (2018) Testing the underlying chemical principles of the Biotic Ligand Model (BLM) to marine copper systems: Measuring copper speciation using fluorescence quenching. *Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology* 100 (1) , 76-81.

U.S.EPA (2018) ECOTOX Quick Database Query. URL. <https://cfpub.epa.gov/ecotox/> ( 2018 年 12 月時点 ).

U.S.EPA (2016) Draft Aquatic Life Ambient Estuarine/Marine Water Quality Criteria for Copper - 2016. Water Quality Criteria. United States Environmental Protection Agency, Washington, DC, USA.

U.S.EPA (2018a) CCC Approach Based on Available Data. Supplemental Module: Aquatic Life Criteria. URL. <https://www.epa.gov/wqs-tech/supplemental-module-aquatic-lifecriteria> (2018 年 6 月時点 ).

U.S.EPA (2018b) Aquatic Life Criteria – Copper, Copper BLM Workshop Proceedings. EPA Related Topics: Water Quality Criteria. URL. <https://www.epa.gov/wqc/aquatic-life-criteria-copper#workshop> ( 2018 年 2 月時点 ).

U.S.EPA (2018c) Assessing Acute Effects Data. Supplemental Module: Aquatic Life Criteria | Water Quality Standards: Regulations and Resources. URL. <https://www.epa.gov/wqs-tech/supplemental-module-aquatic-life-criteria> ( 2018 年 6 月時点 ).

Van Sprang, P., Vangheluwe, M., Van Hyfte, A., Heijerick, D., Vandenbroele, M., Verdonck, F., Delbeke, K., Dwyer, B., Adams, B. (2008) Voluntary risk assessment of copper, copperII, sulphate pentahydrate, copper (I) oxide, copper (II) oxide, dicopper chloride trihydroxide. European Union Risk Assessment Report, European Copper Institute, Brussels, Belgium.

海上保安庁水路部 (1972-1998) 海洋汚染調査報告. 海上保安庁, 東京.

環境省 (1998-2017) 海洋環境モニタリング調査. 環境省, 東京.

環境省 (2006) 化学物質の環境リスク初期評価ガイドライン. URL. <https://www.env.go.jp/chemi/report/h14-05/chap01/02.pdf> (2018 年 3 月時点 ).

環境省 (2014) 化学物質の環境リスク初期評価等 (第 13 次とりまとめ). URL. <http://www.env.go.jp/chemi/report/h27-01/index.html> (2018 年 3 月時点 ).

経済産業省 (2017) リスク評価 (一次) 評価IIにおける亜鉛ピリチオンの評価結果について (生態影響). URL. [http://www.meti.go.jp/policy/chemical\\_management/kasinhou/files/information/ra/170324\\_021.pdf](http://www.meti.go.jp/policy/chemical_management/kasinhou/files/information/ra/170324_021.pdf) (2018 年 12 月時点 ).

中島孝幸, 藤原好, 若林明子, 山崎邦彦 (2007) 東京湾海水中の金属濃度. *水環境学会誌* 30 (1), 45-47.

中西準子, 堀口文男 (2007) 詳細リスク評価書シリーズ 10 銅ピリチオン. 丸善, 東京.

山口良隆, 西野貴裕, 張野宏也, 岡村秀雄 (2012) ストリッピング・ボルタンメトリー法を用いた東京湾海水中の銅モニタリング (所外発表論文等概要). 海上技術安全研究所報告 12 (3), 221.

## 第4章 地域性を考慮したリスク評価を行うための生態毒性試験

### 1. はじめに

地域の環境的、および産業的な特徴を考慮したリスク評価を行うためには、リスク評価に使用する生物を、その地域の特徴を代表するような生物を選定する必要がある。第二章で示したように、志津川湾は養殖が主な産業で、その中でも、銅に対する感受性が高いことでも知られている、無脊椎動物を主要な養殖水産物としている。そこで、銅に対する感受性が高い、志津川湾における水産重要種を供試生物として、志津川湾の海水を用いた生態毒性試験を実施し、志津川湾における水質と、その場に生息する生物種に対する銅の生態影響の関係を調査した結果をまとめる。

### 2. 対象海域および供試生物

#### 2.1. 対象海域

本毒性試験は、宮城県水産技術総合センターにて実施した。また、一般的な生態毒性試験と異なり、飼育・胚確保の容易さ等の汎用性で選定した生物種ではないため、胚の収集や観察方法については、現地の養殖業で実際に行われている手法をご教示いただいた。供試生物の胚採取、実験設備は、同センターの酒井敬一氏、押野明夫氏にご協力いただいた。本研究は、宮城県志津川湾において重要な養殖水産物のうち、銅に対する感受性がとりわけ高い生物種である、キタムラサキウニ (*Strongylocentrotus nudus*)、マガキ (*Crassostrea gigas*)、マボヤ (*Halocynthia roretzi*)、エゾアワビ (*Haliotis discus hannai*) を供試生物とした。試験に用いる海水は、宮城県志津川湾の2地点において採水した海水、および、宮城県水産技術総合センターにて汲み上げられている石巻湾沖の濾過海水を使用した。各生物種に対する試験は、その生物種の自然産卵の時期に合わせて実施した。

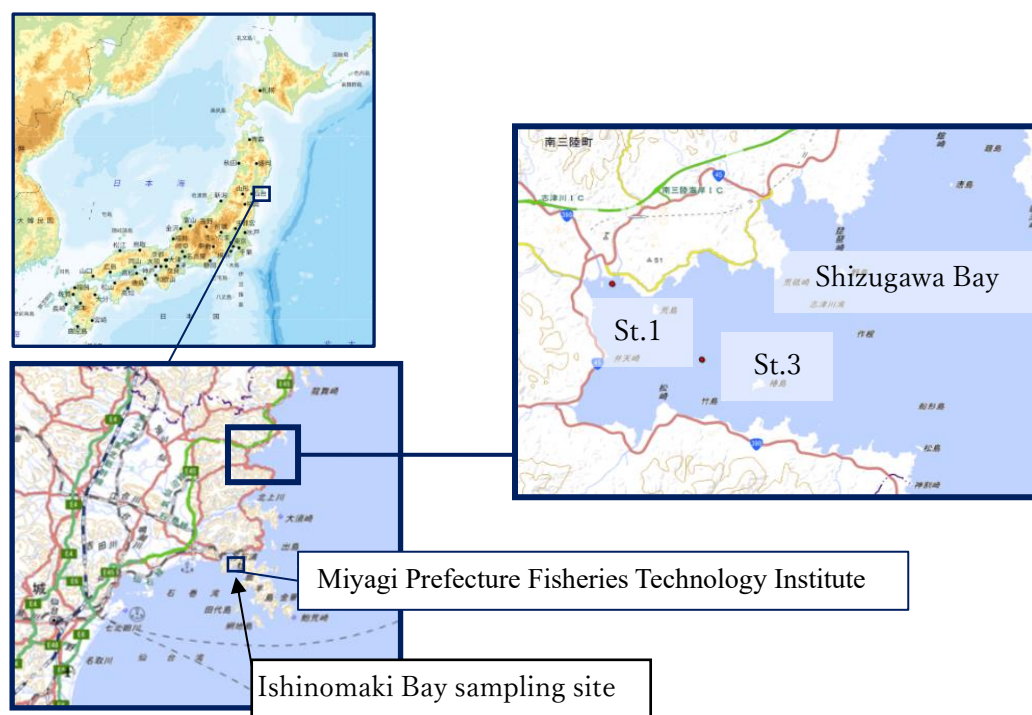


図 4-1 サンプルング地点および試験実施地点

## 2.2. 供試生物

本研究の供試生物は、ステークホルダーの関心が高い生物とした。宮城県志津川湾近傍において養殖が盛んである複数種の生態毒性試験を実施することにした。各供試生物の生態学および宮城県における漁業的な特徴を以下に示す。

### 2.2.1. マガキ (*Crassostrea gigas*)

宮城県はカキの養殖が全国二位の収穫量を誇り（海面漁業生産統計調査, 2018）、志津川湾においても、湾を代表する養殖水産種の一種である。2016 年 3 月 30 日には、宮城県漁業協同組合志津川出張所戸倉地区で手掛けるカキ養殖が、日本ではじめて ASC 漁業認証（第一章参照）を取得した（WWF Japan, 2018）。これに続き、2018 年 4 月には宮城県漁協石巻地区支所、石巻東部支所、および石巻湾支所の 3 支所が新たに ASC 認証を取得し、現在では宮城県産カキの 6 割が ASC 認証を取得している。

### 2.2.2. エゾアワビ (*Haliotis discus hannai*)

宮城県は、全国屈指のアワビの産地である。緯度および気候的な特徴から、エゾアワビ (*Haliotis discus hannai*) の漁獲量が多い。アワビは、採卵および人工授精の後、稚貝になるまで陸上プールで畜養され、その後沿岸に撒かれるという「放流種苗」が行われている（宮城県水産技術総合センター, 2016）。宮城県では、アワビ種苗生産施設も、震災によって壊滅的な被害を受けた。震災後は十分な放流種苗の供給が得られなかったことから漁獲量が減少していたが、2017 年度から県産種苗の放流を再開され、2020 年度は 7 月中旬までに約 106 万個を県内 19 ヶ所に放流された（水産新聞, 2020）。

### 2.2.3. キタムラサキウニ (*Strongylocentrotus nudus*)

アワビやウニといった、干潮汀線より海側に向かう、海底が岩礁で海藻の繁茂した海域である「磯」に生息する底生生物は、磯根資源と呼ばれている。宮城県においては、*H. discus* や *S. nudus* がそれにあたる。*H. discus* に関しては種苗放流がされているが、*S. nudus* は生息数が豊富で、種苗は実施されていない。ただし、資源保護の観点から、県規制や漁業協同組合による漁場行使規則などにより、漁獲サイズと漁期を規制して漁獲管理が行われていた（宮城県, 2012）。一方で、ウニはアラメ等の海藻類が食いつくされてしまう磯焼けの問題種としても知られている。震災後は漁獲量が激減したことにより、2014 年からはウニによる磯焼けの被害数が多く報告されており（小松ら, 2018; 我妻ら, 2018; 小松ら, 2017）、積極的な漁獲がされている。

### 2.2.4. マボヤ (*Halocynthia roretzi*)

*H. roretzi* の養殖発祥の地である宮城県は、全国の生産量のうち約 80%を占める。志津川湾は県内で第 4 位の生産量を誇り、湾を代表する養殖水産種の一つである。しかし *H. roretzi* は日本において珍味とされていることから分かる通り、他国において水産重要種と認識されていない。さらに、ホヤ綱は分類学的には脊索動物門に分類され、*H. roretzi* の近縁種を含めても、軟体動物よりも有害性の観点からの知見が少ない。

## 2.3. 各供試生物に対する試薬の調製

銅原液を調製するために、硫酸銅五水和物（試薬グレード；和光純薬工業、大阪、日本）約 2 g を、電子天秤を用いて精密に秤量し、その重量を記録した。100 mL のポリプロピレンビーカーに超純水で溶解した。硫酸銅五水和物が完全に溶解した後、この溶液を 500 mL 容ポリプロピレン製メスフラスコに移し、500 mL に調整した。その後、硫酸銅の溶解量に応じて少量の超純水を加えて、硫酸銅溶液の全量を調整し、正確な濃度が 1.00 g/L となるように調整した。これを Cu 原液とした。試験群に使用した海水は、志津川湾の 2 地点（St. 1：38°40'21 "N, 141°27'3 "E, St. 3：38°39'22 "N, 141°28'27 "E）から採取した表層水を使用した。また、宮城県水産技術センターで継続的にポンプを用いて揚水されている石巻湾の沖合海水も使用した。試験溶液を調製するために、各海水試料をメンブレンフィルター（JHWP09025：孔径 0.45  $\mu$ m, アズワン株式会社, 大阪府, 日本）を用いて吸引ろ過し、銅濃度の異なる溶液を調製した。

Cu 原液を海水で適切に希釈し、濃度の異なる Cu 溶液を調製した。各生物種に対する濃度区は、以下のように設定した。



表 4-1 各試験生物に対する設定曝露濃度

試験 区 No.	マ ガ キ	エ ゾ ア ワ ビ	キ タ ム ラ サ キ ウ ニ	マ ボ ヤ
Cont.	0 μg/L	0 μg/L	0 μg/L	0 μg/L
1	2 μg/L	5 μg/L	5 μg/L	4 μg/L
2	4 μg/L	7.5 μg/L	10 μg/L	8 μg/L
3	8 μg/L	11.3 μg/L	20 μg/L	16 μg/L
4	16 μg/L	16.9 μg/L	25 μg/L	32 μg/L
5	32 μg/L	25.3 μg/L	31.3 μg/L	64 μg/L
6	64 μg/L	-	40 μg/L	128 μg/L
7	128 μg/L	-	80 μg/L	-

各試験溶液については、海水を 1 L のポリプロピレン製メスフラスコの約 90 % を満たすように添加した。最後に、転倒攪拌させ、各濃度群の均質な試験溶液を調製した。各試験群について、溶液の 40 mL を 100 mL のポリプロピレン容器(フッ素ガス表面処理; Goodboy、アズワン株式会社)に分注した。各濃度群について 5 回の繰り返し試験をした。試験溶液は分注後、化学的な平衡状態にするために、 $24 \pm 2$  °C で一晩静置した(Grosell et al. 2007)。

### 3. 方法および結果

各生物種に対する毒性試験の手法および結果を以下にまとめる。

#### 3.1. マガキ (*Crassostrea gigas*)

##### 3.1.1. 試験方法

*C.gigas* に対する試験においては、International Council for the Exploration of the Sea (ICES) (Leverett and Thain 2013) の手法を参考に、*C.gigas* の産卵期である夏季に実施した。試験実施時に志津川湾で栽培された親個体は、産卵時期が例年よりはやく、既に放卵後であったため、同じ宮城県内の気仙沼市大島の親個体を調達した。採卵までは、発泡スチロール製の箱で冷

蔵保存した。各胚の採取には、漁業者の間で一般的に採用されている「切開法」を用いた。まず、殻を剥いた状態で、生殖腺の発達具合を確認した。身の中央下部に白く視認できる生殖腺が大きく発達している個体を複数種選び、切開用メスを用いて生殖腺に切れ込みを入れた。滲み出てきた胚懸濁液を海水でビーカー内に洗い出した。顕微鏡下で雌雄の確認、および性状を確認し、状態の良い雌雄各4個体ずつの胚懸濁液を1L容ビーカーへ収容し、やさしく攪拌し受精させた。15分静置した後、200 $\mu$ m目合いのフィルターで濾過し、余剰な精子および付着していたゴミを取り除き、受精卵のみを収集したあと、濾過海水を加え800mLにメスアップした。3時間後、ピペットで1mL吸い上げ、顕微鏡下で16-32細胞期まで正常に発生が進んでいるか確認し、450卵/mLとなるよう海水でメスアップした。各試験バイアルに、100個体/mLとなるように添加し曝露を開始した。添加直後に一度やさしく転倒攪拌した後、24時間静置した。

24時間後、試験バイアル内の幼生が一様に分布するように転倒攪拌し、素早く2mLピペットで吸い取り、界線入りスライドガラス上に滴下した。そこにルゴール・エオシン液（ヨウ素水溶液にエオシンY染色液を少量混合させたもの）を滴下することで固定・染色した。この幼生を顕微鏡下で観察し、計数した。D型幼生にまで正常に発育したものを「正常」、その他奇形や発育遅延を呈すものを「異常」とした。本研究では、胚発生の初期段階にある受精卵への曝露の影響のみに焦点を当てているため、未受精卵は分析の対象から除外した。

*C. gigas* の場合、高濃度の銅溶液に曝露されると、異常が発生した幼生は分解が進んでしまい、個体数を計数することが困難であった。そのため、対象群での幼生の総個体数を各銅濃度における試験群の総個体数として以下の計算式で各試験区の影響割合を算出した（Ritz and Streibig 2005）。

$$\text{Normal larvae occurrence rate} = \frac{\text{Normal D - type larva population}}{(\text{Number of normal D - type larvae in control group}) - (\text{Abnormal population in control group})} \quad \dots \text{式 (1)}$$

$$\text{Abnormal larvae occurrence rate} = (1 - \text{Normal larvae occurrence rate}) \quad \dots \text{式 (2)}$$

また、幼生の支援しによる影響を除外するために、異常養成発生率のデータを Abbott の補正（Ritz and Streibig 2005）を用いて補正し、実質異常幼生発生率を算出した。

$$\text{Real abnormal larvae occurrence rate} = \frac{(\text{Abnormal larvae rate of each test group}) - (\text{Abnormal larvae rate of control group})}{1 - (\text{Abnormal larvae rate of control group})} \quad \dots \text{式 (3)}$$

本試験における無影響濃度（No observed Effect Concentration: NOEC）については、Bartlett 検定で確認された等分散のデータについて、一方向分散分析（ANOVA）を行い、Dunnett の多重比較検定（ $p=0.05$ ）を用いて有意性を判定した。また、10%影響濃度（EC10）及び半数影響濃度（EC50）は、統計解析ソフト R（ver. 3.3.3.3）の drc パッケージを用いて 2 パラメータロジスティック回帰を行い、用量-反応曲線を描くことで求めた。

試験終了後に、各濃度区の試験水中の銅濃度を測定した。溶存銅濃度、総銅濃度ともに、誘導結合プラズマ質量分析計（ICP-MS）（Agilent 7700x ICP-MS；Agilent Technologies）を用いて、JIS K0102 52.5 ICP 質量分析法に則して測定した。試験水には海水を用いたため、イミノジ酢酸弱陽イオン交換カラム（InertSep ME-1；GL サイエンス株式会社）に通し、保持した二価金属を 1-M 硝酸（Ultrapure-100；関東化学株式会社）を用いて脱塩前処理をして溶出した。試験容器への銅の吸着量を測定するために、曝露開始から 24 時間後（すなわち曝露期間終了時）に 500 mL のポリプロピレン容器（i-boy；AS ONE 社製）に移し、直ちに硝酸で固定した。また、試験溶液の別のものを容器内に移し替えずに硝酸で固定し、容器壁に吸着した銅を含む銅濃度を測定した。2 つの測定値の差を吸着した分として算出した。検出限界は、JIS K 0133: 2007 に基づいて算出した。

その他の水質パラメータとして、DOC、pH、塩分濃度、水温を測定した。pH、塩分濃度、水温はマルチパラメータ水質計（マルチパラメータ水質チェッカー U-50、堀場製作所）を用いて測定し、DOC 濃度は全有機炭素分析計（島津製作所、TOC-Vcsn）を用いて測定した。マルチパラメータ水質計を用いた測定は採水地での採水時に行ったが、水温は試験時に測定した。持ち帰った試料については、それぞれ冷蔵・冷凍状態で銅濃度、DOC 濃度の分析を行った。

### 3.1.2. 結果

本試験における海水試料の pH、塩分濃度、DOC、Cu 濃度の測定結果を表 4-2 に示す。石巻湾沖合の海水の DOC 値は、志津川湾の海水よりも約 0.3mg/L 高かった。溶存銅濃度は、石巻湾沖のサイト 3 よりも志津川湾のサイト 1、2 の海水の方が高かった。これは、石巻湾沖の St.1 および St.3 の海水は、石巻湾内の養殖かごが多く設置されている場所で採取されているのに対し、石巻湾沖の海水は外洋に接している場所から汲み上げられ、精密ろ過装置を通過しているためと考えられる。

表 4-2 *C.gigas* 試験における水質パラメータ

	pH	Salinity [‰]	DOC [mg/L]	Dissolved copper [μg/L]
Shizugawa St. 1	8.00	32.40	1.19	4.33
Shizugawa St. 3	8.05	32.90	1.14	3.52
Ishinomaki	8.00	32.10	1.51	0.84

対照区の正常発生率は 70%を超えており、ICES による生態毒性試験法の許容基準 (60%以上)を上回っていた。試験中に顕微鏡で観察した幼生の写真を図 4-2 に示す。図 4-2 a は、試験区容器に分注される直前の 8 細胞期の幼生、図 4-2 b は、24 時間曝露終了時に正常とカウントされた D 型幼生、図 4-2 c は、曝露後 24 時間時点で異常とカウントされた幼生の一例を示している。異常幼生は、図 4-2 c に示す形態だけでなく、様々な奇形を呈していた。異常幼生の中には、認識できないほど劣化しているものもあった。

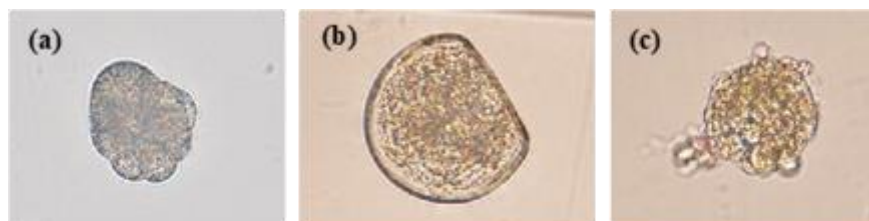


図 4-2 *C. gigas* の幼生の一例 (a) 8 細胞期の幼生 (b) D 型幼生 (c) 異常発生幼生

表 4-3 は、各試験区における 銅の設定濃度と、曝露開始から 24 時間後の測定濃度を示したものである。対照区 (銅スパイクなし) では、バックグラウンド濃度が異なるため、測定された銅濃度は、異なるサンプリング地点からの試験海水の間で異なっていた。

表 4-3 *C. gigas* を供試生物とした試験における海水中の設定銅濃度および測定銅濃度

Nominal/spiked Cu concentration	Sizugawa Bay St.1	Sizugawa Bay St.3	Ishinomaki Bay
	Measured Cu concentration*		
0.00	4.33	3.52	0.84
2.00	5.62	5.38	1.60
4.00	6.14	5.70	2.37
8.00	8.23	7.96	3.84
16.0	8.57	13.5	9.19
22.6	19.0	17.3	13.3
32.0	24.7	24.1	21.4
64.0	49.6	46.3	45.0
128	97.3	91.7	99.4

\*Measured after a 24 h exposure period.

この試験では、各濃度群の試料を曝露後、まず酸で固定した後、全銅濃度を測定した。相対誤差を計算するために、測定した濃度 (バックグラウンド濃度を引いたもの) を対応する設定濃度で割った。相対誤差は、銅濃度が低いグループ (設定 2  $\mu\text{g}/\text{区}$ の一部を除く) で大きく、濃度が高くなるにつれて約 -30 % から -20 % に収束した (図 4-3)。すべての濃度区で相対誤差が負の値を示したことから、銅の一部が試験容器の壁に吸着し、その結果、測定濃度が銅添加直後の濃度よりも低くなったことを示唆していると考えられる。そのため、毒性

試験終了後に実際の銅濃度を測定することが重要である。また、毒性試験の性質上、100%の効果が得られるような高濃度の曝露濃度を設定し、容器への付着の影響を考慮することが望ましい。過去の報告を参考にして、十分に高い銅濃度の試料を作成することが望ましい。試験容器の壁に付着した銅の量を差し引いた測定濃度は、設定濃度よりも実際の曝露濃度として適切であると考えられる。このように、測定濃度に基づく毒性値については、考察で検討する。

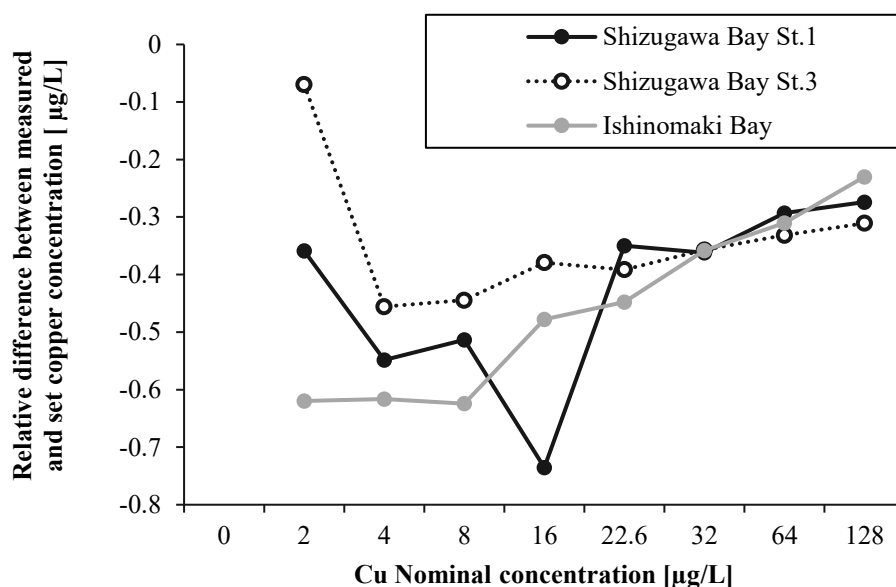


図 4-3 測定された銅濃度の相対誤差

図 4-4 に各試料の容量反応曲線を示す。EC50 はサイト 1、2、3 でそれぞれ 21.4、22.6、20.3 µg/L であった（表 4-3）。各効果濃度について、添加濃度に基づく設定濃度および試験後の測定濃度に基づく値の 2 つの値を示した。Welch の t 検定により、添加濃度と実測濃度の間に有意な差が認められた ( $p < 0.05$ )。

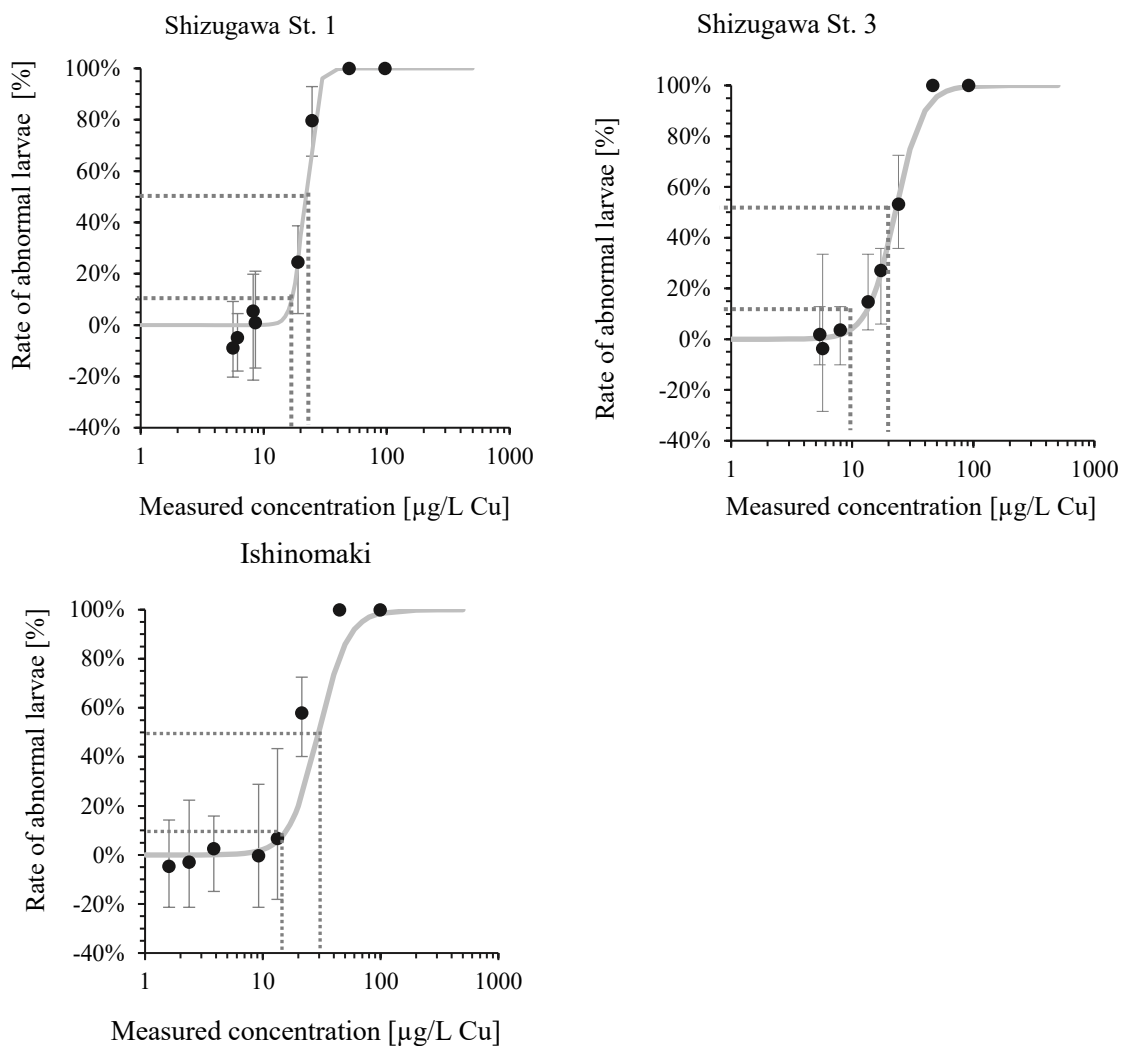


図 4-4 *C. gigas* に対する各試験海水の用量反応曲線

表 4-4 *C. gigas* 毒性試験から算出された影響濃度

Test seawater	Shizugawa Bay St. 1 [ $\mu\text{g/L}$ ]		Shizugawa Bay St. 2 [ $\mu\text{g/L}$ ]		Ishinomaki Bay [ $\mu\text{g/L}$ ]	
	Nominal	Measured	Nominal	Measured	Nominal	Measured
EC <sub>50</sub>	26.5	21.4	29.8	22.6	30.8	20.3
95% CI	24.9–28	20.4–22.3	26.9–32.7	20.5–24.6	28.9–32.7	18.6–22.1
EC <sub>10</sub>	19.6	17.0	15.9	12.8	23.8	14.3
95% CI	17.4–21.7	15.4–18.5	12.4–19.4	10.4–15.1	18.8–28.7	10.4–18.3
NOEC	16.0	8.57	16.0	13.5	22.6	13.3

*C. gigas* は沿岸環境に生息する付着生物であるため、地域の環境汚染の指標となり得る。さらに、漁業にとって重要な種であることから、いくつかの研究で試験生物として使用されている。表 4-5 は、過去の研究で報告された毒性値を時系列で示したものである。Brooks ら

(2007) は、DOC が *C.gigas* の胚に対する銅の影響を調査し、DOC 濃度の増加に伴って毒性が減少し、EC50 値はそれぞれ 0.12、1.02、1.90、3.13 mg/L で 20.77、41.09、37.87、40.52 µg/L であったと報告している。Mai ら(2012)は推定 EC50 を 12.5(95% CI: 11.0-14.2)µg/L と報告し、Gamain ら(2016)は *C. gigas* に対する Cu 毒性の推定 EC50 を 7.4(95% CI: 6.0-9.1)µg/L としている。MacInnes and Calabrese (1979)は、*C. virginica* に対する銅の EC50 値を 15.1、18.3、18.7 µg/L と報告している。本研究では、EC50 値は約 20.3~22.6 µg/L であり、DOC 値は 1.14~1.51 mg/L であり、DOC 値が 1.0 mg/L 未満の Brooks らの EC50 値に非常に近い値であった。EC50 値は試験条件や使用する銅の測定方法によって変化するため、EC50 値だけでは比較できないが、本研究の結果はおおむねこれまでの知見の範囲内であった。

表 4-5 報告されている *C.gigas* および近縁種の影響濃度

Species	EC <sub>50</sub> [μg/L]		DOC [mg/L]	Remarks	Reference
	Nominal	Measured			
<i>Crassostrea virginica</i>	15.1				MacInnes and Calabrese (1978)
<i>Crassostrea virginica</i>	18.3				MacInnes and Calabrese (1978)
<i>Crassostrea virginica</i>	18.7				MacInnes and Calabrese (1978)
<i>Crassostrea gigas</i>		20.77	0.12	Dissolved Cu, FT	Brooks et al. (2007)
<i>Crassostrea gigas</i>		24.33	0.82	Dissolved Cu, FT	Brooks et al. (2007)
<i>Crassostrea gigas</i>		37.87	1.02	Dissolved Cu, FT	Brooks et al. (2007)
<i>Crassostrea gigas</i>		38.17	1.90	Dissolved Cu, FT	Brooks et al. (2007)
<i>Crassostrea gigas</i>		40.52	2.77	Dissolved Cu, FT	Brooks et al. (2007)
<i>Crassostrea gigas</i>		41.09	3.13	Dissolved Cu, FT	Brooks et al. (2007)
<i>Crassostrea gigas</i>		12.5		Total Cu	Mai et al. (2012)
<i>Crassostrea gigas</i>	7.35			Total Cu	Gamain et al. (2016)
<i>Crassostrea gigas</i>	26.5	21.4	1.19	Dissolved Cu, ST	This study
<i>Crassostrea gigas</i>	29.8	22.6	1.14	Dissolved Cu, ST	This study
<i>Crassostrea gigas</i>	30.8	20.3	1.51	Dissolved Cu, ST	This study

FT: flow-through; ST: static



## 3.2. エゾアワビ (*Haliotis discus hannai*)

### 3.2.1. 試験方法

種苗生産のために収集された受精卵の一部を提供いただいた。*H. discus* の自然環境下での自然放卵・放精は夕方から夜にかけて行われる。そのため、受精は昼夜を反転させ行なった。1週間以上昼夜反転させて飼育された親個体に対する人口種苗の作業は、すべて暗黒化で行われた。手元を懐中電灯で照らす以外は親個体に光刺激を当てないようにした。また、作業に使用する海水は紫外線照射で殺菌済みのものを使用した。種苗生産において、紫外線照射した海水自体にも、放卵・放精を誘発する作用があることが知られている(菊池・浮永, 1974)。親個体を水槽から取り出し、乾燥しないよう濡れたガーゼをかけた後、20℃の恒温室に1時間静置した。その後20℃の流水水槽に1個体ずつ入れ、30分かけて水温を23℃まで上昇させた。水温を23℃に2時間維持した後、1時間に1℃を目安として水温を低下させた。この間にメス個体が放卵した場合、スポイトで採卵し、300 µm 目合いのメッシュを通して夾雑物を排除した後、受精用の水槽に移した。オス個体が放精した場合、白濁海水をスポイトで採集し、受精水槽に添加し、受精させ、2時間後に顕微鏡下で正常に発生が進んでいるか確認した。4細胞以上に発生が進んだ胚を、およそ1個体/mLとなるように、濃度調製をした50 mL 遠沈管に収容し、一度やさしく転倒攪拌した後、48時間静置した。

48時間後、100 µm 目合いのネットで胚を収集し、乾燥しないように海水とともに界線入りスライドガラス上に滴下した。そこにルゴール・エオシン液を滴下することで固定・染色した。この幼生を顕微鏡下で観察し、計数した。正常発生個体の判定基準は、発生が正常にベリジャー期以降まで進んだものとし、それ以外を異常個体とした。

本毒性試験において、曝露濃度は化学分析によって検証した。銅濃度の分析は JIS K0102 52.5 ICP 質量分析法に基づき、ICP-質量分析計 (Agilent 7700x ICP-MS、Agilent Technologies) により定量した。海水が試験水であるため、前処理としてイミノ二酢酸型弱陽イオン交換カラム (ジーエルサイエンス株式会社 InertSep-ME-1、500 mg/6 mL) を用いて分析対象金属の濃縮操作を行った。

試験容器への銅の吸着濃度を検証するために、*C. gigas* の場合は、曝露開始から24時間後に、濃度区ごとに各試験区の試験溶液を500 mL 容アイボーイに移し替え、ただちに硝酸固定した。また、*H. discus* の場合は、曝露から48時間経過時に各試験区に硝酸を添加したもの、および、試験溶液を直ちに硝酸洗浄済みボトルに入れ替え、硝酸固定したものも保存し、分析対象とした。この2種類の保存液の濃度差を試験容器に吸着したため減少した濃度とした。また、銅以外の分析項目として、溶存有機炭素 (DOC)、pH、塩分も測定した。

統計解析は、*C. gigas* と同様の手法を用いて、NOEC、EC10、および EC50 を算出した。

### 3.2.2. 結果

試験中に顕微鏡で観察した幼生の写真を図 4-5 に示す。対照区および低濃度区では、殻および成体にはない蓋が形成されており、蓋の開閉、活発な繊毛運動および遊泳が観察された。高濃度区では、発生が正常に進まないが繊毛運動を続ける異常個体が多数確認された。また、受精膜が除去されず、膜内で繊毛運動および回転運動をしている個体も確認された。

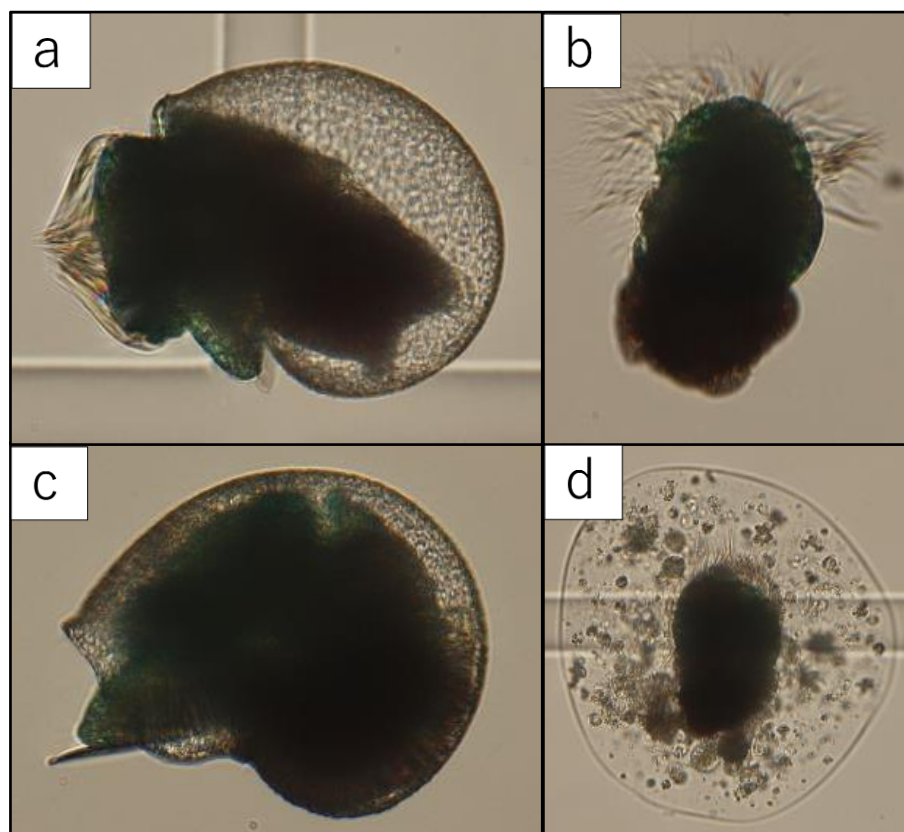


図 4-5 *H. discus* の幼生の一例 (a) 受精から 42 時間経過時点の正常ベリジャー幼生 (b) 42 時間経過時点の異常個体（トロコフォア幼生期で成長が止まり休みなく回転運動を続ける状態）(c) 受精から 42 時間経過時点の正常ベリジャー幼生が蓋を閉めている状態 (d) 42 時間経過時点の異常個体（発生は途中まで進んでいるが卵膜から出られず膜内で回転運動をしている状態）

各試験区における 銅の設定濃度と、曝露開始から 48 時間後の測定濃度を示したものである。対照区（銅スパイクなし）では、バックグラウンド濃度が異なるため、測定された銅濃度は、異なるサンプリング地点からの試験海水の間で異なっていた。また、壁面吸着により、設定濃度と添加濃度に差異があった。

表 4-6 *H. discus* を供試生物とした試験における海水中的の設定銅濃度および測定銅濃度

Nominal [ $\mu\text{g/L}$ ]	Measured [ $\mu\text{g/L}$ ]
0.0	<0.5
5.0	3.3
7.5	6.3
11.3	9.2
16.9	15.0
25.3	22.0

統計解析の結果、NOEC は  $7.5 \mu\text{g/L}$ 、LOEC は  $11.3 \mu\text{g/L}$  となった ( $p=0.05$ )。また、EC10 は  $9.18 \mu\text{g/L}$ 、EC50 は  $10.5 \mu\text{g/L}$  と推定された。各試料の容量反応曲線を図 4-6 に示す。表 4-7 に、統計解析の結果を表す。

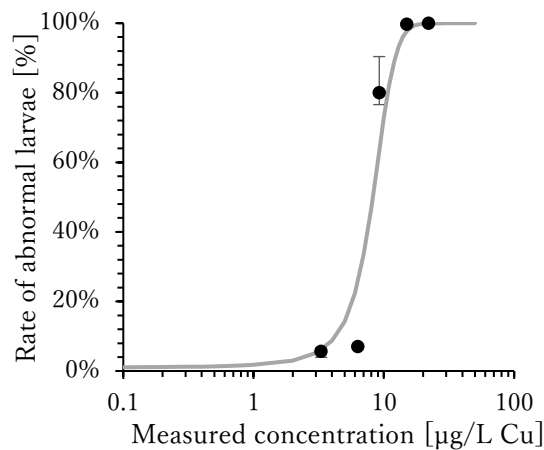


図 4-6 *H. discus* に対する用量反応曲線

表 4-7 *H. discus* 毒性試験から算出された影響濃度

Test seawater	Ishinomaki Bay	
	Nominal	Measured
EC50	10.5	$8.56 \mu\text{g/L}$
95% CI	(8.48–12.4)	(7.12–10.0)
EC10	9.18	$7.59 \mu\text{g/L}$
95% CI	(4.56–13.8)	(4.20–11.0)
NOEC	5.0	$6.3 \mu\text{g/L}$

### 3.3. マボヤ (*Halocynthia roretzi*)

#### 3.3.1. 試験方法

気仙沼市石浜漁港で養殖された *H. roretzi* の成体を、海水に浸漬させずに発泡スチロール容器に入れ、冷蔵で宮城県水産技術総合センターまで輸送し、水槽で畜養した。畜養中は飼料を与えず、水温 9-10 °C、塩分 33.2 ppt、pH 7.93 程度に保持したうえで常時流水させ、なるべく水流以外の外部刺激を与えないようにした。比較的大柄で硬く、張りのある個体を選別し、産卵誘発を行った。水温を 10°C に設定した水槽内に、成体に接触しないように電気ヒーターを設置し、30 分毎に水温を 2-3°C 上下させることを繰り返した。産卵誘発の成功率を高めるために、1 個体から生殖巣を摘出し磨り潰したものを、水槽の高温期に投入した。一度放卵および放精が始まると、他個体の放卵および放精も誘発され、水槽内で受精させた。海水とともにオーバーフローした受精卵は 80 µm ナイロンメッシュネットフィルターで回収した（図 4-7）受精後 2 時間後に顕微鏡で観察し、卵割の進捗を確認した。この胚を 50 個体/mL となるよう各試験バイアルに分注し曝露を開始し、48 時間暗室にて静置した。

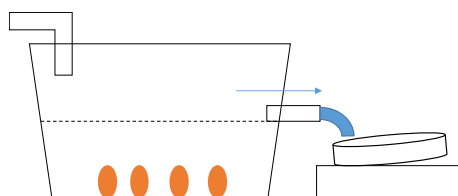


図 4-7 *H. roretzi* の受精卵の収集方法（千葉（2017）から引用）

48 時間後、試験バイアル内の幼生をスポイトで吸い上げ、乾燥しないように海水とともに、界線入りスライドガラス上に滴下した。そこにルゴール・エオシン液を滴下することで固定・染色した。この幼生を顕微鏡下で観察し、計数した。正常または異常個体の判断基準は、Bell et al. (2001) に準じ、尾がまっすぐ十分に長く伸びていること、眼点と平衡器が欠けず確認できること、付着突起が頭部先端に表れていること、および、体の境界がはっきりとしていることを確認できた個体を「正常」と判断した。一方で、尾が短く折れ曲がっている、眼点が消失している、付着突起がない、およびその他の奇形を呈している個体を「異常」と判断した。今回のエンドポイントは正常孵化であることから、たとえ正常に発生が進んでいるように見えても、計数の時点で孵化が完了していない個体は発生遅延が生じていると判断し、異常個体とした。また、本研究では、胚発生の初期段階にある受精卵への曝露の影響のみに焦点を当てているため、未受精卵は分析の対象から除外した。

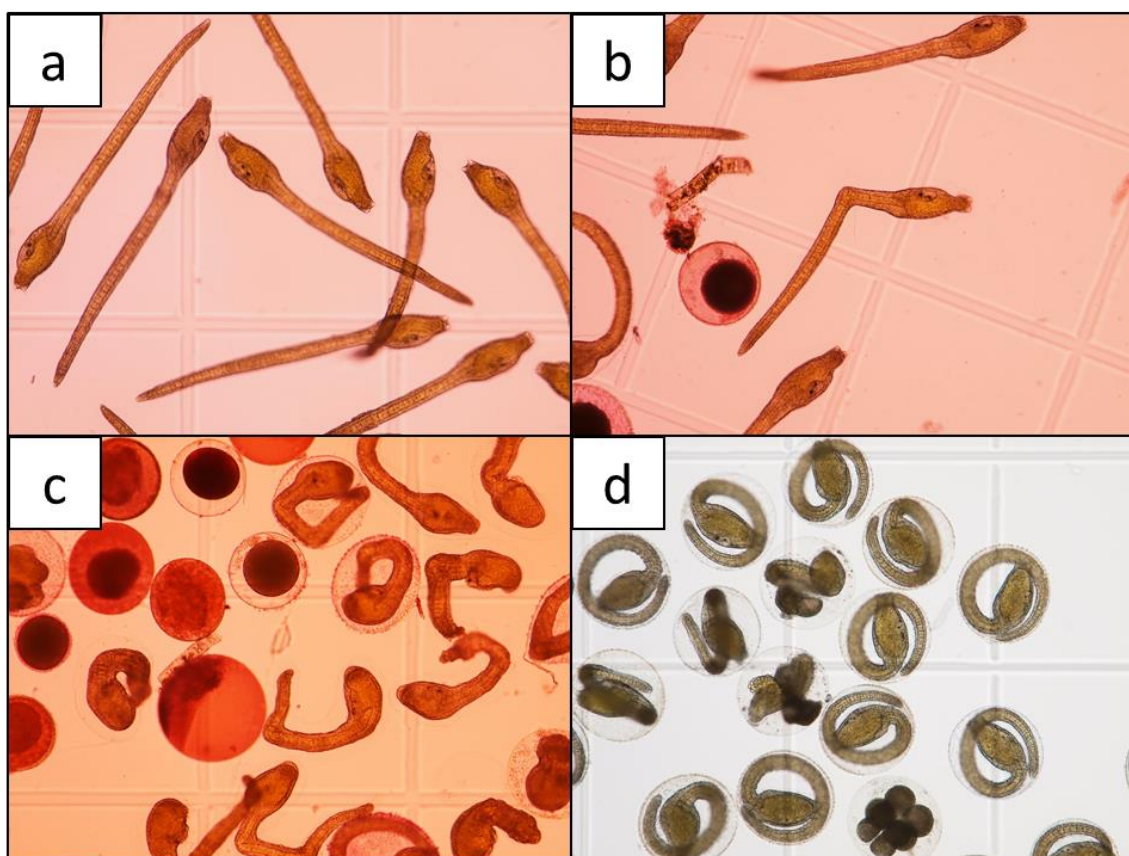


図 4-8 *H. roretzi* 胚および幼生の写真（各写真内の格子の1辺が1 mm）(a) 正常に孵化した浮遊幼生 (b) 尾部が折れ曲がった異常幼生(中央) (c) 高濃度に暴露されたときの異常幼生 (d) 発生異常胚を含むふ化直前の未孵化卵（正常に発生が進行していても試験終了時点では異常として扱う）

計数した全個体数に対する正常孵化幼生の割合を正常孵化率と定義し、各試験区において算出した（式（4））。

$$\text{Net 正常孵化率} = \frac{\text{処理区正常孵化率}}{\text{対照区正常孵化率}} \quad \dots \text{式（4）}$$

各種毒性値においては、*C. gigas* 毒性試験の式（3）を用いて、対象区における正常孵化率を用いて処理区にデータを補正した。統計解析は *C. gigas* 毒性試験と同様の手法を用いた。

### 3.3.2. 結果

各試験海水の水質パラメータを表に示す。塩分は試験水ごとに最大 0.6 ‰ の変動があった。バックグラウンド濃度にあたる溶存銅は、志津川湾 St. 1 が最も高く、1.8 µg/L を示した。

表 4-8 *H. roretzi* 試験における水質パラメータ

	pH	Salinity [‰]	DOC [mg/L]	Dissolved copper [µg/L]
Shizugawa Bay St. 1	8.16	33.5	1.42	1.8
Shizugawa Bay St. 3	8.14	33.8	1.12	1.5
Ishinomaki Bay	7.93	33.2	1.03	<0.5

いずれの試験海水においても、銅の曝露濃度の増加に伴い、正常固着率が減少する用量反応関係が見られた（図 4-9）。

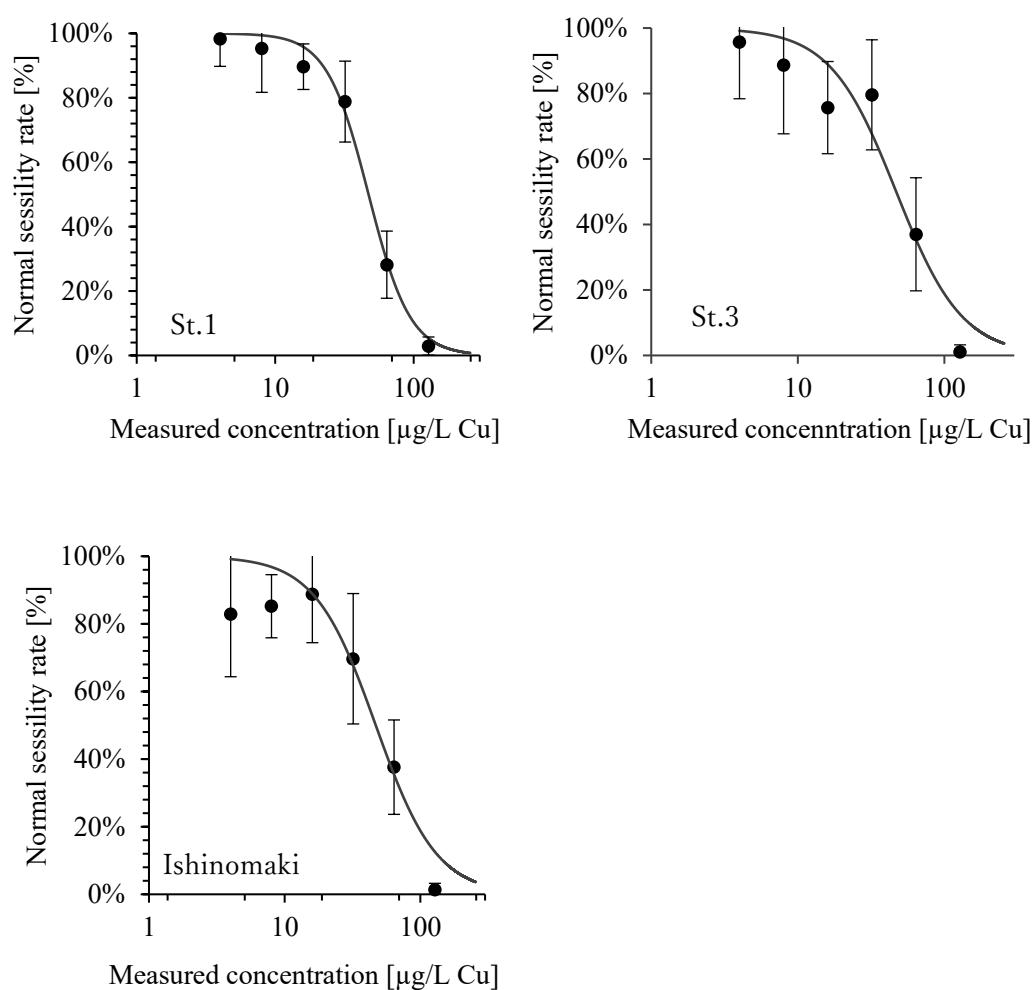


図 4-9 *H. roretzi* に対する各試験海水の用量反応曲線

表 4-9 に各影響濃度を算出した統計解析の結果を示す。志津川湾 St. 1 が最も毒性が低く、EC50 が 47.2 µg/L、EC10 が 22.0 µg/L であった。最も毒性が高い地点は石巻湾で、EC50 が 45.6 µg/L で、EC10 が 15.9 µg/L であった。

表 4-9 *H. roretzi*. 毒性試験から算出された影響濃度

Test seawater	Sizugawa Bay St.1	Sizugawa Bay St.3	Ishinomaki Bay
EC50	47.2 µg/L	47.0 µg/L	45.6 µg/L
95% CI	(42.4–52.1)	(33.4–60.4)	(30.5–62.4)
EC10	22.0 µg/L	15.0 µg/L	15.9
95% CI	(16.7–27.5)	(20.5–28.0)	(5.39–26.4)
NOEC	16 µg/L	32 µg/L	16 µg/L



### 3.4. キタムラサキウニ (*Strongylocentrotus nudus*)

#### 3.4.1. 試験方法

*S.nudus* の親個体は、宮城県志津川湾近傍で採集された後、宮城県水産技術総合センター内で畜養された個体を使用した。畜養中は飼料を与えず、外部刺激をなるべく起こさないように、エアレーションのみ用いた。採卵および採精の際は、口器をハサミで取り除いた後、海水で満水にした 250 mL 容ビーカーの上に、口部が上、肛門が下になるように静置し、0.5 M 塩化カリウムを 1 mL 程度、口部に添加することで筋組織を弛緩させ、卵または精子の排出を促した。メス個体であればそのまま放卵させ、オス個体であれば直ちに乾いたシャーレ上に移動させたのちに解体し、生殖巣からスポイトを用いて精子を採集した。採集した卵、及び精子は、スライドガラス、及び血球計で状態、及び濃度を確認し、濃度は各バイアルに適量添加できるように調整した。卵は海水 1 mL あたり約 100 個になるよう設定し、精子は 1 卵あたり約 10,000 になるように設定し、各試験バイアルに添加し、24 時間静置した。

ウニの卵は直径およそ 100  $\mu\text{m}$  であり、球体である。未受精時はゼリー状物質に覆われているが顕微鏡下で確認することはできない。精子添加後、受精したものは直後に受精膜が上がり始め、図 4-10 の状態になる。精子は卵のどの部分からでも侵入することができる。精子の先端突起膜と卵の原形質膜の接触、あるいは膜融合が引き金になって卵は活性化され、受精膜形成を含む表層の変化、卵内の物質代謝の変化、核融合の過程などが進行する。精子による卵の活性化の原因として、精子侵入点から一種の衝撃波のようなものが伝わるとされている。これは受精波 (fertilization wave) と呼ばれており、受精膜もこの波の流れに則して形成される。

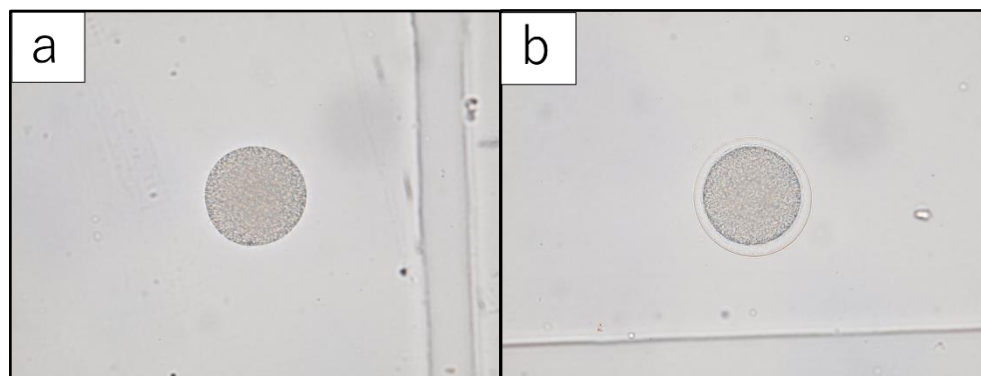


図 4-10 (a) 未受精卵 (b) 正常に受精膜が上がった直後の受精卵

卵割は 2 細胞期、4 細胞期、8 細胞期、16 細胞期、32 細胞期と 2 倍ずつ増えていき、128 細胞期頃に桑実胚となる。その後、間充織細胞に分化し、胞胚期へと進み、プリズム幼生を経てプルテウス幼生となる (図 4-11)。



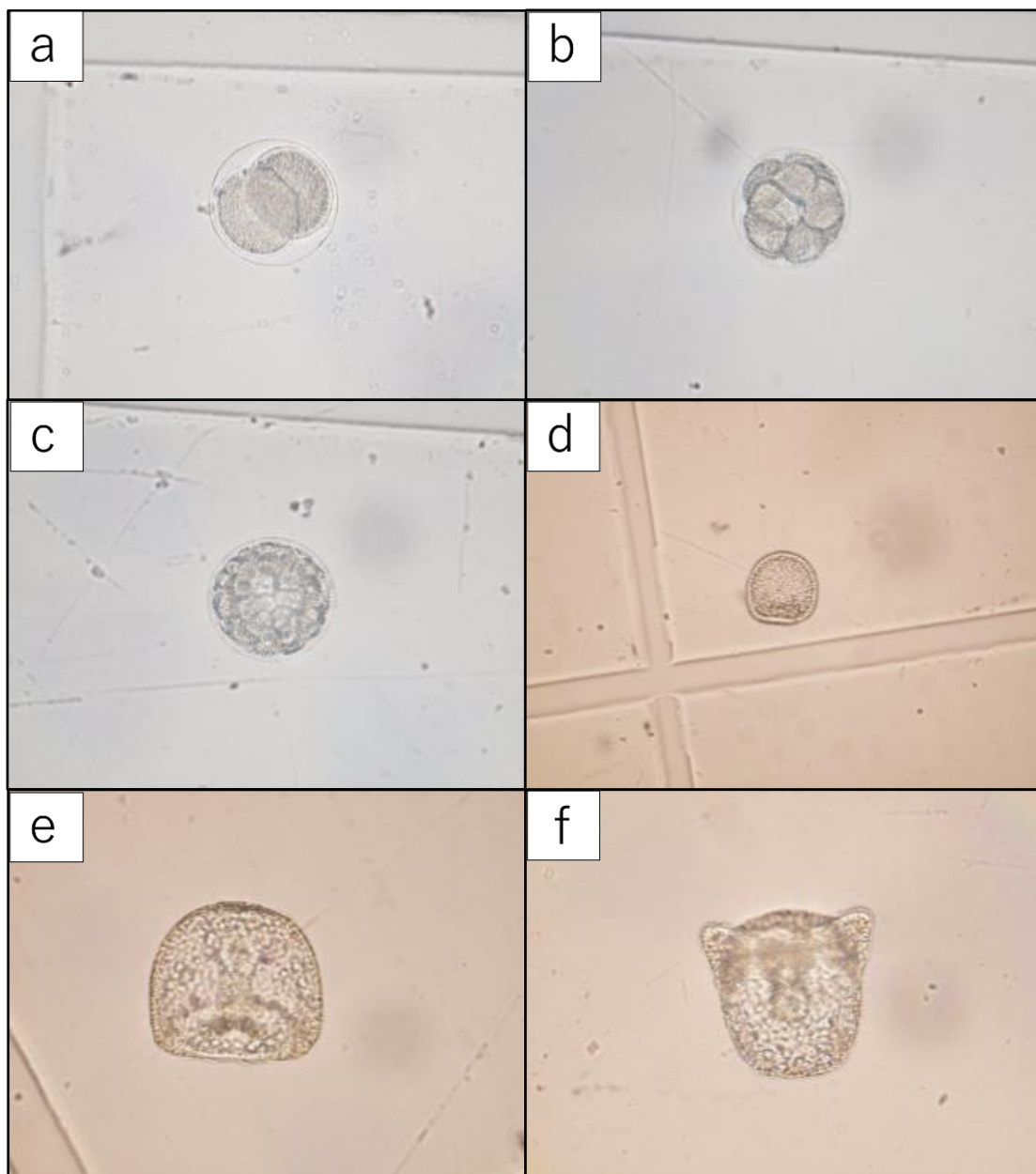


図 4-11 ユニの発生過程 (a) 2細胞期 (b) 16細胞期 (c) 桑実胚 (d) 後期間充織胞胚から初期囊胚 (e) 初期プリズム胚 (f) 後期プリズム胚

24 時間後、試験バイアル内の幼生が一様に分布するように転倒攪拌し、素早く 2 mL ピペットで吸い取り、界線入りスライドガラス上に滴下した。そこにルゴール・エオシン液を滴下することで固定・染色した。この幼生を顕微鏡下で観察し、計数した。プルテウス幼生にまで正常に発育したものを「正常」、その他奇形や発育遅延を呈すものを「異常」とした。本研究では、胚発生の初期段階にある受精卵への曝露の影響のみに焦点を当てているため、未受精卵は分析の対象から除外した。

各試験バイアルからピペットを用いて2mL採取し回線入りスライドガラス上に滴下した個体を、各試験バイアル内の代表として全数観察および計数し、以下の式（5）を用いて異常発生率を算出した。

$$\text{異常率} = \frac{\text{異常個体}}{\text{正常個体} + \text{異常個体}} \times 10 \quad \dots \text{式（5）}$$

NOEC および各影響濃度は、*C. gigas* 毒性試験における統計解析の手法と同様に算出した。

### 3.4.2. 結果

図 4-12 に、*S. nudus* の曝露後の状態を示す。*S. nudus* の発生過程において最も感受性が高い時期は受精時であり、化学物質への曝露によって起こる最も典型的な影響は多精受精である。これは、最初の精子が侵入後、卵が受精膜を張り終わる前に他の精子が侵入してくることにより、複数の精子によって受精が起こり、正常に発生が進まなくなる現象である。その他、化学物質曝露により精子の不活性化が起こることも、受精阻害の原因の一つであるとされており、高濃度区では未受精卵が多く確認された。

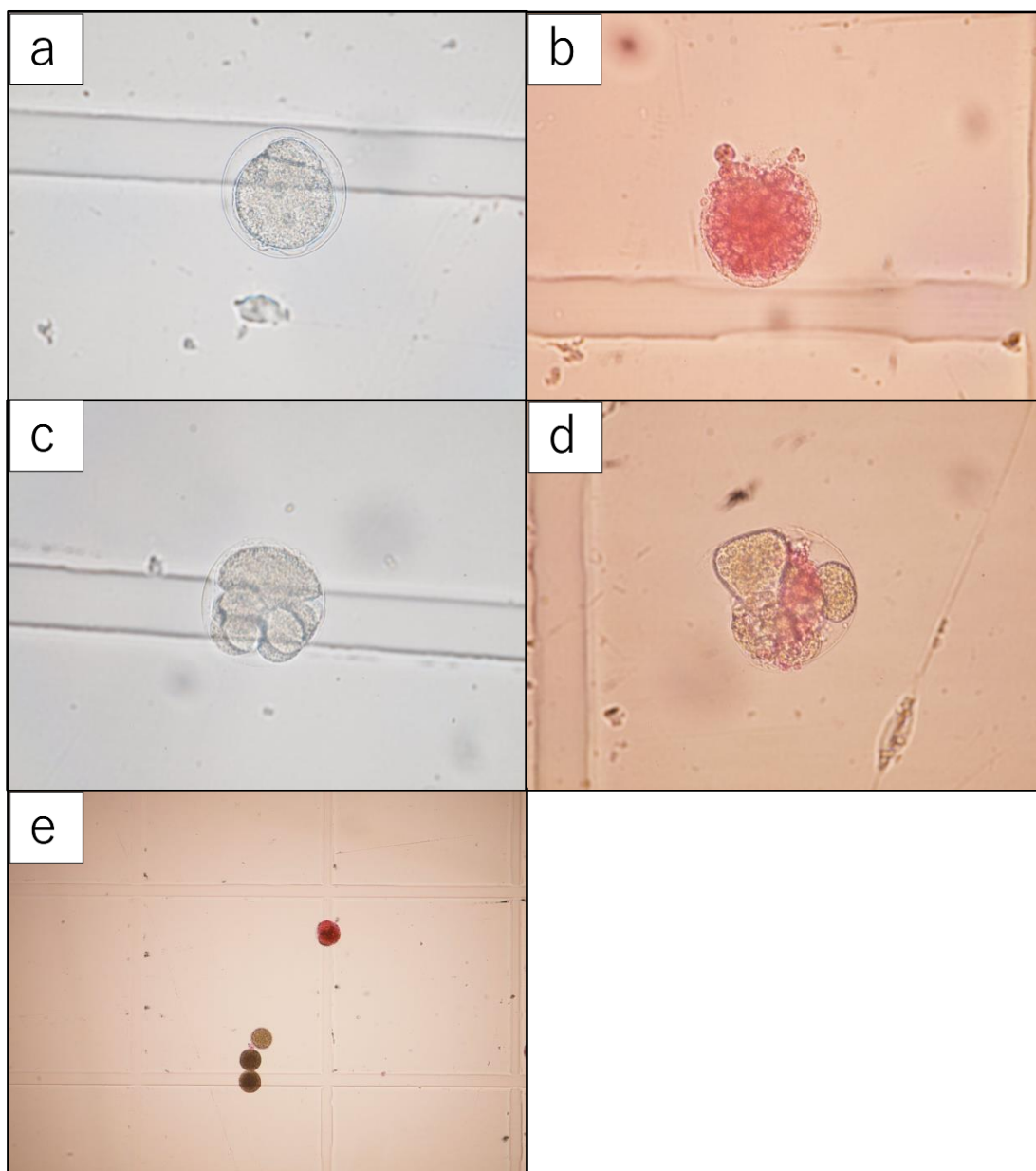


図 4-12 異常胚の一例 (a) 受精後 3 時間の卵. 等卵割にならず大きさに差がある (b) 受精直後 3 時間の卵. 侵入した精子数により分割の仕方は異なる (c) 受精後 19 時間 (d) 受精後 24 時間 (e) 高濃度区での異常受精

表に、各試験区における 銅の設定濃度を示す。*S.nudus* は本試験において、St. 3 よりも St. 1 の方が、毒性が高い結果となった。

表 4-10 *S. nudus* 毒性試験から算出された影響濃度（すべて Nominal concentration）

Test seawater	Shizugawa Bay St.1 [μg/L]	Shizugawa Bay St.3 [μg/L]
EC <sub>50</sub>	37.02	47.89
95% CI	35.35–38.68	41.60–54.18
EC <sub>10</sub>	20.35	28.11
95% CI	20.11–36.12	18.65–22.05
NOEC	20.0	25.0

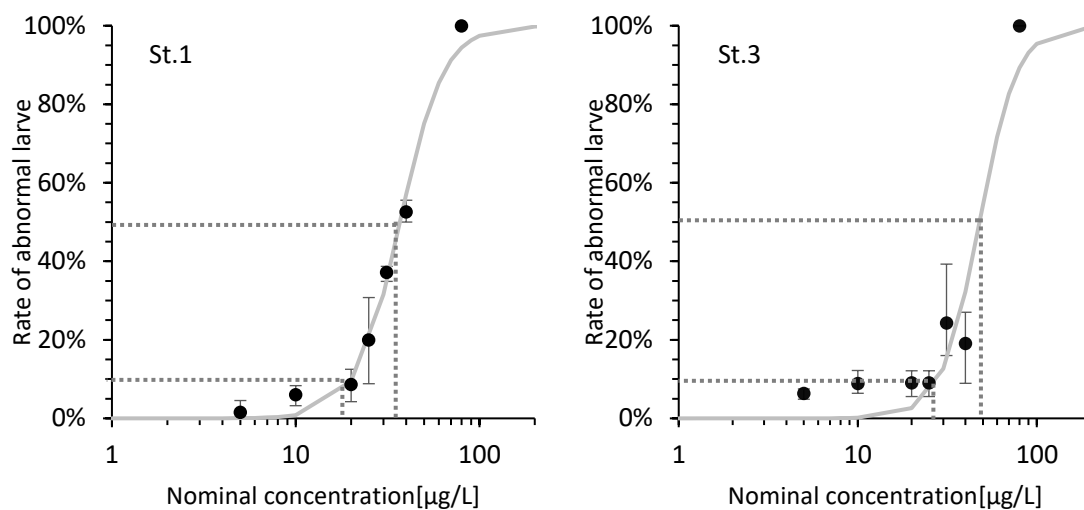


図 4-13 *S.nudus* に対する各試験海水の用量反応曲線

### 3.5. 各生物に対する銅の毒性の種間差

本研究で生態毒性試験を実施した4種の生物について、銅の感受性の種間差を図4-14に示す。ここで示す影響濃度はEC10とした。4種のうち、銅に対する感受性が最も高かった生物種は *H. discus* であった。St.1とSt.3では、*H. roretzi*と*C. gigas*の値は連動しており、どちらの種もSt.3において、St.1よりもEC10が低い、つまり毒性が高い結果となった。一方で、同じ水質を考慮しても、*S. nudus*では、St.1よりもSt.3の方が、毒性が低い結果となった。

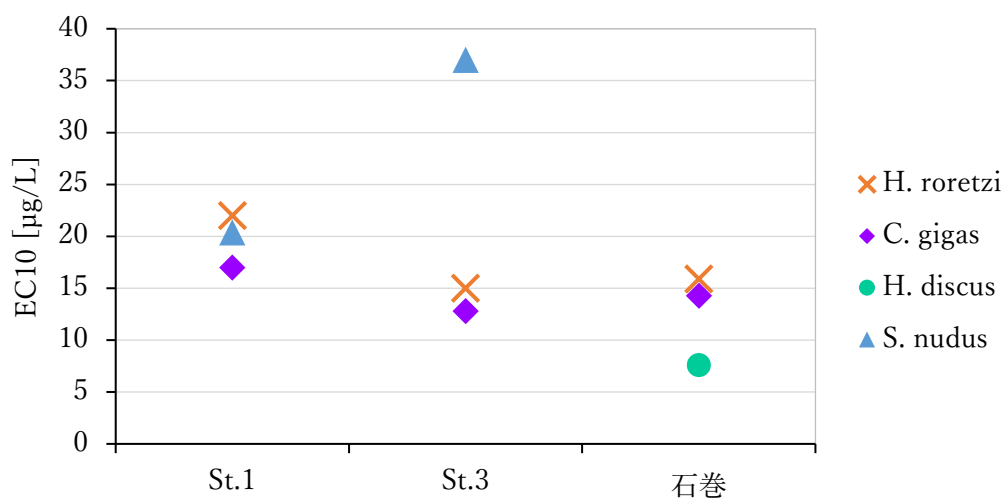


図 4-14 生物ごとの EC10 の違い

図4-15では、第三章で用いた種の感受性分布（SSD）に、本生態毒性試験の結果を当てはめた。藻類、刺胞動物、甲殻類、軟体動物の様々な種のデータと比較しても、大きく外れた値はなかった。*H. discus*については、他の分類群の種と比較してもかなり感受性が高い種であることが分かる。

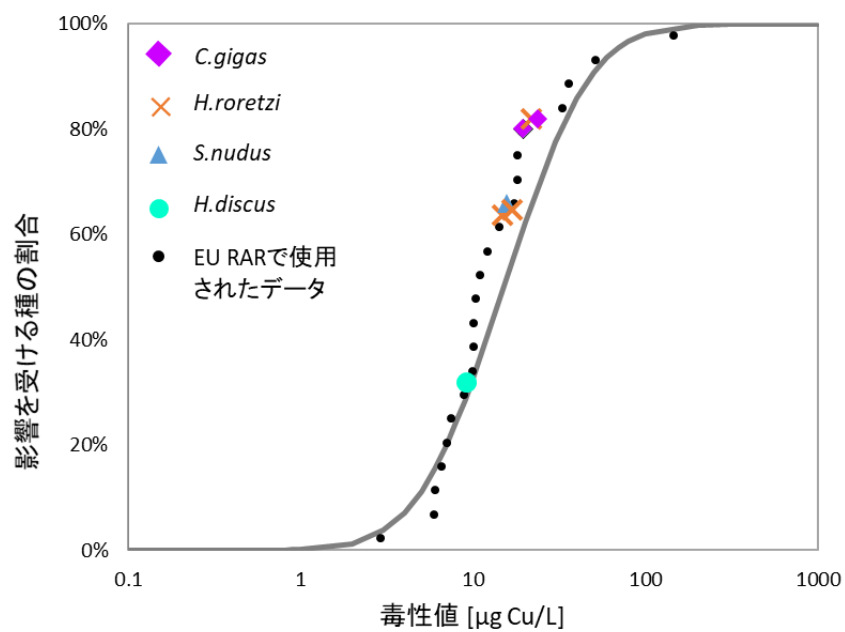


図 4-15 第三章で用いた種の感受性分布と本生態毒性試験結果の比較

#### 4. DOC が銅の毒性へ与える影響

*C.gigas* の胚を供試生物として、DOC の銅に対する毒性への影響を調べた Brooks ら(2007) は、DOC 濃度の増加に伴って毒性が低下し、DOC が 0.12、1.02、1.90、3.13 mg/L で EC50 値がそれぞれ 20.77、41.09、37.87、40.52  $\mu\text{g/L}$  と報告している。本研究では、人為的に DOC を変化させなかったため、DOC 1.1~1.5 mg/L の条件下で 20.3~22.6  $\mu\text{g/L}$  程度の EC50 であった。DOC の変動が小さく、影響濃度にも大きな差が見られなかった。一方で、日本沿岸域の DOC 濃度を調べると、図 4-16 に示すデータが報告されている。2012 年度から 2014 年度までに報告された日本沿岸の DOC 濃度の中央値は 1.2 mg/L であったが、海域によって濃度に大きなばらつきがあった。このような地理的・産業的特性の違いは、海洋生物に対する銅の生態リスクが沿岸地域によって異なることを意味する。実際の海洋環境におけるリスクは、現時点では十分に把握されておらず、異なる地域におけるリスクのばらつきを推定することは困難である。例えば、海水試料中に高い銅濃度が観測され、カキに対するリスクが高いと推定されたとしても、その海域での銅の生物利用可能性が低ければ、実際のリスクは低いと判断される可能性がある。このため、銅の場特異的な生態学的リスクを評価する際には、まずバックグラウンド銅濃度や DOC などの沿岸域の水の化学的特性を評価する必要がある。

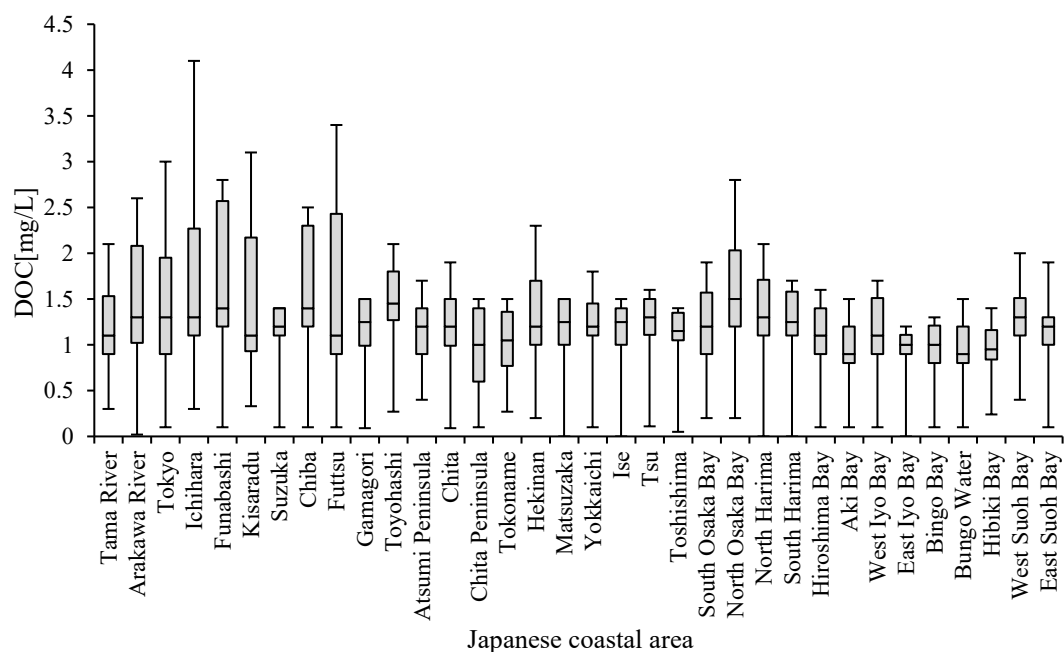


図 4-16 2012 年から 2014 年における日本沿岸域における DOC 濃度

## 5. まとめ

宮城県志津川湾における水産重要種である、マガキ (*C. gigas*)、エゾアワビ (*H. discus*)、マボヤ (*H. roretzi*)、キタムラサキウニ (*S. nudus*) における銅の生態毒性試験を実施した。各生物種に対する試験手法の公定法は確立されておらず、それぞれの生物に対して適切な手法を模索するところから始めた。特に *H. roretzi* は、世界でも珍味のため、水産重要種と認識されておらず、毒性試験そのものが実施された例がなかった。また、*H. discus* については高級種であり毒性試験に使用できる胚の数に制限があるという理由、*S. nudus* については胚の状態が芳しくなかったと理由で、それぞれ試験に用いる胚が十分に確保できなかったため、試験に用いる海水の種類を減らして実施することとなった。4 種の中で最も銅に対する感受性が高かったのは *H. discus* で、EC10 が 7.59 µg/L、EC50 が 8.56 µg/L であった。その他の 3 種も、諸外国で報告されている種々の無脊椎動物に対する生態毒性試験結果と比較して大きく外れた値は無かった。図 4-17 に、各生物種に対する生態毒性試験の手法の概要を示す。各種は生態がそれぞれ異なっていたが、宮城県水産技術総合センターの研究員の方々に畜養方法および採卵方法を教わりながら最適な手法を確立できた。また、宮城県志津川湾を代表する水産重要種に対する銅の影響濃度を算出することができた。



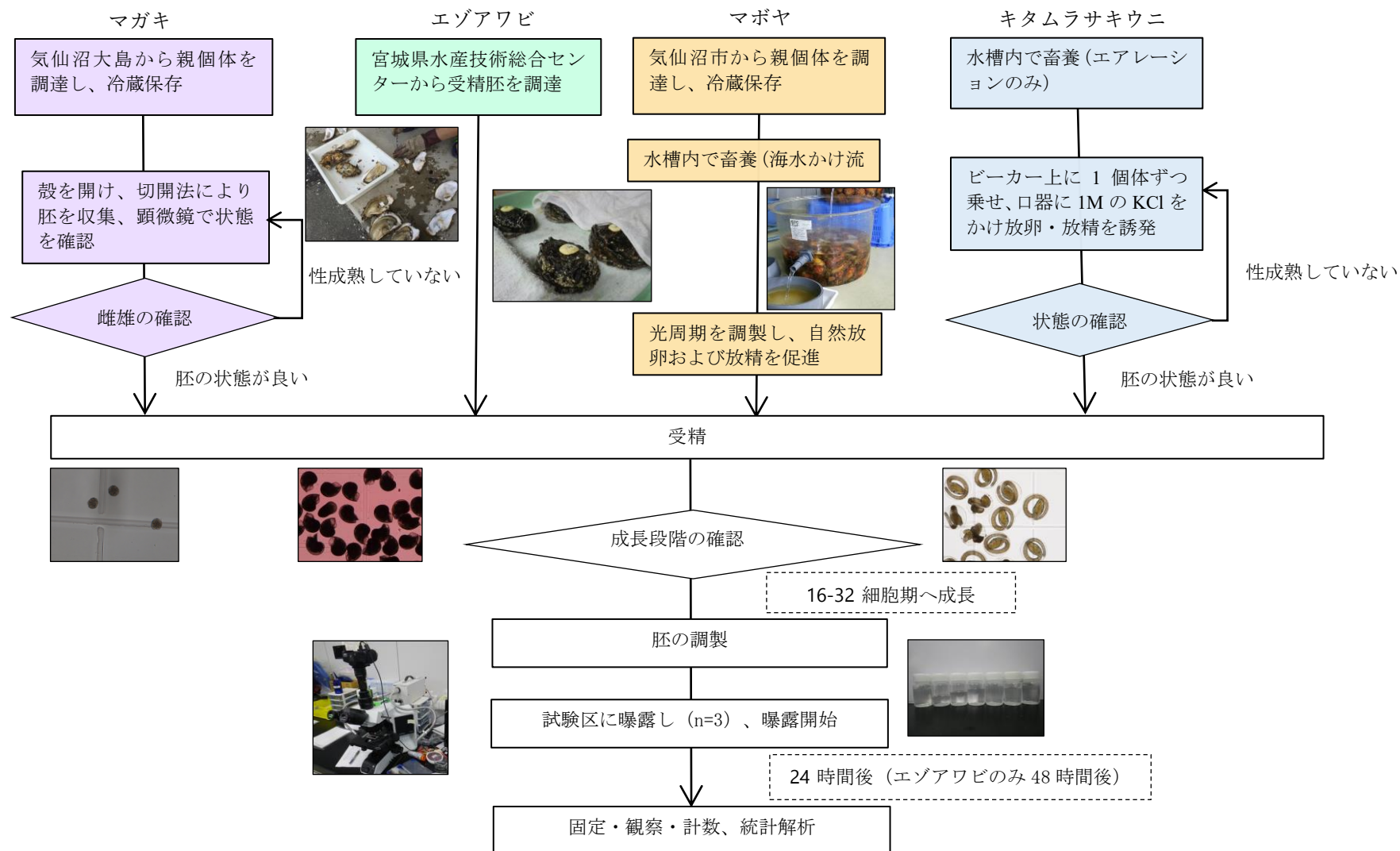


図 4-17 マガキ、エゾアワビ、マボヤ、キタムラサキウニに対する生態毒性試験方法の違いの概要

## 参考文献

- Blake A C, Chadwick D B, Zirino A, Rivera-Duarte I (2004) Spatial and temporal variations in copper speciation in San Diego Bay. *Estuaries* 27(3), 437–447. <https://doi.org/10.1007/BF02803536>
- Bosse C, Rosen G, Colvin M, Earley P, Santore R, Rivera-Duarte I (2014) Copper bioavailability and toxicity to *Mytilus galloprovincialis* in Shelter Island Yacht Basin, San Diego, CA. *Marine pollution bulletin*, 85(1), 225–234. <https://doi.org/10.1016/j.marpolbul.2014.05.045>
- Brooks S J, Bolam T, Tolhurst L, Bassett J, Roche J L, Waldock M, Barry J, Thomas K V (2007) Effects of dissolved organic carbon on the toxicity of copper to the developing embryos of the pacific oyster (*Crassostrea gigas*). *Environmental Toxicology and Chemistry* 26(8), 1756–1763. <https://doi.org/10.1897/06-460R1.1>
- Claissie D, Alzieu C (1993) Copper contamination as a result of antifouling paint regulations? *Marine Pollution Bulletin* 26(7), 395–397. [https://doi.org/10.1016/0025-326X\(93\)90188-P](https://doi.org/10.1016/0025-326X(93)90188-P)
- Cotou E, Henry M, Zeri C, Rigos G, Torreblanca A, Catsiki V A (2012) Short-term exposure of the European sea bass *Dicentrarchus labrax* to copper-based antifouling treated nets: Copper bioavailability and biomarkers responses. *Chemosphere* 89(9), 1091–1097. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2012.05.075>
- Environment and Climate Change Canada, Health Canada (2019) Draft Screening Assessment – Copper and Its Compounds.
- Gamain P, Gonzalez P, Cachot J, Pardon P, Tapie N, Gourves P Y, Budzinski, H, Morin B (2016) Combined effects of pollutants and salinity on embryo-larval development of the Pacific oyster, *Crassostrea gigas*. *Marine Environmental Research* 113, 31–38. <https://doi.org/10.1016/j.marenvres.2015.11.002>
- Grosell, M., Blanchard, J., Brix, K. V., Gerdes, R. (2007) Physiology is pivotal for interactions between salinity and acute copper toxicity to fish and invertebrates. *Aquatic toxicology*, 84(2), 162–172. <https://doi.org/10.1016/j.aquatox.2007.03.026>
- Katranitsas A, Castritsi-Catharios J, Persoone G (2003) The effects of a copper-based antifouling paint on mortality and enzymatic activity of a non-target marine organism. *Marine Pollution Bulletin* 46(11), 1491–1494. [https://doi.org/10.1016/S0025-326X\(03\)00253-4](https://doi.org/10.1016/S0025-326X(03)00253-4)
- Leverett D Thain J (2013) Oyster embryo-larval bioassay (revised), International Council for the Exploration of the Sea (ICES), Report. [https://www.ices.dk/sites/pub/Publication%20Reports/Cooperative%20Research%20Report%20\(CRR\)/CRR299.pdf](https://www.ices.dk/sites/pub/Publication%20Reports/Cooperative%20Research%20Report%20(CRR)/CRR299.pdf)
- MacInnes J R, Calabrese A (1979) Combined effects of salinity, temperature, and copper on embryos and early larvae of the American oyster, *Crassostrea virginica*. *Archives of Environmental Contamination and Toxicology* 8(5), 553–562. <https://doi.org/10.1007/BF01055036>

Mai H, Cachot J, Brune J, Geffard O, Belles A, Budzinski H, Morin B (2012) Embryotoxic and genotoxic effects of heavy metals and pesticides on early life stages of Pacific oyster (*Crassostrea gigas*). *Marine Pollution Bulletin* 64(12), 2663–2670. <https://doi.org/10.1016/j.marpolbul.2012.10.009>

Ministry of the Environment (2009) For type designation of the water quality environmental standards relating to the preservation of aquatic organisms (First report).

Ministry of the Environment (2009) Minutes of the 19th meeting of the Central Environmental Council, Water Environment Division. Status of Environmental Standard Items Related to Aquatic Life Conservation.

Ministry of Economy, Trade and Industry (2019) 2018 10<sup>th</sup> Pharmaceutical Affairs and Food Sanitation Council Pharmaceutical Affairs Subcommittee Chemical Safety Measures Subcommittee Chemicals Research Council, 2018 Chemicals Council 5<sup>th</sup> Safety Measures Subcommittee #192 Central Environment Council Environmental Health Subcommittee Chemical Examination Subcommittee 【Part One】 .

Quiniou F, Damiens G, Gnassia-barelli M, Geffard A, Mouneyrac C, Budzinski, H, Roméo M (2007) Marine water quality assessment using transplanted oyster larvae. *Environment International* 33(1), 27–33. <https://doi.org/10.1016/j.envint.2006.06.020>

Rainbow P S (2007) Trace metal bioaccumulation: Models, metabolic availability and toxicity. *Environment International* 33(4), 576–582. <https://doi.org/10.1016/j.envint.2006.05.007>

Ritz C, Streibig J C (2005) Bioassay Analysis using R, *Journal of Statistical Software* 12(5). <http://hdl.handle.net/10.18637/jss.v012.i05>

Rosen G, Rivera-Duarte I, Kear-Padilla L, Chadwick D B (2005). Use of laboratory toxicity tests with bivalve and echinoderm embryos to evaluate the bioavailability of copper in San Diego Bay, California, USA. *Environmental Toxicology and Chemistry* 24(2), 415–422. <https://doi.org/10.1897/04-079R1.1>

Seki Y, Kojima R, Ando H, Senda T, Kouzai K, Shimada M (2015) Seawater immersion performance of antifouling paints with varying content of cuprous oxide. *Journal of the JIME* 50(2), 247–254. <https://doi.org/10.5988/jime.50.247>

Shoji R, Kumagai N (2016) Heavy metal toxicity to marine organisms under aeration of carbon dioxide in artificial seawater. *Research Reports of National Institute of Technology, Tokyo College* 48, 66–70.

Stauber J L Davies C M (2000) Use and limitations of microbial bioassays for assessing copper bioavailability in the aquatic environment. *Environmental Reviews* 8(4), 255–301. <https://doi.org/10.1139/a00-010>

US EPA (2016) Draft Estuarine/Marine Copper Aquatic Life Ambient Water Quality Criteria. *Water Quality Criteria*. Office of Water, Washington, USA. EPA-HQ-OW-2016-0332.

US EPA (2003) Draft Update of Ambient Water Quality Criteria for Copper, Office of Water, Washington, USA. EPA-822-R-03-026.

Van Sprang P, Vangheluwe M, Van Hyfte A, Heijerick D, Vandenbroele M, Verdonck F, Delbeke K, Dwyer B, Adams B (2008) Voluntary risk assessment of copper, copper II, sulphate pentahydrate, copper(I)oxide, copper(II)oxide, dicopper chloride trihydroxide. European Union Risk Assessment Report, European Copper Institute, Brussels, Belgium.

WWF Japan (2018) 広がる ASC 認証 宮城県産カキの 6 割が認証を取得！ 2018 年 10 月 12 日付. 2020 年 11 月 12 日閲覧. <https://www.wwf.or.jp/activities/activity/3754.html>

吾妻行雄, 遠藤光, 高木聖実, 堀越彩香, 猪股英里, & 青木優和. (2018). 志津川湾における地震後のアラメ群落の動態と新たな保全技術. 日本水産学会誌, 84(6), 1074-1077.

菊池省吾・浮永久 (1974) アワビ属の採卵技術に関する研究 第 2 報 紫外線照射海水の産卵誘発効果. 東北区水産研究所研究報告, 33, 79-86.

小松輝久, 大瀧敬由, 佐々修司, 澤山周平, 阪本真吾, Sara Gonzalvo, 浅田みなみ, 濱名正泰, 村田裕樹, 田中潔, 辻本良, 寺内元基 (2017) 三陸の沿岸漁業を支えるブルーインフラの津波後の復興過程. 沿岸海洋研究, 54(2), 117-127.

小松輝久, 佐々修司, 門谷茂, 吉村千洋, 藤井学, 夏池真史, 西村修, 坂巻隆史, 柳哲雄 (2018). 開放性内湾を対象とした沿岸環境管理法の研究: 南三陸志津川湾の例. 沿岸海洋研究, 56(1), 21-29.

宮城県 (2012) 水産関係用語集 (開口) 2012 年 9 月 10 日更新. 2020 年 11 月 12 日閲覧. <https://www.pref.miyagi.jp/soshiki/suishin/yogo1101.html>

「海さ、ございん」プロジェクト実行委員会. 戸倉、幸せの牡蠣. 2020 年 11 月 12 日閲覧. <https://umisagozain.com/asc/>

(国研)水産研究・教育機構 (2014) 水産総合研究センターによる東日本大震災復興支援活動 さん 年間の記録 平成 23 年 3 月 11 日～平成 26 年 3 月 31 日. [https://www.fra.affrc.go.jp/eq/repo\\_res/sp\\_report.pdf](https://www.fra.affrc.go.jp/eq/repo_res/sp_report.pdf)

週刊水産新聞 (2020) 宮城県アワビ資源復活へ、今季 106 万個放流. 2020 年 6 月 29 日付. 2020 年 11 月 12 日閲覧.

政府統計 (2018) 平成 30 年度海面漁業生産統計調査. [https://www.e-stat.go.jp/stat-search/files?page=1&layout=datalist&toukei=00500216&tstat=000001015174&cycle=7&year=20180&tclass1=000001015175&tclass2=000001136043&cycle\\_facet=cycle](https://www.e-stat.go.jp/stat-search/files?page=1&layout=datalist&toukei=00500216&tstat=000001015174&cycle=7&year=20180&tclass1=000001015175&tclass2=000001136043&cycle_facet=cycle)

高見秀輝 (2018) 東日本大震災でエゾアワビ資源はどうなった？ーアワビ漁業の復興に向けてー. URL: <https://www.fra.affrc.go.jp/topics/20180216/02.pdf>

千葉健太 (2017) 日本の主要海域における銅の水産資源へのリスク評価. 横浜国立大学大学院環境情報学府 修士論文.

農林水産省(2019) 海面漁業生産統計調査. 第 1 報 (年計結果 (統計表一覧)) 令和元年統計表.

宮城県水産技術総合センター(2016) 宮城水産復興だより .  
<https://www.pref.miyagi.jp/uploaded/attachment/72528.pdf>

## 第5章 地域性を考慮したリスク評価を行うための現地調査

### 1. はじめに

日本沿岸域における水質は海域ごとに差異がある（第3章）。生物利用可能量が海域ごとに異なることが示唆されたため、日本沿岸域において地域の特徴を考慮したリスク評価を実施するためには、まずは対象地域の水質を把握する必要がある。対象海域の志津川湾は、日本の代表的な閉鎖性湾のひとつであり、公共用水域としての基本的な水質調査が実施されている（環境省, 2011a）。一方で、生物利用可能性を把握するための水質データや、海水中銅濃度のデータは測定されていない。

そこで本章では、実際の海域環境中の銅濃度を把握するために実施した、志津川湾の現地調査の内容をまとめる。

### 2. 対象海域の特徴

志津川湾は宮城県本吉郡南三陸町の歌津埼から、同郡志津川町の寺濱三角点を結んだ線より内側を指す（環境省, 2011b, 図 2-2）。志津川湾内の海水は、津軽暖流や黒潮、親潮の影響を受けるほか、西風の吹送流に伴う湧昇流等が湾内水の交換をもたらす（堀井ら, 1994; 永澤ら, 1998; 野村ら, 1996）。湾内には荒島や椿島といった大小の島が点在している。湾口幅は 6.6 km、面積は約 46.8 km<sup>2</sup>、湾内最大水深および湾口最大水深は 54 km である。

### 3. 現地調査

#### 3.1. 調査時期および調査地点

志津川湾における海水中銅濃度の調査および分析は、2015 年 6 月、9 月、2016 年 1 月、2017 年 3 月、4 月、8 月、および 2018 年 8 月に実施した。調査はなるべく降雨時を避けて実施した。志津川湾全域を対象に、14 地点を選定した。調査地点の選定は、調査日時を表 5-1 に、調査地点を図 5-1 に示す。

表 5-1 調査日時および地点名

年	月	日	調査地点
2015	6	12	St. 1, 2, 3, 4, 5
	9	15	St. 1, 2, 3, 4
2016	1	5	St. 1, 2, 3, 4
2017	3	19	St. 1
	4	24, 25	St. 1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, 11, 12, 13, 14, 15
	8	7	St. 2, 7, 8, 9, 11, 12, 13, 14, 15
2018	8	30	St. 1, 2, 3, 7, 8, 11, 12, 13, 14, 15



図 5-1 志津川湾における調査地点

### 3.2. 調査方法

調査の際は、宮城県漁業協同組合志津川支所戸倉事務所（戸倉漁協）所属の漁船に乗船させていただいた。各調査地点の全景写真を写真 5-1 および写真 5-2 に示す。GPS（GARMIN 社製：etrex Vista HCX）を用いて調査地点の位置（緯度・経度）まで移動した。海面から約 2 m の水深にバンドーン採水器を投げ入れ採水し、酸洗浄済みの 500 mL 広口ビンに共洗いた後に注ぎ入れた。500 mL ビンは各調査地点に 2 本ずつ、計 1 L 採水した。同時に、多項目水質計（JFE アドバンテック製 直読式総合水質計 AAQ171）を用いて地点ごとの水質を測定した。以下は、2018 年 8 月調査時の各調査地点写真である。調査時は穏やかな気象および海象であった。

すべての調査地点での水質測定および採水が終了し、下船後、ファンネル、濾過瓶、ゴム栓付きベース、ステンレス製サポートスクリーン、クランプ、0.45  $\mu\text{m}$  親水性 PTFE 製メンブレンフィルター、および真空ポンプを用いて、各地点の海水 500 mL ずつ、減圧濾過を行った。減圧濾過を行ったものを溶存態、濾過していないものを全形態の銅を測定するサンプルとした。また、各地点の濾過海水は 50 mL コーニングに注ぎ入れ、DOC 分析用サンプルとした。分注した各サンプルは冷蔵で持ち帰り、分析まで冷蔵庫で保管した。濾過風景は写真 5-3 に示す。

溶存銅濃度、全形態銅濃度は、ともに誘導結合プラズマ質量分析計（ICP-MS）（Agilent

7700x ICP-MS; Agilent Technologies) を用いて、JIS K0102 52.5 ICP 質量分析法に準拠して測定した。サンプルが海水のため、イミノジ酢酸弱陽イオンカラム (InterSep ME-1; GL science 株式会社) に通し、保持した二価金属を 1 M 酢酸 (Ultrapure-100; 関東化学株式会社) で脱塩前処理をして溶出した。

DOC 濃度は、TOC 分析計 (TOC-Vcsn; 島津製作所) を用いて、JIS K 0102 22.2 に従い測定した。

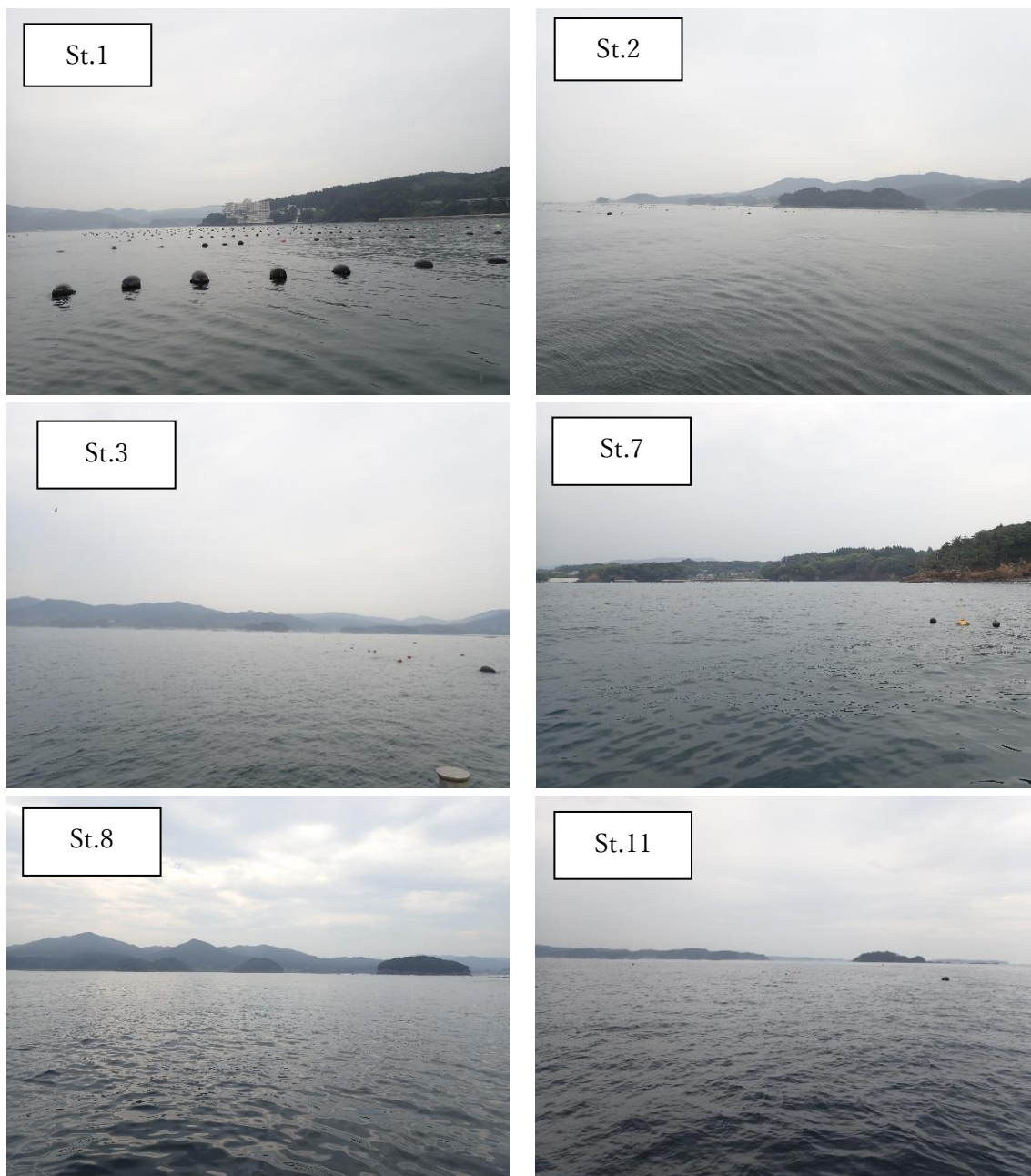


写真 5-1 2018 年 8 月調査時の各調査地点の全景 (St.1, 2, 3, 7)



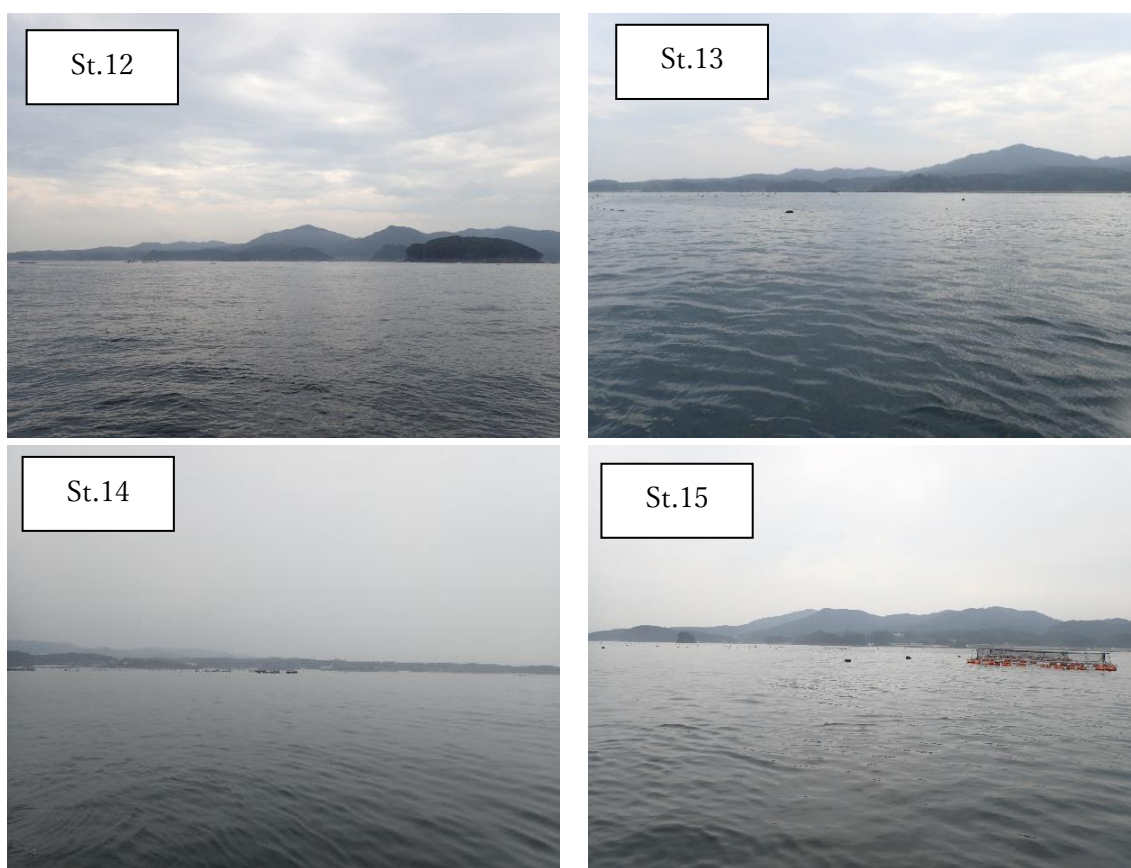


写真 5-2 2018 年 8 月調査時の各調査地点の全景（St.8, 11, 12, 13, 14, 15）



写真 5-3 濾過作業風景

#### 4. 結果

各調査時の水質項目および海水中銅濃度の測定結果を示す。各調査時における地点ごとの濃度は、章末に表 5-4 として掲載する。

表 5-2 に、調査日ごとの志津川湾内の水質調査結果の中央値を示す。pH は、調査日ごとの変動はほとんど見られなかった。塩分の中央値が最も低い調査日は 2018 年 8 月 30 日で、最も高い調査日は 2016 年 1 月 5 日および 2017 年 3 月 19 日であった。夏季の雨量増大による影響が考えられる。DOC の中央値が最も低い調査日は 2017 年 8 月 7 日の 1.05 mg/L で、最も高い調査日は 2015 年 9 月 15 日で 1.75 mg/L であった。

表 5-2 各調査日における志津川湾内の水質（中央値）

	pH	Sal.	Temp.[°C]	DOC[mg/L]
2015/6/12	8.3	-	17.2	-
2015/9/15	8.1	-	21.1	1.75
2016/1/5	8.1	33.8	11.1	1.24
2017/3/19	8.0	33.8	-	1.65
2017/4/24	8.3	33.7	9.9	-
2017/8/7	8.2	33.4	20.9	1.05
2018/8/30	8.2	33.2	22.2	1.48

表 5-3 に、調査地点ごとの志津川湾内の水質調査結果の中央値を示す。各調査地点において、pH は 8.1~8.3、塩分は 33.4~33.8、TOC は 1.12~1.50 mg/L、DOC は 1.09~1.42 mg/L で、調査地点ごとの水質の差はほとんどなかった。

表 5-3 各調査地点における志津川湾内の水質（中央値）

	pH	Sal.	TOC[mg/L]	DOC[mg/L]
St.1	8.1	33.5	1.50	1.42
St.2	8.1	33.4	1.34	1.22
St.3	8.2	33.7	1.36	1.31
St.4	8.2	33.8	1.34	1.49
St.5	8.3	33.7	-	-
St.6	8.3	33.8	-	-
St.7	8.2	33.7	1.43	1.22
St.8	8.2	33.8	1.12	1.25
St.9	8.2	33.4	1.29	1.15
St.11	8.2	33.7	1.32	1.23
St.12	8.2	33.5	1.36	1.14
St.13	8.2	33.4	1.18	1.09
St.14	8.1	33.5	1.30	1.14
St.15	8.1	33.3	1.19	1.17

図 5-2 に、調査日ごとにおける海水中全形態銅濃度の中央値（最大値-最小値）を示す。全形態の銅濃度では、相対的に中央値が最も高い調査日は 2015 年 9 月 15 日で、1.97  $\mu\text{g/L}$  であった。最大濃度が最も高かった調査日は 2017 年 4 月 24 日で、3.69  $\mu\text{g/L}$  であった。全調査日の中央値は 0.70  $\mu\text{g/L}$  であった。第三章で示したように、現在文献で報告されている日本沿岸域の銅濃度の中央値は 0.47  $\mu\text{g/L}$ 、幾何平均値は 0.7  $\mu\text{g/L}$  である。そのため、志津川湾はごく平均的な海水中銅濃度といえる。

図 5-3 に調査日ごとにおける海水中溶存態銅濃度の中央値（最大値-最小値）を示す。調査日の中央値は 5.13  $\mu\text{g/L}$ 、幾何平均値は 0.53  $\mu\text{g/L}$  であった。幾何平均値が高いのは 2017 年 3 月 19 日、最大値が高いのは 2017 年 4 月 24 日であった。

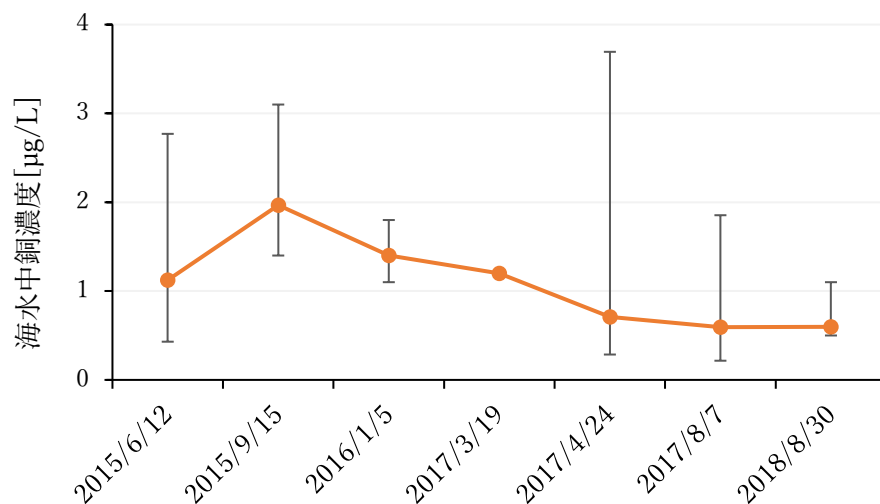


図 5-2 各調査時における全形態銅濃度の幾何平均値（最大値-最小値）[μg/L]

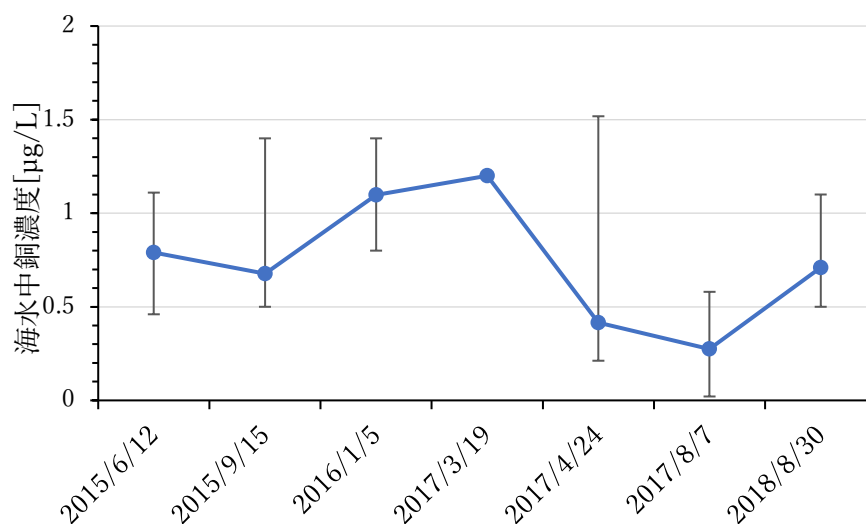


図 5-3 各調査時における溶存態銅濃度の幾何平均値（最大値-最小値）[μg/L]

図 5-4 および図 5-5 に、各銅濃度の季節変動を示す。全形態、溶存態ともに、夏季および冬季は、地点ごとの濃度差が小さかった。全形態銅は春季および秋季に地点ごとの濃度のばらつきが大きかった。

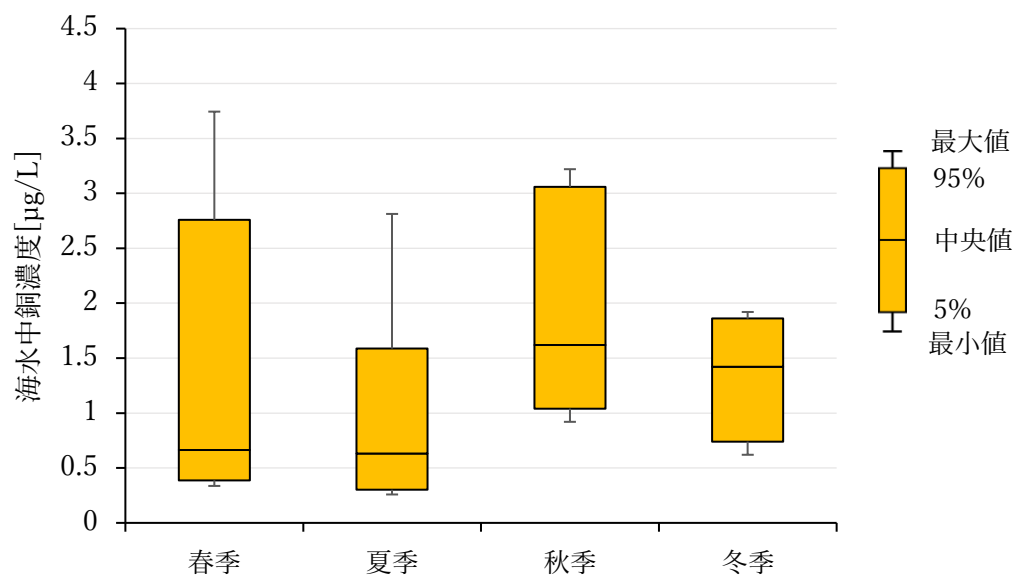


図 5-4 志津川湾における全形態銅濃度の季節変動（最大値-95%-中央値-5%-最小値）

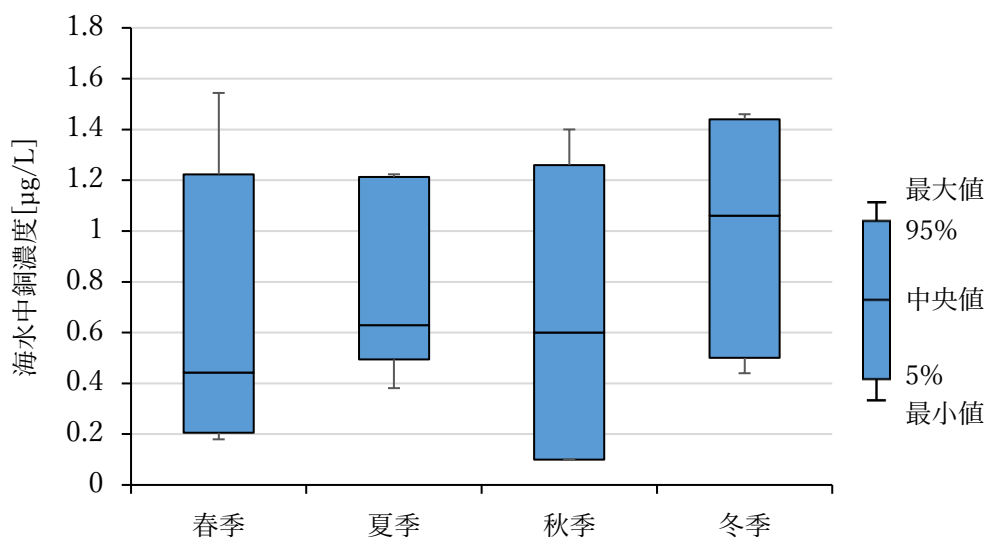


図 5-5 志津川湾における溶存銅濃度の季節変動（最大値-95%-中央値-5%-最小値）

図 5-6 および図 5-7 に、各調査地点における全調査日の中央値を示す。調査日の変動を考慮しない場合、全形態銅濃度は、St.1、St.2、St.3、St.4、St.9、および St.11 で高い濃度を示した。また、溶存態銅濃度は、St.1、St.3、および St.11 で高い濃度を示した。全形態および溶存態のどちらも濃度が高かったのは、St.1、St.3 および St.11 であった。高濃度の調査地点は、どの地点も湾の北側に位置する。海流の影響がある可能性が示唆された。

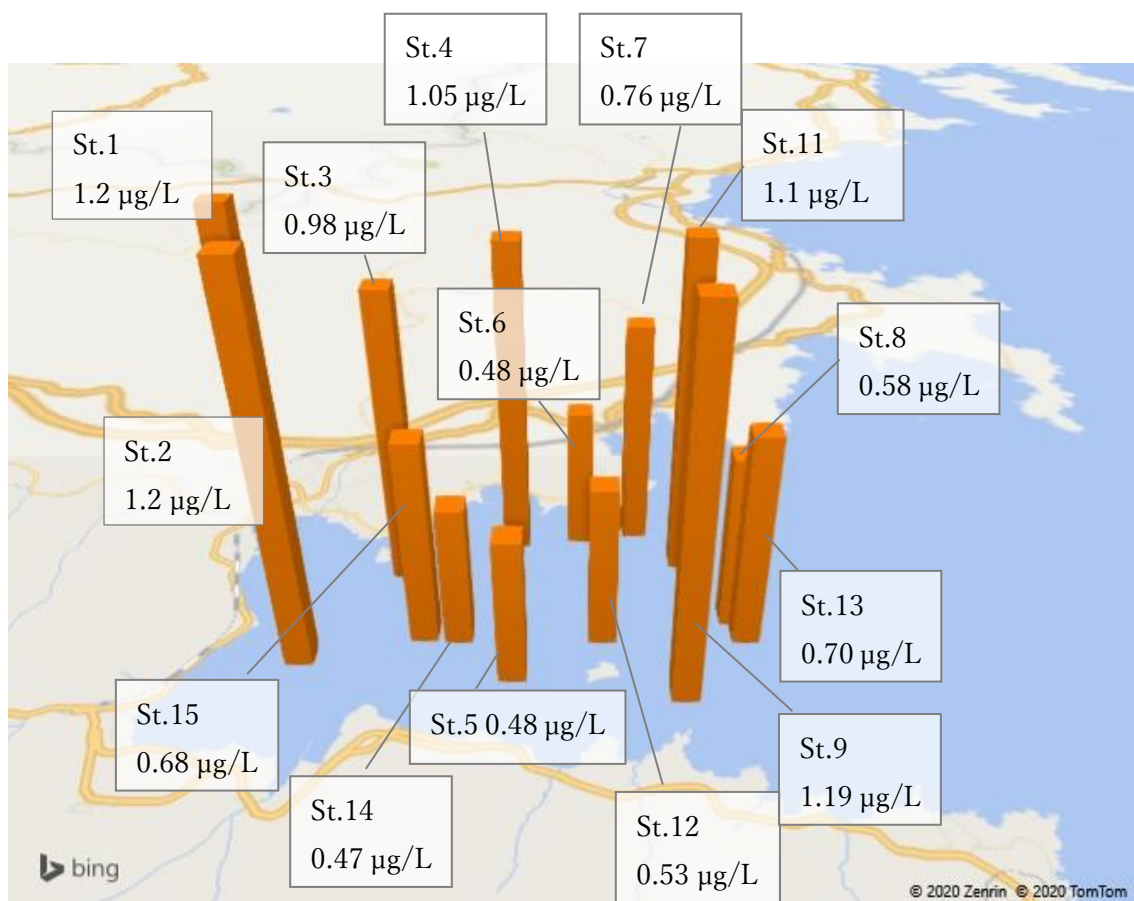


図 5-6 志津川湾の全調査日における地点ごとの全形態銅濃度中央値

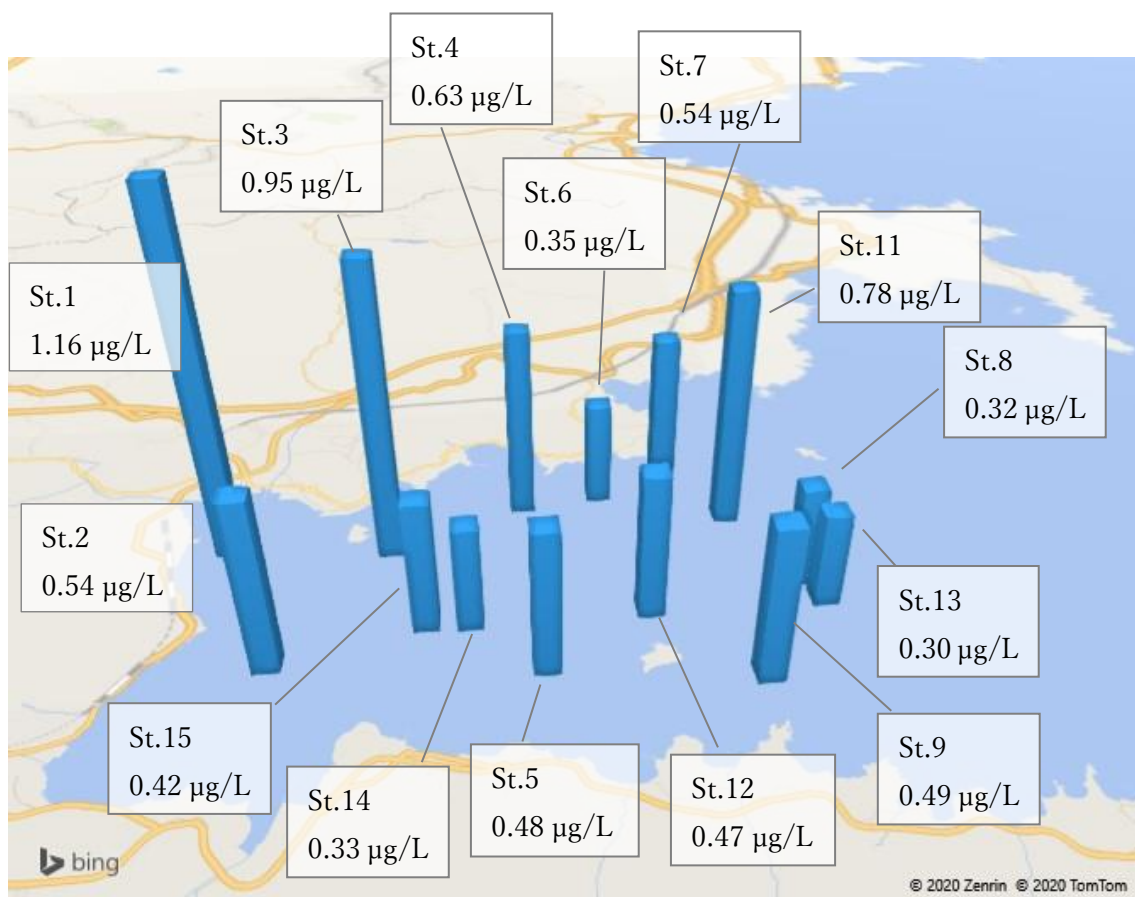


図 5-7 志津川湾の全調査日における地点ごとの溶存銅濃度中央値

## 5. まとめ

本章では、宮城県志津川湾における現在の海水中銅濃度、および、生物利用可能性を考慮するための各水質を調査した結果をまとめた。湾全体の海水中銅濃度の中央値は、全形態銅で  $0.70 \mu\text{g/L}$ 、溶存態銅で  $0.51 \mu\text{g/L}$  であった。宮城県志津川湾の海水中銅濃度は、全国の濃度と比較して大きな差は無く、平均的な濃度であると考えられる。



#### 参考文献

- JIS K0102 52.5 ICP 質量分析法 <https://www.kikakurui.com/k0/K0102-2019-01.html>
- JIS K 0102 22.2 <https://www.kikakurui.com/k0/K0102-2019-01.html>
- 環境省, 2011a. 閉鎖性海域ネット . ダウンロード .  
[https://www.env.go.jp/water/heisa/heisa\\_net/Download.html](https://www.env.go.jp/water/heisa/heisa_net/Download.html)
- 環境省, 2011b. 閉鎖性海域ネット . 25. 志津川湾 .  
[https://www.env.go.jp/water/heisa/heisa\\_net/waters/sizugawawan.html](https://www.env.go.jp/water/heisa/heisa_net/waters/sizugawawan.html)
- 永澤豪, 田中仁, 松村勝之, 山路弘人 (1998) ADCP を用いた志津川湾内流動の観測. 海岸工学論文集, 45, pp. 396-400.
- 野村宗弘, 千葉信男, 徐開欽, 須藤隆一 (1996) 志津川湾における貧酸素水塊の形成. 沿岸海洋研究 33(2), pp. 203-210.
- 堀井久義, 田中仁, 渡辺健二, 首藤伸夫 (1994) 志津川湾における湾水交換の現地観測. 海岸工学論文集, 41, pp. 1091-1095.

表 5-4 各調査時の水質項目および海水中銅濃度の測定結果

調査日	調査地点	採水層 (数値は[m])	Total Cu [μg/L]	Dissolved Cu [μg/L]	Temp. [°C]	Sal. [PSU]	DO [mg/L]	pH [-]	濁度 [NTU]	TOC [mg/L]	DOC [mg/L]
2015/6/12	St.1	表層(2)	2.77	1.11	16.80	-	-	8.19	-	-	-
2015/6/12	St.2	表層(2)	1.23	0.89	18.00	-	-	8.21	-	-	-
2015/6/12	St.3	表層(2)	1.21	0.95	17.10	-	-	8.25	-	-	-
2015/6/12	St.4	表層(2)	1.01	0.71	17.20	-	-	8.26	-	-	-
2015/6/12	St.5	表層(2)	0.43	0.46	18.00	-	-	8.25	-	-	-
2015/9/15	St.1	表層(2)	3.10	1.40	21.31	-	-	7.93	-	-	1.83
2015/9/15	St.2	表層(2)	1.40	0.60	21.11	-	-	8.13	-	-	1.73
2015/9/15	St.3	表層(2)	2.30	0.50	21.18	-	-	8.10	-	-	1.64
2015/9/15	St.4	表層(2)	1.50	0.50	20.80	-	-	8.10	-	-	1.77
2015/9/15	石巻湾	表層(2)	0.80	0.70	22.90	-	-	7.88	-	-	1.63
2015/9/25	St.1	表層(2)	-	4.33	-	32.40	-	8.00	-	-	1.19
2015/9/25	St.3	表層(2)	-	3.52	-	32.90	-	8.05	-	-	1.14
2015/9/25	石巻湾	表層(2)	-	0.84	-	32.10	-	8.00	-	-	1.51
2016/1/5	St.1	2	1.80	1.30	9.75	33.48	8.78	8.16	0.65	1.50	1.42
2016/1/5	St.2	2	1.30	1.00	11.14	33.83	8.42	8.14	0.14	1.33	1.27
2016/1/5	St.3	2	1.50	1.40	11.14	33.83	8.26	8.14	0.24	1.36	1.12
2016/1/5	St.4	2	1.10	0.80	11.28	33.85	8.42	8.14	0.14	1.34	1.21
2016/1/5	石巻湾	表層(2)	<0.5	<0.5	-	-	-	-	-	1.26	1.03
2017/3/19	石巻湾	表層(2)	2.80	2.60	17.20	33.40	-	7.96	-	-	1.31
2017/3/19	St.1	表層(2)	1.20	1.20	16.60	33.81	-	8.02	-	-	1.65

調査日	調査地点	採水層 (数値は[m])	Total Cu [μg/L]	Dissolved Cu [μg/L]	Temp. [°C]	Sal. [PSU]	DO [mg/L]	pH [-]	濁度 [NTU]	TOC [mg/L]	DOC [mg/L]
2017/4/25	St.1	2	0.43	0.42	11.07	33.42	11.27	8.31	1.40	-	-
2017/4/25	St.1	底層(7.0)	0.33	0.33	9.46	33.74	10.95	8.26	1.47	-	-
2017/4/24	St.2	2	1.85	1.17	10.77	33.39	10.25	8.27	1.14	-	-
2017/4/24	St.2	底層(12.0)	0.40	0.33	8.83	33.84	9.43	8.22	1.27	-	-
2017/4/25	St.3	2	0.75	0.64	11.06	33.67	10.91	8.30	1.11	-	-
2017/4/25	St.3	底層(9.98)	0.58	0.42	9.07	33.77	11.13	8.30	1.00	-	-
2017/4/25	St.4	2	0.64	0.55	10.61	33.68	11.06	8.31	0.84	-	-
2017/4/24	St.5	2	1.08	0.55	10.35	33.48	9.85	8.25	1.00	-	-
2017/4/25	St.5	底層(12.6)	0.48	0.27	8.66	33.89	9.07	8.17	1.10	-	-
2017/4/25	St.6	2	1.02	0.43	10.48	33.70	11.00	8.31	0.80	-	-
2017/4/25	St.6	底層(18.06)	0.54	0.26	8.69	33.81	8.68	8.20	1.54	-	-
2017/4/25	St.7	2	3.69	1.52	10.45	33.71	10.90	8.29	0.86	-	-
2017/4/25	St.7	底層(21.67)	0.58	0.27	8.52	33.83	9.42	8.17	0.75	-	-
2017/4/24	St.8	2	0.90	0.42	9.84	33.65	10.42	8.28	0.90	-	-
2017/4/24	St.8	底層(30.00)	0.36	0.24	8.18	33.94	7.12	8.07	2.10	-	-
2017/4/24	St.9	2	0.52	0.41	9.65	33.67	10.50	8.29	0.87	-	-
2017/4/25	St.11	2	2.18	0.78	10.33	33.68	10.91	8.26	0.86	-	-
2017/4/24	St.12	2	1.31	0.41	10.01	33.63	10.49	8.26	0.90	-	-
2017/4/24	St.13	2	1.04	0.21	9.84	33.64	10.58	8.24	0.87	-	-
2017/4/24	St.14	2	0.58	0.42	9.91	33.53	9.97	8.26	1.04	-	-

調査日	調査地点	採水層 (数値は[m])	Total Cu [μg/L]	Dissolved Cu [μg/L]	Temp. [°C]	Sal. [PSU]	DO [mg/L]	pH [-]	濁度 [NTU]	TOC [mg/L]	DOC [mg/L]
2017/4/24	St.14	底層(19.98)	0.35	0.26	8.54	33.90	7.41	8.05	1.90	-	-
2017/4/24	St.15	2	0.29	0.26	10.47	33.51	10.42	8.26	1.14	-	-
2017/8/7	St.2	2	0.48	0.54	24.20	32.29	8.21	8.14	0.30	1.35	1.16
2017/8/7	St.2	中層(7.00)	0.55	0.07	20.91	33.39	6.25	8.04	0.37	1.43	1.10
2017/8/7	St.2	底層(13.80)	1.29	0.33	19.01	33.63	5.87	8.04	4.57	1.19	1.05
2017/8/7	St.7	2	0.94	0.38	23.43	33.12	8.20	8.17	0.25	1.43	1.16
2017/8/7	St.8	底層(29.00)	0.22	0.23	16.57	33.98	7.99	8.13	1.75	1.12	1.02
2017/8/7	St.9	2	1.85	0.58	22.85	33.15	8.08	8.15	0.40	1.29	1.15
2017/8/7	St.11	2	0.35	0.38	22.97	33.27	8.16	8.17	0.19	1.32	1.05
2017/8/7	St.12	2	0.56	0.52	23.17	33.22	8.26	8.18	0.21	1.35	1.00
2017/8/7	St.12	底層(29.00)	0.24	0.19	16.75	33.96	7.93	8.14	1.20	1.37	1.14
2017/8/7	St.13	2	0.99	0.51	23.00	33.21	8.26	8.17	0.25	1.34	1.14
2017/8/7	St.13	中層(10.00)	0.70	0.02	20.89	33.55	8.45	8.20	0.15	1.18	0.97
2017/8/7	St.13	底層(19.00)	0.58	0.30	18.44	33.77	8.10	8.15	0.28	1.14	1.04
2017/8/7	St.14	2	1.25	0.57	23.56	32.80	8.17	8.15	0.26	1.30	1.25
2017/8/7	St.14	中層(10.00)	0.27	0.24	20.47	33.51	7.53	8.14	0.32	1.31	0.99
2017/8/7	St.14	底層(21.00)	0.36	0.25	17.35	33.90	6.91	8.09	3.57	1.10	1.03
2017/8/7	St.15	2	0.65	0.58	23.81	32.62	8.13	8.15	0.28	1.32	1.17
2017/8/7	St.15	底層(18.50)	0.72	0.21	17.98	33.79	6.77	8.09	2.74	1.07	0.94
2018/8/30	St.1	表層(2)	<0.5	0.7	22.01	33.02	6.76	8.1	-	-	1.41

調査日	調査地点	採水層 (数値は[m])	Total Cu [μg/L]	Dissolved Cu [μg/L]	Temp. [°C]	Sal. [PSU]	DO [mg/L]	pH [-]	濁度 [NTU]	TOC [mg/L]	DOC [mg/L]
2018/8/30	St.2	表層(2)	<0.5	<0.5	21.9	32.7	7.01	8.1	-	-	1.59
2018/8/30	St.3	表層(2)	<0.5	1.1	22.25	33.4	7.31	8.16	-	-	1.48
2018/8/30	St.7	表層(2)	0.5	0.7	22.7	33.6	7.19	8.18	-	-	1.28
2018/8/30	St.8	表層(2)	0.8	<0.5	22.37	33.28	7.2	8.18	-	-	1.48
2018/8/30	St.11	表層(2)	1.1	0.9	22.76	33.7	7.14	8.19	-	-	1.4
2018/8/30	St.12A	表層(2)	<0.5	0.6	22.31	33.36	7.22	8.17	-	-	1.5
2018/8/30	St.13	表層(2)	<0.5	0.8	22.15	33.2	7.21	8.16	-	-	1.52
2018/8/30	St.14	表層(2)	0.6	<0.5	21.77	32.96	7.32	8.13	-	-	1.56
2018/8/30	St.15	表層(2)	0.7	1.1	21.7	33.02	7.04	8.12	-	-	1.47

## 第6章 リスク評価とシナリオ分析

### 1. はじめに

第4章および第5章では、地域性を考慮したリスク評価のために、対象海域である志津川湾に生息する水産重要種および志津川湾海水を用いた毒性試験の実施と、志津川湾の海水中銅濃度および水質の調査を実施した結果をまとめた。本章では、これらの結果を用いて、まずは宮城県志津川湾の現段階における生態リスク評価を実施する。また、将来的に持続可能な養殖方法へ転換することを考慮し、養殖生簀の材質を化繊製から銅合金製に変更された場合を仮定して、数値モデルを用いたリスク評価を実施する。

### 2. 現地調査結果を用いた、宮城県志津川湾における生態リスク評価

第5章で記述した現地調査結果を用いて、現時点の宮城県志津川湾における生態リスクの程度を評価した。また、生物や生態系への影響濃度としては、環境省で実施されている環境リスク初期評価の手法を参考にした値、および、現地調査で得られた結果を用いたリスク評価も実施した。

なお、本章で実施する生態リスク評価は、志津川湾という限定した一部の海域に生息する、幾種かの「水産重要種」に対する評価であり、かなり限定的なものである。一方、第3章では、日本全海域の生態系全体を対象としている。リスク評価対象が異なるため、両結果におけるリスクの大小の比較はできない。しかし、現在国内外において確立している複数のリスク評価手法を用いることによって、地域性を考慮する場合としない場合で結果がどのように変化するかを比較するために、第3章で用いた手法も利用した。

#### 2.1. スクリーニングレベルのリスク評価結果

まず、環境リスク初期評価における有害性濃度には、第3章で用いたスクリーニングレベルのPNECである、 $PNEC_{JPN}$ を用いて  $0.29 \mu\text{g/L}$  とした。各調査日の全調査地点を平均した濃度を湾平均濃度とし、比較する現地調査結果とした。

また、本研究で算出した生態毒性試験結果とも比較した。環境リスク初期評価では、収集した有害性濃度のうち、最も感受性が高い結果を用いる。第三章で示した不確実係数（Assessment Factor: AF）の選定方法に準拠し、本評価に用いるAFは100とした。最も感受性が高い結果であった *H. discus* のEC10を、AFである100で除すことによって予測無影響濃度（PNEC）を算出した。その結果、PNECは  $0.08 \mu\text{g/L}$  となった。これを  $PNEC_{JPN-abalone}$  とした。

この二つの結果を、現場調査における、各調査日の地点平均値と比較した。リスク判定方法には、HQ法を用いた。結果を図6-1に示す。その結果、ほとんどの調査結果は  $PNEC_{JPN}$  および  $PNEC_{JPN-abalone}$  よりも高い濃度であり、「詳細なリスク評価を実施する必要がある」と判定された。

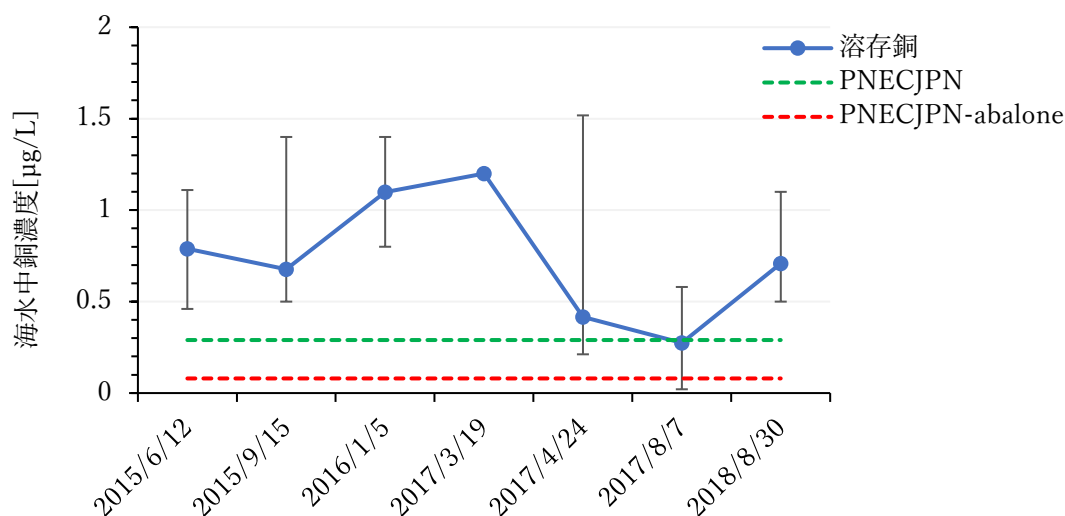


図 6-1 各調査日における全地点幾何平均海水中溶存銅濃度とスクリーニングレベルの予測影響濃度(PNEC)の比較

## 2.2. 生態毒性試験の結果と現地調査結果の比較

宮城県志津川湾における数種の水産重要種に対する生態毒性試験の結果（第4章）を、現地調査で明らかになった志津川湾内における海水中銅濃度（第5章）と比較することによって、現時点での現場におけるリスク評価を実施した。各調査日の全調査地点を平均した濃度を湾平均濃度とし、比較する現地調査結果とした。海水中銅濃度は、生物利用可能性の観点から、溶存態濃度を使用した。また、比較対象の影響濃度には、各供試生物の EC10 の平均値を使用した。結果を図 6-2 に示す。

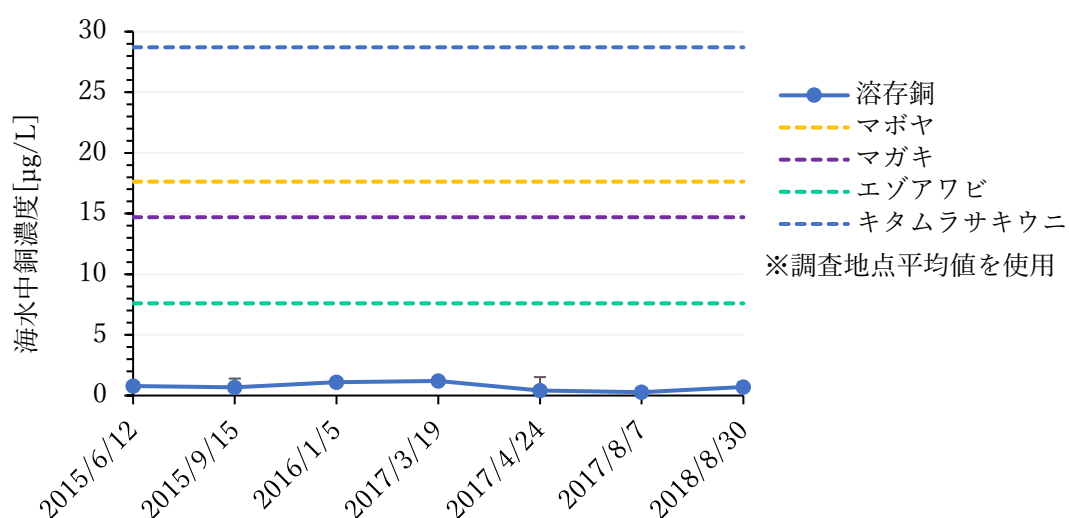


図 6-2 海水中平均溶存銅濃度と現場の水産重要種の 10%影響濃度(EC10)の比較

銅に対する感受性が4種の中で最も高い *H. discus* の EC10 と比較しても、現在の志津川湾の海水中銅濃度は低かった。この EC10 は、各生物の生活史においても、周辺環境に対して最も感受性が高いライフステージである発生初期段階を対象とした試験で得られた値である。志津川湾の *H. discus* は、変態が完了し稚貝となってからさらに一定のサイズに成長するまで、陸に設置された水槽で畜養されるため、実際の環境下に放流される頃には、感受性は低下していると考えられる。そのため、水産重要種に与える銅のリスクは極めて低いと考えられる。

*C. gigas*、*H. roretzi*、*S. nudus* に関しては、St.1 および St.3 の海水中銅濃度とも比較した。結果を図 6-3 および図 6-4 に示す。各地点の海水中溶存銅濃度と、各供試生物における EC10 を比較すると、湾平均値を使用した濃度の結果と同様に、リスクは低かった。

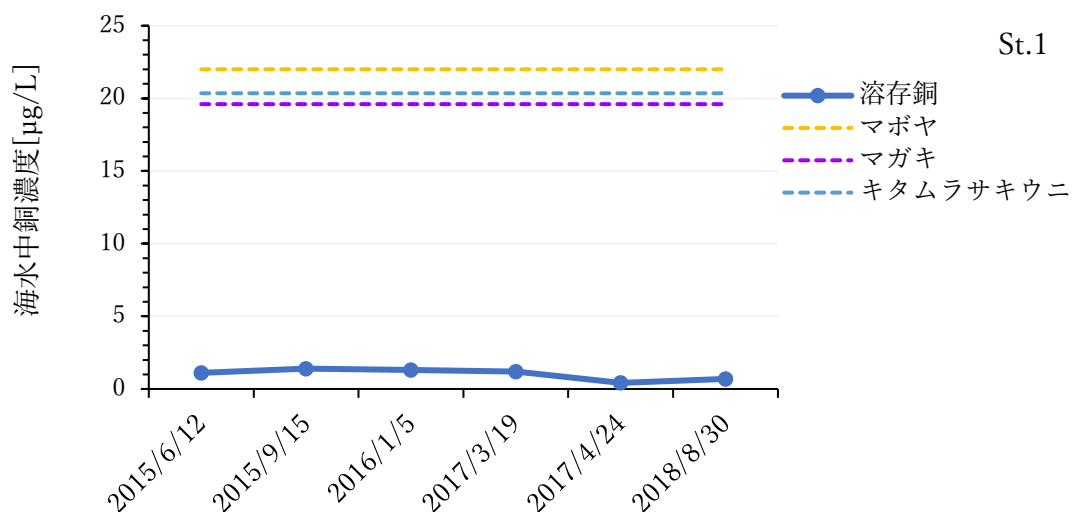


図 6-3 St.1 の各調査日における溶存銅濃度と各供試生物の EC10 の比較

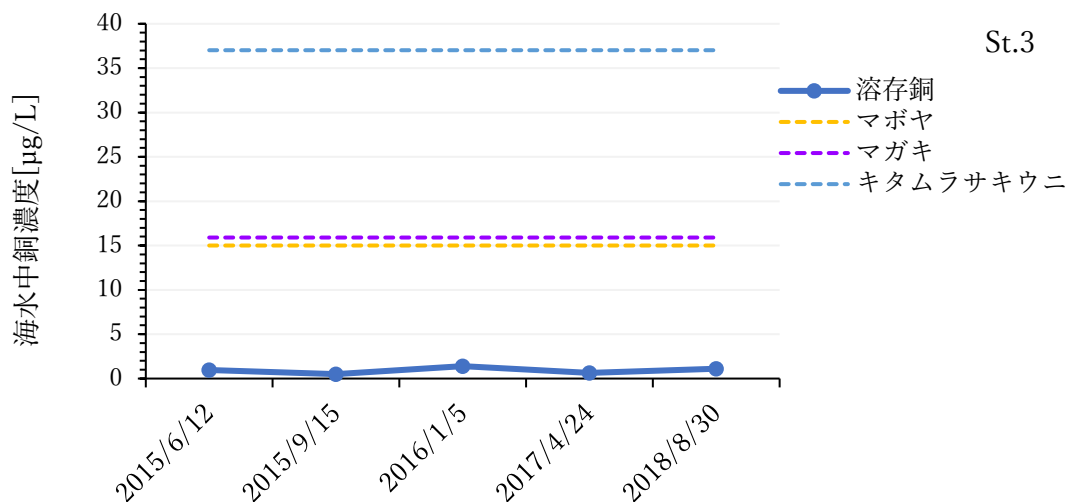


図 6-4 St.3 の各調査日における溶存銅濃度と各供試生物の EC10 の比較



### 2.3. Biotic Ligand Model を使用した生物利用可能量と現地調査結果の比較

米国環境保護局（U.S.EPA）が公開している Marine Biotic Ligand Model（Marine-BLM）を用いて、調査海域の水質を考慮した生物利用可能量を算出し、現場調査結果と比較した。使用した水質パラメータは、銅濃度、水温、塩分、pH、および DOC である。結果を図 6-5 に示す。計算できたすべての調査地点で、現場調査の溶存銅濃度が BLM で算出した生物利用可能量を下回り、いずれの調査地点においてもリスクは低いと判定された。

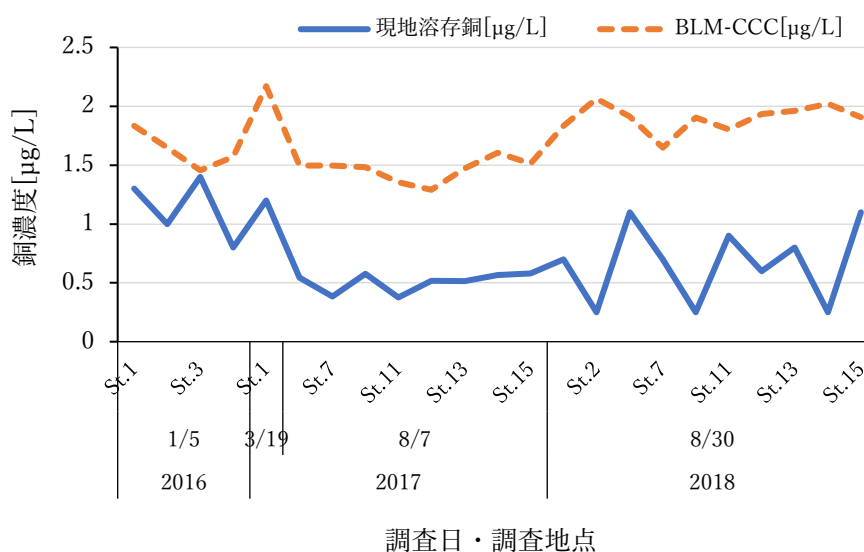


図 6-5 現場調査結果の溶存銅濃度と Marine-BLM を用いた生物利用可能量との比較

### 3. シナリオ分析

#### 3.1. MAMPEC について

シナリオ分析に使用するモデルは、数値モデルである MAMPEC (Marine Antifoulant Model to Predict Environmental Concentrations) を使用した。MAMPEC は、欧州塗料印刷インキ絵具工業会連合会(CEPE)の防汚剤研究グループの依頼を受け、アムステルダム大学と Deltares 社によって開発された、マスバランス法に立脚した 2 次元モデルである。有機スズの海洋環境モデルとして検証され、OECD の排出シナリオや U.S.EPA で使用されている。日本では、化審法の優先評価化学物質のリスク評価における曝露評価において採用が検討されている。四方体のモデル海域の海面を  $10 \times 10$  の 100 メッシュに分割する。航路モデルでは、四方形の海面の中心線、港湾モデルでは開口部に向かう辺に化学物質(防汚剤)を投下し、その物理化学性状(蒸気圧、溶解度、分解速度(加水分解、光分解、生分解)、分配係数(水-有機相、固-液、液-気)、溶解温度、酸乖離定数)により、モデル内と周辺部の水相、DOC 結合、懸濁物質、堆積物(底泥)に分配される化学物質の濃度分布を推定する。

図 6-6 に示すように、環境のタイプとして商港・河口港、マリーナ、外海航路、開放形状の港の 4 つがある。港のサイズや海洋条件等の環境パラメータはユーザーで入力するが、デフォルト値も用意されている。また商港・河口港とマリーナは図 6-7 に示すように港湾部と周辺部に分かれている。本研究では、対象海域である志津川湾が半閉鎖性海域であるため、最も近い形状と考えられるマリーナタイプを使用した。

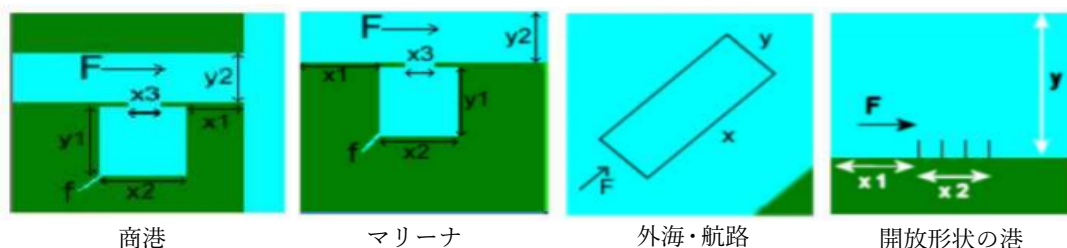


図 6-6 MAMPEC で用意されている環境タイプ

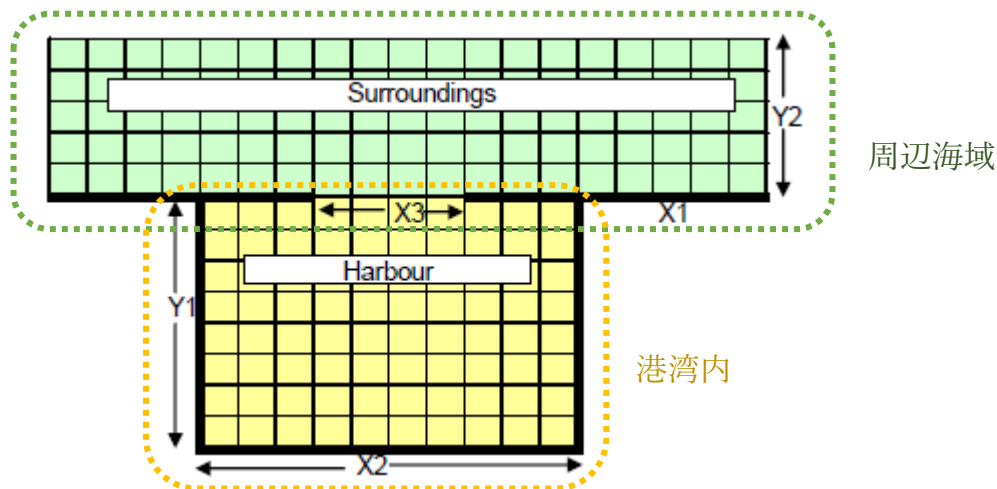


図 6-7 MAMPEC で計算される港湾内および周辺海域

MAMPEC の入力条件および計算の流れを図 6-8 に示す。大きく分けて、環境、化合物、および溶出の 3 つのパラメータがあり、各項目に詳細な条件を入力する。溶出パラメータの項目では、海水中濃度を算出する前に、湾内の総溶出量を算出することができる。

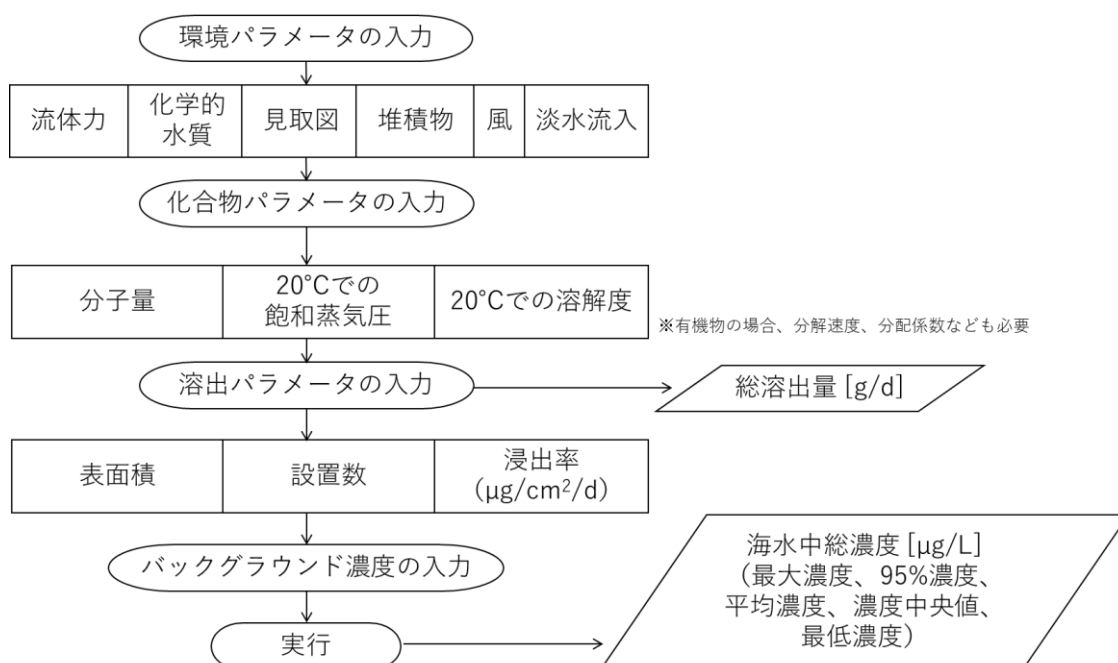


図 6-8 MAMPEC での計算の流れ

3.2. 使用するパラメータの収集

まず、MAMPEC で計算する際に必要なインプットパラメータを収集した。収集したパラメータを図 6-9 および図 6-10 示す。なお、平均水深は 34 m とした。また、密度差の最小値は、ほぼ 0 に近い状態として、 $0.0005 \text{ kg/m}^3$  と設定した。水質については、現地調査で得られた結果（図 6-11）を使用した。

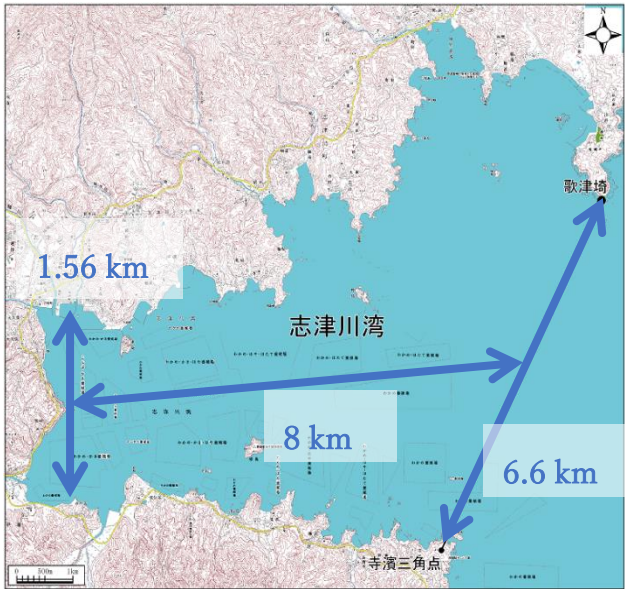


図 6-9 MAMPEC に使用する志津川湾の湾口部幅、湾奥幅、長さ

流体力		参考文献		
潮汐周期	12.4 hour	気象庁, 潮位表		
潮汐に影響されない1日あたりの推移変化	0 m	デフォルト値		
流入速度	0.005 m/s	永澤豪ら(1998)海岸工学論文集, 45. 396-400.		
潮流中の最大密度差			フラッシング	
最大	1 kg/m^3	実測値, 山本潤ら(2006)水工学論文集, 50. 1399-1404.	フラッシング	0 m^3/s
最小	0.0005 kg/m^3		フラッシング中の最大密度差	0 kg/m^3

図 6-10 MAMPEC による計算で使用するインプットパラメータ（文献値）

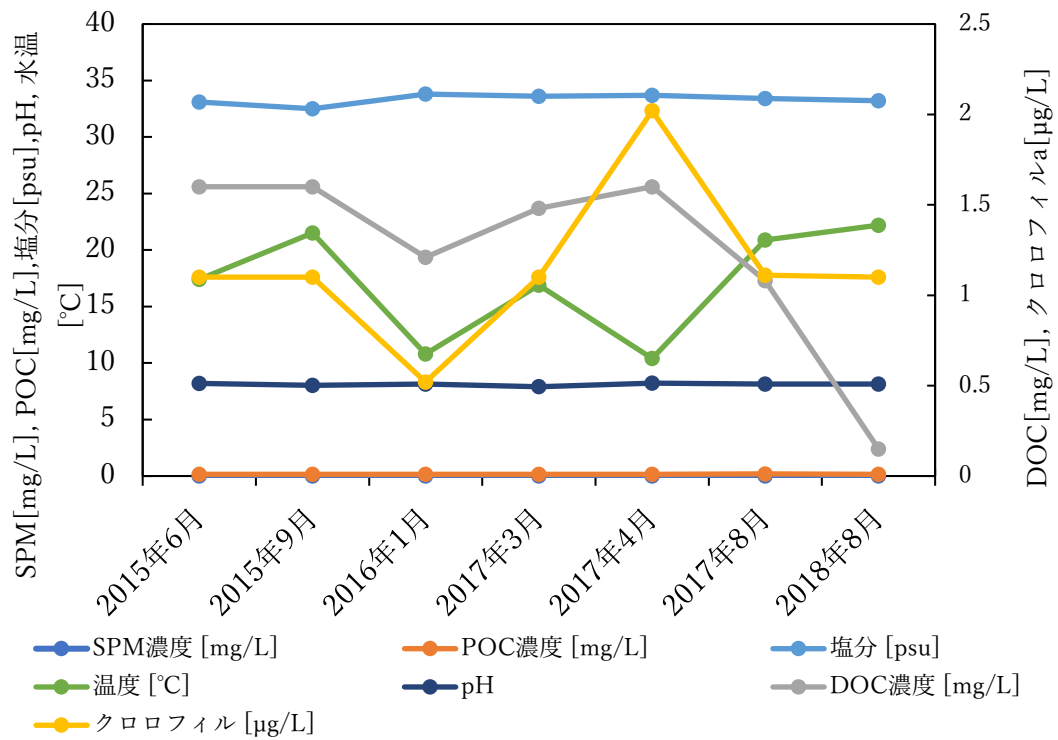


図 6-11 MAMPEC による計算で使用するインプットパラメータ（現地観測値）

風および潮流のデータは、気象庁の過去データから、調査における1日ごとの平均値を収集した。収集したデータを図 6-12 および図 6-13 に示す。

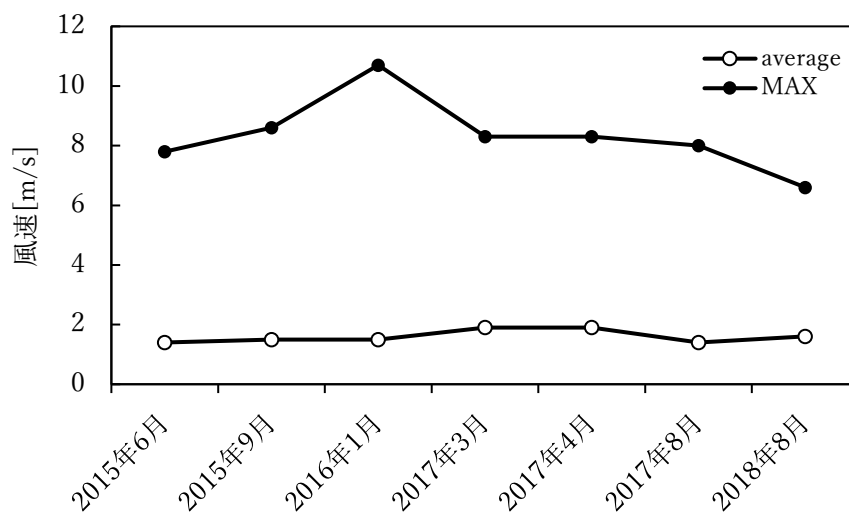


図 6-12 各調査月の平均風速および最大風速[m/s]

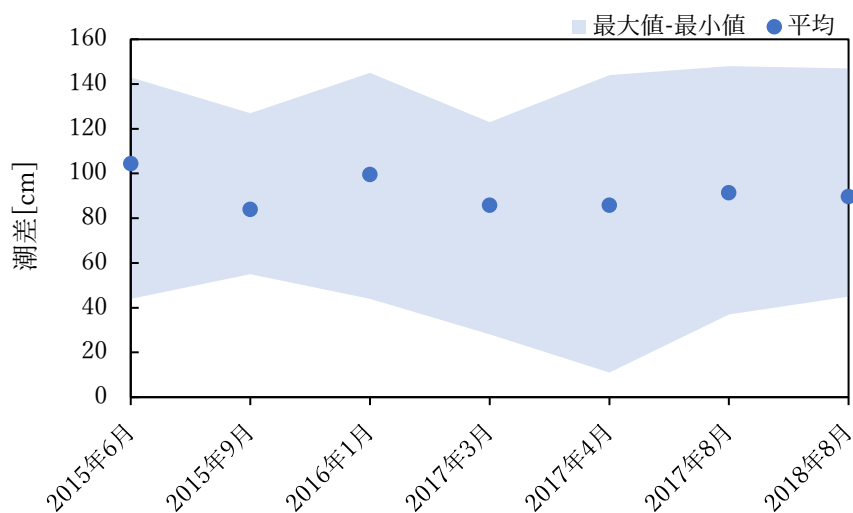


図 6-13 各調査月の平均潮汐（最大－最小）

### 3.3. 感度分析

MAMPEC は、船底防汚塗料の海水中溶出量を算出するために作られたモデルである。そのため、短期的な定常状態の海水中濃度を算出する。この条件下でシナリオ分析に使用するために、まず現況解析を行った。湾内のすべての負荷源の総量が1日当たりどの程度であれば現況が再現できるのか、感度解析を実施し、現地調査の溶存態銅濃度の結果と比較した。図 6-14～図 6-20 に結果を示す。現地調査の結果から、2017 年 3 月の平均濃度および 2017 年 4 月の最大濃度が他の調査日と比較して高かったが、MAMPEC による現況再現によって、風および潮汐による影響が大きいことが示唆された。

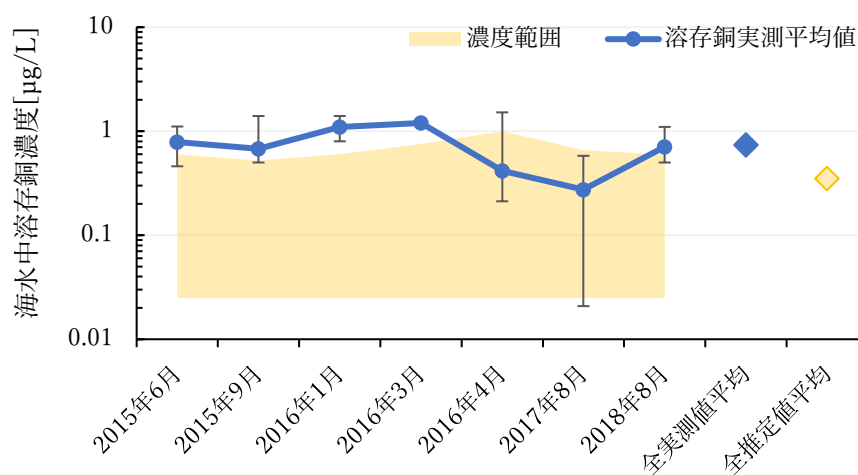


図 6-14 総溶出量を 1500 g/日としたときの MAMPEC 計算結果

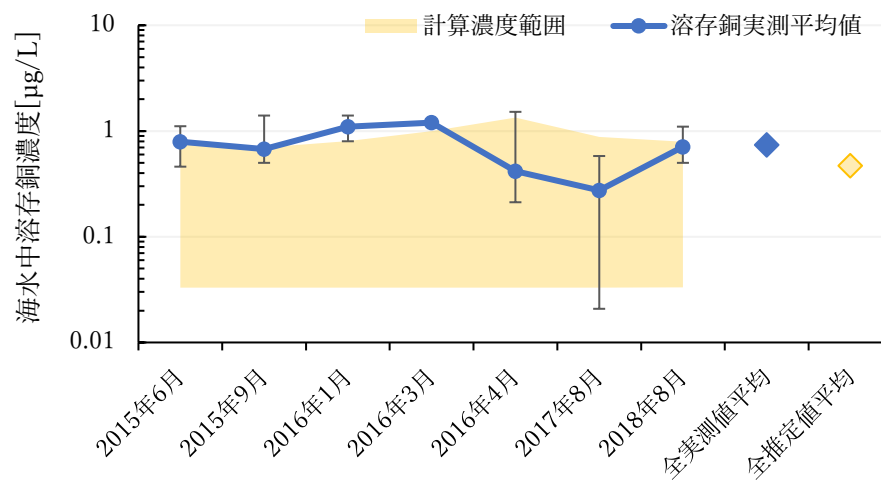


図 6-15 総溶出量を 2000 g/日としたときの MAMPEC 計算結果

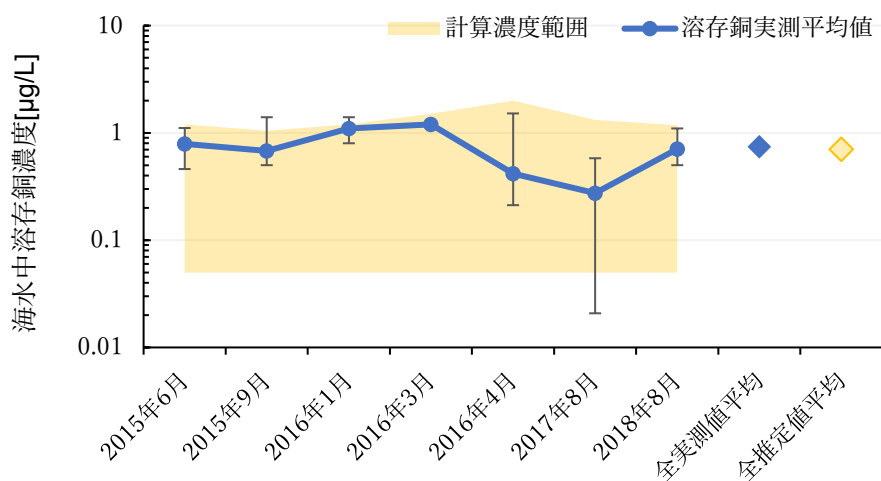


図 6-16 総溶出量を 3000 g/日としたときの MAMPEC 計算結果

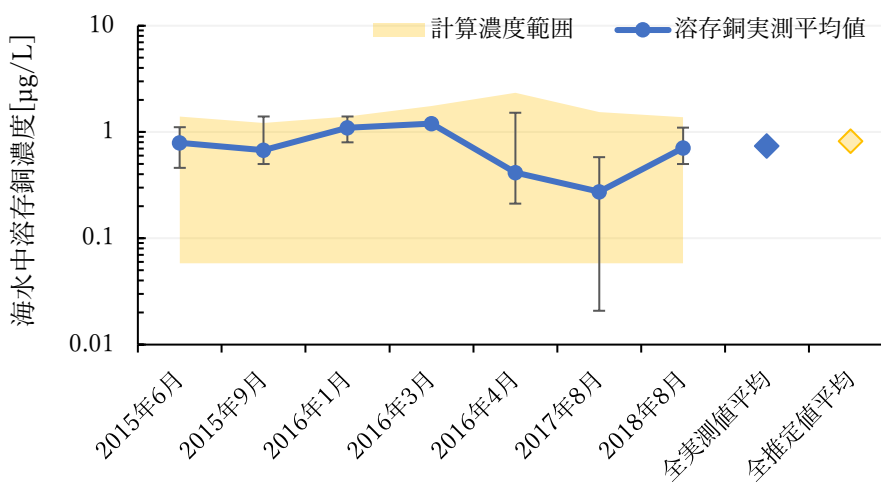


図 6-17 総溶出量を 3500 g/日としたときの MAMPEC 計算結果

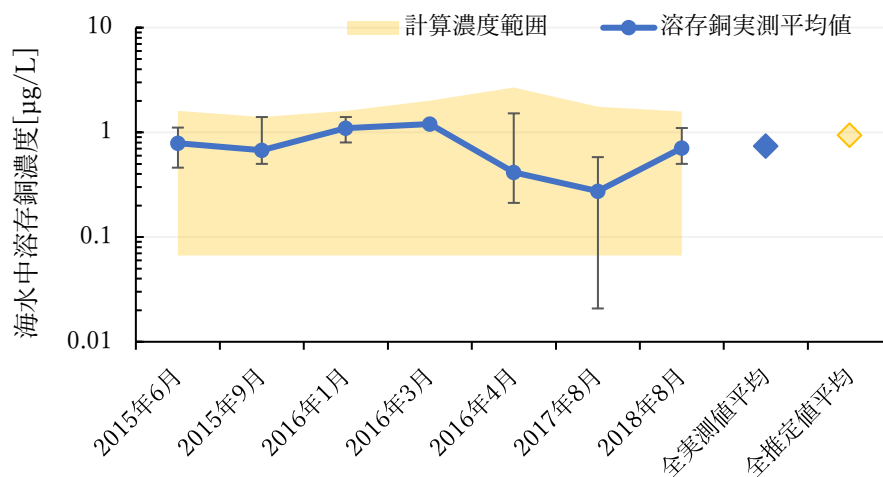


図 6-18 総溶出量を 4000 g/日としたときの MAMPEC 計算結果

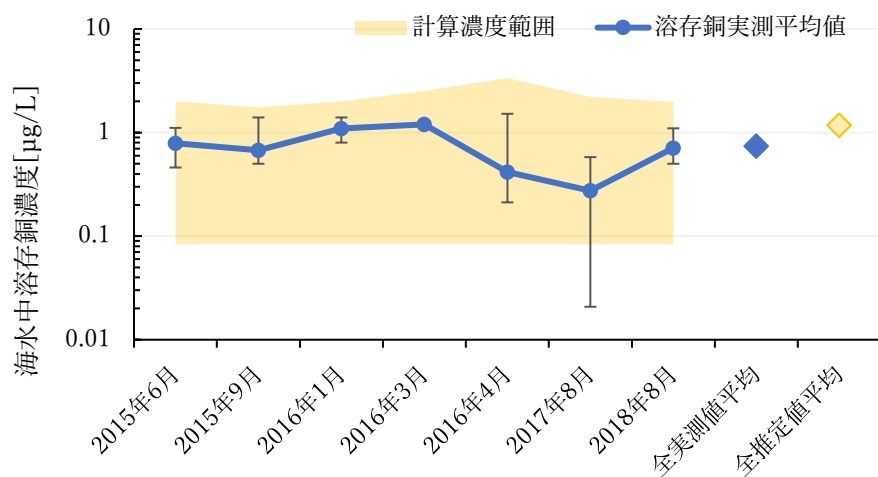


図 6-19 総溶出量を 5000 g/日としたときの MAMPEC 計算結果

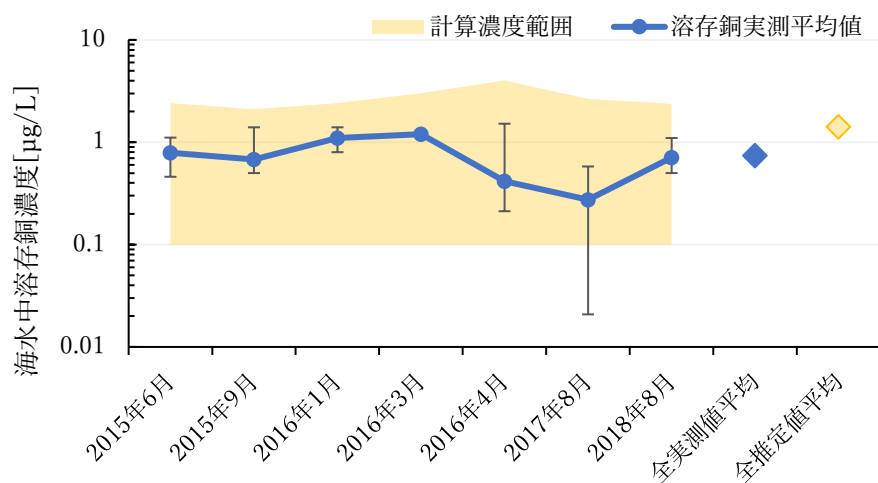


図 6-20 総溶出量を 6000 g/日としたときの MAMPEC 計算結果



現地調査の全調査日程の結果と本現況解析結果で最も相関が良く、また、計算結果および実測値の各平均値が最も近い結果となったのは、総溶出量が 3000 g/日のときであった。そのため、今後はシナリオ解析の現況再現結果として、3000 g/日を使用する。また、図 6-21 には、総溶出量が 3000 g/日の場合の現況解析結果と実際の環境中濃度の実測値における相関を示す。相関係数は約 0.52 であった。

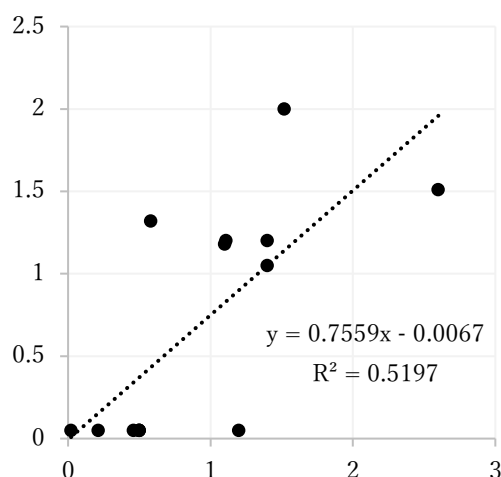


図 6-21 現場調査結果および現況解析結果の比較

調査日時によって総溶出量の再現性は異なり、およそ 2000 g/日～4000 g/日の間で相関が示された。

図 6-16 において、2016 年 4 月および 2017 年 8 月は、他の調査日と比較して異なる傾向が見られた。この理由を考察するために、図 6-22 に岩手県宮古における降水量と閉伊川の流量を示す。志津川湾流域において、降水量と流量の関係を示した報告は無かったため、近隣地域である岩手県宮古における報告から引用した。当該調査年の報告は無かったが、1997 年から 2001 年において、春季および夏季に高くなっている調査月が存在する。とくに 2000 年 5 月において、降水量がそこまで高くないにもかかわらず、流量の増大が顕著である。これは、高緯度地域である東北部における特徴として、冬季の流入量減少、および春季における雪解けによる融雪出水の影響により、流量の増減にタイムラグが生じていることが原因と考えられ、同様の現象が志津川湾でも起きる可能性は十分に考えられる。MAMPEC による計算では、気象条件も平均値を使用するため、計算結果に大きく反映されなかったが、実観測結果においては、このような気象的な特徴が表れている可能性がある。また、夏季においても、台風等の気象条件が影響している可能性が考えられる。

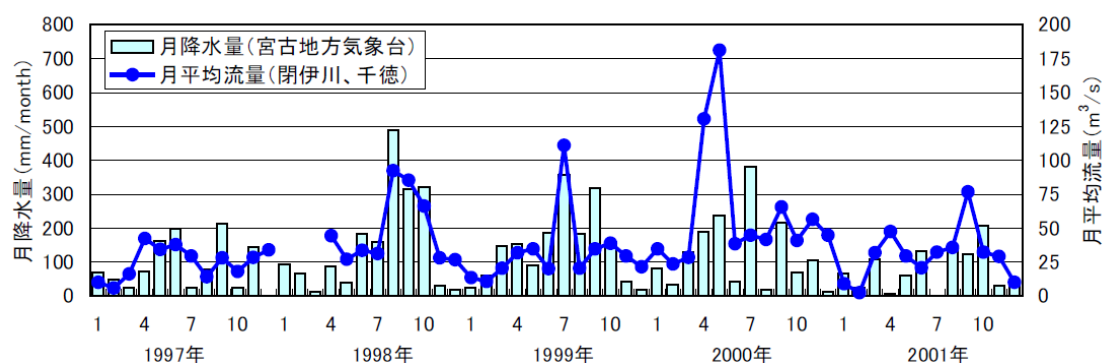


図 3.3-18 宮古における降水量と千徳観測所(閉伊川下流)の流量の経月変化  
 <降水量> 出典：気象庁ホームページ 電子閲覧室よりダウンロードした降水量データを使用  
 <流量> 出典：岩手県資料

図 6-22 宮古における降水量と閉伊川の流量の経時変化（1997 年～2001 年）

### 3.4. シナリオの設定

最も相関が高かった総溶出量 3000 g/日をもとに、シナリオを設定した。現在、宮城県志津川湾には、ギンザケを養殖するための化繊製生簀が 19 基設置されている。そこで、本シナリオ解析では、このギンザケ養殖生簀を化繊製から銅合金製へと置き換えた場合のシナリオを作成し、海水中銅濃度の変化を予測した。溶出シナリオに設定する生簀の表面積、および現在の化繊製生簀の表面積および設置数は、宮城県北部地域養殖復興プロジェクト計画書から引用し、7.5m×8 角の生簀を 19 基として、表面積は 600 m<sup>2</sup>とした。また、溶出面積を合わせるために、銅合金製生簀の設置数および表面積も化繊製生簀と同様とした。

シナリオは、表 6-1 に示す 5 つを設定した。まず、養殖生簀 1 基当たりの銅溶出量をシナリオ 1、銅合金製生簀 1 基当たりの銅溶出量をシナリオ 2、およびシナリオ 3 とした。このとき、各シナリオにおける銅の浸出率はすべて Earley et al.(2020)から引用した。シナリオ 1 は、化繊製生簀 1 基当たりの浸出率、シナリオ 2 は、銅合金製生簀 1 基あたりの最低溶出量、シナリオ 3 は、銅合金製生簀を海面に浸漬した直後における、1 基当たりの最高溶出量を引用した。シナリオ 4 は、現況解析によって得られた総溶出量である 3000 g/日のうち養殖生簀の寄与が占める割合を算出するために、化繊製生簀 19 基設置した場合とした。シナリオ 5 は、現状使用されているギンザケに対する生簀をすべて銅合金製生簀に置き換え、さらに常時最大の浸出率で溶出する場合とした。このシナリオ 5 によって、志津川湾における最大リスクを予測した。

表 6-1 設定シナリオ

シナリオ	生簀設置数		浸出率 [μg/cm <sup>2</sup> /日]	備考
	化繊製	銅製		
1	1	0	0.5	現況 (1基あたり)
2	0	1	1.4	浸出率：定常状態
3	0	1	6.9	浸出率：生簀投入直後最大
4	19	0	0.5	現況の生簀設置数の再現
5	0	19	6.9	最大リスク（銅製生簀に全部置換、浸出率最大）

※浸出率は文献値（Earley, P. J. et al., 2020）を使用

### 3.5. シナリオ解析結果

各シナリオの総溶出量を表 6-2 に示す。化繊製生簀 1 基当たりの溶出量と、銅合金製生簀 1 基当たりの最低溶出量を比較すると、総溶出量は銅合金製生簀 1 基当たりの 2.8 倍となった。銅合金製生簀 1 基当たりの最高濃度では、総溶出量は 13.8 倍となった。

表 6-2 各シナリオの総溶出量[g/日]

シナリオ	総溶出量 [g/day]
1	3
2	8.4
3	41.4
4	57
5	787

現況解析結果からシナリオ 4 の結果を差し引いたうえで、シナリオ 5 の結果を足すことによって、ギンザケ養殖生簀をすべて化繊製から銅合金製に置き換えた場合の海水中銅濃度を算出した。このとき、潮汐や塩分、および風などのインプットパラメータにおいては、海水中銅濃度が最も高くなるよう設定した。結果を図 6-23 に示す。海水中の銅濃度は、最大で 2.5 μg/L にまで上昇する結果となった。図 6-24 に、現況解析結果および最大リスクの解析結果の範囲と、現状の現地調査結果の比較を示す。現地調査結果と比較しても、海水中銅濃度の上昇幅は極めて小さいと算出された。

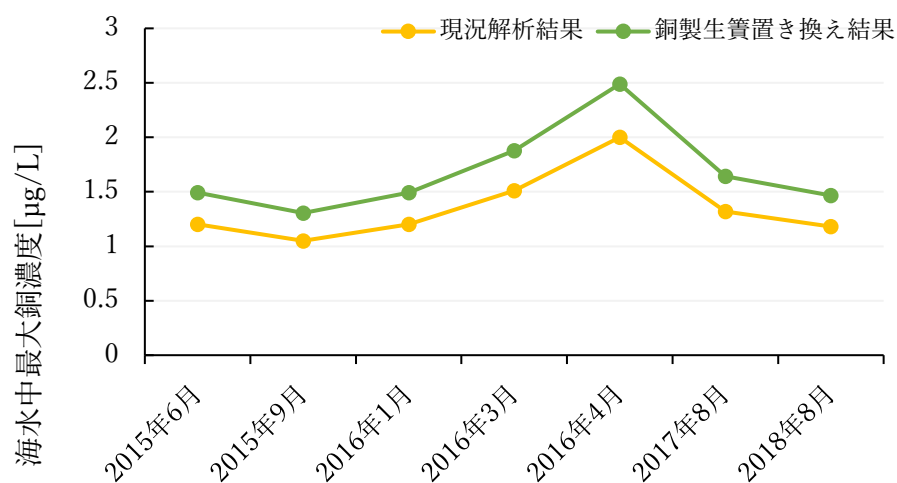


図 6-23 海水中銅濃度のシナリオごとの最大濃度の変化

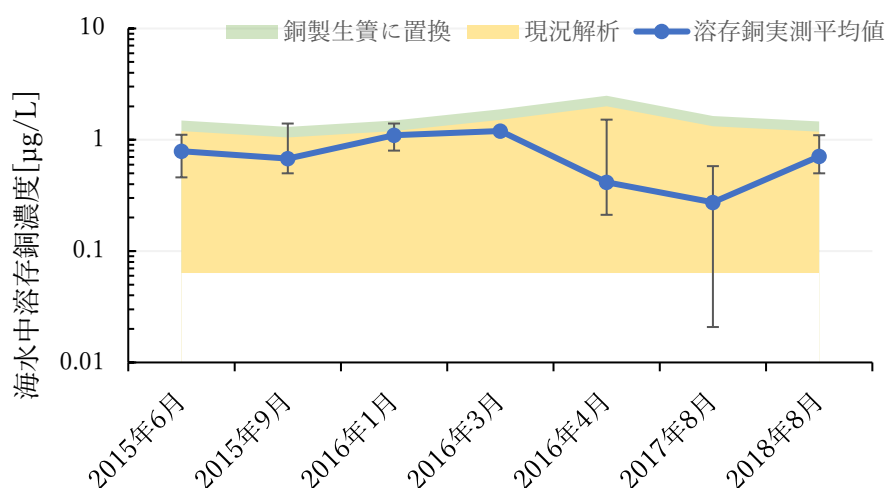


図 6-24 現況解析結果（図 6-16）を元に、生簀を化繊製から銅製へすべて置き換えた場合の海水中銅濃度の推算結果

MAMPEC によって予測した海水中銅濃度と、志津川湾の水産重要種に対する影響濃度を比較した。各生物種に対する影響濃度は EC10 を使用した。結果を図 6-25 に示す。現在ギンザケ養殖に使用されている化繊製生簀を、銅合金製生簀にすべて置換えた場合の最大濃度を考慮しても、水産重要種に対するリスクは低いと算出された。

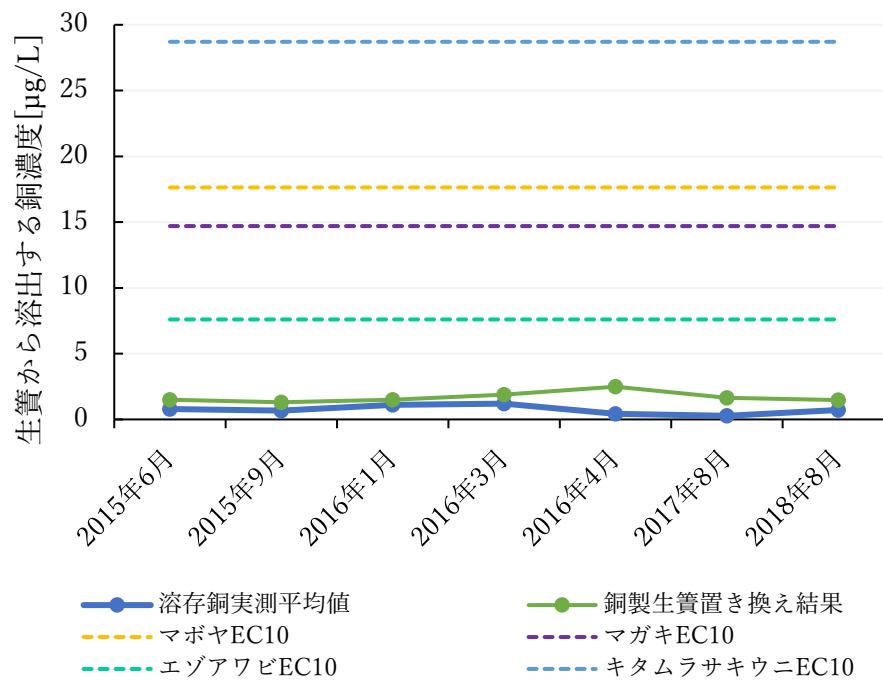


図 6-25 現況解析結果および養殖生簀を銅合金製生簀に置き換えた際のシナリオ解析結果  
と各水産重要種における EC10 の比較

## 4. 考察

### 4.1. 海水交換に関する湾内の銅濃度変動の考察

Parker(1972)による式を用いて、湾内および外洋の塩分差によって、志津川湾における海水交換率を算出した。海水交換率の式は以下に示す(Parker et al., 1972; 大年・松田, 1996)。

$$Rf = (Cf - Ce)/(Cs - Ce)$$

このとき、 $Rf$ : 1 潮汐 (半日周期) 当たりの海水交換率、 $Cf$ : 上げ潮時の平均塩分、 $Ce$ : 下げ潮時の塩分、 $Cs$ : 外海の塩分 である。上げ潮および下げ潮時の塩分は、東北マリンサイエンス拠点形成事業調査結果、外海の塩分は、JDOC から入手した。季節変動を考慮できるほどのデータは収集できず、2014 年 10 月 20 日～10 月 21 日のデータを用いて計算を実施した。その結果、 $Rf=0.08$  となり、1 潮汐あたりの海水交換率は 8%と算出された。1 日あたり 16%ずつ海水交換されるとすると、約 6 日で全海水が交換されることになる。

Earley et al.(2020)の結果から、防汚塗料を塗りなおした直後の化繊製生簀から溶出する銅の浸出率は、10  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ /日程度と報告されている。海水交換を考慮すると、最大濃度から 1 週間以内に減衰するため、防汚塗料の塗りなおしによる銅濃度の変動は大きくないと考えられる。つまり、海水中銅濃度における生簀の寄与は、化繊製生簀および銅合金製生簀の防汚方法の違いによってほとんど変わらないため、湾内に生息する生物に対してのリスクも、どちらの生簀も小さいと考えられる。

### 4.2. 長期的な関係作りの重要性

本研究では、内湾における海水中の濃度上昇が懸念されている銅に対する生態リスクに焦点を当てた。今後、実際の製品を使用して、生産段階でのリスク評価を実施するためには、複数の製品における経年劣化やコストを考慮するコストベネフィット分析や、防汚塗料や抗生物質等、ほかの化学物質も含めたリスクトレードオフ分析が必要となる。たとえば、いくつかの魚種において、銅合金製生簀を使用することによって、養殖対象種の成長率が上がり、従来よりも数か月早く出荷できるようになるという利点がある(武田, 2017; 田中ら, 2015)。1 か月に数千万円もの飼料代がかかることを考えると、成長率を向上させ、出荷時期を早めることは、コスト面からみてかなり重要な課題である。また、化繊製生簀では、数か月に一度における生簀の陸揚げ作業が必要だが、これは、畜養されている生物に対する負担はもちろん、漁業従事者も多大な労力が必要になる。一方で、これらの懸念事項は定量化されておらず、季節変動や年毎の環境要因などによって変動する。正しくリスクを把握するためには、地域ごとのリスクを懸念する人々(本研究における漁業者や生産者)との長期的な関係作りが重要である。

## 5. まとめ

本章では、第 4 章および第 5 章で得られた知見をもとに、宮城県志津川湾における海水中銅濃度の水産重要種に対する現在のリスクを算出した。また、将来的に上昇する可能性がある最大濃度を推算し、その濃度における水産重要種に対する生態リスクを算出した。まず、第 3 章で使用したスクリーニングレベルのリスク評価手法を用いると、ほとんどの調査日における調査地点において、「詳細なリスク評価を実施する必要がある」という結果になった。次に、現在の生態リスクを評価するために、地域における水産重要種である、マガキ (*C. gigas*)、マボヤ (*H. roretzi*)、エゾアワビ (*H. discus*)、キタムラサキウニ (*S. nudus*) の 4 種を用いた生態毒性試験結果と、現地の海水中銅濃度を比較した。このとき、現地の海水特性を考慮した生物利用可能量を算出した。実環境中濃度と、現地に生息している水産重要種に対する銅の影響濃度を比較した結果、各生物種に対するリスクは、生物利用可能量を考慮したうえでも小さかった。志津川湾において養殖されているギンザケの生簀を、現在の化繊製から銅合金製に置き換えた場合、銅の溶出量は上昇するが、生物への影響が懸念されるほどの濃度まで上昇するような結果は得られなかった。そのため、化繊製生簀を銅合金製生簀に置き換えることによるリスクは小さいと結論付けた。また、Parker の式から志津川湾における海水交換を算出すると、1 潮汐当たり 8%であった。そのため、最も高濃度の期間は、生簀を海水に浸漬した直後から、長くても 1 週間程度であると示唆された。本データは、銅合金製生簀の利用の検討に、提供データとして役立てられると考えられる。

## 参考資料

B. van Hattun, J. van Gils, A. Markus, H. Elzinga, M. Jansen, A. Baart (2016) Integrated hydrodynamic and chemical fate model MAMPEC 3.1 Handbook Technical Documentation. <https://www.deltares.nl/app/uploads/2015/03/MAMPEC-Handbook-3.1.0.2-October-2016.pdf>

E. van de Plassche, E. van der Aa (2004). Harmonisation of environmental emission scenarios: an emission scenario document for antifouling products in OECD countries (ESD-PT21), Royal Haskoning, Nijmegen.

Earley, P. J., Swope, B. L., Colvin, M. A., Rosen, G., Wang, P. F., Carilli, J., & Rivera-Duarte, I. (2020). Estimates of environmental loading from copper alloy materials. *Biofouling*, 36(3), 276-291.

Parker, D. S. et al.(1972) Tidal exchange at Golden Gate. *American Society of Civil Engineers*, 98(SA2). 305-323.

今本博健・大年邦雄（1991）閉鎖性海域の海水交換に関する研究. 京都大学防災研究所年報, 34(B-2), 401-419. <http://www.dpri.kyoto-u.ac.jp/nenpo/no34/34b2/a34b2p25.pdf>

大年邦雄（1994）閉鎖性海域の潮流と海水交換に関する研究. 京都大学博士論文. <https://core.ac.uk/download/pdf/39287541.pdf>

海洋状況表示システム. <https://www.msil.go.jp/msil/htm/main.html?Lang=0>

気象庁. 各種データ・資料. 過去の気象データ検索. [http://www.data.jma.go.jp/obd/stats/etrn/index.php?prec\\_no=34&block\\_no=0246&year=&month=&day=&view=p1](http://www.data.jma.go.jp/obd/stats/etrn/index.php?prec_no=34&block_no=0246&year=&month=&day=&view=p1)

気象庁. 各種データ・資料. 海洋の健康診断. 潮汐・海面水位に関する診断表、データ. [http://www.data.jma.go.jp/kaiyou/db/tide/suisan/s\\_tohokus.php](http://www.data.jma.go.jp/kaiyou/db/tide/suisan/s_tohokus.php)

柴田清（2010）防汚塗料の海洋環境リスク評価の方法と問題点. *Journal of JIME*. 45(3).

水産庁 漁港漁場整備部整備課（2003）関係法令・計画等. 報告書. 閉伊川 [https://www.jfa.maff.go.jp/j/gyoko\\_gyozyo/g\\_hourei/pdf/sub70c.pdf](https://www.jfa.maff.go.jp/j/gyoko_gyozyo/g_hourei/pdf/sub70c.pdf)

武田健太郎（2017）カンパチ親子が「銅の生け簀」を選ぶ訳. 日経ビジネス（2017年7月26日付） <https://business.nikkei.com/atcl/opinion/15/221102/072500500/>

田中真次, 大石恵一郎, 石川学. (2015). 銅合金製生簀によるブリ稚魚の成長性および寄生虫感染への影響. 銅と銅合金: 銅及び銅合金技術研究会誌= Copper and copper alloy: journal of Japan Research Institute for Advanced Copper-Base Materials and Technologies, 54(1), 263-267.

東北マリンサイエンス拠点形成所業—海洋生態系の調査研究—TEAMS 調査計画・調査報告（2015）. 宮城県の湾内における植物プランクトンと海洋環境の経時変動に関する調査. [http://www.i-teams.jp/catalog/plan\\_result/metadataDisp/0135\\_R01?lang=ja&view=detail](http://www.i-teams.jp/catalog/plan_result/metadataDisp/0135_R01?lang=ja&view=detail)

宮城県北部地域養殖復興プロジェクト計画書（志津川支所銀乃すけ養殖部会）. [http://www.fpo.jf-net.ne.jp/gyoumu/hojyojigyo/08hukkou/hukkou\\_yoshoku/fukkou\\_keikaku/shizugawa\\_ginnosuke.pdf](http://www.fpo.jf-net.ne.jp/gyoumu/hojyojigyo/08hukkou/hukkou_yoshoku/fukkou_keikaku/shizugawa_ginnosuke.pdf)



## 第7章 総括・今後の課題

### 1. 本研究のまとめ

有害性評価の結果、志津川湾において水産重要種のうち、銅に対する感受性が最も高い生物は *H. discus* で、EC10 は 7.6 µg/L となった。また、最も感受性が低い生物は *S. nudus* で、EC10 は 20.35 µg/L となった。

現場調査において、2015 年 6 月から 2018 年 8 月における志津川湾内の海水中銅濃度は、全形態で 0.59~1.83 µg/L、溶存態で 0.27~1.77 µg/L であった。

現場をベースにリスク評価を行うと、最も感受性が高い *H. discus* に対してのリスクも低いことが示された。現段階では、宮城県志津川湾における水産重要種に対する銅のリスクは極めて低いことが示唆された。

MAMPEC を用いたシナリオ解析により、志津川湾内に設置されているギンザケ養殖生簀を化繊製から銅合金製に置き換えることによって、海水中銅濃度は最大で 2.5 µg/L まで上昇することが分かった。この濃度は現状と比較しても 1.2 倍程度の上昇であり、水産重要種に対する生態リスクは依然として低かった。

### 2. 今後の「地域性を考慮したリスク評価」のフレームの作成

本研究では、養殖が盛んな海域におけるリスク評価を実施したため、生簀を負荷源と設定した。しかし、海域ごとの特徴によって、銅の主要な負荷源は異なる。たとえば、大きな港湾が近い海域などは、より寄与率が高いと考えられる船底防汚塗料を主要負荷源とみなしたうえで、現場に生息する種を考慮することが適当であると考えられる。対象海域にとって必要なリスク評価とはどのようなものなのか、当該地域の関係者らと議論し、評価を行っていく必要がある。

図 7-1 に、これからの地域性を考慮したリスク評価のためのフレームを示す。リスク評価とは従来、リスクの定量化やリスク管理方法の検討のために実施される。今後はさらに、地域との連続的な関係性の構築、およびリスクコミュニケーションのための参考データとなることを目指すべきであると考ええる。そのためには、問題設定の段階で、現場の観察、および現地の方々と連携することにより、対象地域にはどのような地域性があるか明確化し、産業的特徴、地理的・地形的特徴、および歴史・文化的背景といった地域の特徴をどのようにリスク評価の結果に反映させるべきか検討する必要がある。その上で、地域ごとの水質の違いを考慮することによって、現実的にリスクを定量化でき、地域の特徴を考慮しながらの適切な管理が可能になると考えられる。さらに、リスク評価で得られた結果の解釈も、地域の方々や、そのリスクを被る人、つまり狭義的な意味でのステークホルダーと共に進めるべきである。リスク算出方法や評価結果を含めて、地域の方々に対してオープンな情報として提供することによって、地域の課題の解決につながる。

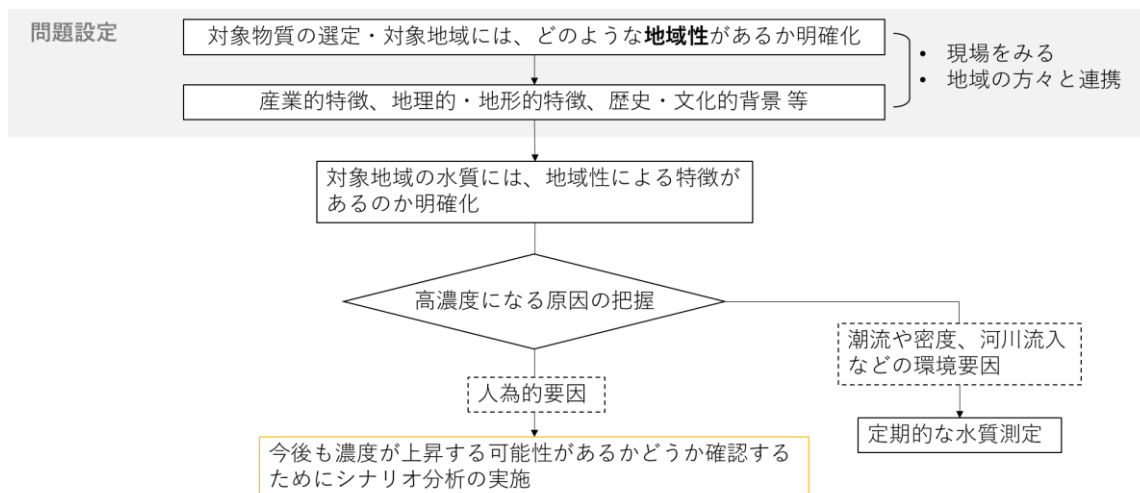


図 7-1 地域性を考慮したリスク評価を実施するためのフレーム（水質について）

地域性を考慮したリスク評価には、リスク評価対象生物として、地域における重要種や生態系を選定し、有害性を定量化することが必要不可欠である。ここでも、地域ごとに、「優先的に守るべき生物種・生態系」は異なる。例えば、絶滅のおそれのある野生生物の種をリスト化した「レッドリスト」がある。これは、国際的には国際自然保護連合（IUCN）が作製しており、国内では、環境省、地方公共団体および NGO が作成している。各レッドリストは、生物学的な観点から、個々の種の絶滅の危険度をカテゴリー別にまとめられているが、作成団体によって分類の方法や絶滅危惧の度合いが異なるという特徴がある。環境省では、「地域個体群」の絶滅の危険度もランキングにしている。地域個体群とは、ある一定の範囲（地域）に生育および生息する生物 1 種あたりの個体のまとまりを表す概念である。種の絶滅は、各地域で地域個体群の絶滅が進むことによって進行していく。そのため、地域個体群の持続性は、生物多様性の保全および種の保存にとって極めて重要である。そこで、地域性を考慮したリスク評価の実施は、各地域における絶滅危惧種を含む重要種の地域個体群に対する柔軟な配慮も可能になると期待できる。もし、リスク評価の結果、当該地域の重要種に対してリスクの懸念があると判断された場合、地域個体群の存続に影響を及ぼすリスクがどの程度あるのか、対象を絞ってさらに詳細に調査することが可能になる。また、この結果は、リスク評価対象物質のみならず、当該種に対する知見の集積という観点からも、重要なデータとなり得る。図 7-2 に、リスク評価対象の生物および生態系についてのフレームを示す。

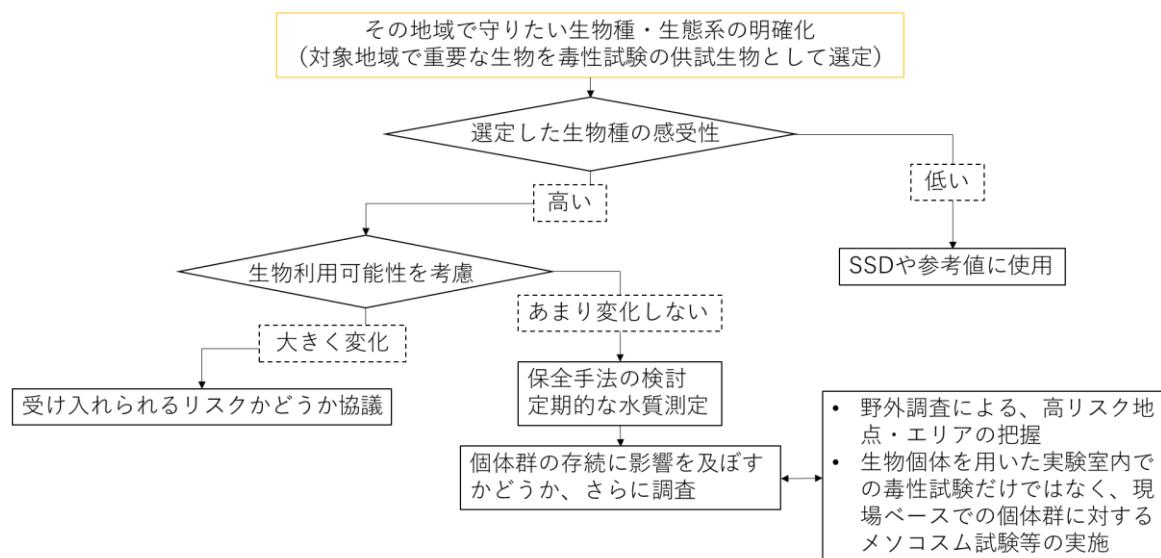


図 7-2 地域性を考慮したリスク評価を実施するためのフレーム（対象生物について）

### 3. 今後の課題

地域性を考慮した生態リスク評価を実施するためには、リスク評価実施前の問題設定の段階から、地域との連携が重要になることは前節で示したが、どのようなプロセスを踏むか、そのプロトコルは確立されていない。本研究対象物質の銅のように、リスクを0にすることが現実的でない物質の場合、リスク評価者は、「そのリスクをどのように受け入れるべきなのか」というテーマまで深く掘り下げた議論を実施できるような情報を、地域の方々に提供することが求められる。そのためには、リスクコミュニケーションが必要不可欠である。

リスクコミュニケーションは、様々な場面で実施されている。たとえば、日本社会においてリスクコミュニケーションの考え方が最も広く普及している一つである医療分野では、治療や投薬に関して、医師と患者の間で実施されてきた。また、東日本大震災後には、放射線被ばくのリスクや原発再稼働に対して実施されており、リスク評価者と地域住民との間で継続的なコミュニケーションがとられてきた。近年では、2020年から世界的に感染が拡大した COVID-19 に関しても、マスク着用およびワクチン接種による感染リスクの低減から、活動自粛に伴う経済リスクに至るまで、感染症専門医をはじめとして様々な立場の人から多くの情報が発信された。一方で、リスクを正しく判断できないことによるパニックが全世界を襲った。リスクとハザードを混同してしまうような報道も散見され、リスクコミュニケーションの重要性が浮き彫りになったとも感じる。このような、様々な異なる分野のリスクコミュニケーション事例も参考にして、これからのリスク評価の出口を模索していく必要がある。

リスク評価者の立場も明確にする必要がある。本研究においては、志津川湾における漁業者、および銅合金製生簀の商社の両者に対して、中立な立場でリスク評価を実施した。昨今

の、民間企業に対する SDGs の考え方や ESG（環境、社会、ガバナンス）投資の普及に伴い、商業ベースのリスク評価の需要は今後さらに増加していくと予想される。しかし、現在日本において、リスク評価を実施するような第三者機関は少数である。今後は、リスク評価を実施する第三者のより一層の普及が求められる。

## 謝辞

本研究は、著者が社会人博士課程学生として、横浜国立大学大学院 都市イノベーション学府 都市イノベーション専攻に在学中に、横浜国立大学都市イノベーション学府 中村由行教授の御指導のもと行ったものです。

主指導教員である中村由行教授には、著者の社会人学生という立場に多大なるご理解を戴き、終始あたたかい御支援と懇切な御指導を賜りました。心より感謝申し上げます。

横浜国立大学名誉教授 益永茂樹先生には、博士課程前期の頃からご指導いただき、研究のいろは、真摯に向き合う姿勢をご教示いただきました。また、社会人を経て研究室に移った後も、本論文の審査委員として多大なるご助言をいただきました。心より感謝申し上げます。

横浜国立大学都市イノベーション学府 中村文彦教授、勝地弘教授、鈴木崇之准教授には、論文審査委員として多大なるご指導を戴きました。厚く御礼申し上げます。

国立研究開発法人 産業技術総合研究所 内藤航様には、本研究のスタート地点から現在に至るまで、常に先導いただき、研究以外の様々な面でも多大なるサポートをいただきました。心より感謝申し上げます。

博士課程前期の頃から一緒に実験を行ってきた同僚のような存在である、元 横浜国立大学環境情報学府 千葉健太さん、西村悠さんは、本研究を遂行するにあたり、データのご提供や実験方法をご教示いただきました。厚く御礼申し上げます。

株式会社 サイエンスアンドテクノロジー 中根徹社長、および同社皆さまには、業務の面で融通をきかせていただき、また、あたたかくお見守りいただきました。深く御礼申し上げます。

一般社団法人、和田正彦様、三菱マテリアル株式会社 鶴丸俊和様、川村創太様には、銅合金製生簀に関する様々な御指導、ご鞭撻を賜りました。深く御礼申し上げます。

宮城県水産技術総合センター 押野明夫様、酒井敬一様、およびセンターの皆さまには、供試生物のご提供、畜養、胚の取り扱いに至るまで、全面的にサポートいただきました。深く御礼申し上げます。

また、研究を進めるにあたり、ご支援、ご協力を戴きながら、ここにお名前を記すことができなかった多くの方々に、心より感謝申し上げます。

最後になりますが、著者の活躍を楽しみにしてくれており、いつも心の支えとなってくれた父、母、神戸に住む祖母、奈良に住む祖母、家族・親族の皆さまに感謝申し上げるとともに、令和2年4月19日に永眠した祖父にこの論文を捧げます。

本研究の一部は、公益財団法人鉄鋼環境基金から研究助成（2015~2017 年度）、および一般財団法人日本鉱業振興会から研究助成を受けて実施しました。ここに記して謝意を表します。