

淡水性カメの血清中ダイオキシン類の汚染特性*

服部 幸和**・清水 武憲**・岸田 真男**
前川 智則**・鎌田 洋一***・星 英之***

キーワード ①淡水カメ ②ダイオキシン類 ③血清 ④水質 ⑤底質

要 旨

大阪府域におけるダイオキシン類など有害化学物質による水生生物への影響を把握するため、淡水カメの血清中ダイオキシン類を分析し、濃度レベルおよび組成の特徴について明らかにした。

ダイオキシン類のカメ血清中濃度は、67～100pgTEQ/g-fatであり、一般のヒトの血液中濃度と比較してやや高いレベルで、ヒトと同様に2,3,7,8位塩素置換体以外の異性体はほとんど検出されなかった。

カメの血清中のPCDDs/PCDFsおよびCo-PCBs組成比については、水質および底質の影響を受けていることが示唆された。異なる点としては、水質および底質に比較して4～6塩素化物のPCDDs/PCDFsの割合が大きく、高塩素化物のOCDDの割合は小さかった。また、Co-PCBsの#77の割合が非常に小さかった。

ヒトの血液と比較すると、カメ血清中のOCDD濃度の割合は小さく、4～6塩素化物のPCDDs/PCDFsの割合が大きかった。

血清中ダイオキシン類濃度の生息環境における水質濃度に対する生物濃縮係数は、4～5塩素化物のPCDDs/PCDFsで、対数表示で2～3程度であり、高塩素化物では0～1と小さかったが、Co-PCBsでは2～4とやや高かった。

1. はじめに

大阪府域では、水質または底質から、環境基準値を上回るダイオキシン類や全国的に高濃度の環境ホルモン作用物質が検出されている地点が多く見られ¹⁾、水生生物への影響が懸念されている。

日本では約5万種の化学物質が使用されているといわれており、総合的かつ誰にもわかりやすく、簡便で低コストなど、環境の状況を把握する

ための新たな指標が求められている。

大阪府においては、府域におけるダイオキシン類など有害化学物質による水生生物への影響を把握するため、大阪府立大学で開発された淡水カメを用いた調査手法を試みた¹⁻³⁾。

淡水カメは、①日本中に分布し、水質汚染に強く、生息域が広いこと、②生存期間が長く、長期間にわたる汚染物の蓄積を調査できる、③淡水ガ

*Pollution Characteristics of Serum in Freshwater Turtles from PCDDs, PCDFs, and Co-PCBs

**Yukikazu HATTORI, Takenori SHIMIZU, Masao KISHIDA, Tomonori MAEKAWA (大阪府環境情報センター) Environmental Pollution Control Center, Osaka Prefectural Government

***Yoichi KAMATA, Hidenobu HOSHI (大阪府立大学大学院生命環境科学研究科) Graduate School of Life and Environmental Sciences, Osaka Prefecture University.

メの多くは雑食性で、食物連鎖において高次であり、汚染物質の生物濃縮性をみることができる、④定期的な採血等に耐えられるので、放流・個体識別・追跡調査が可能、⑤底質(泥の中)に棲み、ばく露の機会が多い、など環境の状況の水生生物への影響を反映する1つの指標として考えられている。

本報告では、水生生物影響調査の一環として、カメ血清中のダイオキシン類を分析し、組成の特徴および水質、底質等との関係について考察したので報告する。

2. 調査方法

2.1 カメの捕獲および血清の採取

大阪府堺市内を流れる石津川流域の地点A(以下、上流)および地点B(以下、下流)の2地点(図1)において、クサガメおよびミシシippアカミガメをそれぞれ13匹、15匹捕獲し、それらから血清を採取し、地点ごとに混合して分析試料とした。合わせて、水質および底質のダイオキシン類についても調査した。ただし、下流部の河川水および底質中のダイオキシン類については、堺市環境局環境共生部よりデータをご提供いただいた。

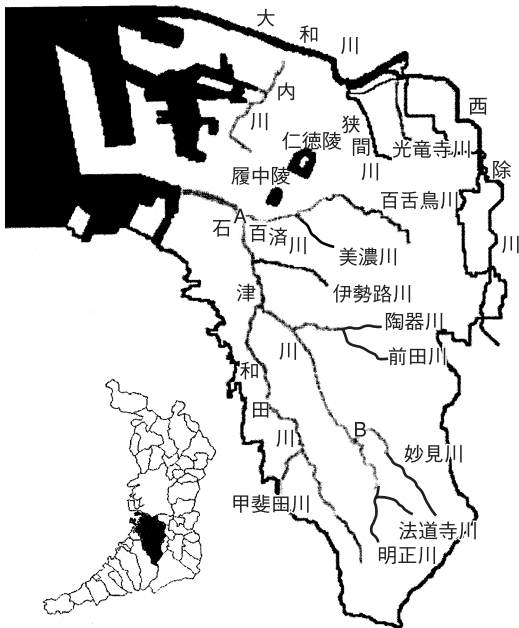


図1 調査地点

A：下流調査地点(石津川、百済川合流直前)

B：上流部調査地点(妙見川宮橋上流側)

2.2 測定方法

血清中のダイオキシン類については、図2に示すように、混合した血清50mlをアルカリ分解、ヘキサン抽出、硫酸処理、多層シリカゲルクロマトグラフィー、活性炭分散シリカゲルクロマトグラフィーの順で前処理を行い、HRGC/HRMSで測定した。

また、脂肪分については図3に示すように、別途10mlを分取して抽出して行った。濃度については、脂肪重量当たりで算出した。

河川水についてはJIS K 0312⁴⁾(工業用水・工場排水中ダイオキシン類およびコプラナーPCBsの測定方法)、底質については「ダイオキシン類に係る底質調査マニュアル」⁵⁾(平成12年3月環境庁水質保全局水質管理課)に従って測定した。

3. 結果および考察

3.1 水質、底質および血清中のPCDDs, PCDFs および Co-PCBs 濃度

カメの血清、河川水および底質中ダイオキシン類濃度(TEQ)の測定結果を図4に示す。上流における水質河川水および底質では下流部の方が高濃度であったが、カメの血清については上流部の方

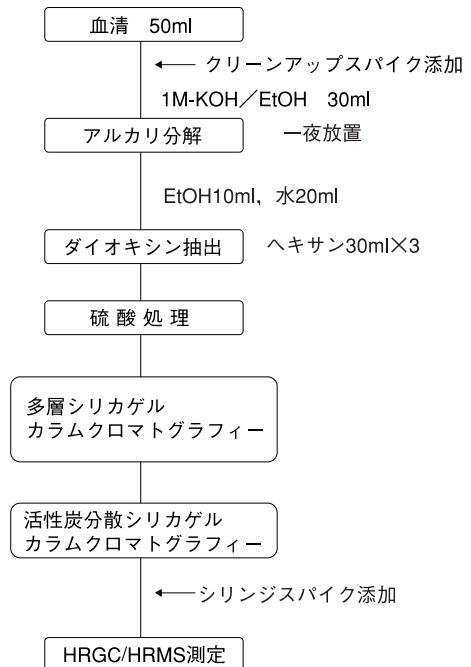


図2 血清中のダイオキシン類分析フロー

がやや高濃度であり、水質、底質の濃度との対応はみられなかった。

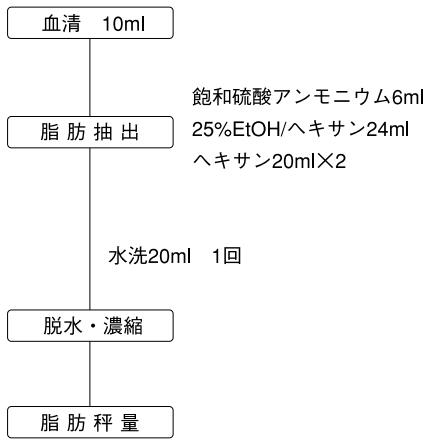


図3 血清中の脂質濃度測定フロー

図5に示すように、水質、底質および血清中濃度の毒性当量濃度の組成比はいずれも、PCDDsで下流部>上流部、Co-PCBsで下流部>上流部であり、血清中濃度の組成割合は水質および底質濃度と対応していた。また、実測濃度でみると、図6に示すように、カメの血清中の大部分はCo-PCBsで占められていた。

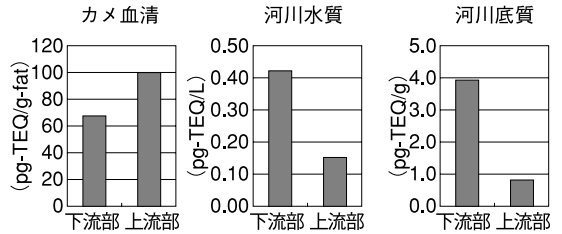


図4 河川水、底質およびカメの血清中ダイオキシン類濃度(毒性等量)

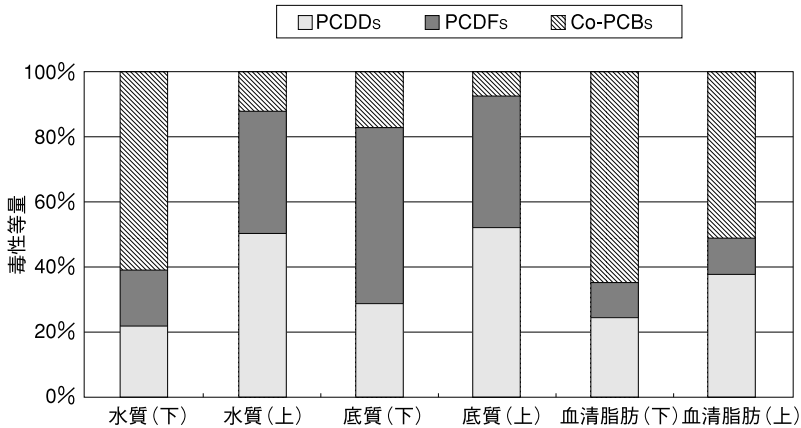


図5 水質、底質、血清試料中のPCDDs, PCDFs, Co-PCBs 構成比(毒性等量)

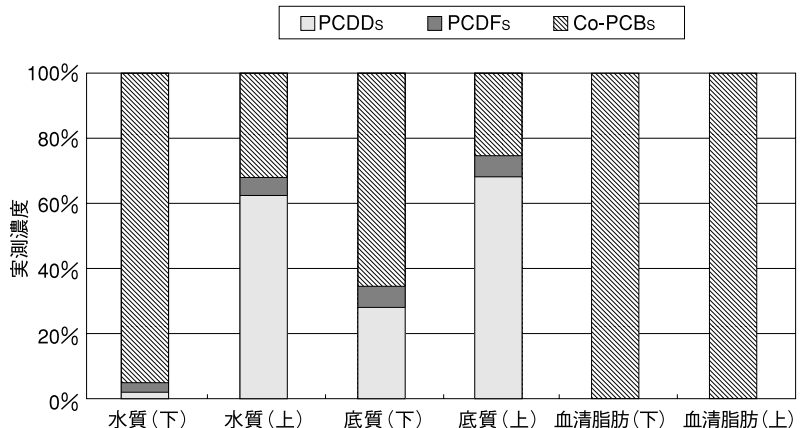


図6 水質、底質、血清中のPCDD, PCDF, Co-PCBs 構成比(実測濃度)

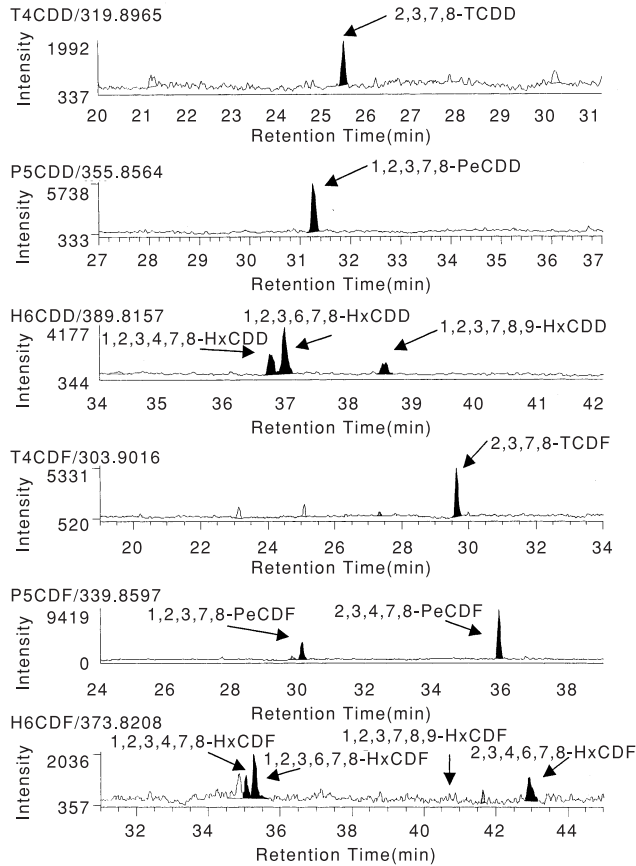


図7 カメ血清試料におけるPCDDs/PCDFsクロマトグラム例

3.2 水質、底質およびカメの血清中におけるPCDDs, PCDFs および Co-PCBsの組成

3.2.1 PCDDs/PCDFs 同族体および異性体

図7および8に下流におけるカメの血清および底質試料のクロマトグラムを示す。血清試料中には、毒性のある2,3,7,8塩素置換体のピークのみ検出されている。図9に水質、底質、血清中PCDDs/PCDFs同族体(実測濃度)の組成比および府域における平均組成比(平成12年度調査⁶⁾)を示す。水質、底質については、OCDD濃度が上流部>府域平均>下流部となり、上流部の田園地帯において、農薬(PCP)由来の寄与が大きいと推測されるが、カメの血清においても上流部>下流部と水質、底質組成比と対応している。

TeCDFsおよびPeCDFsの割合については、下流部>府域平均>上流部となっており、血清とも対応している。

また、血清中のPeCDDsおよびHxCDDsは他の媒体より割合が大きかった。

図10に示すように、血清中の2,3,7,8位塩素置換体組成(実測濃度)については、水質、底質と比較して4~6塩素化物のPCDDs, PCDFsの比率が高く、OCDDの比率が低い特色がみられた。

3.2.2 Co-PCBs 異性体組成

図11に示すように、Co-PCBs異性体組成(実測濃度)については、上下流で大きな相違はみられず、水質、底質の組成は、府域の平均的な組成と変わらなかった。血清の組成については、水質、底質と比較して#77(3,3',4,4'-TeCB)の比率は小さいが、#156(2,3,3',4,4',5-HxCB), #157(2,3,3',4,4',5-HxCB), #167(2,3',4,4',5,5'-HxCB), #189(2,3,3',4,4',5,5'-HpCB)の比率が高かった。

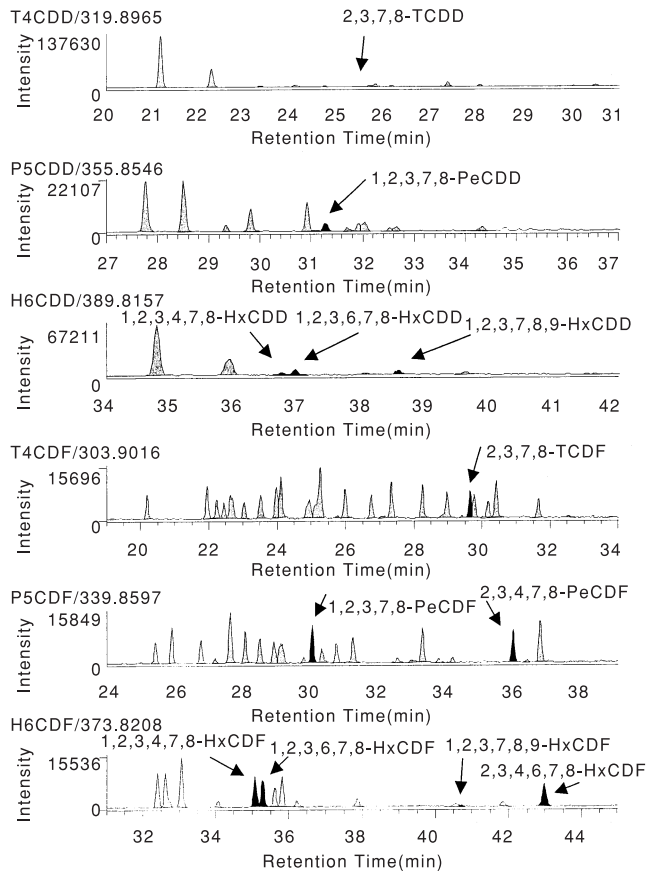


図 8 カメ血清試料における PCDD/PCDFs クロマトグラム例

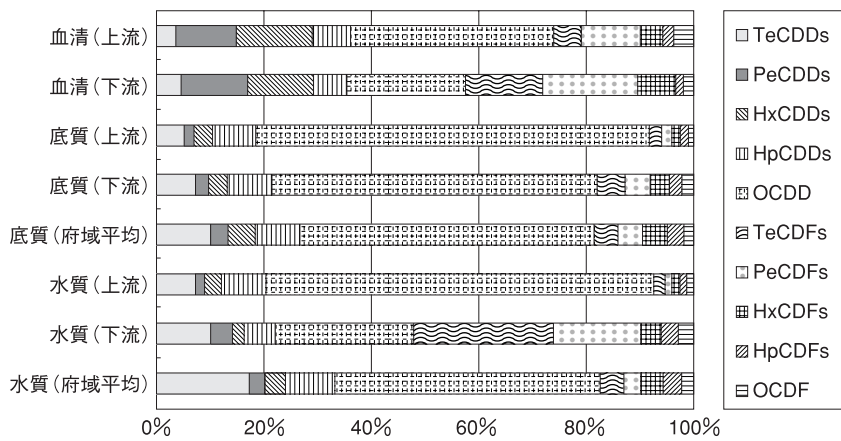


図 9 水質，底質，血清試料中 PCDD/PCDFs 同族体(実測濃度)の組成

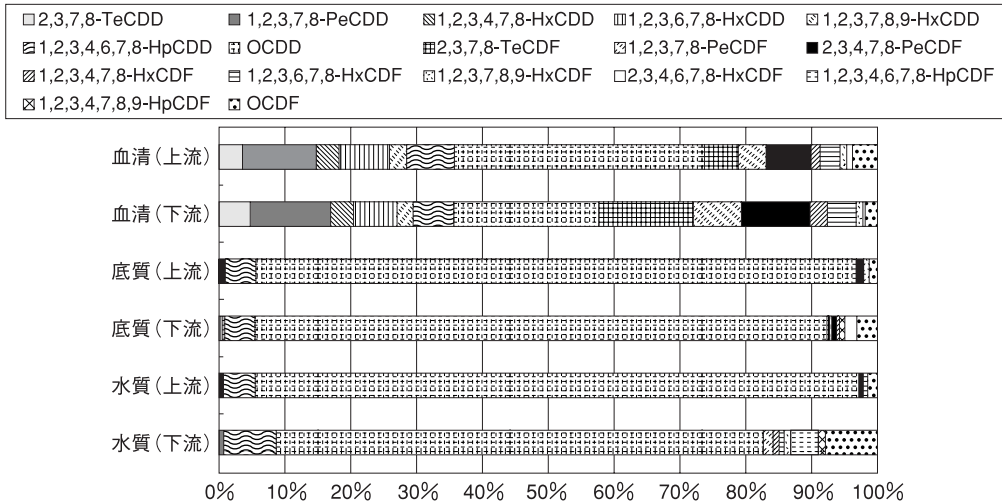


図 10 水質、底質、血清試料中における 2378 PCDD/PCDFs 異性体組成 (TEQ)

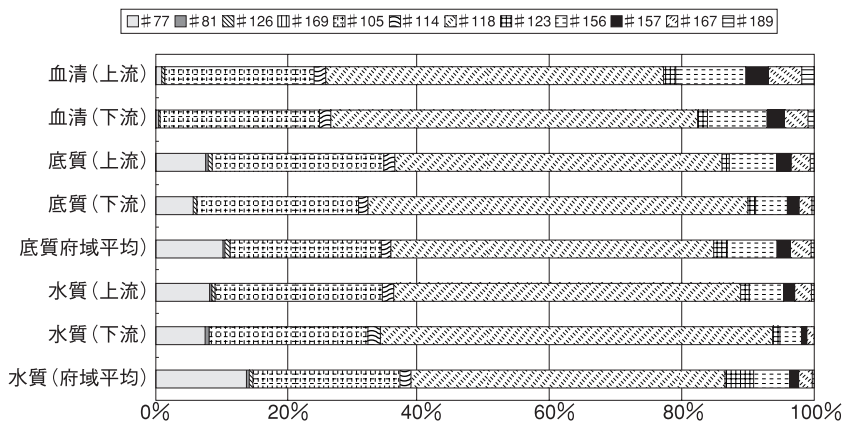


図 11 水質、底質、血清試料中における Co-PCBs 異性体(実測濃度)の組成

3.3 ヒトおよび他の生物組織との比較

3.3.1 ヒトの血液および水環境との比較

血液中のダイオキシン類濃度の測定については、血液全体を使用する場合と凝固沈殿する血餅の上澄液である血清を試料とする場合があるが、脂肪換算値では、後者の方がやや高いといわれている。カメの血清の組成をヒトの平均的な血液組成と比較すると、図 12 に示すように、4～6 塩素化物(2,3,7,8-TeCDD, 12,3,7,8-PeCDD, 1,2,3,4,7,8-HxCDD, 1,2,3,6,7,8-HxCDD, 2,3,7,8-TCDF, 1,2,3,7,8-PeCDF, 2,3,4,7,8-PeCDF)の割合が大きく、OCDD の割合が小さかった。

次に、Co-PCBs(実測濃度)についてみると、図 13 に示すように、ヒトの血液(#118>#156>#

105>#157>#189)、カメの血清(#118>#105>#156>#167>#157)、水質#118>#105>#77>#156>#114の順であった。#156、#157、#189の割合は、ヒト>カメ>水質の順であり、#77の割合が水質>カメ>ヒトであった。また、カメの血清は#105、#167、の割合がヒトより大きかった。図 14 にノンオルト体の Co-PCBs 組成(実測濃度)を示す。ヒトの血液は#126、#169が大部分を占め、カメの血清は、#77が50%程度、#126が30～40%、#169および#81が10%程度を占めるが、水質は#77が90%を占めている。それぞれの食物や生息環境および体内における蓄積性と代謝の影響を反映していると推測される。

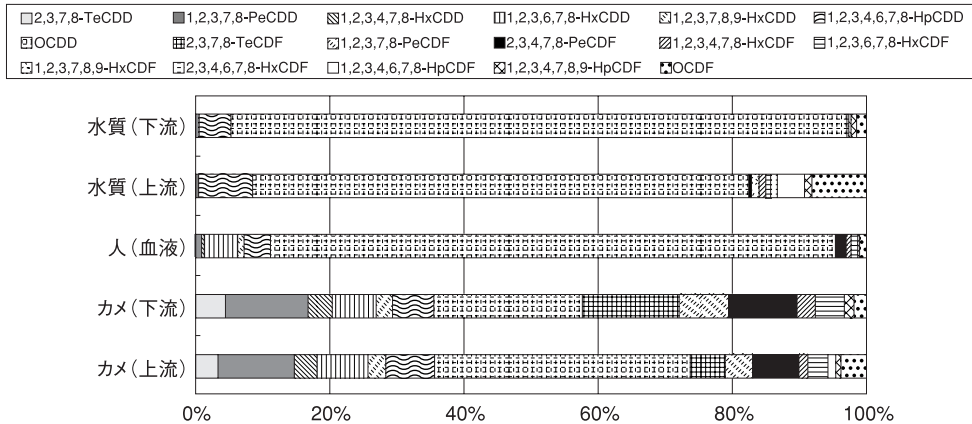


図 12 人の血液とカメの血清試料中 2, 3, 7, 8 PCDD/PCDFs 異質体 (TEQ 濃度) の組成比較

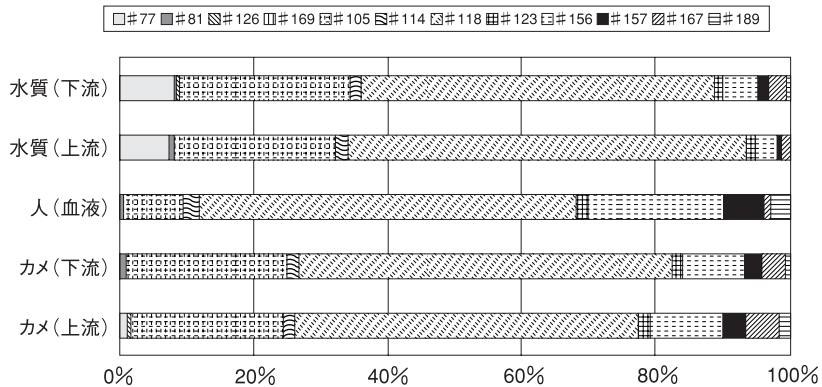


図 13 人の血液とカメの血清試料中 Co-PCBs 異質体 (実測濃度) の組成比較

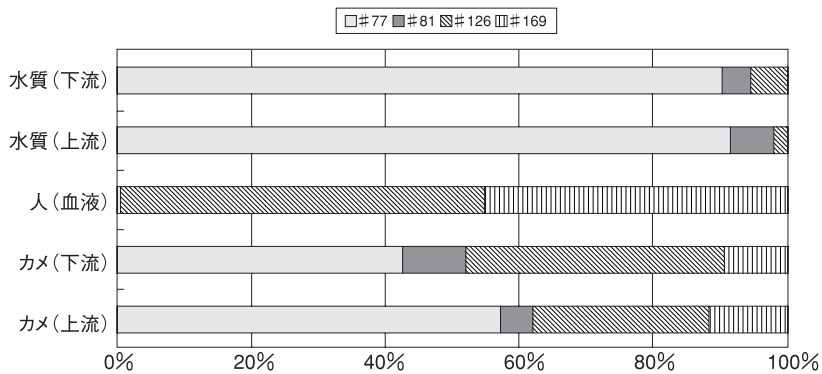


図 14 人の血液とカメの血清試料中モノオルト Co-PCBs 異質体 (実測濃度) の組成比較

3.3.2 ヒトおよび他の水生生物の濃度レベルおよび生物濃縮係数

図 15 に各種水生生物中のダイオキシン類濃度 (脂肪換算値) を示した^{7~9)}。魚類やカエルに比較

してやや低い、同程度の濃度レベルであり、ヒトの平均濃度よりやや高めであった。

また、生息している水質濃度と血清濃度から生物濃縮係数を試算してみると、4~5 塩素化物の

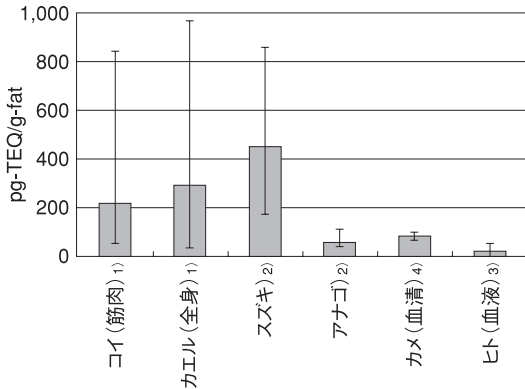


図 15

PCDDs/PCDFs の濃縮係数は、対数表示で 2～3 程度、高塩素化物では 0～1 と小さかったが、Co-PCBs では 2～4 とやや高かった。

4. ま と め

府域におけるダイオキシン類など有害化学物質による水生生物への影響を把握するため、河川に生息するカメの血清中ダイオキシン類を分析し、濃度レベルおよび組成について知見を得た。

カメの血清中濃度は 67～100pgTEQ/g-fat であり、水質、底質濃度との関連性は認められなかったが、組成比からみると、水質および底質の影響を受けていることが推測される。

水質および底質と比較すると、4～6 塩素化物の PCDDs/PCDFs の割合が大きいが、高塩素化物の OCDD の割合が小さかった。また、Co-PCBs の #77 の割合が非常に小さかった。

カメの血清中ダイオキシン類濃度は、一般のヒトの血液濃度と比較してやや高いレベルで、ヒトと同様に 2, 3, 7, 8 位塩素置換体以外の異性体はほとんど検出されなかった。また、ヒトと比較すると OCDD 濃度の割合が小さく、4～6 塩素化物の PCDDs/PCDFs の割合が大きかった。Co-PCBs については、ヒトと比べて #156, #157, #189, #126, #169 が小さく、#105, #167, #77 が大

きかった。

生息している水質濃度と血清濃度から生物濃縮係数を試算してみると、4～5 塩素化物の PCDDs/PCDFs の濃縮係数は、対数表示で 2～3 程度、高塩素化物では 0～1 と小さかったが、Co-PCBs では 2～4 とやや高かった。

謝 辞

本研究の実施に当たり、血清中ダイオキシン類の分析についてご教授いただいた大阪府立公衆衛生研究所の熊谷信二博士に深く感謝いたします。また、堺市環境局環境共生部には貴重なデータをご提供いただき、深く感謝いたします。最後に、本調査は水生生物影響調査ワーキンググループによってなされたものの一部であり、構成員各位に深く感謝いたします。

—引用文献—

- 1) 平成15年度水生生物影響調査報告書(平成16年3月)大阪府ダイオキシン対策環境調査部会, 水生生物影響調査ワーキンググループ
- 2) N. Tada, M. Saka, Y. Ueda, H. Hoshi, T. Uemura, Y. Kamata: Comparative analyses of serum vitellogenin levels in male and female Reeves' pond turtles (*Chinemys reevesii*) by an immunological assay. *J Comp Physiol B* (2004) 174: 13-20
- 3) Y. Kamata, N. Tada, M. Saka, F. Minakawa, H. Hoshi: Production of monoclonal antibodies against *Chinemys reevesii* turtle vitellogenin and their usage for comparison of biochemical and immunological characters of vitellogenins and yolk proteins of freshwater turtles. *Comparative Biochemistry and Physiology, Part B* 142 (2005) 233-238
- 4) 勸業規格協会: 工業用水・工場排水中ダイオキシン類及びコプラナー PCB の測定方法 JIS K 0312(1999)
- 5) 環境庁水質保全局水質管理課: 「ダイオキシン類に係る底質調査マニュアル」(平成12年3月)
- 6) 服部幸和, 清水武憲, 岸田真男, 鎌田曉義, 高橋幸治, 田村友宣, 上堀美知子, 山本仁史, : 大阪府域における河川水質・底質中ダイオキシン類の濃度分布と汚染特性について, *環境化学* **14**, 575-585(2004)
- 7) 平成10年度野生生物のダイオキシン類蓄積状況調査(環境省)
- 8) 飯村他, *環境化学*, Vol. 12, No. 2, pp343-352(2002)
- 9) 平成10年度環境省一般環境血液調査結果(1998)