

(14) 地域水系モデルによる防汚塗料に含まれるTBTのリスクと便益の見積り

ASSESSMENT OF TRIBUTYLTIN COMPOUNDS USE FOR ANTI-FOULING BY BASIN-WIDE ECOLOGICAL MODEL
IN PERSPECTIVE OF RISK AND BENEFIT ESTIMATION

盛岡 通*・東海 明宏*・趙 顯書*
Tohru MORIOKA*, Akihiro TOKAI* and CHO Hyeon-Seo*

ABSTRACT ; Risk assessment and benefit estimation of TBT compounds used as anti-fouling paint to prevent hull and culturing net being protective from propagation of sessile organisms was performed in perspective of regional basin, Osaka Bay in Japan. It was based on environmental fate simulated by using Basin-wide ecological model which was validated by comparing of regional observed data. Predicted concentrations in each compartment were respectively 1.9-466.8ppt in water, 3.0-155.0ppb in sediment and 0.02-0.93ppm in fish, which were almost same order of regional observed data. Risk of TBT was evaluated very high on aquatic life in some places which was estimated by dividing predicted concentration in Benthos(very sensitive species) with MATC. While it was low on human being to extent negligible which was evaluated by dividing predicted intake with ADL. Benefit of TBT was estimated as relative benefit to copper paint by using the indicators of energy saving and dry docking period of ship.

KEYWORDS ; Risk assessment, Benefit Estimation, TBT, Basin-wide Ecological Model

1. はじめに

TBT化合物は、船底や漁網への甲殻類、海藻類等の付着を防止するための防汚塗料として、1960年代に英国で使用されはじめた。船底塗料の他、繊維、皮革等の防カビ加工、木材の防腐加工など、広く防汚・殺菌剤として用いられてきた。とくに、船底塗料としてはすぐれた防汚効果と自己鍊磨の特性のために、エネルギー節約効果と塗料の寿命延長による船体維持費等の節減が計られたから1970年頃から使用量が増大した。しかし、1975年頃フランスの大西洋岸のカキの養殖地域で増殖や成長の不良が観察されて以来、フランス、英國で相次いでカキの生育不良、奇形が問題となったため、1975年代後半から船底塗料としての一部使用禁止措置がとられ始めた。米国、英國、フランス、カナダ等の諸国において、25m未満の船舶への使用禁止(アルミニウム製船体除外)、有機スズの溶出速度が4($\mu\text{g}/\text{cm}^2/\text{d}$)以下の塗料であること、製品ラベルへの規制の表示、などの使用規制がおこなわれることになった。

日本でも1987年2月に全国漁業協同組合連合会等において、養殖用の漁網防汚剤としての使用禁止を決めて以来、1988年4月には化学物質審査規制法による指定化学物質にTBT0(Bis-tributyltin-oxide)を除く8物質のTBT化合物が指定された。TBT0は、難分解性かつ高蓄積性であることが判明したため、長期毒性の有無に対する調査が行われ、1989年12月にこの試験結果がまとめられ、1990年1月に新たに第一種特定化学物質に指定された。

現在日本でのTBT化合物の汚染状況は、1984年全国においての調査・生物モニタリングの結果から判断して、直ちに危険な状況にあるとは考えられないが、今後とも環境汚染の状況を監視することが必要であるとされている。TBT化合物に対する総合的な対策の一例を上げてみると、地域特性を考慮した再現性が高いモデル開

* 大阪大学工学部環境工学科(Dept. of Environmental Eng., Osaka University)

発、リスクアセスメントの各段階における不確実性の定量化、溶出率と生物付着に関するデータの蓄積、リスク/便益の総合的な評価、ネットの効用を高める代替案評価、などが含まれる。

そこで、本研究では代替案評価による総合的なリスク/便益評価の前段階として、TBT化合物の汚染問題が起こり易い閉鎖性水域の大坂湾を対象地域として取り上げ、再現性が高いモデルの構築を通じて不確実性を考慮したリスク評価およびリスク評価モデルを提案し、リスク/便益の推定について検討した。

2. TBT化合物の環境運命予測

TBT化合物の環境運命予測モデルとしては、Waltonら¹⁾がDEM(Dynamic Estuary Model)として提案したDynamic Pseudo Two-dimensional Link-Node Modelと、渡辺らの評価環境²⁾を用いて環境中の濃度変化を大まかに予測する環境動態モデルがある。本研究で用いたモデルはTBT化合物の物質循環を表す2層非保存系のボックスモデルで、地域特性を最大限考慮して移流、拡散、沈降、蓄積、分解などの水質支配因子を考慮した。

2. 1 モデルの概要

対象地域の大坂湾を水質の類似度の高い水塊、環境基準に係わる水質類型分類、地形及び沿岸条件、1計算ステップの間の海水の交換量などを考慮し、クラスタ分析等の結果³⁾に基づき、図-1のように11個のボックスにわける。各ボックスは大気相、水相、表面薄相、底質相で構成され、さらに水相にはSS相、生物相が、底質相には間隙水相があり、次のような特徴を持っている。

まず、水相は生物の主な活動場で、大阪湾の水温躍層、有光層などを目安として平均水位時の上部8mを上層、その以深部を下層とした。水平移流、鉛直移流、拡散、底質への沈降、分解などを主な支配因子として考慮する。水中のSSと生物相は水相と平衡状態にあるとして、有機炭素への吸着定数と生物濃縮定数を適用する。SS中の有機炭素の含有率は5%とし⁴⁾、ボックス内濃度は完全混合状態と仮定する。

底質相はTBT化合物の高蓄積場として、底棲生物へのリスクが懸念される場である。水相からの沈降と分解、巻上がりなどが支配因子として上げられるが、巻上がりは沈降項に含めて表現する。底質の厚みはMaguireら⁵⁾とStangら⁶⁾によるTBT化合物の底質のコアサンプルの鉛直方向の濃度分布とWater columnとの関係から2cmを目安とする。底質中の有機炭素含有率は2%とする⁴⁾。間隙水中の濃度は底質の濃度と平衡状態にある。

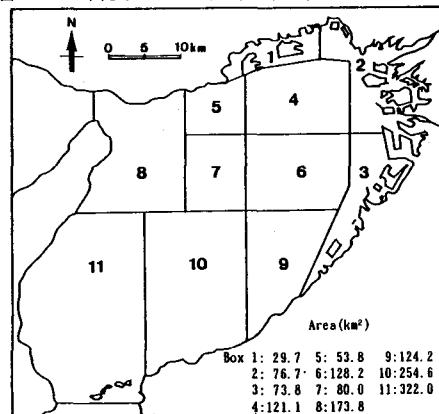


Fig. 1. Box division of Osaka Bay.

表面薄相は微小生物群、動物planktonの夜間の移動場であり、さらにTBT化合物は表面ミクロ層でbulk waterより2~4オーダーぐらい高い濃度が観察されている⁷⁾⁸⁾。厚さは生物の活動場を考慮して1cmを目安とし、濃度変化は上層水からのair bubbleによる輸送と分解、bulk waterとの混合、大気への移動に支配される。

TBT化合物の蒸気圧が非常に低いので大気中の濃度変化には重要な意味は与えないが、高さは大気混合層を考慮して600mとする。大気中の濃度は2層薄膜理論⁹⁾¹⁰⁾による表面薄層からの移動と分解に支配される。

初期条件の扱いについては、ある時期の進入量を与えて計算機上の収束条件を満たす時を平衡状態として、その時の各相での濃度を初期条件とした。各ボックス間では接触面積を通じて移流、拡散が起こるとする。淡水流入に対してはボックス間の移流項に含めて表現する。明石海峡と紀淡海峡につながっている湾外との交換には湾外に別のダミーを設定する。ダミーのボックスでの濃度変化は、隣接する湾内のボックスの濃度の1/5で変化するとし、湾内のボックスの中心間距離は湾内のボックスとの最大の中心間距離になるように設定した。

2. 2 大阪湾の水域特性

大阪湾は明石海峡と紀淡海峡を通じて海水交換が行われており、環境庁の閉鎖度指標でみると、幾何学的閉鎖度が3.3程度の閉鎖度の高い湾である。湾奥部での水深は12m程度だが、湾中央部では50mを越える。面積

は約1408km²、体積は約4.09×10⁴km³である。河川からの淡水の流入は、淀川、大和川がある湾奥部が大部分を占めており、他の地点からの流入は少ない。

水温分布は1~2月上層で8.9~12.2°C、下層で9.5~12.2°C(平均10.34°C)であり、7~8月上層で22.8~26.8°C、下層で22.0~25.5°C(平均24.57°C)である。風速分布は1~2月平均6.40m/s、7~8月平均5.13m/sであり、塩分濃度の分布は南側紀伊水道では30%で、湾奥部に行くに従って減少していく。1~2月平均31.64%、7~8月平均31.06%であり、夏季では湾奥で30%以下となる水域も存在する。

流況シミュレーションの結果を見ると、西流最強時には淡路島の東側を中心に速い北流が見られ、東流最強時には明石海峡からの流れが大阪湾を大きく回りながら南へ向かっている。しかし、湾奥部の上層へはこの影響が及んでいない。残差流を見ると、湾北東の中央に大きな渦が見られる。

2. 3 TBT化合物の物理化学性質

TBT化合物は15種あまり使われている。本研究ではTBT0を代表種として他のTBT化合物もTBT0へ換算して扱う。表-1にTBT0の物理学性状を示す。TBT化合物の水中での存在形態については、平衡状態では共存する塩化物イオン濃度、溶存CO₂及びpHにより影響を受けて60%がTBTC1として存在し、典型的な海水のpHである約8においてはTBTC1、TBT0H及び炭酸塩で存在し¹¹⁾、また、20°C、暗所で約2ヶ月間も揮散しないので、水中からの揮散性は極めて低い¹²⁾。

2. 4 TBTの環境への進入量の推定及び重要パラメータの設定

(1) 進入量の推定

TBT化合物の進入源としては、塗料生産、漁網製造、船の製造及び修理、船舶の運行及び停泊、養殖用漁網使用にわけられるが、大阪湾の場合には養殖産業の占める割合は非常に小さいこと(1988年漁業・養殖業生産統計年報により全国の養殖産業の0.09%)より養殖産業の漁網からの進入は無視する。

塗料生産、漁網製造、船の製造及び修理からの進入量の推定方法は、大阪湾の流域で占める当該産業比から生産量と使用量を推定して、それぞれに相当する環境進入率(通常生産の場合0.1%、使用の場合1%)と湾に到達するまでの分解効果と各海域のボックスに対応する流域面積などを考慮して各ボックスへの進入量を推定した。但し、船底塗料からの環境への進入は直接、海水に進入とした。船舶の停泊と運行による寄与分は船底の浸水面積、船底からの溶出速度、停泊日数及び運航特性に支配される。進入量のほとんどを占める停泊中の船舶からの進入量の推定過程を簡単に説明する。進入量をW(t/d)とし、溶出速度をβ(μg/cm²/d)、浸水面積をA(m²)、停泊期間をT(d)とすると進入量は、W=β·A·Tであらわせる。溶出速度については、停泊船舶には3.0(μg/cm²/d)、運行船舶には8(μg/cm²/d)を設定した¹³⁾⁻¹⁵⁾。浸水面積は、大阪湾に入港する船の99.5%が商船と自動車輸送船であることから貨物船としての浸水面積を考慮する。貨物船の浸水面積は船の科学と関西造船協会誌によりBulk cargo、専用船及びOil carrierの場合の平均値、0.3105(m²/t)を用いた。大阪湾に入港する船舶の総トン数は1988年港湾統計により517.1百万トン/年であるから浸水面積は160.6百万m²/年になる。停泊日数については接岸から荷役

に要する時間約1.5日¹⁵⁾を用い、これに荷物を積んで出航する時間と待ち合わせ時間を考慮して約6日にした。以上から、進入量は、W(t/d)=

$$\beta(\mu\text{g}/\text{cm}^2/\text{d}) \cdot A(\text{m}^2/\text{y}) \cdot T(\text{d}) = 0.0792(\text{t}/\text{d})$$
になる。これを1988年港湾統計により各ボックス別の船の停泊比で割り当てた。運航船舶からの進入量は船舶が大阪湾を通過する平均通過時間(1/6d)を考慮して求めた。これを各ボックスに相当する船の交通量の比から割り当てた。表-2に進入源別にボックス別の進入量をまとめておく。

Table 1. Physico-chemical properties of TBT0.

parameters	properties
分子量(g)	596.16 ^{a)}
分子式	((C ₄ H ₉) ₂ Sn) ₂ O ^{b)}
構造式	C ₄ H ₉ -Sn-O-Sn-C ₄ H ₉ C ₄ H ₉ C ₄ H ₉
水溶解度(ppm)	31±1(pH 8.1) ^{b)}
沸点(°C)	215 ^{a)}
融点(°C)	180 ^{a)}
蒸気圧(mmHg)	6.4±1.2 E-07(20°C) ^{b)}

a) 環境化学物質要覧 b) Maguireら¹²⁾

Table 2. Estimated load of TBT into each box from each source.

Source Box	Total	manufacture	painting on culturenet and ship	navigation and anchorage
Total (t/d)	8.826x10 ⁻² (100%)	1.141x10 ⁻³ (1.29)	2.072x10 ⁻³ (2.35)	8.505x10 ⁻² (96.36)
1	46.27	10.60	46.81	46.72
2	27.66	62.43	48.92	26.69
3	11.00	24.01	1.69	11.06
4	0.95	-	-	0.99
5	0.54	-	-	0.56
6	0.44	-	-	0.46
7	0.74	-	-	0.76
8	2.93	-	-	3.04
9	0.10	2.88	0.21	0.06
10	2.01	-	-	2.08
11	5.55	0.07	2.78	5.69
Total	100	100	100	100

(2) 重要なパラメータの設定

モデルの計算に用いるパラメータについては可能な限り観測値を用いるが、感度解析の結果を慮にいれて決定した。季節における変化が大きい場合は夏と冬に分けて設定した。潮汐流の資料神戸市の水質管理計画策定に伴う潮汐シミュレーションの結果³⁾を加工して用いた。沈降速度は城ら⁴⁾と細川ら⁶⁾の大坂湾での現場実測の結果を基にして、巻上がりの効果を含めて上層では2m/d、下層ではボックス別に4~30m/dの範囲に

した。沈降速度に影響を与えるSS濃度については、上層で4~10ppm、下層で6~12ppmの範囲で、ボックス別に割り当たった。表-3に計算に用いたパラメータをまとめておく。

2. 5 モデルの構造と定式化

本モデルは水層を上下2層分割した2層非保存系ボックスモデルである。モデルの構造を図-2に示す。水質シミュレーションに用いた方程式を以下に表す。

Table 3. Mean value and range of parameters.

Parameter	Summer		Winter		References	
	Range	Mean	Range	Mean		
水平拡散定数	K _{h1} (cm ² /s)	25000~100000	50000	25000~100000	50000	Authors' estimation
鉛直拡散定数	K _{h2} (")	"	"	"	"	5, 23, 24
土壤吸着定数	K _{oc} (m ³ /ton)	3500~60000	50000	3500~60000	50000	8, 25
輸送定数(表面薄層)	K _{tr} (m/day)	0.35~1.4	0.7	0.35~1.4	0.7	9, 10
移動定数(大気)	K _{wa} (/day)	-	0.157	-	0.157	2
混合率(表面層と上層)	K _m (/day)	1.0~24.0	2.0	1.0~24.0	2.0	17~21
分解 定数	K _{dw1} (/day)	0.0325~0.130	0.065	0.0245~0.098	0.049	5, 18, 20
	K _{dw2} (/day)	0.025~0.10	0.05	0.019~0.076	0.038	5, 6
	K _{dsed} (/day)	0.0023~0.009	0.0045	0.0015~0.006	0.003	8, 12
表面薄層	K _{ds1} (/day)	0.05~0.20	0.1	0.04~0.16	0.08	12, 19
生物 濃縮 定数	K _{da} (/day)	0.0025~0.01	0.005	0.0025~0.01	0.005	27, 28, 30
魚類	B _{CF1} (-)	-	2000	-	2000	26, 29, 30
底棲生物	B _{CF2} (-)	-	10000	-	10000	17, 30
Algae	B _{CF3} (-)	-	20000	-	20000	17, 30
有機 炭素	P _{OCSS} (%)	2.5~10.0	5.0	2.5~10.0	5.0	Authors' estimation
底質	P _{OCSd} (%)	1.0~4.0	2.0	1.0~4.0	2.0	Authors' estimation
SS	D _{ss} (ton/m ³)	-	1.5	-	1.5	Authors' estimation
密度	D _{sed} (")	-	2.0	-	2.0	Authors' estimation
底質	D _{db} (")	-	1.0	-	1.0	

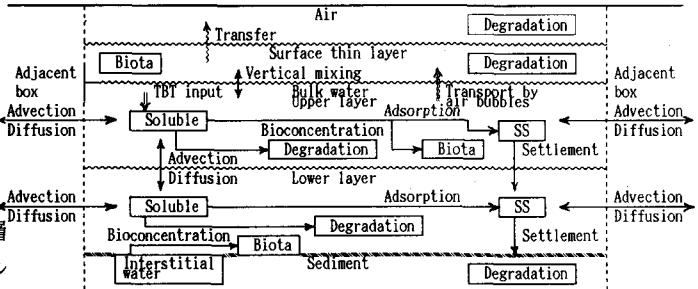


Fig. 2. Schematic diagram of transfer, transport and transformation processes of TBT of water quality model.

[上層の水]

$$V_{W1(i)} \cdot \left(\frac{dC_{W1(i)}}{dt} \right) = \sum_{j=1(i+1)}^n (Q_{1(j,i)} \cdot C_{W1(j)}) - \sum_{j=1(i+1)}^n (Q_{1(j,i)} \cdot C_{W2(j)}) + Q_{12(i)} \cdot C_{W2(i)} - Q_{21(i)} \cdot C_{W1(i)} + \sum_{j=1(i+1)}^n (K_{h1} \cdot D_{1(j,i)} \cdot \left(\frac{C_{W1(j)} - C_{W1(i)}}{L_{1(j,i)}} \right)) + K_v \cdot A_{12(i)} \cdot (1)$$

$$\left(\frac{C_{W2(i)} - C_{W1(i)}}{L_{12(i)}} \right) \cdot \left(\frac{St_{1(i)}}{H_{1(i)}} \right) \cdot K_{oc} \cdot S_{S1(i)} \cdot V_{W1(i)} \cdot P_{OCSS} \cdot C_{W1(i)} - \left(\frac{K_{tr}}{H_{1(i)}} \right) \cdot V_{W1(i)} \cdot C_{W1(i)} + K_m \cdot V_{S1(i)} \cdot C_{S1(i)} - K_{dw1} \cdot V_{W1(i)} \cdot C_{W1(i)} + W_{1(i)} \quad (1)$$

$$C_{S1(i)} = K_{oc} \cdot P_{OCSS} \cdot C_{W1(i)} \quad (2)$$

$$C_{Bf1(i)} = B_{CF1} \cdot C_{W1(i)} \quad (3)$$

$$C_{Bf2(i)} = B_{CF2} \cdot C_{W1(i)} \quad (4)$$

[下層の水]

$$V_{W2(i)} \cdot \left(\frac{dC_{W2(i)}}{dt} \right) = \sum_{j=1(i+1)}^n (Q_{2(j,i)} \cdot C_{W2(j)}) - \sum_{j=1(i+1)}^n (Q_{2(j,i)} \cdot C_{W1(j)}) + Q_{21(i)} \cdot C_{W1(i)} - Q_{12(i)} \cdot C_{W2(i)} + \sum_{j=1(i+1)}^n (K_{h2} \cdot D_{2(j,i)} \cdot \left(\frac{C_{W2(j)} - C_{W2(i)}}{L_{2(j,i)}} \right)) + K_v \cdot A_{12(i)} \cdot (1)$$

$$\left(\frac{C_{W1(i)} - C_{W2(i)}}{L_{12(i)}} \right) \cdot \left(\frac{St_{2(i)}}{H_{2(i)}} \right) \cdot K_{oc} \cdot S_{S2(i)} \cdot V_{W2(i)} \cdot P_{OCSS} \cdot C_{W2(i)} - \left(\frac{K_{tr}}{H_{2(i)}} \right) \cdot V_{W2(i)} \cdot C_{W2(i)} + K_m \cdot V_{S2(i)} \cdot C_{S2(i)} - K_{dw2} \cdot V_{W2(i)} \cdot C_{W2(i)} \quad (5)$$

$$\left(\frac{C_{S2(i)} - C_{S1(i)}}{L_{12(i)}} \right) \cdot \left(\frac{St_{2(i)}}{H_{2(i)}} \right) \cdot K_{oc} \cdot P_{OCSS} \cdot C_{W2(i)} \quad (6)$$

$$dC_{Sed(i)} = \frac{St_{2(i)}}{H_{2(i)}} \cdot K_{oc} \cdot P_{OCSS} \cdot S_{S2(i)} \cdot V_{W2(i)} \cdot C_{W2(i)} - K_{dsed} \cdot V_{sed(i)} \cdot C_{sed(i)} \quad (7)$$

$$C_{Sed(i)} = \frac{C_{sed(i)}}{K_{oc} \cdot P_{OCSS}} \quad (8)$$

$$C_{Bf3(i)} = B_{CF3} \cdot C_{W2(i)} \quad (9)$$

$$[表面薄層] \quad V_{S1(i)} \cdot \left(\frac{dCs1(i)}{dt} \right) = \left(\frac{K_{tr}}{H_{1(i)}} \right) \cdot V_{W1(i)} \cdot C_{W1(i)} - K_{wa} \cdot V_{S1(i)} \cdot C_{S1(i)} - K_m \cdot V_{S1(i)} \cdot C_{S1(i)} - K_{ds1} \cdot V_{sed(i)} \cdot C_{sed(i)} \quad (10)$$

$$[大気] \quad V_{A(i)} \cdot \left(\frac{dCa(i)}{dt} \right) = K_{wa} \cdot V_{S1(i)} \cdot C_{S1(i)} - K_{da} \cdot V_{A(i)} \cdot C_{a(i)} \quad (11)$$

ここで、C_w、C_{sed}、C_{s1}、C_a、C_{ss}、C_{w2}とC_bは各相での濃度(t/m³)、V_w、V_{sed}、V_{s1}とV_aは各相の体積(m³)、Qは移流量(m³/15分)、Dは接触ボックス間の断面積(m²)、Aは各ボックスの断面積(m²)、Lはボックス間の中心間距離(m)、Stは沈降速度(m/15分)、Hは水深(m)、Wは進入量(t/15分)、添え字1、2は上層、下層を示し、_iは

各層におけるボックスを a 、 b 、 c は各々 Algae、Benthos、Fishを示し、添え字 (i, j) 、 i_2 は各々ボックス j から i へ、下層から上層への移動を示している。

3. 濃度予測のシナリオ及びモデルシミュレーション結果の考察

計算は夏の時期のパラメータについて、図-3のように平衡状態に至るまでの計算を行う。平衡状態への収束判定条件は相対許容誤差を0.001%として与えた。この値を初期条件として、他の季節での変化やパラメータの操作により予測結果の解釈及び進入量の増減による濃度変化の検討を試みた。表-4に予測結果をまとめおいた。季節による変化は、冬の値が夏の値より、水中で約10%、下層の水中で最高約2倍ぐらい高く推定された。TBTの負荷量がある一定時間後に0にした場合の濃度変化を図-4に示す。水相のTBTの濃度はすみやか

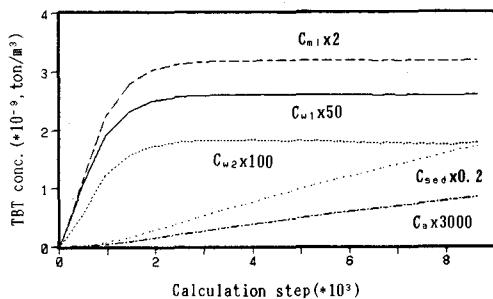


Fig. 3. Simulated curve of TBT concentration in box 4 at summer.

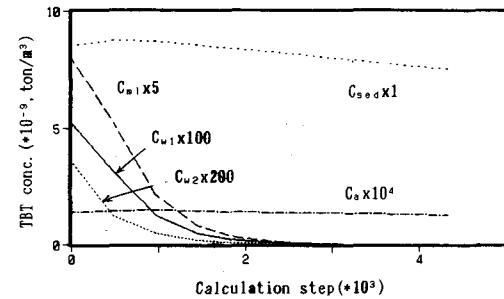


Fig. 4. Simulated decline curve of TBT concentration after INPUT=0 in box 4 at summer.

に平衡状態に達するが、底質のTBTの濃度は負荷がない場合にも長い間高濃度で残留するのがわかる。図-5にはボックス別の濃度変化を示す。進入量の多いボックス1、2で高い様子が示されている。表-5の大坂湾と東京湾の実測値と比較してモデルを検証する。水中の濃度は予測濃度が上層で7.4~466.8ppt(平均80.1ppt)、下層で1.9~194.8ppt(平均36.7ppt)で、大阪湾での実測値の15~110pptと同じオーダーで一致している。特に大阪港が位置しているボックス2で予測濃度が69.3~127.4

ppt、観測濃度が15~110ppt(平均60ppt)でよく一致している。底質中の濃度は予測濃度が3.0~155.0ppb(平均31.0ppb)で実測濃度の<10~910ppbと同じオーダーの範囲に \sim はいる。また大阪港が位置しているボックス2での濃度は予測値が44.9ppb、実測値が18~130ppb(平均57ppb)で同じオーダー内にはいる。生物中(魚類)の濃度は予測値が0.02~0.93ppm(平均0.16ppm)で観測値の<0.04~0.42ppmと同じオーダーである。全般的に予測値は実測値とよく一致していて、モデルの濃度再現能力は十分であると検証された。

特定のボックス、コンパートメント中の化学物質の濃度の変動に対するパラメータの影響の程度を知るために感度解析を行った。図-6に感度解析の一例を示す。沈降速度(X軸)の変化による各相での濃度変化(Y軸)を示している。沈降速度は底質の濃度に大きく影響を与

Table-4. Simulated concentrations of TBT in each box at summer.

compartment box	water (ppt)		sediment	surface layer (ppb)	air (ppt)	biota (ppm)		
	upper	lower	(ppb)	(ppb)	(ppt)	fish	benthos	algae
1	466.8	194.8	155.0	14.7	2.7	0.93	1.56	9.34
2	127.4	69.3	44.9	4.0	0.7	0.26	0.45	2.55
3	102.9	71.4	48.6	3.3	0.6	0.21	0.49	2.06
4	51.9	17.9	17.1	1.6	0.3	0.10	0.17	1.04
5	27.4	7.5	6.9	0.8	0.1	0.05	0.07	0.55
6	36.8	13.4	13.9	1.2	0.2	0.07	0.14	0.74
7	13.6	4.2	7.8	0.4	0.07	0.03	0.08	0.27
8	7.7	2.1	5.4	0.2	0.04	0.02	0.05	0.15
9	26.4	17.2	25.5	0.8	0.1	0.05	0.26	0.53
10	13.2	4.3	12.9	0.4	0.07	0.03	0.13	0.26
11	7.4	1.9	3.0	0.2	0.04	0.02	0.03	0.15
mean ^{a)}	80.1	36.7	31.0	2.5	0.45	0.16	0.31	1.60
mean ^{b)}	90.8	61.2	42.5	2.9	0.54	0.19	0.43	1.82

a)summer b)winter

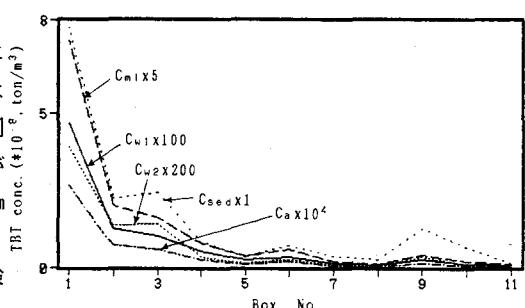


Fig. 5. Simulated TBT concentration in each box at summer.

えるが、他の相の濃度にはほとんど影響を与えないのがわかる。

4. リスク評価

4. 1 水中生物へのリスク

TBT化合物の水中生物への影響評価のための基準値として、ここではLC₅₀からMATC(Ma-ximum Acceptable Toxicant Concentration)を求め、予測した水中の濃度をMATCで除した値をリスクと仮定する。表-6に水中生物への毒性値をまとめておく¹⁵⁾⁽²⁸⁾⁽³⁰⁾⁽³⁵⁾⁻⁽⁴⁰⁾。

資料が多い場合(n>10)は度数分布表を作成

した上で最頻度の階級値から両側を積分し

てゆき、0.5以上(50% confidence levelと仮定)となる値をMATCとした。魚類は0.25ppb、Benthosは0.01ppb、Algaeは0.77ppbで、Benthosの場合はU.S. EPAの海水生物への水質基準の0.01ppb³⁴⁾と一致する。表-4の予結果と比較すると魚類を指標とした時神戸港に相当するボックス1(リスク1.87)を除いては全地域でMATCを越えないが、Benthosを指標生物として取り上げた場合、底質の間隙水中の濃度は3.0~155.0ppmでボックス5、7、8、11の他の湾奥の全てのボックスでMATCを上回っていた(リスク1.3~15.5)。表面薄相での予測濃度は0.2ppb~14.7ppb(平均2.5ppb)でおもに影響を受ける動物planktonのMATCの0.15ppbを全ボックスで上回っている。このことより生物の初期成長段階で表面薄層で影響を受ける可能性があることに注意すべきことがわかった。

4. 2 リスク評価モデル設定

化学物質の汚染による水中生物への毒性影響は主にLC₅₀、EC₅₀、NOECなどの毒性値で評価される。TBT化合物の汚染による水中生物への影響の定量的な評価のために現在までの毒性資料に基づいてリスク評価モデルを提案する。

付着生物へのTBT化合物の影響は図-7のように濃度が増加することにより生存個体は指数的に減少することが示されている¹⁵。そこで、TBT濃度が個体群の生存率に対して一次反応として表現できるとすると、TBT濃度をC_i(ppb)、個体生存率をNb(%)、TBT化

Table 5. Observed concentrations of TBT in Osaka Bay and Tokyo Bay.

	Osaka			Tokyo		
	water (ppb)	sediment (ppb)	biota (ppm)	water (ppb)	sediment (ppb)	biota (ppm)
1983	<0.1 ^{a)}	<10-700 ^{a)}	-	<0.1 ^{a)}	<20-90 ^{a)}	-
1984	<1.0 ^{b)}	<20-910	<0.04-0.08	<0.005-0.284 (0.038) ^{c)}	<0.15-0.38	<0.10-0.48 ^{b)} (0.002-0.139 (0.03) ^{c)}
1985	-	-	0.30-0.42 (0.38) ^{d)}	<0.005-0.137 (0.022) ^{e)}	<0.30-10.0	0.011-0.167 (0.058) ^{e)} 0.12-0.30 (0.24) ^{f)}
1986	-	-	-	<0.005-0.093 (0.026) ^{c)}	-	0.07-0.11 (0.03) ^{c)}
1987	-	-	0.23-0.33 (0.28) ^{f)}	<0.005-0.120 (0.035) ^{c)}	-	0.06-0.17 (0.03) ^{c)} 0.13-0.16 (0.15) ^{f)}
1988	0.015-0.11 ^{g)}	18-130 ^{g)}	0.20-0.30 (0.25) ^{h)}	<0.001-0.109 0.016-0.018 ^{g)}	120-180 ^{g)}	<0.01-0.05 (0.02) ^{g)} 0.22-0.40 (0.31) ^{h)}

a) b) d) f) h) 環境庁 c) e) i) 竹内正博ら²⁶⁾⁽³¹⁾⁽³³⁾ g) 日本食品分析センター⁻³²⁾

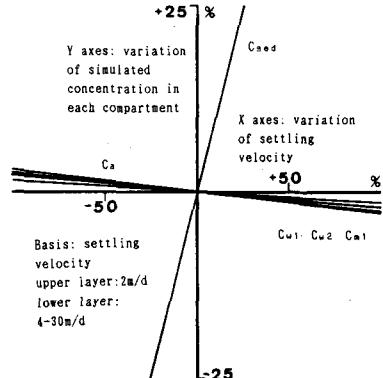


Fig. 6. Example of sensitivity analysis result in box 4 at summer.

Table 6. Toxicity of TBT to species.

Species	a) LC ₅₀			b) EC ₅₀			NOEC		
	Range	50% C. L. ^{a)}	Mean	MATC	Range	Mean	Range	Mean	
Fish	0.96-58.0 (n=10)	2.5-13.5 (n=13)	17.8	0.25	11.7-31.0 (n=21)	21.3	0.1-24.9 (n=2)	7.5	
	0.96-5.0 (n=1)	-	3.0	-	-	-	0.2-1.89 (n=2)	1.0	
Oyster	210-290 (n=3)	-	237	-	1.9	1.9	-	-	
	0.5-2.5 (n=1)	-	1.7	0.17	0.73-1.89 (n=1)	1.3	0.04-0.04 (n=1)	0.04	
Benthos	0.1-90.0 (n=10)	0.4-10.5 (n=10)	14.8	0.01	0.4-1.8 (n=1)	1.1	1.0-19.0 (n=2)	4.25	
	0.1-8.0 (n=1)	-	3.1	-	0.31-0.73 (n=1)	0.52	0.05-9.3 (n=2)	0.21	
Zooplankton	0.8-10.0 (n=10)	1.5-2.5 (n=9)	3.32	0.15	0.4-1.1 (n=4)	1.5	0.32-9.6 (n=2)	0.5	
	0.1-3.0 (n=1)	-	21.0	-	0.08-0.6 (n=6)	0.83	0.02-1.0 (n=6)	0.61	
Plankton	(n=5)	-	1.5	0.15	1.5-20.0 (n=4)	12.6	6.0-1.1 (n=1)	6.0	
	Chronic	-	-	-	0.064-8.0 (n=5)	2.7	-	-	
Algae	0.33-14.2 (n=2)	-	7.7	0.77	0.33-18.0 (n=6)	3.3	-	-	
	Chronic	-	-	-	-	-	5.0-19.0 (n=2)	7.5	

a) 50% C. L.: 50% Confidence level b) MATC: LC₅₀ (50% C. L.) × 0.1 or LC₅₀ (Mean) × 0.1

c) Counted data numbers

合物の汚染の影響がない時の個体生存率をNo(%)として、Nb=No·e(-0.518×C_i)で毒性実験の結果をほぼ再現できるとした。ここで、0.518は係数で生物種によって異なり、底生生物の場合は約0.17であった¹⁵⁾⁽³⁵⁾⁽⁴⁰⁾。

4. 3 人体へのリスク評価

発癌性に関する研究は少なく、今までのところTBT化合物の発癌性は認められていない。動物実験の結果、皮膚障害、呼吸障害、目の炎症、白血球数増加等の様々な障害が報告されている厚生省では食品中のTBTの暫

定的一日許容基準(ADI)を $1.6(\mu\text{g}/\text{kg}/\text{d})$ と設定している。

Schweinfurth and Gunzel⁴¹⁾はratへの実験結果から $3.2(\mu\text{g}/\text{kg}/\text{d})$ の暫定基準を提案している。ここでは、厚生省の基準値を利用する。人体がTBT化合物から暴露される経路は、主にTBT化合物に汚染された食料品の摂取、TBT化合物の製造過程と漁網と船底塗料処理の労働中の曝露過程、からなる。本論文では主な汚染経路を汚染された食品からの曝露のみとした。汚染場は大阪湾であって、食料品は大阪湾で採取される海産物と仮定する。ADIに相当する海産物中の濃度(CbADI)は、日本人成人の一人の体重を 50kg 、農林統計協会の食糧需給表より日本人成人の一人の一日の海産物の摂取量の 95.9g から $\text{CbADI} = \text{ADI} \times 50 / 95.9$ (約 0.88ppm)と定義し、海産物中の濃度Cb(ppm)からもとめられる、Cb/CbADIを暫在リスクと定義した⁴²⁾。海産物のTBT化合物の濃度は海産物の種類によって異なるし、食品の構成比によっても異ってなるが、本研究では1988年漁業・養殖業生産統計年報の種類別漁獲量の比で食品中の海産物の構成比を推定し、魚類86%、甲殻類9%、海草類5%とした。この値を参考しながら、生活習慣、食習慣などを考慮して表7に5つのシナリオを示した。ここでは、魚、海草類の摂取量の寄与を見ることを注眼としている、同時に表4で推定したTBT濃度から各シナリオごとのリスクを推定した。特にシナリオ2、3、5の比較から海草類の摂取量のリスクへの影響の程度が強いことが示されている。この方法でさらに食品ごとのリスクへの寄与分の推定が可能である。

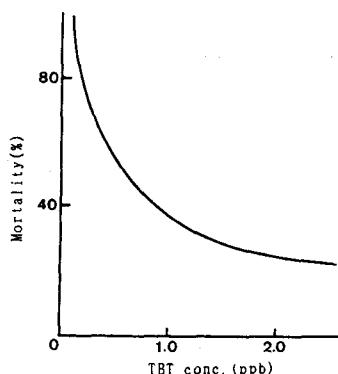


Fig. 7. Mortality on pre-fouled panels after 57days exposure in leachate treatment.

Table 7. Estimated risk of TBT to human in each scenario.

No.	scenarios	risk
1	fish 86%, algae 5%, crustaceans 9%	0.03-1.70 (0.35)
2	fish 100%	0.02-1.12 (0.19)
3	fish 50%, crustaceans 50%	0.03-1.50 (0.28)
4	crustaceans 100%	0.04-1.88 (0.37)
5	fish 50%, algae 20%, crustaceans 30%	0.06-3.37 (0.59)

5. TBTの便益の評価

TBT化合物の使用による便益を代替物質の一つでよく使われている銅化合物との比較で相対評価をする。便益項目としては、塗料自体の費用、塗装費用、修理期間、エネルギー節約、造船産業に及ぼす影響、地域経済への影響、代替品有無などが上げられるが、本研究では代替品の有無、修理期間、エネルギー節約を取り上げ検討する。

代替品としては無毒型塗料とか塗料以外の方法など様々な研究がなされているが、いずれもTBT防汚剤に比し、その耐用期間、燃費節減効果、経済性、メンテナンス等の面で見劣っている。そこで、当面はTBT含有量の低減、またはTBT化合物以外の銅化合物を含む他の防汚剤の利用で対応されるべきだと思われる。

本研究では現在代替物質として従来からよく使われている銅化合物に比べてTBT化合物(self polishing塗料)の相対的な便益を入渠間隔の延長とエネルギー節約面から推定する。ここでは、1989年船舶統計によると日本全国の船の総トン数は 25.6 百万トンでその中で 95.4% が貨物船、専用船、輸送船及び自動車航送船で構成されている。それで、全ての船舶は貨物船で現在はTBT化合物を使っていると仮定する。

5. 1 エネルギー節約面からの便益

商船の運営費の約 50% は燃料費であることが知られている⁴³⁾。船底に生物が付着すると船体表面粗度が増加し、多大の燃料損失を招くことが知られている。このような表面粗度の増加による燃料損失率を換算すると $2.5\sim7.5\%$ の表面粗度の増加で 25 万トンタンカーの場合、約 3000 万~ 1 億円/年に相当する⁴⁴⁾。また、船底において生物の付着した面積の占める割合が 5% 増せば燃料費は約 $5\sim10\%$ 増加し、 30% 増加すれば燃料費は約 50% 増加すると知られている。そこで、TBT copolymer塗料を使っている船は一年間当たり約\$200,000~\$400,000/年節約できる⁴³⁾。このことからTBT塗料を使うことにより平均 $50,000,000$ 円/ 25 万トン/年が節約できるとすれば年間トン当たりの原単位は約 200 円/トン/年になる。したがって、総節約額は 200 円/トン/ $\times 25.6$ 百万ト

ン=51.2億円/年と推定される。

5. 2 入渠間隔の延長による便益

入渠間隔が24か月から30か月に延長されるによって船当たり年\$50,000節約できる⁴³⁾。TBT塗料の寿命が5~7年で比較物質の銅塗料(copper ablative)の寿命は3~4年である⁴⁴⁾。概略的に試算すると、便益は\$50,000/6か月×36か月/6年=\$300,000/6年=\$50,000/年となる。船を25万トンと仮定するとトン当たりの原単位は30円/トン/年になる。これからTBT塗料を使うことによる総便益は、30円/トン/年×25.6百万トン=7.68億円/年と推定される。

6. 結論

本研究から得られた成果を以下にまとめる。

(1) TBT化合物の環境運命予測モデルの定式化から地域環境へ適用し、リスク評価及び便益の計量をおこなった。モデルは実測値との照合により有効性が認められた。水中での予測濃度は上層で7.4~466.8ppt(平均80.1ppt)、下層で1.9~194.8ppt(平均36.7ppt)で湾で停泊する船の大半を占めるボックス1で最大値となった。

(2) 底質中での濃度は3.0~155.0ppb(平均31.0ppb)、生物中の濃度は魚で0.02~0.93ppm(平均0.16ppm)、底棲生物で0.03~1.56ppm(平均0.31ppm)、Algaeで0.15~9.34ppm(平均1.60ppm)であった。また、底質中のTBT濃度は進入量を減少させても濃度減少効果はすみやかには進行せず、底質に残留し、生物に影響を与える可能性のあることが推定された。

(3) 水中の生物への影響は底棲生物を指標生物とした場合、湾中央から湾奥へかけて高いリスク(リスク1.3~15.5)が推定された。表面薄相では動物planktonの受けるリスクが大きいことが推定された。

(4) 人体へのリスクは、表-7のシナリオのリスクから推定し、ボックス1の場合を除いては大きい問題はないと思われるが、持続的な監視は必要であると思われる。

(5) TBT化合物を船底塗料として使うことによる便益を、銅塗料を代替物質として使った場合と相対的な便益として推定できた。リスクと便益のトレードオフへの考え方は主体、地域及び将来の評価視点により異なるが、その判断の基礎的数値が算定された。

なお、本研究を進めるにあたり懇切な御指導を戴いた大阪大学の末石富太郎教授、大阪湾の流況に関してデータの提供を戴いた同城戸由能助手、船舶関係の基礎的なデータに関してご教示を戴いた船舶海洋工学科の多田納久義助手に深く感謝いたします。

7. 参考文献

- 1) Walton, R. et al. ; Organotin Symposium. Oceans'86, Vol.4, pp.1297-1301, 1986
- 2) 渡辺信久ら ; 環境科学会誌, Vol.2(4), pp.275-286, 1989
- 3) Morioka, T. et al. ; Proc. of Int. Conf. on EMECS, Pergamon Press(印刷中), 1991
- 4) 城 久, 安部恒之 ; 大阪府水産試験場研究報告, pp.104-124, 1985
- 5) Maguire, R. J. and R. J. Tkacz ; J. Agric. Food Chem., Vol.33, pp.947-953, 1985
- 6) Stang, P. M. and P. F. Seligman ; Organotin Symposium. Oceans'86, Vol.4, pp.1256-1261, 1986
- 7) Maguire, R. J. et al. ; Environ. Sci. Technol., Vol.16(10), pp.698-702, 1982
- 8) Gucinski, H. ; Organotin Symposium. Oceans'86, Vol.4, pp.1266-1274, 1986
- 9) Liss, P. S. and P. G. Slater ; Nature, Vol.247, pp.181-184, 1974
- 10) Mackay, D. and P. J. Leinonen ; Environ. Sci. Technol., Vol.9(13), pp.1178-1180, 1975
- 11) Laughlin, Jr. R. B. et al. ; Environ. Sci. Technol., Vol.20(2), pp.201-204, 1986
- 12) Maguire, R. J. et al. ; J. Agric. Food Chem., Vol.31, pp.1060-1065, 1983
- 13) 内藤正一, 藤井 忍 ; 第51回船舶技術研究所研究発表会講演集, pp.74-77, 1988
- 14) Waldoch, M. J. ; Organotin Symposium. Oceans'86, Vol.4, pp.1324-1330, 1986

- 15) Henderson, R. S. ; Organotin Symposium. Oceans' 86, Vol. 4, pp. 1226-1233, 1986
- 16) 細川添史ら ; 第35回海岸工学講演会論文集, pp. 372-376, 1988
- 17) Maguire, R. J. et al. ; Can. J. Fish. Aquat. Sci., Vol. 41, pp. 537-540, 1984
- 18) Seligman, P. F. et al. ; Environ. Sci. Technol., Vol. 20(12), pp. 1229-1235, 1986
- 19) 高橋一暢ら ; 日本化学会誌, No. 2, pp. 181-185, 1987
- 20) Lee, R. F. et al. ; Organotin Symposium. Oceans' 87, Vol. 4, pp. 1411-1415, 1987
- 21) Olson, G. J. and F. E. Brinckman ; Organotin Symposium. Oceans' 86, Vol. 4, pp. 1196-1201, 1986
- 22) 服部幸和ら ; 大阪府公害監視センター所報調査研究編第11号, pp. 19-26, 1989
- 23) Unger, M. A. et al. ; Environ. Toxicol. Chem., Vol. 7, pp. 907-915, 1988
- 24) Valkirs, A. O. et al. ; Organotin Symposium. Oceans' 86, Vol. 4, pp. 1165-1170, 1986
- 25) Wallace, Jr. G. T. and R. A. Duce ; Limnol. Oceanogr., Vol. 23(6), pp. 1155-1167, 1978
- 26) 竹内正博ら ; 東京衛生年報, Vol. 38, pp. 160-166, 1987
- 27) Tsuda, T. et al. ; Wat. Res., Vol. 22(5), pp. 647-651, 1988
- 28) Ward, G. S. et al. ; ASTM 4th Annual Symposium on Aquatic Toxicology 10-17-79, 1980
- 29) Thain, J. E. ; Organotin Symposium. Oceans' 86, Vol. 4, pp. 1306-1313, 1986
- 30) 杉浦 桂 ; 水質汚濁研究, Vol. 10(12), pp. 706-712, 1987
- 31) 竹内正博ら ; 東京衛生年報, Vol. 39, pp. 93-96, 1988
- 32) 日本食品分析センター ; 有害化学物質汚染実態追跡調査, pp. 1-30, 1989
- 33) 竹内正博ら ; 東京衛生年報, Vol. 40, pp. 127-132, 1989
- 34) USEPA ; Federal Register, Vol. 54(104), pp. 23529-23531, 1989
- 35) Cardwell, R. D. and A. W. Sheldon ; Organotin Symposium. Oceans' 86, Vol. 4, pp. 1117-1129, 1986
- 36) 里見至弘 ; 水産の研究, Vol. 4(6), pp. 54-66, 1985
- 37) Beaumont, A. R. et al. ; Organotin Symposium. Oceans' 87, Vol. 4, pp. 1488-1493, 1987
- 38) Wong, P. T. S. et al. ; Can. J. Fish. Aquat. Sci., Vol. 39, pp. 483-488, 1982
- 39) Walsh, G. E. et al. ; Chemosphere, Vol. 14(3/4), pp. 383-392, 1985
- 40) Davidson, B. M. et al. ; Organotin Symposium. Oceans' 86, Vol. 4, pp. 1225-1219, 1986
- 41) Schweinfurth, H. A. and P. Gunzel ; Organotin Symposium. Oceans' 87, Vol. 4, pp. 1421-1431, 1987
- 42) 盛岡 通, 東海明宏 ; 衛生工学論文集, Vol. 23, pp. 115-124, 1987
- 43) Ludgate, Jr. J. W. ; Organotin Symposium. Oceans' 87, Vol. 4, pp. 1309-1313, 1987
- 44) 中尾 学 ; 船の科学, Vol. 39, pp. 53-58, 1986