

1. アジアで使用された農薬の北極域への移動に関するモデル解析

西森 基貴^{1*}・小原 裕三²・魏 永芬³

¹農業環境技術研究所 大気環境研究領域 (〒305-8604 茨城県つくば市観音台3-1-3)

²農業環境技術研究所 有機化学物質研究領域 (〒305-8604 茨城県つくば市観音台3-1-3)

³岐阜大学流域圏科学研究センター (〒501-1193 岐阜県岐阜市柳戸1-1)

* E-mail: mnishi@niaes.affrc.go.jp

主に日本・アジア域で使用される農薬を対象に、実際の使用実態を考慮して長距離移動性・環境中残留性を同時に評価できるマルチメディアモデルを開発した。このモデルを用い、まず日本で農薬として使用されたいわゆるPOPs様農薬を対象とし、日本での正確な出荷量データのみを入力としたモデル計算を行った結果、リンデンは北緯65度以北の極域でより高濃度で蓄積され続けていることがわかった。さらに現在でも日本などで使用されており、かつ北極域で実際に検出されている農薬について、仮想的な放出シナリオによってその長距離移動性と環境中残留性を比較した結果、現在使用されている農薬の中でもクロロタロニルは、他の農薬に比べて広範囲に移動し、また高濃度で北極域に到達することがわかった。

Key Words : transboundary pollution, current-use pesticides, POPs, environmental modeling, Arctic region

1. はじめに

残留性有機汚染物質 (POPs) が使用地域から遠い北極域でも検出されるなど、地球規模の環境汚染が問題となっている中で、このような有害化学物質の持つ長距離移動性や環境中残留性などの新たな視点からのリスクを評価し、またその適切な管理を行うために最も確実な方法は、直接測定 (モニタリング) である。しかしながら多種多様な化学物質に対し、時空間的な変動の大きい測定を高密度・高頻度で行うことは現実的には困難であり、数値モデリング手法は、現実的かつ有効な手段として今後の応用が期待されている。日本では未だモニタリングを重視する傾向が強いが、欧米ではモデリングが行政施策立案にも用いられるのが一般的である。

実際にアジア域起源の農薬やPOPsに関する広域の環境動態研究は不十分であり、わが国に対しても多種多様な物質に対するスクリーニングレベル評価が可能な動態予測モデルを構築することが求められている。経済開発協力機構 (OECD) の報告によれば、環境挙動の既知な物質についてある地域の特定媒体における濃度分布を予測するためには拡散モデルが有効であるが、環境媒体間の

分配傾向が未知な物質の動態予測やスクリーニング、分類化およびリスクアセスメントに使用するためには、媒体間の移動や媒体中での消長、および移動媒体による移流プロセスを持つ、フガシティ理論に基づいた「マルチメディアモデル (MMM)」¹⁾の利用が有効である。

ここで、以前より主に欧米諸国で開発されてきた全球規模のMMM²⁾では、農耕地を取り扱わないかまたは畑地のみのモデルであったため、水田が主要な土地利用を占める日本などアジアモンスーン地域へ適用することができなかった。また、主に非極性物質である現在のストックホルム条約指定POPsを対象としており、極性物質が多い農薬としての化学物質を対象としていないという問題があった。さらに既存モデルでは、海洋水中における化学物質の塩析効果³⁾を含んでおらず、全球規模の長距離移動性の評価に疑問が残る。そしてこれまで、既存モデルのほとんどが全球規模でも南北方向のみを考慮しており、化学物質の東西方向の全球動態まで考慮したモデルは、BETR-Global⁴⁾やG-CIEMS⁵⁾などごく最近のものに限られているのが現状である。

著者らはこれまでの一連の研究で、化学物質の塩析効果を含み、東西一様で南北方向のみの動態を考慮した

MMMについて報告し⁶⁾、さらにそれを東西方向も含めた形で拡張してきた⁷⁾が、本稿ではそれらに引き続き、日本において過去に使用された農薬の実際の施用実態を考慮した長期間のモデルによる評価結果、および現在使用されている農薬で現に北極に達しているものを対象にして、その一次的なスクリーニング結果を、それぞれ示す。

2. モデルの構造と実験設定

我々が開発したモデルNIEAS-MMM-Globalは、上層大気・下層大気、非農耕地・森林・畑地農耕地・水田、陸水・陸水底質および海洋の9媒体からなるフガシティ理論⁷⁾に基づいたモデルであり、現状では、全球を緯度15度および経度30度の東西南北各12個ずつに分割したものの(図-1)である。

OECD等の国際機関でPOPsの指定に関して標準ツールとして用いられているMMM⁸⁾は、定常状態のみの計算を行っているのに対し、本モデルは非定常状態の計算に対応しており、化学物質の実際の放出量および気温や風などの自然環境の季節変化に対応していることが特徴で

ある。また本モデルは水田を扱っているため、物質の放出量も作物の成長過程に応じた季節変化を評価することが可能である。

まず過去に使用された農薬に対する評価対象物質では、日本において正確な出荷記録のある農薬の中で、現在POPsとして指定されている化合物、および今後、指定が想定されるものを含めたジクロロジフェニルトリクロロエタン(DDT)類、ヘキサクロロシクロヘキサン(HCH)類、ヘプタクロル(HPTL)、クロルデン(CHL)およびドリノ類(aldrinやdieldrin)の有機塩素系殺虫剤を扱う。

次いで、現在使用されているものも含めた農薬の一次スクリーニングとして、北極域で実際に検出された前述のPOPs様農薬を含む13農薬について、定常状態で仮想的な放出シナリオを用いたときの、長距離移動性と環境中残留性の比較を行う。ここで、上記に追加される現使用農薬は、トリフルラリン(trifluralin)、モリネート(molinate)、クロロタロニル(chlorothalonil)、ジクロロボス(dichlorvos)、クロロピリフォス(chlorpyrifos)、フェニトロチオン(fenitrothion)、シマジン(simazine)およびメソキシクロル(methoxychlor)である。

3. 日本で使用された農薬としてのHCHの動態

まず過去に日本で使用された有機塩素系殺虫剤農薬について、モデルによる評価結果を示す。環境中への放出量は、1970年代半ばの農薬登録失効前は、日本における実際の出荷量データ(有効成分量)を用い、それ以降は環境中への放出は無いとして、現在まで約60年間にわたる計算を行った。放出源の日本域における各物質の水田土壤中濃度の経年変化(図-2上)によると、いずれの農薬も、その濃度は1970年頃の出荷停止時をピークに、その後は緩やかな減少を続けている。濃度減少期において、日本域における水田濃度の実測値(図-2下)⁹⁾と比較した結果は、ドリノ類の濃度がやや過大評価であるほかはおおむね一致している。モデル中におけるこの濃度推移の傾向(図-2上)は、低濃度領域での反応消失速度を低減化することで再現できた。これは、現実の環境下において、低濃度になると土壤中半減期が、高濃度の時に比較して長くなっていることに基づいている。

次いで日本で農薬として使用されたリンデン(α -HCH)についての結果のうち、図-3には放出源の日本域、およびそこから北方のグリッドにおける海洋水中の濃度(pg/L)の経年変化を対数で表したものを示す。これによると、1970年頃までは、物質が放出された日本域における海洋中濃度が最も高く、そこから北方に行くにしたがって濃度が低くなる結果となった。注目すべき点は、北緯65度以北の北極域では当該物質が、日本付近でほぼ消

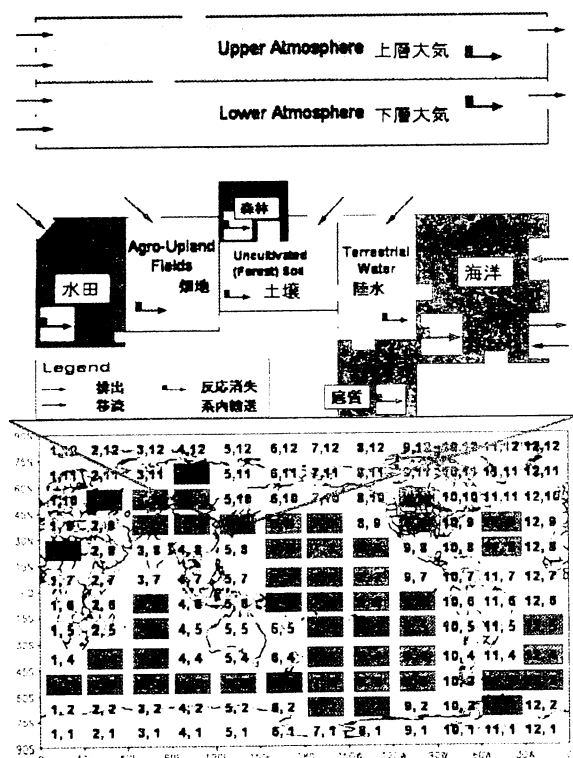


図-1 NIEAS-MMM-global のアウトライン。12°×12°=144の領域のうち、赤は排出源の日本域を示す。他に青色は海洋、茶色は陸域、白色は雪氷のみの領域を示す(原図はカラー)。

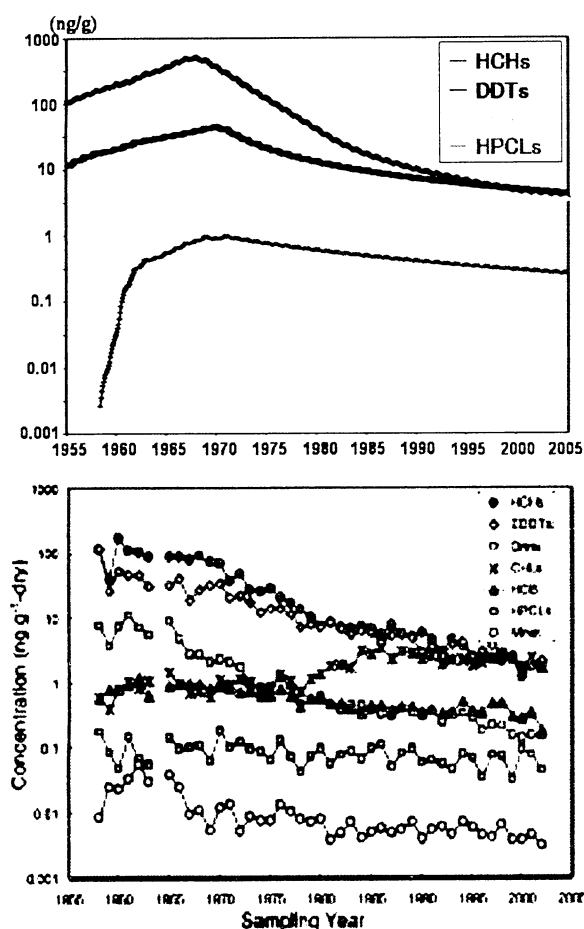


図-2 (上)本モデルで計算された、日本域における POPs 様農薬の水田土壌中濃度 (ng/g) の経年変化 (計算期間前半の高濃度順に、HCH 類, DDT, ドリン剤類, HPCL. (下)同じく日本域の水田における実測値 (ng/g)⁹⁾で、期間前半の高濃度順に HCH 類, DDT 類, ドリン剤類, CHL 類, ヘキサクロロベンゼン (HCB), HPTL 類, マイレックス.

失した後もごく最近まで存在したことである。DDTやドリン類農薬を用いた同様のモデル計算では、このように放出された物質が広範囲に輸送され、長期間残留することはなかった。これはリンデンなどのHCH類が、他の農薬に比べて比較的揮発性と水溶性が高いためである。

日本における農薬としてのリンデンの出荷は1968年がピークであり、1971年には農薬としての登録が失効している。日本付近の海洋における濃度ピークは出荷量のピークからやや遅れ、1969～1970年頃である (図-3)。そのピーク時期である1969年8月の海洋中における濃度の全球分布 (図-4) によると、リンデンは排出源である日本付近より黒潮に運ばれてオホーツク海に高濃度域が広がり、さらにベーリング海峡を通過して、北極海・ボフオート海にまで達していることがわかる。つまり日本で使用された農薬は、当初の予想以上に広範囲に達していることが示唆された。

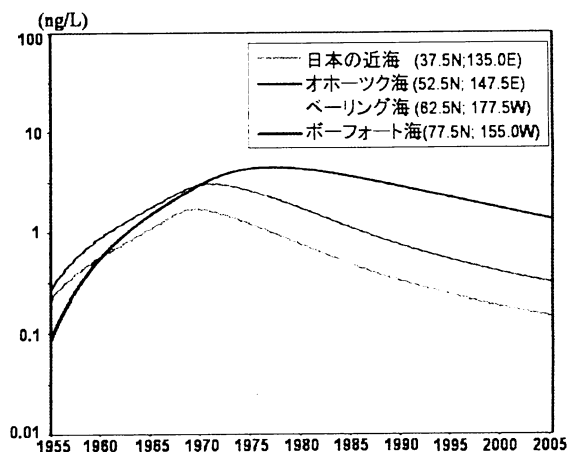


図-3 日本における出荷記録を基にしたリンデンの長期間シミュレーションによる物質の海洋水中の濃度 ($\log_{10}$ pg/L) の経年変化 (計算期間前半の高濃度順に、日本の近海, オホーツク海, ボフオート海およびベーリング海における値を表す。

4. 日本で現在使用されている農薬の一次スクリーニング

ここでは、現在も日本で使用されているものを含めた13農薬について、定常状態で全て日本域のみの大気に1000t/yearを放出したと仮定したときの、水田および海洋における濃度分布を計算し、長距離移動性と環境中残留性の比較を行った。その結果、クロロタロニルは、すでに使用が停止されたPOPs様農薬と同様に、日本域水田への高い残留性と、極を含む広範囲な海洋への移動を示した (図-5)。これはクロロタロニルの大気中半減期の見積もり結果が、他の物質に比べて極端に長くなっているためと推察される。このほかの現使用農薬では蒸気圧の

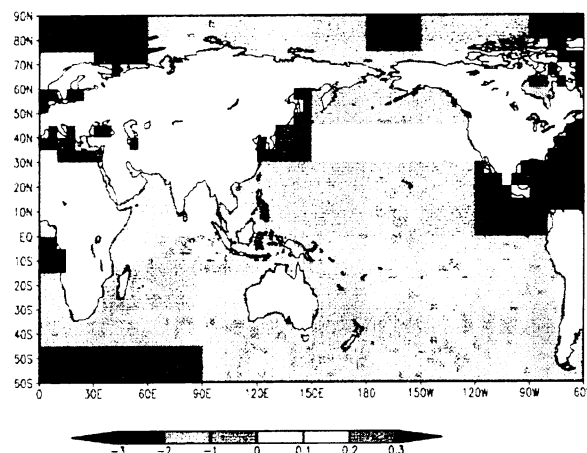


図-4 図-2 のうち日本域で最も高濃度であった 1969 年 8 月における海洋媒体中のリンデンの濃度 ($\log_{10}$ pg/L) の全球分布 (原図はカラー)。

Concentration in Ocean (chlorothalonil) [og10:ng/L]

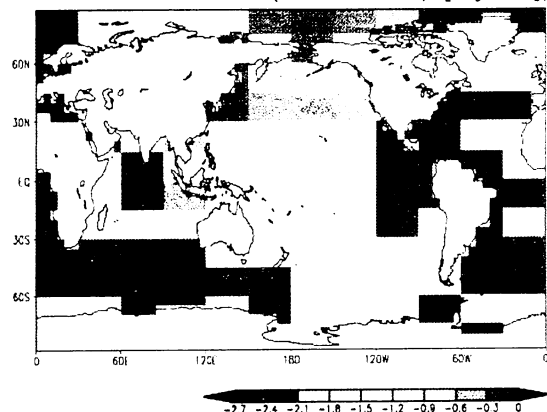


図-5 クロロタロンルを日本域下層大気に、1000t/yearの割合で放出したときの海洋媒体中の濃度(log₁₀:pg/L)の全球分布(原図はカラー)。

高いモリネートやトリフルラリン、ジクロロボスは長距離移動性が弱く、また残留性も低い結果となった。

5. まとめと今後の課題

本稿ではまず、日本で農薬として使用されたいわゆるPOPs様農薬を対象とし、日本での正確な出荷量データのみを入力としたモデル計算を行った結果、リンデンが北緯60度以北の極域でより高濃度で蓄積され続けていることがわかった。

次に、現在でも日本などで使用されており、かつ北極域で実際に検出されている農薬について、仮想的な放出シナリオによってその長距離移動性と環境中残留性を比較した結果、現在使用されている農薬の中でもクロロタロンルは、他の農薬に比べて広範囲に移動し、また高濃度で北極域に到達することがわかった。

なお北極域における化学物質の正確な動態評価のためには、雪氷圏における物質の挙動をモデル化することが重要であり¹¹⁾、この点においてさらにモデルの改良を進めていく必要がある。またドリン剤類農薬を用いたシミュレーションでは、これら物質の日本における水田中濃度の減少速度が実測に比べて過大評価となっている。この原因として、本モデル中での反応消失作用が、半減期調整後も依然として過大評価となっていることのほか、このシミュレーションでは中国など日本周辺領域での排出を考慮していないため、大気中の物質濃度が実測よりも小さくなっており、そのために土壌から大気への移行を過剰に評価することとなり、結果的に土壌中濃度を過小評価していると考えられる。このため、地球上での全

排出源を対象とした同時シミュレーション結果との比較も必要である。

謝辞：本研究は、平成15年～19年農林水産省農林水産技術会議委託プロジェクト「農林水産生態系における有害化学物質の総合管理技術の開発」の中で行われたものである。

参考文献

- 1) Mackay D.: Multimedia Environmental Models. The fugacity approach. Second Edition, Lewis Publisher, 261p, 2001.
- 2) Wania F. and Mackay D.: A global distribution model for persistent organic chemicals, Environmental Toxicology and Chemistry, Vol. 115, pp. 1390-1399, 1999.
- 3) Xie WH, Shiu WY. and Mackay D.: A review of the effect of salts on the solubility of organic compounds in seawater, Marine Environmental Research, Vol.44, pp. 429-444, 1997.
- 4) MacLeod M., Riley W.I. and McKone T.E.: Assessing the influence of climate variability on atmospheric concentrations of polychlorinated biphenyls using a global-scale mass balance model (BETR-Global), Environmental Science and Technology, Vol. 39, 6749-6756, 2005.
- 5) 鈴木規之, 今泉圭隆, 桜井健郎, 田邊潔, 柴田康行, 白石寛明：グローバル多媒体モデルによる PCB の地球規模動態と東アジア地域の寄与に関する考察, 第 16 回環境化学討論会講演要旨集, pp. 188-189, 2007.
- 6) Nishimori M., Wei Y.F. and Kobara Y.: Simulation of the effects of salting-out in the meridional transportation of pesticides and POPs by a new fugacity-based multimedia environmental fate model, Organohalogen Compounds, Vol. 68, pp. 1151-1154, 2006.
- 7) Nishimori M., Wei Y.F. and Kobara Y.: Simulating the deposition and zonal/meridional long-range transport of legacy pesticides in Japan by a new fugacity-based multimedia environmental fate model, Organohalogen Compounds, Vol. 69, pp. 1461-1464, 2007.
- 8) Bennett D.H., McKone T.E. and Kastenber W.E.: Evaluating multimedia chemical persistence: classification and regression tree analysis, Environmental Toxicology and Chemistry, Vol. 19, pp. 810-819, 2000.
- 9) Seike N., Eun H. and Otani T.: Temporal change in organochlorine pesticides contamination in Japanese paddy soils, Organohalogen Compounds, Vol. 69, pp. 28-31, 2007.
- 10) Wania F. and Mackay D.: Tracking the distribution of persistent organic pollutants, Ambio, Vol. 30, pp. 390A-396A, 1996.
- 11) Stocker J., Wegmann F., Scheringer M. and Hungerbuhler K.: Effects of snow and polar ice on the deposition and long-range transport of current-use pesticides and other organic pollutants, Organohalogen Compounds, Vol. 69, 324-327, 2007.