令和6年度 化学物質規制対策

「大学・公的研究機関と連携した化学物質管理高度化推進事業

（化学物質のライフサイクルを踏まえた新規 POPs や

重金属の環境及び生態への影響評価）」

調査報告書

令和7年2月

公立大学法人　北九州市立大学

１．背景と目的

令和５年９月、SAICM『国際的な化学物質管理に関する戦略的なアプローチ）(平成 18 年(2006 年)採択）の後継として、法的拘束力のない、マルチセクター（環境、経済、社会、保健、農業、労働等）におけるマルチステークホルダー（政府、政府間組織、市民社会、産業界、学術界等）によるライフサイクル全体を通じた化学物質管理の枠組みとして、世界的な枠組み文書である「化学物質に関するグローバル枠組み―化学物質や廃棄物の有害な影響から解放された世界へ（Global Framework on Chemicals (GFC) – For a planet free of harm from chemicals and waste)」が策定された。日本は化学物質を用いつつも、そのメリットを最大限に享受できる技術を発展させていく先進的な国として、化学物質のライフサイクルを踏まえた地球規模での環境汚染を視野に入れた、適正な化学物質管理の提言、実践をしていくことが求められている。また、化学物質と廃棄物の有害な影響の防止または最小化を行っていくことが求められている。しかし、現在施行されている PRTR 制度では、製造の過程に環境中へ排出される化学物質の量を把握することができるものの、化学物質のライフサイクル全体を考慮した際に、廃棄物中に含まれて環境中への排出される量を把握することが困難となっている。または、化学物質が廃棄された後の環境への排出量やその影響について把握することが困難となっている。また化学種毎に毒性が変化する重金属についても、現在の化審法では特定の化学種のリスク評価に限定されているという課題が残されている。

さらに、令和５年５月に開催されたストックホルム条約第 11 回締約国会議（COP11）において、新たに残留性有機汚染物質(POPs)であるメトキシクロル、デクロランプラス及び UV-328 を同条約の附属書Ａ（廃絶）に追加することが決定された。この決定を受け、令和５年７月 21 日には、厚生労働省・経済産業省・環境省の３省合同会合会議において、これら３物質が難分解性、高蓄積性を持ち、さらに人や高次捕食動物への長期毒性を有するものであることから、化審法の第一種特定化学物質に指定することが適当であるとの結論が下された。しかしながら、締約国会議の下部会合である残留性有機汚染物質検討委員会（POPRC）のリスク調査をもとに製品評価技術基盤機構 (NITE)が令和５年に調査した結果によると、世界へ拡散しているこれらの物質が最も高い箇所での曝露を継続的に受け続けたとしても、ヒトへのリスクは懸念レベルにないと報告している。しかし、これはダスト経由で直接曝露を受けた場合の条件可に限定される。このように新規 POPs においてはリスクの不確実性が高く、これらのエッセンシャルユースは許可し続けて良いのか、といった国内の化学物質管理の在り方にはさらに検証が必要な状況となっている。一方で、POPRC の報告書によると、カナダ、ノルウェーなど北欧や極域近くの表層水や 30 年前の地層などからこれらの新規 POPs が検出されていることから、残存性が指摘された。しかし、分解性の評価については、物性にもとづく加水分解や光分解による半減期など、自然分解によるものが主となっており、生分解については、メトキシクロル以外はガスクロマトグラフィーや生物化学的酸素要求量(BOD)による分解度で判定されたのみである。よって、多種類の微生物による分解の可能性については、まだデータが少ない状態であり、今後の環境中への影響についても不確実性が高いため、適切な対策案を提言しづらい状況にある。また検出地域についても極域近くの報告例が多いことは、その地域で排出が多かった可能性の他に、POPs の特性として、低緯度から排出されたものが「バッタ効果」と呼ばれる現象によって、極域までホップしながら大気と堆積物を媒介として、移動した可能性が考えられるが、詳細は未だ分かっていない。

そこで本事業では、新規 POPs、重金属を対象として化学物質のライフサイクルを考慮し、廃棄物を含む

排出源から全球規模での移動による汚染状況の把握と、エッセンシャルユースを許可し続けたシナリオ、代替物質に完全に切り替えた場合のシナリオでの大気中の化学物質濃度の将来予測および環境、生態へのリスク評価を、モデルを用いて実施するとともに、リスクが不確実な物質については、生物濃縮によるリスクと、微生物による分解の可能性の双方に着目し、効果的な化学物質管理の方策について提言を行うことを目的とする。さらに化学種毎に毒性が変化する重金属についても、その毒性の変化を明らかにし、化学物質のライフサイクルを踏まえた上での適切なリスク管理策を提言する。

２．事業内容

（１）調査内容

本事業は３年計画とし、本年度を初年度とする。３年の全体の計画においては、、化学種毎に毒性が変化する重金属の化学物質のライフサイクルを踏まえたリスク評価に加え、ストックホルム条約で新たに追加となった、新規 POPs (Persistent Organic Pollutant; 残留性有機汚染物質) 3 物質（z）を対象として、排出源(廃棄物含む)から全球規模での移動状況の把握・予測と生物濃縮によるリスク評価、堆積物の微生物によるバイオレメディエーションの可能性を明らかにすることを目的とする。そして、新規で化審法の第一種特定化学物質に指定された化学物質のより適正かつ包括的な管理を提言することを目標とする。

以上を踏まえ、本年度は以下の内容を実施した。

（２）調査における小課題と概要

i. 優先的な評価が求められる新規 POPs の抽出、多媒体モデルの試行とインベントリーの構築、モデルによる濃度の算出

概要説明

全球多媒体モデル (例：CHASER (CHemical AGCM for Studies of atmospheric Environment and Radiative forcing))の試運転を行い、本事業への化学物質輸送モデルとしての適用可能性について調査した。CHASER モデルは、対流圏・成層圏におけるオゾンを中心とした大気光化学過程を全球的にシミュレートできるモデルであるが、各種汚染物質（気体成分およびエアロゾル粒子成分）の全球分布や長距離輸送（大陸・半球間輸送）とそれらの変動過程についても適応ができるよう開発されつつあるモデルである。現在、NO_X、CO、CH_4、アセトン、イソプレン等の適用が確認されているが、本事業では、新規 POPs にも本モデルを適用できるよう、モデルの化学物質データのインベントリの構築を行った。なお、インベントリを優先的に収集、または推算すべき新規 POPs の順位は、文献調査データなどをもとに決定した。また、今年度に選択したモデルと構築したインベントリを用いて、浮遊粒子状物質 (SPM) をトレーサーとし、POPs の濃度を算出した。その結果、他地域と比較して特に濃集しているホットスポットが確認され、それらの地域における POPs の相対的濃度を評価した。。

ii. ホットスポットに係る文献調査

概要説明

文献や全球多媒体モデルから、POPs のホットスポットが形成されていると考えられる地点について調査を実施した。カナダ、ノルウェーなど北欧や極域近くの表層水や 30 年前の地層などからこれらの新規 POPs が検出されていること (POPRC 報告書)、また大気や海流によって全世界に分布が広がった水銀も、スウェーデン、ノルウェーといった北欧に移動し、高濃度で検出されている事実を踏まえ、これらの地域を念頭に文献に報告された実測データや関連論文を対象に調査を行い、POPs の濃集箇所

の地域の特徴、季節変動を踏まえ、今後、濃集地点での堆積物のサンプリングおよび、濃度定量、微生物の分析に適する地域の候補を選定した。

iii. 低緯度から運搬された POPs 等の捕集および濃度等の測定

概要説明

新規 POPs の大気経由でのバックグラウンドの汚染状況を把握するため、低緯度から気流により運搬された POPs を捕集しやすく、日本由来の汚染物質の影響を排除しやすい条件がそろっている日本最南端の波照間モニタリングステーションにて、エアロゾル中に含まれる POPs を捕集した。捕集材は、事前に低バックグラウンド処理を実施した。サンプリングは、10 月、11 月に行い、捕集したサンプル中の POPs は、GC-HRMS 法で定量した。

大気中物質の測定対象は、新規 POPs 3 物質(デクロランプラス、UV-328、メトキシクロル)に加え、ストックホルム条約発効以後、2008 年までの観測において、日本の最南端の有人島である波照間島にあるモニタリングステーションにて、継続的に濃度の検出が認められていた既存 POPs 8 物質 (HCB、cis-Chlordane、trans-Chlordane、trans-Nonachlor、cis-Heptachlor epoxide、o,p'-DDE、p,p'-DDE、p,p'-DDT)を調査対象として加えた。さらに、新規 POPs である UV-328 と挙動が類似していると報告されているエアロゾル (浮遊粒子状物質/SPM; PM2.5 を含む)中の重金属濃度を ICP-MS を用いて測定した。加えて、放射光を用いた X 線吸収微細構造解析 (XAFS)を行い、環境中での化学種の変化や、それに伴う毒性の変化を明らかにした。

さらに、低緯度で排出された POPs は極域へ移動する過程で沈着と再揮発を繰り返す可能性がある。そのため、通過地点の一つである波照間の堆積物を採取し、POPs の分解に関与する微生物の存在可能性を明らかにするために波い生物の照間島の堆積物中の DNA 解析を実施し、POPs の分解につながる微生物相の有無について、検討を行った。

３．方法

i. 優先的な評価が求められる新規 POPs の抽出、多媒体モデルの試行とインベントリーの構築、モデルによる濃度の算出

i-1. 優先的な評価が求められる新規 POPs の抽出

残留性有機汚染物質（POPs）は、環境中での蓄積、長距離輸送、および生態系への影響の観点から、国際的な規制の対象となっている。特に、デクロランプラス（Dechlorane Plus）、UV-328、メトキシクロル（Methoxychlor）は、2023 年のストックホルム条約第 11 回締約国会議（COP11）において正式に規制対象となった（Stockholm Convention, 2023）。これらの物質は、異なる用途と環境中の挙動を持つため、環境リスクの評価において、どの物質を優先的に研究対象とするかの選定が求められる。

本研究では、新規 POPs の中から、環境リスク評価の優先順位を決定するために、以下の 3 つの要素に着目して評価を行った。

1. 用途と環境中での排出経路：各化学物質がどのような用途で使用され、環境中のどの媒体（水、大気、土壌など）にどのように放出されるかを調査した。

2. 環境中での分配特性：各物質の物理化学的特性（オクタノール-空気分配係数（K_{OA}）、空気-土壌分配係数（K_{SA}）、水溶解度など）を考慮し、大気中の粒子相（SPM）への移行性を評価した。

3. 長距離輸送の可能性：既存の研究を参照し、各物質が大気中でどの程度長距離輸送される可能性があるかを評価した。

これらの基準に基づき、デクロランプラス、メトキシクロル、UV-328 の 3 物質について比較を行い、優先的に研究すべき対象を選定した。

i-2. 多媒体モデルの試行とインベントリーの構築、モデルによる濃度の算出

多媒体モデルについて、本研究では、残留性有機汚染物質（POPs）の環境中挙動を評価するために、大気化学輸送モデルを用いたシミュレーションを実施した。特に、地域スケールの大気化学輸送モデルである CMAQ（Community Multiscale Air Quality）と、全球規模の大気化学輸送モデルである CHASER（Chemical Atmospheric General Circulation Model for Studies of Atmospheric Environment and Radiative Forcing）の二つのモデルを活用し、それぞれの特性を比較することで、POPs の輸送過程や化学変質の違いを明らかにすることを目的とした。CMAQ は主に都市・地域スケールでの大気汚染物質の輸送と沈着の影響を解析するのに適しており、一方の CHASER は、全球規模の大気循環と化学反応を考慮しながら、長距離輸送を評価するのに適している。本研究では、これら二つのモデルの特性を明確にし、それぞれのモデルがどのように POPs の輸送や沈着を再現するのかを比較することを目的とした。

i-2.1 CMAQ の概要と計算手法

CMAQ（Community Multiscale Air Quality）は、米国環境保護庁（EPA）によって開発された地域スケールの大気化学輸送モデルであり、大気中の汚染物質の輸送、化学変質、および沈着を解析するため

に広く利用されている（Itahashi et al., 2017）。このモデルは、気象モデルである WRF（Weather Research and Forecasting model）と連携し、排出インベントリデータを用いた高解像度の化学輸送シミュレーションを行うことが可能である。CMAQ はオイラー型の化学輸送モデルであり、特に都市・地域スケールでの大気汚染物質の時空間変動を詳細に解析することができる。

CMAQ の化学輸送モジュールは、一次汚染物質である窒素酸化物（NOx）や二酸化硫黄（SO_2）だけでなく、二次生成物である硝酸塩（NO_3^-）、硫酸塩（SO_4^{2-}）、およびオゾン（O_3）などの化学反応を考慮したシミュレーションが可能である。特に、都市部における大気汚染の主成分である光化学オキシダントの生成過程や、エアロゾル形成のメカニズムを詳細に解析することができる（Itahashi et al., 2017）。さらに、CMAQ では乾性沈着および湿性沈着のプロセスを考慮し、大気中の汚染物質がどのように除去されるかを評価することが可能である。乾性沈着は、地表面や植生への直接的な吸着を通じて物質が除去されるプロセスであり、湿性沈着は、降水による洗浄効果を通じて大気中の粒子が除去されるプロセスを指す。これらの沈着メカニズムを詳細に解析することで、POPs の環境中での蓄積や除去プロセスを理解することができる。

本研究では、CMAQ のシミュレーションのために、猪俣ら（Inomata et al., 2017）によって構築された POPs 排出インベントリを基にしている。本インベントリは、東アジアにおける大気中の多環芳香族炭化水素（PAHs）の長距離輸送と沈着の解析を目的として開発されたものであり、様々な排出源からの寄与を定量的に評価することが可能である（Inomata et al., 2017）。

このインベントリの特徴として、燃焼プロセスを中心とした排出源の詳細な分類と、それに基づく排出量の推定が行われている点が挙げられる。具体的には、石炭、石油、天然ガスなどの化石燃料の燃焼、自動車排出、産業排出、家庭でのバイオマス燃焼（薪、農業残渣）、および廃棄物焼却などの主要な PAHs 排出源を詳細に分類し、それぞれの排出寄与を算出している。このような詳細な分類により、都市域や工業地域における局所的な排出と、農村地域や森林火災などの広域的な排出の双方を考慮することが可能となっている。

この排出データは、CMAQ モデルの計算に適用するため、空間解像度を調整し、モデルのグリッドに適合させる処理が行われた。具体的には、猪俣ら（2017）のインベントリでは、0.5° ×0.5° の解像度で排出量を提供しているが、本研究では CMAQ のシミュレーション領域に適応するために、排出データを 27 km 解像度の格子にリサンプリングしている。さらに、月ごとの排出データを用いることで、季節変動を考慮した PAHs の輸送・沈着シミュレーションが可能となった。

CMAQ における排出データの適用に際しては、大気輸送モデルとの整合性を確保するため、WRF（Weather Research and Forecasting）モデルによる気象場の補正を加えた上で、排出フラックスの補正が行われた。この補正は、地表面風速や混合層高度などの気象要因を考慮し、実際の排出がどの程度大気中に拡散するかを再現するために不可欠な処理である。また、CMAQ に実装された乾性沈着および湿性沈着スキームに適用するために、ガス相および粒子相の排出成分の比率を考慮した処理が行われた。

猪俣ら（2017）の排出インベントリを適用することで、CMAQ のシミュレーションでは、東アジア域における PAHs の挙動をもとにした POPs の排出・輸送・沈着の時空間変動を詳細に解析することが可能となった。特に、乾性沈着と湿性沈着の相対的な寄与、および異なる排出源からの寄与を評価する。本研究では、CMAQ を用いて、POPs の都市域での挙動を解析し、その結果を全球スケールの

CHASER モデルの結果と比較することで、異なる空間スケールにおける POPs の輸送と沈着のメカニズムを明らかにすることを目的とした。CMAQ の利点として、高い空間解像度を持ち、都市スケールの汚染物質の分布を詳細に解析できる点が挙げられる。しかし、全球スケールでの長距離輸送を解析するには適しておらず、広範囲の大気輸送過程を評価するためには、全球スケールのモデルと比較する必要がある。そのため、本研究では CMAQ の結果と CHASER のシミュレーション結果を比較し、それぞれのモデルが POPs の輸送プロセスをどのように再現するか 2010 年の過去の濃度分布において評価した。

i-2.2 CHASER の概要と計算手法

CHASER（Chemical Atmospheric General Circulation Model for Studies of Atmospheric Environment and Radiative Forcing）は、全球スケールの大気化学輸送モデルであり、MIROC（Model for Interdisciplinary Research on Climate）の一部として開発された（Sekiya et al., 2018）。CHASER は、大気化学過程、大気輸送、気候変動の相互作用を考慮しながら、全球スケールの汚染物質の輸送と変質を解析することを目的としている。このモデルは、窒素酸化物（NOx）、二酸化硫黄（SO_2）、揮発性有機化合物（VOCs）などの汚染物質の化学反応を詳細に考慮し、オゾンや硝酸塩の生成過程を再現するための化学スキームが導入されている。

CHASER は、全球スケールでの沈着プロセスを詳細に解析するために、湿性沈着と乾性沈着のプロセスを考慮している。湿性沈着は降水による洗浄効果を通じて物質が除去されるプロセスであり、乾性沈着は地表や植生への直接的な吸着を通じて物質が取り除かれるプロセスである（Sekiya et al., 2018）。また、CHASER は、大気中の粒子状物質（SPM）との相互作用を考慮し、エアロゾルへの取り込みや沈着プロセスをシミュレーションすることが可能である。

本研究では、CHASER のシミュレーションのために、EDGAR の SPM のインベントリを基とし、UV-328 への寄与が少ないと思われる項目を修正している。詳細は下記のとおりである。

本研究では、CHASER モデルを用いた UV-328 の輸送と沈着の解析に際し、排出源として適切なインベントリカテゴリーを選定した。UV-328 は、紫外線吸収剤として広く利用されており、主にプラスチック製品、塗料、コーティング剤に含まれる。そのため、環境中での排出経路としては、製品の劣化、使用過程での放出、廃棄物処理時の排出など、多様なプロセスが関与している。本研究では、UV-328 の排出源をより現実的に評価するために、以下のカテゴリーを選定した。

・道路輸送（Road transportation no resuspension / Road transportation resuspension）

UV-328 は、自動車の塗装やプラスチック部品の劣化、タイヤの摩耗により、大気中に放出される可能性がある。自動車の外装塗装には紫外線による劣化を防ぐ目的で UV-328 が使用されているため、時間の経過とともに塗膜の摩耗や微粒子の放出が発生する。また、車内のプラスチック部品（ダッシュボードや内装部品など）にも UV-328 が添加されており、温度変化や機械的摩耗によって微細な粒子として環境中に放出される可能性がある。さらに、タイヤには耐候性を向上させるために UV-328 が含まれている場合があり、走行時の摩耗によって細かいゴム粒子とともに排出される。これらの排出メカニズムを考慮し、本研究では、道路輸送に関連する 2 つのカテゴリーを採用した。

「Road transportation no resuspension」は、自動車そのものからの UV-328 排出に着目したカテゴリーであり、塗装の劣化や部品の摩耗が主な排出経路である。一方で、「Road transportation resuspension」は、走行による路面の巻き上げによって UV-328 が再浮遊する可能性を考慮したカテゴリーであり、既に環境中に沈着した UV-328 が再び大気中へ移動するプロセスを含んでいる。

・化学産業（Chemical processes）

UV-328 は、化学工業において紫外線吸収剤としてプラスチック添加剤や塗料の成分として製造されるため、その生産過程において環境中への排出が発生する可能性がある。具体的には、化学製品の合成・加工・混合の過程で、微細な粒子が工場の換気システムを通じて外部へ排出されることが考えられる。また、製造中に廃棄される未使用原料や副産物に含まれる UV-328 が、大気や水系に漏出する可能性もある。このような点を考慮し、化学製造プロセスを含む「Chemical processes」カテゴリーを選定した。

・溶剤および製品使用（Solvents and products use）

UV-328 は、塗料やプラスチック製品の使用中に環境中へ放出される可能性がある。例えば、UV-328 を含む塗料は、自動車、建築材料、電気・電子機器、家具などに使用されるが、これらの製品が屋外環境に晒されることで、劣化・摩耗により UV-328 が徐々に放出される。特に、紫外線や気温変化による経年劣化が進むと、塗料やプラスチックの表面から UV-328 が大気中へ蒸発したり、微粒子として剥離することがある。このような製品使用中の排出を考慮し、「Solvents and products use」を排出インベントリに含めた。

・固形廃棄物埋立（Solid waste landfills）

使用済みのプラスチック製品やコーティング材を含む廃棄物が埋立処理される際に、UV-328 が環境中に放出される可能性がある。プラスチック製品の分解が進行すると、埋立地内で微細なプラスチック粒子が生成され、それに伴って UV-328 が徐々に大気中や土壌へ移動することが考えられる。また、埋立地では、降水によって UV-328 が溶出し、地下水や周辺環境に拡散する可能性もある。特に、高温・高湿度の条件下では、UV-328 の揮発や移動が加速するため、長期的な環境影響を考慮する必要がある。本研究では、このような埋立地からの排出を評価するために、「Solid waste landfills」カテゴリーを選定した。

・固形廃棄物焼却（Solid waste incineration）

UV-328 を含むプラスチック製品や塗料は、廃棄物処理の過程で焼却されることが多い。焼却処理中に高温環境下で分解が進むと、一部の UV-328 がガス相へ移行し、大気中へ放出される可能性がある。特に、不完全燃焼が発生した場合、UV-328 の完全分解が達成されず、粒子状または気体状の形で排出されることが考えられる。さらに、焼却灰や飛灰に UV-328 の残留が確認される可能性もあるため、大気への排出のみならず、二次的な環境への影響も懸念される。このような排出経路を考慮し、本研究では「Solid waste incineration」カテゴリーを選定した。

これにより、CHASER のシミュレーションでは、全球スケールの排出特性を考慮しながら、POPs の長

距離輸送の影響を評価することが可能となった。本研究では、大気中の濃度分布の他、2018 年の大気測定データを用いて、SPM 中の UV-328 の濃度を求め、それに基づいて沈着フラックス（μg/m²/day）を算出した。沈着フラックスの算出には、大気中の SPM の質量濃度、UV-328 の粒子への分配比、降水量、沈着速度などのパラメータを考慮した。特に、UV-328 の粒子分配比については、過去の研究で報告されている数値を参考にしながら、気温や相対湿度の影響を考慮し、粒径ごとの沈着挙動を推定した。

CHASER の利点は、全球スケールでの大気輸送を評価できる点にあり、長距離輸送の影響や大気化学反応を伴う POPs の変質プロセスを詳細に解析できることである。しかし、都市スケールの局所的な大気質を解析するには解像度が十分ではなく、都市レベルの大気汚染解析には適していない。そのため、本研究では、CHASER と CMAQ のシミュレーション結果を比較し、それぞれのモデルが POPs の輸送と沈着をどのように異なる視点から捉えているかを評価した。

ii. ホットスポットに係る文献調査

本研究では、メトキシクロル、UV-328、デクロランプラスの 3 物質に焦点を当て、それらの環境中での残存性や分解特性に関する文献調査を実施した。特に、これらの化学物質が本当に環境中で分解されないのかを明らかにするために、光分解性、加水分解性、生物分解性の観点から過去の実験データや研究成果を収集し、評価を行った。また、これらの物質がホットスポットを形成する可能性について、既存の研究や政府機関の報告書を基に、北欧や極域以外の地域にも分布する可能性があるかを検討した。そのため、文献レビューを通じて、特定地域における POPs（Persistent Organic Pollutants）の濃縮傾向や、環境条件との関連性を評価することを目的とした。

メトキシクロル、UV-328、デクロランプラスの 3 物質が環境中で分解されるかどうかを評価するために、光分解性（Photodegradation）、加水分解性（Hydrolysis）、生物分解性（Biodegradation）３つの観点から、過去の研究を調査した。環境中の化学物質の運命は、これらの分解過程によって大きく左右されるため、それぞれの分解プロセスについて、室内実験やフィールド観測に基づいた研究結果をレビューし、総合的な評価を行った。

光分解性に関しては、これらの化学物質が太陽光の紫外線照射を受けた際の分解挙動を調べるために、過去の室内実験のデータを収集した。特に、UV-328 は紫外線吸収剤であるため、光による分解が抑制される可能性があり、他の物質と比較して光分解されにくいのかを明らかにするための研究を重点的にレビューした。メトキシクロルやデクロランプラスについても、それぞれの化学構造が光分解に対してどの程度の耐性を示すのかを評価するために、室内光分解実験の結果を収集し、自然環境下での光分解速度との比較を行った。

加水分解性については、これらの物質が水環境中でどの程度分解するのかを評価するために、過去の水中分解試験の結果を調査した。加水分解は、水の pH や温度に大きく依存するため、さまざまな環境条件下での分解速度に関する研究を集め、特に淡水・海水環境での違いについても評価を行った。また、UV-328 やデクロランプラスが親油性の特性を持つことから、加水分解が起こりにくい可能性があると考えられ、それを裏付ける実験結果があるかどうかを重点的に調査した。

生物分解性については、微生物による分解の可能性を評価するために、土壌環境や水環境中の微生物分解試験に関する研究を収集した。POPs は一般的に微生物による分解が遅いため、これらの物質が土壌中や堆積物中で長期間残存する可能性があるかどうかを評価するために、好気的および嫌気的条

件下での分解試験の結果を比較した。また、分解に関与する微生物の種類や、特定の微生物群がこれらの物質を分解できるかについても調査し、環境中での分解ポテンシャルを考察した。

さらに、メトキシクロル、UV-328、デクロランプラスは、環境中で長期間残存する可能性があることから、特定の地域に高濃度で蓄積する「ホットスポット」が形成される可能性がある。本研究では、これらの物質が北欧や極域以外の地域にもホットスポットを形成する可能性を評価するために、既存の研究論文や政府の報告書のレビューを行った。特に、日本国立環境研究所（NITE）や欧州化学物質庁（ECHA）、米国環境保護庁（EPA）などの政府機関が発表した報告書を調査し、過去の観測データやモニタリングデータの中に、これらの物質が高濃度で検出された事例があるかどうかを確認した。

ホットスポットの形成には、物質の物理化学的特性（揮発性、親水性・親油性、沈着特性）や、気象・地形的要因（風向、降水量、気温、地形など）が大きく関与する。既存の研究では、POPs の長距離輸送の結果として北極圏や北欧の寒冷地での濃縮が報告されているが、本研究では、それらの地域以外にも高濃度に蓄積する可能性がある地域を特定することを目的とした。特に、熱帯地域や沿岸都市部、産業排出の多い地域において、これらの物質が局所的に蓄積する可能性を示唆する研究をレビューした。

また、POPs は一般的に低温環境で分解が遅くなるため、従来は北極圏などの寒冷地域がホットスポットとなることが多く報告されてきた。しかし、近年の研究では、都市部や工業地帯、特定の生態系（湖沼、湿地、沿岸域）においても POPs の蓄積が確認されており、これらの地域が新たなホットスポットの候補として浮上している。そのため、本研究では、都市部での PAHs やプラスチック由来の汚染に関する論文や、海洋汚染に関連する報告書を調査し、メトキシクロル、UV-328、デクロランプラスがそれらの環境中にどの程度蓄積する可能性があるのかを検討した。

特に、UV-328 はプラスチックの添加剤として使用されることから、プラスチックごみの多い地域（沿岸部や海洋流入域）での蓄積が懸念される。また、デクロランプラスは難燃剤として広く利用されており、電子廃棄物処理場や焼却施設の周辺での濃縮が起こる可能性が指摘されている。メトキシクロルは農薬として使用されていた過去があり、農業地域の土壌や水系に蓄積する可能性がある。これらの観点を基に、ホットスポットの形成に関する既存の研究を総合的に評価し、特定の地域における高濃度蓄積の可能性を検討した。

iii. 低緯度から運搬された POPs 等の捕集および濃度等の測定

iii-1. 低緯度から運搬された POPs の捕集地点としての波照間の選定理由

本研究では、低緯度地域から運搬される POPs の捕集地点として、波照間島を選定した。波照間島は、日本最南端の有人島であり、北緯 24 度に位置する。その地理的特性から、大気輸送による POPs の移動を捉えるのに適した観測地点であると考えられる。本章では、波照間島を選定した理由について、気象学的条件、周辺環境の特性、大気輸送経路の影響、既存の観測データを基に詳しく説明する。

波照間島は、東アジアから東南アジアにかけての広範な地域からの大気輸送を受ける位置にある。特

に、冬季のモンスーン（北東季節風）と夏季の南西風（南西モンスーン）の影響を強く受ける地域である。冬季には、中国大陸や朝鮮半島、東シベリア方面からの冷たい北東風が卓越し、大気中の POPs を含む気団が日本列島を南下しながら波照間島に到達する。一方、夏季には南西モンスーンの影響で、東南アジアや南アジアの熱帯地域からの大気輸送が強まり、これに伴い低緯度地域で発生した POPs が波照間島へ運ばれる可能性がある。このように、波照間島は年間を通じて異なる大気輸送経路の影響を受けるため、低緯度から運搬される POPs の動態を明確に捉えることが可能である。

また、波照間島は産業活動の影響が比較的少ない地域であり、バックグラウンド濃度の測定に適している。一般に、都市部や工業地帯では、地域起源の排出源が影響するため、大気中の POPs の濃度は局所的な排出パターンによって大きく変動する。しかし、波照間島は大規模な産業施設がなく、都市部からも離れているため、局所的な排出の影響を最小限に抑えつつ、長距離輸送された POPs の挙動を捉えることができる。特に、波照間モニタリングステーションは島の最南端に位置し、周囲に大気汚染の主要な発生源がないため、測定データが長距離輸送の影響を受けやすい。

さらに、波照間島周辺の海洋環境も、POPs の輸送メカニズムを解析する上で重要な要素である。島の南側には西太平洋が広がっており、ここでは赤道付近からの海洋大気輸送の影響が強いと考えられる。海洋からの影響が少ない内陸部とは異なり、波照間島では海上を移動する気団の性質を直接観測できるため、POPs の輸送・沈着に関する研究に適している。また、POPs の輸送経路の解析には、大気サンプリングとともに、気象条件や気団の履歴データの分析が不可欠である。波照間島では、過去の研究でもエアロゾル中の POPs の濃度測定が行われており、既存のデータと比較しながら、低緯度地域からの輸送プロセスを解明することができる。

過去の観測データにおいても、波照間島は POPs の長距離輸送を示す興味深い特徴を持っている。例えば、日本国内の他のモニタリング地点と比較すると、波照間島では特定の POPs の濃度が季節的に変動する傾向が報告されている。特に、冬季における中国大陸からの輸送、および夏季における東南アジア地域からの影響が濃度変動に寄与していると考えられている。このような背景から、波照間島は低緯度地域から運搬される POPs の捕集地点として、気象学的・地理的・環境的な条件が整った理想的な観測地点であると判断し、本研究ではこの地点を選定した (図 1)。

図 1. 波照間島の位置

iii-2. 大気中の物質の捕集について

本研究では、POPs とモデルのトレーサーとして用いる SPM の捕集を波照間島の国立環境研究所管轄のモニタリングステーション波照間にて行った。POPs 3 物質の捕集は 10 月、また 11 月には POPs 3 物質に加え、レガシーPOPs 8 物質と SPM の捕集をそれぞれ、ハイボリウムエアサンプラーを用いた。

POPs の捕集方法について

本研究では、大気中の POPs の正確な定量分析を行うために、捕集後の試料に対して適切な前処理を実施した。特に、試料の清浄化および POPs の効率的な抽出を目的として、アセトン洗浄処理を行い、その後ソックスレー抽出法を用いて POPs を試料から回収した (図 2)。

捕集に使用した石英繊維フィルタ、ポリウレタンフォーム (PUF)、活性炭素繊維フェルトなどのろ過・吸着材は、測定前にアセトンによる洗浄処理を実施した。この洗浄処理は、事前に吸着材に含まれる可能性のある有機不純物を除去し、バックグラウンドノイズを低減するために不可欠である。特に、PUF や XAD 樹脂といった吸着材は、製造過程で微量の有機化合物を含んでいる場合があるため、分析の精度を向上させるために、適切な洗浄を行う必要がある。アセトンは、極性・非極性両方の汚染物質を除去できるため、試料の前処理に広く用いられている。捕集量は、補正後の値が 1000 L/m^3 となるように制御し、柴田のハイボリウムエアサンプラー(HV-RW 型)を用いた。

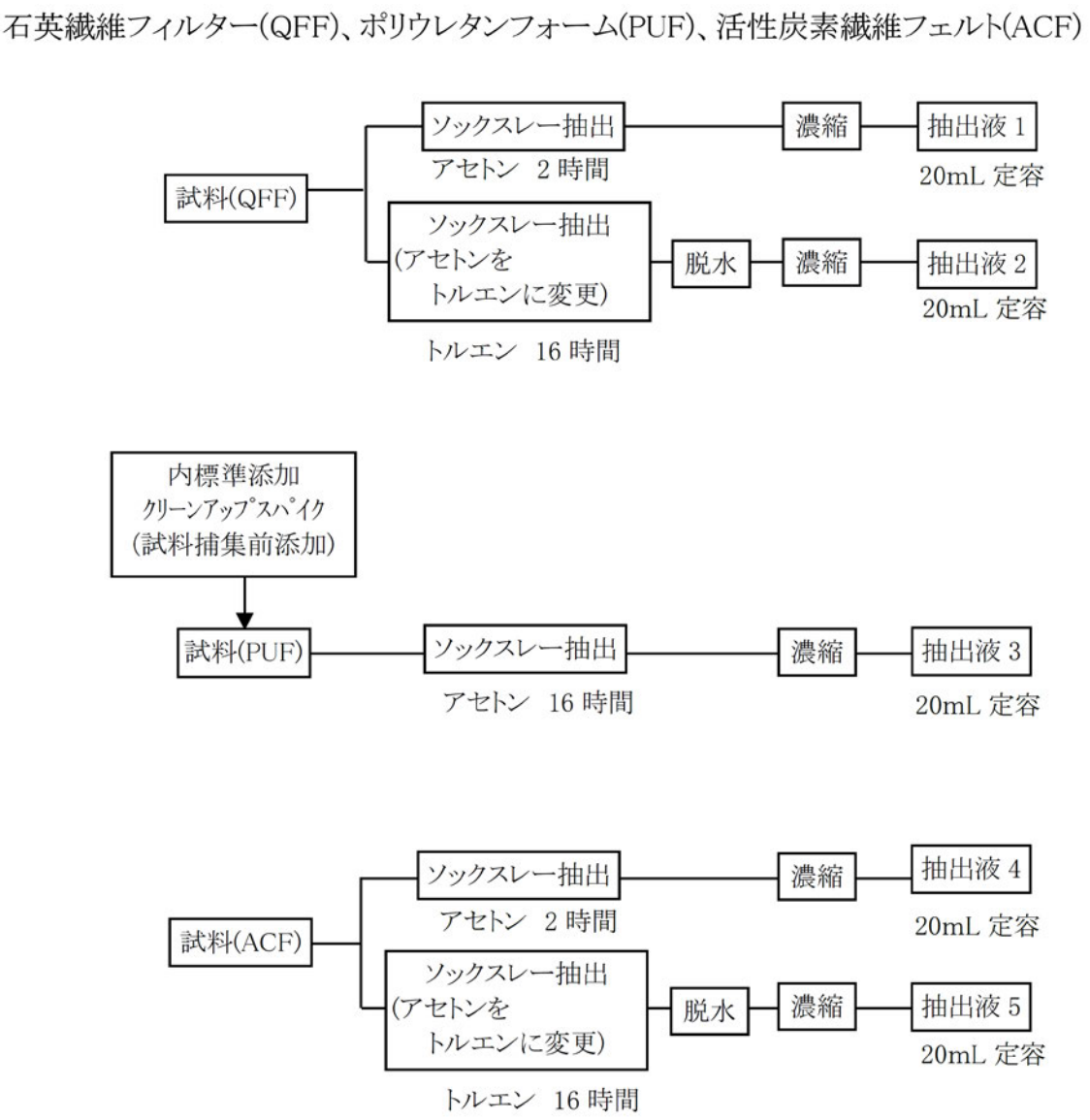


図 2. POPs 捕集フィルターの前処理方法

SPM の捕集方法について

本研究では、大気中の SPM（浮遊粒子状物質）に含まれる重金属成分を正確に測定するために、柴田科学製の分粒装置を備えたハイボリウムエアサンプラー（HV-500）を用いて捕集を実施した。HV-500 は、高流量での長時間サンプリングが可能であり、安定した試料捕集を行うことができる。本研究では、24 時間連続捕集を行い、大気中の SPM の粒径別組成を評価した。

捕集には、柴田科学製の分粒装置を用いた。この装置は、異なる粒径の粒子を分離できるため、SPM に含まれる重金属を選択的に捕集することが可能である。特に、SPM は UV-328 と挙動が類似していることが報告されているため、その詳細な捕集と分析が必要不可欠である。

捕集作業は、HV-500 を用いて 24 時間連続で行い、一定の流量（約 500L/min）を維持しながら大気を吸引した。捕集材には PTFE（ポリテトラフルオロエチレン）フィルタを使用した。PTFE フィルタは、化学的に安定であり、微細粒子の捕集効率が高いことから、重金属の分析に適している。

iii-3. 分析方法

iii-3.1. POPs の濃度定量方法

以下に、POPs 精製の手順を示す (図 3、４)。

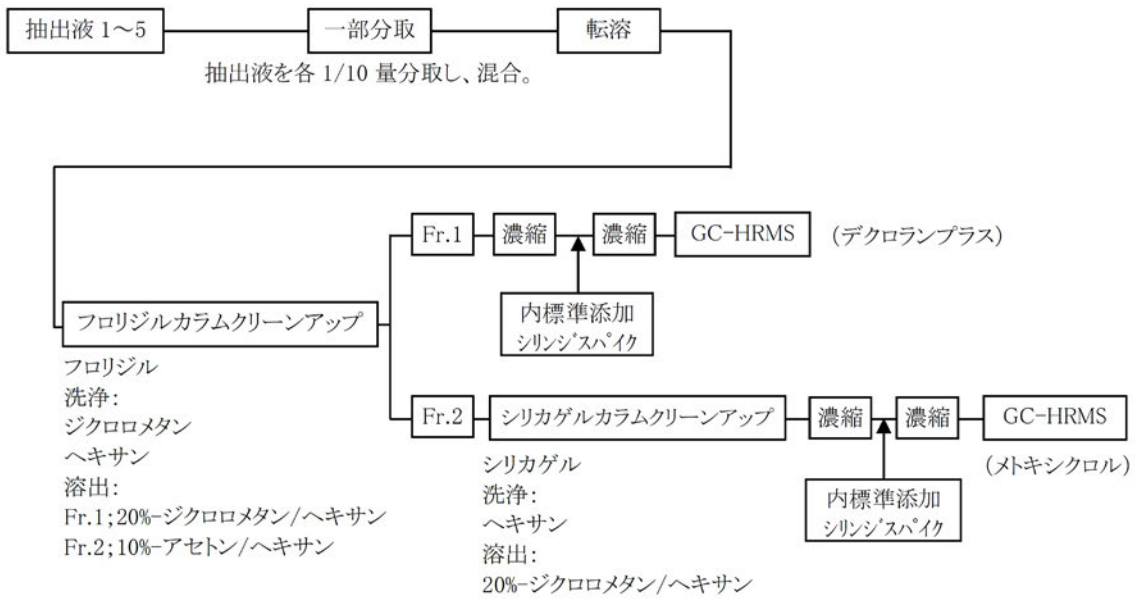


図 3. デクロランプラス、メトキシクロルの精製方法

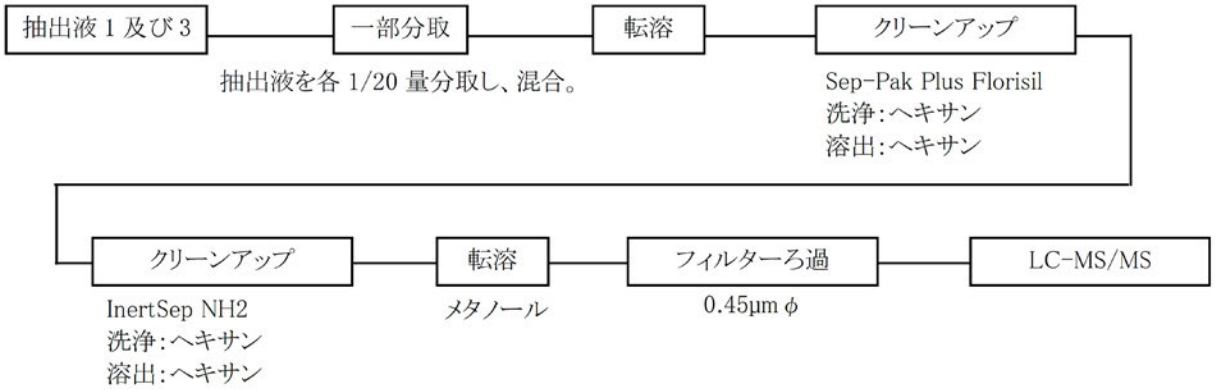


図 4. UV-328 の精製方法

デクロランプラス、メトキシクロルについては、Thermo Fisher Scientific 製 ガスクロマトグラフー質量分析計を用い、UV-328 については、Nexera X2 （島津製作所）と LCMS-8060 （島津製作所）を組み合わせて測定した。

デクロランプラスとメトキシクロルは、揮発性の低い有機塩素系化合物であり、ガスクロマトグラフ質量分析法（GC-MS）による測定が適している。そのため、本研究では、Thermo Fisher Scientific 製の GC-MS を用い、カラム分離による高精度な定量分析を実施した。

まず、試料の前処理としてソックスレー抽出を行い、アセトン-ヘキサン混合溶媒を用いて POPs を試料から抽出した。その後、ロータリーエバポレーターを用いて抽出液を濃縮し、硫酸処理およびシリカゲルカラム精製を実施して不純物を除去した。精製後の試料を、窒素ガス下でさらに濃縮し、n-ヘキサンを添加して分析用溶液を調整した。分析は、分離能の高い極性キャピラリーカラムを用いて GC により試料成分を分離し、その後、質量分析計（MS）により選択イオンモニタリング（SIM）法を用いて各化合物を定量した。カラムには、DB-5ms（長さ 30 m、内径 0.25 mm、膜厚 0.25 µm）を使用し、キャリアガスとして高純度ヘリウムを用いた。カラム温度プログラムは、初期温度 80℃から、10℃/min の速度で 300℃まで昇温し、最終温度を 5 分間保持する設定とした。

UV-328 は、芳香族アミン構造を持つ紫外線吸収剤であり、ガスクロマトグラフィーではなく液体クロマトグラフィー（LC）による測定が適している。そのため、本研究では、Nexera X2（島津製作所製の高速液体クロマトグラフ）と、LCMS-8060（島津製作所製の三重四重極型質量分析計）を組み合わせた LC-MS/MS による分析を行った。

〔LC 部〕 高速液体クロマトグラフィー（LC）条件

本研究では、逆相クロマトグラフィー（Reverse Phase Chromatography）を採用し、UV-328 を高効率に分離するために InertSustain C18 カラム（15 cm × 2.1 mm ID、3 µm, GL サイエンス製）を用いた。このカラムは、親油性の高い化合物の分離に適しており、UV-328 の保持時間を安定させ、シャープなピークを得ることが可能である。

移動相として、5mM 酢酸アンモニウム/メタノール（5/95, v/v）を使用し、適度なイオン化効率と分離

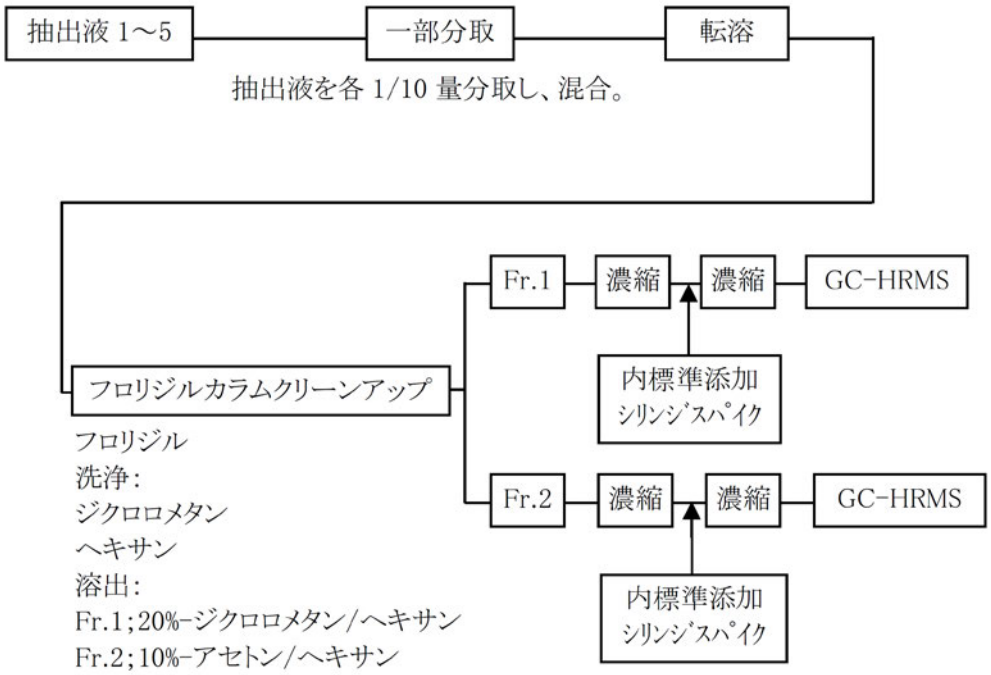
能を確保した。酢酸アンモニウムは、UV-328 の負イオン化を助け、LC-MS/MS での感度を向上させる役割を果たす。移動相の流速は 0.2 mL/min に設定し、分離効率を最適化した。

カラム温度は 40 ℃に設定し、安定した保持時間と再現性の確保を図った。さらに、試料の導入量は 10 μL に設定し、UV-328 の適切なピーク形状を維持するとともに、定量の直線性を向上させた。

〔MS 部〕 質量分析計（MS）条件

UV-328 の測定には、**三重四重極型質量分析計（LCMS-8060, 島津製作所）**を用いた。本装置は、高感度かつ高速分析が可能であり、UV-328 の微量定量に適している。**イオン化法にはエレクトロスプレーイオン化（ESI）を採用し、負イオンモード（ESI negative）**で測定を行った。負イオン化を選択した理由は、UV-328 が負イオン状態で高いイオン化効率を示すためであり、これにより感度を向上させた。また、インターフェース温度は 300 ℃、デソルベーションライン（DL）温度は 250 ℃、ヒートブロック温度は 400 ℃ に設定し、最適なイオン化条件を維持した。これにより、測定の再現性を向上させ、試料マトリックスによる干渉を最小限に抑えた。

塩素系の農薬については図 5 に示すとおり、精製を行った。



Fr.1 に溶出する物質:HCB、DDT 類、クロルデン類、
Fr.2 に溶出する物質:cis-ヘプタクロルエポキシド

図 5. 塩素系農薬類の POPs の精製方法

本研究では、塩素系農薬類の正確な定量分析を行うため、ガスクロマトグラフー質量分析計（GC-MS）を用いた。特に、精度の高い定量を実施するために、Waters/MICROMASS 製 AutoSpec － Ultima および Thermo Fisher Scientific 製 DFS の 2 種類の GC-MS を使用し、以下の測定条件に従って分析を行った。

Waters/MICROMASS 製 AutoSpec － Ultima を用いた測定

AutoSpec － Ultima（Waters/MICROMASS 製 高分解能ガスクロマトグラフー質量分析計）は、塩素系農薬の精密な分離と高分解能分析を可能にする装置である。GC 部には Agilent Technologies HP-6890 を使用し、試料の分離を行った。

〔GC 部〕 ガスクロマトグラフ条件

本研究では、塩素系農薬類の分離に適した**DB-17HT（Agilent Technologies/J&W 製）の fused silica capillary column（30 m × 0.32 mm ID, 0.15 μm）**を使用した。このカラムは、塩素系農薬の保持時間を安定させ、ピーク分離能を向上させるために選択された。

〔MS 部〕 質量分析計条件

質量分析には、EI（電子イオン化）法を採用し、イオン化電圧を 35 eV に設定した。イオン化電流は 600 μA とし、安定したイオン化を実現した。また、加速電圧は 8 kV に設定し、高感度な検出を可能にした。

温度条件は、イオン源温度 300℃、インターフェース温度 300℃に設定し、試料の揮発性成分を適切にイオン化し、カラムから MS へのスムーズな導入を確保した。分解能は 10,000 以上（10% valley）とし、高精度な定量分析を可能にした。

Thermo Fisher Scientific 製 DFS を用いた測定

本研究では、Thermo Fisher Scientific 製 DFS（高分解能ガスクロマトグラフー質量分析計）を用いて、塩素系農薬類の定量を行った。GC 部には Thermo Fisher Scientific TRACE1310 を使用し、試料の分離と分析を行った。

〔GC 部〕 ガスクロマトグラフ条件

GC 部では、塩素系農薬類の効率的な分離のために DB-5MS（Agilent Technologies/J&W 製） fused silica capillary column を使用した。このカラムは、非極性の固定相を持ち、塩素系農薬類の分離能が高いため、選択された。

本研究では、DFS を用いた測定条件の詳細については、AutoSpec － Ultima と同様の温度プログラムを採用し、注入量、カラム温度プログラム、分解能の最適化を行った。DFS は、高分解能 MS を搭載しており、環境試料中の微量成分の定量に適しているため、塩素系農薬類の高精度な定量に使用した。

iii-3.2. 重金属の濃度定量方法

誘導結合プラズマ質量分析法 (ICP-MS)

本研究では、エアロゾル粒子中の重金属を測定するために、酸分解による試料の溶液化を行い、その後 ICP-MS（誘導結合プラズマ質量分析計）を用いた定量分析を実施した。

まず、試料の溶液化を目的として、硝酸、塩酸、フッ化水素酸を用いた酸分解を行った。これにより、エアロゾル粒子を完全に分解し、ICP-MS で測定可能な液体試料とした。溶液試料については、測定のダイナミックレンジ内に適合させるために適切な希釈を施し、最適な濃度に調整した。

測定の過程では、試料溶液をネブライザー（霧化器）によりミスト状に変換し、キャリアガスであるアルゴンとともにプラズマ源へ導入した。ICP（誘導結合プラズマ）は、高周波電磁場によって生成される高温のアルゴンプラズマであり、この中で試料中の成分が効率的にイオン化された。イオン化された試料は、サンプルコーンおよびスキマーコーンを通過し、高真空の質量分析部へ移動した。

質量分析には、四重極質量分析計（QMS）、飛行時間型質量分析計（TOF-MS）、または磁場型質量分析計（Sector Field MS）を用い、質量電荷比（m/z）に基づいて各元素のイオンを分離・検出した。測定では、標準試料を用いて検量線を作成し、未知試料の濃度を定量した。また、マトリックス効果や信号変動を補正するために、内標準元素を添加し、測定の精度を向上させた。

さらに、測定精度を向上させるために、コリジョンセルやリアクションセルを利用し、同重体干渉や多原子イオン干渉を低減する処理を施した。取得した測定データは、バックグラウンド補正およびピーク積分を実施し、元素ごとの濃度を算出した。最終的に、測定の精度を確認しながら、目的とする元素の濃度分布や試料特性の解析を行った。

iii-3.3. 化学種の同定方法 (放射光実験/X 線吸収微細構造解析)

X 線吸収微細構造（XAFS）の電子収量法（Total Electron Yield, TEY 法）の測定手順について説明する。実験は、高エネルギー加速器研究機構で行った。実験方法として特定の元素の吸収端に対応する X 線のエネルギー範囲を設定する。X 線モノクロメーターを調整し、X 線のエネルギーを連続的に変化させながら試料に照射する。試料は導電性のあるものを使用するか、絶縁体の場合は導電コーティングを施し、電荷蓄積を防ぐ処理を行う。試料を真空チャンバー内にセットし、試料表面が X 線ビームに対して適切な角度で配置されるように調整する。TEY 法では、X 線の吸収によって放出されたオージェ電子や二次電子の総数を測定するため、試料表面の電子放出を高感度で検出できる環境を整える必要がある。測定は、試料表面の電子放出による電流変化を検出する方法で行い、試料を接地しながら、流出する電子電流（TEY 信号）を電流計で測定する。試料電流の測定は、試料ホルダーと電流計を接続することで行う。X 線のエネルギーを吸収端付近で変化させながら、試料電流を記録し、得られた信号を X 線のエネルギーに対してプロットすることで、XAFS スペクトルを取得する。スペクトルのノイズ低減のために、複数回の測定を行い、データを平均化する。絶縁体試料の場合、電荷蓄積の影響を抑えるために、低エネルギー電子銃を使用し、試料表面を中和しながら測定する。測定後、取得したスペクトルのバックグラウンド補正や正規化を行い、エネルギー依存性を解析する。これにより、試料表面の局所構造や化学状態を明らかにする。これらの手法では、エアロゾルの表面の化学種の同定に適用することが可能である。

iii-3.4. 微生物解析の DNA 抽出・解析方法

サンプリング地点は、沖縄県八重山郡竹富町波照間島にて 2 試料採取した。1 つは、波照間島の東側にある波照間ステーション近辺の表層の土を採取した。もう 1 つは、波照間島の西側にあるウラピナ浜付近の表層の土を採取した。波照間ステーション近辺の土はサンゴの死骸が混ざっているような状態であった。

2 つの土試料から DNeasy PowerSoil Pro Kit(QIAGEN)を用いて DNA 抽出を行った。得られた DNA 抽出物を PCR 反応により増幅を行った。その際、プライマーは Univ530F、Univ907R を用いた。PCR 反応後、2%アガロースゲルを用いて電気泳動を行い、目的の配列の長さになっているかを確認した。その後、溶液の調整を行い、Flongle (Oxford Nanopore Technologies)を使用し解析を行った。得られたデータは、Emu で解析を行い、SILVA のデータベースを参考にした。

４．結果・考察

i. 優先的な評価が求められる新規 POPs の抽出、多媒体モデルの試行とインベントリーの構築、モデルによる濃度の算出

i-1. 優先的な評価が求められる新規 POPs の抽出

POPs の環境影響を評価する上で、各化学物質の用途と排出経路を明確にすることが重要である。本研究では、各物質の主要な用途と、それに伴う環境中への排出経路を比較した。

デクロランプラスは主に難燃剤として利用されており、電気・電子製品、建築材料、自動車部品などに添加される。この化学物質は高温環境下でも安定性が高く、製品の長寿命化に貢献している。しかし、その耐熱性の高さが環境中での分解の遅さにもつながっており、一度環境に放出されると長期間残存する可能性が指摘されている（Venier et al., 2018）。デクロランプラスの主な排出経路は、製造工程や製品の使用中ではなく、廃棄後のリサイクル処理や廃棄物焼却の段階である。この際、微細な粒子とともに大気中へ拡散する可能性があるが、環境中では主に固体表面や土壌への吸着が支配的であり、SPM との結びつきはそれほど強くないと推定される。

メトキシクロルは、かつて農薬（殺虫剤）として広く利用されていた化学物質であり、その化学的特性は DDT に類似している。特に、農地での散布後に水路を通じて河川や湖沼へと移動し、水生生物や堆積物中に蓄積する可能性が高いと考えられている（ATSDR, 2002）。メトキシクロルは水溶性が DDT よりも高く、大気中よりも水圏での残留が問題視されている。そのため、長距離輸送の主要な経路としては、大気よりも水系を介した拡散が支配的であるとされる（Muir and Howard, 2006）。また、大気中に放出された場合でも、その主な存在形態は気相であり、SPM に強く吸着する傾向は低いと考えられる。

これに対し、UV-328 は紫外線吸収剤としてプラスチック、塗料、コーティング剤などに広く使用されいる。特に、屋外で使用される耐候性プラスチック製品や自動車の外装塗装、電子機器のハウジングなどに多く含まれている（Kameda et al., 2011）。UV-328 の環境中への排出は、製品の使用中だけでなく、劣化や摩耗に伴って微細な粒子とともに放出される点が特徴的である。例えば、屋外に曝露されたプラスチックが紫外線や温度変化によって劣化すると、表面に蓄積した UV-328 が微細なプラスチック粒子とともに環境中に放出される可能性がある。特に、大気中に放出された場合、UV-328 は水に対する溶解度が低く、疎水性が高いため、気相よりも SPM と強く結合しやすい（Odabasi and Cetin, 2012）。これにより、UV-328 はエアロゾル粒子と結合した状態で大気中を輸送され、長距離にわたって移動する可能性がある。

これらの特性を総合すると、デクロランプラスとメトキシクロルはそれぞれ固体廃棄物や水系を主要な移動経路とするのに対し、UV-328 は大気中での粒子相移行が顕著であり、SPM との親和性が高いことが分かる。このような特性を踏まえ、本研究では新規 POPs の中から UV-328 を優先的に評価することとした。

i-2.　化学物質輸送多媒体モデルによる濃度の算出

i-2.1.　CMAQ モデルの結果

図 6 に、CMAQ モデルによる月平均の濃度分布を示す。図は北半球の月別平均の濃度分布の SPM をトレーサーとした UV-328 の濃度を示している。その結果、冬季においては、アジアやアフリカ方面で高濃度の領域が発生している。ただ今回は CMAQ 計算においては、バイオマス燃焼の影響を削除していないため、それらの影響が反映されていると考えられる。アメリカについては、初夏から 11 月にかけて 1 ～5 ug/m^3 の濃度が算出された。

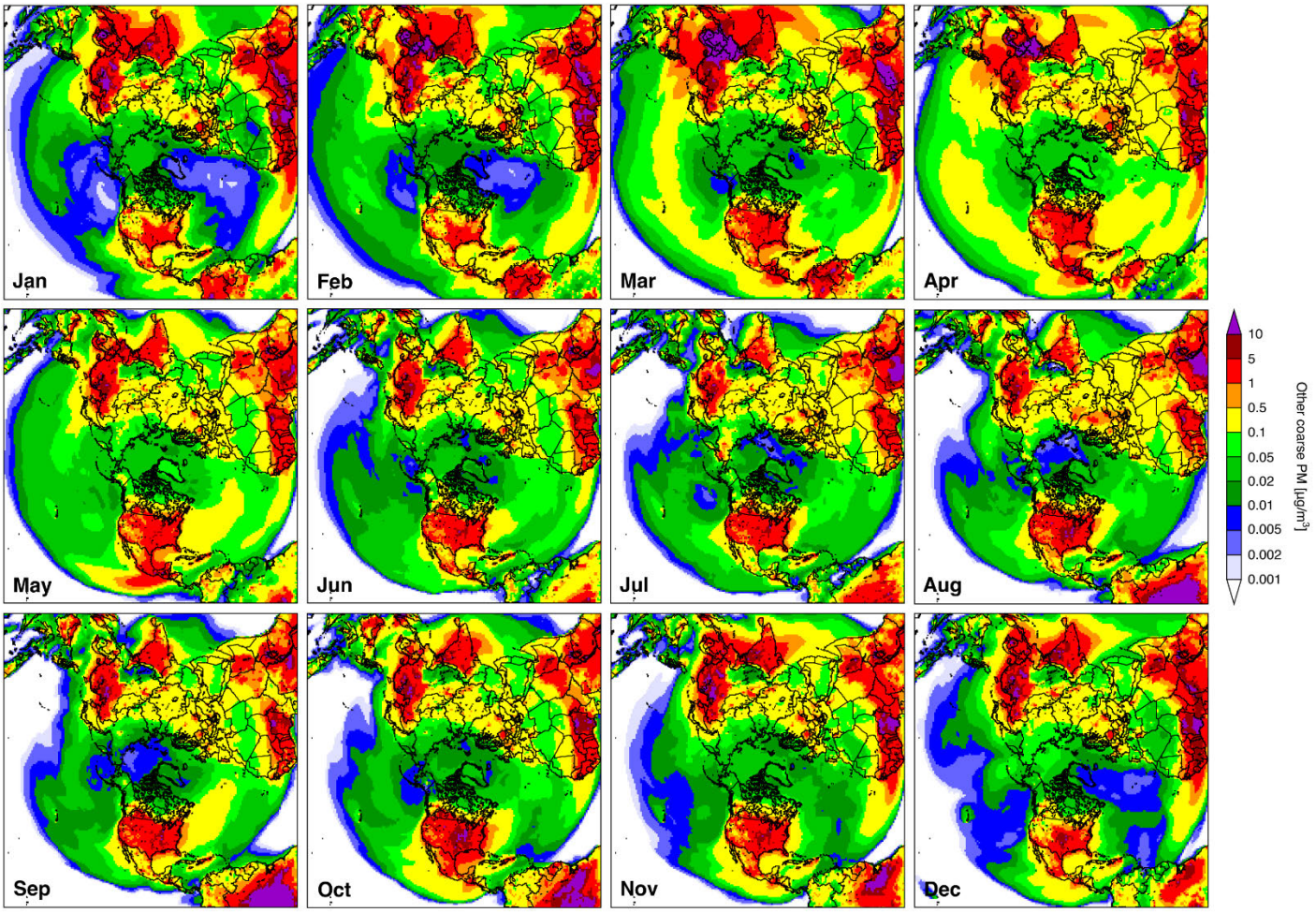


図 6.　CMAQ による月平均の SPM 濃度の分布

図 7 に CMAQ モデルによる年平均の濃度分布を示す。図は北半球の年平均の濃度分布の SPM をトレーサーとした UV-328 の濃度を示している。年平均においても、アフリカ、アジアの赤道付近にホットスポットが発生している。本モデルにおいては、大気中濃度のホットスポットが示されているため、これが沈着した後に再揮発することで、先行研究で報告されているように北欧等の極域付近に堆積物におけるホットスポットが形成されると考えられる。よって SPM 等の粒子に付着し、移動する POPs については、堆積物のホットスポットだけではなく、排出源の大気中の濃度についても着目していくことが重要であることが示唆された。

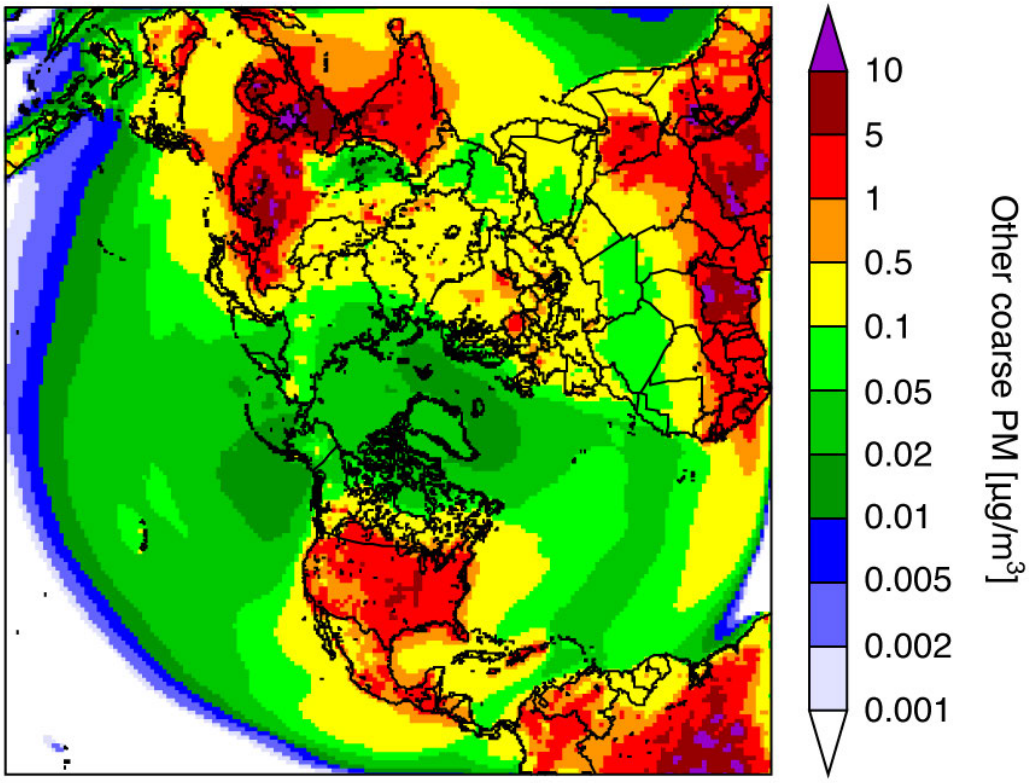


図 7. CMAQ による年平均の SPM 濃度の分布

i-2.1. CHASER モデルの結果

i-2.1.1 評価対象年の選定理由

本研究では、大気中の UV-328 の濃度変動を評価するにあたり、1970 年、2008 年、2018 年のデータを対象として解析を行った。この選定は、排出インベントリの結果を基に、排出源の変遷を考慮したものである。特に、UV-328 が極域や北欧、チベット高原などに難分解性物質として蓄積する特性を持つことを踏まえ、排出量の長期的な変動を評価する必要があるため、1970 年からの排出量推移を考慮することが適切であると判断した。

1970 年から 2007 年にかけて、排出源の中心は日本と北欧に集中していた。この時期は、産業の発展とともに、プラスチック製品の生産と使用が増加し、UV-328 を含む添加剤の環境中排出が増加した時期にあたる。このため、当該期間の排出量が、現在の北欧や極域における UV-328 の蓄積にどの程度寄与しているのかを評価することが重要である。

2008 年以降になると、排出源が東アジア（特に北京）、南米東部、北欧、米国東海岸へと拡大する傾向がみられた。この変化は、経済成長に伴うプラスチック製品の大量生産と消費の増加、および環境規制の違いによる地域間の排出量の変動を反映している。特に、東アジアにおける急激な経済成長と工業化は、UV-328 を含む化学物質の排出を増加させたと考えられる。

2018 年から 2022 年にかけては、排出量が特に目立つ地域として北京付近とブラジル東部が挙げられ、米国東海岸でも一定の排出が継続していることが確認された。この期間において、東アジアおよび南米における産業活動の影響がさらに顕著になり、UV-328 の排出パターンにも大きな変化が見られた。

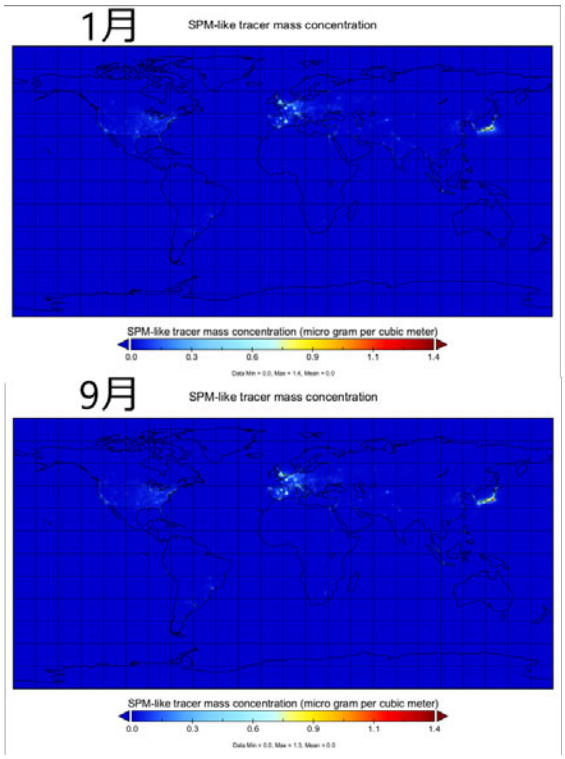
UV-328 は、その難分解性と高い環境残存性により、長距離輸送され極域や高地地域（北欧、チベットなど）に蓄積する性質を持つ。このため、排出量の歴史的変遷を考慮しながら、1970 年からの長期間にわたる排出動向を解析することが、UV-328 の蓄積メカニズムの理解に不可欠である。特に、1970 年以降の排出量の変化が、現在の高緯度・高地地域の環境濃度にどのように影響しているかを明らかにすることが、本研究の目的の一つである。

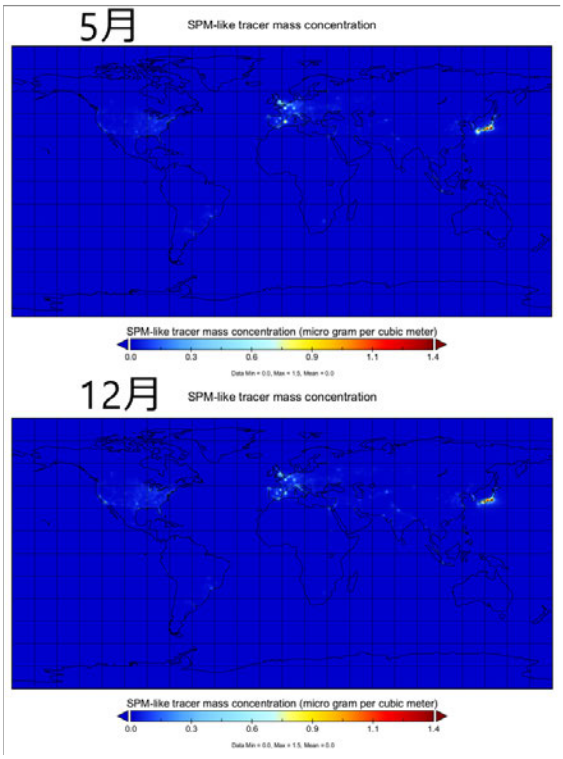
以上の理由から、本研究では 1970 年、2008 年、2018 年を代表年として選定し、排出源の変遷を考慮しながら UV-328 の大気中の濃度分布および、沈着フラックスを算定した。

i-2.1.2 全球規模における大気中濃度の推移

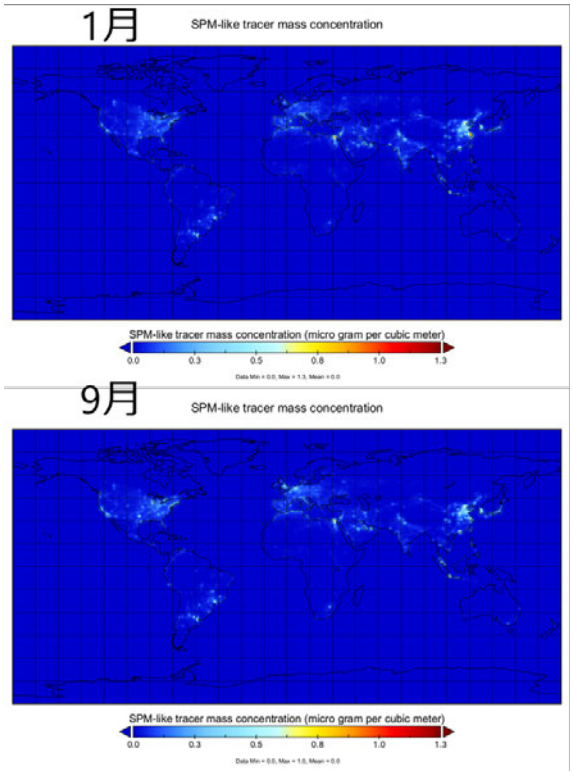
全球規模における大気中濃度の推移　1970、2008、2018 年の (CHASER)の結果を図 8 に示す。

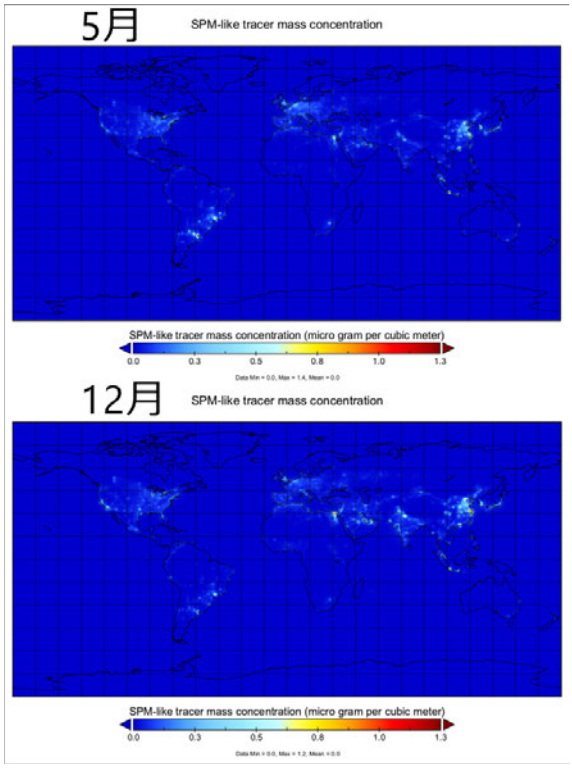
<1970>





<2008>





<2018>

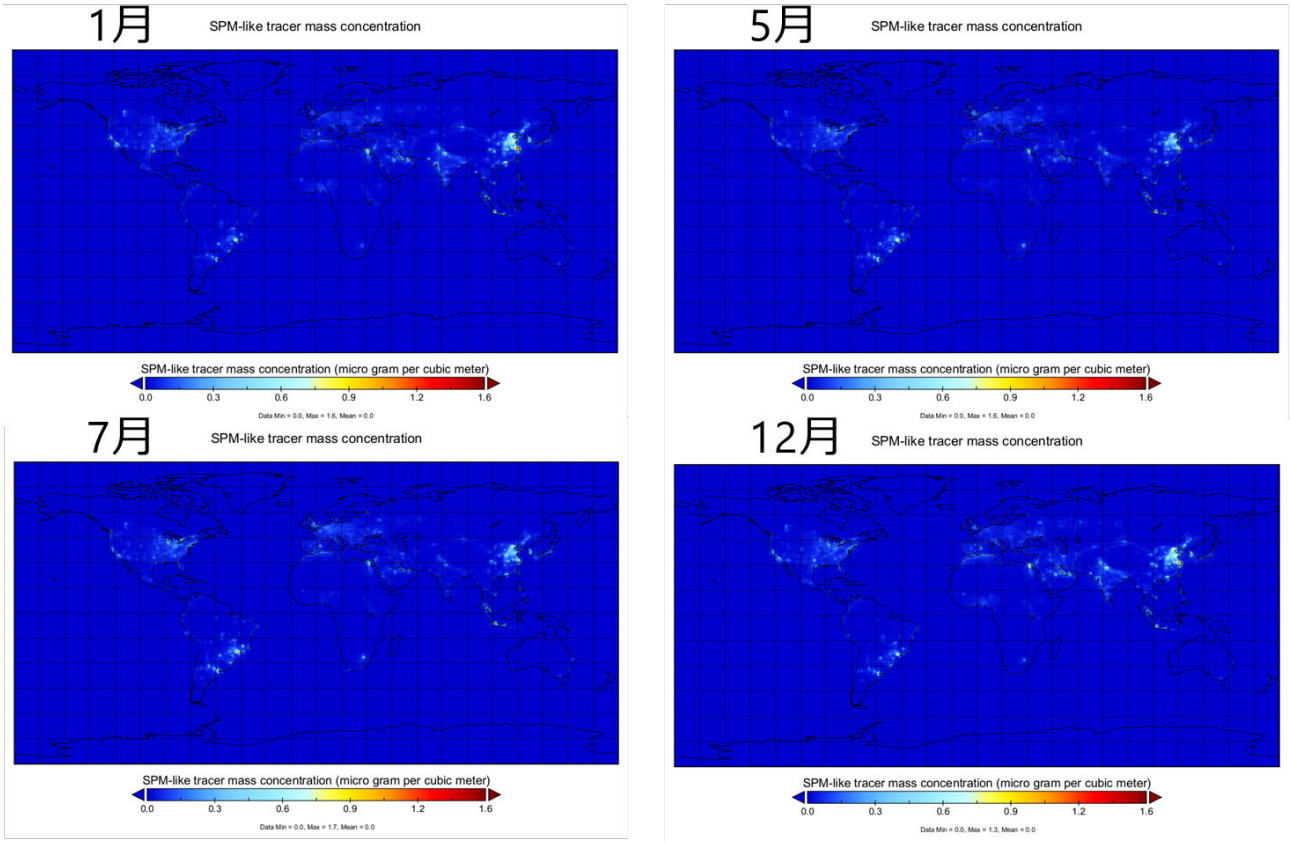


図 8. 1970 年、2008 年、2018 年の全球規模の SPM をトレーサーとした UV-328 の大気中濃度の推移

本研究では、2018 年における大気中の SPM（浮遊粒子状物質）由来の UV-328 の沈着フラックスを算出し、その挙動を評価した。UV-328 は、主にプラスチック製品や塗料の添加剤として使用される化学物質であり、大気中に放出された後、エアロゾル粒子に吸着しながら長距離輸送される可能性が高い。そのため、大気中の UV-328 の動態を理解するためには、エアロゾル中の濃度だけでなく、それがどの程度地表へ沈着するかを評価することが重要である。

UV-328 は、大気中でガス状と粒子状の両形態で存在するが、本研究では特に SPM（粒子状物質）に吸着した UV-328 の沈着フラックスに着目し、その影響を解析した。SPM に付着した UV-328 は、重力沈降、降水による湿性沈着、乾性沈着などのプロセスを経て地表に到達する。これらのプロセスは、気象条件や地理的要因によって大きく変動するため、沈着フラックスの定量化は UV-328 の環境中での挙動を評価する上で不可欠である。

i-2.1.3 全球規模における沈着フラックス分布

2018 年の沈着フラックス量の相対的な分布を図 9 に示す。

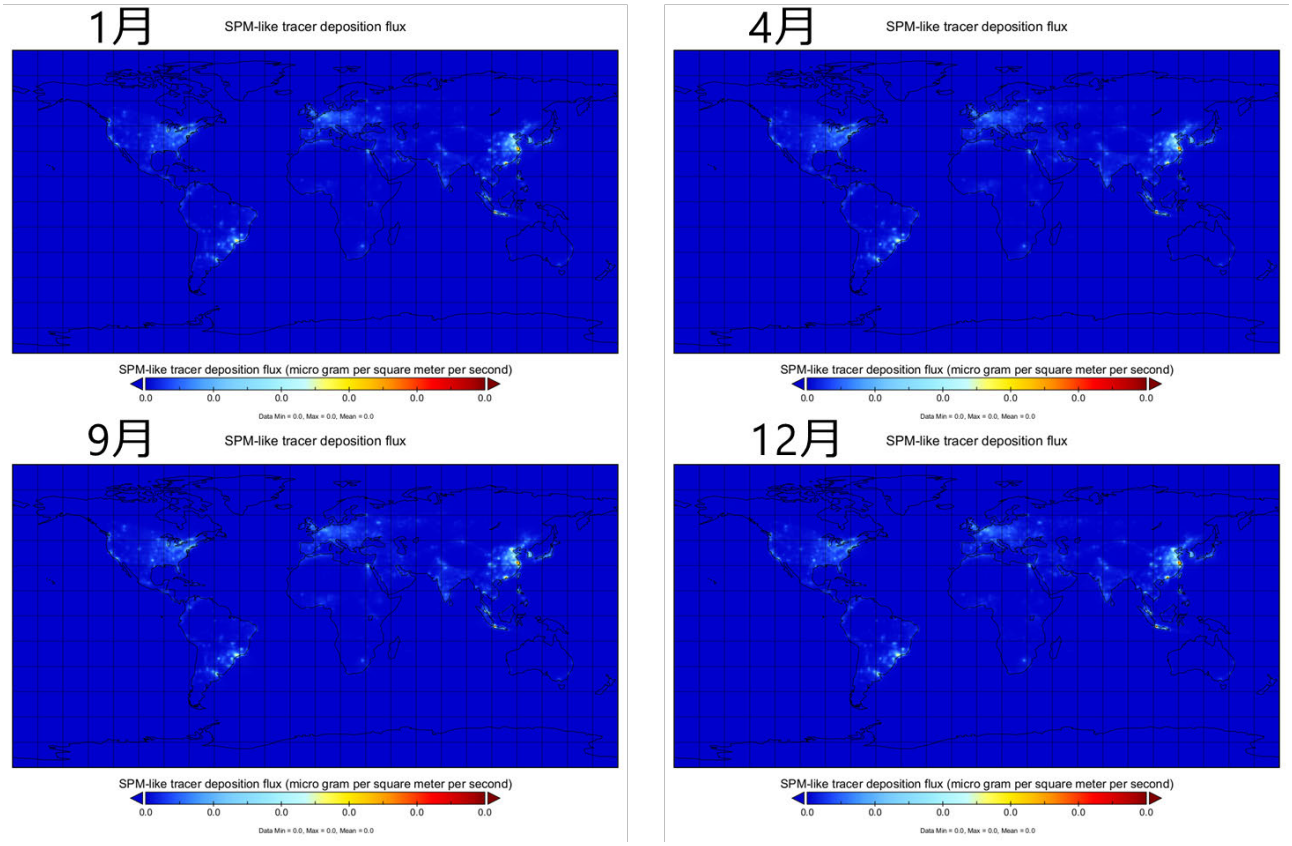


図 9. 2018 年の全球規模の SPM をトレーサーとした沈着フラックス分布

全球における SPM をトレーサーとした UV-328 の濃度分布の経年変化として、各年の推移を検討した。1970 年には、ヨーロッパ地域のイギリス、ドイツ周辺を中心に広範囲で SPM（浮遊粒子状物質）が確認された。特に高濃度が観測されたのは、イギリスやドイツ周辺のヨーロッパ沿岸部であり、スペイン沖では特に高い濃度が記録された。また、日本では東京、兵庫、大阪周辺でも SPM の高濃度が確認された。2008 年には、SPM の分布がさらに拡大し、ヨーロッパではイギリス、ドイツ、イタリア周辺、アジアでは日本、中国、韓国、インドネシア、インド周辺、南米ではブラジルのリオデジャネイロ周辺やアルゼンチン南東海岸、アフリカではエジプトのカイロでも確認された。特に、中国の北京、インドネシアのジャカルタ、エジプトのカイロでは、高濃度の SPM が検出され、大気汚染の深刻化が見られた。2018 年の状況では、SPM の分布地域は 2008 年とほぼ同様であった。しかし、中国の北京、インドネシアのジャカルタ、ブラジル、エジプトのカイロを除く地域では、SPM の濃度が低下し、分布面積も縮小する傾向が確認された。全球的には SPM の濃度が改善傾向にあるものの、一部の都市圏では依然として高濃度の汚染が継続している。高濃度のスポットにおいては、1.2~1.6 μg/m3 の濃度が算出された。特に、中国北東部においては、0.9 μg/m3 の濃度が広く算出されている。

この状況を踏まえ、SPM の管理にはライフサイクル全体を考慮した効果的な対策が引き続き重要であることが考えられる。

沈着フラックスの状況と大気中分布濃度との違いについては、1970 年は、大気中濃度は欧州・日本が高いが、沈着フラックスのホットスポットは日本周辺とスペイン東海上で顕著であった。

2008 年は、大気中濃度は世界的に拡散（北京、ジャカルタ等で高濃度）沈着フラックスも同様に広がるが、北米東部～五大湖周辺、ブラジル東海岸などで沈着が特に顕著（大気中分布とは異なる）であった。

2018 年は、大気中の濃度分布地域は 2008 年とほぼ同じだが、沈着フラックスは中国、インドネシアのジャカルタ、ブラジルなどでより集中し、地域的に限定された高沈着地点がより鮮明化していた。

このことから、排出源からの寄与と大気輸送後の沈着フラックスの地域差を考慮した管理戦略が必要であると考えられる。特に工業地域や都市部において高い値を示した。これは、これらの地域でのプラスチック製品の使用量や塗料の消費量が多く、UV-328 の大気排出量が増加したことと関連していると考えられる。また、東アジアや南米東部といった高排出地域では、沈着フラックスが特に高い傾向を示し、UV-328 の排出源からの移流輸送が大きな影響を与えていることが示唆された。一方で、濃度分布と比較すると、ヨーロッパにおいても北欧寄りに UV-328 の沈着地域が移動していることが確認されており、大気輸送による影響が確認された。

i-2.1.4　CMAQ と CHASER のモデルの比較結果

本研究では、大気中の SPM（浮遊粒子状物質）をトレーサーとした UV-328 の濃度分布を解析するために、CHASER（全球化学輸送モデル）と CMAQ（地域スケール大気質モデル）を用いたシミュレーションを実施し、両モデルの結果を比較した。それぞれのモデルは、異なる空間分解能や排出インベントリ、物理・化学過程の考慮方法を持つため、結果に下記のとおり、違いが見られた。

1. ホットスポット領域の濃度差

CMAQ の結果では、ホットスポット領域の UV-328 濃度が CHASER の約 3 倍高い値を示す傾向が確認された。この差異の主な要因として、CMAQ の排出インベントリにおいてバイオマス燃焼由来の影響が十分に除去されていなかったことが挙げられる。特に、冬季においてアジアやアフリカの一部で高濃度のホットスポットが形成されており、これらの地域ではバイオマス燃焼が大きく影響している可能性が高い。一方、CHASER では広域的な拡散の影響が強く、局所的な排出源の影響が CMAQ よりも緩和されて表れる傾向があった。

2. 大気中の濃度分布の違い

CHASER の結果では、1970 年、2008 年、2018 年における UV-328 の濃度分布を解析した結果、1970 年はヨーロッパおよび日本周辺が高濃度の排出源として目立ったが、2008 年以降は、東アジア（特に北京）、南米東部、北欧、米国東海岸へと排出が拡大した。2018 年には、特に北京周辺とブラジル東部での排出が顕著であり、局所的な排出が UV-328 の濃度を高める要因となっていた。CMAQ の結果と比較すると、CHASER では UV-328 の大気中濃度の広域的な拡散が顕著であり、ヨーロッパでは北欧寄りに濃度が高くなる傾向が確認された。これは、長距離輸送の影響を受けやすい UV-328 の特徴が CHASER のシミュレーションにより明確に捉えられていることを示している。

一方、CMAQ の結果では、特に東アジアおよびアフリカ赤道付近のホットスポットが顕著であり、排出源周辺での高濃度域が強調される傾向が確認された。米国では、初夏から 11 月にかけて 1〜5 μg/m³ の濃度が算出され、局所的な工業活動や都市部でのプラスチック製品使用の影響を強く反映していた。

3. 大気中濃度と沈着の関係

本研究では、CMAQ のシミュレーションでは沈着フラックスを算出していないが、CHASER の結果をもとに沈着フラックスの地域分布を評価した。その結果、UV-328 の沈着フラックスは、大気中のホットスポットとは必ずしも一致せず、1970 年では日本周辺やスペイン沖で高い値が算出されたのに対し、2008 年には沈着が世界的に拡大し、特に北米東部、五大湖周辺、ブラジル東海岸での沈着が顕著であった。2018 年になると、大気中の濃度分布地域は 2008 年と類似していたが、沈着フラックスは中国、ジャカルタ、ブラジルなどに集中し、地域的な高沈着地点がより鮮明に示された。

このことから、UV-328 の大気中濃度の評価においては、単に排出源付近の濃度を評価するだけでなく、長距離輸送や沈着フラックスの地域差を考慮した解析が必要であることが示唆された。特に、CMAQ は局所的な排出源の影響を詳細に評価するのに適しているが、長距離輸送の影響を考慮するためには CHASER のような全球規模のシミュレーションが不可欠である。

4. 管理戦略への示唆

以上の比較結果から、局所的な大気濃度の高濃度域と長距離輸送による蓄積地域が必ずしも一致しないことが確認された。CMAQ は排出源近傍の濃度を精密に評価できるため、産業地域や都市部での汚染状況の把握には有用である。一方で、CHASER は長距離輸送を考慮した沈着特性の解析に優れ、北欧やチベット高原などの遠隔地における UV-328 の蓄積メカニズムを明らかにするために重要である。

本研究の結果は、UV-328 のように難分解性を持ち長距離輸送される化学物質の管理には、単に排出源の大気濃度を監視するだけでなく、広域的な大気輸送の影響を考慮する必要があることを示唆している。特に、北欧や極域などの環境負荷の高い地域への長距離輸送の影響を正確に評価するためには、CHASER を活用した解析が不可欠である。一方で、CMAQ の排出インベントリにおいてバイオマス燃焼の影響を適切に補正することが、今後の課題として挙げられる。

したがって、本研究の結果は、地域的な排出規制や国際的な管理戦略を立案する際に、CMAQ と CHASER の相補的な活用が有効であることを示している。今後、両モデルを組み合わせた統合的なアプローチを通じて、UV-328 の環境動態の詳細な理解を進め、効果的な環境管理政策の策定に貢献することが求められる。

ii. ホットスポットに係る文献調査結果

本研究では、メトキシクロル、UV-328、デクロランプラスの 3 物質について、環境中での挙動とホットスポット形成の可能性に関する文献調査を実施した。その結果、これらの物質は特定の地域に高濃度で蓄積する傾向があり、気象条件や地理的要因によってホットスポットが形成される可能性が高いことが明らかとなった。以下に文献調査の結果、特筆すべき点をまとめた。

・メトキシクロルの加水分解性

メトキシクロルは加水分解によって分解されるが、分解速度は環境条件に大きく依存する。特に、pH が高い環境では分解が促進されるが、低 pH 環境では長期間残存する可能性がある（Wong et al., 2021）。また、大気中でのモニタリング結果によると、北極圏の Alert 観測所ではメトキシクロルが検出されたものの、濃度は比較的低く、これは揮発性が低いためと考えられる。

・濃度の季節変動

POPs の濃度は季節によって変動し、特に夏季に増加する傾向が観測されている（Ren et al., 2019）。これは、夏季の気温上昇によって、土壌や水面に蓄積されていた POPs が再放出されるためと考えられる。特に、チベット高原では夏季の気温上昇とともに大気中の POPs 濃度が増加することが報告されており、この地域が POPs の二次放出源となる可能性が指摘されている。

・気候変動との関係性

気候変動は POPs の挙動に大きな影響を与えている。地球温暖化の進行により、永久凍土層や氷河が融解し、これまで閉じ込められていた POPs が環境中に再放出される可能性が高まっている（Liu and Chen, 2015）。特に、チベット高原では、温暖化による凍土の融解が、POPs の二次的な排出を引き起こすことが示唆されている。

・コールドトラップ効果

一般に、POPs は寒冷地に輸送されて沈着する「コールドトラップ効果」によって、北極や南極のような低温環境に蓄積されると考えられてきた。しかし、最新の研究では、チベット高原もまたコールドトラップとして機能し、POPs が沈着・蓄積する可能性があることが報告されている（Ren et al., 2019）。この地域では冬季に POPs の沈着が進み、夏季には気温上昇とともに再放出が観察されるという季節的な変動が確認されていることが分かった。

・チベット高原におけるホットスポット形成

チベット高原では、南アジアからの長距離輸送（Long-Range Atmospheric Transport, LRAT）の影響を受けて、特定の化学物質のホットスポットが形成されている（Ren et al., 2019）。特に、インドモンスーンによる大気輸送が、夏季の POPs 濃度上昇の主な要因として指摘されている。さらに、冬季には土壌に蓄積された POPs が大気へ再放出されるサイクルが観察されており、チベット高原が POPs の一時的な沈着地であるだけでなく、二次的な放出源としても機能している可能性が示唆されている（Ren et al., 2019）。

・UV-328 とプラスチックの劣化

UV-328 は主にプラスチックの耐候性向上を目的として添加されるが、時間の経過とともにプラスチックの劣化が進行し、UV-328 が環境中へ放出されることが報告されている（Cabrerizo et al., 2018）。プラスチックの劣化には、以下の 3 つの主要な要因が影響を与える。

－紫外線による劣化（光酸化分解）

プラスチックが紫外線に曝露されると、光酸化反応が進行し、ポリマーの分解が促進される。この過程で UV-328 が徐々に放出され、大気中や水中に移行する（Cabrerizo et al., 2018）
。特に、UV-328 は紫外線を吸収してプラスチックを保護する役割を果たすが、長期間の紫外線曝露により、最終的に化学構造が変化し、分解産物を形成することが指摘されている。

－熱劣化

高温環境では、プラスチックの熱酸化分解が進行し、添加剤として含まれる UV-328 の揮発や溶出が促進される。特に、都市部や工業地帯では、夏季に高温になることで劣化が加速され、大気中への排出が増加する可能性がある（Zhu et al., 2015）。

－機械的劣化

プラスチックが繰り返し物理的な力を受けることで、内部の分子構造が破壊され、微細なクラックが形成される。この結果、UV-328 の浸出が促進される。例えば、自動車の外装部品や建築資材では、日常的な摩耗により UV-328 が環境中に放出されるリスクが高まる（Cabrerizo et al., 2018）。

－UV-328 の海洋プラスチック汚染

UV-328 は、プラスチックの添加剤として使用されるため、海洋プラスチック汚染との関連性が強い。特に、海洋環境では、UV-328 を含むマイクロプラスチック（MPs）の蓄積が報告されており、海洋生物への影響が懸念されている（Wong et al., 2021）。

UV-328 は、プラスチックの劣化に伴い環境中へ放出され、特に海洋環境ではマイクロプラスチックを介して広範囲に分布、海岸に漂着することが明らかとなった。プラスチックの光劣化、熱劣化、機械的劣化、また気候変動による気温上昇により、UV-328 の溶出が進行し、大気や水環境中への移行が促進される。特に、海洋プラスチック汚染との関連性が高く、さらに、気象条件の影響により、遠隔地へ輸送され、ホットスポットを形成する可能性があることがわかった。

今後の研究では、UV-328 の環境中での動態をより詳細に評価し、海洋プラスチックが漂着した環境として、陸上への影響も定量的に把握することが求められる。特に、紫外線分解による代謝産物の毒性や、生態系への長期的な影響についての調査が必要である(Nadal et al., 2015)。

また、特に気候変動が POPs の環境中での動態や蓄積にどのような影響を与えるかについて文献調査を行った結果、特に POPs に関するこれまでの研究について詳細なレビュー調査がなされていた Nadal et al (2015)の内容を以下のとおり報告する。

Climate Change and Environmental Concentrations of POPs: A Review　(Nadal et al., 2015)

気温の上昇、降水パターンの変化、紫外線量の増加といった要因が、POPs の挙動を大きく左右することが明らかとなった。特に、POPs の長距離輸送、土壌や水環境との相互作用、紫外線による分解、沈着・再揮発のプロセスにおいて、気候変動の影響が顕著であることが示されている (Nadal et al., 2015)。

気温の上昇は POPs の揮発性に直接影響を及ぼし、土壌や水面からの二次的な放出を促進する可能性がある。POPs は一般に低温環境では土壌や水環境に蓄積しやすいが、気温が上昇すると、過去に沈着した POPs が再び大気中に放出される。特に、永久凍土が広がる地域では、地球温暖化の影響で凍土が融解することにより、長期間閉じ込められていた POPs が大気中に再放出される可能性が高い。この現象は、北極圏やチベット高原といったコールドトラップとされる地域で顕著であり、温暖化の進行とともに POPs の分布パターンが変化していることが指摘されている。降水パターンの変化も、POPs の動態に重要な影響を与える。降水は大気中の POPs を地表に沈着させる役割を果たすため、降水量の増加は POPs の沈着量の増加につながる。一方で、降水が少ない地域では、大気中に長くとどまることで広範囲に拡散する可能性がある。気候変動による降水の変動は、特に乾燥地域やモンスーン地域における POPs の分布を変化させる要因となりうる。また、豪雨や洪水が増加すると、土壌や水系に蓄積された POPs が一気に移動し、特定の地域でホットスポットを形成する可能性がある。紫外線量の増加は、POPs の光分解を促進し、環境中の濃度に影響を与える要因の一つとされる。特に、成層圏オゾンの減少による紫外線量の増加は、POPs の分解速度を加速させる可能性がある。しかし、POPs の化学構造によっては、紫外線による分解が進みにくいものもあり、すべての POPs が気候変動によって短寿命化するわけではない。また、紫外線分解によって生成される分解産物の毒性についての研究はまだ不十分であり、気候変動が POPs の環境リスクに与える影響を正確に評価するにはさらなる研究が必要であると考えられる。POPs の長距離輸送についても、気候変動が重要な要因となることが指摘されている。気温が上昇すると、南半球の産業地帯から排出された POPs が大気中に長くとどまり、北半球へと輸送される可能性が高くなる。特に、大気の対流活動の強化やジェット気流の変動は、POPs の越境輸送の頻度や分布を変化させることが予測されている。大規模な気象現象であるエルニーニョやラニーニャも、POPs の輸送パターンに影響を与える要因として注目されており、これらの気象現象の発生頻度が変化すると、POPs の拡散ルートにも変動が生じる可能性がある。さらに、海洋循環の変化も POPs の動態に大きな影響を与えることが指摘されている。気候変動により、海流の流れや水温が変化すると、海洋に沈着した POPs の移動速度や蓄積パターンが変わる可能性がある。例えば、北大西洋循環が弱まると、海洋に蓄積された POPs がより長くその地域にとどまり、生物蓄積のリスクが高まる可能性がある。また、海氷の減少に伴い、これまで氷の下に閉じ込められていた POPs が海水中に溶出し、海洋生態系への影響が懸念される。

文献調査結果：まとめ

本研究の文献調査の結果、気候変動が POPs（Persistent Organic Pollutants）の環境中濃度や地理的分布に影響を及ぼす可能性が高いことが示唆された。これまでの研究では、POPs が一度環境中に排出されると、その物理化学的特性により長距離輸送を受けながら、地球規模で広がることが知られている。しかし、気候変動に伴う気温上昇、降水パターンの変化、紫外線量の増加、海洋・大気循環の変動などの要因が、POPs の輸送・沈着・分解プロセスに大きく影響を与え、分布パターンが変化する可能性が高いことが明らかとなった。気温上昇の影響として、過去に沈着した POPs が二次放出される可能性が高まることが示唆されている。POPs は一般に低温環境では土壌や水環境に蓄積するが、気温が上昇すると、これまで地表や海洋に固定されていた POPs が再び大気中に放出される。この現象は特に永久凍土や氷河が融解する地域（例えば北極圏やチベット高原など）で顕著に発生すると考えられており、温暖化が進むことで過去数十年間に蓄積された POPs が再び循環し始める可能性がある。これにより、排出源から遠く離れた高緯度地域や山岳地帯における環境負荷が増大するリスクが指摘されている。また、降水パターンの変化は、POPs の沈着挙動に大きな影響を与えることが分かった。一般に、降水は大気中の POPs を地表へ沈着させる主要なプロセスの一つであり、降水量が多い地域では POPs の沈着量も増加する傾向にある。一方で、降水が少ない地域では、大気中に長くとどまり、広範囲へ拡散する可能性がある。さらに、気候変動による極端な気象現象（例えば、豪雨や洪水の増加）は、土壌や水系に蓄積された POPs を急激に移動させる可能性がある。これにより、一部の地域では POPs の濃度が一時的に上昇し、新たなホットスポットが形成されるリスクがある。紫外線量の増加も、POPs の動態に影響を与える重要な要因である。成層圏オゾンの減少により地表に到達する紫外線量が増加すると、POPs の光分解が促進される可能性がある。これは、環境中の POPs の寿命を短縮する効果を持つ一方で、紫外線分解によって生成される分解産物の毒性や環境影響が十分に解明されていないことが懸念されている。特に、UV-328 のような難分解性有機化合物は、紫外線によって化学構造が変化することで、新たな環境リスクを生じる可能性がある。したがって、紫外線分解がもたらす影響についても、さらなる研究が必要である。海洋および大気循環の変化も、POPs の分布に大きな影響を与える要因となる。気候変動による海流の変動や大気の対流活動の変化は、POPs の越境輸送のパターンを変える可能性がある。例えば、エルニーニョやラニーニャといった大規模な気象現象は、POPs の移動ルートや輸送速度を変化させることが予測されている。さらに、海氷の減少に伴い、これまで氷の下に閉じ込められていた POPs が海水中に溶出し、海洋生態系への影響が懸念される。特に、マイクロプラスチックに吸着した POPs が海洋生物に取り込まれることで、食物連鎖を通じた生物濃縮が進行し、最終的にヒトへの健康リスクへとつながる可能性がある。

今後の研究では、気候変動がもたらす環境リスクの変化をより詳細に評価し、POPs の動態予測を改善するためのモデリング研究の発展が求められる。特に、気温上昇による二次放出の影響を正確に予測するためには、観測データの蓄積と数値モデルの精度向上が必要である。また、降水パターンの変化による POPs の輸送・沈着への影響を考慮したモデルシミュレーションも求められる。さらに、紫外線分解や海洋循環の変動が POPs の環境中動態に与える影響について、より詳細な実験研究とフィールド調査を進めることで、より正確なリスク評価が可能となると考えられる。POPs の新たな排出は規制されているものの、過去に蓄積した POPs の移動・分解・蓄積には依然不確実性が残る。今後の環境リスクを適切に管理するためには、気候変動を考慮した長期的な監視とモデル開発が不可欠である。

iii-3.1. POPs の濃度

新規 POPs 3 物質については、10 月、11 月ともにデクロランプラスとメトキシクロルが検出下限以下となった。一方で UV-328 においては、定量下限未満であったものの、検出下限は上回り、それぞれ 0.7、0.3 pg/m^3 の濃度が得られた (表 1)。モデルにおいては、ホットスポットでの濃度レベルを算出していたため、波照間島でのバックグラウンド濃度は、オーダーが異なる結果が得られた。よって、モデルにおいてもバックグラウンド濃度においての精度の向上が求められる。

表 1. 新規 POPs の大気中濃度

測定分析項目		試料名	環境大気	環境大気	検出下限	定量下限
			波照間 POPs20241022	波照間 POPs20241125		
		採取日時	2024 年 10 月 22 日 9:42～23 日 9:42	2024 年 11 月 25 日 12:44～28 日 12:15		
		試料量 / 単位	1008m^3 (20℃, 101.3kPa で補正)	1000m^3 (20℃, 101.3kPa で補正)		
デクロランプラス	syn	pg/m^3	<0.1	<0.1	0.1	0.3
	anti	pg/m^3	<0.1	<0.1	0.1	0.3
	合計	pg/m^3	<0.2	<0.2	0.2	0.6
メトキシクロル		pg/m^3	<0.1	<0.1	0.1	0.3
UV-328		pg/m^3	(0.7)	(0.3)	0.2	0.8

表 2 にレガシーPOPs と言われる、ストックホルム条約発効当時の 2004 年から規制されていた POPs8 物質の濃度の実測データを示す。

ヘキサクロロベンゼン（Hexachlorobenzene, HCB） は、かつて殺菌剤や工業用化学物質として使用されていた。HCB は、農作物の真菌病対策としての農薬や、ゴム、塗料、爆薬、絶縁材料の製造工程で添加剤として利用されていた。しかし、その高い環境残留性と発がん性の可能性が指摘され、2001 年にストックホルム条約で規制対象となった。HCB は水に溶けにくく、土壌や堆積物中に長期間蓄積しやすい性質を持つ。クロルデン（Chlordane） は、1950 年代から 1980 年代にかけて農業用殺虫剤やシロアリ防除の目的で広く使用されていた。この化学物質は、cis-Chlordane と trans-Chlordane という異性体を含むが、どちらも環境中での分解が遅く、長期間残存する特性を持つ。クロルデンは、土壌や堆積物に強く吸着しやすく、生物濃縮による生態系への影響が懸念されていた。そのため、1997 年に日本で使用禁止となり、2004 年にはストックホルム条約で規制対象となった。ノナクロル（Nonachlor） は、クロルデン製剤に含まれる成分の一つであり、特に trans-Nonachlor は環境中での安定性が高く、長距離輸送されることが知られている。ノナクロルは脂溶性が高く、生物の脂肪組織に蓄積しやすいため、食物連鎖を通じた生物濃縮が問題視されていた。ストックホルム条約では、クロルデンと同様に 2004 年に規制対象となり、ほとんどの国で使用が禁止された。

ヘプタクロルエポキシド（Heptachlor epoxide） は、殺虫剤 ヘプタクロル（Heptachlor） の環境中での分解生成物である。ヘプタクロルは、主にシロアリ防除や農業用殺虫剤として利用されていたが、環境中でエポキシドに変化するとさらに安定し、分解されにくくなる。この物質は、野生生物やヒトの脂肪組織に蓄積しやすく、神経毒性や発がん性の可能性が指摘されている。そのため、2004 年のストックホルム条約で規制され、現在ではほぼ全世界で使用が禁止されている。DDE（ジクロロジフェニルジクロロエチレン, DDE） は、DDT（ジクロロジフェニルトリクロロエタン, DDT）の分解生成物であり、o,p'-DDE と p,p'-DDE の二つの異性体が存在する。DDT は、第二次世界大戦中から蚊の駆除（マラリア対策）や農業用殺虫剤として広く使用されてきた。しかし、DDT が環境中で分解すると DDE が生成され、DDT よりもさらに分解されにくく、長期間にわたって環境中に残存する。DDE は、DDT と同様に脂溶性が高く、生物濃縮を引き起こすため、野生生物の生殖機能への影響が懸念されてきた。DDT は、1972 年にアメリカで使用禁止となり、2004 年のストックホルム条約で規制対象となった。ただし、マラリア媒介蚊の防除を目的とした一部の国では、限定的な使用が現在も認められている。本研究で対象とした p,p'-DDT（ジクロロジフェニルトリクロロエタン, p,p'-DDT） は、DDT の主成分であり、農薬として長年にわたって世界的に使用されてきた。DDT は、1950 年代から 1960 年代にかけて世界中で大量に使用されたが、その残留性の高さと生物濃縮の問題から、1970 年代以降、多くの国で使用が禁止された。現在では、ストックホルム条約（2001 年）により、原則として使用が禁止されているが、前述の通りマラリア防除のために一部の国で例外的に使用が継続されている。

表 2. HCB などレガシーPOPs の大気中濃度

測定分析項目	試料名	環境大気	定量下限	検出下限
		波照間 POPs20241125		
	採取日時	2024 年 11 月 25 日 12:44～28 日 12:15		
	試料量 / 単位	1000m^3 (20℃, 101.3kPa で補正)		
HCB	pg/m^3	150	0.18	0.07
p,p'-DDT	pg/m^3	0.14	0.07	0.03
p,p'-DDE	pg/m^3	1.1	0.05	0.02
o,p'-DDE	pg/m^3	0.16	0.05	0.02
cis-Chlordane	pg/m^3	0.6	0.3	0.1
trans-Chlordane	pg/m^3	0.5	0.3	0.1
cis-Nonachlor	pg/m^3	(0.04)	0.08	0.03
trans-Nonachlor	pg/m^3	0.45	0.14	0.05
cis-Heptachlor epoxide	pg/m^3	0.22	0.06	0.02

以上のレガシーPOPs については、2004～2008 年において波照間島で検出されていた物質となるが、2024 年の 11 月においても、HCB、cis-Chlordane、trans-Chlordane、trans-Nonachlor、cis-Heptachlor epoxide、o,p'-DDE、p,p'-DDE、p,p'-DDT の 8 物質の POPs の濃度は、cis-Nonachlor を除き、規制が既に行われた DDT などの POPs が定量下限を超える値で検出された。特に、ヘキサクロロベンゼン (HCB) の濃度が最も高く、150 pg/m^3 の濃度が得られた (表 2)。

HCB については、2004～2008 年において波照間島で検出されていた濃度の推移を図 10 に示す。

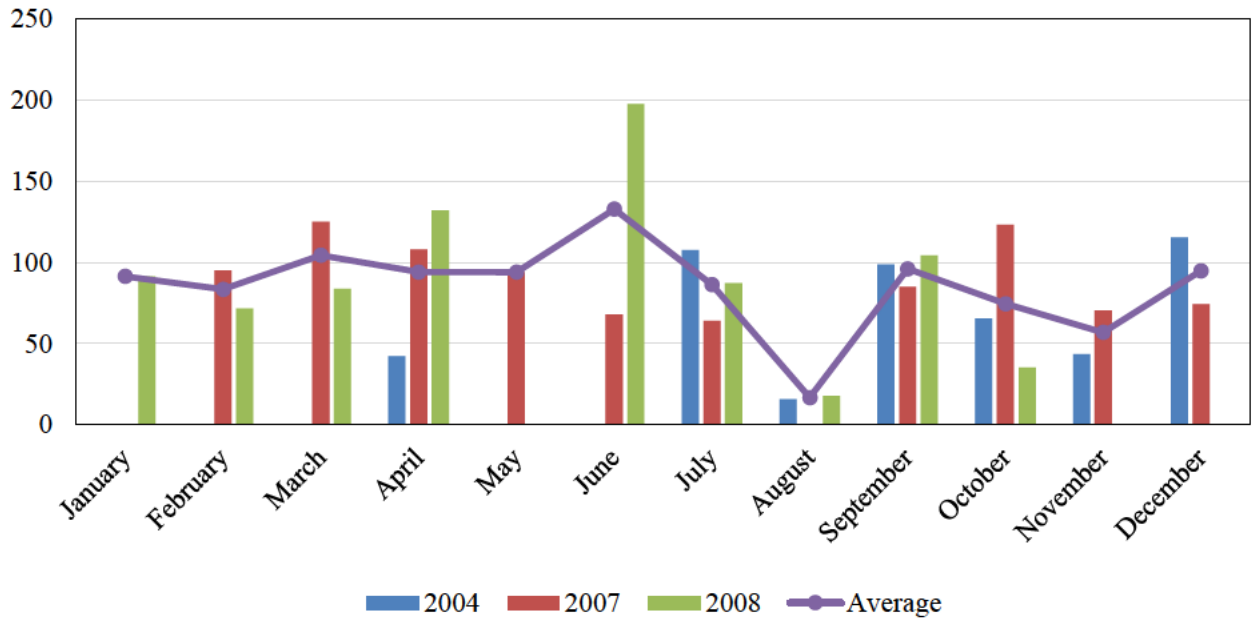


図 10. 過去における HCB 濃度の推移

過去における波照間での POPs の推移について、3 年分のデータがある 4 月、7 月、9 月、10 月に着目すると，4 月は年ごとに濃度が増加しており、7 月と 9 月は 2007 年が最も濃度が小さくなっている。10 月は 2007 年が最も濃度が大きくなっている。年度ごとの変化に大きな特徴は無く、各月の平均値で比較すると、6 月から 8 月にかけて、減少傾向にあるが、それ以外の月では大きな変化は見られなかった。本研究では、日本最南端に位置する波照間島における大気中のヘキサクロロベンゼン（HCB）濃度といったレガシーPOPs のの長期的な変動の解析を行った。

ストックホルム条約発効以降の残存状況を評価した。HCB は、かつて殺菌剤や工業用化学物質として広く使用されていたが、その高い環境残留性や長距離輸送性が問題視され、2001 年のストックホルム条約で規制対象となったが、HCB が現在もなお環境中に残存し続け、波照間といったバックグラウンド濃度に該当する地域でも、大気中 HCB 濃度の測定結果を過去のデータと比較したところ、16～20 年前の測定結果と現在の濃度がほぼ変わらないか、高い濃度で検出されていることが確認された。この結果は、ストックホルム条約による規制が施行された後も、HCB が大気中に残存し続けていることを示しており、規制前の高濃度と同程度の値が現在も維持されていることを明らかにした。

HCB は特に揮発性が高く、大気を介して長距離輸送される性質を持つため、局所的な排出源が減少したとしても、過去に排出された HCB が再放出されることにより、長期的に一定の濃度が維持されている可能性が高い。また、地表や海洋に沈着した HCB が環境中で再揮発し、大気中濃度を維持していることも考えられる。特に、極域や寒冷地域に蓄積した HCB が気温の変化に伴い再放出されるバッタ効果（Grasshopper Effect）」が影響している可能性もある。

本研究の結果は、HCB の大気中での長期的な残存性と環境中での動態をより詳細に理解する必要性も示した。ストックホルム条約による規制が施行されたにもかかわらず、HCB が依然として大気中に存在することは、過去の排出の影響、またはエッセンシャルユースによる影響が現在も続いていることを意味し、今後も継続的な監視が必要であると考えられる。今後の研究では、HCB の二次排出源や環境動態の解明を進め、HCB の大気中濃度が長期的にどのように変化するのかを評価していく必要がある。

iii-3.2. SPM に含まれる重金属の濃度 (濃縮係数)

本研究では、大気中浮遊粒子状物質（SPM）に含まれる重金属の濃度を測定し、その起源や環境中での沈着特性を評価した。特に、地殻由来と人為起源の影響を評価するために、Enrichment Factor（EF, 濃縮係数）(Kemp et al., 1976)を用いた解析を実施した。EF は、対象元素の濃度を基準元素（通常は地殻組成に安定的に含まれるアルミニウムやシリコンなど）で補正することで、その元素が自然起源（地殻由来）なのか、人為的排出に由来するのかを判断する指標として広く用いられる。

測定結果から、SPM 中では亜鉛（Zn）の濃度が特に高く、EF も顕著に高い傾向が見られた (図 11)。亜鉛の EF 値は 1000～1500 に達しており、明らかに人為起源による寄与が支配的であると考えられる。一般的に、EF が 1 に近い場合は地殻由来、10 を超えると人為起源の寄与があると判断されるため、本研究の結果は、亜鉛が主に工業排出や燃焼プロセスに由来している可能性が高いことを示唆している。亜鉛は、自動車のタイヤ摩耗や金属精錬、都市部の大気汚染源（例えばゴミ焼却施設や産業排出）から排出されることが知られており、本研究で観測された高い EF 値もこれらの排出源と関連している可能性がある。また、亜鉛に次いで、セレン（Se）、バリウム（Ba）、ヒ素（As）も比較的高い濃度で検出され、大気を経由した沈着が確認された。セレンは、主に石炭燃焼や鉱業活動、金属精錬から排出されることが多く、EF の結果からも人為起源の影響が大きいことが示唆される。バリウムは、ブレーキパッドの摩耗や工業燃焼プロセスに由来し、ヒ素は石炭燃焼や農業用殺虫剤としての過去の使用が原因で大気中に排出されることが知られている。

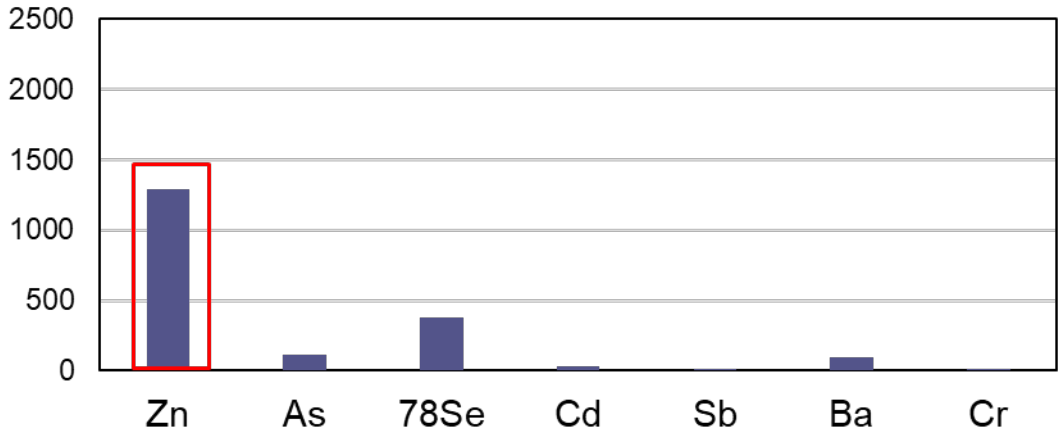


図 11. SPM 中の重金属の Enrichment Factor

本研究の結果は、SPM を介した重金属の輸送と沈着が、特定の元素において顕著に発生していることを示している。特に亜鉛のように極端に EF が高い重金属は、明らかに人為起源の影響が支配的であり、大気中での移動や長距離輸送を考慮する必要がある。また、セレンやバリウム、ヒ素といった重金属についても、局所的な排出源を特定し、その環境負荷を評価することが重要であると考えられる。今後の研究では、これらの重金属の沈着フラックスをより詳細に解析し、環境中での挙動を評価することが求められる。

iii-3.3. 化学種の同定 (X 線吸収微細構造解析 (XAFS))

図 12 は実際に測定したエアロゾル試料について X 線吸収微細構造解析 (XAFS)を行った結果を示している。特に、XAFS の中でもピークトップに近い領域の X 線吸収端近傍構造(XANES)を解析した。

$PM_{2.5}$ に分画されるものを水色、PM_{10} に分画されるものを緑色の線で示し、破線で標準物質のフィッティング結果を示している。標準物質はグラフの下部に黒色のスペクトルで示した。フィッティング解析により、重金属が粒子中にどのような化学種で存在しているかを同定することが可能である。本研究では、大気中浮遊粒子状物質（SPM）、特に $PM_{2.5}$や PM_{10}を含む粒子における重金属の濃度を測定し、その結果、亜鉛（Zn）が SPM 中で特に高濃度で検出されることが明らかとなった (前項参照)。亜鉛は、工業活動や自動車のタイヤ摩耗、燃焼プロセスから排出されることが知られており、大気中を介して広範囲に輸送される。特に、亜鉛は生物に対して毒性が高く、水生生物に対する影響が懸念されている。

しかし、本研究の分析により、大気中のエアロゾル粒子の表面で亜鉛が海洋由来のカルシウム（Ca）やリン（P）と共沈し、アパタイト構造の中に取り込まれていることが判明した（図 12)。アパタイト（$Ca_5(PO_4)_3(OH,F,Cl)$）は水に対して不溶性の特性を持つ鉱物であり、粒子表面に形成されることで、共沈した亜鉛が環境中で溶け出しにくくなると考えられる。このプロセスにより、エアロゾル中の亜鉛は、雨や湿潤沈着によって海洋や河川、土壌の表層水へ沈着した際にも、そのまま安定した形で環境中に留まりやすい。これは、亜鉛が溶解しやすい状態で存在する場合に比べて、生物への直接的な曝露リスクを低減させる可能性がある。亜鉛は水生生物に対して強い毒性を持つことが知られており、特に水中で高濃度に溶存した場合、魚類や水生無脊椎動物の生理機能に悪影響を与えることが報告されている。しかし、本研究の結果は、亜鉛がアパタイトの構造内に固定化されることで、その溶解度が低下し、水生環境への溶出が抑制される可能性があることを示唆している。このことは、大気を経由して運ばれる重金属が、最終的にどのように環境中で安定化するのかを理解する上で重要な知見となる。

今後の研究では、アパタイトと共沈した亜鉛がどの程度の時間スケールで環境中に留まり、どのような条件下で再溶解するのかについての詳細な調査が必要である。また、大気中の亜鉛がこのような形で固定化されるメカニズムが、特定の地域や環境条件によってどのように異なるのかを解明することで、大気中重金属の長距離輸送や環境影響の評価に貢献できると考えられる。

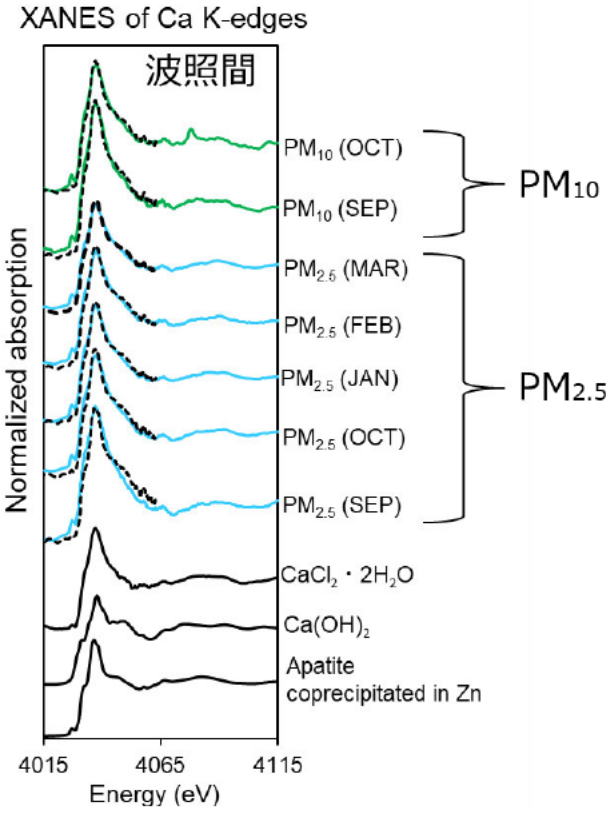


図 12. SPM 中の亜鉛の化学種を示すスペクトル

iii-3.4. 微生物解析の DNA 抽出・解析

波照間ステーションとウラピナ浜付近の門レベルの微生物群集構造解析結果を図 13 に示した。

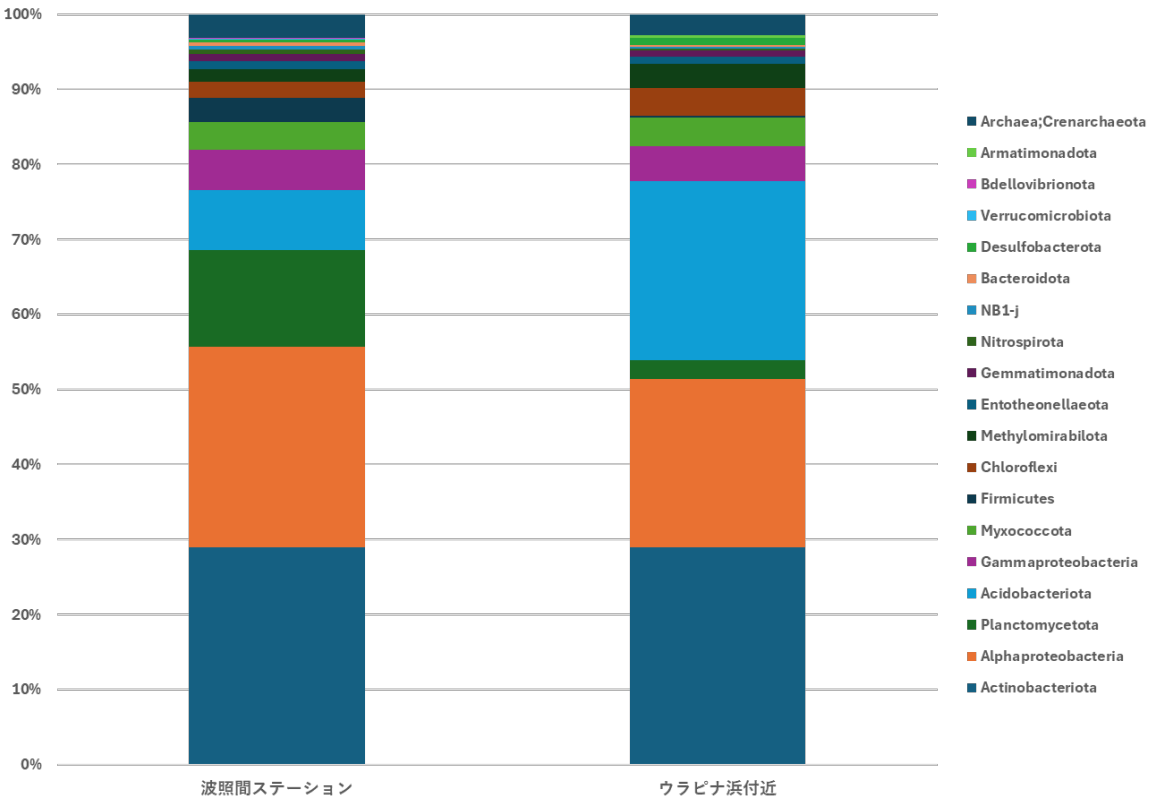


図 13.　微生物群集構造解析結果（門レベル）

2 試料の微生物群集構造解析結果より、好気性の微生物や有機物の分解に関与している微生物が多数を占めていることなどが共通していた。しかし、Acidobacteriota に着目すると波照間ステーションで約 8%検出されたのに対し、ウラピナ浜付近では約 24%検出されていた。Acidobacteriota は好気性の微生物が多く、酸性環境でよく生育していることが知られている (Yun et al., 2016)。このことより、ウラピナ浜付近では酸性環境が形成されている可能性が示唆された。

次に、波照間ステーションとウラピナ浜付近の綱・目・科・属レベルの微生物群集構造解析結果を図 14 に示した。検出された微生物が多かったため、検出された割合の高い上位 10 種のみ示した。

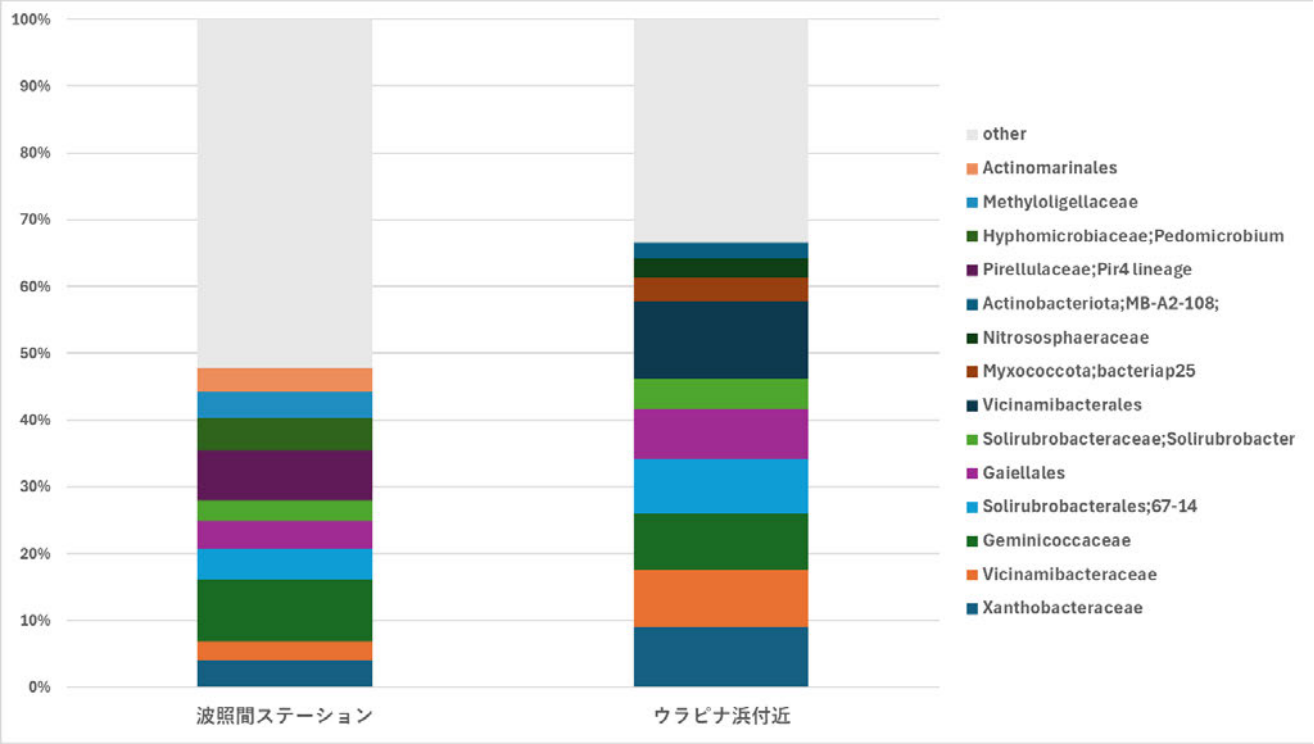


図 14.　微生物群集構造解析結果（綱・目・科・属レベル）

波照間ステーション近辺の土より、 *Hyphomicrobiaceae;Pedomicrobium* という微生物が検出された。鉄やマンガンが豊富な環境から報告されており、それらを酸化する種がいると知られている (Tuhela et al., 1997)。また、土壌中にサンゴの死骸（$CaCO_3$）が含まれていたことから、酸性環境になりにくいと考えられる。よって、波照間ステーションでは中性～還元的な環境が形成されている可能性が示唆された。

さらに、残留性有機汚染物質(POPs)の分解を行う種レベルの微生物を含む、科レベルの微生物でまとめて図 15 に示した。

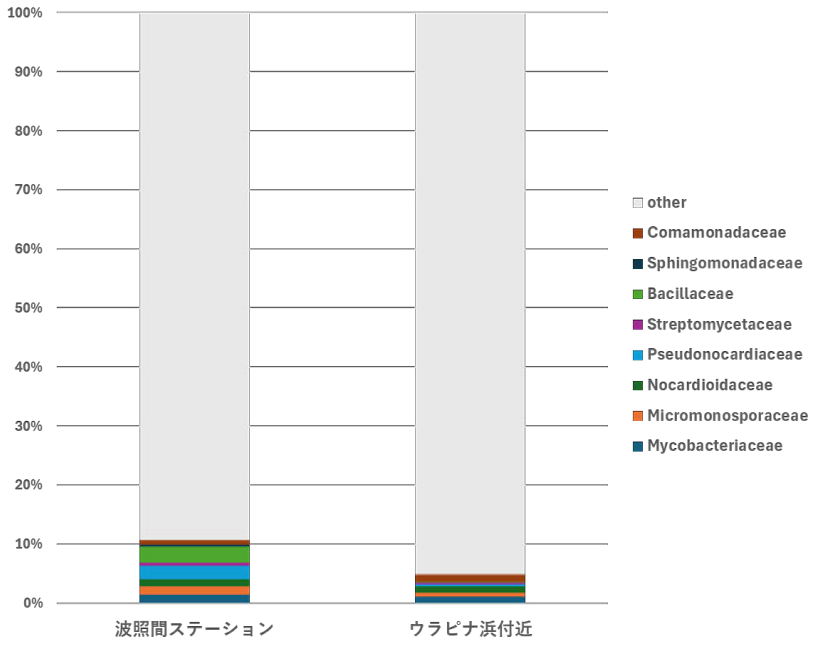


図 15.　微生物群集構造解析結果（POPs 分解に関与する可能性のある微生物）

PCB などの POPs 分解に関与している微生物として、*Pseudonocardiaceae Pseudonocardia* や *Nocardioidaceae Nocardiodes* などが報告されている (Pieper et al., 2005; Leigh et al., 2007; Sul et al., 2009; Guo et al., 2010 Ito et al., 2021; Huang et al., 2022; Vergani et al., 2022)。POPs 分解を行う可能性のある微生物は、波照間ステーションで約 10%検出されていたのに対し、ウラピナ浜付近では約 5%検出された。このことから、波照間ステーションの方が、POPs 分解能を持つ微生物にとって好適な環境であることが示唆された。

しかし、現段階では微生物群集構造解析しか行っていないため、今後メタゲノム解析などを行い、POPs 分解に関与する遺伝子（PCB 分解に関与する bph 遺伝子群など）を持っているか、機能遺伝子の推定を行う必要がある。

波照間島の 2 地点より試料を採取し、微生物群集構造解析を行った結果、波照間ステーションでは、鉄やマンガンを酸化する *Hyphomicrobiaceae*;*Pedomicrobium* が検出された。また、サンゴの死骸（$CaCO_3$）が混ざったような土壌であったことからも、酸性環境になりにくく、中性～還元的な環境であったと考えられる。POPs 分解を行う可能性のある微生物も波照間ステーションで多く検出されており、2 地点を比較すると好適な環境が形成されている可能性が示唆された。今後は、メタゲノム解析などを行い機能遺伝子の推定を行うことで、今回検出された POPs 分解の可能性のある微生物ではなく、POPs 分解に関与する微生物だと示唆される。

５．まとめと今後の展望

本研究では、浮遊粒子状物質（SPM）をトレーサーとした UV-328 の大気中濃度と沈着フラックスの経年変化、気候変動が POPs の動態に及ぼす影響、ならびに微生物分解の可能性について解析し、環境中での挙動と今後の課題を明らかにした。これにより、POPs の広域輸送や沈着パターンが、地域ごとの気象条件や人為的な影響によって大きく変動することが示唆された。さらに、SPM に含まれる重金属（特に亜鉛）が、大気中でどのように化学変化し、環境中での安定性を増しているかについても、新たな知見が得られた。本研究の成果を踏まえ、以下に主要な知見と今後の課題について詳しく述べる。

5.1. 大気中濃度と沈着フラックスの経年変化

1970 年から 2018 年にかけて、SPM をトレーサーとした UV-328 の大気中濃度は、ヨーロッパやアジアから世界各地へと拡大した。特に、中国（北京）やインドネシア（ジャカルタ）などの都市部では、依然として高濃度が維持されており、これらの地域が主要な排出源として機能し、長距離輸送によって北極圏やチベット高原へと蓄積されることが示唆された。これは、近年の都市化や自動車の使用量増加に伴い、紫外線吸収剤である UV-328 が多く含まれる製品が環境中に放出され続けていることと関連していると考えられる。

一方で、沈着フラックスの分布は大気中濃度とはやや異なる傾向を示しており、沈着の主なメカニズムが地域ごとに異なる可能性がある。大気中濃度が高い地域では必ずしも沈着フラックスも高いとは限らず、特に湿潤沈着（降水による沈着）が支配的な地域では、局所的な環境条件が沈着量に大きく影響を与えることが分かった。このため、各地域における輸送・蓄積のプロセスを詳細に解明することが今後の重要な課題である。さらに、UV-328 が他の POPs と異なる特性を示す点についても、沈着後の挙動をより詳細に分析する必要がある。

5.2. 季節変動と地球温暖化の影響

文献調査の結果、UV-328 を含む POPs は、冬季に土壌から大気へと再放出され、夏季に再蓄積されるという明確な季節変動パターンが示されていることが分かった。この挙動は、気温の上昇や日射量の変化に伴う蒸発・再沈着のメカニズムと密接に関連している。特に、冬季における大気中濃度の増加は、気温が低下することで土壌や水面からの放出が抑制されると考えられていた従来の見解とは異なる結果を示しており、今後さらなる検討が必要である。また、地球温暖化の進行により、気温が 1℃上昇するだけで、チベット地域における POPs の大気中濃度が増加する可能性が高いことが明らかになった。この結果は、気候変動が POPs の挙動に与える影響を考慮しなければならないことを示しており、温暖化シナリオに基づいた長期的なリスク評価が必要である。特に、チベット高原のようなコールドトラップ地域では、温暖化による氷河融解や土壌の変化が、POPs の長距離輸送に及ぼす影響を評価する上で重要な要素となる。

さらに、本研究の実測データにおいても、POPs の中でも UV-328 のみが波照間で検出されたことは、自動車部品などの紫外線吸収剤として広く使用されていることと関連していると考えられる。今後、エッセンシャルユース（必要不可欠な使用）として UV-328 を使用し続けることの是非が問われるとともに、中古自動車を含めた製品中の化学物質の管理体制強化が緊急の課題である。これらの要素を考慮し、POPs に関する国際的な規制の強化が求められる可能性が高い。

5.3. 現地調査と微生物分解の重要性

波照間において 2023 年に規制を受けた新規 POPs 3 物質のうち、UV-328 のみが検出下限を超える濃度となった。一方で HCB（ヘキサクロロベンゼン）の大気中濃度は、過去 16 年間でほぼ変化がなく、ストックホルム条約発効後も環境中に残存していることが分かった。これは、POPs が環境中で極めて安定な挙動を示し、一度蓄積されると長期間にわたって分解されにくいことを示唆している。

一方で、微生物解析により、POPs を分解する可能性のある微生物の存在が確認されたことは、環境負荷を低減する新たな視点を提供するものである。特に、微生物群集の DNA 解析を進めることで、環境中での POPs の分解過程を明らかにし、より効果的な汚染対策につなげることができる可能性がある。

また、SPM 中の亜鉛濃度が特に高いことが確認され、亜鉛が金属トレーサーとして有効である可能性が示された。さらに、大気中の亜鉛は、化学反応によって不溶性のアパタイトに取り込まれ、安定化していることが明らかとなった。これにより、大気を経由して輸送される金属成分が、沈着後にどのような形で固定化されるかを明らかにすることが重要であることが示された。

5.4. 今後の展望

今後の研究では、以下の 3 つの点に重点を置き、さらなる調査・解析を進める必要がある。

① モデルによる将来予測の高度化

全球および半球スケールの多媒体モデル（CHASER、CMAQ）を活用し、IPCC の温暖化シナリオ（SSP126, SSP245, SSP585 等）に基づいた POPs および重金属の将来挙動を予測する。これにより、温暖化が進行した場合の POPs の揮発、長距離輸送、堆積・沈着パターンの変化を明らかにし、将来的な環境リスクの評価を強化する。

② 現地調査の強化

低緯度・極域地域に加え、チベット高原でのサンプリング候補地として検討し、温暖化の影響を強く受ける地域のモニタリングデータを取得する。

③ 微生物分解の可能性評価

微生物による POPs の分解を詳細に評価し、環境中での分解プロセスの解明を進める。また、生物濃縮の影響を考慮し、生態系全体への影響を統合的に評価する必要がある。

これらの研究を推進することで、POPs や重金属の長期的な環境動態をより精緻に把握し、気候変動がもたらすリスクを包括的に評価することが可能となる。特に、モデル予測の高度化と現地観測データの統合により、POPs の排出源ごとの寄与解析や、沈着後の再放出メカニズムを定量的に評価できるようになることが期待される。さらに、微生物分解の可能性を探ることで、POPs の自然環境での削減メカニズムを解明し、環境負荷を低減する新たなアプローチの開発につながる可能性がある。今後の研究では、各地域における環境条件を考慮したモニタリングが求められる。。また、政策立案の観点からも、科学的根拠に基づいたリスク管理戦略の策定を支援するための知見を提供することが重要である。

参考文献

(1) Yuan Yun, Hongmei Wang, Baiying Man, Xing Xiang, Jianping Zhou, Xuan Qiu, Yong Duan, Annette S. Engel, The Relationship between pH and Bacterial Communities in a Single Karst Ecosystem and Its Implication for Soil Acidification, Frontiers in Microbiology, December 2016, Volume 7

(2) Tuhela, L., Carlson, L., & Tuovinen, O. H., Biogeochemical transformations of Fe and Mn in oxic groundwater and well water environments. Journal of Environmental Science and Health . Part A: Environmental Science and Engineering and Toxicology, 1997, 32(2), 407–426.

(3) Mary Beth Leigh, Vivian H Pellizari, Ondrej Uhlík, Robin Sutka, Jorge Rodrigues, Nathaniel E Ostrom, Jizhong Zhou, James M Tiedje, Biphenyl-utilizing bacteria and their functional genes in a pine root zone contaminated with polychlorinated biphenyls (PCBs), ISME J. 2007 Jun;1(2):134-48.

(4) Dietmar H Pieper, Aerobic degradation of polychlorinated biphenyls, Applied Microbiology and Biotechnology, Volume 67, pages 170–191, (2005)

(5) Woo Jun Sul, Joonhong Park, John F Quensen III, Jorge L M Rodrigues, Laurie Seliger, Tamara V Tsoi, Gerben J Zylstra, James M Tiedje, DNA-Stable Isotope Probing Integrated with Metagenomics for Retrieval of Biphenyl Dioxygenase Genes from Polychlorinated Biphenyl-Contaminated River Sediment, Applied and Environmental Microbiology, 2009 Jul 31;75(17):5501–5506.

(6) Zilin Huang, Longfei Jiang, Weisheng Lu, Chunling Luo, Mengke Song, Elsholtzia splendens promotes phenanthrene and polychlorinated biphenyl degradation under Cu stress through enrichment of microbial degraders, Journal of Hazardous Materials, Volume 438, 15 September 2022, 129492

(7) Koji Ito, Ahmad Mahmood, Ryota Kataoka & Kazuhiro Takagi, Dichlorodiphenyltrichloroethane (DDT) degradation by Streptomyces sp. isolated from DDT contaminated soil, Bioremediation Journal, Volume 25, 2021 - Issue 2, Pages 148-158

(8) Lorenzo Vergani, Francesca Mapelli, Magdalena Folkmanova, Jakub Papik, Jan Jansa, Ondrej Uhlik & Sara Borin, DNA stable isotope probing on soil treated by plant biostimulation and flooding revealed the bacterial communities involved in PCB degradation, Scientific Reports volume 12, Article number: 19232 (2022)

(9) Chuling Guo, Zhi Dang, Yukshan Wong, Nora Fungyee Tam, Biodegradation ability and dioxgenase genes of PAH-degrading Sphingomonas and Mycobacterium strains isolated from mangrove sediments, International Biodeterioration & Biodegradation, Volume 64, Issue 6, September 2010, Pages 419-426

(10) Stockholm Convention, The 11th Meeting of the Conference of the Parties (COP11), 2023.

(11) Ren Jiao, Xiaoping Wang, Ping Gong, Chuanfei Wang, Characterization of Tibetan soil as a source or sink of atmospheric persistent organic pollutants: Seasonal shift and impact of global warming, Environmental Science & Technology, 2019, Volume 53, Issue 10, Pages 5613–5622.

(12) Sweetman Andrew J., Kevin C. Jones, Henry Wania, Donald Mackay, Illustrated Handbook of Physical-Chemical Properties and Environmental Fate for Organic Chemicals, Lewis Publishers, 2002, Volume 1.

(13) Odabasi Mustafa, Ekin Cetin, Determination of octanol-air partition coefficients and supercooled liquid vapor pressures of PAHs as a function of temperature: Application to gas-particle partitioning in an urban atmosphere, Atmospheric Environment, 2012, Volume 55, Pages 220-227.

(14) Wania Frank, Donald Mackay, Tracking the distribution of persistent organic pollutants, Environmental Science & Technology, 1996, Volume 30, Issue 9, Pages 390A-396A.

(15) Venier Marta, Amila O. Herath, Ronald A. Hites, Brominated flame retardants in the global atmosphere, Environmental Science & Technology, 2018, Volume 52, Issue 6, Pages 3219-3227.

(16) ATSDR (Agency for Toxic Substances and Disease Registry), Toxicological profile for methoxychlor, U.S. Department of Health and Human Services, Public Health Service, 2002.

(17) Muir Derek C.G., Philip Howard, Are there other persistent organic pollutants? A challenge for environmental chemists, Environmental Science & Technology, 2006, Volume 40, Issue 23, Pages 7157-7166.

(18) Kameda Yuki, Keiko Kimura, Hiroshi Watanabe, Kazuki Shigeoka, Yasushi Suzuki, Transport behavior of UV stabilizers and antioxidants in plastics under various environmental conditions, Chemosphere, 2011, Volume 82, Issue 2, Pages 271-278.

(19) Itahashi S., Uno I., Osada K., et al., Nitrate transboundary heavy pollution over East Asia in winter, Atmospheric Chemistry and Physics, 2017, Volume 17, Pages 3823–3843.

(20) Sekiya T., Miyazaki K., Ogochi K., et al., Global high-resolution simulations of tropospheric nitrogen dioxide using CHASER V4.0, Geoscientific Model Development, 2018, Volume 11, Pages 959–988.

(21) Inomata Y., Kajino M., Sato K., Ueda H., Kurokawa J., Tang N., Hayakawa K., Ohara T., Source–Receptor Relationship Analysis of the Atmospheric Deposition of PAHs Subject to Long-Range Transport in

Northeast Asia, Environmental Science & Technology, 2017, Volume 51, Pages 7972–7981.

(22) Zhu, J., Wang, T., Zhang, H., Wang, Y., Zhao, H., Su, Y., Yao, Y., Jiang, G., Environmental behavior and toxicity of novel brominated flame retardants: A review, Environment International, 2015, Volume 75, Pages 210-218.

(23) Xie, Z., Ebinghaus, R., Temme, C., Caba, A., Ruck, W., Trace analysis of perfluorinated surfactants in Arctic snow and ice by liquid chromatography–electrospray tandem mass spectrometry, Analytical and Bioanalytical Chemistry, 2006, Volume 383, Issue 2, Pages 251–261.

(24) Cabrerizo, A., Dachs, J., Barceló, D., Jones, K. C., Legacy and emerging persistent organic pollutants (POPs) in terrestrial compartments in the high altitudes of the Tibetan Plateau, Environmental Science & Technology, 2018, Volume 52, Pages 3612–3620.

(25) Liu, W., Chen, J., Influence of climate change on the fate and transport of persistent organic pollutants, Environmental Pollution, 2015, Volume 196, Pages 126–136.

(26) Wong, F., Hung, H., Dryfhout-Clark, H., Climate change and seasonal variations in air concentrations of legacy and emerging persistent organic pollutants across the Arctic, Science of the Total Environment, 2021, Volume 784, Article 147108.

(27) Ren, J., Wang, X., Gong, P., Wang, C., Characterization of Tibetan soil as a source or sink of atmospheric persistent organic pollutants: Seasonal shift and impact of global warming, Environmental Science & Technology, 2019, Volume 53, Issue 10, Pages 5613–5622.

(28) Wang, X., Halsall, C., Codling, G., Xie, Z., Xu, B., Zhang, G., Jiang, Y., Ma, L., Jones, K. C., Giesy, J. P., Accumulation of perfluoroalkyl substances in Tibetan mountain snow: Evidence of long-range atmospheric transport, Environmental Science & Technology, 2020, Volume 54, Issue 7, Pages 3699–3708.

(29) Kemp, A. L. W., Thomas, R. L., Dell, C. I., & Jaquet, J.-M. (1976). Cultural impact on the geochemistry of sediments in Lake Erie. Journal of the Fisheries Research Board of Canada, Volume 33, Volume 3, Pages 440–462.

謝辞

本研究は、令和６年度化学物質規制対策「大学・公的研究機関と連携した化学物質管理高度化推進事業（化学物質のライフサイクルを踏まえた新規 POPs や重金属の環境及び生態への影響評価）」の受託研究により実施した。ここに深謝の意を表する。