		学	位	論	文	要	旨		<del>-</del>	
氏名	ナサニエル カル	ア	ナスコ				<u> </u>		<del></del>	<u> </u>
題目	沿岸環境における (Pesticides in Coast Organisms)	農薬 al Env	亏染: /ironme	その生 ents: T	物濃約 heir To	縮と生 xicity a	態毒性 and Bio	に関する accumul	る研究 lation in	Marine

沿岸域における水田農薬汚染とその生態影響を調べるため、霧島市沿岸海水および 二枚貝中農薬の分析などを行った。

実験1では、霧島市沿岸の水田排水貯水池を含めた淡水域での農薬分析を行った。そ の結果、16種類の農薬が検出され、比較的高濃度のメフェナセット、フルトラニルおよ びフェノブカルブが頻度高く検出された。上記貯水池の農薬出現パターンは近接する 淡水域のものと類似していた。実験2では沿岸海水中農薬の分析を行った。その結果、 それらの濃度は比較的低いものの、メフェナセット、フェノブカルブおよびイプロベン ホスなどが感潮域で比較的高頻度で検出された。実験3では検出されたメフェナセッ ト(除草剤)の植物プランクトンに対する影響、フェノブカルブ(殺虫剤)の甲殻類 に対する影響を、海産植物プランクトンであるキートセロス(Chaetoceros sp.) および 沿岸域に生息するヨコエビであるフサゲモクズ(*Hyale barbicornis*)を用いた急性毒 性試験結果および既存データをに基づいて評価した。その結果、これらの農薬の淡水お よび沿岸生物に対するリスクは小さいことが推定された。実験4では農薬が検出され た霧島市沿岸で、移植したムラサキイガイ(Mytilus galloprovincialis)、自生のカリガネエ ガイ(Barbatia virescens)およびオハグロガキ(Saccostrea mordax)による農薬の生物濃縮 性評価を行った。その結果、検出される農薬の種類数、濃度ともカリガネエガイで最も 高く、ムラサキイガイで最も低いことが明らかとなった。カリガネエガイの指標生物と しての適性が、生物モニタリングでしばしば用いられているムラサキイガイのそれを 上回っていることがここで示された。実験5では、実験室でカリガネエガとムラサキイ ガイを用い、メフェナセット、フェノブカルブおよびイプロベンホスの生物濃縮試験を 行った。水経由の濃縮実験では2種類の二枚貝間で、それぞれの農薬に対する生物濃縮 係数などは近似した値であり、その値はイプロベンホス、フェノブカルブ、メフェナセ ットの順で高かった。一方、餌経由の生物濃縮では明らかな生物濃縮は認められなかっ た。

以上の結果、霧島市沿岸で検出された農薬は、沿岸生態系に大きな影響を及ぼすことはないと考えられたが、降雨による農薬の流出量増加が懸念されることから、その監視は必要と考えられる。また、一部の二枚貝で明らかな生物濃縮が認められたことから、これらの貝類を用いた農薬に対する生物モニタリングも有効と考えられる。また、比較的高濃度の農薬が貝類に蓄積されていたことから、貝類を捕食する魚類などに対する影響が懸念され、今後に残された問題である。

	学 位 論 文 要 旨
氏名	NATHANIEL C. AÑASCO
題目	Pesticides in Coastal Environments: Their Toxicity and Bioaccumulation in Marine Organisms (沿岸環境における農薬汚染:その生物濃縮と生態毒性に関する研究)

To assess pesticide contamination in coastal waters affected by surface runoffs of coastal rice paddy fields, occurrence and concentrations of pesticides in freshwater areas, coastal waters and marine bivalves of Kirishima City, Kagoshima Prefecture, Japan were examined by GC-MS and a potential biological monitor for rice pesticide pollution in coastal ecosystems was also identified. Five separate studies were conducted, either in the field or in the laboratory, to address these objectives.

In Study 1, a total of sixteen pesticides were detected in four freshwater areas including a wastewater reservoir that are directly influenced by paddy effluents during the 2005 rice planting season. Mefenacet, flutolanil and fenobucarb had higher maximum concentrations detected and were frequently detected. Herbicides had higher concentrations in the earlier stages of the rice planting season while the insecticides and fungicides had higher concentrations in the later stages. The concentrations and temporal patterns of pesticides detected in the wastewater reservoir is comparable to that of the rivers. In Study 2, a total of eight pesticides were detected in coastal waters that receive effluents from a wastewater reservoir temporarily collecting surface runoffs of coastal rice paddy fields. Mefenacet, fenobucarb and iprobenfos were the most important pesticides based on their maximum concentrations and frequencies of detection in the coastal waters. Detected concentrations were relatively low and their distributions were influenced mainly by tidal fluctuations. In Study 3, toxic units in freshwater areas were less than one implying low environmental risk. In the coastal waters, mefenacet and fenobucarb also pose little hazard to marine organisms especially to a marine diatom Chaetoceros sp. and a marine amphipod Hyale barbicornis. In Study 4, a total of eight pesticides associated with rice cultivation were also detected in Mytilus galloprovincialis, Barbatia virescens and Saccostrea mordax also exposed to effluents of the wastewater reservoir. Fenobucarb, iprobenfos, isoprocarb and mefenacet were frequently occurring and in higher concentrations in bivalve tissues. The resident bivalve B. virescens accumulated more pesticides in higher frequency and in higher concentrations compared to the transplanted M. galloprovincialis. In Study 5, both B. virescens and M. galloprovincialis bioaccumulated waterborne mefenacet, fenobucarb and iprobenfos under laboratory conditions. The uptake and depuration rates for all three pesticides were relatively similar between these two bivalve species such that their bioconcentration factors are at about the same levels. Iprobenfos had high bioaccumulation factors followed by fenobucarb and then by mefenacet in both marine bivalves. Foodborne pesticides were not generally bioaccumulated.

Based on these results, it seems rice pesticide pollution do not pose any hazard to coastal organisms. However, monitoring of pesticide residues in the study area must be done every rice planting season since sudden downpours or stormy weather conditions may lead to rapid discharge of a substantial volume of pesticides carried by surface runoffs of coastal rice paddy fields to a wastewater reservoir or even directly into the sea as effluents may overflow due to heavy rain. Both *B. virescens* and *M. galloprovincialis* could be used to monitor coastal pollution by rice pesticides. The habitat preferences of these species, however, which greatly affected their distribution in coastal environments, will largely determine their utilization for biological monitoring without the need for the complicated transplantation of non-residential marine bivalves. Nonetheless, the risks of pesticide residues in these bivalves on their predators should be studied in the future.

学位論文審査結果の要旨								
学位申請者	Nathaniel Cal Añasco							
氏 名								
	主查 鹿児島大学 教授 小山次朗							
	副查 鹿児島大学 教授 板倉隆夫							
審査委員	副查 佐 賀大学 講師 上野大介							
	副查 鹿児島大学 教授 林 國興							
	副查 鹿児島大学 教授 山本 淳							
審查協力者								
題目	Pesticides in Coastal Environments: Their Toxicity and Bioaccumulation in Marine Organisms 沿岸環境における農薬汚染: その生物濃縮と生態毒性に関する研究							

沿岸域における水田農薬汚染とその生態影響を調べるため、霧島市沿岸海水および二枚貝中農薬の分析などを行った。

実験1では、霧島市沿岸の水田排水貯水池を含めた淡水域での農薬分析を行った。その結果、16種類の農薬が検出され、比較的高濃度のメフェナセット、フルトラニルおよびフェノブカルブが頻度高く検出された。上記貯水池の農薬出現パターンは近接する淡水域のものと類似していた。実験2では沿岸海水中農薬の分析を行った。その結果、それらの濃度は比較的低いものの、メフェナセット、フェノブカルブおよびイプロベンホスなどが感潮域で比較的高頻度で検出された。実験3では検出されたメフェナセット(除草剤)の植物プランクトンに対する影響、フェノブカルブ(殺虫剤)の甲殻類に対する影響を、海産植物プランクトンであるキートセロス(Chaetoceros sp.) および沿岸域に生息するヨコエビであるフサゲモクズ(Hyale barbicornis)を用いた急性毒性試験結果および既存データをに基づいて評価した。その結果、これらの農薬の淡水および沿岸生物に対するリスクは小さいことが推定された。実験4では農薬が検出された霧島市沿岸で、

移植したムラサキイガイ、自生のカリガネエガイおよびオハグロガキによる農薬の生物濃縮性評価を行った。その結果、検出される農薬の種類数、濃度ともカリガネエガイで最も高く、ムラサキイガイで最も低いことが明らかとなった。カリガネエガイの指標生物としての適性が、生物モニタリングでしばしば用いられているムラサキイガイのそれを上回っていることがここで示された。実験5では、実験室でカリガネエガとムラサキイガイを用い、メフェナセット、フェノブカルブおよびイプロベンホスの生物濃縮試験を行った。水経由の濃縮実験では2種類の二枚貝間で、それぞれの農薬に対する生物濃縮係数などは近似した値であり、その値はイプロベンホス、フェノブカルブ、メフェナセットの順で高かった。一方、餌経由の生物濃縮では明らかな生物濃縮は認められなかった。

以上の結果、霧島市沿岸で検出された農薬は、沿岸生態系に大きな影響を及ぼすことはないと考えられたが、降雨による農薬の流出量増加が懸念されることから、その監視は必要と考えられる。また、一部の二枚貝で明らかな生物濃縮が認められたことから、これらの貝類を用いた農薬に対する生物モニタリングも有効と考えられる。また、比較的高濃度の農薬が貝類に蓄積されていたことから、貝類を捕食する魚類などに対する影響が懸念され、今後に残された問題である。

最終試験結果の要旨					
学位申請者	Nathaniel Cal Añasco				
氏 名					
	主查 鹿児島大学 教授 小山次朗				
	副查 鹿児島大学 教授 板倉隆夫				
審査委員	副查 佐 賀大学 講師 上野大介				
	副查 鹿児島大学 教授 林 國興				
	副查 鹿児島大学 教授 山本 淳				
審査協力者					
実施年月日	実施年月日 平成22年1月12日				
試験方法(該当のものを○で囲むこと。) 口答・筆答					

主査及び副査は、平成22年1月12日の公開審査会において学位申請者に対して、学位申請論文の内容について説明を求め、関連事項について試問を行った。 具体的には別紙のような質疑応答がなされ、いずれも満足できる回答を得ることができた。

また、口答により外国語 (英語) の学力を確認した。

以上の結果から、審査委員会は申請者が大学院博士課程修了者と同等以上の学力ならびに識見を有するものと認め、博士(水産学)の学位を与えるに十分な資格を有するものと認めた。

学位申請者

Nathaniel Cal Añasco

氏

- [質問1] 二枚貝中農薬分析の回収率はどのように求めたか。 [回答1] 農薬標準物質を添加した二枚貝ホモジネート試料を、実試料と同様の操作で 分析して回収率を求めた。
- [質問2] 生物試料中農薬濃度を表示する場合、脂質重量当たりの含有量として示すことがある。本研究で脂質含量も測定しているが、湿重量当たりで農薬含有量を表示しているのはなぜか。 [回答2] 工校貝の軟体部重量が少ないため、数個体を合わせて1試料にしてすべて農薬含有量分析に用いた。脂質含有量は別の試料について求めたため、脂質重量がの農薬含有量として表示した。
- [質問3] 水試料および二枚貝試料から検出された農薬は、すべて登録農薬(合法的)
- なのか。 すべて登録農薬である。PRTRでもデータが存在していおり、全国的にも用いられている農薬である。 [回答3]
- 分析に用いた二枚貝類は、採取した地点で優先している種なのか。 カリガネエガイとオハグロガキは優先している種である。また、説明したようにムラサキイガイは、長島町の農薬の影響を受けにくい地点(鹿児島大水産学部東町ステーション付近)で採取した個体を、霧島市の観察地点に移植した。
- [質問 5] 食物連鎖経由での農薬の生物濃縮があるとすれば、それをどのように観察すればよいと考えるか。 [回答 5] 貝類を捕食する魚介類中農薬濃度の測定が一つの方法と考える。

- [質問6]日本のコメにはフタル酸類やノニルフェノールなどの環境ホルモンが含まれているが、ここで対象とした海産二枚貝類にも含まれるのか。[回答6]ここでは環境ホルモンを対象としていないが、この研究が契機となって海産生物による環境ホルモンの蓄積が研究されればと考える。
- [質問7] 餌で農薬を投与した場合、二枚貝から農薬があまり検出されなかったが、な
- 野で展業を扱すした。 世か。 餌による農薬投与の場合、1日1回の餌投与であり、投与1時間後には飼育 水をすべて換水した。そのため、餌から吸収した農薬は比較的早く代謝され てしまったため、二枚貝から検出されなかったのではないかと考える。一方、 飼育水で農薬を投与した場合、常時農薬が吸収されたため、一部が代謝され ずに残留して体内濃度が上昇したのではないかと考える。 [回答7]
- 検出される農薬が時期によって異なっているが、なぜか。 それぞれの農薬の使われる時期が異なっているためである。使われた時期に 環境中から検出されている。
- 質問9]注目すべき農薬 (important pesticides) はどのように決めたのか。 回答9] 水試料分析で比較的高濃度であった農薬を選んだ。
- 海域18地点で調査したが、地点間での違いはあったのか。 農薬の分析は5地点で行った。水田排水貯水池の排水口に近いほど農薬の 濃度は高かった。また、採取時期によって検出される農薬の種類、濃度が 異なった。 [質問10] [回答10]
- 農薬の生態毒性試験に用いた生物は、どのように選定したのか。 植物プランクトンであるキートセロスは、しばしば生態毒性試験に用いられる種類であり、ここでは鹿児島湾から単離されたものを用いた。用いが ヨコエビは、日本の沿岸に広く分布する種類であり、対象となるフィール ドを考えた場合、よい試験生物であると考える。
- [質問12] 母国(フィリピン)に帰国したら同じような研究をするのか。また、フィリピンでは養殖場で有機スズを非合法で用いているようであるが、分析方法が不適当なために環境から検出されていない。これらの環境汚染について研究していくのか。[回答12] 母校(フィリピン大学ヴィサヤス)に戻ったらぜひ研究したいと思っている。