

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 6 年 6 月 18 日現在

機関番号：16301

研究種目：基盤研究(A)（一般）

研究期間：2020～2023

課題番号：20H00646

研究課題名（和文）残留性有機汚染物質の包括網羅分析に基づくマスバランス解析と生態リスクの時系列評価

研究課題名（英文）Evaluation of temporal trends of ecotoxicological risk and mass balance of persistent organic pollutants based on an integrated and comprehensive analysis

研究代表者

高橋 真 (Takahashi, Shin)

愛媛大学・農学研究科・教授

研究者番号：30370266

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 34,600,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、国内沿岸の底質柱状試料や野生鳥類等の保管試料を対象に、先端分析機器や細胞アッセイを活用した残留性有機汚染物質（POPs）と類縁有機ハロゲン化合物（OHCs）の一斉/包括分析を行い、汚染実態の時系列評価や既知・未知OHCsのマスバランス解析、毒性同定評価等を実施した。その結果、PCBs等の既存POPsは近年の環境負荷の低減がみられるが、POPs代替の類縁OHCsの環境負荷は増大する傾向がみられた。また、底質や野生動物の組織には未知・未同定のOHCsが相当量残留・蓄積していることが示唆された。一方、細胞アッセイの結果からは、近年ほど底質・生体組織中の毒性等量が低減する傾向が示された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究により、多様な既存・新興POPsの一斉ターゲット分析に加え、類縁OHCsの網羅的スクリーニング、有機態ハロゲンの包括分析、細胞アッセイを活用した毒性同定評価を統合した新規計測・毒性検知法が確立された。また同手法を底質・生物試料に適用することで、新興POPsの環境負荷や生物蓄積の実態、既知/未知OHCsのマスバランス、毒性等量の時系列変化などについて新たな知見を得た。化学物質の種類が増加するなか、本研究により分析技術の高度化や統合化が達成され、多様なPOPs・OHCsの環境残留・生物蓄積等に関する基礎情報が得られたことは学術的に大きな成果であり、将来の化学物質管理への貢献が期待される。

研究成果の概要（英文）：In this study, we conducted simultaneous/comprehensive analysis of persistent organic pollutants (POPs) and related organohalogen compounds (OHCs) using advanced analytical instruments and in vitro bioassays for sediment core samples and archived wild bird samples in Japan, to evaluate their temporal trends of contamination, known/unknown organohalogen mass-balance, and AhR-agonistic/AR-antagonistic activities. The results showed that the environmental impacts of legacy POPs such as PCBs has decreased in recent years, while the environmental load of some OHCs used as alternatives for POPs has tended to increase. Our results also suggested considerable amounts of unknown/unidentified OHCs in sediments and wildlife tissues with little percentages of known POPs. On the other hand, results from bioassays indicated that toxic equivalents in sediments and biological tissues tended to decrease in more recent years, indicating possible effects of regulatory measures for POPs.

研究分野：環境化学

キーワード：残留性有機汚染物質 有機ハロゲン化合物 マスバランス解析 包括網羅分析 毒性同定評価

1. 研究開始当初の背景

残留性有機汚染物質 (POPs) に関するストックホルム条約 (POPs 条約) が 2004 年 5 月に発効し、ポリ塩化ビフェニル (PCBs) などの 12 物質群が規制対象となった。その後も、 POPs 条約対象物質の追加登録が審議され、2019 年までに約 30 物質群が規制対象となっている。 POPs 条約の対象物質は、今後も増加することが予想され、“新規 POPs” やその候補物質に対する早期の環境管理が課題となっている。加えて、規制された POPs の代替物質や類縁物質として、現在も多様な有機ハロゲン化合物 (OHCs) が生産・利用されている。例えば、臭素系難燃剤であるポリ臭素化ジフェニルエーテル (PBDEs) の規制後は、デカブromoジフェニルエタン (DBDPE) や含ハロゲンリン酸エステル系難燃剤等の利用が進んでいる。また、パーフルオロオクタンスルホン酸 (PFOS) やパーフルオロカルボン酸 (PFOA) の代替・類縁化合物として、4,500 種類以上のパーフルオロ / ポリフルオロアルキル化合物 (PFASs) が存在することが指摘されている。これら代替・類縁化合物のなかには、 POPs 類似の環境残留性や生物蓄積性を有する物質群も含まれる可能性がある¹⁾。さらに様々なハロゲン系難燃剤の利用や含有廃棄物の処理等に伴って、未規制のダイオキシン類縁化合物が非意図的に生成・排出されることも指摘されている²⁾。したがって、既存・新規 POPs の個別分析に加え、類縁物質群を網羅的あるいは包括的に検出可能な新規計測・毒性検知システムを確立し、将来の化学物質管理のための技術的基盤や環境排出、生態リスク等に関する基礎情報を整備する必要がある。

2. 研究の目的

以上の背景から、本研究では、沿岸・湖沼堆積物の柱状試料 (底質柱状試料) および野生鳥類等の長期保管試料等を活用し、以下の 3 つの目的に従って研究を実施した。1) 既存および新興 POP 等について、先端分析機器による一斉 / 網羅分析を行い、汚染の時系列トレンドや発生源寄与、生体蓄積の実態を明らかにする。2) 多様な OHCs の包括指標として、試料中の総有機態ハロゲン (TOX) や有機溶媒抽出可能総ハロゲン (EOX) の測定を行い、個別物質の分析結果と統合することで、 TOX・EOX の存在形態や既知 / 未知物質のマスバランスを時系列的に解析する。3) ダイオキシン様毒性や内分泌かく乱活性の測定が可能な *in vitro* 細胞アッセイによる毒性同定評価を行い、既存・新規 POPs や潜在的活性物質の生態リスクについて包括的に評価する。

3. 研究の方法

本研究では、先行研究等^{3,4)}で採取し、堆積年代の解析が行われた別府湾・大阪湾・琵琶湖の底質柱状試料および愛媛大学の生物環境試料バンク (es-BANK) に保管されていた 1970 年代から 2020 年代の野生鳥類 (トビ・カラス・アオサギ・ムクドリ・ミサゴ等) の筋肉・肝臓試料を対象に、下記の POPs および関連 OHCs, PFRs の一斉ターゲット分析、OHCs ノンターゲット網羅分析、EOX・TOX 測定、細胞アッセイを行った。

既存・新興 POPs の分析法は、既法³⁻⁷⁾を改良し、PCBs (全 209 異性体)、DDTs 等の有機塩素系農薬 (POPs-OCPs)、3 7 臭素化 PBDEs を GC-HRMS (EI-SIM) により測定した。また、8 10 臭素化 PBDEs および DBDPE 等の代替臭素系難燃剤 (aBFRs) 4 成分を GC-qMS (NCI-SIM) で測定した。リン酸エステル系難燃剤 (PFRs) 13 成分、PFOS・PFOA 含む PFASs 33 成分については新たな一斉分析法を確立し、HPLC-MS/MS (ESI-MRM) により定性・定量した。また、PCBs の代謝分解物である水酸化 PCBs (OH-PCBs) に関して、3~8 塩素化 OH-PCBs を GC-HRMS (EI-SIM) を用いて定性・定量した。

上記 POPs 等を測定した底質および生物試料の有機溶媒抽出液・難水溶性画分・GPC 分画試料等を対象に、中性子放射化分析 (NAA) および燃焼イオンクロマトグラフィー (C-IC) による TOX・EOX の測定を行った。とくに OHCs が含まれると予想される低分子画分の有機態塩素 (EOCl) / 臭素 (EOBr) について高感度分析法を確立し⁸⁾、既知・未知ハロゲンのマスバランスを解析した。加えて、底質および生物試料の有機溶媒抽出液について、既法⁹⁾による精製・分画を行い、細胞アッセイ (DR-/PAH-/AR-CALUX) に供試した。分画試料のヘキサン画分 (Hex 画分) にはダイオキシン類が、4%アセトン / ヘキサン画分 (Ace 画分) には臭素化ダイオキシン類が、それぞれ溶出することが確認されている。

さらに本研究では、先端分析機器である二次元ガスクロマトグラフ 飛行時間型高分解能質量分析装置 (GC×GC-HRTofMS) を用いて、OHCs ノンターゲット網羅分析法の開発を行った。多様な OHCs を高感度・高選択に検出するため、従来の EI 法によるイオン化に加え、新たにアルゴン (Ar) によるソフトイオン化法を検討した¹⁰⁾。底質試料を対象に Ar イオン化法と EI 法を併用した GC×GC-HRTofMS による網羅分析法を適用し、OHCs の包括的探索を行った。

4. 研究成果

(1) 底質柱状試料を対象とした研究成果

別府湾および大阪湾の底質柱状試料を対象とした既存・新興 POPs 等の分析の結果、PCBs および DDTs 等の POPs-OCPs とともに、PBDEs・DBDPE および 21 種の PFASs が検出された。PCBs および POPs-OCPs の濃度・堆積フラックスに関しては、概ね 1950 年代~70 年代の堆積層でピークがみられた。一方、底質中の PBDEs は、ほとんどが 10 臭素化の BDE-209 あり、1995-96 年頃にピークを示した。DBDPE は、PBDEs よりも表層の堆積層から検出され、近年ほどフラックスが上昇していた。PFASs の濃度・堆積フラックスは、とくに大阪湾で大きく、表層に向けて上昇する傾向が認められた。また、近年ほど長鎖の PFCA の割合が増加する傾向がみられ、生産・使用される PFASs の変化が推察された。以上の結果は、近年の法規制や対策により既存 POPs の環境負荷は低減しているが、新興 POPs や代替物質による環境負荷は、今後も継続・増加する可能性があり、汚染の推移や発生源対策に関するさらなる調査・検証が必要であること示唆している。

また、底質柱状試料の各堆積層から抽出した低分子量画分の EOX (EOCl・EOBr) につ

いて、既知・未知ハロゲンのマスバランスを解析した。底質試料中の EOCi・EOBr は既知 POPs の定量値に比べ、概ね一桁以上高く、未同定有機ハロゲンの割合は、それぞれ 78-94% (Cl 等量)、75-98% (Br 等量) となることから、相当量の未同定有機ハロゲンが存在することが示された。また、EOCi・EOBr の鉛直トレンドは必ずしも既知 POPs のトレンドとは一致せず、人為起源以外の物質寄与が推察された。さらに、本研究で確立した Ar イオン化法と EI 法を併用した GC×GC HRTofMS 網羅分析手法を底質柱状試料に適用し、広範囲の精密質量スペクトルを包括的に解析した結果、既知の人為起源 OHCs に加え、様々な天然起源 OHCs を高感度に検出することに成功した。人為起源および天然起源 OHCs も含め鉛直(時系列的)プロファイル解析した結果、人為起源 OHCs の代表である PCBs は 1970 年代に最も濃度が高くなった一方で、天然起源 OHCs の鉛直プロファイルは PCBs とは異なり、表層に近くなるにつれて濃度が高くなる傾向が認められた。

DR-/PAH-CALUX アッセイによる底質試料の測定では、DR-CALUX アッセイの Hex 画分と Ace 画分、PAH-CALUX アッセイの Ace 画分で AhR アゴニスト活性が検出された。Hex 画分における同活性の 2,3,7,8-TCDD 等量値(TCDD-EQ)は、先行研究により得られたダイオキシン類の分析値から計算した TCDD-EQ と良い相関を示した($r=0.89$, $P=0.033$)。また、底質試料の鉛直(時系列的)プロファイルは、1960 年~1970 年代の堆積層でピークを示し、1970 年以降減少する傾向を示した。Ace 画分の TCDD-EQ は、Hex 画分と異なり、細胞への曝露時間の経過により減少したことから、細胞内で代謝される非ダイオキシン様物質であると推察された。以上の結果から、別府湾底質中のダイオキシン様活性に寄与する物質群は、ダイオキシン類等の規制に伴って減少したことが示された。

(2) 野生鳥類試料を対象とした研究成果

1970 年代から 2020 年代に松山空港で採取した野生鳥類の肝臓試料を対象に、PCBs・PBDEs・aBFRs を測定した結果、すべての試料から PCBs および PBDEs が検出された。一方、DBDPE はじめ aBFRs はすべての検体で検出下限値以下となり、DBDPE 等の生物濃縮性は低いことが推察された。蓄積濃度の時系列変化に着目すると、PCBs は 1970 年代後半から 1990 年代の検体にかけて、濃度が有意に減少したのに対し、PBDEs は同時期において濃度の上昇傾向が認められた。一方、1990 年代以降の検体では両物質とも有意な濃度変化が認められず、生態系における長期的な残留が示唆された。また、鳥類肝臓中の炭素・窒素安定同位体比の測定結果とあわせた解析から、PCBs はとくに水圏食物網の高次栄養段階の鳥種(トビ・ミサゴ等)で高く、10 臭素化 BDE (BDE-209) は陸起源の餌を摂食する鳥種(カラス・ムクドリ等)で高くなる傾向が認められた。さらに、PCBs および OH-PCBs の異性体プロファイル解析した結果、ミサゴやトビなどの猛禽類は、PCBs に対する代謝能力が他種よりも相対的に低いことが示唆された。

また、2017~2018 年に採取されたトビおよびカラスの筋肉試料について PFRs を測定した結果、カラス 2 検体を除く全試料から PFRs が検出された。測定した PFRs 13 種のうち、トビでは tris(1-chloro-2-propyl) phosphate (TCIPP)が、カラスでは tris(4-methylphenyl)

phosphate (p-TMPP)が、卓越的に検出された(検出率 50%以上)。とくにトビの TCIPP 濃度は、同一検体の PBDEs (主要異性体 BDE-47) の蓄積レベルに匹敵していた。以上の結果から、鳥類のなかでも猛禽類は、PCBs 等の既存 POPs のみならず、PFRs 等も高濃度蓄積していることが明らかとなった。今後こうした「ハイリスクアニマル」を対象とした既存・新興 POPs 等のモニタリングや食性・代謝能力を考慮した詳細なリスク評価が必要である。

さらにトビ・アオサギ・カラスの肝臓試料の低分子量画分中の EOX (EOCI・EOBr) の測定結果から、既知・未知有機ハロゲンのマスバランスを解析した。その結果、EOCI については 1977 年のトビで最大 50%、EOBr については 1977 年のトビで最大 33% が既知 POPs (PCBs、PBDEs) の寄与と推算された。底質試料と比較し、生物試料では、既知 POPs の寄与が大きい、90% 以上が未同定有機ハロゲンとなる個体も多く、生物濃縮性で未同定・未知の OHCs が相当量存在することが窺われる。時系列的なトレンドとしては、トビ肝臓中の EOCI は 1970 年代から 1990 年代の検体で減少がみられ、PCBs 等に対する規制の効果が推察された。EOBr に関しては、個体・年代によるばらつきが大きく、一貫した傾向は認められなかった。

また、トビ肝臓試料について、AR-CALUX アッセイを用いて AR アンタゴニスト活性を測定した結果、1970 年代に採取された検体から活性が検出された(1990 年以降の検体では、検出下限以下)。得られた AR アンタゴニスト活性から Flutamide 等量値 (FLU-EQ) を算出し、同一検体の PCBs 濃度と比較したが、有意な関連性が示されなかった。先行研究¹¹⁾において、PCBs 以外にも DDTs 等の POPs-OCPs に AR アンタゴニスト活性のあることが報告されており、トビ肝臓に蓄積する AR アンタゴニスト活性は PCBs よりも DDTs 等に起因する可能性がある。いずれにせよ、トビ肝臓の POPs を含む難分解性化学物質が示す AR アンタゴニスト活性は、1970 年代以降の検体では減少傾向にあり、既存 POPs に対する規制等の効果を反映するものと推察される。

< 引用文献 >

- 1) Kuramochi, H., et al. (2014) Science of The Total Environment 491-492, 108-117.
- 2) 鈴木 剛ら (2018) 廃棄物資源循環学会誌, 29, 470-481.
- 3) Takahashi, S., et al. (2020) Science of the Total Environment 743, 140767.
- 4) Nishimuta, K., et al. (2021) Journal of Pollution Effects & Control 9, 283.
- 5) Hoang, A.Q., et al. (2021) Chemosphere 281, 130867.
- 6) Taniyasu, S., et al. (2005) Journal of Chromatography A 1093, 89-97.
- 7) Eguchi, A., et al., (2014) Talanta 118, 253-261.
- 8) Mukai, K., Fujimori, T., et al. (2021) Science of the Total Environment 756, 143843.
- 9) Suzuki, G., et al. (2017). Analytica Chimica Acta 975, 86-95.
- 10) Ieda T., Hashimoto S., et al. (2021) Journal of Chromatography A, 1657(8), 462571.
- 11) Misaki, K., et al. (2015). Environmental Science & Technology 49, 11840-11848.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計26件（うち査読付論文 25件 / うち国際共著 14件 / うちオープンアクセス 5件）

1. 著者名 高橋 真, 国末達也	4. 巻 45(A)
2. 論文標題 一斉網羅分析法によるPOPsおよび関連物質の環境モニタリングと今後の展望	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 水環境学会誌	6. 最初と最後の頁 321-325
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Kuwaie M, Finney BP, Shi Z, Sakaguchi A, Tsugeki N, Omori T, Agusa T, Suzuki Y, Yokoyama Y, Hinata H, et al.	4. 巻 10
2. 論文標題 Beppu Bay, Japan, as a candidate Global boundary Stratotype Section and Point for the Anthropocene series	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 The Anthropocene Review	6. 最初と最後の頁 49 ~ 86
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1177/20530196221135077	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する
1. 著者名 Anh HQ, Karyu R, Tue NM, Goto A, Tuyen LH, Matsukami H, Suzuki G, Takahashi S, Viet PH, Kunisue T	4. 巻 310
2. 論文標題 Comprehensive characterization of halogenated flame retardants and organophosphate esters in settled dust from informal e-waste and end-of-life vehicle processing sites in Vietnam: Occurrence, source estimation, and risk assessment	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Environmental Pollution	6. 最初と最後の頁 119809 ~ 119809
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.envpol.2022.119809	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Anh HQ, Duong HT, Trinh HT, Kadokami K, Takahashi S	4. 巻 30
2. 論文標題 Sediment contamination with polybrominated diphenyl ethers and alternative brominated flame retardants: case study in urban lakes of Hanoi, Vietnam	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Environmental Science and Pollution Research	6. 最初と最後の頁 31436 ~ 31445
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s11356-022-24393-8	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Misaki K, Tue NM, Takamura-Enya T, Takigami H, Suzuki G, Tuyen LH, Takahashi S, Tanabe S	4. 巻 20
2. 論文標題 Antiandrogenic and Estrogenic Activity Evaluation of Oxygenated and Nitrated Polycyclic Aromatic Hydrocarbons Using Chemically Activated Luciferase Expression Assays	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 International Journal of Environmental Research and Public Health	6. 最初と最後の頁 80 ~ 80
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/ijerph20010080	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 Ito K, Fujimori T, Fukutani S, Anh HQ, Kuwae M, Takaoka M, Takahashi S	4. 巻 83
2. 論文標題 Comparison of the Mass Balance Trends of Organobromine in Sediments from Osaka Bay, Beppu Bay, and Lake Biwa	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Organohalogen Compounds	6. 最初と最後の頁 107 ~ 111
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Anh HQ, Aono D, Kawashima A, Hamada N, Falahudin D, Watanabe I, Tsugeki NK, Kuwae M, Takahashi S	4. 巻 281
2. 論文標題 Determination of brominated flame retardants including polybrominated diphenyl ethers, pentabromoethylbenzene, hexabromobiphenyl, and decabromodiphenyl ethane in sediment samples: Validation of a rapid and efficient clean-up method and application to a sediment core from Lake Biwa, Japan	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Chemosphere	6. 最初と最後の頁 130867 ~ 130867
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.chemosphere.2021.130867	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Anh HQ, Takahashi S, Da Le N, Duong TT, Huong Pham TM, Mai Pham TN, Huong Nguyen TA, Tran TM, Tu MB, Quynh Le TP	4. 巻 197
2. 論文標題 Comprehensive determination of polychlorinated biphenyls and brominated flame retardants in surface sediment samples from Hanoi urban area, Vietnam: Contamination status, accumulation profiles, and potential ecological risks	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Environmental Research	6. 最初と最後の頁 111158 ~ 111158
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.envres.2021.111158	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Anh HQ, Suzuki G, Michinaka C, Tue NM, Tuyen LH, Tu MB, Takahashi S	4. 巻 788
2. 論文標題 Characterization of unsubstituted and methylated polycyclic aromatic hydrocarbons in settled dust: Combination of instrumental analysis and in vitro reporter gene assays and implications for cancer risk assessment	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Science of The Total Environment	6. 最初と最後の頁 147821 ~ 147821
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.scitotenv.2021.147821	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Anh HQ, Aono D, Watanabe I, Tsugeki NK, Kuwae M, Takahashi S	4. 巻 788
2. 論文標題 Historical record of polychlorinated biphenyls in a sediment core from Lake Biwa, Japan: Significance of unintentional emission and weathering signals revealed by full congener-specific analysis	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Science of The Total Environment	6. 最初と最後の頁 147913 ~ 147913
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.scitotenv.2021.147913	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Kuwae M, Tsugeki NK, Amano A, Agusa T, Suzuki Y, Tsutsumi J, Leavitt PR, Hirose K	4. 巻 37
2. 論文標題 Human-induced marine degradation in anoxic coastal sediments of Beppu Bay, Japan, as an Anthropocene marker in East Asia	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Anthropocene	6. 最初と最後の頁 100318 ~ 100318
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.ancene.2021.100318	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Ieda T, Hashimoto S, Tanabe K, Goto A, Kunisue T	4. 巻 1657
2. 論文標題 Application of inert gas-mediated ionization for qualitative screening of chlorinated aromatics in house dust by comprehensive two-dimensional gas chromatography/high-resolution time-of-flight mass spectrometry	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Chromatography A	6. 最初と最後の頁 462571 ~ 462571
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.chroma.2021.462571	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Tue NM, Goto A, Fumoto M, Nakatsu S, Tanabe S, Kunisue T	4. 巻 55
2. 論文標題 Nontarget Screening of Organohalogen Compounds in the Liver of Wild Birds from Osaka, Japan: Specific Accumulation of Highly Chlorinated POP Homologues in Raptors	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Environmental Science & Technology	6. 最初と最後の頁 8691 ~ 8699
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.est.1c00357	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Ito K, Fujimori T, Mukai K, Anh HQ, Fukutani S, Takaoka M, Takahashi S	4. 巻 82
2. 論文標題 Mass Balance Trends of Organobromine Compounds in a Sediment Core from Beppu Bay, Japan	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Organohalogen Compounds	6. 最初と最後の頁 17 ~ 20
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Hoang Anh Quoc, Aono Daichi, Watanabe Isao, Kuwae Michinobu, Kunisue Tatsuya, Takahashi Shin	4. 巻 266
2. 論文標題 Contamination levels and temporal trends of legacy and current-use brominated flame retardants in a dated sediment core from Beppu Bay, southwestern Japan	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Chemosphere	6. 最初と最後の頁 129180 ~ 129180
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.chemosphere.2020.129180	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Mukai Kota, Fujimori Takashi, Anh Hoang Quoc, Fukutani Satoshi, Kunisue Tatsuya, Nomiyama Kei, Takahashi Shin	4. 巻 756
2. 論文標題 Extractable organochlorine (EOCl) and extractable organobromine (EOBr) in GPC-fractionated extracts from high-trophic-level mammals: Species-specific profiles and contributions of legacy organohalogen contaminants	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Science of The Total Environment	6. 最初と最後の頁 143843 ~ 143843
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.scitotenv.2020.143843	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計53件（うち招待講演 3件 / うち国際学会 19件）

1. 発表者名 新里優太・水川葉月・渡辺桃加・野見山桂・高橋真
2. 発表標題 肝臓中水酸化PCBs (OH-PCBs) の分析法確立と野生鳥類におけるPCBs代謝能力の種間差解析
3. 学会等名 第2回 環境化学物質3学会合同大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 高橋真・岡村奏太郎・久保猛・野崎彰平・高須賀智奈美・水川葉月・中村裕史・川嶋文人・石橋弘志
2. 発表標題 魚類および野生動物組織中のPFASsの分析法開発と蓄積特性評価
3. 学会等名 第2回 環境化学物質3学会合同大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 伊藤健登・藤森崇・福谷哲・水川葉月・国末達也・高岡昌輝・高橋真
2. 発表標題 高次栄養動物における抽出可能性塩素および臭素の時系列評価
3. 学会等名 第2回 環境化学物質3学会合同大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Ito K, Fujimori T, Fukutani S, Mizukawa H, Kunisue T, Takaoka M, Takahashi S
2. 発表標題 Time trends of extractable organohalogen (EOX) in archived animal samples
3. 学会等名 43rd International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (Dioxin2023) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 須之内 朋哉・平田若葉・後藤哲智・高橋 真・田上瑠美・国末達也
2. 発表標題 野生鳥類2種におけるリン酸エステル系難燃剤汚染
3. 学会等名 環境科学会2023年会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 家田曜世, 橋本俊次, 高橋真, 国末達也
2. 発表標題 環境試料ノンターゲット分析手法の開発と堆積物コア試料への応用
3. 学会等名 日本分析化学会第72年会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 家田曜世
2. 発表標題 GC×GC HRTofMSを用いた環境試料ノンターゲット分析手法の開発~これまでの成果と現状の課題~
3. 学会等名 令和5年度 統計学的アプローチによる問題解決のための環境化学分析の最適化・高度化に関する研究集会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 新里優太、水川葉月、渡辺桃加、野見山桂、高橋真
2. 発表標題 Contamination status, metabolic characteristic and ecological risk assessment of PCBs in wild birds
3. 学会等名 7th International Chemical Hazard Symposium & 7th Symposium of Japan Society for Environmental Chemistry, Hokkaido/Tohoku & Chugoku/Shikoku Regional Forum (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 池尾拓馬, 高橋 真, 水川葉月, 高須賀智奈美, Ahn HQ, 石橋弘志, 加 三千宣
2. 発表標題 別府湾および大阪湾の底質柱状試料を用いたPFAS 汚染の時系列評価
3. 学会等名 環境化学物質3学会合同大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 水川葉月, 渡辺桃加, 一瀬貴大, 石塚真由美, 池中良徳, 中山翔太, 高橋 真
2. 発表標題 鳥類シナントロープ(ヒト生活圏近傍動物種)におけるPOPs蓄積と代謝特性の解明
3. 学会等名 環境化学物質3学会合同大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 政木仁哉, 藤森 崇, 伊藤健登, 高岡昌輝, 福谷 哲, 渡辺桃加, 水川葉月, 高橋 真
2. 発表標題 野生のトビを対象にした抽出可能性有機塩素・臭素の時系列変化
3. 学会等名 環境化学物質3学会合同大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 高橋 真, Ahn HQ, 田口雄一朗, 青野大地, 石井晃太郎, Falahudin D, 池尾拓馬, 高須賀智奈美, 渡邊 功, 水川葉月, 加 三千宣, 石橋弘志
2. 発表標題 大阪湾および別府湾の底質柱状試料を用いたレガシー & 新興POPs汚染の時系列評価
3. 学会等名 環境化学物質3学会合同大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 伊藤健登, 藤森 崇, 福谷 哲, 加 三千宜, Anh HQ, Falahudin D, 高岡昌輝, 高橋 真
2. 発表標題 大阪湾底質コアを用いた有機塩素マスバランスの時系列変化
3. 学会等名 環境化学物質3学会合同大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 伊藤健登, 藤森 崇, 塩田憲司, 松神秀徳, 高岡昌輝, 高橋 真, 石橋弘志
2. 発表標題 燃焼イオンクロマトグラフィーを用いた底質中有機フッ素の測定に向けた試み
3. 学会等名 環境化学物質3学会合同大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 伊藤健登, 藤森 崇, 塩田憲司, 福谷 哲, 大下和徹, 高岡昌輝, 高橋 真
2. 発表標題 中性子放射化分析における揮発性液体試料中塩素・臭素の測定方法の検討
3. 学会等名 環境化学物質3学会合同大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 鈴木 剛, 道中智恵子, Anh HQ, 渡邊 功, 加 三千宜, 高橋 真
2. 発表標題 別府湾底質柱状試料のAhRアゴニスト活性プロファイリング
3. 学会等名 環境化学物質3学会合同大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 高橋 真, 嶽盛公昭, 高菅卓三, Anh HQ, 加 三千宣
2. 発表標題 別府湾底質柱状試料を用いたダイオキシン類縁化合物汚染の時系列評価
3. 学会等名 環境化学物質3学会合同大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Ito K, Fujimori T, Fukutani S, Mizukawa H*, Kunisue T, Takaoka M, Takahashi S
2. 発表標題 Comparison of the temporal trends of extractable organochlorine and organobromine in archive samples
3. 学会等名 6th International Chemical Hazard Symposium第6回環境化学討論会北海道東北地区部会・中国四国地区部会合同シンポジウム(国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 高橋 真
2. 発表標題 化学物質利用の持続可能性と環境モニタリング
3. 学会等名 愛媛大学大学院農学研究科SDGsシンポジウム「持続可能な化学物質管理に向けた環境計測・生態毒性研究の最前線」
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 高橋 真
2. 発表標題 瀬戸内の堆積物と生物相にみる残留性有機汚染物質 (POPs) の歴史と課題
3. 学会等名 JASIS関西2023トピックスセミナー(招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Kuwae M
2. 発表標題 “Beppu Bay” in “Presentation of six GSSP candidate sites”
3. 学会等名 SQS-sponsored International Symposium on the Anthropocene, “AnthFlor” (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Ieda T, Hashimoto S
2. 発表標題 Environmental analysis using GC×GC-HRToFMS at the National Institute for Environmental Studies (NIES), Japan
3. 学会等名 19th International GC×GC Symposium (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 藤森崇, 向井康太, Hoang Quoc Anh, 福谷哲, 国末達也, 野見山桂, 高橋真
2. 発表標題 哺乳動物体内の「隠れた有機ハロゲン」: 抽出可能性有機ハロゲンの定量と既知・未知物質の寄与解析
3. 学会等名 日本地球惑星科学連合2022年大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 伊藤健登, 藤森崇, 塩田憲司, 加三千宣, 高岡昌輝, 高橋真
2. 発表標題 X線吸収端近傍構造を用いた底質中難水溶性臭素の形態分析
3. 学会等名 日本地球惑星科学連合2022年大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 伊藤健登, 藤森崇, 福谷哲, 大下和徹, 高岡昌輝, 高橋真
2. 発表標題 中性子放射化分析を用いた大阪湾底質コアにおける有機塩素マスバランスの時系列変化
3. 学会等名 放射化分析及び中性子を用いた地球化学研究-4-
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 伊藤健登・藤森 崇・向井康太・Anh HQ・福谷 哲・高岡昌輝・高橋 真
2. 発表標題 別府湾底質コア試料を用いた有機臭素マスバランスの時系列変化
3. 学会等名 第29回環境化学討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 伊藤健登・藤森 崇・向井康太・Anh HQ・福谷 哲・高岡昌輝・高橋 真
2. 発表標題 別府湾底質コア試料を用いた有機塩素マスバランスの時系列変化
3. 学会等名 第29回環境化学討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 向井康太・藤森 崇・塩田憲司・伊藤健登・高岡昌輝・富岡恵大・高橋 真
2. 発表標題 環境固体試料における臭素の化学種別定量：媒体間の横断比較
3. 学会等名 第29回環境化学討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 西牟田昂・上野大介・高橋 真・加三千宣・槻木玲美・門上希和夫・宮脇 崇・松神秀徳・倉持秀敏・酒井伸一
2. 発表標題 CTA-AIQSを用いた大阪湾底質コア試料中CECsの検索
3. 学会等名 第29回環境化学討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 高橋 真・Anh HQ・青野大地・Falahudin D・渡邊 功・水川葉月・加三千宣・槻木玲美・国末達也
2. 発表標題 別府湾および琵琶湖底質柱状試料を用いたPCBs・POPs汚染の時系列評価
3. 学会等名 第29回環境化学討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 渡辺桃加・水川葉月・一瀬貴大・石塚真由美・池中良徳・中山翔太・高橋 真
2. 発表標題 野生鳥類におけるPOPs汚染の時系列評価と安定同位体比に基づく蓄積特性の解析
3. 学会等名 第29回環境化学討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Ito K, Fujimori T, Anh HQ, Fukutani S, Kuwae M, Takaoka M, Takahashi S
2. 発表標題 底質コアを用いた有機ハロゲンマスバランスの時系列変化 環境媒体間元素別トレンド解明への試み
3. 学会等名 5th International Chemical Hazard Symposium (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 池尾拓馬・高須賀智奈美・高橋真・水川葉月・中村裕史・川嶋文人・加 三千宣
2. 発表標題 別府湾および大阪湾の底質柱状試料を用いたPFAS汚染の時系列評価
3. 学会等名 5th International Chemical Hazard Symposium (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Kuwae M, Tsugeki NK, Aman A, Agusa T, Suzuki Y, Ikehara K, Omori K, Inoue J, et al.
2. 発表標題 Dataset of anthropogenic marker records reconstructed from the Beppu Bay sediments
3. 学会等名 Meeting of the Anthropocene Working Group (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Kuwae M, Tsugeki NK, Amano A, Agusa T, Suzuki Y, Tsutsumi J, Leavitt PR, Hirose K
2. 発表標題 Beppu Bay stratigraphy records the timing of human-induced planetary-scale biological and environmental shift at the beginning of the Anthropocene
3. 学会等名 JpGU 2021 meeting
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Ito K, Fujimori T, Mukai K, Anh HQ, Fukutani S, Takaoka M, Takahashi S
2. 発表標題 Mass Balance Trends of Organobromine Compounds in a Sediment Core from Beppu Bay, Japan
3. 学会等名 Dioxin 2021 - 41st International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 篠原菜緒香, 後藤哲智, 田上瑠美, 田辺信介, 国末達也
2. 発表標題 瀬戸内海の二枚貝とマアジにおけるリン酸エステル系難燃剤汚染
3. 学会等名 第29回環境化学討論会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

環境計測学研究室（愛媛大学） http://keisoku.deca.jp/

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	水川 葉月 (Mizukawa Hazuki) (60612661)	愛媛大学・農学研究科・准教授 (16301)	
研究分担者	国末 達也 (Kunisue Tatsuya) (90380287)	愛媛大学・沿岸環境科学研究センター・教授 (16301)	
研究分担者	加 三千宣 (Kuwaie Michinobu) (70448380)	愛媛大学・沿岸環境科学研究センター・教授 (16301)	

6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	藤森 崇 (Fujimori Takashi) (20583248)	龍谷大学・先端理工学部・教授 (34316)	
研究分担者	鈴木 剛 (Suzuki Go) (70414373)	国立研究開発法人国立環境研究所・資源循環領域・室長 (82101)	
研究分担者	橋本 俊次 (Hashimoto Shunji) (80321719)	国立研究開発法人国立環境研究所・環境リスク・健康領域・室長 (82101)	
研究分担者	家田 曜世 (Ieda Teruyo) (40761078)	国立研究開発法人国立環境研究所・環境リスク・健康領域・主任研究員 (82101)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関			
ベトナム	VNU Hanoi University of Science			