

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 9 日現在

機関番号：12605

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2015

課題番号：26550005

研究課題名(和文) POPs吸着材としての海鳥用足環の開発と海洋モニタリングへの適用

研究課題名(英文) Development of seabird foot ring for POPs adsorbent and its application to marine environmental monitoring

研究代表者

山下 麗 (YAMASHITA, Rei)

東京農工大学・(連合)農学研究科(研究院)・研究員

研究者番号：60599629

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では残留性有機汚染物質(POPs)の吸着性が高いポリエチレン製のプラスチック足環と位置情報などを計測する機器(GPSなど)を異なる行動範囲の海鳥にそれらを装着することによって、簡便に海洋中のPOPモニタリングを行うことを目的とした。海域間のPOP濃度の違いを検討するため、異なる島に生息する海鳥にポリエチレン製足環とGPSを装着し数日後に回収した。その結果、足環のPOP濃度は海鳥の利用海域の違いを反映していた。したがって、ポリエチレン製足環は海洋中のPOP濃度のモニタリングツールとして有用であることが示された。

研究成果の概要(英文)：In order to monitor Persistent Organic Pollutants (POPs) in marine environment, we attached plastic foot ring for POPs adsorbent and GPS logger for seabirds which use different foraging areas, and analyzed for POPs in rings and GPS tracking data. To assess the differences of sea areas, we attached plastic rings and GPS loggers at Awa island (Niigata Pref.) and Funakoshi Oshima island (Iwate Pref.). POPs concentrations in plastic rings which were recovered from Awa island were higher than Funakoshi Oshima island. POPs concentrations of foot rings were reflected the differences in the foraging areas of seabirds. These results were consistent with previous studies. We demonstrated the usefulness of plastic foot ring of seabirds as a convenience POPs monitoring tool in marine environment.

研究分野：環境化学

キーワード：残留性有機汚染物質 海鳥 バイオロギング

### 1. 研究開始当初の背景

海洋の有機汚染物質を測定するためには調査船を使った採水や労力を伴う大量濾過を行わなければならなかった (Iwata et al. 1993 など)。また、外洋における試料採取は船舶の使用料や大量の海水の運搬費などコストがかかっていた。近年になって、海洋に漂流しているプラスチックが汚染物質を高濃度に吸着していることが明らかになった (Mato et al. 2001)。この性質を利用し、申請者はこれまで海岸に漂着しているプラスチックの中間原材料であるレジンペレットを用いて、沿岸海域の有機汚染物質 (POPs) のモニタリング (国際ペレットウォッチ: IPW) に携わってきた (Hesket et al. 2012 など)。しかし、この方法が反映する海域は沿岸に限られている。また、外洋に漂流しているプラスチックからも POPs が検出されているが (Hirai et al. 2010)、プラスチックがどこからきたのか履歴を追うことができないため、どの範囲の汚染を反映しているのかわからなかった。

近年、位置情報が分かる小型の計測機器 (GPS) が開発され、海鳥に装着することによって行動範囲が分かるようになってきた。

### 2. 研究の目的

本研究では POPs 吸着力の高いプラスチック製の足環と位置情報や着水情報がわかる小型の計測器 (ジオロケータや GPS) を用いることで、簡便に地球規模での海水中の POPs モニタリングを行うことを最終的な目的とした。そのために、先ず、足環への POPs 吸着状態の経年変化を明らかにするために室内実験を行った。次いで、野生の海鳥に足環と GPS を装着・回収し、GPS から海鳥が利用した海域を解析し、さらに足環へ吸着した POPs を分析することで、海鳥の利用海域中の POPs 濃度を明らかにすることを目的とした。

### 3. 研究の方法

#### (1) 室内実験 (足環への POPs 吸着実験)

これまでの研究から、プラスチックのポリエチレンが POPs の高い吸着性を持つことが分かっている (Karapanagioti and Klontza 2008)。また、プラスチックの厚さが POPs の保持力と関係していることが分かっている。そこで、異なる厚さのプラスチックを 2 種類用意し (図 1)、POPs の吸着力と吸着速度の違いについて検討した。



図 1. 2 種類の足環 (左: タイプ A, 厚さ 0.2 mm, 右: タイプ B, 厚さ 1.2 mm)。

先ず、東京湾から海水を採取し、Whatman GF/F フィルターでろ過したものを試水に供した。ブラジルの海岸に漂着したポリエチレン製のレジンペレットをヘキサンの浸漬し、ポリ塩化ビフェニル (PCBs)、有機塩素系殺虫剤のジクロロジフェニルトリクロロエタンとその生成物 (DDTs) とヘキサクロロシクロヘキサン類 (HCHs) を抽出し、アセトンに置き換えた後に上述の濾過海水に添加し、2 種類の足環を加えて、室温 25 度・暗条件下 (暗瓶) で攪拌した。実験は 391 日間行い、数日毎に足環を採取した。

#### (2) 野外調査

プラスチック製の足環の耐久性と野鳥へのストレスを見るために、初年度である 2014 年の 5 月に北海道天売島で繁殖するウトウ *Cerorhinca monocerata* を用いた。親鳥は雛に餌を与えるために帰巢する習性を利用し、雛がいる巣を予め調査して実験に使う個体 (成鳥) を決定した。それらの個体にプラスチック足環 (図 1 左のタイプ A および 図 2) を 7 個体に装着した。同様の個体の背中に GPS ロガーを装着し (図 2)、数日後に回収した。また、8 月から 9 月にかけて、新潟県粟島に生息するオオミズナギドリ *Calonectris leucomelas* の成鳥 43 個体にも足環と GPS を装着した。



図 2. ウトウに装着した足環 (タイプ A) と

GPS ロガー。

2015 年には新潟県粟島と、岩手県船越大島に生息するオオミズナギドリに、足環と GPS をそれぞれ 37 個体と 15 個体に装着し、数日後に回収した。足環と GPS ロガーを装着した個体が汚染物質にどの程度暴露されたかを調べるために、体内濃度を反映する尾腺ワックス (尾脂腺から出る油) も採取した。

#### (3) 分析方法

回収された足環はヘキサンの 3 日間浸漬させ濃縮した後、活性化シリカゲルカラムクロマトグラフィーによって分画・精製を行った。得られた溶媒を濃縮し、窒素ガスで吹き付けした後、イソオクタンで 100  $\mu$ L に定容し、PCBs については高分解能ガスクロマトグラフ・タンデム質量分析計 (GC-MS/MS

Thermoelectron 社、PolarisQ)で分析した。PCBs の濃度は 13 種類の同族異性体の総和を示した。また、DDTs および HCHs はガスクロマトグラフ - 電子捕獲型検出器 (GC-ECD: Agilent Technologies 社)を用いて分析した。DDTs については、*p,p'*-DDE, *p,p'*-DDD, *p,p'*-DDT の濃度の総和を、HCHs は、 $\alpha$ -HCH、 $\beta$ -HCH、 $\gamma$ -HCH、 $\delta$ -HCH の濃度の総和を示した。

尾腺ワックスについては、アセトンとヘキサンの混合溶液を用いて超音波抽出し、抽出溶液の一部を分取し、脂質重量用に供した。残りの溶液は 2 段階のシリカゲルクロマトグラフィーで分画・精製を行った。得られた溶液は足環の抽出溶液と同様に、GC-MS/MS および GC-ECD で分析した。

GPS ロガーのデータの抽出および解析は、研究協力者である名古屋大学大学院環境科学研究科依田憲教授、博士後期課程松本祥子氏および塩崎達也氏が行った。

#### 4. 研究成果

##### (1)室内実験 (足環への POPs 吸着実験)

タイプ A の足環は厚さが 0.2 mm とタイプ B に比べて薄いため POPs が吸着する時間が早いと予想していたため、27 日までしか分析していないが、およそ 40-50 日程度で濃度が

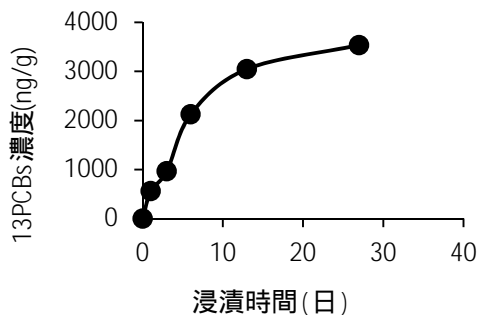


図3. タイプA足環への13PCBs濃度の変化

一定になると予想された (図 3)。

タイプ B の結果も同様に、およそ 50 日 (1200 時間) 程度で一定の濃度に達した (図 4)。実際の海水中の濃度はこの実験で使った濃度に比べて低いため、少なくとも 50 日

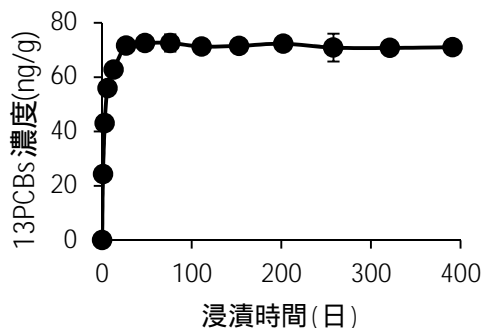


図4. タイプB足環への13PCBs濃度の変化

(1200 時間) 程度の着水時間でもこの足環を使うことが可能であることが示された。

##### (2)野外調査

北海道天売島で繁殖するウトウに足環と GPS を装着したが、2014 年は雛への餌 (イカナゴやカタクチイワシなど) が採れなかったことから、親が育雛を放棄する個体が多かった。本研究に供した個体も帰巢しなかったため、足環と GPS を回収することはできなかった。

新潟県粟島で 2014 年に繁殖していたオオミズナギドリ 43 個体に足環を装着し 36 個体から足環を回収した。しかし、GPS ロガーが回収され、データが取り込まれた個体は 27 個体であった。2015 年は 19 個体のデータが回収され、粟島のオオミズナギドリの利用海域が明らかになった (図 5) 2014 年と 2015 年でオオミズナギドリの利用海域は大きな違いは認められず、島周辺である新潟県沖から秋田・北海道南西部まで利用していた。岩手県船越大島で 2015 年に繁殖していたオオミズナギドリの利用海域を図 6 に示した。船越大島のオオミズナギドリは島周辺・三陸海岸沖から北海道東部の根室・色丹島までの広範を利用していた。

これらの利用海域の違いを検討するために、両島で採取した足環の POPs 濃度を比較した (図 7)。粟島の個体群は船越大島の個体群に比べて高い傾向があった。

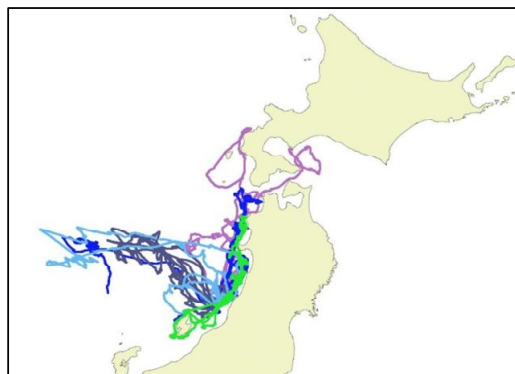


図5. 2015年に粟島で繁殖していたオオミズナギドリの利用海域。

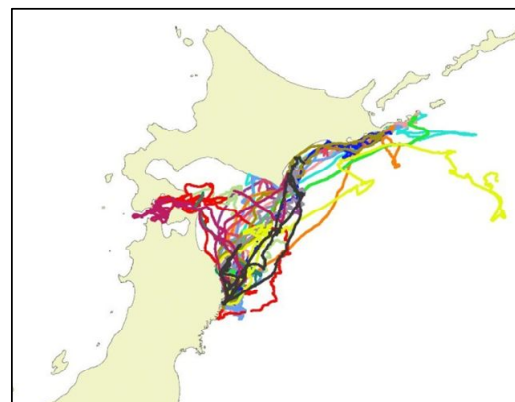


図6. 2015年に船越大島で繁殖していたオオミズナギドリの利用海域

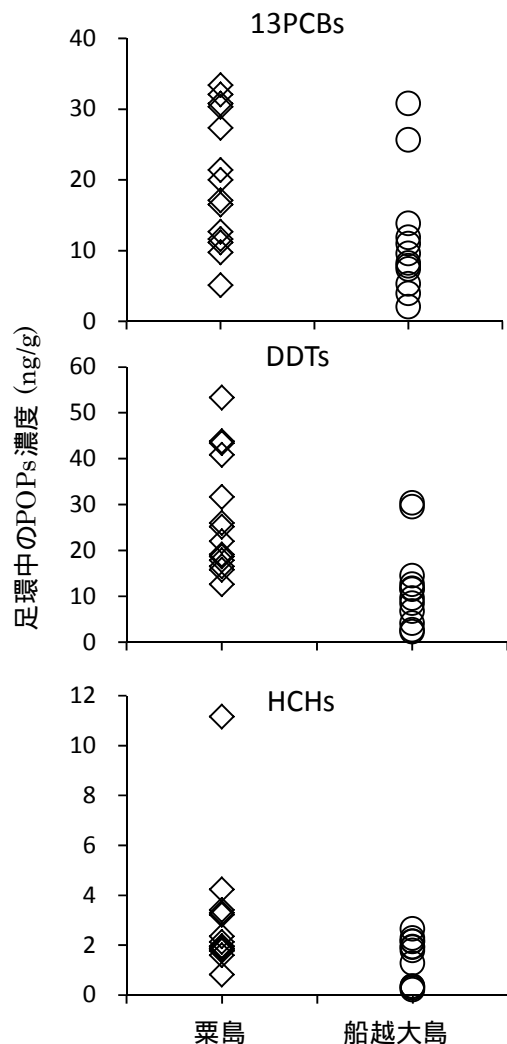


図7. 粟島と船越大島で繁殖していたオオミズナギドリの足環中のPOPs濃度。上から13PCBs, DDTs, HCHs濃度。

PCBs, DDTs, HCHsのいずれの足環の濃度も粟島で有意に高い傾向にあった (Mann-Whitney U-test, PCBs:  $U=36.5$ ,  $p=0.015$ , DDTs:  $U=19.5$ ,  $p<0.001$ , HCHs:  $U=41.0$ ,  $p=0.027$ )。これらの結果は既存の研究結果と一致する (The Ministry of Environment of Japan, 2011.)。したがって、本研究で使用したプラスチック製足環はモニタリングツールとして有用であることが示された。

利用海域で汚染された鳥の体内濃度との関係を検証するために、足環と尾腺ワックス中の濃度を比較検討した (図8)。尾腺ワックス中のPCBs濃度は足環中の濃度に比べて約30倍の濃度であり、両者に相関が認められた (Pearson's  $r=0.785$ ,  $p<0.01$ )。DDTs濃度も同様に相関が認められたが (Pearson's  $r=0.669$ ,  $p<0.05$ )。HCHs濃度には認められなかった (Pearson's  $r=-0.103$ ,  $p=0.776$ )。HCHsで相関が認められなかった理由として、HCHsはPCBsやDDTsと異なり、揮発性と水溶性が比較的高く、脂溶性が低いいため、足環への吸着と海鳥への暴露について異な

る機構が働くためと考えられた。PCBsやDDTsといった海鳥への影響が深刻な成分については、足環濃度から海域の汚染が明らかになれば、海鳥体内中の濃度を推定できる可能性が示された。

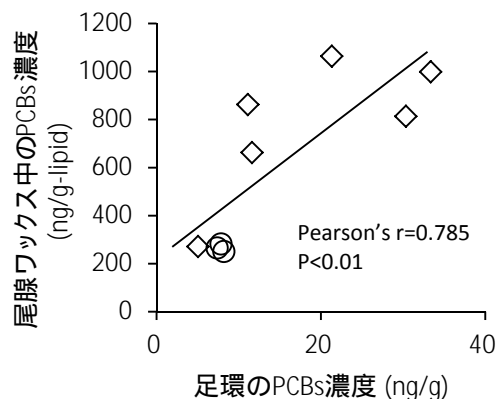


図8. オオミズナギドリに装着した足環と尾腺ワックス中のPCBs濃度。

< 引用文献 >

- (1)Iwata, H., Tanabe, S., Sakai, N., Tatsukawa, R. Distribution of persistent organochlorines in the oceanic air and surface seawater and the role of ocean on their global transport and fate. Environ Sci Technol, 1993, 27, pp. 1080-1098.
- (2)Mato, Y., Isobe, T., Takada, H., Kanehiro, H., Ohtake, C., & Kaminuma, T. Plastic resin pellets as a transport medium for toxic chemicals in the marine environment. Environmental science & technology, 2001, 35(2), 318-324.
- (3)Heskett, M., Takada, H., Yamashita, R., Yuyama, M., Ito, M., Geok, Y. B., Ogata, Y., Kwan, C., Heckhausen, A., Powell, T., Morishige, C., Young, D., Petterson, H., Robertson B., Bailey, E., Mermozl, J. Measurement of persistent organic pollutants (POPs) in plastic resin pellets from remote islands: Toward establishment of background concentrations for International Pellet Watch. Marine Pollution Bulletin, 2012, 64(2), pp. 445-448.
- (4)Hirai, H., Takada, H., Ogata, Y., Yamashita, R., Mizukawa, K., Saha, M., Kwan, C., Moore, C., Gray, H., Laursen, D., Zettler, E.R., Farrington, J.W., Reddy C.M., Peacock, E.E., Ward, M.W. Organic micropollutants in marine plastics debris from the open ocean and remote and urban beaches. Marine Pollution Bulletin, 2011, 62(8), 1683-1692.

(5) Karapanagioti H.K., Klontza I. Testing phenanthrene distribution properties of virgin plastic pellets and plastic eroded pellets found on Lesvos island beaches (Greece). *Marine Environmental Research*, 2008, 65 (4), pp 283–290.

(6) Chemicals in the Environment FY2010 report; The Ministry of Environment of Japan: Tokyo, 2011.

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計7件)

(1) 山下 麗, 田中 厚資, 高田 秀重. 海洋プラスチック汚染: 海洋生態系におけるプラスチックの動態と生物への影響. *日本生態学会誌*, 査読有り, 2016, 66, pp 51-68.

(2) Satie Taniguchi, Fernanda I. Colabuono, Patrick S. Dias, Renato Oliveira, Mara Fisner, Alexander Turra, Gabriel M. Izar, Denis M.S. Abessa, Mahua Saha, Junki Hosoda, Rei Yamashita, Hideshige Takada, Rafael A. Lourenço, Caio A. Magalhães, Márcia C. Bicego, Rosalinda C. Montone. Spatial variability in persistent organic pollutants and polycyclic aromatic hydrocarbons found in beach-stranded pellets along the coast of the state of São Paulo, southeastern Brazil. *Marine Pollution Bulletin*, 査読有り, 2016, 106 (1–2), pp 87–94.

(3) Kosuke Tanaka, Hideshige Takada, Rei Yamashita, Kaoruko Mizukawa, Masa-aki Fukuwaka, and Yutaka Watanuki. Facilitated Leaching of Additive-Derived PBDEs from Plastic by Seabirds' Stomach Oil and Accumulation in Tissues. *Environmental Science and Technology*, 査読有り, 2015, 49 (19), pp 11799–11807. DOI: 10.1021/acs.est.5b01376

(4) Rei Ysmashita, Michio Murakami, Yuichi Iwasaki, Nao Shibayama, Keisuke Sueki, Saha Mahua, Goro Mouri, Soulichan Lamxay, Haechong O, Yukio Koibuchi, Hideshige Takada. Temporal Variation and Source Analysis of Radiocesium in an Urban River after the 2011 Nuclear Accident in Fukushima, Japan. *Journal of Water and Environment Technology*, 査読有り, 2015, 13(2), 179-194. doi.org/10.2965/jwet.2015.179

(5) Junki Hosoda, John Ofosu-Anim, Edward Benjamin Sabi, Lailah Gifty Akita, Siaw Onwona-Agyeman, Rei Yamashita, Hideshige Takada. Monitoring of organic

micropollutants in Ghana by combination of pellet watch with sediment analysis: E-waste as a source of PCBs. *Marine Pollution Bulletin*, 査読有り 2014, 86, (1–2), pp 575-581. doi:10.1016/j.marpolbul.2014.06.008

(6) 高田 秀重, 田中 厚資, 青木 千佳子, 市川 馨子, 山下 麗. プラスチックが媒介する有害化学物質の海洋生物への曝露と移行. 2014 査読なし, 2014 海洋と生物 36, pp 579-587.

(7) 山下 麗, 高田 秀重. さまざまな栄養段階の海洋生物へのプラスチック摂食の影響. *海洋と生物* 査読なし 2014, 36, pp 606-611.

〔学会発表〕(計5件)

(1) 松隈 ゆかり, 山下 麗, 高田 秀重. 柱状堆積物を用いたマイクロプラスチック汚染のトレンド解析. 日本海洋学会 2016年3月15日. 東京海洋大学(東京都品川区).

(2) 山下 麗, 比企 永子, 田中 厚資, 高田 秀重, 綿貫 豊, Peter Ryan, David Hyrenbach. 海鳥尾腺ワックス中のPBDEsの検出: 鳥類のプラスチック汚染のグローバルサーベイランスへ向けて. 日本海洋学会 2016年3月15日. 東京海洋大学(東京都品川区).

(3) 岡崎 陽平, 高田 秀重, 山下 麗, 水川 薫子, 内田 圭一, 東海 正, 宮尾 孝, Nicole Trenholm. 海洋表層中マイクロプラスチックの残留性有機汚染物質分析. 日本海洋学会 2016年3月15日. 東京海洋大学(東京都品川区).

(4) Rei Yamashita, Hideshige Takada, Arisa Nakazawa, Yutaka Watanuki. GLOBAL POPs MONITORING USING SEABIRDS PREEN GLAND OIL. The 2nd World Seabird Conference, 26 October 26 2015. Cape Town, South Africa,

(5) 山下 麗, 高田 秀重, 伊藤 淳郎, 綿貫 豊. 採食海域が異なる海鳥個体群でのPOP汚染レベルの比較: 尾腺ワックスモニタリングによるアプローチ. 第24回環境化学討論会, 2014年6月25日. 札幌コンベンションセンター(北海道札幌市).

## 6. 研究組織

(1) 研究代表者

山下 麗 (YAMASHITA, Rei)

東京農工大学・大学院農学研究院・研究員  
研究者番号: 60599629