

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 4 年 5 月 21 日現在

機関番号：16301

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19H01167

研究課題名(和文)新規環境汚染物質の水圏生物濃縮機構・時空間トレンドの解明とリスク評価

研究課題名(英文)Biomagnification mechanism, spatiotemporal trend, and risk assessment of legacy and new environmental pollutants in various aquatic animal species

研究代表者

国末 達也(Kunisue, Tatsuya)

愛媛大学・沿岸環境科学研究センター・教授

研究者番号：90380287

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 35,100,000円

研究成果の概要(和文)：沖縄本島沿岸に定着する二枚貝から残留性有機汚染物質(POPs)が検出され、ヘキサブROMシクロドデカン(HBCDs)を除くPOPsは都市域で相対的に高値を示した。一方、HBCDsは人為活動がほとんどない北部の検体で最高濃度を示し、微細化された漂着発泡ポリスチレンが潜在的な汚染源と考えられた。瀬戸内海に生息する二枚貝とマアジ、そして高次捕食者であるスナメリのPOPs濃度は大阪湾の検体で相対的に高く、とくにポリ塩化ビフェニルの曝露は依然として相当量あることが示唆された。また、二枚貝から低臭素化ダイオキシンを初めて検出し、ゼブラフィッシュ胚を用いたin vivo試験から毒性発現のリスクが示された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

微細化された漂着発泡ポリスチレンが沿岸域に生息する野生生物の潜在的なHBCDs汚染源になることを示したデータは、海洋プラ問題に対し貴重な化学的知見と成り得る。また、瀬戸内海の栄養段階が異なる水圏生物へのポリ塩化ビフェニル(PCBs)曝露の継続を示した成果は、PCBs特措法の効果を検証する必要性を提起した。さらに、POPs条約で規制された臭素系難燃剤の代替で使用されているリン酸エステル系難燃剤およびin vivo試験で毒性発現が認められた低臭素化ダイオキシン汚染の進行を瀬戸内海沿岸で初めて明らかにし、POPs条約等の関連国際機関のニーズに資する生態系保全施策上の有用な基礎情報を提示できた。

研究成果の概要(英文)：The present study determined contamination levels of persistent organic pollutants (POPs) in oysters collected throughout the seacoast of Okinawa, Japan and higher concentrations of POPs, except hexabromocyclododecanes (HBCDs), were found in oysters from southwestern populated areas. On the other hand, HBCDs showed the highest concentration in a northern rural site with less human and industrial activities, and this result could be due to micronized polystyrene foam particles containing HBCDs as the potential source. Bivalves, saurels and finless porpoises, a higher trophic level species in Seto Inland Sea, inhabiting Osaka Bay, compared with other Seto Inland Sea regions, showed higher POP levels, especially polychlorinated biphenyls (PCBs). In addition, this study revealed relatively higher concentrations of lower brominated dibenzo-p-dioxins (LBDDs) in bivalves from Seto Inland Sea and toxic effects of LBDDs for zebrafish embryos, for the first time.

研究分野：環境化学

キーワード：新規環境汚染物質 水圏生物 生物濃縮 時空間トレンド リスク評価

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

ポリ塩化ビフェニル(PCBs)などの残留性有機汚染物質(POPs)は環境残留性・生物蓄積性があり生体内で内分泌かく乱作用を示すことから、ストックホルム条約(POPs条約)および国内法令に基づいた削減・処理が進められている。とくに PCBs については、POPs 条約において適正な処分の期限が定められており、日本は条約遵守のため 2027 年度までの処分を国内法で規定している。しかしながら、保管中や処理にともなう揮発等の環境動態については不明な点が多く、高次栄養段階に位置する野生生物のモニタリング調査では低減を示さない動物種も存在しており、その影響が危惧されている。

2004 年の POPs 条約発効時、PCBs を含む 12 種類の有機塩素化合物(既存 POPs)が生産・使用の規制や非意図的生成の削減対象となったが、その後 2 年毎に締結国会議が開催されており、既存 POPs に物理化学的性質が類似し地球規模での汚染の拡大と生態リスクが懸念される物質の追加について議論が継続されてきた。その結果、2009 年以降、ポリ臭素化ジフェニルエーテル(PBDEs)やヘキサブロモシクロドデカン(HBCDs)等が新たに追加登録された(新規 POPs)。わが国では、化審法の第一種特定化学物質として製造・輸入・使用が厳しく規制されているため、新規 POPs の環境放出は低減していくことが期待される。しかしながら既存 POPs と同様に、環境汚染の長期化と野生生物に対する曝露の継続が懸念されるが、新規 POPs による汚染レベルの経年変化や野生生物を対象とした調査研究は限定的である。

新規 POPs である PBDEs や HBCDs は臭素系難燃剤(BFRs)として電子・電気機器製品に使用されたことから、一定の製品寿命を経た後にも廃棄物や循環資源として社会に存在し続け、長期にわたり種々のルートで環境中へ放出されうる。近年では、PBDEs と HBCDs の規制を受け代替 BFRs やリン酸エステル系難燃剤(PFRs)の需要も増大している。現在規制されている POPs はすべて有機ハロゲン化合物であるが、これまで多様な有機ハロゲン化合物が合成されてきたことを考慮すると、環境残留性・生物蓄積性を示す未知の POPs 様物質が存在している可能性もあるが、代替難燃剤や POPs 関連物質に関する知見は僅少であり毒性も評価されていない。

2. 研究の目的

愛媛大学の貴重な研究基盤「生物環境試料バンク(es-BANK)」に冷凍保存されている広域の環境試料および多様な水圏生物種の組織試料を活用し、依然として国際社会で関心の高い既存の POPs に加え、近年新たに環境残留性や生態影響が危惧されている新規 POPs や代替難燃剤の汚染実態、生物濃縮、そして時空間トレンドを解明する。また、問題視された新規環境汚染物質を対象に *in vivo* 試験をおこない、発生毒性や内分泌かく乱性を観察しリスクを評価する。

3. 研究の方法

(1) 底質および水圏生物の化学分析

瀬戸内海と沖縄沿岸の化学汚染に着目し、2000 年以降に採集された底質、二枚貝(軟部組織)マアジ(筋肉)、スナメリ(脂皮)の es-BANK 試料を分析対象とした。試料の抽出・前処理法は既法に従い、ゲル浸透・活性シリカゲルクロマトグラフィーで精製・分画した。第 1 画分に溶出した PCBs と PBDEs はガスクロマトグラフ - 四重極型質量分析計(GC-MS)で、Dichlorodiphenyltrichloroethane and its metabolites (DDTs), Chlordane compounds (CHLs), Hexachlorocyclohexane isomers (HCHs)などの有機塩素系農薬(OCPs)はガスクロマトグラフ - タンデム四重極型質量分析計(GC-MS/MS)で定性・定量した。第 2 画分に溶出した HBCDs の定性・定量は、液体クロマトグラフ - タンデム四重極型質量分析計(LC-MS/MS)でおこなった。二枚貝と底質の塩素化・臭素化ダイオキシン/ジベンゾフラン類(PCDD/Fs・PBDD/Fs)の分析は既報に従い、均質化・抽出した後、多層・活性炭分散シリカゲルカラムにより精製した。定性・定量には、ガスクロマトグラフ - 高分解能二重収束型質量分析計(GC-HRMS)を用いた。

本研究で構築した PFRs の分析法を二枚貝と魚類の組織試料に適用した。ジクロロメタン/*n*-ヘキサン溶液で超音波抽出し、クリーンアップスパイク(*d*-labeled TEP, TCEP, TPP, TPHP, TDCIPP, TNBP, TMPP)を添加後、固相抽出カラム(ENVI-Carb-II/PSA)を用いて夾雑成分を除去した。最終精製溶液は LC-MS/MS で測定し、12 化合物(TEP, TCEP, TPP, TCIPP, TDCIPP, TPHP, TNBP, TBOEP, TPEP, TMPP, EHDPP, IPPP)の PFRs を定性・定量した。

(2) ゼブラフィッシュ胚を用いた *in vivo* 試験

ゼブラフィッシュ(系統:RIKEN WT)親魚の multiple breeding により得た受精後 24 時間の胚を、受精後 96 時間まで臭素化ダイオキシン類に水系曝露した。各異性体の濃度は、1,3,7-TrBDD・1,3,8-TrBDD: 10-300 ppb (4 濃度区)、2,3,7-TrBDD: 0.3-30 ppb (5 濃度区)、2,3,7,8-TeBDD・2,3,7,8-TeCDD: 0.01-1 ppb (5 濃度区)とした。評価項目は累積致死率、心臓周囲浮腫、体幹血流量の低下とし、心臓周囲浮腫と体幹血流量の低下については重篤度をスコア化(0: 正常、1: 軽度異常、2: 重度異常)した。また遺伝子発現解析では、各曝露胚より総 RNA を抽出し cDNA 合成をした後、リアルタイム PCR により CYP1A mRNA 発現量を測定した。

4. 研究成果

(1) 汚染実態と時空間トレンド・生物蓄積（濃縮）性の評価

(1) - 1. 二枚貝を指標生物とした沖縄沿岸域の POPs 汚染 - 特異な HBCDs 汚染源 -

2017年と2018年に採取したオハグログキのほぼ全検体から POPs が検出され、沖縄本島沿岸における広域汚染が初めて明らかとなった。地理的分布に着目すると、HBCDs を除く POPs は沖縄本島南西部で相対的に高値を示し、その汚染は都市・居住区域に局在していることが示唆された（図1）。一方、HBCDs は全地点で比較的均質な濃度で検出され、人為活動がほとんどない沖縄本島北部の検体において最高濃度を示したことから、特異な汚染源の存在が示唆された。

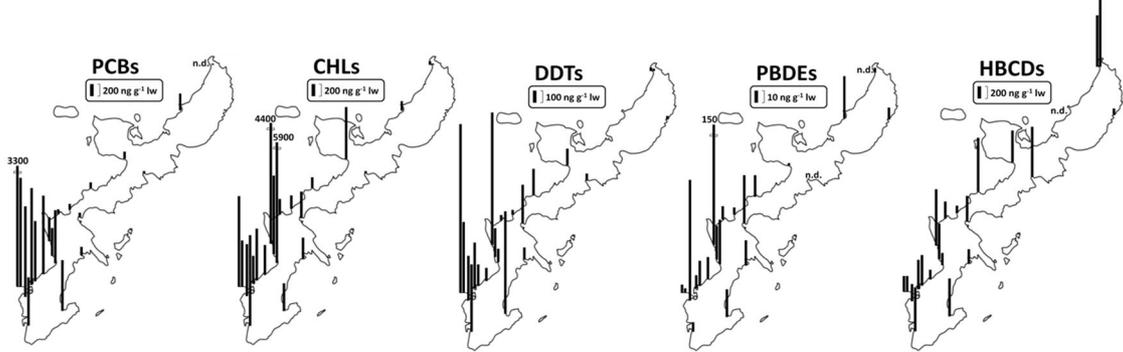


図1. 沖縄本島沿岸域から採取したオハグログキにおける POPs 濃度の地理的分布

先行研究で発泡ポリスチレンが HBCDs の潜在的汚染源であると指摘されていることから、EPS 製のブイと漂着発泡ポリスチレンをオハグログキと共に採取し化学分析をおこなった。その結果、いくつかのブイと漂着発泡ポリスチレン試料から HBCDs が高濃度で検出（ブイ: <LOD-12000 μg/g, 漂着ポリスチレン: <LOD-3500 μg/g）された一方で、他の POPs は検出が認められなかった。このことから沖縄本島でも、ブイや漂着発泡ポリスチレンが沿岸域における HBCDs の潜在的汚染源であることが示された。そこで、オハグログキにおける HBCDs の特異な曝露を評価するため、那覇市と非都市域である宜名真でオハグログキと共に底質と海水を採取し、PCBs と HBCDs の検出濃度から Biota-sediment accumulation factor (BSAF) と bioaccumulation factor (BAF) を算出した。その結果、Log BSAF は Log K_{ow} （オクタノール/水分配係数）の値が7のPCB同属体まで増加し、それ以上の Log K_{ow} では減少する傾向が認められた（図2左）。一方 Log BAF は、Log K_{ow} が PCBs より低いにもかかわらず HBCDs の BAF が高値を示し、とくに α -HBCD の特異な生物蓄積性が明らかとなった（図2右）。先行研究で二枚貝からマイクロプラスチックが見つかることを考慮すると、沖縄本島のオハグログキは海水中の浮遊物に吸着もしくは溶存している HBCDs の取り込みに加え、マイクロ化された漂着発泡ポリスチレンに曝露されている可能性が高い。

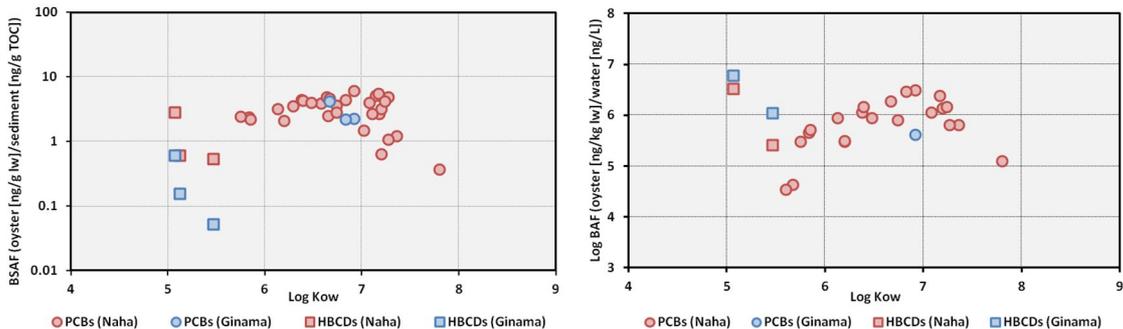


図2. 2019年に那覇市と宜名真沿岸から採取したオハグログキ、底質、海水の HBCD・PCB 異性体濃度から算出した BSAF（左）および BAF（右）と K_{ow} との関係

(1) - 2. 瀬戸内海に生息する水圏生物の POPs・PFRs 汚染と蓄積特性

2017年と2019年に瀬戸内海沿岸の広域で採集した二枚貝を化学分析した結果、PCBs が最も高濃度で検出され、次いで DDTs > CHLs > HBCDs > PBDEs > HCHs の順であった。また、2012年に同一15地点で採取した二枚貝も分析したところ、POPs 濃度に有意差はなく同程度であり瀬戸内海沿岸における POPs 汚染の長期化が懸念された。地理的分布パターンの解析では、大阪府・兵庫県沿岸の検体で高値を示すことが判明し、都市・工業地域からの環境放出が継続していることが推察された。次に、2008年と2019年に採取したマアジの筋肉試料を化学分析に供試した結果、PCBs を除く POPs の残留濃度は2008年と比べ2019年の検体で有意に低値もしくは同等であったのに対し、PCBs 濃度は有意に高値を示した。この結果は、瀬戸内海に生息する魚類への PCBs 曝露は現在も相当量あることを示唆している。また二枚貝と同様に、瀬戸内海東部（大阪府・兵庫県）のマアジほど筋肉中 PCBs 濃度は高い傾向を示した。

そこで、餌生物の 1 種としてマアジを捕食している瀬戸内海の高次生物であるスナメリの脂皮を化学分析し、POP_s 濃度の時系列変化を解析した。その結果、DDT_s・CHL_s・HCH_s は有意に低減していたが、PCB_s と BFR_s (PBDE_s・HBCD_s) は定常状態であることが判明した(図 3)。PBDE_s と HBCD_s が 2009 年以降に新規 POP_s として追加登録されたことから、BFR_s の結果は近年までの使用実績を反映したものと推察された。一方、PCB 製剤は 1970 年代に全廃されたことから製造・使用実績の観点では説明できず、閉鎖系用途で使用されたトランス・コンデンサー等からの継続した漏洩が疑われた。実際、スナメリに蓄積していた PCB_s は近年座礁した個体群から高濃度で検出されており、座礁地点で比較すると大阪府と兵庫県 の検体で高値を示した。前述のマアジの結果を考慮すると、スナメリでみられた PCB_s の時系列蓄積プロファイルは、餌生物への近年の曝露と摂餌による生物濃縮に起因しているものと推察された。また、水棲哺乳動物の *in vivo* 試験で免疫毒性が認められた PCB_s 濃度を閾値と定義し、本研究で検出されたスナメリの蓄積レベルと比較した結果、35% の検体で閾値を超過していた。スナメリにおける PCB_s 蓄積レベルが現在も高濃度で推移していることから、とくに、瀬戸内海の東部海域に生息する個体群の健康リスクに関する研究が求められる。

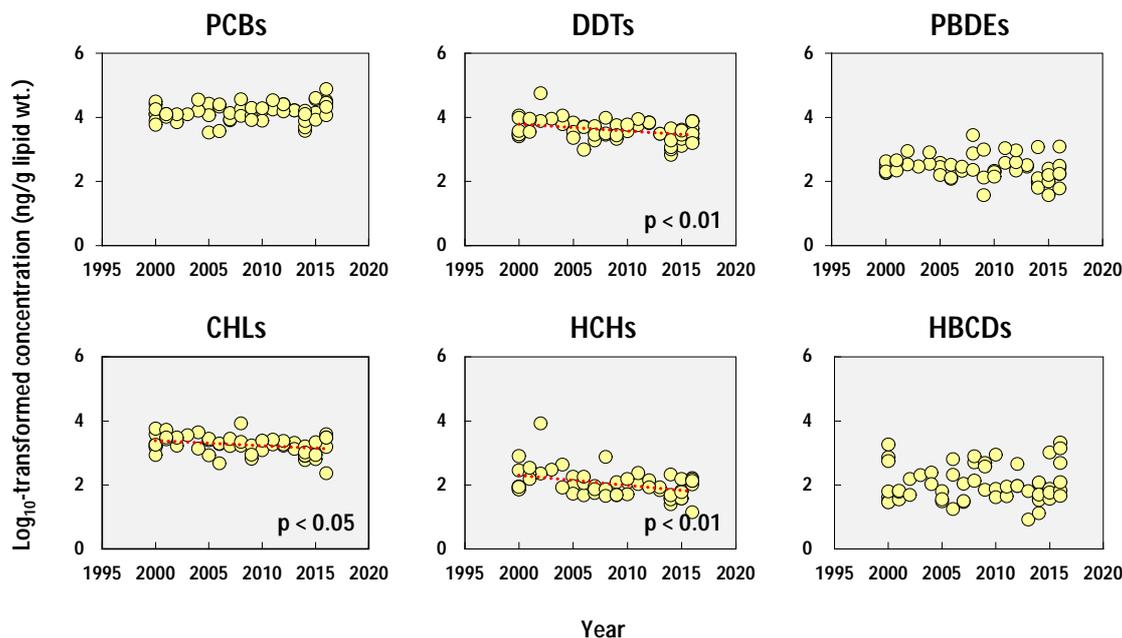


図 3. 瀬戸内海に生息するスナメリの脂皮から検出された POP_s 濃度の時系列変化

本研究では、国内で初めて二枚貝と魚類(マアジ)の PFR_s 汚染の実態を解明した。分析した 12 化合物の中で、瀬戸内海の二枚貝から主要で検出された PFR_s は TMPP, TCIPP, TPHP, TDCIPP であり、海域に比べ河口域に生息する二枚貝に残留し易いことが示された。PFR_s は難燃剤/可塑剤としての使用に加え、油圧作動油やエンジンオイルへの添加も報告されており、河口域に定着する二枚貝は船舶由来のエンジンオイルを介して PFR_s に直接曝露されている可能性がある。また、マアジからは TCIPP と TMPP が主要な PFR_s として検出された。この理由として、TMPP は脂溶性が高いため(Log K_{ow} = 6.3)生物蓄積しやすく、TCIPP は国内需要量が比較的多く慢性的に曝露されている可能性がある。採取海域別に比較したところ、伊予灘と播磨灘より大阪湾のマアジが相対的に高値を示したことから、都市域における産業活動が起因していると考えられた。同一検体の PBDE_s および HBCD_s 濃度と比較したところ、二枚貝とマアジの総 PFR_s レベルはこれらの BFR_s より高く、二枚貝では TMPP と TCIPP も高値を示した(図 4)。このことから、近年の BFR_s 規制に伴う PFR_s の代替使用が示唆され、マアジより二枚貝の PFR_s 濃度が高値であったことも考慮すると、河口域への流入は相当量あるものと推察された。

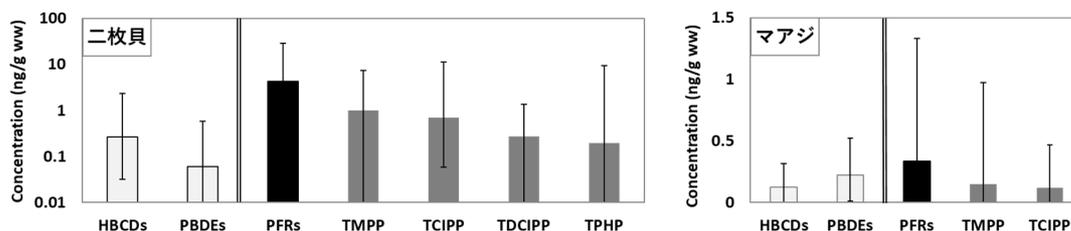


図 4. 瀬戸内海の二枚貝とマアジから検出された PFR_s 濃度と BFR_s データとの比較

さらに、二枚貝では PCDD_s だけでなく PBDD_s の蓄積が認められた(PCDF_s と PBDF_s は検出下限値未満)。異性体組成に着目すると、PCDD_s は既によく知られているクロロニトロフェンや

ペンタクロロフェノール製剤の不純物由来のパターンであったが、PBDDsでは海藻類が生成したと考えられている。2,7-/2,8-DiBDDsおよび1,3,7-/1,3,8-TrBDDsが主体であった。興味深いことに、同一地点の底質を分析しBSAFを算出したところ、PBDDs (2.0-27)はPCDDs (0.013-0.69)に比べ1-2桁高い値を示すことが判明し、水生生物に対するPBDDs曝露リスクが懸念された。

(2) 臭素化ダイオキシン類曝露によるゼブラフィッシュ胚の影響評価

高いBSAFを示したPBDDsに着目し曝露試験を実施した結果、2,3,7,8-TeBDD、2,3,7-TrBDD、2,3,7,8-TeCDDは濃度依存的に心血管毒性の発生率を増加させ、その用量効果は2,3,7,8-TeBDD > 2,3,7,8-TeCDD > 2,3,7-TrBDDの順であった。発生率は20%と低いものの、1,3,7-TrBDD曝露胚においても30 ppb以上の高濃度で心血管毒性が認められた。また、評価した4種の臭素化ダイオキシン類で濃度依存的なCYP1A発現量の増加が認められた。用量応答曲線より算出した用量効果(EC₅₀)と最大効力(E_{max})には物質間で顕著な差が認められ、用量効果は2,3,7,8-TeBDD (0.02 ppb) > 2,3,7-TrBDD (0.59 ppb) > 1,3,8-TrBDD (10 ppb) > 1,3,7-TrBDD (25 ppb)、最大効力は2,3,7-TrBDD (359) > 2,3,7,8-TeBDD (293) > 1,3,7-TrBDD (39) > 1,3,8-TrBDD (4.5)の順であった(図5)。

次に、各臭素化ダイオキシン類の心血管毒性およびCYP1A誘導に対する芳香族炭化水素受容体(AhR)の役割を検討した。2,3,7,8-TeBDDおよび2,3,7-TrBDDによる心血管毒性は、AhRアンタゴニストであるCH-223191との共処置によって改善した。また、2,3,7,8-TeBDDによるCYP1A発現誘導はCH-223191との共処置によって対照群レベルまで低下したのに対し、1,3,7-TrBDDでは40%程度の低下しかみられず、1,3,8-TrBDDではCYP1A発現誘導の低下は認められなかった。これらの結果から、2,3,7,8位に臭素置換数が多いダイオキシン類ほど心血管毒性やCYP1A誘導能が強いと推察された。2,3,7-TrBDDのような一部の非2,3,7,8置換体が相対的に強い心血管毒性とCYP1A誘導能を示すことを明らかにした成果は本研究が初めてである。さらに、2,3,7,8-TeCDDおよび2,3,7-TrBDDによる心血管毒性はAhR介在性であるものの、各臭素化ダイオキシン類によるCYP1A誘導の作用機序はAhR介在性・非介在性の両方が存在すると考えられた。

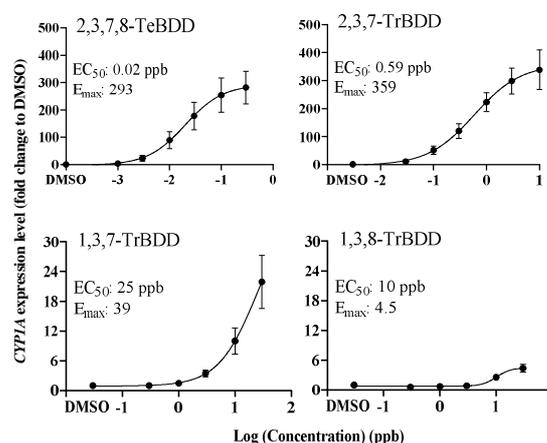


図5 臭素化ダイオキシン類曝露によるゼブラフィッシュ胚CYP1A発現レベルの用量反応関係

<引用文献>

- Mukai, Y., Goto, A., Tashiro, Y., Tanabe, S., Kunisue, T., 2020. Coastal biomonitoring survey on persistent organic pollutants using oysters (*Saccostrea mordax*) from Okinawa, Japan: Geographical distribution and polystyrene foam as a potential source of hexabromocyclododecanes. *Science of the Total Environment*, 739, 140049.
- Kunisue, T., Goto, A., Sunouchi, T., Egashira, K., Ochiai, M., Isobe, T., Tajima, Y., Yamada, T. K., Tanabe, S., 2021. Anthropogenic and natural organohalogen compounds in melon-headed whales (*Peponocephala electra*) stranded along the Japanese coastal waters: Temporal trend analysis using archived samples in the environmental specimen bank (*es*-BANK). *Chemosphere*, 269, 129401.
- Goto, A., Tue, N. M., Someya, M., Isobe, T., Takahashi, S., Tanabe, S., Kunisue, T., 2017. Occurrence of natural mixed halogenated dibenzo-p-dioxins: Specific distribution and profiles in mussels from Seto Inland Sea, Japan. *Environmental Science & Technology*, 51, 11771-11779.
- Jang, M., Shim, W.J., Han, G.M., Rani, M., Song, Y.K., Hong, S.H., 2017. Widespread detection of a brominated flame retardant, hexabromocyclododecane, in expanded polystyrene marine debris and microplastics from South Korea and the Asia-Pacific coastal region. *Environmental Pollution*, 231, 785-794.
- Qu, X., Su, L., Li, H., Liang, M., Shi, H., 2018. Assessing the relationship between the abundance and properties of microplastics in water and in mussels. *Science of the Total Environment*. 621, 679-686.
- Kannan, K., Blankenship, A., Jones, P., Giesy, J., 2000. Toxicity reference values for the toxic effects of polychlorinated biphenyls to aquatic mammals. *Human and Ecological Risk Assessment*., 6, 181-201.
- Van der Veen, I., de Boer, J., 2012. Phosphorus flame retardants: properties, production, environmental occurrence, toxicity and analysis. *Chemosphere*, 88, 1119-1153.
- Masunaga, S., Takasuga, T., Nakanishi, J., 2001. Dioxin and dioxin-like PCB impurities in some Japanese agrochemical formulations. *Chemosphere*, 44, 873-885.
- Arnoldsson, K., Andersson, P.L., Haglund, P., 2012. Formation of environmentally relevant brominated dioxins from 2,4,6-tribromophenol via bromoperoxidase-catalyzed dimerization. *Environmental Science & Technology*, 46, 7239-7244.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計21件（うち査読付論文 21件／うち国際共著 9件／うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Kunisue Tatsuya, Goto Akitoshi, Sunouchi Tomoya, Egashira Kana, Ochiai Mari, Isobe Tomohiko, Tajima Yuko, Yamada Tadasu K., Tanabe Shinsuke	4. 巻 269
2. 論文標題 Anthropogenic and natural organohalogen compounds in melon-headed whales (<i>Peponocephala electra</i>) stranded along the Japanese coastal waters: Temporal trend analysis using archived samples in the environmental specimen bank (es-BANK)	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Chemosphere	6. 最初と最後の頁 129401 ~ 129401
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.chemosphere.2020.129401	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 Hoang Quoc, Le Thi Phuong Quynh, Da Le Nhu, Lu Xi Xi, Duong Thi Thuy, Garnier Josette, Rochelle-Newall Emma, Zhang Shurong, Oh Neung-Hwan, Oeurng Chantha, Ekkawatpanit Chaiwat, Nguyen Tien Dat, Nguyen Quang Trung, Nguyen Tran Dung, Nguyen Trong Nghia, Tran Thi Lieu, Kunisue Tatsuya et al.	4. 巻 764
2. 論文標題 Antibiotics in surface water of East and Southeast Asian countries: A focused review on contamination status, pollution sources, potential risks, and future perspectives	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Science of The Total Environment	6. 最初と最後の頁 142865 ~ 142865
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.scitotenv.2020.142865	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 Hoang Anh Quoc, Tu Minh Binh, Takahashi Shin, Kunisue Tatsuya, Tanabe Shinsuke	4. 巻 770
2. 論文標題 Snakes as bimonitors of environmental pollution: A review on organic contaminants	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Science of The Total Environment	6. 最初と最後の頁 144672 ~ 144672
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.scitotenv.2020.144672	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 Tue Nguyen Minh, Goto Akitoshi, Fumoto Mitsuo, Nakatsu Susumu, Tanabe Shinsuke, Kunisue Tatsuya	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 Guruge Keerthi S., Tamamura Yukino A., Goswami Prasun, Tanoue Rumi, Jinadasa K.B.S.N., Nomiya Kei, Ohura Takeshi, Kunisue Tatsuya, Tanabe Shinsuke, Akiba Masato	4. 巻 279
2. 論文標題 The association between antimicrobials and the antimicrobial-resistant phenotypes and resistance genes of Escherichia coli isolated from hospital wastewaters and adjacent surface waters in Sri Lanka	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Chemosphere	6. 最初と最後の頁 130591 ~ 130591
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.chemosphere.2021.130591	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 Teruyo, Hashimoto Shunji, Tanabe Kiyoshi, Goto Akitoshi, Kunisue Tatsuya	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 Takaguchi Kohki, Ono Sumika, Tanoue Rumi, Kunisue Tatsuya, Tanabe Shinsuke, Nomiya Kei	4. 巻 1661
2. 論文標題 Determination of six thyroid hormones in dog brain and liver using acidic extraction, mixed- mode cleanup, and liquid chromatography-tandem mass spectrometry	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Chromatography A	6. 最初と最後の頁 462686 ~ 462686
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.chroma.2021.462686	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 Tun Thant Zin, Kunisue Tatsuya, Tanabe Shinsuke, Prudente Maricar, Subramanian Annamalai, Sudaryanto Agus, Viet Pham Hung, Nakata Haruhiko	4. 巻 806
2. 論文標題 Microplastics in dumping site soils from six Asian countries as a source of plastic additives	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Science of The Total Environment	6. 最初と最後の頁 150912 ~ 150912
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.scitotenv.2021.150912	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 Goswami Prasun, Guruge Keerthi S., Tanoue Rumi, Tamamura Yukino A., Jinadasa K. B. S. N., Nomiya Kei, Kunisue Tatsuya, Tanabe Shinsuke	4. 巻 41
2. 論文標題 Occurrence of Pharmaceutically Active Compounds and Potential Ecological Risks in Wastewater from Hospitals and Receiving Waters in Sri Lanka	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Environmental Toxicology and Chemistry	6. 最初と最後の頁 298 ~ 311
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/etc.5212	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 Goto Akitoshi, Tue Nguyen Minh, Isobe Tomohiko, Takahashi Shin, Tanabe Shinsuke, Kunisue Tatsuya	4. 巻 54
2. 論文標題 Nontarget and Target Screening of Organohalogen Compounds in Mussels and Sediment from Hiroshima Bay, Japan: Occurrence of Novel Bioaccumulative Substances	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Environmental Science & Technology	6. 最初と最後の頁 5480 ~ 5488
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.est.9b06998	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 Yukino, Goto Akitoshi, Tashiro Yutaka, Tanabe Shinsuke, Kunisue Tatsuya	4. 巻 739
2. 論文標題 Coastal biomonitoring survey on persistent organic pollutants using oysters (<i>Saccostrea mordax</i>) from Okinawa, Japan: Geographical distribution and polystyrene foam as a potential source of hexabromocyclododecanes	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Science of The Total Environment	6. 最初と最後の頁 140049 ~ 140049
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.scitotenv.2020.140049	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 Takahashi Shin, Anh Hoang Quoc, Watanabe Isao, Aono Daichi, Kuwae Michinobu, Kunisue Tatsuya	4. 巻 743
2. 論文標題 Characterization of mono- to deca-chlorinated biphenyls in a well-preserved sediment core from Beppu Bay, Southwestern Japan: Historical profiles, emission sources, and inventory	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Science of The Total Environment	6. 最初と最後の頁 140767 ~ 140767
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.scitotenv.2020.140767	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 Tanoue Rumi, Nozaki Kazusa, Nomiya Kei, Kunisue Tatsuya, Tanabe Shinsuke	4. 巻 1631
2. 論文標題 Rapid analysis of 65 pharmaceuticals and 7 personal care products in plasma and whole-body tissue samples of fish using acidic extraction, zirconia-coated silica cleanup, and liquid chromatography-tandem mass spectrometry	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Chromatography A	6. 最初と最後の頁 461586 ~ 461586
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.chroma.2020.461586	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 Kanerva Mirella, Tue Nguyen Minh, Kunisue Tatsuya, Vuori Kristiina, Iwata Hisato	4. 巻 54
2. 論文標題 Effects on the Liver Transcriptome in Baltic Salmon: Contributions of Contamination with Organohalogen Compounds and Origin of Salmon	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Environmental Science & Technology	6. 最初と最後の頁 15246 ~ 15256
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.est.0c04763	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 Vaezzadeh Vahab, Thomes Margaret William, Kunisue Tatsuya, Tue Nguyen Minh, Zhang Gan, Zakaria Mohamad Pauzi, Affendi Yang Amri, Yap Fook Choy, Chew Li Lee, Teoh Hong Wooi, Lee Choon Weng, Bong Chui Wei	4. 巻 263
2. 論文標題 Examination of barnacles' potential to be used as bioindicators of persistent organic pollutants in coastal ecosystem: A Malaysia case study	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Chemosphere	6. 最初と最後の頁 128272 ~ 128272
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.chemosphere.2020.128272	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 Matsuda Ayaka, Yamada Tadasu K., Tajima Yuko, Kunisue Tatsuya, Amano Masao, Matsuishi Takashi F.	4. 巻 46
2. 論文標題 Diet of Mass-Stranded Striped Dolphins (<i>Stenella coeruleoalba</i>) in Southern Japan (East China Sea)	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Mammal Study	6. 最初と最後の頁 17 ~ 24
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3106/ms2020-0005	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 Tashiro Yutaka, Goto Akitoshi, Kunisue Tatsuya, Tanabe Shinsuke	4. 巻 28
2. 論文標題 Contamination of habu (<i>Protobothrops flavoviridis</i>) in Okinawa, Japan by persistent organochlorine chemicals	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Environmental Science and Pollution Research	6. 最初と最後の頁 1018 ~ 1028
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s11356-020-10510-y	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, Nomiya 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 -

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 Tanoue Rumi, Margiotta-Casaluci Luigi, Huerta Belinda, Runnalls Tamsin J., Eguchi Akifumi, Nomiya Kei, Kunisue Tatsuya, Tanabe Shinsuke, Sumpter John P.	4. 巻 664
2. 論文標題 Protecting the environment from psychoactive drugs: Problems for regulators illustrated by the possible effects of tramadol on fish behaviour	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Science of The Total Environment	6. 最初と最後の頁 915 ~ 926
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.scitotenv.2019.02.090	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 Yoshinouchi Yuka, Shimizu Sachiko, Lee Jin-Seon, Hirano Masashi, Suzuki Ken-ichi T., Kim Eun-Young, Iwata Hisato	4. 巻 181
2. 論文標題 In vitro assessment of effects of persistent organic pollutants on the transactivation of estrogen receptor and (ER and ER) from the Baikal seal (Pusa sibirica)	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Ecotoxicology and Environmental Safety	6. 最初と最後の頁 463 ~ 471
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.ecoenv.2019.06.033	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

〔学会発表〕 計29件 (うち招待講演 1件 / うち国際学会 8件)

1. 発表者名 国末達也
2. 発表標題 海産二枚貝を用いたバイオモニタリング - 未知物質スクリーニングの試み -
3. 学会等名 第24回日本水環境学会シンポジウム (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 後藤哲智・Tue, N. M.・田辺信介・国末達也
2. 発表標題 海産の魚類を対象とした生物蓄積性有機ハロゲン化合物のサスペクトスクリーニング
3. 学会等名 第69回質量分析総合討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 高橋 真・Hoang Quoc Anh・青野大地・Dede Falahudin・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 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

1. 発表者名 後藤哲智・Nguyen Minh Tue・田辺信介・国末達也
2. 発表標題 瀬戸内海の二枚貝と堆積物に残留する既知・未知有機ハロゲン化合物の生物濃縮性評価
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 須之内 朋哉・後藤哲智・Nguyen Minh Tue・田島 木綿子・山田 格・田辺信介・国末達也
2. 発表標題 鯨類の脂皮に蓄積する有機ハロゲン化合物の網羅的スクリーニング
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 須藤菜穂・田上瑠美・国末達也・野見山 桂
2. 発表標題 医薬品・パーソナルケア製品由来化学物質による汽水域魚類への移行・残留性
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 田上瑠美・仲山 慶・近藤昌和・野見山 桂・国末達也
2. 発表標題 下水処理水に残留する医薬品類及びパーソナルケア製品由来物質の魚類への取込と排泄
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 緒方 葵・網田有紗・国末達也・田辺信介・阿草哲郎
2. 発表標題 日本近海の鯨類における重金属濃度の経年変化と地理的分布
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 児玉芽依・国末達也・竇來 佐和子
2. 発表標題 カズハゴンドウの微量元素蓄積特性と経年変動解析
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 Jineui Kwon・Rumi Tanoue・Nguyen Minh Tue・Huu Tuyen・Pham Hung Viet・Vimalkumar Krishnamoorth・Annamalai Subramanian・Shinsuke Tanabe・Tatsuya Kunisue
2. 発表標題 Occurrence and fate of endocrine disrupting chemicals in surface water and fish from India and Vietnam
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 須藤菜穂・田上瑠美・国末達也・野見山 桂
2. 発表標題 生活関連化学物質 (PPCPs) の汽水域魚類への移行・残留性と脳移行
3. 学会等名 第23回環境ホルモン学会研究発表会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 森田浩平・落合真理・須之内朋哉・塩崎 彬・栗原 望・天野雅男・国末達也・岩田久人
2. 発表標題 スナメリ線維芽細胞を用いたTCDD 曝露によるシトクロムP450 1 誘導能評価
3. 学会等名 第23回環境ホルモン学会研究発表会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 大枝 亮・須之内 朋哉・国末達也・坂本広美・田島木綿子
2. 発表標題 日本沿岸にストランディングしたアカボウクジラ科鯨類の胃より検出された海洋プラスチックの化学的解析の試み
3. 学会等名 日本セトロロジー研究会第31回大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 須之内 朋哉・後藤哲智・Nguyen Minh Tue・田島木綿子・山田 格・国末達也
2. 発表標題 鯨類の脂皮に蓄積する有機ハロゲン化合物のスクリーニング分析
3. 学会等名 日本セトロロジー研究会第31回大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Sunouchi, T., Goto, A., Tue, N. M., Tajima, Y., Yamada, T. K., Tanabe, S., Kunisue, T.
2. 発表標題 Accumulation profiles and interspecies comparison of organohalogen compounds in eleven whale species stranded at Japanese coastal waters
3. 学会等名 41th International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Goto, A., Tue, N. M., Tanabe, S., Kunisue, T.
2. 発表標題 Evaluation of biota-sediment accumulation factors (BSAFs) for known and unknown organohalogen compounds in Japanese mussels
3. 学会等名 41th International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Tue, N. M., Goto, A., Fumoto, M., Nakatsu, S., Tanabe, S., Kunisue, T.
2. 発表標題 Specific accumulation of C15-based chlordane-related compounds in the liver of wild birds from Japan
3. 学会等名 41th International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 黒石佳奈・Tue, N. M.・後藤哲智・田辺信介・国末達也
2. 発表標題 瀬戸内海の二枚貝に残留する多環芳香族炭化水素レベルとAhRアゴニストの活性評価
3. 学会等名 環境科学会2020年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Tanoue, R., Nakayama, K., Kondo M., Nomiya, K., Kunisue, T., Tanabe, S.
2. 発表標題 Toxicokinetic parameters causing the discrepancy between the measured and predicted bioconcentration factors of pharmaceuticals and personal care products in fish
3. 学会等名 Society of Environmental Toxicology and Chemistry (SETAC) Europe 29th Annual Meeting (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 向井幸乃・後藤哲智・田代 豊・田辺信介・国末達也
2. 発表標題 オハグロガキを用いた沖縄本島沿岸域におけるPOPs およびリン酸エステル系難燃剤の汚染モニタリング - 地理的分布と汚染源の解析 -
3. 学会等名 第28回環境化学討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 須之内朋哉・後藤哲智・落合真理・田島木綿子・山田 格・田辺信介・国末達也
2. 発表標題 鯨類の脂皮に蓄積する有機ハロゲン化合物のプロファイル解析と鯨種間比較
3. 学会等名 第28回環境化学討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 田上瑠美・野崎一茶・国末達也・田辺信介・野見山 桂
2. 発表標題 水生生物に残留する医薬品類およびパーソナルケア製品由来化学物質
3. 学会等名 第28回環境化学討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Sunouchi, T., Goto, A., Ochiai, M., Tajima, Y., Yamada, T. K., Tanabe, S., Kunisue, T.
2. 発表標題 Accumulation profiles and interspecies comparison of organohalogen compounds in cetaceans
3. 学会等名 30th Annual Meeting of Cetology Study Group of Japan
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Kawabe, R., Goto, A., Ochiai, M., Yamada, T. K., Tajima, Y., Tanabe, S., Kunisue, T.
2. 発表標題 Temporal trends and geographical distribution of organohalogen compounds in finless porpoises from Seto Inland Sea
3. 学会等名 30th Annual Meeting of Cetology Study Group of Japan
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Kuroishi, K., Goto, A., Tue, N. M. Tanabe, S., Kunisue, T.
2. 発表標題 Contamination status, spatial distribution and temporal variation of POPs in bivalves from Seto Inland Sea, Japan
3. 学会等名 39th International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (DIOXIN 2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Goto, A., Tue, N. M., Tanabe, S., Kunisue, T.
2. 発表標題 Non-target screening for POP-like compounds in Japanese bivalves using GC×GC-HRToFMS
3. 学会等名 39th International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (DIOXIN 2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Mukai, Y., Goto, A., Tashiro, Y., Tanabe, S., Kunisue, T.
2. 発表標題 Monitoring survey of POPs and PFRs in oysters (<i>Saccostrea Mordax</i>) from the main island of Okinawa, Japan: geographical distribution and possible contamination sources
3. 学会等名 39th International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (DIOXIN 2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Kawabe, R., Goto, A., Ochiai, M., Shiozaki, A., Amano, M., Tajima, Y., Yamada, T. K., Tanabe, S., Kunisue, T.
2. 発表標題 Geographical distribution and temporal trends of organohalogen compounds in finless porpoises from Seto Inland Sea and Omura Bay, Japan
3. 学会等名 SETAC North America 40th Annual Meeting (国際学会)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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	岩田 久人 (Iwata Hisato) (10271652)	愛媛大学・沿岸環境科学研究センター・教授 (16301)	
研究分担者	野見山 桂 (Nomiya Kei) (30512686)	愛媛大学・沿岸環境科学研究センター・准教授 (16301)	
研究分担者	久保田 彰 (Kubota Akira) (60432811)	帯広畜産大学・畜産学部・准教授 (10105)	

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	竇来 佐和子 (Horai Sawako) (60512689)	国立水俣病総合研究センター・その他部局等・室長 (87401)	

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			
フィンランド	University of Helsinki			
マレーシア	University of Malaya	UCSI University	Xiamen University Malaysia	
ベトナム	Vietnam Academy			
スリランカ	University of Peradeniya			
インド	Bharathidasan University			
インドネシア	BPPT			