

令和 6 年 6 月 6 日現在

機関番号：82708

研究種目：若手研究

研究期間：2021～2023

課題番号：21K17904

研究課題名（和文）分解性の高い防汚物質は環境に優しいと言えるか？感受性の高い水産重要種のリスク評価

研究課題名（英文）Can highly degradable antifouling substances be said to be environmentally friendly? Risk Assessment of Sensitive Fishery Species

研究代表者

河野 久美子（池田久美子）（Kono, Kumiko）

国立研究開発法人水産研究・教育機構・水産技術研究所(廿日市)・主幹研究員

研究者番号：10371973

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,600,000円

研究成果の概要（和文）：広島湾におけるDCOIT汚染の経年変化を調べた結果、海水中DCOITの最高濃度は、二枚貝幼生に対するDCOITの最低影響濃度に近い値であった。また、DCOIT分解産物であるオクチルアミンの二枚貝幼生に対する毒性は、DCOITの10万分の1以下であり、二枚貝幼生に対するDCOITのリスクを評価する上で、分解産物の毒性の寄与は極めて低いことが明らかとなった。19～31で行った毒性試験の結果、アサリでは22、マガキでは25において幼生の奇形率が最も低く、水温の上昇に伴って奇形率が増加する傾向が認められたことから、リスク評価において、DCOITと水温の複合影響を考慮する必要性が明らかとなった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、分解性が高いものの、その影響が懸念されている、防汚物質4,5-dichloro-2-n-octyl-4-isothiazolin-3-one (DCOIT) について、近年、資源量の減少が報告されている二枚貝幼生に対するリスク評価を行うことを目的とし、アサリ胚～幼生期毒性試験法を確立して二枚貝幼生に対するDCOITおよびその分解産物の毒性や水温との複合影響を把握すると共に、マガキおよびアサリ幼生の分布域および移動経路におけるDCOITの汚染実態を明らかにした。本研究の成果は、感受性の高い水産重要種と防汚物質の共存を目指した、防汚物質使用の適正化に関する提言に繋がるものと期待される。

研究成果の概要（英文）：As a result of investigating the annual changes in DCOIT contamination in Hiroshima Bay, the highest concentration of DCOIT in seawater was close to the lowest concentration of DCOIT effect on bivalve larvae. In addition, the toxicity of octylamine, a degradation product of DCOIT, to bivalve larvae is less than 1/100,000 of DCOIT, and the contribution of degradation products to the toxicity of DCOIT on bivalve larvae is extremely low in assessing the risk of DCOIT on bivalve larvae. As a result of toxicity tests conducted at 19～31, the malformation rate of larvae was lowest at 22 for clams and 25 for oysters, and the malformation rate tended to increase with increasing water temperature.

研究分野：環境毒性学

キーワード：防汚物質 二枚貝幼生 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

2008年に船舶への使用が世界的に規制されることとなった有機スズ化合物に代わり、多くの防汚物質が開発され、既に使用されている。海洋環境への残留性が問題となった有機スズ化合物に対し、これらの防汚物質は比較的分解性の高いものが多く、中でも、Sea-Nine 211の有効成分である4,5-dichloro-2-n-octyl-4-isothiazolin-3-one (DCOIT)はその分解性の高さから、環境に優しい防汚物質と考えられている。しかし最近、DCOITが環境中で検出される濃度でマガキ幼生の奇形を誘導することが明らかとなった(Onduka et al., 2022)。DCOITの毒性は細胞分裂を阻害することで発現し、種特異性が低いため、マガキと共に水産上重要な二枚貝であるアサリにも同様な影響が懸念される。近年、マガキは採苗不良、アサリは漁獲量が最盛期の5%程度まで減少し、問題となっている。

2. 研究の目的

本研究では、分解性が高いものの、その影響が懸念されている、DCOITの二枚貝幼生に対するリスク評価を行うことを目的とする。具体的には、マガキと同様にDCOITの影響が懸念されているアサリについて、胚～幼生期の毒性試験法を確立し、毒性試験における試験水中濃度変化を把握することで、実測濃度に基づくDCOITおよびその分解産物の毒性値を算出すると共に、モニタリングにおいて、船上で海水試料中のDCOITを安定化させ、実環境中濃度を求めることにより、DCOITに対して感受性が高いと考えられるこれら二枚貝幼生に対し、より適切なリスク評価を目指す。

3. 研究の方法

DCOITの二枚貝幼生に対するリスク評価のため、以下の研究項目を実施した。

(1) アサリ胚～幼生期の毒性試験法の確立

成熟期のアサリを一晩馴致したのち、昇温刺激および精子添加による産卵誘発処理を行い、得られた受精卵を用いて胚～幼生期の毒性試験法を確立した。毒性試験は、American Society for Testing and Materialsの推奨する方法 (ASTM E724-98(2012)) に準拠して行った。

(2) 分布域および移動経路における汚染実態の解明

所属機関が所有する調査船を用い、広島湾におけるこれまでの浮遊幼生調査で得られた、マガキおよびアサリ幼生の分布域や移動経路における汚染実態を明らかにした。海水試料は採水後、速やかに船上にて固相抽出カラムに付加し、試料中のDCOITをカラムへ吸着させ、安定化させた状態で研究室に持ち帰り、液体クロマトグラフタンデム質量分析計 (LC/MS/MS) 分析に供した。

(3) 胚～幼生期における影響の把握

本研究で確立した方法で毒性試験を行った。試験水中のDCOIT濃度をLC/MS/MSで測定し、試験期間中の濃度変化を把握した。試験終了時に幼生を固定し、顕微鏡観察により幼生の奇形率を求め、実測濃度に基づいたDCOITの毒性値を算出した。分解産物の影響も把握するため、入手可能なDCOIT分解産物について、アサリおよびマガキ受精卵を用いた胚～幼生期の毒性試験を行い、実測濃度に基づいたDCOIT分解産物の毒性値を算出した。

(4) 水温の違いが毒性に及ぼす影響の解明

アサリは、春～秋の水温20°C～28°Cの期間に栄養状態に応じて1～2回産卵する。DCOITの分解速度や受精卵の発生速度は水温の影響を受ける可能性があることから、これらの水温で毒性試験を行い、水温の違いによる毒性への影響を明らかにした。

(5) マガキおよびアサリ幼生に対するリスク評価

マガキ幼生については、すでに得られている毒性値 (Onduka et al., 2022)、アサリ幼生については、本研究で得られた毒性値を実環境中濃度と比較することにより、DCOITの二枚貝幼生に対するリスク評価を行った。

4. 研究成果

(1) 広島湾におけるDCOIT汚染の経年変化を調べた結果、マガキおよびアサリ幼生の分布域や移動経路においてDCOITが定量下限値 (0.34 ng/L) を越える濃度で検出された。海水中DCOITの最高濃度は、何れもマガキ幼生が出現する地点で認められ、その値はマガキ幼生に対するDCOITの最低影響濃度 (LOEC: 4 ng/L) に近い値であった (図1)。しかしながら、無影響濃度 (NOEC: <3 ng/L) を越える地点は認められず、また、アサリ幼生のDCOITに対する感受性はマガキ幼生に比べて低かったことから、現時点において二枚貝幼生に対するDCOITのリスクは低いと考えられた。一方、研究期間を通じてDCOITの最高濃度はマガキ幼生のLOECに近い値で推移していたことから、引き続き、海水中濃度の推移を監視する必要があると考えられた。

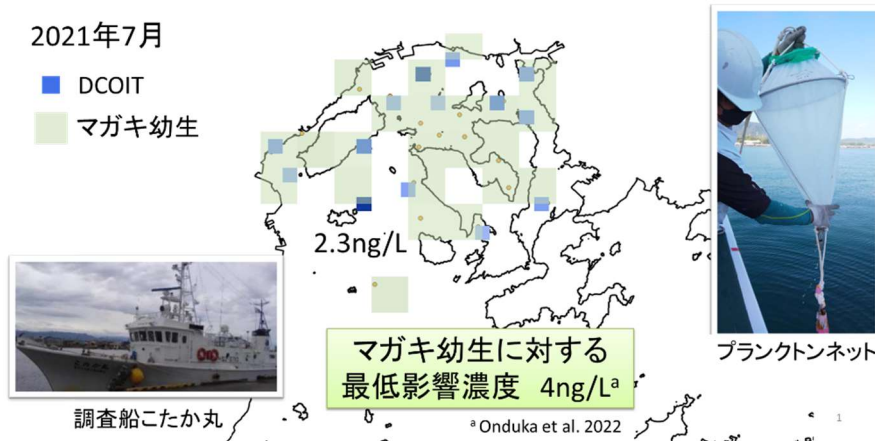


図1. 広島湾における DCOIT 濃度とマガキ幼生の出現状況

(青は DCOIT が定量下限値 (0.34 ng/L) を越える濃度で検出された地点。色の濃さは DCOIT 濃度を示す。薄緑はプランクトンネットにより、マガキ幼生の出現が確認された地点。)

(2) 受精卵を用いた胚～幼生期毒性試験の結果、DCOIT 分解産物であるオクチルアミンの二枚貝幼生に対する毒性は、DCOIT の 10 万分の 1 以下であったことから、二枚貝幼生に対する DCOIT のリスクを評価する上で、分解産物オクチルアミンの毒性の寄与は極めて低いことが明らかとなった (表 1)。

表 1. DCOIT の分解産物オクチルアミンの 24 時間半数影響濃度 (24-h EC₅₀)、24 時間最低影響濃度 (24-h LOEC) および 24 時間無影響濃度 (24-h NOEC)

毒性値	オクチルアミン ($\mu\text{g/L}$)	DCOIT ^b ($\mu\text{g/L}$)
24-h EC ₅₀	570 (440, 700) ^a	—
24-h LOEC	1100	0.004
24-h NOEC	370	<0.003

^a 95%信頼区間

^b Onduka et al., 2022

(3) 19°C～31°Cで行った毒性試験の結果、アサリでは 22°C、マガキでは 25°Cにおいて幼生の奇形率が最も低く、水温の上昇に伴って奇形率が増加する傾向が認められたことから、リスク評価において、DCOIT と水温の複合影響を考慮する必要性が明らかとなった (図 2)。

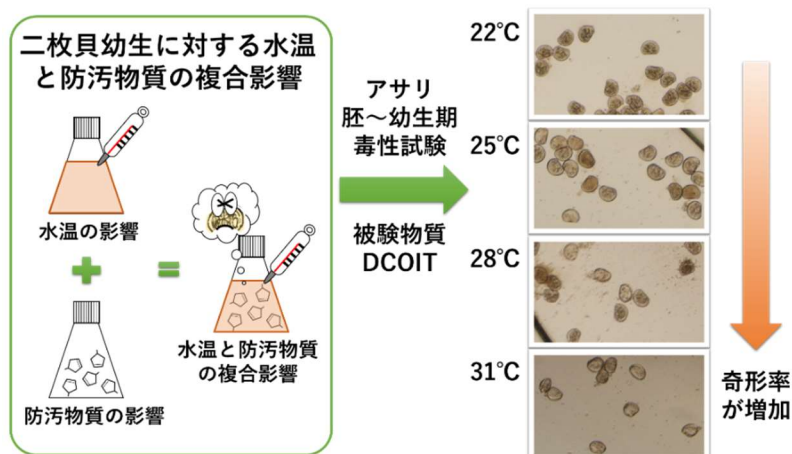


図 2. 二枚貝幼生に対する水温と防汚物質 DCOIT の複合影響

<引用文献>

Onduka T, Mizuno K, Shikata T, Matsubara T, Onitsuka G, Hamaguchi M (2022) Assessment of the risk posed by three antifouling biocides to Pacific oyster embryos and larvae in Hiroshima Bay, Japan. Environmental Science and Pollution Research 29:9011–9022.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Hiroya Harino, Madoka Ohji, Kumiko Kono, Toshimitsu Onduka, Takashi Hano, Kazuhiko Mochida	4. 巻 85
2. 論文標題 Current Status of Antifouling Biocides Contamination in the Seto Inland Sea, Japan	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Archives of Environmental Contamination and Toxicology	6. 最初と最後の頁 333-348
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1007/s00244-023-01036-8	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 河野久美子	4. 巻 89(2)
2. 論文標題 シンポジウム記録 船底や漁網に使用する防汚剤汚染は終わったのか？	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 日本水産学会誌	6. 最初と最後の頁 153
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.2331/suisan.WA3008-6	査読の有無 無
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 -

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 2件/うち国際学会 0件）

1. 発表者名 河野久美子・隠塚俊満・浜口昌巳
2. 発表標題 マガキ幼生に対する防汚物質DCOIT分解産物の毒性
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 河野久美子
2. 発表標題 「汚さないものは汚すもの？」海域における防汚物質の生態リスク評価
3. 学会等名 公益社団法人 日本技術士会 中国本部 農業/森林/水産部会 講演会（招待講演）
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 隠塚俊満・河野久美子
2. 発表標題 シーナインの生態リスク評価：広島湾での事例紹介
3. 学会等名 マリンエンジニアリング学術講演会（招待講演）
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 河野久美子
2. 発表標題 船底や漁網に使用する防汚剤汚染は終わったのか？
3. 学会等名 令和4年度 日本水産学会秋季大会シンポジウム
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 河野久美子
2. 発表標題 広島湾における海水中の防汚物質DCOITのモニタリング
3. 学会等名 令和5年度 日本水産学会春季大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 河野久美子
2. 発表標題 アサリ受精卵を用いた防汚物質DCOITの毒性試験法の検討
3. 学会等名 令和4年度 日本水産学会春季大会
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 張野 宏也・隠塚 俊満・小島 隆志・岡村 秀雄・堀口 敏宏・大地 まどか・河野久美子・北野 克和・三重野 紘央	4. 発行年 2024年
2. 出版社 恒星社厚生閣	5. 総ページ数 200
3. 書名 e-水産学シリーズ「船舶や漁網に使用されている防汚剤の変遷と生物影響」	

〔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
研究協力者	隠塚 俊満 (Onduka Toshimitsu) (00371972)	国立研究開発法人水産研究・教育機構・水産技術研究所・主任研究員 (82708)	
研究協力者	浜口 昌巳 (Hamaguchi Masami)	福井県立大学・海洋生物資源学部 (23401)	
研究協力者	小島 大輔 (Ojima Daisuke)	国立研究開発法人水産研究・教育機構・水産技術研究所・主任研究員 (82708)	

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
---------	---------