

## RF-064 アジア-太平洋地域におけるPOPs候補物質の汚染実態解明と新規モニタリング法の開発

## (1) 有機ハロゲン化合物による汚染実態の解明に関する研究

愛媛大学沿岸環境科学研究センター

高橋 真

国末達也

磯部友彦

平成18～19年度合計予算額	11,306千円
(うち、平成19年度予算額)	5,308千円)

※上記の合計予算額には、間接経費 2,608千円を含む

[要旨] 残留性有機汚染物質 (POPs) の候補物質として注目されている臭素系難燃剤のポリ臭素化ジフェニルエーテル類 (PBDEs) およびヘキサブロモシクロドデカン (HBCDs) を対象に、ガスクロマトグラフ-質量分析器 (GC-MS) および液体クロマトグラフ-タンデム型質量分析器

(LC-MS/MS) を用いた分析法を確立した。また、臭素系難燃剤による汚染の実態を把握するため、アジア各国で採取した二枚貝 (イガイ) やヒトの母乳、日本の陸上・沿岸や北太平洋外洋域に生息する野生高等動物を対象とした調査研究を実施した。化学分析の結果、ほぼ全ての検体からPBDEsやHBCDsが検出され、アジア-太平洋地域におけるその汚染の広がりが明らかとなった。イガイ中のPBDEs濃度は香港や韓国沿岸などで相対的に高く、経済成長の著しい東アジアの新興工業経済地域における汚染の顕在化が明らかとなった。中国や韓国沿岸のイガイ、アジア各国から採取した母乳、日本周辺および北太平洋外洋域に生息する鯨類や鳥類におけるPBDEsの残留濃度は、欧州諸国と同等のレベルに達していることが確認された。なかでも日本の猛禽類や中国南部のスナメリからは欧米の汚染地域に匹敵する濃度のPBDEsが検出され、地域や生物種による汚染レベルや蓄積特性の違いが明らかとなった。また、生態系におけるPBDEsの分布は、水圏の食物連鎖系を中心に汚染が認められるPCBsに比べ、陸域生態系における汚染が顕著であった。一方、HBCDsはカワウや外洋性鯨類の一部にPBDEsを上回る濃度で蓄積しており、水圏環境や外洋域への汚染拡大が示唆された。さらに臭素系難燃剤による汚染の経時的推移について検討したところ、三陸沖のキタオットセイや日本沿岸に座礁したカズハゴンドウ、中国南部で混獲されたスナメリ東京湾の柱状堆積物の全てにおいて、臭素系難燃剤による近年の汚染の進行が示唆され、とくに日本沿岸ではHBCDs、中国南部ではPBDEsによる汚染レベルが近年顕著に上昇していることが明らかとなった。

[キーワード] 残留性有機汚染物質、臭素系難燃剤、ポリ臭素化ジフェニルエーテル、ヘキサブロモシクロドデカン、野生動物

## 1. はじめに

臭素系難燃剤は、家電製品やOA機器のプラスチックや建築用断熱材、室内装飾品用の繊維など、様々な製品中に添加されている。なかでもポリ臭素化ジフェニルエーテル類（PBDEs）は、PCBなど既存の残留性有機汚染物質（POPs）と類似の化学構造・物理化学的特性を有しており（図1）、環境中やヒト・野生生物の体内からも相当濃度で検出されるため、将来のPOPs候補物質として関心を集めている<sup>1,2)</sup>。また、近年の研究により、甲状腺・神経伝達系の攪乱、免疫抑制などの内分泌攪乱作用が報告されており、ヒトや野生生物への影響も懸念されている<sup>3-6)</sup>。さらに既存POPsの環境中濃度や人体・野生生物における蓄積レベルが経年的に減少傾向を示すのに対し、PBDEsの汚染レベルは近年も上昇していることが報告されており、今後その汚染が深刻化する可能性がある<sup>7,8)</sup>。しかしながら、臭素系難燃剤汚染に関する情報は、欧米や日本などの先進諸国が中心で、アジアの途上国における汚染実態はほとんど明らかにされていない<sup>9,10)</sup>。アジアの途上国では、近年の著しい経済成長に伴って、廃棄物の不適正処理や公害発生、環境汚染の深刻化などが指摘されており、臭素系難燃剤による汚染も顕在化する可能性がある。また最近、日本など先進諸国で発生した電子・電気機器廃棄物（e-waste）が、アジア諸国に輸出され、野焼きなど不適切に処理されていることが大きな社会問題となっている<sup>10)</sup>。熱帯・亜熱帯のアジア地域におけるPOPs等の使用は、地球規模での汚染拡大の要因となることも指摘されており<sup>11-13)</sup>、これら地域における臭素系難燃剤等の汚染実態を明らかにすることは喫緊の課題である。

## 2. 研究目的

本研究では、PCBs や DDTs などの既存の POPs および PBDEs に関する分析法<sup>9)</sup>を改良するとともに、近年その使用量増加<sup>1)</sup>や食物連鎖を通じた生物濃縮性<sup>14-16)</sup>が指摘されているヘキサブロモシクロドデカン（HBCDs）（図 1）に着目し、高速液体クロマトグラフ-タンデム型質量分析計（LC-MS/MS）による異性体別分析法を開発した。また、我われの研究グループは、これまで二枚貝の一種であるイガイ（Mussel）を指標生物として、アジア沿岸域における残留性の有機塩素化合物やブチルスズ化合物に関する汚染の実態や分布を明らかにしてきた（Asia-Pacific Mussel Watch Program：APMWP）<sup>17,18)</sup>。そこで、本研究では、これまで APMWP で採集したイガイ試料を活用し、アジア沿岸域における臭素系難燃剤汚染の実態や分布を明らかにした。加えて、ヒトへの臭素系難燃剤の曝露実態を調査するため、アジア諸国のヒトの母乳を対象としたモニタリングを実施した。

さらに、愛媛大学の生物環境試料バンク（es-BANK）<sup>19)</sup>に保管されている試料を活用し、鳥類・タヌキなどの陸上動物やスジイルカなどの外洋性鯨類を対象に有機ハロゲン化合物の汚染実態を調査するとともに、既存の沿岸性鯨類などの調査結果<sup>9)</sup>と比較し、日本の内陸や沿岸、外洋の生態系における汚染分布の特徴や蓄積特性の種間差等について検証した。加えて、海棲哺乳動物の保管試料や柱状堆積物試料を対象に、POPs および臭素系難燃剤の濃度を測定し、アジア太平洋地域における汚染の経時的推移を解析した。



表1 アジア沿岸から採取したイガイ試料の詳細

Locations	Year	Species	<i>n</i>	SL (mm)	Area Description
<b>Cambodia</b>					
Preab Island	2004	<i>Perna viridis</i>	34	92	Harbor
Koh Kchorng	2004	<i>Perna viridis</i>	45	80	Rural area
<b>China</b>					
Xiamen (Haichang)	2004	<i>Perna viridis</i>	108	60 to 90	Commercial area
Qingzhou	2004	<i>Perna viridis</i>	178	60 to 90	Small town
Fuzhou (Ming Jian)	2004	<i>Perna viridis</i>	218	40 to 70	Agriculture, Residential area
Beihai	2004	<i>Perna viridis</i>	156	60 to 90	Small city
Shantau (Lauping)	2004	<i>Perna viridis</i>	104	60 to 90	Residential area
Cheng Si Dao	2004	<i>Perna viridis</i>	56	50 to 95	Fisheries
Dalian	2004	<i>Mytilus edulis</i>	69	30 to 75	Aquaculture
Chong Ming Dao, Shanghai	2004	<i>Mytilus edulis</i>	79	30 to 75	Industrial, Commercial area
Lian Yun Gang	2004	<i>Mytilus edulis</i>	50	40 to 75	Aquaculture
Jiao Zhou Wan, Qingdao	2004	<i>Mytilus edulis</i>	72	30 to 75	Industrial area
<b>Hong Kong</b>					
Tsim Sha Tsui	2004	<i>Perna viridis</i>	NA	NA	Commercial area
Kat O	2004	<i>Perna viridis</i>	NA	NA	Aquaculture area
Cheung Chau	2004	<i>Perna viridis</i>	NA	NA	Residential area
Sai Wan Ho	2004	<i>Perna viridis</i>	NA	NA	Residential area
Ma Liu Shui	2004	<i>Perna viridis</i>	NA	NA	Residential area

Lung Kwu Tan	2004	<i>Perna viridis</i>	NA	NA	Power station
Ma Wan	2004	<i>Perna viridis</i>	NA	NA	Aquaculture
Ma On Shan	2004	<i>Perna viridis</i>	NA	NA	Residential area
Sha Tau Kok	2004	<i>Perna viridis</i>	NA	NA	Aquaculture
Lamma Island	2004	<i>Perna viridis</i>	NA	NA	
<b>India</b>					
Pondicherry	2004	<i>Perna viridis</i>	35	96 to 124	Industry, small harbor
Kakinada	2004	<i>Perna viridis</i>	18	88 to 129	Aqua-and agriculture, harbor
Kasimedu	2004	<i>Perna viridis</i>	20	87 to 105	Fishing harbor
<b>Indonesia</b>					
Jakarta Bay, Muara Angek A	2003	<i>Perna viridis</i>	31	58 to 86	Urban, fishing port, polluted
Jakarta Bay, Muara Angek B	2003	<i>Perna viridis</i>	27	52 to 65	Urban, fishing port, polluted
Jakarta Bay, Cilincing A	2003	<i>Perna viridis</i>	22	52 to 73	Urban, industrial, polluted
Jakarta Bay, Cilincing B	2003	<i>Perna viridis</i>	20	70 to 88	Urban, industrial, polluted
<b>Japan</b>					
Osaka	2003	<i>Mytilus edulis</i>	29	47 to 66	Urban area
Hokkaido	2003	<i>Mytilus edulis</i>	NA	NA	Rural area
Fukui	2003	<i>Mytilus edulis</i>	NA	NA	Rural area
Mie	2003	<i>Mytilus edulis</i>	NA	NA	Aquaculture
Miyagi	2004	<i>Mytilus edulis</i>	NA	NA	Fishing harbor

---

表1 (続き)

Locations	Year	Species	<i>n</i>	SL (mm)	Area Description
<b>Korea</b>					
Uljin A	2005	<i>Mytilus edulis</i>	36	45 to 70	Less industrial activity
Ganggu, Yandok M-3	2005	<i>Mytilus edulis</i>	10	35 to 46	Less industrial activity
Yeongil Bay, Pohang M-2	2005	<i>Mytilus edulis</i>	50	42 to 52	Industrial complex
Guryongpo	2005	<i>Mytilus edulis</i>	58	45 to 58	Less industrial activity
Welseong B	2005	<i>Mytilus edulis</i>	49	53 to 68	Nuclear power plant
Ulsan Bay, M-8	2005	<i>Mytilus edulis</i>	42	54 to 77	Industrial complex
Ulsan Bay, M-6	2005	<i>Mytilus edulis</i>	42	45 to 65	Industrial complex
Onsan Bay, M-1	2005	<i>Mytilus edulis</i>	49	55 to 71	Industrial complex
Onsan Bay, M-2	2005	<i>Mytilus edulis</i>	43	50 to 70	Industrial complex
Kori, Ulju County A	2005	<i>Mytilus edulis</i>	44	45 to 65	Nuclear power plant
Busan Bay, M-1	2005	<i>Mytilus edulis</i>	10	40 to 55	Industrial complex
Wonmunpo, M-1	2005	<i>Mytilus edulis</i>	32	46 to 82	Farming areas
Kohyonsong Bay, Geoje M-3	2005	<i>Mytilus edulis</i>	37	53 to 62	Shipyards, Farming areas
Okpo Bay, M-2	2005	<i>Mytilus edulis</i>	22	51 to 81	Repairing shipyard
Masan Bay, M-2	2005	<i>Mytilus edulis</i>	32	38 to 62	Industrial complex
Haengam Bay, Jinhae	2005	<i>Mytilus edulis</i>	39	41 to 58	Industrial area
Gwangyang Bay	2005	<i>Mytilus edulis</i>	44	46 to 66	Industrial complex
Gamak Bay, Yeosu	2005	<i>Mytilus edulis</i>	10	33 to 57	Coastal protected area

Sacheon Bay, Sacheon	2005	<i>Mytilus edulis</i>	75	37 to 55	Thermoelectric power plant
Shihwa Lake, Incheon	2005	<i>Mytilus edulis</i>	10	35 to 67	Industrial area
Garorim Bay, Dangjin	2005	<i>Mytilus edulis</i>	17	50 to 87	Farming area
Chunsu Bay, Hongseong	2005	<i>Mytilus edulis</i>	46	46 to 64	Influx of migratory birds
<b>Malaysia</b>					
Port Dickson	2004	<i>Perna viridis</i>	NA	NA	Old port and refinery
Pantai Lido, Johor Bahru	2004	<i>Perna viridis</i>	NA	NA	Port, industrial and urban area
Pasir Puteh	2004	<i>Perna viridis</i>	NA	NA	Port, industrial and urban area
Sebatu	2004	<i>Perna viridis</i>	NA	NA	Rural area
Penang	2005	<i>Perna viridis</i>	NA	NA	Port, industrial and urban area
<b>Philippines</b>					
Bacoor, Cavite	2004	<i>Perna viridis</i>	NA	NA	Highly urbanized area
Naic, Cavite	2004	<i>Perna viridis</i>	NA	NA	Suburban area
<b>Vietnam</b>					
Hai Phong	2004	<i>Perna viridis</i>	103	60 to 75	Harbor
Quang Binh	2004	<i>Perna viridis</i>	136	45 to 90	Beach and tourist area
Thanh Hoa	2004	<i>Perna viridis</i>	123	35 to 80	Beach and tourist area
Hue	2004	<i>Perna viridis</i>	18	75 to 110	Shrimp farming
Nha Trang	2004	<i>Perna viridis</i>	44	85 to 95	Shrimp farming

---

NA: Not Available;

SL: Shell Length.

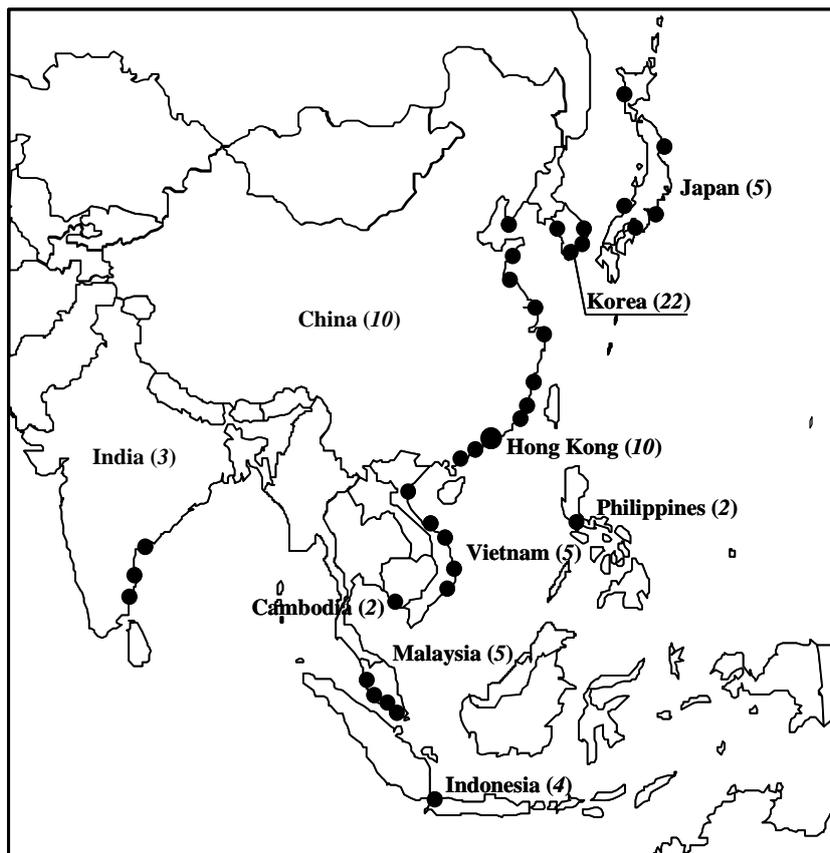


図2 アジア沿岸におけるイガイ試料の採取地点（括弧内は各国／地域内の採取地点数を示す）

表2 化学分析に供試したタヌキ（肝臓試料）、鳥類（筋肉試料）、鯨類（脂皮試料）の詳細

Species	Location	Year	<i>n</i>
<u>Inland</u>			
タヌキ・Raccoon dog ( <i>Nyctereutes procyonoides</i> )	Kanagawa	2001-200	10
		3	
タヌキ・Raccoon dog ( <i>Nyctereutes procyonoides</i> )	Osaka	2001-200	8
		3	
タヌキ・Raccoon dog ( <i>Nyctereutes procyonoides</i> )	Ehime	2001-200	21
		3	
カワウ・Common cormorant ( <i>Phalacrocorax carbo</i> )	Lake Biwa	2001	4
カワウ・Common cormorant ( <i>Phalacrocorax carbo</i> )	Lake Biwa	2006-200	16
		7	
カラス・Jungle crow ( <i>Corvus macrorhynchos</i> )	Osaka	1998	5
イヌワシ・Golden eagle ( <i>Aquila chrysaetos</i> )	Iwate	1994-199	2
		5	
オオタカ・Goshawk ( <i>Accipiter gentilis</i> )	Tochigi	1997	1
<u>Coastal</u>			

オオワシ・Stellars sea-eagle ( <i>Haliaeetus pelagicus</i> )	Hokkaido	1994	1
ウミネコ・Black-tailed gull ( <i>Larus crassirostris</i> )	Rishiri Is.	1999-200 1	5
<u>Offshore</u>			
スジイルカ・Striped dolphin ( <i>Stenella coeruleoalba</i> )	Ehime	2003	5
カズハゴンドウ・Melon headed whale ( <i>Peponocephala electra</i> )	Chiba	2001-200 6	5
フルマカモメ・Northern fulmar ( <i>Fulmarus glacialis</i> )	Bering Sea (51' 30-56' 30N, 178' 00-180' 00E)	1999	5
コアホウドリ・Laysan albatross ( <i>Diomedea immutabilis</i> )	North Pacific (24' 04-33' 29N, 142' 06-177' 59E)	1998	5
クロアシアホウドリ・Black-footed albatross ( <i>Diomedea nigripes</i> )	North Pacific (24' 30-49N, 169' 37-171' 04E)	1998-199 9	5

---

表3 アジア諸国で採取した母乳試料と提供者に関する情報

Country	Location	n	Year	Age (year)	Weight (g)	Hight (cm)	BMI
Japan	Ehime	10	2000	30 (21-41)	na	na	na
Korea	Soul	9	2004	30 (25-35)	57 (45-67)	161 (157-166)	22 (17-26)
China	Nanjing	9	2004	28 (25-34)	56 (44-75)	161 (153-175)	21 (18-29)
	Zhouzan	10	2004	27 (23-38)	60 (48-68)	159 (155-166)	24 (20-28)
Indonesia	Jakarta	10	2001	27 (19-35)	50 (41-62)	154 (150-157)	21 (17-27)
	Purwakarta	10	2002	31 (28-35)	55 (40-65)	157 (155-160)	22 (16-27)
	Bogor	5	2003	24 (18-30)	52 (42-65)	155 (150-163)	22 (18-28)
	Lampung	5	2003	29 (28-32)	54 (48-65)	160 (155-165)	21 (18-27)
Malaysia	Penang	5	2003	29 (27-35)	51 (45-64)	157 (148-175)	21 (18-26)
India	Chennai	5	2000	21 (17-28)	na	na	na
Vietnam	Hanoi	10	2000	29 (22-42)	na	na	na
Cambodia	Phnom Penh	11	2000	26 (18-38)	na	na	na
Philippines	Manila	4	2000	27 (17-33)	na	na	na

Values in parentheses indicate the range, na= Not Available, BMI= body mass index.

## (2) 化学分析

本研究では従来対象としてきた PBDEs の分析法に、新たな対象物質として HBCDs を加え、分析法の開発・改良を行った。これまで HBCD の異性体別分析については、適切な標準品がなかったことに加え、熱異性体化などの問題から、従来のガスクロマトグラフ-質量分析計 (GC-MS) 等を利用した微量分析が困難であったが、最近同位体ラベルの標準品が市販され、高速液体クロマトグラフ-質量分析計 (LC-MS) を用いた HBCD の異性体別分析法が開発された<sup>20,21)</sup>。よって、本研究ではそれらの方法を改良して、試料の前処理過程で PBDEs 画分と HBCDs 画分を分離し、それぞれをガスクロマトグラフ-質量分析器 (GC-MS) および液体クロマトグラフ-タンデム型質量分析器 (LC-MS/MS) で測定する方法を確立した。

分析法の概略を図 3 に示す。生物試料のソックスレー抽出後、クリーンアップスパイク (<sup>13</sup>C<sub>12</sub>-BDE-3、BDE-15、BDE-28、BDE-47、BDE-99、BDE-153、BDE-154、BDE-183、BDE-197、BDE-207、BDE-209 各異性体 5 ng および <sup>13</sup>C<sub>12</sub>-α、β、γ-HBCD 各異性体 10 ng) を添加した。抽出液は濃縮後ゲル浸透クロマトグラフィーにより脱脂を行い、活性化シリカゲルクロマトグラフィーにより分画・精製を行った。ヘキサン/ジクロロメタン(95:5、v/v、80ml)を PBDEs 画分とし、続いてヘキサン/ジクロロメタン(80:20、v/v、100ml)で HBCD を含む画分を溶出させた。両画分とも、濃縮後それぞれシリンジスパイク (<sup>13</sup>C<sub>12</sub>-BDE139: 5ng、d<sub>18</sub>-HBCDs: 10ng)を加えて、それぞれ GC-MS および LC-MS/MS で分析した。堆積物試料分析の際は、PBDEs 画分について硫酸処理と活性銅による硫黄除去を行った。また、母乳試料の抽出の場合、ソックスレー抽出の代わりに珪藻土カラムに試料約 40g を負荷・吸着させ、ジエチルエーテルで抽出する方法を用いた。PBDEs の定量に用いた GC-MS、キャピラリーカラムおよび各種分析条件については、既報に従った<sup>9,22)</sup>。すなわち、1~7 臭素化 BDE 異性体を HRGC-LRMS (Agilent 6890N - 5973N) で、8~10 臭素化異性体を HRGC-DFMS (JEOL GC Mate II) で測定した (イオン化・測定モードはともに EI・SIM)。また分

離用キャピラリーカラムとして、前者に DB-1 (J&W Scientific)、30 m×0.25mm (膜厚 0.25 μm)、後者に DB-1 (J&W Scientific)、15 m×0.25mm (膜厚 0.1 μm) を用いた。HBCDs の定量には、Alliance 2795 (Waters、Tokyo) 高速液体クロマトグラフ-Quattro Micro API (Waters/Micromass、Tokyo) タンデム質量分析計を用い、MassLynx 4.0 ソフトウェアでデータ処理を行った。

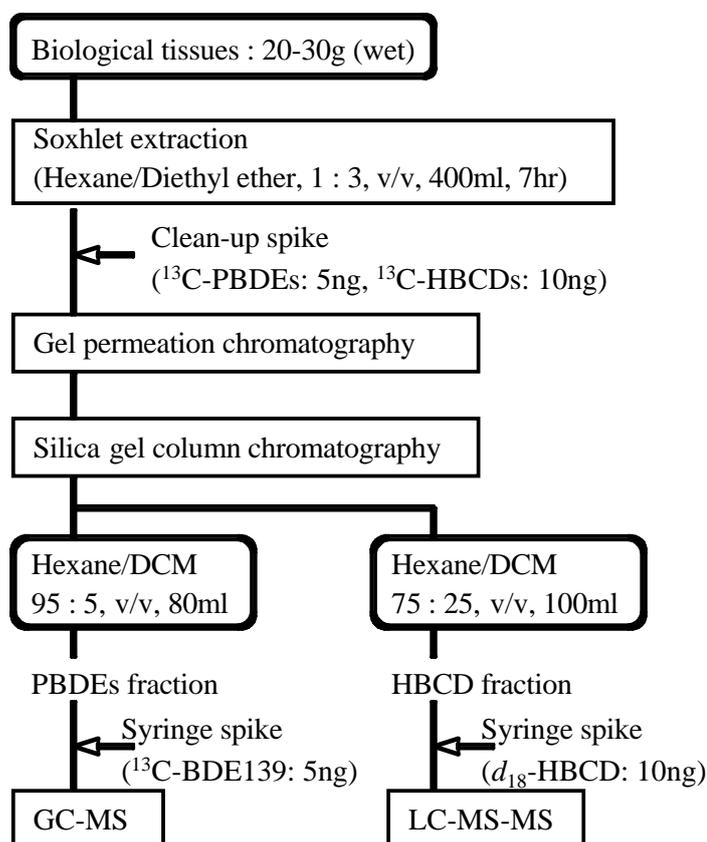


図3 PBDEsおよびHBCDsの分析フロー

#### 4. 結果・考察

##### (1) 分析精度等の確認

本研究で確立したHBCDsの分析精度を検証するため、添加回収試験を実施した。生物試料分析の際に、ソックスレー抽出前の試料に添加した場合の回収率 ( $n=5$ ) は、 $\alpha$ -HBCDが $95 \pm 19\%$ 、 $\beta$ -HBCDが $100 \pm 20\%$ 、 $\gamma$ -HBCDが $92 \pm 20\%$ 、と良好だった。また、機器検出限界についても数pgレベルの測定が可能であることが確認された。さらに測定精度を検証するため、「有機臭素化合物の測定に係る相互検定研究」<sup>23)</sup>で作成された共通試料「動物脂肪」を分析して精度・信頼性を確認した。その結果、本分析法におけるPBDEsおよびHBCDsの定量値は、相互検定研究における報告値の範囲内であった。以上のことから、本分析法の精度・信頼性は高いと考えられる。一方、LC-MSによるHBCDの測定例において内部標準法を用いてもマトリクスエフェクトが補正しきれないケースが報告されている<sup>24)</sup>。よって、マトリクスエフェクトによるイオン化サプレッションが確認された試

料については希釈後に再分析することとした。

## (2) アジア-太平洋Mussel Watch

### 1) PBDEsの汚染実態と分布

アジア沿岸のイガイから検出されたPBDEsの濃度を、表5および図3に示す。化学分析の結果、全てのイガイ試料からPBDEsが検出され、この物質による汚染がアジア沿岸域に広がっていることが明らかとなった。PBDEsによるアジア沿岸域の汚染は、国や地域によって、大きく異なっており、イガイ中の総PBDEs濃度(2~10臭素化異性体濃度の合計)は、0.66~440 ng/g lipid wtであった。また、アジア地域の中でも、PBDEsによる汚染レベルは韓国や香港沿岸およびフィリピンや中国の一部海域で相対的に高いことが判明した(図4)。すなわち、本研究によりアジア-太平洋地域の中でも経済成長の著しいこれら地域において、PBDEsによる汚染の顕在化していることが明らかとなった。また、とくにPBDEs濃度の高い地域は、都市域沿岸や大規模港湾地区、造船業・重化学工業関連のコンビナート等が集中する地域であった(表1、表4)。これらの結果は、PBDEsの汚染源が、以上の地域の都市・港湾活動や造船業、重化学工業等にあることを示唆している。

また、以前に実施した有機塩素化合物に関するAPMWPの結果<sup>14)</sup>と比較すると、PBDEsの濃度レベルは、ポリ塩化ビフェニール(PCBs)やDDTs(*p,p'*-DDTおよびDDE、DDDの合計)よりも概して低く、HCHs(BHC)やCHLs(*trans*および*cis*体のクロルダン、ノナクロールおよびオキソクロルダンの合計)と同程度であった。また、PBDEsとこれら有機塩素化合物ではその汚染の分布が大きく異なっていた。すなわち、これまでの調査から、DDTsなどの有機塩素系農薬については、中国・インドなど熱帯・亜熱帯のアジア諸国に、PCBsについては日本沿岸などの先進工業地域に汚染源のあることが示唆されてきたが、PBDEsについては上記のような東アジアの新興工業経済地域に汚染の集中していることが明らかとなった。

さらにこれらアジア沿岸域のイガイの汚染レベルを評価するため、本研究の結果をこれまでに他の研究で報告された二枚貝のPBDEs濃度と比較した(表5)<sup>25-33)</sup>。分析対象としているBDE異性体が研究事例によって異なっているため厳密な比較は難しいが、韓国や香港、フィリピンのイガイの濃度は、欧州などの先進諸国と同等レベルに達していることが確認された。1999年のPBDEs消費統計情報(ペンタ製剤、オクタ製剤、デカ製剤の総計)によると、アジア地域における消費量は世界の40%を占めることが報告されている<sup>34)</sup>。このようにアジアで大量のPBDEsが使用されているにも拘らず、国別の消費量や環境汚染の実態については、ほとんど公表されていない。最近、我々の研究グループが実施した小型鯨類やカツオを用いたモニタリング調査で、香港沿岸に座礁した沿岸性鯨類<sup>9)</sup>や南シナ海で捕獲したカツオ<sup>22)</sup>からアジアの他海域よりも相対的に高い濃度のPBDEsが検出されており、本研究のイガイで見られた傾向と一致している。また、日本近海の鯨種に着目すると、太平洋より日本海あるいは東シナ海に生息する種で高濃度のPBDEs蓄積が認められている<sup>9)</sup>。Wang et al.<sup>35)</sup>は極東アジア地域のエアロゾルから高濃度のPBDEsが検出された要因として、中国、韓国、ロシアにおけるPBDEsの広域使用をあげている。これらの結果および知見から推察すると、韓国や中国・香港などがアジアにおける主要なPBDEs消費国となっており、その使用・放出による沿岸海洋の汚染が進んでいると考えられる。

### 2) PBDEs異性体の残留組成

アジア各地のイガイから検出されたPBDEsの異性体組成に着目すると、概してBDE-47が最も高い割合で残留しており、次いでBDE-99およびBDE-100が卓越していた（図5）。イガイにおけるこれらの異性体パターンは概ね他の報告と一致していた<sup>25-33</sup>）。しかしながら、デカBDE製剤の中で最も卓越した異性体である10臭素化体BDE209も中国や韓国、香港、日本、インドネシアなどの検体から有意に検出された。一般に高臭素化異性体は粒子吸着性が強いいため、環境中では粒子状有機炭素に結合した形態で存在している。イガイはろ過食性であるため、懸濁粒子や植物プランクトン等に由来する曝露を反映してBDE-209が高頻度で検出される可能性が考えられる。事実、懸濁粒子は高臭素化同族体の重要な輸送媒体であることが報告されている<sup>36</sup>）。また、本研究で分析したイガイは、分析前に砂吐き処理をしていないため、検出された高臭素化異性体はイガイの体内に取り込まれた粒子に由来する可能性もある。ムラサキイガイ中のBDE-209は24時間の砂吐き処理によって劇的に減少することが報告されている<sup>37</sup>）。よって、今後イガイを用いたモニタリングでは、砂吐き処理を行うか、高臭素化の同族異性体を除いて、汚染レベルや組成等を比較・考察することが望ましい。一方、中国や韓国の堆積物から高濃度のBDE209を検出し、これらの国々でデカBDE製剤が主要な難燃剤として使用されていることを裏付ける報告例もある<sup>25,38</sup>）。よって、イガイにおける異性体組成の違いが、各国のPBDE製剤の利用状況の差異を反映している可能性もあることから、今後も様々な環境媒体を対象とした調査研究を推進してそれら環境負荷の実態を解明する必要がある。

表4 アジア沿岸のイガイから検出されたPBDEs濃度 (ng/g lipid wt)

Locations	Lipi d (%)	PBDEs		
		mono-hepta *	octa-deca* *	Total
<b>Cambodia</b>				
Preab Island	1.4	5.3	bd1	5.3
Koh Kchorng	1.6	2.3	bd1	2.3
<b>China</b>				
Xiamen (Haichang)	0.45	19	7.0	26
Qingzhou	0.76	5.1	bd1	5.1
Fuzhou (Ming Jian)	0.70	12	6.0	18
Beihai	0.91	9.1	2.8	12
Shantau (Lauping)	0.99	13	20	33
Cheng Si Dao	0.88	6.6	59	66
Dalian	0.67	30	33	63
Chong Ming Dao, Shanghai	0.79	13	17	30
Lian Yun Gang	1.2	2.7	8.5	11

Jiao Zhou Wan, Qingdao	0.78	13	28	41
<b>Hong Kong</b>				
Tsim Sha Tsui	1.3	120	14	130
Kat O	1.0	25	bd1	25
Cheung Chau	1.3	120	9.5	130
Sai Wan Ho	1.3	60	4.4	65
Ma Liu Shui	1.4	40	7.7	48
Lung Kwu Tan	0.64	17	5.0	22
Ma Wan	1.2	54	3.4	57
Ma On Shan	1.1	41	4.0	45
Sha Tau Kok	1.6	34	4.3	39
Lamma Island	1.7	22	3.6	26
<b>India</b>				
Pondicherry	0.37	1.5	bd1	1.5
Kakinada	2.4	1.4	bd1	1.4
Kasimidu Jetty	0.95	2.7	0.25	2.7
<b>Indonesia</b>				
Jakarta Bay, Muara Angek A	0.60	8.6	4.3	13
Jakarta Bay, Muara Angek B	0.93	9.0	3.4	12
Jakarta Bay, Cilincing A	0.90	12	2.0	14
Jakarta Bay, Cilincing B	0.86	11	2.7	14
<b>Japan</b>				
Osaka	1.9	48	0.26	49
Hokkaido	0.49	6.2	bd1	6.2
Fukui	0.56	7.2	bd1	7.2
Mie	0.74	15	0.41	16
Miyagi	1.6	28	12	40

表5 (つづき)

Locations	Lipid (%)	PBDEs		
		mono-hepta *	octa-deca* *	Total
<b>Korea</b>				
Uljin A	0.78	24	1.4	25
Ganggu, Yandok M-3	1.7	8.7	bd1	8.7
Yeongil Bay, Pohang				
M-2	0.93	140	bd1	140
Guryongpo	1.6	27	8.2	35
Welseong B	1.8	83	bd1	83
Ulsan Bay, M-8	1.0	250	11	260
Ulsan Bay, M-6	2.1	120	bd1	120
Onsan Bay, M-1	0.81	38	bd1	38
Onsan Bay, M-2	1.8	27	bd1	27
Kori, Ulju County A	2.1	23	bd1	23
Busan Bay, M-1	2.3	420	25	440
Wonmunpo, M-1	1.9	6.0	0.63	6.7
Kohyonsong Bay,				
Geoje M-3	1.4	180	9.9	190
Okpo Bay, M-2	1.2	41	6.6	48
Masan Bay, M-2	0.75	250	8.4	260
Haengam Bay, Jinhae	1.2	130	3.4	130
Gwangyang Bay	0.86	17	15	32
Gamak Bay, Yeosu	1.3	24	12	36
Sacheon Bay, Sacheon	0.72	5.9	0.69	6.6
Shihwa Lake, Incheon	1.3	39	5.9	45
Garorim Bay, Dangjin	1.2	14	bd1	14
Chunsu Bay,				
Hongseong	0.95	13	bd1	13
<b>Malaysia</b>				
Port Dickson	0.28	2.1	bd1	2.1
Pantai Lido, Johor				
Bahru	0.71	14	bd1	14
Pasir Puteh	1.5	16	0.19	16
Sebatu	1.8	0.84	bd1	0.84
Penang	0.95	1.2	bd1	1.2

**Philippines**

Bacoor, Cavite	0.85	140	0.73	140
Naic, Cavite	0.60	69	0.38	69

**Vietnam**

Hai Phong	0.80	2.0	bd1	2.0
Quang Binh	1.2	5.4	bd1	5.4
Thanh Hoa	1.0	0.90	bd1	0.90
Hue	0.52	0.95	bd1	0.95
Nha Trang	0.35	0.66	bd1	0.66

---

\*sum of BDE-3, BDE-15, BDE-28, BDE-47, BDE-99, BDE-100, BDE-153, BDE-154, and BDE-183;

\*\*sum of BDE-196, BDE-197, BDE-206, BDE-207, and BDE-209;

bd1: Below detection limit.

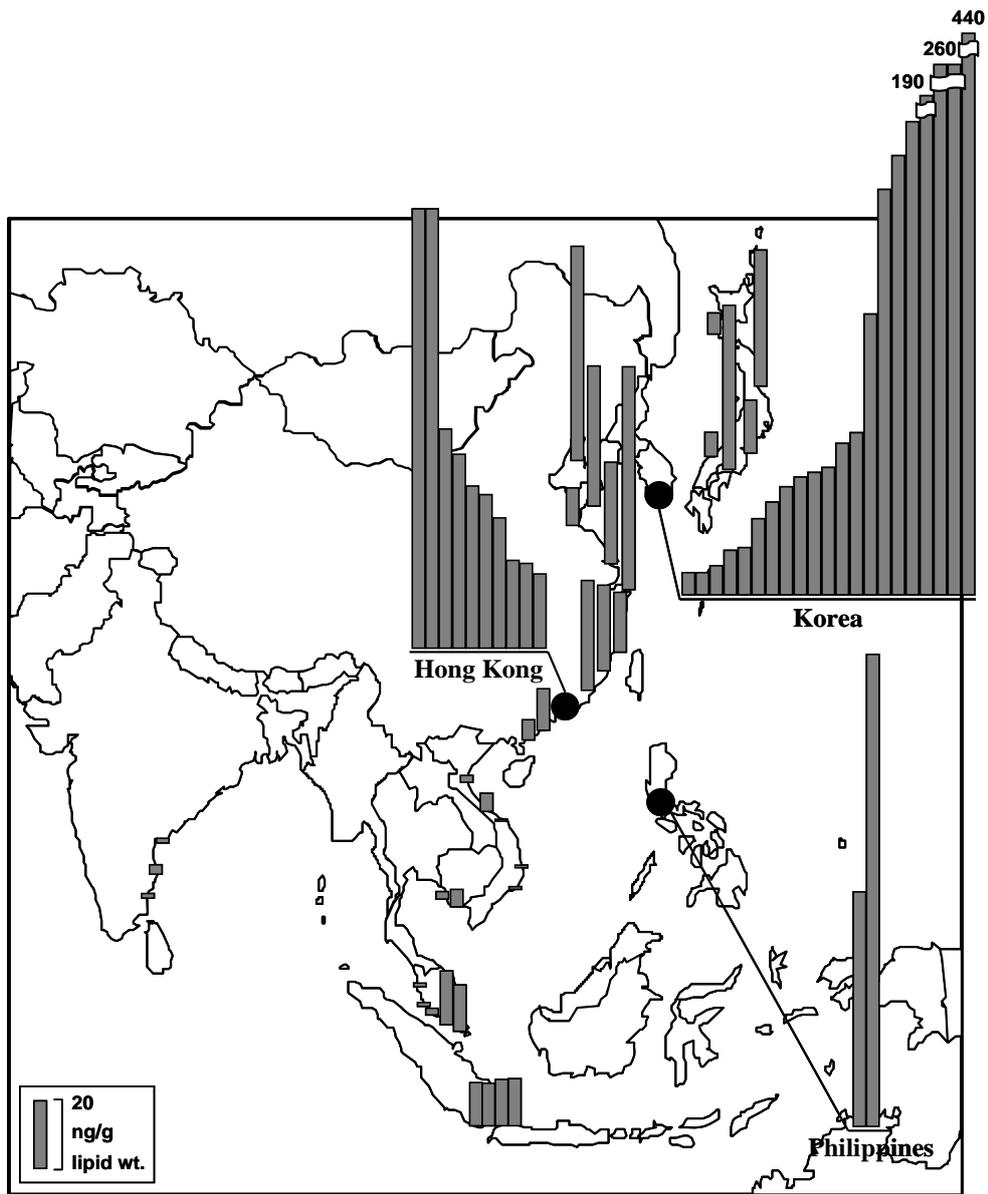


図4 アジア沿岸のイガイにおけるPBDEsの濃度分布

表5 世界各地の二枚貝におけるPBDEs濃度の報告値の比較

Location	Sampling year	Target species	Concentration (ng/g wet wt.)									Reference
			BDE-15	BDE-28	BDE-47	BDE-99	BDE-100	BDE-153	BDE-154	BDE-183	ΣPBDEs	
Cambodia	2004	Mussels	<0.001	0.0018-0.0033	0.014-0.016	0.017-0.025	0.0059-0.019	<0.002-0.0046	<0.002-0.0030	<0.002	0.038-0.071	<i>This study</i>
China	2004	Mussels	<0.001-0.0060	0.0028-0.026	0.018-0.086	0.0071-0.057	0.0027-0.011	<0.002-0.017	<0.002-0.0088	<0.002	0.031-0.20	<i>This study</i>
Hong Kong	2004	Mussels	0.0011-0.0050	<0.001-0.035	0.058-0.81	0.027-0.58	0.012-0.19	0.0029-0.019	0.0028-0.015	<0.002-0.0032	0.11-1.6	<i>This study</i>
India	2004	Mussels	<0.001	<0.001-0.0012	0.0022-0.017	0.0024-0.013	0.0011-0.0048	<0.002	<0.002	<0.002	0.0057-0.035	<i>This study</i>
Indonesia	2003	Mussels	0.0011-0.0014	0.0023-0.0043	0.022-0.045	0.019-0.038	0.0060-0.011	<0.002-0.0022	<0.002-0.0022	<0.002	0.052-0.10	<i>This study</i>
Japan	2003-2004	Mussels	<0.001-0.0061	0.0018-0.063	0.016-0.56	0.0061-0.20	0.0026-0.058	0.0021-0.054	0.0021-0.050	<0.002-0.0098	0.031-0.92	<i>This study</i>
Malaysia	2004	Mussels	<0.001	<0.001-0.0077	0.0023-0.10	0.0022-0.082	0.0014-0.025	<0.002-0.0058	<0.002-0.0041	<0.002	0.0059-0.23	<i>This study</i>
Philippines	2004	Mussels	<0.001-0.0025	0.012-0.024	0.21-0.56	0.13-0.41	0.051-0.16	0.0042-0.011	0.0042-0.012	<0.002	0.41-1.2	<i>This study</i>
Vietnam	2004	Mussels	<0.001	<0.001-0.0034	0.0010-0.025	0.0014-0.02	<0.001-0.0097	<0.002-0.0039	<0.002-0.0031	<0.002	0.0024-0.064	<i>This study</i>
Korea	2005	Mussels	<0.001-0.032	0.0023-0.092	0.023-3.3	0.0089-4.4	0.0058-1.1	<0.002-0.22	0.0021-0.33	<0.002-0.028	0.043-9.5	<i>This study</i>
Korea	2004	Mussels, oysters	0.0007-0.013	0.004-0.042	0.047-1.8	0.017-1.6	0.008-0.64	0.003-0.072	0.004-0.11	0.004-0.029	0.087-4.4	25)
Singapore	2002	Mussels	na	na	0.09-2.5	0.08-4.0	0.02-1.2	BDL-0.14	0.007-0.1	na	0.20-7.9	26)
Hong Kong*	2004	Mussels	0.04-0.82	0.06-5.1	0.28-1.7	0.28-4.3	BDL-0.26	BDL-3.5	BDL-0.38	0.32-4.0	2.1-12	27)
UK	1996	Mussels	na	na	3.5	3.9	na	na	na	na	7.4	28)
Denmark	2000	Mussels	na	na	0.05-0.49	0.02-0.25	0.004-0.05	0.005-0.03	na	na	0.080-0.81	29)
Greenland	2000	Mussels	na	na	0.1	0.02	<0.02	<0.05	na	na	0.11	30)
Norway	2003	Mussels	na	nd	0.03-0.12	0.01-0.07	<0.01-0.04	<0.01-0.03	<0.01-0.04	na	0.06-0.25	31)
France	2001-2002	Mussels	na	<0.003-0.13	0.11-1.5	0.02-0.62	<0.003-0.41	<0.003-0.09	<0.003-0.12	<0.003-0.04	NA	32)
USA	2002	Mussels, oysters, clams	na	nd	bd1-8.1	bd1-2.3	bd1-3.9	nd	nd	nd	bd1-14	33)

\* Data on dry weight reported in the original paper was converted into wet weight assuming moisture content as 80%.

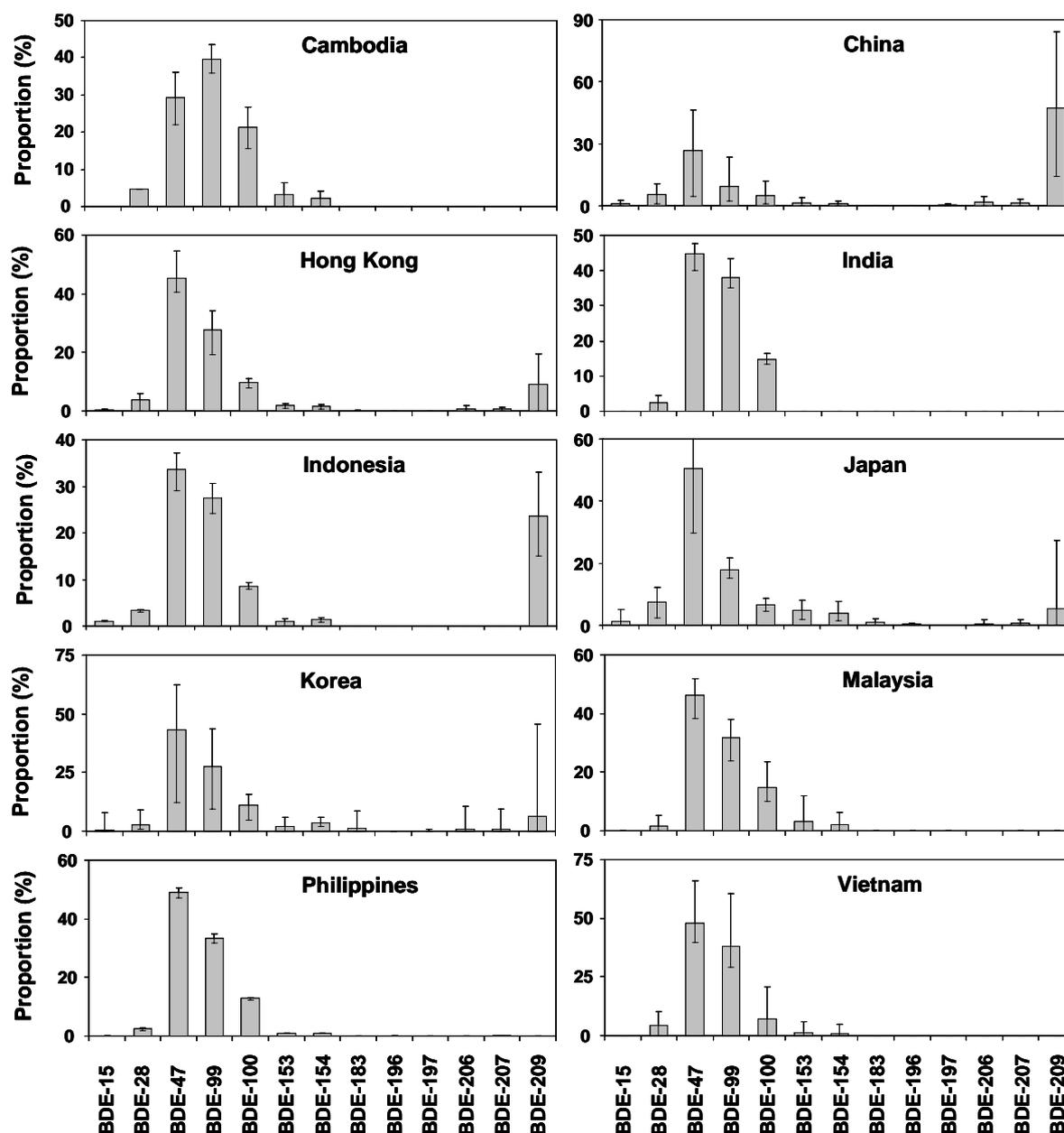


図5 アジア各国のイガイから検出されたPBDEs異性体のプロファイル

### 3) イガイにおけるHBCDsの汚染実態と分布

PBDEsの汚染レベルが高い韓国沿岸のイガイについて、新規に開発した分析法を適用し、HBCDsによる汚染を調査した。その結果、全ての試料からHBCDs検出され、この臭素系難燃剤による汚染も広がっていることが明らかとなった(表6)。

2001年におけるHBCDの世界使用量は約17000トンであり、そのうち57%がヨーロッパで、次いでアジア地域で23%消費されている<sup>34)</sup>。このように、HBCDもPBDEsと同様にアジアで大量に使用されているにも拘らず、その広域モニタリング例はほとんど報告されていない。本研究でイガイから検出された総HBCD濃度 ( $\alpha$ 、 $\beta$ 、 $\gamma$ -HBCD異性体の総計) は6.0~500 ng/g lipid wtであった。ま

た、最高濃度はOnsan Bayの試料から検出された。Onsan Bayは高度に都市化／工業化した地域であり、都市・工業活動に伴うHBCDsの環境負荷が考えられる。Ueno et al.<sup>39)</sup>はカツオを指標生物とした研究で、日本や韓国周辺海域のHBCD濃度が高いことを報告しており、都市化／工業化の進んだ先進諸国からの環境放出量が多いことを示唆している。

イガいのHBCD汚染に関する報告は、オランダでの調査例が唯一である<sup>40)</sup>。この報告では、オランダの3地点で採取したイガいを分析し、 $<0.1\sim 51$  ng/g wet wtの濃度でHBCDが検出されている。また、その他の無脊椎動物に関する報告は、オランダのWesternScheldtで採取したヒトデ ( $<30\sim 84$  ng/g lipid wt、*Asterias rubens*) および北海で採取したバイ貝 ( $29\sim 47$   $\mu$ g/kg、*Buccinum undatum*) のみである<sup>41)</sup>。二枚貝を指標生物とした広域モニタリングをアジア地域で実施し、HBCDの汚染源を究明する必要がある。

さらに各試料採取地点のHBCD/PBDE濃度比を求めたところ、0.17～18の値が得られた。この濃度比はOnsan BayとGamag Bayで高く、これらの地域でPBDEsを上回るHBCDの使用が示唆された。2001年のHBCD世界使用量(約17000トン)は、既にPBDEのペンタ製剤(約8000トン)を上回っており<sup>42)</sup>、PBDEs代替品としてのHBCD消費量の増加を示唆している。一方、本研究で分析したイガイ中PBDEsおよびHBCD濃度と人間活動・産業活動との関係を解析したところ、PBDEsについては、工業地域で採取した検体で有意に濃度が高い傾向が認められたが、HBCDsについては、そのような傾向が不明瞭であり、必ずしも両者の汚染分布は一致しないことが示された(図6)。また、両者の濃度相関を解析した結果からも有意な関係は認められなかった(スピアマン順位相関検定、 $p>0.05$ )。これらの結果は、PBDEsとHBCDsの主な汚染源が異なる可能性を示唆している。PBDEsが主にポリウレタンやポリスチレンなどの樹脂製品に使用されたのに対し、HBCDsは繊維製品や建築材料・室内装飾品等に多用されていることがその要因と考えられる。

また、イガイから検出されたHBCD異性体のなかでは、概ね $\alpha$ -HBCDが卓越しており、続いて $\gamma$ -、 $\beta$ -の順であった。魚類やエビなどの水棲生物試料の分析事例でも、 $\alpha$ -HBCD異性体の卓越的な残留が報告されている<sup>15, 16, 41)</sup>。一方、魚類と比較した場合、イガイでは $\gamma$ -HBCDの割合が相対的に高く、いくつかの検体では $\gamma$ -HBCD $>$  $\alpha$ -HBCDのパターンがみられた。 $\alpha$ -、 $\beta$ -、および $\gamma$ -HBCD異性体の水溶解度はそれぞれ48.8、14.7、および2.1  $\mu$ g/lという報告がある<sup>42)</sup>。 $\gamma$ -HBCDは水溶性が低いため、環境中では堆積物や懸濁粒子に吸着した形態で存在すると考えられる。イガイ中で $\gamma$ -HBCDの割合が他の水棲生物より高値を示したのは、懸濁粒子由来の曝露を反映しているか、粒子そのものを体内取り込んでいるためと考えられる。本研究のイガイと同様にTees川河口で採取したヒトデでも $\gamma$ -HBCD異性体と $\alpha$ -HBCD異性体が同程度の割合で検出され、汚染されたエサの摂餌か腸管内に蓄積した堆積物粒子の影響と推察されている<sup>41)</sup>。実際に堆積物中のHBCDs組成は、ほとんどが $\gamma$ -HBCDで占められていることが報告されている<sup>17, 41)</sup>。HBCDの工業製剤中には $\alpha$ 、 $\beta$ 、および $\gamma$ -HBCDの3種の異性体が含まれ、 $\gamma$ -HBCD異性体は全体の約80%を占めている。一方、製品化工程における加温によって、最終製品中の異性体組成は変動する可能性がある<sup>17)</sup>。韓国沿岸のイガイで観察されたHBCD異性体組成のばらつきは、製品中に含まれる異性体組成の多様化、あるいは環境中での残留・蓄積特性の違いを反映していると思われる。

表6 韓国産イガイから検出されたPBDEsとHBCDs濃度 (ng/g lipid wt)

ID	Location	Lipid (%)	PBDEs	HBCDs	HBCD/PBDE
1	Uljin A	0.78	25	12	0.48
2	Ganggu, Yandok M-3	1.7	8.7	6.0	0.67
3	Yeongil Bay, Pohang M-2	0.93	140	na	-
4	Guryongpo	1.6	35	66	1.9
5	Welseong B	1.8	83	45	0.54
6	Ulsan Bay, M-8	1.0	260	na	-
6	Ulsan Bay, M-6	2.1	130	39	0.30
7	Onsan Bay, M-1	0.81	38	na	-
7	Onsan Bay, M-2	1.8	27	500	19
8	Kori, Ulju County A	2.1	23	21	0.91
9	Busan Bay, M-1	2.3	440	73	0.17
10	Wonmunpo, M-1	1.9	6.7	53	7.9
11	Kohyonsong Bay, Geoje M-3	1.4	190	na	-
12	Okpo Bay, M-2	1.2	48	na	-
13	Masan Bay, M-2	0.75	260	140	0.54
14	Haengam Bay, Jinhae	1.2	130	30	0.24
15	Gwangyang Bay	0.86	33	49	1.5
16	Gamak Bay, Yeosu	1.3	36	350	9.7
17	Sacheon Bay, Sacheon	0.72	6.6	42	6.4
18	Shihwa Lake, Incheon	1.3	46	52	1.1
19	Garorim Bay, Dangjin	1.2	14	18	1.3
20	Chunsu Bay, Hongseong	0.95	13	38	2.9

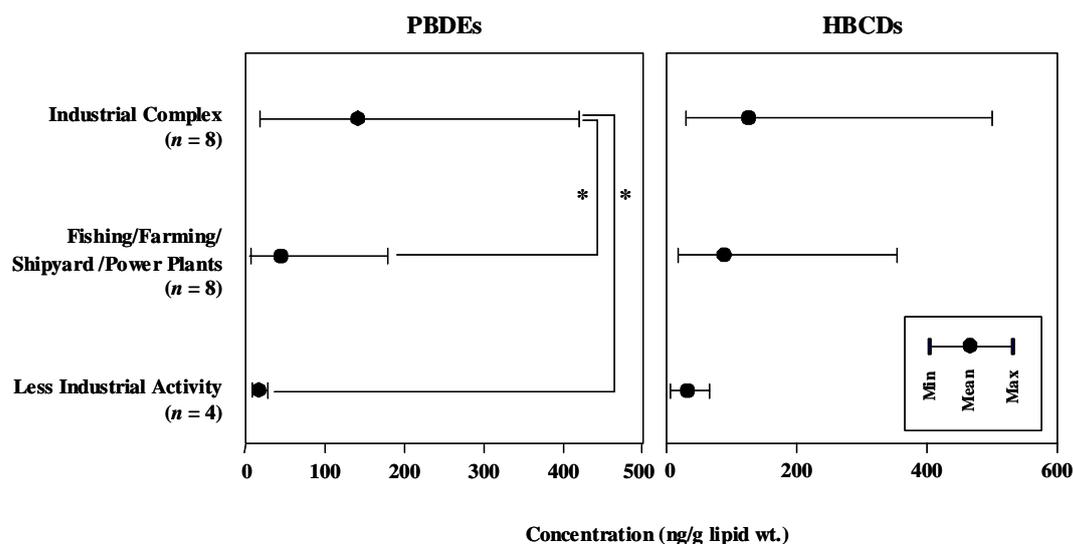


図6 大規模工業地域、漁業・養殖地域、非工業地域間でのイガイ中PBDEsおよびHBCDs濃度の比較 (\*  $p < 0.05$ , Mann-Whitney U-test)

### (3) アジア諸国のヒト母乳を対象としたモニタリング

本研究で分析したアジア諸国の母乳中PBDEs濃度を表7に示す。全ての母乳試料からPBDEsが検出され、その濃度範囲は0.06-18 ng/g lipid wt、平均値は0.60-6.2 ng/g lipid wtであった。日本以外のアジア諸国の母乳からPBDEsを検出したのは本研究が初めてである。本研究で2000年に採取された日本人の母乳中PBDEs濃度(平均3.8 ng/g lipid wt)は、他の日本人の母乳に関する報告値<sup>43)</sup>とほぼ同レベルであった。また、アジア人の母乳中PBDEs濃度は、概して近年アメリカ合衆国やカナダで報告されているレベルより1~2桁低い、ヨーロッパ諸国の母乳中PBDEs濃度に匹敵するレベルであった(表8)。このことは、北アメリカ諸国で、生物蓄積の高いPentaBDE製剤が近年まで生産され、PBDEs需要量が多かったことと一致する<sup>44)</sup>。一方、ヨーロッパ諸国に関しては早期にPentaBDEやOctaBDE製剤の使用を規制したため、母乳中のPBDEsの濃度レベルは最近減少傾向に転じたことが報告されている<sup>45)</sup>。日本や一部の国を除けば、多くのアジア諸国においてPBDEs製剤に対する使用規制はなく、今後も臭素系難燃剤の人体曝露や環境負荷が続く可能性がある。事実、2001年のPBDEs世界需要量では、アジアが世界全体の40%を占めており、そのうち10%を日本が、90%を他のアジア諸国が占めている<sup>34)</sup>。加えて、アメリカや日本、ヨーロッパなどの先進国で使用されたe-wasteが大量にアジアの途上国へ輸出され、野焼きなど不適切な方法でリサイクル処理されていることが大きな問題となっている<sup>10)</sup>。今後もアジア地域におけるPOP�およびその候補物質による人体汚染の実態や経時的推移を調査するとともに、各国におけるこれら物質の環境負荷インベントリーを把握し、影響評価を行うことが喫緊の課題である。

既存POP�を含む有機塩素化合物と比較すると、アジア諸国の母乳中のPBDEs濃度はDDTsやPCBsよりも概ね2桁以上低値を示した(表9)。アジアの途上国では、DDTsなどの有機塩素系農薬は農業やマラリア駆除を目的として1960・70年代より使用しており、PCBsも日本などの先進工業国を中心に電子・電気機器や工業用薬剤として多用されてきた。PBDEsはこれら有機塩素化合物に比べ近年になって使用が開始されたため、その汚染レベルは相対的に低いと考えられる。さらにアジア各国の母乳中OCsとPBDEs濃度を比較し、その地理的分布を検討したところ、先進国である日本ではPCBsが、中国やインドなどの発展途上国ではDDTsやHCHsによる汚染レベルが高い傾向を示したが、PBDEsについては国・地域間の濃度差があまり顕著ではなかった(表9)。これらの結果は、アジア諸国においてPBDEsが広範囲で使用されていることを示唆している。

また、母乳におけるPBDEsの地理的分布の傾向は、中国やフィリピンなどでやや高い傾向が認められるものの、中国や韓国沿岸、東シナ・南シナ海を中心に顕著な汚染が認められたイガイやカツオを用いたモニタリング結果と異なっていた。さらに母乳中のPBDEs組成に着目したところ、カンボジアやインド、マレーシアを除いて、高臭素化の異性体が高い割合で検出される例が多く認められた(図7)。PCBsなどの既存POP�の場合、ヒトへの曝露経路は主に食物由来であり、なかでも魚介類の占める割合の高いことが知られているが、PBDEsの場合、食物経路に加え、ハウスダストの摂取・吸入など室内における曝露も重要な経路となることが指摘されている<sup>46)</sup>。我々の研究チームが実施した日本のハウスダスト調査からもBDE209を含む高臭素化のPBDEs異性体が高濃度で検出されている<sup>47)</sup>。以上のことから、ヒト母乳中のPBDEs濃度や組成は、住環境における曝露や陸上の汚染を強く反映しており、海洋生態系とは異なった汚染分布を示すと考えられる。今後さらにアジア地域における臭素系難燃剤の使用実態やヒトへの曝露経路を解明するため、ヒトとその住環境を対象とした包括的な調査研究が必要と思われる。

表7 アジア諸国で採取した母乳中PBDE濃度 (ng/g lipid wt)

Country	Lipid (%)	PBDE Isomer													ΣPBDEs*
		BDE-15	BDE-28	BDE-47	BDE-99	BDE-100	BDE-153	BDE-154	BDE-183	BDE-196	BDE-197	BDE-206	BDE-207	BDE-209	
Japan	2.8	0.14 (0.07-0.25)	0.14 (0.04-0.29)	1.5 (0.22-11)	0.38 (<0.02-3.0)	0.41 (<0.02-2.9)	1.2 (<0.02-7.3)	0.06 (<0.02-0.27)	0.03 (<0.01-0.10)	<0.08	0.03 (<0.05-0.19)	<0.05	<0.05	<1.3	3.8 (0.49-18)
Korea	3.1	0.17 (0.03-0.44)	0.13 (0.02-0.35)	0.81 (0.08-2.6)	0.20 (0.03-0.67)	0.34 (0.04-1.2)	0.79 (0.25-2.3)	0.06 (<0.02-0.17)	0.08 (0.01-0.25)	<0.08	0.14 (<0.05-0.52)	<0.05	0.02 (<0.05-0.16)	<1.3	2.8 (0.50-8.6)
China	1.8	0.40 (<0.01-1.7)	0.28 (0.04-0.65)	0.49 (0.11-1.4)	0.12 (0.03-0.52)	0.15 (0.06-0.33)	0.74 (<0.02-1.5)	0.07 (<0.02-0.14)	0.21 (<0.01-0.59)	0.24 (<0.08-1.6)	0.95 (0.26-2.5)	0.19 (<0.05-0.61)	0.83 (0.17-2.5)	1.4 (<1.3-5.2)	6.2 (1.2-15)
Indonesia	2.3	0.01 (<0.01-0.05)	0.05 (<0.01-0.34)	0.39 (0.09-2.1)	0.18 (0.06-0.84)	0.15 (0.05-0.65)	0.32 (0.07-2.7)	0.03 (<0.02-0.20)	0.13 (<0.01-1.4)	<0.08	0.34 (0.07-3.2)	0.05 (<0.05-0.83)	0.20 (<0.05-1.5)	0.30 (<1.3-3.6)	2.2 (0.49-13)
Malaysia	1.9	0.04 (<0.01-0.07)	0.12 (0.04-0.17)	1.6 (0.52-3.1)	0.42 (0.11-0.92)	0.32 (0.17-0.48)	0.65 (0.28-1.4)	0.06 (0.02-0.09)	0.24 (<0.01-0.72)	<0.08	0.31 (0.06-1.0)	<0.05	0.04 (<0.05-0.09)	<1.3	3.5 (1.3-5.9)
India	2.9	<0.01	0.01 (<0.01-0.04)	0.27 (0.01-0.89)	0.11 (<0.02-0.23)	0.06 (<0.02-0.19)	0.10 (0.02-0.33)	0.02 (<0.02-0.04)	0.02 (<0.01-0.06)	<0.08	<0.05	<0.05	<0.05	<1.3	0.60 (0.06-2.0)
Vietnam	2.6	0.03 (<0.01-0.19)	0.07 (<0.01-0.35)	0.11 (0.11-0.94)	0.10 (<0.02-0.33)	0.08 (<0.02-0.21)	0.32 (<0.02-1.4)	0.03 (<0.01-0.09)	0.10 (<0.01-0.58)	<0.08	0.05 (<0.05-0.21)	<0.05	<0.05	<1.3	1.1 (0.23-2.9)
Cambodia	2.6	0.01 (<0.01-0.06)	0.07 (0.01-0.11)	0.83 (0.12-1.8)	0.21 (0.05-0.34)	0.18 (0.04-0.38)	0.20 (0.06-0.59)	0.03 (<0.02-0.05)	0.05 (<0.01-0.11)	<0.08	0.02 (<0.05-0.09)	<0.05	<0.05	<1.3	1.7 (0.29-2.8)
Philippine	2.9	0.07 (0.03-0.12)	0.18 (0.09-0.26)	1.1 (0.67-1.4)	0.47 (0.36-0.61)	0.30 (0.15-0.39)	0.39 (0.29-0.55)	0.09 (0.08-0.11)	0.08 (<0.01-0.17)	<0.08	0.24 (0.14-0.36)	0.03 (<0.05-0.07)	0.19 (0.13-0.26)	0.73 (<1.3-1.5)	4.0 (2.9-4.9)

Values in parentheses indicate the range, \*Sum PBDE congeners from mono- to deca-congeners.

表8 アジアおよび世界の母乳中PBDEs (主要異性体) 濃度 (ng/g lipid wt) の比較

Country	Sampling Year	n	PBDE Isomer						References
			BDE-47	BDE-99	BDE-100	BDE-153	BDE-209	ΣPBDEs	
<b>North America</b>									
USA	2002	47	41	14	8.2	5.3	0.92	74	Schechter <i>et al.</i> (48)

Canada	2001-2002	92	13	3.2	1.9	1.3	na	22	Gill <i>et al.</i> (49)
<b>Central America</b>									
Mexico	2003	7	1.1	0.60	0.80	0.80	0.30	2.1	Lopez <i>et al.</i> (50)
<b>Europe</b>									
Faroe Island	1998-1999	10	1.7	1.0	1.0	3.6	na	7.2	Fangstrom <i>et al.</i> (51)
UK	2001-2003	54	3.0	0.90	0.60	1.4	na	6.6	Kalanzi <i>et al.</i> (52)
Sweden	1996-1999	93	2.4	0.62	0.38	0.60	na	4.0	Lind <i>et al.</i> (45)
Sweden	2003	5	1.5	0.50	0.60	1.7	0.40	5.2	Lopez <i>et al.</i> (50)
Germany	2001-2003	93	0.82	0.21	0.21	0.63	0.17	2.2	Vieth <i>et al.</i> (53)
Czech Republic	2003	103	0.65	0.24	0.13	0.17	na	na	Kazda <i>et al.</i> (54)
<b>Asia</b>									
Japan	1999-2000	14	0.81	0.16	0.20	0.28	na	1.5	Akutsu <i>et al.</i> (43)
China	2004	19	0.49	0.12	0.15	0.74	1.4	6.2	This study
Japan	2000	10	1.5	0.38	0.41	1.2	<1.3	3.8	This study
Malaysia	2003	5	1.6	0.42	0.32	0.65	<1.3	3.5	This study
Korea	2004	9	0.81	0.20	0.34	0.79	<1.3	2.6	This study
Philippines	2000	4	1.1	0.47	0.30	0.39	0.73	4.0	This study
ambodia	2000	11	0.83	0.21	0.18	0.20	<1.3	1.7	This study
Indonesia	2001-2003	30	0.39	0.18	0.15	0.32	0.30	1.3	This study
Vietnam	2000	10	0.11	0.10	0.08	0.32	<1.3	1.1	This study
India	2000	5	0.27	0.11	0.06	0.10	<1.3	0.60	This study

---

na=not available.

表9 アジア諸国で採取した母乳中PBDEsおよび有機塩素化合物の濃度 (ng/g lipid wt)

Country	Lipid (%)	Compounds					
		PBDEs	PCBs	DDTs	HCHs	CHLs	HCB
Japan	2.8	3.8 (0.49-18)	260 (81-460)	400 (130-710)	190 (52-440)	80 (8.0-180)	17 (10-24)
Korea	3.1	2.8 (0.50-8.6)	38 (23-61)	120 (37-200)	46 (28-75)	13 (8.8-23)	8.0 (5.5-11)
China	1.8	6.2 (1.2-15)	75 (34-190)	2400 (960-4600)	490 (150-880)	8.8 (4.6-14)	50 (41-52)
Indonesia	2.3	2.2 (0.49-13)	25 (8.4-54)	960 (18-5500)	16 (1.1-120)	4.1 (nd-48)	2.2 (0.42-7.0)
Malaysia	1.9	3.5 (1.3-5.9)	48 (25-79)	1100 (430-3300)	390 (39-1000)	22 (11-33)	6.7 (4.1-13)
India	2.9	0.60 (0.06-2.0)	64 (5.2-170)	500 (100-720)	510 (82-750)	5.2 (1.0-18)	1.7 (1.2-3.1)
Vietnam	2.6	1.1 (0.23-2.9)	55 (28-110)	1300 (680-2700)	42 (15-79)	5.2 (0.69-13)	3.8 (2.1-5.5)
Cambodia	2.6	1.7 (0.29-2.8)	22 (6.0-55)	1300 (310-3200)	3.8 (1.2-11)	0.95 (0.20-1.8)	1.5 (1.1-2.2)
Philippin es	2.9	4.0 (2.9-4.9)	39 (24-62)	230 (36-570)	4.9 (<2.6-10)	11 (4.2-16)	0.53 (<1.3-2.1)

Values in parentheses indicate the range

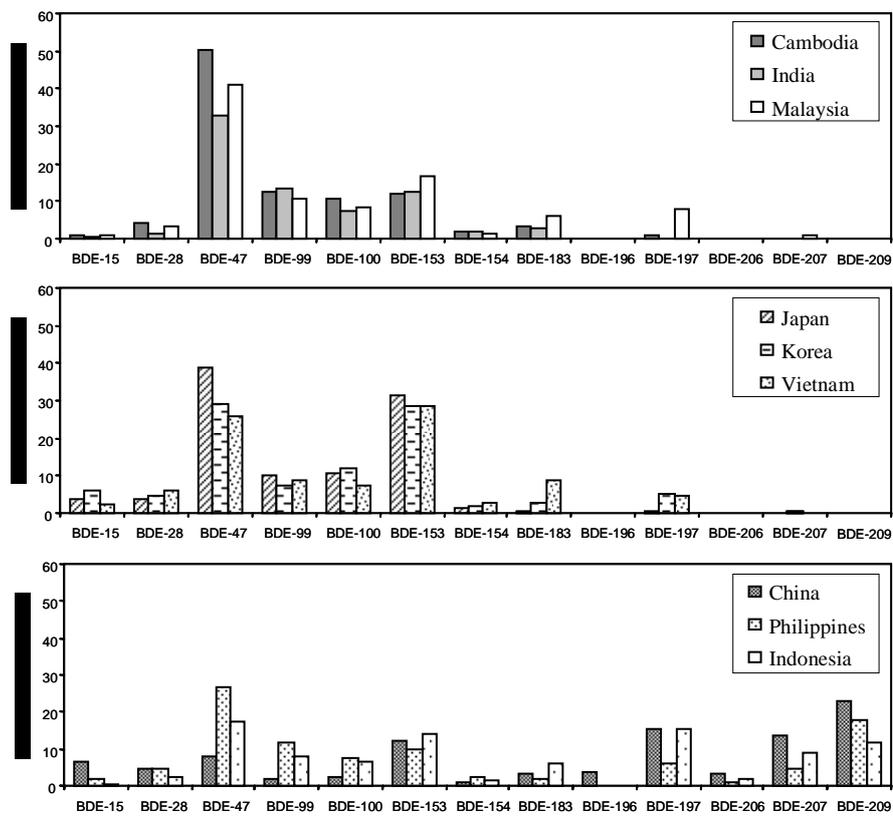


図7 アジア諸国で採取した母乳中PBDEsの異性体組成

(4) 日本の野生高等動物における臭素系難燃剤の蓄積と陸・海の生態系における汚染の分布  
 化学分析の結果、本研究で対象とした全ての内陸・沿岸性および外洋域の野生高等動物からPBDEsおよびPCBsの蓄積が認められた(表10~12)。よって、PBDEsによる汚染は、PCBs同様、日本の内陸や沿岸のみならず、外洋の生態系にまで広がっていることが明らかとなった。また、これら物質の蓄積濃度には、明らかな種間差が認められ、PBDEs濃度は、内陸性の猛禽類であるオオタカ(33000 ng/g lipid)で最も高く、次いでオオワシ(11000 ng/g) > ハシブトガラス(平均1300 ng/g) ≒ イヌワシ(270-2300 ng/g) > スジイルカ(平均630 ng/g) ≒ カワウ('01年、平均530 ng/g) ≒ カズハゴンドウ(平均300 ng/g) > クロアシアホウドリ(平均110 ng/g) ≒ カワウ('06/07年、平均75 ng/g) ≒ タヌキ(平均24-73 ng/g) ≒ コアホウドリ(平均25 ng/g) > フルマカモメ(平均2.8 ng/g)の順であった。PCBsの蓄積濃度は、猛禽類の中でも魚食性の強い、オオワシ(380000 ng/g lipid)で最も高く、次いでカワウ('01年、平均3600000 ng/g) > クロアシアホウドリ(平均82000 ng/g) ≒ イヌワシ(6500-73000 ng/g) ≒ オオタカ(33000 ng/g) ≒ スジイルカ(平均33000 ng/g) > カワウ('06/07年、平均19000 ng/g) ≒ カズハゴンドウ(平均17000 ng/g) ≒ コアホウドリ(平均17000 ng/g) ≒ フルマカモメ(平均15000 ng/g) > ハシブトガラス(平均9700 ng/g) > タヌキ(平均130-390 ng/g)の順であった。

検体数の多いタヌキやカワウで肝臓と筋肉または脂肪におけるPBDEsやPCBsの濃度差を確認したところ、脂肪重当りの換算値において、組織間の濃度差は0.3~4倍の範囲内にあった(PBDEsの平均値では2.0倍、PCBsの平均値では0.6倍)。また鳥類やタヌキにおいて、雌雄間で有意な濃度差は認められなかった(鯨類はオスの成獣のみが分析対象)。本研究で対象とした生物種間における濃度差は、上記のようにPBDEsではほぼ4桁、PCBsでは4桁以上の違いがあった。従って、種間におけるこれら物質の蓄積濃度の違いは、分析対象とした組織や雌雄差よりも、生息環境における曝露レベルの違いや種による食性・蓄積特性(代謝・排泄能)の差異を強く反映していると考えられる。

本研究で対象とした野生高等動物におけるPBDEsの蓄積濃度を既報の日本のヒト<sup>55)</sup>や沿岸性および外洋性鯨類<sup>9, 56)</sup>を対象とした調査結果と比較した(図8)。その結果、オオタカやオオワシなど内陸・沿岸性の猛禽類から検出されたPBDEs濃度は、これまで野生高等動物を対象に実施した調査結果の中でも最高のレベルにあった。生態系の高次に位置する猛禽類においてPBDEsの蓄積濃度が高かったことは、食物連鎖を通してPBDEsが濃縮することを示唆している。とくにこれら猛禽類には生物濃縮性が高いBDE47や153が卓越的に蓄積していた(表12)。加えて、PBDEsはハシブトガラスなど内陸性の鳥類においても比較的高濃度の蓄積が認められ、それらの濃度は魚食性のカワウや鯨類と同程度か、より高い傾向にあった。このことは、日本の内陸や人間の住環境周辺に大きなPBDEsの汚染源が存在することを示唆する結果と考えられる。また表12に示すようにハシブトガラスでは、BDE47や153よりもBDE209が高割合で蓄積しており、近年樹脂製品等に多用されているデカ剤の曝露を受けていると考えられる。一方、アホウドリやフルマカモメなど外洋性の鳥類におけるPBDEsの蓄積濃度は概して低く、この物質による外洋生態系の汚染は陸域や沿岸域よりも顕在化していないと考えられる。しかしながら、鯨類においては本研究で対象

としたスジイルカやカズハゴンドウも含め、外洋性種のPBDEs濃度は、沿岸性種と同程度であり、陸上の哺乳動物よりも明らかに高値であった（図8）。鯨類は海洋食物連鎖系の頂点に位置する高次生物であることに加え、陸上の哺乳動物や鳥類に比べPCBsなどの分解代謝力が弱いことが指摘されている<sup>57)</sup>。外洋性鯨類のPBDEs蓄積に関しても、同様の要因が関与していると推察される。一方、タヌキにおいては、ハシブトガラスと同様、BDE209の蓄積が認められることから、陸上環境におけるデカ製剤への曝露が窺われる。

上記PBDEsの蓄積にみられる種間差や陸・海の汚染分布に比べ、PCBはカワウやオオワシのような魚食性の鳥類に高蓄積する傾向が強く、外洋性鳥類にも相当濃度の蓄積が認められた（表12）。またタヌキやヒトにおけるPCBsの蓄積濃度は、それら魚食性の動物に比べ、明らかに低値であった。すなわち、PCBsの場合、陸上における顕著な汚染源の存在は窺われず、水圏生態系を中心に沿岸から外洋まで比較的均一に分布していることが窺われる。Tanabe<sup>57)</sup>による野生高等動物のPCBs蓄積に関する総括においても、シャチなどの外洋性鯨類やアホウドリなどの大型魚食性鳥類に沿岸や陸上の哺乳動物や鳥類より高濃度のPCBsが蓄積していることを報告している。日本におけるPBDEs製剤の生産は、高い生物濃縮性が疑われたテトラ製剤やオクタ製剤が1990年までに自主規制されたが、デカ製剤の使用は今なお続いている<sup>1)</sup>。難燃樹脂製品等の使用や廃棄ともなっていて、過去に使用されたPBDEsの環境負荷は現在も続いていると考えられ、その結果としてPCBsよりも陸上生態系における汚染が顕在化していると考えられる。一方でPBDEsによる汚染は、PCBsのケースと同様、将来外洋域に拡散していく可能性も考えられ、今後も外洋域におけるモニタリングを継続が望まれる。

さらに野生高等動物の種間や生息域におけるPBDEsとPCBsの蓄積・分布の違いについて検証するため、PCBsに対するPBDEsの濃度比を生物種ごとに算出し、比較した（図9）。その結果、魚食性の強いカワウやアホウドリなどの外洋性鳥類で低い値が得られ、タヌキやハシブトガラス、オオタカなどの陸上高等動物において高い値が示された。このような傾向は、PCBsの場合、水圏の食物連鎖によって濃縮される割合が高いのに対し、PBDEsは陸域に特異な曝露源があることを示唆するものと考えられる。加えて、カワウやアホウドリは、他の陸棲や海棲哺乳動物より低いPBDEs/PCBs比を示すことから、PBDEsに対して強い分解代謝能を有する可能性も考えられる。今後、野生動物に蓄積するPCBsやPBDEs異性体の詳細な解析を実施するとともに、新鮮な肝臓試料等を用いた代謝実験を行って、これら物質の蓄積・代謝特性の差異についてさらに検討する必要がある。

HBCDsについて、タヌキ、スジイルカ、カズハゴンドウ、カワウ（'06/07年）を対象に測定した結果、タヌキの一部検体を除く全ての野生動物試料から検出された（表10および11）。また、その蓄積濃度はスジイルカ（平均710 ng/g lipid wt）やカズハゴンドウ（430 ng/g）ではPBDEsとほぼ同程度、カワウ（430 ng/g）ではPBDEsを上回るレベルであった。以上の結果から、PBDEsのみならず、HBCDsによる野生高等動物の汚染も顕在化しており、すでに外洋の高次生物にまで汚染の拡大していることが明らかとなった。データ数に限りはあるが、HBCDsは魚食性の高等動物に蓄積していることから、PCBs同様、水圏の食物連鎖系により高濃縮される傾向が強いと考え

られる。また異性体組成に着目するとカワウや鯨類では、 $\alpha$ -HBCDがほとんどを占めているのに対し、陸上のタヌキではいくつかの検体に $\gamma$ -HBCDが高割合で蓄積していた。(2)のイガイを対象としたモニタリング研究で述べたように、HBCD製剤中の異性体組成は $\gamma$ 体が卓越しており、タヌキは陸上において、樹脂製品等から直接製剤由来の曝露を受けている可能性が考えられる。一方、鯨類やカワウにおける $\alpha$ -HBCDsの卓越的な蓄積は、水圏食物連鎖系における $\alpha$ -HBCD異性体の選択的濃縮を示した既報の研究結果<sup>15, 16, 41)</sup>と一致している。

本研究で対象とした鯨類のPBDEs濃度を北アメリカや欧州における調査結果と比較すると、カナダ極域からセントローレンス川河口に生息するベルーガ<sup>58)</sup>やバルト海や北海で死亡したネズミイルカ<sup>59)</sup>などと同程度であり、米国フロリダ沿岸のバンドウイルカ<sup>60, 61)</sup>より低値であった。一方、鳥類については、オオタカやオオワシなどの猛禽類における蓄積濃度は、汚染の顕在化が指摘されるベルギーや中国に生息する猛禽類<sup>62, 63)</sup>や、五大湖沿岸<sup>64)</sup>およびカナダBritish Columbia州<sup>65)</sup>の魚食性鳥類の卵中濃度に匹敵するレベルであったが、日本のカワウやウミネコなどにおけるPBDEs濃度は、それらよりも低く、ベルギーのゴイサギ<sup>62)</sup>やバルト海沿岸のウミガラスの卵<sup>66)</sup>における報告値と同等の範囲内であった。よって、日本の野生高等動物におけるPBDEsの汚染レベルは、概して北米諸国の汚染地帯より低く、欧州諸国やカナダ北極圏と同程度のレベルにあると考えられる。一方、猛禽類など一部の野生動物に特異なPBDEs蓄積が認められることから、その曝露源や種特異的な蓄積を解明するための更なる調査研究が必要である。また、本研究で対象とした鯨類やカワウのHBCDs濃度レベルは、HBCD製剤が大量に使用されてきた欧州沿岸の鯨類<sup>14, 41)</sup>や猛禽類の卵<sup>67)</sup>に比べ概して低値であるものの、カナダ北極圏のベルーガ<sup>68)</sup>や米国カリフォルニア沿岸のカリフォルニアアシカ<sup>69)</sup>より明らかに高値であった。よって、日本は北米諸国よりもHBCDsによる汚染が顕在化していると考えられる。先述のようにカツオを用いたHBCDsの広域モニタリング調査<sup>39)</sup>からも日本周辺海域におけるこの物質の広域汚染が示唆されており、POPs候補物質として今後さらに調査を要する物質であると考えられる。

表10 日本（愛媛・神奈川・大阪）のタヌキにおける臭素系難燃剤（PBDEsおよびHBCDs）とPCBsの残留濃度（ng/g lipid wt）

	Raccoon dog			Raccoon dog			Raccoon dog		
	Ehime (Western local prefecture)			Kanagawa (Eastern metropolis)			Osaka (Western metropolis)		
	Liver (n = 21)			Liver (n = 10)			Liver (n = 8)		
	Mean	±SD	(Range)	Mean	±SD	(Range)	Mean	±SD	(Range)
Lipid (%)	4.0	±0.62	(2.6-5.1)	3.3	±0.5	(2.6-4.2)	3.8	±1.2	(2.8-5.8)
BDE28	<b>0.097</b>	±0.27	(<0.01-1.3)	<b>0.019</b>	±0.044	(<0.01-0.13)	<b>0.083</b>	±0.052	(<0.01-0.18)
BDE47	<b>1.4</b>	±2.2	(0.03-8.2)	<b>2.2</b>	±1.5	(0.17-5.2)	<b>1.5</b>	±1.2	(0.60-3.6)
BDE99	<b>0.53</b>	±0.86	(<0.01-3.7)	<b>1.1</b>	±1.0	(<0.01-3.3)	<b>0.48</b>	±0.20	(0.25-0.76)
BDE100	<b>0.28</b>	±1.0	(<0.01-4.8)	<b>0.90</b>	±1.1	(<0.01-3.7)	<b>0.15</b>	±0.10	(0.051-0.33)
BDE153	<b>3.5</b>	±9.5	(<0.01-43)	<b>11</b>	±13	(0.12-37)	<b>2.0</b>	±1.3	(0.31-4.3)
BDE154	<b>0.44</b>	±1.7	(<0.01-8.0)	<b>0.98</b>	±1.1	(<0.01-3.4)	<b>0.11</b>	±0.082	(<0.01-0.26)
BDE183	<b>0.25</b>	±0.55	(<0.01-2.4)	<b>2.4</b>	±3.3	(<0.01-10)	<b>0.38</b>	±0.59	(<0.01-1.7)
BDE196	<b>0.22</b>	±0.51	(<0.02-1.8)	<b>1.4</b>	±1.6	(<0.02-4.8)	<b>0.20</b>	±0.15	(<0.02-0.93)
BDE197	<b>0.076</b>	±0.1	(<0.02-0.36)	<b>1.7</b>	±2.5	(<0.02-8.1)	<b>0.12</b>	±0.13	(<0.02-0.28)
BDE206	<b>0.47</b>	±0.48	(<0.02-1.8)	<b>2.4</b>	±3.0	(0.059-9.4)	<b>0.87</b>	±0.55	(0.16-1.9)
BDE207	<b>0.90</b>	±0.95	(<0.02-2.8)	<b>9.6</b>	±12	(<0.02-32)	<b>1.5</b>	±0.84	(0.48-3.0)
BDE209	<b>16</b>	±18	(1.1-67)	<b>39</b>	±49	(<0.1-160)	<b>28</b>	±23	(5.8-76)
<b>Σ PBDEs</b>	<b>24</b>	±25	(1.4-87)	<b>73</b>	±83	(0.36-250)	<b>35</b>	±25	(13-87)
α-HBCD	<b>0.94</b>	±2.1	(<0.005-7.6)	<b>1.0</b>	±3.3	(<0.005-10)	<b>0.95</b>	±0.20	(0.51-1.2)
β-HBCD	<b>0.42</b>	±0.88	(<0.005-3.7)	<0.005 <sup>a</sup>			<b>0.13</b>	±0.26	(<0.005-0.71)
γ-HBCD	<b>1.9</b>	±4.8	(<0.005-20)	<b>0.004</b>	±0.014	(<0.005-0.044)	<b>0.29</b>	±0.36	(0.029-1.0)
<b>Σ HBCDs</b>	<b>3.3</b>	±7.1	(<0.005-29)	<b>1.0</b>	±3.3	(<0.005-10)	<b>1.4</b>	±0.7	(0.73-2.9)
<b>Σ PCBs<sup>b</sup></b>	<b>200</b>	±370	(15-1700)	<b>390</b>	±410	(24-1200)	<b>130</b>	±100	(38-350)

SD, standard deviation. The concentrations below the detection limit were treated as zero for arithmetic mean and median values.

<sup>a</sup> Concentrations in all the samples were below detection limit.

<sup>b</sup> Sum of CB28, 52, 74, 70, 101, 99, 119, 87, 110, 118, 105, 149, 153, 138, 158, 128, 167, 156, 178, 187, 183, 177, 171, 180, 191, 170, 189, 202, 201, 199, 194, 205, 208, 206, 209.

表11 外洋性鯨類（スジイルカ・カズハゴンドウ）および琵琶湖のカワウにおける臭素系難燃剤（PBDEsおよびHBCDs）とPCBsの残留濃度（ng/g lipid wt）

	Striped dolphin			Melon headed whales			Common cormorant		
	Ehime			Chiba			Lake Biwa		
	blubber (n = 5)			blubber (n = 5)			muscle (n = 15)		
	Mean	±SD	(Range)	Mean	±SD	(Range)	Mean	±SD	(Range)
Lipid (%)	52.6	±5.7	(44.1-58.4)	51	±17	(32-81)	4.0	±0.9	(2.4-5.7)
BDE28	<b>13</b>	±2.6	(8.9-16)	<b>14</b>	±0.052	(7.5-25)	<b>0.17</b>	±0.18	(<0.01-0.50)
BDE47	<b>250</b>	±72	(180-370)	<b>110</b>	±1.2	(70-190)	<b>18</b>	±14	(1.9-61)
BDE99	<b>36</b>	±7.1	(25-44)	<b>18</b>	±0.20	(10-34)	<b>3.9</b>	±2.1	(<0.01-7.7)
BDE100	<b>85</b>	±19	(65-110)	<b>33</b>	±0.10	(17-62)	<b>17</b>	±19	(<0.01-78)
BDE153	<b>95</b>	±15	(76-120)	<b>35</b>	±1.3	(18-50)	<b>18</b>	±17	(0.59-70)
BDE154	<b>150</b>	±24	(120-180)	<b>94</b>	±0.082	(57-150)	<b>17</b>	±16	(<0.01-51)
BDE183	<b>2.7</b>	±0.51	(2.2-3.5)	<b>1.2</b>	±0.59	(0.71-2.4)	<b>0.57</b>	±0.68	(<0.01-2.3)
BDE196	<b>0.16</b>	±0.09	(0.07-0.28)	na			na		
BDE197	<b>2.8</b>	±0.08	(2.2-4.0)	na			<b>0.28</b>	±0.69	(<0.01-2.7)
BDE206	<0.02 <sup>a</sup>			na			na		
BDE207	<b>0.04</b>	±0.02	(0.02-0.06)	na			na		
BDE209	<b>0.20</b>	±0.08	(0.12-0.28)	na			<b>0.79</b>	±1.96	(<0.05-7.6)
<b>Σ PBDEs</b>	<b>630</b>	±130	(520-850)	<b>300</b>	±120	(190-510)	<b>75</b>	±59	(2.5-200)
α-HBCD	<b>710</b>	±140	(570-940)	<b>430</b>	±130	(310-650)	<b>430</b>	±430	(25-1300)
β-HBCD	<b>0.36</b>	±0.03	(0.33-0.40)	<0.005 <sup>a</sup>			<0.005 <sup>a</sup>		
γ-HBCD	<b>3.9</b>	±0.26	(3.6-4.1)	<0.005 <sup>a</sup>			<b>0.17</b>	±0.40	(<0.005-1.8)
<b>Σ HBCDs</b>	<b>710</b>	±140	(580-940)	<b>430</b>	±130	(310-650)	<b>430</b>	±0.7	(25-1300)
<b>Σ PCBs</b>	<b>33000</b>	±6400	(26000-42000)	<b>17000</b>	±6500	(9300-25000)	<b>19000</b>	±29000	(160-120000)

SD: standard deviation. The concentrations below the detection limit were treated as zero for arithmetic mean and median values.

na: not analyzed.

<sup>a</sup> Concentrations in all the samples were below detection limit.

<sup>b</sup> Sum of CB28, 52, 74, 70, 101, 99, 119, 87, 110, 118, 105, 149, 153, 138, 158, 128, 167, 156, 178, 187, 183, 177, 171, 180, 191, 170, 189, 202, 201, 199, 194, 205, 208, 206, 209.



表12 北太平洋に生息する外洋性鳥類と日本の沿岸・陸棲鳥類におけるPBDEsとPCBsの残留濃度  
(ng/g lipid wt)

	Open sea birds											
	Black-footed albatross ( <i>n</i> = 5)				Laysan albatross ( <i>n</i> = 5)				Northern Fulmar ( <i>n</i> = 5)			
	Mean	±SD	Median	Range	Mean	±SD	Median	Range	Mean	±SD	Median	Range
脂質 (%)	4.1	±0.89	4.0	(2.9–5.4)	3.1	±1.9	2.9	(0.97–5.8)	3.3	±1.4	3.3	(1.9–5.5)
BDE15	<0.1	<sup>a</sup>			<0.1	<sup>a</sup>			<0.1	<sup>a</sup>		
BDE28	0.46	±0.086	0.44	(0.35–0.58)	<0.1	<sup>a</sup>			0.39	±0.19	0.33	(0.19–0.62)
BDE47	12	±6.0	8.6	(7.0–21)	2.2	±1.5	1.8	(1.2–4.8)	0.19	±0.12	0.22	(<0.1–0.30)
BDE99	4.4	±0.73	4.6	(3.6–5.2)	<0.1	<sup>a</sup>			0.07	±0.1	<0.1	(<0.1–0.18)
BDE100	3.0	±1.4	2.3	(1.6–4.8)	<0.1	<sup>a</sup>			<0.1	<sup>a</sup>		
BDE153	73	±55	58	(37–170)	18	±20	7.0	(3.2–51)	2.1	±1.5	1.4	(0.73–3.9)
BDE154	12	±6.3	12	(4.7–21)	5.4	±6.7	1.9	(1.1–17)	<0.1	<sup>a</sup>		
BDE183	2.0	±1.2	1.7	(1.0–4.0)	<0.1	<sup>a</sup>			<0.1	<sup>a</sup>		
BDE196	<0.1	<sup>a</sup>			<0.1	<sup>a</sup>			<0.1	<sup>a</sup>		
BDE197	2.0	±1.3	2.2	(0.67–3.2)	<0.1	<sup>a</sup>			<0.1	<sup>a</sup>		
BDE206	<0.2	<sup>a</sup>			<0.2	<sup>a</sup>			<0.2	<sup>a</sup>		
BDE207	<0.2	<sup>a</sup>			<0.2	<sup>a</sup>			<0.2	<sup>a</sup>		
BDE209	<0.5	<sup>a</sup>			<0.5	<sup>a</sup>			1.9	±1.8	1.5	(<0.5–4.8)
∑ PBDEs	110	±61	100	(60–210)	25	±28	10	(6.2–73)	4.7	±1.3	4.9	(3.3–6.5)
∑ PCBs <sup>b</sup>	82000	±73000	54000	(37000–210000)	17000	±14000	9500	(4300–34000)	15000	±3400	13000	(12000–21000)

SD, standard deviation. The concentrations below the detection limit were treated as zero for arithmetic mean and median values.

<sup>a</sup> Concentrations in all the samples were below detection limit.

<sup>b</sup> Sum of CB28, 52, 74, 70, 101, 99, 119, 87, 110, 118, 105, 149, 153, 138, 158, 128, 167, 156, 178, 187, 183, 177, 171, 180, 191, 170, 189, 202, 201, 199, 194, 205, 208, 206, 209.

表12つづき (ng/g lipid wt)

Coastal birds					Inland birds										
Black-tailed gull ( <i>n</i> = 5)				Steller's sea-eagle	Common Cormorant ( <i>n</i> = 4)				Jungle crow ( <i>n</i> = 5)				Golden eagle	Goshawk	
Mean	±SD	Median	Range		Mean	±SD	Median	Range	Mean	±SD	Median	Range			
5.4	±1.6	5.3	(3.3–7.7)	0.81	3.0	±0.80	3.1	(2.0–3.9)	1.2	±0.35	1.1	(0.91–1.8)	2.3	0.96	1.1
<0.1	<sup>a</sup>			6.0	1.3	±0.43	1.3	(0.74–1.7)	<0.1	<sup>a</sup>			0.23	0.50	4.7
2.4	±0.94	2.0	(1.6–4.0)	360	1.4	±0.91	1.2	(0.57–2.7)	<0.1	<sup>a</sup>			1.6	5.9	34
190	±66	180	(110–260)	5700	170	±94	180	(77–250)	18	±31	5.2	(1.3–74)	42	260	1100
50	±32	34	(24–100)	1400	48	±28	43	(21–86)	54	±36	37	(19–110)	26	260	1500
46	±20	37	(29–71)	1100	85	±37	89	(41–120)	16	±6.9	14	(8.6–25)	11	67	310
36	±15	34	(22–59)	1500	120	±67	120	(37–200)	180	±120	180	(38–380)	140	1300	18000
21	±8.0	18	(16–35)	710	97	±43	94	(51–150)	42	±24	31	(16–68)	18	110	440
1.5	±0.44	1.3	(1.1–2.2)	73	3.5	±2.2	3.1	(1.3–6.5)	130	±130	80	(12–350)	22	200	9100
0.37	±0.37	0.43	(<0.1–0.86)	2.0	1.8	±1.1	1.7	(0.66–3.2)	72	±110	12	(3.7–270)	1.4	14	740
0.27	±0.41	0.17	(<0.1–0.98)	6.4	2.6	±1.1	2.7	(1.2–3.9)	99	±170	16	(5.2–400)	7.1	37	970
<0.2	<sup>a</sup>			<0.2	0.75	±1.2	0.25	(<0.2–2.5)	20	±35	4.2	(1.8–83)	<0.2	0.45	370
0.36	±0.65	<0.2	(<0.2–1.5)	0.93	0.60	±0.95	0.20	(<0.2–2.0)	220	±420	24	(12–980)	2.3	3.7	290
2.0	±2.9	0.62	(<0.5–6.8)	<0.5	1.4	±1.5	0.99	(<0.5–3.5)	440	±760	120	(36–1800)	<0.5	10	120
350	±130	290	(220–530)	11000	530	±260	530	(230–820)	1300	±1600	490	(290–4000)	270	2300	33000
6700	±3300	6700	(2700–11000)	3800000	3600000	±300000	3100000	(63000–7700000)	9700	±7300	9500	(1400–17000)	6500	73000	82000

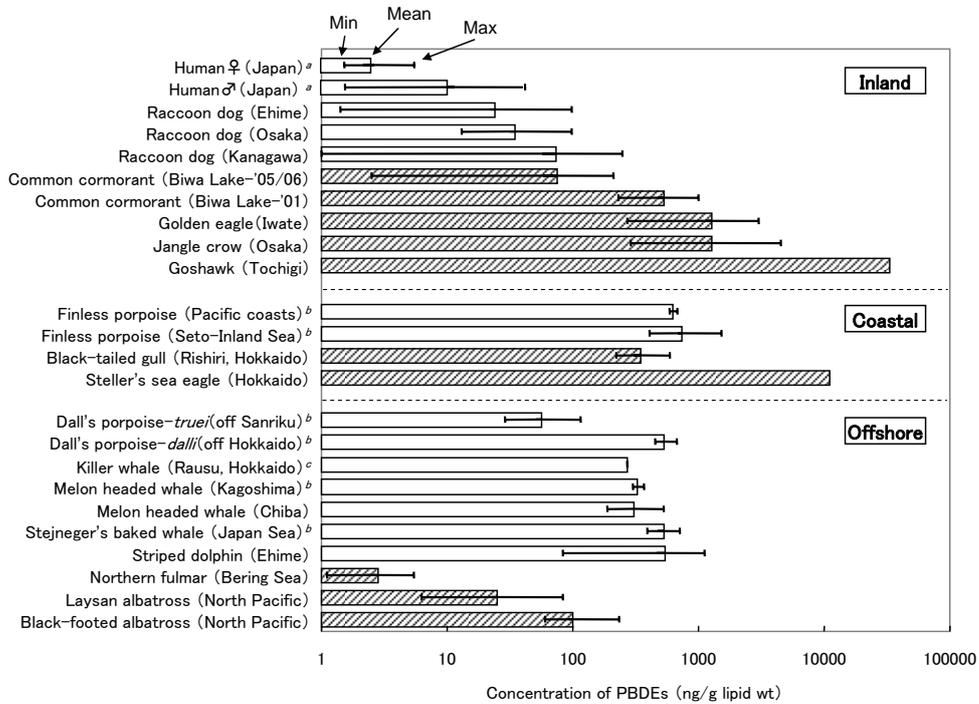


図8 日本の内陸・沿岸および北太平洋外洋域に生息する野生高等動物におけるPBDEsの残留濃度 (ng/g lipid wt)。白が哺乳動物、斜線が鳥類を示す。図中a、b、cのデータはそれぞれ既報の文献<sup>9, 55, 56</sup>から引用した。

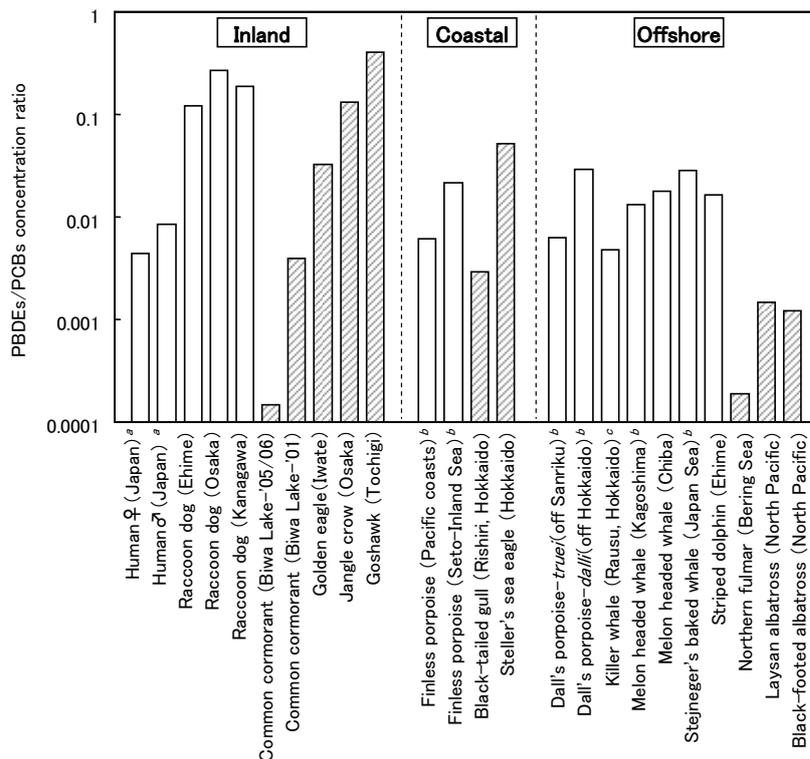


図9 日本の内陸・沿岸および北太平洋外洋域に生息する野生高等動物におけるPBDEs/PCBs濃度比（平均値）。白が哺乳動物、斜線が鳥類を示す。図中 *a*、*b*、*c* のデータはそれぞれ既報の文献<sup>9, 55, 56)</sup> から引用した。

## (5) アジア地域における臭素系難燃剤汚染の経時的推移

### 1) 海棲哺乳動物の保管試料を用いた解析

化学分析の結果、すべての検体からPBDEsが、また1972年のキタオットセイを除くすべての検体からHBCDsが検出され、海棲哺乳動物における臭素系難燃剤の汚染実態と経時的推移が明らかとなった。三陸沖キタオットセイについては、すでにKajiwara et al.<sup>7)</sup>によりPBDEs濃度の経時変化が報告されているが、本研究では新たにHBCDs濃度と併せて解析した。その結果、脂肪組織中のPBDEs濃度は0.33-100 ng/g lipid wt、HBCDs濃度は<0.1-67 ng/g lipid wtの範囲であり、PBDEsについては1990年代前半、HBCDsについては1990年代後半に濃度レベルのピークのあることが確認された(図10)。HBCDs汚染のピークがPBDEsよりも遅れていることは、日本における臭素系難燃剤の需要の経年的な推移と一致している<sup>1)</sup>。すなわち、PBDEsのテトラ・オクタ製剤が1990年代に生産・使用の自主規制がされたのに対し、HBCDsは1990年代以降その需要が増大している。また、同一個体で比較すると、1991年まではPBDEsがHBCDs濃度より明らかに高値を示したが、1990年代後半ではHBCDsとPBDEsの濃度レベルがほぼ同程度となっていた。一方、PBDEsの異性体組成については、BDE-47の占める割合が最も高く、経時的に高臭素化異性体の寄与が上昇する傾向が認められているが<sup>7)</sup>、HBCDsについては $\alpha$ -HBCDの卓越的残留が認められ(>95%)、捕獲年代による異性体組成の大きな変化は認められなかった。その要因として、HBCDs製剤中の組成がこの期間中に変化していないことや、 $\gamma$ -HBCDに比べ $\alpha$ -HBCDの生物濃縮性が高く、海棲哺乳動物など高次生物に $\alpha$ 体が選択的に蓄積されること<sup>14,15,41)</sup>、などが推察される。

カズハゴンドウに関しては、2001年の座礁個体(330-460 ng/g lipid wt)からは1982年の個体(2.7-9.7 ng/g lipid wt)よりも約50倍高濃度のHBCDsが検出された(図11)。3つのHBCD異性体のうち、1982年の個体からは $\alpha$ -HBCDのみが検出されたが、2001年の個体からは低濃度の $\beta$ -および $\gamma$ -HBCDの蓄積も認められた。また、1982年に座礁した検体では、HBCDs濃度はPBDEsより約一桁低値を示したが、2001年の検体ではPBDEs濃度を上回るレベルで検出され、キタオットセイで認められたパターンと一致した。さらに中国南部沿岸のスナメリについても、分析に供した全ての検体からHBCDsが検出され(4.7-55 ng/g lipid wt)、その汚染は日本や韓国以外のアジア地域にも拡大していることが確認された。1990年と2000/01年に混獲された個体の臭素系難燃剤濃度を比較したところ、PBDEs濃度は過去10年間で約5倍上昇していたが、HBCDs濃度は約2倍の上昇にとどまった(図12)。以上のことから、中国南部ではHBCDsによる汚染よりもPBDEsによる汚染が進行していると考えられた。また、香港のスナメリにおけるPBDEsの残留濃度は、アジア地域の鯨類の中で最高値を示すことが報告されており<sup>9)</sup>、本地域におけるPBDEs汚染の顕在化および長期化が懸念される。さらに、PBDEsの異性体組成について、香港のスナメリは、日本沿岸の鯨類よりも低臭素化異性体の割合が高く<sup>9)</sup>、中国南部沿岸において生物濃縮性の高いPenta-BDE製剤等の使用があることも窺われる。

以上、本研究の結果により、アジア-太平洋海域の臭素系難燃剤による汚染の経時的推移の一端が明らかとなった。また日本近海ではHBCDsによる汚染が、中国南部ではPBDEsによる汚染が今後も進行することが考えられるため、長期的なモニタリングの継続が望まれる。

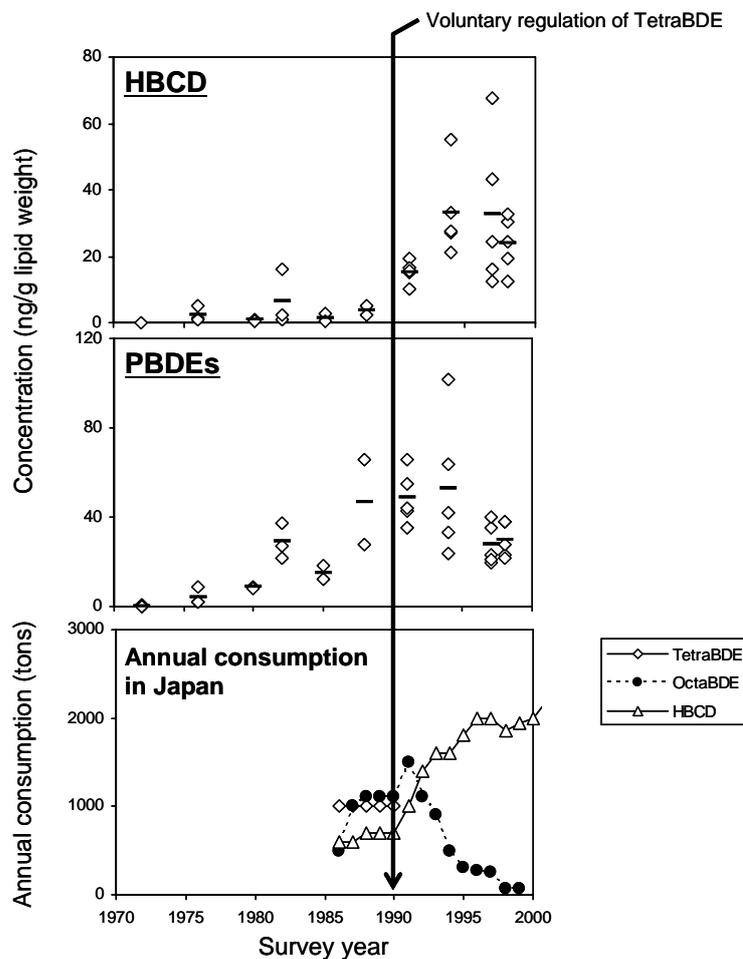


図10 キタオットセイの脂肪組織中PBDEsおよびHBCDs濃度の経時的変化と日本における臭素系難燃剤需要量の経年変化<sup>1)</sup>

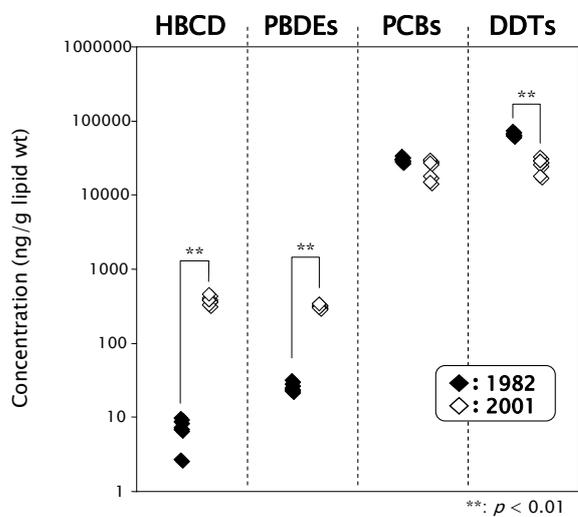


図11 日本沿岸に座礁したカズハゴンドウの脂皮中有機ハロゲン化合物濃度の経時的変化

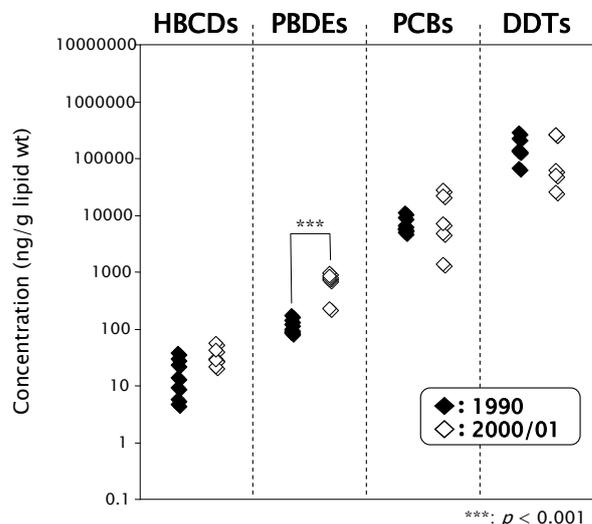


図12 中国南部で混獲されたスナメリの脂皮中有機ハロゲン化合物濃度の経時的変化

## 2) 東京湾の柱状堆積物を用いた解析

化学分析の結果、東京湾の柱状堆積物から検出されたPCBsは、1980年頃をピークに濃度の低減が認められたが、PBDEsやHBCDsの汚染レベルは近年まで上昇傾向を示し、既存のPOPsとは明らかに異なるパターンが認められた(図13)。さらにBFRsの汚染分布を詳細に解析したところ、 $\Sigma$ PBDEs(1-9臭素化異性体)、BDE209およびHBCDsの濃度パターンには違いがみられた。 $\Sigma$ PBDEsは1940年代後半以降の層から検出されはじめたが、HBCDsは1970年代前半以降の層から検出された。PBDEs濃度は1990年代初盤まで顕著な上昇を示したがその後定常状態となり、このパターンには90年代になって実施された国内におけるテトラ製剤・オクタ製剤の自主規制の効果が反映されたものと考えられる。一方、BDE209は、近年デカ製剤の消費量が減少しているにもかかわらず柱状堆積物の表層に向かって濃度の上昇傾向がみられ、使用時期と環境汚染の推移が必ずしも一致しない、すなわち環境汚染の遅れ現象が認められた。HBCDsの堆積物中の濃度は、90年以降急激な濃度上昇を示し、わが国では今なお相当量のHBCDsが消費されていることから、その環境負荷は今後も増大することが予測される。

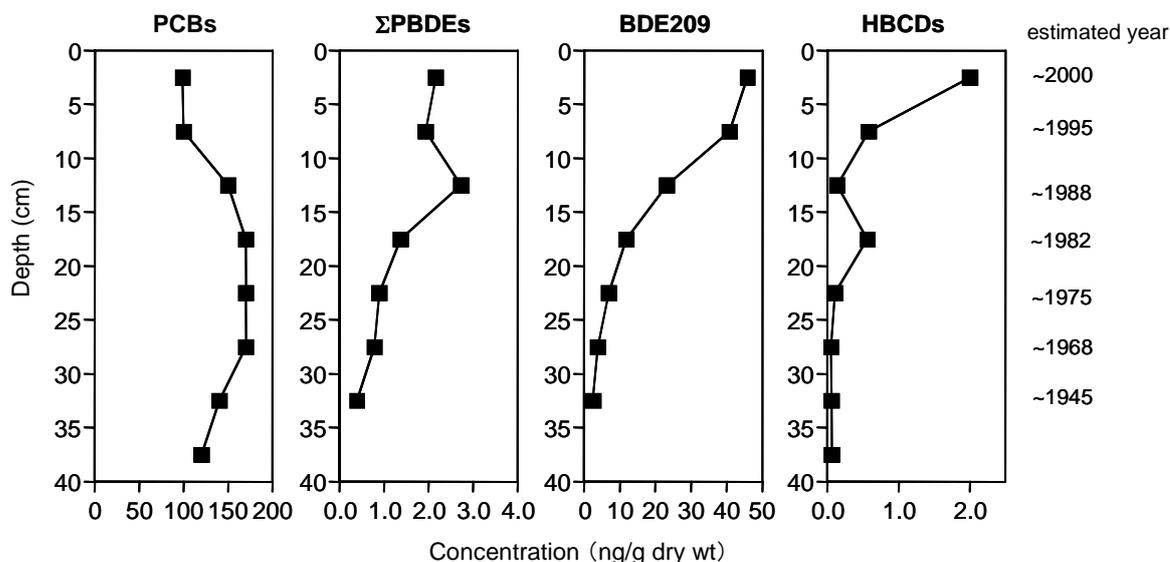


図13 東京湾柱状堆積物中のPCBsおよび臭素系難燃剤の鉛直分布（ $\Sigma$ PBDEsはBDE209を除く1～9臭素化PBDEsの合計）

## 5. 本研究により得られた成果

### (1) 科学的意義

PBDEsやHBCDs等POPs候補物質の分析事例は先進諸国の報告が中心で、途上国の研究例はきわめて断片的であった。途上国の汚染実態を体系的・広域的に明らかにした事例は本研究が初めてであり、その学術的意義はきわめて大きい。とくに、急速な経済成長を遂げ、化学物質の流通量が大きく拡大したアジアの途上国は、臭素系難燃剤による地球汚染の大きなソースとして注目されており、その環境汚染の現状を包括的に明らかにした成果は、地球規模の環境汚染の解明に取り組む関連分野の研究者に新規的かつ重要な学術情報を提供できたと考えている。また資源循環管理や環境修復技術の専門家に、これら物質に関わる途上国問題について今後対処すべき課題を示唆できたことも意義深い。さらに、POPs候補物質に関する新規モニタリング手法や化学汚染の時空間的な動態解析等に関わる基礎情報を提供できたこと、es-BANKの利用を通して試料長期保存の必要性と意義を本研究事例により示すことができたことも価値ある科学的成果であろう。

### (2) 地球環境政策への貢献

近年、急速な経済発展をみせるアジアが地球環境に及ぼす影響はすでに国際社会の大きな関心事であり、世界の環境研究や政策立案に資する情報の提供とこの分野の専門家の育成が喫緊の課題となっている。したがって化学汚染とその影響評価に関わる研究は、アジアを先導するわが国の責務であり、世界に貢献する途でもある。本研究により得られた成果は、アジアにおける有害物質の環境監視やリスク評価、モデルや環境管理の専門家に貴重な学術情報を提供できるばかりでなく、国連環境計画(UNEP)、世界保健機構(WHO)、国連食糧農業機関(FAO)等の国際機関や世

界各国の政府行政機関、そしてNGOやNPO等非政府組織の環境政策上のニーズに資する基礎情報も提示できたと考えている。とくに、UNEPがすすめるストックホルム条約（POPs条約）の履行に有用な新しい知見を多数提供できたものと確信している。

## 6. 引用文献

- (1) Watanabe, I., Sakai, S. (2003) Environmental release and behavior of brominated flame retardants. *Environ. Int.*, 29: 665-682.
- (2) de Wit, C.Y. (2002) An overview of brominated flame retardants in the environment. *Chemosphere* 46, 583-624.
- (3) Meerts, I. A. T. M., van Zanden, J. J., Luijckx, E. A. C., van Leeuwen-Bol, I., Marsh, G., Jakobsson, E., Bergman, A., Brouwer, A. (2000) Potent competitive interactions of some brominated flame retardants and related compounds with human transthyretin *in vitro*. *Toxicol. Sci.*, 56: 95-104.
- (4) Meerts, I. A. T. M., Letcher, R. J., Hoving, S., Marsh, G., Bergman, A., Lemmen, J. G., van der Burg, B., Brouwer, A. (2001) *In vitro* estrogenicity of polybrominated diphenyl ethers, hydroxylated PBDEs, and polybrominated bisphenol A compounds. *Environ. Health Perspect.*, 109: 399-407.
- (5) Legler, J., Brouwer, A. (2003) Are brominated flame retardants endocrine disruptors? *Environ. Int.*, 29: 879-885.
- (6) Darnerud, P. O. (2003) Toxic effects of brominated flame retardants in man and in wildlife. *Environ. Int.*, 29: 841-853.
- (7) Kajiwara, N., Ueno, D., Takahashi, A., Baba, N., Tanabe, S. (2004) Polybrominated diphenyl ethers and organochlorines in archived northern fur seal samples from the Pacific coast of Japan, 1972-1998. *Environ. Sci. Technol.*, 38: 3804-3809.
- (8) Ikonou, M. G.; Rayne, S.; Addison, R. F. Exponential increases of the brominated flame retardants, polybrominated diphenyl ethers, in the Canadian arctic from 1981 to 2000. *Environ. Sci. Technol.* 2002, 36, 1886-1892.
- (9) Kajiwara, N., Kamikawa, S., Ramu, K., Ueno, D., Yamada, T.-K., Subramanian, A., Lam, P. K. S., Jefferson, T. A., Prudente, M., Chung, K.-H. and Tanabe, S. (2006) Geographical distribution and temporal trends of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in cetaceans from Asian waters. *Chemosphere*, 64: 287-295.
- (10) Terazono, A., Murakami, S. et al. (2006) Current status and research on E-waste issues in Asia, *J. Mater. Cycles Waste Manag.*, 8: 1-12.
- (11) Tanabe, S., Ramesh, A., Sakashita, D., Iwata, H., Tatsukawa, R., Mohan, D. and Subramanian, A. N. (1991) Fate of HCH (BHC) in tropical paddy field: application test in south India. *Intern. J. Environ. Anal. Chem.*, 45: 45-53.

- (12)lwata, H., Tanabe, S., Sakai, N., Nishimura, A. and Tatsukawa, R. (1994) Geographical distribution of persistent organochlorines in air, water and sediments from Asia and Oceania, and their implications for global redistribution from lower latitudes. *Environ. Pollut.*, 85: 15-33.
- (13)Wania, F. and Mackay, D. (1996) Tracking the distribution of persistent organic pollutants—Control strategies for these contaminants will require a better understanding of how they move around the globe. *Environ. Sci. Technol.* 30: 390-396.
- (14)Janak, K., Covaci, A., Voorspoels, S., Becher, G. (2005) Hexabromocyclododecane in marine species from the Western Scheldt Estuary: diastereoisomer- and enantiomer-specific accumulation. *Environ. Sci. Technol.*, 39: 1987-1994.
- (15)Tomy, G. T., Budakowski, W., Halldorson, T., Whittle, D. M., Keir, M. J., Marvin, C., MacInnis, G., Alae, M. (2004) Biomagnification of alpha- and gamma-hexabromocyclododecane isomers in a Lake Ontario food web. *Environ. Sci. Technol.*, 38: 2298-2303.
- (16)Zegers, B. N., Mets, A., Van Bommel, R., Minkenberg, C., Hamers, T., Kamstra, J. H., Pierce, G. J., Boon, J. P. (2005) Levels of hexabromocyclododecane in harbor porpoises and common dolphins from western European seas, with evidence for stereoisomer-specific biotransformation by cytochrome p450. *Environ. Sci. Technol.*, 39: 2095-2100.
- (17)Monirith, I., Ueno, D., Takahashi, S., Nakata, H., Sudaryanto, A., Subramanian, An., Karuppiyah, S., Ismail, A., Muchtar, M., Zheng, J., Richardson, B.J., Prudente, M., Hue, N.D., Tana, T.S., Tkalin, A.V., Tanabe, S. (2003) Asia-Pacific mussel watch: monitoring contamination of persistent organochlorine compounds in coastal waters of Asian countries. *Mar. Pollut. Bull.*, 46: 281-300.
- (18)Sudaryanto, A., Takahashi, S., Monirith, I., Ismail, A., Muchtar, M., Zheng, J., Richardson, B. J. Subramanian, An., Prudente, M., Hue, N. D. and Tanabe, S. (2002) Asia-Pacific mussel watch: monitoring of butyltin contamination in coastal waters of Asian developing countries. *Environ. Toxicol. Chem.*, 21: 2119-2130.
- (19)Tanabe, S. (2006) Environmental Specimen Bank in Ehime University (es-Bank), Japan for global monitoring. *J. Environ. Monit.*, 8: 782-790.
- (20)Budakowski, W., Tomy, G. (2003) Congener-specific analysis of hexabromocyclododecane by high-performance liquid chromatography/electrospray tandem mass spectrometry. *Rapid Commun. Mass Spectrom.*, 17: 1399-1404.
- (21)Cariou, R., Antignac, J.P., Marchand, P., Berrebi, A., Zalko, D., Andre, F., Le Bizec, B. (2005) New multiresidue analytical method dedicated to trace level measurement of brominated flame retardants in human biological matrices. *J. Chromatogr. A*, 1100:

144-152.

- (22) Ueno, D., Kajiwara, N., Tanaka, H., Subramanian, A., Fillmann, G., Lam, P.K., Zheng, G.J., Muchitar, M., Razak, H., Prudente, M., Chung, K.H., Tanabe, S. (2004) Global pollution monitoring of polybrominated diphenyl ethers using skipjack tuna as a bioindicator. *Environ. Sci. Technol.*, 38: 2312-2316.
- (23) Takahashi, S., Sakai, S., Watanabe, I. (2005) An intercalibration study on organobromine compounds: brominated flame retardants and related dioxin-like compounds in waste TV cabinet and animal fat. *Organohalogen Compd.*, 67: 494-497.
- (24) Tomy, G.T., Halldorson, T., Danell, R., Law, K., Arsenault, G., Alae, M., Macinnis, G., Marvin, C.H., 2005. Refinements to the diastereoisomer-specific method for the analysis of hexabromocyclododecane. *Rapid Commun. Mass Spectrom.*, 19: 2819-2826.
- (25) Moon, H-B.; Kannan, K.; Lee, S-J.; Choi, M. Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in sediment and bivalves from Korean coastal waters. *Chemosphere* 2007, 66: 243-251.
- (26) Bayen, S., Thomas, G.O., Lee, H.K., Obbard, J.P. (2003) Occurrence of polychlorinated biphenyls and polybrominated diphenyl ethers in green mussels (*Perna viridis*) from Singapore, Southeast Asia. *Environ. Toxicol. Chem.*, 22: 2432-2437.
- (27) Liu, Y., Zheng, G.J., Yu, H., Martin, M., Richardson, B.J., Lam, M.H.W., Lam, P.K.S. (2005) Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in sediments and mussel tissues from Hong Kong marine waters. *Mar. Pollut. Bull.*, 50: 1173-1184.
- (28) Allchin, C.R., Law, R.J., Morris, S. (1999) Polybrominated diphenyl ethers in sediments and biota downstream of potential sources in the UK. *Environ. Pollut.*, 105: 197-207.
- (29) Christensen, J.H., Platz, J. (2001) Screening of polybrominated diphenyl ethers in blue mussels, marine and freshwater sediments in Denmark. *J. Environ. Monit.*, 3: 543-547.
- (30) Christensen, J.H., Glasius, M., Pecseli, M., Platz, J., Pritzl, G. (2002) Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in marine fish and blue mussels from Southern Greenland. *Chemosphere*, 47: 631-638.
- (31) Bethune, C., Nielsen, J., Julshamn, K. (2004) Current levels of primary polybrominated diphenyl ethers in Norwegian seafood. *Organohalogen compd.*, 66: 3861-3866.
- (32) Johansson, I., Moisan, K.H., Guiot, N., Munsch, C., Tronczyński, J. (2006) Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in mussels from selected French coastal sites: 1981-2003. *Chemosphere*, 64: 296-305.
- (33) Oros, D. R., Hoover, D., Rodigari, F., Crane, D., Sericano, J. (2005) Levels and distribution of polybrominated diphenyl ethers in water, surface sediments and

- bivalves from the San Francisco Estuary. *Environ. Sci. Technol.*, 39: 33-41.
- (34) BSEF, 2004 <http://www.bsef.com/>.
- (35) Wang, X.M., Ding, X., Mai, B.X., Xie, Z.Q., Xiang, C.H., Sun, L.G., Sheng, G.Y., Fu, J.M., Zeng, E.Y., 2005. Polybrominated diphenyl ethers in airborne particulates collected during a research expedition from the Bohai Sea to the Arctic. *Environ. Sci. Technol.*, 39: 7803-7809.
- (36) de Boer, J., Wester, P.G., Horst, A.V., Leonards, P.E.G., 2003. Polybrominated diphenyl ethers in influents, suspended particulate matter, sediments, sewage treatment plant and effluents and biota from the Netherlands. *Environ. Pollut.*, 122: 63-74.
- (37) Booij, K., Zegers, B.N., Boon, J.P., 2002. Levels of some polybrominated diphenyl ether (PBDE) flame retardants along the Dutch coast as derived from their accumulation in SPMDs and blue mussels (*Mytilus edulis*). *Chemosphere* 46: 683-688.
- (38) Mai, B., Chen, S., Luo, X., Chen, L., Yang, Q., Sheng, G., Peng, P., Fu, J., Zeng, E.Y. (2005) Distribution of polybrominated diphenyl ethers in sediments of the Pearl River Delta and adjacent South China Sea. *Environ. Sci. Technol.*, 39: 3521-3527.
- (39) Ueno, D., Alaee, M., Marvin, C., Muir, D.C.G., Macinnis, G., Reiner, E., Crozier, P., Furdui, V.I., Subramanian, An., Fillmann, G., Lam, P.K.S., Zheng, G.J., Muchtar, M., Razak, H., Prudente, M., Chung, K.H., Tanabe, S. (2006) Distribution and transportability of hexabromocyclododecane (HBCD) in the Asia-Pacific region using skipjack tuna as a bioindicator. *Environ. Pollut.*, 144: 238-247.
- (40) van Leeuwen, S.P.J., (2002) The Netherlands Institute for Fisheries Research. Report No. C023/02, 12 pp.
- (41) Morris, S., Allchin, C.R., Zegers, B.N., Haftka, J.J.H., Boon, J.P., Belpaire, C., Leonards, P.E.G., Van Leeuwen, S.P.J., de Boer, J., (2004) Distribution and fate of HBCD and TBBPA brominated flame retardants in North Sea estuaries and aquatic food webs. *Environ. Sci. Technol.*, 38: 5497-5504.
- (42) Hunziker, R.W., Gonisor, S., MacGregor, J.A., Desjardins, D., Ariano, J., Friederich, U. (2004) Fate and effect of hexabromocyclododecane in the environment. *Organohalogen Compd.*, 66: 2300-2305.
- (43) Akutsu, K., Kitagawa, M., Nakazawa, H., Makino, T., Iwazaki, K., Oda, H., Hori, S. (2003) Time-trend (1973-2000) of polybrominated diphenyl ethers in Japanese mother's milk. *Chemosphere*, 53: 645-654.
- (44) Hites, R. A. (2004) Polybrominated Diphenyl Ethers in the Environment and in People: A Meta-Analysis of Concentrations. *Environ. Sci. Technol.*, 38: 945-956.
- (45) Lind, Y., Darnerud, P. O., Atuma, S., Aune, M., Becker, W., Bjerselius, R.,

- Cnattingius, S., Glynn, A. (2003) Polybrominated diphenyl ethers in breast milk from Uppsala county, Sweden. *Environ. Res.*, 93: 186-194.
- (46) Schecter, A., Päpke, O., Robert Harris, T., Tung, K.C., Musumba, A., Olson, J., Birnbaum L. (2006) Polybrominated diphenyl ether (PBDE) levels in an expanded market basket survey of U.S. food and estimated PBDE dietary intake by age and sex. *Environ. Health Perspect.*, 114: 1515-1520.
- (47) Suzuki, G., Nose, K., Takigami, H., Takahashi, S., Sakai, S.-I. (2006) PBDEs and PBDD/Fs in house and office dust from Japan, *Organohalogen Compd.* 68: 1843-1846.
- (48) Schecter, A., Pavuk, M., Päpke, O., Ryan, J.J., Birnbaum, L., Rosen, R. (2003) Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in U.S. mothers' milk. *Environ. Health Perspect.*, 111: 1723-1729.
- (49) Gill, U., Chu, I., Ryan J. J., Feeley, M. (2004) Polybrominated diphenyl ethers: human tissue levels and toxicology. *Reviews Environ. Contam. Toxicol.*, 183: 55-97.
- (50) Lopez, D., Athanasiadou, M., Athanassiadis, I., Estrada, L.Y., Diaz-Barriga, F., Bergman, A. (2004) A preliminary study on PBDEs and HBCDD in blood and milk from Mexican women. The thirds international workshop on brominated flame retardants. June 6-9, 2004. Canada. 483-488.
- (51) Fängström, B., Strid, A., Athanassiadis, I., Grandjean, P., Weihe, P., Bergman, A. (2004) A retrospective time trend study of pbdes and pcbs in human milk from the Faroe Islands. *Organohalogen compounds*, 66: 2829-2833.
- (52) Kalantzi, O.I., Martin, F.L., Thomas, G.O, Alcock, R.E., Tang, H.R., Drury, S.C., Carmichael, P.L., Nicholson, J.K., Jones, K.C. (2004) Different Levels of Polybrominated Diphenyl Ethers (PBDEs) and Chlorinated Compounds in Breast Milk from Two U.K. Regions. *Environ. Health Perspect.*, 112: 1085-1091.
- (53) Vieth, B., Herrmann, T., Mielke, H., Ostermann, B., Päpke, O., Rudiger, T. (2004) PBDE levels in human milk: The situation in Germany and potential influencing factors - A controlled study. *Organohalogen compounds*, 66: 2643-2648.
- (54) Kazda, R., Hajslova, J., Poustka, J., Cajka, T. (2004) Determination of polybrominated diphenyl ethers in human milk samples in the Czech Republic: Comparative study of negative chemical ionisation mass spectrometry and time-of-flight high-resolution mass spectrometry. *Analytica Chimica Acta.* 520: 237-243.
- (55) Kunisue, T., Takayanagi, N., Isobe, T., Takahashi, S., Nose, M., Yamada, T., Komori, H., Arita, N., Ueda, N., Tanabe, S. (2007) Polybrominated diphenyl ethers and persistent organochlorines in Japanese human adipose tissues. *Environ. Internatl.*, 33:1048-1056.

- (56) Kajiwar, N., Kunisue, T., Kamikawa, S., Ochi, Y., Yano, S., Tanabe, S. (2006) Organohalogen and organotin compounds in killer whales mass-stranded in the Shiretoko Peninsula, Hokkaido, Japan. *Mar. Pollut. Bull.*, 52: 1066-1076.
- (57) Tanabe, S. (2002) Contamination and toxic effects of persistent endocrine disrupters in marine mammals and birds. *Mar. Pollut. Bull.*, 45: 69-77.
- (58) Lebeuf, M., Gouteux, B., Measures, L., Trottier, S. (2004) Levels and temporal trends (1988-1999) of polybrominated diphenyl ethers in Beluga Whales (*Delphinapterus leucas*) from the St. Lawrence Estuary, Canada. *Environ. Sci. Technol.*, 38: 2971-2977.
- (59) Law, R. J., Allchin, C. R., de Boer, J., Covaci, A., Herzke, D., Lepom, P., Morris, S., Tronczynski, J., de Wit, C. A. (2006) Levels and trends of brominated flame retardants in the European environment. *Chemosphere*, 64: 187-208.
- (60) Johnson-Restrepo, B., Kannan, K., Addink, R., Adams, D.H. (2005) Polybrominated diphenyl ethers and polychlorinated biphenyls in a marine foodweb of coastal Florida. *Environ. Sci. Technol.*, 39: 8243-8250.
- (61) Fair, P.A., Mitchum, G., Hulsey, T.C., Adams, J., Zolman, E., McFee, W., Wirth, E., and Bossart, G.D. (2007) Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in blubber of free-ranging bottlenose dolphins (*Tursiops truncatus*) from 2 southeast Atlantic estuarine areas. *Arch. Environ. Contam. Toxicol.*, 53: 483-494.
- (62) Jaspers, V.L.B., Covaci, A., Voorspoels, S., Dauwe, T., Eens, M., Schepens, P., (2006) Brominated flame retardants and organochlorine pollutants in aquatic and terrestrial predatory birds of Belgium: levels, patterns, tissue distribution and condition factors. *Environ. Pollut.*, 139: 340-352.
- (63) Chen, D., Mai, B., Song, J., Sun, Q., Luo, Y., Luo, X., Zeng, E.Y., Hale, R.C. (2007) Polybrominated diphenyl ethers in birds of prey from Northern China. *Environ. Sci. Technol.*, 41: 1828-1833.
- (64) Norstrom, R.J., Simon, M., Moisey, J., Wakeford, B., Weseloh, D.V.C. (2002) Geographical distribution (2000) and temporal trends (1981-2000) of brominated diphenyl ethers in Great Lakes herring gull eggs. *Environ. Sci. Technol.*, 36: 4783-4789.
- (65) Elliott, J.E., Wilson, L.K., Wakeford, B. (2005) Polybrominated diphenyl ether trends in eggs of marine and freshwater birds from British Columbia, Canada, 1979-2002. *Environ. Sci. Technol.*, 39: 5584-5591.
- (66) Lundstedt-Enkel, K., Johansson, A.-K., Tysklind, M., Asplund, L., Nylund, K., Olsson, M., Örnberg, J. (2005) Multivariate data analyses of chlorinated and brominated contaminants and biological characteristics in adult guillemot (*Uria aalge*) from the Baltic Sea. *Environ. Sci. Technol.*, 39: 8630-8637.

- (67) de Boer, J., Leslie, L.A., Leonards, P.E.G., Bersuder, P., Morris, S., Allchin, C.R. (2004) Screening and time trend study of decabromodiphenylether and hexabromocyclododecane in birds. In: *Proceedings of the Third International Workshop on Brominated Flame Retardants BFR2004*, Toronto, Canada, June 6-9, 2004, pp. 125-128.
- (68) de Wit, C.A., Alaee, M., Muir, D.C.G. (2006) Levels and trends of brominated flame retardants in the Arctic. *Chemosphere*, 64: 209-233.
- (69) Stapleton, H.M., Dodder, N.G., Kucklick, J.R., Reddy, C.M., Schantz, M.M., Becker, P.R., Gulland, F., Porter, B.J., Wise, S.A. (2006) Determination of HBCD, PBDEs and MeO-BDEs in California sealions (*Zalophus californianus*) stranded between 1993 and 2003. *Mar. Pollut. Bull.*, 52: 522-531.

## 7. 国際共同研究等の状況

ベトナム・ホーチミン農林大学・Bui Cach Tuyen 教授らとの共同でベトナム・ホーチミン市やその周辺地域における環境汚染・人体曝露調査を実施した(平成18年度)。また、インド・アナナ大学・Ramachandram Ramesh教授らとの共同でインド・バンガロール市およびチェンナイ市やその周辺地域における環境汚染・人体曝露調査を実施した(平成19年度)。

## 8. 研究成果の発表状況

<論文(査読あり)>

- 1) Ramu, K., Kajiwara, N., Isobe, T., Takahashi, S., Kim, E.Y., Min, B.Y., We, S.U., Tanabe, S. (2007) Spatial distribution and accumulation of brominated flame retardants, polychlorinated biphenyls and organochlorine pesticides in blue mussels (*Mytilus edulis*) from coastal waters of Korea. *Environ. Pollut.* 148: 562-569.
- 2) Minh, N. H., Isobe, T., Ueno, D., Matsumoto, K., Mine, M., Kajiwara, N., Takahashi, S., Tanabe, S. (2007) Spatial distribution and vertical profile of polybrominated diphenyl ethers and hexabromocyclododecanes in sediment core from Tokyo Bay, Japan. *Environmental Pollution*, 148: 409-417.
- 3) Ramu, K., Kajiwara, N., Sudaryanto, A., Isobe, T., Takahashi, S., Subramanian, An., Ueno, D., Zheng, G. J., Lam, P. K. S., Takada, H., Zakaria, M. P., Viet, P. H., Prudente, M., Tana, T. S., Tanabe, S. (2007) Asian mussel watch program: contamination status of polybrominated diphenyl ethers and organochlorines in coastal waters of Asian countries. *Environ. Sci Technol.*, 41: 4580-4586.
- 4) Isobe, T., Ramu, K., Kajiwara, N., Takahashi, S., Lam, P. K. S., Jefferson, T. A., Zhou, K., Tanabe, S. (2007) Isomer specific determination of hexabromocyclododecanes (HBCDs) in small cetaceans from the South China Sea - Levels and temporal variation. *Mar. Pollut. Bull.*, 54: 1139-1145.

- 5) Tanabe, S., Kunisue, T. (2007) Persistent organic pollutants in human breast milk from Asian countries. *Environ. Pollut.*, 146: 400-413.
- 6) Tanabe, S., Ramu, K., Isobe, T., Takahashi, S. (2008) Brominated flame retardants in the environment of Asia-Pacific: an overview of spatial and temporal trends. *J. Environ. Monit.*, 10: 188-197.
- 7) Sudaryanto, A., Kajiwara, N., Takahashi, S., Muawanah, Tanabe, S. (2008) Geographical distribution and accumulation features of PBDEs in human breast milk from Indonesia. *Environ. Pollut.*, 151: 130-138.
- 8) Kunisue, T., Takayanagi, N., Isobe, T., Takahashi, S., Nakatsu, S., Tsubota, T., Okumoto, K., Bushisue, S., Shindo, K., Tanabe, S. (2008) Regional trend and tissue distribution of brominated flame retardants and persistent organochlorines in raccoon dogs (*Nyctereutes procyonoides*) from Japan. *Environ. Sci. Technol.*, 42: 685-691.
- 9) Kunisue, T., Higaki, Y., Isobe, T., Takahashi, S., Subramanian, A., Tanabe, S. (2008) Spatial trends of polybrominated diphenyl ethers in avian species: Utilization of stored samples in the Environmental Specimen Bank of Ehime University (*es-Bank*). *Environ. Pollut.* (published online: 26 November 2007, doi:10.1016/j.envpol.2007.10.013)

<その他誌上発表 (査読なし) >

- 1) Kunisue, T., Ohtake, M., Someya, M., Subramanian, An., Chakraborty, P. and Tanabe, S. (2006) Persistent organic pollutants in human breast milk collected around the open dumping site in Kolkata, India. *Organohalogen Compounds*, 68, 1619-1622.
- 2) Takahashi, S., Kunisue, T., Isobe, T., Noda, S., Subramanian, An., Kajiwara, N., Tana, T. S., Viet, P. H., Miyazaki, T., Sakai, S. and Tanabe, S. (2006) Polybrominated diphenyl ethers and dioxin-related compounds detected in soil samples from waste dumping sites in Asian developing countries. *Organohalogen Compounds*, 68, 1847-1850.
- 3) Sudaryanto, A., Ramu, K., Isobe, T., Takahashi, S., Kajiwara, N., Setiawan, I.E. and Tanabe, S. Levels, Distribution and Temporal Trend of Brominated Flame Retardants in the Environment of Indonesia. (2006). *Proceedings of the International Symposium 2006 on Pioneering Studies of Young Scientists on Chemical Pollution and Environmental Changes*, 27-30.
- 4) Ramu, K., Kajiwara, N., Isobe, T., Takahashi, S., Kim, E-Y., Min, B-Y., We, S-U., Tanabe, S. (2006) Contamination status and spatial distribution of organohalogen compounds in coastal waters of Korea. *Proceedings of the International Symposium 2006 on Pioneering Studies of Young Scientists on Chemical Pollution and Environmental Changes*,

31-34.

- 5) Isobe, T., Minh, N. H., Ueno, D., Matsumoto, K., Kajiwara, N., Takahashi, S., Tanabe, S. (2006) Horizontal distribution and temporal trend of polybrominated diphenyl ethers and hexabromocyclododecanes in Tokyo Bay. *Proceedings of the International Symposium, Pioneering Studies of Young Scientists on Chemical Pollution and Environmental Changes*, 39-42.
- 6) Isobe, T., Ochi, Y., Ramu, K., Yamamoto, T., Takahashi, S., Tanabe, S. (2006) Organochlorines and Brominated flame retardants in striped dolphins (*Stenella Coeruleoalba*) stranded at the Gogo-shima Island, Ehime, Japan. *Proceedings of the International Symposium, Pioneering Studies of Young Scientists on Chemical Pollution and Environmental Changes*, 159-162.
- 7) Tanabe, S., Ramu, K., Isobe, T., Kajiwara, N., Takahashi, S., Jefferson, T. A., Yamada, T. K. (2007) Levels and temporal trends of brominated flame retardants (PBDEs and HBCDs) in Asian waters using archived samples from es-BANK, Ehime University, Japan. *Organohalogen Compd.*, 69: 500-503.
- 8) Isobe, T., Takayanagi, N., Kunisue, T., Nakatsu, S., Tsubota, T., Okumoto, K., Bushisue, S., Shindo, K., Takahashi, S., Tanabe, S. (2007) Brominated flame retardants in raccoon dogs from Japan - a monitoring survey of wild terrestrial mammals. *Organohalogen Compd.*, 69: 2732-2735.
- 9) Subramanian, A., Kunisue, T., Someya, M., Ramu, K., Ohtake, M., Takahashi, S., Tanabe, S. (2007) Persistent organic pollutants in human breast milk from two metropolitan cities in the east coast of India. *Organohalogen Compd.*, 69: 785-788.
- 10) Viet, P. H., Minh, N. H., Minh, T. B., Tuyen, B. C., Takahashi, S., Tanabe, S. (2007) A review of persistent organic pollutants in Vietnam; implications for human exposure. *Organohalogen Compd.*, 69: 2639-2642.
- 11) Sudaryanto, A., Ramu, K., Isobe, T., Minh, N. H., Agusa, T., Kajiwara, N., Takahashi, S., Iwata, H., Setiawan, I. E., Ilyas, M., Ismail, A., Min, B. Y., Matsumoto, K., Tanabe, S. (2007) Assessment of brominated flame retardants in sediments from Asia: levels, profiles and temporal trends. *Organohalogen Compd.*, 69: 2744-2747.

(2) 口頭発表 (学会)

- 1) 国末達也, 大嶽昌子, Subramanian, An., 田辺信介 (2006) ダイオキシン類等残留性有機汚染物質によるインド在住者の母乳汚染. 第15回環境化学討論会, 仙台市, 6月.
- 2) 梶原夏子, 磯部友彦, Ramu, K., 田辺信介 (2006) アジア-太平洋海域の海棲哺乳類における臭素系難燃剤HBCD蓄積の経年変動, 第15回環境化学討論会, 仙台市, 6月.
- 3) 高橋 真, 国末達也, 梶原夏子, Subramanian, An., 宮崎 徹, Tana, T. S., Viet, P. H.,

- 酒井伸一, 田辺信介 (2006) インド・カンボジア・ベトナムのゴミ集積場土壌から検出されたダイオキシン類縁化合物, 第15回環境化学討論会, 仙台市, 6月.
- 4) 磯部友彦, Nguyen Hung Minh, 梶原夏子, 高橋 真, 田辺信介, 上野大介, 松本敬三 (2006) 東京湾柱状堆積物を用いた臭素系難燃剤汚染の歴史変遷の復元. 第15回環境化学討論会, 仙台市, 6月.
  - 5) 磯部友彦, Karri Ramu, 梶原夏子, 高橋真, 田辺信介, Sung-Ug We, Byung-Yoon Min (2006) 韓国産イガイの臭素系難燃剤汚染. 第15回環境化学討論会, 仙台市, 6月.
  - 6) 高橋 真, 国末達也, 村田仁子, 先山孝則, 山田 格, 田辺信介 (2007) 鯨類から検出されたPCBsの蓄積特性, 第16回環境化学討論会, 北九州市, 6月.
  - 7) 磯部友彦, 越智陽子, Ramu, K., 山本貴仁, 高橋 真, 田辺信介 (2007) 有機塩素化合物および臭素系難燃剤によるスジイルカの汚染実態と蓄積特性, 第16回環境化学討論会, 北九州市, 6月.
  - 8) 高橋 真 (2007) 残留性有機汚染物質とその候補物質による汚染の過去復元と将来予測. グローバルCOEワークショップ「生物環境試料バンクを活用した環境科学・生態学の新展開—海棲哺乳類を中心に—」, 松山, 9月.
  - 9) 高橋 真, 田辺信介 (2007) PCBおよびその他残留性有機ハロゲン化合物による地球規模の環境汚染, 第44・45回日本環境化学会講演会「PCB廃棄物処理の現状と今後の課題」, 東京, 12月.
  - 10) Kunisue, T., Ohtake, M., Someya, M., Subramanian, An., Chakraborty, P. Tanabe, S. (2006) Persistent organic pollutants in human breast milk collected around the open dumping site in Kolkata, India. 26<sup>th</sup> International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (Dioxin 2006), Oslo, Norway, Aug.
  - 11) Takahashi, S., Kunisue, T., Isobe, T., Noda, S., Subramanian, An., Kajiwara, N., Tana, T. S., Viet, P. H., Miyazaki, T., Sakai, S. Tanabe, S. (2006) Polybrominated diphenyl ethers and dioxin-related compounds detected in soil samples from waste dumping sites in Asian developing countries. 26<sup>th</sup> International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (Dioxin 2006), Oslo, Norway, Aug.
  - 12) Takahashi, S., Isobe, T., Sudaryanto, A., Ramu, K., Kunisue, T., Minh, N. H., Minh, T. B., Subramanian, An., Kajiwara, N., Ueno, D., Sakai, S. Tanabe, S. (2006) Contamination status of PBDEs in the Asia-Pacific region: a review of recent studies on marine mammals, fish/shellfish, human breast milk and terrestrial environments including waste dumping sites. 232<sup>nd</sup> American Chemical Society National Meeting & Exposition, San Francisco, CA, USA, Sept.
  - 13) Ramu, K., Kajiwara, N., Isobe, T., Takahashi, S., Kim, E. Y., Min, B. Y., We, S. U., Tanabe, S. (2006). Levels and distribution of organohalogen compounds in blue mussels (*Mytilus edulis*) from coastal waters of Korea. 232<sup>nd</sup> American Chemical Society National Meeting

- & Exposition, San Francisco, CA, USA, Sept.
- 14) Sudaryanto, A., Isobe, T., Takahashi, S., Tanabe, S. (2006) Brominated Flame Retardants in the Environment of Indonesia. 232<sup>nd</sup> American Chemical Society National Meeting & Exposition, San Francisco, CA, USA, Sept.
  - 15) Minh, T. B., Takahashi, S., Subramanian, An. and Tanabe, S. (2006) Monitoring of persistent organic pollutants (POPs) in Asia-Pacific using marine mammals and birds as bioindicators: specific accumulation, spatial and temporal trends, and toxic implication. The 2006 POME Workshop, Ha Long City, Vietnam, Nov.
  - 16) Sudaryanto, A., Ramu, K., Isobe, T., Takahashi, S., Kajiwara, N., Setiawan, I.E. Tanabe, S. (2006) Levels, Distribution and temporal trend of brominated flame retardants in the environment of Indonesia. COE International Symposium 2006 - Pioneering Studies of Young Scientists on Chemical Pollution and Environmental Changes, Matsuyama, Japan, Nov.
  - 17) Ramu, K., Kajiwara, N., Isobe, T., Takahashi, S., Kim, E-Y., Min, B-Y., We, S-U., Tanabe, S. (2006) Contamination status and spatial distribution of organohalogen compounds in coastal waters of Korea. COE International Symposium 2006 - Pioneering Studies of Young Scientists on Chemical Pollution and Environmental Changes, Matsuyama, Japan, Nov.
  - 18) Isobe, T., Minh, N. H., Ueno, D., Matsumoto, K., Kajiwara, N., Takahashi, S. Tanabe, S. (2006) Horizontal distribution and temporal trend of polybrominated diphenyl ethers and hexabromocyclododecanes in Tokyo Bay. COE International Symposium 2006 - Pioneering Studies of Young Scientists on Chemical Pollution and Environmental Changes, Matsuyama, Japan, Nov.
  - 19) Isobe, T., Ochi, Y., Ramu, K., Yamamoto, T., Takahashi, S., Tanabe, S. (2006) Organochlorines and Brominated flame retardants in striped dolphins (*Stenella Coeruleoalba*) stranded at the Gogo-shima Island, Ehime, Japan. COE International Symposium 2006 - Pioneering Studies of Young Scientists on Chemical Pollution and Environmental Changes, Matsuyama, Japan, Nov.
  - 20) Tanabe, S., Ramu, K., Isobe, T., Kajiwara, N., Takahashi, S., Jefferson, T. A., Yamada, T. K. (2007) Levels and temporal trends of brominated flame retardants (PBDEs and HBCDs) in Asian waters using archived samples from es-BANK, Ehime University, Japan. 27<sup>th</sup> International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (Dioxin 2007), Tokyo, Japan, Sept.
  - 21) Isobe, T., Takayanagi, N., Kunisue, T., Nakatsu, S., Tsubota, T., Okumoto, K., Bushisue, S., Shindo, K., Takahashi, S., Tanabe, S. (2007) Brominated flame retardants in raccoon dogs from Japan - a monitoring survey of wild terrestrial mammals. 27<sup>th</sup> International

- Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (Dioxin 2007), Tokyo, Japan, Sept.
- 22) Subramanian, A., Kunisue, T., Someya, M., Ramu, K., Ohtake, M., Takahashi, S., Tanabe, S. (2007) Persistent organic pollutants in human breast milk from two metropolitan cities in the east coast of India. 27<sup>th</sup> International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (Dioxin 2007), Tokyo, Japan, Sept.
- 23) Viet, P. H., Minh, N. H., Minh, T. B., Tuyen, B. C., Takahashi, S., Tanabe, S. (2007) A review of persistent organic pollutants in Vietnam: implications for human exposure. 27<sup>th</sup> International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (Dioxin 2007), Tokyo, Japan, Sept.
- 24) Sudaryanto, A., Ramu, K., Isobe, T., Minh, N. H., Agusa, T., Kajiwara, N., Takahashi, S., Iwata, H., Setiawan, I. E., Ilyas, M., Ismail, A., Min, B. Y., Matsumoto, K., Tanabe, S. (2007) Assessment of brominated flame retardants in sediments from Asia: levels, profiles and temporal trends. 27<sup>th</sup> International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (Dioxin 2007), Tokyo, Japan, Sept.

(3) 出願特許

なし

(4) シンポジウム、セミナーの開催（主催のもの）

なし

(5) マスコミ等への公表・報道等

なし

(6) その他

なし