

京都府舞鶴湾の鉛を中心とした重金属汚染実態調査2

～二枚貝を用いた現地調査と移植試験～

江口さやか^{*1}、薄元志帆^{*2}、山本沙織^{*2}、芳村 碧^{*2}、
上野正博^{*3}、益田玲爾^{*3}、山下 洋^{*3}、山本義和^{*4}

Marine Heavy Metal Pollution Monitoring in Maizuru Bay, Kyoto Prefecture, in Japan II —Status of Lead Pollution in Local and Transplanted Stock of Bivalves—

EGUCHI Sayaka, USUMOTO Shiho, YAMAMOTO Saori, YOSHIMURA Midori,
UENO Masahiro, MASUDA Reiji, YAMASHITA Yoh, YAMAMOTO Yoshikazu

Abstract

Heavy metals (Pb, Cd, Cu, Zn and Hg) were determined in blue mussel (*Mytilus galloprovincialis*), short-necked clam (*Ruditapes philippinarum*) and oyster (*Crassostrea gigas*) collected from Maizuru Bay, a semi-enclosed marine inlet of the Japan Sea in 2008, in order to elucidate their contamination levels and distribution. The highest Pb concentrations in blue mussels, short-necked clams and oysters, 9.4 ± 2.4 , 229 , $8.4 \pm 7.1 \mu\text{g/g}$ wet, respectively, were detected in samples from the lead battery recycle factory basin.

These three bivalve species can be used as sentinental organisms to monitor Pb contamination in coastal waters.

Some evaluates are inferior level applied to the environmental index and food-safety standard. Lead concentrations in blue mussels transplanted to near the factory were increased definitely. In this study, we were able to do comprehensive evaluation by using three kinds of bioindicator.

キーワード：舞鶴湾、鉛汚染、重金属、移植試験、ムラサキガイ、アサリ、マガキ

Key words: Maizuru Bay, lead pollution, heavy metal, transplant, blue mussel,
short-necked clam, oyster

*1 本学人間科学部環境・バイオサイエンス学科嘱託教学職員

*2 本学人間科学部環境・バイオサイエンス学科卒業生

*3 京都大学フィールド科学教育研究センター舞鶴水産実験所

*4 本学人間科学部環境・バイオサイエンス学科教授

連絡先：山本義和 〒662-8505 西宮市岡田山4-1 神戸女学院大学人間科学部環境・バイオサイエンス学科
y-yamamo@mail.kobe-c.ac.jp

1. 研究の背景と目的

京都府舞鶴湾における廃バッテリー鉛リサイクル工場（以下、R（recycle）工場と表記）由来の鉛汚染に関する2007年の調査について、前報¹⁾で報告した。水質汚濁防止法で定められている鉛の排水基準0.1mg/Lの数千倍におよぶ工場排水や周辺地域の鉛汚染は、以前京都府が行なった調査でも明らかとなっている。2003年にはR工場による対策として、排水処理施設の設置や排水が流入する入江での浚渫と覆砂が行われた。しかしその後も基準値を超える排水汚染が確認され、周辺環境の十分な改善は見られていなかった。2007年7月に我々が行った底泥と生物試料の調査では湾全体への鉛汚染の広がりは見られなかったものの、汚染源直下の底泥から8,716 μ g/g dry、ムラサキイガイから131 \pm 56 μ g/g wet、アサリから579 \pm 459 μ g/g wetと、様々な基準と比較して非常に高濃度の鉛が検出された。調査後の2007年12月にはR工場によって入江内の一部の浚渫と覆砂が再び行なわれた。そこで我々は2008年6月、舞鶴湾内の比較的汚染源に近い水域で昨年よりも詳細な調査を行った。調査は大きく分けて「現地調査」と「ムラサキイガイの移植試験」の2種類を行った。まず現地調査では、1975年にGoldbergによって“mussel watch”が提唱され²⁾て以来世界各地で汚染モニタリングに使用されているムラサキイガイ (*Mytilus galloprovincialis*)³⁻¹¹⁾、実際に現地で食用として流通し、底泥中に生息していることから底泥汚染との関係も深いと考えられるアサリ (*Ruditapes philippinarum*)、更に食用とされるマガキ (*Crassostrea gigas*) の三種類の指標生物について元素分析を行なった。移植試験では、現地調査において比較的汚染度が低いと考えられる地点から汚染源近くの数地点にムラサキイガイを移植し、一定期間後に回収して各元素濃度の変化を調べた。これらの結果から2007年12月に行なわれた浚渫および覆砂による対策後の鉛汚染の状況を調べることを主目的とした。

2. 方法

2.1 現地調査

2008年6月、京都府舞鶴湾においてムラサキイガイ、アサリ、マガキの採取を行なった。(図1) ムラサキイガイおよびマガキは岸壁や海底の石などに付着しているものを採取した。アサリは底泥中に生息しているものを^{じょれん}鋤簾にて採取した。

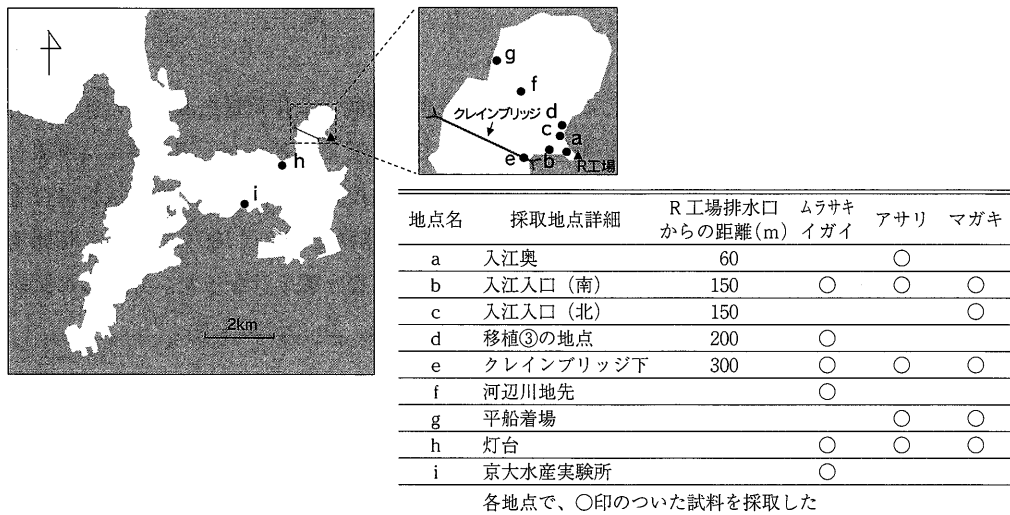


図1. 京都府舞鶴湾におけるムラサキイガイ、アサリ、マガキのサンプリング地点

2.2 ムラサキイガイの移植試験

2008年6月、図1に示した2.1の調査地点のうち、昨年の調査において比較的汚染度が低いと考えられる地点iで採取したムラサキイガイ30個体をネットに入れ、R工場排水口から50m～300m離れた地点①～④に計4ヶ所移植し、13日後に回収した(図2)。ムラサキイガイを設置した水深は、底泥に接触しないように水面から50～60cm程度とした。回収した試料のうち汚染源に近い移植①、②地点の試料には粘性のある泥が付着しており、特に多く付着していた地点①の泥を採取して分析に供した。

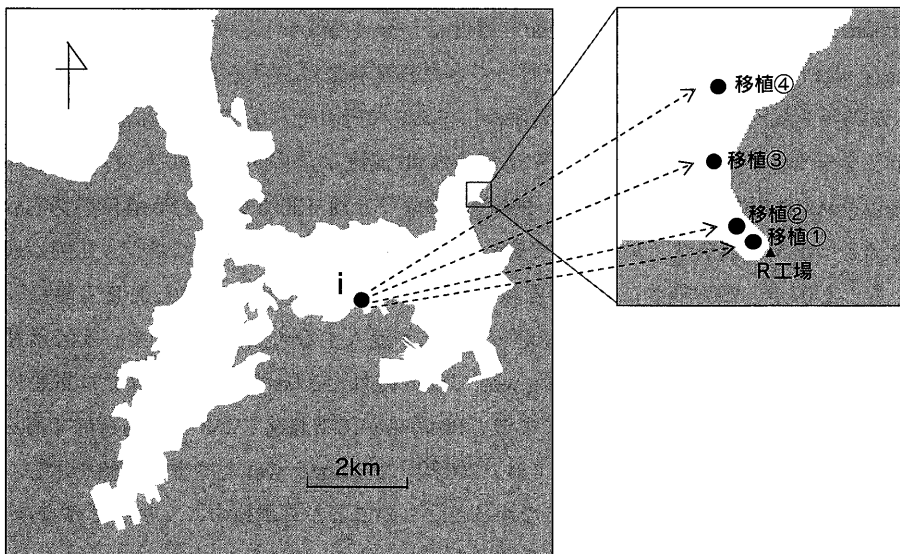


図2. 京都府舞鶴湾におけるムラサキイガイの移植地点

i 地点のムラサキイガイを移植①～移植④地点へ移植
 移植③は現地採取の地点dと同じ地点

2.3 重金属分析

2.3.1 Pb、Cd、Cu、Zn

採取したムラサキイガイおよびアサリは、殻長、殻高、殻幅、全体重量を測定した後に解剖して軟体部を取り出し、軟体部重量を測定して分析まで -20°C で保管した。測定時には解凍した試料に個体ごとに濃硝酸と濃過塩素酸を加えて 180°C で湿式分解を行った。移植試料に付着していた粘性の泥は一定重量を量りとり、濃硝酸と濃過塩素酸を加えて 180°C で2-3時間加熱後、過酸化水素水を加えて更に 180°C で30分間加熱して湿式分解を行なった。分解した試料は原子吸光分析機 (HITACHI Z-8100) を用いてPb、Cd、Cu、Znの分析を行った。

2.3.2 Hg

2.3.1に示した通りに解剖、保管、解凍した試料を分析に供した。試料は個体ごとに濃硝酸を加えて 160°C で予備分解後、濃過塩素酸、濃硫酸を添加して 160°C で加熱を続けた。過マンガン酸カリウムの紫色が1分以上消えない時点で分解終了とし、定容後ろ過した。Hgの分析は還元気化法を利用した平沼水銀濃度計で行った。

3. 結果および考察

3.1 現地調査

3.1.1 ムラサキイガイ

各地点において、ムラサキイガイ軟体部の各元素濃度を地点ごとに10個体測定した結果を表1に示した。

Pb濃度はムラサキイガイ採取地点の中でR工場に最も近い地点b(汚染源から150m)で平均値 $9.4\mu\text{g/g wet}$ と最高値を示した。次いで工場から300m離れた地点eにおいて $3.3\mu\text{g/g wet}$ 、200m離れた地点dで $2.4\mu\text{g/g wet}$ と濃度は $1/3\sim 1/5$ 減少し、その他の地点では $0.50\sim 0.65\mu\text{g/g wet}$ だった。我々がこれまで行ってきた日本各地における調査によれば2003年淡路島¹²⁾、2003年大阪港、2005年大槌湾(岩手県)においてそれぞれ 0.37 、 $0.32\mu\text{g/g wet}$ 、検出限界以下となっている。舞鶴湾のムラサキイガイのPb濃度は全体的に高めで、汚染源近くの濃度 $9.4\mu\text{g/g wet}$ は極度に高いといえる。2007年¹⁾および今回(2008年)のPb濃度の湾内分布の様子を図3に示す。数値はノルウェーで定められている環境評価基準¹³⁾に基づき凡例の通り色分けした。2007年、2008年共に湾内の広域で良好なレベルであるのに対してR工場に近づくにつれてPb濃度が高くなった。R工場からの排水が流入する入江内において、2007年R工場の直下では非常に劣悪に値する $131\mu\text{g/g wet}$ 、150m離れた2008年の調査地点では劣悪に値する $9.4\mu\text{g/g wet}$ と濃度が $1/14$ になっており、Pb汚染が汚染源近くで非常に局所的であることが示された。またクレインブリッジ下では、2007年に $3.1\mu\text{g/g wet}$ とやや高い値を示し、今回も $3.3\mu\text{g/g wet}$ と濃度レベルが変わらなかった。このことから現地のムラサキイガイのPb濃度を指標とした場合、Pb汚染は改善されていないといえる。

Cd濃度は表1に示したようにPb同様R工場に一番近い地点bで平均値 $1.6\mu\text{g/g wet}$ と最も高く、次いで地点eで $1.0\mu\text{g/g wet}$ 、その他の地点では $0.24\sim 0.63\mu\text{g/g wet}$ だった。2007年

表1. ムラサキイガイ、アサリ、マガキ軟体部のPb、Cd、Cu、Zn濃度（平均値±標準偏差）

元素	生物種	採取地点									市販品
		a	b	c	d	e	f	g	h	i	
Pb	ムラサキイガイ		9.4 ±2.4		2.4 ±0.7	3.3 ±1.3	0.50 ±0.21		0.65 ±0.16	0.52 ±0.26	
	アサリ 229		4.3 ±1.3			N.D.		N.D.	N.D.		N.D.
	マガキ		2.1 ±0.6	8.4 ±7.1		0.94 ±0.15		0.68 ±0.21	0.41 ±0.10		
Cd	ムラサキイガイ		1.6 ±0.2		0.62 ±0.13	1.0 ±0.2	0.24 ±0.08		0.63 ±0.15	0.53 ±0.15	
	アサリ 0.96		0.60 ±0.09			0.63 ±0.32		0.27 ±0.11	N.D.		N.D.
	マガキ		1.7 ±0.4	2.9 ±1.3		1.2 ±0.2		0.57 ±0.11	0.66 ±0.13		
Cu	ムラサキイガイ		0.85 ±0.09		1.1 ±0.2	1.0 ±0.2	0.69 ±0.20		1.03 ±0.16	1.3 ±0.4	
	アサリ 2.6		1.0 ±0.1			1.0 ±0.1		1.3 ±0.2	1.6 ±0.2		0.20 ±0.20
	マガキ		79 ±7	78 ±26		71 ±20		40 ±10	49 ±8		
Zn	ムラサキイガイ		55 ±27		23 ±7	57 ±22	12 ±5		54 ±57	38 ±15	
	アサリ 63		26 ±9			28 ±11		19 ±5	19 ±4		18 ±4
	マガキ		691 ±68	719 ±183		453 ±93		410 ±135	594 ±167		
Hg	ムラサキイガイ		0.020 ±0.005		0.031 ±0.006	0.016 ±0.005	0.029 ±0.004		0.017 ±0.003	0.011 ±0.001	
	アサリ —		—			0.042 ±0.026		0.013 ±0.005	0.031 ±0.013		0.017 ±0.011
	マガキ		0.014 ±0.002	0.028 ±0.008		0.037 ±0.012		0.013 ±0.006	0.043 ±0.051		

N.D.: 検出限界 (Pb: 0.6 μ g/g wet, Cd: 0.04 μ g/g wet) 以下
各地点の分析個体数(個体ごとに分析)

単位: μ g/g wet

Pb、Cd、Cu、Zn: ムラサキイガイ: 10個体、アサリ: 10個体 (a地点は2個体を1サンプルとして分析、b地点は3個体を分析)、
マガキ: 5個体、Hg: 全ての生物種について5個体

の舞鶴湾調査結果¹⁾では平均値0.25–0.61 μ g/g wetだった。また、これまでの我々の調査で2003年の淡路島、2003年の大阪港、2005年の大槌湾におけるムラサキイガイ Pb濃度の平均値はそれぞれ0.40、0.28、0.43 μ g/g wetとなっており、2008年の地点bおよび地点eの値はやや高かった。

Cu濃度は平均値0.69–1.3 μ g/g wetと、地点間での大きな濃度差は見られなかった。2007年の舞鶴湾¹⁾では0.4–1.9、2003年の淡路島、2003年の大阪港、2005年の大槌湾においてはそれぞれ1.3、3.3、1.3 μ g/g wetとなっており、舞鶴湾のムラサキイガイのCu濃度は日本沿岸域で一般的に見られるものだった。

Zn濃度は平均値12–57 μ g/g wetで、地点間での大きな濃度差は見られなかった。これまで

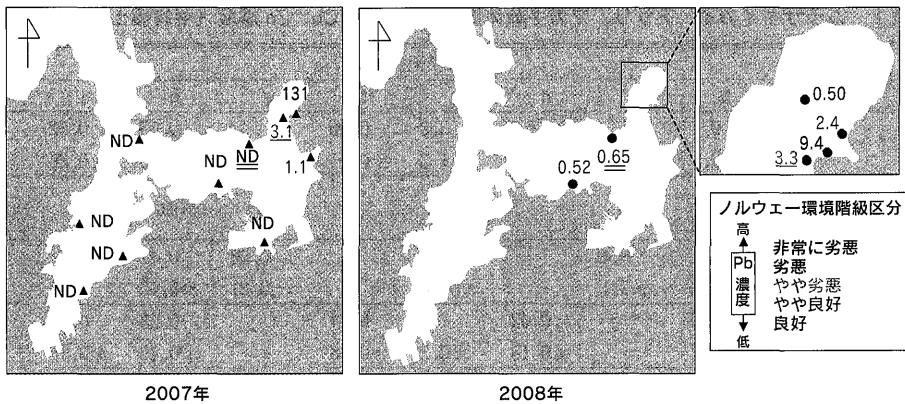


図3. 2007年、2008年のムラサキイガイ Pb 濃度水平分布とノルウェー環境階級区分

数値はノルウェーの環境階級区分に従って色分けした。2007年と2008年の両年で採取した地点は2地点。同じ地点の測定結果の数値には両年の数値に同じアンダーラインを引いた。

の我々の調査で2003年の淡路島、2003年の大阪港、2005年の大植湾におけるムラサキイガイ Zn 濃度の平均値はそれぞれ46、26、 $22\mu\text{g/g wet}$ となっており、舞鶴湾のムラサキイガイの Zn 濃度は日本沿岸域で一般的に見られるものだった。

Hg 濃度は平均値 $0.011\text{--}0.031\mu\text{g/g wet}$ で、地点間の大きな濃度差は見られなかった。これまでの我々の調査で2003年の淡路島、2003年の大阪港、2005年の大植湾におけるムラサキイガイ Hg 濃度の平均値はそれぞれ 0.012 、 0.011 、 $0.017\mu\text{g/g wet}$ で、舞鶴湾のムラサキイガイの Hg 濃度は日本沿岸域で一般的に見られるものだった。

3.1.2 アサリ

各地点において、アサリ軟体部の各元素濃度を地点 b では3個体、地点 e、g、h および舞鶴市内での市販品は10個体を個体ごとに、地点 a では2個体を1サンプルとして測定した結果を表1に示した。

Pb 濃度は R 工場に最も近い地点 a (排水口から60m) で $229\mu\text{g/g wet}$ と最高値を示した。次いで R 工場から150m 離れた地点 b において平均値 $4.3\mu\text{g/g wet}$ と濃度は2桁減少し、その他の地点では N.D. ($0.6\mu\text{g/g wet}$ 以下) だった。2007年の結果¹⁾では R 工場の排水口直下で $579\mu\text{g/g wet}$ が検出されていた。これらのことから Pb 汚染は依然として劣悪であるものの、汚染は局所的でそれほど広域には拡散していないというムラサキイガイと同様の結果が示された。市販品は検出限界以下 ($0.6\mu\text{g/g wet}$ 以下) だった。

Cd 濃度は Pb と同様に R 工場に一番近い地点 a で平均値 $0.96\mu\text{g/g wet}$ と最も高く、次いで地点 e (排水口から300m) および地点 b でそれぞれ $0.63\mu\text{g/g wet}$ 、 $0.60\mu\text{g/g wet}$ 、1 km 以上離れた地点では N.D. ($0.04\mu\text{g/g wet}$ 以下) -- $0.27\mu\text{g/g wet}$ だった。2007年の結果¹⁾でも、R 工場排水口直下は $0.87\mu\text{g/g wet}$ 、1 km 以上離れた地点では N.D. ($0.04\mu\text{g/g wet}$ 以下) -- $0.20\mu\text{g/g wet}$ で、排水口に近い地点で濃度が高くなるという同様の傾向が見られた。市販品は検出限界以下 ($0.04\mu\text{g/g wet}$ 以下) だった。

Cu 濃度は R 工場に一番近い地点 a で $2.6\mu\text{g/g wet}$ と最も高く、他の地点は平均値 $1.0\text{--}1.6\mu\text{g/g wet}$ だった。2007年の調査でも¹⁾排水口直下で $1.1\mu\text{g/g wet}$ と全調査地点の中で最も高い値を示し、排水口に近い地点では濃度が高くなるという同様の傾向が見られた。また、兩年のうち最も濃度が高かった地点の濃度を比較すると、排水口直下における2007年の値よりも、排水口から60m離れた地点における2008年の値のほうが高くなっている。次報¹⁴⁾で示す底泥のCu濃度において、2007年の排水口直下の底泥よりも2008年の排水口から100m付近の底泥の方がCu濃度が若干高いという結果となっており、アサリがその生息域での底泥の汚染状況を正確に反映していると考えられる。市販品は $0.2\mu\text{g/g wet}$ と最も低いCu濃度を示した。

Zn 濃度も汚染源に一番近い地点 a で $63\mu\text{g/g wet}$ と最も高く、他の地点は平均値 $19\text{--}28\mu\text{g/g wet}$ だった。2007年の調査¹⁾においても排水口直下で $36\mu\text{g/g wet}$ と全調査地点の中で最も高い値を示し、排水口に近い地点で濃度が高くなるという同様の傾向が見られた。また、兩年のうち最も濃度が高かった地点の濃度を比較すると、排水口直下における2007年の値より、排水口から60m離れた地点における2008年の値のほうが高くなっている。次報で示す底泥の濃度において2007年の排水口直下の底泥よりも、2008年の排水口から100m付近の底泥の方がZn濃度が4倍程度高いという結果となっており、アサリが底泥の汚染状況を正確に反映していると考えられる。市販品は $18\mu\text{g/g wet}$ と最も低いZn濃度を示した。

Hg 濃度は、地点 a と b では採取できた試料数が少なかったために分析できなかった。分析を行った地点 e、g、h の Hg 濃度はそれぞれ平均値 0.042 、 0.013 、 $0.031\mu\text{g/g wet}$ で、地点 e の濃度 $0.042\mu\text{g/g wet}$ は相対的にやや高かった。市販品の Hg 濃度は $0.017\mu\text{g/g wet}$ だった。

3.1.3 マガキ

各地点において、マガキ軟体部の各元素濃度を地点ごとに5個体ずつ測定した結果を表1に示した。

Pb 濃度は汚染源に最も近い地点 c (排水口から150mの入江入口北) で平均値 $8.4\mu\text{g/g wet}$ と最高値を示した。次いで同じく汚染源に最も近い地点 b (排水口から150mの入江入口南) において平均値 $2.1\mu\text{g/g wet}$ で、300m以上離れた地点では $0.41\text{--}0.94\mu\text{g/g wet}$ だった。ムラサキガイとアサリ同様に、R工場の排水が流入する入江で濃度が高い結果となった。

Cd 濃度も Pb と同様に汚染源に一番近い地点 c で平均値 $2.9\mu\text{g/g wet}$ と最も高く、次いで地点 b と地点 e (汚染源から300m) でそれぞれ $1.7\mu\text{g/g wet}$ と $1.2\mu\text{g/g wet}$ 、1 km 以上離れた地点では 0.57 と $0.66\mu\text{g/g wet}$ だった。

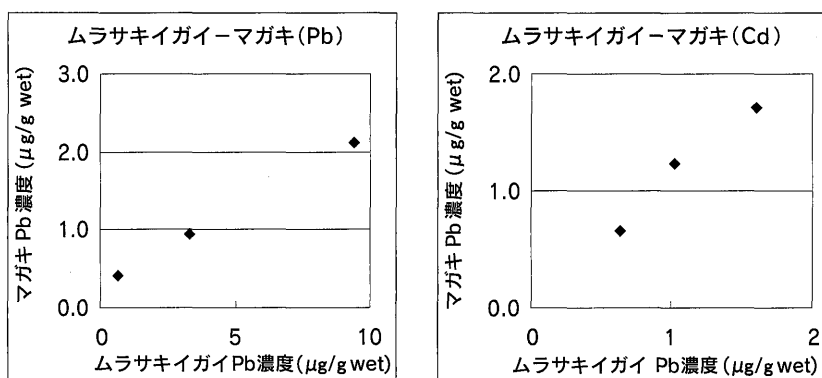
Cu 濃度は地点 b で平均値 $79\mu\text{g/g wet}$ 、次いで地点 c および地点 e でそれぞれ 78 、 $71\mu\text{g/g wet}$ とやや高めだったが、その他の2地点も 40 、 $49\mu\text{g/g wet}$ と Pb や Cd ほどの大きな差は見られなかった。

Zn 濃度も地点 c で平均値 $719\mu\text{g/g wet}$ 、地点 b で $691\mu\text{g/g wet}$ とやや高めだったが、その他の地点も平均値 $410\text{--}594\mu\text{g/g wet}$ と Pb や Cd ほどの大きな差は見られなかった。

Hg 濃度は、平均値 $0.013\text{--}0.043\mu\text{g/g wet}$ で、地点 e の濃度 $0.037\mu\text{g/g wet}$ と地点 h の濃度 $0.043\mu\text{g/g wet}$ は相対的にやや高かった。

3.1.4 重金属濃度の種間差

表1に示した結果のうち3種類の二枚貝を採取できた地点での二枚貝間の元素濃度の相関関係を図4に示す。グラフに図示したとおり、ムラサキイガイとマガキのPbおよびCd濃度の間には非常に高い相関関係が認められた。ムラサキイガイとアサリの間ではZn濃度で有意な相関が認められ、マガキとアサリの間ではCu濃度で有意な逆相関が認められた。詳細は次報14)で述べるが、底泥試料ではR工場の影響がPbほどではないもののCuについても見られており、底泥中に生息するアサリにはその影響が現れたのに対して潮間帯や水中に生息するマガキは影響を受けなかったと考えられる。また、CuとZnは必須元素であり、PbやCdのような汚染元素と異なり生体内でその濃度を維持するホメオスタシスが機能していることも関係していると思われる。



各元素における異なる二枚貝同士の濃度相関係数

生物種間	Pb	Cd	Cu	Zn
ムラサキイガイーマガキ	0.999996**	0.987**	-0.740	-0.697
ムラサキイガイーアサリ	—	—	0.586	0.894*
マガキーアサリ	—	—	-0.979**	-0.301

ムラサキイガイーアサリおよびマガキーアサリのPb、Cd濃度の相関は、N.D.値を含むため省いた。

*: $p < 0.05$, **: $p < 0.01$

図4. 各元素における異なる二枚貝同士の濃度相関関係

3.1.5 食品としての安全性

Pbの過剰摂取は人体に対し、造血系や神経系をはじめ様々な悪影響をもたらすことが知られている¹⁵⁾。また、Cdも人体に対し、腎機能障害や発がん性をはじめ様々な悪影響をもたらすことが知られている¹⁶⁾。そこで、2008年の調査において局所的に高濃度で検出されたPbとCdについて食品の安全性という観点から分析結果を評価する。

日本においては、食品の安全性に関する貝類のPbおよびCd濃度基準は定められていない。このため、諸外国で定められている食品安全基準¹⁷⁾と照らし合わせてみた。Pbの食品安全基準は、EUでは $1.5\mu\text{g/g wet}$ 、オーストラリアとニュージーランドでは $2\mu\text{g/g wet}$ と定められている。Cdは、CODEX委員会（FAO及びWHOにより設置された国際的な政府間機関）において、基準値案ではあるがマガキ、ホタテを除く海産二枚貝で $1.0\mu\text{g/g wet}$ 、EUでも $1.0\mu\text{g/g wet}$ と定められている。これらの基準値と表1で示した値とを比較すると、まずPbに関して

は、湾全体で見れば問題のない値であるが、R工場が位置する入江付近ではムラサキイガイ、アサリ、マガキの全てが基準値を大きく上回っていた。特にアサリの値229 $\mu\text{g/g}$ wetは基準値を数100倍も超える値だった。Cdについては、R工場の排水が流入する入江付近のムラサキイガイ、マガキが基準値を超え、アサリは僅かながらも基準値以下だった。

次にPb、Cdの耐容摂取量との観点から考察する。JECFA（WHOとFAOの合同食品添加物専門家会議）では、PbのPTWI（暫定的耐容週間摂取量）を25 $\mu\text{g/kg}$ 体重/週、CdのPTWIを7 $\mu\text{g/kg}$ 体重/週と定めている。この値に基づいて、体重50kgの人1日あたりの耐容摂取量を計算すると、Pbでは179（ $\mu\text{g}/50\text{kg}$ 体重/日）、Cdでは50（ $\mu\text{g}/50\text{kg}$ 体重/日）となる。貝類1個体の可食部をムラサキイガイは7g、アサリは4g、マガキは15gと仮定すると、一日に摂取できる個体数は以下のように計算できる。

Pbの場合：摂取可能個体数（個）=179/ { Pb含有量（ $\mu\text{g/g}$ ） \times 1個体の可食部重量（g）}

Cdの場合：摂取可能個体数（個）=50/ { Cd含有量（ $\mu\text{g/g}$ ） \times 1個体の可食部重量（g）}

これらの式に基づいて算出した各地点の生物試料摂取可能個体数を表2に示す。Pb耐容摂取量を観点にした摂取可能個体数は、a地点のアサリ1個体以下、b地点のムラサキイガイ2個、マガキ5個、c地点のマガキ1個、その他は10個以上となった。Cd耐容摂取量を観点にした摂取可能個体数はb地点のムラサキイガイ4個、マガキ1個、c地点のマガキ1個、e地点のムラサキイガイは7個マガキは2個、gおよびh地点のマガキ5個、その他は10個以上となった。これらはいくまでPbおよびCdを全てムラサキイガイあるいはアサリから毎日摂取した場合の計算である。厚生労働省の食品安全に関するリスクプロファイルシート¹⁶⁾によれば、PbおよびCdの全摂取量のうちコメ由来のものが29および43%、魚介類由来のものが1および3%とされており、コメ他からの摂取を含め合わせて考えれば、実際に摂取可能な個体数は表2に示したよりも少なくなる。このことから、特に舞鶴湾のPb汚染海域a、b、c地点では食品の安全性が認められない結果となった。幸いにもa、b、c地点は非漁場に設定されている海域であるため、ここでとられた貝類が商品として流通することは通常では考えられない。しかしながら、海のレジャーでこの海域の魚介類を捕獲して多量に摂取する可能性を考えれば危険な状態である。

表2. PbおよびCdの耐容摂取量から算出した1日に摂取可能な二枚貝の個体数

元素	生物種名	採取地点								
		a	b	c	d	e	f	g	h	i
Pb	ムラサキイガイ		2.6		11.4	7.8	50.7		41.3	49.2
	アサリ	0.2	10.5							
	マガキ		5.6	1.4		12.7		17.6	29.0	
Cd	ムラサキイガイ		4.4		11.9	7.0	29.9		11.3	13.5
	アサリ	13.0	20.8				19.9	46.3		
	マガキ		1.9	1.1		2.7		5.8	5.0	

PTWI（暫定的耐容週間摂取量）値はPb：25 $\mu\text{g/kg}$ 体重/週、Cd：7 $\mu\text{g/kg}$ 体重/週

PTWI値をもとに計算すると体重50kgの人の1日あたりの耐容摂取量はPb：179 μg 、Cd：50 μg

1個体の軟体部重量を、ムラサキイガイは7g、アサリは4g、マガキは15gとして以下の式で計算。

Pb：摂取可能個体数(個)=179/ { Pb含有量($\mu\text{g/g}$) \times 1個体の軟体部重量(g)}

Cd：摂取可能個体数(個)=50/ { Cd含有量($\mu\text{g/g}$) \times 1個体の軟体部重量(g)}

3.2 移植試験

京大水産実験所の海域から各地点に移植したムラサキイガイ軟体部の各元素濃度を1個体ずつ10個体測定した結果を平均値と標準偏差で表3に示した。Pbは移植前の地点*i*で平均値0.52 μg/g wetだったが、移植①から④まで順に4.6、2.9、1.1、0.76 μg/g wetと移植した地点全てで濃度が上昇するとともに汚染源に近いほど濃度が高くなった。Cdは移植前の地点*i*で0.53 μg/g wetだった濃度は0.45–0.70 μg/g wetとなり、大きな変化は見られなかった。Cuでは移植前に1.3 μg/g wetだった濃度が0.58–0.99 μg/g wet 4地点とも減少していた。Znでは移植前に38 μg/g wetだった濃度が20–29 μg/g wetと4地点とも減少し、地点間の大きな差も見られなかった。移植前に0.011 μg/g wetだったHg濃度は、移植後も0.008–0.013 μg/g wetとほとんど変わらなかった。移植試験の結果ではPbのみ顕著な濃度上昇が見られ、現地採取試料の測定結果を反映するものだった。移植①および②におけるPb濃度は、3.1で示した他湾の結果および様々な基準値と比較しても高濃度であった。さらに現地試料採取地点dの試料のPb濃度2.4 μg/g wetが、同じ地点に移植した移植③地点の試料のPb濃度1.1 μg/g wetの2倍以上だったことから、移植期間を延長すれば、今回の濃度以上に上昇する可能性も考えられる。

移植①地点に移植したムラサキイガイの貝殻表面に付着していた泥を分析した結果、Pb、Cd、Cu、Zn濃度はそれぞれ12,924、8、809、15,164 μg/g dryで、舞鶴湾の非汚染海域地点の底泥のそれぞれ1,000、10、10、100倍程度高かった。

表3. 移植したムラサキイガイ軟体部のPb、Cd、Cu、Zn濃度（10個体の平均値±標準偏差）

元素	移植前	ムラサキイガイ移植地点			
		移植①	移植②	移植③	移植④
Pb	0.52 ± 0.26	4.6 ± 1.0	2.9 ± 1.1	1.1 ± 0.2	0.76 ± 0.27
Cd	0.53 ± 0.15	0.70 ± 0.16	0.58 ± 0.14	0.45 ± 0.07	0.46 ± 0.05
Cu	1.3 ± 0.4	0.88 ± 0.14	0.58 ± 0.28	0.99 ± 0.40	0.84 ± 0.18
Zn	38 ±15	23 ± 9	20 ± 6	20 ± 7	29 ±18
Hg	0.011 ± 0.001	0.010 ± 0.002	0.013 ± 0.003	0.012 ± 0.008	0.008 ± 0.001

単位：μg/g wet

これらのことからR工場前の入江はPbについて未だ新たな汚染を引き起こす状況にある事がわかった。非常に高濃度のPbが検出された付着泥が汚染を引き起こす大きな原因の一つだと考えられる。ムラサキイガイ付着泥の元素濃度が高い理由については次報¹⁴⁾で詳しく述べるが、高濃度に汚染された土壌の陸上からの流入が主な原因ではないかと考えている。

4. まとめ

Pbはムラサキイガイ、アサリ、マガキ全てにおいてR工場が位置する入江の濃度が非常に高く、食品として見た場合もかなり危険な濃度であった。移植したムラサキイガイも2週間弱で明らかに濃度が上昇すると共に、R工場に近いほど高濃度となった。これらのことから、現

地の貝類は依然としてPbで汚染されており、生物に対して新たなPb汚染を引き起こす状況であることがわかった。Cdはムラサキイガイ、アサリ、マガキ全てにおいて入江付近の濃度が高く、食品として見ても安全性がやや心配な状況だった。ただ、移植したムラサキイガイの濃度は上昇していなかった。これらのことから現存している個体にCdが比較的高濃度に残存しているが、海水域での新たな汚染の危険性は低いと考えられる。Cuに関しては、ムラサキイガイについては現地、移植調査共に濃度は低かったが、アサリ、マガキでは入江付近でやや高かった。このことから現存している個体に通常よりもわずかに多いCuが残存しているものの、海水域での新たな汚染の危険性は低いと考えられる。Znはムラサキイガイについては現地、移植調査共に濃度は低かったが、入江付近ではアサリは明らかに、マガキはやや高かった。このことから現存している個体に若干多めのZnが残存しているものの、海水域での新たな汚染の危険性は低いと考えられる。Hgは3種類の生物試料全ての調査結果で問題となるような高い濃度は見受けられなかった。以上をまとめると、R工場による様々な対策によっても目立った環境改善は今のところ見られない。特にPbに関しては未だ新たな汚染の危険性も示唆された。貝類は数年間生存するため、汚染対策後に成育した個体の濃度はどの様になっていくのかも含め、今後も長期的なモニタリングが必要だと考える。

3種類の生物試料の間でモニタリング結果がやや異なっていたことに関しては、濾過能力その他の生理生態の違い¹⁷⁻²⁰⁾や生息場所の違いなどが関係していると考えられる。また、重金属の存在形態と底泥や水域、そこに生息する生物との関係には様々な要因が複雑に絡まっている²¹⁾。汚染が著しかったPb、比較的汚染の進んでいたCdでムラサキイガイとマガキの濃度に有意な相関関係が見られたこと、アサリが底泥の分析傾向を反映していることから、海水中を生息域とするムラサキイガイ、マガキは海水域の状況を、底泥が生活圏であるアサリは底泥の状況をそれぞれ判断する指標生物として有用であり、これらを組み合わせることでよりの確に水圏環境の現状を把握できることが確かめられた。

5. 謝辞

本研究の一部は2008年度神戸女学院大学研究所助成金によって行ったものであり、記して感謝の意を表す。また、舞鶴湾でのサンプリングでは京都大学フィールド科学研究センターの佐藤一夫氏に御協力いただいた。

参考文献

- 1) 江口さやか, 稲葉法子, 白石有希, 上野正博, 益田玲爾, 山下 洋, 山本義和. 京都府舞鶴湾内の重金属汚染実態調査—鉛汚染の現状把握を中心に—. 神戸女学院大学論集 2008; 55(2): 117-131.
- 2) E. D. Goldberg. The mussel watch. *Marine Pollution Bulletin* 1975; 6: 111-113.
- 3) S. Topcuoglu, C. Kirbasoglu and Y. Z. Yilmaz. Heavy metal levels in biota and sediments in the northern coast of the Marmara Sea. *Environmental Monitoring and Assessment* 2004; 96: 183-189.
- 4) R. Beiras, N. Fernandez, J. Bellas, V. Besada, A. Gonzalez-Quijano and T. Nunes. Integrative assessment of marine pollution in Galician estuaries using sediment chemistry, mussel bioaccumulation, and embryonic larval toxicity bioassays. *Chemosphere* 2003; 52: 1209-1224.
- 5) 高柳和史, 坂見知子. 沿岸海域の重金属汚染モニタリングに向けた指標生物候補としての二枚貝の特

- 性—総説—. 水産総合研究センター研究報告 2002.; 2: 35-46.
- 6) 山崎正夫, 安藤晴夫. ムラサキイガイの多元素分析による東京湾水質のモニタリングに関する研究(その4) —微量元素濃度の季節変動について—. 東京都環境科学研究所年報 1993; 112-119.
 - 7) B. J. Richardson, J. S. Garnham and J. G. Fabris. Trace metal concentrations in mussels (*Mutilus edulis planulatus* L.) transplanted into Southern Australian Waters. *Marine Pollution Bulletin* 1994; 28: 392-396.
 - 8) 森田昌敏. ムラサキイガイ等の二枚貝中に含まれる微量元素及び有機汚染物質. 環境庁国立公害研究所 1989.
 - 9) M. Oji, T. Arai, S. Midorikawa, H. Harino, R. Masuda, and N. Miyazaki. Distribution and fate of organotin compounds in Japanese coastal waters. *Water, Air, and Soil Pollution*. 2007; 178: 255-265.
 - 10) 山口友加, 佐藤太, 秋山賢一郎, 河野恵里子, 堤史薫, 高田秀重. ムラサキイガイを用いた沿岸海域の微量有機物質汚染のモニタリング—汚染物質の蓄積特性と東京湾への応用—. 地球科学 2000; 34: 41-57.
 - 11) 山本義和. ムラサキイガイを指標とした沿岸海域における数種の重金属汚染に関する調査. 西宮市建設局公園緑地課西宮市域海浜生物保全のための報告書第2部 1983; 3-6.
 - 12) 川合真一郎, 山本義和. 「第3版・明日の環境と人間—地球をまもる科学の知恵—」化学同人. 2004; 159-163.
 - 13) Molvær J., J. Knutzen, J. Magnusson, B. Rygg, J. Skei og J. Sørensen. Klassifisering av miljökvalitet i fjorder og kystfavann. SFT 1997; TA1467.
 - 14) 江口さやか, 薄元志帆, 山本沙織, 芳村碧, 上野正博, 益田玲爾, 山下洋, 山本義和. 京都府舞鶴湾の鉛を中心とした重金属汚染実態調査3～底泥調査と陸上土壌調査～. 神戸女学院大学論集 2009; 56(1): 165-178.
 - 15) 中西準子, 小林憲弘, 内藤 航. 「詳細リスク評価書シリーズ9 鉛」(NEDO 技術開発機構, 産業技術総合研究所共編) 丸善株式会社. 2006
 - 16) 中西準子, 小野恭子, 蒲生昌志. 「詳細リスク評価書シリーズ13 カドミウム」(NEDO 技術開発機構, 産業技術総合研究所共編) 丸善株式会社. 2008
 - 17) 農林水産省: 「食品安全に関するリスクプロファイルシート」(http://www.maff.go.jp/www/council/council_cont/syohi_anzen/risk_kanri/dai03/siry03.pdf).
 - 18) 磯野良介, 中村義治. 二枚貝による海水濾過量の推定とそれにおよぼす温度影響の種間比較. 水環境学会誌 2000; 23: 683-689.
 - 19) M. Sprung and U. Rose. Influence of food size and food quantity on the feeding of the mussel *Dreissena polymorpha*. *Oecologia*. 1988; 77: 526-532.
 - 20) Dexter S and Reinaldo M. Filtration of particles from suspension by the American Oyster *Crassostrea virginica*. *The Biological Bulletin*. 1970; 139: 248-264.
 - 21) C. B. JØRGENSEN and E. D. GOLDBERG. Particle Filtration in Some Ascidians and Lamellibranchs. *The Biological Bulletin*. 1953; 105: 477-489.
 - 22) S. N. Luoma. Can we determine the biological availability of sediment-bound trace elements? *Hydrobiologia*. 1989; 176/177: 379-396.

(原稿受理 2009年3月24日)