

多摩川及び周辺水域に生息するカワウの有害物質 蓄積とその影響評価に関する環境化学的研究

1 9 9 9 年

田 辺 信 介

愛媛大学沿岸環境科学研究センター

目 次

はじめに	1
1. 試料と方法	3
(1) 試料	3
(2) 化学分析	4
2. 結果と考察	7
(1) BTs の蓄積特性	7
(2) 有機塩素系殺虫剤の蓄積特性	10
(3) 有機塩素系殺虫剤の残留組成	14
(4) 有機塩素系殺虫剤の生物濃縮	16
(5) PCBs の蓄積特性	17
(6) PCBs の異性体組成	21
(7) 強毒性コプラナ PCBs の蓄積特性	26
(8) PCBs の毒性影響評価	27
(9) PCBs の薬物代謝酵素誘導	29
3. 要 約	31
参考文献	32

多摩川及び周辺水域に生息するカワウの有害物質蓄積と その影響評価に関する環境化学的研究

はじめに

ブチルスズ化合物 (BTs) は微生物や藻類、貝類などの増殖を抑制するため、養殖漁網や船舶の防汚塗料として大量に使用され、一部の海洋生物に有害な影響を与えた (Alzieu *et al.*, 1986 ; Gibbs & Bryan, 1986)。有機スズ化合物 (OTs) の汚染研究は、水質や底質 (Maguire, 1986)、甲殻類 (Wade *et al.*, 1988 ; Higashiyama *et al.*, 1991) や魚類 (Suzuki *et al.*, 1992 ; Kannan *et al.*, 1995) が中心であったが、最近になって Iwata ら (1994, 1995) は海棲哺乳類から BTs を検出し、食物連鎖を通して高次生物に濃縮することを明らかにした。Schlatterer ら (1993) は、トリブチルスズオキサイドにより、ウズラ卵胚の受精率や孵化率が減少することを報告した。また Coenen ら (1992) は、トリブチルスズオキサイドにより、ウズラ (*Coturnixcoturnix japonica*) 肝臓の酵素活性やホルモンが阻害されることを示した。このように OTs は、実験動物としての鳥に数百 ppm のレベルで毒作用を示すことが報告されているが、野生の鳥類における OTs の蓄積や毒性のデータはほとんどない。

一方、ポリ塩化ビフェニール (PCBs)、DDTs、ヘキサクロロシクロヘキサン (HCHs)、ヘキサクロロベンゼン (HCB)、そしてクロルダン化合物 (CHLs) などの有機塩素化合物 (OCs) は、水棲生物だけでなく、陸棲生物にも高濃度で蓄積し、悪影響を与えた。これらの化合物は、食物連鎖を通じて高次生物に濃縮するため、魚食性鳥類は相当濃度で OCs を蓄積し、また毒性影響も顕在化している。卵殻の薄化による孵化の失敗 (Anderson & Hickey, 1972 ; Cooke, 1979) や卵胚の死亡、雛鳥の浮種 (Gilbertson *et al.*, 1991) など、多数の異常例が報告されている。また、鵜など魚食性鳥類では、OCs の解毒に関与する肝ミクロゾームのモノオキシゲナーゼ活性の低いことが報告されており、そのため OCs を高濃度で蓄積すると考えられている (Walker *et al.*, 1984 ; Fossi *et al.*, 1995)。

鵜は行動範囲が比較的狭いため、地域的な化学汚染を理解するのに適した指標生物である (Scharenberg, 1991)。鵜の OCs 蓄積とその毒性についてはいくつかの報告があり、死亡事例の原因として PCBs の影響が示唆されたものもある (Koeman *et*

al., 1973 ; Wilson & Earley, 1986 ; Somer *et al.*, 1993)。五大湖産のミミヒメウ (*Phalacrocorax auritus*) は、コプラナ PCB などダイオキシン様物質の暴露によって生殖機能が攪乱され、毒性影響が深刻化している (Yamashita, 1993)。しかしながら、日本産の鵜に関する OCs データはほとんど報告されていない。そこで本研究では、東京近郊で営巣するカワウおよびその比較対照群として琵琶湖産のカワウを用いて、OCs と BTs による汚染の現状ならびに、その影響について調査した。また、PCB 異性体も分析し、毒性の強いコプラナ PCBs に注目して TEQ 値 (2, 3, 7, 8-TCDD 毒性等量値) を求め、その影響を評価した。

1. 試料と方法

(1) 試料

不忍池から19羽のカワウの死亡個体を、東京湾の御台場から5羽の死亡個体と3個の未孵化卵を採取して分析に供した。さらに比較のため、琵琶湖の成鳥10検体も分析に供した。カワウの成長は体重、色、羽、生殖腺の発達によって判定した。

また東京湾でスズキ (*Lateolabrax japonicus*)、ボラ (*Mugil cephalus*)、イシモチ (*Argyrosomus argentatus*)、コノシロ (*Konosirus punctatus*) の4種14検体、多摩川でクチボソボラ (*Neomyxus leuciscus*)、オイカワ (*Zacco platypus*)、モロコ (*Squalidus sp.*)、ハヤ (*Moroco sp.*)、ナマズ (*Silurus asotus*)、コイ (*Cyprinus carpo*)、ギンブナ (*Carassius auratus langsdorfii*) の7種24検体を採取し、東京近郊で営巣しているカワウの餌として分析に供し、考察した。試料の採取地点と生体計測情報は、図1および表1に示した。

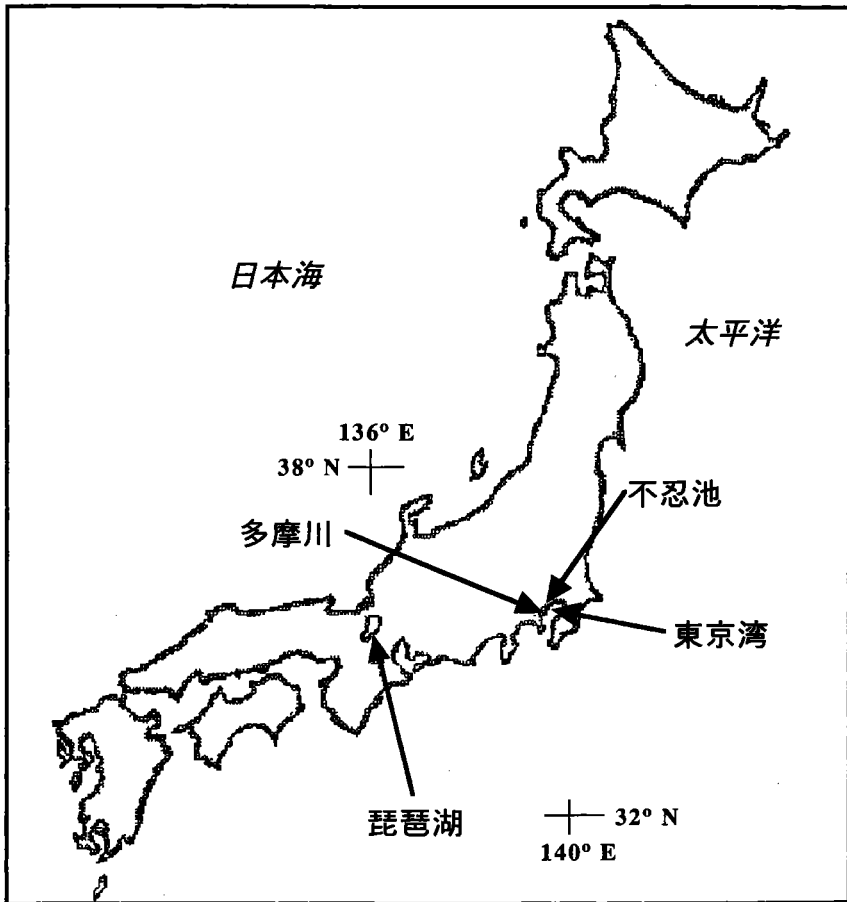


図1 試料採取地点

表1. 分析に供したカワウ及びその餌生物に関する生体計測情報

採取地点	採取年月	成長段階/種名	検体数	平均体長 (cm)	平均体重 (g)	平均脂肪含量 (%)
カワウ						
琵琶湖	1993年6月	成鳥	10	77.7	2120	4.4
不忍池	1993年11月～ 1994年3月	雛鳥	5	57	1347	3.5
		幼鳥	6	78.4	1477	3.6
		成鳥	8	80.5	1970	3.6
御台場	1998年3月～4月	卵	3	*	46.5 †	4.8
		雛鳥-1	1	*	41	3.0
		雛鳥-2	1	40	420	3.6
		雛鳥-3	2	50	610	3.5
		雛鳥-4	1	78	1260	3.6
餌生物						
琵琶湖	1993年6月	ウグイ	1	18	102	6.1
		ブルーギル	1	20	261	5.3
		アユ	1	16.5	101	12.6
東京湾	1994年9月	スズキ	3	20.2	120	6.5
		ボラ	3	22.2	161	3.6
		イシモチ	5	21.6	157	12.6
		コノシロ	3	17	98.4	8.0
多摩川	1997年9月	オイカワ	2	9	8	7.6
		クチボソボラ	2	7.9	11	12.4
		ハヤ	10	9.2	8.7	7.5
		モロコ	2	5.4	8	3.1
		ナマズ	1	15	59	2.5
	1998年3月	ギンブナ	3	17	100	3.0
		コイ	4	15.7	75.8	0.4

*調査記録なし

†殻を含む

(2) 化学分析

BTsの分析はIwataら(1994)に従った。臓器・組織試料約2gを分取し、2N塩酸及び0.1%トロポロン含有アセトン70mlを加え、攪拌・抽出した。その全量を遠心分離し、アセトン層を分取したのち、あらかじめ水500mlを入れた1Lの分液ロートに移した。再び、0.1%トロポロン含有アセトンを試料に加え、同様の操作を行い抽出液を併せた。これに0.1%トロポロン含有ベンゼンを加え、振とう・静置後、上層のベンゼン層を分取した。さらに水層に0.1%トロポロン含有ベンゼンを加えて抽出し、先のベンゼン層に併せた。ベンゼン抽出液に無水硫酸ナトリウム35gを加えて脱水し、ロータリーエバポレーターで濃縮後、比色管に移しベンゼン

で5 mlに定容した。この抽出液に*n*-プロピルマグネシウムブロミド5 mlを滴下し、30分間ウォーターバス(40℃)中で軽く振とうして誘導体化した。反応終了後、水浴上で冷却し、1 N硫酸20mlを加え、未反応の*n*-プロピルマグネシウムブロミドを分解した。この抽出液をあらかじめヘキサン：ベンゼン(9：1)20mlと水40mlを入れた100mlの分液ロートにメタノール5 mlで洗い込み、15分間振とうした。その後、抽出液をロータリーエバポレーターで1 ml以下まで濃縮し、フロリジル8 gをヘキサンの湿式充填したカラム上に、少量のヘキサンで洗い込みながら添加した。上部よりヘキサン80mlを流下し、カラムからの溶出液を全量回収した。溶出液をロータリーエバポレーターで1 ml以下まで濃縮した後、濃縮液を少量のヘキサンで試験管に洗い込みながら5 ml定容とし、GC注入用試料液とした。

羽のBTs分析は、腹部より約0.3gを採取し、洗剤で洗浄して一昼夜風乾し、細切後4 Nの水酸化カリウム20ml溶液に浸した。その溶液を40℃で1時間振とうし、塩酸で中和後、組織と同様の分析操作を行った。

BTsの定量は、キャピラリーカラム(DB-1)を装着したGC-FPD(Hewlett-Packard 5890 Series II)によった。

体組織及び羽中のMBT(モノブチルスズ)、DBT(ジブチルスズ)、TBT(トリブチルスズ)の検出限界は、それぞれ5、3、1(体組織)と25、6、3(羽)ng/g(湿重当り)であった。またMBT、DBT、TBTおよびHexyl TBT(内部標準)の添加回収試験の成績は、それぞれ105±13、121±6、82±14、96±7%SD(平均±標準偏差、*n*=3)であった。また羽分析の平均回収率はそれぞれ97、115、95、91%(*n*=2)であった。

OCsの分析はTanabeら(1984)の方法に従った。試料は無水硫酸ナトリウムでホモジナイズ後、ソックスレー抽出器を用いてジエチルエーテル：ヘキサン(3：1)混合溶液400mlで7時間抽出した。抽出液はKD濃縮器で10mlに濃縮後、2mlは脂肪含量の測定に用いた。また残余抽出液2mlは20gのフロリジルを充填したカラムに添加し、窒素ガスでヘキサンを除去した。フロリジルに吸着したOCsは、ヘキサン洗浄水を20%含むアセトニトリル150mlで溶出した。溶出液はあらかじめ100mlのヘキサンと600mlのヘキサン洗浄水を入れた分液ロートに集めた。この分液ロートを15分間振とうした後、6時間以上静置し、ヘキサン層と水層を分離させた。約100mlのヘキサン洗浄水で3回水洗した後、KD濃縮器で6mlに濃縮した。その濃縮液に濃硫酸を加えて静置し、上層のヘキサン層を別の試験管に移し、同じ操作

を繰り返した。このヘキサン層をヘキサン洗浄水で水洗した後、フロリジルカラムに供して以下の分画操作を行った。130℃で12時間活性化させたフロリジル12gをガラスカラムに充填し、分画用のカラムとした。ヘキサン抽出液4 mlをカラムに添加した後、80mlのヘキサン（第一画分）と20%ジクロロメタン含有ヘキサン150ml（第二画分）で溶出させた。第一画分はPCBs、HCB、*p,p'*-DDE と *trans*-nonachlor が溶出し、第二画分では、*p,p'*-DDT、*p,p'*-DDD、HCHs、そして残りのCHLs が溶出した。これらの溶出液はKD濃縮器で濃縮後、GC-ECD に注入した。

OCs の定量には、キャピラリーカラム（DB-1）を装着したGC-ECD（Hewlett-Packard 5890 Series II）を用いた。

検出限界は有機塩素系殺虫剤で0.2ng/g、PCBs で1.0ng/gであった。添加回収試験の成績は PCB 異性体で94~102%、HCB=92%、HCHs=90%、CHLs=92%、そして DDTs=87%であった。

PCBs の異性体分析は、Wakimotoら（1971）の方法に従った。先の Tanabe ら（1984）の方法で得られた抽出液を、1 N水酸化カリウムエタノール溶液200mlに添加し、100℃のウォーターバス上で1時間加熱した。あらかじめ水200ml、ヘキサン100mlを入れた分液ロートにアルカリエタノール溶液を移し、15分間振とうした。静置後、下層の水層を捨て新たにヘキサン洗浄水を加えて振とうした。この操作を3回繰り返した後、KD濃縮器で6 mlまで濃縮した。次に120℃で3時間活性化したシリカゲルをカラムに湿式充填し、濃縮液を添加後、200mlのヘキサンで溶出し、再びKD濃縮器で5 mlまで濃縮した。この濃縮液1 mlを分取し、ヘキサンで5 mlまで定容したのち、5%の発煙硫酸を含んだ濃硫酸を加えてクリーンアップした。その後ヘキサン層をヘキサン洗浄水で洗い、GC-MSにより定性・定量した。また残余の濃縮液4 mlは *non-ortho* コプラナ PCBs の異性体分析に供した。125mgの活性炭を充填したカラムに先の濃縮液4 mlを添加し、ジクロロメタン20%、ヘキサン80%の混合溶液100mlで、*non-ortho* コプラナ PCB 異性体以外の PCB 異性体を溶出させた。その後、ベンゼンと酢酸エチルの等量混合液100mlで、*non-ortho* コプラナ PCB 異性体を溶出させた。溶出液はロータリーエバポレーターを用いて極少量まで濃縮し、ヘキサンを添加して転溶した。その溶液に5%の発煙硫酸含有濃硫酸を加えてクリーンアップを行い、ヘキサン層をヘキサン洗浄水で水洗したのち、GC-MS（Hewlett-Packard 5890 GC-5972）によって定性・定量した。標準溶液の添加回収試験の成績は、PCB 異性体全体で105-106%、*non-ortho* コプラナ PCB 異

non-ortho コプラナ PCB 異性体は93-106%であった。

本研究で得られたデータの統計処理は、Macintosh PC のソフトSPSS 6.1によった。

2. 結果と考察

(1) BTs の蓄積特性

東京近郊と琵琶湖で採取されたカワウの肝臓、腎臓、卵、そして羽中の BTs 濃度の平均値と濃度範囲を表 2 に示した。不忍池で採取されたカワウで最も高い BTs 濃度を示したのは幼鳥で、次いで成鳥、雛鳥の順であった。幼鳥は肝臓 ($160 \pm 170 \text{ ng/g}$ 湿重当り、6 検体) や腎臓 ($120 \pm 81 \text{ ng/g}$ 湿重当り、6 検体) よりもやや羽の濃度が高く ($190 \pm 110 \text{ ng/g}$ 湿重当り、4 検体)、一方雛鳥では肝臓が高く ($110 \pm 70 \text{ ng/g}$ 湿重当り、5 検体)、次いで腎臓 ($76 \pm 75 \text{ ng/g}$ 湿重当り、5 検体)、羽 ($65 \pm 34 \text{ ng/g}$ 湿重当り、4 検体) の順であった。また不忍池の成鳥は、腎臓 ($97 \pm 49 \text{ ng/g}$ 湿重当り) や肝臓 ($79 \pm 54 \text{ ng/g}$ 湿重当り) よりも羽 ($190 \pm 95 \text{ ng/g}$ 湿重当り) の濃度が高かった。一方琵琶湖のカワウは、いずれの組織も不忍池や御台場の個体より高濃度を示し、腎臓 ($300 \pm 150 \text{ ng/g}$ 湿重当り)、肝臓 ($280 \pm 280 \text{ ng/g}$ 湿重当り)、羽 ($250 \pm 170 \text{ ng/g}$ 湿重当り) の濃度に大きな差はみられなかった。

雛鳥の羽中 BTs の平均濃度は、幼鳥や成鳥よりも低値であった。幼鳥が成鳥よりも高濃度を示した理由としては、成鳥の捕獲が換羽時期あるいは繁殖時期であったためと考えられた。鳥類は繁殖、換羽時期にメチル水銀を大量に排泄し、その結果、体内の濃度を減少させている (Honda *et al.*, 1986a ; Lewis and Furness, 1991)。BTs は御台場で採取されたカワウの卵でも検出された。よって繁殖、換羽時期の成鳥カワウは、産卵や羽の生え替わりによって BTs を体外に排泄したため、未成熟個体よりも濃度が低くなったと考えられた。

東京湾の魚から検出された BTs 濃度は琵琶湖と同程度であり (表 3)、多摩川よりも数倍高値であった。平均 BTs 濃度は東京湾のスズキで最も高く、 74 ng/g (湿重当り) であった。琵琶湖の魚ではアユが最も高い濃度を示し (55 ng/g)、ついでウグイ (52 ng/g)、ブルーギル (10 ng/g) の順であった。この値は以前報告されている濃度とほぼ同程度であった (Tsuda *et al.*, 1986 ; Takayama *et al.*, 1995)。多摩川産魚類の低い BTs 濃度は、流域の BTs 汚染源が少ないことを示唆している。ところでカワウの BTs 平均濃度は、不忍池よりも琵琶湖で高濃度蓄積がみられた

表2. 琵琶湖及び不忍池で採取したカワウの腎臓、肝臓、羽における
ブチルスズ化合物の濃度 (湿重当り ng/g)

試料	検体数	分析組織	MBT	DBT	TBT	Total BTs
琵琶湖						
成鳥	9	腎臓	73 (23 - 180)	210 (70 - 390)	15 (6 - 23)	300 (120 - 540)
		肝臓	110 (12 - 700)	160 (92 - 300)	16 (5 - 22)	280 (140 - 1010)
		羽	130 (<25 - 360)	77 (<6 - 180)	37 (<3 - 63)	250 (33 - 450)
不忍池						
雛鳥	5	腎臓	17 (2 - 44)	44 (8 - 140)	14 (10 - 20)	76 (25 - 200)
		肝臓	30 (20 - 61)	54 (33 - 170)	15 (10 - 23)	110 (73 - 240)
		羽	25 (<25 - 51)	73 (14 - 45)	19 (<3 - 10)	65 (28 - 99)
幼鳥	6	腎臓	21 (4 - 46)	87 (26 - 150)	16 (3 - 34)	120 (34 - 220)
		肝臓	62 (12 - 210)	92 (17 - 250)	17 (5 - 40)	160 (35 - 500)
		羽	98 (<25 - 160)	73 (23 - 140)	15 (<3 - 30)	190 (23 - 270)
成鳥	8	腎臓	34 (12 - 67)	52 (19 - 120)	11 (3 - 25)	97 (36 - 190)
		肝臓	24 (5 - 86)	40 (12 - 97)	10 (3 - 35)	79 (19 - 190)
		羽	120 (<25 - 260)	51 (<6 - 80)	21 (<3 - 77)	190 (110 - 360)
御台場						
卵	2	全組織	2.5 † (<5 - 5)	3.5 † (<3 - 7)	3 † (<1 - 6)	9 † (nd - 18)
雛鳥-1	1	全組織	8	16	7	31
雛鳥-2	1	肝臓	20	50	13	83
雛鳥-3	2	肝臓	34 (30 - 37)	60 (50 - 70)	8 (6 - 9)	100 (86 - 120)
雛鳥-4	1	肝臓	12	34	10	56

(): 範囲

† 2卵のデータの平均

(表2)。この結果は、不忍池のカワウが東京湾や多摩川などの限られた地域だけでなく、その他の BTs 汚染地域で採餌を行っていることを暗示している。また Fossi ら (1995) は、鵜の餌は数種の魚に限られていることを報告している。よって不忍池のカワウでみられた低濃度の BTs 蓄積は、季節的な餌の変化など、その他の要因も考慮する必要がある。

表3. カワウの餌生物から検出されたブチルスズ化合物の濃度 (湿重当り ng/g)

採取地点	種名	検体数	MBT	DBT	TBT	Total BTs
琵琶湖	アユ	1	14	7	34	55
	ブルーギル	1	<5	<3	6	6
	ウグイ	1	7	9	36	52
不忍池	スズキ	7	7	10	57	74
	ボラ	3	10	3	10	23
	イシモチ	3	<5	5	49	54
	コノシロ	5	17	7	15	36
多摩川	オイカワ	2	<5	3	2	5
	クチボソボラ	2	<5	4	2	6
	ハヤ	10	5	<3	2	7
	モロコ	2	5	3	<1	8
	ナマズ	1	5	3	2	10
	ギンブナ	3	14	<3	4	18
	コイ	4	<5	<3	3	3

(2) 有機塩素系殺虫剤の蓄積特性

カワウとその餌生物の有機塩素系殺虫剤の濃度を、表4と5に示した。DDTs はいずれの地域でも最も高い濃度で検出され、ついでCHLs、HCB、HCHsの順であった。不忍池の成鳥の濃度レベルは、琵琶湖の個体よりも有意に高値を示した ($p < 0.01$)。また御台場で採取した雛鳥では、有機塩素系殺虫剤濃度の成長に伴う希釈がみられた。DDTsは、日本で使用されたその他の殺虫剤に比べ安定性が高い。カワウでみられるDDTsの高濃度蓄積は、その生体内安定性が反映されているものと考えられる。不忍池の雛鳥、幼鳥、成鳥では、分析した全ての化合物で成長に伴う蓄積がみられた。本研究で明らかになったカワウ体内のDDTs濃度は、近年報告された日本の海棲哺乳類や鳥類に蓄積していた濃度とほぼ同程度か、やや高い値を示した (Tanabe *et al.*, 1987; Yamashita *et al.*, 1992; Environmental Agency, 1995) (表6)。また日本のカワウは、米国、五大湖産のミミヒメウ (Tillitt *et al.*, 1992; Yamashita *et al.*, 1993) の卵から検出されたDDTs濃度よりも高く、ドイツ (Scharenberg, 1991)、カナダ (Somers *et al.*, 1993)、イタリア (Fossi *et al.*, 1995) 産の鵜の臓器・組織よりも高い濃度が認められた (表6)。Dirksonら (1995) は、高濃度のOCs蓄積が繁殖率に影響を与えることを示し、またFossiら (1995) は、鵜のチトクロムP-450酵素系の活性の弱さが生体異物の高濃度蓄積を導き、肝臓が障害を受けると血清中の γ -glutamyl transpeptidaseが誘導されることを報告した。本研究でみられた有機塩素系殺虫剤の濃度は、不忍池や御台場で採取されたカワウの死亡に何らかの影響を与えた可能性がある。

琵琶湖産魚のDDTs、CHLs、HCHs、HCB濃度は、それぞれ120、61、17、そして2.2ng/g (湿重当りの平均値) であった。なかでも肉食性であるウグイは、分析した魚の中で最も高い濃度を示した。また、不忍池と御台場で営巣しているカワウの主な採餌場所である東京湾産の魚は、それぞれ56、43、3、1.8ng/gであり、多摩川産の魚は33、93、1.7、2.2ng/gであった。日本ではDDTsの使用は1971年に禁止され、Loganathanら (1989) は、長良川の魚 (カワヨシノボリ: *Rhinogobius fluffiness*) で1971年以降の急激なDDTs濃度の減少を報告している。琵琶湖産魚のDDTsとCHLsの残留濃度は東京湾や多摩川よりも高いが、CHLs濃度は多摩川で高値を示した。不忍池のカワウ成鳥は、琵琶湖のカワウよりもDDTsの高濃度蓄積を示したが、一方魚では琵琶湖で高濃度がみられた。この理由として不忍池の成鳥の方が琵琶湖の個体よりも高年齢であること、琵琶湖の餌生物は数検

表4. カワウから検出された有機塩素系殺虫剤の濃度 (湿重当り ng/g)

採取地点	検体数	α-HCH		β-HCH		γ-HCH		Total HCH		HCB		Oxy CHL		Trans-CHL		Cis-CHL		Trans-nona	
		濃度	範囲	濃度	範囲	濃度	範囲	濃度	範囲	濃度	範囲	濃度	範囲	濃度	範囲	濃度	範囲	濃度	範囲
琵琶湖	成鳥	2.4	(0.9-3.9)	110	(25-180)	0.21	(<0.2-0.6)	110	(50-180)	17	(0.94-42)	43	(13-84)	1.4	(<0.2-4.0)	1.6	(0.4-3.9)	0.59	(<0.2-2.9)
	雛鳥	2.2	(1.6-3.1)	7.7	(4.5-13)	0.29	(0.22-0.34)	11	(7.0-17)	25	(8.7-42)	11	(6.8-17)	2.0	(<0.2-4.6)	3.9	(1.9-5.7)	1.2	(<0.2-1.9)
	幼鳥	2.0	(0.23-4.7)	84	(6.2-160)	0.62	(0.14-0.88)	87	(12-180)	110	(20-280)	130	(6.2-280)	3.7	(<0.2-8.7)	19	(9.0-61)	20	(1.8-60)
	成鳥	6.4	(<0.2-8.7)	180	(110-410)	2.3	(<0.2-2.7)	190	(120-410)	180	(56-380)	200	(100-360)	12	(<0.2-5.9)	42	(3.5-9.9)	29	(8.8-51)
	卵	1.3	(1.1-1.5)	12	(6.9-19)	0.41	(0.32-0.62)	13	(8.4-20)	21	(14-30)	34	(26-55)	2.1	(0.9-3.4)	6.7	(1.7-10)	7.1	(3.7-13)
	雛鳥-1	7.0		46		<0.2		54		80		41		7.0		22		21	
御台場	雛鳥-2	5.0		26		<0.2		31		48		27		8.0		12		12	
	雛鳥-3	3.0		16		1.0		20		26		18		5.0		7.0		4.0	
	雛鳥-4	3.0	(1.0-2.1)	37	(10-21)	2.0	(1.0-2.0)	46	(14-26)	67	(20-38)	38	(14-22)	5.0	(3.0-7.0)	20	(5.0-10)	29	(4.0-9.0)
	雛鳥-4	6.0		37		2.0		46		67		38		5.0		20		29	

採取地点	検体数	Cis-nona		Total CHLs		P,P'-DDT		P,P'-DDE		P,P'-DDD		Total DDTs	
		濃度	範囲	濃度	範囲	濃度	範囲	濃度	範囲	濃度	範囲	濃度	範囲
琵琶湖	成鳥	6.8	(2.0-12)	64	(16-98)	0.57	(<0.2-2.7)	2900	(720-9400)	8.6	(2.0-13)	2900	(730-9400)
	雛鳥	8.2	(0.3-17)	27	(13-47)	0.29	(<0.2-4.8)	260	(200-420)	3.2	(1.0-6.1)	260	(150-430)
	幼鳥	160	(7.8-660)	330	(33-940)	2.3	(0.48-5.7)	3500	(190-9400)	7.7	(1.5-18)	3500	(200-9400)
	成鳥	130	(13-320)	390	(110-830)	3.9	(0.8-11)	16000	(5100-25000)	25	(6.8-55)	16000	(5100-25000)
御台場	卵	24	(13-40)	74	(43-120)	2.7	(1.4-4.4)	800	(530-1300)	3.1	(0.46-6.0)	800	(530-1300)
	雛鳥-1	55		150		4.0		1300		8.0		1300	
	雛鳥-2	31		90		2.0		940		2.0		840	
	雛鳥-3	27	(16-28)	59	(41-76)	1.0	(<0.2-2.0)	500	(320-670)	2.0	(1.0-4.0)	500	(320-680)
雛鳥-4	46		130		3.0		1100		6.0		1200		

(): 濃度範囲

‡ 全組織をホモジナイズして分析に供試

表5. カワウの餌生物から検出された塩素系殺虫剤の平均濃度 (湿重当り ng/g)

採取地点	種名	α-HCH		β-HCH		γ-HCH		Total HCH		HCB		Oxy CHL		Trans CHL		Cis CHL		Total CHLs		P,p'-DDT		P,p'-DDE		P,p'-DDD		Total DDTs		
琵琶湖	ウグイ	3.9	17	0.40	0.80	0.30	1.2	1.5	5.3	7.8	37	49	22	130	2.6	170	34	210										
	ブルーギル	2.7	11	0.80	1.5	4.1	0.50	1.6	3.6	19	3.3	86	14	100														
	アユ	2.0	25	0.10	1.6	1.2	5.5	10	9.8	4.3	35	0.27	41	48														
東京湾	スズキ	0.70	0.80	0.30	1.2	1.5	5.3	7.8	11	4.8	30	2.6	31	42														
	ホウ	0.60	0.60	0.20	1.4	0.80	6.8	8.6	7.0	3.4	27	2.1	21	29														
	イシモチ	0.45	0.57	0.13	1.0	0.63	4.5	7.2	8.5	4.0	26	1.6	28	36														
	コノシロ	1.8	2.6	0.65	5.1	4.4	16	25	15	15	87	2.2	110	120														
多摩川	オイカワ	0.69	1.7	0.74	3.1	1.9	7.7	26	27	14	90	3.4	27															
	クサボリボラ	0.31	0.41	0.20	0.92	1.2	2.0	14	20	9.3	74	1.9	26	34														
	ハヤ	1.5	3.6	1.5	6.6	4.1	15	40	68	32	210	8.0	30	52														
	モロコ	0.79	1.2	0.54	2.5	2.3	5.8	24	27	9.2	82	0.84	23	33														
	ナマス	0.03	0.08	0.030	0.15	0.20	0.26	1.2	1.6	1.5	0.60	3.4	0.45	4.0														
	ギンブナ	0.28	0.78	0.24	1.3	1.1	5.0	26	39	14	100	2.4	48	58														
	コイ	0.25	0.64	0.29	1.2	1.0	3.9	15	26	26	13	84	4.6	26														

表6. 日本産カワウと他種高等生物との有機塩素化合物濃度の比較 (脂肪重当り $\mu\text{g/g}$)

種名	採取地点	採取年	分析組織	POBs	DDTs	HCHs	CHLs	HCB	参考文献
コビレゴンドウ	太平洋沿岸	1985	皮下脂肪	6.2	14				[1]
スナメリ	瀬戸内海	1985	皮下脂肪	40					[1]
ツチクシラ	太平洋沿岸	1985	皮下脂肪	3.6	14				[2]
スアオカモメ	愛媛	1987	筋肉	14	8.2				[3]
ウミネコ	愛媛	1987	筋肉	35	7.5				[3]
ウミネコ	東京湾	1992	筋肉	1.2	0.333	0.009	0.11	0.006	[4]
ミミヒメウ	カナダ	1985	卵	2.2	3.9*	0.017	0.01\$	0.013	[5]
			脂肪組織**	0.94	0.95				
鵜類									
ミミヒメウ	五大湖、アメリカ	1988	卵	4.2-14	2.2-6.3*	0.007-0.013	0.087-0.17	0.008-0.036	[6]
		1986	卵	0.1-15					[7]
		1987	卵	4.4-12					[7]
		1988	卵	5.3-5.5					[7]
カワウ	ドイツ	1985/86	肝臓***	0.03†					[8]
			脂肪組織***	11†					
			肝臓#	2.4†					
			脂肪組織#	88†					
カワウ	オランダ	1987/88	卵	10-21†	3-8.5				[9]
カワウ	イタリヤ	1991/92	筋肉†	3.2	1.6				[10]
カワウ	琵琶湖	1993	肝臓・成鳥	5.6	2.9	0.11	0.054	0.017	本研究
	不忍池	1994	肝臓・成鳥	40	13	0.16	0.36	0.15	本研究

脂肪重当り

\$ oxychloridane のみ

* *p,p'*-DDE のみ

** 幼鳥

*** 1-2 歳

2歳以上

† IUPAC No 28+52+101+136+153+180 のみの含量

‡ 乾重当り

参考文献: [1] Tanabe *et al*, 1987; [2] Subramanian *et al*, 1988; [3] Yamashita *et al*, 1992; [4] Environment Agency, 1993; [5] Somers *et al*, 1993; [6] Yamashita *et al*, 1993; [7] Tillitt *et al*, 1992; [8] Scharenberg *et al*, 1993; [9] Dirksen *et al*, 1995; [10] Fossi *et al*, 1995

体の分析データのみであること（表1）、両地点のコロニーとも他の場所で採餌している可能性があることなどが挙げられる。

(3) 有機塩素系殺虫剤の残留組成

p,p' -DDE は DDTs の主な代謝産物 (>95%) であり、全ての個体において最も多量を占めた (図2)。鳥類の場合、早くから指摘された汚染の影響として DDE による卵殻の薄化がある (Heath *et al.*, 1969 ; Cooke, 1979 ; Ohlendorf & Marois, 1990)。Burgerら (1995) は、DDE 濃度の減少にともなって卵殻薄化が回復したことを報告している。また Vermeer と Peakallら (1977) は、卵殻の薄化が五大湖に生息している鶴の個体群減少に大きく関わっていることを報告した。鶴の卵では p,p' -DDE が約 $4 \mu\text{g/g}$ (湿重当り) 存在すると約 5% の卵殻薄化を起こすことが知られている (Dirksen *et al.*, 1995)。DDTs の高濃度蓄積を示した不忍池 ($25 \mu\text{g/g}$ [湿重当り] の p,p' -DDE) の成鳥では卵殻薄化が懸念される。しかし御台場のコロニーの DDE レベルは $0.5 \sim 1.3 \mu\text{g/g}$ と低く、その影響はないと考えてよい。東京湾、琵琶湖、多摩川の魚における p,p' -DDE / DDTs の平均割合は、それぞれ 83、84、70% でカワウのそれよりも低く、これは魚類の代謝能力の低さを示している。

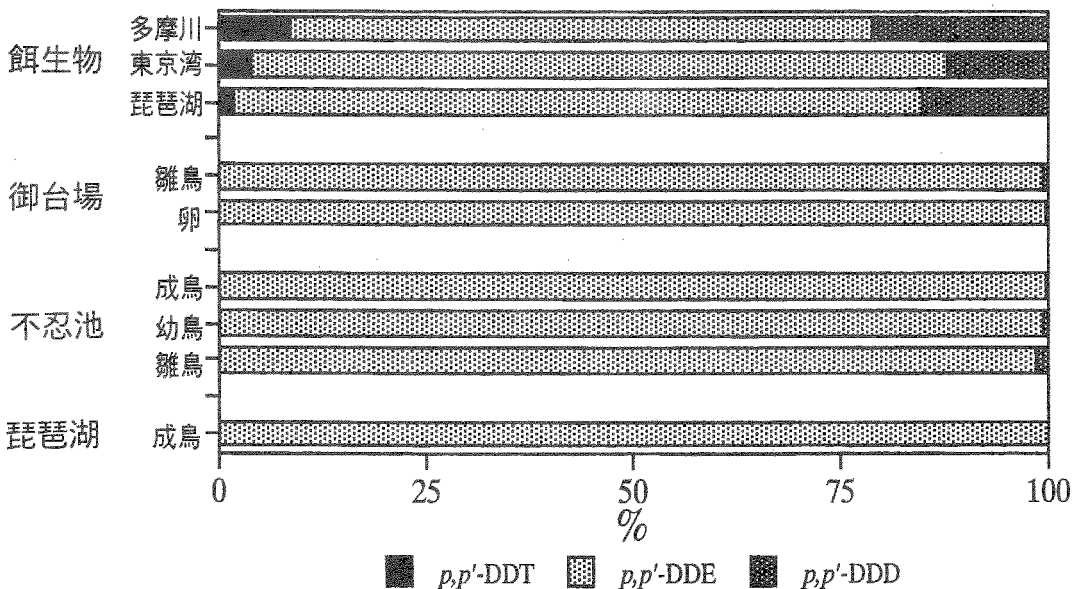


図2 カワウとその餌生物における DDT 化合物組成

カワウにおける HCHs 異性体の組成割合は、 β -HCH が大半を占めていた (図 3)。HCH 製剤中の β -HCH は、 α -HCH や γ -HCH よりも少ないが、生体中で代謝されにくいいため残留性は高い。琵琶湖のカワウと魚は、東京湾の個体よりも β -HCH の高い割合がみられた。この理由は不明であるが、同様の結果が琵琶湖生態系の他の調査でも報告されている (Fukushima *et al.*, 1988 ; Environmental Agency, 1993)。成鳥と幼鳥における α -HCH / HCHs の平均割合は 5 % 以下であり、一方雛鳥はやや高い値を示した (14~22%)。御台場で採取された卵中 α -HCH / HCHs の割合は 14% であった。この結果はおそらく、餌である魚中の α -HCH の割合を反映したものであろう。

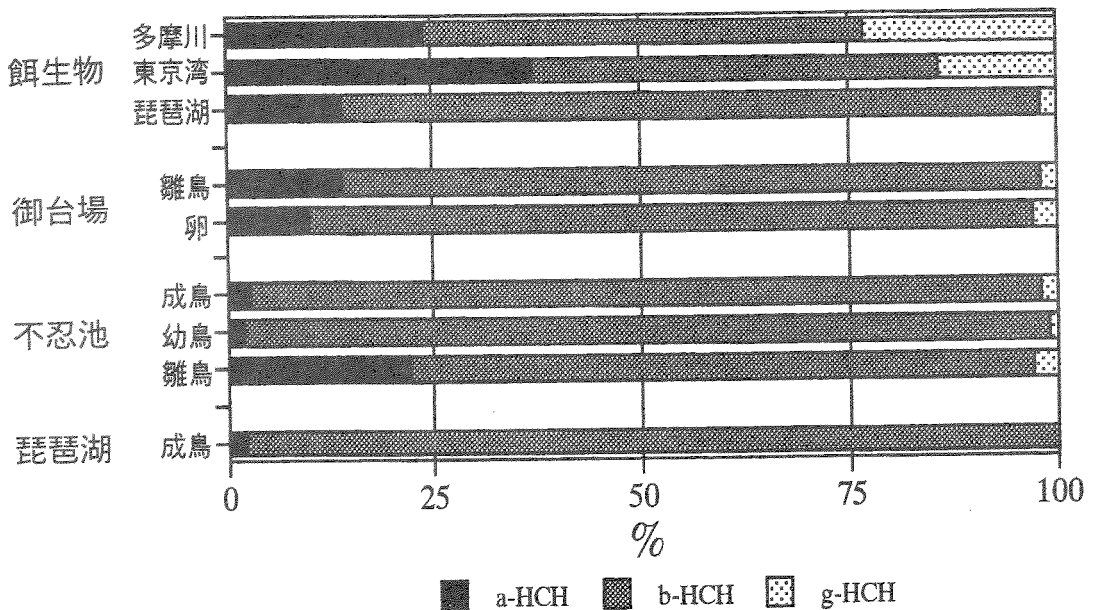


図 3 カワウとその餌生物における HCH 異性体組成

Oxy-CHL (オキシクロルダン) の割合は、CHLs の生物の代謝能力を理解する上でよい指標となる (Kawano *et al.*, 1988)。琵琶湖のカワウでみられた CHLs は約 80% が Oxy-CHL で占められており、他地域よりも高い割合を示した。一方不忍池のカワウは、成長に従って Oxy-CHL / CHLs の割合が増加していた (図 4)。いずれの地点でも魚中 CHLs は、*trans*-nonachlor と *cis*-chlordane が高い割合を占めていた。Oxy-CHL は魚中で最も低く、これは魚の CHLs 代謝能力の弱さを示している。一方カワウでは、Oxy-CHL がかなりな割合を占めている。HCHs の

組成割合と同様に、成長に伴う Oxy-CHL / CHLs の割合の増加は、雛鳥が餌生物である魚の組成割合の影響を受けているためと考えられる。

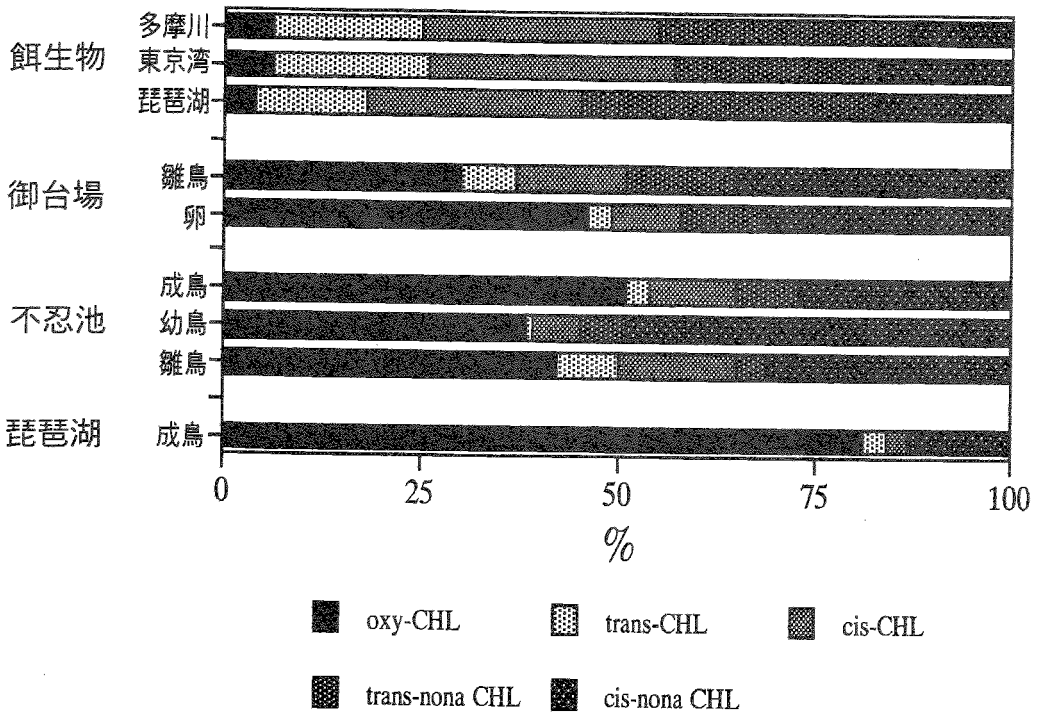


図4 カワウとその餌生物における CHL 化合物組成

(4) 有機塩素化合物の生物濃縮

琵琶湖で捕獲されたカワウとその吐き戻した魚、そして不忍池、御台場の個体と東京湾、多摩川で採取した魚類の分析結果を用いて、有機塩素化合物の生物濃縮係数を見積もった。生物濃縮係数は、カワウの肝臓で検出された脂肪重当りの平均濃度を、魚の全組織中で検出された殺虫剤の脂肪重当りの平均濃度で除した値によって評価した(表7)。その結果、成鳥で見積もられた有機塩素化合物の生物濃縮係数は、ウミガラス (*Uria lomvia*) でみられた数値と同程度であり (Kawano *et al.*, 1986)、また DDTs > PCBs > HCB > HCHs > CHLs の順であったことから、カワウは他の海鳥類よりも CHLs を代謝する能力に優れていることが示唆された。不忍池の成鳥カワウの生物濃縮係数は、琵琶湖のそれよりも一桁近く高い値を示した。琵琶湖産魚類の平均 OCs 濃度は、東京湾や多摩川のそれと比較して同程度かやや高い値であり、脂肪重当りの数値でみると地域の差は少ない(表5)。よって、不忍池のカワウより

表7. カワウにおけるPCBs および有機塩素系殺虫剤の生物濃縮係数

採取地点	成長段階	PCBs	DDTs	HCHs	CHLs	HCB
琵琶湖	成鳥	29	44	12	1	14
不忍池	雛鳥	5	9	8	1	24
	幼鳥	52	120	60	7	100
	成鳥	220	550	130	8	170
御台場	卵	36	21	7	1	15
	雛鳥-1	20	53	45	4	90
	雛鳥-2	15	29	22	2	45
	雛鳥-3	9	18	14	1	25
	雛鳥-4	18	39	32	3	63

*: カワウ肝臓中の濃度 (脂肪重当り) / 魚全体中の濃度 (脂肪中当り)

も琵琶湖のカワウの方が、これらの化合物を高濃度で蓄積することが示唆された。しかし採餌場所はカワウの個体群によって異なり、そのことがこの差を導いた可能性もある。両コロニー間の食性のちがいもまたこの差を招いた要因として挙げられる。不忍池のカワウは、比較的高濃度の有機塩素化合物を蓄積しているカレイ (*Limanda herzensteini*) を、夏の期間主な餌としている。1984年にカレイから検出された CHLs 濃度は、275ng/g (湿重当り) であった (Miyazaki *et al.*, 1986)。カワウやミミヒメウは餌生物の個体数によって食性を変化させる (Pilon *et al.*, 1983)。よってカワウの代謝能力が今回調査した2地点で同じならば、季節によって変化する食性が地域固有なカワウの有機塩素化合物蓄積の変動を招いたとも考えられる。

(5) PCBs の蓄積特性

カワウから検出された PCBs 濃度および di-, mono-, non-ortho コプラナ異性体濃度を、表 8 に示した。不忍池で採取した成鳥の肝臓中 PCBs 濃度(18-58 μ g/g 湿重当り)は、琵琶湖のカワウ (1.3-16 μ g/g 湿重当り) よりも高値を示した。東京及び琵琶湖のカワウから検出された PCBs 濃度は、有機塩素系殺虫剤や BTs 濃度よりも有意に高かった ($p < 0.001$)。また本研究で得られたカワウの PCBs 濃度は、報告されている日本沿岸域の鳥類よりも高値であった (Yamashita *et al.*, 1992; Environmental Agency, 1995)。また日本産の成鳥カワウはドイツ (肝臓0.03-2.4; 脂肪11-88 μ g/g 湿重当り, Scharenberg, 1991; 筋肉 1 μ g/g 湿重当り, Zimmermann

表 8. カワウの肝臓及び卵から検出された di-, mono-, non-ortho コプラナ PCBs の平均濃度 (湿重当り ng/g)

IUPAC	琵琶湖		不忍池		御台場				
	成鳥	雛鳥	幼鳥	成鳥	卵	雛鳥-1	雛鳥-2	雛鳥-3	雛鳥-4
Nos	< 0.5	0.80 (< 0.5 - 1.0)	1.7 (< 0.5 - 1.4)	< 0.5	< 0.5	< 0.5	< 0.5	< 0.5	< 0.5
Di-ortho	128	77	130	650	82	77	31	20	< 0.5
		(< 0.5 - 290)	(< 0.5 - 190)	(380 - 1000)	(16 - 200)			(13 - 26)	
	137	10	990	5100	1200	480	360	190	390
	138	76	(55 - 1300)	(2900 - 7100)	(720 - 1900)			(140 - 240)	
	153	1200	1200	5900	1600	720	420	230	490
		(180 - 2900)	(44 - 1800)	(3500 - 8500)	(910 - 2600)			(170 - 280)	
	170	130	130	660	150	61	39	20	49
		(16 - 370)	(6 - 200)	(420 - 1000)	(75 - 230)			(15 - 26)	
	180	350	310	1700	400	190	110	58	150
		(38 - 1300)	(11 - 530)	(1200 - 2500)	(210 - 650)			(42 - 74)	
	194	45	32	160	40	20	1.0	5.3	16
		(3 - 190)	(1.1 - 2.7)	(100 - 250)	(21 - 64)			(3.9 - 6.7)	
Mono-ortho	60	27	97	350	59	19	26	16	41
		(5 - 120)	(10 - 150)	(130 - 500)	(46 - 82)			(12 - 19)	
	105	230	370	1300	330	110	100	56	110
		(46 - 750)	(27 - 540)	(230 - 2400)	(220 - 510)			(40 - 72)	
	118	660	1100	4900	1200	430	330	180	360
		(110 - 2200)	(65 - 1700)	(24 - 7100)	(700 - 1800)			(130 - 230)	
	156	120	110	650	130	45	35	17	32
		(16 - 380)	(5.2 - 150)	(400 - 1000)	(65 - 210)			(12 - 21)	
Non-ortho	77	0.43	0.48	2.8	0.75	0.12	0.077	0.11	2.0
		(0.21 - 0.90)	(0.07 - 0.82)	(1.1 - 5.8)	(0.27 - 1.6)			(0.085 - 0.13)	
	126	6.0	3.3	15	1.8	0.46	0.48	0.28	1.9
		(1.0 - 17)	(0.16 - 6.7)	(3.1 - 41)	(1.1 - 3.3)			(0.21 - 0.35)	
	169	1.3	0.91	7.0	0.52	0.084	0.10	0.054	0.61
		(0.15 - 4.0)	(0.007 - 0.046)	(1.6 - 21)	(0.27 - 0.90)			(0.049 - 0.056)	
PCBs †		3800	4500	22000	5200	2200	1500	790	1600
		(600 - 11000)	(190 - 6000)	(9300 - 31000)	(3000 - 8300)			(580 - 1000)	
Total PCBs		5600	9100	40000	8500	3500	2600	1500	3200
		(1300 - 16000)	(780 - 1100)	(18000 - 58000)	(5000 - 13000)			(1100 - 1900)	
Total PCBs に対する割合 (%)	68	35	48	53	61	63	58	53	50

(): 濃度範囲

† 選択した non-, mono- and di-ortho PCB 異性体の合計

et al., 1997)、カナダ（幼鳥の脂肪0.94 $\mu\text{g/g}$ 湿重当り, Somers *et al.*, 1993）、そしてイタリア（筋肉3.2 $\mu\text{g/g}$ 乾重当り, Fossi *et al.*, 1995）の鵜よりも高濃度の PCBs を蓄積していた。鵜の低いチトクローム P-450 酵素活性は生体異物の高濃度蓄積を導き、毒作用の要因となる（Fossi *et al.*, 1995）。東京湾のカワウでみられた高い PCBs の蓄積レベルは、高度な都市化と急速な工業化の結果と考えられる。不忍池のカワウは成長に伴う PCBs 濃度の上昇を示した（表 8）。一方御台場の個体は、有機塩素系殺虫剤同様、身体の急速な成長により PCBs 濃度が希釈されて低下している（表 8）。御台場の雛鳥（3.5 $\mu\text{g/g}$ 湿重当り）は、イギリスのコロニーで採取された同程度の大きさの雛鳥（2.2 $\mu\text{g/g}$ 湿重当り）よりも、高い濃度の PCBs を蓄積していた（Mason *et al.*, 1997）。御台場の卵でみられた平均 PCBs 濃度（8.5 $\mu\text{g/g}$ 湿重当り）もまたイギリスのコロニーで報告されているもの（0.5-2.1 $\mu\text{g/g}$ 湿重当り, Wilson and Earley, 1986 ; 0.085-7.0 $\mu\text{g/g}$ 湿重当り, Mason *et al.*, 1997）より高濃度で、卵の未孵化や雛鳥の奇形が報告されているアメリカ合衆国ミシガン湖のミミヒメウの卵（7.3-8.2 $\mu\text{g/g}$ 湿重当り）と同程度であった（Larson *et al.*, 1992）。しかし卵中の濃度は、高濃度の PCBs で汚染されているオランダのもの（23 $\mu\text{g/g}$ 湿重当り, Bosveld and Van den berg, 1994 ; 約1000 $\mu\text{g/g}$ 脂肪重当り, Van den Berg *et al.*, 1994）より低濃度であった。Tillitt ら（1992）や Yamashita ら（1993）は、本研究のカワウ卵から検出された濃度とほぼ同程度であった五大湖産のミミヒメウ（3.6-7.3 $\mu\text{g/g}$ 湿重当り）において、卵胚の死亡に PCBs が関与していることを報告している。鳥類の卵に注目した研究では、悪影響を及ぼす PCBs の最低濃度は 3～5 ppm と見積もられている（Giesy *et al.*, 1994）。本研究で検出されたカワウの卵の PCBs 濃度はこの値を超えており、このことは日本産カワウが PCBs の毒性影響を受けている可能性を示唆している。

琵琶湖、東京湾、多摩川の魚から検出された PCBs の平均残留濃度は、それぞれ 310、330、200 ng/g （湿重当り）であった（4400、4800、5200 ng/g 脂肪重当り）（表 9）。PCBs は琵琶湖周辺で使用され、琵琶湖のイサザ（*Chaenogobius isaza* TANAKA）では 1966 年～1976 年の間の PCBs 濃度として 410～1500 ng/g （湿重当り）の値が報告されている（Watanabe *et al.*, 1979）。1978 年～1995 年の東京湾産スズキの筋肉中 PCBs 濃度は、340 ng/g から 220 ng/g （湿重当り）に減少している。また 1994 年に調査された琵琶湖産のウグイ（*Tribolodon hakonesis*）の PCBs 濃度は 40 ng/g （湿重当り）（Environmental Agency, 1995）と、本研究の魚類より低濃度

表9. カワウの餌生物から検出されたdi-, mono-, non-ortho コブラナPCBsの平均濃度 (湿重当り ng/g)

IUPAC Nos	琵琶湖				東京湾				多摩川					
	ウグイ	アユ	ブルーギル	スズキ	ボラ	イシモチ	コノシロ	オイカワ	クチボソボラ	ハヤ	モロコ	コイ	ギンブナ	ナマス
Di-ortho PCBs														
128	8.3	3.7	1.6	2.9	1.4	3.1	1.7	1.5	3.5	3.3	1.3	0.28	2.6	2.6
137	6.5	2.6	3.2	2.4	1.3	2.8	1.8	0.6	1.2	1.6	0.5	0.2	3.4	1.4
138	56	21	23	22	13	22	18	11	20	39	12	1.8	25	11
153	44	17	19	24	11	25	23	10	18	34	10	2.0	23	9.3
170	5.9	1.8	1.7	1.6	1.7	2.8	1.7	1.0	2.0	3.6	0.9	0.17	1.8	0.83
180	11	3.7	3.9	4.0	3.3	7.4	6.0	2.5	5.2	8.4	1.0	0.53	4.3	2.0
194	1.7	0.6	0.4	0.51	0.57	1.1	0.6	0.4	0.1	0.9	0.1	0.05	0.35	0.19
Mono-ortho PCBs														
60	4.5	3.0	1.4	5.9	3.8	9.3	3.2	2.7	3.8	6.9	3.5	0.26	2.3	2.3
105	16	11	6.8	6.3	4.9	8.7	5	3.2	6.2	13	5.1	0.54	6.6	3.6
118	33	26	19	23	13	26	18	7.6	15	30	12	1.3	20	8.7
156	5.6	2.0	2.7	1.3	1.1	2.3	1.3	1.1	2.2	3.4	1.3	0.14	2.3	0.91
Non-ortho PCBs														
77	0.92	0.21	0.20	0.41	0.23	0.36	0.14	0.18	0.013	0.38	0.37	0.009	0.15	0.075
126	0.15	0.027	0.023	0.024	0.01	0.043	0.05	0.026	0.016	0.06	0.03	0.005	0.05	0.044
169	0.024	0.006	0.007	0.007	<0.002	0.009	0.022	0.011	0.007	0.02	0.01	0.002	0.011	0.009
PCBs†	190	93	83	94	55	110	81	42	77	140	48	7.3	92	43
Total PCBs	470	280	180	410	230	410	280	140	250	470	190	21	210	150
Total PCBsに対する割合 (%)	42	33	46	23	24	27	29	30	31	31	25	35	44	29

† 選択したnon-, mono-, di-ortho PCB異性体の合計

であった。本研究で得られた魚類の PCBs 濃度は、琵琶湖、不忍池で同程度であったが、成鳥カワウでは不忍池の方が琵琶湖よりも有意に高い濃度の PCBs を蓄積していた ($p < 0.01$)。この原因は、先に述べた食性の違い等が関与しているものと考えられる。

(6) PCBs の異性体組成

カワウとその餌生物から約70種の PCB 異性体が検出された (図5、6、7)。琵琶湖では3、4、5塩素などの低塩素 PCB 異性体の割合は、魚で高く (魚2、10、42% ; カワウ2、4、25%)、一方6、7、8塩素など高塩素異性体の割合はカワウで高かった (魚37、8、1% ; カワウ50、16、3%)。とくにこの傾向は成鳥で顕著であった。この結果はカワウ体内で低塩素成分が代謝されたことを示している。また不忍池のカワウは、成長に伴う高塩素成分の増加がみられた (図6)。PCB 異性体の特異的な蓄積は雛鳥でみられた。IUPAC 28+31と118は不忍池で高く、一方 IUPAC 153は御台場で富化していた。この傾向は東京湾と多摩川の魚でもみられる (図5)。すなわち、御台場のカワウは主として東京湾の魚を、不忍池のカワウは多摩川など、東京湾以外の魚を主に摂餌していることが推察される。

IUPAC 153は成鳥カワウ肝臓の PCBs 異性体の中で最も多量に存在し、琵琶湖および不忍池でそれぞれ15%、21%を占めた (図6)。またそれに続く異性体は IUPAC 138、118であった。しかし不忍池の雛鳥と幼鳥の IUPAC 28+31は、PCBs 異性体の中で最も高い割合を占めており (14%、10%)、ついで IUPAC 118、138、153の順であった (図6)。御台場カワウの卵及び雛鳥の蓄積パターンは、琵琶湖や不忍池の成鳥と類似の残留組成を示し、高塩素成分が中心であった。

野生生物の PCBs 代謝能力を調べるため、Tanabe ら(1988)は Metabolic Index (MI 値) を考案した。

Metabolic Index (MI_i) = $\log CR_{180} / CR_i$;

この式の CR_{180} は、カワウとその餌生物に残留する IUPAC 180の相対的な割合を示しており、 CR_i も同様に各化合物の相対割合を示している。つまり MI 値が大きい異性体は、酵素でより代謝されたことを示す。不忍池と琵琶湖の成鳥カワウから検出された PCB 異性体の MI 値を図8に示す。IUPAC 16+31、17、34、40、51、67、101、128、129、176の PCB 異性体はカワウから検出されなかったが、餌生物からは検出された。カワウから検出されなかった高い MI 値を示す PCB 異性体は、片方

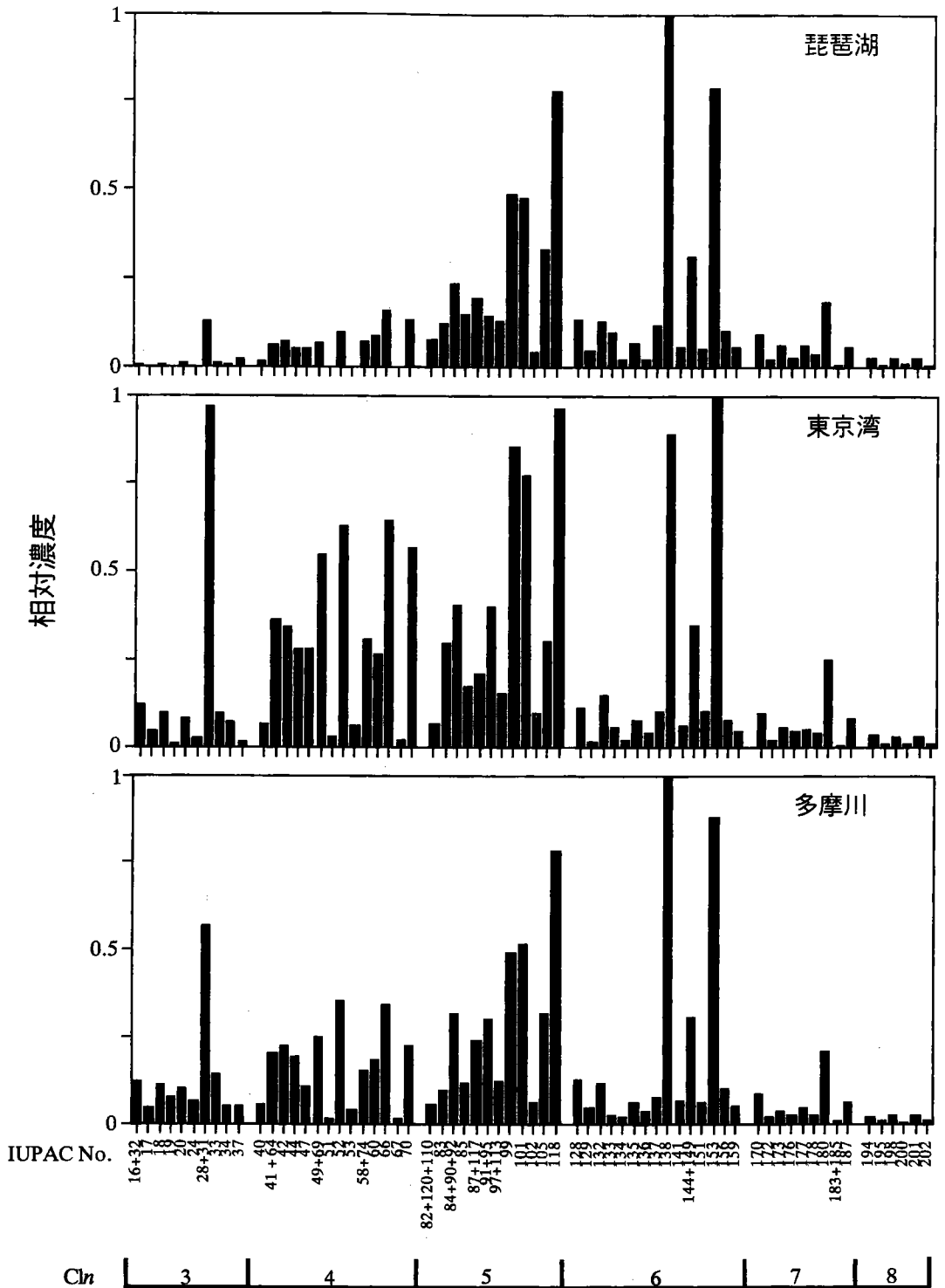


図5 琵琶湖、東京湾、多摩川で採取されたカワウ餌生物中のPCB異性体組成。PCBsの中で最高濃度を示した異性体〔琵琶湖と多摩川 IUPAC138、東京湾では IUPAC 153〕を1.0として、それぞれの異性体の相対濃度を示した。

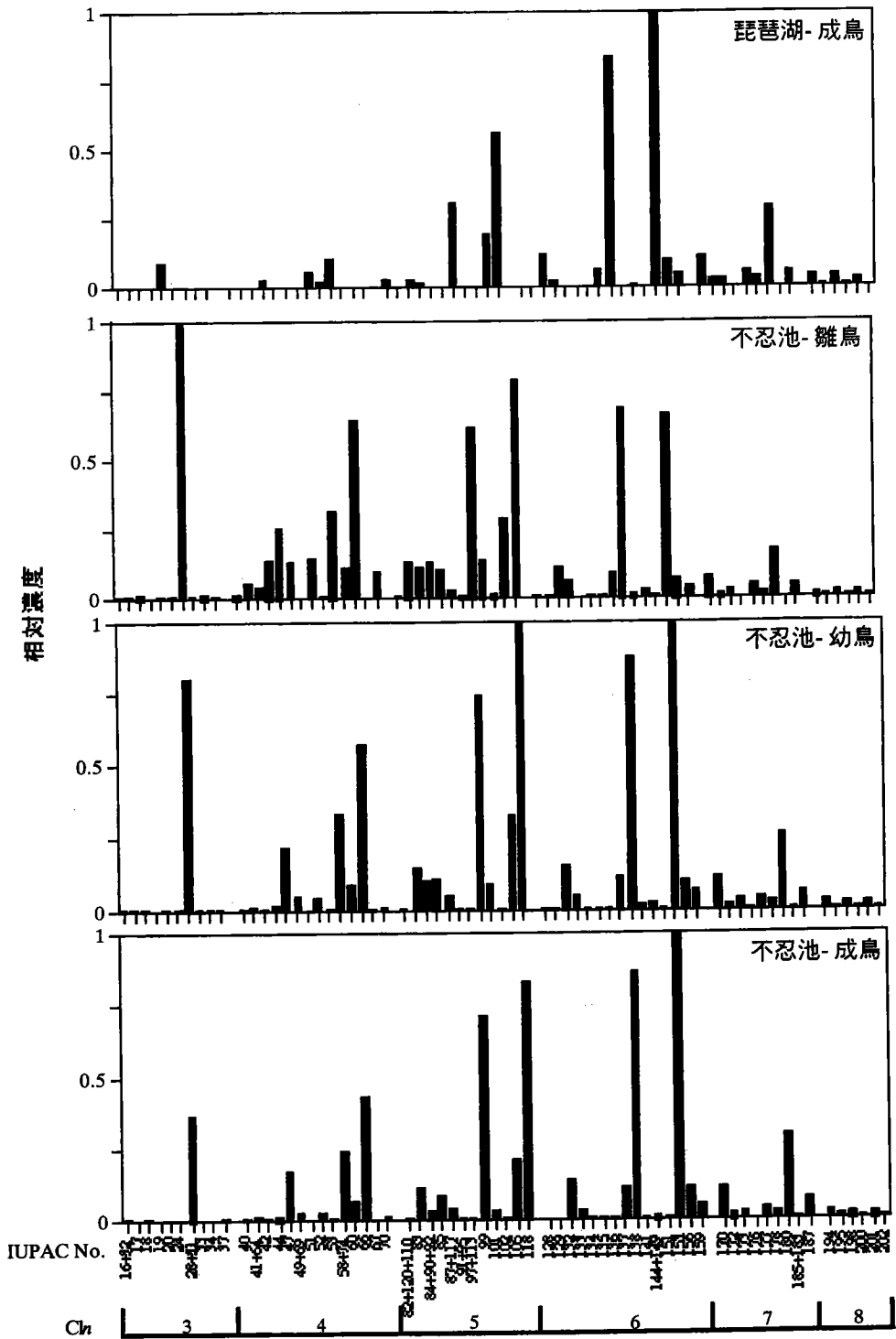


図6 琵琶湖及び不忍池で捕獲されたカワウ肝臓中のPCB異性体組成。PCBsの中で最高濃度を示した異性体（琵琶湖と多摩川はIUPAC138、東京湾ではIUPAC153）を1.0として、それぞれの異性体の相対濃度を示した。

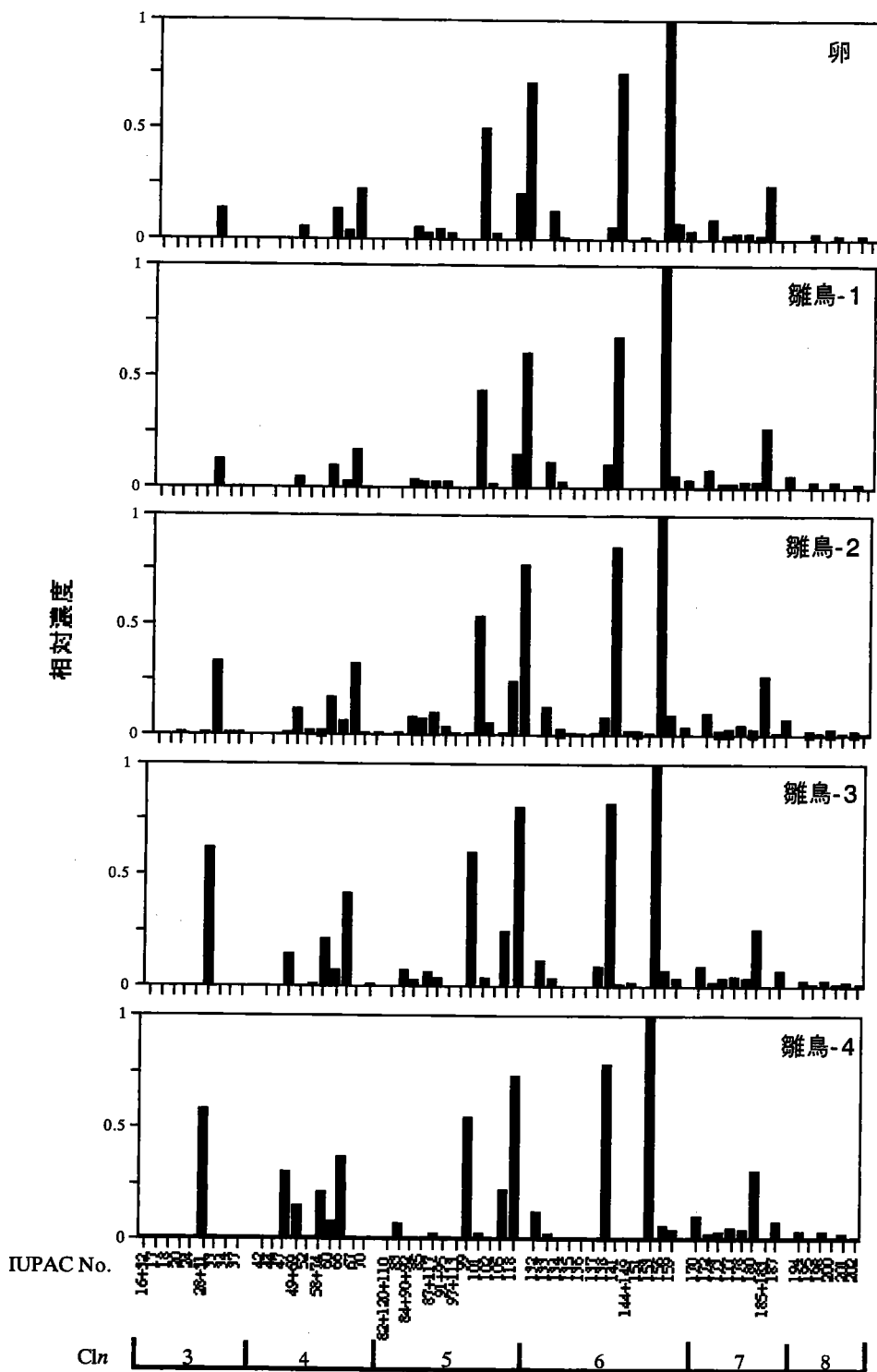
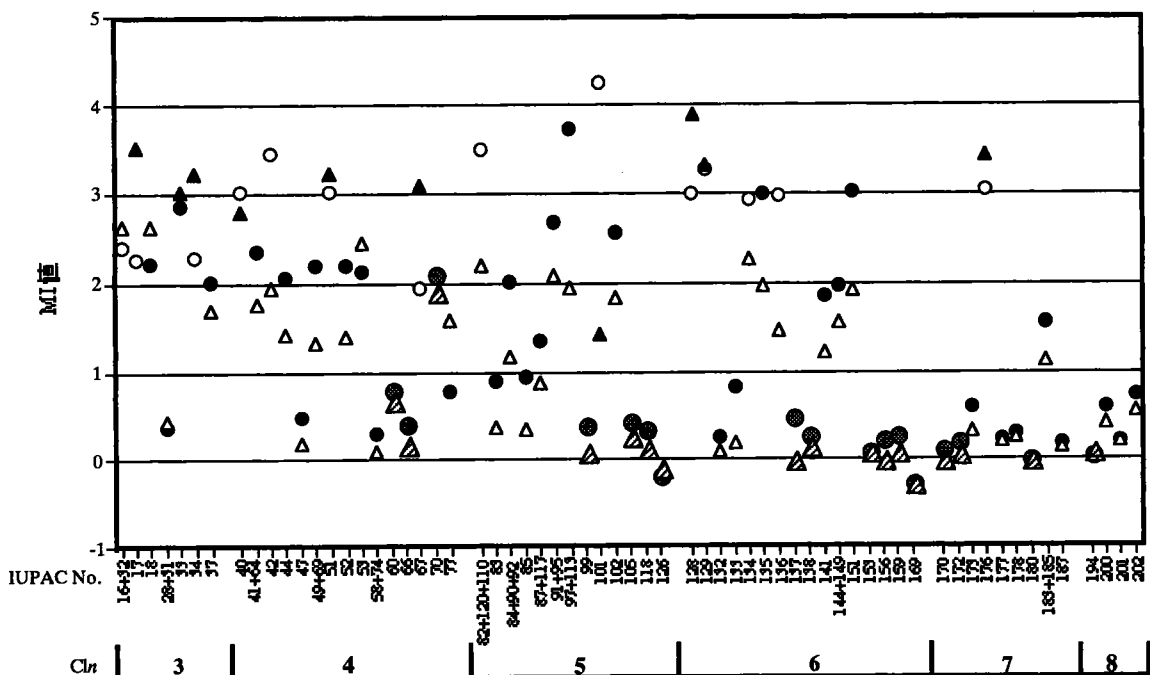


図7 御台場で採取されたカワウ雛鳥、卵中のPCB異性体組成。PCBsの中で最高濃度を示した異性体（琵琶湖と多摩川はIUPAC138、東京湾ではIUPAC153）を1.0として、それぞれの異性体の相対濃度を示した。



- (○) : 琵琶湖のカワウで検出されず、魚生物では検出された PCB 異性体
- (▲) : 不忍池のカワウで検出されず、魚生物では検出された PCB 異性体
- (●) : 琵琶湖のカワウ及び魚生物で検出された PCB 異性体
- (△) : 不忍池のカワウ及び魚生物で検出された PCB 異性体
- (●) : 琵琶湖のカワウ及び魚生物で検出された di-, mono-, non-ortho コプラナ PCBs
- (▲) : 不忍池琵琶湖のカワウ及び魚生物で検出された di-, mono-, non-ortho コプラナ PCBs

図8 琵琶湖及び不忍池で捕獲された成鳥カワウ肝臓中の PCB 異性体における MI 値の比較

のビフェニル環のメターパラ位に塩素が置換していない部分を少なくとも1つもつ異性体であった。カワウは体内でこれらの異性体を代謝分解しているものと考えられる。ほとんどの di-, mono-, non-ortho PCB 異性体は MI 値が低く、カワウ体内で高い残留性を有する (図8)。IUPAC 77 の MI 値は、他の non-ortho コプラナ PCBs のそれよりも高く、相対的に代謝されやすいことがわかった。

PCBs は肝ミクロゾームに局在するチトクローム P450 系の酵素によって代謝され、それはフェノバルビタール型 (PB 型) とメチルコラントレン型 (MC 型) に分類される。先の研究で、琵琶湖の成鳥カワウは PB 型の高い酵素活性を有し、一方

MC 型酵素活性は他の鳥類と同程度であったことが明らかにされている (Guruge and Tanabe, 1997)。またカワウの PCBs を代謝する能力は、他の陸生哺乳類よりも低く、海棲哺乳類よりも高いことが明らかにされている。一方カワウの肝臓中 MC 型酵素活性は、調査された動物の中では最も低く、そのためコプラナ PCBs のようなオルソ-メタ位に塩素が置換していない異性体を体内に蓄積しやすいことが指摘されている (Guruge and Tanabe, 1997)。

(7) 強毒性コプラナ PCBs の蓄積特性

カワウの肝臓および餌生物から検出された di-、mono-、non-ortho コプラナ PCBs の濃度を表 8 と 9 に示す。不忍池の成鳥と幼鳥のカワウから検出された最も毒性の強い non-ortho コプラナ PCBs の中で濃度が高かったのは IUPAC 126 で、ついで IUPAC169、IUPAC77 の順であった。一方御台場および不忍池の卵と雛鳥では、IUPAC126 > IUPAC77 > IUPAC169 の順で残留しており、また餌生物の魚は IUPAC77 > IUPAC126 > IUPAC169 の順を示した。魚類でみられた non-ortho コプラナ PCBs の蓄積パターンは、PCB 製剤と類似しており (Kanna *et al.*, 1987)、魚介類はコプラナ PCB の分解力が弱いために、その影響がそのまま現れたものと考えられた。不忍池の成鳥カワウでみられた non-ortho コプラナ PCBs の合計濃度は 24.8 ng/g (湿重当り) であり、琵琶湖の成鳥カワウのそれよりも 3 倍高い濃度を示した (表 8)。またカワウから検出された non-ortho コプラナ PCB の濃度レベルは、日本産ウミネコやズアオカモメの筋肉中の濃度 (0.36 ng/g、1.4 ng/g 湿重当り) よりも高値であった (Yamashita *et al.*, 1992)。しかし、カワウの成長に伴う濃度変化を議論した報告はほとんどない。本研究では、不忍池のカワウで成長に伴う non-ortho コプラナ PCBs の濃度上昇がみられた。御台場の雛鳥でみられた non-ortho コプラナ PCBs の濃度減少は、体重の増加に伴う希釈のためと考えられた。

餌生物でみられた non-ortho コプラナ PCBs の平均濃度は、琵琶湖、東京湾、多摩川でそれぞれ 0.17、0.12、0.07 ng/g (湿重当り) であった。non-ortho コプラナ PCBs は、カワウや餌生物の PCBs 濃度よりも 3 桁ほど低値であった。御台場で得られた卵中 non-ortho コプラナ PCBs の生物濃縮係数は 45 と見積もられ、琵琶湖では 52 であった。この数値は総 PCBs のそれよりも高く、カワウの体内にダイオキシン様の毒性を示す異性体が蓄積しやすいことを示している。琵琶湖の成

鳥から検出された IUPAC77、126、169の濃度比はそれぞれ1:14:3で、一方不忍池では1:5:2.5であった。このような non-ortho コプラナ PCBs の異なる残留パターンは、不忍池と御台場のカワウの PCB 暴露の違いによって説明できる。また鳥類の non-ortho コプラナ PCB 蓄積パターンは薬物代謝酵素誘導等の有無によっても変化する (Yamashita *et al.*, 1993 ; Bosveld *et al.*, 1995 ; Bosveld and Van den Berg, 1994)。不忍池の成鳥では、IUPAC126 と 169の IUPAC77 に対する割合が低く、この結果は高濃度の PCBs 暴露によって薬物代謝酵素が誘導され、IUPAC 77が分解されたためと考えられた。

(8) PCBs の毒性影響評価

一般に鳥類に残留する di-、mono- non-ortho PCBs の TEQ 値は、ダイオキシンやフランのそれよりも高いことが知られている (Kubiak *et al.*, 1989 ; Bosveld *et al.*, 1995)。そこで Van den Berg ら(1998) によって報告された鳥類と魚類の TEFs (2, 3, 7, 8-TCDD 毒性等量換算値) を用いて、カワウとその餌生物から検出された mono-、non-ortho コプラナ PCBs の TEQ 値(2, 3, 7, 8-TCDD 毒性等量値) を見積もった (表10、11)。琵琶湖と不忍池の成鳥カワウの平均 TEQ 値は、それぞれ670と1900pg/g(湿重当り)であった(Safe らの TEFs では1800、9300pg/g ; Ahlborg らの TEFs では770、2500pg/g 湿重当り)。御台場の雛の TEQ 値(42~220pg/g 湿重当り) は不忍池のそれ (21pg/g 湿重当り) よりも高い値を示した。本研究で得られた成鳥カワウの TEQ 値は、日本産のカモメと比較して高く、雛鳥や幼鳥の TEQ 値は、五大湖産ミミヒメウやセグロカモメの雛鳥とほぼ同程度であった (Jones *et al.*, 1994)。御台場の卵の TEQ 値 (0.28ng/g 湿重当り ; Safe の TEF, 0.86ng/g ; Ahlborg の TEF, 0.40 ng/g) は、様々な異常が報告されている五大湖産ミミヒメウの卵 (Safeの TEF, 0.35~1.3ng/g)(Yamashita *et al.*, 1993)に近い値であった。琵琶湖、東京湾、多摩川産魚の平均 TEQ 値は、それぞれ0.38、0.19、0.18pg/g (湿重当り)、6.0、2.4、4.2pg/g (脂肪重当り) であった。琵琶湖産カワウの肝臓の TEQ 値と餌生物の TEQ 値の比は、2540であった (脂肪重当り)。不忍池の成鳥カワウと餌生物の TEQ 値では16000の比が得られ、御台場の卵では1770であった。以上の結果からカワウは、餌を通してダイオキシン様化学物質を高濃縮することが示された。

non-ortho IUPAC126は、TEQ 値の中で最も高い割合を占めており、次いで

表10. 日本産カワウの肝臓及び卵から検出された mono-, non-ortho コブナ PCBs の TEQs 値 (2, 3, 7, 8-TCDD 毒性等量値) (湿重当り pg/g)

IUPAC Nos	不忍池				卵	御台場			
	琵琶湖 成鳥	雑鳥	幼鳥	成鳥		雑鳥-1†	雑鳥-2	雑鳥-3	雑鳥-4
Mono-ortho PCBs									
105	23 (4.6-75)	3.2 (3.1-4.2)	36 (2.7-54)	130 (81-240)	33 (22-51)	11	10	5.6 (4.0-7.2)	11
118	6.6 (1.1-22)	0.86 (0.59-1.2)	11 (0.65-17)	49 (0.44-76)	12 (7.0-18)	4.3	3.3	1.8 (1.3-2.3)	3.6
156	12 (1.6-38)	0.81 (0.48-1.1)	11 (0.52-15)	65 (40-97)	13 (6.5-21)	4.5	3.5	1.7 (1.2-2.1)	3.2
Non-ortho PCBs									
77	22 (10-45)	4.1 (2.3-5.1)	24 (3.5-41)	150 (55-290)	37 (21-77)	6.0	3.9	5.4 (4.2-7.2)	10
126	610 (100-1700)	12 (4-23)	330 (16-670)	24 (3.5-41)	180 (110-330)	46	48	28 (21-35)	190
169	1.3 (0.15-4.0)	0.023 (0.007-0.046)	0.90 (0.044-1.7)	7.0 (1.6-21)	0.52 (0.27-0.90)	0.084	0.10	0.054 (0.049-0.058)	0.61
Total TEQs	670 (120-1800)	21 (11-34)	410 (23-790)	1900 (490-4600)	280 (150-500)	72	69	42 (32-53)	220

コブナ PCBs の TEQ 値は Van den Berg ら (1998) を引用した

(): 濃度範囲

† 雑鳥-1 の全体濃度

表11. カワウの餌生物から検出された non-ortho コブナ PCBs の TEQs 値 (2, 3, 7, 8-TCDD 毒性等量値) (湿重当り pg/g)

IUPAC Nos	琵琶湖 東京湾				多摩川									
	ウグイ	アユ	ブルーギル	ススキ	ボラ	イシモチ	コノシロ	オイカワ	クチボソボラ	ハヤ	モロコ	コイ	ギンブナ	ナマス
Non-ortho PCBs														
77	0.092	0.021	0.020	0.041	0.020	0.040	0.010	0.020	0.0010	0.038	0.040	0.0010	0.015	0.0080
126	0.77	0.14	0.11	0.12	0.050	0.22	0.25	0.13	0.080	0.29	0.17	0.030	0.25	0.22
169	0.001	0.0003	0.0004	0.0004	<0.0003	0.0004	0.0001	0.001	0.0004	0.001	0.001	<0.0003	0.001	0.0005
Total TEQs	0.86	0.16	0.13	0.16	0.080	0.26	0.27	0.15	0.080	0.32	0.21	0.031	0.27	0.23

コブナ PCBs の TEQ 値は Van den Berg ら (1998) を引用した

non-ortho IUPAC77、mono-ortho IUPAC105 の順であった(図9)。IUPAC126の高い TEQ 値は陸棲動物で一般に認められているが、海棲哺乳類では IUPAC118が TEQ 値の中で最も高い割合を占めている (Kannan *et al.*, 1993)。この違いは、陸棲動物と海棲哺乳類の PCBs 代謝能力の差や、TEFs の違いが関与している。カワウの肝臓中で毒性上大きなインパクトをもつ PCB 異性体は IUPAC126、77、105で、その3つを含めると TEQ 値の90%以上を占める。

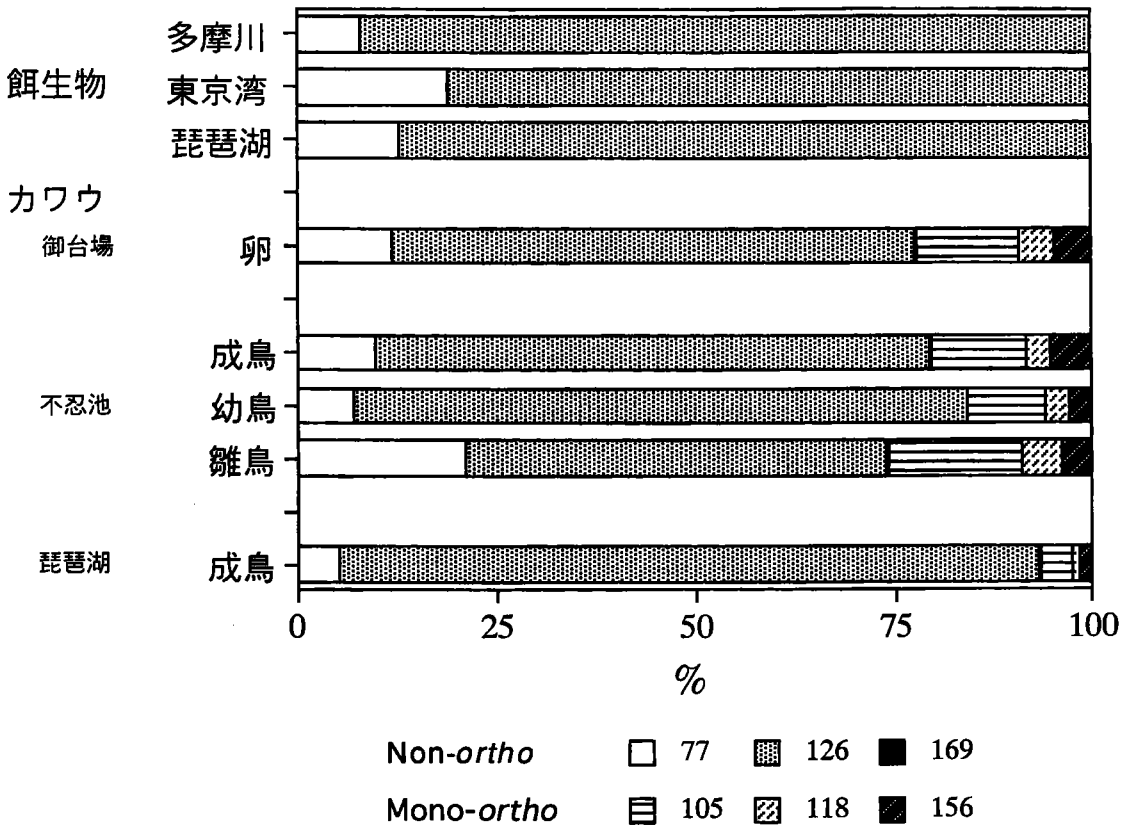


図9 カワウの卵、肝臓及びその餌生物から検出した non-ortho コプラナ PCBs の TEQ 値の組成

(9) PCBs の薬物代謝酵素誘導

ダイオキシン様の化合物に対して高い感受性を示す CYP 1 A1 酵素の誘導は、鳥類の EROD 活性を測定することによって確かめられている (Tillitt *et al.*, 1991 ; Yamashita *et al.*, 1992)。琵琶湖産カワウの肝マイクロゾーム画分で測定された EROD

($r=0.79$, $p<0.01$, $n=10$)と PROD ($r=0.94$, $p<0.001$, $n=10$)活性は、TEQ 値に対して有為な相関を示し、薬物代謝酵素が生体内に残留する PCBs によって誘導されていることが示されている (Guruge and Tanabe, 1997)。本研究では、生存個体を入手できなかったため、肝中薬物代謝酵素活性を直接測定できなかった。

ところで IUPAC 169 / 126 の濃度比は、薬物代謝酵素誘導と PCBs の毒性影響の関係を理解する指標として使われている (Kannan *et al.*, 1993)。高濃度の PCBs 暴露は IUPAC 169 / 126 の濃度比の増加を導き、酵素誘導を示唆する (Kannan *et al.*, 1993 ; Corsolini *et al.*, 1995)。薬物代謝酵素の誘導は、IUPAC169 よりも代謝されやすい IUPAC77、126 の分解を促進するため、結果的に IUPAC169 / 126 の割合を増加させる。そこで、この濃度比に注目して、薬物代謝酵素誘導の有無を検証した。その結果、不忍池の個体で、IUPAC169 / 126 の濃度比と TEQ 値の間に有意な正の相関がみられ ($r=0.71$, $p<0.01$)、ダイオキシン様物質による薬物代謝酵素の誘導が示唆された (図10)。

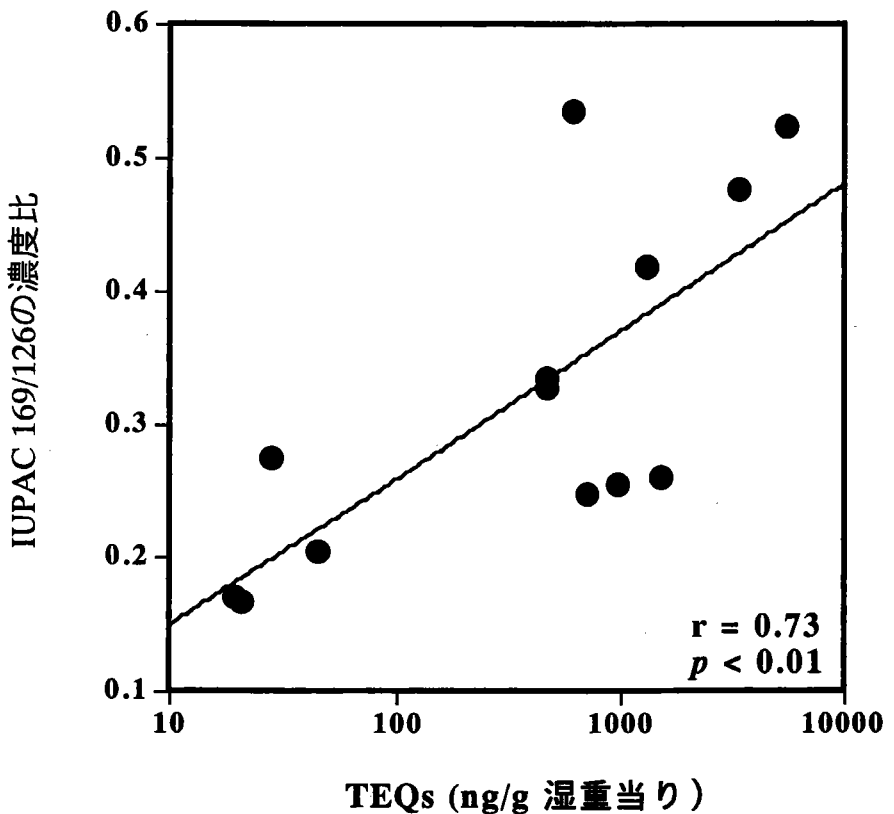


図10 不忍池のカワウ肝臓における PCBs と IUPAC 169 / 126 の関係

3. 要 約

本研究では、多摩川近郊の東京湾と不忍池で捕獲したカワウのブチルスズ化合物 (BTs) および有機塩素化合物を分析し、その生態汚染の現状と影響について以下のような知見を得た。

1. 御台場および不忍池のカワウおよびその卵から BTs が検出され、東京湾の鳥類も BTs によって汚染されていることが明らかになった。しかしその残留濃度は琵琶湖のカワウより低値であった。
2. 御台場および不忍池に生息するカワウの有機塩素化合物濃度は、PCBs > DDTs > CHLs > HCB > HCHs の順であった。不忍池の成鳥カワウは、琵琶湖の成鳥個体より明らかに有機塩素化合物濃度が高く、最高25 μ g/g (湿重当り) の PCBs を蓄積していた。
3. 不忍池のカワウでは、成長に伴う有機塩素化合物の蓄積がみられた。しかし成長の著しい雛鳥 (御台場個体) では、体重増加にともなう有機塩素化合物の希釈が認められた。
4. 御台場および不忍池に分布するカワウから IUPAC126 など強毒性のコプラナ PCBs が相当濃度で検出された。その TEQ 値は、これまで異常が報告されている五大湖産の鳥類とほぼ同程度であり、この種の PCB 成分による毒性影響が懸念された。とくに IUPAC126、77、105 のコプラナ PCBs は、高い毒性上のインパクトを与えていると推察された。
5. IUPAC169 / 126 の濃度比より、コプラナ PCBs によるチトクローム P450 薬物代謝酵素の誘導が示唆され、このこともカワウに対する毒性影響の可能性を暗示した。

参考文献

- Ahlborg UG, Becking GC, Birnbaum LS, Brouwer A, Derks HJGM, Feeley M, Golor G, Hanberg A, Larsen JC, Liem AKD, Safe SH, Schlatter C, Waern F, Younes M, Yrjanheikki E (1994) Toxic equivalency factors for dioxin-like PCBs. *Chemosphere* 28 : 1049-1067.
- Alzieu C, Sanjuan J, Deltreil JP, Borel M (1986) Tin contamination in Arcachon Bay : effects on oyster shell anomalies. *Mar Pollut Bull* 17 : 494-498.
- Anderson DW, Hickey JJ (1972) Eggshell changes in certain North American birds. *Proc XVth Int Orn Congr* 514-540.
- Bosveld ATC, Gradener J, Murk AJ, Brouwer A, Kampen MV, Evers EHG, Van den berg M (1995) Effects of PCDDs, PCDFs and PCBs in common tern (*Sterna hirundo*) breeding in estuarine and coastal colonies in the Netherlands and Belgium. *Environ Toxicol Chem* 14:99-115.
- Bosveld ATC, Van den berg M (1994) Effects of polychlorinated biphenyls (PCBs), dibenzo-*p*-dioxins (PCDDs), and dibenzofurans (PCDFs) on fish eating bird. *Environ Rev* 2 : 147-166.
- Burger J, Viscido K, Gochfeld M (1995) Eggshell thickness in marine birds in the New York Bight-1970s to 1990s. *Arch Environ Contam Toxicol* 29, 187-191.
- Coenen TMM, Brouwer A, Enninga IC and Koeman JH (1992) Subchronic toxicity and reproduction effects of tri-*n*-butyltin oxide in Japanese Quail. *Arch Environ Contam Toxicol* 23 : 457-463.
- Cooke AS (1979) Egg shell characteristics of gannets *Sula bassana*, shags *Phalacrocorax aristotelis* and great black-backed gulls *Larus marinus* exposed to DDE and other environmental pollutants. *Environ Pollut* 19 : 47-65.
- Corsolini S, Focardi S, Kannan K, Tanabe S, Borrell A, Tatsukawa R (1995) Congener profile and toxicity assessment of polychlorinated biphenyls in dolphins, sharks and tuna collected from Italian coastal waters. *Marine Environ Res* 40:33-53.
- Dirksen S, Boudewijn TJ, Slager LK, Mes RG, van Schaick MJM, de Voogt P (1995) Reduced breeding success of cormorants (*Phalacrocorax carbo sinensis*) in relation to persistent organochlorine pollution of aquatic habitats

- in the Netherlands. *Environ Pollut* 88:119-132.
- Environment Agency (1993) Office of Health Studies, Environmental Health Department, Japan. 257-258.
- Environment Agency (1995). Chemicals in the environment, Office of Health Studies, Environmental Health Department, Japan. 203-221.
- Focardi S, Leonzio C, Fossi MC (1989) Variations of polychlorinated biphenyl congener composition in eggs of Mediterranean water birds in relation to their position in the food chain. *Environ Pollut* 52:243-255.
- Fossi MC, Massi A, Lari L, Marsili L, Focardi S, Leonzio C, Renzoni A (1995) Interspecies differences in mixed function oxidase activity in birds: relationship between feeding habits, detoxication activities and organochlorine accumulation. *Environ Pollut* 90:15-24.
- Gibbs PE, Bryan GW (1986) Reproductive failure in populations of the dogwhelk, *Nucella Lapillus*, caused by imposex induced by tributyltin from antifouling paints. *J Mar Biol Ass UK* 66 : 767-777.
- Giesy JP, Ludwig JP, Tillitt DE (1994) Dioxins, dibenzofurans, PCBs and similar chlorinated diaromatic hydrocarbons in and their effects on birds. In : Schecter A (ed) Dioxins and health, Plenum Press, New York, pp 249 - 307.
- Gilbertson M, Kubiak T, Ludwig J, Fox G (1991) Great Lakes embryo mortality, edema and deformities syndrome (GLEMEDS) in colonial fish-eating birds: similarity to chick-edema disease. *J Toxicol Environ Health* 33:455-520.
- Guruge KS, Tanabe S, Iwata H, Tatsukawa R, Yamagishi S (1996) Distribution, biomagnification, and elimination of butyltin compound residues in common cormorants (*Phalacrocorax carbo*) from the Lake Biwa, Japan. *Arch Environ Contam Toxicol* 31:210-217.
- Guruge KS, Tanabe S (1997) Congener specific toxic assessment of polychlorinated biphenyl and P-450 induction in common cormorant, *Phalacrocorax carbo*, from Lake Biwa, Japan. *Environ Pollut* 96. 425-433.
- Heath RG, Spann JW, Kreitzer JF (1969) Marked DDE impairment of mallard reproduction in controlled studies. *Nature* 224:47-48.

- Higashiyama T, Shiraishi H, Otsuki A, Hashimoto S (1991) Concentrations of organotin compounds in blue mussels from the wharves of Tokyo Bay. *Mar Pollut Bull* 22:585-587.
- Honda K, Nasu T, Tatsukawa R (1986) Seasonal changes in mercury accumulation in the black-eared Kite, *Milvus migrans lineatus*. *Environ Pollut* 42:325-334.
- Iwata H, Tanabe S, Miyazaki N, Tatsukawa R (1994) Detection of butyltin compound residues in the blubber of marine mammals. *Mar Pollut Bull* 28:607-612.
- Iwata H, Tanabe S, Mizuno T, Tatsukawa R (1995) High accumulation of toxic butyltins in marine mammals from Japanese coastal waters. *Environ Sci Technol* 29:2959-2962.
- Jones PD, Giesy JP, Newsted JL, Verbrugge DA, Beaver DL, Ankley GT, Tillitt DE, Lodge KB, Niemi GL (1993) 2, 3, 7, 8-tetrachlorodibenzo-*p*-dioxin equivalents in tissues of birds at Green Bay, Wisconsin, USA. *Arch Environ Contam Toxicol* 24:345-354.
- Jones PD, Giesy JP, Newsted JL, Verbrugge DA, Ludwig JP, Ludwig ME, Auman HJ, Crawford R, Tillitt DE, Kubiak TJ, Best DA (1994) Accumulation of 2, 3, 7, 8-tetrachlorodibenzo-*p*-dioxin equivalents by double-crested cormorant (*Phalacrocorax auritus*, Pelicarniformes) chicks in the North American Great Lakes. *Ecotoxicol Environ Safe* 27:192-209.
- Kawano M, Matsushita S, Inoue, Tanaka H, Tatsukawa R (1986) Biological accumulation of chlordane compounds in marine organisms from the northern North Pacific and Bering Sea. *Mar Pollut Bull* 17:512-516.
- Kawano M, Inoue T, Wada T, Hidaka H, Tatsukawa R (1988) Bioconcentration and residue patterns of chlordane compounds in marine animals: Invertebrates, fish, mammals, and seabirds. *Environ Sci Technol* 22:792-797.
- Kannan K, Iwata H, Tanabe S, Tatsukawa R (1995) Butyltins in muscle and liver of fish collected from certain Asian and Oceanian countries. *Environ Pollut* 90:279-290.
- Kannan K, Tanabe S, Borrell A, Aguilar A, Focardi S, Tatsukawa R (1993) Isomer-specific analysis and toxic evaluation of polychlorinated biphenyls

- in striped dolphins affected by an epizootic in the western Mediterranean sea. Arch Environ Contam Toxicol 25:227-233.
- Kannan N, Tanabe S, Wakimoto T, Tatsukawa R (1987) Coplanar polychlorinated biphenyls in Aroclors and Kanechlors. J Assoc Off Anal Chem 70 : 451-454.
- Kubiak TJ, Harris HJ, Smith LM, Schwartz TR, Stalling DL, Trick JA, Sileo L, Docherty DE, Erdman TC (1989) Microcontaminants and reproductive impairment of the Forster's tern on green Bay, Lake Michigan-1989. Arch Environ Contam Toxicol 18:706-727.
- Larson JM, Karasov WH, Sileo L, Stromborg KL, Hanbidge BA, Giesy JP, Jones PD, Tillitt DE, Verbrugge DA (1996) Reproductive success, developmental anomalies, and environmental contaminants in double-crested cormorants (*Phalacrocorax auritus*). Environ Toxicol Chem 15:553-559.
- Lewis SA, Furness RW (1991) Mercury accumulation and excretion in laboratory reared black-headed gull *Larus ridibundus* chicks. Arch Environ Contam Toxicol 21:316-320.
- Loganathan BG, Tanabe S, Goto M, Tatsukawa R (1989) Temporal trend of organochlorine residues in lizard goby *Rhinogobius flumineus* from the river Nagaragawa, Japan. Environ Pollut 62:237-252.
- Maguire RJ (1986) Review of the occurrence, persistence and degradation of tributyltin in fresh water ecosystems in Canada. Organotin symposium. Oceans 86 proceedings. 4:1252-1255.
- Mason CF, Ekins G, Ratford JR (1997) PCB congeners, DDE, dieldrin and mercury in eggs from an expanding colony of cormorants (*Phalacrocorax carbo*). Chemosphere 34:1845-1849.
- Miyazaki T, Yamagishi T, Matsumoto M (1986) Component pattern of chlordanes in sea water, river water, fish and shellfish. J Food Hyg Soc Jpn 27, 49-58. (in Japanese).
- Ohlendorf HM, Marois KC (1990) Organochlorines and selenium in California night-heron and egret eggs. Environ Monitor Assess 15 : 91-104.

- Pilon C, Burton J, McNeil R (1983) Summer food of the great and double-crested cormorants on the Magdalen Islands, Quebec. *Can J Zool* 61:2733-2739.
- Safe S (1990) Polychlorinated biphenyls (PCBs), dibenzo-*p*-dioxins (PCDDs) and dibenzofurans (PCDFs), and related compounds : environmental and mechanistic considerations which support the development of toxic equivalency factors (TEFs). *Crit Rev Toxicol* 21:51-88.
- Scharenberg W (1991) Cormorants (*Phalacrocorax carbo sinensis*) as bioindicators for polychlorinated biphenyls. *Arch Environ Contam Toxicol* 21:536-540.
- Schlatterer B, Coenen TMM, Ebert E, Grau R, Hilbig V, Munk R (1993) Effect of *Bis* (tri-*n*-butyltin) oxide in Japanese quail exposed during egg laying period : An interlaboratory comparison study. *Arch Environ Contam Toxicol* 24:440-448.
- Somers JD, Goski BC, Barbeau JM (1993) Accumulation of organochlorine contaminants in double-crested cormorants. *Environ Pollut* 80:17-23.
- Suzuki T, Matsuda R, Saito Y (1992) Molecular Species of Tri-*n*-butyltin compounds in marine products. *J Agric Food Chem* 40:1437-1443.
- Tanabe S, Tanaka H, Tatsukawa R (1984) Polychlorinated biphenyls, DDTs, and hexachlorocyclohexane isomers in the Western North Pacific ecosystem. *Arch Environ Contam Toxicol* 13:731-738.
- Tanabe S, Kannan N, Subramanian An, Watanabe S, Tatsukawa R (1987) Highly Toxic coplanar PCBs : occurrence, source, persistency and toxic implication to wildlife and humans. *Environ Pollut* 47:147-163.
- Tanabe S, Watanabe S, Kan H, Tatsukawa R (1988) Capacity and mode of PCB metabolism in small cetaceans. *Mar Mam Sci* 4:103-124.
- Tanabe S, Iwata H, Tatsukawa R (1994) Global contamination by persistent organochlorines and their ecotoxicological impact on marine mammals. *Sci Total Environ* 4 : 103-124.
- Tillitt DE, Ankley GT, Verbrugge DA, Giesy JP, Ludwig JP, Kubiak TJ (1991) H 4 IIE rat hepatoma cell bioassay-derived 2, 3, 7, 8-tetrachlorodibenzo-*p*-dioxin equivalents in colonial fish-eating bird eggs from the Great Lakes.

- Arch Environ Contam Toxicol 21:91-101.
- Tillitt DE, Ankley GT, Giesy JP, Ludwig JP, Kurita-Matsuba H, Weseloh D V, Ross PS, Bishop A, Seleo L, Stromborg KL, Larson J, Kubiak TJ (1992) Polychlorinated biphenyl residues and egg mortality in double-crested cormorants from the Great Lakes. Environ Toxicol Chem 11:1281-1288.
- Tsuda T, Nakanishi H, Morita T, Takebayashi J (1986) Simultaneous gas chromatographic determination of dibutyltin and tributyltin compounds in biological and sediment samples. Assoc Anal Chem 69:6:981-984.
- Van den berg M, Craane BLHJ, Sinnige T, Mourik SV, Dirksen S, Boudewijn T, Gaag MV, Lutrk-Schipholt J, Spengelink B, Brouwer A (1994) Biochemical and toxic effects of polychlorinated biphenyls (PCBs), dibenzo-*p*-dioxins (PCDDs) and dibenzofurans (PCDFs) in the cormorant (*Phalacrocorax carbo*) after ovo exposure. Environ Toxicol Chem 13:803-816.
- Van den berg M, Birnbaum L, Bosveld ATC, Brunstrom B, Cook P, Feeley M, Giesy JP, Hanberg A, Hasegawa R, Kennedy SW, Kubiak T, Lersen JC, Leeuwen FXR, Liem AKD, Nolt C, Peterson RE, Poellinger L, Safe S, Schrenk D, Tillitt D, Tysklind M, Younes M, Waern F, Zacharewski T (1998) Toxic equivalency factors (TEFs) for PCBs, PCDDs, PCDFs for humans and wildlife. Environ Health Perspect 106(12):775-792.
- Vermeer, K. & Peakall, D. B. (1977) Toxic chemicals in Canadian Fish-eating birds. Mar Pollut Bull 8:205-210.
- Wade TL, Garcia-Romero B, Brooks JM (1988) Tributyltin contamination in bivalves from United States coastal estuaries. Environ Sci Technol 22:1488-1493.
- Wakimoto T, Tatsukawa R, Ogawa T (1971) Analytical methods of PCBs. J Environ Pollut Control 7:517-522.
- Walker CH, Knight GC, Chipman JK, Ronis MJ J (1984) Hepatic microsomal monooxygenases of Sea birds. Marine Environ Res 14:416-419.
- Watanabe N, Ishimaru Y, Ishida N, Katayama Y, Kitayama S (1979) The use of Isaza (*Chaenogobius isaza* TANAKA) to study the PCB pollution. Jap J Limnol 40:66-73. (in Japanese).

- Wilson JG, Early JJ (1986) Pesticide and PCB levels in the eggs of shag and cormorant from Ireland. *Environ Pollut* 12:15-26.
- Yamashita N, Tanabe S, Ludwig JP, Kurita H, Ludwig ME, Tatsukawa R (1993) Embryonic abnormalities and organochlorine contamination in double-crested cormorants (*Phalacrocorax auritus*) and caspian terns (*Hydroprogne caspia*) from the upper Great Lakes in 1988. *Environ Pollut* 79:163-173.
- Yamashita N, Simada T, Tanabe S, Yamazaki H, Tatsukawa R (1992) Cytochrome P-450 forms and its inducibility by PCB isomers in black-headed gulls and black-tailed gulls. *Mar Pollut Bull* 24:316-321.
- Zimmermann G, Dietrich DR, Schmid P, Schlatter C (1997) Congener-specific bioaccumulation of PCBs in different water bird species. *Chemosphere* 34 : 1379-1388.

「た ま がわおよ しゅうへがしいき せいそく多摩川及び周辺水域に生息するカワウのゆうがいぶっしつちくせき有害物質蓄積と
えいきようひょうか かん かんきようか がくてきけんきゆうその影響評価に関する環境化学的研究」

(研究助成・学術研究 VOL. 28-No.202)

著 者 田 邊 信 介
発行日 2000年3月31日
発 行 財団法人 とうきゅう環境浄化財団
〒150-0002
渋谷区渋谷1-16-14 (渋谷地下鉄ビル内)
TEL (03)3400-9142
FAX (03)3400-9141
