

# 日本周辺の4海域で採集したトラザメ, *Scyliorhinus orazame*, のPCBsとDDEの蓄積特性

誌名	東海大学紀要. 海洋学部
ISSN	13487620
著者名	堀江, 琢 田中, 博之 田中, 彰
発行元	東海大学海洋学部
巻/号	2巻2号
巻号補足	
掲載ページ	p. 33-43
発行年月	2004年11月

農林水産省 農林水産技術会議事務局筑波産学連携支援センター  
Tsukuba Business-Academia Cooperation Support Center, Agriculture, Forestry and Fisheries Research Council  
Secretariat



# 日本周辺の4海域で採集したトラザメ, *Scyliorhinus torazame*, のPCBsとDDEの蓄積特性

堀江 琢\*<sup>1</sup>・田中博之\*<sup>2</sup>・田中 彰\*<sup>1</sup>

Bioaccumulation of PCBs and DDE in cloudy catshark,  
*Scyliorhinus torazame*, caught in four locations around Japan

Taku HORIE, Hiroyuki TANAKA and Sho TANAKA

## Abstract

Only a few biology- and ecology-based studies have been conducted on the bioaccumulation of polychlorinated biphenyls (PCBs) and dichlorodiphenyl dichloroethylene (DDE) in sharks, which are the top predatory fish. We analyzed the concentrations of PCBs and DDE in the cloudy catshark, *Scyliorhinus torazame*, caught in four locations around Japan. A total of 30 sharks were caught from Aomori Prefecture (8), Fukushima Prefecture (8), Ibaraki Prefecture (7), and Tsushima Island (7). The ranges of concentrations of PCBs on a lipid weight basis in the four locations were 0.40-1.5 $\mu$ g/g, 0.41-1.6 $\mu$ g/g, 0.69-2.4 $\mu$ g/g, and 0.54-4.4 $\mu$ g/g, respectively, and those of DDE were 0.077-0.82 $\mu$ g/g, 0.17-0.63 $\mu$ g/g, 0.25-0.78 $\mu$ g/g, and 0.48-1.6 $\mu$ g/g, respectively. Among the sharks caught from Tsushima Island, the concentration of both chemicals was higher in mature males than in mature females. During ovulation, the PCBs and DDE may be transferred into the eggs of the mature female. The ratio of DDE to PCBs in the sharks from Tsushima Island was significantly higher than the ratios obtained in other locations. This result suggests the recent use of DDT by developing Asian countries located to the south of Japan. The ratio of trichlorinated biphenyls to total PCBs in Aomori Prefecture was higher than the ratios obtained in other locations. The difference in PCB composition in sharks from Aomori Prefecture could be attributed to the Kurile Current. The main PCB isomers detected in cloudy catsharks were IUPAC Nos. 153, 138, 118, 180, and 187. The influence of toxicity caused by the coplanar PCB (IUPAC No. 118) in the cloudy catshark is a matter of concern.

## 1. 緒 言

Polychlorinated biphenyls (PCBs) は、ビフェニール基に1-10個の塩素が置換した化合物の総称で、置換塩素数と置換位置によって理論上209の異性体が存在する。化学的に不活性で、熱、酸、アルカリに優れた耐性を持ち、水に難溶であるが油によく溶け、プラスチックとの相性が良く、不燃性、低揮発性、絶縁性が良い等の特性を持つため、工業材料として広い用途を持っている。PCBsによる環境汚染は、スウェーデンのJensen (1966) がオジロ

ワシの体内から検出し、世界で初めて明らかにされた。我が国では、1968年にPCBsを原因物質とするカネミ油症事件が発生して、大きな社会問題となり、1972年に生産が中止されている(立川, 1977)。環境中に流出したPCBsの大部分は、沿岸底や外洋海水に残留している(田辺, 1985)。

Dichlorodiphenyl trichloroethane (DDT) は、過去シラミ駆除やマラリア防除の殺虫剤として大量に散布された。DDTも生体内への高い蓄積特性と強い毒性をもつことから、先進国では使用が禁止されており、我が国では1971年に生産が禁止された(環境庁, 1999)。しかし、発

2004年9月13日受理

\*1 東海大学海洋学部水産学科 (Department of Fisheries, School of Marine Science and Technology, Tokai University.)

\*2 独立行政法人水産総合研究センター瀬戸内海区水産研究所 (National Research Institute of Fisheries and Environment of Inland Sea Fisheries Research Agency.)

展途上国では、化学物質の適切な管理に必要な能力開発、組織体制の整備等が不十分であることや、代替品との価格差が大きいためその購入が困難であること、代替物質を生産するための技術と資本が不足していることなどが障害となっており、今もなお使用されている（環境庁, 2000）。

蓄積性の化学物質による生物への汚染は、生物が直接環境から取り込むことに加えて、生態系の中での食物連鎖を経由し、栄養段階の上位生物に順次濃縮されて増幅される（吉田, 1977）とされる。このため、海産哺乳動物をはじめとする高次捕食者ではいくつかの弊害が生じている。例えば、1992年にイタリア沿岸でのハンドウイルカ *Tursiops truncatus* とハナゴンドウ *Grampus griseus* の大量死の際は、死亡個体の多くから高濃度のPCBsが検出され、感染症の発症に関わっている可能性が示唆されている（Corsolini *et al.*, 1995）。また、アメリカ合衆国フロリダ州のアポプカ湖では、1980年にDDTを含む農業が大量に流入し、これがアリゲーターの減少や雄個体のホルモン異常に関与した可能性が考えられている（Gullette, 1998）。

このような背景から、日本では保管してあったPCBを処理する法律として、「ポリ塩化ビフェニル廃棄物の適正な処理推進に関する特別措置法」（平成13年法律 第65号）が2001年7月15日に施行され、合わせて、政令215号において、施行日から15年の期間内における処理が定められている。また、PCBやDDTなどを含む12種の残留性有機汚染物質の、製造、使用の廃絶、削減を国際的な協調のもとに行う目的で、残留性有機汚染物質に関するストックホルム条約（POPs条約）が2004年5月に発効されており（環境省, 2004）、今後、これらの環境での動向を監視する必要があると考えられる。

サメ類は、海洋生態系の高位に位置しており、PCBsやDDTのような蓄積性のある汚染物質を高濃度に蓄積していると考えられる。しかし、その報告例は少なく（新聞・新聞, 1974; 高木ほか, 1976; 高木, 1976; Butler and Schutzmann, 1979; Corsolini *et al.*, 1995; Berg *et al.*, 1997; Lee *et al.*, 1997; Serrano *et al.*, 1997）、特にサメ類の生物学的・生態学的知見に基づく蓄積特性についてはほとんど報告されていないのが現状である。蓄積性のある汚染物質に対して、高次捕食者であるサメ類の生物学的・生態学的知見に基づいて、その蓄積特性を明らかにすることは、サメ類の汚染に対する影響や、水産業に関わる生物も同居生息している環境の汚染状況を把握する上からも、重要であると考えられる。

トラザメ *Scyliorhinus torazame* は、トラザメ科 Scyliorhinidae に属する。本種は、北海道以南の日本近海から韓国、中国、フィリピン近海まで広く分布し、水深100m前後に生息する底生性のサメである（吉野・青沼, 2000）。繁殖様式は卵生で、全長40cm前後で成熟に達する（Horie and Tanaka, 2002）。本種は、底曳網、刺網、底延縄などで漁獲されるが、水産物として利用されること

はほとんどない。また、山口県では投棄される魚のうちの重量で約40%を占めている（高木, 1994）。

このように、トラザメは日本各地に分布し、サメ類としては比較的まとまって漁獲されるため容易に採集できる。本研究では日本各地で採集したトラザメを用い、本種のPCBsとDDTの代謝産物であるDDE（Dichlorodiphenyl dichloroethylene）の汚染状況とその蓄積特性を明らかにすることを目的とした。

## 2. 材料と方法

### 1) 試料

試料として、1998年10月から12月の間に、青森県尻屋崎沖で操業した底曳網に混獲され、八戸魚市場で投棄されたトラザメ8個体（雌4個体、雄4個体）を採集した。また、1998年10月に福島県久ノ浜沖で8個体（雌4個体、雄4個体）、1998年9月に茨城県白磯沖で7個体（雌6個体、雄1個体）、1998年8月に長崎県対馬沖で7個体（雌3個体、雄4個体）を、それぞれの海域で操業した底曳網で採集した（Fig. 1）。供試魚は採集後直ちに凍結して実験室に持ち帰り、解凍後に全長と体重を測定し解剖を行った。解剖では既報に従い（Horie and Tanaka, 2000）、生殖器官の発達状況から成熟状態を観察した。また、肝臓を取り出して重量を測定し、以下の方法で肝臓内のPCBsとDDEを測定した。

### 2) PCBsとDDEの抽出および分析方法

肝臓をペースト状にホモジナイズして、2-5gを秤取りし、これにヘキサン20mlを加えて3時間振とうして、脂質をヘキサンで抽出した。その後、遠心分離（3000rpm, 10分間）を行って、ヘキサン層をナシ型フラスコに回収した。この処理は2回行った。さらに、試料にアセトン10mlとヘキサン10mlを加えて3時間振とうし、蒸留水10ml加えて再び10分間振とうし、遠心分離（10分間）後ヘキサン層を回収した。回収したヘキサンは合わせてロータリー・エバポレーターで濃縮、乾固し、脂質重量を測定した。

分析法は、脇本ほか（1971）に従いアルカリ分解法を用いた。この方法では抽出した脂質をアルカリアルコールでけん化することにより、脂質や試料に含まれるエステル類の農薬およびその他の妨害物質を分解することにより、PCBsのみを分析できる。なおこの方法では、DDTの代謝物であるDDEは、PCBsと同様の挙動を示し、DDTは定量的にDDEに変化する。このため、DDTとDDEの含量をDDEとして同時に定量できる。本報では、p,p'-DDEについて測定した。脂質を三角フラスコ（500ml）に移して、50mlの1N-水酸化カリウムエタノール溶液（KOH-EtOH）を加え、リービッヒ冷却器をつけ80°Cで1時間環流した。加熱後50°Cほどまで冷却し、あらかじめ蒸留水（50ml）とヘキサン（50ml）を入れておいたスキープ型分

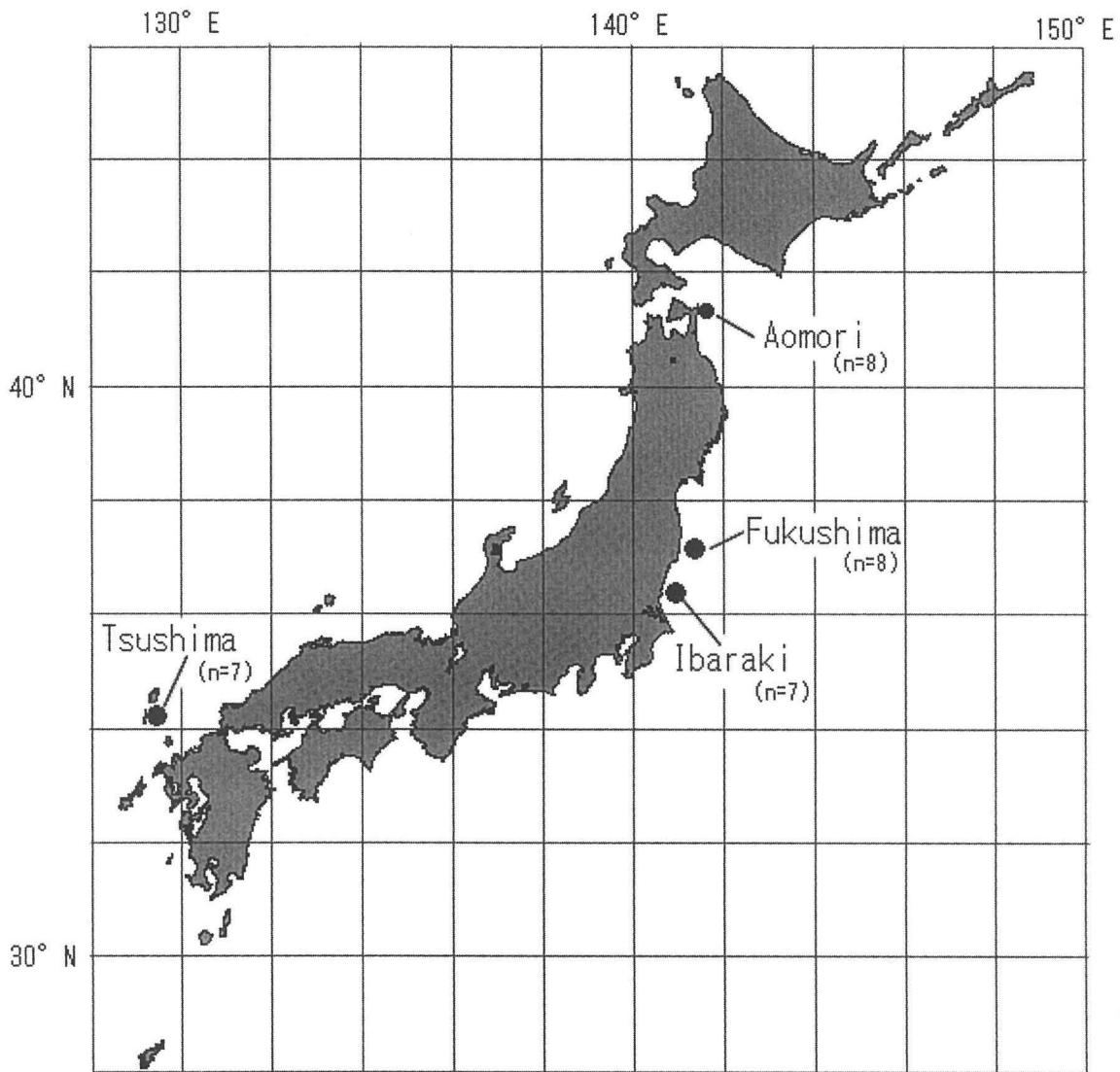


Fig. 1 Map showing the sampling locations of cloudy catsharks.

液ロート (300ml) に加えて, 5分間振とうしてヘキサンに転溶した。これをしばらく静置した後, 水層を捨て, さらに蒸留水 50ml を加えて水洗処理を 3 回行った。いずれの場合も, エマルジョン層は残し, 水洗処理後はヘキサン層の回収量を計量した。回収したヘキサン層の回収率は平均 95.4% であり, 未回収分については, 濃度の計算時に補正した。次に, 回収したヘキサン溶液をナシ型フラスコに移して, ロータリー・エバポレーターで濃縮した。

シリカゲルによる分離・精製はスペルクリン LC-Si カートリッジ (Supelco, inc., 以下カートリッジと略す) を用いてバキュームマニホールド上で行った。カートリッジをヘキサン (2ml) でコンディショニングして, PCBs と DDE を含む濃縮したヘキサン溶液 (1ml) を, カートリッジに添加し, シリカゲルに吸着させた。その後, ヘキサン 9ml を流すことによって, PCBs と DDE を含む分画を得た。これをロータリー・エバポレーターで濃縮して, 最終溶液を 1-1.5ml にした。

キャピラリーカラム (HP-5 cross-linked 5% phenyl

methyl silicone, 30m, 0.25mmID) を装着した GC-MS (ガスクロマトグラフ質量分析計 Hewlett packard-5890 II, 5972) に最終溶液をスプリットレス注入し, SIM (Selected Ion Monitor) モードで PCBs と p,p'-DDE を定性・定量した。分析条件は以下の通りである。カラム温度は, 60°C で 1 分間保持後, 15°C/min で 180°C まで昇温, 続いて 5°C/min で 300°C まで昇温し, 2 分間保持した。試料導入部の温度は 280°C, 検出器を装着する部分に 300°C の温度をかけ, GC-MS のインターフェース部分に約 190°C の温度を得た。PCBs は, 3, 4, 5, 6, 7, 8 塩化同族体に対応して, それぞれの質量数 m/z256, 292, 326, 360, 394, 430 に, DDE は m/z318 に設定してそれぞれ検出した。今回定量に用いた標準液は, PCBs の標準カネクロール製品の KC-300, -400, -500, および -600 を当量混合した 1ppm ヘキサン溶液と, DDE の標準品の 500ppb ヘキサン溶液を用いた。なお, PCB と DDE 濃度は, それぞれ脂質重量の単位あたりに含まれる両物質の重量として求めた。また, 実験を行うにあたり, ホモジナイズして秤

取した試料に、PCBsとDDEの標準溶液を添加しての回収試験を3回繰り返した。毎回95%以上の回収率が得られ再現性は良好であった。

### 3. 結 果

#### 1) 全長と PCBs および DDE の関係

青森県の肝臓内の脂質含有率は、雌雄それぞれで10.6-36.0%と12.2-50.2%であった (Table 1)。肝臓内のPCBs濃度は、雌で0.49-1.4 $\mu\text{g/g}$ 、雄で0.40-1.5 $\mu\text{g/g}$ 、DDE濃度は、雌で0.14-0.81 $\mu\text{g/g}$ 、雄で0.077-0.82 $\mu\text{g/g}$ であった。雌の肝臓内のPCBsとDDE濃度は、ともに全長152mmの未成魚が最も低く、全長470mmの成魚が最高値を示した (Figs. 2a and 3a)。雄のPCBs濃度は全長331mm、DDE濃度は全長205mmの未成魚が最低で、PCBsとDDE濃度はともに全長501mmの成魚が最高値を示した。

福島県の肝臓内の脂質含有率は、雌雄それぞれで35.5-52.0%と25.7-50.2%であった (Table 1)。肝臓内のPCBs濃度は雌で0.42-1.3 $\mu\text{g/g}$ 、雄で0.41-1.6 $\mu\text{g/g}$ 、DDE濃度は雌で、0.20-0.63 $\mu\text{g/g}$ 、雄で0.17-0.63 $\mu\text{g/g}$ であった。雌の肝臓内のPCBsとDDE濃度は、ともに全長386mmの未成魚が最低で、全長443mmの成魚が最高値を示した (Figs. 2b and 3b)。雄のPCBsとDDE濃度は、ともに全長299mmの未成魚が最低で、全長442mmの成魚が最高値を示した。

茨城県の肝臓内の脂質含有率は、雌雄それぞれで28.8-52.0%と36.2%であった (Table 1)。肝臓内のPCBs濃度は、雌で0.69-2.2 $\mu\text{g/g}$ 、雄で2.4 $\mu\text{g/g}$ 、DDE濃度は雌で0.25-0.78 $\mu\text{g/g}$ 、雄で0.71 $\mu\text{g/g}$ であった。雌の肝臓内のPCBsとDDE濃度は、ともに全長433mmの成魚が最低で、全長430mmの成魚が最高値を示した (Figs. 2c and 3c)。

対馬の肝臓内の脂質含有率は、雌雄それぞれで18.4-46.2%と31.4-40.2%であった (Table 1)。肝臓内のPCBs濃度は、雌で0.54-0.99 $\mu\text{g/g}$ 、雄で0.81-4.4 $\mu\text{g/g}$ 、DDE濃度は雌で、0.48-0.72 $\mu\text{g/g}$ 、雄で0.53-1.6 $\mu\text{g/g}$ であった。雌の肝臓内のPCBsとDDE濃度は、ともに全長354

mmの未成魚が最低で、全長420mmの成魚が最高値を示した (Figs. 2d and 3d)。雄のPCBsとDDE濃度は、ともに全長347mmの未成魚が最低で、PCBs濃度は全長421mmの成魚が、DDE濃度は全長432mmの成魚が最高値を示した。

以上のことから、海域間でPCBsとDDE濃度を比較すると、対馬の雄の成魚が両濃度ともに高い濃度を示した。一方、対馬の未成魚や雌の成魚では、他海域に比べPCBs濃度はほとんど変わらず、DDE濃度がやや高い値を示した。

#### 2) PCBs と DDE 濃度の関係

各海域ごとの肝臓内のPCBs (X) とDDE (Y) 濃度の関係について解析した。個体数の関係から雌雄あわせて解析を行ったが、何れの海域においても有意な相関関係が認められ、以下の回帰式が得られた (Fig. 4)。

$$\text{青森県: } Y = 0.64X - 0.12 \quad (r = 0.881)$$

$$\text{福島県: } Y = 0.41X - 0.26 \quad (r = 0.983)$$

$$\text{茨城県: } Y = 0.18X + 0.25 \quad (r = 0.882)$$

$$\text{対馬: } Y = 0.39X + 0.23 \quad (r = 0.924)$$

それぞれの海域間で、回帰直線の傾きと切片について共分散分析を行った。青森県の回帰直線は福島県、茨城県、対馬のいずれの回帰直線とも、直線の傾きに有意な差が認められ (福島:  $F_{\text{cal}} = 11.11$ , 茨城:  $F_{\text{cal}} = 20.22$ , 対馬:  $F_{\text{cal}} = 13.21$ ,  $P < 0.05$ ) 異なった。

福島県と茨城県の回帰直線には有意な差は認められなかった ( $P > 0.05$ )。

また、対馬の回帰直線には、福島県と茨城県と傾きに有意な差は認められなかった ( $P > 0.05$ ) が、切片はそれぞれ有意な差が認められ異なった (福島県:  $F_{\text{cal}} = 8.28$ , 茨城県  $F_{\text{cal}} = 6.89$ ,  $P < 0.05$ )。

#### 3) PCBs 組成

PCBsは、青森県で55-68、福島県で66-72、茨城県で37-71、対馬で59-65成分を検出した。PCBsの同族体や、異性体の各組成に雌雄差が見られなかったため、雌雄あわせてPCBs組成について解析した。

PCBs総量に対する各PCBs同族体の割合を雌雄あわせて示す (Fig. 5)。各海域ともに6塩化合物が最も多く

**Table 1** The PCBs and DDE concentrations in the livers of sharks from four locations.

Location	Aomori Prefecture		Fukushima Prefecture		Ibaraki Prefecture		Tsushima Island	
	Date	Sex	Date	Sex	Date	Sex	Date	Sex
Date	October-December 1998		October 1998		September 1998		August 1998	
Sex	Female	Male	Female	Male	Female	Male	Female	Male
Number of specimens	4	4	4	4	6	1	3	4
Total length (mm)	152-470	156-501	307-443	255-442	390-470	450	322-420	347-432
Fat in liver (%)	10.6-36.0	12.2-50.2	35.5-52.0	25.7-50.2	28.8-52.0	36.2	18.4-46.2	31.4-40.2
PCBs	0.49-1.4	0.40-1.5	0.42-1.3	0.41-1.6	0.69-2.2	2.4	0.54-0.99	0.81-4.4
DDE	0.14-0.81	0.077-0.82	0.20-0.61	0.17-0.63	0.25-0.78	0.71	0.48-0.72	0.53-1.6

日本周辺の4海域で採集したトラザメ, *Scyliorhinus torazame*, のPCBsとDDEの蓄積特性

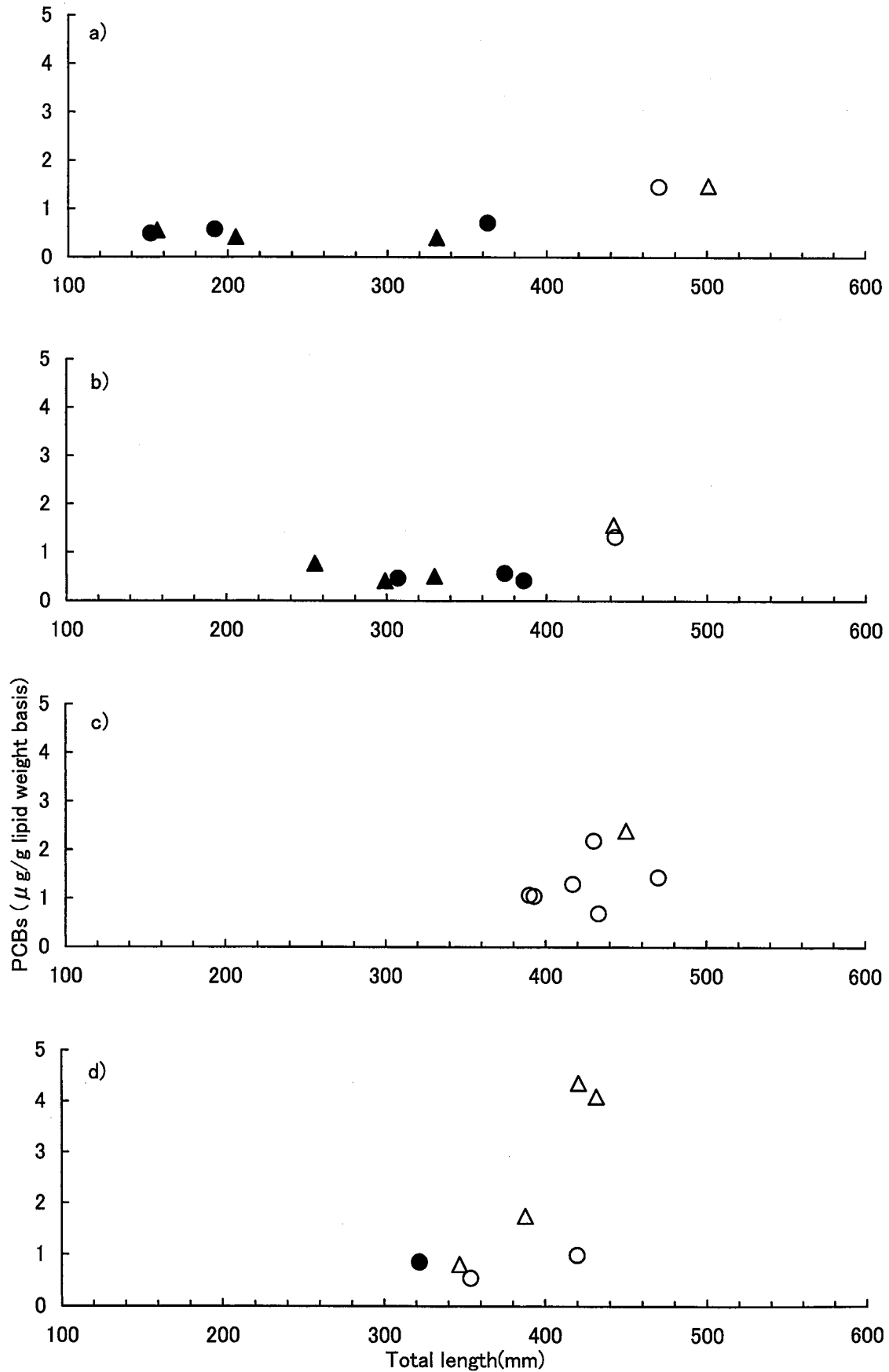


Fig. 2 Relationship between total length and PCB concentration in female (●: immature, ○: mature) and male (▲: immature, △: mature) cloudy catsharks from Aomori Prefecture (a), Fukushima Prefecture (b), Ibaraki Prefecture (c), and Tsushima Island (d).

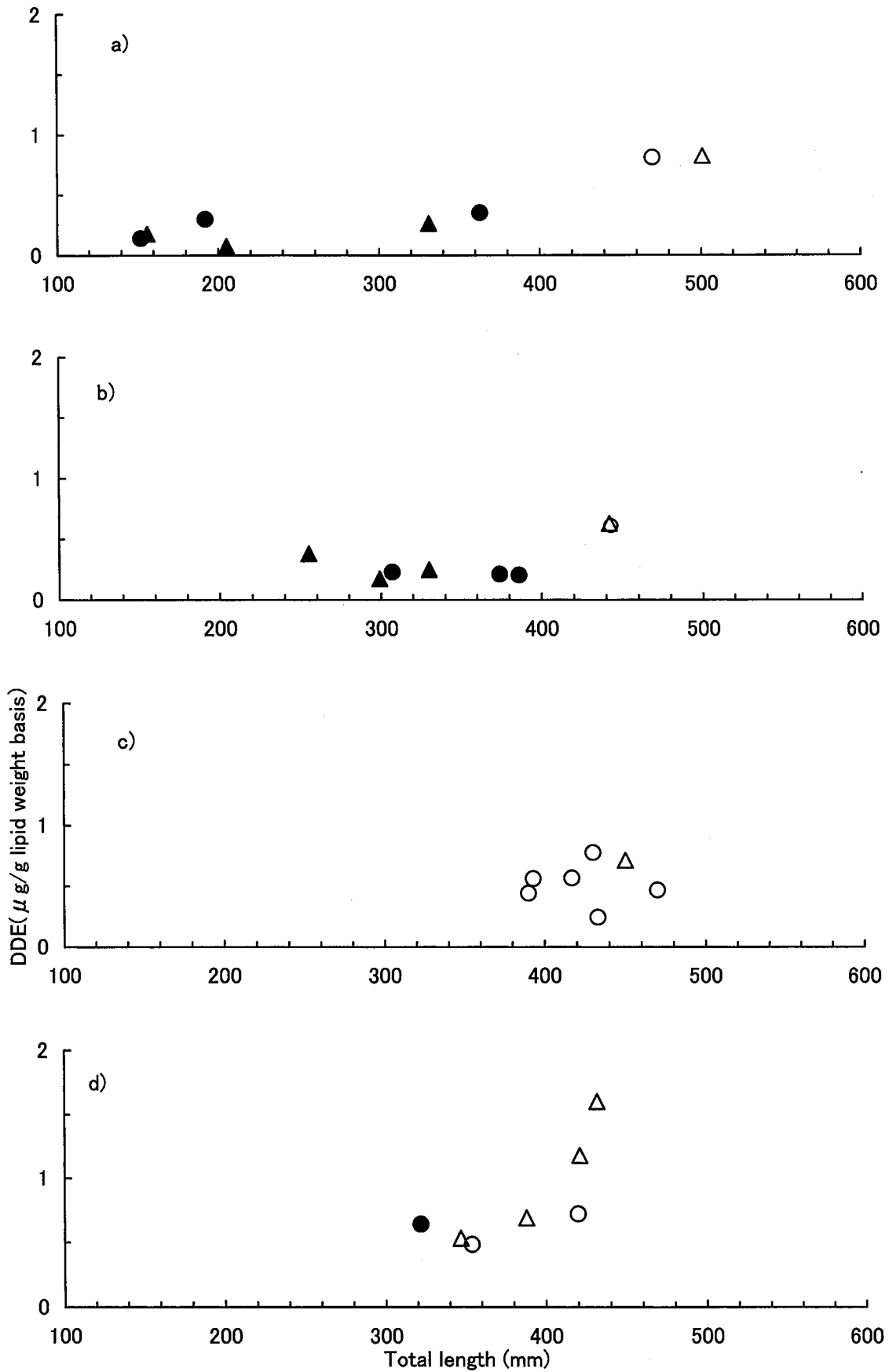


Fig. 3 Relationship between total length and DDE concentration in female (●: immature, ○: mature) and male (▲: immature, △: mature) cloudy catsharks from Aomori Prefecture (a), Fukushima Prefecture (b), Ibaraki Prefecture (c), and Tsushima Island (d).

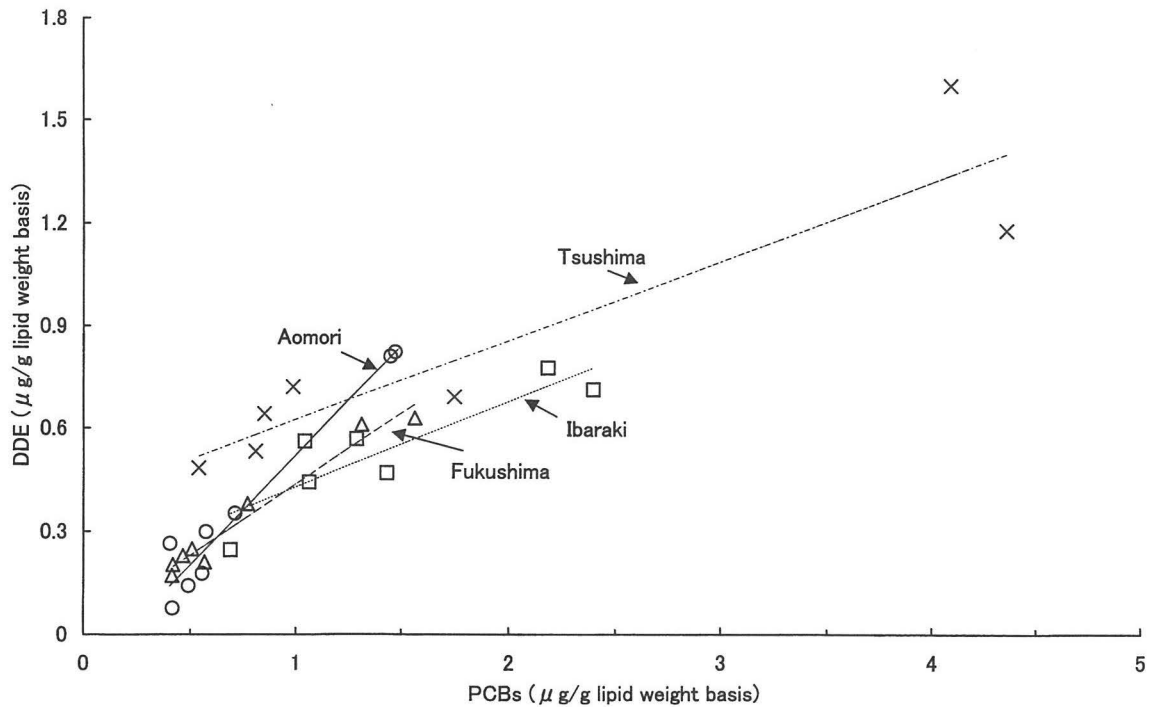


Fig. 4 Relationship between the PCB and DDE concentrations in the livers of sharks from Aomori Prefecture (○), Fukushima Prefecture (△), Ibaraki Prefecture (□), and Tsushima Island (×).

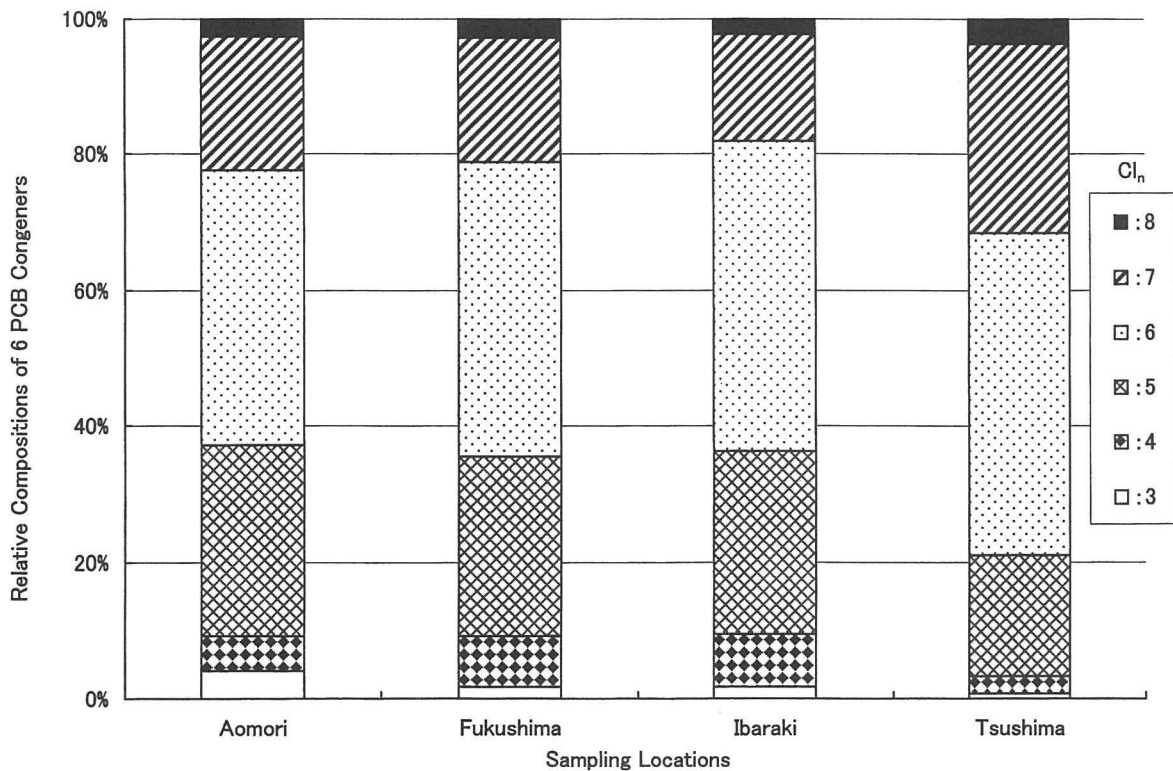


Fig. 5 Relative composition of six PCB congeners in the livers of sharks from four locations. Cl<sub>n</sub> indicates the number of chlorine atoms.

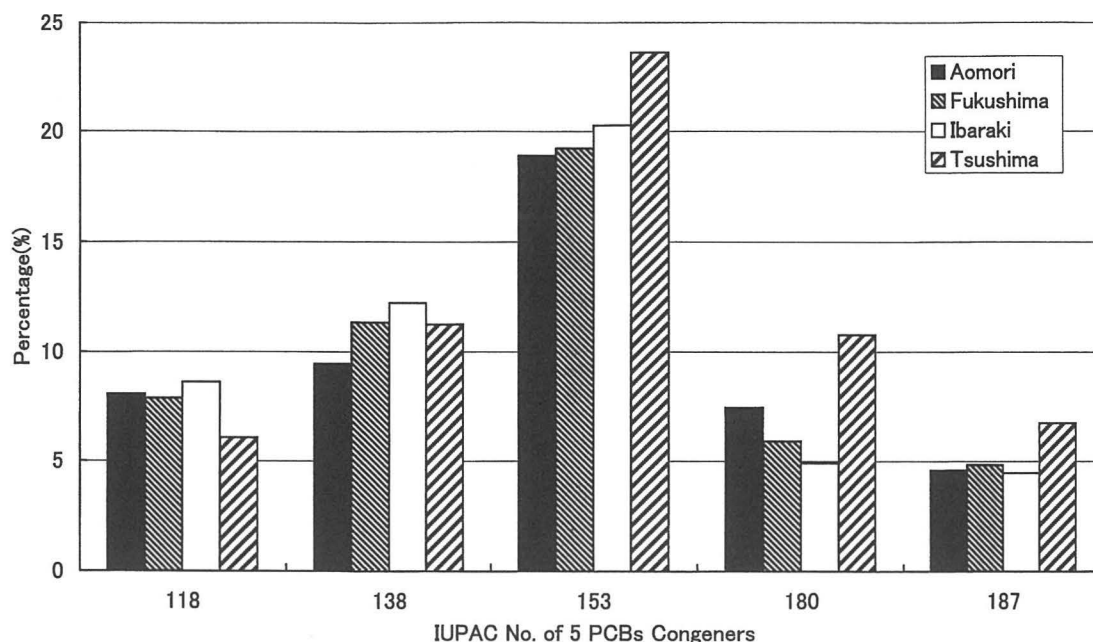


Fig. 6 The PCB isomers, IUPAC Nos. 118, 138, 153, 180, and 187, as a percentage of the total PCBs in the livers of sharks from four locations.

を占め、青森県で40.4%、福島県で43.3%、茨城県で45.6%、対馬で47.4%であった。塩素を3から5個持ったPCBsの合計量は、それぞれ全体の37.2%、35.5%、36.2%、21.0%で、対馬では、他の3海域に比べて低い割合であった。また、青森県では3塩化化合物の割合が4.1%と、ほかの海域に比べてわずかに高かった。

PCBs総量に対する主要5成分のPCBsの割合を海域別に示す (Fig. 6)。各海域ともに主要なPCBs成分は、6塩化化合物のIUPAC No. 153 (2,2',4,4',5,5'-HexaCB) で青森県で18.9%、福島県で19.2%、茨城県で20.2%、対馬で23.6%、を占めた。青森県、福島県、茨城県はIUPAC No. 153, 138 (2,2',3,4,4',5'-HexaCB), 118 (2,3',4,4',5-PentaCB), 180 (2,2',3,4,4',5,5'-HeptaCB), 187 (2,2',3,4',5,5',6-HeptaCB) の順に全体に占めるPCBsの割合が高く、主要5成分だけで青森県が全体の48.5%、福島県が49.2%、茨城県50.5%を占めた。この3海域では、PCBsの主要成分に顕著な違いは見られなかった。対馬では、IUPAC No. 153, 138, 180, 187, 118の順に全体に占めるPCBsの割合が高く、主要5成分だけで全体の58.5%を占めた。対馬のPCBs組成は、ほかの3海域に比べてIUPAC No. 180と187の占める割合が高かった。

#### 4. 論 議

##### 1) PCBs と DDE の汚染状況

本種から検出したPCBs濃度範囲は、1972年に採集した東京湾のホシザメ *Mustelus manazo* のPCBs濃度 22-770 $\mu\text{g/g}$  (新聞・新聞, 1974) に比べて極めて低い値であ

る (Table 2)。しかし、これまで報告された、外洋域と深海の6海域13種のサメ類のPCBs濃度の範囲は、カナリア諸島沖のフトカラスザメ *Etomopterus princeps* の0.015 $\mu\text{g/g}$  から同海域のモミジザメ *Centrophorus fabricii* の3.3 $\mu\text{g/g}$  の範囲であった (高木ほか, 1976; 高木, 1977; Berg *et al.*, 1997; Lee *et al.*, 1997; Serrano *et al.*, 1997)。本種の汚染は、日本の沿岸域である東京湾のホシザメを除く、外洋域や深海域のサメ類と同等、もしくは若干高レベルであると考えられた。

##### 2) 成熟段階と PCBs および DDE の関係

本種のPCBsとDDEによる汚染レベルを海域間で比較すると、対馬沖の雄の成魚は、他海域に比べてPCBsとDDEともに高い値を示した。クジラやイルカなどの海産哺乳動物の雌の場合、体内のPCBs等の汚染物質は、母乳を通して体外へ排泄され、性成熟した雌のPCBs濃度は減少することが報告されている (Tanabe *et al.*, 1986)。一方、卵黄依存型の胎生のアブラツノザメ *Squalus acanthias* では、仔魚や卵からPCBsが検出されている (Butler and Schutzmann, 1979)。本種は卵生のサメで、産卵は2-3週間の間隔で、一度に1.5g前後の卵を2個産卵する (Horie and Tanaka, 2002)。本研究での雌の成魚の体重は225-488gであり、一回の産卵における卵重量の割合は、体重の0.6-1.3%に相当する。このことから、雌は産卵により汚染物質を体外に排出すると考えられ、雄の成魚は、雌のように汚染物質の排出が行われないうえに、雌に比べて高濃度で蓄積すると考えられる。日本各地で採集したホシザメ *M. manazo* では、南に生息するほど成長が早く、性成熟全長は小さくなるとされている

**Table 2** The concentration of PCBs and DDT in sharks from previous reports.

Location	Species name	n	PCBs ( $\mu\text{g/g}$ )	DDT ( $\mu\text{g/g}$ )
Coastal water				
Tokyo Bay (Shinma and Shinma, 1974)	<i>Mustelus manazo</i>	7	22-770	
Oceanic water				
East China Sea (Takagi <i>et al.</i> , 1976)	<i>Squalus mitsukurii</i>	1	0.37	
South China Sea (Takagi, 1977)	<i>Loxodon macrorhinus</i>	1	0.83	
Karolin Islands (Takagi, 1977)	<i>Isurus oxyrinchus</i>	1	0.40	
	<i>Alopias superciliosus</i>	1	0.084	
	<i>Carcharhinus plumbeus</i>	1	0.11	
	<i>C. albimarginatus</i>	1	0.10	
Deep sea				
Suruga Bay (Lee <i>et al.</i> , 1997)	<i>Deania calcea</i>	2	1.0	0.91
Davis Strait (Berg <i>et al.</i> , 1997)	<i>Centroscyllium fabricii</i>	9-10	0.55 $\pm$ 0.26*	0.96 $\pm$ 0.64*
Canary Islands (Serrano <i>et al.</i> , 1997)	<i>Centrophorus squamosus</i>	1	3.3	
	<i>C. coelolepis</i>	9	0.060-0.49	
	<i>C. cryptacanthus</i>	1	1.0	
	<i>D. calcea</i>	1	0.038	
	<i>D. profundorum</i>	1	0.56	
	<i>Etmopterus princeps</i>	2	0.015-0.87	

\* Mean $\pm$ SD

(Yamaguchi *et al.*, 1998 and 2000). 本種の性成熟全長も、青森県>福島県=茨城県>対馬沖の順に小さくなっている (Horie and Tanaka, 2002). 本科魚類では、最大全長に対する性成熟全長の割合が高く (Taniuchi, 1988; Horie and Tanaka, 2000; 堀江・田中, 2002), 性成熟に達すると成長が鈍化すると考えられる。このため、性成熟後の成長の鈍化にともない、肝臓の成長も鈍化するが、汚染物質は餌などから取り込まれ続けるために、肝臓に取り込まれる汚染物質の濃度は増加すると考えられる。このことから、対馬沖のトラザメは、性成熟と成長速度がほかの海域に比べて速く、早期に成体の大きさに達するために、PCBsとDDEの濃度が増加したことが考えられた。一方、対馬以外の3海域の雄成魚の両濃度は、雌と比べてわずかに高いか同等であった。これは雌の産卵経験が少ないために、まだ十分に排出されていないためか、性成熟後の成長が対馬に比べて緩やかであるために、雄の濃度がほとんど増加していないことなどが考えられ、トラザメの年齢や成長速度、産卵回数、汚染物質の体内への取り込み量と、産卵に伴う排出量など、より詳細な調査が必要であると考えられた。

未成魚でのPCBs濃度を比較すると、本種の汚染状況は全国的にほぼ同レベルであると考えられた。トラザメは、同科に属するナヌカザメ *Cephaloscyllium umbratile* (Taniuchi, 1988; 堀江・田中, 2002) や、ヤモリザメ *Galeus eastmani* とニホンヤモリザメ *G. nipponensis* (Horie and Tanaka, 2000) の食性と同様に非選択的で、底生性の生物を中心に、その海域に生息する様々な生物を捕食していると考えられる。よって、本種の餌となる周辺生物の汚染状況は、海域によって顕著に異ならず、同レベルであると考えられた。

### 3) PCBsとDDE濃度の関係

PCBsとDDE濃度の関係をみると (Fig. 4), PCBs濃度の増加に伴ってDDE濃度は高い相関で増加した。共分散分析の結果、対馬沖のトラザメは他の海域に比べて、PCBs濃度に対するDDE濃度が有意に高かった。DDTはマラリア防除のために南方の途上国でいまだに使用されており (環境庁, 2000), 世界各地で測定した表層海水中のDDT濃度は、日本の南方域で高い (Iwata *et al.*, 1993). また、世界各地で採集したカツオ (*Katsuwonus pelamis*) のDDT濃度は、南シナ海, 東シナ海, 日本海のものが高く (Ueno *et al.*, 2003b), 日本周辺で採集したスルメイカ (*Todarodes pacificus*) でも日本海のものが高く、大陸由来の汚染を示唆している (Ueda *et al.*, 2003a). このように、日本の南方由来のDDTが、海流や生物によって運ばれ、調査海域で最も南に生息する対馬沖のトラザメにその影響が現れているのではないかと考えられた。また、青森県のトラザメでは、PCBs濃度の増加に伴うDDE濃度の増加がほかの海域に比べて大きく (Fig. 4), PCBsとDDEの汚染比率が他の海域に比べて異なっていることが考えられた。

### 4) PCBs組成

肝臓から検出されたPCBsの組成を比較すると、青森県では3塩化化合物が、対馬沖では7塩化化合物が、他の海域に比べて高くなった。有機塩素系化合物は、化学種によって粒子に対する親和性が異なるため、粒子との親和力の強い物質は滞留時間が短く、この傾向は懸濁物などの粒子量の多い高緯度冷水域ほど顕著になり、この傾向から、暖水域に比べて、冷水域表層水のPCBs組成は低塩素成分が富化している (田辺, 1988) とされる。青森県のトラ

ザメは寒流である親潮の影響を受けているために、低塩素成分が高くなっていることが考えられた。また、対馬沖のトラザメは、青森県とは逆の現象を起こして、高塩素成分が高くなったことが考えられた。このような現象の解明にはPCBsとDDTの環境内での挙動について、今後より詳細な調査が必要であると考えられた。

主要異性体は、何れの海域でもIUPAC No. 153, 138, 118, 180, 187で、共通して一方のベンゼン環の2, 4, 5位に塩素が置換する構造を有していた。世界各地で採集したカツオ (*K. pelamis*) においても153, 138, 180, 118が卓越しており (Ueno *et. al.*, 2003b), PCBsのうち、これらの異性体が生体中に残留しやすいことが窺われる。また、IUPAC No. 118はダイオキシン類 (Co-PCB) の一種であり、内分泌攪乱などの毒性影響が懸念される。

## 謝 辞

青森県のトラザメの採集では、元東北水産研究所底魚資源研究室室長 石戸芳男氏にすべてにおいて便宜を図っていただき、採集していただきました。福島県の採集では、福島県久ノ浜漁港所属の吉田 豊氏のご協力により採集できました。茨城県の採集では、アクアワールド大洗 展示課稲葉暢弘氏はじめ職員の方々、ぎたん丸船主 白土義男氏のご協力により採集していただきました。対馬沖の採集では、山口県外海水産試験場漁業科科长 小林知吉氏のご協力により採集していただきました。試料の採集にご協力いただいた方々に深く感謝いたします。

## 引用文献

- Berg, V., K. I. Uglund, N. R. Hareide, P. E. Aspholm, A. Polder and J. U. Skaare (1997): Organochlorine contamination in deep-sea fish from the Davis Strait. *Mar. Environ. Res.*, **44**(2), 135-148.
- Butler, P.A. and R.L. Schutzmman (1979): Bioaccumulation of DDT and PCB in tissues of marine fishes. *Aquatic Toxicology*, 1979, 212-220.
- Corsolini S., S. Focardi, K. Kannan, S. Tanabe, A. Borell and R. Tatsukawa (1995): Congener profile and toxicity assessment of polychlorinated biphenyls in dolphins, sharks and tuna collected from Italian coastal waters. *Mar. Environ. Res.*, **40**(1), 33-53.
- Gullette Jr., L. S. (1998): ワニの胚発生を攪乱する環境汚染物質。環境ホルモンの現在, 科学, **68**(7), 552-557.
- Horie, T. and S. Tanaka (2000): Reproduction and food habits of two species of sawtail catsharks, *Galeus eastmani* and *G. nipponensis*, in Suruga Bay, Japan. *Fish. Sci.*, **66**(5), 812-825.
- 堀江 琢・田中 彰 (2002): 駿河湾におけるナヌカザメ *Cephaloscyllium umbratile* (トラザメ科) の繁殖と食性。東海大学紀要海洋学部, **53**, 89-109.
- Horie, T. and S. Tanaka (2002): Geographic variation of maturity size of the cloudy catshark, *Scyliorhinus torazame*, in Japan. *Journal of The School of Marine Science and Technology*, **53**, 111-124.
- Iwata, H., S. Tanabe, N. Sakai and R. Tatsukawa (1993): Distribution of persistent organochlorines in the oceanic air and surface sea water and role of ocean on their global transport and fate. *Environ. Sci. Technol.*, **27**, 1080-1098.
- Jensen, S. (1966): Report of a new chemical hazard. *New Scientist*, **32**, 612.
- 環境庁 (1999): 平成11年版環境白書 総説。大蔵省印刷局, 東京, 498pp.
- 環境庁 (2000): 平成12年版環境白書 各論。ぎょうせい, 東京, 404pp.
- 環境省 (2004): 環境白書 (平成16年版)。ぎょうせい, 東京, 282pp.
- Lee, J. S., S. Tanabe, N. Takemoto and T. Kubodera (1997): Organochlorine residues in deep-sea organisms from Suruga Bay, Japan. *Mar. Pollut. Bull.*, **34**(4), 250-258.
- Serrano, R., Fernandez, M. A., Hernandez, L. M., Hernandez, M., Pascual, P., Rabanal, R. M. and Gonzalez, M. J. (1997): Coplanar polychlorinated biphenyl congeners in shark livers from the North-Western African Atlantic Ocean. *Bull. Environ. Contam. Toxicol.*, **58**, 150-157.
- 新聞脩子・新聞弥一郎 (1974): 東京湾産ホシザメのPCBについて。日水誌, **40**(11), 1179-1186.
- Shimma, H. and Y. Shimma (1974): PCBs in the spotted sharks, *Mustelus manazo*, from Tokyo Bay. *Bull. Japan. Soc. Sci. Fish.*, **40**(11), 1179-1186. (in Japanese with English abstract).
- 立川 涼 (1977): PCBの諸性状ならびに定量法。海洋生物のPCB汚染, 日本水産学会編, 恒星社厚生閣, 東京, 水産学シリーズ18, 7-17.
- 高木和昭 (1994): 小型底曳網(縦曳1種)で投棄される魚種について。西海ブロック底曳網調査研究会報, 水産庁西海区水産研究所, **5**, 8-11.
- 高木光造 (1976): 遠洋, 海洋生物のPCB汚染, 日本水産学会編, 恒星社厚生閣, 東京, 水産学シリーズ18, 94-106.
- Takagi, M. (1976): [Far sea, PCB pollution of marine organisms.] *The Japanese society of fisheries science edition.*, Fisheries Series 18, Kouseisya Kouseikaku, Tokyo, Japan, 94-106. (in Japanese).
- 高木光造・飯田 優・岡 重美 (1976): 東支那海産水産生物のPCB含量について。日水誌, **42**(7), 735-759.
- Takagi, M., A. Iida and S. Oka (1976): PCB contents in marine animals collected in the East China Sea. *Bull. Japan. Soc. Sci. Fish.*, **47**(7), 753-759. (in Japanese with English abstract).
- 田辺信介 (1985): 海洋におけるPCBの分布と挙動。日海誌, **41**(5), 358-370.
- Tanabe, S., S. Miura and R. Tatsukawa (1986): Variation of organochlorine residues with age and sex in Antarctic

- mink whale. Mem. Natl. Polar Res., Spec. Issue, **44**, 174-181.
- 田辺信介 (1988): 海洋における PCB の地球化学的および化学生態学的挙動, 21世紀の漁業と水産海洋研究, 水産海洋研究会編, 恒星社厚生閣, 東京, 218-227.
- Taniuchi, T. (1988): Aspects of reproduction and food habits of the Japanese swellshark *Cephaloscyllium umbratile* from Choshi, Japan. Nippon Suisan Gakkaishi, **54**(4), 43-50.
- Ueno, D., S. Inoue, K. Ikeba, H. Tanaka, H. Yamada and S. Tanabe (2003a): Specific accumulation of polychlorinated biphenyls and organochlorine pesticides in Japanese common squid as a bioindicator. Environ. Pollut., **125**, 227-235.
- Ueno, D., S. Takahashi, H. Tanaka, A. N. Subramanian, G. Fillmann, H. Nakata, P.K. Lam, J. Zheng, M. Muchtar, M. Prudente, K. H. Chung and S. Tanabe (2003b): Global pollution monitoring of PCBs and organochlorine pesticides using skipjack tuna as a bioindicator. Environ. Contam. Toxicol., **45**, 378-389.
- 脇本忠明・立川 涼・小川恒彦 (1971): PCB の残留分析法. 公害と対策 7, 517-522.
- Yamaguchi, A., T. Taniuchi and M. Shimizu (1998): Geographic variation in growth of the starspotted dogfish *Mustelus manazo* from five localities in Japan and Taiwan. Fish, Sci., **64**(5), 732-739.
- Yamaguchi, A, T. Taniuchi and M. Shimizu (2000): Geographic variations in reproductive parameters of starspotted dogfish, *Mustelus manazo*, from five localities in Japan and in Taiwan. Environ. Biol. Fish., **57**(2), 221-233.
- 吉田多摩夫 (1977): PCB の蓄積と排泄の機構, 海洋生物の PCB 汚染, 日本水産学会編, 恒星社厚生閣, 東京. 水産学シリーズ18, 18-31.
- 吉野哲夫・青沼佳方 (1993): トラザメ科. 日本産魚類検索全種の同定, 中坊徹次編, 東海大学出版会, 東京, 99-102.

## 要 旨

サメ類の生物学的・生態学的知見に基づく polychlorinated biphenyls (PCBs) と dichlorodiphenyl dichloroethylene (DDE) の蓄積特性に関する研究は少ない。青森県, 福島県, 茨城県, 対馬沖で採集したトラザメ *Scyliorhinus torazame*, 計30個体の両物質の汚染状況を比較し, その蓄積特性を明らかにした。肝臓内脂質重量あたりの PCBs 濃度範囲は, 青森県で 0.40-1.5 $\mu$ g/g, 福島県で 0.41-1.6 $\mu$ g/g, 茨城県で 0.69-2.4 $\mu$ g/g, 対馬で 0.54-4.4 $\mu$ g/g であった。DDE は, それぞれ 0.077-0.82 $\mu$ g/g, 0.17-0.63 $\mu$ g/g, 0.25-0.78 $\mu$ g/g, 0.48-1.6 $\mu$ g/g であった。対馬の雄成魚の両濃度は, 雌に比べ高かった。雌は産卵により両物質を排出すると考えられた。対馬の DDE 濃度が高く, 日本の南方域での DDT の使用が窺われる。青森県で 3 塩化合物の比率が高く, 親潮による影響が考えられた。IUPAC No. 118 の濃度が高く, 毒性影響が懸念される。