

季節, サイズおよび生息深度によるムラサキイガイ中 有機塩素化合物蓄積濃度の変動

上野 大介,¹ 高橋 真,¹ 田辺 信介,^{1*}
池田久美子,² 小山次朗,² 山田 久,²

(2000年8月3日受付, 2001年3月30日受理)

¹愛媛大学沿岸環境科学研究センター, ²水産総合研究センター瀬戸内海区水産研究所

Variations of Organochlorine Concentrations in Blue Mussels Associated with Season, Size and Vertical Habitat

Daisuke Ueno,¹ Shin Takahashi,¹ Shinsuke Tanabe,^{1*}
Kumiko Ikeda,² Jiro Koyama,² Hisashi Yamada²

¹Center for Marine Environmental Studies, Ehime University, Ehime 790-8566, ²National Research Institute of Fisheries and Environment of Inland Sea, Fisheries Research Agency, Hiroshima 739-0452, Japan

Live specimens of the blue mussel *Mytilus galloprovincialis* were collected from the southwestern coastal region of Tokyo Bay and examined for seasonal, size-dependent and spatial variations in the concentrations of organochlorine compounds (OCs) such as PCBs (polychlorinated biphenyls), DDTs (DDT and its metabolites), CHLs (chlordanes and related compounds), HCHs (hexachlorocyclohexane isomers) and HCB (hexachlorobenzene). Seasonal variations in OCs concentrations (fat weight base) appeared to reflect the levels in an ambient water rather than seasonal physiological changes of mussels. Neither shell size nor vertical habitation of mussels resulted in significant differences in their concentrations (fat weight base). These results suggest that the variable factors examined did not significantly affect the availability and suitability of mussels as bioindicators for monitoring of contamination with OCs.

キーワード: ムラサキイガイ, Mussel Watch, PCBs, DDTs, 採取法, 季節, サイズ, 潮間帯

PCBsやDDTsなどの有機塩素化合物(OCs)による汚染は地球規模で広がりを見せ、¹⁾生態系を構成する生物への蓄積や影響が懸念されている。²⁾海洋はこれら化学物質のたまり場として機能するため、³⁾その汚染の実態を理解することは、海洋環境を保全する上で重要である。

海洋汚染の監視業務では、海水中の有害物質の濃度を測定する必要があるが、難溶性のOCsなどの有害物質は一般に水中濃度が低いため、その化学分析には高度の技術が必要とされる。また水中のそれら物質の濃度は変動が著しく、海域の汚染を代表する客観的なデータを得ることも容易ではない。したがって、生体に濃縮される有害物質については、生物の体内濃度を指標としたモニタリング手法が開発され、現場への応用が試みられてき

た。とくに沿岸域においては、世界の海に広く分布し、容易に採取できるイガイ科の二枚貝を指標生物とした海洋汚染モニタリング、いわゆる“マッセルウオッチ”が提唱され⁴⁾成果をあげている。⁵⁻⁷⁾

生物を利用したモニタリング法を現場に適用するには、指標生物の有害物質蓄積特性を理解することが前提となる。一般に魚介類のようにエラをもつ生物の場合、OCsのような脂溶性物質の体内蓄積は生体内の脂肪含量に依存し、食性や代謝能力などに起因する蓄積の種間差はあらわれにくいことが知られている。⁸⁾すなわち魚介類のOCs濃度を脂肪重当たりに換算した場合、その蓄積レベルは水の汚染を反映すると考えられる。⁸⁾しかしながらマッセルウオッチにおいて、イガイ類の種差がOCs蓄積濃度におよぼす影響を検討した例はみられな

* Tel: +81-89-946-9904, Fax: +81-89-946-9904, E-mail: shinsuke@agr.ehime-u.ac.jp

い。そのような中、著者らは東京湾におけるムラサキイガイ *Mytilus galloprovincialis* とミドリイガイ *Perna viridis* のOCs蓄積特性を比較するため、2ヶ月間におよぶ移植実験を行った。⁹⁾ その結果、これら2種のイガイ間で脂肪重当たりのOCsの蓄積特性に差は見られず、同一海域における短期間の汚染監視であれば、種にこだわることなくこれらを指標生物として利用できることが示唆された。⁹⁾ しかしながらこの移植実験では、9~10月においてこれらイガイ類の脂肪重当たりOCs蓄積濃度の上昇がみられ、季節による残留濃度の変動が推察された。⁹⁾ このことは脂肪重当たりのOCs濃度に換算しても、他にOCs濃度を変動させる要因があることを示唆している。このような季節による影響の他に、以前から産卵や¹⁰⁾サイズの差¹¹⁾などが、脂肪重当たりの濃度に換算してもOCs濃度を変動させる要因としてあげられている。また有機スズ化合物の場合、イガイ類の潮間帯生息深度によってその蓄積濃度は変化することが報告されているが、¹²⁻¹⁴⁾ OCsに関してこのような検討を行った例はみられない。このように同海域のイガイ類であってもサンプリングの条件によって、脂肪重当たりのOCs濃度が変動する可能性が示唆されているが、その情報は断片的であり、季節やサイズによる差、潮間帯生息深度の違いなどによる変動に焦点を絞り、包括的に検討した例はみられない。二枚貝を用いた海洋汚染監視のための手法すなわち“マッセルウオッチ”を高度化、汎用化するためには、これらの課題を検証する必要がある。

そこで本研究では東京湾の自生ムラサキイガイ *Mytilus galloprovincialis* を用いて、季節変化が脂肪重当たりのOCs蓄積濃度におよぼす影響を、生理機能が大きく変動する産卵期を含む期間を取り上げ検討した。またムラサキイガイの個体サイズや生息深度が脂肪重当たりのOCs蓄積濃度に及ぼす影響についても調査した。それらのOCs濃度の測定結果をもとに、ムラサキイガイの指標生物としての有効性と限界について考察した。

試料および方法

試料の採取 自生のムラサキイガイ *Mytilus galloprovincialis* を、東京湾三浦半島の先端部に位置する三崎漁港の岸壁（城ヶ島）で採取した（Fig. 1）。これらのムラサキイガイは、潮間帯の生息深度によって上部、中部、下部に分けて採取した（Fig. 2）。試料は全て大潮の干潮時に採取し、潮間帯下部はその時点で水面下に没しているもの、上部はムラサキイガイの分布上限部のもの（水面から約1m）、中部はその中間（水面から約0.5m）から採集した。試料の採取は1998年7月、9月、11月、1999年3月に実施し、7月は上中下部それぞれから、9~3月は中部からのみ採集した（Table 1）。これらのムラサキイガイは各季節、深度ごとに殻長、軟組

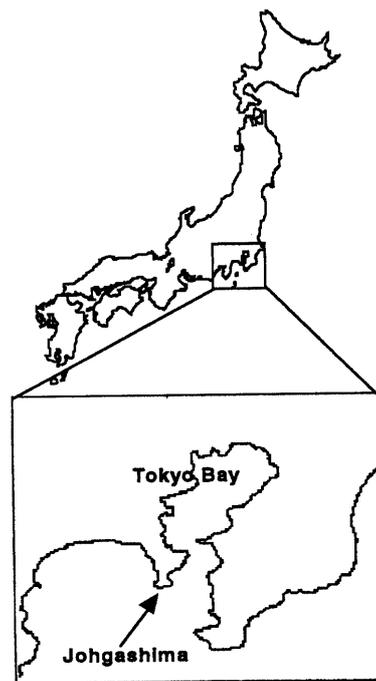


Fig. 1. Map showing the sampling location for blue mussels.

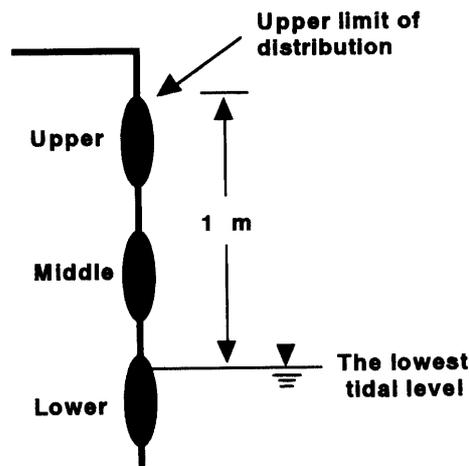


Fig. 2. Sampling sites (upper, middle and lower) of blue mussels in relation to the tidal height.

織重量を測定し、大型個体（45 mm 以上）と小型個体（45 mm 未満）に分別し、まとめてホモジナイズした。試料の詳細を Table 2 に示す。

分析法 分析法は既法¹⁵⁾に従った。まずホモジナイズしたムラサキイガイの試料を無水硫酸ナトリウムにより脱水し、*n*-ヘキサン/ジエチルエーテル混合溶液（1:3）でソックスレーを用い脂肪を抽出した。次に粗抽出液中の脂質を除去するため、フロリジル 20 g を充填したガラスカラムに抽出液を添加し、2~3時間窒素ガス

を通過させ溶媒を除去した。その後、脂質とともにフロリジルに吸着した OCs を 20% 含水アセトニトリルで溶出させ、*n*-ヘキサンと水を加えた分液ロート中で *n*-ヘキサン層に転溶させた。さらに挟雑物質を取り除くため、OCs を含むヘキサンを分取して濃縮し、濃硫酸を加えてクリーンアップを行った。その後、活性化させたフロリジルで PCBs と有機塩素系農薬を分画した。溶出液は、電子捕獲型検出器付ガスクロマトグラフ (GC-ECD) (Hewlett Packard 社 5890 Series II および 6890 Series) に注入し、ポリ塩化ビフェニル (PCBs), DDT とその代謝物 (DDTs: *p,p'*-DDT, *p,p'*-DDE, *p,p'*-DDD の含量値), クロルデン化合物 (CHLs: *trans*-chlordane, *cis*-chlordane, *trans*-nonachlor, *cis*-nonachlor, oxychlordane の含量値), ヘキサクロシクロヘキサン (HCHs: α -HCH, β -HCH, γ -HCH の含量値), ヘキサクロベンゼン (HCB) を定量した。添加回収試験はコーン油に標準溶液を添加して一連の操作を行い、その回収率は PCBs が $114 \pm 3.3\%$, 有機塩素系農薬が $90.6 \pm 8.6\%$ であった ($n=4$)。本研究では上記 *n*-ヘキサン/ジエチルエーテル混合粗抽出液の一部をオープンで加熱後、秤量

して試料中の脂肪含量を求めた。分析結果は、すべて脂肪重当りの濃度 (ng/g fat wt) で表示した。

結果および考察

汚染の実態 化学分析の結果、城ヶ島で採取した全てのムラサキイガイから OCs が検出された。その残留濃度は PCBs > DDTs = CHLs > HCHs > HCB の順であった (Table 3)。また検出された OCs の濃度範囲は、日本沿岸の魚介類で報告されている値とほぼ同程度であった。¹⁶⁻¹⁹⁾ これらムラサキイガイが上記のような蓄積傾向を示す原因として、PCBs や DDTs, CHLs が高い生物蓄積性をもつこと、²⁰⁾ かつて日本など先進工業国で多用された PCBs が今なおコンデンサー等電気機器から環境中に流出していること²¹⁾などが考えられる。一方、HCHs や HCB の濃度は、検出限界に近い値であった。HCHs と HCB の分析精度は低いと考えられたため、以下の議論では考察の対象としなかった。

季節による残留濃度の変化 以前報告した移植実験で、OCs (PCBs, DDTs, CHLs) の蓄積濃度 (脂肪重当たり) はムラサキイガイ、ミドリイガイともに9月から10月にかけて上昇する傾向がみられ、何らかの生理機能の変化により季節的に変動することが示唆された。⁹⁾ また産卵による OCs 濃度の変動については未検討であった。そこで本研究では、ムラサキイガイの産卵期を含む1998年7月から翌年3月にかけて、潮間帯中部から採取したものを対象に、OCs 残留濃度 (脂肪重当たり) の季節変動を調査した。まず、ムラサキイガイの生理変化の指標として、脂肪含量の季節変動に着目した。その結果、ムラサキイガイの大型個体群 (≥ 45 mm) の脂肪含量は、1998年7月から11月の間において徐々に上昇したが (最大 2.4%), 1999年3月では大きく減少した (1.5%) (Fig. 3.A)。日本の沿岸に分布するムラサ

Table 1. Sampling seasons of native blue mussels collected from Johgashima, Tokyo Bay

Tidal height	Size*	Seasons in 1998-1999			
		July	September	November	March
Upper	Large	○			
	Small	○			
Middle	Large	○	○	○	○
	Small	○	○	○	○
Lower	Large	○			
	Small	○			

* Large ≥ 45 mm, Small < 45 mm in shell length.

Table 2. Biometrics of native blue mussels collected from Johgashima, Tokyo Bay

Sampling date	Tidal height	Size*	Fat %	N	Shell length (mm)	Soft tissue weight (g)
July 1998	Upper	Large	1.9	8	50.5(47.1-55.7)	3.6(2.1-5.7)
		Small	2.2	50	36.3(30.3-44.1)	1.7(0.7-2.7)
	Middle	Large	2.2	49	56.1(46.2-71.3)	4.8(2.8-8.8)
		Small	2.1	48	37.0(30.8-44.2)	1.6(0.9-2.5)
	Lower	Large	2.0	29	58.2(46.5-77.7)	5.6(2.8-11.4)
		Small	2.3	18	31.8(19.2-44.9)	1.1(0.2-2.7)
September 1998	Middle	Large	2.3	40	61.9(50.8-76.6)	6.2(2.8-10.1)
		Small	2.0	49	40.5(32.0-45.3)	2.0(1.2-3.0)
November 1998	Middle	Large	2.4	13	51.2(45.7-62.7)	4.5(3.0-8.4)
		Small	1.9	28	40.9(36.6-44.8)	2.4(1.4-3.4)
March 1999	Middle	Large	1.5	27	54.2(47.0-66.8)	3.2(1.7-6.0)
		Small	1.6	50	39.1(30.7-44.9)	1.3(0.7-2.5)

* Large ≥ 45 mm, Small < 45 mm in shell length Figures in parentheses indicate the range.

Table 3. Concentrations of organochlorines (ng/g fat wt) in native blue mussels collected from Johgashima, Tokyo Bay

Sampling date	Tidal height	Size*	Fat %	PCBs	DDTs	CHLs	HCHs	HCB
July 1998	Upper	Large	1.9	1200	190	240	6.5	<1.6
		Small	2.2	1400	250	300	7.5	2.1
	Middle	Large	2.2	1300	210	250	8.7	2.8
		Small	2.1	1400	210	260	7.3	2.4
	Lower	Large	2.0	1300	200	230	7.4	2.8
		Small	2.3	1300	220	260	9.4	2.4
September 1998	Middle	Large	2.3	1500	200	230	9.4	2.1
		Small	2.0	1300	180	200	10	1.7
November 1998	Middle	Large	2.4	1300	190	230	8.8	<1.9
		Small	1.9	1300	170	200	5.4	<1.9
March 1999	Middle	Large	1.5	1100	200	200	11	<1.9
		Small	1.6	1100	210	220	9.7	<1.9

* Large ≥ 45 mm, Small < 45 mm in shell length.

DDTs: sum of *p*, *p'*-DDT, *p*, *p'*-DDE and *p*, *p'*-DDD.

CHLs: sum of *trans*-chlordane, *cis*-chlordane, *trans*-nonachlor, *cis*-nonachlor and oxychlordane.

HCHs: sum of α -HCH, β -HCH and γ -HCH.

キイガイは、一般に10月から2月の間に生殖腺が発達し、1月から3月にかけて産卵することが知られている。²²⁻²³⁾ このことから大型個体群は、1998年11月まで生殖腺が発達したため脂肪含量が増加し、1999年3月では産卵を終了しているためその含量が低下したものと考えられた。しかし小型個体群 (< 45 mm) では、このような傾向はみられなかった (Fig. 3.A)。今回分析した小型個体群には未成熟個体が多く含まれていたため、生殖腺の発達や産卵による脂肪含量の変化が不明瞭になったものと思われる。よって脂肪含量は、ムラサキイガイの産卵による生理的変化の指標として利用できると考えられた。

次にこうしたムラサキイガイ中の脂肪含量の変動が、脂肪重当たりのOCs蓄積濃度に与える影響について検討した。その結果、産卵期を含む1998年11月から1999年3月の大型個体群の脂肪重当たりのOCs濃度変化に着目すると、PCBsとCHLsの濃度は脂肪含量の減少とともに低減したが、DDTsの濃度は上昇していた (Fig. 3. B, C, D)。こうしたOCsの変動パターンは、ムラサキイガイの大型、小型個体群で有意な差はなかった ($p > 0.05$, Wilcoxon signed-ranks test)。Lee *et al.*¹⁰⁾ によると、バルト海のムラサキイガイ *Mytilus edulis* は産卵期である3月~5月に脂肪含量が増加するため、希釈されて体内の脂肪重当たりのPCB濃度が低下することを報告している。本研究でみられたOCs蓄積濃度の変化が産卵などの生理的要因によると仮定すれば、物理化学的特性の類似しているこれらOCsは²⁴⁻²⁶⁾同様の変動を示すことが考えられる。しかしながら本研究では、産卵期である11月~3月の間のOCs濃度の変動にそのような傾向はみられず、物質ごとに異なる濃度変動を示した (Fig. 3. B, C, D)。よってムラサキイガイの脂肪重当

たりのOCs蓄積濃度は、産卵など生理機能の変化がもたらす季節的な影響をほとんど受けていないと考えられた。本研究では環境水中のOCs濃度を測定していないため直接ムラサキイガイ中濃度と比較することはできないが、もしその蓄積に季節変動がみられるとすれば、それはムラサキイガイの生理的な変化よりむしろ海水中のOCs濃度を反映したと解釈される。

以上、本研究と前報告⁹⁾の結果をまとめて考察すると、ムラサキイガイにおけるOCs蓄積の季節変動に生理学的、生態学的な要因が関与する可能性は小さく、むしろ海水の汚染状況を数週間単位で体内に反映すること⁹⁾が、濃度変動の主な要因になると推察された。

個体サイズによる残留濃度の変化 全ての地点の大型個体群 (≥ 45 mm) と小型個体群 (< 45 mm) を対象に、ムラサキイガイの個体サイズの差が脂肪重当たりのOCs残留濃度に及ぼす影響を検討した。Table 4に、大型個体群に対する小型個体群の脂肪重当たりの濃度比を示した。全ての物質で、いずれの季節、生息深度においても個体サイズによるOCs蓄積濃度に有意な差はみられなかった ($p > 0.05$, Wilcoxon signed-ranks test)。一部、潮間帯上部において小型個体群が高濃度を示したが、統計的に有意な差ではなかった。またDDTsとCHLsの組成においても、サイズによる明らかな違いは認められなかった (Fig. 4)。Ferreira and Vale¹¹⁾は、アサリの小型個体 (< 25 mm) は大型個体 (> 35 mm) より高濃度のPCBs蓄積 (脂肪重当たり) がみられたことを報告している。しかしながら、本研究のムラサキイガイではそのような傾向は認められなかった。これらの結果より、ムラサキイガイを指標生物として用いた汚染調査では、殻長30 mm~80 mm程度であればサイズに関わりなく多様な個体を用いた調査が可能であると考え

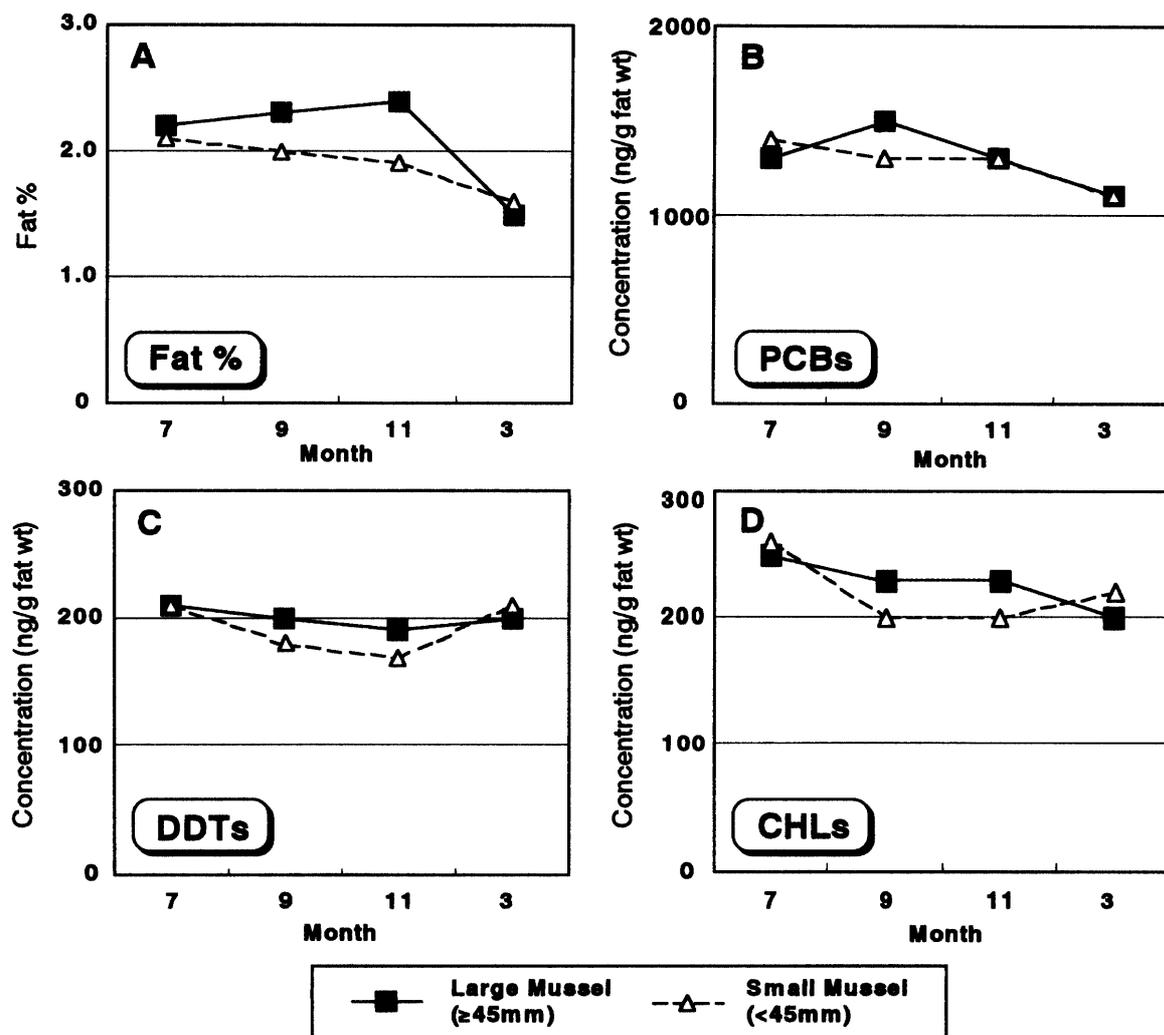


Fig. 3. Seasonal variation of organochlorine concentrations and fat contents in blue mussels collected from the middle of tidal height.

Table 4. Ratios of organochlorine concentrations and fat contents in small to large size mussels

Sampling date	Tidal height	Ratio (small/large*)			
		Fat %	PCBs	DDTs	CHLs
July, 1998	Upper	1.16	1.17	1.32	1.25
	Middle	0.95	1.08	1.00	1.04
	Lower	1.15	1.00	1.10	1.13
September, 1998	Middle	0.87	0.87	0.90	0.87
November, 1998	Middle	0.79	1.00	0.89	0.87
March, 1999	Middle	1.07	1.00	1.05	1.10

* Large ≥45 mm, Small <45 mm in shell length.

られた。

生息深度による残留濃度の変化 1998年の7月に潮間帯上部, 中部, 下部で採取したムラサキイガイを対象に, 潮間帯の生息深度の違いが脂肪重当たりのOCs蓄

積濃度に及ぼす影響について検討した。Table 5に, 潮間帯中部を基準にしたそれぞれの深度における脂肪重当たりの濃度比を示した。その結果, 深度によるOCs濃度に有意な差はみられなかった ($p > 0.05$, Wilcoxon signed-ranks test)。またDDTsとCHLsの組成においても, 深度による差は認められなかった (Fig. 4)。Batley and Scammell¹²⁾は, 潮間帯のムラサキイガイやカキは, 潮下帯のものより有機スズ化合物 (TBT) 濃度が高いことを報告している。その要因として脂溶性の高いTBTは表層マイクロレイヤーに高濃度で蓄積しており, 潮間帯のムラサキイガイは潮下帯のものに比べ, 表層マイクロレイヤーに触れる機会が多いことをあげている。しかしながら, 本研究のムラサキイガイ中OCs濃度 (脂肪重当たり) に, はそのような傾向はみられなかった。本研究の結果は, 生息深度に関わらずムラサキイガイを採取し, 汚染監視に利用できることを示してお

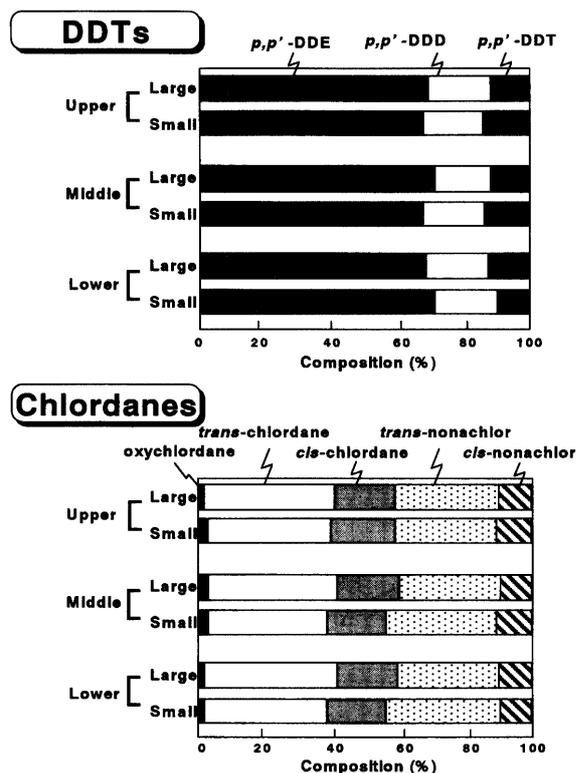


Fig. 4 Variation of organochlorine compositions in different size and tidal height of blue mussels collected in July, 1998.

Table 5. Ratios of organochlorine concentrations and fat contents in blue mussels collected from different tidal height in July, 1998

Tidal height	Size*	Ratio (upper or lower/middle)			
		Fat %	PCBs	DDTs	CHLs
Upper	Large	0.86	0.92	0.90	0.96
	Small	1.05	1.00	1.19	1.15
Middle	Large	1.00	1.00	1.00	1.00
	Small	1.00	1.00	1.00	1.00
Lower	Large	0.91	1.00	0.95	0.92
	Small	1.10	0.93	1.05	1.00

* Large ≥ 45 mm, Small < 45 mm in shell length.

り、指標生物としてのムラサキイガイの有効性がさらに確認された。

本研究ではマッセルウオッチを行う際に未だ十分に検討されていない項目である季節や個体サイズおよび潮間帯生息深度が、有機塩素化合物 (OCs) 蓄積濃度におよぼす影響を調査した。その結果、東京湾の自生ムラサキイガイでみられた OCs 濃度 (脂肪重当たり) の季節変動は、産卵などの生理的な変化によるものではなく、海水中の OCs 濃度を反映していると解釈された。またサ

イズや、生息深度による変化もみられなかった。よってムラサキイガイは脂肪重当たりの OCs 濃度に換算することで、汚染監視のための生物指標として、季節に関わりなく、殻長 30 mm~80 mm 程度であれば、潮間帯上部から下部のどの生息深度のものでも利用できると結論された。

以上、本研究および以前の報告⁹⁾をまとめると、イガイ類体内の OCs は数週間程度の短期間で海水中 OCs と平衡濃度に達するため、突発的な海水汚染の変動を速やかに体内濃度に反映するものと考えられる。⁹⁾ よってイガイを生物指標として海洋における長期 OCs 汚染を監視したい場合、多数回のサンプリングは避けられない。一方、短期間の海洋汚染を監視する場合、本種は成長や生息深度によって OCs の汚染レベルがほとんど変動しないため、有用な指標生物として活用できる。

謝 辞

本研究は、中央水産研究所委託事業、環境庁一括計上、国立機関公害防止等試験研究「指標生物による有害物質海洋汚染の監視手法の高度化」および文部省科学研究補助金、国際学術研究 (09041163) により実施した。

引用文献

- 1) Iwata H, Tanabe S, Sakai N, Tatsukawa R. Distribution of persistent organochlorines in the oceanic air and surface seawater and the role of ocean on their global transport and fate. *Environ. Sci. Technol.* 1993; **27**: 1080-1098.
- 2) Tanabe S. Asian developing regions: persistent organic pollutants in the seas. In: Sheppard CRC (ed) *Seas at the millennium: an environmental evaluation*. Elsevier Science, Amsterdam, 2000; 447-462.
- 3) Woodwell GM, Craig PP, Johnson HA. DDT in the biosphere: Where does it go? *Science* 1971; **174**: 1101-1107.
- 4) Goldberg ED. The mussel watch- a first step in global marine monitoring. *Mar. Pollut. Bull.* 1975; **6**: 111.
- 5) Sericano JL, Wade TL, Jackson TJ, Brooks JM, Tripp BW, Farrington JW, Mee LD, Readmann JW, Villeneuve JP, Goldberg ED. Trace organic contamination in the Americas: an overview of the US national status & trends and the international 'Mussel Watch' programmes. *Mar. Pollut. Bull.* 1995; **31**: 214-225.
- 6) Kan-atreklap S, Tanabe S, Sanguansin J, Tabucanon MS, Hungspreugs M. Contamination by butyltin compounds and organochlorine residues in green mussel (*Perna viridis*, L.) from Thailand coastal waters. *Environ. Pollut.* 1997; **97**: 79-89.
- 7) 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—. *地球化学* 2000; **34**: 41-57.
- 8) Tanabe S, Tanaka H, Tatsukawa R. Polychlorobiphenyls, Σ DDT, and hexachlorocyclohexane isomers in the Western North Pacific ecosystem. *Arch. Environ. Contam. Toxicol.* 1984; **13**: 731-738.
- 9) 上野大介, 高橋 真, 田辺信介, 池田久美子, 小山次

- 朗. イガイ移植実験における有機塩素化合物の蓄積挙動. 環境化学 1999; **9**: 369-378.
- 10) Lee KM, Kruse H, Wassermann O. Seasonal fluctuation of organochlorines in *Mytilus edulis* L. from the South West Baltic Sea. *Chemosphere* 1996; **32**: 1883-1895.
 - 11) Ferreira AM, Vale C. PCB accumulation and alterations of lipids in two length classes of the oyster *Crassostrea angulata* and of the clam *Ruditapes decussatus*. *Mar. Environ. Res.* 1998; **45**: 259-268.
 - 12) Batley GE, Scammell MS. Research on tributyltin in Australian estuaries. *Appl. Organomet. Chem.* 1991; **5**: 99-105.
 - 13) Harino H, Fukushima M, Yamamoto Y, Kawai S, Miyazaki N. Contamination of butyltin and phenyltin compounds in the marine environment of Otsuchi Bay, Japan. *Environ. Pollut.* 1998; **101**: 209-214.
 - 14) Shindo K, Otsuki A. Establishment of a sampling strategy for the use of blue mussels as an indicator of organotin contamination in the coastal environment. *J. Environ. Monit.* 1999; **1**: 243-250.
 - 15) Tanabe S, Sung JK, Choi DY, Baba N, Kiyota M, Yoshida K, Tatsukawa R. Persistent organochlorine residues in northern fur seal from the Pacific coast of Japan since 1971. *Environ. Pollut.* 1994; **85**: 305-314.
 - 16) 桑原克義, 松本比佐志, 村上保行, 西宗高弘, 佐々木寧. 魚介類に含まれる有機塩素系農薬およびPCBの残留実態. 大阪府立公衛研所報 1995; **26**: 45-59.
 - 17) 環境庁環境保健部環境安全課. 一平成10年度版一化学物質と環境. 東京, 1998; 109-130.
 - 18) Kannan K, Tanabe S, Tatsukawa R. Geographical distribution and accumulation features of organochlorine residues in fish in tropical Asia and Oceania. *Environ. Sci. Technol.* 1995; **29**: 2673-2683.
 - 19) Lee JS, Tanabe S, Takemoto N, Kubodera T. Organochlorine residues in deep-sea organisms from Suruga Bay, Japan. *Mar. Pollut. Bull.* 1997; **34**: 250-258.
 - 20) Tanabe S, Kannan N, Fukushima M, Okamoto T, Wakimoto T, Tatsukawa R. Persistent organochlorines in Japanese coastal waters: an introspective summary from a Far East developed nation. *Mar. Pollut. Bull.* 1989; **20**: 344-352.
 - 21) Loganathan BG, Tanabe S, Hidaka Y, Kawano M, Hidaka H, Tatsukawa R. Temporal trends of persistent organochlorine residues in human adipose tissue from Japan, 1928-1985. *Environ. Pollut.* 1993; **81**: 31-39.
 - 22) 梶原 武, 浦 吉徳, 伊藤信夫. 東京湾の潮間帯におけるムラサキイガいの付着, 生長および死亡について. 日本誌 1978; **44**: 949-953.
 - 23) 劉 明淑, 梶原 武. ムラサキイガいの繁殖生態. 付着生物研究 1983; **4**: 11-21.
 - 24) Chiou CT. Partition coefficients of organic compounds in lipid-water systems and correlations with fish bioconcentration factors. *Environ. Sci. Technol.* 1985; **19**: 57-62.
 - 25) Chiou CT. Partition coefficients of organic compounds in lipid-water systems and correlations with fish bioconcentration factors. *Environ. Sci. Technol.* 1985; **19**: 57-62.
 - 26) Hawker DW, Connell DW. Octanol-water partition coefficients of polychlorinated biphenyl congeners. *Environ. Sci. Technol.* 1988; **22**: 382-387.