



室蘭港のムラサキイガイ中に含まれるポリ塩化ビフェニール及びダイオキシン類

メタデータ	言語: jpn 出版者: 室蘭工業大学 公開日: 2012-04-12 キーワード (Ja): キーワード (En): polychlorinated biphenyl and dioxins, chemical processing of polychlorinated biphenyl, PCBS and dioxins in mussel 作成者: 橋本, 忠雄, 渡辺, 真悟, 湯口, 実, 岩佐, 達郎 メールアドレス: 所属:
URL	http://hdl.handle.net/10258/1005

室蘭港のムラサキイガイ中に含まれるポリ塩化ビフェニール及びダイオキシン類

その他（別言語等） のタイトル	Polychlorinated Biphenyls and Dioxins in Mussel, <i>Mytilus galloprovincialis</i> , from the Muroran Bay
著者	橋本 忠雄, 渡辺 真悟, 湯口 実, 岩佐 達郎
雑誌名	室蘭工業大学紀要
巻	61
ページ	43-55
発行年	2012-03-27
URL	http://hdl.handle.net/10258/1005

室蘭港のムラサキイガイ中に含まれる ポリ塩化ビフェニール及びダイオキシン類

橋本 忠雄^{*1}, 渡辺 真悟^{*1}, 湯口 実^{*2}, 岩佐 達郎^{*1,3}

Polychlorinated Biphenyls and Dioxins in Mussel, *Mytilus galloprovincialis*, from the Muroran Bay

Tadao HASHIMOTO^{*1}, Shingo WATANABE^{*1}, Minoru YUGUCHI^{*2} and Tatsuo IWASA^{*1,3}

(原稿受付日 平成 23 年 5 月 25 日 論文受理日 平成 24 年 1 月 19 日)

Abstract

Polychlorinated biphenyls, PCBs, were produced from 1929 and used for many industrial applications. But, the production and the usage were banned in 1972 because of its biological toxicity. In 2004, Japanese government decided to eliminate the total preserved PCBs by chemical processing. One of the facilities was built and began working in Muroran in 2008. In 2005, we began to monitor the level of PCBs and dioxins in the mussel captured at the shore reef in Muroran and neighboring sea, which was selected as one of the monitor living organisms of dioxins in 2003 by Japanese Ministry of the Environment. Our bio-monitoring revealed that the mussel did not contain dioxins and PCBs in the high level and that a large amount of PCBs was precipitated in the bottom mud of the Muroran bay. Based on the results we discussed main sources of the PCBs and dioxins and evaluated the toxicity.

Keywords : polychlorinated biphenyl and dioxins, chemical processing of polychlorinated biphenyl, PCBs and dioxins in mussel

1 序論

我々の周りには様々な有機合成化合物が存在する。ハロゲン化合物は物理的に強く、化学的に安定で、有用な化合物が多い。しかし生物毒性を示すものもあり、分解されにくく自然界に放出されると蓄積する。その低分子化合物は脂溶性のものが

多く、食物連鎖で濃縮されることもこの物質の特徴の 1 つである。ポリ塩化ビフェニール (PCBs) は 1929 年にアメリカのスワン社で開発され、後にモンサント社で製品化された。電気を通さず、高温で安定な、燃えない液体であることから変圧器やコンデンサーの絶縁油あるいは潤滑油などに使われ、第二次世界大戦を契機に生産とその使用が拡大した。モンサント社は PCBs に毒性がないとしていたが、PCBs による塩素痤瘡 (chloracne) の発生は戦前から知られていた⁽¹⁾。

日本国内で PCBs が関係する大きな事故では、1

*1 環境科学・防災研究センター

*2 技術部

*3 しくみ情報系領域

1968年10月にカネミ油症として知られる事件がある。カネミ倉庫という食用油メーカーが、米ぬか油特有の臭いを取るためにステンレス製蛇管にPCBsを通して間接加熱する方法を開発・採用していた。しかし蛇管が何らかの形で破損していたために米ぬか油にPCBsが混入し、この食用油を摂取した14,000人以上の人が被災するという日本最大の食中毒事件となった⁽²⁾。40年以上経過した現在でも後遺症に苦しんでいる人がある。この食中毒事件の前、同年の2月から3月にかけて、西日本16県で、カネミ倉庫の米ぬか油製造の過程で出る副産物をニワトリの餌に混ぜて食べさせていた養鶏場で200万羽以上に被害が出て、49万羽が死ぬ事件も起きていた。これらの食中毒を引き起こした主原因物質はPCBs製品に含有されるコプラナーPCBsを含むダイオキシン類であった⁽²⁾。

自然界でPCBsが生物濃縮により、食物連鎖の上位に位置する動物に蓄積することは1966年に始めて報告された⁽³⁾。1970年代に入るとアメリカやヨーロッパでPCBs等を含む化学物質による野生動物や人体に対する影響が広範囲に出始めた。これらは後になってコルボーンらにより「Our Stolen Future」(邦訳、「奪われし未来」)にまとめられ、ハロゲン化有機物に内分泌攪乱作用があるという新しい認識につながった⁽⁴⁾。1972年に日本では環境省が魚介類のPCBs汚染実態調査を広範囲に行った。その結果、さらに精密な調査が必要とわかり、1973年に全国14カ所の水域で魚介類の精密調査が行われた。その結果は1974年に報告されている⁽⁵⁾。72年の調査に基づき、同年通産省が行政指導でPCBs製造中止を通達し、74年になって「化学物質の審査及び製造等にかかわる法律」が制定され、PCBsの製造と使用が原則禁止となった。これ以降PCBs製品は各事業所に保管されたまま、約30年が経過した。しかし保管の不備等から環境へのPCBsの漏えいが続き、国際的にはPCBsそのものを焼却あるいは化学処理で全量処分する方向で動き出した。

日本では2001年に「ポリ塩化ビフェニール廃棄物の適正な処理の推進に関する特別措置法」が制定され、PCBs製品を保管している事業者は15年以内に処分することが義務づけられた。2004年に「残留性有機汚染物質に関するストックホルム条約」が発効になり、同年日本政府は100%の出資で設立した日本環境安全事業(株)がPCBs処理を全国5カ所で行うことを決め、第5番目の

処理地に選ばれた室蘭で2008年から処理事業が開始された。

PCBsの毒性と言われるが、PCBsだけでなく、その製品中に含まれるコプラナーPCBsと副産物として含まれる塩化ダイオキシン(以下ダイオキシン)や塩化ジベンゾフラン(以下ジベンゾフラン)に強い生物毒性がある。コプラナーPCBsとダイオキシンとジベンゾフランをまとめてダイオキシン類と総称する。ダイオキシン類は一般廃棄物や産業廃棄物の焼却の際にも発生する。そのため、PCBsの使用が禁止された後でもダイオキシン類による汚染は拡大した。

我々は国の事業としてPCBs処理施設が室蘭に設置されることから、室蘭近海の岩礁に生息するムラサキイガイの中に含まれるPCBsを含むダイオキシン類の測定を2005年から開始した。ムラサキイガイは比較的入手しやすく、世界的に分布し、しかも生息場所を移動しないために、局所的汚染のモニターとして有用な生物であることをすでに1975年にGoldbergが提唱していた⁽⁶⁾。これを受けて環境省は2003年、ムラサキイガイをモニター生物の1つに選定している⁽⁷⁾。経年的にダイオキシン類を測定することは、環境汚染に問題が生じたとき、その原因を特定し、対策を立てる上でも重要であると考えている。我々の測定結果から判断すると、これまでのところ、PCB処理施設からPCBs等の汚染は発生していないと判断できる。しかし、室蘭が工業都市として長年にわたり各種の生産活動を続けてきたことに起因すると考えられるPCBsやダイオキシン類が蓄積していることを示唆する結果を得たので報告する。

2 試料及び分析

室蘭港の御崎、築地、崎守地区と、工業都市ではなく漁業の盛んな日本海の岩内漁港を試料採集場所として選んだ。特製の熊手を用いてムラサキイガイを採取した。採取に当たっては北海道水産局の許可、および関係者の同意を得た(特別採捕許可証 ホク特採第2号)。ムラサキイガイの集団の中から大きさ約5センチメートルのものを選び、殻をはずしてむき身として、100グラム単位で凍結保存した。約5センチメートルのムラサキイガイは生後数年経たものであるが、ムラサキイガイへのPCBs等の蓄積は数か月で環境濃度と平衡関係が成立することから、この大きさのムラサキイガイがPCBs等の分析に推奨されている⁽⁸⁾。

表1 ムラサキイガイに含まれる総 PCBs 及びダイオキシン類とその毒性当量（2005 年—2010 年）

採取場所	採取年月	pg PCBs /g 湿重量	pg ダイオキシン類 /g 湿重量	pg TEQ /g 湿重量
室蘭市築地	2005.09	27,000	2,600	1.5
	2008.12	54,000	2,900	1.1
	2009.07	30,000	1,210	0.47
	2010.01	21,000	1,600	0.92
室蘭市御崎	2005.01	18,000	1,000	0.66
	2008.12	14,000	1,210	0.55
	2009.07	33,000	2,710	0.75
	2010.01	12,000	1,100	0.59
岩内郡岩内	2005.01	14,000	1,100	0.50
	2005.10*	9,000	990	0.61
	2010.01	68,000	3,300	2.1
室蘭市崎守	2005.09	6,000	1,000	0.68

脚注：採取場所ごとに分類した。*－8 0℃で5年間保存後に測定した試料。数値は湿重量1グラムに含まれるダイオキシン類をピコグラムで表示した。TEQは Toxicity Equivalency Quantity を意味し、毒性当量である。ダイオキシンには、置換した塩素原子の位置と数により多数の Congener（同類体）が存在し、それぞれの毒性は異なる。ダイオキシン（PCDDs）に似た構造をもつジベンゾフランも、同じように多数の同類体がある（PCDFs）。PCBs はオルトの位置に塩素置換をしていない化合物4種に強い毒性がある。モノオルト置換体8種にも弱い毒性があり、世界保健機構（WHO）は8種のモノオルト PCBs を含めて12種をコプラナー PCBs と呼び、毒性評価の対象にしている。毒性の強い7種の PCDDs と、PCDFs の10種、コプラナー PCBs を含めてダイオキシン類として毒性評価する。これらの中で一番毒性の強い2,3,7,8-テトラクロロジベンゾ-1,4-ジオキシン（2,3,7,8-TCDD）の毒性を1として、各化合物の毒性等価係数が計算されている。表1のTEQ（毒性当量）はムラサキイガイ1グラム湿重量中のダイオキシン類のそれぞれの含量を計算し、その毒性等価係数を加重した値である。毒性等価係数はWHOの国際化学物質安全性計画（IPCS）で5年ごとの再評価が合意されており、この表1の2005年のデータは1998年度の毒性等価係数を使い、2008年以降のデータは2006年度に改訂された係数を使って計算した。

凍結試料は兵庫県の株式会社カネカテクノロジー環境分析センターに送り、分析を依頼した。PCBs の分析は厚生省環境衛生局環食46号通知「分析方法に関する研究」（昭和47年）に準拠した。ダイオキシン類の分析は環境庁水質保全局水質管理課が定める「ダイオキシン類に係わる水棲生物調査暫定マニュアル（平成10年）に準拠した。ムラサキイガイに含まれる PCBs およびダイオキシン類の含量と室蘭港内の海水及び底質中の PCBs およびダイオキシン類の関連を議論するために道庁ホームページに掲載されている室蘭港の PCBs およびダイオキシン類に関するデータ⁹⁾を使用した。

3 結果

3.1 イガイの中に検出される PCBs 類とダイオキシン類の総量

ムラサキイガイの採取場所は室蘭港で2カ所と、日本海側の岩内港を選んだ。そのほかに2005年度だけ室蘭湾の入り口近くで、PCB 処理場から遠い崎守漁港で採取した。ムラサキイガイに含まれる PCBs の総量、ダイオキシン類総量とそれらの毒性当量を表1に集計した。

表1全体を見ると、各年度の PCBs 量やダイオキシン量にばらつきはあるが、2008年に室蘭で PCBs 処理が始まった後に、室蘭港のイガイに検出可能な PCBs やダイオキシン類の蓄積が増加したとは言えない。2008年に室蘭港の築地地区で採取したイガイ中の PCBs 濃度は2005年に同所で採取したものと比較して、2倍の値を示しているが、PCB 処理場のある御崎地区では下がって

いる。これはダイオキシン類についても同じである。同じ場所での各年度の値を見ると数倍の範囲で変動があるが、これも PCB 処理場からの流出が原因であると考えすることは出来ない。岩内町は日本海側の漁村であり、工業都市でもないが、このイガイに含まれる PCBs 量は室蘭港のイガイのそれと比較してみてもほぼ同じような値であり、年度による変動も同じように見られる。表 1 の中で PCBs の最高値を示したものは 2010 年に岩内漁港で採取したものであった。この問題は後で議論する。

3. 2 コプラナーPCBs 含量の経年変化

総 PCBs 量の経年変化は表 1 に示したとおりである。コプラナーPCBs の含量について、その経年変化を PCB 処理場がある御崎地区を例にとって検

討する (表 2)。WHO が定めたコプラナーPCBs はノンオルト体 4 種、モノオルト体 8 種である。PCBs 同類体はそのすべてに IUPAC がナンバーをつけているので、表 2 はその各化合物をナンバーで表示する。各同類体ナンバーと対応するコプラナーPCBs は脚注に記載している。

表 2 を見ると、PCBs 処理が始まる前の 2005 年と、操業開始後になる 2008 年以降に大きな変化はない。後述するように、室蘭港のイガイ中には PCDDs (ポリ塩化ダイオキシン) はほとんど検出されない。ムラサキイガイが取り込むコプラナーPCBs は主に #114 と #118 化合物である。両者でほぼ 8 割を占める。表 1 と、表 2 を比較してみると、毒性当量に寄与する物質はほとんどコプラナーPCBs の毒性であることが分かる。ダイオキシンやジベンゾフランからの寄与は少ない。

表 2 コプラナーPCBs の経年変化 (実測 pg/g 湿重量と毒性当量 pg-TEQ/g 湿重量)

	化合物番号	2005 (%)	2008	2009	2010	毒性係数
ノンオルト体	#77	2.5 (0.3)	1.1	1.5	1.2	0.0001
	#81	50 (5.2)	20	32	27	0.0003
	#126	5.4 (0.6)	3.2	5.2	4	0.1
	#169	0.47 (0.1)	0.22	0.18	0.25	0.03
	合計	58 (6.0)	25	39	32	
モノオルト体	#105	13 (1.3)	14	30	14	0.00003
	#114	550 (56)	760	1800	650	0.00003
	#118	210 (22)	240	560	240	0.00003
	#123	13 (1.3)	14	32	12	0.00003
	#156	40 (4.1)	45	92	45	0.00003
	#157	61 (6.3)	69	140	63	0.00003
	#167	14 (1.4)	19	38	19	0.00003
	#189	6.3 (0.6)	3.9	5.4	3.6	0.00003
	合計	910 (94)	1200	2700	1048	
コプラナーPCBs	合計	970 (100)	1225	2739	1080	
毒性当量 総計		0.66	0.55	0.73	0.59	

脚注：#77 は 3,3',4,4'-TeCB, #81 は 3,4,4',5-TeCB, #126 は 3,3',4,4',5-PeCB, #169 は 3,3',4,4',5,5'-HxCB で、これらがノンオルト体。#105 は 2,3,3',4,4'-PeCB, #114 は 2,3,4,4',5-PeCB, #118 は 2,3',4,4',5-PeCB, #123 は 2',3,4,4',5-PeCB, #156 は 2,3,3',4,4',5-HxCB, #157 は 2,3,3',4,4',5-HxCB, #167 は 2,3',4,4',5,5'-HxCB, #189 は 2,3,3',4,4',5,5'-HPCBS である。2005 年度の値の後ろにカッコで示した数字は表中のコプラナーPCBs の合計を母数にした各成分の百分率である。毒性係数のないコプラナーPCBs は対象にしていない。2008 年以降のものに百分比を示さなかったのは表が煩瑣になるためである。2005 年のデータで各成分比はほぼ代表できる。

表 2 に示したものは室蘭市御崎地区で採取したイガイのものであるが、同じ室蘭港の築地地区で採取したものも、ほぼ同じ結果となる（橋本他、未発表）。1987年に環境省が全国15箇所で調査したムラサキイガイの平均毒性当量は

1.107pg-TEQ/グラム湿重量と計算されており⁽⁷⁾、室蘭港のムラサキイガイに含まれるダイオキシン類の毒性当量はその半分強と言うことになる。

3. 3 ムラサキイガイ総 PCBs 中のコプラナー PCBs の比率

全国的に使われている PCBs はそのほとんどが鐘淵化学で製造されたもので、コンデンサーやトランスにはカネクロール KC-500 が使われていた。この PCBs 中にはコプラナー PCBs が 10% 弱含まれている。総 PCBs 中に含まれるコプラナー PCBs の比率を御崎地区と築地地区のデータと比較してみた（表 3）。

室蘭御崎地区と築地地区では大体 10% 弱の値である。表には示さなかったが、2005 年岩内港で採取したムラサキイガイでも、10% 弱の値となっている。10% 弱の値と言っても年度による差が 2 倍ほどある。年度や地区によって総 PCBs 量に違いが生じているのは生物濃縮過程、あるいはムラサキイガイ中の脂質含量の違いを反映しているのかも知れない。

ここで検出されたコプラナー PCBs の含有率からだけでは、検出される PCBs およびダイオキシン類がカネクロール製品に由来すると断定することはできない。このことについてはカネクロール KC-500 に含まれるコプラナー PCBs の「指紋」にあたるコプラナー成分比を 3・5 項の表 5-1 に示し議論した。

3. 4 ムラサキイガイ中のダイオキシンとジベンゾフランの含量

御崎地区で採取したムラサキイガイ中に検出さ

れたダイオキシンとジベンゾフランの経年変化を表 4-1 と表 4-2 にそれぞれ示す。ダイオキシンについては表 4-1 に示した。毒性をもつダイオキシンはほとんど検出されていない。7 塩素置換体（HpCDD）と 8 塩素置換体（OCDD）がわずかに検出されているが、その含量が少ないために、全体の毒性当量に影響を与える数値にはなっていない。

表 4-1 に示したとおり、ダイオキシン 1,3,6,8-TeCDD と 1,3,7,9-TeCDD は比較的多く存在する。この両物質の毒性係数はカッコ内に示すとおりゼロであり、WHO が指定するダイオキシン類には含まれない。この両物質をダイオキシン類測定の際に表示する理由は、これらがかつて農薬として使われたクロロニトロフェン製造の副反応で生成され不純物として混入してきたもので、ダイオキシン類汚染の原因が何に由来するかを考察する際に参考になるからである⁽¹¹⁾。その 1,3,6,8-TeCDD と 1,3,7,9-TeCDD が 2005 年度に異常に高値を示している。両物質が同時に高い値を示しているので、測定ミスとは考えられない。この値はこの年だけで、また通常の値に戻っている。何らかの理由でクロロニトロフェン製剤がこの年に大量に室蘭湾に流れ込んだ可能性が考えられる。

表 4-2 にムラサキイガイ中に含まれるジベンゾフランの含量を示した。ダイオキシンがあまり取り込まれず、毒性当量に寄与しなかったのに比較して、ジベンゾフラザンの毒性当量は総毒性当量に対して一定の寄与を示している。これは毒性係が 0.3 の 2,3,4,7,8-PeCDF や 0.01 の 2,3,7,8-TeCDF をムラサキイガイが選択的に取り込むことによる（表 7-1 に示した海水中の各ジベンゾフラザンの濃度参照）。2005 年、2008 年、2009 年、2010 年の各年度の総毒性当量に占めるジベンゾフラザンの寄与は、約 10%、30%、15%、25% と計算される。

表 3 ムラサキイガイ中の総 PCBs (pg/g 湿重量) に対するコプラナー PCBs の比率

		2005	2008	2009	2010
御崎地区	総 PCBs	18,000	14,000	33,000	12,000
	Co-PCBs	968	1,225	2,739	1,032
	Co-PCBs 比率 (%)	5.4	8.7	8.3	8.6
築地地区	総 PCBs	27,000	54,000	30,000	21,000
	Co-PCBs	2,600	2,900	1,200	1,600
	Co-PCBs 比率 (%)	9.6	5.3	4.0	7.6

表 4-1 ムラサキイガイ 1 グラム中のダイオキシン (PCDD) の経年変化 (pg/g 湿重量)

ダイオキシン (PCDD)	2005	2008	2009	2010
1, 3, 6, 8-TeCDD (0)	15	1.4	1.3	0.94
1, 3, 7, 9-TeCDD (0)	3.8	0.39	0.32	0.19
2, 3, 7, 8-TeCDD (1)	-	-	-	-
1, 2, 3, 7, 8-PeCCD (1)	-	-	-	-
1, 2, 3, 4, 7, 8-HxCDD (0.1)	-	-	-	-
1, 2, 3, 6, 7, 8-HxCDD (0.1)	-	-	-	-
1, 2, 3, 7, 8, 9-HxCDD (0.1)	-	-	-	-
1, 2, 3, 4, 6, 7, 8-HpCDD (0.01)	0.26	0.1*	-	0.08*
OCDD (0.0003)	1.30	0.3*	-	0.2*
毒性当量合計	0.0030	0.0	0.0	0.0

脚注：各 PCDD の直後にカッコ内に入れて記載した数字はその PCDD の毒性等価係数。*印のついた数値は検出下限以上ではあるが、定量下限未満を示す。

表 4-2 ムラサキイガイ 1 グラム中のジベンゾフラン (PCDFs) の経年変化 (pg/g 湿重量)

ジベンゾフラン (PCDFs)	2005	2008	2009	2010
1, 2, 7, 8-TeCDF (0)	0.17	0.40	0.26	0.49
2, 3, 7, 8-TeCDF (0.01)	0.31	1.0	0.73	0.94
1, 2, 3, 7, 8-PeCDF (0.03)	-	0.11	0.04	0.11
2, 3, 4, 7, 8-PeCDF (0.3)	0.13	0.26	0.17	0.16
1, 2, 3, 4, 7, 8-HxCDF (0.1)	-	-	-	-
1, 2, 3, 6, 7, 8-HxCDF (0.1)	-	-	-	-
1, 2, 3, 7, 8, 9-HxCDF (0.1)	-	-	-	-
2, 3, 4, 6, 7, 8-HxCDF (0.1)	-	-	-	-
1, 2, 3, 3, 6, 7, 8-HpCDF (0.01)	-	0.11	-	-
1, 2, 3, 4, 7, 8, 9-HpCDF (0.01)	-	-	-	-
OCDF (0.003)	-	-	-	-
毒性当量合計	0.07	0.18	0.12	0.15

脚注：各ジベンゾフランの後にカッコで示した数字はそれぞれの物質の毒性係数。1, 2, 7, 8-TeCDF はかつてパルプ製造過程でパルプの塩素漂白の際に発生するものとして発見され⁽¹²⁾、毒性係数はゼロである。これが測定される理由は PCDFs 同族体全体の由来を考える上で参考になるからである。

3. 5 室蘭港の海水と底質に含まれるコプラナー PCBs

表 5-1 と表 5-2 に 2006 年と 2010 年の海水と底質に含まれるコプラナー PCBs の量を示した。以下の室蘭港の海水や底質のデータは北海道庁ホームページのデータで公開されたもの⁽⁹⁾を分析しながら議論する。室蘭港における道庁のサンプリングは 8 か所に及び、大量のデータが公開されているが、PCB 処理施設近くの海域というよりも、室蘭港の中央部の ST4 と命名された 1 地点でのデータを今回は使用した。

海水のデータではその成分比は両年でおおむね一致している。コプラナー PCBs の 10%弱がノンオルト PCBs で 90%がモノオルト PCBs である。海水と底質のコプラナー PCBs の比較については、海水は 1 リットル中に含まれるコプラナー PCBs であり、底質は 1 グラム中の値であるから、絶対値の比較よりその成分比の比較に意味がある。概略的には海水中の PCBs と底質中の PCBs の成分比はほぼ同じである。

先に述べた表 2 ではその海水中の PCBs を取り込んで育ったムラサキイガイの成分を示したが、

表 5-1 室蘭港海水 1 リットル中のコプラナーPCBs と総 PCBs の量 (pg/ L)

	化合物番号	2006 (%)	2010 (%)	KC-500
ノンオルト体	#77	0.42 (6)	0.32 (6)	(1.1)
	#81	0.11 (2)	< 0.02 (0.4)	(1.5)
	#126	< 0.03 (0.4)	< 0.05 (1)	(0.4)
	#169	< 0.05 (0.7)	< 0.03 (0.6)	(0.0)
	合計	0.53 (8)	0.37 (8)	
モノオルト体	#105	1.4 (21)	1.0 (19)	(18)
	#114	0.11 (2)	0.08 (1.5)	(1.3)
	#118	3.8 (56)	2.9 (54)	(54)
	#123	0.07 (1)	0.05 (0.9)	(2.2)
	#156	0.53 (8)	0.42 (8)	(7.4)
	#157	0.19 (3)	0.11 (2)	(1.4)
	#167	0.21 (3)	0.24 (5)	(13)
	#189	0.08* (1)	0.10 (2)	(0.3)
	合計	6.3 (92)	5.0 (92)	
毒性当量	合計	0.068	0.0056	
総 PCBs		120	140	

脚注：2006年と2010年の各値の後のカッコ内の数字は総コプラナーPCBsを母数にした各成分の%を示した。各成分の#数字は表2の脚注を参照のこと。<印は検出下限未満を示す。*印は検出限界以上であるが定量下限未満を示す。これ以降表5-1から表7-2までは北海道庁ホームページ⁽⁹⁾に公開された資料の数値から計算した。表5-1の最後のカラムはカネクロール KC-500の成分のコプラナーPCBsを母数としたコプラナーPCBs各成分の存在百分率である。存在比率を示した。その成分比は参考文献⁽¹³⁾から計算した。

表 5-2 室蘭港底質 1 グラム中のコプラナーPCBs と総 PCBs 量 (pg/ グラム底質)

	化合物番号	2006 (%)	2010 (%)
ノンオルト体	#77	89 (3)	59 (2)
	#81	7.1 (0.3)	3.3 (0.1)
	#126	9.7 (0.4)	7.8 (0.3)
	#169	6.7 (0.3)	9.1 (0.4)
	合計	110 (4)	80 (3)
モノオルト体	#105	520 (19)	540 (22)
	#114	38 (1)	36 (2)
	#118	1500 (55)	1400 (57)
	#123	25 (1)	23 (1)
	#156	270 (10)	240 (10)
	#157	57 (2)	47 (2)
	#167	110 (4)	95 (4)
	#189	39 (1)	35 (1)
	合計	2600 (96)	2400 (97)
毒性当量	合計	1.4	1.1
総 PCBs		42000	41000

脚注：2006年と2010年の各値の後のカッコ内の数字は表中の総コプラナーPCBsを母数にした各成分の%を示した。各成分の#数字は表2の脚注を参照のこと。

ここでもノンオルト PCBs は 10%以下で、90%以上はモノオルト PCBs であった。しかし特徴的なところはムラサキガイでは #114 が 50%以上の比率を示しているのに、海水中の主成分は #118 である (表 5-1)。海水中のコプラナー PCBs がその比率でムラサキガイに取り込まれてはいないことが分かる。生物濃縮の過程がここに存在すると思われる。そのほかの成分もムラサキガイと海水中のダイオキシン成分比は一致しない (表 4-1、4-2 と表 6-1、6-2 の比較)。

海水中と底質中のコプラナー PCBs の同類体分布を比較してみると、いずれも #118 が主要成分で 50%を超え、次が #105 で 20%位を占め、成分比には共通点があるように見える (表 5-1、表 5-2)。なお表 5-1 の最後のカラムにはカネクロール製品 KC-500 のコプラナー PCBs のみの量を取り出しその百分率を示した。コプラナー PCBs の主要成分である #105、#118、#156 の相対比率がよく一致している。ここで示したコプラナー PCBs の存在比率は KC-500 中の存在比率ではない。製品 KC-500 での総 PCBs に対して #118 の存在百分率は 5%程度である⁽¹³⁾。

3. 6 室蘭港海水と底質に含まれるダイオキシン

ムラサキガイはダイオキシン同類体をほとんど取り込んでいなかったことは表 2 のデータで示したところであるが、室蘭港の海水や底質中にダイオキシンは存在している。表 6-1 と表 6-2

に示したとおり、WHO で規定されている毒性を持つダイオキシンのほとんどが検出される。表 4-1 で示したようにムラサキガイはクロロニトロフェン由来の 1,3,6,8-TeCDD と 1,3,7,9-TeCDD を選択的に取り込んでいたが、両物質が他のダイオキシンよりは海水や底質中で格段に量が多いというわけではない。ダイオキシンを取り込む過程で生物濃縮が働いていると見られる。

海水中と底質中に含まれるダイオキシン同類体の成分比を検討してみた。データは示していないが、クロロニトロフェン由来のダイオキシン 1,3,6,8-TeCDD が全体の 20%程度、1,3,7,9-TeCDD は 10%弱と似た傾向を示す。その他のダイオキシン同類体成分比率は量的に少ないので、成分比に共通点が見いだしにくい、主成分である 1,3,6,8-TeCDD と 1,3,7,9-TeCDD の存在比に類似点が見えるので、基本的にはダイオキシンも海水中と底質では似た成分比になっていると考えてもよいと思われる。

3. 7 室蘭港海水と底質に含まれるジベンゾフラン

表 7-1 と表 7-2 でジベンゾフランの同類体の成分を海水中と底質で比較してみた。底質には 1,2,3,4,6,7,8-HpCDF と OCDF が比較的多く、20-30%の値で存在するが、海水中でのジベンゾフラン同類体で特に目立つものはない。しかし表 7-1 におけるジベンゾフランの定量についてはその存在絶対量が少ないので、検出下限未満が多く、議論することはむづかしい。

表 6-1 室蘭港海水 1 リットル中に含まれるダイオキシン量 (pg/L)

	2006	2010
1, 3, 6, 8-TeCDD (0)	0.13	0.09*
1, 3, 7, 9-TeCDD (0)	0.05	< 0.03
2, 3, 7, 8-TeCDD (1)	< 0.03	< 0.03
1, 2, 3, 7, 8-PeCCD (1)	-	< 0.05
1, 2, 3, 4, 7, 8-HxCDD (0.1)	-	< 0.05
1, 2, 3, 6, 7, 8-HxCDD (0.1)	0.09	< 0.05
1, 2, 3, 7, 8, 9-HxCDD (0.1)	0.06	< 0.03
1, 2, 3, 4, 6, 7, 8-HpCDD (0.01)	< 0.02	0.05*
OCDD (0.0003)	0.25	0.10
合計 P C D D	0.76	0.47
毒性当量合計	0.050	0.032

脚注：各ダイオキシンの直後にカッコで示した数字は毒性係数。<と*印については表 5-1 の脚注を参照のこと

表 6-2 室蘭港底質 1 グラム中に含まれるダイオキシン (pg/グラム底質)

	2006	2010
1, 3, 6, 8-TeCDD (0)	32	18
1, 3, 7, 9-TeCDD (0)	13	7.8
2, 3, 7, 8-TeCDD (1)	0.2*	< 0.3
1, 2, 3, 7, 8-PeCCD (1)	0.9	0.8*
1, 2, 3, 4, 7, 8-HxCDD (0.1)	1.0	0.6*
1, 2, 3, 6, 7, 8-HxCDD (0.1)	2.3	1.9*
1, 2, 3, 7, 8, 9-HxCDD (0.1)	2.3	1.3
1, 2, 3, 4, 6, 7, 8-HpCDD (0.01)	17	9.8
OCDD (0.0003)	110	54
毒性当量合計	1.9	1.4

脚注：各ダイオキシンの直後にカッコで示した数字は各毒性係数。<と*印については表 5-1 の脚注を参照のこと

4 考察

平成 22 年度版環境省環境白書⁽¹⁷⁾にダイオキシン類に係わる公共用水域全国 1714 カ所で調べた結果が掲載されている。水質では最低値から最高値が 0.013 - 3.0 pg TEQ/1 リットルの値を示し、平均値は 0.2 pg-TEQ/リットルであった。底質については 1398 地点で調査し、0.067 - 540 pg-TEQ/グラム底質で、平均値は 7.2 pg-TEQ/グラム底質となっている。この数値を室蘭港の値と比較すると、2010 年の値は 0.049 pg-TEQ/リットルとなっている（表 5-1、表 6-1、表 7-1 の毒性当量の合計）。底質については表 5-2、6-2、7-2 から 4.3 pg-TEQ/グラム底質という値であるから、これらは全国平均値よりは小さい。ムラサキイガイ湿重量当たりの毒性当量も全国平均よりはわずかに低い値となっている。このことは室蘭港の底質に含まれる毒性係数の高いダイオキシンとジベンゾフルザンが全国平均と比較して低いためである（3-2 項参照）。ただし、室蘭港の中央部に位置する場所で採取する底質の総 PCBs 量では 40,000 pg/グラム底質のレベルを毎年検出しており（表 5-2 では 2006 年と 2010 年のみのデータ）、これは環境省が調査した全国平均の 27,000 pg/グラム底質の 2 倍弱である⁽¹⁴⁾。その PCBs 組成から判断して、これは室蘭の工場群からの漏洩と考えられるもので、全国平均よりも高い濃度の総

PCBs が現在でも底質に残存している。姉崎らは室蘭 PCBs 処理施設本格稼働を前にした 2007 年に室蘭港内外の 8 か所において底質試料を採取し分析している⁽¹⁵⁾。港の周辺に位置する工場群近くでは高い PCBs 濃度になっており、港の外側ではその十分の一くらいの値になっていることも工場からの流出を裏付ける。ダイオキシン類はその発生源から水中に放出された場合、拡散により発生源からの距離が遠くなると必然的に底質への蓄積量は減る。大阪湾から外洋にかけてダイオキシン類の蓄積を分析した先山らの論文でも外洋に向かってダイオキシンの蓄積が低減していることが分かる⁽¹⁶⁾。2005 年以降の測定からの暫定的結論は、総 PCBs については、すでに流出し底質に滞留している量が多いので、もし少量の PCBs が漏洩したとしても全体のレベルを上げるほどにはならない状態になっているということである。室蘭港におけるムラサキイガイのダイオキシン類の含量について大きな経年変化はなく、また海域の水質及び底質のダイオキシン含量も大きな経年変化はない。変動があるのは採取した時期やイガイの栄養状態による可能性が考えられるので、採取時期は今後考慮しなければならない。

全国的なレベルでいえば、ダイオキシン・ジベンゾフランは一般廃棄物焼却施設や産業廃棄物焼却施設からの排出が続いたために全国的に蓄積された。焼却施設の改善が始まり平成 10 年から急激に排出量が減少し始めた。平成 9 年には全国総

表 7-1 海水 1 リットルに含まれるジベンゾフラン量 (pg/L)

	2006	2010
1, 2, 7, 8-TeCDF (0)	0.02	< 0.01
2, 3, 7, 8-TeCDF (0.01)	< 0.03	< 0.01
1, 2, 3, 7, 8-PeCDF (0.03)	(0.02)	< 0.02
2, 3, 4, 7, 8-PeCDF (0.3)	< 0.02	< 0.02
1, 2, 3, 4, 7, 8-HxCDF (0.1)	0.02*	< 0.04
1, 2, 3, 6, 7, 8-HxCDF (0.1)	0.05	< 0.05
1, 2, 3, 7, 8, 9-HxCDF (0.1)	< 0.01	< 0.03
2, 3, 4, 6, 7, 8-HxCDF (0.1)	< 0.01	< 0.05
1, 2, 3, 4, 6, 7, 8-HpCDF (0.01)	< 0.02	< 0.05
1, 2, 3, 4, 7, 8, 9-HpCDF (0.01)	< 0.02	< 0.1
OCDF (0.003)	< 0.02	0.12
毒性当量合計	0.015	0.012

脚注：各ジベンゾフランの直後にカッコで示した数字は各毒性係数。くと*印については表 5-1 の脚注を参照のこと

表 7-2 室蘭湾の底質 1 グラムに含まれるジベンゾフラン量 (pg/グラム底質)

	2006	2010
1, 2, 7, 8-TeCDF (0)	2.9	2.1
2, 3, 7, 8-TeCDF (0.01)	3.4	2.2
1, 2, 3, 7, 8-PeCDF (0.03)	3.4	2.2
2, 3, 4, 7, 8-PeCDF (0.3)	3.1	2.0
1, 2, 3, 4, 7, 8-HxCDF (0.1)	4.1	3.2
1, 2, 3, 6, 7, 8-HxCDF (0.1)	3.2	2.2
1, 2, 3, 7, 8, 9-HxCDF (0.1)	0.81	< 0.3
2, 3, 4, 6, 7, 8-HxCDF (0.1)	3.6	2.5
1, 2, 3, 4, 6, 7, 8-HpCDF (0.01)	14	8.7
1, 2, 3, 4, 7, 8, 9-HpCDF (0.01)	2.6	2*
OCDF (0.003)	13	14
毒性当量合計	3.4	1.8

脚注：各ジベンゾフランの直後にカッコで示した数字は各毒性係数。くと*印については表 5-1 の脚注を参照のこと

排出量は毒性当量で 6 5 0 0 グラムあったが、平成 1 8 年には 1 0 0 グラムのレベルに減少し、現在もそのレベルを保っている。平成 1 1 年ダイオキシン類対策特別措置法が制定され、全国総排出量を平成 9 年の 9 2 %削減を目標にしたが、現在 9 8 %削減が達成されている⁽¹⁷⁾。排出についての削減計画は達成されたが、ダイオキシン類は一度環境に排出されると難分解性物質であるため長期に残存する。しばらくは室蘭を含め全国の海域の底質が大きく改善されることは期待できない。表 1 で示したとおり、室蘭港のムラサキイガイに検出されるダイオキシン量について経年的変化はほとんどない。

表 4-1 で示したが、農薬クロロニトロフェン由来の 1,3,6,8,-TeCDD と 1,3,7,9-TeCDD は毒性当量には反映されないが、われわれが採取したムラサキイガイの中のダイオキシンはほとんどこの 2 物質で占められている。益永は宍道湖の底質に蓄積しているダイオキシン類の分析を行い、この農薬由来のダイオキシン類の挙動を明らかにしている⁽¹¹⁾。室蘭港周辺では農業はあまり行われていないために、これらの 2 物質の由来が問題になる。例えば室蘭港に広大に埋め立てられた工場敷地の除草にかつて使われた可能性は考えられないだろうか。現在除草剤としてクロロニトロフェンは使われていないためにこれ以上

増加することはないと考えられるが、継続して測定を続けて検討する必要がある。

日本人の1日でのダイオキシン類(ダイオキシン、ジベンゾフラン、コプラナーPCB 合計)の摂取量は0.94 pg-TEQ/kg/dayであり、このうちの90%以上は魚介類からの摂取である⁽¹⁸⁾。ダイオキシン類対策特別措置法第6条には1日に摂取する限度、耐容1日摂取量(TDI)が定められており、4pg/kg 体重となっている。国際的に4 pgは上限の部類であり、厚生労働省は、将来的には1pg/kg 体重とする方向をめざしている⁽¹⁸⁾。体重60 kgの日本人なら、魚介類が室蘭港のムラサキガイが含有するレベルのダイオキシン類を含んでいるとすると、魚肉300グラム摂取で耐容1日摂取量を超える。その意味ではきれいな海域と言われる北海道でも、今回のムラサキガイ中のダイオキシン類含量から考えて、魚介類への汚染はかなり深刻であると認識しておかなければならない。

表1に、室蘭港の他に日本海側の岩内郡岩内町の岩内漁港で採取したムラサキガイのデータを示した。2010年に毒性当量が2.1 pg-TEQ/グラムとなっており、表1で示したどの年のムラサキガイよりも高く、また総PCBs値も異常に高かった。このことが一過性な現象であるかどうかは今後の推移を観察しなければならない。このことに関連して問題になることは近年日本海側のダイオキシン類等の汚染が増加していることである。環境省は2009年に「日本周辺海域における海洋汚染の現状」を発表した。太平洋側の黒潮海域や親潮海域でのダイオキシン類汚染等は経年的に減少傾向を見せているが、東シナ海や日本海では逆に増える傾向があることを指摘している⁽¹⁹⁾。北海道の海洋汚染を考える上でも、日本海側での観測の重要性が新たな問題となってきた。

先に述べたとおり(表2)、ムラサキガイの毒性当量に寄与するものはコプラナーPCBsである。ジベンゾフラン同類体の関与は多少認められるが、ダイオキシン同類体は実質ゼロの関与である。このことについて過去のデータを調査してみると、生物資料の毒性当量にPCDDsとPCDFsの占める割合が高い例がある。環境省の平成10年全国一斉調査によると、ダイオキシン類の高濃度汚染地区ではダイオキシン同類体やジベンゾフラン同類体がコプラナーPCBによる毒性を上回っている例があり、高濃度汚染がない場所では全体の毒性当量が減少すると共に、コプラナーPCBsがその毒性当量に寄与する割合が高い⁽¹⁰⁾。焼却施設からのダイオキシンが大量に排出

されていた当時では毒性当量全体にダイオキシン・ジベンゾフランが寄与し、焼却施設が整備されて、全国的にダイオキシン・ジベンゾフラン同類体が水質から減少していく時期になると、毒性当量にしめるコプラナーPCBsの寄与が相対的に高まるのは当然であろう。室蘭港で採取したムラサキガイのダイオキシン類の特徴は、焼却施設で発生したダイオキシン・ジベンゾフランが、人口の多い本州の諸都市と比べると、室蘭では少なかったことを反映していると考えられる。

表5-1に室蘭港海水中のコプラナーPCBsの同類体成分を示した。右端のカラムにKC-500の成分のうち、コプラナーPCBsに関するものだけを、高管らのデータ⁽¹³⁾から抜き出しその成分百分率を対比させてみた。主要成分となった#105, #118, #156の比率が海水中的のコプラナー存在比とよく一致した。このことは室蘭港に流れ込んだPCBsの主なものが高圧変圧器やコンデンサーに使用されたKC-500に由来する可能性を強く示唆する。ムラサキガイはこれらのPCBsを生物濃縮の過程を経て体内に蓄積する。海中の主要成分がムラサキガイにそのままの比率で取り込まれるわけではない。多く取り込まれた#114と#118に注目すると、海水中では#118は#114の3.4倍存在している。表5-2の底質で見るとその値は3.9倍でほぼ同じ値である。ところがムラサキガイの中に検出される#114と#118量は表2に示したように、1グラム湿重量あたり#114が550 pgで、#118が210 pgとなっており、その存在比が逆転し、#114が2倍以上になっていて、#114の濃縮率が高いことが分かる。生物濃縮係数は一般的に言えば、濃縮される物質の疎水性と正の相関がある。PCBsでは塩素置換数が増えると水に対する溶解度が減る傾向にある。#114と#118は共に塩素原子5置換であるから溶解度に大きな差はないはずである。津野らはPCBsの塩素置換位置による濃縮率の変化について詳細な検討を加えている⁽²⁰⁾。その中でベンゼン核の2,4,5の位置に塩素置換したものは濃縮率が高くなることを述べているが、#114も#118も共に2,4,5位に塩素置換をもつ。同時に津野らは2,3,4,5位に置換をもつPCBsの場合は濃縮率が低くなることを指摘している。塩素置換基が2,3,4,5と局所的に集中して並ぶとそれが原因で取り込み阻害が起こるのではないかと述べている。#114がちょうどこれにあたるが、我々の結果は逆で#118よりも効率よく取り込まれている。池田らは2002年に神奈川県引地川調査で#118がム

ラサキイガイのコプラナー主成分として検出され、# 1 1 4 は少ないことを報告している⁽²¹⁾。先に述べたように KC-5 0 0 で # 1 1 8 は # 1 1 4 の 4 0 倍ある。このために環境中のコプラナーPCBs には # 1 1 8 が多く、# 1 1 4 は少ない。両者が同じレベルの濃縮係数をもてば、当然ムラサキイガイに取り込まれるのは # 1 1 8 のほうが多くなる。池田らの # 1 1 4 と # 1 1 8 についての結果は、環境中の両者の濃度をそのまま反映しているように見える。それは我々の結果とは異なる。現在 PCBs 同類体すべての物性が調べられていないし、また生物濃縮についてのデータも少ない。我々の結果は池田らの結果と異なるだけでなく、津野らの予想からも異なる。海中微生物を通じた生物濃縮を考える時、北方と温暖な湘南地域ではムラサキイガイが摂取する海中微生物の種類が違うために濃縮に差が生じるのかも知れない。ムラサキイガイが世界的なモニター生物になっているのでこのことは今後の検討課題としたい。

5 結論

1. 2 0 0 5 年から室蘭港と日本海側の岩内港でムラサキイガイに蓄積するポリ塩化ビフェニールとダイオキシン類の測定を行ってきた。この間に蓄積の増加やその減少は観察されず、一定の値が維持されている。ダイオキシン類の毒性当量を形成する成分について特徴的なことは、そのほとんどがコプラナーPCBs によるもので、次いでジベンゾフランがわずかに寄与し、ダイオキシンの寄与は無視できる量であった。このことはダイオキシンとジベンゾフランが低濃度の海域で見られる現象で、室蘭港がダイオキシン類について言えばその汚染が比較的少ないことを示していると言える。
2. ダイオキシン類の毒性当量は、室蘭港では全国平均より低い値であった。検出されたダイオキシン同類体の主成分は農薬ニトロフェン由来の 1,3,6,8-TeCDD と 1,3,7,9-TeCDD であり、ジベンゾフラン同類体では塩素漂白過程で発生するとされる 1,2,7,8-TeCDF であった。これらの毒性当量はゼロと評価されているために、毒性当量の増加に寄与しない。しかし発生原因となる農薬の製造は行われていないし、またパルプ等の塩素漂白も行われていないことから、今後これらが室蘭港で高い濃度で推移するなら、その発生源が問題となることを指摘しておきたい。
3. 底質の総ポリ塩化ビフェニール量は全国平均より高い値が観察された。これは室蘭市が工業都市として活動したことの反映と考えられる。底質あるいは水質のポリ塩化ビフェニールの成分プロファイルをコプラナーPCBs について比較すると、カネクロール KC-5 0 0 の成分に類似したものを示した。室蘭の企業で使われていたトランスやコンデンサーから長い期間漏洩して蓄積してきたものと考えられる。
4. ムラサキイガイは世界的に環境モニター生物として研究されている。我々はコプラナーPCBs 同類体による濃縮を検討したが、従来報告されているパターンと違った濃縮を観察した。ムラサキイガイの生物濃縮のメカニズムについては検討が必要である。

文献

- (1) Drinker, C.K., Warren, M.F., and Bennet, G.A., The problem of possible systemic effects from certain chlorinated hydrocarbons, *Journal of Industrial Hygiene and Toxicology*, 19 (7) (1937), p283.
- (2) カネミ油症被害者支援センター編, カネミ油症過去・現在・未来, 緑出版
- (3) Jensen, S., Report of a new chemical hazard, *New Scientist*, 32 (1966), p612.
- (4) シーアーコルボーン等, 奪われし未来, 翔泳社
- (5) 環境省, 環境白書昭和 49 年度版第 4 章第 8 節
- (6) Goldberg, E.D., The Mussel Watch - A first step in global marine monitoring, *Marine Pollution Bulletin*, 6, No.7 (1975), p111.
- (7) 環境省, 平成 1 5 年度版: 化学物質と環境, http://www.env.go.jp/chemi/kurohon/http2004/sec1_2_1_15.html (2004)
- (8) 津野洋、中野武、田中康寛、松村千里、天野幹太、新海貴文、ムラサキイガイの成長過程での PCBs 濃縮特性に関する研究、*土木学会論文集*, No.797/VII-36, (2005) pp.63-70
- (9) 北海道庁ホームページ, http://www.pref.hokkaido.lg.jp/ks/jss/recycle_2/PCBs/m-keikaku.htm
- (10) 環境省, 平成 11 年度公共用水域等のダイオキシン類調査について, http://www.env.go.jp/press/file_view.php?serial=1004&hou_id=1486
- (11) 益永茂樹, ダイオキシン類の流域内挙動の総合解析: 宍道湖の事例研究, <http://staff.aist.go.jp/m-yamamuro/pdf%20Filed/daio>

kisin.pdf

- (12) Wiberg, K., Lundström, K., Glas, B., and Rappe, C., PCDDs and PCDFs in Consumers' Paper Products, *Chemosphere*, 19 (1986), pp.735-740.
- (13) 高菅卓三, 井上毅, 大井悦雅, 各種クリーンアップ法と HRGC/HRMC を用いたポリ塩化ビフェニール(PCBs)の全同類体詳細分析方法, *環境化学(Journal of Environmental Chemistry)*, Vol.5, No.3 (1995), pp.647-675.
- (14) 環境省, 平成 21 年度ダイオキシン類に係わる環境調査について,
<http://www.env.go.jp/press/press.php?serial=13266>
- (15) 姉崎克典, 山口勝透, 永洞真一郎, 岩田理樹, 北海道室蘭港における POPs 調査, *水環境学会第 42 回日本水環境学会年会講演集*, (2008), p545.
- (16) 先山孝則, 東條俊樹, 高倉晃人, 仲谷正, 私たちを取り巻くダイオキシン類汚染の現状と課題, *生活衛生*, 50 (No.5) (2006), pp.239-260.
- (17) 環境省, 平成 22 年廃棄物処理施設からのダイオキシン類排出量推移,
http://www.env.go.jp/press/file_view.php?serial=16623&hou_id=13272
- (18) 厚生労働省, ダイオキシンの耐容 1 日摂取量について,
http://www1.mhlw.go.jp/houdou/1106/h0621-3_13.html#no9
- (19) 環境モニタリング調査研究会 (環境省), 日本周辺海域における海洋汚染の現状,
http://www.env.go.jp/earth/kaiyo/monitoring/status_report.html
- (20) 津野洋, 新海貴史ら, 瀬戸内海における PCBs の分布とムラサキイガイへの濃縮特性に関する研究, *土木学会論文集 G*, Vol.63 No.2 (2007), p149-158.
- (21) 池田こみち, 湘南の海の汚染はどこまで続くか,
<http://www.yc.tcu.ac.jp/~aoyama/independent-research/dioxin-research/shell/kickoff/fujisawa02-3-30.html>