

## 沿岸海域の重金属汚染モニタリングに向けた 指標生物候補としての二枚貝の特性 総説

高柳 和史\*・坂見 知子\*

### Bivalves as a possible sentinel marine organism to monitor metal pollution in coastal waters A review

Kazufumi TAKAYANAGI\* and Tomoko SAKAMI\*

**Abstract** In order to evaluate three bivalve species: *Mytilus edulis*, *Perna viridis* and *Crassostrea gigas* as a possible sentinel organism to monitor metal pollution in coastal waters, related literatures have been reviewed. The special attention was given to five requirements to use a sentinel organism: (1) ability to accumulate metals, (2) representative of coastal waters, (3) easily sampled year around, (4) easy to obtain a large amount and (5) wide distribution to cover all the continents. The metal concentrations (Mn, Cd, Cu, Ni, Pb and As) in transplanted *Mytilus galloprovincialis* (closely related species of *M. edulis*) and *P. viridis* into Tokyo Bay and Aburatsubo Bay were also monitored for 8 weeks to check accumulation patterns of the metals space. The literature review indicates that the combination of three species is necessary to meet the above requirements. Although all three species can accumulate metals efficiently (more than  $10^6$ ) and all are representative organisms of the intertidal zone, the geographical coverage of each species is limited. In order to cover world wide, the combination of the three is required. The transplanted bivalve studies indicate that these three species can be used interchangeably as a sentinel organism at least for Cd, Ni, Pb and As.

1996年国連海洋法条約の発効以来、我が国経済水域の海域環境の保全是ますます重要な課題となってきた。環境中に排出される化学物質の種類、量は増加しており、経済水域内の海洋汚染監視は急務となってきた。重金属類の排出は法律の整備等で減少しているようであるが、海洋の広い範囲において人間活動の影響が現れている (Nriagu and Pacyna, 1988)。

重金属類による海洋汚染の監視には、海水中の重金属濃度を正確に把握する必要がある。しかし、海水を直接分析するには海水中にナトリウム塩等の妨害物質が多含まれているため難しく、また海水の採取も試料汚染等の問題もあり容易ではない。さらに、海水中では重金属類は低濃度かつ不均一に分布することから、海水中の濃度変動の実態を正確に直接測定するためには困難なことが多い。そこで、海産魚介類が重金属を体内に濃縮する特性を利用した生物モニタリ

ング手法が考案され、ムラサキイガイ、イカ等の生物への適用が試みられている (Phillips, 1976, 1977; Goldberg *et al.*, 1978; 杉山等, 1996)。特に Goldberg (1975) が提唱したイガイ属 (*Mytilus*) の貝を指標生物とした沿岸海域の汚染モニタリングプログラム“マツセルウォッチ”は良く知られており、世界各地でムラサキイガイに蓄積されている有害物質が重金属に限らず、有機塩素系化学物質、石油炭化系化学物質等についても測定されている (Goldberg *et al.*, 1983; Claisse, 1989; Cossa, 1989; 森田, 1989; Sericano *et al.*, 1995; Tanabe, 1994; 山口等, 2000)。

しかしながら、Goldberg (1975) の扱ったイガイ属は主として北半球の中・高緯度地域に限られるため、全世界の沿岸域をカバーするのは難しく、他の二枚貝との併用が望まれている。本研究では熱帯から亜寒帯までを広くカバーするためにムラサキイガイ

2001年9月26日受理 (Accepted on September 26, 2001)

水産総合研究センター業績 A 第10号 (Contribution No.A 10 from Fisheries Research Agency)

\* 養殖研究所 〒516-0193 三重県度合郡南勢町中津浜浦422-1 (National Research Institute of Aquaculture, Fisheries Research Agency, 422-1 Nakatsuhamaura, Nansei, Mie 516-0193, Japan)

(*Mytilus edulis*), ミドリイガイ (*Perna viridis*), マガキ (*Crassostrea gigas*) に焦点を当て、既往文献のレビューを行い、それらの生理・生態的特徴、有害物質の蓄積性等を明らかにした。また、東京湾と油壺湾(神奈川県)にムラサキイガイの近縁種 *Mytilus galloprovincialis* 及びミドリイガイを移植し、軟体部中の蓄積金属濃度をモニターすることにより、海洋汚染の指標生物としてこれら3種の二枚貝類が使用可能かどうかを検討した。なお、*M. galloprovincialis* は、日本に *M. edulis* がほとんど生息しないため、代わりの指標生物として考えられるためこれを用いた。

### 材料と方法

#### 文献レビュー

ムラサキイガイ (*Mytilus edulis*), ミドリイガイ (*Perna viridis*), マガキ (*Crassostrea gigas*) の分類と地理的分布、生理・生態的特徴、重金属を中心とした有害物質の蓄積性をキーワードにして文献検索システム ASFA, BIOSIS を用いて文献検索を行い、文献レビューを行った。

#### *M. galloprovincialis*, ミドリイガイ移植実験

移植実験は油壺湾と東京湾横浜市沖(蒼鷹丸棧橋)で行った。*M. galloprovincialis* は島根県栽培漁業センター、ミドリイガイは沖縄県より搬入した。中央水産研究所横須賀庁舎で2~3週間蓄養した後、油壺湾と東京湾に移し8週間垂下し、貝軟体部中の重金属濃度の変化を追跡した。重金属分析のために、試験貝は2週間ごとに5~10個体採取し、凍結保存し、養殖研究所へ送付した。自生個体群として垂下した場所から *M. galloprovincialis* のを採取し同様に処理した。さらにマガキについても、油壺湾と、養殖研究所のある五ヶ所湾からの自生個体群を採取し、分析に供した。

二枚貝軟体部中の蓄積重金属の分析は既報により行った(高柳, 2000)。まず、軟体部を貝殻から外し、秤量し、凍結乾燥させた。凍結乾燥させた試料は秤量した後ミキサーにより粉碎した。次に粉碎した試料1g前後を正確に秤量し耐圧容器に入れ硝酸(有害金属測定用の高純度試薬)5mlと硫酸(有害金属測定用の高純度試薬)1mlを添加した。この耐圧容器をマイクロ波分解装置(マイルストーン社製MLS-1200, イタリア)にセットし、重金属を溶解させた。最終的に超純水で定量に希釈しICP-AES(誘導結合プラズマ発光分光分析装置, リーマンラボ社製PS3000UV, アメリカ)を用いて金属濃度(Mn, Cd, Cu, Ni, Pb及びAs)を測定した。

### 3種の二枚貝の分類と地理的分布

#### ムラサキイガイ (*Mytilus edulis*)

*Mytilus* 属は、二枚貝綱(Class Bivalvia), イガイ目(Order Mytiloida), イガイ科(Family Mytilidae)に属し、代表種として次の5種がある:*M. edulis*, *M. galloprovincialis*, *M. trossulus*, *M. californianus*, *M. coruscus*。これら5種は殻の大きさ、形、外套膜の色等が僅かに異なるが相互の交配による雑種が多いため外見だけで種を判別することは極めて難しい。特に前者3種、後者2種は外見上は非常に似ている。最近ではタンパク質電気泳動、アミノ酸配列、DNA解析等を使用し、種の判別を行っている(Gosling, 1992)

ムラサキイガイ類3種(*M. edulis*, *M. galloprovincialis*, *M. californianus*)の世界的分布をFig. 1に示す。北半球ではインド洋沿岸を除き広範囲に分布しているが、南半球では南アメリカ、アフリカ、オセアニアとも中-高緯度地域に限られている。また、多数の地域で3種の分布が重なり合っている。

#### ミドリイガイ (*Perna viridis*)

ミドリイガイは二枚貝綱, イガイ目, イガイ科に属す。*Perna* 属はムラサキイガイの *Mytilus* 属と近縁で過去には分類が混乱していたが、現在両属は前筋痕の形態によって区別されている。*Perna* 属は前筋痕が前部と後部の2つに分かれているが、*Mytilus* 属では一続きになっている(Fig. 2)。*Perna* 属には *P. Perna*, *P. viridis*, *P. canaliculus* の3種が含まれるが、個体の変異が大きいことから外見によって3種を明瞭に識別することは困難である。

上記3種の世界的分布をFig. 1に示す。この3種の分布は *Mytilus* 属とは異なり、あまり重複していない。*P. viridis* はフィリピン以南のインド-西太平洋域に分布する。台湾でも分布が報告されているが、人為的移入によるものであると考えられている。日本では1968年に兵庫県相生市で最初に発見され、その後も数カ所から報告されており、帰化動物の一つとなっている(梶原, 1996)。熱帯性生物であるため、日本では通常冬季の低水温によって個体群は死滅消失してしまう。しかし近年では、発電所や工場の温排水放出口付近で越冬個体群が見つかる(梅森, 堀越, 1991)。また、三重県五ヶ所湾でも夏季に確認されている。

#### マガキ (*Crassostrea gigas*)

マガキは二枚貝綱, ウズクガイ目(Order Ptereroidea), イタボガキ科(Family Ostreidae)に属す。イ

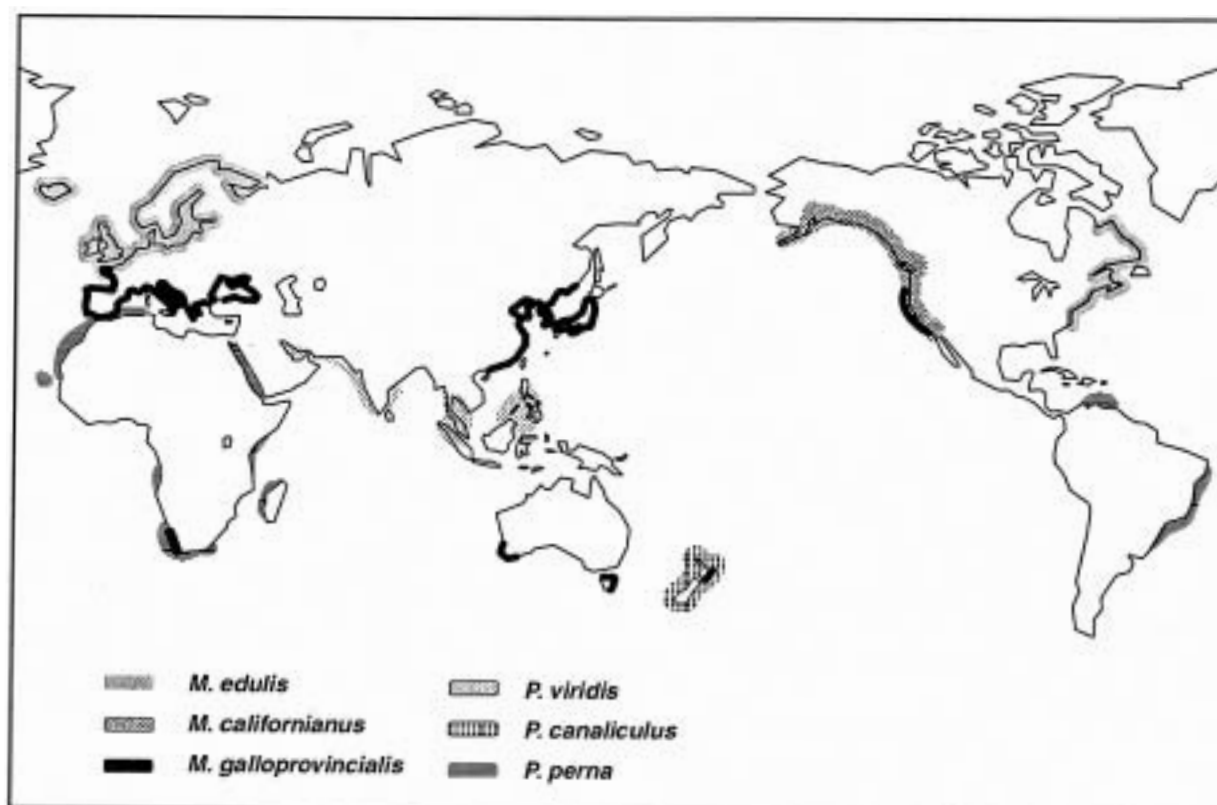


Fig. 1. World wide distributions of three species of the genus *Mytilus* and three species of the genus *Perna* (after Vakily, 1989 and Gosling, 1992)

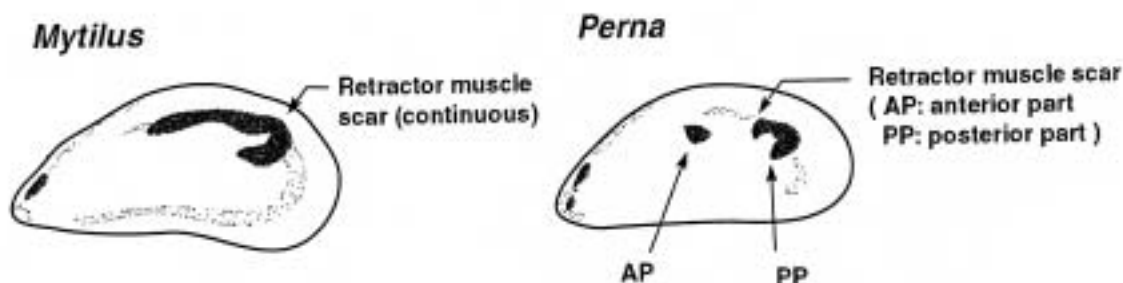


Fig. 2. Difference in muscle scar pattern of *Mytilus* and *Perna* (after Vakily, 1989)

タボガキ科には *Ostrea*, *Crassostrea*, *Pycnodonta* の3属が含まれ世界中で100種以上に分類されている。日本には主に次の2属6種が分布する：*C. gigas* (マガキ, Pacific Oyster), *C. ariakensis* (= *C. vivularis*, スミノエガキ), *C. nippona* (イワガキ), *C. sikamea* (シカメガキ), *C. echinata* (ケガキ), *O. denseramel-lasa* (イタボガキ)。

カキ類のうち分布量が多く産業的にも重要である2属6種の地理的分布を Table 1に示す。マガキは日本周辺が主たる生息域であり、北海道から九州、朝鮮半島、沿海州、中国大陸沿岸に分布する。大きさや、殻の色・形状の変異が大きく、日本国内でも分布域や形態的特徴から北海道・宮城・広島・熊本の4つの地域

集団に大別されていた。形態以外にも成長速度やグリコーゲン含有量等の生理的な違いがあり、これらの地域集団の持つ形質の違いは遺伝的なものであると考えられる。しかし、いずれの集団間でも中間形質を持った雑種を形成し (Imai and Sakai, 1961), 分布境界付近での変異が連続的であることから、マガキは全国で同一種とされている。また、マガキは重要産業種であることから種苗の移動が大規模に行われてきている。そのためカキ養殖の盛んな地域では、在来の集団と移入された集団とが交雑し、現在では集団の地域性が不明瞭になりつつある (Fujio, 1979)。

マガキの種苗は欧州、北米、豪州など国外にも輸出されており、北米太平洋岸では、主要なカキ漁場周辺

Table 1. Geographical distributions of commercially important oysters (from Imai, 1971)

Species	Region	
	Major habitat	Latitude
<i>Ostrea edulis</i> (European flat oyster)	Europe (Mediterranean ~ Scandinavia, England)	40 ~ 60 N
<i>Ostrea lurida</i> (Olympia oyster)	West coast of the USA	33 ~ 50 N
<i>Crassostrea angulata</i> (Portuguese oyster)	Portugal, Spain, France	37 ~ 45 N
<i>Crassostrea virginica</i> (American oyster)	East coast of the USA	27 ~ 47 N
<i>Crassostrea gigas</i> (Pacific oyster)	Japan, Korea, China	30 ~ 45 N
<i>Crassostrea commercialis</i> (Sydney rock oyster)	Australia	22 ~ 28 S

では移入したマガキが繁殖して、その地域の優占種となり分布を広げている。また、フランスには既存種のポルトガルガキ (*C. angulata*) が生息していたが、両種は交配可能で生殖隔離がないことから、遺伝的に混ざって分布を広げていると考えられる (沼地, 1994)。

### 3種の二枚貝の生理・生態学的特徴

#### ムラサキイガイ (*Mytilus edulis*)

ムラサキイガイはムールガイとも呼ばれている。殻長は約7cm、殻は薄く、膨らんでいる。亜三角形で殻頂部はとがり、腹縁は僅かにはりだしている。殻の外表面は黒紫色、内表面は青みがかった白色である (奥谷, 1986)。ムラサキイガイは春先に産卵し、受精後5~6日でD型幼生となるのが一般的である。人工授精も容易に行うことができる。餌として植物プランクトン、懸濁有機物を摂取する。ムラサキイガイの成長、成熟からみた生産性は非常に高く、熱帯雨林やケルプ群生に匹敵すると考えられている (Seed and Suchanek, 1992)。寿命は生息環境により異なり、20年以上と報告されているものもあるが、一般的には2~3年である (Seed and Suchanek, 1992)。

ムラサキイガイは高塩分を好むが、*M. trossulus* のように6~7‰程度の低塩分でも生息することができる近縁種もいる (Gosling, 1992)。低塩分では一般的に成長が阻害されると報告されているが、好適塩分よりも餌の豊富さを求めて低塩分の汽水域で生息している例もある (Seed and Suchanek, 1992)。また、波の穏やかな内湾的な環境を好み、潮間帯から水深約20m

の岩礁に足糸で付着している (奥谷, 1986)。

#### ミドリイガイ (*Perna viridis*)

ミドリイガイは元来は熱帯性種であるため、近縁の *Mytilus* 属と比較して成長が早い。熱帯域では周年成長し、その殻長は1年で70~80mm、2年で110~120mmになる。香港等の亜熱帯域では水温が低下する冬季は成長が停滞し、17℃が本種の成長限界水温であるとされている。ミドリイガイは殻長20~30mm (2~3ヶ月) で成熟する。放卵放精は環境条件の安定した熱帯域では周年行われるが、年に2回程度の不明瞭な盛期がある。香港や沖縄などの亜熱帯域 (移植実験結果) では、夏季に一回放卵放精が行われる。受精卵は約20時間でD型幼生になり、15~20日間の浮遊幼生期を経た後、適当な基盤に付着し、足糸を出して固着生活に入る (Vakily, 1981)。

ミドリイガイの軟体部の重量や成分組成は、多少の年変動を示す。これは生殖腺の発達と卵・精子の放出を反映していると考えられ、生殖腺が発達している時期にはタンパク・脂質の含有量が増大し、糖の含有量が低下する傾向が見られる。摂餌形態は過摂食性で動植物プランクトンや懸濁有機物を餌としている。養殖漁場では一次生産量が17-40µg Chl a/l、潮流が0.17-0.25m/s : flood tide, 0.25-0.35m/s ; ebb tide であることが良好な生育を維持するのに必要であるとされている (Vakily, 1981)。

ミドリイガイは比較的富栄養で懸濁有機物が豊富な海域を好み、陸水の影響が大きい内海、内湾等に多く生息し、貧栄養なサンゴ礁域や外洋に面した海域では

見られない。生息水深は潮間帯以下で、岩やローブなど様々な基質に付着する。生息適水温は冬季26～28℃から夏季31～32℃程度で、変動の少ない高水温を好む。生存可能な水温の上下限界はそれぞれ10℃及び35℃とされている (Vakily, 1981)。生息場所の塩分は27～33‰の範囲で、至適塩分は30‰付近とされているが、一時的な河川水の流入などで20‰程度まで塩分が低下しても耐えられる。

マガキ (*Crassostrea gigas*)

マガキの成熟は水温によって支配され、高水温期 (日本では5～11月、盛期6～8月) に成熟、放卵放精が行われる。卵の大きさは約50μmで、受精後2～4週間の浮遊幼生期を過ごす。この時期、浮遊幼生は海流によって内湾から外洋へ出て40～50km離れた場所でも多量に着底する例も観察されている (Quayle, 1969)。270～300μmの大きさに成長した幼生は水中の基盤に付着して稚貝となり着底生活に移行する。年内には、殻長1cm程度の大きさになり、冬を越す。

マガキは主に小型の植物プランクトンを餌料とするろ過摂食性であり、殻長にみられる成長は一般に春から夏にかけて大きく、秋から冬にかけて停滞する。成長速度や成体の大きさは水温や地域集団によって大きく異なる。ナガガキと呼ばれる北海道産の大型のものでは殻長20cm以上になるが、小型の広島や熊本産のものでは7cm程度である。

一方、マガキの軟体部の重量や組成は、夏季の成熟、放卵放精と冬季のグリコーゲン蓄積による顕著な季節変動を示す。春から夏にかけて生殖腺が発達し、体内には成熟した卵や精子が充満する。放卵放精後は、結合組織がグリコーゲンを蓄えながら増大して、冬季には大量のグリコーゲンを含んだ厚い結合組織が形成される。ただし、餌料環境の良好な場所では、放卵放精による軟体部重量の減少が必ずしも認められるわけではなく、春から秋まで連続して軟体部重量が増加することもある。成熟は1才から始まる。

マガキは潮間帯の岩礁に付着するか、砂礫底にカキ礁をつくって生息する。生息水温は3～35℃、塩分は10～42‰とされている。

重金属の蓄積性

Table 2に世界各地で採取されたイガイ属の二枚貝軟体部中の重金属濃度と表層海水中の濃度との比較を一覧表として示す。二枚貝軟体部中の重金属濃度は、マンガンでは0.14～69.8ppm、カドミウムでは0.1～111ppm、銅では1.9～740.4ppm、ニッケルでは0.3～49.29ppm、亜鉛では45～3803ppm、鉛で<0.1～180ppmと2～3桁も異なる濃度が報告されている。ヒ素、セレン、ストロンチウムについては報告が少ないが、それぞれ3.9～33.6ppm、0.4～5.0ppm、14～323ppmと広範囲な値である。ミドリイガイについ

Table 2. Surface water metal concentrations (ng/L) in the major oceans and the metal concentrations (ppm, dry weight) in *Mytilus* collected around the world

		Mn	Cd	Cu	Ni	As	Se	Sr	Zn	Pb	Reference	
The Pacific :	surface waters	6 - 34	9 - 100	31 - 309	147 - 590	1125 - 1875	47 - 182	8 × 10 <sup>6</sup>	5 - 580	1 - 13	Bruland, 1983	
	Japan	0.14 - 49.29	0.41 - 740.4	1.9 - 49.29	0.14 - 49.29	3.91 - 33.55	0.40 - 5.00	14 - 323	49 - 3803		Morita, 1989	
	US Pacific coast		0.5 - 20.2	3.6 - 11.0	0.3 - 7.4				60 - 280	0.2 - 17.7	Goldberg <i>et al.</i> , 1983	
	US Pacific coast		3 - 7	8 - 11					204 - 341	2 - 8	Stenner & Nickless, 1975	
	US Atlantic coast		0.7 - 10.7	4.3 - 610	0.4 - 5.1					<0.1 - 9.5	Goldberg <i>et al.</i> , 1983	
	St.Lawrence, Canada		1.38 - 3.20									Cossa, 1988
	British Columbia, Canada		0.5 - 16.2									Cossa, 1987
	Hong Kong		0.1 - 1.44	8.5 - 278					77 - 164			Phillips, 1985
	New Zealand		< 10						50 - 180	50 - 180		Brooks & Rumsby, 1965
	Australia	9.2 - 20.8	6.7 - 111	4.8 - 54					198 - 505			Fabris <i>et al.</i> , 1986
The Atlantic :	surface waters	6 - 53	3 - 27	73 - 127	110 - 336	1200 - 1500	25 - 120	8 × 10 <sup>6</sup>	3 - 130	5 - 35	Bruland, 1983	
	England		0.9 - 36.5	4.8 - 18.1					68 - 443		Franklin, 1987	
	the Irish Sea		5.1	9.6					91	9.1	Segar <i>et al.</i> , 1971	
	Scotland		0.6 - 3.5	5.7 - 30					79 - 259	6 - 33	Topping, 1972	
	France		0.1 - 36.2							1.2 - 5.5	Classis, 1989	
	US Atlantic coast		0.8 - 6.2	4.3 - 35	0.4 - 4.2				45 - 320		Goldberg <i>et al.</i> , 1983	
	Bermuda		2.9 - 4.1	5.7 - 9.8					64 - 86		Widdows <i>et al.</i> , 1990	
The Indian :	surface waters	1 - 85	1 - 78	44 - 203	110 - 411			8 × 10 <sup>6</sup>	3 - 500	2 - 21	Morley <i>et al.</i> , 1993	
	Pakistan		0.24 - 0.61								IAEA, 1987	
	Oman		8.3 - 25.5								Fowler, 1988	
The Mediterranean :	surface waters*		16	95	235			8 × 10 <sup>6</sup>	200	20	Yoon <i>et al.</i> , 1999	
	French Mediterranean		0.7 - 20.2							0.46 - 19.7	Classis, 1989	
	French Mediterranean	3.3 - 69.8	0.4 - 5.9	2.4 - 154	0.9 - 14.1				97 - 644		Fowler & Oregioni, 1976	

\* : Average concentration

Table 3. Relationships between the cadmium concentration in mussel soft-tissue and seawater\*

Region	Mussel soft-tissue concentration (ppm, dry weight)		Seawater concentration (ng/L)	
	Average	Sample Number	Average	Sample Number
Baltic	2.7	48	28	49
North Sea	1.5	79	16	11
Iceland	0.7	49		
Barents/White Seas	0.6	11		
Irish Sea	2.2	38	25	15
Western Ireland	1.4	15		
English Channel	1.4	49	15	11
Iberian Atlantic (Portugal)	0.8	46	6	6
Mediterranean	1.2	57	8	53
US Atlantic	1.8	42		
Gulf of St Lawrence	1.9	65	20	23
US Pacific	3.3	55		
Asia/Australia	1.6	37		

Correlation :  $Cd(\text{mussel in ppm, dry weight}) = 0.074Cd(\text{seawater in ng/L}) + 0.39$

\* : Data taken from Cossa (1988)

ての分析例は少ないが、インド沿岸からマレーシア沿岸、及びフィリピンではカドミウムでは $<0.01 \sim 9.85$  ppm, 銅では $8 \sim 100$  ppm, 亜鉛では $<0.1 \sim 940$  ppm, 鉛で $0.4 \sim 31$  ppm (Sivalingam and Bhaskaran, 1980; Lakshmanan and Nambisan, 1983; Prudente *et al.*, 1999) とやはり広範囲な値が報告されている。これまでの研究では、汚染地域の貝を選択的に採取して成分分析をする傾向があり、これらの濃度のばらつきは採取地域の汚染の特徴を反映しているものと思われる。一般的な表層海水中の金属濃度も Table 2 に示した。貝を採取した海域での金属濃度ではないこと、貝軟体部中の濃度が乾燥重量で表されていること等から単純な比較はできないが、海水濃度が ng/l ( $\sim$  ng/kg), 貝軟体部中が ppm (mg/kg) であることから、 $10^5 \sim 10^6$  レベルで貝軟体部に濃縮していることになる。

カドミウムのムラサキガイによる蓄積性は特に良く研究がされており、Cossa (1989) による文献レビューもある。カドミウムのムラサキガイによる蓄積は水からの直接の取り込みがほとんどで、餌由来はごく僅かである (Borchardt, 1983)。カドミウムの曝露時間が長くなると体内への蓄積が増加することが良く知られており (Cossa, 1989), また、環境水中のカドミウム濃度と体内中の濃度が平衡に達するには2ヶ

月かかるとも報告されている (Fowler and Benayoun, 1974)。ムラサキガイの大きさとカドミウムの蓄積性については議論が分かれているが、同一地域、同一季節で採取されたものについては、体サイズ (乾燥重量) とカドミウム量 (濃度ではなく総量) は比例する傾向がある: つまり、単位体重当たりの濃度変化はない。温度と塩分により蓄積性にも僅かに変化があり、高温、低塩分では蓄積性が増加するようである。ムラサキガイ生息地の海水中のカドミウム濃度と軟体部中の濃度については、Cossa (1988) の結果によれば良い相関が得られている (Table 3)。Cossa (1989) はまた、分析前のムラサキガイ試料の洗浄に対しても注意を促している。2~3日で消化管内の水分を置換することができるが、マンガン、鉄、アルミニウム、クロムは消化管にかなり蓄積されており、消化管を洗浄海水で洗浄することにより、上記金属が洗い流される可能性があるとしている。カドミウム、銅、亜鉛は消化管にはほとんど含まれておらず影響は無いようである。

重金属以外の有害物質として、有機スズ化合物の蓄積に関する研究も最近盛んに行われている。世界各地で採取されたムラサキガイ、マガキ、ミドリイガイ及びその他二枚貝類の軟体部中のモノブチルスズ化合物

**Table 4.** The Concentrations of butyltin compounds in selected bivalves collected around the world

Organism	Location	Concentration (ppb, wet weight)			References
		MBT	DBT	TBT	
<i>Mytilus edulis</i>	Pacific coast, USA, 1986 - 1987			< 5 - 1080	Short and Sharp, 1989
	Tokyo Bay, Japan, 1989	20 - 120	40 - 540	20 - 240	Higashiyama <i>et al.</i> , 1991
	Atlantic coast, USA			100 - 420	Wade <i>et al.</i> , 1988
	Atlantic coast, USA	ND - 140	10 - 580	10 - 1200	Uhler <i>et al.</i> , 1993
	Pacific coast, USA			150 - 1540	Wade <i>et al.</i> , 1988
	Pacific coast, USA	ND - 300	10 - 740	10 - 1380	Uhler <i>et al.</i> , 1993
	British Columbia, Canada, 1990	8.2 - 49	6.8 - 80	52 - 314	Stewart and Thompson, 1994 <sup>a</sup>
	Marine, USA, 1989		340 ± 50	2350 ± 430	Page <i>et al.</i> , 1995 <sup>a</sup>
Perth, Austraria, 1991			< 1 - 330	Burt and Ebell, 1995	
<i>Mytilus galloprovincialis</i>	West coast, Portugal	3.2 - 169	ND - 82	ND - 114	Quevauviller <i>et al.</i> , 1989
	Mediterranean, 1998		12 - 2450	220 - 2600	Tolosa <i>et al.</i> , 1992 <sup>a</sup>
<i>Crassostrea virginica</i>	Gulf or Mexico, 1989	< 5 - 145	< 5 - 380	< 5 - 1450	Garcia-Romero <i>et al.</i> , 1993 <sup>ab</sup>
	Gulf or Mexico, 1990	< 5 - 25	< 5 - 160	< 5 - 770	Garcia-Romero <i>et al.</i> , 1993 <sup>ab</sup>
	Gulf or Mexico, 1991	< 5 - 42	< 5 - 200	< 5 - 1160	Garcia-Romero <i>et al.</i> , 1993 <sup>ab</sup>
	Atlantic coast, USA	ND - 330	10 - 1570	10 - 4030	Uhler <i>et al.</i> , 1993
Chesapeake Bay, USA			< 10 - 5600	Espourteille <i>et al.</i> , 1993	
<i>Crassostrea gigas</i>	Coastal estuaries, UK, 1986			180 - 6350	Waite <i>et al.</i> , 1991
	Coastal estuaries, UK, 1987			280 - 3650	Waite <i>et al.</i> , 1991
	Coastal estuaries, UK, 1988			80 - 5600	Waite <i>et al.</i> , 1991
	Coastal estuaries, UK, 1989			80 - 1280	Waite <i>et al.</i> , 1991
	Chinhae Bay, Korea, 1995	19 - 119	53 - 559	250 - 1350	Shim, 1996 <sup>ab</sup>
<i>Perna viridis</i>	Hong Kong, 1989			64 - 115	Chiu <i>et al.</i> , 1991
	Malaysia, 1992			14.2 - 23.5	Tong <i>et al.</i> , 1996
	Thailand, 1994	< 3 - 45	< 2 - 66	5 - 200	Kan-atreklap <i>et al.</i> , 1997
	Thailand, 1995	< 3 - 42	< 2 - 80	3 - 680	Kan-atreklap <i>et al.</i> , 1997
	India, 1994 - 1995	< 3 - 45	< 1 - 110	< 1 - 640	Kan-atreklap <i>et al.</i> , 1998
	Philippines, 1994 - 1997	< 3 - 51	< 1 - 100	< 1 - 640	Prudente <i>et al.</i> , 1999

a : Dry weight basis, b : Expressed in Sn, ND : no data shown

(MBT), ジブチルスズ化合物 (DBT), トリブチルスズ化合物 (TBT) の濃度を Table 4 に示す。表層海水中の TBT 濃度は日本の太平洋側沿岸で 5 ~ 50ng/ℓ (Yamada, 1992) フランスの大西洋側沿岸域で 2 ~ 833 ng/ℓ (Alzieu, 1990) との報告があり, 二枚貝軟体部中の TBT 濃度は ppb (μg/kg) であるから, 10<sup>3</sup>以上のレベルで貝軟体部に濃縮していることになる。

### 移植実験

東京湾と油壺湾に移植した *M. galloprovincialis* とミドリイガイ軟体部中の蓄積金属濃度の推移を Fig. 3 に示す。濃度は 3 ~ 5 検体の平均値である。また, 東京湾と油壺湾に自生している *M. galloprovincialis* も採取し, 軟体部中の金属濃度を測定し, Fig. 3 中に星印として示した。Pb 濃度は常時, 検出限界である 1 ppm 前後の濃度であったので図に含めていない。

まず, *M. galloprovincialis* とミドリイガイの比較で顕著なことは Mn 濃度がミドリイガイで 3 倍ほど高いことである。他の 5 元素 (Pb も含め) の濃度レベルは両種間で大きな差はない。また, 東京湾に移植

した個体群では, 共に Mn 濃度が上昇し, As 濃度は反対に減少し, Ni, Cd 濃度はほぼ一定と, 同様なパターンを示している。Cu に関しては少し異なるが, 移植前 (0 週) と 8 週後で比較すると濃度は増加している。油壺湾に移植した個体群でも Mn, Cu は東京湾と同様に濃度が増加し, Cd は一定, As は減少の傾向を示している。Ni に関しては *M. galloprovincialis* で増加, ミドリイガイで減少の傾向と異なったパターンを示している。以上のことを総合すると, Mn を除き濃度レベルは両種で同じであり, 蓄積濃度の経時変化も同じようなパターンを取るのだから, 両種を補完的に指標生物として使用し濃度を比較するのは可能であろう。

自生の *M. galloprovincialis* と移植貝を比較すると油壺湾では自生貝の Cu, Mn 濃度が高く, As 濃度が移植貝よりも低い。自生貝が油壺湾海水中の金属濃度を反映しているならば, 移植貝もそのレベルに近づくように濃度変動するはずであり, 確かに移植貝中の Cu, Mn 濃度は増加し As 濃度は減少しているが自生貝レベルには達していない。カドミウムでは 2 ヶ月で環境水中濃度と体内中の濃度が平衡に達するとされて

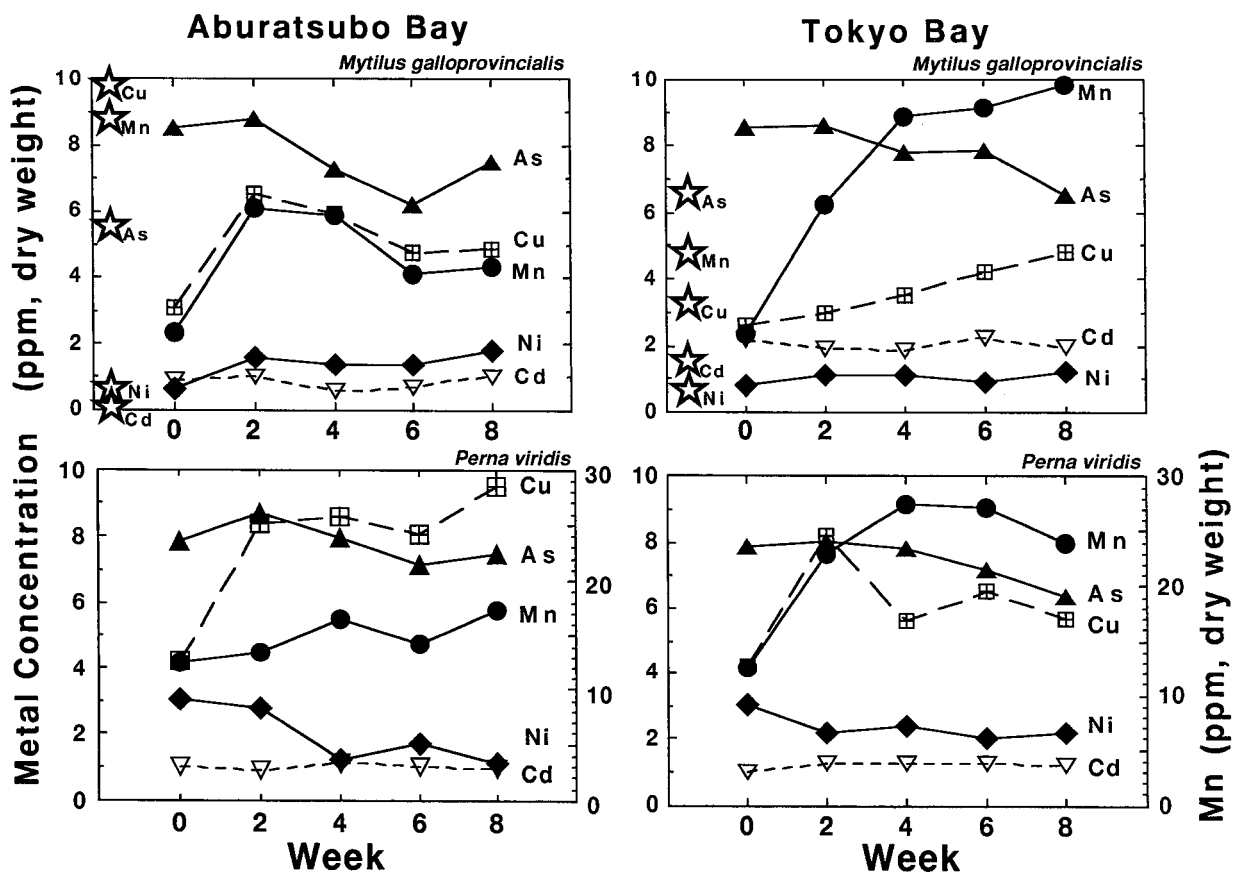


Fig. 3. Metal concentration changes in the soft-tissue of *M. galloprovincialis* and *P. viridis* transplanted into Tokyo Bay and Aburatsubo Bay. The Manganese concentration is scaled on the right Y axis. The concentrations shown in asterisk are the metal concentrations in native *M. galloprovincialis* in Tokyo Bay and Aburatsubo Bay.

Table 5. Metal concentrations (ppm, dry weight) in native oysters from Gokasho Bay and Aburatsubo Bay

	Mn	Cd	Cu	Ni	Pb	As
Gokasho Bay	38.7	1.45	56.8	1.1	2.0	10
December, 1999	±6.2	±0.16	±25	±0.08	±0.70	±0.9
Aburatsubo Bay	11.4	1.47	528	0.7		7.0
September, 1998	±3.3	±0.15	±110	±0.3		0.9

いるが (Fowler and Benayoun, 1974), その他の金属ではもう少し長いのもかもしれない。東京湾では, As に関しては油壺湾と同様に自生貝中の濃度が低く, 移植貝中の濃度は減少し, さらに 8週間で自生貝とほぼ同レベルまで減少した。Mn, Cu に関しては, やはり油壺湾と同様に自生貝中の濃度が, 移植貝よりも僅かであるが高い。

マガキに関しては, 五ヶ所湾と油壺湾の自生マガキの分析を行ったのでその結果を Table 5に示す。3個体の平均値と標準偏差を示してある。両湾を比較すると Mn と Cu で顕著な違いがある: Mn が五ヶ所湾では約3倍濃度が高く, 反対に Cu は油壺湾で約10倍濃

度が高い。これが両湾の水質の相違を反映しているのかは, 今後の分析結果で明らかにしたい。油壺湾の自生の *M. galloprovincialis* と比較すると (Fig. 3), Cu を除いてはほぼ同レベルであることから, マガキも他の2種と同様に補完的に指標生物として濃度の比較ができると思われる。ただし, マガキは Cu を特異的に濃縮することが知られており (竹内, 1994), また, 個体差が原因と思われる Cu 濃度の標準偏差が大きいため, マガキを使用した Cu の比較にはさらに検討が必要である。



## 指標生物としての適性評価

ある生物種が有害化学物質の汚染モニタリングを行う上で生物指標となる条件として次の5項目が考えられる。

- (1) 有害化学物質を容易に蓄積する。
- (2) その地域の代表的な生物である。
- (3) 周年採取可能である。
- (4) 分析に可能な生物量を採集可能である。
- (5) 広範な分布域を持つ。

これを今回調査したムラサキガイ, ミドリイガイ, マガキについてまとめると以下のようなになる

- (1) 有害化学物質を容易に蓄積する

ムラサキガイ, ミドリイガイ, マガキとも金属類を体内に蓄積し, 海水中の濃度と比較し $10^5 \sim 10^6$ レベルで濃縮している。移植実験の結果からは, 貝軟体部中の金属濃度は海水中の濃度を反映して変動していることが示唆された。また, 芳香族炭化水素, 有機塩素系農薬などの有害化学物質の蓄積についての研究例もこれまで多く報告されており(例えば Sericano *et al.*, 1990), 複雑な前処理をせず, 既存の分析技術で測定可能な濃度レベルまで濃縮していると思われる。

しかし, 移植実験からも明らかなように, 種により金属の蓄積性に差があるので, 種間で金属濃度を比較する場合には注意が必要である。

- (2) その地域の代表的な生物である

3種とも潮間帯や岩礁地帯では, 生物量も多く代表的な生物種といえる。

- (3) 周年採取可能である

これら3種の成体は周年採取可能である。ただし, ミドリイガイは産卵期が一定でなく, かつ初期成長が早いため, 年齢のそろった個体群を採取するのは難しいと思われる。また, 3種とも軟体部の重量や構成成分組成が年間で大きく変動する。重金属類については, その蓄積性が軟体部重量の変化に影響されること(Boyden and Phillips, 1981)や, 金属元素の種類によってその傾向が異なること(Thomson, 1982)が報告されているので, 試料採取時期の選択には注意を要する。

- (4) 分析に可能な生物量を採集可能である

潮間帯に生息することから試料の採集は比較的容易であり, 分析に可能な量を採集できると考えられる。また, 3種とも養殖生物であることから生産漁場が特定でき, かつ年齢が明らかな試料を購入することも可能である。但し, 潮間帯での干出が化学物質の蓄積性に影響を与える可能性が指摘されているため(Phillips, 1976), 潮間帯の天然集団と海中に垂下された養

殖集団との比較には注意を要する。

- (5) 広範な分布域を持つ

Fig. 1, Table 1で示したように世界の沿岸域に広範囲に分布し, 3種の二枚貝を併用することにより全世界の沿岸域をカバーすることが可能である。また, 生息可能塩分域も広く, 沿岸生物の指標種としては適していると考えられる。

## 謝 辞

本報をまとめるにあたり, 助言をいただいた瀬戸内海区水産研究所山田久環境保全部長に厚くお礼を申し上げます。また, 移植貝の管理をしていただいた, 瀬戸内海区水産研究所小山次朗室長(現鹿児島大学教授), 池田久美子研究員, 分析補助をしていただいた養殖研究所世古圭子女史, 南貴代女史, Fig. 1, 2を作図していただいた養殖研究所栗原眞野女史に感謝いたします。本研究は環境庁一括計上国立機関公害等試験研究費によって行った。

## 文 献

- Alzieu C., Michel P., Sanjuan J., and Averty B., 1990 : Tributyltin levels in French Mediterranean coastal waters. *Appl. Organomet. Chem.*, 4, 55 - 61 .
- Borchardt T., 1983 : Influence of food quantity on the kinetics of cadmium uptake and loss via food and sea water in *Mytilus edulis*. *Mar. Biol.*, 76, 67 - 76 .
- Boyden C. R., Phillips D. J. P., 1981 : Seasonal variation and inherent variability of trace elements in oysters and their implications for indicator studies. *Mar. Ecol. Prog. Ser.*, 5, 29 - 40 .
- Brooks R. R. and Rumsby M. G., 1965 : The biogeochemistry of trace elements uptake by some New Zealand bivalves. *Limnol. Oceanogr.*, 10, 521 - 527 .
- Bruland K. W., 1983 : Trace elements in sea-water, in "Chemical Oceanography" (ed. by Riley J. P. & Chester R.), Academic Press, London, pp.157 - 220 .
- Burt J. S. and Ebell G. F., 1995 : Organic pollutants in mussels and sediments of the coastal waters off Perth, western Australia. *Mar. Poll. Bull.*, 30, 723 - 732 .
- Chiu S. T., Ho I. M., and Wong P. S., 1991 : TBT contamination in Hong Kong waters. *Mar. Poll. Bull.*, 22, 220 .
- Claissie D., 1989 : Chemical contamination of French coasts. *Mar. Pollut. Bull.*, 20, 523 - 528 .
- Cossa D., 1987 : Le cadmium et le mercure en milieu cotier : Biogéochimie et utilisation du genre *Mytilus* comme indicateur quantitatif. These de Doctorat d'Etat es Sciences Naturelles, Univesite Pierre et Marie Curie, Paris VI, 374pp.

- Cossa D., 1988 : Cadmium in *Mytilus* spp. : Worldwide survey and relationship between seawater and mussel content. *Mar. Environ. Res.*, 26, 265 - 284 .
- Cossa D., 1989 : A review of the use of *Mytilus* spp. as quantitative indicators of cadmium and mercury contamination in coastal waters. *Oceanol. Acta*, 12, 417 - 432 .
- Espourteille F. A., Greaves J., and Huggett R. J., 1993 : Measurement of tributyltin contamination of sediments and *Crassostrea virginica* in the southern Chesapeake Bay. *Environ. Toxicol. Chem.*, 12, 305 - 314 .
- Fabris G. T., Gibbs C. F., and Brown P., 1986 : Cadmium and other heavy metals in mussels (*Mytilus edulis planulatus* L.) from Corio Bay, Victoria. *Tech. Rep. Maar. Sci. Lab.*, 49, 1 - 12 .
- Franklin A., 1987 : The concentrations of metals, organochlorine pesticides and PCB residues in marine fish and shellfish : Results from MAFF fish and shellfish monitoring programme 1977 - 1984. Aquatic Environmental Monitoring Report, No.16. MAFF Directorate of Fisheries Research, Lowestoft, 38pp.
- Fowler S. W., 1988 : Coastal baseline studies of pollutants in Bahrain, UAAE and Orman., in "Poceedings of Symposium on Regional Marine Pollution Monitoring and Research Programmes", ROPME, Kuwait, 155 - 180 .
- Fowler S. W. and Benayoun G., 1974 : Experimental studies on cadmium flux through marine biota. in "Comparative Studies of Food and Environmental Contamination", IAEA-SM 175/10, International Atomic Energy Agency, Vienne, Austria .
- Fowler S. W. and Oregioni B., 1976 : Trace metals in mussels from the N. W. Mediterranean. *Mar. Pollut. Bull.*, 7, 26 - 29 .
- Fujio Y., 1979 : Enzyme polymorphism and population structure of the Pacific oyster, *Crassostrea gigas*. *Tohoku J. Agr. Res.*, 30 (1), 32 - 42 .
- Garcia-Romero B., Wade T. L., Salata G. G., and Brooks J. M., 1993 : Butyltin concentrations in oysters from the Gulf of Mexico from 1989 to 1991. *Environ. Poll.*, 81, 103 - 111 .
- Goldberg E. D., 1975 : The Mussel Watch A first step in global marine monitoring. *Mar. Pollut. Bull.*, 6, 111 .
- Goldberg E. D., Bowen V. T., Farrington J. H., Harvey G., Martin J. H., Parker P. L., Riseborough R. W., Robertson W., Schneider E., and Gamble E., 1978 : The Mussel Watch. *Environ. Conserv.*, 5, 1 - 25 .
- Goldberg E. D., Koide M., Hodge V., Flegal A. R., and Martin J., 1983 : US mussel watch : 1977 - 1978 results on trace metals and radionuclides. *Est. Coastal Shelf Sci.*, 16 : 69 - 93 .
- Gosling E. M., 1992. Systematics and Geographic distribution of *Mytilus*. In Gosling ed. *The Mussel Mytilus : Ecology. Physiology and Culture, Developments in Aquaculture and Fisheries Science 25*, Elsevier, Amsterdam. pp.1 - 20 .
- Granby K. and Spliid N. H., 1995, Hydrocarbons and organochlorines in common mussels from the Kattegat and the belts and their relation to condition indices., *Mar. Poll. Bull.*, 30, 70 - 82 .
- Higashiyama T., Shiraishi H., Otsuki A., and Hashimoto S., 1991 : Concentrations of organotin compounds in blue mussels from the wharves of Tokyo Bay. *Mar. Poll. Bull.*, 22, 585 - 587 .
- IAEA, 1987 : Marine Pollution Baseline Survey in the Korangi - Phitti Creek, Pakistan. Final Report. ILMR, IAEA, Monaco .
- Imai T. 1971 : Aquaculture in shallow seas : progress in shallow sea culture. National Technical Information Service. PB280 493 - T .
- Imai T. and Sakai S., 1961 : Study of breeding of Japanese oyster, *Crassostrea gigas*. *Tohoku J. Agr. Res.*, 12, 125 - 171 .
- 梶原 武, 1996 : 東京湾に移住した外来種付着動物, 付着生物研究, 12(2), 25 - 26 .
- Kan-atireklap S., Tanabe S., Sanguansin J., Tabucanon M. S., and Hungspreugs M., 1997 : Contamination by butyltin compounds and organochlorine residues in green mussel (*Perna viridis*, L.) from Thailand coastal waters. *Environ. Poll.*, 97 (1 - 2), 79 - 89 .
- Kan-atireklap S., Yen N. T. H., Tanabe S. and Subramanian A. N., 1998 : Buthyltin compounds and organochlorine residues in green mussel (*Perna viridis* L.) from India. *Toxicol. Environ. Chem.*, 68, 409 - 424 .
- Lakshmanan P. T. and Nambisan P. N. K., 1983 : Seasonal variations in trace metal content in bivalve molluscs, *Villorita cyprinoides* var. *cochinensis* (Hanley) *Meretrix casta* (Chemnitz) & *Perna viridis*. (Linnaeus) *Indian J. Mar. Sci.*, 12, 100 - 103 .
- Morley N. H., Statham P. J., and Burton J. D., 1993 : Dissolved trace metals in the Southwestern Indian Ocean. *Deep-Sea Res. I*, 40, 1043 - 1062 .
- Morton B., 1992 : The evolution and success of the heteromyarian form in the Mytiloidea, in "The Mussel *Mytilus* : Ecology. Physiology and Culture, Developments in Aquaculture and Fisheries Science 25" (ed. by Gosling) Elsevier, Amsterdam, pp.21 - 52 .
- 森田昌敏, 1989 : ムラサキイガイ等の二枚貝中に含まれる微量元素及び有機汚染物質 国立公害研究所資料 F-8-'89 / NIES, 環境庁国立公害研究所, 108pp.
- Nriagu J. O. and Pacyna J. M., 1988 : Quantitative assessment of world wide contamination of air, water and soils by trace metals. *Nature*, 333, 134 - 139 .
- 沼地健一, 1994 : 人工種苗放流による水産資源の遺伝的管理とその基礎, 「カキ・ホタテガイ・アワビ 生産技術と関連研究領域」(野村 正監修), pp.65 - 95 .
- 奥谷喬司, 1989 : 決定版生物大図鑑貝類, (株)世界文化社, 東京, 399pp.

- Page D. S., Dassanayake T. M., and Gilfillan E. S., 1995 : Tissue distribution and depuration of tributyltin for field exposed *Mytilus edulis*. *Mar. Environ. Res.*, 40, 409 - 421 .
- Phillips D. J. H., 1976 : The common mussel *Mytilus edulis* as an indicator of pollution by zinc ,cadmium ,lead and copper. I. Effects of environmental variables on uptake of metals. *Mar. Biol.*, 38, 59 - 69 .
- Phillips D. J. H., 1977 : The use of biological indicator organisms to monitor trace metal pollution in marine and estuarine environments A review. *Environ. Pollut.*, 13, 281 - 317 .
- Phillips D. J. H., 1985 : Organochlorine and trace metals in green-lipped mussels *Perna viridis* from Hong Kong waters : a test of indicator ability. *Mar. Ecol. Prog. Ser.*, 14, 251 - 258 .
- Prudente M., Ichihashi H., Kan-ati-reklap S., Watanabe I., and Tanabe S., 1999 : Butyltins , organochlorines and metal levels in green mussel, *Perna viridis* L. from coastal waters of the Philippines. *Fish. Sci.*, 65, 441 - 447 .
- Quayle D. B., 1969 : Pacific oyster culture in British Columbia. *Bull. Fish. Res. Bd Canada*, 169, 192 .
- Quevauviller P., Lavigne R., Pinel R., and Astruc M., 1989 : Organotins in sediments and mussels from the Sado estuarine system ( Portugal ) *Environ. Poll.*, 57, 149 - 166 .
- Seed R. and Suchanek T. H., 1992 : Population and community ecology of *Mytilus*, in "The Mussel *Mytilus* : Ecology. Physiology and Culture, Developments in Aquaculture and Fisheries Science 25 "(ed. By Gosling ) Elsevier, Amsterdam, pp.87 - 169 .
- Segar D. A., Collins J. D., and Riley J. P., 1971 : The distribution of the major and some minor elements in marine animals. Part II, Molluscs. *J. Mar. Biol. Assoc U. K.*, 51, 131 - 136 .
- Sericano J. L., Atlas E. L., Wade T. L., and Brooks J. M., 1990 : NOAA's status and trends mussel watch program : Chlorinated pesticides and PCBs in oysters ( *Crassostrea virginica* ) and sediments from the Gulf of Mexico, 1986 - 1987. *Mar. Environ. Res.*, 29, 161 - 203 .
- Sericano J. L., Wade T. L., Jackson T. J., Brooks J. M., Tripp B. W., Farrington J. W., Mee L. D., Readmann J. W., Villeneuve J. - P., and Goldberg E. D., 1995 : Trace organic contamination in the Americas : an overview of the US national status and trends and the international ' Mussel Watch ' programmes., *Mar. Poll. Bull.*, 31, 214 - 225 .
- Shim W. J., 1996 : Contamination and bioaccumulation of tributyltin and triphenyltin compounds in the Chinhae bay system, Korea, Thesis for Master of Science, oceanogr. Depart., Seoul Nati. Univ., 90pp.
- Short J. W. and Sharp J. L., 1989 : Tributyltin in bay mussels ( *Mytilus edulis* ) of the Pacific coast of the United States. *Environ. Sci. Tech.*, 23, 740 - 743 .
- Sivalingam P. M. and Bhaskaran B., 1980 : Experimental insight of trace metal environmental pollution problems in mussel farming. *Aquacult.*, 20, 291 - 303 .
- Stenner R. D. and Nickless G., 1975 : Heavy metals in organisms of the Atlantic coast of S. W. Spain and Portugal. *Mar. Poll. Bull.*, 6, 89 - 72 .
- Stewart C. and Thompson J. A. J., 1994 : Extensive butyltin contamination in southwestern coastal British Columbia, Canada. *Mar. Poll. Bull.*, 28, 601 - 606 .
- 杉山元彦, 川原重幸, 余川幸太郎, 早瀬茂雄, 谷津明彦, 田中博之, 松山尺彦, 梅津武司, 角埜 彰, 山田 久, 高柳和史, 森田昌敏, 吉永 淳, 柴田康行, 小山次朗, 奥谷喬司, 瀬川 進, 1996 : イカ類肝臓の蓄積化学物質による全海洋環境監視計画に関する研究, 地球環境研究総合推進費平成 6 年度終了研究成果報告集, 環境庁企画調整局地球環境部環境保全対策課研究調査室, pp.334 - 347 .
- 高柳和史 2000 : 魚介類中の重金属分析のためのマイクロ波分解装置による前処理の簡易化 海洋汚染監視への貢献 , 養殖研研報, 30, 33 - 38 .
- 竹内昌昭, 1994 : 食品としての特性「カキ・ホタテガイ・アワビ 生産技術と関連研究領域」(野村 正監修), pp.235 - 248 .
- Tanabe, S., 1994 : International mussel watch in Asia - Pacific phase. *Mar. Pollut. Bull.*, 28, 518 .
- Thomson J. D., 1982 : Metal concentration changes in growing pacific oyster, *Crassostrea gigas*, cultivation field in Tasmania, Australia. *Mar. Biol.*, 67, 135 - 142 .
- Tolosa I., Merlini L., de Bertrand N., Bayona J. M., and Albaiges J., 1992 : Occurrence and fate of tributyl and triphenyltin compounds in western Mediterranean coastal enclosures. *Environ. Toxicol. Chem.*, 11, 145 - 155 .
- Tong S. L., Pang F. Y., Phang S. M., and Lai H. C., 1996 : Tributyltin distribution in the coastal environment of Peninsular Malaysia. *Environ. Poll.*, 91, 209 - 216 .
- Topping G., 1972 : Heavy metals in shellfish from Scottish waters, in " Baseline Studies of Pollutants in the Marine Environment ", NSF-IDOE Workshop, Brookhaven, NY, pp.173 - 185 .
- Uhler A. D., Durell G. S., Steinhaver W. G., and Spellacy A. M., 1993 : Tributyltin levels in bivalve mollusks from the east and west coasts of the United States : results from the 1988 - 1990 national status and trends mussel watch project. *Environ. Toxicol. Chem.*, 12, 139 - 153 .
- 梅森龍史, 堀越増興, 1991 : 東京湾西岸におけるミドリイガイの冬季死亡と生残の区域差, *La mer*, 29, 103 - 107 .
- Vakily J. M., 1989 : The biology and culture of mussels of the genus *Perna*. ICLARM studies and reviews, 17, International Center for Living Aquatic Resources Management, Manila, Philippines. 63pp.

- Wade T. L., Garcia-Romero B., and Brooks J. M., 1988 : Tributyltin contamination in bivalves from United States coastal estuaries. *Environ. Sci. Technol.*, 22, 1488 - 1493 .
- Waite M. E., Waldock M. J., Thain J. E., Smith D. J., and Milton S. M., 1991 : Reductions in TBT concentrations in UK estuaries following legislation in 1986 and 1987. *Mar. Environ. Res.* 32, 89 - 111 .
- Widdows J., Burns K. A., Menon N. R., Page D. S., and Soria S., 1990 : Measurement of physiological energetic (scope for growth) and chemical contaminants in mussels (*Arca zebra*) transplanted along a contamination gradient in Bermuda. *J. Exp. Mar. Biol. Ecol.*, 138, 99 - 117 .
- Yamada H., 1992 : Marine pollution by organotin compounds and its influence on aquatic life. *Water Rep.*, 2, 7 - 12 .
- 山口友加, 佐藤太, 秋山賢一郎, 河野恵理子, 堤史薫, 高田秀重, 2000 : ムラサキイガイを用いた沿岸海域の微量有機汚染物質のモニタリング 汚染物質の蓄積特性と東京湾への応用 , *地球科学* , 34, 41 - 57 .
- Yoon Y. Y., Martin J. M., and Cotte M. E., 1999 : Dissolved trace metals in the Western Mediterranean Sea : total concentration and fraction isolated by C18 Sep-Pak technique. *Mar. Chem.*, 66, 129 - 148 .