総 説

日本産カワウにおけるダイオキシン類汚染の現状

井関直政^{1*}・長谷川 淳²・羽山伸一³・益永茂樹¹

¹ 横浜国立大学大学院環境情報研究院 〒240-8501 横浜市保土ヶ谷区常盤台 79-7

² 愛媛大学大学院連合農学研究科 〒790-8566 松山市樽味 3-5-7

³ 日本獣医畜産大学 〒180-8602 東京都武蔵野市境南町 1-7-1

(2001年9月28日受付; 2001年12月25日受理)

キーワード: カワウ, 環境毒性学, ダイオキシン, PCB, リスクアセスメント.

日本鳥学会誌

Japanese Journal of
Ornithology

© The Ornithological Society
of Japan 2002

Naomasa Iseki^{1*}, Jun Hasegawa², Shin-ichi Hayama³ and Shigeki Masunaga¹. 2002. The current status of dioxin pollution and its intrinsic effects on Great Cormorants (*Phalacrocorax carbo*) in Japan: an overview. Jpn. J. Ornithol. 51: 37-55.

Abstract. In this paper we outline the history of toxic contaminants in wild birds in Japan. Pollution by dioxin and dioxin-like compounds has become a common issue in recent decades. As such pollution poses a considerable health problem, countermeasures and technology to reduce the impacts are important. Very few papers have so far focussed on the effects of dioxin and dioxin-like compounds on wild life in Japan. For the purposes of our research, we selected the Great Cormorant (*Phalacrocorax carbo*). This fish-eating species nests colonially, and can be regarded as an indicator species of the effects of dioxins and dioxin-like compounds. We monitored cormorant health and compared it with published information on other. The cormorant residue levels were found to be higher than among other birds. The residue of PCDD/Fs consisted mainly of 2,3,7,8-substitution, in which 1,2,3,7,8-PeCDD and 2,3,4,7,8-PeCDF were the greatest contribution to toxic equivalency (TEQ). These compounds are accumulated more in the liver than egg and muscle. Based on the half-lives of dioxin and dioxin-like compound in the body of the cormorants, a decadal change of pollutant levels of their eggs was calculated using that of the environmental. It seems likely that embryo mortality, caused by dioxins, was the main toxic effect during the 1970s, but this declined dramatically over the following decades. We conclude that the estimated embryo mortality caused by PCDD/Fs and co-PCBs pollution (27%) was so small and would not impact population status. However, studies of the other end points such as LOEL of enzyme activity and immunotoxicity are still needed. Our sample size was small and it is desirable to monitor large number of birds with un-lethal techniques.

Key words: Cormorant, Dioxin, Ecotoxicology, PCBs, Risk assessment.

¹ Graduate School of Environment and Information Sciences, Yokohama National University, 79-7 Tokiwadai, Hodogaya-ku, Yokohama 240-8501, Japan.

² Department of Environment Conservation, Ehime University, Tarumi 3-5-7, Matsuyama 790-8566, Japan.

³ Division of Wild Animal Medicine, Nippon Veterinary & Animal Science University, 1-7-1 Kyonan-cho, Musashino, Tokyo 180-8602, Japan.

はじめに

* E-mail: nisk@k3.dion.ne.jp

現・国立環境研究所

〒305-8506 つくば市小野川 16-2

今日の産業は元より私たちの生活的文化は、化学物質の恩恵なくしては成り立たないと言っても過言ではない。一方、わが国ではカドミウム（イ

タイタイ病 (1955年) や水銀 (水俣病 1956年) の公害に代表される重金属汚染やPCB (カネミ油症 1968年) といった化学物質によって世界でも有数の不幸を経験した。

こうした化学物質による被害は、決してヒトだけではない。R.カーソン (1962年) は「沈黙の春」の中で、化学物質による野生生物を含んだ生態学的影響、さらにはヒト社会への警鐘をすでに鳴らしていた。野生鳥類に関しては、1970年代から80年代にかけて多くの調査が行われ、北米のセグロカモメ *Larus argentatus* (Hickey & Anderson 1968) やカッシュクベリカン *Pelecanus occidentalis* (Blus 1972), ミミヒメウ *Phalacrocorax auritus* (Gress et al. 1973), アジサシ *Sterna hirundo* (Custer et al. 1983), ミサゴ *Pandion haliaetus* (Spitzer et al. 1978), ハクトウワシ *Haliaeetus leucocephalus* (Grier 1982) などで個体数の減少と卵殻厚の薄化もしくは胚毒性による繁殖障害とDDE (DDTの代謝産物) やPCBの関連が示唆されてきた。こうした鳥種は、いずれも魚類を多食する比較的大型の水禽や猛禽で、化学物質の水圏生態系への汚染および影響の結果である。

従来、有害性が懸念される化学物質の特徴は、生産・使用量が大きい、使用の用途ならびに形態において環境中へ放出されやすい、残留性が高い、生物濃縮性が大きい、毒性が強いなどの特質があげられる。

こうした問題の背景から、当時多用されてきたアルドリノおよびディルドリン、DDTといった有機塩素系農薬やPCBの製造・使用は、1970年代に世界の先進諸国で禁止されるに至った (ただし途上国でのマラリア対策のためのDDTの製造・使用は認可、2001年)。わが国でもDDTが1971年、PCBが1972年に禁止され、その後、環境庁によってPCBや有機塩素系農薬の環境中残留濃度がモニタリングされてきた。その中で1978年からムクドリ *Sturnus cineraceus* が、1979年からウミネコ *Larus crassirostris* が生物指標として継続して調査されているが、非汚染地域の個体の胸筋のみの分析や総濃度での報告というあり方は、あくまでも汚染指標であって、野生個体そのものへの影響評価を目的にされているわけではなかった。今日では、先述した特質、
、
に長距離移動性を加えた定義に従って、国際的に残留性有機汚染物質 (POPs) 条約 (2001年) が採択され、PCBやDDT、PCDDs、PCDFsなど12物質を対象に汚染レベルの減少に向けた対策が行われつつある。

ダイオキシン類であるPCDDsやPCDFsの分析が報告されるようになったのは、分析技術が向上した1980年以降であり、ウ類では、五大湖のミミヒメウ (Stalling et al. 1985, Yamashita et al. 1993) やオランダ・ライン川流域のカワウ *Phalacrocorax carbo* (Van den Berg et al. 1987) で肝臓中濃度が初めて報告された。

多くの有機塩素系農薬が禁止されてからは、鳥類の個体数は回復したが、新たに奇形や浮腫などが観察され、ダイオキシン類との関連が示唆されている (Gilbertson et al. 1991)。さらに最近では、卵や胚肝細胞への投与による感受性の種間比較や、フィールドでの免疫能調査など多角的なアプローチが試みられている (Janz et al. 1996, Kennedy et al. 1996, Grasman et al. 1996)。

日本産野生鳥類では、カワウ (Guruge et al. 1997), ユリカモメ *Larus ridibundus* やウミネコ (Yamashita et al. 1992), オオワシ *Haliaeetus pelagicus* やハシブトウミガラス *Uria lomvia* (岩田ら 1997), ハシボソガラス *Corvus corone* やドバト *Columba livia* (Hoshi et al. 1998) など数種の鳥類において有機塩素系農薬やPCBの化学物質が分析されている。しかしながら、ダイオキシン類 (PCDDs, PCDFs, Co-PCBs) の同時分析の報告例は、井関ら (1999年) や長谷川ら (1999年) による最初の報告以降、同時期に開始された環境庁調査以外にはほとんどない。

本稿は、現在もっとも汚染が懸念されているダイオキシン類汚染のカワウへの汚染実態について、著者らが行ってきた研究例を中心にまとめた。最初にダイオキシン類についての基本的な知見をまとめ、次に東京産カワウにおけるダイオキシン類の蓄積レベルとその特性を述べ、実測値をふまえた現段階での影響を定量的に考察した。また今後の課題として、現在進行中である研究内容の焦点を最後に紹介する。

ダイオキシン類の物性ならびに毒性

1) 物理化学的特徴と発生源

ダイオキシンとは通称であり、正しくはポリ塩化ジベンゾ - パラ - ジオキシン (PCDDs, polychlorinated dibenzo-*p*-dioxins) を指す。しかし物理化学的性質や毒性が比較的似ているポリ塩化ジベンゾフラン (PCDFs, polychlorinated dibenzofurans) および平面構造をとるポリ塩化ビフェニール (Co-PCBs, coplanar polychlorinated biphenyls) を含めて

ダイオキシン類と総称されるようになっている。

PCDDsおよびPCDFs（以下：PCDD/Fs）は2つのベンゼン環を酸素1つないしは2つで結合した平面構造をとり、2つのベンゼン環には1～8の塩素が置換している。これら塩素の置換する部位や数によって、PCDD/Fsの中でも物理化学的特性や毒性が異なる。PCDDsでは75種、PCDFsでは135種のコンジェナー（Congener）が理論上存在する（コンジェナーについては、同族異性体と呼ばれる。異性体と表現される場合があるが、ここでは化学構造の違いを越えて一連の化合物を指すので、異性体は後述するように不適当である）。このうち塩素置換数で分類したものを同族体（Homologue）、塩素置換数が同じでその位置が異なるものを異性体（Isomer）と呼ぶ。また、2,3,7,8のすべての部位に塩素が置換したものを2,3,7,8-置換体（以下：

2,3,7,8-PCDD/Fs）と総称され、残留性および毒性が最も高いとされる。これら2,3,7,8-PCDD/Fsは17種あり、PCDDsおよびPCDFsはそれぞれ7、10種が存在する（図1）。

PCBsは、ビフェニール基に塩素が1～10個置換した化合物の総称であり、理論的に209個のコンジェナー、10種の同族体が存在する。このうちPCB製品には約100種類のコンジェナーが含まれている。Co-PCBsは、PCBのビフェニール基のうちオルト位に置換する塩素数により3種のグループに分けられている。オルト位の塩素の有無、もしくは数によってビフェニールの立体構造が異なり、オルト位に1つも塩素が置換していないノンオルト（non-ortho）PCBsは最も平面構造をとり易い。ついでオルト位に塩素を1つ置換したものをモノオルト（mono-ortho）PCBs、2つ置換したものをジオルト（di-ortho）PCBsと分類される。オルト位の塩素数が増えるにしたがって、ビフェニールにある2つのベンゼン環の位置はねじれた構造をとるようになる。これらnon-, mono-, di-ortho PCBsは通常コプラナーPCBs（Co-PCBs）と呼ばれるが、本稿でのCo-PCBsの定義は、WHOからダイオキシン様の毒性があると対象とされた12種のPCBs（non-ortho PCBs, mono-ortho PCBs）を指す。

PCDD/FsおよびPCBsの物性は、低塩素化物のものほど蒸気圧が高く気化しやすい、また水溶解度が大いことから水へも溶けやすいという性質をもつ。逆に高塩素化物のものは、 $\log K_{ow}$ （オクタノール-水分配係数）の値が大いなど脂溶性が高く、このような特徴によって環境ならびに生態系での挙動が異なる。また非常に難分解性であ

図1．ダイオキシン類の化学構造

Figure 1. Molecular structures of PCDD, PCDF and PCB.

図2．環境中におけるダイオキシン類の発生源と挙動

Figure 2. Source and fate of dioxin in the environment.

るため生態系の中では、食物連鎖を通して高次栄養段階の生物へ生物濃縮される(図2)。

PCDD/Fsの発生源には、農薬やPCBの不純物、また燃焼や焼却過程、パルプ漂白、塩素製造工場やアルミニウム精錬工場などの化学工場からの生成・放出が挙げられる。また日本におけるPCBの総生産量(1954~1972)は約6万トンとされ、PCB製品以外にも燃焼などからも生成されている。

2) 毒性作用

ダイオキシン類の毒性としては、致死毒性、発癌性、催奇形性、生殖毒性、内分泌攪乱性、免疫毒性などが動物実験で確認されている(環境庁1997a)。これらの毒性は動物の種類や曝露時期によって大きく異なる。特に、胎児・新生児期は成体よりも感受性が高く影響を受けやすい。

ダイオキシン類の毒性メカニズムは、一般に、細胞内にあるAh受容体(Aryl hydrocarbon receptor)というタンパク質を介して発現するものと理解されている。Ah受容体は特に肝臓に多く存在し、ダイオキシン類や多環芳香族炭化水素のような平面構造を有する化合物と高い親和性を示す。ダイオキシン類がAh受容体と結合すると、さらにいくつかのタンパク質と共同して、複数の遺伝子発現を変化させることが明らかにされており、その結果、多様な毒性影響が引き起こされると考えられている。また、Ah受容体を介する代表的な作用として、肝臓の薬物代謝酵素の誘導が挙げられる。特に、チトクロームP450は、ダイオキシン類によって特異的かつ鋭敏に誘導される酵素として知られ、この酵素誘導能が曝露や感受性の指標として用い

られることも多い(図3)。

ダイオキシン類の毒性は各コンジェナーによって異なるので、それらは最も毒性の高い2,3,7,8-TCDDを1とした、毒性等価係数(TEF: Toxic Equivalency Factor)を用いて相対的に表される(表1)。ダイオキシン類は環境中では通常、様々なコンジェナーの混合物として存在するので、実際のダイオキシン類による毒性の強さは、各コンジェナーの量に各々のTEFを乗じた値を総和した毒性等価量(TEQ: Toxic Equivalent)として表すことができる。現時点では、WHOにより再評価された

表1. 毒性等価係数(TEF)

Table 1. Toxic equivalency factors.

Congener (コンジェナー)	WHO-TEF	
	(Human/mammal) (ヒト・哺乳類)	(Birds) (鳥類)
<i>PCDDs</i>		
2378-T(tetra)CDD	1	1
12378-Pe(penta)CDD	1	1
123478-Hx(hexa)CDD	0.1	0.05
123678-HxCDD	0.1	0.01
123789-HxCDD	0.1	0.1
1234678-Hp(hepta)CDD	0.01	0.001
O(octa)CDD	0.0001	—
<i>PCDFs</i>		
2378-TCDF	0.1	1
12378-PeCDF	0.05	0.1
23478-PeCDF	0.5	1
123478-HxCDF	0.1	0.1
123678-HxCDF	0.1	0.1
234678-HxCDF	0.1	0.1
123789-HxCDF	0.1	0.1
1234678-HpCDF	0.01	0.01
1234789-HpCDF	0.01	0.01
OCDF	0.0001	0.0001
<i>Co-PCBs</i>		
344'5-TCB (CB81)*	0.0001	0.1
33'44'-TCB (CB77)*	0.0001	0.05
33'44'5-PeCB (CB126)*	0.1	0.1
33'44'55'-HxCB (CB169)*	0.01	0.001
233'44'-PeCB (CB105)	0.0001	0.0001
2344'5-PeCB (CB114)	0.0005	0.0001
23'44'5-PeCB (CB118)	0.0001	0.00001
2'344'5-PeCB (CB123)	0.0001	0.00001
233'44'5-HxCB (CB156)	0.0005	0.0001
233'44'5'-HxCB (CB157)	0.0005	0.0001
23'44'55'-HxCB (CB167)	0.00001	0.00001
233'44'55'-HpCB (CB189)	0.0001	0.00001

*はnon-ortho PCBsを示す。

カッコ内のCBの後に続く数字は、IUPAC Noを表す。

* Denotes non-ortho PCBs.

The CB followed by the number in parentheses represents the IUPAC number.

図3. ダイオキシン類による酵素誘導機構

Figure 3. A mechanism of enzyme induction by dioxin.

TEF (Van den Berg *et al.* 1998) をもとに TEQ を算出することが国際的に支持されている。

この WHO-TEF では、これまでに提唱された TEF と異なり、哺乳類・魚類・鳥類別に設定され、動物種による感受性の差を考慮したものになっている。birds-TEF の設定にあたっては、ニワトリを中心に、マガモ *Anas platyrhynchos*・シチメンチョウ *Meleagris gallopavo*・キジ *Phasianus colchicus*・セグロカモメ・アジサシ・ミミヒメウなどの鳥類を用い、卵及び肝細胞への投与を通して胚致死と肝酵素誘導能をエンドポイントにした結果が反映されている。birds-TEF からわかるように、鳥類は哺乳類よりも感受性が高いとされているが、鳥類の中でもニワトリは特異的に感受性が高く、この結果が大きく寄与していることに注意する必要がある。例えば、ニワトリ胚の肝酵素誘導能の感受性は、セグロカモメ胚よりも 5000 倍以上高い (Kennedy *et al.* 1996)。このため、野生鳥類の毒性評価に birds-TEF を用いるのは必ずしも適切ではないとの指摘もある (Sanderson & Van den Berg 1999)。

カワウにおけるダイオキシン類の蓄積と代謝

1) 残留レベルと生物濃縮性

分析されたカワウのダイオキシン類濃度を他の日本産鳥類の報告値と比較する。報告例によっては、分析部位や測定対象物質に違いがあるため、出来るだけ同じ組織や一連の化学物質で比較すべきである。既報で比較可能な日本産鳥類の分析値を分析部位、鳥種、年齢、採取地域、測定物質ごとに分け、表 2 にまとめた。東京産カワウ (成鳥) の肝臓中濃度 ($n=6$) は、PCDD/Fs (平均 41,000 pg/g fat: 脂肪重量あたり) および non-ortho PCBs (平均 260 ng/g fat) とともに他鳥種に比べて高濃度である。また、すべての鳥類肝臓中 PCDD/Fs のコンジェナーは 2,3,7,8-置換体が優占的に残留しており、カワウではその割合は肝臓と卵でそれぞれ 97%、90% であった。中でも 1,2,3,7,8-PeCDD、1,2,3,6,7,8-HxCDD および 2,3,4,7,8-PeCDF などが高濃度でみられている (井関ら 2000, 2001)。カワウやトビでは筋肉分析よりも肝臓分析で高濃度であり、地域による目立った濃度差はみられない。また、成鳥>幼鳥>雛の順に濃度が高い傾向がみられる。鳥類の残留濃度および汚染パターンは、生息環境の汚染を反映すると共に、食性や代謝力の種間差に大きく依存することが考えられるが、

特にドバトやウコッケイ *Gallus gallus*、キジと比較して、魚を含む雑食性や完全魚食性の鳥種に高濃度がみられることは、汚染経路として魚類が大きく寄与していることを示唆するものであろう。

カワウの餌でもある 3 種の魚類 (スズキ *Lateolabrax japonicus*、コノシロ *Konosirus punctatus*、アナゴ *Conger myriaster*) の全身の PCDD/Fs と Co-PCBs 濃度は、それぞれ 210~710 pg/g fat、54~470 ng/g fat であり、魚種によって差が見られた。これらの濃度は、東京都によって調査された魚類中濃度 (1990~99 年) と大きな差はみられなかった (井関ら 2000)。

これらのコンジェナーパターンを環境媒体である大気や底質、また魚類と比較した結果、カワウは魚類の蓄積パターンと類似しており、カワウ肝臓中濃度は魚類中濃度を反映したものであると考えられた。しかしながら、これらの各コンジェナーの BMF (生物蓄積係数 = カワウ濃度 / 魚類濃度) は、それぞれ大きく異なった。特に PCDDs では、1,2,3,6,7,8-HxCDD (300) > 1,2,3,4,7,8-HxCDD (200) > 1,2,3,7,8-PeCDD (140)、また PCDFs では 2,3,4,7,8-PeCDF (340) > 1,2,3,6,7,8-HxCDF (290)、Co-PCBs では、CB (IUPAC No.) 189 (3100) > CB169 (420) などが高い値を示した。一方、2,3,7,8-TCDF (1.9) や CB77 (6.9) は小さい値となった。このようにコンジェナーによって BMF が異なることから、カワウ独自の蓄積や代謝が関係していることが示唆された。 (Iseki *et al.* 2001a)

琵琶湖産 ($n=9$) と東京産 ($n=8$) のカワウ成鳥の肝臓中総 PCB 分析の結果では、それぞれ平均 155 $\mu\text{g/g fat}$ 、972 $\mu\text{g/g fat}$ と東京産カワウで高い蓄積が報告されている (Guruge *et al.* 1997)。その中で分析値のある Co-PCBs で比較すると、東京産の方が CB105 (5.7 倍)、CB118 (7.4 倍)、CB156 (5.4 倍)、CB77 (6.5 倍)、CB126 (2.5 倍)、CB169 (5.4 倍) といずれも高い濃度を示している (Guruge *et al.* 2000)。また、同じライフステージである卵に着目し、カワウの東京産卵と青森産卵を用いたダイオキシン類濃度の地域比較の結果、東京産は青森産卵より特に PCDFs で 2.5 倍、Co-PCBs で 3.3 倍高濃度であった (井関ら 2001)。これらの結果から東京産カワウの生息環境は他地域よりも汚染レベルが高いことが明らかとなった。

2) カワウにおけるダイオキシン類の代謝と半減期

Guruge *et al.* (2000) は、生体内で最も代謝され

表2. 日本産鳥類におけるPCDDs, PCDFsおよび Σ non-ortho PCBs濃度
Table 2. 2,3,7,8-substituted PCDDs, PCDFs and non-ortho PCBs concentrations in the birds reported from Japan.

Species	Age	n	Fat (%)	PCDD/Fs (pg/g fat)		Non-ortho PCBs (ng/g fat)				Location Year	Ref.
				Total PCDDs	Total PCDFs	CB81 ⁽¹⁾	CB77	CB126	CB169		
Liver analysis (肝臓分析)											
カワウ <i>Phalacrocorax carbo</i>	C	1	2.7	6000	3900	15	17	32	7	Tokyo 1998	[1]
	C	3	3.5	N.A.	N.A.	N.A.	2,3 ²⁾ (1.4-2.9)	3 (1.1-6.6)	1 (0.20-1.3)	Tokyo 1993-94	[2]
	C	5	3.4	N.A.	N.A.	N.A.	17 (2.3-59)	23 (6.2-56)	6 (1.4-18)	Tokyo 1998	[2]
	J	9	3.5	16000 (1200-96000)	14000 (1500-74000)	11 (15-26)	9 (19-29)	51 (4.3-150)	23 (1.1-100)	Tokyo* 1997-98	[1]
	J	5	3.6	N.A.	N.A.	N.A.	13 (1.9-23)	92 (4.4-190)	25 (11-47)	Tokyo 1993-94	[2]
	A	6	4.4	19000 (2400-41000)	22000 (3300-38000)	17 (3.4-42)	50 (10-91)	130 (20-300)	61 (8.9-120)	Tokyo** 1997-99	[1]
ウコッケイ <i>Gallus gallus</i> キジ <i>Phasianus colchicus</i>	A	10	4.4	N.A.	N.A.	N.A.	9.8 (4.8-20)	140 (23-390)	30 (3.4-91)	Shiga 1993	[2]
	A	5	3.6	N.A.	N.A.	N.A.	78 (31-160)	420 (86-1100)	190 (44-580)	Tokyo 1993-94	[2]
アオサギ <i>Ardea cinerea</i>	A	1	8.7	55	25	0.010	0.50	0.10	0.040	Kanagawa 1998	[3]
	A	1	2.9	160	330	0.20	1.0	1.1	0.3	Chiba 1997	[3]
	J	1	3.3	29000	2100	8.2	42	19	3.3	Chiba 1998	[3]
	A	1	5.0	8400	2000	99	420	190	6.9	Chiba 1997	[3]

表2. つづき
Table 2. Continue.,

Species	Age	n	Fat (%)	PCDD/Fs (pg/g fat)		Non-ortho PCBs (ng/g fat)				Location Year	Ref.
				Total PCDDs	Total PCDFs	CB81 ¹⁾	CB77	CB126	CB169		
カルガモ <i>Anas poecilorhyncha</i>	A	2	2.7	2100 (1100-3100)	2300 (2000-2500)	4.0 (2.8-5.1)	13 (5.1-21)	9.9 (1.7-18)	1.3 (0.50-21)	Chiba 1997-98	[3]
チュウシヤクシギ <i>Numenius phaeopus</i>	A	1	8.4	480	1700	0.30	1.6	0.40	0.10	Tokyo 1998	[3]
ハシボソミズナギドリ <i>Puffinus tenuirostris</i>	A	1	4.7	49	42	0.90	1.6	5.7	9.3	Chiba 1998	[3]
アマサギ <i>Bubulcus ibis</i>	A	1	9.5	2800	2200	9.0	5.7	47	20	Tokyo 1999	[3]
ダイサギ <i>Ardea alba</i>	A	1	4.2	4600	4700	11	9.3	46	17	Kanagawa 1999	[3]
ハシブトガラス <i>Corvus macrorhynchos</i>	A	1	4.2	1400	860	0.030	0.50	1.2	2.1	Chiba 1998	[3]
ユリカモメ <i>Larus ridibundus</i>	A	1	4.0	2900	8000	56	280	810	110	Chiba 1998	[3]
ウミネコ <i>Larus crassirostris</i>	A	1	3.3	7700	7600	76	310	1200	610	Chiba 1998	[3]
トビ <i>Milvus lineatus</i>	A	3	6.8	3300 (340-7300)	1500 (580-2500)	6.7 (0.80-12)	5.6 (2.5-7.4)	25 (5.3-45)	3.2 (2.0-3.8)	Tokyo 1998-99	[3]
チョウゲンボウ <i>Falco tinnunculus</i>	A	1	5.1	1100	640	0.70	0.70	2.2	1.4	Chiba 1999	[3]
アオバズク <i>Ninox scutulata</i>	A	1	11	4900	960	0.044	0.18	0.53	0.62	Fukui 1998	[9]
クマタカ <i>Spizaetus nipalensis</i>	A	1	8.8	360000	620000	490	280	7800	8200	Tochigi 1999	[3]
	A	1	8.6	92	190	0.060	0.24	0.43	0.52	Tochigi 1998	[9]
オオタカ <i>Accipiter gentilis</i>	A	1	5.9	9800	9500	0.34	0.40	1.4	0.60	Tokyo 1999	[3]
	A	1	11	840	640	0.14	0.37	0.99	1.4	Tochigi 1998	[9]
フクロウ <i>Sirix uralensis</i>	A	1	2.8	640	3000	0.90	15	3.1	2.9	Chiba 1996	[3]

表2・つづき
Table 2. Continue.,

Species	Age	n	Fat (%)	PCDD/Fs (pg/g fat)		Non-ortho PCBs (ng/g fat)			Location Year	Ref.
				Total PCDDs	Total PCDFs	CB81 ¹⁾	CB77	CB126		
Egg analysis (卵分析) カワウ <i>Phalacrocorax carbo</i>	A	2	11 (8.3-13)	2500 (740-4200)	3700 (2200-5200)	0.12 (0.10-0.13)	0.058 (0.034-0.082)	4.0 (3.1-4.8)	Tochigi 1998	[9]
		10	6.7	1400 (280-4400)	360 (130-820)	1.9 (0.56-3.5)	4.6 (0.92-16)	6.6 (1.9-14)	Aomori 1998	[4]
		9	6.0	1100 (630-2000)	870 (440-1500)	5.4 (2.2-14)	12 (2.4-3.8)	13 (3.4-41)	Tokyo 1998	[4]
		50	4.8 (2.2-6.2)	910 (310-2300)	730 (340-2500)	8.1 (3.1-52)	6.0 (2.3-25)	21 (9.0-90)	Chiba 2000	[11]
		5	4.8	N.A.	N.A.	N.A.	16 (5.6-32)	38 (23-69)	Tokyo 1998	[2]
ウミネコ										
<i>Larus crassirostris</i>		10		28 (10-85)	25 (13-36)	0.28 (0.15-0.43)	1.5 (0.78-2.8)	2.6 (1.2-3.5)	Hokkaido 1998	[5]
Muscle analysis (筋肉分析)										
ドバト <i>Columba livia</i>	A	pool	2.5	120	32	0.084	0.24	0.091	Tokyo 1997	[6]
	A	pool	2.7	48	14	0.024	0.052	0.011	Ehime 1997	[6]
	A	1	1.0	510	150	0.020	0.20	0.030	Chiba 1997	[3]
ハシボソガラス										
<i>Corvus corone</i>	A	4	2.8 (1.9-4.2)	160 (60-220)	52 (28-93)	0.043 (0.011-0.076)	0.13 (0.063-0.16)	0.036 (0.031-0.051)	Ehime 1997-98	[6]
コサギ										
<i>Egretta garzetta</i>	A	2	1.1 (0.9-1.2)	2700 (1900-3500)	3000 (2200-3900)	15 (3.0-26)	9.1 (3.2-15)	97 (41-154)	Saitama 1996	[6]

表2. つづき

Table 2. Continue.,

Species	Age	n	Fat (%)	PCDD/Fs (pg/g fat)		Non-ortho PCBs (ng/g fat)			Location Year	Ref.
				Total PCDDs	Total PCDFs	CB81 ¹⁾	CB77	CB126		
アオサギ <i>Ardea cinerea</i>	A	1	3.8	3100	300	8.0	51	6.1	Osaka 1998	[6]
	A	4	3.5 (2.4-4.8)	1400 (450-3200)	390 (120-620)	4.9 (0.38-11)	9.0 (3.1-19)	6.4 (2.0-13)	Ehime 1997-98	[6]
	A	4		63 (50-90)	74 (40-120)	0.070 (0.0061-0.12)	1.6 (0.99-2.1)	0.24 (0.094-0.31)	Shimane 1994-95	[7]
Muscle analysis (筋肉分析)										
カワウ <i>Phalacrocorax carbo</i>	C	6	2.8 (1.9-4.4)	330 (150-630)	210 (110-470)	1.9 (0.61-3.5)	0.8 (0.35-1.9)	2.4 (0.81-7.4)	Shiga 1998	[10]
	J	7	4.3 (3.7-5.5)	2200 (970-6300)	700 (310-1000)	2.2 (0.80-4.6)	4.7 (1.4-10)	11 (3.1-33)	Aichi 1999	[10]
	J	2	5.4 (4.8-5.9)	760 (730-780)	800 (630-970)	1.5 (1.4-1.6)	3.5 (2.7-4.3)	6.5 (5.5-7.5)	Kanagawa 1999	[10]
	J	2	4.0 (3.8-4.2)	870 (530-1200)	450 (270-630)	1.8 (1.1-2.5)	2.6 (2.0-3.1)	6.6 (6.4-6.8)	Tochigi 1999	[10]
	J	30	2.7 (1.7-3.9)	68 (11-280)	53 (29-103)	1.4 (0.33-4.6)	0.60 (0.019-2.3)	1.0 (0.44-3.4)	Chiba 2000	[11]
	A	1	2.4	1200	920	3.5	1.4	9.1	Osaka 1998	[6]
	A	5		380 (120-750)	190 (48-370)	0.69 (0.10-1.6)	1.5 (0.47-1.6)	2.0 (0.66-4.1)	Shimane 1994-95	[7]
	A	8	4.3 (2.9-7.2)	1400 (230-3100)	540 (120-1100)	1.1 (0.24-2.1)	3.9 (1.1-12)	12 (2.6-32)	Aichi 1999	[10]
キンクロハジロ <i>Aythya fuligula</i>	A	8	4.4 (3.0-5.5)	960 (400-1700)	610 (330-910)	3.0 (1.1-5.7)	4.0 (1.4-9.4)	17 (7.6-32)	Shiga 1998	[10]

表2. つづき
Table 2. Continue.,

Species	Age	n	Fat (%)	PCDD/Fs (pg/g fat)		Non-ortho PCBs (ng/g fat)			Location Year	Ref.
				Total PCDDs	Total PCDFs	CB81 ¹⁾	CB77	CB126		
ウミウ <i>Phalacrocorax capillatus</i>	A	11	4.1 (3.5-5.5)	1000 (460-2000)	1100 (550-2200)	4.9 (1.2-9.7)	9.5 (2.1-20)	24 (4.0-46)	11 (2.0-31)	[10]
	A	5	4.6 (3.6-7.6)	1400 (650-2300)	1300 (710-2000)	6.8 (1.2-13)	6.3 (4.9-8.4)	22 (12-36)	11 (3.2-18)	[10]
	A	1	4.58	650	360	1.5	1.8	3.8	0.79	[10]
コリカモメ <i>Larus ridibundus</i>	A	2	5.7 (5.3-6.1)	150 (110-190)	210 (130-290)	0.60 (0.6-0.61)	0.45 (0.44-0.46)	4.6 (4.2-5.0)	1.6 (1.5-1.7)	[6]
	A	10	4.3	N.A.	N.A.	N.A.	3.5	4.0	1.0	[8]
ウミネコ <i>Larus crassirostris</i>	A	10	5.2	N.A.	N.A.	N.A.	17	8.2	1.8	[8]
	A	5		38 (14-76)	38 (18-69)	0.56 (0.19-0.85)	1.5 (0.55-2.2)	5.5 (2.0-8.0)	1.7 (0.68-2.5)	[5]
	A	3	4.4 (3.9-4.7)	300 (180-450)	220 (130-390)	1.9 (0.64-4.3)	13 (4.5-28)	14 (4.3-33)	3.8 (1.4-8.4)	[6]
	A	1	4.1	310	210	4.7	5.8	10	2.9	[6]
オオセグロカモメ <i>Larus schistisagus</i>	A	3	6.7 (5.7-8.0)	98 (88-110)	99 (57-120)	0.44 (0.36-0.48)	0.63 (0.50-0.65)	5.1 (3.4-7.2)	2.0 (1.1-3.4)	[6]
ミサゴ <i>Pandion haliaetus</i>	A	1	5.6	400	420	9.6	47	11	9.5	[6]
	A	1	5.0	210	120	6.0	11	5.5	7.3	[6]

表2. つづき
Table 2. Continue.,

Species	Age	n	Fat (%)	PCDD/Fs (pg/g fat)		Non-ortho PCBs (ng/g fat)				Location Year	Ref.
				Total PCDDs	Total PCDFs	CB81 ¹⁾	CB77	CB126	CB169		
トビ <i>Milvus migrans</i>	C	1	2.1	170	42	0.43	0.25	3.2	0.76	Hokkaido 1999	[10]
	J	3	3.8 (3.3-4.3)	190 (15-330)	40 (20-71)	0.084 (0.060-0.11)	0.29 (0.22-0.35)	0.35 (0.31-0.37)	0.13 (0.074-0.19)	Hokkaido 1999	[10]
	SA	1	6.9	400	150	0.33	0.24	1.5	0.64	Tokyo 1999	[10]
	A	14	7.0 (1.2-12)	720 (110-5200)	290 (40-1200)	1.4 (0.066-4.8)	0.62 (0.16-1.6)	4.2 (0.50-16)	2.0 (0.26-12)	Tokyo 1999	[10]
	A	3	7.1 (4.3-10)	100 (84-130)	46 (32-63)	0.10 (0.087-0.13)	0.098 (0.065-0.14)	0.79 (0.48-1.2)	0.28 (0.20-0.44)	Hokkaido 1999	[10]
	A	1	3.0	1400	300	1.1	1.0	5.0	1.8	Miyagi 1998	[9]
	A	5	10	450 (34-1300)	380 (21-1600)	3.1 (0.067-11)	4.0 (0.028-14)	22 (0.28-94)	12 (0.12-54)	Kanagawa 1998	[9]
	A	2	5.1	170 (150-180)	120 (81-150)	0.75 (0.52-0.85)	0.84 (0.52-0.97)	3.4 (3.3-3.4)	1.0 (0.98-1.1)	Ehime 1998	[9]
	A	4	6.9 (4.4-9.3)	330 (230-510)	250 (230-270)	3.1 (0.48-6.1)	4.6 (0.60-11)	3.2 (2.1-4.7)	0.86 (0.55-1.2)	Tokyo 1998	[6]
	A	4	5.2 (4.5-6.0)	180 (100-380)	120 (70-180)	2.6 (0.69-3.5)	7.6 (1.8-11)	4.9 (1.4-7.5)	4.0 (0.42-8.3)	Osaka 1998	[6]
ハヤブサ <i>Falco peregrinus</i> クマタカ <i>Spizaetus nipalensis</i>	A	4	5.8 (5.1-7.0)	150 (110-200)	140 (110-220)	2.2 (0.88-4.7)	6.2 (0.55-12)	5.8 (3.0-8.4)	2.6 (1.0-6.1)	Ehime 1997	[6]
	A	1	1.8	23000	12000	21	59	110	150	Fukui 1998	[6]
	A	2	0.90 (0.80-1.0)	14000 (7900-22000)	14000 (13000-15000)	19 (5.2-32)	14 (2.4-20)	130 (81-170)	130 (110-150)	Fukui 1997	[6]

表2. つづき
Table 2. Continue.,

Species	Age	n	Fat (%)	PCDD/Fs (pg/g fat)		Non-ortho PCBs (ng/g fat)			Location Year	Ref.
				Total PCDDs	Total PCDFs	CB81 ¹⁾	CB77	CB126		
オオタカ <i>Accipiter gentilis</i>	C	3	2.2 (0.90-3.1)	1800 (120-5200)	970 (120-2700)	0.35 (0.071-0.83)	0.51 (0.17-1.1)	1.9 (0.24-4.9)	Tochigi 1997-98	[6]
	C	1	2.6	380	360	0.18	0.31	0.93	Saitama 1997	[6]
	J	4	2.1 (0.9-5.4)	3700 (620-6200)	2400 (460-3800)	1.7 (0.19-3.2)	4.4 (0.20-12)	11 (1.2-20)	Tochigi 1996-98	[6]
	J	1	0.80	6200	4100	4.3	3.4	25	Tokyo 1996	[6]
	J	1	1.0	14000	7600	2.6	3.9	22	Nagano 1996	[6]
	J	1	4.7	50	74	0.062	0.35	0.33	Ishikawa 1997	[6]
	A	1	2.0	5800	6100	2.4	1.6	3.6	Saitama 1996	[6]

1) CBのあとに続く数字はIUPAC No.を示す. 1) The CB followed by the number represents the IUPAC number.

C, J, SA, Aは, それぞれ雛, 幼鳥, 亜成鳥, 成鳥を示す. n.d.およびN.A.は, それぞれ検出下限値以下, 未測定を示す.

n indicates sample number. nはサンプル数を示す.

C, J, SA and A are chick, juvenile, semi-adult and adult, respectively. n.d. and N.A. denote not detected and not analyzed, respectively.

[1]: 井関 *et al.* (2000a), [2]: Guruge *et al.* (2000), [3]: Senthilkumar *et al.* (2002), [4]: 井関ら (2001), [5]: Choi *et al.* (2001), [6]: 長谷川 (1999), [7]: 康ら (2000), [8]: Yamashita *et al.* (1992), [9]: 環境庁 (1999), [10]: 環境庁 (2000), [11]: 環境省 (2001)

Tokyo*は千葉, 埼玉を, Tokyo**は千葉, 神奈川をそれぞれ含む. Tokyo***は千葉を含む.

Tokyo* is including Chiba and Saitama. Tokyo** is including Chiba and Kanagawa. Tokyo*** is including Chiba.

2) 上段は算術平均, 下段は濃度範囲をそれぞれ示す. 2) The values in upper case and lower case indicates statistical mean and range, respectively.

にくいとされるCB180のBMF (CR180: カワウ / 魚) と各PCBコンジェナーのBMF (CR_i: 同様) を用いて代謝の比較をしている。すなわちMI値 (Metabolic Index) = $\text{Log} (\text{CR180}/\text{CR}_i)$ として表し、その値が大きい程代謝が進んでいることを意味する (Tanabe *et al.* 1988)。それらの結果、琵琶湖産と東京産のいずれもCB126 (それぞれ0.63, 0.70) とCB169 (0.52, 0.47) のMI値が小さく、代謝されずに蓄積 (この場合、CB169 > CB126となる) していると推察された (Guruge *et al.* 2000)。このような代謝に関する考察として、PCBの分子構造と代謝酵素の関係が示唆されている。PCBの代謝に関して、ピフェニール基のPエリア (隣接したメタ位とパラ位)、Mエリア (隣接したオルト位とメタ位) に塩素が置換されていないタイプのPCBは代謝に関する酵素がそれぞれ異なることが確認されており、前者をPB (フェノバルピタール) 型、後者をMC (3-メチルコラントレン) 型酵素と区別されている。これらの酵素によって代謝されるPCBとして、PB型はCB52 (2,2',5,5'-tetraCB), MC型はCB66 (2,3',4,4'-tetraCB) に着目し、それらのMI値は酵素の代謝能を示す指標とされた。こうして様々な動物種間で比較された結果、カワウは鳥類で最も高いPB型の代謝能を持ち、ヒトと同レベルであった。しかしMC型では、最も低い代謝能を示す結果となった (Guruge & Tanabe 1997)。ダイオキシン類はMC型酵素を誘導することが知られているが、この結果から考えるとカワウは、ダイオキシン類の代謝が最もされにくい種であるといえる。ダイオキシン類やMエリアのPCBによって誘導される酵素は、チトクロームP450のそれぞれCYP1AとCYP2B分子種である。また肝ミクロソームに多く存在するこれら分子種は、前者がEROD (Ethoxyresorufin O-dialkylase) 活性、後者がPROD (Pentoxyresorufin O-dialkylase) 活性から間接的に測定することができる。琵琶湖産のカワウで、肝臓中Co-PCB濃度とEROD及びPROD活性の関係が調査されている (Guruge & Tanabe 1997)。酵素活性については後述する。

生体に取り込まれた化学物質が、初期存在量から半分量まで代謝・排泄によって減少するまでの時間を半減期という。キジを用いたラベル化2,3,7,8-TCDD投与による体内半減期は378日という報告例がある (Nosek *et al.* 1992)。Iseki *et al.* (2001b) は、カワウ成鳥の肝臓中濃度が平衡状態にあると仮定して、東京湾魚類中の幾何平均濃度と幾何標準偏差から2,3,7,8-TCDDの体内半減期を平

均43日、その範囲を31~69日と見積もった。またキジにおける毒性値であるLD₅₀ (半数致死濃度) は、2.2 ng/gであるが (Nosek *et al.* 1993)、ミミヒメウのLD₅₀は0.46 ng/gと大きな種間差がある。カワウはミミヒメウと近縁種であり同様のLD₅₀値であると考え、カワウの半減期がキジよりも短いことは、LD₅₀にみられる毒性の感受性の違いにも関係しているのかもしれない。すなわち、毒性影響を酵素誘導能と言い換えた場合、カワウはキジよりも代謝反応に敏感であり、その結果、キジよりも半減期が短く推定されたと説明できる。

3) 体内分布

食餌によって体内に取り込まれたダイオキシン類の各組織への分布を明らかにするために、同一個体から採取された組織・器官を分析、比較がおこなわれた (Iseki *et al.* 2001b)。分析された個体は、輸卵管に産卵直前の卵を持っており、筋肉、肝臓、腎臓、血液の合計5部位の組織・器官が分析された。脂肪あたりのPCDD/Fs濃度を比較したところ、OCDDを除いてすべての2,3,7,8-置換体は、肝臓で高濃度であった。特に、1,2,3,7,8-PeCDD、1,2,3,6,7,8-HxCDD、2,3,4,7,8-PeCDFは、肝臓に特異的に蓄積する傾向がみられている。同様にCo-PCBsの比較では、non-ortho PCBsのCB126やCB169だけが肝臓への高い蓄積傾向がみられ、mono-ortho PCBsのコンジェナーではほぼ同レベルであることが明らかにされた (Iseki *et al.* 2001b)。また、このような肝臓への特異的な蓄積は、体内濃度が高いほど顕著であることが報告されている (飯塚ら 2001)。

毒性等価量およびリスク変遷

1) 毒性等価量

WHO-TEF (birds) を用いたカワウ肝臓および卵中、魚類のダイオキシン類の総TEQは、カワウ肝臓で27,000、カワウ卵で3,600、魚類で330 pgTEQ/g fatと計算された。すべてのカワウ試料に共通してPCDDsは1,2,3,7,8-PeCDD、PCDFsは2,3,4,7,8-PeCDFが大部分を占めているが、その寄与率はカワウ卵でPCDD/Fsが約30%であるのに対し、カワウ肝臓では50%を越えている。また、Co-PCBsでは、non-ortho PCBsが大きく寄与しており、特にカワウ試料ではCB126が、魚類試料ではCB77が優占的であった。特に肝臓で寄与の大きかったコンジェナーは、その蓄積とTEFの値が大きいこと

による (Iseki *et al.* 2001b) .

五大湖に生息するミミヒメウでは、繁殖調査とラットの肝ガン細胞 (H4IIE) を用いたバイオアッセイによる卵中TEQ濃度の相関が報告され、死亡胚の影響濃度をLD値としてまとめられている (Giesy *et al.* 1994) . いくつかのTEQ濃度 (湿重あたり) におけるLD値をプロットして回帰直線 ($LD = 0.092 \times TEQ [wet\ wt.] + 6.1$) を求め、これに東京産カワウ卵の実測値であるTEQ濃度を代入してLD値を求めた結果、その値は27となった。これは個体群全体の27%が影響を受けていることを意味する。五大湖と東京湾の汚染パターンや魚類中TEQの組成、濃度分布、用いた動物セルとカワウの感受性の違いなどがあるが、本稿では、卵中TEQ濃度と回帰直線から見積もられるLD値を用いてリスク評価をおこなった。一般に、H4IIEセルを用いたTEQは、Ahレセプターを介したトータルの毒性量 (TEQ) として評価される。したがって、通常は既知の化学物質以外にも含めたTEQとなり化学分析から計算したTEQ値よりも大きくなるとされる。本稿では、過小評価であってもTEQ換算された値とそれに対する影響 (致死割合: LD) として扱うという仮定の下におこなっている。

2) 東京湾におけるリスク変遷

益永ら (2001) は、東京湾の垂直に採取し年代査定された底質コア中PCDD/Fsを主成分分析し、いくつかの抽出因子と発生源のコンジェナーパターンにもとづいて解析した結果、東京湾の汚染 (1992年) は、過去に使用されていた農薬の不純物が83% (PCP約67%, CNP約16%), 燃焼・焼却が約17%と寄与割合を算出している。また濃度変遷を調べた結果、同様の3つの因子で説明することが出来、さらにそれらの寄与割合ならびに濃度レベルは関東地域の農薬生産量の推移と一致した。さらにこれら農薬中に毒性のある2,3,7,8-置換体のPCDD/Fsが不純物として含まれていたことも明らかにしている (Masunaga *et al.* 2001) .

Iseki *et al.* (2001c) は、カワウ体内におけるPCDD/Fsとnon-ortho PCBsの半減期を求め、東京湾底質コアの年代別分析値 (Yao *et al.* 2000) よりBSAF (生物/底質蓄積係数) を用いて過去の魚類中濃度を推定した。さらにこれらの魚類を採食するという一定の仮定の下、卵への濃度変遷を明らかにしている。計算された卵中TEQ濃度は、先に述べた回帰式から各年代における卵のLD値を推算し、リスクとして変遷が示された (図4) . そ

図4. 関東におけるカワウ個体数と致死割合の推移

Figure 4. The transition of the population size and lethal dose of great cormorant in Kanto region.

れによると、1960年前半からリスクは急激に上昇し1967~72年のLD47をピークにリスクは減衰するという結果が得られた。これらは特にCB126, CB77といったPCBsによるTEQ寄与が大きかった。一方、PCDD/FsによるTEQ寄与は、1970年代からLD11まで若干大きくなったが、その後はおよそLD10で変遷し、TEQへの寄与の大きさは今もそれほど小さくはなっていないと推定された。

関東で生息するカワウは1970年に個体数を約170羽まで減少させており (石田ら 2000), 生態学者は、減少の理由に、狩猟や駆除、生息地の埋め立て、さらに環境汚染の影響によるものと考察している。カワウにおけるダイオキシン類汚染の変遷では、その一因として現在よりもおよそ2倍の影響があることが推察されたが、当時の環境汚染は他の有機塩素系農薬などからの影響や複合的な影響、またカワウの感受性など他に多くの課題が残される。したがって、本稿では毒性値の大きさよりむしろ傾向を示したことに成果がある。

Guruge *et al.* (2000) は、東京 (第六台場) より1999年に採取した未孵化卵 ($n=3$) のCo-PCBsのTEQ濃度 ($150 \sim 500 \text{ pgTEQ/g wet wt.}$) やそのときに観察された雛の死亡状況から東京産カワウが危機的状況にあると述べている。しかしながら同年、同じ地域で採食活動していると考えられる別のコロニーでの調査では、雛の死亡個体は見られず (羽山, 私信), 第六台場での雛の死亡は突風などによる雛の転落、巣の落下など、繁殖地の地理的な要因や営巣条件による事故の可能性もある。さらに本研究で同じ第六台場コロニーから1998年に採取した東京産卵 ($n=9$) は、平均 $216 \text{ pgTEQ/g wet wt.}$ であり、また2000年度環境庁調査 (環境庁 2001) で行徳コロニーから採取した東京産卵 ($n=50$) でも平均 $208 \text{ pgTEQ/g wet wt.}$ であって、こ

れから推定したLD値で示した死亡率はそれぞれ27%、25%であった。さらに人工孵化試験 ($n=82$) による未孵化率は約15%と決して高い値ではなかった。

Murata *et al.* (2001) は、カワウ卵の発生リスクが個体群減少へ及ぼす影響を、レスリー行列を用いて推算しているが、卵死亡率が85%以上にならないと内的自然増加率が負にならない、すなわち個体群は減少しないと計算される。したがって、現在のダイオキシン類曝露レベルにおける孵化率への影響は、カワウ個体群レベルでは決して危機的状況ではないといえる。

3) 代謝酵素 (P450) の誘導

オランダのアジサシ雛を用いた投与試験では、0.6 ngTEQ/g wet wt.相当の餌を与えた投与グループから酵素誘導がみられ、それら雛の肝臓中TEQ濃度からLOEL (最小作用量: Lowest-Observed-Effect Level) は25 ngTEQ/g fatと見積もられた (Bosveld *et al.* 2000)。その結果、オランダのアジサシが実際に採食する魚類中TEQ濃度レベルはその1/6にあたり、巣立ち期間における成長や酵素誘導などの影響はないと結論付けられている。東京産魚類のTEQ濃度レベルは、およそ0.025 ngTEQ/g wetでありオランダ産魚類の1/4であり、同じ考察に立てば、カワウもこれらの影響はないといえるかもしれない。

一方、琵琶湖産カワウ (成鳥) の肝臓中では酵素誘導が測定されている (Guruge & Tanabe 1997)。また東京湾周辺から集められたカワウ幼鳥 (1歳齢) の肝臓中濃度 (2.2~90.6 ng TEQ/g fat) は、アジサシのLOELを超えているものもあり、酵素誘導の影響が出ていることが考えられる。井関ら (2001) は、幼鳥での酵素誘導の可能性や未孵化卵の分析結果 (Guruge *et al.* 2000) を考え合わせた結果、餌である魚の平均濃度では巣立ち期間で酵素誘導のLOELを超える可能性は低い、巣立ち後にはLOELを超える蓄積が起きていると考察している。また卵中濃度のバラツキが大きいことは、親の年齢差よりも餌濃度のバラツキを反映していることが伺え、一部の卵でみられた高濃度はそれら餌の濃度分布が大きいことによるものと推察している (井関 2001)。

カワウにおけるP450酵素誘導のリスク評価を行うためには、エンドポイントとしてLOELなどを実験的に決定する必要がある。

今後の研究展望

1) 内分泌系への影響

近年出版されたT.コルボーン (1998) の「奪われし未来」は、様々な化学物質が生体の内分泌を攪乱しているとして一躍注目を浴びた。それらの化学物質はいわゆる「環境ホルモン」として社会に広く浸透した。正式名称は「外因性内分泌攪乱化学物質」とされ、その環境庁の定義によると「動物の生体内に取り込まれた場合に、本来、その生体内で営まれている正常なホルモン作用に影響を与える外因性の物質」とされ67物質がリストアップされた (環境庁 1997b)。その中には、ダイオキシン類をはじめPOPsの多くが含まれ、生体内でエストロゲン様作用や抗アンドロゲン作用、甲状腺ホルモン阻害を引き起こすことが指摘されている。

特にエストロゲン様作用にともなう生殖への影響についてマウスや魚類を中心に多くの実験がおこなわれている (日本公衆衛生協会, 2000)。そこでは、反応機序や野生個体への影響をモニターするために、影響指標となるバイオマーカーの検討がおこなわれている。鳥類においても検討が開始されているが、反応機序や野生個体についてはほとんど不明の状況である。

カワウでは、東京産 ($n=22$) と琵琶湖産 ($n=20$) のカワウ甲状腺の組織切片を比較した結果、東京産において小型化濾胞の密在や濾胞上皮の乳頭上突出、上皮細胞数の増加等、小濾胞性過形成性変化の多くが確認された (齋田 2001)。このような症状は、汚染の深刻な米・五大湖のセグロカモメでも過去に観察されている (Moccia *et al.* 1986)。琵琶湖と東京のカワウ肝臓中のPOPsレベルを比較した結果でも、東京産の高濃度が報告されており、生息域の汚染による甲状腺機能への影響などが懸念される。

先述したオランダのアジサシ雛を用いたダイオキシン類の投与試験では、濃度-依存的な甲状腺ホルモン (T4) の低下が (Bosveld *et al.* 2000)、またオランダのカワウでは、ダイオキシン類汚染度の異なる2ヶ所のコロニー調査において、汚染度が高いほど孵化後雛の遊離T4 (freeT4: FT4) が低下する傾向が認められている (van den Berg *et al.* 1995)。現在、著者らの研究グループも、東京湾の個体群について、甲状腺ホルモン (T4, T3, FT4, FT3) とダイオキシン類との関連を調査中である。

甲状腺機能への攪乱に関しては、ダイオキシン類によって別に誘導されるUDP-グルクロン酸転移酵素による甲状腺ホルモンの代謝促進と、P450によって代謝された水酸化PCBが甲状腺ホルモン受容体や輸送タンパクに結合することによる甲状腺ホルモン濃度の低下による影響が考えられている。

このように内分泌攪乱に関する問題は、影響への反応機序の解明とともに、種間における化学物質の体内蓄積や代謝、反応への感受性の違いを明らかにし、影響評価のためのバイオマーカーの確立が必要である。

2) 免疫系への影響

免疫系は生体防御反応を司り、生物の基本的な健康維持に重要な役割を果たしている。免疫機能の低下は、潜在的に病原性のある微生物に囲まれて生活している野生生物にとって致命的な影響を与える可能性がある。

野生生物における免疫機能の低下と疾病の関連について最も注目されているのが、世界各地で起こったイルカやアザラシなど海生哺乳類の大量死である。これらは、ダイオキシン類・PCBなどの環境汚染物質の長期曝露により免疫機能が抑制された結果、特定の病原体（ウイルス・細菌）に感染し易くなり個体群レベルで発症に至ったことが大量死の一因ではないかと推測されている (Lahvis *et al.* 1995; de Guise *et al.* 1995; Ross *et al.* 1996)。実際に、汚染海域の魚で長期飼育されたアザラシでは、主に細胞性免疫（リンパ球増殖活性・ナチュラルキラー細胞活性・遅延型皮膚反応など）や、免疫能と密接な関係を持つビタミンAの低下が引き起こされることが明らかにされている (de Swart *et al.* 1996)。

野生鳥類における環境汚染物質曝露と免疫抑制との関連については、米・五大湖でセグロカモメ・オニアジサシ *Sterna caspia* において、ダイオキシン類・PCB汚染度が高いほど遅延型皮膚反応 (PHA-skin test) が有意に低下していることや、胸腺萎縮、白血球比率の変化が確認されている (Grasman *et al.* 1996, 2000, 2001)。また、ミミヒメウにおいて、ダイオキシン類・PCB曝露と眼の感染症 (*Pasteurella* sp.) 頻度との間に相関が認められている (Ludwig *et al.* 1996)。

現在、著者らの研究グループも東京湾のカワウを対象として、環境汚染物質曝露と免疫抑制の関係についての調査を始めつつある。主に、巣立ち前ヒナの血中ダイオキシン類・PCB濃度とリンパ

球活性・皮膚反応・白血球比率などとの関係を調べていく予定である。

野生鳥類においては、海生哺乳類のような免疫抑制とウイルス感染による大量死の因果関係は報告されていない。しかし欧米のウ類では、鳥類の代表的な伝染病であるニューカッスル病の感染例の報告があり (Kuiken 1999)、特に1992年には、米国のミミヒメウにおいてこの感染が突発的に広がった結果、発症に至った2万羽以上の雛・幼鳥が死亡している (Glaser *et al.* 1999)。幸い、わが国のカワウにおいてはそのような事例は起こっていないが、個体数が爆発的に増加しているとしても、集団として免疫能が低下していれば一気に感染症が広まる可能性もあり、決して油断はできない。したがって生態疫学的な調査をおこない、個体群の健康状態を監視していくことが望まれる。

3) 非捕殺的モニタリング手法

野生動物における化学物質による影響評価をおこなう際、対象種の選定、採取時期、採取方法、採取場所を考慮する必要がある (杉森 2001)。最初に述べた環境庁によるウミネコを用いた汚染調査は、その目的はともかくも試料選定の難しさが伺える。すなわち、毎年一定の個体数を確保する必要性和年齢をそろえる必要性から繁殖地での捕獲ならびに事故による死亡個体の回収が選ばれた。こうして毎年、一定数の幼鳥を確保出来るに至った訳であるが、その繁殖地ではウミネコが天然記念物に選定されるという別の意味で制約が加わっている (杉森 2001)。繁殖を東北地方でおこなうウミネコに比べて、東京湾周辺に生息するカワウは年中観察され、繁殖も多くはねぐらとする同じ場所でおこなっている。このことは、生息環境の高次捕食者に位置するカワウが産業活動の盛んな地域の生態系において、汚染の実態を示す最適の指標となるとともに、最も危険にさらされている種であるともいえる。

カワウの汚染調査では多くの場合、回収された死亡個体 (不忍池、行徳) や有害鳥獣駆除 (琵琶湖) や食性調査 (相模川) のためやむ得なく捕殺されたものを用いている。前者の死因は、必ずしも化学物質が原因になったわけではないが、死亡個体の分析値と駆除個体の分析値には大きな差がみられる。考えられる要因は、例えば死亡個体は栄養状態が比較的悪いことやコロニー内からの駆除個体は幼鳥を含め比較的若齢が多い傾向にあるためかもしれない。また、鳥類の年齢査定が確立

されていないことは解析の最大の難点でもある。したがって、回収理由の異なる2地域間の試料を比較するためには、これらの情報をよく吟味しなければならない。またこれらの試料はいずれも数が限定され、統計的にも十分な解析が出来ない現状である。しかし学術研究の理由の上で多数の個体を捕殺することは、生態学的にも倫理的にも問題を生み出すことになる。根本的な問題は、化学分析のために生体を犠牲にしなければならない点にある。ダイオキシン類やPOPsの分析で、またはP450酵素をバイオマーカーとして測定するにせよ、肝臓を用いる以上、生体の犠牲は免れない。海外の研究では、羽を用いた水銀分析 (Furness *et al.* 1986) や、ハクトウワシでの血液中ダイオキシン類の分析 (Elliott & Norstrom 1998) などがおこなわれている。

著者らはこうした課題に応えるために、現在、非捕殺的手法の確立に焦点を定めている。これらは、血液と各組織器官中濃度の相関を実測値から求め、取り込み量と体内負荷量を推定するというものである。こうして体内コンパートメントモデルを構築することによって、血中濃度から肝臓中濃度さらには酵素誘導量を推定することが可能となる。カワウはダイオキシン類曝露レベルが高く、現在必要とされる血液量は1個体あたりおよそ5 ccを想定している。非捕殺的手法は、血中甲状腺ホルモン濃度やリンパ球などの免疫応答も同時に測定することができるほか、さらに多くの試料数が確保できれば、曝露濃度分布を描くことができる。また、モンテカルロシミュレーションといった数学的手法によって餌濃度から推定したダイオキシン類曝露分布の推算値と比較し、環境媒体からのリスク評価モデルの精度を向上させることも可能である。いずれにせよ、個体群の曝露分布が見積もられれば、LOELなどの影響濃度を超える個体が母集団のどの程度存在するのかが算出することができる。今後、化学物質による生物の影響評価のためには、分布、確率、ポテンシーといった定量的な知見を考え合わせて表現されるリスク評価が非常に有効な手段となるであろう。また、リスクとして表現することは、生息域や餌の減少など他の影響要因とも並列に議論でき、これからの野生動物への環境管理の上で重要な手段となるであろう。

摘 要

化学物質による野生鳥類の研究史についてわが

国の取り組みを紹介した。ダイオキシン類の汚染が大きな注目を浴びた近年、それらの問題に向けた対策や技術は大きな社会現象にもなった。わが国における化学物質による野生動物への影響に関する研究は、未だ少ないのが現状である。著者らは、魚食性鳥類であるカワウに着目し、ダイオキシン類の体内残留レベルを明らかにすると共に、既報の日本産鳥類のデータと比較した。その結果、カワウは最も高濃度に蓄積する鳥種であった。またPCDD/Fsの残留パターンは、2,3,7,8-置換体PCDD/Fsが優占し、WHO-TEF (birds) を用いた毒性値への寄与には、1,2,3,7,8-PeCDDや2,3,4,7,8-PeCDF, CB126が大きな寄与を示した。肝臓におけるこれらのコンジェナーは、筋肉や卵よりも特異に蓄積していた。

カワウにおけるダイオキシン類の半減期を算出し、環境濃度から卵への濃度を予測した結果、孵化率への影響は1970年代をピークに減少傾向であることが推察された。現在のダイオキシン類の曝露による未孵化率は27%と見積もられ、個体群の減少には影響しないことが結論づけられた。しかしながら、別のエンドポイントや免疫などの調査の必要性が考えられ、これらを遂行するための非捕殺的モニタリング手法など、カワウ個体群をリスク管理するための新たな取り組みが期待された。

引用文献

- Blus LJ, Gish CO, Belisle AA & Proutry RM (1972) Logarithmic relationship of DDE residues to eggshell thinning. *Nature* **235**: 376-377.
- Bosveld ATC, Nieboer R, De Bont A, Mennen J, Murk AJ, Feyk LA, Giesy JP & Van den Berg M (2000) Biochemical and developmental effects of dietary exposure to polychlorinated biphenyls 126 and 153 in common tern chicks. *Environ. Toxicol. Chem.* **19**: 719-730.
- カーソン R (1962) 沈黙の春. 新潮社.
- Choi JW, Matsuda M, Kawano M, Wakimoto T, Iseki N, Masunaga S, Hayama S & Watanuki Y (2001) Chlorinated persistent organic pollutants in black-tailed gulls (*Larus crassirostris*) from Hokkaido, Japan. *Chemosphere* **44**: 1375-1382.
- コルボーン T (1997) 奪われし未来. 翔泳社.
- Custer TW, Erwin RM & Stafford C (1983) Organochlorine residues on common tern eggs from nine atlantic coast colonies. *Colon. Waterbirds* **6**: 197-204.
- de Guise S, Martineau D, Beland P & Fournier M (1995) Possible Mechanisms of Action of Environmental Contaminants on St. Lawrence Beluga Whales (*Delphinapterus leucas*). *Environ. Health. Perspect. Suppl.* **103**: 73-77.
- de Swart RL, Ross PS, Vos JG & Osterhaus ADME (1996) Impaired immunity in harbor seals exposed to bioaccumu-

- lated environmental contaminants: review of a long-term feeding study. *Environ. Health. Perspect. Suppl.* **104**: 823–828.
- Elliott JE & Norstrom RJ (1998) Chlorinated hydrocarbon contaminants and productivity of bald eagle populations on the pacific coast of Canada. *Environm. Toxicol. and Chemist.* **17**: 1142–1153.
- Furness RW, Muirhead SJ & Woodburn M (1986) Using bird feathers to measure mercury in the environment: Relationships between mercury content and moult. *Marine Pollut. Bull.* **17**: 27–30.
- Giesy JP, Ludwig JP & Tillit DE (1994) Dioxins, dibenzofurans, PCBs and colonial, fish-eating water birds. In: Schecter, A. (ed.): *Dioxins and Health*, pp. 249–308. Plenum Press, New York.
- Gilbertson M, Kubiak T, Ludwig J & Fox G (1991) Great Lakes embryo mortality, edema and deformities syndrome (GLEMEDS) in colonial fish-eating birds: Similarity to chick-edema disease. *J. Toxicol. Environ. Health* **33**: 455–520.
- Glaser LC, Barker IK, Weseloh DV, Ludwig JP, Windingstad RM, Key DW & Bollinger TK (1999) The 1992 epizootic of Newcastle disease in double-crested cormorants in North America. *J. Wildl. Dis.* **35**: 319–330.
- Grasman KA, Fox GA, Scanlon PF & Ludwig JP (1996) Organochlorine-associated immunosuppression in pre-fledgling Caspian terns and herring gulls from the Great Lakes: an ecoepidemiological study. *Environ. Health. Perspect. Suppl.* **104**: 829–842.
- Grasman KA, Scanlon PF & Fox GA (2000) Geographic variation in Hematological variables in adult and pre-fledgling herring gulls and possible associations with organochlorine exposure. *Arch. Environ. Contam. Toxicol.* **38**: 244–253.
- Grasman KA & Fox GA (2001) Associations between altered immune function and organochlorine contamination in young Caspian terns from Lake Huron, 1997–1999. *Eco-toxicology* **10**: 101–114.
- Gress F, Risebrough RW, Anderson DW, Kiff LF & Jehl Jr JR (1973) Reproductive failures of double-crested cormorants in southern California and Baja California. *Wilson Bull.* **85**: 197–207.
- Grier JW (1982) Ban of DDT and subsequent recovery of reproduction in bald eagles. *Science* **218**: 1232–1235.
- Guruge KS & Tanabe S (1997) Congener specific accumulation and toxic assessment of polychlorinated biphenyls in common cormorants, *Phalacrocorax carbo*, from Lake Biwa, Japan. *Environm. Pollu.* **96**: 425–433.
- Guruge KS, Tanabe S, Fukuda M, Yamagishi S & Tatsukawa R (1997) Accumulation pattern of persistent organochlorine residues in common cormorants (*Phalacrocorax carbo*) from Japan. *Marine Pollu. Bull.* **34**: 186–193.
- Guruge KS, Tanabe S & Fukuda M (2000) Toxic Assessment of PCBs by the 2,3,7,8-tetrachlorodibenzo-*p*-dioxin equivalent in common cormorant (*Phalacrocorax carbo*) from Japan. *Arch. Environ. Contam. Toxicol.* **38**: 509–521.
- 長谷川 淳・松田宗明・河野公栄・脇本忠明・綿貴豊 (1999) 日本産野生鳥類におけるダイオキシン類の蓄積特性と毒性評価. 第8回環境化学討論会講演要旨集: 150–151.
- 長谷川 淳 (1999) 日本産野生鳥類におけるダイオキシン類汚染の評価. 愛媛大学大学院修士論文.
- Hickey JJ & Anderson DW (1968) Chlorinated hydrocarbons and eggshell changes in raptorial and fish-eating birds. *Science* **162**: 271–273.
- Hoshi H, Minamoto N, Iwata H, Shiraki K, Tatsukawa R, Tanabe S, Fujita S, Hirai K & Kinjo T (1998) Organochlorine pesticides and polychlorinated biphenyl congeners in wild terrestrial mammals and birds from chubu region, Japan: Interspecies comparison of the residue levels and compositions. *Chemosphere* **36**: 3211–3221.
- 飯塚 隆・井関直政・羽山伸一・益永茂樹・中西準子 (2001) カワウ体内におけるダイオキシン類の蓄積と分布. 第10回環境化学討論会講演要旨集: 120–121
- Iseki N, Hayama S, Masunaga S & Nakanishi J (2001a) Concentrations of PCDDs, PCDFs and dioxin-like PCBs; Their biomagnification factor in Common Cormorants (*Phalacrocorax carbo*), from Japan. *Organohalogen Compounds* **51**: 332–335.
- Iseki N, Iizuka T, Hayama S, Masunaga S & Nakanishi J (2001b) Accumulation profiles and burdens of dioxins, furans and dioxin-like PCBs in Common Cormorants (*Phalacrocorax carbo*), from Japan. *Organohalogen Compounds* **51**: 336–339.
- Iseki N, Hayama S, Masunaga S & Nakanishi J (2001c) Dioxin and dioxin-like PCB exposure and their risk estimation: Survival rate of common cormorant in Japan. In: Nakanishi J (ed.), *Proceedings of the 4th International workshop on risk evaluation and management of chemicals*: 129–140. CREST, Yokohama.
- 井関直政・益永茂樹・中西準子 (1999) カワウ *Phalacrocorax carbo* におけるダイオキシン類の蓄積特性. 第33回日本水環境学会講演要旨集: 111
- 井関直政・羽山伸一・益永茂樹・中西準子 (2000) カワウにおけるPCDDs, PCDFsおよびコブラナーPCBsの蓄積レベル. *環境化学* **10**: 817–831.
- 井関直政・益永茂樹・中西準子 (2001) カワウ卵におけるダイオキシン類 (PCDD/Fs, Co-PCBs) レベルと地域比較. *水環境学会誌* **24**: 447–453.
- 石田 朗・松沢友紀・亀田佳代子・成末雅恵 (2000) 日本におけるカワウの増加と被害—地域別・問題別の概況と今後の課題—. *Strix* **18**: 1–28.
- 岩田久人・渡辺真文・田辺信介・増田 泰・升田直木彦・数坂昭夫・藤田正一 (1997) 知床半島に飛来したオオワシの有機塩素化合物汚染. 知床博物館研究報告 **18**: 1–7.
- Janz DM & Bellward GD (1996) In ovo 2,3,7,8-tetrachlorodibenzo-*p*-dioxin exposure in three avian species. *Toxicol. Appl. Pharmacol.* **139**: 99–115.
- 環境庁 (1997a) ダイオキシンリスク評価検討会報告書.
- 環境庁 (1997b) 外因性内分泌攪乱化学物質問題に関する研究班中間報告書.
- 環境庁 (1999) 平成10年度 野生動物のダイオキシン類蓄積状況調査結果.

- 環境庁 (2000) 平成 11 年度 野生動物のダイオキシン類蓄積状況調査結果.
- 環境庁 (2001) 平成 12 年度 野生動物のダイオキシン類蓄積状況調査結果.
- 康 允碩・山室真澄・益永茂樹・中西準子 (2000) 宍道湖における水鳥, 魚類及び二枚貝類中のダイオキシン類の異性体組成について. 横浜国立大学環境科学研究センター紀要 **26**: 11–22.
- Kennedy SW, Lorenzen A, Jones SP, Hahn ME & Stegeman JJ (1996) Cytochrome P4501A induction in avian hepatocyte cultures: A promising approach for predicting the sensitivity of avian species to toxic effects of halogenated aromatic hydrocarbons. *Toxicol. Appl. Pharmacol.* **141**: 214–230.
- Kuiken T. (1999) Review of Newcastle disease in cormorants. *Waterbirds* **22**: 333–347.
- Lahvis GP, Wells RS, Kuel DW, Stewart JL, Rhinehart HL & Via CS (1995) Decreased lymphocyte responses in free-ranging bottlenose dolphins (*Tursiops truncatus*) are associated with increased concentrations of PCBs and DDT in peripheral blood. *Environ. Health. Perspect. Suppl.* **103**: 67–72.
- Ludwig JP, Kurita-Matsuba H, Auman HJ, Ludwig ME, Summer CL, Giesy JP, Tillitt DE & Joens PD (1996) Deformities, PCBs and TCDD-equivalents in double-crested cormorants and Caspian terns of the upper Great Lakes 1986–1991: testing a cause-effect hypothesis. *J. Great Lakes Res.* **22**: 172–197.
- Masunaga S, Takasuga T & Nakanishi J (2001) Dioxin and dioxin-like PCB impurities in some Japanese agrochemical formations. *Chemosphere* **44**: 873–885.
- 益永茂樹・姚元・高田秀樹・桜井健郎・中西準子 (2001) 東京湾のダイオキシン汚染: 組成と汚染源推定. *地球化学* **35**: 159–168.
- Moccia RD, Fox GA & Britton A (1986) A quantitative assessment of thyroid histopathology of herring gulls (*Larus argentatus*) from the Great Lakes and hypothesis on the causal role of environmental contaminants. *J. Wildl. Dis.* **22**: 60–70.
- Murata M, Iseki N, Masunaga S & Nakanishi J (2001) Estimation of Effect of Dioxins on Wildlife Population. A Case Study of Common Cormorant Population *Proceedings of the 4th International Workshop on Risk Evaluation and Management of Chemicals*, 147–155, Yokohama, Japan.
- 日本公衆衛生協会 (2000) 平成 11 年度内分泌攪乱化学物質等の影響等調査研究報告書.
- Nosek AJ, Craven SR, Sullivan JR, Olson JR & Peterson RE (1992) Metabolism and disposition of 2,3,7,8-tetrachlorodibenzo-*p*-dioxin in ring-necked pheasant hens, chicks and eggs. *J. Toxicol. Environ. Health* **35**: 153–164.
- Nosek AJ, Sullivan JR, Craven SR, Gendron-Fitzpatrick A & Peterson RE (1993) Embryotoxicity of 2,3,7,8-tetrachlorodibenzo-*p*-dioxin in the ring-necked pheasant. *Environ. Toxicol. Chem.* **12**: 1215–1222.
- Ross P, de Swart R, Addison R, van Loveren H, Vos J & Osterhaus A (1996) Contaminant-induced immunotoxicity in harbour seals: wildlife at risk? *Toxicology* **112**: 157–169.
- 齋田栄理奈 (2001) 野生カワウにおける甲状腺の過形成様変化と有機塩素系化学物質汚染について. 日本獣医畜産大学卒業論文
- Sanderson JT & Van den Berg M (1999) Toxic equivalency factor (TEF) for halogenated aromatic hydrocarbons in wildlife. *Organohalogen Compounds* **44**: 433–435.
- Senthilkumar K, Iseki N, Masunaga S, Hayama S & Nakanishi J (2002) Polychlorinated dibenzo-*p*-dioxins, dibenzofurans and dioxin-like polychlorinated biphenyls in livers of birds from Japan. *Arch. Environ. Contam. Toxicol.* **42**: 244–255.
- Spitzer PR, Risebrough RW, Walker III W, Hernandez R, Poole A, Puleston D & Nisbet ICT (1978) Productivity of ospreys in connecticut-long island increases as DDE residues decline. *Science* **202**: 333–335.
- Stalling DL, Norstrom RJ, Smith LM & Simon M (1985) Patterns of PCDD, PCDF and PCB contamination in Grate Lakes fish and birds and their characterization by principal components analysis. *Chemosphere* **14**: 627–643.
- 杉森文夫 (2001) 環境汚染の実態把握に関連した野生鳥類のサンプリングの動向と今後の対応. 生態影響と評価に関するセミナー 2001. 講演要旨集, 1–10.
- Tanabe S, Watanabe S, Kan H & Tatsukawa R (1988) Capacity and mode of PCB metabolism in small cetaceans. *Mar. Mamm. Sci.* **4**: 103–124.
- Van den Berg M, Blank F, Heeremans C, Wagenaar H. & Olie K (1987) Presence of polychlorinated dibenzo-*p*-dioxins and dibenzofurans in fish-eating birds and fish from the Netherlands. *Arch. Environ. Contam. Toxicol.* **16**: 149–158.
- Van den Berg M, Craane LHJ, Van Mourik S. & Brouwer A (1995) The (possible) impact of chlorinated dioxins (PCDDs), dibenzofurans (PCDFs) and biphenyls (PCBs) on the reproduction of the Cormorant *Phalacrocorax carbo*: an ecotoxicological approach *Ardea* **83**: 299–313.
- Van den Berg M, Birnbaum L, Bosveld ATC, Brunstrom B, Cook P, Feeley M, Giesy JP, Hanberg A, Hasegawa R, Kennedy SW, Kubiak T, Larsen JC, Van Leeuwen FXR, Liem AKD, Nolt C, Peterson RE, Poellinger L, Safe S, Schrenk D, Tillitt D, Tysklind M, Younes M, Warn F & Zacharewski T (1998) Toxic equivalency factors (TEFs) for PCBs, PCDDs, PCDFs for humans and wildlife. *Environ. Health Perspect.* **106**: 775–792.
- Yamashita N, Shimada T, Tanabe S, Yamazaki H & Tatsukawa R (1992) Cytochrome P-450 forms and its inducibility by isomers in black-headed gulls and black-tailed gulls. *Mar. Poll. Bull.* **24**: 316–321.
- Yamashita N, Tanabe S, Ludwig JP, Kurita H, Ludwig ME & Tatsukawa R (1993) Embryonic abnormalities and organochlorine contamination in double-crested cormorants (*Phalacrocorax auritus*) and Caspian terns (*Hydroprogne caspia*) from the upper Great Lakes in 1988. *Environ. Pollut.* **79**: 163–173.
- Yao Y, Takada H, Masunaga S & Nakanishi J (2000) PCDDs, PCDFs and Co-PCBs in Tokyo Bay: Sources and contribution. *Organohalogen Compounds* **46**: 491–494.