調査資料

瀬戸内海産魚介類の PCB 濃度変化

(昭和 55 年 12 月 26 日受理)

黒田 弘之^{*1} 毛利 孝明^{*1} 西岡 千鶴^{*1}
小島 俊男^{*1} 石川 英樹^{*1} 高樹 正浩^{*1}
菊地 茂^{*2} 多田 御幸^{*2}

Survey of PCB Content in Fish from the Inland Sea of Seto

Hiroyuki KURODA^{*1}, Takaaki MOURI^{*1}, Chizuru NISHIOKA^{*1},
Toshio KOJIMA^{*1}, Hideki ISHIKAWA^{*1}, Masahiro TAKAGI^{*1},
Sigeru KIKUCHI^{*2} and Miyuki TADA^{*2}

(^{*1}Kagawa Prefectural Institute of Public Health: 17-28, Matsushimacho 1-chome,
Takamatsu; ^{*2}Kagawa Prefectural Medicines and Foods Division:
1-10, Bancho 4-chome, Takamatsu)

Key words: 瀬戸内海 The inland sea of seto; 魚類 fish; 貝類 shellfish; PCB 濃度 PCB level

緒 言

昭和47年に PCB 汚染が社会問題化した後、開放系に PCB の使用が禁止された。しかし、感圧紙、可塑剤、コンデンサーなどに使用されていた PCB は、昭和48年以降も除々に放出され瀬戸内海を汚染してきた。これらの変化が瀬戸内海という比較的海水の移動が少ない海に生息した魚介類の PCB 濃度と構造に、いかなる変化を与えて減少しているか興味のあるところである。

今回我々は昭和47年より昭和54年まで、香川県沿岸で取れた魚介類の PCB 調査を行い、若干の知見を得たので報告する。

実験材料

1. 試 料

1) 魚 介 類

昭和47年1月から昭和54年3月までに香川県沿岸の瀬戸内海で陸揚げされたもの、また市場で販売されているもので採取場所の明らかなものを買上げた、総計 904 件の魚介類を実験材料とした。

2) 海水および底質

昭和47年10月から昭和49年3月まで、土庄沖および観音寺沖それぞれ 2 km を約 500 m 間隔に 10 地点設定し、海水についてはその10地点の表層 1 m をハイロート採水器を用い約 2 L 採水し試料とした。また底質については、エクマンバージ型採泥器を用い表面から深さ約 10 cm までの泥約 2 kg を採取混合し、その 500 g を試料とした。

2. 分析期間

1) 魚 介 類

昭和47年1月から昭和54年3月

2) 海水および底質

昭和47年10月から昭和49年3月

3. 分析方法

1) 魚 介 類

「厚生省 PCB 分析研究班報告書」¹⁾の方法により実施した。

2) 海水および底質

「PCB による環境汚染実態調査における水質、土壌、底質および農作物中の PCB の分析法」²⁾により実施した。

^{*1} 香川県衛生研究所: 高松市松島町 1-17-28

^{*2} 香川県薬務食品課: 高松市番町 4-1-10

分析結果および考察

1) 香川県沿岸の魚介類中の PCB 濃度

昭和47年より昭和54年までの8年間、香川県沿岸で採取された魚介類中の PCB 濃度および検体数を Table 1 に示した。またその濃度変化を Fig. 1 に示した。

Fig. 1 からわかるとおり昭和47年より除々に減少し、昭和54年には昭和47年当時の約 1/5 に減少した。しかし、昭和51年よりその減少は非常にゆるやかになってきた。また、内海魚の PCB 暫定基準の 3 ppm を上まわるものは、昭和51年以降は検出されなくなった。

次に、香川県産魚介類の魚種別 PCB 濃度と PCB 構成割合をそれぞれ Table 2 と Fig. 2 に、また、Fig. 3 に魚種別 PCB 濃度変化を示した。

Table 2, Fig. 3 から魚種間での PCB 蓄積量の違いが認められ興味深い。特にメバル、アイナメ、カレイは比較的 PCB の蓄積が少なく、昭和49年より顕著な減少は認められない。それに対して、コノシロ、ボラ、アナゴ、ニベといった魚種では、昭和49年より PCB 濃度の著しい減少が認められた。このことは、これらの魚が海岸近くに生息し、汚泥などを食べたりするため PCB 汚染の影響を受けやすいことを意味している。次に Table

Table 1. Average Content of PCB in Fish Collected from Kagawa Prefecture

Year	PCB (ppm, wet base)		N
	Range	Mean	
1972	0.001-3	0.730	68
'73	ND-3	0.400	176
'74	0.01 -3	0.320	147
'75	ND-4	0.345	80
'76	ND-2	0.193	103
'77	ND-2.9	0.175	105
'78	ND-1	0.145	109
'79	ND-1	0.155	116

Fig. 1. PCB content in fish collected from Kagawa prefecture, 1972~1979

Fig. 2. Ratio of KC-500 content in several kinds of fish collected from Kagawa prefecture, 1974~1979

Fig. 3. PCB content in several kinds of fish collected from Kagawa prefecture, 1974~1979

2 より、蓄積 PCB の構成割合では、KC-300 タイプの低塩素型の PCB が減少し、KC-400, KC-500, KC-600 タイプの高塩素型の PCB に移行している。特に KC-500 を指標とした構成割合の変化が著しく、Fig. 2 に示すように、ボラ、アナゴ、コノシロ、ニベでは蓄積 PCB の 4 から 5 割、メバル、アイナメ、カレイでは 6 割近くを KC-500 タイプが占めている。これらのことは環境中の低塩素型の PCB が自然浄化され、比較的安定な KC-500, KC-600 タイプの高塩素型の PCB が残っていることを実証している。また母乳中の PCB も代謝され、ほとんどが KC-500 に近いタイプとして残留していることも上記の結果とよく一致している。

Table 2. Concentration and Constitution of PCB in Fish Collected from Kagawa Prefecture

Sample	Year	PCB (ppm)	Constitution ratio of PCB				N	Size of fish	
			KC-300	KC-400	KC-500	KC-600		Length (cm)	Weight (g)
Gazzered shad (Konoshiro)	'74	1.2	1.2	1.0	3.3	4.5	5	21	120
	'75	0.8	0.2	4.0	2.5	3.3	13	23	138
	'76	0.66	0.2	3.8	2.8	3.2	8	21	133
	'77	0.66	0.2	2.8	3.2	3.8	14	22	136
	'78	0.38	0.7	2.3	4.0	3.0	14	15	127
	'79	0.28	—	3.0	4.0	3.0	10	20	130
Mullet (Bora)	'74	0.33	2.7	2.2	3.0	2.1	9	32	333
	'75	0.45	0.4	3.8	2.8	3.0	19	32	414
	'76	0.35	1.2	2.5	4.0	2.3	19	32	393
	'77	0.25	0.1	2.6	3.7	3.6	16	36	540
	'78	0.28	—	2.2	5.0	2.8	14	29	522
	'79	0.18	—	2.8	4.5	2.7	17	34	535
Conger ell (Anago)	'74	0.40	1.1	2.6	2.7	3.6	7	36	74
	'75	0.58	1.0	2.9	3.1	3.0	8	43	102
	'76	0.45	—	3.2	3.2	3.6	8	36	107
	'77	0.26	—	3.3	3.3	3.4	10	31	91
	'78	0.43	—	3.7	3.6	2.7	6	22	81
	'79	0.28	—	3.7	3.5	2.8	7	23	68
Croaker (Nibe)	'74	0.40	1.1	3.7	2.4	2.8	5	29	335
	'75	0.30	—	5.7	1.8	2.5	5	35	522
	'76	0.24	—	5.1	2.1	2.8	8	26	305
	'77	0.21	—	2.2	3.9	3.9	11	28	283
	'78	0.16	—	2.1	3.1	4.8	7	17	296
	'79	0.20	—	1.8	3.5	4.7	9	26	246
Greenling (Ainame)	'74	0.13	—	4.5	3.3	2.2	2	24	192
	'75	0.10	—	2.4	3.6	4.0	7	28	161
	'76	0.14	—	2.1	4.3	3.6	12	21	179
	'77	0.11	—	2.8	3.6	3.6	12	21	145
	'78	0.07	—	2.0	4.5	3.5	8	18	102
	'79	0.10	—	0.6	5.8	3.6	10	20	145
Brack rockfish (Mebaru)	'74	0.10	—	2.7	4.0	3.3	5	16	79
	'75	0.13	—	3.0	4.3	2.7	5	20	143
	'76	0.09	—	2.8	4.3	2.9	10	17	114
	'77	0.08	—	2.3	4.6	3.1	10	17	93
	'78	0.08	—	2.9	4.1	3.0	4	15	76
	'79	0.06	—	1.1	5.6	3.3	8	16	94
Flatfish (Karei)	'74	0.08	0.9	2.1	4.3	2.7	11	20	97
	'75	0.15	0.9	1.1	3.8	4.2	14	22	104
	'76	0.08	0.6	3.1	4.0	2.3	17	18	117
	'77	0.09	0.3	2.3	4.3	3.1	20	18	106
	'78	0.13	—	2.4	5.2	2.4	14	18	77
	'79	0.05	—	1.1	6.1	3.0	16	18	120

ppm: wet base

2) 香川県沿岸二海域（土庄沖，観音寺沖）の海水， 底質および魚介類中の PCB 濃度

瀬戸内海は海水の移動の少ない一種の湖のような状態であり，その周辺の工場や河川から流れ込む汚染物の浄化作用が少なく，蓄積傾向を示すことが予想される．そこで，海水や底質中の PCB 濃度と魚介類中の PCB 濃度との関係を知るため，昭和47年から昭和49年の3か年香川県沿岸の Fig. 4 に示した土庄および観音寺沖，それぞれ半径 2 km 周辺 10 地点の海水と底質について，

PCB 濃度を測定しその結果を Table 3, 4 に示した．

Table 3 より 測定年度別に比較してみると，土庄沖では PCB 濃度に変化は認め難いが，観音寺沖では若干減少傾向が認められた．また，土庄と観音寺の両海域の比較では，約10倍観音寺沖の底質が高い傾向を示した．

Table 4 より，土庄沖と観音寺沖の PCB の構成割合を比較すると，土庄沖では KC-500, KC-600 タイプの高塩素型 PCB の比率が高く，観音寺沖では KC-300, KC-400 タイプの低塩素型 PCB の比率が高くなっていて，

両海域間で著しく PCB の汚染形態が異なっているのが認められた。このことは明らかに両海域間で、PCB の汚染源が異なっていることを意味している。さらに、PCB 濃度について両海域を比較してみると、海水については観音寺 (0.028 ppb) の方が土庄 (0.012 ppb) よりも 2.33 倍濃度が高く、底質についても、観音寺 (0.084

ppm) の方が土庄 (0.015 ppm) よりも 5.6 倍高くなっているのが認められた。しかし、これらの底質の PCB 濃度はいずれも環境庁の決めた暫定除去基準の 10 ppm よりも著しく低い値であった。

次に、この両海域で採取された昭和47年から昭和54年までの魚介類中の PCB 濃度の分析結果を Table 5 に

Table 3. PCB Content in Sediment at the Coasts in Kagawa Prefecture

Year	Place	PCB (ppm, dry base)			
		Tonosho		Kanonji	
		Range	Mean (N)	Range	Mean (N)
1972		0.01 -0.03	0.016 (10)	0.11 -0.32	0.180 (10)
'73		0.004-0.032	0.015 (10)	0.02 -0.23	0.084 (10)
'74		0.004-0.072	0.017 (10)	0.018-0.427	0.121 (10)

Table 4. Analytical Results of PCB Content in Sea Water and Sediment at the Coasts in Kagawa Prefecture

Place	PCB Content		Constitution ratio
	Seawater (ppb)	Sediment (ppm) (dry base)	
Seashore in Tonosho			
1	0.02	0.007	KC-500:KC-600 2:3
2	0.008	0.007	KC-500:KC-600 2:3
3	0.009	0.022	KC-500:KC-600 2:3
4	0.01	0.007	KC-500:KC-600 4:1
5	0.01	0.041	KC-500:KC-600 2:3
6	0.01	0.032	KC-500:KC-600 1:2
7	0.01	0.004	KC-500:KC-600 4:1
8	0.02	0.010	KC-500
9	0.02	0.008	KC-500:KC-600 4:1
10	0.03	0.012	KC-500:KC-600 2:3
Average	0.012	0.015	
Seashore in Kanonji			
1	0.03	0.036	KC-300:KC-500 3:1
2	0.04	0.056	KC-300:KC-400 1:1
3	0.03	0.030	KC-300:KC-400 1:1
4	0.02	0.020	KC-300:KC-400 1:1
5	0.04	0.067	KC-300:KC-500 3:1
6	0.04	0.16	KC-300:KC-400 1:1
7	0.02	0.13	KC-300:KC-400 1:1
8	0.01	0.026	KC-300:KC-500 3:1
9	0.03	0.23	KC-300:KC-400 1:1
10	0.02	0.082	KC-300:KC-400 1:1
Average	0.028	0.084	

Sampling period: Dec. 1973

Table 5. PCB Content in Fish along the Seashore of Tonosho and Kanonji

Year	Tonosho		Kanonji	
	PCB (ppm)	N	PCB (ppm)	N
1972	1.025	12	1.153	5
'73	0.319	36	0.530	60
'74	0.210	24	0.187	18
'75	0.196	12	0.181	14
'76	0.175	16	0.244	12
'77	0.087	14	0.288	13
'78	0.075	15	0.261	14
'79	0.129	13	0.164	25

ppm: wet base

Fig. 4. Sampling points of sea water and sediment at the coasts in Kagawa prefecture **Fig. 5.** PCB content in fish along the seashore of Tonosho and Kanonji, 1972~1979

またその変化を Fig. 5 に示した。

Fig. 5 より、両海域とも開放系への PCB の使用が禁止された昭和47年以降、急速に PCB 濃度が減少していることが認められた。昭和49年から昭和54年までの間、土庄沖ではゆるやかな減少傾向が認められたが、観音寺沖では減少傾向は認められなかった。このことは、土庄沖では播磨灘周辺の工場群が PCB の汚染源として考えられるが、昭和47年以降その地域での PCB 汚染がなくなり、その結果魚介類中の PCB 濃度が徐々に減少していったことを示していると思われる。しかし、観音寺沖については燧灘周辺に PCB の汚染源があり、禁止後もしばらくの間 PCB 汚染が継続していたものと思われる。

この両海域で採取された異なった魚種間の PCB の濃度および構成形態については、検体数が少なく比較できなかった。

結 論

1) 香川県沿岸で採取された魚介類総計 904 件の PCB を測定したところ、漸次減少の傾向が認められ、昭和47年当時の約 1/5 に減少した。また、厚生省の暫定基準 3 ppm を上回るものは昭和51年以降検出されなくなった。

2) 魚種による PCB 蓄積量の変化ではメバル、アイナメ、カレイは蓄積性が少なく、コノシロ、アナゴ、ニベ、ボラといった雑食性の魚種では蓄積性が高いことが認められた。

3) 各魚種ともに PCB の構成割合では、低塩素型が減少し、高塩素型が増加していることが認められた。特に KC-500 タイプの PCB について顕著な増加が認められた。

4) 観音寺沖と土庄沖の両海域での魚介類、海水、底質中の PCB 濃度を比較したところ、いずれの検体も観音寺沖の方が高いことが認められた。また、PCB の形態も観音寺沖では低塩素型 (KC-300, KC-400 タイプ)、土庄沖では高塩素型 (KC-500, KC-600 タイプ) が主成分で、両海域の汚染形態に著しい差異が認められた。

本報告の要旨は日本食品衛生学会第40回学術講演会(昭和55年10月、長野市)において発表した。

文 献

- 1) 厚生省環境衛生局: PCB 分析法に関する研究 (1972年1月)。
- 2) 環境庁水質保全局: PCB による環境汚染実態調査における水質、土壌、底質および農作物中の PCB 分析法 (1972年7月)。