

## 有機スズ化合物の衛生化学的研究 (第9報\*) 魚介類中のトリブチルスズ及びトリフェニルスズ化合物含有量 (1994-1999)

水石和子\*\*, 小野恭司\*\*, 雨宮 敬\*\*  
伊藤弘一\*\*, 竹内正博\*\*\*

### Hygienic Chemicals Studies on Organotin Compounds (IX\*) Content of Tributyltin and Triphenyltin Compounds in Fish and Shellfish (1994-1999)

Kazuko MIZUSHI\*\*, Yasushi ONO\*\*, Takasi AMEMIYA\*\*  
Koichi ITO\*\* and Masahiro TAKEUCHI\*\*\*

A survey of tributyltin (TBT) and triphenyltin (TPT) compounds in fish and shellfish was performed from 1994 to 1999. The fish, 1059, were purchased from the Tokyo central market and consisted of groups: A) cultured fish, B) bay or inshore fish and shellfish, C) offshore fish and D) imported fish and shellfish. The annual averages of TBT in the samples were 0.02ppm in 1994 to 1997 and 0.01ppm in 1998 and 1999. In the case of TPT, the annual averages were 0.01ppm every year except 1996. These values were 1/7-1/16 for TBT and 1/17-1/22 for TPT compared with the averages resulting from the previous investigation of TBT and TPT in fish performed during 1989-1990. A law banning the production and use of TBT and TPT has been in force since 1991 in Japan. It was evident that, following the restriction on TBT and TPT, their levels in fish and shellfish had decreased. These decreases may reflect the banning of TBT and TPT use in marine environments in Japan.

**Keywords:** トリブチルスズ化合物 tributyltin compound, トリフェニルスズ化合物 triphenyltin compound, 防汚塗料 antifouling paints, 魚介類 fish and shellfish, 含有量 contents, 環境汚染 environmental pollution

#### 緒 言

トリブチルスズ (TBT) 化合物, トリフェニルスズ (TPT) 化合物などの有機スズ化合物は船底塗料や漁網防汚剤として使われてきたが, 海洋汚染, 食物連鎖による生物濃縮, 魚介類への蓄積が判明し, 大きな環境汚染の問題となった。その結果, 我が国では1991年に化審法 (化学物質の審査及び製造に関する法律) でその製造と使用が規制されている。

著者らは, 1988年度から1990年度に渡って都内で搬入した魚介類についてTBT及びTPT汚染調査を行い, 法による規制前の汚染レベルを把握している。今回の調査では, 規制後の1994年から1999年度に都内で購入, 入手した魚介試料についてTBT, TPT含有量を測定, 化審法による規制の有効性の確認とその後の汚染レベルの推移を観察し, 現状レベルでの魚介類の食品安全性を評価した。

#### 調 査 法

##### 1. 試料

1994年4月から1999年3月までの期間に東京卸売市場内において購入した魚介類1059検体を試料とした。試料はA) 養殖魚介類, B) 湾内及び沿岸魚介類, C) 沖合魚類・その他の魚類及びD) 輸入魚介類に分類し, 購入後仲買人を通して出荷地を確認した。

##### 2. 試料調製

既報<sup>1)</sup>に従って処理して調製した試料は, -40℃のフリ-ザ-に保存した。

##### 3. 分析法

既報<sup>1,2)</sup>に従ってTBT及びTPTを測定し, 結果はTBTについてはピストリブチルスズオキシド (TBTO) 換算, TPTについては塩化トリフェニルスズ (TPTC) 換算で表示した。

#### 調 査 結 果

1994 - 1999年度の試料の測定結果をTable1-9に示す。

\* 第8報, 東京衛研年報, 42, 86-89, 1991

\*\* 東京都立衛生研究所理化学部微量分析研究科 169-0073 東京都新宿区百人町3-24-1

\*\* The Tokyo Metropolitan Research Laboratory of Public Health  
3-24-1, Hyakunin-cho, Shinjuku-ku, Tokyo, 169-0073 Japan

\*\*\* 東京都立衛生研究所理化学部

Table 1. Result of Cultured Fish and Shellfish

(annual average values : TBT/TPT,  $\mu\text{g/g}$ )

	sample No.	species No.	TBT	TPT
1994	31	10	0.03	0.01
1995	29	7	0.05	0.01
1996	30	11	0.04	0.02
1997	42	12	0.04	0.01
1998	37	10	0.03	0
1999	35	9	0.02	0

Table 2. Result of Inshore Fish and Shellfish

(annual average values : TBT/TPT,  $\mu\text{g/g}$ )

	sample No.	species No.	TBT	TPT
1994	83	38	0.01	0.01
1995	88	38	0.01	0.01
1996	84	37	0.01	0.03
1997	58	33	0.01	0.02
1998	43	24	0.01	0.02
1999	45	32	0.01	0.02

Table 3. Result of offshore Fish

(annual average values : TBT/TPT,  $\mu\text{g/g}$ )

	sample No.	species No.	TBT	TPT
1994	56	21	0.01	0.01
1995	71	33	0.02	0.02
1996	57	31	0.01	0.04
1997	44	23	0.01	0.01
1998	48	28	0.01	0.01
1999	61	35	0.01	0.01

Table 1は A) 養殖魚介類, Table 2は B) 湾内及び沿岸魚介類, Table 3は C) 沖合魚類・その他魚類及びTable 4は D) 輸入魚介類についての各年度における検査数, 種の数とTBT及びTPTの平均濃度で, Table 5は全魚介類の各年度における検査数, 種の数とTBT及びTPTの平均濃度である。Table 6は A) 養殖魚介類, Table 7は B) 湾内及び沿岸魚介類, Table 8は C) 沖合魚類・その他の魚類について0.03 ppm ( $\mu\text{g/g}$ ) 以上のTBTあるいはTPTを検出した魚介類の結果を示した。Table 9は D) 輸入魚介類の検査結果を示した。

最初にTBTの含有量について述べる。

A) 養殖魚介類では1994年度の平均は0.03 ppm, 1995年が0.05 ppmで最も高くなり, その後1996年-1999年度の平均はそれぞれ0.04 ppm, 0.04 ppm, 0.03 ppm, 0.02 ppmとなり, 横這いあるいは微減傾向であった。年度全体の平均は0.036 ppmとなる。各年度での養殖魚介類の最高値検出値のものはシマアジ(1994年度: 0.28 ppm, 1997: 0.30 ppm), カンパチ(1995: 0.35 ppm, 1996: 0.24 ppm, 1999: 0.14 ppm), スズキ(1998, 0.18 ppm)であった。

B) 湾内及び沿岸魚介類, 及びC) 沖合魚類・その他魚

Table 4. Result of Imported Fish and Shellfish

(annual average values : TBT/TPT,  $\mu\text{g/g}$ )

	sample No.	species No.	TBT	TPT
1994	24	17	0.01	0.01
1995	15	12	0.02	0
1996	22	19	0	0
1997	11	8	0.01	0.01
1998	31	24	0	0
1999	14	9	0	0

Table 5. Result of Total Fish and Shellfish

(annual average values : TBT/TPT,  $\mu\text{g/g}$ )

	sample No.	species No.	TBT	TPT
1994	194	86	0.02	0.01
1995	203	90	0.02	0.01
1996	193	98	0.02	0.03
1997	155	76	0.02	0.01
1998	159	85	0.01	0.01
1999	155	85	0.01	0.01

類では各年度でほとんど平均は変化していない。年度全体の平均は0.01 ppmである。湾内及び沿岸魚介類の最高値検出値のものはスズキ(1994年度: 0.12 ppm, 1998: 0.05 ppm), タチウオ(1995: 0.19 ppm), イシモチ(1996, 0.06 ppm), フウセイ(1997, 0.11 ppm)及びアサリ(1999, 0.09 ppm)であった。沖合魚類・その他の最高値検出値のものはマイワシ(1994年度: 0.12 ppm, 1996: 0.25 ppm, 1998: 0.12 ppm), カマス(1995: 0.18 ppm), マサバ(1997: 0.09 ppm, 1999: 0.17 ppm)であった。

D) 輸入魚介類では1995年度の平均が0.02 ppmで, その他の年度は0.01 ppmであった。年度全体の平均は0.005 ppmと他の群に比べて低値である。輸入魚介類の最高値検出値のものはアカガイ(1994年度: 0.11 ppm, 1997: 0.04 ppm, 1998: 0.07 ppm), アゲマキ(1995: 0.09 ppm), サワラ(1996: 0.02 ppm)及びマダイ(1999, 0.01 ppm)であった。

各年度の全試料の平均は, 1997年までは0.02 ppmであったが, その後は平均は0.01 ppmと半減している。

次にTPTについて述べる

A) 養殖魚介類では, 1996年度が0.02 ppmであったが, 1997年度までほぼ0.01 ppmレベルで推移し, その後平均は0.005 ppm未満である。年度全体の平均は0.008 ppmとなる。最高検出値のものはカキ(1994年度: 0.22 ppm, 1996: 0.08 ppm), カンパチ(1995: 0.18 ppm, 1999: 0.02 ppm), マダイ(1997, 0.05 ppm)ハマチ(1998, 0.03 ppm)であった。

B) 湾内及び沿岸魚介類及びC) 沖合魚類・その他魚類では1996年度にそれぞれ0.03 ppm, 0.04 ppmと平均がやや高いが, 湾内及び沿岸魚介類はその後は微かずつ低減, 沖合魚類・その他の魚類では0.01 ppmレベルで推移してい

Table 6. Results of Cultures Fish and Shellfish (TBT/TPT,  $\mu\text{g/g}$ ) samples (No., range, average)

1994	1997
カンパチ ( <i>Seliora dumerili</i> ) (2, 0.00-0.14/0.00-0.02)	シマアジ ( <i>Pseudocaranx dsntex</i> ) (6, 0.00-0.30/0.00-0.04, 0.07/0.01)
シマアジ ( <i>Pseudocaranx dsntex</i> ) (3, 0.01-0.23/0.00-0.02, 0.10/0.01)	スズキ (sea-bass, <i>Lataolabrax japonicus</i> ) (2, 0.00-0.14/0.01)
ハマチ (yellow tail, <i>Siriois quinqueradiata</i> ) (3, 0.02/0.01)	ハマチ (yellow tail, <i>Siriois quinqueradiata</i> ) (5, 0.00-0.16/0.00-0.02, 0.05/0.01)
ヒラマサ ( <i>Seliola, dumerili</i> ) (4, 0.00-0.03/0.00-0.01, 0.02/0.00)	マダイ (sea bream, <i>Pagrus major</i> ) (4, 0.01-0.16/0.00-0.05, 0.07/0.02)
マダイ (sea bream, <i>Pagrus major</i> ) (5, 0.00-0.08/0.00-0.01, 0.05/0.00)	マハタ ( <i>Epinephelus septemfasciatus</i> ) (1, 0.03/0.00)
マハタ ( <i>Epinephelus septemfasciatus</i> ) (1, 0.11/0.02)	カキ (oyster, <i>Crassotres gigas</i> ) (6, 0.00-0.05/0.01-0.04, 0.02/0.02)
カキ (oyster, <i>Crassotres gigas</i> ) (5, 0.02-0.11/0.00-0.22, 0.06/0.05)	ホタテガイ (scallap, <i>Patinopecten yessoensis</i> ) (10, 0.01-0.09/0.00-0.01, 0.04/0.00)
ホタテガイ (scallap, <i>Patinopecten yessoensis</i> ) (6, 0.00-0.28/0.00-0.01, 0.12/0.00)	
1995	1998
カンパチ ( <i>Seliora dumerili</i> ) (3, 0.06-0.35/0.00-0.01, 0.18/0.01)	シマアジ ( <i>Pseudocaranx dsntex</i> ) (4, 0.01-0.04/0.00-0.02, 0.02/0.01)
シマアジ ( <i>Pseudocaranx dsntex</i> ) (3, 0.01-0.03/0.00-0.01, 0.02/0.01)	スズキ (sea-bass, <i>Lataolabrax japonicus</i> ) (4, 0.01-0.18/0.00-0.02, 0.07/0.01)
ハマチ (yellow tail, <i>Siriois quinqueradiata</i> ) (4, 0.01-0.05/0.00-0.04, 0.02/0.01)	ハマチ (yellow tail, <i>Siriois quinqueradiata</i> ) (4, 0.00-0.04/0.00-0.03, 0.04/0.01)
マダイ (sea bream, <i>Pagrus major</i> ) (6, 0.01-0.09/0.00-0.01, 0.04/0.00)	マダイ (sea bream, <i>Pagrus major</i> ) (3, 0.03/0.00-0.01, 0.03/0.00)
マハタ ( <i>Epinephelus septemfasciatus</i> ) (3, 0.03/0.01-0.02, 0.03/0.02)	カキ (oyster, <i>Crassotres gigas</i> ) (5, 0.01-0.09/0.00-0.01, 0.05/0.00)
カキ (oyster, <i>Crassotres gigas</i> ) (5, 0.01-0.13/0.00-0.01, 0.04/0.01)	ホタテガイ (scallap, <i>Patinopecten yessoensis</i> ) (8, 0.01-0.03/0.00-0.01, 0.02/0.00)
ホタテガイ (scallap, <i>Patinopecten yessoensis</i> ) (5, 0.00-0.08/0.00, 0.03/0.00)	
1996	1999
カンパチ ( <i>Seliora dumerili</i> ) (5, 0.01-0.24/0.02-0.07, 0.06/0.04)	カンパチ ( <i>Seliora dumerili</i> ) (2, 0.00-0.14/0.00-0.02)
シマアジ ( <i>Pseudocaranx dsntex</i> ) (1, 0.12/0.01)	シマアジ ( <i>Pseudocaranx dsntex</i> ) (4, 0.01-0.02/0.00-0.01, 0.02/0.00)
ハマチ (yellow tail, <i>Siriois quinqueradiata</i> ) (3, 0.03-0.09/0.00-0.02, 0.05/0.02)	ハマチ (yellow tail, <i>Siriois quinqueradiata</i> ) (4, 0.01-0.03/0.00-0.01, 0.01/0.01)
ヒラメ (flounder, <i>Paralichthys olivaceus</i> ) (1, 0.00/0.01)	ヒラメ (flounder, <i>Paralichthys olivaceus</i> ) (4, 0.01/0.00-0.01, 0.02/0.00)
マダイ (sea bream, <i>Pagrus major</i> ) (3, 0.01-0.04/0.00-0.01, 0.03/0.01)	マダイ (sea bream, <i>Pagrus major</i> ) (5, 0.01-0.04/0.00-0.01, 0.02/0.00)
カキ (oyster, <i>Crassotres gigas</i> ) (5, 0.00-0.04/0.00-0.08, 0.01/0.03)	カキ (oyster, <i>Crassotres gigas</i> ) (4, 0.00-0.04/0.00-0.01, 0.02/0.00)
ホタテガイ (scallap, <i>Patinopecten yessoensis</i> ) (8, 0.00-0.08/0.00-0.04, 0.05/0.02)	ホタテガイ (scallap, <i>Patinopecten yessoensis</i> ) (8, 0.01-0.05/0.00-0.01, 0.03/0.00)

る。年度全体の平均はそれぞれ0.015 ppm, 0.016 ppmである。湾内及び沿岸魚介類では最高検出値のものはスズキ (1994年度: 0.16 ppm, 1998: 0.06 ppm), クロムツ (1995: 0.52 ppm), イシモチ (1996: 0.33 ppm, 1999: 0.11 ppm), アサリ (1997, 0.31 ppm) であり, 沖合魚類・その他の魚類では最高検出値のものはマイワシ (1994: 0.12 ppm), マコガレイ (1995: 0.24 ppm), ヨロイタチウオ (1996: 0.39 ppm), キンメ (1997: 0.11 ppm, 1999: 0.13 ppm) 及びマサバ (1998, 0.08 ppm) であった。

D) 輸入魚介類では1994と1997年度の平均が0.01 ppmであるが, その他の年度は0.005 ppm未満で, 年度全体の平均も0.003 ppmと他の群に比べて低値である。輸入魚介類では最高検出値のものはヒラサワラ (1994年度: 0.05 ppm), アカガイ (1995: 0.01 ppm, 1998: 0.07 ppm), サワラ (1996: 0.33 ppm), マカジキ (1997: 0.03 ppm) 及びマダイ (1999: 0.01 ppm) であった。

各年のA) からD) までの全試料の平均は, 1996年が0.03 ppmであったが, その他の年度の平均は0.01 ppmであった。

## 考 察

### 1. 魚介類中のTBT及びTPT含有量の推移

1994年度から1999年度の6年間, 東京都搬入魚介類についてTBT及びTPT汚染調査を行った。対象魚介類数は1059検体である。

TBTは各年度の全試料の平均が1994-1997年度までは0.02 ppmで, その後は0.01 ppmを推移し, TPTは1996年度0.03 ppmを除いて他の年度はすべて平均0.01 ppmであった。化審法による規制以前の1989と1990年度に行った前回の調査結果では, TBT/TPTがそれぞれ0.00-1.05 / 0.00-1.55 ppm, 平均0.14/0.22 ppmと0.00 - 1.31 / 0.00 - 1.23 ppm, 平均0.16 / 0.17 ppmであった。今回の調査結果はこれらの

Table 7. Results of Bay or Inshore Fish and Shellfish (TBT/TPT,  $\mu\text{g/g}$ ) samples (No., range, average)

1994	アイナメ (greenling, <i>Hexagrammons Otakii</i> ) (9, 0.00-0.03/0.00-0.05, 0.01/0.01)	シロギス ( <i>Sillago japonica</i> ) (1, 0.00/0.03)
イサキ (gtunt, <i>Parapristipoma</i> ) (5, 0.00-0.04/0.00-0.04, 0.01/0.01)	スズキ (sea-bass, <i>Lataolabrax japonicus</i> ) (8, 0.01-0.06/0.01-0.28, 0.04/0.07)	チダイ ( <i>Evyritis japonica</i> ) (2, 0.01-0.03/0.02-0.05)
イシモチ (croaker, <i>Argyrosomus argentatus</i> ) (2, 0.05-0.06/0.02-0.06)	ワラサ (yellow tail, <i>Sirioia quinqueradiata</i> ) (2, 0.0-0.01/0.0-0.09)	アサリ (short-necked clam, <i>Tapes (Amygdala) japonica</i> ) (2, 0.03-0.09/0.00)
イボダイ ( <i>Psenopsis anomala</i> ) (4, 0.01-0.04/0.00-0.01, 0.02/0.01)	ボタンエビ (Botanebi) (1, 0.01/0.05)	ムラサキガイ ( <i>Mytilus edulis</i> ) (9, 0.00-0.01/0.00-0.07, 0.01/0.01)
クロムツ ( <i>Scombrops boops</i> ) (1, 0.00/0.06)	1997	
サヨリ ( <i>Hyporhamphus sajori</i> ) (1, 0.04/0.01)	アイナメ (greenling, <i>Hexagrammons Otakii</i> ) (3, 0.00-0.03/0.00-0.22, 0.01/0.08)	
スズキ (sea-bass, <i>Lataolabrax japonicus</i> ) (4, 0.04-0.12/0.01-0.16, 0.08/0.06)	イイダコ ( <i>Octopus fangsiao</i> ) (1, 0.06/0.02)	
タチウオ (hairtail, <i>Trichiurus lepturus</i> ) (1, 0.09/0.04)	イサキ (gtunt, <i>Parapristipoma</i> ) (2, 0.00-0.03/0.01)	
アサリ (short-necked clam, <i>Tapes (Amygdala) japonica</i> ) (2, 0.01-0.02/0.00-0.14, 0.02/0.07)	クロムツ ( <i>Scombrops boops</i> ) (1, 0.00/0.03)	
ウバガイ (Ubagai) (1, 0.04/0.00)	サワラ (Spanish mackerel, <i>Scomberomorus niphonius</i> ) (1, 0.01/0.03)	
ムラサキガイ ( <i>Mytilus edulis</i> ) (3, 0.02-0.04/0.00-0.03, 0.03/0.01)	スズキ (sea-bass, <i>Lataolabrax japonicus</i> ) (8, 0.01-0.08/0.01-0.06, 0.04/0.03)	
1995	フウセイ (Huusei) (1, 0.11/0.08)	
クロムツ ( <i>Scombrops boops</i> ) (4, 0.00-0.01-0.52, 0.00/0.02)	アサリ (short-necked clam, <i>Tapes (Amygdala) japonica</i> ) (3, 0.00-0.09/0.00-0.31, 0.03/0.11)	
スズキ (sea-bass, <i>Lataolabrax japonicus</i> ) (8, 0.01-0.05/0.01-0.06, 0.02/0.02)	1998	
タチウオ (hairtail, <i>Trichiurus lepturus</i> ) (2, 0.02-0.19/0.01-0.02)	アイナメ (greenling, <i>Hexagrammons Otakii</i> ) (4, 0.00/0.00-0.03, 0.01/0.08)	
アサリ (short-necked clam, <i>Tapes (Amygdala) japonica</i> ) (5, 0.00-0.13/0.00-0.06, 0.00/0.01)	イボダイ ( <i>Psenopsis anomala</i> ) (1, 0.03/0.00)	
1996	カマス (barracuda, <i>Sphyaena Japonica</i> ) (1, 0.01/0.03)	
アイナメ (greenling, <i>Hexagrammons Otakii</i> ) (8, 0.00-0.01/0.00-0.23, 0.00/0.05)	サワラ (Spanish mackerel, <i>Scomberomorus nihonius</i> ) (1, 0.01/0.03)	
アカアマダイ ( <i>Branchiostegus japonicus</i> ) (2, 0.00/0.00-0.04)	スズキ (sea-bass, <i>Lataolabrax japonicus</i> ) (8, 0.01-0.08/0.01-0.06, 0.04/0.03)	
イサキ (gtunt, <i>Parapristipoma</i> ) (2, 0.00-0.02/0.03-0.06)	アサリ (short-necked clam, <i>Tapes (Amygdala) japonica</i> ) (1, 0.05/0.02)	
イシモチ (croaker, <i>Argyrosomus argentatus</i> ) (3, 0.01-0.06/0.05-0.33, 0.03/0.15)	1999	
イナダ ( <i>Seliora quinqueradiata</i> ) (2, 0.01/0.05-0.06)	イシモチ (croaker, <i>Argyrosomus argentatus</i> ) (1, 0.08/0.11)	
イボダイ ( <i>Psenopsis anomala</i> ) (2, 0.01-0.03/0.01)	カマス (barracuda, <i>Sphyaena Japonica</i> ) (1, 0.03/0.03)	
ウスメバル ( <i>Sebastes inermis</i> ) (6, 0.00-0.01/0.00-0.03, 0.01/0.01)	スズキ (sea-bass, <i>Lataolabrax japonicus</i> ) (3, 0.03-0.04/0.01-0.04, 0.03/0.02)	
カサゴ ( <i>Sebistiscus marmoratus</i> ) (1, 0.01/0.03)	ブリ ( <i>Seliola quinqueradiata</i> ) (1, 0.01/0.03)	
カタクチイワシ ( <i>Engraulis japonicus</i> ) (1, 0.00/0.01)	アサリ (short-necked clam, <i>Tapes (Amygdala) japonica</i> ) (1, 0.016/0.005)	
カワハギ ( <i>Stephanolepis cirrhifer</i> ) (1, 0.01/0.05)		
クロムツ ( <i>Scombrops boops</i> ) (1, 0.01/0.31)		
コノシロ (gizzard shad, <i>Clupanodon punctatus</i> ) (1, 0.03/0.01)		

平均と比較してTBTは1/14-1/16, TPTは1/17-1/22まで低下した。

TBTでは養殖魚介類のシマアジ (0.28 ppm, 1994年度検出以下同じ, 0.30 ppm, 1997), カンパチ (0.35 ppm, 1995, 0.24 ppm, 1995, 0.14 ppm, 1999), スズキ (0.18 ppm, 1998) などが, 湾内・沿岸魚介類ではスズキ (0.12 ppm, 1994), タチウオ (0.19 ppm, 1995), フウセイ (0.11 ppm, 1997), 沖合魚・その他の魚類ではマイワシ

(0.12 ppm, 1994, 1998, 0.25 ppm, 1996), カマス (0.18 ppm, 1995), マサバ (0.17 ppm, 1999), 輸入魚介類ではアカガイ (0.11 ppm, 1994) が0.1 ppm以上検出された。TBTの検出結果は, 養殖魚介類, 湾内・沿岸魚介類に種類及び濃度ともに多くかつ高く検出される傾向がみられた。過去に湾内や閉鎖性海域に大量に使用された残留漁網防汚剤由来による汚染の寄与率が高いことが考えられた。

TPTでは養殖魚介類のカキ (0.22 ppm, 1994), 湾内・

Table 8. Results of Offshore Fish and Others (TBT/TPT,  $\mu\text{g/g}$ ) samples (No., range, average)

1994	マサバ (mackerel, <i>Pneumophrus Japonicus</i> ) (4, 0.01-0.06/0.01-0.04, 0.03/0.02)
カマス (barracuda, <i>Sphyraena Japonica</i> ) (2, 0.03/0.01)	メダイ ( <i>Gymnocranius griseus</i> ) (3, 0.00-0.01/0.01-0.07, 0.00/0.03)
キンメ ( <i>Baryx splendens</i> ) (2, 0.00/0.00-0.07)	ヨロイタチウオ ( <i>Hoplobrotula armada</i> ) (1, 0.00/0.39)
マイワシ (sardine, <i>Sardinops melanoticta</i> ) (8, 0.00-0.12/0.00-0.08, 0.03/0.02)	1997
マサバ (mackerel, <i>Pneumophrus Japonicus</i> ) (8, 0.00-0.03/0.00-0.02, 0.02/0.01)	アイナメ (greenling, <i>Hexagrammons Otaki</i> ) (6, 0.00/0.01-0.04, 0.00/0.02)
1995	キンメ ( <i>Baryx splendens</i> ) (1, 0.00/0.11)
カマス (barracuda, <i>Sphyraena Japonica</i> ) (1, 0.18/0.03)	スルメイカ (sagittated calamary, <i>Todarandes pacificus</i> ) (4, 0.01-0.03/0.00-0.01, 0.02/0.01)
キハダ ( <i>Thunnus albacares</i> ) (1, 0.01/0.04)	マイワシ (sardine, <i>Sardinops melanoticta</i> ) (5, 0.00-0.08/0.00-0.04, 0.02/0.01)
キンメ ( <i>Baryx splendens</i> ) (2, 0.00-0.01/0.05-0.07)	マコガレイ (marbled sole, <i>Limanda yokohamae</i> ) (4, 0.00-0.01/0.00-0.03, 0.01/0.01)
サワラ (Spanish mackerel, <i>Scoromorus nipponius</i> ) (4, 0.00-0.06/0.01-0.08, 0.02/0.04)	マサバ (mackerel, <i>Pneumophrus Japonicus</i> ) (4, 0.00-0.09/0.00-0.04, 0.06/0.02)
スミイカ (Sumiika) (1, 0.05/0.00)	メカジキ ( <i>Xiphias gladius</i> ) (1, 0.01/0.06)
スルメイカ (sagittated calamary, <i>Todarandes pacificus</i> ) (5, 0.01-0.03/0.00-0.01, 0.01/0.00)	1998
マイワシ (sardine, <i>Sardinops melanoticta</i> ) (10, 0.01-0.13/0.00-0.06, 0.04/0.02)	キンメ ( <i>Baryx splendens</i> ) (2, 0.00/0.05-0.08)
マガレイ ( <i>Limanda herzensteini</i> ) (1, 0.00/0.00)	ハタハタ ( <i>Arctoscopus japonicus</i> ) (1, 0.03/0.01)
マコガレイ (marbled sole, <i>Limanda yokohamae</i> ) (5, 0.00-0.02/0.00-0.24, 0.01/0.05)	マイワシ (sardine, <i>Sardinops melanoticta</i> ) (4, 0.01-0.12/0.00-0.01, 0.05/0.01)
マサバ (mackerel, <i>Pneumophrus Japonicus</i> ) (8, 0.01-0.12/0.00-0.03, 0.03/0.02)	マサバ (mackerel, <i>Pneumophrus Japonicus</i> ) (3, 0.01-0.08/0.01-0.08, 0.04/0.03)
メヌケ (Menuke) (2, 0.01/0.00-0.04)	メジマグロ (tuna, <i>Thunnus thynnus</i> ) (1, 0.04/0.01)
1996	1999
イトヨリ ( <i>Nemipterus virgatus</i> ) (1, 0.01/0.05)	キンメ ( <i>Baryx splendens</i> ) (1, 0.00/0.13)
キンメ ( <i>Baryx splendens</i> ) (4, 0.00/0.01/0.02-0.35, 0.00/0.21)	サワラ (Spanish mackerel, <i>Scoromorus nipponius</i> ) (1, 0.04/0.06)
サワラ (Spanish mackerel, <i>Scoromorus nipponius</i> ) (1, 0.00/0.04)	スズキ (sea-bass, <i>Lataolabrax japonicus</i> ) (4, 0.01-0.02/0.00-0.03, 0.02/0.01)
シイラ (dorado, <i>Coryphaena hippurus</i> ) (1, 0.02/0.04)	ヒラマサ (Seliola, <i>dumerili</i> ) (1, 0.01/0.04)
スズキ (sea-bass, <i>Lataolabrax japonicus</i> ) (2, 0.02/0.02-0.04)	マイワシ (sardine, <i>Sardinops melanoticta</i> ) (5, 0.01-0.04/0.00-0.02, 0.02/0.01)
スルメイカ (sagittated calamary, <i>Todarandes pacificus</i> ) (5, 0.00-0.03/0.00-0.05, 0.01)	マサバ (mackerel, <i>Pneumophrus Japonicus</i> ) (3, 0.02-0.17/0.02-0.03, 0.07/0.02)
タチウオ (hairtail, <i>Trichiurus lepturus</i> ) (1, 0.00/0.05)	
ヒラメ (flounder, <i>Paralichthys olivaceus</i> ) (2, 0.00-0.02/0.01-0.30)	
マイワシ (sardine, <i>Sardinops melanoticta</i> ) (7, 0.00-0.25/0.01-0.13, 0.06/0.05)	
マカジキ ( <i>Tetrapturus audax</i> ) (1, 0.01/0.05)	

沿岸魚介類ではスズキ (0.16 ppm, 1994), クロムツ (0.52 ppm, 1995, 0.31ppm, 1996), アイナメ (0.23 ppm, 1996, 0.22 ppm, 1997), イシモチ (0.33 ppm, 1996, 0.11 ppm, 1999), アサリ (0.31 ppm, 1997) 沖合魚・その他の魚類ではマコガレイ (0.24 ppm, 1995), キンメ (0.35 ppm, 1996, 0.11 ppm, 1997, 0.13 ppm, 1999), マサバ (0.17 ppm, 1999), 輸入魚介類ではサワラ (0.13 ppm, 1996) などが0.1 ppm以上検出された。TPTの検出結果は湾内・沿岸魚介類及び沖合魚・その他の魚介類で高く検出

される傾向があり, これらは船底塗料由来の汚染と考えられる。現在では, TPT化合物の船底塗料への使用規制は我が国のみで採られており, 外国ではTPT使用規制は無い。TPTによる魚介類汚染は海洋中の残留TPTよりも, 主に外国船底塗料の海洋汚染の寄与率が高いことも考えられる。

## 2. 魚介類の食品安全性評価

6年間の調査結果から魚介類の安全性評価を行った。今回の調査した1059試料からは, 厚生省が勧告したTBTの

Table 9. Results of Imported Fish and Shellfish (TBT/TPT,  $\mu\text{g/g}$ ) samples (No., range, average)/ \* TBT, TPT < 0.005  $\mu\text{g/g}$ 

1994	イトヨリ ( <i>Nemipterus virgatus</i> ) (1, 0.00/0.00-0.01, 0.00/0.01)	マナガツオ (harvest fish, <i>Pampus argenteus</i> ) (1)
	ギンダラ (Gindara) (1, 0.00/0.01)	メロ (mero) (2), モンゴイカ (mongoika cuttlefish) (1),
	ドブガレイ (Dobugarei) (1, 0.00/0.02)	ワカサギ (pond smelt) (1), アマエビ (amaebi shrimp) (1)
	ニシン (Herring) (1, 0.02/0.01)	1997
	ヒラサワラ (himesawara mackerel) (1, 0.00/0.05)	アカシタピラメ (sole) (1, 0.00/0.01)
	マナガツオ (harvest fish, <i>Pampus argenteus</i> ) (1, 0.00/0.01)	ヒラメ (flounder, <i>Paralichthys olivaceus</i> ) (2, 0.00/0.00-0.01, 0.00/0.01)
	アカガイ (ark shell, <i>Andara (Scapharca) broughtonii</i> ) (2, 0.05-0.11/0.02-0.03, 0.08/0.03)	マアナゴ (coger eel, <i>Astroconger myriaster</i> ) (1, 0.00/0.02)
	サザエ (turban [wreath] shell, torbo) (1, 0.01/0.00)	マナガツオ (harvest fish, <i>Pampus argenteus</i> ) (1, 0.01/0.03)
	* < 0.005 $\mu\text{g/g}$ (No.)	ハマグリ (clam, <i>Meretrix lusoria</i> ) (2, 0.00-0.02/0.00, 0.01/0.00)
	キンメ ( <i>Baryx splendens</i> ) (1), ギンザケ (ginzake) (1),	アカガイ (ark shell, <i>Andara (Scapharca) broughtonii</i> ) (1, 0.04/0.01)
	マサバ (mackerel, <i>Pneumophrus Japonicus</i> ) (1),	サワラ (Spanish mackerel, <i>Scomberomorus niphonius</i> ) (1, 0.00/0.01)
	シロアマダイ (siroamadai sea braam) (2),	ブラックタイガー (blacktiger) (2, 0.00/0.00-0.02, 0.00/0.01)
	タイヘイヨウサケ (taiheiyousake samon) (1),	1998
	ベニザケ ( <i>Oncorhynchus nerka</i> ) (2), マダイ (sea bream, <i>Pagrus major</i> ) (4),	ギンダラ (Gindara) (2, 0.00/0.00-0.01, 0.00/0.01)
	タイラガイ (tairagai shellfish) (1), ハマグリ (clam, <i>Meretrix lusoria</i> ) (2)	アカガイ (ark shell, <i>Andara (Scapharca) broughtonia</i> ) (2, 0.01-0.07/0.00-0.07, 0.04/0.04)
1995		ワタリガニ (watarigani) (1, 0.01/0.00)
	ニシン (Herring) (2, 0.00-0.02/0.00)	* < 0.005 $\mu\text{g/g}$ (No.)
	アカガイ (ark shell, <i>Andara (Scapharca) broughtonii</i> ) (2, 0.00-0.04/0.00-0.01, 0.02/0.01)	アナゴ (coger eel, <i>Astroconger myriaster</i> ) (1), キンメ ( <i>Baryx splendens</i> ) (1),
	タイラガイ (tairagai shellfish) (1, 0.03/0.00)	サワラ (Spanish mackerel, <i>Scomberomorus niphonius</i> ) (1),
	アゲマキ (agemaki shellfish) (1, 0.09/0.00)	マサバ (mackerel, <i>Pneumophrus Japonicus</i> ) (2),
	ハマグリ (clam, <i>Meretrix lusoria</i> ) (1, 0.05/0.00)	シルバー (silver) (1), ドジョウ (loach) (1),
	* < 0.005 $\mu\text{g/g}$ (No.)	ベニザケ ( <i>Oncorhynchus nerka</i> ) (1), シタピラメ (sole) (1),
	アカウオ (akauo) (1), イトヨリ ( <i>Nemipterus virgatus</i> ) (2),	マナガツオ (harvest fish, <i>Pampus argenteus</i> ) (2),
	ギンザケ (ginzake samon) (1), シルバー (silver) (1)	メガジキ (swordfish, broadbill) (1), メルルーサ (mer luza, common hake) (1),
	ベニザケ ( <i>Oncorhynchus nerka</i> ) (1),	メロ (mero) (1), モンゴイカ (mongoika cuttlefish) (2),
	マナガツオ (harvest fish, <i>Pampus argenteus</i> ) (1), メロ (mero) (1)	ヤリイカ (calamary, <i>Doryteuthis bleekersquid</i> ) (1),
1996		マダコ (octopus, <i>Octopus vulgaris</i> ) (1), アマエビ (amaebi) (1),
	クロカジキ (kurokajiki spearfish) (1, 0.01/0.00)	イセエビ (spiny lobster) (1), ハマグリ (clam, <i>Meretrix lusoria</i> ) (1),
	サワラ (Spanish mackerel, <i>Scomberomorus niphonius</i> ) (1, 0.02/0.13)	ブラックタイガー (blacktiger) (3)
	シロサケ (sirosake samon) (1, 0.02/0.00)	1999
	ヒメサワラ (himesawara mackere) (1, 0.01/0.04)	キンキ (bighand thomyhead, <i>Paracaesio xanthurus</i> ) (1, 0.00/0.01)
	サザエ (turban [wreath] shell, turb) (1, 0.00/0.01)	ハマグリ (clam, <i>Meretrix lusoria</i> ) (1, 0.01/0.00)
	タラバガニ (king crab) (1, 0.00/0.01)	ブラックタイガー (blacktiger) (2, 0.00-0.01/0.00-0.01)
	* < 0.005 $\mu\text{g/g}$ (No.)	マダイ (sea bream, <i>Pagrus major</i> ) (3, 0.00-0.01/0.00, 0.001/0.00)
	マサバ (macrel, <i>Pneumophrus Japonicus</i> ) (1), シルバー (silver) (1),	* < 0.005 $\mu\text{g/g}$ (No.)
	サーモン (samon) (1), シロアダイ (siroamadai sea bream) (1),	ギンザケ (ginzake) (1), キンメ ( <i>Baryx splendens</i> ) (1),
	シロシロダイ (sirosirodai sea bream) (1), ニシン (herring) (3)	マサバ (mackerel, <i>Pneumophrus Japonicus</i> ) (1), ホウボウ (houbou) (1),
	ハマダイ (hamadai sea bream) (1), マトウダイ (Zeus faber) (1),	モンゴイカ (mongoika) (3)

1日許容摂取量 (1.6  $\mu\text{g/Kg/日}$ )<sup>4)</sup> と平成11年国民栄養調査による魚介類摂取量 (都民一人一日当たり魚介類摂取量: 84.1  $\text{g/日}$ )<sup>5)</sup> から算出した許容濃度 (0.94 ppm) 及びFAO/WHOが勧告したTPTの1日許容摂取量 (0.5  $\mu\text{g/Kg/日}$ )<sup>6)</sup> から算出した許容濃度 (0.30 ppm) を超えたものは

無かった。また法による規制前の1988 - 1990年度に行った前回の調査<sup>3)</sup> では、養殖魚介類及び内湾・沿岸魚介類で比較的高いTBTが検出され、許容濃度 (前調査では魚介類摂取量を109.9  $\text{g}$  とした: TBT/0.73 ppm, TPT/0.24 ppm) を超えた検体は3年間を通して1.8% (9/512) であったが、

食品安全性の面では問題になるレベルとは考えられないとした。今回の調査結果では、1990年度から1994年度にかけて平均濃度が1/8に減少、その後汚染はほぼ横這い推移していることが明らかである。魚介類のTBT濃度は食品安全性の観点からは安全レベルであるといえる。

TPTについては、前回の調査結果<sup>3)</sup>は食品安全性に問題が無いレベルとは結論できなかった。1998-1999年度の調査で許容濃度を超えたものの割合はそれぞれ30.5、33.3及び21.1%あり、これらはほとんどが船底塗料による汚染の影響を強く受ける内湾内海性の魚介類であった。しかし、これらの魚介類は通常の食生活では摂取量の比較的少ない魚介類に属していることから、通常の摂取では問題が無いであろうとされた。一方、今回の調査ではスズキ、クロムツ、イシモチ、マコガレイ、キンメ、ヒラメ、タチウオ、カキ、アサリなどで0.1 ppm以上のTPTが検出されたが、その範囲は0.11 - 0.52 ppmで許容濃度を超えたものは無かった。また、平均濃度は1990年度から1994年度にかけて1/17となり、法規制後に急激な低減が観察されている。これらの結果は明らかに食品安全性の観点からはTPTの魚介類濃度は安全レベルの領域にあると考えられる。

#### おわりに

1994年度から1999年度の6年間、魚介類(対象数1059検体)中のTBT及びTPTの汚染調査を行った。各年度のTBT平均は1994 - 1997年度までは0.02 ppmで、その後は0.01 ppmを推移しており、TPT平均は1996年度の0.03 ppmを除いて他の年度はすべて0.01 ppmであった。前回の1989-1991年度の調査における各年の平均よりTBTは1/7 - 1/16、TPTは1/17 - 1/22まで低下している。食品安全性の観点からはTBT、TPTとも問題の無いレベルといえる。また、これらの結果から、1991年に我が国の化審法で有機スズ化合物の製造・使用の規制が定められた後直ちに日本の海洋環境におけるTBT及びTPT使用量が減少し、海洋

環境の汚染の改善が急速に図られたことが読みとれる。強力な法規制による環境改善の有効な結果と考えられる。

一方、1990年代後半に環境中の微量の存在で生物に内分泌かく乱作用を及ぼす化学物質の問題が社会的に関心を集め、その内分泌かく乱化学物質の一つとしてTBTが再び環境汚染物質として取り上げられた。現在は、我が国ではTBTは漁網防汚剤、船底塗料としては使用されていないが、欧米の規制は完全ではなく、また、アジアなどその他の国はほとんど規制措置はとられていないので、グローバルな観点からは有機スズ化合物による環境汚染は低下しないと考えられる。現在の汚染レベルは依然としてある種の生物(海産巻貝)に内分泌かく乱作用を及ぼすレベルより高い。我が国においても汚染は法規制により急激な減少はみられたが、その後の汚染は微減少あるいは横這い傾向であり、これからさらに大幅な改善は期待できない。残留化学物質として微量汚染の長期持続が推測され、今後、世界的な規模でTBT、TPT使用量の低減化と環境浄化の手法を図ることが望まれる。

謝辞本調査にあたりご協力頂いた衛生局生活環境部獣医衛生課並びに市場衛生検査所の各位に深謝します。

#### 文 献

- 1) 竹内正博, 水石和子, 山野辺秀夫, 他: 分析化学, 38, 522-528, 1989.
- 2) Mizuishi, K., Takeuchi, M. and Hobo, T.: *Analyst*, 123, 329-335, 1998.
- 3) 竹内正博, 水石和子, 山野辺秀夫, 他: 東京都衛研年報, 42, 77-85, 1991.
- 4) 食品中のビストリブチルスズオキシド(TBTO)の安全性評価検討委員会報告, 昭和60年4月26日.
- 5) FAO/WHO Monograph, 1970 Evaluations of some pesticides residues in food, 1971.
- 6) 厚生労働省: 平成11年国民栄養調査(都民の栄養状況)

\* 追 年報の校正段階でトリブチルスズ(TBT)を使用することを禁止する国際条約が国際海事機関(IMO)で採択された(2001年11月).