

## 解 説

# 多摩川河口域におけるマガキ体内の微量元素の季節変動と流入経路

大矢 悠幾<sup>\*1§</sup>・渡邊 泉<sup>\*2</sup>

Seasonal variation in trace element distribution in the Pacific oyster  
(*Crassostrea gigas*) from the Tamagawa River estuary

Yuki Oya<sup>\*1§</sup> and Izumi Watanabe<sup>\*2</sup>

キーワード：微量元素, 生物指標モニタリング, 環境汚染解析, マガキ, 都市部沿岸域

### 要 旨

先進国主要都市の沿岸部では、様々な元素の人為的流入による汚染が進行しているが、流入経路が複雑で、把握することが困難である。本稿では東京湾でのマガキを生物指標として用いた微量元素濃度の動態解析研究を紹介する。マガキ軟組織での元素濃度について、海水および底質の各主要構成元素であるNaおよびFeと各元素濃度との比を指標として用いることによる流入経路の寄与の評価を試みた結果、Li, V, Cr, Mn, Co, Ni, Cu, Zn, AsとPbの降雨期における表層水経由の寄与増大が明らかとなった。東京湾では、とくにCu, Zn, AsとPbの慢性的な汚染が顕著であった。本稿での紹介事例は新規の手法を活用した評価方法であり、沿岸域での元素動態解析研究の促進への貢献が期待される。

### はじめに

水圏環境に対する人為起源の微量元素流入は生態系のかく乱および水産物消費によるヒトへの健康影響の双方から問題視されている。微量元素は

生命活動の促進あるいは阻害の双方でかかわり、鉄や亜鉛のように生体内で必須とされる必須元素と、ヒ素や鉛のような生体に対して微量でも強い毒性を有する元素も含め、生命活動における機能が明らかではない非必須元素に大別される (He *et al.*, 2005 ; Gu *et al.*, 2018)。これらの元素は自然環境中に普遍的に存在する一方で、人類の活動によって環境中に負荷される (Liu *et al.*, 2018 ; Satheeswaran *et al.*, 2019)。元素は生物によって分解されることがないため、人為起源で流入した元素は恒久的に環境中に残留し、継続的な汚染をもたらすこととなる (Chen *et al.*, 2018; Liu *et al.*, 2018 ; Sobihah *et al.*, 2018)。ゆえに、微量元素の適切な管理による環境流出の防止は重要であり、その予防策として、環境への放出経路の把握が必要である。しかし、水圏環境に対する流出経路は下水といった生活系排水、農業および工業排水といった人為起源排水、大雨時に処理されずに川へ流れ出る下水 (雨天時越流水) や、地表を流れる雨水 (ランオフ) などの雨水の影響を受ける経路および自動車、船舶や航空機といった各種交通手段からの発生経路といった多岐にわたる負荷源が存在し (Widdows *et al.*, 1995 ; Duman *et al.*, 2007

(2025年11月14日受付, 2026年1月30日受理)

\*1 公益財団法人海洋生物環境研究所 中央研究所 (〒299-5105 千葉県夷隅郡御宿町岩和田300)

§ E-mail: oya@kaiseiken.or.jp

\*2 東京農工大学 大学院 農学研究院 環境毒性学研究室 (〒183-8509 東京都府中市幸町3-5-8)

; Sakata *et al.*, 2008 ; Ho *et al.*, 2012 ; Zahra *et al.*, 2014 ; Bonnail *et al.*, 2017 ; Chen *et al.*, 2018 ; Liu *et al.*, 2018 ; Sobihah *et al.*, 2018), 水圏環境に対する微量元素汚染の詳細な汚染源評価を困難にしている (Davis *et al.*, 2001 ; Gasperi *et al.*, 2008 ; Schertzing *et al.*, 2018)。とくに、鉱山での採掘活動や不十分な下水処理といったインフラの不全による原因から流入経路が明らかにしやすい発展途上国における事例と比較して、沿岸域における交通網や生活および工業に関する設備が発達している日本を含む先進諸国では多岐にわたる流入経路の混在による複雑化から、明確な流入源の評価が困難とされ、研究例が極めて少ない。しかし、先進諸国沿岸域における微量元素のうち銅や亜鉛では沿岸域における濃度が上昇傾向にあり、日本においても、二枚貝類の軟組織からこれらの元素が他国の汚染地と同等程度の濃度で検出されている (Oya *et al.*, 2022)。以上より、先進諸国沿岸域における微量元素分布および流入経路の解析を図る研究は重要な課題である。

水圏環境における化学物質汚染解析分野では、有機物量やpHの変動によって、元素の化学形態や水中での滞留時間が変化することによる不均一な微量元素分布を起こすこと (野崎, 1997; 高柳・坂見, 2002)、海水中に豊富に含まれるナトリウム塩が海水中の他元素の分析において妨害物質として機能することから (高柳・坂見, 2002)、海水の分析は中長期的な濃度の解析には不向きとされている。一方で、生物指標を用いたモニタリングでは水中の化学物質や他の生物を摂取することによって元素を取り込む性質を利用して、対象とする地点の代表値の計測が可能であるとされている (Goldberg, 1975 ; Phillips, 1976 ; 高柳・坂見, 2002)。とくに、定住性で比較的長い寿命と高い環境耐性を有する二枚貝類は有用な種として、微量元素やPCBs, 放射性物質の水圏環境におけるモニタリング研究で用いられてきた (Goldberg, 1975 ; Sivalingam *et al.*, 1982 ; Soto *et al.*, 2000 ; Lauenstein *et al.*, 2002 ; Huang *et al.*, 2007 ; Bartolomé *et al.*, 2010 ; Farrington *et al.*, 2016 ; Burioli *et al.*, 2017 ; Jonathan *et al.*, 2017 ; Liu *et al.*, 2018 ; Kinjo *et al.*, 2019 ; Li *et al.*, 2019, 2021 ; Murakami-Sugihara *et al.*, 2021 ; Ding *et al.*, 2020, 2021 ; Santos-Echeandia *et al.*, 2021 ; Oya *et al.*, 2022)。二枚貝類のほとんどは棲息環境域の水を体内に取り込み、その中に含まれる有機物

をろ過摂食する (佐々木, 2010; Liu *et al.*, 2018)。この食餌行動から、二枚貝類は栄養とともに環境中に存在する微量元素や有機物質、マイクロプラスチックなどを水中から取り込み、体内に保持する (Liu *et al.*, 2018; Ding *et al.*, 2020, 2021)。それらの結果、指標生物は各地点における水圏環境中の微量元素の動態を生体内で比較的長期にわたって反映することが明らかになっている。くわえて、二枚貝類はヒトが消費する主要な水産資源の1つでもあり、ヒトの安全な資源利用の評価も二枚貝類を用いた解析から可能になる。このことも二枚貝類を指標とするうえでの有用性を高めており、生物指標を用いた微量元素モニタリングは底質や海水とは異なる視点から環境中の元素動態を把握できる手法として有効である (Cho *et al.*, 2019; Ding *et al.*, 2021)。

本稿では、先進国沿岸域のひとつである東京湾の概要について述べた後、湾奥部河口域の羽田地区における二枚貝の一種マガキ *Crassostrea gigas* を用いた微量元素の分析方法、季節変化、元素の流入起源評価について解説した。とくに、降雨による微量元素濃度の変動と流入経路については、各元素濃度のNa濃度とFe濃度に対する比の分布を基にした新規の評価手法が先行研究 (大矢, 2025) にて検討されており、本稿にて解説する。

### 先進諸国沿岸域の代表例としての東京湾

関東地方に位置する東京湾は日本の主要都市の1つである東京都を中心に、千葉県および神奈川県に囲まれている。千葉県房総半島南西部の洲崎と神奈川県三浦半島の剣崎を直線で結んだ場所より北部と定義され、その区域は南北80km、東西に10から30kmにわたり、総面積は1,380km<sup>2</sup>となる (陶ら, 1981 ; 山口ら, 2000 ; 若林, 2000)。東京湾には江戸川、荒川および多摩川などの主要3河川を含む55河川を通じておよそ400~640m<sup>3</sup>/sの淡水が流れ込んでいる (松村・石丸, 2004 ; 二瓶ら, 2008 ; Sakata *et al.*, 2010)。東京湾内では漁業も行われており、湾内で採取されたマアナゴ、アサリ、シャコおよびマダコといった水産資源がしばしば市場に流通している (今井, 1992; 柴田・河西, 1999 ; 清水, 2003 ; 田島, 2011)。湾内には日本の各都県との物資の流通の拠点となる複数の貿易港を有し、1日に約500隻の船舶が湾内外を出入りし (東京湾口航路事務局, 2015)、国内最大規模の航

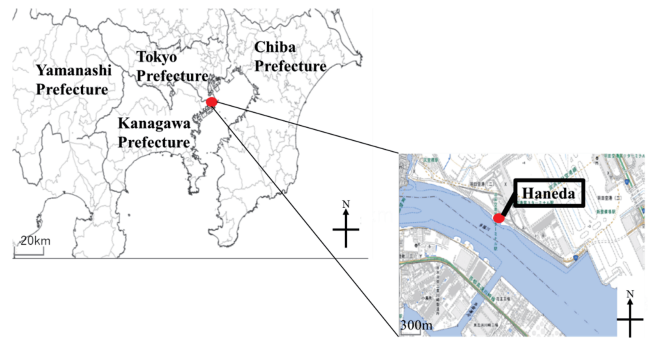
空便拠点である羽田国際空港も存在する。さらに、湾奥部には重化学工業を主体とした日本国内最大規模の産業拠点である京浜工業地帯および京葉工業地域を有する（坂田, 2006）。湾周辺部はヒトの居住区としても国内最大規模であり、東京湾沿岸域と流入する河川周辺の流域人口は、令和元年度においては約3,100万人に達している（東京湾岸自治体環境保全会議, 2021）。これは、日本の総人口の約24%が東京湾周辺に居住していることに相当し、東京湾を取り巻く環境は日本国民の生活においても重要な生活および工業の拠点として機能している（東京湾岸自治体環境保全会議, 2021）。以上のように、東京湾は湾周辺を含め、国内において、貿易、産業および交通の主要拠点としての役割も担っており、先進国主要都市圏内に位置する典型的な海域といえる。

実際に、東京湾は化学物質の人為的な負荷による海洋汚染問題が生じている（松本, 1983）。とくに、重化学工業拠点、羽田国際空港を含めた陸海空の複数の主要交通網および貿易拠点や東京都を中心とした主要港湾居住区の存在から、湾奥部では時に負荷の影響が相対的に高いことが報告されている（Oya *et al.*, 2022）。微量元素の流入源が多岐にわたる東京湾は、同様の環境条件を持つ沿岸海域における流入源解析におけるモデル海域となりうる。

## 二枚貝類の採取および軟組織中の微量元素分析

本稿で紹介する二枚貝類のマガキは東京湾湾奥部付近に位置する羽田自然干潟で2020年7月から2021年4月（2020年12月を除く）の間の中潮または大潮の日を選択し、日中の最大干潮時刻の1時間前後に採取した（第1図）。各月で5個体ずつを分析試料として無作為に選択し、計45個体を分析に用いた。

軟組織の微量元素濃度の分析には湿式灰化法による液化処理と誘導結合プラズマ質量分析計（ICP-MS）を用いた。マガキ軟組織を超純水で洗浄し、外部の付着物を入念に除去した後に、閉殻筋や外套膜を含む筋肉部と消化管や生殖巣を含む内臓部を分取し、90°C、24時間の条件にて、オーブンで乾燥させることで乾燥試料を調製した。湿式灰化には乾燥試料0.100gに対し、2.00mLの61%硝酸を添加し、マイクロウェーブ分解処理を施した。分解済みの液体試料はろ過後、250倍に希釈



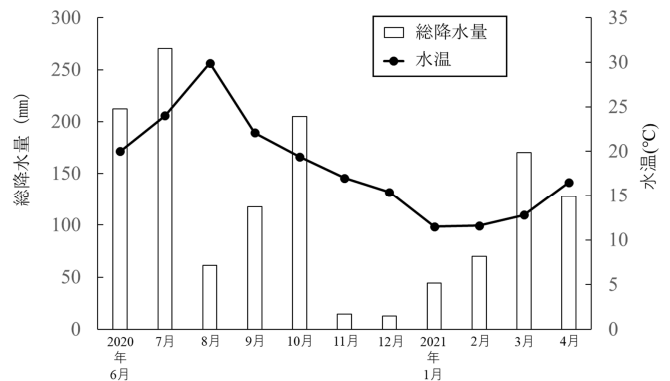
第1図 マガキの採取地である東京都大田区羽田自然干潟の地図（Oya *et al.*, 2022を一部改変）

した液体を分析試料とし、ICP-MSでは内部標準を<sup>103</sup>Rhとし、33元素（Li, Na, Mg, Al, K, Ca, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Ga, As, Rb, Sr, Y, Mo, Cd, In, Sn, Sb, Cs, Ba, La, Ce, Gd, Pt, Tl, PbおよびBi）の濃度分析をおこなった。

## マガキ軟組織における各元素濃度の季節変動

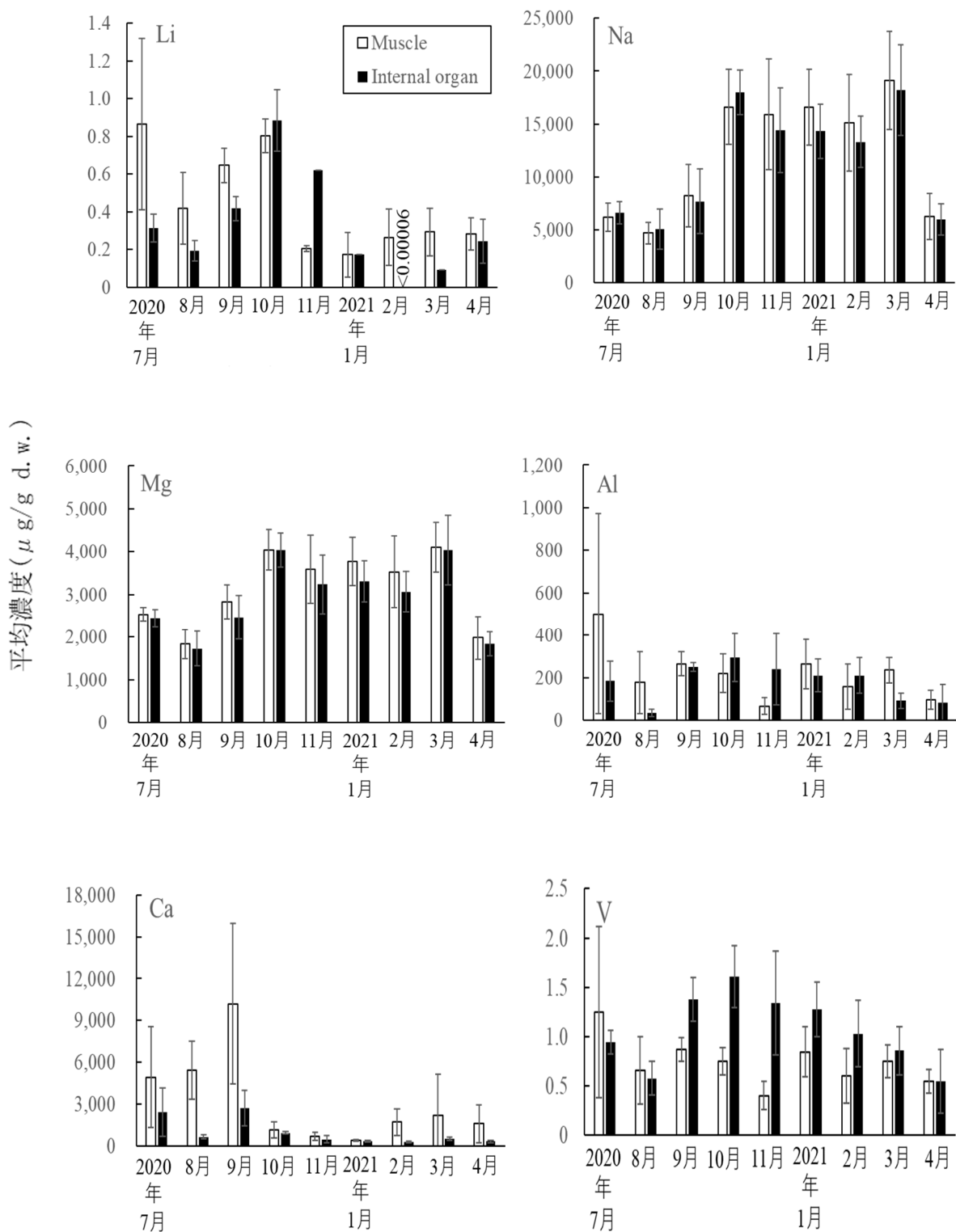
羽田近傍のマガキ調査期間中の水温および降水量を第2図に示す。データは神奈川県水産技術センター（2021）と気象庁（2024）のデータベースから入手した。

マガキの軟組織（筋肉と内臓）において、分析対象とした33元素のうち、Ga, Mo, In, Sn, Sb, Pt, TlおよびBiの8元素は総分析個体45個体の半数にあたる22個体以上で検出限界を下回り、季節変動評価が困難であったため、評価から除外した。残る25元素のマガキの軟組織（筋肉と内臓）における季節変動（第3-1図～第3-4図および第4図）の傾



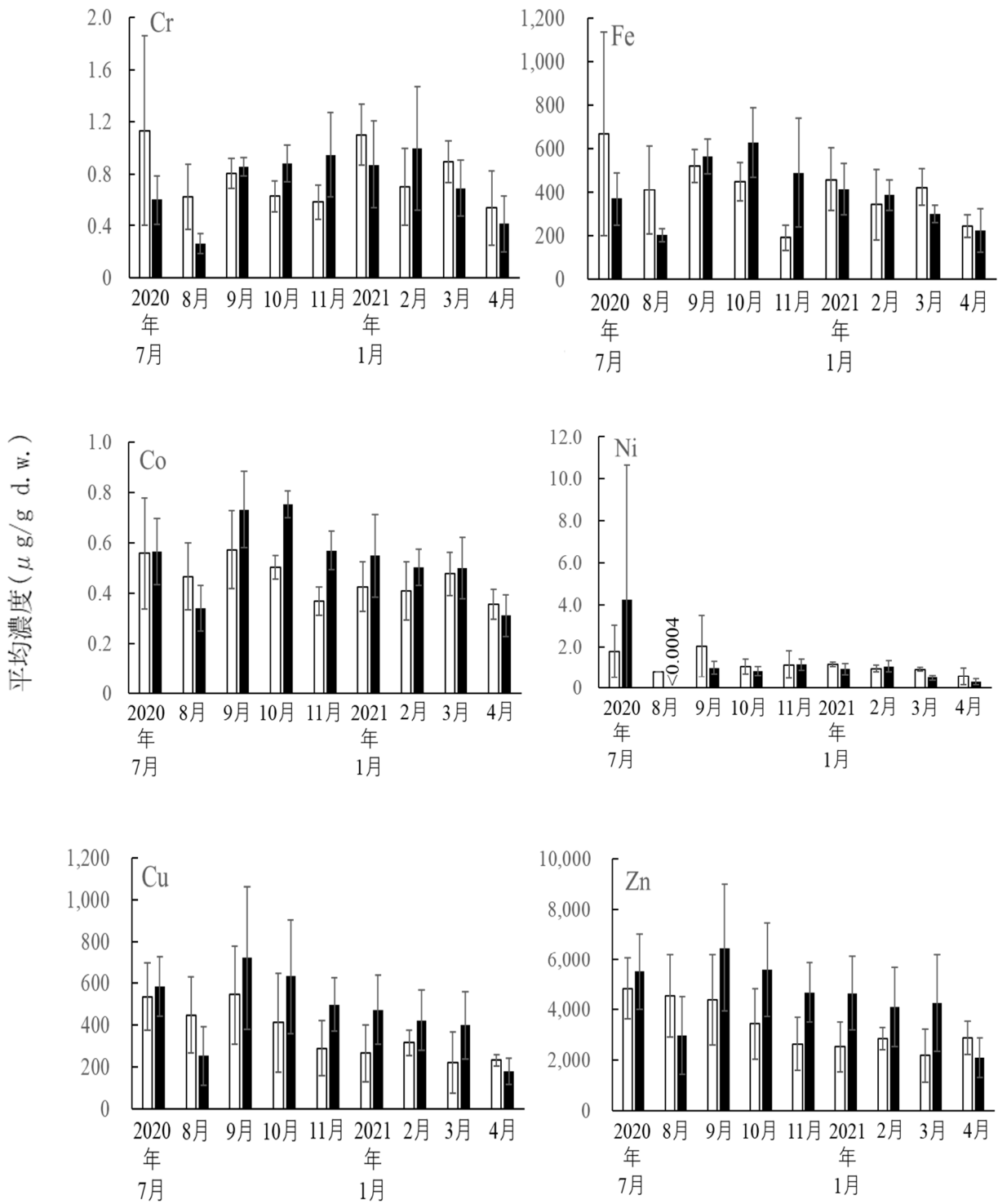
第2図 2020年6月から2021年4月にかけての水温および降水量の経月変化（神奈川県水産技術センター, 2021; 気象庁, 2024）

大矢・渡邊：マガキ体内の元素の季節変動



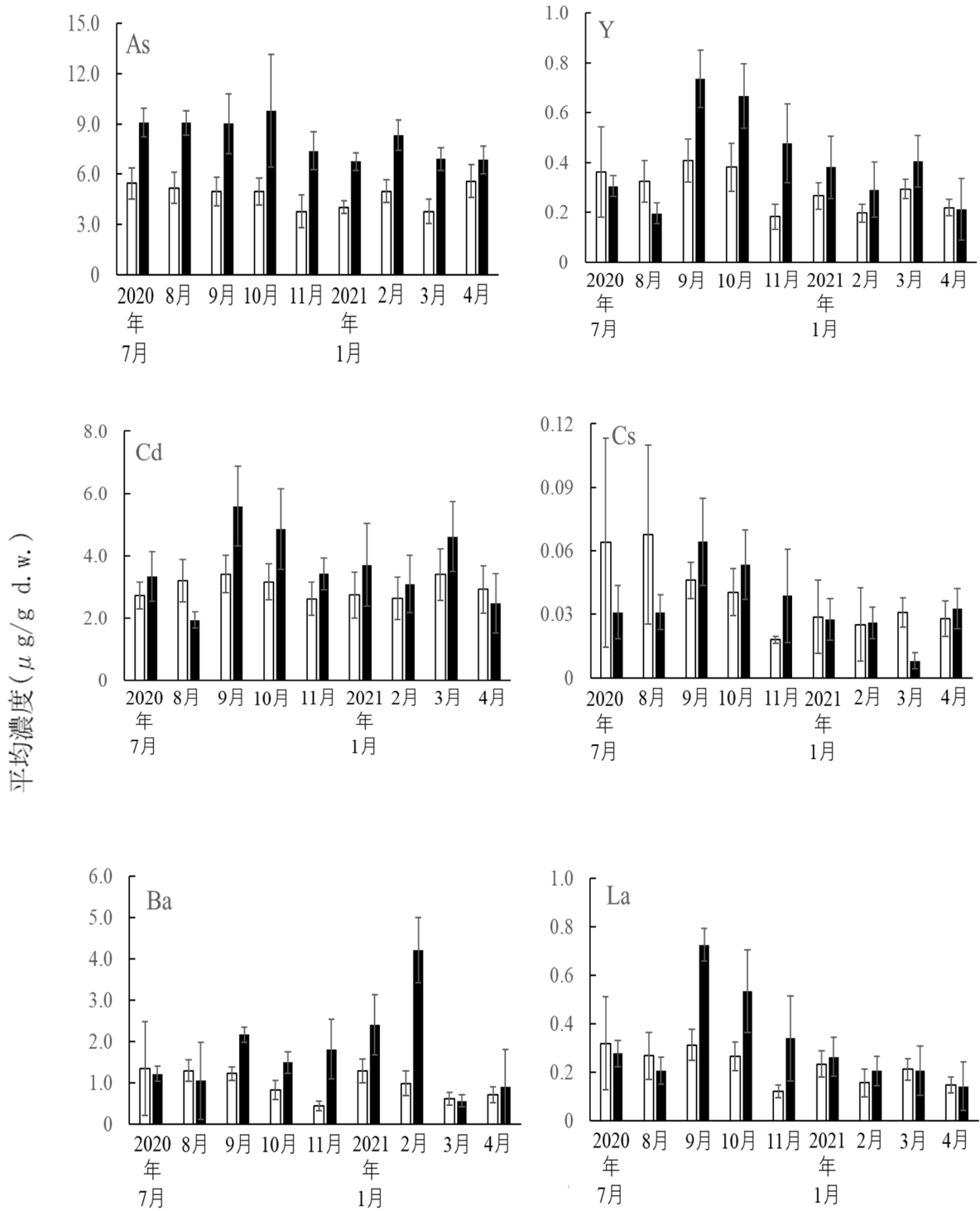
第3-1図 2020年7月から2021年4月における羽田のマガキ軟体部の21元素濃度の変動 (濃度単位: μg/g d.w.; 2020年12月は必要量の採取ができず欠測) (白棒: 筋肉, 黒棒: 内蔵)

大矢・渡邊：マガキ体内の元素の季節変動

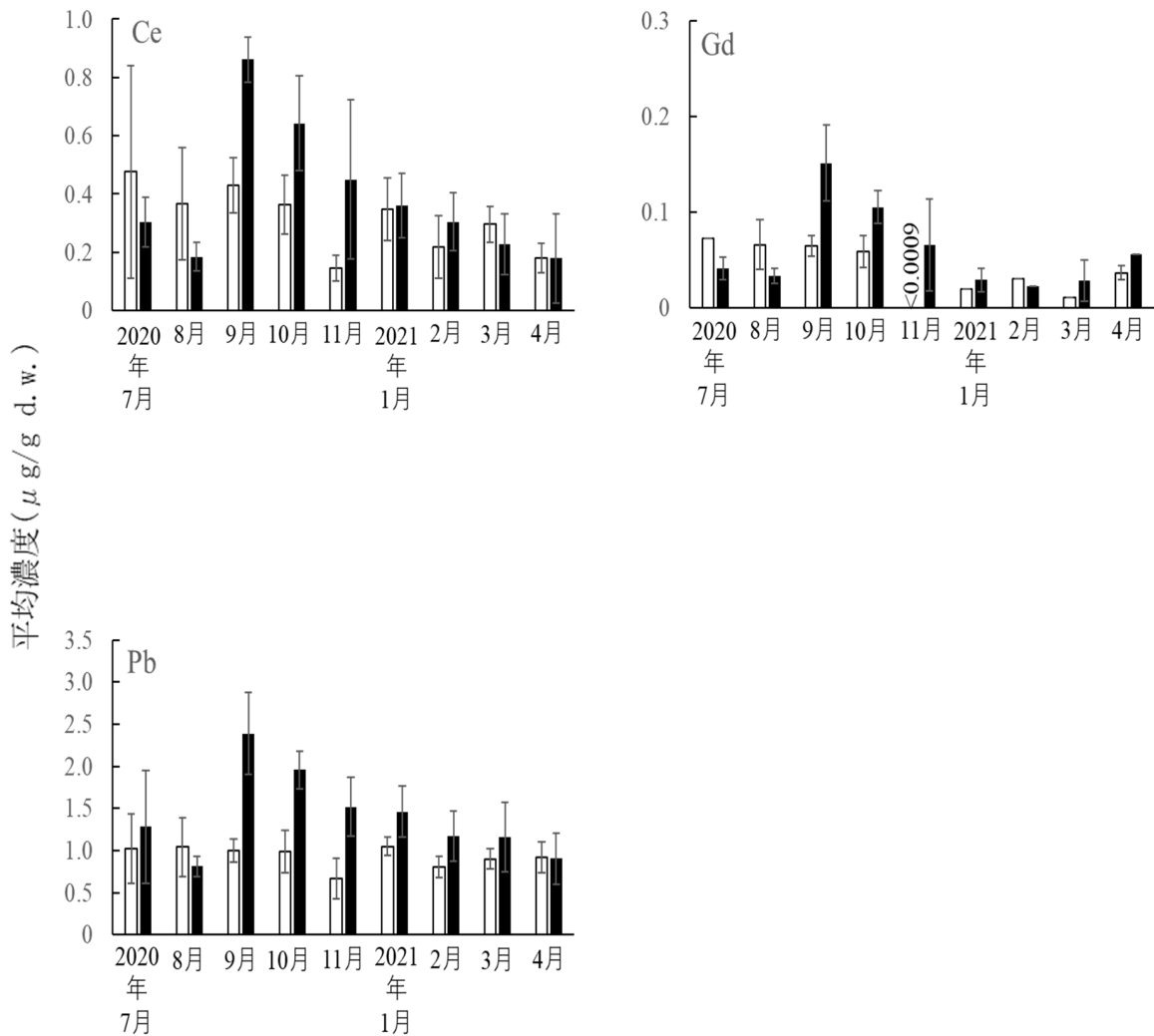


第3-2図 2020年7月から2021年4月における羽田のマガキ軟体部の21元素濃度の変動  
(濃度単位:  $\mu\text{g/g d.w.}$ ; 2020年12月は必要量の採取ができず欠測)(白棒: 筋肉, 黒棒: 内蔵)

大矢・渡邊：マガキ体内の元素の季節変動



第3-3図 2020年7月から2021年4月における羽田のマガキ軟体部の21元素濃度の変動  
(濃度単位:  $\mu\text{g/g d.w.}$ ; 2020年12月は必要量の採取ができず欠測)(白棒: 筋肉, 黒棒: 内蔵)



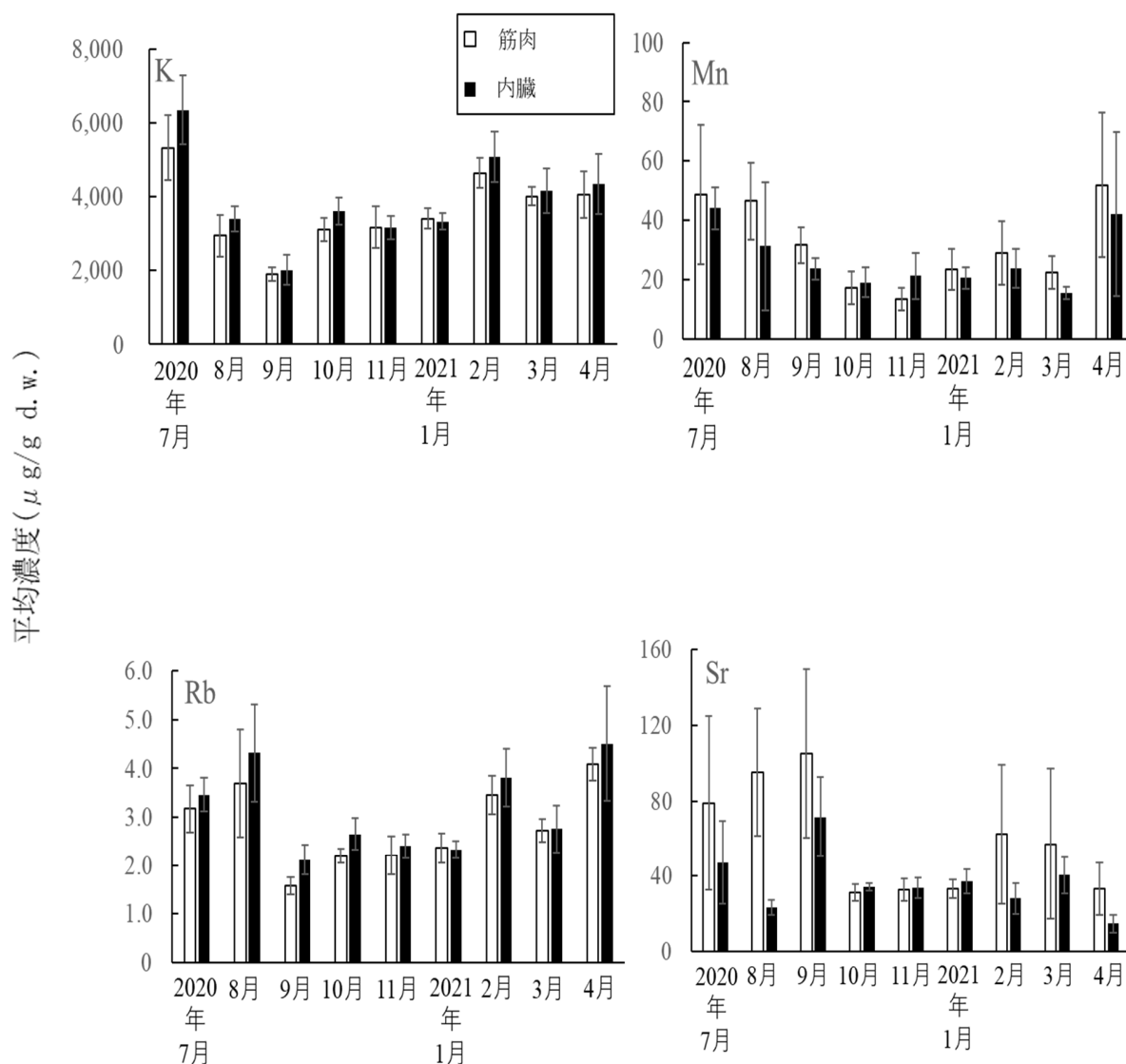
第3-4図 2020年7月から2021年4月における羽田のマガキ軟体部の21元素濃度の変動 (濃度単位:  $\mu\text{g/g d.w.}$ ; 2020年12月は必要量の採取ができず欠測) (白棒: 筋肉, 黒棒: 内臓)

向は内臓と筋肉で概して類似した。その季節変動の傾向は主に、7、8月に元素濃度が低く9または10月にピークがあり、その後冬に向かって低下するパターンを示すものが多かった(第3-1図～第3-4図)。逆に、9、10月ごろに最も低濃度で冬に向かって上昇するものとしてはK, Mn, RbおよびSrが挙げられる(第4図)。

水温が上昇する春期から夏期はマガキの成熟期から産卵期にあたる。マガキの産卵は主に水温によって制御され、水温が $20^{\circ}\text{C}$ 以上の条件下で性成熟および産卵行動が活発化する(田中, 1954; 赤

繁ら, 2006)。また、同条件下においては、産卵後においても再度の性成熟を起し、産卵行動を繰り返すことが知られている(赤繁ら, 2006)。羽田干潟では平均水温が $20^{\circ}\text{C}$ 以上となる期間は2020年7月から9月であり(第2図)、マガキの主要産卵期はこの時期にあたったと考えられる。

マガキにおいては摂餌量を間接的に示す、ろ過水量が非産卵期に比べて産卵期では低いことが知られており、またこの時期は高水温のために生理機能維持に必要なエネルギーが増大するため生理的に過酷な状態になる(赤繁ら, 2006)。カキの



第4図 2020年7月から2021年4月における羽田のマガキ軟体部の4元素濃度の変動 (濃度単位:  $\mu\text{g/g d.w.}$ ; 2020年12月は必要量の採取ができず欠測) (白棒: 筋肉, 黒棒: 内臓)

成熟, 産卵にはエネルギー源としてグリコーゲンが用いられ, 産卵が繰り返されるような場合にはエネルギー源の不足により生理的活性が著しく低下し (森, 1965), ろ過速度が低下することにより生体内への物質の取り込みが抑制される (今井, 1971; 村岡ら, 1998)。産卵期後期を開始点とする約3ヶ月から4ヶ月が産卵終了期から生殖不活期 (以下, 生殖不活期) にあたるとされ, 産卵による体力の消耗からの回復のために, 周辺環境からの餌や栄養の取り込み量の増加が生じ, 結果として必須元素やグリコーゲンをはじめとした生理的機能を有する物質の貯蓄および合成が活発化する

(森ら, 1965; 今井, 1971; 赤繁ら, 1983, 2006; 村岡ら, 1998)。

一方で, 産卵期以外では, 生体内外での物質の出入りに係る要素であるろ過速度は, 水温によって制御され, 概して水温の増加に伴ってろ過速度は増加することが明らかとされている (Solidoro *et al.*, 2000)。ゆえに, 冬期にかけては, 水温低下の影響から, ろ過速度が減少することにより元素濃度が低下したものと考えられる。

以上のように, マガキ軟組織における元素濃度低下は, 産卵期には放卵・放精に伴って, 生殖巣からの元素排出が生じること, 性成熟に伴って体

内の元素が卵や精子の形成などの代謝に利用されること、生理的な理由による、ろ過速度の低下により元素は排出傾向となったことなどによって生じたと考えられる。一方で、産卵後の生殖不活期には、生殖行動によって消耗した元素の回復および生命維持のための必須元素を中心とした元素の摂取や貯蓄が活発化し、元素濃度が増加したと推測される。生命維持に関与する元素は主にNa, Mg, Ca, Fe, CuやZnといった必須元素である。しかし、CdやPbのような毒性の高い非必須元素の解毒のためにZnを含む金属結合性タンパク質のメタロチオネインの誘導といった代謝機構 (Dunn *et al.*, 1987 ; Viarengo and Nott, 1993 ; Tanguy and Moraga, 2001 ; Meistertzheim *et al.*, 2009) の活性化によって、必須元素と非必須元素の生体内での存在量は類似する場合がある。こうした元素間の相互作用から、生体内の多くの元素濃度は、夏期に低く、冬期に高くなる変動傾向となったと考えられる。

冬期に高くなった元素について、Kはグリコーゲンの貯蔵とマガキの性成熟への関与から、産卵後の冬期に濃度が増加し (Okoshi *et al.*, 1988)。また、Rbはイオン半径のような化学的性質がKと類似するため (Hille, 1992)、共移動することにより季節変動が類似したものと考えられる。Mnは、マガキの生殖活動において、冬期に特異的な役割を有することが示唆されている (Okoshi *et al.*, 1988 ; 村岡ら, 1998)。これら3元素に関しても、季節変動は生殖サイクルに関与した代謝に関わるものであると言える。

以上のように、マガキにおける元素濃度の季節変動は必須、非必須元素に関わらず、ほとんどがマガキの生殖サイクルに関わる内的要因によって制御されていることが示唆された。しかしながら、詳細にみると、各元素の変動はそれだけでは説明できないことも多い。それらについてはマガキの内的要因ではなく降雨などによる環境水中の元素濃度の変化などの外的要因に関連するものと考えられるため、次節で外的要因によって変動する元素とその変動傾向を明らかにし、それらの元素のマガキ体内への流入経路について検討する。

#### マガキ体内における各元素の変動にかかる 外的要因解明の方法

二枚貝類はろ過摂食により、水中から植物プラ

ントンを取り込むが、さまざまな懸濁粒子も同時に取り込まれ、それらに含まれる微量元素は二枚貝の体内に移行する。懸濁粒子には、デトリタスと言われる生物の死骸、排泄物やそれらの分解物などの凝集物、潮流や波浪などにより海底から巻き上げられた堆積物、多岐にわたる経路を通じて陸域から流入する粒子などがあり、それぞれ異なる種類の微量元素を含むと考えられる。また二枚貝は、鰓や外套膜などの組織を通じて水から直接微量元素を取り込むが、微量元素の種類ごとに発生源や流入経路が異なると考えられる。

以上のような、マガキ体内への元素の流入経路や量は降雨量や潮流、波浪などの気象に関わる要因によって変化すると考えられる。ここでは、マガキ体内の微量元素の外的要因による変化を生殖サイクルに関わる内的要因による変化と区別するために、各元素の濃度をマガキ体内に存在する2つの主要な元素と比較することにより判別する試みについて紹介する。比較対象の一つはNa、もう一つはFeである。マガキをはじめとする二枚貝類の多くが生息する河口域から沿岸域の表層水はNaやMgに富む海水で構成されている。とくに、Naは海水の主要成分であり、本研究における分析対象元素のなかではカキ軟組織において最も普遍的かつ多量に含まれている元素である。カキ属は浸透圧順応生物であり血リンパ中のNa濃度は環境水中の濃度に追従して変動し、細胞内外における浸透圧バランスは細胞内の遊離アミノ酸濃度を変えることによって調整している (Hosoi *et al.*, 2003)。このことからマガキ軟組織のNa濃度は環境水中の塩分濃度の解析にも有効であると考えられる。第3-1図のNaの変化から、環境水の塩分濃度は2020年7~9月と2021年4月には低く、2020年10月~2021年3月に高かったことが読み取れ、この変化のパターンは同じく海水の主要構成元素であるMgの変化のパターン (第3-1図) にも良く一致している。これら2元素では内臓と筋肉における濃度に有意な差は認められず、マガキ体液における濃度は周囲の海水の濃度に急速に追従したと考えられる。マガキ軟組織における各元素濃度が、塩分濃度の変化などによりどのような影響を受けるかは、その元素の濃度をNa濃度と比較することにより知ることができる。

マガキの生殖周期に伴って変化する典型的な元素としてFeをとりあげる。Feは、Alとともに底質の主要構成成分であり、底質中に4番目に多く

含まれる元素である（浅見, 2010）。また, Feの海水中での溶解度は極めて低いことから（Markich, 2021）、懸濁態としてのマガキ体内への流入量が多いと考えられる。Feは生物にとっての必須元素であり、生体内においては常に必要量が存在する。ある元素の濃度のFe濃度に対する比をとったときに、その元素の季節変動がFeに類似していれば測定期間を通してFeに対する比の変動幅は小さく、逆に季節変動に相違があれば変動幅は大きくなる。また全期間中のある月の比の値が、平均より大きく外れていれば、その際の環境条件を解析することによりその原因を解明できる可能性がある。

具体的な方法としては、ある元素Mの濃度とNaの濃度比M/Na（以下、Na比）とFeとの濃度比M/Fe（以下、Fe比）を散布図に示し、全測定期間におけるプロットの分布中において、特徴的なプロットの分布位置を占める月を抽出し、その月の降雨量などの気象条件や当該元素の物理化学的性質、近傍の環境における発生源などの既存の情報と組合わせて解析することにより、環境水への流入経路を推定できる可能性が大きい。この解析法の有効性について次項で検討する。

#### マガキ内臓に含まれる各元素とNaおよびFeとの濃度比による流入経路の推定

2020年7月から2021年4月の間に羽田沖で採取された（2020年12月を除く）毎月5個体のマガキに関して各微量元素のNa比とFe比を算出し、採取期間内における流入経路の寄与の評価を試みた。二枚貝類の生体内での元素の蓄積及び排出速度の観点から（Jebali *et al.*, 2014）、マガキの環境からの元素取り込みによる影響は、摂餌に関与する消化器系や、環境水からの直接吸収に関与する鰓などの器官にまず反映され、続いて筋肉に蓄積されると考えられる。そこで、ここでは変化が直接現れる内臓を対象として解析を行った。元素濃度による季節変動評価を行った25元素から、比較の対照としたNaおよびFeと主要必須元素およびそれらに類する挙動をとるMg, K, Ca, Rb, SrとCsの8元素も除き、残る17元素に関するマガキの内臓での元素濃度をもとにしたNa比およびFe比の散布図を作製した（第5～第7図）。後述する元素の流入経路や環境中での挙動を考慮して、図はプロットの分布パターンの類似性により3つに分けて示

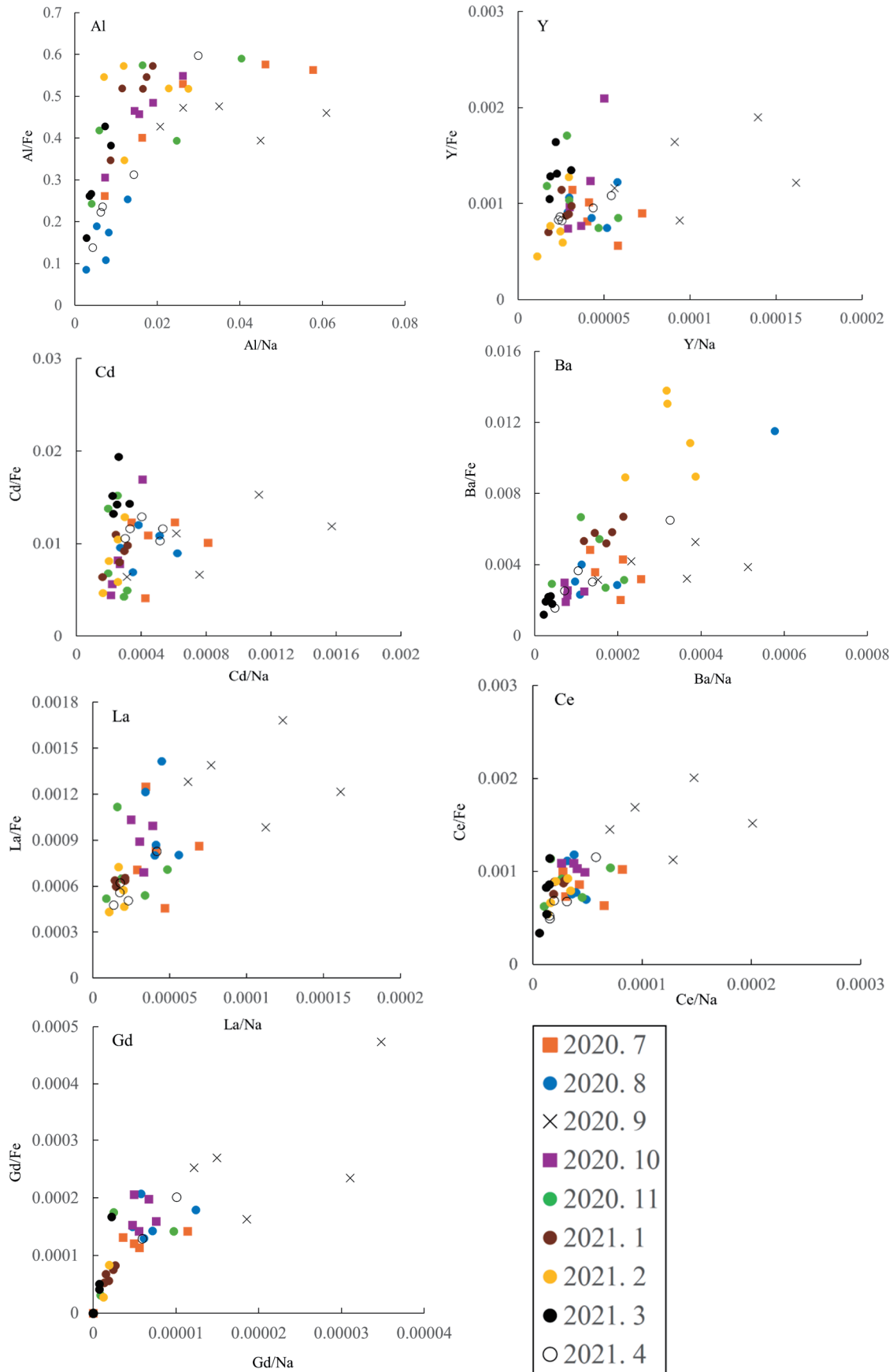
した（第5図、第6図および第7図）。

これらの散布図においてきわめて特徴的であったことは2020年9月の各元素の分布位置である。特に第5図において顕著にみられるように9月における各元素の分布位置はほかの月における分布と全く重なることがないほどに離れている。前述のようにマガキが浸透圧順応生物であることから、環境水の塩分変化は内臓の塩分濃度に直接反映される。そこでNaとMgの濃度の季節変化（第3-1図）を見ると、塩分濃度にかかわるNaを含む内臓中のその他の元素濃度は2020年7～9月と2021年4月には2020年10月～2021年3月の半分以下の低濃度であったことがわかる。以後、便宜上これらの時期を雨季と乾季と呼ぶことにする。この区分は、第2図に示す月間降水量の変動パターンとはかけ離れているが、マガキを採集した期間の羽田干潟の塩分濃度の変化は月単位の時間スケールではなくもっと長い期間の降水量の変化を反映したものと考えられる。ただし、短時間の強い降雨による、陸域からの溶存態及び懸濁態の元素の流入や、荒天時の波浪による底質の擾乱などにより短時間の変化は、月ごとの採集試料中の元素濃度に影響を与える可能性が高い。

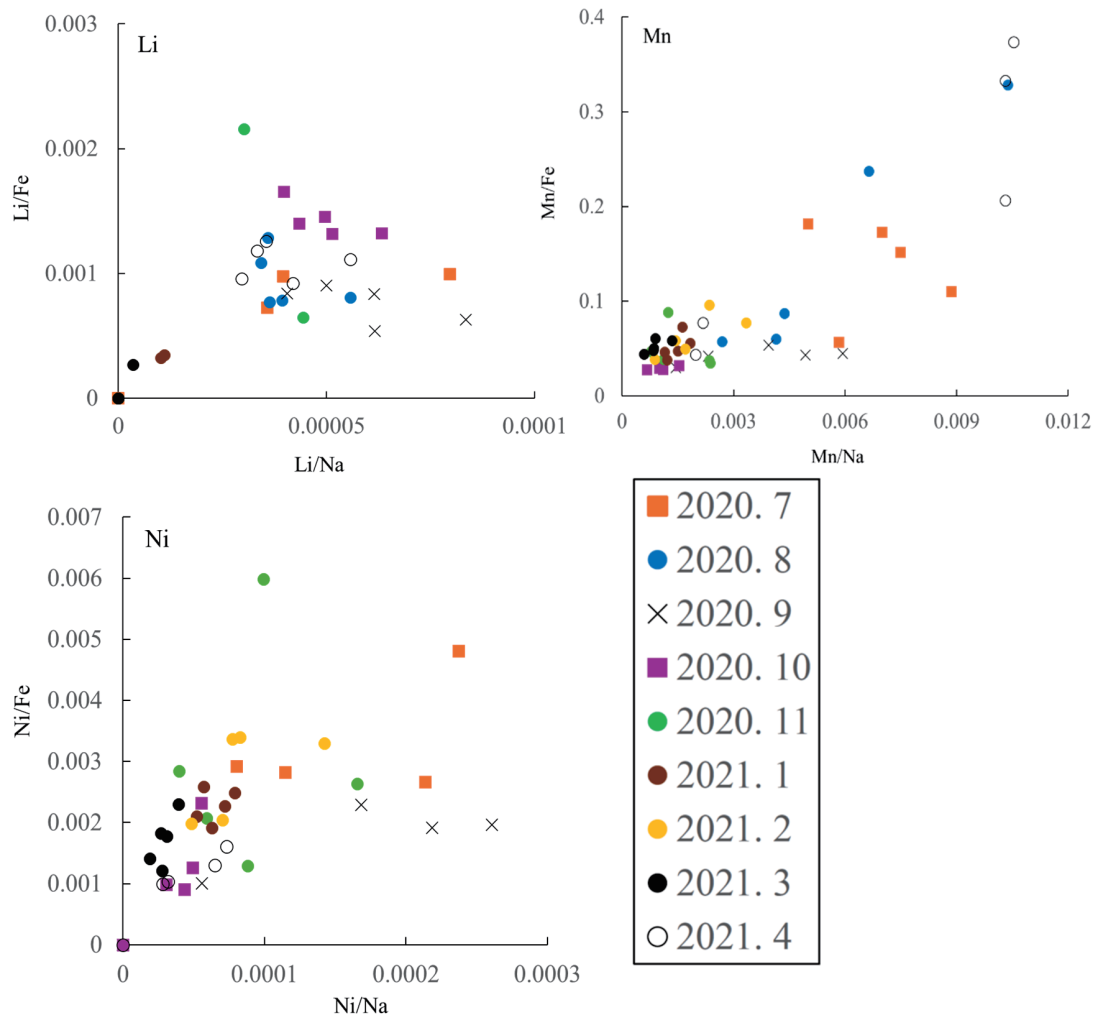
各元素のNaに対する比が乾季に比べて雨季に高い傾向は第5図から第7図において共通して見られる。しかしながら、9月における各元素のNa比が、同じ雨季である7、8月のNa比に比べて著しく高いことは、環境水の塩分濃度以外の要因の影響が強かった可能性を示している。一方、Fe比も他の月と大きく異なる高い値になったことに関しては、前述したように、2020年9月がマガキの産卵終了期から生殖不活期へ移行する時期にあたり、ろ過水量が著しく高まり、各元素の蓄積が開始されたことによる可能性がある。以上のように9月において、Na比、Fe比がともに高くなる現象は、マガキの生理学的状態の特異性による可能性が高いため、9月の結果を各元素の外的要因による変化の解析に用いることは適当ではないと考えられる。

第5図には、Al, Y, Cd, Ba, La, CeおよびGdの7元素の散布図を示す。これらは、9月を除く雨季においてもNa比があまり上昇しない。つまり環境水中の塩分低下による見かけ上のNa比の上昇以外の影響は見られず、例えば7月や10月の降雨量増大時にいずれの元素においてもNa比が増加しない。また散布図中の月ごとのプロットを見る

大矢・渡邊：マガキ体内の元素の季節変動



第5図 2020年7月から2021年4月の間に採取されたマガキの内蔵の乾重量元素濃度におけるAl, Y, Cd, Ba, La, CeおよびGdのNa比・Fe比の散布図 (2020年12月は必要量の採取ができず欠測)



第6図 2020年7月から2021年4月の間に採取されたマガキの内臓の乾重量元素濃度におけるLi, MnおよびNiのNa比・Fe比の散布図 (2020年12月は必要量の採取ができず欠測)

と、Baでは、2月にFe比が明らかに上昇しており、これは第3-3図のBaの内臓での顕著な濃度上昇に呼応している。2月は乾季であり降水量も低い(図2)ため、陸域からの流入は考えられず、季節風による底質の攪拌の影響の可能性がある。希土類元素であるY, La, CeおよびGdは地殻や土壤に普遍的に存在し、二枚貝類への流入経路は底質由来の懸濁粒子であることも報告されている (Akagi and Edanami, 2017)。Alは底質での含有量が3番目に多く、普遍的に含まれている元素 (浅見, 2010)である。また、AlはFe比が季節により大きくばらつき、Feとは季節変動のパターンがあまり一致しないことが明らかであるが、散布図の特徴から見てマガキ体内への流入は底質由来の懸濁粒子経路が主体であると推定される。

Li, MnとNiの3元素(第6図)は、乾季に比べ雨季にNa比が大きく上昇するパターンを示す元素である。雨季の2020年7月および8月、2021年4月にNa比が大きく、その増加割合は、マガキ体内のNa濃度が雨季に乾季の約半分になることによる増加割合を大きく上回る。Liは海水中に溶存態として一定の割合存在することが知られており (Stoffynegli and Mackenzie, 1984 ; 野崎, 1997), Niも海水中にイオンNi<sup>2+</sup>の形態で全体の71%が存在することが予測されている (Markich, 2021)。また、多摩川では下水処理水を主要な起源として放出されており、底質の表層部での濃縮は微小であることが明らかとされている (Sakata *et al.*, 2010)。以上のことから、LiとNiは溶存態として環境水中に存在し、通年表層水経路でマガキに流入してい

ることが示唆された。一方、Mnは粒子吸着され、溶存態の存在割合が少ないことが知られているが(野崎, 1997) LiやNiとともに工業廃水からの不完全な除去により残留するとも言われている(Franzaring *et al.*, 2016; 宮崎, 2018; Rodríguez *et al.*, 2021)。こうした未処理廃水の流入は東京湾近郊の沿岸域においては、主に合流式下水道区画において、雨天時に都市部における洪水を防ぐための河川への雨天時越流水とよばれる排水によって生じる。本研究の採取地である羽田近傍のマガキ体内におけるLi, Mn,およびNi元素の濃度増加が降雨期に生じていたことから、これらの元素の主な流入経路は未処理水の排水と雨天時越流水であると推察された。

Cu, Zn, As, V, Cr, CoおよびPbの7元素は雨季にNa比が大きく上昇する傾向がみられたが、乾季には低いNa比を示した(第7図)。

まず、これらの元素のうち、CuとZnは必須元素であり、マガキの軟組織においてFeとともに濃度が高く、マガキの生殖サイクルに伴う典型的な季節変化を示す(第3-2図)。両元素の散布図をみると雨季である7, 8月における各プロットの分布はFe比, Na比ともに乾季におけるそれらに比べて大きくなった。Feは前述のように溶存態としての存在割合が低く、マガキ体内へは主に懸濁態として取り込まれるが、CuとZnに関しても、雨季の環境水中に懸濁態としての存在量がFe以上に増加したことが、散布図に現れたものと考えられる。しかし、これら2元素についてはマガキの内的要因による変化が体内における濃度に強く反映されるため、散布図から季節変動に関連した流入経路を論議することは困難である。

Asにおいては、雨季(7~9月と4月)にNa比, Fe比がともに大きくなり、特に8月においてはNa濃度の低下に伴うNa比の増加である約2倍を大きく超える増加がみられ、淡水流入に伴う濃度増加があったことが伺える。8月にFe比が非常に高くなったのは、Feが必須元素でマガキ内臓中に常に必要とされる濃度で存在するのに対し、Asは非必須元素であるため、内臓における濃度が環境水中における濃度をそのまま反映したことによると考えられる。

第7図に示した元素のうち、V, Cr, CoとPbの4元素は、既に述べた3元素と同様に雨季の7, 8月にNa比は上昇し、その比は2を大きく超えるため、淡水流入に伴う外部からの流入があったことを示

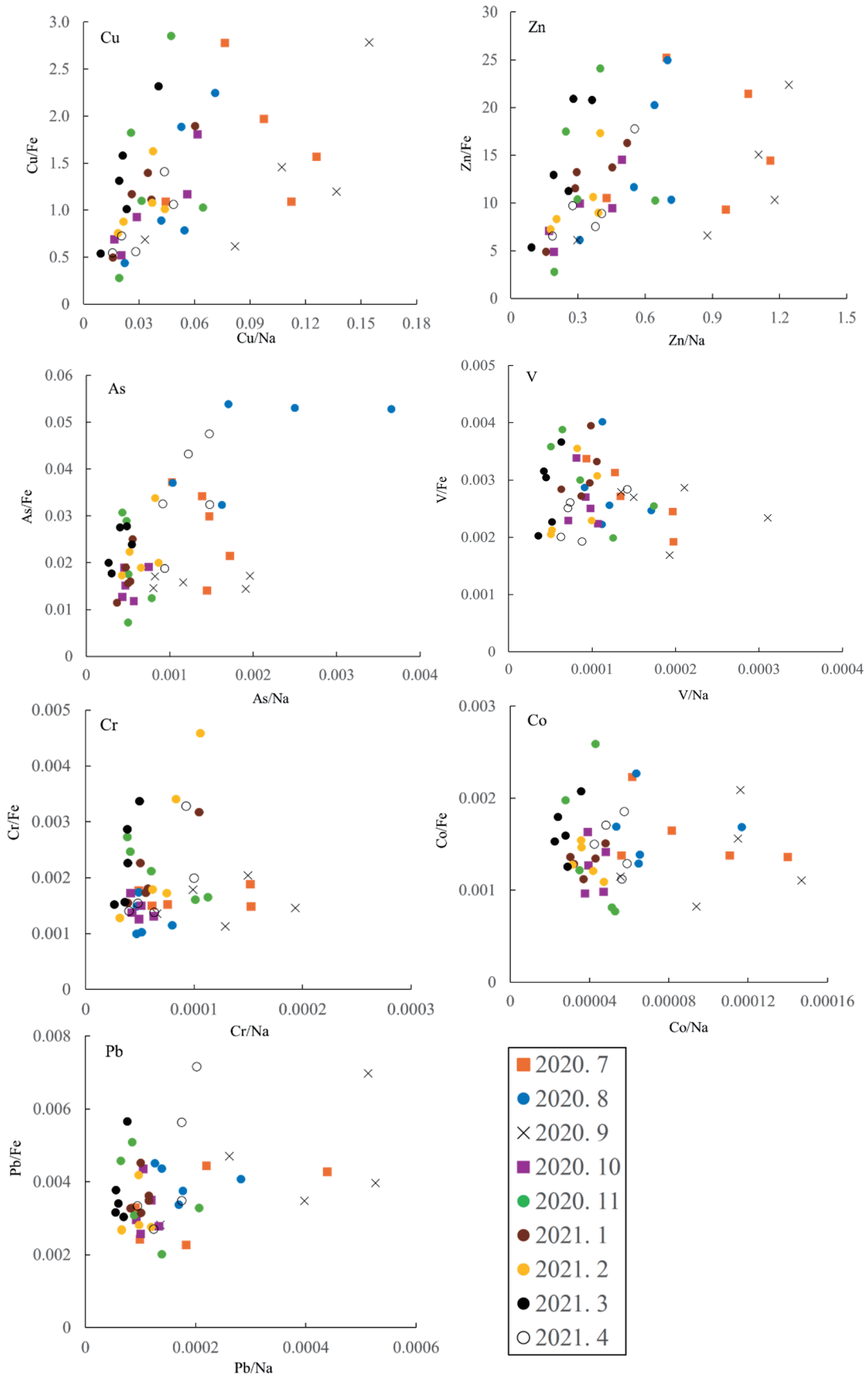
す。一方、散布図上のこれらの月のプロットは、年間のFe比の変動幅の中間から下側の位置に分布することが読み取れ、これはFeとは異なる経路からの流入があったことを意味する。

各元素の化学形態に着目するとPbは水中での溶存イオン形態が全体の3.7%程度であることが報告されており(Markich, 2021)。Crは逐次抽出法による分析から、多摩川下流域の河川底質において、ケイ酸塩や残渣画分といった水に移動しにくい形態で存在することが明らかとされている(Shikazono *et al.*, 2012)。また、Vも自然起源での存在状態の76~98%が鉱物中での保持であり(Loring, 1979)、自然起源の水中への移行は鉱物の風化による溶存態イオンでの拡散が主であることが指摘されている(Shiller and Mao, 2000)。Coも海洋における滞留時間が他元素と比較して短く、安定な溶存種をもたないことが明らかとされている(野崎, 1997)。以上のようにこれら4元素は、いずれも自然起源では溶存態としての存在割合は低く、底質に保存されやすい状態であることを考慮すると、マガキ内臓におけるこれらの元素の濃度の上昇は、採集地点近傍における再懸濁、溶出などが原因ではなく、陸域からの人為起源による元素の流入がその原因であると考えられる。

人為起源のこれらの元素による環境汚染の事例を以下に挙げる。PbやCrはかつて道路上の黄色塗料の主成分として用いられており、その摩耗による粉塵の発生と降雨による道路表層を經由したランオフによる河川への流入が報告されている(Adachi and Tainosho, 2004; Thorpe and Harrison, 2008; Turner *et al.*, 2016; Zamani *et al.*, 2021)。Vでは都市化が進んだ沿岸域ほど、廃水中に含有されることが明らかとされており(Hartung *et al.*, 2015; Ivanov *et al.*, 2019; Tulcan *et al.*, 2021)、多摩川中流部では長期的な降雨または突発的な豪雨による高流量状態のときに、懸濁粒子と一緒に河川への流入量が増加する傾向も示されている(Sakata *et al.*, 2010)。Coは工業廃水中における存在が報告されている(宮崎, 2018)。

羽田が位置する場所は東京湾湾奥部の沿岸域であり、多摩川の河口域付近にあたる場所である。ゆえに、本地点は河川の流れが緩やかとなる河口域の特徴と潮の干満といった潮流変化の影響を受けやすい沿岸域の特徴が重なる場所であり、近傍から流入した元素や底質が滞留しやすい場所といえる(北野, 1984)。結果として、本地点は河川

大矢・渡邊：マガキ体内の元素の季節変動



第7図 2020年7月から2021年4月の間に採取されたマガキの内蔵の乾重量元素濃度におけるCu, Zn, As, V, Cr, CoおよびPbのNa比・Fe比の散布図(2020年12月は必要量の採取ができず欠測)

および沿岸域陸部からの元素の集積地として機能し、溶存態よりも吸着による懸濁態や底質に沈着した状態で元素が存在することにより、通年で二枚貝体内に流入しやすい環境にあることが推察された。

### 羽田に棲息するマガキと先行研究の濃度比較

メキシコの養殖場のマガキ軟組織における8種の金属 (Cr, Co, Ni, Pb, Zn, Ca, AsおよびHg) の濃度について, Jonathan *et al.* (2017) は都市河川および下水や交通系といった陸域からの影響を考慮して評価している。この研究と比較すると, 羽田干潟から採取されたマガキの元素濃度は, Cuが約2.8倍~11倍, Znが約7.5倍~23倍, Asが約6.5倍~17倍高濃度であった。このことから, 羽田のマガキでは汚染がより進行した状態にあると考えられた。また, CrやPbのように, 降雨に伴う溶存態での流入が想定される元素では最大で同程度の濃度が認められた。

ついで, 羽田産マガキの微量元素濃度と各国および国際機関が制定したCr, Cu, Zn, As, CdやPbといった強毒性元素に関する食品基準値 (Yuan *et al.*, 2020 ; Kouali *et al.*, 2022) との比較を行った (第1表)。羽田のマガキの筋肉および内臓における元素濃度はCdとPbについては濃度が高くな

る期間には基準値の超過がみられた。とくに, Pbは産卵期後の秋雨期において基準値を超過しており, 降雨現象が環境への負荷を高めていることが濃度比較結果からも明らかである。秋雨期後も冬期に基準値相当の平均値が記録されていることから, Pbの継続的な残留とマガキへの流入の危険性が想定される。くわえて, Cu, ZnおよびAsはすべての調査期間で全機関の設定値を超過した。これらの元素の羽田における分布量は慢性的に高い状態にあることが分かった。Pb, Cu, ZnとAsは概してFe比に依存した分布になることから, 底質がマガキへの元素流入に寄与するものの, 7月の降雨期にNa比の増加または偏重傾向となり, 降雨に伴った表層水中の分布量増加といった寄与の増加が示唆される4元素であった。以上のことから, 降雨期にNa比偏重, その他の時期にFe比偏重となる元素種ほど, 生体での元素汚染を引き起こしやすいといえる。羽田自然干潟は多摩川の最下流の河口域に位置し, 多摩川および支流から流入した化学物質が河川水によって東京湾に流出する境界水域あるいは汀線域といえる。溶存態の物質は湾にそのまま流出するのに対し, 粒子吸着されやすい元素や底質に沈着しやすい元素については湾内まで到達せずに河口域に滞留し, 負荷が高くなったと考えられる。

第1表 国際機関および日本国外の政府関係機関で制定された二枚貝類に関するCr, Cu, Zn, As, CdおよびPbの乾燥重量濃度基準値と2020年7月から2021年4月にかけてのマガキでの濃度(濃度単位:  $\mu\text{g/g d.w.}$ ; 2020年12月は必要量の採取ができず欠測) (Yuan *et al.*, 2020; Kouali *et al.*, 2022から引用)

国際機関名(英語略称)	Cr	Cu	Zn	As	Cd	Pb
BFL, 1975	1	30	50	-	1	-
FAO, 1983	1	70	1,000	-	2	-
WHO, 1989	50	30	100	-	1	-
UNEP, 1993	-	20	-	-	0.5	-
USFDA, 1993	12	-	-	-	4	-
FDA, 1997	13	-	-	-	4	-
TKB, 2002	-	20	-	-	0.1	-
USEPA, 2002	-	50-150	200-500	2-4	1.4	1.7
EFSA, 2005	-	-	-	-	1	-
FSSAI, 2012	-	-	-	-	1.5	-
Chinese Food Health Criterion, 2017	2	50	50	0.5	0.5	1.5
<b>羽田 2020.7-2021.4 (本研究, 筋肉および内臓)</b>	0.185-2.13	92.6-1,330	994-10,700	2.22-16.4	1.48-7.30	0.354-7.30

## まとめ

本結果は、二枚貝のNa比およびFe比による元素分布評価の有効性を示した。本指標は代謝等の内的要因だけでなく、降雨や塩分濃度といった外的要因の影響を評価する際にも有用である。マガキ軟組織における元素濃度の季節変動評価のみでは内的要因の影響が強く、環境中の分布量の評価が困難であったものの、内臓におけるNa比およびFe比による評価からは、Li, V, Cr, Mn, Co, Ni, Cu, Zn, AsとPbについて、降雨現象が二枚貝類生体内への微量元素流入や元素の水圏環境への新規流入に寄与することが明らかとなった。これらの元素について、Na比とFe比による評価は、各元素の水中での分布量や滞留時間、土壌および堆積物といった底質成分中での存在形態に関する各種先行研究結果と一致していた。とくに、Cu, Zn, AsとPbについては河口域や汀線域での沈着と慢性的汚染が示された。しかし、各元素の明確な流入源評価のためには、降雨現象に伴う流入量変動に関与する雨天時越流水やランオフの流入地点、下水処理水の放出地点付近、ならびに降雨に伴う河川流量変化との関連性を探るための中・上流域において、元素濃度分析を行う必要がある。そのためには、水および底質に加えて、マガキ同様に指標となりうる汽水性または淡水性の水生生物による生物指標モニタリングが必要とされよう。

## 謝辞

本稿の執筆にあたっては東京農工大学環境毒性学研究室の学生、同大学大地まどか准教授ならびに所属学生、高田秀重名誉教授および水川薫子講師から多大なる尽力を賜った。また、公益財団法人 海洋生物環境研究所 顧問 石丸 隆博士（東京海洋大学 名誉教授）ならびに加戸 隆介博士（北里大学 名誉教授）には本稿の取りまとめに関する有益な助言を賜った。ここに感謝の意を表す。

## 引用文献

- Adachi, K. and Tainosho, Y. (2004). Characterization of heavy metal particle embedded in tire dust. *Environ. Int.*, **30**, 1009–1017.
- Akagi, T. and Edanami, K. (2017). Source of rare earth elements in shells and soft-tissues of bivalves from Tokyo Bay. *Mar. Chem.*, **194**, 55–62.
- 赤繁悟・平田靖・高辻英之 (2006). 養殖マガキの大量へい死と水温、降水量との関係. 広島県立水産海洋技術センター研究報告, **1**, 9–13.
- 赤繁悟・楠木豊・橋本俊将 (1983). 1979～1981年の広島県下のカキへい死. 広島県水産試験場研究報告, **13**, 35–51.
- 浅見輝男 (2010). 改訂増補 データで示す 日本土壌の有害金属汚染, アグネ技術センター, 東京, 615pp.
- Bartolomé, L., Navarro, P., Raposo, J. C., Arana, G., Zuloaga, O., Etxebarria, N. and Soto, M. (2010). Occurrence and distribution of metals in mussels from the Cantabrian Coast. *Arch. Environ. Contam. Toxicol.*, **59**, 235–243.
- Bonnail, E., Pérez-López, R., Sarmiento, A. M., Nieto, J. M. and DelValls, T. Á. (2017). A novel approach for acid mine drainage pollution biomonitoring using rare earth elements bioaccumulated in the freshwater clam *Corbicula fluminea*. *J. Hazard. Mater.*, **338**, 466–471.
- Burioli, E. A. V., Stella, S. C., Foglini, C., Abete, M. C. and Prearo, M. (2017). Trace element occurrence in the Pacific oyster *Crassostrea gigas* from coastal marine ecosystems in Italy. *Chemosphere*, **187**, 248–260.
- Chen, L., Zhou, S., Shi, Y., Wang, C., Li, B., Li, Y. and Wu, S. (2018). Heavy metals in food crops, soil, and water in the Lihe River Watershed of the Taihu Region and their potential health risks when ingested. *Sci. Total Environ.*, **615**, 141–149.
- Cho, Y., Shim, W. J., Jang, M., Han, G. M. and Hong, S. H. (2019). Abundance and characteristics of microplastics in market bivalves from South Korea. *Environ. Pollut.*, **245**, 1107–1116.
- Davis, A.P., Shokouhian, M. and Ni, S. (2001). Loading estimates of lead, copper, cadmium and zinc in urban runoff from specific sources. *Chemosphere*, **44**, 997–1009.
- Ding, J., Li, J., Sun, C., Jiang, F., He, C., Zhang, M., Ju, P. and Ding, N. X. (2020). An examination of the occurrence and potential risks

- of microplastics across various shellfish. *Sci. Total Environ.*, **739**, 139887.
- Ding, J., Sun, C., He, C., Li, J., Ju, P. and Li, F. (2021). Microplastics in four bivalve species and basis for using bivalves as bioindicators of microplastic pollution. *Sci. Total Environ.*, **782**, 146830.
- Duman, F., Cicek, M. and Sezen, G. (2007). Seasonal changes of metal accumulation and distribution in common club rush (*Schoenoplectus lacustris*) and common reed (*Phragmites australis*). *EcoToxicol.*, **16**, 457–463.
- Dunn, M.A., Blalock, T.L. and Cousins, R.J. (1987). Metallothionein. *Proc. Soc. Exp. Biol. Med.*, **185**, 107–119.
- Farrington, J. W., Tripp, B. W., Tanabe, S., Subramanian, A., Sericano, J. L., Wade, T. L. and Knap, A. H. (2016). Edward D. Goldberg’s proposal of “the Mussel Watch” : Reflections after 40 years. *Mar. Pollut. Bull.*, **110**, 501–510.
- Franzaring, J., Schlosser, S., Damsohn, W. and Fangmeier, A. (2016). Regional differences in plant levels and investigations on the phytotoxicity of lithium. *Environ. Pollut.*, **216**, 858–865.
- Gasperri, J., Garnuad, S., Rocher, V. and Moilleron, R. (2008). Priority pollutants in wastewater and combined sewer overflow. *Sci. Total Environ.*, **407**, 263–272.
- Goldberg, E. D. (1975). The Mussel Watch—A first step in global marine monitoring. *Mar. Pollut. Bull.*, **6**, 111–114.
- Gu, Y. G., Ning, J. J., Ke, C. L. and Huang, H. H. (2018). Bioaccessibility and human health implications of heavy metals in different trophic level Mar. organisms: A case study of the South China Sea. *EcoToxicol. Environ. Saf.*, **163**, 551–557.
- Hartung, S., Bucher, N., Chen, H.Y., Al-Oweini, R., Sreejith, S., Borah, P., Yanli, Z., Kortz, U., Stimming, U., Hoster, H.E. and Srinivasan, M. (2015). Vanadium-based polyoxometalate as new material for sodium-ion battery anodes. *J. Power Sources*, **288**, 270–277.
- He, Z.L., Yang, X.E. and Stoffella, P.J. (2005). Trace elements in agroecosystems and impacts on the environment. *J. Trace elem. Med. Biol.*, **19**, 125–140.
- Hille, B. (1992). G protein-coupled mechanisms and nervous signaling. *Neuron*, **9**, 187–195.
- Ho, H. H., Swennen, R., Cappuyns, V., Vassilieva, E., Van Gerven, T. and Tran, T.V. (2012). Potential release of selected trace elements (As, Cd, Cu, Mn, Pb and Zn) from sediments in Cam River-mouth (Vietnam) under influence of pH and oxidation. *Sci. Total Environ.*, **435–436**, 487–498.
- Hosoi, M., Kubota, S., Toyohara, M. and Hayashi, I. (2003). Effect of salinity change on free amino acid content in Pacific oyster. *Fish. Sci.*, **69**, 395–400.
- Huang, H., Wu, J. Y. and Wu, J. H. (2007). Heavy metal monitoring using bivalved shellfish from Zhejiang coastal waters, East China Sea. *Environ. Monit. Assess.*, **129**, 315–320.
- 今井正昭 (1992). 東京湾の奇形マダコについて. 神奈川県水産試験場研究報告, **13**, 19–25.
- 今井丈夫 (1971). 浅海完全養殖, 恒星社厚生閣, 東京, 454pp.
- Ivanov, A.S., Parker, B.F., Zhang, Z., Aguila, B., Sun, Q., Ma, S., Jansone-Popova, S., Arnold, J., Mayes, R.T., Dai, S., Bryantsev, V.S., Rao, L. and Popovs, I. (2019). Siderophore-inspired chelator hijacks uranium from aqueous medium. *Nat. Commun.*, **10**, 819.
- Jebali, J., Chouba, L., Banni, M. and Boussetta, H. (2014). Comparative study of the bioaccumulation and elimination of trace metals (Cd, Pb, Zn, Mn and Fe) in the digestive gland, gills and muscle of bivalve *Pinna nobilis* during a field transplant experiment. *J. Trace Elem. Med. Biol.* **28**, 212–217.
- Jonathan, M. P., Muñoz-Sevilla, N. P., Góngora-Gómez, A. M., Varela, R. G. L., Sujitha, S. B., Escobedo-Urías, D. C., Rodríguez-Espinosa, P. F., Elizabeth, L. and Villegas, C. (2017). Bioaccumulation of trace metals in farmed pacific oysters *Crassostrea gigas* from SW Gulf of California coast, Mexico. *Chemospher*, **187**, 311–319.
- 神奈川県水産技術センター (2021). 海況図データ

- ベース 東京湾口海況図. <http://sui-kanagawa.jp/Kaikyozu/TokyoWanko/> (2025年10月28日現在)
- Kinjo, A., Mizukawa, K., Takada, H. and Inoue, K. (2019). Size-dependent elimination of ingested microplastics in the Mediterranean mussel *Mytilus galloprovincialis*. *Mar. Pollut. Bull.*, **149**, 110512.
- 気象庁 (2024). 過去の気象データ検索 各地の気温, 降水量, 風など. <https://www.data.jma.go.jp/obd/stats/etrn/index.php> (2025年10月28日現在)
- 北野康 (1984). 河口域の地球化学 (総説). *地球化学*, **18**, 65-71.
- Kouali, H., Chaouti, A., Achtak, H., Elkalay, K. and Dahbi, A. (2022). Trace metal contents in the mussel *Mytilus galloprovincialis* from Atlantic coastal areas in northwestern Morocco: levels of contamination and assessment of potential risks to human health. *Mar. Pollut. Bull.*, **179**, 113680.
- Lauenstein, G. G., Cantillo, A. Y. and O'Connor, T. P. (2002). The status and trends of trace element and organic contaminations in oysters, *Crassostrea virginica*, in the waters of the Carolinas, USA. *Sci. Total. Environ.*, **285**, 79-87.
- Li, J., Lusher, A. L., Rotchell, J. M., Deudero, S., Turra, A., Bråte, I. L. N., Sun, C., Shahadat Hossain, m., Li, Q., Kolandhasamy, P. and Shi, H. (2019). Using mussel as a global bioindicator of coastal microplastic pollution. *Environ. Pollut.*, **244**, 522-533.
- Li, J., Wang, Z., Rotchell, J. M., Shen, X., Li, Q. and Zhu, J. (2021). Where are we? Towards an understanding of the selective accumulation of microplastics in mussels. *Environ. Pollut.*, **286**, 117543.
- Liu, Q., Liao, Y. and Shou, L. (2018). Concentration and potential health risk of heavy metals in seafoods collected from Sanmen Bay and its adjacent areas, China. *Mar. Pollut. Bull.*, **131**, 356-364.
- Loring, D.H. (1979). GeoChem. of cobalt, nickel, chromium, and vanadium in the sediments of the estuary and open Gulf of St. Lawrence. *Can. J. Earth Sci.*, **16**, 1196-1209.
- Markich, S.J. (2021). Comparative embryo/larval sensitivity of Australian marine bivalves to ten metals: A disjunct between physiology and phylogeny. *Sci. Total. Environ.*, **89**, 147988.
- 松本英二 (1983). 東京湾の底質環境. *地球化学*, **17**, 27-32.
- 松村 剛・石丸 隆 (2004). 東京湾への淡水供給量と窒素・リンの流入負荷量 (1997, 98年度). *海の研究*, **13**, 25-36.
- Meistertzheim, A.L., Lejart, M., Goïc, N.L. and Thébault, M.T. (2009). Sex-, gametogenesis, and tidal height-related differences in levels of HSP70 and metallothioneins in the Pacific Oyster *Crassostrea gigas*. *Comp. BioChem. Physiol., Part A*, **152**, 234-239.
- 宮崎章 (2018). 千葉県北西部の江戸川, 利根川並びに茨城県日立市及びその近隣地域を流れる河川中の溶存態Li, Mn, Ni, Co, SrのICP-MSによる定量. *環境化学*, **28**, 19-26.
- 森勝義・今井丈夫・豊島清明・臼井格 (1965). 松島湾におけるカキの大量斃死に関する研究 IV. 性成熟及び産卵に伴うカキの生理的活性と糖原量の変化. *東北区水産研究所研究報告*, **25**, 49-63.
- Murakami-Sugihara, N., Shirai, K., Tazoe, H., Mizukawa, K., Takada, H., Yamagata, T., Ootosaka, S. and Ogawa, H. (2021). Spatiotemporal change of cesium-137 in the Pacific coast of Tohoku, Japan: The mussel watch approach. *Mar. Pollut. Bull.*, **168**, 112413.
- 村岡俊彦・策俊郎・久保清 (1998). 4) マガキを用いた海域重金属モニタリングの検討. *熊本県保健環境科学研究所報*, **27**, 51-57.
- 二瓶泰雄・大津慧・影山英将・広瀬久也 (2008). 東京湾における流入負荷の経年変化. *海岸工学論文集*, **55**, 1226-1230
- 野崎義行 (1997). 最新の海水の元素組成表 (1996年版) とその解説. *日本海水学会誌*, **51**, 302-308.
- Okoshi, K., Ishikawa, M. and Nomura, T. (1988). Simultaneous Determination of Elements in Soft Tissues of the Japanese Oyster *Crassostrea gigas* by PIXE. *Nippon Suisan Gakkaishi*, **54**, 1213-1219.

- 大矢悠幾 (2025). 東京湾湾奥部沿岸域および流入河川における無脊椎生物の微量元素分布と生物指標モニタリングによる元素流入源の解析. 博士論文, 東京農工大学, 東京, 467pp.
- Oya, Y., Takada, H., Mizukawa, K., Ohji, M. and Watanabe, I. (2022). Distribution of trace element concentration in invertebrate species collected from Tokyo Bay, Japan. *Environ. Monit. Contam. Res.*, **2**, 67-87.
- 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**, 56-69.
- Rodríguez, B.M., Bhuiyan, M.K.A., Freitas, R. and Conradi, M. (2021). Mission impossible: Reach the carrion in a lithium pollution and marine warming scenario. *Environ. Res.*, **199**, 111332.
- 坂田昌弘 (2006). 東京湾における水銀汚染の現状とその負荷源. 日本海水学会誌, **603**, 145-151.
- Sakata, M., Takagi, T. and Mitsunobu, S. (2010). Evaluation of loads and sources of heavy metals in Tama River, Tokyo. *Water, Air, Soil Pollut.*, **213**, 363-373.
- Sakata, M., Tani, Y. and Takagi, T. (2008). Wet and dry deposition fluxes of trace elements in Tokyo Bay. *Atmospheric Environ.*, **42**, 5913-5922.
- Santos-Echeandía, J., Campillo, J. A., Egea, J. A., Guitart, C., González, C. J., Martínez-Gómez, C., León, V. M., Rodríguez-Puente, C. and Benedicto, J. (2021). The influence of natural vs anthropogenic factors on trace metal (loid) levels in the Mussel Watch programme: Two decades of monitoring in the Spanish Mediterranean sea. *Mar. Environ. Res.*, **169**, 105382.
- 佐々木猛智 (2010). 貝類学, 東京大学出版会, 東京, 354pp.
- Satheeswaran, T., Yuvaraj, P., Damotharan, P., Karthikeyan, V., Jha, D. K., Dharani, G., Balasubramanian, T. and Kirubakaran, R. (2019). Assessment of trace metal contamination the Mar. sediment, seawater, and bivalves of Parangipettai, south coast of India. *Mar. Pollut. Bull.*, **149**, 110499.
- Schertzing, G., Ruchter, N. and Sures, B. (2018). Metal accumulation in sediments and amphipods downstream of combined sewer overflows. *Sci. Total. Environ.*, **616-617**, 1199-1207.
- 柴田輝和・河西伸治 (1999). 東京湾盤州干潟と富津干潟のアサリ漁場におけるツメタガイの大量発生と駆除方法. 千葉水試研報, **55**, 25-31.
- Shikazono, N., Tatewaki, K., Mohiuddin, K.M., Nakano, T. and Zakir, H.M. (2012). Sources, spatial variation, and speciation of heavy metals in sediments of the Tamagawa River in Central Japan. *Environ. GeoChem. Health*, **34**, 13-26.
- Shiller, A.M. and Mao, L. (2000). Dissolved vanadium in rivers: effects of silicate weathering. *Chem. Geol.*, **165**, 13-22.
- 清水詢道 (2003). 東京湾のマアナゴ資源について. 神奈川県水産総合研究所研究報告, **8**, 1-11.
- Sivalingam, P. M., Allapitchay, I. H., Kojima, H. and Yoshida, T. (1982). Mussel watch of PCBs and persistent pesticide residues in *Perna viridis* Linnaeus from Malaysian and Singapore waters. *Appl. Geogr.*, **2**, 232-237.
- Sobihah, N. N., Zaharin, A. A., Nizam, K. M., Juen, L. L. and Kyoung-Woong, K. (2018). Bioaccumulation of heavy metals in maricultured fish, *Lates calcarifer* (Barramudi), *Lutjanus campechanus* (redsnapper) and *Lutjanus griseus* (greysnapper). *Chemosphere*, **197**, 318-324.
- Solidoro, C., Pastres, R., Canu, D.M., Pellizzato, M. and Rossi, R. (2000). Modelling the growth of *Tapes philippinarum* in Northern Adriatic lagoons. *Mar. Ecol. Prog. Ser.*, **199**, 137-148.
- Soto, M., Ireland, M. P. and Marigómez, I. (2000). Changes in mussel biometry on exposure to metals: implications in estimation of metal bioavailability in 'Mussel-Watch' programmes. *Sci. Total. Environ.*, **247**, 175-187.
- Stoffynegli, P. and Mackenzie, F. (1984). Mass balance of dissolved lithium in the oceans. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **48**, 859-872.
- 陶正史・峯正之・岩本孝二・当重弘 (1981). 東京湾海底堆積物の重金属汚染. 水路部研究報告, **16**, 83-93.
- 高柳和史・坂見知子 (2002). 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. 水産総合研究センター研究報告, **2**, 35-46.
- 田島良博 (2011). 東京湾におけるシャコ資源の現状と課題. 黒潮の資源海洋研究, **12**, 47-52.
- 田中彌太郎 (1954). 有明海産重要二枚貝の産卵期 -II スミノエガキ及びマガキについて. 日本水産学会誌, **19**, 1161-1164.
- Tanguy, A. and Moraga, D. (2001). Cloning and characterization of a gene coding for a novel metallothionein in the Pacific oyster *Crassostrea gigas* (CgMT2) : a case of adaptive response to metal-induced stress? *Gene*, **273**, 123-130.
- Thorpe, A. and Harrison, R.M. (2008). Sources and properties of non-exhaust particulate matter from road traffic: a review. *Sci. Total. Environ.*, **400**, 270-282.
- 東京湾岸自治体環境保全会議 (2021). 東京湾水質調査報告書 (令和元年度) 2019. [https://www.kankyo.metro.tokyo.lg.jp/documents/d/kankyo/bay-water-report2019\\_pdf](https://www.kankyo.metro.tokyo.lg.jp/documents/d/kankyo/bay-water-report2019_pdf) (2025年10月28日現在)
- 東京湾口航路事務局 (2015). そもそも東京湾とは? <https://www.pa.ktr.mlit.go.jp/wankou/knowledg/index.htm> (2025年10月28日現在)
- Tulcan, R.X.S., Ouyang, W., Lin, C., He, M. and Wang, B. (2021). Vanadium pollution and health risks in marine ecosystems: Anthropogenic sources over natural contributions. *Water Res.*, **207**, 117838.
- Turner, A., Kearn, E.R. and Solman, K.R. (2016). Lead and other toxic metals in playground paints from South West England. *Sci. Total. Environ.*, **544**, 460-466.
- Viarengo, A. and Nott, J.A. (1993). Mechanisms of heavy metal cation homeostasis in marine invertebrates. *Comp. BioChem. Physiol. C-Pharmacol. Toxicol. Endocrinol.*, **104**, 355-372.
- 若林敬子 (2000). 東京湾の環境問題史, 有斐閣, 東京, 408pp.
- Widdows, J., Donkin, P., Brinsley, M. D., Evans, S. V., Salkeld, P. N., Franklin, A., Law, R. J. and Waldock, M. J. (1995). Scope for growth and contaminant levels in north-sea mussels *Mytilus edulis*. *Mar. Ecol. Prog. Ser.*, **127**, 131-148.
- 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). ムラサキガイを用いた沿岸海域の微量元素汚染のモニタリング-汚染物質の蓄積特性と東京湾への応用-. 地球化学, **34**, 41-57.
- Yuan, Y., Sun, T., Wang, H., Liu, Y., Pan, Y., Xie, Y., Huang, H. and Fan, Z. (2020). Bioaccumulation and health risk assessment of heavy metals to bivalve species in Daya Bay (South China Sea) : consumption advisory. *Mar. Pollut. Bull.*, **150**, 110717.
- Zahra, A., Hashmi, M. Z., Malik, R. N. and Ahmed, Z. (2014). Enrichment and geo-accumulation of heavy metals and risk assessment of sediments of Kurang Nallah-feeding tributary of Rawal Lake Reservoir, Pakistan. *Sci. Total. Environ.*, **470-471**, 925-933.
- Zamani, A., Eavani, S. and Rafiee, E. (2021). Synthesis and characterization of anticorrosion, low-lead leaching PbCrO<sub>4</sub>/eggshell composites as the environmentally sustainable yellow pigments. *J. Clean. Prod.*, **304**, 127103.