

## 東京都内湾の魚介類におけるダイオキシン類の生物蓄積

大橋 則 雄\*

### Bioaccumulation of Dioxins in Fish and Shellfish from Tokyo Inner Bay

Norio OHASHI\*

**Keywords** : ダイオキシン類 dioxins, ポリ塩化ジベンゾ-*p*-ジオキシン PCDDs, ポリ塩化ジベンゾフラン PCDFs, コプラナーポリ塩化ビフェニル Co-PCBs, 生物蓄積 bioaccumulation, 魚介類 fish and shellfish, 東京湾内湾 Tokyo inner bay

#### はじめに

都民の一般的な生活環境からのダイオキシン類暴露量は、食物、水、大気、土壌のモニタリングの結果から毒性等量(TEQ)に換算され評価されている。平成16年度の調査では、総暴露量は平均1.58 pg-TEQ/kg/dayと推計され、そのうち食物からの暴露量は1.55 pg-TEQ/kg/day (98%)と高い寄与率を占めている<sup>1)</sup>。食物からの摂取量は、大人食中のダイオキシン類一日摂取量調査(トータルダイエツトスタディ)で、14食品群に分類されて推計されているが<sup>2)</sup>、平成16年度の食品群別によるTEQへの寄与率は、魚介類82.4%、肉類・卵類10.8%、乳・乳製品3.6%と、これら3群で全食品群の95%以上を占め<sup>3)</sup>、特に魚介類からの暴露量が高いことを示している。平成15年度の厚生労働省の全国調査でも、魚介類の寄与率は78.5%と同様の傾向が認められ<sup>4)</sup>、魚介類より肉製品からの寄与率が高い欧米と異なり<sup>5-8)</sup>、日本人はダイオキシン類を主に魚介類から摂取している。

都衛生局(現福祉保健局)は、化学物質から都民の健康を守るための基礎資料を得るため、平成元年より東京都内湾に生息する魚類について、ポリ塩化ジベンゾ-*p*-ジオキシン(PCDDs)およびポリ塩化ジベンゾフラン(PCDFs)の蓄積状況調査を行っている<sup>9)</sup>。ダイオキシン類対策特別措置法(以下特措法と略す)によりコプラナーポリ塩化ビフェニル(Co-PCBs)もダイオキシン類として定義された平成11年から、健康安全研究センターは本調査の分析を開始し、平成14年度からは、食品監視の観点から調査が引き継がれ、現在に至っている。

特措法により、平成14年12月から特定施設の排ガス排出基準が強化されたことから、ダイオキシン類の発生源対策が進み、都内大気環境中への推計排出量は、特措法施行前の平成10年度は62.3 g-TEQ/年であり、平成16年度には2.7 g-TEQ/年と激減しているが<sup>10)</sup>、東京湾内湾の魚介類中のダイオキシン類濃度は、魚介類におけるダイオキシン類の生物蓄積性が高いため<sup>11-15)</sup>、大気環境のように明確な減少傾向が認められていない。

そこで、東京湾内湾の魚介類が生息する水環境、水生生物に関するダイオキシン類調査などの知見に基づき、東京湾内湾の魚介類におけるダイオキシン類の生物蓄積の特徴について概説する。

#### 1. 東京湾に生息する生物とその栄養段階

東京湾内湾の水質は徐々に改善され、スズキやカレイを対象とした刺網漁業やアサリを対象とした採貝漁業、アナゴのはえなわ漁業などが6漁業組合(大田、芝、港、佃島、中央墨田、東京東部)により営まれている。またハゼ釣りも都民の楽しみの一つとなっている。平成15年1月から12月までの内湾の総生産量は509トン(t)で、図1に示すように、魚種別では、主としてアサリ、スズキ、アナゴ、カレイ類などの生産量が多く、「江戸前」漁業の振興を目的として、水質浄化や人工海浜などの整備、近隣県と連携した資源管理、身近な水辺の再生などの振興方策がとられている<sup>16, 17)</sup>。

福祉保健局は、東京湾内湾の河川河口域、中央防波堤周辺などを定点とし、魚介類のスズキ、ボラ、コノシロ、マアナゴ、マハゼ、マコガレイ、ムラサキイガイ、アサリを

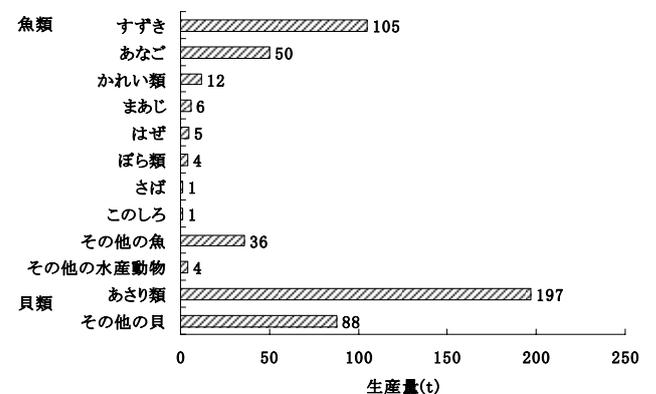


図1. 東京湾内湾の魚種別生産量(平成15年)

\* 東京都健康安全研究センター環境保健部 169-0073 新宿区百人町3-24-1

\* Tokyo Metropolitan Institute of Public Health

3-24-1, Hyakunin-cho, Shinjyuku-ku, Tokyo 169-0073 Japan

表1 東京湾魚介類の食性

魚介類	体長	食性
魚類	スズキ	稚仔魚
	5~8月	藻場 アミ類, 端脚類
	9~10月	藻場の外 エビ類, アミ類, ハゼ類
	20cm前後	魚類 (アユ, カタクチイワシ, マアジ), エビ類
	後期仔魚	動物プランクトン
	2~3cm	付着藻類
	4~5cm	付着藻類, デトライタス (堆積物)
	若魚・成魚	底層に沈積した微生物や原生動物, 付着藻類を砂泥ごと食べる
	マアナゴ	多毛類 (ゴカイ), 甲殻類 (エビ, カニ), 頭足類 (イカ, タコ), 魚類
	マコガレイ	貝類, 多毛類, プランクトン, 甲殻類, 頭足類
	コノシロ	動・植物プランクトン
	マハゼ	
貝類	アサリ	動物プランクトン, セストン (海水中有機懸濁粒子)
	ムラサキイガイ	プランクトン, マクロベントス (懸濁物食性)

対象としてダイオキシン類の調査を行っている。これら魚介類は、表1のように動・植物プランクトン、海水中の有機懸濁粒子および底生生物（付着藻類、フジツボ、貝類、ゴカイ、ヒトデ、ハゼ類などの底生魚類）を、また成長したスズキやマアナゴは甲殻類や魚類も摂取している<sup>18)</sup>。

動物体の窒素や炭素の安定同位体組成は、餌の組成が変化しなければ老化しても同じ同位体組成を保つため、上位の栄養段階の動物は餌より同位体濃度が高く濃縮されることから、食物連鎖における被食と捕食の関係を解析する目的で、窒素安定同位体の測定が行われている。東京湾の水生生物における調査では、各生物種の窒素安定同位体存在比 $\delta^{15}\text{N}$ は、平均11.3~17.7‰で、プランクトン類<多毛類<貝類<魚類の順に高い。魚類ではコノシロ<マコガレイ<アナゴ<スズキの順で、スズキが食物連鎖のもっとも高位にあり<sup>19)</sup>、表1の各生物種の食性を反映している。

## 2. 東京湾をめぐる水環境中のダイオキシン類

### 1) 水質

東京湾に流入する5河川（江戸川、中川、荒川、隅田川、多摩川）のうち、江戸川、中川、荒川、隅田川の4河川は、多摩川と比べ上流に農地が多く、農薬のペンタクロロフェノール (PCP) の不純物に由来する八塩化PCDD (OCDD) 濃度が、PCDDsおよびPCDFs (以下PCDD/DFs) の合計濃度において高い割合を示す。特に中川ではOCDD濃度がPCDD/DFs濃度の51~62%を占める。多摩川は上流に工場や住宅地が多いため、主に燃焼由来のダイオキシン類の影響のほかに殺菌剤の不純物由来の異性体が検出されている。都内河川中のダイオキシン類の存在量は、懸濁態には9.9~65 pg-TEQ/g (0.074~2.8 pg-TEQ/L)、溶解態には0.010~0.39 pg-TEQ/Lと、懸濁態に多く存在し、高塩素数の六塩化~八塩化のPCDD/DFs同族体の86~96%が懸濁態に存在している<sup>20, 21)</sup>。

平成16年度の都内環境中のダイオキシン類濃度は、公共用水域の河川および海域でそれぞれ0.069~1.3 pg-TEQ/L、0.079~0.73 pg-TEQ/Lの範囲にあり、平均値はそれぞれ0.31 pg-TEQ/L、0.25 pg-TEQ/Lである。河川3地点で夏期に環境基準 (年平均値1 pg-TEQ/L以下) を超えているが、これは底

泥の巻上げが原因と考えられている。底質が巻上げられると水中の懸濁物質 (SS) 濃度が高くなり総TEQは高くなる傾向があるが<sup>22)</sup>、一地点はSS濃度が低いにもかかわらず総TEQが高く、他の汚染要因が考えられている<sup>9)</sup>。

### 2) 底質

東京湾の堆積物中のダイオキシン類組成を年代別に調査した結果では、東京湾に堆積しているPCDDs およびPCDFsは、主として燃焼由来の四塩化PCDFs (TeCDFs) と五塩化PCDFs (PeCDFs) および過去に水田除草剤として使用された農薬であるPCPとクロロニトロフェン (CNP) の不純物に由来している。1967~1972年代、図2に示した高塩素のOCDD、八塩化PCDF (OCDF) および七塩化PCDF (HpCDF) などのピークは、PCPの不純物に由来する<sup>23)</sup>。また、1972~1977年代のTeCDDのピークはCNPの不純物で毒性等価係数 (TEF) が設定されていない1,3,6,8-および1,3,7,9-TeCDDに主として起因する<sup>24, 25)</sup>。以上のように、東京湾の堆積物中のダイオキシン類は、燃焼由来の大気沈着物 (降雨や大気から沈降する粉塵) および農薬の不純物であるダイオキシン類が主な汚染要因であり、これらが雨水により河川へ流出し東京湾に流入している。

Co-PCBsの汚染源は主にPCB製品由来であるが、PCB製品中で組成が低い3,3',4,4',5,5'-PCB (PCB-169) は、燃焼由来によるものと考えられている。PCB-169は、図3のように減少傾向が見られず平衡状態にある。

都の調査では、公共用水域の河川および海域の底質のダイオキシン類濃度は、それぞれ0.26~570 pg-TEQ/g、6.4~57 pg-TEQ/g、平均値はそれぞれ27 pg-TEQ/g、28 pg-TEQ/gであり、河川の底質で環境基準 (150pg-TEQ/g以下) を上回る一地点については<sup>10, 26)</sup>、底質の拡散抑制対策が取り組まれている<sup>10)</sup>。

東京湾の海水、プランクトン、魚類のアナゴ、スズキのダイオキシン類濃度を化合物別に比較すると、表2のように、海水<プランクトン<アナゴ・スズキの順に濃度が上昇し蓄積性が認められる。また、Co-PCBsの総TEQに占める寄与率を比較すると、海水、底質では4.7、6.4%であるが、水生生物では80~92%と高く、Co-PCBsの蓄積性がPCDD/DFsより高いことを示す<sup>27)</sup>。

表 2. 東京湾の水環境と水生生物のダイオキシン類濃度

試料名	(単位)	PCDDs	PCDFs	Co-PCBs	総TEQ	Co-PCBsの寄与率(%)
海水	(pg-TEQ/L)	0.092	0.064	0.0076	0.16	4.7
表層底質	(pg-TEQ/g)	18	20	2.6	41	6.4
プランクトン	(pg-TEQ/g)	0.048	0.00059	0.54	0.59	92
アナゴ	(pg-TEQ/g)	0.73	0.91	7.2	8.9	80
スズキ	(pg-TEQ/g)	0.45	0.66	8.6	9.5	88

底質・プランクトンは乾燥重量あたり, アナゴ・スズキは湿重量あたりの濃度

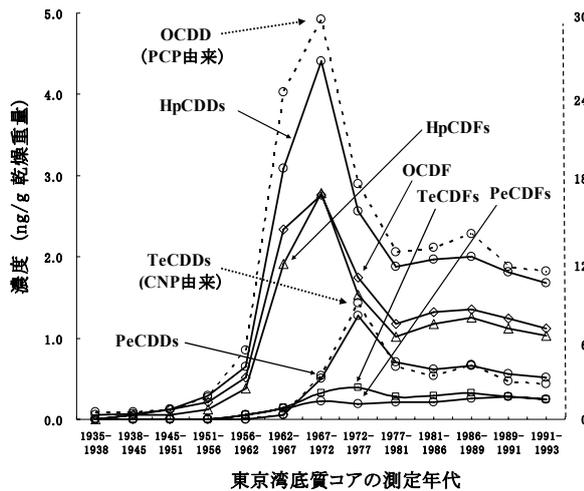


図 2. 東京湾底質コア中のPCDD/DFs同族体の濃度

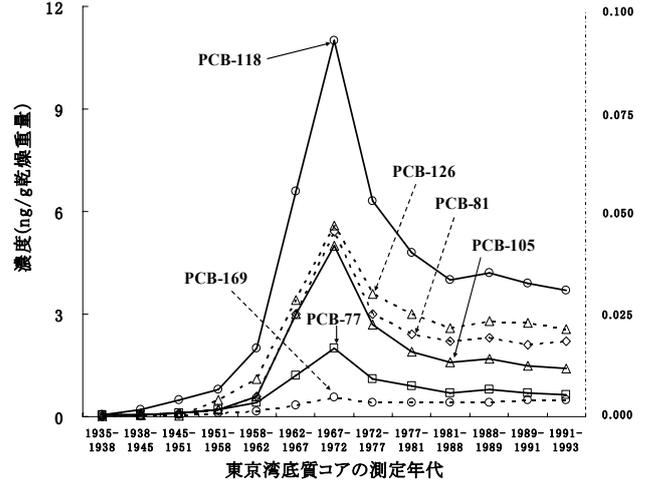


図 3. 東京湾底質コア中のCo-PCBsの濃度

3. 東京湾内湾の魚介類へのダイオキシン類の蓄積

1) 魚介類から検出される PCDD/DFs の組成

東京湾内湾の各魚介類の PCDD/DFs 濃度を比較すると、図 4, 5 のように魚類では TEF が設定されている 2,3,7,8-塩素置換 PCDD/DFs が主に検出され、貝類、底質、海水の組成と比較すると、各同族体におけるその他の PCDD/DFs 異性体の濃度はあまり高くない。一方、貝類では 2,3,7,8-塩素置換 PCDD/DFs も検出されるが、農薬の CNP および PCP の不純物由来する 1,3,6,8-, TeCDD, 1,3,7,9-TeCDD, OCDD および各同族体におけるその他の非 2,3,7,8-塩素置換 PCDD/DFs 異性体が主として検出される。また、CNP の不純物である 1,3,6,8-, TeCDD と 1,3,7,9-TeCDD の濃度比は、魚類では約 20 : 1 以上となるが、貝類では海水や底質の検出組成と同様に約 3 : 1 で検出され、魚類と貝類では蓄積性や代謝速度が異性体により異なっていることがわかる。

各採取地点で採取した魚類と貝類における PCDD/DFs 異性体の組成は、それぞれ類似していて、生息環境や汚染源の違いを示す明確な地域差は認められていない。

水生生物への蓄積性を PCDD/DFs の分子構造から比較すると、毒性等価係数 (TEF) が設定されているような 2,3,7,8-位に塩素が全て置換した PCDD/DFs は、水生生物に取込まれやすく代謝・排泄されにくいいため、生物蓄積性が高い<sup>28, 29)</sup>。2,3,7,8-位に塩素が全て置換せず、1,4 位の片方あるいは 6,9 位の片方に塩素が置換した 1,2,3,7-TeCDD,

1,2,3,7,9-PeCDF などの PCDD/DFs は、代謝・排泄されやすく、蓄積性があまりみられない。1,4-あるいは 6,9-の両位置に塩素が置換した 1,2,3,4-TeCDD, 1,2,3,4,7-PeCDF, 1,2,3,4,6,7,8-HpCDF, OCDD などの PCDD/DFs は、分子の横断面の長さが 0.95nm 以上あるため生体膜を通過しにくいことから、水生生物に取込まれにくい<sup>29, 30)</sup>。また、水溶解度が低い高塩素化合物は、底質に吸着されやすいため、魚介類への取込みが制限されると考えられている<sup>31)</sup>。

また、水生生物への 2,3,7,8-塩素置換 PCDD/DFs の蓄積性を栄養段階で比較すると、低塩素の化合物は栄養段階の上昇に伴い蓄積されやすく、OCDD のような高塩素の化合物は栄養段階の上昇に伴い排除されやすい。また、非 2,3,7,8-塩素置換 PCDD/DFs は、塩素の数によらず栄養段階の上昇に伴い排除される傾向がある<sup>19, 32)</sup>。

これら、PCDD/DFs の生物蓄積に関する知見は、東京湾の魚類と貝類における蓄積性の特徴と一致している。

2) 魚介類から検出される Co-PCBs の組成

東京湾内湾の各魚介類、底質および海水から検出された Co-PCBs 12 物質の相対組成比は類似し、2,3',4,4',5-PCB (IUPAC#118 : 以下 PCB-118) および 2,3,3',4,4'-PCB (PCB-105) の合計濃度は、図 6 のように Co-PCBs 濃度の約 80% を占める。一般的に底質の Co-PCBs の相対組成比は、過去に使用された PCB 製品中の Co-PCBs の組成比<sup>33)</sup> と類似している。しかし、non-ortho PCBs の PCB-77 について比

較すると、海水や底質の組成比が魚介類より高いことから、PCB-77は魚介類で代謝速度が速いことが示唆される。また、魚類と貝類では組成比が異なり、魚類の代謝速度が速いことが推測される。他の調査でも、Co-PCBsの相対組成比が異なることやCo-PCBsの塩素置換している位置により分解速度や蓄積性が異なることが指摘されている<sup>3,4-3,7)</sup>。

Co-PCBs全12物質は、水生生物の栄養段階において高い蓄積性を示すが、特に4~6塩素数のCo-PCBsが栄養段階の上昇に伴って高い蓄積性を示し、高塩素数のCo-PCBsは低い蓄積性を示す<sup>1,9)</sup>。

魚類のヒラメの体長とPCDD/DFs濃度との間には相関はみられないが、総non-ortho PCBs濃度および総mono-ortho PCBs濃度との間には相関がみられ<sup>3,8)</sup>、概して大きな魚からはCo-PCBsの高い蓄積性が認められる。

貝類のムラサキガイのPCB異性体組成は、海水のSSの寄与が大きい。海水からの濃縮過程で、同族体分布は高塩素に移行し、五、六塩化体では濃縮係数が $10^5$ までとなるが、高塩素化体は疎水性が高く、七、八塩化体では取込に選択性があり $10^3 \sim 10^4$ となる。濃縮係数は六塩化体が高<sup>3,9)</sup>。

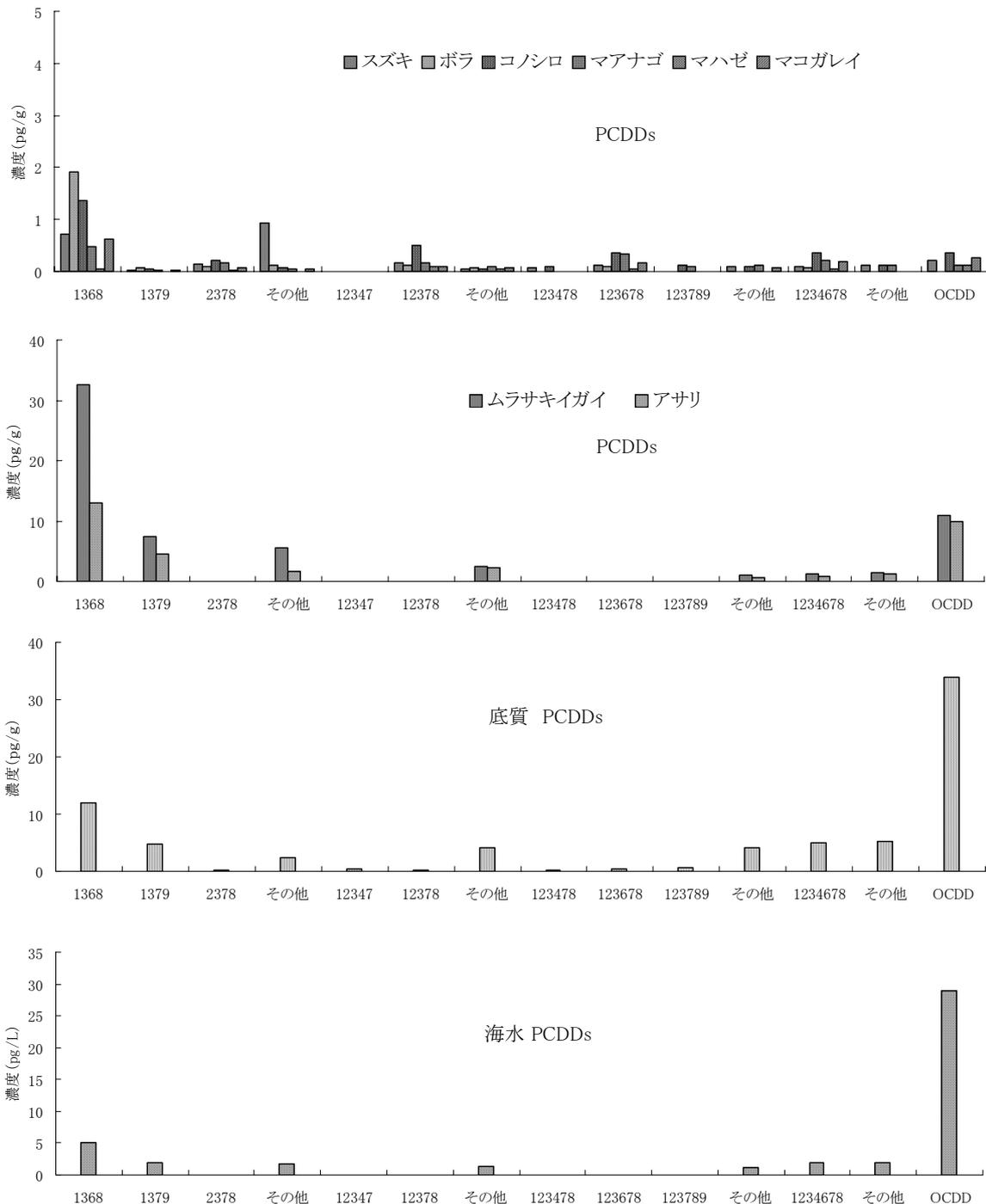


図4. 東京湾内湾魚貝類のPCDDsの組成

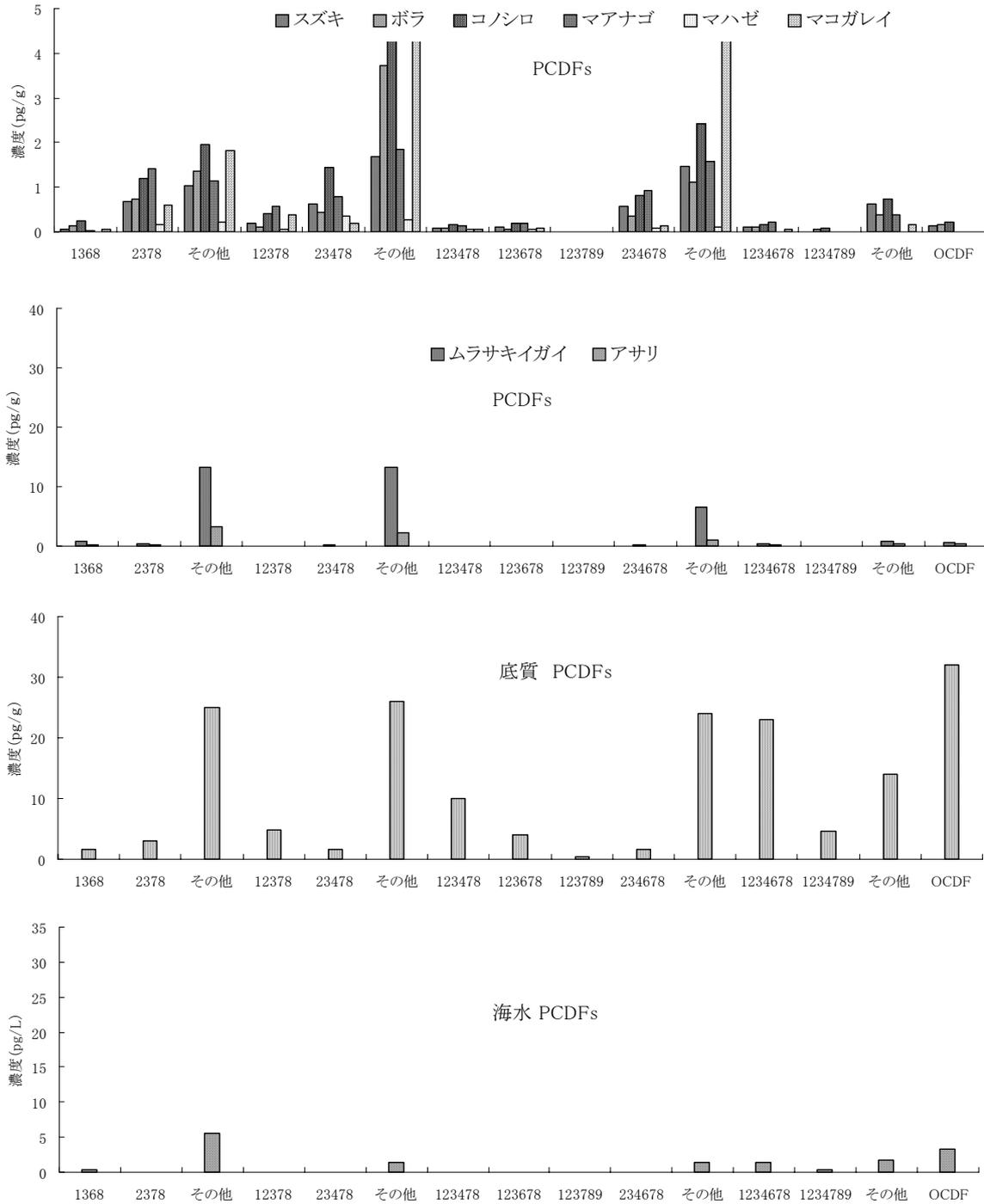


図5. 東京湾内湾魚貝類のPCDFsの組成

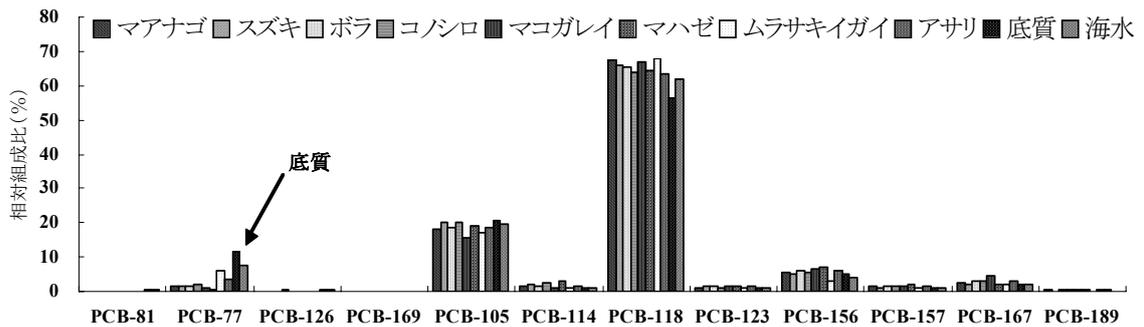


図6. 東京湾内湾魚貝類および底質・海水のCo-PCBsの組成

#### 4. 東京湾内湾の魚介類中のダイオキシン類濃度

平成 11 年度から 16 年度までに実施された、東京湾内湾魚介類のダイオキシン類の調査結果では<sup>40-45)</sup>、魚介類を調理せずに摂取したとしても耐容一日摂取量 4 pg-TEQ/kg・bw/day を下回ると評価されている。

平成 16 年度の調査では、魚類のダイオキシン類濃度は、隅田川河口が 5.33 pg-TEQ/g、漁場 1 が 4.93 pg-TEQ/g、漁場 2 が 4.09 pg-TEQ/g であった。これらの魚類を調理せずに摂取した場合、魚類からの一日のダイオキシン類摂取量は 2.45 pg-TEQ/kg・bw/day で、食事全体からのダイオキシン類摂取量は 2.51 pg-TEQ/kg・bw/day となり、特措法における耐容一日摂取量 4 pg-TEQ/kg・bw/day を下回っている<sup>40)</sup>。

調査した魚介類のダイオキシン類平均濃度と脂肪含量との関係を表 3 に示したが、脂肪含量の高い魚種から順にダイオキシン類濃度は高くなり、脂肪に蓄積しやすいダイオキシン類の特徴を示している。また、平成 16 年度のアサリを除き、各魚介類の Co-PCBs 濃度のダイオキシン類濃度に対する寄与率は 74.1~86.3% と高い。

農林水産省の平成 16 年度魚介類のダイオキシン類調査では、全国の魚類の PCDD/DFs および Co-PCBs の平均濃度は、国内産（沿岸・沖合）は 0.36 pg-TEQ/g、0.74 pg-TEQ/g、計 1.10 pg-TEQ/g、遠洋輸入は 0.17 pg-TEQ/g、0.82 pg-TEQ/g、計 0.99 pg-TEQ/g で、貝類では、国内産（沿岸・沖合）は、0.12 pg-TEQ/g、0.07 pg-TEQ/g、計 0.19 pg-TEQ/g、遠洋輸入は 0.10 pg-TEQ/g、0.09 pg-TEQ/g、計 0.19 pg-TEQ/g と、沿岸・沖合の濃度が高い傾向にある<sup>46)</sup>。これら国内産魚介類の Co-PCBs の TEQ への寄与率は魚類で 69.1%、貝類で 36.7% であった。都市部港湾や沿岸・沖合のアナゴ、ボラ、スズキの Co-PCBs の寄与率は、表 4 のように東京湾内湾魚介類の調査結果とほぼ同様である。都市部港湾内に生息する魚介類は、遠洋水域の魚介類より PCB 汚染の影響が高いことを示している。

##### 1) 魚類のダイオキシン類濃度

東京湾のスズキに関する飯村らの報告では、平成 12 年に 4.5~16 pg-TEQ/g の範囲で平均 9.6 pg-TEQ/g と高濃度に検

出されている<sup>36)</sup>。農林水産省の調査では、表 4 のように東京湾のスズキから 3.85~6.54 pg-TEQ/g の範囲で検出されている<sup>46)</sup>。福祉保健局の調査でも、図 6 のように平成 11 年度は 9.0 pg-TEQ/g と高濃度であったが、それ以降は、平均 2.4~4.6 pg-TEQ/g の範囲で検出されている<sup>40)</sup>。ダイオキシン類濃度を脂肪重量当りの濃度と比較すると、スズキの脂肪含量が比較的低いいため、マコガレイと同様に高濃度となる<sup>36, 40, 46)</sup>。

マアナゴは、脂肪含量が高いため、例年高濃度にダイオキシン類が検出される。飯村らの調査では平成 12 年に 5.1~18 pg-TEQ/g の範囲で平均 8.9 pg-TEQ/g と高濃度に検出されている<sup>36)</sup>。福祉保健局の調査では、これまでに平均濃度 3.9~11 pg-TEQ/g の範囲で検出され、農林水産省の調査では 3.51, 5.88 pg-TEQ/g 検出されている<sup>46)</sup>。

コノシロは、平成 13 年度まで調査が行われたが、各年度検体の脂肪含量が高く、ダイオキシン類濃度も高い結果が得られている。農林水産省の調査で、平均 2.4 pg-TEQ/g と比較的的低濃度の検体は、東京湾の汚染の低い地域で採取されたものと推定される。

ボラは、農林水産省の調査では東京湾の検体がみられないが、関東沖合のボラのダイオキシン類は低濃度で、Co-PCBs 濃度の寄与率も低いことから、内湾のボラの汚染が高いことがわかる。

マコガレイは脂肪含量が低いいため、平成 14 年度から例年約 2 pg-TEQ/g と他の魚類より比較的的低濃度に検出されているが、脂肪重量当りの濃度はスズキと同様に高い。

マハゼについては筋肉部を分析しているが、ダイオキシン類平均濃度は、平成 12 年度は 3.5 pg-TEQ/g、平成 13 年度は 1.4 pg-TEQ/g であった。江東区の調査では、運河で採取されるハゼから 5.1~14 pg-TEQ/g と高濃度に検出されている<sup>47)</sup>、内臓を含む全身を分析していることに起因しているためと考えられる。ハゼは、水環境の汚染指標生物として有効で、1953 年から 1999 年までに採取され、冷凍保存された東京湾産ハゼの標準試料により、ダイオキシン類汚染の歴史的経過が確認されている<sup>48)</sup>。

表 3. 東京湾内湾魚介類のダイオキシン類の平均濃度

魚種	調査年度	試料数	脂肪含量 (%)	Dioxins	PCDD/Fs	Co-PCBs	Dioxins	Co-PCBsの寄与率 (%)
				(湿重量)			(脂肪重量)	
				(pg-TEQ/g)				
マアナゴ	H15	8	12.5	9.2	1.3	7.9	74	85.5
	H16	8	8.6	7.2	1.0	6.2	83	86.3
コノシロ	H13	10	6.0	7.2	1.8	5.4	119	75.4
	ボラ	H16	8	5.7	5.7	0.99	4.7	100
H15		8	5.2	4.9	0.84	4.1	95	82.9
スズキ	H16	8	4.4	4.1	0.71	3.4	93	82.7
	H15	8	3.4	4.2	0.76	3.5	126	82.1
ムラサキイガイ	H13	10	1.5	1.2	0.31	0.87	77	74.1
マコガレイ	H16	8	0.7	1.9	0.31	1.6	254	83.5
アサリ	H16	6	0.9	0.19	0.09	0.10	21	51.9
マハゼ	H15	6	1.0	0.71	0.10	0.61	73	85.9
	H13	4	0.5	1.4	0.32	1.0	302	76.4

2) 貝類のダイオキシン類濃度

アサリについては、平成 15 年度から調査を開始しているが、平成 15 年度は 0.71 pg-TEQ/g、平成 16 年度は 0.19 pg-TEQ/g と、魚類と異なり低濃度である。平成 15 年度は、一地点が高濃度となったため平均値が高くなったが、平成 16 年度の試料は低濃度であった。Co-PCBs の寄与率は、表 3,4 のように低い傾向にある。

ムラサキガイは海岸の岩場や防潮堤などに付着している定住性の二枚貝で、海浜に生息するアサリと生息状況

が異なり、平成 11 年度から 14 年度の Co-PCBs の寄与率の平均は 74.6%とアサリより高い。

3) ダイオキシン類濃度の経年変化

平成 11 年度から 16 年度まで、東京湾内湾各魚介類のダイオキシン類濃度は<sup>40-45)</sup>、図 7 のように、年度によっては体長が小さく脂肪含量の低い検体が捕獲される場合があり、ダイオキシン類平均濃度が年度によって増減することから、魚介類中のダイオキシン類濃度は大気環境のように明確な減少傾向は認められていない。

表 4. 魚介類のダイオキシン類濃度 (農林水産省の調査より抜粋)

魚介類	輸入 国産	水 域	調査 年度	脂肪 含量 (%)	Dioxins	PCDD/Fs	Co-PCBs	Dioxins	Co-PCBsの	
					(湿重量)			(脂肪重量)		寄与率
					(pg-TEQ/g)			(%)		
アナゴ	国産	東京湾	H16	10.5	3.51	0.66	2.85	33	81.2	
	国産	東京湾	H15	13.5	5.88	1.14	4.74	44	80.6	
	国産	伊勢・三河湾	H16	11.5	2.41	0.74	1.67	21	69.3	
	国産	伊勢・三河湾	H15	12.5	3.50	0.68	2.82	28	80.5	
	国産	伊勢・三河湾	H11-14	13.6	3.90	1.01	2.89	29	74.1	
	国産	大阪湾	H16	18.4	8.87	1.72	7.15	48	80.6	
	国産	大阪湾	H15	11.8	6.40	1.29	5.11	54	79.9	
	国産	山陰沖	H16	11.2	1.13	0.27	0.86	10	76.1	
	国産	瀬戸内海西部	H15	7.3	1.46	0.36	1.10	20	75.1	
	国産	瀬戸内海東部	H16	14.7	4.46	1.04	3.42	30	76.7	
	国産	瀬戸内海東部	H15	12.8	6.29	1.39	4.90	49	77.9	
	国産	瀬戸内海東部	H11-14	12.5	8.31	1.84	6.47	66	77.8	
	国産	東海沖	H11-14	8.6	1.77	0.11	1.67	21	94.1	
	スズキ	国産	東京湾	H16	3.0	3.85	0.80	3.05	128	79.2
国産		東京湾	H15	2.7	4.57	1.05	3.52	169	77.0	
国産		東京湾	H11-14	3.0	4.25	0.69	3.56	142	83.8	
国産		東京湾	H11-14	4.2	6.54	1.05	5.50	156	84.0	
国産		伊勢・三河湾	H16	1.2	1.74	0.55	1.19	145	68.4	
国産		伊勢・三河湾	H15	1.6	2.60	0.59	2.01	163	77.2	
国産		大阪湾	H16	3.4	5.45	1.12	4.33	160	79.4	
国産		大阪湾	H15	2.1	4.29	0.85	3.43	204	80.1	
国産		瀬戸内海東部	H16	4.1	4.43	1.11	3.32	108	74.9	
国産		瀬戸内海東部	H15	5.5	3.02	0.81	2.21	55	73.1	
国産		瀬戸内海東部	H11-14	2.1	5.19	1.15	4.05	247	77.9	
ボラ		国産	関東沖	H15	3.1	0.81	0.31	0.50	26	61.8
		国産	瀬戸内海西部	H11-14	5.8	3.44	0.98	2.46	59	71.6
		国産	瀬戸内海南部	H15	8.4	2.53	0.35	2.18	30	86.4
	国産	東海沖	H16	6.5	2.12	0.54	1.58	33	74.5	
	国産	東海沖	H11-14	1.0	0.50	0.08	0.42	50	84.7	
マコガレイ	国産	東京湾	H16	0.4	0.77	0.20	0.57	193	74.0	
	国産	東京湾	H15	0.4	0.66	0.17	0.49	164	74.2	
	国産	瀬戸内海東部	H16	0.6	0.74	0.25	0.49	123	66.2	
	国産	瀬戸内海東部	H15	1.8	1.13	0.48	0.65	63	57.2	
アサリ	国産	東京湾	H16	0.5	0.05	0.03	0.02	10	40.0	
	国産	東京湾	H15	0.8	0.08	0.04	0.04	10	50.0	
	国産	東京湾	H11-14	0.3	0.16	0.16	0.00	54	1.2	
	国産	東京湾	H11-14	2.1	2.22	1.99	0.24	106	10.7	
	国産	伊勢・三河湾	H16	0.7	0.06	0.05	0.01	9	16.7	
	国産	伊勢・三河湾	H15	1.1	0.06	0.04	0.02	5	40.0	
	国産	伊勢・三河湾	H15	0.6	0.06	0.03	0.02	9	41.8	
	国産	伊勢・三河湾	H11-14	0.8	0.30	0.27	0.02	37	8.1	
	国産	伊勢・三河湾	H11-14	1.1	1.10	0.89	0.21	100	19.1	
	国産	東海沿岸	H16	0.9	0.03	0.02	0.01	3	33.3	
	輸入	韓国沿岸	H16	0.7	0.01	0.01	0.00	1	-	
	輸入	韓国沿岸	H16	0.4	0.00	0.00	0.00	-	-	
	輸入	大韓民国沿岸	H15	1.1	0.03	0.01	0.02	2	80.8	
	輸入	大韓民国沿岸	H15	1.3	0.04	0.02	0.02	3	59.5	
	輸入	大韓民国沿岸	H11-14	0.7	0.04	0.03	0.01	6	28.2	
	輸入	中国沿岸	H11-14	0.6	0.09	0.08	0.01	15	12.0	

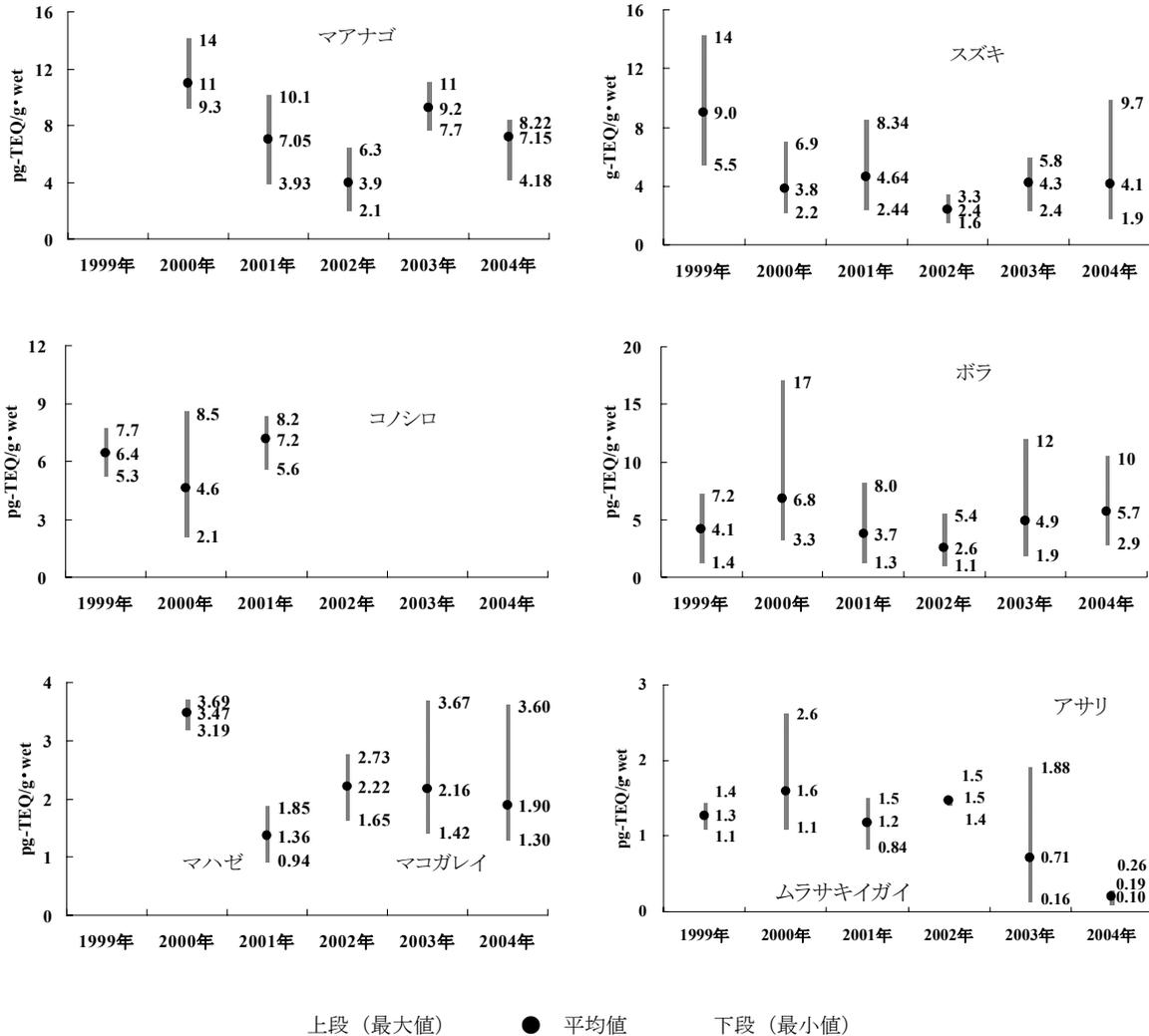


図7. 東京湾内湾の魚介類中のダイオキシン類の平均濃度（湿重量あたり）

4) 魚介類のPCB濃度

魚介類についてはダイオキシン類と同時にPCBの調査が行われている。平成16年度の魚類全体のPCB濃度は、隅田川河口0.16 ppm、漁場1,2はそれぞれ0.11 ppm, 0.08 ppm、貝類のアサリは、三枚洲0.03 ppm、羽田沖0.01 ppm、海の公園は検出限界以下(ND)で<sup>40)</sup>、東京湾内湾の魚介類は、食品衛生法による魚介類のPCB暫定的規制値(内海内湾魚介類3 ppm、遠洋沖合魚介類0.5 ppm)を下回っている。

東京湾のスズキのPCB濃度は、1976年には濃度範囲0.35~1.88 ppm平均1.0 ppm<sup>49)</sup>、1983年には濃度範囲0.24~0.98 ppm平均0.49 ppmであったが<sup>50)</sup>、平成16年度では、隅田川河口0.18 ppm、漁場1,2はそれぞれ0.09 ppm, 0.08 ppmと減少している。平成11年度からスズキのPCB濃度はあまり大きな変化がみられていない。

東京湾のアサリのPCB濃度は、1980~1983年には濃度範囲0.00~0.06 ppm平均0.00~0.04 ppm検出されているが、一地点の高濃度試料を除くと、その他の地点は濃度範囲0.00~0.02 ppm平均0.00~0.01 ppmとなり<sup>50-53)</sup>、現在の濃度レベルと変わっていない<sup>40, 41)</sup>。

東京都は、昭和47年のPCB汚染調査で、内湾のスズキ、

コノシロ、ボラから暫定規制値を超えるPCBが検出されたため、都は漁業者に対し漁獲の自主規制を要請した。その後、汚染が改善されてきたことから、昭和51年にスズキ、昭和60年にボラ、昭和62年にコノシロの漁獲の自主規制を解除している。現在、東京湾産の魚介類については、60 cm以上のスズキに対する入荷の自主規制措置が残っているが、有害物環境調査で基準値を超えるスズキはない<sup>17)</sup>。

5. 魚類の臓器へのダイオキシン類分布

魚類の内臓は可食部よりPCBを多く蓄積し、フッコ、ハゼ、マコガレイ、ハマチの内臓では、可食部の3倍から14倍の高濃度になる<sup>54-56)</sup>。魚の肝臓中のPCDD/DFs濃度は、筋肉部のPCDD/DFs濃度と相関関係があり、濃度は肝臓がはるかに高い<sup>57)</sup>。

筆者らのスズキの各臓器のダイオキシン類濃度分布を検討した結果では、図8に示したように、消化管の周囲にある脂肪組織から124 pg-TEQ/gと最も高濃度に検出され、以下肝臓23 pg-TEQ/g、消化管10 pg-TEQ/gの順に検出された。腎臓、脾臓から消化管より高濃度に検出される場合があり、ボラでも同様の傾向がみられたが、試料数が少ない

ため明確な順位は得られていない。各臓器の PCDD/DFs および Co-PCBs の濃度組成は筋肉部の濃度組成と類似し、相関関係も高い。

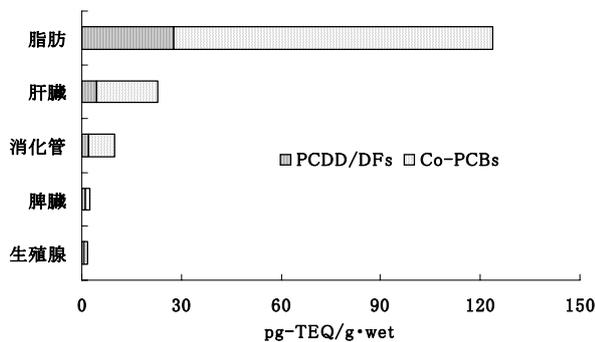


図 8. スズキの臓器中のダイオキシン類濃度

## 6. 調理による魚類中のダイオキシン類の低減

魚は、刺身で食べるほかは、焼く、煮るなどの調理方法がとられ、これら調理によるダイオキシン類の減少が期待される。水分が減少するため、実際の測定ではダイオキシン類濃度の増加傾向が認められるが、調理前の重量当りに換算して比較すると、「煮る」で 14.4%、「焼く」で 30.6%、「つみれとして煮る」で 20.9%低減することが確認されている<sup>58)</sup>。

ハゼの頭と内臓を除去すると PCB は 13~41%に減少し、それを素揚げにすると 15~39%に、甘露煮にすると 30%に減少した。頭と内臓を除去し、それを素揚げにすると、ダイオキシン類は 29~52%に減少した。PCB およびダイオキシン類は筋肉部よりハゼの内臓部分に多く蓄積している<sup>47)</sup>。

ダイオキシン類の摂取を抑えるには、魚の内臓を除去して食べるかあるいは日常的に内臓を食べないように心がけることが最善の方策といえる。

## おわりに

ダイオキシン類の発生源対策は着実に成果が得られてきた<sup>10)</sup>。一方、東京湾内湾の魚介類のダイオキシン類濃度は、魚介類の生物濃縮性が高いため、大気環境のような急激な減少はみられないが、化学物質排出移動量届出制度 (PRTR) による環境への排出量の管理把握などによって<sup>59)</sup>、さらに環境中へのダイオキシン類の排出抑制が進むと考えられ、今後緩やかに減少していくと思われる。

これまでに、PCB 使用製品の廃棄物処理が課題となることに対応した「PCB 廃棄物の適正な処理の推進に関する特別措置法」の施行や魚介類中のダイオキシン類濃度の低減を期待した「ダイオキシン類対策特別措置法に基づく水質汚濁のうち水質の底質の汚染に係る環境基準」の設定などの対策がとられてきた。今後、ダイオキシン類は大気、水環境や食物連鎖により移動する性質をもつことから、残留性有機汚染物質に関するスウェーデン条約 (POPs 条約) の対象物質として、国際的な協力のもとで汚染拡大防止対策や監視測定などの措置がとられようとしている<sup>60)</sup>。

ダイオキシン類の調査研究においては、TEF が設定されていない非 Co-PCBs の中に Ah レセプター非依存性の免疫抑制作用や甲状腺ホルモンかく乱作用が疑われる異性体があることから、食品中の Co-PCBs 以外の異性体分析が新たな課題となっている<sup>61), 62)</sup>。

最近、輸入魚の養殖魚でもダイオキシン濃度が高濃度に検出され<sup>63)</sup>、養殖魚への餌由来のダイオキシン類についても注意が喚起されている。ダイオキシン類の難分解性、生物蓄積性、有害性および移動性などを考慮すると、魚介類のモニタリングを、今後も継続して行く必要があると考える。

謝 辞 東京湾産魚介類のダイオキシン類調査は、福祉保健局健康安全室環境保健課および食品監視課の事業計画により実施されたもので、本稿を書く機会を与えていただいたことを感謝します。また、本調査結果は、当センターの微量分析研究科、水質研究科および環境衛生研究科の 3 科の協力で得られたもので、関係各位に感謝します。

## 文 献

- 1) 東京都福祉保健局：平成 17 年度第 1 回化学物質保健対策分科会資料“平成 16 年度都内における一般的な生活環境からのダイオキシン類暴露量状況の推計結果”平成 17 年 7 月 29 日。
- 2) 牛尾房雄, 菊谷典久, 斎藤由紀, 他：東京衛研年報, **53**, 87-94, 2002。
- 3) 東京都福祉保健局：平成 16 年度第 2 回化学物質保健対策分科会資料“平成 16 年度食事由来の化学物質暴露量推計調査結果”平成 17 年 3 月 29 日。
- 4) 厚生労働省食品安全部：平成 15 年度食品からのダイオキシン類一日摂取量調査などの調査結果について、<http://www.mhlw.go.jp/houdou/2004/12/h1227-2a.html>
- 5) Fernandez, M.A., Gomara, B., Bordajandi, L.R., et al. : *Food additives and Contaminants*, **21**, 983-991, 2004.
- 6) Baars, A.J., Bakker, M.I., Baumann, R.A., et al. : *Toxicology Letters*, **151**, 51-61, 2004.
- 7) Kiviranta, H., Ovaskainen, M.-L. and Vartiainen, T. : *Environment International*, **30**, 923-932, 2004.
- 8) Charnley, G. and Doull, J. : *Food and Chemical Toxicology*, **43**, 671-679, 2005.
- 9) 東京都衛生局医療福祉部環境公害保健課：ダイオキシン類生物汚染状況調査結果報告書(平成元年度～9 年度), 平成 11 年 3 月。
- 10) 東京都環境局・建設局：平成 16 年度都内環境中のダイオキシン類調査結果およびダイオキシン類排出量推計結果について、<http://www2.kankyo.metro.tokyo.jp/kansi/dioxin/dxn16/16hp.htm>
- 11) Muir, D.C.G., Marshall, W.K. and Webster, G.R.B. : *Chemosphere*, **14**, 829-833, 1985.

- 12) Opperhuizen, A. and Sjim, D.T.H.M. : *Environ. Toxicol. Chem.*, **9**, 175-186, 1990.
- 13) Burkhard, L.P., Cook, P.M. and Lukasewycz, M.T. : *Environ. Sci. Technol.*, **38**, 5297-5305, 2004.
- 14) 山田 久 : 中央水研研報, **9**, 139-161, 1997.
- 15) 佐々木裕子 : 環境化学, **10**, 517-532, 2000.
- 16) 東京都産業労働局農林水産部水産課 : 水産業振興プラン (海編), 平成 16 年 4 月.
- 17) 東京都産業労働局農林水産部水産課 : 東京都の水産 平成 16 年版, 平成 17 年 3 月.
- 18) 落合 明編 : 魚類解剖大図鑑解説編, 1994, 緑書房, 東京.
- 19) Naito, W., Jin, J., Kang, Y., et al. : *Chemosphere*, **53**, 347-362, 2003.
- 20) 小林憲弘, 益永茂樹, 中西準子 : 水環境学会誌, **27**, 7, 465-472, 2004.
- 21) 小林憲弘, 益永茂樹, 中西準子 : 水環境学会誌, **26**, 10, 665-662, 2003.
- 22) 佐々木啓行, 津久井公昭, 吉岡英俊, 他 : 東京都環境科学研究所年報 2003, 72-77, 2004.
- 23) Buser, H.R. and Bosshardt, H.P. : *AOAC*, **59**, 562-569, 1976.
- 24) Masunaga, S., Takasuga, T. and Nakanishi, J. : *Chemosphere*, **44**, 873-885, 2001.
- 25) Yamagishi, T., Miyazaki, T., Akiyama, K., Morita, M., et al. : *Chemosphere*, **10**, 1137-1144, 2001.
- 26) 飯村文成, 池田広数, 佐々木裕子, 他 : 東京都環境科学研究所年報 2002, 105-112, 2003.
- 27) 飯村文成, 佐々木裕子, 津久井公昭, 他 : 東京都環境科学研究所年報 2001, 112-120, 2002.
- 28) Rappe, C., Bergqvist, P.A. and Opperhuizen, A. : *Chemosphere*, **22**, 239-266, 1991.
- 29) Sjim, D.T.H.M., Wever, H. and Opperhuizen, A. : *Environ. Toxicol. Chem.*, **12**, 1895-1907, 1993.
- 30) Niimi, A.J. and Oliver, B.G. : *Environ. Toxicol. Chem.*, **5**, 49-53, 1986.
- 31) Loonen, H., Parsons, J.R. and Govers, H.A.J. : *Chemosphere*, **28**, 1433-1446, 1994.
- 32) Broman, D., Naf, C., Rolff, C., et al. : *Environ. Toxicol. Chem.*, **11**, 331-345, 1992.
- 33) 高菅卓三, 井上 毅, 大井悦雅 : 環境化学, **5**, 647-675, 1995.
- 34) Ling, Y.-C., Soong, D.-K. and Lee, M.-K. : *Chemosphere*, **31**, 2863-2872, 1995.
- 35) Sjim, D.T.H.M., Selen, W. and Opperhuizen, A. : *Environ. Sci. Technol.*, **26**, 2162-2174, 2004.
- 36) 飯村文成, 佐々木裕子, 津久井公昭, 他 : 環境化学, **12**, 343-352, 2002.
- 37) Isoaari, P., Vartiainen, T., Hallikainen, A., et al. : *Chemosphere*, **10**, 1137-1144, 2001.
- 38) Okumura, Y., Yamashita, Y. and Isagawa, S. : *J. Environ. Monit.*, **6**, 201-208, 2004.
- 39) 田中康寛, 天野幹大, 津野 洋, 他 : 環境衛生工学, **16**, 125-130, 2002.
- 40) 東京都福祉保健局健康安全室 : 平成 16 年度東京湾産魚介類の化学物質汚染実態調査結果, 平成 17 年 7 月 29 日.
- 41) 東京都福祉保健局健康安全室 : 平成 15 年度第 1 回化学物質保健対策分科会評価結果, 平成 16 年 8 月 31 日.
- 42) 東京都福祉保健局健康安全室 : 平成 14 年度東京湾産魚貝類の化学物質汚染実態調査結果, 平成 15 年 8 月 5 日.
- 43) 東京都健康局地域保健部 : 平成 13 年度ダイオキシン類生物汚染状況調査結果, 平成 14 年 7 月 26 日.
- 44) 東京都健康局地域保健部 : 平成 12 年度ダイオキシン類生物汚染状況調査結果, 平成 13 年 8 月 6 日.
- 45) 東京都健康局地域保健部 : 平成 11 年度ダイオキシン類生物汚染状況調査結果, 平成 12 年 7 月 13 日.
- 46) 農林水産省 : 平成 16 年度農畜水産物に係るダイオキシン類の実態調査結果について, 平成 17 年 9 月 12 日 [http://www.maff.go.jp/www/press/cont2/20050912press\\_7.html](http://www.maff.go.jp/www/press/cont2/20050912press_7.html)
- 47) 江東区保健所生活衛生課食の安全班 : 江東区食品衛生ニュース第 41 号, 平成 17 年 3 月 4 日 <http://www.city.koto.lg.jp/seikatsu/hoken/6962/6969.html>
- 48) 康 允硯, 谷内 透, 益永茂樹, 他 : 第 9 回環境化学討論会講演要旨集, 2000
- 49) 山崎清子, 山野辺秀夫, 鈴木助治, 他 : 東京衛研年報, **28-1**, 107-110, 1977.
- 50) 岸本清子, 竹内正博, 風間成孔 : 東京衛研年報, **35**, 175-178, 1984.
- 51) 山崎清子, 雨宮 敬, 鈴木助治, 他 : 東京衛研年報, **32-1**, 151-154, 1981.
- 52) 山崎清子, 水石和子, 竹内正博, 他 : 東京衛研年報, **33**, 182-185, 1982.
- 53) 山崎清子, 水石和子, 竹内正博, 他 : 東京衛研年報, **34**, 142-145, 1983.
- 54) 山野辺秀夫, 天川映子, 鈴木助治, 他 : 東京衛研年報, **25**, 119-126, 1974.
- 55) 山野辺秀夫, 天川映子, 鈴木助治, 他 : 東京衛研年報, **25**, 119-126, 1974.
- 56) 鈴木助治, 山崎清子, 山野辺秀夫, 他 : 東京衛研年報, **27-1**, 132-135, 1976.
- 57) Wu, W.Z., Schramm, K.W. and Kettrup, A. : *Chemosphere*, **43**, 633-641, 2001.
- 58) 厚生省生活衛生局 : 平成 11 年度食品からのダイオキシン一日摂取量調査等の調査結果について, 平成 12 年 11 月 28 日.
- 59) 経済産業省・環境省 : 特定化学物質の環境への排出量の把握等及び管理の改善の促進に関する法律, 平成 15 年 3 月.

- 60) 環境省：POPs 条約に基づく国内実施計画，平成 17 年 6 月 24 日。  
<http://www.env.go.jp/chemi/pops/plan/all.pdf>
- 61) 阿久津和彦 桑原克義 小西義昌 他：食衛誌 **46**, 99-108, 2005.
- 62) 武 志保, 劔持賢志, 難波順子, 他：岡山県環境保健センター年報, **26**, 65-72, 2002.
- 63) 笹本剛生, 橋本常生, 八巻ゆみこ, 他：東京健安研七 年報, 215-220, 2005.