

原著論文

魚介類中のダイオキシン類の蓄積特性

柴崎道廣^{*1 §}・林 正裕^{*2}

Accumulation Characteristics of Dioxins in Marine Fishery Products

Michihiro Shibazaki^{*1 §} and Masahiro Hayashi^{*2}

要約: 平成18年度～27年度に日本周辺水域で漁獲・収獲された11種類の魚介類(1,044検体)のダイオキシン類を分析した。その値は、0.067～7.8pg-TEQ/g-wetの範囲にあり、平均値は1.6pg-TEQ/g-wetであった。筋肉部(可食部)に蓄積しているダイオキシン類の毒性等量(TEQ)は、種類による相違、水域による相違が認められた。これらの相違は、魚介類の生態的特性と、脂溶性の高いダイオキシン類の物理化学的特性に依存する場合が認められた。また、これらの魚介類のダイオキシン類の経年的な変化傾向は明らかではないことから、今後も様々な発生源の影響を受けて魚介類に蓄積したダイオキシン類の動向を注視していく必要があることが示唆された。

平成28年度に環境省が公表した大気及び土壌のダイオキシン類濃度から算出した両者経由の人への摂取量と厚生労働省から公表された食品経由の人へのダイオキシン類摂取量の合計は0.66pg-TEQ/kg bw/dayとなり、ダイオキシン類の耐容一日摂取量(4pg-TEQ/kg bw/day)の1/5以下であった。

キーワード: ダイオキシン類, 蓄積特性, 脂質, 異性体組成, 経年変化, BSAF

Abstract: Dioxin contents in 11 species of marine fishes and a crab caught in the waters surrounding Japan ranged from 0.082 to 7.8 pg-TEQ/g-wet, having the average value of 1.6 pg-TEQ/g-wet, during the fiscal year of 2006 to 2015. Accumulation of dioxins in muscle as edible part of fish varies with species as well as conditions of waters for inhabitation. It is likely that accumulation of dioxin were characterized both by the biological properties of marine organisms such as feeding habit and by the physico-chemical properties of dioxins; especially their affinity to lipids. The results have not provided any clear tendency of the dioxin contents over time in marine organisms, nevertheless further efforts should be paid, because marine organisms are most likely to be exposed by environmental dioxins released from a variety of sources.

Key words: dioxins, accumulation characteristics, lipid, isomer composition, secular change, BSAF

(2017年2月6日受付, 2017年11月9日受理)

*1 公益財団法人海洋生物環境研究所 事務局 (〒162-0801 東京都新宿区山吹町347番地 藤和江戸川橋ビル7階)

*2 公益財団法人海洋生物環境研究所 実証試験場 (〒945-0017 新潟県柏崎市荒浜四丁目7-17)

§ E-mail: 8705yzxo@jcom.zaq.ne.jp

まえがき

ダイオキシン類対策特別措置法（平成11年7月制定）の成立、公布以降発生源対策が進み、我が国の環境中ダイオキシン類排出量は年々減少し、平成26年には平成9年に比較して約98%減少し、121～123g-TEQ/年となっていた（環境省、2016）。一方、局所的なダイオキシン類汚染も報告されており、発生源把握の難しさを表している（環境省、2017）。人が摂取するダイオキシン類の量については、環境省（2017）が公表した大気及び土壌濃度から算出した人への摂取量と、厚生労働省（2016）が公表した食品経路の摂取量の合計は0.66pg-TEQ/kg bw/dayとなり、平成10年度に比較して約1/3程度に減少しており、環境庁（当時）及び厚生労働省が定めたダイオキシン類の耐容一日摂取量（4pg-TEQ/kg bw/day）の1/5以下となっている。

ダイオキシン類については、平成3年頃から日本周辺に生息する魚介類に多く蓄積されていることが報告された（高山ら、1991）。水産庁では、平成11年度～14年度水産庁事業及び平成15年度～19年度水産庁委託事業において、日本周辺で水揚げされた魚介藻類および輸入された魚介藻類についてダイオキシン類の分析を行い、実態を把握した。農林水産省消費・安全局は、ダイオキシン類が比較的高く、水揚量（生産量）が1万トン以上の11種類の魚介類を選択し、平成18年度からサーベイランス・モニタリング調査を行い、分析結果を毎年公表して現在に至っている（平成18年度及び平成19年度は上記の水産庁委託事業として実施）。海生研ではこれらの調査を委託事業または補助事業として受託している。これらの調査結果は農林水産省ホームページで公開されている（http://www.maff.go.jp/j/syuan/seisaku/risk_analysis/survei/result.html#kannkyouchuu）。

一方、水産庁は、平成12年度～14年度にかけて東京湾及び大阪湾における水質、底質、魚類、餌生物のダイオキシン類の実態把握調査及びダイオキシン類の経口、経鰓濃縮・排出試験（スズキ *Lateolabrax japonicus*、マコガレイ *Pleuronectes yokohamae*）を海生研に委託している。

本報告では、上記の水産庁委託事業のデータの一部と平成20年度農林水産省委託事業及び平成21年度～27年度農林水産省補助事業で取得されたデータを基にして、魚介類に蓄積しているダイオ

キシン類の定性・定量的な全体像を明らかにするとともに、蓄積したPCDD/DFs, Co-PCBsに特徴のある異性体分布及び水域間における蓄積状況の差異を取りまとめた。

材料と方法

供試材料 ダイオキシン類の分析に供した魚介類試料は、調査協力を得た全国の漁業協同組合等から入手した。

調査対象魚介類（11種類）の水域別採取数の設定方法 農林水産省から毎年公表されている「漁業・養殖業生産統計年報」から、調査対象種の都道府県別水揚量及び収穫量を集計した。これらの集計結果から水揚量及び収穫量の多い順に都道府県を選択した。これらの都道府県を全国20水域区分（第1図）に対応させて水域毎の予定試料数を決めた。なお、同一水域における継続的なデータ取得にも留意するとともに、調査対象種の主要な漁業地区における漁場や、漁獲時期の情報を聞き取り調査によって得た。水域区分毎の検体数は取得データの統計的な処理が可能に3以上とした。

調査対象魚介類（11種類）の採取・分析 平成18年度～27年度に農林水産省が行ったサーベイランス・モニタリング調査の調査対象魚介類と調査年度を第1表に示した。毎年2～6種類を対象とし、各々の種類とも3～5年にわたって調査を実施した。これまでの総分析検体数は1,044検体であった。

分析対象部位 頭、内臓、骨、皮（鱗を含む）及び鰭を除いた筋肉部（可食部）を分析対象とし、カタクチイワシ *Engraulis japonicus*（1検体当たり200～400個体使用）以外は10個体の混合試料（試料重量約1kg）を作製した。なお、カタクチイワシ及びウナギ *Anguilla japonica*（養殖）の分析試料には皮を含めた。

分析試料の調製方法 水産庁委託事業では、平成15年度（2004）から「漁場環境の化学物質リスク対策推進委託事業 ダイオキシン類の蓄積実態調査」を実施し、同調査のなかで試料調製方法の検討を行い、平成19年度（2008）に魚介藻類のダイオキシン類に係る試料採取及び標準手順書（暫定



注：水産庁作成の我が国周辺水域区分図より（公財）海生研が作成

第1図 我が国周辺水域区分（20水域区分）。平成14年度に水産庁が作成した水域区分図であり、農林水産省では調査対象とした魚介類の採取水域の表示に使用している。

第1表 農林水産省が実施しているサーベイランス・モニタリング調査の年度展開

No.	種類名	H18	H19	H20	H21	H22	H23	H24	H25	H26	H27
1	カタクチイワシ	①		②			③				④
2	コノシロ	①		②			③				④
3	スズキ	①		②		③		④			⑤
4	タチウオ	①		②		③			④		
5	ブリ (天然)		①		②		③		④		
6	ホッケ	①		②		③			④		
7	マサバ	①		②			③			④	
8	ウナギ (養殖)		①		②			③			④
9	カンパチ (養殖)		①		②		③			④	
10	ブリ (養殖)		①		②		③		④		
11	ベニズワイガニ		①		②			③			
各種類の検体数		n=10	n=10	n=30	n=30	n=30	n=30	n=30	n=30	n=20	n=20

○印内の数字は調査回次

版)を作成した。この手順書に従って分析部位の調製を行った。調製を行う前に採取した試料の種査定及び写真撮影を行うとともに、生物学的データ(体重, 体長, 雌雄)を取得した。また, 10個体の混合試料(筋肉部位)を調製するために, 供試した個体から分割した各々の筋肉重量及び分析用の調製重量約1kgを得る縮分過程についても記録した。調製重量約1kgは, 上記の魚介藻類のダイオキシン類に係る試料採取及び標準手順書(暫定版)を作成したときに分析データの再々分析を複数の分析機関で行うことが可能な量として上記調査の検討委員会において設定した。

分析対象物質 分析対象としたのは, 4~8塩素化物のポリ塩素ジベンゾ-パラ-ジオキシン(PCDDs)の49同族体/異性体(以下, 異性体と略記), ポリ塩化ジベンゾフラン(PCDFs)の87異性体及びコプラナ-PCB(Co-PCBs)のうち12異性体と脂質である(付表1参照)。本報告においてダイオキシン類とは, WHO/IPCS(2005)による毒性等価係数(TEF: Toxicity Equivalency Factor, 第2表)が提案されている4~8塩素化物のポリ塩化ジベンゾ-パラ-ジオキシン(PCDDs)の7異性体, 同じくポリ塩化ジベンゾフラン(PCDFs)の10異性体及びコプラナ-PCB(Co-PCBs)の12異性体濃度に各々のTEFを乗じて合算した値であり, 毒性等量(Toxicity Equivalency Quantity, TEQ: pg-TEQ/g-wet)と呼ばれる。

本文中, PCDDs+PCDFsはPCDD/DFs, コプラナ-PCBはCo-PCBs, PCDD/DFs+Co-PCBsはダイオキシン類と表記し, 単位は毒性等量(pg-TEQ/g-wet)とする。

なお, 平成15年度~19年度にかけて水産庁が公表したダイオキシン類の毒性等量は, WHO/IPCS(1998)の毒性等価係数を用いて算出されているため, WHO/IPCS(2005)の毒性等価係数を用いて海生研が再計算を行った。

分析方法及び検出下限値 調製した魚介類試料の分析は, 食品中のダイオキシン類及びコプラナ-PCBの測定方法暫定ガイドライン(厚生労働省, 1999)及び食品中のダイオキシン類の測定方法暫定ガイドライン(厚生労働省, 2008)に定める手順に従った。脂質はソックスレー抽出法を用いた。各々の分析に供した試料重量は, ダイオキシン類で50g, 脂質では1.5~4gであった。

検出下限及び定量下限については, JIS K 0312: 工場用水・工場排水中のダイオキシン類の測定方法(日本規格協会, 2005)の7.5.「検出下限及び定量下限」に従い算出した。各異性体の定量下限はPCDDs, PCDFsが0.01pg/g(4, 5塩素化物), 0.02pg/g(6, 7塩素化物), 0.05pg/g(8塩素化物), Co-PCBsが0.1pg/g(3,3',4,4'-TeCB, 3,4,4',5-TeCB, 3,3',4,4',5-PeCB, 3,3',4,4',5,5'-HxCB), 1pg/g(その他)である。

なお, 分析結果が定量下限値未満(ND)であ

る場合には0として毒性等量 (pg-TEQ/g-wet) を算出した。

ダイオキシン類の分析に係る内部精度管理は、日本規格協会 (2005) に従った。また、外部精度管理は、国際的に認知されている外部精度管理機

関 (Central Science Laboratory (FAPAS) あるいは Norwegian Institute of Public Health (NIPH)) のダイオキシン類の分析技能試験において送付される標準試料の分析を行い、上記の外部精度管理機関から良好であるとの評価を受けている。

第2表 ダイオキシン類各異性体の毒性等価係数

No.	化合物の名称等		毒性等価係数TEF (WHO-2005)
1	PCDDs (ポリ塩化ジベンゾ-p-ラジオキシン)	2, 3, 7, 8-TeCDD	1
2		1, 2, 3, 7, 8-PeCDD	1
3		1, 2, 3, 4, 7, 8-HxCDD	0.1
4		1, 2, 3, 6, 7, 8-HxCDD	0.1
5		1, 2, 3, 7, 8, 9-HxCDD	0.1
6		1, 2, 3, 4, 6, 7, 8-HpCDD	0.01
7		OCDD	0.0003
1	PCDFs (ポリ塩化ジベンゾフラン)	2, 3, 7, 8-TeCDF	0.1
2		1, 2, 3, 7, 8-PeCDF	0.03
3		2, 3, 4, 7, 8-PeCDF	0.3
4		1, 2, 3, 4, 7, 8-HxCDF	0.1
5		1, 2, 3, 6, 7, 8-HxCDF	0.1
6		1, 2, 3, 7, 8, 9-HxCDF	0.1
7		2, 3, 4, 6, 7, 8-HxCDF	0.1
8		1, 2, 3, 4, 6, 7, 8-HpCDF	0.01
9		1, 2, 3, 4, 7, 8, 9-HpCDF	0.01
10		OCDF	0.0003
1	Co-PCBs (コプラナーポリ塩化ビフェニル)	non-ortho*	
2		3, 3', 4, 4'-TeCB (#77)	0.0001
3		3, 4, 4', 5-TeCB (#81)	0.0003
4		3, 3', 4, 4', 5-PeCB (#126)	0.1
		3, 3', 4, 4', 5, 5'-HxCB (#169)	0.03
5		mono-ortho*	
6		2, 3, 3', 4, 4'-PeCB (#105)	0.00003
7		2, 3, 4, 4', 5-PeCB (#114)	0.00003
8		2, 3', 4, 4', 5-PeCB (#118)	0.00003
9		2', 3, 4, 4', 5-PeCB (#123)	0.00003
10		2, 3, 3', 4, 4', 5-HxCB (#156)	0.00003
11		2, 3, 3', 4, 4', 5'-HxCB (#157)	0.00003
12	2, 3', 4, 4', 5, 5'-HxCB (#167)	0.00003	
	2, 3, 3', 4, 4', 5, 5'-HpCB (#189)	0.00003	

* ()内の数字はIUPAC(国際純正・応用化学連合)により決められた化合物命名法による No. を示す。

結果及び考察

平成18年度～27年度に採取・分析を行った11種類の魚介類のダイオキシン類は、0.067～7.8pg-TEQ/g-wetの範囲にあり、その平均値は1.6pg-TEQ/g-wetであった（第3表）。

魚介類中のダイオキシン類と体重、体長、脂質分析に供した個体の平均体重（g）とダイオキシン類、平均体長（cm）とダイオキシン類、脂質（g/100g）とダイオキシン類の関係を第2図～第4図に示した。

魚介類中のダイオキシン類と上記の3要素の相関係数（r）を第4表に示した。一般的に有意な相関係数の大きさはデータ数によって異なる。第2図～第4図に示した11種類の魚介類データは各々70～121個である（第3表）。よって最小データ数70の場合の5%有意水準の限界値は0.235となる。

この値を参考にして有意性をみると、体重ではカタクチイワシ、コノシロ *Konosirus punctatus*、ブリ *Seriola quinqueradiata*（天然）、マサバ *Scomber japonicus*、カンパチ *Seriola dumerili*（養殖）、ブリ（養殖）で、体長ではカタクチイワシ、コノシロ、ブリ（天然）、ホッケ *Pleurogrammus azonus*、カンパチ（養殖）、ベニズワイガニ *Chionoecetes japonicus*で、脂質ではベニズワイガニを除く10種類で相関係数の有意性が認められた。ダイオキシン類と脂質で相関が良いのは、脂溶性物質であるダイオキシン類の特性を反映したものと考えられる。なお、調査対象とした各種類の魚介類は、ダイオキシン類の蓄積状況を把握するために異なった水域から同サイズ（同一年級群）のものを入手することを目途とした。そのため、ダイオキシン類と平均体重及び平均体長間の関係が良くなかったとも考えられる。

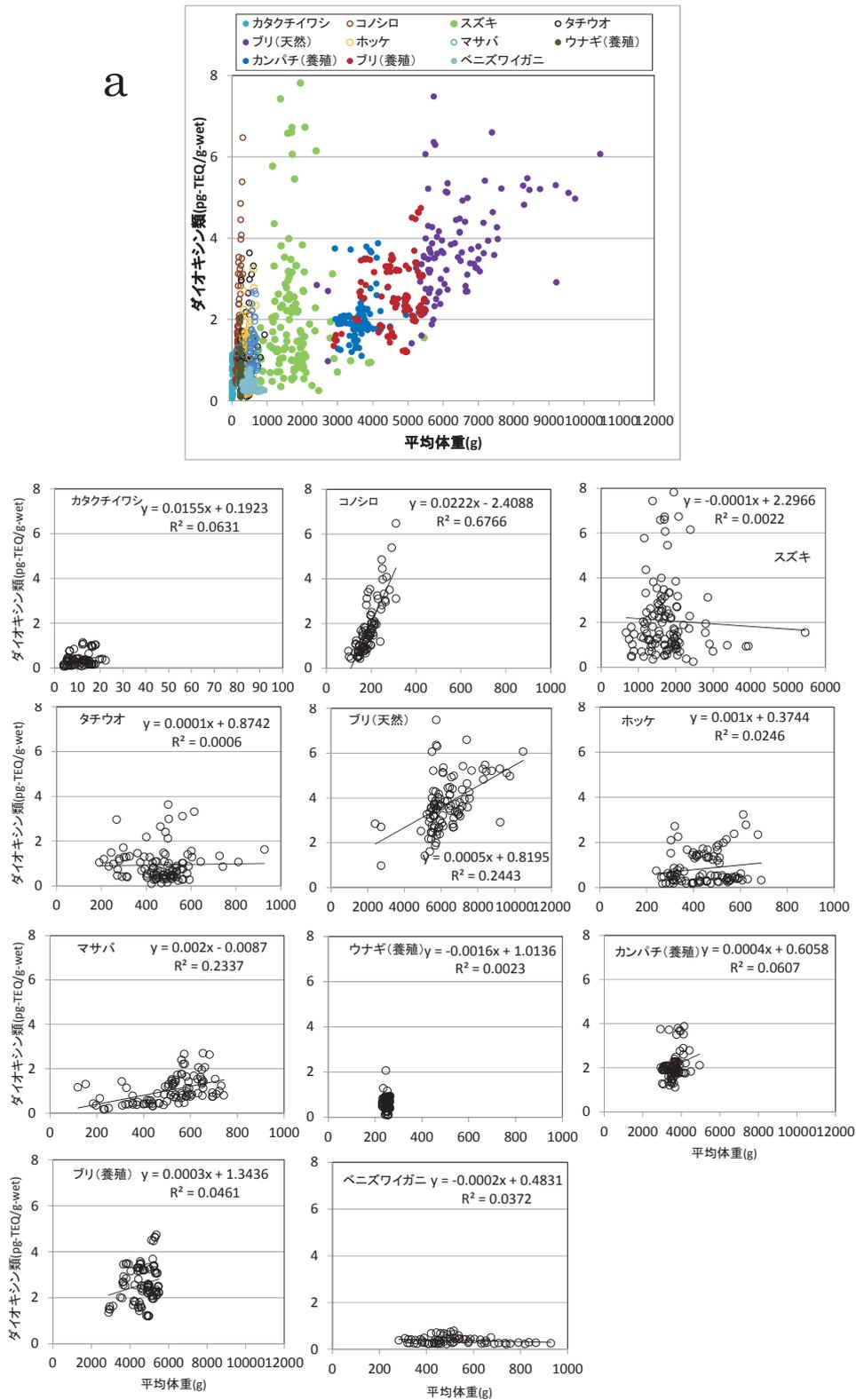
第3表 魚介類11種類のダイオキシン類の最小値、最大値、平均値

種類名	単位：pg-TEQ/g-wet			
	最小値	最大値	平均値	データ数
カタクチイワシ	0.067	～ 1.1	0.37	90
コノシロ	0.43	～ 6.5	1.8	90
スズキ	0.25	～ 7.8	2.1	121
タチウオ	0.096	～ 3.6	0.94	100
ブリ（天然）	0.97	～ 7.5	3.7	103
ホッケ	0.17	～ 3.2	0.83	100
マサバ	0.18	～ 2.7	0.99	90
ウナギ（養殖）	0.098	～ 2.1	0.62	90
カンパチ（養殖）	1.1	～ 3.9	2.1	90
ブリ（養殖）	1.2	～ 4.7	2.6	100
ベニズワイガニ	0.21	～ 0.79	0.38	70

第4表 ダイオキシン類（毒性等量）に対する体重（g）、体長（cm）、脂質（g/100g）の相関係数（r）の比較

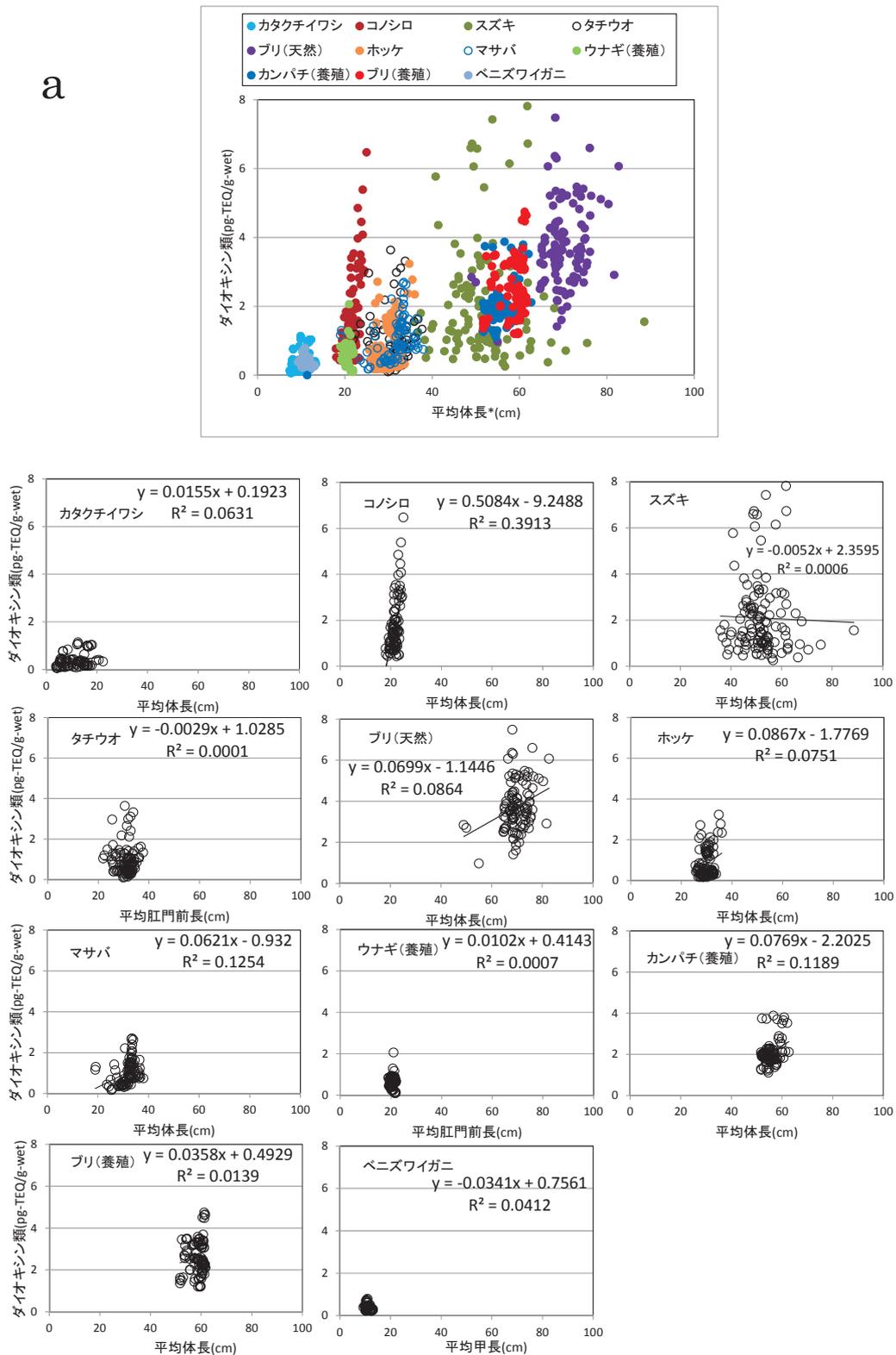
種類名	相関係数（r）		
	体重（g）	体長（cm）*	脂質（g/100g）
カタクチイワシ	0.251	0.251	0.330
コノシロ	0.823	0.626	0.491
スズキ	0.047	0.024	0.539
タチウオ	0.024	0.010	0.335
ブリ（天然）	0.494	0.294	0.712
ホッケ	0.157	0.274	0.292
マサバ	0.483	0.159	0.220
ウナギ（養殖）	0.048	0.026	0.655
カンパチ（養殖）	0.246	0.345	0.218
ブリ（養殖）	0.215	0.118	0.328
ベニズワイガニ	0.193	0.203	0.154

* タチウオ及びウナギ（養殖）の体長は肛門前長、ベニズワイガニは甲長である。

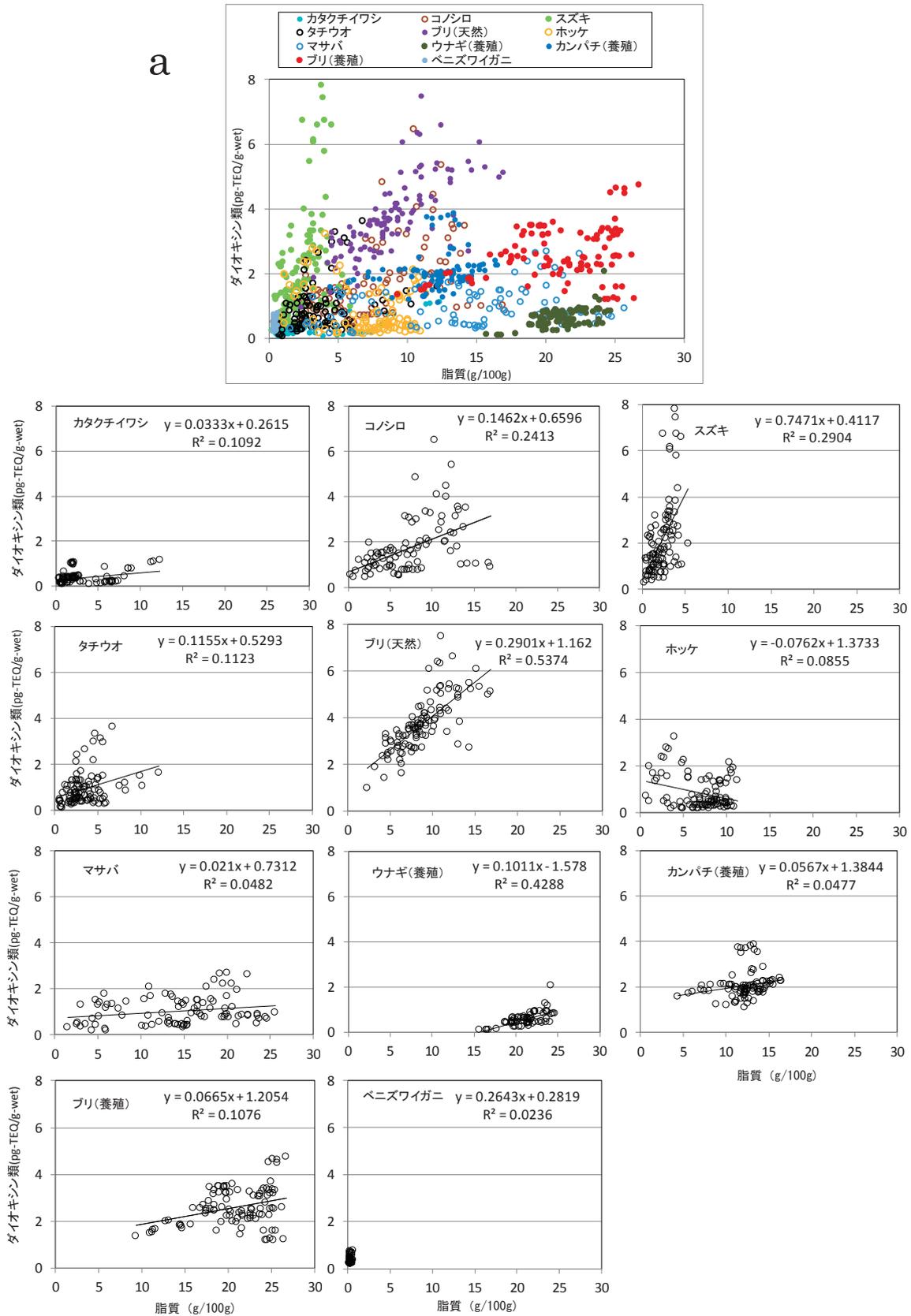


第2図 調査対象種のダイオキシン類(TEQ)と平均体重(g)の関係。横軸は体重(g)，縦軸はダイオキシン類(pg-TEQ/g-wet)を示す。aは11種類全体をプロット。下図は種類別を示す。

a



第3図 調査対象種のダイオキシン類(TEQ)と平均体長(cm)の関係。横軸は体長(cm)、縦軸はダイオキシン類(pg-TEQ/g-wet)を示す。aは11種類全体をプロット。下図は種類別を示す。なお、タチウオ、ウナギ(養殖)は肛門前長、ベニズワイガニは甲長を用いた。



第4図 調査対象種のダイオキシン類(TEQ)と脂質(g/100g)の関係。横軸は脂質(g/100g), 縦軸はダイオキシン類(pg-TEQ/g-wet)を示す。aは11種類全体をプロット。下図は種類別を示す。

筋肉部に蓄積したPCDD/DFsとCo-PCBs 11種類の魚介類についてPCDD/DFsとCo-PCBsの関係を毒性等量の場合を第5図に、湿重量濃度の場合を第6図に示した。PCDD/DFsとCo-PCBsの関係を毒性等量と湿重量濃度で比較した場合の相関係数（r）を第5表に示した（相関係数（r）は、第5図及び第6図に示した r^2 から算出した）。相関係数の有意性は上記の5%有意水準の限界値0.235を参考にする、毒性等量では全ての種類で有意な相関が認められ、湿重量濃度ではウナギ（養殖）、ブリ（養殖）、ベニズワイガニ以外で有意な相関が認められた。

第5表 11種類の魚介類中の毒性等量と湿重量濃度でのPCDD/DFsとCo-PCBs間の相関係数（r）の比較

種類名	毒性等量	湿重量濃度
カタクチイワシ	0.794	0.855
コノシロ	0.754	0.374
スズキ	0.894	0.465
タチウオ	0.915	0.702
ブリ（天然）	0.623	0.522
ホッケ	0.983	0.917
マサバ	0.931	0.337
ウナギ（養殖）	0.781	0.197
カンパチ（養殖）	0.849	0.300
ブリ（養殖）	0.728	0.073
ベニズワイガニ	0.905	0.024

毒性等量で表現した場合、PCDD/DFsとCo-PCBsとの比率は、種類によって幅があるが1：1～4となりCo-PCBsが高い場合が多かった。コノシロは他の魚類と比較すると、PCDD/DFsの割合が大きくCo-PCBsより高くなる場合が認められた。甲殻類のベニズワイガニは、魚類に比べてダイオキシン類が低かったが、Co-PCBsに比べてPCDD/DFsが高く、魚類とは異なった蓄積特性が示唆された（第5図）。水産庁委託事業において、東京湾で採取したコノシロ、マコガレイ、スズキ、マアナゴ *Conger myriaster* の胃内容物のPCDD/DFs, Co-PCBs, ダイオキシン類を第6表に示した。コノシロのPCDD/DFsが他の3種よりも高かった。越川（2015）は宍道湖・中海で採取したコノシロの胃内容物の同定結果から、同種の食性がボラ類と類似した底泥食であることを報告しており、コノシロに蓄積しているPCDD/DFsが底泥由来であることが窺われる。

第6表 東京湾で採取した4魚種の胃内容物中のPCDD/DFs及びCo-PCBs

種類名	単位：pg-TEQ/g-wet		
	PCDD/DFs	Co-PCBs	ダイオキシン類*
コノシロ	2.6	1.8	4.5
マコガレイ	0.79	0.44	1.2
スズキ	0.66	1.4	2.0
マアナゴ	0.23	0.32	0.55

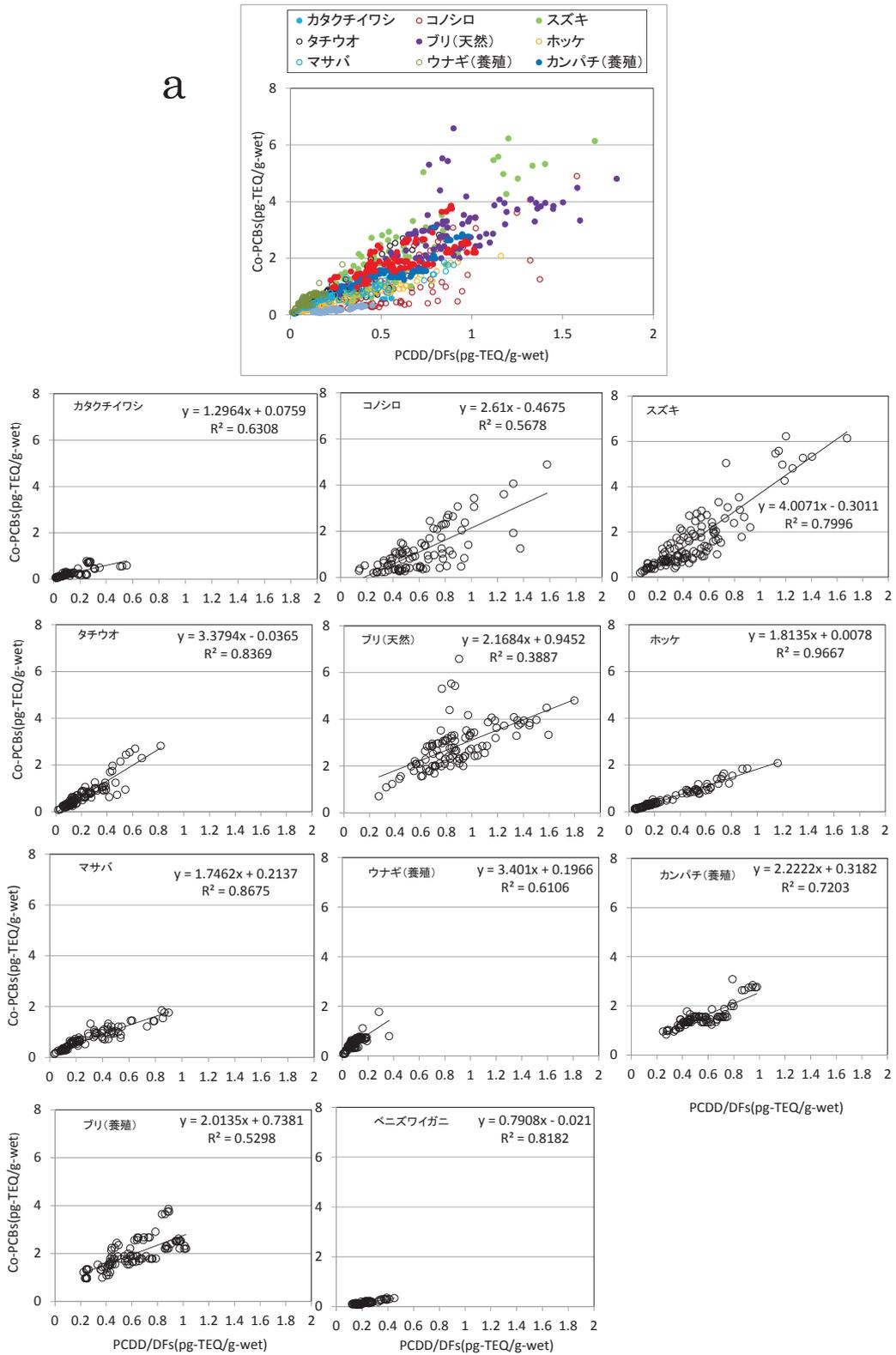
各魚種の胃内容物は数個体から採取して混合して1試料とした。
* 有効数字2桁で表記したためにPCDD/DFsとCo-PCBsの合計はダイオキシン類の値と一致しない。

一方、第6図下部の種類別のPCDD/DFs 湿重量濃度とCo-PCBs湿重量濃度を比較すると、種類によってPCDD/DFs の濃度範囲とCo-PCBs濃度範囲が異なることが明瞭に認められた。以下ではPCDD/DFsとCo-PCBsの蓄積特性の詳細を検討する。

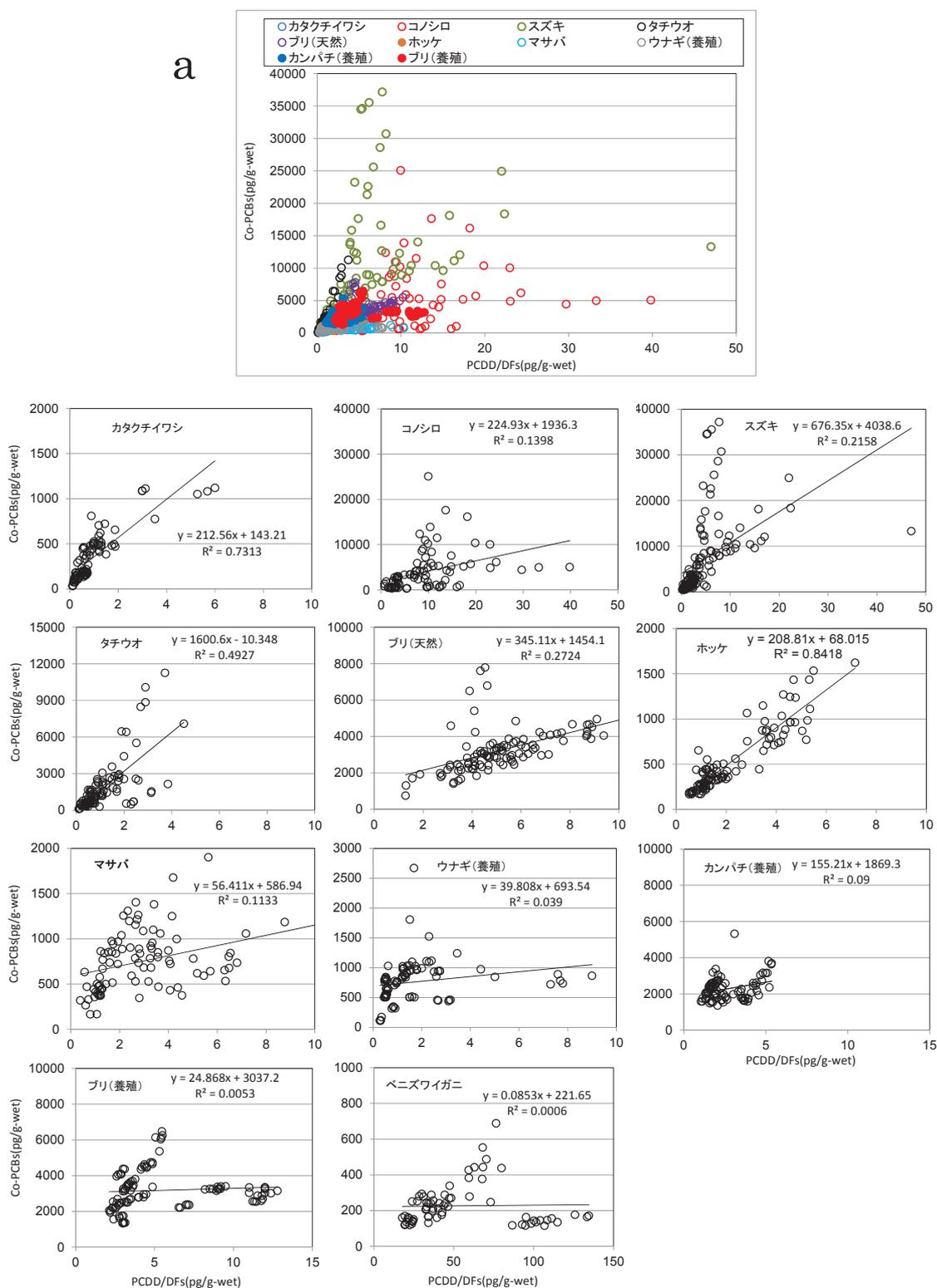
PCDD/DFs (pg/g-wet) の蓄積特性 水産庁及び農林水産省の委託及び補助事業では、4塩素化物以上のPCDD/DFs (pg/g-wet) 136異性体を分析対象とした。それによりPCDD/DFsの異性体組成を算出し、種類別に蓄積特性を把握した（コノシロ及びスズキの異性体組成を第7図、その他の9種類の異性体組成を付図1～5に示す）。調査対象とした11種類の魚介類に蓄積しているPCDD/DFs各異性体は、以下に示すようなものが共通していた。

PCDDs : 1368-TeCDD, 2378-TeCDD,
12378-PeCDD, 123678-HxCDD
PCDFs : 2378-TeCDF, 23478-PeCDF

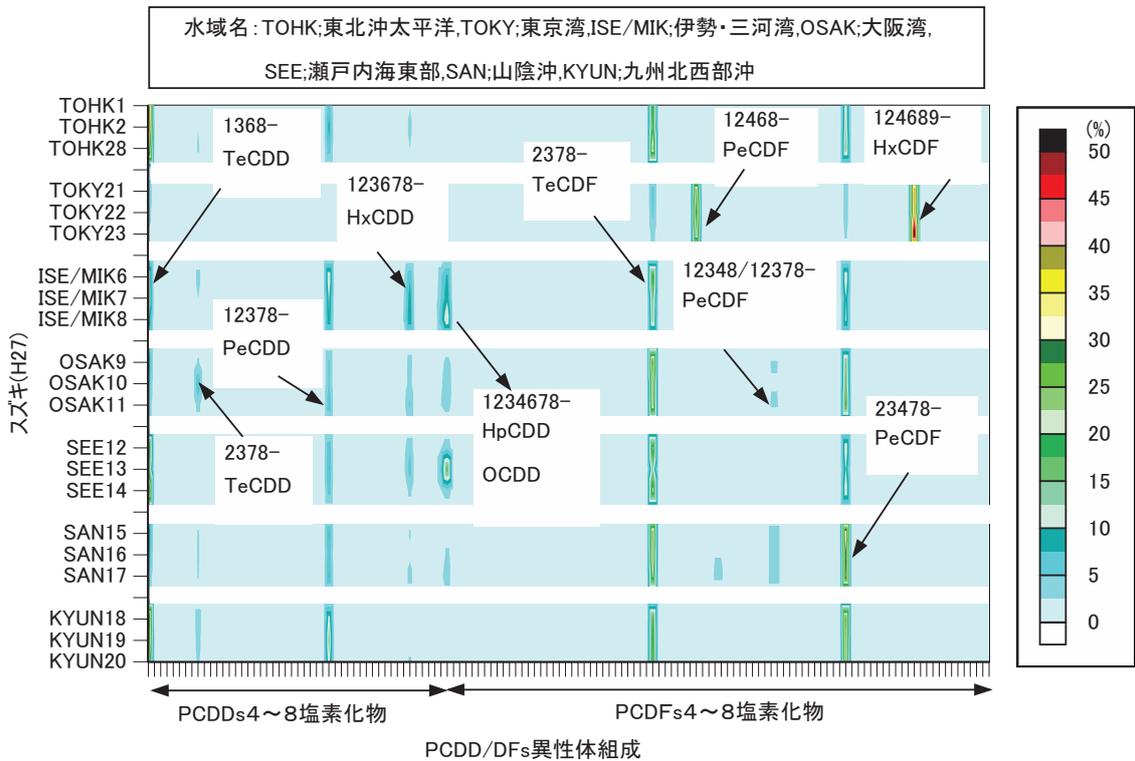
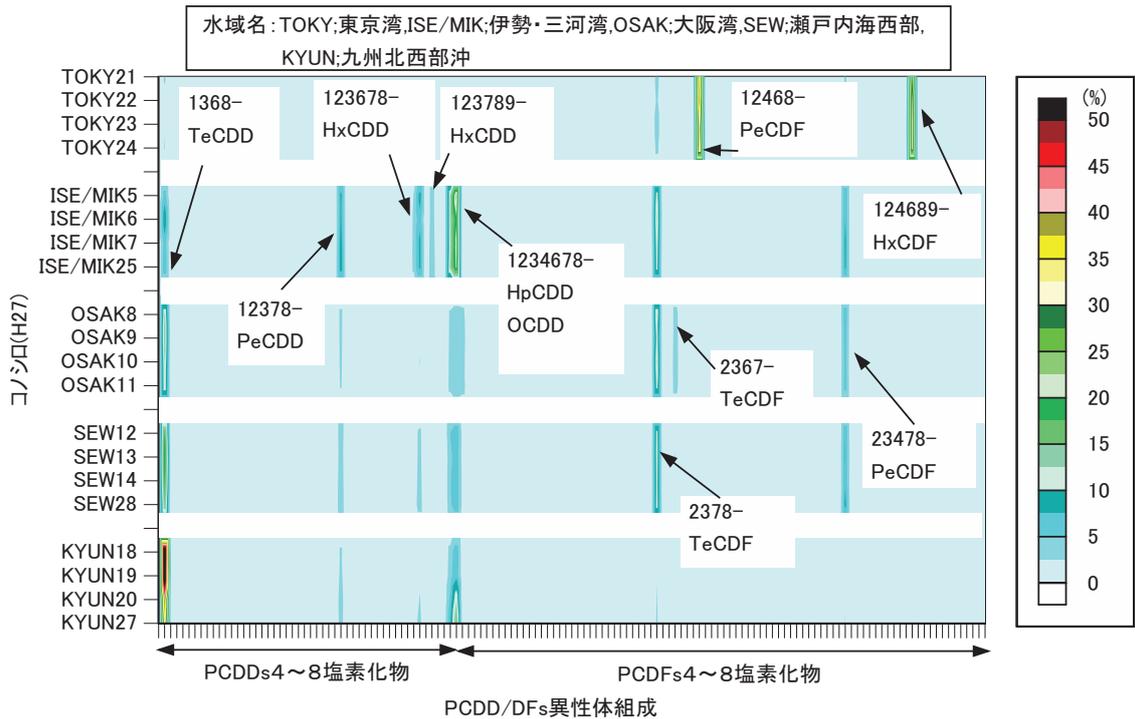
各種類とも主に2378塩素置換体が蓄積していたが、非2378塩素置換体の1368-TeCDDも共通して認められたのが特徴的であった。先山ら（2000）は、1368-TeCDDの起源が過去に使用された水田除草剤（CNP：クロルニトロフェン）と燃焼系発生源において特徴的であるとしている。



第5図 調査対象種のPCDD/DFsとCo-PCBsの関係。横軸はPCDD/DFs (pg-TEQ/g-wet)，縦軸はCo-PCBs (pg-TEQ/g-wet)を示す。aは11種類全体をプロット。下図は種類別を示す。



第6図 調査対象種のPCDD/DFsとCo-PCBsの関係。横軸はPCDD/DFs (pg/g-wet)，縦軸はCo-PCBs (pg/g-wet)を示す。aはベニズワイガニを除く10種類をプロット。下図は種類別を示す。



第7図 コノシロ、スズキのPCDD/DFs異性体組成。横軸はPCDD/DFsの4~8塩素化物の合計濃度(pg/g-wet)に対する各異性体の濃度比率(%)を色の濃淡で示す。縦軸は採取水域名及び試料名を示し、記号は図の上部にある水域名を参照。

また、東京湾のスズキ、コノシロでは、他の水域とは異なり非2378塩素置換体である12468-PeCDF及び124689-HxCDFが高濃度 (pg/g-wet) であった。この両異性体の濃度は、水産庁委託事業における東京湾の魚介類でも高く、内水面の魚介類にも認められていた。第8図に水産庁委託事業で取得した東京湾における各生物種の12468-PeCDF, 124689-HxCDF濃度を示した。なお、同図には上記の2異性体濃度と比較するために、5塩素化物、6塩素化物の他異性体、同族体合計、Total PCDFs濃度を示した。農林水産省委託・補助事業においても12468-PeCDF, 124689-HxCDFは東京湾以外の水域で採取した魚介類にも散見された。なお、両異性体は、水産庁委託事業の東京湾における底質調査においても表層底質で約100pg/g-dry程度認められている。野澤ら (2014) は、2011, 2012, 2013年に採取した東京湾の表層底質での両異性体の割合が高くなっていると報告している。

亀田ら (2003) は茨城県で採取した稲藁中のPCDD/DFsを解析した結果、124689-HxCDFが水田除草剤 (PCP: ペンタクロロフェノール) の不純物であるとしている。清家 (2002) は水田土壌中ダイオキシン類の異性体組成から、両異性体が燃焼、燃焼プラスPCP、燃焼プラスPCPプラスCNPのいずれの組合せからも認められるとしている。橋本 (2004) は統計的手法によるダイオキシン類の発生源推定のための基礎検討のなかで、両異性体がCNPに由来すると整理している。

これら一連の報告は、水産庁委託事業の底質調査と同時期の調査結果をもとに取りまとめられたものである。水産庁委託事業での東京湾におけるスズキ、コノシロに認められたPCDD/DFsの異性体組成の特徴が、平成15年度～19年度の水産庁委託事業、平成20年度～27年度の農林水産省委託・補助事業においても認められることは、東京湾の底質に認められた12468-PeCDF, 124689-HxCDFが何らかの経路を介して現在でも魚類筋肉に蓄積していることを窺わせており、東京湾の魚介類に特有な蓄積特性の可能性があるが、日本沿岸における底質の上記2異性体の分析データが殆ど無いためにその蓄積経路及び過程については今後の検討課題である。

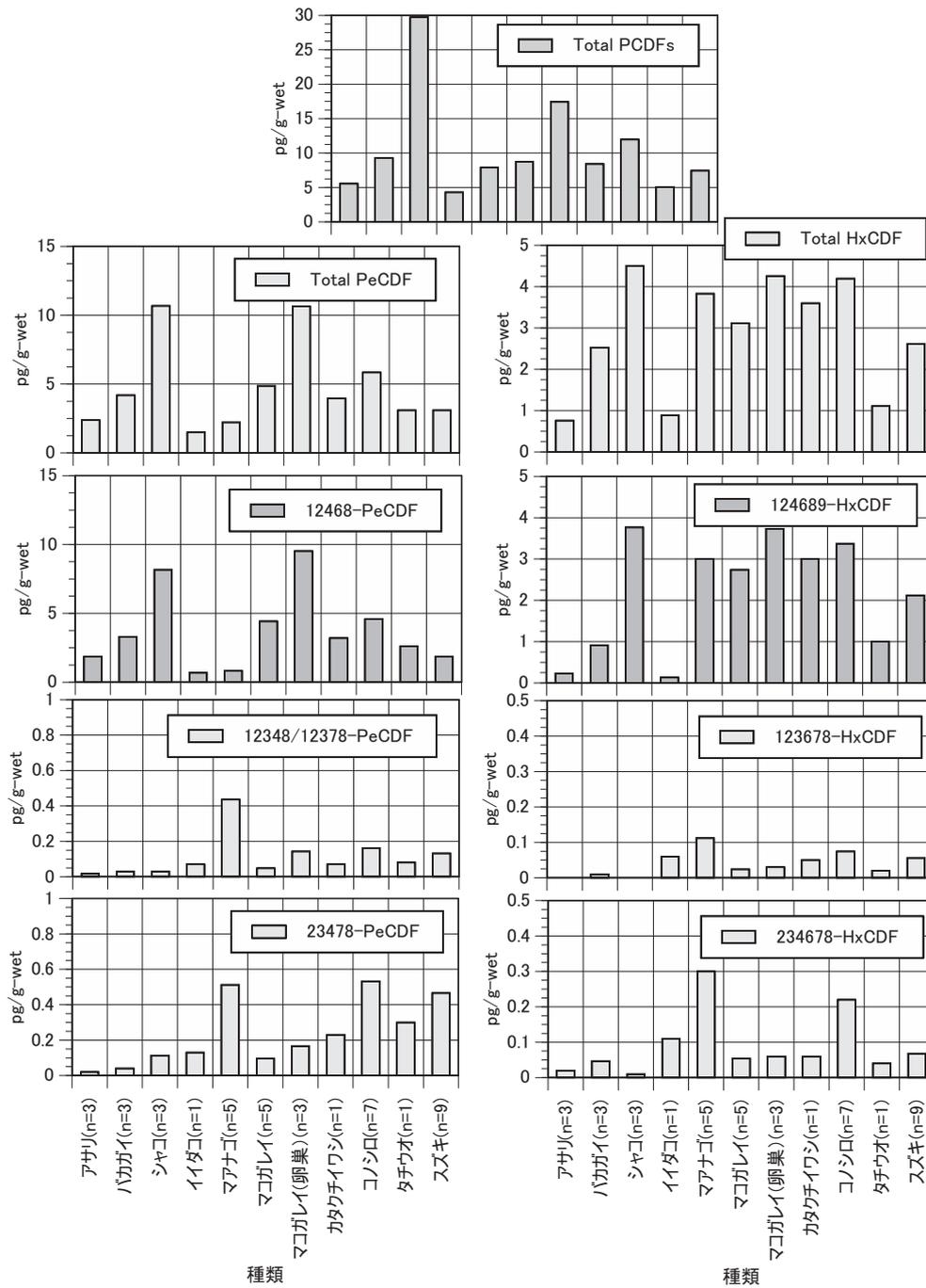
Co-PCBsの蓄積特性 魚介類の筋肉部 (可食部) に蓄積しているCo-PCBsを毒性等量でみた場合、

毒性等量で多く占めていたのはnon-ortho Co-PCBsの3,3',4,4',5-PeCB (#126) であった。毒性等価係数が大きい (TEF: 0.1) ことに起因していた。コノシロ及びベニズワイガニを除くと、3,3',4,4',5-PeCB (#126) の割合は、約54～78%であった。コノシロの場合はPCDDsが、ベニズワイガニの場合は、PCDDs, PCDFsの割合が高い場合が認められた (第7表)。

一方、湿重量濃度で見た場合には、mono-ortho Co-PCBsの2,3,3',4,4'-PeCB (#105), 2,3',4,4',5-PeCB (#118) の濃度が高いものの (第8表)、毒性等価係数が小さい (TEF: 0.00003) ことにより毒性等量に寄与する割合が小さく、魚種により濃度差が認められた。

第9図にスズキ、コノシロのPCDD/DFsとCo-PCBsの湿重量濃度の関係を東京湾及び大阪湾とその他の水域を分けて示した。東京湾ではPCDD/DFs濃度が、大阪湾ではCo-PCBs濃度が他の水域とは異なった分布となっており、両水域に影響を及ぼす発生源の違いが推察された。

魚介類中に蓄積したダイオキシン類を毒性等量で表現した場合には、種類間での蓄積程度の違いを評価するのに有用であるが、魚介類中に含まれるダイオキシン類の特性を考察する場合には湿重量濃度を用いた検討が必要であると考えられる。



第8図 東京湾で採取した生物の12468-PeCDF, 124689-HxCDF濃度と5塩素化物各異性体及び同族体濃度, 全PCDFs濃度 (横軸は生物種, 縦軸は各異性体, 同族体, 全PCDFs濃度を示す)。

柴崎・林：魚介類中のダイオキシン類

第7表 PCDD/DFs+Co-PCBsに対するDDs, PCDFs, 3, 3', 4, 4', 5-PeCB (#126), #126以外のCo-PCBsの割合 (毒性等量換算値)

カタクチイワシ

水域名	PCDDs (%)	PCDFs (%)	3, 3', 4, 4', 5-PeCB (#126) (%)	#126以外のCo-PCBs (%)	PCDD/DFs+Co-PCB (pg-TEQ/g-wet)
東北沖太平洋	12.4	10.8	69.4	7.3	0.21
関東沖	19.3	15.6	59.1	6.0	0.24
伊勢・三河湾	31.3	14.0	48.1	6.6	0.54
瀬戸内海東部	22.0	11.9	58.7	7.4	0.37
瀬戸内海西部	14.2	11.8	65.6	8.4	0.12
北陸沖	15.0	18.9	59.9	6.2	0.07
山陰沖	13.9	14.2	64.4	7.5	0.14
九州北西部沖	11.3	16.0	66.1	6.6	0.59

コノシロ

水域名	PCDDs (%)	PCDFs (%)	3, 3', 4, 4', 5-PeCB (#126) (%)	#126以外のCo-PCBs (%)	PCDD/DFs+Co-PCB (pg-TEQ/g-wet)
東京湾	15.8	12.0	59.1	13.1	2.0
伊勢・三河湾	30.7	12.0	49.1	8.1	1.7
大阪湾	14.1	11.6	63.4	10.9	3.4
瀬戸内海東部	27.9	17.8	47.4	6.9	3.0
瀬戸内海西部	18.6	15.2	56.7	9.4	0.86
北陸沖	36.3	18.9	38.5	6.4	0.87
九州北西部沖	46.0	13.0	35.8	5.2	0.83

スズキ

水域名	PCDDs (%)	PCDFs (%)	3, 3', 4, 4', 5-PeCB (#126) (%)	#126以外のCo-PCBs (%)	PCDD/DFs+Co-PCB (pg-TEQ/g-wet)
東北沖太平洋	18.8	10.1	63.2	7.8	1.1
東京湾	10.7	7.7	64.8	16.8	2.4
伊勢・三河湾	22.0	9.3	57.7	11.0	1.7
大阪湾	10.6	8.6	65.2	15.6	5.5
瀬戸内海東部	15.5	10.9	63.4	10.3	2.0
瀬戸内海西部	16.3	10.8	64.4	8.5	2.0
山陰沖	15.2	14.9	62.1	7.7	0.81
九州北西部沖	15.8	9.3	66.1	8.9	0.73

タチウオ

水域名	PCDDs (%)	PCDFs (%)	3, 3', 4, 4', 5-PeCB (#126) (%)	#126以外のCo-PCBs (%)	PCDD/DFs+Co-PCB (pg-TEQ/g-wet)
東海沖	15.4	7.3	69.4	7.9	0.55
伊勢・三河湾	24.7	13.9	53.9	7.5	1.2
大阪湾	11.0	9.6	68.9	10.6	2.1
瀬戸内海東部	13.2	9.6	67.9	9.3	0.98
瀬戸内海西部	15.4	9.9	66.4	8.3	0.78
瀬戸内海南部	14.2	9.7	68.2	7.9	0.36
九州北西部沖	18.0	9.6	64.2	8.3	0.78
九州南部沖	19.7	9.1	63.6	7.7	0.35

ブリ (天然)

水域名	PCDDs (%)	PCDFs (%)	3, 3', 4, 4', 5-PeCB (#126) (%)	#126以外のCo-PCBs (%)	PCDD/DFs+Co-PCB (pg-TEQ/g-wet)
襟裳岬以西太平洋	13.0	10.0	69.4	7.6	1.7
北陸沖	12.0	15.5	65.7	6.8	3.5
山陰沖	7.5	13.2	72.2	7.1	4.0
九州北西部沖	9.0	15.1	68.6	7.3	4.1

ホッケ

水域名	PCDDs (%)	PCDFs (%)	3, 3', 4, 4', 5-PeCB (#126) (%)	#126以外のCo-PCBs (%)	PCDD/DFs+Co-PCB (pg-TEQ/g-wet)
オホーツク海	12.3	22.4	59.9	5.4	0.35
襟裳岬以東太平洋	11.3	23.3	59.6	5.7	0.27
襟裳岬以西太平洋	16.2	19.1	59.1	5.6	0.51
東北沖太平洋	14.4	25.6	55.0	5.0	0.64
北海道沖日本海	12.2	23.2	59.6	4.9	1.2
東北沖日本海	14.1	19.7	61.5	4.7	1.0
北陸沖	11.4	23.7	59.5	5.4	2.1

柴崎・林：魚介類中のダイオキシン類

第7表（継続） PCDD/DFs+Co-PCBsに対するDDs, PCDFs, 3, 3', 4, 4', 5-PeCB (#126), #126以外のCo-PCBsの割合（毒性等量換算値）

マサバ

水域名	PCDDs (%)	PCDFs (%)	3, 3', 4, 4', 5-PeCB (#126) (%)	#126以外のCo-PCBs (%)	PCDD/DFs+Co-PCB (pg-TEQ/g-wet)
東北沖太平洋	9.4	15.1	68.9	6.6	0.62
関東沖	10.1	14.6	68.5	6.8	0.68
東海沖	10.7	12.8	69.4	7.0	0.75
瀬戸内海東部	21.8	17.9	54.3	6.0	1.2
瀬戸内海西部	15.8	10.5	66.9	6.8	1.5
瀬戸内海南部	14.1	11.3	67.9	6.6	1.3
山陰沖	11.7	17.6	63.9	6.7	1.4
九州北西部沖	10.7	23.5	59.8	6.0	1.8
九州南部沖	11.8	22.8	59.7	5.7	1.1

ウナギ（養殖）

水域名	PCDDs (%)	PCDFs (%)	3, 3', 4, 4', 5-PeCB (#126) (%)	#126以外のCo-PCBs (%)	PCDD/DFs+Co-PCB (pg-TEQ/g-wet)
東海沖	9.7	7.2	74.3	8.9	0.80
伊勢・三河湾	10.0	9.1	72.2	8.8	0.74
四国南部沖	5.2	7.1	78.2	9.5	0.48
九州北西部沖	5.6	8.5	74.5	11.3	0.68
九州南部沖	6.1	7.7	76.1	10.1	0.52

カンパチ（養殖）

水域名	PCDDs (%)	PCDFs (%)	3, 3', 4, 4', 5-PeCB (#126) (%)	#126以外のCo-PCBs (%)	PCDD/DFs+Co-PCB (pg-TEQ/g-wet)
瀬戸内海東部	14.6	13.8	64.6	7.0	2.0
瀬戸内海南部	13.2	11.7	67.6	7.4	2.0
四国南部沖	15.3	14.5	63.4	6.7	2.4
九州北西部沖	12.5	14.1	66.6	6.7	3.0
九州南部沖	13.8	10.6	67.8	7.9	1.7

ブリ（養殖）

水域名	PCDDs (%)	PCDFs (%)	3, 3', 4, 4', 5-PeCB (#126) (%)	#126以外のCo-PCBs (%)	PCDD/DFs+Co-PCB (pg-TEQ/g-wet)
瀬戸内海東部	15.6	12.8	64.8	6.8	2.6
瀬戸内海南部	9.6	10.6	72.0	7.8	2.7
四国南部沖	11.3	10.6	70.5	7.6	2.4
九州北西部沖	12.7	16.0	65.1	6.2	3.4
九州南部沖	12.4	10.5	69.4	7.7	2.0

ベニズワイガニ

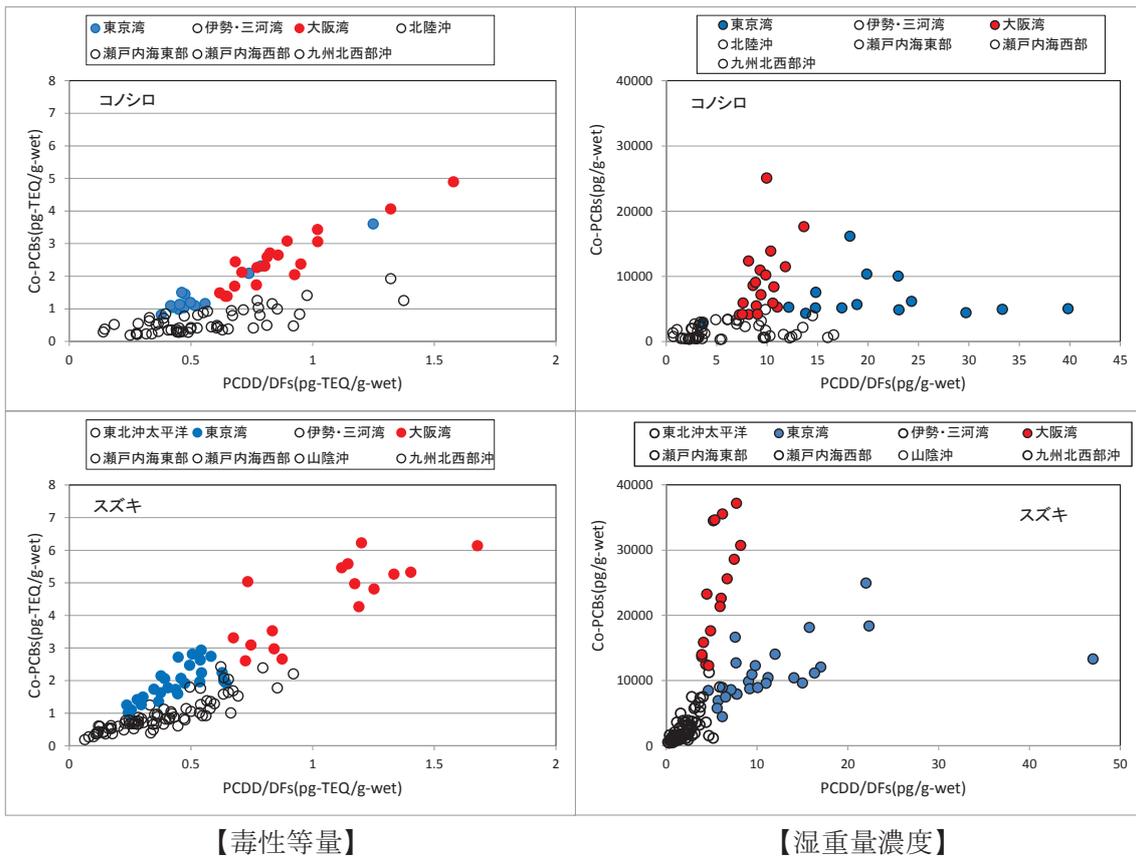
水域名	PCDDs (%)	PCDFs (%)	3, 3', 4, 4', 5-PeCB (#126) (%)	#126以外のCo-PCBs (%)	PCDD/DFs+Co-PCB (pg-TEQ/g-wet)
北海道沖日本海	19.8	36.5	39.5	4.2	0.66
北陸沖	23.9	39.4	32.2	4.5	0.33
山陰沖	17.1	37.9	40.5	4.5	0.36

第8表 魚介類中のPCDD/DFsとCo-PCBs各異性体の濃度レベル(pg/g-wet)

No.	化合物の名称等		TEF (WHO-2005)	魚介類筋肉中の濃度 レベル*, 単位: pg/g
1	PCDDs	2, 3, 7, 8-TeCDD	1	N. D., 0.01~10
2	(ポリ塩化ジベンゾ-p-ダイオキシン)	1, 2, 3, 7, 8-PeCDD	1	0.01~0.10
3		1, 2, 3, 4, 7, 8-HxCDD	0.1	N. D., 0.01~0.10
4		1, 2, 3, 6, 7, 8-HxCDD	0.1	N. D., 0.01~0.10
5		1, 2, 3, 7, 8, 9-HxCDD	0.1	N. D., 0.01~0.10
6		1, 2, 3, 4, 6, 7, 8-HpCDD	0.01	N. D., 0.01~0.10
7		OCDD	0.0003	N. D., 0.01~0.10
1		PCDFs	2, 3, 7, 8-TeCDF	0.1
2	(ポリ塩化ジベンゾ-furan)	1, 2, 3, 7, 8-PeCDF	0.03	0.01~0.10
3		2, 3, 4, 7, 8-PeCDF	0.3	0.01~1.0
4		1, 2, 3, 4, 7, 8-HxCDF	0.1	0.01~0.1
5		1, 2, 3, 6, 7, 8-HxCDF	0.1	N. D., 0.01~1.0
6		1, 2, 3, 7, 8, 9-HxCDF	0.1	N. D., 0.01
7		2, 3, 4, 6, 7, 8-HxCDF	0.1	N. D., 0.01~0.10
8		1, 2, 3, 4, 6, 7, 8-HpCDF	0.01	N. D., 0.01~0.10
9		1, 2, 3, 4, 7, 8, 9-HpCDF	0.01	N. D.
10		OCDF	0.0003	N. D., 0.1
1		Co-PCBs	non-ortho	
1	(コプラナーポリ塩化ビフェニル)	3, 3', 4, 4'-TeCB (#77)	0.0001	10~100
2		3, 4, 4', 5'-TeCB (#81)	0.0003	N. D., 0.1~10
3		3, 3', 4, 4', 5'-PeCB (#126)	0.1	0.1~10
4		3, 3', 4, 4', 5, 5'-HxCB (#169)	0.03	0.1~1.0
5		mono-ortho		
5		2, 3, 3', 4, 4'-PeCB (#105)	0.00003	1.0~1000
6		2, 3, 4, 4', 5'-PeCB (#114)	0.00003	N. D. 1.0~100
7		2, 3', 4, 4', 5'-PeCB (#118)	0.00003	10~1000
8		2', 3, 4, 4', 5'-PeCB (#123)	0.00003	N. D., 1.0~100
9		2, 3, 3', 4, 4', 5'-HxCB (#156)	0.00003	1.0~1000
10		2, 3, 3', 4, 4', 5'-HxCB (#157)	0.00003	N. D. 1.0~10
11		2, 3', 4, 4', 5, 5'-HxCB (#167)	0.00003	1.0~100
12	2, 3, 3', 4, 4', 5, 5'-HpCB (#189)	0.00003	N. D., 1.0~10	

網掛けは、魚介類に多く蓄積している異性体である。

* 濃度レベルの表記は、絶対値ではなく数値の桁数を示す。



第9図 東京湾及び大阪湾と他の水域におけるPCDD/DFsとCo-PCBsの毒性等量と湿重量濃度との違い。東京湾（●）及び大阪湾（●）とその他の水域におけるPCDD/DFsとCo-PCBs分布の毒性等量と湿重量濃度範囲の違いを示す。

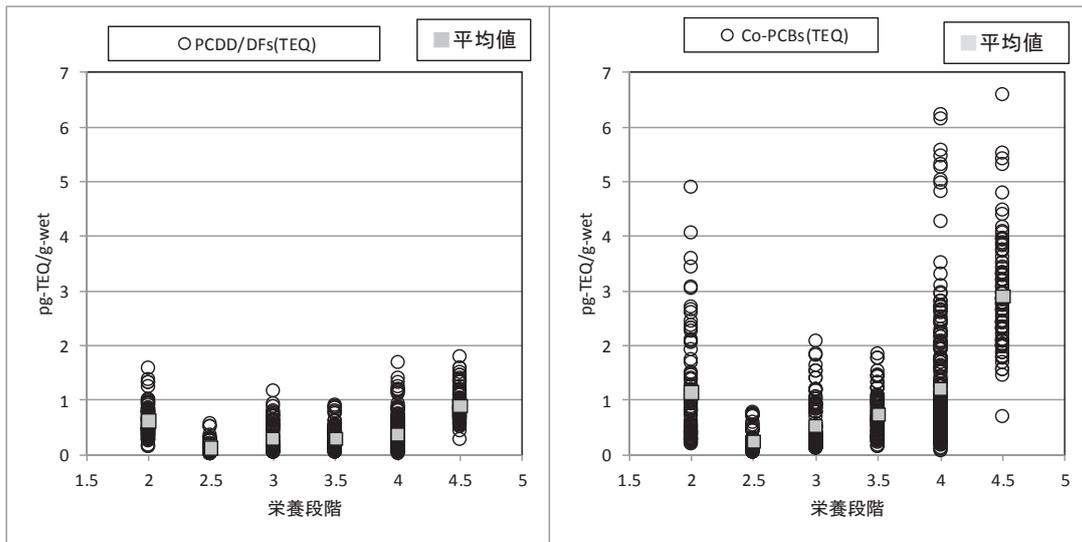
魚類の栄養段階の違いによるPCDD/DFsとCo-PCBsの蓄積 平成18年度から27年度に実施したサーベイランス・モニタリング調査で採取・分析した天然魚類（7種類，695試料）の筋肉部に蓄積したPCDD/DFsとCo-PCBsデータ（通常，栄養段階を検討する場合は媒体の全量分析値を用いるが，本報告では筋肉部の分析値のみを取得しているために筋肉部の値を用いた）を用いて水産庁（1989a～1989g）に記載された魚種別の餌生物の種類を用いて栄養段階を割り当てて検討したところ，PCDD/DFsの毒性等量に比べてCo-PCBsの毒性等量には栄養段階の上昇に伴って高くなる傾向が認められ，Co-PCBsの生物濃縮されている可能性が示された（第10図）。しかし，上述したように大阪湾におけるスズキ，コノシロのCo-PCBsの毒性等量に生物濃縮過程がどの程度関与しているかの詳細検討が必要である。

生物相-底質濃縮係数（BSAF : biota to sediment accumulation factor） 前項で検討した非2378塩素置換体の12468-PeCDF，124689-HxCDFの生物相-底質濃縮係数（以下，BSAFと略記）とPCDD/DFs（2378塩素置換体）及びCo-PCBsの各異性体のBSAFを比較した。BSAFについては，EPA（2008）によるデータベースがあり，その中から水生生物に関するPCDD/DFsに関するデータを抜粋して第9表に示す。日本の魚類及び底質データを用いて算出されたBSAFは，Naito *et al.*（2003）がある。そこで水産庁委託事業で得た東京湾の底質及びスズキ，マコガレイのPCDD/DFs及びCo-PCBsデータからBSAFを算出した（第10表）。

BSAFは環境省（2004）に基づいて以下の式で計算した。

$$BSAF = C_b / C_s$$

C_b : 脂肪当りの生体内濃度 (pg/g lipids wt)



天然魚類の胃内容物に基づいた栄養段階別のPCDD/DFs(TEQ)、Co-PCBs(TEQ)
[カタクチイワシ(2.5)、コノシロ(2.0)、スズキ(4.0)、タチウオ(4.0)、ブリ(天然)(4.5)、ホッケ(3.0)、マサバ(3.5)]

魚類の栄養段階区分

種類	栄養段階区分	調査対象種
植物プランクトン	1.0	
動植物プランクトン	1.5	
動物プランクトン、多毛類	2.0	コノシロ
動物プランクトン、小型甲殻類、小型頭足類	2.5	カタクチイワシ
小型魚類、小型甲殻類、小型頭足類	3.0	ホッケ
小型魚類、小型甲殻類	3.5	マサバ
魚類	4.0	タチウオ、スズキ
肉食性大魚魚類	4.5	ブリ

出典：水産庁研究部(平成元年3月)我が国漁獲対象魚種の資源特性(Ⅰ)～(Ⅱ)

第10図 栄養段階別のPCDD/DFs(TEQ)、Co-PCBs(TEQ)。横軸は調査対象種の栄養段階、縦軸はPCDD/DFs及びCo-PCBsの毒性等量(pg-TEQ/g-wet)を示す。調査対象種の餌生物と栄養段階区分はaを参照。

Cs:底質中強熱減量(IL, Ignition Loss) 当りの濃度(pg/g-IL)

計算に用いた底質のダイオキシン類、強熱減量(IL)及びスズキ、マコガレイのダイオキシン類及び脂質データは、以下の条件で求めたものである。

- 底質：2000年10月に東京湾内の湾奥部から湾口部に配置した9地点で採取した表層泥の平均値を用いた。
- マコガレイ：東京湾中部で2002年10月、11月、12月、2003年1月、2月に採取した3才、雌の全量分析値(各月3個体を別々に分析を行い、月別の平均値を求めた)を用いた。
- スズキ：東京湾中部で2000年12月、2001年2月、7月、8月、10月、11月、12月に採取した3才、雌の部位別(可食部、エラ、肝臓、消化管、生殖腺、頭部+背骨、腹腔内脂肪)の分析値(2~7個体の混合試料)と各々の部位の重量か

ら換算して1個体当りの異性体別総量を算出して用いた。

第10表に示すように東京湾の底質及びスズキ、マコガレイ中濃度から算出した12468-PeCDF、124689-HxCDFのBSAFは、他の2378塩素置換体の5塩素化物及び6塩素化物の異性体とほぼ同様な値であった。また、2378塩素置換体のBSAFはEPA(2008)のBSAFとほぼ同様な値であった。2378塩素置換体のPCDD/DFsのBSAFは低塩素化物で高く、高塩素化物で低かった。Co-PCBsのBSAFはPCDD/DFsのそれらに比べて全体的に高かった。第10表のスズキ及びマコガレイのPCDD/DFs及びCo-PCBsのBSAFの平均値と東京湾の底質のPCDD/DFs及びCo-PCBsを重ねて第11図に示した。この図で見られるダイオキシン類のBSAFの変化傾向は田中(未公表)が検討した大阪湾、東京湾、広島湾で得られたマコガレイのBSAFと同様な傾向を示していた。

柴崎・林：魚介類中のダイオキシン類

第9表 EPA(2008)より抜粋した水生生物のBSAF

化合物	BSAF平均値	n
2, 3, 7, 8-TCDD	0. 3	13
1, 2, 3, 7, 8-PeCDD	0. 4	1
1, 2, 3, 4, 7, 8-HxCDD	0. 03	10
1, 2, 3, 7, 8, 9-HxCDD	0. 008	3
1, 2, 3, 4, 6, 7, 8-HpCDD	0. 003	5
2, 3, 7, 8-TCDF	0. 5	10
1, 2, 3, 7, 8-PeCDF	0. 1	1
2, 3, 4, 7, 8-PeCDF	0. 2	2
1, 2, 3, 6, 7, 8-HxCDF	0. 03	1
2, 3, 4, 6, 7, 8-HxCDF	0. 02	1
dibenzofuran	0. 03	12

生物種: フォールフィッシュ, ホワイトサッカー, アメリカウナギ,
オオクチバス

第10表 東京湾のスズキ及びマコガレイのBSAF

BSAF (東京湾, スズキ*)	2000/12	2001/2	2001/7	2001/8	2001/10	2001/11	2001/12
2378-TeCDD	2	2	1	2	3	2	3
12378-PeCDD	0. 4	0. 9	0. 3	0. 4	0. 7	0. 5	0. 8
123478-HxCDD	0. 005	0. 02	0. 01	0. 008	0. 01	0. 01	0. 02
123678-HxCDD	0. 05	0. 08	0. 04	0. 04	0. 06	0. 05	0. 1
123789-HxCDD	0. 003	0. 005	0. 0008	0. 002	0. 002	0. 005	0. 009
1234678-HpCDD	0. 0002	0. 0004	0. 0002	0. 0002	0. 0002	0. 0002	0. 0006
OCDD	0. 00002	0. 00007	0. 00002	0. 00004	0. 00002	0. 00002	0. 00006
2378-TeCDF	1	2	0. 9	1	2	1	2
12468-PeCDF	0. 08	0. 04	0. 05	0. 04	0. 3	0. 2	0. 2
12348/12378-PeCDF	0. 1	0. 2	0. 1	0. 1	0. 3	0. 2	0. 3
23478-PeCDF	0. 6	1. 7	0. 6	0. 7	1. 5	0. 8	1. 4
123478/123479-HxCDF	0. 009	0. 02	0. 005	0. 005	0. 007	0. 006	0. 01
123678-HxCDF	0. 03	0. 06	0. 007	0. 008	0. 01	0. 009	0. 09
124689-HxCDF	0. 08	0. 09	0. 05	0. 05	0. 4	0. 3	0. 4
123789-HxCDF	0	0	0. 0004	0. 0005	0. 0005	0. 002	0. 0005
234678-HxCDF	0. 02	0. 05	0. 008	0. 008	0. 05	0. 04	0. 1
1234678-HpCDF	0. 002	0. 007	0. 003	0. 003	0. 005	0. 004	0. 01
1234789-HpCDF	0. 0002	0. 005	0. 001	0. 001	0. 001	0. 002	0. 002
OCDF	0. 00001	0. 0004	0. 0001	0. 0001	0. 0001	0. 0001	0. 0002
3, 3', 4, 4'-TeCB (#77)	5	4	3	4	5	3	6
3, 4, 4', 5'-TeCB (#81)	9	8	4	7	9	6	10
3, 3', 4, 4', 5'-PeCB (#126)	11	20	8	13	19	11	20
3, 3', 4, 4', 5, 5'-HxCB (#169)	7	17	7	9	13	8	16
2, 3, 3', 4, 4'-PeCB (#105)	27	37	16	27	29	23	37
2, 3, 4, 4', 5'-PeCB (#114)	43	82	36	59	67	51	82
2, 3', 4, 4', 5'-PeCB (#118)	40	56	26	42	46	35	62
2', 3, 4, 4', 5'-PeCB (#123)	45	68	29	51	48	44	72
2, 3, 3', 4, 4', 5-HxCB (#156)	25	63	22	32	31	32	53
2, 3, 3', 4, 4', 5'-HxCB (#157)	21	55	21	30	31	30	50
2, 3', 4, 4', 5, 5'-HxCB (#167)	25	64	24	35	31	33	59
2, 3, 3', 4, 4', 5, 5'-HpCB (#189)	17	54	15	21	17	19	35

網掛けは12468-PeCDF, 124689-HxCDFのBSAFを示す。

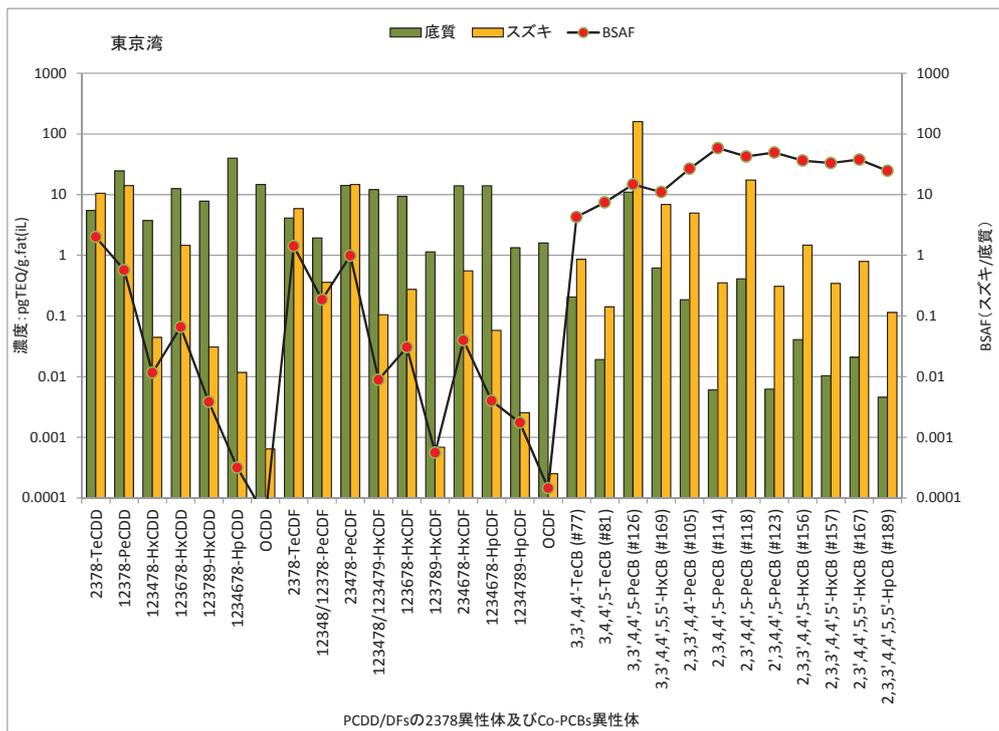
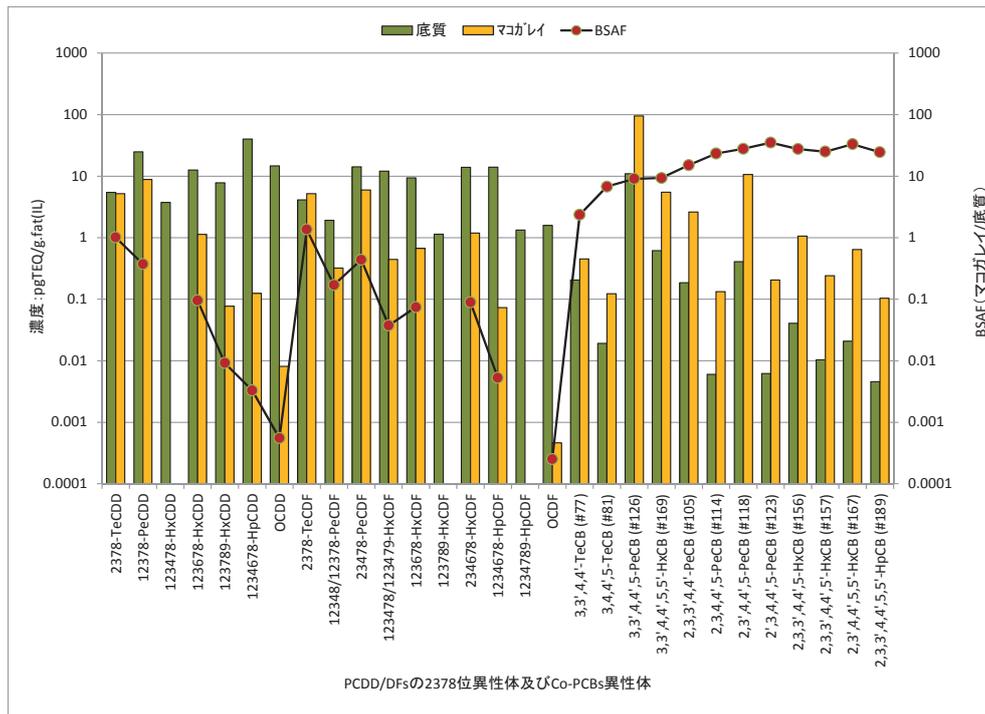
* スズキのBSAFは、各月に採取したスズキの部位別(可食部, エラ, 肝臓, 消化管, 生殖腺, 頭部+背骨, 腹腔内脂肪)分析値から1個体毎の異性体別総量を算出して計算。

第10表（継続） 東京湾のスズキ及びマコガレイのBSAF

BSAF (東京湾マコガレイ**)	2002/10	2002/11	2002/12	2003/1	2003/2
2378-TeCDD	1	0.9	1	1	0.9
12378-PeCDD	0.3	0.3	0.5	0.4	0.3
123478-HxCDD	0	0	0	0	0
123678-HxCDD	0.09	0.08	0.1	0.1	0.1
123789-HxCDD	0.02	0	0.01	0.01	0
1234678-HpCDD	0.003	0.003	0.003	0.004	0.003
OCDD	0.0008	0.0006	0.0003	0.0005	0.0006
2378-TeCDF	0.9	1	1.5	2	1
12468-PeCDF	0.08	0.2	0.4	0.3	0.3
12348/12378-PeCDF	0.1	0.1	0.2	0.2	0.2
23478-PeCDF	0.3	0.4	0.5	0.5	0.4
123478/123479-HxCDF	0.03	0.04	0.03	0.06	0.03
123678-HxCDF	0.07	0.05	0.06	0.1	0.07
124689-HxCDF	0.1	0.1	0.2	0.5	0.2
123789-HxCDF	0	0	0	0	0
234678-HxCDF	0.08	0.07	0.09	0.1	0.08
1234678-HpCDF	0.006	0.006	0.003	0.006	0.006
1234789-HpCDF	0	0	0	0	0
OCDF	0.0007	0.0006	0	0	0
3,3',4,4'-TeCB (#77)	2	2	2	4	2
3,4,4',5-TeCB (#81)	6	5	5	11	7
3,3',4,4',5-PeCB (#126)	7	6	6	15	11
3,3',4,4',5,5'-HxCB (#169)	6	5	6	15	14
2,3,3',4,4'-PeCB (#105)	15	9	9	26	16
2,3,4,4',5-PeCB (#114)	24	14	12	41	26
2,3',4,4',5-PeCB (#118)	26	15	14	50	34
2',3,4,4',5-PeCB (#123)	33	20	20	60	43
2,3,3',4,4',5-HxCB (#156)	21	14	14	52	36
2,3,3',4,4',5'-HxCB (#157)	18	13	15	46	32
2,3',4,4',5,5'-HxCB (#167)	22	17	18	64	45
2,3,3',4,4',5,5'-HpCB (#189)	14	13	14	46	35

** マコガレイのBSAFは、各月3個体（個別全量分析）の平均値。

柴崎・林：魚介類中のダイオキシン類



第11図 水産庁(2003)において東京湾で採取したマコガレイ、スズキのダイオキシン類から算出したマコガレイ(上)、スズキ(下)のBSAFと東京湾の底質(水産庁委託事業)のダイオキシン類。横軸は2378塩素置換体PCDD/DFsとCo-PCBs各異性体。縦軸は底質、スズキ及びマコガレイの毒性等量とBSAF(●)を示す。

魚介類（11種類別）のダイオキシン類水域別平均値及び経年変化 水産庁委託事業及び農林水産省委託・補助事業で得られた11種類の魚介類の採取水域別のダイオキシン類平均値及び継続的な試料採取を行うことができた水域の経年変化を整理した。なお、種類別の経年変化図（第13, 15, 17, 19, 21, 23, 25, 27, 29, 31, 33図）には水産庁委託事業で得られたデータも記載した。種類別の採取水域、年度及び検体数を第11表に示した。

①**カタクチイワシ** 4回（H18,H20,H23,H27）の調査の結果、全試料のダイオキシン類は0.067～1.1pg-TEQ/g-wetの範囲であり、平均値と標準偏差は 0.37 ± 0.28 pg-TEQ/g-wetであった。試料採取を行った8水域の水域別平均値を比較すると、伊勢・三河湾及び九州北西部沖で他の水域に比べ若干高い傾向にあり、伊勢・三河湾では東北沖太平洋、関東沖、瀬戸内海西部、山陰沖と有意差が認められ、九州北西部沖では関東沖、瀬戸内海西部、山陰沖と有意差が認められた（第12図）。また、過去の採取例が多い関東沖、伊勢・三河湾、瀬戸内海東部の3水域で比較したが、各水域とも年変化は小さかった（第13図）。

②**コノシロ** 4回（H18,H20,H23,H27）の調査の結果、全試料のダイオキシン類は0.43～6.5pg-TEQ/g-wetの範囲であり、平均値と標準偏差は 1.8 ± 1.2 pg-TEQ/g-wetであった。試料採取を行った6水域の水域別平均値を比較すると、東京湾、伊勢・三河湾、大阪湾で高く、瀬戸内海西部、北陸沖、九州北西部沖で低い傾向であり、大阪湾では他の水域と有意差が認められた（第14図）。また、過去の採取例が多い5水域の経年変化を比較すると、大阪湾のCo-PCBsの経年変化が大きかった。瀬戸内海西部及び九州北西部沖では同程度で年変化も小さかった（第15図）。

③**スズキ** 5回（H18,H20,H22,H24,H27）の調査の結果、全試料のダイオキシン類は0.25～7.8pg-TEQ/g-wetの範囲であり、平均値、標準偏差は 2.1 ± 1.6 pg-TEQ/g-wetであった。試料採取を行った8水域の水域別平均値を比較すると、コノシロと同様に大阪湾で高く、東京湾、瀬戸内海西部がそれに次いでいた。大阪湾では他の7水域と有意差が認められた。また、山陰沖、九州北西部沖では東北沖太平洋を除く5水域と有意差が認め

られた（第16図）。8水域の経年変化を比較すると、大阪湾のCo-PCBsの経年変化が大きく東京湾がそれに次いでいた。瀬戸内海東部、瀬戸内海西部及び九州北西部沖では同程度で年変化も小さかった（第17図）。

なお、瀬戸内海東部では平成22年度以降減少傾向になっているが、平成15年度から22年度と平成24, 27年度では、採取地点を同水域の中央部から四国沿岸に変更したことが影響している可能性がある。

④**タチウオ *Trichiurus lepturus*** 4回（H18,H20,H22,H25）の調査の結果、全試料のダイオキシン類は0.096～3.6pg-TEQ/g-wetの範囲であり、平均値、標準偏差は 0.94 ± 0.72 pg-TEQ/g-wetであった。試料採取を行った8水域の水域別平均値を比較すると、大阪湾で高く、次いで伊勢・三河湾、瀬戸内海東部の順であった。大阪湾では伊勢・三河湾を除く6水域と有意差が認められた。また、瀬戸内海南部、九州南部沖では、他の水域に比べて低く、大阪湾、瀬戸内海東部、瀬戸内海西部と有意差が認められた（第18図）。経年変化は東海沖、大阪湾、瀬戸内海東部、瀬戸内海西部、瀬戸内海南部、九州北西部沖、九州南部沖の7水域で比較した。大阪湾のダイオキシン類の年変化はCo-PCBsの変化に依存する傾向が認められた。その他の水域では、横ばい傾向であった（第19図）。

⑤**ブリ（天然）** 4回（H19,H21,H23,H25）の調査の結果、全試料のダイオキシン類は0.97～7.5pg-TEQ/g-wetの範囲であり、平均値、標準偏差は 3.7 ± 1.2 pg-TEQ/g-wetであった。試料採取を行った4水域の水域別平均値を比較すると、襟裳岬以西太平洋で低く、他の3水域と有意差が認められた（第20図）。経年変化を北陸沖、山陰沖、九州北西部沖の3水域で比較したところ、3水域とも年変化が大きくその要因はCo-PCBsの変化によるものであった（第21図）。

⑥**ホッケ** 4回（H18,H20,H22,H25）の調査の結果、全試料のダイオキシン類は0.17～3.2pg-TEQ/g-wetの範囲であり、平均値、標準偏差は 0.83 ± 0.70 pg-TEQ/g-wetであった。試料採取を行った6水域の水域別平均値を比較すると、オホーツク海及び太平洋側の水域に比べて日本海側の水域で高い傾向にあり、北陸沖では他の水域と有意差

が認められた(第22図)。経年変化をオホーツク海、襟裳岬以東太平洋、襟裳岬以西太平洋、北海道沖日本海、東北沖日本海、北陸沖の6水域で比較した。オホーツク海、襟裳岬以東太平洋、襟裳岬以西太平洋では、ダイオキシン類も低く横ばい傾向であったが、北海道沖日本海、東北沖日本海、北陸沖では、上記の3水域よりも相対的に高く年変化も大きかった(第23図)。襟裳岬以東太平洋、襟裳岬以西太平洋と北海道沖日本海、東北沖日本海、北陸沖の水域別平均値と経年変化で認められたダイオキシン類の相違は、太平洋側の親潮系千島海流と日本海側の対馬海流における餌生物の違いを反映している可能性がある。なお、オホーツク海における採取地点は、一般的なオホーツク海よりも太平洋側に近く、襟裳岬以東太平洋、襟裳岬以西太平洋とダイオキシン類が同程度であったと推察される。

⑦マサバ 4回(H18,H20,H23,H26)の調査の結果、全試料のダイオキシン類は0.18~2.7pg-TEQ/g-wetの範囲であり、平均値、標準偏差は1.0±0.60pg-TEQ/g-wetであった。試料採取を行った6水域の水域別平均値を比較すると、東北沖太平洋、関東沖、東海沖に比べて、瀬戸内海西部、山陰沖、九州北西部沖で高く、瀬戸内海西部、九州北西部沖では前者の3水域と有意差が認められた(第24図)。経年変化を東北沖太平洋、関東沖、東海沖、瀬戸内海西部、山陰沖、九州北西部沖の6水域で比較した。各水域ともダイオキシン類の年変化は小さかったが、太平洋側に比べて日本海側の水域で相対的に高く推移していた(第25図)。

⑧ウナギ(養殖) 4回(H19,H21,H24,H27)の調査の結果、全試料のダイオキシン類は0.098~2.1pg-TEQ/g-wetの範囲であり、平均値、標準偏差は0.62±0.29pg-TEQ/g-wetであった。伊勢・三河湾、東海沖、四国南部沖、九州北緯部沖、九州南部沖(注:ウナギ養殖は通常陸上で行われるが、採取地点の標記方法を全国20水域区分に従っているため、試料採取地点に該当する水域名で表現した。)の5地点で比較した。試料採取を行った5水域の水域別平均値を比較すると、九州南部沖で低い傾向にあり、東海沖、伊勢・三河湾、九州北西部沖との間に有意差が認められた(第26図)。経年変化では東海沖、九州南部沖のCo-PCBsに年変化が認められたが、他の水域では低く推移してい

た(第27図)。

⑨カンパチ(養殖) 4回(H19,H21,H23,H26)の調査の結果、全試料のダイオキシン類は1.1~3.9pg-TEQ/g-wetの範囲であり、平均値、標準偏差は2.1±0.60pg-TEQ/g-wetであった。試料採取を行った5水域の水域別平均値を比較すると、九州南部沖で低い傾向であり、瀬戸内海南部、四国南部沖、九州北西部沖との間に有意差が認められた(第28図)。経年変化では各水域ともほぼ横ばい傾向であったが、九州北西部沖では年変化がやや大きかった(第29図)。

⑩ブリ(養殖) 4回(H19,H21,H23,H25)の調査の結果、全試料のダイオキシン類は1.2~4.7pg-TEQ/g-wetの範囲であり、平均値、標準偏差は2.6±0.81pg-TEQ/g-wetであった。試料採取を行った5水域の水域別平均値を比較すると、カンパチ(養殖)と同様に九州南部沖で低い傾向であり、瀬戸内海東部、瀬戸内海南部、九州北西部沖との間に有意差が認められた(第30図)。経年変化では各水域とも横ばい傾向で推移していた(第31図)。

⑪ベニズワイガニ 3回(H19,H21,H24)の調査の結果、全試料のダイオキシン類は0.21~0.79pg-TEQ/g-wetの範囲であり、平均値、標準偏差は0.38±0.15pg-TEQ/g-wetであった。試料採取を行った3水域の水域別平均値を比較すると、北海道沖日本海でやや高く、他の2水域との間に有意差が認められた(第32図)。経年変化を北陸沖と山陰沖の2水域で比較すると、両水域とも横ばい傾向で推移していた(第33図)。

柴崎・林：魚介類中のダイオキシン類

第11表 種類別の採取水域，年度及び検体数

カタクチイワシ (単位：検体数)

採取水域名	H18	H20	H23	H27	合計
東北沖太平洋	-	9	-	-	9
北陸沖	-	-	-	3	3
関東沖	4	12	-	-	16
伊勢・三河湾	3	6	6	4	19
瀬戸内海東部	3	3	3	3	12
瀬戸内海西部	-	-	3	6	9
山陰沖	-	-	-	4	4
九州北西部沖	-	-	18	-	18
合計	10	30	30	20	90

スズキ (単位：検体数)

採取水域名	H18	H20	H22	H24	H27	合計
東北沖太平洋	-	3	3	3	3	12
東京湾	4	7	6	7	3	27
伊勢・三河湾	3	3	3	4	3	16
大阪湾	3	3	3	4	3	16
瀬戸内海東部	-	5	3	4	3	15
瀬戸内海西部	-	3	3	-	-	6
山陰沖	-	3	3	4	3	13
九州北西部沖	-	3	6	4	3	16
合計	10	30	30	30	21	121

ブリ (天然) (単位：検体数)

採取水域名	H19	H21	H23	H25	合計
襟裳岬以西太平洋	-	-	-	3	3
北陸沖	5	5	9	17	36
山陰沖	4	23	13	6	46
九州北西部沖	1	2	8	7	18
合計	10	30	30	33	103

マサバ (単位：検体数)

採取水域名	H18	H20	H23	H26	合計
東北沖太平洋	5	9	8	3	25
関東沖	2	4	4	3	13
東海沖	-	6	4	4	14
瀬戸内海東部	2	-	-	-	2
瀬戸内海西部	-	-	3	3	6
山陰沖	-	3	6	3	12
九州北西部沖	1	5	5	4	15
九州南部沖	-	3	-	-	3
合計	10	30	30	20	90

カンパチ (養殖) (単位：検体数)

採取水域名	H19	H21	H23	H26	合計
瀬戸内海東部	-	3	5	4	12
瀬戸内海南部	3	6	10	4	23
四国南部沖	-	3	5	4	12
九州北西部沖	-	3	5	4	12
九州南部沖	7	15	5	4	31
合計	10	30	30	20	90

ベニズワイガニ (単位：検体数)

採取水域名	H19	H21	H24	合計
北海道沖日本海	-	-	8	8
北陸沖	6	15	14	35
山陰沖	4	15	8	27
合計	10	30	30	70

コノシロ (単位：検体数)

採取水域名	H18	H20	H23	H27	合計
北陸沖	-	6	-	-	6
東京湾	2	3	6	4	15
伊勢・三河湾	-	5	5	4	14
大阪湾	3	7	5	4	19
瀬戸内海東部	2	-	-	-	2
瀬戸内海西部	-	3	3	4	10
九州北西部沖	3	6	11	4	24
合計	10	30	30	20	90

タチウオ (単位：検体数)

採取水域名	H18	H20	H22	H25	合計
東海沖	-	-	3	3	6
伊勢・三河湾	-	3	-	-	3
大阪湾	4	5	3	4	16
瀬戸内海東部	3	6	6	4	19
瀬戸内海西部	3	8	6	8	25
瀬戸内海南部	-	5	6	3	14
九州北西部沖	-	3	3	3	9
九州南部沖	-	-	3	5	8
合計	10	30	30	30	100

ホッケ (単位：検体数)

採取水域名	H18	H20	H22	H25	合計
オホーツク海	5	10	7	11	33
北海道沖日本海	2	8	11	8	29
襟裳岬以東太平洋	-	3	3	3	9
襟裳岬以西太平洋	-	3	3	4	10
東北沖太平洋	3	-	-	-	3
東北沖日本海	-	3	3	-	6
北陸沖	-	3	3	4	10
合計	10	30	30	30	100

ウナギ (養殖) (単位：検体数)

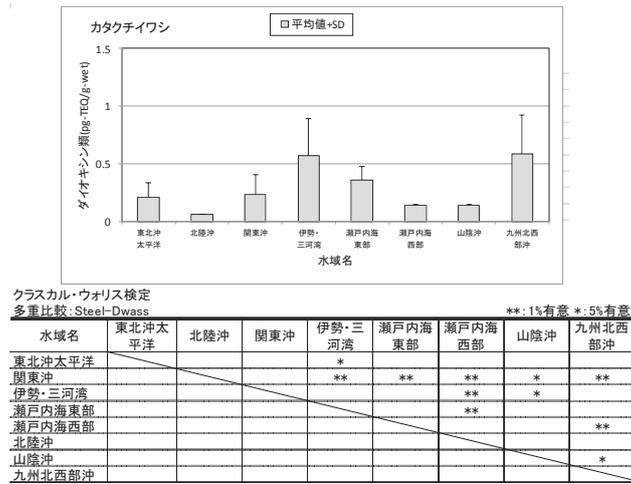
採取水域名*	H19	H21	H24	H27	合計
東海沖	3	4	5	4	16
伊勢・三河湾	4	4	5	4	17
四国南部沖	-	5	5	4	14
九州北西部沖	-	5	5	0	10
九州南部沖	3	12	10	8	33
合計	10	30	30	20	90

* ウナギの養殖は陸上で行われているが，採取地点の表記方法を全国20水域区分に従っているため，試料採取地点に該当する水域名で表記した。

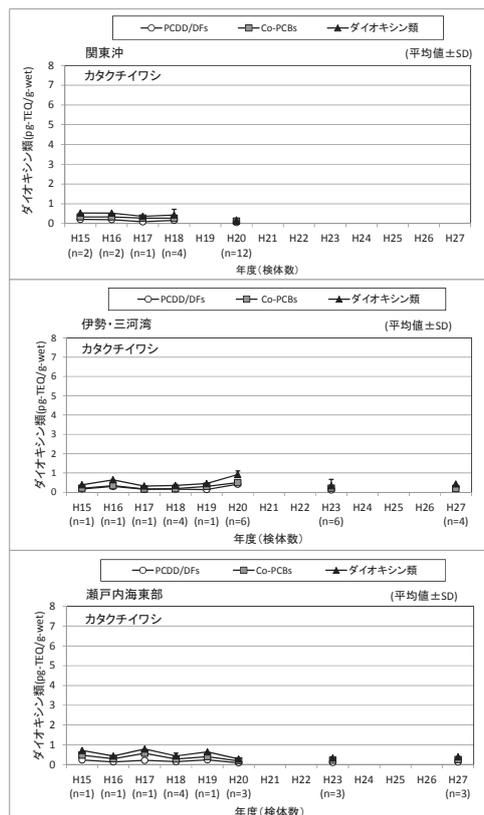
ブリ (養殖) (単位：検体数)

採取水域名	H19	H21	H23	H25	合計
瀬戸内海東部	-	5	5	5	15
瀬戸内海南部	6	10	10	10	36
四国南部沖	-	-	5	5	10
九州北西部沖	-	5	5	5	15
九州南部沖	4	10	5	5	24
合計	10	30	30	30	100

柴崎・林：魚介類中のダイオキシン類

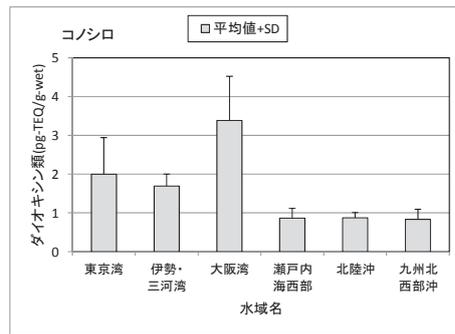


第12図 カタクチワシのダイオキシン類水域別平均値。採取水域別の平均値を示す。試料採取回が多年度にわたるため各水域の検体数は第7表を参照。縦線は標準偏差(SD)を示す。表はクラスカル・ウォリス検定結果、**1%有意、*5%有意を示す。以下、第14, 16, 18, 20, 22, 24, 26, 28, 30, 32図は同様。



第13図 カタクチワシのダイオキシン類水域別経年変化。各年度のnは検体数を示す。H15～H19のデータは水産庁委託事業から2005TEFを用いて再計算して表示した。図中の縦棒は標準偏差を示す。以下、第19, 21, 23, 25, 27, 29, 31, 33図は同様。

柴崎・林：魚介類中のダイオキシン類



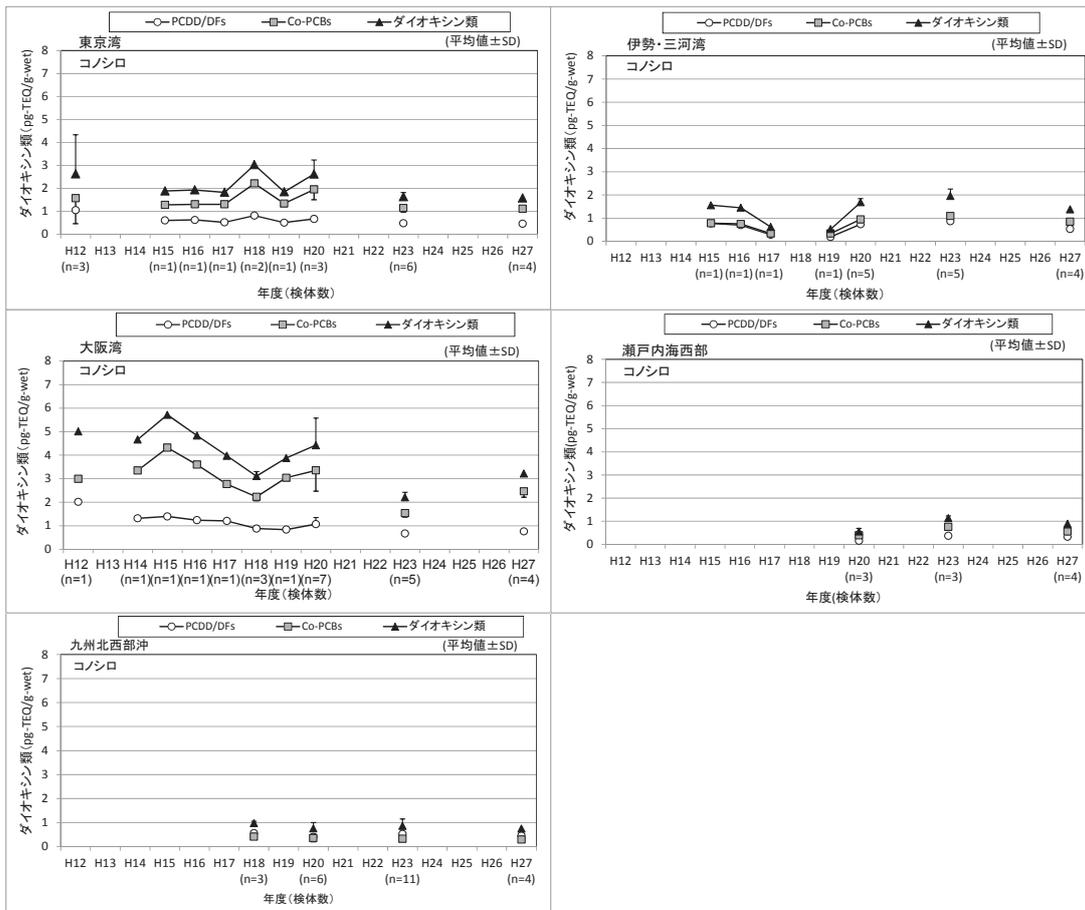
クラスカル・ウォリス検定(Kruskal Wallis test)

多重比較: Steel-Dwass

** : 1%有意 * : 5%有意

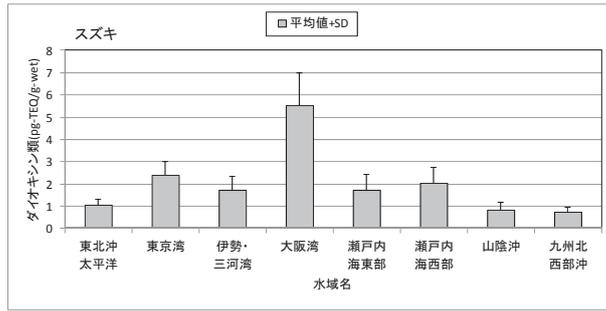
水域名	東京湾	伊勢・三河湾	大阪湾	瀬戸内海西部	北陸沖	九州北西部沖
東京湾			**	**	**	**
伊勢・三河湾			**	**	**	**
大阪湾				**	**	**
瀬戸内海西部						
北陸沖						
九州北西部沖						

第14図 コノシロのダイオキシン類水域別平均値。



第15図 コノシロのダイオキシン類水域別経年変化。各年度のnは検体数を示す。H12～H19のデータは水産庁委託事業から2005TEFを用いて再計算して表示した。図中の縦棒は標準偏差を示す。以下、第17図は同様。

柴崎・林：魚介類中のダイオキシン類

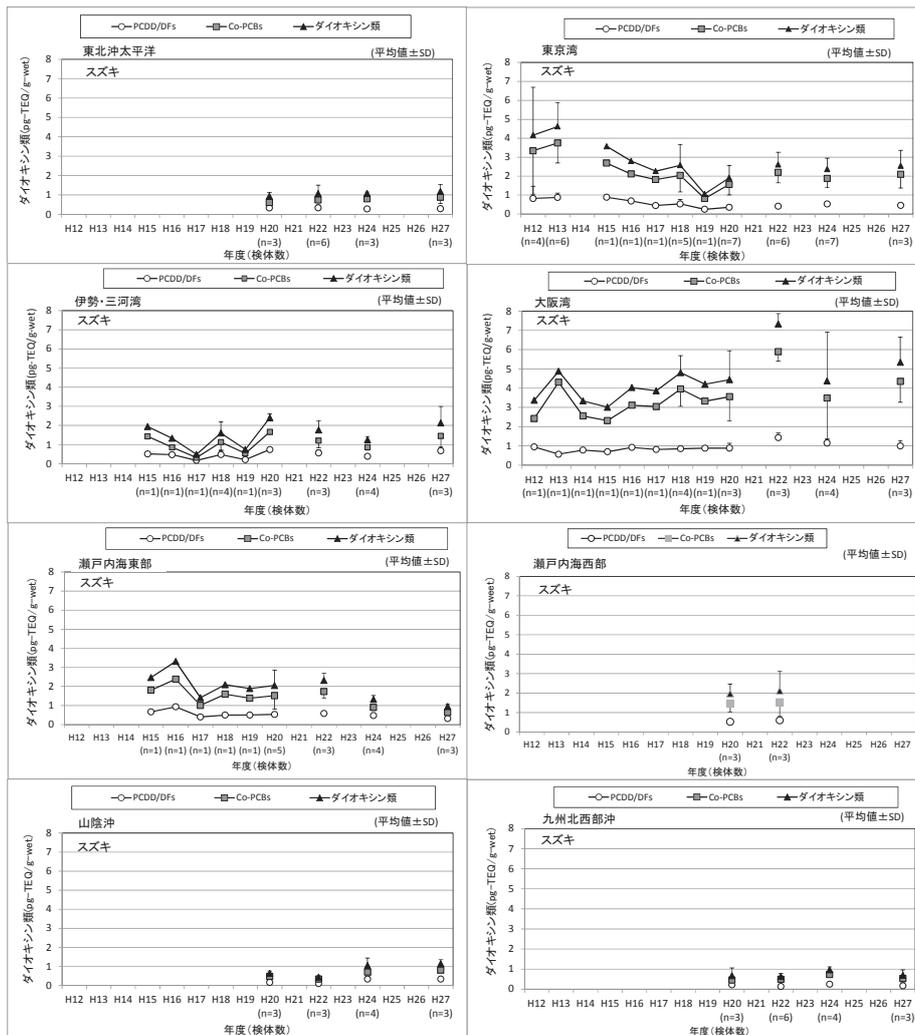


クラスカル・ウォリス検定(Kruskal Wallis test)
多重比較:Steel-Dwass

	東北沖太平洋	東京湾	伊勢・三河湾	大阪湾	瀬戸内海東部	瀬戸内海西部	山陰沖	九州北西部沖
東北沖太平洋		**	*	**		*		
東京湾			**	**			**	**
伊勢・三河湾				**			**	**
大阪湾					**	**	**	**
瀬戸内海東部							**	**
瀬戸内海西部							*	**
山陰沖								
九州北西部沖								

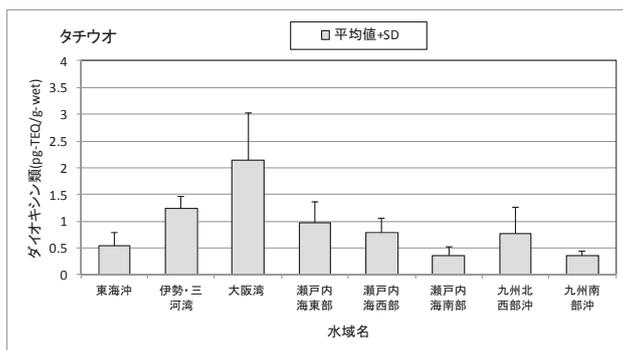
** : 1%有意 * : 5%有意

第16図 スズキのダイオキシン類水域別平均値。



第17図 スズキのダイオキシン類水域別経年変化。

柴崎・林：魚介類中のダイオキシン類

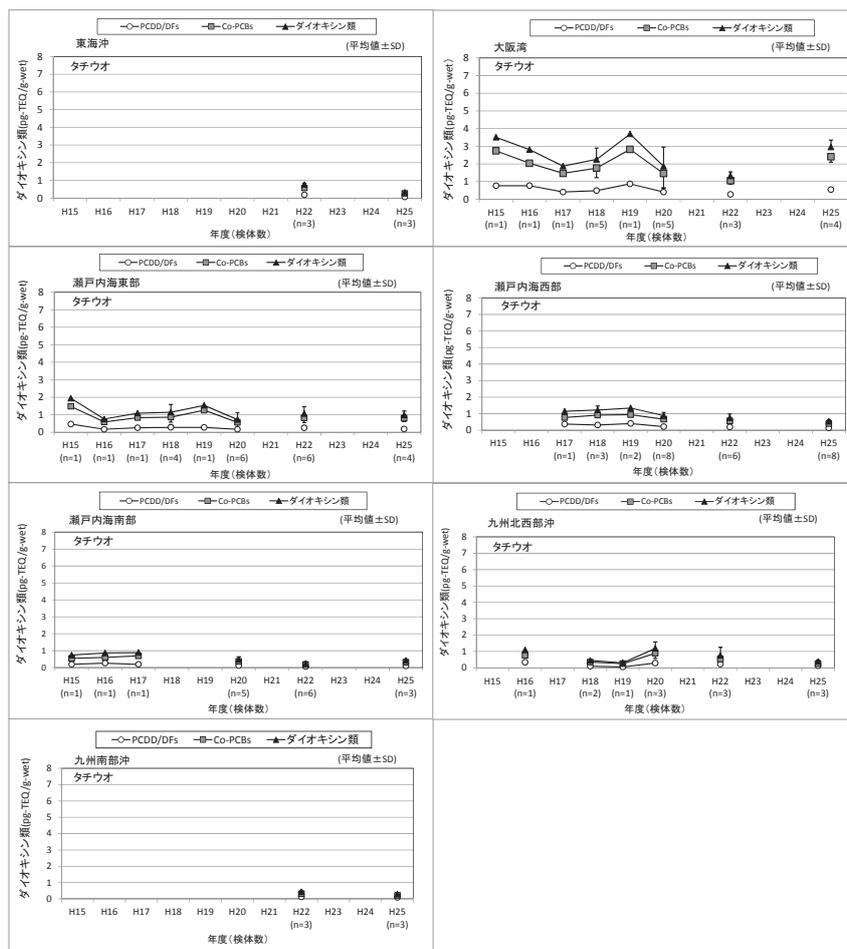


クラスカル・ウォリス検定
多重比較: Steel-Dwass

** : 1%有意 * : 5%有意

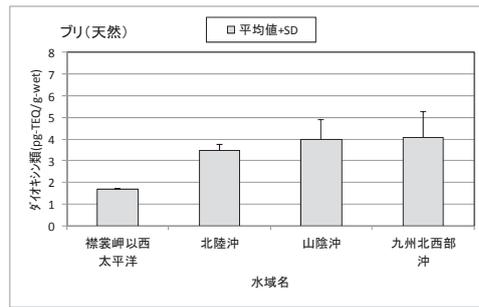
水域名	東海沖	伊勢・三河湾	大阪湾	瀬戸内海東部	瀬戸内海西部	瀬戸内海南部	九州北西部沖	九州南部沖
東海沖			**					
伊勢・三河湾								
大阪湾				**	**	**	*	**
瀬戸内海東部						**		**
瀬戸内海西部						**		**
瀬戸内海南部								
九州北西部沖								
九州南部沖								

第18図 タチウオのダイオキシン類水域別平均値。



第19図 タチウオのダイオキシン類水域別経年変化。

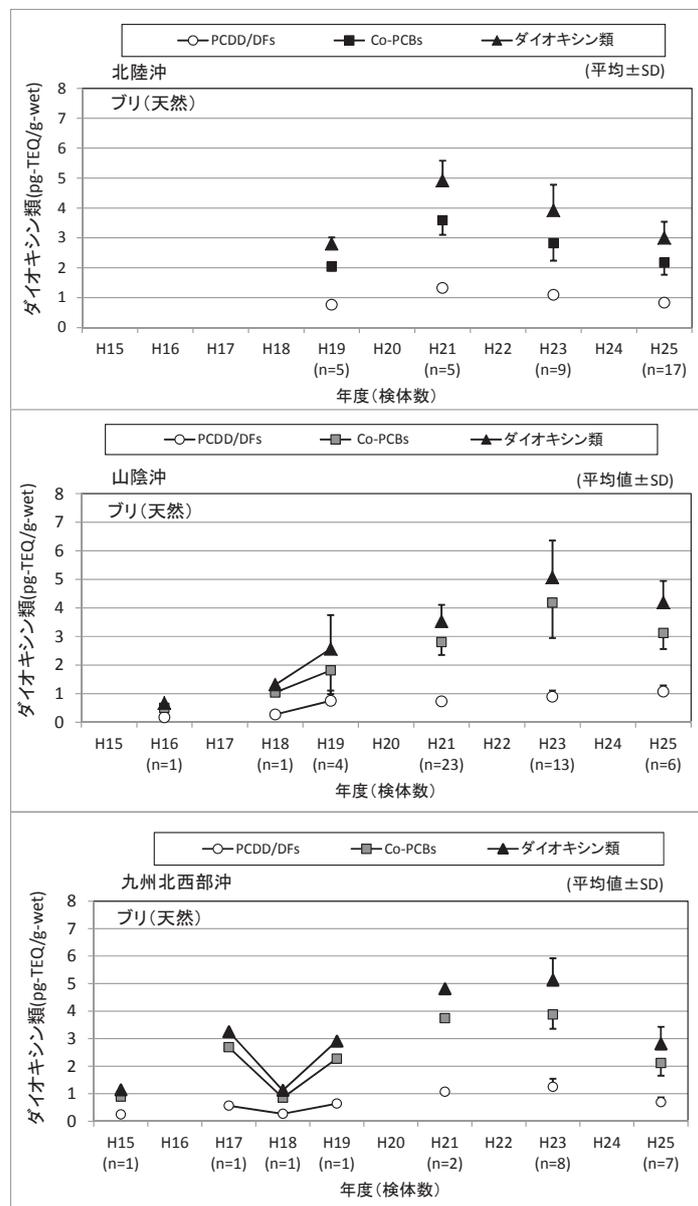
柴崎・林：魚介類中のダイオキシン類



クラスカル・ウォリス検定
多重比較: Steel-Dwass **: 1%有意 * : 5%有意

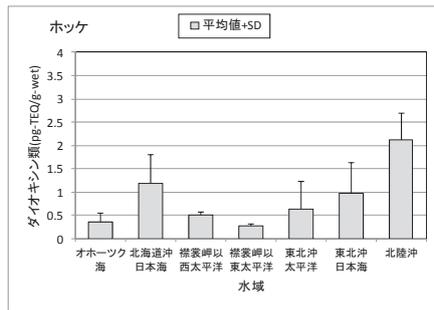
水域名	襟裳岬以西太平洋	北陸沖	山陰沖	九州北西部沖
襟裳岬以西太平洋		*	*	*
北陸沖			*	
山陰沖				
九州北西部沖				

第20図 ブリ（天然）のダイオキシン類水域別平均値。



第21図 ブリ（天然）のダイオキシン類水域別経年変化。

柴崎・林：魚介類中のダイオキシン類

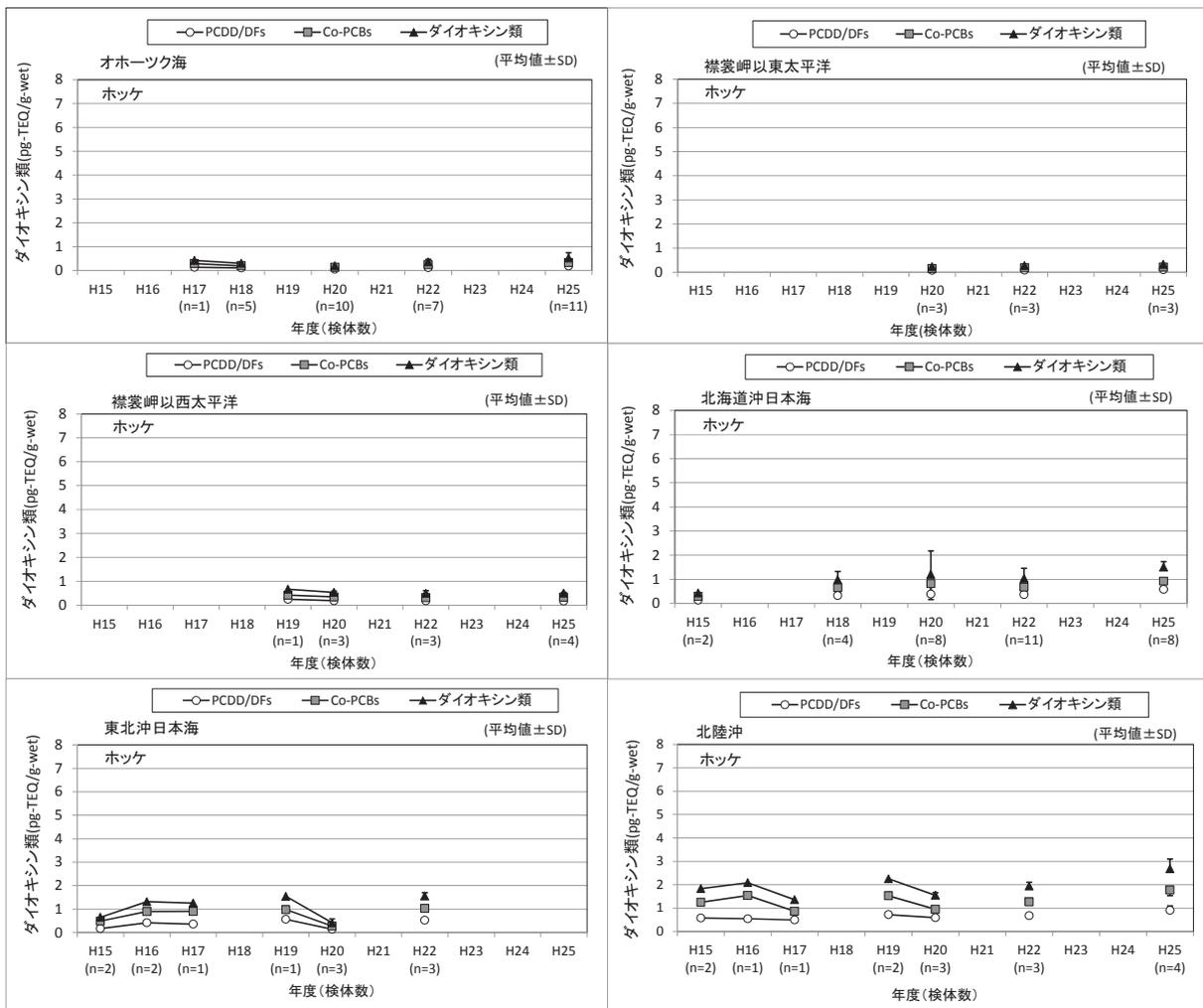


クラスカル・ウォリス検定
多重比較：Steel-Dwass

**：1%有意 *：5%有意

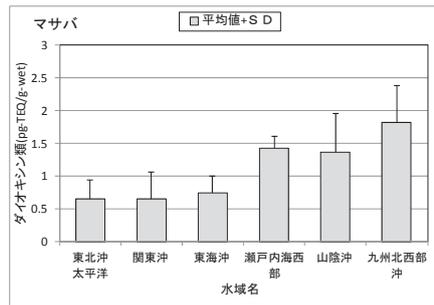
水域名	オホーツク海	北海道沖日本海	襟裳岬以西太平洋	襟裳岬以東太平洋	東北沖太平洋	東北沖日本海	北陸沖
オホーツク海		**	**				**
北海道沖日本海			**	**			**
襟裳岬以西太平洋				**			
襟裳岬以東太平洋					**		
東北沖太平洋						**	
東北沖日本海							**
北陸沖							

第22図 ホッケのダイオキシン類水域別平均値。



第23図 ホッケのダイオキシン類水域別経年変化。

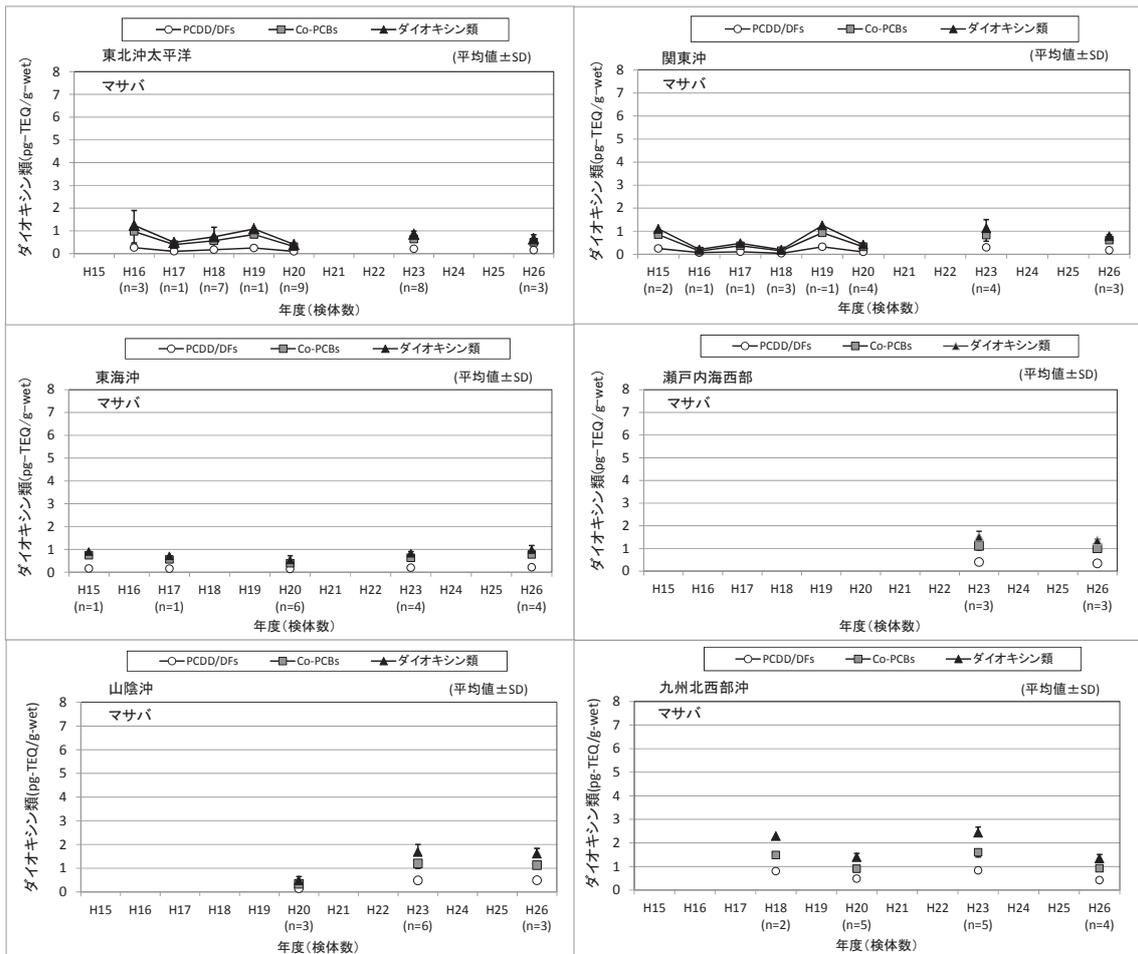
柴崎・林：魚介類中のダイオキシン類



クラスカル・ウォリス検定
多重比較: Steel-Dwass **: 1%有意 * : 5%有意

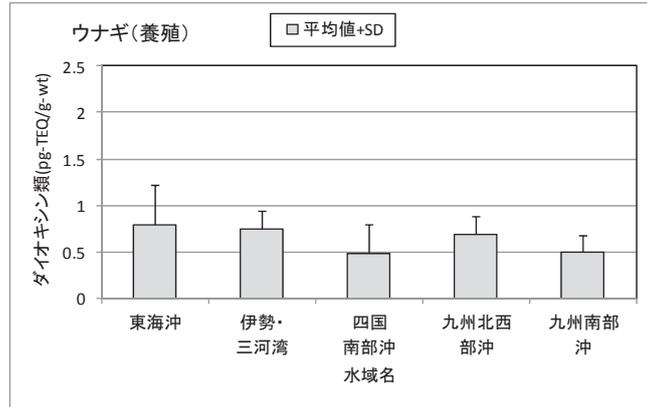
水域名	東北沖太平洋	関東沖	東海沖	瀬戸内海西部	山陰沖	九州北西部沖
東北沖太平洋				**	*	**
関東沖				*		**
東海沖				**		**
瀬戸内海西部						
山陰沖						
九州北西部沖						

第24図 マサバのダイオキシン類水域別平均値。



第25図 マサバのダイオキシン類水域別経年変化。

柴崎・林：魚介類中のダイオキシン類



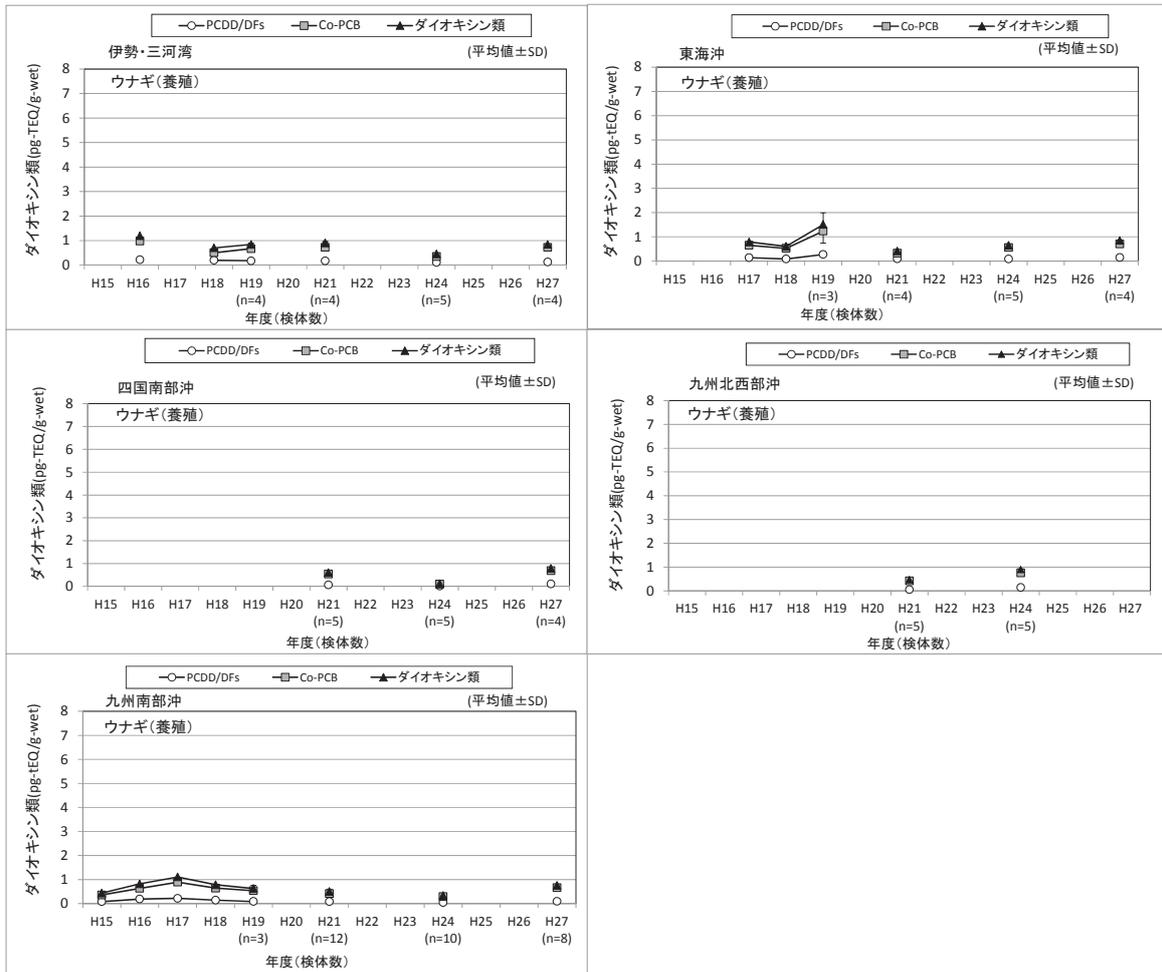
クラスカル・ウォリス検定
多重比較：Steel-Dwass

**：1%有意 *：5%有意

水域名	東海沖	伊勢・三河湾	四国南部沖	九州北西部沖	九州南部沖
東海沖					*
伊勢・三河湾			*		**
四国南部沖					*
九州北西部沖					
九州南部沖					

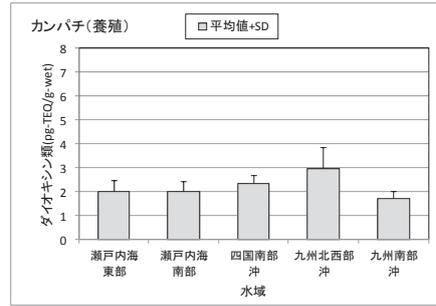
注：ウナギの養殖は陸上で行われているが、採取地点の標記方法を全国20水域区分に従っているため、試料採取地点に該当する水域名で表現した。

第26図 ウナギ(養殖)のダイオキシン類水域別平均値。



第27図 ウナギ(養殖)のダイオキシン類水域別経年変化。

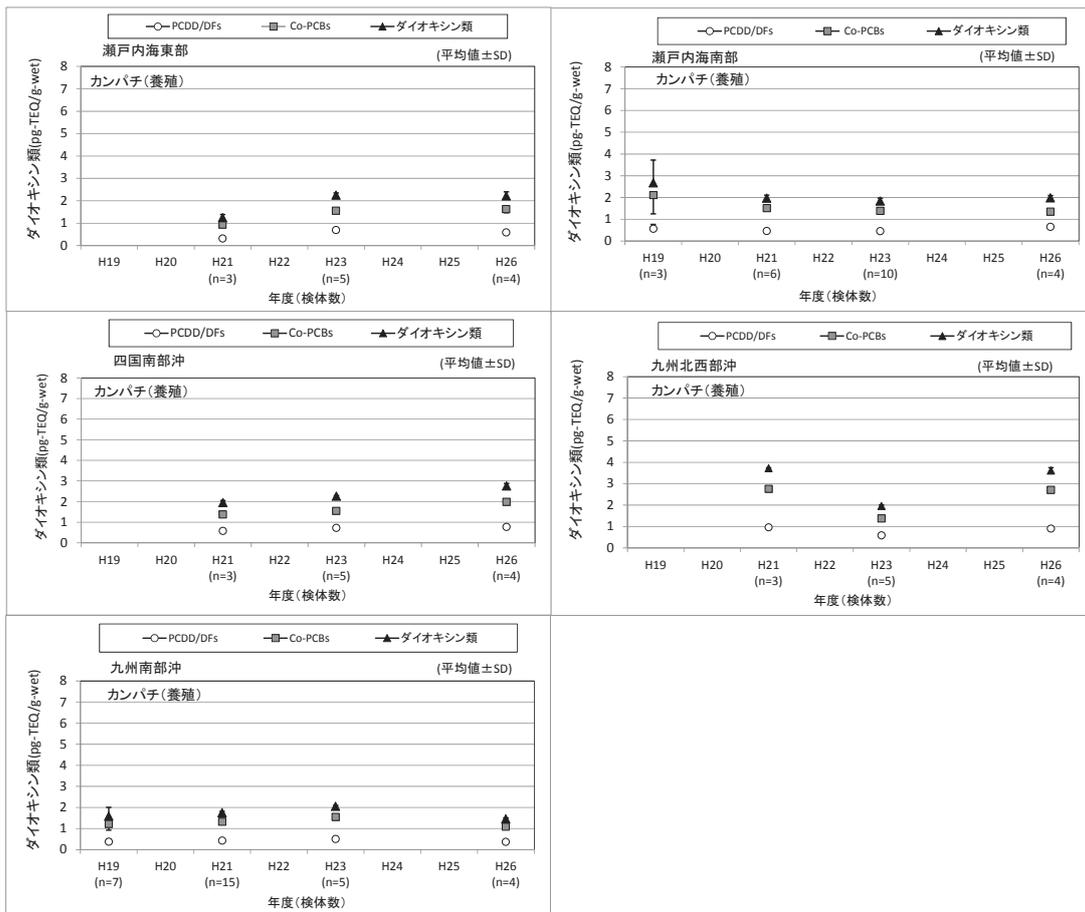
柴崎・林：魚介類中のダイオキシン類



クラスカル・ウォリス検定
多重比較: Steel-Dwass **: 1%有意 * : 5%有意

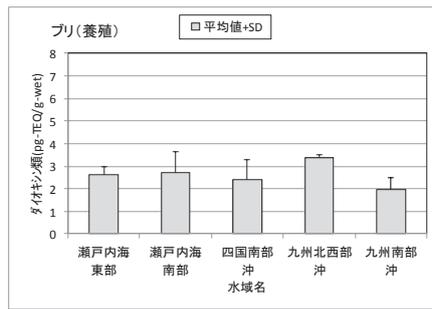
水域名	瀬戸内海東部	瀬戸内海南部	四国南部沖	九州北西部沖	九州南部沖
瀬戸内海東部					
瀬戸内海南部			**	*	*
四国南部沖					**
九州北西部沖					**
九州南部沖					

第28図 カンパチ (養殖) のダイオキシン類水域別平均値。



第29図 カンパチ (養殖) のダイオキシン類水域別経年変化。

柴崎・林：魚介類中のダイオキシン類

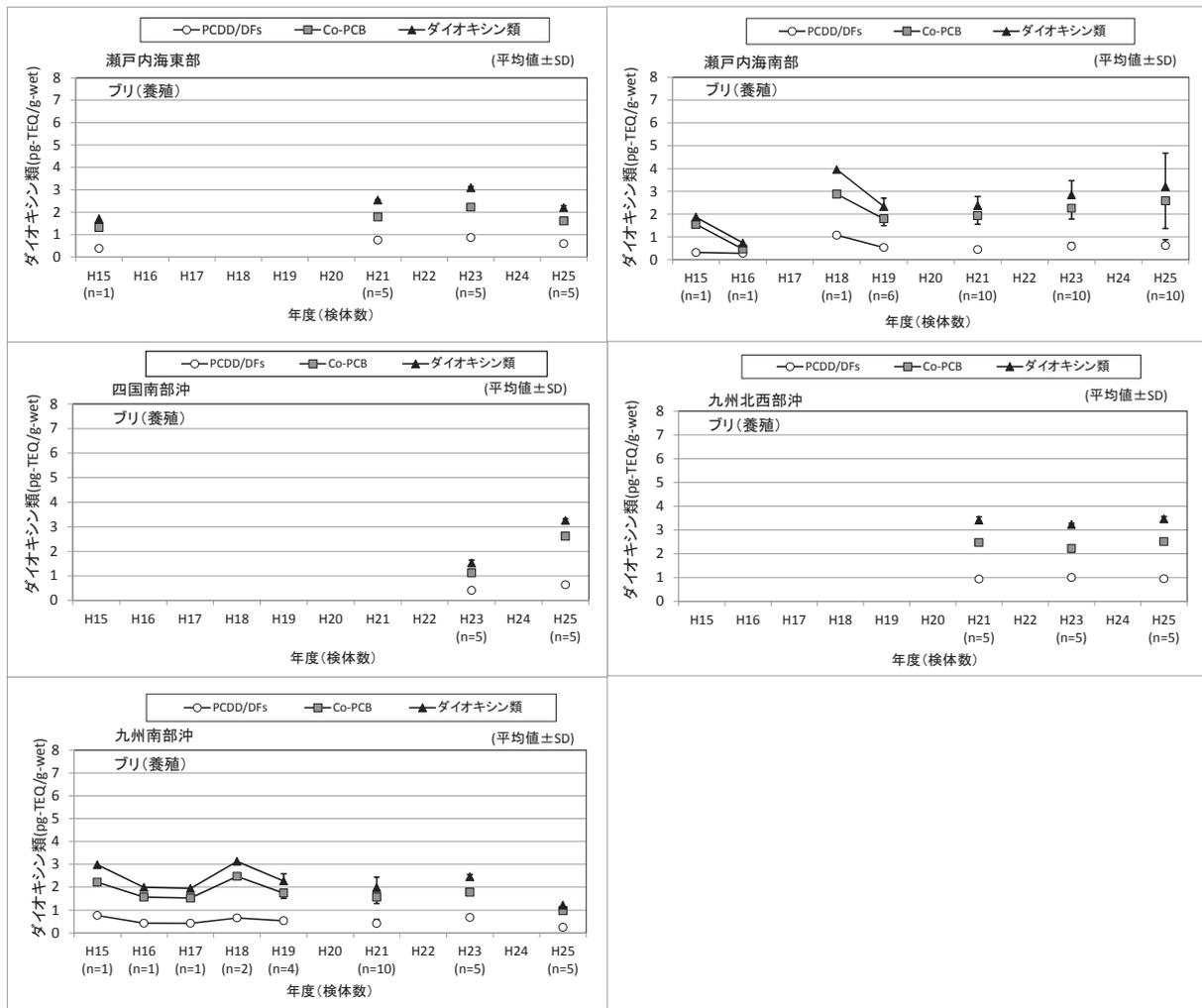


クラスカル・ウォリス検定
多重比較: Steel-Dwass

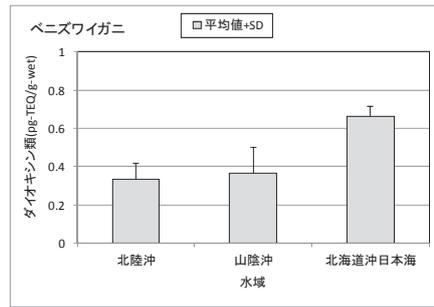
水域名	瀬戸内海東部	瀬戸内海南部	四国南部沖	九州北西部沖	九州南部沖
瀬戸内海東部				**	**
瀬戸内海南部				*	*
四国南部沖				*	
九州北西部沖					**
九州南部沖					

**: 1%有意 * : 5%有意

第30図 プリ（養殖）のダイオキシン類水域別平均値。



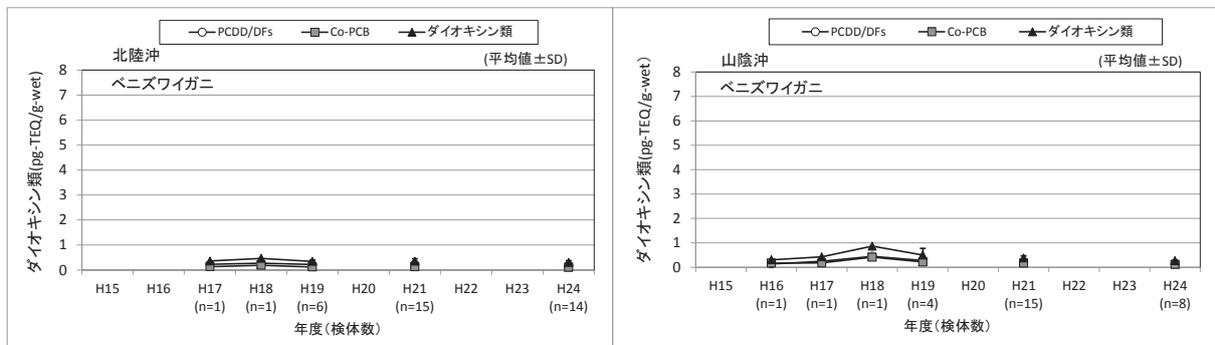
第31図 プリ（養殖）のダイオキシン類水域別経年変化。



クラスカル・ウォリス検定
多重比較：Steel-Dwass **：1%有意 *：5%有意

水域名	北陸沖	山陰沖	北海道沖日本海
北陸沖			**
山陰沖			**
北海道沖日本海			

第32図 ベニズワイガニのダイオキシン類水域別平均値。



第33図 ベニズワイガニのダイオキシン類水域別経年変化。

まとめ

平成18年度～27年度に行ったサーベイランス・モニタリング調査で魚介類中の筋肉中（可食部）に蓄積したダイオキシン類は、魚介類の種類によるダイオキシン類の毒性等量の相違、水域による相違が認められ、その要因はCo-PCBsの毒性等量の違いに起因している場合が多かった。同時に各々の魚介類の経年的な変化傾向は明らかでなかった。魚介類中に含まれるダイオキシン類と体重、体長、脂質の関係を相関係数で比較したところ、毒性等量と脂質との相関の良いことが認められ、脂溶性の高いダイオキシン類の物理化学的特性を反映していた。しかし、ダイオキシン類の蓄積状況を比較するために、一般的に流通している同一サイズ（年級群）の個体を分析対象としたため、体重及び体長との相関が良くなかった可能性がある。

また、PCDD/DFsとCo-PCBsの関係を湿重量濃度で見た場合、PCDD/DFs各異性体の濃度(pg/g-wet)からは、農薬起源であると推察されている非2378塩素置換体の1368-TeCDDが全種類で共通して認められた。東京湾で採取したスズキ、コノシロでは、他の水域とは異なり非2378塩素置換体の12468-PeCDF、124689-HxCDF濃度が高かった。この両異性体は水産庁委託事業でも東京湾のスズキ、コノシロに認められ、東京湾の底質にも認められた。12468-PeCDF、124689-HxCDFが何らかの経路を介して現在でも魚類筋肉に蓄積していることを窺わせており、東京湾の魚介類に特有な蓄積特性の可能性はあるが、日本沿岸における底質の上記2異性体の分析データが殆ど無いためその蓄積経路及び過程については今後の検討課題である。東京湾及び大阪湾で採取したコノシロ及びスズキのPCDD/DFsとCo-PCBsの蓄積状況を湿重量濃度で比較すると、東京湾ではPCDD/DFs

が、大阪湾ではCo-PCBsが他の水域とは異なった分布となっており、両水域に影響を及ぼす発生源の違いが推察される。

魚介類中に含まれるダイオキシン類を毒性等量で表現することにより、種類間での蓄積程度の違いを評価するのに有用であるが、魚介類中に含まれるダイオキシン類の特性を考察する場合には湿重量濃度を用いた検討が必要であると考えられる。

なお、東京湾のマコガレイのBSAFを算出したところ、大阪湾及び広島湾で得られたBSAFとほぼ同様であった

また、ホッケでは太平洋側の水域と日本海側の水域でダイオキシン類に有意差が認められた。マサバでも太平洋側の水域とその他の水域では、ダイオキシン類に有意差が認められた。これらの相違は生息域における餌生物の違いとも推測されるが詳細は今後の検討課題である。内湾、沿岸域で代表的なコノシロ、スズキでは、大阪湾や東京湾のような人口集中沿岸域と他の水域ではダイオキシン類に明らかな違い（特に、Co-PCBsの違い）が認められたことから、発生源からのダイオキシン類の時空間的な差及び量的な違いが魚介類中のダイオキシン類の差に影響している可能性が示唆された。

養殖種（カンパチ、ブリ）におけるダイオキシン類の経年変化に関しては、ほぼ横ばい傾向で推移していた。

以上、平成18年度～27年度に行ったサーベイランス・モニタリング調査で得られた魚介類中に蓄積したダイオキシン類のデータと平成12年度～19年度（水産庁委託事業）の調査結果から、ダイオキシン類の種類による相違、水域間での相違、PCDD/DFs組成の特徴を抽出したが、PCDD/DFsとCo-PCBsの組成やダイオキシン類の蓄積状況に経年的な変化の傾向は認められていない。よって、今後も魚介類に蓄積したダイオキシン類の動向を注視していく必要があるが、平成28年度に環境省及び厚生労働省から報告されたダイオキシン類摂取量の合計は0.66pg-TEQ/kg bw/day（環境省（2017）、厚生労働省（2016））と国が定めた耐容一日摂取量の1/5以下であったことから、上述した魚介類のダイオキシン類が健康に影響及ぼす可能性は低いと考えられる。

謝 辞

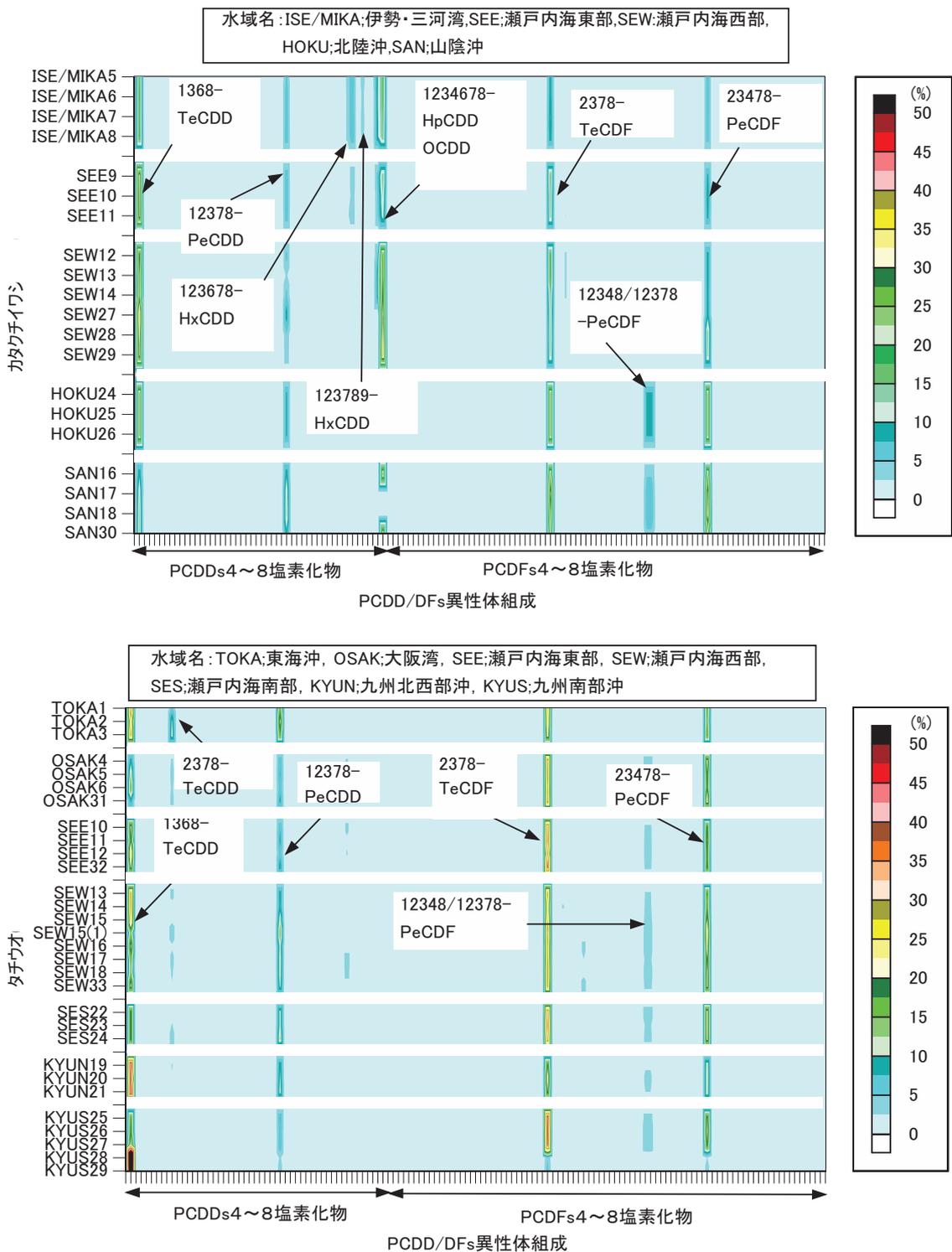
本報告は2001年（平成12年度）～2003年（平成14年度）水産庁委託事業「ダイオキシン類等漁業影響調査魚介類中のコプラナ-PCB削減方策検討・解明事業」、2004年（平成15年度）～2008年（平成19年度）水産庁委託事業「漁場環境の化学物質リスク対策推進委託事業ダイオキシン類の蓄積実態調査」、2009年（平成20年度）農林水産省委託事業「有害化学物質リスク管理基礎調査事業」、2010年（平成21年度）～2016年（平成27年度）の農林水産省補助事業「有害化学物質リスク管理推進事業」で得られたデータを使用しており、委託元の水産庁、農林水産省及び事業費交付元の農林水産省に多大なご協力を賜った。また、試料採取時に都道府県水産部局及び漁業協同組合及び水産業者にも多くのご理解・ご協力を賜った。そして、分析用試料の調製には、海生研の多くの職員、臨時雇用の方々による練達の技量によるところが大きい。ダイオキシン類の分析を担当した（一財）日本食品分析センター多摩研究所の職員の皆様にも併せて、厚く御礼申し上げる。

この報告をまとめるにあたり、鹿児島大学名誉教授小山次朗先生並びに海生研清野通康顧問に多大なるご指導を受け賜わった。また、未公表データの提供を頂いた国立研究開発法人水産研究・教育機構瀬戸内海区水産研究所田中博之博士に御礼申し上げます。

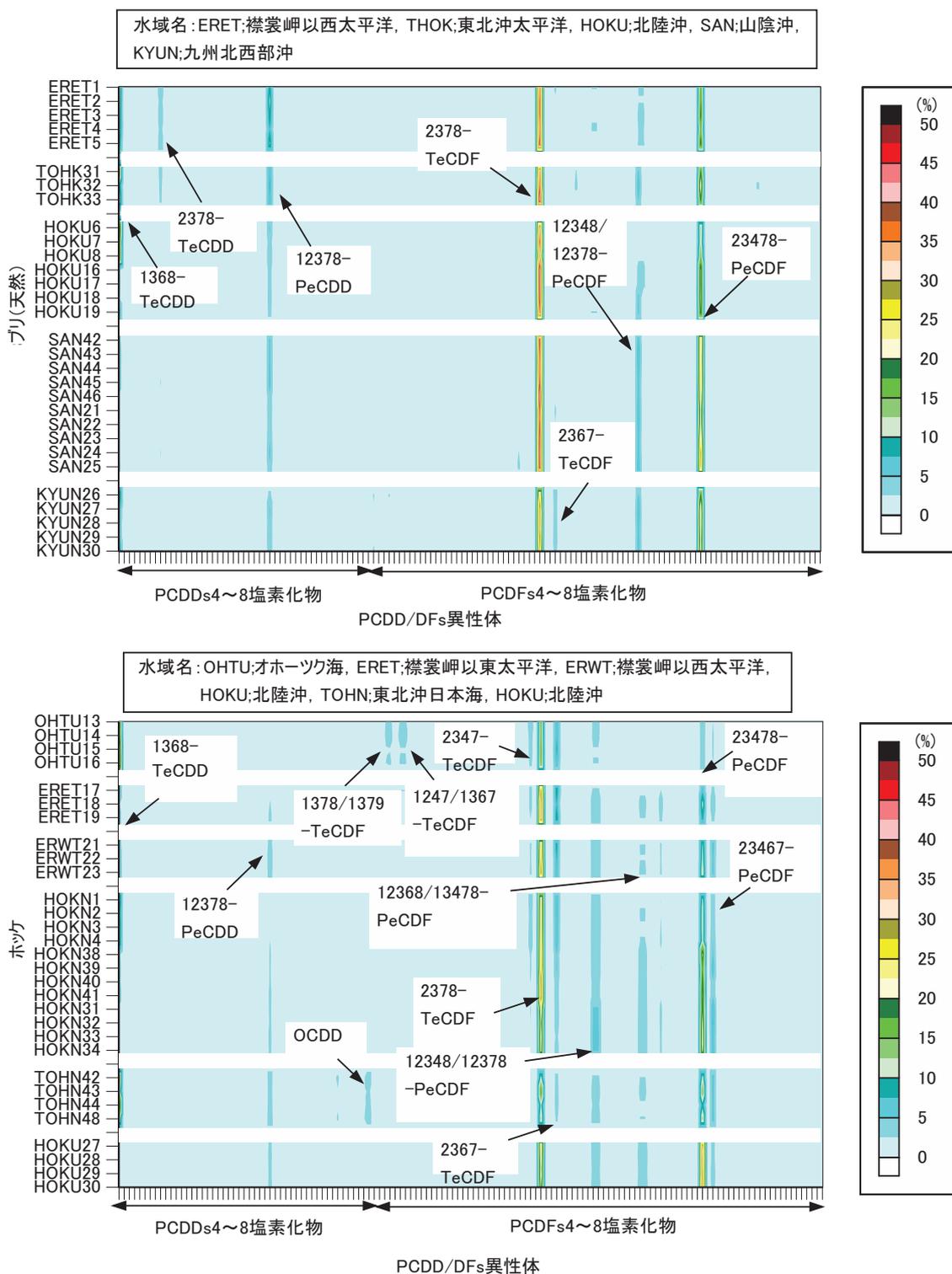
引用文献

- EPA (2008). Biota-sediment accumulation factor data set (BSAF) . https://archive.epa.gov/med/med_archive_03/web/html/bsaf.html (2014年8月25日に閲覧).
- 橋本俊次・田中雄一郎・生田悟志・宮崎 徹 (2005). CNPおよびPCPの加熱・燃焼実験におけるPCDD/FおよびPCB全異性体測定. 環境化学, **15**, 813-834.
- 亀田 豊・益永茂樹・浜田 弘・中西準子 (2003). 稲藁のダイオキシン類と農薬汚染の変遷及びそれが日本人のPCDD/Fs摂取量に与えた影響の推定. 環境化学, **13**, 369-383.
- 環境省 (2004). ダイオキシン類挙動モデルハンドブック. 環境省, 東京, 57-58.
- 環境省 (2016). ダイオキシン類の排出量の目録

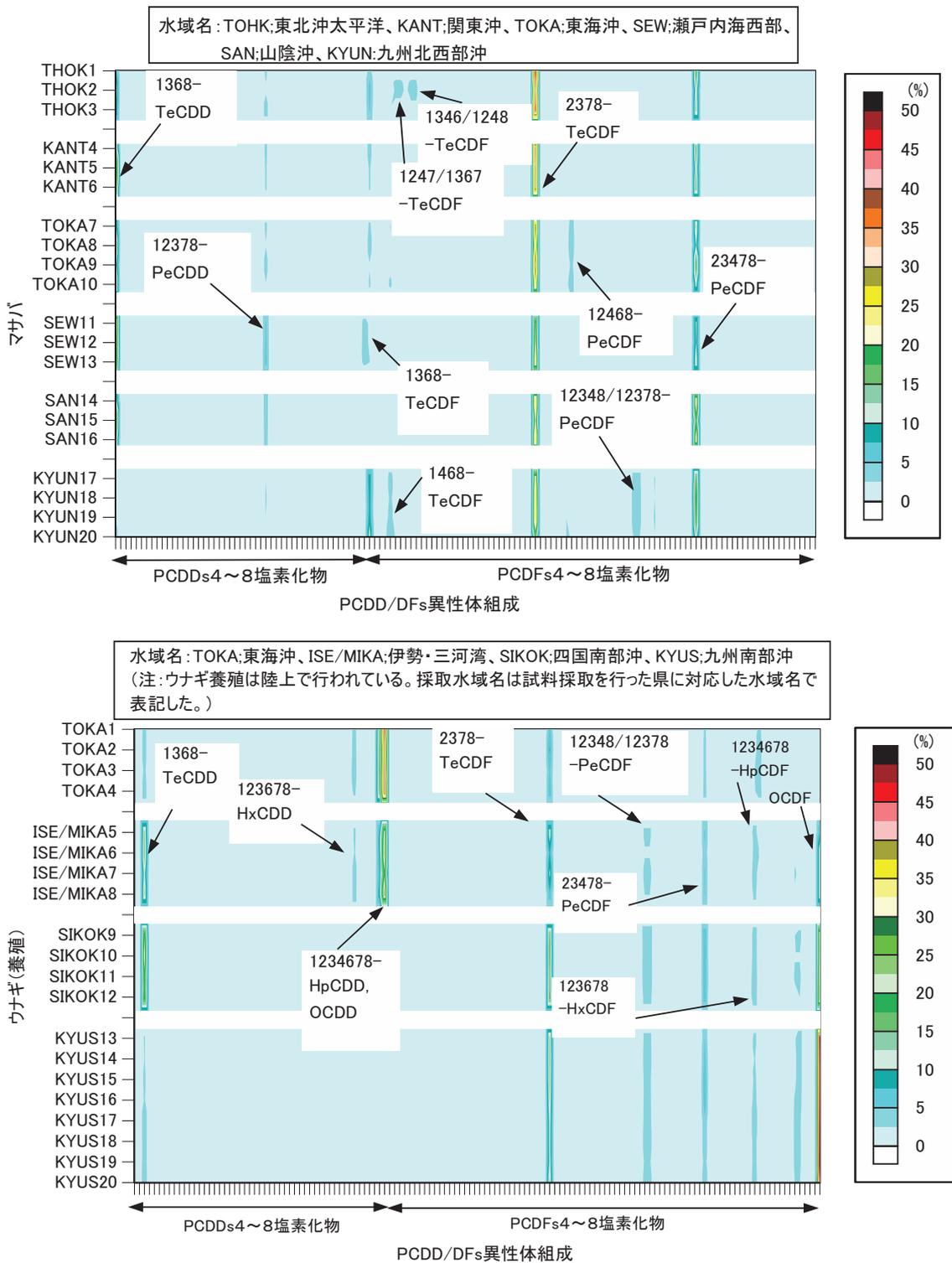
- (排出インベントリー). 環境省, 1-23.
- 環境省 (2017). 平成27年度ダイオキシン類に係る環境調査結果. 環境省, 1-72.
- 厚生労働省 (1999). 食品中のダイオキシン類及びコプラナ-PCBの測定方法暫定ガイドライン. 1-43.
- 厚生労働省 (2008). 食品中のダイオキシン類の測定方法暫定ガイドライン. 1-45.
- 厚生労働省 (2016). 平成27年度食品からのダイオキシン類一日摂取量調査等の調査結果について. <http://www.mhlw.go.jp/stf/seisakunitsuite/bunya/0000135837.html> (2016年9月8日に閲覧)
- 越川敏樹 (2015). コノシロの食性と宍道湖・中海の環境. 平成26年度ホシザキグリーン財団環境修復プロジェクト報告書, 1-20.
- 日本規格協会 (2005). JIS K 0312 (工場用水・工場排水中のダイオキシン類の測定方法). 1173-1216.
- Naito, W., Jin, J., Kang, Y.S., Yamamuro, M., Masunaga, S. and Nakanishi, J. (2003). Dynamics of PCDD/DFs and coplanar-PCBs in an aquatic food chain of Tokyo Bay. *Chemosphere*, **53**, 347-362.
- 野澤亜紀・山崎正夫・森 育子・清水一志 (2014). 東京湾表層底質中におけるダイオキシン類の濃度及び組成. 平成25年第23回環境化学討論会, ポスター発表 (P-031).
- 先山孝則・仲谷 正・角谷直哉・神浦俊一 (2000). 都市域の環境媒体におけるダイオキシン類組成とその変動要因. 平成12年度日本水環境学会シンポジウム講演要旨集, 179-180.
- 清家伸康 (2002). 水田土壤中ダイオキシン類の異性体組成. 平成14年第5回日本水環境学会シンポジウム講演集, 184-185.
- 水産庁 (1989a). 我が国漁獲対象魚種の資源特性 (I). 北海道区水産研究所, 1-60.
- 水産庁 (1989b). 我が国漁獲対象魚種の資源特性 (I). 東海区水産研究所, 1-38.
- 水産庁 (1989c). 我が国漁獲対象魚種の資源特性 (I). 南西海区水産研究所 (高知), 1-76.
- 水産庁 (1989d). 我が国漁獲対象魚種の資源特性 (II). 南西海区水産研究所 (広島), 1-87.
- 水産庁 (1989e). 我が国漁獲対象魚種の資源特性 (II). 南西海区水産研究所, 1-54.
- 水産庁 (1989f). 我が国漁獲対象魚種の資源特性 (II). 西海区水産研究所 (下関), 1-39.
- 水産庁 (1989g). 我が国漁獲対象魚種の資源特性 (II). 日本海区水産研究所, 1-96.
- 高山幸司・宮田秀明・味村真弓・樫本 隆 (1991). 日本の沿岸魚及び市販魚類中のPCDDs, PCDFs及びCo-PCBs. 衛生化学, **37**, 125-131.
- WHO (1998). World health organization. Executive summary – assessment of the health risks of dioxins: re-evaluation of the tolerable daily intake (TDI). WHO Consultation, May 25-29, 1998, Geneva, Switzerland. <http://www.who.int/ipcs/publications/en/exe-sum-final.pdf> (2015年9月3日に閲覧).
- WHO (2005). 2005 Re-evaluation of human and mammalian toxic equivalency factors (TEFs).



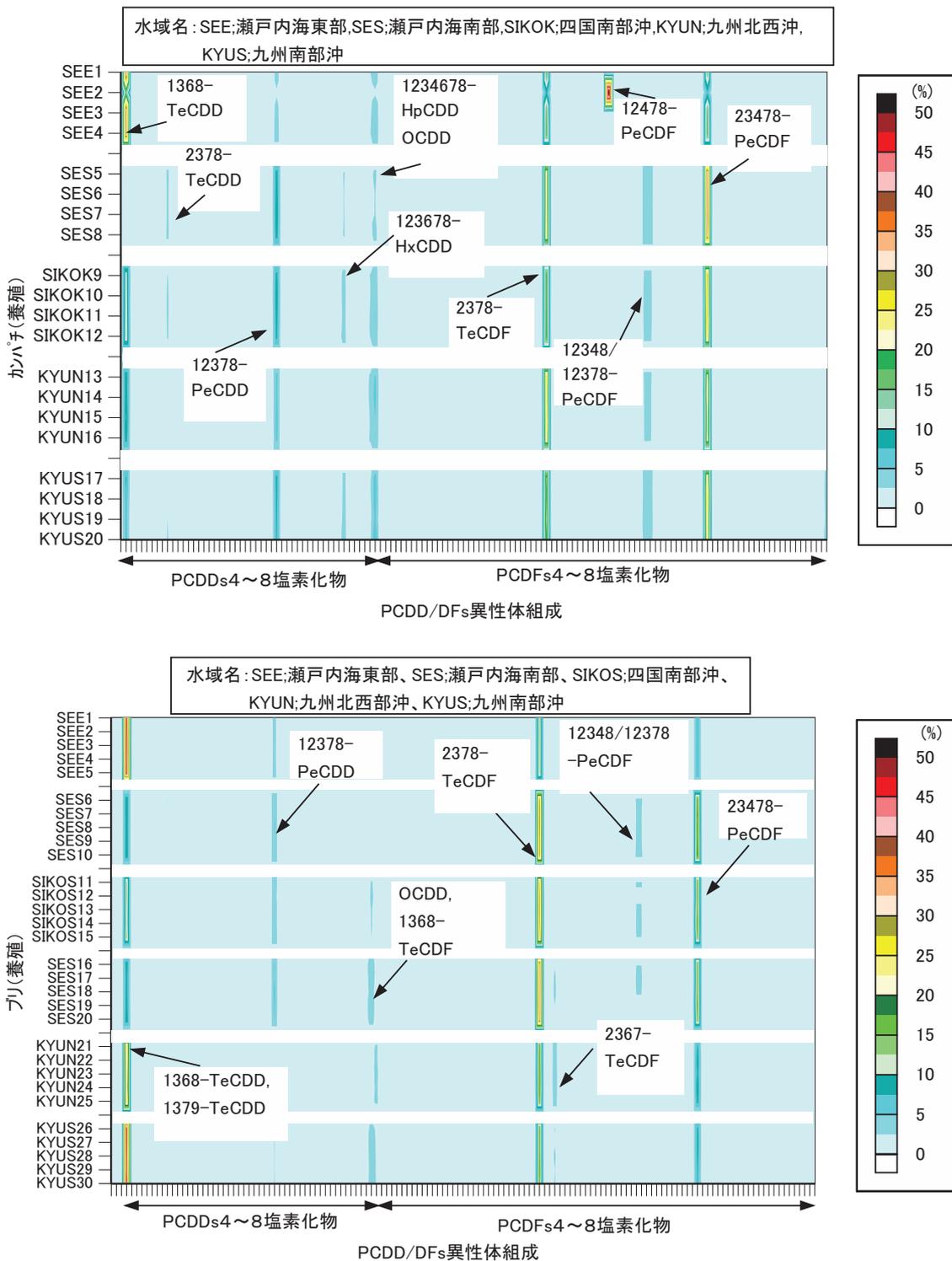
付図1 カタクチイワシ, タチウオのPCDD/DFs異性体組成。横軸はPCDD/DFsの4~8塩素化物の合計濃度 (pg/g-wet) に対する各異性体の濃度比率 (%) を色の濃淡で示す。縦軸は採取水域名及び試料名を示し, 記号は図の上部にある水域名を参照。



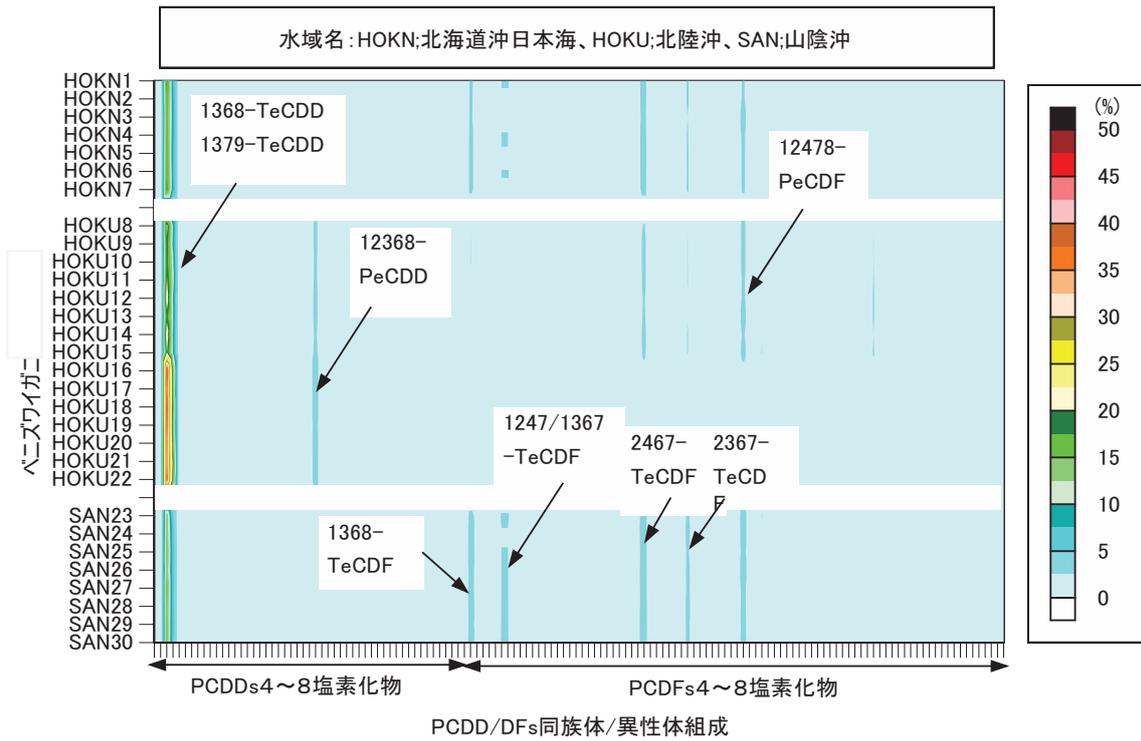
付図2 ブリ(天然), ホッケのPCDD/DFs異性体組成。横軸はPCDD/DFsの4~8塩素化物の合計濃度(pg/g-wet)に対する各異性体の濃度比率(%)を色の濃淡で示す。縦軸は採取水域名及び試料名を示し, 記号は図の上部にある水域名を参照。



付図3 マサバ, ウナギ (養殖) のPCDD/DFs異性体組成。横軸はPCDD/DFsの4~8塩素化物の合計濃度 (pg/g-wet) に対する各異性体の濃度比率 (%) を色の濃淡で示す。縦軸は採取水域名及び試料名を示し, 記号は図の上部にある水域名を参照。



付図4 カンパチ（養殖）、ブリ（養殖）のPCDD/DFs異性体組成。横軸はPCDD/DFsの4～8塩素化物の合計濃度 (pg/g-wet) に対する各異性体の濃度比率 (%) を色の濃淡で示す。縦軸は採取水域名及び試料名を示し、記号は図の上部にある水域名を参照。



付図5 ベニズワイガニのPCDD/DFs異性体組成。横軸はPCDD/DFsの4~8塩素化物の合計濃度 (pg/g-wet) に対する各異性体の濃度比率 (%) を色の濃淡で示す。縦軸は採取水域名及び試料名を示し、記号は図の上部にある水域名を参照。

柴崎・林：魚介類中のダイオキシン類

付表1 ダイオキシン類 (PCDDs,PCDFs,Co-PCBs)の分析対象異性体一覧

1) 1368-TeCDD	64) 13468-PeCDF
2) 1379-TeCDD	65) 12468-PeCDF
3) 1378-TeCDD	66) 13678-PeCDF
4) 1369/1247/1248-TeCDD	67) 13479-PeCDF
5) 1268-TeCDD	68) 12368/13478-PeCDF
6) 1478-TeCDD	69) 12478-PeCDF
7) 2378-TeCDD	70) 12479/13467-PeCDF
8) 1237-TeCDD	71) 12467-PeCDF
9) 1234/1246/1249/1238-TeCDD	72) 14678/12347-PeCDF
10) 1236/1279-TeCDD	73) 13469-PeCDF
11) 1469/1278-TeCDD	74) 12348/12378-PeCDF
12) 1239-TeCDD	75) 12346-PeCDF
13) 1269-TeCDD	76) 12379-PeCDF
14) 1267-TeCDD	77) 12367-PeCDF
15) 1289-TeCDD	78) 12469/12678-PeCDF
Total TeCDD	79) 12679-PeCDF
16) 12468/12479-PeCDD	80) 12369-PeCDF
17) 12368-PeCDD	81) 23468-PeCDF
18) 12478-PeCDD	82) 12349-PeCDF
19) 12379-PeCDD	83) 12489-PeCDF
20) 12469/12347-PeCDD	84) 23478-PeCDF
21) 12378-PeCDD	85) 12389-PeCDF
22) 12369-PeCDD	86) 23467-PeCDF
23) 12467-PeCDD	Total PeCDF
24) 12489-PeCDD	87) 123468-HxCDF
25) 12346-PeCDD	88) 134678/134679-HxCDF
26) 12367-PeCDD	89) 124678-HxCDF
27) 12389-PeCDD	90) 124679-HxCDF
Total PeCDD	91) 123478/123479-HxCDF
28) 123468/124679/124689-HxCDD	92) 123678-HxCDF
29) 123679/123689-HxCDD	93) 124689-HxCDF
30) 123478-HxCDD	94) 123467-HxCDF
31) 123678-HxCDD	95) 123679-HxCDF
32) 123469-HxCDD	96) 123469/123689-HxCDF
33) 123789-HxCDD	97) 123789-HxCDF
34) 123467-HxCDD	98) 123489-HxCDF
Total HxCDD	99) 234678-HxCDF
35) 1234679-HpCDD	Total HxCDF
36) 1234678-HpCDD	100) 1234678-HpCDF
Total HpCDD	101) 1234679-HpCDF
37) OCDD	102) 1234689-HpCDF
Total PCDD	103) 1234789-HpCDF
38) 1368-TeCDF	TOTAL HpCDF
39) 1378/1379-TeCDF	104) OCDF
40) 1347-TeCDF	Total PCDF
41) 1468-TeCDF	Total Dioxin
42) 1247/1367-TeCDF	105) 3, 3', 4, 4'-TeCB(#77)
43) 1348-TeCDF	106) 3, 4, 4', 5-TeCB(#81)
44) 1346/1248-TeCDF	107) 3, 3', 4, 4', 5-PeCB(#126)
45) 1246/1268-TeCDF	108) 3, 3', 4, 4', 5, 5'-HxCB(#169)
46) 1478/1369/1237-TeCDF	Total Non-ortho PCB
47) 1678/1234-TeCDF	109) 2, 3, 3', 4, 4'-PeCB(#105)
48) 2468/1238/1467/1236-TeCDF	110) 2, 3, 4, 4', 5-PeCB(#114)
49) 1349-TeCDF	111) 2, 3', 4, 4', 5-PeCB(#118)
50) 1278-TeCDF	112) 2', 3, 4, 4', 5-PeCB(#123)
51) 1267/1279-TeCDF	113) 2, 3, 3', 4, 4', 5-HxCB(#156)
52) 1469-TeCDF	114) 2, 3, 3', 4, 4', 5'-HxCB(#157)
53) 1249/2368-TeCDF	115) 2, 3', 4, 4', 5, 5'-HxCB(#167)
54) 2467-TeCDF	116) 2, 3, 3', 4, 4', 5, 5'-HpCB(#189)
55) 1239-TeCDF	Total Mono-ortho PCB
56) 2347-TeCDF	Total Co-PCB
57) 1269-TeCDF	Total Dioxin+Total Co-PCB
58) 2378-TeCDF	
59) 2348-TeCDF	
60) 2346-TeCDF	
61) 2367-TeCDF	
62) 3467-TeCDF	
63) 1289-TeCDF	
Total TeCDF	