

厚生労働科学研究費補助金  
食品の安心・安全確保推進研究事業

ダイオキシン類による食品汚染実態の把握に関する研究

平成 16 年度～18 年度 総合研究報告書

主任研究者

国立医薬品食品衛生研究所 食品部 佐々木久美子

分担研究者

国立医薬品食品衛生研究所 食品部 米谷 民雄

国立医薬品食品衛生研究所 食品部 佐々木久美子

国立医薬品食品衛生研究所 食品部 天倉 吉章

(平成 16 年度, 17 年度), 松山大学

薬学部(平成 18 年度)

国立医薬品食品衛生研究所 食品部 堤 智昭

福岡県保健環境研究所 保健科学部 中川 礼子

# 研究報告書目次

## 1. 総合研究報告書

ダイオキシン類による食品汚染実態の把握に関する研究 ..... 1

主任研究者 佐々木久美子

ダイオキシン類の摂取量に関する研究

分担研究者 米谷民雄

個別食品のダイオキシン類汚染実態調査

個別食品のダイオキシン類汚染実態調査

分担研究者 天倉吉章(平成 16, 17 年度)

佐々木久美子(平成 18 年度)

植物を利用した汚染浄化技術に関する基礎検討

分担研究者 天倉吉章(平成 17, 18 年度)

食品中ダイオキシン類分析の迅速化・信頼性向上に関する研究

分担研究者 堤 智昭

食品中臭素化ダイオキシン及びその関連化合物質汚染調査

分担研究者 中川礼子

2. 研究成果の刊行に関する一覧表 ..... 31

3. 研究成果の刊行物・別刷

## 1. 総合研究報告書

ダイオキシン類による食品汚染実態の把握に関する研究

佐々木久美子

厚生労働科学研究補助金(食品の安心・安全確保推進研究事業)

総合研究報告書

ダイオキシン類による食品汚染実態の把握に関する研究

主任研究者 佐々木久美子 国立医薬品食品衛生研究所 食品部第一室長

研究要旨

ダイオキシン類による食品汚染実態及び食事経路摂取量の把握、並びにダイオキシン類測定  
の迅速化及び信頼性向上を目的として、下記の研究を実施した。

- (1)ダイオキシン類のトータルダイエットによる摂取量調査
- (2)個別食品のダイオキシン類汚染実態調査
  - (2-1)個別食品のダイオキシン類汚染実態調査
  - (2-2)植物を利用した汚染浄化技術に関する基礎検討
- (3)食品中ダイオキシン類分析の迅速化・信頼性向上に関する研究
  - (3-1)PCB ELISA と Ah イムノアッセイによる市販魚中のダイオキシン類のスクリーニング法
  - (3-2)表面プラズモン共鳴センサーを用いた市販魚中のダイオキシン類スクリーニング法
  - (3-3)高速流下加熱抽出装置による市販魚中ダイオキシン類の抽出法の検討
  - (3-4)食品中ダイオキシン類分析における高速溶媒抽出法の応用に関する研究
  - (3-5)魚油を使用した健康食品の臭素化ダイオキシン類及びその関連化合物の汚染調査
- (4)食品中臭素化ダイオキシン及びその関連化合物汚染調査

(1)では毎年度、全国の9機関においてトータルダイエット試料を調製し、ダイオキシン類を分析した。その結果、平成16~18年度の食事経路ダイオキシン類一日摂取量はそれぞれ  $1.41 \pm 0.66$ ,  $1.20 \pm 0.66$ ,  $1.04 \pm 0.47$  pgTEQ/kgbw/day であった。

(2-1)では、魚介類、畜肉、鶏卵及びそれらの加工品など195試料について、ダイオキシン類を分析し、汚染実態を明らかにした。さらに、魚介類の筋肉部と内臓、皮、マグロの赤身とトロなど同一個体から調製した部位別試料についてダイオキシン類を分析した結果、部位によりダイオキシン類濃度は異なるが、脂質重量あたりの濃度には差が少ないことを明らかにした。

(2-2)食品汚染に影響を与える一因として土壌汚染があげられるため、その軽減を志向した対策研究として、植物を利用した浄化技術に関する予備検討を行った。3種の有機塩素系農薬〔(2,4-dichlorophenoxy) acetate (2,4-D), alachlor, atrazine〕について、ABC(ATP-binding cassette)タンパク質のサブファミリーであるMRP1(multidrug resistance associated protein 1)を発現させたタバコ(MRP1 タバコ)を実験植物とし、抵抗性及び吸収除去能について野生株と比較した。その結果、alachlor, atrazine に対してMRP1 タバコは抵抗性を示し、特に atrazine では顕著な抵抗性の差が確認された。一方、吸収除去能については顕著な差は認められなかった。ダイオキシンについては、MRP1 タバコに加え、同じABCタンパク質ファミリーのMDR(multidrug resistance)サブファミリー、CjMDR1を発現させたシロイヌナズナ(CjMDR1 シロイヌナズナ)について検討した。

ダイオキシン類を暴露したところ、全ての植物は枯れることなく、抵抗性に差は認められなかった。吸収除去能は、MRP1 タバコでは顕著な差は認められなかったが、CjMDR1 シロイヌナズナでは全てのダイオキシンにおいて吸収量が多く、MDR1 植物体のダイオキシン汚染浄化植物としての可能性が示唆された。

(3-1)では、市販魚中のダイオキシン類を対象に、市販のバイオアッセイキットであるPCB ELISAとAhイムノアッセイを組み合わせたスクリーニング法を開発した。モノオルトPCBs分画をPCB ELISAにより、ノンオルトPCBs及びPCDD/Fs分画をAhイムノアッセイにより測定した。魚試料について本法と従来法(HRGC/HRMS法)の比較試験を行った結果、両分画で従来法の毒性等量濃度に対し良好な相関係数( $r > 0.97$ )が得られた。従って、本法は市販魚中のダイオキシン類のスクリーニング法として有用であると考えられた。

(3-2)では、表面プラズモン共鳴センサーを用いた市販魚中のダイオキシン類スクリーニング法について検討した。抗PCB 118モノクローナル抗体を使用した競合法は、前処理した試料の測定時間が約12分であり迅速性が極めて高かった。しかし、マトリックスの影響を最小限にするため、測定試料は希釈系列を作製し測定する必要があった。HRGC/HRMS法と比較試験を行った結果、コプラナーPCBsの毒性等量濃度と比較的良好な相関( $r = 0.89$ )が認められ、スクリーニング法として期待できた。

(3-3)では、高速加熱流下抽出装置を用いた魚試料からのダイオキシン類の抽出法を検討した。抽出条件を検討し、従来法であるアルカリ分解・溶媒抽出法と比較した結果、両者の毒性等量濃度に非常に高い相関( $r = 0.99$ )が認められた。本抽出法は迅速(約1.5時間)にダイオキシン類を抽出できるため、魚試料中のダイオキシン類分析の迅速化に有効であると考えられた。

(3-4)では、食品中のダイオキシン類を迅速に抽出する方法として高速溶媒抽出法(ASE)の応用を検討した。植物性食品及び動物性食品を対象とした従来法との比較試験並びに実試料に対する添加回収試験の結果から、ASEは食品試料全般に対して高い抽出効率を示し、迅速・簡便な抽出法として使用できることが示された。トータルダイエツト試料についてもASEを使用すると、抽出液を迅速に調製することが可能であった。

(3-5)では、魚油を使用した健康食品4製品について、臭素化・臭素系ダイオキシン類、臭素化ジフェニルエーテル(PBDEs)及びポリ塩化ビフェニル(PCBs)の汚染調査を実施した。臭素化・臭素系ダイオキシン類はほとんど検出されず、2製品で1.2 pg/g及び1.3 pg/gの2,3,7,8-TeBDFが検出されただけであった。PBDEs及びPCBsは全ての製品で検出された。特にイタチ鮫肝油製品では、賞味期限の異なる2ロットについて調査した結果、他の製品よりも高濃度のPBDEs(150,000 pg/g及び210,000 pg/g)とPCBs(10,000 ng/g及び18,000 ng/g)が検出された。

(4)では、臭素系ダイオキシン類(PBDD/Fs, MoBrPCDD/Fs)及びPBDEsのマーケットバスケット方式による5地域(中国・四国, 関東, 北海道, 東北, 中部)の摂取量調査を実施した。臭素系ダイオキシン類の一日摂取量(ND=0とした場合)は平均0.00056 pgTEQ/kgbw/day, PBDEsは平均2.09 ng/kgbw/dayであった。個別食品の汚染調査では、4地域から採取した魚介類等55試料について調査を実施した。その結果、中国・四国地域の7種の魚介類に1,2,3,4,6,7,8-HpBDF, 2,3,7,8-TeBDD, 2,3,7,8-TeBDF及び3-Br-2,7,8-CDFを微量検出し、濃度は0.001~0.256 pgTEQ/gであった。その他の3地域の魚介類からは検出されなかった。PBDEsは、すべての魚介類から検出された。主として、4臭素化体の寄与が大きく、底質に棲息する魚類については10臭素

化体の寄与も大きかった。また、 $\Sigma$ PBDE 濃度は脂肪含量と相関傾向が認められた。四臭素化ビスフェノールA (TBBPA) の、国内 3 地域の個別食品(魚介類 45 件)の平均汚染濃度は 0.02 ng/g (<0.01 ng/g~0.11 ng/g)であった。その他の臭素系難燃剤の微量分析法の検討と予備的摂取量調査として、TBBPA とヘキサブロモシクロドデカン(HBCDs)の北九州地区における予備的摂取量調査を実施した。ND=0とした場合、TBBPA の一日摂取量は平均で 0.6 ng/kgbw/day, HBCDs は 1.8 ng/kgbw/day であった。

#### 分担研究者

米谷民雄 国立医薬品食品衛生研究所  
食品部長

佐々木久美子 国立医薬品食品衛生研究所  
食品部第一室長

天倉吉章 国立医薬品食品衛生研究所  
食品部主任研究官(平成  
16, 17 年度)  
松山大学  
薬学部助教授(平成 18 年  
度)

堤 智昭 国立医薬品食品衛生研究所  
食品部主任研究官

中川礼子 福岡県保健環境研究所  
生活化学課長

株式会社 ダイアインストルメンツ

伊藤日本男, 栗原 浩

株式会社 エンバイオテック・ラボラトリーズ

奥山 亮

株式会社 日新環境調査センター

芦枝和典

第一ファインケミカル株式会社

坂田一登, 谷岡洋平

株式会社 クボタ

小林康男

北海道立衛生研究所

高橋哲夫

宮城県塩釜保健所黒川支所

手代木年彦

宮城県保健環境センター

氏家愛子

埼玉県衛生研究所

堀江正一

名古屋市衛生研究所

田村征男

香川県環境保健研究センター

西岡千鶴

#### 研究協力者

福岡県保健環境研究所  
堀 就英, 安武大輔, 飛石和大, 芦塚由紀,  
村田さつき, 飯田隆雄

(財)日本食品分析センター  
丹野憲二, 野村孝一, 柳 俊彦, 河野洋一

実践女子大学  
豊田正武

京都大学  
廣岡孝志, 土反伸和, 矢崎一史,

松山大学  
吉田隆志

(財)日本冷凍食品検査協会  
田形 肇

株式会社 日吉  
中村昌文

#### A. 研究目的

食品は人におけるダイオキシン類(PCDDs, PCDFs)及びコプラナーPCBs)暴露の主要経路であると考えられている。そこで、ダイオキシン類の人体への影響を評価するためには、食品汚染状況の把握が重要である。本研究では、ダイオキシン類及び臭素化ダイオキシン類とその関連化合物について、食事経由摂取量

及び個別食品の汚染実態の把握、ダイオキシン類測定迅速化、信頼性向上等を目的として、次の研究を実施した。

(1)ダイオキシン類のトータルダイエツトによる摂取量調査

(2)個別食品のダイオキシン類汚染実態調査

(2-1)個別食品のダイオキシン類汚染実態調査

(2-2)植物を利用した汚染浄化技術に関する基礎検討

(3)食品中ダイオキシン類分析の迅速化・信頼性向上に関する研究

(3-1)PCB ELISA と Ah イムノアッセイによる市販魚中のダイオキシン類のスクリーニング法

(3-2)表面プラズモン共鳴センサーを用いた市販魚中のダイオキシン類スクリーニング法

(3-3)高速流下加熱抽出装置による市販魚中ダイオキシン類の抽出法の検討

(3-4)食品中ダイオキシン類分析における高速溶媒抽出法の応用に関する研究

(3-5)魚油を使用した健康食品の臭素化ダイオキシン類及びその関連化合物の汚染調査

(4)食品中臭素化ダイオキシン及びその関連化合物汚染調査

## B.研究方法

(1)ダイオキシン類のトータルダイエツトによる摂取量調査

トータルダイエツト試料は、全国 7 地区の 9 機関で調製した。平成 16 及び 17 年度は厚生労働省の平成 13 年度国民栄養調査、平成 18 年度は厚生労働省の平成 13, 14 年度国民栄養調査並びに平成 15 年度国民健康・栄養調査の各地区における食品別摂取量表に基づいて、それぞれ食品を購入し、それらの食品を計量し、そのまま、または調理した後、13 群に大別して、混合均一化したものを試料とした。さらに第 14 群として飲料水を試料とした。第 10 群(魚介類)、11 群(肉・卵)及び 12 群(乳・

乳製品)は、各機関で魚種、産地、メーカー等が異なる食品で構成された各 3 セットの試料を調製した。これらについて、「食品中のダイオキシン類測定方法ガイドライン」に従ってダイオキシン類を分析し、一日摂取量を算出した。なお、第 10, 11 及び 12 群を除く食品群試料は 9 機関で調製した試料を群毎に 5 ブロックに分け、複数機関の試料を混合して分析を行った。

(2)個別食品のダイオキシン類汚染実態調査

(2-1)個別食品のダイオキシン類汚染実態調査

魚介類、畜肉、鶏卵及びそれらの加工品など 195 試料について、「食品中のダイオキシン類測定方法ガイドライン」に従ってダイオキシン類を分析した。さらに、魚介類の筋肉部と内臓、皮、マグロの赤身とトロなど同一個体から調製した部位別試料についてダイオキシン類を分析した。

(2-2)植物を利用した汚染浄化技術に関する基礎検討

ABC タンパク質サブファミリーの中の薬剤排出ポンプの一つであるヒト mrp1 遺伝子を導入、発現させたタバコ (*Nicotiana tabacum* cv. Samsun NN) を実験植物 1 (MRP1 タバコ) とし、野生株のタバコを対照植物 (Wild タバコ) として使用した。またキンポウゲ科植物のオウレン (*Coptis japonica*) mdr1 遺伝子を導入、発現させたシロイヌナズナ (*Arabidopsis thaliana*) を実験植物 2 (CjMDR1 シロイヌナズナ) とし、野生株のシロイヌナズナを対照植物 (Wild シロイヌナズナ) として使用した。

(3)食品中ダイオキシン類分析の迅速化・信頼性向上に関する研究

(3-1)PCB ELISA と Ah イムノアッセイによる市販魚中のダイオキシン類のスクリーニング法

魚試料をアルカリ分解後、多層シリカゲルカ

ラム、アルミナカラムで分画精製し、第1分画(モノオルト PCBs)を PCB ELISA に供した。第2分画(ノンオルト PCBs 及び PCDD/Fs)は、さらに硫酸シリカゲルカラムで精製後、Ah イムノアッセイに供した。PCB ELISA キット((株)エンバイオテック・ラボラトリーズ製)、及び Ah イムノアッセイキット(パラセルシアン社製)は、添付のマニュアルに従い操作した。バイオアッセイに対するマトリックスの影響を検討するため、ダイオキシン類を含む魚試料の前処理済み溶液を使用した希釈直線性試験を行った。また、添加回収試験及び繰返し測定試験を行い、本法がダイオキシン類を正確に定量できるか検討した。さらに、市販の魚試料(20 試料)に本法を適用し、得られた定量値を従来法(HRGC/HRMS 法)の毒性等量濃度と比較した。

### (3-2) 表面プラズモン共鳴センサーを用いた市販魚中のダイオキシン類スクリーニング法

CM5 センサーチップに PCB 類似体-牛アルブミン結合物を固定化し、抗 PCB 118 モノクローナル抗体と測定試料を競合させた。競合反応後、チップ上の固定化抗原に結合した抗体を、表面プラズモン共鳴現象により検出した。魚試料はアルカリ分解後、多層シリカゲルカラム、アルミナカラムで分画精製し、モノオルト PCBs を含む分画を表面プラズモン共鳴センサー装置(ピアコア 3000)に供した。前処理した魚試料液を使用した添加回収試験等を行いマトリックスが本法に与える影響を検討した。また、同じ抗 PCB 118 抗体を使用した PCB ELISA 及び HRGC/HRMS 法と比較試験を行い、魚試料におけるコプラナー PCBs 測定の妥当性について検討した。

### (3-3) 高速流下加熱抽出装置による市販魚中ダイオキシン類の抽出法の検討

高速加熱流下抽出装置(ダイアインストルメンツ社製 SE-100 型)の抽出条件は、スズキ及

びブリ試料を用いて検討した。市販の魚試料を無水硫酸ナトリウムと混合後、抽出カラムに充填し、確立した条件で抽出を行った。常法により精製後、HRGC/HRMS 分析を行い、定量値及び毒性等量濃度を従来法(アルカリ分解・溶媒抽出法)と比較した。

### (3-4) 食品中ダイオキシン類分析における高速溶媒抽出法の応用に関する研究

高速溶媒抽出装置(ASE)の抽出条件は、乾海苔粉末と粉末ミルクを用いて抽出温度(100℃と 150℃)と抽出溶媒(ヘキサンとアセトン・ヘキサン混液)を比較検討した。植物性食品の検討では乾海苔粉末、また動物性食品としてはマグロ可食部のホモジネートを使用し、ASE とガイドライン記載の従来法でそれぞれ抽出液を調製し、双方から得られるダイオキシン類の定量値と変動を比較した。また、ダイオキシン類 29 種化合物のクリーンアップスパイク(CS)回収率を、植物性食品 10 種 21 試料及び乳製品を主とする動物性食品 6 種 18 試料を用いて検討した。トータルダイエット試料 1~13 群については、各試料 50 g(第 4 群は 7.5 g)を量り採り ASE による抽出操作に供した。なお、PCDD/Fs 及びノンオルト PCBs の同定・定量には溶媒除去大量注入装置を装着した HRGC/HRMS 分析を実施した。

### (3-5) 魚油を使用した健康食品の臭素化ダイオキシン類及びその関連化合物の汚染調査

日本国内で 2004~2005 年に市販されていた、魚油を使用した健康食品(4 製品、5 検体)を試料とした。1 製品については、ロットによる汚染濃度の違いについて調査するため、異なる賞味期限が表示されている製品を試料とした。カプセルも含めて約 5~20 g を試料として、臭素化・臭素系ダイオキシン類(PBDD/Fs・MoBrPCDD/Fs)、臭素化ジフェニルエーテル(PBDEs)及びポリ塩化ビフェニル(PCBs)を分析した。



#### (4) 食品中臭素化ダイオキシン及びその関連化合物汚染調査

マーケットバスケット方式による摂取量調査では、関東、中国・四国、北海道、東北、中部の5地域で調製された第1群から第13群までのトータルダイエツト試料について食品中臭素系ダイオキシン(PBDD/Fs, MoBrPCDD/Fs)及PBDEsの分析を実施した。

個別食品の汚染調査では、3地域(九州、中国・四国、中部)の45試料についてPBDD/Fs, MoBrPCDD/Fs, PBDEs, 及び四臭素化ビスフェノール A(TBBPA)の分析を実施した。また、東北地域の10試料については、TBBPAを除く、PBDD/Fs, MoBrPCDD/Fs, PBDEsの分析を実施した。

臭素系難燃剤の微量分析法の検討と予備的摂取量調査として、TBBPAとヘキサブロモシクロドデカン(HBCDs)についてその微量分析法を検討し、その再現性や精度について北九州地区のトータルダイエツト試料を用いて検証した。また、予備的に、TBBPAとHBCDsの摂取量調査を実施した。

### C. 研究結果及び考察

#### (1) ダイオキシン類のトータルダイエツトによる摂取量調査

不検出の異性体濃度をゼロとして計算した、ダイオキシン類の一日摂取量の経年推移を表1に示した。表1には平成10～12年度厚生科学研究費補助金研究事業「ダイオキシン類の食品経路総摂取量調査研究報告書」及び平成13～15年度厚生労働科学研究費補助金研究事業「ダイオキシンの汚染実態把握及び摂取低減化に関する研究」から引用した平成10～15年度の調査結果も併せて示した。平成16～18年度におけるダイオキシン類の平均摂取量は1.0～1.4 pgTEQ/kgbw/dayの間で推移しており、日本における耐容一日摂

取量(4 pgTEQ/kgbw/day)を大幅に下回っていた。また最も高かった摂取量でも3.56 pgTEQ/kgbw/day(平成17年度北海道地区)であり、耐容一日摂取量より低かった。なお、同一機関で調製したトータルダイエツト試料であっても、10～12群に選択した食品の種類、産地等の差によりダイオキシン類摂取量には1.1～6.2倍の差が認められた。また、平成18年度については、最近発表された新しいTEF(WHO, 2005)を使用した場合の摂取量も参考値として算出し、表1に示した。新しいTEFを使用した場合は、従来のTEF(WHO, 1998)を使用した場合より約15%低い値であった。

表2には総ダイオキシン類摂取量に対する各食品群が占める割合を示した。10群(魚介)、11群(肉・卵)及び12群(乳・乳製品)からの摂取量が全体のほとんどを占めており、特に10群からの摂取量が顕著であった。平成10～15年度の調査でも同様の結果が得られている。

#### (2-1) 個別食品のダイオキシン類汚染実態調査

3年間で195試料のダイオキシン類濃度を明らかにした。表3には食品毎の汚染濃度(平均値、最小値及び最大値)を示した。ダイオキシン類濃度が高かったのは魚介類であり、特にあんこう肝では、高い濃度のダイオキシン類(13.604及び27.092 pgTEQ/g)が検出された。あんこう肝は脂肪濃度が高いこともあり、一般に高濃度のダイオキシン類を含んでいる可能性がある。その他の魚介類では、さめ、さわら、すずき、たちうお、はまち、ぶり、めかじきが比較的高い平均汚染濃度(>2 pgTEQ/g)を示した。

さらに、魚介類の部位によるダイオキシン類濃度の差を調査した(図1)。あんこう、こい、いわし、さんま、ホタルイカ、スルメイカ及び煮干しの筋肉部と内臓のダイオキシン類濃度は、湿重量あたりの濃度で比較すると、あんこうでは約330倍、スルメイカでは50～65倍、内臓

の濃度が高かったが、さんま、ホタルイカ及び煮干しではその差は 1~2 倍であった。また、さけ、かれい、たら及びぶりの筋肉部と皮とを比較すると、1.5~5 倍皮の濃度が高かった。一方、脂質重量あたりの濃度で比較すると、あんこう及びスルメイカの筋肉部と内臓の濃度差は最大でも 3 倍に過ぎず、こい、いわし、ホタルイカ、煮干しなど他の魚においても筋肉部と内臓または皮との濃度比は何れも 2 倍以下であった。また、マグロの筋肉部(赤身、トロ)におけるダイオキシン類の部位別汚染実態についても調査した(図 2)。湿重量あたりの濃度で比較すると、トロの部分は 2~22 倍、ダイオキシン類濃度が赤身の部分より高かった。特に大トロは同一個体の筋肉部で、最も高い汚染濃度を示した。一方、脂質重量あたりの濃度で比較すると、赤身とトロの濃度差は最大でも 1.3 倍程度であった。これらの結果から、ダイオキシン類は魚体内の脂質中にほぼ均一な濃度で存在しており、部位による濃度の差は主として脂質含量に起因していると考えられる。

## (2-2)植物を利用した汚染浄化技術に関する基礎検討

### 農薬に対する耐性と吸収除去能

MRP1 及び Wild タバコ各 3 本を各農薬含有液体培地中で 10 日間水耕栽培した。2,4-D に暴露させた系では、両タバコとも栽培開始 16 時間後に葉に変化が生じ、4 日目には完全に枯れてしまった。従って、両タバコとも 2,4-D に対する耐性ほとんどなく、その差は認められなかった。Alachlor を暴露させた系では、Wild タバコの葉に変化が生じ、培養 10 日目に枯れはじめ、MRP1 タバコに若干の耐性が示された。Atrazine 含有培地では、栽培開始 7 日目に両タバコの形態に変化が観察され、10 日目に Wild タバコはすべて枯れた。一方、MRP1 タバコは 1 本枯れたのみであった。また根の生育量に視覚的な差が観察された。そこで再度

atrazine に対する耐性試験を行い、再現性の確認を試みた。MRP1 及び Wild タバコ各 5 本について、atrazine 含有培地で 14 日間水耕栽培を行った。その結果、前試験と同様、栽培 7 日目から両タバコ間で葉に差が観察され始め、12 日目には明らかな差が示され、MRP1 タバコに atrazine に対する耐性が認められた。図 3 に MRP1 及び Wild タバコを暴露させた液体培地中の 2,4-D、alachlor 及び atrazine の濃度変化を示す。両タバコにおいて経日的な 3 農薬の減少は認められたが、両植物間における濃度変化の差はなく、顕著な除去能力の差は認められなかった。MRP1 タバコの atrazine に対する除去能力は、Wild タバコと差を認めなかったが、抵抗性に差が認められたことは、耐性の高い植物個体を長期的に栽培することによって、成長を続けるプラントマスに atrazine を溜め続けることを意味しており、土壌から atrazine 除去の可能性が示唆された。

### ダイオキシン類に対する耐性と吸収除去能

MRP1 タバコ及び Wild タバコ各 10 ポット(10 株)を、プラントボックス中で実験可能な大きさとなる 3~4 ヶ月間栽培した後、ダイオキシンを暴露した。14 日間経過観察したところ、両タバコとも枯れることなく生育し、抵抗性に差は認められなかった。暴露後、14 日目に植物体をそれぞれ回収し、ダイオキシン分析を行った。図 4 にその結果を示す。MRP1 タバコと Wild タバコ、ともにダイオキシンが検出された。特に 2,3,7,8-TeCDD の吸収除去能が顕著に認められたが、高塩素体になるに従い、低下する傾向が認められた。この傾向は、PCDD 類のみならず、PCDF 類、Co-PCB 類においても同じであった。また高濃度のダイオキシンを暴露した系においても同様の傾向が認められた[図 4(b)]。MRP1 タバコと Wild タバコのダイオキシン吸収除去能には差が認められず、高濃度では Wild タバコの吸収除去能の方が大きい結果となった。

一方, CjMDR1 シロイヌナズナ及び Wild シロイヌナズナ各 20 ポット(40 株)をプラントボックス中で 3~4 ヶ月間栽培した後, ダイオキシンを暴露した. 7 日間経過を観察したところ, 両シロイヌナズナとも枯れることなく生育し, 抵抗性に差は認められなかった. 暴露後, 7 日目に植物体をそれぞれ回収し, ダイオキシン分析を行った. 図 5 にその結果を示す. 両シロイヌナズナともにダイオキシンを検出した. 特に 2,3,7,8-TeCDD の吸収除去能が顕著で, 高塩素体になるに従い, 低下する傾向が認められた. この傾向は, PCDD 類のみならず, PCDF 類, コプラナーPCB 類においても認められ, タバコでの傾向と同じであった. CjMDR1 シロイヌナズナと Wild シロイヌナズナにおける吸収除去能は, 全てのダイオキシンにおいて CjMDR1 発現植物の方が大きい結果となった. 全てのダイオキシンについて吸収除去能が高かったことから, 発現させた MDR1 はシロイヌナズナ中, 広い基質認識を示して細胞内に取り込んだと期待される. これらの結果から, 今回用いた MDR1 シロイヌナズナには, ダイオキシン浄化植物としての可能性が示された.

### (3-1) PCB ELISA と Ah イムノアッセイによる市販魚中のダイオキシン類のスクリーニング法

希釈直線性試験の結果, PCB ELISA では定量値の大きな変化は認められず, マトリックスの影響は小さいと考えられた. 一方, Ah イムノアッセイでは定量値に対するマトリックスの影響が疑われた. そこで, Ah イムノアッセイでは測定試料は希釈系列をとり測定し, 希釈倍率による定量値の上昇が認められた場合は, 最大の定量値を試料濃度として選択した. 前処理済みの抽出液に対する添加回収試験では, PCB ELISA で 92.0~114.7%, Ah イムノアッセイで 90.4~99.4% の良好な回収率が得られた. 繰返し測定試験を行った結果, 変動係数は PCB ELISA で 0.5~4.9%, Ah イムノアッセイで

19.9~23.4%であり, 測定精度は良好であった. 市販の魚試料に適用した結果, PCB ELISA の定量値は, 従来法のモノオルト PCBs 毒性等量濃度に対して良好な相関( $r > 0.98$ )を示した(図 6(a)). また, Ah イムノアッセイの定量値は, 従来法のノンオルト PCBs 及び PCDD/Fs の毒性等量濃度に対して良好な相関( $r = 0.97$ )を示した(図 6(b)).

以上の結果から, PCB ELISA と Ah イムノアッセイの組み合わせにより, 市販魚中のダイオキシン類を良好に測定することが可能であった. 本法は, 従来法と良い相関が得られたことから, 魚中のダイオキシン類の毒性等量濃度を推測することが可能であると考えられる. 従来法に比べ安価で迅速に定量結果が得られることから, スクリーニング法として有用であった.

### (3-2) 表面プラズモン共鳴センサーを用いた市販魚中のダイオキシン類スクリーニング法

本法の PCB 118 に対する定量下限は 100 ng/ml であり, 魚試料を 20 g 使用した場合における試料の定量下限は 1 ng PCB 118/g であった. 添加回収試験の結果, マトリックスによる影響が示唆された. そこで, マトリックスの影響を低減するため, 測定試料は希釈系列をとり測定し, 最も希釈率の大きい試料の測定値を用いて試料濃度を算出した. 7 検体の魚試料について, 同じ抗 PCB 118 抗体を使用した PCB ELISA と比較試験を行った. その結果, 両者の定量値はよく一致し, 本法は ELISA と同等の測定能を有することが示唆された. さらに, 10 検体の魚試料について HRGC/HRMS 法と比較試験を行った結果, コプラナーPCBs の毒性等量濃度と比較的良好な相関( $r = 0.89$ )が認められ, スクリーニング法として期待できた(図 7). しかし, 魚の種類(スズキ)によっては, 他の魚試料と比較し高めの定量値が得られる傾向があり, 注意が必要であった. 本法の前処理した試料の測定時間は 1 試料あたり約 12 分であり, 迅速に汚染濃度を把握すること

が可能であると考えられる。ただし現段階では、マトリックスの影響を軽減するため希釈系列をとり試料を測定する必要があり、試料数が多くなると迅速性が失われる点が今度の検討課題である。

### (3-3) 高速流下加熱抽出装置による市販魚中ダイオキシン類の抽出法の検討

高速加熱流下抽出装置による魚試料の抽出条件を検討した結果、抽出溶媒にアセトン・ヘキサン(1:1)混液を使用し、温度30℃、流速6 ml/minの条件で1時間抽出を行えば、良好に魚試料からダイオキシン類を抽出できることが判明した。従来法であるアルカリ分解・溶媒抽出法と比較した結果、得られたダイオキシン類異性体の各定量値は従来法と良く一致した(±10%以内)(表4)。また、種々の魚試料( $n=12$ )に適用し、従来法の毒性等量濃度と比較した結果、非常に高い相関( $r=0.99$ )が認められた(図8)。

本抽出法は短時間でダイオキシン類を抽出でき、従来法(アルカリ分解・溶媒抽出)の所要時間(長い場合で20時間程度)と比較すると大幅に抽出時間が短縮できた。さらに、アルカリ溶液を使用しないためダイオキシン類の分解を懸念する必要が無く、迅速化・信頼性の向上に有効であると考えられる。しかし、従来法と比較すると前処理過程における硫酸処理に若干、時間を要する問題点があった。従来法ではアルカリ分解中に脂質・タンパク質等のマトリックスの分解がある程度行われるため、多少の精製効果が得られる。一方、本法は抽出時にこのような精製効果は期待できないため、前処理過程が若干、煩雑になったと考えられる。本法において、抽出と同時に何らかの精製効果が得られるような工夫が将来必要になると考えられる。

### (3-4) 食品中ダイオキシン類分析における高速溶媒抽出法の応用に関する研究

乾海苔試料をASEで抽出した際のCS添加回収率は、抽出温度を150℃、溶媒をアセトン・ヘキサンとした場合に高い回収率が得られた。また同条件で粉末ミルクを抽出したところ、高い抽出効率を得られた。当該条件を粉末ミルクの抽出に適用し、抽出液を濃縮乾固して得た粗脂肪量(g)から試料中の脂肪含量(%)を算出したところ、常法(溶媒振とう抽出)で得られる値とよく一致した。ASEで得られる抽出物の重量をそのまま脂肪重量とし、この値を用いて脂肪重量あたりのダイオキシン類濃度に換算することができ、効率的に分析を実施できるものと考えられた。乾海苔粉末をASEで抽出した場合とアセトン・ヘキサン振とう抽出を行った場合のダイオキシン類の定量値は前者で高くなる傾向が認められた(1.1~3.2倍)(表5)。これはASEの抽出効率の高さによるものと考えられた。マグロ可食部のホモジネートをASEで抽出した場合とアルカリ分解・溶媒抽出を行った場合の定量値は両者でよく一致していた(表6)。繰り返し試験による再現性を調べたところ、ASEと従来法に顕著な差は認められなかった。植物性食品及び動物性食品(計39試料)にASEを適用した際のCS回収率(%)はガイドラインの要求する40~120%に適合していた。ASEにおける試料1件あたりの抽出時間は約30分であり、ASEは食品試料の迅速・簡便な抽出法として使用可能であると考えられた。ASEによるトータルダイエツト試料の抽出では、量り採った試料50gをあらかじめ凍結乾燥処理して水分を除去して全量を抽出セル1本に収め、抽出操作を効率的かつ迅速に実施することができた。しかし、トータルダイエツト試料の分析においては、一部の化合物(特に2,3,7,8-TeCDF及び1,2,3,7,8-PeCDF)については、CS回収率が120%を超える傾向が強く、これら異性体の定量値の取り扱いには注意が必要であった。

### (3-5) 魚油を使用した健康食品の臭素化ダイ

オキシシン類及びその関連化合物の汚染調査

臭素化・臭素系ダイオキシシン類はほとんど検出されず、2 製品で 1.2 pg/g 及び 1.3 pg/g の 2,3,7,8-TeBDF が検出されただけであった。PBDEs 及び PCBs は、全ての製品から検出された(表 7)。特にイタチ鮫肝油製品では、賞味期限の異なる 2 ロットを調査した結果、他の製品よりも高濃度の PBDEs (150,000 pg/g 及び 210,000 pg/g)と PCBs (10,000 ng/g 及び 18,000 ng/g)が検出された。

本研究の調査結果と、これらの4製品を含む健康食品(30 製品)について別途調査した塩素化ダイオキシシン類(PCDD/Fs 及びコプラナーPCBs)の調査結果を合わせて、魚油を含む健康食品摂取によるリスク評価を行った。その結果、ほとんどの製品では摂取により臭素化・臭素系ダイオキシシン類及び塩素化ダイオキシシン類に対するリスクを大幅に引き上げる可能性は低いと考えられるが、ごく一部の製品では高濃度の塩素化ダイオキシシン類を含む場合があり、長期的な摂取には注意が必要と考えられた。

#### (4)食品中臭素化ダイオキシシン及びその関連化合物汚染調査

各地域における臭素系ダイオキシシン類(PBDD/Fs, MoBrPCDD/Fs)及び PBDEs の一日摂取量の総括表を表 8 に示す。塩素化ダイオキシシン類と同じ TEF を適用すると、ND=0 のとき、 $\Sigma$  (PBDD/Fs + MoBrPCDD/Fs) が平均 0.00056 pgTEQ/kgbw/day,  $\Sigma$  PBDEs が 2.09 ng/kgbw/day, また、ND=1/2LOD のとき、 $\Sigma$  (PBDD/Fs + MoBrPCDD/Fs) が平均 1.60 pgTEQ/kgbw/day,  $\Sigma$  PBDE s が 2.14 ng/kgbw/day であった。現在我が国が法律上定めている耐容一日摂取量や最小毒性発現量(NOAEL)と比較したとき、本調査結果は低い値であり、これらの化学物質が毒性学的に懸念を与えるものではないと思われた。

表 9 に 4 地域(九州, 中国・四国, 中部及

び東北)の魚介類についての、臭素化ダイオキシシン及びその関連化合物の測定結果を示す。個別試料として、4 地域から採取した魚介類等 55 試料について調査を実施した。その結果、中国・四国の 7 種の魚介類にのみに 1,2,3,4,6,7,8-HpBDF, 2,3,7,8-TeBDD, 2,3,7,8-TeBDF 及び 3-Br-2,7,8-CDF が検出された。塩素化ダイオキシシン類と同じ TEF を適用すると、その濃度は 0.001~0.256 pgTEQ/g wb であった。一方、関連化合物質として調査した難燃剤の PBDEs は、すべての魚介類から検出された。平均汚染濃度は 0.44 ng/g wb (0.01 ng/g~2.88 ng/g wb)であった。主として、4 臭素化体の寄与が大きく、底質に棲息する魚類では、10 臭素化体の寄与も大きかった。また、 $\Sigma$  PBDE 濃度は脂肪含量との相関傾向が認められた。TBBPA では、検出頻度(国内 3 地域魚介類 45 件)が 64%(29/45)で、平均汚染濃度が 0.02 ng/g wb (<0.01 ng/g~0.11 ng/g wb)であった。

検討したトータルダイエツト試料中の TBBPA 及び HBCDs の分析法は再現性も良く、かつ 0.1 ng/g (HBCDs では 0.2 ng/g) の添加量における回収率及び精度はともに Codex 委員会の基準を満たすものであった。また、確立した分析法を用いた、北九州地区における予備調査では、TBBPA 及び HBCDs の 1 日摂取量(2002 年と 2005 年の平均)は ND=0 とした場合、TBBPA が 0.6 ng/kgbw/day, HBCDs が 1.8 ng/kgbw/day であった。これらの値は、英国での推定摂取量 (TBBPA < 1.6 ng/kgbw/day, HBCD < 5.9 ng/kgbw/day) より低く、英国が報告したのと同じく、毒性学的に懸念を与えるものではないと思われた。

#### D.結論

(1) 3 年間のトータルダイエツト調査の結果、ダイオキシシン類の平均一日摂取量は 1.41, 1.20, 1.04 pgTEQ/kgbw/day であり、日本の耐

容一日摂取量を下回っていた。

(2-1) あんこう肝は高い濃度のダイオキシン類が検出された。また、一部の鮮魚でも比較的高い濃度のダイオキシン類が検出された。さらに魚介類の部位別分析では内臓などの脂肪含量が高い部位で、湿重量あたりのダイオキシン類濃度が高かった。従って、ダイオキシン類の摂取量を減らすためには、魚介類の内臓等の脂身の多い部分や、一部の鮮魚を多食せずバランスの良い食生活を心がけること及び加熱調理によって可食部の脂質を減らすことが有効と考えられる。

(2-2) MRP1 及び Wild タバコの 3 種有機塩素系農薬 (2,4-D, alachlor, atrazine) に対する抵抗性と吸収除去能について検討を行った結果、特に atrazine では顕著な抵抗性の差が確認された。次いで MRP1 タバコ及び CjMDR1 シロイヌナズナのダイオキシンに対する吸収除去能について、野生株と比較検討を行った結果、MRP1 タバコには耐性、吸収除去能について顕著な差は認められなかった。一方、CjMDR1 シロイヌナズナでは全てのダイオキシンにおいて吸収量が多く、MDR1 植物体のダイオキシン汚染浄化植物としての可能性が示唆された。

(3-1) PCB ELISA と Ah イムノアッセイによる市販魚中のダイオキシン類のスクリーニング法を開発した。HRGC/HRMS 分析と比較し数分の一の時間及び費用で分析可能であり、スクリーニング法として有用であった。

(3-2) 表面プラズモン共鳴センサーを使用した結果、魚試料中のコプラナーPCBs を、超短時間(約 12 分)で測定することが可能であった。HRGC/HRMS 法と良い相関が得られたことから、魚中のコプラナーPCBs の毒性等量濃度を推測するスクリーニング法として期待できた。

ただし、マトリックスの影響を軽減するため希釈系列をとり試料を測定する必要があり、試料数が多くなると迅速性が大きく失われる点が今度の検討課題である。

(3-3) 高速加熱流下抽出法は短時間(約 1.5 時間)でダイオキシン類を抽出でき、さらに従来法のようにアルカリ溶液を使用しないためダイオキシン類の分解を懸念する必要がない。従って、本抽出法は魚試料中のダイオキシン類分析の迅速化・信頼性の向上に有効であると考えられる。

(3-4) ASE は植物性食品及び動物性食品中のダイオキシン類を迅速にかつ効率よく抽出できた。ASE を使用することで従来法と比べ、抽出時間を大幅に短縮できた。なお、トータルダイエット試料については、一部のダイオキシン類でマトリックスの影響が認められたため、定量値の取り扱いには注意が必要であった。

(3-5) 魚油を使用した健康食品から臭素化・臭素系ダイオキシン類はほとんど検出されなかった。PBDEs 及び PCBs は全製品で検出された。魚油を使用した健康食品の原材料、製造方法は多種多様であり、まれに高濃度の塩素化ダイオキシン類及びその関連化合物に汚染されている場合がある。従って、今後も引き続き汚染調査を行う必要があると考えられる。

(4) マーケットバスケット方式による臭素系ダイオキシン及びその関連化合物である PBDEs の摂取量調査では、全国 5 地域(北海道、東北、関東、中部、中国・四国)について、その摂取傾向を明らかにすることができ、これらの化学物質が毒性学的に懸念を与える量ではないことが示唆された。

個別食品(魚介類)の汚染調査では、半閉鎖系海域に面した中国・四国の魚介類に、臭

素系ダイオキシンが検出された。また、Σ PBDE 濃度に占める 10 臭素化体の割合が高い傾向が見られた。これらの化合物はその発生や汚染分布に密接な関係があることが窺えるため、同地域における魚介類汚染の推移を見守ることは今後も重要と考えられた。

その他の重要関連化合物である TBBPA 及び HBCDs の摂取量調査では、微量分析法の検討を行い、確立した上で、北九州地区の摂取量を予備的に調査した。その結果、結論には至らないが、ある程度の傾向を把握することができた。したがって、今後、複数の地域について調査を実施し、全国レベルの摂取量を把握する必要がある。

## E. 研究業績

### 1. 論文発表

- 1) Hori, T., Tobiishi, K., Ashizuka, Y., Nakagawa, R., Iida, T., Tsutsumi, T., Sasaki, K.: Comparison of accelerated solvent extraction and standard shaking extraction for determination of dioxins in foods. *Organohalogen Compounds*, 66, 537-541, 2004.
- 2) Ashizuka, Y., Nakagawa, R., Hori, T., Tobiishi, K., Iida, T.: Levels of polybrominated diphenyl ethers and polybrominated dioxins in fish, total diet study food groups and Japanese meals. *Organohalogen Compounds*, 66, 2524-2529, 2004.
- 3) Ashizuka, Y., Nakagawa, R., Hori, T., Tobiishi, K., Iida, T.: Determination of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) and polybrominated dibenzo-*p*-dioxins, dibenzofurans (PBDD/DFs) in marine products. *J. Agri. Food Chem.*, 43, 3807-3813, 2005.
- 4) Tsutsumi, T., Amakura, Y., Ashieda, K.,

Okuyama, A., Tanioka, Y., Sakata, K., Kobayashi, Y., Sasaki, K., Maitani, T.: Screening for dioxins in retail fish using a combination of a PCB ELISA and an aryl hydrocarbon receptor immunoassay (Ah-immunoassay). *Organohalogen Compounds*, 67, 42-45, 2005.

5) Nakagawa, R., Ashizuka, Y., Hori, T., Tobiishi, K., Yasutake, D., Sasaki, K.: Determination of brominated retardants in fish and market basket food samples of Japan. *Organohalogen Compounds*, 67, 498-501, 2005.

6) Tsutsumi, T., Amakura, Y., Matsumoto, T., Ito, Y., Kurihara, H., Sasaki, K., Maitani, T.: Removal of dioxins from retail fish by high-speed solvent extraction. *Organohalogen Compounds*, 68, 2473-2476, 2006.

7) Nakagawa, R., Ashizuka, Y., Hori, T., Yasutake, D., Tobiishi, K., Sasaki, K.: Determination of brominated flame retardants and brominated dioxins in fish collected from three regions of Japan. *Organohalogen Compounds*, 68, 2166-2169, 2006.

8) Tsutsumi, T., Amakura, Y., Okuyama, A., Tanioka, Y., Sakata, K., Sasaki, K., Maitani, T.: Application of an ELISA for PCB 118 to the screening of dioxin-like PCBs in retail fish. *Chemosphere*, 65, 467-473, 2006.

9) Tsutsumi, T., Amakura, Y., Sasaki, K., Maitani, T.: Dioxin concentrations in the edible parts of Japanese common squid and saury. *J. Food Hyg. Soc. Japan*, 48, 8-12, 2007.

### 2. 学会発表

- 1) 中川礼子, 芦塚由紀, 堀 就英, 飛石和大, 飯田隆雄: 食品における臭素化ジフェニルエーテル及び臭素化ダイオキシン分析. 日

本食品衛生学会第 88 回学術講演会(2004. 11)

2) 芦塚由紀, 中川礼子, 堀 就英, 飛石和大, 飯田隆雄: 食品中のテトラブロモビスフェノールA(TBBPA)分析法の検討. 第 41 回全国衛生化学技術協議会(2004. 11)

3) 芦塚由紀, 中川礼子, 飛石和大, 堀 就英, 飯田隆雄: 食品における臭素系難燃剤の分析. 環境ホルモン学会第7回研究発表会(2004. 12)

4) 堤 智昭, 天倉吉章, 松本輝樹, 伊藤日本男, 栗原 浩, 佐々木久美子, 米谷民雄: 高速加熱流下抽出装置による市販魚中ダイオキシン類の抽出法の検討. 第 14 回環境化学討論会(2005.6)

5) 堤 智昭, 天倉吉章, 芦枝和典, 奥山 亮, 坂田一登, 谷岡洋平, 小林康男, 佐々木久美子, 米谷民雄: Ah イムノアッセイと PCB ELISA による市販魚中ダイオキシン類のスクリーニング法. 第 14 回環境化学討論会(2005.6)

6) 芦塚由紀, 中川礼子, 堀 就英, 安武大輔, 佐々木久美子: 魚介類個別食品における臭素化ダイオキシン及びその関連化合物の汚染実態調査. 第8回環境ホルモン学会(2005. 9)

7) 芦塚由紀, 中川礼子, 堀 就英, 安武大輔, 佐々木久美子: 魚介類個別食品における臭素化ダイオキシン及びその関連化合物の汚染実態調査. 第 42 回全国衛生化学技術協議会(2005. 11)

8) 堀 就英, 飯田隆雄, 中川礼子, 芦塚由紀, 飛石和大, 堤 智昭, 佐々木久美子: 食品中ダイオキシン類分析における高速溶媒抽出の適用について. 第 42 回全国衛生化学技術協議会(2005. 11)

9) 芦塚由紀, 中川礼子, 堀 就英, 村田さつき, 安武大輔, 佐々木久美子: 食品における臭素化ダイオキシン及びその関連化合物の汚染実態調査. 第 43 回全国衛生化学技術協議会(2006. 11)

10) 芦塚由紀, 中川礼子, 堀 就英, 安武大輔, 佐々木久美子: 食品における臭素化ダイオキシン及び臭素系難燃剤の汚染実態調査. 第 9 回環境ホルモン学会(2006. 11)

11) 堤 智昭, 三好紀子, 佐々木久美子, 米谷民雄: 表面プラズモン共鳴センサーを用いた市販魚中のコプラナーPCBs スクリーニング法. 第 16 回環境化学討論会(2007. 6)

F. 知的所有権の取得状況  
なし



表1 機関別ダイオキシン類1日摂取量の経年推移(平成10～18年度)<sup>1)</sup>

地 区	PCDDs+PCDFs+Co-PCBs (pgTEQ/kgbw/day) ND=0									
	平成10年度	平成11年度	平成12年度	平成13年度	平成14年度	平成15年度	平成16年度	平成17年度	平成18年度	
北海道地区	A	2.77	1.29	0.84	0.67	0.88	0.84	0.48	0.67	0.38 (0.33) <sup>2)</sup>
					0.94	1.03	1.03	1.80	0.45 (0.39)	
					1.44	1.33	2.48	3.56	1.71 (1.50)	
東北地区	A	1.26	1.47	1.10	-	-	-	-	-	-
	B	-	1.65	1.92	2.02	1.16	0.72	0.48	0.64	0.53 (0.46)
					1.46	0.84	0.80	1.15	1.06 (0.90)	
関東地区					2.05	1.35	2.93	1.57	1.85 (1.57)	
	A	2.06	4.04	1.30	1.08	1.46	0.78	1.64	0.55	0.60 (0.51)
					2.01	1.86	1.80	0.87	0.94 (0.81)	
					2.76	3.05	1.87	1.26	1.47 (1.28)	
	B	2.14	1.59	1.72	1.99	1.34	0.90	-	-	-
					2.33	1.01	-	-	-	-
中部地区					3.40	2.93	-	-	-	-
	C	2.00	1.68	1.48	1.42	0.90	1.02	1.05	0.70	0.79 (0.68)
					1.17	1.06	1.75	1.33	1.00 (0.87)	
					1.51	2.05	2.34	2.03	1.38 (1.22)	
	A	-	1.53	1.44	-	-	-	-	-	-
関西地区	B	1.87	1.57	1.41	1.65	1.40	1.34	0.72	0.69	0.67 (0.58)
					1.67	1.48	0.91	0.80	0.87 (0.76)	
					1.93	1.86	1.83	1.40	1.00 (0.87)	
	C	2.03	2.42	1.80	1.53	0.62	0.58	0.64	0.47	0.46 (0.40)
					0.68	1.15	0.71	0.60	0.70 (0.62)	
中国四国地区					1.28	1.50	2.03	1.86	1.24 (1.01)	
	A	-	7.01	2.01	-	-	-	-	-	-
	B	2.72	1.79	1.43	1.33	0.96	0.77	1.32	0.67	0.98 (0.86)
					1.39	1.15	1.86	0.82	1.50 (1.32)	
					2.75	1.58	2.25	1.42	1.76 (1.54)	
九州地区	C	-	1.89	2.01	2.00	1.40	-	-	-	-
					1.78	-	-	-	-	-
					2.02	-	-	-	-	-
	A	-	3.59	-	-	-	-	-	-	-
	B	-	-	0.98	0.88	0.79	0.62	-	-	-
平均					1.22	1.56	-	-	-	-
		1.22	1.48	1.40	1.60	0.73	1.03	1.19	1.20	0.93 (0.82)
					1.54	1.51	1.35	1.57	1.08 (0.92)	
					2.12	2.05	1.72	1.72	1.94 (1.64)	
		1.99	1.84	1.55	3.40	0.57	0.85	0.61	0.66	0.61 (0.54)
九州地区	A					1.18	1.04	0.99	1.05	0.65 (0.56)
					1.81	1.83	1.27	1.44	1.65 (1.38)	
	B	-	1.19	0.86	-	-	-	-	-	-
平均	2.00	2.25	1.45	1.63	1.49	1.33	1.41	1.20	1.04 (0.90)	
最大値	2.77	7.01	2.01	3.40	3.40	3.05	2.93	3.56	1.94 (1.64)	
最小値	1.22	1.19	0.84	0.67	0.57	0.58	0.48	0.47	0.38 (0.33)	

1) 平成10～12年度の摂取量は、平成12年度厚生科学研究費補助金研究事業「ダイオキシン類の食品経由総摂取量調査研究報告書」から、平成13～15年度の摂取量は、平成15年度厚生労働科学研究費補助金研究事業「ダイオキシンの汚染実態把握及び摂取低減化に関する研究報告書」から、平成16及び17年度の摂取量は、平成16及び17年度厚生労働科学研究費補助金研究事業「ダイオキシン類による食品汚染実態の把握に関する研究報告書」から引用した。

2) ( )内の数値は新しいTEF(WHO, 2005)を使用して算出した摂取量である。10から12群の摂取量の組み合わせは新しいTEFを使用した場合の最小値、中央値、最大値の組み合わせとしたため、一部の機関(関東地区A、中国・四国地区C)では使用している10から12群の分析値の組み合わせは従来のTEF(WHO, 1998)を使用した場合と異なる。

表2 トータルダイエット試料(1~14群)からのダイオキシン類一日摂取量(ND=0)

食品群	平成16年度			平成17年度			平成18年度		
	平均摂取量	標準偏差	比率(%)	平均摂取量	標準偏差	比率(%)	平均摂取量	標準偏差	比率(%)
1群(米)	0.02	0.02	0.0	0.02	0.03	0.0	0.03	0.04	0.1
2群(雑穀・芋)	0.13	0.12	0.2	0.11	0.14	0.2	0.27	0.36	0.5
3群(砂糖・菓子)	0.10	0.06	0.1	0.08	0.03	0.1	0.09	0.05	0.2
4群(油脂)	0.07	0.03	0.1	0.06	0.05	0.1	0.05	0.05	0.1
5群(豆・豆加工品)	0.02	0.02	0.0	0.04	0.05	0.1	0.01	0.01	0.0
6群(果実)	0.00	0.01	0.0	0.00	0.00	0.0	0.00	0.00	0.0
7群(有色野菜)	0.14	0.12	0.2	0.14	0.16	0.2	0.06	0.06	0.1
8群(野菜・海藻)	0.13	0.12	0.2	0.05	0.04	0.1	0.07	0.06	0.1
9群(嗜好品)	0.07	0.11	0.1	0.00	0.00	0.0	0.00	0.00	0.0
10群(魚介)	62.27	28.32	88.4	54.52	29.14	90.6	47.00	20.68	90.0
11群(肉・卵)	5.07	6.05	7.2	3.43	3.98	5.7	3.52	3.13	6.7
12群(乳・乳製品)	2.34	4.21	3.3	1.64	3.62	2.7	1.06	2.27	2.0
13群(調味料)	0.10	0.10	0.1	0.07	0.03	0.1	0.06	0.04	0.1
14群(飲料水)	0.00	0.00	0.0	0.00	0.00	0.0	0.00	0.00	0.0
総摂取量(pgTEQ/day)	70.47	33.25	100.0	60.16	32.83	100.0	52.23	23.32	100.0
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	1.41	0.66		1.20	0.66		1.04	0.47	
10, 11, 12群を除く食品群からの摂取量(pgTEQ/day)	0.79		1.1	0.56		0.9	0.65		1.2
10, 11, 12群からの摂取量(pgTEQ/day)	69.67		98.9	59.60		99.1	51.57		98.8

表 3 個別食品中のダイオキシン類濃度 (ND=0)

試料	試料数	ダイオキシン類 (pgTEQ/g)		
		平均値	最小値	最大値
魚介類				
赤貝	2	0.187	0.186	0.188
あなご	2	1.994	1.810	2.177
あゆ	3	0.201	0.120	0.327
あんこう肝	2	20.348	13.604	27.092
いいだこ	2	0.909	0.903	0.915
いさき	3	0.096	0.040	0.146
うなぎ	6	0.580	0.301	1.052
うに	2	0.115	0.081	0.148
えび	4	0.157	0.020	0.333
かき	3	0.248	0.192	0.307
かたくちいわし	2	0.552	0.328	0.776
かつお	4	0.378	0.223	0.696
かに	4	0.282	0.006	0.814
かれい	2	0.496	0.327	0.664
きはだまぐろ	2	0.019	0.004	0.034
ぎびなご	3	0.550	0.388	0.860
ぎんたら	4	0.914	0.267	1.914
さけ	4	1.092	0.099	2.059
さば	6	1.889	0.561	2.696
さめ	4	2.614	0.788	6.141
さわら	2	2.176	1.829	2.523
さんま	6	0.252	0.193	0.317
すけとうたら	2	0.040	0.028	0.052
すずき	2	3.790	3.345	4.235
すじこ(生)	3	0.260	0.163	0.409
ずわいがに棒肉	2	0.239	0.035	0.442
たちうお	2	3.951	2.738	5.163
にしん	2	0.655	0.505	0.804
はまち	2	2.576	2.111	3.040
ふぐ	2	0.035	0.013	0.056
ぶり	4	2.298	1.819	2.969
ほたて貝	2	0.002	0.001	0.002
ほっけ	4	0.565	0.363	0.774
まいわし	2	0.550	0.534	0.566
まあじ	4	0.491	0.261	0.857
まぐろ	4	1.556	0.035	3.932
ます	2	0.859	0.135	1.582
まだい	4	0.868	0.506	1.457
むきがれい	3	0.099	0.017	0.210
むろあじ	2	0.398	0.384	0.412
めかじき	4	3.065	2.416	4.034
めばちまぐろ	2	0.296	0.147	0.445
めばる	2	0.832	0.738	0.926
メルルーサ	3	0.120	0.061	0.192

表3 個別食品中のダイオキシン類濃度(つづき)

試料	試料数	ダイオキシン類(pgTEQ/g)				
		平均値	最小値	最大値		
魚介類	あみ佃煮	2	0.153	0.091	0.214	
加工品	あじ開き	2	0.206	0.194	0.217	
	いわし味付缶詰	2	0.170	0.119	0.221	
	かます干物	2	0.744	0.587	0.900	
	小女子佃煮	2	0.493	0.472	0.514	
	さば水煮缶詰	2	1.381	1.345	1.417	
	塩さけ	4	0.262	0.170	0.432	
	塩さば	4	1.394	0.563	2.308	
	しらす干し	2	0.160	0.131	0.189	
	すじこ	2	0.199	0.141	0.257	
	たらこ	2	0.102	0.086	0.118	
	ほっけ開き	2	1.200	1.010	1.390	
	まぐろ缶詰	2	0.022	0.021	0.023	
	畜産食品	牛肉	2	0.014	0.009	0.019
		鶏肉	2	0.003	0.002	0.003
豚肉		2	0.022	0.001	0.043	
羊肉(マトン)		2	0.010	<0.001	0.020	
子羊(ラム)		2	0.001	<0.001	0.001	
サラミ		2	0.037	0.035	0.038	
ベーコン		2	0.007	0.006	0.007	
鶏卵		4	0.032	0.008	0.051	
菓子	カステラ	3	0.010	0.003	0.014	
油脂	バター	2	0.336	0.164	0.508	
	牛脂	2	0.711	0.459	0.963	
	ラード	2	0.009	0.009	0.009	
野菜	小松菜	2	0.009	0.002	0.015	
	春菊	2	0.042	0.001	0.083	
嗜好飲料	緑茶	3	<0.001	<0.001	<0.001	