

200734031A

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

ダイオキシン類等の有害化学物質による食品汚染実態の把握
に関する研究

平成 19 年度 総括・分担研究報告書

主任研究者

国立医薬品食品衛生研究所 食品部 堤 智昭

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 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

I. 総括研究報告書

- ダイオキシン類等の有害化学物質による食品汚染実態の把握に関する研究…………… 1
堤 智昭

II. 分担研究報告書

1. 食品からの塩素化ダイオキシン類及び有機フッ素化合物の摂取量調査

米谷 民雄

- 1-1. 塩素化ダイオキシン類のトータルダイエツト調査…………… 9
1-2. 塩素化ダイオキシン類の個別食品汚染調査…………… 21
1-3. 有機フッ素化合物のトータルダイエツト調査…………… 31
1-4. 食品中のダイオキシン類分析法ガイドラインの改正…………… 39

2. 食品中のダイオキシン類等の有害化学物質に対する迅速測定法の開発

堤 智昭

- 2-1. ダイオキシン類に対する高感度レポータージーンアッセイの開発…………… 89
2-2. 食品試料の芳香族炭化水素レセプター結合活性の調査…………… 97
2-3. 食品中ダイオキシン類および PCBs の迅速一斉分析法の検討…………… 105
2-4. 食品中ベンゾトリアゾール類の迅速測定法の開発…………… 115

3. 食品中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…………… 125

中川 礼子

III. 研究成果の刊行に関する一覧表…………… 153

I. 総括研究報告書

ダイオキシン類等の有害化学物質による食品汚染実態の把握に関する研究

主任研究者 堤 智昭

ダイオキシン類等の有害化学物質による食品汚染実態の把握に関する研究

分担研究者 堤 智昭 国立医薬品食品衛生研究所 食品部主任研究官

研究要旨

本研究では、ダイオキシン類を中心に難分解性・蓄積性の高い有害化学物質について、食品汚染実態の把握及び分析の迅速化を目的として、研究を実施した。

(1-1)トータルダイエツト方式による塩素化ダイオキシン類の摂取量調査では、全国9機関で調製したトータルダイエツト試料を分析し、食事経由ダイオキシン類一日摂取量の全国平均が 1.11 ± 0.59 pg TEQ/kgbw/dayであることを明らかにした。

(1-2)個別食品のダイオキシン類汚染実態調査では、鮮魚 30 試料、魚油を使用した健康食品 10 製品、及び健康茶 5 製品について塩素化ダイオキシン類を分析し、汚染実態を明らかにした。また、ハイリスクグループの可能性のある魚介類多食者に対して、モンテカルロ・シミュレーション法による魚介類からの塩素化ダイオキシン類摂取量を予備的に推計した結果、摂取量の平均値は 153.15 pg TEQ/day と推計された。

(1-3)トータルダイエツト方式による有機フッ素化合物(PFOA 及び PFOS)の摂取量調査では、全国 2 機関で調製したトータルダイエツト試料を分析した。魚介と飲料水を除く食品群では当該化合物は未検出(ND)であった。ND=0 として計算した場合の平均一日摂取量は、PFOA で 0.06 ng/kgbw/day、PFOS で 0.98 ng/kgbw/day であった。ND を検出下限値の $1/2$ の値として計算した場合は、PFOA で 11.5 ng/kgbw/day、PFOS で 12.1 ng/kgbw/day であった。

(1-4)“食品中のダイオキシン類及びコプラナーPCB の測定方法暫定ガイドライン”を改正した。毒性等価係数(TEF)の改訂、並びに分析技術の進歩等に伴う分析条件等の改訂を行い、“食品中のダイオキシン類の測定方法暫定ガイドライン”として改正ガイドラインを公表した。

(2-1)ダイオキシン類に対する芳香族炭化水素レセプター(AhR)レポータージーンアッセイの高感度化を目的として、ダイオキシン類応答性 DNA 領域(DRE)を 4~20 個まで連結したルシフェラーゼレポーターベクターのダイオキシン類応答性を検討した。DRE の挿入方向や、用量反応曲線を作製し検討した結果、DRE を正方向に 20 個連結したベクターでは、2,3,7,8-TCDD に対するルシフェラーゼ活性が増強された。しかし、ブランクにおけるルシフェラーゼ活性も上昇したため、活性倍率(TCDD に対する活性/ブランクの活性)の大幅な上昇は認められなかった。

(2-2)食品試料の AhR 結合活性(ダイオキシン様活性)についてバイオアッセイにより実態調査を行った。高濃度で AhR 活性が見込まれる試料として、加工食品であるサプリメントや健康食品(50 種類の市販品)を取り上げ、レポータージーンアッセイ(ダイオキシン類と AhR との結合を、ルシフェラーゼ活性により検出するバイオアッセイ)により評価した。その結果、主に大豆、ゴマ、プロポリスを原料とする試料の一部が、高濃度で AhR 活性を示した。

(2-3)食品中ダイオキシン類・PCBs の一斉迅速測定法の確立を目的として、分析に使用する内部標準物質中の不純物の検定を行った。 $^{13}\text{C}_{12}$ -mono-ortho PCBs の内部標準製品中に微量ながら $^{13}\text{C}_{12}$ -non-ortho PCBs が不純物として含まれており、ネイティブ non-ortho PCBs の定量精度が著しく低下することが確認された。そこで、一斉法で使用予定である $^{13}\text{C}_{12}$ -PCBs(1~10 塩化物)の内部標準物質(2 製品)について不純物の有無を調べた結果、1 製品に微量の不純物

(2,3,4,6,7,8-hexaCDF)の存在が示唆された。不純物量は分析精度に著しい影響を及ぼすものではないが、低濃度域の定量精度に少なからず影響を及ぼすと考えられるため注意が必要である。

(2-4)食品中のベンゾトリアゾール類の迅速機器測定法を開発することを目的とし、ベンゾトリアゾール類の測定のための基本物性を明らかにするとともに、HPLC 分析と LC/MS/MS 分析での当面の条件を決定し、高感度分析の可能性を示した。また、脂肪分の異なる 3 種類の魚を用いて、5 種類の方法で脂肪のアルカリ分解条件を検討し、従来法の問題点を明らかにし、新しい抽出液分解法を提案した。

(3)食品における臭素化ダイオキシン類及びその関連化合物の汚染実態を調査した。本年度は、①臭素系ダイオキシン類、臭素化ジフェニルエーテル類(PBDEs)に、臭素化ビフェニル(PBBs)、コプラナー塩素・臭素化ビフェニル(PXBs)を加えた新たな分析法の検討と、その分析法を用いた個別食品での汚染調査、② 三地域(九州、中国・四国、中部)の魚介類(45 試料)についてヘキサプロモシクロドデカン(HBCDs)を分析した。その結果、①では、高分解能 GC/MS による検討の結果、PBDEs、PBBs、PXBs 及びテトラプロモビスフェノール A については 1 種類のカラム(SLB-5MS)で測定が可能であった。魚試料の調査では、アナゴから 4 臭素化ダイオキシンが微量に検出された。PBDEs ではすべての魚から#49、#47、#100、#99、#154、#153、#209 などの異性体が検出され、PBBs では 4 種類の魚から 4-6 臭素化体が検出された。PXBs は今回の魚試料からは、検出されなかった。②では、 Σ HBCDs の中央値は、九州(0.04 ng/g ww、1.1 ng/g lw) < 中国・四国(0.08 ng/g ww、7.0 ng/g lw) < 中部(1.2 ng/g ww、100 ng/g lw)の順に汚染が高くなり、この結果からも、海産食品の HBCD 汚染が地域によっては、進んでいることが示唆された。

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
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

本研究の目的は、ダイオキシン類(塩素化、臭素化、塩素・臭素化混合物)を中心に、臭素化難燃剤及び有機フッ素化合物について、トータルダイエツト調査及び個別食品の汚染調査を行い食品からの摂取量を推定する。また、食品中のダイオキシン類、ポリ塩化ビフェニル(PCBs)、及びベンゾトリアゾール類を対象に、バイオアッセイや機器分析による迅速測定法を開発する。これらの目的のために、次の研究を実施した。

A. 研究目的

ダイオキシン類に代表される難分解性かつ高蓄積性の有害化学物質は、一旦、環境中に排出されると長期間にわたり残留する。また、高蓄積性であるため食物連鎖を経て食品中に濃縮された結果、食品中に高濃度に残留し、人の健康に影響を及ぼす危険性がある。そこで、これら有害化学物質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。さらに、汚染調査を効率的に行うために、食品中の有害化学物質を迅速に測定できる分析法の開発が必要とされる。

(1)食品からの塩素化ダイオキシン類及び有機フッ素化合物の摂取量調査

(1-1)塩素化ダイオキシン類のトータルダイエツト調査

(1-2)塩素化ダイオキシン類の個別食品汚染調査

(1-3)有機フッ素化合物のトータルダイエツト調査

(1-4)食品中のダイオキシン類分析法ガイドラインの改正

(2)食品中のダイオキシン類等の有害化学物質に対する迅速測定法の開発

(2-1) ダイオキシン類に対する高感度レポータージーンアッセイの開発

(2-2) 食品試料の芳香族炭化水素レセプター結合活性の調査

(2-3) 食品中ダイオキシン類およびPCBsの迅速一斉分析法の検討

(2-4) 食品中ベンゾトリアゾール類の迅速測定法の開発

(3) 食品中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

B. 研究方法

(1-1) 塩素化ダイオキシン類のトータルダイエツト調査

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。厚生労働省の平成14年度国民栄養調査並びに平成15、16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)、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各群毎に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。

(1-2) 塩素化ダイオキシン類の個別食品汚染調査

鮮魚(30試料)、魚油を使用した健康食品(10試料)、及び嗜好飲料として健康茶(5製品)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。

また、ハイリスクグループの可能性のある魚介類多食者について、モンテカルロ・シミュレーション法による魚介類からの確率論的暴露評価を予

備的に行った。ダイオキシン類汚染データは、平成10~18年度に行われた魚介類の個別食品汚染調査結果を使用した。

(1-3) 有機フッ素化合物のトータルダイエツト調査

トータルダイエツト試料は、全国2地区の2機関で調製した。厚生労働省の平成14年度国民栄養調査並びに平成15、16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計14食品群を調整した。有機フッ素化合物(PFOA及びPFOS)の分析にはLC/MS/MSを使用し、安定同位体による内標準法により定量した。

(1-4) 食品中のダイオキシン類分析法ガイドラインの改正

毒性等価係数(TEF)の改正、分析条件の更新を中心に“食品中のダイオキシン類及びコプラナーPCBの測定方法暫定ガイドライン”を改正した。改正作業を行うにあたりダイオキシン類分析の専門家より構成される検討会を開催し、検討項目について議論した。

(2-1) ダイオキシン類に対する高感度レポータージーンアッセイの開発

芳香族炭化水素レセプター(AhR)結合レポータージーンアッセイの高感度化を検討した。ダイオキシン類応答性DNA領域(DRE)を4~20個まで連結したルシフェラーゼレポーターベクターの検討を行った。各ベクターを培養細胞株(Hepalcl7)に一過性のトランスフェクションを行い、2,3,7,8-tetrachlorodibenzo-p-dioxin(TCDD)暴露により誘導されたルシフェラーゼ活性を比較した。

(2-2) 食品試料のAhR結合活性の調査

ダイオキシン類の迅速測定法(バイオアッセイ)の信頼性確保に関する基礎的検討を目的に、食品試料のAhR結合活性(ダイオキシン様活性)について実態調査を行った。高濃度でAhR活性が見込まれる試料として、濃縮物が中心の加工食品であるサプリメントや健康食品(50

種類の市販品)を取り上げ、AhR 結合レポータージーンアッセイ(ダイオキシン類と AhR との結合を、ルシフェラーゼ活性により検出するバイオアッセイ)により評価した。

(2-3) 食品中ダイオキシン類および PCBs の迅速一斉分析法の検討

食品中ダイオキシン類・PCBs の迅速分析法の確立を目的に、分析に使用する内部標準物質中の不純物の検定を行い、種類の異なる内部標準製品を抽出時に同時使用する(混合して使用する)ことが可能であるか調べた。国内で市販されている内部標準製品のうち 3 種類を入手し、各々を高分解能ガスクロマトグラフ/高分解能質量分析計(HRGC/HRMS)に注入して分析した。

(2-4) 食品中ベンゾトリアゾール類の迅速測定法の開発

食品中のベンゾトリアゾール類の迅速測定法を開発することを目的に、ベンゾトリアゾール類の測定のための基本物性を明らかにするとともに、HPLC 分析と LC/MS/MS 分析での当面の条件を検討した。また、脂肪分の大きく異なる 3 種類の魚を用いて、5 種類の方法で脂肪のアルカリ分解条件を検討し、従来法の問題点を明らかにし、新しい抽出液分解法を提案した。

(3) 食品中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

臭素化ダイオキシン類及びその関連化合物質の汚染実態を明らかにすることを目的として、① 臭素系ダイオキシン類(PBDD/DFs、MoBrPCDD/DFs)、臭素化ジフェニルエーテル類(PBDEs)に、臭素化ビフェニル(PBBs)、コプラナー塩素・臭素化ビフェニル(PXBs)を加えた新たな分析法の検討と、その分析法を用いた個別食品での汚染調査、② 三地域(九州、中国・四国、中部)の魚介個別食品 45 試料についてヘキサプロモシクロドデカン(HBCDs)を分析した。①では、GC 分析カラムの検討、前処理法の分画条件などを検討し、測定対象化合物を全て測定できる HRGC/HRMS 法の検討を行った。また、開発した方法を使用して 5 種類の鮮魚の汚

染調査を実施した。②では既に関連した分析法により、HBCDs を分析した。試料は 2004 年-2005 年に九州地方(天草)、中部地方(三河湾、伊勢湾)、中国・四国地方(瀬戸内海)の鮮魚店から、各地域で捕れた魚介類を購入した。各 15 件、計 45 試料で生鮮魚介が 44 試料、加工食品が 1 試料であった。

C. 結果及び考察

(1-1) 塩素化ダイオキシン類のトータルダイエツト調査

ダイオキシン類の国民平均一日摂取量は 1.11 ± 0.59 pg TEQ/kgbw/day(範囲 0.42~3.32 pg TEQ/kgbw/day)であった。これは、平成 10 年度以降(平成 10~18 年度)の調査結果の中で 2 番目に低い値であった。最大値は 3.32 pg TEQ/kgbw/day であり、昨年度の最大値(1.94 pg TEQ/kgbw/day)よりやや高い値であったが、この場合でも日本における耐容一日摂取量(4 pg TEQ/kgbw/day)を下回っていた。なお、同一機関で調製した試料であってもダイオキシン類摂取量には 1.5~4.3 倍の差が認められた。

(1-2) 塩素化ダイオキシン類の個別食品汚染調査

鮮魚についてはサケ・マス(8 試料)で平均 0.55 pg TEQ/g(範囲 0.12~2.6 pg TEQ/g)、ブリ(6 試料)で平均 3.1 pg TEQ/g(範囲 1.2~8.0 pg TEQ/g)、マグロ(8 試料)で平均 3.0 pg TEQ/g(範囲 0.23~5.5 pg TEQ/g)、マダイ(8 試料)で平均 1.2 pg TEQ/g(範囲 0.44~4.3 pg TEQ/g)のダイオキシン類が検出された。また、魚油を使用した健康食品では、0.72~53 pg TEQ/g のダイオキシン類が検出された。添付書に従い健康食品を摂取した場合、ほとんどの製品では TDI の 25%以下のダイオキシン類摂取量であった。鮫肝油を使用した 1 製品については比較的高め(53 pg TEQ/g)のダイオキシン類が検出され、本製品を摂取した場合は TDI の約 60%に相当した。健康茶では 0.000066~0.30 pg TEQ/g のダイオキシン類が検出された。鮮魚や健康食品と比べると、汚染濃度は低濃度であった。

また、魚介類多食者に対して、モンテカルロ・シミュレーション法による魚介類からのダイオキシン類摂取量を推計した。その結果、摂取量の平均値は 153.15 pg TEQ/day と推計され、TDI の約 75% であった。摂取量の内訳は平均 PCDD/Fs 曝露量が 42.37 pg TEQ/day、平均 Co-PCBs 曝露量が 110.78 pg TEQ/day と推計された。

(1-3) 有機フッ素化合物のトータルダイエツト調査

TDS 試料を全国 2 地区(関東及び関西地区)で調製した TDS 試料について、PFOA 及び PFOS を分析した。その結果、魚介類(10 群)に PFOS が、飲料水(14 群)に PFOA 及び PFOS が検出された。その他の食品群では PFOA 及び PFOS は未検出(ND)であった。ほとんどの食品群が ND であるため正確な摂取量を把握するのは困難であるが、ND=0 として計算した場合の平均 1 日摂取量は、PFOA で 0.06 ng/kgbw/day、PFOS で 0.98 ng/kgbw/day であった。また、ND に検出下限値の 1/2 の値を用いた場合の摂取量は、PFOA で 11.5 ng/kgbw/day、PFOS で 12.1 ng/kgbw/day であった。リスク評価を行うため、ND=LOD/2 の場合の摂取量を、健康リスクの初期評価として提案されている無毒性量等(PFOA 及び PFOS 共に 0.03 mg/kg/day)と比較した。その結果、無毒性量等は PFOA で 2.6×10^3 、PFOS で 2.5×10^3 倍大きい値であった。平均的な食生活をする限り、PFOA 及び PFOS による健康影響が生じるとは考えにくかった。

(1-4) 食品中のダイオキシン類分析法ガイドラインの改正

TEF の改訂及び分析技術の進歩等に伴い、“食品中のダイオキシン類及びコプラナー PCB の測定方法暫定ガイドライン”を改正した。TEF については、WHO より提案された新しい TEF (2005 TEF) に変更した。前処理操作については、DMSO 分配処理操作の追加、及び前処理操作に必要な試薬等を見直した。また、ガスクロマトグラフ分析条件の例示、試料測定時の確認事項(相対感度係数の変動の許容範囲等)も見直した。これらの改正点をとりまとめ、“食品中の

ダイオキシン類の測定方法暫定ガイドライン”として公表した。

(2-1) ダイオキシン類に対する高感度レポータージーンアッセイの開発

DRE を 4~20 個まで連結したルシフェラーゼレポーターベクターの TCDD 曝露によるルシフェラーゼ活性を検討した。連結した DRE が正方向に数が多くなるとルシフェラーゼ活性が増大し、DRE を 4 つしか含まない従来の場合と比較し、最大 5 倍の活性増強が認められた。各 TCDD 濃度におけるルシフェラーゼ活性倍率(各 TCDD 濃度における活性/TCDD を含まないブランクの活性)を算出したところ、DRE を正方向に 20 個連結した pGL7.5F ベクターが最も高い倍率を示した。そこで、pGL7.5F を含むいくつかのベクターについて、TCDD 用量反応曲線(3.14~314 pM)を作製した。その結果、ルシフェラーゼ活性は TCDD 濃度に依存して誘導され、特に pGL7.5F ベクターでは DRE を 4 つしか含まない場合と比較すると、いずれの濃度でも高い活性が認められた。しかし、活性倍率については、いずれの濃度においても大幅な違いは認められなかった。この原因としては、レポーターベクター上の連結した DRE 数が増えるに従い、ブランクにおけるルシフェラーゼ活性が上昇したためだと考えられる。今後は、ブランクにおける活性を下げる何らかの工夫が必要になると考えられる。

(2-2) 食品試料の AhR 結合活性の調査

50 種類の市販品について、レポータージーンアッセイ(ダイオキシン類と AhR との結合を、ルシフェラーゼ活性により検出するバイオアッセイ)により、AhR 結合活性を評価した。その結果、主に大豆、ゴマ、プロポリスを原料とする試料の一部が、高濃度で TCDD と同等の AhR 活性を示した。今回、一部の試料が高濃度ではあるが、食品成分に由来すると考えられる AhR 活性を示したことから、特に活性を示した食品原料中のダイオキシン類濃度を本バイオアッセイにより測定する際は、測定結果の慎重な解釈が必要であることが考察された。

(2-3) 食品中ダイオキシン類および PCBs の迅速一斉分析法の検討

内部標準製品(3種類)について HRGC/HRMS 分析し、不純物の検定を行った。その結果、 $^{13}\text{C}_{12}$ -mono-ortho PCBs の8種同族体を成分とする内部標準製品中に、微量ながら4種類の $^{13}\text{C}_{12}$ -non-ortho PCBs 同族体(#77、#81、#126、#169)が不純物として含まれていることが確認できた。当該製品を魚試料中ダイオキシン類分析に使用したとき、これらの不純物の影響によって、4種類のネイティブ non-ortho PCBs 各同族体の定量精度は著しく低下した。そこで一斉分析法で使用予定である $^{13}\text{C}_{12}$ -PCBs (1~10塩化物の27種化合物)の内部標準物質で、組成と濃度が同じ2製品について不純物の有無を調べた。その結果、1製品に微量ながら2,3,4,6,7,8-hexaCDF の存在が示唆された。2,3,4,6,7,8-hexaCDF の不純物量は分析精度に著しい影響を及ぼすものではないと推察されたが、本製品を一斉迅速分析に使用する際には、検出限界値付近の低濃度領域において精度に少なからず影響を及ぼす量として、注意が必要と考えられた。

(2-4) 食品中ベンゾトリアゾール類の迅速測定法の開発

測定対象とする6種類のベンゾトリアゾール類の測定のための基本物性を明らかにするとともに、HPLC分析とLC/MS/MS分析での当面の条件を決定した。HPLC条件はSunFireC18(2.1×150mm、3.5 μm)カラムを用い、メタノール/水(99/1~97/3)を移動相として、305nmと340nmの検出波長により測定した。LC/MS/MS条件はSunFireC18(2.1×150mm、3.5 μm)カラムを用い、メタノール/水(99/1)を移動相として、APCI(+)のイオン化法でMRM測定した。

また、魚試料の前処理法として、5種類の方法で脂肪のアルカリ分解条件を検討し、従来法の問題点を明らかにし、新しい抽出液分解法を提案した。抽出液分解法では、4試料が同時に抽出できる加熱流下式高速抽出装置 SE-100 型(ダイアインストルメンツ社製)を用いて抽出を行った。魚試料を、30°Cで15min静置後、エタノール・ヘキサン混合液(1:1)を6mL/minで75min

間通液して抽出液を得た。抽出液にKOHを加えアルカリ分解後、水を加えてヘキサン抽出する方法を開発した。

(3) 食品中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

全ての対象とする臭素系化合物の分析を1種類のGCカラムで高感度測定できないかを検討した。GCカラムとして5%フェニルメチルポリシロキサン系のDB-5、ENV-5MS、SLB-5MS、VF-5MSを検討した。感度、分離能について検討した結果、今回検討したカラムでは、全ての臭素系化合物を1種類のカラムで分析することはできないと考えられた。そこでPBDEs、PBBs、PXBs、TBBPA(エチル化体)はSLB-5MSで、PBDD/DFsはDB-5で測定することにした。

また、測定対象化合物の分画試験を行い、前処理操作の分析フローを決定した。すなわち、魚試料(凍結乾燥物)を高速溶媒抽出し、硫酸処理後、シリカゲルカラム精製を行う。その後、フロリジルカラムにより第1分画(PBDEs、PBBs、PXBs)と第2分画(PBDD/DFs)に分画する。第1分画はDMSO分配を行い、HRGC/HRMS分析に供する。第2分画は活性炭カラム精製を行い、HRGC/HRMS分析に供する。

本法による魚試料(5種類)を分析した結果、アナゴから4臭素化ダイオキシンが微量に検出されたが、その他の魚からはPBDD/DFsは検出されなかった。PBDEsではすべての魚から#49、#47、#100、#99、#154、#153、#209などの異性体が検出され、PBBsでは4種類の魚から4-6臭素化体の異性体が検出された。PXBsは今回の魚試料からは、いずれの異性体も検出されなかった。

次に、三地域(九州、中国・四国、中部)の魚介個別食品45試料についてHBCDsを既報に従い分析した。その結果、 Σ HBCDsの中央値は、九州(0.04 ng/g ww、1.1 ng/g lw) < 中国・四国(0.08 ng/g ww、7.0 ng/g lw) < 中部(1.2 ng/g ww、100 ng/g lw)の順に汚染が高くなり、この結果からも、海産食品のHBCD汚染が地域によっては、進んでいることが示唆された。

D. 結論

1. トータルダイエットによる摂取量調査の結果、塩素化ダイオキシン類の一日摂取量は、 1.11 ± 0.59 pg TEQ/kgbw/day (範囲 0.42~3.32 pg TEQ/kgbw/day) であり、TDI を下回っていた。
2. 鮮魚、健康食品、及び健康茶について塩素化ダイオキシン類濃度を調査した結果、鮮魚と健康食品の一部で比較的高い濃度のダイオキシン類が検出された。一部の食品を多食することを避け、バランスのとれた食生活を送ることが、ダイオキシン類摂取量を減らすために有効であると考えられる。
3. ハイリスクグループの可能性のある魚介類多食者に対して、モンテカルロ・シミュレーション法による魚介類からのダイオキシン類摂取量を予備的に推計した。その結果、摂取量の平均値は 153.15 pg TEQ/day と推計された。
4. トータルダイエット試料による PFOA/PFOS の摂取量調査を実施した結果、ND=0 の場合の平均 1 日摂取量は PFOA で 0.06 ng/kgbw/day、PFOS で 0.98 ng/kgbw/day であった。ND=LOD/2 の場合は、PFOA で 11.5 ng/kgbw/day、PFOS で 12.1 ng/kgbw/day であった。毒性試験データから考察すると、平均的な食生活をしている場合、健康影響が生じる可能性は低いと考えられた。
5. 連結 DRE を正方向に多く導入することで、レポーターベクターの TCDD 応答性が高まった。しかし、連結 DRE を多く含むと、ブランク値におけるルシフェラーゼ活性の上昇が生じるため、活性倍率の大幅な上昇は認められなかった。今後は、検討したベクターを使用して安定細胞株を作製し、ブランク値の低いクローンを選択する必要があると考えられる。
6. 市販加工食品 50 種を試料とし、ダイオキシン様活性を評価した。その結果、大豆抽出物、ゴマ抽出物、プロポリス抽出物などの含有加工食品が、高濃度で AhR 活性を示した。
7. ダイオキシン類及び PCBs 分析用の一部の内部標準物質(安定同位体)には、ネイティブのダイオキシン類が不純物として含まれていた。不

純物の影響によりダイオキシン類の定量精度が低下する可能性があるため、注意が必要であった。

8. 6 種類のベンゾトリアゾール類の基本物性および HPLC と LC/MS/MS 分析の例から、魚介類試料中のベンゾトリアゾール類を高感度で迅速測定できる可能性を示した。従来のアルカリ分解・抽出法の問題点を改善し、新規の抽出液分解法を提案して分解条件と分解後の抽出条件を決定した。
9. 臭素化ダイオキシン類及びその関連化合物を効率よく分析する HRGC/HRMS 分析法を開発した。魚試料(5試料)の汚染調査では、アナゴから 4 臭素化ダイオキシンが微量に検出されたが、その他の魚からは PBDD/Fs は検出されなかった。PBDEs ではすべての魚から #49、#47、#100、#99、#154、#153、#209 などの異性体が検出され、PBBs では 4 種類の魚から 4-6 臭素化体の異性体が検出された。PXBs は今回の魚試料からは、いずれの異性体も検出されなかった。また、日本の 3 つの地域(九州、中国・四国、中部)から集めた魚介食品 45 試料について HBCDs を分析した。 Σ HBCDs の中央値は、九州 < 中国・四国 < 中部の順に汚染が高くなり、この結果からも、海産食品の HBCD 汚染が地域によっては、進んでいることが示唆された。今後は PBDE 汚染とともに HBCD 汚染の推移についても継続的に注視する必要があると考えられる。

E. 健康危険情報

なし

F. 研究発表

1. 論文発表

- 1) Hori T, Yasutake D, Tobiishi K, Ashizuka Y, Kajiwara J, Nakagawa R, Iida T, Tsutsumi T, Sasaki K. Comparison of accelerated solvent extraction and alkaline digestion-hexane shaking extraction for determination of dioxins in animal-origin food sample. *Organohalogen Compounds* 2007; 69: 1118-1121.

2) Murata S, Nakagawa R, Ashizuka Y, Hori T, Yasutake D, Tobiishi K, Sasaki K. Brominated flame retardants (HBCD, TBBPA and Σ PBDES) in market basket food samples of northern Kyushu district in Japan. *Organohalogen Compounds* 2007; 69: 1985-1988.

3) Tsutsumi T, Amakura Y, Tanno K, Yanagi T, Kono Y, Sasaki K, Maitani T. Dioxins and other organohalogen compounds in fish oil supplements on the Japanese market. *Organohalogen Compounds* 2007; 69: 2371-2374.

4) Ashizuka Y, Nakagawa R, Murata S, Yasutake D, Hori T, Horie M, Nishioka C, Takahashi T, Tamura I, Teshirogi T, Sasaki K. Daily intake of brominated dioxins and polybrominated diphenyl ethers estimated by market basket study. *Organohalogen Compounds* 2007; 69: 2769-2772.

5) Ashizuka Y, Nakagawa R, Hori T, Yasutake D, Tobiishi K, Sasaki K. Determination of brominated flame retardants and brominated dioxins in fish collected from three regions of Japan. *Mol. Nutr. Food Res.* 2008; 52: 273-283.

2. 学会発表

1) 芦塚由紀, 中川礼子, 村田さつき, 堀 就英, 安武大輔, 堀江正一, 西岡千鶴, 高橋哲夫,

田村征男, 手代木年彦, 佐々木久美子: マーケットバスケット方式による臭素化ダイオキシン及び臭素化ジフェニルエーテルの摂取量調査. 第16回環境化学討論会 (2007.6).

2) 村田さつき, 芦塚由紀, 中川礼子, 堀 就英, 佐々木久美子: 食品の有機臭素系化合物分析とその汚染濃度. 第16回環境化学討論会 (2007.6).

3) 村田さつき, 芦塚由紀, 中川礼子, 堀 就英, 佐々木久美子: 食品中の臭素系難燃剤の分析. 第44回全国衛生化学技術協議会年会 (2007.11).

4) 堤 智昭, 天倉吉章, 柳 俊彦, 河野洋一, 中村宗知, 野村孝一, 内部博泰, 丹野憲二, 佐々木久美子, 米谷民雄: トータルダイエツトスタディによるダイオキシン類摂取量調査～ここ数年間の全国調査結果について～. 第44回全国衛生化学技術協議会年会 (2007.11).

G. 知的財産権の出願、登録

なし

Ⅱ. 分担研究報告書

1. 食品からの塩素化ダイオキシン類及び有機フッ素化合物の摂取 量調査

1-1. 塩素化ダイオキシン類のトータルダイエツト調査

分担研究者 米谷 民雄

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)

分担研究報告書

ダイオキシン類等の有害化学物質による食品汚染実態の把握に関する研究

(1) 食品からの塩素化ダイオキシン類及び有機フッ素化合物の摂取量調査

(1-1) 塩素化ダイオキシン類のトータルダイエツト調査

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

研究要旨

マーケットバスケット方式によるトータルダイエツト調査(TDS)試料を用いて、ダイオキシン類(PCDD/PCDFs及びCo-PCBs)の国民平均1日摂取量を求めた。国民(健康)栄養調査の地域別国民平均食品摂取量に基づいて食品を購入し、飲料水を含め14群から成るTDS試料を全国7地区9機関で調製した。ダイオキシン類濃度が高い食品を含む第10群(魚介類)、11群(肉・卵類)及び12群(乳・乳製品)については、各機関がそれぞれ各3セットの試料を調製し、その他の食品群は各1セットの試料を調製した。上記3食品群については試料毎にダイオキシン類を分析し、その他は食品群毎に1または2地区の試料を混合して分析し、ダイオキシン類の1日摂取量を求めた。その結果、ダイオキシン類の国民平均1日摂取量は 1.11 ± 0.59 pgTEQ/kgbw/day(範囲0.42~3.32 pgTEQ/kgbw/day)であった。これは、平成18年度の調査結果(1.04 pgTEQ/kgbw/day)と同程度の値であった。最大値は3.32 pgTEQ/kgbw/dayであり平均値より約3倍高い値を示したが、日本における耐容1日摂取量(4 pgTEQ/kgbw/day)よりは低かった。なお、同一機関で調製した試料であってもダイオキシン類摂取量には1.5~4.3倍の差が認められた。

研究協力者

(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

国立医薬品食品衛生研究所

松田りえ子、堤 智昭

A. 研究目的

トータルダイエツト調査(TDS)試料を用いたダイオキシン類の摂取量調査は、平成9年から厚生科学研究(現在は厚生労働科学研究)として、毎年実施されており、国民のダイオキシン類暴露量を知る上で役立っている。本年度も全国7地区9機関で調製したTDS試料についてダイオキシン類を分析し、1日摂取量を求めた。

B. 研究方法

1. 試料

TDS試料は、全国7地区の9機関で調製した。各機関でそれぞれ約120品目の食品を購入したのち、厚生労働省の平成14年度国民栄養調査並びに平成15、16年度国民健康・栄養調査の地域別国民平均食品摂取量表に基づいて、それらの食品を計量し、食品によっては調理した後、13群に大別して、混合均一化したものを試料とした。分析に供すまで-20℃で保存した。

13食品群の内訳は、次のとおりである。国民栄養調査の食品群分類が平成13年から一部変更されたため、特に第13群の構成食品が平成16年以降はそれ以前の調査と異なっている。

第1群: 米、米加工品

第2群: 米以外の穀類、種実類、いも類

- 第3群:砂糖類、菓子類
- 第4群:油脂類
- 第5群:豆類、豆加工品
- 第6群:果実、果汁
- 第7群:緑黄色野菜
- 第8群:他の野菜類、キノコ類、海藻類
- 第9群:酒類、嗜好飲料
- 第10群:魚介類
- 第11群:肉類、卵類
- 第12群:乳、乳製品
- 第13群:調味料
- 第14群として飲料水を加えている。

なお、第10～12群は、9機関が各群3セットずつ調製した。3セットの試料は、魚種、産地、メーカー等が異なる食品を選んで調製した。

2. 試験項目及び検出限界

試験項目は、WHO が毒性係数(TEF)を定めた PCDDs 7種、PCDFs 10種及び Co-PCBs 12種の計29種である。

ダイオキシン類各異性体の検出限界は次のとおりである。

	検出限界		
	1-3, 5-13群	4群	14群
PCDDs	(pg/g)	(pg/g)	(pg/L)
2, 3, 7, 8-TCDD	0.01	0.05	0.1
1, 2, 3, 7, 8-PeCDD	0.01	0.05	0.1
1, 2, 3, 4, 7, 8-HxCDD	0.02	0.1	0.2
1, 2, 3, 6, 7, 8-HxCDD	0.02	0.1	0.2
1, 2, 3, 7, 8, 9-HxCDD	0.02	0.1	0.2
1, 2, 3, 4, 6, 7, 8-HpCDD	0.02	0.1	0.2
1, 2, 3, 4, 6, 7, 8, 9-OCDD	0.05	0.2	0.5
PCDFs			
2, 3, 7, 8-TCDF	0.01	0.05	0.1
1, 2, 3, 7, 8-PeCDF	0.01	0.05	0.1
2, 3, 4, 7, 8-PeCDF	0.01	0.05	0.1
1, 2, 3, 4, 7, 8-HxCDF	0.02	0.1	0.2
1, 2, 3, 6, 7, 8-HxCDF	0.02	0.1	0.2
1, 2, 3, 7, 8, 9-HxCDF	0.02	0.1	0.2
2, 3, 4, 6, 7, 8-HxCDF	0.02	0.1	0.2
1, 2, 3, 4, 6, 7, 8-HpCDF	0.02	0.1	0.2
1, 2, 3, 4, 7, 8, 9-HpCDF	0.02	0.1	0.2
1, 2, 3, 4, 6, 7, 8, 9-OCDF	0.05	0.2	0.5

Co-PCBs

3, 3', 4, 4'-TCB(#77)	0.1	0.5	1
3, 4, 4', 5-TCB(#81)	0.1	0.5	1
3, 3', 4, 4', 5-PeCB(#126)	0.1	0.5	1
3, 3', 4, 4', 5, 5'-HxCB(#169)	0.1	0.5	1
2, 3, 3', 4, 4'-PeCB(#105)	1	5	10
2, 3, 4, 4', 5-PeCB(#114)	1	5	10
2, 3', 4, 4', 5-PeCB(#118)	1	5	10
2', 3, 4, 4', 5-PeCB(#123)	1	5	10
2, 3, 3', 4, 4', 5-HxCB(#156)	1	5	10
2, 3, 3', 4, 4', 5'-HxCB(#157)	1	5	10
2, 3', 4, 4', 5, 5'-HxCB(#167)	1	5	10
2, 3, 3', 4, 4', 5, 5'-HpCB(#189)	1	5	10

3. 試験方法

ダイオキシン類の分析法は、「食品中のダイオキシン類測定方法ガイドライン」(厚生労働省、平成11年10月)に従った。

各機関で3セットずつ調製した第10、11、12群の試料はそれぞれ個別にダイオキシン類を分析した。一方、第1～9群及び第13、14群については、7地区9機関の試料を、北海道・東北地区、関東地区、中部地区、関西地区、中国四国・九州地区の5つに分け、食品群毎に各機関の食品摂取量に応じた割合で混合して、ダイオキシン類を分析した。

4. 分析結果の表記

調査結果は、1日摂取量を体重あたりの毒性等量(pgTEQ/kgbw/day)で示した。TEFは1998TEFを使用した。一部の結果については新しいTEF(2005TEF)を使用した数値についても参考値として算出した。分析値が検出限界以下の異性体をゼロとして計算した場合(以下、ND=0と略す)と、検出限界値の1/2を当てはめた場合(以下、ND=LOD/2と略す)について示した。

各機関について第10～12群はそれぞれ3つの分析値が得られるので、各群のダイオキシン類摂取量の最小値の組み合わせを#1、中央値の組み合わせを#2、最大値の組み合わせを#3として示した。

C. 研究結果

7 地区の 9 機関において調製した TDS 試料を分析し、ダイオキシン類摂取量及び各群からの摂取割合を算出した。表 1~3 には、ND=0 の場合の PCDD/PCDFs、Co-PCBs 及び両者を合わせたダイオキシン類の値を示した。また、表 4~6 には ND=LOD/2 の場合のそれぞれの値を示した。

表 1~6 では、第 10~12 群の各群からのダイオキシン類摂取量の最小値の組み合わせを#1、中央値の組み合わせを#2、最大値の組み合わせを#3 と示した。したがって PCDDs/PCDFs 摂取量及び Co-PCBs 摂取量の最小値、中央値、最大値と#1、#2、#3 とは必ずしも一致しない。

1. PCDD/PCDFs 摂取量

PCDD/PCDFs の 1 日摂取量は、ND=0 の場合、平均 16.31(範囲:6.29~41.26)pgTEQ/day であった。これを、日本人の平均体重を 50 kg とし、体重(kg)あたりの 1 日摂取量に換算すると、平均 0.33 (範囲:0.13~0.83) pgTEQ/kgbw/day であった(表 1)。平成 18 年度は平均 0.31 (範囲:0.05~0.83) pgTEQ/kgbw/day であったことから、今年度はほぼ同等の値となった。

ND=LOD/2 の場合の 1 日摂取量は、平均 61.87 (範囲:51.43~82.72)pgTEQ/day であり、体重あたり平均 1.24 (範囲:1.03~1.65) pgTEQ/kgbw/day であった(表 4)。

ダイオキシン摂取量に対する寄与率が高い食品群は、ND=0 の場合、10 群(魚介)88.7%、11 群(肉・卵)5.4%、12 群(乳・乳製品)5.0%であり、これら 3 群で全体の 99.1%を占めた。

ND=LOD/2 の場合は、高い順に 10 群 24.7%、9 群(酒類、嗜好飲料)18.4%、1 群(米、米加工品)15.6%であった。9 群及び 1 群の寄与は ND=0 の場合には何れもゼロに近いが、これらの群は摂食量が多いため、ほとんど全てのダイオキシン類分析値が ND であっても寄与率が高くなった。平成 15 年までの調査結果に比べて 9 群の寄与率が高くなったのは、国民栄養調査で 9 群の嗜好飲料(茶、コーヒーなど)の集計が水を含む重量に変更され摂食量が多くなったためである。

2. Co-PCBs 摂取量

Co-PCBs の 1 日摂取量は、ND=0 の場合、平均 38.99(範囲:12.54~124.98)pgTEQ/day であり、体重あたり平均 0.78 (範囲:0.25~2.50) pgTEQ/kgbw/day であった(表 2)。平成 18 年度 [平均 0.73 (範囲:0.32~1.47) pgTEQ/kgbw/day] に比べ、平成 19 年度は最大値がやや高い値であった。

ND=LOD/2 の場合の摂取量は、平均 52.76 (範囲:25.45~138.05)pgTEQ/day であり、体重あたり平均 1.06 (範囲:0.51~2.76) pgTEQ/kgbw/day であった(表 5)。

Co-PCBs 摂取量に対する寄与率が高い食品群は、ND=0 の場合、10 群(魚介類)95.4%、11 群(肉・卵)3.2%、12 群(乳・乳製品)0.8%であり、これら 3 群で全体の 99.4%を占めた。

ND=LOD/2 の場合は 10 群(70.5%)、11 群(3.1%)及び 12 群(2.2%)の 3 群で全体の 75.7%を占めたが、PCDD/PCDFs の場合と同様に、摂食量が多い 1 群、9 群も両群で 12.6%を占めた。

3. ダイオキシン類摂取量

PCDD/PCDFs と Co-PCBs を合わせたダイオキシン類の 1 日摂取量は、ND=0 の場合、平均 55.30(範囲:21.18~166.24)pgTEQ/day であり、体重あたり平均 1.11 ± 0.59 (範囲:0.42~3.32)pgTEQ/kgbw/day であった(表 3)。平成 18 年度は平均 1.04 ± 0.47 (範囲:0.38~1.94) pgTEQ/kgbw/day であったことから、今年度はほぼ同等の平均値が得られた。しかし、最大値は 3.32 pgTEQ/kgbw/day であり、平成 18 年度と比較すると、やや高めの値であった。

ND=LOD/2 の場合の 1 日摂取量は、平均 114.62(範囲:79.05~220.77)pgTEQ/day であり、体重あたり平均 2.29 ± 0.57 (範囲:1.58~4.42) pgTEQ/kgbw/day であった(表 6)。

ダイオキシン類摂取量に対する寄与率が高い食品群は、ND=0 の場合、10 群 93.4%、11 群 3.8%、12 群 2.1%であり、これら 3 群で全体の 99.3%を占めた。ND=LOD/2 の場合は、高い順に 10 群 45.8%、9 群 13.0%、1 群 11.1%、2 群 5.9%であり、1 群及び 9 群の寄与率が高かった。

ダイオキシン類摂取量に占める Co-PCBs の割合は、ND=0 の場合、70%であった。Co-PCBs か

らの摂取率は平成 18 年度も 70%と同程度であった。

4. ダイオキシン類摂取量の経年推移

ダイオキシン類摂取量の経年推移を、表 7 に示した。平成 10～18 年度の調査結果は、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」、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」及び平成 18 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。

本年度の平均値は、平成 10 年度以降(平成 10～17 年度)の調査結果(それぞれ 2.00、2.25、1.45、1.63、1.49、1.33、1.41、1.20、1.04 pgTEQ/kgbw/day)の中で 2 番目に低い値であった。第 10～12 群については各機関で各 3 セットの試料を調製し、ダイオキシン類摂取量の最小値、中央値及び最大値を求めた。その結果、同一機関におけるダイオキシン類摂取量の最小値と最大値には 1.5～4.3 倍の差があった。同一機関で市販食品を購入し調製した TDS 試料でも、購入した魚種、産地、個体の差が影響しているものと考えられる。

さらに、最近公表された新しい TEF (2005 TEF)¹⁾を使用したダイオキシン類摂取量を参考値として計算し、表 7 に値を示した。その結果、平均値は 0.93 pgTEQ/kgbw/day であり、従来の TEF (1998 TEF)を使用した場合と比較すると、概ね 15%低い値になった。

D. 考察

本年度及びこれまでの調査結果から、ダイオキシン類摂取量は第 10～12 群の食品(魚介、肉・卵、乳、乳製品)に主に起因している。これらを除く食品群からのダイオキシン類摂取量は ND=0 の場合、平均 0.39 pgTEQ/day であり、全食品群からの摂取量(55.30 pgTEQ/day)に占める割合は、0.70%であった。平成 16、17、18 年度の調査においても、第 10～12 群を除く食品群からのダイオキシン類摂取量はそれぞれ平均

0.79、0.57、0.65 pgTEQ/day であり、全食品群からの摂取量に占める割合は、毎年僅か(1.5%以下)であった。このことから、ダイオキシン類摂取量を低減するためには、主に魚介類からの Co-PCBs 摂取量を低減することが効果的である。

同一機関で調製した試料の分析から得られた、ダイオキシン類摂取量の最小値と最大値には 1.5～4.3 倍の差があったことから、第 10～12 群の調査数を多くすることは、ダイオキシン類摂取量の精密な推定にとって重要であると考えられる。

本年度のダイオキシン類摂取量の平均値は 1.11 pgTEQ/kgbw/day であり、平成 10 年度以降で 2 番目に低い値であった。ダイオキシン類摂取量が減少傾向であることを確実に判断し、食品の安全を確保するため、今後も推移を確認していく必要がある。

東京都はマーケットバスケット方式によるダイオキシン類摂取量調査を実施しており、平成 18 年度は 1.47 pgTEQ/kgbw/day と報告している²⁾。神奈川県はマーケットバスケット方式によるダイオキシン類摂取量調査を実施しており、平成 19 年度の調査結果を 0.99 pgTEQ/kgbw/day と報告している³⁾。これらの調査は、それぞれ 1 組の TDS 試料の調査結果であるが、本研究で得られた 1.11 ± 0.59 pgTEQ/kgbw/day の範囲に含まれる。また、環境省は陰膳方式で食事からのダイオキシン類摂取量を調査しており、平成 18 年度の調査では平均値($n=75$)として 0.65 pgTEQ/kgbw/day (1998 TEF を使用)の値を報告している⁴⁾。本研究の平均値よりはやや低めの値となっている。

本年度のダイオキシン類摂取量の全国平均値(1.11 pgTEQ/kgbw/day)は、日本における TDI (4 pgTEQ/kgbw/day)の 1/4 程度であった。

E. 結論

平成 19 年度に、全国 7 地区 9 機関で調製した TDS 試料によるダイオキシン類の摂取量調査を実施した結果、平均 1 日摂取量は 1.11 ± 0.59 pgTEQ/kgbw/day であり、日本における TDI より低かった。食品の安全を確保するため、

今後もダイオキシン類摂取に対する寄与が大きい魚介類、肉・卵類、乳・乳製品に重点を置いたTDS調査を継続し、動向を見守る必要がある。

F. 参考文献】

- 1) Van den Berg M, Birnbaum LS, Denison M, De Vito M, Farland W, Feeley M, Fiedler H, Hakansson H, Hanberg A, Haws L, Rose M, Safe S, Schrenk D, Tohyama C, Tritscher A, Tuomisto J, Tysklind M, Walker N, Peterson RE. The 2005 World Health Organization reevaluation of human and Mammalian toxic equivalency factors for dioxins and dioxin-like compounds. *Toxicol Sci.* 63 (2006) 223-241.
- 2) 東京都福祉保健局:平成 18 年度 食事由来の化学物質摂取量推計調査 <http://www.metro.tokyo.jp/INET/CHOUSA/2007/08/60h86201.htm>
- 3) 神奈川県保健福祉部生活衛生課:平成 19 年度食品からのダイオキシン類一日摂取量調査(トータルダイエツスタディ)の結果について <http://www.pref.kanagawa.jp/osirase/seikatueisei/kanajin/kisya-diet/H19diet.html>
- 4) 環境省環境保健部環境リスク評価室:平成

18 年度ダイオキシン類の蓄積・ばく露状況及び臭素系ダイオキシン類の調査結果について I.ダイオキシン類の人への蓄積量調査

G. 研究発表

1. 論文発表

なし

2. 学会発表

堤 智昭¹、天倉吉章¹、柳 俊彦²、河野洋一²、中村宗知²、野村孝一²、内部博泰²、丹野憲二²、佐々木久美子¹、米谷民雄¹:トータルダイエツスタディによるダイオキシン類摂取量調査～ここ数年間の全国調査結果について～. 第 44 回全国衛生化学技術協議会年会

¹国立医薬品食品衛生研究所

²(財)日本食品分析センター)

【謝辞】

TDS 試料の調製にご協力いただいた 7 地区 9 研究機関及び国民栄養調査並びに国民健康・栄養調査結果の特別集計にご協力いただいた独立行政法人国立健康・栄養研究所の諸氏に感謝いたします。

表1 平成19年度トータルダイエット(1~14群)からのダイオキシン(PCDDs+PCDFs)1日摂取量(ND=0)

食品群	(pgTEQ/day)											
	北海道地区			東北地区			関東地区			中部地区		
	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3
1群(米)	0.00			0.00			0.00			0.00		
2群(雑穀・芋)	0.00			0.00			0.07			0.00		
3群(砂糖・菓子)	0.03			0.03			0.03			0.07		
4群(油脂)	0.00			0.00			0.00			0.01		
5群(豆・豆加工品)	0.00			0.00			0.00			0.00		
6群(果実)	0.00			0.00			0.00			0.00		
7群(有色野菜)	0.00			0.00			0.00			0.00		
8群(野菜・海藻)	0.07			0.07			0.00			0.00		
9群(嗜好品)	0.00			0.00			0.00			0.00		
10群(魚介)	17.76	20.45	15.07	7.16	9.19	10.40	8.34	13.63	13.92	11.59	8.68	37.74
11群(肉・卵)	0.04	0.07	0.06	0.06	0.06	0.79	0.05	0.15	2.96	0.20	0.35	3.32
12群(乳・乳製品)	0.00	0.00	0.22	2.73	5.26	6.55	0.03	0.04	0.03	0.00	0.03	0.03
13群(調味料)	0.05			0.05			0.07			0.05		
14群(飲料水)	0.00			0.00			0.00			0.00		
総摂取量(pgTEQ/day)	17.95	20.66	15.50	10.09	14.64	17.88	8.60	14.00	17.08	11.97	9.23	41.26
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.36	0.41	0.31	0.20	0.29	0.36	0.17	0.28	0.34	0.24	0.18	0.83
標準偏差							14.10	13.43	20.80	0.28	0.27	0.42
							7.93	7.23	19.91	0.16	0.14	0.40
食品群	比率(%)											
	関西地区			中国・四国地区			九州地区			平均摂取量		
	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	標準偏差	比率(%)	
1群(米)	0.00			0.00			0.00			0.00	0.00	
2群(雑穀・芋)	0.00			0.00			0.00			0.03	0.11	
3群(砂糖・菓子)	0.05			0.07			0.07			0.02	0.30	
4群(油脂)	0.05			0.02			0.02			0.02	0.09	
5群(豆・豆加工品)	0.00			0.00			0.00			0.00	0.01	
6群(果実)	0.00			0.00			0.00			0.00	0.00	
7群(有色野菜)	0.00			0.00			0.00			0.00	0.01	
8群(野菜・海藻)	0.00			0.00			0.00			0.03	0.10	
9群(嗜好品)	0.00			0.00			0.00			0.00	0.00	
10群(魚介)	12.38	14.50	19.80	9.17	14.27	21.02	6.05	13.82	28.09	7.01	88.73	
11群(肉・卵)	0.08	0.28	4.85	0.09	0.08	0.76	0.10	2.10	3.34	1.30	5.39	
12群(乳・乳製品)	0.06	0.76	0.91	0.04	0.04	0.05	0.03	2.23	2.23	1.66	5.01	
13群(調味料)	0.03			0.00			0.00			0.03	0.26	
14群(飲料水)	0.00			0.00			0.00			0.00	0.00	
総摂取量(pgTEQ/day)	12.67	15.68	25.70	9.40	14.50	21.93	6.29	18.24	33.76	7.88	100.00	
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.25	0.31	0.51	0.19	0.29	0.44	0.13	0.36	0.68	0.16		

* 一部の地域(北海道及び東北地区、中国・四国及び九州地区)の食品群1~9、13及び14群は共通試料を使用した。

** 食品群10~12におけるダイオキシン類(PCDDs+PCDFs+Co-PCBs)摂取量(ND=0)の最小値の組み合わせを#1、中央値の組み合わせを#2、最大値の組み合わせを#3とした。

表3 平成19年度トータルダイエット(1~14群)からのダイオキシン類1日摂取量(ND=0)

食品群	(pgTEQ/day)																		
	北海道地区				東北地区				関東地区				中部地区						
	#1		#2		#3		#1		#2		#3		#1		#2		#3		
1群(米)	0.00				0.00				0.00				0.05				0.05		
2群(雑穀・芋)	0.03				0.03				0.17				0.06				0.06		
3群(砂糖・菓子)	0.04				0.04				0.11				0.18				0.18		
4群(油脂)	0.01				0.01				0.02				0.02				0.02		
5群(豆・豆加工品)	0.02				0.02				0.00				0.05				0.05		
6群(果実)	0.00				0.00				0.00				0.01				0.01		
7群(有色野菜)	0.00				0.00				0.06				0.06				0.06		
8群(野菜・海藻)	0.07				0.07				0.11				0.08				0.08		
9群(嗜好品)	0.00				0.00				0.00				0.00				0.00		
10群(魚介)	53.16	77.66	79.43		17.64	27.35	28.16		39.55	48.08	61.99		39.75	47.40	162.06		36.50	41.76	63.19
11群(肉・卵)	0.25	0.28	0.29		0.19	0.24	1.05		0.34	1.80	4.33		0.60	1.68	3.51		2.82	2.86	4.58
12群(乳・乳製品)	0.03	0.06	0.31		4.60	6.97	9.84		0.07	0.10	0.11		0.03	0.08	0.08		0.04	0.08	0.75
13群(調味料)	0.05				0.05				0.10				0.10				0.12		
14群(飲料水)	0.00				0.00				0.00				0.00				0.00		
総摂取量(pgTEQ/day)	53.65	78.20	80.24		22.63	34.77	39.26		40.54	50.56	67.02		40.96	49.75	166.24		39.98	45.31	69.14
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	1.07	1.56	1.60		0.45	0.70	0.79		0.81	1.01	1.34		0.82	1.00	3.32		0.80	0.91	1.38

食品群	九州地区												標準偏差		比率(%)				
	中国・四国地区				九州地区				平均摂取量										
	#1		#2		#3		#1		#2		#3								
1群(米)	0.00				0.00				0.00				0.01			0.02			0.02
2群(雑穀・芋)	0.03				0.03				0.03				0.07			0.06			0.12
3群(砂糖・菓子)	0.06				0.12				0.12				0.11			0.05			0.19
4群(油脂)	0.06				0.03				0.03				0.02			0.02			0.04
5群(豆・豆加工品)	0.00				0.01				0.01				0.02			0.02			0.03
6群(果実)	0.00				0.00				0.00				0.00			0.01			0.00
7群(有色野菜)	0.01				0.02				0.02				0.03			0.03			0.06
8群(野菜・海藻)	0.00				0.03				0.03				0.06			0.04			0.11
9群(嗜好品)	0.00				0.00				0.00				0.00			0.00			0.00
10群(魚介)	36.35	45.07	52.55		37.10	50.51	62.46		20.59	57.15	82.33		51.67			29.06			93.43
11群(肉・卵)	0.50	1.69	8.81		1.89	2.43	4.14		0.28	2.37	5.47		2.11			2.04			3.82
12群(乳・乳製品)	0.11	0.90	0.94		0.09	0.09	0.12		0.07	2.30	2.33		1.13			2.36			2.05
13群(調味料)	0.03				0.00				0.00				0.06			0.05			0.11
14群(飲料水)	0.00				0.00				0.00				0.00			0.00			0.00
総摂取量(pgTEQ/day)	37.16	47.87	62.50		39.32	53.27	66.95		21.18	62.05	90.37		55.30			29.35			100.00
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.74	0.96	1.25		0.79	1.07	1.34		0.42	1.24	1.81		1.11			0.59			-

* 一部の地域(北海道及び東北地区、中国・四国及び九州地区)の食品群1~9、13及び14群は共通試験を使用した。

** 食品群10~12におけるダイオキシン類(PCDDs+PCDFs+Co-PCBs)摂取量(ND=0)の最小値の組み合わせを#1、中央値の組み合わせを#2、最大値の組み合わせを#3とした。