

表4 平成19年度トータルダイアエット(1~14群)からのダイオキシン(PCDDs+PCDFs)1日摂取量(ND=LOD/2)

食品群	北海道地区			東北地区			関東地区			中部地区			(pgTEQ/day)		
	#1	#2	#3	#1	#2	#3	I	II	I	II	I	II			
1群(米)	9.01			9.01			7.35					10.96			
2群(雑穀・芋)	5.77			5.77			4.24					4.99			
3群(砂糖・菓子)	0.86			0.86			0.93					0.91			
4群(油脂)	0.99			0.99			1.13					1.05			
5群(豆・豆加工品)	1.44			1.44			1.24					1.26			
6群(果実)	2.52			2.52			2.58					2.40			
7群(有色野菜)	1.80			1.80			2.01					1.66			
8群(野菜・海藻)	4.33			4.33			4.23					4.09			
9群(嗜好品)	10.68			10.68			11.12					11.13			
10群(魚介)	18.77	21.28	16.07	8.22	10.02	11.69	9.24	14.05	14.26	13.19	9.99	38.29	#1	#2	#3
11群(肉・卵)	2.77	2.75	2.70	1.55	1.80	2.22	2.15	2.22	3.97	2.34	2.26	4.39	2.11	2.82	2.68
12群(乳・乳製品)	3.08	3.08	3.29	4.59	7.12	7.95	2.85	2.86	2.84	2.83	2.84	2.84	2.57	2.58	2.92
13群(調味料)	1.80			1.80			2.31			2.31		1.80	1.80		
14群(飲料水)	0.05			0.05			0.05			0.05		0.05	0.05		
総摂取量(pgTEQ/day)	63.86	66.35	61.29	53.80	58.18	61.09	51.43	56.32	58.28	55.55	52.30	82.72	58.96	58.00	65.34
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	1.28	1.33	1.23	1.07	1.16	1.22	1.03	1.13	1.17	1.11	1.05	1.65	1.18	1.16	1.31
食品群	関西地区			中国・四国地区			九州地区			標準偏差			比率(%)		
	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3						
1群(米)	11.94			10.25			10.25			9.68			1.61		15.64
2群(雑穀・芋)	6.08			5.15			5.15			5.15			0.65		8.33
3群(砂糖・菓子)	1.53			0.87			0.87			0.96			0.22		1.56
4群(油脂)	1.14			1.06			1.06			1.06			0.06		1.72
5群(豆・豆加工品)	2.08			1.28			1.28			1.39			0.27		2.25
6群(果実)	2.48			2.42			2.42			2.48			0.07		4.01
7群(有色野菜)	1.69			2.15			2.15			1.88			0.20		3.04
8群(野菜・海藻)	3.53			4.69			4.69			4.25			0.35		6.86
9群(嗜好品)	12.67			11.92			11.92			11.37			0.66		18.39
10群(魚介)	12.63	14.60	20.05	10.74	15.09	21.17	7.16	14.39	28.38	15.26			6.79		24.67
11群(肉・卵)	2.35	2.33	6.08	2.94	3.04	3.21	2.82	3.85	4.89	2.90			0.99		4.68
12群(乳・乳製品)	2.99	3.32	3.82	2.97	2.97	2.98	2.99	4.10	4.10	3.47			1.27		5.60
13群(調味料)	1.93			1.95			1.95			1.96			0.21		3.17
14群(飲料水)	0.05			0.05			0.05			0.05			0.00		0.08
総摂取量(pgTEQ/day)	63.09	65.38	75.08	58.44	62.89	69.14	54.75	64.12	79.16	61.87			7.84		100.00
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	1.26	1.31	1.50	1.17	1.26	1.38	1.10	1.28	1.58	1.24			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5 平成19年度トータルダイエイト(1~14群)からのCo-PCBs類1日摂取量(ND=LOD/2)

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)	2.83			2.83	2.31			2.31			3.47			3.47						
2群(雑穀・芋)	1.83			1.83	1.40			1.40			1.61			1.61						
3群(砂糖・菓子)	0.27			0.27	0.35			0.35			0.37			0.37						
4群(油脂)	0.32			0.32	0.37			0.37			0.33			0.33						
5群(豆・豆加工品)	0.46			0.46	0.39			0.39			0.43			0.43						
6群(果実)	0.79			0.79	0.81			0.81			0.76			0.76						
7群(有色野菜)	0.57			0.57	0.68			0.68			0.57			0.57						
8群(野菜・海藻)	1.35			1.35	1.41			1.41			1.35			1.35						
9群(嗜好品)	3.36			3.36	3.50			3.50			3.50			3.50						
10群(魚介)	35.40			57.21	64.36	10.49	18.17	17.77	31.21	34.45	48.07	28.15	38.72	124.33	23.04	30.12	44.35	12.88	17.98	62.67
11群(肉・卵)	1.02			1.01	1.03	0.57	0.71	0.78	0.91	1.74	1.47	1.04	1.44	0.80	2.40	1.35	3.47	0.95	1.96	2.01
12群(乳・乳製品)	0.99			1.02	1.04	2.04	1.93	3.50	0.92	0.94	0.96	0.91	0.94	0.94	0.84	0.85	0.87	1.03	1.02	1.08
13群(調味料)	0.55			0.55	0.55			0.74			0.74			0.60			0.60			
14群(飲料水)	0.02			0.02	0.02			0.02			0.02			0.02			0.02			
総摂取量(pgTEQ/day)	49.76			71.59	78.77	25.45	33.15	34.40	45.03	49.11	62.49	42.09	53.09	138.05	39.29	45.32	61.70	27.86	33.96	78.76
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	1.00			1.43	1.58	0.51	0.66	0.69	0.90	0.98	1.25	0.84	1.06	2.76	0.79	0.91	1.23	0.56	0.68	1.58

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)	3.76			3.23	3.05			3.05			0.51			5.78		
2群(雑穀・芋)	1.93			1.63	1.65			1.65			0.18			3.13		
3群(砂糖・菓子)	0.48			0.29	0.34			0.34			0.07			0.64		
4群(油脂)	0.35			0.33	0.34			0.34			0.02			0.64		
5群(豆・豆加工品)	0.65			0.41	0.45			0.45			0.08			0.85		
6群(果実)	0.78			0.76	0.78			0.78			0.02			1.48		
7群(有色野菜)	0.54			0.69	0.62			0.62			0.07			1.17		
8群(野菜・海藻)	1.11			1.49	1.37			1.37			0.11			2.59		
9群(嗜好品)	3.98			3.75	3.58			3.58			0.21			6.78		
10群(魚介)	23.97			30.57	32.75	27.93	36.24	41.43	14.54	43.33	54.24	37.20	22.81	70.50		
11群(肉・卵)	1.09			1.52	4.08	1.96	2.48	3.54	0.99	1.09	2.25	1.62	0.92	3.06		
12群(乳・乳製品)	0.96			1.05	0.95	0.96	0.96	0.98	0.97	0.99	1.02	1.14	0.55	2.15		
13群(調味料)	0.60			0.61	0.61			0.61			0.07			1.18		
14群(飲料水)	0.02			0.02	0.02			0.02			0.00			0.03		
総摂取量(pgTEQ/day)	40.22			47.34	51.96	44.05	52.88	59.15	29.70	58.62	70.71	52.76	22.55	100.00		
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.80			0.95	1.04	0.88	1.06	1.18	0.59	1.17	1.41	1.06	0.45			

* 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6 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=LOD/2)

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)	11.84			11.84			9.67			9.67	14.43	14.43
2群(雑穀・芋)	7.60			7.60			5.64			5.64	6.59	6.59
3群(砂糖・菓子)	1.13			1.13			1.28			1.28	1.28	1.28
4群(油脂)	1.30			1.30			1.50			1.50	1.37	1.37
5群(豆・豆加工品)	1.91			1.91			1.64			1.64	1.70	1.70
6群(果実)	3.31			3.31			3.39			3.39	3.17	3.17
7群(有色野菜)	2.36			2.36			2.69			2.69	2.23	>2.23
8群(野菜・海藻)	5.67			5.67			5.64			5.64	5.44	5.44
9群(嗜好品)	14.04			14.04			14.61			14.61	14.63	14.63
10群(魚介)	54.17	78.49	80.42	18.71	28.18	29.46	40.45	48.50	62.33	41.34	48.72	162.62
11群(肉・卵)	3.79	3.77	3.72	2.11	2.51	3.00	3.05	3.95	5.45	3.37	3.70	5.19
12群(乳・乳製品)	4.07	4.10	4.33	6.64	9.05	11.45	3.77	3.80	3.80	3.74	3.78	3.78
13群(調味料)	2.35			2.35			3.05			3.05	2.40	2.40
14群(飲料水)	0.07			0.07			0.07			0.07	0.07	0.07
総摂取量(pgTEQ/day)	113.62	137.94	140.06	79.05	91.33	95.49	96.46	105.43	120.77	97.64	105.38	220.77
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	2.27	2.76	2.80	1.58	1.83	1.91	1.93	2.11	2.42	1.95	2.11	4.42
										98.25	103.32	127.04
										1.97	2.07	2.54
										82.68	88.10	144.84
										1.65	1.76	2.90

食品群	九州地区											
	中国・四国地区			九州地区			平均摂取量			標準偏差		
	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3
1群(米)	15.70			13.48			13.48			12.73	2.12	11.10
2群(雑穀・芋)	8.01			6.78			6.78			6.80	0.83	5.94
3群(砂糖・菓子)	2.01			1.16			1.16			1.30	0.28	1.13
4群(油脂)	1.49			1.39			1.39			1.40	0.08	1.22
5群(豆・豆加工品)	2.73			1.69			1.69			1.84	0.35	1.61
6群(果実)	3.26			3.19			3.19			3.26	0.09	2.85
7群(有色野菜)	2.23			2.84			2.84			2.50	0.26	2.18
8群(野菜・海藻)	4.64			6.18			6.18			5.61	0.45	4.90
9群(嗜好品)	16.65			15.67			15.67			14.95	0.87	13.04
10群(魚介)	36.59	45.17	52.80	38.67	51.33	62.60	21.70	57.72	82.63	52.46	28.90	45.77
11群(肉・卵)	3.44	3.85	10.15	4.90	5.51	6.75	3.81	4.94	7.14	4.51	1.65	3.94
12群(乳・乳製品)	3.94	4.38	4.77	3.94	3.94	3.96	3.96	5.09	5.12	4.60	1.78	4.02
13群(調味料)	2.53			2.56			2.56			2.58	0.28	2.25
14群(飲料水)	0.07			0.07			0.07			0.07	0.00	0.00
総摂取量(pgTEQ/day)	103.30	112.72	127.05	102.49	115.76	128.29	84.45	122.74	149.87	114.62	28.75	100.00
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	2.07	2.25	2.54	2.05	2.32	2.57	1.69	2.45	3.00	2.29	0.57	

* 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7 機関別ダイオキシン類1日摂取量の経年推移(平成10~19年度)¹⁾

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	平成19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) ²⁾	1.07 (0.92)
	B					0.94	1.03	1.03	1.80	0.45 (0.39)	1.56 (1.28)
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)	0.45 (0.40)
	C					2.05	1.35	2.93	1.57	1.85 (1.57)	0.79 (0.68)
	D					1.46	0.78	1.64	0.55	0.60 (0.51)	0.81 (0.68)
関東地区	A	2.06	4.04	1.30	1.08	1.46	0.78	1.64	0.55	0.60 (0.51)	0.81 (0.68)
	B					2.01	1.86	1.80	0.87	0.94 (0.81)	1.01 (0.89)
	C					2.76	3.05	1.87	1.26	1.47 (1.28)	1.34 (1.12)
	D	2.14	1.59	1.72	1.99	1.34	0.90	-	-	-	-
	E					2.33	1.01	-	-	-	-
	F					3.40	2.93	-	-	-	-
中部地区	A	2.00	1.68	1.48	1.42	0.90	1.02	1.05	0.70	0.79 (0.68)	0.82 (0.70)
	B					1.17	1.06	1.75	1.33	1.00 (0.87)	1.00 (0.85)
	C					1.51	2.05	2.34	2.03	1.38 (1.22)	3.32 (2.51)
	D					1.28	1.50	2.03	1.86	1.24 (1.01)	1.70 (1.48)
関西地区	A	-	1.53	1.44	-	-	-	-	-	-	-
	B	1.87	1.57	1.41	1.65	1.40	1.34	0.72	0.69	0.67 (0.58)	0.80 (0.68)
	C					1.67	1.48	0.91	0.80	0.87 (0.76)	0.91 (0.76)
	D					1.93	1.86	1.83	1.40	1.00 (0.87)	1.38 (1.19)
中国四国地区	A	2.03	2.42	1.80	1.53	0.62	0.58	0.64	0.47	0.46 (0.40)	0.43 (0.35)
	B					0.68	1.15	0.71	0.60	0.70 (0.62)	0.55 (0.45)
	C					1.28	1.50	2.03	1.86	1.24 (1.01)	1.70 (1.48)
	D					1.28	1.50	2.03	1.86	1.24 (1.01)	1.70 (1.48)
九州地区	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)	0.74 (0.64)
	C					1.39	1.15	1.86	0.82	1.50 (1.32)	0.96 (0.82)
	D					2.75	1.58	2.25	1.42	1.76 (1.54)	1.25 (1.08)
平均	A	-	1.89	2.01	2.00	1.40	-	-	-	-	-
	B					1.78	-	-	-	-	-
	C					2.02	-	-	-	-	-
	D					2.02	-	-	-	-	-
九州地区	A	-	3.59	-	-	-	-	-	-	-	-
	B	-	-	0.98	0.88	0.79	0.62	-	-	-	-
	C					0.98	1.22	-	-	-	-
	D					1.22	1.56	-	-	-	-
九州地区	A	1.22	1.48	1.40	1.60	0.73	1.03	1.19	1.20	0.93 (0.82)	0.79 (0.67)
	B					1.54	1.51	1.35	1.57	1.08 (0.92)	1.07 (0.90)
	C					2.12	2.05	1.72	1.72	1.94 (1.64)	1.34 (1.17)
	D					0.57	0.85	0.61	0.66	0.61 (0.54)	0.42 (0.37)
九州地区	A	1.99	1.84	1.55	3.40	1.18	1.04	0.99	1.05	0.65 (0.56)	1.24 (1.03)
	B					1.81	1.83	1.27	1.44	1.65 (1.38)	1.81 (1.56)
平均											
平均	2.00	2.25	1.45	1.63	1.49	1.33	1.41	1.20	1.04 (0.90)	1.11 (0.93)	

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16~18年度の摂取量は、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。

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。

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

1-2. 塩素化ダイオキシン類の個別食品汚染調査

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
(1-2) 塩素化ダイオキシン類の個別食品汚染調査

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

鮮魚 30 試料、魚油を使用した健康食品 10 製品、及び嗜好飲料である健康茶 5 製品について、PCDDs 7 種、PCDFs 10 種及び Co-PCBs 12 種の計 29 種のダイオキシン類濃度を調査した。鮮魚についてはサケ・マス(8 試料)で平均 0.55 pg TEQ/g、ブリ(6 試料)で平均 3.1 pg TEQ/g、マグロ(8 試料)で平均 3.0 pg TEQ/g、マダイ(8 試料)で平均 1.2 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、現在までに蓄積されている個別食品のダイオキシン類汚染データ(平成 10~18 年度)を基に、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評価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(中央値は 126.17 pg TEQ/day)と推計された。

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

自治医科大学 地域医療学センター環境医学部

香山 不二雄

横浜国立大学 大学院環境情報研究院 自然環境と情報部門

中井 里史

松山大学 薬学部

天倉吉章、吉田隆志

A. 研究目的

トータルダイエツト法によるダイオキシン類の摂取量調査結果から、摂取量の約 90%が魚介類によるものであることが分かっている。そこで、本研究では食品のダイオキシン類汚染実態を把握し、個人別暴露量を正確に評価するためのデータ蓄積を目的に、鮮魚を中心にダイオキシン類の汚染調査を実施した。また、魚油を使用した健康食品についても、ダイオキシン類の汚染調査を実施した。さらに、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。

B. 研究方法

1. 試料

調査対象食品は、鮮魚(30 試料)、魚油を使用した健康食品(10 製品)、及び嗜好飲料として健康茶(5 製品)を国内で購入した。なお、健康食品は魚油をカプセルで被包した形状の製品であり、本研究ではカプセルも含めて分析に供した。

2. 試験項目及び検出限界

WHO が毒性等価係数(TEF)を定めた下記の PCDDs 7 種、PCDFs 10 種及び Co-PCBs 12 種の計 29 種を分析対象とした。

()内の数字は検出限界(pg/g)を示す。但し、健康食品は分析に使用する試料量を少なくしたため検出下限が異なる(4,5 塩素化 PCDD/Fs: 0.05、6,7 塩素化 PCDD/Fs:0.1、8 塩素化 PCDD/Fs:0.2、ノンオルト PCBs: 0.5、モノオルト PCBs: 5)。

PCDDs

- 2,3,7,8-TCDD, 1,2,3,7,8-PeCDD (0.01)
- 1,2,3,4,7,8-HxCDD, 1,2,3,6,7,8-HxCDD, 1,2,3,7,8,9-HxCDD, 1,2,3,4,6,7,8-HpCDD (0.02)
- 1,2,3,4,6,7,8,9-OCDD (0.05)

PCDFs

- 2,3,7,8-TCDF, 1,2,3,7,8-PeCDF, 2,3,4,7,8-PeCDF (0.01)
- 1,2,3,4,7,8-HxCDF, 1,2,3,6,7,8-HxCDF, 1,2,3,7,8,9-HxCDF, 2,3,4,6,7,8-HxCDF, 1,2,3,4,6,7,8-HpCDF, 1,2,3,4,7,8,9-HpCDF (0.02)
- 1,2,3,4,6,7,8,9-OCDF (0.05)

Co-PCBs

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

3. 試験方法

ダイオキシン類の分析は、「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。

4. 分析結果の表記

測定結果は湿重量あたりの毒性等量(pg TEQ/g)で示した。毒性等量の計算には、TEF(WHO 1998)を用いた。また、参考値として最近公表された新しい TEF(WHO 2005)¹⁾を用いた毒性等量も算出した。検出限界以下の異性体濃度はゼロとして計算した。

5. モンテカルロ・シミュレーション法によるダイオキシン類摂取量の推定

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を用いた魚介類からのダイオキシン類摂取量調査を予備的に推計した。食品摂取量として、110 名分の自記式食事履歴調査(Dietary History Questionnaire: DHQ)で得られた魚介類摂取量データ(21 項目)を使用した²⁾。また、ダイオキシン類汚染データとしては、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³⁻⁵⁾より、DHQ に存在する魚介類(18 種類)を選択した。選択した魚介類の種類と、ダイオキシン類濃度を調査した試料数を下記に示した。

選択した魚介類及び調査試料数(平成 10~18 年度)

魚種	試料数
アジ	15
アンコウ(肝含まず)	3
アユ	3
イカ(内臓含まず)	10
カジキ	13
カレイ	9
キンメダイ	7
サケ	18
サバ	15
サメ	4
サンマ	11
タコ	13
ヒラメ	7
ブリ	22
ホッケ	12
マグロ	21
ホタテ	10
ワカサギ	4

また、モンテカルロ・シミュレーションによる推計方法の手順は下記のように行った。

- ① 魚介類摂取の有無の決定
 - ✓ 二値分布を設定
 - ✓ パラメータは対象集団の摂取割合データ(摂取割合の平均)より
- ② 魚介類別摂取量分布の決定
 - ✓ 対数正規分布を仮定
 - ✓ パラメータは魚介類摂取量データ(平均値、標準偏差)より
 - ✓ 魚介類別ダイオキシン濃度分布の決定
 - ✓ 対数正規分布を仮定
 - ✓ パラメータは魚介類ダイオキシンデータ(平均値、標準偏差)より
- ③ 魚介類別摂取の有無に関する二値乱数発生
- ④ 魚介類別摂取量分布に従う乱数発生
- ⑤ 魚介類別ダイオキシン濃度分布に従う乱数発生
- ⑥ ダイオキシン摂取量の算出
- ④×⑤×⑥の総和

C. 研究結果及び考察

1. 個別食品のダイオキシン類汚染調査結果

鮮魚(5種、30試料)、健康食品(10製品)、及び健康茶(5製品)の分析結果を表1に示した。また、鮮魚については魚毎にダイオキシン濃度の結果を整理し、表2にまとめた。ダイオキシン類濃度の平均値は、サケ・マスで0.55 pg TEQ/g、ブリで3.1 pg TEQ/g、マグロで3.0 pg TEQ/g、マダイで1.2 pg TEQ/gであった。ブリ及びマグロの平均濃度は、サケ・マス及びマダイと比較すると高い傾向があった。中央値と比較した場合も、同様の傾向が認められた。

鮮魚の中で最も高い濃度を示した試料は、ブリの8.0 pg TEQ/gであった。試料によっても異なるが、ブリ及びマグロでは一般的に脂肪濃度が高いことが多く、ダイオキシン類濃度が高くなる傾向がある。ダイオキシン類に占めるCo-PCBsの割合は、鮮魚30試料の平均で約78%であった。過去の報告と同様⁶⁾、ダイオキシン類の大半はCo-PCBが占めていると言える。また、新しいTEF(WHO 2005)を用いて毒性等量を算出した場合は、10~20%低い値が得られる場合が多かった。

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、製品によってダイオキシン類濃度は大きく異なった。例えば鮫肝油を使用した5製品については、鮫肝油#4では0.72 pg TEQ/gであったが、鮫肝油#2では53 pg TEQ/gであり、約100倍高濃度のダイオキシン類が検出された。各製品で使用している魚の大きさ、産地、及び魚油の精製操作などが製品の汚染濃度に影響している可能性が考えられる。また、新しいTEF(WHO, 2005)を用いて毒性等量を算出した場合は、鮮魚の場合と同様に10~20%低い値が得られる場合が多かった。

表3には健康食品からのダイオキシン類摂取量を算出した。各製品の摂取量は添付書に記載されている最大の摂取量を使用した。ほとんどの製品では一日摂取量は50 pg TEQ/day以下であり、TDIに占める摂取量の割合は25%以下であった。しかし、鮫肝油を使用した1製品(鮫肝油#2)については摂取量が126.7 pg TEQ/dayとなり、本製品を摂取した場合はTDI(体重50 kgの場合は、200 pg TEQ/day)の約60%に相当した。本年度のトータルダイエット調査による国民平均のダイオキシン類摂取量は55.30 pg TEQ/dayであることから、他の一般的な食品からの摂取量を考慮した場合でも、TDIを超えることはない。しかし、ダイオキシン類摂取を大幅に上昇させる危険性が否定できないことから、注意を払う必要が

ある。

健康茶では 0.000066～0.30 pgTEQ/g のダイオキシン類が検出された。鮮魚、健康食品と比較すると、汚染濃度は低かった。

一部の鮮魚及び魚油を使用した健康食品では、比較的高い濃度のダイオキシン類が検出された。しかし、これらの食品はエイコサペンタエン酸、ドコサヘキサエン酸を多く含み、心臓病や動脈硬化等のリスクを低減するベネフィットがあると言われている。従って、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。

2. 魚介類からのダイオキシン類摂取量の推定

摂取量推計値は図1から図3のような分布となり、今回の魚介類多食者におけるダイオキシン一日総摂取量のシミュレーション結果の平均値は 153.15 pg TEQ/day (中央値は 126.17 pg TEQ/day)と推計された(表 4)。内訳は平均 PCDD/Fs 曝露量が 42.37 pg TEQ/day(中央値は 35.17 pg TEQ/day)、平均 Co-PCBs 曝露量が 110.78 pg TEQ/day(中央値は 85.92 pg TEQ/day)と推計された。平均値は、日本の TDI である 200 pg TEQ/day の約 75%であった。しかし、平成 10 から 18 年度厚生労働省によるトータルダイエツト調査の一日摂取量の平均 77 pg TEQ/day を上回る結果であり、今回計算に使用した魚介類は、DHQ により得られた 18 種類についてのみの検討であることから考えると、トータルダイエツト調査と比べて、推計結果は高いものであると考えられる。

今回対象とした集団の魚介類摂取量の平均値はおおよそ 128.5g/day であった。トータルダイエツト調査で用いる国民健康・栄養調査報告によると、例えば平成 15 年度の魚介類摂取量の全国平均値は 86.7 g/day であり⁷⁾、1.5 倍ほど摂取量が多い。調査対象となる魚種な

どの違いがあるため単純比較することは難しいが、魚介類多食のためダイオキシン類摂取量が高いと考えられる。

本結果について、いくつかの課題を挙げる事ができる。一つ目は、実際に摂取しているか不明であるが、スズキ、タチウオ、アナゴ、アンコウ肝などの比較的高濃度のダイオキシン類含有魚介類の質問項目が DHQ に含まれておらず、今回の計算では考慮していない。魚介類摂取量追加調査の必要があるかもしれない。また他の食品(穀物、野菜、肉類、卵など)からのダイオキシン類摂取量を検討する必要がある。

上記の点を考慮すると、今回の検討結果は、過小評価であっても過大評価ではないと考えられる。すなわち、今回対象とした魚介類多食者のダイオキシン摂取量は決して低いものではないと考えられる。また、シミュレーションだけではなく、単純に魚介類中濃度と摂取量を掛け合わせた結果との比較も行うなどにより、摂取量把握に関する方法論的な検討も可能ではないかと考えられる。

D. 結論

1. 鮮魚、健康食品、及び健康茶についてダイオキシン類濃度を調査した。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。
2. 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、TDI の約 75%であった。

E. 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 I., 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)内閣府食品安全委員会 平成 19 年度 食品健康影響評価技術研究 実績報告書:「一般集団およびハイリスク集団への食品中有害物質の暴露評価手法の開発」(主任研究者:香山不二雄)研究期間 18~20 年度

3) 平成 10~12 年度厚生科学研究補助金総合研究報告書:「ダイオキシン類の食品経由総摂取量調査研究」

4) 平成 13~15 年度厚生労働科学研究補助金総合研究報告書:「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」

5) 平成 16~18 年度厚生労働科学研究補助金総合研究報告書:「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」

6) 平成 18 年度厚生労働科学研究補助金研究報告書:「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(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」

7)平成 15 年国民健康・栄養調査報告 厚生労働省

F. 研究業績

1. 論文発表

なし

2. 学会発表

なし

表1 平成19年度 食品中のダイオキシン類の濃度 (pg TEQ/g)

食品	国産/輸入	天然/養殖	ダイオキシン類 (pg TEQ/g)				
			PCDD/Fs	Co-PCBs	Total ¹⁾		
鮮魚	サケ(アキサケ)	国産	天然	0.026	0.095	0.12 (0.10)	
	サケ(アトランティックサーモン)	輸入	養殖	0.035	0.16	0.20 (0.17)	
	サケ(キングサーモン)	輸入	養殖	0.026	0.25	0.27 (0.24)	
	サケ(ギンサケ)	輸入	養殖	0.044	0.12	0.16 (0.15)	
	サケ(シロサケ)	国産	天然	0.046	0.13	0.18 (0.15)	
	サケ(ベニサケ)	輸入	天然	0.20	0.34	0.55 (0.44)	
	サケ(ベニサケ)	輸入	天然	0.084	0.19	0.28 (0.23)	
	トラウトサーモン	輸入	養殖	0.58	2.0	2.6 (2.1)	
	ブリ	国産	天然	0.44	1.0	1.5 (1.3)	
	ブリ	国産	天然	0.40	1.6	2.1 (1.8)	
	ブリ	国産	天然	0.30	0.86	1.2 (1.0)	
	ブリ	国産	天然	2.3	5.7	8.0 (6.9)	
	ブリ	国産	養殖	0.51	1.7	2.2 (2.0)	
	ブリ	国産	養殖	0.83	2.8	3.7 (3.1)	
	マグロ(ホンマグロ)	国産	養殖	0.54	4.9	5.5 (4.2)	
	マグロ(ホンマグロ)	輸入	養殖	0.57	4.7	5.2 (4.2)	
	マグロ(ホンマグロ)	輸入	養殖	0.24	2.5	2.7 (2.2)	
	マグロ(ホンマグロ)	輸入	養殖	0.53	3.7	4.2 (3.5)	
	マグロ(メバチマグロ)	輸入	天然	0.030	0.20	0.23 (0.23)	
	マグロ(メバチマグロ)	国産	天然	0.50	2.9	3.4 (2.9)	
	マグロ(メバチマグロ)	国産	天然	0.35	2.3	2.6 (2.3)	
	マグロ(メバチマグロ)	輸入	天然	0.022	0.30	0.32 (0.31)	
	マダイ	国産	天然	0.83	0.89	1.7 (1.5)	
	マダイ	国産	天然	0.23	0.48	0.71 (0.62)	
	マダイ	国産	天然	0.30	0.41	0.71 (0.59)	
	マダイ	国産	天然	1.2	3.1	4.3 (3.9)	
	マダイ	国産	養殖	0.13	0.42	0.54 (0.46)	
	マダイ	国産	養殖	0.15	0.65	0.80 (0.66)	
	マダイ	国産	養殖	0.067	0.38	0.44 (0.38)	
	マダイ	国産	養殖	0.067	0.43	0.50 (0.42)	
	健康食品	鰹精製魚油 #1	— ²⁾	—	5.0	7.7	13 (11)
		鰹精製魚油 #2	—	—	1.5	3.2	4.7 (4.2)
鮫肝油 #1		—	—	1.0	3.2	4.2 (3.8)	
鮫肝油 #2		国産	—	11	42	53 (41)	
鮫肝油 #3		—	—	1.3	6.1	7.3 (6.9)	
鮫肝油 #4		—	—	0.000040	0.72	0.72 (0.25)	
鮫肝油 #5		—	—	1.8	7.5	9.4 (8.9)	
マンボウ肝油		—	—	1.8	4.9	6.8 (6.0)	
ヤツメウナギ油 #1		—	—	1.2	8.5	9.7 (8.7)	
ヤツメウナギ油 #2	—	—	0.60	1.4	2.0 (1.7)		
嗜好飲料	杜仲茶葉	—	—	0.23	0.075	0.30 (0.27)	
	ドクダミ茶	—	—	0.13	0.021	0.15 (0.13)	
	ハブ茶	—	—	0.00031	0.00023	0.00054 (0.00049)	
	ルイボス茶	輸入	—	0.0000060	0.000060	0.000066 (0.00020)	
	ローズヒップ茶	—	—	0.013	0.00025	0.013 (0.015)	

1)()内の数値はWHO 2005 TEFを使用した場合の値を示す。

2)不明又は該当せず。

表2 鮮魚中のダイオキシン類濃度の概要

食品名	試料数	ダイオキシン類濃度 (pg TEQ/g) ¹⁾			
		平均値	中央値	最小値	最大値
サケ・マス	8	0.55 (0.45)	0.24 (0.20)	0.12 (0.10)	2.6 (2.1)
ブリ	6	3.1 (2.7)	2.2 (1.9)	1.2 (1.0)	8.0 (6.9)
マグロ	8	3.0 (2.5)	3.1 (2.6)	0.23 (0.23)	5.5 (4.2)
マダイ	8	1.2 (1.1)	0.71 (0.61)	0.44 (0.38)	4.3 (3.9)

1)()内の数値はWHO 2005 TEFを使用した場合の値を示す。

表3 魚油を使用した健康食品からのダイオキシン類摂取量¹⁾

製品名	ダイオキシン類摂取量 ²⁾ TDIに占める割合	
	(pg TEQ/day)	(%)
鰯精製魚油 #1	42.5 (36.0)	21 (18)
鰯精製魚油 #2	15.7 (14.0)	8 (7)
鮫肝油 #1	13.1 (11.9)	7 (6)
鮫肝油 #2	126.7 (98.0)	63 (49)
鮫肝油 #3	11.8 (11.1)	6 (6)
鮫肝油 #4	3.1 (1.1)	2 (1)
鮫肝油 #5	16.4 (15.5)	8 (8)
マンボウ肝油	8.2 (7.2)	4 (4)
ヤツメウナギ油 #1	24.3 (21.8)	12 (11)
ヤツメウナギ油 #2	1.9 (1.6)	1 (1)

1)()内の数値はWHO 2005 TEFを使用した場合の値を示す。

2)各製品に記載されている一日摂取量の最大値に基づき算出した。

表 4. 魚介類多食者におけるダイオキシン類摂取量分布推計値[pgTEQ/day]

パーセンタイル	PCDD/Fs 曝露量	Co-PCBs 曝露量	総曝露量
0%	0.08	0.07	1.74
10%	16.69	40.43	63.13
20%	21.67	52.54	80.55
30%	26.07	63.37	95.82
40%	30.45	74.16	110.46
50%	35.17	85.92	126.17
60%	40.62	99.07	143.92
70%	47.28	116.06	166.13
80%	56.71	141.21	197.42
90%	73.58	188.69	254.77
100%	1,806.24	14,745.40	14,761.24

統計量	PCDD/Fs 曝露量	Co-PCBs 曝露量	総曝露量
試行回数	100000	100000	100000
平均値	42.37	110.78	153.15
中央値	35.17	85.92	126.17
最頻値	—	—	—
標準偏差	33.51	136.63	146.27
分散	1,123.23	18,668.25	21,395.13
歪度	9.02	23.90	19.79
尖度	254.38	1,611.71	1,225.63
変動係数	0.79	1.23	0.96
範囲下限	0.08	0.07	1.74
範囲上限	1,806.24	14,745.40	14,761.24
範囲	1,806.17	14,745.33	14,759.50
平均標準誤差	0.11	0.43	0.46

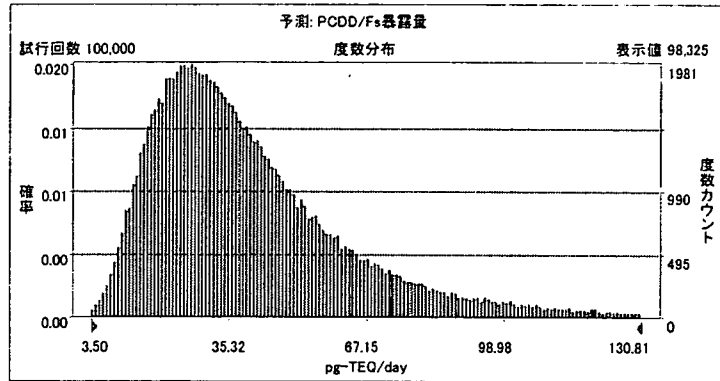


図 1. 魚介類多食者における PCDD/Fs 摂取量推計値の分布

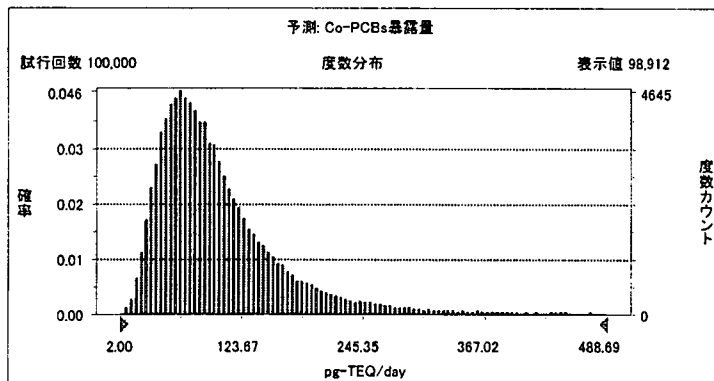


図 2. 魚介類多食者における Co-PCBs 摂取量推計値の分布

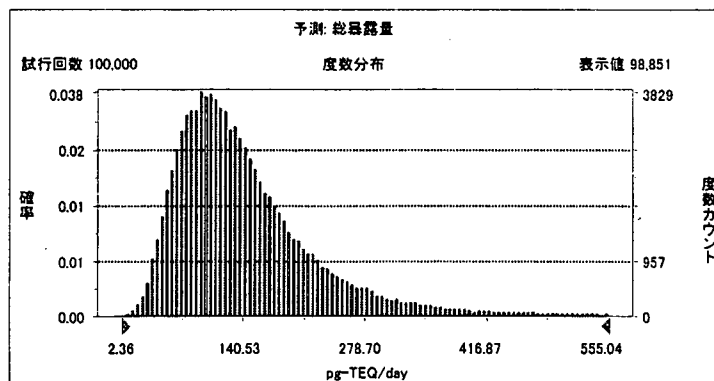


図 3. 魚介類多食者におけるダイオキシン類摂取量推計値の分布

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

1-3. 有機フッ素化合物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
(1-3)有機フッ素化合物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、ペルフルオロオクタン酸(PFOA)、及びペルフルオロオクタンスルホン酸(PFOS)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2地区で調製した。PFOA及びPFOSの分析にはLC/MS/MSを使用し、内標準法により定量した。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。

研究協力者

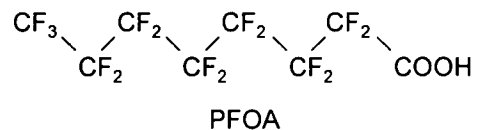
(財)日本食品分析センター

丹野憲二、野村孝一、柳 俊彦、河野洋一、
福沢栄太

国立医薬品食品衛生研究所

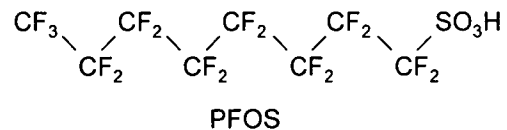
松田りえ子、堤 智昭

し、国民平均の1日摂取量を求めた。分析対象物であるPFOA及びPFOSの構造を下記に示す。



A. 研究目的

ペルフルオロオクタン酸(PFOA)、ペルフルオロオクタンスルホン酸(PFOS)に代表される有機フッ素化合物は、フッ素樹脂、撥水剤などの製造に広く使用されてきた。これらの物質は難分解性で蓄積性が高いため、食事を介して人に暴露する危険性が懸念されている。現在までに、一部の魚介類を中心に汚染調査が行われているが、日本における平均的な食事からの摂取量データは殆どない。そこで、本研究では全国2地区(2機関)で調製したトータルダイエツト調査(TDS)試料についてPFOA及びPFOSを分析



B. 研究方法

1. 試料

TDS試料は、全国2地区の2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。なお、各食品群はテフロンが使用されていない容器(ポリエチレン、ガラス製)に保存した。

13 食品群の内訳は、次のとおりである。

- 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。

2. 試験項目及び検出限界

試験項目は PFOA、及び PFOS の計 2 種である。各化合物の検出限界は次のとおりである。

	検出限界		
	1-3, 5-13 群 (ng/g)	4 群 (ng/g)	14 群 (ng/L)
PFOA	0.5	1	0.5
PFOS	0.5	1	0.5

3. 試験方法

1 から 13 群については 5 g(4 群のみ 2 g)を秤量後、クリーンアップスパイクとして ¹³C-PFOA/PFOS(10 ng)を添加した。2 mol/l 水酸化ナトリウム水溶液(10 ml)を加え、90℃に加熱し 3 時間、アルカリ分解を行った。0.2 mol/l 炭酸緩衝液(pH10)(20 ml)、0.1 mol/l テトラブチルアンモニウム塩(pH10)(5 ml)、及びメチルターシャリーブチルエーテル(30 ml)を加え、振とう抽出(30 min)した。遠心分離後、上層を採取し、下層にメチルターシャリーブチルエーテル(20 ml)を加え振とう抽出後、遠心分離し上層を採取した。上層を合わせ、無水硫酸ナトリウムを加え脱水した。減圧濃縮後、ヘキサンに再溶解し

ムエルトカラム(10 ml)に負荷した。5 min 間放置後、吸引によりヘキサンを除去し、5%含水アセトニトリル(40 ml)で PFOA/PFOS を溶出させた。減圧濃縮後、メタノール(1 ml)に再溶解し、試験溶液とした。

14 群については 0.2 から 1 L を採取し、pH を 6 から 7 であることを確認後、¹³C-PFOA/PFOS(1 ng)を添加した。メタノール(5 ml)及び蒸留水(5 ml)でコンディショニングした Sep-Pak Vac PS2 カラム(500 mg)に試料を通水後、カラムを脱水し、メタノール(4 ml)で PFOA/PFOS を溶出させた。減圧濃縮後、メタノール(0.1 ml)に再溶解し試験溶液とした。

試験溶液(10 μl)を LC/MS/MS により分析した。LC/MS/MS の分析条件は下記の通りである。

LC/MS/MS条件		
HPLC条件		
機種 Alliance2795(Waters)		
カラム		
10及び11群: Atlantis dC18(15 cm×2.1 mm, 3 μm)		
その他の群: Mightysil RP-18MS(15 cm×2.0 mm, 5 μm)		
移動相		
A: 蒸留水		
B: 100 mM 酢酸アンモニウム水溶液		
C: メタノール		
A:B:C = 45:5:60		
A:B:C = 0:5:95(0-5 min)		
A:B:C = 45:5:60(5-10 min)		
注入量		
10 μL		
流速		
0.2 ml/min		
カラムオープン温度		
40℃		
MS条件		
装置 Quattro premier XE(Waters)		
イオン化法		
ESI ネガティブモード		
測定モード		
MRM		
キャピラリー電圧		
3 kV		
温度		
イオン源温度	110℃	
デソルベーション温度	450℃	
流量		
コーンガス流量	N ₂ , 50 L/hr	
デソルベーションガス流量	N ₂ , 800 L/hr	
コーン電圧		
for PFOS	55 V	
for PFOA	25 V	
コリジョンエネルギー		
for PFOS	45 eV	
for PFOA	15 eV	
モニターイオン		
	定量(m/z)	確認(m/z)
PFOS	499 → 80	499 → 99
PFOA	413 → 369	413 → 169
¹³ C-PFOS	503 → 80	503 → 99
¹³ C-PFOA	417 → 372	417 → 169

*なお、本条件は使用した装置固有のものである。

PFOA 及び PFOS は内標準法により定量した。クリーンアップスパイクの回収率は 43.2～102%であった。

C. 研究結果及び考察

全国2カ所(関東及び関西地区)において調製した TDS 試料を分析し、PFOA 及び PFOS の摂取量を算出した。表 1 には各地区で調製した TDS 試料(14 群)の PFOA 及び PFOS 分析結果を示した。両地区ともほとんどの食品群で未検出であったが、PFOA が 14 群(飲料水)、PFOS が 10 群(魚介類)及び 14 群(飲料水)で検出された。10 群で検出された PFOS は、検出下限値をやや上回る程度の濃度であった。

表 2 には、PFOA 及び PFOS の一日摂取量を算出した。なお、分析値が検出下限以下の場合にはゼロとして計算した(以下、ND=0 と略す)。調査した2地区の摂取量に大きな差はなく、平均値は PFOA で 2.9 ng/day、PFOS で 49.1 ng/day であった。体重(kg)あたりの 1 日摂取量に換算すると、平均値は PFOA で 0.06 ng/kgbw/day、PFOS で 0.98 ng/kgbw/day であった。PFOS の摂取量は PFOA と比較し、約 17 倍高い値であったが、これは PFOS が両地区の 10 群において僅かに検出されたためである。なお、ほとんどの食品群で PFOA 及び PFOS が未検出であるため、ND=0 で計算した摂取量は大幅に過小評価されている可能性が高い。

表 3 には一日摂取量の参考値として、分析値が検出下限以下の場合に検出限界の 1/2 を当てはめて計算した(以下、ND=LOD/2 と略す)。2地区の平均値は PFOA で 577.4 ng/day (11.5 ng/kgbw/day)、PFOS で 603.6 ng/day (12.1 ng/kgbw/day)であった。ND=LOD/2 の場合は、1 群(米、米加工品)及び 9 群(酒類、嗜好飲料)からの摂取量が高くなった。これらの食品群では PFOA 及び PFOS は検出されなかったが、食品群の摂取量が多いため、ND=LOD/2 として計算した場合に摂取量が多くなった。

本研究で得られた結果を、諸外国の調査結果と比較した。イギリスで行われた TDS では一日摂取量として、PFOA について 100 ng/kgbw/day、PFOS については 70 ng/kgbw/day の値が報告

されている¹⁾。これらの摂取量は ND=LOD とした場合の値であり、さらに検出下限値も異なるため比較には注意が必要であるが、本研究で得られた摂取量(ND=LOD/2)は、PFOA で約 6 分の 1、PFOS で約 8 分の 1 の値であった。イギリスの調査でも多くの食品群で PFOA 及び PFOS は未検出であった。

カナダの TDS では一日摂取量として、PFOA で 70 ng/day、PFOS で 110 ng/day の値が報告されている(いずれも ND=0 の場合)²⁾。本研究の得られた摂取量(ND=0)は、PFOA で約 10 分の 1、PFOS で約 半分 の値であった。

また、スペインで行われた摂取量調査では、PFOS の一日摂取量として 62.5 ng/day (ND=0) 及び 74.2 ng/day (ND=LOD/2) が報告されている³⁾。本研究で得られた PFOS の摂取量は、ND=0 の場合は同程度、ND=LOD/2 の場合は約 10 倍高い値であった。スペインの調査では PFOS の食品中の検出下限が 0.014～0.654 ng/g であり、本研究の検出下限よりも高いため、魚介類を中心に多くの食品で PFOS が検出されている。

現在、PFOA 及び PFOS については食品中の残留基準や耐容一日摂取量が設定されていない。そこで、毒性試験データから本研究で得られた 1 日摂取量のリスク評価を試みた。種々の毒性試験データを基に、健康リスクの初期評価として経口暴露では PFOA 及び PFOS 共に 0.03 mg/kg/day が無毒性量等として提案されている^{4,5)}。本研究で得られた ND=0 の場合の摂取量は過小評価されている可能性が高いため、ここでは ND=LOD/2 の場合の摂取量を用いてリスク評価を試みた。ND=LOD/2 の場合は、一日摂取量は PFOA で 11.5 ng/kgbw/day、PFOS では 12.1 ng/kgbw/day であった。これらの値と比較すると無毒性量等は PFOA で 2.6×10^3 、PFOS で 2.5×10^3 倍大きい値であった。これらの結果より、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い。

本化合物は肝臓及び血液に蓄積される傾向がある。魚、牛、鶏等の肝臓について本化合物が高濃度に検出されている報告がある^{6,7)}。これらの知見から、一部の食品(肝臓や肝臓を含む食品等)では本化合物に高濃度に汚染されて可

能性が高い。また、本化合物は撥油加工の紙製食品容器などに使われる場合があり、ファーストフードなどでは特に容器包装からの汚染が懸念されている。しかしながら、日本ではこれらの食品の汚染実態調が不足しており、今後、調査を実施することが望ましい。

D. 結論

全国2地区2機関で調製したTDS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。

E. 参考文献

- 1) U.K. Food Standards Agency. Fluorinated Chemicals: U.K. Dietary Intakes. Food Survey Information Sheet 11/06 (2006); <http://www.food.gov.uk/science/surveillance/fsisbranch2006/fsis1106>.
- 2) Tittlemier SA, Pepper K, Seymour C, Moisey J, Bronson R, Cao XL, Dabeka RW. Dietary exposure of Canadians to perfluorinated carboxylates and perfluorooctane sulfonate via consumption of meat, fish, fast foods, and food items prepared in their packaging. *J Agric Food Chem.*, 55 (2007) 3203-3210.
- 3) Ericson I, Marti-Cid R, Nadal M, Van Bavel B, Lindström G, Domingo JL. Human exposure to perfluorinated chemicals through the diet: intake of perfluorinated compounds in foods from the Catalan (Spain) market. *J Agric Food Chem.*, 56

(2008) 1787-1794.

- 4) 環境省環境保健部環境リスク評価室: 化学物質の環境リスク評価 第6巻 [18] ペルフルオロオクタン酸及びその塩 (平成20年5月). <http://www.env.go.jp/chemi/report/h19-03/index.html>
- 5) 環境省環境保健部環境リスク評価室: 化学物質の環境リスク評価 第6巻 [19] ペルフルオロオクタンスルホン酸及びその塩 (平成20年5月). <http://www.env.go.jp/chemi/report/h19-03/index.html>
- 6) Taniyasu S, Kannan K, Horii Y, Hanari N, Yamashita N. A survey of perfluorooctane sulfonate and related perfluorinated organic compounds in water, fish, birds, and humans from Japan. *Environ Sci Technol.* 37 (2003) 2634-2639
- 7) Guruge K, Manage PM, Miyazaki S, Yamanaka N, Taniyasu S, Hanari N, Yamashita N. Species-specific accumulation of perfluorinated compounds in farm animals from Japan. *Organohalogen Compounds* 67 (2005) 823-826.

F. 研究発表

1. 論文発表
なし
2. 学会発表
なし

【謝辞】

TDS試料の調製にご協力いただいた2地区2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 トータルダイエット試料の有機フッ素化合物(PFOA/PFOS)分析結果

食品群	試料中の 検出下限	関東地区		関西地区	
		PFOA	PFOS	PFOA	PFOS
1群(米、米加工品)	0.5	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
2群(米以外の穀類、種実類、芋類)	0.5	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
3群(砂糖類、菓子類)	0.5	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
4群(油脂類)	1	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
5群(豆類、豆加工品)	0.5	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
6群(果実、果汁)	0.5	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
7群(緑黄色野菜)	0.5	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
8群(他の野菜類、キノコ類、海草類)	0.5	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
9群(酒類、嗜好飲料)	0.5	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
10群(魚介類)	0.5	N.D.	0.6	N.D.	0.6
11群(肉類、卵類)	0.5	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
12群(乳、乳製品)	0.5	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
13群(調味料)	0.5	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
14群(飲料水)	0.5	4.3	8	19	2.1

単位:1~13群はng/g、14群はng/L