

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 20 年度 総括・分担研究報告書

研究代表者

国立医薬品食品衛生研究所 食品部 堤 智昭

研究分担者

国立医薬品食品衛生研究所 食品部 松田 りえ子

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

松田 りえ子

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及び有機フッ素化合物の個別食品汚染調査 .....	21
--	----

### 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 .....	33
--	----

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 .....	43
-------------------------------------	----

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 .....	55
---	----

2-4. 食品中ペンゾトリアゾール類の迅速測定法の開発 .....	69
-----------------------------------	----

### 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 .....

中川 礼子

## III. 研究成果の刊行に関する一覧表 .....

123

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

研究代表者 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

研究代表者 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)トータルダイエッ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ット試料を分析した。その結果、食事経由ダイオキシン類一日摂取量の全国平均が0.92 pg TEQ/kg bw/dayであり、耐容一日摂取量の約1/4であることを明らかにした。

(1-2)個別食品の汚染実態調査では、魚介類、食肉、チーズ、卵、健康食品の計 45 試料について、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、肝臓を原料とする食品であるイカ塩辛および蟹みそ、牛・鶏肝臓などの計 21 試料について、有機フッ素化合物濃度(PFOA 及び PFOS)を調査した。さらに、蓄積してきた個別食品汚染データを用いて一般人における塩素化ダイオキシン類摂取量をモンテカルロ・シミュレーションにより推定した。その結果、摂取量の平均値は 51.45 pg TEQ/day (1.03 pg TEQ/kg bw/day)と推計された。

(2-1)芳香族炭化水素レセプター(AhR)レポーター遺伝子アッセイの高感度化を検討した。レポーターベクターには高感度化を図るため、ダイオキシン応答配列(DRE)を多く含むベクターを使用した。ルシフェラーゼレポーターベクターである pGL7.3(12DRE を含む)を遺伝子導入した安定発現細胞株では、低濃度の 2,3,7,8-TCDD (10 pM)により誘導されるルシフェラーゼ活性が、pGL7.1(4DRE を含む)を導入した細胞株と比較し、2倍以上に上昇した。また、緑色蛍光タンパク質レポーターベクターである pZs7.5(20DRE を含む)を導入した細胞株では、pZs7.1(4DRE を含む)を導入した細胞株と比較し、2,3,7,8-TCDD(10 pM)に対する蛍光強度が約 4 倍上昇した。

(2-2)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。プロポリス抽出物含有試料ではヘキササン分画物、他の試料では酢酸エチル分画物において、いずれも高濃度領域(1~10 mg/mL)で 2,3,7,8-TCDD と同等の AhR 活性が認められた。

(2-3)食品試料中ダイオキシン類及びポリ塩化ビフェニル(PCBs)の一斉迅速分析法の開発を行った。本分析法は、高速溶媒抽出法、カラムクロマトグラフィー及びゲル浸透クロマトグラフィーによる試料精製、高分解能ガスクロマトグラフ/質量分析計による異性体別定量の各工程から構成される。魚介類試料を用いて全試験操作を試行したところ、PCBs 内部標準物質の添加回収率は 40~120%となり、良好であった。また繰り返し試験による定量値と回収率の再現性も良好であった。

(2-4)魚介類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とし、脂肪のアルカリ分解方法として 19 年度に提案した抽出液 KOH 分解法について、魚種による分解条件を決定した。また、分解液中の分析妨害物の除去方法として 4 種類のカートリッジ精製方法を検討し、NH<sub>2</sub> カートリッジを用いる精製の条件を決定した。さらに、LC/MS/MS 分析条件を決定し、実サンプルでの検出下限濃度と定量下限濃度を算出した。

(3)臭素化ダイオキシン類及びその関連化合物として、臭素化ジフェニルエーテル類(PBDEs)、臭素化ビフェニル(PBBs)、コプラナー塩素・臭素化ビフェニル(Co-PXBs)、ヘキサブロモシクロデカン(HBCDs)及び4 臭素化ビスフェノール A (TBBPA)について、魚介類の汚染調査及び国内2地域における摂取量調査(トータルダイエツト調査)を行った。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はすべての魚から検出され、PBBsでは7件中5件の魚から検出された。Co-PXBsは検出されなかった。HBCDs及びTBBPAは16件中13件から検出された。トータルダイエツト試料を分析した結果、一日摂取量は臭素系ダイオキシン類が平均0.000073 pg TEQ/kg bw/day、PBDEsが平均2.98 ng/kg bw/day、PBBsが平均0.00546 ng/kg bw/dayであった(ND=0として算出)。Co-PXBsはいずれの試料からも検出されなかった。HBCDsの摂取量は2.1 ng/kgbw/day(ND=0)、TBBPAの平均摂取量は1.7 ng/kg bw/day(ND=0)となった。

## 研究分担者

松田りえ子 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

## 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。

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。

(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及び有機フッ素化合物の個別食品汚染調査

(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の測定方法暫定ガイドライン」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及び有機フッ素化合物の個別食品汚染調査

魚介類(20 試料)、食肉(9 試料)、チーズ(3 試料)、卵(3 試料)、魚油及び卵黄を使用した健康食品(10 製品)について、「食品中のダイオキシン類の測定方法暫定ガイドライン」に従って塩素化ダイオキシン類を分析した。また、魚介の内臓を原料とする食品としてイカ塩辛(4 試料)および蟹みそ(4 試料)、牛肝臓(4 試料)、鶏肝臓(4 試料)、魚肝油を原料とする健康食品(5 試料)中の有機フッ素化合物濃度(PFOA 及び PFOS)を調査した。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。

さらに、国民健康・栄養調査結果を用い、一般的な国民の魚介類からのダイオキシン摂取量分布をモンテカルロ・シミュレーションにより推定した。食品の摂取量は、国民健康・栄養調査結果を食品別に集計した結果(平成 16-18 年度の平均)を用いた。ダイオキシン類濃度データは、平成 10~19 年度に行われた魚介類の個別食品汚染調査結果中の魚介類データを用いた。

#### (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。高感度化を図るため、ダイオキシン類応答性 DNA 領域(DRE)を多く含むベクターを用いて、

安定発現細胞株を作製した。レポーター遺伝子にホタルルシフェラーゼを用いたベクターとして pGL7.1(4DRE を含む)、pGL7.3(12DRE を含む)、又は pGL7.5(20DRE を含む)をマウス培養細胞株(Hepa1c1c7)に遺伝子導入した。さらに、より迅速なアッセイの開発を目的に、レポーター遺伝子に緑色蛍光タンパク質(サンゴ由来の ZsGreen1)を用いたベクターとして、pZs7.1(4DRE を含む)、pZs7.3(12DRE を含む)、又は pZs7.5(20DRE を含む)をラット培養細胞株(H4IIE)に遺伝子導入した。2,3,7,8-tetrachlorodibenzo-*p*-dioxin(TCDD)に対する応答性を指標に安定発現細胞株のスクリーニングを行い、最終的なクローンの TCDD 応答性を解析した。

#### (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。19 年度の調査で AhR 活性が認められた天然物濃縮加工食品(大豆、ゴマ、プロポリス抽出物を含有する 8 試料)について、含有 AhR 活性物質を検討するために各分画物(ヘキサン、酢酸エチル、水分画)を調製し、それらの AhR 活性を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

食品試料中ダイオキシン類及び PCBs の一斉迅速分析法の開発を行った。本分析法は、高速溶媒抽出法(ASE)による自動迅速抽出、カラムクロマトグラフィー及びゲル浸透クロマトグラフィー(GPC)による試料精製、高分解能ガスクロマトグラフ/質量分析計(HRGC/HRMS)による異性体別定量の各工程から構成される。ASE で調製した粉末ミルクの抽出液を用い、精製工程の条件を検討した。また HRGC/HRMS の測定条件の最適化を行った。さらに実際の魚介類試料を用いて全試験操作を試行し、目的物質の定量値と標準品添加回収率を求め、良好な結果が得ら

れるか確認した。

#### (2-4) 食品中ベンゾトリアゾール類の迅速測定法の開発

平成 19 年度の研究より魚種を増やし抽出液 KOH 分解法を行い、方法の妥当性の判定を行った後、文献から脂肪含有率で魚種を2グループに分け、各グループについて分解条件を決定した。次に、NH<sub>2</sub>カートリッジ、PS-2カートリッジ、及びフロリジルとシリカゲルカートリッジを組み合わせて、溶出液の UV-HPLC での妨害ピークの数と大きさを比較し、精製方法を選定した。さらに、標準液分析による感度の比較からイオン化法と移動相の選択を行い、実サンプルのマトリクス効果などを確認することによって、LC/MS/MS の分析条件を決定した。

#### (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

魚介類の汚染調査には、九州、中部、中国・四国地方で購入した魚介類を用いた。ヘキサブロモクロドデカン(HBCDs)については東北地方で捕獲された魚 4 件についても分析した。摂取量調査には、関東(埼玉)及び関西(大阪)の機関で調製したマーケットバスケット試料の第 1 群から 13 群の食品群別試料を用いた。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)、臭素化ビフェニル(PBBs)、コブラナー塩素・臭素化ビフェニル(Co-PXBs)の分析は高速溶媒抽出を行い、硫酸処理、シリカゲルカラムで精製した後、フロリジルカラムで分画(第一画分:PBDEs、PBBs 及び Co-PXBs 画分、第 2 画分:PBDD/DFs、MoBrPCDD/DFs)した後、第 1 画分は DMSO 分配で、第 2 画分は活性炭カラムで精製を行い、HRGC/HRMS で測定した。HBCDs は、メタノール、10%ジクロロメタン/ヘキサン混液、10%ジクロロメタン/ヘキサンで抽出した後、5% NaCl 水溶液で洗浄した。抽出液を GPC で精製し、さらに 44%硫酸シリカゲルクロマトグラフィーで精製した後、LC/MS/MS で測定した。テトラブロモビスフェノール A(TBBPA)はメタノールを加えて高速ホモジナイザー抽出し、ヘキサン分配で脂肪分を除去した後、5%NaCl 水溶液を加

えて、ジクロロメタンで抽出した。脱水し、乾固させた後、ジエチル硫酸で誘導体化した。誘導体化した試料をアルカリ分解した後、精製水を加えて、ヘキサンで抽出した。さらにフロリジルカラムで精製した後、GC/MS で分析した。

### 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ット調査

ダイオキシン類の国民平均一日摂取量は 0.92 ± 0.42 pg TEQ/kgbw/day(範囲 0.13~1.90 pg TEQ/kgbw/day)であった。平均摂取量は日本の耐容一日摂取量(TDI)である 4 pg TEQ/kgbw/day の約 1/4 であった。また、本年度の平均摂取量は、平成 10 年度以降(平成 10~20 年度)の調査結果の中で 2 番目に低い値であった。ダイオキシン類摂取量に対する寄与率が高い食品群は、10 群 94.3%、11 群 4.3%、12 群 0.8% であり、これら 3 群で全体の 99.5%を占めた。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 6 倍程度の差が認められた。

#### (1-2) 塩素化ダイオキシン類及び有機フッ素化合物の個別食品汚染調査

鮮魚中のダイオキシン類濃度の平均値は、サンマが 0.16 pg TEQ/g、カツオが 0.30 pg TEQ/g、イカが 0.092 pg TEQ/g、タコが 0.15 pg TEQ/g であった。肉類中のダイオキシン類濃度平均値は魚介より 2 オーダー低いレベルであった。チーズ及び卵は、魚介と肉類の中間のレベルであった。魚油を使用した健康食品では、0.33~5.5 pg TEQ/g のダイオキシン類が検出された。卵黄を原材料とする健康食品には、0.0027~0.12 pg TEQ/g のダイオキシン類が検出され、魚油を原料とする製品より低い結果となった。

有機フッ素化合物は全ての蟹みそから検出され、2 試料から 0.4~0.8 ng/g の PFOA が、4 試料から 0.8~2.2 ng/g の PFOS が検出された。牛肝臓では 1 試料から 0.2 ng/g の PFOA が、2 試料から 0.2~0.9 ng/g の PFOS が検出された。鶏肝臓では 1 試料から 0.3 ng/g の PFOA が、2 試

料から 0.3 ng/g の PFOS が検出された。イカ塩辛及び健康食品からは有機フッ素化合物は検出されなかった。

現在までに蓄積されている個別食品の塩素化ダイオキシン類汚染データ(平成 10~19 年度)を基に、一般人におけるダイオキシン類摂取量をモンテカルロ・シミュレーションにより推定した。その結果、摂取量の平均値は 51.45 pg TEQ/day (1.03 pg TEQ/kg bw/day)と推計され、トータルダイエツト試料による結果と同程度となった。摂取量の内訳は平均 PCDD/Fs 摂取量が 18.20 pg TEQ/day、平均 Co-PCBs 摂取量が 36.43 pg TEQ/day と推定された。摂取量の 90 パーセンタイル値は 129.6 pg TEQ/day と推定された。

#### (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 を多く含む pGL7.3 あるいは pGL7.5 を遺伝子導入した細胞株では、低濃度の TCDD (10 pM) により誘導されるルシフェラーゼ活性が、pGL7.1 を導入した細胞株と比較し、2 倍以上に上昇した。また、ルシフェラーゼ活性誘導倍率(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、pGL7.3 を遺伝子導入した細胞株が最も高い倍率を示した。

緑色蛍光タンパク質をレポーター遺伝子に用いたベクターとして、pZs7.1 (4DRE を含む)、pZs7.3 (12DRE を含む)、又は pZs7.5 (20DRE を含む)を作製し、各ベクターを培養細胞株 (H4IIE) に遺伝子導入した。DRE を最も多く含む pZs7.5 を導入した細胞株では、低濃度の TCDD (10 pM) に対する蛍光強度が、pZs7.1 を導入した細胞株と比較し約 4 倍上昇した。また、GFP 誘導倍率についても pZs7.1 を導入した細胞株と比較し、3 倍程度高い値が得られた。

本レポータージーンアッセイは高感度であるため、食品などを対象にしたダイオキシン類のスクリーニング法として期待できる。

#### (2-2) 食品試料の AhR 結合活性の調査

プロポリス抽出物含有試料ではヘキサシクロヘキサン分画物、他の試料では酢酸エチル分画物において、いずれも高濃度領域 (1~10 mg/mL) で TCDD

と同等の AhR 活性が認められた。本アッセイに影響を及ぼす化合物としてイソフラボン類があげられるため、各試料中のイソフラボン類 (daidzein、glycitein、genistein、daidzin、glycitin、genistin) の分布を HPLC により検討した。その結果、いずれの試料においてもイソフラボン類の検出が認められ、これらを含む特に大豆関連製品において本バイオアッセイを使用する際には、その影響も考慮したデータ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

HRGC/HRMS による PCBs 全異性体の測定条件を検討した。GC オープンの初期温度を 100 °C に設定した場合、ピーク割れの無い良好なクロマトグラムを得ることができた。さらに測定条件を最適化し、約 30 分の計測時間で全ての PCBs 異性体を測定できる条件を確立した。

精製方法の検討では、多層シリカゲルカラム精製における PCBs の吸着・損失を防ぐために充填剤の少量化を検討した。その結果、充填剤の量をガイドライン記載の重量に対して 1/3 とし、溶出溶媒を 10%ジクロロメタン含有ヘキサンとすることで良好な精製効果と回収率を得た。GPC 精製における条件検討では、粉末ミルク由来抽出物を装置に注入し、注入開始から 22 分までの溶出液を捨て、22~32 分までを PCBs 測定試料として回収し測定した。その結果、PCBs の 1~10 塩素化物について妨害物の影響の無い良好なクロマトグラムが得られた。

魚介類試料を用いて全試験操作を試行したところ、PCB 内部標準物質の 26 化合物の添加回収率は総じて 40~120%となり、良好であった。また繰り返し試験による定量値と回収率の再現性も良好であった。

#### (2-4) 食品中ベンゾトリアゾール類の迅速測定法の開発

抽出液の KOH 分解条件: 反応温度 40°C、抽出液濃縮液量/魚=5 mL/g-wet、KOH 添加量/魚=5 mmol/g-wet の条件で、反応時間 1 時間では脂肪含有率 21%で分解十分、33%で分解不十分、2 時間では脂肪含有率 50%でも分解十分で



あったため、脂質含有率 20%未満と考えられる魚種については、前記条件で 1 時間、20%以上となり得る特定の魚種については 2 時間とすることとした。

KOH 分解液の精製方法: NH<sub>2</sub> と PS-2 カートリッジの溶出液は、UV-HPLC クロマトグラムは同等であったが、転溶時析出物が PS-2 の方が多かった。NH<sub>2</sub> の後、さらにフロリジルもしくはシリカゲルカートリッジを通してほとんど効果がなくなったことから、精製は NH<sub>2</sub> カートリッジのみで行うこととした。

LC/MS/MS 分析条件: 標準液分析では、ESI ポジティブ法(移動相:メタノール/5 mM 酢酸アンモニウム溶液 99/1)の方が APCI ポジティブ法(移動相:メタノール/水 99/1)より感度が高かったが、前者では実サンプルで共存物によるマトリックス効果が大きく、実用困難であった。一方、後者ではマトリックス効果が小さく、実用可能であったので、検出下限濃度と定量下限濃度を明らかにした。

### (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

魚介類の調査結果は臭素系ダイオキシン類の分析では 7 検体中 1 検体から 4 臭素化体が低濃度で検出された。PBDEs は全ての魚介類試料から検出された(最高値は 0.818 ng/g ww)。PBBs は、7 検体中 5 検体から検出された(最高値は 2.24 pg/g ww)。Co-PXBs はいずれの魚介類からも検出されなかった。検出された臭素系ダイオキシン類濃度は 0.09 pg/g ww (0.009 pgTEQ/g ww)と極めて低く、摂取しても問題がないと考えられた。ΣPBDEs 及び ΣPBBs 濃度は脂肪含量が比較的高い魚で高い傾向であった。HBCDs は 16 検体中 13 検体で検出された(最高値は 36.9 ng/g)。HBCDs 異性体では α-HBCD が高濃度で検出される場合が多く、ついで γ-HBCD であり、β-HBCD はほとんど検出されなかった。TBBPA は 13 検体で検出された(最高値は 0.31 ng/g)。HBCDs は脂肪含量が多いほど濃度が高い傾向がみられたが、TBBPA に明瞭な相関関係は認められなかった。

摂取量調査では、臭素系ダイオキシン類の一

日摂取量は、ND=0 とした場合は平均 0.00073 pgTEQ/kg bw/day、ND=1/2LOD とした場合は平均 1.59 pgTEQ/kg bw/day であった。これらの結果より、塩素化ダイオキシン類の摂取量に、臭素系ダイオキシン類の摂取量を足し合わせた場合も、我が国の TDI の 4 pg TEQ/kg bw/day を下回ると推察された。PBDEs の一日摂取量は平均 2.98 ng/kg bw/day(ND=0)、平均 3.03 ng/kg bw/day (ND=1/2LOD)であった。現在報告されている MRL(最小リスクレベル)や LOAEL(最小毒性発現量)よりも極めて低いレベルであった。PBBs の一日摂取量は平均 0.00546 ng/kg bw/day (ND=0)、平均 0.0620 ng/kg bw/day (ND=1/2LOD)であった。PBBs についても現在の一日摂取量は極めて低いと考えられた。Co-PXBs は検出されなかったため、一日摂取量は ND=0 とした場合は 0 であった。ND=1/2LOD とした場合は平均 0.24 pg TEQ/kg bw/day(暫定的に Co-PCBs に定められた TEF を用いた場合)となった。

HBCDs の一日摂取量は平均 2.1 ng/kg bw/day (ND=0)、3.2 ng/kg bw/day (ND=1/2LOD)と計算された。今回の調査結果は以前の結果(平成 18 年度)とほぼ同程度の値であった。TBBPA の一日摂取量は、平均 1.7 ng/kg bw/day (ND=0)、1.8 ng/kg bw/day (ND=1/2LOD)と計算され、以前の結果(平成 18 年度)の倍に相当した。地域や年度、試料調整時に選択した食品種の差異もあり、ある程度の期間観察する必要がある。HBCDs、TBBPA のいずれも現在報告されている NOAEL(無毒性量)と比較すると極めて低いが、摂取量の推移には今後も注意する必要がある。

## 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、 $0.92 \pm 0.42$  pg TEQ/kgbw/day(範囲 0.13~1.90 pg TEQ/kgbw/day)であり、TDI を下回っていた。
2. 魚介類、食肉、チーズ、卵、魚油及び卵黄を使用した健康食品について、塩素化ダイオキシン

類濃度を調査した。ダイオキシン類汚染濃度は過去の調査と比較すると、比較的低いレベルであった。

3. 食品試料 21 種類中の有機フッ素化合物濃度を調査した。蟹みそ 4 試料中全試料から有機フッ素化合物が検出された。牛肝臓では 4 試料中 2 試料から、鶏肝臓では 4 試料中 1 試料から有機フッ素化合物が検出された。イカ塩辛 4 試料及び鮫肝油 5 試料からは有機フッ素化合物は検出されなかった。

4. 一般人におけるダイオキシン類摂取量をモンテカルロ・シミュレーションにより推定した結果、摂取量の平均値は 51.45 pg TEQ/day (1.03 pg TEQ/kg bw/day) と推計された。

5. DRE を多く含むレポーターベクターを遺伝子導入し、TCDD に高応答性を有するレポータージーンアッセイを開発した。レポーター遺伝子にルシフェラーゼを使用したアッセイの他、より簡便な方法として緑色蛍光タンパク質を使用したレポータージーンアッセイも開発した。

6. 天然物濃縮加工食品の分画物を調製し、AhR 活性を評価した結果、プロポリス抽出物含有試料ではヘキサシクロ分画物、他の試料においては酢酸エチル分画物のいずれも高濃度領域で、TCDD と同等の AhR 活性を示した。イソフラボン類の影響が示唆されるため、逆相 HPLC によるイソフラボン類の分布を検討したところ、プロポリス抽出物以外の製品においてそれらの検出が認められた。

7. 本分析方法によって魚介類から調製した測定試料を HRGC/HRMS で分析したところ、良好なクロマトグラムが得られ、また全試験操作における PCBs の標準品添加回収率と定量値の再現性は良好であった。このことから食品中のダイオキシン類・PCBs の迅速一斉分析法として、ASE の応用が可能と考えられた。

8. 新規に提案した抽出液の KOH による脂肪等分解法に関して、魚種を 2 つに分け、それぞれに適した分解条件を決定した。また、KOH 分解液の精製方法として 4 種類のカートリッジ精製方法を検討し、NH<sub>2</sub> カートリッジを用いる精製の条件を決定した。さらに、LC/MS/MS 分析条

件を決定し、実サンプルでの検出下限濃度と定量下限濃度を算出した。

9. 魚試料の汚染調査では、1 検体から 4 臭素化ダイオキシンが微量に検出された (0.09 pg/g ww)。PBDEs ではすべての魚から検出され (最高値は 0.818 ng/g ww)、PBBs では 7 検体中 5 検体の魚から検出された (最高値は 2.24 pg/g ww)。Co-PXBs はいずれの異性体も検出されなかった。HBCDs については汎用性の高い食品試料の分析法を検討・開発し、その方法を用いて魚試料の汚染調査を実施した結果、16 検体中 12 検体から HBCDs を検出した (最高値は 36.9 ng/g)。一方 TBBPA は 13 検体で検出され、最高値は 0.31 ng/g であり、総じて HBCDs に比し、1-2 桁低汚染であった。

国内 2 地域の摂取量調査の結果、一日摂取量は臭素系ダイオキシン類が平均 0.000073 pgTEQ/kg bw/day (ND=0)、PBDEs が平均 3.23 ng/kg bw/day (ND=0)、PBBs が平均 0.00547 ng/kg bw/day (ND=0) であった。Co-PXBs は 2 地域ともいずれの食品群別試料からも検出されなかった。HBCDs は平均 2.1 ng/kg bw/day (ND=0)、TBBPA は平均 1.7 ng/kg bw/day (ND=0) であった。

## E. 健康危険情報

なし

## F. 研究発表

### 1. 論文発表

1) Tsutsumi T, Amakura Y, Ashieda K, Okuyama A, Tanioka Y, Sakata K, Kobayashi Y, Sasaki K, Maitani T. PCB 118 and aryl hydrocarbon receptor immunoassays for screening dioxins in retail fish. *J. Agric. Food Chem.* 2008; 56: 2867-2874.

2) Tsutsumi T, Miyoshi N, Sasaki K, Maitani T. Biosensor immunoassay for the screening of dioxin-like polychlorinated biphenyls in retail fish. *Anal. Chim. Acta.* 2008; 617: 177-183.

- 3) Tsutsumi T, Amakura Y, Yanagi T, Kono Y, Nakamura M, Nomura T, Sasaki K, Maitani T, Matsuda R. Dietary exposure to dioxins in Japan: Nationwide total diet study 2002-2006. *Organohalogen Compounds* 2008; 70: 2313-2316.
- 4) Nakagawa R, Murata S, Ashizuka Y, Hori T, Yasutake D, Ujii A, Sasaki K, Tsutsumi T. Hexabromo-cyclododecane in marine products collected from four regions of Japan. *Organohalogen Compounds* 2008; 70: 1900-1903.
- 5) Amakura Y, Tsutsumi T, Sasaki K, Nakamura M, Yoshida T, Maitani T. Influence of food polyphenols on aryl hydrocarbon receptor-signaling pathway estimated by in vitro bioassay. *Phytochemistry* 2008; 69: 3117-3130.
- 6) Amakura Y, Tsutsumi T, Tanno K, Nomura K, Yanagi T, Kono Y, Yoshimura M, Maitani T, Matsuda R, Yoshida T. Dioxin concentrations in commercial health tea materials in Japan. *J. Health Sci.* 2009; 55: 290-293.

## 2. 学会発表

- 1) 中川礼子, 村田さつき, 芦塚由紀, 安武大輔, 堀 就英, 氏家愛子, 堤 智昭: 国内4地域で採取された魚介食品におけるヘキサブロモシクロドデカンの汚染について. 第17回環境化学討論会(2008.6).
- 2) 堤 智昭, 天倉吉章, 柳 俊彦, 中村宗知, 河野洋一, 野村孝一, 堀 就英, 飛石和大, 芦塚由紀, 中川礼子, 飯田隆雄, 佐々木久美子,

豊田正武, 米谷民雄, 松田りえ子: 日本における市販食品のダイオキシン類汚染実態 ~厚生労働科学研究による調査結果のまとめ~. 第45回全国衛生化学技術協議会年会(2008.11).

- 3) 芦塚由紀, 安武大輔, 中川礼子, 村田さつき, 堀 就英, 堤 智昭: 魚介類中の臭素化ダイオキシン類及びその関連化合物の分析. 第45回全国衛生化学技術協議会年会(2008.11).
- 4) 堤 智昭, 石塚菜穂子, 松田りえ子, Michael S. Denison: ダイオキシン類に対する高感度 CALUX バイオアッセイの開発 -ダイオキシン類応答性領域を多数含むレポーターベクターを利用したアプローチ-. 第11回環境ホルモン学会(2008.12)
- 5) 天倉吉章, 堤 智昭, 中村昌文, 好村守生, 米谷民雄, 吉田隆志: 天然物濃縮加工食品の AhR 結合活性について. 日本生薬学会第55年会(2008.9).
- 6) 堀 就英, 安武大輔, 中川礼子, 堤 智昭: 食品中ダイオキシン類・PCBs の一斉迅速分析法の検討 -市販内部標準製品中の不純物の同定-. 第45回全国衛生化学技術協議会年会(2008.11).

## 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

研究分担者 松田 りえ子

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)  
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 松田りえ子 国立医薬品食品衛生研究所

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(TDS)試料を用いて、ダイオキシン類(PCDD/P CDFs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10-12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。なお、本年度から毒性等価係数(TEF)にはWHO-TEF(2005)を使用した。その結果、ダイオキシン類の国民平均1日摂取量は $0.92 \pm 0.42$  pgTEQ/kgbw/day(範囲0.13~1.90 pgTEQ/kgbw/day)であった。これは、平成19年度の調査結果(0.93 pgTEQ/kgbw/day(2005 TEF計算値))と同程度の値であった。最大値は1.90 pgTEQ/kgbw/dayで平均値の約2倍であったが、日本における耐容1日摂取量(4 pgTEQ/kgbw/day)の約半分であった。試料によって推定される摂取量はかなり異なり、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6倍程度の差が認められた。

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 堤 智昭

A. 研究目的

トータルダイエツト(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 が毒性等価係数(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の測定方法暫定ガイドライン」<sup>1)</sup>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2005TEFを使用した。一部の結果については1998TEF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 12.91(範囲:1.24~27.72)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 0.26 (範囲:0.02~0.55) pgTEQ/kgbw/day であった(表 1)。平成 19 年度の PCDD/PCDFs 摂取量(2005 TEF 計算値)は平均 0.27(範囲:0.10~0.70)pgTEQ/kgbw/day であり、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 56.03(範囲:41.79~69.13)pgTEQ/day であり、体重あたり平均 1.12 (範囲:0.84~1.38) pgTEQ/kgbw/day であった(表 4)。

PCDD/PCDFs 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)87.6%、11 群(肉・卵)8.7%、12 群(乳・乳製品)2.3%であり、これら 3 群で全体の 98.7%を占めた。

ND=LOD/2 の場合は、高い順に 10 群 21.5%、9 群(酒類、嗜好飲料)19.2%、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 32.85(範囲:5.41~84.26)pgTEQ/day であり、体重あたり平均 0.66 (範囲:0.11~1.69)

pgTEQ/kgbw/day であった(表 2)。平成 19 年度の Co-PCBs 摂取量(2005 TEF 計算値)は平均 0.66(範囲:0.22~1.80)pgTEQ/kgbw/day)であり、ほぼ同じ値であった。

ND=LOD/2 の場合の摂取量は、平均 47.12 (範囲:18.69~97.10)pgTEQ/day であり、体重あたり平均 0.94 (範囲:0.37~1.94) 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)97.0%、11 群(肉・卵)2.6%、12 群(乳・乳製品)0.3%であり、これら 3 群で全体の 99.8%を占めた。

ND=LOD/2 の場合は 10 群(67.6%)、11 群(2.8%)及び 12 群(2.1%)の 3 群で全体の 72.5%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 14.1%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 45.76(範囲:6.65~94.92)pgTEQ/day であり、体重あたり平均 0.92 ± 0.42 (範囲:0.13~1.90)pgTEQ/kgbw/day であった(表 3)。平成 19 年度のダイオキシン類摂取量(2005 TEF 計算値)は平均 0.93 ± 0.45 (範囲:0.35~2.51) 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。

ND=LOD/2 の場合の 1 日摂取量は、平均 103.15(範囲:60.47~148.15)pgTEQ/day であり、体重あたり平均 2.06 ± 0.41(範囲:1.21~2.96) pgTEQ /kgbw/day であった(表 6)。

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 1.8~6.4 倍の差があった(ND=0 の場合)。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。

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 94.3%、11 群 4.3%、12 群 0.8%であり、これら 3 群で全体の 99.5%を占めた。ND=LOD/2 の場合は、高い順に 10 群 42.6%、9 群 14.0%、1 群 11.4%、2 群 6.6%

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、72%であった。Co-PCBsからの摂取率は平成19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10～19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路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」、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」及び平成19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」から引用した。各年度の摂取量については、使用したTEFを統一するため、1998TEFを使用した摂取量を示した。なお、平成18から20年度については、2005TEFを使用した摂取量も括弧内に併記した。

1998TEFを使用した場合、本年度の平均値は、平成10年度以降(平成10～20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、1.11、1.08 pgTEQ/kgbw/day)の中で2番目に低い値であった。平成19年度は3番目に、平成18年度は1番低い値であり、3年間の摂取量推定値は概ね一定している。また、調査研究が開始された平成10年度及び11年度と比較すると、50%程度の摂取量となっている。

#### D. 考察

本年度のダイオキシン類摂取量の全国平均値(0.92 pgTEQ/kgbw/day)は、日本におけるTDI(4 pgTEQ/kgbw/day)の1/4程度であった。

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)に主に起因しており、90%以上を魚介の群から摂取し、魚介、肉・卵、乳、乳製品群からの摂取総計は全体の99%を越えてい

る。また、ダイオキシン類摂取量の70%はCo-PCBであった。これらの傾向は過去の調査でも同じであり、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最大6倍の開きがあった。TDS試料に含まれる食品の数は限られているため、このような変動は避けがたいことから、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、1998TEFを使用した場合、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は平成10年度に比較すると減少しているが、平成18～20年度の結果はほぼ等しく明らかな減少傾向は認められない。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。

#### E. 結論

平成20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 $0.92 \pm 0.42$  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) 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、平成20年2月。

#### G. 研究発表

##### 1. 論文発表

Tsutsumi T, Amakura Y, Yanagi T, Kono Y, Nakamura M, Nomura T, Sasaki K, Maitani T, Matsuda R. Dietary exposure to dioxins in Japan: Nationwide total diet study 2002–2006, Organohalogen Compounds 2008; 70: 2313–2316.



## 2. 学会発表

なし

### 【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20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	(pg TEQ/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			0.00		
2群 雑穀・芋	0.02			0.02			0.01			0.01			0.01		
3群 砂糖・菓子	0.03			0.03			0.02			0.02			0.03		
4群 油脂	0.04			0.04			0.01			0.01			0.02		
5群 豆・豆加工品	0.00			0.00			0.01			0.00			0.00		
6群 果実	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
7群 有色野菜	0.00			0.00			0.01			0.01			0.05		
8群 野菜・海藻	0.07			0.07			0.02			0.02			0.07		
9群 嗜好品		#1	#2	#3											
10群 魚介	9.87	18.41	10.21	0.98	11.22	11.26	4.65	14.48	27.52	8.09	12.42	13.19	9.89	16.17	19.20
11群 肉・卵	0.04	0.03	0.19	0.05	0.13	1.37	0.05	0.80	0.05	0.05	0.05	0.09	0.37	0.04	0.33
12群 乳・乳製品	0.00	0.00	0.06	0.00	0.03	4.81	0.00	0.00	0.00	0.00	0.03	1.72	0.00	0.04	0.05
13群 調味料	0.05			0.05			0.07			0.07			0.05		
14群 飲料水	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
総摂取量(pg TEQ/day)	10.11	18.64	10.66	1.24	11.58	17.64	4.85	15.42	27.72	8.29	12.65	15.15	10.48	16.47	19.81
総摂取量(pg TEQ/kg bw/day)	0.20	0.37	0.21	0.02	0.23	0.35	0.10	0.31	0.55	0.17	0.25	0.30	0.21	0.33	0.40

食品群	九州												標準偏差	比率(%)	
	関西地区			中国・四国地区			九州			平均摂取量					
	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3			
1群 米	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
2群 雑穀・芋	0.01			0.01			0.01			0.01			0.01		
3群 砂糖・菓子	0.05			0.04			0.04			0.03			0.01		
4群 油脂	0.01			0.01			0.01			0.02			0.01		
5群 豆・豆加工品	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
6群 果実	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
7群 有色野菜	0.02			0.07			0.07			0.03			0.03		
8群 野菜・海藻	0.00			0.00			0.00			0.03			0.03		
9群 嗜好品		#1	#2	#3											
10群 魚介	7.28	8.88	10.49	6.33	6.38	14.13	8.04	9.35	17.38	11.32			5.30		
11群 肉・卵	0.39	1.90	12.81	0.07	0.11	0.47	0.45	2.27	0.93	1.13			2.66		
12群 乳・乳製品	0.03	0.05	0.05	0.05	0.05	0.08	0.05	0.46	0.48	0.30			0.96		
13群 調味料	0.01			0.01			0.01			0.04			0.03		
14群 飲料水	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
総摂取量(pg TEQ/day)	7.80	10.92	23.44	6.58	6.68	14.82	8.69	12.22	18.93	12.91			5.99		
総摂取量(pg TEQ/kg bw/day)	0.16	0.22	0.47	0.13	0.13	0.30	0.17	0.24	0.38	0.26			0.12		

\* 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20年度トータルダイエイト(1~14群)からのダイオキシン類1日摂取量(ND=0)

食品群	北海道地区			東北地区			関東地区			中部地区		
	I	II	III	I	II	III	I	II	III	I	II	III
1群 米	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
2群 雑穀・芋	0.02	0.02	0.02	0.02	0.04	0.04	0.04	0.04	0.08	0.08	0.08	0.08
3群 砂糖・菓子	0.03	0.03	0.03	0.03	0.03	0.03	0.03	0.03	0.04	0.04	0.04	0.04
4群 油脂	0.04	0.04	0.04	0.04	0.01	0.01	0.01	0.01	0.02	0.02	0.02	0.02
5群 豆・豆加工品	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01
6群 果実	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	0.01	0.01	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00
7群 有色野菜	0.00	0.00	0.00	0.00	0.02	0.02	0.02	0.02	0.06	0.06	0.06	0.06
8群 野菜・海藻	0.07	0.07	0.07	0.07	0.04	0.04	0.04	0.04	0.12	0.12	0.12	0.12
9群 嗜好品	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
10群 魚介	52.25	60.66	93.03	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3
11群 肉・卵	0.07	0.11	1.59	6.29	35.57	35.81	23.75	60.94	82.79	30.21	38.52	52.96
12群 乳・乳製品	0.01	0.02	0.09	0.10	0.20	1.42	0.13	0.94	2.01	0.09	0.11	0.16
13群 調味料	0.05	0.05	0.05	0.05	1.72	4.84	0.00	0.01	0.01	0.01	0.05	1.74
14群 飲料水	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.07	0.07	0.00	0.07	0.05	0.05
総摂取量(pgTEQ/day)	52.55	61.00	94.92	6.85	37.71	42.28	24.11	62.11	85.04	30.54	38.91	55.09
総摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	1.05	1.22	1.90	0.13	0.75	0.85	0.48	1.24	1.70	0.61	0.78	1.10

食品群	関西地区			中国・四国地区			九州			標準偏差			比率
	I	II	III	I	II	III	I	II	III	I	II	III	
1群 米	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
2群 雑穀・芋	0.01	0.01	0.01	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.04	0.04	0.04	0.04	0.08
3群 砂糖・菓子	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	0.04	0.04	0.04	0.04	0.09
4群 油脂	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.02	0.02	0.02	0.02	0.04
5群 豆・豆加工品	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01
6群 果実	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
7群 有色野菜	0.02	0.02	0.02	0.07	0.07	0.07	0.07	0.07	0.04	0.04	0.04	0.04	0.08
8群 野菜・海藻	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.03	0.03	0.03	0.03	0.11
9群 嗜好品	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.05	0.05	0.05	0.05	0.11
10群 魚介	25.57	27.35	42.77	28.87	30.16	53.42	26.17	26.75	65.27	43.17	20.14	94.34	94.34
11群 肉・卵	2.71	2.89	15.27	1.56	1.65	2.03	0.66	2.38	2.40	1.98	3.19	4.32	4.32
12群 乳・乳製品	0.04	0.06	0.07	0.06	0.08	0.09	0.07	0.48	0.50	0.38	1.00	0.83	0.83
13群 調味料	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.04	0.04	0.03	0.09	0.09
14群 飲料水	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
総摂取量(pgTEQ/day)	28.43	30.41	58.22	30.65	32.04	55.69	27.05	29.77	68.33	45.76	20.98	100.00	100.00
総摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.57	0.61	1.16	0.61	0.64	1.11	0.54	0.60	1.37	0.92	0.42	1.00	1.00

\* 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。