

表4 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=LOD/2)

食品群	(pg TEQ/day)													
	北海道地区				東北地区				関東地区				中部地区	
	I		II		I		II		I		II		I	
1群 米	6.81		7.45		6.81		7.45		7.45		10.37		10.37	
2群 雑穀・芋	4.46		5.01		4.46		5.01		5.01		5.31		5.31	
3群 砂糖・菓子	0.78		0.89		0.78		0.89		0.89		0.84		0.84	
4群 油脂	0.96		1.08		0.96		1.08		1.08		0.99		0.99	
5群 豆・豆加工品	1.25		1.18		1.25		1.18		1.18		1.28		1.28	
6群 果実	2.39		2.44		2.39		2.44		2.44		2.28		2.28	
7群 有色野菜	1.83		1.96		1.83		1.96		1.96		1.61		1.61	
8群 野菜・海藻	3.97		4.04		3.97		4.04		4.04		4.11		4.11	
9群 嗜好品	10.12		10.53		10.12		10.53		10.53		10.54		10.54	
10群 魚介	11.44	#1	11.82	#3	11.44	#1	11.82	#3	11.44	#1	11.82	#3	11.44	#1
11群 肉・卵	2.42	#2	2.45	#2	2.42	#2	2.45	#2	2.42	#2	2.45	#2	2.42	#2
12群 乳・乳製品	2.92	#2	2.92	#2	2.92	#2	2.92	#2	2.92	#2	2.92	#2	2.92	#2
13群 調味料	1.70		1.70		1.70		1.70		1.70		1.70		1.70	
14群 飲料水	0.05		0.05		0.05		0.05		0.05		0.05		0.05	
総摂取量(pgTEQ/day)	51.09		51.05		51.09		51.05		51.09		51.05		51.09	
総摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	1.02		1.02		1.02		1.02		1.02		1.02		1.02	
食品群	関西地区				中国・四国地区				九州				標準偏差	
1群 米	9.97		9.71		9.71		9.71		9.71		8.74		8.74	
2群 雑穀・芋	6.14		4.87		4.87		4.87		4.87		5.05		5.05	
3群 砂糖・菓子	1.45		0.83		0.83		0.83		0.83		0.90		0.90	
4群 油脂	1.04		0.99		0.99		0.99		0.99		1.01		1.01	
5群 豆・豆加工品	1.81		1.19		1.19		1.19		1.19		1.29		1.29	
6群 果実	2.35		2.29		2.29		2.29		2.29		2.35		2.35	
7群 有色野菜	1.73		2.04		2.04		2.04		2.04		1.84		1.84	
8群 野菜・海藻	3.58		4.41		4.41		4.41		4.41		4.07		4.07	
9群 嗜好品	12.00		11.29		11.29		11.29		11.29		10.77		10.77	
10群 魚介	7.72	#1	7.80	#2	7.80	#2	7.80	#3	7.72	#1	7.80	#2	7.72	#1
11群 肉・卵	2.34	#2	2.75	#2	2.75	#2	2.75	#2	2.34	#2	2.75	#2	2.34	#2
12群 乳・乳製品	2.80	#2	2.81	#2	2.82	#2	2.82	#2	2.80	#2	2.98		2.98	
13群 調味料	1.81		1.85		1.85		1.85		1.85		1.86		1.86	
14群 飲料水	0.05		0.05		0.05		0.05		0.05		0.05		0.05	
総摂取量(pgTEQ/day)	54.79		57.04		52.89		53.17		53.93		56.85		56.03	
総摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	1.10		1.14		1.06		1.06		1.08		1.14		1.12	
総摂取量(pgTEQ/day)	1.12													
総摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.12													
総摂取量(pgTEQ/day)	6.10													
総摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	100.00													

* 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。

表5 平成20年度トータルダイエット(1~14群)からのCo-PCBs類1日摂取量(ND=L0D/2)

食品群	(pg TEG/day)											
	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	2.32	2.32	2.32	2.54	2.54	2.54	2.54	2.54	2.54	3.54	3.54	3.54
2群 雑穀・芋	1.52	1.52	1.52	1.73	1.73	1.73	1.73	1.73	1.73	1.87	1.87	1.87
3群 砂糖・菓子	0.26	0.26	0.26	0.30	0.30	0.30	0.30	0.30	0.30	0.29	0.29	0.29
4群 油脂	0.32	0.32	0.32	0.37	0.37	0.37	0.37	0.37	0.37	0.34	0.34	0.34
5群 豆・豆加工品	0.43	0.43	0.43	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40	0.44	0.44	0.44
6群 果実	0.81	0.81	0.81	0.68	0.68	0.68	0.68	0.68	0.68	0.78	0.78	0.78
7群 有色野菜	0.62	0.62	0.62	0.68	0.68	0.68	0.68	0.68	0.68	0.55	0.55	0.55
8群 野菜・海藻	1.34	1.34	1.34	1.39	1.39	1.39	1.39	1.39	1.39	1.43	1.43	1.43
9群 嗜好品	3.45	3.45	3.45	3.59	3.59	3.59	3.59	3.59	3.59	3.59	3.59	3.59
10群 魚介	42.39	42.39	42.39	42.39	42.39	42.39	42.39	42.39	42.39	42.39	42.39	42.39
11群 肉・卵	0.84	0.90	1.60	0.65	0.65	0.65	0.65	0.65	0.65	0.66	0.66	0.66
12群 乳・乳製品	1.00	1.01	1.02	1.08	1.08	1.08	1.08	1.08	1.08	0.84	0.84	0.84
13群 調味料	0.57	0.57	0.57	0.57	0.57	0.57	0.57	0.57	0.57	0.57	0.57	0.57
14群 飲料水	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02
総摂取量(pgTEG/day)	55.89	55.83	97.10	18.69	38.59	37.89	33.32	60.76	70.88	34.14	45.84	49.94
総摂取量(pgTEG/kg bw/day)	1.12	1.12	1.94	0.37	0.77	0.76	0.67	1.22	1.42	0.68	0.92	1.00

食品群	九州											
	関西地区			中国・四国地区			平均摂取量			標準偏差		
	I	II	III	I	II	III	平均	標準	偏差	平均	標準	偏差
1群 米	3.40	3.40	3.40	3.31	3.31	3.31	3.31	3.31	3.31	2.98	2.98	2.98
2群 雑穀・芋	2.09	2.09	2.09	1.66	1.66	1.66	1.66	1.66	1.66	1.74	1.74	1.74
3群 砂糖・菓子	0.49	0.49	0.49	0.27	0.27	0.27	0.27	0.27	0.27	0.30	0.30	0.30
4群 油脂	0.35	0.35	0.35	0.34	0.34	0.34	0.34	0.34	0.34	0.34	0.34	0.34
5群 豆・豆加工品	0.62	0.62	0.62	0.41	0.41	0.41	0.41	0.41	0.41	0.44	0.44	0.44
6群 果実	0.80	0.80	0.80	0.78	0.78	0.78	0.78	0.78	0.78	0.80	0.80	0.80
7群 有色野菜	0.59	0.59	0.59	0.67	0.67	0.67	0.67	0.67	0.67	0.63	0.63	0.63
8群 野菜・海藻	1.22	1.22	1.22	1.50	1.50	1.50	1.50	1.50	1.50	1.39	1.39	1.39
9群 嗜好品	4.09	4.09	4.09	3.85	3.85	3.85	3.85	3.85	3.85	3.67	3.67	3.67
10群 魚介	18.30	18.47	32.28	22.54	23.78	39.28	18.12	17.40	47.89	31.86	31.86	31.86
11群 肉・卵	2.49	1.14	2.63	1.71	1.76	1.77	1.09	1.00	1.68	1.33	1.33	1.33
12群 乳・乳製品	0.96	0.96	0.97	0.96	0.98	0.96	0.97	0.97	0.98	1.00	1.00	1.00
13群 調味料	0.62	0.62	0.62	0.63	0.63	0.63	0.63	0.63	0.63	0.62	0.62	0.62
14群 飲料水	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02
総摂取量(pgTEG/day)	36.03	34.85	50.16	38.67	39.96	55.47	33.63	32.83	64.00	47.12	47.12	47.12
総摂取量(pgTEG/kg bw/day)	0.72	0.70	1.00	0.77	0.80	1.11	0.67	0.66	1.28	0.94	0.94	0.94

* 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20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=L0D/2)

食品群	北海道地区			東北地区			関東地区			中部地区			(pg TEQ/day)						
	I	II	III	I	II	III	I	II	III	I	II	III							
1群 米	9.13			9.13			9.99			13.91			13.91						
2群 雑穀・芋	5.98			5.98			6.73			7.18			7.18						
3群 砂糖・菓子	1.04			1.04			1.19			1.13			1.13						
4群 油脂	1.28			1.28			1.44			1.33			1.33						
5群 豆・豆加工品	1.68			1.68			1.59			1.72			1.72						
6群 果実	3.20			3.20			3.28			3.05			3.05						
7群 有色野菜	2.45			2.45			2.64			2.16			2.16						
8群 野菜・海藻	5.31			5.31			5.43			5.54			5.54						
9群 嗜好品	13.57			13.57			14.12			14.13			14.13						
10群 魚介	53.83	61.56	93.95	7.94	35.86	36.36	24.66	61.25	83.07	31.59	39.06	53.65	29.50	46.05	53.11	31.74	33.78	75.56	
11群 肉・卵	3.27	3.36	4.25	2.46	2.47	3.02	2.69	3.30	3.95	2.52	2.59	3.05	2.66	3.95	4.03	3.36	4.40	10.39	
12群 乳・乳製品	3.92	3.93	3.99	4.11	4.99	7.71	3.60	3.60	3.60	3.60	3.63	4.49	3.28	3.30	3.33	3.83	3.86	3.86	
13群 調味料	2.27			2.27			2.92			2.27			2.27			2.27			2.27
14群 飲料水	0.07			0.07			0.07			0.07			0.07			0.07			0.07
総摂取量(pgTEQ/day)	106.98	114.81	148.15	60.47	89.28	93.06	80.34	117.53	140.00	87.10	94.67	110.57	87.93	105.78	112.95	91.43	94.53	142.29	
総摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	2.14	2.30	2.96	1.21	1.79	1.86	1.61	2.35	2.80	1.74	1.89	2.21	1.76	2.12	2.26	1.83	1.89	2.85	

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	13.38			13.02			13.02			11.72			2.09
2群 雑穀・芋	8.24			6.54			6.54			6.79			0.69
3群 砂糖・菓子	1.94			1.10			1.10			1.21			0.28
4群 油脂	1.39			1.32			1.32			1.35			0.06
5群 豆・豆加工品	2.42			1.60			1.60			1.73			0.26
6群 果実	3.15			3.08			3.08			3.15			0.09
7群 有色野菜	2.32			2.71			2.71			2.47			0.22
8群 野菜・海藻	4.80			5.91			5.91			5.46			0.34
9群 嗜好品	16.09			15.14			15.14			14.44			0.84
10群 魚介	26.02	27.78	43.16	30.34	31.77	54.23	26.83	27.69	65.56	43.92			19.99
11群 肉・卵	4.83	4.12	16.13	4.46	4.59	4.74	3.93	5.00	4.97	4.39			2.80
12群 乳・乳製品	3.76	3.78	3.78	3.78	3.80	3.81	3.82	4.01	4.04	3.97			0.82
13群 調味料	2.43			2.49			2.49			2.48			0.26
14群 飲料水	0.07			0.07			0.07			0.07			0.00
総摂取量(pgTEQ/day)	90.82	91.90	119.30	91.56	93.14	115.76	87.56	89.68	127.53	103.15			20.37
総摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	1.82	1.84	2.39	1.83	1.86	2.32	1.75	1.79	2.55	2.06			0.41

* 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10~20年度)¹⁾

地区	PCDDs+PCDFs+Co-PCBs (pgTEQ/kgbw/day) ND=0												
	H10年度	H11年度	H12年度	H13年度	H14年度	H15年度	H16年度	H17年度	H18年度	H19年度	H20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)	1.21 (1.05)	
					0.94	1.03	1.03	1.80	0.45 (0.39)	1.56 (1.28)	1.44 (1.22)		
					1.44	1.33	2.48	3.58	1.71 (1.50)	1.60 (1.34)	2.32 (1.90)		
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)	0.16 (0.13)	
					1.46	0.84	0.80	1.15	1.06 (0.90)	0.70 (0.60)	0.86 (0.75)		
関東地区	A					2.05	1.35	2.93	1.57	1.85 (1.57)	0.79 (0.68)	0.97 (0.85)	
			2.06	4.04	1.30	1.08	1.46	0.78	1.64	0.55	0.60 (0.51)	0.81 (0.68)	0.56 (0.48)
						2.01	1.86	1.80	0.87	0.94 (0.81)	1.01 (0.89)	1.52 (1.24)	
	B		2.14	1.59	1.72	1.99	1.34	0.90	-	-	-	-	
						2.33	1.01	-	-	-	-	-	
						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)	0.82 (0.70)	0.71 (0.61)
						1.17	1.06	1.75	1.33	1.00 (0.87)	1.00 (0.85)	0.92 (0.78)	
						1.51	2.05	2.34	2.03	1.38 (1.22)	3.32 (2.51)	1.29 (1.10)	
中部地区	A		-	1.53	1.44	-	-	-	-	-	-	-	
			1.87	1.57	1.41	1.65	1.40	1.34	0.72	0.69	0.67 (0.58)	0.80 (0.68)	0.70 (0.60)
	B					1.67	1.48	0.91	0.80	0.87 (0.76)	0.91 (0.76)	1.13 (0.96)	
						1.93	1.86	1.83	1.40	1.00 (0.87)	1.38 (1.19)	1.29 (1.11)	
	C		2.03	2.42	1.80	1.53	0.62	0.58	0.64	0.47	0.46 (0.40)	0.43 (0.35)	0.75 (0.63)
					0.68	1.15	0.71	0.60	0.70 (0.62)	0.55 (0.45)	0.82 (0.69)		
					1.28	1.50	2.03	1.86	1.24 (1.01)	1.70 (1.48)	2.05 (1.69)		
関西地区	A		-	7.01	2.01	-	-	-	-	-	-	-	
			2.72	1.79	1.43	1.33	0.96	0.77	1.32	0.67	0.98 (0.86)	0.74 (0.64)	0.66 (0.57)
	B					1.39	1.15	1.86	0.82	1.50 (1.32)	0.96 (0.82)	0.69 (0.61)	
						2.75	1.58	2.25	1.42	1.76 (1.54)	1.25 (1.08)	1.33 (1.16)	
	C		-	1.89	2.01	2.00	1.40	-	-	-	-	-	
					1.78	-	-	-	-	-	-		
					2.02	-	-	-	-	-	-		
中国四国地区	A		-	3.59	-	-	-	-	-	-	-	-	
			-	-	0.98	0.88	0.79	0.62	-	-	-	-	
	B					0.98	1.22	-	-	-	-	-	
						1.22	1.56	-	-	-	-	-	
	C		1.22	1.48	1.40	1.60	0.73	1.03	1.19	1.20	0.93 (0.82)	0.79 (0.67)	0.71 (0.61)
					1.54	1.51	1.35	1.57	1.08 (0.92)	1.07 (0.90)	0.73 (0.64)		
					2.12	2.05	1.72	1.72	1.94 (1.64)	1.34 (1.17)	1.29 (1.11)		
九州地区	A		1.99	1.84	1.55	3.40	0.57	0.85	0.61	0.66	0.61 (0.54)	0.42 (0.37)	0.64 (0.54)
						1.18	1.04	0.99	1.05	0.65 (0.56)	1.24 (1.03)	0.70 (0.60)	
	B		-	1.19	0.86	-	-	-	-	-	-	-	
					1.81	1.83	1.27	1.44	1.65 (1.38)	1.81 (1.56)	1.60 (1.37)		
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)	1.08 (0.92)	

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路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。19年度の摂取量は、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。

2) ()内の数値は2005 TEF、それ以外は1998 TEF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、各々の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。

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及び有機フッ素化合物の個別食品汚

染調査

研究分担者 松田 りえ子

- 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及び有機フッ素化合物の個別食品汚染調査

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

研究要旨

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、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。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。

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。

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10~19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(中央値は21.72 pg TEQ/day)と推計され、トータルダイエット試料による結果と同程度となった。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。

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

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

A. 研究目的

トータルダイエッ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

99%が魚介類、肉・卵類、乳製品類に由来す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、肉、卵、チーズ中のダイオキシン類の汚染調査を実施した。また、魚油及び卵黄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。

また、パーフルオロオクタン酸 (PFOA)、パー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。有機フッ素化合物の摂取量については、平成 19 年度の本研究でトータルダイエツト試料を用いた摂取量推定を実施し、PFOA で 11.5 ng/kgbw/day、PFOS で 12.1 ng/kgbw/day (いずれも ND に検出下限値の 1/2 の値を用いた場合) と推定された。この結果、平均的な食生活をしている場合には、PFOA/PFOS により健康影響が生じる可能性は低いと考えられた。本年度は、高濃度の有機フッ素化合物を含有する可能性がある、肝臓を原料とする食品中の PFOA 及び PFOS の実態調査を試みた。

B. 研究方法

1. 試料

ダイオキシン類

調査対象食品は、鮮魚 (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) とした。なお、健康食品についてはカプセルも含めて分析に供した。

有機フッ素化合物

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 製品を試料とした。

2. 試験項目及び検出限界

ダイオキシン類

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)

有機フッ素化合物

試験項目は PFOA、及び PFOS の計 2 種とした。各化合物の検出限界は 0.2 ng/g であった。

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の測定方法暫定ガイドライン」（厚生労働省、平成20年2月）に従った。有機フッ素化合物の分析方法を以下に示す。

試料5g（蟹みそ、鶏肝臓は2g）を秤量後、クリーンアップスパイクとして13C-PFOA/PFOS（5 ng）を添加した。2 M 水酸化ナトリウム水溶液（10 ml）を加え、90°Cに加熱し3時間、アルカリ分解を行った。0.1 M 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（20 ml）を加え、振とう抽出（10 min）した。静置後、上層を採取し、再度、下層にメチルターシャリーブチルエーテル（20 ml）を加え振とう抽出した。静置後に上層を採取し最初の上層と合わせた後、無水硫酸ナトリウムにより脱水した。減圧濃縮後、ヘキサン（4 ml）に再溶解しケムエルトカラム（20 ml）に負荷した。10 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（100 ml）でPFOA/PFOSを溶出させた。減圧濃縮後、メタノール（2 ml）に再溶解し、ぎ酸1滴（50 µl程度）を加え酸性にし、OASIS WAX カラム（150 mg）に負荷した。カラムはコンディショニングとして、1%濃アンモニア水/メタノール混液（25%アンモニア水；メタノール=1：99、4 ml）、メタノール（4 ml）、精製水（4 ml）で順次洗浄した。試料負荷後、試料容器はメタノール（2 ml）及び精製水（4 ml）で洗い込んだ。精製水（4 ml）、さらにメタノール（15 ml）で洗浄後、1%濃アンモニア水/メタノール（2 ml）で溶出した。窒素気流下で溶媒を蒸発させ、メタノール（0.5 ml）に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。内標準法により定量し、クリーンアップスパイクの回収率は51～118%であった。LC/MS/MS条件

を表1に示す。

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。ダイオキシン類の毒性等量の計算には、TEF（WHO 2005）¹⁾を用いた。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

平成19年度には魚介類多食者を対象とした。これとの比較のため、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²⁻⁵⁾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。データは国民健康・栄養調査⁶⁾で用いられている区分（アジ・イワシ、サケ・マス、タイ・カレイ、マグロ・カジキ、その他の生魚、貝類、イカ・タコ、えび・かに、魚介塩蔵、魚介缶詰、魚介佃煮、魚介練り製品、魚肉ハム）に従って分類したデータを用いた。TEFはWHO 2005年の値を用い、検出限界以下となった異性体濃度は0として計算した。

モンテカルロ・シミュレーション手順を以下に示す。

1. 魚介類摂取量分布の決定

国民健康・栄養調査の食品区分毎に、パーセントイル値から摂取する確率を定めた。

摂食した場合の摂食量分布は、摂食した場合の平均値を平均値、平均値×0.2標準偏差とする対数正規分布を仮定した。

2. 魚介類中ダイオキシン濃度分布の決定

国民健康・栄養調査の食品区分に分類し

たデータに対数正規分布を適合した。ただし、極端に高い値を含み、対数正規分布の適合が不適であったマグロ・カジキ及びイカ・タコについてはガンマ分布を適合した。分布の適合は、PCDD/Fs、Co-PCBs、総ダイオキシン類それぞれに実施した。

3. シミュレーション

国民健康・栄養調査の食品区分毎に1で定めた摂取確率に従う2値分布(0,1)に従う乱数aを発生する。別に1で定めた平均値及び標準偏差を持つ対数正規分布に従う乱数bを発生する。 $a \times b$ を当該区分魚介類の摂取量とする。

2で定めた分布に従う乱数cを発生し当該魚介類中のダイオキシン類濃度とする。

$a \times b \times c$ を当該区分魚介類からのダイオキシン類摂取量とした。ただし、濃度データ及び摂取量の少ない、魚介佃煮、魚介練り製品、魚肉ハムについては、それぞれの摂取量の平均値とダイオキシン類濃度の平均値を掛け合わせた値をダイオキシン類摂取量とした。

区分毎に求めたダイオキシン類摂取量の総和を、魚介類からのダイオキシン類摂取量とした。シミュレーション試行回数は20000回とした。

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

魚介類(4種、20試料)、食肉(3種、9試料)、チーズ(3試料)、卵(3試料)、健康食品(10製品)の分析結果を表2に示した。また、健康食品以外の一般の食品については食品毎にダイオキシン濃度の結果を整理し、表3にまとめた。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19年度に分析したサケ・マス(0.55 pg TEQ/g)、ブ

リ(3.1 pg TEQ/g)、マグロ(3.0 pg TEQ/g)、マダイ(1.2 pg TEQ/g)よりも低い結果となった。また、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。しかし、試料数が少なく、試料間の濃度の変動幅が大きいため、一般的な傾向を断定することは困難であった。

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。魚油を原料とする健康食品では、Co-PCBs濃度がPCDD/Fsよりも数倍高いが、卵黄を原料とする健康食品ではその大小関係は一定しておらず、Co-PCBs濃度の方が低い試料も見られた。

2. 食品中の有機フッ素化合物汚染調査結果

食品試料21種類の分析結果を表4に示した。塩辛では全試料から有機フッ素化合物は検出されなかったが、蟹みそ製品では4試料全てからPFOSが、2試料からはPFOAが検出された。

牛肝臓4試料中、1試料からPFOA及びPFOSが検出され、1試料からは検出限界レベルのPFOSが検出された。他の2試料からは有機フッ素化合物は検出されなかった。鶏肝臓では、2試料からPFOSが、1試料からPFOAが検出された。健康食品試料では全試料から有機フッ素化合物は検出されなかった。

検出レベルは蟹みそ中のPFOSが高く、最高値は2.2 ng/gであった。また、PFOS濃度はPFOAの3-4倍であった。

昨年度のTDS試料を用いた研究結果より、通常の食事からのPFOA及びPFOSの摂取量は小さく、健康被害の可能性は低いと考

えられた。本年度は有機フッ素化合物の性質から、濃度が高くなる可能性がある、魚介を含む肝臓及び肝臓を原料とする食品中の有機フッ素濃度を調査したところ、蟹みそで最大 2.2 ng/g の PFOS を含む試料があった。しかしながら、蟹みそは一度に摂食する量はそれほど多くなく、仮に体重 50 kg の人が、PFOS を 2.2 ng/g 含む蟹みそ 100 g を食べたとしても、PFOS 摂取量は 4.4 ng/kg/day である。昨年の TDS による PFOS 摂取量は 12.1 ng/kgbw/day と推定されており、これに 4.4 ng/kg/day が加わったとしても、つまり通常の食事に加えて蟹みそ 100 g を毎日摂取したとしても、一日摂取量は 16.5 ng/kg/day であり、無毒性量として提案されている 0.03 mg/kg/day の 1/2000 程度である。従って、これらの食品による健康危害の可能性は低いと考えられる。

牛肝臓については、摂食量も多く、また連続して摂食する人の存在も否定できない。本研究結果では、4 試料中 1 試料で有機フッ素化合物を合計で 1.6 ng/g 含むものが認められたため、動物の肝臓については調査を継続することが望ましいと考えられる。

3. 魚介類からのダイオキシン類摂取量の推定

表 4 に魚介類からのダイオキシン類摂取量推定の結果を示す。一日摂取量の平均値はダイオキシン類総量として 56.6 pg TEQ/man/day (1.13 pg TEQ/kg bw/day)、中央値は 21.5 pg TEQ/man/day (0.43 pg TEQ/kg bw/day) と推定された。昨年度実施された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 153.15 pg TEQ/man/day、及び中央値 126.17 pg TEQ/man/day) と比較すると、平均値は 1/2 以下、中央値は 1/6 であった。魚介類多食者の結果と比較して、平均値と中央値の差が大きい。これは、魚介類多食

者と比較して魚介類摂食量が少ないだけでなく、摂食する率が低いことためダイオキシン摂取量が 0 に近い結果が多くなったためと考えられる。図 1 にシミュレーション結果を示す。左端の摂取量 0 から 1 pg TEQ/man/day に対応するカラムの頻度は 3,843 であり、全体の約 20% がここに含まれている。

本年度のトータルダイエツト試料の分析による、魚介類からのダイオキシン類摂取量推定値は 43.2 pg TEQ/man/day であった。シミュレーションの結果はこれより 30% 程度高い結果となった。また、PCDD/DF の平均摂取量推定値はシミュレーション結果が 22.9 pg TEQ/man/day、トータルダイエツト試料からの推定値が 11.3 pg TEQ/man/day であり、Co-PCBs の平均摂取量推定値はシミュレーションでは 42.1 pg TEQ/man/day、トータルダイエツト試料では 31.9 pg TEQ/man/day となり、いずれもシミュレーションの方が高い結果となった。

この理由として、平成 10-18 年の濃度データを使用しているため、現在よりも濃度の高いデータが含まれている事が考えられる。トータルダイエツト試料によるダイオキシン摂取量推定値は、平成 10-11 年度は現在の 2 倍程度であり、徐々に低下していることから、過去の魚介類中のダイオキシン濃度は現在より高かった可能性は否定できない。

また、シミュレーションの際には個々の区分毎に計算しているため、複数の区分で摂食量が多い状態が含まれている可能性がある。計算に使用された魚介類摂取量の分布を図 2 に示す。左端の 0-5 g の頻度は全体の 16%、平均は 57.8 g、最大値は 270 g であり実際に近い値と考えられた。一方、ダイオキシン濃度分布は非常に対称性の低い分布であるため、対数正規分布あるいはガンマ分布を適合した際に非常に高い値が発

生される場合がある。例えばサケ・マス類でのダイオキシン類濃度データの最大値は2.33 pg TEQ/g であるが、シミュレーションでは104 pg TEQ/g という高い値が1回発生されている。この極端に高い濃度となった少数の試行の結果が、全体の平均を高くしている可能性がある。

この影響を回避するため、シミュレーション時に、関わる乱数の上限を用いたデータの最大値の3倍としたシミュレーションを行った結果を表5の下段に示す。平均値は10~15%低下したが、中央値にはほとんど変化が見られなかった。

表5にはシミュレーション結果から推定された90パーセンタイル値及び95パーセンタイル値を示した。90パーセンタイル値は129.6 pg TEQ/man/day (2.6 pg TEQ/kg bw/day)、95パーセンタイル値は196.6 pg TEQ/man/day (3.9 pg TEQ/kg bw/day)と算出された。上記のように、ダイオキシン類濃度データへの分布の適合があまり良くないため、95パーセンタイル値は過大評価の可能性があり、その信頼性はあまり高くないが、4 pg TEQ/kg bw/day に近い値となった。

ダイオキシン類摂取への寄与率が高い魚介類は、アジ・イワシ、その他の生魚（ブリを含む）、魚介塩蔵、マグロ・カジキであった。

D. 結論

1. ダイオキシン類濃度の調査対象としたサンマ、カツオ、イカ、タコ中のダイオキシン濃度は0.000030~0.38 pg TEQ/g の範囲にあり、肉類は0.00023~0.018 pg TEQ/g、チーズ及び卵は0.00042~0.14 pg TEQ/g であり、いずれも健康危害が懸念されるレベルではなかった。
2. 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。

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. 平成10~19年度に調査された個別食品のダイオキシン類濃度データを基に、一般人における魚介類からの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 (中央値は21.72 pg TEQ/day)と推計され、トータルダイエット試料による結果と同程度となった。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。

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 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) 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經由総摂取量調査研究」
- 3) 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」
- 4) 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」

5) 平成 19 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」

6) 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

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

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)。

表1 有機フッ素化合物分析条件

LC/MS/MS条件	
HPLC条件	
機種	Alliance2795(Waters)
カラム	塩から(イカ)、蟹みそ XBridge Shield RP18(150 mm×2.1 mm, pore size 5 μm) 牛肝臓、鶏肝臓、健康食品
移動相	Atlantis T3(150 mm×2.1 mm, pore size 3 μm) 塩から(イカ)、蟹みそ A:蒸留水 B:100mM 酢酸アンモニウム水溶液 C:メタノール A:B:C = 35:5:60 A:B:C = 0:5:95(0-15min)リニアグラジエント A:B:C = 35:5:60(15.01-20min)平衡化 牛肝臓、鶏肝臓、健康食品 A:蒸留水 B:100mM 酢酸アンモニウム水溶液 C:メタノール A:B:C = 35:5:60 A:B:C = 0:5:95(0-10min)リニアグラジエント A:B:C = 35:5:60(10.01-15min)平衡化
注入量	10 μl
流速	0.2ml/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	3kV
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 50L/hr デソルベーションガス流量 800L/hr
コーン電圧	for PFOS 55V for PFOA 25V
コリジョンエネルギー	for PFOS 45eV for PFOA 15eV
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 ₄ -PFOS 503 → 80 503 → 99
	¹³ C ₄ -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。

表2 食品中ダイオキシン類濃度測定結果

食 品			ダイオキシン類濃度 (pgTEQ/g) ¹⁾		
			PCDD/F	Co-PCB	Total
魚 介	サンマ1	国産 天然	0.016	0.11	0.13
	サンマ2	国産 天然	0.015	0.10	0.12
	サンマ3	国産 天然	0.016	0.092	0.11
	サンマ4	国産 天然	0.019	0.14	0.16
	サンマ5	国産 天然	0.050	0.25	0.30
	カツオ1	国産 天然	0.047	0.28	0.33
	カツオ2	国産 天然	0.064	0.31	0.38
	カツオ3	国産 天然	0.032	0.20	0.24
	カツオ4	国産 天然	0.052	0.29	0.35
	カツオ5	国産 天然	0.017	0.17	0.19
	イカ1	国産 天然	0.0010	0.010	0.011
	イカ2	国産 天然	0.033	0.045	0.077
	イカ3	輸入 天然	0	0.000060	0.000060
	イカ4	輸入 天然	0	0.000030	0.000030
	イカ5	国産 天然	0.15	0.21	0.37
	タコ1	国産	0.20	0.072	0.27
	タコ2	輸入	0	0.00065	0.00065
	タコ3	国産	0.12	0.14	0.26
	タコ4	輸入	0.073	0.047	0.12
タコ5	国産	0.041	0.055	0.096	
食 肉	牛肉1	輸入	0.000054	0.00018	0.00023
	牛肉2	輸入	0.0049	0.010	0.015
	牛肉3	輸入	0.00041	0.000090	0.00050
	豚肉1	国産	0.0020	0.00024	0.0023
	豚肉2	国産	0.00040	0.00036	0.00076
	豚肉3	国産	0.00029	0.018	0.018
	鶏肉1	国産	0.00032	0.00060	0.00092
	鶏肉2	国産	0.000027	0.0021	0.0021
鶏肉3	国産	0.000033	0.00039	0.00042	
チーズ	チーズ1	輸入	0	0.00042	0.00042
	チーズ2	国産	0.055	0.021	0.076
	チーズ3	国産	0.033	0.031	0.064
卵	卵1	国産	0.029	0.011	0.040
	卵2	国産	0.0093	0.032	0.041
	卵3	国産	0.027	0.12	0.14
健康食品	健康食品1	鮫肝油製品	0.0023	0.50	0.51
	健康食品2	魚油製品(輸入)	0.10	1.1	1.2
	健康食品3	鮫肝油製品	0.87	4.7	5.5
	健康食品4	鮫肝油製品	0	0.86	0.86
	健康食品5	鮫肝油製品	0.028	0.30	0.33
	健康食品6	卵黄油製品	0.0086	0.073	0.081
	健康食品7	卵黄油製品	0.051	0.073	0.12
	健康食品8	卵黄油製品	0.0024	0.00024	0.0027
	健康食品9	卵黄油製品	0.0029	0.00030	0.0032
	健康食品10	卵黄油製品	0.027	0.084	0.11

1) WHO 2005 TEFにより計算

表3 一般食品中のダイオキシン類濃度の概要

食品	試料数	ダイオキシン類濃度 (pg TEQ/g)			
		平均値	中央値	最大値	最小値
サンマ	5	0.16	0.13	0.30	0.11
カツオ	5	0.30	0.33	0.38	0.19
イカ	5	0.092	0.011	0.37	0.000030
タコ	5	0.15	0.12	0.27	0.00065
牛肉	3	0.0052	0.00050	0.015	0.00023
豚肉	3	0.0070	0.0023	0.018	0.00076
鶏肉	3	0.0011	0.00092	0.0021	0.00042
チーズ	3	0.047	0.064	0.076	0.00042
卵	3	0.074	0.041	0.14	0.040

WHO 2005 TEF により計算

表4 肝臓を原料とする食品中の有機フッ素化合物濃度

有機フッ素化合物	(ng/g)							
	塩から(イカ)1 国産	塩から(イカ)2 輸入	塩から(イカ)3 国産	塩から(イカ)4 国産	蟹みそ1 国産	蟹みそ2 国産	蟹みそ3 日本・韓国	蟹みそ4 国産
パーフルオロオクタン酸(PFOA)	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	0.8	0.4	N.D.
パーフルオロオクタンスルホン酸(PFOS)	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	0.8	2.2	1.6	1.8

N.D.:d.l. 0.2 ng/g

有機フッ素化合物	(ng/g)							
	牛肝臓1 輸入	牛肝臓2 輸入	牛肝臓3 国産	牛肝臓4 輸入	鶏肝臓1 国産	鶏肝臓2 国産	鶏肝臓3 国産	鶏肝臓4 国産
パーフルオロオクタン酸(PFOA)	0.2	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	0.3	N.D.	N.D.
パーフルオロオクタンスルホン酸(PFOS)	0.9	0.2	N.D.	N.D.	0.3	N.D.	0.3	N.D.

N.D.:d.l. 0.2 ng/g

有機フッ素化合物	(ng/g)				
	健康食品1 鮫肝油	健康食品2 鮫肝油	健康食品3 鮫肝油	健康食品4 鮫肝油	健康食品5 鮫肝油
パーフルオロオクタン酸(PFOA)	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
パーフルオロオクタンスルホン酸(PFOS)	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.

N.D.:d.l. 0.2 ng/g

表5 モンテカルロ・シミュレーションによる魚介類からのダイオキシン類摂取量

濃度に上限を設定しなかった場合の結果

	一日摂取量(pg TEQ/man/day)			一日摂取量(pg TEQ/kg bw/day)		
	PCDD/Fs	Co-PCBs	Total	PCDD/Fs	Co-PCBs	Total
平均値	22.87	42.08	56.64	0.46	0.84	1.13
中央値	6.59	14.38	21.47	0.13	0.29	0.43
パーセンタイル値	90	50.04	99.80	1.00	2.00	2.78
	95	81.72	157.86	1.63	3.16	4.23

濃度に上限を設定した場合の結果

	一日摂取量(pg TEQ/man/day)			一日摂取量(pg TEQ/kg bw/day)		
	PCDD/Fs	Co-PCBs	Total	PCDD/Fs	Co-PCBs	Total
平均値	18.20	36.43	51.45	0.36	0.73	1.03
中央値	6.49	13.87	21.72	0.13	0.28	0.43
パーセンタイル値	90	47.03	94.05	0.94	1.88	2.59
	95	73.76	141.81	1.48	2.84	3.93

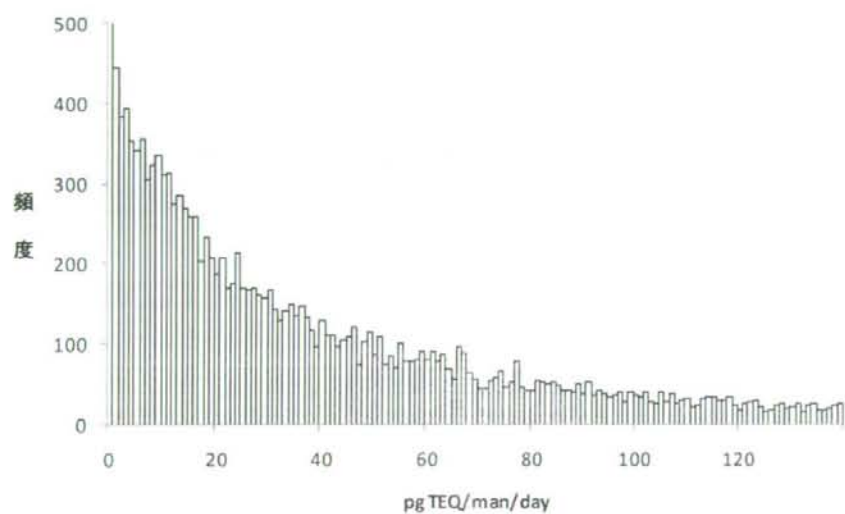


図1 魚介からのダイオキシン類摂取量分布

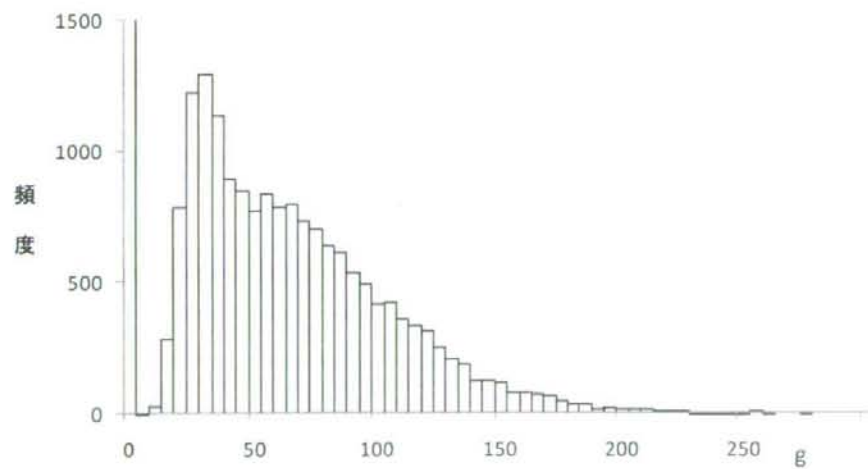


図2 魚介類摂食量の分布

Ⅱ. 分担研究報告書

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

研究分担者 堤 智昭

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
(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

研究分担者 堤 智昭 国立医薬品食品衛生研究所

研究要旨

ダイオキシン類に対する芳香族炭化水素レセプターレポータージーンアッセイの高感度化を目的として、新規ダイオキシン類応答性レポーターベクターを用いて安定発現細胞株の作製を行った。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: Dioxin Response Element)を多く含むベクターを使用した。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)を培養細胞株(Hepalclc7)に遺伝子導入し、2,3,7,8-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った。その結果、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。さらに、簡便化を図るため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)を使用したレポーターベクターの作製を行った。pZs7.1(4DRE を含む)、pZs7.3(12DRE を含む)、又は pZs7.5(20DRE を含む)GFP のレポーターベクターを作製し、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 3 倍程度高い値が得られた。このように DRE を多く含む新規レポーターベクターを使用した結果、TCDD に対して高い応答性を有するレポータージーンアッセイが開発できた。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。

研究協力者

国立医薬品食品衛生研究所
石塚 菜穂子

A.研究目的

人が暴露するダイオキシン類の殆ど全ては食品の摂取に由来するため、食品中のダイオキシン類に対するスクリーニング法が開発できれば、食品衛生上有意義である。食品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

は、培養細胞を用いたレポータージーンアッセイ^{1,2)}や、酵素免疫測定法³⁻⁵⁾が検討されている。しかし、食品ではダイオキシン類の汚染濃度が環境試料と比較し低いことから、スクリーニング法の高感度化が強く望まれてきた。

レポータージーンアッセイではダイオキシン類の芳香族炭化水素レセプター(AhR)を介した毒性発現機構を利用し、ダイオキシン類を検出する。これらのアッセイでは、例えばルシフェラーゼをレポーター遺伝子にしたダイオキ

シン類応答性ベクターを DNA に組み込んだ培養細胞を使用する。ダイオキシン類は細胞内の AhR に結合した後、ダイオキシン類応答性ベクターのダイオキシン類応答性領域 (DRE: Dioxin Responsive Element) に結合しプロモーター領域を活性化することで、定量指標となるルシフェラーゼ遺伝子の発現を誘導する。しかし、汎用されているダイオキシン類応答性ベクターは4個のDREしか含んでおらず⁶⁾、微量のダイオキシン類が十分にルシフェラーゼ遺伝子を誘導できない可能性が考えられた。

昨年度、我々はDREを多く含んだルシフェラーゼレポーター (pGL7.1~7.5) の特性を詳細に解析した結果、DRE の数が増えると TCDD 応答性が高まることを確認した⁷⁾。そこで、今年度は本レポーターベクターを使用して安定細胞株の作製を行った。さらに、測定法の簡便化を図るため緑色蛍光タンパク質 (GFP) を使用したレポータージーンアッセイについても検討した。レポーター遺伝子として汎用されているホタルルシフェラーゼは高感度であるが、発光測定に基質を必要とするため測定操作が煩雑になる。これに対し、GFP を利用したレポータージーンアッセイは、測定に基質を必要としないため優れた迅速性を有する。そこで、レポーター遺伝子としてサング由来の GFP である ZsGreen1 を用いたレポーターベクターを開発し、これらを使用して安定発現細胞株の作製を行った。

B. 研究方法

1. 試薬

MEM 培地、牛胎児血清 (FBS)、及びトランスフェクション試薬であるリポフェクタミン 2000 はインビトロジェン社より購入した。RPMI 1640 培地、ペニシリン/ストレプトマイシン混合溶液はナカライテスク株式会社より購入した。また、細胞溶解液 (CCLR) 及びルシフェラーゼ定量システム (スタンダードタイプ) はプロメ

ガ社より購入した。2,3,7,8-TCDD は和光純薬より購入した。G418 及びジメチルスルホキシド (DMSO) はシグマアルドリッチ社製を使用した。pZsGreen1-1 レポーターベクターはクローンテック社より購入した。

DRE を含むダイオキシン応答性ルシフェラーゼレポーターベクター (pGL7.1、pGL7.3 及び pGL7.5)、Hepa6.1 細胞、及び H4G1.1c2 細胞は、マイケル S. デニソン教授 (カリフォルニア大学) より供与して頂いた。pGL7.1、pGL7.3 及び pGL7.5 の概略は表 1 に示した。

2. 装置

ルミノメーターはベルトールド社製の Centro LB960 を使用した。蛍光プレートリーダーはテカン社製のインフィニット F200 を使用した。

3. DRE を多数含むダイオキシン類応答性 GFP ベクターの作製

pGL7.1、pGL7.3 または pGL7.5 より、DRE 領域 (4、12 または 20 個の DRE を含む) とマウス乳房腫瘍ウィルス (MMTV) プロモーター領域を含む DNA 断片 (800~3,000 bp) を 2 種類の制限酵素 (HindIII 及び XhoI) で切り出し、pZsGreen レポーターベクターにサブクローニングした。なお、本レポーターベクターは、最も強い蛍光強度を有する GFP の一つである ZsGreen1 (サング由来) をレポーターとしている。作製した 3 種類のベクター (pZs7.1、pZs7.3 及び pZs7.5) の概略を表 1 に示す。

3. 安定発現細胞株の作製

培養細胞株 (Hepa1c1c7 又は H4IIE) は MEM 培地 (10%FBS 含む) を用いて CO₂ インキュベーター内で培養した (37°C、5%CO₂)。24 ウェルプレートに播種し、約 90%コンフルエントまで培養した。各ルシフェラーゼレポーターベクター (pGL7.1、pGL7.3 あるいは pGL7.5、各 0.6 µg) は pSV2neo (G418 耐性遺伝子を有するベクター、0.2 µg) と混合し、リポフェクタミ