

Table 4-2. Trueness, repeatability and reproducibility of the method for rape seed oil samples

Internal standard		C11:0							
Fortified level (g/100 g)		0.15			0.3			0.6	
Molecular species of <i>trans</i> -fatty acid	RSD _r (%)	RSD _R (%)	Trueness (%)	RSD _r (%)	RSD _R (%)	Trueness (%)	RSD _r (%)	RSD _R (%)	Trueness (%)
C15:1 (10t)	0.9	1.5	99.3	1.1	1.3	99.8	0.5	0.9	102.0
C16:1 (9t)	1.3	1.3	100.2	1.1	1.1	101.3	0.3	0.4	103.1
C17:1 (10t)	2.1	2.1	100.6	1.3	1.3	101.7	1	1.1	100.3
C20:1 (11t)	0.7	1.2	99.5	1	1.1	99.3	0.7	0.7	101.6
C22:1 (13t)	1.1	1.1	100.8	0.6	0.8	99.4	0.5	0.6	101.3

Table 4-2. (Continued)

Internal standard		C13:0							
Fortified level (g/100 g)		0.15			0.3			0.6	
Molecular species of <i>trans</i> -fatty acid	RSD _r (%)	RSD _R (%)	Trueness (%)	RSD _r (%)	RSD _R (%)	Trueness (%)	RSD _r (%)	RSD _R (%)	Trueness (%)
C15:1 (10t)	0.7	1.5	96.8	0.7	1.1	97.4	0.4	0.7	99.4
C16:1 (9t)	1.2	1.3	97.7	1.1	1.1	98.8	0.5	0.5	100.5
C17:1 (10t)	2.0	2.1	98.1	1.0	1.3	99.2	0.8	0.9	97.8
C20:1 (11t)	0.8	1.4	97.0	0.7	0.9	96.9	0.4	0.4	99.1
C22:1 (13t)	1.1	1.3	98.3	0.6	0.7	96.9	0.3	0.5	98.8

Table 4-2. (Continued)

Internal standard		C17:0							
Fortified level (g/100 g)		0.15			0.3			0.6	
Molecular species of <i>trans</i> -fatty acid	RSD _r (%)	RSD _R (%)	Trueness (%)	RSD _r (%)	RSD _R (%)	Trueness (%)	RSD _r (%)	RSD _R (%)	Trueness (%)
C15:1 (10t)	0.7	1.4	93.8	0.7	1.1	94.6	0.3	0.6	96.7
C16:1 (9t)	1.2	1.3	94.7	1.0	1.0	96.0	0.5	0.6	97.7
C17:1 (10t)	2.0	2.0	95.1	1.1	1.3	96.3	0.6	0.7	95.0
C20:1 (11t)	0.8	1.4	94.1	0.7	1.0	94.1	0.4	0.4	96.3
C22:1 (13t)	1.1	1.4	95.3	0.5	0.7	94.1	0.3	0.5	96.0

Table 4-2. (Continued)

Internal standard		C21:0							
Fortified level (g/100 g)		0.15			0.3			0.6	
Molecular species of <i>trans</i> -fatty acid	RSD _r (%)	RSD _R (%)	Trueness (%)	RSD _r (%)	RSD _R (%)	Trueness (%)	RSD _r (%)	RSD _R (%)	Trueness (%)
C15:1 (10t)	0.6	1.4	94.0	0.6	1.0	94.8	0.2	0.7	97.0
C16:1 (9t)	1.2	1.3	94.9	1.0	1.0	96.2	0.6	0.7	98.0
C17:1 (10t)	2.0	2.0	95.3	1.2	1.4	96.6	0.8	0.8	95.4
C20:1 (11t)	0.9	1.3	94.2	0.6	1.0	94.4	0.6	0.6	96.6
C22:1 (13t)	1.3	1.4	95.5	0.6	0.7	94.4	0.4	0.7	96.3

RSD_r: Repeatability, RSD_R: Reproducibility within laboratory

Table 4-3. Trueness, repeatability and reproducibility of the method for safflower oil samples

Internal standard		C11:0							
Fortified level (g/100 g)		0.15			0.3			0.6	
Molecular species of <i>trans</i> -fatty acid	RSDr (%)	RSDR (%)	Trueness (%)	RSDr (%)	RSDR (%)	Trueness (%)	RSDr (%)	RSDR (%)	Trueness (%)
C15:1 (10t)	1.7	1.8	97.2	1.0	1.4	99.1	0.3	0.9	99.6
C16:1 (9t)	1.2	1.3	98.7	1.2	1.9	100.6	0.5	0.7	100.6
C17:1 (10t)	0.9	1.5	95.5	0.7	1.4	98.1	0.5	0.9	96.3
C20:1 (11t)	1.2	1.5	96.3	0.4	1.6	98.3	0.7	1.1	100.7
C22:1 (13t)	1.9	2.0	98.6	1.2	1.8	98.7	0.6	1.1	99.2

Table 4-3. (Continued)

Internal standard		C13:0							
Fortified level (g/100 g)		0.15			0.3			0.6	
Molecular species of <i>trans</i> -fatty acid	RSDr (%)	RSDR (%)	Trueness (%)	RSDr (%)	RSDR (%)	Trueness (%)	RSDr (%)	RSDR (%)	Trueness (%)
C15:1 (10t)	1.0	1.0	95.2	0.6	0.9	97.1	0.6	0.6	98.0
C16:1 (9t)	1.3	1.3	96.7	0.7	1.3	98.6	0.8	0.8	99.1
C17:1 (10t)	0.3	0.8	93.6	0.3	0.8	96.1	0.4	0.5	94.8
C20:1 (11t)	1.1	1.1	94.3	0.9	1.5	96.3	0.5	0.7	99.1
C22:1 (13t)	1.3	1.5	96.6	0.7	1.2	96.7	0.6	0.9	97.7

Table 4-3. (Continued)

Internal standard		C17:0							
Fortified level (g/100 g)		0.15			0.3			0.6	
Molecular species of <i>trans</i> -fatty acid	RSDr (%)	RSDR (%)	Trueness (%)	RSDr (%)	RSDR (%)	Trueness (%)	RSDr (%)	RSDR (%)	Trueness (%)
C15:1 (10t)	0.9	1.0	92.4	0.6	1.0	94.4	0.6	0.7	95.3
C16:1 (9t)	1.3	1.3	93.9	0.7	1.3	95.9	0.9	0.9	96.4
C17:1 (10t)	0.3	0.8	90.9	0.3	0.8	93.5	0.4	0.5	92.2
C20:1 (11t)	1.2	1.2	91.6	0.9	1.5	93.7	0.5	0.8	96.4
C22:1 (13t)	1.3	1.4	93.8	0.7	1.2	94.0	0.7	1.0	95.0

Table 4-3. (Continued)

Internal standard		C21:0							
Fortified level (g/100 g)		0.15			0.3			0.6	
Molecular species of <i>trans</i> -fatty acid	RSDr (%)	RSDR (%)	Trueness (%)	RSDr (%)	RSDR (%)	Trueness (%)	RSDr (%)	RSDR (%)	Trueness (%)
C15:1 (10t)	1.0	1.1	92.3	0.6	1.1	94.3	0.6	0.8	95.3
C16:1 (9t)	1.4	1.4	93.7	0.7	1.5	95.7	0.9	1	96.4
C17:1 (10t)	0.5	1.0	90.7	0.2	1.0	93.3	0.4	0.7	92.2
C20:1 (11t)	1.1	1.4	91.4	0.9	1.6	93.5	0.5	0.8	96.4
C22:1 (13t)	1.3	1.5	93.6	0.7	1.4	93.9	0.7	1.1	95.0

RSDr: Repeatability, RSDR: Reproducibility within laboratory

Table 4-4. Trueness, repeatability and reproducibility of the method for shortening samples

Internal standard		C11:0							
Fortified level (g/100 g)		0.15		0.3		0.6			
Molecular species of <i>trans</i> -fatty acid	RSD _r (%)	RSD _R (%)	Trueness (%)	RSD _r (%)	RSD _R (%)	Trueness (%)	RSD _r (%)	RSD _R (%)	Trueness (%)
C15:1 (10t)	1.3	1.4	97.9	0.4	1.3	100.5	0.6	1.1	101.5
C16:1 (9t)	1.4	1.6	100.2	0.6	1.1	103	0.5	1.1	102.6
C17:1 (10t)	1.3	1.6	96.3	1.1	1.5	99.9	1.7	1.9	98.7
C20:1 (11t)	1.1	1.1	96.1	0.7	3.3	98.7	2.0	2.1	101.5
C22:1 (13t)	1.7	2	98.7	0.9	1.6	100.4	0.5	1.7	101.1

Table 4-4. (Continued)

Internal standard		C13:0							
Fortified level (g/100 g)		0.15		0.3		0.6			
Molecular species of <i>trans</i> -fatty acid	RSD _r (%)	RSD _R (%)	Trueness (%)	RSD _r (%)	RSD _R (%)	Trueness (%)	RSD _r (%)	RSD _R (%)	Trueness (%)
C15:1 (10t)	0.9	0.9	95.6	0.2	0.8	97.8	0.5	0.6	98.9
C16:1 (9t)	1.1	1.1	97.9	0.5	0.6	100.2	0.9	1	100.1
C17:1 (10t)	0.9	0.9	94.1	0.7	1.0	97.2	1.6	1.6	96.1
C20:1 (11t)	1.3	1.3	93.9	0.6	2.8	96.0	1.9	2.1	98.9
C22:1 (13t)	1.7	2.0	98.7	0.9	1.6	100.4	0.5	1.7	101.1

Table 4-4. (Continued)

Internal standard		C17:0							
Fortified level (g/100 g)		0.15		0.3		0.6			
Molecular species of <i>trans</i> -fatty acid	RSD _r (%)	RSD _R (%)	Trueness (%)	RSD _r (%)	RSD _R (%)	Trueness (%)	RSD _r (%)	RSD _R (%)	Trueness (%)
C15:1 (10t)	1.0	1.0	92.0	0.3	0.7	94.3	0.6	0.6	95.5
C16:1 (9t)	1.1	1.1	94.2	0.5	0.5	96.6	0.9	0.9	96.6
C17:1 (10t)	0.9	0.9	90.6	0.6	0.9	93.7	1.1	1.1	92.3
C20:1 (11t)	1.3	1.3	90.4	0.6	2.6	92.6	1.9	2.1	95.4
C22:1 (13t)	1.4	1.4	92.9	0.6	1.0	94.2	0.6	0.9	95.1

Table 4-4. (Continued)

Internal standard		C21:0							
Fortified level (g/100 g)		0.15		0.3		0.6			
Molecular species of <i>trans</i> -fatty acid	RSD _r (%)	RSD _R (%)	Trueness (%)	RSD _r (%)	RSD _R (%)	Trueness (%)	RSD _r (%)	RSD _R (%)	Trueness (%)
C15:1 (10t)	0.9	0.9	92.4	0.3	0.7	94.5	0.6	0.6	95.8
C16:1 (9t)	1.0	1.0	94.6	0.5	0.6	96.8	1.0	1.0	96.9
C17:1 (10t)	0.8	0.8	90.9	0.7	0.9	93.9	1.7	1.7	93.1
C20:1 (11t)	1.2	1.2	90.7	0.7	2.6	92.8	2.0	2.1	95.7
C22:1 (13t)	1.3	1.3	93.2	0.6	1.0	94.4	0.6	0.8	95.4

RSD_r: Repeatability, RSD_R: Reproducibility within laboratory

Table 4-5. Trueness, repeatability and reproducibility of the method for Danish pastry samples

Internal standard		C11:0							
Fortified level (g/100 g)	0.06			0.12			0.3		
Molecular species of <i>trans</i> -fatty acid	RSDr (%)	RSDR (%)	Trueness (%)	RSDr (%)	RSDR (%)	Trueness (%)	RSDr (%)	RSDR (%)	Trueness (%)
C15:1 (10t)	0.9	1.5	99.3	1.1	1.3	99.8	0.5	0.9	102.0
C16:1 (9t)	1.3	1.3	100.2	1.1	1.1	101.3	0.3	0.4	103.1
C17:1 (10t)	2.1	2.1	100.6	1.3	1.3	101.7	1.0	1.1	100.3
C20:1 (11t)	0.7	1.2	99.5	1.0	1.1	99.3	0.7	0.7	101.6
C22:1 (13t)	1.1	1.1	100.8	0.6	0.8	99.4	0.5	0.6	101.3

Table 4-5. (Continued)

Internal standard		C13:0							
Fortified level (g/100 g)	0.06			0.12			0.3		
Molecular species of <i>trans</i> -fatty acid	RSDr (%)	RSDR (%)	Trueness (%)	RSDr (%)	RSDR (%)	Trueness (%)	RSDr (%)	RSDR (%)	Trueness (%)
C15:1 (10t)	0.7	1.5	96.8	0.7	1.1	97.4	0.4	0.7	99.4
C16:1 (9t)	1.2	1.3	97.7	1.1	1.1	98.8	0.5	0.5	100.5
C17:1 (10t)	2.0	2.1	98.1	1.0	1.3	99.2	0.8	0.9	97.8
C20:1 (11t)	0.8	1.4	97.0	0.7	0.9	96.9	0.4	0.4	99.1
C22:1 (13t)	1.1	1.3	98.3	0.6	0.7	96.9	0.3	0.5	98.8

Table 4-5. (Continued)

Internal standard		C17:0							
Fortified level (g/100 g)	0.06			0.12			0.3		
Molecular species of <i>trans</i> -fatty acid	RSDr (%)	RSDR (%)	Trueness (%)	RSDr (%)	RSDR (%)	Trueness (%)	RSDr (%)	RSDR (%)	Trueness (%)
C15:1 (10t)	0.7	1.4	93.8	0.7	1.1	94.6	0.3	0.6	96.7
C16:1 (9t)	1.2	1.3	94.7	1.0	1.0	96.0	0.5	0.6	97.7
C17:1 (10t)	2.0	2.0	95.1	1.1	1.3	96.3	0.6	0.7	95.0
C20:1 (11t)	0.8	1.4	94.1	0.7	1.0	94.1	0.4	0.4	96.3
C22:1 (13t)	1.1	1.4	95.3	0.5	0.7	94.1	0.3	0.5	96.0

RSDr: Repeatability, RSDR: Reproducibility within laboratory

は、全分析を通じて90.4~105.2%であった (Table 4)。これらを考慮し、90~110%を真度の評価基準値とすることが適当と考えられる。なお、0.3 g/100 gの濃度の各トランス脂肪酸分子種の分析結果に制限すれば、上記に比べより狭い範囲で真度は推定されている。

ガイドライン中には、Horwitz式¹³⁾により0.1~1%の濃度で予測される室間精度は相対標準偏差 (RSD%) として6~8%であることが例示されている。また予測室間精度に0.66を乗じた値を予測室内精度とすることが提案されている¹⁴⁾。一方、本研究で実施したすべての分析を

通じ、最大の室内精度は2.8%であった (Table 4)。したがって、予測室内精度を参照し、室内精度の評価基準値を5%に設定しても、余裕のある設定といえる。また、2.8%の室内精度は、C20:1 (11t) をショートニングに0.3 g/100 gの濃度で添加した試料の分析結果から推定されている。このときの平均値は0.29 g/100 g、標準偏差は0.008 g/100 gである。これらの値と χ^2 乗値を用いて、全定量値が構成要素となる仮想的母集団の標準偏差を推定すると (自由度4, 95%信頼水準, 相対標準偏差として約8%となる。これを丸めた10%を室内精度の基準値とする

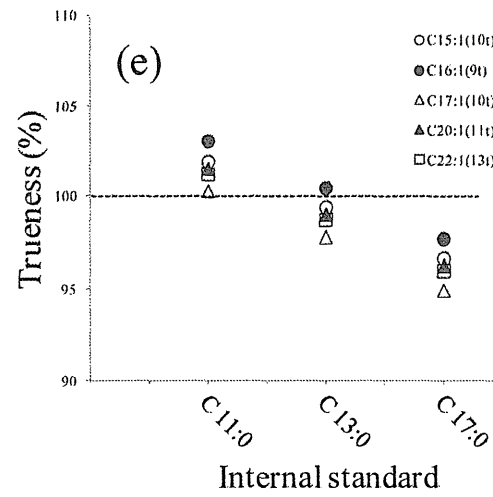
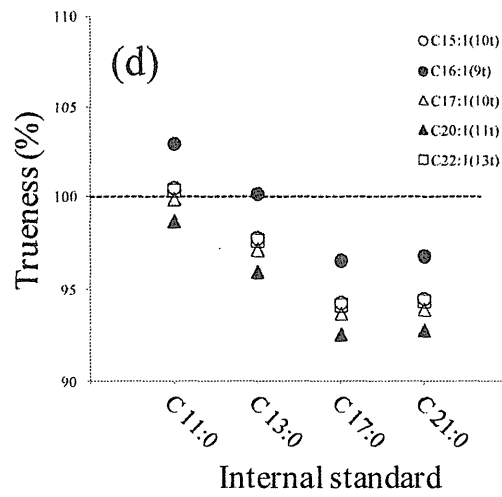
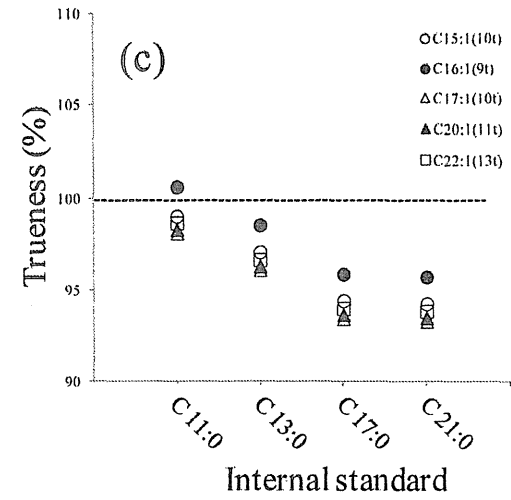
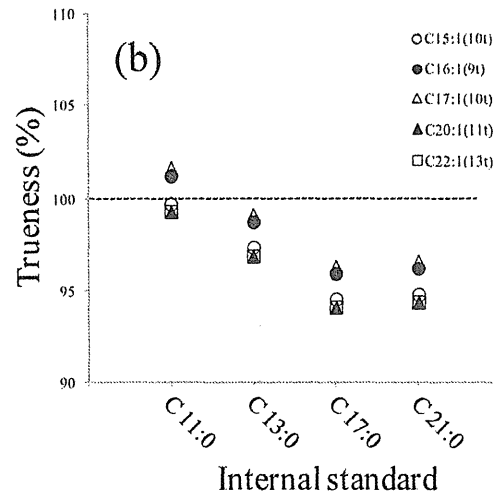
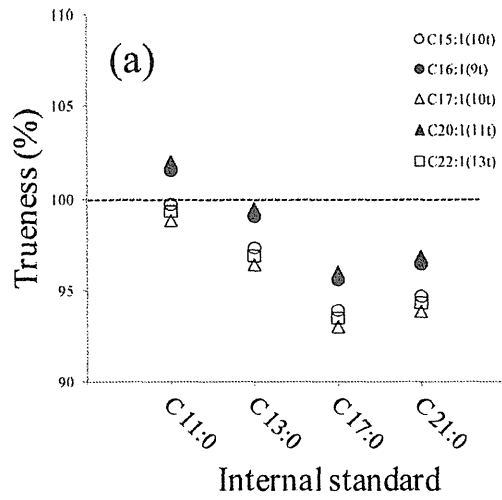


Fig. 3. Trueness of the methods for (a) soy bean oil, (b) rape seed oil, (c) safflower oil, (d) shortening, (e) Danish pastry

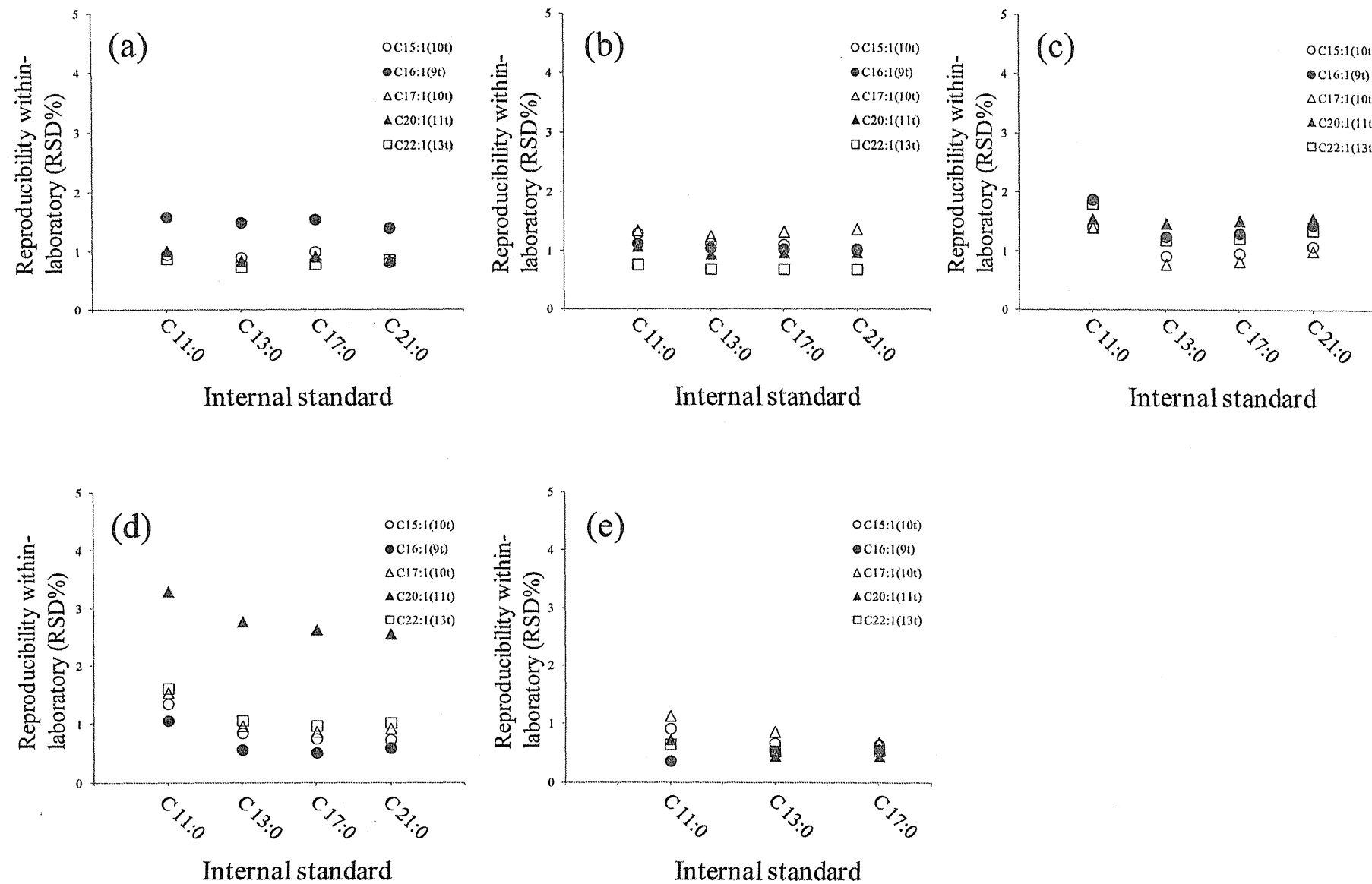


Fig. 4. Reproducibility of the methods for (a) soy bean oil, (b) rape seed oil, (c) safflower oil, (d) shortening, (e) Danish pastry

Table 5. *trans*-Fatty acid contents in soybean oil, rape seed oil, safflower oil, shortening, and Danish pastry samples

Sample	Molecular species of <i>trans</i> -fatty acid	Results		
		Average (g/100 g)	S.D.	RSD%
Soybean oil	C18 : 2 (9c, 12t)	0.40	0.004	0.9
	C18 : 2 (9t, 12c)	0.36	0.008	2.2
	C18 : 3 (9t, 12t, 15c)/C18 : 3 (9t, 12c, 15t)	0.08	0.004	4.5
	C18 : 3 (9c, 12c, 15t)/C18 : 3 (9c, 12t, 15t)	0.64	0.006	0.9
	C18 : 3 (9c, 12t, 15c)	0.11	0.008	8.6
	C18 : 3 (9t, 12c, 15c)	0.58	0.008	1.5
	Content of <i>trans</i> -fatty acids	2.15	0.021	1.0
Rape seed oil	C18 : 2 (9c, 12t)	0.02	0.001	2.9
	C18 : 3 (9c, 12c, 15t)/C18 : 3 (9c, 12t, 15t)	0.05	0.001	1.9
	Content of <i>trans</i> -fatty acids	0.07	0.001	2.1
Safflower oil	C18 : 2 (9c, 12t)	0.02	0.002	6.3
	C18 : 3 (9t, 12c, 15c)	0.02	0.002	9.5
	Content of <i>trans</i> -fatty acids	0.04	0.003	6.2
Shortening	C18 : 1 (9t)	0.11	0.005	5.0
	C18 : 2 (9c, 12t)	0.13	0.004	3.2
	C18 : 2 (9t, 12c)	0.11	0.005	4.0
	C18 : 3 (9c, 12c, 15t)/C18 : 3 (9c, 12t, 15t)	0.08	0.002	1.9
	C18 : 3 (9t, 12c, 15c)	0.08	0.005	6.4
	Content of <i>trans</i> -fatty acids	0.51	0.014	2.8
Danish pastry	C18 : 1 (6t)	0.05	0.005	11.5
	C18 : 1 (9t)	0.07	0.004	6.5
	C18 : 1 (11t)	0.15	0.002	1.1
	C18 : 2 (9c, 12t)	0.02	0.001	2.6
	C18 : 2 (9t, 12c)	0.02	0.001	3.4
	C18 : 3 (9c, 12c, 15t)/C18 : 3 (9c, 12t, 15t)	0.02	0.000	2.0
	C18 : 3 (9t, 12c, 15c)	0.02	0.001	5.9
	Content of <i>trans</i> -fatty acids	0.35	0.005	1.4

Content of *trans*-fatty acids is the sum of contents for each *trans*-fatty acid molecular species.

ことも考えられる。

5. 食品に含まれるトランス脂肪酸の分析結果

性能評価のための実験計画に従い、添加試料の調製に使用した試料（未添加試料）を分析した。大豆油およびデニッシュペストリーの添加ならびに、未添加試料から得た代表的なクロマトグラムをFig.5に示す。また、未添加試料に含まれていたトランス脂肪酸分子種を同定し、定量した結果をTable 5に示す。クロマトグラムからは、添加した各種脂肪酸分子種と食品に含まれていた脂肪酸分子種との分離を確認することができる。

トランス脂肪酸定量値のばらつきは、含有量の少ない一部のトランス脂肪酸分子種の定量値のばらつきに比べ、小さい（Table 5）。独立に分布する複数の定量値の和の分散は、個々の定量値の分散のうち大きな値により支配的な影響を受ける。この原理どおり、トランス脂肪酸定量値のばらつきも、より多く含まれているトランス脂肪酸分子種の定量値のばらつきの影響を強く受けることが示された。極微量なトランス脂肪酸分子種の含有を見逃さないためには、より定量限界の低い分析法を用いる必要もある。

大豆油試料の分析結果からは、2 g/100 gを超える比較的多量のトランス脂肪酸が含まれていることが明らかになった。しかし、この大豆油製品には、トランス脂肪酸を含まない旨の表示がされていた。一般にトランス脂肪酸として強く認識されているエライジン酸（C18 : 1 9t）とバクセン酸（C18 : 1 11t）は検出されなかったことから、それら特定のトランス脂肪酸分子種の分析結果にのみ基づき表示がされたのではと疑われる。測定対象が明示されていないことを原因とする、不適切な表示の一例と言えるだろう。

ま と め

トランス脂肪酸表示を目的とした、食用油脂と一般食品分析のための一例となる方法を構築した。また、同じ目的で使用される分析法の性能を明らかにするための手法と、満たすべき性能基準値について検討した。性能基準値を満たす分析法は、使用する内部標準によることなく、表示やその検証を目的として、食用油脂および一般食品中のトランス脂肪酸量を知るための分析法として使用可能と考えら

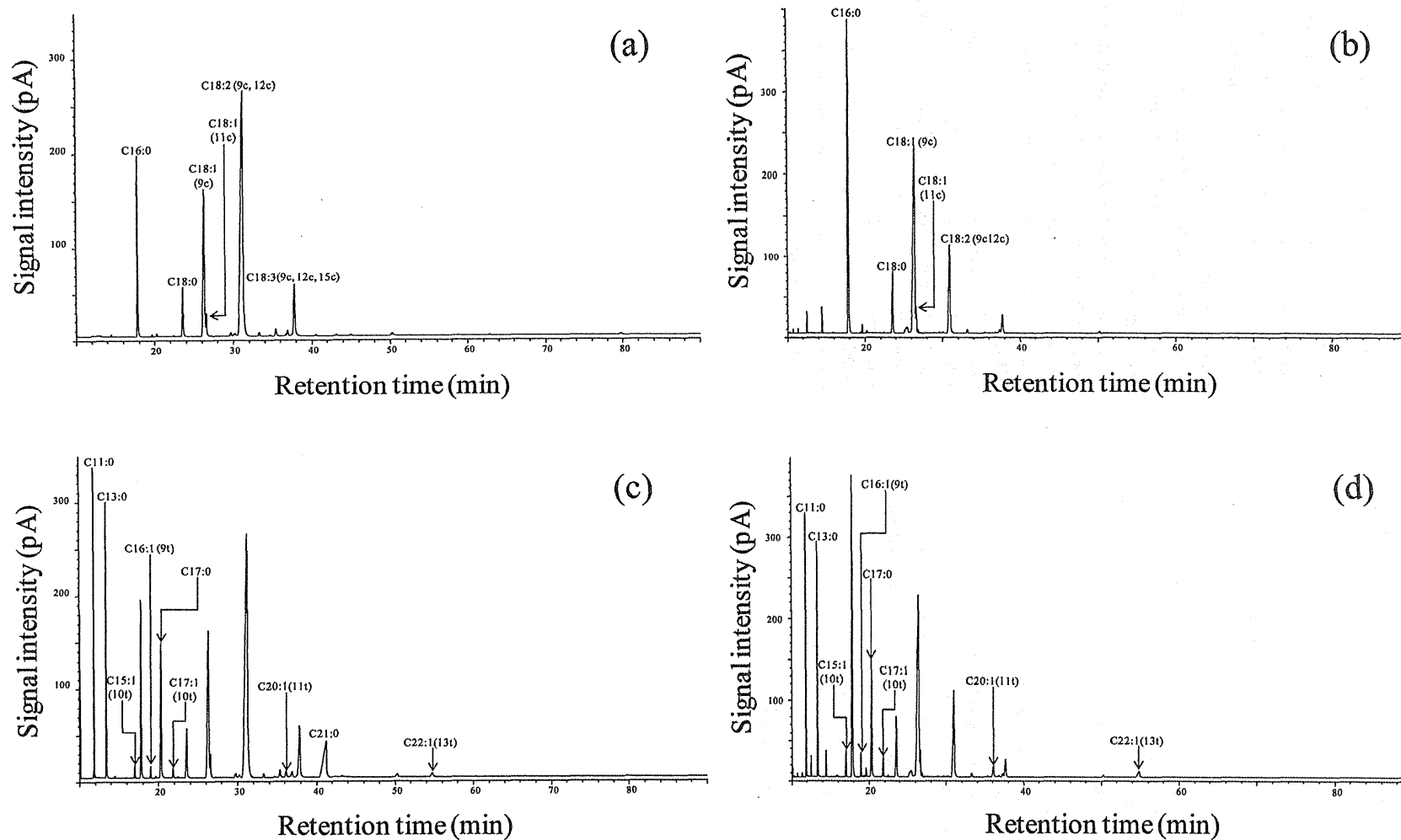


Fig. 5. Representative GC chromatograms of (a) soy bean oil, (b) Danish pastry, (c) the fortified soy bean oil, and (d) fortified Danish pastry samples

In the chromatograms of non-fortified samples (a and b), major peaks of fatty acids contained in each sample are indicated. In the chromatograms of the fortified samples (c and d), the peaks of the fortified fatty acids are indicated.

れた。ただし、測定対象とすることのできるトランス脂肪酸分子種は、入手可能な標準試薬に依存する。より正確なトランス脂肪酸分析を実行するためには、より多数の標準試薬の整備が今後の課題である。

文 献

- 1) Codex. Guidelines on Nutrition Labelling (CAC/GL 2) (1985).
- 2) American Oil Chemists' Society. Official Methods and Recommended Practices of the AOCS, 5th ed. AOCS, Champaign, IL, USA, Official Method Cd14d-99, 1999.
- 3) American Oil Chemists' Society. Official Methods and Recommended Practices of the AOCS, 5th ed. AOCS, Champaign, IL, USA, Method Cd14-95, 1997.
- 4) AOAC International. Official Methods of Analysis, 16 ed. AOAC International, Gaithersburg, MD, USA, Official Method 965.34, 1997.
- 5) American Oil Chemists' Society. Official Methods and Recommended Practices of the AOCS, 5th ed. AOCS, Champaign, IL, USA, Official Method Ce1h-05, 2005.
- 6) Codex. Recommended methods of analysis and sampling (CAC/STAN 234) (1999).
- 7) AOAC International. Official Methods of Analysis, 17 ed. AOAC International, Gaithersburg, MD, USA, Official Method 996.06, 2001.
- 8) Codex Alimentarius Commission. "Principles for the establishment of Codex methods of analysis" Procedural manual 20th ed. 2011, p. 63. (ISBN 978-92-5-106824-2)
- 9) 日本油化学会. 基準油脂分析試験法 2003年版, 暫8-2003, 2003.
- 10) American Oil Chemists' Society. Official Methods and Recommended Practices of the AOCS, 5th ed. AOCS, Champaign, IL, USA, Official Method Ce1g-96, 1997.
- 11) Goto, H., Shionoya, N., Sugie, M., Tominga, M., Shimelis, O., Taniguchi, M., Igarashi, T., Hirata, Y. Novel pre-fraction method of *trans* fatty acids by gas chromatography with silver-ion cartridge column. *J. Oleo Sci.*, **61**, 49-56 (2012).
- 12) Codex Alimentarius Commission. "Guidelines for establishing numeric values for methods criteria and/or assessing methods for compliance thereof" Procedural manual 20th ed. 2011, p. 68-76. (ISBN 978-92-5-106824-2)
- 13) Horwitz, W. "Principle and practices of method validation" In *The Potential Use of Quality Control Data to Validate Pesticide Residue Method Performance*; Fajgelj, A., Ambrus, Á. eds. Royal Society of Chemistry: Cambridge, U.K., 2000, p. 1-9.
- 14) Ambrus, Á., Soboleva, E. Contribution of sampling to the variability of pesticide residue data. *J. AOAC Int.*, **87**, 1368-1379 (2004).

食品からのダイオキシン類の摂取量推定

Estimation of Dietary Intake of Dioxins

国立医薬品食品衛生研究所
食品部

堤 智昭

国立医薬品食品衛生研究所
食品衛生管理部

松田 りえ子

Division of Food
National Institute of Health Sciences

Tomoaki TSUTSUMI

Division of Biomedical Food Research
National Institute of Health Sciences

Rieko MATSUDA

I はじめに

ダイオキシン類 (DXNs) とは、ポリ塩化ジベンゾ-*p*-ジオキシン (PCDFs), ポリ塩化ジベンゾフラン (PCDDs) およびコプラナーポリ塩化ビフェニル (Co-PCBs) を合わせた化合物の総称である。図1にはDXNsの基本構造を示したが、1~9および2'~6'に結合する塩素の数や結合する位置によって、数百種類のDXNsが存在する。これらのDXNsは焼却施設からの発生や、過去に使用されたポリ塩化ビフェニルまたは農薬に含まれる不純物等に由来することが知られている。DXNsは強い急性毒性のほか、発がん性、生殖毒性等を有することが知られており、表1に示した29種のDXNsは毒性が強いため、毒性評価の対象になっている。また、各DXNsの毒性の強さは大きく異なるため、これらのDXNsには最も毒性が強いとされる2, 3, 7, 8-テトラクロロジベンゾ-*p*-ジオキシン (2, 3, 7, 8-TCDD)の毒性を1とした時の相対的な毒性の強さである

毒性等価係数 (TEF) が定められている。DXNs全体の毒性の強さは、各DXNsの実測濃度と対応するTEFを乗じ、それらを合計した毒性等量 (TEQ) により評価される。なお、TEFは新たに得られた毒性試験の結果等を考慮して、係数が変更されることがある。2005年にWHOによりTEFの再評価が行われたため、表1には最新のTEF (2005)¹⁾を示した。

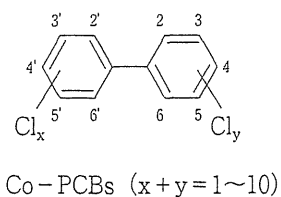
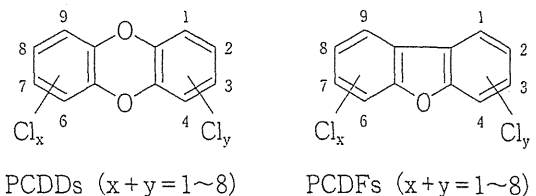


図1 DXNsの基本構造

表1 毒性評価対象の DXNs と対応する毒性等価係数

PCDD/Fs		TEF (2005)	Co-PCBs		TEF (2005)
PCDDs	2,3,7,8-TCDD	1	ノンオルト体	3,3',4,4'-TCB (#77)	0.0001
	1,2,3,7,8-PeCDD	1		3,4,4',5-TCB (#81)	0.0003
	1,2,3,4,7,8-HxCDD	0.1		3,3',4,4',5-PeCB (#126)	0.1
	1,2,3,6,7,8-HxCDD	0.1		3,3',4,4',5,5'-HxCB (#169)	0.03
	1,2,3,7,8,9-HxCDD	0.1	モノオルト体	2,3,3',4,4'-PeCB (#105)	0.00003
	1,2,3,4,6,7,8-HpCDD	0.01		2,3,4,4',5-PeCB (#114)	0.00003
	1,2,3,4,6,7,8,9-OCDD	0.0003		2,3',4,4',5-PeCB (#118)	0.00003
		2',3,4,4',5-PeCB (#123)		0.00003	
		2,3,3',4,4',5-HxCB (#156)		0.00003	
PCDFs	2,3,7,8-TCDF	0.1	2,3,3',4,4',5-HxCB (#157)	0.00003	
	1,2,3,7,8-PeCDF	0.03	2,3',4,4',5,5'-HxCB (#167)	0.00003	
	2,3,4,7,8-PeCDF	0.3	2,3,3',4,4',5,5'-HpCB (#189)	0.00003	
	1,2,3,4,7,8-HxCDF	0.1			
	1,2,3,6,7,8-HxCDF	0.1			
	1,2,3,7,8,9-HxCDF	0.1			
	2,3,4,6,7,8-HxCDF	0.1			
	1,2,3,4,6,7,8-HpCDF	0.01			
	1,2,3,4,7,8,9-HpCDF	0.01			
	1,2,3,4,6,7,8,9-OCDF	0.0003			

人が暴露する DXNs のほとんどは食品からの摂取による。人の健康影響に対する DXNs のリスク管理をするためには、食品から人がどの程度 DXNs を摂取しているか推定することが重要となる。推定した摂取量は耐容1日摂取量 (TDI) 等と比較して、リスク評価を行う。推定した DXNs 摂取量が TDI に近ければ健康への影響を考慮すべきと評価される。日本では中央環境審議会ならびに生活環境審議会および食品衛生調査会において合同で科学的知見からの検討が行われ、DXNs の当面の TDI を 4 pg TEQ/kg bw/day としている²⁾。また、WHO では 4 pg TEQ/kg bw/day を最大の TDI とし、究極的には 1 pg TEQ/kg bw/day 未満に DXNs を低減することを目標としている³⁾。DXNs 摂取量を評価することで、規制等の行政施策の必要性や、さらには施策の効果の検証に活用ができる。われわれは平成10年度から厚生労働科学研究費により食品からの DXNs 摂取量を継続して調査している。本稿では、厚生労働

科学研究で実施してきたトータルダイエット (TD) 調査とモンテカルロシミュレーションによる DXNs 摂取量推定について中心に紹介する。

II TD 調査による DXNs 摂取量推定

TD 調査は日常の1日分の食事を分析試料として DXNs 摂取量を推定する方法であり、マーケットバスケット方式と陰膳方式の2種類がある。マーケットバスケット方式では、厚生労働省が実施している国民健康・栄養調査結果に基づいて日本人の平均的な食事を作製し分析試料とする。陰膳方式では、調査対象者が1日に食べた食事と同一の内容の食事を調製し分析試料とする。マーケットバスケット方式では、日本人の平均的な食事試料を試料しているため、平均的な DXNs 摂取量が推定できる。一方、陰膳方式では、個人の嗜好や食習慣を反映した食事試料を作製しているため、個人の正確な DXNs 摂取量を推定するこ

とが可能である。どちらの方式を選択するかは摂取量調査の目的による。厚生労働科学研究費において DXNs 摂取量を推定する大きな目的の一つは、日本人の平均的な DXNs 摂取量を推定しリスク管理への活用である。そのため、厚生労働科学研究ではマーケットバスケット方式の TD 調査を平成 10 年度より実施している。また、マーケットバスケット方式では、食品群別の摂取量が得られるので、DXNs の主要な摂取源がわかる利点があるが、陰膳試料では食事内容の詳細な解析が必要になり DXNs をどの食品から多く摂取しているか推定するのは困難である。

DXNs 摂取量推定のための TD 試料は、以下の手順で作製している。

- ① 国民健康・栄養調査に基づいて食品を 14 食品に分類する。各群より代表的な食品を複数選択し、小売店などで食品を購入する。14 食品群の内訳は表 2 に示したとおりで、食品の小分類は 99 になる。通常は小分類に区分される代表的な食品を複数購入するので、全部で 200 種以上の食品を購入することになる。
- ② 食品を国民健康・栄養調査に基づく摂取量に応じて分取し、調理を必要とする食品については通常行われている調理方法に準じて調理をする。
- ③ 食品群毎に分類した食品を混合・均一化して分析試料とする。

日本人の平均的な DXNs 摂取量を推定するため、全国各地の衛生研究所等の機関で、上記の TD 試料を作製した。最新の調査である平成 24 年度は、8 機関で TD 試料を作製した。なお、各食品群の TD 試料に含めることが可能な食品の数は限られる。そこで、DXNs 濃度が比較的高い食品を含む魚介 (10 群)、肉・卵 (11 群)、乳・乳製品 (12 群) の群は、各機関が各群 3 セットずつ TD 試料を作製し DXNs 分析試料とした。3 セッ

トの試料は可能な限り食品の種類、産地、メーカー等が異なる食品を選択して調製した。その他の食品群については、食品摂取量に応じた割合で各機関の TD 試料を混合した共通試料を作製し、DXNs 分析試料とした。得られた DXNs 濃度と食品摂取量を掛け合わせ、1 日あたりの食事からの DXNs 摂取量を推定した。全機関の DXNs 摂取量の平均値を日本人の平均的な DXNs 摂取量とした。TD 試料の DXNs 分析は、食品中の DXNs 分析の暫定ガイドライン⁴⁾に従い、高分解能ガスクロマトグラフ質量分析計により DXNs を測定した。TD 試料における DXNs 分析の目標とした検出下限値 (LOD) を表 3 に示した。DXNs 摂取量を求める際は LOD 未満の DXNs をゼロ (ND=0) とした場合と、参考値として LOD の 1/2 をあてはめた場合 (ND=LOD/2) についても算出した。

平成 24 年度の機関ごとの TD 調査の結果を表 4 に示した。日本人の平均体重を 50 kg とした時の DXNs 1 日摂取量の全機関の平均値は、ND=0 の場合、平均 0.69 (範囲: 0.22 ~ 1.22) pg TEQ/kg bw/day と推定された。平均値は日本の TDI である 4 pg TEQ/kg bw/day の 17% 程度であった。また、最大値である 1.22 pg TEQ/kg bw/day の場合でも TDI の 30% 程度であった。本調査では 10 ~ 12 群については各機関で各 3 セットの TD 試料を作製している。10 ~ 12 群について DXNs 摂取量が最小と最大になる組み合わせでは、同一機関であっても最小値と最大値には 1.3 ~ 3.4 倍の開きが生じた (ND=0)。3 セットの試料は同一地域で市販食品を購入し調製されているが、購入した食品の種類、個体等の差が DXNs 摂取量に影響しているものと考えられる。特に魚介 (10 群) の DXNs 濃度の違いが大きく影響しており、魚介類中の DXNs 濃度は広い範囲に分布していると推察された。1 セットの TD 試料

表2 TD 試料における食品分類

食品群	大分類	小分類
1	米	米, 米加工品
2	雑穀・芋	小麦粉類, パン類, 菓子パン類, うどん, 中華麺類, 即席中華めん, パスタ, その他の小麦加工品, そば・加工品, とうもろこし・加工品, その他の穀類, さつまいも・加工品, ジャガイモ・加工品, その他のいも・加工品, でんぷん・加工品, 種実類
3	砂糖・菓子	砂糖・甘味料類, 和菓子類, ケーキ・パストリー類, ビスケット類, キャンデー類, その他の菓子類
4	油脂	バター, マーガリン, 植物性油脂, 動物性油脂, その他の油脂
5	豆・豆加工品	大豆(全粒)・加工品, 豆腐, 油揚げ類, 納豆, その他の大豆加工品, その他の豆・加工品
6	果実	いちご, 柑橘類, バナナ, りんご, その他の生果(缶詰含), ジャム, 果汁・果汁飲料
7	有色野菜	トマト, にんじん, ほうれん草, ピーマン, その他の緑黄色野菜, 野菜ジュース
8	野菜・海草	キャベツ, きゅうり, 大根, たまねぎ, はくさい, その他の淡色野菜, 葉類漬け物, たくあん・その他の漬け物, きのこと類, 海草類
9	嗜好品	日本酒, ビール, 洋酒・その他アルコール飲料, 茶, コーヒー・ココア, その他の嗜好飲料
10	魚介	あじ, いわし類, さけ, ます, たい, かれい類, まぐろ, かじき類, その他の生魚, 貝類, いか, たこ類, えび, かに類, 魚介(塩蔵, 生干し, 乾物), 魚介(缶詰), 魚介(佃煮), 魚介(練り製品), 魚肉ハム, ソーセージ
11	肉・卵	牛肉, 豚肉, ハム, ソーセージ類, その他の畜肉, 鶏肉, その他の鳥肉, 肉類(内臓), 鯨肉, その他の肉・加工品, 卵類
12	乳・乳製品	牛乳, チーズ, 発酵乳・乳酸菌飲料, その他の乳製品, その他の乳類
13	調味料	ソース, しょうゆ, 塩, マヨネーズ, 味噌, その他の調味料, 香辛料・その他
14	飲料水	飲料水

表3 TD 試料における DXNs の LOD

食品群	LOD (pg/g)				
	PCDD/Fs			Co-PCBs	
	四,五塩化物	六,七塩化物	八塩化物	ノンオルト体	モノオルト体
1~3群, および5~13群	0.01	0.02	0.05	0.1	1
4群	0.05	0.10	0.20	0.5	5
14群	0.0001	0.0002	0.0005	0.001	0.01

表4 DXNs 摂取量の推定結果 (平成 24 年度)

機 関	DXNs 摂取量 (pg TEQ/kg bw/day) ¹⁾							
	ND=0				ND=LOD/2			
	#1	#2	#3	平均	#1	#2	#3	平均
A	0.64	0.67	0.86	0.72	1.77	1.78	1.94	1.83
B	0.42	0.50	0.56	0.49	1.52	1.59	1.66	1.59
C	0.62	0.67	1.14	0.81	1.73	1.76	2.22	1.90
D	0.30	0.75	1.00	0.68	1.42	1.85	2.10	1.79
E	0.36	0.52	1.22	0.70	1.49	1.63	2.31	1.81
F	0.76	0.83	1.00	0.86	1.85	1.91	2.08	1.95
G	0.69	0.84	0.92	0.82	1.83	1.96	2.02	1.94
H	0.22	0.44	0.67	0.44	1.35	1.56	1.75	1.55
平均(最小-最大)	0.69 (0.22 - 1.22)				1.79 (1.35 - 2.31)			

1) 食品 10～12 群については各機関で各 3 セットの TD 試料を作製しているため、DXNs 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 とした。その他の食品群は各機関の TD 試料を混合した試料の DXNs 摂取量結果を使用した。また、日本人の平均体重を 50 kg として計算した。

に含めることが可能な食品の数は限られているため、本研究のように 10 群の試料数を多くして、広範囲な魚介類を含めることが、日本人の平均的な DXNs 摂取量の精密な推定に有用であると考えられる。ND=LOD/2 の場合の DXNs 1 日摂取量は、平均 1.79 (範囲: 1.35～2.31) pg TEQ/kg bw/day と推定された。また、DXNs 摂取量に占める PCDD/Fs と Co-PCBs の割合は、ND=0 の場合は 3:7 程度、ND=LOD/2 の場合は 6:4 程度であった。

食品群別の DXNs 摂取量の平均値と比率を表 5 に示した。DXNs 摂取量に対する比率が高い食品群は ND=0 の場合、魚介 (10 群) 91.0% と肉・卵 (11 群) 7.9% であり、これら 2 群で全体の約 99% を占めた。ND=LOD/2 の場合は、高い順に魚介 (10 群) 36.0%、嗜好品 (9 群) 16.7%、米 (1 群) 12.2% であり、1 群および 9 群の比率が高くなった。1 群と 9 群ではすべての DXNs が LOD 未満であったが、食品摂取量が多いため ND に LOD/2 をあてはめた場合、DXNs 摂取量が多

くなり比率が大きくなった。摂取量推定の際の ND の取り扱いについては、Global Environment Monitoring System (GEMS) により、ND=0 と ND=LOD/2 の 2 とおりの計算を行うことが推奨されている。しかし、ND=LOD/2 による算出は本来、ND となった試料が全分析試料の 60% 以下であることが適用の前提となっている。平成 19～24 年度の TD 試料の DXNs 検出率を表 6 に示した。魚介 (10 群) や肉・卵 (11 群) では ND となった DXNs は比較的少なく、特に魚介 (10 群) の Co-PCBs についてはほとんどの DXNs が検出されていることがわかる。一方、ND=LOD/2 の場合に摂取量が多くなった 1 群や 9 群等では、DXNs の検出率は極めて低く、ND となった試料の割合は 60% を大きく上回った。このような食品群については、ND=LOD/2 により推定した摂取量の信頼性は低く、摂取量を過大評価している可能性が高いと考えられる。

近年の DXNs 摂取量の経年変化について考察するため、平成 10 年度以降の TD 調査の結果を

表5 食品群別の DXNs 摂取量 (平成 24 年度)

食品群	DXNs 摂取量 (pg TEQ/kg bw/day)			
	ND=0		ND=LOD/2	
	全国平均	比率(%)	全国平均	比率(%)
1 群 (米)	< 0.01	< 0.1	0.22	12.2
2 群 (雑穀・芋)	< 0.01	0.1	0.12	6.8
3 群 (砂糖・菓子)	< 0.01	0.1	0.02	1.2
4 群 (油脂)	< 0.01	< 0.1	0.03	1.4
5 群 (豆・豆加工品)	< 0.01	< 0.1	0.03	1.7
6 群 (果実)	< 0.01	< 0.1	0.06	3.5
7 群 (有色野菜)	< 0.01	0.1	0.05	2.8
8 群 (野菜・海草)	< 0.01	< 0.1	0.10	5.8
9 群 (嗜好品)	< 0.01	< 0.1	0.30	16.7
10 群 (魚介)	0.63	91.0	0.65	36.0
11 群 (肉・卵)	0.05	7.9	0.10	5.7
12 群 (乳・乳製品)	< 0.01	0.4	0.06	3.4
13 群 (調味料)	< 0.01	0.2	0.05	2.9
14 群 (飲料水)	< 0.01	< 0.1	< 0.01	0.1
合計	0.69	100.0	1.79	100.0

図2に示した。同一年度の各機関のDXNs摂取量には大きな幅が認められるが、各年度の平均値を比較すると緩やかな減少傾向が示唆されている。平成24年度のDXNs摂取量の平均値である0.69 pgTEQ/kg bw/dayは、平成10年度以降の調査結果の中で2番目に低い値であり、一番低い値であった平成23年度の0.68 pgTEQ/kg bw/dayとほぼ同等の値であった。調査研究が開始された平成10年度および11年度のDXNs摂取量の平均値は1.75および1.92 pgTEQ/kg bw/dayであり、これらの値と比較すると、最近の摂取量は40%以下まで低下している。これは、平成11年7月に成立、平成12年1月に施行されたDXNs対策特別措置法に基づき環境基準が設定されたことにより、焼却施設等からのDXNsの排出が大幅に抑制された効果が影響していると考えられる。また、各年度で推定されたDXNs摂取量の最大値については、平成11年の1地区にお

いてTDIである4 pg TEQ/kg bw/dayを超える摂取量が推定された。しかし、それ以降は最大値に関してもTDIを超える摂取量は推定されておらず、平成20年度以降は継続して2 pg TEQ/kg bw/dayを下回っている。また、平成10年度より以前のDXNs摂取量の経年変化については、関西の1地区で昭和52～平成10年度に作製したTD試料を分析した報告がある⁵⁾。該当地区の平成10年度のDXNs摂取量(2.72 pg TEQ/kg bw/day)は、昭和52年度のDXNs摂取量(8.18 pg TEQ/kg bw/day)と比較し、約1/3に減少していることが明らかになっている。

日本と諸外国のDXNs摂取量を比較するため、2004年以降に報告されているおもな諸外国における食事由来のDXNs摂取量^{6)~13)}を表7に示した。DXNs摂取量の算出には、分析法のLOD、LODの取り扱い、使用したTEFの違い等が影響するため、各国のDXNs摂取量を単純比較する

表6 TD 試料における DXNs の検出率 (平成 19 ~ 24 年度)¹⁾

食品群	1群	2群	3群	4群	5群	6群	7群	8群	9群	10群	11群	12群	13群	14群	
P C D D s	2,3,7,8-TeCDD	0	0	0	0	0	0	0	0	60	1	0	0	0	
	1,2,3,7,8-PeCDD	0	0	0	0	0	0	0	0	99	16	8	0	0	
	1,2,3,4,7,8-HxCDD	0	0	0	0	0	0	0	0	2	1	0	0	0	
	1,2,3,6,7,8-HxCDD	0	0	0	0	0	0	0	0	48	23	7	0	0	
	1,2,3,7,8,9-HxCDD	0	0	0	0	0	0	0	0	5	2	1	0	0	
	1,2,3,4,6,7,8-HpCDD	0	11	100	72	6	0	33	28	0	67	97	61	78	0
OCDD	0	100	100	100	100	0	89	72	0	79	100	55	100	6	
P C D F s	2,3,7,8-TeCDF	0	0	6	0	0	0	0	0	100	24	0	6	11	
	1,2,3,7,8-PeCDF	0	0	0	0	0	0	0	0	99	5	0	0	0	
	2,3,4,7,8-PeCDF	0	0	0	0	0	0	0	0	100	48	10	0	0	
	1,2,3,4,7,8-HxCDF	0	0	0	0	0	0	0	0	17	12	1	0	0	
	1,2,3,6,7,8-HxCDF	0	0	0	0	0	0	0	0	19	4	0	0	0	
	1,2,3,7,8,9-HxCDF	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	
	2,3,4,6,7,8-HxCDF	0	0	0	0	0	0	0	0	25	3	1	0	0	
	1,2,3,4,6,7,8-HpCDF	0	0	6	0	0	0	0	0	8	33	1	0	0	
	1,2,3,4,7,8,9-HpCDF	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	
	OCDF	0	0	0	0	0	0	0	0	0	2	0	1	0	0
C O I P C B s	3,3',4,4'-TeCB (#77)	0	44	83	28	61	11	61	61	0	100	100	20	22	0
	3,4,4',5'-TeCB (#81)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	100	1	1	0	0
	3,3',4,4',5'-PeCB (#126)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	100	49	5	0	0
	3,3',4,4',5,5'-HxCB (#169)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	100	5	0	0	0
	2,3,3',4,4'-PeCB (#105)	0	17	50	6	11	0	44	28	0	100	100	31	11	0
	2,3,4,4',5'-PeCB (#114)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	100	5	0	0	0
	2,3',4,4',5'-PeCB (#118)	6	78	100	78	50	17	61	56	0	100	100	98	39	0
	2',3,4,4',5'-PeCB (#123)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	99	1	0	0	0
	2,3,3',4,4',5'-HxCB (#156)	0	0	17	0	0	0	0	0	0	100	91	1	0	0
	2,3,3',4,4',5'-HxCB (#157)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	100	12	0	0	0
	2,3',4,4',5,5'-HxCB (#167)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	100	39	0	0	0
	2,3,3',4,4',5,5'-HpCB (#189)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	97	2	0	0	0

1) 10 ~ 12 群については各 153 試料, それ以外の食品群については各 18 試料についての検出率を示す。各食品群の LOD は表 3 に従った。

ことは難しい。これらの点に注意する必要があるが、日本の DXNs 摂取量は諸外国で報告されている DXNs 摂取量のほぼ中間に相当すると考えられる。なお、日本については、古い TEF (1998)

を使用し算出した DXNs 摂取量についても比較のために併記した。

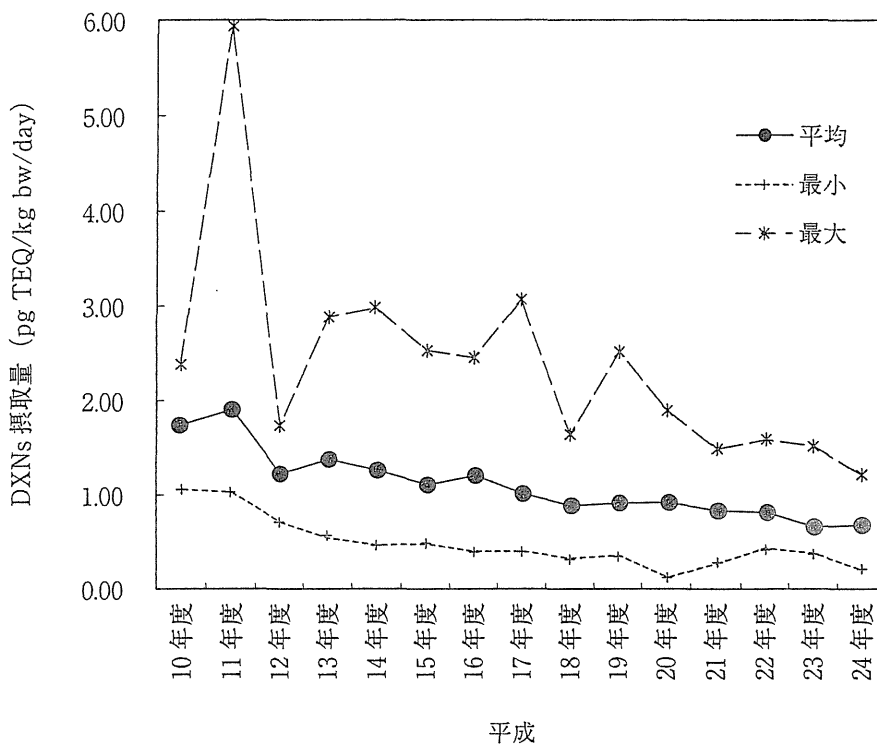


図2 TD調査におけるDXNs摂取量の推移 (ND=0)

表7 日本と主な諸外国における食品からのDXNs摂取量

国	DXNs 摂取量 pg TEQ/kg/日	使用した TEF	検出下限値 の取り扱い ¹⁾	参考文献
日本	0.69 (0.80) ²⁾	2005 TEF	ND=0	本研究
フィンランド	1.5	1998 TEF	ND=0	6)
オーストラリア	0.12	1998 TEF	ND=0	7)
イタリア	2.28	1998 TEF	ND=LOD	8)
フランス	1.8	1998 TEF	ND=0	9)
ベルギー	0.61	2005 TEF	ND=LOD/2	10)
スペイン (ヴァレンシア)	2.86	1998 TEF	ND=LOD	11)
スペイン (カタロニア)	0.75	2005 TEF	ND=LOD/2	12)
イギリス	0.49	2005 TEF	ND=0	13)

1) 検出下限値未満のDXNsをゼロとして計算した場合はND=0, 検出下限値の1/2を当てはめた場合はND=LOD/2, 検出下限値を当てはめた場合はND=LODと示す。

2) 参考値

Ⅲ モンテカルロシミュレーション法による DXNs 摂取量推定

食品中の有害物質濃度の分布と、食品を摂取する量の分布が得られる場合には、モンテカルロ法を用いてその有害物質の摂取量を推定することが可能である。モンテカルロ法による摂取量の計算では、まず1日の食品摂取量の分布から無作為(ランダム)に1つのデータを選ぶ。次に有害物質の濃度分布からランダムに1つのデータを選ぶ。これは、全人口中のある人がある日に食べる食品の量と、その際に食べる食品中の有害物質の濃度に相当する。これら2つの間に相関はない、つまり食品摂取量の多い人は高濃度の有害物質を含む傾向のような関係はないと推定される場合は、2つのデータの選択は独立に行う。2つのデータを掛け合わせると、1日にその食品から摂取される有害物質の量が得られる。同じことをもう一度行くと、1回目とは別の人が別の日に食べる食品の量と、その食品中の有害物質の濃度が得られ、その時の有害物質の摂取量が求められる。これらの操作は、実際に日本国民からランダムに1人を選んで、ランダムに選んだ日に食べた食品を採取し、その中の有害物質濃度を測定することを、コンピュータ上で行っていることに相当し、そのためにモンテカルロシミュレーションとも呼ばれる。実際の食事を収集して試料とし、その中の有害物質を測定する方法としては、前項で触れた陰膳方式がある。陰膳方式は実試料の分析を伴うために、集める試料の数には限りがあるが、モンテカルロシミュレーションはコンピュータ上で行うために、非常に多数の計算が可能となる。

モンテカルロシミュレーションによる有害物質摂取量推定の特徴の第一は、有害物質の摂取量の平均値だけではなく、図3に示すような分布を得られることである。これにより、平均値とTDI

等を比較による評価だけではなく、95%タイル値のような多量摂取者の評価や、TDIを超える確率も評価することが可能となる。また、濃度の規制のような行政施策を実施して濃度分布を変化させたときに、摂取量がどのように変化するかを予測することも可能である。

一方、モンテカルロシミュレーションにより信頼性のある測定値を得るためには、計算に用いる分布が正しいことが大前提である。食品摂取量の分布は国民健康・栄養調査により毎年10,000件以上のデータが得られており、シミュレーションに用いる分布として適切である。一方、食品中の濃度分布を正確に当てはめるため、多数のデータ100以上が必要である。また、データの数が多くてもNDが多ければ意味のあるシミュレーションはできないが、十分に多いデータが得られることは少ない。また分布の当てはめは、特にデータが少ない場合に、分布の端の方による影響を受ける。一般に、食品中の有害物質の分布は、高濃度側に長く裾を引いた非対称分布となることが多い。このような場合に当てはまる分布は対数正規分布であることが多いが、高濃度側のデータのわずかな違いで分布のパラメータ、特に標準偏差が大きく変わる。データ総数が少ないときには、この影響は特に顕著となる。計算された有害物質摂取量分布も、摂取量の多い側に裾を引いた分布であり、この形が計算に使用した分布の影響を受ける。つまり、95%タイル値、TDIを超える確率のような、モンテカルロシミュレーションによってのみ得られる値が、もっとも大きな影響を受ける。このため、モンテカルロシミュレーション結果の評価においては、使用した分布の信頼性と、分布への適合の質を考慮する必要がある。

本稿では、平成23年度の厚生労働科学研究「食品を介したDXNs等有害物質摂取量の評価とその手法開発に関する研究」において実施した、モ

ンテカルロシミュレーションによる、魚介類からのDXNs摂取量推定の結果を紹介する。表5に示すように、TD試料によるDXNs摂取量推定研究から、DXNsの90%が魚介類の群から摂取されると考えられ、この傾向はDXNs摂取量評価研究を継続した期間で一定であった。このため、すべての食品ではなく、魚介類のみからの摂取量を推定した。また、魚介類の種類によりDXNs濃度が異なるため、魚介類をさらに区分して摂取量推定を行った。

魚介類の摂取量分布は、平成15～19年度国民健康・栄養調査結果の魚介類の13区分（あじ・いわし類、さけ・ます、たい・かれい類、まぐろ・かじき類、その他の生魚、貝類、いか・たこ類、えび・かに類、魚介乾物、魚介缶詰、魚介佃煮、魚介練り製品、魚肉ハム・ソーセージ）ごとに集計して得た。摂取量0gのデータが多いこと、また分布の形状も通常使用可能な連続分布の当てはめが困難であった。しかし、全体のデータ数が数万と非常に多いため、特定の分布を当てはめず実際の分布をそのまま使用した。魚介類中のDXNs濃度は厚生労働科学研究（平成10～22年度）の調査結果（約650試料）を用いた。TEFはWHO 2005年の値を用い、検出限界値未満となった異性体の濃度はゼロとして計算した。データを上記の13区分に分類し、それぞれのDXNs濃度に対数正規分布を当てはめた。

モンテカルロシミュレーションには、Oracle社製Crystall Ballを用いた。以上の設定で、魚介類の13区分ごとの摂取量分布およびDXNs濃度分布に従う乱数を発生させ、13区分ごとにDXNs摂取量を求め、それらの総和を魚介類からのDXNs摂取量とした。シミュレーションの試行回数は20,000回とした。また、平均体重を50kgとして、体重(kg)あたりの摂取量とした。

魚介類からの一般的な国民のDXNs 1日摂取

量の分布を図3に、統計量を表8に示す。図3の縦軸は頻度である。DXNs 1日摂取量の分布は値の小さい側にピークがあり、高い側に裾を引いた分布となった。DXNs 1日摂取量の平均値は1.3 pg TEQ/kg bw/day、中央値は0.36 pg TEQ/kg bw/dayであった。また、90%および95%タイル値は2.9および4.9 pg TEQ/kg bw/dayと推定された。分布の形が著しく非対称であるため、中央値は平均値よりかなり低くなった。

モンテカルロシミュレーションにより推定されたDXNs 1日摂取量の平均値は、平成24年度のTD調査の魚介類からのDXNs摂取量（全国平均値0.63 pg TEQ/kg bw/day）と比較すると約2倍高く、平成10年代前半と同程度の値となった。このように値が乖離した理由の1つとして、TD試料は現在流通する魚介類を用いて作られているのに対して、モンテカルロシミュレーションでは、平成10～22年度に測定された魚介類のDXNs汚染データをまとめて使用していることが考えられる。このため、モンテカルロシミュレーションにより推定された1日摂取量の分布は、推定を行った平成24年時点の値ではなく、平成10～22年の平均的な値を示していることになる。図2に示すように、TD試料分析から推定した、平成10および11年度のDXNs 1日摂取量は現在の2倍以上であり、平成10年代前半の1日摂取量はモンテカルロシミュレーションによる推定値と同程度である。

90%タイル値および95%タイル値は、魚介類のDXNs濃度データへの分布の適合が良くない場合があるため、あまり信頼性は高くないが、90%タイル値は平成10年代にTD試料から推定した最高値と同程度となった。一方、95%タイル値はTDIである4 pg TEQ/kg bw/dayをやや超える値であった。

魚介類13区分からのDXNs 1日摂取量の平均

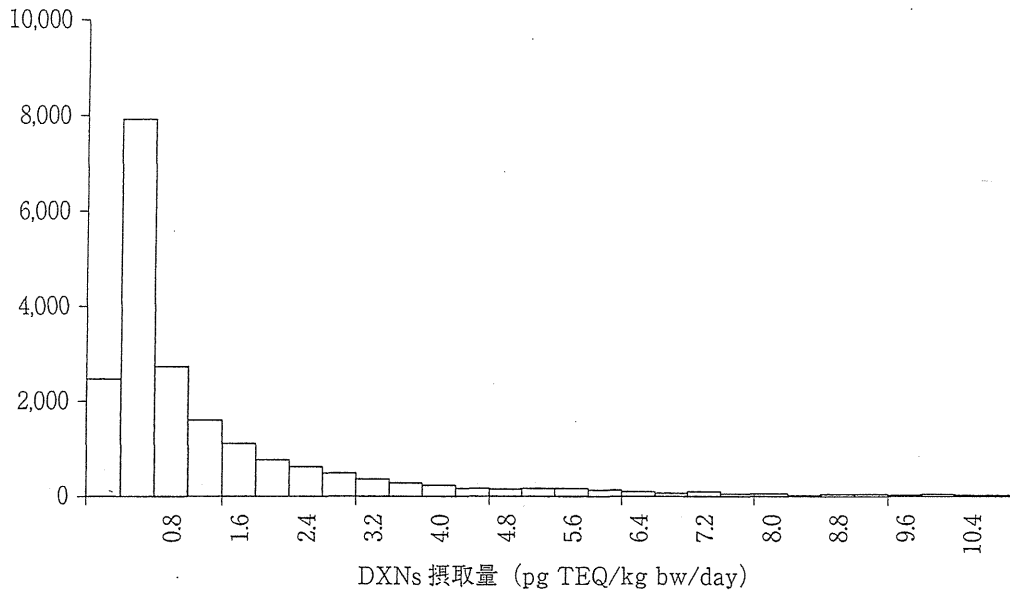


図3 モンテカルロシミュレーションにより推定した魚介類からのDXNs 1日摂取量分布

表8 モンテカルロシミュレーションにより推定した魚介類からのDXNs 1日摂取量分布の統計量

回数	20,000 回
平均値	1.3 pg TEQ/kg bw/day
中央値	0.36 pg TEQ/kg bw/day
90% tile 値	2.9 pg TEQ/kg bw/day
95% tile 値	4.9 pg TEQ/kg bw/day

値を図4に示した。図5は、魚介類13区分の1日あたりの摂取量を示している。DXNs 1日摂取量への寄与率は、“その他の生魚”が最も高く28%であり、次いで“魚介（塩蔵、生干し、乾物）”が20%，“あじ・いわし類”が18%，“まぐろ・かじき類”が15%であった。図5に示すように、1日に摂取される量は“魚介（塩蔵、生干し、乾物）”および“あじ・いわし類”が多く、このことからDXNs 1日摂取量にも高い割合を占めたと考えられる。“その他の生魚”は魚介類摂取全体の12%に過ぎないが、DXNs 1日摂取量への寄与率は28%と高くなった。“その他の生魚”に

は、DXNs濃度が高い報告が多いぶりを含むため、寄与率が高くなったと考えられる。軟体類や甲殻類および魚介の練り製品などでは、一般に脂肪含量が低いためDXNs濃度も低く、摂取量に対する寄与率は低く、特に“魚介練り製品”は1日摂取量が全体の12%を占めているが、DXNs 1日摂取量への寄与率は1%未満であった。練り製品は脂肪の少ない白身魚を原料として製造されることが多いためと考えられる。