

除くすべての試料では、PeCBs の比率が最も高く、次いで HxCBs の比率が高かった。このことは、表 9 に示した KC500-KC600(1 : 1) の同族体組成比に類似しており、PCB 工業製品に由来する同族体を生物濃縮した結果を反映しているのかもしれない。タラの同族体組成比は、TeCBs と PeCBs の比率が高く、KC400 と KC500 の PCB 塩素数別組成比への類似が指摘される。

2.3 市販魚介類試料中の PCBs と OH-PCBs 濃度の比較

魚介類 16 試料の Σ PCBs 並びに Σ OH-PCBs 及び、それらの比 (Σ OH-PCBs/ Σ PCBs) を表 10 に示す。 Σ OH-PCBs/ Σ PCBs は、PCBs の代謝能と OH-PCBs の保持能を評価する指標の一つであり、その比が 1 より大きい値の場合、その生物は代謝能、保持能が高いと考えられる。表 10 に示すように、 Σ OH-PCBs/ Σ PCBs は、平均 0.046(0.0014-0.22)であった。堀内らは、魚類の血液中の Σ OH-PCBs/ Σ PCBs は、0.0040-0.52 であると報告している⁷⁾。本研究と魚種、試料採取地、調査部位が異なるが、今回得られた結果は堀内らの調査結果と同じ傾向であった。

D 結論

魚介類中の OH-PCBs 分析においては、分析した 16 試料すべてから OH-PCBs が検出され、その湿重量当たりの濃度範囲は

0.020 ng/g~0.56 ng/g(平均 0.14 ng/g)であった。OH-PCBs の濃度に魚種による明確な違いは認められず、試料に含まれる脂肪量との間に正の相関も確認されなかった。OH-PCBs の同族体組成比は、OH-MoCBs と OH-DiCBs を主要同族体とする試料と、OH-PeCBs と OH-HxCBs を主要同族体とする試料に分類することができた。

魚介類中の PCBs 分析においては、測定した 16 試料すべてから PCBs が検出され、その湿重量当たりの濃度範囲は 0.20 ng/g~50 ng/g(平均 9.2 ng/g)であり、魚種別ではマグロやブリで濃度が高い傾向があり、脂肪含量との相関が見られた。PCBs の同族体組成比はタチウオを除き、PeCBs と HxCBs の組成が約 60 %であった。PCBs 調査結果は、これまで報告してきた結果⁸⁾⁹⁾と類似していた。

調査した魚 16 試料中の Σ OH-PCBs/ Σ PCBs は、0.0014-0.22(平均 0.046)であり、過去の調査結果と同程度の値であることが確認された。

OH-PCBs の一部の異性体では、代謝元の PCB に比べ毒性が高い異性体¹⁰⁾や体内への蓄積性を有する異性体が確認されている¹¹⁾¹²⁾。しかし食用魚の可食部から OH-PCBs を検出し、定量した報告は、これまでにほとんどなかった。今回の調査により、PCBs に比べ低濃度であるが、複数種の食用魚に OH-PCBs が含まれていることが明らかとなった。したがって、ヒトが摂取した後に OH-PCBs が PCBs と異なる機序で体内に蓄積、健康影響を及ぼすと仮定するならば、

食品から摂取される OH-PCBs の量を推定する必要がある。

E 参考文献

- 1) Ueno D., Darling C., Alae M., Campbell L., Pacepavicius G., Teixeira C., Muir D. Detection of Hydroxylated Poly-chlorinated Biphenyls (OH-PCBs) in the Abiotic Environment: Surface Water and Precipitation from Ontario, Canada. *Environ. Sci. Technol.* (2007) 41, 1841- 1848.
- 2) 先山孝則、奥村為男、森義明 水環境中の水酸化 PCB について. 第 14 回環境化学討論会要旨集、(2005)498-499.
- 3) Kunisue T., Tanabe S. Hydroxylated polychlorinated biphenyls (OH-PCBs) in the blood of mammals and birds from Japan: lower chlorinated OH-PCBs and profiles. *Chemosphere* (2009) 74, 950-961.
- 4) 難波智史、松田宗明、河野公栄、森田昌敏 水生生物とその周辺環境中における水酸化 PCB の挙動 第 18 回環境化学討論会要旨集、(2009)438-439.
- 5) William P. Flanagan, Ralph J. May, Metabolite detection as evidence for naturally occurring aerobic PCB biodegradation in Hudson River sediments. *Environ. Sci. Technol.* (1993) 27, 2207-2212.
- 6) 黒田純子、永田功、黒田洋一郎 低濃度水酸化 PCB による甲状腺ホルモン依存性小脳プルキンエ細胞発達分化の阻害. 環境ホルモン学会研究発表会要旨集、6、374.
- 7) 堀内聡子、内山幸子、野見山桂、篠原亮太 魚類中の PCBs 及び OH-PCBs について. 第 19 回環境化学討論会講演要旨集、462-463.
- 8) 堀 就英、梶原淳睦、安武大輔、中川礼子 魚介類中 PCBs の異性体分離分析 福岡県保健環境研究所年報 (2008) 35, 77-82.
- 9) 武 志保、劔持堅志、難波順子、門田 実 岡山県環境保健センター年報 (2002) 26, 65-72.
- 10) Fielden MR, Chen I, Chittim B, Safe SH, Zacharewski TR Examination of the estrogenicity of 2,4,6,2',6'-pentachloro biphenyl (PCB104), its hydroxylated metabolite 2,4,6,2',6'-pentachloro-4-biphenylol (OH-PCB104) , and further chlorinated derivative, 2,4,6,2',4',6'-hexachlorobiphenyl (PCB155). *Environ Health Perspect* (1997) 105, 1238-1248.
- 11) Sandau CD, Ayotte P, Dewailly E, Duffe J, Norstrom RJ Analysis of hydroxylated metabolites of PCBs (OH-PCBs) and other chlorinated phenolic compounds in whole blood from Canadian Inuit. *Environ Health Perspect* (2000) 108, 611-616
- 12) Hovader L, Malmberg T, Athanasiadou M, Athanassiadis I, Rahm S, Bergman Å , Klasson-Wehler E. Identification of hydroxylated PCB metabolites and other phenolic halogenated pollutants in human blood plasma. *Arch Environ Contam Toxicol* (2000) 42, 105-117.

F. 研究業績

1. 論文発表

なし

2. 学会発表

なし

表 1 分析に用いた魚試料(平成 25 年度購入試料)

No	Sample	Production regions	Fat content (%)	No	Sample	Production regions	Fat content (%)
1	Sardine	Chugoku-Shikoku	1.3	9	Tuna-1	Kyushu	18
2	Mackerel-1	Kyushu	3.8	10	Tuna-2	Kyushu	2.8
3	Mackerel-2	Kyushu	4.1	11	Horse mackerel-1	Kyushu	0.39
4	Yellowtail	Kyushu	3.5	12	Horse mackerel-2	Kyushu	0.11
5	Japanese seabass-1	Kyushu	0.54	13	Horse mackerel-3	Kyushu	0.32
6	Japanese seabass-2	Kyushu	0.41	14	Horse mackerel-4	Kyushu	1.4
7	Sea bream-1	Chugoku-Shikoku	5	15	Cod	Tohoku	0.078
8	Sea bream-2	Kyushu	0.96	16	Largehead hairtail	Kyushu	2.9

表 2-1 OH-PCBs 測定用標準物質一覧

OH-PCB 測定用標準物質	
Native 体標準物質	
OH-MoCB	6-OH-CB2、4-OH-CB1、4-OH-CB2、4'-OH-CB3
OH-DiCB	2'-OH-CB9、3'-OH-CB9、4'-OH-CB9 4-OH-CB14、2'-OH-CB5、2'-OH-CB12
OH-TrCB	2'-OH-CB30、6'-OH-CB18、3'-OH-CB30、4'-OH-CB2、4'-OH-CB30
OH-TeCB	2'-OH-CB61、2'-OH-CB65、6'-OH-CB69、3'-OH-CB613'-OH-CB65 4'-OH-CB50、4'-OH-CB61、4'-OH-CB69、4'-OH-CB72、4'-OH-CB65
OH-PeCB	6'-OH-CB101、4'-OH-CB121、6'-OH-CB112、4'-OH-CB93、3'-OH-CB101 4'-OH-CB101、6'-OH-CB106、4'-OH-CB86、4'-OH-CB112、4'-OH-CB106
OH-HxCB	4'-OH-CB165、4'-OH-CB159
OH-HpCB	4'-OH-CB172
Label 体クリーンアップスパイク	
OH-DiCB	¹³ C ₁₂ -4'-OH-CB12
OH-TrCB	¹³ C ₁₂ -4'-OH-CB29
OH-TeCB	¹³ C ₁₂ -4'-OH-CB61
OH-PeCB	¹³ C ₁₂ -4'-OH-CB120、 ¹³ C ₁₂ -4-OH-CB107
OH-HxCB	¹³ C ₁₂ -4-OH-CB146、 ¹³ C ₁₂ -3'-OH-CB138、 ¹³ C ₁₂ -4'-OH-CB159
OH-HpCB	¹³ C ₁₂ -4-OH-CB187、 ¹³ C ₁₂ -4'-OH-CB172
Label 体シリングスパイク	
PeCB	¹³ C ₁₂ -PCB111

表 2-2 PCBs 測定用標準物質一覧

PCB測定用標準物質	
Native体標準物質	
TrCB	PCB29、PCB28、PCB37
TeCB	PCB52、PCB49、PCB47、PCB44、PCB71、PCB63 PCB74、PCB70、PCB66、PCB60、PCB56
PeCB	PCB95、PCB92、PCB101、PCB99、PCB117、PCB87、PCB85 PCB110、PCB107、PCB123、PCB118、PCB114、PCB105 PCB151、PCB135、PCB147、PCB139、PCB134、PCB165
HxCB	PCB146、PCB132、PCB153、PCB141、PCB137、PCB130 PCB164、PCB138、PCB128、PCB167、PCB156、PCB157
HpCB	PCB179、PCB178、PCB182、PCB183、PCB181、PCB177 PCB172、PCB180、PCB191、PCB170、PCB189
OcCB	PCB202、PCB201、PCB200、PCB198、PCB203、PCB195、PCB194、PCB205
NoCB	PCB208、PCB207、PCB206
DeCB	PCB209
Label体クリーンアップスパイク	
TrCB	$^{13}\text{C}_{12}$ -PCB28、 $^{13}\text{C}_{12}$ -PCB37
TeCB	$^{13}\text{C}_{12}$ -PCB52、 $^{13}\text{C}_{12}$ -PCB70
PeCB	$^{13}\text{C}_{12}$ -PCB95、 $^{13}\text{C}_{12}$ -PCB101、 $^{13}\text{C}_{12}$ -PCB123、 $^{13}\text{C}_{12}$ -PCB118 $^{13}\text{C}_{12}$ -PCB114、 $^{13}\text{C}_{12}$ -PCB105
HxCB	$^{13}\text{C}_{12}$ -PCB153、 $^{13}\text{C}_{12}$ -PCB138、 $^{13}\text{C}_{12}$ -PCB157
HpCB	$^{13}\text{C}_{12}$ -PCB178、 $^{13}\text{C}_{12}$ -PCB180、 $^{13}\text{C}_{12}$ -PCB170、 $^{13}\text{C}_{12}$ -PCB189
OcCB	$^{13}\text{C}_{12}$ -PCB194
NoCB	$^{13}\text{C}_{12}$ -PCB206
DeCB	$^{13}\text{C}_{12}$ -PCB209
Label体シリングスパイク	
PeCB	$^{13}\text{C}_{12}$ -PCB111

表3 OH-PCBs及びPCBsのHRGC/HRMS測定条件

OH-PCB測定条件	
GC条件	
注入口温度	280 °C
注入方法	Splitless
注入量	2 µL
Heガス流量	1.3 mL/min.
キャピラリーカラム	HT8PCB (60 m × φ0.25 mm)
昇温条件	120°C(1min)→30°C/min→180°C→5°C/min →275°C→40°C/min→310°C
イオン源温度	270 °C
トランスファー温度	280 °C

MS条件					
Injection 1			Injection 2		
OH-PCBs	定量用	確認用	OH-PCBs	定量用	確認用
OMe-MoCB	218.0498	220.0472	OMe-PeCB	355.8911	357.8882
OMe-DiCB	252.0109	254.0081	OMe-HxCB	389.8521	391.8492
OMe-TrCB	287.9691	289.9663	OMe-HpCB	423.8131	425.8102
OMe-TeCB	321.9301	319.9329			
クリーンアップスパイク(¹³ C ₁₂ -OH-PCBs)			クリーンアップスパイク(¹³ C ₁₂ -OH-PCBs)		
OMe- ¹³ C ₁₂ -DiCB	264.0511	-	OMe- ¹³ C ₁₂ -PeCB	365.9342	-
OMe- ¹³ C ₁₂ -TrCB	300.0092	-	OMe- ¹³ C ₁₂ -HxCB	399.8952	-
OMe- ¹³ C ₁₂ -TeCB	333.9702	-	OMe- ¹³ C ₁₂ -HpCB	433.8563	-
シリンジスパイク(¹³ C ₁₂ -PCB111)			シリンジスパイク(¹³ C ₁₂ -PCB111)		
¹³ C ₁₂ -PCB111	337.9207	-	¹³ C ₁₂ -PCB111	337.9207	-

PCBs測定条件	
GC条件	
注入口温度	280 °C
注入方法	Splitless
注入量	1 µL
Heガス流量	1.3 mL/min.
キャピラリーカラム	HT8PCB (60 m × φ0.25 mm)
昇温条件	130°C(1min)→20°C/min→220°C→3°C/min →280°C→20°C/min→300°C
イオン源温度	270 °C
トランスファー温度	280 °C

MS条件					
Injection 1			Injection 2		
PCBs	定量用	確認用	PCBs	定量用	確認用
TrCB	255.9613	257.9585	HxCB	359.8415	361.8385
TeCB	291.9195	289.9224	HpCB	393.8025	395.7996
PeCB	325.8805	327.8776	OcCB	429.7606	427.7636
NoCB	463.7217	461.7246			
DeCB	497.6827	499.6798			
クリーンアップスパイク(¹³ C ₁₂ -PCBs)			クリーンアップスパイク(¹³ C ₁₂ -PCBs)		
¹³ C ₁₂ -TrCB	268.0016	-	¹³ C ₁₂ -HxCB	371.8817	-
¹³ C ₁₂ -TeCB	303.9597	-	¹³ C ₁₂ -HpCB	405.8428	-
¹³ C ₁₂ -PeCB	337.9207	-	¹³ C ₁₂ -OcCB	441.8008	-
¹³ C ₁₂ -NoCB	475.7619	-			
¹³ C ₁₂ -DeCB	509.7229	-			
シリンジスパイク(¹³ C ₁₂ -PCB111)			シリンジスパイク(¹³ C ₁₂ -PCB111)		
¹³ C ₁₂ -PCB111	337.9207	-	¹³ C ₁₂ -PCB111	337.9207	-

表 4 高速溶媒抽出の条件

機器	DIONEX社製 ASE-350
抽出条件	オープン温度 100 °C
抽出圧力	1500 psi
抽出溶媒	ヘキサン
設定温圧保持時間	5 分
フラッシュ容積	セル容積の40 %
ガスパージ時間	120 秒
静止サイクル数	2 回

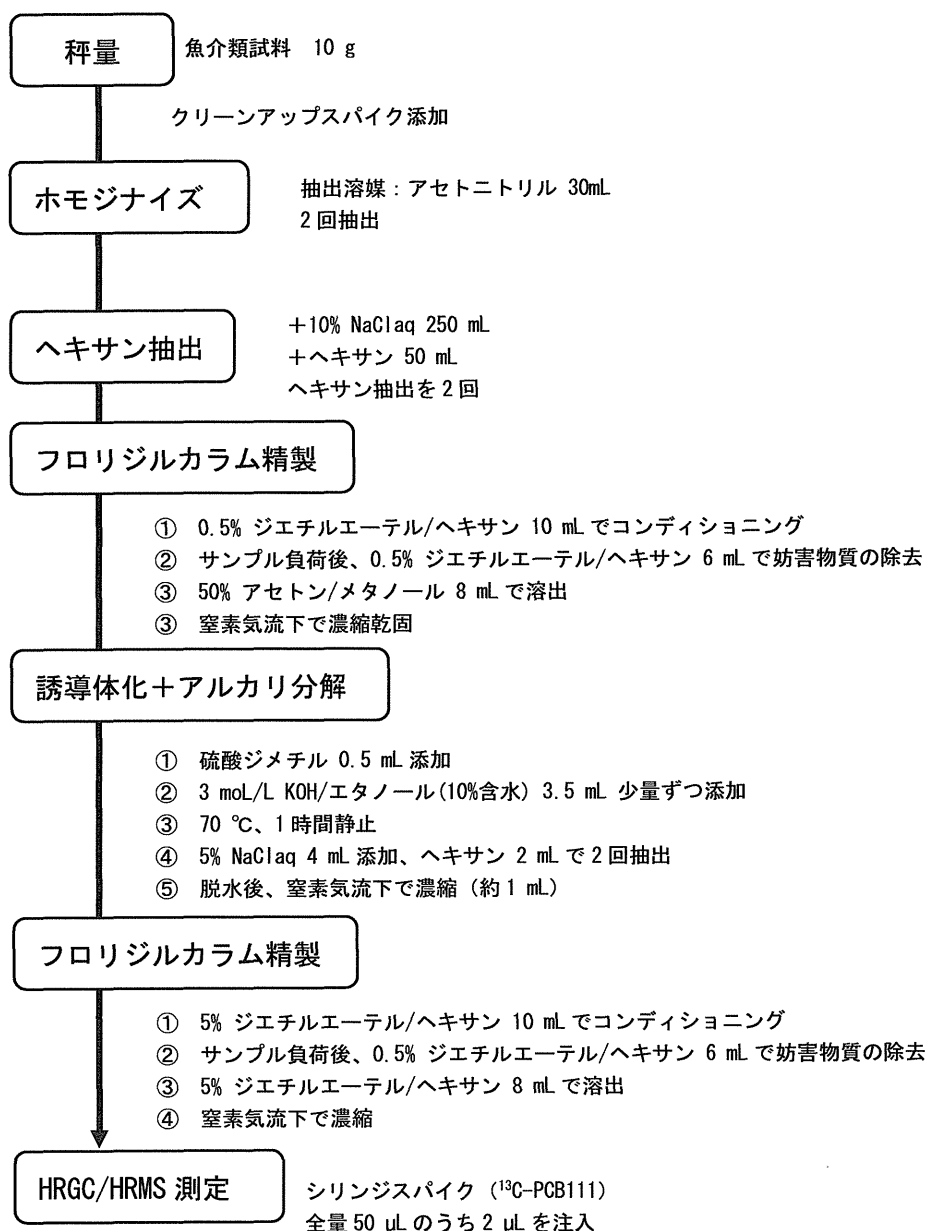


図 1 魚介類中の OH-PCBs の分析フロー

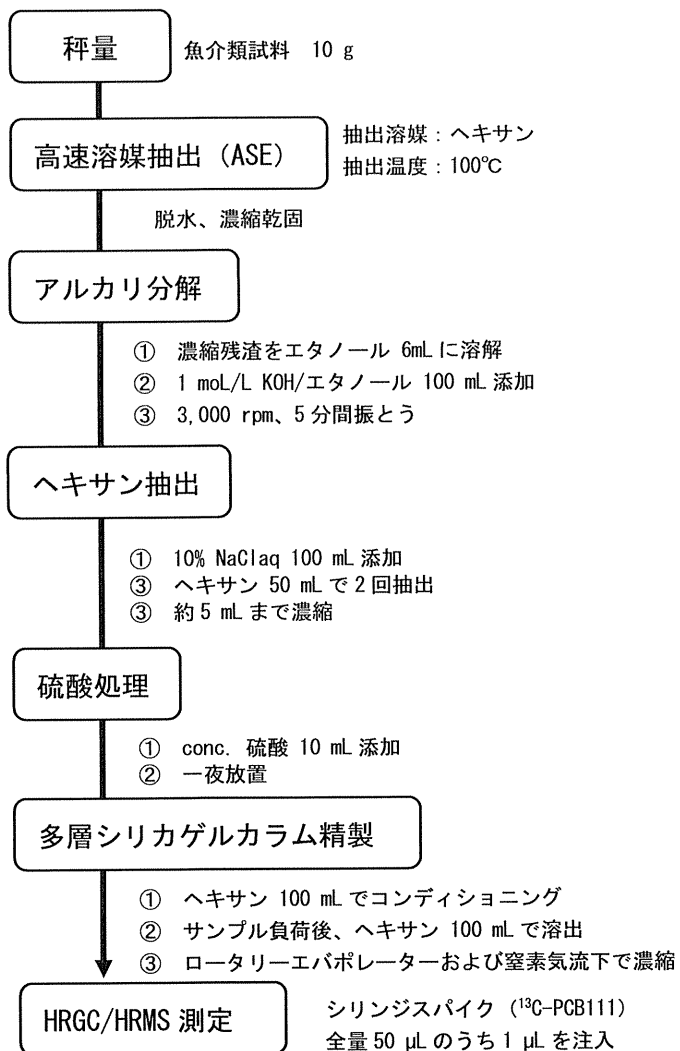


図 2 魚介類中の PCBs の分析フロー

表5 魚介類中のOH-PCBsの分析結果

(ng/g ww)

	Sardine	Mackerel-1	Mackerel-2	Yellowtail	Japanese seabass-1	Japanese seabass-2	Sea bream-1	Sea bream-2	Tuna-1	Tuna-2	Horse mackerel-1	Horse mackerel-2	Horse mackerel-3	Horse mackerel-4	Cod	Largehead hairtail	Mean	Mn	Max	
OH-MoCBs	6-OH-CB2	0.0020	ND	0.0027	ND	0.0016	0.00020	ND	0.00019	ND	0.0017	0.0056	0.00051	0.00073	0.00036	ND	0.00021	0.00099	ND	0.0056
	4-OH-CB1	0.032	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.039	0.0041	0.0033	0.0010	ND	ND	0.0050	ND	0.039	
	4-OH-CB2&4'-OH-CB3	0.0070	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.0013	0.011	0.00072	0.00062	ND	ND	ND	0.0013	ND	0.011	
OH-DiCBs	2'-OH-CB9	0.012	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.019	0.0015	0.0015	0.00041	ND	ND	0.0022	ND	0.019	
	3'-OH-CB9	0.0060	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.010	0.00089	0.0015	ND	ND	ND	0.0012	ND	0.010		
	4'-OH-CB9&4-OH-CB14	0.0070	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.012	0.0011	0.0020	ND	ND	ND	0.0014	ND	0.012		
	2'-OH-CB5	0.0035	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.00049	ND	ND	ND	0.00025	ND	0.0035		
	2'-OH-CB12	0.0047	ND	ND	0.0017	ND	ND	ND	0.012	0.0034	ND	ND	ND	ND	ND	0.0012	0.0014	ND	0.012	
OH-TriCBs	2'-OH-CB30	0.0037	0.0012	ND	ND	ND	ND	ND	0.0015	ND	0.0044	0.00085	0.0015	ND	ND	ND	0.00082	ND	0.0044	
	6'-OH-CB18	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.0011	ND	ND	ND	0.00070	ND	0.0011	
	3'-OH-CB30	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.00025	ND	ND	0.0027	ND	0.0019	ND	ND	ND	0.00030	ND	0.0027	
	4'-OH-CB2	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.0011	ND	ND	ND	0.00070	ND	0.0011	
	4'-OH-CB30	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.0012	ND	ND	ND	0.00074	ND	0.0012		
OH-TeCBs	2'-OH-CB61	0.00049	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.00098	0.00026	0.0015	ND	ND	ND	0.00020	ND	0.0015	
	2'-OH-CB65	0.00041	ND	ND	ND	ND	ND	0.00015	ND	ND	0.0015	0.00019	0.0016	ND	ND	ND	0.00024	ND	0.0016	
	6'-OH-CB69	0.00036	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.00089	0.0025	ND	ND	ND	ND	0.00019	ND	0.0025	
	3'-OH-CB61	0.00059	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.00020	0.0025	ND	ND	ND	ND	0.00021	ND	0.0025	
	3'-OH-CB65	0.00078	0.00075	0.013	ND	0.0015	0.00066	0.0012	0.00016	0.029	0.0046	0.0011	0.00026	0.0031	0.00033	0.00018	0.00028	0.0036	ND	0.029
	4'-OH-CB50	0.00083	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.00039	ND	0.0011	0.00019	0.0021	0.000048	ND	ND	0.00029	ND	0.0021	
	4'-OH-CB61	0.00076	ND	ND	0.00021	0.00027	0.00028	0.00022	ND	0.00044	0.00085	0.00032	0.0018	0.00021	0.00023	0.00024	0.00037	ND	0.0018	
	4'-OH-CB69	0.00065	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.0019	ND	ND	ND	0.00016	ND	0.0019	
	4'-OH-CB72	0.00034	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.00010	0.0015	ND	ND	ND	0.00012	ND	0.0015	
	4'-OH-CB65	0.00044	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.00071	0.00014	0.0031	ND	ND	ND	0.00027	ND	0.0031		
OH-PeCBs	6'-OH-CB101	0.0016	ND	0.0036	0.0011	0.0017	0.00046	0.0014	0.0019	0.23	ND	ND	0.00085	0.010	0.00038	ND	0.0019	0.016	ND	0.23
	4'-OH-CB121	0.00083	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.00070	0.011	ND	ND	ND	0.00078	ND	0.011	
	6'-OH-CB112	0.0012	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.0010	0.019	ND	ND	ND	0.0013	ND	0.019	
	4'-OH-CB93	0.0016	ND	ND	ND	ND	0.00031	ND	ND	0.0010	0.00098	0.0013	0.020	ND	ND	ND	0.0016	ND	0.020	
	3'-OH-CB101	0.00077	ND	0.0011	ND	ND	ND	ND	0.0082	ND	ND	0.00078	0.016	ND	ND	ND	0.0017	ND	0.016	
	4'-OH-CB101	0.00052	ND	0.0044	0.0037	0.0039	0.0040	0.0035	0.0035	0.0000065	0.0059	0.0057	0.0039	0.015	0.0036	0.0057	0.0035	0.0042	ND	0.015
	4'-OH-CB120	0.00040	ND	0.00046	0.00041	0.00039	0.00044	0.00038	0.00037	ND	0.00047	0.00035	0.00041	0.00040	0.00042	0.00045	0.00037	0.00036	ND	0.00047
	6'-OH-CB106	0.0037	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.00089	0.017	ND	ND	ND	0.0013	ND	0.017	
	4'-OH-CB86&4'-OH-CB112	0.0026	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.0028	0.0027	0.0021	0.042	ND	ND	ND	0.0033	ND	0.042	
	4'-OH-CB107	0.00048	0.00045	0.00051	0.00047	0.00048	0.00046	0.00049	0.00053	0.00049	0.00055	0.00049	0.00045	0.00048	0.00052	0.00047	0.00049	0.00045	0.00055	
	4'-OH-CB106	0.0026	ND	0.00063	ND	ND	ND	ND	0.0016	0.0046	0.0044	0.0017	0.036	ND	ND	ND	0.0032	ND	0.036	
OH-HxCBs	4'-OH-CB165	0.00054	ND	ND	0.0044	0.0041	ND	0.0042	0.0046	ND	0.00056	0.00054	0.00096	0.013	0.0046	0.0047	0.0051	0.0029	ND	0.013
	4'-OH-CB146	0.00084	0.00084	0.00095	0.00086	0.00078	0.00091	0.00085	0.00087	0.0011	0.00093	0.00091	0.00088	0.00090	0.00090	0.00086	0.00095	0.00089	0.00078	0.0011
	3'-OH-CB138	0.00031	0.00025	0.00026	0.00028	0.00036	0.00032	0.00028	0.00033	0.00037	ND	0.00031	0.00031	0.00032	0.00039	0.00035	0.00032	0.00032	0.00025	0.00039
	4'-OH-CB159	0.0017	0.0017	0.0017	0.0014	0.0016	0.0015	0.0016	0.0017	0.0017	0.0019	0.0016	0.0018	0.0048	0.0018	0.0017	0.0018	0.0019	0.0014	0.0048
OH-HpCBs	4-OH-CB187	0.00071	0.00071	0.00085	0.00084	0.00075	0.00083	0.00074	0.00079	0.0010	0.00078	0.00094	0.00081	0.00083	0.00080	0.00090	0.0012	0.00084	0.00071	0.0012
	4'-OH-CB172	0.018	0.017	0.016	0.018	0.017	0.018	0.014	0.018	0.017	0.017	0.017	0.038	0.050	0.018	0.017	0.018	0.020	0.014	0.050
	OH-MoCBs	0.089	ND	0.0059	ND	0.0035	0.00043	ND	0.00042	ND	0.0065	0.12	0.012	0.010	0.0030	ND	0.00046	0.016	ND	0.120
	OH-DiCBs	0.12	0.084	0.21	0.072	ND	0.0026	0.020	0.0020	0.30	0.096	0.15	0.0087	0.016	0.013	0.00098	0.036	0.070	ND	0.30
	OH-TriCBs	0.0046	0.0031	ND	0.00065	0.0026	0.0014	0.0021	0.0015	0.0028	0.0011	0.0073	0.0019	0.0086	0.00076	0.0013	0.0019	0.0026	ND	0.0086
	OH-TeCBs	0.019	0.0045	0.020	0.0070	0.012	0.0025	0.0078	0.0027	0.026	0.0081	0.023	0.0042	0.021	0.0019	0.0019	0.0029	0.010	0.0019	0.026
	OH-PeCBs	0.0091	0.0084	0.013	0.011	0.0049	0.0057	0.0070	0.0055	0.21	0.059	0.0071	0.018	0.027	0.0070	0.0050	0.0089	0.026	0.0049	0.21
	OH-HxCBs	0.0054	0.0054	0.0062	0.010	0.0084	0.0062	0.0052	0.0068	0.010	0.010	0.0066	0.0065	0.012	0.0067	0.0063	0.0068	0.074	0.0052	0.074
	OH-HpCBs	0.0031	0.0030	0.0029	0.0033	0.0031	0.0037	0.0027	0.0032	0.0087	0.0039	0.0034	0.0053	0.0062	0.0035	0.0043	0.0039	0.0040	0.0027	0.0087
	Σ OH-PCBs	0.25	0.11	0.26	0.10	0.034	0.023	0.045	0.022	0.56	0.19	0.32	0.056	0.10	0.036	0.020	0.061	0.14	0.020	0.56

表 6 魚介類中の OH-PCBs の同族体組成比

	(%)						
	OH-MoCBs	OH-DiCBs	OH-TriCBs	OH-TeCBs	OH-PeCBs	OH-HxCBs	OH-HpCBs
Sardine	36	47	1.9	7.8	3.7	2.2	1.3
Mackerel-1	0	78	2.9	4.1	7.7	5.0	2.7
Mackerel-2	2.3	82	0	7.6	4.9	2.4	1.1
Yellowtail	0	70	0.63	6.7	10	9.5	3.2
Japanese seabass-1	10	0	7.5	35	14	24	8.9
Japanese seabass-2	1.9	12	6.2	11	25	28	17
Sea bream-1	0	44	4.7	18	16	12	5.9
Sea bream-2	1.9	8.9	6.9	12	25	31	15
Tuna-1	0	53	0.50	4.6	38	1.8	1.6
Tuna-2	3.5	52	0.60	4.4	32	5.6	2.1
Horse mackerel-1	38	47	2.3	7.1	2.2	2.1	1.0
Horse mackerel-2	21	16	3.4	7.6	31	12	9.5
Horse mackerel-3	10	16	8.5	21	27	12	6.1
Horse mackerel-4	8.3	37	2.1	5.1	20	19	9.8
Cod	0	5.0	6.7	9.4	25	32	22
Largehead hairtail	0.75	59	3.2	4.7	15	11	6.5

表 7 魚介類中の PCBs の同族体分析結果

	(ng/g-ww)									
	Fat content (%)	TrCBs	TeCBs	PeCBs	HxCBs	HpCBs	OcCBs	NoCBs	DeCB	Σ PCBs
Sardine	1.3	0.053	0.22	0.41	0.75	0.38	0.066	0.0094	0.0074	1.9
Mackerel-1	3.8	0.062	0.18	0.43	0.76	0.41	0.049	0.014	0.012	1.9
Mackerel-2	4.1	0.19	0.96	2.4	3.3	1.4	0.19	0.038	0.028	8.5
Yellowtail	3.5	0.26	1.6	5.4	10	4.9	0.66	0.093	0.086	23
Japanese seabass-1	0.54	0.14	0.65	1.2	1.5	0.47	0.072	0.0053	0.0019	4.1
Japanese seabass-2	0.41	0.34	1.3	2.5	2.7	0.90	0.14	0.012	0.0046	7.8
Sea bream-1	5	0.35	1.1	1.9	2.4	0.99	0.12	0.015	0.011	6.9
Sea bream-2	0.96	0.94	2.6	4.5	5.6	2.4	0.31	0.038	0.023	16
Tuna-1	18	0.79	5.1	15	20	8.0	1.1	0.20	0.12	50
Tuna-2	2.8	0.16	0.82	2.5	3.3	1.4	0.22	0.043	0.027	8.5
Horse mackerel-1	0.39	0.030	0.12	0.35	0.62	0.34	0.046	0.0028	0.0011	1.5
Horse mackerel-2	0.11	0.047	0.23	0.58	1.1	0.77	0.12	0.0083	0.0047	2.8
Horse mackerel-3	0.32	0.039	0.11	0.20	0.35	0.22	0.038	0.0049	0.0042	0.96
Horse mackerel-4	1.4	0.065	0.20	0.44	0.71	0.43	0.071	0.012	0.014	1.9
Cod	0.078	0.029	0.061	0.064	0.040	0.0093	0.0010	ND	0.00037	0.20
Largehead hairtail	2.9	0.18	0.80	1.9	4.4	2.5	0.32	0.018	0.0047	10
Mean	2.9	0.23	1.0	2.5	3.6	1.6	0.22	0.034	0.022	9.2
Min	0.078	0.029	0.061	0.064	0.040	0.0093	0.0010	ND	0.00037	0.20
Max	18	0.94	5.1	15	20	8.0	1.1	0.20	0.12	50

表 8 魚介類中の PCBs の同族体組成比

	(%)							
	TrCBs	TeCBs	PeCBs	HxCBs	HpCBs	OcCBs	NoCBs	DeCB
Sardine	2.8	12	21	40	20	3.5	0.50	0.39
Mackerel-1	3.2	9.7	23	40	21	2.6	0.74	0.65
Mackerel-2	2.2	11	28	39	16	2.2	0.45	0.33
Yellowtail	1.1	6.7	23	44	21	2.9	0.40	0.38
Japanese seabass-1	3.5	16	30	37	11	1.7	0.13	0.046
Japanese seabass-2	4.4	16	32	35	12	1.7	0.16	0.059
Sea bream-1	5.1	16	27	35	14	1.8	0.22	0.16
Sea bream-2	5.9	16	28	35	15	1.9	0.23	0.14
Tuna-1	1.6	10	31	40	16	2.2	0.39	0.23
Tuna-2	1.9	9.7	30	39	17	2.6	0.51	0.32
Horse mackerel-1	2.0	7.7	23	42	22	3.1	0.19	0.08
Horse mackerel-2	1.7	8.4	21	38	27	4.1	0.30	0.17
Horse mackerel-3	4.0	11	21	36	23	4.0	0.51	0.44
Horse mackerel-4	3.4	11	23	37	23	3.7	0.63	0.73
Cod	15	31	32	20	4.6	0.51	0.000	0.19
Largehead hairtail	1.8	8.0	19	44	25	3.2	0.18	0.047

表 9 PCB 工業製品中の同族体組成比

	(%)					
	KC200	KC300	KC400	KC500	KC600	KC500-KC600 (1:1)
MoCBs	25	0	0	0	0	0
DiCBs	16	13	1	0	0	0
TrCBs	33	49	20	2	2	2
TeCBs	19	30	55	15	3	9
PeCBs	4	6	19	44	10	27
HxCBs	1	2	3	31	38	34
HpCBs	1	1	1	6	37	22
OcCBs	0	0	0	1	9	5
NoCBs	0	0	0	0	1	0
DeCB	0	0	0	0	0	0

表 10 魚介類中の PCBs と OH-PCBs の濃度比率

	Fat content (%)	Σ PCBs (ng/g ww)	Σ OH-PCBs (ng/g ww)	Σ OH-PCBs / Σ PCBs
Sardine	1.3	1.9	0.26	0.13
Mackerel-1	3.8	1.9	0.11	0.057
Mackerel-2	4.1	8.5	0.26	0.030
Yellowtail	3.5	23	0.10	0.0045
Japanese seabass-1	0.54	4.1	0.034	0.0084
Japanese seabass-2	0.41	7.8	0.023	0.0029
Sea bream-1	5.0	6.9	0.044	0.0065
Sea bream-2	0.96	16	0.022	0.0014
Tuna-1	18	50	0.56	0.011
Tuna-2	2.8	8.5	0.19	0.022
Horse mackerel-1	0.39	1.5	0.32	0.22
Horse mackerel-2	0.11	2.8	0.056	0.020
Horse mackerel-3	0.32	0.96	0.10	0.11
Horse mackerel-4	1.4	1.9	0.036	0.019
Cod	0.078	0.20	0.020	0.10
Largehead hairtail	2.9	10	0.061	0.0061
Mean	2.9	9.2	0.14	0.046
Min	0.078	0.20	0.020	0.0014
Max	18	50	0.56	0.22

II. 分担研究報告 2

食品からの塩素化ダイオキシン類の摂取量調査に関する研究

堤 智昭

食品を介したダイオキシン類等有害物質摂取量の評価と
その手法開発に関する研究

分担研究報告書

食品からの塩素化ダイオキシン類の摂取量調査に関する研究
塩素化ダイオキシン類のトータルダイエツト調査

研究代表者 渡邊敬浩 国立医薬品食品衛生研究所食品部
研究分担者 堤 智昭 国立医薬品食品衛生研究所食品部

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(TD)試料を用いて、ダイオキシン類(PCDD/PCDFs及びCo-PCBs)の国民平均一日摂取量を求めた。国民健康・栄養調査による地域別の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TD試料を全国7地区8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)及び11群(肉・卵類)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。10及び11群については試料毎にダイオキシン類を分析し、その他の群は全地区の試料を混合して分析し、ダイオキシン類の一日摂取量を求めた。その結果、ダイオキシン類の国民平均一日摂取量は0.69(範囲:0.26~2.02) pg TEQ/kg bw/dayと推定された。10群(魚介類)からのダイオキシン類摂取が全体の約9割を占めていた。摂取量推定値の平均は、日本の耐容一日摂取量(4 pg TEQ/kg bw/day)の約17%であった。摂取量推定値の最大は2.02 pg TEQ/kg bw/dayであり、平均値の約2.9倍となり耐容一日摂取量の半分程度に相当した。同一機関であっても推定される摂取量に1.2~7.6倍の開きがあり、10群に含まれている魚介類のダイオキシン類濃度が大きな影響を与えた。

研究協力者

(一財)日本食品分析センター
伊佐川 聡、柳 俊彦、飯塚誠一郎
国立医薬品食品衛生研究所
松田りえ子、植草義徳、五十嵐敦子

A. 研究目的

トータルダイエツト(TD)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)費補助金により、毎年実施されており、国民のダイオキシン類暴露量とその経年推移に関する知見が得られている。国民平均のダイオキシン類摂取量を推定するため、本年度も昨年度に引き続き全国7地区8機関において日本人の平均的な食品摂取に従ったTD試料を調製し、試料中のダイオキシ

ン類を分析し、一日摂取量を求めた。

B. 研究方法

1. 試料

国民平均のダイオキシン類摂取量を推定するためのTD試料は、全国7地区の8機関で調製した。厚生労働省が実施した平成20～22年度の国民健康・栄養調査の地域別食品摂取量(1歳以上)を項目ごとに平均し、各食品の地域別摂取量とした。食品は13群に大別して試料を調製した。各機関はそれぞれ約120品目の食品を購入し、地域別食品摂取量に基づいて、それらの食品を計量し、食品によっては調理した後、食品群ごとに混合均一化したものを試料とした。作製したTD試料は、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。

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(水道水)を加えている。

第1～9群、及び第12～14群は、各機関で1セットの試料を調製した。第10及び11群はダイオキシン類の主要な摂取源であるため、8機関

が各群3セットずつ調製した。これら3セットの試料調製では、魚種、産地、メーカー等が異なる食品を含めた。各機関で3セットずつ調製した第10及び11群の試料はそれぞれの試料を分析に供した。一方、第1～9群及び第12～14群は、各機関の食品摂取量に応じた割合で混合した共通試料とし、分析に供した。

2. 分析対象項目及び検出限界

分析対象項目は、WHOが毒性係数(TEF)を定めたPCDDs7種、PCDFs10種及びCo-PCBs12種の計29種とした。

ダイオキシン類各異性体の検出限界値は以下のとおりである。

	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. 分析方法

ダイオキシン類の分析法は、「食品中のダイオキシン類測定方法ガイドライン」(厚生労働省、平成20年2月)に従った。

4. 分析結果の表記

調査結果は、一日摂取量を体重あたりの毒性等量(pgTEQ/kg bw/day)で示した。TEQの算出には2005年に定められたTEFを使用し、分析値が検出限界値未満の異性体濃度をゼロとして計算した値(以下、ND=0と略す)と、個々の異性体の検出限界値濃度の1/2として計算した値(以下、ND=LOD/2と略す)を示した。

C. 研究結果及び考察

7地区の8機関において調製したTD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。第10及び11群は機関毎に3試料からの分

析値が得られるので、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。従って、PCDD/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の一日摂取量は、ND=0の場合、平均10.51(範囲:3.97~19.64)pgTEQ/dayであった。これを、日本人の平均体重を50kgとして、体重(kg)あたりの一日摂取量に換算すると、平均0.21(範囲:0.08~0.39)pgTEQ/kg bw/dayとなった(表1)。平成25年度は平均0.18(範囲:0.03~0.44)pgTEQ/kg bw/dayであり、今年度の平均値は1.2倍高い値であった。ND=LOD/2の場合のPCDD/PCDFsの一日摂取量は、平均49.36(範囲:43.59~57.07)pgTEQ/dayであり、体重あたり平均0.99(範囲:0.87~1.14)pgTEQ/kg bw/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(魚介類)81.1%、11群(肉・卵類)14.6%であり、これら2群で全体の95.7%を占めた。ND=LOD/2の場合、高い順に9群(酒類、嗜好飲料)22.2%、10群18.7%、1群(米、米加工品)15.1%であった。9群と1群のPCDD/PCDFs分析値は全てNDであったが、これらの群の食品摂取量が多いため、ND=LOD/2として計算した場合、結果として高い摂取量が得られ寄与率が高くなっている。

2. Co-PCBs 摂取量

Co-PCBsの一日摂取量は、ND=0の場合、平均14.92(範囲:9.14~83.73)pgTEQ/dayであり、体重あたり平均0.48(範囲:0.18~1.67)

pgTEQ/kg bw/day であった(表 2)。平成 25 年度は平均 0.39 (範囲: 0.15 ~ 0.66) pgTEQ/kg bw/day であり、今年度の平均値は 1.2 倍高い値であった。一方、今年度の最大値は平成 25 年度と比較して 2.5 倍高い値であった。中部地区で作製した 10 群試料(#3)において、他よりも顕著に高い濃度の Co-PCBs が検出されたため摂取量の最大値が大きくなった。ND=LOD/2 の場合の摂取量は、平均 36.93 (範囲: 22.28 ~ 96.34) pgTEQ/day であり、体重あたりとすれば、平均 0.74 (範囲: 0.45 ~ 1.93) pgTEQ/kg bw/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)97.2%、11 群(肉・卵類)2.6%であり、これら 2 群で全体の 99.8%を占めた。ND=LOD/2 の場合は、高い順に 10 群 63.2%、9 群 10.1%、1 群 6.9%であった。PCDD/PCDFs の場合と同様に、9 群と 1 群の Co-PCBs 分析値は全て ND であったが、ND=LOD/2 として計算するため、結果として 9 群及び 1 群からの寄与率が高くなった。

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一日摂取量は、ND=0 の場合、平均 34.51 (範囲: 13.24 ~ 100.85) pgTEQ/day であり、体重あたりの摂取量は平均 0.69 (範囲: 0.26 ~ 2.02) pgTEQ/kg bw/day であった(表 3)。平均値は日本の TDI (4 pgTEQ/kg bw/day) の 17%程度であり、最大値は TDI の 50%程度に相当した。平成 25 年度は平均 0.58 (範囲: 0.18 ~ 0.97) pgTEQ/kg bw/day であり、今年度の平均値は 1.2 倍高い値であった。一方、最大値は平成 25 年度と比べ 2.1 倍高い値であった。前述したように中部地区で作製した 10 群試料(#3)の Co-PCBs 濃度が他よりも顕著に高い濃度であったことが

影響している。ND=LOD/2 の場合の一日摂取量は、平均 86.29 (範囲: 65.87 ~ 152.23) pgTEQ/day であり、体重あたりの摂取量は平均 1.73 (範囲: 1.32 ~ 3.04) pgTEQ /kg bw/day であった(表 6)。

ダイオキシン類摂取量に対する寄与率が高い食品群は、ND=0 の場合、10 群(魚介類) 92.3%、11 群(肉・卵類)6.3%であり、これら 2 群で全体の 98.6%を占めた。ND=LOD/2 の場合は、高い順に 10 群 37.7%、9 群(酒類、嗜好飲料) 17.0%、1 群(米、米加工品) 11.6%であり、PCDD/PCDFs 及び Co-PCBs の場合と同じく、1 群及び 9 群の寄与率が高くなった。9 群と 1 群のダイオキシン類分析値は全て ND であったが、ND=LOD/2 として計算するため、結果として 9 群及び 1 群からの寄与率が高くなった。ダイオキシン類摂取量に占める Co-PCBs の割合は、ND=0 の場合、70%であった。平成 24 及び 25 年度における割合は 69%及び 68%であり、ほぼ 7 割を推移している。

本調査研究では、ダイオキシン類摂取への寄与が大きい第 10 群及び第 11 群の試料を各機関で各 3 セット調製し、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ている。平成 26 年度は、同一機関であっても、推定されるダイオキシン類摂取量の最小値と最大値には 1.2 ~ 7.6 倍の開きがあった。平成 25 年度は同一機関における最小値と最大値の開きは 1.2 ~ 3.5 倍であり、今年度は最小値と最大値の開きが平成 25 年度と比べ大きかった。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、ダイオキシン類濃度は大きく異なる場合があった。特に 10 群のダイオキシン類濃度の違いが摂取量に大きな影響を与えていた。図 1 には、本年度と平成 25 年度の全機関の 10 群のダイオキシン類濃度を箱ひげ図により示した。10 群のダイオキシン

類濃度は広い範囲に分布しており、10群試料に含まれる魚種や個体等の違いがダイオキシン類濃度に影響していると考えられる。特に本年度は平成25年度と比較し、ダイオキシン類濃度が顕著に高い10群試料(中部地区#3)が1試料存在していた。このため、ダイオキシン類摂取量の最大値が平成25年度と比較し高くなり、平均値も影響を受けている。

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と図2に示した。平成10～18年度の調査結果は、平成12年度厚生科学研究費補助金研究事業「ダイオキシン類の食品経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」、及び平成18年度厚生労働科学研究費補助金研究事業「ダイオキシン類による食品汚染実態の把握に関する研究報告書」から引用し、2005年のTEFを用いて再計算した。平成19～21年度の調査結果は、平成21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報告書」から引用した。平成22～24年度の摂取量は、平成24及び25年度厚生労働科学研究費補助金研究事業「食品を介したダイオキシン類等有害物質摂取量の評価とその手法開発に関する研究」から引用した。

ダイオキシン類摂取量の経年変化についてみると、平成10年度以降、摂取量の平均値は若干の増減はあるものの緩やかな減少傾向を示した(図2)。平成26年度のダイオキシン類摂取量(平均値)は0.69 pgTEQ/kg bw/dayであり、平成10年以降の調査結果の中で3番目に低い値であった。また、調査研究が開始時の平成10年度

のダイオキシン類摂取量は1.75 pgTEQ/kg bw/dayであり、これと比較すると最近数年間のダイオキシン類摂取量は40%以下まで低下している。

さらに、ダイオキシン類摂取量が減少した要因について考察するため、ダイオキシン類摂取量に占める割合が大きい10群及び11群のダイオキシン類濃度の経年変化を図3に示した。11群のダイオキシン類濃度は平成18年度頃までは顕著に減少し、その後一定となっている。一方、10群のダイオキシン類濃度は多少の増減があるものの、減少傾向は現在も維持されており、平成26年度のダイオキシン類濃度は平成10年度の70%程度であった。平成18年度頃まではダイオキシン類摂取量の減少傾向が大きかったが、18年度以降の減少傾向は小さくなっている(図2)。平成18年頃までは、10群の他に11群のダイオキシン類濃度の減少も加わっていたため、摂取量の減少傾向が大きかったと考えられる。これらのダイオキシン類濃度の低下については、平成11年に制定されたダイオキシン類対策特別措置法により、焼却施設等からのダイオキシン類の排出が大幅に抑制された効果の影響が窺われた。また、図4には平成10年以降の調査で用いられた10群と11群の食品摂取量の経年変化を示した。11群の食品摂取量は平成10年度から横ばいで推移しているが、10群の食品摂取量は近年ゆるやかな減少傾向を示しており、平成26年度の10群摂取量は平成10年度と比較して73%に減少していた。従って、魚介類摂取量の減少も部分的にダイオキシン類摂取量の減少に寄与していると考えられた。

D. 結論

全国7地区8機関で調製したTD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

均一日摂取量は 0.69 pgTEQ/kg bw/day であり、日本における TDI の約 17%であった。ダイオキシン摂取量は経年的に減少傾向にあるが、TDI に占める割合は DDT 等の塩素系農薬や PCBs と比べると高い値である。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に重点を置いた調査を継続し、ダイオキシン類摂取量の動向を見守る必要がある。

E.研究業績

1. 論文発表

Tsutsumi T, Watanabe T, Matsuda R, Teshima R. Dietary intake of dioxins in Japan, fiscal year 1998-2013. *Organohalogen Compounds* (2014) 76, 1325-1328.

2. 学会発表

1) 堤 智昭, 植草義徳, 松田 りえ子, 五十嵐敦子, 渡邊敬浩, 手島玲子:ダイオキシン類摂取量の経年変化(平成 10~25 年度), 第 108 回日本食品衛生学会(2014, 12).

2) Tsutsumi T, Watanabe T, Matsuda R, Teshima R. Dietary intake of dioxins in Japan, fiscal year 1998-2013. 34th International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (2014.9).

【謝辞】

TD 試料の調製にご協力いただいた 7 地区 8 研究機関の諸氏に感謝いたします。

表1 平成26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)

(pgTEQ/day)

食品群	北海道地区			東北地区			関東地区						中部地区			関西地区		
							I			II								
1群(米、米加工品)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
2群(米以外の穀類、種実類、いも類)	0.01			0.01			0.01			0.01			0.01			0.01		
3群(砂糖類、菓子類)	0.02			0.02			0.02			0.02			0.02			0.02		
4群(油脂類)	0.03			0.03			0.03			0.03			0.03			0.03		
5群(豆・豆加工品)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
6群(果実、果汁)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
7群(緑黄色野菜)	0.02			0.02			0.02			0.02			0.02			0.02		
8群(他の野菜類、キノコ類、海藻類)	0.30			0.30			0.30			0.30			0.30			0.30		
9群(酒類、嗜好飲料)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3
10群(魚介類)	4.78	11.74	13.80	4.91	5.25	5.33	4.90	6.44	13.21	6.11	6.29	11.87	3.64	3.76	16.29	11.18	13.53	11.46
11群(肉類・卵類)	0.05	0.15	0.52	0.88	0.63	2.97	4.38	5.44	5.98	0.75	1.44	1.31	0.00	0.02	0.37	0.93	0.64	3.56
12群(乳・乳製品)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
13群(調味料)	0.07			0.07			0.07			0.07			0.07			0.07		
14群(飲料水)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
総摂取量(pgTEQ/day)	5.28	12.35	14.78	6.25	6.34	8.76	9.74	12.34	19.64	7.31	8.19	13.64	4.10	4.24	17.11	12.57	14.63	15.47
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.11	0.25	0.30	0.12	0.13	0.18	0.19	0.25	0.39	0.15	0.16	0.27	0.08	0.08	0.34	0.25	0.29	0.31

食品群	中国・四国地区			九州地区			平均摂取量	標準偏差	比率(%)
1群(米、米加工品)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
2群(米以外の穀類、種実類、いも類)	0.01			0.01			0.01	0.00	0.11
3群(砂糖類、菓子類)	0.02			0.02			0.02	0.00	0.19
4群(油脂類)	0.03			0.03			0.03	0.00	0.28
5群(豆・豆加工品)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.03
6群(果実、果汁)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
7群(緑黄色野菜)	0.02			0.02			0.02	0.00	0.22
8群(他の野菜類、キノコ類、海藻類)	0.30			0.30			0.30	0.00	2.87
9群(酒類、嗜好飲料)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
	#1	#2	#3	#1	#2	#3			
10群(魚介類)	8.67	10.07	12.28	3.03	6.70	9.32	8.52	3.88	81.07
11群(肉類・卵類)	0.07	0.23	0.48	0.48	1.05	4.50	1.54	1.85	14.60
12群(乳・乳製品)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.02
13群(調味料)	0.07			0.07			0.07	0.00	0.63
14群(飲料水)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
総摂取量(pgTEQ/day)	9.19	10.76	13.21	3.97	8.20	14.28	10.51	4.38	100.00
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.18	0.22	0.26	0.08	0.16	0.29	0.21	0.09	

* 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、12~14群は共通試料を使用した。

** 食品群10及び11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。