

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

食品の塩素化ダイオキシン類、PCB 等の摂取量推定及び汚染実態の把握に関する研究

1. トータルダイエツト試料の分析による塩素化ダイオキシン類摂取量推定

研究代表者 穉山 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/P CDFs及びCo-PCBs)の国民平均一日摂取量を推定した。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。過去の調査からダイオキシン類摂取量に占める割合の高い食品群である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、体重(50 kgと仮定)あたりのダイオキシン類の全国平均摂取量は0.54(範囲:0.19~1.42) 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量が全体の約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14%であった。摂取量推定値の最大は1.42 pg TEQ/kg bw/dayであり、平均値の約2.6倍となり、耐容一日摂取量の36%程度に相当した。また、同一機関であっても推定されるダイオキシン類摂取量に1.5~4.6倍の開きがあり、過去の調査結果と同様に10群に含まれている魚介類のダイオキシン類濃度が摂取量に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
高附 巧、前田朋美、足立利華

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。

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

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23~25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14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。

14食品群の内訳は、次のとおりである。

- 1群:米、米加工品
- 2群:米以外の穀類、種実類、いも類
- 3群:砂糖類、菓子類
- 4群:油脂類
- 5群:豆類、豆加工品
- 6群:果実、果汁
- 7群:緑黄色野菜
- 8群:他の野菜類、キノコ類、海草類
- 9群:酒類、嗜好飲料
- 10群:魚介類
- 11群:肉類、卵類
- 12群:乳、乳製品
- 13群:調味料
- 14群:飲料水

1~9群、及び12~14群は、各機関で1セットの試料を調製した。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、1~9群及び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. 分析対象項目及び目標とした検出限界値

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目標とした検出限界値(LOD)は以

下のとおりである。

	検出限界値		
	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(pg TEQ/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(以下、ND=0と略す)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及び両者を合計したダイオキシン類の値を示した。なお、昨年度までは、LOD未満の異性体を個々の異性体のLODの1/2として計算した値(以下、ND=LOD/2と略す)についても参考値として示していた。しかし、直近10年間のTD試料の各ダイオキシン類異性体の検出率をみると、10群と11群以外では殆どの異性体の検出率が極めて低いことが分かる(表4)。Global Environment Monitoring System(GEMS)では、分析値がLOD未満となった場合はND=LOD/2として摂取量を推定する方法も示されているが、これは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条件になっている。このようなことから、ND=LOD/2により推定したダイオキシン類摂取量の信頼性は低く、摂取量を著しく過大評価する可能性が高いため、本年度からはND=0として摂取量を推定した結果のみを示した。

また、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1~3では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、平均8.98(範囲:2.82~23.75)pg TEQ/person/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0.18(範囲:0.06~0.48)pg TEQ/kg bw/dayとなった(表1)。平成27年度は平均0.18(範囲:

0.07~0.33)pg TEQ/kg bw/dayであり、今年度の平均値は同程度の値であった。PCDD/PCDFs摂取量に対する寄与率が高い食品群は、10群(魚介類)74.1%、11群(肉・卵類)23.9%であり、これら2群で全体の98.0%と大部分を占めた。

2. Co-PCBs 摂取量

Co-PCBsの一日摂取量は、平均18.24(範囲:6.67~47.36)pg TEQ/person/dayであり、体重あたりの摂取量は平均0.36(範囲:0.13~0.95)pg TEQ/kg bw/dayであった(表2)。平成27年度は平均0.46(範囲:0.16~1.39)pg TEQ/kg bw/dayであり、今年度の平均値はやや低い値であった。Co-PCBs摂取量に対する寄与率が高い食品群は、10群(魚介類)95.9%、11群(肉・卵類)3.89%であり、これら2群で全体の99.8%と大部分を占めた。

昨年度は関西地区で作製した11群試料(#3)において、他地区よりも顕著に高い濃度のCo-PCBsが検出されたため、これが11群からのCo-PCBs摂取量の平均値に大きな影響を与えた¹⁾。本年度は同地区のTD試料のCo-PCBs濃度が顕著に高いことはなく、昨年度は同地区のTD試料を調製する際に、偶発的に高濃度のCo-PCBsを含有する食品が含まれたと考えられた。

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、平均27.22(範囲:9.69~71.11)pg TEQ/person/dayであり、体重あたりの摂取量は平均0.54(範囲:0.19~1.42)pg TEQ/kg bw/dayであった(表3)。平均値は日本のTDI(4pg TEQ/kg bw/day)の14%程度であり、最大値はTDIの36%程度に相当した。平成27年度は平均0.64(範囲:0.23~1.67)pg TEQ/kg bw/dayであり、今年度の平均値はやや低い値であった。

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(魚介類)88.7%、11群(肉・卵類)10.5%であり、これら2群で全体の99.2%を占めた。この傾向は昨年度の調査と同様の傾向であった。また、ダイオキシン類摂取量に占める

Co-PCBsの割合は、67%であった。平成26及び27年度における割合は70%及び72%であり、ほぼ7割を推移している。

本研究では、ダイオキシン類摂取への寄与が大きい10群及び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。今年度は、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1.5～4.6倍の開きがあった。平成27年度は同一機関における最小値と最大値の開きは1.4～3.7倍であり、今年度は最小値と最大値の開きが平成27年度と比べ若干大きかった。

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図1に示した。平成27年度までの摂取量は、平成27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」¹⁾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ている。平成28年度のダイオキシン類摂取量(平均値)は0.54 pg TEQ/kg bw/dayであり、平成10年以降の調査結果の中で最も低い値であった。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 pg TEQ/kg bw/dayであり、これと比較すると本年度のダイオキシン類摂取量は30%程度まで低下している。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、昨年度の報告書¹⁾でも記述したように、10群(魚介類)の食品摂取量は近年ゆるやかな減少傾向を示しており、食生活の多様化に伴う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0.54 pg TEQ/kg bw/dayであった。ダイオキシン類摂取量は行政施策の効果などもあり経年的な減少傾向が示唆されている。しかし、依然としてTDIの14%程度を占めており、この値はDDT等の塩素系農薬やPCBsの摂取量がそれらのTDIに占める割合と比較すると非常に高い値である。今後もダイオキシン類摂取量調査を継続し、ダイオキシン類摂取量の動向を見守る必要があると考えられる。

E. 参考文献

- 1) 平成27年度厚生労働科学研究費補助金研究報告書「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)

F. 研究業績

1. 論文発表

- 1) 堤 智昭, 松田 りえ子: 食品からのダイオキシン類の摂取量推定 - 厚生労働科学研究による調査結果(平成25～27年度)の紹介 -, 食品衛生研究, 2017:67:25-39.

2. 学会発表

なし

【謝辞】

TD試料の調製にご協力いただいた研究機関の諸氏に感謝いたします。

表1 平成28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		
	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3
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)	0.01			0.01			0.01			0.01			0.01			0.01		
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)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
8群(他の野菜類、キノコ類、海藻類)	0.06			0.06			0.06			0.06			0.06			0.06		
9群(酒類、嗜好飲料)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
10群(魚介類)	6.84	6.41	10.98	4.57	6.13	7.83	4.09	4.09	18.79	2.61	2.26	4.82	1.89	6.38	5.00	11.93	8.52	11.41
11群(肉類・卵類)	0.04	0.17	0.56	4.05	5.32	9.20	0.01	0.74	4.78	0.05	0.38	1.33	0.94	5.62	0.68	0.62	2.75	4.30
12群(乳・乳製品)	0.03			0.03			0.03			0.03			0.03			0.03		
13群(調味料)	0.05			0.05			0.05			0.05			0.05			0.05		
14群(飲料水)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
総摂取量(pgTEQ/day)	7.06	6.76	11.72	8.80	11.64	17.21	4.28	5.01	23.75	2.84	2.82	6.33	3.02	12.19	5.86	12.73	11.45	15.89
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.14	0.14	0.23	0.18	0.23	0.34	0.09	0.10	0.48	0.06	0.06	0.13	0.06	0.24	0.12	0.25	0.23	0.32

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	0.14
3群(砂糖類、菓子類)	0.02			0.02			0.02	0.00	0.26
4群(油脂類)	0.01			0.01			0.01	0.00	0.07
5群(豆・豆加工品)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.02
6群(果実、果汁)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
7群(緑黄色野菜)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.05
8群(他の野菜類、キノコ類、海藻類)	0.06			0.06			0.06	0.00	0.69
9群(酒類、嗜好飲料)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
10群(魚介類)	4.73	5.72	7.07	6.14	6.65	4.84	6.65	3.68	74.10
11群(肉類・卵類)	0.51	0.22	1.79	0.08	0.25	7.04	2.14	2.62	23.86
12群(乳・乳製品)	0.03			0.03			0.03	0.00	0.30
13群(調味料)	0.05			0.05			0.05	0.00	0.51
14群(飲料水)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
総摂取量(pgTEQ/day)	5.43	6.13	9.04	6.40	7.08	12.07	8.98	5.08	100.00
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.11	0.12	0.18	0.13	0.14	0.24	0.18	0.10	

* 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。

表2 平成28年度トータルダイエツト(1~14群)からのCo-PCBs類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		
	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3
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)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
4群(油脂類)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
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)	0.01			0.01			0.01			0.01			0.01			0.01		
8群(他の野菜類、キノコ類、海藻類)	0.02			0.02			0.02			0.02			0.02			0.02		
9群(酒類、嗜好飲料)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
10群(魚介類)	16.86	21.26	32.12	13.17	12.13	26.48	9.79	13.08	47.27	7.71	8.73	14.70	6.41	9.28	15.22	18.65	26.49	29.67
11群(肉類・卵類)	0.01	0.01	1.94	0.02	0.06	1.40	1.51	1.18	0.04	0.00	0.01	0.02	0.21	0.14	5.13	0.01	1.56	0.07
12群(乳・乳製品)	0.01			0.01			0.01			0.01			0.01			0.01		
13群(調味料)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
14群(飲料水)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
総摂取量(pgTEQ/day)	16.92	21.32	34.10	13.24	12.23	27.93	11.34	14.31	47.36	7.75	8.79	14.77	6.67	9.47	20.41	18.71	28.10	29.78
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.34	0.43	0.68	0.26	0.24	0.56	0.23	0.29	0.95	0.16	0.18	0.30	0.13	0.19	0.41	0.37	0.56	0.60

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	0.04
3群(砂糖類、菓子類)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.01
4群(油脂類)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
5群(豆・豆加工品)	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
7群(緑黄色野菜)	0.01			0.01			0.01	0.00	0.06
8群(他の野菜類、キノコ類、海藻類)	0.02			0.02			0.02	0.00	0.10
9群(酒類、嗜好飲料)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
10群(魚介類)	13.91	19.29	19.58	11.13	11.10	15.53	17.48	9.40	95.85
11群(肉類・卵類)	0.11	1.88	1.65	0.00	0.00	0.04	0.71	1.19	3.89
12群(乳・乳製品)	0.01			0.01			0.01	0.00	0.04
13群(調味料)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
14群(飲料水)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
総摂取量(pgTEQ/day)	14.07	21.22	21.28	11.18	11.15	15.62	18.24	9.62	100.00
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.28	0.42	0.43	0.22	0.22	0.31	0.36	0.19	

* 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。

表3 平成28年度トータルダイエツト(1~14群)からのダイオキシン類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		
	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3
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)	0.02			0.02			0.02			0.02			0.02			0.02		
3群(砂糖類、菓子類)	0.03			0.03			0.03			0.03			0.03			0.03		
4群(油脂類)	0.01			0.01			0.01			0.01			0.01			0.01		
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)	0.08			0.08			0.08			0.08			0.08			0.08		
9群(酒類、嗜好飲料)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
10群(魚介類)	23.69	27.67	43.09	17.75	18.26	34.31	13.88	17.17	66.06	10.32	10.99	19.52	8.30	15.66	20.22	30.58	35.01	41.07
11群(肉類・卵類)	0.06	0.18	2.50	4.07	5.37	10.60	1.51	1.92	4.82	0.05	0.39	1.35	1.15	5.76	5.82	0.63	4.31	4.36
12群(乳・乳製品)	0.03			0.03			0.03			0.03			0.03			0.03		
13群(調味料)	0.05			0.05			0.05			0.05			0.05			0.05		
14群(飲料水)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
総摂取量(pgTEQ/day)	23.98	28.08	45.82	22.05	23.87	45.14	15.62	19.32	71.11	10.59	11.61	21.10	9.69	21.66	26.27	31.44	39.55	45.67
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.48	0.56	0.92	0.44	0.48	0.90	0.31	0.39	1.42	0.21	0.23	0.42	0.19	0.43	0.53	0.63	0.79	0.91

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)	0.02			0.02			0.02	0.00	0.07
3群(砂糖類、菓子類)	0.03			0.03			0.03	0.00	0.09
4群(油脂類)	0.01			0.01			0.01	0.00	0.02
5群(豆・豆加工品)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.01
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	0.06
8群(他の野菜類、キノコ類、海藻類)	0.08			0.08			0.08	0.00	0.30
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)	18.64	25.01	26.65	17.27	17.74	20.37	24.13	12.81	88.68
11群(肉類・卵類)	0.63	2.10	3.44	0.08	0.25	7.08	2.85	2.75	10.48
12群(乳・乳製品)	0.03			0.03			0.03	0.00	0.12
13群(調味料)	0.05			0.05			0.05	0.00	0.17
14群(飲料水)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
総摂取量(pgTEQ/day)	19.50	27.34	30.32	17.58	18.23	27.69	27.22	13.97	100.00
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.39	0.55	0.61	0.35	0.36	0.55	0.54	0.28	

*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。

表4 TD試料におけるダイオキシン類の検出率(平成19~28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	
PCDDs	2,3,7,8-TeCDD	0	0	0	0	0	0	0	0	59	2	0	0	0	
	1,2,3,7,8-PeCDD	0	0	0	0	0	0	0	0	99	22	8	0	0	
	1,2,3,4,7,8-HxCDD	0	0	0	0	0	0	0	0	2	3	0	0	0	
	1,2,3,6,7,8-HxCDD	0	0	0	0	0	0	0	0	45	28	7	0	0	
	1,2,3,7,8,9-HxCDD	0	0	0	0	0	0	0	0	6	5	1	0	0	
	1,2,3,4,6,7,8-HpCDD	0	9	100	73	5	0	36	41	0	64	93	61	82	0
	OCDD	0	100	100	100	100	0	91	77	0	80	98	56	100	5
PCDFs	2,3,7,8-TeCDF	0	0	5	0	0	0	0	0	100	35	0	5	9	
	1,2,3,7,8-PeCDF	0	0	0	0	0	0	0	0	100	12	0	0	0	
	2,3,4,7,8-PeCDF	0	0	0	0	0	0	0	0	100	57	10	0	0	
	1,2,3,4,7,8-HxCDF	0	0	0	0	0	0	0	0	16	16	1	0	0	
	1,2,3,6,7,8-HxCDF	0	0	0	0	0	0	0	0	16	6	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	21	6	1	0	0	
	1,2,3,4,6,7,8-HpCDF	0	0	5	0	0	0	0	5	0	10	35	1	0	0
	1,2,3,4,7,8,9-HpCDF	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	OCDF	0	0	0	0	0	0	0	0	0	1	0	1	0	0
Co-PCBs	3,3',4,4'-TeCB(#77)	0	41	82	23	55	9	68	64	0	100	99	20	23	0
	3,4,4',5'-TeCB(#81)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	100	8	1	0	0
	3,3',4,4',5'-PeCB(#126)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	100	49	4	0	0
	3,3',4,4',5,5'-HxCB(#169)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	100	11	0	0	0
	2,3,3',4,4'-PeCB(#105)	0	14	45	5	9	0	50	32	0	100	97	30	9	0
	2,3,4,4',5'-PeCB(#114)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	100	12	0	0	0
	2,3',4,4',5'-PeCB(#118)	5	77	100	68	45	14	68	64	0	100	99	98	36	0
	2',3,4,4',5'-PeCB(#123)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	100	8	0	0	0
	2,3,3',4,4',5'-HxCB(#156)	0	0	14	0	0	0	0	0	0	100	87	1	0	0
	2,3,3',4,4',5'-HxCB(#157)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	100	16	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	8	0	0	0

¹⁾10~11群については各249試料、12群については157試料、それ以外の食品群については各22試料についての検出率を示す。

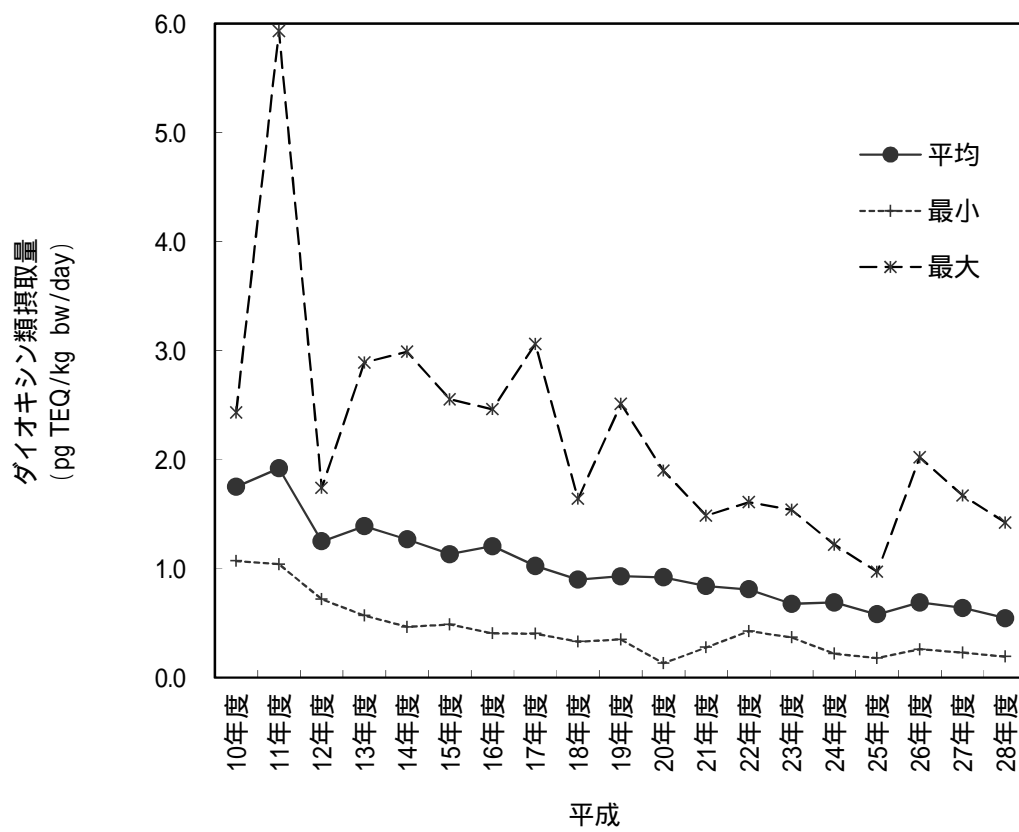


図1 ダイオキシン類摂取量の経年変化

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

食品の塩素化ダイオキシン類、PCB 等の摂取量推定及び汚染実態の把握に関する研究
2. トータルダイエツト試料の分析による PCBs 摂取量推定

研究代表者 穉山 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、ポリ塩化ビフェニル(PCBs)の国民平均一日摂取量を推定した。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、TD試料を全国10地域で調製した。過去の研究からPCBs摂取量に占める割合の高い食品群である10群(魚介類)と11群(肉類、卵類)について試料を調製し、PCBs異性体分析を実施した。その結果、PCBsの全国平均摂取量は、357 ng/person/dayと推定された。体重(50 kgと仮定)あたりでは7.1 ng/kg bw/dayと推定され、この値は日本の暫定耐容一日摂取量(TDI)の0.14%であった。また、推定された摂取量は、より厳しいWHOの国際簡潔評価文書のTDIと比較しても低い値であったが、TDIの36%程度となった。さらに、リスク評価の為の情報不足している非ダイオキシン様PCBs(NDL-PCBs)の摂取量についても推定した。NDL-PCBsの全国平均摂取量は329 ng/person/day、NDL-PCBsの指標異性体として用いられる6異性体の全国平均摂取量は113 ng/person/dayと推定された。

研究協力者

国立医薬品食品衛生研究所

高附 巧、前田朋美

北海道立衛生研究所

平間祐志、橋本 諭、林 玲子

新潟県保健環境科学研究所

今井美紗子

横浜市衛生研究所

櫻井 光、高橋京子

名古屋市衛生研究所

中島正博、加藤陽康、高木恭子

滋賀県衛生科学センター

小林博美

香川県環境保健研究センター

氏家あけみ、上田淳司、安永 恵

沖縄県衛生環境研究所

高嶺朝典

福岡県保健環境研究所

佐藤 環、安武大輔、堀 就英

A. 研究目的

我が国では、通知「食品中に残留する PCB の規制について」¹⁾の中で、ポリ塩化ビフェニル

(PCBs)の耐容一日摂取量(TDI)が暫定値として示されている。トータルダイエット(TD)試料を用いたPCBsの摂取量調査は、1977年から毎年実施されており、国民のPCBs摂取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PCBs摂取量を推定するため、本年度も昨年度に引き続き、全国10地域において日本人の平均的な食品摂取に基づいたTD試料を調製し、試料中のPCBsを分析し、一日摂取量を求めた。TD試料の調製には、地方自治体所管の衛生研究所等にご協力を頂いた。

またPCBsはその毒性学的性質からダイオキシン様PCBs(Co-PCBsとも呼ばれる)と非ダイオキシン様PCBs(NDL-PCBs)の二つに分類される。そのため、欧州では、Co-PCBsとNDL-PCBsに分けてリスク管理を行っている。Co-PCBsの12異性体についてはポリ塩化ジベンゾ-*p*-ジオキシン/ポリ塩化ジベンゾフラン(PCDD/PCDFs)と共にダイオキシン類に分類されることが一般であり、我が国でもCo-PCBsを含めてダイオキシン類のTDIが定まっている。一方、NDL-PCBsのTDIは定まっておらず、JECFA等でリスク評価のための情報を収集中である。従って、NDL-PCBsの摂取量に関する情報を提供することは、リスク評価のために重要と考えられることから、本年度よりNDL-PCBsの摂取量についても推定した。また、NDL-PCBsの指標異性体として欧州等で使用されている6種のPCBs(PCB 28, 52, 101, 138, 153, 180)(以下、6PCBs)の合計値についてもあわせて摂取量を推定した。

B. 研究方法

1. TD 試料

国民平均のPCBs摂取量を推定するためのTD試料は、全国10地域の衛生研究所等で調製した。厚生労働省が実施した平成23~25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。各地の小売店から食品を購入し、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。過去の研究からPCBs摂取量に占める割合の高い食品群は、10群(魚介類)と11群(肉類、卵類)であることが判明していたため、これら二つの食品群を分析対象とした。

2. PCBs 分析

2-1. 試薬

クリーンアップスパイク標準溶液は、(株)ウェリントンラボラトリージャパンよりTPCB-LCS-A500を購入した。シリンジスパイク標準溶液は、(株)ウェリントンラボラトリージャパンよりTPCB-IS-A-STKを購入した。検量線用PCBs標準溶液は、(株)ウェリントンラボラトリージャパンよりTPCB-CVS-Aを購入した。209異性体確認用標準溶液は、M-1668A-1-0.01X、M-1668A-2-0.01X、M-1668A-3-0.01X、M-1668A-4-0.01X、M-1668A-5-0.01X(和光純薬工業株式会社)を等容量混合したものを使用した。

アセトン(ダイオキシン類分析用)、エタノール(ダイオキシン類分析用)、塩化ナトリウム(特級)、ジクロロメタン(ダイオキシン類分析用)、水酸化カリウム(特級)、ヘキサン(ダイオキシン類分析用)、ヘキサン洗浄水(残留農薬試験用)、ノナン(ダイオキシン類分析用)、無水硫酸ナトリウム(PCB分析用)、アルミナは関東化学(株)より購入した。

多層シリカゲルカラム(内径15mm、長さ9.5cmのカラムに無水硫酸ナトリウム2g、シリカゲル0.9g、44%硫酸シリカゲル3.0g、シリカゲル0.9g、及び無水硫酸ナトリウム2g順次充填)は、ジーエルサイエンス(株)より購入した。アルミナカラムは、内径15mm、長さ30cmのカラムに無水硫酸ナトリウム2g、アルミナ15g、無水硫酸ナトリウム2gを順次充填し作製した。

GCキャピラリーカラムは、関東化学(株)社製のHT8-PCBを使用した。

2-2. 機器

GC: 7890B GC System (Agilent Technologies)

MS: Mstation JMS-700 (日本電子(株)社製)

2-3. 試験溶液の調製

均一化した試料 20 g をビーカーに量りとり、クリーンアップスパイク 40 μ L を加えた後、1 mol/L 水酸化カリウムエタノール溶液を 100 mL 加え室温で 16 時間、スターラーで攪拌した。このアルカリ分解液を分液ロートに移した後、水 100 mL、ヘキサン 100 mL を加え 10 分間振とう抽出した。静置後、ヘキサン層を分取し、水層にヘキサン 70 mL を加え同様の操作を 2 回行った。ヘキサン抽出液を合わせ、2%塩化ナトリウム溶液 100 mL を加えて緩やかに揺り動かし、静置後、水層を除き同様の操作を繰り返した。ヘキサン層の入った分液漏斗に濃硫酸を適量加え、緩やかに振とうし、静置後、硫酸層を除去した。この操作を硫酸層の着色が薄くなるまで繰り返した。ヘキサン層をヘキサン洗浄水 10 mL で 2 回洗浄し、無水硫酸ナトリウムで脱水後、溶媒を留去し約 2 mL のヘキサンに溶解した。多層シリカゲルをヘキサン 100 mL で洗浄した後、試験溶液を注入し、ヘキサン 50 mL で溶出した。溶出液は溶媒を留去し、約 2 mL のヘキサンに溶解した。ヘキサンで湿式充填したアルミナカラムに試験溶液を注入し、ヘキサン 100 mL で洗浄後、20%(v/v)ジクロロメタン含有ヘキサン 100 mL で溶出した。溶媒を留去し、シリンジスパイク 100 μ L を加え、GC/MS 試験溶液とした。

2-4. 高分解能 GC/MS 測定条件

カラム：HT8-PCB (関東化学(株)社製) 内径 0.25 mm \times 60 m

注入方式：スプリットレス

注入口温度：280

注入量：2.0 μ L

昇温条件：100 (1 分保持)-20 /分-180 -2 /分-260 -5 /分-300 (22 分保持)

キャリアーガス：ヘリウム (流速：1.0 mL/分)

MS 導入部温度：300

イオン源温度：300

イオン化法：EI ポジティブ

イオン化電圧：38 eV

イオン化電流：600 μ A

加速電圧：~10.0 kV

分解能：10,000 以上

モニターイオン：

一塩素化ビフェニル モノクロロビフェニル(MoCBs)

定量イオン:m/z 188.0393, 確認イオン:m/z 190.0364

二塩素化ビフェニルジクロロビフェニル(DiCBs)

定量イオン:m/z 222.0003, 確認イオン:m/z 223.9974

三塩素化ビフェニルトリクロロビフェニル(TrCBs)

定量イオン:m/z 255.9613, 確認イオン:m/z 257.9587

四塩素化ビフェニルテトラクロロビフェニル(TeCBs)

定量イオン:m/z 289.9224, 確認イオン:m/z 291.9195

五塩素化ビフェニルペンタクロロビフェニル(PeCBs)

定量イオン:m/z 323.8834, 確認イオン:m/z 325.8805

六塩素化ビフェニルヘキサクロロビフェニル(HxCBs)

定量イオン:m/z 359.8415, 確認イオン:m/z 361.8386

七塩素化ビフェニルヘプタクロロビフェニル(HpCBs)

定量イオン:m/z 393.8025, 確認イオン:m/z 395.7996

八塩素化ビフェニルオクタクロロビフェニル(OcCBs)

定量イオン:m/z 427.7636, 確認イオン:m/z 429.7606

九塩素化ビフェニルノナクロロビフェニル(NoCBs)

定量イオン:m/z 461.7246, 確認イオン:m/z 463.7216

十塩素化ビフェニルデカクロロビフェニル(DeCB)

定量イオン:m/z 497.6826, 確認イオン:m/z 499.6797

¹³C₁₂標識 MoCB

定量イオン:m/z 200.0795, 確認イオン:m/z 202.0766

¹³C₁₂標識 DiCBs

定量イオン:m/z 234.0406, 確認イオン:m/z 236.0376

¹³C₁₂標識 TrCBs

定量イオン:m/z 268.0016, 確認イオン:m/z 269.9986

¹³C₁₂標識 TeCBs

定量イオン:m/z 301.9626, 確認イオン:m/z 303.9597

¹³C₁₂標識 PeCBs

定量イオン:m/z 335.9237, 確認イオン:m/z 337.9207

¹³C₁₂標識 HxCBs

定量イオン:m/z 371.8817, 確認イオン:m/z 373.8788

¹³C₁₂標識 HpCBs

定量イオン:m/z 405.8428, 確認イオン:m/z 407.8398

¹³C₁₂標識 OcCBs

定量イオン:m/z 439.8038, 確認イオン:m/z 441.8008

¹³C₁₂標識 NoCBs

定量イオン:m/z 473.7648, 確認イオン:m/z 475.7619

¹³C₁₂標識 DeCB

定量イオン:m/z 509.7229, 確認イオン:m/z 511.7199

2-5. 検量線の作成

相対感度係数法により検量線を作成した。検量線作成用標準液(6点)に対して3回測定を実施し、計18点の測定データを得た。各測定データについて、各分析対象物質とそれに対応するクリーンアップスパイクとの相対感度係数(RRF)、及びクリーンアップスパイ

クとそれに対応するシリンジスパイクの相対感度係数(RRFss)を算出した。検量線作成用標準液に含まれる分析対象物質の内、同一の化学構造のクリーンアップスパイクがない分析対象物質については、同一塩素数に含まれるクリーンアップスパイクの平均の面積値を使用して RRF を算出した。検量線作成時の測定データにおける RRF 及び RRFss の変動係数は 15%以内を目標とした。

2-6. 検出下限値及び定量下限値

最低濃度の検量線作成用標準液を 5 倍に希釈した標準溶液を GC/MS により分析し、S/N=3 に相当する濃度を検出下限値(LOD)、S/N=10 に相当する濃度を定量下限値(LOQ)として求めた。標準溶液に含まれていない PCBs 異性体については、同一塩素数に含まれる PCBs 異性体の平均の S/N を使用して LOD 及び LOQ を求めた。また、操作ブランク試験を 5 回行い、ブランクが認められる分析対象物については、ブランクの標準偏差の 3 倍を LOD、10 倍を LOQ として求めた。S/N から算出した値と比較し、大きい方を LOD、又は LOQ とした。本分析法の各 PCBs 異性体の LOD と LOQ を表 1 に示した。

2-7. 試験溶液の測定

試験溶液の測定開始時には 3 濃度の検量線作成用標準液を測定して、RRF 及び RRFss を求めた。これらの値が、検量線作成時の RRF 及び RRFss と比較し、 $\pm 15\%$ 以内であることを確認した。検量線作成時の RRF 及び RRFss を用いて、試験溶液に含まれる各 PCBs を定量した。試験溶液より得られた分析対象物質のシグナルが検量線作成用標準液の範囲外となった場合は、外挿により定量値を算出した。操作ブランク値が認められた PCBs 異性体は、操作ブランク値を差し引いた。なお、検量線作成用標準液に含まれない PCBs 異性体の溶出位置は、209 全異性体を含む PCBs 標準溶液を使用して決定した。

2-8. 分析対象とした PCBs 異性体

総 PCBs は、全 PCBs 異性体(209 異性体)の合計値とした。

NDL-PCBs は Co-PCBs である 12 異性体以外の PCBs 異性体の合計値とした。なお、Co-PCBs に分類される PCB 105 は、NDL-PCBs である PCB 127 と GC カラムでのピークの分離が不十分であった。しかし、PCB 127 はカネクロール中での存在量が極めて微量であるため、実質上はゼロとみなせると考えられたため、本研究では PCB 105 のピークとして取り扱った。

6PCBs は PCB 28, 52, 101, 138, 153, 180 の合計値とした。なお、PCB 52 は PCB 69 と GC カラムでのピークの分離が不十分であった。PCB 69 はカネクロール中での存在量が極めて微量であるため、実質上はゼロとみなせると考えられたため、本研究では PCB 52 のピークとして取り扱った。

2-9. PCBs 摂取量の推定

TD 試料における分析対象物の濃度に、各食品群の食品摂取量を乗じて PCBs 摂取量を推定した。TD 試料において LOD 未満の異性体濃度はゼロ(ND=0)として計算した。平成 25 年度より高分解能 GC/MS による PCBs 分析を実施することで、LOD を十分に低く設定できているため、仮に LOD 未満の濃度で極微量に含まれる PCBs 異性体が存在していても、推定される摂取量に与える影響はごく僅かである。平成 25 年度の報告では、ND となった異性体に LOD の 1/2 の異性体濃度をあてはめて PCBs 摂取量を推定したが、ND=0 として計算した PCBs 摂取量と僅か数%程度の差しかなかった²⁾。

C. 研究結果及び考察

1) PCBs 摂取量の推定

全 10 地域で調製した 10 群及び 11 群の分析結果から推定した PCBs 摂取量を表 2 及び表 3 に示した。表には各地域における同族体ごとの PCBs 摂取量と、それらの合計となる総 PCBs 摂取量を示した。10 群からの総 PCBs 摂取量は 154 ~ 499 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 327 ng/person/day であった。また、11 群からの総 PCBs 摂取量は 11 ~ 45 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 29 ng/person/day であった。昨年度の 10 群

からの総 PCBs 摂取量は 181 ~ 1,707 ng/person/day、11 群からの全 PCBs 摂取量は 5.7 ~ 1,298 ng/person/day の範囲であったことから、今年度の総 PCBs 摂取量は比較的狭い範囲に分布していた。昨年度は 10 群と 11 群の各 1 地域において、他の地域と比較して顕著に高い総 PCBs 摂取量が推定された³⁾。昨年度の報告書で考察されているように、この原因としては比較的高濃度の PCBs に汚染された食品が偶発的に昨年度の TD 試料の調製の際に含まれたことが考えられる。このようなことは程度の差はあれ全ての地域で調製する TD 試料について起こりうることである。そのため、各地域で推定された単年度の PCBs 摂取量をその地域の代表値として地域間の比較に使用することは適当ではない。

また、10 群と 11 群からの PCBs 摂取量について、同族体毎の割合を図 1 と図 2 に示した。10 群では TD 試料を作製した地域によらず同族体の割合はよく似ていた。4 塩素 ~ 7 塩素の PCBs が主要であり、これらの合計で全体の 85%以上を占めていた。カネクロール (KC) の中でも、KC-400、KC-500、KC-600 の同族体割合は 4 塩素 ~ 7 塩素化 PCBs が主体であり、10 群の同族体割合はこれらの混合物の同族体の割合と近かった。一方、11 群については 10 群と異なり、TD 試料により同族体の割合は大きく異なった。A、B、F と J の地域の TD 試料では、低塩素 PCBs (1 塩素 ~ 3 塩素) の割合が 10 群試料と比較すると高かった。低塩素 PCBs は KC300 や排ガスなどで割合が高い PCBs であり、これらの PCBs 汚染への関与が疑われた。

10 群と 11 群からの PCBs 摂取量の合計値を表 4 に示した。総 PCBs 摂取量は 171 ~ 532 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 357 ng/person/day であった。昨年度の総 PCBs 摂取量の全国平均値は 663 ng/person/day であり、今年度の総 PCBs 摂取量は半分程度であった。昨年度の摂取量から大きく減少した要因としては、前述したように昨年度は複数の地域において偶発的と考えられる顕著に高い PCBs 摂取量が推定されたことが主要因として考えられる。

現在、日本では PCBs に暫定 TDI (5 µg/kg

bw/day) が示されている。本研究で推定された総 PCBs 摂取量の全国平均値は 357 ng/person/day であり、体重 (50 kg と仮定) あたりでは 7.1 ng/kg bw/day であった。この値は暫定 TDI の僅か 0.14% であった。暫定 TDI に対する割合を考えると PCBs の摂取量調査を継続する必要性は低いと考えられる。しかし、暫定 TDI は昭和 47 年に示されたものであり、その導出の根拠となった長期毒性研究は非常に古い時代のものである。より新しい毒性の知見を踏まえた TDI と比較することも必要と考えられる。2003 年に WHO で PCBs に関する国際簡潔評価文書 No.55 (CICAD: Concise International Chemical Assessment Document)⁴⁾ が作成された。この中で PCBs の TDI として 0.02 µg /kg bw/day が提案されている。この TDI と比較すると総 PCBs 摂取量の全国平均値は 36% に相当した。この値はカドミウムなどの有害元素の摂取量の TDI に対する割合³⁾ とほぼ同じ程度である。ただし、本評価文書の TDI の導出の根拠になった毒性研究では、人の健康への重要性が明確になっていない免疫毒性学的影響が毒性の指標となっている。また、PCBs に感受性の高いアカゲザルを使用していることもあり、過度の安全を見込んだ TDI となっている可能性に注意が必要である。

本年度までの総 PCBs 摂取量の経年推移を、図 3 に示した。平成 27 (2015) 年度までの調査結果は、平成 27 年度厚生労働科学研究補助金研究報告書「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」³⁾ から引用した。総 PCBs 摂取量は 1990 年頃までは急激に減少し、その後は緩やかな減少となり、2010 年ごろからはほぼ横ばいになりつつある。1990 年頃までの PCBs 摂取量の急激な減少は、1972 年に PCBs の使用、輸入、使用が原則禁止された効果の影響が窺われた。

2) NDL-PCBs 摂取量の推定

各地域の TD 試料の分析結果より推定した NDL-PCBs 摂取量を表 5 に示した。また、NDL-PCBs 摂取量の指標異性として使用されている 6 PCBs の摂取量についてもあわせて表に示した。10 群からの NDL-PCBs 摂取量は 142 ~ 464 ng/person/day の範囲で推定され、全国平

均値は 302 ng/person/day であった。11 群からの NDL-PCBs 摂取量は 11 ~ 43 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 27 ng/person/day であった。また、10 群と 11 群からの摂取量を合計した NDL-PCBs 摂取量は、158 ~ 496 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 329 ng/person/day であった。10 群と 11 群からの総 PCBs 摂取量の全国平均値は 357 ng/person/day であることから、NDL-PCBs は総 PCBs 摂取量の約 9 割を占めていた。

NDL-PCBs の指標異性体として用いられる 6PCBs の 10 群からの摂取量は 47 ~ 159 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 104 ng/person/day であった。11 群からの摂取量は 2 ~ 14 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 9 ng/person/day であった。また、10 群と 11 群からの摂取量を合計した 6PCBs 摂取量は、52 ~ 161 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 113 ng/person/day であった。

EFSA では、ヨーロッパにおける食品のモニタリング調査結果をもとに、6PCBs は NDL-PCBs の約 50%を占めると報告している。しかし、本研究結果では、6PCBs の検出率が 100%に近いにもかかわらず、その割合は 10 群で 31 ~ 38%、11 群で 21 ~ 46%であった。また、植草らの報告⁵⁾によると、日本近海で採取された魚の PCBs 濃度を調査した結果、NDL-PCBs 中に占める 6PCBs の割合は平均 37% (範囲 26 ~ 48%)と報告している。指標異性体の NDL-PCBs に対する割合については、汚染源となる PCBs 製品における PCBs 組成の違いや、代謝の影響などが影響すると考えられるため、引き続き検証が必要と考えられる。

D. 結論

全国 10 地区で調製した TD 試料による PCBs の摂取量調査を実施した結果、一日摂取量の全国平均値は 357 ng/person/day と推定された。体重あたりでは 7.1 ng/kg bw/day と推定され、この値は日本の暫定 TDI の僅か 0.14%であった。また、推定された摂取量はより厳しい WHO の国際簡潔評価文書の TDI と比較しても

低い値であったが、TDI の 36%程度となった。NDL-PCBs の一日摂取量の全国平均値は 329 ng/person/day と推定され、その指標異性体である 6PCBs 摂取量の全国平均値は 113 ng/person/day と推定された。

E. 参考文献

- 2) 厚生省環境衛生局長通知“食品中に残留する PCB の規制について”昭和 47 年 8 月 24 日、環食第 442 号(1972)
- 3) 平成 25 年度厚生労働科学研究補助金研究報告書「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(各種有害物質の適時及び継続的な摂取量推定研究)
- 4) 平成 27 年度厚生労働科学研究補助金研究報告書「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(各種有害物質の適時及び継続的な摂取量推定研究)
- 5) WHO, 2003. Concise International Chemical Assessment Document 55. Polychlorinated biphenyls: human health aspects.
- 6) Uekusa Y, Takatsuki S, Tsutsumi T, Akiyama H, Matsuda R, Teshima R, Hachisuka A, Watanabe T.: Determination of polychlorinated biphenyls in marine fish obtained from tsunami-stricken areas of Japan, PLoS ONE, 12(4):e0174961.

F. 研究業績

1. 論文発表
なし
2. 学会発表
なし

表1 本分析法の検出下限値及び定量下 限值

PCBs	LOD, ng/g	LOQ, ng/g	PCBs	LOD, ng/g	LOQ, ng/g
MoCBs #1	0.00004	0.00012	HxCBs #128/#162	0.00007	0.00022
#2	0.00004	0.00013	#129	0.00010	0.00032
#3	0.00004	0.00014	#130	0.00010	0.00032
DiCBs #4	0.00009	0.00029	#131/#133	0.00010	0.00032
#6	0.00006	0.00020	#132/#161	0.00010	0.00032
#7	0.00006	0.00020	#134	0.00010	0.00032
#8/#5	0.00024	0.00079	#135	0.00010	0.00032
#9	0.00006	0.00020	#136/#148	0.00010	0.00032
#10	0.00005	0.00017	#137	0.00010	0.00032
#11	0.00070	0.00234	#138	0.00010	0.00034
#13/#12	0.00005	0.00018	#140	0.00010	0.00032
#14	0.00006	0.00020	#141	0.00010	0.00032
#15	0.00006	0.00021	#142	0.00010	0.00032
TrCBs #16	0.00026	0.00087	#143	0.00010	0.00032
#17	0.00034	0.00113	#144	0.00010	0.00032
#18	0.00077	0.00258	#145	0.00010	0.00032
#19	0.00011	0.00036	#146	0.00010	0.00032
#20/#33	0.00088	0.00292	#147	0.00010	0.00032
#21	0.00008	0.00028	#149/#139	0.00009	0.00031
#22	0.00042	0.00140	#150	0.00010	0.00032
#23	0.00008	0.00028	#151	0.00010	0.00032
#24	0.00008	0.00028	#152	0.00010	0.00032
#25	0.00008	0.00028	#153	0.00010	0.00033
#26	0.00008	0.00028	#154	0.00010	0.00032
#27	0.00008	0.00028	#155	0.00005	0.00017
#28	0.00095	0.00318	#156	0.00008	0.00026
#29	0.00008	0.00028	#157	0.00011	0.00037
#30	0.00008	0.00028	#158	0.00010	0.00032
#31	0.00068	0.00226	#159	0.00010	0.00032
#32	0.00030	0.00101	#160	0.00010	0.00032
#34	0.00008	0.00028	#164/#163	0.00010	0.00032
#35	0.00008	0.00028	#165	0.00010	0.00032
#36	0.00008	0.00028	#166	0.00010	0.00032
#37	0.00057	0.00190	#167	0.00012	0.00038
#38	0.00007	0.00022	#168	0.00010	0.00032
#39	0.00008	0.00028	#169	0.00014	0.00047
TeCBs #40/#57	0.00010	0.00032	HpCBs #170	0.00013	0.00044
#41	0.00011	0.00035	#171	0.00011	0.00038
#42	0.00023	0.00076	#172	0.00011	0.00038
#43/#49	0.00048	0.00161	#173	0.00011	0.00038
#44	0.00031	0.00103	#174	0.00012	0.00040
#45	0.00011	0.00035	#175	0.00011	0.00038
#46	0.00011	0.00035	#176	0.00011	0.00038
#48/#47	0.00029	0.00096	#177	0.00011	0.00038
#50	0.00011	0.00035	#178	0.00011	0.00038
#51	0.00011	0.00035	#179	0.00011	0.00038
#52/#69	0.00056	0.00186	#180	0.00011	0.00035
#53	0.00011	0.00035	#181	0.00011	0.00038
#54	0.00007	0.00022	#182/#187	0.00014	0.00047
#55	0.00011	0.00035	#183	0.00011	0.00038
#56	0.00024	0.00081	#184	0.00011	0.00038
#58	0.00011	0.00035	#185	0.00011	0.00038
#59	0.00011	0.00035	#186	0.00011	0.00038
#60	0.00015	0.00050	#188	0.00009	0.00030
#61	0.00011	0.00035	#189	0.00009	0.00031
#62	0.00011	0.00035	#190	0.00011	0.00038
#63	0.00011	0.00035	#191	0.00011	0.00038
#64/#72	0.00012	0.00040	#192	0.00011	0.00038
#65/#75	0.00011	0.00035	#193	0.00011	0.00038
#66	0.00033	0.00109	OcCBs #194	0.00024	0.00081
#67	0.00011	0.00035	#195	0.00010	0.00033
#68	0.00011	0.00035	#196	0.00009	0.00030
#70	0.00058	0.00192	#197	0.00009	0.00030
#71	0.00030	0.00101	#198	0.00009	0.00030
#73	0.00011	0.00035	#199	0.00009	0.00030
#74	0.00040	0.00133	#200	0.00009	0.00031
#76	0.00011	0.00035	#201	0.00009	0.00030
#77	0.00013	0.00043	#202	0.00007	0.00024
#78	0.00013	0.00043	#203	0.00007	0.00023
#79	0.00008	0.00028	#204	0.00009	0.00030
#80	0.00011	0.00035	#205	0.00010	0.00033
#81	0.00020	0.00067	NoCBs #206	0.00011	0.00038
#82	0.00015	0.00049	#207	0.00008	0.00028
PeCBs #83/#108	0.00015	0.00049	#208	0.00005	0.00018
#84	0.00015	0.00049	DeCBs #209	0.00011	0.00037
#85	0.00015	0.00049			
#86/#117/#97	0.00015	0.00049			
#87/#115	0.00036	0.00119			
#88	0.00015	0.00049			
#89/#90	0.00015	0.00049			
#91/#121	0.00015	0.00049			
#92	0.00015	0.00049			
#94	0.00015	0.00049			
#96	0.00015	0.00049			
#98/#95	0.00018	0.00061			
#99	0.00025	0.00084			
#100	0.00015	0.00049			
#101	0.00052	0.00175			
#102/#93	0.00015	0.00049			
#103	0.00015	0.00049			
#104	0.00011	0.00037			
#105/#127	0.00015	0.00050			
#106	0.00015	0.00049			
#109/#107	0.00015	0.00049			
#110	0.00046	0.00152			
#111	0.00015	0.00049			
#112/#119	0.00015	0.00049			
#113	0.00015	0.00049			
#114	0.00020	0.00067			
#118	0.00033	0.00108			
#120	0.00015	0.00049			
#122	0.00015	0.00049			
#123	0.00010	0.00033			
#124	0.00015	0.00049			
#125/#116	0.00015	0.00049			
#126	0.00021	0.00071			

表 2 10 群からの PCBs 摂取量

PCBs 同族体	地域										平均値
	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J	
MoCBs	0.20	0.20	0.13	0.16	0.17	0.52	0.15	0.32	0.19	0.12	0.22
DiCBs	3.25	3.03	1.97	2.58	2.46	9.48	2.47	5.24	2.31	2.17	3.50
TrCBs	23.8	16.4	7.55	21.0	11.3	28.9	20.6	18.8	15.3	12.8	17.6
TeCBs	79.2	54.0	23.9	49.9	27.7	69.1	63.0	50.4	41.9	29.0	48.8
PeCBs	143	97.7	45.1	71.5	51.0	128	106	99.2	88.5	43.2	87.3
HxCBs	174	126	60.9	79.7	59.7	170	134	154	153	46.2	116
HpCBs	56.6	43.6	22.7	25.6	20.5	69.1	47.7	57.1	60.1	13.3	41.6
OcCBs	7.83	6.53	3.23	3.82	2.99	14.6	7.47	9.41	7.86	1.81	6.55
NoCBs	1.24	1.10	0.45	0.62	0.50	5.26	1.13	1.25	0.94	0.24	1.27
DeCB	4.29	15.0	0.47	6.65	0.48	3.34	6.75	2.15	0.87	5.49	4.55
総PCBs	493	363	166	261	177	499	389	398	371	154	327

表 3 11 群からの PCBs 摂取量

PCBs 同族体	地域										平均値
	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J	
MoCBs	0.07	0.05	0.08	0.06	0.06	0.05	0.08	0.40	0.09	0.08	0.10
DiCBs	1.09	2.73	0.54	0.51	0.46	1.79	0.75	1.46	1.01	0.93	1.13
TrCBs	3.70	12.9	0.93	1.35	1.47	6.00	1.83	4.21	2.63	2.97	3.80
TeCBs	2.84	11.7	2.34	2.82	4.31	6.56	3.05	6.91	4.22	2.92	4.77
PeCBs	1.49	6.84	7.07	4.21	13.1	5.72	4.29	10.6	8.11	2.82	6.42
HxCBs	1.44	6.96	16.3	2.96	17.8	8.96	7.65	8.36	14.5	4.01	8.89
HpCBs	0.55	3.34	6.37	0.83	5.83	3.40	2.55	3.41	4.86	2.12	3.33
OcCBs	0.16	0.68	1.20	0.22	0.97	0.78	0.46	0.70	0.98	0.44	0.66
NoCBs	0.00	0.14	0.22	0.00	0.18	0.15	0.08	0.12	0.17	0.10	0.12
DeCB	0.04	0.07	0.15	0.04	0.12	0.13	0.09	0.15	0.13	0.19	0.11
総PCBs	11	45	35	13	44	34	21	36	37	17	29

表 4 10 群と 11 群からの PCBs 摂取量の合計値

PCBs 同族体	地域										平均値
	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J	
MoCBs	0.27	0.26	0.21	0.22	0.22	0.58	0.23	0.72	0.28	0.21	0.32
DiCBs	4.35	5.76	2.52	3.09	2.92	11.3	3.22	6.70	3.32	3.10	4.62
TrCBs	27.5	29.3	8.48	22.3	12.7	34.9	22.4	23.0	17.9	15.8	21.4
TeCBs	82.1	65.7	26.3	52.7	32.1	75.6	66.1	57.3	46.1	31.9	53.6
PeCBs	144	105	52.1	75.7	64.0	134	110	110	96.6	46.0	93.7
HxCBs	175	133	77.2	82.7	77.4	179	142	163	167	50.2	125
HpCBs	57.1	46.9	29.0	26.4	26.3	72.5	50.3	60.5	64.9	15.4	44.9
OcCBs	7.99	7.21	4.43	4.04	3.95	15.4	7.94	10.1	8.84	2.25	7.21
NoCBs	1.24	1.23	0.67	0.62	0.68	5.41	1.22	1.37	1.10	0.34	1.39
DeCB	4.34	15.1	0.62	6.69	0.60	3.47	6.84	2.30	1.00	5.68	4.66
総PCBs	505	409	202	275	221	532	410	434	407	171	357

表 5 10 群と 11 群試料からの 6PCBs 及び NDL-PCBs 摂取量

食品群	PCBs	地域										平均値
		A	B	C	D	E	F	G	H	I	J	
10群	6PCBs	159	114	53.8	81.1	51.6	145	120	139	124	47.4	104
	NDL-PCBs	452	334	153	241	162	464	357	369	346	142	302
11群	6PCBs	2.3	9.8	14.2	4.0	14.4	10.5	6.8	9.7	13.6	4.7	9.0
	NDL-PCBs	11	43	31	12	39	31	19	33	33	15	27
10群と11群	6PCBs	161	124	68	85	66	156	127	148	138	52	113
の合計	NDL-PCBs	463	377	184	253	201	496	376	402	379	158	329

(ng/person/day)

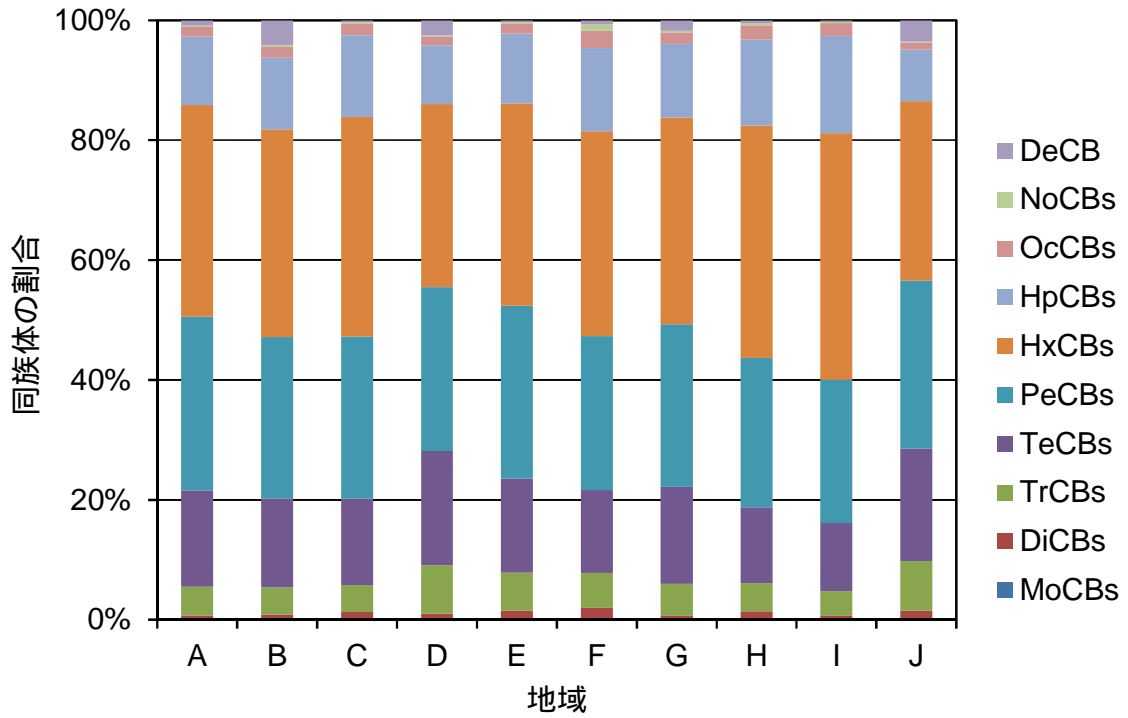


図 1 10 群からの PCBs 摂取量における PCBs 同族体の割合

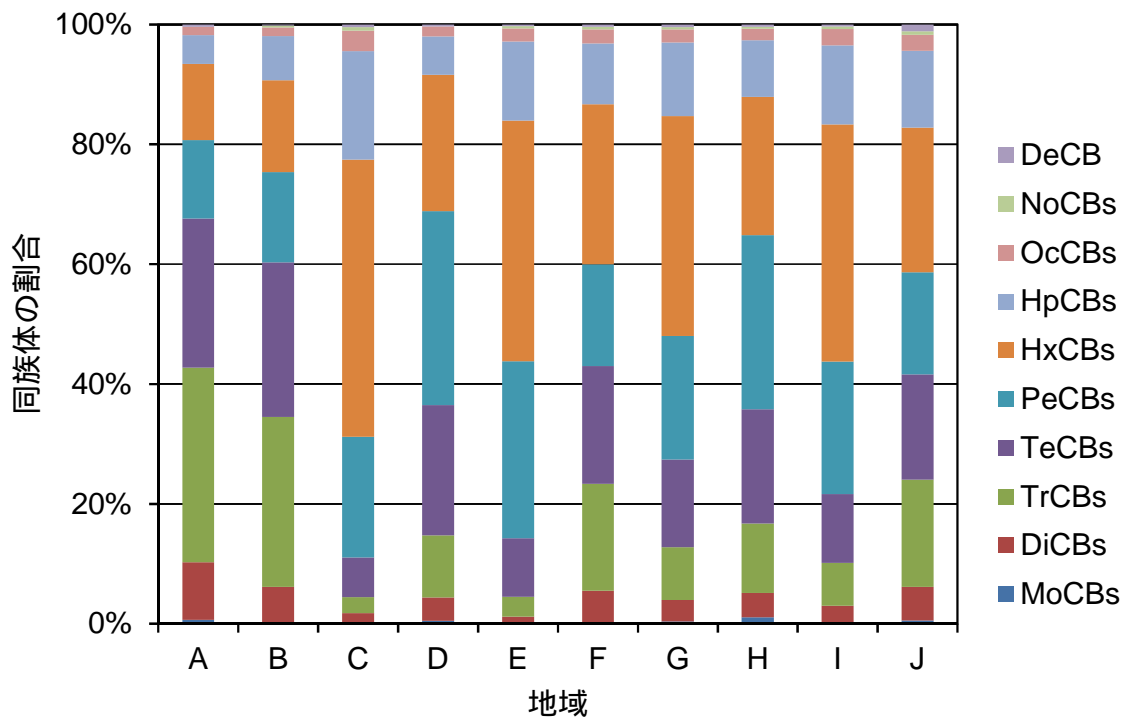


図 2 11 群からの PCBs 摂取量における PCBs 同族体の割合

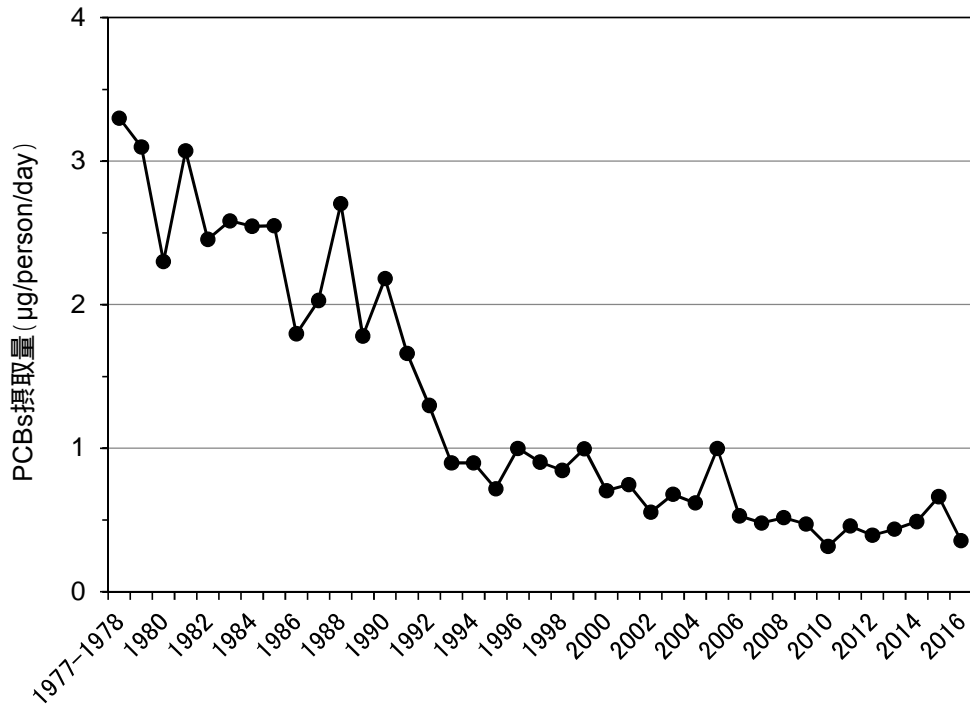


図3 総 PCBs 摂取量の経年変化 (1977 ~ 2016)