

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
(1)食品からの塩素化ダイオキシン類及び有機フッ素化合物の摂取量調査
(1-1)塩素化ダイオキシン類のトータルダイエツト調査

分担研究者 米谷民雄 国立医薬品食品衛生研究所 食品部長

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調査(TDS)試料を用いて、ダイオキシン類(PCDD/PCDFs及びCo-PCBs)の国民平均1日摂取量を求めた。国民(健康)栄養調査の地域別国民平均食品摂取量に基づいて食品を購入し、飲料水を含め14群から成るTDS試料を全国7地区9機関で調製した。ダイオキシン類濃度が高い食品を含む第10群(魚介類)、11群(肉・卵類)及び12群(乳・乳製品)については、各機関がそれぞれ各3セットの試料を調製し、その他の食品群は各1セットの試料を調製した。上記3食品群については試料毎にダイオキシン類を分析し、その他は食品群毎に1または2地区の試料を混合して分析し、ダイオキシン類の1日摂取量を求めた。その結果、ダイオキシン類の国民平均1日摂取量は 1.11 ± 0.59 pgTEQ/kgbw/day(範囲0.42~3.32 pgTEQ/kgbw/day)であった。これは、平成18年度の調査結果(1.04 pgTEQ/kgbw/day)と同程度の値であった。最大値は3.32 pgTEQ/kgbw/dayであり平均値より約3倍高い値を示したが、日本における耐容1日摂取量(4 pgTEQ/kgbw/day)よりは低かった。なお、同一機関で調製した試料であってもダイオキシン類摂取量には1.5~4.3倍の差が認められた。

研究協力者

(財)日本食品分析センター

丹野憲二、野村孝一、柳 俊彦、河野洋一

国立医薬品食品衛生研究所

松田りえ子、堤 智昭

A. 研究目的

トータルダイエツト調査(TDS)試料を用いたダイオキシン類の摂取量調査は、平成9年から厚生科学研究(現在は厚生労働科学研究)として、毎年実施されており、国民のダイオキシン類暴露量を知る上で役立っている。本年度も全国7地区9機関で調製したTDS試料についてダイオキシン類を分析し、1日摂取量を求めた。

B. 研究方法

1. 試料

TDS試料は、全国7地区の9機関で調製した。各機関でそれぞれ約120品目の食品を購入したのち、厚生労働省の平成14年度国民栄養調査並びに平成15、16年度国民健康・栄養調査の地域別国民平均食品摂取量表に基づいて、それらの食品を計量し、食品によっては調理した後、13群に大別して、混合均一化したものを試料とした。分析に供すまで-20℃で保存した。

13食品群の内訳は、次のとおりである。国民栄養調査の食品群分類が平成13年から一部変更されたため、特に第13群の構成食品が平成16年以降はそれ以前の調査と異なっている。

第1群:米、米加工品

第2群:米以外の穀類、種実類、いも類

- 第3群: 砂糖類、菓子類
- 第4群: 油脂類
- 第5群: 豆類、豆加工品
- 第6群: 果実、果汁
- 第7群: 緑黄色野菜
- 第8群: 他の野菜類、キノコ類、海藻類
- 第9群: 酒類、嗜好飲料
- 第10群: 魚介類
- 第11群: 肉類、卵類
- 第12群: 乳、乳製品
- 第13群: 調味料
- 第14群として飲料水を加えている。

なお、第10～12群は、9機関が各群3セットずつ調製した。3セットの試料は、魚種、産地、メーカー等が異なる食品を選んで調製した。

2. 試験項目及び検出限界

試験項目は、WHO が毒性係数(TEF)を定めたPCDDs 7種、PCDFs 10種及びCo-PCBs 12種の計29種である。

ダイオキシン類各異性体の検出限界は次のとおりである。

	検出限界		
	1-3, 5-13群	4群	14群
	(pg/g)	(pg/g)	(pg/L)
PCDDs			
2, 3, 7, 8-TCDD	0.01	0.05	0.1
1, 2, 3, 7, 8-PeCDD	0.01	0.05	0.1
1, 2, 3, 4, 7, 8-HxCDD	0.02	0.1	0.2
1, 2, 3, 6, 7, 8-HxCDD	0.02	0.1	0.2
1, 2, 3, 7, 8, 9-HxCDD	0.02	0.1	0.2
1, 2, 3, 4, 6, 7, 8-HpCDD	0.02	0.1	0.2
1, 2, 3, 4, 6, 7, 8, 9-OCDD	0.05	0.2	0.5
PCDFs			
2, 3, 7, 8-TCDF	0.01	0.05	0.1
1, 2, 3, 7, 8-PeCDF	0.01	0.05	0.1
2, 3, 4, 7, 8-PeCDF	0.01	0.05	0.1
1, 2, 3, 4, 7, 8-HxCDF	0.02	0.1	0.2
1, 2, 3, 6, 7, 8-HxCDF	0.02	0.1	0.2
1, 2, 3, 7, 8, 9-HxCDF	0.02	0.1	0.2
2, 3, 4, 6, 7, 8-HxCDF	0.02	0.1	0.2
1, 2, 3, 4, 6, 7, 8-HpCDF	0.02	0.1	0.2
1, 2, 3, 4, 7, 8, 9-HpCDF	0.02	0.1	0.2
1, 2, 3, 4, 6, 7, 8, 9-OCDF	0.05	0.2	0.5

Co-PCBs

3, 3', 4, 4'-TCB(#77)	0.1	0.5	1
3, 4, 4', 5-TCB(#81)	0.1	0.5	1
3, 3', 4, 4', 5-PeCB(#126)	0.1	0.5	1
3, 3', 4, 4', 5, 5'-HxCB(#169)	0.1	0.5	1
2, 3, 3', 4, 4'-PeCB(#105)	1	5	10
2, 3, 4, 4', 5-PeCB(#114)	1	5	10
2, 3', 4, 4', 5-PeCB(#118)	1	5	10
2', 3, 4, 4', 5-PeCB(#123)	1	5	10
2, 3, 3', 4, 4', 5-HxCB(#156)	1	5	10
2, 3, 3', 4, 4', 5'-HxCB(#157)	1	5	10
2, 3', 4, 4', 5, 5'-HxCB(#167)	1	5	10
2, 3, 3', 4, 4', 5, 5'-HpCB(#189)	1	5	10

3. 試験方法

ダイオキシン類の分析法は、「食品中のダイオキシン類測定方法ガイドライン」(厚生労働省、平成11年10月)に従った。

各機関で3セットずつ調製した第10、11、12群の試料はそれぞれ個別にダイオキシン類を分析した。一方、第1～9群及び第13、14群については、7地区9機関の試料を、北海道・東北地区、関東地区、中部地区、関西地区、中国四国・九州地区の5つに分け、食品群毎に各機関の食品摂取量に応じた割合で混合して、ダイオキシン類を分析した。

4. 分析結果の表記

調査結果は、1日摂取量を体重あたりの毒性等量(pgTEQ/kgbw/day)で示した。TEFは1998TEFを使用したが、一部の結果については新しいTEF(2005TEF)を使用した数値についても参考値として算出した。分析値が検出限界以下の異性体をゼロとして計算した場合(以下、ND=0と略す)と、検出限界値の1/2を当てはめた場合(以下、ND=LOD/2と略す)について示した。

各機関について第10～12群はそれぞれ3つの分析値が得られるので、各群のダイオキシン類摂取量の最小値の組み合わせを#1、中央値の組み合わせを#2、最大値の組み合わせを#3として示した。

C. 研究結果

7 地区の 9 機関において調製した TDS 試料を分析し、ダイオキシン類摂取量及び各群からの摂取割合を算出した。表 1～3 には、ND=0 の場合の PCDD/PCDFs、Co-PCBs 及び両者を合わせたダイオキシン類の値を示した。また、表 4～6 には ND=LOD/2 の場合のそれぞれの値を示した。

表 1～6 では、第 10～12 群の各群からのダイオキシン類摂取量の最小値の組み合わせを#1、中央値の組み合わせを#2、最大値の組み合わせを#3 と示した。したがって PCDDs/PCDFs 摂取量及び Co-PCBs 摂取量の最小値、中央値、最大値と#1、#2、#3 とは必ずしも一致しない。

1. PCDD/PCDFs 摂取量

PCDD/PCDFs の 1 日摂取量は、ND=0 の場合、平均 16.31(範囲:6.29～41.26)pgTEQ/day であった。これを、日本人の平均体重を 50 kg とし、体重(kg)あたりの 1 日摂取量に換算すると、平均 0.33 (範囲 : 0.13 ~ 0.83) pgTEQ/kgbw/day であった(表 1)。平成 18 年度は平均 0.31 (範囲 : 0.05 ~ 0.83) pgTEQ/kgbw/day であったことから、今年度はほぼ同等の値となった。

ND=LOD/2 の場合の 1 日摂取量は、平均 61.87 (範囲 : 51.43 ~ 82.72) pgTEQ/day であり、体重あたり平均 1.24 (範囲 : 1.03 ~ 1.65) pgTEQ/kgbw/day であった(表 4)。

ダイオキシン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)88.7%、11 群(肉・卵)5.4%、12 群(乳・乳製品)5.0%であり、これら 3 群で全体の 99.1%を占めた。

ND=LOD/2 の場合は、高い順に 10 群 24.7%、9 群(酒類、嗜好飲料)18.4%、1 群(米、米加工品)15.6%であった。9 群及び 1 群の寄与は ND=0 の場合には何れもゼロに近いが、これらの群は摂食量が多いため、ほとんど全てのダイオキシン類分析値が ND であっても寄与率が高くなった。平成 15 年までの調査結果に比べて 9 群の寄与率が高くなったのは、国民栄養調査で 9 群の嗜好飲料(茶、コーヒーなど)の集計が水を含む重量に変更され摂食量が多くなったためである。

2. Co-PCBs 摂取量

Co-PCBs の 1 日摂取量は、ND=0 の場合、平均 38.99(範囲:12.54～124.98)pgTEQ/day であり、体重あたり平均 0.78 (範囲 : 0.25 ~ 2.50) pgTEQ/kgbw/day であった(表 2)。平成 18 年度 [平均 0.73 (範囲 : 0.32 ~ 1.47) pgTEQ/kgbw/day] に比べ、平成 19 年度は最大値がやや高い値であった。

ND=LOD/2 の場合の摂取量は、平均 52.76 (範囲 : 25.45 ~ 138.05) pgTEQ/day であり、体重あたり平均 1.06 (範囲 : 0.51 ~ 2.76) pgTEQ/kgbw/day であった(表 5)。

Co-PCBs 摂取量に対する寄与率が高い食品群は、ND=0 の場合、10 群(魚介類)95.4%、11 群(肉・卵)3.2%、12 群(乳・乳製品)0.8%であり、これら 3 群で全体の 99.4%を占めた。

ND=LOD/2 の場合は 10 群(70.5%)、11 群(3.1%)及び 12 群(2.2%)の 3 群で全体の 75.7%を占めたが、PCDD/PCDFs の場合と同様に、摂食量が多い 1 群、9 群も両群で 12.6%を占めた。

3. ダイオキシン類摂取量

PCDD/PCDFs と Co-PCBs を合わせたダイオキシン類の 1 日摂取量は、ND=0 の場合、平均 55.30 (範囲 : 21.18 ~ 166.24) pgTEQ/day であり、体重あたり平均 1.11 ± 0.59 (範囲 : 0.42 ~ 3.32) pgTEQ/kgbw/day であった(表 3)。平成 18 年度は平均 1.04 ± 0.47 (範囲 : 0.38 ~ 1.94) pgTEQ/kgbw/day であったことから、今年度はほぼ同等の平均値が得られた。しかし、最大値は 3.32 pgTEQ/kgbw/day であり、平成 18 年度と比較すると、やや高めの数値であった。

ND=LOD/2 の場合の 1 日摂取量は、平均 114.62 (範囲 : 79.05 ~ 220.77) pgTEQ/day であり、体重あたり平均 2.29 ± 0.57 (範囲 : 1.58 ~ 4.42) pgTEQ/kgbw/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 93.4%、11 群 3.8%、12 群 2.1%であり、これら 3 群で全体の 99.3%を占めた。ND=LOD/2 の場合は、高い順に 10 群 45.8%、9 群 13.0%、1 群 11.1%、2 群 5.9%であり、1 群及び 9 群の寄与率が高かった。

ダイオキシン類摂取量に占める Co-PCBs の割合は、ND=0 の場合、70%であった。Co-PCBs か

らの摂取率は平成 18 年度も 70%と同程度であった。

4. ダイオキシン類摂取量の経年推移

ダイオキシン類摂取量の経年推移を、表 7 に示した。平成 10～18 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由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」から引用した。

本年度の平均値は、平成 10 年度以降(平成 10～17 年度)の調査結果(それぞれ 2.00、2.25、1.45、1.63、1.49、1.33、1.41、1.20、1.04 pgTEQ/kgbw/day)の中で 2 番目に低い値であった。第 10～12 群については各機関で各 3 セットの試料を調製し、ダイオキシン類摂取量の最小値、中央値及び最大値を求めた。その結果、同一機関におけるダイオキシン類摂取量の最小値と最大値には 1.5～4.3 倍の差があった。同一機関で市販食品を購入し調製した TDS 試料でも、購入した魚種、産地、個体の差が影響しているものと考えられる。

さらに、最近公表された新しい TEF (2005 TEF)¹⁾を使用したダイオキシン類摂取量を参考値として計算し、表 7 に値を示した。その結果、平均値は 0.93 pgTEQ/kgbw/day であり、従来の TEF (1998 TEF)を使用した場合と比較すると、概ね 15%低い値になった。

D. 考察

本年度及びこれまでの調査結果から、ダイオキシン類摂取量は第 10～12 群の食品(魚介、肉・卵、乳、乳製品)に主に起因している。これらを除く食品群からのダイオキシン類摂取量は ND=0 の場合、平均 0.39 pgTEQ/day であり、全食品群からの摂取量(55.30 pgTEQ/day)に占める割合は、0.70%であった。平成 16、17、18 年度の調査においても、第 10～12 群を除く食品群からのダイオキシン類摂取量はそれぞれ平均

0.79、0.57、0.65 pgTEQ/day であり、全食品群からの摂取量に占める割合は、毎年僅か(1.5%以下)であった。このことから、ダイオキシン類摂取量を低減するためには、主に魚介類からの Co-PCBs 摂取量を低減することが効果的である。

同一機関で調製した試料の分析から得られた、ダイオキシン類摂取量の最小値と最大値には 1.5～4.3 倍の差があったことから、第 10～12 群の調査数を多くすることは、ダイオキシン類摂取量の精密な推定にとって重要であると考えられる。

本年度のダイオキシン類摂取量の平均値は 1.11 pgTEQ/kgbw/day であり、平成 10 年度以降で 2 番目に低い値であった。ダイオキシン類摂取量が減少傾向であることを確実に判断し、食品の安全を確保するため、今後も推移を確認していく必要がある。

東京都はマーケットバスケット方式によるダイオキシン類摂取量調査を実施しており、平成 18 年度は 1.47 pgTEQ/kgbw/day と報告している²⁾。神奈川県はマーケットバスケット方式によるダイオキシン類摂取量調査を実施しており、平成 19 年度の調査結果を 0.99 pgTEQ/kgbw/day と報告している³⁾。これらの調査は、それぞれ 1 組の TDS 試料の調査結果であるが、本研究で得られた 1.11 ± 0.59 pgTEQ/kgbw/day の範囲に含まれる。また、環境省は陰膳方式で食事からのダイオキシン類摂取量を調査しており、平成 18 年度の調査では平均値 ($n=75$)として 0.65 pgTEQ/kgbw/day (1998 TEF を使用)の値を報告している⁴⁾。本研究の平均値よりはやや低めの値となっている。

本年度のダイオキシン類摂取量の全国平均値(1.11 pgTEQ/kgbw/day)は、日本における TDI (4 pgTEQ/kgbw/day)の 1/4 程度であった。

E. 結論

平成 19 年度に、全国 7 地区 9 機関で調製した TDS 試料によるダイオキシン類の摂取量調査を実施した結果、平均 1 日摂取量は 1.11 ± 0.59 pgTEQ/kgbw/day であり、日本における TDI より低かった。食品の安全を確保するため、

今後もダイオキシン類摂取に対する寄与が大きい魚介類、肉・卵類、乳・乳製品に重点を置いたTDS 調査を継続し、動向を見守る必要がある。

F. 参考文献】

- 1) 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) 東京都福祉保健局:平成 18 年度 食事由来の化学物質摂取量推計調査 <http://www.metro.tokyo.jp/INET/CHOUSA/2007/08/60h86201.htm>
- 3) 神奈川県保健福祉部生活衛生課:平成 19 年度食品からのダイオキシン類一日摂取量調査(トータルダイエツトスタディ)の結果について <http://www.pref.kanagawa.jp/osirase/seikatueisei/kanajin/kisya-diet/H19diet.html>
- 4) 環境省環境保健部環境リスク評価室:平成

18 年度ダイオキシン類の蓄積・ばく露状況及び臭素系ダイオキシン類の調査結果について I.ダイオキシン類の人への蓄積量調査

G. 研究発表

1. 論文発表

なし

2. 学会発表

堤 智昭¹、天倉吉章¹、柳 俊彦²、河野洋一²、中村宗知²、野村孝一²、内部博泰²、丹野憲二²、佐々木久美子¹、米谷民雄¹:トータルダイエツトスタディによるダイオキシン類摂取量調査～ここ数年間の全国調査結果について～. 第 44 回全国衛生化学技術協議会年会

¹ 国立医薬品食品衛生研究所

² (財)日本食品分析センター)

【謝辞】

TDS 試料の調製にご協力いただいた 7 地区 9 研究機関及び国民栄養調査並びに国民健康・栄養調査結果の特別集計にご協力いただいた独立行政法人国立健康・栄養研究所の諸氏に感謝いたします。