

厚生労働科学研究補助金(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

研究分担者 松田りえ子 国立医薬品食品衛生研究所 食品部長

研究要旨

マーケットバスケット方式によるトータルダイエツト試料を用いて、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)および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。10-12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0.84(範囲:0.28~1.49)pgTEQ/kg bw/dayと推定された。これは、平成10年度から継続している調査結果の中で最も低い値であった。摂取量推定値の最大は1.49 pgTEQ/kg bw/dayで平均値の約1.8倍であったが、日本における耐容1日摂取量(4 pgTEQ/kg bw/day)の40%程度であった。機関および試料によって推定される摂取量はかなり異なり、特に魚介類におけるダイオキシン類の濃度の分布が広い範囲に渡っていることが予想された。

研究協力者

(財)日本食品分析センター

野村孝一、中村宗知、柳俊彦、河野洋一、
福沢栄太、宮脇栄子

国立医薬品食品衛生研究所 堤 智昭

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。本年度も全国7地区9機関においてTD試料を調製し、試料中の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

TD試料は、全国7地区の9機関で調製した。厚生労働省が実施した平成14年度国民栄養調査並びに平成15、16年度国民健康・栄養調査の地域別食品摂取量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。作成した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 | 3, 3', 4, 4'-TCB(#77) | 0.1 | 0.5 | 1 |
| 第5群: 豆類、豆加工品 | 3, 4, 4', 5-TCB(#81) | 0.1 | 0.5 | 1 |
| 第6群: 果実、果汁 | 3, 3', 4, 4', 5-PeCB(#126) | 0.1 | 0.5 | 1 |
| 第7群: 緑黄色野菜 | 3, 3', 4, 4', 5, 5'-HxCB(#169) | 0.1 | 0.5 | 1 |
| 第8群: 他の野菜類、キノコ類、海藻類 | 2, 3, 3', 4, 4'-PeCB(#105) | 1 | 5 | 10 |
| 第9群: 酒類、嗜好飲料 | 2, 3, 4, 4', 5-PeCB(#114) | 1 | 5 | 10 |
| 第10群: 魚介類 | 2, 3', 4, 4', 5-PeCB(#118) | 1 | 5 | 10 |
| 第11群: 肉類、卵類 | 2', 3, 4, 4', 5-PeCB(#123) | 1 | 5 | 10 |
| 第12群: 乳、乳製品 | 2, 3, 3', 4, 4', 5-HxCB(#156) | 1 | 5 | 10 |
| 第13群: 調味料 | 2, 3, 3', 4, 4', 5'-HxCB(#157) | 1 | 5 | 10 |
| 第14群として飲料水(水道水)を加えている。 | 2, 3', 4, 4', 5, 5'-HxCB(#167) | 1 | 5 | 10 |
| なお、ダイオキシン類の主要な摂取源と考えられる第10~12群は、9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。 | 2, 3, 3', 4, 4', 5, 5'-HpCB(#189) | 1 | 5 | 10 |

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 PCDDs 7 種、PCDFs 10 種及び Co-PCBs 12 種の計 29 種とした。

ダイオキシン類各異性体の検出限界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. 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。

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の試料毎に、ダイオキシン類を分析した。一方、第 1~9 群及び第 13、14 群は、北海道地区と東北地区、および中国四国・九州地区の試料を、各機関の食品摂取量に応じた割合で混合して 2 地区の試料とした。これらに関東地区、中部地区、関西地区を加えて、全体として 5 地区の試料とし、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/kg bw/day)で示した。TEQ の算出には TEF は、2005 年に定められた TEF を使用し、分析値が検出限界以下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。

第 10~12 群は機関毎に 3 試料から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を組み合わせ得られる値を#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 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 およ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、前述のように、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 11.89(範囲:4.63～26.63)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 0.24(範囲:0.09～0.53) pgTEQ/kg bw/day となった(表 1)。平成 20 年度は平均 0.26(範囲:0.02～0.55) pgTEQ/kg bw/day、平成 19 年度は平均 0.27(範囲:0.10～0.70) pgTEQ/kg bw/day であり、平成 21 年度はこれらよりやや低い PCDD/PCDFs の摂取量となった。

ND=LOD/2 の場合の PCDD/PCDFs の 1 日摂取量は、平均 54.88(範囲:45.30～70.45) pgTEQ/day であり、体重あたり平均 1.10(範囲:0.91～1.41) 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)84.7%、11 群(肉・卵)8.9%、12 群(乳・乳製品)4.5%であり、これら 3 群で全体の 98.2%を占めた。

ND=LOD/2 の場合は、高い順に 10 群 19.9%、9 群(酒類、嗜好飲料)19.6%、1 群(米、米加工品)16.1%であった。ND=0 の場合には、9 群及び 1 群の寄与はほとんどゼロであるが、これらの群は重量が大きく、全てのダイオキシン類分析値が ND であっても、それを LOD/2 の濃度として計算するため、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。特に、平成 15 年から 9 群の寄与率が高くなっており、これは国民健康・栄養調査で 9 群の嗜好飲料(茶、コーヒーなど)の重量が茶葉等から浸出液重量に変更され、重

量が非常に増加したためである。

2. Co-PCBs 摂取量

Co-PCBs の 1 日摂取量は、ND=0 の場合、平均 30.25(範囲:9.27～56.20)pgTEQ/day であり、体重あたり平均 0.61(範囲:0.19～1.12) pgTEQ/kg bw/day であった(表 2)。平成 20 年度は平均 0.66(範囲:0.11～1.69)pgTEQ /kg bw/day、平成 19 年度は平均 0.66(範囲:0.22～1.80)pgTEQ /kg bw/day で、PCDD/PCDFs と同様に 3 年を通じて平均値は僅かに低下した。一方、21 年度の最大値は平成 19 年度と比較して大きく低下している。

ND=LOD/2 の場合の摂取量は、平均 44.45(範囲:23.28～70.88)pgTEQ/day であり、体重あたりとすれば、平均 0.89(範囲:0.47～1.42) 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)96.3%、11 群(肉・卵)3.1%、12 群(乳・乳製品)0.4%であり、これら 3 群で全体の 99.8%を占めた。

ND=LOD/2 の場合は 10 群(65.5%)が最も多く、11 群からは 3.2%、12 群は 2.3%を摂取していた。PCDD/PCDFs の場合と同様に、摂食量が多い 1 群、9 群も両群で 15.0%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 42.14(範囲:13.91～74.27)pgTEQ/day であり、体重あたり摂取量は平均 0.84(範囲:0.28～1.49)pgTEQ/kg bw/day であった(表 3)。平成 19 年度は平均 0.93(範囲:0.35～2.51) pgTEQ/kg bw/day、平成 20 年度は平均 0.92(範囲:0.13～1.90)pgTEQ/kg bw/day であり、今年度の平均値はやや低下している。また、最大値は平成 19 年度及び平成 20 年度では平均値の 2 倍以上の高い値であったが、21 年度は低下して、平均値の約 1.8 倍となった。

ND=LOD/2 の場合の 1 日摂取量は、平均 99.33(範囲:69.92～134.54)pgTEQ/day であり、体重あたり摂取量は平均 1.99(範囲:1.40～2.69) 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 93.0%、11 群 4.7%、12 群 1.6%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、高い順に 10 群 40.3%、9 群 14.5%、1 群 11.9%、2 群 6.6%であり、PCDD/PCDFs および Co-PCBs の場合と同じく 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、72%であった。Co-PCBs からの摂取率は平成 19 年度は 71%、平成 20 年度は 72%であり、大きな変化は見られていない。

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 21 年度のダイオキシン類摂取量(平均値)は 0.84 pgTEQ/kg bw/day であり、平成 10 年度以降の調査結果の中で最も低い値であった。2 番目に低い値は平成 18 年度の 0.90 pgTEQ/kg bw/day、3 番目に低い値は平成 20 年度の 0.92 pgTEQ/kg bw/day であり、平成 18 年度から 21 年度の 4 年間の摂取量推定値は、1.0 pgTEQ/kg bw/day 以下のレベルで概ね一定している。また、調査研究が開始された平成 10 年度及び 11 年度のダイオキシン類摂取量は 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 50%程度まで低下していると考えられる。平成 13 年度から 18 年度までは継続した低下傾向が認められるが、18 年度以降はほぼ一定した摂取量となっている。

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 10～12 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。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

値と最大値には数倍以上の開きがあった。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、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。

D. 考察

本年度のダイオキシン類摂取量の全国平均値(0.84 pgTEQ/kg bw/day)は、日本における TDI(4 pgTEQ/kg bw/day)の 1/5 程度であり、最大値の 1.49 pgTEQ/kg bw/day も TDI の半分以下であった。

本年度及びこれまでの調査結果では、ダイオキシン類は第 10～12 群の食品(魚介、肉・卵、乳、乳製品)から主として摂取されている事がしめされており、これらの食品群からの摂取総計は全体の 99%を越えていた。中でも 90%以上が魚介の群から摂取されている。また、ダイオキシン類摂取量の 72%は Co-PCBs によるものであった。このような傾向は過去の調査でも同じであり、ダイオキシン類摂取量を低減するためには、主に魚介類中のダイオキシン類、特に Co-PCBs 濃度を低減化することが効果的であると考えられる。

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大きな開きがあった。このことから、国内で摂取される魚介類中のダイオキシン濃度は、広い範囲に分布していると推定される。1 セットの TD 試料に含めることが可能な食品の数は限られているため、広い濃度分布から少数個のサンプリングとなることから、推定摂取量の変動は避けがたい。より正確な推定を行うためには、サンプルとする食品数を多くする事が必要であり、第 10～12 群特に 10 群の試料数を多くして、広範な魚介類を含めることが、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 0.84 pgTEQ/kg bw/day であり、平成 10 年度以降で最も低い値であった。ダイオキシン類摂取量は平成 10 年度と比較すると減少しているが、平成 18-21 年度の結果はほぼ等しく明らかな減少傾向は認められない。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。

E. 結論

平成 21 年度に、全国 7 地区 9 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 1 日摂取量は 0.84 pgTEQ/kg bw/day であり、日本における TDI の約 20%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、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 TD 調査を継続し、動向を見守る必要がある。

G. 研究発表

1. 論文発表

なし

2. 学会発表

堤 智昭：食品からのダイオキシン類の摂取量調査. 第7回食品安全フォーラム(2009.11).

【謝辞】

TD 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。