

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  
(1-2) 塩素化ダイオキシン類の個別食品汚染調査

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**

鮮魚 30 試料、魚油を使用した健康食品 10 製品、及び嗜好飲料である健康茶 5 製品について、PCDDs 7種、PCDFs 10種及びCo-PCBs 12種の計29種のダイオキシン類濃度を調査した。鮮魚についてはサケ・マス(8試料)で平均 0.55 pg TEQ/g、ブリ(6試料)で平均 3.1 pg TEQ/g、マグロ(8試料)で平均 3.0 pg TEQ/g、マダイ(8試料)で平均 1.2 pg TEQ/g のダイオキシン類が検出された。また、魚油を使用した健康食品では、0.72~53 pg TEQ/g のダイオキシン類が検出された。添付書に従い健康食品を摂取した場合、ほとんどの製品では TDI の 25%以下のダイオキシン類摂取量であった。鮫肝油を使用した 1 製品については比較的高め(53 pg TEQ/g)のダイオキシン類が検出され、本製品を摂取した場合は TDI の約 60%に相当した。健康茶では 0.000066~0.30 pg TEQ/g のダイオキシン類が検出された。鮮魚や健康食品と比べると、汚染濃度は低濃度であった。

また、現在までに蓄積されている個別食品のダイオキシン類汚染データ(平成 10~18 年度)を基に、ハイリスクグループの可能性のある魚介類多食者に対して、モンテカルロ・シミュレーション法による魚介類からのダイオキシン類摂取量評価を予備的に推計した。その結果、摂取量の平均値は 153.15 pg TEQ/day(中央値は 126.17 pg TEQ/day)と推計された。

**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  
自治医科大学 地域医療学センター環境医学部

香山 不二雄  
横浜国立大学 大学院環境情報研究院 自然環境と情報部門

中井 里史  
松山大学 薬学部

天倉吉章、吉田隆志

**A. 研究目的**

トータルダイエツト法によるダイオキシン類の摂取量調査結果から、摂取量の約 90%が魚介類によるものであることが分かっている。そこで、本研究では食品のダイオキシン類汚染実態を把握し、個人別暴露量を正確に評価するためのデータ蓄積を目的に、鮮魚を中心にダイオキシン類の汚染調査を実施した。また、魚油を使用した健康食品についても、ダイオキシン類の汚染調査を実施した。さらに、ハイリスクグループの可能性のある魚介類多食者について、モンテカルロ・シミュレーション法による魚介類からの確率論的暴露評価を予備的に行った。

## B. 研究方法

### 1. 試料

調査対象食品は、鮮魚(30 試料)、魚油を使用した健康食品(10 製品)、及び嗜好飲料として健康茶(5 製品)を国内で購入した。なお、健康食品は魚油をカプセルで被包した形状の製品であり、本研究ではカプセルも含めて分析に供した。

### 2. 試験項目及び検出限界

WHO が毒性等価係数(TEF)を定めた下記の PCDDs 7 種、PCDFs 10 種及び Co-PCBs 12 種の計 29 種を分析対象とした。

( )内の数字は検出限界(pg/g)を示す。但し、健康食品は分析に使用する試料量を少なくしたため検出下限が異なる(4,5 塩素化 PCDD/Fs: 0.05、6,7 塩素化 PCDD/Fs:0.1、8 塩素化 PCDD/Fs:0.2、ノンオルト PCBs: 0.5、モノオルト PCBs:5)。

#### PCDDs

- 2,3,7,8-TCDD, 1,2,3,7,8-PeCDD (0.01)
- 1,2,3,4,7,8-HxCDD, 1,2,3,6,7,8-HxCDD, 1,2,3,7,8,9-HxCDD, 1,2,3,4,6,7,8-HpCDD (0.02)
- 1,2,3,4,6,7,8,9-OCDD (0.05)

#### PCDFs

- 2,3,7,8-TCDF, 1,2,3,7,8-PeCDF, 2,3,4,7,8-PeCDF (0.01)
- 1,2,3,4,7,8-HxCDF, 1,2,3,6,7,8-HxCDF, 1,2,3,7,8,9-HxCDF, 2,3,4,6,7,8-HxCDF, 1,2,3,4,6,7,8-HpCDF, 1,2,3,4,7,8,9-HpCDF (0.02)
- 1,2,3,4,6,7,8,9-OCDF (0.05)

#### Co-PCBs

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

### 3. 試験方法

ダイオキシン類の分析は、「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。

### 4. 分析結果の表記

測定結果は湿重量あたりの毒性等量(pg TEQ/g)で示した。毒性等量の計算には、TEF(WHO 1998)を用いた。また、参考値として最近公表された新しい TEF(WHO 2005)<sup>1)</sup>を用いた毒性等量も算出した。検出限界以下の異性体濃度はゼロとして計算した。

### 5. モンテカルロ・シミュレーション法によるダイオキシン類摂取量の推定

魚介類多食者に対して、モンテカルロ・シミュレーション法を用いた魚介類からのダイオキシン類摂取量調査を予備的に推計した。食品摂取量として、110 名分の自記式食事履歴調査(Dietary History Questionnaire: DHQ)で得られた魚介類摂取量データ(21 項目)を使用した<sup>2)</sup>。また、ダイオキシン類汚染データとしては、平成 10~18 年度に行われた魚介類の個別食品汚染調査結果<sup>3-5)</sup>より、DHQ に存在する魚介類(18 種類)を選択した。選択した魚介類の種類と、ダイオキシン類濃度を調査した試料数を下記に示した。

選択した魚介類及び調査試料数(平成 10~18 年度)

魚種	試料数
アジ	15
アンコウ(肝含まず)	3
アユ	3
イカ(内臓含まず)	10
カジキ	13
カレイ	9
キンメダイ	7
サケ	18
サバ	15
サメ	4
サンマ	11
タコ	13
ヒラメ	7
ブリ	22
ホッケ	12
マグロ	21
ホタテ	10
ワカサギ	4

また、モンテカルロ・シミュレーションによる推計方法の手順は下記のように行った。

- ① 魚介類摂取の有無の決定
  - ✓ 二値分布を設定
  - ✓ パラメータは対象集団の摂取割合データ(摂取割合の平均)より
- ② 魚介類別摂取量分布の決定
  - ✓ 対数正規分布を仮定
  - ✓ パラメータは魚介類摂取量データ(平均値、標準偏差)より
  - ✓ 魚介類別ダイオキシン濃度分布の決定
  - ✓ 対数正規分布を仮定
  - ✓ パラメータは魚介類ダイオキシンデータ(平均値、標準偏差)より
- ③ 魚介類別摂取の有無に関する二値乱数発生
- ④ 魚介類別摂取量分布に従う乱数発生
- ⑤ 魚介類別ダイオキシン濃度分布に従う乱数発生
- ⑥ ダイオキシン摂取量の算出
- ④×⑤×⑥の総和

## C. 研究結果及び考察

### 1. 個別食品のダイオキシン類汚染調査結果

鮮魚(5種、30試料)、健康食品(10製品)、及び健康茶(5製品)の分析結果を表1に示した。また、鮮魚については魚毎にダイオキシン濃度の結果を整理し、表2にまとめた。ダイオキシン類濃度の平均値は、サケ・マスで0.55 pg TEQ/g、ブリで3.1 pg TEQ/g、マグロで3.0 pg TEQ/g、マダイで1.2 pg TEQ/gであった。ブリ及びマグロの平均濃度は、サケ・マス及びマダイと比較すると高い傾向があった。中央値と比較した場合も、同様の傾向が認められた。

鮮魚の中で最も高い濃度を示した試料は、ブリの8.0 pg TEQ/gであった。試料によっても異なるが、ブリ及びマグロでは一般的に脂肪濃度が高いことが多く、ダイオキシン類濃度が高くなる傾向がある。ダイオキシン類に占めるCo-PCBsの割合は、鮮魚30試料の平均で約78%であった。過去の報告と同様<sup>6)</sup>、ダイオキシン類の大半はCo-PCBが占めていると言える。また、新しいTEF(WHO 2005)を用いて毒性等量を算出した場合は、10~20%低い値が得られる場合が多かった。

魚油を使用した健康食品では、0.72~53 pg TEQ/gのダイオキシン類が検出され、製品によってダイオキシン類濃度は大きく異なった。例えば鮫肝油を使用した5製品については、鮫肝油#4では0.72 pg TEQ/gであったが、鮫肝油#2では53 pg TEQ/gであり、約100倍高濃度のダイオキシン類が検出された。各製品で使用している魚の大きさ、産地、及び魚油の精製操作などが製品の汚染濃度に影響している可能性が考えられる。また、新しいTEF(WHO, 2005)を用いて毒性等量を算出した場合は、鮮魚の場合と同様に10~20%低い値が得られる場合が多かった。

表3には健康食品からのダイオキシン類摂取量を算出した。各製品の摂取量は添付書に記載されている最大の摂取量を使用した。ほとんどの製品では一日摂取量は50 pg TEQ/day以下であり、TDIに占める摂取量の割合は25%以下であった。しかし、鮫肝油を使用した1製品(鮫肝油#2)については摂取量が126.7 pg TEQ/dayとなり、本製品を摂取した場合はTDI(体重50 kgの場合は、200 pg TEQ/day)の約60%に相当した。本年度のトータルダイエット調査による国民平均のダイオキシン類摂取量は55.30 pg TEQ/dayであることから、他の一般的な食品からの摂取量を考慮した場合でも、TDIを超えることはない。しかし、ダイオキシン類摂取を大幅に上昇させる危険性が否定できないことから、注意を払う必要が

ある。

健康茶では 0.000066～0.30 pgTEQ/g のダイオキシン類が検出された。鮮魚、健康食品と比較すると、汚染濃度は低かった。

一部の鮮魚及び魚油を使用した健康食品では、比較的高い濃度のダイオキシン類が検出された。しかし、これらの食品はエイコサペンタエン酸、ドコサヘキサエン酸を多く含み、心臓病や動脈硬化等のリスクを低減するベネフィットがあると言われている。従って、一部の食品を多食することを避け、バランスのとれた食生活を送ることが、ダイオキシン類摂取量を減らすために有効であると考えられる。

## 2. 魚介類からのダイオキシン類摂取量の推定

摂取量推計値は図1から図3のような分布となり、今回の魚介類多食者におけるダイオキシン一日総摂取量のシミュレーション結果の平均値は 153.15 pg TEQ/day (中央値は 126.17 pg TEQ/day)と推計された(表 4)。内訳は平均 PCDD/Fs 曝露量が 42.37 pg TEQ/day(中央値は 35.17 pg TEQ/day)、平均 Co-PCBs 曝露量が 110.78 pg TEQ/day(中央値は 85.92 pg TEQ/day)と推計された。平均値は、日本の TDI である 200 pg TEQ/day の約 75%であった。しかし、平成 10 から 18 年度厚生労働省によるトータルダイエツト調査の一日摂取量の平均 77 pg TEQ/day を上回る結果であり、今回計算に使用した魚介類は、DHQ により得られた 18 種類についてのみの検討であることから考えると、トータルダイエツト調査と比べて、推計結果は高いものであると考えられる。

今回対象とした集団の魚介類摂取量の平均値はおおよそ 128.5g/day であった。トータルダイエツト調査で用いる国民健康・栄養調査報告によると、例えば平成 15 年度の魚介類摂取量の全国平均値は 86.7 g/day であり<sup>7)</sup>、1.5 倍ほど摂取量が多い。調査対象となる魚種な

どの違いがあるため単純比較することは難しいが、魚介類多食のためダイオキシン類摂取量が高いと考えられる。

本結果について、いくつかの課題を挙げることができる。一つ目は、実際に摂取しているか不明であるが、スズキ、タチウオ、アナゴ、アンコウ肝などの比較的高濃度のダイオキシン類含有魚介類の質問項目が DHQ に含まれておらず、今回の計算では考慮していない。魚介類摂取量追加調査の必要があるかもしれない。また他の食品(穀物、野菜、肉類、卵など)からのダイオキシン類摂取量を検討する必要がある。

上記の点を考慮すると、今回の検討結果は、過小評価であっても過大評価ではないと考えられる。すなわち、今回対象とした魚介類多食者のダイオキシン摂取量は決して低いものではないと考えられる。また、シミュレーションだけではなく、単純に魚介類中濃度と摂取量を掛け合わせた結果との比較も行うなどにより、摂取量把握に関する方法論的な検討も可能ではないかと考えられる。

## D. 結論

1. 鮮魚、健康食品、及び健康茶についてダイオキシン類濃度を調査した。鮮魚と健康食品の一部で比較的高い濃度のダイオキシン類が検出された。
2. ハイリスクグループの可能性のある魚介類多食者に対して、モンテカルロ・シミュレーション法による魚介類からのダイオキシン類摂取量を予備的に推計した。その結果、摂取量の平均値は 153.15 pg TEQ/day と推計され、TDI の約 75%であった。

## E. 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)内閣府食品安全委員会 平成 19 年度 食品健康影響評価技術研究 実績報告書:「一般集団およびハイリスク集団への食品中有害物質の暴露評価手法の開発」(主任研究者:香山不二雄)研究期間 18~20 年度

3) 平成 10~12 年度厚生科学研究補助金総合研究報告書:「ダイオキシン類の食品経路総摂取量調査研究」

4) 平成 13~15 年度厚生労働科学研究補助金総合研究報告書:「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」

5) 平成 16~18 年度厚生労働科学研究補助金総合研究報告書:「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」

6) 平成 18 年度厚生労働科学研究補助金研究報告書:「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(2)個別食品のダイオキシン類汚染実態調査(2-1)個別食品のダイオキシン類汚染実態調査」

7)平成 15 年国民健康・栄養調査報告 厚生労働省

## F. 研究業績

### 1. 論文発表

なし

### 2. 学会発表

なし

表1 平成19年度 食品中のダイオキシン類の濃度 (pg TEQ/g)

食品	国産/輸入	天然/養殖	ダイオキシン類 (pg TEQ/g)				
			PCDD/Fs	Co-PCBs	Total <sup>1)</sup>		
鮮魚	サケ(アキサケ)	国産	天然	0.026	0.095	0.12 (0.10)	
	サケ(アトランティックサーモン)	輸入	養殖	0.035	0.16	0.20 (0.17)	
	サケ(キングサーモン)	輸入	養殖	0.026	0.25	0.27 (0.24)	
	サケ(ギンサケ)	輸入	養殖	0.044	0.12	0.16 (0.15)	
	サケ(シロサケ)	国産	天然	0.046	0.13	0.18 (0.15)	
	サケ(ベニサケ)	輸入	天然	0.20	0.34	0.55 (0.44)	
	サケ(ベニサケ)	輸入	天然	0.084	0.19	0.28 (0.23)	
	トラウトサーモン	輸入	養殖	0.58	2.0	2.6 (2.1)	
	ブリ	国産	天然	0.44	1.0	1.5 (1.3)	
	ブリ	国産	天然	0.40	1.6	2.1 (1.8)	
	ブリ	国産	天然	0.30	0.86	1.2 (1.0)	
	ブリ	国産	天然	2.3	5.7	8.0 (6.9)	
	ブリ	国産	養殖	0.51	1.7	2.2 (2.0)	
	ブリ	国産	養殖	0.83	2.8	3.7 (3.1)	
	マグロ(ホンマグロ)	国産	養殖	0.54	4.9	5.5 (4.2)	
	マグロ(ホンマグロ)	輸入	養殖	0.57	4.7	5.2 (4.2)	
	マグロ(ホンマグロ)	輸入	養殖	0.24	2.5	2.7 (2.2)	
	マグロ(ホンマグロ)	輸入	養殖	0.53	3.7	4.2 (3.5)	
	マグロ(メバチマグロ)	輸入	天然	0.030	0.20	0.23 (0.23)	
	マグロ(メバチマグロ)	国産	天然	0.50	2.9	3.4 (2.9)	
	マグロ(メバチマグロ)	国産	天然	0.35	2.3	2.6 (2.3)	
	マグロ(メバチマグロ)	輸入	天然	0.022	0.30	0.32 (0.31)	
	マダイ	国産	天然	0.83	0.89	1.7 (1.5)	
	マダイ	国産	天然	0.23	0.48	0.71 (0.62)	
	マダイ	国産	天然	0.30	0.41	0.71 (0.59)	
	マダイ	国産	天然	1.2	3.1	4.3 (3.9)	
	マダイ	国産	養殖	0.13	0.42	0.54 (0.46)	
	マダイ	国産	養殖	0.15	0.65	0.80 (0.66)	
	マダイ	国産	養殖	0.067	0.38	0.44 (0.38)	
	マダイ	国産	養殖	0.067	0.43	0.50 (0.42)	
	健康食品	鰵精製魚油 #1	— <sup>2)</sup>	—	5.0	7.7	13 (11)
		鰵精製魚油 #2	—	—	1.5	3.2	4.7 (4.2)
鮫肝油 #1		—	—	1.0	3.2	4.2 (3.8)	
鮫肝油 #2		国産	—	11	42	53 (41)	
鮫肝油 #3		—	—	1.3	6.1	7.3 (6.9)	
鮫肝油 #4		—	—	0.000040	0.72	0.72 (0.25)	
鮫肝油 #5		—	—	1.8	7.5	9.4 (8.9)	
マンボウ肝油		—	—	1.8	4.9	6.8 (6.0)	
ヤツメウナギ油 #1		—	—	1.2	8.5	9.7 (8.7)	
ヤツメウナギ油 #2		—	—	0.60	1.4	2.0 (1.7)	
嗜好飲料	杜仲茶葉	—	—	0.23	0.075	0.30 (0.27)	
	ドクダミ茶	—	—	0.13	0.021	0.15 (0.13)	
	ハブ茶	—	—	0.00031	0.00023	0.00054 (0.00049)	
	ルイボス茶	輸入	—	0.0000060	0.0000060	0.000066 (0.00020)	
	ローズヒップ茶	—	—	0.013	0.00025	0.013 (0.015)	

1)( )内の数値はWHO 2005 TEFを使用した場合の値を示す。

2)不明又は該当せず。

表2 鮮魚中のダイオキシン類濃度の概要

食品名	試料数	ダイオキシン類濃度 (pg TEQ/g) <sup>1)</sup>			
		平均値	中央値	最小値	最大値
サケ・マス	8	0.55 (0.45)	0.24 (0.20)	0.12 (0.10)	2.6 (2.1)
ブリ	6	3.1 (2.7)	2.2 (1.9)	1.2 (1.0)	8.0 (6.9)
マグロ	8	3.0 (2.5)	3.1 (2.6)	0.23 (0.23)	5.5 (4.2)
マダイ	8	1.2 (1.1)	0.71 (0.61)	0.44 (0.38)	4.3 (3.9)

1)( )内の数値はWHO 2005 TEFを使用した場合の値を示す。

表3 魚油を使用した健康食品からのダイオキシン類摂取量<sup>1)</sup>

製品名	ダイオキシン類摂取量 <sup>2)</sup> TDIに占める割合	
	(pg TEQ/day)	(%)
鰯精製魚油 #1	42.5 (36.0)	21 (18)
鰯精製魚油 #2	15.7 (14.0)	8 (7)
鮫肝油 #1	13.1 (11.9)	7 (6)
鮫肝油 #2	126.7 (98.0)	63 (49)
鮫肝油 #3	11.8 (11.1)	6 (6)
鮫肝油 #4	3.1 (1.1)	2 (1)
鮫肝油 #5	16.4 (15.5)	8 (8)
マンボウ肝油	8.2 (7.2)	4 (4)
ヤツメウナギ油 #1	24.3 (21.8)	12 (11)
ヤツメウナギ油 #2	1.9 (1.6)	1 (1)

1)( )内の数値はWHO 2005 TEFを使用した場合の値を示す。

2)各製品に記載されている一日摂取量の最大値に基づき算出した。

表 4. 魚介類多食者におけるダイオキシン類摂取量分布推計値[pgTEQ/day]

パーセンタイル	PCDD/Fs 曝露量	Co-PCBs 曝露量	総曝露量
0%	0.08	0.07	1.74
10%	16.69	40.43	63.13
20%	21.67	52.54	80.55
30%	26.07	63.37	95.82
40%	30.45	74.16	110.46
50%	35.17	85.92	126.17
60%	40.62	99.07	143.92
70%	47.28	116.06	166.13
80%	56.71	141.21	197.42
90%	73.58	188.69	254.77
100%	1,806.24	14,745.40	14,761.24

統計量	PCDD/Fs 曝露量	Co-PCBs 曝露量	総曝露量
試行回数	100000	100000	100000
平均値	42.37	110.78	153.15
中央値	35.17	85.92	126.17
最頻値	---	---	---
標準偏差	33.51	136.63	146.27
分散	1,123.23	18,668.25	21,395.13
歪度	9.02	23.90	19.79
尖度	254.38	1,611.71	1,225.63
変動係数	0.79	1.23	0.96
範囲下限	0.08	0.07	1.74
範囲上限	1,806.24	14,745.40	14,761.24
範囲	1,806.17	14,745.33	14,759.50
平均標準誤差	0.11	0.43	0.46

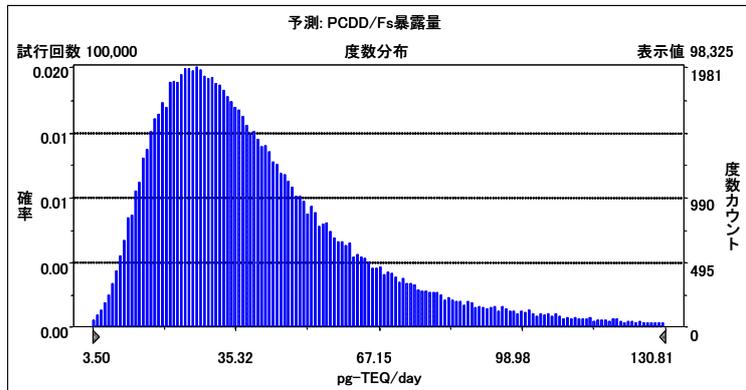


図 1. 魚介類多食者における PCDD/Fs 摂取量推計値の分布

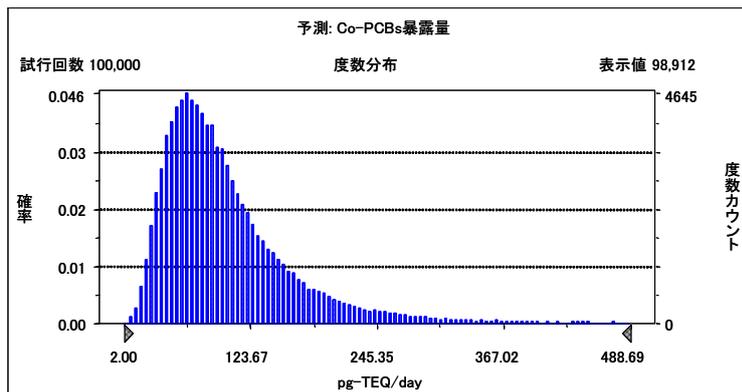


図 2. 魚介類多食者における Co-PCBs 摂取量推計値の分布

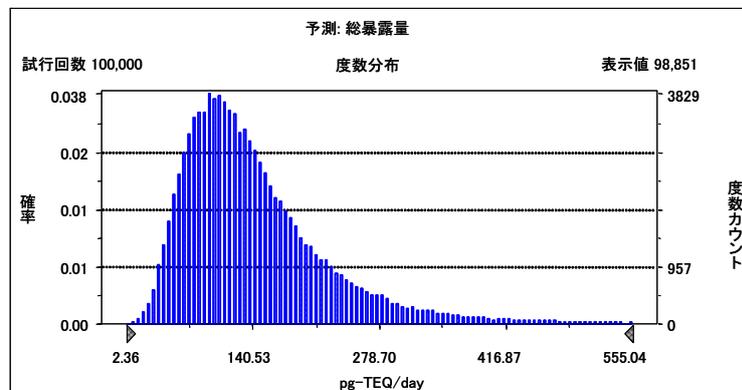


図 3. 魚介類多食者におけるダイオキシン類摂取量推計値の分布