

厚生労働科学研究費補助金(食品・化学物質安全総合研究事業)
総括研究報告書

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

主任研究者 佐々木久美子 国立医薬品食品衛生研究所 食品部第一室長

研究要旨

ダイオキシン類による食品汚染実態および食事経由 1 日摂取量を把握するための調査研究を実施するとともに、ダイオキシン測定迅速化、精密化およびダイオキシン類の摂取低減化を図ることを目的として、下記の 5 課題の研究を実施した。

- (1)ダイオキシン類のトータルダイエツトによる摂取量調査
- (2)個別食品のダイオキシン類汚染実態調査
- (3)ダイオキシン類の迅速測定法及び分析の精密化に関する研究
 - (3-1)食品中のダイオキシン類測定迅速法の開発(Ah イムノアッセイ)
 - (3-2)食品中のダイオキシン類分析におけるアルカリ分解・溶媒抽出法の評価
- (4)食品中のダイオキシン類のリスク低減に関する研究

(1)では、トータルダイエツト調査を実施し、食事経由ダイオキシン類1日摂取量の全国平均が 1.49 ± 0.65 pgTEQ/kgbw/day であることを明らかにした。

(2)では、魚介類、畜産物、野菜・果実、およびそれらの加工品等 158 試料および市販ベビーフード製品 51試料中のダイオキシン類を分析し、汚染実態を明らかにした。

(3-1)では、市販魚中のダイオキシン類の毒性等量を推測するスクリーニング法として、Ah イムノアッセイキットの検討を行った。その結果、本法はダイオキシン類のスクリーニング法として有用であると考えられた。しかしながら、操作ブランク値が高く認められ、低濃度汚染試料の数値化が困難であることが示唆された。

(3-2)では、食品中ダイオキシン類分析におけるアルカリ(水酸化カリウム水溶液)分解・ヘキサン抽出法の評価を行った。実試料に対する添加回収試験、ソックスレー抽出との比較試験および認証値つき試料の分析結果から、操作が簡便な本法が有用な方法であることが分かった。

(4)では、植物性食品成分のダイオキシン類毒性バイオアッセイ系への影響を、CALUX アッセイ(ルシフェラーゼ遺伝子を導入した培養細胞を利用したレポータージーンアッセイ)を利用して検討した。95 種の食品成分について検討した結果、大豆イソフラボンの他、一部のフラボノイド、スチルベン骨格を有する resveratrol など、いわゆる植物エストロゲンといわれるものの一部に、高濃度でアッセイ系の活性化が認められた。

分担研究者		調査研究を行うとともに、ダイオキシン類測定迅速化と精密化ならびにダイオキシン類の摂取低減化を図ることを目的として、次の 5 課題の研究を実施した。
米谷民雄	国立医薬品食品衛生研究所 食品部長	(1)ダイオキシン類のトータルダイエツト調査
飯田隆雄	福岡県保健環境研究所 保健科学部長	(2)個別食品のダイオキシン類汚染実態調査
豊田正武	実践女子大学	(3-1)食品中のダイオキシン類測定迅速法の開発(Ah イムノアッセイ)
天倉吉章	国立医薬品食品衛生研究所 食品部	(3-2)食品中のダイオキシン類分析におけるアルカリ分解・溶媒抽出法の評価
A. 研究目的		(4)食品中のダイオキシン類のリスク低減に関する研究
	本研究では、ダイオキシン類の食事経由1日摂取量および個別食品汚染実態を把握するための	

B. 研究方法

分担研究(1)

全国7地区の12機関で、それぞれ約120品目の食品を購入し、厚生労働省の平成12年度国民栄養調査の食品別摂取量表に基づいて、それらの食品を計量し、そのまままたは調理した後、13群に大別して、混合し均一化したものを試料とした。さらに第14群として飲料水を試料とした。なお、魚介類の10群、肉・卵の11群および乳・乳製品の12群は、各機関で魚種、産地、メーカー等が異なる食品で構成された各3セットの試料を調製した。これらについて、「食品中のダイオキシン類測定方法ガイドライン」に従ってダイオキシン類を分析し、1日摂取量を算出した。

分担研究(2)

国内産食品(125試料)および輸入食品(33試料)ならびに瓶詰め等の市販ベビーフード製品51試料について、「食品中のダイオキシン類測定方法ガイドライン」に従ってダイオキシン類を分析した。

分担研究(3-1)

魚試料をアルカリ分解後、クリーンアップを行い、PCDD/Fs及びnon-ortho PCBs分画をAhイムノアッセイキット(クボタ株製)により測定した。一方、高分解能GC/MSでPCDD/FsおよびPCBsを測定し、毒性等量値をもとめ、Ahイムノアッセイによる分析値と比較した。

分担研究(3-2)

魚試料をアルカリ分解・溶媒抽出し、ダイオキシン類の添加回収率をもとめた。同一魚試料をアルカリ分解・溶媒抽出とソックスレー抽出で分析し、両者による定量値を比較した。さらに、ダイオキシン類濃度の認証値つき試料をアルカリ分解法で分析した値を認証値と比較した。

分担研究(4)

植物性食品成分95種(フラボノイド類、タンニン類、サポニン類、テルペン類など)を試料とし、希釈した試料溶液をCALUXアッセイで測定し、アッセイ系の活性化能をダイオキシン(TCDD)によるそれと比較し、誘導等価係数として数値化した。

C. 結果および考察

分担研究(1)

ダイオキシン類の平均1日摂取量は 1.49 ± 0.65 pgTEQ/kgbw/day(範囲0.57~3.40 pgTEQ/kgbw/day)であった。これらの値は、平成13年度の調査結果(1.63 ± 0.71 pgTEQ/kgbw/day, 範囲0.67~3.40 pgTEQ/kgbw/day)とほとんど同じレベルであり、日本における耐容1日摂取量(4 pgTEQ/kgbw/day)より低かった。なお、同一機関で調製したTDS試料であっても、10~12群に選択した食品の種類、産地等の差により、ダイオキシン類摂取量には約1.4~3.2倍の差が生じることが分かった。

1日摂取量はこの3年間横這いであることから、今後も調査を継続し、推移を見守る必要がある。

分担研究(2)

鮮魚(31試料)から、0.028~18.939 pgTEQ/g(平均1.862 pgTEQ/g)、魚干物(16試料)から、0.292~1.946 pgTEQ/g(平均0.910 pgTEQ/g)のダイオキシン類が検出された。馬肉(4.696 pgTEQ/g)を除く畜産食品と乳製品では、0.347 pgTEQ/g以下であった。植物性食品(76試料)中48試料では、ダイオキシン類濃度は0.001 pgTEQ/g未満であった。0.100 pgTEQ/g以上検出されたものは、小松菜(0.101 pgTEQ/g)、ビスケット(0.164 pgTEQ/g)、乾燥海苔およびびじき(0.133~0.199 pgTEQ/g)の6試料だけであった。

市販ベビーフード(51試料)中14試料では、0.001 pgTEQ/g未満であった。0.010 pgTEQ/g以上検出されたのは21試料であり、最も濃度が高かったものは0.135 pgTEQ/gであった。

分担研究(3-1)

Ahイムノアッセイキットによる魚試料の分析値は、高分解能GC/MS分析によるPCDD/Fsおよびnon-ortho PCBs毒性等量値と良好な相関が得られた。さらに、mono-ortho PCBsを含めた総ダイオキシン類毒性等量に対しても相関は良好であった。本法は、安価で簡便にダイオキシン類測定が可能であるため、ダイオキシン類のスクリーニング法として有用であると考えられる。しかしながら、操作ブランク値が高いため、低濃度汚染試料の数値化が困難であることが示唆された。今後は、より詳

細なダイオキシン類測定に関する評価を行い、信頼性を高めていく必要があると考えられる。

分担研究(3-2)

魚試料に対するダイオキシン類の添加回収試験では、ほとんどの検体で良好な回収率(79-107%)が得られ、アルカリ分解によるダイオキシン類の分解は認められなかった。マグロでは、アルカリ分解による OCDF の損失(回収率<61%)が認められたが、対応するグリーンアップスパイクをアルカリ分解前に加えることで、定量値への影響は防止することができた。魚試料のアルカリ分解・ヘキサン抽出とソックスレー抽出とでは、同等のダイオキシン類定量値が得られた。さらに、認証値つき試料の分析では認証範囲内の定量値が得られた。アルカリ分解は操作が簡便であることから有用な方法であると考えられる。

分担研究(4)

大部分の化合物は CALUX アッセイに対して作用を示さなかったが、大豆イソフラボンの他、一部のフラボノイド、スチルベン骨格を有する resveratrol など、いわゆる植物エストロゲンといわれるものの一部に、高濃度でアッセイ系の活性化が認められた。今回のデータからは、一部食品の過度の摂取を避けたバランスのとれた食事が重要であり、ダイオキシンのリスク低減化においても大切であるといえる。

D. 結論

5 課題について研究し、下記の成果を得た。

- (1) トータルダイエツト調査により、ダイオキシン類の1日摂取量が 1.49 ± 0.65 pgTEQ/kgbw/day であることを明らかにした。
- (2) 一般食品およびベビーフード製品中のダイオキシン類を分析し、汚染実態を明らかにした。
- (3-1) Ah イムノアッセイキットは、魚介類のダイオキシン類スクリーニング法として有用であると考えられる。しかし、操作ブランク値が高いので、低濃度汚染試料の数値化が困難であることが示唆された。
- (3-2) アルカリ(水酸化カリウム水溶液)分解・ヘキサン抽出法は、特別な器具を必要とせず、操作が簡便であることから、食品中ダイオキシン類分析において有用な方法であると考えられた。

(4) 植物性食品成分の大部分はダイオキシン類毒性バイオアッセイ系へ影響を示さなかったが、大豆イソフラボンなど、いわゆる植物エストロゲンといわれるものの一部に、高濃度でアッセイ系の活性化が認められた。

F. 研究発表

1. 論文発表

1) Tsutsumi, T.*¹, Amakura, Y.*¹, Sasaki, K.*¹, Toyoda, M.*², Maitani, T.*¹. Evaluation of an aqueous KOH digestion followed by hexane extraction for analysis of PCDD/Fs and dioxin-like PCBs in retailed fish. *Analytical and Bioanalytical Chemistry*, 375,792-798 (2003)

*¹ 国立医薬品食品衛生研究所

*² 実践女子大学

2) Amakura, Y.*¹, Tsutsumi, T.*¹, Nakamura, M.*², Kitagawa H.*², Fujino, J.*², Sasaki, K.*¹, Toyoda, M.*³, Yoshida, T.*⁴, Maitani, T.*¹, Activation of the aryl hydrocarbon receptor by some vegetable constituents determined using in vitro reporter gene assay. *Biol. Pharm. Bull.*, 26, 532-539 (2003).

*¹ 国立医薬品食品衛生研究所

*² 株式会社日吉

*³ 実践女子大学

*⁴ 岡山大学薬学部

2. 学会発表

1) 堤 智昭*¹, 飯田隆雄*², 堀 就英*², 中川礼子*², 飛石和大*², 柳 俊彦*³, 中村宗知*³, 河野洋一*³, 内部博泰*³, 豊田正武*⁴, 天倉吉章*¹, 佐々木久美子*¹, 米谷民雄*¹: 日本における市販食品中のダイオキシン類汚染. 日本薬学会第 123 年会(2003.3)

*¹ 国立医薬品食品衛生研究所

*² 福岡県保健環境研究所

*³ (財)日本食品分析センター

*⁴ 実践女子大学

2) 堤 智昭*¹, 天倉吉章*¹, 佐々木久美子*¹, 豊田正武*², 米谷民雄*¹: 食品中のダイオキシン類分析におけるアルカリ分解の影響. 第 11 回環境化学討論会(2002.6)

*¹ 国立医薬品食品衛生研究所

*² 実践女子大学

3)天倉吉章*¹, 堤 智昭*¹, 中村昌文*², 北川宏子*², 藤野潤子*², 佐々木久美子*¹, 豊田正武*⁴, 吉田隆志*³, 米谷民雄*¹:植物性食品成分のアル炭化水素レセプター活性化に関する検討. フォーラム 2002 :衛生薬学・環境トキシコロジー(2002. 10).

*¹ 国立医薬品食品衛生研究所

*² 株式会社日吉

*³ 岡山大学薬学部

*⁴ 実践女子大学