

東京都における食事由来のダイオキシン類曝露量

笹本 剛生

Dietary Intake of Dioxins in Tokyo Metropolitan Area

Takeo SASAMOTO

[研究年報 第 61 号 (2010) 正誤表 Errata]

東京健安研セ年報 *Ann. Rep. Tokyo Metr. Inst. Pub. Health*, **61**, 93-101, 2010

東京都における食事由来のダイオキシン類曝露量

Dietary Intake of Dioxins in Tokyo Metropolitan Area

page 93 和文要約 (Japanese abstract)

[誤 Error]

それ以降は 1.15～1.42 pg-TEQ/kg BW/day でほぼ横ばいに推移した.

[正 Correct]

それ以降は 1.12～1.39 pg-TEQ/kg BW/day でほぼ横ばいに推移した.

東京都における食事由来のダイオキシン類曝露量

笹本 剛生*

東京都ではダイオキシン類の人への健康影響を調査することを目的として食事由来のダイオキシン類曝露量推計調査を継続的に実施している。ここでは、過去10年間の調査結果を総括するとともに、離乳食、幼児食及び加工食品等、様々な食事形態を想定して実施した曝露量調査結果についても解説する。1999年～2008年の10年間にわたり継続調査を実施した成人食からのダイオキシン類曝露量では、1999年には1.92pg-TEQ/kg BW/dayであったが、2001年にかけて減少し、それ以降は1.15～1.42 pg-TEQ/kg BW/dayでほぼ横ばいに推移した。その他に、離乳食、幼児食及び加工食品を中心とした食事を想定して曝露量の推計を試みたが、いずれの食事形態においても耐容一日摂取量（Tolerable Daily Intake : TDI）の4pg-TEQ/kg BW/dayを下回った。食品群別曝露量を見ると、魚介類群からの曝露量が最も多かったが、総曝露量や栄養学的観点からも魚食を避ける必要性はなく、バランスのとれた食事を心がけることが重要である。

キーワード：ダイオキシン類、ポリ塩化ジベンゾパラジオキシン、ポリ塩化ジベンゾフラン、コプラナーポリ塩化ビフェニル、トータルダイエット法、陰膳法、一日耐用摂取量

はじめに

化学工業の発展により生み出された合成有機化合物は2000万種類を超えていると言われている。人類はこれらの恩恵としての様々な利便性を獲得した一方、それらの化合物の中には生物に対し何らかの毒性を示すと同時に、環境中で分解されずに長期間にわたって残留し、地球規模の環境汚染を引き起こす物質も存在した。これらの化合物群は難分解性有機汚染物質（Persistent Organic Pollutants : POPs）と呼ばれ、2004年5月に発効したストックホルム条約により国際的協調下での廃絶・削減が進められている¹⁾。ダイオキシン類は本条約の附属書Cで可能な限り非意図的な放出を減らす措置を取るべき物質に掲載され、条約の締約国に必要な措置の実施を求めている。我が国においては、1999年に成立したダイオキシン類対策特別措置法²⁾の下でダイオキシン類の徹底した排出抑制が図られてきた。通常の生活環境におけるダイオキシン類の人への曝露経路は、その95%以上が食事を介しているとされ^{3, 4)}、食事由来のダイオキシン類曝露量の把握は、ダイオキシン類の人への健康リスクを評価する上で必要不可欠である。東京都ではこの考えに基づき、トータルダイエット法による成人食のダイオキシン類曝露量推計調査と共に、様々な年齢階層や食事形態を想定した曝露量調査を実施してきた。ここでは、過去10年間に実施した調査結果を総括し、食事由来のダイオキシン類曝露量について解説する。

調査方法

1. 試料

1) 成人食試料

成人食からのダイオキシン類曝露量の推計には、トータルダイエット法を用いた。トータルダイエット法はマーケットバスケット法とも呼ばれ、ダイオキシン類等の環境汚

染物質だけでなく、食品中の農薬、有機物質、無機物質及び放射性物質等の残留レベルを調査し、曝露量を推計する手法として1961年に米国で確立された手法である⁵⁾。トータルダイエット法に用いる食品試料は、厚生労働省が毎年実施している「国民健康栄養調査」の東京都地区における集計結果「東京都民の栄養状況」に示されている食品群別摂取量を基礎資料とし、原則として調査年の前年分の食品群別摂取量を用いて試料調製を行った。成人食試料を用いた曝露量調査は2010年現在も継続して調査が進められているが、ここでは1999年～2008年の10年間の調査についてまとめた。一例として2006年の食品群別摂取量をTable 1に示した。

Table 1. Per Capita Daily Intake of 14 Food Groups in Tokyo Metropolitan Area in 2006

No. of Food groups	Food groups	Daily intake (g/day)
1	Rice and rice products	312.1
2	Cereals, seeds and potatoes	179.9
3	Sugars and confectioneries	36
4	Fats and oils	18.5
5	Pulses	65.8
6	Fruits	106.7
7	Green vegetables	111.7
8	Other vegetables, mushrooms and seaweeds	220.9
9	Seasoning and beverages	674.6
10	Fish and shellfish	73.5
11	Meat and eggs	119.8
12	Milk and dairy products	140.1
13	Other foods (prepared)	6
14	Drinking water	600

試料調製は各年とも東京都内の百貨店、スーパーマーケット及びその他の小売店より約100種類、300品目の食品を購入し、食品群ごとにその可食部について実際の食事形態に従いそのまま、あるいは調理を行った後、混合、均質化して分析試料とし、分析に供するまで-40℃で保存した。

* 東京都健康安全研究センター食品化学部残留物質研究科 169-0073 東京都新宿区百人町 3-24-1

いずれの調査年においても、食品の摂取量は異なるものの、調製要領はほぼ同様であり、各食品群ともより平均的な食事実態を反映させるため、一つの食品につき3～5品目を購入し、試料に用いた。また、これらの食品群とともに、飲料水についても分析を行った。飲料水は世田谷区、足立区の一般家庭水道水を採取した。いずれも、30分以上放水後、密封ステンレス容器に採水し、分析まで4℃で保存した。

2) 幼児食試料

成人食と同じく国民健康栄養調査における食品群別摂取量から、2歳～6歳の年齢階層の摂取量データを基礎資料として試料調製を行った。基本的には成人食におけるトータルダイエット法と同様の手法であり、食品群別摂取量データの年齢階層のみが異なる。幼児食からのダイオキシン類曝露量調査は2002年に実施した。

3) 離乳食試料

乳児は生後約6ヶ月頃から母乳または育児用ミルク等の乳汁栄養から幼児食に移行する離乳期に入る。この間に乳児の摂食機能は、乳汁を吸うことから、食物をかみつぶして飲み込むことへと発達し、摂取する食品は量や種類も多くなり、献立や調理の形態も変化していく。離乳期は乳幼児が摂食機能の急速な発達とともに大脳皮質をはじめとする脳神経系の発達時期であり、同時期におけるダイオキシン類の曝露は他の発育段階と比べてもその影響は無視できない。日本で初めて離乳の方法を具体的に示した文書として、昭和55年（1980年）に厚生省から提案された「離乳の基本」が知られている。「離乳の基本」は、その後の社会変化に伴う育児環境の変化や乳児栄養についての新しい概念を取り入れ、平成7年（1995年）に改訂「離乳の基本」として発表された。そこで本調査では、この改訂「離乳の基本」を基に「手作り離乳食」と「ベビーフードを主体に

した離乳食」の2種類の離乳食形態を想定し、試料調製を試みた。いずれも「離乳の基本」の中で示された「離乳の進め方の目安」（Table 2）に従い、離乳期を離乳初期（生後5～6ヶ月）、中期（生後7～8ヶ月）、後期（生後9～11ヶ月）、完了期（生後12～15ヶ月）の4期に分けて試料調製を行った。「手作り離乳食」では、離乳期ごとにI群：穀類、II群：タンパク質食品、III群：野菜・果実類、IV群：油脂・砂糖・調味料等の4群に分別して試料を作成した。さらに、離乳初期～後期にかけては育児用ドライミルクも併せて用いるので、市販の4種類の育児用ドライミルクを各社製品の説明書きとおりに調製し、均等に混合した試料をV群とした。試料は離乳期毎及び食品群毎に調製可能な量（例えば離乳初期の穀類ならば50日分）で調製を行った。また、実際には離乳期の進行につれて食材の種類は増加するので、試料調製にもその点を考慮するとともに、各離乳期共通の食材については同一のものを使用した。本法は、成人食におけるトータルダイエット法を離乳食に応用したものである。一方、「ベビーフードを主体にした離乳食」では離乳初期から完了期について各期3日分の献立を作成し、その3日分のメニューを全て混合、均質化したものを分析試料とした。さらに、育児用ドライミルクは「手作り離乳食」と同様に調製して別試料として分析を行った。本法は成人食の陰膳法を離乳食に応用したものである。

最終的に、「手作り離乳食」では45種類、117品目の食品及び4種類の育児用ドライミルクを使用し、「ベビーフードを主体にした離乳食」では、145種類の市販ベビーフードと16種類の一般食品及び4種類の育児用ドライミルクを使用して試料調製を行った。なお、離乳食からのダイオキシン類曝露量調査は2003年に実施した。

Table 2. Daily Intakes of 5 Food Groups in Each Weaning Stage Obtained from the Basic of Weaning Revised by the Health and Welfare Ministry (g/day)

Weaning stage	Early stage	Medium stage	Late stage	Completed stage
Months	5～6	7～8	9～11	12～15
Number of weaning food per day	1→2 ^{a)}	2	3	3
Number of formula milk per day	4→3	3	2	200～300mL of milk
Food groups				
I Grain	30g → 40g (rice gruel)	50g → 80g (rice gruel)	90g rice gruel → 80g soft rice	90g soft rice → 80g rice
II Protein				
f.e. Eggs	1/2 of egg yolk	One egg yolk → 1/2 of whole egg	1/2 of whole egg	1/2 of whole egg → 2/3 of whole egg
or Tofu	25g	40g → 50g	50g	50g → 55g
or Dairy products	55g	80g → 100g	100g	100g → 120g
or Fish	5g → 10g	13g → 15g	15g	15g → 18g
or Meat	-	10g → 15g	18g	18g → 20g
III Vegetables and fruits	10g → 15g	25g	30g → 40g	40g → 50g
IV Sugar, fats and oils	0g → 1g (each)	2g → 2.5g (each)	3g (each)	4g (each)
V Formula milk	920mL	820mL	605mL	-

^{a)} Arrow indicates changes in intake from early to late part of each stage

4) 加工食品を中心とした試料

近年、「中食」（なかしょく）と呼ばれる食事形態が普及している。中食とは、外食と家庭での料理の中間にあるものとして、惣菜や弁当などを買って、家庭で食べるような食事形態を指す。この中食は、核家族化、個食化、家庭での料理の簡便化などから、また、外食ほど経費がかからないこともあり、年々市場規模を拡大している。そこで、中食の中心となる加工食品を含む大人食を想定して試料調製を行い、ダイオキシン類曝露量を推計した。中食における「加工食品」の範囲は家庭以外で調理したものとして「平成12年度食料品消費モニター第2回定期調査結果の概要について」（農林水産省総合食糧局）の分類における「中食」を中心とし、レトルト食品やインスタント食品なども含めて副食14日分の仮想献立を作製した。この仮想献立に基づき購入した食品を通常の食事形態に従って調理を行い、一日分毎の食事を混合、均質化し、分析試料に供した。また、これとは別に主食の仮想献立を4パターン作成し、同様に調理、混合、均質化した試料についても分析を行った。本法は成人食の陰膳法を応用したものである。加工食品を中心とした食事からのダイオキシン類曝露量調査は2004年に実施した。

2. 測定対象化合物

本調査においてダイオキシン類とはポリ塩化ジベンゾパラジオキシン (PCDDs), ポリ塩化ジベンゾフラン (PCDFs) 及びコプラナーポリ塩化ビフェニル (Co-PCBs) を示している。測定対象とした同族体、異性体は 2006 年に

FAO-WHO により毒性等価係数 (TEF2006) が設定されている PCDDs 7 種, PCDFs 10 種及び Co-PCBs 12 種である。また, PCDDs および PCDFs の異性体, 同族体表記は塩素置換位をそのまま, Co-PCBs は IUPAC (International Union of Pure and Applied Chemistry : 国際純正応用化学連合) 番号で表記した。

3. 分析方法

1998年に厚生労働省から示された「食品中のダイオキシン類およびコプラナーPCB分析暫定マニュアル」⁶⁾ に準拠して実施した。

結果及び考察

1. 成人食からのダイオキシン類曝露量

Table 3 に調査実施各年度のダイオキシン類の総曝露量、各食品群別曝露量及び総曝露量に対する各食品群別曝露量の割合（寄与率, Ratio）を示した。体重を 50kg と仮定した場合の体重 (Body Weight : BW) 1kg あたりのダイオキシン類一日曝露量は、1999 年には 1.92pg TEQ/kg BW/day であったが、2000 年には 1.65 pg TEQ/kg BW/day, 2001 年には 1.08 pg TEQ/kg BW/day と低下し、その後は 1.12~1.39 pg TEQ/kg BW/day であり、ほぼ横ばいで推移した。この曝露量を国内の他の報告例と比較してみると、1999 年の豊田らの報告（国内 7 地区で食材を調達）⁷⁾ や、2000 年の堤らの報告（国内 16 地区で食材を調達）⁸⁾ と同レベルもしくはやや低いレベルであった。

継続的な調査例は厚生労働省で実施している調査があ

Table 3. Dietary Daily Intakes of Dioxins as WHO-TEQ(2006) from 14 Groups of Adult Food in Tokyo Metropolitan Area from 1999 to 2008

Food Groups	2008		2007		2006		2005		2004	
	Intake of each group (pg TEQ/day)	Ratio to total intake (%)	Intake of each group (pg TEQ/day)	Ratio to total intake (%)	Intake of each group (pg TEQ/day)	Ratio to total intake (%)	Intake of each group (pg TEQ/day)	Ratio to total intake (%)	Intake of each group (pg TEQ/day)	Ratio to total intake (%)
Group 1	0.00169	0.00254	0.00046	0.00076	0.0028	0.0043	0.0010	0.0014	0.0019	0.0034
Group 2	0.024	0.04	0.22	0.36	0.37	0.58	0.20	0.30	0.32	0.56
Group 3	0.22	0.33	0.39	0.63	0.61	0.94	0.23	0.34	0.47	0.83
Group 4	0.32	0.48	0.38	0.62	0.53	0.82	0.56	0.83	0.20	0.36
Group 5	0.0046	0.007	0.031	0.050	0.0046	0.007	0.011	0.017	0.013	0.022
Group 6	0.00062	0.00093	0.00042	0.00068	0.0026	0.0040	0.00024	0.00036	0.00007	0.00012
Group 7	0.0295	0.0445	0.00403	0.0066	0.0043	0.007	0.14	0.21	0.26	0.46
Group 8	0.19	0.29	0.27	0.44	0.28	0.43	0.48	0.71	0.51	0.91
Group 9	0.0096	0.014	0.0087	0.014	0.017	0.027	0.007	0.01	0.015	0.026
Group 10	52.09	78.64	46.43	75.60	46	70.71	54.79	81.91	44.08	78.40
Group 11	12.46	18.81	12.49	20.33	15	23.68	9.00	13.46	7.66	13.62
Group 12	0.8	1.14	1.04	1.70	1.7	2.59	1.35	2.02	2.11	3.75
Group 13	0.12	0.18	0.13	0.21	0.14	0.22	0.11	0.17	0.60	1.06
Group 14	0.018	0.027	0.018	0.030	0.000054	0.000008	0.018	0.03	0.0000072	0.000013
Total (pg TEQ/day)	66.2		61.4		64.7		66.9		56.2	
Intake (pg TEQ/kg BW/day)	1.32		1.23		1.29		1.34		1.12	

Food Groups	2003		2002		2001		2000		1999	
	Intake of each group (pg TEQ/day)	Ratio to total intake (%)	Intake of each group (pg TEQ/day)	Ratio to total intake (%)	Intake of each group (pg TEQ/day)	Ratio to total intake (%)	Intake of each group (pg TEQ/day)	Ratio to total intake (%)	Intake of each group (pg TEQ/day)	Ratio to total intake (%)
Group 1	0.0007	0.0010	0.0020	0.003	0.7669	1.42	0.045	0.055	0.393	0.41
Group 2	0.32	0.47	0.80	1.15	0.27	0.49	0.63	0.77	0.87	0.91
Group 3	0.62	0.91	0.44	0.63	0.75	1.38	1.05	1.27	0.49	0.51
Group 4	0.83	1.21	0.70	1.00	0.47	0.87	0.26	0.31	0.50	0.52
Group 5	0.010	0.014	0.077	0.11	0.075	0.14	0.0045	0.01	0.0124	0.01
Group 6	0.00008	0.00011	0.000076	0.00011	0.001830	0.0034	0.015	0.02	0.062	0.07
Group 7	0.20	0.29	0.26	0.38	1.47	2.72	1.36	1.64	2.53	2.64
Group 8	0.32	0.47	0.070	0.10	0.252	0.47	1.06	1.28	0.66	0.69
Group 9	0.031	0.045	0.0018	0.003	0.0059	0.011	0.032	0.04	0.005	0.01
Group 10	56.90	83.40	52.57	75.50	29.14	53.87	60.51	73.17	75.15	78.32
Group 11	6.06	8.89	8.56	12.30	17.01	31.45	10.94	13.23	7.75	8.07
Group 12	2.48	3.64	5.91	8.49	3.67	6.78	6.33	7.65	7.25	7.56
Group 13	0.45	0.66	0.23	0.32	0.22	0.40	0.46	0.56	0.28	0.29
Group 14	0.00008	0.00011	0.00008	0.00012	0.00011	0.00020	0.00039	0.00048	0.00004	0.000046
Total (pg TEQ/day)	68.2		69.6		54.1		82.7		96.0	
Intake (pg TEQ/kg BW/day)	1.36		1.39		1.08		1.65		1.92	

る⁹⁾。これは毎年全国7地区を対象としてトータルダイエツト法での調査を行っているもので、この報告によると、体重1kg当たりの食事由来ダイオキシン類一日曝露量は1999年までは2pg TEQを超えていたが、2000年以降は1.0~1.6pg TEQ程度で推移している。これらの結果は東京都の調査値推移と一致しており、我が国の食事由来のダイオキシン類曝露量は2000年に大きな転換点があったと考えられる。また、2000年以降でみると多少の増減が見られるものの、変化の幅は小さく横ばい状態が続いている。いずれにしても調査開始以来、WHO-TDI¹⁰⁾の4pg TEQ/kg BW/dayを上回ることにはなかった。一方で、欧州連合食品科学委員会による耐容週間摂取量(EU Scientific Committee on Food- Tolerable Weekly Intake : EU-SCF-TWI)¹¹⁾や、国連食糧農業機関(FAO)とWHOの食品添加物合同専門家委員会による耐容月間摂取量(Joint FAO/WHO Expert Committee on Food Additives - Tolerable Monthly Intake : JECFA-TMI)¹²⁾における耐容摂取量を1日あたりの曝露量に換算すると、約2pg TEQであり、本調査ではこれらの耐容摂取量も下回った。

食品群別に見ると、いずれの年度においても10群の魚介類からの曝露量が最も多く、2001年の53.87%を除き全て総ダイオキシン類曝露量の70%以上を占めた。次いで11群の肉・卵類が8.07~31.45%、12群の乳・乳製品が1.14~8.49%を占めた。各調査年ともこの3食品群より90%以上(92.1~98.6%)のダイオキシン類を曝露していた。この3群以外ではⅦ群の緑黄色野菜群から1999年~2001年の間において1pg TEQ以上の曝露量があり、寄与率も1%以上を占めていたが、2002年以降は0.004pg~0.26pg TEQと顕著に減少した。

Fig. 1にはPCDDs, PCDFs及びCo-PCBsの一日曝露量の推移を示した。いずれの調査年においても、Co-PCBsの曝

露量はPCDDs+PCDFsの曝露量よりも多く、1999年~2001年にかけては、Co-PCBsの占める割合が年々高まる傾向が見られた。ダイオキシン類総曝露量に占めるPCDDs, PCDFs及びCo-PCBsの割合を見ると1999年に59.9%であったCo-PCBsの割合が2003年には72.2%と12.3ポイント上昇していた。すなわちこれは、PCDDs及びPCDFsの占める割合が相対的に低下していることを示し、2000年代初めにおける食事由来のダイオキシン類曝露量の減少は食品中のPCDD及びPCDFs濃度の低下によることが示唆された。一方で、Co-PCBsの濃度はこの10年間でほとんど変わっていない。豊田らの報告⁷⁾ではダイオキシン類曝露量の約60%は魚介類の摂取によるとしているが、現在ではその割合は70%以上に増加しているものと考えられる。我が国のダイオキシン類対策は1999年に制定された「ダイオキシン類対策特別措置法」²⁾が最初である。本法では焼却施設からの焼却灰中のダイオキシン類に対しての基準値を設けることとされており、小型のもの含めて基準に適合しない焼却炉は使用できなくなった。したがって、この法律の施行後は焼却由来のダイオキシン類の発生は減少したと考えられる。スペインでも発生源である焼却施設の改善の結果、1998年に比べて2002年の食事由来ダイオキシン類一日曝露量は1/3に低減したことが報告されている¹³⁾。焼却に由来するダイオキシン類はPCDDs及びPCDFsのほぼ全ての異性体が主体であり、野菜類に残留するPCDDs及びPCDFsの主因はこれらの大気中の焼却灰であると言われている¹⁴⁾。本調査において7群の緑黄色野菜からのPCDDs及びPCDFsの曝露量が減少したことも、本法律による規制の成果であると考察された。また、ペンタクロロフェノール(PCP)やクロロニトロフェン(CNP)等の水田除草剤に由来するダイオキシン類は、PCPは7~8塩素化体のTEFが低いPCDDs, PCDFsが主体であり、CNPは1,3,6,8-テト

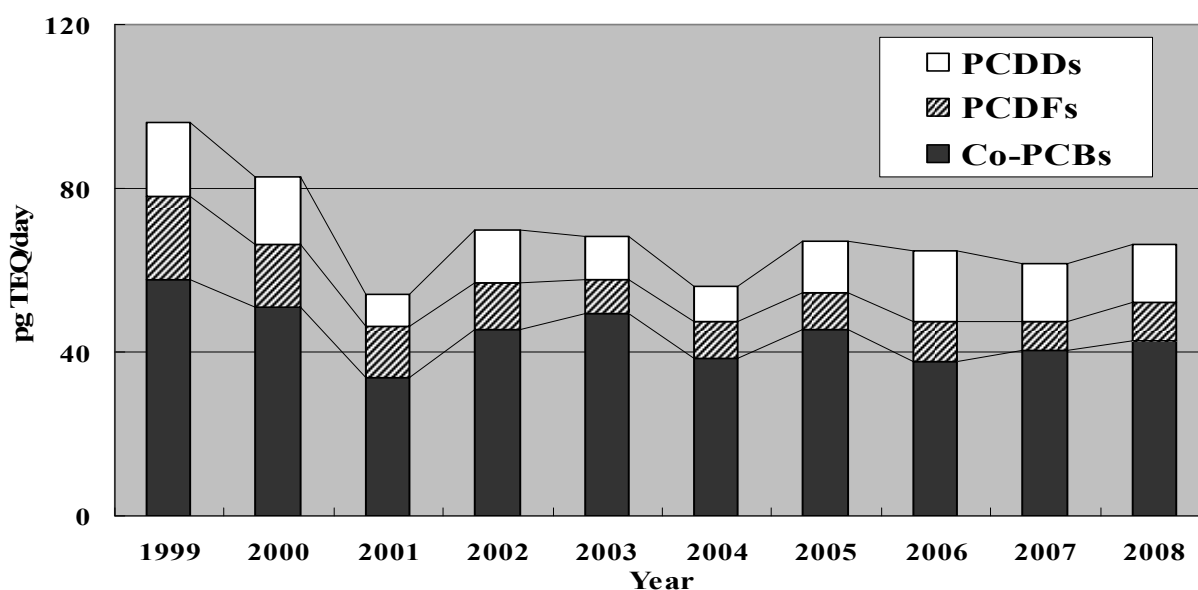


Fig. 1. Dietary Daily Intakes of PCDDs, PCDFs and Co-PCBs from Adult Foods as WHO-TEQ(2006) in Tokyo Metropolitan Area

ラクロジベンゾーパラジオキシン (1,3,6,8-TeCDD) などの TEF が設定されていない異性体が主体と言われている¹⁵⁾。いずれも製造・使用が禁止されて 10 年以上経過しており、本調査において目立った影響は見られなかった。

一方, Co-PCBs は電気設備等に使用された工業用 PCB に由来するものが主体である。阿久津らは食品中の PCBs 全異性体の分析を分析した結果から、我が国の流通食品の PCBs 汚染は主として環境中に流出した PCBs 製品に由来するものであり、燃焼系発生源の寄与は極めて小さいことを指摘している¹⁶⁾。PCBs は 1973 年の製造・使用禁止以降、30 年以上にわたり保管されてきた。現在までに何らかの原因で漏出した PCBs は広く環境中に残留している。食品も例外ではなく、本調査結果も世界規模の PCBs 汚染の一端に過ぎない。「ポリ塩化ビフェニルの適正な処理の推進に関する特別措置法」¹⁷⁾の施行に伴い、PCBs を含む製品の無害処理が進められているものの、まだ、国内で数箇所の処理施設が稼働し始めたばかりである。しかも、すでに広く環境中に残留する PCBs を処理することは現時点では不可能であり、本調査結果と併せても、今後魚介類中の Co-PCBs が速やかに減少するとは考えられず、今後我が国では魚介類中の Co-PCBs 濃度を軽減していくことが課題であることが強く示唆された。

2. 幼児食からのダイオキシン類曝露量

Table 4 に 2002 年に調査した幼児食 (年齢階層 2 歳～6 歳) からのダイオキシン類の総曝露量、各食品群別曝露量及び総曝露量に対する各食品群別曝露量の割合 (寄与率, Ratio) を示した。体重を 15kg と仮定した場合の体重 1kg あたりのダイオキシン類一日曝露量は、2.03pg TEQ/kg BW/day であった。幼児の食事摂取量は成人のおよそ 50% であったが、体重 1kg あたりでは逆に成人よりも曝露量は増加する結果となった。本調査結果から体重 1kg あたりのダイオキシン類曝露量は、成人のおよそ 1.5 倍であると推測されたが、現

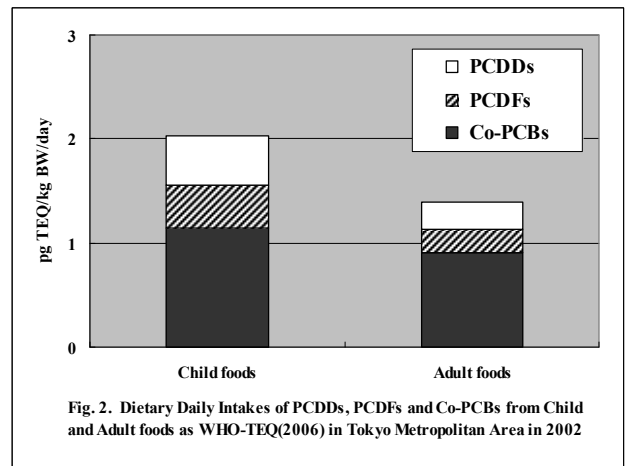
Table 4. Dietary Daily Intakes of Dioxins as WHO-TEQ(2006) from 14 Groups of Child Food in Tokyo Metropolitan Area in 2002

	Intake of each group (pg TEQ/day)	Ratio to total intake (%)
Group 1	0.0010	0.0033
Group 2	0.36	1.2
Group 3	0.53	1.7
Group 4	0.38	1.2
Group 5	0.0056	0.018
Group 6	0.0010	0.0033
Group 7	0.33	1.07
Group 8	0.16	0.53
Group 9	0.00062	0.0020
Group 10	13	43
Group 11	7.5	25
Group 12	7.9	26
Group 13	0.22	0.73
Group 14	0.000085	0.00028
Total (pg TEQ/day)	30.4	
Intake (pg TEQ/kg BW/day)	2.03	

在の成人食におけるダイオキシン類曝露量から換算して、WHO-TDI の 4pg TEQ/kg BW/day を上回ることはないと考え

られた。一方、食品群別に見ると、10 群の魚介類からの曝露量が最も多いものの、成人食の 75% に比べて 43% とかなり寄与率は低い。それと比較して、11 群の肉類及び 12 群の乳類からの曝露量が多く、10 群からの曝露量と 11 群 + 12 群からの曝露量はほぼ 1 : 1 であった。これは、主たる蛋白質の曝露源が肉類と乳類であるという幼児食の特徴に起因するものである。

Fig. 2 に、2002 年に実施した幼児食及び成人食からの PCDDs, PCDFs 及び Co-PCBs の体重 1kg あたりの一日曝露量を示した。Co-PCBs の曝露量は幼児、成人共に変わらなかったものの、PCDDs と PCDFs の曝露量は幼児は成人のおよそ 2 倍の曝露量であった。この結果も上述のとおり、幼児は成人に比べて肉類及び乳類の摂取割合が高いことに起因するものと考えられた。Table 3 からわかるように成人食における継続的な調査では、11 群や 12 群からのダイオキシン類曝露量は減少傾向にあることから、現在の幼児食からのダイオキシン類曝露量は、本調査が実施された 2002 年と比較して低下していると推察される。



3. 離乳食からのダイオキシン類曝露量

手作り離乳食およびベビーフードを主体とした離乳食の各離乳期におけるダイオキシン類一日曝露量を Table 5 に示した。なお、各離乳期の体重は「乳児身体発育調査報告書」(平成 13 年 10 月、厚生労働省)に示されている数値 (離乳初期: 7.7kg, 離乳中期: 8.3kg, 離乳後期: 8.8kg, 離乳完了期: 9.5kg) を用いた。手作り離乳食では、体重 1kg あたりのダイオキシン類曝露量は離乳期が進むにつれて増加し、離乳完了期では 1.49 pg TEQ/kg BW/day となり、東京都における 2002 年の成人の曝露量 1.39 pg TEQ/kg BW/day とほぼ同じレベル¹⁸⁾ になった。離乳初期では、体重 1kg あたりの一日曝露量 0.33pg TEQ のうち、育児用ドライミルクからの曝露量が 0.21pg TEQ (64%) を占めていたが、離乳中期では 0.18pg TEQ (37%), 離乳後期では 0.12pg TEQ (19%) と離乳期が進むにつれて育児用ドライミルクからの曝露量割合が減少し、それに代わって II 群のタンパク質食品からの曝露量割合が離乳初期では 0.11pg TEQ (33%), 離乳中期では 0.24pg TEQ (49%), 離乳後期では 0.40pg TEQ (63%) さらに離乳完了期では 1.36pg TEQ (91%) と離乳期が進むにつれて高くなっ

一方、ベビーフードを主体とした離乳食では、手作り離乳食と同様に離乳期が進むにつれてダイオキシン類の曝露量は多くなるものの、体重 1kg あたりの曝露量は離乳完了期で 0.78 pg TEQ/kg BW/day であり、手作り離乳食の約 1/2 であった。市販ベビーフード中のダイオキシン類濃度については、これまでいくつかの報告例があるが、今回の調査結果とほぼ同じ曝露量を算出している^{19, 20)}。

本結果を基に、手作り離乳食と市販ベビーフードを主体とした離乳食を等量使用すると仮定した場合のダイオキシン類一日曝露量は、それぞれ、0.32 (離乳初期)、0.45 (離乳中期)、0.58 (離乳後期)、1.25 (離乳完了期) pg TEQ/kg BW/day であった。この結果から、通常想定される「手作り離乳食」および「ベビーフードを主体とした離乳食」のいずれかを選択、あるいは組み合わせても離乳期におけるダイオキシン類曝露量は、WHO による 4pg TEQ/kg BW/day¹⁰⁾、EU-SCF による 14 pg TEQ/kg BW/week¹¹⁾、JECFA による 70 pg TEQ/kg BW/month¹²⁾、のいずれの耐容摂取量も上回ることとはないと考えられた。手作り離乳食、市販ベビーフードのいずれにも利点があり、状況に応じてそれらをバランスよく組み合わせ献立を作ることが望ましい。

Fig. 3 に手作り離乳食および市販ベビーフードを主体とした離乳食の各離乳期におけるダイオキシン類異性体組成比 (実測濃度比) を示した。手作り離乳食とベビーフード主体の離乳食からの曝露量には差がみられたものの、異性体はほぼ同じ組成を示した。離乳初期ではドライミルクに由来すると考えられるオクタクロロジベンゾーパラジオキシン (OCDD) を主体とする PCDDs が約 20% を占め、この組成比は離乳期が進むにつれて減少し、完了期には魚介類由来と考えられる Co-PCBs 主体の異性体組成となった。Co-PCBs の異性体別濃度は高い順に #118 > #105 > #156 > #167 であり、この点も魚介類における異性体濃度比と

ほぼ一致していた^{16, 21)}。

東京都で毎年実施しているトータルダイエツト法による成人食からのダイオキシン類曝露量調査では、ダイオキシン類の近年の曝露量は横ばい傾向が続いている¹⁸⁾。この原因として、魚介類に由来する Co-PCBs 曝露量がほとんど減少していないことが考えられ、今後食事由来のダイオキシン類曝露量をさらに低減するためには、曝露量への寄与率が大きい魚介類中の Co-PCBs 濃度をいかに低減するかが重要な課題であり、この点は離乳食においても共通である。魚介類は我が国にとって良質なタンパク源であるとともに、生活習慣病の予防に欠かせない高度不飽和脂肪酸を多く含むなど、栄養学的側面からも優れており、安易に蛋白源を他の食品に求める対策はすべきではない。離乳期こそ魚介類、肉類、卵類および乳製品をバランスよく摂取することが重要である。

4. 加工食品試料からのダイオキシン類曝露量

Table 6 に加工食品を中心とした 14 日間の仮想献立からのダイオキシン類曝露量を示した。献立による曝露量の差が大変大きく、最小が 5.7pg TEQ/day、最大が 290 TEQ/day であった。一日曝露量が 100pg TEQ を超えた献立にはいずれも魚介類が含まれており、この魚介類中のダイオキシン類、特に Co-PCBs が曝露量を上昇させたと考えられた。14 日間の平均一日ダイオキシン類曝露量は、74pg TEQ/day であり、体重を 50kg とした場合の体重 1kg あたりの一日曝露量は 1.48 pg TEQ/kg BW/day であった。これはトータルダイエツト法による成人食からの曝露量とほぼ同じレベルであり、加工食品を食事に取り入れても WHO-ICPS による 4pg TEQ/kg BW/day¹⁰⁾、EU-SCF による 14 pg TEQ/kg BW/week¹¹⁾、JECFA による 70 pg TEQ/kg BW/month¹²⁾ のいずれの耐容摂取量も上回ることとはないと考えられた。

Table 5. Dietary Daily Intakes of PCDDs, PCDFs and Co-PCBs as TEQ^{a)} from Homemade Baby Foods and Baby Foods Mainly in Commercial Items in Each Weaning Stage

Homemade baby foods												
	Early stage (pg TEQ/day)			Medium stage (pg TEQ/day)			Late stage (pg TEQ/day)			Completed stage (pg TEQ/day) ^{b)}		
	PCDDs	PCDFs	Co-PCBs	PCDDs	PCDFs	Co-PCBs	PCDDs	PCDFs	Co-PCBs	PCDDs	PCDFs	Co-PCBs
Group I : Grain foods	0.000233	0	0.0004	0.00087	0	0.0018	0.00260	0	0.005	0	0	0.22
Group II : Protein foods	0.25	0.14	0.44	0.072	0.24	1.67	0.96	0.34	2.18	5.16	2.10	5.65
Group III : Vegetables and fruits	0.000264	0	0.0004	0.00090	0	0.0014	0.00187	0	0.0017	0.036	0	0.0043
Group IV : Sugars, fats and oils	0.029	0.009	0.021	0.28	0.12	0.22	0.38	0.18	0.43	0.42	0.15	0.36
Sub total	0.28	0.15	0.46	0.35	0.35	1.89	1.35	0.53	2.62	5.63	2.24	6.23
Total TEQ/day		0.88			2.60			4.50			14	
Total TEQ/kg BW/day ^{c)}		0.11			0.31			0.51			1.49	
Group V : Formula milk	0.62	0	1.03	0.56	0	0.92	0.41	0	0.68	-	-	-
Total TEQ/day		1.66			1.48			1.09			-	
Total TEQ/kg BW/day		0.21			0.18			0.12			-	
Total intake TEQ/kg BW/day		0.33			0.49			0.63			1.49	

Baby foods mainly in commercial items												
	Early stage (pg TEQ/day)			Medium stage (pg TEQ/day)			Late stage (pg TEQ/day)			Completed stage (pg TEQ/day)		
	PCDDs	PCDFs	Co-PCBs	PCDDs	PCDFs	Co-PCBs	PCDDs	PCDFs	Co-PCBs	PCDDs	PCDFs	Co-PCBs
Baby foods mainly commercial items	0.0088	0	0.17	0.00298	0	1.14	0.060	0.0034	2.51	0.103	0	7.27
Total TEQ/day		0.18			1.14			2.57			7.38	
Total TEQ/kg BW/day		0.024			0.14			0.29			0.78	
Group V : Formula milk	0.62	0	1.03	0.56	0	0.92	0.41	0	0.68	-	-	-
Total TEQ/day		1.66			1.48			1.09			-	
Total TEQ/kg BW/day		0.21			0.18			0.12			-	
Total intake TEQ/kg BW/day		0.24			0.32			0.42			0.78	

^{a)} TEQ were calculated using WHO-TEF (2006).

^{b)} 0 : not detected; - : not intake.

^{c)} Body weight in each weaning stage are given in the Results and Discussion section of the text.

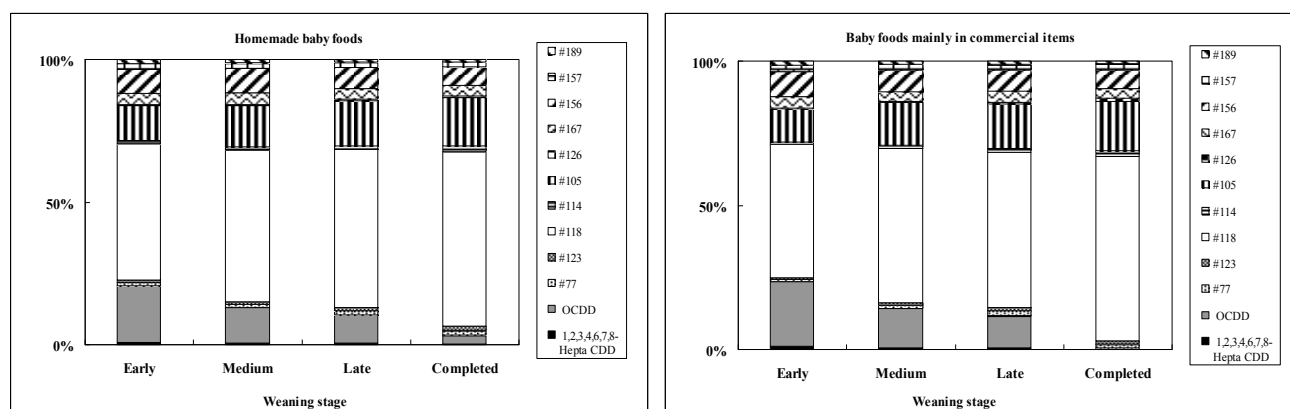


Fig. 3 Contribution of Dioxin Congeners to Total Dietary Intake of Dioxins (pg/day) in Each Weaning Stage

Table 6. Dietary Daily Intakes of PCDDs, PCDFs and Co-PCBs as TEQ(2006) from Adult Foods Mainly in Processed Items (pg TEQ/day)

No. of menu	PCDDs	PCDFs	Co-PCBs	Intake from subsidiary foods	Intake from staple foods	Intake of dioxins
1	0.52	0.0091	18	18	0.038	18
2	0.78	1.9	16	19	0.033	19
3	0.31	11	64	76	0.033	76
4	0.79	14	102	117	0.038	117
5	0.23	0	55	55	0.026	55
6	18	29	242	289	0.029	290
7	0.75	15	183	198	0.033	199
8	5.6	25	72	103	0.033	103
9	0.072	0	13	13	0.029	13
10	0.54	0	10	11	0.033	11
11	9.9	4.9	97	112	0.038	112
12	0.091	0	5.6	5.7	0.033	5.7
13	0.54	0	12	13	0.029	13
14	1.2	0.36	5.6	7.2	0.033	7.2
Average	2.8	7.2	64	74	0.033	74

お わ り に

当センターにおけるダイオキシン類の分析は、ダイオキシン類汚染が社会問題化して間もない1999年から始まった。以降、様々な年齢階層や食事形態を想定した10年間にわたる調査を行ったことで、東京都におけるダイオキシン類の曝露実態はほぼ解明できたと考えている。日本の食事形態は世界に類を見ない程多様化している。特に東京には世界中から食品が集まる世界最大の食品消費地でもあり、日常の食事を標準化することは大変難しい。このような環境下においてより正確に食事由来のダイオキシン類曝露量を推計するため、本調査では試料の調製にあたり、市場に流通する食品をなるべく多く使うことを原則とした。調査の結果から、あらゆる年齢階層、食事形態においても食事由来のダイオキシン類曝露量は安全なレベルにあることが明らかとなった。しかしながら、極端な偏食はダイオキシン類の曝露リスクを高めることも事実である。バランスのとれた食習慣を心がけるといふ点は他の有害化学物質のリスク回避の考え方と同じである。輸入食品への依存度が高い我が国にとって、継続的な曝露量調査の意義は大きい。科学

的知見の継続的な更新により、リスク評価を正しく行い、それに基づいた管理を徹底することで、将来に安心をもたらすことができる。

文 献

- 1) Secretariat of the Stockholm Convention: STOCKHOLM CONVENTION ON PERSISTENT ORGANIC POLLUTANTS, 22 May 2001.
http://www.pops.int/documents/convtext/convtext_en.pdf
- 2) ダイオキシン類対策特別措置法, 平成11年法律第105号
- 3) Päpke, O.: Environ. Health Perspectives **106**, 723-731, 1998.
- 4) Liem, A.K.D.: Dioxins: chemical analysis, exposure and risk assessment, Ph.D. Thesis. University of Utrecht, Utrecht, 1997.
- 5) Gunderson, E. L.: J. AOAC Int. **78**, 1353-1363, 1995.
- 6) 厚生省生活衛生局: 食品中のダイオキシン類及びコプラナーPCBの測定方法暫定ガイドライン, 1999.

- 7) 豊田正武, 内部博泰, 柳 俊彦, 他: 食衛誌, **40**, 98-110, 1999.
- 8) Tsutsumi, T., Yanagi, T., Nakamura, M., et al.: Chemosphere, **45**, 1129-1137, 2001.
- 9) 厚生労働省医薬品食品安全部: 食品中のダイオキシン対策について,
<http://www.mhlw.go.jp/topics/bukyoku/iyaku/syoku-anzen/dioxin/index.html> (2010 年 7 月 21 日現在, なお本 URL は変更または抹消の可能性がある)
- 10) WHO-IPCS, Executive summary for assessment of the health risk of dioxins, reevaluation of tolerable daily intake (TDI), 1998.
- 11) EU Scientific Committee on Food (EU-SCF), Opinion of the SCF on the risk assessment of dioxins and dioxin-like PCBs in food – update based on new scientific information available since the adoption of the SCF opinion of 22nd November 2000 –, 2001.
- 12) Joint FAO/WHO Expert Committee on Food Additives (JECFA), Summary of the fifty-seventh meeting of the Joint FAO/WHO Expert Committee on Food Additives, 2001.
- 13) Bocio, A., Domingo, J. L.: Environmental Research, **97**, 1-9, 2005.
- 14) Smith, K. E. C., Jones, K. C.: Sci. Total Environ., **246**, 207-236, 2000.
- 15) Masunaga, S., Takasuga, T., Nakanishi, J.: Chemosphere, **44**, 873-885, 2001.
- 16) 阿久津和彦, 桑原克義, 小西良昌, 他: 食衛誌, **46**, 99-108, 2005.
- 17) ポリ塩化ビフェニルの適正な処理の推進に関する特別措置法, 平成 13 年法律第 65 号
- 18) 牛尾房雄, 菊谷典久, 齋東由紀, 他: 東京健安研セ年報, **53**, 87-94, 2002.
- 19) 天倉吉章, 堤 智昭, 飯田隆雄, 他: 食衛誌, **46**, 148-152, 2005.
- 20) Schecter, A., Wallace, D., Pavuk, M., et al.: J. Toxicol. Environ. Health A, **65**, 1,937-1,943, 2002.
- 21) Naito, W., Jin, J., Kang, Y.S., Yamamuro, M., et al.: Chemosphere, **53**, 347-362, 2003.

Dietary Intake of Dioxins in Tokyo Metropolitan Area

Takeo SASAMOTO*

A study of dietary dioxin intake, consisting of polychlorinated dibenzo-*p*-dioxins (PCDDs), polychlorinated dibenzofurans (PCDFs), and coplanar polychlorinated biphenyls (Co-PCBs) through adult foods, child foods, baby foods, and processed foods in the metropolitan Tokyo area was carried out. Samples were prepared by the total diet-market basket method or by the duplicate portion method. Daily dioxin intake per kg of body weight for a 50 kg average adult body was 1.92 pg TEQ / kg / day in 1999, 1.65 pg TEQ / kg / day in 2000, 1.08 pg TEQ / kg / day in 2001, 1.39 pg TEQ / kg / day in 2002, 1.36 pg TEQ / kg / day in 2003, 1.12 pg TEQ / kg / day in 2004, 1.34 pg TEQ / kg / day in 2005, 1.29 pg TEQ / kg / day in 2006, 1.23 pg TEQ / kg / day in 2007, and 1.32 pg TEQ / kg / day in 2008. The total daily intake decreased during the first 3 years, and thereafter was broadly flat. These total intake values were below the tolerable daily intake (TDI) of 4 pg TEQ / kg / day as set by the Environmental Agency and Ministry of Health and Welfare of Japan. Additionally, the daily dioxin intake in other age brackets and meal patterns were less than the TDI. Dioxins were mainly ingested daily through fish and shellfish. It is not necessary to avoid eating fish intentionally, but a balanced and nutritional diet is recommended.

Keywords: dioxins, polychlorinated dibenzo-*p*-dioxin (PCDD), polychlorinated dibenzofuran (PCDF), coplanar polychlorinated biphenyl (Co-PCB), total diet method, duplicate portion method, tolerable daily intake

* Tokyo Metropolitan Institute of Public Health
3-24-1, Hyakunin-cho, Shinjuku-ku, Tokyo 169-0073 Japan