日本における食事経由のダイオキシン関連物質の摂取量

(平成3年4月24日受理)

高山 幸司* 宮田 秀明* 青 笹 治*
味村 真弓* 樫 本 隆*

Dietary Intake of Dioxin-Related Compounds through Food in Japan

Koji TAKAYAMA, Hideaki MIYATA, Osamu AOZASA, Mayumi MIMURA
and Takashi KASHIMOTO

(Faculty of Pharmaceutical Sciences, Setsunan University:
45-1, Nagaotoge-cho, Hirakata, Osaka, Japan)

On the basis of the total diet-market basket method, about one hundred kinds of food were respectively purchased in 1977, 1985 and 1990 in Osaka, Japan, and they were cooked, divided into 13 groups and frozen at -40°C . Dietary intakes of polychlorinated dibenzo-*p*-dioxins (PCDDs), polychlorinated dibenzofurans (PCDFs) and coplanar PCBs (Co-PCBs) through food in Japan were studied by using these 39 samples. The total dietary intake of PCDDs and PCDFs was 175 pg TEQ (2,3,7,8-Tetrachlorinated dibenzo-*p*-dioxin Toxic Equivalent), i. e., 40 pg TEQ/day of PCDDs and 135 pg TEQ/day of PCDFs. Co-PCBs, having the same toxic effect as PCDDs and PCDFs, gave an estimated intake of 660 pg TEQ/day, which was calculated by using the 2,3,7,8- T_4CDD toxicity equivalency factors reported by Hanberg *et al.* In addition, it was found that Japanese took about 60% of the TEQ of the three chemicals in food through fish & shellfish, daily intakes of which are larger in Japan than in Europe or the USA. It is noteworthy that the dietary intake of Co-PCBs as TEQ was much greater than that of PCDDs or PCDFs.

(Received April 24, 1991)

Key words: ポリ塩化ジベンゾ-*p*-ダイオキシン polychlorinated dibenzo-*p*-dioxins (PCDDs); ポリ塩化ジベンゾフラン polychlorinated dibenzofurans (PCDFs); コプラナー PCB coplanar PCBs; 食事 food; 摂取量 dietary intake; 2,3,7,8-四塩化ジベンゾ-*p*-ジオキシン当価量 2,3,7,8-tetrachlorinated dibenzo-*p*-dioxin toxic equivalent (TEQ)

緒 言

ダイオキシン (polychlorinated dibenzo-*p*-dioxins: PCDDs) 及び polychlorinated dibenzofurans (PCDFs) は極めて毒性¹⁾及び発ガン性²⁾が強いことより、環境衛生上注目されている汚染物質である。また, polychlorinated biphenyl (PCBs) のうちオルト位に置換塩素を持たない coplanar PCBs (Co-PCBs) は, PCDDs, PCDFs 同様に強毒性を示す³⁾と共に, メチルコラントレン型 (チトクロム P-448) の薬物代謝酵素を強く誘導することから⁴⁾, 最近, 他の汚染物質と異なり, ダイオキシン関連物質として総合的に扱い, 最強毒性を示す 2,3,7,

8-tetrachlorinated dibenzo-*p*-dioxin (2,3,7,8- T_4CDD) に換算して毒性評価が行われ始めている⁵⁾。

PCDDs, PCDFs の主な発生源としては, 都市一般廃棄物及び医療系廃棄物焼却場, 製紙工場及び車の排気ガスなどが考えられており, 大気, 水, 土壌, 食品などを通じて摂取される量は, アメリカ人で 98%⁶⁾, カナダ人で 96.3%⁷⁾が食物由来と見積もられている。

すでに, 著者らも, ダイオキシン関連物質についてムラサキイガイを指標生物とした海洋汚染⁸⁾, 人体脂肪分析による人体汚染⁹⁾及び各種食品汚染¹⁰⁾の実態を明らかにしている。また, 日本の沿岸魚及び市販魚中の汚染実態を初めて明らかにし, PCDDs, PCDFs のみならず Co-PCBs も含めた汚染レベルの把握の必要性を示した¹¹⁾。

* 摂南大学薬学部: 大阪府枚方市長尾峠町 45-1

加えて、大阪府、高知県で採取したトータルダイエットの保存魚介類試料を用いた分析結果より、日本人におけるダイオキシン関連物質の人体への影響は、魚介類摂取に起因するところが多いことも示唆した¹²⁾。

このダイオキシン関連物質の人体への影響を知るためには、食品全体からの摂取量把握が必要であるが、日本では、1987年に小野らにより、唯一PCDDsとPCDFsの摂取量調査が報告されている¹³⁾。しかし、分析精度が格段に向上すると共に、PCDDs、PCDFsの毒性換算係数¹⁴⁾も大幅に修正された上、Co-PCBsの換算係数¹⁵⁾も新たに提唱された。そこで、本研究ではダイオキシン関連化合物の人体への汚染源を究明する一環として、大阪府で採取した3年分のトータルダイエット試料を分析し、日本における食品経由のダイオキシン関連物質の摂取量をCo-PCBsも含めて調査し、併せて毒性評価を行ったので報告する。

実験方法

1. 試料

1977年以来食品汚染物摂取量調査計画¹⁶⁾に基づき、日本各地でトータルダイエット・マーケットバスケット方式¹⁷⁾で採取された試料が保存されている。これまでの調査において、採取場所による極端な差は認められないことより、今回は、1977、1985及び1990年に大阪府下で採取された各13、計39検体を日本の代表試料とした。すなわち、厚生省発行の食品群別摂取量表^{18)~20)}の近畿Iの欄を基にして、89の食品カテゴリーを満たす市販食品を、1977、1985及び1990年にそれぞれ100、114及び111品目購入した。その後、実際の食事形態に応じて各食品をそのまま、あるいは調理した後13群(Table 1)に大別、混合ホモジナイズし、 -40° で保存したものを分析用試料とした。なお、1977及び1985年の試料は国立衛生試験所、1990年の試料は大阪府立公衆衛生研究所より譲渡されたものである。

2. 試薬及び標準品

試薬及び標準品は、既報記載のものと同様である^{21)~23)}。ただし、 AgNO_3 -シリカ、 H_2SO_4 -シリカ及びKOH-シリカゲルの積層カラム²¹⁾に使用したシリカゲルは、メクル社製 Kieselgel 60 (70~230 mesh) を未洗浄のまま用いた。

3. 精製及び分析法

試料20(油脂類)~100gを既法^{9), 11)}に従って抽出、精製及び分析を行った。すなわち、 $^{13}\text{C}_{12}$ -2,3,7,8-PCDDs ($^{13}\text{C}_{12}$ で標識した2,3,7,8-位に置換塩素を有するPCDDs異性体のうち4~8塩化体の各1成分、1ngずつ)、 $^{13}\text{C}_{12}$ -2,3,7,8-tetrachlorinated dibenzofuran ($^{13}\text{C}_{12}$ -2,3,7,8- T_4CDF , 1ng) 及び $^{13}\text{C}_{12}$ -3,4,3',4'-tetrachlorinated biphenyl ($^{13}\text{C}_{12}$ -3,4,3',4'- T_4CB , 5ng) を内標準物質として試料に添加した後、1N KOH-エタノール溶液により室温で2時間アルカリ分解を行った。次に、*n*-ヘキサン

で2回抽出後、脱水、濃縮し、 AgNO_3 -シリカ、 H_2SO_4 -シリカ及びKOH-シリカゲルの積層カラムクロマトグラフィーにより精製した。さらに、中性アルミナカラムクロマトグラフィーによりPCBs画分とCo-PCBs、PCDDs及びPCDFs画分に2分画した。後者を室温で濃縮後、*n*-デカン20 μl に置換し、高分解能ガスクロマトグラフ-高分解能質量分析計(HRGC-HRMS)を用いてSelected Ion Monitoring (SIM)法により、分解能7000~10000(10% valley)、定量下限0.02~0.1pptで分析し、 $^{13}\text{C}_{12}$ で標識した内標準物質により補正した。

なお、4~6塩化PCDDs、PCDFs、7~8塩化PCDDs、PCDFs及びCo-PCBs分析は、それぞれSupelco社製SP-2331 (30m $\times$ 0.25mm, 0.20 μm)、Hewlett-Packard社製Ultrapond #2 (25m $\times$ 0.32mm, 0.17 μm)及びJ&W社製DB-1 (25m $\times$ 0.32mm, 0.25 μm)カラムを用いて、HP5890J GC-JEOL SX-102 MS装置で行った。

結果及び考察

1. 添加回収試験

トータルダイエット試料に添加した、 $^{13}\text{C}_{12}$ 標識 T_4CB 、 T_4CDF 、 T_4CDD 、 P_6CDD 、 H_6CDD 、 H_7CDD 及び O_8CDD (以下4, 5, 6, 7及び8塩化体をそれぞれ T_4 、 P_6 、 H_6 、 H_7 、 O_8 と略す)の内標準物質より得られた3年間(39検体)の回収率の平均と標準偏差はそれぞれ63 $\pm$ 17%、73 $\pm$ 19%、75 $\pm$ 22%、88 $\pm$ 24%、89 $\pm$ 24%、78 $\pm$ 17%及び70 $\pm$ 15%であった。なお、4~8塩化のPCDFsの補正はすべて同塩素数を有するPCDDsの回収率を用いて行った。

2. PCDDs, PCDFs 及び CO-PCBs 摂取量

著者らはすでに、大阪府において1977、1979、1989年及び高知県において1977、1979年に採取した魚介類(X群)試料を用いて、PCDDs、PCDFs及びCo-PCBsの一日摂取量及び2,3,7,8- T_4CDD Toxic Equivalent (TEQ)としての摂取量を明らかにしている¹²⁾。今回、大阪府の1977、1985年の魚介類を除く12試料に加え、1990年の全13試料を分析した。

食品経由のダイオキシン関連物質の摂取量を調べる場合、食品中の濃度が低くても、食品摂取量を乗じた値は濃度の9~200倍に増加するため(Table 1)、毒性評価を踏まえて0.1ppt以下の定量下限での分析が望ましい。そこで、今回は、妨害物の影響を大幅に減らすことが可能な高分解能条件(分解能=7000~10000)で、定量下限を0.02ppt(T_4CDD)~0.1ppt(Co-PCBs)に設定して定量を行った。まず、データ解析にあたり、各年度ごとにダイオキシン関連化合物の群別濃度を求めた後、各群別食品摂取量を乗じて、各化合物の食事経由の一日摂取量を算出し、3年間の平均と標準偏差で示した(Table 1~3)。

大阪府下に在住する人は、平均して一日1368gの食品を摂取している(Table 1)。この全食品を通じて、大阪

Table 1. Average Daily Intake (pg/day) of 2,3,7,8-Chlorine Substituted PCDDs through Food*¹ in Osaka, Japan

Group	Composite	Food (g/day)	2,3,7,8- T ₄ CDD	1,2,3,7,8- P ₅ CDD	1,2,3,4,7,8- H ₆ CDD	1,2,3,6,7,8- H ₆ CDD	1,2,3,7,8,9- H ₆ CDD	1,2,3,4,6,7,8- H ₇ CDD	O ₈ CDD	Sum-2,3,7,8 PCDDs
I	Rice	209±16	—	—	—	—	—	—	84±15	84±15
II	Cereal, Grain, Potato	166±7	—	—	—	—	—	—	170±70	170±70
III	Sugar, Cake	37.9±6.1	1.9±2.7	—	—	1.9±2.6	—	29±36	200±250	230±290
IV	Fat, Oil* ²	16.5±0.5	—	1.3±1.1	0.53±0.75	1.0±1.5	0.67±0.94	24±13	280±120	300±140
V	Bean product	63.0±3.2	0.50±0.71	—	—	—	—	5.2±4.1	30±4	36±7
VI	Fruit	161±30	—	—	—	—	—	9.0±12.7	42±22	51±35
VII	Green vegetable	66.4±10.5	—	4.1±3.0	2.8±3.9	5.0±3.6	4.7±6.6	46±27	360±400	420±410
VIII	Vegetable, Seaweed	176±7	—	—	—	—	—	21±3	79±38	100±39
IX	Seasoning beverage	136±16	—	—	—	—	—	—	21±7	21±7
X	Fish, Mollusc, Crustacean	88.0±5.0	8.8±3.1	8.7±12.3	—	5.0±7.1	—	19±9	170±50	220±50
XI	Meat, Egg	124±7	2.2±3.1	—	—	38±33	13±13	130±150	450±400	630±620
XII	Milk, Dairy product	115±14	3.1±2.4	5.1±5.1	1.2±1.7	11±9	0.97±1.37	27±31	57±52	105±100
XIII	Cooked meal	9.13±4.86	—	—	—	1.3±1.8	0.47±0.66	9.7±6.3	25±15	36±23
<hr/>										
Total food		1,368±50	16.5±2.6	19.2±15.6	4.5±6.1	63±46	20±14	320±240	1,970±1,260	2,410±1,580
<hr/>										
I-TEF* ³			1.0	0.5	0.1	0.1	0.1	0.01	0.001	

—: Not detected (T₄CDD: <0.02 ppt, P₅CDD: <0.03 ppt, H₆CDD: <0.05 ppt, H₇CDD and O₈CDD: <0.08 ppt)*¹: Samples were collected in 1977, 1985, 1990.*²: Does not include the amount used for cooking, etc.*³: International toxicity equivalency factor by Kutz *et al.*¹⁴⁾

Table 2. Average Daily Intake (pg/day) of 2,3,7,8-Chlorine Substituted PCDFs through Food*1 in Osaka, Japan

Group	2,3,7,8- T ₄ CDF	1,2,3,7,8- P ₅ CDF	2,3,4,7,8- P ₅ CDF	1,2,3,4,7,8- H ₆ CDF	1,2,3,6,7,8- H ₆ CDF	1,2,3,7,8,9- H ₆ CDF	2,3,4,6,7,8- H ₆ CDF	1,2,3,4,6,7,8- H ₇ CDF	1,2,3,4,7,8,9- H ₇ CDF	O ₈ CDF	Sum-2,3,7,8, PCDFs
I	—	4.7±6.6	—	—	—	—	—	1,100±1,600	—	24±17	1,120±1,550
II	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
III	2.0±1.7	1.9±2.6	—	—	—	—	—	8.2±8.5	—	4.0±5.7	16.1±11.7
IV	8.7±9.4	1.1±1.5	0.63±0.49	0.27±0.38	—	—	0.50±0.71	14±14	—	8.5±8.8	35±22
V	—	—	1.2±1.7	—	—	—	—	5.7±8.0	—	—	6.9±9.9
VI	—	—	—	—	1.6±2.3	—	—	26±37	—	9.0±12.7	37±52
VII	11±11	15±3.4	5.3±4.0	11±7	7.6±3.2	—	6.2±5.3	35±10	—	12±10	103±34
VIII	4.9±4.1	6.0±8.5	—	7.0±9.9	2.8±3.9	—	3.3±4.7	—	—	—	24±18
IX	5.3±7.5	—	—	—	—	—	—	6.3±9.0	—	—	11.6±8.3
X	120±80	100±66	120±130	120±160	12±10	—	5.3±7.5	71±77	4.0±5.7	82±112	630±630
XI	8.3±6.0	2.9±4.1	9.7±7.8	6.6±4.7	9.0±12.7	—	7.5±7.7	33±35	—	14±11	90±78
XII	18±18	1.4±2.0	14±10	7.7±5.8	6.6±5.7	—	3.8±3.1	14±12	—	—	66±5
XIII	0.23±0.21	—	0.23±0.33	0.73±1.00	1.3±1.2	—	0.40±0.57	5.2±3.5	—	0.60±0.85	8.6±6.7
Total	180±130	133±65	150±130	160±180	42±13	—	27.0±18.1	1,320±1,680	4.0±5.7	155±133	2,160±2,310
I-TEF*2	0.1	0.05	0.5	0.1	0.1	0.1	0.1	0.01	0.01	0.001	

—: Not detected (T₄CDF: <0.02 ppt, P₅CDF: <0.03 ppt, H₆CDF: <0.05 ppt, H₇CDF and O₈CDF: <0.08 ppt)

*1: Samples were collected in 1977, 1985, 1990.

*2: International toxicity equivalency factor by Kutz *et al.*¹⁴⁾

Table 3. Average Daily Intake (pg/day) of Co-PCBs through Food*¹ in Osaka, Japan

Group	3,4,3',4'-T ₄ CB	3,4,5,3',4'-P ₅ CB	3,4,5,3',4',5'-H ₆ CB	Total
I	1,500±1,400	17±25	—	1,500±1,400
II	510±260	290±210	200±290	1,000±630
III	1,000±1,200	10±7	—	1,000±1,200
IV	120±100	26±30	2.1±1.9	150±130
V	4,100±5,600	33±36	—	4,100±5,400
VI	260±130	—	—	260±130
VII	570±90	57±14	8.7±7.4	640±80
VIII	350±380	6.0±8.5	—	360±390
IX	880±1,150	7.0±9.9	—	890±1,100
X	35,000±28,000	2,300±2,000	270±380	37,000±28,000
XI	1,600±800	900±540	100±96	2,600±1,200
XII	220±200	410±490	39±44	670±730
XIII	46±35	5.8±7.3	7.7±10.8	60±52
Total	46,000±36,000	4,000±1,500	630±640	51,000±34,000
TEF* ²	0.001	0.15	0.006	

—: Not detected (<0.1 ppt)

*¹: Samples were collected in 1977, 1985, 1990.*²: Toxicity equivalency factor by Hanberg *et al.*¹⁵⁾

府民は最強毒性の 2,3,7,8-T₄CDD を一日 16.5 pg 摂取しており、その内訳は魚介類 (X 群) 53%, 乳製品 (XII 群) 19% 及び肉類・卵類 (XI 群) 13% である。また、総 2,3,7,8-PCDDs の全食品からの摂取量は 2410 pg/日に及んでおり、高塩素化体ほど摂取量が増える傾向を示し、特に O₈CDD の摂取割合は 82% にも及ぶ。この同族体パターンは、以前著者らが分析した人体脂肪中の PCDDs 組成とかなり類似したものである⁹⁾。内訳を見ると、肉・卵類 (XI 群)、緑黄色野菜 (VII 群) 及び油脂類 (IV 群) 経由がそれぞれ 630, 420 及び 300 pg/日と多い。魚介類 (X 群) は他の群に比べて強毒性の T₄CDD と P₅CDD が多いが、O₈CDD はさほど多くないため、魚介類経由の総 2,3,7,8-PCDDs 摂取量は 220 pg/日にとどまる。

一方、2,3,7,8-PCDFs (2,3,7,8-位に置換塩素を有する PCDFs 異性体) は、全食品より 2160 pg/日摂取しており、2,3,7,8-PCDDs と比較した場合、毒性の比較的強い T₄CDF と P₅CDF が 1 桁高く、逆に O₈CDF が 1 桁低い傾向が認められる。食品別に 2,3,7,8-PCDFs 摂取量を比較すると、米 (I 群) が 1120 pg/日で最も多い。これは 1985 年の検体のみより高濃度 (3300 pg/日相当) の 1,2,3,4,6,7,8-H₇CDF が検出されたのに起因するが、まだ原因不明のため、検討を要する。次いで、魚介類 (X 群)、緑黄色野菜 (VII 群) 及び肉・卵類 (XI 群) 経由がそれぞれ 630, 103 及び 90 pg/日と魚介類の影響が大きい。

Table 3 は、*ortho* 位に塩素原子を持たない *non-ortho* Co-PCBs についての摂取量を示したものである。全食品からの総 Co-PCBs 摂取量は 51 ng/日に達し、そのう

ち、7 割以上が魚介類 (X 群) 経由で、豆類 (V 群) 8% 及び肉・卵類 (XI 群) 5% の寄与率を示す。また、各異性体別摂取量を見ても、いずれの異性体においても魚介類の寄与が最も多く、低塩素化体ほどその傾向が強い。一方、総食品及びほとんどの食品中の Co-PCBs は、4Cl > 5Cl > 6Cl の傾向を示すが、乳製品 (XII 群) では毒性の強い 3,4,5,3',4'-P₅CB が最も多かった。

3. 毒性評価

PCDDs 及び PCDFs は Kutz ら¹⁴⁾ の International toxicity equivalency factor (I-TEF) を、Co-PCBs は Hanberg ら¹⁵⁾ の毒性換算係数をそれぞれ該当する食品別摂取量 (Table 1~3) に乗じて、各食品経由の平均一日 TEQ 摂取量を見積もった (Table 4)。食事全体で見た場合、PCDDs 及び PCDFs に起因するものは、それぞれ 40 及び 135 pg TEQ/人/日で、前者よりも後者の TEQ 摂取量の方が大きい。これは、魚介類 (X 群) で特に PCDFs の影響が 87% (91 pg TEQ) もあることに起因するが、砂糖・ケーキ (III 群) 及び肉・卵類 (XI 群) ではむしろ PCDDs の寄与率が大きい。また、米 (I 群) の PCDFs 由来が 11 pg TEQ を示すが、先ほど摂取量の項で述べたように、唯一 1985 年の試料において、摂取量換算で 1,2,3,4,6,7,8-H₇CDF が 3300 pg/日検出されたことを考慮すべきである。仮に、この値を除外すると、米 (I 群) の PCDFs 由来が 0.26 pg TEQ に減少し、米の寄与は無視できるレベルとなる。また、ラット肝ガン細胞における薬物代謝酵素誘導能を指標にした Hanberg らの係数¹⁵⁾を用いて Co-PCBs 由来の TEQ 摂取量を算出すると、PCDDs, PCDFs 由来の 3.8 倍に相当する 660

Table 4. Average Daily Intake (pg TEQ^{*1}/adult/day) of PCDDs, PCDFs and Co-PCBs through Food^{*2} in Osaka, Japan

Group	Composite	PCDDs	PCDFs	PCDDs+PCDFs	Co-PCBs
I	Rice	0.1±0.02	11±15	11±15	4.1±3.4
II	Cereal, Grain, Potato	0.2±0.1	—	0.2±0.1	46±33
III	Sugar, Cake	2.6±2.8	0.4±0.3	3.0±2.8	2.5±0.5
IV	Fat, Oil ^{*3}	1.4±0.9	1.5±1.3	2.9±2.0	4.0±4.6
V	Bean product	0.6±0.7	0.6±0.9	1.2±1.7	9.1±11.0
VI	Fruit	0.1±0.1	0.4±0.6	0.6±0.8	0.26±0.13
VII	Green vegetable	4.1±2.2	7.3±3.9	11±6	9.3±2.1
VIII	Vegetable, Seaweed	0.3±0.1	2.1±1.8	2.4±1.8	1.25±1.65
IX	Seasoning beverage	0.02±0.01	0.6±0.7	0.6±0.7	2.0±1.5
X	Fish, Mollusc, Crustacean	14±5	91±91	105±87	390±290
XI	Meat, Egg	9.0±9.3	8.5±7.1	17.5±16.2	140±80
XII	Milk, Dairy product	7.4±6.1	11±8	18±13	62±74
XIII	Cooked meal	0.3±0.3	0.4±0.4	0.7±0.7	0.97±1.21
Total food		40±19	135±120	175±120	660±190

—: Not detected; ^{*1}: TEQs values of PCDDs and PCDFs were calculated using I-TEF by Kutz *et al.*¹⁴⁾ and those of Co-PCBs were did using factor by Hanberg *et al.*¹⁵⁾; ^{*2}: Samples were collected in 1977, 1985, 1990; ^{*3}: Does not include the amount used for cooking, etc.

Fig. 1. Contribution (TEQ %) of PCDDs+PCDFs in food in Osaka, Japan

^{*1}: TEQ was calculated using I-TEF by Kutz *et al.*¹⁴⁾

pg/成人/日に及んだ。

Fig. 1 及び 2 は、それぞれ、各食品中の PCDDs, PCDFs 及び Co-PCBs 由来の TEQ を寄与率として図示したものである。このように、大阪府民が、一日大人一人当たり食事より摂取している PCDDs, PCDFs 総摂取量 (175 pg TEQ) のうち、60% は魚介類 (X 群) 経由で、乳製品 (XII 群) 及び肉・卵類 (XI 群) が共に 10% の寄与率を示す (Fig. 1)。また、Co-PCBs 由来を見た場合、PCDDs, PCDFs 同様に、魚介類 (X 群) 経由が 58% を占めるが、肉・卵類 (XI 群) 21%、乳製品 (XII 群) 9.2% と、PCDDs, PCDFs 由来よりも肉・卵類の寄与が大きい (Fig. 2)。

1989 年に Beck ら²⁴⁾は、西ドイツの市販食品などを

分析し、西ドイツ厚生省の換算係数を用いた食品消費による PCDDs, PCDFs の一日摂取量を報告している²⁴⁾。食事経由の PCDDs, PCDFs 総摂取量は 93.5 pg TEQ/成人/日で、主に魚介類 (35.6%)、乳製品 (30.4%) 及び肉類 (25.1%) に起因すると報告されている。さらに、Birmingham ら⁷⁾により、カナダ成人についてのデータが発表され、人体に摂取される総 PCDDs, PCDFs 量は 145.1 pg TEQ/日で、そのうち 96.3% に相当する 139.7 pg TEQ/日は食物由来であること、及び食品別寄与率は、肉類 26.2%、乳製品 22.3%、卵 17.5% で、魚は 12.1% に相当する 17.0 pg TEQ に過ぎないことが示された。

Beck ら²⁴⁾の結果は、市販食品を直接分析し、摂取量を

Fig. 2. Contribution (TEQ %) of Co-PCBs in food in Osaka, Japan

*: TEQ was calculated using factor by Hanberg *et al.*¹⁵⁾

乗じて算出されたものであり、Birmingham ら⁷⁾のデータは、分析済みの各種データを引用して、それに摂取量に乗じて見積もったものである。一方、著者らの摂取量評価は、大阪府民が一日に摂取する 100~114 食品を実際の食事形態に応じて、未調理あるいは調理後 13 群に分類した試料を用いて行ったため、より実状に即した評価法と考えられる。今回算出した日本の食事経由の PCDDs, PCDFs 摂取量 (175 pg TEQ/成人/日) は、換算係数及び試料採取法の違いを考慮しなければならないが、西ドイツ (93.5 pg TEQ/成人/日) 及びカナダ (145.1 pg TEQ/成人/日) を上回るものである。我が国の特徴は、欧米に比べ魚介類を多食する食生活 (カナダの 44 倍⁷⁾) 故、魚介類経由が 6 割を占めることである。また、欧米で注目されている肉類、乳製品も魚介類に次ぐ主要経路となっているが、寄与率は相対的に低下している。

一方、Co-PCBs は、汚染魚中の濃度及び毒性評価⁵⁾の報告はあるが、摂取量については、他に報告例はない。最近著者らは、日本の沿岸魚、市販魚中の PCDDs, PCDFs, Co-PCBs の汚染実態¹¹⁾、及び Co-PCBs が“油症”においても PCDFs に次ぐ原因物質であることを明らかにした²⁵⁾。今回、Hanberg らの係数を用いて算出した日本人の食事経由の Co-PCBs 摂取量は、660 pg TEQ/成人/日であるが、最近、Safe はダイオキシン '90 国際学会 (ドイツ) において、薬物代謝酵素誘導能以外に体重増加抑制、胸腺萎縮などの毒性データを基にして、新たに Co-PCBs の毒性換算係数を提案した²⁶⁾ (3,4,3',4'-T₄CB=0.01, 3,4,5,3',4'-P₅CB=0.1, 3,4,5,3',4',5'-H₆CB=0.05)。この値を用いて、Co-PCBs 摂取量を評価すると 890 pg TEQ/成人/日に増大する。どちらの換算係数を用いても、Co-PCBs 摂取量は、PCDDs, PCDFs よりもかなり多いことより、Co-PCBs は、PCDDs, PCDFs よりも大きな生物影響を及ぼす可能性が示唆される。

また、日本人の成人体重を 50 kg として計算した 3.5 pg TEQ/kg 体重/日 (PCDDs, PCDFs) は、諸外国の ADI 値 1~10 pg/kg 体重/日に接近しており、Co-PCBs 由来の 13.2 pg TEQ/kg 体重/日 (Hanberg らによる TEF 使用) あるいは 17.8 pg TEQ/kg 体重/日 (Safe による TEF 使用) は、ADI 値を上回るものである。以上のことより、魚介類の寄与がかなり大きい日本では、Co-PCBs も含めた食事経由のダイオキシン関連物質の継続の実態把握が切望される。

謝 辞

本研究は、平成 2 年度文部省科学研究費 (重点領域研究「人間環境系」) により行った。

本研究に際して、貴重な試料を提供して頂きました国立衛生試験所内山 充、斎藤生岡博士、並びに大阪府立公衆衛生研究所西宗高弘博士、及び両研究所の研究員各位に深謝致します。

なお、本研究に使用した HRGC-HRMS は昭和 62 年度文部省科学研究費特別研究の大型共通機器として摂南大学薬学部設置された装置を用いた。

文 献

- 1) McConnell, E. E., Moore, J. A., Haseman, J. K., Harris, M. W.: *Toxicol. Appl. Pharmacol.* **44**, 335~356 (1978).
- 2) Kociba, R. J., Cabey, O.: *Chemosphere* **14**, 649~660 (1985).
- 3) Safe, S.: *ibid.* **14**, 791~802 (1987).
- 4) Yoshimura, H., Yoshihara, S., Ozawa, N., Miki, M.: *Ann. N. Y. Acad. Sci.* **320**, 179~192 (1979).
- 5) Asplund, L., Grafström, A.-K., Haglund, P., Jansson, B., Järnberg, U., Mace, D., Strandell, M., de Wit, C.: *Chemosphere* **20**, 1481~1488 (1990).
- 6) Travis, C. C., Hattmer-Frey, H. A.: *ibid.* **16**, 2,331~2,342 (1987).
- 7) Birmingham, B., Gilman, A., Grant, D., Salminen, J., Boddington, M., Thorpe, B., Wile, I., Toft, P., Armstrong, V.: *ibid.* **19**, 637~642 (1989).

- 8) Miyata, H., Takayama, K., Ogaki, J., Kashimoto, T., Fukushima, S.: *ibid.* **16**, 1,817~1,822 (1987).
- 9) Kashimoto, T., Takayama, K., Mimura, M., Miyata, H., Murakami Y., Matsumoto, H.: *ibid.* **19**, 921~926 (1989).
- 10) Ogaki, J., Takayama, K., Miyata, H., Kashimoto, T.: *ibid.* **16**, 2,047~2,056 (1987).
- 11) 高山幸司, 宮田秀明, 味村真弓, 榎本 隆: 衛生化学 **37** 125~131 (1991).
- 12) 高山幸司, 宮田秀明, 味村真弓, 榎本 隆: 食衛誌. **32**, 108~109 (1991).
- 13) Ono, M., Kashima, Y., Wakimoto, T., Tatsukawa, R.: *Chemosphere* **16**, 1,823~1,828 (1987).
- 14) Kutz, F. W., Barnes, D. G., Bottimore, D. P., Greim, H., Bretthauer, E. W.: *ibid.* **20**, 751~757 (1990).
- 15) Hanberg, A., Wærn, F., Asplund, L., Haglund, E., Safe, S.: *ibid.* **20**, 1,161~1,164 (1990).
- 16) 内山 充ら: “昭和 52 年度食品中の各種汚染物の実態に関する調査研究”, 汚染物質研究班, 昭和 53 年 3 月.
- 17) Joint FAO/WHO Food Contamination Monitoring Programme: Guidelines for the Study of Dietary Intakes of Chemical Contaminants (1983), World Health Organization (Geneva).
- 18) 厚生省公衆衛生局栄養課編: “国民栄養の現状 (昭和 49 年度国民栄養調査成績)”, (1977) 第一出版, 東京.
- 19) 厚生省保健医療局健康増進栄養課編: “国民栄養の現状 (昭和 57 年度国民栄養調査成績)”, (1984) 第一出版, 東京.
- 20) 厚生省保健医療局健康増進栄養課編: “国民栄養の現状 (昭和 62 年度国民栄養調査成績)”, (1989) 第一出版, 東京.
- 21) 榎本 隆, 宮田秀明, 高山幸司, 尾垣淳治: 福岡医誌. **78**, 325~336 (1987).
- 22) Miyata, H., Takayama, K., Ogaki, J., Mimura, M., Kashimoto, T., Yamada, T.: *Chemosphere* **18**, 407~416 (1989).
- 23) 高山幸司, 宮田秀明, 味村真弓, 尾垣淳治, 榎本 隆: 衛生化学 **34**, 231~236 (1988).
- 24) Beck, H., Eckart, K., Mathar, W., Wittkowski, R.: *Chemosphere* **18**, 417~424 (1989).
- 25) Takayama, K., Miyata, H., Mimura, M., Ohta, S., Kashimoto, T.: *ibid.* **22**, 537~546 (1991).
- 26) Safe, S., Yao, C., Davis, D.: Development of toxic equivalency factors for polychlorinated biphenyls (PCBs), DIOXIN '90 Organohalogen Compound, **2**, 55~59 (1990).