

C. 結果及び考察

1. 1. 臭素系ダイオキシン類 (PBDD/DFs、MoBrPCDD/DFs)、臭素化ジフェニルエーテル類 (PBDEs)、臭素化ビフェニル (PBBs)、コプラナー塩素・臭素化ビフェニル (Co-PXBs) 及び テトラプロモビスフェノール A (TBBPA) の高分解能ガスクロマトグラフ/質量分析計 (HRGC/HRMS) における測定条件検討

HRGC/HRMS 測定ではガスクロマトグラフの分析カラムとして、臭素系化合物の種類によって異なるカラムを用いている。しかしながら、HRGC/HRMS におけるカラム交換は非常に煩雑で時間がかかる。そこで、カラム交換の手間を省いて効率よく測定を行うために、現在 HRGC/HRMS で測定を行っている臭素系ダイオキシン類、PBDEs、PBBs 及び Co-PXBs、TBBPA (エチル化体) の全化合物計 66 種類を分離良くかつ高感度に 1 種類のカラムで測定することを検討した。平成 19 年度は 5%フェニルメチルポリシロキサン系の GC カラムである DB-5、ENV-5MS、SLB-5MS、VF-5MS を検討し、臭素系ダイオキシン類以外の PBDEs、TBBPA (エチル化体)、PBBs 及び Co-PXBs については 1 種類のカラム (SLB-5MS) で分析が可能となった。しかしながら、臭素系ダイオキシン類は SLB-5MS を用いると使用と共に 8 臭素化ダイオキシン類の感度が低下していく傾向にあり、測定が困難であった。本年度は、さらに 8 種類の分析カラムを用いて分析条件等についての検討を行った。

複数のカラムを試した結果、臭素系化合物の中でも臭素系ダイオキシン類のピークの検出は難しく、特に高臭素化体ほど

安定した良好なピークを得るのが困難であった。臭素系ダイオキシン類を各分析カラムで測定した場合の検討結果を表 14 に示す。検討の結果、臭素化ダイオキシン類の測定では内径が 0.25mm、膜厚が 0.1 μm の DB-5 のカラムが比較的安定した感度が得られることがわかった。

そこで DB-5 で長さが 15m のカラムを用いて検討を行ったところ、いずれの化合物についても分離よく測定可能であった。しかしながら、測定回数を重ねる毎に、ピークのテーリングが生じ、感度の低下が見られた。そこで次に、長さ 30m の DB-5 を用いて検討を行った。インジェクター温度、ヘリウムガス流量、カラムオープンの昇温温度等を変化させ、各化合物において最適な分離及び感度を示す条件を検討した。その結果、表 8 に示す条件で測定することにより、良好な分離及び感度が得られた。

評価したすべてのカラムの中で DB-5 (30m \times 0.25 \times 0.1 μm) では各化合物のピークの形状も良好であり、測定回数を重ねた場合においても感度の低下は見られなかった。さらにカラムの耐久性を良くするために、長さ 1m のプレカラムを使用したところ、ピーク形状がよりシャープになった。

図 4-7 に DB-5 (長さ 30m、内径 0.25mm、膜厚 0.1 μm) で測定した PBDDs 及び MoBrPCDDs、PBDFs 及び MoBrPCDFs、PBDEs、PBBs 及び Co-PXBs のクロマトグラムを示す。測定対象とした各異性体のピークについて良好な分離が得られた。TBBPA (エチル化体) についても良好な感度が得られた。表 15-18 に DB-5 を用いて測定した

時のSN比より算出した装置における相対保持時間及び検出下限値を示す。いずれの化合物においても、これまでの試料の測定で得られていた検出下限値レベルの感度を達成できた。

以上の結果より、DB-5 の 30m（内径 0.25mm、膜厚 0.1 μ m）を用いて、臭素系ダイオキシン類を含めた計 66 種類の臭素系化合物を網羅的に 1 種類のカラムで分析することが可能と考えられたことから、

食品の実試料の分析に用いた。

臭素系ダイオキシン類以外の臭素系化合物である PBDEs、PBBs、TBBPA（エチル化体）等の単独測定については、他のカラムでも良好な感度が得られて問題なく分析可能と考えられた。臭素系ダイオキシン類も含めた網羅的な調査を行う場合には、今回確立した測定条件で測定を行うことによって、効率的に機器分析が可能であると考えられた。

表 14 臭素系ダイオキシン類測定における各分析カラムの検討結果

カラム名	規格	PBDD/DFs
SLB-5MS	30m×0.25×0.1	△ ¹⁾
HP-5MS	15m×0.25×0.1	△ ²⁾
ENV-5MS	30m×0.25×0.1	△ ²⁾
VF-5HT	30m×0.25×0.1	× ²⁾
HP-1	30m×0.32×0.25	× ³⁾
DB-XLB	30m×0.25×0.1	× ²⁾
DB-35MS	30m×0.25×0.25	× ²⁾
DB-1	30m×0.32×0.1	△ ²⁾
DB-5	30m×0.32×0.1	× ²⁾
DB-5	15m×0.25×0.1	△ ¹⁾
DB-5	30m×0.25×0.1	○

- 1) 高臭素化体の感度が徐々に弱くなった。
- 2) 高臭素化体の感度が低かった。
- 3) 一部の異性体のピークが検出されなかった。

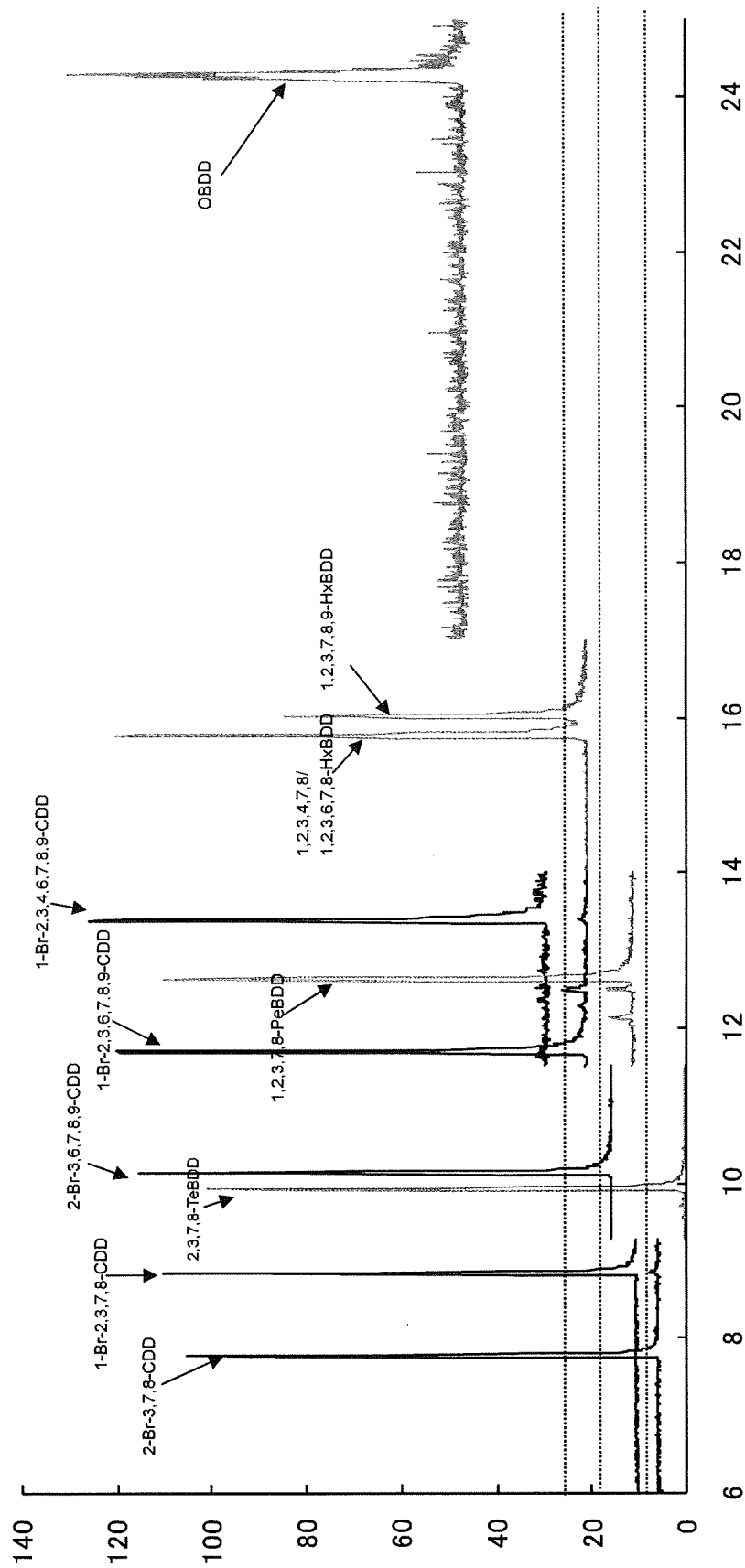


図 4 PBDDs 及び MoBrPCDDs のクロマトグラム (GC カラム: DB-5, 30m × 0.25mm, 0.1 μm)

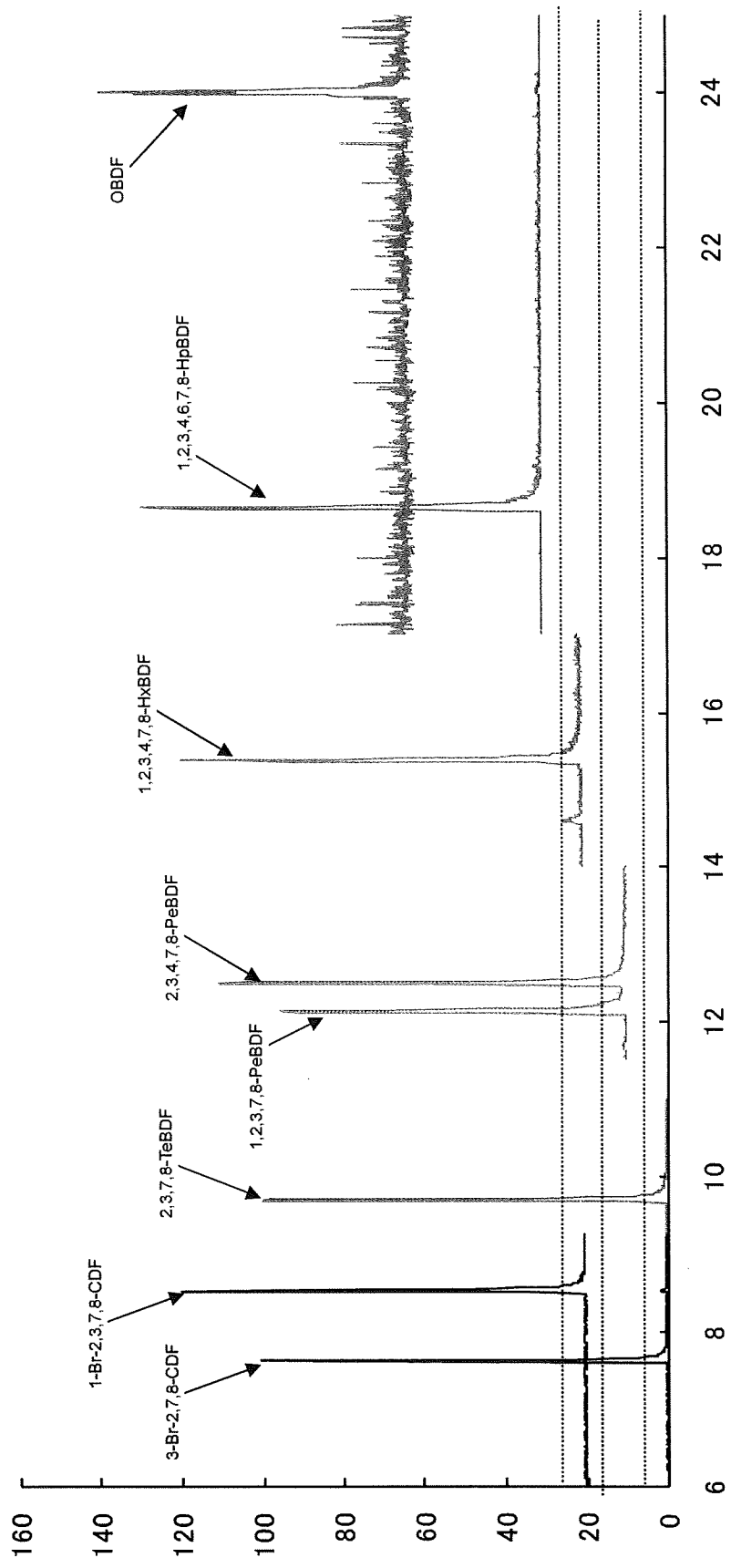


図 5 PBDFs 及び MoBrPCDFs のクロマトグラム (GC カラム: DB-5, 30m × 0.25mm, 0.1 μ m)

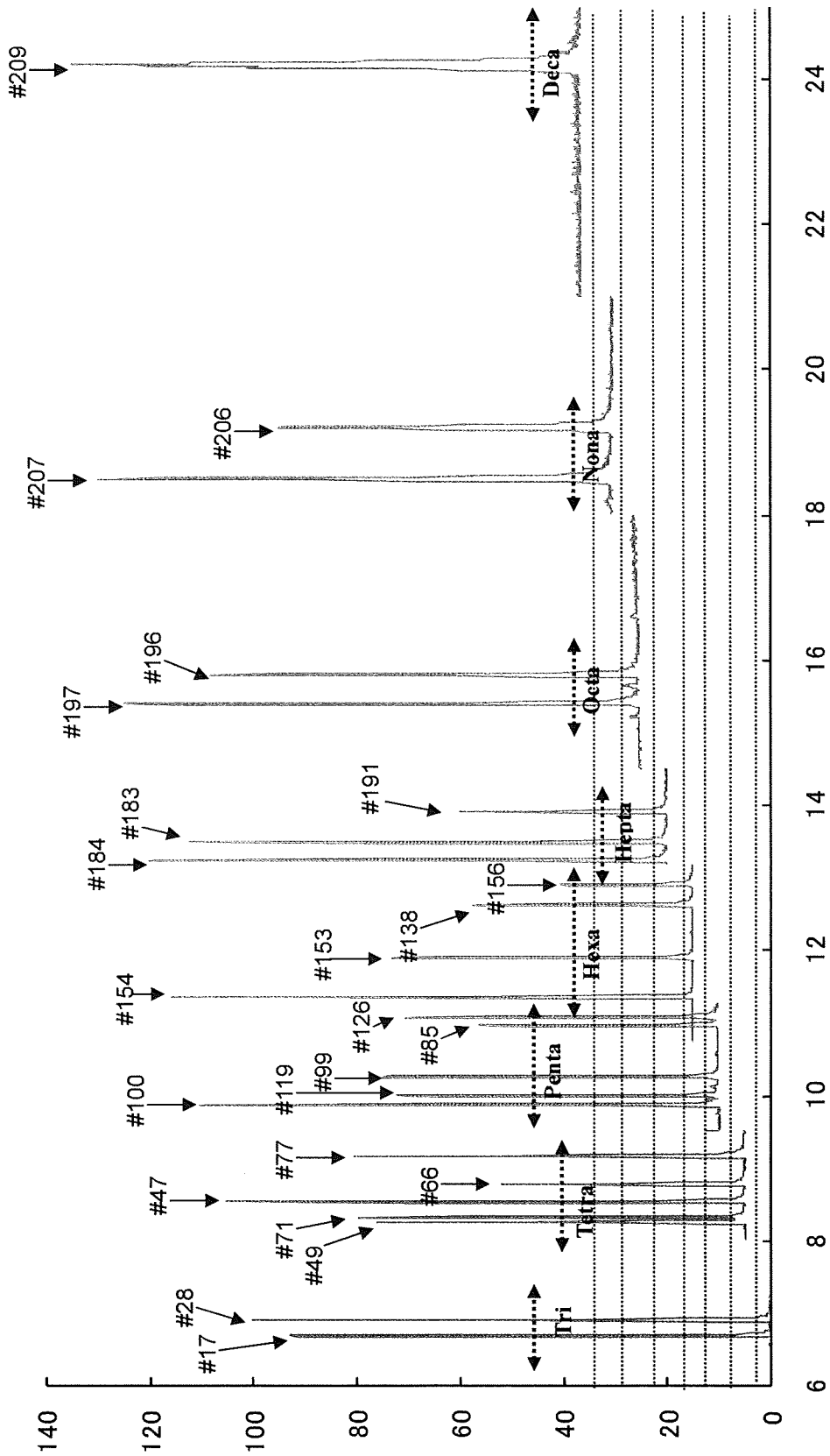


図 6 PBDEs のクロマトグラム (GC カラム: DB-5, 30m × 0.25mm, 0.1 μ m)

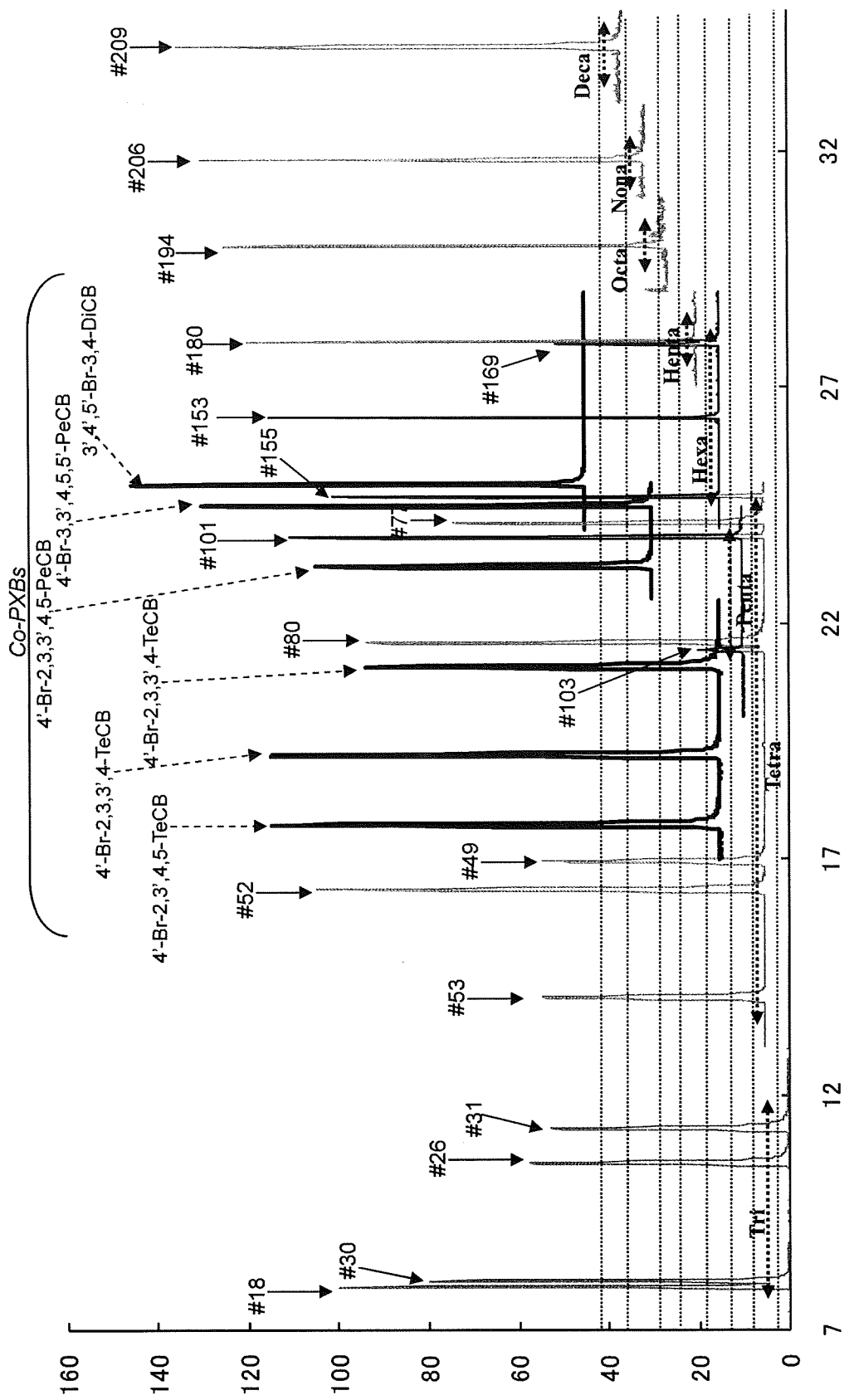


図7 PBBs 及び Co-PXBs のクロマトグラム(GC カラム:DB-5, 30m × 0.25mm, 0.1 μ m)

表 15 臭素系ダイオキシン類の相対保持時間 (RRT) 及び装置検出下限値¹⁾

異性体	RRT ²⁾	装置の検出下限(pg) ³⁾
2,3,7,8-TeBDD	1.30	0.003
1,2,3,7,8-PeBDD	1.66	0.03
1,2,3,4,7,8-HxBDD+	2.07	0.03
1,2,3,6,7,8-HxBDD		
1,2,3,7,8,9-HxBDD	2.10	0.02
OBDD	3.18	0.4
2,3,7,8-TeBDF	1.27	0.01
1,2,3,7,8-PeBDF	1.59	0.02
2,3,4,7,8-PeBDF	1.64	0.02
1,2,3,4,7,8-HxBDF	2.02	0.02
1,2,3,4,6,7,8-HpBDF	2.44	0.02
OBDF	3.15	0.7
2-Br-3,7,8-TriCDD	1.02	0.009
3-Br-2,7,8-TriCDF	1.00	0.001
1-Br-2,3,7,8-TeCDD	1.16	0.002
1-Br-2,3,7,8-TeCDF	1.12	0.002
2-Br-3,6,7,8,9-PeCDD	1.33	0.01
1-Br-2,3,6,7,8,9-HxCDD	1.53	0.01
1-Br-2,3,4,5,6,7,8-HpCDD	1.75	0.01

- 1) 使用カラム: DB-5、30 m、0.25 mm i. d.、0.1 μm
 2) RRT は 3-Br-2,7,8-TriCDF の時間 (7.63) を 1.00 とし、算出した。
 3) 検出下限値は S/N=3 から算出した。

表 16 PBDEs の相対保持時間 (RRT) 及び装置検出下限値¹⁾

異性体	IUPAC No.	RRT ²⁾	装置の検出下限(pg) ³⁾
2,2',4'-TriBDE	#17	1.00	0.01
2,4,4'-TriBDE	#28	1.03	0.01
2,2',4',5'-TeBDE	#49	1.23	0.01
2,3',4',6'-TeBDE	#71	1.25	0.01
2,2',4,4'-TeBDE	#47	1.28	0.006
2,3',4,4'-TeBDE	#66	1.31	0.01
3,3',4,4'-TeBDE	#77	1.37	0.007
2,2',4,4',6'-PeBDE	#100	1.48	0.003
2,3',4,4',6'-PeBDE	#119	1.49	0.004
2,2',4,4',5'-PeBDE	#99	1.53	0.004
2,2',3,4,4'-PeBDE	#85	1.64	0.006
3,3',4,4',5'-PeBDE	#126	1.66	0.005
2,2',4,4',5,6'-HxBDE	#154	1.70	0.02
2,2',4,4',5,5'-HxBDE	#153	1.78	0.04
2,2',3,4,4',5'-HxBDE	#138	1.89	0.08
2,3,3',4,4',5'-HxBDE	#156	1.93	0.2
2,2',3,4,4',6,6'-HpBDE	#184	1.98	0.02
2,2',3,4,4',5',6'-HpBDE	#183	2.02	0.02
2,3,3',4,4',5',6'-HpBDE	#191	2.08	0.04
2,2',3,3',4,4',6,6'-OcBDE	#197	2.30	0.04
2,2',3,3',4,4',5,6'-OcBDE	#196	2.36	0.05
2,2',3,3',4,4',5,6,6'-NoBDE	#207	2.76	0.2
2,2',3,3',4,4',5,5',6'-NoBDE	#206	2.87	0.3
DeBDE	#209	3.62	0.5

- 1) 使用カラム: DB-5、30 m、0.25 mm i. d.、0.1 μm
 2) RRT は 2,2',4'-TriBDE の時間 (6.69) を 1.00 とし、算出した。
 3) 検出下限値は S/N=3 から算出した。

表 17 PBBs の相対保持時間 (RRT) 及び装置検出下限値¹⁾

異性体	IUPAC No.	RRT ²⁾	装置の検出下限(pg) ³⁾
2,2',5'-TriBB	#18	1.00	0.005
2,4,6'-TriBB	#30	1.02	0.007
2,3',5'-TriBB	#26	1.33	0.004
2,4',5'-TriBB	#31	1.42	0.02
2,2',5,6'-TeBB	#53	1.77	0.005
2,2',5,5'-TeBB	#52	2.06	0.008
2,2',4,5'-TeBB	#49	2.14	0.009
3,3',5,5'-TeBB	#80	2.72	0.005
3,3',4,4'-TeBB	#77	3.04	0.006
2,2',4,5',6'-PeBB	#103	2.70	0.006
2,2',4,5,5'-PeBB	#101	3.00	0.008
2,2',4,4',6,6'-HxBB	#155	3.11	0.003
2,2',4,4',5,5'-HxBB	#153	3.32	0.007
3,3',4,4',5,5'-HxBB	#169	3.52	0.04
2,2',3,4,4',5,5'-HpBB	#180	3.53	0.03
2,2',3,3',4,4',5,5'-OcBB	#194	3.78	0.1
2,2',3,3',4,4',5,5',6'-NoBB	#206	4.01	0.2
DeBB	#209	4.32	0.3

- 1) 使用カラム: DB-5、30 m、0.25 mm i. d.、0.1 μm
 2) RRT は 2,2',5'-TriBB の時間 (7.93) を 1.00 とし、算出した。
 3) 検出下限値は S/N=3 から算出した。

表 18 Co-PXBs の相対保持時間 (RRT) 及び装置検出下限値¹⁾

異性体	RRT ²⁾	装置の検出下限 ³⁾
4'-Br-2,3',4,5'-TeCB	2.23	0.008
4'-Br-2,3,3',4'-TeCB	2.42	0.01
4'-Br-3,3',4,5'-TeCB	2.66	0.008
4'-Br-2,3,4',4,5'-PeCB	2.93	0.008
4'-Br-3,3',4,5,5'-PeCB	3.09	0.009
3',4',5'-Br-3,4-DiCB	3.14	0.004

- 1) 使用カラム: DB-5、30 m、0.25 mm i. d.、0.1 μm
 2) RRT は 2,2',5'-TriBB の時間 (7.93) を 1.00 とし、算出した。
 3) 検出下限値は S/N=3 から算出した。

2. 臭素系ダイオキシン類 (PBDD/DFs, MoBrPCDD/DFs)、臭素化ジフェニルエーテル (PBDEs)、臭素化ビフェニル (PBBs) 及びコプラナー塩素・臭素化ビフェニル (Co-PXBs) の分析

2-1 魚介類個別試料の分析

魚介類試料として、4 検体の魚介類を用いた。魚介類試料の分析結果の総括を表 19 に示す。臭素系ダイオキシン類の分析では 4 検体中 1 検体から 7 臭素化体が低濃度で検出された。PBDEs は全ての魚介類試料から検出され、 Σ PBDEs は 0.116-0.263ng/g ww であった。PBBs は、4 検体中 3 検体から 0.368-2.57 pg/g ww で検出された。Co-PXBs はいずれの魚介類からも検出されなかった。

表 20 から表 22 に各試料中の臭素系ダイオキシン類、PBDEs、PBBs 及び Co-PXB の詳細な異性体別濃度及び検出下限値を示す。

臭素系ダイオキシン類はアナゴから 1, 2, 3, 4, 6, 7, 8-HpBDF が検出されたのみで、検出頻度は低かった。検出濃度についても、0.18 pg/g ww で TEQ 濃度にする と 0.0018 pgTEQ/g ww と極めて低濃度であり、摂取しても問題がない程度であると考えられた。

PBDEs は、 Σ PBDEs 濃度ではアナゴが最も高かった。主要な異性体は 3 臭素化体の#28、4 臭素化体の#47、5 臭素化体の#100、6 臭素化体の#154、10 臭素化体の#209 であった。

PBBs はカレイ以外の魚介類 3 検体から検出された。検出された異性体は 4 臭素化体の#52 と#49、6 臭素化体の#155 と#153 であった。 Σ PBBs 濃度はアナゴが最も高かった。Co-PXBs はいずれの魚介類からも検出されなかった。

表 19 魚介類試料 (4 試料) の分析結果 総括表

	タイ①	タイ②	カレイ	アナゴ
脂肪含量 (%)	0.44	0.79	4.53	12.2
臭素系ダイオキシン類 (pgTEQ/g ww)*	ND	ND	ND	0.0018
Σ PBDEs ng/g ww	0.116	0.136	0.180	0.263
Σ PBB pg/g ww	1.47	0.368	ND	2.57
Σ Co-PXB pg/g ww	ND	ND	ND	ND

*暫定的に塩素化ダイオキシン類の TEF (1998) を用いて算出した

表 20 魚介類（4 試料）中の臭素系ダイオキシン類の異性体別分析結果 (pg/g ww)

	検出下限値	タイ①	タイ②	カレイ	アナゴ
2,3,7,8-TeBDD	0.01	ND	ND	ND	ND
1,2,3,7,8-PeBDD	0.01	ND	ND	ND	ND
1,2,3,4,7,8/1,2,3,6,7,8-HxBDD	0.05	ND	ND	ND	ND
1,2,3,7,8,9-HxBDD	0.05	ND	ND	ND	ND
OcBDD	1	ND	ND	ND	ND
2,3,7,8-TeBDF	0.01	ND	ND	ND	ND
1,2,3,7,8-PeBDF	0.01	ND	ND	ND	ND
2,3,4,7,8-PeBDF	0.01	ND	ND	ND	ND
1,2,3,4,7,8-HxBDF	0.05	ND	ND	ND	ND
1,2,3,4,6,7,8-HpBDF	0.1	ND	ND	ND	0.18
Total PBDD/DFs		ND	ND	ND	0.18
3-Br-2,7,8-CDF	0.01	ND	ND	ND	ND
2-Br-3,7,8-CDD	0.01	ND	ND	ND	ND
1-Br-2,3,7,8-CDF	0.01	ND	ND	ND	ND
1-Br-2,3,7,8-CDD	0.01	ND	ND	ND	ND
2-Br-3,6,7,8-CDD	0.05	ND	ND	ND	ND
1-Br-2,3,6,7,8,9-CDD	0.05	ND	ND	ND	ND
1-Br-2,3,4,6,7,8,9-CDD	0.05	ND	ND	ND	ND
Total MoBrPCDD/DFs		ND	ND	ND	ND
PBDD/DFs+MoBrPCDD/DFs		ND	ND	ND	0.18
Total TEQ [*] pgTEQ/g ww		0	0	0	0.0018

*暫定的に塩素化ダイオキシン類の TEF (1998) を用いて算出した値

表 21 魚介類中の PBDEs 濃度 (pg/g ww)

	検出下限値	タイ①	タイ②	カレイ	アナゴ
2,2',4'-TriBDE (#17)	0.1	ND	ND	ND	ND
2,4,4'-TriBDE (#28)	0.1	2.22	2.51	2.37	9.42
2,2',4,5'-TeBDE (#49)	0.1	0.617	0.987	5.21	16.1
2,3',4',6'-TeBDE (#71)	0.1	ND	ND	ND	ND
2,2',4,4'-TeBDE (#47)	0.1	42.3	39.9	16.7	53.7
2,3',4,4'-TeBDE (#66)	0.1	2.75	3.42	2.80	4.33
3,3',4,4'-TeBDE (#77)	0.1	0.166	0.568	0.455	0.959
2,2',4,4',6'-PeBDE (#100)	0.1	12.1	12.0	2.61	15.1
2,3',4,4',6'-PeBDE (#119)	0.1	0.860	1.48	0.554	2.40
2,2',4,4',5'-PeBDE (#99)	0.1	1.12	1.52	3.84	3.78
2,2',3,4,4'-PeBDE (#85)	0.1	ND	ND	ND	ND
2,2',4,4',5,6'-HxBDE (#154)	0.1	5.67	14.3	3.40	26.7
2,2',4,4',5,5'-HxBDE (#153)	0.1	0.419	0.743	1.13	7.24
2,2',3,4,4',5'-HxBDE (#138)	0.1	ND	ND	ND	ND
2,3,3',4,4',5'-HxBDE (#156)	0.1	ND	ND	ND	ND
2,2',3,4,4',6,6'-HpBDE (#184)	0.1	ND	0.387	0.165	0.164
2,2',3,4,4',5',6'-HpBDE (#183)	0.1	ND	0.248	0.453	0.797
2,3,3',4,4',5',6'-HpBDE (#191)	0.1	ND	ND	ND	ND
2,2',3,3',4,4',6,6'-OcBDE (#197)	0.2	ND	ND	ND	0.282
2,2',3,3',4,4',5,6'-OcBDE (#196)	0.2	ND	ND	ND	ND
2,2',3,3',4,4',5,6,6'-NoBDE (#207)	0.5	ND	ND	1.29	3.31
2,2',3,3',4,4',5,5',6'-NoBDE (#206)	0.5	1.31	1.12	1.84	3.02
DeBDE (#209)	1	46.8	57.0	137	116
Total PBDEs		116	136	180	263

表 22 魚介類中の PBBs 及び Co-PXBs 濃度 (pg/g ww)

		検出限 値	タイ①	タイ②	カレイ	アナゴ
P B B	2,2',5'-TriBB (#18)	0.1	ND	ND	ND	ND
	2,4,6'-TriBB (#30)	0.1	ND	ND	ND	ND
	2,3',5'-TriBB(#26)	0.1	ND	ND	ND	ND
	2,4',5'-TriBB (#31)	0.1	ND	ND	ND	ND
	2,2',5,6'-TeBB (#53)	0.1	ND	ND	ND	ND
	2,2',5,5'-TeBB (#52)	0.1	0.525	ND	ND	0.544
	2,2',4,5'-TeBB (#49)	0.1	0.293	ND	ND	ND
	3,3',5,5'-TeBB (#80)	0.1	ND	ND	ND	ND
	3,3',4,4'-TeBB (#77)	0.1	ND	ND	ND	ND
	2,2',4,5',6'-PeBB (#103)	0.1	ND	ND	ND	ND
	2,2',4,5,5'-PeBB (#101)	0.1	ND	ND	ND	ND
	2,2',4,4',6,6'-HxBB (#155)	0.1	0.466	0.204	ND	0.328
	2,2',4,4',5,5'-HxBB (#153)	0.1	0.183	0.164	ND	1.70
	3,3',4,4',5,5'-HxBB (#169)	0.1	ND	ND	ND	ND
	2,2',3,4,4',5,5'-HpBB (#180)	0.2	ND	ND	ND	ND
	2,2',3,3',4,4',5,5'-OcBB (#194)	0.2	ND	ND	ND	ND
	2,2',3,3',4,4',5,5',6'-NoBB (#206)	0.2	ND	ND	ND	ND
DeBB (#209)	0.5	ND	ND	ND	ND	
Total PBBs			1.47	0.368	ND	2.57
P X B	4'-Br-2,3',4,5'-TeCB	0.05	ND	ND	ND	ND
	4'-Br-2,3,3',4'-TeCB	0.05	ND	ND	ND	ND
	4'-Br-3,3',4,5'-TeCB	0.05	ND	ND	ND	ND
	4'-Br-2,3,3',4,5'-PeCB	0.05	ND	ND	ND	ND
	4'-Br-3,3',4,5,5'-PeCB	0.05	ND	ND	ND	ND
	3',4',5'-Br-3,4'-DiCB	0.05	ND	ND	ND	ND
	Total PXBs			ND	ND	ND

2-2 マーケットバスケット試料の分析

本年度は九州地区について、マーケットバスケット方式による摂取量調査を行った。福岡県で調製された第1群から第13群までの試料中の臭素系ダイオキシン類、PBDEs、PBBs及びCo-PXBsを分析し、各試料中の濃度を定量した後、当該地域における各食品群の1日あたりの食事量からこれらの臭素系化合物1日摂取量を算出した。

表23に今回分析した臭素系ダイオキシン類及びその関連化合物(PBDEs、PBBs、Co-PXBs)の1日摂取量総括表を示す。臭素系ダイオキシン類については、暫定的に塩素化ダイオキシン類の毒性等価係数(TEF, 1998)を用いて算出した値を示す。

臭素系ダイオキシン類の1日摂取量は、不検出の異性体濃度を0(ND=0)とした場合、0.00384 pgTEQ/kg/日で、不検出の異性体を検出下限値の1/2(ND=1/2LOD)として1日摂取量を算出した場合は1.56 pgTEQ/kg/日であった。平成19年度の塩素化ダイオキシン類摂取量調査(分担研究者 米谷民雄)⁴⁾によると、塩素化ダイオキシン類の九州地区における摂取量は1.16 pgTEQ/kg/日、これらの摂取量に臭素系ダイオキシン類の摂取量を足し合わせた場合も、我が国の耐容1日摂取量(TDI)の4 pgTEQ/kg/日を下回ると推察された。

PBDEsの1日摂取量はND=0とした場合、3.14 ng/kg/日であり、ND=1/2LODとした場合は3.19 ng/kg/日であった。平成20年度に実施した関東、関西地区の摂取量調査では、関東地区が3.21 ng/kg/日

(ND=0とした場合)、関西地区が2.74 ng/kg/日(ND=0とした場合)であったことから、今回の九州地区の結果は昨年度に行った2地区とほぼ同程度であった。Darnerudらの報告⁵⁾ではPBDEのLOAEL(最小毒性発現量)は1 mg/kg/日と考えるのが妥当であるとされている。また、アメリカのATSDRによって導出された経口暴露に関するPBDEのMRL(最小リスクレベル)は、NOAEL(無毒性量)と不確実係数から0.03 mg/kg/日(急性経口MRL)及び0.007 mg/kg/日(亜慢性経口MRL)とされている⁶⁾。現在の食品からのPBDE摂取量はMRLの0.007 mg/kg/日と比較しても 2×10^3 分の1以下と極めて低いレベルであることから、人体には影響がないレベルの汚染であると考えられる。

PBBsの1日摂取量はND=0とした場合、0.00648 ng/kg/日、ND=1/2LODとした場合は0.0617 ng/kg/日であった。平成20年度の関東、関西地区の摂取量は、関東地区が0.00755 ng/kg/日(ND=0とした場合)、関西地区が0.00337 ng/kg/日(ND=0とした場合)であったことから、今回の九州地区の結果はこれらの間の値であった。PBBsについて、アメリカのATSDRによって導出された経口暴露に関するMRLは、0.01 mg/kg/日(急性経口MRL)とされている⁶⁾。また、環境保健クライテリア⁷⁾によると、長期的な毒性を考慮した場合の安全な摂取量として0.15 μ g/kg/日が提案されている。これらのレベルと比較すると、PBBsの現在の1日摂取量は極めて低いと考えられた。一方、Co-PXBsはいずれの異性体も検出されなかったため、1日摂取量は

表 23 九州地区における臭素系ダイオキシン類及びその関連化合物の一日摂取量総括表

異性体	1群	2群	3群	4群	5群	6群	7群	8群	9群	10群	11群	12群	13群	合計	体重50kgと 仮定した場合
一日食事量(g)	357.1	162.9	33.1	10.4	59.9	106.2	90.5	196.0	581.6	81.5	114.7	144.5	86.2	2025	
臭素系ダイオキシン類 ND=0	0	0	0	0.087	0	0	0	0	0	0.105	0	0	0	0.192	0.00384 pgTEQ/kg/日
pgTEQ/日*	14.7	7.0	1.2	0.4	2.2	4.1	3.7	8.2	20.2	3.3	4.7	5.0	3.0	77.8	1.56 pgTEQ/kg/日
Total PBDEs ng/日 ND=1/2LOD	8.87	3.98	2.27	13.6	3.47	1.99	0.203	9.06	1.96	92.9	8.89	1.91	7.93	157	3.14 ng/kg/日
Total PBBs ng/日 ND=0	9.48	4.15	2.29	13.6	3.52	2.10	0.375	9.38	2.89	92.9	8.97	2.08	7.99	160	3.19 ng/kg/日
Total Co-PXBs ng/日 ND=1/2LOD	0	0	0	0.006	0	0	0	0	0	0.309	0.010	0	0	0.324	0.00648 ng/kg/日
Total Co-PXBs ng/日 ND=0	0.590	0.251	0.044	0.016	0.079	0.148	0.134	0.295	0.727	0.400	0.173	0.181	0.108	3.084	0.0617 ng/kg/日
Total Co-PXBs ng/日 ND=1/2LOD	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0 ng/kg/日
	0.064	0.030	0.005	0.002	0.009	0.018	0.016	0.035	0.087	0.014	0.020	0.022	0.013	0.335	0.00670 ng/kg/日

*暫定的に塩素化ダイオキシン類の TEF (1998) を用いて算出した値

表 24 九州地区における臭素系ダイオキシンの食品群別（第1群から第13群）一日摂取量

異性体	(pg/日)													合計*			
	1群	2群	3群	4群	5群	6群	7群	8群	9群	10群		11群			12群	13群	
										A	B	A	B		A	B	
2,3,7,8-TeBDD	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
1,2,3,7,8-PeBDD	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
1,2,3,4,7,8/1,2,3,6,7,8-HxBDD	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
1,2,3,4,7,8-HxBDD	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
OBDD	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
2,3,7,8-TeBDF	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
1,2,3,7,8-PeBDF	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
2,3,4,7,8-PeBDF	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
1,2,3,4,7,8-HxBDF	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
1,2,3,4,6,7,8-HpBDF	-	-	-	8.7	-	-	-	-	-	21	-	-	-	-	-	-	19.2
Total PBDD/DFs	-	-	-	8.7	-	-	-	-	-	21	-	-	-	-	-	-	19.2
3-Br-2,7,8-TrICDF	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
2-Br-3,7,8-TrICDD	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
1-Br-2,3,7,8-TeCDF	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
1-Br-2,3,7,8-TeCDD	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
2-Br-3,6,7,8,9-PeCDD	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
1-Br-2,3,6,7,8,9-HxCDD	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
1-Br-2,3,4,6,7,8,9-HpCDD	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Total MoBrPCDD/DFs	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
PBDD/DFs + MoBrPCDD/DFs pg/日	-	-	-	8.7	-	-	-	-	-	21	-	-	-	-	-	-	19.2
Total TEQ(ND=0) pgTEQ/日	0	0	0	0.087	0	0	0	0	0	0.21	0	0	0	0	0	0	0.192
Total TEQ(ND=1/2LOD) pgTEQ/日	14.7	7.0	1.2	0.4	2.2	4.1	3.7	8.2	20.2	3.3	3.2	4.6	4.7	5.0	5.0	3.0	77.8

- : NDの異性体
合計*は10、11、12群においては平均値を用いて計算した。

表 25 九州地区におけるPBDEsの食品群別（第1群から第13群）の一日摂取量

(ng/日)

異性体	1群		2群		3群		4群		5群		6群		7群		8群		9群		10群		11群		12群		13群		合計*		
																					A	B	A	B	A	B		A	B
2,2',4'-TriBDE (#17)	—	—	0.006	0.001	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.046	0.737	—	—	—	—	—	—	0.399
2,4,4'-TriBDE (#28)	—	0.022	0.021	0.005	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.472	5.49	0.035	0.029	—	—	—	—	3.06
2,2',4,5'-TeBDE (#49)	—	—	0.023	0.025	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	2.06	13.7	0.033	0.018	—	—	—	—	7.97
2,3',4',6'-TeBDE (#71)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
2,2',4,4'-TeBDE (#47)	—	0.127	0.595	1.35	0.028	0.014	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	5.05	50.6	3.89	0.784	0.303	0.201	0.070	0.70	32.6
2,3',4,4'-TeBDE (#66)	—	—	0.016	0.033	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.769	6.54	—	—	—	—	—	—	3.70
3,3',4,4'-TeBDE (#77)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.071	0.672	—	—	—	—	—	—	0.371
2,2',4,4',6'-PeBDE (#100)	—	0.024	0.068	0.539	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	1.47	12.1	0.894	0.184	0.047	0.026	0.019	8.00	
2,3',4,4',6'-PeBDE (#119)	—	—	—	0.001	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.437	2.11	—	—	—	—	—	—	1.27
2,2',4,4',5'-PeBDE (#99)	—	0.137	0.262	2.96	0.037	0.013	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.915	17.2	4.9	0.815	0.222	0.118	0.117	15.6	
2,2',3,4,4'-PeBDE (#85)	—	—	—	0.186	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.009	0.139	0.033	—	—	0.009	0.286	
2,2',4,4',5,6'-HxBDE (#154)	—	0.386	0.016	0.254	0.106	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	1.86	9.69	0.480	0.140	0.039	—	0.023	6.89	
2,2',4,4',5,5'-HxBDE (#153)	0.043	—	0.014	0.385	0.012	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.401	5.32	0.784	0.203	0.044	—	0.019	3.85	
2,2',3,4,4',5'-HxBDE (#138)	—	—	—	0.058	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.056	0.033	0.024	—	—	—	—	0.114
2,3,3',4,4',5'-HxBDE (#156)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
2,2',3,4,4',6'-HpBDE (#184)	—	—	—	0.003	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.019	0.192	—	—	—	—	—	—	0.109
2,2',3,4,4',5',6'-HpBDE (#183)	0.049	—	0.007	0.015	0.028	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.038	0.280	0.111	0.151	—	—	0.014	0.402	
2,3,3',4,4',5',6'-HpBDE (#191)	0.060	—	—	0.001	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.014	0.012	—	—	—	—	—	—	0.074
2,2',3,3',4,4',6,6'-OBDE (#197)	—	—	—	0.010	0.016	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.031	0.106	0.121	0.116	—	—	—	—	0.212
2,2',3,3',4,4',5,6'-OBDE (#196)	—	—	—	0.011	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.048	0.036	0.085	0.068	—	—	—	—	0.172
2,2',3,3',4,4',5,6,6'-NoBDE (#207)	—	0.124	0.026	0.165	0.082	0.114	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.847	0.484	0.168	0.250	0.094	—	0.098	1.53	
2,2',3,3',4,4',5,5',6'-NoBDE (#206)	—	0.121	0.035	0.185	0.095	0.092	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	1.03	0.435	—	0.091	—	0.091	0.198	1.69	
DeBDE (#209)	8.72	3.04	1.18	7.44	3.06	1.75	0.203	8.92	1.96	33.2	11.1	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	68.7
Total PBDE (ND=0)	8.87	3.98	2.27	13.6	3.47	1.99	0.203	9.06	1.96	48.8	13.7	11.7	6.08	2.96	0.861	7.93	157	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	157
Total PBDE (ND=1/2LOD)	9.48	4.15	2.29	13.6	3.52	2.10	0.375	9.38	2.89	48.8	13.7	11.8	6.14	3.12	1.03	7.99	160	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	160

— : NDの異性体 合計*は10, 11, 12群においては平均値を用いて計算した。

表 26 九州地区における PBBs 及び Co-PXBs の食品群別 (第 1 群から第 13 群) の一日摂取量

(ng/日)

異性体	1 群	2 群	3 群	4 群	5 群	6 群	7 群	8 群	9 群	10 群		11 群		12 群		13 群	合計*	
										A	B	A	B	A	B			
PBBs																		
2,2',5'-TriBB(#18)	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0.102	-	-	-	-	-	-	0.051
2,4,6-TriBB(#30)	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
2,3',5'-TriBB(#26)	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
2,4',5,6-TriBB(#31)	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
2,2',5,6'-TeBB(#53)	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
2,2',5,5'-TeBB(#52)	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0.029	0.102	-	-	-	-	-	-	0.066
2,2',4,5'-TeBB(#49)	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0.022	0.071	-	-	-	-	-	-	0.046
3,3',5,5'-TeBB(#80)	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
3,3',4,4'-TeBB(#77)	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
2,2',4,5,6'-PeBB(#103)	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
2,2',4,5,5'-PeBB(#101)	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0.016	-	-	-	-	-	-	-	0.008
2,2',4,4',6,6'-HxBB(#155)	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0.029	0.135	-	-	-	-	-	-	0.082
2,2',4,4',5,5'-HxBB(#153)	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0.020	0.091	0.019	-	-	-	-	-	0.065
3,3',4,4',4,4'-HxBB(#169)	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
2,2',3,4,4',5,5'-HpBB(#155)	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
2,2',3,3',4,4',5,5'-OcBB(#194)	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
2,2',3,3',4,4',5,5',6'-NoBB(#206)	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
DeBB(#209)	-	-	-	-	0.006	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0.006
Total PBBs (ND=0)	-	-	-	-	0.006	-	-	-	-	0.116	0.501	0.019	-	-	-	-	-	0.324
Total PBBs (ND=1/2LOD)	0.590	0.251	0.044	0.016	0.079	0.148	0.134	0.295	0.727	0.207	0.592	0.177	0.169	0.181	0.181	0.108	0.108	3.084
PXBs																		
4'-Br-2,3',4,5'-TeCB	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
4'-Br-2,3,3',4'-TeCB	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
4'-Br-3,3',4,5'-TeCB	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
4'-Br-2,3,3',4,5'-PeCB	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
4'-Br-3,3',4,5'-PeCB	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
3',4',5'-Br-3,4-DiCB	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Total PXBs (ND=0)	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Total PXBs (ND=1/2LOD)	0.064	0.030	0.005	0.002	0.009	0.018	0.016	0.035	0.087	0.014	0.014	0.020	0.020	0.022	0.022	0.013	0.013	0.335

合計*は 10、11、12 群においては平均値を用いて計算した。

— : ND の異性体

ND=0とした場合は0であった。ND=1/2LODとした場合は0.00670ng/kg/日となった。さらにND=1/2LODとした場合のCo-PXBs摂取量について、暫定的にCo-PCBsに定められたTEF(1998)を用いてTEQ濃度を算出した場合0.24pgTEQ/kg/日となった。この値は耐容一日摂取量(TDI)の4pg/kg/日の10分の1以下であり、塩素化ダイオキシン類、臭素系ダイオキシン類の摂取量と合わせても、耐容1日摂取量(TDI)の4pg/kg/日を下回ると考えられた。

表24から表26に臭素系ダイオキシン類、PBDEs、PBBs及びCo-PXBsの詳細な食品群別及び異性体別の摂取量を示す。

臭素系ダイオキシン類では、第4群(油脂類)と第10群の試料の一つから7臭素化ジベンゾフランが検出された。摂取量にするとそれぞれ0.087pgTEQ/日、0.21pgTEQ/日と極めて微量であるため、健康影響が生じる可能性は低いと考えられる。

PBDEsの摂取量では、10群(魚介類)からの寄与率が最も高かった。続いて4群(油脂類)であった。異性体別に見ると、#209(10臭素化体)、続いて#47(4臭素化体)が高かった。

PBBsの結果では、異性体が検出された食品群は第4群、第10群であり、摂取量における寄与率は第10群から80%以上と極めて高かった。異性体では第4群の試料からは#209が、第10群の試料から#18(3臭素化体)、#52、#49(4臭素化体)、#101(5臭素化体)、#155、#153(6臭素化体)が、第11群の試料から#153が検出された。

3 ヘキサブロモシクロドデカン(HBCDs)及びテトラブロモビスフェノールA(TBBPA)のマーケットバスケット試料の分析

九州地区で調製したマーケットバスケット試料についてHBCDs及びTBBPAをそれぞれの個別分析法を用いて分析を行った。分析結果より算出した九州地区におけるHBCDsの1日摂取量を食品群別にまとめたものを表27に示す。マーケットバスケット試料の第1群から13群まで分析を行った中で、第10群の魚介類試料から α 、 β 、 γ のすべての異性体が検出され、その1日摂取量は平均値でそれぞれ85.5、0.9、68.7ng/日であった。また、第11群の肉・卵類の1試料から α 体が微量に検出され、1日摂取量は平均値で2.0ng/日であった。

昨年度のマーケットバスケット調査(関東、関西地区)と同様に、魚介類の中で最も高い濃度で検出されたのは α -HBCDで、次いで γ -HBCD、 β -HBCDの順であった。 β -HBCDの濃度は α 、 γ -HBCDに比べて非常に低濃度であった。日本人の平均体重を50kgと仮定し、体重1kgあたりのHBCDsの1日摂取量を求めたところ、ND=0とした場合は3.1ng/kg/日、ND=1/2LODとした場合は4.2ng/kg/日と算出された。昨年度の関東、関西地区における1日摂取量はそれぞれ2.4、1.8ng/kg/日(ND=0)であったことから、これらの値と比較すると今回の値は若干高めであった。

表 27 マーケットバスケット試料(九州地区)における HBCD s の 1 日平均摂取量

	HBCD (ng/日)											
	ND=0					ND=1/2LOD						
	α	β	γ	Σ HBCDs	α	β	γ	Σ HBCDs	α	β	γ	Σ HBCDs
第1群	0	0	0	0	0	0	0	0	4.2	2.1	4.2	10.6
第2群	0	0	0	0	0	0	0	0	2.0	1.0	2.0	5.0
第3群	0	0	0	0	0	0	0	0	0.4	0.2	0.4	0.9
第4群	0	0	0	0	0	0	0	0	0.1	0.1	0.1	0.3
第5群	0	0	0	0	0	0	0	0	0.6	0.3	0.6	1.6
第6群	0	0	0	0	0	0	0	0	1.2	0.6	1.2	3.0
第7群	0	0	0	0	0	0	0	0	1.1	0.5	1.1	2.7
第8群	0	0	0	0	0	0	0	0	2.4	1.2	2.4	5.9
第9群	0	0	0	0	0	0	0	0	5.8	2.9	5.8	14.5
第10群	85.5	0.9	68.7	155.1	85.5	1.1	68.7	155.3	85.5	1.1	68.7	155.3
第11群	2.0	0	0	2.0	2.6	0.7	0	2.6	2.6	0.7	1.3	4.6
第12群	0	0	0	0	1.4	0.7	0	1.4	1.4	0.7	1.4	3.6
第13群	0	0	0	0	0.9	0.4	0	0.9	0.9	0.4	0.9	2.2
各 HBCD 摂取量 ng/日	85.5	0.9	68.7	157.1	108.2	11.8	90.1	210.1	108.2	11.8	90.1	210.1
Σ HBCDs 推定摂取量 ng/kg 体重/日	3.1											
	4.2											

*1 日平均摂取量を算出する場合、第 10, 11, 12 群については各々平均摂取量を採用した。
 α 、 γ -HBCD の LOD 値は 0.02ng/g、 β -HBCD の LOD 値は 0.01ng/g とした。

HBCDsの毒性については動物試験の結果から日本では10.2 mg/kg/日が無毒性量 (NOAEL)とされている⁸⁾。HBCDsのヒトへの影響は、長期に亘って摂取するという仮定の下では安全係数100 (動物種差10×固体別差10)で除した量 (耐容1日摂取量)⁹⁾と比較することが妥当と考えられており、HBCDsの場合は102 μg/kg/日と比較することとなる。今回得られた九州地区の摂取量の3.1 ng/kg/日 (ND=0)、4.2 ng/kg/日 (ND=1/2LOD)は耐容1日摂取量の約40,000分の一から20,000分の一となり、ただちに健康に問題がある量ではないと考えられた。しかし、その他の毒性についても報告されていることから¹⁰⁾⁻¹²⁾、今後も食品における汚染や摂取量の推移の観察は必須である。

次に、九州地区におけるTBBPAの1日摂取量を食品群別にまとめたものを表28に示す。TBBPAは第2群、4群、5群、10群、11群から検出された。その他の群では検出されなかった。検出頻度は16試料中6試料で37.5%であった。1日摂取量にすると、第2群の3.7 ng/日が最も多く、次いで第11群の3.3 ng/日であった。日本人の平均体重を50 kgと仮定し、体重1kgあたりの1日摂取量を求めたところ、ND=0とした場合は0.2 ng/kg/日、ND=1/2LODとした場合は0.4 ng/kg/日と算出された。昨年度の関東、関西地区における1日摂取量はそれぞれ0.6、2.8 ng/kg/日 (ND=0)であったことから、これらの値と比較すると今回の値は低かった。

表28 マーケットバスケット試料(九州地区)におけるTBBPAの1日平均摂取量

	TBBPA (ng/日)	
	ND=0	ND=1/2LOD
第1群 (米類)	0	2.1
第2群 (米以外の穀類)	3.7	3.7
第3群 (砂糖・菓子類)	0	0.2
第4群 (油脂類)	0.1	0.1
第5群 (豆類)	1.0	1.0
第6群 (果実類)	0	0.6
第7群 (緑黄色野菜)	0	0.5
第8群 (その他の野菜)	0	1.2
第9群 (調味嗜好飲料)	0	2.9
第10群 (魚介類) *	0.5	0.7
第11群 (肉・卵類) *	3.3	4.7
第12群 (乳類) *	0	0.7
第13群 (調味料)	0	0.4
TBBPA 摂取量 (ng/日)	8.5	18.8
TBBPA 推定摂取量 (ng/kg/日)	0.2	0.4

* 1日平均摂取量を算出する場合、第10, 11, 12群については各々平均摂取量を採用した。

TBBPA の毒性については、1995 年に IPCS/WHO¹³⁾によって報告された NOAEL 値 700 mg/kg 体重がある。ヒトへの外挿値として安全係数 100 で除した数値 7 mg/kg 体重と比べて、今回得られた摂取量は、極めて低いレベルであり、ヒトへの健康影響はないと考えられる。しかし、マウスにおいて胎児性暴露による神経発達障害や肝臓・腎臓での組織障害などの報告¹⁴⁾⁻¹⁶⁾もあることから、TBBPA の摂取量についても観察が必要であると考えられる。

D 結論

1 臭素系ダイオキシン類、PBDEs、PBBs、Co-PXBs 及びテトラブロモビスフェノール A の高分解能ガスクロマトグラフ/質量分析計 (HRGC/HRMS) における測定条件検討では、これらの臭素系化合物計 66 異性体について、ガスクロマトグラフにおける分析カラムを交換することなく、すべて 1 種類のカラムで測定することが可能となった。カラム交換の手間や労力、カラム購入のためのコストを削減することができた。

2 魚試料の汚染調査では、アナゴから 7 臭素化ダイオキシンが微量に検出されたが、その他の魚からは PBDD/DFs は検出されなかった。PBDEs ではすべての魚から #28、#47、#99、#154、#206、#207、#209 などの異性体が検出され、PBBs では 4 検体中 3 検体の魚から 4-6 臭素化体の異性体が検出された。Co-PXBs はいずれの異性体も検出されなかった。

3 マーケットバスケット方式による九州地区の摂取量調査では、一日摂取量は臭素系ダイオキシン類が 0.00384

pgTEQ/kg/日 (ND=0) 及び 1.56 pgTEQ/kg/日 (ND=1/2LOD)、PBDEs が 3.14 ng/kg/日 (ND=0) 及び 3.19 ng/kg/日 (ND=1/2LOD)、PBBs が 0.00648 ng/kg/日 (ND=0) 及び 0.0617 ng/kg/日 (ND=1/2LOD) であった。Co-PXBs はいずれの食品群別試料からも検出されなかった。

4 マーケットバスケット方式による九州地区における HBCDs 及び TBBPA の摂取量調査では、HBCDs は 3.1 ng/kg/日 (ND=0)、4.2 ng/kg/日 (ND=1/2LOD)、TBBPA は 0.2 ng/kg/日 (ND=0)、0.4 ng/kg/日 (ND=1/2LOD) であった。マーケットバスケット試料の分析から求めた摂取量の差異は、地域や年度、試料調製時に選択した食品種の違いによるものもあり、平均摂取量の把握には、ある程度の期間観察する必要があると考えられる。

E 研究発表

1 論文発表

1) Ashizuka, Y., Yasutake, D., Nakagawa, R., Shintani, Y., Hori, T., Tsutsumi, T.: Determination of polybrominated dibenzo-*p*-dioxins, Co-PXBs and brominated flame retardant in fish. Organohalogen Compounds, 71, 1251-1254, 2009.

2 学会・協議会発表

1) 中川礼子, 新谷依子, 芦塚由紀, 堀 就英, 堀江正一, 田中之雄, 柿本健作, 堤智昭: マーケットバスケット食品試料におけるヘキサブロモシクロドデカン (HBCDs) の分析法の検討とその 1 日摂取

量の推定. 第46回全国衛生化学技術協議会年会(2009.11).

2) 芦塚由紀, 中川礼子, 安武大輔, 新谷依子, 堀 就英, 堀江正一, 田中之雄, 堤 智昭: 臭素系ダイオキシン類及びその関連化合物質のマーケットバスケット方式による摂取量調査. 第46回全国衛生化学技術協議会年会(2009.11).

参考文献

- 1) Watanabe, K., Senthilkumar, K., Masunaga, S., Takasuga, T., Iseki, N., Morita, M. : Brominated organic contaminants in the liver and egg of the common cormorants (*Phalacrocorax carbo*) from Japan. Environ. Sci. Technol., 38, 4071-4077, 2004.
- 2) Ishikawa, Y., Nose, K., Suzuki, G., Takigami, H., Noma, Y., Sakai, S. : Quantitative analysis of polybrominated biphenyls (PBBs) in Japanese waste samples. Organohalogen Compounds, 68, 1776-1779, 2004.
- 3) Ohta, S., Tokusawa, H., Magota, H., Nakao, T., Aozasa, O., Miyata, H., Ochiai, T., Shimizu, Y. : Contamination levels of polychlorinated / brominated coplanar biphenyls (Co-PXBs) in the market foods and mother's milk of Japan. Organohalogen Compounds, 69, 2018-2021, 2007.
- 4) 厚生労働科学研究「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」平成19年度 研究報告書
- 5) Darnerud, P. O., Eriksen, G. S., Jóhannesson, T., Larsen, P. B., Viluksela, M.: Polybrominated diphenyl ethers: occurrence, dietary exposure, and toxicology. Environ. Health Perspect., 109 supplement1 (2001) 49-68.
- 6) Hana, R.P., Stephen, B. : ATSDR's Guidance Values for Polybrominated Biphenyls (PBBs) and Polybrominated Diphenyl Ethers (PBDEs). Organohalogen Compounds, 61, 211-214, 2003.
- 7) IPCS/WHO: POLYBROMINATED BIPHENYLS. Environmental Health Criteria 152, Geneva, Switzerland. 1994.
- 8) Ema, M., Fujii, S., Hirata-koizumi, M., Matsumoto, M. : Two generation reproductive toxicity study of the flame retardant hexabromocyclododecane in rats. Reprod. Toxicol. 25, 335-351, 2008.
- 9) NEDO事業における「初期リスク評価書」TDI (耐容一日摂取量) : <http://www.safe.nite.go.jp/risk.riskhykd01.html>.
- 10) Cantón, R. F., Peijnenburg, A. A. C. M., Hoogenboom, R. L. A. P., Piersma, A. H., van der Ven, L. T. M., van den Berg, Martin, Henneer, M. :