

201033045A

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

食品を介したダイオキシン類等有害物質摂取量の  
評価とその手法開発に関する研究

平成22年度 総括・分担研究報告書

研究代表者

国立医薬品食品衛生研究所 松田りえ子

研究分担者

国立医薬品食品衛生研究所 松田りえ子

国立医薬品食品衛生研究所 渡邊 敬浩

国立医薬品食品衛生研究所 堤 智昭

松山大学薬学部 天倉 吉章

福岡県保健環境研究所 芦塚 由紀

帝京平成大学 杉山 英男

## 目 次

### I. 総括研究報告

- 食品を介したダイオキシン類等有害物質摂取量の評価とその手法開発に関する研究 ..... 1  
松田りえ子

### II. 分担研究報告

1. 日常食からの汚染物質摂取量推定に関する研究 ..... 17  
渡邊 敬浩
2. 食品からの塩素化ダイオキシン類の摂取量推定に関する研究 ..... 31  
堤 智昭
3. 汚染物質摂取量推定法の精密化に関する研究 ..... 53  
渡邊 敬浩
4. 汚染物質検査データ等の解析に基づく摂取量推定対象の選択方法に関する検討 ..... 65  
松田りえ子
5. 難分解性汚染物 (POPs) の摂取量推定に必要な分析法の開発 ..... 83  
天倉 吉章
6. 食品における有機臭素系化合物の汚染調査 ..... 137  
芦塚 由紀

### III. 研究成果の刊行に関する一覧表 ..... 161

# 総括研究報告

食品を介したダイオキシン類等有害物質摂取量の評価と  
その手法開発に関する研究

松田 りえ子

食品を介したダイオキシン類等有害物質摂取量の評価と  
その手法開発に関する研究

総括報告書

研究代表者	松田りえ子	国立医薬品食品衛生研究所食品部
研究分担者	堤 智昭	国立医薬品食品衛生研究所食品部
研究分担者	渡邊敬浩	国立医薬品食品衛生研究所食品部
研究分担者	天倉吉章	松山大学 薬学部
研究分担者	芦塚由紀	福岡県保健環境研究所

研究要旨

種々の化学物質のヒトに対する暴露及びそれに伴う健康影響リスク評価と低減を目的とし、食品からの有害物質摂取量評価に係る研究を実施した。研究は、有害化学物質摂取量推定研究、摂取量推定のための方法論確立研究、摂取量推定を目的とした分析法開発研究の3つに大別されるが、相互に関連している。

有害化学物質摂取量推定研究では、TD 試料分析によるヘキサクロロシクロヘキサン(HCH)類、DDT 類、ディルドリン、ヘプタクロルエポキサイド(HCE)、ヘキサクロロベンゼン(HCB)、PCBs、マラチオン、MEP、ダイアジノン、鉛、カドミウム、ヒ素、水銀、銅、マンガン、亜鉛、ダイオキシン類の摂取量を推定した。また、ダイオキシン類については、魚介類ならびに弁当中の濃度実態も調査した。分析結果がNDであるデータが多い場合の摂取量計算において、定量限界あるいは検出限界が不統一であり現在の計算方法が不適切である可能性が明らかになったため、今後の摂取量推定のための方法論確立研究課題とした。

摂取量推定のための方法論確立研究では、健康リスク評価に有用な精確な摂取量推定方法の確立を目指した。水銀の健康リスク評価のため、メチル水銀摂取量評価のため、フェニル誘導体化後 GC-MS で分析する方法を開発し、性能評価を行った。食品中の有害物質分析結果のデータベースから、検出率が上昇している農薬等を選択し、今後摂取量評価を実施していく化学物質の候補とした。

摂取量推定を目的とした分析法開発研究では、ダイオキシン類の簡易分析法である高感度 CALUX アッセイのスクリーニング法としての性能を評価した。分析結果に影響を与える、野菜・果実中のダイオキシン様活性を持つ物質を探索した。水酸化 PCB を誘導体化せずに分析可能な方法を検討した。臭素系ダイオキシン(PBDD/DFs, MoBrPCDD/DFs)及び代表的な臭素系難燃剤の分析法を検討した。有機臭素化合物の1つであるヘキサブロモシクロドデカン(HBCDs)の TD 試料中濃度を測定し、摂取量を推定した。

# 有害化学物質摂取量推定研究

## A. 研究目的

種々の化学物質のヒトに対する暴露およびそれに伴う健康影響リスクは、社会的に関心が高い事項の1つである。化学物質のヒトへの暴露量の90%以上は、食事を介していると考えられており、食品からの化学物質のヒトへの暴露を把握することが重要である。本研究では、このような化学物質摂取量推定のために、マーケットバスケット方式により調製したトータルダイエツト試料(TD)試料を用いて、化学物質摂取量調査研究を行った。摂取量評価対象とした化学物質は、ヘキサクロロシクロヘキサン(HCH)類、DDT類、ディルドリン、ヘプタクロルエポキサイド(HCE)、ヘキサクロロベンゼン(HCB)、PCBs、マラチオン、MEP、ダイアジノン、鉛、カドミウム、ヒ素、水銀、銅、マンガン、亜鉛、ダイオキシン類である。

TD試料によるダイオキシン類のこれまでの摂取量推定研究によれば、ダイオキシン類摂取量の約99%が魚介類、肉・卵類、乳製品類に由来している。そこで、これら摂取への寄与が大きい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、鮮魚および魚加工品中のダイオキシン類の汚染調査を実施した。また、一食の形態で提供される弁当については、ダイオキシン類汚染調査が不足しているため、市販の弁当30試料(寿司、焼き魚・煮魚、及び揚げ物)中のダイオキシン類を分析し、一食当たりダイオキシン類摂取量を算出した。

## B. 研究方法

### 試料

日常食のモデルとしてマーケットバスケット方式によるTD試料を調製した。各機関はそれぞれ独自に食品を購入し、地域別食品摂取量に基づいて、それらの食品を計量し、食品によっては調理した後、13群に大別した食品群ごとに混合均一化して試料とした。

試料に含める食品数を多くすることと、地域による食品摂取パターンの違いについても考慮することを目的に、HCH類から亜鉛までの摂取量推定のためのTD試料は、全国11カ所の衛生研究所および大学で調製した。ダイオキシン類摂取量推定用のTD試料は、全国7地区8機関で調製した。ダイオキシン類の主要な摂取源と考えられる第10~12群は、魚種、産地、メーカー等が異なる食品を含めて、各機関3セットずつ調製した。

ダイオキシン類汚染調査のための試料は、鮮魚(15)、魚加工品(25)、及び弁当(寿司13、焼き魚・煮魚13、及び揚げ物4)とした。弁当については、米飯を除いた具材を均一化し試料とした。

### 一日摂取量の計算方法

HCH類から亜鉛までの摂取量は、全機関から得られた摂取量の平均値とした。分析結果がそれぞれの機関の定量限界(LQ)以下(ND)の場合に濃度を0として計算した結果(ND=0)と、LQの1/2の濃度として計算した結果(ND=LQ/2)の2種類の推定値を計算

した。

ダイオキシン類の1日摂取量は体重あたりの毒性等量( $\mu\text{gTEQ/kg bw/day}$ )で示し、2005年に定められたTEFを使用した。分析値が検出限界以下の異性体濃度を0とした値( $\text{ND}=0$ )と、個々の異性体の検出限界濃度の1/2とした値( $\text{ND}=\text{LOD}/2$ )を計算した。

第10～12群は機関毎に3試料からの分析値が得られるので、各群のダイオキシン類摂取量の最小値を組み合わせ得られる値、中央値の組み合わせ、最大値の組み合わせた摂取量の3種類を計算した。

## C. 研究結果

### HCH類～PCBsの摂取量

HCH類は10群を除く全ての群で、11試料全てがNDであった。摂取量推定値は、 $\text{ND}=0$ としたときには $0.009 \mu\text{g/man/day}$ 、 $\text{ND}=\text{LQ}/2$ としたときは $0.238 \mu\text{g/man/day}$ となり、両者間に大きな差が認められた。DDT類は10群における5-7試料で検出され、12群、4群・7群・11群の試料からも検出された。摂取量推定値は、 $\text{ND}=0$ としたときには $0.209 \mu\text{g/man/day}$ であり、HCH類と比較してかなり高い。また $\text{ND}=\text{LQ}/2$ としたときは $0.372 \mu\text{g/man/day}$ となり、HCH類のようなNDの扱いの違いによる大きな差は見られなかった。他の塩素系農薬は、ほとんどの群で検出された試料がなく、10群においてHCBが5試料から検出されたのが最も多い例であった。この結果、 $\text{ND}=0$ としたときの摂取量推定値は、HCH類等と同程度の非常に低い値となった。また、ディルドリンのLQを高く設定している機関があったため、 $\text{ND}=\text{LQ}/2$ とした場合のディルドリン摂取量推定値は $0.4 \mu\text{g/man/day}$ と、他の塩素系農薬よりもや

や高い値となった。PCBsは10群では全ての試料から検出されたが、その他では11群の1試料から検出されたのみで、 $\text{ND}=0$ とした摂取量推定値は $0.317 \mu\text{g/man/day}$ 、 $\text{ND}=\text{LQ}/2$ とした摂取量推定値は $1.2 \mu\text{g/man/day}$ となった。

有機リン系農薬も有機塩素系農薬と同様に検出率が低く、 $\text{ND}=0$ とした場合は、マラチオンが $0.071 \mu\text{g/man/day}$ 、MEPが $0.039 \mu\text{g/man/day}$ 、ダイアジノンが $0 \mu\text{g/man/day}$ 、 $\text{ND}=\text{LQ}/2$ とした摂取量推定値はそれぞれ $1.250 \mu\text{g/man/day}$ 、 $1.222 \mu\text{g/man/day}$ 、 $1.196 \mu\text{g/man/day}$ であった。有機リン系農薬のLQが $0.001 \mu\text{g/g}$ のレベルであり、有機塩素系農薬の10倍となっていることが、 $\text{ND}=\text{LQ}/2$ として推定した摂取量が大きくなる原因の一つと考えられる。

### 金属の摂取量

金属類は全ての群で複数の試料から検出された。銅、マンガン、亜鉛は大部分の群において半数以上の試料から検出された。鉛は、全ての群で複数試料から検出されており、検出された試料数は3-7で、特定の群において検出率が高くなる傾向は認められなかった。カドミウムは7群、8群、10群で全ての試料から検出されており、1群、2群、5群では10試料から検出されているが、4群、6群、12群では検出された試料数は少なかった。ヒ素はカドミウムと似た傾向を示し、1群、8群、10群で多数の試料から検出されている。水銀は、金属中で最も検出される食品群が偏っており、10群においては全ての試料から検出されたが、他の群で検出された試料数は全試料の半数である6以下であった。

NDの数値の取り扱いによる金属類摂取

量推定値の違いは、塩素系農薬のように顕著ではなく、銅、マンガン、亜鉛では $ND=LQ/2$ とした摂取量推定値と $ND=0$ とした摂取量推定値は、1%程度の差であった。ヒ素では2つの摂取量推定値は $180 \mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ と $185 \mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ であり、両者の差は3%程度であった。カドミウムの2つの摂取量推定値は $19.1 \mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ と $20.8 \mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ であり、両者の差は10%程度であった。水銀は全試料の70%が $ND$ であったため、摂取量推定値は $ND=0$ としたときに $6.8 \mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、 $ND=LQ/2$ としたときには $8.8 \mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ となり、両者の間に30%の差が認められた。鉛が検出された試料は全試料の45%であり、水銀の場合よりは検出率が高い。一方、2つの計算方式による摂取量推定値は、 $14.6 \mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ と $28.3 \mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ であり、2倍の開きが認められた。

金属類の摂取量をTWIあるいはPTWIと比較した。鉛のPTWIは $25 \mu\text{g}/\text{kg bw}/\text{week}$ (= $179 \mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ )であり、 $ND=LQ/2$ として推定した摂取量( $28.3 \mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ )及び $ND=0$ とした摂取量( $14.6 \mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ )はPTWIのそれぞれ16%および8%に相当した。カドミウムのPTWIは $7 \mu\text{g}/\text{kg bw}/\text{week}$ (= $50 \mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ )であり、 $ND=LQ/2$ とした摂取量( $20.8 \mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ )は42%に相当した。

メチル水銀のTWIはJECFAが $1.6 \mu\text{g}/\text{kg bw}/\text{week}$ としている。本研究では総水銀としての摂取量のみを推定しており、直接メチル水銀のTWIと比較することはできないが、水銀摂取量の $8.8 \mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ (= $1.23 \mu\text{g}/\text{kg bw}/\text{week}$ )から予想されるメチル水銀摂取量の対TWI比は50%を超えている可能性もある。メチル水銀の摂取量を推定する方法の確立が急務と考えられる。

無機ヒ素に $15 \mu\text{g}/\text{kg bw}/\text{week}$ (= $107 \mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ )のPTWIが設定されている。総ヒ素摂取量は180あるいは $185 \mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ であり全てが無機ヒ素であればPTWIを超えることにもなるため、ヒ素においても水銀と同様に、有機ヒ素と無機ヒ素の個別の評価が必要である。

本摂取量推定研究開始は1977年である。それ以来の摂取量の推移を概観した。総HCH摂取量は調査開始当初は $2 \mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ であったが、徐々に減少し2000年頃から $0.1 \mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 以下の状態が継続している。総DDTの摂取量は調査開始当初は $4 \mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ であったが、HCH類と同じく徐々に減少し、2000年以降は $0.3 \mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 付近でほぼ一定している。DDT類はHCH類に比較して検出頻度が高く、最近10年間の減少傾向はみられていない。その他の塩素系農薬も、2000年頃から摂取量は低いレベルで一定している。PCBs摂取量は1995年頃まではHCH類と同じく減少したが、その後減少の程度が緩やかになり現在に至っている。有機リン系農薬中マラチオンおよびMEPは、調査初期には $1 \mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 程度の摂取量であったが、1995年頃からは $0.1 \mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 以下の低い摂取量となる年が多くなった。ダイアジノンは、調査開始時から一貫して低い摂取量となっている。金属類は農薬およびPCBsと比較して、摂取量の変化が少ない。その中で、鉛の摂取量は30年間で徐々に低下する傾向が認められ、調査開始時にはカドミウムの2倍の摂取量であったが、直近の10年では同程度となっている。

Global Environment Monitoring System (GEMS)では、 $ND$ を含むデータセットから

平均値を求める方法を示している。ここでは、定量されなかった値が全データの60%以下の場合、NDである試料の濃度をLODの1/2とするとされているが、全試料についてLODが一定である(あるいは大きく違っていない)ことが仮定されている。定量されない値の割合が60%以上に増えた場合の計算でも、LODが一定とみなせることが求められている。

本研究で測定した有機塩素系農薬、有機リン系農薬、PCBsのデータは、ほとんど全ての群でNDとなる試料が80%以上であり、参加機関間でのLQの差が大きく、計算の前提であるLODが一定あるいはほぼ同程度とはみなされない。LQあるいはLODを適切に設定しなければ、信頼性のある摂取量を推定できない状態にある。

#### ダイオキシン類摂取量

ダイオキシン類中、PCDD/PCDFsの1日摂取量は、ND=0の場合、平均11.95 pgTEQ/dayであった。体重(kg)あたりの1日摂取量に換算すると、平均0.24 pgTEQ/kg bw/dayとなった。ND=LOD/2の場合は、平均55.36 pgTEQ/dayであり、体重あたり平均1.11 pgTEQ/kg bw/dayであった。

PCDD/PCDFs摂取量に対する寄与率が高い食品群は、ND=0の場合、10群(魚介類)85.8%、11群(肉・卵類)10.9%であり、これら2つの群で全摂取量の96.7%を占めた。

Co-PCBsの1日摂取量は、ND=0の場合、平均28.72 pgTEQ/dayであり、体重あたり平均0.57 pgTEQ/kg bw/dayであった。ND=LOD/2の場合の摂取量は、平均43.17 pgTEQ/dayであり、体重あたりとすれば、平均0.86 pgTEQ/kg bw/dayであった。Co-PCBs摂取量に対する寄与率が高い食品

群は、ND=0の場合、10群(魚介類)97.1%、11群(肉・卵類)2.7%であり、これら2つの群で全摂取量の99.8%を占めた。

PCDD/PCDFsとCo-PCBsを合わせたダイオキシン類の1日摂取量は、ND=0の場合、平均40.67 pgTEQ/day、体重あたり摂取量は平均0.81 pgTEQ/kg bw/dayであった。ND=LOD/2の場合の1日摂取量は、平均98.53 pgTEQ/dayであり、体重あたり摂取量は平均1.97 pgTEQ/kg bw/dayであった。ダイオキシン類摂取量に対する寄与率が高い食品群は、ND=0の場合、10群(魚介類)93.8%、11群(肉・卵類)5.1%であり、これら2つの群で全摂取量の98.9%を占めた。ダイオキシン類摂取量に占めるCo-PCBsの割合は、ND=0の場合、71%であった。

平成22年度のダイオキシン類摂取量0.81 pgTEQ/kg bw/dayは、平成10年度以降の調査結果の中で最も低い値であった。2番目に低い値は平成21年度の0.84 pgTEQ/kg bw/dayであり、平成18年度から22年度の5年間の摂取量推定値は、1.0 pgTEQ/kg bw/day以下のレベルで推移している。調査開始時の平成10年度及び11年度のダイオキシン類摂取量は1.75および1.92 pgTEQ/kg bw/dayであり、これらの値と比較すると、最近の摂取量は50%程度まで低下している。平成10年度から18年度までは低下傾向が大きかったが、18年度以降はほぼ一定した摂取量となっている。

#### 個別食品中のダイオキシン濃度調査

鮮魚中のダイオキシン類濃度はイワシが0.48~1.9 pgTEQ/g、ウナギが0.28~8.6 pgTEQ/g、及びスズキが0.20~0.86 pgTEQ/gであった。魚加工品では、アジ干物が0.26~2.6 pgTEQ/g、塩サケが0.076~0.30 pgTEQ/g、塩



サバが 0.35~1.2 pgTEQ/g, イワシ缶詰が 0.055~3.3 pgTEQ/g, 魚醬が 0~0.000070 pgTEQ/g であった. ウナギの 1 試料で比較的高い 8.6 pgTEQ/g のダイオキシン類濃度が認められたが, それ以外は過去 3 年間に実施された鮮魚のダイオキシン類濃度(0.10~6.9)の範囲内であった. また, 魚醬のダイオキシン類濃度は他の加工品と比較し著しく低かった. 鮮魚及び魚加工品では 1 試料を除き, Co-PCBs 類濃度が PCDD/Fs 濃度よりも高い結果であった.

弁当 30 試料の分析結果は同種の弁当間でも大きく異なっていた. 濃度が 1.0 pgTEQ/g 以上となった弁当はサバ鮭とブリ照り焼きであった. どちらも脂肪含量が高い魚を使用しているため, ダイオキシン類濃度が高くなったと考えられる. 弁当を食材の種類により寿司, 焼き魚・煮魚, 揚げ物の 3 つのカテゴリーに分類し, ダイオキシン類濃度をまとめた. 寿司が 0.037~2.3 pgTEQ/g, 焼き魚・煮魚が 0.051~3.3 pgTEQ/g, 揚げ物が 0.0073~0.21 pgTEQ/g であった. 寿司及び焼き魚・煮魚のダイオキシン類濃度は揚げ物と比較し高かった. 揚げ物ではダイオキシン類濃度が比較的低い白身魚やエビ等を使用するためダイオキシン類濃度が低くなったと考えられる.

弁当 1 食を食した場合(飯は除く)に摂取するダイオキシン類量は TDI(200 pgTEQ/day)の半分以下であった. 焼き魚弁当(ブリ照り焼き)1 試料のみが TDI を超過し(約 3 倍)であった. 寿司では 1 食分からのダイオキシン類摂取量が TDI を超えた試料はなかった.

#### D. 結論

HCH 類~亜鉛の摂取量推定研究からは以下の結論が得られた.

1. 分析環境の改良と LOD 推定法の統一, あるいは分析機関を統一することにより, LOD をより低い一定の値に揃えていくことが, 正しい摂取量推定のために必要であり, 本研究の一分野である摂取量推定のための方法論研究で取り組む必要がある.
2.  $ND=LQ/2$  として推定した鉛摂取量は 28.3  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ ,  $ND=0$  とした鉛摂取量は 14.6  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$  であり, 鉛の PTWI 25  $\mu\text{g}/\text{kg bw}/\text{week}$ (=179  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ )のそれぞれ 16% および 8% に相当する.
3.  $ND=LQ/2$  としたカドミウムの摂取量は, PTWI 7  $\mu\text{g}/\text{kg bw}/\text{week}$ (=50  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ )の 42% に相当する.
4. メチル水銀の TWI は JECFA が 1.6  $\mu\text{g}/\text{kg bw}/\text{week}$  としている. 本研究では総水銀としての摂取量のみを推定しており, 直接メチル水銀の TWI と比較することはできないが, 8.8  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$  (=1.23  $\mu\text{g}/\text{kg bw}/\text{week}$ ) から予想されるメチル水銀摂取量の対 TWI 比は 50% を超えている可能性もある. メチル水銀の摂取量を推定する方法の確立が急務であり, 摂取量推定のための方法論研究で検討を進めている.
5. 無機ヒ素に 15  $\mu\text{g}/\text{kg bw}/\text{week}$  (=107  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ )の PTWI が設定されている. 推定されたヒ素摂取量は 180 あるいは 185  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$  であり全てが無機ヒ素であれば PTWI を超えることにもなるため, ヒ素においても水銀と同様に, 有機ヒ素と無機ヒ素の個別の評価が必要である.

ダイオキシン類摂取量推定研究からは以下の結論が得られた.

1. ダイオキシン類摂取量の全国平均値 (0.81 pgTEQ/kg bw/day) は, 日本における

TDI(4 pgTEQ/kg bw/day)の1/5程度であり、最大値の1.61 pgTEQ/kg bw/dayもTDIの半分以下であった。

2. ダイオキシン類は第10～12群の食品(魚介, 肉・卵, 乳, 乳製品)から99%以上が摂取され, 90%以上が魚介の群から摂取されている。また, 71%はCo-PCBsによるものであった。ダイオキシン類摂取量を低減するためには, 主に魚介類中のダイオキシン類, 特にCo-PCBs濃度を低減化することが効果的であると考えられる。

3. 国内で摂取される魚介類中のダイオキシン濃度は広い範囲に分布していると推定され, より正確な摂取量推定を行うためには, 10～12群特に10群の試料数を多くして, 広範な魚介類を含めることが重要である。

4. 本年度のダイオキシン類摂取量の平均値は0.81 pgTEQ/kg bw/dayであり, 平成10年度以降で最も低い値であった。ダイオキシン類摂取量は平成10年度に比較すると半分程度に減少しているが, 平成18年度以

降については明らかな減少傾向は認められない。食品の安全を確保するため, 今後も推移を確認していく必要がある。

個別食品中のダイオキシン濃度調査研究からは以下の結論が得られた。

1. 鮮魚(イワシ, ウナギ及びスズキ)中のダイオキシン類濃度は0.20～8.6 pgTEQ/gの範囲内であった。また, 加工品(アジ干物, 塩サケ, 塩サバ, イワシ缶詰及び魚醤)のダイオキシン類濃度は0～3.3 pgTEQ/gの範囲内であった。ウナギの1試料で比較的高いダイオキシン類(8.6 pgTEQ/g)が検出された

2. 弁当のダイオキシン類調査の結果, 寿司で0.037～2.3 pgTEQ/g, 焼き魚・煮魚で0.051～3.3 pgTEQ/g, 揚げ物で, 0.0073～0.21 pgTEQ/gのダイオキシン類が検出された。弁当1食からのダイオキシン類摂取量は殆どの試料でTDIの半分以下であった。焼き魚弁当1試料からの摂取量のみがTDIを上回っていた。

## 摂取量推定のための方法論確立研究

### A. 研究目的

食品を介した有害化学物質の摂取量は、試料中に含まれる対象有害物質の分析結果に基づき推定される。信頼性ある摂取量推定値を得るためには、摂取量推定に要求される性能を満たした分析法を使用する事が重要である。摂取量を推定する対象となる化学物質の選定もまた検討すべき課題である。健康危害の恐れのある化学物質は多数あり、摂取量推定に割けるリソースは限られていることから、より重要な対象を選定して摂取量推定とリスク評価を行っていくことが重要である。

本研究では、以上の要求を考慮し、何の摂取量を推定するか、どのように推定するかという方法論について検討を行った。検討した内容は、メチル水銀分析法開発、摂取量推定すべき対象化学物質の探索方法検討である。

水銀には、無機水銀と有機水銀があり、有機水銀中で食品を介した摂食が特に問題となるのがメチル水銀である。メチル水銀はマグロやクジラ類のような大型水産動物に特に多く含まれていることが知られており、厚生労働省は、妊婦らを対象とした摂食に関する注意を喚起している。食品から摂取される水銀の健康影響を正しく評価するためには、総水銀の摂取量だけでなく、形態別、特にメチル水銀の選択的な分析結果が必要である。メチル水銀の分析法としては、GC-ECDを使用する方法が示されているが、有害溶媒の使用や機器性能としての選択性や安定性の点に多くの問題が認め

られる。そこで本研究では、メチル水銀摂取量推定を目的とし、その根拠となる分析結果を得ることが可能な分析法の開発を目指した。本年度は、抽出、精製、誘導体化、GC-MS測定条件の基礎検討を行い、認証標準試料を用いた性能評価を実施した。

健康影響を評価するために有効な、摂取量推定対象化合物の設定の一つのクライテリアとして、食品中から検出が増加しつつあることが考えられる。このような、検出率の時系列解析には、多数の実態調査データが必要である。本研究では、全国の衛生研究所の協力を得て、食品中の汚染物検査データの収集を行い、データベース化している。この事業は、1980年頃から継続しており、食品中の汚染物の検出率および濃度の推移を示す貴重なデータとなっている。これらのデータは、食品中に残留する有害化学物質の時系列的な傾向を示しており、これを解析・抽出することにより、検出率が増加している化学物質を知ることができる。そこで、このデータベース中から最近の約10年間（1998年から2010年）に報告された、残留農薬等のデータを抽出し、これを解析して検出率が増加している農薬の探索を実施した。

### B. 研究方法及び研究結果

#### メチル水銀分析法に関する研究

メチル水銀をフェニル誘導体化した後にn-ヘキサンに抽出し、GC-MSにより測定する分析法を検討した。低濃度のメチル水銀を精確に定量できることを目的として、

GC-MSによる測定条件を最適化した。また、分析法の頑健性を担保するために、カートリッジカラム精製による誘導体化反応副生成物除去法を検討した。抽出条件の検討は、メチル水銀含有量が明らかな認証標準試料を用いて実施した。

検討の結果、1 mol/L 臭化カリウム溶液及び硫酸銅(II)飽和 4 mol/L 硫酸の存在下でトルエンによりメチル水銀を抽出した後、1%システイン溶液に逆抽出し、フェニル誘導体化の後、GC-MSで測定する方法を確立した。

タラ、マグロ、メカジキおよびツノザメを基材とする5種の認証標準試料を用いて、開発した分析法の性能を評価した。各試料を1日あたり2併行で分析し、これを5日実行し、得られた結果から真度、併行精度、室内精度を推定した。全ての試料について、厚労省が通知する「食品中の金属に関する試験法の妥当性評価ガイドライン」に示された目標値を満たす性能パラメータが得られた。これにより、本分析法の基本的な妥当性が確認された。

#### 摂取量推定対象化学物質の選択手法研究

全国の地方衛生研究所等から食品中の有害化学物質検査データを収集し、データベース化を継続して実施している。本年度は668,946件のデータが報告され、食品部サーバーには累計約640万件のデータが保存された。

各年度において、収集したデータを集計し、この結果から検査数、検出率の高い食品及び化学物質を明らかにしている。本年度の検査数の多い食品は、

豚肉(308)、卵(281)、牛肉(265)、鶏肉(244)であった。2008年から、加工食品の検査数が増加し、本年も217試料が検査対象となった。検査数の多い野菜・果実類は、きゅうり、ほうれんそう、ブロッコリー、グレープフルーツ、なす、バナナ、ねぎ、トマト、キャベツ、オレンジ、かぼちゃ、さといも、にんじん、いちごであった。農薬等の検出率が高い食品は、柑橘類をはじめとする果実が多く、次いで比較的軟弱な野菜であった。一方、検査数の多い動物性の食品における農薬等の検出率は全て1%以下であった。

検査数の多い農薬等はマラチオン、クロルピリホス、ダイアジノン等の有機リン系農薬、及びピレスロイド系農薬であった。検出率の高かった農薬等はイマザリル、オルトフェニルフェノール、カルベンダジム、ロイコマラカイトグリーン、イミダクロプリド、アセタミプリド、チアベンダゾール、アゾキシストロビン、トリベヌロンメチル、クロルピリホス、フルフェノクスロン、ピラクロストロビン、クレソキシムメチル、シペルメトリン、プロシミドン、クロルフェナピル、ボスカリド、クロチアニジン、24Dであった。これらの農薬中には複数残留する農薬が含まれており、使用頻度が高いと農薬類と考えられる。一方、検査数の多い有機リン系農薬はクロルピリホスを除いて検出率はあまり高くなく、例えば最も検査数の多いマラチオンの検出率は1%以下の0.2%であった。

1998年から2010年のデータから、農薬等の検出率の推移を求めた。有機リン系農薬であるクロルピリホス、マラチオン、フェニトロチオンは常に検査数の上位にある

が、その検出率は、クロルピリホスが最も高く2.6~4.6%である他は、マラチオンが0.2~1.2%、フェニトロチオンが0.34~1.2%程度であった。イマザリル、オルトフェニルフェノール(OPP)、チアベンダゾール(TBZ)は、1998~2005年には15~35%の検出率であったが、その後低下している。プロシミドン、イプロジオン、シペルメトリン、クロルフェナピルは2003年頃から一定して2~4%検出されている。検出率が上昇している農薬等は、アセタミプリド、フルフェノクスロン、クレソキシムメチル、アゾキシストロビン、イミダクロプリドであった。これらの農薬は1998年には全く検出されていないが、徐々に検出率が増加している。最近の数年間で検出率が上昇している農薬は、クロチアニジン、チアメトキサム、ボスカリド、ピラクロストロビンであった。

1 試料に4種類以上の農薬等が検出された試料数は、1998年は12であったが、徐々に増加して2007年は55、2008年は88、2009年は79、2010年は100となり、年々その数が増加している。複数の農薬等が残留していた食品は、りんご、桜桃、なし、いちご、ピーマン、きゅうり、枝豆等で、果実あるいは軟弱な野菜が主であった。

1998年頃は複数残留する農薬等は、クロルピリホス、イマザリル、オルトフェニルフェノール、チアベンダゾール等が主であったが、2009年および2010年はアセタミプリド、クレソキシムメチル、クロルフェナピル、アゾキシストロビン、ピフェントリン、イミダクロプリド、プロシミドンが多く、検出率が上昇している農薬等とほぼ

一致している。

### C. 結論

メチル水銀摂取量推定法に関する研究からは、以下の結論が得られた。

1. フェニル誘導体化を介したメチル水銀のGC-MSによる新規分析法を開発し、その性能を認証標準試料の分析を通じて評価した。この結果に基づき、妥当な分析結果の得られる方法であると判断した。
2. 今後、摂取量推定に使用する試料を中心に、様々な食品試料への適用性またそれら試料中での定量限界を検証した後、水銀の形態別摂取量推定を行う予定である。

摂取量推定対象化学物質の選択手法研究からは以下の結論が得られた。

1. 最近13年間の農薬等の検査データを解析し、農薬ごとに検出率の変動があることを明らかにした。
2. 本研究の摂取量推定研究を行っている対象農薬類は、大部分の食品群試料から検出されることがなく、摂取量もきわめて低い。一方、有機リン系農薬であってもクロルピリホスの検出率は3~4%であり、また、イミダクロプリド・アセタミプリド・クロチアニジン・チアメトキサムのようなネオニコチノイド系農薬の検出率も上昇傾向にあり、摂取量を正確に把握し、リスクを評価する必要があると考えられる。

## 摂取量推定を目的とした分析法開発研究

### A. 研究目的

健康への影響が懸念され、今後摂取量を評価すべきと考えられる化学物質について、トータルダイエツト試料あるいは広範囲の食品に適用可能な分析法を確立することは、化学物質の健康影響評価における基本的な段階である。本研究分野では、環境に残存しやすい POPs 類を対象とし分析法開発を行った。

本研究の摂取量推定研究においてダイオキシン摂取量が評価されているが、その分析は時間・コストが高い。摂取量推定研究で明らかにした通り、我が国では魚を介したダイオキシン類の摂取量が多いため、魚におけるスクリーニング法が望まれている。この目的では、培養細胞を用いたレポーター遺伝子アッセイ (CALUX アッセイ) が早くから検討されており、食品中のダイオキシン類濃度に対応するための、高感度を行ってきた。本年度は、魚を対象にして、開発した高感度 CALUX アッセイの性能評価を実施した。

また、CALUX アッセイのようなバイオアッセイでは、ダイオキシン様物質の影響の除去が課題となる。天然 AhR アゴニスト (ダイオキシン様物質) がかなり高い AhR 活性 (ダイオキシン様活性) を示すことが明らかになっているが、食品中のダイオキシン様物質に関する情報は少なく、天然のダイオキシン様活性物質の健康影響も調査すべき重要な課題であることから、食頻度の高い野菜、果物、ハーブ、健康食品エキス原料の計 30 種を選択し、含有する天然

AhR 活性 (ダイオキシン様) 物質を探索した。

ポリ塩化ビフェニル (PCBs) は化審法により特定化学物質に指定される環境汚染物質である。近年、環境水や底質、生物試料等の環境媒体において、PCBs の化学構造が変化した種々の PCBs 代謝物が検出されており、一部の PCBs 代謝物は母化合物の PCBs よりも強い毒性を有することが示されているが、PCBs 代謝物の食品汚染実態は明らかでない。本研究では、代表的な PCBs 代謝物である、PCBs 水酸化体 (OH-PCBs) を対象とし、食品中の微量の OH-PCBs を高い精度で計測できる手法の確立を目指した。

難燃剤の中でも比較的残留性が高い、有機臭素系化合物の臭素系難燃剤は世界中で使用されており、人体への影響及び毒性の高い臭素系ダイオキシン類の発生が懸念されてきた。臭素系有機化合物の摂取量を推定するため、臭素系ダイオキシン (PBDD/DFs, MoBrPCDD/DFs) 及び代表的な臭素系難燃剤の臭素化ジフェニルエーテル類 (PBDEs), テトラブロモビスフェノール A (TBBPA), ヘキサブロモシクロドデカン (HBCDs), 臭素化ビフェニル (PBBs), デカブロモジフェニルエタン (DBDPE) を分析対象とし、食品試料の前処理法や機器分析における測定法の検討を行った。また、HBCDs について九州地区におけるマーケットバスケット試料を分析し摂取量を推定した。

多環芳香族炭化水素 (PAHs) は芳香環を二

つ以上持つ炭化水素化合物の総称であり、Benzo[a]pyrene(BAP)をはじめ、発ガン性の疑いがある物質が多く含まれている。PAHsには種々の化合物が存在するが、欧州食品科学委員会(SCF)や食品添加物専門家会議(JECFA)を中心にリスク評価が行われ、モニタリングすべき 16 種の PAHs (以下、PAHs16 種と表記) が提案されている。本研究では、PAHs16 種を網羅的に分析できる分析法の開発を目的とし、安定同位体を使用した GC-MS/MS による分析の開発を目標として、分析条件の予備検討を実施した。

## B. 研究方法及び研究結果

### 高感度 CALUX アッセイの性能評価

まず、高感度 CALUX アッセイの基本性能を評価するために、種々のダイオキシン類に対する応答性を求め、さらに魚試料のマトリックスの影響の評価を目的として、希釈直線性試験を実施した。WHO-TEF が定められている 29 種の異性体に対する応答性は、多くの異性体で WHO-TEF の数倍以内の比率に収まっていた。特に、魚の毒性等量濃度において占める割合の高い異性体である、2,3,7,8-TCDD, 1,2,3,7,8-PeCDD, 2,3,7,8-TCDF, 1,2,3,7,8-PeCDF, 2,3,4,7,8-PeCDF 及び 3,3',4,4',5-PeCB における、本法の応答性は良好であった。

サーモン、スズキ及びブリの前処理済み試験液をヘキサンで段階希釈し、希釈測定時の定量値を初期濃度と比較することにより、希釈直線性試験を行った。その結果、PCDD/Fs 測定及び Co-PCBs 測定の両者において、希釈操作により定量値が 2 倍程度増加する場合は認められ、マトリックスの

影響が疑われた。

魚試料にダイオキシン異性体を添加し、高感度 CALUX アッセイで分析し回収率を確認すると共に、HRGC-HRMS 分析との比較おこなった。サーモンにおける回収率は、PCDD/Fs 分画で 76~99%、Co-PCBs 分画で 81~107%であった。マグロにおける回収率は、PCDD/Fs 分画で 61~84%、Co-PCBs 分画で 75~102%であった。高濃度の 2,3,7,8-TCDD の回収率が 61~69%とやや低い値が得られたが、スクリーニング法としては許容できる回収率であると考えられた。

魚試料 7 試料の高感度 CALUX アッセイによる分析結果と、HRGC-HRMS 分析によるダイオキシン毒性等量濃度を比較した。PCDD/Fs 測定における両者の相関係数は 0.93、Co-PCBs 測定における相関係数は 0.99 であった。高感度 CALUX アッセイ結果と HRGC-HRMS 分析結果の比は、PCDD/Fs で約 4 倍、Co-PCBs で約 0.8 倍であった。

### 食品由来ダイオキシン様物質の探索研究

野菜、果物、およびハーブ、健康食品エキス原料の試料 30 種類について、CALUX アッセイによる AhR 活性を測定した。試料の大半は 10~100 mg/mL の高濃度でも AhR 活性は認められなかったが、ホウレンソウ、ブロッコリー、ジャガイモ、セロリ、レモン、グレープフルーツ、ローズマリー、セージに高濃度域で AhR 活性が認められた。これらの結果は、以前の調査と一致しており再現性が確認された。

緑黄色野菜に含まれるインドール化合物は AhR 活性を示すことが報告されており、それらの影響が考えられ、活性成分の探索

は今後の課題である。

#### 水酸化ポリ塩化ビフェニル分析法開発研究

OH-PCBsを誘導体化せずに測定する方法(非誘導体化法)とメキシ体(OMe-PCBs)に誘導体化して測定する方法(メチル化法)を検討した。

非誘導体化法では、先ずキャピラリーカラムを選択した。19種類のカラムの適合性を、①各異性体がピークとして検出されていること、②ピークの形状が良好であること(ガウス分布型に近似していること)、③ピークが定量可能なレベル(強度)であること、の3つの観点から評価した。(5%フェニル)メチルポリシロキサン系の液相を有する多数のキャピラリーカラムでは、メーカーや商品の違いにより分離能が大きく異なり、性能の違いが認められた。

HP5MS, VF5MS 及び VF5ht のキャピラリーカラムで、OH-PCBs の定量が可能であった。測定条件を検討した結果、リテンションギャップの使用は、塩素数の多い異性体ではピークのテーリングを増大させる等、ピーク形状改善効果がないことが明らかとなった。GC の昇温における初期温度が、ピーク形状に大きな影響を与えることからこれを詳細に検討し、VF5MS (長さ 30m, 内径 0.25mm, 膜厚 0.1 $\mu$ m) を HRGC/HRMS に装着して行う GC 条件を確立した。本条件で、4'-OH-CB#72 と 4'-OH-CB#50 が分離されなかったが、その以外の 36 種類の OH-PCBs 同族体は分離可能であった。

メチル化法開発研究では、誘導体化試薬に硫酸ジメチルを選択した。反応効率と反応の安定性を検討することが誘導体化法の

今後の課題である。また、非誘導体との同時分析を目的として、VF5MS (長さ 30m, 内径 0.25mm, 膜厚 0.1 $\mu$ m) による分離を検討した結果、38 種類の OMe-PCBs を定量することが可能であった。

確立した測定条件により、OH-PCBs及び OMe-PCBsの検量線を作成した結果、すべての同族体で原点を通る $R^2=0.99$ 以上の直線が得られた。装置検出下限はOH-PCBsでは0.02~0.2 pg, OMe-PCBsは0.02~0.05 pgの範囲であった。感度はOMe-PCBsがやや優れているが、誘導体化法では反応効率が同族体によって異なり、反応の安定性も明らかでなく、これらは測定精度に少なからず影響を及ぼす要因である。よって食品中のOH-PCBs分析では、非誘導体化法の採用に十分な優位性があると考えられる。

#### 有機臭素化合物分析法開発研究

DBDPEのHRGC-HRMSによる測定条件を検討するとともに、DBDPE及びその他の臭素系難燃剤について、より簡便で高感度な測定法を確立するため、LC-MS/MS及びGC-MS/MSを用いた測定も検討した。

DB-5の15 mのカラムにより、HRGC-HRMSによるDBDPEが分析可能であった。同一のカラムを用いたGC-MS/MSによりDBDPEを分析したところ、HRGC-HRMSとほぼ同等の感度が得られたがやや不安定であった。PBDEsは3から10臭素化体まで良好なピークが得られた。3臭素化体の装置における検出感度はHRGC-HRMSとほぼ同等であったが、6臭素以上の高臭素化体の感度はHRGC-HRMSの1/2-1/5、DeBDEの感度は1/10程度であった。

APCI法によるLC-MS/MSによるDBDPE



及びPBDEsの測定条件を検討したが、DBDPEのピークは検出されなかった。低臭素化PBDEsは感度が悪くピークの検出は困難であったが、DeBDEはAPCIのネガティブモードで良好なピークが得られ、検出下限値は2 pgであった。HRGC-HRMSの装置検出感度より劣っているが、注入量を増やすことにより、同程度の試料の定量下限値が達成可能と考えられた。実試料において良好なピークが得られたことから、LC-MS/MS測定はDeBDEのみのモニタリングに有用であると考えられた。

次に、シリカゲルカラム、フロリジルカラム、液液分配、スルホキシドカラムによる精製を検討した。実試料への添加により分析法を評価したところ、1-7群のTD試料及び魚試料について40~70%の範囲の回収率が得られた。第4群と第7群についてはDMSO/ヘキサン分配の代わりにスルホキシドカラムを用いて精製を行った結果も、ほぼ同等の回収率が得られた。

TD試料中のHBCDs分析を行ったところ、第10群から主として $\alpha$ 、 $\gamma$ の異性体が検出され、その他の食品群からは検出されなかった。この結果から推定した一日摂取量は、ND=0とした場合が29.4 ng/kg/day、ND=LOD/2とした場合が30.5 ng/kg/dayであった。これらの値は、2007年度の結果の10倍近かったため、特に高濃度であった第10群試料構成食品のHBCDsを分析した。この結果、まさばに61.9 ng/gの高濃度のHBCDsが含まれていたことが明らかになった。

#### 多環芳香族炭化水素 (PAHs) 分析法開発研究

PAHs16種の測定のためのGC注入口温度

とピーク形状及び面積値の関係について検討した結果、ピーク形状には大きな影響は見られなかった。注入口温度は300°Cとした場合に最大の面積値が得られた。イオン源温度とピーク形状及び面積値の関係の検討の結果、イオン源温度が低いとピーク形状が悪化（テーリング）する傾向が認められた。ピーク形状が良好で最大の面積値が得られた325°Cをイオン源温度として選択した。選択した条件でPAHs16種及び内標準物質のピーク形状は良好であったが、5種のPAHsのベースライン分離が達成されなかった。

続いてGC-MS/MS条件を検討し、プリカーサーイオン、プロダクトイオン、コリジョンエネルギーを最適化した。構造の類似性から、共通のプロダクトイオンとなる場合が多く、選択的検出は困難であったため、極性の異なるGCカラムを用いた良好な分離が条件の検討が必要と考えられた。

#### C. 結論

高感度 CALUX アッセイの性能評価研究では、以下の結論が得られた。

1. 高感度 CALUX アッセイのダイオキシン類に対する相対的な応答性は、WHO-TEF とよく一致していた。
2. 魚試料に対する添加回収試験を行った結果、回収率は 61~107%であり、スクリーニング法として許容できる値であった。
3. HRGC-HRMS 分析結果と良い相関が得られたことから、魚中のダイオキシン類の毒性等量濃度をスクリーニングする方法として期待できる。

食品由来ダイオキシン様物質の探索研究

では、以下の結論が得られた。

1. ホウレンソウ、ブロッコリー、ジャガイモ、セロリ、レモン、グレープフルーツ、ローズマリー、セージの高濃度領域(10~100 mg/mL)にAhR活性が認められた。
2. ブロッコリーおよびローズマリー中の天然AhR活性因子について、その解明を行っている。

水酸化ポリ塩化ビフェニル分析法開発研究では、以下の結論が得られた。

1. 分析用キャピラリーカラムとしてVF5MS（長さ 30m, 内径 0.25mm, 膜厚 0.1 $\mu$ m）を採用して GC 条件の最適化を行った結果、38 種類の OH-PCBs を分離同定することができた。
2. OMe-PCBs 誘導体化法を検討した。OH-PCBs測定で用いたものと同様のカラム（VF5MS, 長さ30m, 内径0.25mm, 膜厚 0.1  $\mu$  m）とGC条件を用いてOMe-PCBsを測定した結果、38種類のOH-PCBsがすべてOMe-PCBsに誘導体化されたことが確認され、これらをクロマトグラム上でアサインすることができた。
3. OH-PCBsの感度は、OMe-PCBsに比べ多少劣るが、誘導体化に伴う反応効率や反応の変動を考慮すれば、遜色ない結果であり、誘導体化せずに測定する方法の実用性が示された。

有機臭素化合物分析法開発研究からは、以下の結論が得られた。

1. DBDPE 及びその他の臭素系難燃剤の機器分析による測定条件の検討、前処理条件の検討を行い、分析法を確立した。DMSO 分配に代用できる方法としてスルホキシド

カラムが有用であることが明らかとなった。

2. DBDPE は HRGC-HRMS と GC-MS/MS で測定が可能と考えられたが、HRGC-HRMS の方が若干感度は安定していた。
3. TD 試料中の HBCDs の分析結果から、HBCDs 摂取量は 29.4 ng/kg bw/day(ND=0)あるいは 30.5 ng/kg bw/day(ND=LOD/2)と推定された。
4. TD 試料の分析から求めた摂取量には、試料調製時に選択した食品種や生育場所の影響が大きく現れることから、平均摂取量の把握には、ある程度の期間地域や年度を変えて観察する必要があると考えられる。

多環芳香族炭化水素(PAHs)分析法開発研究からは、以下の結論が得られた。

1. 高分子量の PAHs について良好なピーク形状及び面積値を得るため、GC 注入口温度を 300 $^{\circ}$ C, イオン源温度を 325 $^{\circ}$ C に設定した。
2. PAHs16 種を GC-MS/MS 分析するためのモニターイオンの候補を選択した。
3. 一部の PAHs では、MS/MS 条件下でも他の PAHs と完全分離することはできなかった。

# 分 担 研 究 報 告

日常食からの汚染物質摂取量推定に関する研究

渡邊 敬浩

平成 22 年度厚生労働科学研究補助金 食品の安心・安全確保推進研究事業

食品を介したダイオキシン類等有害物質摂取量の評価と  
その手法開発に関する研究

研究分担報告書

日常食からの汚染物質摂取量推定に関する研究

研究代表者 松田りえ子 国立医薬品食品衛生研究所食品部

研究分担者 渡邊敬浩 国立医薬品食品衛生研究所食品部

研究要旨

化学物質摂取量推定のために、マーケットバスケット方式により調製したトータルダイエット (TD) 試料を用いて、化学物質摂取量の推定を行った。ヘキサクロシクロヘキサン(HCH) 類, DDT 類, ディルドリン, ヘプタクロルエポキサイド(HCE), ヘキサクロロベンゼン(HCB), PCBs, マラチオン, MEP, ダイアジノンは, 1977 年の調査開始当初に比べ摂取量が大きく低下している。また, 定量結果が得られる試料数が激減したため, 摂取量推定における ND となった結果の取り扱いにより, 推定値が大きく乖離する状況となった。

鉛, カドミウム, ヒ素, 水銀, 銅, マンガン, 亜鉛の摂取量には大きな変化は見られず, 定量結果が得られる試料の割合も高い。鉛, カドミウムは PTWI あるいは TWI に対する摂取量の比率も大きく, 今後も監視が必要である。水銀はメチル水銀として TWI が設定されているため, 安全性を評価するためにはメチル水銀としての摂取量推定値が必要である。無機ヒ素として PTWI が設定されているヒ素の評価においても同様に, 無機ヒ素の摂取量推定が必要である。

研究協力者 国立医薬品食品衛生研究所食品部 松田りえ子, 五十嵐敦子

協力機関

北海道立衛生研究所, 新潟県保健環境科学研究所, 横浜市衛生研究所, 福井県衛生環境センター, 名古屋市衛生研究所, 滋賀県衛生科学センター, 大阪府立公衆衛生研究所, 香川県環境保健研究センター, 宮崎県衛生環境研究所, 沖縄県衛生環境研究所, 別府大学