

201131003B (1/2)

厚生労働科学研究費補助金
食品の安全確保推進研究事業

生体試料バンクを有効活用した
食の安全と安心の基盤形成

平成21年度～23年度 総合研究報告書

1 / 2 冊

研究代表者・ 小泉 昭夫
京都大学大学院医学研究科

平成24(2012)年5月28日

目 次

I. 総合研究報告

- 生体試料バンクを有効活用した食の安全と安心の基盤形成 ----- 1
小泉 昭夫

(資料) 分析法の開発

1. 食事中試料の汚染化学物質のスクリーニング手法の検討----- 34
高菅 卓三
2. 短鎖塩素化パラフィンの分析手法の検討 ----- 41
高菅 卓三
3. 食事試料中の PFCs の高感度分析法の確立----- 49
小泉 昭夫
(藤井 由希子)
4. 日中韓の母乳試料中の長鎖有機フッ素化合物(Long chain PFCAs)
分析手法の確立 ----- 58
小泉 昭夫
原田 浩二
(藤井 由希子)

(資料) 懸念される物質のモニタリング

5. 汚染が懸念される物質のモニタリング-日中韓の食事試料：ポジティブリス
ト農薬、残留性有機汚染物質----- 65
小泉 昭夫
高菅 卓三
原田 浩二
6. 汚染が懸念される物質のモニタリング-日中韓の食事試料：短鎖塩素化パ
ラフィン・エンドスルファン----- 77
小泉 昭夫
高菅 卓三
原田 浩二
7. 汚染が懸念される物質のモニタリング-日中韓の食事試料：有機フッ素カ
ルボン酸----- 86
小泉 昭夫
(藤井 由希子)
8. 汚染が懸念される物質のモニタリング-日中韓越の母乳試料：残留農薬
および難燃剤----- 94
原口 浩一
(藤井 由希子)
9. 汚染が懸念される物質のモニタリング-日中韓の母乳試料：ポジティブ

リスト農薬-----	98
原口 浩一 (藤井 由希子)	
10. 汚染が懸念される物質のモニタリングー日本の母乳試料：日本人の化学 物質曝露実態ー臭素系汚染物質-----	102
原口 浩一 (藤井 由希子)	
11. 汚染が懸念される物質のモニタリング-日中韓の母乳試料の比較：ジコ ホール -----	116
原口 浩一 (藤井 由希子)	
12. 汚染が懸念される物質のモニタリングー日本の母乳試料：ペンタクロロ シクロペンタジエン類 -----	128
原口 浩一 (藤井 由希子)	
13. 汚染が懸念される物質のモニタリングー日中韓の母乳試料：ペンタク ロロシクロペンタジエン類 -----	144
原口 浩一 (藤井 由希子)	
14. 汚染が懸念される物質のモニタリングー日中韓の母乳試料：短鎖塩素化 パラフィン -----	157
小泉 昭夫 原田 浩二 高菅 卓三	
15. 日本における難分解性汚染物質のモニタリング (OH-PCB)-----	162
原口 浩一 (藤井 由希子)	
16. 汚染が懸念される物質のモニタリングー日本の生体試料：沖縄試料を用 いた、母乳・血液・食事の化学物質の残留分布結果-----	168
原口 浩一 (藤井 由希子)	
17. 日韓越での血液中難分解性有機フッ素化合物の汚染源の検討 -----	188
小泉 昭夫 原田 浩二 (藤井 由希子)	
18. 汚染が懸念される物質のモニタリングー日本の生体試料：日本人の化 学物質曝露実態ー現在と20年前の比較-----	197
原口 浩一 (藤井 由希子)	
19. 放射性セシウムの内部被曝の評価 -----	218

小泉 昭夫
渡辺 孝男
原田 浩二
(石川 裕彦)
(和田 安彦)
(人見 敏明)
(小林 果)
(新添 多聞)
(藤井 由希子)

(資料) 系統的持続的な試料の収集

20. 系統的持続的な試料の収集ーアジア地域の試料の整備----- 226

小泉 昭夫
渡辺 孝男
原田 浩二
(人見 敏明)
(新添 多聞)
(藤井 由希子)

21. 系統的持続的な試料の収集ー国内試料の採取 ----- 234

小泉 昭夫
原田 浩二
(人見 敏明)
(新添 多聞)
(藤井 由希子)

(資料) モニタリングデータを用いたモデリング

22. Environmental ecological modeling を用いた食事中鉛に対するヒト
曝露評価 ----- 240

小泉 昭夫
渡辺 孝男
原田 浩二
(人見 敏明)
(新添 多聞)

23. 大気輸送モデルを用いた短鎖塩素化パラフィン汚染源の推定
----- 265

小泉 昭夫
原田 浩二
(新添 多聞)

(資料) 国際協力とリスクコミュニケーション

24. 食の安全のための国際協力とリスクコミュニケーション
----- 282

小泉 昭夫

※()は研究協力者。

II. 研究成果の刊行に関する一覧表	-----	291
III. 研究成果の刊行物・別刷	-----	298

厚生労働科学研究費補助金（食品の安全確保推進研究事業）
総合研究報告書

生体試料バンクを有効活用した食の安全と安心の基盤形成

研究代表者 小泉 昭夫 京都大学医学研究科

研究要旨：

我が国の食料自給率はカロリーベースで40%程度であり、多くの食料を海外に依存している。食の安全を確保するために、平成18年の5月から、ポジティブリスト制度が導入されることになった。本制度は、画期的な法制度と考えられるのであるが、諸外国での不正な使用が行われてきたDDTなどのPOPs(Persistent Organic Pollutants)やメラミンなどは捕捉できない可能性がある。そこで、適切なリスク管理には、主な生産国および我が国でランダムサンプリングによる食事からの曝露評価の情報も活用することが安全である。また特殊な事例として乳児に関しては、母乳を通じた間接的な曝露評価を行うことも必要になる。我々の研究目的は、生体試料バンクを有効活用し、現行のポジティブリスト制度を補完し、食の安全と安心の基盤を強化することである。食事、生体試料中の汚染化学物質の分析手法の検討、汚染が懸念される物質への対応、継続的モニタリング、系統的持続的な試料の収集、汚染同定のための環境生態系モデリング手法の確立、日中韓3国の専門家による意見交換の諸活動を行った。

研究代表者
小泉 昭夫 京都大学医学研究
科・教授

分担研究者
渡辺 孝男 東北文教大学・教授
原口 浩一 第一薬科大学・教授
高菅 卓三 愛媛大学沿岸環境科
学研究センター兼島津テクノリサー
チ 部長
中塚 晴夫 宮城大学 教授
原田 浩二 京都大学医学研究
科・准教授

研究協力者
石川 裕彦 京都大学防災研究所
教授
和田 安彦 高知県立大学 教授

新添 多聞 京都大学医学研究
科・研究員
人見 敏明 京都大学医学研究
科・講師
小林 果 京都大学医学研究
科・研究員
藤井 由希子 京都大学医学研究
科・大学院生

1. 食事中試料の汚染化学物質の分析
手法の検討

課題1食事中試料の汚染化学物質のス
クリーニング手法の検討

A. 研究目的

化学物質曝露を捉える上で、既存の
情報に基づかず、探索することは、汚
染の未然予防に必要である。しかしな

から食品、生物試料は多種多量の成分から構成されているため、微量の汚染物質を捉えるためには、高感度、高分解能な分析方法が必要である。

ガスクロマトグラフ-飛行時間型 (Time Of Flight) 質量分析計 (GC-TOFMS) は、最近様々な分野に用いられつつある。環境分析における GC-HRTOFMS の高感度・高精度スクリーニング分析の有用性について評価した。

B. 研究方法

対象は環境試料、生物試料とした。微量物質の検索には、得られた抽出液の一部を分取してクリーンアップ後測定を行った。試料に含まれる成分の全体像を把握する為に、TIC の他、縦軸に m/z 、横軸に保持時間の2次元Mapを作成し、検出された成分のミリマススペクトルを抽出し、その精密質量から元素組成を計算ソフトにより推定した。一部の成分については標準物質による確認を行った。また、高分解能表示でのExact マスクロマトグラフィーにより、想定物質や類似物質の検索やSIM 法との比較を行った。評価した内容は、ミリマスの測定精度のばらつき、直線性、感度、定量性、一斉スクリーニング分析法の有用性などである。

C. 研究結果

ダイオキシンや主要POPs標準品を用いて、数pgの量で十分なシグナルノイズ比が得られ、全質量域のミリマススペクトルの理論値との差は0.3~1mDa以内と良好な精密質量測定精度であった。大量の成分が同時に溶出する場合には測定は困難となるため、前処理は必要であった。また近接イオン

がある場合には存在比の大きいイオンの影響で質量数がずれて目的イオンのピークが検出されなくなる等の問題があったが、その他は概ね良好で、検量線の変動係数も10%程度以内であった。

GC-TOFMS では、実試料でも微量レベルのミリマススペクトルが得られ、元素組成の推定が可能であった。幅広い範囲の精密質量のマススペクトルを1回または最小限の測定回数で取得して効率化を図った。GC-HRMS のSIM 法とGC-HRTOFMS のマスクロマトグラムを比較すると、測定感度は劣るが、ほぼ同様の測定結果が得られた。また、それ以上に一回の測定で得られる情報量の多さを有効に活用できることが可能であった。得られたクロマトグラムを相互比較することで、汚染物質のパターン比較などが容易になり、汚染原因の解明等にも役立てられると考えられる。

D. 考察

今回、GC-HRTOFMSでは測定感度は十分であり、また幅広い質量数にわたってスクリーニング可能であった。これは本課題の目的にかなったものであると考えられた。しかしながら、近接するイオンの妨害などについては留意する必要があった。環境、生物試料での測定から、各種汚染物質を捉えることができ、GC-HRMSでの結果と同等であることを示すことができ、TOFMS法の妥当性を検証できたと考えられた。今後、検体の測定を実施していく。

課題2 短鎖塩素化パラフィンの分析手法の検討

A. 研究目的

化学物質による曝露を捉える上で、同族体の同定、感度の高い検出機器の

使用は、汚染の未然予防に必要である。本研究では、ガスクロマトグラフ-飛行時間型(Time Of Flight)質量分析計(GC-TOFMS)を用い、短鎖塩素化パラフィンの同族体解析に応用し、化学イオン化による高感度分析法を検討した。

B. 研究方法

各同族体の感度は塩素数に大きく依存したため、異なる塩素含有量の標準溶液を使用した。まず、ポリ塩化デカンの13異性体の標準を分析し、塩素数と感度との関係が評価した。各塩素化デカンの異性体のピーク面積は、電子衝撃イオン化と化学イオン化で比較した。トータルイオンクロマトグラム(TIC)は、スキャンモード(質量範囲50-550)で得た。SIMは電子イオン化では $[M-2H_3Cl]^+$ 、化学イオン化では $[M-Cl]$ を選択した。それぞれの炭素鎖長(C10-13)の塩素化パラフィンについて、塩素化度45%、55%、65%およびそれらの1:1:1混合物を調製した。塩素含有量はEI/MSのTICのピーク面積に基づいて算出した。

塩素化度45%、55%、65%ののSCCPsの1:1:1混合物を希釈し、検量線に使用した。HRGC / ECNI / HRMSは、Hewlett-Packard 6890、サーモフィッシャーMAT 95 XLを用いた。キャピラリーカラムはDB-5MSを用いて、15m×内径0.25 mm、膜厚0.1 μ mで異性体が同時に溶出する条件とした。 $[M-Cl]$ のフラグメントを定量イオンとして用いた。

C. 研究結果

イオン化効率、異なる塩素数、塩素化位置の異性体ではECNI/TOFMSで

大きく異なっていたのに対し、EI/TOFMSでは、4倍以内であった。EI/TOFMSでは異なる塩素数でも比較的同等の感度が得られると考えられたため、標準溶液の塩素化割合を定量化するために用いた。

45%塩素含有度の塩素化デカン標準溶液では計算された塩素含有度は56.04パーセントであり、2、3塩素化SCCPsはEI / MSであっても低感度である可能性があった。一方、塩素化度55%溶液および65%溶液ではEI/MSで計算された結果と一致した。

各同族体の化学イオン化での定量には、 $[M-Cl]$ のピーク面積を用いて検量線を作成した。SCCPsの1:1:1混合標準の同族体濃度を、EI/MSで測定し、ピーク面積の割合に比例して同族体が含まれると仮定している。混合標準液を5段階希釈したものを分析し、線形回帰式を使用した。同族の直線性(r)は0.998以上であった。各同族体の感度は、9塩素化同族体がそれぞれの炭素鎖長で最も感度であった。

D. 考察

混合標準液の同族体組成をEI/MSであらかじめ測定し、それを用いて化学イオン化での検量線を作成するという手順を採用した。同族体組成をもとに計算した塩素含有度は、元素分析の結果に合致し、EI/MSでの測定の妥当性が示された。現時点でSCCP分析についてはコンセンサスは得られていない。今後、研究室間での校正、また認証標準物質の策定が期待される。

課題3 食事試料中のPFCsの高感度分析法の確立

A. 研究目的

化学物質による曝露を捉える上で、

感度の高い検出法は、汚染評価に必要である。化学イオン化による高感度、前処理、誘導体化および検出機器の工夫により有機ペルフロロカルボン酸類の高感度一斉分析法を開発した。

B. 研究方法

食事試料から1gを分注し分析用試料とした。分注後、¹³C標識のPFOA, PFNA, PFDA, PFUnDA, PFDoDA内部標準、t-ブチルメチルエーテル(MTBE)1ml、0.5Mテトラブチルアンモニウム溶液(TBA) 0.3ml、0.5M炭酸ナトリウム緩衝液0.6mlを加えた。チューブローテーターにて24時間回転混和させた後、遠心分離を行い、上清を量りとった。さらにMTBEを1ml追加し、24時間回転、遠心分離、上清を取る操作を繰り返した(計2回の抽出)。この溶液を高純度窒素気流で乾固した。誘導体化効率を確認するために1 ng 11H-perfluoroundecanoic acid と1ng ¹³C12-labeled CB111 0.1 M を加えた臭化ベンジルアセトン溶液を添加し、ベンジルエステル誘導体化した。分析は誘導体化後24時間以内に行った。

C. 研究結果

PFCAs標準物質を用いEIとECNIのfull-scan modeでretention timeとフラグメントパターンの確認を行った。EI-modeでは[M]+イオンがm/z 504にて確認された。一方、ECNI-modeでは[M-C7H7]-イオンがcarboxylate anion (C8F15COO-)に対応する形でm/z 413に確認された。他のPFCAs (C9-C14にも同様のECNIモードにて[M-C7H7]-イオンがEIモードに比べ非常に高いレスポンスがみられた。ブランク値の2倍の

値をMethod detection limit (MDL)として扱った。その結果、PFCAsにおいて2から10pg/g-w.wのMDLを得た

D. 考察

ベンジルエステル誘導体化と化学イオン化陰イオンモード測定を組み合わせ、高感度にPFCAsを測定できることを示した。またこの分析手法は、食事中PFCAsの微量分析が少ない試料(1g-w.w)を用いて簡便な方法で可能であることを示した。

課題4. 日中韓の母乳試料中の長鎖有機フッ素化合物(Long chain PFCAs)分析手法の確立

A. 研究目的

母乳試料は曝露指標として有用であるが、夾雑物を取り除く過程が必要である。これまでの有機フッ素化合物分析では、油脂が多い試料での分析、特に脂溶性PFCAを含む場合には応用できない。母乳試料を高い感度を前処理、誘導体化および検出機器の工夫により有機ペルフロロカルボン酸類の一斉分析法を開発した。

B. 研究方法

有機ペルフロロカルボン酸については、イオンペア抽出手法を用い、フロリジルカラムなど順相固相を用いて脱脂し、ベンジルエステル誘導体化した。分析機器はGC/MS (Agilent 6890GC/ 5973MSD, Agilent Technologies Japan, Ltd., Tokyo, Japan)を用い化学イオン化陰イオンモードで分析した。

C. 研究結果

母乳中の(PFCAs)については、炭素長C8-C13の化合物が検出された。

日中韓の3国で採取した母乳を比較したところ、C8,C9,C10,C11で日本が中韓に比べ有意に高く差異が認められた。

D. 考察

前処理を十分に行い、GC-ECNI-MSを用いることにより母乳・血液など生体試料中のPFCAsを高感度で検出可能とした。この手法を持ちたところ、欧米とは異なるPFCA s のプロファイルが明らかとなった。

2. 汚染が懸念される物質のモニタリング

京都大学大学院医学研究科の「医の倫理委員会」より、「POPsのリスク評価に向けてのヒト曝露長期モニタリングのための試料バンク創設に関する研究」の承認を得て、本研究は実施された。

課題5—日中韓の食事試料：ポジティブリスト農薬、残留性有機汚染物質

A. 研究目的

本研究では、海外で収集された陰膳食事試料を用いて、各国の化学物質曝露のパターンを比較評価する。ポジティブリスト農薬、食品の生産国での不正使用が報告されているDDTなど残留性有機汚染物質POPsを対象に行う。

B. 研究方法

食事試料は、京都大学生体試料バンクに保存されている日本(京都:2005年)、中国(北京:2008年)、韓国(プサン:2008年)の陰膳食事検体を日本で10日食、中国・韓国で5日食分を混合したものをを用いた。

ポジティブリスト農薬の分析につい

ては「食品に残留する農薬、飼料添加物又は動物用医薬品の成分である物質の試験法について」（平成17年1月24日付け食安発第0124001号厚生労働省医薬食品局食品安全部長通知）にある一斉分析法を採用した。標的物質はポジティブリスト制度に係る農薬等(356物質)に4物質追加しメタミドホス、アセフェート、ジクロロボス・ナレドとし、GC/MS/MS法(一部GC法、LC/MS/MS法)にて、0.01ppm以上の感度で分析・定量した。POPsおよび候補物質について、抽出操作は、農薬と同様に、ホモジナイズした試料を溶媒抽出、濃縮、抽出液の一部をとって内標準を添加後フロリジルカラムクロマトグラフィーを行い、GC-HRMS SIM法で定量した。トキサフェン、短鎖塩素化パラフィンとエンドスルファンはNCI(負化学イオン化)法、その他は通常のEI法によりイオン化を行った。

C. 研究結果

ポジティブリスト制度に係る農薬等、また上記追加4物質は日中韓の試料とも定義による感度以下(0.01ppm以下)であった。特定の関心のある農薬であるメタミドホス、アセフェート、ジクロロボス及びナレドもすべて0.01ppmの定量下限で検出せずとなった。POPsでは濃度の高い成分としては、最も高濃度の $\mu\text{g}/\text{kg}$ -食品湿重量オーダーで短鎖塩素化パラフィンが検出され、中国が最も高く291、続いて日本17.7、韓国11.0であった。他のPOPsは ng/kg 食品湿重量オーダーで検出された。中国ではヘキサクロロベンゼン、ヘキサクロロシクロヘキサンは中国で高い。一方、PCB、DDT、クロルデン、ヘプタクロルは日本で最も高かった。またトキサフェンとディ

ルドリン、マイレックスは日本で64、62、6が検出されたが、韓国、中国では検出されなかった。エンドスルファンは韓国、中国、日本の順で高くそれぞれ712、281、44であった。アルドリン、エンドリンの検出はなかった。

D. 考察

今回、POPs全般では日本の食事試料で高く見られ、これはPCB、DDTが多くを占めている。母乳中POPsの分析結果との比較では、日本ではPCB、クロルデンが高いので、食事試料と同じ傾向にある。ヘキサクロロベンゼン、ヘキサクロロシクロヘキサンは中国で高かったが、これも母乳中の傾向と同じであった。一方、母乳中DDTは中国で高く、食事以外の曝露源が予想された。

POPs候補物質であるエンドスルファン、また短鎖塩素化パラフィンも検出され、食事由来曝露の寄与を解明する必要があると考えられた。

課題6—日中韓越の食事試料：短鎖塩素化パラフィン・エンドスルファン

A. 研究目的

我が国における食事試料中の化学物質の調査はヒトへの曝露を調べる上で重要であり、また多くを中国や韓国に依存している事からも汚染レベルのタイムトレンドを調査する必要がある。京都大学生体試料バンク保存試料を用いてPOPsおよびPOPs候補物質等を調査した。1試料は5人の一日の食事を混合調製して1試料とし計60試料、延べ約300人分の食事調査とし、京都 1996 or 1997, 2005; 沖縄 1992 or 1995; 北海道 1992 or 1995), 韓国(ソウル 1994, 2007; プサン 2008) 中国(1993, 2009)を1990年代と2000

年代の比較を行った

B. 研究方法

京都大学生体試料バンク保存試料の採取では1試料には5人の一日の食事を混合調製して1試料とし計60試料、延べ約300人分の食事調査とし、京都 1996 or 1997, 2005; 沖縄 1992 or 1995; 北海道 1992 or 1995), 韓国(ソウル 1994, 2007; プサン 2008) 中国(1993, 2009)を用いた。また、食事以外に、汚染源として疑われる中国各地および日本国内で市販されている食用油、乳製品を採取し分析した。

C. 研究結果

356種のポジティブリスト農薬およびメタミドフォス、アセフェート、ジクロロボス、ナレドは3地域の最近の試料では基準値[0.01 µg/g (wet weight basis)]以下であった。

1993年の北京(中国)試料では、他と比べても比較的高いレベルでHCHs DDTs (主にp,p'-DDE)が確認された。北京と日本の3地域(沖縄、京都、北海道)では食事の総POPレベルは1990年代から2000年代で減少傾向が確認されたがソウルでは一部のPOPsで1994年に比べて2007年に上昇傾向がみられた。また、POPs候補物質のエンドスルファン(α-and β-Endosulfan)のレベルは明らかに中国と韓国で上昇傾向がみられた。

食事の短鎖塩素化パラフィン(SCCP)については、1990年代中葉に比較し2009年において日韓において増加は認められないが、中国においては、100倍以上の増加が認められた。上海、北京、瀋陽、香港、横浜で購入した食用油および乳製品、油菓子进行分析したところ、高濃度に汚染が汚染が確認されたのは、油類であった。食事

由来の一日摂取量は、北京の住民で53gと推定される。また、食用油等の分析では、中国国内で販売されている油脂類に多く、菓子類や乳製品の濃度は低い。また我が国で輸入油脂類でも検出され、最高値の検体もみられた。

D. 考察

バンク試料を用いて日中韓の食事試料中の化学物質の汚染レベルのタイムトレンドを調査した結果、1990年代の北京試料でPOPsが高い傾向、その後の2000年代ではどの国も減衰傾向が確認された。POP候補物質のエンドスルファンのレベルは明らかに中国と韓国で上昇傾向がみられた。高レベルのSCCPが2009年の北京の試料で確認された。中国北京での食用油の一日一人当たりの使用量を32g (http://news3.xinhuanet.com/fprum/2004-10/12/content_2087980.htm)とし、大豆油~からし菜湯、ごま油を利用したとすると、北京住民の概ね50%をは油脂類により説明できる。従って現状では汚染源は食用油が主な汚染源と考えるのが妥当であろう。中国から我が国に輸入されている食用油の濃度でも検出され、それらの使用による汚染の可能性もあり、今後引き続き警戒が必要である。

課題7—日中韓の食事試料：有機フッ素カルボン酸

A. 研究目的

食事ホモジナイズ試料を用いたpg/gレベルのPFCAの質量分析はそのマトリックスの複雑さから複雑なclean-upの手順が求められる(Vestergren et al., 2012)。一方GC/MSはマトリックスの影響を受け

にくい electron-capture negative ionization (ECNI)モードでの分析はPFCA anilidesの分析感度を向上させるとの報告がある(De Silva et al., 2006)。

本研究の主な目標は、上記のようにPFCA分析に優れた適性を持つGC/MSを用いて簡便でありながら高感度の食事中PFCA分析法を開発することである。

B. 研究方法

京都大学生体試料バンク保存試料の採取では1試料には5人の一日の食事を混合調製して1試料とし計60試料、延べ約300人分の食事調査とし、京都1996 or 1997, 2005; 沖縄1992 or 1995; 北海道1992 or 1995), 韓国(ソウル1994, 2007; プサン2008) 中国(1993, 2009)である

C. 研究結果

日本ではPFOA(C8)を含むPFCAは1990年代、2000年代双方で検出された。特徴的な傾向として奇数鎖PFCA (PFUnDA (C11) PFTrDA (C13))が偶数鎖PFCA (PFDA (C10)、PFDoDA (C12)、PFTeDA (C14))に比べ多く含まれる傾向が見られた。

韓国では1990年代に比べ、2000年代のサンプルでは長鎖PFCA (C9-C14)は優位に増加していた($p < 0.05$, Student's t-test)。韓国でも日本と同様に奇数鎖PFCAのPFUnDA (C11) PFTrDA (C13)が偶数鎖PFCA (PFDA (C10)、PFDoDA (C12)、PFTeDA (C14))に比べ多く含まれる傾向が見られた。一方日本とは異なりPFOA(C8)はすべて検出限界以下($< 10\text{pg/g-f.w.}$)であった。

中国では韓国と同じく日本と異なりPFOA(C8)はすべて検出限界以下

(<10pg/g-f.w.)であった。PFCAsの中ではPFDA(C10)が最も高く、PFNA(C9)、PFTrDA (C13)と続く形となっている。日本・韓国とは異なり、奇数鎖PFCAsの優位性は中国では見られない。

D. 考察

本研究では、確立した測定手法にて実際の食事中PFCAs濃度を測定し、摂取量を計算した。その結果、Total PFCAs 摂取量がソウルで1990年に比べ、2000年代有意に増加していることが判明した。さらに特徴的なパターンとして、奇数鎖PFCAsが偶数鎖PFCAsよりも日本・韓国で優位に見られた。PFOA(C8)よりも長鎖のPFCAs(C9-C14)の割合は三カ国平均で1990年代から2000年代にかけて68%から82%に増加しており、東アジアでの長鎖PFCAsの暴露が増加していることが示唆される。

課題8—日中韓越の母乳試料：残留農薬および難燃剤

A. 研究目的

本課題では、国内外で収集された母乳試料を用いて、各国の化学物質曝露のパターンを比較評価する。残留性有機汚染物質POPsを対象に行う。

残留が懸念されているPOPs化合物HCHs, HCB, DDTs, CHLs, 残留農薬toxaphene, mirex および難燃剤hexabromocyclododecane(HBCD)について対象とした。

B. 研究方法

2007年から2008年に採取した中国母乳(北京20検体)、韓国母乳(プサン10検体、ソウル10検体)日本(仙台10検体、高山10検体、兵庫10検体)について5人からそれぞれ5mL

を混合し、合計25mLをPOPs、農薬分析試料とした。母乳から脂肪を抽出したのち、ゲル浸透クロマトグラフィーで脱脂したのち、抽出した化学物質をシリカゲルカラムにより精製したものをGC/MS試料とした。標準溶液を用いた回収率は86-101%(n=4)と良好であった。

HBCDについては、2007-2008年に採取した日本人(30名)、韓国人(20名)および中国人(20名)の母乳からそれぞれ1mLをとり合計10mLのpooled milkを作成した。試料にシュウ酸カリウム0.2g, ethanol:diethylether(1;1)5mL, hexane 10mLを加え、遠心分離して上層を抽出分離した。この抽出液を濃縮し、脂肪重量を測定した。ゲルろ過クロマトグラフィーにて脂肪を除去した。溶出液を乾固し、アセトニトリル溶液にしたものをLC/MS/MS試料とした。

C. 研究結果

中国母乳ではHCHsが246 ng/g lipidを、DDTsが1458 ng/g lipidを示し、日本および韓国の母乳レベルよりも1桁高い値であった。一方、CHLsについては日本母乳で25.8 ng/g lipidを示し、中国、韓国母乳より有意に高い値であった。トキサフェンは日本(22-37 ng/g lipid) > 韓国(9-14 ng/g lipid) > 中国(2.6-7.3 ng/g lipid)の順に濃度が高い傾向が見られた。2つの異性体(palar #26, #50)の比率に地域差はみられなかった。

HBCDは兵庫で3.6 ng/g lipid、高山で2.7 ng/g lipid、北京で2.9 ng/g lipid、ソウルで1.3 ng/g lipidを示し、仙台、釜山では検出されなかった(検出限界0.5 ng/g lipid)。

D. 考察

日本ではトキサフェンは登録された

ことはないが、中国や韓国からの越境よりも日本国内での汚染またはUSAやロシアから大気または輸入食品を通じて日本へ流入していることが考えられる。しかし、サンプル数が少ないことおよび限られた地域の試料であることから、さらに継続した調査が必要である。

アジアではPBDEが1990年をピークに汚染状況は改善されているのに対し、HBCDは使用制限がなく、海洋哺乳動物中のHBCD残留濃度は増加傾向にある。ヒトでもHBCDの傾向、汚染源の詳細を検討する必要がある。

課題9－日中韓越の母乳試料：ポジティブリスト農薬

A. 研究目的

本課題では、国内外で収集された母乳試料を用いて、各国の化学物質曝露のパターンを比較評価する。ポジティブリスト農薬を対象に行う。

B. 研究方法

2007年から2008年に採取した中国母乳（北京20検体）、韓国母乳（プサン10検体、ソウル10検体）日本（仙台10検体、高山10検体、兵庫10検体）について5人からそれぞれ5mLを混合し、合計25mLをPOPs、農薬分析試料とした。母乳から脂肪を抽出したのち、ゲル浸透クロマトグラフィーで脱脂したのち、抽出した化学物質をシリカゲルカラムにより精製したものをGC/MS試料とした。標準溶液を用いた回収率は86-101%(n=4)と良好であった。

C. 研究結果

ポジティブリスト52種の検索の結果、

新規にジコホールが検出された。検出イオンはEI法では、m/z 139, 250を、ECNIではm/z 250イオンで確認した。濃度は中国母乳で10.9 ng/g lipidであり、韓国および日本母乳でも低い値で検出された。

D. 考察

今回、初めてジコホールを母乳中に検出した。ジコホールはDDTの分解物との関係があり、今後母乳中DDTおよびdicofolの汚染源の解明と再評価が必要である。今後、母乳のポジティブリスト化学物質のECNI法によるスクリーニングをさらに続行する。

課題10－日本の母乳試料：日本人の化学物質曝露実態－臭素系汚染物質

A. 研究目的

母子の健康影響への懸念を持ちながら、現在までデータが不足している日本人の母乳中に存在する臭素化汚染物質（人工由来：PBDE類とHeBB、天然由来：MeO-PBDE類とbipyrrole類）の濃度を明らかにすることである。今回、日本の最北地域（北海道）と最南西地域（沖縄）の母乳サンプルを使用し、残留する臭素系汚染物質の濃度について地域差を検討した

B. 研究方法

本研究では京都大学生体試料バンク (Koizumi et al., 2005; Koizumi et al., 2009)に保存されている 2005年から2006年にかけて北海道、沖縄の協力者から提供を受けた各20の母乳サンプルを使用した。

母乳中臭素系汚染物質の分析は、脂肪抽出、ゲル浸透クロマトグラフィー、シリカゲルカラムによる精製、負イオン-化学イオン化GC-MS (GC-NCI-MS)

の手順で行なった。

C. 研究結果

北海道と沖縄の母乳から6種のPBDEs、HeBBおよびTeBBを検出した。それらの濃度をTable 3に示す。PBDEsの主成分はBDE-47とBDE-153で、総濃度は $<0.2 \sim 69$ ng/g lipid (中央値 1.5 ng/g lipid) の範囲であり、沖縄のサンプルで高い頻度で検出された。しかしながら北海道の母乳1検体から高濃度のBDE-47 (46 ng/g lipid) およびBDE-153 (4.0 ng/g lipid) が検出された。HeBBとTeBBはそれぞれ $<0.05 \sim 2.5$ (平均値 0.53) ng/g lipid、0.76 から 6.6 (平均値, 2.6) ng/g lipidであった。TeBBの濃度に地域差は見られなかったが、HeBB濃度は北海道のサンプルで有意に高かった($p<0.01$)。本研究では、母乳中に天然由来臭素系汚染物質としてMeO-BDEsとハロゲン化bipyrroleを検出した (Fig. 2)。沖縄のサンプルで、MeO-BDEsのうち、2'-MeO-BDE68と2,2'-diMeO-BB80は沖縄サンプルで有意に高かった(それぞれ0.39 と 0.20 ng/g lipid)。MBP-Cl₇とDBP-Br₄Cl₂の濃度はそれぞれ $<0.01 \sim 0.94$ ng/g lipid と <0.01 から 2.7 ng/g lipidであり、地域差は見られなかった。

D. 考察

本研究では日本人の母乳から人工臭素系汚染物質 (PBDEs と HeBB) と天然由来の臭素系化合物 (MeO-PBDEs と bipyrroles) を検出した。PBDEs (BDE-47 and BDE-153) の濃度は沖縄のサンプルで高い一方、HeBBは北海道で有意に高かった。このことはPBDEsとHeBBは異なった曝露経路を持つことを示唆している。2種のMeO-PBDEs (2'-MeO-BDE68 と

2,2'-diMeO-BB80) および2種のbipyrroles (DBP-Br₄Cl₂とMBP-Cl₇) についても地域差がみられ、この違いは日本の南北海域で異なった発生源をもつためと考えられる。臭素系汚染物質の曝露経路と健康影響を明らかにするためには、これらの汚染物質の地域差と発生源についてさらなる検討が求められる。

課題11—日中韓の母乳試料のモニタリング—：ジコホール

A. 研究目的

東アジア3国で採取した母乳は、其々の国で特徴ある汚染パターンを示す。母乳に残留するDDT濃度は日本・韓国に比べ高いことが知られている。

近年ストックホルム条約では、ジコホールの上程を検討している。

そこで、DDTの由来と考えられているジコホールの評価を行った。

B. 研究方法

母乳試料は京大大学生体試料バンク (Koizumi et al., 2005; Koizumi et al., 2009) の保存試料を使用し、総計210人の母親から14プール試料を得た (15人分の母乳試料 各1 mLをとり1プール15-mLとした)。試料は2007年から2009年の間に中国 (60人、北京)、韓国 (60人、ソウル/プサン、日本 (90人) のボランティアから採取された。

ジコホールの分析においては、¹³C-labeled 2,3,4,5,6,3',4',5'-octachlorobiphenyl (CB-205; AccuStandard Inc., CA, USA) をジコホールとDDT類の内部標準として用い、分析にはGC/MS Agilent GC/MSD 5973i, 6890N GCを用いた。

C. 研究結果

ジコホールは日本・宝塚を除く5地域の母乳で検出された。母乳中ジコホールの幾何平均は日本で0.3 ng/g lipidであり、中国(9.6 ng/g lipid)、韓国(1.9 ng/g lipid)より有意に低かった($p < 0.05$ by Tukey's HSD test)。DDT濃度は中国で1358 ng/g lipidであり、日本(120 ng/g lipid)、韓国(144 ng/g lipid)より約10倍高かった。

D. 考察

本研究では、母乳中のジコホールを定量分析することに成功した。中国の母乳においてジコホール濃度はDDT総濃度に比べると2桁低いng/g lipidのレベルであることが分かった。本研究結果は、母乳中のDDT類の由来はtechnical DDTの長期蓄積によるもので、ジコホール製品中の不純物DDTの由来であるとは考えにくい。

課題12.汚染が懸念される物質のモニタリングー日本の母乳試料：ペンタクロロシクロペンタジエン類

A. 研究目的

母乳では日本は中国や韓国よりPCBやクロルデン類(CHLs)が比較的高い汚染傾向にある。本研究では、日本で収集した母乳中のPOPsを詳細に調査し、汚染の地域差、年齢差、出産回数、POPs濃度間の相関および乳児の推定摂取量とその評価を行った。

B. 研究方法

母乳試料は京都大学生体試料バンク (Koizumi et al. 2005; 2009)の保存試料から 総計200人の試料を分析対象とした。母乳試料5mLに内標準(^{13}C -cis-CHL および 4-methoxy

-BDE121)を加え、GC/MSはAgilent GC/MSD-5973i に6890N-GCを接続した装置を用いた。

C. 研究結果

母乳POPs関連物質の残留分布は、(1) DDTs, PCBs, HCHs, CHLsのグループ (49-120 ng/g lipid), (2) HCB, heptachlorepoxyde (HCE), dieldrinのグループ (2.8-8.3 ng/g lipid), および(3) toxaphene, endosulfan, dicofol, BDE-47 のグループ (0.4-2 ng/g lipid) に分けられた。グループ(2)ではHCBが北海道で、dieldrinが沖縄で有意に高濃度を示した。endosulfan以外でPOPs濃度間に相関性が見られた。グループ(1)および(2)はいずれも初産婦が経産婦より有意に濃度が高かった。加齢とともに母乳PCB濃度は上昇傾向を示した($p < 0.05$)。しかしそれ以外のPOPsと年齢との間には有意な相関はみられなかった。

D. 考察

地域差、年齢差等が明らかになった。CHLsにおいては、乳児の推定平均摂取量はCHLsの暫定耐容一日摂取量(PTDI=0.5 $\mu\text{g}/\text{kg}\cdot\text{body wt}/\text{day}$)の45%に相当し、全試料の6.5%がPTDIを超過した。地域別にみると、沖縄で2/20(10%)、山口で5/20(25%)、宝塚で1/20(5%)、京都で2/20(10%)、東京で1/20(5%)と山口で多い傾向がみられた。

課題13.汚染が懸念される物質のモニタリングー日中韓の母乳試料：ペンタクロロシクロペンタジエン類

A. 研究目的

日中韓の母乳に残留するPCBs, DDTs, HCHs, CHLs, HCBおよび

PBDEs濃度を報告した (Haraguchi et al., 2009)。本研究では、日本、中国および韓国から収集したプール母乳(n=70)について汚染の懸念される古典的ペンタクロロシクロペンタジエン類を詳細に調査し、汚染の地域差、および乳児の推定摂取量とその評価を行った。

B. 研究方法

母乳試料は京大大学生体試料バンク (Koizumi et al., 2009; Koizumi et al., 2005)の保存試料を使用し、総計210人の母親から14プール試料を得た(15人分の母乳試料 各1 mLをとり1プール15-mLとした)。試料は2007年から2009年の間に中国 (60人、北京、2007年12月-2008年9月)、韓国 (30人、ソウル、2007年10月; 30人・プサン・2008年12月-2009年1月)、日本 (30人、仙台、2009年4月-5月; 30人、宝塚、2008年8月; 30人、高山、2008年6月-10月)のボランティアから採取された。母乳試料5mLに内標準(¹³C-cis-CHL および 4-methoxy-BDE121)を加え、GC/MSはAgilent GC/MSD-5973i に6890N-GCを接続した装置を用いた。

C. 研究結果

CHLs では oxy-CHL および trans-nonachlor が主成分であった。heptachlor および aldrin はほとんど検出されなかった。地域別にみると、中国 (北京) の母乳では、DDTsの他に、HCHs が平均値688 ng/g lipidで残留していた。他のPOPsは、HCB (57 ng/g lipid) > PCB (45 ng/g lipid) > CHLs (7.2 ng/g lipid) の順で残留した。HCE, dieldrin, toxaphene, mirex およびBDE-47はいずれも1 ng/g lipid以下であり、endrinはほとんど検出さ

れなかった。韓国の母乳ではPCB (62 ng/g lipid) >HCH (50 ng/g lipid) >CHL (14 ng/g lipid)>HCB (13 ng/g lipid)>HCE (4.7 ng/g lipid)の順に残留していた。HCHsおよびHCEは日本と同濃度で残留していたが、CHLs, dieldrin, endrin, toxaphene および mirexは日本より有意に低い濃度であった。

D. 考察

母乳POPs関連物質の残留傾向を日本、中国および韓国の国別、地域別で比較すると、(1)中国ではHCHs, HCBの母乳残留濃度が依然として高かった。(2) PCBs, CHLsおよびHCE は日本および韓国の方が中国より高かった。(3) dieldrin, endrin, toxaphene および mirex は日本母乳で0.8-2.8 ng/g lipidで残留し、韓国母乳より高かった。中国母乳では1 ng/g lipid以下であった。(4) 中国の乳児によるHCHsおよびHCBの平均推定摂取量はADIを超過する母乳があり、日本母乳ではCHLs が一部ADIを超過する可能性があるが、ほかのPOPs摂取量は許容量よりかなり低かった。

課題14. 汚染が懸念される短鎖塩素化パラフィンの日中韓母乳試料モニタリング

A. 研究目的

平成22年度の調査で食事中短鎖塩素化パラフィンが中国で高濃度に検出され、また食用油脂から特に高い値が認められた。このように食品が汚染されていることから、ヒトへの曝露が実際に生じていることが考えられる。

そこで母乳試料中の短鎖塩素化パラフィン、京都大学生体試料バンクの2007年から2009年の韓国、中国、日本の母乳試料中を用いて調査した。

B. 研究方法

母乳試料は京都大学生体試料バンク (Koizumi et al. 2005; 2009) の保存試料から 5人の母乳試料を等量混合調製して1試料とし、日中韓の京都2007-2009; 仙台2007-2009; ソウル2007-2010; プサン 2008-2009; 北京2007-2009の延べ385人分の計77試料を調査した。粗抽出液2mLをホールピペットを用いて分取し、8g活性化フロリジルカラムに滴下し、SCCPsを1:4ジクロロメタン/ヘキサンで溶出し、HRGC/ECNI/HRMS分析に供した。

C. 研究結果

脂肪重量当たりの全SCCPs濃度では中国では中央値37600pg/g-lipidで、最大値は66000pg/g-lipidであった。日本では最大でも17500pg/g-lipidであり、中央値は検出限界以下(600pg/g-lipid以下)であった。韓国では最大値3400pg/g-lipidで中央値は検出限界以下(600pg/g-lipid以下)であった。中国での濃度は有意に他の2カ国より高かった(P<0.05、ノンパラメトリックSteel-Dwass test)。

D. 考察

北京では食餌試料中SCCPsにつづき、母乳試料中でも日本、韓国に比べて高い濃度で検出された。中国は世界で最大のSCCPs生産国と見なされ(Yuan et al., 2009)、SCCPs生産により北京の母乳からSCCPsが検出されるようになったと示唆される。

課題15—日本における水酸化塩素化

ビフェニル、臭素化ジフェニルエーテルの評価

A. 研究目的

PCBは過去、日本で多量に用いられたPOPsのひとつであり、未だにヒト体内に蓄積が見られる。PCBはヒト体内で代謝され、血液にOH-PCBとして残留する。一方、PBDEも一部代謝され、OH-PBDEとして血液中で検出されている。OH-PCBやOH-PBDEは内分泌系に影響を与えることが懸念されている。そこで、本研究では、宮城県仙台市、岐阜県高山市、大阪府大阪市、京都府京都市、京都府宇治市5か所の30-60歳代女性の血清中のPCBおよびOH-PCBを調べ、年齢と濃度の関係を明らかにする。同時にPBDEおよびその代謝物についても検索した。

B. 研究方法

宮城県仙台市、岐阜県高山市、大阪府大阪市、京都府京都市、京都府宇治市5か地域に在住する30, 40, 50, 60代の女性5名(計100名)の血清1.5mLにPCB分析のISとして13C-PCB153を5ng添加した。OH-PCB分析のISとして、13C-4-OH-PCB107, 13C-4-OH-PCB146, 13C-4-OH-187をそれぞれ0.2ngを添加した。次に塩酸、acetone/hexaneを加え、抽出液を濃縮し脂肪量を測定。GPC処理後、neutralとphenolic fractionに分離した。Neutral fractionはシリカゲルカラムで精製しGC/MS(EI)でPCBの9異性体を分析した。Phenolic fractionは5検体分をpooled sampleとし、HCl酸性としたのちdiethylether/hexaneで逆抽出した。この液を濃縮し、ジアゾメタンにてO-メチル化を行った後、シリカゲルカラムで精製し、GC/MSの試料とした。

C. 研究結果

血清 (n=100) 中の PCB 総濃度 (13isomers)は432-8532 pg/g wet (mean 2008 pg/g wet)であった。年齢とPCB濃度の関係では30, 40代のPCBレベルは50, 60代と比べて有意に低かった。一方、OH-PCB総濃度は60-536 pg/g wet (mean 249 pg/g wet)を示し、年代の上がるにつれて有意に上昇した。OH-PCBの主成分は、4-OH-CB107, 4-OH-CB146および4-OH-CB187で、ほかに3-OH-CB153, 3'-OH-CB138, 4'-OH-CB172が検出された。PCB濃度とOH-PCB濃度の間に正の相関がみられた。一方、PBDE濃度は18-29 ng/g wetであり、各年代による濃度の変化に有意差はみられなかった。OH-PBDEを検索した結果、6-OH-BDE47が主成分として検出され、2'-OH-BDE68および2,2'-dihydroxy-3,3',5,5'-tetrabromobiphenyl (2,2'-diOH-BB80)が検出された。これらの総濃度は202 pg/g wetを示し、PBDE濃度より1桁高い値であった。Neutral fractionには2'-MeO-BDE68が10 pg/g wet以下の濃度で検出された。

D. 考察

今回得られた血清PCB, OH-PCB濃度はこれまでに国内で報告されている定量値の範囲内であった。日本人血液中のPCB濃度は欧米と比べ低いことを確認した。PCBの使用が禁止された1970年代以降に生まれた30代のPCB濃度はかなり低く、PCBの食品汚染がかなり改善されていることを示唆する。しかし、高年齢世代はPCB濃度は依然として高い。一方、OH-PCBの濃度では、年齢とともに上昇し、60代のOH-PCBレベル (440 pg/g wet) は30代のOH-PCB(120 pg/g wet) レベル

より3倍ほど高い。異性体別でみると代謝物-母化合物の濃度の相関性はいずれも有意に高かった。

一方、PBDEレベルは欧米で報告されている値より低く、主成分BDE47のレベルは欧米の1/10以下であった。6-OH-BDE47などのOH-PBDEは血液のtransthyretin (TTR)に親和性が高く、TTRと結合して甲状腺ホルモンの恒常性に影響を与えることが指摘されている。血清で検出された6-OH-BDE47および2'-OH-BDE68の由来はPBDE代謝物でなく、海藻などが産出する化学物質OH-PBDEやMeO-PBDEが食物連鎖を通じてヒトへ到達している可能性がある。由来の検討が必要と考えられた。

課題16. 汚染が懸念される物質のモニタリングー日本の生体試料：沖縄試料を用いた、母乳・血液・食事の化学物質の残留分布結果

A. 研究目的

ヒトへの主な曝露源と考えられる食品における汚染物質のうち、フェノール性臭素化合物の実態およびそのヒト曝露量と残留濃度との関連性を明らかにすることである。そこで陰膳方式による食事から汚染物質の摂取量を測定するとともに同一地域（沖縄）における母乳および血液中濃度を調べることにした。分析対象は、POPsの4種、残留農薬（PCPおよび α -endosulfan）、難燃剤（PBDE, TBPおよびTBBPA）、水酸化PCB（4-OH-PCB187）および水酸化PBDE（6-OH-BDE47）とし、それらの食事からの摂取量と母乳および血液中の残留量を比較した。

B. 研究方法

ヒト血清試料は京都大学生体試料バンク (Koizumi et al 2005; 2009)の食事試料のうち、2004年分は24時間に陰膳法、2009年分は24時間に摂取する食事・飲料・間食を仮定し、研究員がスーパー等で購入したものを使用した。2006年に沖縄の40歳台の男性(10名)から提供された血清(1mL)を使用した。母乳試料は、2005-2006年に沖縄の26-39歳の母親(9名)から提供されたものを使用した。

C. 研究結果

食事(2004年および2009年)から抽出した中性画分では、POPs(4,4'-DDE, HCB, PCB-153, t-nonachlor)および α -endosulfanを、フェノール性画分ではPCP、TBP、TBBPAのほか、水酸化PCBの主成分4-OH-PCB187、さらに水酸化PBDEの主成分6-OH-BDE47を検出した。2004年および2009年の陰膳方式の食事ホモジネート20試料中の平均値をみると、4,4'-DDE > TBP > α -endosulfan > HCB > PCB-153 > BDE-47の濃度順に検出された。フェノール性画分では、TBP(32-76 pg/g wet)のつぎにTBBPAが20検体中18検体から検出された。また、2009年の食事から6-OH-BDE47が20試料中15試料(平均6.8 pg/g wet)で検出された。PCP濃度は、1-2 pg/g wetであった。さらに2009年の食事からBDE-99 > BDE-100 > BDE-47 > BDE-153の濃度組成の試料が4検体みられ、そのうち1検体ではBDE-99濃度が850 pg/g wetを示した。

母乳中の中性画分では、4,4'-DDE > trans-nonachlor > HCB > α -endosulfanの濃度順に定量されたフェノール性画分では、

TBP > TBBPA > PCP > 4-OH-PCB187の高濃度順に定量された。

沖縄血清(40-47歳女性)中の中性画分ではDDE > PCB-153 > HCB > α -endosulfan > t-nonachlorの順、フェノール画分では、PCP > 4-OH-BDE47 > 6-OH-BDE187 > TBP > TBBPAの濃度順であった。

D. 考察

食事の汚染調査で、中性画分に従来の塩素系POPsに加えて、endosulfanが微量に検出され、またPBDEのなかでPBDE-99が主成分の試料がいくつかみられた。残留成分のEDIは基準値の設定された成分についてはかなり下回っており、また母乳の乳児による摂取量にも安全性の点で問題のないことが示された。フェノール性画分では、食事でTBPの含有量が高く、ついでTBBPA、PCP、OH-PBDEの順に検出された。食事と母乳および血清の間には一部のPOPsに弱い相関がみられる程度で、フェノール性画分では相関性は見当たらない。このことは、ヒト残留成分が必ずしも食事由来だけではないことを示唆している。食品中には、フェノール体のメチル化した成分が混在し、母乳、血液では異なる残留比で存在した。これらの動態はヒト影響を評価する上で参考になると思われる。

課題17. 日韓越での血液中難分解性有機フッ素化合物の汚染源の検討

A. 研究目的

有機フッ素化合物ペルフルオロオクタン酸(PFOA)環境汚染は、近年詳細な研究がなされ、世界的な規模での汚染の広がり経年動向が明らかにされてきた。PFOAの主な製造企業の製造からの撤退により、汚染強度は減