

平成 27 年度厚生労働科学研究補助金
食品の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

総括・分担報告書

研究代表者

国立医薬品食品衛生研究所食品部

渡邊敬浩

研究分担者

国立医薬品食品衛生研究所食品部

堤 智昭

国立医薬品食品衛生研究所食品部

片岡洋平

国立医薬品食品衛生研究所食品部

松田りえ子

松山大学薬学部

天倉吉章

国立医薬品食品衛生研究所安全情報部

畝山智香子

平成 28 年(2016 年) 5 月

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
渡邊敬浩.....1

II. 分担研究報告

- 各種有害物質の適時及び継続的な摂取量推定研究
渡邊敬浩
有害物質摂取量推定の部.....95
元素類及び PCBs 摂取量の推定.....96
メチル水銀摂取量の確率論的推定.....152
摂取量推定値の分布に基づく推定手法の評価.....158
ハロゲン系難燃剤摂取量推定の試行.....169
有害物質濃度実態調査の部.....189
食品中に含まれる多環芳香族炭化水素類濃度の実態調査.....190
PCBs 代謝物による食品汚染実態調査.....221

2. 食品からの塩素化ダイオキシン類の摂取量調査に関する研究
堤 智昭
塩素化ダイオキシン類のトータルダイエツト調査.....246
個別食品中の塩素化ダイオキシン類の実態調査.....262
3. 有害化学物質摂取量推定に不可欠な分析法開発に関する研究
片岡洋平.....270
4. リスクを考慮した精密摂取量推定手法開発に関する研究
松田りえ子.....300
5. ダイオキシン様活性を有する新規有害物質に関する研究
天倉吉章.....314
6. 国際動向を踏まえた摂取量推定すべき有害化学物質の探索に関する研究
畝山智香子.....331

III. 研究成果の刊行に関する一覧表

IV. 研究成果の刊行物・別刷

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

渡邊敬浩

平成 27 年度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

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
総括研究報告書

研究代表者	渡邊敬浩	国立医薬品食品衛生研究所食品部
研究分担者	堤 智昭	国立医薬品食品衛生研究所食品部
研究分担者	片岡洋平	国立医薬品食品衛生研究所食品部
研究分担者	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	天倉吉章	松山大学薬学部
研究分担者	畝山智香子	国立医薬品食品衛生研究所安全情報部

研究概要

有害物質の摂取量推定値は、ヒトの健康リスク管理のための基礎データであり、適切な施策には、高い信頼性と精密さが要求される。リスク管理の施策策定には、懸念される有害物質の摂取量推定値が適時に必要となる。同時に、リスクの高い有害物質の摂取量推定値を継続的に監視し、施策効果を検証する必要がある。本研究では、様々な有害物質の信頼できる摂取量を適時にまた必要に応じて継続的に推定することを目的に、①有害物質の摂取量推定、②摂取量の精密化、③摂取量を推定すべき新規有害物質の選定の3つに大別できる研究を実施した。

①有害物質の摂取量推定研究

2015年にマーケットバスケット(MB)方式により調製したトータルダイエツト(TD)試料の分析を通じ、健康リスクが懸念される蓋然性の高い有害物質として、鉛、カドミウム、ヒ素(総ヒ素並びに無機ヒ素)、水銀(総水銀並びにメチル水銀)を含む元素類及びPCBsの全国・全年齢層平均摂取量(全国摂取量_{ave.})を推定した。その結果、元素類の全国摂取量_{ave.}はB:1417 µg/man/day、Al:3580 µg/man/day、Ni:143 µg/man/day、Se:86.9 µg/man/day、Cd:17.8 µg/man/day、Sb:0.872 µg/man/day、Ba:473 µg/man/day、Pb:12.1 µg/man/day、U:1.22 µg/man/day、Sn:80.3 µg/man/day、Cr:28.8 µg/man/day、Co:8.90 µg/man/day、Mo:197 µg/man/dayと推定された。総ヒ素と無機ヒ素の全国摂取量_{ave.}は、それぞれ214 µg/man/day、15.4 ng/man/dayと推定された。総水銀とメチル水銀

の全国摂取量_{ave.}は、それぞれ 8.37 µg/man/day、6.61 µg/man/day と推定された。PCBs の全国摂取量_{ave.}は、663 ng/man/day と推定された。耐用摂取量が設定されている有害物質については、必要に応じ便宜的に一日当たりの耐用摂取量(TDI)を算出した後、全国摂取量_{ave.}が占める割合(対 TDI 比)を求めた。その結果、対 TDI 比は Ni の 71%を筆頭に、メチル水銀が 58%、Se、Cd、Ba、B が 30%以上、Al が 20%以上、U が 10%以上となった。

2013 年～2015 年の 3 年間に、特定の 1 地域において、全国摂取量_{ave.}を推定するための全年齢層用 TD 試料の他、幼児(1～3 歳児)における各種有害物質の摂取量を推定するための試料(幼児用 TD 試料)を調製し、それら試料の分析を通じて各種元素類及び PCBs の幼児摂取量(摂取量_{inf.})を推定した。各種有害物質ごとに、推定した摂取量_{inf.}と全年齢層摂取量(摂取量_{gen.})の比率を求めた結果、107～228%となり、幼児における体重当たりの有害物質摂取量が全年齢層平均に比べおしなべて高いことが明らかとなった。

鮮魚 210 試料におけるメチル水銀濃度と、国民健康・栄養調査結果を解析して得た魚の摂取量分布を用いて、モンテカルロシミュレーションにより魚からのメチル水銀摂取量を推定した。その結果、メチル水銀摂取量の平均値は 5.83 µg/man/day、中央値は 1.78 µg/man/day と推定された。90%tile 値は 15.04 µg/man/day と推定され、メチル水銀の TDI から計算した一日摂取量 11.43 µg/man/day を上回った。また、特定の一日に TDI を超える確率は 14%程度であった。

2013 年～2015 年の 3 年間にわたり、全国の約 10 か所において毎年作製された TD 試料の分析結果に基づき推定した各種有害物質の摂取量を解析し、全国摂取量_{ave.}の推定値の分布範囲、有害物質による違いを評価した。

全国 8 地域 11 機関においてマーケットバスケット方式により調製された TD 試料のうち、過去の実態調査結果に基づき、10 群試料の HBCD 濃度を分析した。分析の結果、全地域の TD 試料から HBCD が検出され、濃度範囲は 0.16 ng/g～2.63 ng/g であった。TD 試料の分析結果に基づき推定された HBCD の一日摂取量は、11.4～192.8 ng/man/day であった。

塩素系難燃剤(デクロラン類)に挙げられる Dechlorane、Chlordene Plus(CP)、Dechlorane 602(Dec 602)、Dechlorane 603(Dec 603)、Dechlorane 604(Dec 604)及び Dechlorane Plus(DP、*syn*体と*anti*体の2種異性体)の計7種類の化合物の摂取量を推定した。2015年に北部九州地区で調製したTD試料の分析を通じて推定された各デクロラン類の一日摂取量はDechloraneで1.5 ng/man/day、CPで0.057 ng/day、Dec 602で22

ng/man/day、Dec 603で0.92 ng/man/day、Dec 604で0.22 ng/man/day、DPのsyn体とanti体で各々2.6及び6.3 ng/man/dayであった。これらの摂取量の合計値(Σ Dechloranes)は 35 ng/man/dayとなり、9群からの摂取量値(9.3 ng/man/day)が最も高い割合を占めた。

ダイオキシン類(DXNs)の摂取量推定研究では、TD試料を全国7地域8機関で調製した。その際、DXNs濃度が高い食品を含む第10群(魚介類)及び11群(肉・卵類)試料は、各機関がそれぞれ各3セットの試料を調製し、その他の食品群は各1セットの試料を調製した。10群及び11群試料については試料ごとにDXNsを分析し、その他の群は全地域の試料を混合して分析し、DXNsの一日摂取量を求めた。その結果、DXNsの国民平均一日摂取量は0.64 (範囲：0.23～1.67) pg TEQ/kg bw/dayと推定された。10群(魚介類)からのDXNs摂取が全体の約9割を占めていた。摂取量推定値の平均は、日本の耐受一日摂取量(4 pg TEQ/kg bw/day)の約16%であった。摂取量推定値の最大は1.67 pg TEQ/kg bw/dayであり、平均値の約2.6倍となり耐受一日摂取量の42%程度に相当した。同一機関であっても推定される摂取量に1.4～3.7倍の開きがあり、10群に含まれている魚介類のDXNs濃度が大きな影響を与えた。DXNsに関する研究としては、TD研究の一環として行った摂取量推定の他、魚介類に属する個別食品や健康食品、調製粉乳の濃度の実態も調査してきている。2015年には、食肉及び卵のDXNs濃度を調査した。食肉30試料(牛肉、豚肉、鶏肉、羊肉(レバー含む)、馬肉、フォアグラについて各5試料)を調査した結果、DXNs濃度は0～0.47 pg TEQ/g(中央値0.012 pg TEQ/g)の範囲であった。鶏卵6試料を調査した結果、DXNs濃度は0.0048～0.036 pg TEQ/g(中央値0.017 pg TEQ/g)の範囲であった。また、市販のベビーフードについても、DXNs濃度の調査を行った。市販のベビーフード(42試料)を調査した結果、DXNs濃度は0～0.0016 pg TEQ/g(中央値0.000023 pg TEQ/g)の範囲であった。DXNs摂取量が最も多かったベビーフードから摂取するDXNsのTDIに占める割合は、仮に一日三食同じものを食したとしても最大で1.2%程度であった。

その他、摂取量推定が必要かを判断するため、毒性や国際的な規制等の動向から優先度が高いと判断した多環芳香族炭化水素類(PAHs)と水酸化PCBs(OH-PCBs)を対象に食品濃度の実態等を引き続き調査した。6種64試料の加熱調理済み食品中のPAHs濃度を調査した結果、焼いた貝(ホタテ、カキ)のPAHs濃度が比較的高かった。過去に調査した燻製食品や昨年度に調査した加熱調理食品(ウナギや焼き鶏)と比較するとPAHs濃度は低かった。さらに、種々の加熱調理方法が食品中のPAHs濃度に与える影響を調査した。その結果、サンマ、鶏モモ肉及び、鶏皮肉については、ガスグリルと炭火焼きで調理した場合、PAHs濃度が顕著に高くなった。これらの調理では炎が発

生し、炎と食品が接触したことからPAHs濃度が上昇したものと考えられた。また、陰膳試料20日分(計60試料)のPAHsを分析し、食事からのPAHs一日摂取量を推定した。BAP、PAHs 4種合計及びPAHs 16種合計の一日摂取量の平均値は、それぞれ39、470及び741 ng/man/dayであった。陰膳調査で得られた最大の一日摂取量を用いて暴露マージン(MOE)を計算すると、BAPに対して約79,000、PAHs 4種合計に対して約20,000となり、10,000を大きく上回っていたことからリスク管理の優先度は低いと考えられた。OH-PCBsの含有実態調査では、24種の魚試料を対象とした。OH-PCBs及びPCBsの濃度を調査した結果、24試料のすべてから両物質が共に検出され、OH-PCBsの合計濃度(Σ OH-PCBs)の範囲は0.012 ng/g~0.44 ng/g(平均0.072 ng/g)、PCBsの合計濃度(Σ PCBs)の範囲は 0.072 ng/g~91 ng/g(平均 18 ng/g)であった。2014年~2015年の2年間に調査した計40試料(10魚種、n=4)の分析結果をまとめ、OH-PCBsの同族体組成比を解析した結果からは、OH-MoCBsとOH-DiCBsを主要同族体とする魚種、OH-PeCBsとOH-HxCBsを主要同族体とする魚種及び、OH-DiCBsとOH-PeCBsを主要異性体とする魚種の3グループに分類することが可能であった。40試料における Σ OH-PCBs/ Σ PCBsは、0.00036-0.21(平均 0.032)であり、市販されている魚介類中のOH-PCBsはPCBに比べて低濃度であり、魚種内でも魚種間でも明確な違いは確認できなかった。

②摂取量の精密化研究

MB方式により作製したTD試料は、国民全体の食品一日摂取量平均に基づいて調製されており、その分析結果から推定される有害物質の一日摂取量は全年齢層を平均した値である。しかし、年代別の体重 1kg当たりの食品一日摂取量は、1-3歳の幼児で最も大きく、成長と共に小さくなることから、幼児では全年齢平均よりも、体重当たりの有害物質の一日摂取量も多いことが予想される。この予想に基づき、1-3歳の幼児の有害物質一日摂取量を知るために、幼児の平均的食事を模したTD試料(TD_{inf})を、2013年~2015年の3年間に3セット調製した。TD_{inf}の調製では、全年齢層平均食品摂取量に基づいたTD試料(TD_{ave})と可能な限り同一の食品を使用した。これら2つのTD試料から推定された元素類、PCBs、ダイオキシン(DXNs)の体重当たり一日摂取量を比較したところ、幼児の体重当たり一日摂取量は全年齢層平均の体重当たり一日摂取量よりも大きくなり、両者の比は体重当たり食品一日摂取量の比と近い値となる場合が多かった。そこで、TD_{ave}により推定した全年齢層平均の体重当たり一日摂取量から、幼児の体重当たり一日摂取量を推定する方法を検討した。その結果、大部分の元素ではTD_{ave}から推定した体重当たり一日摂取量に、幼児と全年齢層平均の体重当たりの食品一日摂

取量の比を乗じることにより、幼児の一日摂取量を推定することが可能であったが、Al、Sn、Sb、As、Pbでは正しく推定できない場合があった。また、Hg、PCBs、DXNsでは魚介類の体重当たり一日摂取量の比を乗じて、幼児の体重当たり一日摂取量の推定が可能であった。この方法を用いることにより、過去の摂取量データから、幼児における有害物質の摂取量を遡って推定することが可能となった。

2014年には、ヒ素の形態別分析法を開発し無機ヒ素摂取量の推定への利用を開始している。しかし、価数の異なる無機ヒ素を分別して定量するためには、分析法の改良が必要である。そこで、特にヒ素摂取量への寄与が大きい精米及び玄米を対象食品とし、分析法の改良を試みた。測定時間の短縮、クロマトグラムのピーク形状や分離の改善を目的に移動相条件及び、分析に供する試料量を検討した。改良した無機ヒ素分析法の性能を、精米及び玄米を基材とする認証標準試料及び、無機ヒ素(3価)と無機ヒ素(5価)の標準溶液を用いて調製した添加試料(精米及び玄米)を計画的に分析することで評価した。分析法の真度は、認証標準試料に対し99~100%、両添加試料に対し100~102%と推定された。また、併行精度(RSD%)は認証標準試料に対し1.0~1.6%、両添加試料に対し1.5~2.6%と推定された。これらの結果より、改良した無機ヒ素分析法は精米及び玄米に適用可能な性能を有していると判断した。その他、検出にタンデム型質量分析計(MS/MS)を用いることにより、HPLCにより各ヒ素化合物が完全には分離できなくとも定量可能な方法の開発を目的とし、LC-MS/MSの分析条件を検討した。認証標準試料及び添加試料の分析において、希釈した測定溶液を調製することで、マトリクス成分の影響を低減させ定量可能となることを確認した。また、LC-QTOF/MSで標準品の精密質量を測定し、有機ヒ素の測定イオン形態を確認した。

③摂取量を推定すべき新規有害物質の選定研究

食品中のDXNs簡易測定生物検定法(バイオアッセイ)の他有害物質への評価応用のための基礎検討を継続して行った。2015年には、2014年のバイオアッセイ(ケイラックスアッセイ)による評価から明らかとなったアシル炭化水素レセプター(AhR)相互作用(DXNs様活性)物質を他のアッセイで評価し、検出感度に違いはあるものの活性の有無の傾向が類似していることを確認した。また、DXNs様活性を示すPAHsの検出報告がある食品の抽出物を分画し、各分画物のDXNs様活性を評価した。さらに、野菜や果物を中心とした食品の抽出物を調製し、酵母を用いたアッセイによりDXNs様活性を評価した。これまでに引き続き、PAHs検出の報告がある食品(紅茶、かつお節、ウイスキー)の抽出物についてDXNs様活性に寄与する成分を精査した結果、紅茶抽出物から

epicatechin gallateを見出した。ウイスキー、かつお節の抽出物に由来する活性画分については、芳香族ではない化合物の活性への関与が示唆された。一方で、各抽出物のPAHs含量についてGC-MSにより分析した結果、いずれの抽出物のPAHs濃度も低濃度であり、PAHs以外の物質が活性に影響していることが示唆された。自然毒の原因物質数種に対するDXNs様活性の評価では、イヌサフランに含まれるcolchicineが顕著なDXNs様活性を示し、ヒガンバナ科植物に含まれるlycorineにも若干の活性が認められた。なお、pyrrolizidine alkaloidやジャガイモの有毒成分solanine等は活性を示さなかった。

食品には、しばしば環境や食品そのものに由来する有害化学物質が含まれるが、その実態やリスクの大きさについては情報が不足している。国民の健康保護のためには食品の安全性確保は重要課題であるが、全てのリスクを知ることや全てのリスクに対応することは不可能である。そこでリスクの大きさに基づいた、リスク管理の優先順位付けが必要になる。日本人にとってのリスク管理の優先順位付けを検討する一例として、本研究班の渡邊分担課題により得られた有害元素類の摂取量推定値をもとに、2014年度までに集めた各種物質の毒性評価情報を利用してMOEを試算した。

1. 各種有害物質の適時及び継続的な摂取量推定

1-1. 元素類及び PCBs 摂取量の推定

A. 研究目的

本研究では、有害物質の適時及び継続的な摂取量推定を目的とした。

有害物質には、過去の研究成果や耐用摂取量(TDI)が設定されていることを指標に、鉛、カドミウム、ヒ素(総ヒ素並びに無機ヒ素)、水銀(総水銀並びにメチル水銀)を含む元素類及び PCBs を選定した。

鉛、カドミウム、ヒ素、水銀を含む元素類及び PCBs の摂取量を、マーケットバスケット(MB)方式によるトータルダイエット(TD)研究の一環として推定した。本 TD 研究には、地方自治体所管の衛生研究所等に毎年ご協力をいただいている。本報告書では、上記有害物質の全国・全年齢層における平均摂取量(全国摂取量_{ave.})の推定を目的に、2015年に実施した TD 研究の成果を報告する。また、本研究班松田分担課題の成果として、2015年に調製された幼児用 TD 試料(TD_{inf})の分析を通じ推定された、各種有害物質の幼児における摂取量(摂取量_{inf.})を報告する。さらに、当研究課題により 2013年～2015年の3年間に推定された、各種有害

物質の摂取量推定値の解析結果を報告する。

B. 研究方法

1. TD 試料の調製

日本人が日常的に飲食する食事(日常食)からの各種有害物質摂取量を推定するため、日常食のモデルとなる TD 試料を MB 方式により調製した。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を考慮し、TD 試料の調製は、全国 11 地域の衛生研究所等で行った。TD 試料は 2015年 4月から 10月までの間に調製された。統計法に基づく申請手続きを経て入手した、平成 20 年度～22 年度の 3 年間分の国民健康・栄養調査の結果を地域別に集計し、該当する各地域における個々の食品の 3 年間における平均摂取量を求めた。この集計では、年齢を要素としなかったため、該当する地域における各食品の全年齢層平均摂取量が集計結果である。各地域の担当者は、小売店から食品を購入し、茹でる、焼く等の一般的な調理加工を行ってから、該当する地域における 1 日当たりの摂取量に従って秤量

し、混合・均質化することで試料を調製した。

TD 試料は、混合・均質化の際に組み合わせる食品の種類に応じて、下記 14 群に分割して調製した。1 群:米及びその加工品、2 群:雑穀・芋、3 群:砂糖・菓子類、4 群:油脂類、5 群:豆・豆加工品、6:果実類、7 群:有色野菜、8 群:その他の野菜・海草類、9 群:嗜好飲料、10 群:魚介類、11 群:肉・卵、12 群:乳・乳製品、13 群:調味料、14 群:飲料水。

各地域で調製された TD 試料は、変質等による分析結果への影響に配慮し、不活性容器に入れ冷凍状態を保ちつつ、国立医薬品食品衛生研究所に収集された。全ての分析は、国立医薬品食品衛生研究所で実施した。

本研究班松田分担課題の成果として、幼児(1~3 歳児)における食品の摂取量を集計した結果に基づき、国立医薬品食品衛生研究所において上記と同様の手法を用いて幼児用 TD 試料(TD_{inf})を調製した。

当研究課題では、性能評価した新たな分析法を順次導入しつつ、2013 年~2015 年の 3 年間にわたり TD 試料の調製と分析を毎年実施し、各種元素類及び PCBs 類の摂取量を継続的に推定してきた。研究を実施した上記 3 年間に蓄積されたデータをまとめて解析し、各種有害物質摂取量推定値の推移や変動を明らかにし、原因等について考

察した。

2. 分析

元素類の一斉分析、総水銀の分析、メチル水銀の分析、無機ヒ素の分析及び、異性体別 PCBs の分析には、昨年度までに報告した各種方法を用いた。元素類一斉分析法の対象元素は、以下の 14 元素である。ホウ素(B)、アルミニウム(Al)、クロム(Cr)、コバルト(Co)、ニッケル(Ni)、総ヒ素(total As)、セレン(Se)、モリブデン(Mo)、カドミウム(Cd)、スズ(Sn)、アンチモン(Sb)、バリウム(Ba)、鉛(Pb)、ウラン(U)。

本研究に用いた全ての分析法が、昨年度までに推定した検出下限(LOD)や定量下限(LOQ)を含む性能を維持していることを、標準品の測定等を通じて確認後、TD 試料の分析は実施した。

3. 摂取量の推定及び解析

TD 試料における各種有害物質の濃度に、食品摂取量を乗じて有害物質摂取量を推定した。

当研究課題を実施した 3 年間に蓄積されたデータをまとめて解析し、各種有害物質摂取量推定値の推移や変動を明らかにし、原因等について考察した。

C. D. 結果及び考察

C. D.-1 各種有害物質の全国・全年齢層平均摂取量の推定

MB方式により全国11地域でTD試料を調製し、その分析により得られた値、すなわちTD試料の各種(有害)物質の濃度と、各地域の食品摂取重量に基づき、各種有害物質の摂取量を推定した。本研究課題で推定した幼児(1~3歳児)における各種有害物質の摂取量との区別を明確にするため、全国の地域ごとに推定された全年齢層における摂取量の平均値を、全国・全年齢層平均摂取量(全国摂取量_{ave.})とする。本研究においては、昨年度に引き続き検出下限を下回った分析結果をNDとし、ND=0として摂取量を推定した。

1)-1. 各種元素の摂取量推定値

2015年に調製した全14群のTD試料の分析を通じ、各種元素の摂取量を推定した。一斉分析法の対象となる14元素(B、Al、Ni、Se、Cd、Sb、Ba、Pb、U、total As、Sn、Cr、Co、Mo)、HPLC-ICP-MS法の対象となる無機ヒ素(inorganic As; iAs)、水銀計を用いた分析法の対象となる総水銀(total Hg)の摂取量推定値は全11地域を通じ、元素ごとに以下の範囲にあった。B:1186~1793 µg/man/day、Al:1426~16570 µg/man/day、Ni:87.3~223 µg/man/day、Se:70.7~97.3 µg/man/day、Cd:12.9~27.4 µg/man/day、

Sb:0.4~2.4 µg/man/day、Ba:366~717 µg/man/day、total Hg:5.3~16.7 µg/man/day、Pb:5.1~35.6 µg/man/day、U:0.3~2.1 µg/man/day、total As:140~405 µg/man/day、iAs:11.4~22.0 µg/man/day Sn:0.4~361 µg/man/day、Cr:13.6~47.2 µg/man/day、Co:6.4~13.9 µg/man/day、Mo:158~237 µg/man/day。上記16種の元素類の全国摂取量_{ave.}は、以下の通りとなった。B:1417 µg/man/day、Al:3580 µg/man/day、Ni:143 µg/man/day、Se:86.9 µg/man/day、Cd:17.8 µg/man/day、Sb:0.872 µg/man/day、Ba:473 µg/man/day、Pb:12.1 µg/man/day、U:1.22 µg/man/day、As:214 µg/man/day、iAs:15.4 µg/man/day、Hg:8.37 µg/man/day、Sn:80.3 µg/man/day、Cr:28.8 µg/man/day、Co:8.90 µg/man/day、Mo:197 µg/man/day。

総水銀の分析結果を踏まえ、含有の可能性が高いと判断した1群、10群、11群のTD試料の分析を通じ、メチル水銀の摂取量を推定した。2015年に推定した総メチル水銀摂取量の値(1群、10群、11群別摂取量推定値の総和)は、全11地域を通じ、3.6~14.5 µg/man/dayの範囲にあった。

1)-2. 摂取量推定値の変化が大きかった元素

2014年の摂取量推定値から比較的大きな変化が認められた元素は、アルミニウム、アンチモン、鉛、スズであった。2014年に比べ、アルミニウムと鉛の摂取量推定値は約1.5倍、アンチモンとスズの摂取量推定値は約0.5倍となった。(アルミニウム、アンチモン、鉛、スズの2014年における摂取量推定値は、それぞれ以下の通りである。Al:2453 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Sb: 1.38 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Pb:7.82 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Sn:133 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 。)

アルミニウムについては、地域Cの8群からの摂取量が、全国摂取量_{ave.}に大きく寄与していた。地域Cにおいて8群のTD試料の調製に使用された食品のレシピを確認し、アルミニウム濃度が高い食品として青のりを疑った。実際に、TD試料の調製に使用した製品と同一の製品を買い上げ、アルミニウムを分析した結果、濃度は約3400 mg/kgであった。TD試料と青のり製品のそれぞれの濃度及び、TD試料に占める上記青のり製品の割合から、当該青のり製品がアルミニウム摂取量に支配的な影響を与えたことが強く示唆された。青のりに含まれるアルミニウムに関する情報を見つけることはできなかった。青のりという食品のアルミニウム濃度は、原料としても比較的高値なのかも知れないし、当該製品の製造において

何かしらの工法が採られるあるいは添加物が加えられることによって高くなるのかも知れない。

食品の製造方法が有害物質の摂取量の増加につながる可能性については、スズについてもほぼ同様に当てはまる。スズが食品に含まれる経路については十分に確認できていない。しかし、食品の製造もしくは保管の工程においてスズを材質に含む缶を使用することで、缶から溶出したスズが食品に移行することが疑われる。スズの摂取量は、11地域中3地域で突出して高かった。スズの摂取量が高い3地域では、6群あるいは、8群からの摂取量が総摂取量に対し大きく寄与していた。2013年と2014年に実施したTD研究においても、スズに関しては、ある地域において推定された摂取量が他の地域において推定された摂取量に比べて高く、6群あるいは8群からの摂取量が総摂取量に対し大きく寄与するという、同様の特徴が確認されている。

アンチモンについては、食品の濃度が総じて低いため、特定の食品における濃度が高いといった特徴を捉えることができなかった。アンチモンの濃度は極めて低値であるため、分析による変動への効果が無視できるほど小さくないとも考えられる。そのため、現時点で摂取量の変化の

原因を考察することは困難である。また鉛についても同様である。特に鉛は、後述するとおり、ほぼ全ての食品群から摂取されており、総摂取量に対する寄与率にも食品群間に大きな違いがない。ただし、2015年のTD研究の結果においては、地域Cで調製されたTD試料の8群、地域Hで調製されたTD試料の9群からの摂取量が、他地域の同じ群からの摂取量に比べ高かったことに注目すべきかもしれない。上記8群や9群に含まれる食品の中に、摂取量を明らかに変化させるほど鉛濃度の高い食品があり、時折摂取されている可能性も考えられる。なお、地域の特徴ではなく、食品の特徴に関する考察であることを強調しておく。

昨年度の報告書においても考察したが、アルミニウムやスズのように、食品添加物の成分にもなる元素あるいは、食品容器の材質に含まれる可能性のある元素は、該当する添加物や容器を使用した食品を摂取するかしないかによって大きく摂取量が変わる。そのような特徴を持つ元素については、MB方式ではなく、摂取量への寄与が大きいと考えられる個別食品を選別し、実態濃度データを十分蓄積した上で、当該食品の摂取に関する合理的なシナリオを想定し、確率論的推定を行うほうが、摂取量

推定の手法として適切であり、より精密な摂取量が推定されるだろう。アンチモンや鉛のように、特定の食品における濃度が他の食品に比べ高くなるといった特徴がなく、そのような特徴に基づく摂取の蓋然性を考察できない元素については、可能な範囲で食品を網羅し、より多くの摂取量推定値を蓄積させる以外、精密な摂取量を推定する方法がないかもしれない。網羅する食品の範囲が広いという点において、MB方式のTD研究は適していると考えられる。

上記のアルミニウム、スズ、鉛、アンチモンに関する考察は、摂取量推定値の変化を取り扱ったものである。この考察では、健康リスクは要素としていない。健康リスクを要素とする摂取量推定値の考察は、耐用摂取量を指標として後述する。また、摂取量推定値の変化に関しては、2013～2015年に実施したTD研究により推定された各種有害物質の摂取量をまとめて解析した結果を用いて、項を変えて再度考察する。

1)-3. 各種元素類の摂取量に寄与する食品群

全国摂取量_{ave.}に対する食品群別摂取量の寄与率を検討した結果、総摂取量に対する食品群別摂取量の寄与のパターン及び寄与率は、元素によ

って大きく異なることが明らかとなった。また、2013年～2015年の結果を年間で比較した結果からは、各食品群の寄与が必ずしも一定ではなく、変動することが示された。

ホウ素、ニッケル、セレン、カドミウム、バリウム、ウラン、総ヒ素、無機ヒ素、総水銀、クロム、コバルト、モリブデンの総摂取量に対する各食品群の寄与率は、3年間の結果を通じて安定したパターンを示した。食品の摂取量には、3年間を通じて同一の値を用いているため、これら元素類については、各食品群に含めた食品での濃度が比較的安定しているとも考えることができる。一方、アルミニウム、アンチモン、鉛、スズの総摂取量に対する各食品群の寄与率は、3年間で少なからず変動している。アルミニウムでは8群と9群、スズでは6群と8群の寄与率が3年間で大きく変動していた。これら食品群からの摂取量の変動を踏まえ、各食品群に属する食品の実態濃度データを使用した確率論的摂取量推定の実施が、摂取量推定値の精密さの向上につながる。

アンチモンについては、先に考察したとおり、食品における濃度が極めて低いことの影響もあると考えられるが、各食品群の寄与率に特徴を見いだすことができなかつた。鉛については、4群(油脂)を除く全ての食

品群が、摂取量に寄与していた。各食品群の寄与率は、3年間を通じて少なからず変動しているが、8群と9群からの寄与率が比較的安定して高いと言える。

その他として、2014年に続き、2015年の結果からも、総ヒ素と無機ヒ素との間で、総摂取量に寄与する食品群が大きく異なることが示された。総ヒ素摂取量への寄与率は10群、8群そして1群の順に高く、無機ヒ素摂取量への寄与率は、1群、8群、13群の順に高い。このような違いが明らかになったことで、より精密に摂取量を推定するための方針を持つことができる。無機ヒ素の摂取量の精密な推定には、1群に属しその摂取量の大半を占めるコメの実態濃度データを蓄積し、確率論的摂取量推定を実施することが有効だと考える。同様の考えから、本分担課題の一部として、魚におけるメチル水銀の実態濃度データの蓄積を進め、確率論的摂取量推定を実施した。その結果は、別途報告する。

1)-4. PCB類の摂取量推定

全11地域で調製されたTD試料の分析を通じ、PCBsの摂取量を推定した。過去の研究の結果から、PCBsはほぼ10群と11群からしか検出されず、総摂取量に対する10群からの寄与が支

配的であることが明らかになっている。このことを踏まえ、10群と11群のTD試料のみを分析した。

全11地域を通じ、10群からの全PCBs摂取量は181～1707 ng/man/dayの範囲、11群からの全PCBs摂取量は5.7～1298 ng/man/dayの範囲で推定された。昨年度に比べ、10群からの全PCBs摂取量の最大値は1.5倍程度、11群からの全PCBs摂取量の最大値は15倍程度大きくなった。10群と11群から推定された全PCBs摂取量の和である総PCBs摂取量推定値は、11地域を通じて197～1741 ng/man/dayの範囲にあり、全国摂取量_{ave.}は663 ng/man/dayと推定された。

10群からの全PCBs摂取量の最大値は地域Aにおいて、11群からの全PCBs摂取量の最大値は地域Fにおいて推定された。これら2つの最大値は、昨年度推定された相当する最大値に比べ、それぞれ1.5倍あるいは15倍程度高いだけでなく、他の地域において推定された全PCBs摂取量と比べても高い。また、11群からの全PCBs摂取量については、地域Jにおいて推定された値も他の地域に比べると高い(昨年度の相当する全PCBs摂取量の最大値に比べても、約5倍高い)。10群と11群からの全PCBs摂取量推定値のいずれかが高い結果として、地域A、地域F、地域Jにおける総PCBs摂取量

推定値もまた、他地域に比べ高い値となった。

2015年の総PCBs摂取量の全国摂取量_{ave.}は、663 ng/man/dayと推定され、2014年に推定された488 ng/man/dayに比べわずかに高い。2015年の推定値が昨年の推定値に比べ高い原因として、上記の地域A、地域Fにおいて推定された摂取量の寄与が考えられる。しかし、この考察は2015年の摂取量推定値に限定されるものであり、地域A、地域Fまたは地域Jにおける総PCBs摂取量が他の地域に比べ一般に高いことを意味してはいない。2015年に、上記の地域において他地域と比べて高い摂取量が推定されたのは、偶発的であると考えられる。例えば地域Aにおいて、同じ食品群のTD試料をそれに含める食品(とその組合せ)を変えて複数回調製すれば、それらの分析を通じて異なる摂取量が推定されるだろう。そのように推定された摂取量が、2015年に推定された摂取量と同程度の値になるとは限らない。同じように、別の地域において推定される摂取量が高くなることもありえる。PCBsの全国摂取量_{ave.}の変化もまた、推定ごと異なる摂取量の変動の範囲に含まれるものと考えられる。食品の摂取量が大きく変化しない限り、10群や11群からの総PCBs摂取量は、魚あるいは肉のPCBs濃度により

ほぼ決定される。養鶏や食物連鎖の上位に位置する魚種等に関する一部の情報を除き、魚あるいは肉の高濃度汚染に関する情報は少ない。特に魚種や肉種を限定すれば、どのような魚製品や肉製品が定常的な濃度と比べ高い濃度でPCBsに汚染されるかは、偶発的な事象だと言える。食品の高濃度汚染が偶発的であることに加え、高濃度に汚染された食品の国民による摂取もまた偶発的である。PCBsの全国摂取量_{ave.}の変動と、その変動要因となる濃度の高い食品がTD試料に含まれることの偶発性については、2013-2015年に得られた地域別の推定値をまとめて解析した結果を示し、後述する。なお、上記考察では、健康リスクを要素としていないことを強調しておく。健康リスクを要素とした考察については、耐用摂取量を指標として示し、後述する。

1)-5. 有害元素及び総PCBsの全国・全年齢層平均摂取量の対TDI比

2015年に全国摂取量_{ave.}を推定した元素のうち、耐用摂取量(TDI)の設定されている有害元素(ホウ素、アルミニウム、ニッケルセレン、カドミウム、アンチモン、バリウム、鉛、ウラン、メチル水銀)及び、総PCBs摂取量の対TDI比を求めた。その結果、ニッケルの全国摂取量_{ave.}の対TDI比が約70%

と計算され、2013年からの3年間を通じて推定した摂取量の中で最も高かった。この値に続いて、メチル水銀摂取量の対TDI比は50%を超え、ホウ素、セレン、カドミウム、バリウム摂取量の対TDI費は30%を超えた。以上の元素類の摂取量は、引き続き年次推移を監視する蓋然性が高い。また、本TD研究において推定される摂取量が、全国・全年齢層平均であることを踏まえ、多量の食品を偏って摂取する個人の存在を考慮し、より精密な摂取量を推定するために、可能な範囲で確率論的な手法を取り入れていく必要があると考える。Uの摂取量とPb摂取量の対TDI比はそれぞれ約10%と5%であり、2013年からの3年間で計算された値がほぼ一致している。また、アンチモンとPCBsの全国摂取量_{ave.}の対TDI比は、2013年からの3年間を通じて、一致して0.5%を下回っている。全国・全年齢層における平均の摂取量が対TDIに占める割合が1%に満たない点からは、これら有害物質の摂取量を継続して推定する蓋然性は低いと判断される。ただし、PCBsについては、昭和48年に、当時の厚生省により発出された通知に示された5 µg/kg bw/dayを対TDI比の計算に使用している。その後、PCBsの毒性に関する科学的知見が蓄積されるにつれて、国際的には新たな毒性指標(値)

が示され、それを踏まえた規制等を実施している国もある。本研究課題において推定されたPCBsの全国摂取量_{ave.}は、それらの毒性に関する科学的知見の影響を受けるものではないが、健康リスクに関しては、最新の指標を導入した再評価について検討すべきと考える。

1)-6. 元素類及び総PCBsの全国・全年齢層平均摂取量の変動

各協力機関が調製したTD試料を、分析法の性能評価を実施するなどして品質保証に取り組む1機関が全て分析することで、一定の品質が担保されたデータ(各地域における全年齢層平均摂取量)が蓄積された。元素類のデータ(無機ヒ素についてはn=22、それ以外の元素類についてはn=32)及びPCBsのデータ(n=27)を対象に、全年齢層平均摂取量の値とその変動について解析した。

全地域を通じた全年齢層平均摂取量の最大値と最小値の差が5倍未満であった元素には、ホウ素、ニッケル、セレン、バリウム、クロム、コバルト、モリブデン、カドミウムがあり、平均値、最小値そして最大値のいずれもが、TD研究を実施した3年間を通じて比較的よく一致した。またこれら元素の総摂取量に対する各食品群の寄与率は、3年間を通じて安定したパタ

ーンを示した。以上の結果から、平均的な日本人の日常的な摂食行動においては、これら5種の元素が、決まった食品群から狭い範囲の量で安定して摂取されているといえる。2013～2015年の3年間には、各地域の全年齢層平均摂取量の推定に一定の食品摂取量を用いているため、解析対象とした摂取量の値は、食品群(食品)の濃度により決まっている。つまり、食品におけるこれら8種の元素の濃度は、摂取量の観点からは、比較的狭い範囲に分布していると考えられる。セレンのように、生存に必須であるため、過剰とならない適切な量が生物に含まれており、その生物に由来する食品にも失われることなく維持されていることが理由の1つに考えられる。カドミウムは、セレンのように生物の生存に必須ではなく、主に土壌から吸収され、農作物に含まれるようになるといわれている。そのため、カドミウム濃度の高い土壌で栽培されることで高濃度のカドミウムに汚染された農作物を原材料とする食品が摂取されない限り、我が国における平均的なカドミウム摂取量は安定なのかもしれない。上記8種の元素の摂取量に関しては、全国摂取量_{ave.}の3年間の平均値がより頑健な推定値であるといえるだろう。以下に各元素の全国摂取量_{ave.}の3年間の平

均値を示す。B:1407 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、
Ni:146 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Se:90 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、
Ba:461 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Cr:26 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、
Co: 8.5 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Mo:212 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、
Cd : 18 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 。

全年齢層平均摂取量の最大値と最小値の差が5倍以上であった元素には、アルミニウム、アンチモン、スズ、鉛、ウランがあった。これら元素のうち、スズ、アンチモン、アルミニウムの全年齢層平均摂取量の最大値と最小値の差は大きく、それぞれ約3000倍、100倍、15倍であった。アンチモンの摂取量は極めて小さく、食品における濃度も極めて低い。TD試料調製時のコンタミネーションや、極微量を分析する際の分析に起因するばらつきが、上記最大値と最小値の差に寄与している可能性も考えられる。スズとアルミニウムの摂取量は、先に述べたとおり、それら元素を成分に含む添加物の使用や食品容器からの移行等、食品の製造、保管・輸送に関わる人の行為により大きく影響を受けていることが強く示唆される。摂取量への寄与が大きな食品群が、6群、8群、9群であることも特定された。特にスズについては、人の行為以外の寄与が無視できるほどに小さいためか、摂取量に寄与する食品群はほぼ6群と8群に限定されており、全年齢層平均摂取量の最大値と最小値の

差が極めて大きい。鉛とウランにおける全年齢層平均摂取量の最大値と最小値の差は、それぞれ約10倍と8倍であった。鉛とウランは共に環境からの汚染物質である。鉛の汚染源を唯一のものとして特定することはできない。油脂を除く全ての食品群から鉛の摂取量への寄与がある。ウランの汚染源には、ウラン鉱山や過去の核実験によるわずかな残留が疑われる。ウランの摂取量に大きく寄与する食品群は、8群と10群であるが、これら食品群に含まれる各食品のウラン濃度は、その食品の原材料となる植物や水生動物が生育する環境に依存して決まるのだろう。濃度が極めて低いことも、ウラン摂取量推定値の変動が大きい原因の1つとして考えられる。

十分な情報がなく考察ができないためにアンチモンは除外するが、上記アルミニウム、スズ、鉛、ウランのように人為的な行為の影響を受けるか否か、あるいは生育の過程において環境からの汚染を受けるか否かによって、偶発的に食品の濃度が大きく変化するような元素の摂取量推定として、TD研究を実施することには限界がある。鉛のように多様な食品を微量に汚染するような元素の場合には、それら多様な食品の濃度の実態を網羅的に調査するための労力が

膨大となる。この労力の低減方法として、MB方式によるTD研究は有効であろう。ウランについては、摂取量に大きく寄与する食品群の特定は可能であるが、寄与が大きい食品を特定することは困難である。食物連鎖の上位に位置する大型の魚や葉もの野菜といった共通の特徴を持つ複数の食品の範囲までしか絞り込むことができないことが予想される。そのような場合でも、特定の食品群のみの分析を通じたTD研究の実施が、労力の低減に有効だろう。しかし、TD研究の実施により推定されるこれら元素の摂取量の変動が大きいことを踏まえ、十分に多数の摂取量推定値の平均を求めるような工夫をしなければ、正確な摂取量を推定することはできないと考える。

一方、アルミニウムやスズのように、摂取量に影響を与える人の行為が具体的に推測される場合には、その行為の対象となったであろう食品を選別し、それら食品の実態濃度データを十分に蓄積し、食品の摂取に関する妥当なシナリオを想定した上で、確率論的に摂取量を推定するのが最も効率的かつ、精密な摂取量推定法になるだろう。

互いに関係を持つため、総ヒ素と無機ヒ素、総水銀とメチル水銀摂取量の解析結果は一組にして考察した。

総水銀における最大値と最小値の差は5.5倍、メチル水銀における最大値と最小値の差は7.6倍であり、多少大きい。それに比べ、総ヒ素と無機ヒ素における最大値と最小値の差はいずれも3倍以下である。総水銀(メチル水銀)と総ヒ素(無機ヒ素)は、鉛やウランと同様に、環境からの汚染物質である。総水銀とメチル水銀の摂取量及び、効率的かつより精密な摂取量推定に関する考察は、ウランに対してした考察と同じである。総ヒ素と無機ヒ素の摂取量に関する考察は、カドミウムに対してした考察と同じになる。総ヒ素と無機ヒ素のより頑健な摂取量推定値として、全国摂取量_{ave}の3年間(無機ヒ素に関しては2年間)の平均値を以下に示す。Total As:214 µg/man/day、iAs:17 µg/man/day。

10群と11群からの全PCBs摂取量及び、10群と11群からの全PCBs摂取量の和である総PCBs摂取量の全年齢平均摂取量を対象に同様の解析を行った。その結果、特定の地域における特定の群からの全PCBs摂取量が常に高いあるいは低いといった特徴はなかった。2015年のTD研究において、地域Aにおける10群からの全PCBs摂取量が、その他の地域に比べて高い値で推定された原因は、地域Aで調製されたTD試料に、比較的高濃度のPCBsに汚染された食品が偶発的に含まれ