

たことであるとした考察が、支持される。地域Aにおける摂取量の3年間の変動だけを見ても、2015年の摂取量が突出して高い。2014年には地域Gにおける総PCBs摂取量が、その他の地域に比べ高い値で推定されている。PCBsも又、鉛、ウラン、ヒ素そして水銀と同じように環境からの汚染物質である。PCBs摂取量に関する考察も、その他汚染物質に対する考察と同じになる。

1)-7. 鉛、カドミウム、総ヒ素、総水銀及び総PCBsの全国・全年齢層平均摂取量の変動

これまで30年以上にわたり推定してきた鉛、カドミウム、総ヒ素、総水銀及び総PCBsについて、2015年の結果も加えた全国摂取量_{ave.}の経年変化を見た結果、ヒ素、水銀、カドミウムの摂取量は、わずかに減少が認められるもののほぼ一定の値で30年間推移していることが分かった。カドミウムは、経年的にわずかに減少しているように見えるが、これは食品のカドミウム濃度の減少ではなく、カドミウム摂取量に大きく寄与する1群(米・米加工品)の摂取量の減少に伴うものである。鉛とPCBs摂取量は1990年代までに大きく減少して以降ほぼ下げ止まり、以後、安定して推移している。2012年以降、総PCBs摂取

量がわずかに増加しているようにも見えるが、特定の地域で比較的大きな摂取量が偶発的に推定された結果であり、国民全体の摂取量の増加を示したものではないと考えている。多くの地域で高頻度に比較的大きな摂取量が推定されるようなことが今後あれば、注意が必要である。

C. D.-2 特定地域における全年齢層平均摂取量と幼児摂取量との比較

当研究班松田分担課題の成果として、地域C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(TD_{ave})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;TD_{inf})が調製された。本研究では、全年齢層用TD試料並びに幼児用TD試料の分析を通じ推定した、元素類及びPCBsの全年齢層摂取量(摂取量_{gen.})並びに幼児摂取量(摂取量_{inf.})を報告する。

2015年のTD研究における摂取量の推定対象は、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、総ヒ素、スズ、クロム、コバルト、モリブデン、総水銀、メチル水銀、無機ヒ素、及びPCBsである。各年に推定した摂取量の平均値を摂取量_{gen.}及び、摂取量_{inf.}とする。なお、幼児の平均体重を12.6kg、全年齢層の平均体重を50

kgとして計算し、単位を $\mu\text{g}/\text{bw kg}/\text{day}$ とした。また、摂取量 $_{\text{gen}}$ に占める摂取量 $_{\text{inf}}$ の割合を求め、対全年齢比(%)とした。

摂取量 $_{\text{inf}}$ は、以下の通りである。
B:49.7 $\mu\text{g}/\text{kg bw}/\text{day}$ 、Al:317 $\mu\text{g}/\text{kg bw}/\text{day}$ 、Ni:5.30 $\mu\text{g}/\text{kg bw}/\text{day}$ 、Se:2.81 $\mu\text{g}/\text{kg bw}/\text{day}$ 、Cd:0.481 $\mu\text{g}/\text{kg bw}/\text{day}$ 、Sb: 0.0423 $\mu\text{g}/\text{kg bw}/\text{day}$ 、Ba:15.9 $\mu\text{g}/\text{kg bw}/\text{day}$ 、Pb:0.437 $\mu\text{g}/\text{kg bw}/\text{day}$ 、U: 0.0358 $\mu\text{g}/\text{kg bw}/\text{day}$ 、As:5.09 $\mu\text{g}/\text{kg bw}/\text{day}$ 、iAs:0.392 $\mu\text{g}/\text{kg bw}/\text{day}$ 、Hg:0.239 $\mu\text{g}/\text{kg bw}/\text{day}$ 、MeHg:0.111 $\mu\text{g}/\text{kg bw}/\text{day}$ 、Sn: 0.216 $\mu\text{g}/\text{kg bw}/\text{day}$ 、Cr:1.03 $\mu\text{g}/\text{kg bw}/\text{day}$ 、Co: 0.355 $\mu\text{g}/\text{kg bw}/\text{day}$ 、Mo:5.65 $\mu\text{g}/\text{kg bw}/\text{day}$ 。

対全年齢比(%)は、全ての元素を通じて100%を超え、最大はズズにおける228%であった。元素によらず、計算された対全年齢比の範囲を示せば、107~228%となった。元素類と同様に、3年間分の全PCBs摂取量から摂取量 $_{\text{gen}}$ 並びに摂取量 $_{\text{inf}}$ 及び、対全年齢比を求め他結果、対全年齢比は全同族体摂取量については100%を超え、総PCBs摂取量に関しては156%となった。

摂取量 $_{\text{gen}}$ 並びに、摂取量 $_{\text{inf}}$ の対TDI比(%)を求めた。その結果、対全年齢比が全ての元素及びPCBsで100%を超えたことから自明であるが、摂取量 $_{\text{inf}}$ の対TDI比の値は、摂取

量 $_{\text{gen}}$ の対TDI比に比べ、必ず高い値となった。特に、アルミニウムとニッケルの摂取量 $_{\text{inf}}$ の対TDI比は、100%を超えた。

2013~2015年の3年間にわたり実施した本研究では、全年齢層用TD試料と幼児用TD試料は、家庭内で大人と幼児が食事を摂ることを想定し、地域Cにおいて買い上げた同一の食品を材料として調製した。ただし、常識的に幼児が摂食しないだろうと考えた刺激性の強い食品等は、それに代わる食品に置き換えた。そのため基本的に、対応する食品群の全年齢層用TD試料と幼児用TD試料の元素類濃度やPCBs濃度は近い値となる。幼児における体重1 kg当たりの食品摂取量はそれ以上の年齢層における体重1kg当たりの食品摂取量に比べて大きい。このことが、元素類及びPCBsの全てについて、幼児摂取量が全年齢層平均摂取量を上回った主要原因であると考えられる。

本研究で採用した想定のように、1つの家庭の中では大人と幼児が同一の食材から調理された食事を摂るのであれば、体重と食事摂取量との関係を求めることで、大人と幼児における暴露量を相互に計算することが可能と考える。MB方式のTD研究において摂取量 $_{\text{gen}}$ が推定されれば、その値に体重と食事摂取量の関係から

導かれる係数を乗じることにより、
摂取量_{inf}が推定できることになる。

摂取量_{gen}に基づき、計算により摂取量_{inf}を推定する可能性については、
当研究班松田分担課題において詳細
が述べられる。

1-2. メチル水銀摂取量の確率論的推定

A. 研究目的

メチル水銀等の有機水銀は、無機水銀よりも毒性が強く、食品衛生法により総水銀 0.4 mg/kg、メチル水銀 0.3 mg/kg (水銀として)を暫定的規制値とすることが示されている。食品を介したメチル水銀の摂取量は、「有害物質摂取量推定の部-元素類及び PCBs 摂取量の推定-」の部において、MB 方式の TD 試料の分析結果に基づいて 6.61 µg/man/day と推定されている。この推定に基づく、メチル水銀の対 TDI 比は 58%となり、健康リスクの観点からも監視の継続が必要と考えられる物質の一つである。

「有害物質摂取量推定の部-元素類及び PCBs 摂取量の推定-」の部において、メチル水銀摂取量の推定方法には、食品の濃度実態データを使用した確率論的な手法が有効と考察されている。この考察は、メチル水銀の大部分が魚介類の群(10 群)から摂取されて

いるという、TD 試料による摂取量推定の結果を根拠としている。

確率論的な手法を用いて摂取量分布を推定するためには、食品に含まれるメチル水銀濃度の正しい分布が必要となる。TD 試料によるメチル水銀摂取量推定の結果は、メチル水銀の大部分が魚介類から摂取されることを示しているため、魚介類のみのメチル水銀濃度からでも、おおむね正しい推定値が得られると期待される。この前提に基づいて、まず魚類 210 試料を分析し、メチル水銀濃度を明らかにした。得られた濃度データと、魚類の摂取量分布データを用い、モンテカルロシミュレーションにより、メチル水銀の一日摂取量分布の推定を試みた。

B. 研究方法

試料 東京都内及び神奈川県内の小売店で販売されていた産地の異なる鮮魚 210 試料を購入した。可食部(内

臓を除く)を試料とした。

メチル水銀分析法

試料からメチル水銀を抽出しフェニル誘導體化した後に GC-MS で測定し定量した。認証標準試料ならびに鮮魚を基材とする添加試料(添加濃度 0.3 mg/kg)を用いた計画的な実験により、分析法の性能を明らかにした。分析者 3 名が性能を評価した結果、真度は 85 ~ 98%、室内精度(RSD%)は 1.6 ~ 8.1% と推定された。

確率論的摂取量推定

メチル水銀濃度を分析した 210 試料の魚類を、国民健康・栄養調査の食品小分類に従って、あじ・いわし類(あじ、いわし、さば、さんま)、さけ・ます類(さけ、にじます)、たい・かれい類(かれい、たい、たら)、まぐろ・かじき類(めかじき、くろまぐろ、めばちまぐろ、きはだまぐろ、びんながまぐろ、かつお)、その他の生魚類(いなだ、かんばち、さわら、ぶり)の 5 つのグループに分類した。まぐろ・かじき類には、メチル水銀濃度が 1.0 mg/kg を超える試料がみられたが、他の魚グループのメチル水銀濃度は 1.0 mg/kg 以下であった。さけ・ますのグループのメチル水銀濃度は特に低かった。

各グループの濃度分布に対数正規分布を適合し、シミュレーションに用いる濃度の分布とした。対数平均はまぐろ・かじきのグループで最も大きく、

さけ・ますのグループで最も小さかった。対数標準偏差が対数平均よりも大きく、環境に広く存在する汚染物質の典型的な分布を示した。

魚類摂取量の分布は国民健康・栄養調査のデータ(28,706 件)を使用した。調査対象全体の 66%(その他の生魚) ~ 85%(まぐろ・かじき類)は、調査の当日に各グループの魚類を摂取していないため除いた。また 20 g 以下の摂取量の人数が全体の 10 ~ 25%であり、全体としては左側に偏った分布となった。一方、200 g 以上を摂取した人の割合は 0.1%以下であった。このような形状の分布に、通常連続分布をあてはめることは困難であるため、分布をあてはめを行わず、度数分布化してシミュレーションには使用した。

モンテカルロシミュレーションは Oracle 社製 Crystal ball を用いて行った。一回の試行において、魚のグループごとにメチル水銀濃度と対応する摂取量それぞれ 1 個を分布に従って発生させ、両者の積を一日摂取量とし、これを 5 グループ分足し合わせて、全摂取量とした。試行回数は 20000 回とした。

C. D. 結果及び考察

メチル水銀濃度と魚の摂取量が共に、右下がりの分布であることから、モンテカルロシミュレーションによ

り得られたメチル水銀摂取量の分布も同じような右下がりの分布となった。また、感度はまぐろ・かじき類の摂取量が33.2%で最大となった。まぐろ・かじき類は、他の魚のグループと比較してメチル水銀濃度分布が高濃度範囲を含んでいるためと考えられる。次いで、感度が高かったのはその他の魚の摂取量であった。

モンテカルロシミュレーションにより得られたメチル水銀摂取量の平均値は5.83 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ となった。この値は、TD 試料の分析結果に基づく摂取量推定値である6.61 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ の88%であり、やや低い推定となった。①鮮魚のみの濃度分布と摂取量を用い加工品を含めなかったこと、②魚以外の魚介類また、肉類からの寄与分が考慮されていないことが、本シミュレーションによる推定値がやや過小となった原因として考えられる。中央値は1.78 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ で平均値よりもか

なり低い値となった。分布の形状からも、平均値に比べ中央値が低くなることは確認できる。90%tile 値は15.04 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 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 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 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。

モンテカルロシミュレーションで示された、95%tile 値あるいはTDIを超える割合は、ある一日の事象である。しかし、魚の多食者が、日常的に多くの魚を食べているとすれば、平均的な量と頻度で魚を食べる集団に比べ、TDIを超えてメチル水銀を摂取する可能性は大きくなる。実際に、魚多食者によるメチル水銀の摂取量をシミュレーションにより推定するためには、複数日にわたる食品摂取の調査等、食品摂取の傾向が明らかとなるような調査データが必要である。

1-3. 摂取量推定値の分布に基づく推定手法の評価

A. 研究目的

分担研究課題「各種有害物質の適時及び継続的な摂取量推定研究」では、多数の機関においてMB方式により調製したTD試料を分析し、得られた元素類、PCBsの濃度に基づいて、こ

れらの物質の食品を介した一日摂取量を推定している。

MB方式でTD試料を調製する際には、国民健康・栄養調査結果を解析することで得た、各食品小分類の一日摂取重量の平均値に従って食品を混合

する。このようにして調製される TD 試料の分析結果に基づき推定される有害物質の一日摂取量は、日本人が食事から摂取する有害物質の一日摂取量の平均値である。

MB 方式で調製した TD 試料は、上記の通り、日本人の平均的な食事を模している。しかしその一方で、TD 試料の調製において混合される個々の食品は、試料調製者や機関により選択されるものであり、そのようにして調製される TD 試料は個々に異なっている。異なる TD 試料を分析して得られる有害物質濃度も当然ながら異なり、異なる濃度に基づき推定される一日摂取量は同じにはならず、分布を持つ。つまり、MB 方式により調製された TD 試料の分析結果に基づき推定される個々の一日摂取量は、現実には達成不可能な理念上のすべての TD 試料から推定される一日摂取量の集合の 1 つの要素である。さらに、摂取量は個々の TD 試料を分析して得られる濃度に基づき算出される。そのため試料の変動(多様性)に加えて、分析に起因する分析結果の変動も、摂取量推定値の変動要因となると考えられる。

しかしこれまでに、TD 試料の分析結果に基づき推定される一日摂取量の変動の大きさや、摂取量推定の対象となる物質ごとの変動の違い等は明らかになっていない。この変動の大きさ

を明らかにするため、本研究により 2013 年～2015 年の 3 年間にわたり推定された 30 あまりの摂取量推定値を解析し、MB 方式により作製された TD 試料の分析結果に基づく摂取量推定値の信頼性について考察した。

B. 研究方法

2013 年～2015 年に、全国 12 カ所の研究機関(北海道、新潟県、東京都、横浜市、名古屋市、滋賀県、福井県、大阪市、香川県、福岡県、宮崎県、沖縄県の衛生研究所等)において、TD 試料を調製した。12 機関中 9 機関は、2013 年～2015 年の 3 年間を通じて TD 試料を調製し、他の 3 機関はこの期間中の 1 年あるいは 2 年間だけ試料を調製した。

14 食品群からなる TD 試料を分析し 15 元素(B、Al、Cr、Co、Ni、As、Se、Mo、Cd、Sn、Sb、Ba、Pb、U、Hg)及び PCBs(10 群及び 11 群のみ)の濃度を得た。各食品群の TD 試料における分析対象の濃度と、各食品群を一日に摂取する重量を掛け合わせて、分析対象の一日摂取量を推定した。3 年間に、元素類及び PCBs の摂取量推定値がそれぞれ 32 個得られた。それぞれの物質ごとの 32 の推定値を、当該物質の全摂取量推定値の集合からのサンプルとみなして、統計量を推定した。

C. 結果

大部分の元素類及び PCBs の一日摂取量推定値は比較的狭い範囲に分布しているが、Al、Sn、Sb では、少数の推定値が突出して大きい結果となった。一例として Cd を取りあげると、Cd の一日摂取量では、中央が高くほぼ対称なヒストグラムが得られたが、Al、Sn、Sb の一日摂取量では値の小さい方(左側)に最頻値があり、大きい側に裾を引くヒストグラムとなった。Pb と PCBs のヒストグラムは、Cd のヒストグラムと Al 等のヒストグラムとの中間的な形状となった。

一日摂取量推定値の平均と相対標準偏差(RSD)をプロットして解析した結果、32 個の元素類と PCBs の摂取量推定値は、その分布から大きく 2 つあるいは 3 つのグループに分類可能と考えられた。1 つは、比較的対称な分布を示し RSD が 10~50%程度のグループで、B、Cr、Co、Ni、As、Se、Mo、Cd、Ba、U、Hg が含まれる。もう 1 つのグループには Al、Sn、Sb が含まれ、一日摂取量推定値は極めて非対称で、飛び離れた値を持つ分布を示し、RSD は 100%を超えた。Pb と PCBs は 2 つのグループの間であるが、ヒストグラムは連続的であり、RSD は 70%程度であることから、第 1 のグループに属するものの、特に一日摂取量推定値分布が広がったものとも

可能である。

3 年間分が蓄積された 9 機関分の一 日摂取量を対象に、機関と試料作製年を要因とした 2 元配置の分散分析を行った。その結果、年間の分散比が有意ではない危険率が 5%以上となった元素は B、Cr、Mo のみであった。一方、機関間の分散比は Se、U、Hg、PCBs 以外は、有意ではない危険率が 5%以下となり、そのうち 8 元素では 1%以下であった。この結果は、TD 試料を調製した機関によって、摂取量推定値に違いがあることを示している。

TD 試料調製の基礎となる国民健康・栄養調査結果を解析した個々の食品の摂取量と内訳は、地域ごとにわずかに異なるが、有意差を示すほど大きなものではないと考えられる。TD 試料に含める食品の選択と重量の割合には幅があり、その幅の中で組み合わせが変わりうる。実際にも、特定の機関で調製する TD 試料に含める食品の種類と重量の割合は、その機関により独自に決定されている。TD 試料に含める食品の種類と重量の割合が、決められた幅の中で調製の機会ごとに変動しているならば、機関間と同様に年間にも、有害物質摂取量の違いが現れるはずである。本研究は長期間にわたっており、協力機関が長年 TD 試料を作製する間に、選択する食品の種類や購入場所、また試料に含める重量の割

合等が固定化し、そのことが機関間で有害物質摂取量の違いとなって現れている可能性がある。

D. 考察

第 1 のグループに属する元素類の 32 個の摂取量推定値は、母集団から得られたサンプルと考えることができる。サンプルサイズが 30 以上あるため、推定された標準偏差も信頼することができる。また、分布形状も正規分布に近く、そのサンプル平均値の分布の期待値は母平均、分散は母分散/32 と考えることができる。この想定に基づき、32 個の摂取量推定値から推定した平均値の 95%信頼区間を計算した結果、得られた標準偏差の二桁目までを有効数字とすると、多くの元素類で 3 桁の摂取量推定値が得られた。摂取量推定値の分布が広い PCBs では 2 桁の推定値となった。

以上の結果から、TD 試料を用いて推定された第 1 のグループに属する元素類及び PCBs の摂取量推定値の信頼性は高く、MB 方式により TD 試料を作製し、その分析結果に基づき摂取量を推定する手法が適切であると評価できる。しかし、RSD が 40%程度はあることから、より信頼できる推定値を得るためには、より多くの推定値の平均を得る必要がある。また、機関によって偏りが生じる可能性を減らす

ためには、TD 試料調製に使用する食品の選択や購入場所等を固定化せず、可能な限り広範囲にすること(ランダム化)が重要と考えられる。

摂取量推定値の分布が極度に非対称になった、Al、Sn、Sb について、特に高い摂取量が推定された試料を抽出し、食品群別の摂取量を検討した。

高い Al 摂取量が推定された TD 試料では、野菜・海草・漬物を含む群(8 群)の寄与率が 90%となった。Sn では、8 群に加えて、果実の群(6 群)からの寄与が摂取量の大部分を占める試料もあった。Sb は、砂糖・菓子の群(3 群)と調味料の群(13 群)から多くが摂取されていた。いずれの元素も、平均的な摂取量が推定された TD 試料では、限られた食品群ではなく、多くの食品群から摂取されていた。

特に高い摂取量を与えた TD 試料と、平均的な摂取量を与えた TD 試料では、摂取源となる食品群のパターンが異なっている。高い摂取量を与えられる場合には、特定の食品群から大部分が摂取され、その食品群からの摂取量が平均的な摂取量の 10 倍以上になっている。食品の元となる同種の生物において、これほど大きな摂取量の違いを与えるほど濃度が異なることは考えにくい。また、食品となるまでの過程で、限定的にかつまばらに、これほど高濃度の非意図的な汚染が生じると

も考えにくい。したがって、これらの食品群に含まれた Al 等の元素は、食品の基となる生物あるいは環境に由来するものではなく、別の起源に由来する可能性がある。

Al は食品添加物として使用される膨張剤の成分であり、健康への懸念から、厚生労働省は関係業界へ膨張剤使用の低減化を依頼している。しかし、今回の TD 試料では、膨張剤が使用される可能性のある食品を含む 2 群及び 3 群からの摂取量ではなく、8 群からの摂取量が高かった。

Sn が高濃度に含まれていた食品群は、果実と野菜であった。これらの食品の輸送や包装に使用される缶にスズメッキが施されることがあり、スズメッキ缶に由来するスズの可能性がある。また Sb も食品に触れる器具に 5%以上含まれてはならないという規格があり、容器包装に由来する可能性がある。そのほか、特に Sb は濃度が極めて低いため、TD 試料を調製する際に使用した器具等から混入した可能性も否定できない。

以上の 3 つの元素は、何らかの原因

により、特定の食品での濃度が高かった可能性がある。また同時に、そのように特定元素の濃度が高い食品の存在確率は、あまり大きくはないと考えられる。食品に低確率で多量に含まれるような物質が推定対象となる場合、そのような食品が TD 試料の調製時に選択されるか否かによって推定される摂取量が大きく変わり、その結果として、推定値は大きく変動する。

食品全体として、濃度が連続する対称な分布を示すと考えられる第 1 グループの元素と異なり、多くの TD 試料を調製することによる平均化の効果は表れにくく、信頼できる摂取量推定のためには、非常に多数の TD 試料を調製し分析することが必要となる。しかし、現実的な制約から困難であることも多い。このような場合には、まずどのような食品の濃度が高くなるかや、濃度が高くなる確率はどの程度かという情報を収集し、その情報に基づいた TD 試料をデザインするべきである。あるいは、事前に得られた情報を活用した、確率論的な推定も有用な手段となると考えられる。

1-4. ハロゲン系難燃剤摂取量推定の試行

A. 研究目的

難燃剤は、プラスチック、ゴム、繊維等の高分子有機材料に添加され広

く使用されている。難燃剤には、ハロゲン系やリン系などの有機系難燃剤及び金属酸化物やアンチモン系など

の無機系難燃剤があり、このうちハロゲン系難燃剤はその効率の良さからプラスチック製品の難燃剤として幅広く使用されている。ハロゲン系難燃剤のうち、臭素系難燃剤には、人体への直接の悪影響のほか、より毒性が高い臭素系ダイオキシン類の発生原等となることへの懸念がある。そのため国内では1990年以降、臭素化ジフェニルエーテル類(PBDEs)の使用量は、メーカーによる自主規制により減少している。しかし、環境中での残留性が高い高臭素化体のデカブロモジフェニルエーテル(DeBDE)や、DeBDEの代替品としてデカブロモジフェニルエタン(DBDPE)等の新たな臭素系難燃剤が開発、使用されている。

ヘキサブロモシクロドデカン(HBCD)は、分子量641.7の臭素系化合物で、16の立体異性体があり、主な異性体は α 体、 β 体及び γ 体である。HBCDは、主に樹脂用及び繊維用の難燃剤として用いられてきた。HBCDは難燃剤として優れた性質を持つ一方、環境中での残留性や生物蓄積性を有することから、2013年にストックホルム条約(POPs条約)の締結国会議において同条約付属書A(廃絶)に追加されることが決定され、日本においても化学物質審査規制法の第一種特定化学物質に指定された。しかし、HBCDを使用した製品の廃棄が今後増加し

ていくことから、環境や食品の汚染実態を継続的に調査し、必要に応じて摂取量を推定していく必要がある。HBCDについては、MB方式で調製したTD試料の分析を通じたこれまでの摂取量推定の結果から、10群(魚介類)試料のみから検出されることが明らかになっている。そのため、10群試料の分析結果に基づき摂取量を推定することが、合理的かつ効率的であると考えられる。

塩素系難燃剤である Dechlorane Plus(DP)、Chlordene Plus(CP)、Dechlorane 602(Dec 602)、Dechlorane 603(Dec 603)及び Dechlorane 604(Dec 604)は、POPs条約で指定された塩素系難燃剤・Dechlorane(別名:Mirex、マイレックス)の代替製品として需要が増大傾向にあり、近年環境汚染物質として注目されている物質である。DPは、分子量653.7の塩素系化合物であり、*syn*体と*anti*体の二つの異性体が存在する。Dechloraneの類似体であるCPは分子量611.6、分子式 $C_{14}H_6Cl_{13}$ 、Dec 602は分子量613.6、分子式 $C_{14}H_4Cl_{12}O$ 、Dec 603は分子量637.7、分子式 $C_{17}H_8Cl_{12}$ 、Dec 604は分子量692.5、分子式 $C_{13}H_4Br_4Cl_6$ の塩素系難燃剤である。これらデクロラン類の水-オクタノール分配係数($\log K_{ow}$)は、DPでは11.3、Dec 602では8.1、Dec 603では11.2、Dec 604では10.6等で

あり、主要な PCB 異性体やダイオキシン類と同等の値で生物濃縮性の観点から注視が必要な物質である。食品中の DP 濃度並びに一日摂取量については、Kakimoto らによって、魚介類や MB 方式による調製試料の分析結果が報告されているが事例は少なく、またデクロラン類を網羅的に調べたデータは殆ど得られていないのが現状である。

2013 年の本研究では、九州地域を中心とする西日本で購入した魚介類試料中の DP を分析した。また 2014 年には分析対象を DP の類縁化合物に拡大し、北部九州地域で調製した TD 試料中のデクロラン類を分析し、その結果に基づき一日摂取量を推定した。

上記の研究の進捗を踏まえ、本年の研究では、臭素系難燃剤である HBCD 及び塩素系難燃剤である DP を含むデクロラン類について、全国規模であるいは北部九州地域において調製された TD 試料の分析を通じ、検出の頻度から汚染実態を調査するとともに摂取量推定を試行した。

B. 研究方法

1. 全国 8 地域 11 機関で調製された TD 試料の分析結果に基づく HBCD の摂取量推定

1.1 試料・試薬等

1.1.1 試料

2013 年に全国 8 地域 11 機関で調製された TD 試料のうち、10 群(魚介類)の試料を用いた。

1.1.2 標準物質

α -、 β -、 γ -HBCD 標準品、及び α -、 β -、 γ - $^{13}\text{C}_{12}$ ラベル化 HBCD は Wellington Laboratories 製を用いた。各異性体をメタノールで適宜希釈・混合して分析に用いた。

1.1.3 試薬及び器材

アセトン、ヘキサン、ジクロロメタン、メタノール、蒸留水(ヘキサン洗浄品)、無水硫酸ナトリウム及び塩化ナトリウムは関東化学製のダイオキシン類分析用又は残留農薬・PCB 試験用を用いた。シクロヘキサンは関東化学製の高速液体クロマトグラフ用を用いた。44%硫酸シリカゲルは和光純薬工業製ダイオキシン類分析用を用いた。珪藻土は International Sorbent Technology 製の BULK ISOLUTE SORBENT HM-N を用いた。

1.2 機器及び使用条件

1.2.1 高速溶媒抽出装置

高速溶媒抽出(ASE)には DIONEX 製の ASE-350 を使用した。抽出条件は下記のとおりとした。

セル温度: 100°C、セル圧力: 1500 psi、加熱時間: 5 分、静置時間: 10 分、抽出

サイクル数: 3、抽出溶媒: アセトン/ヘキサン(1:3)

1.2.2 GPC 装置

GPC として、ポンプはジーエルサイエンス製の PU 714、カラムオーブンはジーエルサイエンス製の CO 705、検出器はジーエルサイエンス製の GL-7452、分画装置は東京理化学器械製の DC-1500 を使用した。プレカラム及び分離カラムは昭和電工製 Shodex CLNpak EV-G AC 及び EV-2000 AC を用い、移動相はアセトン/シクロヘキサン(3:7, v/v)、流速 5 mL/min とした。

1.2.3 液体クロマトグラフ・質量分析計(LC-MS/MS)

LC-MS/MS は Waters 製 2695/Quattro Ultima Pt を用いた。

1.3 分析操作

試料約 5 g を秤取し、 $^{13}\text{C}_{12}\text{-}\alpha\text{-}$ 、 $^{13}\text{C}_{12}\text{-}\beta\text{-}$ 及び $^{13}\text{C}_{12}\text{-}\gamma\text{-HBCD}$ 各 1 ng を内部標準(クリーンアップスパイク)として添加した。これにあらかじめ洗浄した珪藻土 5 g を加え、試料とよくかき混ぜた後 ASE の抽出セル(容積 33 mL)に充填し、表 1 に示す条件で高速溶媒抽出を行った。抽出液を分液ロートに移し、あらかじめジクロロメタンで洗浄した 5% NaCl 水溶液 120 mL を加えて 5 分間振とうした後、静置した。分離

した有機層は綿栓した三角ロート上の無水硫酸ナトリウムを通過させ、ナス型フラスコに採った。その後、ジクロロメタン/ヘキサン(1:9) 40 mL で同様の液-液抽出及び脱水を 2 回行った。これをロータリーエバポレーターで濃縮し、濃縮液をあらかじめ風袋重量を量ったビーカーに移し、室温下で一夜静置して大部分の有機溶媒を揮散させた後、105°C に設定した恒温装置で 1 時間加熱し乾燥させた。放冷後重量を測定し、得られた抽出物(脂肪成分)の重量を求めた。抽出物をアセトン/シクロヘキサン(3:7)で再溶解し、10 mL に定容した。そのうちの 2 mL を GPC 装置に注入し、粗脂肪溶出直後の HBCD 溶出画分(溶出時間 12.5 分~16.5 分)を採取して濃縮乾固した。残渣を少量のヘキサンに溶解し、パストゥールピペットに 44%硫酸シリカゲルを 1 g 充填したミニカラムに負荷した。20% ジクロロメタン/ヘキサン(2:8) 8 mL で溶出し、窒素ガスを吹き付け乾燥した。少量のジクロロメタンに溶解させインサートバイアルに移し、自然乾燥後にメタノール 50 μL を加えて溶解させ、LC-MS/MS で測定した。

2. 北部九州地区においてマーケットバスケット方式により調製した TD 試料の分析を通じた塩素系難燃剤(デクロラン類)の摂取量推定

2.1 試料・試薬等

2.1.1 試料

2015 年に北部九州(福岡県)において、MB 方式により調製した TD 試料の第 1 群から第 13 群の食品群別試料を用いた。

2.1.2 標準物質

Dechlorane(ネイティブ体と ^{13}C -ラベル体)及び Dec 602(^{13}C -ラベル体)の各標準溶液は Cambridge Isotope 製を、CP(ネイティブ体)及び DP の各種標準溶液は Wellington Laboratories 製を、Dec 602、Dec603 及び Dec604 の各標準溶液は Santa Druz 製を使用した。これらをノナンで適宜希釈・混合して分析に用いた。シリンジスパイクには、 ^{13}C -2,3,3',55'- pentaCB(^{13}C -PCB111)を使用した。

2.1.3 試薬及び器材

アセトン、ヘキサン、ジクロロメタン、ノナン、メタノール、蒸留水(ヘキサン洗浄品)、無水硫酸ナトリウム及び塩化ナトリウムは関東化学製のダイオキシン類分析用又は残留農薬・PCB 試験用を用いた。硫酸は和光純薬工業製の有害金属測定用を使用した。フロリジルカートリッジカラムは Waters 製の Sep-pak Vac RC (500 mg)を使用した。スルホキシドカラムは Supelco 製の Supelclean Sulfoxide(3 g)

を用いた。ガラスビーズは、0.991~1.397 mm の粒度のソーダガラス製を使用した。

2.2 機器及び使用条件

2.2.1 高分解能ガスクロマトグラフ・質量分析計(HRGC/HRMS)

HRGC/HRMS の GC は Agilent A 7890 を MS は Waters AutoSpec Premier を使用した。表 3 に示した分析条件でデクロラン類を測定した。SIM 測定におけるフラグメントイオンは、各化合物の親イオンに相当する m/z ではなく、各化合物から生成するフラグメントイオンの m/z を選択した。

2.2.2 高速溶媒抽出装置

高速溶媒抽出(ASE)には HBCD の抽出操作と同様に DIONEX 製の大容量型装置 ASE-350 を使用した。抽出条件は下記の通りとした。

セル温度: 100°C、セル圧力: 1500psi、加熱時間: 7 分、静置時間: 10 分、抽出サイクル数: 3、抽出溶媒: ヘキサン

2.3 実験操作

TD 試料(4 群を除く)約 10 g をビーカーに正確に量りとり、凍結乾燥後、ガラスビーズを加えて混合し、クリーンアップスパイク($^{13}\text{C}_{10}$ -Dechlorane、 $^{13}\text{C}_{10}$ -Dec 602、 $^{13}\text{C}_{10}$ -anti-DP、 $^{13}\text{C}_{10}$ -syn-DP を各 250 pg 相当)を添加し、ヘキサ

ンで高速溶媒抽出を行った。抽出液を濃縮し、硫酸処理、フロリジルカラム、スルホキシドカラムで精製した。スルホキシドカラム精製は、岩村らの方法¹⁰⁾を参考に行った。あらかじめアセトン、ヘキサンの順でコンディショニングしたカラムに試料液を負荷し、ヘキサンで不純物を除去した。次に50%アセトン/ヘキサンでデクロラン類を溶出した。

溶出液を濃縮し、測定バイアルに移し、シリンジスパイク(¹³C₁₂-PCB111を250 pg相当)を添加した。ノナンで全量を約50 μLとしたものを最終検液とし、このうち2 μLをHRGC/HRMSに注入して測定した。

C. D. 結果及び考察

1. HBCDの摂取量推定

2013年に全国8地域11機関で調製されたTD試料のうち、10群(魚介類)試料のHBCD濃度を測定した。分析した11試料のうち、α-異性体はすべての試料から検出され、β-異性体は1試料、γ-異性体は9試料から検出された。全異性体濃度の和(Total HBCD)は、0.16 ng/g~2.63 ng/g(平均0.88 ng/g)であった。昨年度の本研究において、2012年に全国7地域10機関で調製されたTD試料を分析したが、その結果(Total HBCD: 0.18 ng/g~1.24 ng/g、平均0.68 ng/g)と比較すると、Total

HBCDの平均値はわずかに高かった。

10群試料のTotal HBCDに基づき推定した各地域におけるHBCDの一日摂取量は、11.4~192.8 ng/day(平均66.3 ng/day)であった。これを、日本人の平均体重を50 kgと仮定して、体重(kg)あたりの一日摂取量に換算すると、0.23~3.86 ng/kg bw/day(平均1.33 ng/kg bw/day)であった。HBCDの毒性に関しては、我が国の研究では動物試験の結果から10.2 mg/kg bw/dayが無毒性量(NOAEL)とされている。長期間にわたる摂取によるヒトへの悪影響は、通常NOAELを不確実係数積(UFs)100(動物種差10×個体別差10)で除し得られる値を耐容一日摂取量(TDI)の指標値として比較することが妥当と考えられる。そのためここでは、上記NOAELをUFsによって除した値である0.102 mg/kg bw/dayを指標値として今回の推定結果と比較した。その結果、今回得られた値は試算したHBCDのTDIの約2.6万分の1から44万分の1であり、人の健康への影響は無視できるほど小さいレベルであると考えられた。

2. デクロラン類の摂取量推定

2.1 HRGC/HRMSによる塩素系難燃剤の標準品の測定

昨年度の本研究で採用した分析法では、デクロラン類7種化合物

(Dechlorane、CP、Dec 602、Dec 603、Dec 604、DP(*syn*-DP と *anti*-DP の 2 異性体))のうち、Dec 604 を検出できなかった。Dec 604 は国内における環境からの報告事例はないものの、分析法中、HRGC/HRMS の測定条件を検討する必要があると考えられた。

HRGC/HRMS の SIM モニターイオンの変更など測定条件等を変更することにより、Dec 604 を含む 7 種のデクロラン類化合物の全てを同時検出することが可能となった。デクロラン類の混合標準液を繰り返し測定し、ピーク面積値の S/N から各化合物の検出下限値を推定した。推定された検出下限値は、Dec 602 で 0.05 pg(昨年度 0.2 pg)、Dec 603 で 0.3 pg(昨年度 3 pg)、*syn*-DP で 0.3 pg(昨年度 2 pg)、*anti*-DP で 0.4 pg(昨年度 2 pg)となり、いずれの化合物についても、昨年度の値に比べより低値となった。Dec 602 測定感度は、他の化合物と比べて 10 倍程度高かった。

2.2 デクロラン類の分析におけるブランク値低減のための検討

定量下限値の改善を目的として、操作ブランク値の低減に関する検討を事前に行った。ブランク値の低減化対策として、ガラス器具は使用前に蒸留水、アセトン及びヘキサンで十分にすすいで洗浄し、クリーンオープンを用

いて 450℃で約 4 時間加熱したものを使用した。また室内ダストからの汚染¹⁴⁾が疑われたため、分析中は可能な限り密栓や遮蔽によって微粒子物質の混入を防ぎ、濃縮操作においては風乾によらず窒素ガスパーズで迅速に行う等の工夫をした。抽出操作に使用するガラスビーズは、あらかじめ ASE で実際の試料抽出と同じ条件で溶媒洗浄したものをを用いた。

上記の検討の結果、デクロラン類の操作ブランク値は総じて低下した。特に、昨年度の分析時には *anti*-DP のブランク値が最も高く 29 pg/g であったが、本年度の検討の結果 3.2 pg/g 相当となり、約 1/10 に低減することができた。

2.3 TD 試料中の塩素系難燃剤の分析

2015 年に北部九州地区で調製した TD 試料における各デクロラン類の濃度を分析した。その結果、DP の 2 つの異性体である *syn*-DP 及び *anti*-DP は全 13 の食品群から検出された。昨年度の本研究においては、全 13 群中 *syn*-DP が 3 つの群、*anti*-DP が 7 つの群で検出されただけであった。分析法を改良することでより低値の定量下限が達成されたため、そのことを原因として、検出頻度が高くなったものと推察される。全 13 群における *syn*-DP

の濃度範囲は 0.72~2.4 pg/g(平均 1.5 pg/g)、*anti*-DP の濃度範囲は 2.6~7.8 pg/g(平均 3.8 pg/g)であった。また *syn*-DP と *anti*-DP の合計濃度(Σ DPs)の範囲は、3.3~9.8 pg/g(平均 5.2 pg/g)であった。いずれも昨年度の分析結果に比べて概ね 1/10 程度の低い値であった。また、魚介類を主な構成要素とする 10 群の TD 試料における *syn*-DP 濃度は 1.9 pg/g、*anti*-DP 濃度は 5.6 pg/g であり、2013 年の研究において調査した、市販魚介類試料中の DP 濃度(*syn*-DP : 平均 2.2 pg/g-wet、*anti*-DP : 平均 3.7 pg/g)とほぼ同等の値であった。

我が国における DP 濃度の調査事例として、Kakimoto らは大阪地区におけるマーケットバスケット方式により調製した試料の DP 分析を実施しており、DP は 3 群、5 群、10 群、11 群の試料から検出され、 Σ DPs の濃度範囲は 1.5~3.3 pg/g であったと報告している。本研究では、動物性食品を主な構成要素とする 10 群や 11 群、油脂類により構成される 4 群から DP が比較的高濃度に検出されており、柿本らの調査結果とほぼ同じ傾向となった。また Σ DPs 濃度は、本研究で得た値のほうが高値となった。

これまでに水質や土壌等の環境媒体から DP を検出した報告では、環境動態の観点から、異性体の *syn*-DP と *anti*-DP の濃度比を求め、両者の残留

傾向が考察されている。本研究において分析した TD 試料について Σ DPs 濃度に対する *anti*-DP 濃度の比率(f_{anti})を算出したところ、 f_{anti} 値は 0.53~0.79(平均 0.72)であった。米国で工業生産されている DP 製品の f_{anti} 値は 0.64~0.85、中国で生産される製品の分析事例では 0.59~0.60 と報告されている。2 群の TD 試料から得られた結果($f_{anti}=0.53$)以外は、米国で生産されている製品の f_{anti} 値と近い値であり、Kakimoto らにより報告されている f_{anti} 値と比べ高い値であった。DP は生物濃縮性が高いため、10 群や 11 群での f_{anti} 値は、環境媒体の f_{anti} 値に近い値になると考えられる。2 群における f_{anti} 値は、0.53 と最も低い値であった。主な構成食品は米以外の穀類や芋類、種実類であり、産地における汚染の実態を反映している可能性を否定できない。今後も TD 試料の分析による DP 濃度のモニタリングを継続し、傾向を把握する必要がある。

Dec 602 は、定量下限が低かったこともあり、すべての食品群から検出された。濃度範囲は 3.1~79 pg/g(平均 14 pg/g)であり、特に 10 群から得られた値が高かった。2014 年の本研究により得られた、TD 試料全 13 群における Dec 602 の濃度範囲 0.49~4.3 (平均 1.3 pg/g)と比較すると 10 倍程度高い値となった。調製試料の多様性を反映

した濃度の変動である可能性も考えられるが、増加傾向にないことを確認するためにも、濃度のモニタリングを続ける必要がある。今年度実施した分析から項目に加えた Dechlorane、CP 及び Dec 604 の濃度は、他の化合物に比べて低めであった。しかし、Dechlorane に関しては、10 群と 11 群からその他の食品群に比べて突出して高い値で検出されており(10 群; 7.2 pg/g、11 群; 2.3 pg/g)、難燃剤としての使用が禁止された現在も魚介類や乳製品等に残留している実態が明らかになった。日本国内における環境媒体や食品におけるデクロラン類の分析事例は少ないことから、今後、国内外の塩素系難燃剤の分析事例も含めて注視する必要がある。

2.4 北部九州地域において調製された TD 試料の分析結果に基づくデクロラン類の摂取量推定

本年度研究により得た分析結果に基づき、北部九州地域におけるデクロラン類の一日摂取量を推定した。各化合物の一日摂取量(ng/day)は、TD 試料中のデクロラン類濃度(ng/g)を下記に示す二つの方法で定量し、それぞれ摂取量を算出した。方法の1つは、操作ブランク実験の結果から推定された検出下限値を TD 試料分析時の検出下限値として採用し、濃度

を定量化する方法である(以下、「ブランク値を検出下限」と表記する)。もう1つの方法は、TD 試料の定量値から操作ブランク値を化合物ごとに差し引いた値を定量値とし、摂取量の算出に用いる方法である(以下、「ブランク値を差し引く」と表記する)。

ブランク値を検出下限とした場合、各食品群のデクロラン類の一日摂取量は、Dechlorane で 1.5 ng/day、CP で 0.057 ng/day、Dec 602 で 22 ng/day、Dec 603 で 2.6 ng/day、Dec 604 で 0.22 ng/day、DP の *syn* 体と *anti* 体でそれぞれ 2.6 及び 6.3 ng/day(Σ DPs では 8.9 ng/day)と推定された。またデクロラン類の摂取量合計値(Σ Dechloranes)は 25 ng/day となった。 Σ DPs 及び Σ Dechloranes に占める割合が最も高い食品群はともに 9 群の嗜好飲料であり、摂取量推定値はそれぞれ 2.1 及び 9.3 ng/day であった。

一方、ブランク値を差し引く方法で求めた一日摂取量は、Dechlorane で 1.1 ng/day、CP で 0.057 ng/day、Dec 602 で 19 ng/day、Dec 603 で 0.92 ng/day、Dec 604 で 0.23 ng/day、DP の *syn* 体と *anti* 体でそれぞれ 1.3 及び 2.5 ng/day(Σ DPs では 3.8 ng/day)、 Σ Dechloranes の値は 35 ng/day と推定された。この場合の Σ DPs に占める割合が最も高い食品群は 1 群(米・米加

工品)の 0.81 ng/day となり、同様に Σ Dechloranes に対しては 9 群と 10 群の割合が最も高く、摂取量はともに 6.2 ng/day であった。

今年度の研究において、臭素系難燃剤(HBCD)の一日摂取量は 66.3 ng/day と推定されており、デクロラン類の摂取量は HBCDs の摂取量に比べ低かった。

本研究推定された DP の一日摂取量 (8.9 ng/day)は、Kakimoto らが大阪地区で調製した TD 試料の分析を通じて推定した摂取量推定値(0.58 ng/day)と比較して高い値であった。また、韓国における最近の研究では、11.2 ng/day の一日摂取量が推定されており、本研究に近い値となっているが、DP の主な摂取源は米類や乳製品と考察されている。今後も異なる地域や異なる年度に調製された TD 試料の分析を通じ、DP を始めとするデクロラン類について、食品汚染の実態把握並びに摂取量推定のための研究を拡充していく計画である。

E. 結論

全国 8 地域 11 機関で調製された 10

群の TD 試料(魚介類)を分析した結果、0.16 ng/g~2.63 ng/g(平均 0.88 ng/g)の濃度で HBCD が検出された。10 群の分析結果に基づき推定した一日摂取量は 0.23~3.86 ng/kg/day (平均 1.33 ng/kg/day)であり、健康リスクへ寄与は無視できるほど小さいと考えられた。

北部九州地区における TD 試料中の塩素系難燃剤(デクロラン類)の分析においては、測定対象を類縁化合物に拡大し、分析法の改良及び操作ブランク値の低減を試みた。今年度の研究により推定された摂取量は、Dechlorane で 1.5 ng/day、CP で 0.057 ng/day、Dec 602 で 22 ng/day、Dec 603 で 0.92 ng/day、Dec 604 で 0.22 ng/day、DP の *syn* 体と *anti* 体で各々 2.6 及び 6.3 ng/day であった。これらの摂取量合計値 (Σ Dechloranes)は 35 ng/day となり、 Σ Dechloranes に占める割合が最も高い食品群であった 9 群からの摂取量は 9.3 ng/day と推定された。

国内のデクロラン類の食品分析事例は少なく、汚染の実態も明らかでないため、継続したモニタリングが必要である。

1-5. 塩素化ダイオキシン類のトータルダイエツト調査

A. 研究目的

TD 試料を用いたダイオキシン類

(DXNs)の摂取量調査は、平成 9 年から厚生科学研究(現在は厚生労働科学研究)費補助金により、毎年実施されており、国民のダイオキシン類暴露量とその経年推移に関する知見が得られている。国民平均の DXNs 摂取量を推定するため、本年度も昨年度に引き続き全国 7 地区 8 機関において日本人の平均的な食品摂取に従った TD 試料を調製し、試料中のダイオキシン類を分析し、一日摂取量を求めた。

B. 研究方法

1. 試料

国民平均の DXNs 摂取量を推定するための TD 試料は、全国 7 地区の 8 機関で調製した。厚生労働省が実施した平成 20~22 年度の国民健康・栄養調査の地域別食品摂取量(1 歳以上)を項目ごとに平均し、各食品の地域別摂取量とした。食品は 13 群に大別して試料を調製した。各機関はそれぞれ約 120 品目の食品を購入し、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、食品群ごとに混合し均質化したものを試料とした。作製した TD 試料は、分析に供すまで -20°C で保存した。

1~9 群及び、12~14 群は、各機関で 1 セットの試料を調製した。10 及び 11 群は DXNs の主要な摂取源であるため、8 機関が各群 3 セットずつ調

製した。これら 3 セットの試料調製では、魚種、産地、メーカー等が異なる食品を含めた。各機関で 3 セットずつ調製した 10 及び 11 群の試料はそれぞれの試料を分析に供した。一方、1~9 群及び 12~14 群は、各機関の食品摂取量に応じた割合で混合した共通試料とし、分析に供した。

2. 分析対象項目及び検出限界

分析対象項目は、WHO が毒性係数(TEF)を定めた PCDDs 7 種、PCDFs 10 種及び Co-PCBs 12 種の計 29 種とした。

3. 分析方法

DXNs の分析法は、「食品中のダイオキシン類測定方法ガイドライン」(厚生労働省、平成 20 年 2 月)に従った。

4. 分析結果の表記

調査結果は、一日摂取量を体重あたりの毒性等量($\text{pgTEQ}/\text{kg bw}/\text{day}$)で示した。TEQ の算出には 2005 年に定められた TEF を使用し、分析値が検出限界値未満の異性体濃度をゼロとして計算した値(以下、 $\text{ND}=0$ と略す)と、参考値として、個々の異性体の検出限界値濃度の $1/2$ として計算した値(以下、 $\text{ND}=\text{LOD}/2$ と略す)を示した。

C. D. 結果及び考察

1. PCDD/PCDFs 摂取量

7 地区の 8 機関において調製した TD 試料を分析し、DXNs 摂取量及び各群からの摂取割合を算出した。

PCDD/PCDFs の一日摂取量は、ND=0 の場合、平均 9.14(範囲：3.59～16.56)pgTEQ/day であった。これを、日本人の平均体重を 50 kg として、体重(kg)あたりの一日摂取量に換算すると、平均 0.18(範囲：0.07～0.33)pgTEQ/kg bw/day となった。平成 26 年度は平均 0.21(範囲：0.08～0.39)pgTEQ/kg bw/day であり、今年度の平均値はやや低い値であった。ND=LOD/2 の場合の PCDD/PCDFs の一日摂取量は、平均 47.80(範囲：42.22～55.64)pgTEQ/day であり、体重あたり平均 0.96(範囲：0.84～1.11)pgTEQ/kg bw/day であった(表 4)。

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)88.5%、11 群(肉・卵)8.81% であり、これら 2 群で全体の 97.3% を占めた。ND=LOD/2 の場合は、高い順に 9 群(酒類、嗜好飲料)22.9%、10 群 18.3%、1 群(米、米加工品)15.5% であった。9 群と 1 群の PCDD/PCDFs 分析値は全て ND であったが、これらの群の食品摂取量が多いため、ND=LOD/2 として計算した場合、結果として高い摂取量が得られ寄与率が高くなっている。

2. Co-PCBs 摂取量

Co-PCBs の一日摂取量は、ND=0 の場合、平均 23.09(範囲：7.83～69.73)pgTEQ/day であり、体重あたり平均 0.46(範囲：0.16～1.39)pgTEQ/kg bw/day であった。平成 26 年度は平均 0.48(範囲：0.18～1.67)pgTEQ/kg bw/day であり、今年度の平均値はやや低い値であった。ND=LOD/2 の場合の摂取量は、平均 35.86(範囲：20.83～82.24)pgTEQ/day であり、体重あたりとすれば、平均 0.72(範囲：0.42～1.64)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)88.1%、11 群(肉・卵類)11.7% であり、これら 2 群で全体の 99.8% を占めた。今年度の 11 群からの寄与率は、一昨年及び昨年度の寄与率(3.5%及び 2.6%)と比較すると顕著に高かった。関西地区で調製した 11 群試料において、他よりも顕著に高い濃度の Co-PCBs が検出されたため、これが 11 群からの Co-PCBs 摂取量に大きく影響していた。11 群試料の調製には、鯨(畝須ベーコン)がごく少量ではあるが使用されていた。畝須ベーコンは脂肪に富んだ食品であり、過去に鯨脂肪では高濃度の Co-PCBs が検出された例がある。ND=LOD/2 の場合は、高い順に 10 群 56.7%、9 群 10.4%、11 群 8.7%、1 群 7.1% であった。PCDD/PCDFs の場