

平成 28 年度厚生労働行政推進調査事業費補助金 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

研究分担報告書

食品の有害元素、ハロゲン難燃剤等の摂取量推定及び  
汚染実態の把握に関する研究

研究分担者

国立医薬品食品衛生研究所食品部 渡邊敬浩

研究要旨

有害物質の摂取量推定値は、健康リスクの管理を目的とする規格値策定等の行政施策の検討及び、効果検証のための科学的根拠となる。また、自らがどのような有害物質のどのくらいの量を摂取しているかという、国民の関心への答えでもある。

本研究では、日常的な食事を通じて国民が平均的に摂取する鉛、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、塩素系難燃剤(デクロラン類)の量を推定した。

研究協力者

国立医薬品食品衛生研究所食品部	片岡洋平、林恭子
北海道立衛生研究所	平間祐志、橋本諭、林玲子
新潟県保健環境科学研究所	今井美紗子
横浜市衛生研究所	櫻井光、高橋京子
名古屋市衛生研究所	中島正博、加藤陽康、高木恭子
滋賀県衛生科学センター	小林博美
香川県環境保健研究センター	氏家あけみ、上田淳司、安永恵
沖縄県衛生環境研究所	高嶺朝典
福岡県保健環境研究所	安武大輔、佐藤 環、堀 就英

有害物質の摂取量推定値は、健康リスクの管理を目的とする規格値策定等の行政施策の検討及び、効果検証のための科学的根拠となる。また、自らが

どのような有害物質のどのくらいの量を摂取しているかという、国民の関心への答えでもある。従って、健康リスクの大きさや懸念の蓋然性を指標に選定した有害物質の信頼できる摂取量を適時かつ継続的に推定し蓄積すること並びに、必要に応じて様々に活用することが肝要である。

本研究では、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、ハロゲン系難燃剤(塩素系難燃剤：デクロラン類)を選定し、マーケットバスケット(MB)方式によ

るトータルダイエツトスタディー(TDS)を方法として、日常的な食事を通じた国民平均の一日摂取量を推定した。

本 TDS に用いた試料(TD 試料)は、全国 10 地域の地方衛生研究所等により調製された。TD 試料中の各種元素類の分析は国立医薬品食品衛生研究所においてまた、デクロラン類の分析は福岡県保健環境研究所において実施した。本研究により得られた結果を、元素類の摂取量推定とデクロラン類の摂取量推定とに区分し、以下報告する。

**食品の有害元素、ハロゲン難燃剤等の摂取量推定及び  
汚染実態の把握に関する研究分担報告書  
元素類摂取量推定の部**

**研究要旨**

本研究では、2016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、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17種の元素類の全国・全年齢層平均摂取量(全国摂取量<sub>ave.</sub>)を推定した。その結果、各元素類の全国摂取量<sub>ave.</sub>はホウ素: 1471 µg/man/day、アルミニウム:2598 µg/man/day、ニッケル:144 µg/man/day、セレン:96.6 µg/man/day、カドミウム:18.1 µg/man/day、アンチモン:1.08 µg/man/day、バリウム:462 µg/man/day、ウラン:1.04 µg/man/day、鉛:9.88 µg/man/day、スズ:175 µg/man/day、クロム:27.6 µg/man/day、コバルト:9.34 µg/man/day、モリブデン:216 µg/man/dayと推定された。総ヒ素と無機ヒ素の全国摂取量<sub>ave.</sub>は、それぞれ 246 µg/man/day、16.6 µg/man/dayと推定された。総水銀とメチル水銀の全国摂取量<sub>ave.</sub>は、それぞれ 6.54 µg/man/day、5.14 µg/man/dayと推定された。

各元素類の摂取量及び、各元素類の摂取に寄与する食品群の変化について、2013年から蓄積したデータをもとに解析した。耐用摂取量が設定されている元素類については、必要に応じて便宜的に耐用一日摂取量(TDI)を算出した後、全国摂取量<sub>ave.</sub>が占める割合(対TDI比)を求めた。その結果、対TDI比はNiの72%を筆頭に、セレン、バリウム、メチル水銀が40%以上、ホウ素とカドミウムが30%以上、アルミニウムとウランが10%以上となった。さらに、鉛、カドミウム、総ヒ素、総水銀については、1977年以後に推定された摂取量の経年変化の情報を更新した。

**研究協力者 (元素類の分析)**

国立医薬品食品衛生研究所食品部 片岡洋平、林恭子

**A. 研究目的**

本研究では、マーケットバスケット(MB)方式によるトータルダイエツトスタディー(TDS)の一環として、有害な鉛、カドミウム、ヒ素、水銀等の重

金属類を含む17種の元素類の摂取量を継続して推定している。本TDS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、上記元素類の全国・

全年齢層における平均摂取量(全国摂取量<sub>ave.</sub>)の推定を目的に、2016年に実施したTDSの成果を報告する。また、2013年～2016年に推定した各元素類摂取量の変動や、各元素類の摂取に寄与する食品群の変動の解析結果を報告する。さらに、1977年以後に継続して推定している鉛、カドミウム、総ヒ素、総水銀の摂取量については、情報を更新し報告する。

## B. 研究方法

### 1. TD 試料の調製

日本人の日常的な食事(日常食)からの各元素類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10地域の地方衛生研究所等で行った。TD試料は2016年5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23年度～25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、該当する地域における個々の食品の平均消費量を求めた。この集計では、年齢や性別を要素としていないため、該当地域における各食品の全年齢層平均消費量が集計結果である。各地域の協力研究者は、小売店から食品を購入し、茹でる、焼く等の一般的な調

理を行ってから、該当地域における1日当たりの消費量に従って秤量し、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。

### 2. 分析

元素類の一斉分析、総水銀の分析、メチル水銀の分析及び、無機ヒ素の分析には、昨年度までに報告した各種方法を性能評価後に使用した。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)。

本年の分析に先立ち、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、食品消費量を乗じて有害物質摂取量を推定した。

2013年～2016年の4年間に蓄積されたデータをまとめて解析し、各種元素類摂取量推定値や摂取量に寄与する食品群の変動を明らかにし、原因等について考察した。

## C.D. 結果及び考察

### C.D.-1 各元素類の全国・全年齢層平均摂取量の推定

MB方式により全国10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試料の各元素類の濃度と、各地域における食品消費量に基づき、各元素類の地域別全年齢層平均摂取量(地域別摂取量)を推定した。地域別摂取量の平均値を全国・全年齢層平均摂取量(全国摂取量<sub>ave.</sub>)とした。

本研究では、検出下限(LOD)となる濃度が十分に低いこと性能評価により実証した分析法を採用し、1機関内で全ての分析を実施している。そのため、分析による元素類の見逃しが起こる可能性は低く、健康リスク上意味のある大きさ

で、摂取量を過小に推定することはないと考える。逆に、合理性を欠いたまま保守的な推定を意図して、1/2LODの値を推定に使用することが、健康リスク上は意味のない摂取量推定値を生み出し、誤った懸念にもつながりかねない。本研究においては、同様に分析値の品質を保証したこれまでの研究に引き続き、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. 各元素類の摂取量推定値

2016年に調製した全14群のTD試料の分析を通じ、各元素類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)の地域・食品群別摂取量推定値を表1-1～表1-16に示す。推定された総摂取量(食品群別摂取量推定値の総和)すなわち、地域別摂取量の値は、全10地域を通じて元素ごとに以下の範囲にあった。B:1290～1714 µg/man/day、Al:1511～3613 µg/man/day、Ni:102～206 µg/man/day、Se:83～127 µg/man/day、Cd:9.7～23 µg/man/day、Sb:0.35～2.9 µg/man/day、Ba:367～617 µg/man/day、Pb:3.5～25 µg/man/day、U:0.41～2.2 µg/man/day、total As:143～466 µg/man/day、total iAs:10～21

μg/man/day、Sn:0.64 ~ 1540 μg/man/day、Cr:15 ~ 50 μg/man/day、Co:6.5 ~ 17 μg/man/day、Mo:172 ~ 268 μg/man/day、Hg:2.7 ~ 13 μg/man/day。上記16種の元素類について、地域・食品群別摂取量推定値を集計し、食品群別摂取量の全国平均値とその総和となる全国摂取量<sub>ave.</sub>を推定し、表2に示した。表2は、耐用摂取量(耐用週間摂取量もしくはその値から便宜的に計算した耐用一日摂取量)が設定されている元素(B、Al、Ni、Se、Cd、Sb、Ba、U)とそれ以外の元素(total As、iAs、total Hg、Pb、Sn、Cr、Co、Mo)に2分割して示した。表には0.00の数値が含まれているが、これは摂取量推定値を小数点以下2桁で表記することを基本としたためであって、必ずしも摂取量は0ではない。しかし、健康リスク上意味のある摂取量の表記としては、十分であるとも考える。各元素類の全国摂取量<sub>ave.</sub>は、以下の通り推定された。B:1471 μg/man/day、Al:2598 μg/man/day、Ni:144 μg/man/day、Se:96.6 μg/man/day、Cd:18.1 μg/man/day、Sb: 1.08 μg/man/day、Ba:462 μg/man/day、U: 1.04 μg/man/day、total As:246 μg/man/day、iAs:16.6 μg/man/day、total Hg:6.54 μg/man/day、Pb:9.88 μg/man/day、Sn:175 μg/man/day、Cr:27.6 μg/man/day、Co: 9.34 μg/man/day、Mo:216 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。2016年に推定したメチル水銀の地域別摂取量は、全10地域を通じ、2.2 ~ 9.0 μg/man/dayの範囲にあった。また、全国摂取量<sub>ave.</sub>は、5.1 μg/man/dayと推定された(表3)。

#### 1)-2. 各元素類摂取量の変動

昨年度の本研究において、2013年 ~ 2015年の3年間に推定した各元素の地域別摂取量(TDS実施年ごとにn=10ないし11)をTDSの実施年ごとに解析し、その変動を明らかにした。その結果、TDSの実施年に依らず、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、カドミウムの地域別摂取量の最大値は最小値の5倍未満の値となり、比較的変動が小さかった。一方で、アルミニウム、アンチモン、スズ、鉛、ウランの地域別摂取量の最大値は最小値の5倍以上となる場合があり、比較的変動が大きかった。2016年の推定値についても、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、カドミウムの地域別摂取量の変動は小さく、過去の結果によく一致した。また、アルミニウムを除き、アンチモン、スズ、鉛、ウランの地域別摂取量の変動は大きく、過去の結果に一致した。(図1-1並びに図1-2)。

これまでに推定されたどの元素類の摂取量からも、特定の地域と元素との

組合せにおいて安定して大きくなるといった明確な特徴は認められていない。2013年～2015年のTDSには、平成20年度～平成22年度の国民健康栄養調査結果を集計した食品消費量を、2016年のTDSには平成23年度～平成25年度の国民健康栄養調査結果を集計した食品消費量を採用した。しかし、この食品消費量の変化による影響は、無視できるほどに小さいと考えて良い。現在は、より高度に生産管理された食品が広域に流通しているため、個々の食品(あるいは製品)における濃度の観点からも、特定の地域におけるある元素の摂取量が恒常的に高くなる可能性は低いと考えられる。特に、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、カドミウムについては、個々の食品における濃度の変動が小さく、調製に含める食品の違いがTD試料の濃度に大きく影響しないために、本TDSによる推定摂取量の地域間また年間の変動が小さくなるものと推測される。セレンの摂取量とその変動を一例として、以下、具体的に考察する。

セレンは微量には必須である一方、一定量以上を摂取した場合には有害影響が知られる元素である。日本人は、その多くを魚と肉から摂取している(図2-2)。セレンはヒトだけに必須なのではなく、食品となる魚や家畜にも必須である。そのため、食品におけるセレン

濃度は、魚種や家畜の種類によらず比較的安定していると考えられる。さらに、工業等の人間活動に伴う利用が制限されているため、食品が消費されるまでの生産や調理の段階において、セレン濃度が著しく変化することも考えにくい。魚や肉の消費量は地域により異なり経年的にも変化する可能性があるが、その差異の大きさあるいは変化量は、特定の地域におけるセレン摂取量に特徴を与えるほどあるいは、ある年におけるセレン摂取量に注意を促すほど大きくはない。

セレンに対してされるこのような考察は、少なくとも摂取量の変動が小さい一部の元素には、ほぼそのまま適用可能と考える。

地域また年間の変動が小さい上記8種の元素の摂取量に対しては、2013年以降に推定された全国摂取量<sub>ave.</sub>の4年間の平均値がより頑健な推定値となる。以下に各元素の全国摂取量<sub>ave.</sub>の4年間の平均値を示す。B:1422 µg/man/day、Ni:146 µg/man/day、Se:91 µg/man/day、Ba:461 µg/man/day、Cr:27µg/man/day、Co: 8.7 µg/man/day、Mo:213 µg/man/day、Cd : 18 µg/man/day。

一方で、地域別摂取量の変動が比較的大きいアルミニウム、アンチモン、スズ、鉛、ウランのうち、アルミニウムとスズについては、製造方法等の違いが原因となり、同一の食品であって

も個々の製品での濃度が大きく異なることが予想される。濃度の高い製品をTD試料の調製に偶発的に含めた場合、その試料を調製した地域における摂取量は一見高くなる。しかしあくまで偶発的な食品選択の結果であり、一般家庭における日常的な食事でも起こりえる。2016年に推定されたアルミニウムの地域別摂取量の最大値は最小値の2倍程度の値であり、過去に観察された値に比べると小さい。これは、2016年度に調製された10地域分のTD試料のどれにもアルミニウム濃度が高い食品が含まれなかった結果であり、やはり偶発的に起きうる現象である。

上記の通り、製品による濃度が明らかに異なる元素類については、TD試料の調製時に濃度の高い食品が選択されるか否かによって、摂取量推定値が大きく変化することが自然である。しかし、TD試料の調製に常に同じレシピ(食品の種類とその比率)を採用し、特定の小売店等から購入した同一の製品を含めた場合には、その影響が摂取量に現れると考えられる。すなわち、人為的な選択や操作が試料調製の方法に含まれていた場合、その結果としてその試料を調製した地域における摂取量が変わる。一般家庭における食事はレシピも多様で、同一レシピであっても異なる小売店から異なる製品を購入して準備されると考えるのが自然であろう。

TD試料は、このごく普通の日常的な食事を模した試料であるため、上記のような人為的な影響は避けなければならない。人為的な影響を避けるためには、試料調製ごとにレシピを見直し、買い上げる食品を無理のない範囲で変えるといった工夫が必要であろう。アルミニウムやスズの濃度が高い食品が偶発的に選択されれば、それら食品が選択された時にだけ、非連続的に摂取量が大きくなることが予想される。なお、アルミニウムやスズのように、食品(製品)によって濃度が大きく異なる有害物質の場合には、実態調査データを蓄積し確率論的な手法を用いて摂取量を推定することが、変動の幅に関する情報が得られる事もあり有効だと考える。地域別摂取量の変動が大きかったその他の元素(鉛、ウラン、アンチモン)に関する考察は、昨年度報告書を参考にされたい。

総ヒ素摂取量と無機ヒ素摂取量、総水銀摂取量とメチル水銀摂取量の解析結果は一組にして、図1-3に示した。2016年に推定された各元素類摂取量の解析結果も、2013年～2015年の解析結果と同様となった。具体的には、総水銀とメチル水銀の地域別摂取量の最大値と最小値の比はそれぞれ4.9、4.0となり、総ヒ素摂取量と無機ヒ素摂取量の最大値と最小値との比(3.3と2.1)に比べ、やや高めの値となった。



同じ環境からの汚染物質であるカドミウム並びに鉛を比較対象とすると、水銀摂取量と鉛摂取量、カドミウム摂取量とヒ素摂取量の変動とがより類似している。図2-8に示した通り、水銀摂取量に大きく寄与する食品群は魚を含む魚介類である。魚における水銀(メチル水銀)濃度は、食物連鎖の上位に位置する大型の捕食魚ほど高くなることが知られている。水銀の摂取量に寄与する食品群は限定されるものの、寄与する群に分類される個別の食品(魚種)間での濃度の変動が大きい。このことが原因となり、水銀摂取量の変動は、多様な食品群が寄与する鉛摂取量の変動との類似性がより高くなるものと考察される。無機ヒ素並びにカドミウムの摂取量に大きく寄与する食品群には、コメを中心とした植物性の食品が多数分類される(図2-3及び図2-6)。これら食品のもととなる作物の栽培において、無機ヒ素とカドミウムは共に土壌から吸収される。そのため、高濃度に汚染された地域で栽培された作物に由来する食品が摂取されなければ、摂取量の変動は比較的小さく、類似性が高くなると考察される。地域別摂取量の変動が小さかった総ヒ素と無機ヒ素摂取量のより頑健な推定値として、全国摂取量<sub>ave.</sub>の4年間(無機ヒ素に関しては3年間)の平均値を以下に示す。Total As:214 µg/man/day、iAs:17 µg/man/day。

### 1)-3. 各種元素類の摂取量に寄与する食品群

図2-1～図2-8には、総摂取量に対する各食品群別摂取量の寄与率(食品群別寄与率)を元素ごとに示した。寄与率の変動を考察するために、2013年～2015年の3年間分の摂取量推定値に基づく平均的な食品群別寄与率と、2016年の摂取量推定値に基づく食品群別寄与率とをあわせて示した。

これまでに明らかにしているとおり、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、元素により大きく異なる。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、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のパターン並びに寄与率は、3年間の平均と2016年単年度の解析結果がよく一致し、安定している。先述の通り、2013年～2015年のTDSと2016年のTDSとでは、収集年度の異なる国民健康栄養調査の結果に基づく異なる食品消費量のデータを用いた。上記元素類の総摂取量に対する食品群別摂取量の寄与のパターンが安定していることから、食品消費量の変化の影響は、連続する数年間といった単位で観察する限り、無視できるほど小さいと考察される。

一方、アルミニウム、アンチモン、クロム、鉛、スズに関しては、2016年

の摂取量推定値に基づく寄与率が、3年間分の摂取量推定値に基づく平均的な寄与率から少なからず変化している。特にアルミニウムでは8群と9群、スズでは6群と8群の寄与率が大きく変化している。これは既に考察したとおり、各群に分類される個々の食品における濃度の変動の大きさを反映した結果と捉えることができる。鉛とクロムにおける食品群別寄与率については、特に植物性食品が含まれる1~9群の寄与率が比較的大きくなることが特徴と言えるかも知れない。アンチモンについては、TD試料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い。その他として、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も、これまでの結果と一致している。

#### 1)-4. 元素類の全国・全年齢層平均摂取量の対TDI比

耐用摂取量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、ウラン、メチル水銀)について、必要に応じ便宜的に耐容一日摂取量(TDI)を計算し、それに対して2016年に推定した全国摂取量<sub>ave.</sub>が占める割合(対TDI比)を求め、表4に示した。ニッケルの全国摂取量<sub>ave.</sub>の対TDI比が約70%と

計算され、推定した摂取量中最も高い。ただし、本研究班によって実施された畝山等の分担研究課題によっても示されているが、ニッケルの毒性は経皮感作によるアレルギー症状を指標としているため、経口摂取量としては特に懸念する必要がないと考える。ニッケルの対TDI比に続いて、セレン、バリウム、メチル水銀の摂取量の対TDI比は40%を超え、ホウ素とカドミウムの摂取量の対TDI比は30%を超えている。以上の元素類の摂取量は、引き続き年次推移をモニタリングする蓋然性が高い。アルミニウム摂取量の対TDI比は18%であり、これまでに計算された値に比べると減少している。しかし、繰り返し言及しているとおり、アルミニウム摂取量は変動が大きいため、対TDI比の解釈にも注意が必要である。ウラン摂取量の対TDI比は約10%であり、2013年からの4年間を通じて計算された値がほぼ一致している。2010年にJECFAによる耐用週間摂取量が取り下げられていることを踏まえ、本年からは計算を取りやめているが、鉛摂取量も同じ水準で推移している。アンチモン摂取量の対TDI比は、2013年からの4年間を通じて、一致して0.5%を下回っている。

#### 1)-5. 鉛、カドミウム、総ヒ素、総水銀の全国・全年齢層平均摂取量の経年変化

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、総水銀について、2016年の結果を加えた全国摂取量<sub>ave.</sub>の経年変化を図3～図6に示した。総ヒ素、総水銀、カドミウムの摂取量は、ほぼ一定の値で30年間推移している。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)の消費量の減少に伴うものである。鉛は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。

## E. 研究発表

### 1. 論文発表

渡邊敬浩, 林 智子, 松田りえ子, 穠山 浩, 手島玲子;食品として流通する魚の総水銀及びメチル水銀濃度の実態調査, J. Hood Hyg. Soc. Japan, in press

### 2. 学会発表

1) 松田りえ子, 林 智子, 穠山 浩, 渡邊敬浩;モンテカルロ法による魚類からのメチル水銀摂取量推定. 第25回環境化学討論会(2016.6)

2) 渡邊敬浩, 林 智子, 松田りえ子, 穠山 浩;魚における総水銀及びメチル水銀濃度の実態調査. AOAC I 日本セクション 2016 年次大会(2016.7)

3) 松田りえ子, 林 智子, 穠山 浩, 渡邊敬浩;魚類からのメチル水銀摂取量の確率論的推定. AOAC I 日本セクション 2016 年次大会(2016.7)

4) 渡邊敬浩, 片岡洋平, 林 智子, 林 恭子, 穠山 浩, 手島玲子;有害物質摂取量の推定に関する研究(2013~2015年). 第53回全国衛生化学技術協議会年会(2016.11)

5) 松田りえ子, 五十嵐敦子, 鍋師裕美, 林 恭子, 植草義徳, 林 智子, 高附 巧, 前田朋美, 片岡洋平, 堤 智昭, 穠山 浩, 渡邊敬浩;幼児の元素類及びダイオキシン類の摂取量推定. 第53回全国衛生化学技術協議会年会(2016.11)

6) 戸渡寛法, 宮崎悦子, 赤木浩一, 片岡洋平, 宮本道彦, 牟田朱美, 穠山浩, 渡邊敬浩;福岡市近海で漁獲される魚介類中のヒ素濃度について. 第53回全国衛生化学技術協議会年会(2016.11)

7) 渡邊敬浩;魚におけるメチル水銀濃度の実態調査とその結果を利用した摂取量推定. メチル水銀研究ミーティング(2016.12)

TD試料(群)	地域									
	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J
1	119	64.8	56.5	54.2	42.9	52.9	51.5	63.3	64.4	39.6
2	116	102	117	89.0	73.4	99.1	98.7	96.6	111	58.2
3	11.9	23.5	27.4	24.7	36.3	50.4	321	43.8	37.3	31.7
4	0.186	0.266	0.466	0.281	0.283	0.263	0.397	0.265	0.236	0.288
5	208	217	212	188	196	141	168	164	150	201
6	202	342	159	128	190	203	170	227	158	203
7	152	220	226	169	151	125	141	147	152	142
8	283	285	259	261	247	222	224	501	252	327
9	138	121	153	236	122	108	153	164	141	49.5
10	44.1	47.2	45.9	23.4	27.2	31.6	52.1	47.7	41.6	42.2
11	13.7	18.5	12.0	14.1	11.3	6.56	10.6	13.2	11.8	10.4
12	29.1	22.8	33.0	21.9	38.1	28.6	26.6	25.1	30.8	27.2
13	128	232	243	221	183	228	203	134	133	165
14	96.7	16.3	5.35	4.13	1.79	2.91	5.42	4.31	6.42	4.39
総和	1541	1714	1550	1435	1320	1299	1624	1631	1290	1302

µg/man/day

表 1-1 ホウ素の地域・食品群別摂取量

TD試料(群)	地域									
	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J
1	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	86.7	0.00
2	202	304	133	575	181	288	294	130	320	343
3	19.4	225	26.7	31.2	17.1	65.7	498	41.6	244	769.1
4	0.00	3.85	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	1.66
5	72.5	74.9	139	107	57.7	37.4	148	123	105	101
6	32.8	102	15.3	5.74	5.64	39.4	63.2	43.2	22.0	19.9
7	44.2	232	172	111	93.8	101	213	41.7	109	89.3
8	182	388	87.8	531	95.4	190	368	122	291	748
9	778	618	1286	688	1116	1428	982	979	374	289
10	105	521	81.6	260	400	136	266	588	437	184
11	9.89	127	94.8	59.8	81.3	10.3	123	121	25.2	4.73
12	8.05	19.1	99.7	173	53.6	176	0.00	0.00	0.00	12.2
13	57.1	56.1	442	388	276	696	659	69.9	202	68.7
14	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	8.26	0.00	8.24	7.05	0.00
総和	1511	2669	2578	2929	2377	3176	3613	2267	2224	2631

µg/man/day

表 1-2 アルミニウムの地域・食品群別摂取量

TD試料(群)	地域									
	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J
1	34.0	19.9	18.8	21.1	27.3	14.1	22.6	17.9	14.7	24.1
2	20.3	16.2	11.2	16.2	7.96	77.4	19.4	9.64	13.6	16.6
3	2.01	4.16	6.28	5.47	4.80	8.46	51.8	4.78	8.65	9.02
4	0.00934	0.00	0.0114	0.0107	0.0119	0.0102	0.0125	0.00	0.00	0.0156
5	39.3	37.1	42.0	36.1	35.4	19.9	19.9	26.4	19.8	19.4
6	2.72	6.14	6.58	3.97	3.69	3.36	5.42	5.48	5.23	4.51
7	5.27	7.82	3.16	4.71	4.62	1.75	16.0	3.14	7.79	15.3
8	14.2	5.38	4.36	15.7	4.54	6.46	6.10	8.45	6.20	6.48
9	11.3	20.8	10.3	25.3	10.2	48.0	11.0	20.1	9.13	9.57
10	3.06	2.87	2.41	2.78	2.11	3.32	3.19	3.87	3.18	2.37
11	5.18	2.30	0.726	0.553	0.741	0.673	0.662	1.29	0.492	0.445
12	1.81	0.483	0.111	0.444	0.198	0.675	0.421	0.164	0.334	0.273
13	17.0	30.5	25.9	22.8	17.0	22.3	20.9	11.6	12.4	18.6
14	0.00	1.14	0.00	0.806	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
総和	156	155	132	156	118	206	177	113	102	127

μg/man/day

表 1-3 ニッケルの地域・食品群別摂取量

TD試料(群)	地域									
	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J
1	3.27	4.65	2.46	2.31	4.47	3.25	2.58	4.55	3.79	1.79
2	9.92	12.8	16.5	16.7	15.4	21.3	22.2	13.2	17.5	16.5
3	0.568	1.51	1.51	1.06	1.17	1.87	19.6	1.50	1.30	0.991
4	0.0366	0.0637	0.110	0.0761	0.0520	0.0628	0.0863	0.0429	0.0173	0.0459
5	0.830	3.56	2.27	2.86	0.500	2.46	1.60	1.99	3.14	1.81
6	0.496	0.114	0.129	0.209	0.00	0.160	0.416	0.364	0.101	0.435
7	0.590	0.438	0.391	0.219	0.252	0.0834	0.257	0.149	0.166	0.261
8	0.528	0.918	1.08	2.45	2.35	1.18	1.09	0.609	0.938	1.15
9	0.00	0.00	0.617	0.538	0.00	0.00	1.00	0.00	0.00	0.00
10	29.2	39.8	28.8	29.4	29.0	34.0	33.4	37.4	26.3	29.6
11	32.7	30.6	30.2	27.8	28.2	25.0	36.8	21.3	39.9	26.3
12	3.17	2.80	3.22	2.87	2.60	3.29	2.96	2.83	2.79	3.84
13	2.05	3.06	7.32	11.3	4.74	8.77	4.76	3.35	2.74	4.13
14	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
総和	83	100	95	98	89	102	127	87	99	87

μg/man/day

表 1-4 セレンの地域・食品群別摂取量

TD試料(群)	地域									
	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J
1	1.63	6.83	12.4	6.69	10.2	4.05	3.96	5.33	5.42	6.04
2	2.47	1.95	2.38	1.94	2.10	3.02	2.68	2.16	2.38	1.44
3	0.134	0.530	0.493	0.635	0.481	0.992	5.05	0.491	0.817	0.581
4	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
5	0.730	0.857	0.868	0.691	0.842	0.897	0.747	1.01	0.664	0.530
6	0.0243	0.296	0.0938	0.103	0.0656	0.0671	0.0378	0.132	0.0554	0.0629
7	1.60	7.96	1.65	1.06	1.47	1.36	1.30	0.794	2.44	0.850
8	2.14	2.15	3.33	3.65	4.39	3.19	2.41	3.45	2.68	3.48
9	0.0338	0.268	0.00	0.0660	0.0127	0.0482	0.0533	0.201	0.0204	0.0513
10	0.485	1.74	0.744	3.18	1.26	0.953	3.60	0.960	0.566	2.38
11	0.0252	0.144	0.0405	0.0863	0.0467	0.130	0.0303	0.0339	0.0239	0.0381
12	0.00434	0.0474	0.00	0.00981	0.0135	0.00612	0.0105	0.0105	0.0278	0.0105
13	0.402	0.459	0.919	0.983	0.890	1.86	0.848	0.891	0.506	0.488
14	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.0118
総和	9.7	23	23	19	22	17	21	15	16	16

μg/man/day

表 1-5 カドミウムの地域・食品群別摂取量

TD試料(群)	地域									
	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J
1	0.121	0.00	0.0972	0.0918	0.00	0.173	0.146	0.00	0.116	0.00
2	0.0970	0.0935	0.114	0.0927	0.00	0.202	0.219	0.138	0.0713	0.00
3	0.0243	0.0249	0.0340	0.0583	0.0323	0.0492	0.504	0.0601	0.0406	0.353
4	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
5	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.0119	0.00	0.0197	0.00
6	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
7	0.441	0.875	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
8	0.00	0.00	0.00	0.217	0.00	0.00	0.0537	0.00	0.00	0.0591
9	0.193	0.365	0.384	0.567	0.164	0.178	0.395	0.213	0.252	0.00
10	0.00	0.210	0.0665	0.0583	0.0606	0.0438	0.102	0.0613	0.194	0.0482
11	0.126	0.0955	0.0578	0.102	0.00	0.0217	0.00	0.0653	0.00	0.00
12	0.00	1.28	0.0322	0.0510	0.0399	0.0987	0.0725	0.0689	0.168	0.104
13	0.00	0.00	0.00	0.00	0.0519	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
14	0.0599	0.00	0.0493	0.00	0.00	0.00	0.0542	0.00	0.00	0.00
総和	1.1	2.9	0.84	1.2	0.35	0.77	1.6	0.61	0.86	0.56

μg/man/day

表 1-6 アンチモンの地域・食品群別摂取量

TD試料(群)	地域									
	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J
1	5.20	12.6	18.8	14.6	8.39	13.9	8.88	11.7	15.6	12.9
2	64.3	74.4	76.1	127.9	75.5	136	84.9	142	176	63.7
3	5.49	14.3	13.5	11.0	12.9	14.7	163	12.5	15.0	16.2
4	0.00	0.4316	0.458	0.0274	0.0242	0.0319	0.516	0.0623	0.0110	0.0577
5	54.7	61.0	62.2	49.3	25.9	31.9	49.3	30.6	60.0	35.3
6	34.1	96.6	18.2	18.3	22.0	34.8	63.7	45.6	45.8	35.8
7	46.3	61.9	110	39.0	61.8	34.7	34.7	15.8	101	39.2
8	50.8	65.4	92.5	83.8	62.5	52.0	81.4	40.1	74.7	131
9	17.1	23.9	22.9	14.9	21.1	22.7	21.6	24.9	7.67	8.90
10	3.99	8.39	3.98	6.51	6.08	7.62	5.49	26.4	5.63	4.99
11	48.2	29.0	14.7	9.42	10.2	8.22	10.4	12.8	13.8	11.2
12	10.1	9.25	12.6	14.4	11.1	14.2	9.79	8.44	10.5	9.14
13	24.2	49.9	72.4	73.3	47.8	39.8	79.8	26.7	35.3	33.0
14	2.29	2.45	1.70	0.516	1.54	1.41	3.40	1.97	2.00	1.60
総和	367	510	520	463	367	412	617	399	563	403

μg/man/day

表 1-7 バリウムの地域・食品群別摂取量

TD試料(群)	地域									
	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J
1	1.13	1.20	0.137	0.441	0.00	12.6	0.119	0.389	0.186	0.242
2	0.656	0.586	0.774	1.11	0.150	3.45	0.208	0.451	0.376	0.378
3	0.117	0.0813	0.0526	0.0683	0.152	0.113	19.6	0.0704	0.200	0.0823
4	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.0289	0.00	0.00	0.00	0.00
5	0.252	0.310	0.442	0.465	0.167	0.358	0.353	0.431	0.180	0.126
6	0.504	0.196	0.00	0.117	0.00	0.107	0.00	0.00	0.0737	0.00
7	0.464	0.796	0.251	2.71	0.148	0.285	0.204	0.109	0.187	0.126
8	2.36	0.668	0.451	3.79	1.88	0.677	0.410	0.812	0.602	1.21
9	1.64	1.12	0.937	3.86	0.693	3.10	1.35	1.06	0.713	0.262
10	0.358	0.624	0.187	0.465	0.720	0.758	0.361	0.815	0.491	0.521
11	0.196	0.118	0.0474	0.00	0.00	2.64	0.00	0.272	0.00	0.00
12	0.479	0.318	0.146	0.146	0.161	0.296	0.205	0.218	0.570	0.438
13	0.214	0.212	0.490	1.67	0.330	0.663	0.451	0.192	0.129	0.122
14	0.00	0.297	0.00	0.368	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
総和	8.4	6.5	3.9	15	4.4	25	23	4.8	3.7	3.5

μg/man/day

表 1-8 鉛の地域・食品群別摂取量

TD試料(群)	地域									
	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J
1	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.0115	0.00
2	0.0214	0.0237	0.0466	0.0395	0.0560	0.319	0.0383	0.0407	0.0363	0.0158
3	0.00	0.0100	0.00370	0.00707	0.00271	0.00252	0.0513	0.00434	0.0124	0.00
4	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
5	0.0159	0.0145	0.0740	0.0132	0.0133	0.0335	0.0170	0.0394	0.0914	0.0374
6	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
7	0.0136	0.00979	0.0101	0.0107	0.00776	0.00567	0.00874	0.00	0.0246	0.0109
8	0.211	0.0137	0.619	0.989	1.90	0.589	0.961	0.562	0.177	0.366
9	0.0214	0.0139	0.0446	0.00871	0.0307	0.0146	0.0619	0.0248	0.0102	0.00
10	0.237	0.247	0.122	0.143	0.148	0.221	0.211	0.299	0.122	0.241
11	0.00959	0.0273	0.0139	0.0230	0.0110	0.00	0.00739	0.0148	0.0166	0.00
12	0.00	0.0247	0.0143	0.0113	0.00	0.00887	0.00586	0.0111	0.0139	0.0128
13	0.00721	0.0257	0.0577	0.0411	0.0417	0.0417	0.0376	0.0171	0.0176	0.0101
14	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
総和	0.54	0.41	1.0	1.3	2.2	1.2	1.4	1.0	0.54	0.70

μg/man/day

表 1-9 ウランの地域・食品群別摂取量

TD試料(群)	地域									
	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J
1	12.0	12.5	15.5	13.9	11.8	16.9	17.2	15.5	13.8	13.0
2	0.228	0.272	0.952	0.473	0.437	0.291	0.661	1.80	1.15	0.121
3	0.175	0.334	0.139	0.465	0.215	0.797	0.506	0.118	0.241	0.123
4	0.00143	0.00310	0.00524	0.00335	0.00886	0.00206	0.0073	0.00709	0.00170	0.0126
5	0.145	0.235	0.224	0.130	0.0691	0.991	0.636	0.104	0.124	0.120
6	0.185	0.265	0.132	0.255	0.0828	0.323	0.142	0.363	0.167	0.0570
7	0.139	0.811	0.103	0.0618	0.0723	0.0546	0.0512	0.0891	0.103	0.164
8	6.73	1.01	132	82.4	59.9	45.4	81.5	128	18.8	130
9	0.264	0.321	0.203	0.489	0.406	0.247	0.328	0.457	0.312	0.121
10	120	154	157	115	89.8	125	359	142	147	120
11	0.355	1.20	1.02	0.264	1.76	1.53	1.34	2.41	0.958	0.479
12	0.0184	0.105	0.0450	0.0224	0.0313	0.0479	0.0468	0.0397	0.100	0.0674
13	1.51	3.29	8.54	6.05	2.65	32.8	4.95	6.27	1.54	2.26
14	0.682	0.0774	0.0883	0.0412	0.0543	0.0610	0.122	0.0242	0.102	0.00
総和	143	174	316	219	167	224	466	298	185	267

μg/man/day

表 1-10 総ヒ素の地域・食品群別摂取量



TD試料(群)	地域									
	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J
1	6.55	11.0	10.3	11.1	9.09	14.1	14.5	10.9	10.1	8.26
2	0.373	0.294	0.311	0.437	0.388	0.449	0.409	0.806	0.368	0.224
3	0.139	0.308	0.172	0.0248	0.114	0.450	0.0515	0.0918	0.200	0.0734
4	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
5	0.0947	0.0962	0.149	0.0455	0.0597	0.0547	0.0631	0.0416	0.0730	0.0917
6	0.163	0.186	0.167	0.168	0.0818	0.269	0.0594	0.324	0.0951	0.0416
7	0.107	0.648	0.0865	0.0574	0.0695	0.0726	0.0711	0.0689	0.109	0.121
8	0.324	0.571	2.30	4.36	0.790	1.53	1.31	0.660	0.821	10.5
9	0.326	0.338	0.333	0.557	0.279	0.184	0.197	0.640	0.295	0.279
10	0.00	0.00	0.0969	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.0877
11	0.00	0.406	0.261	0.318	0.434	0.344	0.572	0.454	0.396	0.565
12	0.00	0.107	0.0832	0.0737	0.0193	0.0476	0.0660	0.0548	0.0616	0.0899
13	1.67	1.66	2.78	2.24	1.94	2.93	1.80	1.57	1.59	1.16
14	0.593	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
総和	10	16	17	19	13	20	19	16	14	21

μg/man/day

表 1-11 無機ヒ素の地域・食品群別摂取量

TD試料(群)	地域									
	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J
1	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	1.05	0.00	0.00	0.00	0.00
2	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
3	0.333	0.00	0.00	0.00	43.9	0.243	3.11	0.00	0.188	1.04
4	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.0270	0.00	0.00	0.00
5	0.00	0.255	0.253	0.00	0.00	20.0	0.00	0.105	0.00	0.00
6	0.00	0.332	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
7	1.56	0.388	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
8	0.477	0.00	0.00	1537	0.00	129	0.00	0.00	0.00	0.357
9	0.00	0.00	0.00	2.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
10	0.00	0.280	0.138	0.291	0.165	0.318	0.218	0.265	0.606	0.164
11	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.245	0.00	0.00	0.00	0.00
12	0.00	3.74	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.300	0.00
13	0.289	0.191	0.246	0.794	0.00	1.23	0.00	0.573	0.00	0.230
14	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
総和	2.7	5.2	0.64	1540	44	152	3.4	0.94	1.1	1.8

μg/man/day

表 1-12 スズの地域・食品群別摂取量

TD試料(群)	地域									
	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J
1	2.81	1.71	0.306	26.3	0.774	4.69	0.457	0.471	2.29	0.915
2	2.84	3.72	2.97	3.84	2.18	14.4	3.34	1.73	2.16	1.54
3	0.473	1.79	1.28	1.63	1.09	2.02	19.1	1.41	1.86	2.23
4	0.00	0.00675	0.00669	0.0221	0.00	0.00	0.0107	0.00832	0.00	0.0439
5	1.25	0.917	2.07	2.38	0.961	0.688	1.96	4.29	2.22	1.79
6	0.530	0.415	0.372	0.322	0.183	0.0510	1.66	4.81	0.284	0.0924
7	0.467	0.559	0.599	1.41	0.283	0.451	0.918	1.04	1.50	0.399
8	0.837	0.697	0.819	4.95	1.79	1.25	1.33	1.48	0.924	1.25
9	3.08	1.50	2.20	1.51	3.72	0.992	6.02	6.28	1.59	0.705
10	0.798	1.63	0.738	1.66	2.48	1.21	1.39	2.60	2.42	2.81
11	3.42	6.48	6.13	1.15	0.634	3.62	6.81	1.56	0.784	1.27
12	0.395	0.307	0.221	0.482	0.338	0.684	0.653	0.191	0.525	0.500
13	1.42	1.35	2.95	4.62	3.97	3.03	6.08	1.98	2.22	1.76
14	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
総和	18	21	21	50	18	33	50	28	19	15

μg/man/day

表 1-13 クロムの地域・食品群別摂取量

TD試料(群)	地域									
	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J
1	0.455	0.528	0.372	0.785	0.509	0.993	0.359	0.567	0.671	0.294
2	2.22	1.10	0.976	1.76	1.04	0.910	1.31	1.94	1.48	0.638
3	0.118	0.358	0.746	0.474	0.467	0.726	6.77	0.387	0.587	0.755
4	0.00	0.00	0.00102	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00157	0.00	0.00
5	0.970	0.678	1.13	0.931	0.683	0.499	0.642	1.15	0.776	0.634
6	0.190	0.239	0.706	0.296	0.489	0.263	0.253	0.755	0.228	0.476
7	0.636	1.44	0.621	1.44	0.785	0.250	0.834	0.281	2.39	0.934
8	0.542	0.47	1.19	1.04	0.647	0.831	0.804	0.854	0.579	0.625
9	0.710	1.13	0.975	0.789	1.25	1.61	0.906	1.66	0.39	0.650
10	0.355	1.22	0.701	0.561	0.854	0.903	3.409	0.756	0.993	0.489
11	0.130	0.233	0.192	0.204	0.172	0.149	0.248	0.154	0.134	0.184
12	0.0469	0.0462	0.0512	0.0655	0.0559	0.0979	0.0616	0.0438	0.0670	0.0872
13	1.27	1.24	1.30	1.21	1.02	1.67	1.21	1.12	0.493	0.692
14	0.00	0.00	0.00	0.0104	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
総和	7.6	8.7	9.0	9.6	8.0	8.9	17	9.7	8.8	6.5

μg/man/day

表 1-14 コバルトの地域・食品群別摂取量

TD試料(群)	地域									
	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J
1	71.1	101	62.0	64.2	84.2	82.3	118	133	104	161
2	12.2	14.6	13.1	14.1	15.2	20.0	15.0	12.1	18.9	10.0
3	2.19	3.93	4.69	6.71	3.95	7.12	33.3	3.18	3.11	2.14
4	0.0239	0.0295	0.0611	0.0264	0.0280	0.0361	0.0350	0.00817	0.0104	0.0212
5	49.0	37.6	36.0	52.3	53.2	43.3	27.5	36.4	37.5	39.6
6	1.27	1.27	1.51	1.61	0.705	2.52	1.08	1.92	1.10	1.78
7	2.29	5.88	4.03	5.03	3.88	3.02	2.64	3.12	4.73	5.46
8	6.42	5.20	11.3	10.8	14.5	10.5	14.2	10.3	8.51	8.36
9	1.46	1.19	1.19	0.887	0.451	0.407	1.68	2.43	0.773	0.378
10	0.487	7.11	0.798	0.724	0.591	0.718	1.48	7.25	0.805	0.789
11	4.00	8.17	7.82	6.99	7.17	4.19	6.79	4.50	5.26	4.88
12	6.63	4.13	5.41	4.90	4.71	4.55	4.94	4.50	4.61	4.78
13	14.9	42.6	37.5	28.4	22.6	20.5	30.7	12.3	16.0	29.6
14	0.00	0.174	0.154	0.149	0.00	0.125	0.222	0.0799	0.108	0.00
総和	172	233	186	197	211	199	258	231	206	268

μg/man/day

表 1-15 モリブデンの地域・食品群別摂取量

TD試料(群)	地域									
	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J
1	0.286	0.218	0.267	0.177	0.330	0.452	0.480	0.538	0.488	0.291
2	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
3	0.00	0.00	0.0148	0.00	0.0176	0.0188	0.00	0.00	0.00	0.00
4	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
5	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
6	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
7	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
8	0.00	0.00	0.00	0.09	0.00	0.128	0.00	0.00	0.00	0.0532
9	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
10	12.7	5.61	3.93	6.03	6.29	6.12	6.09	6.06	4.02	2.16
11	0.00	0.254	0.502	0.0596	0.164	0.295	0.125	0.197	0.582	0.115
12	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
13	0.00	0.00	0.00	0.133	0.00	0.00	0.0357	0.00	0.00	0.0392
14	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
総和	13	6.1	4.7	6.5	6.8	7.0	6.7	6.8	5.1	2.7

μg/man/day

表 1-16 総水銀の地域・食品群別摂取量

ND=0		摂取量 (μg/man/day)													
有害元素	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	14群	総和
B	60.9	96.1	60.7	0.293	184	198	163	286	138	40.3	12.2	28.3	187	14.8	1471
Al	8.67	277	194	0.551	96.6	34.9	121	300	854	298	65.8	54.1	291	2.35	2598
Ni	21.4	20.8	10.5	0.00816	29.5	4.71	6.95	7.79	17.6	2.92	1.31	0.491	19.9	0.195	144
Se	3.31	16.2	3.11	0.0593	2.10	0.242	0.281	1.23	0.216	31.7	29.9	3.04	5.22	0.00	96.6
Cd	6.26	2.25	1.02	0.00	0.784	0.0938	2.05	3.09	0.0755	1.59	0.0598	0.0140	0.825	0.00	18.1
Sb	0.0745	0.103	0.118	0.00	0.00316	0.00	0.132	0.0329	0.271	0.0845	0.0468	0.192	0.00519	0.0163	1.08
Ba	12.3	102	27.8	0.162	46.0	41.5	54.4	73.4	18.6	7.91	16.8	11.0	48.2	1.89	462
U	0.00	0.0637	0.0101	0.00	0.0350	0.00	0.0107	0.639	0.0231	0.199	0.0127	0.0108	0.0297	0.00	1.04

ND=0		摂取量 (μg/man/day)													
元素	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	14群	総和
total As	14.2	0.639	0.311	0.00527	0.278	0.197	0.165	68.6	0.315	153	1.13	0.0524	6.99	0.125	246
iAs	10.6	0.406	0.162	0.00	0.0769	0.155	0.141	2.31	0.343	0.0185	0.375	0.0603	1.93	0.0593	16.6
total Hg	0.353	0.00	0.00513	0.00	0.00	0.00	0.00	0.0271	0.00	5.90	0.229	0.00	0.0208	0.00	6.54
Pb	1.65	0.814	2.05	0.00	0.308	0.100	0.528	1.29	1.47	0.530	0.328	0.298	0.447	0.0665	9.88
Sn	0.105	0.00	4.88	0.00270	2.06	0.0332	0.195	167	0.200	0.244	0.0245	0.404	0.356	0.00	175
Cr	4.07	3.87	3.29	0.0133	1.85	0.871	0.762	1.53	2.76	1.77	3.19	0.430	2.94	0.223	27.6
Co	0.553	1.34	1.14	0.00	0.809	0.390	0.961	0.758	1.01	1.02	0.180	0.0623	1.12	0.00104	9.34
Mo	98.1	14.5	7.03	0.0280	41.2	1.48	4.01	10.0	1.08	2.07	5.98	4.92	25.5	0.101	216

表2 元素類(メチル水銀を除く)の全国・全年齢層平均摂取量 (食品群別摂取量の平均及びそれらの総和；全国摂取量<sub>ave.</sub>)

TD試料(群)	地域										平均値
	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J	
10	8.89	4.68	3.10	5.12	3.87	5.52	5.25	6.12	4.08	2.10	4.87
11	0.0330	0.215	0.450	0.0391	0.101	0.222	0.212	0.156	0.458	0.108	0.20
総和	9.01	4.95	3.60	5.25	4.02	5.81	5.54	6.33	4.60	2.23	5.14

μg/man/day

表3 10群及び、11群試料の分析値に基づくメチルの全国・全年齢層平均摂取量(地域別摂取量及びその平均；全国摂取量<sub>ave.</sub>)

	TDI (μg/man/day)	摂取量 (μg/man/day)	対TDI比(%)
B	4800	1471	31
Al	14286	2598	18
Ni	200	144	72
Se	200	97	48
Cd	50	18	36
Sb	300	1.1	0.4
Ba	1000	462	46
U	10	1.0	10
MeHg	11.43	5.1	45
Pb	-	9.9	-
total As	-	246	-
iAs	-	17	-
total Hg	-	6.5	-
Sn	-	175	-
Cr	-	28	-
Co	-	9.3	-
Mo	-	216	-

表4 全国摂取量<sub>ave.</sub>の対TDI比 (2016年)

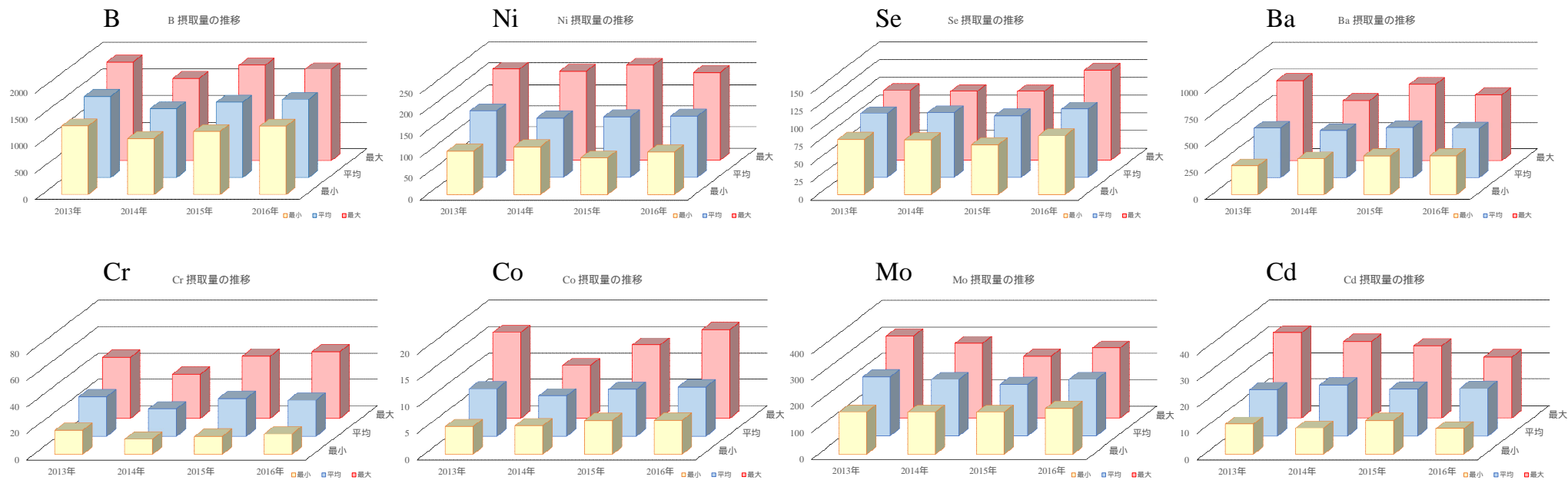


図 1-1 元素類摂取量の推移(2013-2016) - 摂取量変動の小さな元素； ホウ素、ニッケル、セレン、バリウム、クロム、コバルト、モリブデン、カドミウム

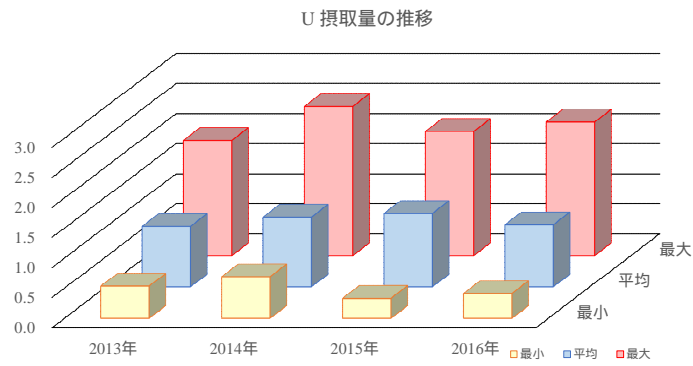
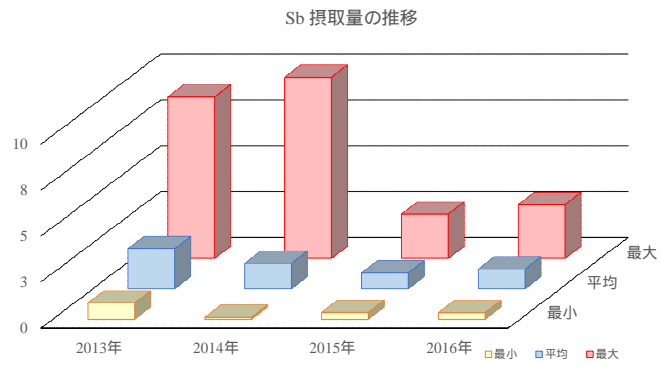
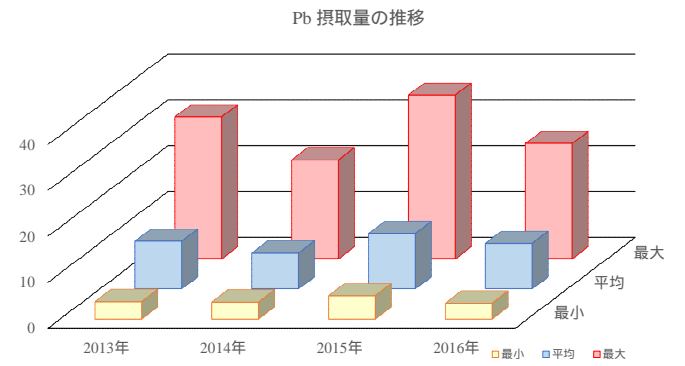
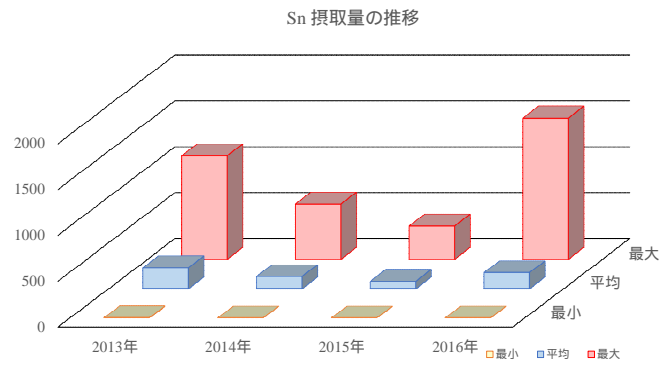
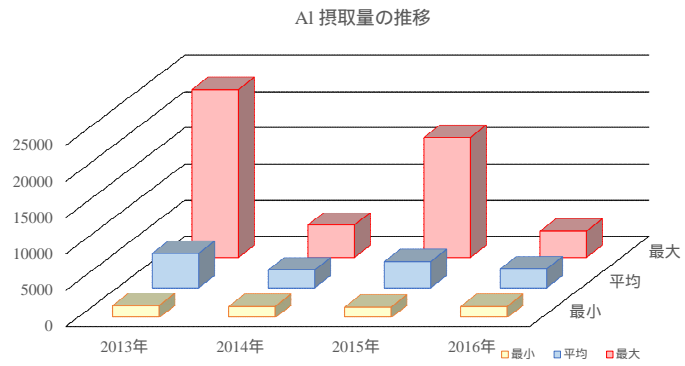
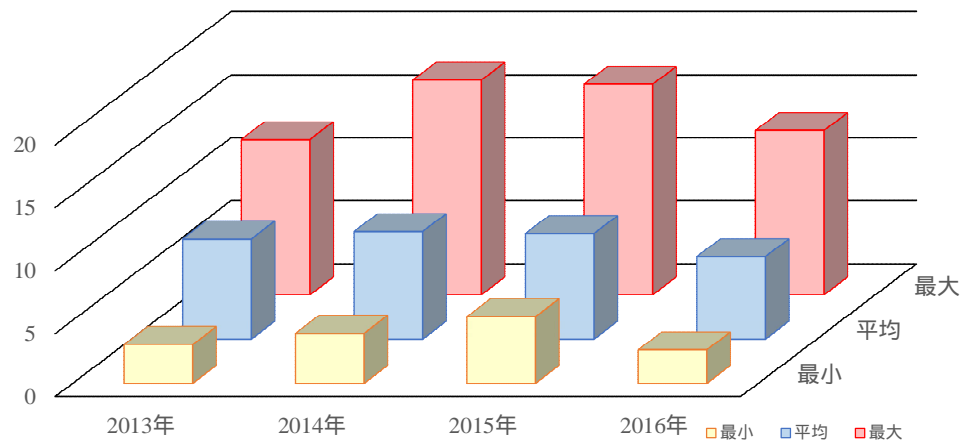
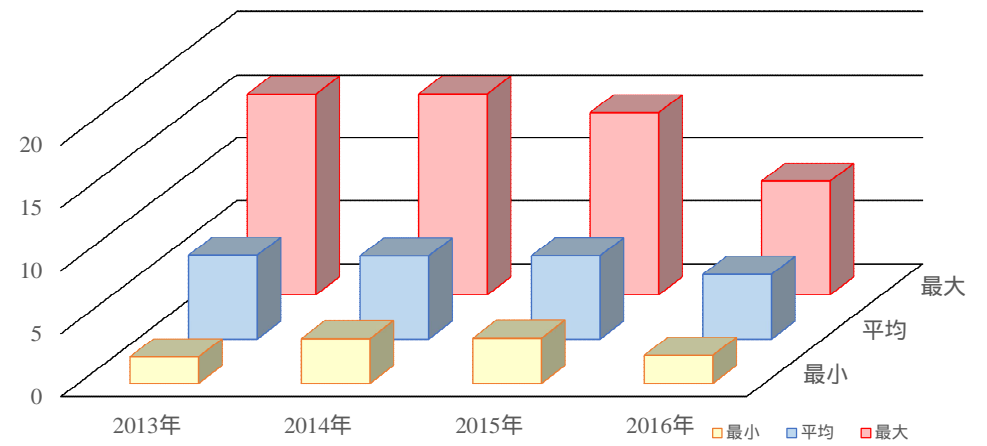


図 1-2 元素類摂取量の推移(2013-20166) - 摂取量変動の大きな元素； アルミニウム、スズ、鉛、アンチモン、ウラン

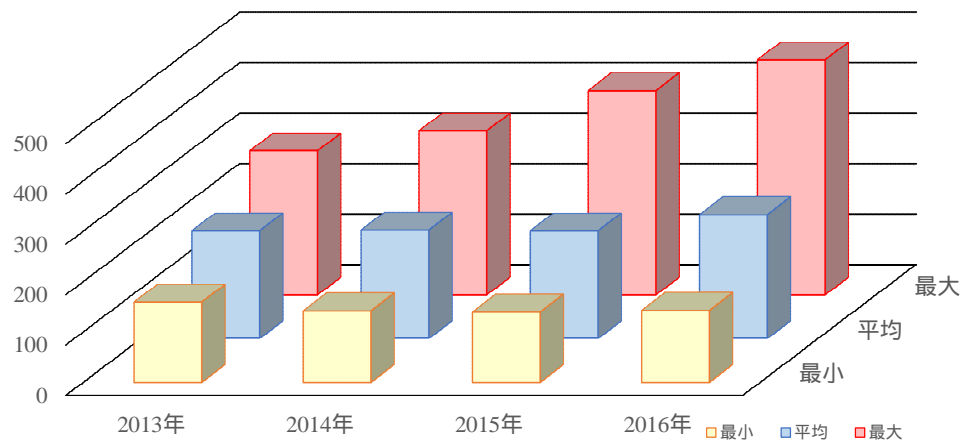
Total Hg 摂取量の推移



MeHg 摂取量の推移



TotalAs 摂取量の推移



iAs 摂取量の推移

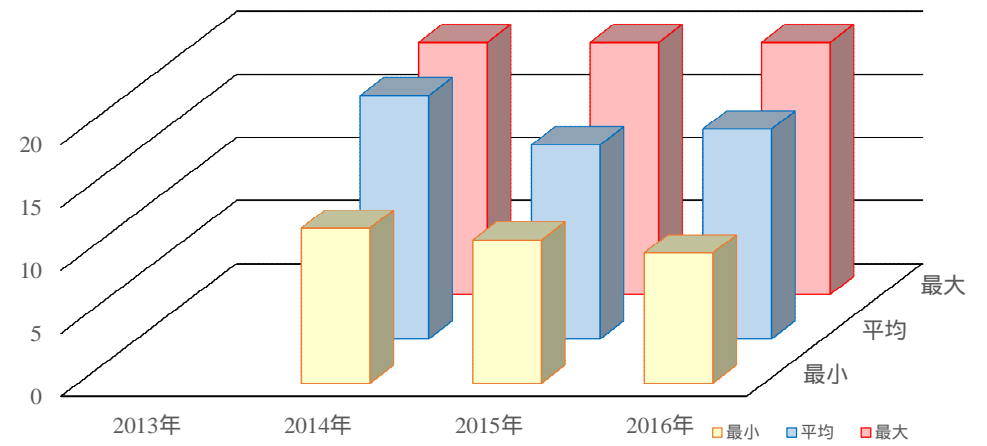
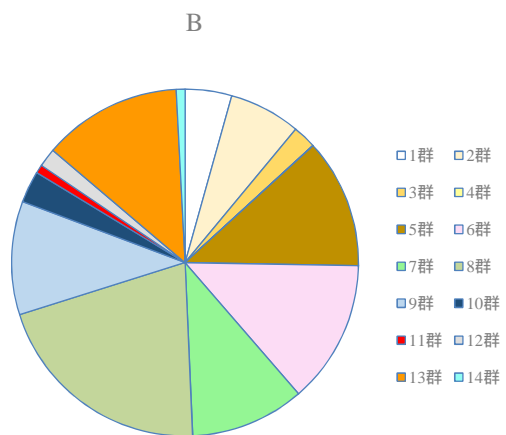


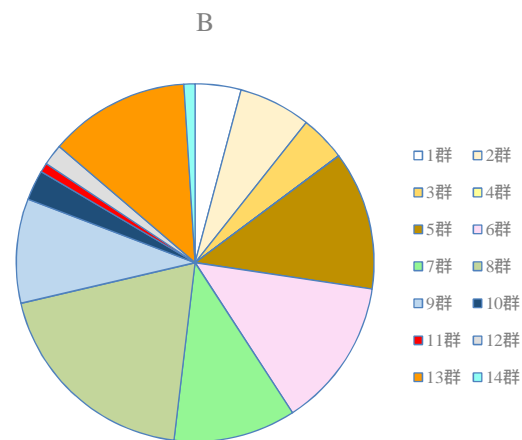
図 1-3 元素類摂取量の推移(2013-2016) - 総水銀、メチル水銀、総ヒ素、無機ヒ素



B

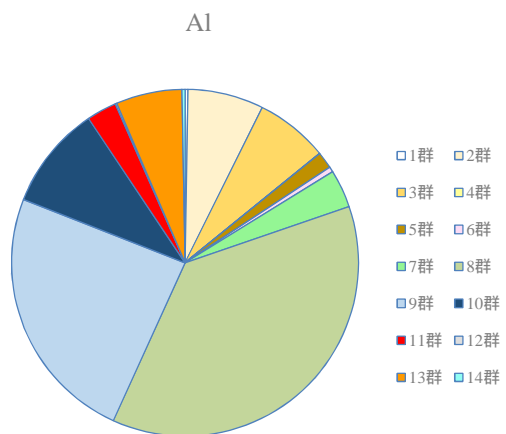


2013-2015年平均

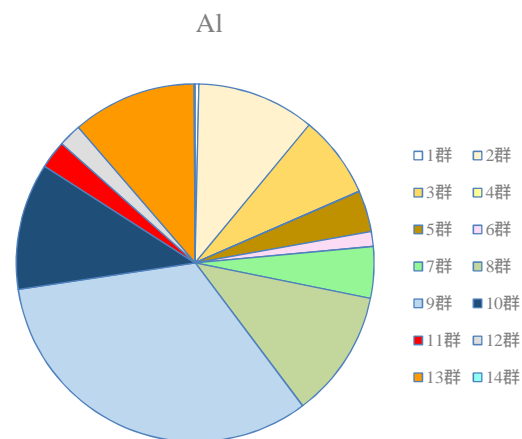


2016年

A1



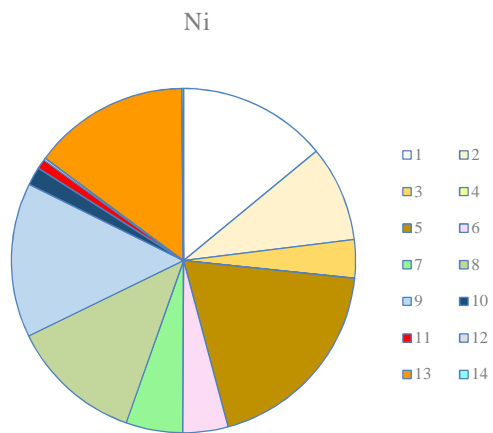
2013-2015年平均



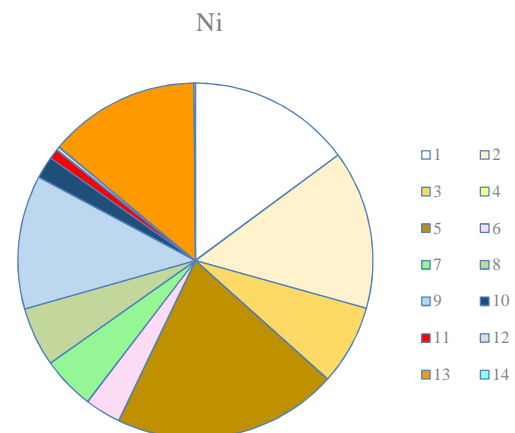
2016年

図 2-1 各元素の総摂取量に対する各群摂取量の寄与率 (ホウ素とアルミニウム)

Ni

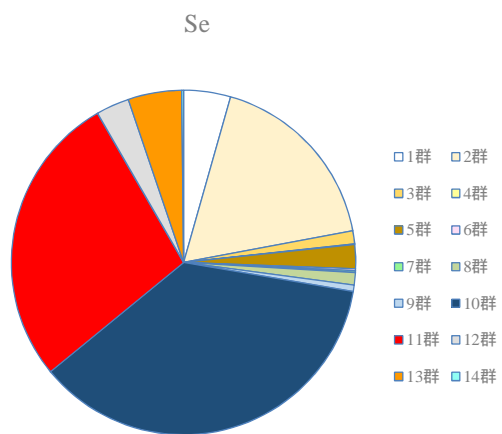


2013-2015年平均

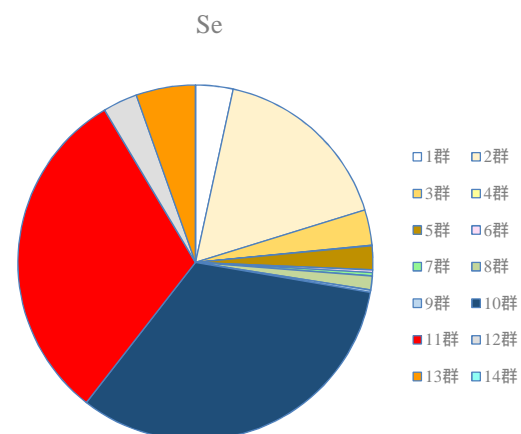


2016年

Se



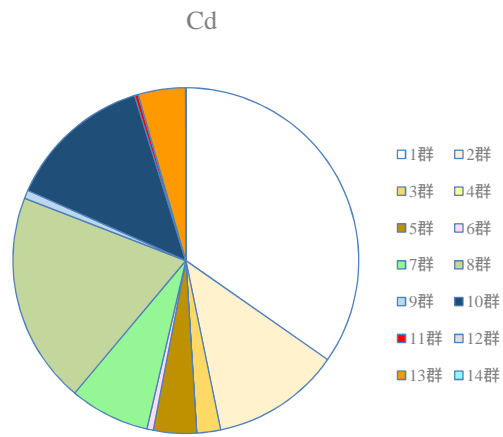
2013-2015年平均



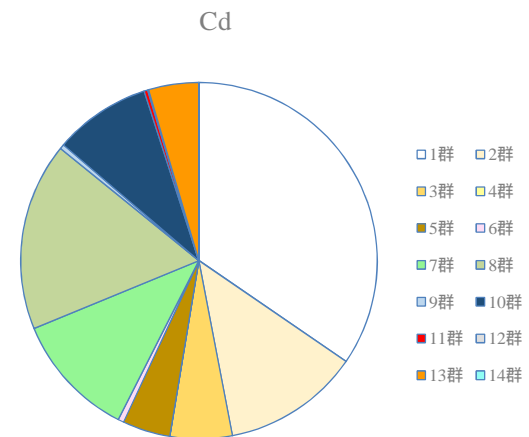
2016年

図 2-2 各元素の総摂取量に対する各群摂取量の寄与率 (ニッケルとセレン)

# Cd

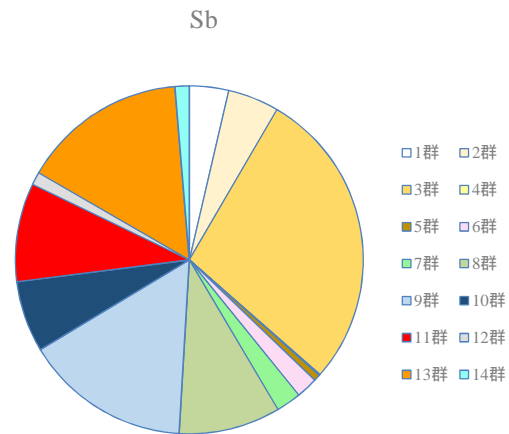


2013-2015年平均

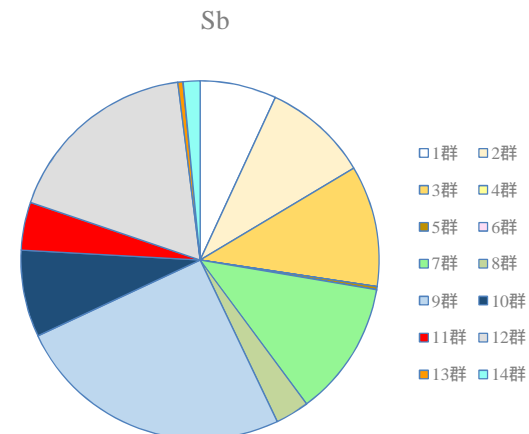


2016年

# Sb



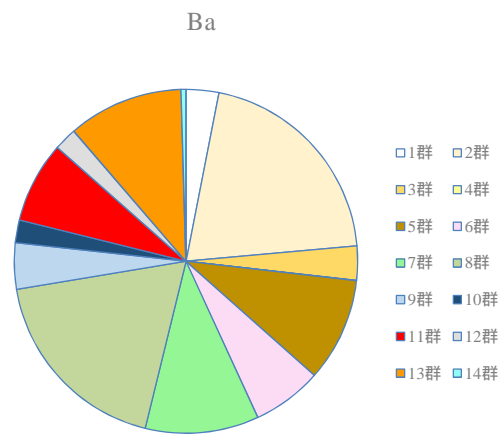
2013-2015年平均



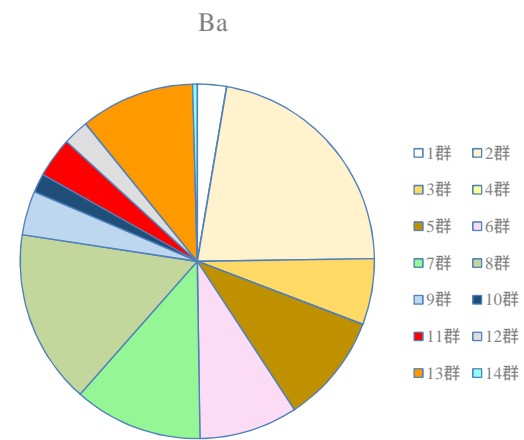
2016年

図 2-3 各元素の総摂取量に対する各群摂取量の寄与率 (カドミウムとアンチモン)

# Ba

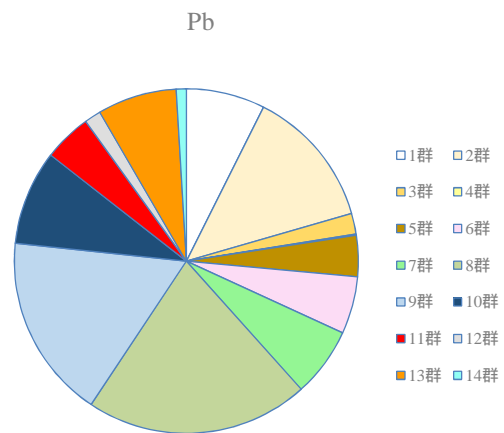


2013-2015年平均

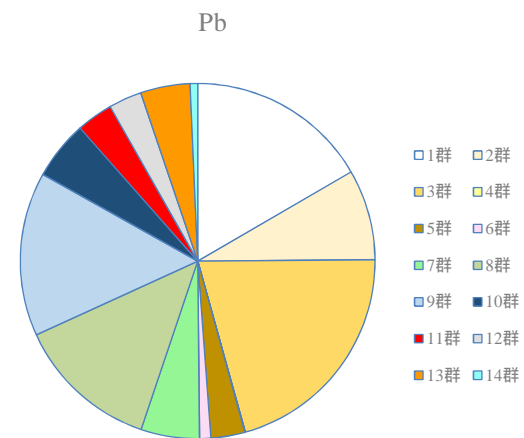


2016年

# Pb



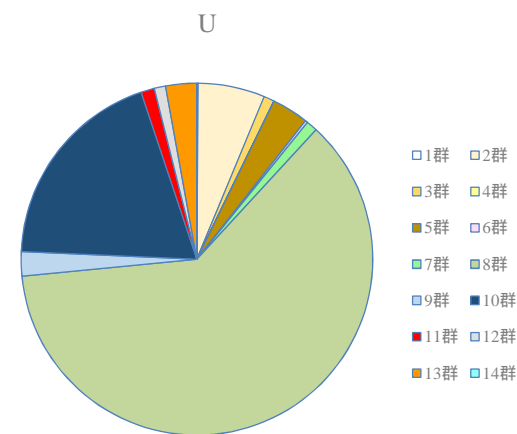
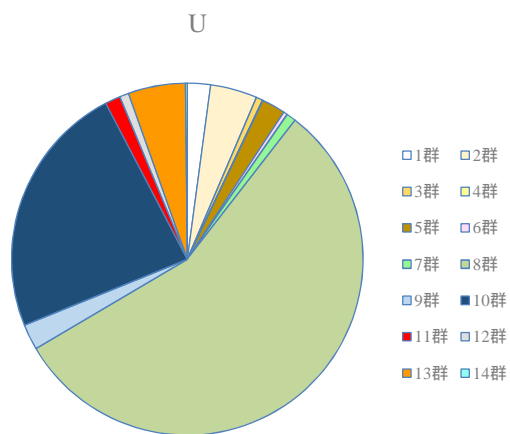
2013-2015年平均



2016年

図 2-4 各元素の総摂取量に対する各群摂取量の寄与率 (バリウムと鉛)

U



Sn

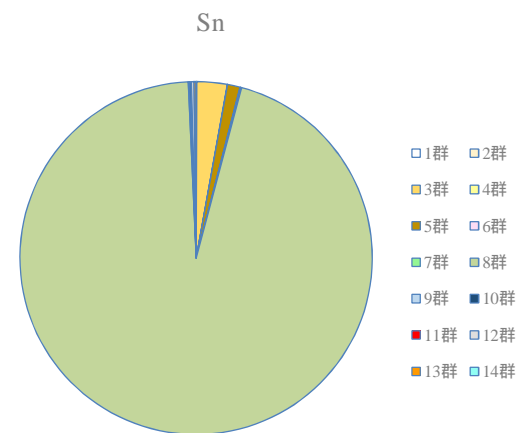
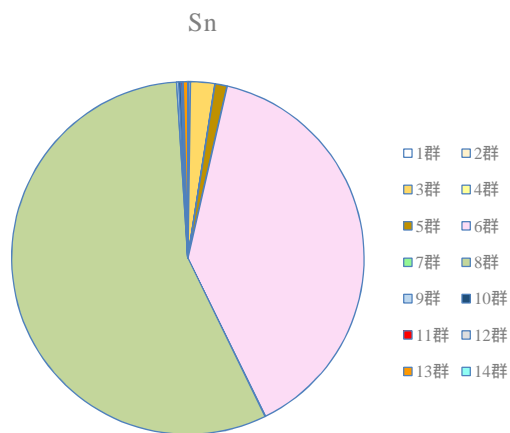
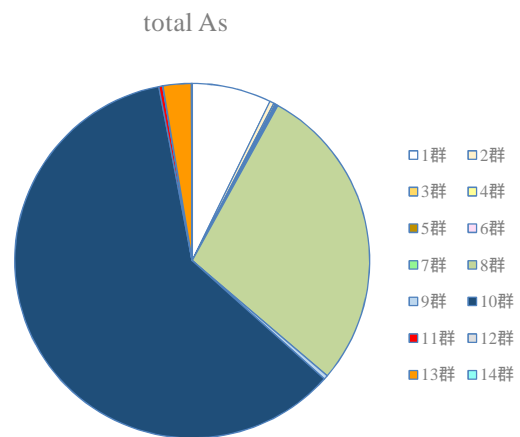
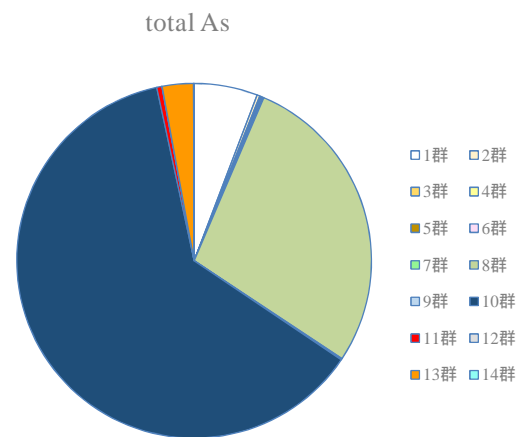


図 2-5 各元素の総摂取量に対する各群摂取量の寄与率 (ウランとスズ)

# TotalAs

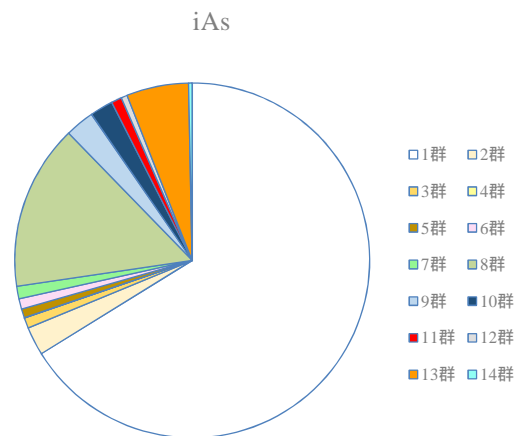


2013-2015年平均

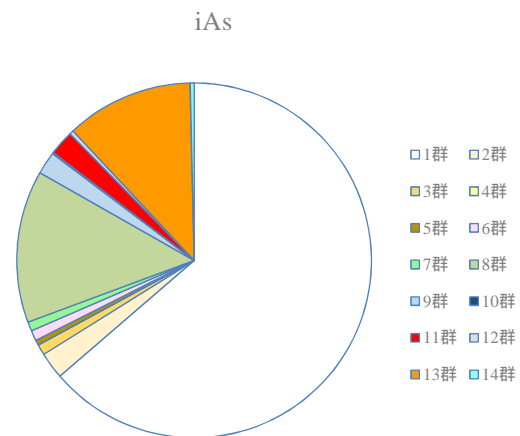


2016年

# iAs



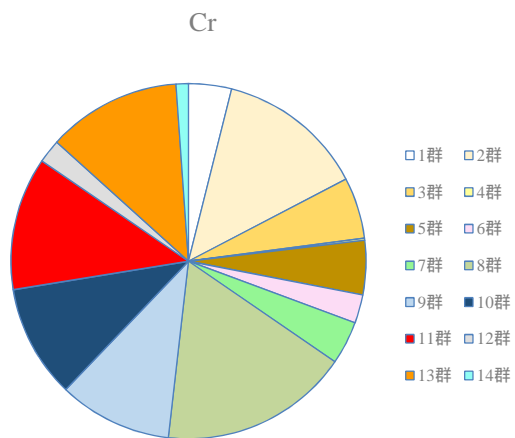
2014-2015年平均



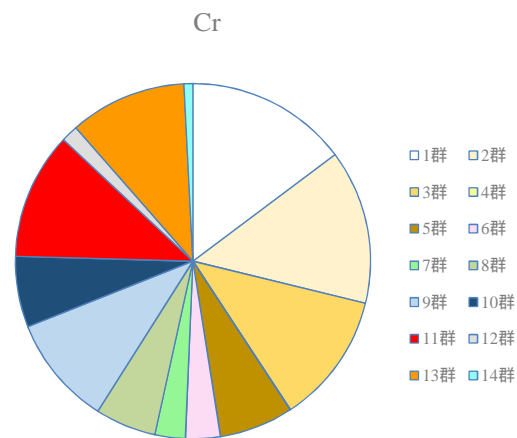
2016年

図 2-6 各元素の総摂取量に対する各群摂取量の寄与率 (総ヒ素と無機ヒ素)

# Cr

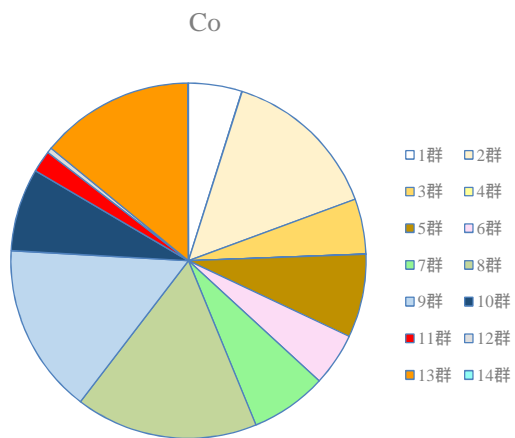


2013-2015年平均

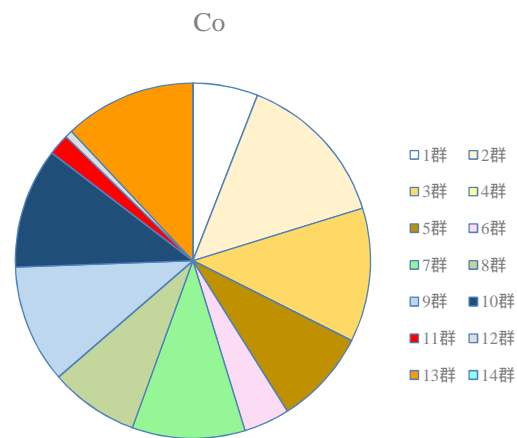


2016年

# Co



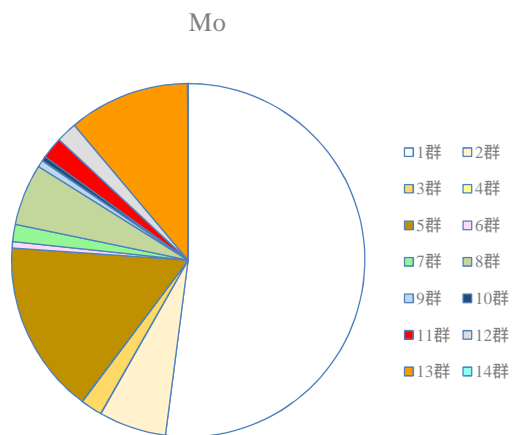
2013-2015年平均



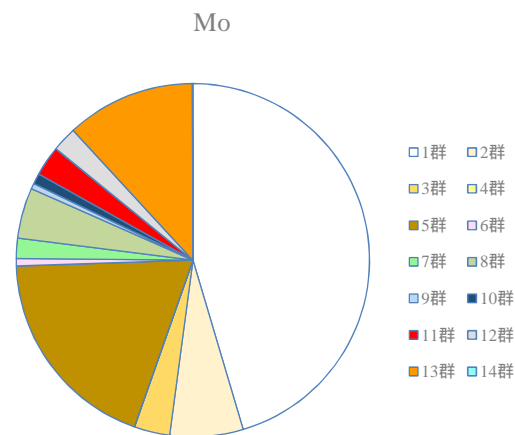
2016年

図 2-7 各元素の総摂取量に対する各群摂取量の寄与率 (クロムとコバルト)

# Mo

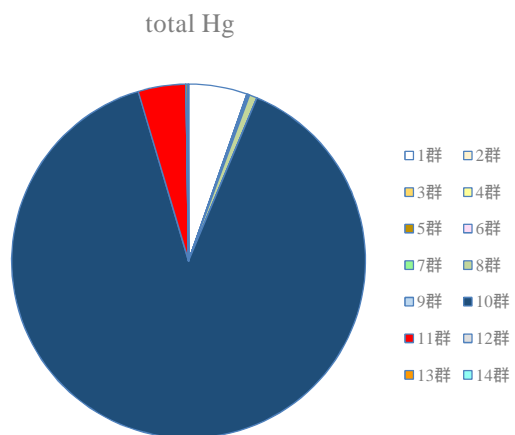


2013-2015年平均

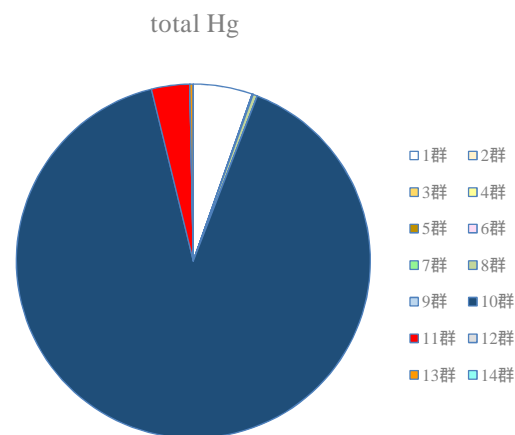


2016年

# TotalHg



2013-2015年平均



2016年

図 2-8 各元素の総摂取量に対する各群摂取量の寄与率 (モリブデンと総ヒ素)



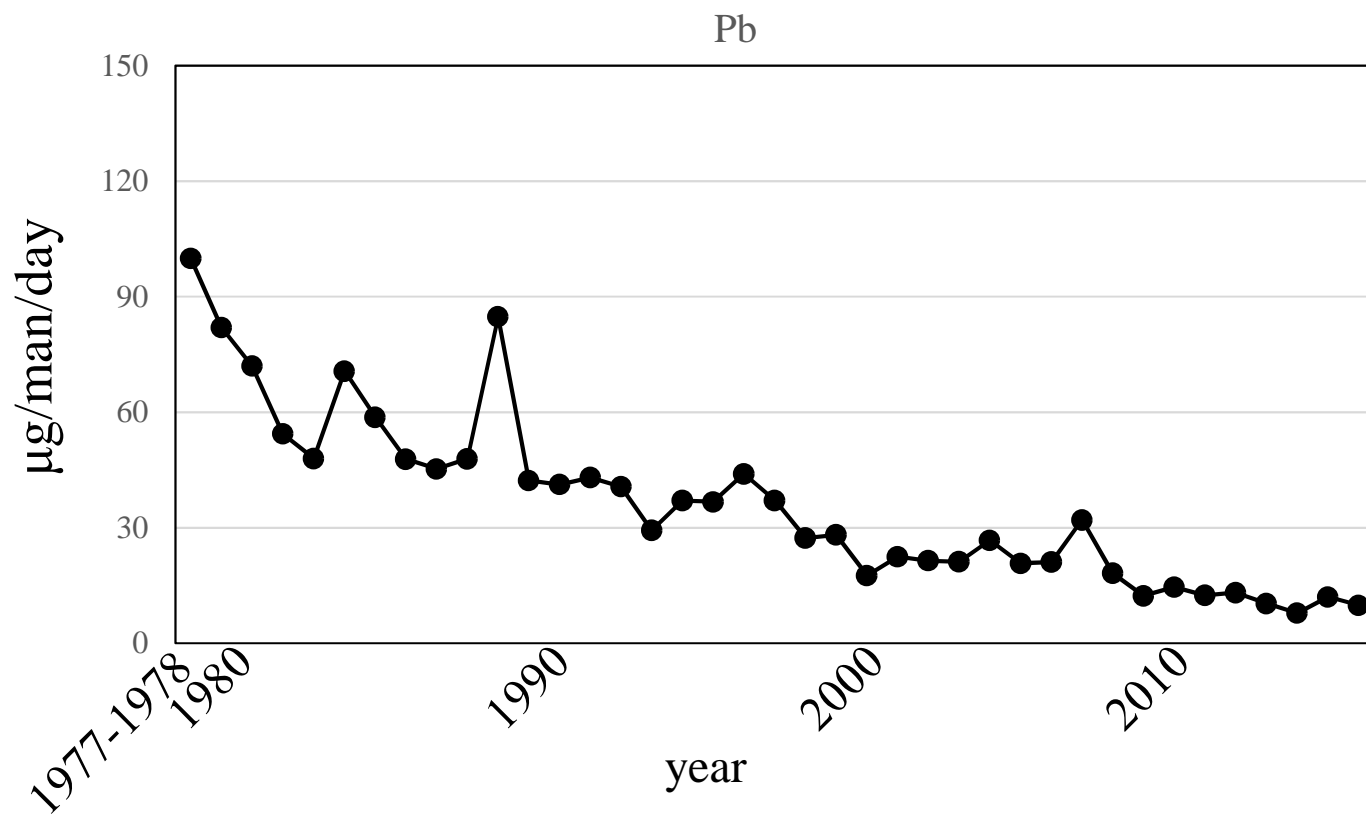


図3 鉛摂取量の経年変化 (1977-2016)

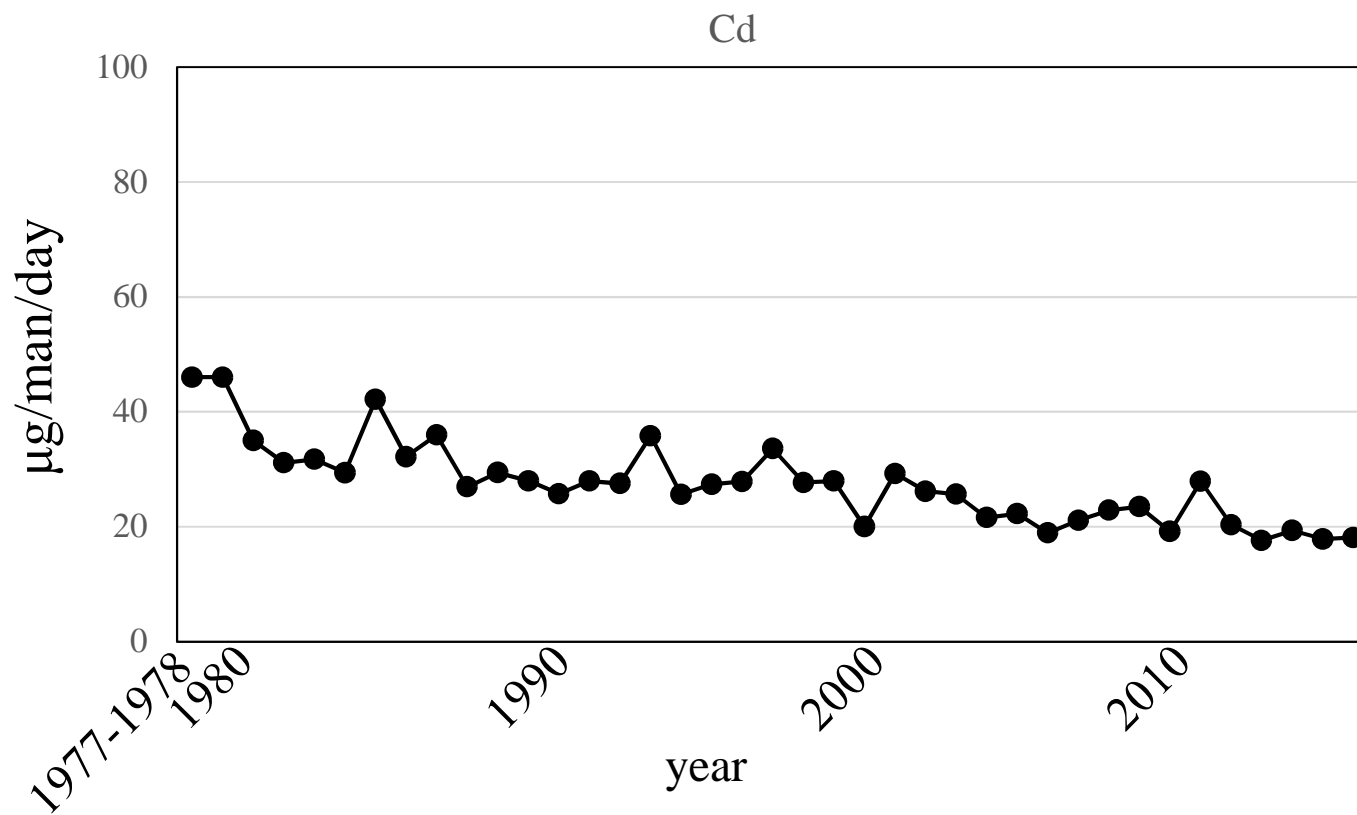


図4 カドミウム摂取量の経年変化 (1977-2016)

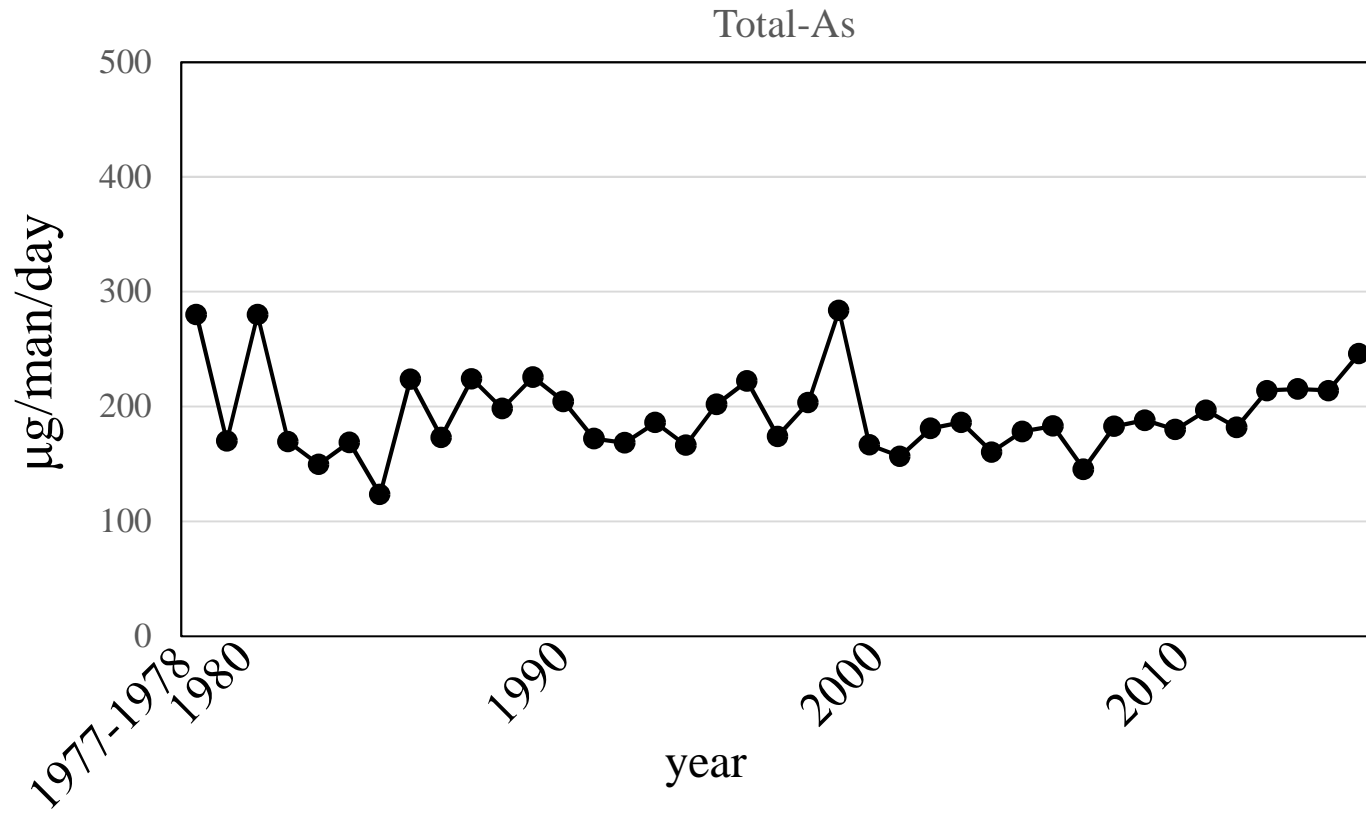


図5 総ヒ素摂取量の経年変化 (1977-2016)

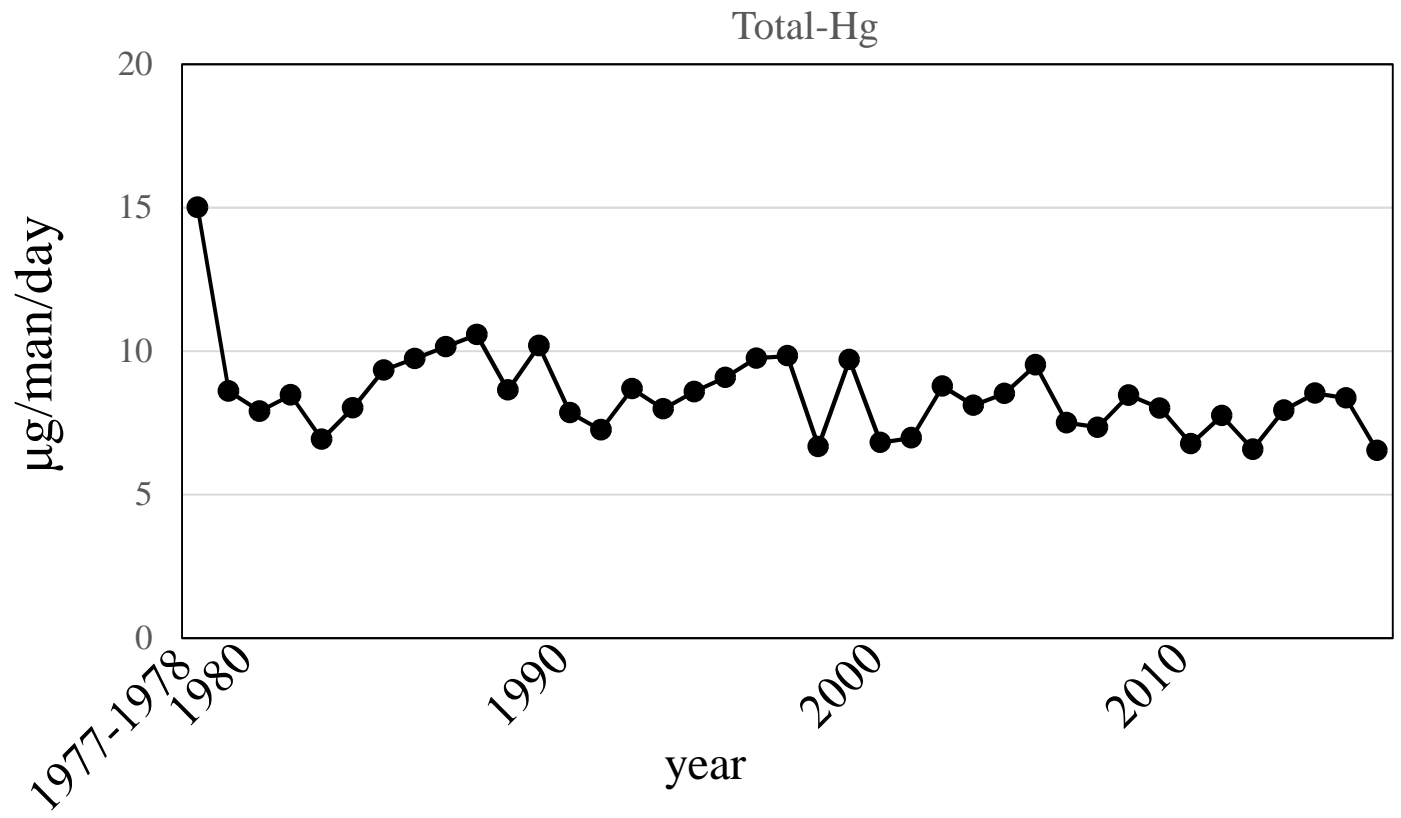


図 6 総水銀摂取量の経年変化 (1977-2016)

**食品の有害元素、ハロゲン系難燃剤等の摂取量推定及び  
汚染実態の把握に関する研究分担報告書  
デクロラン類摂取量推定の部**

**研究要旨**

本研究では、マーケットバスケット(MB)方式により、2016年に全国10地域及び特定1地域の4半期ごとに調製したトータルダイエツト(TD)試料の分析を通じ、塩素系難燃剤であるデクロラン類の全国規模の汚染実態把握と摂取量推定を3年間で実施する。デクロラン類に含まれる対象化合物は、Dechlorane 602(Dec 602)、Dechlorane 603(Dec 603)、Dechlorane 604(Dec 604)、Dechlorane Plus(DP、*syn*体と*anti*体の2種異性体)、Chlordene Plus(CP)及びDechloraneの計7種類である。今年度の研究では全国10地域のうち4地域で調製されたTD試料を分析し、デクロラン類の汚染実態の把握と摂取量推定を行った。4地域分の試料の分析結果から、調査対象物質ごとの平均摂取量はそれぞれ、Dec602:3.2 ng/man/day、Dec603:0.26 ng/man/day、Dec604:0.0046 ng/man/day、CP:0.060 ng/man/day 及び Dechlorane:0.48 ng/man/day と推定され、これら5種類の調査対象物質の平均摂取量の総和として、デクロラン類の全平均摂取量は4.0 ng/man/day と推定された。なお、本年度の分析において操作ブランク値が異常を示し、分析値の品質が保証できない事から、DPの摂取量推定はおこなわなかった。

**研究協力者(デクロラン類の分析)**

福岡県保健環境研究所 安武大輔、佐藤 環、堀 就英

**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低コスト、堅牢性及び難燃効果の高さから、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。一方で、ハロゲン系難燃剤の一部は、残留性の高い有機化合物であり、環境汚染物質として規制されている。ハロゲン系難燃剤の中でも臭素系難燃剤に属する六臭素化ビ

フェニル(HxBBs)、ポリ臭素化ジフェニルエーテル(PBDEs)の一部及びヘキサブロモシクロドデカン(HBCD)は、環境中での残留性、生物濃縮性、ヒトを含む生物への毒性が高く、長距離移動性にも懸念がある。これらの化合物は、国内では「化学物質の審査及び製造等の規制に関する法律」いわゆる化審法の第一種特定化学物質に指定され、国際的には「残留性有機汚染物質に関するストックホルム条約」いわゆる POPs 条約の附属書 A による規制対象として、製造、使用、輸出入が原則禁止されている。これらの難燃剤が規制される一方で、規制対象となっていない新たなハロゲン系難燃剤が

増加している。

Mirex(別名 Dechlorane であり、以下 Dechlorane とする)は、国内での使用実績はないが、国外では農薬やプラスチックの難燃剤として使用されており、すでに化審法及び POPs 条約により規制されている。アメリカでは 1978 年に製造が禁止され、Dechlorane の代替品として Dechlorane Plus (DP)、Dechlorane 602(Dec602)、Dechlorane 603 (Dec603) 及び Dechlorane 604 (Dec604) や、Dechlorane の類縁化合物として Chlorden Plus (CP)が存在する(図 1)。DP は 40 年以上前から市場に流通している塩素系難燃剤であり、電気機器の配線、電力ケーブルやワイヤーの被覆、コンピューターコネクタ類、樹脂製の屋根材料等の用途に使用されている<sup>1)2)</sup>。DP はアメリカの OxyChem 社と中国の Anpon 社によって生産されており、DP の生産量は 4,500 t 以上と推定されている<sup>3)4)</sup>。

Dec602 は、DP の副生成物であり<sup>5)</sup>、グラスファバーの補強ナイロンとして使用されている<sup>6)</sup>。Dec603 は Aldrin 及び Dieldrin の不純物として検出されている<sup>7)</sup>。Dec604 は Dechlorane の不純物であり、製品としては高電圧ワイヤーの絶縁被覆<sup>8)</sup>や電気機器用のシリコングリース<sup>9)</sup>にも使用されている。CP は Chlordene や Chlordane の不純物として検出されている<sup>7)</sup>。Dec602、Dec603、Dec604 及び CP の使用状況は不明であるが、国内外において様々な環境媒体からこれらのデクロラン類が検出されている<sup>10)11)12)</sup>。

表 1 にデクロラン類(CP は情報が無い

め未記載)の物理化学的性質を示す<sup>2)</sup>。なお、比較対象として 2,4,7,8-tetrachloro-dibenzo-p-dioxin (TeCDD)を併せて示す<sup>13)</sup>。表 1 のように、デクロラン類は TeCDD と同様に蒸気圧や水溶解度が低く、一方で、オクタノール-水分配比が高いため、環境中での残留性や生物濃縮性が示唆される、注視が必要な化学物質の一つである。

DP の食品における濃度及び食品消費を通じた一日摂取量については、Kakimoto ら<sup>14)15)</sup>によって、国内の魚介類の汚染状況や日本人の摂取量調査結果が報告されているが事例がすくない。さらに、デクロラン類を網羅的に調査した結果はほとんど報告されていないのが現状である。

このような背景から、2013 年の分担研究では、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 分析を行った<sup>16)17)</sup>。2014 年から 2015 年は分析対象を 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の分析を行い、一日摂取量の推定を試行した<sup>18)19)20)</sup>。

上記の現況及び研究の進展を踏まえ、本研究では、今後 3 年間をかけ、全国で調製された TD 試料の分析を通じ、デクロラン類の汚染実態を調査するとともに国民平均摂取量を推定することとした。具体的には、2016 年に調製された全国 10 地域分の TD 試料及び特定 1 地域における 4 半期ごとの TD 試料を 3 年計画で分析し、濃度レベルの高い食品群を明らかにすると共に国民平均摂取量を推定する。今年度の研究では、全国 4 地域分の TD 試料を分析しデクロラ

ン類の摂取量を推定した。

## B. 研究方法

### 1. 試料・試薬等

#### 1)-1. 試料

日本人が日常的な食事から摂取するデクロラン類の量を推定するため、2016年に福岡県を含む全国4地域4機関でMB方式により調製されたTD試料を用いた。

#### 1)-2. 標準物質

Dechlorane(ネイティブ体と<sup>13</sup>C-ラベル体)及びDec 602(<sup>13</sup>C-ラベル体)の各標準溶液はCambridge Isotope製を、CP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・混合し分析に用いた(表2)。シリンジスパイクには<sup>13</sup>C<sub>12</sub>-2,2',3,4,4',5,5'-heptabromodiphenylether(<sup>13</sup>C-PBDE180)を使用した。

#### 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、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. 機器及び使用条件

### 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. 高速溶媒抽出装置

高速溶媒抽出(ASE)にはThermoFisher Scientific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、セル圧力：1500psi、加熱時間：7分、静置時間：10分、抽出サイクル数：2、抽出溶媒：ヘキサン

### 2)-3. 実験操作

図2に示す操作フローに従い、デクロラン類の分析を実施した<sup>20)</sup>。分析で使用したガラス器具類は予めアセトン、ヘキサンで洗浄し、ダイオキシンフリーオープンで450、4時間加熱処理した。TD試料(第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(<sup>13</sup>C<sub>10</sub>-Dechlorane、<sup>13</sup>C<sub>10</sub>-Dec 602、<sup>13</sup>C<sub>10</sub>-anti-DP、<sup>13</sup>C<sub>10</sub>-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<sup>21)</sup>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、シリジスパイク(<sup>13</sup>C-PBDE180 を 500 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 1 μL を HRGC/HRMS に注入して測定した。4 群の TD 試料は約 5 g を精秤し、ヘキサンで希釈後、硫酸処理以降は他の食品群と同様な精製を行った。

## C . D . 研究結果及び考察

### 1. デクロラン類の分析における操作ブランク試験結果

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 から各化合物の装置検出下限値を算出した。装置の検出下限値は Dec 602 で 0.05 pg、Dec 603 で 0.06 pg、Dec604 で 0.8 pg、*syn*-DP で 0.2 pg、*anti*-DP で 0.2 pg、CP で 0.03 pg、Dechlorane で 0.03 pg であった。

今年度の操作ブランク試験と、2014 年及び 2015 年における操作ブランク試験の結果を表 4 に示す。今年度の操作ブランク試験では Dec602、*syn*-DP 及び *anti*-DP のみが検出され、それぞれの濃度は 0.035 pg/g、14 pg/g 及び 56 pg/g であった。2014 年及び 2015 年の操作ブランク試験では Dec604 及び CP は検出されなかった。また、これま

で検出されていた Dec603 及び Dechlorane は検出されなかった。DP の濃度は、2014 年では *syn*-DP が 5.3 pg/g 及び *anti*-DP が 29 pg/g であり、他のデクロラン類に比べ高かった。2015 年にガラス器具の溶媒洗浄及び加熱処理等のブランク低減処置を行うことで *syn*-DP が 0.66 pg/g 及び *anti*-DP が 1.9 pg/g に大幅に低下した。今年度の操作ブランク試験で得られた DP の濃度は *syn*-DP で 13 pg/g、*anti*-DP で 56 pg/g であり、これまでで最も高かった。この結果は、TD 試料の分析値に影響を与え、正確な摂取量推定が困難となることから、今年度の研究においては、*syn*-DP 及び *anti*-DP を対象化合物から除外した。

### 2. TD 試料中のデクロラン類の分析

2016 年に 4 地域で調製された TD 試料を分析して得られたデクロラン類(各化合物)の濃度を、地域ごとに表 5-1 ~ 表 5-4 に示す。なお、表 5-1 ~ 表 5-4 における Total(各化合物濃度の単純な和)には *syn*-DP 及び *anti*-DP を含まない。分析した TD 試料のすべてを通じて、各化合物の濃度は以下の範囲であった。Dec602 : 0.050 ~ 39 pg/g、Dec603 : ND ~ 0.94 pg/g、Dec604 : ND ~ 0.22 pg/g、CP : ND ~ 0.83 pg/g、Dechlorane : ND ~ 7.4 pg/g。

2014 年から 2015 年までの過去 2 年間の研究で分析した TD 試料から検出されたデクロラン類の濃度範囲は、Dec602 では 0.49 ~ 79 ng/g、Dec603 では ND ~ 42 pg/g、Dec604 では ND ~ 0.46 pg/g、CP では ND



～ 0.83 pg/g 及び Dechlorane では 0.2 ～ 7.2 pg/g であった。2016 年に調製された TD 試料から検出された Dec602 及び Dec603 の濃度は、過去の結果と比較してより低い範囲に含まれたが、他のデクロラン類の濃度は類似していた。表 5-1～表 5-4 に示すように、Dec602、Dec603 及び Dechlorane は、すべての食品群から高頻度で検出された。これら化合物に対し、Dec604 及び CP が検出される事はまれであった。検出された濃度を比較すると、Dec602、Dechlorane、Dec603、CP、Dec604 の順で高くなる場合が多く、この特徴は 4 地域に共通していた。また、食品群間で濃度を比較すると、脂肪含量の多い 10 群(魚介類)及び 11 群(肉・卵)でのデクロラン類の濃度が高く、生物蓄積性及び生物濃縮性が高いことが示唆された。

### 3. デクロラン類の摂取量推定

2016 年に 4 地域で調製した TD 試料の分析結果と食品消費量から推定されたデクロラン類の摂取量を、地域ごとに表 6-1～表 6-4 に示す。なお、本研究における摂取量推定では、各化合物の分析結果が ND の場合、ND=0 として摂取量を推定した。4 地域、すべての食品群を通じてデクロラン類の各化合物の摂取量は以下の範囲であった。Dec602 : 0.0035 ～ 3.3 ng/man/day、Dec603:0 ～ 0.22 ng/man/day、Dec604:0 ～ 0.018 ng/man/day、CP : 0 ～ 0.070 ng/man/day、Dechlorane : 0 ～ 0.73 ng/man/day。

Dec602、Dec603 及び Dechlorane は、ほとんどすべての食品群から摂取されており、これらのデクロラン類が身近な環境中に存在し、食事を介して日常的に摂取されていることが示された。デクロラン類摂取量への寄与が大きい食品群には、10 群(魚介類)が挙げられる。

食品群ごとのデクロラン類平均摂取量を表 7 に示す。化合物ごとの平均摂取量は、Dec602 で 3.2 ng/man/day、Dec603 で 0.26 ng/man/day、Dec604 で 0.0046 ng/man/day、CP で 0.060 ng/man/day 及び Dechlorane で 0.48 ng/man/day であり、DP を除くこれら化合物ごとの平均摂取量の総和として推定したデクロラン類の平均摂取量は、4.0 ng/man/day であった。

本年度の研究により推定されたデクロラン類の平均摂取量は、我々がこれまでに推定した臭素系難燃剤の摂取量と比較して十分に低かった。ただし、DP の摂取量の寄与が無いことには注意が必要である。推定されたデクロラン類の摂取量に対し、各化合物の摂取量が占める割合は、Dec602 が 80.0 %、Dec603 が 6.4 %、Dec604 が 0.1 %、CP が 1.5 % 及び Dechlorane が 12.0 % であった。

デクロラン類とされる化合物のうち、DP を除く化合物の摂取量推定の国内事例はない。国外に目を向けると、韓国の事例として、Dec602、Dec603、Dechlorane の摂取量がそれぞれ 0.463 ng/man/day、0.0351 ng/man/day、1.0999 ng/man/day と報告されている。本研究で推定された Dec602 及び

Dec603 の摂取量は、韓国の摂取量と比較して高かった<sup>22)</sup>。

DP を含むデクロラン類は使用量、生産量及び輸入量が明らかではなく、食品を汚染する経路も不明確であるが、複数の地域で調製された様々な食品を含む TD 試料からデクロラン類が検出され、食事を介して日常的に摂取されていることが強く示唆された。大気環境調査でもデクロラン類の検出が報告されており、特に都市部で高濃度となる傾向にあることから、デクロラン類の発生源は身の回りにあることが示唆されている<sup>23) 24)</sup>。

今後は、早々に DP の分析が可能になるよう操作ブランクを低減させたのち、計画に沿ってより多くの TD 試料の分析を行う。その結果を用いて、より信頼できるデクロラン類の国民平均摂取量の推定を目指す。

## E. 参考文献

- 1) Betts K.S., A new flame retardant in the air. *Environ. Sci. Technol.* (2006) 40, 1090-1091.
- 2) Feo M. L., Baron E., Eljarrat E., Barcelo D., Dechlorane Plus and related compounds in aquatic and terrestrial biota: a review. *Bioanal. Chem.* (2012) 404, 2525-2737.
- 3) Yu Z., Lu S., Gao S., Wang J., Li H., Zeng X., Dheng G. and Fu J., Levels and isomer profiles of Dechlorane Plus in the surface soils from e-waste recycling areas and industrial areas in South China. *Environ. Pollut.* (2010) 158, 2920-2925.
- 4) Ren N., Sverko E.D., Li Y.F., Zhang Z., Harner T., Wang D., Wan X. and MacCarty B.E., Levels and isomer profiles of Dechlorane Plus in Chinese air. *Environ. Sci. Technol.* (2008) 42, 6476-6480.
- 5) Wang D. G., Yang M., Qi H., Sverko E., Ma W.-L., Li Y.-F., Alae M., Reiner E.J., Shen L., An Asia-specific source of Dechlorane Plus: concentration, isomer profiles, and other related compounds. *Environ. Sci. Technol.* (2010) 44, 6608-6613.
- 6) Canada M., Roy S.K., *Plastics Technology Handbook*, 4<sup>th</sup>, ed., CRC Press: Boca Raton, FL, 2007.
- 7) Shen L., Reiner E.J., MacPherson K.A., Kolic T.M., Helm P.A., Richman L.A., Marvin C.H., Burniston D.A., Hill B., Brindle ID., McCrindle R., Chittim B.G., Dechloranes 602, 603, 604, Dechlorane Plus and Chlordene Plus, a newly detected analogue, in tributary sediments of the Laurentian Great Lakes. *Environ. Sci. Technol.* (2011) 45, 693-699.
- 8) Krackeler J.P., Biddell W.G. Insulated high voltage wire coated with a flame retardant composition U.S. Patent No. 3,900,533, 1976.
- 9) Material Safety Data Sheet: Molykote<sup>®</sup>. AS-810, Dow Corning Corporation: Midland MI, 2009.
- 10) Hoh E., Zhu L. and Hites R.A., Dechlorane Plus, a Chlorinated flame retardant in the Great Lakes. *Environ. Sci. Technol.* (2006) 40, 1184-1189.

- 11) Sverko E., Tomy G.T., Reiner E.J., Li Y.-f., MacCary B.E., Arnot J.A., Law R.J. and Hites R.A., Dechlorane Plus and related compounds in the environment: A review. *Environ. Sci. Technol.* (2011) 45, 5088-5098.
- 12) 先山孝則、中野武 高分解能 GC/MS 法を用いる環境中の塩素系難燃剤 Dechlorane Plus の分析. *分析化学* (2012) 60, 745-754.
- 13) U.S. national Library of Medicine., Toxicology Data Network, <https://toxnet.nlm.nih.gov/> (2017/3/2 Access)
- 14) Kakimoto K., Nagayashi H., Yoshida J., Akutsu Y., Konishi Y., Toriba A., Hayakawa K., Detection of Dechlorane Plus and brominated flame retardants in marketed fish in Japan., *Chemosphere* (2012) 89, 416-419.
- 15) Kakimoto K., Nagayashi H., Takagi S., Akutsu Y., Konishi Y., Kajimura K., Hayakawa K., Toriba A., Inhalation and dietary exposure to Dechlorane Plus and polybrominated diphenyl ethers in Osaka, Japan., *Ecotoxicology and Environmental Safety* (2014) 99, 69-73.
- 16) Hori T., Miyawaki T., Takahashi K., Yasutake D., Yamamoto T., Kajiwara J., Watanabe T., Concentration of Dechlorane Plus in fish samples collected in Kyushu district, western Japan., *Organohalogen Compounds* (2014) 76, 900-903.
- 17) 平成 25 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 八口ゲン系難燃剤の食品汚染度実態調査」研究分担報告書.
- 18) Takahashi K., Yasutake D., Hori T., Kogiso, T., Watanabe T., Investigation of dietary exposure to Dechlorane Plus and related compounds in Kyushu district, Japan. *Organohalogen Compounds* (2016) 78, 1191-1195.
- 19) 平成 26 年度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 食品における有機臭素系化合物の汚染調査」研究分担報告書.
- 20) 平成 27 年度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 食品における有機臭素系化合物の汚染調査」研究分担報告書.
- 21) 岩村幸美、陣矢大助、門上希和夫 スルホキシドカラムクリーンアップを用いた底質及び魚肉試料中ポリ臭素化ジフェニルエーテル類の分析 *環境化学* (2009) 19, 527-535.
- 22) Kim J., Son M.H., Kim J., Suh J., Kang Y., Chang Y.S., Assessment of Dechlorane compounds in foodstuffs obtained from retail markets and estimates of dietary intake in Korean population. *Journal of Hazardous Materials* (2014) 275, 19-25.
- 23) Kakimoto K., Nagayoshi H., Takagi S., Akutsu K., Konishi Y., Kajimura K.,

Hayakawa K. and Toriba A., Dechlorane Plus and decabromodiphenyl ether in atmospheric particles of northeast Asian cities. *Environ. Sci. Technol.* (2010) 44, 760-766.

24) 蓑毛康太郎、野尻喜好、茂木守、大塚宣寿、堀井勇一 埼玉県の大気中 Dechlorane Plus 及び類縁化合物. *環境化学* (2016) 26, 53-59.

dietary exposure to Dechlorane Plus and related compounds in Kyushu district, Japan. 36th International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (2016.8).

2) 安武大輔、小木曾俊孝、堀 就英、高橋浩司、梶原淳睦、渡邊敬浩 食品中のハロゲン系難燃剤の摂取量推定 第 112 回日本食品衛生学会学術講演会 (2016. 10).

## F. 研究発表

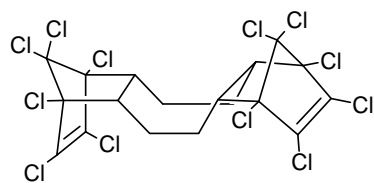
### 1. 論文発表

1) Takahashi K., Yasutake D., Hori T., Kogiso T., Watanabe T., Investigation of dietary exposure to Dechlorane Plus and related compounds in Kyushu district, Japan. *Organohalogen Compounds* (2016) 78, 1191-1195.

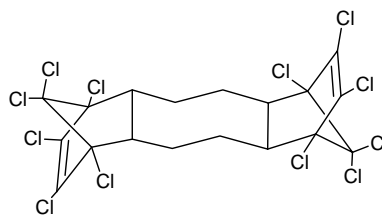
### 2. 学会発表

1) 安武大輔、堀 就英、小木曾俊孝、高橋浩司、梶原淳睦、渡邊敬浩 食品中のデクロランプラス類の摂取量調査 第 25 回環境化学討論会 (2016. 6).

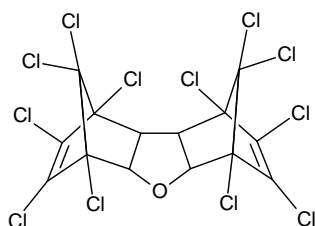
2) Takahashi K., Yasutake D., Hori T., Kogiso T., Kajiwara J., Watanabe T., Investigation of



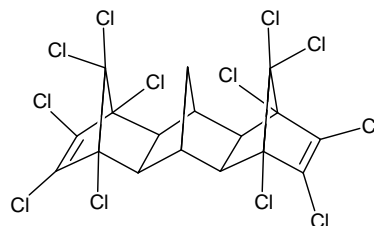
*syn*-Decchlorane Plus



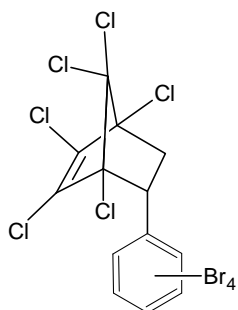
*anti*-Decchlorane Plus



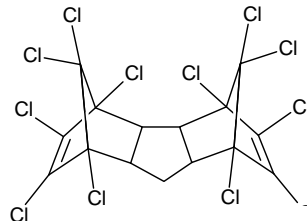
Dechlorane 602



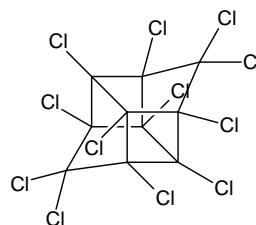
Dechlorane 603



Dechlorane 604



Chlordene Plus



Dechlorane ( Mirex )

図1 デクロラン類の化学構造

表 1 デクロラン類の物理化学的性質

	DP	Dec602	Dec603	Dec604	Dechlorane	TeCDD(参考)
組成式	C <sub>18</sub> H <sub>12</sub> Cl <sub>12</sub>	C <sub>14</sub> H <sub>4</sub> Cl <sub>12</sub> O	C <sub>17</sub> H <sub>8</sub> Cl <sub>12</sub>	C <sub>13</sub> H <sub>4</sub> Br <sub>4</sub> Cl <sub>6</sub>	C <sub>10</sub> Cl <sub>12</sub>	C <sub>12</sub> H <sub>4</sub> Cl <sub>4</sub> O <sub>2</sub>
分子量	653.7	613.6	637.7	692.5	545.55	321.97
融点 ( )	206	325	198	203	485	305
蒸気圧 (Pa)	4.71×10 <sup>-7</sup>	5.53×10 <sup>-7</sup>	1.59×10 <sup>-7</sup>	8.47×10 <sup>-8</sup>	1.07×10 <sup>-4</sup>	2.0×10 <sup>-7</sup>
水溶解度 (ng/L)	2.21	0.04	8.49	0.3	85000	200
Log Pow*	9	7.1	8.5	8.5	6.89	6.8

\* Pow : オクタノール/水分配比

表 2 デクロラン類標準溶液の組成と濃度

	(ng/mL)		
	GC/MS 測定用溶液	クリーンアップス パイク用溶液	シリンジスパイク 用溶液
ネイティブ体			
Dec602	2.5	-	-
Dec 603	2.5	-	-
Dec 604	2.5	-	-
<i>syn</i> -DP	2.5	-	-
<i>anti</i> -DP	2.5	-	-
CP	2.5	-	-
Dechlorane	2.5	-	-
ラベル体			
<sup>13</sup> C <sub>10</sub> -Dec602	2.5	50	-
<sup>13</sup> C <sub>10</sub> - <i>syn</i> -DP	2.5	50	-
<sup>13</sup> C <sub>10</sub> - <i>anti</i> -DP	2.5	50	-
<sup>13</sup> C <sub>10</sub> -Dechlorane	2.5	50	-
<sup>13</sup> C <sub>12</sub> -2,2',3,4,4',5,5'-HeptaBDE	10	-	100

表3 HRGC/HRMS によるデクロラン類の分析条件

GC条件	
GCシステム	Agilent A7890
キャピラリーカラム	DB5 (Agilent, 0.25mm×15m, 0.1 μm)
インジェクションモード	スプリットレス
注入量	1 μL
インジェクター温度	280
キャリアーガス(流量)	ヘリウム (1.0 mL/min)
オープン温度	120 (1min保持) - 30 /min - 240 - 5 /min - 275 - 40 /min - 320 (2.88min保持)
MS条件	
MSシステム	Waters AutoSpec premier
イオン化法	EI
イオン化電圧	38eV
イオン源温度	280
分解能	10000以上
モニターイオン	
Dec 602, DP Dechlorane	271.8102(定量用)、273.8072(確認用)
Dec 603	262.8570(定量用)、264.8540(確認用)
Dec 604	419.7006(定量用)、417.7026(確認用)
<sup>13</sup> C <sub>10</sub> -Dechlorane、 <sup>13</sup> C <sub>10</sub> -Dec602、 <sup>13</sup> C <sub>10</sub> -DP	276.8269
<sup>13</sup> C <sub>12</sub> -2,2',3,4,4',5,5'-HeptaBDE	415.9096(定量用)、413.8116(確認用)

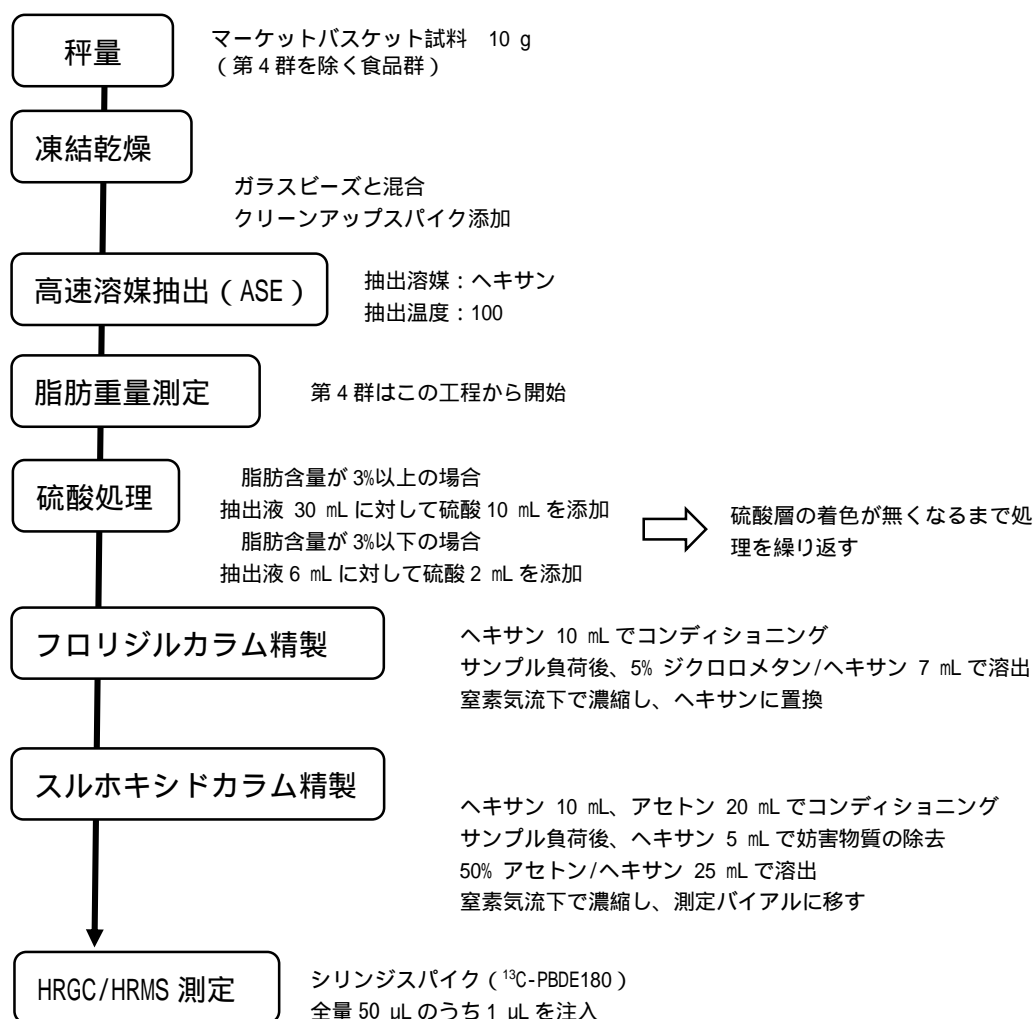


図2 デクロラン類の分析フロー

表4 デクロラン類測定における操作ブランク試験結果

	(pg/g)		
	2014年	2015年	2016年
Dec602	0.5	1.4	0.035
Dec603	7.8	0.82	ND
Dec604	未実施	ND	ND
syn-DP	5.3	0.66	13
anti-DP	29	1.9	56
CP	未実施	ND	ND
Dechlorane	未実施	0.19	ND



表 5-1 A 地域における TD 試料中のデクロラン類の濃度

		( pg/g )					
食品群	Dec602	Dec603	Dec604	CP	Dechlorane	Total	
1群	米及びその加工品	0.74	0.48	ND	ND	0.040	1.3
2群	雑穀・芋	0.20	0.050	ND	ND	0.034	0.29
3群	砂糖・菓子類	0.53	0.26	ND	0.049	0.087	0.92
4群	油脂類	0.44	ND	ND	ND	0.33	0.77
5群	豆・豆加工品	0.19	0.10	ND	ND	0.024	0.32
6群	果実類	0.12	0.063	ND	ND	0.020	0.21
7群	有色野菜	0.21	ND	ND	0.034	0.064	0.31
8群	その他の野菜・海藻	0.12	ND	ND	ND	0.027	0.15
9群	嗜好飲料	0.065	0.048	ND	ND	0.017	0.13
10群	魚介類	27	0.41	ND	0.44	2.4	31
11群	肉・卵	3.8	0.32	ND	0.21	0.41	4.7
12群	乳・乳製品	0.39	0.081	ND	ND	0.047	0.51
13群	調味料	0.12	0.53	ND	ND	0.61	1.3
総和		34	2.4	ND	0.74	4.1	41

表 5-2 B 地域における TD 試料中のデクロラン類の濃度

		( pg/g )					
食品群	Dec602	Dec603	Dec604	CP	Dechlorane	Total	
1群	米及びその加工品	0.18	0.050	ND	ND	0.023	0.25
2群	雑穀・芋	0.71	0.038	ND	ND	0.0069	0.75
3群	砂糖・菓子類	0.33	0.12	ND	ND	0.068	0.52
4群	油脂類	0.55	0.72	ND	ND	ND	1.3
5群	豆・豆加工品	0.45	0.10	ND	ND	0.027	0.58
6群	果実類	19	0.038	ND	ND	0.023	19
7群	有色野菜	0.19	0.053	ND	ND	7.4	7.7
8群	その他の野菜・海藻	0.20	ND	ND	ND	0.040	0.24
9群	嗜好飲料	0.068	ND	ND	ND	ND	0.068
10群	魚介類	13	0.17	ND	ND	0.90	14
11群	肉・卵	1.1	0.11	ND	ND	0.28	1.5
12群	乳・乳製品	0.39	0.077	ND	ND	0.21	0.68
13群	調味料	0.13	ND	ND	ND	0.011	0.14
総和		36	1.5	ND	ND	9.0	47

表 5-3 C 地域における TD 試料中のデクロラン類の濃度

		( pg/g )					
食品群	Dec602	Dec603	Dec604	CP	Dechlorane	Total	
1群	米及びその加工品	0.11	ND	ND	ND	0.023	0.14
2群	雑穀・芋	0.16	0.061	ND	ND	0.033	0.25
3群	砂糖・菓子類	0.47	0.036	ND	ND	0.041	0.54
4群	油脂類	0.41	ND	ND	ND	0.27	0.68
5群	豆・豆加工品	0.69	0.042	ND	ND	0.013	0.74
6群	果実類	0.11	ND	ND	ND	0.031	0.14
7群	有色野菜	0.52	0.058	ND	0.058	0.032	0.67
8群	その他の野菜・海藻	0.16	ND	ND	ND	0.022	0.18
9群	嗜好飲料	0.17	0.052	ND	ND	0.014	0.24
10群	魚介類	21	0.44	ND	0.56	2.2	24
11群	肉・卵	1.7	0.57	ND	0.20	0.22	2.7
12群	乳・乳製品	0.40	0.11	ND	ND	0.086	0.60
13群	調味料	0.35	0.11	ND	ND	0.10	0.56
	総和	26	1.5	ND	0.82	3.1	31

表 5-4 D 地域における TD 試料中のデクロラン類の濃度

		( pg/g )					
食品群	Dec602	Dec603	Dec604	CP	Dechlorane	Total	
1群	米及びその加工品	0.094	0.050	ND	ND	0.0085	0.15
2群	雑穀・芋	0.15	0.25	ND	ND	ND	0.41
3群	砂糖・菓子類	0.36	0.15	ND	ND	0.095	0.61
4群	油脂類	0.55	ND	ND	ND	0.20	0.75
5群	豆・豆加工品	0.088	0.15	ND	ND	0.079	0.31
6群	果実類	0.16	ND	ND	ND	ND	0.16
7群	有色野菜	0.12	ND	ND	0.089	0.038	0.25
8群	その他の野菜・海藻	0.12	ND	ND	ND	0.043	0.16
9群	嗜好飲料	0.054	ND	ND	ND	0.026	0.080
10群	魚介類	39	0.94	ND	0.83	3.5	44
11群	肉・卵	1.7	0.91	0.22	0.15	0.31	3.3
12群	乳・乳製品	0.45	0.16	ND	ND	0.15	0.76
13群	調味料	0.050	0.18	ND	ND	0.074	0.30
	総和	43	2.8	0.22	1.1	4.5	51

表 6-1 A 地域におけるデクロラン類の食品群別摂取量

		( ng/man/day )					
食品群	Dec602	Dec603	Dec604	CP	Dechlorane	Total	
1群 米及びその加工品	0.33	0.22	0	0	0.018	0.56	
2群 雑穀・芋	0.038	0.0095	0	0	0.0063	0.054	
3群 砂糖・菓子類	0.019	0.0092	0	0.0017	0.0031	0.032	
4群 油脂類	0.0042	0	0	0	0.0031	0.0073	
5群 豆・豆加工品	0.013	0.0067	0	0	0.0016	0.021	
6群 果実類	0.012	0.0061	0	0	0.0019	0.020	
7群 有色野菜	0.017	0	0	0.0028	0.0053	0.025	
8群 その他の野菜・海藻	0.023	0	0	0	0.0050	0.028	
9群 嗜好飲料	0.044	0.033	0	0	0.012	0.088	
10群 魚介類	1.8	0.027	0	0.029	0.16	2.0	
11群 肉・卵	0.39	0.034	0	0.022	0.042	0.49	
12群 乳・乳製品	0.044	0.0092	0	0	0.0053	0.058	
13群 調味料	0.011	0.047	0	0	0.054	0.11	
Total	2.7	0.40	0	0.056	0.31	3.5	

表 6-2 B 地域におけるデクロラン類の食品群別摂取量

		( ng/man/day )					
食品群	Dec602	Dec603	Dec604	CP	Dechlorane	Total	
1群 米及びその加工品	0.11	0.030	0	0	0.013	0.15	
2群 雑穀・芋	0.22	0.011	0	0	0.0021	0.23	
3群 砂糖・菓子類	0.016	0.0055	0	0	0.0032	0.025	
4群 油脂類	0.0056	0.0074	0	0	0	0.013	
5群 豆・豆加工品	0.032	0.0075	0	0	0.0019	0.042	
6群 果実類	1.8	0.0035	0	0	0.0021	1.8	
7群 有色野菜	0.019	0.0052	0	0	0.73	0.75	
8群 その他の野菜・海藻	0.032	0	0	0	0.0066	0.039	
9群 嗜好飲料	0.041	0	0	0	0	0.041	
10群 魚介類	1.0	0.014	0	0	0.074	1.1	
11群 肉・卵	0.17	0.016	0	0	0.042	0.22	
12群 乳・乳製品	0.050	0.010	0	0	0.026	0.085	
13群 調味料	0.010	0	0	0	0.00088	0.011	
Total	3.5	0.11	0	0	0.90	4.6	

表 6-3 C 地域におけるデクロラン類の食品群別摂取量

		( ng/man/day )					
食品群	Dec602	Dec603	Dec604	CP	Dechlorane	Total	
1群 米及びその加工品	0.063	0	0	0	0.013	0.076	
2群 雑穀・芋	0.042	0.016	0	0	0.0089	0.067	
3群 砂糖・菓子類	0.022	0.0017	0	0	0.0019	0.026	
4群 油脂類	0.0035	0	0	0	0.0023	0.0058	
5群 豆・豆加工品	0.043	0.0026	0	0	0.00080	0.047	
6群 果実類	0.014	0	0	0	0.0039	0	
7群 有色野菜	0.054	0.0060	0	0.0060	0.0034	0.069	
8群 その他の野菜・海藻	0.036	0	0	0	0.0049	0.040	
9群 嗜好飲料	0.12	0.037	0	0	0.010	0.17	
10群 魚介類	2.3	0.048	0	0.062	0.24	2.6	
11群 肉・卵	0.22	0.074	0	0.026	0.029	0.35	
12群 乳・乳製品	0.043	0.012	0	0	0.0093	0.065	
13群 調味料	0.028	0.0087	0	0	0.0082	0.045	
Total	3.0	0.21	0	0.094	0.34	3.6	

表 6-4 D 地域におけるデクロラン類の食品群別摂取量

		( ng/man/day )					
食品群	Dec602	Dec603	Dec604	CP	Dechlorane	Total	
1群 米及びその加工品	0.043	0.023	0	0	0.0039	0.070	
2群 雑穀・芋	0.055	0.090	0	0	0	0.15	
3群 砂糖・菓子類	0.018	0.0074	0	0	0.0047	0.030	
4群 油脂類	0.0054	0	0	0	0.0020	0.0074	
5群 豆・豆加工品	0.0055	0.0092	0	0	0.0049	0.020	
6群 果実類	0.017	0	0	0	0	0	
7群 有色野菜	0.010	0	0	0.0076	0.0032	0.021	
8群 その他の野菜・海藻	0.020	0	0	0	0.0074	0.028	
9群 嗜好飲料	0.035	0	0	0	0.017	0.051	
10群 魚介類	3.3	0.079	0	0.070	0.29	3.7	
11群 肉・卵	0.14	0.075	0.018	0.013	0.025	0.28	
12群 乳・乳製品	0.054	0.019	0	0	0.018	0.091	
13群 調味料	0.0047	0.017	0	0	0.0070	0.028	
Total	3.7	0.32	0.018	0.090	0.38	4.5	

表7 デクロラン類の食品群別平均摂取量

		( ng/man/day )					
食品群	Dec602	Dec603	Dec604	CP	Dechlorane	Total	
1群 米及びその加工品	0.14	0.067	0	0	0.012	0.21	
2群 雑穀・芋	0.088	0.032	0	0	0.0043	0.12	
3群 砂糖・菓子類	0.019	0.0060	0	0.00043	0.0032	0.028	
4群 油脂類	0.0047	0.0018	0	0	0.0019	0.0084	
5群 豆・豆加工品	0.023	0.0065	0	0	0.0023	0.032	
6群 果実類	0.46	0.0024	0	0	0.0020	0.47	
7群 有色野菜	0.025	0.0028	0	0.0041	0.18	0.22	
8群 その他の野菜・海藻	0.028	0	0	0	0.0060	0.034	
9群 嗜好飲料	0.061	0.018	0	0	0.0095	0.088	
10群 魚介類	2.1	0.042	0	0.040	0.19	2.4	
11群 肉・卵	0.23	0.050	0.0046	0.015	0.034	0.33	
12群 乳・乳製品	0.048	0.013	0	0	0.015	0.075	
13群 調味料	0.013	0.018	0	0	0.018	0.049	
総和	3.2	0.26	0.0046	0.060	0.48	4.0	