

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

分担研究報告書

食品の塩素化ダイオキシン類、PCB 等の摂取量推定及び汚染実態の把握に関する研究

2. トータルダイエツト試料の分析による PCBs 摂取量推定

研究代表者 穂山 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

研究要旨

マーケットバスケット方式によるトータルダイエツト(TD)試料を用いて、ポリ塩化ビフェニル(PCBs)の国民平均一日摂取量を推定した。国民健康・栄養調査による地域別の平均食品摂取量に基づいて食品を購入し、TD試料を全国10地域で調製した。過去の研究からPCBs摂取量に占める割合の高い食品群である10群(魚介類)と11群(肉類、卵類)について試料を調製し、PCBs異性体分析を実施した。その結果、総PCBsの全国平均摂取量は、250 ng/person/dayと推定された。体重(50 kgと仮定)あたりでは5.0 ng/kg bw/dayと推定され、この値は日本の暫定耐容一日摂取量(TDI)の0.1%であった。また、推定された摂取量は、より厳しいWHOの国際簡潔評価文書のTDIと比較しても低い値であったが、TDIの25%程度となった。さらに、リスク評価の為の情報不足している非ダイオキシン様PCBs(NDL-PCBs)の摂取量についても推定した。NDL-PCBsの全国平均摂取量は229 ng/person/day、NDL-PCBsの指標異性体として用いられる6異性体の全国平均摂取量は80 ng/person/dayと推定された。

研究協力者

国立医薬品食品衛生研究所

高附 巧、今村正隆、前田朋美

北海道立衛生研究所

平間祐志、青柳直樹

新潟県保健環境科学研究所

吉崎麻友子、細貝恵深

横浜市衛生研究所

石井敬子

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

南 真紀

香川県環境保健研究センター

安永 恵、豊田みちる

沖縄県衛生環境研究所

高嶺朝典、仲眞弘樹、古謝あゆ子、大城聡子、佐久川さつき

福岡県保健環境研究所

佐藤 環、安武大輔、堀 就英

A. 研究目的

我が国では、通知「食品中に残留する PCB の規制について」¹⁾の中で、ポリ塩化ビフェニル(PCBs)の耐容一日摂取量(TDI)が暫定値とし

て示されている。トータルダイエット(TD)試料を用いたPCBsの摂取量調査は、1977年から毎年実施されており、国民のPCBs摂取量とその経年推移に関する知見が得られている。最新の国民平均のPCBs摂取量を推定するため、本年度も昨年度に引き続き、全国10地域において日本人の平均的な食品摂取に基づいたTD試料を調製し、試料中のPCBsを分析し、一日摂取量を推定した。TD試料の調製には、地方自治体所管の衛生研究所等にご協力を頂いた。

またPCBsはその毒性学的性質からダイオキシン様PCBs(Co-PCBsとも呼ばれる)と非ダイオキシン様PCBs(NDL-PCBs)の二つに分類される。そのため、欧州では、Co-PCBsとNDL-PCBsに分けてリスク管理を行っている。Co-PCBsの12異性体についてはポリ塩化ジベンゾ-*p*-ジオキシン/ポリ塩化ジベンゾフラン(PCDD/PCDFs)と共にダイオキシン類に分類されることが一般であり、我が国でもCo-PCBsを含めてダイオキシン類のTDIが定まっている。一方、NDL-PCBsのTDIは定まっておらず、JECFA等でリスク評価のための情報を収集することが推奨されている。本分担研究ではリスク評価に資する情報を提供するため、平成28年度よりNDL-PCBsの摂取量についても推定している。また、NDL-PCBsの指標異性体として欧州等で使用されている6種のPCBs(PCB 28, 52, 101, 138, 153, 180)(以下、6PCBs)の合計値についてもあわせて摂取量を推定した。

B. 研究方法

1. TD 試料

国民平均のPCBs摂取量を推定するためのTD試料は、全国10地域の衛生研究所等で調製した。厚生労働省が実施した平成23年～平成25年の国民健康・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。各地の小売店から食品を購入し、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、食品群ごとに混合均一化したものを試料とした。過去の研究からPCBs摂取量に占める割合の高い食品群は、10群(魚介類)と11群(肉類、卵類)であることが判明しているため、これら二つの食品群を分析対象とした。

2. PCBs 分析

2-1. 試薬

クリーンアップスパイク標準溶液は、(株)ウェリントンラボラトリージャパンよりTPCB-LCS-A500を購入した。シリンジスパイク標準溶液は、(株)ウェリントンラボラトリージャパンよりTPCB-IS-A-STKを購入した。検量線用PCBs標準溶液は、(株)ウェリントンラボラトリージャパンよりTPCB-CVS-Aを購入した。209異性体確認用標準溶液は、M-1668A-1-0.01X、M-1668A-2-0.01X、M-1668A-3-0.01X、M-1668A-4-0.01X、M-1668A-5-0.01X(和光純薬工業株式会社)を等容量混合したものを使用した。

アセトン(ダイオキシン類分析用)、エタノール(ダイオキシン類分析用)、ジクロロメタン(ダイオキシン類分析用)、水酸化カリウム(特級)、ヘキサン(ダイオキシン類分析用)、ヘキサン洗浄水(残留農薬試験用)、無水硫酸ナトリウム(PCB分析用)、アルミナは関東化学(株)より購入した。ノナン(ダイオキシン類分析用)、塩化ナトリウム(特級)は和光純薬(株)より購入した。

多層シリカゲルカラム(内径15mm、長さ9.5cmのカラムに無水硫酸ナトリウム2g、シリカゲル0.9g、44%硫酸シリカゲル3.0g、シリカゲル0.9g、及び無水硫酸ナトリウム2g順次充填)は、ジーエルサイエンス(株)より購入した。アルミナカラムは、内径15mm、長さ30cmのカラムに無水硫酸ナトリウム2g、アルミナ15g、無水硫酸ナトリウム2gを順次充填し作製した。

GCキャピラリーカラムは、関東化学(株)社製のHT8-PCBを使用した。

2-2. 機器

GC: 7890B GC System (Agilent Technologies)
MS: MStation JMS-800D UltraFOUCUS (日本電子(株)社製)

2-3. 試験溶液の調製

均一化した試料 20 g をビーカーに量りとり、クリーンアップスパイク 40 μ L を加えた後、1 mol/L 水酸化カリウムエタノール溶液を 100 mL 加え室温で 16 時間、スターラーで攪拌した。このアルカリ分解液を分液ロートに移した後、水 100 mL、ヘキサン 100 mL を加え 10 分間振とう抽出した。静置後、ヘキサン層を分取し、水層にヘキサン 70 mL を加え同様の操作を 2 回行った。ヘキサン抽出液を合わせ、2%塩化ナトリウム溶液 100 mL を加えて緩やかに揺り動かし、静置後、水層を除き同様の操作を繰り返した。ヘキサン層の入った分液漏斗に濃硫酸を適量加え、緩やかに振とうし、静置後、硫酸層を除去した。この操作を硫酸層の着色が薄くなるまで繰り返した。ヘキサン層をヘキサン洗浄水 10 mL で 2 回洗浄し、無水硫酸ナトリウムで脱水後、溶媒を留去し約 2 mL のヘキサンに溶解した。多層シリカゲルをヘキサン 100 mL で洗浄した後、試験溶液を注入し、ヘキサン 50 mL で溶出した。溶出液は溶媒を留去し、約 2 mL のヘキサンに溶解した。ヘキサンで湿式充填したアルミナカラムに試験溶液を注入し、ヘキサン 100 mL で洗浄後、20%(v/v)ジクロロメタン含有ヘキサン 100 mL で溶出した。溶媒を留去し、シリンジスパイク 100 μ L を加え、GC/MS 試験溶液とした。

2-4. 高分解能 GC/MS 測定条件

カラム : HT8-PCB (関東化学(株)社製) 内径 0.25 mm \times 60 m
注入方式 : スプリットレス
注入口温度 : 280 $^{\circ}$ C
注入量 : 2.0 μ L
昇温条件 : 100 $^{\circ}$ C (1 分保持)-20 $^{\circ}$ C/分-180 $^{\circ}$ C-2 $^{\circ}$ C/分-260 $^{\circ}$ C-5 $^{\circ}$ C/分-300 $^{\circ}$ C (22 分保持)

キャリアーガス : ヘリウム (流速 : 1.0 mL/分)

MS 導入部温度 : 300 $^{\circ}$ C

イオン源温度 : 300 $^{\circ}$ C

イオン化法 : EI ポジティブ

イオン化電圧 : 38 eV

イオン化電流 : 600 μ A

加速電圧 : \sim 10.0 kV

分解能 : 10,000 以上

モニターイオン :

一塩素化ビフェニル モノクロロビフェニル (MoCBs)

定量イオン:m/z 188.0393, 確認イオン:m/z 190.0364

二塩素化ビフェニルジクロロビフェニル (DiCBs)

定量イオン:m/z 222.0003, 確認イオン:m/z 223.9974

三塩素化ビフェニルトリクロロビフェニル (TrCBs)

定量イオン:m/z 255.9613, 確認イオン:m/z 257.9587

四塩素化ビフェニル テトラクロロビフェニル (TeCBs)

定量イオン:m/z 289.9224, 確認イオン:m/z 291.9195

五塩素化ビフェニルペンタクロロビフェニル (PeCBs)

定量イオン:m/z 323.8834, 確認イオン:m/z 325.8805

六塩素化ビフェニルヘキサクロロビフェニル (HxCBs)

定量イオン:m/z 359.8415, 確認イオン:m/z 361.8386

七塩素化ビフェニルヘプタクロロビフェニル (HpCBs)

定量イオン:m/z 393.8025, 確認イオン:m/z 395.7996

八塩素化ビフェニルオクタクロロビフェニル (OcCBs)

定量イオン:m/z 427.7636, 確認イオン:m/z 429.7606

九塩素化ビフェニルノナクロロビフェニル (NoCBs)

定量イオン:m/z 461.7246, 確認イオン:m/z 463.7216

十塩素化ビフェニルデカクロロビフェニル (DeCB)

定量イオン:m/z 497.6826, 確認イオン:m/z 499.6797

¹³C₁₂標識 MoCB

定量イオン:m/z 200.0795, 確認イオン:m/z 202.0766

¹³C₁₂標識 DiCBs

定量イオン:m/z 234.0406, 確認イオン:m/z 236.0376

¹³C₁₂標識 TrCBs

定量イオン:m/z 268.0016, 確認イオン:m/z 269.9986

¹³C₁₂標識 TeCBs

定量イオン:m/z 301.9626, 確認イオン:m/z 303.9597

¹³C₁₂標識 PeCBs

定量イオン:m/z 335.9237, 確認イオン:m/z 337.9207

¹³C₁₂標識 HxCBs

定量イオン:m/z 371.8817, 確認イオン:m/z 373.8788

¹³C₁₂標識 HpCBs

定量イオン:m/z 405.8428, 確認イオン:m/z 407.8398

¹³C₁₂標識 OcCBs

定量イオン:m/z 439.8038, 確認イオン:m/z 441.8008

¹³C₁₂標識 NoCBs

定量イオン:m/z 473.7648, 確認イオン:m/z 475.7619

¹³C₁₂標識 DeCB

定量イオン:m/z 509.7229, 確認イオン:m/z 511.7199

2-5. 検量線の作成

相対感度係数法により検量線を作成した。検量線作成用標準液（6点）に対して3回測定を実施し、計18点の測定データを得た。各測定データについて、各分析対象物質とそれに対応するクリーンアップスパイクとの相対感度係数（RRF）、及びクリーンアップスパイクとそれに対応するシリンジスパイクの相対感度係数（RRF_{ss}）を算出した。検量線作成用標準液に含まれる分析対象物質の内、同一の化学構造のクリーンアップスパイクがない分析対象物質については、同一塩素数に含まれるクリーンアップスパイクの平均の面積値を使用してRRFを算出した。検量線作成時の測定データにおけるRRF及びRRF_{ss}の変動係数は15%以内を目標とした。

2-6. 検出下限値及び定量下限値

最低濃度の検量線作成用標準液を5倍に希釈した標準溶液をGC/MSにより分析し、S/N=3に相当する濃度を検出下限値（LOD）、S/N=10に相当する濃度を定量下限値（LOQ）として求めた。標準溶液に含まれていないPCBs異性体については、同一塩素数に含まれるPCBs異性体の平均のS/Nを使用してLOD及びLOQを求めた。また、操作ブランク試験を5回行い、ブランクが認められる分析対象物については、ブランクの標準偏差の3倍をLOD、10倍をLOQとして求めた。S/Nから算出した値と比較し、大きい方をLOD、又はLOQとした。本分析法の各PCBs異性体のLODとLOQを表1に示した。

2-7. 試験溶液の測定

試験溶液の測定開始時には3濃度の検量線作成用標準液を測定して、RRF及びRRF_{ss}を求めた。これらの値が、検量線作成時のRRF及びRRF_{ss}と比較し、±15%以内であることを確認した。検量線作成時のRRF及びRRF_{ss}を用いて、試験溶液に含まれる各PCBsを定量した。試験

溶液より得られた分析対象物質のシグナルが検量線作成用標準液の範囲外となった場合は、外挿により定量値を算出した。操作ブランク値が認められたPCBs異性体は、操作ブランク値を差し引いた。なお、検量線作成用標準液に含まれないPCBs異性体の溶出位置は、209全異性体を含むPCBs標準溶液を使用して決定した。

2-8. 分析対象としたPCBs異性体

総PCBsは、全PCBs異性体（209異性体）の合計値とした。

NDL-PCBsはCo-PCBsである12異性体以外のPCBs異性体の合計値とした。なお、Co-PCBsに分類されるPCB105は、NDL-PCBsであるPCB127とGCカラムでのピークの分離が不十分であった。しかし、PCB127はカネクロール中での存在量が極めて微量であるため、実質上はゼロとみなせると考えられたため、本研究ではPCB105のピークとして取り扱った。

6PCBsはPCB28, 52, 101, 138, 153, 180の合計値とした。なお、PCB52はPCB69とGCカラムでのピークの分離が不十分であった。PCB69はカネクロール中での存在量が極めて微量であるため、実質上はゼロとみなせると考えられたため、本研究ではPCB52のピークとして取り扱った。

2-9. PCBs摂取量の推定

TD試料における分析対象物の濃度に、各食品群の食品摂取量を乗じてPCBs摂取量を推定した。TD試料においてLOD未満の異性体濃度はゼロ（ND=0）として計算した。平成25年度より高分解能GC/MSによるPCBs分析を実施することで、LODを十分に低く設定できているため、仮にLOD未満の濃度で極微量に含まれるPCBs異性体が存在していても、推定される摂取量に与える影響はごく僅かである。平成25年度の報告では、NDとなった異性体にLODの1/2の異性体濃度をあてはめてPCBs摂取量を推定したが、ND=0として計算したPCBs摂取量と僅

か数%程度の差しかなかった²⁾。

C. 研究結果及び考察

1) PCBs 摂取量の推定

全 10 地域で調製した 10 群及び 11 群の分析結果から推定した PCBs 摂取量を表 2 及び表 3 に示した。表には各地域における同族体ごとの PCBs 摂取量と、それらの合計となる総 PCBs 摂取量を示した。10 群からの総 PCBs 摂取量は 160～313 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 233 ng/person/day であった。また、11 群からの総 PCBs 摂取量は 5.5～41 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 16 ng/person/day であった。昨年度の 10 群からの総 PCBs 摂取量は 148～551 ng/person/day、11 群からの総 PCBs 摂取量は 6.9～29 ng/person/day の範囲であったことから³⁾、今年度は 10 群からの総 PCBs 摂取量の最大値が大きく低下していた。

また、10 群と 11 群からの総 PCBs 摂取量について、同族体毎の割合を図 1 と図 2 に示した。10 群については、TD 試料を作製した地域によらず同族体の割合はよく似ていた。4 塩素～7 塩素の PCBs が主要であり、これらの合計で全体の 88% 以上を占めていた。カネクロール(KC)の中でも、KC-400、KC-500、KC-600 の同族体割合は 4 塩素～7 塩素化 PCBs が主体であり、10 群の同族体割合はこれらの混合物の同族体割合とよく似ていた。一方、11 群については 10 群と比較すると、概して低塩素 PCBs (1 塩素～3 塩素) の割合が高かった。また、TD 試料によっても同族体の割合が大きく異なる場合が認められ、特に F の地域の TD 試料では低塩素 PCBs の割合が 30% 程度に達した。低塩素 PCBs は KC300 や排ガスなどで割合が高い PCBs であり、これらの PCBs 汚染への関与が疑われた。

10 群と 11 群からの PCBs 摂取量の合計値を表 4 に示した。総 PCBs 摂取量は 169～349 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値

は 250 ng/person/day であった。昨年度の総 PCBs 摂取量の全国平均値は 364 ng/person/day であり³⁾、今年度の総 PCBs 摂取量は昨年度と比較すると 3 割程度低い値であった。現在、日本では PCBs に暫定 TDI (5 µg/kg bw/day) が示されている。本研究で推定された総 PCBs 摂取量の全国平均値は 250 ng/person/day であり、体重 (50 kg と仮定) あたりでは 5.0 ng/kg bw/day であった。この値は暫定 TDI の僅か 0.1% であった。一見すると総 PCBs の摂取量は十分に小さいと考えられるが、暫定 TDI は 1972 年に示されたものであり、その導出の根拠となった長期毒性研究は非常に古い時代のものである。より新しい毒性の知見を踏まえた TDI と比較することも必要と考えられる。2003 年に WHO で PCBs に関する国際簡潔評価文書 No.55 (CICAD: Concise International Chemical Assessment Document)⁴⁾ が作成された。この中で PCBs の混合物について TDI として 0.02 µg/kg bw/day が提案されている。この TDI と比較すると総 PCBs 摂取量の全国平均値は 25% に相当した。この値はカドミウムなどの有害元素の摂取量の TDI に対する割合⁵⁾ に近い。ただし、本評価文書の TDI の導出の根拠になった毒性研究では、人の健康への重要性が明確になっていない免疫毒性学的影響が毒性の指標となっている。また、PCBs に感受性の高いアカゲザルを使用していることもあり、過度の安全を見込んだ TDI となっている可能性に注意が必要である。

本年度までの総 PCBs 摂取量の平均値の経年推移を、図 3 に示した。平成 29 (2017) 年度までの調査結果は、平成 29 年度厚生労働科学研究補助金研究報告書「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」³⁾ から引用した。総 PCBs 摂取量は 1990 年頃までは急激に減少しているが、それ以降の減少傾向は鈍化している。行政指導により 1972 年に PCBs 製品の製造・使用が中止となり、1973 年には PCBs は化審法により特定化学物質 (現在の第一種特定化学物質) に指定され

た。1990年頃までの急激な摂取量の低下はこれらの行政施策の効果が反映されているものと考えられる。本年度の総 PCBs 摂取量は調査開始以来、最も少ない摂取量を示した。調査開始時と比較すると、本年度の総 PCBs 摂取量は 1/13 程度であった。平成 28 年以降の総 PCBs 摂取量は暫定 TDI の 0.15%以下を推移している。

2) NDL-PCBs 摂取量の推定

各地域の TD 試料の分析結果より推定した NDL-PCBs 摂取量を表 5 に示した。また、NDL-PCBs 摂取量の指標異性体として使用されている 6 PCBs の摂取量についてもあわせて表 5 に示した。10 群からの NDL-PCBs 摂取量は 147～289 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 214 ng/person/day であった。11 群からの NDL-PCBs 摂取量は 5.1～39 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 15 ng/person/day であった。また、10 群と 11 群からの摂取量を合計した NDL-PCBs 摂取量は、155～323 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 229 ng/person/day であった。10 群と 11 群からの総 PCBs 摂取量の全国平均値は 250 ng/person/day であることから、NDL-PCBs は総 PCBs 摂取量の約 92%を占めていた。

NDL-PCBs の指標異性体として用いられる 6PCBs の 10 群からの摂取量は 49～103 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 74 ng/person/day であった。11 群からの摂取量は 1.7～11 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 5.3 ng/person/day であった。また、10 群と 11 群からの摂取量を合計した 6PCBs 摂取量は、55～109 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 80 ng/person/day であった。

EFSA では、ヨーロッパにおける食品のモニタリング調査結果をもとに、6PCBs は NDL-PCBs の約 50%を占めると報告している。しかし、本研究結果では、6PCBs の検出率が 100%であるにも

かかわらず、その割合は 10 群で 30～38%、11 群で 24～46%であり、一昨年度及び昨年度の調査結果と同様に 50%を下回っていた。指標異性体の NDL-PCBs に対する割合については汚染源となる PCBs 製品における PCBs 組成の違いや、代謝の影響などが影響すると考えられるため、引き続き検証が必要と考えられる。

3) 諸外国の PCBs 摂取量との比較

日本と主な諸外国の食品からの PCBs 摂取量を表 6 に示した。日本の調査結果については、本研究事業で実施した平成 28 年度～平成 30 年度の総 PCBs 摂取量の調査結果を示した。日本の総 PCBs 摂取量は、250～364 ng/person/day であり、体重あたりでは 5.0～7.3 ng/kg bw/day であった。これらの摂取量は主な諸外国で報告されている PCBs 摂取量の範囲内であり、特に高いことはなかった。

また、表 7 には NDL-PCBs の指標異性体として用いられる 6PCBs の摂取量について、日本と主な諸外国の調査結果を示した。日本の調査結果については、本研究事業で実施した平成 28 年度～平成 30 年度の 6PCBs 摂取量の調査結果を示した。日本の 6PCBs 摂取量は体重あたりでは、1.6～2.4 ng/kg bw/day であった。これらの摂取量は諸外国で報告されている 6PCBs 摂取量よりも低い値であった。

D. 結論

全国 10 地区で調製した TD 試料(10 群及び 11 群)による PCBs の摂取量調査を実施した結果、総 PCBs 一日摂取量の全国平均値は 250 ng/person/day と推定された。体重あたりでは 5.0 ng/kg bw/day と推定され、この値は日本の暫定 TDI の僅か 0.1%であった。また、推定された摂取量はより厳しい WHO の国際簡潔評価文書の TDI と比較しても低い値であったが、TDI の 25%程度となった。NDL-PCBs の一日摂取量の全国平均値は 229 ng/person/day と推定され、

その指標異性体である 6PCBs 摂取量の全国平均値は 80 ng/person/day と推定された。

E. 参考文献

- 1) 厚生省環境衛生局長通知“食品中に残留する PCB の規制について”昭和 47 年 8 月 24 日,環食第 442 号(1972)
- 2) 平成 25 年度厚生労働科学研究補助金研究報告書「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」分担研究報告書(各種有害物質の適時及び継続的な摂取量推定研究)
- 3) 平成 29 年度厚生労働科学研究補助金研究報告書「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」分担研究報告書(食品の塩素化ダイオキシン類、PCB 等の摂取量推定及び汚染実態の把握に関する研究)
- 4) WHO, 2003. Concise International Chemical Assessment Document 55. Polychlorinated biphenyls: human health aspects.
- 5) 平成 29 年度厚生労働科学研究補助金研究報告書「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」分担研究報告書(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)
- 6) 平成 28 年度厚生労働科学研究補助金研究報告書「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」分担研究報告書(食品の塩素化ダイオキシン類、PCB 等の摂取量推定及び汚染実態の把握に関する研究)
- 7) Voorspoels S, Covaci A, Neels H. : Dietary PCB intake in Belgium, *Environ. Toxicol. Pharmacol.* 25, 179-182 (2008)
- 8) Schecter A, Colacino J, Haffner D, Patel K, Opel M, Pöpke O, Birnbaum L. : Perfluorinated compounds, polychlorinated biphenyls, and organochlorine pesticide contamination in composite food samples from Dallas, Texas, USA, *Environ. Health Perspect.* 118, 796-802 (2010)
- 9) Fromberg A, Granby K, Højgård A, Fagt S, Larsen JC. : Estimation of dietary intake of PCB and organochlorine pesticides for children and adults, *Food Chem.* 125, 1179-1187 (2011)
- 10) Törnkvist A, Glynn A, Aune M, Darnerud PO, Ankarberg EH. : PCDD/F, PCB, PBDE, HBCD and chlorinated pesticides in a Swedish market basket from 2005—levels and dietary intake estimations, *Chemosphere.* 83, 193-199 (2011)
- 11) Shin ES, Nguyen KH, Kim J, Kim CI, Chang, YS. : Progressive risk assessment of polychlorinated biphenyls through a Total Diet Study in the Korean population, *Environ. Pollut.* 207, 403-412 (2015)
- 12) Fattore E, Fanelli R, Dellatte E, Turrini A, di Domenico A. : Assessment of the dietary exposure to non-dioxin-like PCBs of the Italian general population, *Chemosphere.* 73, S278-S283 (2008)
- 13) Sirot V, Tard A, Venisseau A, Brosseau A, Marchand P, Le Bizec B, Leblanc JC. : Dietary exposure to polychlorinated dibenzo-p-dioxins, polychlorinated dibenzofurans and polychlorinated biphenyls of the French population: Results of the second French Total Diet Study, *Chemosphere.* 88, 492-500 (2012)
- 14) Cimenci O, Vandevijvere S, Gosciny S, Van Den Bergh MA, Hanot V, Vinkx C, Bolle F, Van Loco J. : Dietary exposure of the Belgian adult population to non-dioxin-like PCBs, *Food Chem. Toxicol.* 59, 670-679 (2013)

- 15) Mihats D, Moche W, Prean M, Rauscher-Gabernig E. : Dietary exposure to non-dioxin-like PCBs of different population groups in Austria, Chemosphere. 126, 53-59 (2015)

F.研究業績

1. 論文発表

なし

2. 学会発表

なし

表 2 10 群からの PCBs 摂取量

PCBs 同族体	地域										平均値
	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J	
MoCBs	0.265	0.161	0.136	0.155	0.242	0.209	0.157	0.242	0.192	0.146	0.191
DiCBs	1.74	1.56	2.37	2.32	2.53	3.62	2.57	3.11	1.55	2.03	2.34
TrCBs	13.0	11.7	15.3	12.5	16.9	20.4	19.3	13.5	7.12	11.7	14.1
TeCBs	44.3	44.0	38.8	38.9	46.2	50.2	50.5	44.8	21.3	30.6	41.0
PeCBs	72.4	69.2	46.1	64.7	76.5	78.8	71.5	83.3	39.4	45.6	64.8
HxCBs	65.3	87.6	49.8	81.5	85.5	106	77.8	118	58.7	49.6	78.0
HpCBs	15.8	33.9	16.9	27.4	25.4	38.6	25.6	41.7	24.8	16.3	26.6
OcCBs	2.10	7.13	3.14	5.95	5.07	7.64	4.97	7.44	5.66	3.15	5.22
NoCBs	0.375	0.910	0.354	0.795	0.739	1.01	0.688	0.836	0.786	0.419	0.692
DeCB	0.304	0.519	0.182	0.508	0.550	0.633	0.400	0.411	0.499	0.266	0.427
総PCBs	216	257	173	235	260	308	253	313	160	160	233

表 3 11 群からの PCBs 摂取量

PCBs 同族体	地域										平均値
	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J	
MoCBs	0.162	0.120	0.178	0.142	0.148	0.109	0.176	0.123	0.312	0.116	0.159
DiCBs	0.728	1.06	0.687	0.530	0.617	2.33	0.517	0.611	0.714	0.502	0.830
TrCBs	1.26	1.56	0.743	0.491	0.839	10.4	0.756	1.02	0.964	1.54	1.95
TeCBs	1.49	1.82	1.56	0.76	2.18	13.6	1.51	1.94	1.09	1.47	2.74
PeCBs	1.53	2.31	5.01	1.28	4.53	7.20	3.49	3.96	1.58	1.31	3.22
HxCBs	2.10	3.69	11.7	1.57	4.91	5.16	7.00	7.29	2.86	2.57	4.88
HpCBs	0.717	1.24	5.02	0.533	1.79	1.79	3.09	2.99	0.965	0.947	1.91
OcCBs	0.132	0.275	1.07	0.115	0.445	0.407	0.906	0.717	0.233	0.191	0.449
NoCBs	0.0343	0.0332	0.174	0.0359	0.0632	0.0593	0.0877	0.0884	0.0525	0	0.0628
DeCB	0	0.0334	0.0878	0.0349	0.0373	0.0462	0.0564	0.109	0.0302	0.0390	0.0475
総PCBs	8.15	12.1	26.2	5.50	15.6	41.1	17.6	18.8	8.79	8.68	16.3

表 4 10 群と 11 群からの PCBs 摂取量の合計値

PCBs 同族体	地域										平均値
	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J	
MoCBs	0.427	0.281	0.314	0.297	0.390	0.318	0.333	0.366	0.504	0.262	0.349
DiCBs	2.46	2.63	3.06	2.85	3.14	5.94	3.08	3.72	2.27	2.54	3.17
TrCBs	14.2	13.2	16.0	12.9	17.7	30.8	20.1	14.5	8.08	13.2	16.1
TeCBs	45.8	45.8	40.4	39.6	48.4	63.8	52.0	46.7	22.4	32.0	43.7
PeCBs	73.9	71.5	51.1	66.0	81.1	86.0	75.0	87.2	40.9	46.9	68.0
HxCBs	67.4	91.3	61.5	83.0	90.4	112	84.8	125	61.6	52.2	82.9
HpCBs	16.5	35.1	21.9	27.9	27.2	40.4	28.7	44.7	25.8	17.3	28.5
OcCBs	2.23	7.40	4.21	6.06	5.51	8.05	5.88	8.15	5.89	3.34	5.67
NoCBs	0.409	0.944	0.528	0.831	0.803	1.07	0.776	0.924	0.839	0.419	0.754
DeCB	0.304	0.552	0.270	0.543	0.587	0.679	0.456	0.520	0.529	0.305	0.475
総PCBs	224	269	199	240	275	349	271	332	169	169	250

表5 10群と11群試料からの6PCBs及びNDL-PCBs摂取量

食品群	PCBs	地域										平均値
		A	B	C	D	E	F	G	H	I	J	
10群	6PCBs	66.2	82	48.7	78.3	86.2	96.3	77.3	103	55.6	51.2	74.4
	NDL-PCBs	196	236	161	215	237	284	233	289	147	147	214
11群	6PCBs	2.51	3.78	10.6	1.73	4.74	9.52	6.68	6.86	2.91	3.67	5.30
	NDL-PCBs	7.43	11.3	23.4	5.15	14.0	39.2	15.5	17.1	7.93	7.91	14.9
10群と11群	6PCBs	68.7	85.5	59.2	80.0	91.0	106	84.0	109	58.5	54.9	79.7
の合計	NDL-PCBs	203	248	184	220	251	323	248	307	155	155	229

表6 日本と主な諸外国における食品からのPCBs摂取量

国	調査時期*	対象年齢	PCBs平均摂取量 ng/kg bw/day (ng/day)	検出(定量)下限値 の取り扱い	測定対象	参考文献
日本	2016年度(平成28年度)		7.1 (357)			6)
	2017年度(平成29年度)	1歳以上	7.3 (364)	<LOD=0	209異性体	3)
	2018年度(平成30年度)		5.0 (250)			本研究
ベルギー	2005年	— **	— (404) — (535)	<LOQ=0 <LOQ=LOQ	23異性体	7)
アメリカ	2009年	—	— (33)	<LOD=0	7異性体	8)
デンマーク	1998-2003年	4-14歳	24.9 (—)	<LOD=1/3LOD	10異性体	9)
		15-75歳	12.6 (—)			
スウェーデン	2005年	17-79歳	4.9 (362)	<LOQ=1/2LOQ	28異性体	10)
韓国	2008-2011年	19歳以上	3.94 (—)	—	62異性体	11)

*食品試料を集めた時期

**未掲載

表7 日本と主な諸外国における食品からの6PCBs摂取量

国	調査時期*	対象年齢	6指標異性体の平均摂取量 ng/kg bw/day	検出(定量)下限値 の取り扱い	参考文献
日本	2016年度(平成28年度)		2.3		6)
	2017年度(平成29年度)	1歳以上	2.4	<LOD=0	3)
	2018年度(平成30年度)		1.6		本研究
イタリア	1994-1996年	0.5-6歳	24.6	<LOQ=LOQ	12)
		7-12歳	16.1		
		13-94歳	10.9		
フランス	2005年、2007年	3-17歳	3.77	<LOD(LOQ)=1/2LOD(LOQ)	13)
		18-79歳	2.71		
ベルギー	2008年	15歳以上	5.33	<LOQ=0	14)
オーストリア	2006-2011年	6-15歳	3.37	—**	15)
		19-65歳女性	3.19		
		19-65歳男性	2.64		

*食品試料を集めた時期

**未掲載

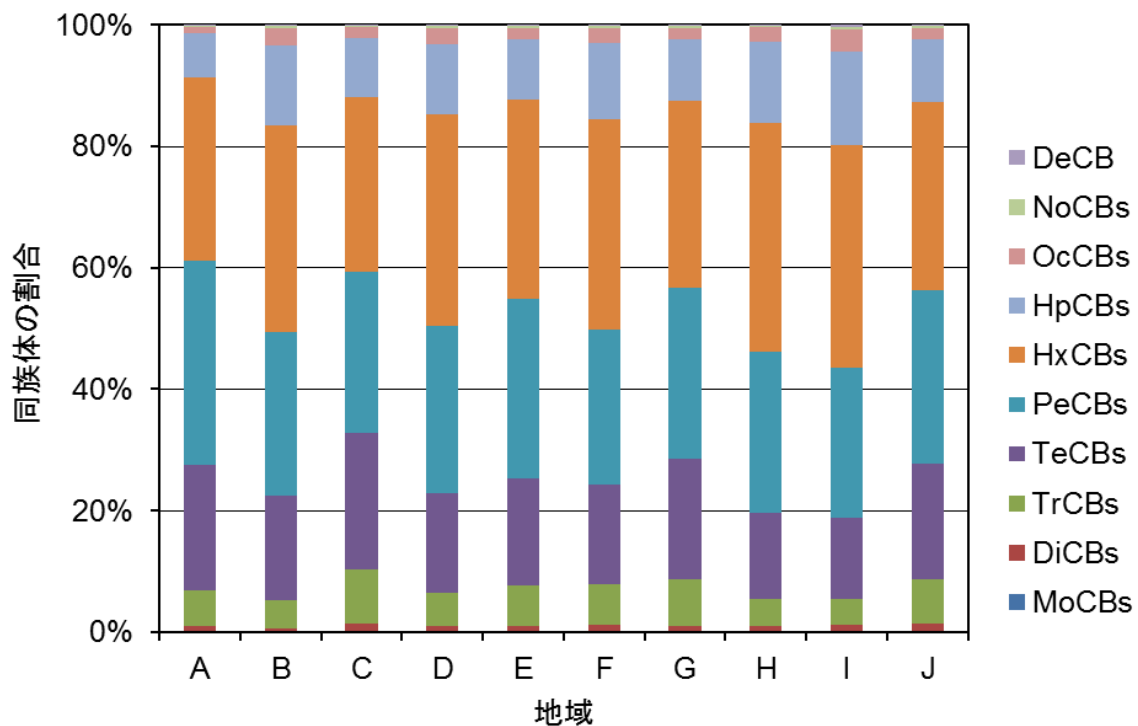


図1 10群からのPCBs摂取量におけるPCBs同族体の割合

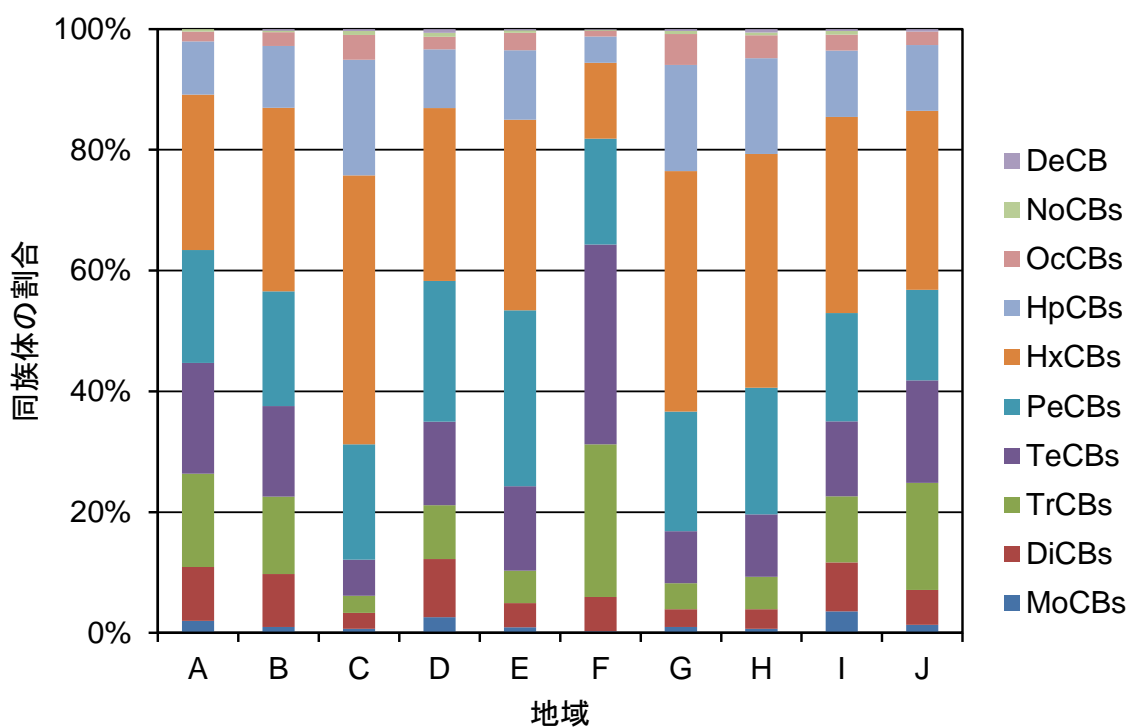


図2 11群からのPCBs摂取量におけるPCBs同族体の割合

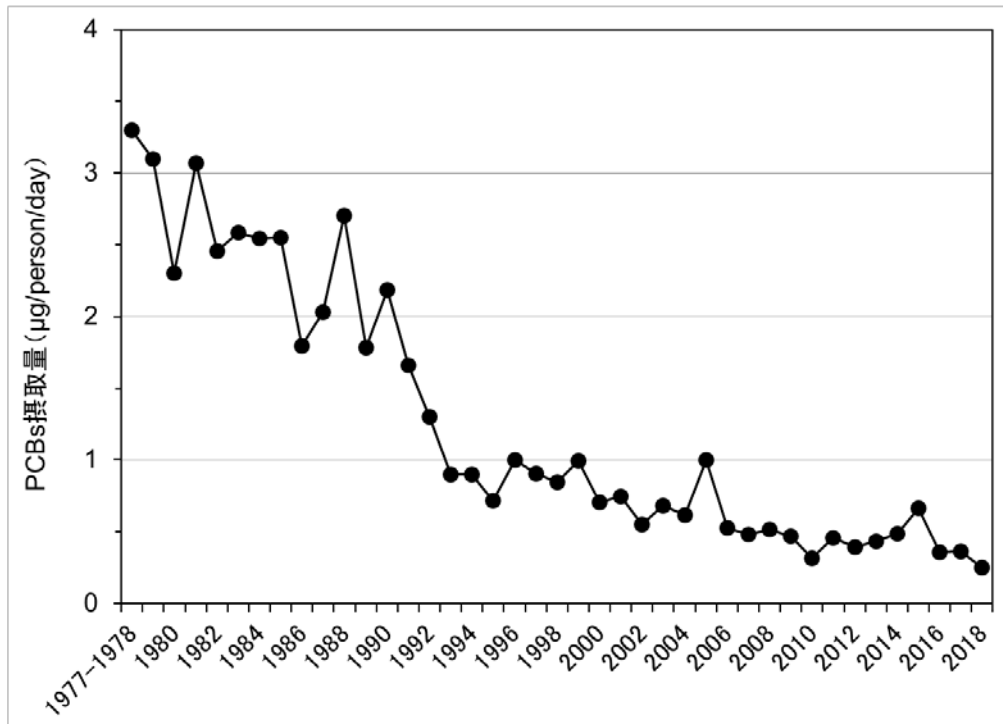


図3 総 PCBs 摂取量の経年変化(1977～2018)

