

平成 30 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安全情報部 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、日常的な食事から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、全国 10 地域、並びに特定 1 地域の複数年間あるいは四季を通じて調製した TD 試料の分析結果に基づき推定した。

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、青柳直樹
新潟県保健環境科学研究所	吉崎麻友子
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、川端彰範、小林博美
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
福岡市環境局保健環境研究所	宮崎悦子、藤井優寿、戸渡寛法
福岡市水道局水道水質センター	赤木浩一
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より健康な生活のために様々な活用できるように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。また、特定 1 地域を対象に 2016 年～2018 年の 3 年間、あるいは 1 年間の四季を通じて調製された。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、2018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 ave.)を推定した。その結果、各元素類の全国摂取量 ave.はホウ素:1474 µg/man/day、アルミニウム:2242 µg/man/day、ニッケル:138 µg/man/day、セレン:94.4 µg/man/day、カドミウム:19.1 µg/man/day、アンチモン:0.9 µg/man/day、バリウム:460 µg/man/day、ウラン:1.5 µg/man/day、鉛:10.1 µg/man/day、スズ:62.6 µg/man/day、クロム:25.7 µg/man/day、コバルト:9.7 µg/man/day、モリブデン:214 µg/man/dayと推定された。総ヒ素と無機ヒ素の全国摂取量 ave.は、それぞれ 230 µg/man/day、16.8 µg/man/dayと推定された。総水銀とメチル水銀の全国摂取量 ave.は、それぞれ 6.5 µg/man/day、5.8 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 ave.が占める割合(対 TDI 比)を求めた。その結果、対 TDI 比は Ni の 69%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。

特定1地域の四季を通じて調製した TD 試料の分析からは、各元素類の四季を通じた摂取量の変動と平均値が、全国10地域における摂取量の変動と平均値と大きく異なることが示された。

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

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_{ave.})の推定を目的に、2018年に実施したTDSの成果を報告する。また、2013年~2018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。その他、特定の1地域における摂取量の季節変動についても検討したので、合わせて報告する。

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、地域による食品消費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2018年5月から10月までの間に調製された。各地域の研究協力者は、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。分析に必要な均質性を確保する目的から、調製時に試料に加水される場合があるが、その量は、摂取量を算出する過程において考慮されている。

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・海藻類、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。

特定の1地域(東京)における各元素摂取量の季節変動を検討するためのTD試料も、上記と同様に、2016年の3月、8月、10月、12月に調製した。ただし、四季を通じて変わりなく消費されると考えられた米・米加工品といった食品は、基本的にその季節にしか市場流通せずよって消費量が季節によって異なると考えられた食品の元素類

摂取量への影響をより明確にするために、可能な範囲で同一の製品を選び試料調製に用いた。

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(total Hg)の分析、メチル水銀(MeHg)の分析、及び無機ヒ素(iAs)の分析には、昨年度までに報告した各種方法をその実施の適正を確認した後に使用した。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)。

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(正確には、食品消費量に応じて調製した TD 試料の量)を乗じて元素類摂取量を推定した。

2013年～2018年の6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。特定 1 地域における元素類摂取量の季節による変動と季節を通じた平均値を明らかにし、全国 10 地域において推定された摂取量の変動と平均と比較し考察した。

C. D. 結果及び考察

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試料における各元素類の濃度と、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_{ave.})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を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. 各元素類の全国・全年齢層平均摂取量の推定 (2018年)

2018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。地域ごとに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:1248～1788 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Al:1470～3462 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Ni:93.3～177 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Se:80.8～109 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Cd:14.4～26.7 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Sb:0.3～2.0 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Ba:340～554 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Pb:2.6～27.6 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、U:0.59～4.23 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、total As:163～354 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、iAs:9.6～25.1 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Sn:1.1～543 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Cr:12.2～63.7 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Co:7.3～11.8 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Mo:185～278 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Hg:4.3～9.6 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 。

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_{ave.}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_{ave.}は、以下の通り推定された。B:1474 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Al:2242 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Ni:138 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Se:94.4 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Cd:19.1 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Sb: 0.93 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Ba:460 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、U: 1.52 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、total As:230 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、iAs:16.8 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、total Hg:6.5 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Pb:10.1 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Sn:62.6 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Cr:25.7 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Co: 9.7 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Mo:214 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 。

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。2018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、3.5～9.2 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ の範囲にあった。また、全国摂取量_{ave.}は、5.8 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ と推定された(表3)。

2. 各元素類摂取量の変動

これまでの研究において、2013年～2015年の3年間に推定した各元素の地

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。

2018年の研究においてもこれまでと同様に、ホウ素、ニッケル、セレン、バリウム、コバルト、モリブデン、カドミウムの摂取量の地域間変動は小さく、過去の結果によく一致した(図1-1)。特に、ホウ素、セレン、バリウム、モリブデンの4つの元素については、2013年以降に推定された地域別摂取量の最大値と最小値の比が2を超えることはまれであり、これら4元素を日本人は毎日安定して摂取していると言えるだろう。2018年の結果においても、これら元素に関しては、推定摂取量の最大値と最小値の比は最大でも1.6であった。2017年に推定されたクロムの地域別摂取量の最大値は最小値の約36倍の値となり、前年までに得られた推定値に比べ変動が大きかった。2018年の推定では、クロム地域別摂取量の最大値は最小値の約5倍の値となり、変動は小さく

なっている。これまでに、一般に、ある特定の食品におけるクロム濃度が高いという情報は得られていない。一方で、昨年度報告書中においても言及したとおり、クロムはニッケル・クロム鋼として、フードプロセッサー等の刃の原料として用いられることのある元素である。そのため、本研究の手法として用いている試料調製法を原因としてクロム摂取量が不精確に推定され可能性がある。このことを防ぐために、TD試料の調製に用いる機器や器具からの汚染に引き続き注意する必要があるだろう。

2013年から摂取量推定を継続する中で、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変動が大ききことを明らかにしてきた(図1-2)。2018年の研究においては、これら元素のうちアルミニウムとアンチモンについては、過去に観察された変動に比べ変動が小さくなった。アルミニウムについては、2013年に観察された地域別摂取量の最大値と最小値の比は14を超えていた。一方2018年の推定では、その比は約2と大幅に小さくなっている。またアンチモンについては、2014年の最大値と最小値の比は100を超えていた。一方、2018年の推定では、その比は約6と大幅に小さくなっている。アルミニウムについては、一部の食品添加物として使用される化学物質に含まれ

ており、それを使用した食品をTD試料の調製に含めるか否かで、摂取量が大きく変わることは明らかである。2018年の研究において調製したTD試料には、上記の理由からアルミニウム濃度が他の食品に比べて明らかに高い食品が含まれなかったことにより、偶発的に、地域別摂取量の変動が小さくなったものと考えることができる。アンチモンについては、過去の変動の原因として、TD試料を調製した環境(試料調製者が使用していた化粧品を含む)が推察されたが、明らかにはされていない。また、アルミニウムの様に、意図的に食品に添加されることも知られていない。そのため今後、摂取量がどの様に変動するかを予測することは難しい。ただし、摂取量の値が小さい、すなわち極低濃度の分析値に基づく摂取量であるために、分析の観点からは変動が大きくなりやすい元素であると考えことは妥当であろう。

2018年の研究においても、スズと鉛の地域別摂取量の変動は大きく、過去の結果に一致した。2017年の解析では、スズと鉛それぞれの摂取量の最大値は、対応する最小値の約3000倍と18倍であった。この結果と比較すると、2018年の解析では、スズと鉛それぞれの摂取量の最大値は、対応する最小値の約480倍と11倍であり、変動が小さくなっている。2017年の推定において最大の鉛

摂取量(48.7 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$)を与えた地域はFであり、2018年の推定においても同地域における鉛摂取量が最大(27.6 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$)となった。地域Fにおける鉛摂取量への寄与の大きかった食品群は、2017年の推定では2群、2018年の推定では1群であった。このように、鉛摂取量への寄与の大きい食品群が変化した理由は不明である。地域Fにおいて2018年に推定された鉛摂取量は、2017年に推定された摂取量の約1/2である。また後に示すとおり、鉛の全国摂取量_{ave.}は、調査を開始した1977年以降2000年頃までに漸次的に減少し、2010年以降は一定の水準に下げ止まっている。摂取量の値の大きさ、その地域間並びに年間での変動、さらに中長期的な変動の傾向も合わせて考察すべきであるが、同一地域での摂取量が2カ年連続して高値となった事実に着目しておくことは、リスクベースドシンキング上有益であろう。2018年の推定において、地域Fに次ぐ高値の摂取量が推定された地域はAであるが、寄与の大きい食品群は、地域Fと同じく1群であった。TD試料は、複数の食品を混合して調製されるため、摂取量への寄与を大きくした個々の食品を特定することはできない。しかし、上記の食品群に含まれる食品において鉛濃度が高くなる可能性のあることに留意することもまた有益であろう。

スズについては、その濃度が他に比

較して突出して高い食品が存在し、その食品が偶発的にTD試料の調製に含まれることがこれまでもあり、その場合に摂取量が高くなることを示してきた。この偶発的要因は、アルミニウムと共通のものであると考えられる。スズ摂取量への寄与が高い食品群は、これまでと同様に8群であった(図2-5)。スズの摂取量が高くなる要因は、食品の原料となる農産品における濃度が高いことではなく、調理・保存・輸送の過程で使用される容器からの移行である可能性が高いことをこれまでに考察している。8群に分類される水煮の野菜等と、2018年の摂取量への寄与はほとんど見られなかったが6群に分類される缶詰くだもの類は、上記の容器から移行が考えられる食品である。

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。なお、総ヒ素の摂取量の最大値は2013年から2017年にかけて漸次的に増加しているように見えたが、昨年度報告書において言及したとおり全国摂取量_{ave.}にはその傾向が認めらず、2018年の摂取量推定値の最大値は2014年の摂取量推定値の最大値と同水準となったため、やはり偶発的な観測の結果であると捉えるのが適切かと考える。

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。摂取量の地域間変動が特に小さい、ホウ素、セレン、バリウム、モリブデンの4つの元素の全国摂取量_{ave.}の6年間(2013-2018年)の平均値は以下の通りである。B:1432 µg/man/day、Se:92 µg/man/day、Ba:456 µg/man/day、Mo:214 µg/man/day。昨年度報告書で報告した5年間(2013-2017年)の全国摂取量_{ave.}の平均値は以下の通りであり、ほとんど変化が無いことが分かる。B:1424 µg/man/day、Se:91 µg/man/day、Ba:455 µg/man/day、Mo:214 µg/man/day。

その他の元素類の摂取量については、6年間分の全国摂取量_{ave.}平均値と標準偏差(括弧内は相対標準偏差%)を以下に示す。

Al:3048±3277 µg/man/day(108%)、Ni:145±39 µg/man/day (27%)、Cd:18±5 µg/man/day (28%)、Sb:1.2±1.6 µg/man/day (134%)、Pb:10±9 µg/man/day (89%)、U:1.2±0.6 µg/man/day (54%)、total As:225±74 µg/man/day (33%)、iAs:18±6 µg/man/day (35%)、Sn:142±309 µg/man/day (217%)、Cr:32±45 µg/man/day (138%)、Co:9.0±2.5 µg/man/day (28%)、total Hg:7.5±2.9 µg/man/day (38%)、MeHg:6.2±2.8 µg/man/day (45%)。これらの元素についても、2018年度の推定結果を加えて計算した結果、全国摂取量_{ave.}平均値と標準偏差の変化はごくわ

ずかであった。そのため、これまでに蓄積された結果によって、各元素の平均的な摂取量とどのくらい変動があるかの概要は十分に把握できていると考える。

元素類摂取量の変動の大きな要因の1つには、ある一日にどのような食品を選択し消費するかの偶発性が挙げられるものと考察する。極端な例ではあるが、特定メーカーが販売する原材料や製造方法に変更のない同一の食品を必ず選択する消費者がおり、その製品にある元素が比較的高濃度に含まれていた場合に、その食品の消費者におけるある元素の摂取量は高くなる。後述する耐受摂取量との比較からは、仮にそのような選択と消費の固定が毎日の食事において繰り返された場合であっても、対象としている元素類に関しては、健康リスクの懸念につながるような推定値は得られていない。ただし、本研究で推定されている摂取量が、全国・全年齢層平均値であることには留意しなければならない。

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、各元素の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、2017年、そして2018年の各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の大きさを表す寄与率は、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～2018年各年度の解析結果がよく一致し、安定している。

本研究では、総ヒ素と無機ヒ素とを区別しそれぞれの摂取量を推定するとともに、上記の通りそれぞれの摂取量について、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を解析し安定していることを示してきた。一方で、総ヒ素摂取量と無機ヒ素摂取量との間で比較を行うと、寄与のパターンと寄与率はともに大きく異なっている。特に顕著な違いを挙げれば、魚介類を含む10群は総ヒ素摂取量への寄与率が高い一方で、無機ヒ素摂取量への寄与が極めて小さい。総ヒ素とは、ヒ素について知られる有機並びに無機化合物の異なる化学形態を区別することなく、ヒ素として分析する場合の対象を意味する。これまでは、上記10群に

観察された総ヒ素摂取量と無機ヒ素摂取量への寄与への顕著な違いについて、魚介類には無機ヒ素以外の有機ヒ素化合物の形態で蓄積していることが原因であろうと推測してきた。この推測を確認し、魚介類に含まれるヒ素化合物の形態を明らかにする目的から、福岡市環境局保健環境研究所並びに福岡市水道局水道水質センターの研究協力者に有機ヒ素化合物を対象とした分析法開発と一部魚の実態調査を依頼した。その結果、モノメチルアルソン酸、ジメチルアルシン酸、トリメチルアルシンオキシド、テトラメチルアルソニウム、アルセノベタイン、アルセノコリンの計6種の有機ヒ素化合物を対象とした分析法(LC-MS/MS法)が開発された。さらに、開発された分析法を用いて10種類計50試料の魚を対象に、有機ヒ素化合物濃度の実態が調査された。その結果、魚種により検出されるヒ素化合物の形態と、その濃度が総ヒ素濃度に占める割合が異なるものの、魚介類に含まれるヒ素の化学形態はアルセノベタインが主であることが明らかとなり、総ヒ素濃度との間に正の相関があることが示された(結果示さず)。

アルミニウム、アンチモン、クロム、鉛、スズに関しては、3年間分の摂取量推定値に基づく平均的な寄与のパターン、2016年、2017年あるいは2018年のパターンが少なからず変化している。

このパターン変化の1つの要因として、各元素類の濃度の高い個別の食品を消費するか否かの偶発性、実験的にはTD試料の調製に含めるか否かの偶発性が考察される。スズ摂取量に対する寄与のパターンの変化は明確である。2013年～2015年の3年間分の寄与のパターンには、6群が大きく影響しているが、その後の2016年、2017年、2018年の寄与のパターンにその影響を確認することはできない。このことから、2016年以降のTDSで調製されたTD試料にはスズの濃度が高い缶詰フルーツが含まれなかったことが考えられる。逆に、2016年以降の寄与のパターンの類似性の高さからは、水煮の野菜を含む8群がスズ摂取量に安定して寄与していると言うこともできる。

2018年の鉛摂取量についてみると、2017年の摂取量において高かった2群の寄与率は減少し、1群の寄与率が高くなっている。これは先に考察したとおり、2017年にある1地域において調製された2群のTD試料から観察された高い鉛濃度が2018年には観察されなくなり、2017年には観察されなかった1群における高い鉛濃度が2地域で調製されたTD試料から観察されたことに関連する結果である。2013年～2015年の3年間分の寄与のパターンとも合わせて考察すれば、鉛摂取量への寄与率は多くの食品群によって分割されており、特定の

食品群ひいては特定の食品からの寄与が大きくなると明確に言うことが難しい。

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2018年に推定した全国摂取量_{ave.}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_{ave.}の対TDI比が69%と計算され、推定した摂取量中最も高い。ただし、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ことを注記しておく。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。この対TDI比の大きさ並びに順位は、昨年までの解析結果に一致している。アルミニウム摂取量の対TDI比は16%であり、2016年以降の解析結果と同水準となった。ウラン摂取量の対TDI比は約15%であり、この結果も2013年以降の解析結果とほぼ一致している。2010年にJECFAによる耐用週間摂取量を取り下

げられていることを踏まえ計算を取りやめているが、鉛摂取量は次に示すとおり一定の水準で推移している。アンチモン摂取量の対TDI比は、2013年以降、一致して0.5%を下回っている。

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、2018年の結果を加えた全国摂取量_{ave.}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。

6. 四季による各元素類摂取量の変動

我が国には四季があり、その季節にしか流通しない食品もある。これまでのTDSは全国規模で実施してきたものの、5月～10月を試料調製期間としているために、四季に応じた特徴をもって消費される食品の摂取量への影響は明確にされていなかった。そこで特定1地域において、3月、8月、10月、12月にTD試料

を調製し、それを分析することで、各種元素類の摂取量の変動について検討した。各季節に推定されたホウ素、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、無機ヒ素、スズ、クロム、コバルト、モリブデン、総水銀摂取量を表5-1～表5-16に示した。四季を通じて推定された各元素の摂取量は、以下の範囲にあった。B:1366～1550 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Al:1588～2578 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Ni:120～162 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Se:91.7～99.0 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Cd:14.7～22.9 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Sb:0.58～1.2 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Ba:415～541 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Pb:3.0～4.4 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、U:0.74～2.5 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、total As:251～316 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、iAs:15.6～20.2 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Sn:0.30～3045 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Cr:9.9～20.7 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Co:8.4～9.7 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Mo:183～201 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Hg:4.1～6.8 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 。スズの摂取量は、最大値と最小値の比が1万以上となり、極めて広い範囲に推定されたが、これは3月に調製された8群のTD試料にのみ、水煮の野菜(たけのこ)が含まれたことが原因と考えられる。

2016年に推定された対応する元素の地域別摂取量の変動を指標に、上記各元素摂取量の季節変動の大きさについて検討した。変動はRSD%として表し、スズを除く元素類の比較結果を図7-1に示した。いずれの元素類についても四

季を通じた摂取量推定値の変動は、全国における摂取量の変動と同じかそれ以下の大きさであることが明らかとなった。他の元素類とは変動の大きさが大きく異なるため図7-2に示したスズについても同様であった。季節による各元素の摂取量への影響をより明確に捉えるため、本TD試料の調製では、四季を通じて変わりなく消費される、米・米加工品といった食品は、可能な範囲で同一の製品を選び用いた。そのことが摂取量の変動を小さくした一因となることは考えられる。しかし、季節を要素とする変動が純粋に観察されており、その大きさは地域を要素とする変動と同等かそれ以下になると考察される。この考察からは、より大きな変動の要素を考慮し推定されている全国摂取量_{ave}が、我が国における各元素類摂取量をより適切に代表する値であると言える。また、これまでの報告においても言及しているとおり、特定の地域における摂取量が常に高いあるいは低いという事実は確認されていないことから、TD試料の調製に含められる食品の多様性、すなわち国民が消費する食品の多様性を失わずに、全国摂取量_{ave}が推定されていると捉える方が適切かも知れない。

図8には、推定した全元素について、2016年の全国摂取量_{ave}に対する季節ごと摂取量の比を求め示した。多くの元

素について算出された比は1付近となり、季節による違いもわずかである。鉛とクロムの比は常に1を下回り、0.5付近となることがあった。またウランでは、季節による比の違いが大きく、3月の推定値に対する比は2.5程度となった。鉛とクロムに対し得られた結果は、指標とした2016年の全国摂取量_{ave}が、偶発的に高めであったためにもたらされた可能性も考えられる。また、ウランについては季節変動が観察されている可能性もある。しかし全国規模の調査でも、ウランの摂取量推定値は小さく、かつ変動が大きいことが示されているため、現時点で季節変動であると判断することはできない。

E. 研究発表

特になし

TD試料(群)	地域																			
	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J
1	67.9	67.5	42.3	36.3	40.1	46.9	48.8	55.8	55.5	70.5	67.9	67.5	42.3	36.3	40.1	46.9	48.8	55.8	55.5	70.5
2	114	94.3	121	96.9	82.2	94.0	90.2	85.2	91.3	88.5	114	94.3	121	96.9	82.2	94.0	90.2	85.2	91.3	88.5
3	40.1	25.2	30.1	27.4	30.5	38.8	33.4	44.8	27.8	52.8	40.1	25.2	30.1	27.4	30.5	38.8	33.4	44.8	27.8	52.8
4	0.1	0.1	0.2	0.1	0.1	0.1	0.1	0.2	0.1	0.4	0.1	0.1	0.2	0.1	0.1	0.1	0.1	0.2	0.1	0.4
5	218	212	264	196	196	173	165	193	168	219	218	212	264	196	196	173	165	193	168	219
6	188	279	206	123	218	236	163	219	159	224	188	279	206	123	218	236	163	219	159	224
7	156	158	176	184	139	166	178	221	159	164	156	158	176	184	139	166	178	221	159	164
8	279	399	271	304	213	253	239	561	232	285	279	399	271	304	213	253	239	561	232	285
9	142	152	185	226	109	146	142	170	132	36.3	142	152	185	226	109	146	142	170	132	36.3
10	34.2	36.8	49.3	24.1	31.9	31.0	35.6	35.1	24.9	43.7	34.2	36.8	49.3	24.1	31.9	31.0	35.6	35.1	24.9	43.7
11	16.1	15.7	10.2	13.1	10.1	19.3	13.4	8.6	10.4	8.1	16.1	15.7	10.2	13.1	10.1	19.3	13.4	8.6	10.4	8.1
12	26.8	25.9	23.4	32.4	24.2	21.1	21.0	22.5	20.1	19.3	26.8	25.9	23.4	32.4	24.2	21.1	21.0	22.5	20.1	19.3
13	164	187	240	194	186	178	178	166	156	203	164	187	240	194	186	178	178	166	156	203
14	90.3	13.8	2.7	5.2	3.3	2.4	4.9	5.3	12.6	4.2	90.3	13.8	2.7	5.2	3.3	2.4	4.9	5.3	12.6	4.2
総和	1537	1666	1621	1462	1284	1404	1313	1788	1248	1419	1537	1666	1621	1462	1284	1404	1313	1788	1248	1419

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	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J
1	24.9	0.0	0.0	9.1	0.0	0.0	24.6	0.0	0.0	0.0	24.9	0.0	0.0	9.1	0.0	0.0	24.6	0.0	0.0	0.0
2	173	409	193	132	102	895	192	201	362	145	173	409	193	132	102	895	192	201	362	145
3	44.9	25.6	28.2	39.6	16.8	29.7	1098	46.4	364	59.3	44.9	25.6	28.2	39.6	16.8	29.7	1098	46.4	364	59.3
4	0.3	1.4	1.5	0.0	0.0	6.1	2.7	0.3	0.0	0.7	0.3	1.4	1.5	0.0	0.0	6.1	2.7	0.3	0.0	0.7
5	174	91.6	45.6	69.2	44.6	55.5	80.9	81.2	54.3	98.6	174	91.6	45.6	69.2	44.6	55.5	80.9	81.2	54.3	98.6
6	66.6	63.6	15.8	10.9	22.3	26.0	49.2	55.2	18.0	27.3	66.6	63.6	15.8	10.9	22.3	26.0	49.2	55.2	18.0	27.3
7	104	114	85.7	88.6	143	171	131	93.9	72.4	102	104	114	85.7	88.6	143	171	131	93.9	72.4	102
8	176	338	174	404	123	680	124	91.8	63.0	215	176	338	174	404	123	680	124	91.8	63.0	215
9	436	837	665	357	609	1027	796	1126	388	312	436	837	665	357	609	1027	796	1126	388	312
10	14.4	337	389	352	125	232	138	484	18.4	1169	14.4	337	389	352	125	232	138	484	18.4	1169
11	286	71.8	45.6	87.9	46.4	83.8	151	24.4	9.8	19.6	286	71.8	45.6	87.9	46.4	83.8	151	24.4	9.8	19.6
12	4.4	26.4	41.2	10.4	0.0	12.1	32.7	6.9	11.5	0.0	4.4	26.4	41.2	10.4	0.0	12.1	32.7	6.9	11.5	0.0
13	213	70.7	317	413	264	232	324	62.8	98.8	325	213	70.7	317	413	264	232	324	62.8	98.8	325
14	0.0	0.0	0.0	7.0	0.0	13.6	0.0	12.6	10.3	0.0	0.0	0.0	0.0	7.0	0.0	13.6	0.0	12.6	10.3	0.0
総和	1717	2387	2002	1981	1496	3462	3143	2287	1470	2472	1717	2387	2002	1981	1496	3462	3143	2287	1470	2472

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	17.4	33.4	23.6	39.7	31.0	50.2	26.5	24.4	16.4	41.5				
2	23.9	19.7	9.5	18.5	11.8	25.2	19.4	6.5	8.2	8.2				
3	1.4	5.0	6.4	6.7	4.6	6.3	8.5	5.1	7.9	10.9				
4	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00	0.07	0.04	0.00	0.00	0.02				
5	56.1	8.9	8.6	9.8	6.5	9.3	12.4	6.9	12.8	21.2				
6	6.2	9.0	5.8	5.1	2.9	13.6	7.3	4.9	6.2	1.8				
7	13.4	7.0	2.6	8.4	5.8	4.1	17.8	3.0	4.0	3.1				
8	22.8	6.2	8.0	42.4	5.1	8.3	10.2	11.5	8.6	27.1				
9	7.6	25.5	7.5	15.7	11.5	32.8	13.0	16.7	9.6	7.9				
10	2.7	2.1	2.6	2.1	1.6	4.7	4.5	2.7	1.9	2.8				
11	4.1	1.5	0.79	1.4	0.90	2.0	0.96	1.0	0.61	0.48				
12	0.78	0.20	0.16	0.53	0.14	0.22	0.13	0.70	1.6	0.39				
13	15.9	29.4	22.5	18.8	27.8	19.8	20.4	18.5	15.5	30.9				
14	0.00	2.0	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	13.7				
総和	172	150	98	169	110	177	141	102	93.3	170				

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	4.1	4.5	3.7	3.6	2.6	5.9	2.0	1.8	3.3	2.3				
2	11.07	11.1	14.8	10.8	11.7	12.7	13.8	9.4	9.6	14.8				
3	1.6	1.2	2.0	1.1	1.2	1.4	1.6	1.5	1.3	1.6				
4	0.10	0.07	0.08	0.13	0.14	0.11	0.08	0.05	0.03	0.08				
5	0.30	2.9	0.83	2.9	1.8	4.2	3.0	2.7	4.9	3.8				
6	0.36	0.21	0.17	0.29	0.00	0.25	0.42	0.15	0.26	0.18				
7	0.23	0.13	0.27	0.15	0.22	0.68	0.29	0.26	0.18	0.26				
8	1.8	1.9	2.7	1.3	1.3	1.1	1.8	0.51	0.72	1.1				
9	1.0	1.1	1.0	0.00	0.91	0.72	0.74	2.2	2.0	1.1				
10	30.0	33.5	30.2	33.0	25.1	37.0	33.8	33.7	32.2	34.9				
11	33.1	29.0	31.5	33.2	27.5	23.4	38.3	24.1	30.4	35.0				
12	4.5	3.8	3.8	4.1	3.6	3.2	2.6	3.3	3.2	3.8				
13	3.0	3.8	7.3	9.1	4.7	5.0	10.2	3.6	2.2	3.9				
14	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00				
総和	91.2	93.2	98.4	99.7	80.8	95.8	109	83.3	90.2	103				

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	5.6	9.3	12.4	4.0	7.5	8.2	6.0	4.7	6.8	8.2				
2	1.8	2.0	2.3	2.9	2.1	2.4	2.3	1.9	2.1	1.7				
3	0.35	0.33	0.59	0.33	0.39	0.63	0.69	0.42	0.56	0.48				
4	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00				
5	1.1	0.79	1.4	0.72	0.70	1.0	0.85	0.75	0.81	0.53				
6	0.09	0.22	0.07	0.15	0.09	0.07	0.03	0.07	0.06	0.09				
7	0.76	1.4	2.0	1.1	1.9	2.4	1.9	2.2	1.5	3.3				
8	2.9	2.3	4.1	4.0	2.6	3.6	2.7	2.8	3.4	3.0				
9	0.01	0.81	0.04	0.05	0.04	0.06	0.02	0.12	0.02	0.02				
10	0.72	1.4	0.96	0.87	0.91	6.9	3.3	3.6	1.1	1.9				
11	0.09	0.08	0.05	0.06	0.06	0.21	0.07	0.03	0.01	0.05				
12	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00				
13	0.86	1.1	1.0	1.1	0.91	1.3	0.73	0.88	0.64	0.51				
14	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01				
総和	14.4	19.7	24.9	15.3	17.1	26.7	18.7	17.3	17.1	19.8				

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	0.000	0.000	0.000	0.129	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000				
2	0.082	0.053	0.130	0.242	0.000	0.092	0.092	0.069	0.065	0.062				
3	0.010	0.038	0.025	1.010	0.031	0.015	0.022	0.043	0.016	0.021				
4	0.000	0.000	0.002	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.003				
5	0.016	0.017	0.015	0.074	0.000	0.015	0.013	0.014	0.024	0.000				
6	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.042	0.000	0.051	0.023	0.000				
7	0.040	0.023	0.028	0.000	0.000	0.000	0.000	0.031	0.000	0.000				
8	0.043	0.122	0.131	0.078	0.000	0.067	0.055	0.179	0.035	0.112				
9	0.000	0.763	0.149	0.261	0.138	0.275	0.188	0.000	0.312	0.121				
10	0.062	0.277	0.072	0.047	0.064	0.104	0.052	0.192	0.034	0.107				
11	0.036	0.112	0.028	0.048	0.033	0.028	0.666	0.127	0.023	0.000				
12	0.000	0.027	0.000	0.024	0.000	0.254	0.029	0.183	0.000	0.000				
13	0.053	0.083	0.089	0.069	0.089	0.089	0.095	0.085	0.060	0.098				
14	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.101	0.000	0.000	0.000	0.065				
総和	0.3	1.5	0.7	2.0	0.4	1.1	1.2	1.0	0.6	0.6				

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)	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J
1	5.6	13.5	20.3	5.3	7.4	9.4	9.2	13.8	12.1	11.9
2	68.9	90.0	79.6	124	93.6	154	92.6	159	57.6	78.2
3	7.8	25.3	14.1	11.3	10.8	13.9	16.1	13.3	15.5	17.6
4	0.6	0.11	0.46	0.17	0.02	0.08	0.17	0.23	0.02	0.03
5	60.6	45.1	49.8	52.7	45.4	75.9	58.0	58.8	53.5	40.2
6	44.7	35.8	19.1	23.8	43.3	52.7	35.4	35.7	22.3	51.5
7	31.1	21.2	71.9	46.7	28.0	35.3	104	15.4	38.4	39.8
8	38.0	206	96.2	90.6	36.2	98.1	82.8	40.6	71.3	168
9	8.2	31.8	20.6	8.5	8.2	17.2	10.9	25.0	9.1	3.8
10	7.0	6.3	6.6	4.6	5.0	17.2	8.2	9.9	5.1	18.5
11	12.0	17.8	42.8	7.8	16.0	8.7	18.1	21.5	12.5	18.8
12	11.0	11.2	11.5	14.8	9.1	10.8	9.7	9.5	11.5	8.2
13	42.0	47.6	71.7	87.7	63.7	40.2	74.5	36.7	38.2	44.3
14	2.3	2.4	1.7	0.49	1.6	2.7	3.3	2.0	2.1	1.5
総和	340	554	506	478	368	537	523	441	349	502

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	10.4	0.54	0.35	1.2	0.00	11.1	0.12	0.00	0.00	0.00
2	2.4	0.53	0.65	1.2	0.36	6.2	0.26	0.44	0.32	0.37
3	0.15	0.11	0.05	0.36	0.06	0.16	0.52	0.19	0.07	0.11
4	0.01	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01
5	0.42	0.38	0.14	0.54	0.14	0.43	0.32	0.22	0.25	0.25
6	0.52	0.20	0.06	0.8	0.10	1.5	0.05	0.08	0.07	0.04
7	2.0	0.36	0.22	1.3	0.15	0.28	0.20	0.24	0.08	0.24
8	6.3	1.2	2.8	2.8	0.39	1.6	0.59	0.76	0.51	2.0
9	0.47	1.0	0.80	2.0	0.56	0.28	0.56	0.66	4.2	0.51
10	1.1	0.55	0.35	0.49	0.39	0.82	0.33	1.5	0.23	1.4
11	0.73	0.14	0.00	0.18	0.06	0.22	0.09	0.09	0.00	0.00
12	0.31	0.07	0.00	0.40	0.00	4.7	0.00	0.00	0.04	0.11
13	0.99	0.29	0.50	1.1	0.37	0.26	0.69	0.18	0.20	0.15
14	0.00	1.1	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.80
総和	25.7	6.5	5.9	12.4	2.6	27.6	3.7	4.4	6.0	6.0

µg/man/day

表 1-8 鉛の地域・食品群別摂取量

TD試料(群)	地域										μg/man/day	
	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J		
1	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
2	0.024	0.024	0.058	0.026	0.018	0.055	0.056	0.052	0.064	0.030	0.030	0.030
3	0.005	0.007	0.005	0.006	0.004	0.006	0.003	0.005	0.004	0.006	0.006	0.006
4	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.002	0.002	0.002	0.002
5	0.032	0.026	0.066	0.023	0.019	0.056	0.047	0.081	0.016	0.042	0.042	0.042
6	0.002	0.003	0.004	0.000	0.004	0.002	0.003	0.004	0.002	0.000	0.000	0.000
7	0.051	0.009	0.005	0.096	0.055	0.023	0.008	0.006	0.007	0.058	0.058	0.058
8	1.567	0.407	3.842	1.405	0.432	0.683	1.522	0.474	0.200	0.594	0.594	0.594
9	0.018	0.080	0.028	0.010	0.021	0.019	0.046	0.036	0.013	0.000	0.000	0.000
10	0.086	0.176	0.155	0.131	0.135	0.501	0.152	0.237	0.151	0.222	0.222	0.222
11	0.049	0.016	0.030	0.028	0.026	0.026	0.017	0.009	0.071	0.005	0.005	0.005
12	0.012	0.028	0.003	0.007	0.000	0.005	0.023	0.004	0.045	0.003	0.003	0.003
13	0.015	0.031	0.032	0.049	0.031	0.020	0.032	0.016	0.021	0.034	0.034	0.034
14	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
総和	1.86	0.81	4.23	1.78	0.75	1.40	1.91	0.92	0.59	1.00	1.00	1.00

表 1-9 ウランの地域・食品群別摂取量

TD試料(群)	地域										μg/man/day	
	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J		
1	8.7	12.9	15.2	9.4	12.3	11.7	17.9	16.5	16.4	17.2	17.2	17.2
2	0.41	0.37	1.6	0.37	0.40	1.8	0.50	1.9	1.1	0.47	0.47	0.47
3	0.08	0.54	0.11	0.72	0.25	0.46	0.10	0.16	0.15	0.47	0.47	0.47
4	0.02	0.02	0.04	0.05	0.05	0.05	0.05	0.04	0.04	0.10	0.10	0.10
5	0.13	0.20	0.23	0.70	0.17	0.61	0.22	0.13	0.16	0.14	0.14	0.14
6	0.04	0.17	0.25	0.12	0.21	0.08	0.07	0.31	0.08	0.06	0.06	0.06
7	0.16	0.15	0.11	0.14	0.10	0.13	0.08	0.26	0.08	0.16	0.16	0.16
8	28.6	24.7	165	63.3	60.7	47.9	107	99.2	9.5	120	120	120
9	0.39	0.74	0.14	0.37	0.42	0.35	0.35	0.41	0.48	0.29	0.29	0.29
10	118	192	163	116	136	110	97.9	82.4	142	183	183	183
11	0.34	0.81	0.27	0.28	0.62	1.2	2.0	1.0	0.23	0.48	0.48	0.48
12	0.04	0.04	0.01	0.03	0.02	0.50	0.00	0.01	0.06	0.01	0.01	0.01
13	5.8	8.3	7.8	7.1	2.6	13.5	6.4	6.3	3.0	2.8	2.8	2.8
14	0.72	0.05	0.00	0.00	0.00	0.00	0.05	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
総和	163	241	354	199	214	188	232	209	174	326	326	326

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	6.6	12.8	12.5	8.3	10.2	11.6	18.4	14.4	15.3	14.0				
2	0.48	0.29	1.1	0.41	0.41	0.57	0.51	1.2	0.81	0.45				
3	0.04	0.33	0.06	0.40	0.16	0.26	0.03	0.08	0.28	0.08				
4	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00				
5	0.15	0.07	0.14	0.29	0.07	0.06	0.07	0.04	0.08	0.06				
6	0.05	0.11	0.18	0.06	0.15	0.07	0.06	0.24	0.06	0.00				
7	0.10	0.12	0.07	0.08	0.08	0.10	0.04	0.23	0.05	0.08				
8	0.59	0.50	2.0	2.7	0.42	2.1	1.2	2.1	0.63	9.6				
9	0.34	0.76	0.28	0.22	0.31	0.00	0.29	0.28	0.52	0.00				
10	0.04	0.11	0.05	0.07	0.08	0.08	0.06	0.13	0.04	0.41				
11	0.13	0.06	0.06	0.07	0.06	0.06	0.06	0.06	0.04	0.06				
12	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.18	0.00	0.00	0.06	0.00				
13	0.38	0.47	0.62	0.46	0.74	1.0	0.46	0.49	0.31	0.36				
14	0.68	0.00	0.00	0.09	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00				
総和	9.6	15.6	17.0	13.2	12.6	16.2	21.2	19.3	18.2	25.1				

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	0.90	0.00	0.00	0.00	0.00				
2	0.74	0.00	0.00	0.00	0.00	1.0	0.00	0.00	0.00	0.54				
3	0.00	0.16	0.12	0.35	56.1	0.06	0.36	0.10	0.00	0.17				
4	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.07				
5	0.00	0.00	0.60	0.00	0.00	4.8	0.00	0.00	0.00	0.00				
6	0.64	0.00	0.00	0.00	0.28	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	0.61	0.00	0.44	0.00	0.82	536	0.00	0.00	0.00	0.30				
9	0.00	0.00	0.00	1.5	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00				
10	4.7	0.18	0.12	0.72	0.82	0.51	0.40	0.35	0.24	0.28				
11	0.96	0.19	0.00	0.00	1.2	0.00	0.00	0.00	0.19	0.00				
12	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00				
13	0.17	1.3	0.46	0.81	0.18	0.41	1.9	0.69	1.1	1.4				
14	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00				
総和	7.9	1.8	1.7	3.4	59.3	543	2.6	1.1	1.5	2.7				

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	0.63	8.2	0.33	42.2	0.24	2.3	0.34	0.37	0.34	0.28
2	4.6	2.8	2.0	3.1	5.2	3.6	4.2	1.7	2.2	3.7
3	0.50	1.1	1.0	1.6	0.95	1.2	1.0	1.5	2.7	2.6
4	0.02	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.03	0.01	0.00	0.02
5	2.6	0.96	0.92	3.9	0.82	1.3	1.1	1.6	1.3	1.8
6	0.20	0.13	0.26	0.36	0.24	0.21	0.51	0.40	0.61	0.07
7	1.2	0.41	0.13	1.4	1.2	0.54	0.84	0.47	0.42	0.31
8	3.0	4.2	0.98	4.3	1.2	2.0	1.4	1.6	4.7	9.1
9	0.57	8.9	1.4	1.1	1.2	1.2	2.7	7.7	0.51	0.54
10	1.4	1.5	0.55	0.92	1.3	1.1	1.3	2.1	0.70	3.5
11	1.1	2.0	1.9	0.8	2.3	3.1	2.6	0.8	0.38	0.45
12	0.22	0.24	0.06	0.10	0.09	0.11	0.13	0.18	0.10	0.12
13	1.5	1.8	2.7	3.9	4.1	3.4	5.0	1.6	9.5	4.9
14	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
総和	17.6	32.2	12.2	63.7	18.8	20.0	21.3	20.1	23.5	27.4

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	0.36	0.43	0.35	1.0	0.30	0.48	0.38	0.40	0.28	0.66
2	1.3	2.8	0.84	1.6	1.9	2.6	1.4	2.1	1.9	4.5
3	0.14	0.40	0.74	0.44	0.49	0.62	0.95	0.43	0.77	0.82
4	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
5	0.94	0.94	1.0	1.1	0.8	0.58	0.59	0.71	0.97	0.95
6	0.33	0.59	0.89	0.28	0.20	0.21	0.35	0.36	0.45	0.46
7	0.68	0.63	0.43	0.43	0.79	0.48	0.58	0.48	0.43	0.54
8	1.9	0.77	1.6	1.2	1.0	1.3	1.3	0.87	0.76	1.6
9	1.1	1.9	0.66	0.92	1.4	1.1	1.3	1.8	0.37	0.44
10	0.33	1.9	0.76	0.70	0.40	1.1	1.7	0.84	0.54	0.73
11	0.25	0.22	0.11	0.15	0.14	0.21	0.22	0.21	0.15	0.19
12	0.16	0.05	0.06	0.05	0.04	0.04	0.05	0.06	0.08	0.04
13	0.70	1.1	1.4	1.5	1.2	1.3	2.4	1.4	0.61	0.67
14	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00
総和	8.2	11.8	8.9	9.3	8.7	10.0	11.2	9.8	7.3	11.6

μg/man/day

表 1-14 コバルトの地域・食品群別摂取量

TD試料(群)	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J
1	96.8	93.9	86.4	51.7	63.4	95.9	128	89.1	99.1	128
2	12.4	9.2	24.9	13.0	12.2	17.2	12.3	10.3	10.8	9.4
3	2.6	5.4	4.4	5.5	3.7	4.2	3.1	3.7	2.0	4.9
4	0.03	0.03	0.05	0.02	0.03	0.02	0.06	0.02	0.03	0.03
5	31.7	39.1	32.2	46.5	77.0	39.6	37.1	31.7	54.9	73.3
6	0.63	2.0	1.5	3.0	0.62	2.1	0.89	2.3	1.6	1.0
7	7.5	4.2	3.5	6.8	4.3	3.9	3.3	4.1	4.0	5.1
8	9.8	7.9	13.3	14.1	11.8	10.6	15.0	10.8	7.6	9.9
9	0.56	4.1	1.3	0.82	0.72	1.0	1.1	1.6	0.94	0.39
10	0.50	0.54	0.66	0.52	0.38	2.0	0.99	0.77	0.57	0.91
11	3.5	6.3	4.5	3.9	5.4	11.2	6.2	3.7	2.6	4.8
12	6.1	5.3	5.1	5.4	5.2	5.2	5.2	4.4	4.5	5.8
13	19.1	21.1	35.5	40.9	30.6	32.7	20.1	22.1	18.6	34.2
14	0.00	0.11	0.11	0.09	0.00	0.12	0.13	0.00	0.07	0.00
総和	191	199	213	192	216	226	234	185	207	278

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	0.24	0.32	0.24	0.15	0.21	0.32	0.18	0.61	0.75	0.80
2	0.02	0.01	0.01	0.01	0.02	0.01	0.01	0.01	0.02	0.01
3	0.00	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	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	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
6	0.01	0.01	0.00	0.01	0.00	0.01	0.01	0.00	0.00	0.01
7	0.01	0.02	0.03	0.02	0.02	0.02	0.01	0.02	0.01	0.01
8	0.02	0.01	0.05	0.04	0.02	0.06	0.03	0.05	0.02	0.04
9	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
10	4.5	6.1	3.9	9.2	8.3	6.7	6.2	5.8	4.5	3.8
11	0.06	0.13	0.05	0.05	0.08	0.05	0.14	0.10	0.03	0.08
12	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
13	0.02	0.04	0.01	0.09	0.01	0.01	0.02	0.01	0.01	0.03
14	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
総和	4.9	6.6	4.3	9.6	8.7	7.2	6.7	6.7	5.3	4.8

µg/man/day

表 1-16 総水銀の地域・食品群別摂取量

有害元素	摂取量 (µg/man/day)														総和
	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	
B	53.2	95.7	35.1	0.15	201	202	170	304	144	34.7	12.5	23.7	185	14.5	1474
Al	5.9	280	175	1.3	79.6	35.5	111	239	655	326	82.7	14.6	232	4.4	2242
Ni	30.4	15.1	6.3	0.01	15.2	6.3	6.9	15.0	14.8	2.8	1.4	0.48	22.0	1.6	138
Se	3.4	12.0	1.5	0.09	2.7	0.23	0.27	1.4	1.1	32.3	30.6	3.6	5.3	0.00	94.4
Cd	7.3	2.2	0.48	0.00	0.87	0.09	1.8	3.1	0.12	2.1	0.07	0.00	0.90	0.00	19.1
Sb	0.01	0.09	0.12	0.00	0.02	0.01	0.01	0.08	0.22	0.10	0.11	0.05	0.08	0.02	0.93
Ba	10.8	100	14.6	0.19	54.0	36.4	43.2	92.8	14.3	8.8	17.6	10.7	54.7	2.0	460
U	0.00	0.04	0.01	0.00	0.04	0.00	0.03	1.1	0.03	0.19	0.03	0.01	0.03	0.00	1.52

元素	摂取量 (µg/man/day)														総和
	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	
total As	13.8	0.88	0.30	0.05	0.27	0.14	0.14	72.6	0.39	134	0.73	0.07	6.4	0.08	230
iAs	12.4	0.63	0.17	0.00	0.10	0.10	0.10	2.2	0.30	0.11	0.07	0.02	0.53	0.08	16.8
total Hg	0.38	0.01	0.01	0.00	0.00	0.01	0.02	0.03	0.00	5.9	0.07	0.00	0.02	0.00	6.5
Pb	2.36	1.3	0.18	0.00	0.31	0.34	0.50	1.9	1.1	0.72	0.15	0.56	0.47	0.19	10.1
Sn	0.090	0.23	5.7	0.01	0.54	0.09	0.00	53.8	0.15	0.84	0.25	0.00	0.83	0.00	62.6
Cr	5.5	3.3	1.4	0.01	1.6	0.30	0.69	3.2	2.6	1.4	1.5	0.13	3.8	0.00	25.7
Co	0.46	2.1	0.58	0.00	0.86	0.41	0.55	1.2	1.1	0.90	0.18	0.06	1.2	0.00	9.7
Mo	93.2	13.2	4.0	0.03	46.3	1.6	4.7	11.1	1.2	0.79	5.2	5.2	27.5	0.06	214

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ぞれの総和；全国摂取量_{ave.})

TD試料(群)	地域										平均値
	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J	
10	4.3	6.0	3.7	9.2	8.2	6.5	5.9	5.9	4.4	3.5	5.8
11	0.00	0.11	0.00	0.00	0.00	0.00	0.08	0.09	0.00	0.00	0.0
総和	4.3	6.1	3.7	9.2	8.2	6.5	6.0	6.0	4.4	3.5	5.8

µg/man/day

表 3 10 群及び、11 群試料の分析値に基づくメチル水銀の全国・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_{ave.})

	TDI (μg/man/day)	摂取量 (μg/man/day)	対TDI比(%)
B	4800	1474	31
Al	14286	2242	16
Ni	200	138	69
Se	200	94	47
Cd	50	19	38
Sb	300	0.9	0.3
Ba	1000	460	46
U	10	1.5	15
MeHg	11.43	5.8	51
Pb	-	10.1	-
total As	-	230	-
iAs	-	17	-
total Hg	-	6.5	-
Sn	-	63	-
Cr	-	26	-
Co	-	9.7	-
Mo	-	214	-

表4 全国摂取量_{ave.}の対TDI比 (2018年)

TD試料(群)	摂取量 (µg/man/day)				Average	SD	RSD%
	March	August	October	December			
1	73.4	56.5	43.6	47.1	55	13	24
2	101	117	105	95.2	104.5	9.2	8.8
3	26.4	27.4	27.2	30.8	28.0	2.0	7.0
4	0.095	0.466	0.333	0.363	0.31	0.16	50
5	222	212	216	215	216.3	4.6	2.1
6	160	159	175	217	178	27	15
7	178	226	165	170	185	28	15
8	144	259	233	228	216	50	23
9	140	153	137	146	144.2	7.1	4.9
10	46.9	45.9	40.7	44.4	44.5	2.7	6.1
11	11.3	12.0	11.7	11.6	11.64	0.31	2.7
12	28.6	33.0	22.7	26.2	28	4.3	16
13	217	243	239	227	231	12	5.3
14	16.9	5.4	12.8	6.9	10.5	5.4	51
総和	1366	1550	1430	1466	1453	77	5.3

表 5-1 1 地域におけるホウ素摂取量の季節変動

TD試料(群)	摂取量 (µg/man/day)				Average	SD	RSD%
	March	August	October	December			
1	8.7	0.00	8.6	0.00	4.3	5.0	115
2	88.5	133	94.1	128	111	23	21
3	27.6	26.7	29.2	27.7	27.8	1.0	3.7
4	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	
5	37.2	139	32.4	24.6	58	54	93
6	16.0	15.3	4.3	8.5	11.0	5.6	51
7	224	172	97.3	404	224	131	58
8	184	87.8	35.2	139	111	64	58
9	656	1286	638	612	798	326	41
10	234	81.6	187	190	173	65	37
11	66.2	94.8	87.8	62.8	78	16	20
12	27.2	99.7	22.8	25.7	44	37	85
13	401	442	352	388	396	37	9.4
14	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	
総和	1970	2578	1588	2011	2037	408.2	20

表 5-2 1 地域におけるアルミニウム摂取量の季節変動

TD試料(群)	摂取量 (µg/man/day)				Average	SD	RSD%
	March	August	October	December			
1	18.9	18.8	15.1	19.2	18.0	2.0	11
2	9.9	11.2	9.5	7.2	9.4	1.7	18
3	6.2	6.3	7.3	6.6	6.57	0.50	7.6
4	0.02	0.01	0.00	0.03	0.014	0.013	88
5	40.4	42.0	33.5	43.9	39.9	4.5	11
6	1.1	6.6	6.8	18.7	8.3	7.4	90
7	6.5	3.2	3.0	25.1	9	11	112
8	7.0	4.4	7.9	7.2	6.6	1.6	23
9	8.4	10.3	8.4	8.2	8.8	1.0	11
10	2.8	2.4	2.2	3.1	2.60	0.38	15
11	0.57	0.73	0.59	0.67	0.64	0.07	11
12	0.22	0.11	0.15	0.17	0.164	0.045	27
13	21.6	25.9	25.0	21.9	23.6	2.2	9.2
14	0.00	0.00	0.25	0.25	0.12	0.14	116
総和	123	132	120	162	134	19	14

表 5-3 1 地域におけるニッケル素摂取量の季節変動

TD試料(群)	摂取量 (µg/man/day)				Average	SD	RSD%
	March	August	October	December			
1	3.7	2.5	2.8	3.2	3.03	0.51	17
2	15.4	16.5	17.5	21.8	17.8	2.8	16
3	1.4	1.5	1.7	1.2	1.46	0.21	15
4	0.06	0.11	0.08	0.10	0.086	0.022	26
5	1.2	2.3	1.0	2.2	1.67	0.67	40
6	0.43	0.13	0.00	0.10	0.17	0.19	113
7	0.21	0.39	0.11	0.15	0.21	0.12	58
8	0.47	1.1	1.1	0.57	0.80	0.33	41
9	0.00	0.62	0.00	0.00	0.15	0.31	200
10	29.4	28.8	30.4	30.2	29.72	0.77	2.6
11	30.1	30.2	29.6	29.5	29.85	0.32	1.1
12	3.1	3.2	3.3	2.9	3.12	0.15	4.8
13	6.1	7.3	8.4	6.9	7.2	1.0	13
14	0.23	0.00	0.27	0.00	0.12	0.14	116
総和	91.7	94.6	96.3	99.0	95.4	3.1	3.2

表 5-4 1 地域におけるセレン素摂取量の季節変動

TD試料(群)	摂取量 (µg/man/day)				Average	SD	RSD%
	March	August	October	December			
1	9.9	12.4	8.8	5.5	9.2	2.9	31
2	2.4	2.4	2.5	2.6	2.46	0.10	4.0
3	0.38	0.49	0.37	0.42	0.41	0.06	14
4	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	200
5	1.1	0.87	0.71	0.84	0.89	0.18	20
6	0.14	0.09	0.06	0.10	0.099	0.031	31
7	1.9	1.6	0.97	0.72	1.30	0.55	42
8	2.4	3.3	2.8	2.5	2.76	0.43	15
9	0.03	0.00	0.03	0.02	0.020	0.014	73
10	1.0	0.74	3.2	0.91	1.5	1.2	79
11	0.08	0.04	0.11	0.11	0.086	0.033	38
12	0.00	0.00	0.00	0.00	0.0008	0.0015	200
13	0.91	0.92	0.96	0.96	0.939	0.027	2.9
14	0.0	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	
総和	20.3	22.9	20.6	14.7	19.6	3.5	18

表 5-5 1 地域におけるカドミウム摂取量の季節変動

TD試料(群)	摂取量 (µg/man/day)				Average	SD	RSD%
	March	August	October	December			
1	0.06	0.10	0.06	0.07	0.073	0.017	23
2	0.08	0.11	0.08	0.08	0.086	0.019	22
3	0.03	0.03	0.03	0.03	0.031	0.002	7.3
4	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	
6	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	
8	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	
9	0.25	0.38	0.82	0.27	0.43	0.27	62
10	0.05	0.07	0.07	0.05	0.059	0.009	15
11	0.03	0.06	0.09	0.20	0.093	0.075	81
12	0.00	0.03	0.00	0.00	0.008	0.016	200
13	0.08	0.00	0.08	0.07	0.058	0.039	67
14	0.00	0.05	0.00	0.00	0.012	0.025	200
総和	0.58	0.84	1.2	0.77	0.85	0.27	32

表 5-6 1 地域におけるアンチモン摂取量の季節変動

TD試料(群)	摂取量 (µg/man/day)				Average	SD	RSD%
	March	August	October	December			
1	20.9	18.8	16.4	19.3	18.9	1.8	10
2	72.5	76.1	82.1	95.7	82	10	13
3	16.3	13.5	17.6	15.1	15.6	1.8	11
4	0.77	0.46	1.1	0.56	0.73	0.29	40
5	53.5	62.2	40.1	64.9	55	11	20
6	31.4	18.2	22.0	62.7	34	20	60
7	104	110	63.5	34.9	78	35	45
8	65.7	92.5	41.4	112	78	31	39
9	20.0	22.9	19.9	19.4	20.5	1.6	7.7
10	7.0	4.0	6.9	5.9	5.9	1.4	24
11	13.0	14.7	14.4	14.8	14.22	0.82	5.7
12	11.0	12.6	9.2	12.0	11.2	1.5	13
13	80.7	72.4	78.6	82.8	78.6	4.5	5.7
14	1.7	1.7	2.1	1.47	1.74	0.27	15
総和	499	520	415	541	494	55	11

表 5-7 1 地域におけるバリウム摂取量の季節変動

TD試料(群)	摂取量 (µg/man/day)				Average	SD	RSD%
	March	August	October	December			
1	0.19	0.14	0.23	0.12	0.167	0.048	29
2	0.28	0.77	0.30	0.31	0.42	0.24	57
3	0.06	0.05	0.06	0.06	0.0598	0.0048	8.1
4	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	
5	0.09	0.44	0.05	0.09	0.17	0.19	112
6	0.00	0.00	0.05	0.10	0.039	0.049	127
7	0.25	0.25	0.20	0.38	0.271	0.078	29
8	0.54	0.45	0.46	1.4	0.72	0.47	65
9	0.86	0.94	0.83	0.81	0.858	0.056	6.5
10	0.46	0.19	0.29	0.32	0.31	0.11	36
11	0.15	0.05	0.09	0.21	0.123	0.069	56
12	0.00	0.15	0.00	0.00	0.037	0.073	200
13	0.49	0.49	0.45	0.55	0.494	0.039	7.9
14	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	
総和	3.4	3.9	3.0	4.4	3.66	0.60	16

表 5-8 1 地域における鉛摂取量の季節変動

TD試料(群)	摂取量 (μg/man/day)				Average	SD	RSD%
	March	August	October	December			
1	0.000	0.000	0.000	0.000	0.00	0.00	
2	0.065	0.047	0.040	0.062	0.053	0.012	23
3	0.004	0.004	0.004	0.004	0.00	0.00	6.8
4	0.000	0.000	0.000	0.000	0.00	0.00	
5	0.014	0.074	0.014	0.010	0.028	0.031	110
6	0.000	0.002	0.000	0.000	0.00	0.00	200
7	0.009	0.010	0.007	0.015	0.01	0.00	33
8	2.2	0.62	1.5	0.39	1.16	0.82	71
9	0.042	0.045	0.044	0.038	0.04	0.00	6.6
10	0.157	0.122	0.259	0.172	0.177	0.058	33
11	0.025	0.014	0.021	0.015	0.019	0.005	28
12	0.002	0.014	0.013	0.004	0.008	0.006	73
13	0.034	0.058	0.033	0.032	0.039	0.012	32
14	0.000	0.0000	0.0000	0.0000	0.00	0.00	
総和	2.5	1.0	1.9	0.74	1.55	0.83	53

表 5-9 1 地域におけるウラン摂取量の季節変動

TD試料(群)	摂取量 (μg/man/day)				Average	SD	RSD%
	March	August	October	December			
1	14.4	15.5	15.7	10.9	14.1	2.2	16
2	1.3	0.95	0.51	1.2	1.00	0.36	36
3	0.07	0.14	0.13	0.07	0.102	0.038	37
4	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	135
5	0.17	0.22	0.24	0.21	0.210	0.030	14
6	0.28	0.13	0.20	0.05	0.16	0.10	60
7	0.09	0.10	0.07	0.10	0.088	0.016	18
8	136	132	108	116	123	13	11
9	0.12	0.20	0.17	0.13	0.156	0.038	24
10	129	157	118	152	139	19	14
11	0.38	1.0	0.33	0.32	0.51	0.34	67
12	0.00	0.05	0.00	0.00	0.011	0.023	200
13	6.4	8.5	7.6	6.6	7.3	0.98	13
14	0.05	0.09	0.04	0.00	0.045	0.037	80
総和	288	316	251	288	286	27	9.4

表 5-10 1 地域における総ヒ素摂取量の季節変動

TD試料(群)	摂取量 (µg/man/day)				Average	SD	RSD%
	March	August	October	December			
1	14.8	10.3	14.4	11.2	12.7	2.2	18
2	0.62	0.31	0.34	0.39	0.42	0.14	34
3	0.06	0.17	0.08	0.07	0.096	0.051	53
4	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	73
5	0.09	0.15	0.18	0.08	0.123	0.048	39
6	0.39	0.17	0.14	0.11	0.20	0.13	64
7	0.11	0.09	0.11	0.16	0.116	0.030	26
8	2.3	2.3	2.4	1.9	2.21	0.21	9.4
9	0.00	0.33	0.00	0.00	0.08	0.17	200
10	0.30	0.10	0.15	0.19	0.183	0.084	46
11	0.06	0.26	0.04	0.04	0.10	0.11	104
12	0.00	0.08	0.00	0.00	0.021	0.042	200
13	1.4	2.8	1.5	1.5	1.79	0.66	37
14	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	
総和	20.2	17.1	19.3	15.6	18.0	2.1	11

表 5-11 1 地域における無機ヒ素摂取量の季節変動

TD試料(群)	摂取量 (µg/man/day)				Average	SD	RSD%
	March	August	October	December			
1	0.99	0.00	0.00	0.00	0.25	0.49	200
2	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	
3	0.00	0.00	0.00	0.06	0.015	0.029	200
4	0.12	0.00	0.00	0.00	0.029	0.059	200
5	0.00	0.25	0.00	0.00	0.06	0.13	200
6	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	
8	3044	0.00	0.00	0.00	761	1522	200
9	0.00	0.00	3.95	0.00	1.0	2.0	200
10	0.30	0.14	0.00	0.00	0.11	0.14	131
11	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	
12	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	
13	0.00	0.25	0.47	0.24	0.24	0.19	81
14	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	
総和	3045	0.64	4.4	0.30	763	1522	200

表 5-12 1 地域におけるスズ摂取量の季節変動

TD試料(群)	摂取量 (µg/man/day)				Average	SD	RSD%
	March	August	October	December			
1	0.24	0.31	0.30	0.15	0.249	0.071	28
2	1.7	3.0	1.4	1.6	1.90	0.72	38
3	1.1	1.3	1.5	1.2	1.27	0.17	13
4	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.00	26
5	0.78	2.1	0.82	0.70	1.09	0.65	60
6	0.13	0.37	0.23	0.23	0.24	0.10	43
7	0.29	0.60	0.24	0.64	0.44	0.21	47
8	0.92	0.82	0.46	0.37	0.64	0.27	41
9	0.59	2.2	0.44	0.59	0.96	0.83	87
10	0.75	0.74	0.59	1.3	0.84	0.30	36
11	1.7	6.1	1.4	1.5	2.7	2.3	87
12	0.18	0.22	0.10	0.10	0.152	0.060	40
13	2.7	2.9	2.5	2.7	2.73	0.18	6.6
14	0.0	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	
総和	11.0	20.7	9.9	11.1	13.2	5.0	38

表 5-13 1 地域におけるクロム摂取量の季節変動

TD試料(群)	摂取量 (µg/man/day)				Average	SD	RSD%
	March	August	October	December			
1	0.45	0.37	0.31	0.39	0.382	0.056	15
2	0.79	0.98	0.78	0.91	0.86	0.10	11
3	0.60	0.75	0.54	0.57	0.612	0.093	15
4	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	82
5	1.1	1.1	0.85	1.0	1.02	0.12	12
6	0.24	0.71	0.83	0.36	0.53	0.28	53
7	0.65	0.62	0.80	0.61	0.67	0.088	13
8	1.0	1.2	1.4	1.2	1.19	0.15	12
9	0.92	0.98	0.93	0.97	0.949	0.030	3.2
10	1.1	0.70	1.5	0.99	1.08	0.35	33
11	0.15	0.19	0.15	0.13	0.155	0.027	17
12	0.05	0.05	0.05	0.07	0.055	0.008	14
13	1.4	1.3	1.5	1.2	1.35	0.12	8.9
14	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	
総和	8.4	9.0	9.7	8.4	8.85	0.60	6.8

表 5-14 1 地域におけるコバルト摂取量の季節変動

TD試料(群)	摂取量 (µg/man/day)				Average	SD	RSD%
	March	August	October	December			
1	95.6	62.0	79.8	64.5	75	16	21
2	14.3	13.1	12.6	14.6	13.63	0.93	6.8
3	2.5	4.7	4.4	2.8	3.6	1.1	30
4	0.00	0.06	0.02	0.02	0.025	0.026	103
5	35.4	36.0	31.5	31.8	33.7	2.3	7.0
6	0.91	1.5	0.83	2.1	1.34	0.59	44
7	4.2	4.0	3.8	5.3	4.32	0.64	15
8	5.8	11.3	11.6	9.2	9.5	2.7	28
9	1.4	1.2	4.0	1.3	2.0	1.3	68
10	0.95	0.80	0.56	0.93	0.81	0.18	22
11	4.9	7.8	4.4	3.8	5.2	1.8	34
12	5.1	5.4	4.6	5.4	5.11	0.37	7.1
13	30.2	37.5	37.9	41.6	36.8	4.8	13
14	0.21	0.15	0.22	0.12	0.175	0.048	28
総和	201	186	196	183	192	8.6	4.5

表 5-15 1 地域におけるモリブデン摂取量の季節変動

TD試料(群)	摂取量 (µg/man/day)				Average	SD	RSD%
	March	August	October	December			
1	0.16	0.27	0.27	0.30	0.249	0.062	25
2	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.00	42
3	0.01	0.01	0.02	0.01	0.01	0.00	30
4	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	
5	0.01	0.01	0.00	0.00	0.01	0.00	31
6	0.00	0.01	0.01	0.01	0.01	0.00	29
7	0.01	0.03	0.01	0.03	0.02	0.01	42
8	0.03	0.04	0.03	0.10	0.05	0.03	64
9	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	200
10	4.8	3.9	3.6	6.2	4.6	1.2	25
11	0.09	0.50	0.18	0.14	0.23	0.19	81
12	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	200
13	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.00	4.8
14	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	200
総和	5.1	4.8	4.1	6.8	5.2	1.1	22

表 5-16 1 地域における総水銀摂取量の季節変動

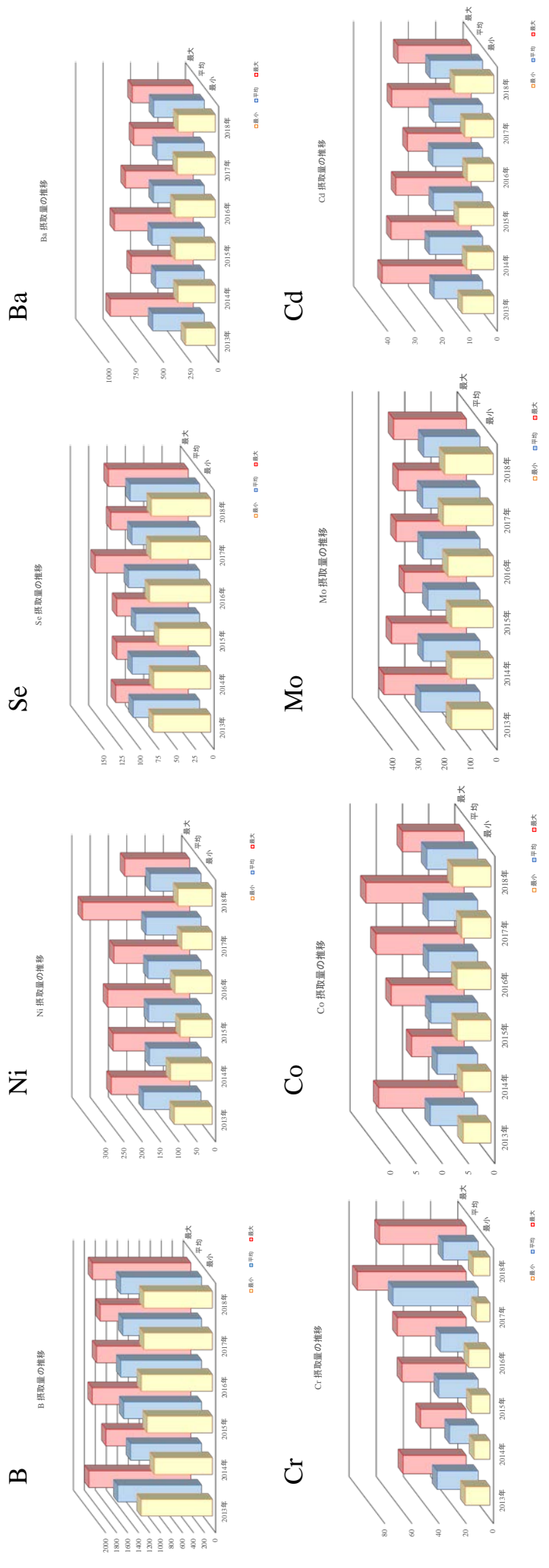


図 1-1 元素類摂取量の推移(2013-2018)―摂取量変動の小さな元素；ホウ素、ニッケル、セレン、バリウム、クロム、コバルト、モリブデン、カドミウム

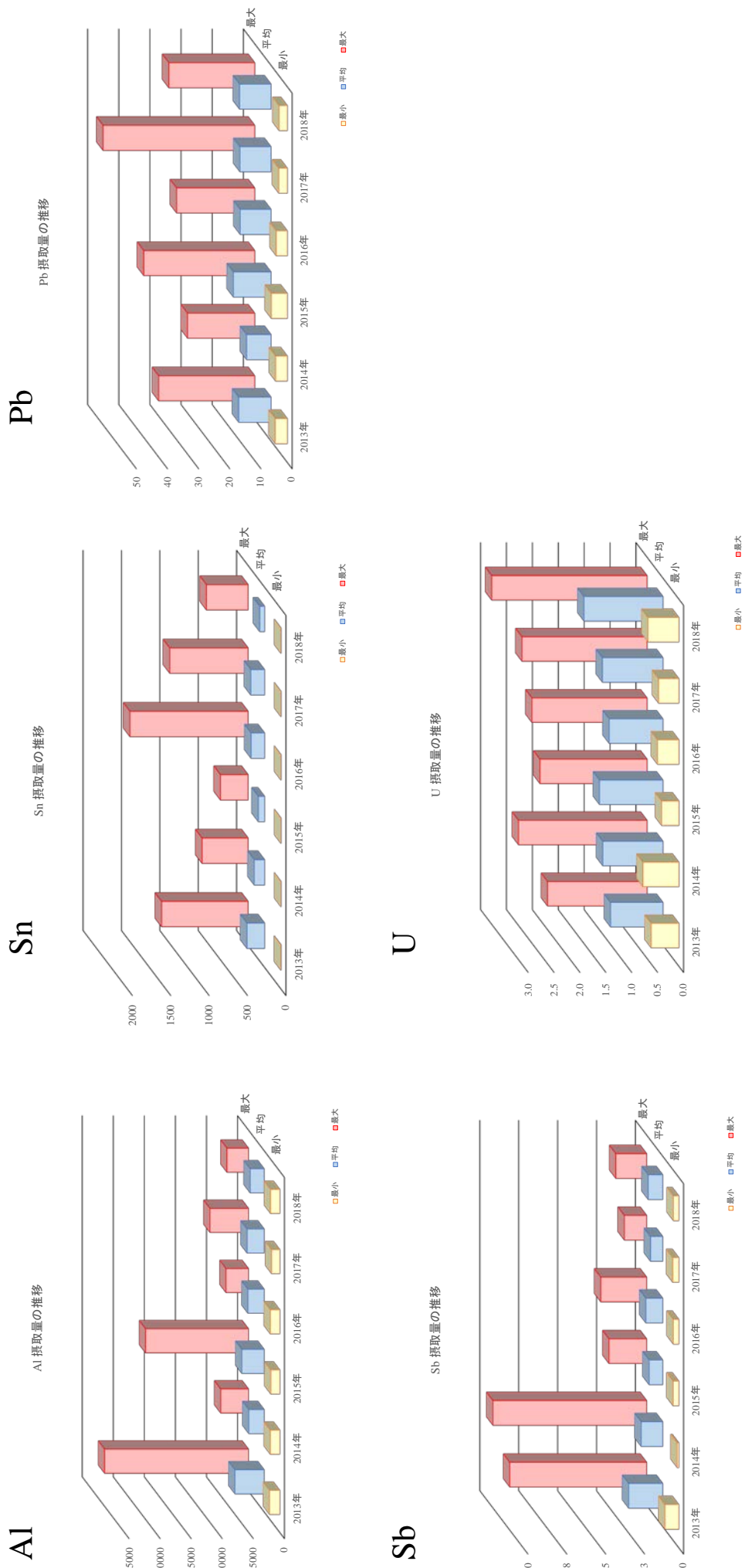


図 1-2 元素類摂取量の推移(2013-2018)摂取量変動の比較的大きな元素；アルミニウム、スズ、鉛、アンチモン、ウラン

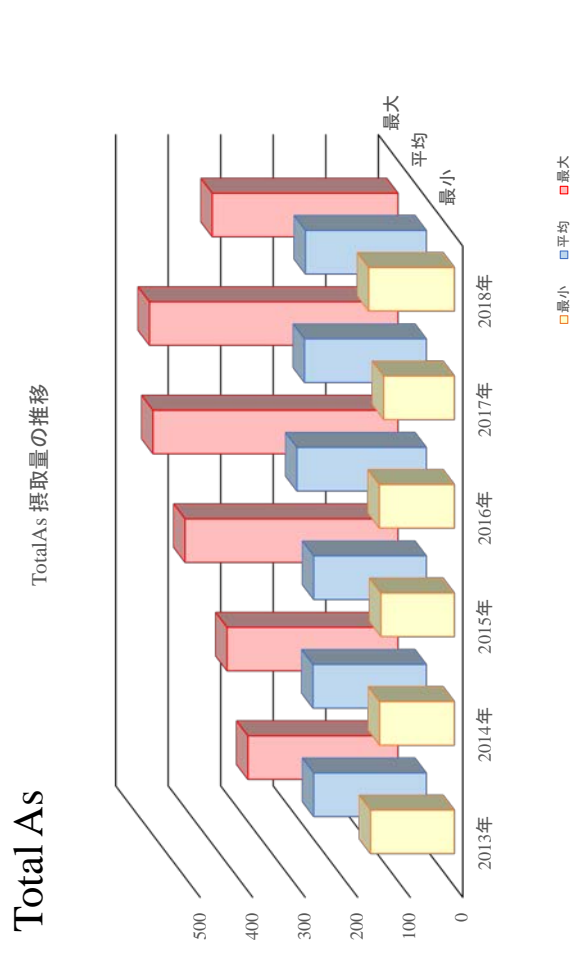
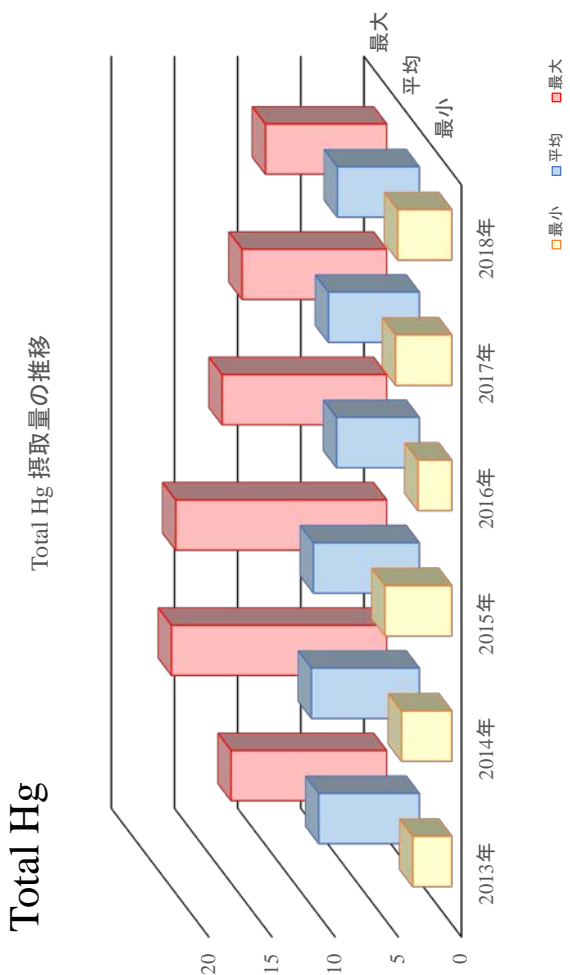
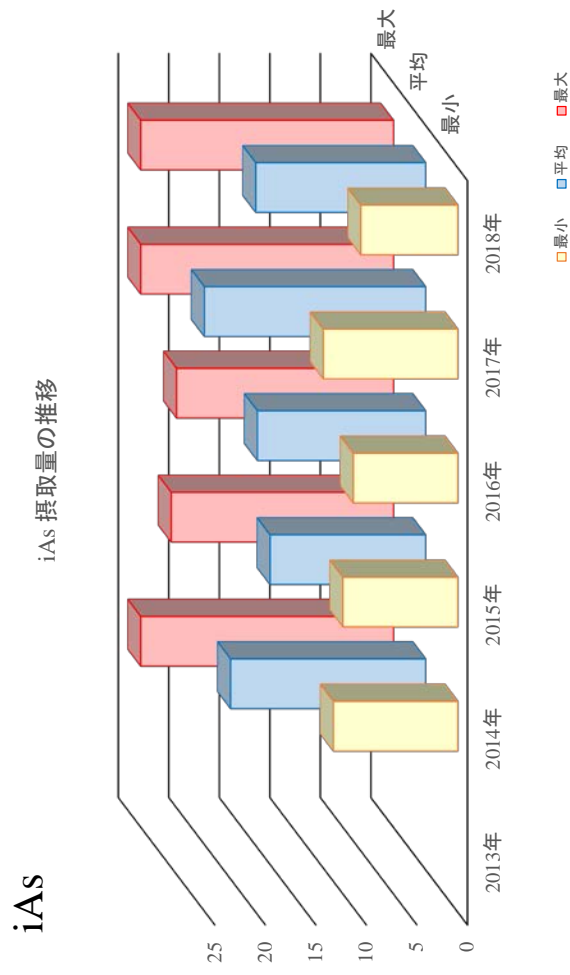
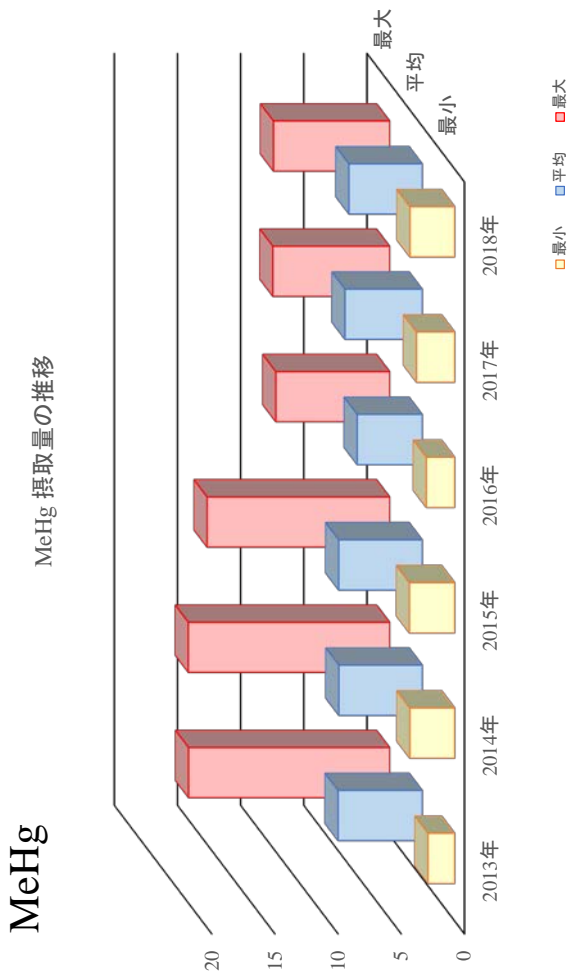


図 1-3 元素類摂取量の推移(2013-2018)－総水銀、メチル水銀、総ヒ素、無機ヒ素

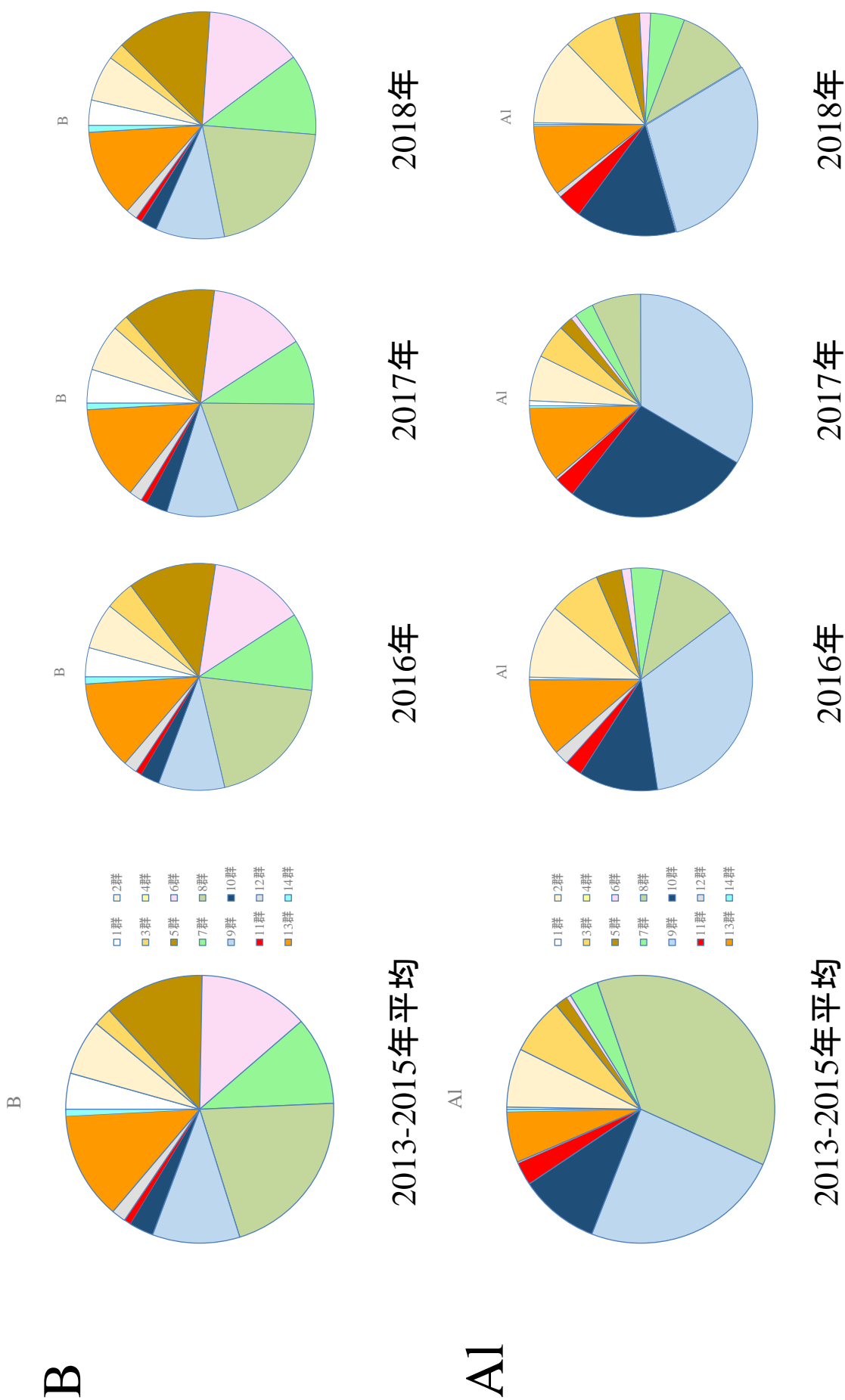


図 2-1 各元素の総摂取量に対する各群摂取量の寄与率（ホウ素とアルミニウム）

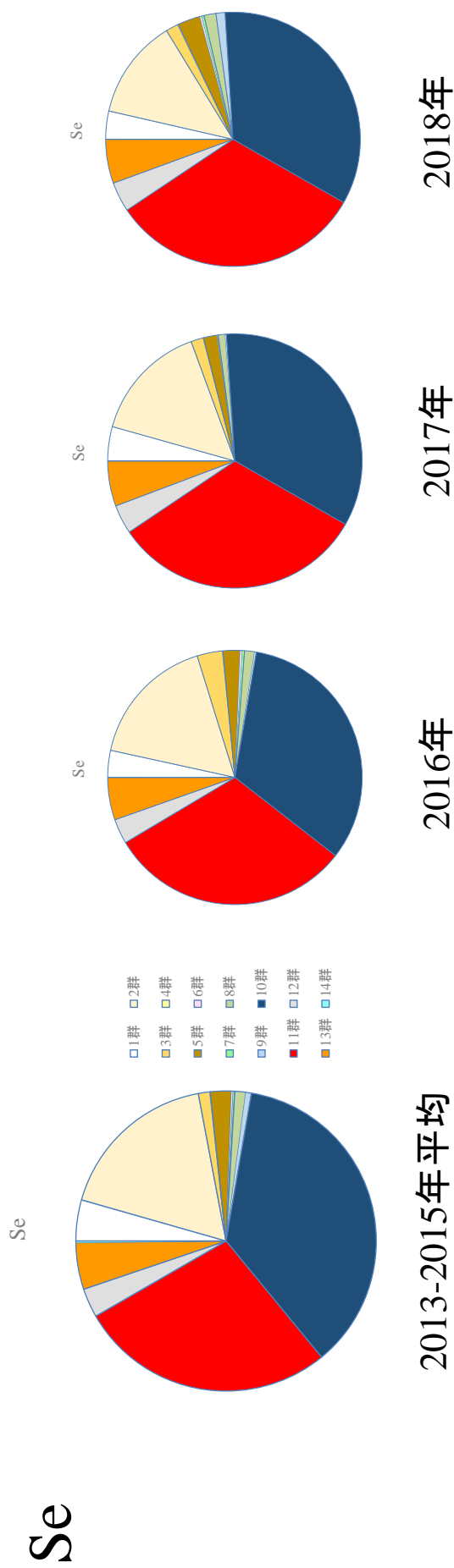
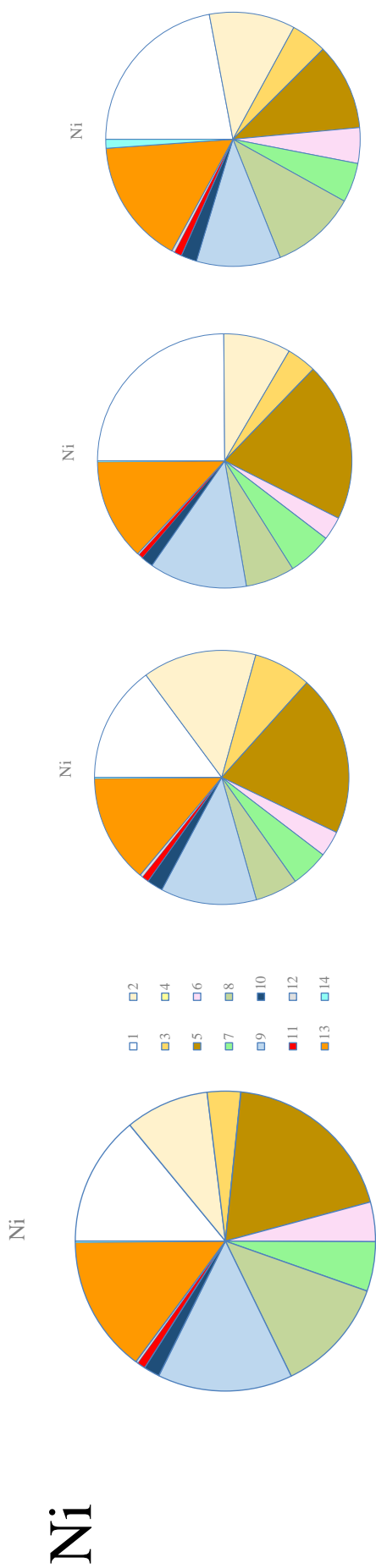
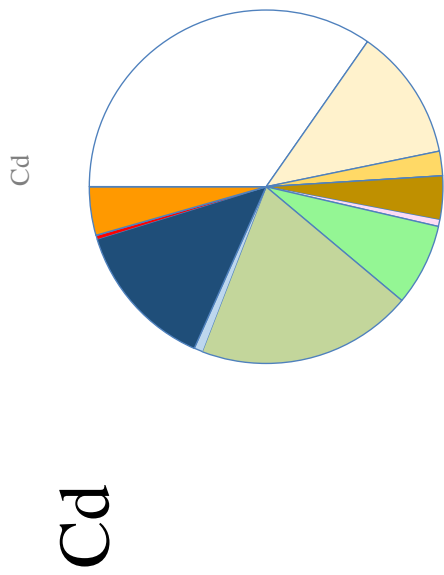
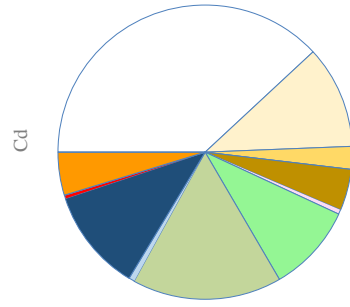
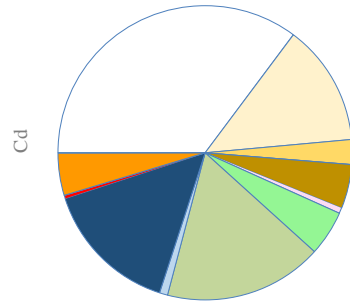
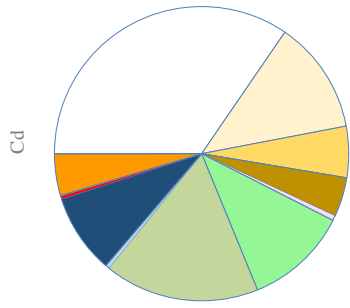


図 2-2 各元素の総摂取量に対する各群摂取量の寄与率（ニッケルとセレン）



- 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

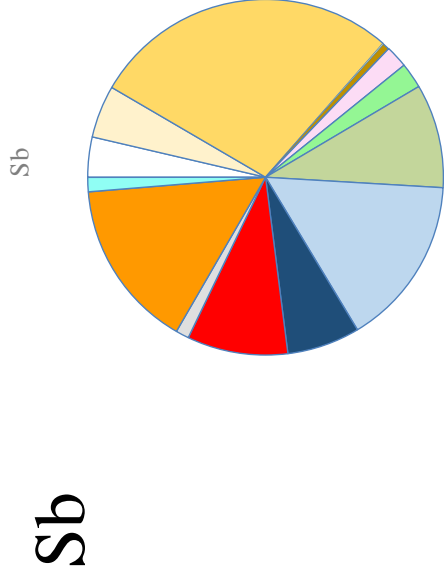


2013-2015年平均

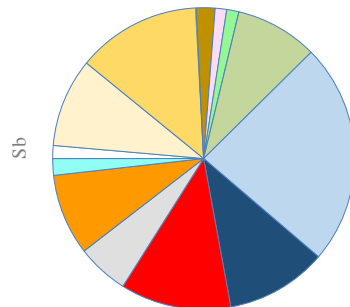
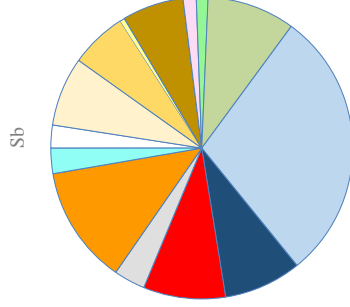
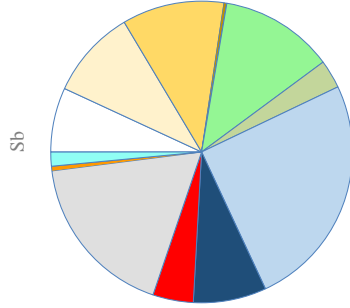
2016年

2017年

2018年



- 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



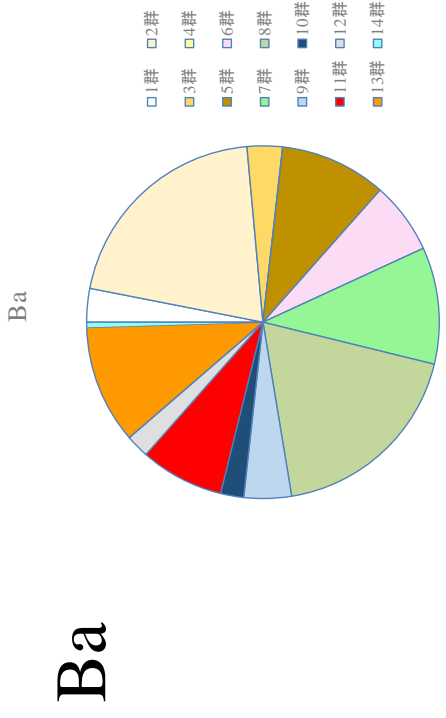
2013-2015年平均

2016年

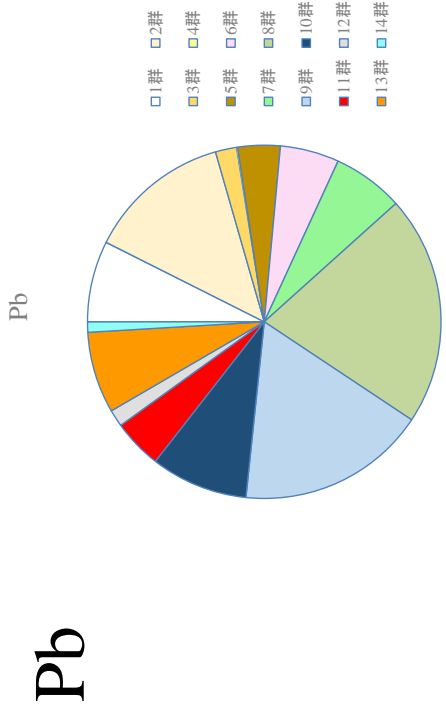
2017年

2018年

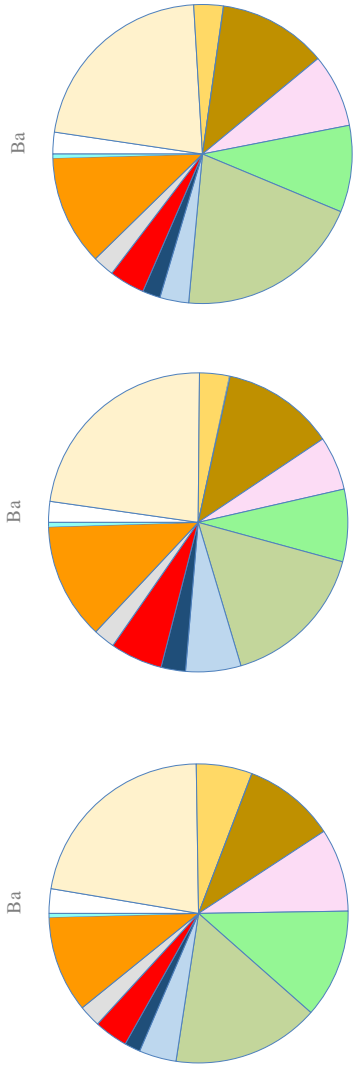
図 2-3 各元素の総摂取量に対する各群摂取量の寄与率 (カドミウムとアンチモン)



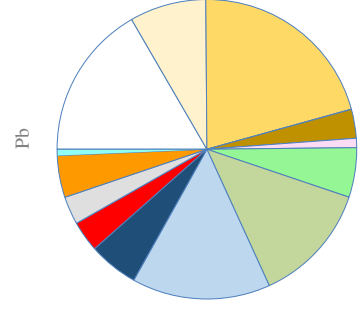
2013-2015年平均



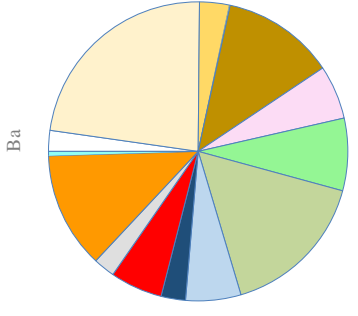
2013-2015年平均



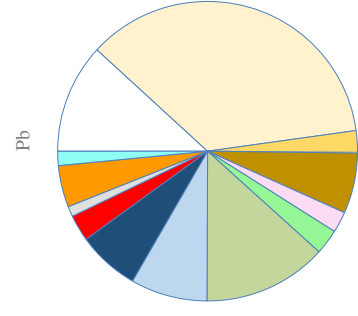
2016年



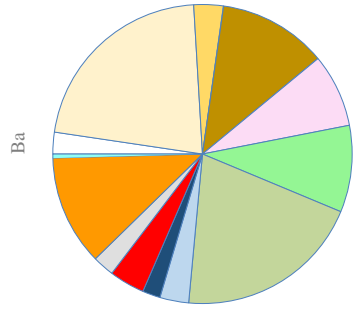
2016年



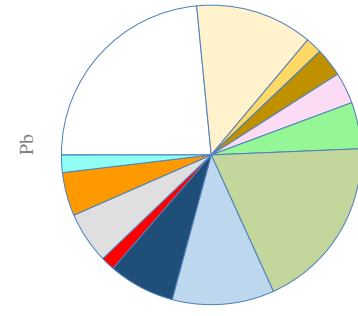
2017年



2017年



2018年



2018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）

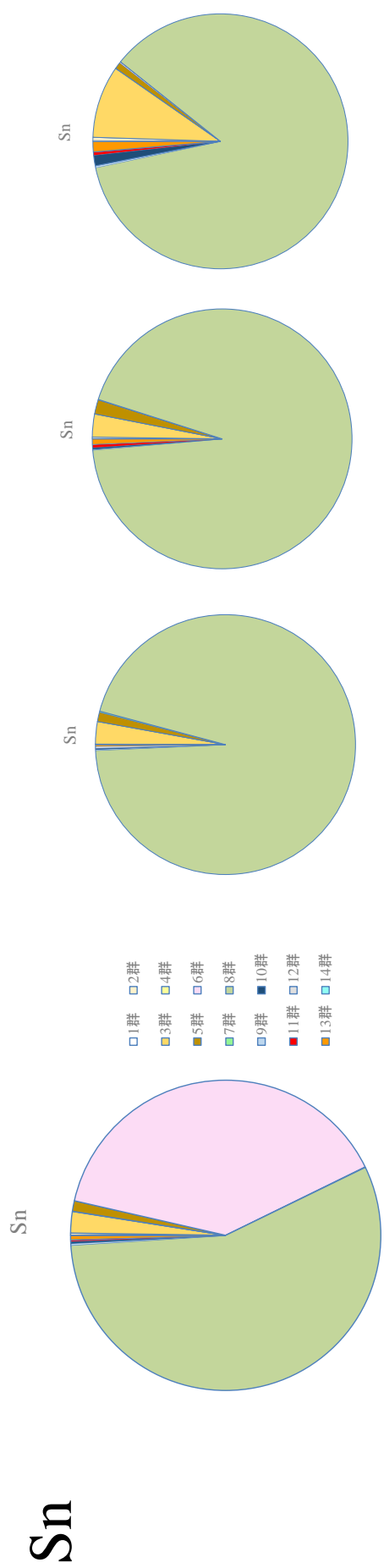
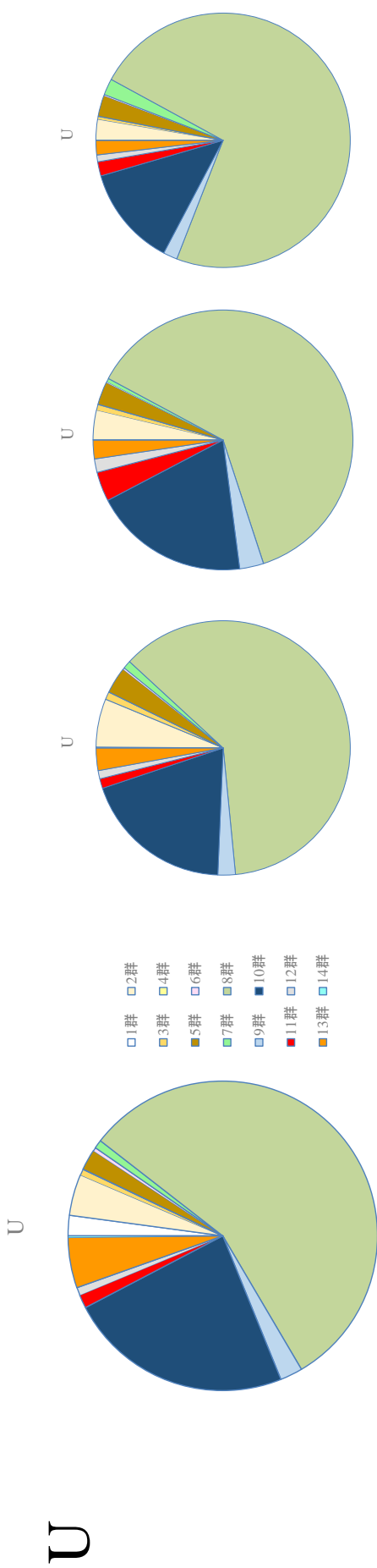
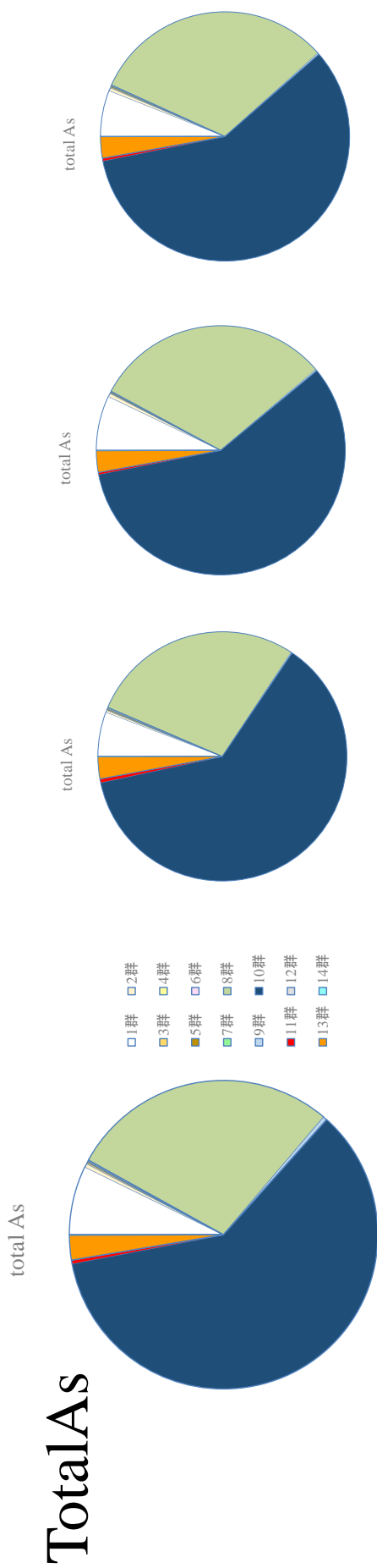
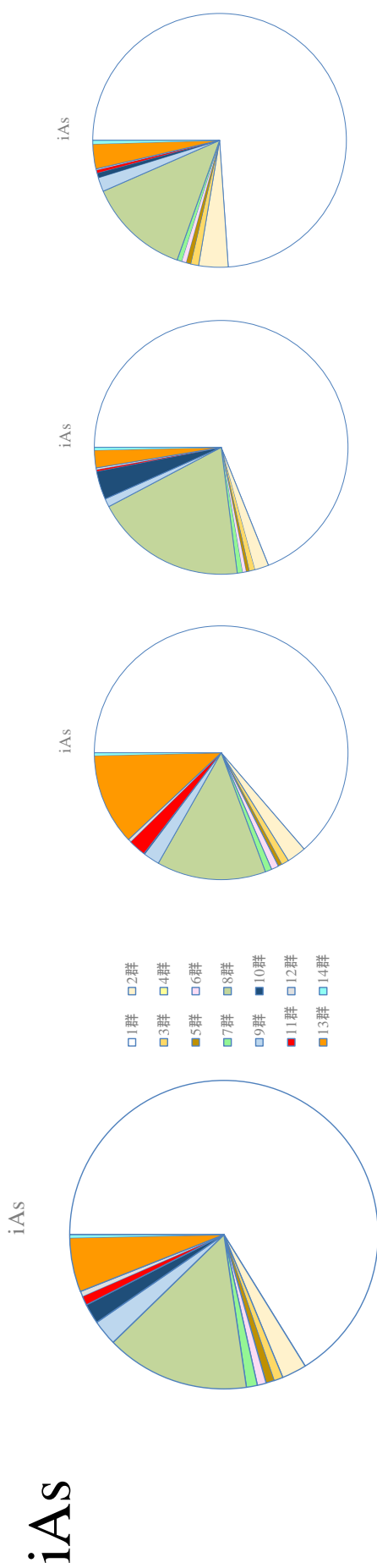


図 2-5 各元素の総摂取量に対する各群摂取量の寄与率 (ウランとスズ)



2013-2015年平均 2016年 2017年 2018年



2013-2015年平均 2016年 2017年 2018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)

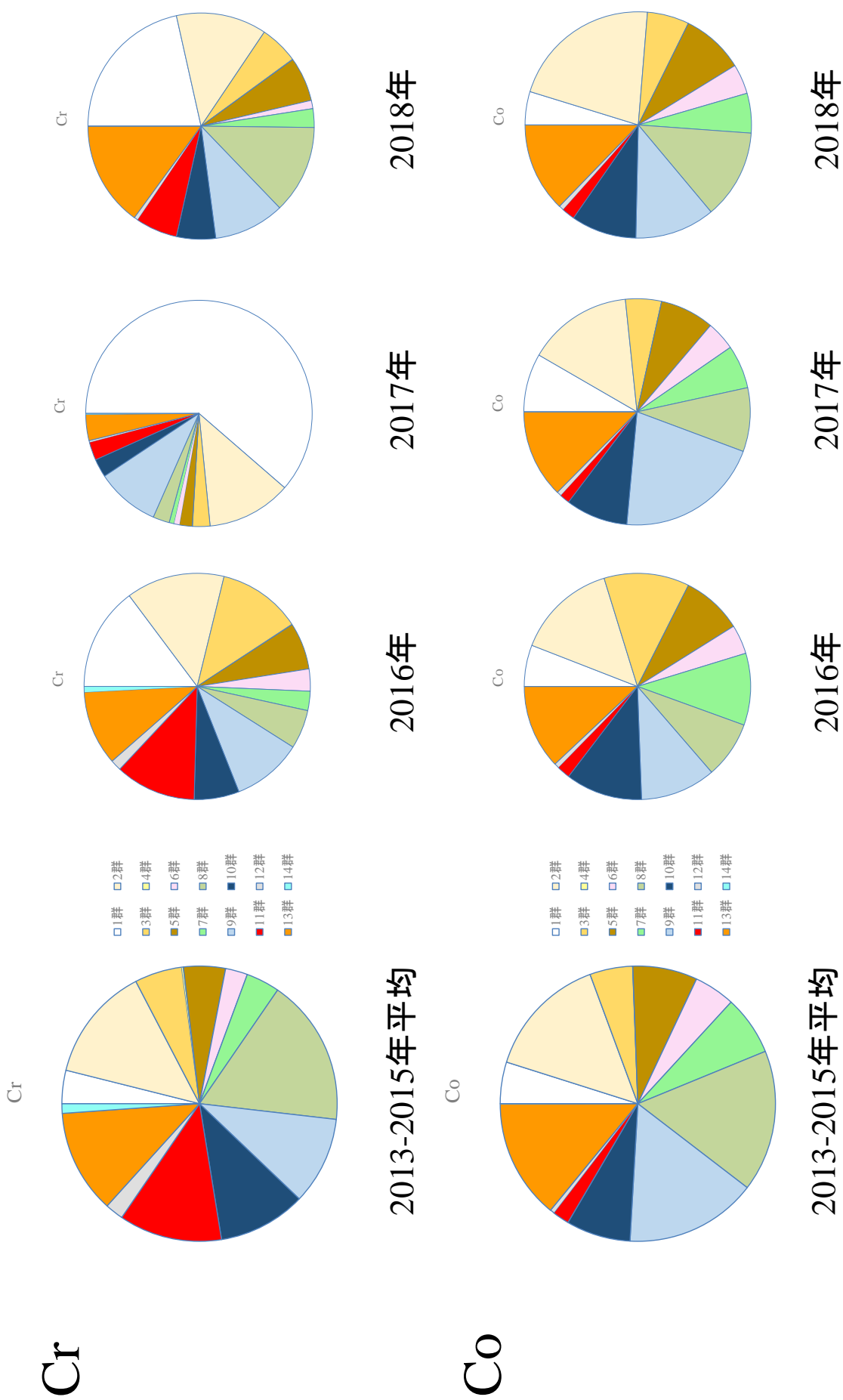
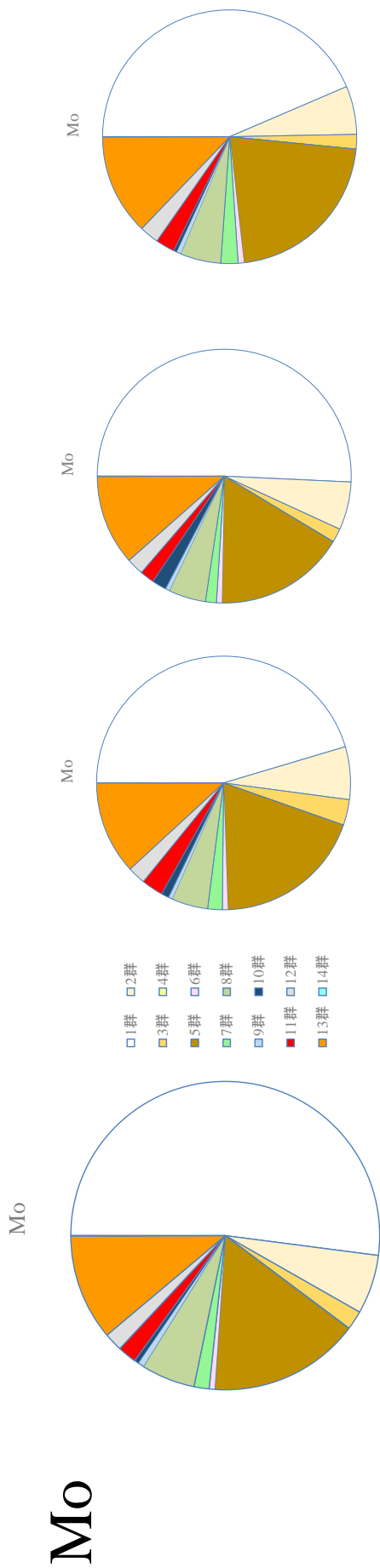


図 2-7 各元素の総摂取量に対する各群摂取量の寄与率（クロムとコバルト）

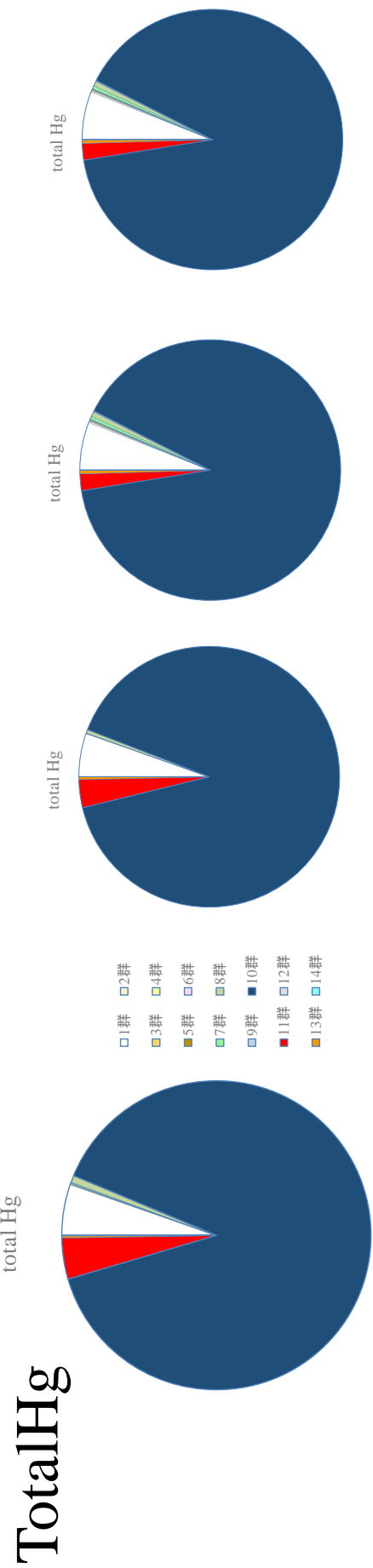


2018年

2017年

2016年

2013-2015年平均



2018年

2017年

2016年

2013-2015年平均

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

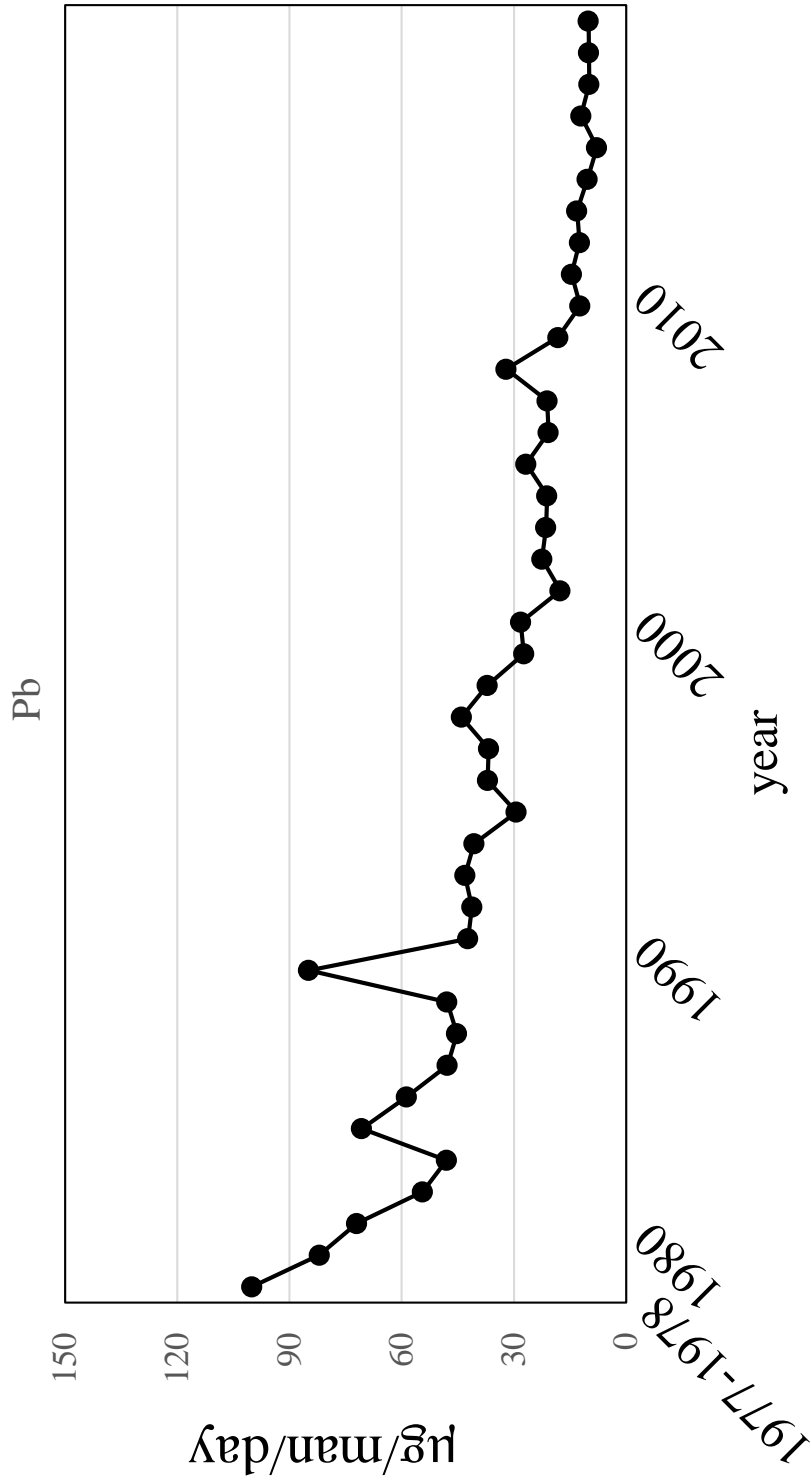


図3 鉛摂取量の経年変化 (1977-2018)

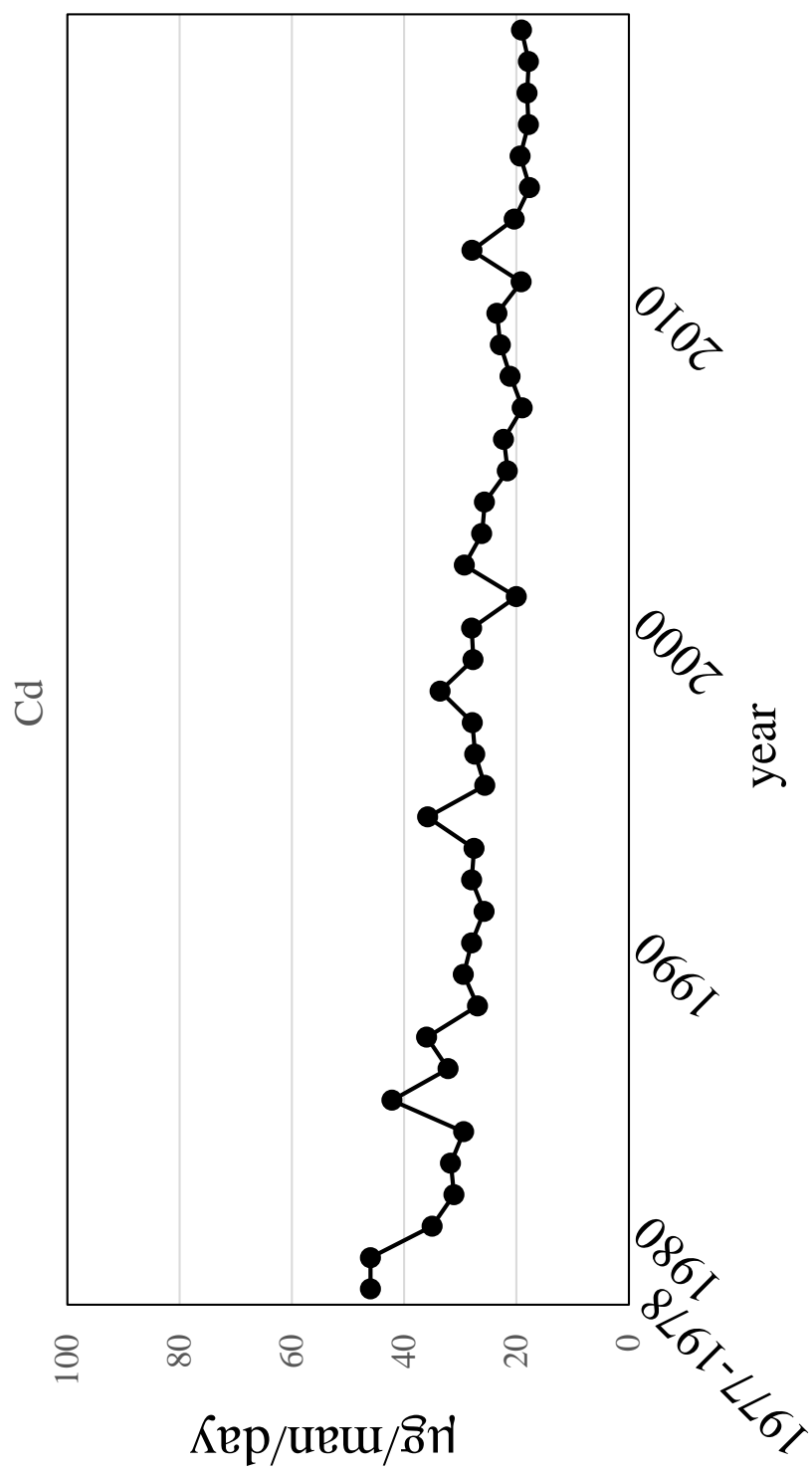


図4 カドミウム摂取量の経年変化 (1977-2018)

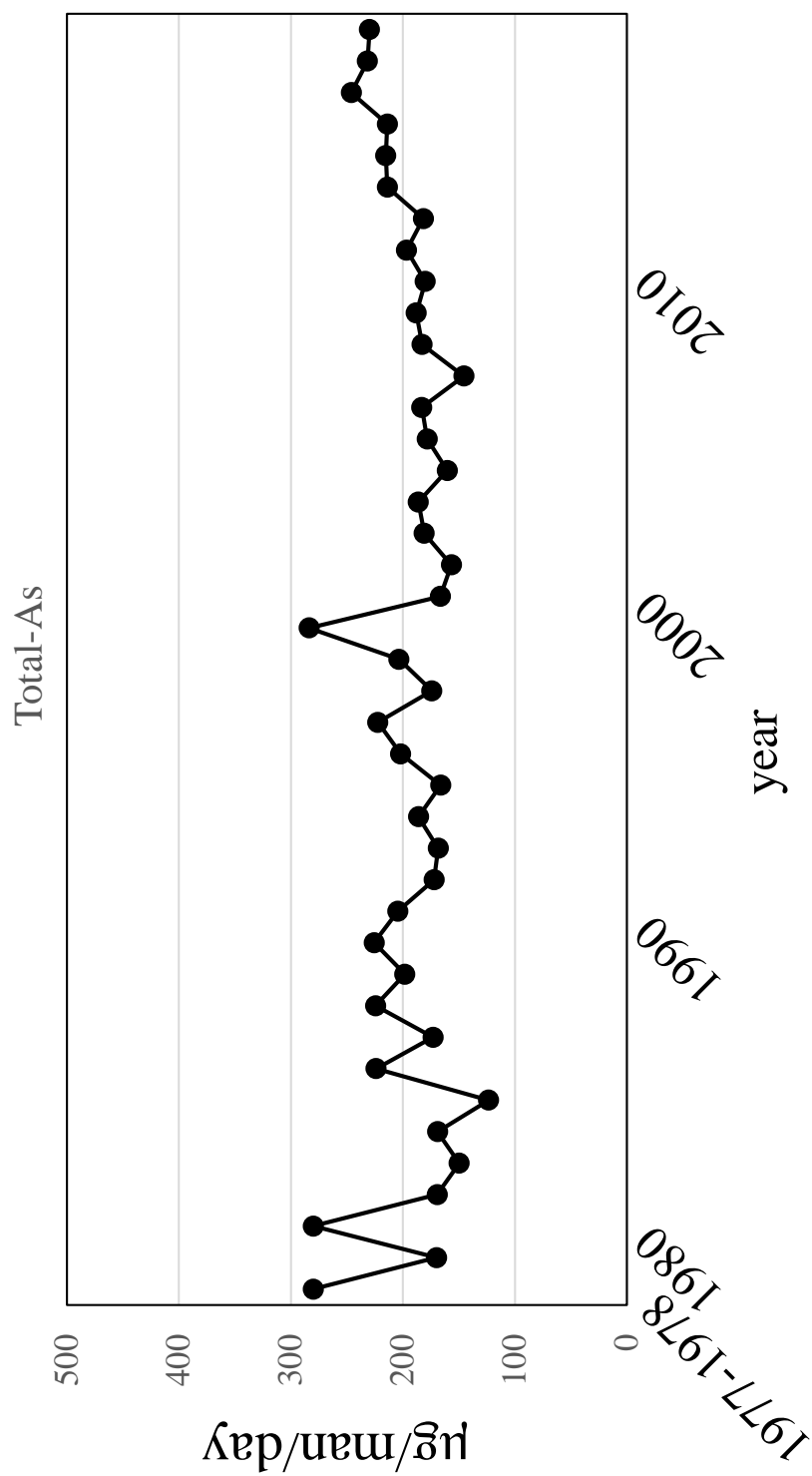


図5 総ヒ素摂取量の経年変化 (1977-2018)

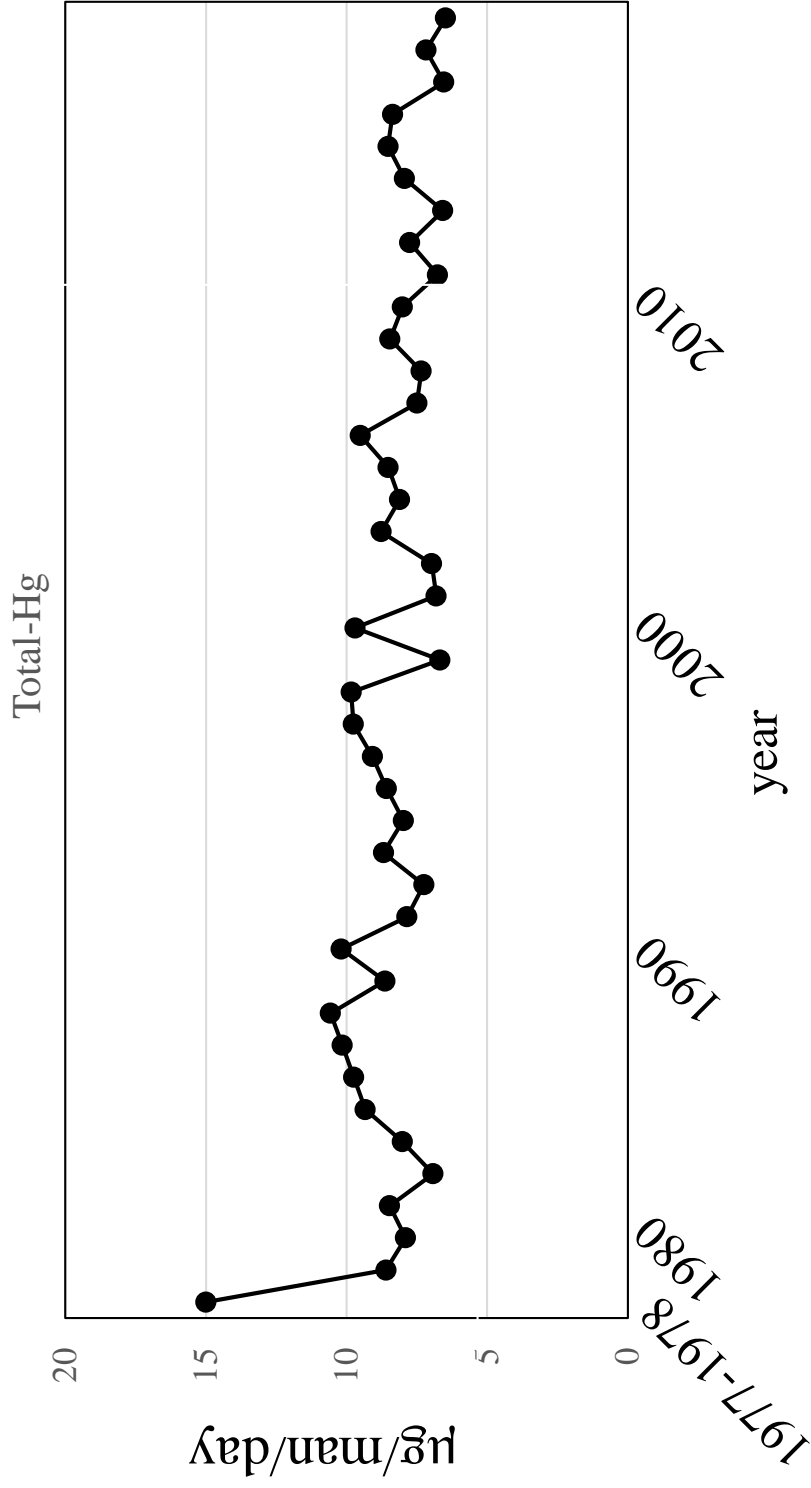


図 6 総水銀摂取量の経年変化 (1977-2018)

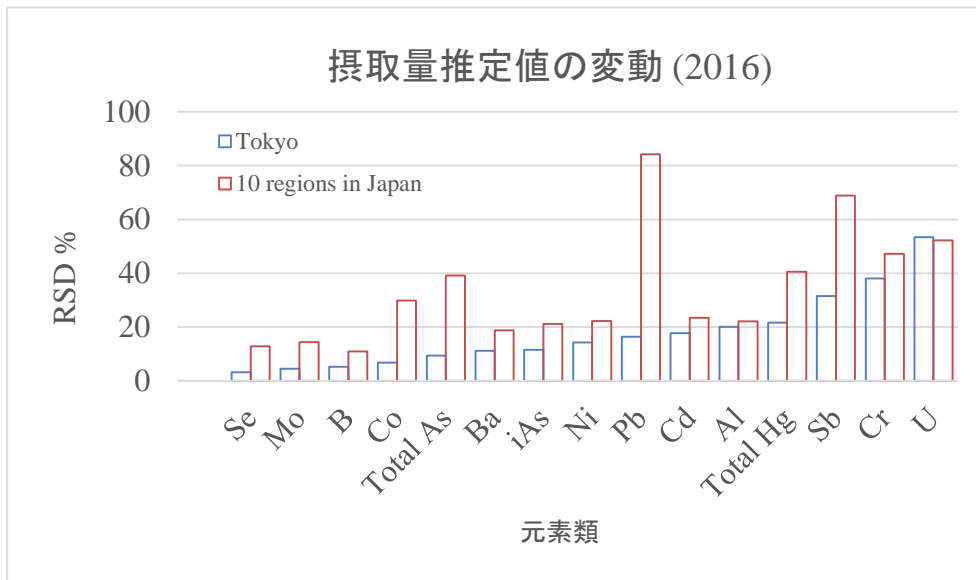


図 7-1 摂取量変動の大きさの比較(1 地域四季 vs 全国 10 地域 1 年間) (スズを除く)

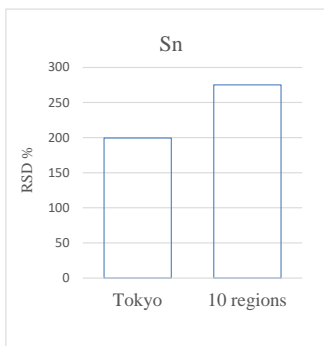


図 7-2 摂取量変動の大きさの比較(1 地域四季 vs 全国 10 地域 1 年間) (スズ)

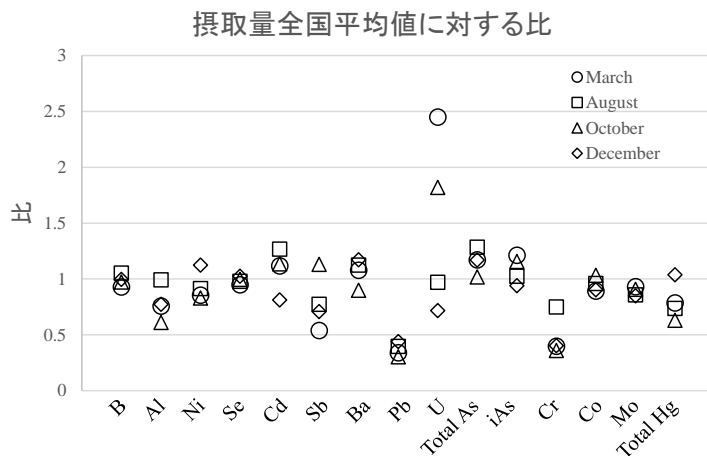


図 8 地域四季摂取量と全国平均摂取量との比較

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地域で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実施する。また、2016年から2018年の間に特定1地域で調製した3年間分のTD試料の分析を通じ、デクロラン類の汚染実態と摂取量の変化を検証する。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。一昨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、昨年度の研究では全国10地域のうち残りの6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。全国10地域分のTD試料の分析結果から、7種類のデクロラン類の平均摂取量は、7600 pg/man/day(最小摂取量：4900 pg/man/day、最大摂取量：9200 pg/man/day)と推定された。2016年から2018年の間に特定1地域で調製された3年間分のTD試料を分析した今年度の研究の結果として、当該地域におけるデクロラン類の摂取量は2016年では7100 pg/man/day、2017年では5200 pg/man/day、2018年では4800 pg/man/dayと推定された。

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水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」(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」(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。これら臭素系難燃剤が規制される一方で、現在は規制されていない塩素系難燃剤が知られ、様々な用途に使用されてもいる。

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、Dechlorane 602 (Dec 602)、Dechlorane 603 (Dec 603) 及び Dechlorane 604 (Dec 604) や、Dechlorane の類縁化合物として Chlordene Plus (CP)が存在し、デクロラン類として知られる(図 1)。なお、Dechlorane Plus には、*syn* 体と *anti* 体の 2 種異性体が存在し、本研究では異性体別に分析をしている。そのため、本研究では、*syn*-DP、*anti*-DP またその両方を意図して DPs として表記する。その他の場合には、一般として DP と表記する。

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¹⁾²⁾。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、2010 年頃の生産量は 4500 t 以上と推定されている³⁾⁴⁾。しかし最近の生産量や使用量に関する情報はない。

Dec 602 は、DP の副生成物であり⁵⁾、グラスファイバーの補強ナイロンとして使用

されている⁶⁾。Dec 603 は Aldrin 及び Dieldrin の不純物として検出されている⁷⁾。Dec 604 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⁸⁾や電気機器用のシリコングリース⁹⁾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⁷⁾。Dec 602、Dec 603、Dec 604 及び CP の生産量や使用状況に関する情報は無いが、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¹⁰⁾¹¹⁾¹²⁾。

表 1 にデクロラン類(CP は情報が無いため未記載)の物理化学的性質を示す²⁾。なお、比較対象として 2,4,7,8-tetrachloro-dibenzo-p-dioxin (TeCDD)の物理化学的性質を併せて示す¹³⁾。表 1 のように、Dechlorane を除くデクロラン類は TeCDD と同様に蒸気圧や水溶解度が低く、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。そのため、食品を汚染し、汚染した食品の消費を通じて摂取される可能性があるが、汚染実態や摂取量に関する報告は少ない。DP に関しては少ない事例ではあるが、Kakimoto 等により、国内の魚介類の汚染実態調査や日本人の摂取量推定の結果が報告されている¹⁴⁾¹⁵⁾。この報告を除くと、国内における魚介類の塩素系難燃剤による汚染状況について、特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。

このような背景から、2013 年の研究では、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 DPs 分析を行った¹⁶⁾¹⁷⁾。2014

年から2015年は対象化合物を拡大し、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^{18) 19) 20)}。

上記の現況及び研究の進展を踏まえ、本研究では、3年間にわたり、全国10地域で調製されたTD試料の分析を通じ、全国規模でのデクロラン類による汚染実態の把握を試みるとともに平均摂取量を推定することとした。具体的には、2016年に、北海道から沖縄までを含む全国10地域で調製されたTD試料の分析を通じ、デクロラン類による汚染実態を把握し、平均摂取量を推定する。また、2016年から2018年までの3年間に、特定1地域で調製したTD試料を分析し、汚染実態並びに摂取量の変化を検証する。本年度の研究では、2016年から2018年までの3年間に特定1地域で調製したTD試料を分析し、デクロラン類の摂取量の変化を明らかにした。

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、特定1地域で2016年から2018年までの各年でMB方式により調製されたTD試料を用いた。TD試料の情報は本報告書における「元素類摂取量推定の部」に示した。

1)-2. 標準物質

Dechlorane(ネイティブ体と¹³C-ラベル

体)及びDec 602(¹³C-ラベル体)の各標準溶液はCambridge Isotope製を、CP及びDPsの各種標準溶液はWellington Laboratories製を、Dec 602、Dec 603及びDec 604の各標準物質はSanta Cruz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。シリジスパイクにはWellington Laboratories製の¹³C₁₂-2,2',3,4,4',5,5'-heptabromodiphenylether (¹³C-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。硫酸は富士フイルム和光純薬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Merck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製A 7890をMSはWaters製AutoSpec Premierを使用した。表2に示した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°C、セル圧力：1500 psi、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 に示すフローに従い、デクロラン類を分析した。分析に使用するガラス器具類は予めアセトン、ヘキサンで洗浄し、ダイオキシソフリーオーブンで 450 °C、4 時間加熱処理した。TD 試料(4群(油脂類)を除く) 約 10 g をビーカーに精秤し、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、 $^{13}\text{C}_{10}$ -*syn*-DP 及び $^{13}\text{C}_{10}$ -*anti*-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、フロリジルカラムで精製し、精製液を 2 mL に定容した。DPs 測定のために精製液 1 mL を分取、濃縮し、測定バイアルに移し、シリンジスパイク (^{13}C -PBDE180 を 125 pg 相当)を添加した。ノナンで全量を約 25 μL としたものを測定溶液とし、このうち 1 μL を HRGC/HRMS に注入して測定した。

DPs 以外のデクロラン類を測定するために、精製液 1 mL を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²¹⁾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、ヘキサン溶出により不純物を除去した。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 (^{13}C -PBDE180 を 125 pg 相当)を添加した。ノナンで全量を約 25 μL としたものを測定溶液とし、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. TD 試料におけるデクロラン類濃度

2016 年から 2018 年の間に特定 1 地域で調製された TD 試料を分析して得られた、各年のデクロラン類の濃度を化合物と食品群の組み合わせごとに示す(表 3-1～表 3-3)。分析した TD 試料のすべてを通じて、各化合物の濃度範囲は以下の通りであった。
Dec 602 : 0.017 ~ 27 pg/g、Dec 603 : ND ~ 0.71 pg/g、Dec 604 : ND(すべて未検出)、*syn*-DP : 0.13 ~ 6.6 pg/g、*anti*-DP : 0.57 ~ 20 pg/g、CP : ND ~ 0.46 pg/g、Dechlorane : ND ~ 3.3 pg/g。

Dec 602、*syn*-DP、*anti*-DP 及び Dechlorane は、ほぼ全ての TD 試料から検出された。Dec 602 の濃度は、他の食品群に比べ 10 群(魚介類)で高値であった。本研究で対象としたデクロラン類のうち、*syn*-DP 及び *anti*-DP は、10 群及び 11 群(肉類)以外の食品群からも比較的高い濃度で検出された。

Dechlorane の検出頻度は比較的高かった。Dec 603 が、脂肪量の少ない 6 群、7 群、8 群及び 9 群から検出されることはまれであった。Dec 604 は全ての食品群から検出されなかった。CP の検出頻度は総じて低く、濃度も低かったが、食品からの検出事例そのものがほとんど報告されておらず、非常に興味深い。

2. デクロラン類の摂取量推定

2016 年から 2018 年の間に特定 1 地域で調製された TD 試料の分析結果に基づき推定された各年のデクロラン類各化合物の摂取量を表 4-1～表 4-7 に、その総和として求めた総デクロラン類摂取量を表 4-8 に示す。なお、本研究では、各化合物の分析結果が ND の場合、摂取量はゼロとして推定した。当該地域における 3 年間のデクロラン類各化合物の摂取量は以下の範囲であった。Dec 602 : 1100 ~ 2700 pg/man/day、Dec 603 : 130 ~ 400 pg/man/day、Dec 604 : 0 pg/man/day、*syn*-DP : 860 ~ 1,200 pg/man/day、*anti*-DP : 2100 ~ 2400 pg/man/day、CP : 0 ~ 340 pg/man/day 及び Dechlorane : 250 ~ 310 pg/man/day。上記 7 種類の化合物について、各年の食品群別摂取量推定値をもとに、食品群別摂取量の平均値とその総和を求め、表 5 に示した。各化合物の 3 年間の平均摂取量は、以下の通り推定された。Dec 602 : 1800 pg/man/day、Dec 603 : 240 pg/man/day、Dec 604 : 0 pg/man/day、*syn*-DP : 1000 pg/man/day、*anti*-DP : 2300 pg/man/day、CP : 130

pg/man/day 及び Dechlorane : 290 pg/man/day。また、総デクロラン類の 3 年間の平均摂取量は 5700 pg/man/day であった。

国外での DPs の摂取量として、推定時期や方法に違いがあるもの下記の報告がある。韓国 : 11200 pg/man/day、ベルギー : 4800 pg/man/day、スペイン : 5370 pg/man/day。本研究において推定された全国平均 DPs 摂取量は *syn*-DP と *anti*-DP の摂取量の和として 3300 pg/man/day、特定 1 地域における 3 年間の平均 DPs 摂取量は 3300 pg/man/day であり、韓国における DPs 摂取量と比較すると 1/3 未満と低くなったが、ベルギーやスペインにおける摂取量と同水準にあると言えるだろう。

これまでに私たちは、本研究の対象地域と同一の地域において、同じ方法を用いて、様々な臭素系難燃剤の摂取量を推定してきた。TD 試料の調製や分析の年が異なるが、各臭素系難燃剤の摂取量は以下のように推定されている。HBCD : 120000 pg/man/day、PBDEs : 110000 pg/man/day、デカブロモジフェニルエタン(DBDPE) : 560 pg/man/day、ヘキサブロモビフェニル(HxBBs) : 240 pg/man/day。本研究により推定された総デクロラン類の平均摂取量は、上記の HBCD や PBDEs の摂取量よりも低く、HxBBs や DBDPE の摂取量よりも高かった。HBCD や PBDEs には ADI が設定されているが、上記の推定摂取量がそれら ADI に占める割合は 1%を大きく下回る。本研究により推定されたデクロラン類には ADI が設定されていない。しかし、少なくとも HBCD

やPBDEsのような、難燃剤として使用されるその他の化合物に比べ100倍程度高い毒性が示されない限り、現在の摂取量が健康に対する懸念材料になることはない。現在のデクロラン類摂取量が推定されたことは有益である。しかし、毒性に関する新たな知見が得られその必要性が明確にならない限り、これ以上の摂取量推定は不要と考える。一方で、デクロラン類の生産量や使用量が増加すれば、その物理化学的特性から食品を汚染する濃度が高くなる可能性も考えられる。そのため、それらの情報を入手しつつ、実態調査の必要性については考えるべきである。

3. 各化合物の摂取量に寄与する食品群

図3-1～図3-6には、総摂取量に対する食品群別摂取量の寄与率(食品群別寄与率)をデクロラン類化合物ごとにあるいは総デクロラン類に対して示した。寄与率の変動を考察するために、TD試料を調製した年ごとに、食品群別寄与率を示した。なお、Dec 604及びCPは検出頻度また濃度ともに低かったため、解析から除外した。デクロラン類に属する各化合物の物理化学的な性質は類似していると言えるが、どの食品群が総摂取量に寄与するかには、化合物ごとに差異が認められた。

Dec 602は、全ての食品群から摂取されているが、3年間を通じた10群の平均寄与率が約70%をとり、魚介類が主たる摂取源であると言える。他の化合物と比較しても、摂取に対する10群の寄与率は、Dec 602にお

いて最大となった。このことは、Dec 602が海洋に拡散後、生物濃縮により魚介類に蓄積していることを示唆している。Dec 603、*syn-DP*及び*anti-DP*も全ての食品群から摂取されているが、各食品群の寄与のパターンは異なっている。Dec 603摂取量に大きく寄与する食品群は年ごとに変化した。Dec603摂取量に主として寄与する食品群は、2016年では1群(55%)、2017年では9群(70%)、2018年では2群(49%)であった。これは、Dec603摂取量が比較的少ないことから推測可能であるが、各食品群を構成する個別食品のDec603濃度のばらつきが大きいためと考察される。*syn-DP*と*anti-DP*の摂取量には様々な食品群が寄与しかつ、寄与のパターンが高い類似性を示すことが明らかとなった(図3-3及び図3-4)。このことは、Dec 602の主たる摂取源と考えられる魚介類における蓄積の他に、経路や機構は不明であるがDPが様々な食品を汚染しており、食事を介して日常的に摂取されていることを示唆している。Dechloraneも全ての食品群から摂取されている。特に、3年間の平均寄与率が約70%を占めることから、Dec 602と同様に、生物濃縮による魚介類への蓄積を機構とし、10群が主たる摂取源になることが示唆された。デクロラン類各化合物の摂取に様々な食品(群)が寄与することを反映した結果として、総デクロラン類の摂取には全ての食品群が寄与し、特に10群(32%)、9群(16%)、1群(13%)および11群(9.2%)の寄与率が高くなった。

以上の結果から、本研究により推定された現時点の摂取量からは、健康への影響を

懸念する蓋然性が低いが、デクロラン類が食事を介して日常的に摂取されていることが明らかとなった。デクロラン類が食品を汚染する経路や機構には不明な点が多いが、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^{23) 24)}。

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., Alaei 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, 4th, 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[®]. 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., MacCarty 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 ハロ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.

F. 研究発表

1. 論文発表

1) Yasutake D., Sato T., Hori T., Watanabe T.,
Estimation of Dietary Intake of Dechlorane
Plus and Related Compounds in Japanese
National Survey. Organohalogen Compounds
(2018) 80, 92-96.

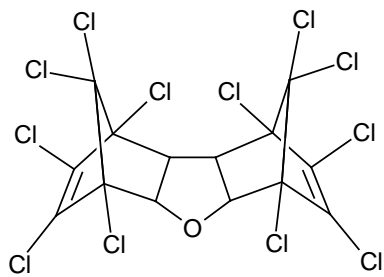
2. 学会発表

1) Yasutake D., Sato T., Hori T., Watanabe T.,
Estimation of Dietary Intake of Dechlorane
Plus and Related Compounds in Japanese
National Survey. 38th International

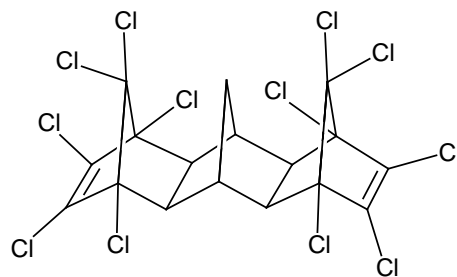
Symposium on Halogenated Persistent
Organic Pollutants (2018.8).

2) 安武大輔、佐藤 環、堀 就英、渡邊敬
浩 トータルダイエツト試料によるデク
ロランプラス類の摂取量推定 (全国調査)
第 27 回環境化学討論会(2018.5)

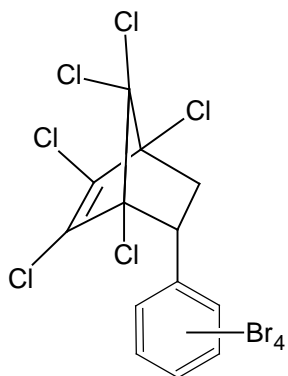
3) 安武大輔、佐藤 環、堀 就英、渡邊敬
浩 マーケットバスケット方式によるポ
リ臭素化ジフェニルエーテルの摂取量推
定 第 55 回全国衛生化学技術協議会
(2018. 11).



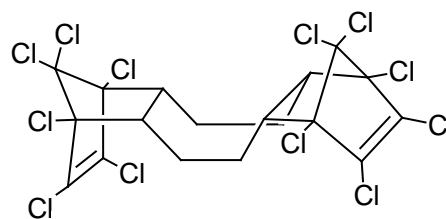
Dechlorane 602



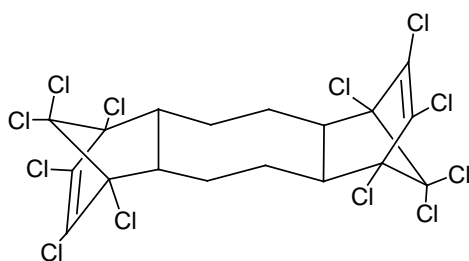
Dechlorane 603



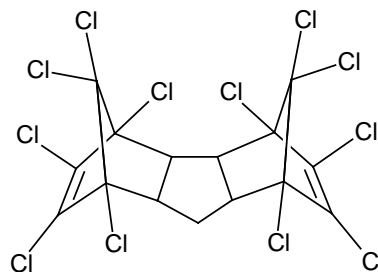
Dechlorane 604



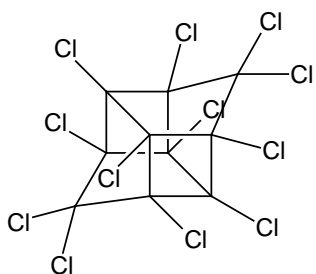
syn-Dechlorane Plus



anti-Dechlorane Plus



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 ₁₈ H ₁₂ Cl ₁₂	C ₁₄ H ₄ Cl ₁₂ O	C ₁₇ H ₈ Cl ₁₂	C ₁₃ H ₄ Br ₄ Cl ₆	C ₁₀ Cl ₁₂	C ₁₂ H ₄ Cl ₄ O ₂
分子量	653.7	613.6	637.7	692.5	545.55	321.97
融点 (°C)	206	325	198	203	485	305
蒸気圧 (Pa)	4.71×10 ⁻⁷	5.53×10 ⁻⁷	1.59×10 ⁻⁷	8.47×10 ⁻⁸	1.07×10 ⁻⁴	2.0×10 ⁻⁷
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 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°C
キャリアーガス(流量)	ヘリウム(1.0 mL/min)
オープン温度	120°C (1min保持) - 30°C/min - 240°C - 5°C/min - 275°C - 40°C/min - 320°C (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°C
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)
¹³ C ₁₀ -Dechlorane、	276.8269
¹³ C ₁₀ -Dec602、 ¹³ C ₁₀ -DP	
¹³ C ₁₂ -2,2',3,4,4',5,5'-HeptaBDE	415.9096(定量用)、413.8116(確認用)

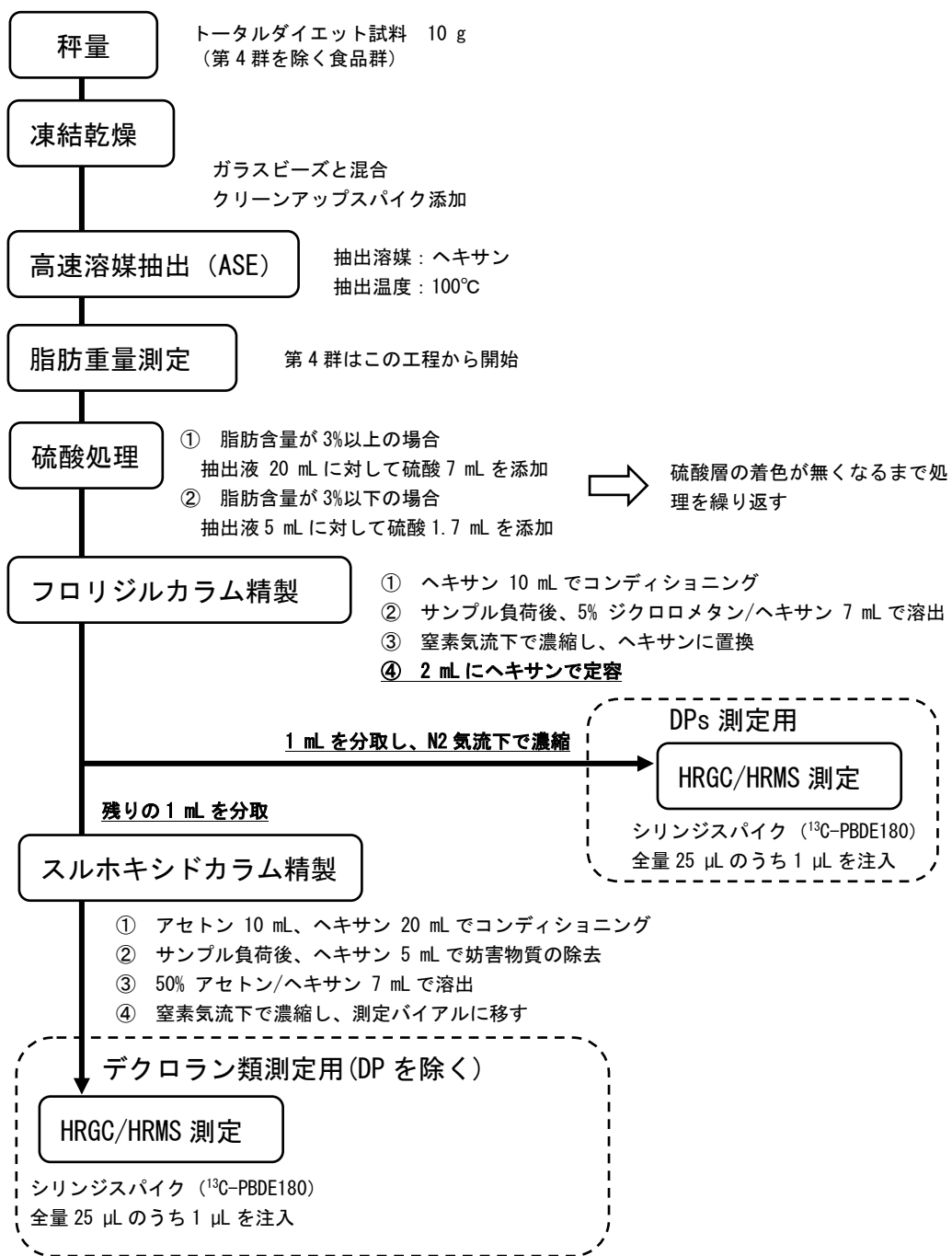


図 2 デクロラン類の分析フロー

表 3-1 2016 年調製 TD 試料中のデクロロラン類濃度

化合物	濃度 (pg/g)												
	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
Dec602	0.74	0.20	0.53	0.44	0.19	0.12	0.21	0.12	0.065	27	3.8	0.39	0.12
Dec603	0.48	0.050	0.26	ND	0.10	0.063	ND	ND	0.048	0.41	0.32	0.081	0.53
Dec604	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
<i>syn</i> -DP	0.35	0.64	0.65	6.3	0.43	0.35	0.45	0.56	0.62	1.2	0.78	0.49	0.65
<i>anti</i> -DP	0.75	1.4	1.0	20	1.1	0.66	0.82	0.79	0.65	1.3	2.0	0.66	1.0
CP	ND	0.049	ND	ND	ND	0.033	ND	ND	0.46	0.21	ND	ND	ND
Decchlorane	0.040	0.034	0.087	0.33	0.024	0.020	0.064	0.027	0.017	2.4	0.41	0.047	0.61
Total	2.4	2.4	2.8	27	1.8	1.3	1.5	1.5	1.9	33	7.3	1.7	2.9

表 3-2 2017 年調製 TD 試料中のデクロロラン類濃度

化合物	濃度 (pg/g)												
	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
Dec602	0.091	0.051	0.084	0.32	0.085	0.019	0.12	0.063	0.063	19	0.58	0.27	0.20
Dec603	ND	ND	0.062	0.25	0.081	ND	ND	ND	0.21	0.26	0.28	ND	0.029
Dec604	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
<i>syn</i> -DP	0.55	0.52	0.98	6.6	0.44	0.29	0.33	0.26	0.22	1.8	0.73	0.68	0.21
<i>anti</i> -DP	1.1	1.3	1.7	15	1.2	0.75	0.57	1.0	0.70	2.0	2.6	1.5	0.90
CP	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
Decchlorane	ND	0.12	0.075	0.26	0.062	ND	0.054	0.015	0.011	3.3	0.23	0.11	0.029
Total	1.8	2.0	2.9	23	1.8	1.1	1.1	1.4	1.2	26	4.4	2.6	1.4

表 3-3 2018 年調製 TD 試料中のデクロラン類濃度

化合物	濃度 (pg/g)												
	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
Dec602	0.044	0.086	0.075	0.25	0.058	0.27	0.021	0.024	0.017	14	0.38	0.083	0.067
Dec603	0.033	0.42	ND	0.71	ND	ND	ND	ND	ND	0.46	0.11	ND	0.020
Dec604	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
<i>syn</i> -DP	0.31	0.51	0.32	5.4	0.41	0.26	2.6	0.14	0.13	1.7	0.48	0.19	0.60
<i>anti</i> -DP	1.1	1.1	1.2	13	1.1	0.79	2.3	0.72	0.72	4.0	2.2	1.0	1.5
CP	0.0058	0.031	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.0095	0.37	0.067	0.027	ND
Dechlorane	0.020	0.058	0.028	0.46	0.034	ND	ND	ND	0.014	3.2	0.080	0.015	ND
Total	1.5	2.2	1.6	20	1.6	1.3	5.0	0.89	0.88	24	3.3	1.4	2.2

表 4-1 Dechlorane 602 の調査年・食品群別摂取量

Dec 602 調査年	濃度 (pg/man/day)													
	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	総和
2016年	330	38	19	4.2	13	12	17	23	44	1800	390	44	11	2700
2017年	31	8.3	2.7	3.0	5.7	1.8	9.5	12	43	1200	64	30	18	1500
2018年	15	13	2.4	2.4	3.8	26	1.7	4.3	12	930	44	9.4	5.9	1100

表 4-2 Dechlorane 603 の調査年・食品群別摂取量

Dec 603 調査年	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	総和
2016年	220	9.5	9.2	0	6.7	6.1	0	0	33	27	34	9.2	47	400
2017年	0	0	2.0	2.3	5.4	0	0	0	140	17	31	0	2.6	200
2018年	11	64	0	6.7	0	0	0	0	0	31	13	0	1.8	130

(pg/man/day)

表 4-3 Dechlorane 604 の調査年・食品群別摂取量

Dec 604 調査年	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	総和
2016年	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
2017年	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
2018年	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0

(pg/man/day)

表 4-4 *syn*-Dechlorane Plus の調査年・食品群別摂取量

<i>syn</i> -DP 調査年	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	総和
2016年	160	120	23	60	29	34	37	100	420	76	80	55	58	1200
2017年	190	84	32	63	30	28	27	48	150	120	81	78	19	950
2018年	110	79	10	51	27	26	210	25	87	110	55	21	53	860

(pg/man/day)

表 4-5 *anti*-Dechlorane Plus の調査年・食品群別摂取量

<i>anti</i> -DP 調査年	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	総和
2016年	330	270	46	190	71	64	68	140	440	86	210	74	90	2100
2017年	390	210	55	140	77	73	46	190	480	130	280	170	80	2300
2018年	370	170	39	120	71	76	180	130	490	270	250	120	130	2400

(pg/man/day)

表 4-6 Chlordene Plus の調査年・食品群別摂取量

CP 調査年	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	総和
2016年	0	9.2	0	0	0	3.2	0	0	310	14	0	0	0	340
2017年	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
2018年	2.0	4.8	0	0	0	0	0	0	5.4	24	7.6	3.0	0	48

(pg/man/day)

表 4-7 Dechlorane の調査年・食品群別摂取量

Dechlorane 調査年	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	総和
2016年	18	6.3	3.1	3.1	1.6	1.9	5.3	5.0	12	160	42	5.3	54	310
2017年	0	20	2.4	2.5	4.1	0	4.4	2.8	7.7	220	25	12	2.6	300
2018年	7.0	9.0	0.92	4.4	2.2	0	0	0	9.2	210	9.1	1.6	0	250

(pg/man/day)

表 4-8 デクロラン類(7種類)の調査年・食品群別摂取量

Total 調査年	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	総和
2016年	1100	450	99	250	120	120	130	270	1300	2200	750	190	260	7100
2017年	610	320	95	210	120	100	87	250	820	1700	480	290	120	5200
2018年	510	340	53	190	100	130	390	160	600	1600	380	150	190	4800

(pg/man/day)

表 5 デクロラン類の3年間の平均摂取量 (食品群別摂取量の平均及びそれぞれの総和)

化合物	摂取量 (pg/man/day)													総和
	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	
Dec602	130	20	7.9	3.2	7.4	13	9.5	13	33	1300	170	28	11	1800
Dec603	76	24	3.7	3.0	4.0	2.0	0	0	58	25	26	3.1	17	240
Dec604	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
syn-DP	150	95	22	58	28	29	90	58	220	100	72	51	43	1000
anti-DP	360	220	47	150	73	71	98	150	470	160	250	120	100	2300
CP	0.66	4.7	0	0	0	1.1	0	0	110	13	2.5	1.0	0	130
Decchlorane	8.3	12	2.1	3.3	2.6	0.63	3.2	2.6	9.5	190	25	6.4	19	290
Total	720	370	82	220	120	120	200	230	890	1800	540	210	190	5700

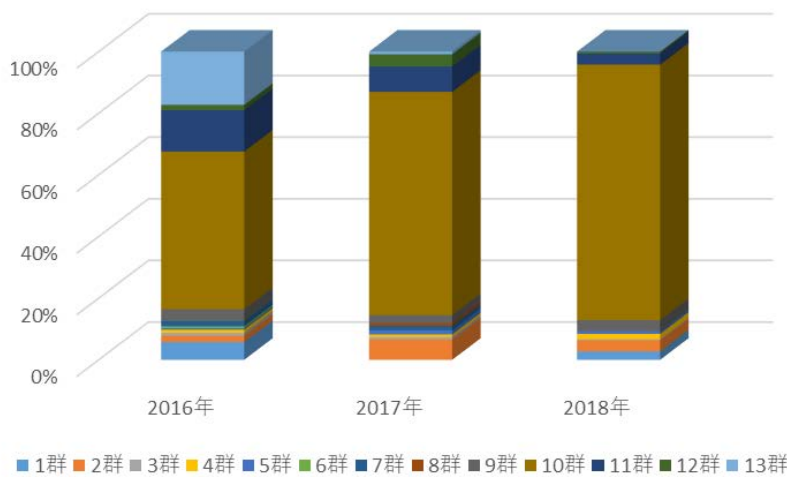


図 3-1 Dechlorane 602 の総摂取量に対する各食品群の摂取量寄与率

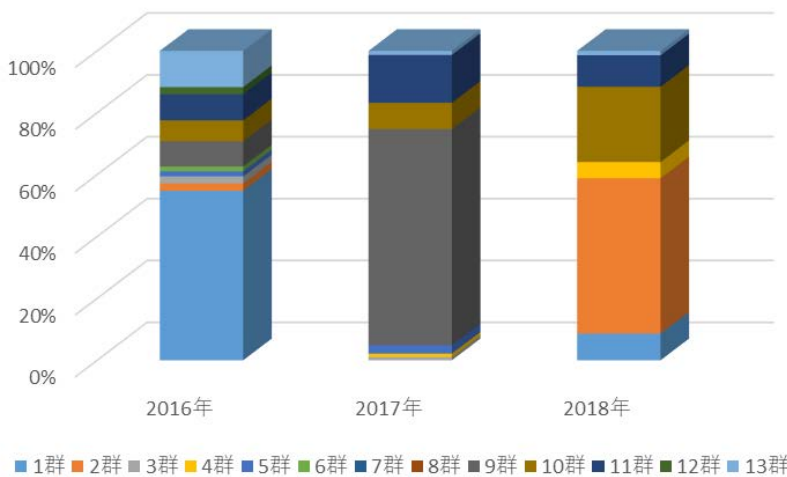


図 3-2 Dechlorane 603 の総摂取量に対する各食品群の摂取量寄与率

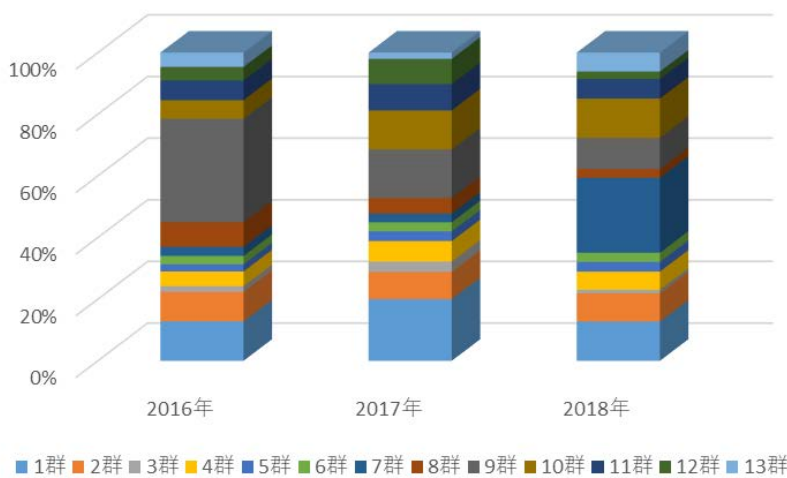


図 3-3 *syn*-Dechlorane Plus の総摂取量に対する各食品群の摂取量寄与率

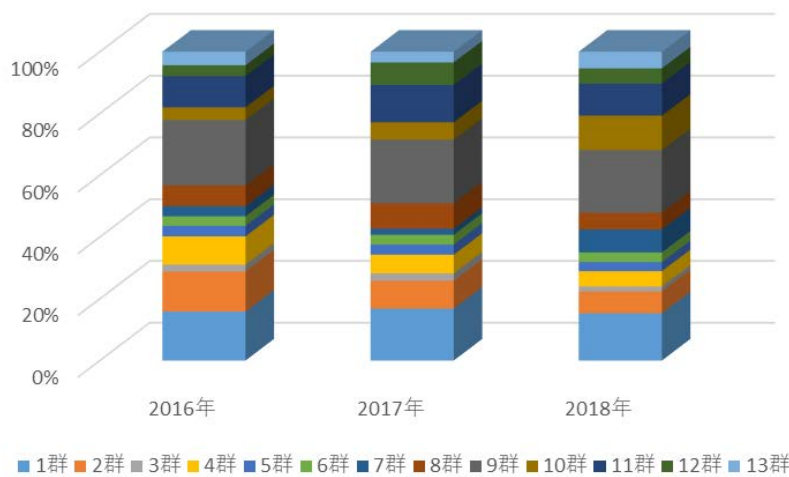


図 3-4 anti-Decchlorane Plus の総摂取量に対する各食品群の摂取量寄与率

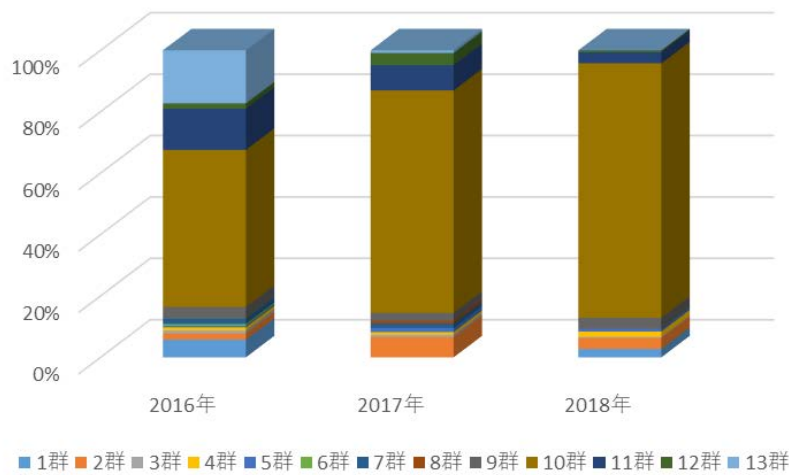


図 3-5 Decchlorane (Mirex)の総摂取量に対する各食品群の摂取量寄与率

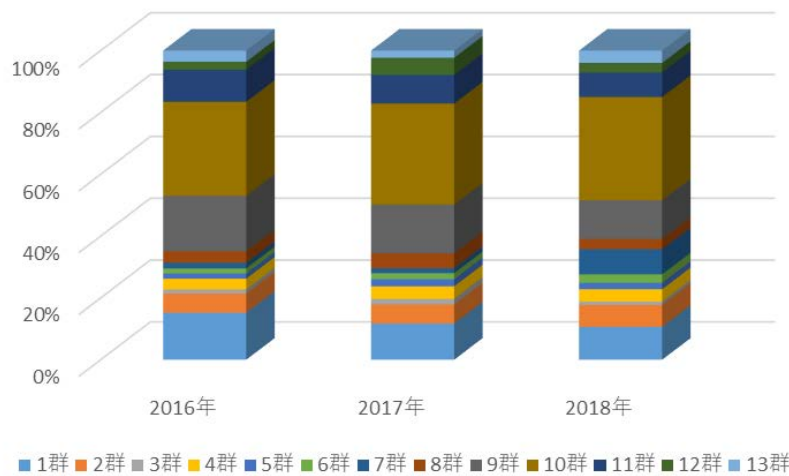


図 3-6 デクロラン類(7種類の合計)の総摂取量に対する各食品群の摂取量寄与率

