

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
その手法開発のための研究

分担研究報告書

食品の塩素化ダイオキシン類、PCB、難燃剤等の摂取量推定に関する研究
トータルダイエッ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ット(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、420 ng/person/dayと推定された。体重(50 kgと仮定)あたりでは8.4 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0.2%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42%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389 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127 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

青柳直樹、平間祐志

新潟県保健環境科学研究所

雅楽川憲子

横浜市衛生研究所

内藤えりか、櫻井有里子

名古屋市衛生研究所

宮崎仁志、加藤陽康、高木恭子

滋賀県衛生科学センター

三田村徳子、川端彰範、小林博美

香川県環境保健研究センター

安永 恵、荻田 幸

沖縄県衛生環境研究所

新垣 俊、宮平松侍、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

新谷依子、佐藤 環、岡元冬樹、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 26 年～平成 28 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 15 mm、長さ 9.5 cm のカラムに無水硫酸ナトリウム 2 g、シリカゲル 0.9 g、44%硫酸シリカゲル 3.0 g、シリカゲル 0.9 g、及び無水硫酸ナトリウム 2 g 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 15 mm、長さ 30 cm のカラムに無水硫酸ナトリウム 2 g、アルミナ 15 g、無水硫酸ナトリウム 2 g 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

GC カラム: HT8-PCB (トレイジャン サイエントフィック) 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°C
注入量: 2.0 μ L
昇温条件: 100°C (1 分保持) \rightarrow 20°C/分 \rightarrow 180°C \rightarrow 2°C/分 \rightarrow 260°C \rightarrow 5°C/分 \rightarrow 300°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°C
イオン源温度: 300°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

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
モニターイオン:

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（197異性体）の合計値とした。なお、昨年度までは、Co-PCBsであるPCB105と、NDL-PCBsであるPCB127のGCカラムでのピーク分離が不十分であったが、今年度は使用したGCカラムのロットの違いにより、PCB105とPCB127のピーク分離が可能であった。

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。今年度の結果についても、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摂取量を推定しても、ND=0として計算したPCBs摂取量と1%未満の差しか生じなかった。

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 128 ~ 1,621 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 394 ng/person/day であった。また、11 群からの総 PCBs 摂取量は 8.64 ~ 52.3 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 26.4 ng/person/day であった。昨年度の 10 群からの総 PCBs 摂取量の全国平均値は 233 ng/person/day、11 群からの総 PCBs 摂取量の全国平均値は 16.3 ng/person/day であった²⁾。昨年度と比較すると、今年度の 10 群及び 11 群の総 PCBs 摂取量の全国平均値は 1.7 倍及び 1.6 倍ほど高くなった。10 群及び 11 群からの総 PCBs 摂取量の最大値は地域 F において推定された。これら二つの最大値は、昨年度の最大値と比較して、それぞれ 5.2 倍と 1.3 倍高い値であった。特に地域 F の 10 群からの総 PCBs 摂取量については他の地域と比較して突出して高い値であった。過去の調査結果において地域 F の総 PCBs 摂取量が毎回、高い値とはなっていないことを考慮すると、今回、地域 F において最大値が推定されたのは、地域 F の TD 試料作製に使用された食品の中に偶発的に PCBs を高濃度に含有する食品が含まれていた可能性が高いと考えられた。

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、地域によって同族体ごとの割合に違いが認められた。特に地域 A と F においては、低塩素 PCBs (1 塩素 ~ 3 塩素) の割合が他の地域よりも高く、20% 以上を占めていた。低塩素 PCBs は KC300 や排ガスなどで割合が高い PCBs であり、これらの汚染の関与が疑われた。

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 156 ~ 1,673 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 420 ng/person/day であった。昨年度の総 PCBs 摂取量の全国平均値は 250 ng/person/day であり²⁾、今年度の総 PCBs 摂取量は昨年度と比較すると 1.7 倍高い値であった。今年度は地域 F の 10 群において、突出して高い総 PCBs 摂取量が推定されたことが大きく影響しているものと考えられる。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 420 ng/person/day であり、体重 (50 kg と仮定) あたりでは 8.4 ng/kg bw/day であった。この値は暫定 TDI の僅か 0.2% 程度であった。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)³⁾ 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 42% 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⁴⁾ 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 摂取量の全国平均値の経年推移を、図 3 に示した。平成 30(2018)年度までの調査結果は、昨年度の本事業の報告書「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」²⁾から引用した。総 PCBs 摂取量は 1990 年代前半までに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 年代前半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 摂取量の全国平均値は、昨年度よりやや高い値が得られたものの、これまでの PCBs 摂取量の推移に影響を与えるものではなかった。調査開始時と比較すると、本年度の総 PCBs 摂取量は 1/8 程度であった。

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 117~1,511 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 365 ng/person/day であった。11 群からの NDL-PCBs 摂取量は 7.86~49.2 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 24.1 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、141~1,561 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 389 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 420 ng/person/day であることから、NDL-PCBs は総 PCBs 摂取量の 93%を占めていた。この傾向は昨年度の調査結果²⁾と同様であった。

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 39.9~485

ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 119 ng/person/day であった。11 群からの摂取量は 3.15~16.2 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 8.22 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、48.4~497 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 127 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 28~36%、11 群で 22~45%であり、昨年度の調査結果²⁾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、生物体内における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) 国内外の PCBs 摂取量調査との比較

日本と主な諸外国で実施された PCBs 摂取量調査の結果を表 6 に示した。日本国内では本調査の他に、東京都が実施している PCBs 摂取量調査の報告がある。東京都の 2018 年度の PCBs 摂取量は 9.2 ng/kg bw/day と報告されており、本調査結果と近い値であった。また、これら日本の調査結果は、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、本調査の結果を示した。日本の 6PCBs 摂取量は体重(50 kg と仮定)あたりでは、2.5 ng/kg bw/day であり、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 420 ng/person/day と推定された。体重あたりでは 8.4 ng/kg bw/day と推定され、この値は日本の暫定 TDI の僅か 0.2%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 42%となった。NDL-PCBs の一日摂取量の全国平均値は 389 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 127 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 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」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)
- 3) WHO, 2003. Concise International Chemical Assessment Document 55. Polychlorinated biphenyls: human health aspects.
- 4) 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」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)
- 5) 東京都福祉保健局健康安全部環境保健衛生, 平成 30 年度 食事由来の化学物質等摂取量推計調査, https://www.metro.tokyo.lg.jp/tosei/hodohappyo/press/2019/08/01/documents/10_01.pdf
- 6) Voorspoels S, Covaci A, Neels H. : Dietary PCB intake in Belgium, *Environ. Toxicol. Pharmacol.* 25, 179–182 (2008)
- 7) Schechter 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)
- 8) 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)
- 9) 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)
- 10) 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)
- 11) 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)
- 12) 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)

- 13) 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)
- 14) 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

- 1) Tsutsumi T, Imamura M, Takatsuki S, Maeda T, Akiyama H: Dietary intake of PCBs by the Japanese population in a total diet study during 2016–2018. 39th International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (2019.8)

表1 本分析法の検出下限値及び定量下限値

PCBs	LOD, ng/g	LOQ, ng/g	PCBs	LOD, ng/g	LOQ, ng/g
MoCBs #1	0.00015	0.00050	HxCBs #128	0.00002	0.00008
#2	0.00010	0.00034	#129	0.00002	0.00008
#3	0.00011	0.00038	#130	0.00002	0.00008
DiCBs #4	0.00044	0.01146	#131	0.00002	0.00008
#6	0.00006	0.00020	#133	0.00002	0.00008
#7	0.00002	0.00006	#134	0.00002	0.00008
#8/#5	0.00048	0.01160	#135	0.00002	0.00008
#9	0.00002	0.00006	#136	0.00002	0.00008
#10	0.00002	0.00005	#137	0.00002	0.00008
#11	0.01103	0.00342	#138	0.00011	0.00038
#13/#12	0.00002	0.00006	#140	0.00002	0.00008
#14	0.00002	0.00006	#141	0.00002	0.00008
#15	0.00014	0.00048	#142	0.00002	0.00008
TrCBs #16	0.00010	0.00034	#143	0.00002	0.00008
#17	0.00016	0.00052	#144	0.00002	0.00008
#18	0.00052	0.01175	#145	0.00002	0.00008
#19	0.00003	0.00011	#146/#132	0.00002	0.00008
#20/#33	0.00033	0.00111	#147	0.00002	0.00008
#21	0.00003	0.00011	#148	0.00002	0.00008
#22	0.00015	0.00050	#149/#139	0.00002	0.00008
#23	0.00003	0.00011	#150	0.00002	0.00008
#24	0.00003	0.00011	#151	0.00002	0.00008
#25	0.00003	0.00011	#152	0.00002	0.00008
#26	0.00007	0.00024	#153	0.00007	0.00025
#27	0.00003	0.00011	#154	0.00002	0.00008
#28	0.00039	0.01128	#155	0.00001	0.00005
#29	0.00003	0.00011	#156	0.00002	0.00007
#30	0.00003	0.00011	#157	0.00002	0.00008
#31	0.00031	0.01105	#158	0.00002	0.00008
#32	0.00014	0.00047	#159	0.00002	0.00008
#34	0.00003	0.00011	#160	0.00002	0.00008
#35	0.00004	0.00012	#161	0.00002	0.00008
#36	0.00003	0.00011	#162	0.00002	0.00008
#37	0.00015	0.00051	#164/#163	0.00002	0.00008
#38	0.00004	0.00013	#165	0.00002	0.00008
#39	0.00003	0.00011	#166	0.00002	0.00008
TeCBs #40	0.00002	0.00006	#167	0.00002	0.00007
#41	0.00002	0.00006	#168	0.00002	0.00008
#42	0.00002	0.00006	#169	0.00003	0.00010
#43/#49	0.00012	0.00040	HpCBs #170	0.00006	0.00019
#44	0.00011	0.00038	#171	0.00005	0.00016
#45	0.00002	0.00006	#172	0.00005	0.00016
#46	0.00002	0.00006	#173	0.00005	0.00016
#50	0.00002	0.00006	#174	0.00005	0.00016
#51	0.00002	0.00006	#175	0.00005	0.00016
#52/#69	0.00026	0.00086	#176	0.00005	0.00016
#53	0.00002	0.00006	#177	0.00005	0.00016
#54	0.00001	0.00004	#178	0.00005	0.00016
#55	0.00002	0.00006	#179	0.00005	0.00016
#56	0.00007	0.00024	#180	0.00005	0.00018
#57	0.00001	0.00004	#181	0.00005	0.00016
#59	0.00002	0.00006	#182/#187	0.00005	0.00017
#60	0.00005	0.00015	#183	0.00005	0.00016
#61	0.00002	0.00006	#184	0.00005	0.00016
#62	0.00002	0.00006	#185	0.00005	0.00016
#63/#58	0.00002	0.00006	#186	0.00005	0.00016
#64	0.00006	0.00021	#188	0.00004	0.00012
#65/#75/#48/#	0.00027	0.00090	#189	0.00004	0.00015
#67	0.00002	0.00006	#190	0.00005	0.00016
#68	0.00002	0.00006	#191	0.00005	0.00016
#70	0.00009	0.00030	#192	0.00005	0.00016
#72/#71	0.00002	0.00006	#193	0.00005	0.00016
#73	0.00002	0.00006	OcCBs #194	0.00004	0.00012
#74	0.00007	0.00023	#195	0.00002	0.00008
#76	0.00002	0.00006	#196	0.00002	0.00005
#77	0.00004	0.00013	#197	0.00002	0.00005
#78	0.00002	0.00006	#198	0.00002	0.00005
#79	0.00002	0.00007	#199	0.00002	0.00005
#80/#66	0.00018	0.00059	#200	0.00002	0.00005
#81	0.00002	0.00007	#201	0.00002	0.00005
#82	0.00002	0.00006	#202	0.00001	0.00003
#83	0.00002	0.00006	#203	0.00001	0.00005
PeCBs #84/#92	0.00002	0.00006	#204	0.00002	0.00005
#85	0.00002	0.00006	#205	0.00001	0.00005
#86/#117/#97	0.00002	0.00006	NoCBs #206	0.00002	0.00008
#87/#115	0.00004	0.00012	#207	0.00002	0.00007
#88	0.00002	0.00006	#208	0.00002	0.00007
#89	0.00002	0.00006	DeCB #209	0.00005	0.00016
#90	0.00002	0.00006			
#91	0.00002	0.00006			
#94	0.00002	0.00006			
#96	0.00002	0.00006			
#98/#95	0.00004	0.00013			
#99	0.00004	0.00014			
#100	0.00002	0.00006			
#101	0.00003	0.00010			
#102/#93	0.00002	0.00006			
#103	0.00002	0.00006			
#104	0.00002	0.00008			
#105	0.00008	0.00028			
#106	0.00002	0.00006			
#108	0.00002	0.00006			
#109/#107	0.00002	0.00006			
#110/#120	0.00010	0.00034			
#111	0.00002	0.00006			
#112/#119	0.00002	0.00006			
#113	0.00002	0.00006			
#114	0.00004	0.00014			
#118	0.00013	0.00044			
#121	0.00002	0.00006			
#122	0.00002	0.00006			
#123	0.00004	0.00012			
#124	0.00002	0.00006			
#125/#116	0.00002	0.00006			
#126	0.00004	0.00015			
#127	0.00002	0.00006			

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	0.128	0.552	0.0734	0.117	0.113	0.395	0.199	0.156	0.251	0.137	0.212
DiCBs	2.26	3.09	0.954	1.43	1.09	12.7	3.67	1.63	3.44	2.16	3.24
TrCBs	17.9	16.6	5.98	14.2	6.01	143	25.1	8.42	34.4	13.3	28.5
TeCBs	42.2	47.3	21.6	46.5	21.2	349	74.2	33.9	110	32.1	77.8
PeCBs	58.6	80.7	48.2	79.5	36.0	415	112	61.4	112	55.3	106
HxCBs	54.9	96.6	67.0	89.8	44.6	499	136	97.2	112	73.6	127
HpCBs	15.6	30.0	24.6	30.6	15.6	170	45.2	38.3	35.3	24.4	43.0
OcCBs	2.03	4.46	3.76	4.40	2.49	27.1	7.34	6.15	5.28	4.16	6.72
NoCBs	0.310	0.745	0.606	0.681	0.374	3.13	1.06	1.23	0.580	0.534	0.925
DeCB	0.224	0.444	0.354	0.463	0.198	1.20	0.558	0.608	0.293	0.276	0.462
総PCBs	194	281	173	268	128	1621	406	249	414	206	394

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	0.0652	0.196	0.0795	0.0840	0.0558	0.106	0.0906	0.138	0.667	0	0.148
DiCBs	3.45	0.258	0.154	0.301	0.289	2.67	0.00884	0.207	0.229	0.368	0.793
TrCBs	18.3	0.525	0.519	0.511	0.573	11.9	0.295	0.466	0.375	0.676	3.41
TeCBs	8.90	3.25	2.43	1.98	2.63	14.6	0.931	1.72	1.40	1.33	3.92
PeCBs	3.25	9.30	9.06	3.03	9.09	10.1	1.97	4.34	3.65	1.72	5.55
HxCBs	3.67	18.3	19.4	3.25	11.2	8.45	3.67	5.78	7.66	3.09	8.45
HpCBs	1.59	8.30	7.26	1.08	3.44	3.45	1.48	2.63	3.19	1.14	3.36
OcCBs	0.275	1.35	1.40	0.186	0.711	0.816	0.286	0.576	0.705	0.230	0.654
NoCBs	0.0596	0.186	0.197	0.0333	0.104	0.0870	0.0420	0.0667	0.115	0.0498	0.0941
DeCB	0.0287	0.0778	0.0756	0.0167	0.0366	0.0259	0.0432	0.0479	0.0635	0.0326	0.0448
総PCBs	39.6	41.8	40.6	10.5	28.1	52.3	8.82	16.0	18.1	8.64	26.4

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	0.194	0.747	0.153	0.201	0.169	0.501	0.290	0.294	0.917	0.137	0.360
DiCBs	5.71	3.35	1.11	1.73	1.38	15.3	3.68	1.84	3.67	2.53	4.03
TrCBs	36.2	17.1	6.50	14.7	6.59	155	25.4	8.88	34.8	14.0	31.9
TeCBs	51.1	50.6	24.1	48.5	23.8	363	75.2	35.6	111	33.4	81.7
PeCBs	61.8	90.0	57.2	82.5	45.1	426	114	65.7	116	57.0	111
HxCBs	58.6	115	86.3	93.1	55.8	507	140	103	120	76.7	136
HpCBs	17.1	38.3	31.9	31.6	19.0	174	46.6	40.9	38.5	25.6	46.3
OcCBs	2.31	5.82	5.16	4.59	3.20	28.0	7.63	6.72	5.98	4.39	7.38
NoCBs	0.370	0.931	0.804	0.714	0.478	3.22	1.10	1.30	0.695	0.584	1.02
DeCB	0.253	0.522	0.430	0.480	0.234	1.23	0.601	0.656	0.356	0.308	0.507
総PCBs	234	322	214	278	156	1673	415	265	432	215	420

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	54.1	91.2	55.9	84.4	39.9	485	126	76.0	110	67.7	119
	NDL-PCBs	179	257	158	245	117	1511	373	233	389	190	365
11群	6PCBs	8.41	15.3	16.2	3.58	8.50	12.0	3.28	5.34	6.39	3.15	8.22
	NDL-PCBs	38.6	38.1	35.8	9.79	23.2	49.2	7.86	14.1	16.0	7.87	24.1
10群と11群	6PCBs	62.5	107	72.0	88.0	48.4	497	129	81.3	116	70.9	127
の合計	NDL-PCBs	217	295	193	255	141	1561	381	247	405	198	389

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 (全国)	2019年度 (令和元年度)	1歳以上	8.4 (420)	<LOD=0	209異性体	本研究
日本 (東京都)	2018年度 (平成30年度)	1歳以上	9.2 (-)	- *	-	5)
ベルギー	2005年	-	- (404) - (535)	<LOQ=0 <LOQ=L0Q	23異性体	6)
アメリカ	2009年	-	- (33)	<LOD=0	7異性体	7)
デンマーク	1998-2003年	4-14歳 15-75歳	24.9 (-) 12.6 (-)	<LOD=1/3LOD	10異性体	8)
スウェーデン	2005年	17-79歳	4.9 (362)	<LOQ=1/2LOQ	28異性体	9)
韓国	2008-2011年	19歳以上	3.94 (-)	-	62異性体	10)

*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	2019年度 (令和元年度)	1歳以上	2.5	<LOD=0	本研究
イタリア	1994-1996年	0.5-6歳 7-12歳 13-94歳	24.6 16.1 10.9	<LOQ=L0Q	11)
フランス	2005年、2007年	3-17歳 18-79歳	3.77 2.71	<LOD (LOQ)=1/2LOD (LOQ)	12)
ベルギー	2008年	15歳以上	5.33	<LOQ=0	13)
オーストリア	2006-2011年	6-15歳 19-65歳女性 19-65歳男性	3.37 3.19 2.64	- *	14)

*未掲載

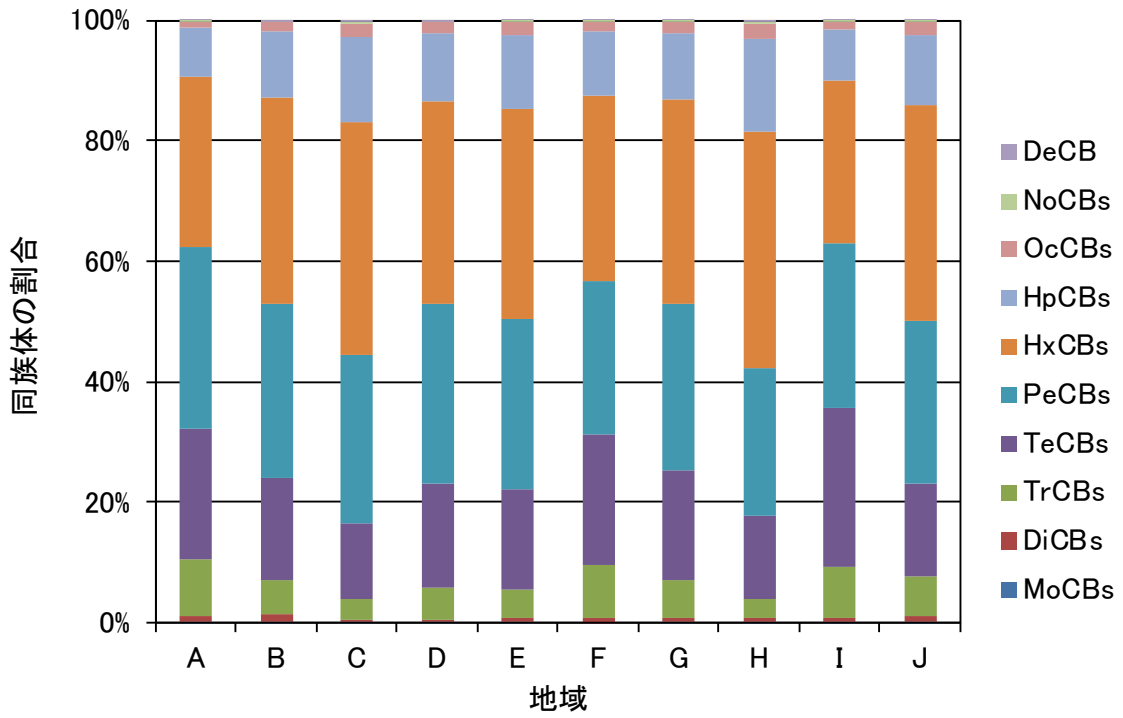


図1 10群からのPCBs摂取量におけるPCBs同族体の割合

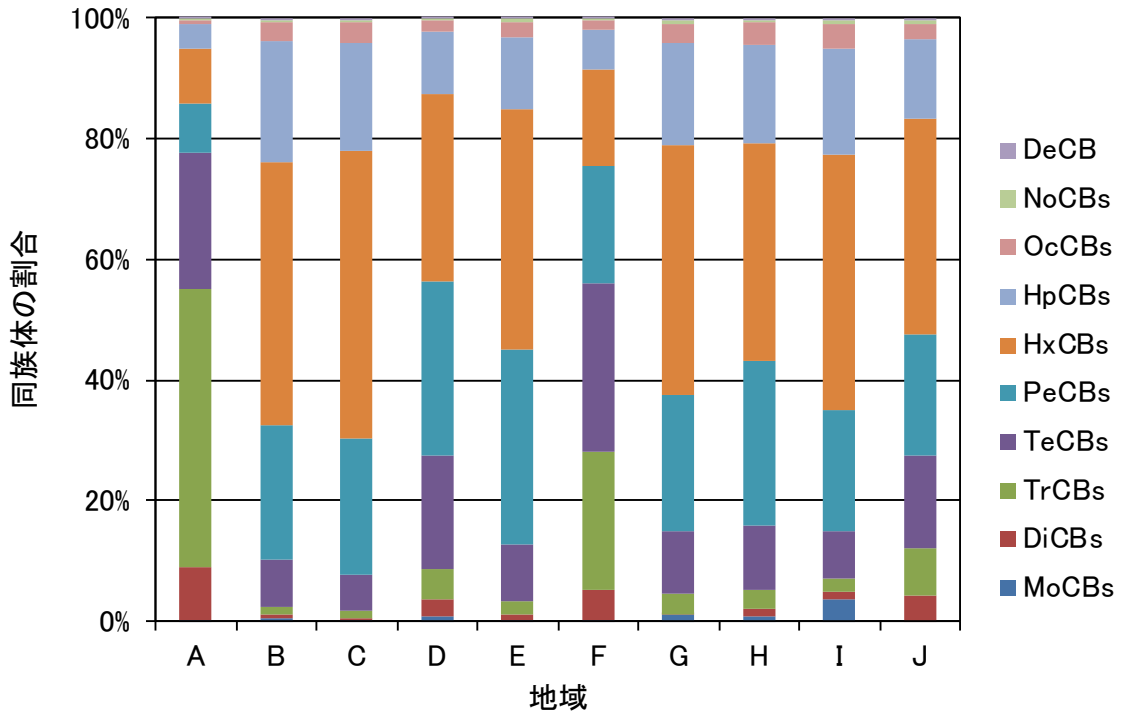


図2 11群からのPCBs摂取量におけるPCBs同族体の割合

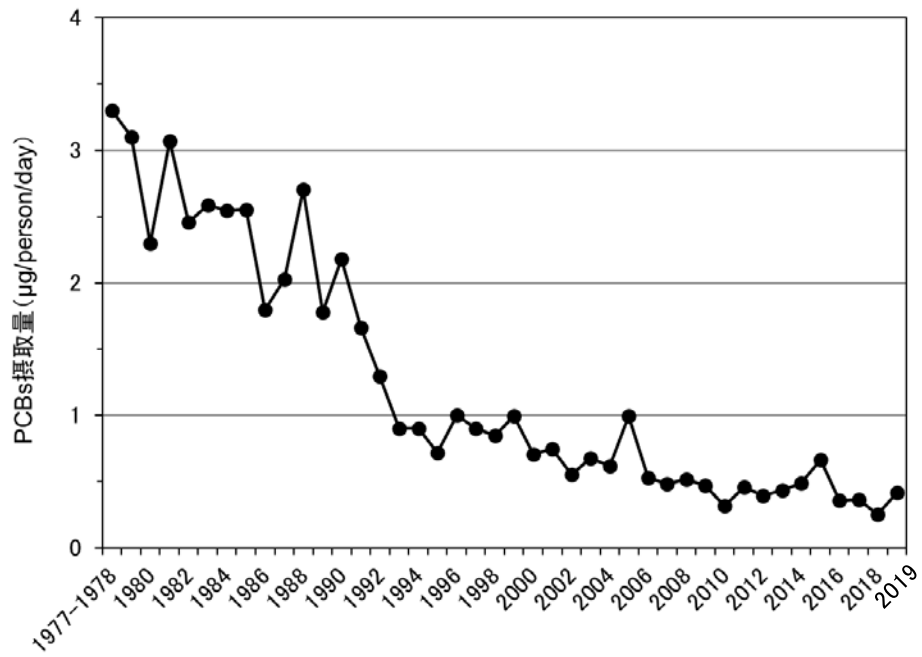


図3 総 PCBs 摂取量の経年変化(1977~2019)