

令和3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  
手法開発のための研究

総括・分担研究報告書

研究代表者

国立医薬品食品衛生研究所 食品部 堤 智昭

研究分担者

国立医薬品食品衛生研究所 食品部 堤 智昭

国立医薬品食品衛生研究所 食品部 鈴木美成

立命館大学薬学部 井之上浩一

埼玉県立小児医療センター 岡 明

国立医薬品食品衛生研究所 食品部 畝山智香子

令和4年（2022年）5月

## 目次

### I. 総括研究報告書

食品を介したダイオキシン類等有害物質摂取量の評価とその手法開発のための研究 . . . 1

堤 智昭

### II. 分担研究報告書

(1) 食品の塩素化ダイオキシン類、PCB、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

堤 智昭

(1-1) トータルダイエツト試料の分析による塩素化ダイオキシン類摂取量推定 . . . . . 36

(1-2) リスクを考慮した摂取量推定手法開発 . . . . . 49

(1-3) トータルダイエツト試料の分析による PCBs 摂取量推定 . . . . . 54

(1-4) 魚介類を主菜とする一食分試料(弁当類)及び魚油を原料とする健康食品からの  
ポリ塩化ビフェニルの摂取量調査 . . . . . 70

(1-5) 魚介類を主菜とする一食分試料(弁当類)及び魚油を原料とする健康食品からの  
ハロゲン系難燃剤の摂取量調査 . . . . . 92

(1-6) 自動前処理装置を用いた食品中のダイオキシン類分析の検討 . . . . . 131

(2) 食品の有害元素の摂取量推定に関する研究 . . . . . 161

鈴木美成

(3) 有害物質(有機フッ素化合物)摂取量推定に不可欠な分析法開発 . . . . . 210

井之上浩一

(4) 母乳のダイオキシン類汚染の実態調査と乳幼児の発達への影響に関する研究 . . . 232

岡 明

(5) 国際動向等を踏まえた摂取量推定すべき有害物質の探索とその摂取量推定に関する  
研究 . . . . . 239

畝山智香子

Ⅲ. 研究成果の刊行に関する一覧表 . . . . . 268

## I. 総括研究報告書

食品を介したダイオキシン類等有害物質摂取量の評価と  
その手法開発のための研究

研究代表者 堤 智昭

令和3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)  
総括研究報告書

食品を介したダイオキシン類等有害物質摂取量の評価と  
その手法開発のための研究

研究代表者 堤 智昭 国立医薬品食品衛生研究所

**研究要旨**

本研究では、食品を介した有害化学物質(ダイオキシン類等の残留性有機汚染物質や有害元素等)の摂取量を適時かつ継続的に調査すること目的として研究を実施した。

(1-1) 今年度に作製した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(TD)試料を用いて、ダイオキシン類(PCDD/PCDFs及びCo-PCBs)の国民平均一日摂取量を推定した。全国7地区8機関で調製したTD試料を分析した結果、ダイオキシン類の全国平均摂取量は0.44 pg TEQ/kg bw/dayと推定された。この値は、日本の耐容一日摂取量(TDI: 4 pg TEQ/kg bw/day)の約11%であった。10群(魚介類)からのダイオキシン類摂取量が全体の約9割を占めていた。ダイオキシン摂取量は本研究で調査を開始した1998年度以降、緩やかな減少傾向を示している。本年度のダイオキシン類摂取量は1998年の摂取量と比較すると25%程度であった。

(1-2) ダイオキシン類の摂取量の精密化のために、個人の食品摂取量のデータと魚介類中のダイオキシン類濃度を用いて、ベイズ法を併用した2次元モンテカルロシミュレーション(2D-MCS)を行った。ダイオキシン類摂取量の平均値は、1-6歳: 1.79 pg TEQ/kg bw/day、7-14歳: 1.28 pg TEQ/kg bw/day、15-19歳: 0.91 pg TEQ/kg bw/day、 $\geq 20$ 歳: 1.27 pg TEQ/kg bw/dayと推定された。

(1-3) 今年度に作製したMB方式による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。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)のみを対象にPCBs異性体分析を実施した。全国10地域で調製したTD試料を分析した結果、総PCBsの全国平均摂取量は、6.7 ng/kg bw/dayと推定され、この値は日本の暫定TDIの0.1%程度であった。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結果、NDL-PCBsの全国平均摂取量は6.1 ng/kg bw/dayと推定された。一昨年度に作製したTD試料を用いて、食品全体のPCBs摂取量において10群と11群が主要な摂取源であるかを検証した結果、これら2つの食品群からの摂取量で食品全体からのPCBs摂取量をほぼ説明できることが確認できた。

(1-4) 国内で市販されている一食分試料(弁当類)及び魚油を原料とする健康食品からのPCBs摂取量の調査を目的とした。本年度は、令和元年度に魚介類部分からのPCBs摂取量を調査した魚介類を主菜とする弁当類(5種、計25試料)について、魚介類以外の食品のPCBs分析を行い、これらの弁当全体からのPCBs摂取量を調査した。一食あたりの総PCBs摂取量は、平均値が341 ng/食、中央値が227 ng/食、範囲が16~1,827 ng/食であった。一食あたりの総PCBs摂取量の最大値は、日本の暫定TDIの約0.73%であった。また、魚油(精製魚油や鮫肝油)を原料とする健康食品計37試料を分析し、各試料からのPCBsの一日摂取量を算出した。総PCBsの一日摂取量は平均値が3.9 ng/day、中央値が0.44 ng/day、範囲が0.039~51 ng/dayであった。一日摂取量の最大値

は、日本の暫定 TDI の約 0.02%であった。

(1-5) 国内で市販されている一食分試料(弁当類)及び健康食品の分析を通じて、塩素系難燃剤であるデクロラン類及び臭素系難燃剤であるヘキサブプロモシクロドデカン(HBCDs)、ポリ臭素化ジフェニルエーテル(PBDEs)の摂取量調査を実施した。魚介類を主菜とする弁当類(5種、計25試料)について、HBCDsの一食当たりの摂取量は、平均値が18 ng/食、中央値が13 ng/食、範囲が0~82 ng/食であった。デクロラン類の一食当たりの摂取量は、平均値が2 ng/食、中央値が2 ng/食、範囲が0~7 ng/食であった。PBDEsの一食当たりの摂取量は、平均値が20 ng/食、中央値が7 ng/食、範囲が0~132 ng/食であった。また、魚油(精製魚油や鮫肝油)を原料とする健康食品について、HBCDsの一日当たりの摂取量は、平均値が0.8 ng/day、中央値が0.4 ng/day、範囲が0~3.3 ng/dayであった。デクロラン類の一日当たりの摂取量は、平均値が0.3 ng/day、中央値が0 ng/day、範囲が0~3.3 ng/dayであった。PBDEsの一日当たりの摂取量は、平均値が0.6 ng/day、中央値が0 ng/day、範囲が0~6 ng/dayであった。各々の化合物の有害性評価値または参照用量と比較したところ、魚介類を主菜とする弁当類や魚油を原料とする健康食品から摂取するハロゲン系難燃剤による人の健康リスクは低いと考えられた。

(1-6) 食品中のダイオキシン類分析の迅速化・省力化を目的として、自動前処理装置の肉類及び卵類へのダイオキシン類分析の適用性を検討した。牛肉及び鶏卵を用いた従来法(オープンカラム精製)との比較試験、添加回収試験、及び標準試料の分析の結果は良好であった。自動前処理装置は肉類及び卵類のダイオキシン類分析の迅速化・省力化に有効であると考えられた。

(2) 今年度に作製した MB 方式により調製した TD 試料の分析を通じ、ヒ素 [総ヒ素および無機ヒ素 (iAs) を含むヒ素化学種]、カドミウム、水銀 [総水銀及びメチル水銀 (Me-Hg)]、鉛を含む 41 元素および 5 化学種の全国・全年齢層における平均摂取量 (推定一日摂取量) を推定した。その結果、各元素類の推定一日摂取量は、B: 1715  $\mu$ g/person/day、Al: 2498  $\mu$ g/person/day、V: 27.5  $\mu$ g/person/day、Cr: 101  $\mu$ g/person/day、Mn: 4637  $\mu$ g/person/day、Co: 12.3  $\mu$ g/person/day、Ni: 197  $\mu$ g/person/day、As: 322  $\mu$ g/person/day、iAs: 22.8  $\mu$ g/person/day、Se: 123  $\mu$ g/person/day、Mo: 236  $\mu$ g/person/day、Cd: 16.7  $\mu$ g/person/day、Sn: 328  $\mu$ g/person/day、Sb: 1.90  $\mu$ g/person/day、Ba: 427  $\mu$ g/person/day、Hg: 8.21  $\mu$ g/person/day、Me-Hg: 7.02  $\mu$ g/person/day、Pb: 5.60  $\mu$ g/person/day、U: 1.29  $\mu$ g/person/day であった。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解析した。また、耐用摂取量等の Health Based Guideline Value (HBGV) が設定されている元素類については、必要に応じて一日当たりの値に換算した後、推定一日摂取量と HBGV の比 (ハザード比、HQ) を求めた。その結果、HQ は iAs の 1.36 を筆頭に、Ni、Mo が 0.80 以上、Se、Ba、Me-Hg が 0.39-0.59、B、Cd が 0.16-0.36 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。また、金属ナノ粒子の摂取量評価として、Ag ナノ粒子の摂取量推定を行った。健康リスクの高いと考えられる As、iAs、Cd、Hg、Pb の摂取量評価においては、ベイズ法を併用した 2D-MCS による確率論的摂取量評価についても検討を試みた。また、年代別の摂取量推定も行った。

(3) 有機フッ素化合物(PFCs)を対象とし、飲料水や食品からのヒト曝露に関する研究を進めている。前年度まで、国際的な情報収集と飲料水や食品を対象とした具体的な分析法開発に取り組んだ。本年度は、近年報告されている「食品汚染」についての論文報告例を取集した。また、昨年度の分析法開発において、分析装置環境からの PFCs 汚染が認められたため、本年度においてもバ

ックグラウンドの低減に取り組んだ。分析対象化合物を6種に限定し、Oasis WAXの固相抽出カラムを用いた前処理を検討した結果、試料5gを用いた時の定量範囲は0.1 ng/g~10 ng/gであった。さらに、TD調査に向けた分析法の構築を試みた。TD調査の試料は、令和3年度に作製した東京都と大阪府の試料とした。予備的な結果であるが、10群(魚介類)などから一部のPFCsが検出され、各食品群についても今後さらなる調査が必要と考えられた。

(4) 乳児への栄養食品という観点でダイオキシン類汚染の状況の評価を行った。初産婦の出産後1か月の母乳中のダイオキシン類濃度は、 $5.60 \pm 2.24$  pg TEQ/g-fat(平均±標準偏差)であった。平均値の経緯をみると長期的に認められている漸減傾向が継続している。ダイオキシン類対策が進んだ中で、母乳中のダイオキシン類濃度が今後さらに低下するかどうか引き続き調査を継続する必要がある。2013年度から2021年度までの本研究班での調査した中で、児の発育発達について十分なデータが得られた181名を対象として、母乳中のダイオキシン類による影響について、濃度と児の身体発育や発達との関連を検討した。母乳中のダイオキシン類濃度による児の身体発育への影響については、出生時の頭囲と負の相関があり、重回帰分析でも相関は有意であった。これは妊娠中の母体内でのダイオキシン類曝露の影響が推測されるが、母乳中のダイオキシン類濃度と生後の発達については、明らかな影響は認められなかった。

(5) 食品中にはしばしば環境や食品そのものに由来する有害化学物質が含まれるが、その実態やリスクの大きさについては必ずしも十分な情報があるわけではない。国民の健康保護のためには食品の安全性確保は重要課題であるが、全てのリスクを知ることや全てに対応することは不可能である。そこでリスクの大きさに基づいた、リスク管理の優先順位付けが必要になる。本課題では世界の食品安全担当機関が評価している各種汚染物質の暴露マージンについての情報を継続的に収集している。また欧米でパーおよびポリフルオロ化合物についての研究や評価にいくつか重要な進展があったのでその経緯をまとめた。

#### 研究分担者

国立医薬品食品衛生研究所食品部  
堤 智昭

国立医薬品食品衛生研究所食品部  
鈴木 美成

立命館大学薬学部  
井之上 浩一

埼玉県立小児医療センター  
岡 明

国立医薬品食品衛生研究所安全情報部  
畝山 智香子

#### 研究協力者

国立医薬品食品衛生研究所  
高附 巧、前田朋美、足立利華、鍋師裕美、  
登田 美桜

北海道立衛生研究所

青柳直樹、市橋大山

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

越智直樹、堀里実、五十嵐悠、櫻井有里子

名古屋市衛生研究所

宮崎仁志、高木恭子

滋賀県衛生科学センター

三田村徳子、佐野政文、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

大城聡子、當間一晃、古謝あゆ子

福岡県保健環境研究所

飛石和大、佐藤 環、新谷依子、古谷貴志、  
堀 就英

星薬科大学

穂山 浩

愛媛大学

川嶋文人

立命館大学

布目 真梨、五十嵐 由樹

(一財)日本食品分析センター

河野洋一、小杉正樹、柳俊彦

三浦工業株式会社

山本一樹、上田祐子

医療法人成和会山口病院

山口 暁

## A. 研究目的

有害物質の摂取量調査の結果は、リスク管理のための行政施策の策定やその効果の検証に科学的な知見を与えることから、極めて重要となる。本研究では、一般的にリスク管理が難しいとされる食品に非意図的に含まれてくる有害物質を対象として、摂取量調査を適時又は継続的に実施することを目的とした。食品からの摂取量調査の対象物質としては、ダイオキシン対策推進基本指針によりダイオキシン類暴露状況の調査が求められているダイオキシン類の他、ポリ塩化ビフェニル(PCBs)、有害元素類、ハロゲン系難燃剤とした。ダイオキシン類については乳児にとって主要な食品となる母乳からの摂取量と、その経年変化についても調査した。また、近年、健康危害リスクが懸念される有機フッ素化合物については、食品を対象にした分析法を検討した。さらに、リスク管理の優先順位付けに必要となる各種有害物質の暴露マージンについての情報を世界の食品安全担当機関等より収集し整理した。以上の研究を遂行するため下記(1)～(5)の分担課題を実施した。

(1)食品の塩素化ダイオキシン類、PCB、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

(1-1) トータルダイエツト試料の分析による塩素化ダイオキシン類摂取量推定

(1-2) リスクを考慮した摂取量推定手法開発

(1-3) トータルダイエツト試料の分析によるPCBs 摂取量推定

(1-4) 魚介類を主菜とする一食分試料(弁当類)及び魚油を原料とする健康食品からのPCBs の摂取量調査

(1-5) 魚介類を主菜とする一食分試料(弁当類)及び魚油を原料とする健康食品からのハロゲン系難燃剤の摂取量調査

(1-6) 自動前処理装置を用いた食品中のダイオキシン類分析の検討

(2) 食品の有害元素の摂取量推定に関する研究

(3) 有害物質(有機フッ素化合物)摂取量推定に不可欠な分析法開発

(4) 母乳のダイオキシン類汚染の実態調査と乳幼児の発達への影響に関する研究

(5) 国際動向等を踏まえた摂取量推定すべき有害物質の探索とその摂取量推定に関する研究

## B. 研究方法

(1) 食品の塩素化ダイオキシン類、PCB、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

(1-1) 塩素化ダイオキシン類のトータルダイエツト(TD)調査

### TD 試料

TD 試料は、全国7地区の8機関で調製した。厚生労働省が実施した平成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。食品は14群に大別して試料を調製した。各機関はそれぞれ約120品目の食品を購入し、地域別食品摂取量に基づいて、それらの食品を計量し、食品によっては調理した後、食品群ごとに混合均一化したものを試料とした。さらに第14群として飲料水を試料とした。1～9群、



及び 12～14 群は、各機関で 1 セットの試料を調製した。10 及び 11 群はダイオキシン類の主要な摂取源であるため、8 機関が各群 3 セットずつ調製した。これら 3 セットの試料調製では、魚種、産地、メーカー等が異なる食品を含めた。各機関で 3 セットずつ調製した 10 及び 11 群の試料はそれぞれの試料を分析に供した。一方、1～9 群及び 12～14 群は、各機関の食品摂取量に応じた割合で混合した共通試料とし、分析に供した。

### ダイオキシン類の分析

「食品中のダイオキシン類の測定方法暫定ガイドライン」に従ってダイオキシン類を分析し、一日摂取量を推定した。

### (1-2) リスクを考慮した摂取量推定手法開発

#### 魚介類摂取量の算出

平成 22 年度 受託事業(厚生労働省医薬食品局食品安全部基準審査課)食品摂取頻度・摂取量調査の特別集計業務報告書(平成 23 年 1 月 28 日)の食品摂取量データの個別データを用いた。本データの個別データは小児(1～6 歳)227 人、学童(7～14 歳)381 人、青年(15～19 歳)288 人、成人(20 歳以上)3614 人の、最大 12 日(連続しない 3 日×4 季節)のもので、このうち、体重の記録のなかったデータ(青年 3 件、成人 27 件)を除く、小児 1619 件、学童 3419 件、青年 2539 件、成人 32787 件を使用した。淡水魚、海水魚、缶詰等の魚 278 項目を魚介類 13 区分に分類し、それぞれの摂取量を算出した

#### 魚介類中のダイオキシン類濃度

魚介類中のダイオキシン類濃度は、厚生労働省科学研究(平成 10～26 年度)の調査結果(鮮魚 454、魚介類(軟体・甲殻・貝類)及びそれらの加工品 384 試料)を使用した。測定結果が検出下限値未満(ND)となった場合に 0 としたデータを使用した。

ダイオキシン類濃度の確率密度分布の推定には、正の実数をとる対数正規分布、ガンマ分布、ワイブル分布を仮定したモデルを用いた。ダイオキシン類濃度は PCDD、PCDF、DL-PCB とそれ

らの異性体の総和を用いた。必ずしも全ての測定対象物質が検出できているわけではないため、ND のデータがある場合については、下限値-上限値間の累積確率を用いて推定を行った。一方で、体重当たりの喫食量にはすべての小分類において 0 を含んでいたことから、ゼロ過剰を表現できる確率分布として、ゼロ過剰対数正規分布(ZILN)、ゼロ過剰ガンマ分布(ZIG)、Tweedie 分布を仮定したモデルについて検討した。

対数正規分布・ガンマ分布・ワイブル分布の確率密度関数はそれぞれ以下の式で示される。

対数正規分布:

$$f(Y|\mu, \sigma) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma Y} \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{\log Y - \mu}{\sigma}\right)^2\right]$$

ガンマ分布:

$$f(Y|\alpha, \beta) = \frac{\beta^\alpha}{\Gamma(\alpha)} Y^{\alpha-1} e^{-\beta Y}$$

ワイブル分布:

$$f(Y|m, \eta) = \frac{m}{\eta} \left(\frac{Y}{\eta}\right)^{m-1} \exp\left[-\left(\frac{Y}{\eta}\right)^m\right]$$

体重当たりの喫食量は非負値の連続変数であるため、対数正規分布を仮定してシミュレーションを行うことがこれまで多かった。しかしながら、すべての食品群には 0 を含むレコードが存在していたため、対数正規分布は妥当な確率密度分布であるとはいえない。そこで、0 過剰を表現できる確率密度分布である Tweedie 分布、zero-inflated gamma 分布、zero-inflated lognormal 分布を検討した。Tweedie 分布は以下の式で示すように、 $Y=0$  の場合は確率  $e^{-\lambda}$  で生成され、 $Y > 0$  の場合は複合ポアソン-ガンマ分布(compound Poisson-gamma distribution)から生成される。

$$\begin{cases} e^{-\lambda} & \text{if } Y = 0 \\ \begin{cases} M \sim \text{Poisson}(\lambda) \\ X_m \sim \text{Gamma}(\alpha, \beta) \\ Y = \sum_{m=1}^M X_m \end{cases} & \text{if } Y > 0 \end{cases}$$

ここで、 $\lambda$  はポアソン分布のパラメーター、 $\alpha$  は

ガンマ分布の形状パラメーター shape を、 $\beta$ はガンマ分布の比率パラメーターrate を示す。つまり、喫食回数  $M$  がポアソン分布に従い、1 回の喫食量  $X_m$  がガンマ分布に従い、その総和として Tweedie 分布となると解釈できる。R の Tweedie パッケージ (ver. 2.3.2) を使う場合は、Tweedie 分布のパラメーターは  $\mu$ 、 $\phi$ 、 $\theta$  で指定しており、 $\mu > 0$ 、 $\phi > 0$ 、 $1 < \theta < 2$  を満たす。Tweedie 分布の平均値の理論値は  $\mu$ 、分散の理論値は  $\phi\mu^\theta$  になる。ここで、 $\mu$ 、 $\phi$ 、 $\theta$  と  $\lambda$ 、 $\alpha$ 、 $\beta$  の間には以下のような関係がある。

$$\begin{cases} \lambda = \frac{1}{\phi} \frac{\mu^{(2-\theta)}}{2-\theta} \\ \alpha = \frac{2-\theta}{\theta-1} \\ \beta = \frac{1}{\phi} \frac{\mu^{(1-\theta)}}{\theta-1} \end{cases}$$

$$\begin{cases} \mu = \lambda \frac{\alpha}{\beta} \\ \phi = \frac{\lambda^{(1-\theta)} \left(\frac{\alpha}{\beta}\right)^{2-\theta}}{2-\theta} \\ \theta = \frac{\alpha+2}{\alpha+1} \end{cases}$$

Tweedie 分布は 0 にマスを持つ確率分布であるため、タバコ消費の解析や保険数理などの応用分野でもニーズが高く利用されている。Zero-inflated モデルは、 $(1-p)$  の確率で 0、 $p$  の確率である確率密度分布に従うモデルであり、ポアソン分布と組み合わせた zero-inflated Poisson 分布は来店回数の来客数のモデルに使用される。喫食量は 0 以上の連続変数であるので、対数正規分布あるいはガンマ分布と組み合わせた、zero-inflated lognormal (ZILN) 分布と zero-inflated gamma (ZIG) 分布への適合を検討した。

ダイオキシン濃度は必ずしもすべての異性体が検出されるわけではないので、本研究で使用している総ダイオキシン濃度には下限値と上限値がある。このような不検出例を含むデータの

場合には、不検出例に確率密度関数  $f(Y|\theta)$  に代わって下限値 ( $L$ ) - 上限値 ( $U$ ) 間の累積確率関数  $F(L, U|\theta)$  を用いることで、以下のように尤度  $L(Y|\theta)$  を算出できる。

$$L(Y|\theta) = \prod_{i=1}^{N_{\text{obs}}} f(Y_i|\theta) \times \prod_{j=1}^{N_{\text{cen}}} F(L_j, U_j|\theta)$$

ここで、 $N_{\text{obs}}$  は定量できたサンプルサイズを、 $N_{\text{cen}}$  は LOQ 未満のサンプルサイズを示す。

BE 法で得られる事後予測分布  $f_{\text{post}}(\theta|Y)$  は、ベイズの定理を用いて以下のようにあらわすことができる。

$$f_{\text{post}}(\theta|Y) = \frac{L(Y|\theta)f_{\text{pri}}(\theta)}{f_{\text{obs}}(Y)}$$

ここで、 $f_{\text{pri}}(\theta)$  は事前分布を、 $f_{\text{obs}}(Y)$  は観測値  $Y$  の確率密度分布を示す。観測値  $Y$  は観測後には変化しないため、

$$f_{\text{post}}(\theta|Y) \propto L(Y|\theta)f_{\text{pri}}(\theta)$$

と簡略化することができる。つまり、ベイズ推定は尤度を事前知識に基づいて重み付したものであると解釈できる。

ダイオキシン濃度のベイズ推定においては、形状パラメーターの事前分布には、以下の確率密度関数であらわされるコーシー分布を用いた。

$$f(Y|y_0, \gamma) = \frac{1}{\pi} \frac{\gamma}{(Y - y_0)^2 + \gamma^2}$$

対数正規分布を仮定した場合には  $(y_0, \gamma) = (3, 1)$  を使い、ガンマ分布及びワイブル分布には  $(y_0, \gamma) = (1, 1)$  をコーシー分布のパラメーターに用いた。パラメーターから変換した理論平均値の事前分布には、不検出例に LOQ の半値を代入して求めた平均値  $\hat{\mu}^{\text{RL}/2}$  を用いて、 $N(\hat{\mu}^{\text{RL}/2}, \hat{\mu}^{\text{RL}/2})$  の正規分布を採用した。

体重当たりの喫食量に関するベイズ推定においては、サンプルサイズが十分なため、無情報事前分布として  $(-\infty, \infty)$  の一様分布を用い

た。

ベイズ推定は、R のパッケージである rstan (ver.2.21.2)を用いた。WAIC が最も低いモデルを最適なものとして採用した。

### (1-3)TD 試料の分析による PCBs 摂取量推定

#### TD 試料

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(計 13 食品群)ごとに混合均一化したものを試料とした。

#### 1 群、2 群、及び 5 群の前処理

均一化した試料 20 g をナスフラスコに量りとり、クリーンアップスパイクを加えた後、アセトン、ヘキサンを加え振とう抽出した。抽出溶液を吸引ろ過し、残渣にアセトン、ヘキサンを加え、同様の操作を行い抽出液を分液ロートに合わせた。2%塩化ナトリウム溶液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。無水硫酸ナトリウムで脱水後、溶媒を留去したのち 1 mol/L 水酸化カリウムエタノール溶液を加え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、ヘキサンを加え振とう抽出した。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ロート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、溶媒を留去しヘキサンに溶解し分液ロートに移した。ヘキサン飽和ジメチルスルホキシドを加え振とう抽出した。静置

後、ジメチルスルホキシド層を分取し、ヘキサン層にヘキサン飽和ジメチルスルホキシドを加え同様の操作を 2 回行った。ジメチルスルホキシド層に水、ヘキサンを加え振とう抽出した。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、水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。無水硫酸ナトリウムで脱水後、溶媒を留去し少量のヘキサンに溶解した。多層シリカゲルをヘキサンで洗浄した後、試験溶液を注入し、ヘキサンで溶出した。溶出液は溶媒を留去し、少量のヘキサンに溶解した。アルミナカラムに試験溶液を注入し、ヘキサンで洗浄後、20%(v/v)ジクロロメタン含有ヘキサンで溶出した。溶媒を留去し、シリンジスパイクを加え、GC/MS 試験溶液とした。

#### 3 群、4 群、6 群～9 群、12 群、及び 13 群の前処理

均一化した試料 20 g(4 群は 5 g)をビーカーに量りとり、クリーンアップスパイクを加えた後、1 mol/L 水酸化カリウムエタノール溶液を加え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、ヘキサンを加え振とう抽出した。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ロート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、溶媒を留去しヘキサンに溶解し分液ロートに移した。ヘキサン飽和ジメチルスルホキシドを加え振とう抽出した。静置後、ジメチルスルホキシド層を分取し、ヘキサン層にヘキサン飽和ジメチルスルホキシドを加え同様の操作を 2 回行った。ジメチルスルホキシド層に水 mL、ヘキサンを加え振とう抽出した。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、水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。無水硫酸ナトリウムで脱水後、溶媒を留去し少量のヘキサンに溶解した。多層シリカゲルをヘキサンで洗浄した後、試験溶液を注入し、ヘキサンで溶出した。溶出液は溶媒を留去し、少量のヘキサンに溶解した。アルミナカラムに試験溶液を注入し、ヘキサンで洗浄後、20% (v/v) ジクロロメタン含有ヘキサンで溶出した。溶媒を留去し、シリンジスパイクを加え、GC/MS 試験溶液とした。

### **10 群及び 11 群の前処理**

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を加えた後、1 mol/L 水酸化カリウムエタノール溶液を加え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、水及びヘキサンを加え、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、溶媒を留去し少量のヘキサンに溶解した。多層シリカゲルをヘキサンで洗浄した後、試験溶液を注入し、ヘキサンで溶出した。溶出液は溶媒を留去し、少量のヘキサンに溶解した。アルミナカラムに試験溶液を注入し、ヘキサンで洗浄後、20% (v/v) ジクロロメタン含有ヘキサンで溶出した。溶媒を留去し、シリンジスパイクを加え、GC/MS 試験溶液とした。

### **PCBs の測定**

高分解能 GC/MS を使用して下記の条件で測定した。

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 × 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 µL

昇温条件: 100°C (1 分保持) - 20°C/分 - 180°C - 2°C/分 - 260°C - 5°C/分 - 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 µA

加速電圧: ~10.0 kV

分解能: 10,000 以上

測定モード: SIM

### **(1-4) 魚介類を主菜とする一食分試料(弁当類)及び魚油を原料とする健康食品からの PCBs の摂取量調査**

#### **試料**

弁当試料については、2019 年 9-10 月に国内のスーパーマーケット及び商業施設で魚介類を主菜とする弁当類 (5 種 25 試料) を購入して調査試料とした。各弁当について 3~4 個を購入し、弁当の内容物を魚介類部分とその他の部分に分け、各々をフードプロセッサーやハンドミキサーを使用して均一化した。試料は -20°C の冷凍庫で保管し、分析時に解凍して使用した。本年度は、その他の部分を均一化した試料を分析した。

健康食品については、2021 年 7-9 月に国内のドラッグストア及びインターネット (A~AA の 27 販売者等) で魚油を原料とする健康食品の計 37 試料 (精製魚油 32 試料、鮫肝油 5 試料) を購入して調査試料とした。

#### **弁当試料(その他の部分)の前処理**

均一化した試料 20 g をナスフラスコに量りとり、クリーンアップスパイクを加えた後、アセトン、ヘキサンを加え振とう抽出した。抽出溶液を吸引ろ過し、残渣にアセトン、ヘキサンを加え同様の操作を行い抽出液を分液ロートに合わせた。2% 塩化ナトリウム溶液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。無水硫酸ナトリウムで脱水後、溶媒を留去したのち 1 mol/L 水酸化カリウムエタノール溶液を加えスターラーで攪拌した。このアルカリ分解液を分液漏斗に移した後、水、ヘキサンを加え振とう抽出した。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、ヘキサンに溶解後、ヘキサン飽和ジメチルスルホキシドを加え振とう抽出した。静置後、ジメチルスルホキシド層を分取し、ヘキサン層にジメチルスルホキシドを加え同様の操作を 2 回行った。ジメチルスルホキシド抽出液を合わせ水、ヘキサンを加え、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、水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。ヘキサン層を無水硫酸ナトリウムで脱水後、溶媒を留去し少量のヘキサンに溶解した。多層シリカゲルをヘキサンで洗浄した後、試験溶液を注入し、ヘキサンで溶出した。溶出液は溶媒を留去し、少量のヘキサンに溶解した。アルミナカラムに試験溶液を注入し、ヘキサンで洗浄後、20%(v/v)ジクロロメタン含有ヘキサンで溶出した。溶媒を留去し、シリンジスパイクを加え、GC/MS 試験溶液とした。

### **健康食品の前処理**

試料 5g(被包材含む)をビーカーに量りとり、1 mol/L 水酸化カリウムエタノール溶液を加え、スターラーで攪拌し、攪拌開始 1 時間後にクリーンアップスパイクを加えた。このアルカリ分解液を分液漏斗に移した後、水、ヘキサンを加え振とう抽出した。置後、ヘキサン層を分取し、水層に

ヘキサン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、溶媒を留去し少量のヘキサンに溶解した。多層シリカゲルをヘキサンで洗浄した後、試験溶液を注入し、ヘキサンで溶出した。溶出液は溶媒を留去し、少量のヘキサンに溶解した。アルミナカラムに試験溶液を注入し、ヘキサンで洗浄後、20%(v/v)ジクロロメタン含有ヘキサンで溶出した。溶出液の溶媒を留去し、ヘキサンに溶解後、ヘキサン飽和ジメチルスルホキシドを加え振とう抽出した。静置後、ジメチルスルホキシド層を分取し、ヘキサン層にジメチルスルホキシドを加え同様の操作を 2 回行った。ジメチルスルホキシド抽出液を合わせ水、ヘキサンを加え、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、水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。ヘキサン層を無水硫酸ナトリウムで脱水後、溶媒を留去し少量のヘキサンに溶解した。多層シリカゲルをヘキサンで洗浄した後、試験溶液を注入し、ヘキサンで溶出した。溶出液は溶媒を留去し、シリンジスパイクを加え、GC/MS 試験溶液とした。

### **PCBs の測定**

(1-3) TD 試料の分析による PCBs 摂取量推定と同様に実施した。

(1-5) 魚介類を主菜とする一食分試料(弁当類)及び魚油を原料とする健康食品からのハロゲン系難燃剤の摂取量調査

### **試料**

2019 年 9-10 月に国内のスーパーマーケット及び商業施設(12 施設)で魚介類を主菜とする

弁当類を購入して調査試料とした。なお、購入した弁当類は「(1-4) 魚介類を主菜とする一食分試料(弁当類)及び魚油を原料とする健康食品からのPCBsの摂取量調査」で調査した弁当類と同一である。

2021年7-9月に国内のドラッグストア及びインターネット(27販売者など)で魚油を原料とする健康食品の計37製品(精製魚油32製品、鮫精製肝油5製品)を購入して調査試料とした。なお、購入した健康食品は「(1-4) 魚介類を主菜とする一食分試料(弁当類)及び魚油を原料とする健康食品からのPCBsの摂取量調査」で調査した弁当類と同一である。

### ハロゲン系難燃剤の分析

弁当類は、魚介類部分及びその他部分、それぞれ約10gをビーカーに精秤し、珪藻土10gとよく混合した後、凍結乾燥を行った。凍結乾燥した試料を珪藻土と共にASE抽出用セル(99mL)に充填し、高速溶媒抽出を行った。抽出液を濃縮した後、ジクロロメタン5mLを加え、ヘキサンで20mLに定容し試料液を調製した。

健康食品(被包材含む)は、それぞれ約1gをビーカーに精秤し、蒸留水55mLおよび濃塩酸5mLを加え、45°Cに加温しながら被包材が溶解するまで超音波(180W)で分解した。分解物を300mL分液ロートに移し、蒸留水40mL、エタノール50mL、ヘキサン60mL、ジクロロメタン20mL、塩化ナトリウム20gを加えて5分間振とう抽出を行った。ヘキサン層を無水硫酸ナトリウムにて脱水、濃縮後、ジクロロメタン5mLを加え、ヘキサンで20mLに定容し試料液を調製した。

20mLに定容した抽出液を一部分取し、濃縮乾固して得られた残渣の重量から脂肪含量(w/w,%)を求めた。健康食品についても弁当類と同様に脂肪含量(w/w,%)を求めた。

試料液5mLを分取し、クリーンアップスパイク( $^{13}\text{C}_{10}$ -Dechlorane、 $^{13}\text{C}_{10}$ -Dec 602、 $^{13}\text{C}_{10}$ -*anti*-DP、 $^{13}\text{C}_{10}$ -*syn*-DP、BFR-LCS)を各250pg相当、 $\alpha$ -、 $\beta$ -、 $\gamma$ - $^{13}\text{C}_{12}$ -HBCDを各

5000pg相当)を添加した後、硫酸処理を行った。続いて、GPC装置を用いて精製を行った。ハロゲン系難燃剤の溶出画分として指標物質フルバリネート溶出後20分(注入後12分~32分)を分取した。得られた画分を減圧濃縮して、*n*-ヘキサン1mLに転溶した後、44%硫酸シリカゲルカラムに負荷し、30%ジクロロメタン/*n*-ヘキサン8mLで溶出した。溶出液を窒素気流下で濃縮乾固し、0.1mLアセトニトリル溶液(シリジンスパイクとして、 $^{13}\text{C}_{12}$ -PentaCB 111、BFR-ISS)を各100pg、 $\gamma$ -HBCD-*d*<sub>18</sub>を2000pg含む)としたものを測定試料とした。デクロラン類とPBDEsは高分解能GC/MSにより測定した。HBCDsはLC-MS/MSにより測定した。測定条件は分担研究報告書に従った。

### (1-6) 自動前処理装置を用いた食品中のダイオキシン類分析の検討

#### アルカリ分解・溶媒抽出

均一化した試料40gをビーカーに量りとり、クリーンアップスパイク( $^{13}\text{C}$ 標識したダイオキシン類)を加えた後、2mol/L水酸化カリウム水溶液を加え室温で約16時間放置した。このアルカリ分解液を分液ロートに移した後、メタノール、ヘキサンを加え振とう抽出した。静置後、ヘキサン層を分取し、水層にヘキサンを加え同様の操作を2回行った。ヘキサン層を合わせ、2%塩化ナトリウム溶液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。得られたヘキサン層を抽出液とした。

#### オープンカラムによる精製(従来法)

ヘキサン抽出液を「食品中のダイオキシン類の測定方法暫定ガイドライン」に従って精製した。

#### 自動前処理装置(GO-EHT)による精製

ヘキサン層の入った分液漏斗に濃硫酸を加え、緩やかに振とうし、1晩放置した。鶏卵では、翌日、硫酸層を除去し、再度、濃硫酸を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2回繰り返した。牛肉では、翌日、硫酸

層を除去し、再度、濃硫酸を加え緩やかに振とうし、更に 1 晩放置した。翌日、硫酸層を除去し、再度、濃硫酸を加え緩やかに振とうし、静置後、硫酸層を除去した。この操作を再度繰り返した。その後、ヘキサン層をヘキサン洗浄水で 2 回洗浄し、無水硫酸ナトリウムで脱水した。溶媒を留去し 1 mL 程度に濃縮した後、自動前処理装置に装着した精製カラム(標準タイプ 20 φ)に負荷した。精製カラムは上から順に、硝酸銀シリカゲルカラム、硫酸シリカゲルカラム、炭素系カラム、及びアルミナカラムを連結させた。ヘキサンをカラムに通液後、逆方向からトルエンを送液した。アルミナカラムからトルエンでモノオルト PCBs 分画を溶出した。炭素系カラムからトルエンで PCDD/PCDFs 及びノンオルト PCBs 分画を溶出した。モノオルト PCBs 分画は溶媒を留去し、シリジスパイク (<sup>13</sup>C 標識体ダイオキシン類)を添加し高分解能 GC/MS に供した。PCDD/PCDFs 及びノンオルト PCBs 分画は溶媒を留去後、シリジスパイク (<sup>13</sup>C 標識体 40 pg ダイオキシン類)を添加し高分解能 GC/MS に供した。

### ダイオキシン類の測定

「食品中のダイオキシン類の測定方法暫定ガイドライン」に従ってダイオキシン類を測定した。

## (2) 食品の有害元素の摂取量推定に関する研究

### ICP-MS による元素分析

多元素分析は、分析用試料 0.50 g を石英製分解容器に量りとり、硝酸 5 mL 及び過酸化水素水 2 mL を加えた。水 5 mL 及び過酸化水素水 2 mL を加えた TFM 製分解容器に前述の石英製分解容器を入れ、マイクロ波分解装置により分解した。マイクロ波分解は次の条件で行った。70 °C: 2 分間→50°C: 3 分間→8.3°C/分: 18 分間→200°C: 10 分間。

分解後の溶液に、混合内部標準溶液 0.5 mL を添加後、水で 50 mL に定容した。定容後の溶液を測定溶液として ICP-MS により測定した。

ただし、14 群の試料に対しては、試料 40 mL に

対し硝酸 5 mL、過酸化水素 2 mL を添加し、50 mL に定容したものを ICP-MS 用の分析試料とした。

### ヒ素の化学形態別分析

試料 2.0 g を量り取り、0.3 mol/L 硝酸溶液 5 mL を加え、100°C で 2 時間静置した。なお、30 分おきによく振り混ぜた。2600×g で 10 分間遠心分離後、水層を 20 mL メスフラスコに移した。残渣に水 5.0 mL を加え、手でよく振とうした後、同様に遠心分離後、水層を上記のメスフラスコに合わせた。同様の操作を計 2 回行った。メスフラスコにメチルオレンジ溶液を 100 μL 加え、5% アンモニア水で約 pH 2.7 (溶液の色が薄い赤色～オレンジ)に調整した後、20 mL に定容した。この溶液を孔径 0.45 μm の PTFE フィルターでろ過したものを、測定溶液とした。

測定試料 10 μL を HPLC カラムに抽入し、ヒ素の化学種別分析を行った。定量対象とした As 化学種は、無機ヒ素 [iAs (As(III)と As(V)の合計)]、モノメチルアルソン酸 (MMAs)、ジメチルアルソン酸 (DMAs)、およびアルセノベタイン (AsB) とした。得られた As ピーク面積値の濃度に対する一次回帰式を最小二乗法により求め、検量線を作成した。内部標準として移動相に添加した Te の信号を解析し、Te の信号強度の変動が認められた場合には、As/Te 比を用いて同様に定量を行った。

### 総水銀の分析

総水銀 (Hg) は総水銀計を用いて測定を行った。標準溶液及び水銀濃度が 0.01 mg/kg 未満の試料の測定には低濃度用の吸光セル、水銀濃度が 0.01 mg/kg 以上の試料の測定には高濃度用の吸光セルを用いた。サンプルポートは、5 mol/L 硝酸溶液に 12 時間以上浸け置きした後、水でよくすすぎ、使用する直前に 750°C で 3 時間加熱した。冷却後、総水銀計により 850°C で 4 分間再加熱したものを使用した。添加剤 B は使用する直前に 750°C で 5 時間加熱したものを、4 群の T-Hg 測定の際に添加した。標準原液を適宜量りとり、0.01% L-システイン溶液で希

積し、検量線用標準溶液とした。

### メチル水銀の分析

試料 2.0 g を量り取り、10% TMAH 溶液 5 mL を加え、80°C で 2 時間静置した。なお、30 分おきによく振り混ぜた。2600×g で 10 分間遠心分離後、上澄みを 20 mL メスフラスコに移した。塩酸を用いて pH 2.3 に調整した後、20 mL に定容した。この溶液を孔径 0.45 μm の PTFE フィルターでろ過したものを、測定溶液とした。

1 群の場合には、試料 2.0 g に対して人口唾液 (1.667 mg/mL NaCl, 0.5 mg/mL NaSCN, 1.833 mg/mL Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>, 0.5 mg/ml NaHCO<sub>3</sub>, 1.5 mg/mL KCl, 2.0 mg/mL KH<sub>2</sub>PO<sub>4</sub>, CaCl<sub>2</sub>·H<sub>2</sub>O, 0.833 mg/mL α-アミラーゼ, 0.333mg/mL 尿酸, 0.033 mg/mL 尿素, 2.5 mg/mL ムチン) を 3 mL 添加し、37°C で 15 分静置した後、25% TMAH を 2 mL 添加し 80° C で 2 時間静置した。以降の操作は、上記と同様に行った。

### 銀ナノ粒子の分析

試料 0.5 g を量り取り、酵素溶液 (3.0 mg/L パンクレアチン、3.0 g/L リパーゼ、0.2 mol/L NaH<sub>2</sub>PO<sub>4</sub>、0.2 mol/L NaOH、pH=7.4) 7 mL を添加し超音波バスにて 10 分間処理を行い、ヒートブロック状で 37°C 60 分加熱した。室温に戻した後、遠心分離 (2600×g, 30 分間) で得られた上清を 100 mL メスフラスコに移し、1% Tween-20 で定容した。溶存性の Ag を除くために、定容した溶液 1 mL を 50-kDa のカットオフ値の限外濾過フィルターを用いて銀ナノ粒子 (Ag-NP) 画分を分離した。回収した Ag-NP 画分は 50 mL メスフラスコに移し、1% Tween-20 で定容し、測定溶液とした。

適宜 1% Tween-20 で希釈した後、単一粒子 (single particle, sp)-ICP-MS 法を用いて、Ag-NP の粒子数濃度、粒子質量濃度、単一粒子質量分布を測定した。sp-ICP-MS 測定においては、信号の取り込み時間を 0.5 ms とし、1~5 分間の時間分解分析を行った。sp-ICP-MS での試料輸送効率は、粒径 60 nm の銀ナノ粒子を用いて測定日ごとに算出した値を用いた。ま

た、同様の方法で二酸化ケイ素ナノ粒子 (SiO<sub>2</sub>-NP) も測定を行った。

### 統計解析

空試験を 3 回以上行い、空試験の信号強度の標準偏差を 10 倍した値を検量線の傾きで除した値を定量下限値 (LOQ) とした。HPLC-ICP-MS によるヒ素化合物の分析においては、空試験のピーク範囲における信号を積分した値を利用し、信号強度が低い場合にはポアソン分布に近似していると仮定して、標準偏差はピーク面積値の 2 乗根を用いた。

LOQ 未満の結果を含むデータの取扱いに関しては、古典的には 0、1/2LOQ、LOQ 等を代入する方法が用いられてきた。しかしながら、最近の研究・ガイドラインでは、代入法の適用範囲は限定されて来ており、その使用も推奨されなくなってきている。代入法以外の平均値推定法として、R (3.4.0) と R のパッケージ rstan (2.16.2) を用いた。

一方で、これまでと同様の手法で推定値を比較することも求められる。そこで、本研究では代入法に代わる解析法についても本研究への適用可能性を調査するとともに、LOQ 未満となったデータは 0 (ND=0) と 1/2LOQ (ND=0.5LOQ) の代入法両方で算出することを基本とした。

元素類摂取量は、TD 試料中化学物質濃度に食品消費量を乗じて推定した。この推定値は地域別の全年齢層平均摂取量 (地域別摂取量) に相当する。地域別摂取量を平均した値を全国・全年齢層平均摂取量 (推定一日摂取量) とした。

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。

モンテカルロシミュレーションの際には、14 群の体重当たり喫食量には 250/55 g/kg/day の定数を用いた。

### **(3) 有害物質 (有機フッ素化合物) 摂取量推定に不可欠な分析法開発**



## 論文調査

立命館大学情報管理システムにおけるものを用いた。

## PFCs 分析

標準溶液の調製方法:本標準品はメタノールを用いて、1000 µg/mL の標準原液に調製した。検量線用標準溶液は、各標準原液からメタノールで希釈し、100 ng/mL の混合液を調製した。その後、本溶液を段階的に希釈し、検量線用標準溶液を調製した。

遠心分離機:日立社製 CF15RN

ホモジナイザー:KINEMATICA 社製 ポリトロン  
ホモジナイザーPT10-35GT

加熱濃縮装置:ジーエルサイエンス社製 リアク  
ティバップ、リアクティサーモ

固相抽出カラム:Waters 社製 Oasis WAX (6  
cc/150 mg)、ジーエルサイエンス社製 InertSep  
MA-2 (6 mL/250 mg)

LC 装置:Waters 社製 Acquity H Class

分離カラム:TSKgel ODS-100V (2.0 × 150  
mm、3 mm、東ソー社製)

Delay カラム:Delay Column for PFAS (3.0 ×  
30 mm、ジーエルサイエンス社製)

移動相:A 5 mmol/L 酢酸アンモニウム水溶  
液、B 5 mmol/L 酢酸アンモニウム含有メタノ  
ール (A/B=65/35 (0-2 min) → 2/98 (15-23  
min) → 65/35 (23.1-25 min))

流速:0.2 mL/min

注入量:10 µL

MS 装置:Waters 社製 Xevo TQD

Capillary voltage 2.0 kV

Extractor voltage 3 V

RF lens voltage 2.5 V

Source temperature 150°C

Desolvation temperature 400°C

Cone/desolvation gas flows 50/800 L/hr

MS/daughter scan ranges m/z 50-1200

Cone voltage 15-50 V

Collision energy 15-50 eV

イオン化モード:ESI ネガティブモード

食品の前処理は、分担研究報告書に記載された方法に従った。

## (4) 母乳のダイオキシン類汚染の実態調査と乳幼児の発達への影響に関する研究

### 母乳試料

初産婦より、産後 1 か月の母乳の提供を受けダイオキシン類濃度を測定する。生後 1 か月と採取条件を一定とし、経年的な母乳汚染の変化を判断出来るように計画している。母乳中ダイオキシン類レベルは、初産婦と経産婦でその分布が異なるため、本研究では原則として初産婦に限定している。母乳採取の際には、同時に母親の年齢、喫煙歴や児の出生時の体格、1 か月時の発育状況などの調査用紙への記入を求めた。本年度は、医療法人成和会山口病院にて計 20 人から母乳の提供を受けた。

### ダイオキシン類分析

ダイオキシン類として、PCDD7 種類、PCDF10 種類、Co-PCB12 種類と、母乳中の脂肪含有量を公益財団法人北九州生活科学センターに委託して測定した。ダイオキシン類濃度の毒性等価量は、2006 年の WHO の毒性等価係数を用いた。脂肪 1 g 当たりの毒性等価量(脂肪重量換算)を pg TEQ/g-fat として表記した。PCDDs (7 種) + PCDFs (10 種) + Co-PCBs (12 種) を総ダイオキシン類濃度と定義した。ダイオキシン類は高分解能 GC/MS で測定し、脂肪 1 g 当たりの毒性等価量で示した。実測濃度が LOQ 未満のダイオキシン類は LOQ の 1/2 の濃度として計算した。

### 母乳中ダイオキシン類濃度と発育発達への影響

1 歳時に郵送にて質問紙表を送付し下記の点について郵送にて回答を依頼した。

・これまでにかかった病気

・1 歳までの発育・発達

運動発達(出来るようになった月齢)

首のすわり、寝返り、お座り(座位)、つかまり立ち、伝い歩き、一人歩き(2~3歩)

精神発達:(出来るようになった月齢)

禁止の理解:「いけません」というと、ちょっと手をひっこめる。

動作の理解:「バイバイ」や「さよなら」に反応する。

指示の理解:「おいで」「ちょうだい」「ねんね」などを1つでも理解できる。

発語:食物のことを「マンマ」という(他の有意義語でも良い)。

動作模倣:ブラシ、鉛筆などを使うまねをする。

母乳中ダイオキシン類濃度と発育発達への影響については、出生時(生下時)の体重、頭囲、1歳時の身体発育、運動発達、精神発達との関係について、Parsonの相関係数、重回帰分析を行った。統計はSPSSソフトウェア(IBM SPSS Statistics 28.0.0.0)を使用した。

#### (5) 国際動向等を踏まえた摂取量推定すべき有害物質の探索とその摂取量推定に関する研究

世界各国の食品安全担当機関やリスク評価担当機関によるここ数年の発表を収集した。学術発表やメディア報道に対応して何らかの発表を行っている場合にはもともとなった文献や報道についても可能であれば情報収集した。MOEについては評価書から抜き出した数値を表にまとめた。パーおよびポリフルオロ化合物(PFAS)については時系列を年表にした。なお収集期間は2022年3月までである。

### C. 結果及び考察

#### (1) 食品の塩素化ダイオキシン類、PCB、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

##### (1-1) TD 試料の分析による塩素化ダイオキシン類摂取量推定

##### ダイオキシン類摂取量

PCDD/PCDFsとCo-PCBsを合わせたダイオキシン類の一日摂取量は、平均22.20(範囲:7.32~59.69)pg TEQ/person/dayと推定された。体重あたりの摂取量は平均0.44(範囲:0.15

~1.19)pg TEQ/kg bw/dayであった。平均値は日本のダイオキシン類のTDI(4pg TEQ/kg bw/day)の約11%であり、最大値はTDIの30%程度に相当した。昨年度は平均0.40(範囲:0.11~0.91)pg TEQ/kg bw/dayであり、今年度の平均値は昨年度より1割ほど高い値であった。

ダイオキシン類摂取量に対する寄与率が高い食品群は、10群(魚介類)91.9%、11群(肉・卵類)6.5%であり、これら2つの食品群で全体の98.4%を占めた。この傾向は昨年度の調査と同様の傾向であった。また、ダイオキシン類摂取量に占めるCo-PCBsの割合は、69%であった。一昨年度及び昨年度における割合は共に67%であり、ほぼ7割を推移している。

本研究では、ダイオキシン類摂取量に占める割合が大きい10群及び11群の試料を各機関で各3セット調製し、ダイオキシン類摂取量の最小値、中央値及び最大値を求めている。今年度は、同一機関であっても、推定されるダイオキシン類摂取量の最小値と最大値には1.6~8.2倍の開きがあった。昨年度は同一機関における最小値と最大値の開きは1.5~3.2倍であり、今年度の最小値と最大値の開きは昨年度と比べ大きかった。3セットの試料は、同一機関(地域)において、種類、産地、メーカー等が異なる食品を使用して調製していることから、10群及び11群に含まれる食品のダイオキシン類濃度は広い範囲に分布していることが推察された。1セットのTD試料に含めることが可能な食品の数は限られているため、本研究のように10群や11群の試料数を多くして広範囲な食品を含めることが、信頼性の高いダイオキシン類摂取量の平均値の推定には有用であると考えられる。

##### ダイオキシン類摂取量の経年変化

平成10(1998)年度以降の調査で得られたダイオキシン類摂取量(全国平均値)の経年変化を解析した。ダイオキシン類摂取量の合計値は、1998年度以降、若干の増減はあるものの緩やかな減少傾向を示している。本年度(2021年度)の全国平均値は0.44pg TEQ/kg bw/dayで

あり、1998年度以降の調査結果の中で2番目に低い値であった。また、調査開始時の1998年度の摂取量は1.75 pg TEQ/kg bw/dayであり、これと比較すると本年度の平均値は25%程度であった。同様に、10群からの摂取量も、調査期間内で緩やかな減少を示していた。一方、11群からの摂取量は、2006年度までに大きく減少し、その後は低い値でほぼ一定となっていた。このように、ダイオキシン類摂取量の減少には、2006年度までは10群と11群からの摂取量の減少が寄与していたが、2006年度以降は、主として10群からの摂取量の減少が寄与していた。

ダイオキシン類摂取量はTD試料中のダイオキシン類濃度と各食品群の食品摂取量を乗じて求められる。ダイオキシン類摂取量が減少した要因について考察するため、ダイオキシン類摂取量に占める割合が大きい10群及び11群のダイオキシン類濃度の平均値の経年変化を解析した。10群及び11群のダイオキシン類濃度は、ダイオキシン類摂取量とよく似た減少傾向を示していた。日本ではCo-PCBsを含むPCB製品の使用が1972年に禁止されている。また、PCDD/PCDFsを不純物として含むことが知られている農薬(クロロニトロフェン及びペンタクロロフェノール)の農薬登録が1970年代に失効している。さらには、1999年に制定されたダイオキシン類対策特別措置法により、焼却施設等からのダイオキシン類の排出が大幅に抑制されている。ダイオキシン類摂取量の低下についてはこれらの行政施策の効果が窺われた。また、各年の調査で用いた10群と11群の一日あたりの食品摂取量(g/day)を解析した。11群の食品摂取量は調査開始時の1998年度からほぼ横ばいで推移しているが、10群の食品摂取量は近年ゆるやかな減少を示しており、今年度の10群の食品摂取量は1998年と比較して約70%に減少していた。食生活の多様化に伴う魚介類摂取量の減少も部分的にダイオキシン類摂取量の減少に寄与していると考えられた。

#### **国内外のダイオキシン類摂取量調査との比較**

過去10年間に実施された日本と主な諸外国のTD調査の結果を調査した。日本国内では本調査の他に、東京都が実施しているダイオキシン類摂取量調査の報告がある。東京都の令和2年度のダイオキシン類摂取量は0.40 pg TEQ/kg bw/dayと報告されており、本調査結果と近い値であった。ダイオキシン類摂取量の推定には、分析法の検出下限値(LOD)、LODの取り扱い、また対象とした年齢層などの違いが影響するため、各国のダイオキシン類摂取量を単純に比較することは難しい。これらの点に留意する必要があるが、本調査のダイオキシン類摂取量は諸外国で報告されているダイオキシン類摂取量と比較し、特に高いことはなかった。

#### **(1-2)リスクを考慮した摂取量推定手法開発**

ベイズ推定で得られた各魚介類サブグループのダイオキシン濃度に関する事後予測分布の平均値として算出した形状パラメーターは次の通りであった;  $e^{\theta}$  :  $3.3 \pm 0.6$ ,  $\alpha$  : (1.7, 8.2),  $m$  : 3.8。ほとんどのグループで得られた結果は、設定した事前分布との乖離は小さかったことから、事前分布の設定は適切であったと判断できた。事前分布との乖離が大きかった練り製品と魚肉ソーセージは、LとUの分布がほとんど重なっていなかった。このようなデータの場合は、パラメーターが収束せず、妥当な推定が行えなかった可能性がある。

多くの小分類においてダイオキシン類濃度は対数正規分布への適合が最も良いと判断できた。対数正規分布以外の分布への適合度が高かった、練り製品・魚肉ソーセージについては、分布の相対標準偏差が40%未満であった。これらのグループは、試料自体が均質化されていることから、他の小分類のグループと比較して相対標準偏差が小さくなった可能性も考えられた。

体重当たりの喫食量に関する事後予測分布の結果、ZILN分布が33グループで、ZIG分布が10グループで、Tweedie分布が9グループで適していると判断された。

ベイズ推定で得られた事後予測分布から 2000 個のモンテカルロサンプルを得たのちに、各事後予測分布の組み合わせから 50 個の乱数を発生させ、計 10 万個の乱数を生成した。魚介類を介したダイオキシン類摂取量を 13 の小分類からの総和として算出した 2D-MCS によるダイオキシン類摂取量の平均値は、1-6 歳: 1.79 pg TEQ/kg/day、7-14 歳: 1.28 pg TEQ/kg/day、15-19 歳: 0.91 pg TEQ/kg/day、 $\geq 20$  歳: 1.27 pg TEQ/kg/day であった。TDI (4 pg TEQ/kg/day) を超過する確率は以下の通りであった; 1-6 歳: 10.0%、7-14 歳: 6.7%、15-19 歳: 4.2%、 $>20$  歳: 6.5%。15-19 歳よりも 20 歳以上で TDI を超過する確率が高かった要因は、魚介類の喫食頻度が 15-19 歳では 76%であったのに対して、20 歳以上では 85%と喫食頻度が高いためと考えられた。

なお、本研究で推定したダイオキシン類摂取量については、次の点から過大推定されている可能性に留意が必要である。本研究では全て未調理の魚介類のダイオキシン類濃度データをシミュレーションに使用している。調理によりダイオキシン類濃度が減少することが知られていることから、魚介類中のダイオキシン類濃度が実際の喫食状態よりも高くなっている可能性が考えられる。また、ダイオキシン類摂取量は経年的に減少していることが TD 調査より明らかになっている。今回のシミュレーションに使用した魚介類のダイオキシン類濃度データには過去のデータも含まれていることから、摂取量推定値を大きくした可能性も考えられる。

### (1-3) TD 試料の分析による PCBs 摂取量推定 PCBs 摂取量の推定(令和 3 年度)

全 10 地域で調製した 10 群及び 11 群の分析結果から PCBs 摂取量を推定した。10 群からの総 PCBs 摂取量は 102~993 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 320 ng/person/day であった。また、11 群からの総 PCBs 摂取量は 6.6~32 ng/person/day の範囲

で推定され、全国平均値は 16 ng/person/day であった。昨年度の 10 群からの総 PCBs 摂取量の全国平均値は 300 ng/person/day、11 群からの総 PCBs 摂取量の全国平均値は 21 ng/person/day であった。昨年度と比較すると、今年度の 10 群の総 PCBs 摂取量の全国平均値はやや高い値であったが、11 群の総 PCBs 摂取量はやや低い値であった。今年度は 10 群については地域 A、11 群については地域 B で総 PCBs 摂取量の最大値が推定され、昨年度の最大値と比較すると、それぞれ約 1.9 倍及び約 0.8 倍であった。

10 群と 11 群からの総 PCBs 摂取量は 117~1014 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 336 ng/person/day であった。昨年度の総 PCBs 摂取量の全国平均値は 321 ng/person/day であり、今年度の総 PCBs 摂取量は昨年度と比較して大きな変化はなかった。現在、日本では PCBs に暫定 TDI (5  $\mu$ g/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 336 ng/person/day であり、体重 (50 kg と仮定) あたりでは 6.7 ng/kg bw/day であった。この値は暫定 TDI の僅か 0.1%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) 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  $\mu$ g /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 34%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留意が必要である。

本年度までの総 PCBs 摂取量の全国平均値の経年推移を解析した。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、調査開始以来、4番目に低い値であった。調査開始時の総 PCBs 摂取量と比較すると、本年度の総 PCBs 摂取量は1/10程度であった。

#### **非ダイオキシン様 PCBs (NDL-PCBs) 摂取量の推定(令和3年度)**

各地域のTD試料の分析結果よりNDL-PCBs摂取量を推定した。また、NDL-PCBs 摂取量の指標異性体として欧州等で使用されている6PCBsの摂取量についてもあわせて推定した。10群からのNDL-PCBs摂取量は94~885 ng/person/dayの範囲で推定され、全国平均値は292 ng/person/dayであった。11群からのNDL-PCBs摂取量は6.0~29 ng/person/dayの範囲で推定され、全国平均値は15 ng/person/dayであった。また、10群と11群からの摂取量を合計したNDL-PCBs摂取量は、106~906 ng/person/dayの範囲で推定され、全国平均値は307 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336 ng/person/dayであることから、NDL-PCBsは総PCBs摂取量の91%を占めていた。この傾向は昨年度の調査結果と同様であった。

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32~361 ng/person/dayの範囲で推定され、全国平均値は108 ng/person/dayであった。11群からの摂

取量は2.4~12 ng/person/dayの範囲で推定され、全国平均値は5.4 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、37~366 ng/person/dayの範囲で推定され、全国平均値は113 ng/person/dayであった。

EFSAでは、欧州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、NDL-PCBsに対する割合は10群で34~41%、11群で22~47%であり、昨年度の調査結果と同様に50%を下回っていた。指標異性体のNDL-PCBsに対する割合については汚染源となるPCBs製品におけるPCBs組成の違いや、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。

#### **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まとめた。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。東京都の令和3年度のPCBs摂取量は6.8 ng/kg bw/dayと報告されており、本調査結果とほぼ同じ値であった。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、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まとめた。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(50kgと仮定)あたりでは、2.3 ng/kg bw/dayであり、諸外国で報告されている6PCBs摂取量の範囲内であった。

#### **食品全体からのPCBs摂取量に占める10群と11群の摂取量割合の調査**

令和元年度に作製したTD試料を用いて、食品全体(飲料水を除く)からのPCBs摂取量において10群と11群が主要な摂取源であるかを

検証した。1～9 群、12 群、及び 13 群については、全地域のコンポジット試料の分析結果から PCBs 摂取量を推定した。10 群と 11 群については、令和元年度厚生労働行政推進調査事業費補助金研究報告書より全国平均値を使用した。食品全体からの PCBs 摂取量に占める各食品群の割合を解析した結果、総 PCBs 摂取量、NDL-PCBs 摂取量、及び 6PCBs 摂取量のいずれにおいても 10 群の占める割合が最も高く、次いで 11 群の占める割合が高かった。総 PCBs 摂取量、NDL-PCBs 摂取量、及び 6PCBs 摂取量における 10 群と 11 群の合計値が占める割合は、それぞれ 88.0%、87.7%、及び 92.8%であった。これら 2 つの食品群からの摂取量で食品全体からの PCBs 摂取量をほぼ説明できることが確認できた。

#### (1-4) 魚介類を主菜とする一食分試料(弁当類)及び魚油を原料とする健康食品からの PCBs の摂取量調査

##### 弁当試料からの PCBs 摂取量

各弁当のその他の部分からの総 PCBs 摂取量は、平均値が 17.5 ng/食、中央値が 14.9 ng/食、範囲が 5.8～61.4 ng/食であった。サバ弁当の No.4 及び No.5 でやや高い値が得られたものの、最大値と最小値の比は 10 倍程度であった。令和元年度に報告した同一の弁当試料の魚介類部分からの総 PCBs 摂取量の最大値と最小値の比は 300 倍程度であったことから、その他の部分からの総 PCBs 摂取量は比較的狭い範囲に収まっていた。その他の部分については飯が大部分を占めており、飯の PCBs 濃度が魚介類ほど広い範囲に分布していないことが要因として考えられた。白身魚フライ弁当を除き、弁当全体からの総 PCBs 摂取量に占めるその他の部分の割合は総じて低かった。

弁当全体(その他の部分と魚介類部分の合計)からの一食あたりの総 PCBs 摂取量は、ウナギ弁当で平均値が 326 ng/食、中央値が 244 ng/食、範囲が 130～731 ng/食、サケ弁当で平

均値が 122 ng/食、中央値が 82 ng/食、範囲が 71～238 ng/食、サバ弁当で平均値が 1,013 ng/食、中央値が 955 ng/食、範囲が 464～1,827 ng/食、サンマ弁当で平均値が 198 ng/食、中央値が 228 ng/食、範囲が 85～252 ng/食、白身魚フライ弁当で平均値が 44 ng/食、中央値が 26 ng/食、範囲が 16～128 ng/食であった。弁当の種類毎の調査数が 5 と少ないことに留意する必要があるが、弁当一食あたりの総 PCBs 摂取量は、主菜とする魚介類の種類により大きな違いが認められた。中央値で比較した場合、総 PCBs 摂取量の中央値が最大であったサバ弁当と、最小であった白身魚フライ弁当では 37 倍もの差があった。

現在、日本では PCBs に暫定耐容一日摂取量(TDI) (5 µg/kg bw/day) が示されている。弁当全体の内、総 PCBs 摂取量が最も高かったサバ弁当(No.2)でも暫定 TDI の僅か 0.73%であった。暫定 TDI を指標にした場合は、総 PCBs 摂取量によるヒトの健康リスクは小さいと判断できる。しかし、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 WHO TDI (0.02 µg/kg bw/day) と比較すると、各種弁当の総 PCBs 摂取量の平均値は WHO TDI の 4～101%、中央値は WHO TDI の 3～96%であった。個々の弁当試料についてみた場合は、サバ弁当 2 試料(No. 1、No.2)の一食当たりの総 PCBs 摂取量が WHO TDI を超過(116%及び 183%)していた。WHO TDI については過度の安全を見込んだ TDI となっている可能性に留意が必要であるが、PCBs 摂取量をより低減する観点からも、特定の種類や製造会社の食品を過度に摂取するのではなく、多様な食品を含むバランスの良い食生活を送ることが重要であると考えられる。

リスク評価のための情報が不足している NDL-PCB 摂取量、及び NDL-PCBs の指標異性体として使用されている 6PCBs の摂取量についても弁当全体からの摂取量を算出した。

弁当全体からの一食当たりの NDL-PCBs 摂取量は、ウナギ弁当で平均値が 297 ng/食、中央値が 225 ng/食、範囲が 120~662 ng/食、サケ弁当で平均値が 113 ng/食、中央値が 76 ng/食、範囲が 67~221 ng/食、サバ弁当で平均値が 938 ng/食、中央値が 882 ng/食、範囲が 431~1,698 ng/食、サンマ弁当で平均値が 187 ng/食、中央値が 215 ng/食、範囲が 80~239 ng/食、白身魚フライ弁当で平均値が 41 ng/食、中央値が 24 ng/食、範囲が 15~118 ng/食であった。弁当全体からの総 PCBs 摂取量に占める NDL-PCBs の割合は、調査した 25 試料で 90~95%であった。

弁当全体からの一食当たりの 6PCBs 摂取量は、ウナギ弁当で平均値が 113 ng/食、中央値が 86 ng/食、範囲が 46~260 ng/食、サケ弁当で平均値が 37 ng/食、中央値 25 ng/食、範囲が 22~70 ng/食、サバ弁当で平均値が 344 ng/食、中央値が 305 ng/食、範囲が 145~608 ng/食、サンマ弁当で平均値が 53 ng/食、中央値 62 ng/食、範囲が 23~66 ng/食、白身魚フライ弁当で平均値が 12 ng/食、中央値が 5.5 ng/食、範囲が 3.0~39 ng/食であった。弁当全体からの NDL-PCBs 摂取量に占める 6PCBs 摂取量の割合は、調査した 25 試料で 20~41%であった。現在、NDL-PCBs についてはリスク評価のための毒性試験データなどの情報が不足しており、TDI は設定されていない。そのため、今回得られた NDL-PCBs 摂取量と TDI の比較はできなかった。

### **健康食品からの PCBs 摂取量**

健康食品 37 試料からの PCBs の一日摂取量を算出した。今回調査した魚油を原料とする健康食品については、鮫肝油を使用している表示がある試料(以下、鮫肝油)と、その他の魚油を使用していると考えられる試料(以下、その他の魚油)に大別できた。全試料からの総 PCBs の一日摂取量は、平均値が 3.9 ng/day、中央値が 0.44 ng/day、範囲が 0.039~51 ng/day であった。NDL-PCBs の一日摂取量は、平均値が 3.8

ng/day、中央値が 0.42 ng/day、範囲が 0.039~51 ng/day であった。6PCBs の一日摂取量は、平均値が 1.6 ng/day、中央値が 0.11 ng/day、範囲が 0.0041~22 ng/day であった。総 PCBs の一日摂取量が最も高かった試料は No.35 であり、試料には鮫肝油を使用している表示があった。総 PCBs の一日摂取量は 51 ng/day と算出され、体重(50 kg と仮定)あたりの総 PCBs 摂取量は 1.0 ng/kg/day であった。日本の PCBs の暫定 TDI と比較すると、この値は僅か 0.02%程度であった。また、参考としてより厳しい WHO の TDI と比較すると、5%程度に相当した。今年度の TD 調査によると、一般的な食事からの総 PCBs の全国平均値は、6.7 ng/kg bw/day と推定されている。全国平均値と No.35 からの総 PCBs の摂取量を合計した場合でも、日本の暫定 TDI の 0.15%程度、WHO の TDI の 39%程度であり、TDI を下回っていた。

鮫肝油試料の調査数は 5 と少ないことに留意する必要があるものの、鮫肝油試料からの PCBs 摂取量は、その他の魚油試料と比較すると概して高い値であった。鮫肝油については鮫が食物連鎖の上位に位置することや、肝臓には PCBs 等の残留性有機汚染物質(POPs)が蓄積しやすいことから、PCBs 摂取量が高くなった可能性が考えられた。鮫肝油を使用した健康食品では PCBs の摂取量が比較的高くなることが報告されており、本研究の結果とよく一致していた。

今回調査した魚油を原料とする健康食品から摂取される PCBs による人の健康リスクは低いと考えられた。しかし、魚油の精製方法は製品により様々であり、精製方法によっては魚油に含まれる PCBs 等の POPs が十分に除去できない場合も考えられる。過去にはある販売者の健康食品から TDI を超過するダイオキシン類が検出された事例もあることから、種々の製品について調査を継続していくことが望ましい。

**(1-5)魚介類を主菜とする一食分試料(弁当類)及び魚油を原料とする健康食品からのハロゲン**

## 系難燃剤の摂取量調査

### 一食分試料(弁当類)におけるハロゲン系難燃剤の摂取量

一食分の重量をもとに、一食当たりのハロゲン系難燃剤の摂取量を算出した。なお、ND となったハロゲン系難燃剤については、ゼロとして摂取量を算出した。弁当類一食当たりのハロゲン系難燃剤の摂取量は、ほとんどの試料において魚介類部分からの摂取量割合が大きかったが、PBDEs 摂取量が最大であったサンマ弁当 (No.19) においては、その他部分からの摂取量割合が大きかった。当該試料では、その他部分におけるPBDEs濃度が比較的高く、かつ一食分重量が魚介類部分より大きいことから、その他部分からの摂取量割合が大きくなった。

弁当の種類別においては、個々の弁当によって摂取量に大きな違いが認められたものの、中央値で比較した場合、サバ弁当の PBDEs 摂取量、ウナギ弁当とサンマ弁当の HBCDs 摂取量が比較的高値であった。他方、白身魚フライ弁当は総じて摂取量が低い傾向であった。

HBCDs の一食当たりの摂取量は、平均値が 18 ng/食、中央値が 13 ng/食、範囲が 0~82 ng/食であった。有害性評価値(無毒性量 10.2 mg/kg/day を不確実係数 200 で除した値)と比較を行ったところ、この値に対する HBCDsの一食当たりの摂取量は体重 50 kg の人で最大 0.003%であった。一食当たりの摂取量が最も高かった弁当を、仮に一日に3食喫食しても有害性評価値に対する割合は僅か 0.01%であった。

デクロラン類の一食当たりの摂取量は、平均値が 2 ng/食、中央値が 2 ng/食、範囲が 0~7 ng/食であった。デクロラン類の摂取量への寄与が最も高かった Dechlorane の参照用量(RfD、0.0002 mg/kg/day)と比較したところ、RfD に対するデクロラン類の一食当たりの摂取量は、体重 50 kg の人で最大 0.07%であった。一食当たりの摂取量が最も高かった弁当を、仮に一日に3食喫食しても RfD に対する割合は僅か 0.2%であった。

PBDEs の一食当たりの摂取量は、平均値が 20 ng/食、中央値が 7 ng/食、範囲が 0~132 ng/食であった。PBDEs についても HBCDs と同様に有害性評価値(DecaBDE-209 の最小毒性量 0.05 mg/kg/day を不確実係数 1000 で除した値)と比較を行ったところ、この値に対する PBDEs の一日摂取量は体重 50 kg の人で最大 5.3%であった。一食当たりの摂取量が最も高かった弁当を、仮に一日に3食喫食した場合、有害性評価値に対する割合は 15.8%であった。

以上の結果から、魚介類を主菜とする弁当類から摂取するハロゲン系難燃剤による人の健康リスクは低いと考えられる。

### 健康食品におけるハロゲン系難燃剤の摂取量

健康食品の一日摂取重量をもとに算出した、一日当たりのハロゲン系難燃剤の摂取量を算出した。なお、ND となったハロゲン系難燃剤については、ゼロとして摂取量を算出した。

HBCDs の一日当たりの摂取量は、平均値が 0.8 ng/day、中央値が 0.4 ng/day、範囲が 0~3.3 ng/day であった。有害性評価値(無毒性量 10.2 mg/kg/day を不確実係数 200 で除した値)と比較を行ったところ、この値に対する HBCDs の一日当たりの摂取量は体重 50kg の人で最大 0.0001%であった。

デクロラン類の一日当たりの摂取量は、平均値が 0.3 ng/day、中央値が 0 ng/day、範囲が 0~3.3 ng/day であった。デクロラン類の摂取量への寄与が最も高かった Dechlorane の参照用量(RfD、0.0002 mg/kg/day)と比較したところ、RfD に対するデクロラン類の一日当たりの摂取量は、体重 50 kg の人で最大 0.03%であった。

PBDEs の一日当たりの摂取量は、平均値が 0.6 ng/day、中央値が 0 ng/day、範囲が 0~6 ng/day であった。PBDEs についても HBCDs と同様に有害性評価値(DecaBDE-209 の最小毒性量 0.05 mg/kg/day を不確実係数 1000 で除した値)と比較を行ったところ、この値に対する PBDEs の一日摂取量は体重 50kg の人で最大 0.2%であった。



以上の結果から、魚油を原料とする健康食品から摂取するハロゲン系難燃剤による人の健康リスクは低いと考えられる。

#### (1-6) 自動前処理装置を用いた食品中のダイオキシン類分析の検討

##### 自動前処理装置におけるノンオルト PCBs 及び PCDD/PCDFs 分画の精製回数の検討

昨年度に検討した魚試料のノンオルト PCBs 及び PCDD/PCDFs 分画については、一部のダイオキシン類異性体 (1,2,3,7,8-PeCDF、1,2,3,4,7,8-HxCDF) に夾雑物の影響が認められたため、自動前処理装置による精製を2回行う必要があった。そこで、今年度に検討する食品の中で、夾雑物を多く含むと考えられた鶏卵を用いて、当該分画の精製回数と夾雑物の影響について検討した。

鶏卵を自動前処理装置により1回及び2回精製した当該分画の SIM クロマトグラム (PeCDFs 及び HxCDFs) を、従来法の SIM クロマトグラムと比較した。1回精製の SIM クロマトグラムでも、魚試料で夾雑物の影響が認められた 1,2,3,7,8-PeCDF 及び 1,2,3,4,7,8-HxCDF に対する妨害ピークは殆ど認められなかった。また、自動前処理装置で1回精製した各異性体の濃度は、2回精製及び従来法と顕著な違いは認められなかった。魚試料で夾雑物の影響が認められた 1,2,3,7,8-PeCDF 及び 1,2,3,4,7,8-HxCDF についても、良く一致した濃度が得られていた。以上の結果から、肉類及び卵類については、ノンオルト PCBs 及び PCDD/PCDFs 分画の精製回数は1回が適切であると判断した。

##### 自動前処理装置と従来法のダイオキシン類異性体濃度の比較

自動前処理装置と従来法により牛肉と鶏卵 (各  $n = 5$ ) を分析し、ダイオキシン類の各異性体濃度を比較した。自動前処理装置の各異性体濃度の平均値は、従来法に対して牛肉で 90~112%、鶏卵で 88~108% であり良く一致していた。また、RSD (%) も牛肉で 16% 以内、鶏卵で 9%

以内であり、従来法 (牛肉で 23% 以内、鶏卵で 12% 以内) と比較して顕著に大きな値となることはなかった。

牛肉については、自動前処理装置と従来法の SIM クロマトグラムには大きな違いは認められなかった。一方、鶏卵については、自動前処理装置の PCDFs (特に PeCDFs 及び HxCDFs) の SIM クロマトグラムには、従来法では認められない夾雑物のピークが多数認められた。PCDFs が含まれる分画については、従来法と比較すると夾雑物の含有が多いと考えられた。今回使用した鶏卵には平飼いの表示があった。平飼いの鶏卵についてはダイオキシン類やその他の環境汚染物質の濃度が高くなる報告がある。観察された夾雑物のピークはダイオキシン類の定量に影響することはなかったものの、鶏の飼育環境 (平飼いなど) によっては鶏卵に環境汚染物質等に由来すると考えられる夾雑物が多く含まれる場合が想定されるため、これらの夾雑物の影響に注意を払う必要がある。

##### 自動前処理装置の適用性の検証

自動前処理装置の適用性を検証するため、種々の牛肉及び鶏卵 (計 5 試料、各  $n = 1$ ) を分析し、従来法のダイオキシン類の異性体濃度と比較した。自動前処理装置の異性体濃度は、殆どの異性体について従来法の  $\pm 20\%$  以内に収まっており、概してよく一致していた。また、自動前処理装置のクリーンアップスパイクの回収率は 54~108% であり、ガイドラインの許容範囲 (40~120%) に収まった。従来法のクリーンアップスパイクの回収率 (57~119%) と比較すると、自動前処理装置のクリーンアップスパイクの回収率は全体的にやや低値であった。

ダイオキシン類全体のリスク評価やリスク管理のためには、毒性当量濃度が用いられる。自動前処理装置の各試料の毒性当量濃度は、従来法に対して 91~103% であり、非常に良く一致していた。

##### ダイオキシン類の添加回収試験

自動前処理装置を用いたダイオキシン類の分

析性能(真度、及び併行精度)を添加回収試験により評価した。牛肉及び鶏卵に既知濃度(0.1~20 pg/g)の各異性体を添加し、5 併行で分析した際の真度及び併行精度を評価した。牛肉における真度は 88~104%、併行精度は 7.2%以下、鶏卵における真度は 90~105%、併行精度は 5.2%以下であり、分析対象となる全ての異性体について良好な結果であった。

### 認証標準試料及び標準試料のダイオキシン類分析

ダイオキシン類濃度が参照値として付与されている標準試料(EDF-5491、鶏卵の凍結乾燥品)を自動前処理装置で分析した。2 試行で分析した結果、参照値を有する異性体については、全ての異性体で LODs 以上の値が得られ、参照値の範囲内(付与値±2SD)であった。これらの結果から、自動前処理装置を用いたダイオキシン類分析により得られた分析結果の信頼性が確認できた。

## (2)食品の有害元素の摂取量推定に関する研究

### 各元素類の全国・全年齢層平均摂取量の推定

本年度に調製した全 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 41 元素(B, Al, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Ge, As, Se, Rb, Sr, Zr, Mo, Cd, Sn, Sb, Cs, Ba, La, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu, W, Hg, Pb, U)について 10 地域の平均値として推定一日摂取量を算出した。また、ヒ素の化学種別の推定一日摂取量の平均値、地域ブロックごとの 1 群、10 群、および 11 群の MeHg 摂取量、MeHg 割合を示した。V, Cr, Ge, Sn、希土類元素、Pb 以外の元素では地域ブロック間の変動は小さかった。Ge と希土類元素は定量値が低かったことから、測定精度を踏まえると妥当な変動幅であるといえた。

一方で、Sn は四分位範囲が広く、他の元素のパターンとは大きく異なった。これまでの調査に

おいては、Al, Sn, Sb, Pb, U の摂取量に地域間の変動が大きいことが報告されている。Sn の変動が高くなる要因として、これまでの報告書では、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とされている。缶詰食品が利用されていた、5 群、6 群、7 群、8 群に関して比較した。サンプル数が少ないため、統計的検定は行わなかったが、缶詰食品を使用したほうが、Sn 摂取量が高くなる傾向があった。しかしながら、8 群で缶詰食品の利用よりも、水煮タケノコが含まれているかどうかの影響が大きいと判断できた。これまでの研究においても水煮タケノコが TD 試料中の Sn 濃度を増加した可能性が指摘されている。タケノコの水煮には、保存中のチロシンの発生を抑制するためにクエン酸やアスコルビン酸を添加して pH を 1~3 に調整する方法がしばしば取られる。容器からの溶出が影響を与えたと考えられた。

### 食品群ごとの寄与率

As の摂取量における寄与率は、これまでの報告と同様に、10 群で 52.5%、次いで 8 群で 35.1%と大きかった。10 群の魚介類においては、ヒ素は毒性の低い AsB として存在していた。一方で、iAs はコメや海藻の中でもヒジキには無機ヒ素が多く含まれており、そのリスクが懸念されている。昨年度の調査においても、1 群の寄与率は 56.0%、8 群の寄与率は 28.4%であった。Cd の摂取量における寄与率は、これまでの報告と同様に、1 群で 30.3%、次いで 8 群の 21.3%と大きかった。Hg の摂取量における寄与率は、これまでの報告と同様に、10 群の魚介類で多く 90.0%であった。10 群では 88.6%が毒性の高いメチル水銀として存在していた。Pb の摂取量における寄与率は、8 群で 22.6%、1 群で 13.3%であった。

一昨年度の調査から追加した元素である Ti, Ge, Rb, Sr, Zr, Cs、希土類元素、W について、その特徴を以下にまとめる。Ti は 10 群の魚介類の寄与率が 20.0%と高かった。Ge は 9 群の嗜好飲料からの寄与が 23.0%と最も高かった。これは

PETの合成触媒としてGeが使用されているためと考えられた。同じく触媒に利用されているSbの寄与も9群で高かった結果(23.7%)は、上記の推測と矛盾していない。Rbは11群(24.1%)の寄与が最も高かったが、他の食品群でも5~12%の寄与が観測された。Srは8群からの寄与が45.2%と最も高かった。Csは11群(20.6%)、10群(14.1%)、9群(13.0%)で高かった。本研究で測定しているのは安定同位体のSrとCsであるが、放射性同位体のSrとCsの参考にはなると考えられる。Zr(57.6%)およびW(31.5%)は9群での寄与が最も高かった。希土類元素は、元素によって多少異なるが、概ね8群で26~53%と最も寄与率が高く、ついで10群の魚介類で8~24%と高かった。

#### Health-Based Guideline Value との比較

各元素のHealth-Based Guideline Value(HBGV)を種々の公的機関のデータベースから参照し、推定した一日摂取量と比較からハザード比(HQ)を算出した。

HQが最も高かったのはiAsであり、最大で136%であった。ここで、iAsのHGBVについては、US EPA(アメリカ合衆国環境保護庁)が1999年に評価した経口暴露による心臓血管、皮膚障害のRfDと、ATSDR(米国健康福祉省の毒性物質疾病登録機関)が行った2007年に評価した非発がん毒性として皮膚病変のNOELと比較した。一方で、JECFA(FAO/WHO合同食品添加物専門家会議)はBMDL0.5として $3.0 \mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ を導出した。BMDLとの比較は曝露マージン(MOE)として評価したところ、MOEは7.3となった。不確実係数としては、個人差として10、摂取量推定の不確実性として4を用いたところ、推定したMOEは不確実係数積よりも小さい値となった。

地域ごとの値を比較すると、HQは89-450%でありHQが100%を超えた地域もあった。現在のところ、食品安全委員会ではHBGVを設定するためには、国内の曝露実態及び食事由来のヒ素曝露を明らかにした上で摂取量を評価する必要

があるとしている。以上の点からも、iAsのHQについては、リスクが高い可能性があるものの正確な評価については今後のリスク評価結果を待つ必要があるだろう。

2番目にHQが最も高かったのはNiであり、その値は90%であった。Niの推定一日摂取量における各食品群からの寄与率は、5群(21.3%)で最も高く、次いで1群(19.6%)で高かった。

3番目にHQが最も高かったのはMoであり、その値は86%であった。MoもiAsも推定一日摂取量における各食品群からの寄与率は1群(52.6%)で最も高いことから、コメの喫食量については低値が望ましいのかもしれない。

毒性の高い元素であるCdとMeHgのHQは30-59%の範囲であり、今後とも食品を介した摂取量の変動に注視する必要があるだろう。一方で、Pbに関しては、BMDLと比較するため、MOEによる検討を行ったところ、MOEは5-15の範囲内であった。MOEが1でも健康リスクはほとんどないと考えられていることから、次節の経年変動の解析結果と合わせると、今後ともリスクは減少すると考えられた。

#### 経年変動

1977年より継続的に行ってきたAs、Cd、Hg、Pbの推定一日摂取量の経年変動を解析した。2018年以前の調査結果は、厚生労働科学研究費補助事業の研究報告書より引用した。

2013年以前の調査ではNDとなったデータに0と1/2LOQ(あるいは1/2LOD)を代入した平均値が報告されていた。一方で、2013-2018年の報告ではNDとなったデータには0を代入した値のみが報告されている。そのため、経年変動の解析においては、ND=0を代入した値を用いた。ここでは、トレンドに関して変化点も踏まえて解析するために、prophet(ver. 1.0)パッケージを用いた解析を行った。なお、摂取量は正の実数であると考えられるため、対数変換した値を解析に用いた。

Asの推定一日摂取量は、調査開始以降減少傾向にあったが、2007年以降増加傾向に転じて

いた。国民健康・栄養調査のデータベースと比較するとAsの寄与率が高い10群の喫食量は減少して、8群に含まれる海藻類の喫食量はほぼ一定の量を示している。これらのことから、食品中のAs濃度が増加している可能性がある。摂取量だけでなく、食品中濃度および変動を与える要因について注視する必要があるだろう。毒性の高いiAsについては、2014年からのデータしか無く中长期での変動傾向を判断するのは難しいが、2014年度以降における変動をふまえてその傾向を判断すると、ほぼ一定の濃度で推移しているといえた。時系列解析を行うだけの十分なデータ数をそろえるためにも、継続的な調査が必要だろう。

Cdは1977年の調査開始以来摂取量は減少してきており、2013年以降は摂取量のバラツキが小さくなってきた。1977年の摂取量と比較すると半分以下まで減少していた。コメ中Cdの基準値は、1970年以降1.0 mg/kg未満とされていた。また、その当時はCd濃度0.4 mg/kgを超えるコメが生産される地域は、何らかのカドミウムによる環境汚染があると考えられていた。このような背景を受け、2010年4月に食品衛生法に基づくコメのカドミウムの規格基準を「玄米及び精米で0.4 mg/kg以下」に改正し、2011年2月末日に施行した。2012年以前は、不規則に摂取量が高くなる年が5～10年に1度の頻度で観測されていたが、施工後の2012年以降は摂取量の変動が抑えられている。この結果は、何らかの要因で環境中のCd濃度が増加しコメに移行するといった突発的な汚染を、食品衛生法の改正によりコントロールできていることを示唆するものと考えられた。

Hgの推定一日摂取量は1977-1978年を除くと5～12  $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$ の間を推移していたが、時系列解析の結果、少しずつ減少している傾向にあることが示された。2021年におけるHgの推定一日摂取量は1977年の半分以下であった。

厚生労働省は2010年に妊婦への魚介類の

摂取と水銀に関する注意事項及びQ&Aを更新し、特に水銀含有量の高い魚介類を偏って多量に食べることに警鐘を鳴らした。2010年以降の国民健康・栄養調査の各食品小分類のデータのみが、TD試料の調製に反映されているのは、2016年以降の調査であることを踏まえると、各機関におけるリスクコミュニケーションが上手くいつて高濃度Hgの喫食機会が低減されていることを示唆しているものと考えられた。

Pbはこれまで様々な目的で使用されてきて、日本においても1960年代までは鉛化合物を添加した有鉛ガソリンを使用していた。また工場等からの排気ガスに鉛が含まれていたことから、大気中の鉛濃度が高い状態であったと報告されている。Pbの推定一日摂取量は1977年の調査以降継続して減少傾向にある。Pbの推定一日摂取量における1977～1982年における急激な減少には1975年の有鉛ガソリンの使用禁止が寄与しており、1996年以降の緩やかな減少は焼却施設に設置されている排ガス除去装置の改善による廃棄物処理施設からの環境への排出量が減少したことが要因であると考えられる。これらの要因により、2021年の推定一日摂取量は1977年の10%以下まで減少していた。

#### **確率論的摂取量推定**

媒体中濃度（以後、食品中濃度）と媒体摂取量（以後、喫食量）をそれぞれ確率密度分布として扱うことによる確率論的な摂取量評価は、摂取量を分布として評価できる。そのため、確率論的摂取量評価は不確かさ評価・任意のパーセンタイル値が推定できる等の利点がある。乱数を生成することで数値シミュレーションを行うMCSは、確率論的摂取量推定において有用な計算方法である。しかしながら、MCSに用いるパラメーターをどのように設定するかの問題が生じる。とくにサンプルサイズが十分でない場合、分布の歪みが大きい場合、食品中濃度にLOQ未満の観測値を含む場合には、推定されたパラメーター自体に不確かさを伴う。パラメーター推定の不確かさも含めて評価するには、

パラメーター自身も分布を持つ（あるいは複数のパラメーターを検討する）ように2次元に拡張する必要がある。これまでの研究において、食品中濃度に不検出データが含まれている場合における確率分布の推定に、ベイズ推定が有用であることが示唆されている。このことから、不確実性を考慮しつつ食品中濃度の確率密度分布のパラメーターを推定するには、ベイズ推定法は適していると考えられる。

以上のことから、複数地域あるいは複数年にわたるMB方式によるTD試料の分析結果に確率論的手法を適用することで、通常のMB方式では算出できない各種パーセンタイル値や基準値を超過する確率等が計算できることが期待される。本研究では確率論的推計を行うために、MB方式で作製されたコンポジット試料の濃度データおよび国民健康・栄養調査の喫食量データにベイズ推定を適用した。さらに、推定したパラメーターからさらに乱数を生成することで、2D-MCSを行うことで、パラメーター推定に伴う不確実性も加味した精緻な摂取量の推定を試みた。

ここでは、毒性の高いAs, iAs, Cd, Hg およびPbの摂取量を対象として確率論的摂取量評価を試みた。体重当たりの喫食量には2014-2016年の国民健康・栄養調査のデータを用い、食品中As, iAs, Cd, Hg およびPbの濃度データには2019-2021年に行った本研究のデータを用いた。

本研究では、確率的プログラミング言語 Stan を用いてベイズ推定を行うことで、確率密度分布のパラメーター推定を行った。食品中の化学物質濃度は正の実数であると考えられるため、対数正規分布・ガンマ分布・ワイブル分布を仮定した統計モデルを検討した。対数正規分布・ガンマ分布・ワイブル分布の確率密度関数はそれぞれ以下の式で示される。

対数正規分布:

$$f(Y|\mu, \sigma) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma}} \frac{1}{Y} \exp \left[ -\frac{1}{2} \left( \frac{\log Y - \mu}{\sigma} \right)^2 \right]$$

ガンマ分布:

$$f(Y|\alpha, \beta) = \frac{\beta^\alpha}{\Gamma(\alpha)} Y^{\alpha-1} e^{-\beta Y}$$

ワイブル分布:

$$f(Y|m, \eta) = \frac{m}{\eta} \left( \frac{Y}{\eta} \right)^{m-1} \exp \left[ -\left( \frac{Y}{\eta} \right)^m \right]$$

一方で、喫食量は非負値の実数であると考えられる。また、国民健康栄養調査のデータを解析したところ、全ての食品群において0を含むデータが確認された。以上のことから、非負値の確率密度分布として、Tweedie分布、ゼロ過剰対数正規(ZILN)分布およびゼロ過剰ガンマ(ZIG)分布を検討した。

不検出例を含むデータの場合には、不検出例に確率密度関数  $f(Y|\theta)$  に代わって下限値 ( $L$ ) - 上限値 ( $U$ ) 間の累積確率関数  $F(L, U|\theta)$  を用いることで、以下のように尤度を算出できる。

$$L(Y|\theta) = \prod_{i=1}^{N_{\text{obs}}} f(Y_i|\theta) \times \prod_{j=1}^{N_{\text{cen}}} F(L_j, U_j|\theta)$$

ここで、 $N_{\text{obs}}$ は定量できたサンプルサイズを、 $N_{\text{cen}}$ はLOQ未満のサンプルサイズを示す。

BE法で得られる事後予測分布  $f_{\text{post}}(\theta|Y)$  は、ベイズの定理を用いて以下のようにあらわすことができる。

$$f_{\text{post}}(\theta|Y) = \frac{L(Y|\theta) f_{\text{pri}}(\theta)}{f_{\text{obs}}(Y)}$$

ここで、 $f_{\text{pri}}(\theta)$ は事前分布を、 $f_{\text{obs}}(Y)$ は観測値  $Y$  の確率密度分布を示す。観測値  $Y$  は観測後には変化しないため、定数とみなせるので、

$$f_{\text{post}}(\theta|Y) \propto L(Y|\theta) f_{\text{pri}}(\theta)$$

と簡略化することができる。つまり、ベイズ推定は尤度を事前知識に基づいて重み付したものであると解釈できる。

一般的に最尤推定(MLE)法は、サンプルサイズが小さい場合(例えば50未満)には、使用を勧められていない。原因の一つとして、少ないサンプルサイズでは標本の偏りによる影響が大きいことが挙げられる。BE法は、少ないサンプルサイズの場合に生じる標本の偏りを補正するために、事前分布を利用してMLE法を補正しているとも解釈できる。

喫食量に関するベイズ推定においては、サンプルサイズが十分なため、無情報事前分布として $(-\infty, \infty)$ の一様分布を用いた。食品中元素濃度のベイズ推定においては、形状パラメータの事前分布には、以下の確率密度関数であらわされるコーシー分布を用いた。

$$f(y|y_0, \gamma) = \frac{1}{\pi} \frac{\gamma}{(y - y_0)^2 + \gamma^2}$$

対数正規分布を仮定した場合には $(y_0, \gamma) = (3, 1)$ を用い、ガンマ分布及びワイブル分布には $(y_0, \gamma) = (1, 1)$ をコーシー分布のパラメータに用いた。

パラメータから変換した理論平均値の事前分布には、不検出例にLOQの半値を代入して求めた平均値 $\hat{\mu}^{RL/2}$ を用いて、 $N(\hat{\mu}^{RL/2}, \hat{\mu}^{RL/2})$ の正規分布を採用した。

各食品群の喫食量の確率密度分布は、6つの食品群でTweedie分布が、5つの食品群でZIG分布が、2つの食品群でZILN分布が最も適していると判断できた。これまでの確率論的摂取量推定において、喫食量分布がゼロ過剰となる確率密度分布はほとんど利用されてこなかったが、生成した乱数のヒストグラムは国民健康・栄養調査のデータとよく似た形状を示していた。この結果は、喫食量に関する確率密度分布が適切に推定できたことを示している。

2D-MCSを用いて推定した摂取量の5、25、50、75、95パーセンタイル値は、それぞれAs(1.05、2.60、4.66、7.77、15.0  $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ )、iAs(0.129、0.238、0.346、0.495、0.810  $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ )、Cd(0.158、0.242、0.320、0.422、

0.641  $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ )、Hg(0.009、0.032、0.087、0.175、0.377  $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ )、Pb(0.051、0.087、0.128、0.197、0.447  $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ )であった。

摂取量への不確かさに影響する因子を把握するため、感度解析を行った。14食品群の金属濃度と喫食量は互いに独立な変数だと考えられるため、食事性摂取量(EDE)の合成不確かさ $u_c(\text{EDE})$ は以下の式で計算できる。

$$\{u_c(\text{EDE})\}^2 = \sum_{i=1}^{14} \{[R_i u(C_i)]^2 + [C_i u(R_i)]^2\}$$

ここで、 $R_i$ は食品群*i*の喫食量、 $C_i$ は食品群*i*の元素濃度、 $u(x)$ は変数*x*の不確かさを示す。不確かさの値には標準偏差を用いた。

上記の式を用いて感度解析を行ったところ、AsのEDEへの不確かさには8群の濃度(56.2%)、10群の喫食量(20.7%)、10群の濃度(17.1%)が、iAsは8群の濃度(48.7%)、1群の喫食量(34.0%)、1群の濃度(11.6%)が、Cdは1群の濃度(49.5%)、10群の濃度(11.7%)、8群の濃度(9.93%)が、Hgは10群の喫食量(53.8%)、10群の濃度(45.3%)が、Pbは1群の濃度(67.1%)、11群の濃度(10.7%)が寄与していた。Hg以外の元素は濃度の不確かさの合計が50%以上であったことから、MB方式のTD試料を用いた推定であっても、濃度の不確かさは喫食量の不確かさ以上にEDEの不確かさに寄与していることが示された。

2D-MCSを用いることによる利点があるかどうかを検討するため、1D-MCSとの比較を行った。その際には、不検出値に1/2LOQを代入して、幾何平均値と幾何標準偏差を求め、対数正規分布を仮定する方法[1D-MCS(SMB)]と、ベイズ推定の事後平均値を用いる方法[1D-MCS(BE)]の両方について検討した。比較を行ったいずれの元素においても、2D-MCSを用いると90%区間を広く推定する結果となった。また、1D-MCSと比較すると、5%タイル値にはそれほど大きな差が認められないのに対して、95%タイル値が大きな推定結果となる傾向があった。この結

果は、2D-MCS を用いることで、より安全側に立った摂取量分布の推定結果を得られる可能性を示すものと考えられた。

### 年代別摂取量の推定

国民健康栄養調査のデータを解析し、年代別 (A: 1-5、B: 6-11、C: 12-19、D: 20-59、E: ≥60 歳) の体重当たり喫食量の平均値を算出した。各食品群について、食品小分類の構成に顕著な差が認めなければ、現在の TD 試料は全年代に共通の食品小分類組成に基づき調製されたとみなせる。そこで、各食品群について、年代間に食品小分類の組成に差異があるかどうか、 $\chi^2$ 検定を用いて検討した。多重検定による第一種の過誤の増大を調整するために、 $0.05/13=0.0038$ を有意水準としたところ、9群 ( $p = 2.2 \times 10^{-16}$ ) と12群 ( $p = 3.8 \times 10^{-6}$ ) で食品小分類の組成に年代間で有意な差が認められた。他の食品群では食品分類の構成に有意な差異はないと判断できた。これらのデータを基に、2019-2021年に行った本調査の結果を用いて年代別の iAs、Cd、MeHg、Pb の摂取量を推定した。iAs、Cd、および Pb については、9群と12群由来の摂取量を除いた推定も行った。食品小分類の構成に年代間の差異が認められた9群と12群に関しては、データを除くことによる影響は小さかった。

iAs に関しては、19歳以下のグループでは平均摂取量が EPA の RfD である  $0.3 \mu\text{g/kg-bw/day}$  を超過していた。また、20歳以上のグループでも平均摂取量は RfD と同程度であった。現在、食品安全委員会では iAs に関する HBGV を設定するには国内の曝露実態及び食事由来のヒ素曝露を明らかにした上で摂取量を評価する必要があるとしている。年代別の iAs 摂取量の推定結果は、年齢が低いグループが EPA の RfD を超過していたことから、iAs 濃度の高い食品の喫食 (玄米やヒジキ) を避けるような提言が必要かもしれない。

Cd は5歳以下のグループにおいて一部の地域で食品安全委員会の TWI ( $7.0 \mu$

$\text{g/kg-bw/week}$ ) および JECFA の PTMI ( $25 \mu\text{g/kg-bw/month}$ ) を超過する事例が認められた。しかしながら、平均摂取量はいずれの年代においても HBGV を下回っていた。

MeHg は iAs や Cd と比較すると、年代間の差異が小さかった。また、20-59歳にくらべて60歳以上における MeHg の摂取量が大きかった。60歳以上の10群の体重当たり喫食量は、20-59歳の約1.5倍ほどであることが要因と考えられた。Pb は一部の地域で EFSA の BMDL ( $0.50-1.50 \mu\text{g/kg/day}$ ) を超過していたが、中央値および幾何平均値はいずれの年代でも下回っていた。

### 金属ナノ粒子の摂取量推定

2020年に調製された東京および大阪の TD 試料について Ag-NP 分析を行ったところ、全ての食品群から Ag-NP が検出された。最低の粒子濃度は14群の  $1.0 \times 10^2 \text{ particle/g}$  であり、最大は3群の  $25.6 \times 10^6 \text{ particle/g}$  であった。14群、10群においては、Total Ag に対する Ag-NP の割合は0.1~100%であり、ほとんどの Ag は非粒子状として存在していた。一方で、1、2、8、11群では24~75%の Ag が NP として存在していた。5、7、12群では80%以上の Ag が Ag-NP として存在していた。今回前処理に用いた方法はタンパク質や脂質の分解を目的とした方法であったにもかかわらず、7群の植物が主体の食品においても Total Ag に対する Ag-NP の割合が90%以上となったことから、次の2つの可能性が考えられた。1つ目は、本研究で用いた前処理方法を他の食品群に適用しても、ある程度妥当な結果が得られた可能性である。2つ目の可能性は、検出された Ag-NP は細胞内に取り込まれたものでなく、コンタミネーションにより付着した可能性である。

特に2つ目の可能性については、抗菌剤として使用されている Ag-NP が試料の調製過程で混入した可能性が考えられた。抗菌剤として使用されている Ag-NP はシリカゲルやゼオライトの表面に担持されているものが使用されるとのことから、二酸化ケイ素ナノ粒子 ( $\text{SiO}_2\text{-NP}$ ) につい

でも sp-ICP-MS 分析を行った。また、抗菌スポンジ、抗菌マスク、あるいは菓子類の装飾に用いられるアラザンといったコンタミネーションの原因の可能性がある製品についても、1% Tween-20 溶液中に浸し1時間の超音波処理を行い、溶出された Ag-NP および SiO<sub>2</sub>-NP について解析を行った。TD 試料中の Ag-NP の粒径、SiO<sub>2</sub>-NP の粒径、粒子濃度比 (Ag-NP/SiO<sub>2</sub>-NP) を汚染源候補のデータと比較した。ほとんどの TD 試料の粒子濃度比は、抗菌スポンジの粒子濃度比の 1/3~3 倍の範囲内 (0.55~4.96) に収まっていた。他の汚染源候補と比較すると、抗菌スポンジの粒子濃度比は、多くの TD 試料と似た値を示した。この抗菌スポンジは、試料を調製した機関で使用していたことから、Ag-NP の汚染源の可能性はあるだろう。しかしながら、TD 試料中 Ag-NP の平均粒径は、抗菌スポンジよりも小さかったことから、容器や機材に残存していた Ag-NP が一部溶解して粒径が小さくなった NP による汚染と考えられた。

食事を介した Total Ag および Ag-NP の曝露は、1.91 ~ 4.87 および 1.78 ~ 1.79  $\mu$ g/person/day と推定された。また、粒子数としては  $1.4 \times 10^{10} \sim 1.5 \times 10^{10}$  particle/person/day と推察された。Hadrup と Lam [2014, DOI: 10.1016/j.yrtph.2013.11.002] は、Ag-NP の TDI を 2.5  $\mu$ g/kg-bw/day と導出した。この値と比較すると、Ag-NP の HQ は 1.3% と推定された。現在得られたデータから判断すると、健康リスクは小さいと推定された。

### (3) 有害物質(有機フッ素化合物)摂取量推定に不可欠な分析法開発

#### 近年報告されている食品の調査結果

今回、2021 年から 2022 年までの学術的論文を参考にして検討を行った。以下に、食品における PFCs 汚染の報告する。ヨーロッパの陸生・海洋頂点捕食者など 61 サンプルから 4 つの魚類(鯛、ローチ、ニシン、うなぎ)から PFCs が検出され、PFOS はいずれのサンプルからも検出さ

れた。米国食品医薬品局(FDA)の TD 調査によると、加工食品 172 検体から缶詰のマグロ(PFOS が 0.076 ng/g、PFDA が 0.072 ng/g)、魚スティック(PFOS が 0.033 ng/g、PFNA が 0.05 ng/g)、プロテインパウダー(PFOS が 0.14 ng/g)から PFCs が検出された。ギリシャで食べられている 24 種類の魚介試料から  $\Sigma$  PFCs (PFOS、PFOA、PFNA、PFHxS) が  $<LOQ \sim 20.4$  ng/g (平均値 2.5 ng/g) で検出された。PFOS がサンプルの 50%、PFOA と PFNA はサンプルの 10% で検出され、PFHxS はどのサンプルからも検出されなかった。また、ギリシャにおける 86 種の卵試料から  $\Sigma$  PFCs (PFOS、PFOA、PFNA、PFHxS) が  $<LOQ \sim 9.7$  ng/g (平均値 0.9 ng/g) で検出された。PFCs の摂取量を算出したところ、ギリシャの成人の一日平均摂取量は、魚消費量より 0.92 ng/kg bw/day、卵消費量より 0.16 ng/kg bw/day であった。ギリシャの PFOA と PFOS への食事曝露要因の 50% は魚と卵であることが分かっている。バルト海の 13 種の魚介試料における検出値は PFOS が  $<LOQ \sim 15.2$  ng/g、PFNA が  $<LOQ \sim 11.2$  ng/g、PFDA が  $<LOQ \sim 3.3$  ng/g であり、EFSA が新たに導入した週間耐容摂取量(TWI) 4.4 ng/kg bw/week (PFOS、PFOA、PFNA、PFHxS の 4 つの PFCs の合算値) を比較して評価した結果、13 種の魚介試料のうち 10 種の魚が TWI を超過した。アフリカの乳児調査によると、 $\Sigma$  15PFCs (PFBA、PFPeA、PFBS、PFHxA、PFHpA、PFHxS、PFOA、PFNA、PFOS、PFDA、PFUDa、PFDS、PFDoA、PFTrDA、PFTeDA) の推定一日摂取量(EDI) は、一部母乳で育てられた乳児は 184.92 ng/kg bw/day、人工的な乳で育てられた乳児は 329.47 ng/kg bw/day であり、これらの EDI は EFSA の EDI を下回っているが、乳製品の摂取による乳児の曝露が懸念される。一般的な食事を摂る人とビーガンと比較した横断的な疫学研究の結果、PFOS 及び PFNA の血中濃度中央値がそれぞれ 54% 及び 240% 高いことが示され、特に肉類及び魚介類の摂取量に強い相関が見られた。以上の論文報告より、世界



各国で PFCs が食品から検出されており、特に、魚類や卵類、乳類からの検出頻度が高い。一方で、韓国における作物の汚染量から算出された EDI の寄与は PFOS で 66.4%、PFOA で 7.9% であり、特に、米は PFOS で 30.9%、PFOA で 4.8% であった。このことから、欧米諸国のリスク評価の報告が多くあるが、米を主食とする日本を含むアジア圏でのリスク評価も今後参考にしたい。北京の魚、肉、卵を測定した結果、ADONA (Dodecafluoro-3 H-4,8-dioxanonoate、PFOA 代替化合物) や GenX (Hexafluoropropylene oxide dimer acid) HFPO-DA)、PFOA 代替化合物) は検出されなかったが、PFOS や PFOA の分岐異性体や代替化合物である F-53B ( ( 6:2chlorinated polyfluoroalkyl ether sulphonates [6:2Cl-PFESA] and 8:2chlorinated polyfluoroalkyl ether sulphonate [8:2Cl-PFESA]) PFOS 代替化合物) が高頻度で検出され、F-53B の EDI は魚類が 56 pg/kg/day、牛肉が 2 pg/kg/day であった。また、中国南部の北武湾の海洋生物から F-53B が <LOD~0.1 ng/g (平均値 0.05 ng/g、検出頻度 44%)、PFOS が <LOD~1.5 ng/g で検出された。F-53B は中国で開発された PFOS の代替品であり、PFOS と構造が類似していることから、F-53B も食物網を介して生物蓄積が拡大される可能性があるかと仮定されている。PFOS 同様 F-53B も世界的に汚染が拡大される可能性があるため、代替品として使用されている化合物に関しても、今後調査していく必要があると考えられる。

次に、容器包装による食品の PFCs 汚染の報告を示す。ファーストフードの包装やマフィン容器、ベーキングペーパー、プレート、電子レンジ用ポップコーン容器から複数の PFCs (特に PFOS、PFOA、PFBA、PFHxA、PFHpA) が検出された。43 種類のストロー(プラスチック素材 5 種、紙素材 29 種、その他の植物素材 9 種)を測定した結果、紙素材とその他の植物素材のストローから 21 種の PFCs (特に PFBA、PFOA、

PFHxA) が検出され、合計検出濃度の範囲は 0.043~29.1 ng/g であった。これらの容器包装のうち、非常に高温状態になり、かつ脂肪酸と接触することが多いものについては、PFCs が食品に移行する可能性がある。アメリカにおいて、包装されている食品(アイスクリームやソーダなど)や魚の摂取量が多い子供ほど血中の PFOS を含む複数の PFCs 濃度が高く、小児期の食事において包装容器ごとによる PFCs 曝露に相関があることが示唆された。これより、PFCs 摂取の曝露経路として食品接触製品として容器やストローなどが大きく寄与する可能性がある。

### 食品の前処理検討

昨年度までに、LC-MS/MS を用いた PFCs の一斉分析法を開発した。本分析法を用いて、ペットボトル水、お茶、ジュースの PFCs 分析へ応用することができた。しかしながら、一部の PFCs において、装置バックグラウンドや前処理での汚染など、食品分析に伴う微量分析でそれらを排除する必要が求められた。そこで、本年度は、食品の前処理を想定したバックグラウンドを低減させた LC-MS/MS 法を検討することとした。

LC-MS/MS 分析装置環境(特に移動相、それまでの配管など)からの PFCs 汚染が確認されたため、そのバックグラウンドの保持時間を遅らせる目的で Delay カラムを移動相の混合部と試料注入部の間に導入することでその低減化を実施した。さらに、バイヤルのセプタムの変更、精製水の検討、各種器具のメタノール洗浄などを行い、バックグラウンドの削減を目指した。Delay カラムの利用については、近年の報告では一般的になっており、特に Waters Atlantis T3 などを利用することがある。国内では、ジーエルサイエンス社より、Delay Column for PFAS(3.0×30 mm) が入手可能なため、本研究においてはそれを用いることとした。

次に、前処理の検討を実施した。近年、FDA の報告でも WAX SPE カートリッジのような逆相-弱陰イオン交換ミックスモードの水湿潤性ポリマーを基質にしたカートリッジを使用する報告が多

い。そこで、本研究では、Oasis WAX 及び InterSep MA-2 カートリッジを用いて代表的な PFCs の回収率に関する比較検討を実施した。その結果、R-SO<sub>3</sub>H 系及び炭素鎖の長い PFCs で低回収率となった。さらに、溶出液に関するトリエチルアミンの含有量などを比較検討した。また、富士フィルム和光純薬から Presep PFC-2 及び-C Agri カートリッジが販売されており、今後はそれらも検討し、絶対回収率 80%以上を目指す。それらを踏まえて、内標準法による各種食品の添加回収実験を行った。いずれも、分析対象と同じ安定同位体補正を行えば、良好な回収率を示すことができる一方で、それとは異なる安定同位体では回収率の補正は困難であった。そこで、今回の TD 試料への応用としては、正確な定量値を求めるため、安定同位体補正可能な PFBA、PFHxA、PFOA、PFUdA、PFHxS 及び PFOS に対象を絞った。また、今後は更なる安定同位体種類を増やして、モニタリングすることとする。

次に、選択性の検討を実施した。まず、PFBA に関する TD の代表的な SRM クロマトグラムでは、夾雑物の影響により擬陽性と判断できるクロマトグラムが得られる。Ullah らの報告では、移動相に複素環アミンを添加することで、PFBA などの感度向上を示している。また、FDA の報告では、False positives due to chromatography として PFBA と PFPeA については擬陽性の可能性があることを指摘し、最終的な解決策としては高分解能質量分析(Q-Exactive Orbitrap)を利用している。

PFOS に関する代表的な TD の SRM クロマトグラムでは、PFOS の保持時間に非常に近いピークが観察され、擬陽性と判断してしまう可能性が示された。PFOS は炭素鎖の異性体(isomers)が観察される場合があり、それらに注意する必要があるうえ、m/z 499 > 80 モニタリングでは胆汁酸や脂質の影響を受ける可能性も示唆している。実際に、一部の胆汁酸については m/z 498 付近からプロダクトイオン m/z 80 付近と類似して

おり、PFCs の R-SO<sub>3</sub>H 系とは誤認識してしまう恐れがある。

PFOA に関する代表的な SRM クロマトグラムでは、PFOA と同じ保持時間に LOQ (0.1 ng/g) 未満であるがピークが検出される。概算値としては、0.03 ng/g 程度となる。本結果に類似して、PFHxA 及び PFUdA については、LOQ を超えるピークを検出した。これらのピークは LOQ 付近(もしくは未満)であり、検出したものとして判断が難しい。本来であれば、定性イオンを確認する必要が望まれる。PFCs 全般に炭素鎖に関するフラグメントイオンが検出され難く、定性イオンを設定することができない。そのため、擬陽性の可能性を完全に排除するためには、精密質量を分析する手段が有用と考える。

#### 食品中の PFCs プレリミナリーモニタリング

検討より改良した前処理を用いて、東京都及び大阪府の TD 試料を分析した。本手法での LOQ を 0.1 ng/g とし、定量範囲を 0.1~10 ng/g とした。14 群(飲料水)は試料 5 mL とし、固相抽出過程のみで前処理した。分析対象化合物は、PFOS、PFOA、PFHxS、PFHxA、PFBA、PFUdA の 6 つの PFCs を分析対象とした。今回は添加回収試験を行っておらず、プレリミナリーな分析評価としてバックグラウンドの定量を行った。また、前処理は n=1 とし、その定量値を示した。その結果、東京都の 2 群(米以外の穀類、種実類、いも類)、6 群(果実、果汁)、7 群(緑黄色野菜)、10 群(魚介類)、11 群(肉・卵類)、13 群(調味料)から PFCs が検出された。また、大阪府の 6 群(果実、果汁)、7 群(緑黄色野菜)、10 群(魚介類)、11 群(肉・卵類)、14 群(飲料水)から PFCs が検出された。また、LOQ を 0.1 ng/g としたが、trace レベル(0.05~0.1 ng/g 程度)で検出される PFCs もあった。

東京都と大阪府のサンプル間で検出頻度や濃度が異なり、東京都のサンプルからは様々な食品群から PFCs が検出された。しかしながら、夾雑物の影響もあるため、今後は更なる前処理の検討及び高選択的な分析法の求められると考

える。また、今回はプレリミナリーな調査であるため、今後も更なる検証を進める必要性がある。

#### (4) 母乳のダイオキシン類汚染の実態調査と乳幼児の発達への影響に関する研究

##### 初産婦の出産1か月後の母乳中のダイオキシン類濃度

今年度も引き続き乳児へのダイオキシン類汚染の原因として重要な初産婦の母乳中のダイオキシン類濃度の測定を行なった。時期をそろえる必要がある理由として、母乳は、出産後の時期によって母乳内の脂肪成分などの組成も変化し、脂肪中に含まれるダイオキシン類量についても影響を受ける可能性があり、出産後 1 か月時に測定時期をそろえて測定を行った。ダイオキシン類濃度は、 $5.596 \pm 2.240$  pg TEQ/g-fat (平均±標準偏差)、中央値が 5.234、範囲が 2.630~13.117 であった。

##### 経年的な母乳中のダイオキシン類濃度の変化

厚生労働科学研究として Co-PCB12 種類を含めて測定を開始した平成 10(1998)年度からの傾向として、平成 25(2013)年度までは漸減傾向が認められ、その後、平成 29(2017)年度までは横ばいを示したが、平成 30 年度以降は漸減傾向が認められた。

令和 3 年度(2021 年度)の平均値ではこれまでの測定の中でも最も低い  $5.596$  pg TEQ/g fat であった。環境中のダイオキシン類汚染が改善しており、平成 25 年から平成 29 年にかけてはすでに基本的に下げ止まってプラトーに達している可能性も考えられるが、平成 30 年以降、漸減傾向と判断された。今後、母乳中に排泄されるダイオキシン類量がさらに漸減するかどうかは今後の傾向を見る必要がある。

##### 母乳中ダイオキシン類濃度と発育発達への影響

2013 年度から 2021 年度までの本研究班での調査した中で、児の発育発達について十分なデータが得られた 181 名を対象として、母乳中ダイオキシン類濃度と、生下時体重、生下時頭囲、母体年齢、母体喫煙、および発達に関する項目

を獲得した月齢(禁止の理解、バイバイの理解、指示理解、発語、動作模倣、首の座り、寝返り、座位、つかまり立ち、伝い歩き)の Pearson の相関係数(両側)を評価した。5%以下の有意な相関を示したのは、正の相関は母体年齢(1%水準)で、負の相関を示したのは生下時体重、生下時頭囲、座位を獲得した月齢だった。運動発達や精神発達については、有意な相関を認めなかった。さらに重回帰分析を行ってダイオキシン類濃度と有意な相関が認められたのは出生時の頭囲だけであり、生後の発育や発達に関し有意な相関は認めなかった。

母乳中のダイオキシン類濃度は、母体に蓄積されたダイオキシン類が母乳中に分泌されることを反映し、母体年齢に相関が認められた。児の身体発育については、出生時の頭囲と負の相関があり、重回帰分析でも相関は有意であった。これは妊娠中の母体内でのダイオキシン類曝露の影響が推測されるが、母乳中のダイオキシン類濃度と生後の発達については、明らかな影響は認められなかった。

#### (5) 国際動向等を踏まえた摂取量推定すべき有害物質の探索とその摂取量推定に関する研究

MOE については 2021 年の更新分を整理した。新たに評価されたのは非ダイオキシン様 PCB、ステリグマトシスチン、ヘキサプロモシクロドデカン(HBCDs)、各種酵素や新規食品である。近年 MOE を遺伝毒性発がん物質以外の評価に使う事例が増えてきたため、これまで収集した MOE のうち、エンドポイントががんでかつその値が 1 万以下のものを記載した。がんがエンドポイントとなる優先順位の高い物質はこれまで通り無機ヒ素、アクリルアミド、ピロリジジンアルカロイド、アフラトキシンを筆頭にしたカビ毒である。がん以外のエンドポイントでは鉛が最も安全側に余裕がない。

PFAS についての動向は資料の年表にまとめた。この 1 年で特筆すべきことは FSANZ による第 27 回オーストラリアトータルダイエツトスタディ

(ATDS)でのリスク評価である。2020年にEFSAがPFASの新しいグループTWIを4.4 ng/kg 体重/週と極めて小さい値に引き下げて以降、米国EPAも同様に指標値を厳しくする方向で見直しが進んでいたがFSANZはそれに同調せず、PFOSのTDI 20 ng/kg bw/day、PFOAは160 ng/kg bw/dayを維持して評価している。FSANZの発表については参考資料で紹介した。

#### D. 結論

(1-1) 全国7地区8機関で調製したTD試料の分析結果より、ダイオキシン類の国民平均一日摂取量は0.44 pg TEQ/kg bw/dayと推定された。ダイオキシン摂取量は行政施策の効果などもあり経年的な減少傾向が示されている。しかし、依然としてTDIの11%程度を占めており、この値は有機塩素系農薬等のその他の多くの有害化学物質と比較すると比較的高い値である。今後もダイオキシン摂取量調査を継続し、ダイオキシン類摂取量の動向を調査していく必要がある。

(1-2) 魚介類を介したダイオキシン類摂取量を13の小分類からの総和として算出した2D-MCSによるダイオキシン類摂取量の平均値は、1-6歳：1.79 pg TEQ/kg/day、7-14歳：1.28 pg TEQ/kg/day、15-19歳：0.91 pg TEQ/kg/day、 $\geq 20$ 歳：1.27 pg TEQ/kg/dayであった。また95%タイルは1-6歳：7.28 pg TEQ/kg/day、7-14歳：5.05 pg TEQ/kg/day、15-19歳：3.49 pg TEQ/kg/day、 $>20$ 歳：4.90 pg TEQ/kg/dayであった。またTDI (4 pg/kg/day)を超過する確率は以下の通りであった；1-6歳：10.0%、7-14歳：6.7%、15-19歳：4.2%、 $\geq 20$ 歳：6.5%。15-19歳よりも20歳以上でTDIを超過する確率が高かった要因は、魚介類の喫食頻度が15-19歳では76%であったのに対して、20歳以上では85%と喫食頻度が高いためと考えられた。脂肪含量が高い魚介類の摂取量や摂取頻度が高いと、TDIを超えてしまうことから、食品の摂取量や摂取頻度のバランスを心掛けることがリスク低減化に重要と考え

られた。

(1-3) 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336 ng/person/dayと推定された。体重あたりでは6.7 ng/kg bw/dayと推定され、この値は日本の暫定TDIの僅か0.1%程度であった。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34%となった。NDL-PCBsの一日摂取量の全国平均値は307 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113 ng/person/dayと推定された。

また、食品全体からの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)であり、これら2つの食品群からの摂取量で食品全体からのPCBs摂取量をほぼ説明できることが確認できた。

(1-4) ウナギ、サケ、サバ、サンマ、及び白身魚フライを主菜とする弁当(計25試料)の内容物の内、その他の部分からのPCBs摂取量を調査した。令和元年度に実施した同一の弁当の魚介類部分と合計した一食あたりの総PCBs摂取量を算出した結果、白身魚フライの弁当を除き、総PCBs摂取量に占めるその他の部分の割合は、魚介類部分と比較すると総じて低かった。一食あたりの総PCBs摂取量の最大値は、日本の暫定耐容一日摂取量(TDI)の0.73%程度であった。一方、参考としてより厳しいWHOのTDIと比較すると、サバを主菜とする弁当2試料からの総PCBs摂取量がWHOのTDIを超過(116%及び183%)していた。

国内で流通している魚油を原料とする健康食品(計37試料)を対象にPCBs摂取量を調査した。総PCBsの一日摂取量は、日本の暫定TDI及びWHOのTDIを十分に下回っていた。鮫肝油を使用した試料からのPCBs摂取量は、その他の魚油を使用した試料と比較すると概して高い値であった。

(1-5) 一食分試料(弁当類)及び魚油を原料と

する健康食品の分析を通じて、ハロゲン系難燃剤であるデクロラン類、HBCDs及びPBDEsの摂取量調査を行った。一食分試料について、HBCDsの一食当たりの摂取量は、平均値が18 ng/食、中央値が13 ng/食、範囲が0~82 ng/食であった。デクロラン類の一食当たりの摂取量は、平均値が2 ng/食、中央値が2 ng/食、範囲が0~7 ng/食であった。PBDEsの一食当たりの摂取量は、平均値が20 ng/食、中央値が7 ng/食、範囲が0~132 ng/食であった。健康食品について、HBCDsの一日当たりの摂取量は、平均値が0.8 ng/day、中央値が0.4 ng/day、範囲が0~3.3 ng/dayであった。デクロラン類の一日当たりの摂取量は、平均値が0.3 ng/day、中央値が0 ng/day、範囲が0~3.3 ng/dayであった。PBDEsの一日当たりの摂取量は、平均値が0.6 ng/day、中央値が0 ng/day、範囲が0~6 ng/dayであった。

各々のハロゲン系難燃剤の摂取量を有害性評価値またはRfDと比較したところ、いずれも十分に小さい値であった。魚介類を主菜とする弁当類や魚油を原料とする健康食品から摂取するハロゲン系難燃剤による人の健康リスクは低いと考えられる。

(1-6) 自動前処理装置の肉類及び卵類へのダイオキシン類分析の適用性を検討した。昨年度に検討した魚試料では、夾雑物の影響のため、ノンオルトPCBs及びPCDD/PCDFs分画を自動前処理装置により2回精製する必要があったが、肉類及び卵類については1回精製で分析上の問題は無かった。牛肉及び鶏卵を用いた従来法との比較試験、添加回収試験、及び標準試料の分析から、自動前処理装置を用いたダイオキシン類分析の信頼性は高いと考えられた。自動前処理装置を用いた精製は、従来法と比較すると迅速かつ必要な溶媒量は格段に少ないことから、肉類及び卵類のダイオキシン類分析の迅速化・省力化に有用であると考えられる。

(2) 全国10地域よりMB方式によりTD試料を調製し、食品を介した元素類の摂取量評価を行

った。HBGVと比較したところ、HQが最も高かったのはiAs(1.36)であった。次いで、Ni(0.9)、Mo(0.86)、CdとMeHgは0.30-0.59の範囲であり高い比率を示した。一方で、PbのMOE(5-15)は不確実係数積(1)よりも大きく健康リスクは小さいと考えられた。これまでの調査と比較し経年変動を解析したところ、Cd、Hg、Pbは減少傾向にあり、これまでの政策との関連が示唆された。一方で、Asについては近年上昇傾向に転じていたが、iAsについてはほぼ一定の値を示していた。iAsは対HBGV比も高いことから、継続調査の必要性が改めて示された。

ベイズ法を併用した2D-MCSによる確率論的摂取量評価について検討を試みた。1D-MCSと比較すると、2D-MCSは95%タイル値が大きな推定結果となる傾向があった。この結果は、2D-MCSを用いることで、より安全側に立った摂取量分布の推定結果を得られる可能性を示すものと考えられた。MB方式のTD試料においても2D-MCSを用いた確率論的摂取量の推定は有用であると考えられた。

年代別の摂取量を推定したところ、評価を行ったいずれの金属においても1-5歳の摂取量が最も高い結果となった。とくに、iAsはEPAのRfDを超過していたことから、iAsの摂取量を低減させるための取組が必要であると考えられた。

ナノ粒子として、Ag-NPの摂取量評価を行ったところ、1.8 µg/person/dayと推定された。この値は、HadrupとLam(2014)が導出したTDIの1.3%であり、健康リスクは小さいと推定された。

(3) PFCsの分析法の開発では、昨年と同様バックグラウンドを低減させたLC-MS/MSによる分析法により、安定同位体補正できる6種類のPFCsの一斉分析を提案した。試料5gを分析に供した時の定量範囲を0.1~10 ng/gと設定した。東京都と大阪府のTD試料を分析した結果、複数の食品群から数種類のPFCsが検出された。しかしながら、LOQ付近のピークや夾雑物の影響で判断しにくいSRMクロマトグラムとなり、更なる改良が求められると考えた。以上より、様々

な食品に対応できる PFCs の前処理法のバリデーションを取る必要があります、今後、精度の高い分析法を用いて、日本の食事からの PFCs 摂取量調査が求められる。

(4) 令和 3 年度(2021 年度)に提供を受けた初産婦の母乳中のダイオキシン類濃度は、昨年と同様に低値を示した。母乳中のダイオキシン類濃度は、調査開始時からの長期間的に見ると漸減傾向が続いている。今後母乳中に排泄されるダイオキシン類量がさらに漸減するかどうかは今後の傾向を見る必要がある。現在のレベルの濃度での母乳中ダイオキシン類では、生後の児の発育発達への明らかな影響は認められなかった。

(5) MOE についての情報を継続的に収集して更新すると共に、これまで収集した MOE をエンドポイントの違いに基づき整理した。がんがエンドポイントとなる優先順位の高い物質は、これまで通り無機ヒ素、アクリルアミド、ピロリジジンアルカロイド、アフラトキシンを筆頭にしたカビ毒であった。がん以外のエンドポイントでは鉛が最も安全側に余裕がなかった。また、PFAS に対する各国の動向としては、FSANZ が EFSA などの厳しい評価値に同調しない評価をしている。

## E. 健康危険情報

なし

## F. 研究発表

### 1. 論文発表

- 1) Sato T, Tobiishi K, Hori T, Tsutsumi T, Matsui T, Akiyama H. Exposure to hexabromocyclododecanes from boxed sushi. *Organohalogen Compounds 2021*: (in press).
- 2) Tobiishi K, Sato T, Hori T, Tsutsumi T, Akiyama H. Exposure to polybrominated diphenyl ethers through boxed sushi.

*Organohalogen Compounds 2021*: (in press).

- 3) Shiono K, Tsutsumi T, Nabeshi H, Ikeda A, Yokoyama J, Akiyama H. Simple and rapid determination of biogenic amines in fish and fish products by LC-MS/MS using 2,4,6-triethyl-3,5-dimethyl pyrylium trifluoromethanesulfonate as a derivatization reagent. *J. Chromatogr. A* 2021:1643:462046.
- 4) 登田美桜、井上依子、河恵子、春田一絵、與那覇ひとみ、畝山智香子「食品安全情報(化学物質)」のトピックスについて—令和2年度(2020)—衛研報告 139, 64-70 (2021)
- 5) 畝山智香子 ほんとうの「食の安全」を考える—ゼロリスクという幻想— DOJIN 文庫 6、化学同人(2021)
- 6) Suzuki Y, Kondo M, Harimoto M, Kitayama I, Akiyama H. Dietary exposure to arsenic species in Japan in 2019 using a total diet study based on composite sample with market basket approach at the national level. *J Food Compost Anal.* 2022: 104384, DOI: 10.1016/j.jfca.2022.104384.
- 7) Ando T, Mori R, Takehara K, Asukata M, Ito S, Oka A. Effectiveness of Pediatric Teleconsultation to Prevent Skin Conditions in Infants and Reduce Parenting Stress in Mothers: A Randomized Controlled Trial. *JMIR Pediatr Parent.* 2022:5:e27615.
- 8) Mori T, Sato A, Oka A, Higuchi O, Mizuguchi M. Anti-lipoprotein receptor-related protein 4 antibody titer correlates with the clinical course of myasthenia gravis. *Pediatr Int.* 2022: 64:e14916.

### 2. 学会発表

- 1) 鈴木美成, 近藤 翠, 北山育子, 穠山浩 : トータルダイエツトスタディーによる食品を介したヒ素化学種の曝露量評価. 第 29 回環境化学討論会 (2021.6).
- 2) 堤 智昭, 足立利華, 川嶋文人, 山本一樹, 上田祐子, 岡本悠佑, 高附 巧, 穠山 浩: 自動前処理装置を用いた魚中のダイオキシン類分析の検討. 第 29 回環境化学討論会 (2021.6).
- 3) 飛石 和大, 佐藤 環, 堀 就英, 堤 智昭, 穠山 浩: 食品中のハロゲン系難燃剤の一斉分析法の検討. 第 29 回環境化学討論会 (2021.6).
- 4) 真宮彩乃, 五十嵐由樹, 高橋未来, 堤 智昭, 穠山 浩, 井之上浩一: LC-MS/MS による有機フッ素化合物の食品分析の基礎検討 バックグラウンド評価と食品からの前処理. 日本食品化学学会第 27 回総会・学術大会(2021.6).
- 5) 鈴木美成, 近藤 翠, 北山育子, 穠山浩, 堤智昭: 二次元モンテカルロシミュレーションによる食事性鉛曝露量分布の推定: トータルダイエツト試料への適用の試み. 日本食品衛生学会第 117 回学術講演会 (2021.10).
- 6) 佐藤 環, 飛石和大, 堀 就英, 松井利郎, 堤 智昭, 穠山 浩: 市販の調理済み食品 (寿司弁当類)からの塩素系難燃剤デクロラン類の摂取量調査. 日本食品衛生学会第 117 回学術講演会(2021.10).
- 7) Tsutsumi T, Adachi R, Kawashima A, Yamamoto K, Ueda Y, Okamoto Y, Takatsuki S, Akiyama H: Determination of dioxins in fish samples using an automatic sample preparation system. 41st International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants(2021.11)
- 8) Okamoto Y, Tsutsumi T, Takatsuki S, Maeda T, Adachi R, Akiyama H: Dietary intake of dioxins by the Japanese population in a total diet study (1998 - 2020). 41st International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (2021.11)
- 9) Sato T, Tobiishi K, Hori T, Tsutsumi T, Matsui T, Akiyama H: Exposure to hexabromocyclododecanes from boxed sushi. 41st International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (2021.11)
- 10) Tobiishi K, Sato T, Hori T, Tsutsumi T, Akiyama H: Exposure to polybrominated diphenyl ethers through boxed sushi. 41st International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (2021.11)

#### G. 知的財産権の出願、登録

なし

## Ⅱ. 分担研究報告書

(1) 食品の塩素化ダイオキシン類、PCB、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

(1-1) トータルダイエツト試料の分析による塩素化ダイオキシン類摂取  
量推定

研究分担者 堤 智昭



# 令和3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のための研究

## 分担研究報告書

(1) 食品の塩素化ダイオキシン類、PCB、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

(1-1) トータルダイエツト試料の分析による塩素化ダイオキシン類摂取量推定

研究分担者 堤 智昭 国立医薬品食品衛生研究所食品部

### 研究要旨

マーケットバスケット方式によるトータルダイエツト(TD)試料を用いて、ダイオキシン類(PCDD/PCDFs及びCo-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国民平均食品摂取量に基づいて食品を購入し、飲料水を含め14群から成るTD試料を全国7地区8機関で調製した。過去の調査からダイオキシン類摂取量に占める割合の高い食品群である10群(魚介類)及び11群(肉・卵類)については、各機関がそれぞれ各3セットの試料を調製し、その他の食品群は各1セットの試料を調製した。10及び11群については試料毎にダイオキシン類を分析し、その他の群は全地区の試料を混合して分析し、ダイオキシン類の一日摂取量を推定した。その結果、体重(50 kgと仮定)あたりのダイオキシン類の全国平均摂取量は0.44(範囲:0.15~1.19) pg TEQ/kg bw/dayと推定された。10群(魚介類)からのダイオキシン類摂取量が全体の約9割を占めていた。摂取量推定値の平均は、日本の耐容一日摂取量(4 pg TEQ/kg bw/day)の約11%であった。摂取量推定値の最大は1.19 pg TEQ/kg bw/dayであり、平均値の約2.7倍となり、耐容一日摂取量の30%程度に相当した。また、同一機関であっても推定されるダイオキシン類摂取量に1.6~8.2倍の開きがあり、10群及び11群に含まれている食品のダイオキシン類濃度が摂取量に大きな影響を与えていた。

### 研究協力者

国立医薬品食品衛生研究所

高附 巧、前田朋美、足立利華、鍋師裕美

(一財)日本食品分析センター

河野洋一、小杉正樹、柳俊彦

量とその経年推移に関する知見が得られている。最新の国民平均のダイオキシン類摂取量を推定するため、本年度も昨年度に引き続き全国7地区8機関において日本人の平均的な食品摂取に従ったTD試料を調製し、試料中のダイオキシン類を分析し、一日摂取量を推定した。

### A. 研究目的

トータルダイエツト(TD)試料を用いたダイオキシン類の摂取量調査は、平成9年から厚生科学研究(現在は厚生労働科学研究)費補助金により、毎年実施されており、国民のダイオキシン類摂取

### B. 研究方法

#### 1. 試料

国民平均のダイオキシン類摂取量を推定するためのTD試料は、全国7地区の8機関で調製

した。厚生労働省が実施した平成 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。食品は 14 群に大別して試料を調製した。各機関はそれぞれ約 120 品目の食品を購入し、地域別食品摂取量に基づいて、こ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。作製した TD 試料は、分析に供すまで-20℃で保存した。

14 食品群の内訳は、次のとおりである。

- 1 群: 米、米加工品
- 2 群: 米以外の穀類、種実類、いも類
- 3 群: 砂糖類、菓子類
- 4 群: 油脂類
- 5 群: 豆類、豆加工品
- 6 群: 果実、果汁
- 7 群: 緑黄色野菜
- 8 群: 他の野菜類、キノコ類、海草類
- 9 群: 酒類、嗜好飲料
- 10 群: 魚介類
- 11 群: 肉類、卵類
- 12 群: 乳、乳製品
- 13 群: 調味料
- 14 群: 飲料水

1～9 群、及び 12～14 群は、各機関で 1 セットの試料を調製した。10 及び 11 群はダイオキシン類の主要な摂取源であるため、8 機関が各群 3 セットずつ調製した。これら 3 セットの試料調製では、魚種、産地、メーカー等が異なる食品を含めた。各機関で 3 セットずつ調製した 10 及び 11 群の試料はそれぞれの試料を分析に供した。一方、1～9 群及び 12～14 群は、各機関の食品摂取量に応じた割合で混合した共通試料とし、分析に供した。

## 2. 分析対象項目及び目標とした検出下限値

分析対象項目は、WHO が毒性係数(TEF)を

定めた PCDDs 7 種、PCDFs 10 種及び Co-PCBs 12 種の計 29 種とした。ダイオキシン類各異性体の目標とした検出下限値(LOD)は以下のとおりである。

	検出下限値		
	1-3,5-13 群	4 群	14 群
<b>PCDDs</b>	(pg/g)	(pg/g)	(pg/L)
2,3,7,8-TCDD	0.01	0.05	0.1
1,2,3,7,8-PeCDD	0.01	0.05	0.1
1,2,3,4,7,8-HxCDD	0.02	0.1	0.2
1,2,3,6,7,8-HxCDD	0.02	0.1	0.2
1,2,3,7,8,9-HxCDD	0.02	0.1	0.2
1,2,3,4,6,7,8-HpCDD	0.02	0.1	0.2
1,2,3,4,6,7,8,9-OCDD	0.05	0.2	0.5
<b>PCDFs</b>			
2,3,7,8-TCDF	0.01	0.05	0.1
1,2,3,7,8-PeCDF	0.01	0.05	0.1
2,3,4,7,8-PeCDF	0.01	0.05	0.1
1,2,3,4,7,8-HxCDF	0.02	0.1	0.2
1,2,3,6,7,8-HxCDF	0.02	0.1	0.2
1,2,3,7,8,9-HxCDF	0.02	0.1	0.2
2,3,4,6,7,8-HxCDF	0.02	0.1	0.2
1,2,3,4,6,7,8-HpCDF	0.02	0.1	0.2
1,2,3,4,7,8,9-HpCDF	0.02	0.1	0.2
1,2,3,4,6,7,8,9-OCDF	0.05	0.2	0.5
<b>Co-PCBs</b>			
3,3',4,4'-TCB(#77)	0.1	0.5	1
3,4,4',5-TCB(#81)	0.1	0.5	1
3,3',4,4',5-PeCB(#126)	0.1	0.5	1
3,3',4,4',5,5'-HxCB(#169)	0.1	0.5	1
2,3,3',4,4'-PeCB(#105)	1	5	10
2,3,4,4',5-PeCB(#114)	1	5	10
2,3',4,4',5-PeCB(#118)	1	5	10
2',3,4,4',5-PeCB(#123)	1	5	10
2,3,3',4,4',5-HxCB(#156)	1	5	10
2,3,3',4,4',5'-HxCB(#157)	1	5	10
2,3',4,4',5,5'-HxCB(#167)	1	5	10
2,3,3',4,4',5,5'-HpCB(#189)	1	5	10

## 3. 分析方法

ダイオキシン類の分析法は、「食品中のダイオ

キシソ類測定方法ガイドライン」(厚生労働省、平成 20 年 2 月)<sup>1)</sup>に準じた。10 群と 11 群の詳細な分析条件は既報<sup>2)</sup>に従った。その他の食品群の詳細な分析条件は平成 29 年度の報告書<sup>3)</sup>に従った。

#### 4. 分析結果の表記

調査結果は、一日摂取量を体重あたりの毒性等量 (pg TEQ/kg bw/day) で示した。TEQ の算出には 2005 年に定められた TEF を使用し、分析値が LOD 未満の異性体濃度をゼロとして計算 (以下、ND=0 と略す) した。Global Environment Monitoring System (GEMS) では、分析値が LOD 未満となった場合は ND=LOD/2 として摂取量を推定する方法も示されているが、これは ND となった試料が全分析試料の 60% 以下であることが適用の条件になっている。過去の報告書<sup>4)</sup>で示したとおり、10 群と 11 群以外では異性体の検出率は極めて低くなる。このようなことから、ND=LOD/2 により推定したダイオキシソ類摂取量の信頼性は低く、摂取量を著しく過大評価する可能性が高いため、ND=0 として摂取量を推定した結果のみを示した。

#### C. 研究結果及び考察

7 地区の 8 機関において調製した TD 試料を分析し、ダイオキシソ類摂取量及び各群からの摂取割合を算出した。表 1~3 には、ND=0 の場合の PCDD/PCDFs、Co-PCBs 及び両者を合計したダイオキシソ類の一日摂取量を示した。また、10 及び 11 群は機関毎に 3 試料からの分析値が得られるので、表 1~3 では 10 及び 11 群の各群からのダイオキシソ類摂取量の最小値の組み合わせを#1、中央値の組み合わせを#2、最大値の組み合わせを#3 と示した。従って、PCDD/PCDFs 及び Co-PCBs 摂取量の最小値、中央値、最大値と#1、#2、#3 とは必ずしも一致しない。

#### 1. PCDD/PCDFs 摂取量

PCDD/PCDFs の一日摂取量は、平均 6.98 (範囲: 2.44~16.69) pg TEQ/person/day と推定された。これを、日本人の平均体重を 50 kg として、体重 (kg) あたりの一日摂取量に換算すると、平均 0.14 (範囲: 0.05~0.33) pg TEQ/kg bw/day となった (表 1)。昨年度は平均 0.13 (範囲: 0.02~0.40) pg TEQ/kg bw/day であり<sup>5)</sup>、今年度と昨年度の平均値はほぼ同じ値であった。最大の摂取量となった TD 試料は、北海道地区で作製した 10 群試料 (#3) であった。PCDD/PCDFs 摂取量 (全国平均値) に占める割合が高い食品群は、10 群 (魚介類) 78.8%、11 群 (肉・卵類) 16.6% であり、これら 2 群で全体の 95.4% と大部分を占めた。

#### 2. Co-PCBs 摂取量

Co-PCBs の一日摂取量は、平均 15.22 (範囲: 4.21~43.01) pg TEQ/person/day と推定された。体重あたりの摂取量は平均 0.30 (範囲: 0.08~0.86) pg TEQ/kg bw/day であった (表 2)。昨年度は平均 0.27 (範囲: 0.09~0.51) pg TEQ/kg bw/day であり<sup>5)</sup>、今年度の平均値は昨年度と比べ一割ほど高い値であった。また、最大の摂取量となった TD 試料は、北海道地区で作製した 10 群試料 (#3) であり、PCDD/PCDFs 摂取量が最大であった試料と同一であった。Co-PCBs 摂取量 (全国平均値) に占める割合が高い食品群は、10 群 (魚介類) 98.0%、11 群 (肉・卵類) 1.8% であり、これら 2 群で全体の 99.8% と大部分を占めた。

#### 3. ダイオキシソ類摂取量

PCDD/PCDFs と Co-PCBs を合わせたダイオキシソ類の一日摂取量は、平均 22.20 (範囲: 7.32~59.69) pg TEQ/person/day と推定された。体重あたりの摂取量は平均 0.44 (範囲: 0.15~1.19) pg TEQ/kg bw/day であった (表 3)。平均値は日本のダイオキシソ類の TDI (4 pg TEQ/kg bw/day) の約 11% であり、最大値は TDI の 30% 程度に相当した。昨年度は平均 0.40 (範囲: 0.11~

0.91) pg TEQ/kg bw/day であり<sup>5)</sup>、今年度の平均値は昨年度より1割ほど高い値であった。

ダイオキシン類摂取量に対する寄与率が高い食品群は、10群(魚介類)91.9%、11群(肉・卵類)6.5%であり、これら2つの食品群で全体の98.4%を占めた。この傾向は昨年度の調査と同様の傾向であった。また、ダイオキシン類摂取量に占めるCo-PCBsの割合は、69%であった。一昨年度及び昨年度における割合は共に67%であり<sup>5)</sup>、ほぼ7割を推移している。

本研究では、ダイオキシン類摂取量に占める割合が大きい10群及び11群の試料を各機関で各3セット調製し、ダイオキシン類摂取量の最小値、中央値及び最大値を求めている。今年度は、同一機関であっても、推定されるダイオキシン類摂取量の最小値と最大値には1.6~8.2倍の開きがあった。昨年度は同一機関における最小値と最大値の開きは1.5~3.2倍であり<sup>5)</sup>、今年度の最小値と最大値の開きは昨年度と比べ大きかった。3セットの試料は、同一機関(地域)において、種類、産地、メーカー等が異なる食品を使用して調製していることから、10群及び11群に含まれる食品のダイオキシン類濃度は広い範囲に分布していることが推察された。1セットのTD試料に含めることが可能な食品の数は限られているため、本研究のように10群や11群の試料数を多くして広範囲な食品を含めることが、信頼性の高いダイオキシン類摂取量の平均値の推定には有用であると考えられる。

#### 4. ダイオキシン類摂取量の経年変化

平成10(1998)年度以降の調査で得られたダイオキシン類摂取量(全国平均値)の経年変化を図1に示した。全食品群からの合計値の他、ダイオキシン類摂取量に大きな割合を占めた10群と11群からの摂取量についてもあわせて示した。昨年度までの摂取量は、令和2年度厚生労働行政推進調査事業費補助金研究報告書<sup>5)</sup>から引用した。ダイオキシン類摂取量の合計値は、1998年度以降、若干の増減はあるものの緩やかな減

少傾向を示している。本年度(2021年度)の全国平均値は0.44 pg TEQ/kg bw/day であり、1998年度以降の調査結果の中で2番目に低い値であった。また、調査開始時の1998年度の摂取量は1.75 pg TEQ/kg bw/day であり、これと比較すると本年度の平均値は25%程度であった。同様に、10群からの摂取量も、調査期間内で緩やかな減少を示していた。一方、11群からの摂取量は、2006年度までに大きく減少し、その後は低い値でほぼ一定となっていた。このように、ダイオキシン類摂取量の減少には、2006年度までは10群と11群からの摂取量の減少が寄与していたが、2006年度以降は、主として10群からの摂取量の減少が寄与していた。

ダイオキシン類摂取量はTD試料中のダイオキシン類濃度と各食品群の食品摂取量を乗じて求められる。ダイオキシン類摂取量が減少した要因について考察するため、ダイオキシン類摂取量に占める割合が大きい10群及び11群のダイオキシン類濃度の平均値の経年変化を図2に示した。10群及び11群のダイオキシン類濃度は、図1で示したダイオキシン類摂取量とよく似た減少傾向を示していた。日本ではCo-PCBsを含むPCB製品の使用が1972年に禁止されている。また、PCDD/PCDFsを不純物として含むことが知られている農薬(クロロトロフェン及びペンタクロロフェノール)の農薬登録が1970年代に失効している。さらには、1999年に制定されたダイオキシン類対策特別措置法により、焼却施設等からのダイオキシン類の排出が大幅に抑制されている。ダイオキシン類摂取量の低下についてはこれらの行政施策の効果が窺われた。また、各年の調査で用いた10群と11群の一日あたりの食品摂取量(g/day)を図3に示した。11群の食品摂取量は調査開始時の1998年度からほぼ横ばいで推移しているが、10群の食品摂取量は近年ゆるやかな減少を示しており、今年度の10群の食品摂取量は1998年と比較して約70%に減少していた。食生活の多様化に伴う魚介類摂取量の減少も部分的にダイオキシン類摂取量の減少に寄与

していると考えられた。

## 5. 国内外のダイオキシン類摂取量調査との比較

過去 10 年間に実施された日本と主な諸外国の TD 調査の結果を表 4 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ダイオキシン類摂取量調査の報告がある。東京都の令和 2 年度(2020 年度)のダイオキシン類摂取量は 0.40 pg TEQ/kg bw/day と報告<sup>6)</sup>されており、本調査結果と近い値であった。ダイオキシン類摂取量の推定には、分析法の LOD、LOD の取り扱い、また対象とした年齢層などの違いが影響するため、各国のダイオキシン類摂取量を単純に比較することは難しい。これらの点に留意する必要があるが、本調査のダイオキシン類摂取量は諸外国で報告<sup>7-12)</sup>されているダイオキシン類摂取量と比較し、特に高いことはなかった。

## D. 結論

全国 7 地区 8 機関で調製した TD 試料の分析結果より、ダイオキシン類の国民平均一日摂取量は 0.44 pg TEQ/kg bw/day と推定された。ダイオキシン摂取量は行政施策の効果などもあり経年的な減少傾向が示されている。しかし、依然として TDI の 11%程度を占めており、この値は有機塩素系農薬等のその他の多くの有害化学物質と比較すると比較的高い値である。今後もダイオキシン摂取量調査を継続し、ダイオキシン類摂取量の動向を調査していく必要がある。

## E. 参考文献

- 1) 食品中のダイオキシン類の測定方法暫定ガイドライン、食安監発第 0228003(平成 20 年 2 月 28 日)
- 2) Tsutsumi T, Amakura Y, Sasaki K, Toyoda M, Maitani T: Evaluation of an aqueous KOH digestion followed by hexane extraction for analysis of PCDD/Fs and dioxin-like PCBs

in retailed fish. Anal. Bioanal. Chem., 2003;375:792-798.

- 3) 平成 29 年度厚生労働行政推進調査事業費補助金研究報告書「食品を介したダイオキシン類等有害物質摂取量の評価とその手法開発に関する研究」分担研究報告書(食品の塩素化ダイオキシン類、PCB 等の摂取量推定及び汚染実態の把握に関する研究)
- 4) 平成 28 年度厚生労働行政推進調査事業費補助金研究報告書「食品を介したダイオキシン類等有害物質摂取量の評価とその手法開発に関する研究」分担研究報告書(食品の塩素化ダイオキシン類、PCB 等の摂取量推定及び汚染実態の把握に関する研究)
- 5) 令和 2 年度厚生労働行政推進調査事業費補助金研究報告書「食品を介したダイオキシン類等有害物質摂取量の評価とその手法開発のための研究」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及び汚染実態の把握に関する研究)
- 6) 東京都福祉保健局健康安全部環境保健衛生、令和 2 年度 食事由来の化学物質等摂取量推計調査, [https://www.fukushihoken.metro.tokyo.lg.jp/kankyo/kankyo\\_eisei/kagakutaisaku/shokuhin/kekka.files/2shokuji.pdf](https://www.fukushihoken.metro.tokyo.lg.jp/kankyo/kankyo_eisei/kagakutaisaku/shokuhin/kekka.files/2shokuji.pdf)
- 7) Windal I, Vandevijvere S, Maleki M, Gosciny S, Vinkx C, Focant J, Eppe G, Hanot V, Van Loco J: Dietary intake of PCDD/Fs and dioxin-like PCBs of the Belgian population. Chemosphere, 2010;79:334-340.
- 8) Perelló G, Gómez-Catalán J, Castell V, Llobet JM, Domingo JL: Assessment of the temporal trend of the dietary exposure to PCDD/Fs and PCBs in Catalonia, over Spain: Health risks. Food Chem. Toxicol., 2012;50:399-408.
- 9) Wong WWK, Yip YC, Choi KK, Ho YY, Xiao

- Y: Dietary exposure to dioxins and dioxin-like PCBs of Hong Kong adults: results of the first Hong Kong Total Diet Study. Food Additives & Contaminants: Part A, 2013;30:2152-2158.
- 10) Zhang L, Yin S, Wang X, Li J, Zhao Y, Li X, Shen H, Wu Y: Assessment of dietary intake of polychlorinated dibenzo-*p*-dioxins and dibenzofurans and dioxin-like polychlorinated biphenyls from the Chinese Total Diet Study in 2011. Chemosphere, 2015;137:178-184.
- 11) Bramwell L, Mortimer D, Rose M, Fernandes A, Harrad S, Pless-Mulloli T: UK dietary exposure to PCDD/Fs, PCBs, PBDD/Fs, PBBs and PBDEs: comparison of results from 24-h duplicate diets and total diet studies. Food Additives & Contaminants: Part A, 2017: 34:65-77.
- 12) Food Standards Australia New Zealand. (2020) The 26<sup>th</sup> Australian total diet study. <https://www.foodstandards.gov.au/publications/Documents/26th%20ATDS%20report.pdf>

の諸氏に感謝いたします。

## F.研究業績

### 1. 論文発表

なし

### 2. 学会発表

- 1) Okamoto Y, Tsutsumi T, Takatsuki S, Maeda T, Adachi R, Akiyama H: Dietary intake of dioxins by the Japanese population in a total diet study (1998-2020). 41st International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (2021.11)

## 【謝辞】

TD 試料の調製にご協力いただいた研究機関

表1 令和3年度トータルダイエツト試料(1~14群)からのダイオキシソ(PCDDs+PCDFs)1日摂取量(ND=0)

(pgTEQ/day)

食品群	北海道地区			東北地区			関東地区						中部地区			関西地区		
							I			II								
1群(米、米加工品)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
2群(米以外の穀類、種実類、いも類)	0.02			0.02			0.02			0.02			0.02			0.02		
3群(砂糖類、菓子類)	0.03			0.03			0.03			0.03			0.03			0.03		
4群(油脂類)	0.03			0.03			0.03			0.03			0.03			0.03		
5群(豆・豆加工品)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
6群(果実、果汁)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
7群(緑黄色野菜)	0.06			0.06			0.06			0.06			0.06			0.06		
8群(他の野菜類、キノコ類、海藻類)	0.07			0.07			0.07			0.07			0.07			0.07		
9群(酒類、嗜好飲料)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3
10群(魚介類)	2.74	3.61	15.51	6.75	8.33	9.76	3.34	5.57	7.76	2.96	2.83	5.30	2.11	2.14	4.41	2.94	3.84	9.48
11群(肉類・卵類)	0.06	0.22	0.86	0.07	4.27	5.80	0.03	0.66	2.27	0.01	0.04	3.37	0.01	0.05	0.55	0.06	0.95	0.39
12群(乳・乳製品)	0.03			0.03			0.03			0.03			0.03			0.03		
13群(調味料)	0.07			0.07			0.07			0.07			0.07			0.07		
14群(飲料水)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
総摂取量(pgTEQ/day)	3.11	4.15	16.69	7.14	12.92	15.89	3.70	6.56	10.35	3.29	3.19	8.99	2.44	2.51	5.28	3.31	5.12	10.19
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.06	0.08	0.33	0.14	0.26	0.32	0.07	0.13	0.21	0.07	0.06	0.18	0.05	0.05	0.11	0.07	0.10	0.20

食品群	中国・四国地区			九州地区			平均摂取量	標準偏差	比率(%)
1群(米、米加工品)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
2群(米以外の穀類、種実類、いも類)	0.02			0.02			0.02	0.00	0.28
3群(砂糖類、菓子類)	0.03			0.03			0.03	0.00	0.46
4群(油脂類)	0.03			0.03			0.03	0.00	0.42
5群(豆・豆加工品)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.05
6群(果実、果汁)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
7群(緑黄色野菜)	0.06			0.06			0.06	0.00	0.89
8群(他の野菜類、キノコ類、海藻類)	0.07			0.07			0.07	0.00	1.06
9群(酒類、嗜好飲料)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
	#1	#2	#3	#1	#2	#3			
10群(魚介類)	3.81	4.55	5.08	3.95	6.94	8.31	5.50	3.15	78.81
11群(肉類・卵類)	0.08	0.06	0.50	0.78	2.33	4.39	1.16	1.67	16.60
12群(乳・乳製品)	0.03			0.03			0.03	0.00	0.41
13群(調味料)	0.07			0.07			0.07	0.00	1.01
14群(飲料水)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
総摂取量(pgTEQ/day)	4.20	4.93	5.90	5.05	9.59	13.02	6.98	4.26	100.00
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.08	0.10	0.12	0.10	0.19	0.26	0.14	0.09	

\* 一部の地域(北海道及び東北地区、中国・四国及び九州地区)の食品群1~9、12~14群は共通試料を使用した。

\*\* 食品群10及び11におけるダイオキシソ類(PCDDs+PCDFs+Co-PCBs)摂取量(ND=0)の最小値の組み合わせを#1、中央値の組み合わせを#2、最大値の組み合わせを#3とした。

表2 令3年度トータルダイエツト試料(1~14群)からのCo-PCBs類1日摂取量(ND=0)

(pgTEQ/day)

食品群	北海道地区			東北地区			関東地区						中部地区			関西地区		
							I			II								
1群(米、米加工品)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
2群(米以外の穀類、種実類、いも類)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
3群(砂糖類、菓子類)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
4群(油脂類)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
5群(豆・豆加工品)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
6群(果実、果汁)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
7群(緑黄色野菜)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
8群(他の野菜類、キノコ類、海藻類)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
9群(酒類、嗜好飲料)	0.02			0.02			0.02			0.02			0.02			0.02		
	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3
10群(魚介類)	4.16	9.16	42.91	14.37	17.27	31.28	9.47	15.44	20.80	7.37	9.25	10.98	6.15	6.50	9.23	7.27	18.37	19.61
11群(肉類・卵類)	0.02	0.04	0.07	0.01	0.37	0.03	0.03	0.05	0.09	0.01	0.01	0.71	0.05	0.02	0.08	0.02	0.04	3.06
12群(乳・乳製品)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
13群(調味料)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
14群(飲料水)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
総摂取量(pgTEQ/day)	4.21	9.23	43.01	14.41	17.67	31.34	9.53	15.51	20.92	7.40	9.29	11.71	6.23	6.54	9.34	7.32	18.44	22.70
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.08	0.18	0.86	0.29	0.35	0.63	0.19	0.31	0.42	0.15	0.19	0.23	0.12	0.13	0.19	0.15	0.37	0.45

食品群	中国・四国地区			九州地区			平均摂取量	標準偏差	比率(%)
1群(米、米加工品)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
2群(米以外の穀類、種実類、いも類)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
3群(砂糖類、菓子類)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.02
4群(油脂類)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
5群(豆・豆加工品)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
6群(果実、果汁)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
7群(緑黄色野菜)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.02
8群(他の野菜類、キノコ類、海藻類)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
9群(酒類、嗜好飲料)	0.02			0.02			0.02	0.00	0.13
	#1	#2	#3	#1	#2	#3			
10群(魚介類)	10.83	13.60	17.53	11.07	15.94	29.23	14.91	9.07	97.96
11群(肉類・卵類)	0.01	0.05	0.02	0.03	0.01	1.93	0.28	0.72	1.85
12群(乳・乳製品)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.03
13群(調味料)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
14群(飲料水)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
総摂取量(pgTEQ/day)	10.88	13.68	17.58	11.12	15.98	31.19	15.22	9.30	100.00
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.22	0.27	0.35	0.22	0.32	0.62	0.30	0.19	

\* 一部の地域(北海道及び東北地区、中国・四国及び九州地区)の食品群1~9、12~14群は共通試料を使用した。

\*\* 食品群10及び11におけるダイオキシン類(PCDDs+PCDFs+Co-PCBs)摂取量(ND=0)の最小値の組み合わせを#1、中央値の組み合わせを#2、最大値の組み合わせを#3とした。



表3 令和3年度トータルダイエツト試料(1~14群)からのダイオキシソ類1日摂取量(ND=0)

(pgTEQ/day)

食品群	北海道地区			東北地区			関東地区						中部地区			関西地区		
							I			II								
1群(米、米加工品)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
2群(米以外の穀類、種実類、いも類)	0.02			0.02			0.02			0.02			0.02			0.02		
3群(砂糖類、菓子類)	0.03			0.03			0.03			0.03			0.03			0.03		
4群(油脂類)	0.03			0.03			0.03			0.03			0.03			0.03		
5群(豆・豆加工品)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
6群(果実、果汁)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
7群(緑黄色野菜)	0.06			0.06			0.06			0.06			0.06			0.06		
8群(他の野菜類、キノコ類、海藻類)	0.07			0.07			0.07			0.07			0.07			0.07		
9群(酒類、嗜好飲料)	0.02			0.02			0.02			0.02			0.02			0.02		
	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3
10群(魚介類)	6.89	12.77	58.42	21.12	25.60	41.05	12.82	21.01	28.56	10.33	12.08	16.27	8.26	8.64	13.63	10.21	22.21	29.09
11群(肉類・卵類)	0.08	0.26	0.93	0.08	4.64	5.83	0.06	0.71	2.36	0.01	0.05	4.08	0.06	0.07	0.63	0.07	0.99	3.45
12群(乳・乳製品)	0.03			0.03			0.03			0.03			0.03			0.03		
13群(調味料)	0.07			0.07			0.07			0.07			0.07			0.07		
14群(飲料水)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
総摂取量(pgTEQ/day)	7.32	13.38	59.69	21.55	30.59	47.23	13.23	22.07	31.27	10.69	12.49	20.70	8.67	9.05	14.62	10.63	23.56	32.89
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.15	0.27	1.19	0.43	0.61	0.94	0.26	0.44	0.63	0.21	0.25	0.41	0.17	0.18	0.29	0.21	0.47	0.66

食品群	中国・四国地区			九州地区			平均摂取量	標準偏差	比率(%)
1群(米、米加工品)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
2群(米以外の穀類、種実類、いも類)	0.02			0.02			0.02	0.00	0.09
3群(砂糖類、菓子類)	0.03			0.03			0.03	0.00	0.16
4群(油脂類)	0.03			0.03			0.03	0.00	0.13
5群(豆・豆加工品)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.02
6群(果実、果汁)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
7群(緑黄色野菜)	0.06			0.06			0.06	0.00	0.29
8群(他の野菜類、キノコ類、海藻類)	0.07			0.07			0.07	0.00	0.33
9群(酒類、嗜好飲料)	0.02			0.02			0.02	0.00	0.09
	#1	#2	#3	#1	#2	#3			
10群(魚介類)	14.64	18.16	22.61	15.02	22.88	37.53	20.41	12.05	91.94
11群(肉類・卵類)	0.09	0.10	0.52	0.81	2.35	6.32	1.44	1.97	6.49
12群(乳・乳製品)	0.03			0.03			0.03	0.00	0.15
13群(調味料)	0.07			0.07			0.07	0.00	0.32
14群(飲料水)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
総摂取量(pgTEQ/day)	15.08	18.61	23.48	16.18	25.57	44.20	22.20	13.28	100.00
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.30	0.37	0.47	0.32	0.51	0.88	0.44	0.27	

\* 一部の地域(北海道及び東北地区、中国・四国及び九州地区)の食品群1~9、12~14群は共通試料を使用した。

\*\* 食品群10及び11におけるダイオキシソ類(PCDDs+PCDFs+Co-PCBs)摂取量(ND=0)の最小値の組み合わせを#1、中央値の組み合わせを#2、最大値の組み合わせを#3とした。

表 4 日本と主な諸外国の TD 調査によるダイオキシン類摂取量推定値

国	調査時期	ダイオキシン類摂取量 pg TEQ/kg bw/day	対象とした 年齢層	検出下限値 の取り扱い*	参考文献
日本(全国)	2020年度(令和2年度)	0.44	1歳以上	ND=0	本研究 6)
日本(東京都)	2020年度(令和2年度)	0.40	1歳以上	ND=0	
ベルギー	2008年	0.61	15歳以上	ND=LOD/2	7)
スペイン	2008年	0.60	成人	ND=LOD/2	8)
中国	2010-2011年	0.73 **	20-84歳	ND=LOD/2	9)
	2011年	0.59	18-45歳	ND=0	10)
イギリス	2011-2012年	0.52	19歳以上	ND=LOD	11)
オーストラリア	2017-2018年	0.21	2歳以上	ND=0	12)

\* 検出下限値未満のダイオキシン類をゼロとして計算した場合はND=0、検出下限値の1/2を当てはめた場合はND=LOD/2、検出下限値を当てはめた場合はND=LODと示した。

\*\* 原著では一ヶ月あたりのDXNs摂取量が示されていたため、30日で除した値を一日摂取量として示した。

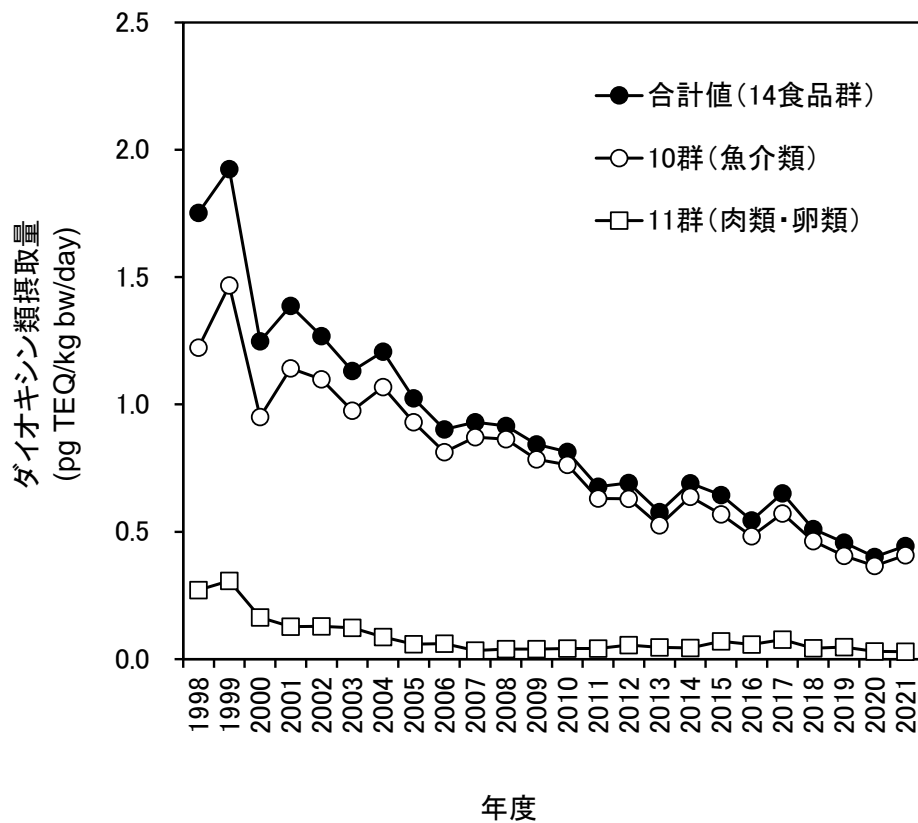


図1 ダイオキシン類摂取量（全国平均値）の経年変化

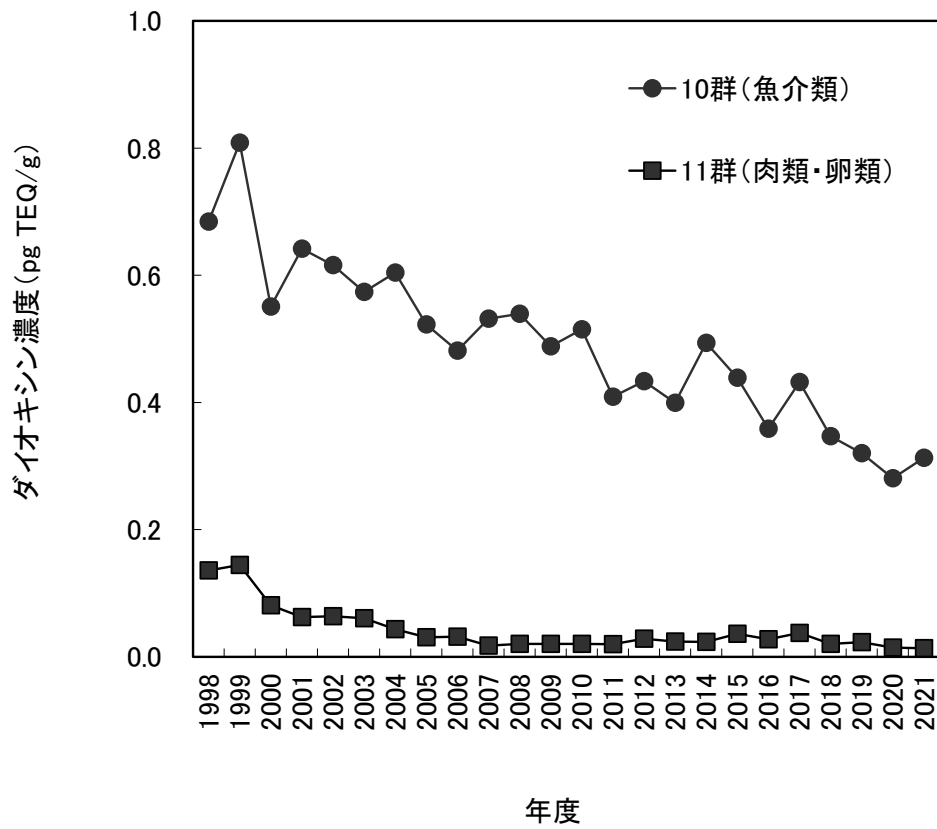


図2 10群及び11群のダイオキシン類濃度（平均値）の経年変化

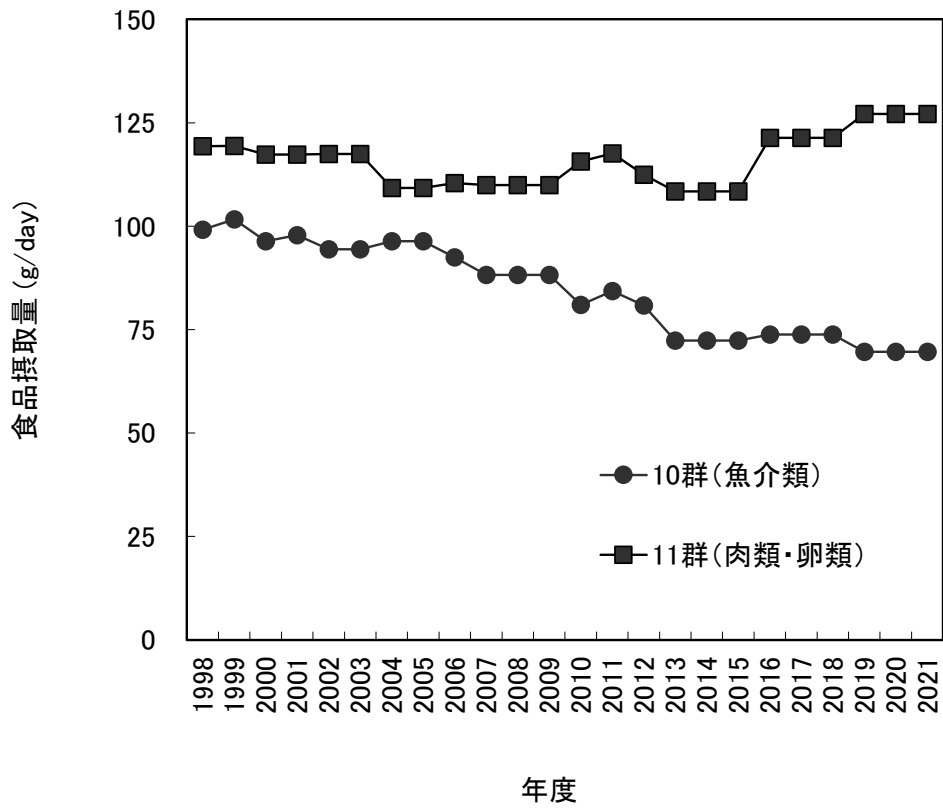


図3 10群及び11群の食品摂取量の経年変化

## Ⅱ. 分担研究報告書

(1) 食品の塩素化ダイオキシン類、PCB、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

(1-2) リスクを考慮した摂取量推定手法開発

研究分担者 堤 智昭

## 令和3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のための研究

### 分担研究報告書

(1) 食品の塩素化ダイオキシン類、PCB、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

(1-2) リスクを考慮した摂取量推定手法開発

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

ダイオキシン類の摂取量の精密化のために、個人の食品摂取量のデータと魚介類中のダイオキシン類濃度を用いて、ベイズ推定を用いたパラメーター自体を分布として推定することで、2次元モンテカルロシミュレーション(2D-MCS)を行った。年齢別(1-6歳、7-14歳、15-19歳、20歳以上)に対するダイオキシン類摂取量を推定した。魚介類を介したダイオキシン類摂取量を13の小分類からの総和として算出した2D-MCSによるダイオキシン類摂取量の平均値は、1-6歳: 1.79 pg TEQ/kg/day、7-14歳: 1.28 pg TEQ/kg/day、15-19歳: 0.91 pg TEQ/kg/day、 $\geq 20$ 歳: 1.27 pg TEQ/kg/dayと推定された。またTDI(4 pg TEQ/kg/day)を超過する確率は、1-6歳で10.0%、7-14歳で6.7%、15-19歳で4.2%、 $\geq 20$ 歳で6.5%であった。15-19歳よりも20歳以上でTDIを超過する確率が高かった要因は、魚介類の喫食頻度が15-19歳では76%であったのに対して、20歳以上では85%と喫食頻度が高いためと考えられた。脂肪含量が高い魚介類の摂取量や摂取頻度が高いと、TDIを超えてしまうことから、食品の摂取量や摂取頻度のバランスを心掛けることがリスク低減化に重要と考えられた。

#### 協力研究者

星薬科大学薬学部

穂山 浩

国立医薬品食品衛生研究所

鈴木美成

推定等の利点がある。これは、トータルダイエットスタディー等の分析値に基づく決定論的な摂取量評価とは異なる利点である。乱数を生成することで数値シミュレーションを行うモンテカルロシミュレーション(MCS)は、確率論的摂取量推定において有用な計算方法である。しかしながら、MCSに用いるパラメーターをどのように設定するかの問題が生じる。標本誤差やパラメーター推定の不確かさも含めて評価するために、ベイズ推定を用いることでパラメーター自体を分布として推定することで、二次元MCS(2D-MCS)を行った。今年度は小児(1~6歳)、学童(7~14歳)、青年(15~19歳)、成人(20歳以上)の4区分の年齢に関する

#### A. 研究目的

現在までに蓄積された魚介類のダイオキシン類濃度データと、食品摂取頻度・摂取量調査の特別集計データを利用して、魚介類からのダイオキシン類の確率論的摂取量推定を実施した。媒体中の濃度と媒体摂取量をそれぞれ確率密度分布として扱うことによる確率論的な摂取量評価は、摂取量を分布として評価できるため、不確かさ評価・任意のパーセンタイル値の

るダイオキシン類摂取量の推定を行った。

## B. 研究方法

### 魚介類摂取量の算出

平成 22 年度 受託事業（厚生労働省医薬食品局食品安全部基準審査課）食品摂取頻度・摂取量調査の特別集計業務報告書（平成 23 年 1 月 28 日）の食品摂取量データの個別データを用いた。本データの個別データは小児（1～6 歳）227 人、学童（7～14 歳）381 人、青年（15～19 歳）288 人、成人（20 歳以上）3614 人の、最大 12 日（連続しない 3 日×4 季節）のもので、このうち、体重の記録のなかったデータ（青年 3 件、成人 27 件）を除く、小児 1619 件、学童 3419 件、青年 2539 件、成人 32787 件を使用した。淡水魚、海水魚、缶詰等の魚 278 項目を魚介類 13 区分に分類し、それぞれの摂取量を算出した。魚介類の 13 区分は、あじ・いわし、さけ・ます、たい・かれい類、まぐろ・かじき類、その他の生魚、貝類、いか・たこ類、えび・かに類、魚介（塩蔵、生干し、乾物）、魚介（缶詰）、魚介（佃煮）、魚介（練り製品）、魚肉ハム・ソーセージとした。

### 魚介類中のダイオキシン類濃度

魚介類中のダイオキシン類濃度は、厚生労働省科学研究（平成 10～26 年度）の調査結果（鮮魚 454、魚介類（軟体・甲殻・貝類）及びそれらの加工品 384 試料）を使用した。TEF は WHO2005 年の値を用い、測定結果が検出下限値未満（ND）となった場合に 0 としたデータを使用した。

ダイオキシン類濃度の確率密度分布の推定には、正の実数をとる対数正規分布、ガンマ分布、ワイブル分布を仮定したモデルを用いた。ダイオキシン類濃度は PCDD、PCDF、DL-PCB とそれらの異性体の総和を用いた。必ずしも全ての測定対象物質が検出できているわけではないため、ND のデータがある場合については、下限値-上限値間の累積確率を用いて推定を行った。一方で、体重当たりの喫食量にはすべての

小分類において 0 を含んでいたことから、ゼロ過剰を表現できる確率分布として、ゼロ過剰対数正規分布（ZILN）、ゼロ過剰ガンマ分布（ZIG）、Tweedie 分布を仮定したモデルについて検討した。

対数正規分布・ガンマ分布・ワイブル分布の確率密度関数はそれぞれ以下の式で示される。対数正規分布：

$$f(Y|\mu, \sigma) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma Y} \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{\log Y - \mu}{\sigma}\right)^2\right]$$

ガンマ分布：

$$f(Y|\alpha, \beta) = \frac{\beta^\alpha}{\Gamma(\alpha)} Y^{\alpha-1} e^{-\beta Y}$$

ワイブル分布：

$$f(Y|m, \eta) = \frac{m}{\eta} \left(\frac{Y}{\eta}\right)^{m-1} \exp\left[-\left(\frac{Y}{\eta}\right)^m\right]$$

体重当たりの喫食量は非負値の連続変数であるため、対数正規分布を仮定してシミュレーションを行うことがこれまで多かった。しかしながら、すべての食品群には 0 を含むレコードが存在していたため、対数正規分布は妥当な確率密度分布であるとはいえない。そこで、0 過剰を表現できる確率密度分布である Tweedie 分布、zero-inflated gamma 分布、zero-inflated lognormal 分布を検討した。Tweedie 分布は以下の式で示すように、 $Y=0$  の場合は確率  $e^{-\lambda}$  で生成され、 $Y > 0$  の場合は複合ポアソン-ガンマ分布（compound Poisson-gamma distribution）から生成される。

$$\begin{cases} e^{-\lambda} & \text{if } Y = 0 \\ \left. \begin{array}{l} M \sim \text{Poisson}(\lambda) \\ X_m \sim \text{Gamma}(\alpha, \beta) \end{array} \right\} & \text{if } Y > 0 \\ Y = \sum_{m=1}^M X_m \end{cases}$$

ここで、 $\lambda$  はポアソン分布のパラメーター、 $\alpha$  はガンマ分布の形状パラメーター shape を、 $\beta$  はガンマ分布の比率パラメーター rate を示す。つまり、喫食回数  $M$  がポアソン分布に従い、1 回の喫食量  $X_m$  がガンマ分布に従い、その総和として Tweedie 分布となると解釈できる。R



の tweedie パッケージ (ver. 2.3.2) を使う場合は、Tweedie 分布のパラメーターは $\mu$ 、 $\phi$ 、 $\theta$  で指定しており、 $\mu > 0$ 、 $\phi > 0$ 、 $1 < \theta < 2$ を満たす。Tweedie 分布の平均値の理論値は $\mu$ 、分散の理論値は $\phi\mu^\theta$ になる。ここで、 $\mu$ 、 $\phi$ 、 $\theta$ と $\lambda$ 、 $\alpha$ 、 $\beta$ の間には以下のような関係がある。

$$\begin{cases} \lambda = \frac{1}{\phi} \frac{\mu^{(2-\theta)}}{2-\theta} \\ \alpha = \frac{2-\theta}{\theta-1} \\ \beta = \frac{1}{\phi} \frac{\mu^{(1-\theta)}}{\theta-1} \end{cases}$$

$$\begin{cases} \mu = \lambda \frac{\alpha}{\beta} \\ \phi = \frac{\lambda^{(1-\theta)} \left(\frac{\alpha}{\beta}\right)^{2-\theta}}{2-\theta} \\ \theta = \frac{\alpha+2}{\alpha+1} \end{cases}$$

Tweedie 分布は 0 にマスを持つ確率分布であるため、タバコ消費の解析や保険数理などの応用分野でもニーズが高く利用されている。Zero-inflated モデルは、 $(1-p)$ の確率で 0、 $p$ の確率である確率密度分布に従うモデルであり、ポアソン分布と組み合わせた zero-inflated Poisson 分布は来店回数の来客数のモデルに使用される。喫食量は 0 以上の連続変数であるので、対数正規分布あるいはガンマ分布と組み合わせた、zero-inflated lognormal (ZILN) 分布と zero-inflated gamma (ZIG) 分布への適合を検討した。

ダイオキシン濃度は必ずしもすべての異性体が検出されるわけではないので、本研究で使用している総ダイオキシン濃度には下限値と上限値がある。このような不検出例を含むデータの場合には、不検出例に確率密度関数  $f(Y|\theta)$  に代わって下限値 ( $L$ ) - 上限値 ( $U$ ) 間の累積確率関数  $F(L, U|\theta)$  を用いることで、以下のように尤度  $L(Y|\theta)$  を算出できる。

$$L(Y|\theta) = \prod_{i=1}^{N_{\text{obs}}} f(Y_i|\theta) \times \prod_{j=1}^{N_{\text{cen}}} F(L_j, U_j|\theta)$$

ここで、 $N_{\text{obs}}$ は定量できたサンプルサイズを、 $N_{\text{cen}}$ は定量下限値未満のサンプルサイズを示す。

BE 法で得られる事後予測分布  $f_{\text{post}}(\theta|Y)$  は、ベイズの定理を用いて以下のようにあらわすことができる。

$$f_{\text{post}}(\theta|Y) = \frac{L(Y|\theta)f_{\text{pri}}(\theta)}{f_{\text{obs}}(Y)}$$

ここで、 $f_{\text{pri}}(\theta)$ は事前分布を、 $f_{\text{obs}}(Y)$  は観測値  $Y$  の確率密度分布を示す。観測値  $Y$  は観測後には変化しないため、

$$f_{\text{post}}(\theta|Y) \propto L(Y|\theta)f_{\text{pri}}(\theta)$$

と簡略化することができる。つまり、ベイズ推定は尤度を事前知識に基づいて重み付したものであると解釈できる。

ダイオキシン濃度のベイズ推定においては、形状パラメーターの事前分布には、以下の確率密度関数であらわされるコーシー分布を用いた。

$$f(Y|y_0, \gamma) = \frac{1}{\pi} \frac{\gamma}{(Y - y_0)^2 + \gamma^2}$$

対数正規分布を仮定した場合には  $(y_0, \gamma) = (3, 1)$  を使い、ガンマ分布及びワイブル分布には  $(y_0, \gamma) = (1, 1)$  をコーシー分布のパラメーターに用いた。パラメーターから変換した理論平均値の事前分布には、不検出例に定量下限値の半値を代入して求めた平均値  $\hat{\mu}^{\text{RL}/2}$  を用いて、 $N(\hat{\mu}^{\text{RL}/2}, \hat{\mu}^{\text{RL}/2})$  の正規分布を採用した。

体重当たりの喫食量に関するベイズ推定においては、サンプルサイズが十分なため、無情報事前分布として  $(-\infty, \infty)$  の一様分布を用いた。

ベイズ推定は、R のパッケージである rstan (ver. 2.21.2) を用いた。WAIC が最も低いモデル

を最適なものとして採用した。

### C. 研究結果及び考察

ベイズ推定で得られた各魚介類サブグループのダイオキシン濃度に関する事後予測分布を Table 1 に示す。事後予測分布の平均値として算出した形状パラメーターは次の通りであった； $e^{\sigma}$  :  $3.3 \pm 0.6$ 、 $\alpha$  : (1.7, 8.2)、 $m$  : 3.8。ほとんどのグループで得られた結果は、設定した事前分布との乖離は小さかったことから、事前分布の設定は適切であったと判断できた。事前分布との乖離が大きかった練り製品と魚肉ソーセージは、L と U の分布がほとんど重なっていなかった。このようなデータの場合は、パラメーターが収束せず、妥当な推定が行えなかった可能性がある。

多くの小分類においてダイオキシン類濃度は対数正規分布への適合が最も良いと判断できた。対数正規分布以外の分布への適合度が高かった、練り製品・魚肉ソーセージについては、分布の相対標準偏差が 40%未満であった。これらのグループは、試料自体が均質化されていることから、他の小分類のグループと比較して相対標準偏差が小さくなった可能性も考えられた。

体重当たりの喫食量に関する事後予測分布の結果を Table 2~5 に示す。ZILN 分布が 33 グループで、ZIG 分布が 10 グループで、Tweedie 分布が 9 グループで適していると判断された。

ベイズ推定で得られた事後予測分布から 2000 個のモンテカルロサンプルを得たのちに、各事後予測分布の組み合わせから 50 個の乱数を発生させ、計 10 万個の乱数を生成した。推定結果を Table 6~9 に示す。また、得られた分布のヒストグラム/確率質量を Fig. 1~4 に示す。

魚介類を介したダイオキシン類摂取量を 13 の小分類からの総和として算出した 2D-MCS によるダイオキシン類摂取量の平均値は、1-6 歳：1.79 pg TEQ/kg/day、7-14 歳：1.28 pg TEQ/kg/day、15-19 歳：0.91 pg TEQ/kg/day、 $\geq$

20 歳：1.27 pg TEQ/kg/day であった。TDI (4 pg TEQ/kg/day) を超過する確率は以下の通りであった；1-6 歳：10.0%、7-14 歳：6.7%、15-19 歳：4.2%、 $\geq$ 20 歳：6.5%。15-19 歳よりも 20 歳以上で TDI を超過する確率が高かった要因は、魚介類の喫食頻度が 15-19 歳では 76%であったのに対して、20 歳以上では 85%と喫食頻度が高いためと考えられた。

なお、本研究で推定したダイオキシン類摂取量については、次の点から過大推定されている可能性に留意が必要である。本研究では全て未調理の魚介類のダイオキシン類濃度データをシミュレーションに使用している。調理によりダイオキシン類濃度が減少することが知られていることから、魚介類中のダイオキシン類濃度が実際の喫食状態よりも高くなっている可能性が考えられる。また、ダイオキシン類摂取量は経年的に減少していることがトータルダイエット調査より明らかになっている。今回のシミュレーションに使用した魚介類のダイオキシン類濃度データには過去のデータも含まれていることから、摂取量推定値を大きくした可能性も考えられる。

### D. 結論

魚介類を介したダイオキシン類摂取量を 13 の小分類からの総和として算出した 2D-MCS によるダイオキシン類摂取量の平均値は、1-6 歳：1.79 pg TEQ/kg/day、7-14 歳：1.28 pg TEQ/kg/day、15-19 歳：0.91 pg TEQ/kg/day、 $\geq$ 20 歳：1.27 pg TEQ/kg/day であった。また 95%タイルは 1-6 歳：7.28 pg TEQ/kg/day、7-14 歳：5.05 pg TEQ/kg/day、15-19 歳：3.49 pg TEQ/kg/day、 $\geq$ 20 歳：4.90 pg TEQ/kg/day であった。また TDI (4 pg/kg/day) を超過する確率は以下の通りであった；1-6 歳：10.0%、7-14 歳：6.7%、15-19 歳：4.2%、 $\geq$ 20 歳：6.5%。15-19 歳よりも 20 歳以上で TDI を超過する確率が高かった要因は、魚介類の喫食頻度が 15-19 歳では 76%であったのに対し

て、20歳以上では85%と喫食頻度が高いためと考えられた。脂肪含量が高い魚介類の摂取量や摂取頻度が高いと、TDIを超えてしまうことから、食品の摂取量や摂取頻度のバランスを心掛けることがリスク低減化に重要と考えられた。

#### **E. 研究業績**

##### **1. 論文発表**

特になし。

##### **2. 学会発表**

特になし。

#### **F. 知的財産権の出願、登録状況**

特になし。

#### **G. 健康危機情報**

特になし。

## Ⅱ. 分担研究報告書

(1) 食品の塩素化ダイオキシン類、PCB、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

(1-3) トータルダイエツト試料の分析による PCBs 摂取量推定

研究分担者 堤 智昭

## 令和3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のための研究

### 分担研究報告書

(1) 食品の塩素化ダイオキシン類、PCB、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

(1-3) トータルダイエツト試料の分析による PCBs 摂取量推定

研究分担者 堤 智昭 国立医薬品食品衛生研究所食品部

#### 研究要旨

2021年度に作製したマーケットバスケット方式によるトータルダイエツト(TD)試料を用いて、ポリ塩化ビフェニル(PCBs)の国民平均一日摂取量を推定した。国民健康・栄養調査による地域別の平均食品摂取量に基づいて食品を購入し、TD試料を全国10地域で調製した。過去の研究からPCBs摂取量に占める割合の高い食品群である10群(魚介類)と11群(肉類、卵類)のみを対象に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、336 ng/person/dayと推定された。体重(50 kgと仮定)あたりでは6.7 ng/kg bw/dayと推定され、この値は日本の暫定耐容一日摂取量(TDI)の0.1%程度であった。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、WHOのTDIの34%程度に相当した。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307 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113 ng/person/dayと推定された。

また、2019年度に作製したTD試料を用いて、食品全体(飲料水を除く)のPCBs摂取量において10群と11群が主要な摂取源であるかを検証した。食品全体からの総PCBs摂取量、NDL-PCBs摂取量、及び6異性体摂取量における10群と11群の合計値が占める割合は、いずれにおいても約9割であり、これら2つの食品群からの摂取量で食品全体からのPCBs摂取量をほぼ説明できることが確認できた。

#### 研究協力者

国立医薬品食品衛生研究所

高附 巧、前田朋美、足立利華、鍋師裕美

北海道立衛生研究所

青柳直樹、市橋大山

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

越智直樹、堀里実、五十嵐悠

名古屋市衛生研究所

宮崎仁志、高木恭子

滋賀県衛生科学センター

三田村徳子、佐野政文、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

大城聡子、當間一晃

福岡県保健環境研究所

飛石和大、佐藤 環、新谷依子、古谷貴志、

## 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」<sup>1)</sup>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。トータルダイエツト (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。

さらに今年度は、食品全体 (飲料水を除く) の PCBs 摂取量において、10 群と 11 群が主要な摂取源であるかを検証した。平成 25 (2013) 年度以降の PCBs 摂取量調査では、過去の研究結果か

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たため、これら 2 つの食品群のみを摂取量調査の対象としてきた。しかし、食品摂取パターンや食品中の PCBs 濃度は年月と共に変化していくと考えられることから、定期的に 10 群と 11 群以外の食品群からの摂取量についても把握しておくことが望ましい。そこで、2019 年度に作製した TD 試料について、分析対象外であった 10 群と 11 群以外の食品群 (14 群の飲料水を除く) を全て分析し、食品全体からの PCBs 摂取量に占める 10 群と 11 群の摂取量割合を調査した。

## 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 (計 13 食品群) ごとに混合均一化したものを試料とした。作製した TD 試料は、分析に供すまで -20℃ で保存した。

13 食品群の内訳は、次のとおりである。

- 1 群: 米、米加工品
- 2 群: 米以外の穀類、種実類、いも類
- 3 群: 砂糖類、菓子類
- 4 群: 油脂類
- 5 群: 豆類、豆加工品
- 6 群: 果実、果汁
- 7 群: 緑黄色野菜
- 8 群: 他の野菜類、キノコ類、海草類
- 9 群: 酒類、嗜好飲料
- 10 群: 魚介類
- 11 群: 肉類、卵類

12 群: 乳、乳製品

13 群: 調味料

2021 年度に作製した TD 試料については、10 群と 11 群のみを分析とした。2019 年度に作製した TD 試料については、1~9 群及び 12 及び 13 群を分析した。10 群と 11 群以外の各食品群については、各地域の食品摂取量に応じた割合で混合した共通試料(コンポジット試料)とし、分析に供した。

## 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(富士フィルム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)、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)、ジメチルスルホキシド(ダイオキシン類分析用)、濃硫酸(特級)、塩化ナトリウム(特級)は富士フィルム和光純薬(株)より購入した。水は、ミリポア Milli-Q Integral 10 環境分析タイプから採取した超純水をヘキサンで洗浄し使用した。

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 UltraFOCUS (日本電子(株)社製)

### 2-3. 試験溶液の調製

#### 2-3-1. 1 群、2 群、及び 5 群

均一化した試料 20 g をナスフラスコに量りとり、クリーンアップスパイク 40 µL を加えた後、アセトン 100 mL、ヘキサン 100 mL を加え 1 時間振とう抽出をした。抽出溶液を吸引ろ過し、残渣にアセトン 30 mL、ヘキサン 30 mL を加え 15 分間振とうし、同様の操作を行い抽出液を分液ロートに合わせた。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。無水硫酸ナトリウムで脱水後、溶媒を留去したのち 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ロート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、溶媒を留去しヘキサン 15 mL に溶解し分液ロートに移した。ヘキサン飽和ジメチルスルホキシド 40 mL を加え 10 分間振とう抽出した。

静置後、ジメチルスルホキシド層を分取し、ヘキサン層にヘキサン飽和ジメチルスルホキシド 40 mL を加え同様の操作を 2 回行った。ジメチルスルホキシド層に水 120 mL、ヘキサン 60 mL を加え 10 分間振とう抽出を行った。静置後、ヘキサン層を分取し、水層にヘキサン 60 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、水 50 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。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。

この溶液を、ヘキサン 100 mL で洗浄した多層シリカゲルに注入し、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。さらにこの溶液を、ヘキサンで湿式充填したアルミナカラムに注入し、ヘキサン 100 mL で洗浄後、20% (v/v) ジクロロメタン含有ヘキサン 100 mL で溶出した。溶媒を留去し、シリンジスパイク 100  $\mu$ L を加え、GC/MS 試験溶液とした。

### 2-3-2. 3 群、4 群、6 群～9 群、12 群、及び 13 群

均一化した試料 20 g (4 群は 5 g) をビーカーに量りとり、クリーンアップスパイク 40  $\mu$ 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ロート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、溶媒を留去しヘキサン 15 mL に溶解し分液ロートに移した。ヘキサ

ン飽和ジメチルスルホキシド 40 mL を加え 10 分間振とう抽出した。静置後、ジメチルスルホキシド層を分取し、ヘキサン層にヘキサン飽和ジメチルスルホキシド 40 mL を加え同様の操作を 2 回行った。ジメチルスルホキシド層に水 120 mL、ヘキサン 60 mL を加え 10 分間振とう抽出を行った。静置後、ヘキサン層を分取し、水層にヘキサン 60 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、水 50 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。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。

この溶液を 2-3-1. と同様に多層シリカゲル及びアルミナカラムで精製後、溶媒を留去し、シリンジスパイク 100  $\mu$ L を加え、GC/MS 試験溶液とした。

### 2-3-3. 10 群及び 11 群

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  $\mu$ 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ロート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。

この溶液を 2-3-1. と同様に多層シリカゲル及びアルミナカラムで精製後、溶媒を留去し、シリンジスパイク 100  $\mu$ 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  
ンティフィック） 内径 0.25 mm×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 µL

昇温条件：100°C（1 分保持）-20°C/分-180°C-2  
°C/分-260°C-5°C/分- 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 µA

加速電圧：～10.0 kV

分解能：10,000 以上

モニターイオン：

一塩化ビフェニル モノクロロビフェニル(MoCBs)

定量用イオン： $m/z$  188.0393, 確認イオン： $m/z$  190.0364

二塩化ビフェニル ジクロロビフェニル(DiCBs)

定量用イオン： $m/z$  222.0003, 確認イオン： $m/z$ -223.9974

三塩化ビフェニル トリクロロビフェニル(TrCBs)

定量用イオン： $m/z$  255.9613, 確認イオン： $m/z$  257.9587

四塩化ビフェニル テトラクロロビフェニル(TeCBs)

定量用イオン： $m/z$  289.9224, 確認イオン： $m/z$  291.9195

五塩化ビフェニル ペンタクロロビフェニル(PeCBs)

定量用イオン： $m/z$  323.8834, 確認イオン： $m/z$  325.8805

六塩化ビフェニル ヘキサクロロビフェニル(HxCBs)

定量用イオン： $m/z$  359.8415, 確認イオン： $m/z$  361.8386

七塩化ビフェニル ヘプタクロロビフェニル(HpCBs)

定量用イオン： $m/z$  393.8025, 確認イオン： $m/z$  395.7996

八塩化ビフェニル オクタクロロビフェニル(OcCBs)

定量用イオン： $m/z$  427.7636, 確認イオン： $m/z$  429.7606

九塩化ビフェニル ノナクロロビフェニル(NoCBs)

定量用イオン： $m/z$  461.7246, 確認イオン： $m/z$  463.7216

十塩化ビフェニル デカクロロビフェニル(DeCB)

定量用イオン： $m/z$  497.6826, 確認イオン： $m/z$  499.6797

<sup>13</sup>C<sub>12</sub>標識 MoCBs

定量用イオン： $m/z$  200.0795, 確認イオン： $m/z$  202.0766

<sup>13</sup>C<sub>12</sub>標識 DiCBs

定量用イオン： $m/z$  234.0406, 確認イオン： $m/z$  236.0376

<sup>13</sup>C<sub>12</sub>標識 TrCBs

定量用イオン： $m/z$  268.0016, 確認イオン： $m/z$  269.9986

<sup>13</sup>C<sub>12</sub>標識 TeCBs

定量用イオン： $m/z$  301.9626, 確認イオン： $m/z$  303.9597

<sup>13</sup>C<sub>12</sub>標識 PeCBs

定量用イオン： $m/z$  335.9237, 確認イオン： $m/z$  337.9207

<sup>13</sup>C<sub>12</sub>標識 HxCBs

定量用イオン： $m/z$  371.8817, 確認イオン： $m/z$  373.8788

<sup>13</sup>C<sub>12</sub>標識 HpCBs

定量用イオン： $m/z$  405.8428, 確認イオン： $m/z$  407.8398

<sup>13</sup>C<sub>12</sub>標識 OcCBs

定量用イオン： $m/z$  439.8038, 確認イオン： $m/z$  441.8008

<sup>13</sup>C<sub>12</sub>標識 NoCBs

定量用イオン： $m/z$  473.7648, 確認イオン： $m/z$  475.7619

<sup>13</sup>C<sub>12</sub>標識 DeCB

定量用イオン： $m/z$  509.7229, 確認イオン： $m/z$  511.7199

## 2-5. 検量線の作成

相対感度係数法により検量線を作成した。検量線作成用標準液（6 点）に対して 3 回測定を実施し、計 18 点の測定データを得た。各測定データについて、各分析対象物質とそれに対応するクリーンアップスパイクとの相対感度係数 (RRF)、及びクリーンアップスパイクとそれに対応するシリンジスパイクの相対感度係数 (RRF<sub>SS</sub>) 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<sub>SS</sub> 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<sub>ss</sub> を求めた。これらの値が、検量線作成時の RRF 及び RRF<sub>ss</sub> 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<sub>ss</sub> 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。

6PCBs は PCB 28, 52, 101, 138, 153, 180 の合計値とした。なお、PCB 52 は PCB 69 と GC カラムでのピーク分離が不十分であった。PCB 69 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ことから、本研究では PCB 52 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。2021 年度に作製した TD 試料 (10 群及び 11 群) については、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、10 群と 11 群については多くの PCBs 異性体が LOD 以上となる。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。実際に今年度の 10 群と 11 群からの PCBs 摂取量についても、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全国平均値を推定 (ND=1/2LOD) しても、ND=0 として計算した全国平均値と 1%未満の差しか生じなかった。

一方、10 群と 11 群以外の TD 試料については、LOD 未満となる PCBs 異性体が多くなることが予想された。食品群によっては、LOD 未満の濃度で含まれる PCBs 異性体を無視できない場合も考えられたため、2019 年度に作製した TD 試料については、ND=1/2LOD とした場合についても参考値として摂取量を推定した。

## C. 研究結果及び考察

### 1) PCBs 摂取量の推定 (2021 年度)

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 102~993 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 320 ng/person/day であった。また、11 群からの総 PCBs 摂取量は 6.6~32 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 16 ng/person/day であった。昨年度の 10 群からの総 PCBs 摂取量の全国平均値は 300

ng/person/day、11 群からの総 PCBs 摂取量の全国平均値は 21 ng/person/day であった<sup>2)</sup>。昨年度と比較すると、今年度の 10 群の総 PCBs 摂取量の全国平均値はやや高い値であったが、11 群の総 PCBs 摂取量はやや低い値であった。今年度は 10 群については地域 A、11 群については地域 B で総 PCBs 摂取量の最大値が推定され、昨年度の最大値と比較すると、それぞれ約 1.9 倍及び約 0.8 倍であった。

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 89% 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、30% 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 117～1014 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 336 ng/person/day であった。昨年度の総 PCBs 摂取量の全国平均値は 321 ng/person/day であり<sup>2)</sup>、今年度の総 PCBs 摂取量は昨年度と比較して大きな変化はなかった。現在、日本では PCBs に暫定 TDI (5 µg/kg bw/day) が示されている。本研究で推定された総 PCBs 摂取量の全国平均値は 336 ng/person/day であり、体重 (50 kg と仮定) あたりでは 6.7 ng/kg bw/day であった。この値は暫定 TDI の僅か 0.1% 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)<sup>3)</sup> 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 34% 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<sup>4)</sup> 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留意が必要である。

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。2020 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」<sup>2)</sup> 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、調査開始以来、4 番目に低い値であった。調査開始時の総 PCBs 摂取量と比較すると、本年度の総 PCBs 摂取量は 1/10 程度であった。

## 2) NDL-PCBs 摂取量の推定 (2021 年度)

各地域の TD 試料の分析結果より推定した NDL-PCBs 摂取量を表 5 に示した。また、NDL-PCBs 摂取量の指標異性体として欧州等

で使用されている 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 94~885 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 292 ng/person/day であった。11 群からの NDL-PCBs 摂取量は 6.0~29 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 15 ng/person/day であった。また、10 群と 11 群からの摂取量を合計した NDL-PCBs 摂取量は、106~906 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 307 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 336 ng/person/day であることから、NDL-PCBs は総 PCBs 摂取量の 91%を占めていた。この傾向は昨年度の調査結果<sup>2)</sup>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 32~361 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 108 ng/person/day であった。11 群からの摂取量は 2.4~12 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 5.4 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、37~366 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 113 ng/person/day であった。

EFSA では、欧州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、NDL-PCBs に対する割合は 10 群で 34~41%、11 群で 22~47%であり、昨年度の調査結果<sup>2)</sup>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 2020 年度の PCBs 摂取量は 6.8 ng/kg bw/day と報告<sup>5)</sup>されており、本調査結果とほぼ同じ値であった。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<sup>6~10)</sup>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、2.3 ng/kg bw/day であり、諸外国で報告されている 6PCBs 摂取量<sup>11~16)</sup>の範囲内であった。

### 4) 食品全体からの PCBs 摂取量に占める 10 群と 11 群の摂取量割合の調査 (2019 年度)

2019 年度に作製した TD 試料を用いて、食品全体 (飲料水を除く) からの PCBs 摂取量において 10 群と 11 群が主要な摂取源であるかを検証した。各食品群の分析結果から推定した PCBs 摂取量 (ND=0 及び ND=1/2LOD) を、表 8 及び表 9 に示した。1~9 群、12 群、及び 13 群については、全地域のコンポジット試料の分析結果から推定した PCBs 摂取量を示した。10 群と 11 群については、令和元年度厚生労働行政推進調査事業費補助金研究報告書<sup>17)</sup>より全国平均値を引用した。各食品群の総 PCBs 摂取量、NDL-PCBs 摂取量、及び 6PCBs 摂取量の ND=1/2LOD の値は、ND=0 の値と比較すると 1.0~3.8 倍となった。倍率が最大となった食品群は 9 群であった。9 群は ND となった PCBs 異性体が多く、かつ食品摂取量も多いことから、ND=0 と ND=1/2LOD で推定した摂取量に大きな違いが生じたと考えられた。一方、その他の食品群では倍率は 1.4 倍以下であり、1~13 群を合計した総 PCBs 摂取量、NDL-PCBs 摂取量、及び 6PCBs 摂取量に関しては ND=0 と ND=1/2LOD の推定値に殆ど差がなかった。そ

のため、以降については ND=0 で推定した摂取量について議論した。

表 10 には、食品全体からの PCBs 摂取量に占める各食品群の割合を示した。総 PCBs 摂取量、NDL-PCBs 摂取量、及び 6PCBs 摂取量のいずれにおいても 10 群の占める割合が最も高く、次いで 11 群の占める割合が高かった。総 PCBs 摂取量、NDL-PCBs 摂取量、及び 6PCBs 摂取量における 10 群と 11 群の合計値が占める割合は、それぞれ 88.0%、87.7%、及び 92.8%であった。これら 2 つの食品群からの摂取量で食品全体からの PCBs 摂取量をほぼ説明できることが確認できた。

#### 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 336 ng/person/day と推定された。体重あたりでは 6.7 ng/kg bw/day と推定され、この値は日本の暫定 TDI の僅か 0.1%程度であった。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 34%となった。NDL-PCBs の一日摂取量の全国平均値は 307 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 113 ng/person/day と推定された。

また、食品全体からの 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)であり、これら 2 つの食品群からの摂取量で食品全体からの PCBs 摂取量をほぼ説明できることが確認できた。

#### 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) 令和 2 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課, 令和 2 年度 食事由来の化学物質等摂取量推計調査, [https://www.fukushihoken.metro.tokyo.lg.jp/kankyo/kankyo\\_eisei/kagakutaisaku/shokuhin/kekka.files/2shokuji.pdf](https://www.fukushihoken.metro.tokyo.lg.jp/kankyo/kankyo_eisei/kagakutaisaku/shokuhin/kekka.files/2shokuji.pdf)
- 6) Voorspoels S, Covaci A, Neels H. : Dietary PCB intake in Belgium, Environ. Toxicol. Pharmacol. 25, 179-182 (2008)
- 7) Schecter A, Colacino J, Haffner D, Patel K, Opel M, Pöpke O, Birnbaum L. : Perfluorinated compounds, polychlorinated biphenyls, and organochlorine pesticide contamination in composite food samples from Dallas, Texas, USA, Environ. Health Perspect. 118, 796-802 (2010)
- 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)
- 15) Chung SWC, Lau JSY, Chu JYK.: Dietary exposure to non-dioxin-like PCBs of the Hong Kong adult population from a total diet study, *Food Addit. Contam. Part A*. 35, 519–528 (2018)
- 16) Food Standards Australia New Zealand. (2020) The 26<sup>th</sup> Australian total diet study.

<https://www.foodstandards.gov.au/publications/Documents/26th%20ATDS%20report.pdf>

- 17) 令和元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)

## F.研究業績

1. 論文発表  
なし
2. 学会発表  
なし

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	0.0015 (0.0060)	0.0050 (0.0020)	HxCBs #128	0.0002 (0.0010)	0.0008 (0.0032)
#2	0.0010 (0.0040)	0.0034 (0.0013)	#129	0.0002 (0.0010)	0.0008 (0.0032)
#3	0.0011 (0.0046)	0.0038 (0.0015)	#130	0.0002 (0.0010)	0.0008 (0.0032)
DiCBs #4	0.00044 (0.00175)	0.00146 (0.0058)	#131	0.0002 (0.0010)	0.0008 (0.0032)
#6	0.0006 (0.0024)	0.0020 (0.0008)	#133	0.0002 (0.0010)	0.0008 (0.0032)
#7	0.0002 (0.0007)	0.0006 (0.0002)	#134	0.0002 (0.0010)	0.0008 (0.0032)
#8/#5	0.0048 (0.00191)	0.0160 (0.0064)	#135	0.0002 (0.0010)	0.0008 (0.0032)
#9	0.0002 (0.0007)	0.0006 (0.0002)	#136	0.0002 (0.0010)	0.0008 (0.0032)
#10	0.0002 (0.0006)	0.0005 (0.0002)	#137	0.0002 (0.0010)	0.0008 (0.0032)
#11	0.00103 (0.00410)	0.00342 (0.0137)	#138	0.0011 (0.0046)	0.0038 (0.0153)
#13/#12	0.0002 (0.0007)	0.0006 (0.0002)	#140	0.0002 (0.0010)	0.0008 (0.0032)
#14	0.0002 (0.0007)	0.0006 (0.0002)	#141	0.0002 (0.0010)	0.0008 (0.0032)
#15	0.0014 (0.0058)	0.0048 (0.0019)	#142	0.0002 (0.0010)	0.0008 (0.0032)
TrCBs #16	0.0010 (0.0041)	0.0034 (0.0014)	#143	0.0002 (0.0010)	0.0008 (0.0032)
#17	0.0016 (0.0063)	0.0052 (0.0021)	#144	0.0002 (0.0010)	0.0008 (0.0032)
#18	0.0052 (0.00210)	0.0175 (0.0070)	#145	0.0002 (0.0010)	0.0008 (0.0032)
#19	0.0003 (0.0013)	0.0011 (0.0004)	#146/#132	0.0002 (0.0010)	0.0008 (0.0032)
#20/#33	0.0033 (0.00133)	0.0111 (0.0044)	#147	0.0002 (0.0010)	0.0008 (0.0032)
#21	0.0003 (0.0013)	0.0011 (0.0004)	#148	0.0002 (0.0010)	0.0008 (0.0032)
#22	0.0015 (0.0061)	0.0050 (0.0020)	#149/#139	0.0002 (0.0010)	0.0008 (0.0032)
#23	0.0003 (0.0013)	0.0011 (0.0004)	#150	0.0002 (0.0010)	0.0008 (0.0032)
#24	0.0003 (0.0013)	0.0011 (0.0004)	#151	0.0002 (0.0010)	0.0008 (0.0032)
#25	0.0003 (0.0013)	0.0011 (0.0004)	#152	0.0002 (0.0010)	0.0008 (0.0032)
#26	0.0007 (0.0029)	0.0024 (0.0010)	#153	0.0007 (0.0029)	0.0025 (0.0098)
#27	0.0003 (0.0013)	0.0011 (0.0004)	#154	0.0002 (0.0010)	0.0008 (0.0032)
#28	0.0039 (0.00154)	0.0128 (0.0051)	#155	0.0001 (0.0006)	0.0005 (0.0020)
#29	0.0003 (0.0013)	0.0011 (0.0004)	#156	0.0002 (0.0009)	0.0007 (0.0029)
#30	0.0003 (0.0013)	0.0011 (0.0004)	#157	0.0002 (0.0010)	0.0008 (0.0032)
#31	0.0031 (0.00125)	0.0105 (0.0042)	#158	0.0002 (0.0010)	0.0008 (0.0032)
#32	0.0014 (0.0056)	0.0047 (0.0019)	#159	0.0002 (0.0010)	0.0008 (0.0032)
#34	0.0003 (0.0013)	0.0011 (0.0004)	#160	0.0002 (0.0010)	0.0008 (0.0032)
#35	0.0004 (0.0014)	0.0012 (0.0005)	#161	0.0002 (0.0010)	0.0008 (0.0032)
#36	0.0003 (0.0013)	0.0011 (0.0004)	#162	0.0002 (0.0010)	0.0008 (0.0032)
#37	0.0015 (0.0061)	0.0051 (0.0020)	#164/#163	0.0002 (0.0010)	0.0008 (0.0032)
#38	0.0004 (0.0015)	0.0013 (0.0005)	#165	0.0002 (0.0010)	0.0008 (0.0032)
TeCBs #39	0.0003 (0.0013)	0.0011 (0.0004)	#166	0.0002 (0.0010)	0.0008 (0.0032)
#40	0.0002 (0.0007)	0.0006 (0.0002)	#167	0.0002 (0.0009)	0.0007 (0.0030)
#41	0.0002 (0.0007)	0.0006 (0.0002)	#168	0.0002 (0.0010)	0.0008 (0.0032)
#42	0.0002 (0.0007)	0.0006 (0.0002)	#169	0.0003 (0.0012)	0.0010 (0.0040)
#43/#49	0.0012 (0.0048)	0.0040 (0.016)	HpCBs #170	0.0006 (0.0023)	0.0019 (0.0076)
#44	0.0011 (0.0046)	0.0038 (0.015)	#171	0.0005 (0.0019)	0.0016 (0.0065)
#45	0.0002 (0.0007)	0.0006 (0.0002)	#172	0.0005 (0.0019)	0.0016 (0.0065)
#46	0.0002 (0.0007)	0.0006 (0.0002)	#173	0.0005 (0.0019)	0.0016 (0.0065)
#50	0.0002 (0.0007)	0.0006 (0.0002)	#174	0.0005 (0.0019)	0.0016 (0.0065)
#51	0.0002 (0.0007)	0.0006 (0.0002)	#175	0.0005 (0.0019)	0.0016 (0.0065)
#52/#69	0.0026 (0.00104)	0.0086 (0.0035)	#176	0.0005 (0.0019)	0.0016 (0.0065)
#53	0.0002 (0.0007)	0.0006 (0.0002)	#177	0.0005 (0.0019)	0.0016 (0.0065)
#54	0.0001 (0.0005)	0.0004 (0.0002)	#178	0.0005 (0.0019)	0.0016 (0.0065)
#55	0.0002 (0.0007)	0.0006 (0.0002)	#179	0.0005 (0.0019)	0.0016 (0.0065)
#56	0.0007 (0.0029)	0.0024 (0.0010)	#180	0.0005 (0.0021)	0.0018 (0.0071)
#57	0.0001 (0.0005)	0.0004 (0.0002)	#181	0.0005 (0.0019)	0.0016 (0.0065)
#59	0.0002 (0.0007)	0.0006 (0.0002)	#182/#187	0.0005 (0.0021)	0.0017 (0.0070)
#60	0.0005 (0.0018)	0.0015 (0.0006)	#183	0.0005 (0.0019)	0.0016 (0.0065)
#61	0.0002 (0.0007)	0.0006 (0.0002)	#184	0.0005 (0.0019)	0.0016 (0.0065)
#62	0.0002 (0.0007)	0.0006 (0.0002)	#185	0.0005 (0.0019)	0.0016 (0.0065)
#63/#58	0.0002 (0.0007)	0.0006 (0.0002)	#186	0.0005 (0.0019)	0.0016 (0.0065)
#64	0.0006 (0.00025)	0.0021 (0.0008)	#188	0.0004 (0.0015)	0.0012 (0.0050)
#65/#75/#48/#47	0.0027 (0.00108)	0.0090 (0.0036)	#189	0.0004 (0.0018)	0.0015 (0.0058)
#67	0.0002 (0.0007)	0.0006 (0.0002)	#190	0.0005 (0.0019)	0.0016 (0.0065)
#68	0.0002 (0.0007)	0.0006 (0.0002)	#191	0.0005 (0.0019)	0.0016 (0.0065)
#70	0.0009 (0.00036)	0.0030 (0.0012)	#192	0.0005 (0.0019)	0.0016 (0.0065)
#72/#71	0.0002 (0.0007)	0.0006 (0.0002)	#193	0.0005 (0.0019)	0.0016 (0.0065)
#73	0.0002 (0.0007)	0.0006 (0.0002)	OcCBs #194	0.0004 (0.0015)	0.0012 (0.0050)
#74	0.0007 (0.0027)	0.0023 (0.0009)	#195	0.0002 (0.0009)	0.0008 (0.0031)
#76	0.0002 (0.0007)	0.0006 (0.0002)	#196	0.0002 (0.0007)	0.0005 (0.0022)
#77	0.0004 (0.0016)	0.0013 (0.0005)	#197	0.0002 (0.0007)	0.0005 (0.0022)
#78	0.0002 (0.0008)	0.0006 (0.0003)	#198	0.0002 (0.0007)	0.0005 (0.0022)
#79	0.0002 (0.0008)	0.0007 (0.0003)	#199	0.0002 (0.0006)	0.0005 (0.0021)
#80/#66	0.0018 (0.0071)	0.0059 (0.0024)	#200	0.0002 (0.0007)	0.0005 (0.0022)
#81	0.0002 (0.0009)	0.0007 (0.0003)	#201	0.0002 (0.0007)	0.0005 (0.0022)
#82	0.0002 (0.0007)	0.0006 (0.0002)	#202	0.0001 (0.0004)	0.0003 (0.0013)
#83	0.0002 (0.0007)	0.0006 (0.0002)	#203	0.0001 (0.0006)	0.0005 (0.0019)
PeCBs #84/#92	0.0002 (0.0007)	0.0006 (0.0002)	#204	0.0002 (0.0007)	0.0005 (0.0022)
#85	0.0002 (0.0007)	0.0006 (0.0002)	#205	0.0001 (0.0006)	0.0005 (0.0019)
#86/#117/#97	0.0002 (0.0007)	0.0006 (0.0002)	NoCBs #206	0.0002 (0.0009)	0.0008 (0.0032)
#87/#115	0.0004 (0.0015)	0.0012 (0.0005)	#207	0.0002 (0.0009)	0.0007 (0.0029)
#88	0.0002 (0.0007)	0.0006 (0.0002)	#208	0.0002 (0.0008)	0.0007 (0.0026)
#89	0.0002 (0.0007)	0.0006 (0.0002)	DeCB #209	0.0005 (0.0019)	0.0016 (0.0062)
#90	0.0002 (0.0007)	0.0006 (0.0002)			
#91	0.0002 (0.0007)	0.0006 (0.0002)			
#94	0.0002 (0.0007)	0.0006 (0.0002)			
#96	0.0002 (0.0007)	0.0006 (0.0002)			
#98/#95	0.0004 (0.0016)	0.0013 (0.0005)			
#99	0.0004 (0.0016)	0.0014 (0.0005)			
#100	0.0002 (0.0007)	0.0006 (0.0002)			
#101	0.0003 (0.0013)	0.0010 (0.0004)			
#102/#93	0.0002 (0.0007)	0.0006 (0.0002)			
#103	0.0002 (0.0007)	0.0006 (0.0002)			
#104	0.0002 (0.0010)	0.0008 (0.0003)			
#105	0.0008 (0.00033)	0.0028 (0.0011)			
#106	0.0002 (0.0007)	0.0006 (0.0002)			
#108	0.0002 (0.0007)	0.0006 (0.0002)			
#109/#107	0.0002 (0.0007)	0.0006 (0.0002)			
#110/#120	0.0010 (0.0040)	0.0034 (0.0013)			
#111	0.0002 (0.0007)	0.0006 (0.0002)			
#112/#119	0.0002 (0.0007)	0.0006 (0.0002)			
#113	0.0002 (0.0007)	0.0006 (0.0002)			
#114	0.0004 (0.0017)	0.0014 (0.0006)			
#118	0.0013 (0.0053)	0.0044 (0.018)			
#121	0.0002 (0.0007)	0.0006 (0.0002)			
#122	0.0002 (0.0007)	0.0006 (0.0002)			
#123	0.0004 (0.0014)	0.0012 (0.0005)			
#124	0.0002 (0.0007)	0.0006 (0.0002)			
#125/#116	0.0002 (0.0007)	0.0006 (0.0002)			
#126	0.0004 (0.0018)	0.0015 (0.0006)			
#127	0.0002 (0.0007)	0.0006 (0.0002)			

\* ( )内は4群のLODs及びLOQs

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	0.13	0.19	0.049	0	0.074	0.24	0.093	0.23	0.29	0.12	0.14
DiCBs	2.9	2.0	0.70	0.098	1.0	5.4	1.5	3.3	1.2	1.4	1.9
TrCBs	37	9.4	3.7	5.2	4.8	30	9.5	15	8.6	8.8	13
TeCBs	162	35	17	22	15	74	41	58	31	26	48
PeCBs	343	67	39	40	29	108	90	112	62	52	94
HxCBs	359	84	50	52	37	136	125	162	75	96	118
HpCBs	77	29	15	21	13	47	45	62	27	44	38
OcCBs	9.6	4.1	2.3	3.0	1.9	6.6	7.3	9.5	4.2	6.7	5.5
NoCBs	1.1	0.58	0.45	0.45	0.32	0.95	2.2	1.1	0.66	0.68	0.85
DeCB	0.45	0.28	0.30	0.26	0.16	0.46	0.97	0.51	0.43	0.37	0.42
総PCBs	993	232	128	145	102	410	322	424	209	236	320

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	0.059	0.15	0.015	0.036	0.029	0.20	0.013	0.11	0.22	0.063	0.090
DiCBs	1.4	0.44	0.20	0.72	0.39	1.2	0.25	0.30	0.29	0.77	0.60
TrCBs	8.1	0.52	0.099	0.51	0.21	5.6	0.23	0.15	0.35	0.14	1.6
TeCBs	6.5	2.9	0.71	1.1	1.2	6.1	0.79	0.75	1.0	0.82	2.2
PeCBs	2.3	7.5	2.1	3.0	3.2	3.6	1.4	1.7	1.9	3.4	3.0
HxCBs	1.9	14	4.5	5.8	5.9	4.4	2.5	3.2	3.5	10	5.6
HpCBs	0.64	5.6	1.6	2.1	2.9	1.8	1.1	1.4	1.2	4.9	2.3
OcCBs	0.15	0.81	0.35	0.34	0.54	0.27	0.25	0.27	0.27	0.82	0.41
NoCBs	0.025	0.14	0.078	0.056	0.082	0.037	0.041	0.052	0.058	0.17	0.074
DeCB	0.013	0.076	0.037	0.033	0.044	0.012	0.016	0.042	0.023	0.10	0.040
総PCBs	21	32	9.7	14	14	23	6.6	8.0	8.9	21	16

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	0.19	0.34	0.064	0.036	0.10	0.45	0.11	0.34	0.51	0.18	0.23
DiCBs	4.3	2.4	0.90	0.82	1.4	6.5	1.7	3.6	1.5	2.2	2.5
TrCBs	45	9.9	3.8	5.7	5.0	36	9.8	15	8.9	9.0	15
TeCBs	169	38	17	23	17	80	42	58	32	27	50
PeCBs	346	74	41	43	33	112	91	114	64	55	97
HxCBs	361	98	54	58	43	141	127	165	78	106	123
HpCBs	77	35	17	24	16	49	46	64	28	49	40
OcCBs	9.7	4.9	2.6	3.3	2.4	6.9	7.5	9.7	4.5	7.6	5.9
NoCBs	1.1	0.73	0.53	0.51	0.40	0.99	2.2	1.2	0.72	0.85	0.92
DeCB	0.46	0.36	0.34	0.29	0.21	0.47	0.98	0.55	0.45	0.47	0.46
総PCBs	1014	264	138	159	117	433	329	432	218	258	336



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	361	80	42	48	32	129	106	136	65	79	108
	NDL-PCBs	885	213	116	133	94	381	295	393	191	222	292
11群	6PCBs	4.5	12	4.0	5.3	4.9	5.8	2.4	3.0	3.2	8.9	5.4
	NDL-PCBs	20	29	8.6	12	13	22	6.0	7.3	7.8	19	15
10群と11群の合計	6PCBs	366	91	46	53	37	134	109	139	68	87	113
	NDL-PCBs	906	242	124	146	106	403	301	400	199	241	307

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)	2021年度(令和3年度)	1歳以上	6.7 (336)	<LOD=0	209異性体	本研究
日本(東京都)	2020年度(令和2年度)	1歳以上	6.8 (340)	<LOQ=0	- **	5)
ベルギー	2005年	-	- (404) - (535)	<LOQ=0 <LOQ=LOQ	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)

\*食品試料を集めた時期

\*\*未掲載

表7 日本と主な諸外国における食品からの6PCBs摂取量

国	調査時期*	対象年齢	6指標異性体の平均摂取量 ng/kg bw/day	検出(定量)下限値 の取り扱い	参考文献
日本	2021年度(令和3年度)	1歳以上	2.3	<LOD=0	本研究
イタリア	1994-1996年	0.5-6歳	24.6	<LOQ=LOQ	11)
		7-12歳	16.1		
		13-94歳	10.9		
フランス	2005年、2007年	3-17歳	3.77	<LOD (LOQ)=1/2LOD (LOQ)	12)
		18-79歳	2.71		
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	3.37	- **	14)
		19-65歳女性	3.19		
		19-65歳男性	2.64		
香港	2010-2011年	20-84歳	0.68	<LOD=0	15)
			1.38	<LOD=LOD	
オーストラリア	2017-2018年	2歳以上	0.1	<LOR=0	16)
			8	<LOR=1/2LOR	
			16	<LOR=LOR	

\*食品試料を集めた時期

\*\*未掲載

表 8 各食品群からの PCBs 摂取量 (2019 年度作製試料、ND=0)

PCBs	食品群													合計
	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	
同族体														
MoCBs	0.36	0.27	0.088	0.14	0.11	0.083	0.12	0.28	0.50	0.21	0.15	0.17	0.18	2.7
DiCBs	1.7	1.9	0.46	0.24	0.49	0.26	0.49	1.8	0.047	3.2	0.79	0.26	0.53	12
TrCBs	2.1	2.3	0.77	0.21	0.58	0.063	0.60	1.8	0.039	29	3.4	0.12	0.25	41
TeCBs	6.0	2.9	1.1	0.50	0.84	0.38	0.74	2.2	0.17	78	3.9	0.78	0.44	98
PeCBs	3.7	2.5	0.77	0.54	0.76	0.31	0.85	2.4	0.45	106	5.6	0.60	0.48	125
HxCBs	0.69	1.7	0.73	0.30	0.35	0.12	0.50	1.4	0.067	127	8.4	0.60	0.41	142
HpCBs	0	0.46	0.26	0.074	0.037	0.024	0.088	0.24	0	43	3.4	0.20	0.15	48
OcCBs	0	0.061	0.039	0.011	0.0024	0	0.0051	0.0046	0	6.7	0.65	0.039	0.027	7.6
NoCBs	0	0	0.0051	0.0020	0	0	0	0	0	0.93	0.094	0	0.0040	1.0
DeCB	0	0	0.0039	0.0026	0	0	0	0	0	0.46	0.045	0	0.0067	0.52
総PCBs	14	12	4.3	2.0	3.2	1.2	3.4	10	1.3	394	26	2.8	2.5	478
6PCBs	2.3	2.2	0.93	0.37	0.52	0.14	0.56	1.7	0.12	119	8.2	0.68	0.46	137
NDL-PCBs	14	12	4.0	1.9	3.0	1.2	3.2	9.7	1.3	365	24	2.5	2.4	444

\*令和元年度厚生労働行政推進調査事業費補助金研究報告書<sup>17)</sup>より引用

表 9 各食品群からの PCBs 摂取量 (2019 年度作製試料、ND=1/2LOD)

PCBs	食品群													合計
	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	
同族体														
MoCBs	0.36	0.27	0.088	0.14	0.11	0.083	0.12	0.28	0.53	0.21	0.15	0.17	0.18	2.7
DiCBs	1.9	2.0	0.47	0.26	0.50	0.32	0.52	1.9	0.76	3.2	0.85	0.33	0.57	14
TrCBs	2.3	2.4	0.77	0.24	0.59	0.18	0.62	1.8	0.92	29	3.5	0.25	0.30	42
TeCBs	6.0	2.9	1.1	0.50	0.84	0.39	0.75	2.2	0.67	78	3.9	0.80	0.45	98
PeCBs	3.8	2.5	0.77	0.55	0.77	0.34	0.87	2.4	0.71	106	5.6	0.63	0.50	125
HxCBs	0.84	1.7	0.74	0.31	0.37	0.16	0.52	1.5	0.40	127	8.5	0.64	0.44	143
HpCBs	0.24	0.54	0.26	0.089	0.064	0.076	0.13	0.31	0.36	43	3.4	0.26	0.18	49
OcCBs	0.046	0.079	0.040	0.013	0.0085	0.011	0.013	0.023	0.068	6.7	0.65	0.047	0.032	7.8
NoCBs	0.014	0.0074	0.0051	0.0029	0.0020	0.0033	0.0030	0.0060	0.021	0.93	0.095	0.0042	0.0059	1.1
DeCB	0.010	0.0053	0.0039	0.0026	0.0015	0.0024	0.0021	0.0043	0.015	0.46	0.045	0.0030	0.0067	0.56
総PCBs	15	12	4.3	2.1	3.3	1.6	3.5	10	4.5	394	27	3.1	2.7	484
6PCBs	2.6	2.5	1.1	0.46	0.61	0.19	0.68	1.9	0.45	119	8.2	0.87	0.53	139
NDL-PCBs	15	12	4.1	2.0	3.1	1.5	3.3	9.9	4.3	365	24	2.9	2.5	450

\*令和元年度厚生労働行政推進調査事業費補助金研究報告書<sup>17)</sup>より引用

表 10 食品全体からの PCBs 摂取量 (ND=0) に対する各食品群の占める割合 (%)

	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
6PCBs	1.6	1.6	0.7	0.3	0.4	0.1	0.4	1.2	0.1	86.8	6.0	0.5	0.3
NDL-PCBs	3.1	2.6	0.9	0.4	0.7	0.3	0.7	2.2	0.3	82.3	5.4	0.6	0.5
総PCBs	3.0	2.5	0.9	0.4	0.7	0.3	0.7	2.1	0.3	82.5	5.5	0.6	0.5

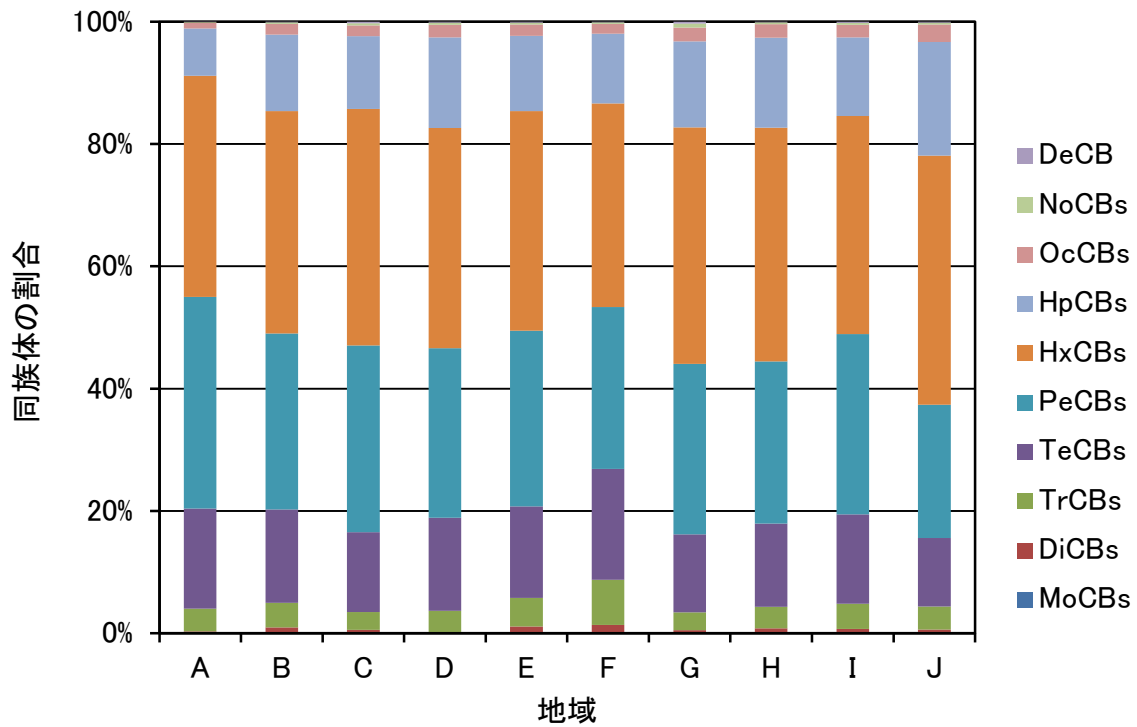


図1 10群からのPCBs摂取量におけるPCBs同族体の割合

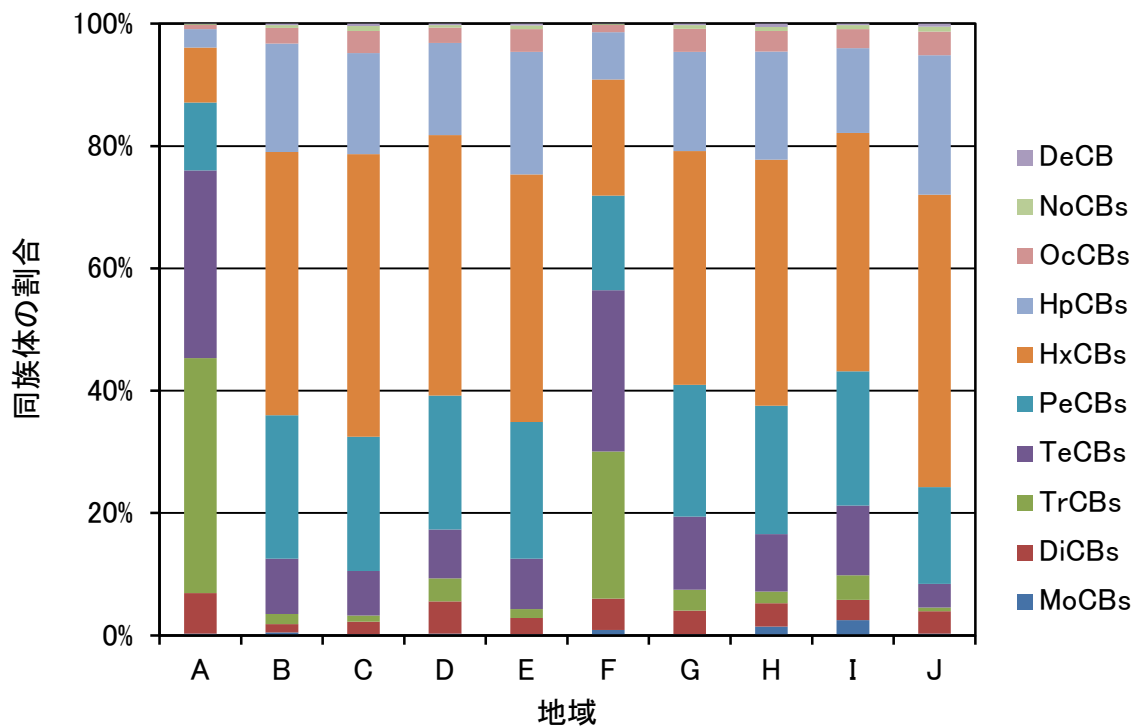


図2 11群からのPCBs摂取量におけるPCBs同族体の割合

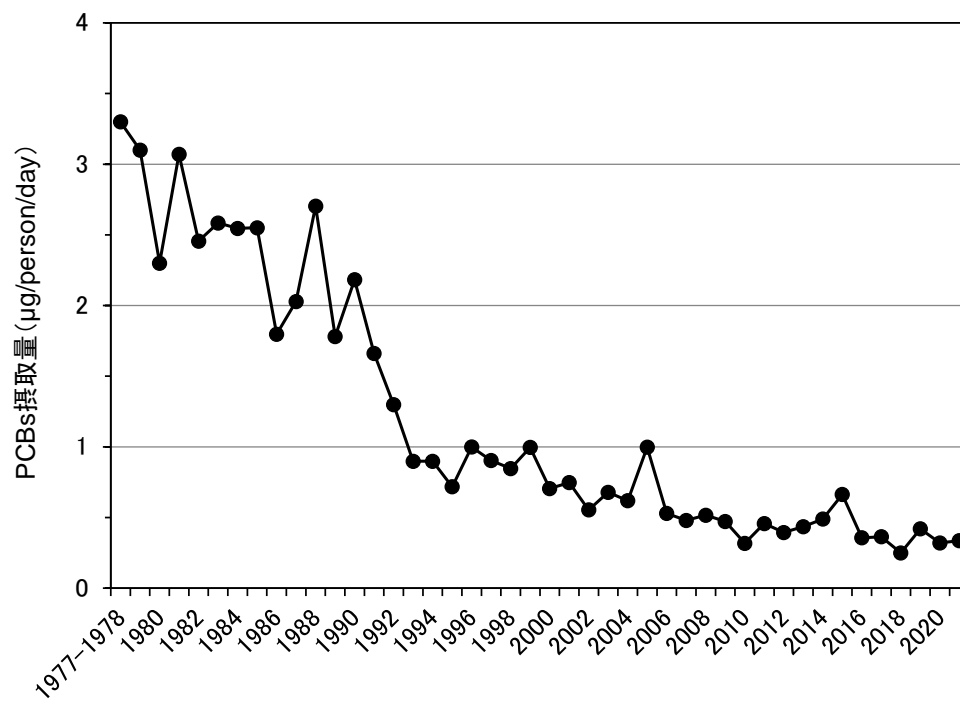


図3 総 PCBs 摂取量の経年変化(1977~2021)

## Ⅱ. 分担研究報告書

(1) 食品の塩素化ダイオキシン類、PCB、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

(1-4) 魚介類を主菜とする一食分試料(弁当類)及び魚油を原料とする健康食品からの PCBs の摂取量調査

研究分担者 堤 智昭

# 令和3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のための研究

## 分担研究報告書

(1) 食品の塩素化ダイオキシン類、PCB、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

(1-4) 魚介類を主菜とする一食分試料(弁当類)及び魚油を原料とする健康食品からのポリ塩化ビフェニルの摂取量調査

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

国内で市販されている一食分試料(弁当類)及び魚油を原料とする健康食品からのポリ塩化ビフェニル(PCBs)摂取量の調査を目的とした。本年度は、1) 令和元年度に魚介類部分からのPCBs摂取量を調査した弁当類について、魚介類以外の食品からのPCBs摂取量の調査、2) 魚油を原料とする健康食品からのPCBs摂取量の調査、を実施した。

1)については、ウナギ、サケ、サバ、サンマ、及び白身魚フライを主菜とする弁当(計25試料)の内容物の内、魚介類以外の食品(以下、その他の部分)を均一化して分析試料とした。弁当一食あたりのその他の部分からの総PCBs摂取量は、平均値が17.5 ng/食、中央値が14.9 ng/食、範囲が5.8~61.4 ng/食であった。令和元年度に実施した同一の弁当の魚介類部分と合計した一食あたりの総PCBs摂取量は、平均値が341 ng/食、中央値が227 ng/食、範囲が16~1,827 ng/食であった。白身魚フライの弁当を除き、総PCBs摂取量に占めるその他の部分の割合は、魚介類部分と比較すると総じて低かった。一食あたりの総PCBs摂取量の最大値は、日本の暫定耐容一日摂取量(TDI)の0.73%程度であった。一方、参考としてより厳しいWHOのTDIと比較すると、サバを主菜とする弁当2試料からの総PCBs摂取量がWHOのTDIを超過(116%及び183%)していた。また、リスク評価のための情報が不足している非ダイオキシン様PCBs(NDL-PCBs)の摂取量は、総PCBs摂取量の9割程度を占めていた。

2)については、魚油(精製魚油や鮫肝油)を原料とする健康食品計37試料を分析し、各試料からのPCBsの一日摂取量を算出した。総PCBsの一日摂取量は平均値が3.9 ng/day、中央値が0.44 ng/day、範囲が0.039~51 ng/dayであった。一日摂取量の最大値は、日本の暫定TDIの約0.02%(WHO TDIの約5%)であった。また、NDL-PCBsの摂取量は、総PCBs摂取量の9割以上を占めていた。

### 研究協力者

国立医薬品食品衛生研究所

足立利華、前田朋美、高附 巧、鍋師裕美

福岡県保健環境研究所

飛石和大、佐藤 環、堀 就英

### A. 研究目的

人が暴露するポリ塩化ビフェニル(PCBs)の主

要な経路は食品摂取である。日本では特に魚介類からの摂取量が多いことが、マーケットバスケット方式のトータルダイエット(TD)試料による推定により明らかになっている。しかし、TD 試料による調査では国民健康・栄養調査の食品喫食量の平均に基づいた摂取量推定となっていることから、個人の嗜好を反映した摂取量の把握が困難である。近年、弁当などの調理済みの食品を食する「中食」と呼ばれる食事形態が増加している。しかし、これらの弁当からの PCBs 摂取量に関する情報は見当たらない。そこで本研究では、令和元年度より魚介類を主食材とした市販の弁当からの PCBs 摂取量の調査してき<sup>1, 2)</sup>。令和元年度に、ウナギ、サケ、サバ、サンマ、及び白身魚フライを各々主菜とする弁当(以下、ウナギ弁当、サケ弁当、サバ弁当、サンマ弁当、及び白身魚フライ弁当とする)を対象に調査したが、弁当の内容物の内、魚介類以外の食品(以下、その他の部分)からの PCBs 摂取量の調査は実施していなかった。また、近年では健康志向の高まりに伴い健康食品の利用が増加している。魚油を原料とする健康食品については、PCBs は脂溶性で生物濃縮性が高いことから、PCBs 摂取量が高くなることが懸念された。そこで本年度は、1) 令和元年度に魚介類部分からの PCBs 摂取量を調査した弁当類について、その他の部分からの PCBs 摂取量の調査、2)魚油を原料とする健康食品からの PCBs 摂取量の調査、を実施した。

なお、本研究では全ての PCBs 異性体(209 異性体)の合計となる総 PCBs の他、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非ダイオキシン様 PCBs (NDL-PCBs)、及び NDL-PCBs の指標異性体として欧州等<sup>3)</sup>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調査した。

## B. 研究方法

### 1. 試料

弁当試料については、2019年9-10月に国内のスーパーマーケット及び商業施設で魚介類を主菜とする弁当類(5種25試料)を購入して調査試料とした。各弁当について3~4個を購入し、弁当の内容物を魚介類部分とその他の部分に分け、各々をフードプロセッサーやハンドミキサーを使用して均一化した。試料の詳細を表1に示した。試料は-20℃の冷凍庫で保管し、分析時に解凍して使用した。本年度は、その他の部分を均一化した試料を分析した。

健康食品については、2021年7-9月に国内のドラッグストア及びインターネット(A~AAの27販売者等)で魚油を原料とする健康食品の計37試料(精製魚油32試料、鮫肝油5試料)を購入して調査試料とした。試料の詳細を表2に示した。

## 2. PCBs 分析

### 2-1. 試薬、試液及び器具

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(旧和光純薬工業株式会社、現富士フイルム和光純薬(株))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)、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。ジメチルスルホキシド(ダイオキシン類分析用)、ノナン(ダイオキシン類分析用)、塩化ナトリウム(特級)は富士フイルム和光純薬(株)より購入した。水は、ミリポア Milli-Q Integral 10 環境分

析タイプから採取した超純水をヘキサンで洗浄し使用した。

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、トレイジャンサイエンティフィック社製の HT8-PCB を使用した。

## 2-2. 機器

GC: 7890B GC System (Agilent Technologies)

MS: MStation JMS-800D UltraFOCUS (日本電子(株)社製)

## 2-3. 試験溶液の調製

### 2-3-1. 弁当試料(その他の部分)

均一化した試料 20 g を 500 mL ナス型フラスコに量りとり、クリーンアップスパイク 40  $\mu$ L を加えた後、アセトン 100 mL、ヘキサン 100 mL を加え、栓をして 1 時間振とうした。この溶液をガラスフィルタ(予めヘキサン洗浄水及びアセトンで洗浄)をつけた桐山ロートを用い減圧濾過をした。残渣にアセトン 30 mL、ヘキサン 30 mL を加え、再度、15 分間振とうした。この溶液を同様に桐山ロートで減圧濾過をして、先の濾過液と合わせた。濾過液を分液ロートに移した後、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。有機層を無水硫酸ナトリウムで脱水後、ナス型フラスコに移した。溶媒を留去した後、1 mol/L 水酸化カリウムエタノール溶液を 100 mL 加え栓をして室温で 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漏斗に移した後、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。このヘキサン溶液を分液ロートに移し、ヘキサンで容器を数度洗い分液ロートに合わせ 15 mL とし、ヘキサン飽和ジメチルスルホキシド(DMSO) 40 mL を加え 10 分間振とう抽出した。静置後、DMSO 層を分取し、ヘキサン層に DMSO 40 mL を加え同様の操作を 2 回行った。DMSO 抽出液を合わせ水 120 mL、ヘキサン 60 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 60 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、水 50 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。ヘキサン層を無水硫酸ナトリウムで脱水後、溶媒を留去し約 2 mL のヘキサンに溶解した。多層シリカゲルをヘキサン 100 mL で洗浄した後、試験溶液を注入し、ヘキサン 50 mL で溶出した。溶出液は溶媒を留去し、約 2 mL のヘキサンに溶解した。ヘキサンで湿式充填したアルミナカラムに試験溶液を注入し、ヘキサン 100 mL で洗浄後、20% (v/v)ジクロロメタン含有ヘキサン 100 mL で溶出した。溶媒を留去し、シリンジスパイク 100  $\mu$ L を加え、GC/MS 試験溶液とした。

### 2-3-2. 健康食品

試料 5g(被包材含む)をビーカーに量りとり、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 1 時間、スターラーで攪拌した。クリーンアップスパイク 40  $\mu$ L を加え、15 時間攪拌した。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ロート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。この溶液を、2-3-1 で記述したように、多層シリカゲルカラム及びアルミナカラムで精製した。溶出液の溶媒を留去し、ヘキサン 15 mL に溶解後、2-3-1 で記述したように、ヘキサン飽和 DMSO で抽出後、ヘキサンに転溶した。ヘキサン層を水洗し、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。この溶液を、2-3-1 で記述したように、多層シリカゲルカラムで精製後、溶媒を留去し、シリンジスパイク 100  $\mu$ 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ティフィック) 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 $^{\circ}$ C

注入量:2.0  $\mu$ L

昇温条件:100 $^{\circ}$ C(1 分保持)-20 $^{\circ}$ C/分-180 $^{\circ}$ C-2 $^{\circ}$ C/分-260 $^{\circ}$ C-5 $^{\circ}$ C/分-300 $^{\circ}$ C(22 分保持)

キャリアーガス:ヘリウム(流速:1.0 mL/分)

MS 導入部温度:300 $^{\circ}$ C

イオン源温度:300 $^{\circ}$ C

イオン化法:EI ポジティブ

イオン化電圧:38 eV

イオン化電流:600  $\mu$ A

加速電圧:~10.0 kV

分解能:10,000 以上

モニターイオン:

一塩化ビフェニル モノクロロビフェニル(MoCBs)

定量用イオン:  $m/z$  188.0393, 確認イオン: $m/z$  190.0364

二塩化ビフェニル ジクロロビフェニル(DiCBs)

定量用イオン: $m/z$  222.0003, 確認イオン: $m/z$ -223.9974

三塩化ビフェニル トリクロロビフェニル(TrCBs)

定量用イオン: $m/z$  255.9613, 確認イオン: $m/z$  257.9587

四塩化ビフェニル テトラクロロビフェニル(TeCBs)

定量用イオン: $m/z$  289.9224, 確認イオン: $m/z$  291.9195

五塩化ビフェニル ペンタクロロビフェニル(PeCBs)

定量用イオン: $m/z$  323.8834, 確認イオン: $m/z$  325.8805

六塩化ビフェニル ヘキサクロロビフェニル(HxCBs)

定量用イオン: $m/z$  359.8415, 確認イオン: $m/z$  361.8386

七塩化ビフェニル ヘプタクロロビフェニル(HpCBs)

定量用イオン: $m/z$  393.8025, 確認イオン: $m/z$  395.7996

八塩化ビフェニル オクタクロロビフェニル(OcCBs)

定量用イオン: $m/z$  427.7636, 確認イオン: $m/z$  429.7606

九塩化ビフェニル ノナクロロビフェニル(NoCBs)

定量用イオン: $m/z$  461.7246, 確認イオン: $m/z$  463.7216

十塩化ビフェニル デカクロロビフェニル(DeCB)

定量用イオン: $m/z$  497.6826, 確認イオン: $m/z$  499.6797

$^{13}$ C<sub>12</sub> 標識 MoCBs

定量用イオン: $m/z$  200.0795, 確認イオン: $m/z$  202.0766

$^{13}$ C<sub>12</sub> 標識 DiCBs

定量用イオン: $m/z$  234.0406, 確認イオン: $m/z$  236.0376

$^{13}$ C<sub>12</sub> 標識 TrCBs

定量用イオン: $m/z$  268.0016, 確認イオン: $m/z$  269.9986

$^{13}$ C<sub>12</sub> 標識 TeCBs

定量用イオン: $m/z$  301.9626, 確認イオン: $m/z$  303.9597

$^{13}$ C<sub>12</sub> 標識 PeCBs

定量用イオン: $m/z$  335.9237, 確認イオン: $m/z$  337.9207

$^{13}$ C<sub>12</sub> 標識 HxCBs

定量用イオン: $m/z$  371.8817, 確認イオン: $m/z$  373.8788

$^{13}$ C<sub>12</sub> 標識 HpCBs

定量用イオン: $m/z$  405.8428, 確認イオン: $m/z$  407.8398

$^{13}$ C<sub>12</sub> 標識 OcCBs

定量用イオン: $m/z$  439.8038, 確認イオン: $m/z$  441.8008

$^{13}$ C<sub>12</sub> 標識 NoCBs

定量用イオン: $m/z$  473.7648, 確認イオン: $m/z$  475.7619

$^{13}$ C<sub>12</sub> 標識 DeCB

定量用イオン: $m/z$  509.7229, 確認イオン: $m/z$  511.7199

#### 2-5. 検量線の作成

相対感度係数法により検量線を作成した。検

量線作成用標準液(6点)に対して3回測定を実施し、計18点の測定データを得た。各測定データについて、各分析対象物質とそれに対応するクリーンアップスパイクとの相対感度係数(RRF)、及びクリーンアップスパイクとそれに対応するレンジスパイクの相対感度係数(RRF<sub>ss</sub>)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<sub>ss</sub> 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3に示した。

## 3. PCBs 摂取量

弁当類については、各試料における分析対象物の濃度に各試料の一食分の食品重量を乗じて、一食当たりのPCBs摂取量を算出した。健康食品については、各試料における分析対象物質の濃度に各試料に表示されている一日の摂取目安量に乗じて、一日当たりのPCBs摂取量を算出した。体重当たりの摂取量は、日本人の平均体重を50kgとして計算した。

試料中の濃度がLOD未満の異性体はゼロ(ND=0)として計算した。総PCBsは、全PCBs異

性体(209異性体)の合計値とした。NDL-PCBsはコプラナー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。6PCBsはPCB 28, 52, 101, 138, 153, 180の合計値とした。なお、PCB 52はPCB 69とGCカラムでのピーク分離が不十分であった。PCB 69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PCB 52のピークとして取り扱った。

## C. 研究結果及び考察

### 1) 弁当試料からのPCBs摂取量

各弁当のその他の部分からの一食あたりの総PCBs摂取量を図1に示した。その他の部分からの総PCBs摂取量は、平均値が17.5ng/食、中央値が14.9ng/食、範囲が5.8~61.4ng/食であった。サバ弁当のNo.4及びNo.5でやや高い値が得られたものの、最大値と最小値の比は10倍程度であった。令和元年度に報告<sup>1)</sup>した同一の弁当試料の魚介類部分からの総PCBs摂取量の最大値と最小値の比は300倍程度であったことから、その他の部分からの総PCBs摂取量は比較的狭い範囲に収まっていた。その他の部分については飯が大部分を占めており、飯のPCBs濃度が魚介類ほど広い範囲に分布していないことが要因として考えられた。図2には、弁当全体からの総PCBs摂取量に占めるその他の部分と魚介類部分の割合を示した。白身魚フライ弁当を除き、弁当全体からの総PCBs摂取量に占めるその他の部分の割合は総じて低かった。

弁当全体からのPCBs摂取量の統計量を表4に示した。各弁当試料の魚介類部分、その他の部分、及び全体からのPCBs摂取量の詳細については付表1、付表2、及び付表3に示した。弁当全体からの一食あたりの総PCBs摂取量は、ウナギ弁当で平均値が326ng/食、中央値が244ng/食、範囲が130~731ng/食、サケ弁当で平均値が122ng/食、中央値が82ng/食、範囲が71~238ng/食、サバ弁当で平均値が1,013ng/

食、中央値が955 ng/食、範囲が464~1,827 ng/食、サンマ弁当で平均値が198 ng/食、中央値が228 ng/食、範囲が85~252 ng/食、白身魚フライ弁当で平均値が44 ng/食、中央値が26 ng/食、範囲が16~128 ng/食であった。総 PCBs 摂取量の散布図を図3に示した。弁当の種類毎の調査数が5と少ないことに留意する必要があるが、弁当一食あたりの総 PCBs 摂取量は、主菜とする魚介類の種類により大きな違いが認められた。中央値で比較した場合、総 PCBs 摂取量の中央値が最大であったサバ弁当と、最小であった白身魚フライ弁当では37倍もの差があった。

現在、日本ではPCBsに暫定耐容一日摂取量(TDI)(5 µg/kg bw/day)が示されている<sup>4)</sup>。弁当全体の内、総 PCBs 摂取量が最も高かったサバ弁当(No.2)でも暫定 TDI の僅か0.73%であった。暫定 TDI を指標にした場合は、総 PCBs 摂取量によるヒトの健康リスクは小さいと判断できる。しかし、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)<sup>5)</sup>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WHO TDIと比較すると、各種弁当の総 PCBs 摂取量の平均値はWHO TDIの4~101%、中央値はWHO TDIの3~96%であった。個々の弁当試料についてみた場合は、サバ弁当2試料(No.1、No.2)の一食当たりの総 PCBs 摂取量がWHO TDIを超過(116%及び183%)していた。WHO TDIについては過度の安全を見込んだ TDI となっている可能性に留意が必要であるが、PCBs 摂取量をより低減する観点からも、特定の種類や製造会社の食品を過度に摂取するのではなく、多様な食品を含むバランスの良い食生活を送ることが重要であると考えられる。

リスク評価のための情報が不足している NDL-

PCB 摂取量、及び NDL-PCBs の指標異性体として使用されている6PCBsの摂取量についても弁当全体からの摂取量を算出した。これらの摂取量の統計量についても併せて表4に示した。

弁当全体からの一食当たりのNDL-PCBs摂取量は、ウナギ弁当で平均値が297 ng/食、中央値が225 ng/食、範囲が120~662 ng/食、サケ弁当で平均値が113 ng/食、中央値が76 ng/食、範囲が67~221 ng/食、サバ弁当で平均値が938 ng/食、中央値が882 ng/食、範囲が431~1,698 ng/食、サンマ弁当で平均値が187 ng/食、中央値が215 ng/食、範囲が80~239 ng/食、白身魚フライ弁当で平均値が41 ng/食、中央値が24 ng/食、範囲が15~118 ng/食であった。弁当全体からの総 PCBs 摂取量に占めるNDL-PCBsの割合は、調査した25試料で90~95%であった。

弁当全体からの一食当たりの6PCBs摂取量は、ウナギ弁当で平均値が113 ng/食、中央値が86 ng/食、範囲が46~260 ng/食、サケ弁当で平均値が37 ng/食、中央値25 ng/食、範囲が22~70 ng/食、サバ弁当で平均値が344 ng/食、中央値が305 ng/食、範囲が145~608 ng/食、サンマ弁当で平均値が53 ng/食、中央値62 ng/食、範囲が23~66 ng/食、白身魚フライ弁当で平均値が12 ng/食、中央値が5.5 ng/食、範囲が3.0~39 ng/食であった。弁当全体からのNDL-PCBs摂取量に占める6PCBs摂取量の割合は、調査した25試料で20~41%であった。

現在、NDL-PCBsについてはリスク評価のための毒性試験データなどの情報が不足しており、TDIは設定されていない。そのため、今回得られたNDL-PCBs摂取量とTDIの比較はできなかった。

## 2) 健康食品からのPCBs摂取量

健康食品37試料からのPCBsの一日摂取量を図4に示した。今回調査した魚油を原料とする健康食品については、鮫肝油を使用している表示がある試料(以下、鮫肝油)と、その他の魚油を

使用していると考えられる試料(以下、その他の魚油)に大別できた。各試料における同族体毎の摂取量の詳細は付表4に示した。また、調査した健康食品からのPCBsの一日摂取量の統計量を表5に示した。全試料からの総PCBsの一日摂取量は、平均値が3.9 ng/day、中央値が0.44 ng/day、範囲が0.039~51 ng/dayであった。NDL-PCBsの一日摂取量は、平均値が3.8 ng/day、中央値が0.42 ng/day、範囲が0.039~51 ng/dayであった。6PCBsの一日摂取量は、平均値が1.6 ng/day、中央値が0.11 ng/day、範囲が0.0041~22 ng/dayであった。総PCBsの一日摂取量が最も高かった試料はNo.35であり、試料には鮫肝油を使用している表示があった。総PCBsの一日摂取量は51 ng/dayと算出され、体重(50 kgと仮定)あたりの総PCBs摂取量は1.0 ng/kg/dayであった。日本のPCBsの暫定TDIと比較すると、この値は僅か0.02%程度であった。また、参考としてより厳しいWHOのTDIと比較すると、5%程度に相当した。今年度のトータルダイエツト調査によると、一般的な食事からの総PCBsの全国平均値は、6.7 ng/kg bw/dayと推定されている<sup>6)</sup>。全国平均値とNo.35からの総PCBsの摂取量を合計した場合でも、日本の暫定TDIの0.15%程度、WHOのTDIの39%程度であり、TDIを下回っていた。

鮫肝油試料の調査数は5と少ないことに留意する必要があるものの、鮫肝油試料からのPCBs摂取量は、その他の魚油試料と比較すると概して高い値であった(図4、表5)。鮫肝油については鮫が食物連鎖の上位に位置することや、肝臓にはPCBs等の残留性有機汚染物質(POPs)が蓄積しやすいことから、PCBs摂取量が高くなった可能性が考えられた。鮫肝油を使用した健康食品ではPCBsの摂取量が比較的高くなることが報告<sup>7)</sup>されており、本研究の結果とよく一致していた。

今回調査した魚油を原料とする健康食品から摂取されるPCBsによる人の健康リスクは低いと考えられた。しかし、魚油の精製方法は製品によ

り様々であり、精製方法によっては魚油に含まれるPCBs等のPOPsが十分に除去できない場合も考えられる。過去にはある販売者の健康食品からTDIを超過するダイオキシン類が検出された事例もあることから、種々の製品について調査を継続していくことが望ましい。

#### D. 結論

ウナギ、サケ、サバ、サンマ、及び白身魚フライを主菜とする弁当(計25試料)の内容物の内、その他の部分からのPCBs摂取量を調査した。令和元年度に実施した同一の弁当の魚介類部分と合計した一食あたりの総PCBs摂取量を算出した結果、白身魚フライの弁当を除き、総PCBs摂取量に占めるその他の部分の割合は、魚介類部分と比較すると総じて低かった。一食あたりの総PCBs摂取量の最大値は、日本の暫定耐容一日摂取量(TDI)の0.73%程度であった。一方、参考としてより厳しいWHOのTDIと比較すると、サバを主菜とする弁当2試料からの総PCBs摂取量がWHOのTDIを超過(116%及び183%)していた。

国内で流通している魚油を原料とする健康食品(計37試料)を対象にPCBs摂取量を調査した。総PCBsの一日摂取量は、日本の暫定TDI及びWHOのTDIを十分に下回っていた。鮫肝油を使用した試料からのPCBs摂取量は、その他の魚油を使用した試料と比較すると概して高い値であった。

#### E. 参考文献

- 1) 令和元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及び汚染実態の把握に関する研究)

- 2) 令和 2 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及び汚染実態の把握に関する研究)
- 3) European Food Safety Authority (EFSA), Results of the monitoring of non dioxin-like PCBs in food and feed, EFSA J, 8, 1701-1736 (2010).
- 4) 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)
- 5) WHO, 2003. Concise International Chemical Assessment Document 55. Polychlorinated biphenyls: human health aspects.
- 6) 令和 3 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及び汚染実態の把握に関する研究)
- 7) Matsuo Y, Nakai K, Sakuma I, Akutsu K, Tatsuta N, Ishiyama M, Higuchi T, Ryuda N, Ueno D: Estimation of Polychlorinated Biphenyls Intake through Fish Oil-Derived Dietary Supplements and Prescription Drugs in the Japanese Population. J. Food Qual. Hazards Control, 2019;6:146-152.

## F.研究業績

### 1. 論文発表

なし

### 2. 学会発表

なし

表 1 購入した一食分試料(弁当類)の概要

弁当の種類 <sup>1)</sup>	No.	購入店	主な内容物		一食分重量 (g) <sup>2)</sup>	
			魚介類部分	その他の部分	魚介類部分	その他の部分
ウナギ弁当	1	b	ウナギ蒲焼き	ご飯、蒲焼のたれ、奈良漬、玉子焼き	62	229
	2	e	ウナギ蒲焼き	ご飯、牛肉	84	348
	3	h	ウナギ蒲焼き	ご飯、蒲焼のたれ	124	277
	4	k	ウナギ蒲焼き	ご飯、蒲焼のたれ	124	239
	5	l	ウナギ蒲焼き	ご飯、奈良漬	83	267
サケ弁当	1	a	焼きサケ	ご飯、大根煮、がんも煮、玉子焼、しいたけ煮、人参煮	63	247
	2	c	焼きサケ、おかか	ご飯、きんぴらごぼう、酢漬、のり	83	241
	3	f	焼きサケ	ご飯、鶏唐揚、コロッケ、錦糸卵、大根酢漬	34	267
	4	i	焼きサケ、エビフライ	ご飯、すき焼き(牛肉)、玉子焼、煮物(ニンジン、タケノコ、こんにゃく)	71	384
	5	l	焼きサケ、ちくわ磯辺揚げ、明太子	ご飯、玉子焼、鶏の七味焼き、きんぴらごぼう、のり	81	319
サバ弁当	1	d	煮サバ	ご飯、筑前煮(レンコン、ニンジン、しいたけ)、漬物、烏団子	73	286
	2	c	焼きサバ	ご飯、玉子焼、きんぴらごぼう、大根酢漬、しいたけ、ニンジン、ゴボウ、こんにゃく	107	242
	3	f	焼きサバ、エビかき揚げ	ご飯、鶏唐揚、筑前煮(レンコン、サトイモ、ニンジン、こんにゃく)、玉子焼	53	335
	4	g	焼きサバ	ご飯、ごま入りひじき煮調味梅漬あえ	48	186
	5	i	焼きサバ	ご飯、鶏唐揚、ポテトサラダ、大根酢漬	99	320
サンマ弁当	1	a	サンマ蒲焼き	ご飯、玉子焼、小松菜あえ、ごま、ネギ、のり	82	232
	2	b	味付サンマ	ご飯、甘醤油たれ、玉子焼、大根酢漬、ネギ、ごま	35	222
	3	b	サンマフライ、ちくわ天、明太子	ご飯、玉子焼、タルタルソース、きんぴらごぼう、のり	142	282
	4	f	焼きサンマ	ご飯、玉子焼、しいたけ	80	304
	5	i	焼きサンマ	ご飯、照り焼きチキン、煮物(ニンジン、タケノコ、こんにゃく)、大根おろし	71	390
白身魚フライ弁当	1	a	白身フライ、ちくわ磯辺揚げ、おかか	ご飯、鶏唐揚、玉子焼、きんぴらごぼう、タルタルソース、味付高菜、のり	69	223
	2	b	白身フライ、ちくわ磯辺揚げ	ご飯、ハンバーグ、野菜コロッケ、茹玉子、鶏唐揚、タルタルソース、きんぴらごぼう、漬物、昆布佃煮、のり	62	306
	3	c	白身フライ(タラ)、ちくわ天、おかか	ご飯、大根酢漬、きんぴらごぼう、のり	98	228
	4	f	白身フライ(タラ)	ご飯、鶏唐揚、タルタルソース、錦糸卵、大根酢漬、のり	46	274
	5	i	白身フライ(ホキ)、おかか	ご飯、メンチカツ(鶏)、鶏唐揚、きんぴらごぼう、のり	54	393

1) 主菜となる魚介類に基づき分類

2) 3~4個の平均値

表 2 購入した健康食品の概要

No.	名称	販売者等	一日摂取目安量 <sup>1)</sup> (mg)
1	DHA含有精製魚油加工食品	A	1320
2	EPA含有精製魚油加工食品	A	3648
3	EPA・DHA含有精製魚油配合食品	B	2025
4	EPA・DHA含有精製魚油・ $\alpha$ -リノレン酸含有シソ油配合食品	B	3060
5	DHA含有精製魚油加工食品	C	2020
6	EPA含有精製魚油加工食品	C	1299
7	精製魚油加工食品	D	1760
8	精製魚油加工食品	D	2300
9	EPA含有精製魚油加工食品	E	1610
10	DHA・EPA含有精製魚油加工食品	F	3066
11	DHA・EPA含有精製魚油加工食品	G	2700
12	DHA含有精製魚油加工食品	H	2212
13	EPA・DHA含有食品	I	4080
14	DHA・EPA含有精製魚油加工食品	J	3840
15	ドコサヘキサエン酸加工食品	K	2940
16	EPA含有精製魚油含有食品	L	4248
17	EPA含有精製魚油加工食品	M	2170
18	DHA、EPA含有加工食品	N	2040
19	DHA・EPA含有食品	O	1800
20	DHA含有精製魚油加工食品	O	3570
21	DHA含有加工食品	P	1200
22	EPA含有加工食品	P	1605
23	精製魚油含有食品	Q	2700
24	DHA含有精製魚油加工食品	R	1365
25	DHA・EPA含有精製魚油加工食品	R	2275
26	DHA含有精製魚油加工食品	S	2200
27	DHA・EPA含有精製魚油加工食品	T	1656
28	精製魚油加工食品	U	2400
29	DHA・EPA含有精製魚油加工食品	V	2700
30	精製魚油加工食品	W	3150
31	EPA・DHA含有精製魚油加工食品	X	1680
32	DHA・EPA含有精製魚油加工食品	Y	6600
33	スクアレン加工食品	D	2200
34	深海鮫精製肝油加工食品	F	2640
35	スクワレン加工食品	G	2700
36	深海鮫精製肝臓エキス食品	Z	2736
37	鮫肝油精製油含有食品	AA	1842

1) 各試料に表示されている一日摂取目安量(粒数など)を重量に換算

表3 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 (0.00060)	0.00050 (0.0020)	HxCBs #128	0.00002 (0.00010)	0.00008 (0.00032)
#2	0.00010 (0.00040)	0.00034 (0.0013)	#129	0.00002 (0.00010)	0.00008 (0.00032)
#3	0.00011 (0.00046)	0.00038 (0.0015)	#130	0.00002 (0.00010)	0.00008 (0.00032)
DiCBs #4	0.00044 (0.00175)	0.00146 (0.0058)	#131	0.00002 (0.00010)	0.00008 (0.00032)
#6	0.00006 (0.00024)	0.00020 (0.0008)	#133	0.00002 (0.00010)	0.00008 (0.00032)
#7	0.00002 (0.00007)	0.00006 (0.0002)	#134	0.00002 (0.00010)	0.00008 (0.00032)
#8/#5	0.00048 (0.00191)	0.00160 (0.0064)	#135	0.00002 (0.00010)	0.00008 (0.00032)
#9	0.00002 (0.00007)	0.00006 (0.0002)	#136	0.00002 (0.00010)	0.00008 (0.00032)
#10	0.00002 (0.00006)	0.00005 (0.0002)	#137	0.00002 (0.00010)	0.00008 (0.00032)
#11	0.00103 (0.00410)	0.00342 (0.0137)	#138	0.00011 (0.00046)	0.00038 (0.0153)
#13/#12	0.00002 (0.00007)	0.00006 (0.0002)	#140	0.00002 (0.00010)	0.00008 (0.00032)
#14	0.00002 (0.00007)	0.00006 (0.0002)	#141	0.00002 (0.00010)	0.00008 (0.00032)
#15	0.00014 (0.00058)	0.00048 (0.0019)	#142	0.00002 (0.00010)	0.00008 (0.00032)
TrCBs #16	0.00010 (0.00041)	0.00034 (0.0014)	#143	0.00002 (0.00010)	0.00008 (0.00032)
#17	0.00016 (0.00063)	0.00052 (0.0021)	#144	0.00002 (0.00010)	0.00008 (0.00032)
#18	0.00052 (0.00210)	0.00175 (0.0070)	#145	0.00002 (0.00010)	0.00008 (0.00032)
#19	0.00003 (0.00013)	0.00011 (0.0004)	#146/#132	0.00002 (0.00010)	0.00008 (0.00032)
#20/#33	0.00033 (0.00133)	0.00111 (0.0044)	#147	0.00002 (0.00010)	0.00008 (0.00032)
#21	0.00003 (0.00013)	0.00011 (0.0004)	#148	0.00002 (0.00010)	0.00008 (0.00032)
#22	0.00015 (0.00061)	0.00050 (0.0020)	#149/#139	0.00002 (0.00010)	0.00008 (0.00032)
#23	0.00003 (0.00013)	0.00011 (0.0004)	#150	0.00002 (0.00010)	0.00008 (0.00032)
#24	0.00003 (0.00013)	0.00011 (0.0004)	#151	0.00002 (0.00010)	0.00008 (0.00032)
#25	0.00003 (0.00013)	0.00011 (0.0004)	#152	0.00002 (0.00010)	0.00008 (0.00032)
#26	0.00007 (0.00029)	0.00024 (0.0010)	#153	0.00007 (0.00029)	0.00025 (0.00098)
#27	0.00003 (0.00013)	0.00011 (0.0004)	#154	0.00002 (0.00010)	0.00008 (0.00032)
#28	0.00039 (0.00154)	0.00128 (0.0051)	#155	0.00001 (0.00006)	0.00005 (0.00020)
#29	0.00003 (0.00013)	0.00011 (0.0004)	#156	0.00002 (0.00009)	0.00007 (0.00029)
#30	0.00003 (0.00013)	0.00011 (0.0004)	#157	0.00002 (0.00010)	0.00008 (0.00032)
#31	0.00031 (0.00125)	0.00105 (0.0042)	#158	0.00002 (0.00010)	0.00008 (0.00032)
#32	0.00014 (0.00056)	0.00047 (0.0019)	#159	0.00002 (0.00010)	0.00008 (0.00032)
#34	0.00003 (0.00013)	0.00011 (0.0004)	#160	0.00002 (0.00010)	0.00008 (0.00032)
#35	0.00004 (0.00014)	0.00012 (0.0005)	#161	0.00002 (0.00010)	0.00008 (0.00032)
#36	0.00003 (0.00013)	0.00011 (0.0004)	#162	0.00002 (0.00010)	0.00008 (0.00032)
#37	0.00015 (0.00061)	0.00051 (0.0020)	#164/#163	0.00002 (0.00010)	0.00008 (0.00032)
#38	0.00004 (0.00015)	0.00013 (0.0005)	#165	0.00002 (0.00010)	0.00008 (0.00032)
#39	0.00003 (0.00013)	0.00011 (0.0004)	#166	0.00002 (0.00010)	0.00008 (0.00032)
TeCBs #40	0.00002 (0.00007)	0.00006 (0.0002)	#167	0.00002 (0.00009)	0.00007 (0.00030)
#41	0.00002 (0.00007)	0.00006 (0.0002)	#168	0.00002 (0.00010)	0.00008 (0.00032)
#42	0.00002 (0.00007)	0.00006 (0.0002)	#169	0.00003 (0.00012)	0.00010 (0.00040)
#43/#49	0.00012 (0.00048)	0.00040 (0.0016)	HpCBs #170	0.00006 (0.00023)	0.00019 (0.00076)
#44	0.00011 (0.00046)	0.00038 (0.0015)	#171	0.00005 (0.00019)	0.00016 (0.00065)
#45	0.00002 (0.00007)	0.00006 (0.0002)	#172	0.00005 (0.00019)	0.00016 (0.00065)
#46	0.00002 (0.00007)	0.00006 (0.0002)	#173	0.00005 (0.00019)	0.00016 (0.00065)
#50	0.00002 (0.00007)	0.00006 (0.0002)	#174	0.00005 (0.00019)	0.00016 (0.00065)
#51	0.00002 (0.00007)	0.00006 (0.0002)	#175	0.00005 (0.00019)	0.00016 (0.00065)
#52/#69	0.00026 (0.00104)	0.00086 (0.0035)	#176	0.00005 (0.00019)	0.00016 (0.00065)
#53	0.00002 (0.00007)	0.00006 (0.0002)	#177	0.00005 (0.00019)	0.00016 (0.00065)
#54	0.00001 (0.00005)	0.00004 (0.0002)	#178	0.00005 (0.00019)	0.00016 (0.00065)
#55	0.00002 (0.00007)	0.00006 (0.0002)	#179	0.00005 (0.00019)	0.00016 (0.00065)
#56	0.00007 (0.00029)	0.00024 (0.0010)	#180	0.00005 (0.00021)	0.00018 (0.00071)
#57	0.00001 (0.00005)	0.00004 (0.0002)	#181	0.00005 (0.00019)	0.00016 (0.00065)
#59	0.00002 (0.00007)	0.00006 (0.0002)	#182/#187	0.00005 (0.00021)	0.00017 (0.00070)
#60	0.00005 (0.00018)	0.00015 (0.0006)	#183	0.00005 (0.00019)	0.00016 (0.00065)
#61	0.00002 (0.00007)	0.00006 (0.0002)	#184	0.00005 (0.00019)	0.00016 (0.00065)
#62	0.00002 (0.00007)	0.00006 (0.0002)	#185	0.00005 (0.00019)	0.00016 (0.00065)
#63/#58	0.00002 (0.00007)	0.00006 (0.0002)	#186	0.00005 (0.00019)	0.00016 (0.00065)
#64	0.00006 (0.00025)	0.00021 (0.0008)	#188	0.00004 (0.00015)	0.00012 (0.00050)
#65/#75/#48/#47	0.00027 (0.00108)	0.00090 (0.0036)	#189	0.00004 (0.00018)	0.00015 (0.00058)
#67	0.00002 (0.00007)	0.00006 (0.0002)	#190	0.00005 (0.00019)	0.00016 (0.00065)
#68	0.00002 (0.00007)	0.00006 (0.0002)	#191	0.00005 (0.00019)	0.00016 (0.00065)
#70	0.00009 (0.00036)	0.00030 (0.0012)	#192	0.00005 (0.00019)	0.00016 (0.00065)
#72/#71	0.00002 (0.00007)	0.00006 (0.0002)	#193	0.00005 (0.00019)	0.00016 (0.00065)
#73	0.00002 (0.00007)	0.00006 (0.0002)	OcCBs #194	0.00004 (0.00015)	0.00012 (0.00050)
#74	0.00007 (0.00027)	0.00023 (0.0009)	#195	0.00002 (0.00009)	0.00008 (0.00031)
#76	0.00002 (0.00007)	0.00006 (0.0002)	#196	0.00002 (0.00007)	0.00005 (0.00022)
#77	0.00004 (0.00016)	0.00013 (0.0005)	#197	0.00002 (0.00007)	0.00005 (0.00022)
#78	0.00002 (0.00008)	0.00006 (0.0003)	#198	0.00002 (0.00007)	0.00005 (0.00022)
#79	0.00002 (0.00008)	0.00007 (0.0003)	#199	0.00002 (0.00006)	0.00005 (0.00021)
#80/#66	0.00018 (0.00071)	0.00059 (0.0024)	#200	0.00002 (0.00007)	0.00005 (0.00022)
#81	0.00002 (0.00009)	0.00007 (0.0003)	#201	0.00002 (0.00007)	0.00005 (0.00022)
#82	0.00002 (0.00007)	0.00006 (0.0002)	#202	0.00001 (0.00004)	0.00003 (0.00013)
#83	0.00002 (0.00007)	0.00006 (0.0002)	#203	0.00001 (0.00006)	0.00005 (0.00019)
PeCBs #84/#92	0.00002 (0.00007)	0.00006 (0.0002)	#204	0.00002 (0.00007)	0.00005 (0.00022)
#85	0.00002 (0.00007)	0.00006 (0.0002)	#205	0.00001 (0.00006)	0.00005 (0.00019)
#86/#117/#97	0.00002 (0.00007)	0.00006 (0.0002)	NoCBs #206	0.00002 (0.00009)	0.00008 (0.00032)
#87/#115	0.00004 (0.00015)	0.00012 (0.0005)	#207	0.00002 (0.00009)	0.00007 (0.00029)
#88	0.00002 (0.00007)	0.00006 (0.0002)	#208	0.00002 (0.00008)	0.00007 (0.00026)
#89	0.00002 (0.00007)	0.00006 (0.0002)	DeCB #209	0.00005 (0.00019)	0.00016 (0.00062)
#90	0.00002 (0.00007)	0.00006 (0.0002)			
#91	0.00002 (0.00007)	0.00006 (0.0002)			
#94	0.00002 (0.00007)	0.00006 (0.0002)			
#96	0.00002 (0.00007)	0.00006 (0.0002)			
#98/#95	0.00004 (0.00016)	0.00013 (0.0005)			
#99	0.00004 (0.00016)	0.00014 (0.0005)			
#100	0.00002 (0.00007)	0.00006 (0.0002)			
#101	0.00003 (0.00013)	0.00010 (0.0004)			
#102/#93	0.00002 (0.00007)	0.00006 (0.0002)			
#103	0.00002 (0.00007)	0.00006 (0.0002)			
#104	0.00002 (0.00010)	0.00008 (0.0003)			
#105	0.00008 (0.00033)	0.00028 (0.0011)			
#106	0.00002 (0.00007)	0.00006 (0.0002)			
#108	0.00002 (0.00007)	0.00006 (0.0002)			
#109/#107	0.00002 (0.00007)	0.00006 (0.0002)			
#110/#120	0.00010 (0.00040)	0.00034 (0.0013)			
#111	0.00002 (0.00007)	0.00006 (0.0002)			
#112/#119	0.00002 (0.00007)	0.00006 (0.0002)			
#113	0.00002 (0.00007)	0.00006 (0.0002)			
#114	0.00004 (0.00017)	0.00014 (0.0006)			
#118	0.00013 (0.00053)	0.00044 (0.0018)			
#121	0.00002 (0.00007)	0.00006 (0.0002)			
#122	0.00002 (0.00007)	0.00006 (0.0002)			
#123	0.00004 (0.00014)	0.00012 (0.0005)			
#124	0.00002 (0.00007)	0.00006 (0.0002)			
#125/#116	0.00002 (0.00007)	0.00006 (0.0002)			
#126	0.00004 (0.00018)	0.00015 (0.0006)			
#127	0.00002 (0.00007)	0.00006 (0.0002)			

\*( )内は健康食品分析時のLODs及びLOQs



表 4 弁当試料(全体)からの PCBs 摂取量の統計量

試料(試料数)		PCBs摂取量 (ng/食) <sup>1)</sup>			
		平均値	最小値	中央値	最大値
ウナギ弁当 (5)	総PCBs	326	130	244	731
	NDL-PCBs	297	120	225	662
	6PCBs	113	46	86	260
サケ弁当 (5)	総PCBs	122	71	82	238
	NDL-PCBs	113	67	76	221
	6PCBs	37	22	25	70
サバ弁当 (5)	総PCBs	1,013	464	955	1,827
	NDL-PCBs	938	431	882	1,698
	6PCBs	344	145	305	608
サンマ弁当 (5)	総PCBs	198	85	228	252
	NDL-PCBs	187	80	215	239
	6PCBs	53	23	62	66
白身魚フライ弁当 (5)	総PCBs	44	16	26	128
	NDL-PCBs	41	15	24	118
	6PCBs	12	3.0	5.5	39
全ての弁当 (25)	総PCBs	341	16	227	1,827
	NDL-PCBs	315	15	208	1,698
	6PCBs	112	3.0	61.5	608

1) ND=0として計算

表 5 健康食品からの PCBs 摂取量の統計量

試料(試料数)		PCBs一日摂取量 (ng/day) <sup>1)</sup>			
		平均値	最小値	中央値	最大値
鮫肝油(5)	総PCBs	24	4.8	14	51
	NDL-PCBs	23	4.5	13	51
	6PCBs	10	1.7	5.7	22
その他(32)	総PCBs	0.82	0.039	0.34	11
	NDL-PCBs	0.77	0.039	0.32	11
	6PCBs	0.28	0.0041	0.10	4.4
全試料(37)	総PCBs	3.9	0.039	0.44	51
	NDL-PCBs	3.8	0.039	0.42	51
	6PCBs	1.6	0.0041	0.11	22

1) ND=0として計算

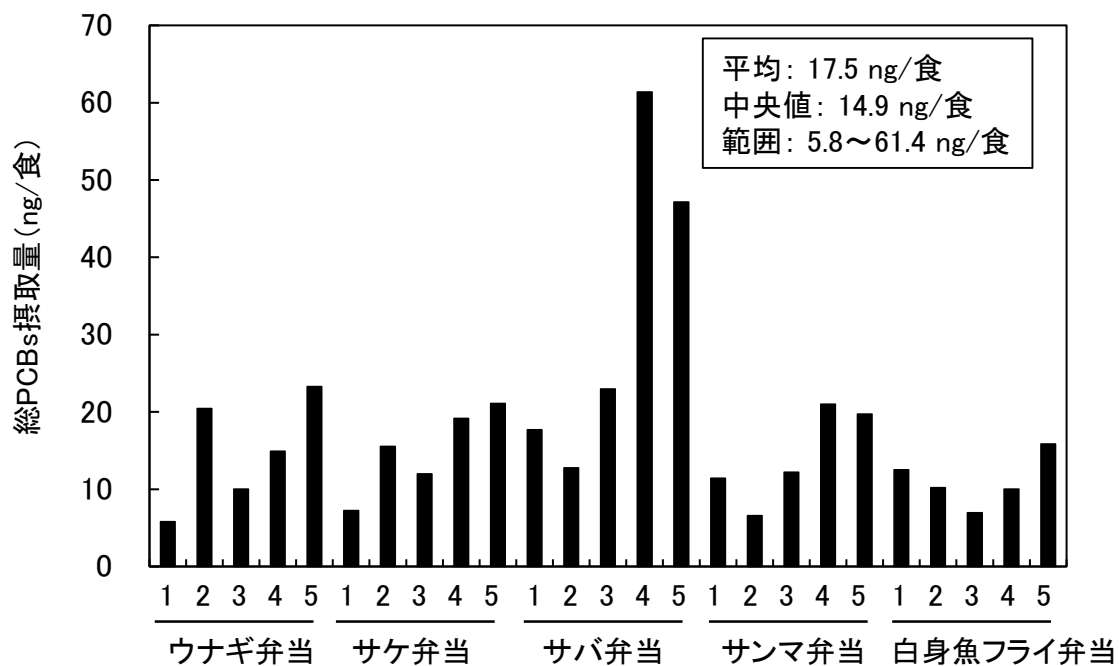


図 1 弁当試料(その他の部分)からの総 PCBs 摂取量

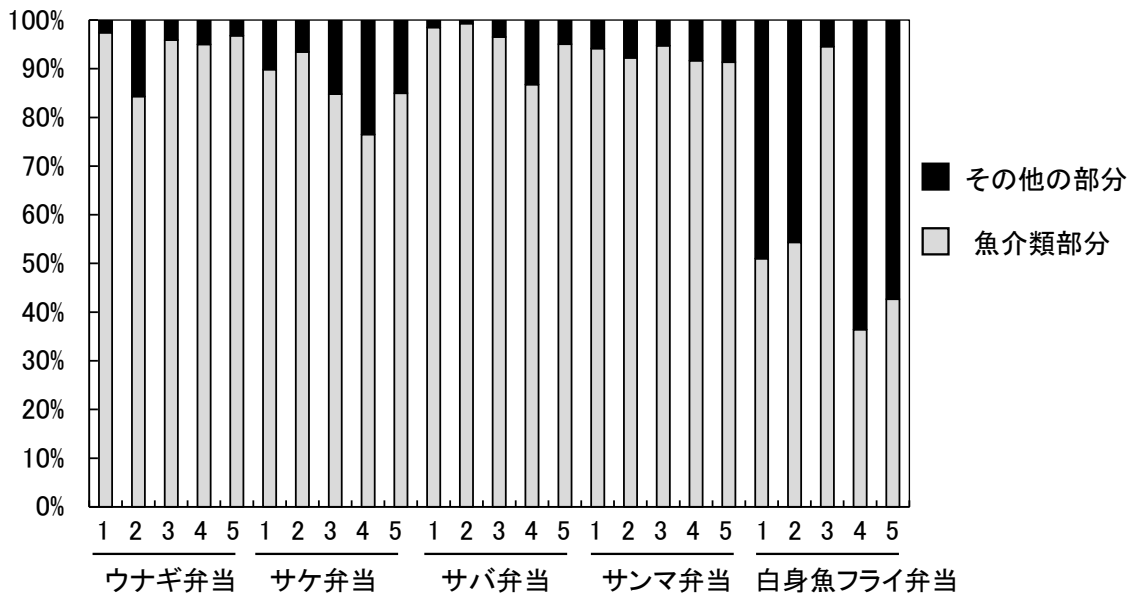


図 2 弁当全体からの総 PCBs 摂取量に占めるその他の部分の割合

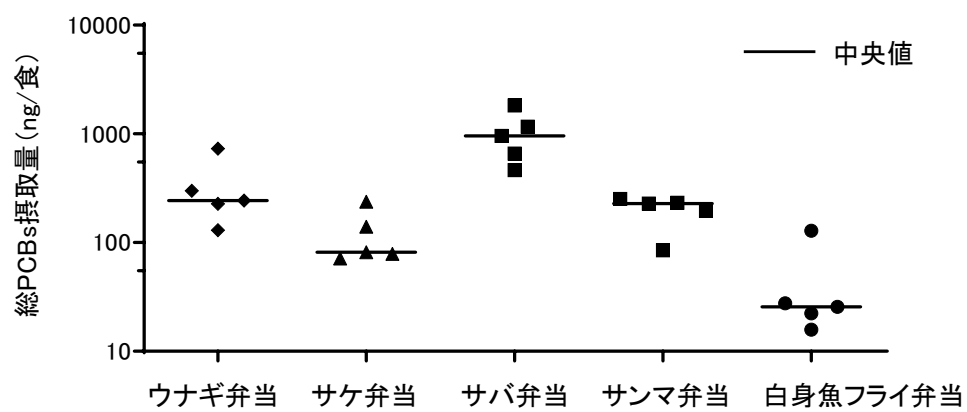


図 3 弁当全体からの総 PCBs 摂取量の散布図

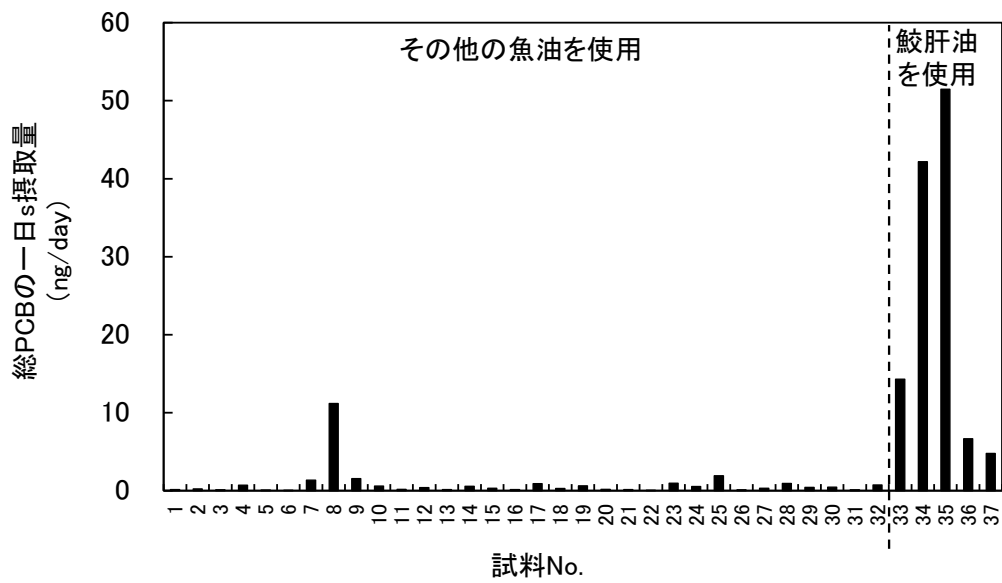


図4 健康食品からの総 PCBs 摂取量

付表 1 弁当試料(魚介類部分)からの PCBs 摂取量<sup>1)</sup>

													(ng/食)		
弁当の種類 <sup>2)</sup>	No.	MoCBs	DiCBs	TrCBs	TeCBs	PeCBs	HxCBs	HpCBs	OcCBs	NoCBs	DeCB	総PCBs	6PCBs <sup>3)</sup>	NDL-PCBs	
ウナギ弁当	1	0.71	14.93	11.50	29.39	53.01	79.16	27.30	3.90	0.46	0.47	220.83	74.86	202.12	
	2	0.48	1.09	4.14	15.04	27.85	42.51	15.86	2.26	0.24	0.17	109.64	39.14	101.61	
	3	0.45	1.07	6.52	30.26	64.07	87.98	33.71	4.44	0.66	4.76	233.92	84.07	215.87	
	4	1.01	17.76	18.24	54.63	86.29	81.75	20.81	2.89	0.62	0.45	284.43	94.67	255.42	
	5	1.39	2.14	28.55	110.81	214.33	255.93	81.47	10.99	1.50	0.75	707.87	253.71	640.18	
サケ弁当	1	0.24	1.99	3.69	9.74	15.94	21.94	8.81	1.47	0.17	0.06	64.07	20.14	59.86	
	2	0.51	2.17	21.38	55.75	73.93	55.53	11.83	1.25	0.17	0.08	222.60	66.69	206.18	
	3	0.06	0.29	1.74	9.65	18.77	24.69	9.57	1.61	0.28	0.12	66.77	23.30	61.84	
	4	6.43	2.37	3.24	7.27	14.11	20.08	7.66	1.05	0.13	0.04	62.39	18.36	58.45	
	5	0.40	2.81	8.05	20.71	34.36	38.10	12.76	1.73	0.19	0.13	119.24	40.85	110.40	
サバ弁当	1	0.52	3.12	28.79	103.56	282.71	531.11	169.00	21.74	2.19	1.13	1143.86	436.33	1055.72	
	2	0.85	4.10	47.53	213.32	475.34	748.78	289.64	31.64	2.24	0.59	1814.03	604.29	1685.74	
	3	0.15	2.73	21.79	69.91	172.31	267.63	88.33	9.65	1.06	0.51	634.08	216.06	583.90	
	4	0.22	1.75	17.41	62.13	119.12	149.90	47.33	4.36	0.33	0.12	402.68	126.03	374.38	
	5	0.36	4.21	40.76	143.80	274.09	343.20	91.57	8.86	1.11	0.38	908.34	291.89	837.72	
サンマ弁当	1	0.39	4.31	27.31	50.63	53.98	38.31	7.89	0.79	0.11	0.06	183.78	49.73	173.18	
	2	0.17	1.57	9.45	20.00	24.79	18.08	3.91	0.39	0.06	0.04	78.45	21.75	73.49	
	3	0.27	3.61	27.69	55.01	67.29	51.18	13.04	1.58	0.25	0.16	220.06	63.31	205.85	
	4	0.46	5.28	39.28	64.03	67.16	44.20	9.65	0.77	0.11	0.05	231.00	58.99	218.53	
	5	8.18	5.91	35.78	51.39	56.42	40.55	8.89	0.80	0.13	0.07	208.11	58.45	195.59	
白身魚フライ弁当	1	0.64	1.76	1.20	2.29	3.00	2.87	1.02	0.18	0.04	0.03	13.03	3.26	12.20	
	2	0.25	1.24	1.13	2.49	3.13	2.95	0.78	0.13	0.03	0.01	12.13	3.41	11.35	
	3	0.48	1.37	4.29	16.58	36.67	45.05	14.66	1.85	0.22	0.11	121.29	37.84	111.33	
	4	0.08	1.07	0.73	1.24	1.44	0.96	0.18	0.02	0.01	0.00	5.74	1.41	5.40	
	5	0.18	0.40	0.46	1.20	2.79	4.60	1.91	0.24	0.04	0.01	11.81	3.93	10.87	

1) ND=0として計算(令和元年度の報告書より引用)

2) 主菜となる魚介類に基づき分類

3) PCB 28, 52, 101, 138, 153, 180の合計値

付表2 弁当試料(その他の部分)からの PCBs 摂取量<sup>1)</sup>

													(ng/食)		
弁当の種類 <sup>2)</sup>	No.	MoCBs	DiCBs	TrCBs	TeCBs	PeCBs	HxCBs	HpCBs	OcCBs	NoCBs	DeCB	総PCBs	6PCBs <sup>3)</sup>	NDL-PCBs	
ウナギ弁当	1	0.64	0.83	0.75	1.17	1.02	1.02	0.32	0.06	0.00	0.00	5.82	1.11	5.55	
	2	0.77	1.63	1.49	2.57	4.56	6.39	2.17	0.63	0.17	0.06	20.43	6.42	18.11	
	3	0.19	1.98	1.44	1.81	1.96	1.95	0.56	0.05	0.00	0.08	10.03	2.17	9.53	
	4	0.27	2.83	2.39	3.24	2.99	2.52	0.55	0.11	0.02	0.00	14.93	3.28	13.90	
	5	0.56	1.99	2.93	4.46	5.51	5.84	1.67	0.29	0.04	0.00	23.29	6.35	21.66	
サケ弁当	1	0.34	1.51	0.86	1.53	1.43	1.17	0.34	0.06	0.00	0.00	7.23	1.37	6.95	
	2	0.40	0.86	1.72	3.90	4.51	3.37	0.74	0.07	0.00	0.00	15.55	3.81	14.58	
	3	0.17	2.26	2.33	2.86	2.05	1.69	0.47	0.11	0.00	0.02	11.98	2.13	11.49	
	4	0.48	5.41	2.33	2.31	2.92	4.11	1.17	0.30	0.09	0.03	19.16	4.59	17.62	
	5	0.40	2.59	2.38	3.35	4.34	5.55	2.07	0.37	0.04	0.00	21.09	5.53	19.84	
サバ弁当	1	0.45	2.04	1.18	2.60	3.76	5.64	1.81	0.19	0.02	0.02	17.71	4.70	16.67	
	2	0.42	1.31	1.31	2.21	2.70	3.54	1.13	0.16	0.00	0.00	12.78	3.25	12.02	
	3	0.63	3.63	2.32	3.36	4.62	6.24	1.90	0.26	0.00	0.00	22.97	5.48	21.76	
	4	0.39	1.31	3.16	10.28	17.86	21.56	6.10	0.68	0.06	0.00	61.40	18.86	57.03	
	5	0.25	4.01	3.62	7.94	12.83	14.46	3.61	0.38	0.06	0.00	47.15	12.80	43.84	
サンマ弁当	1	0.27	1.60	1.38	2.67	2.45	2.18	0.76	0.12	0.00	0.00	11.44	2.58	10.83	
	2	0.33	0.80	0.94	1.50	1.27	1.31	0.38	0.08	0.00	0.00	6.59	1.56	6.23	
	3	0.57	1.77	1.45	2.09	2.05	2.85	1.15	0.24	0.04	0.00	12.20	3.00	11.42	
	4	1.46	3.71	3.26	4.37	4.15	3.17	0.81	0.07	0.00	0.00	21.00	4.01	20.01	
	5	2.10	4.31	2.99	4.03	3.56	2.22	0.49	0.00	0.00	0.02	19.72	3.07	19.07	
白身魚フライ弁当	1	0.46	5.11	1.62	2.22	1.42	1.17	0.46	0.07	0.00	0.00	12.53	1.54	12.20	
	2	0.39	2.33	0.94	2.13	1.80	1.92	0.59	0.10	0.00	0.00	10.20	2.11	9.74	
	3	0.66	1.16	1.33	1.65	1.22	0.80	0.14	0.02	0.00	0.00	6.97	1.06	6.75	
	4	0.21	2.28	2.09	2.48	1.44	1.13	0.33	0.04	0.01	0.00	10.02	1.60	9.63	
	5	1.22	4.24	2.78	3.39	2.05	1.58	0.52	0.08	0.01	0.00	15.86	2.73	15.45	

1) ND=0として計算

2) 主菜となる魚介類に基づき分類

3) PCB 28, 52, 101, 138, 153, 180の合計値



付表 3 弁当試料(全体)からの PCBs 摂取量<sup>1)</sup>

													(ng/食)		
弁当の種類 <sup>2)</sup>	No.	MoCBs	DiCBs	TrCBs	TeCBs	PeCBs	HxCBs	HpCBs	OcCBs	NoCBs	DeCB	総PCBs	6PCBs <sup>3)</sup>	NDL-PCBs	
ウナギ弁当	1	1.36	15.76	12.25	30.56	54.03	80.18	27.62	3.96	0.46	0.47 <sup>2)</sup>	226.64	75.97	207.67	
	2	1.24	2.71	5.64	17.61	32.41	48.90	18.03	2.89	0.41	0.23	130.07	45.55	119.72	
	3	0.65	3.05	7.95	32.06	66.03	89.93	34.27	4.50	0.66	4.84	243.95	86.24	225.39	
	4	1.28	20.59	20.64	57.87	89.28	84.27	21.36	3.00	0.64	0.45	299.36	97.95	269.32	
	5	1.95	4.13	31.48	115.26	219.85	261.78	83.14	11.28	1.54	0.75	731.16	260.06	661.83	
サケ弁当	1	0.58	3.50	4.56	11.27	17.36	23.11	9.14	1.53	0.17	0.06	71.30	21.51	66.82	
	2	0.90	3.03	23.10	59.64	78.44	58.90	12.58	1.31	0.17	0.08	238.15	70.50	220.76	
	3	0.23	2.55	4.07	12.52	20.82	26.38	10.04	1.72	0.28	0.14	78.75	25.43	73.32	
	4	6.91	7.78	5.57	9.58	17.04	24.19	8.83	1.35	0.21	0.07	81.54	22.95	76.07	
	5	0.80	5.40	10.43	24.06	38.70	43.65	14.83	2.10	0.23	0.13	140.33	46.38	130.24	
サバ弁当	1	0.96	5.16	29.97	106.16	286.48	536.75	170.81	21.93	2.21	1.15	1161.57	441.03	1072.39	
	2	1.27	5.41	48.84	215.53	478.04	752.33	290.77	31.80	2.24	0.59	1826.81	607.54	1697.76	
	3	0.78	6.37	24.12	73.27	176.93	273.87	90.23	9.91	1.06	0.51	657.05	221.54	605.65	
	4	0.61	3.06	20.57	72.41	136.98	171.45	53.44	5.04	0.38	0.12	464.08	144.89	431.41	
	5	0.61	8.22	44.38	151.74	286.92	357.65	95.18	9.24	1.16	0.38	955.49	304.69	881.56	
サンマ弁当	1	0.65	5.92	28.69	53.30	56.43	40.49	8.65	0.91	0.11	0.06	195.22	52.31	184.01	
	2	0.50	2.36	10.38	21.50	26.06	19.39	4.28	0.47	0.06	0.04	85.04	23.31	79.72	
	3	0.84	5.38	29.14	57.10	69.33	54.03	14.19	1.82	0.29	0.16	232.27	66.30	217.27	
	4	1.93	8.99	42.54	68.40	71.31	47.38	10.46	0.84	0.11	0.05	252.00	63.00	238.55	
	5	10.29	10.22	38.77	55.42	59.98	42.76	9.38	0.80	0.13	0.09	227.83	61.52	214.66	
白身魚フライ弁当	1	1.10	6.88	2.82	4.51	4.42	4.04	1.47	0.25	0.04	0.03	25.56	4.80	24.40	
	2	0.64	3.57	2.07	4.62	4.93	4.88	1.36	0.23	0.03	0.01	22.33	5.51	21.09	
	3	1.13	2.53	5.62	18.24	37.89	45.84	14.80	1.87	0.22	0.11	128.26	38.90	118.07	
	4	0.29	3.35	2.82	3.72	2.88	2.09	0.52	0.07	0.02	0.00	15.76	3.01	15.03	
	5	1.39	4.64	3.24	4.58	4.84	6.17	2.44	0.32	0.05	0.01	27.67	6.66	26.33	

1) ND=0として計算

2) 主菜となる魚介類に基づき分類

3) PCB 28, 52, 101, 138, 153, 180の合計値

付表 4 健康食品からの PCBs 摂取量 <sup>1)</sup>

No.	(ng/day)													
	MoCBs	DiCBs	TrCBs	TeCBs	PeCBs	HxCBs	HpCBs	OcCBs	NoCBs	DeCB	総PCBs	6PCBs <sup>2)</sup>	NDL-PCBs	
1	DHA含有精製魚油加工食品	0.003	0.011	0.001	0.006	0.015	0.034	0.036	0.012	0.004	0.002	0.124	0.038	0.116
2	EPA含有精製魚油加工食品	0.005	0.020	0.006	0.043	0.059	0.049	0.024	0.008	0.002	0.001	0.217	0.048	0.202
3	EPA・DHA含有精製魚油配合食品	0.002	0.019	0.001	0.014	0.015	0.026	0.025	0.011	0.004	0.004	0.121	0.030	0.114
4	EPA・DHA含有精製魚油・ $\alpha$ -リノレン酸含有シソ油配合食品	0.017	0.227	0.100	0.105	0.094	0.086	0.044	0.010	0.003	0.001	0.689	0.106	0.667
5	DHA含有精製魚油加工食品	0.002	0.014	0.001	0.007	0.008	0.010	0.016	0.008	0.004	0.006	0.076	0.014	0.072
6	EPA含有精製魚油加工食品	0.003	0.010	0.001	0.005	0.007	0.007	0.006	0.002	0.000	0.000	0.042	0.009	0.040
7	精製魚油加工食品	0.002	0.151	0.004	0.026	0.117	0.589	0.358	0.071	0.011	0.003	1.332	0.594	1.286
8	精製魚油加工食品	0.000	0.027	0.049	0.346	1.444	5.200	3.324	0.718	0.056	0.012	11.176	4.350	10.598
9	EPA含有精製魚油加工食品	0.011	0.016	0.002	0.027	0.149	0.693	0.530	0.095	0.008	0.009	1.540	0.673	1.471
10	DHA・EPA含有精製魚油加工食品	0.005	0.025	0.010	0.054	0.096	0.189	0.138	0.041	0.011	0.008	0.577	0.185	0.540
11	DHA・EPA含有精製魚油加工食品	0.005	0.021	0.006	0.034	0.041	0.036	0.020	0.007	0.004	0.002	0.176	0.040	0.166
12	DHA含有精製魚油加工食品	0.004	0.025	0.007	0.039	0.053	0.066	0.106	0.052	0.016	0.010	0.377	0.099	0.357
13	EPA・DHA含有食品	0.007	0.037	0.003	0.027	0.027	0.018	0.006	0.004	0.001	0.000	0.129	0.018	0.123
14	DHA・EPA含有精製魚油加工食品	0.005	0.050	0.003	0.034	0.081	0.217	0.125	0.026	0.004	0.002	0.546	0.183	0.513
15	ドコサヘキサエン酸加工食品	0.004	0.029	0.002	0.021	0.051	0.099	0.064	0.019	0.006	0.005	0.300	0.088	0.280
16	EPA含有精製魚油含有食品	0.011	0.036	0.002	0.026	0.030	0.022	0.007	0.001	0.001	0.000	0.137	0.023	0.130
17	EPA含有精製魚油加工食品	0.004	0.033	0.023	0.095	0.182	0.310	0.172	0.056	0.009	0.003	0.888	0.287	0.828
18	DHA、EPA含有加工食品	0.003	0.019	0.001	0.009	0.019	0.048	0.091	0.059	0.012	0.003	0.265	0.070	0.256
19	DHA・EPA含有食品	0.002	0.045	0.033	0.035	0.072	0.193	0.163	0.063	0.011	0.004	0.621	0.192	0.583
20	DHA含有精製魚油加工食品	0.000	0.002	0.002	0.011	0.025	0.053	0.034	0.015	0.006	0.004	0.151	0.045	0.140
21	DHA含有加工食品	0.001	0.029	0.018	0.016	0.013	0.025	0.024	0.008	0.003	0.001	0.138	0.034	0.133
22	EPA含有加工食品	0.002	0.018	0.001	0.006	0.008	0.004	0.000	0.000	0.000	0.000	0.039	0.004	0.039
23	精製魚油含有食品	0.003	0.042	0.009	0.024	0.029	0.129	0.372	0.299	0.050	0.005	0.961	0.243	0.939
24	DHA含有精製魚油加工食品	0.002	0.020	0.009	0.029	0.080	0.212	0.136	0.033	0.008	0.005	0.533	0.185	0.496
25	DHA・EPA含有精製魚油加工食品	0.001	0.045	0.017	0.058	0.275	0.833	0.527	0.118	0.022	0.012	1.908	0.710	1.763

1) ND=0として計算

2) PCB 28, 52, 101, 138, 153, 180の合計値

付表 4 健康食品からの PCBs 摂取量<sup>1)</sup> (つづき)

													(ng/day)	
No.		MoCBs	DiCBs	TrCBs	TeCBs	PeCBs	HxCBs	HoCBs	OcCBs	NoCBs	DeCB	総PCBs	6PCBs <sup>2)</sup>	NDL-PCBs
26	DHA含有精製魚油加工食品	0.002	0.032	0.001	0.012	0.017	0.025	0.015	0.004	0.002	0.001	0.111	0.021	0.103
27	DHA・EPA含有精製魚油加工食品	0.000	0.009	0.001	0.007	0.042	0.132	0.087	0.024	0.005	0.003	0.310	0.109	0.289
28	精製魚油加工食品	0.066	0.211	0.029	0.062	0.074	0.147	0.188	0.115	0.021	0.002	0.915	0.195	0.883
29	DHA・EPA含有精製魚油加工食品	0.000	0.003	0.001	0.013	0.045	0.155	0.138	0.046	0.008	0.003	0.413	0.138	0.395
30	精製魚油加工食品	0.002	0.078	0.021	0.040	0.031	0.053	0.121	0.064	0.019	0.013	0.442	0.102	0.424
31	EPA・DHA含有精製魚油加工食品	0.002	0.046	0.013	0.017	0.009	0.011	0.012	0.004	0.001	0.000	0.113	0.018	0.111
32	DHA・EPA含有精製魚油加工食品	0.000	0.102	0.037	0.058	0.069	0.175	0.167	0.093	0.017	0.007	0.725	0.193	0.698
33	スクアレン加工食品	0.003	0.005	0.002	0.235	1.337	4.983	5.378	1.838	0.398	0.113	14.293	5.656	13.361
34	深海鮫精製肝油加工食品	0.006	0.034	0.044	0.472	3.084	20.277	13.993	3.646	0.561	0.067	42.183	19.071	41.641
35	スクワレン加工食品	0.004	0.031	0.046	0.467	3.688	23.993	17.794	4.657	0.691	0.090	51.461	22.174	50.897
36	深海鮫精製肝臓エキス食品	0.001	0.043	0.015	0.091	0.196	1.195	2.895	1.687	0.461	0.075	6.660	2.179	6.337
37	鮫肝油精製油含有食品	0.001	0.024	0.004	0.050	0.156	0.938	2.234	1.056	0.236	0.073	4.772	1.703	4.521

1) ND=0として計算

2) PCB 28, 52, 101, 138, 153, 180の合計値

## Ⅱ. 分担研究報告書

(1) 食品の塩素化ダイオキシン類、PCB、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

(1-5) 魚介類を主菜とする一食分試料(弁当類)及び魚油を原料とする  
健康食品からのハロゲン系難燃剤の摂取量調査

研究分担者 堤 智昭

## 令和3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のための研究

### 分担研究報告書

(1)食品の塩素化ダイオキシン類、PCB、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

(1-5)魚介類を主菜とする一食分試料(弁当類)及び魚油を原料とする健康食品からのハロゲン系難燃剤の摂取量調査

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

本研究は、国内で購入した一食分試料(弁当類)及び健康食品の分析を通じて、塩素系難燃剤であるデクロラン類及び臭素系難燃剤であるヘキサブromシクロデカン(HBCDs)、ポリ臭素化ジフェニルエーテル(PBDEs)の摂取量調査を目的とした。デクロラン類は Dechlorane 602、Dechlorane 603、Dechlorane 604、Dechlorane Plus (*syn-*、*anti-*)、Chlordene Plus 及び Dechlorane の7種類、HBCDs は $\alpha$ 、 $\beta$ 及び $\gamma$ の3種類、PBDEs は3~10 臭素化体の35種類を調査対象とした。一食分試料(弁当類)として、主菜に魚介類(ウナギ、サケ、サバ、サンマ、白身フライ)を含む弁当類各5種の合計25種類の製品を購入した。また、健康食品として、魚油(精製魚油や鮫肝油)を原料とする健康食品計37製品を購入した。それぞれ、一食(一日)分の重量から、ハロゲン系難燃剤の一食(一日)当たりの摂取量を求めた。

弁当類について、HBCDs の一食当たりの摂取量は、平均値が18 ng/食、中央値が13 ng/食、範囲が0~82 ng/食であった。デクロラン類の一食当たりの摂取量は、平均値が2 ng/食、中央値が2 ng/食、範囲が0~7 ng/食であった。PBDEs の一食当たりの摂取量は、平均値が20 ng/食、中央値が7 ng/食、範囲が0~132 ng/食であった。一食あたりの摂取量を各々の有害性評価値または参照用量(RfD)と比較したところ、HBCDs の摂取量は最大0.003%、Dechlorane の摂取量は最大で0.07%、PBDEs の摂取量は最大5.3%であった。

健康食品について、HBCDs の一日当たりの摂取量は、平均値が0.8 ng/day、中央値が0.4 ng/day、範囲が0~3.3 ng/day であった。デクロラン類の一食当たりの摂取量は、平均値が0.3 ng/day、中央値が0 ng/day、範囲が0~3.3 ng/day であった。PBDEs の一日当たりの摂取量は、平均値が0.6 ng/day、中央値が0 ng/day、範囲が0~6 ng/day であった。一日あたりの摂取量を各々の有害性評価値または参照用量(RfD)と比較したところ、HBCDs の摂取量は最大0.0001%、Dechlorane の摂取量は最大で0.03%、PBDEs の摂取量は最大0.2%であった。

## 研究協力者

福岡県保健環境研究所

飛石和夫、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及び難燃効果に優れることから、プラスチック製品の添加剤として幅広く使用されている。一方、ハロゲン系難燃剤の一部には残留性が高く、環境汚染物質として規制されているものが含まれている。

ハロゲン系難燃剤の中で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(HBCDs)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、長距離移動性が懸念されている。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(図 1-1 及び 1-2)。また、マーケットバスケット(MB)方式で調製した トータルダイエット(TD) 試料の分析を通じたこれまでの摂取量推定の結果から、臭素系難燃剤は主に 10 群(魚介類)試料から検出されることが示されている<sup>1)2)</sup>。

一方、塩素系難燃剤の Mirex(別名 Dechlorane、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 1978 年に製造が禁止された Dechlorane の代替品として、Dechlorane Plus (DP)、Dechlorane 602 (Dec 602)、Dechlorane 603 (Dec 603) 及び Dechlorane 604 (Dec 604) や、Dechlorane の類縁化合物である Chlordene Plus (CP)が知られており、デクロラン類と総称する(図 1-3)。Dechlorane Plus には *syn* 体と *anti* 体の 2 種異性体 (*syn*-DP 及び *anti*-DP)が存在する(なお本研究では、*syn*-DP、*anti*-DP の各異性体を意図した場合はDPsとして表記し、製品を意図した場合は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<sup>3)4)</sup>。DP はアメリカの OxyChem 社と中国の Anpon 社によって生産されており、DP の生産量は 4,500 t 以上と推定されているが<sup>5)6)</sup>、DP の生産量や使用量に関する最近の情報は限られている。Dec 602、Dec 603、Dec 604 及び CP の生産量や使用状況についても詳細は不明であるが、国内外において様々な環境媒体からこれらのデクロラン類が検出されている<sup>7)8)9)</sup>。しかし、食品の汚染実態や経口摂取量の報告は少ない。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<sup>10) 11)</sup>。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かった。

このような背景から、2013年の厚生労働科学研究において国内で購入した魚介類試料中のDPs分析を行った<sup>12) 13)</sup>。また2014-2015年は対象化合物を拡大し、北部九州地域で調製したトータルダイエット(TD)試料中のデクロラン類の分析を行い、一日摂取量の推定を試行した<sup>14) 15) 16)</sup>。さらに2016-2019年の3年間にわたり、全国で調製されたTD試料の分析を通じ、デクロラン類による汚染実態の把握を試みるとともに平均摂取量の推定を行ったところである<sup>17)</sup>。

上記の調査結果から、ハロゲン系難燃剤は魚介類からの摂取量が比較的多いと考えられた。一方、TD試料による調査では国民健康・栄養調査の食品消費量の平均に基づいた摂取量推定となっていることから、個人の嗜好を反映した摂取量は把握できない。近年、調理加工済みの「中食」の利用や、健康志向の高まりに伴い「健康食品」の利用が増加している。そこで本研究では、魚介類を主菜とした一食分試料(弁当類)及び魚油を原料とした健康食品からのハロゲン系難燃剤の摂取量調査を行った。

## B. 研究方法

### 1. 試料・試薬等

#### 1-1. 試料

##### (1) 魚介類を主菜とした弁当類

2019年9-10月に国内のスーパーマーケット及び商業施設(a~1の12施設)で魚介類を主菜とする弁当類を購入して調査試料とした。なお、購入した弁当類は本分担研究報告書(3-1. 魚介類を主菜とする一食分試料(弁当類)及び魚油を原料とする健康食品からのポリ塩化ビフェニルの摂取量調査)で調査した弁当類と同一である。

弁当類の主菜の内訳は、ウナギ、サケ、サバ、サンマ、白身フライであって、一食分として販売されていた各5種類、合計25の商品を購入した。一商品につき同一のものを3~4個購入し試料とした。一食分試料(弁当類)の内訳及び脂肪重量を表1-1に示した。

弁当の内容物を、魚介類部分とそれ以外(米飯等、以下、その他部分)に分け、各々をフードプロセッサーやハンドミキサーを使用して均一化した。使用した食品については、可食部のみを対象とし均一化した。均一化の際に加水は行わなかった。試料は-20℃の冷凍庫で保管し、分析時に解凍して使用した。

##### (2) 魚油を原料とする健康食品

2021年7-9月に国内のドラッグストア及びインターネット(A~AAの27販売者など)で魚油を原料とする健康食品の計37製品(精製魚油32製品、鮫精製肝油5製品)を購入して調査試料とした。なお、購入した健康食品は本分担研究報告書(3-1. 魚介類を主菜とする一食分試料(弁当類)及び魚油を原料とする健康食品からのポリ塩化ビフェニルの摂取量調査)で調査した製品と同一である。健康食品の内訳及び脂肪重量を表1-2に示した。

## 1-2. 標準物質

Dechlorane (ネイティブ体と<sup>13</sup>C<sub>10</sub>-ラベル体)及びDec 602 (<sup>13</sup>C<sub>10</sub>-ラベル体)の各標準溶液は Cambridge Isotope 社製を、CP 及び DPs の各種標準溶液は Wellington Laboratories 社製を、Dec 602、Dec 603 及び Dec 604 の各標準物質は Santa Cruz 社製を使用した。これらをノナンで適宜希釈・混合し分析に用いた。シリンジスパイクには Wellington Laboratories 社製の<sup>13</sup>C<sub>12</sub>-PentaCB 111 を使用した。

PBDEs の測定では、Wellington Laboratories 社製 PBDEs 混合標準液 BFR-CVS、およびクリーンアップスパイクとして BFR-LCS を用いた。また、シリンジスパイクとして BFR-ISS を用いた。

HBCDs の測定では、Wellington Laboratories 社製 $\alpha$ -、 $\beta$ -、 $\gamma$ -HBCD 標準品、およびクリーンアップスパイクとして<sup>13</sup>C<sub>12</sub>ラベル化 $\alpha$ -、 $\beta$ -、 $\gamma$ -HBCD を用いた。また、シリンジスパイクとして、 $\gamma$ -HBCD-*d*<sub>18</sub>を用いた。各異性体をアセトニトリルで適宜希釈・混合して分析に用いた。

## 1-3. 試薬及び器材

アセトン、*n*-ヘキサン、シクロヘキサン、トルエン、ジクロロメタン、ノナン、エタノール、塩化ナトリウム、硫酸ナトリウム(無水)、蒸留水(ヘキサン洗浄品)は関東化学社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。LC/MS 用のアセトニトリル及び蒸留水は関東化学社製を用いた。フルバリネート標準品は富士フィルム和光純薬社製の残留農薬試験用を、44%硫酸シリカゲルはダイオキ

シン類分析用をそれぞれ用いた。酢酸アンモニウムは富士フィルム和光純薬社製の HPLC 用を、硫酸及び塩酸は有害金属測定用を使用した。珪藻土はバイオタージジャパン社製の ISOLUTE HM-N を用いた。ガラス器具類は予めアセトン、ヘキサンですすいで洗浄し、十分に乾燥させたものを使用した。

## 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 は Thermo Fisher Scientific 社製の TRACE 1310/Double Focusing Sector Mass Spectrometer を使用した。表 2-1 に示す条件でデクロラン類を、表 2-2 に示す条件で PBDEs を測定した。

### 2-2. 液体クロマトグラフ・タンデム四重極型質量分析計 (LC-MS/MS)

LC-MS/MS は Waters 社製の Acquity UPLC H-Class Plus Binary/Xevo TQ-XS を用いた。表 2-3 に示す条件で HBCDs を測定した。

### 2-3. 高速溶媒抽出装置

高速溶媒抽出(ASE)には Thermo Fisher Scientific 社製の ASE-350 を使用した。抽出条件は下記の通りとした。

セル温度:100℃、セル圧力:1500 psi、加熱時間:5 分、静置時間:10 分、抽出サイクル数:2、抽出溶媒:ジクロロメタン/ヘキサン(1:3)



## 2-4. ゲル浸透クロマトグラフ

ゲル浸透クロマトグラフ (GPC) の装置構成、使用条件等は下記の通りであった。

ポンプおよびデガッサーは、島津製作所製の LC-10ADVP および DGU-12A を使用した。PDA 検出器は GL サイエンス社製の GL-7452 を使用し、210 nm の吸光度をモニターした。カラムオーブンは GL サイエンス社製の CO 705 を使用し、カラム温度を 40°C に設定した。カラムは、昭和電工社製の CLNpak EV-G AC + EV-2000 AC を使用し、移動相としてアセトン/シクロヘキサン (3:7) を用いて、流速を 5 mL/min に設定した。各試料は移動相と同じ組成の溶液 5 mL に定容し、その内の 2 mL をサンプルループ方式にて GPC 装置に注入した。

## 3. 実験操作

弁当類中のハロゲン系難燃剤の分析フローを図 2-1、健康食品中の分析フローを図 2-2 に示した。両者は試料の特性上、抽出方法が異なり、弁当類の抽出には凍結乾燥-高速溶媒抽出を用い、健康食品の抽出には、塩酸分解-液・液抽出を行った。抽出液の定容後の操作は同一である。

### (1) 魚介類を主菜とした弁当類の抽出操作

弁当類は、魚介類部分及びその他部分、それぞれ約 10 g をビーカーに精秤し、珪藻土 10 g とよく混合した後、凍結乾燥を行った。凍結乾燥した試料を珪藻土と共に ASE 抽出用セル (99 mL) に充填し、高速溶媒抽出を行った。抽出液を濃縮した後、ジクロロメタン 5 mL を加え、ヘキサンで 20 mL に定容し試料

液を調製した。

(2) 魚油を原料とする健康食品の抽出操作  
健康食品 (被包材含む) は、それぞれ約 1 g をビーカーに精秤し、蒸留水 55 mL および濃塩酸 5 mL を加え、45°C に加温しながら被包材が溶解するまで超音波 (180 W) で分解した。分解物を 300 mL 分液ロートに移し、蒸留水 40 mL、エタノール 50 mL、ヘキサン 60 mL、ジクロロメタン 20 mL、塩化ナトリウム 20g を加えて 5 分間振とう抽出を行った。ヘキサン層を無水硫酸ナトリウムにて脱水、濃縮後、ジクロロメタン 5 mL を加え、ヘキサンで 20 mL に定容し試料液を調製した。

### (3) 試料中の脂肪含量の測定

20 mL に定容した抽出液を一部分取し、濃縮乾固して得られた残渣の重量から脂肪含量 (w/w, %) を求めた。健康食品についても弁当類と同様に脂肪含量 (w/w, %) を求めた。

### (4) 試料の精製

試料液 5 mL を分取し、クリーンアップスパイク ( $^{13}\text{C}_{10}$ -Dechlorane、 $^{13}\text{C}_{10}$ -Dec 602、 $^{13}\text{C}_{10}$ -*anti*-DP、 $^{13}\text{C}_{10}$ -*syn*-DP、BFR-LCS を各 250 pg 相当、 $\alpha$ -、 $\beta$ -、 $\gamma$ - $^{13}\text{C}_{12}$ -HBCD を各 5000 pg 相当) を添加した後、硫酸処理を行った。

続いて、GPC 装置を用いて精製を行った。ハロゲン系難燃剤の溶出画分として指標物質フルバリネート溶出後 20 分 (注入後 12 分~32 分) を分取した。得られた画分を減圧濃縮して、*n*-ヘキサン 1 mL に転溶した後、44% 硫酸シリカゲルカラムに負荷し、30% ジクロロメタン/*n*-ヘキサン 8 mL で溶出した。溶出液を窒素気流下で濃縮乾固し、0.1 mL アセトニトリル溶液

(シリンジスパイクとして、 $^{13}\text{C}_{12}$ -PentaCB 111、BFR-ISS を各 100 pg、 $\gamma$ -HBCD- $d_{18}$  を 2000 pg 含む)としたものを測定試料とした。

## C. 研究結果及び考察

### 1. 試料の脂肪含量

弁当類について、魚介類部分 25 検体の脂肪含量は平均 18% (10~28%)、その他部分は平均 1.9% (0.1~5.1%) となった(表 1-1)。

健康食品 37 検体の脂肪含量は平均 67% (58~74%) であった(表 1-2)。

### 2. 健康食品中のハロゲン系難燃剤の分析法

本年度、健康食品中のハロゲン系難燃剤の分析のために新たに抽出法の検討を行った。健康食品は被包材(ゼラチン等)を有するため、主としてこれらを分解するために塩酸分解して抽出した。蒸留水にクリーンアップスパイクとしてラベル化された HBCD、デクロラン類及び PBDEs を添加し、対応するシリンジスパイクを用いて回収率の評価を行った。

抽出液を定容し、分取する際にクリーンアップスパイクを添加することとしたため、回収率の評価は、塩酸分解・抽出～定容間と定容～測定間の 2 工程で行った。

その結果、抽出～定容間の回収率の平均は、HBCDs で 114 %、デクロラン類で 96 %、PBDEs で 99 % であった。また、定容～測定間の回収率の平均は、HBCDs で 99 %、デクロラン類で 83 %、PBDEs で 85 % と良好であった。

健康食品中のハロゲン系難燃剤を図 2-2 に従い分析した。HBCDs の LC-MS/MS 測定クロマトグラムを図 3-1 及び図 3-2 に示した。妨

害ピークは認められず、良好に異性体分離したクロマトグラムが得られた。また、デクロラン類の HRGC/HRMS 測定クロマトグラムを図 4-1 及び図 4-2 に、PBDEs の HRGC/HRMS 測定クロマトグラムを図 5-1～図 5-6 に示した。これらのクロマトグラム上に妨害物の影響は認められず、デクロラン類及び PBDEs のピーク形状も良好であった。

### 3. 一食分試料(弁当類)の魚介類部分におけるハロゲン系難燃剤濃度

一食分試料(弁当類の魚介類部分) 25 検体のハロゲン系難燃剤の分析結果(湿重量当たり濃度)を表 3-1 に示した。なお、各分析対象物の検出下限値は、標準品のクロマトグラムの S/N=3 に相当する濃度から換算した。

HBCDs の試料中合計濃度の範囲は、自身フライの ND(<10) から、ウナギの 1308 pg/g であった。異性体別にみると、 $\alpha$ -HBCD が ND(<10)~1240 pg/g (20 試料から検出)、 $\beta$ -HBCD が ND(<10)~45 pg/g (6 試料から検出)、 $\gamma$ -HBCD が ND(<10)~498 pg/g (11 試料から検出) であった。全体的に  $\alpha$  体の検出頻度、濃度がともに高く、これは過去の測定事例と同様の傾向であった。他方、サケの一部試料(試料 No.9 及び 10)において、 $\gamma$ -HBCD が  $\alpha$ -HBCD よりも高濃度に検出される異なった傾向も認められた。

デクロラン類の試料中合計濃度の範囲は、サケの ND(<1) から、ウナギの 73 pg/g であった。このうち、Dechlorane は検出頻度(23 試料から検出)及び濃度が共に高く、自身フライの一部試料(試料 No.22 及び 24)を除き、合計値

に対して占める割合が最も高かった(63～100%)。

PBDEsの試料中同族体合計濃度の範囲は、自身フライのND(<10)から、サバの895 pg/gであった。異性体別に見ると、TriBDE-17(6試料から検出、以下検出した試料数のみ表記)、TriBDE-28(15試料)、TetraBDE-49(18試料)、TetraBDE-47(24試料)、TetraBDE-66(5試料)、PentaBDE-100(15試料)、PentaBDE-119(4試料)、PentaBDE-99(6試料)、HexaBDE-154(9試料)、HexaBDE-153(5試料)、DecaBDE-209(7試料)が検出された。また、DecaBDE-209、TetraBDE-47及びTetraBDE-49に関しては、比較的高い濃度で検出される試料が認められた。魚中のTetraBDE-47については、検出頻度及び濃度が高く、主要な異性体であることが報告されており<sup>11)</sup>、本研究においても同様の傾向が認められた。また、7～8 臭素化体はほとんどの試料でNDであった。

ハロゲン系難燃剤の濃度を弁当の種類ごとに比べると、自身フライにおける濃度はいずれのハロゲン系難燃剤においても比較的到低値であった。

#### 4. 一食分試料(弁当類)のその他部分におけるハロゲン系難燃剤濃度

一食分試料(弁当類のその他部分)25検体のハロゲン系難燃剤の分析結果(湿重量当たり濃度)を表3-2に示した。

HBCDsの分析の結果、 $\alpha$ -、 $\beta$ -、 $\gamma$ -HBCDのいずれもND(<10 pg/g)であった。これは過去に実施したMB方式を用いた摂取量

調査において、HBCDsが10群(魚介類)のみから検出されている結果<sup>2)</sup>と一致した。

デクロラン類は3試料から検出され、濃度はND(<1)～3 pg/g(合計値)であった。自身フライ弁当1試料から*anti*-DP、サバ弁当1試料からDec604、サケ弁当1試料からDechloraneがそれぞれ検出され、異性体の検出の傾向は把握できなかった。これは、その他部分の構成が弁当ごとに異なり、多様であるためと考えられた。

PBDEsは5試料から検出され、濃度はND(<1～10)～299 pg/gであった。検出された異性体はDecaBDE-209のみであった(13～299 pg/g)。サンマ弁当1試料(No.19)のDecaBDE-209濃度が他と比較すると突出して高かった。

今回対象とした弁当類において、弁当のその他部分からハロゲン系難燃剤が検出される割合は、概して低いことが分かった。

#### 5. 健康食品のハロゲン系難燃剤濃度

健康食品37検体のハロゲン系難燃剤の分析結果を表3-3に示した。

HBCDsの試料中濃度はND(<100)～1299 pg/g(合計値)であった。異性体別にみると、 $\alpha$ -HBCDがND(<100)～1198 pg/g(22試料から検出)、 $\beta$ -HBCDは全ての試料でND(<100)、 $\gamma$ -HBCDが101 pg/g(1試料から検出)であった。全体的に $\alpha$ 体の検出頻度、濃度がともに高かった。

デクロラン類濃度は、ND(<10)～1229 pg/g(合計値)であった。デクロラン類のうち、Dechlorane及び*anti*-DPの検出頻度が高か

った。また、鮫肝油(試料 No. 33~37)において Dechlorane と Dechlorane 602 が比較的高濃度で検出された。

PBDEs は 17 試料から検出された(ND(<100)~2049 pg/g)。PBDEs の異性体の中で、DecaBDE-209 が検出頻度・濃度ともに最も高かった。

## 6. 一食分試料(弁当類)におけるハロゲン系難燃剤の摂取量

一食分の重量(表 1-1)をもとに算出した一食当たりのハロゲン系難燃剤の摂取量を表 4-1 に示した。また、一食当たりのハロゲン系難燃剤の摂取量(魚介類部分とその他部分の合計)の統計量について、弁当の種類別にまとめたものを表 4-2、全てをまとめたものを表 4-3 に示した。なお、ND となったハロゲン系難燃剤については、ゼロとして摂取量を算出した。

弁当類一食当たりのハロゲン系難燃剤の摂取量は、ほとんどの試料において魚介類部分からの摂取量割合が大きかったが、PBDEs 摂取量が最大であったサンマ弁当(No.19)においては、その他部分からの摂取量割合が大きかった。当該試料では、その他部分における PBDEs 濃度が比較的高く、かつ一食分重量が魚介類部分より大きいことから、その他部分からの摂取量割合が大きくなった。

弁当の種類別においては、個々の弁当によって摂取量に大きな違いが認められたものの、中央値で比較した場合、サバ弁当の PBDEs 摂取量、ウナギ弁当とサンマ弁当の HBCDs 摂取量が比較的高値であった。他方、

白身魚フライ弁当は総じて摂取量が低い傾向であった。

HBCDs の一食当たりの摂取量は、平均値が 18 ng/食、中央値が 13 ng/食、範囲が 0~82 ng/食であった。有害性評価値(無毒性量 10.2 mg/kg/day を不確実係数 200 で除した値)<sup>18)</sup>と比較を行ったところ、この値に対する HBCDs の一食当たりの摂取量は体重 50 kg の人で最大 0.003%であった。一食当たりの摂取量が最も高かった弁当を、仮に一日に 3 食喫食しても有害性評価値に対する割合は僅か 0.01%であった。

デクロラン類の一食当たりの摂取量は、平均値が 2 ng/食、中央値が 2 ng/食、範囲が 0~7 ng/食であった。デクロラン類の摂取量への寄与が最も高かった Dechlorane の参照用量(RfD、0.0002 mg/kg/day)<sup>19)</sup>と比較したところ、RfD に対するデクロラン類の一食当たりの摂取量は、体重 50 kg の人で最大 0.07%であった。一食当たりの摂取量が最も高かった弁当を、仮に一日に 3 食喫食しても RfD に対する割合は僅か 0.2%であった。

PBDEs の一食当たりの摂取量は、平均値が 20 ng/食、中央値が 7 ng/食、範囲が 0~132 ng/食であった。PBDEs についても HBCDs と同様に有害性評価値(DecaBDE-209 の最小毒性量 0.05 mg/kg/day を不確実係数 1000 で除した値)<sup>20)</sup>と比較を行ったところ、この値に対する PBDEs の一日摂取量は体重 50 kg の人で最大 5.3%であった。一食当たりの摂取量が最も高かった弁当を、仮に一日に 3 食喫食した場合、有害性評価値に対する割合は 15.8%であった。

以上の結果から、魚介類を主菜とする弁当類から摂取するハロゲン系難燃剤による人の健康リスクは低いと考えられる。

## 7.健康食品におけるハロゲン系難燃剤の摂取量

健康食品の一日摂取重量(表 1-2)をもとに算出した、一日当たりのハロゲン系難燃剤の摂取量を表 5-1 に示した。また、一日当たりのハロゲン系難燃剤の摂取量の統計量を表 5-2 に示した。なお、ND となったハロゲン系難燃剤については、ゼロとして摂取量を算出した。

HBCDs の一日当たりの摂取量は、平均値が 0.8 ng/day、中央値が 0.4 ng/day、範囲が 0~3.3 ng/day であった。有害性評価値(無毒性量 10.2 mg/kg/day を不確実係数 200 で除した値)<sup>18)</sup>と比較を行ったところ、この値に対する HBCDs の一日当たりの摂取量は体重 50kg の人で最大 0.0001% であった。

デクロラン類の一日当たりの摂取量は、平均値が 0.3 ng/day、中央値が 0 ng/day、範囲が 0~3.3 ng/day であった。デクロラン類の摂取量への寄与が最も高かった Dechlorane の参照用量(RfD、0.0002 mg/kg/day)<sup>19)</sup>と比較したところ、RfD に対するデクロラン類の一日当たりの摂取量は、体重 50kg の人で最大 0.03% であった。

PBDEs の一日当たりの摂取量は、平均値が 0.6 ng/day、中央値が 0 ng/day、範囲が 0~6 ng/day であった。PBDEs についても HBCDs と同様に有害性評価値(DecaBDE-209 の最小毒性量 0.05 mg/kg/day を不確実係数 1000 で除した値)<sup>20)</sup>

と比較を行ったところ、この値に対する PBDEs の一日摂取量は体重 50kg の人で最大 0.2% であった。

以上の結果から、魚油を原料とする健康食品から摂取するハロゲン系難燃剤による人の健康リスクは低いと考えられる。

## D. 結論

一食分試料(弁当類)及び魚油を原料とする健康食品の分析を通じて、ハロゲン系難燃剤であるデクロラン類、HBCDs 及び PBDEs の摂取量調査を行った。

一食分試料について、HBCDs の一食当たりの摂取量は、平均値が 18 ng/食、中央値が 13 ng/食、範囲が 0~82 ng/食であった。デクロラン類の一食当たりの摂取量は、平均値が 2 ng/食、中央値が 2 ng/食、範囲が 0~7 ng/食であった。PBDEs の一食当たりの摂取量は、平均値が 20 ng/食、中央値が 7 ng/食、範囲が 0~132 ng/食であった。

健康食品について、HBCDs の一日当たりの摂取量は、平均値が 0.8 ng/day、中央値が 0.4 ng/day、範囲が 0~3.3 ng/day であった。デクロラン類の一日当たりの摂取量は、平均値が 0.3 ng/day、中央値が 0 ng/day、範囲が 0~3.3 ng/day であった。PBDEs の一日当たりの摂取量は、平均値が 0.6 ng/day、中央値が 0 ng/day、範囲が 0~6 ng/day であった。

以上の結果から、魚介類を主菜とする弁当類や魚油を原料とする健康食品から摂取するハロゲン系難燃剤による人の健康リスクは低いと考えられる。

## E. 参考文献

- 1) 平成 15 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「食品中臭素化ダイオキシン及びその関連化合物の汚染実態の解明に関する研究」研究分担報告書.
- 2) 平成 22 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」研究分担報告書.
- 3) Betts K.S., A new flame retardant in the air. Environ. Sci. Technol. (2006) 40, 1090-1091.
- 4) 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.
- 5) 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.
- 6) 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.
- 7) 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.
- 8) 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.
- 9) 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.
- 10) 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.
- 11) 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.
- 12) 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.
- 13) 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.

14) 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.

15) 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.

16) 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.

17) 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 ハロゲン系難燃剤の摂取量推定及び食品汚染実態の把握に関する研究」研究分担報告書.

18) 製品含有化学物質のリスク評価 ヘキサブロモシクロドデカン(平成25年10月)、独立行政法人 製品評価技術基盤機構, <https://www.nite.go.jp/data/000010128.pdf> (2022年3月9日閲覧)

19) Integrated Risk Information System (IRIS) Chemical Assessment Summary Mirex;

CASRN 2385-85-5, U.S. Environmental Protection Agency National Center for Environmental Assessment,

[https://cfpub.epa.gov/ncea/iris/iris\\_documents/documents/subst/0251\\_summary.pdf](https://cfpub.epa.gov/ncea/iris/iris_documents/documents/subst/0251_summary.pdf)

(2022年3月9日閲覧)

20) 製品含有化学物質のリスク評価 デカブロモジフェニルエーテル(平成29年9月)、独立行政法人製品評価技術基盤機構, <https://www.nite.go.jp/chem/risk/products/risk-decabde.pdf> (2022年3月9日閲覧)

## F. 研究発表

### 1. 論文発表

1. Sato T, Tobiishi K, Hori T, Tsutsumi T, Matsui T, Akiyama H: Exposure to hexabromocyclododecanes from boxed sushi, *Organohalogen Compounds*, 2021 (in press).
2. Tobiishi K, Sato T, Hori T, Tsutsumi T, Akiyama H: Exposure to polybrominated diphenyl ethers through boxed sushi, *Organohalogen Compounds*, 2021 (in press).

### 2. 学会発表

1. 飛石 和大, 佐藤 環, 堀 就英, 堤 智昭, 穂山 浩, 食品中のハロゲン系難燃剤の一斉分析法の検討: 第29回環境化学討論会(豊中市, WEBハイブリッド開催), 2021年6月1~3日.
2. Sato T, Tobiishi K, Hori T, Tsutsumi T, Matsui T, Akiyama H: Exposure to

- hexabromocyclododecanes from boxed sushi, 41st International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (DIOXIN 2021), Tianjin, China & Web, 8-11 November 2021.
3. Tobiishi K, Sato T, Hori T, Tsutsumi T, Akiyama H: Exposure to polybrominated diphenyl ethers through boxed sushi, 41st International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (DIOXIN 2021), Tianjin, China & Web, 8-11 November 2021.
  4. 佐藤 環, 飛石和大, 堀 就英, 松井利郎, 堤 智昭, 穂山 浩: 市販の調理済み食品(寿司弁当類)からの塩素系難燃剤デクロラン類の摂取量調査, 第 117 回食品衛生学会学術講演会(WEB 開催), 2021 年 10 月 26~11 月 9 日.



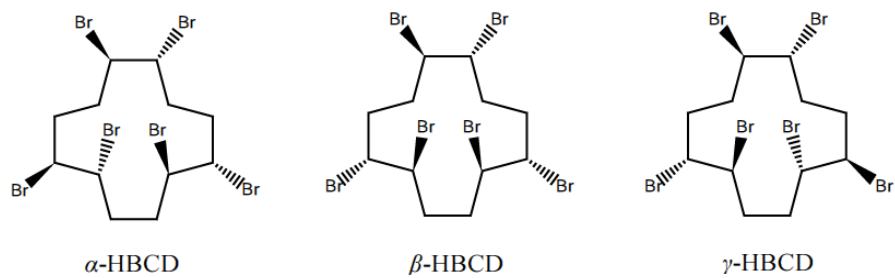


図 1-1 ヘキサブロモシクロデカン(HBCDs)の化学構造

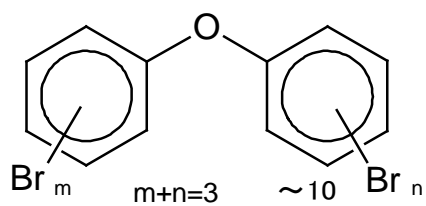
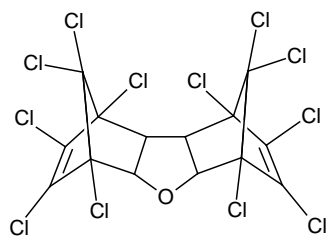
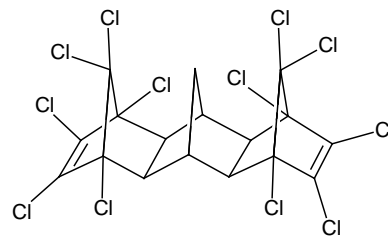


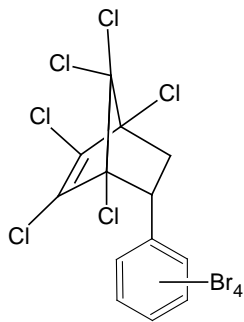
図 1-2 ポリ臭素化ジフェニルエーテル(PBDEs)の化学構造



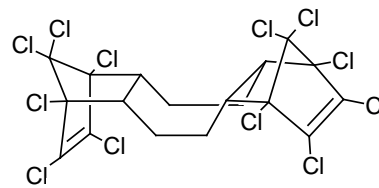
Dechlorane 602



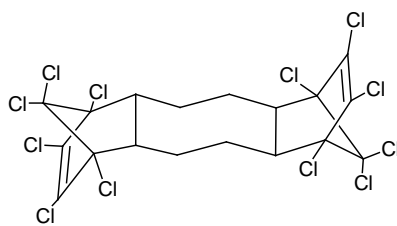
Dechlorane 603



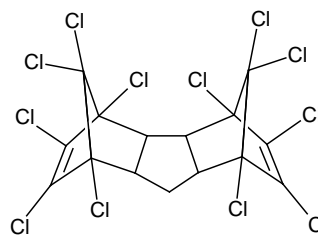
Dechlorane 604



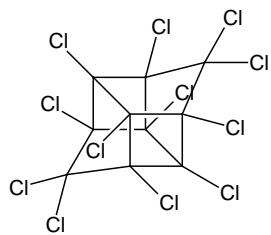
*syn*-Dechlorane Plus



*anti*-Dechlorane Plus



Chlordene Plus



Dechlorane (Mirex)

図 1-3 デクロラン類の化学構造

表 1-1 一食分試料(弁当類)の内訳及び脂肪重量

弁当の種類 <sup>1)</sup>	No.	魚介類を使った食品	一食分重量 (g) <sup>2)</sup>		脂肪重量(%)		購入店
			魚介類使用	その他	魚介類使用	その他	
ウナギ弁当	1	ウナギ蒲焼き	62	229	21.7	0.2	b
	2	ウナギ蒲焼き	84	348	24.9	5.1	e
	3	ウナギ蒲焼き	124	277	15.4	0.1	h
	4	ウナギ蒲焼き	124	239	15.3	0.2	k
	5	ウナギ蒲焼き	83	267	20.1	0.1	l
サケ弁当	6	焼きサケ	63	247	22.0	1.0	a
	7	焼きサケ、おかか	83	241	9.7	0.3	c
	8	焼きサケ	34	267	11.2	2.5	f
	9	焼きサケ、エビフライ	71	384	13.0	4.2	i
	10	焼きサケ、ちくわ磯辺揚げ、明太子	81	319	11.3	2.2	l
サバ弁当	11	煮サバ	73	286	24.9	0.9	d
	12	焼きサバ	107	242	19.8	0.4	c
	13	焼きサバ、エビかき揚げ	53	335	28.2	2.6	f
	14	焼きサバ	48	186	23.3	1.2	g
	15	焼きサバ	99	320	23.0	1.7	j
サンマ弁当	16	サンマ蒲焼き	82	232	21.4	1.5	a
	17	味付サンマ	35	222	16.1	0.4	b
	18	サンマフライ、ちくわ天、明太子	142	282	16.7	3.5	b
	19	焼きサンマ	80	304	26.0	1.9	f
	20	焼きサンマ	71	390	17.7	1.4	i
白身魚フライ弁当	21	白身フライ、ちくわ磯辺揚げ、おかか	69	223	16.7	3.0	a
	22	白身フライ、ちくわ磯辺揚げ	62	306	13.4	4.7	b
	23	白身フライ(タラ)、ちくわ天、おかか	98	228	10.8	0.3	c
	24	白身フライ(タラ)	46	274	16.9	2.9	f
	25	白身フライ(ホキ)、おかか	54	393	20.8	4.6	i

1) 主菜となる魚介類に基づき分類

2) 3~4個の平均値

表 1-2 魚油を原料とする健康食品の内訳及び脂肪重量

試料 No.	名称	販売者 など	一日摂取 重量(mg)*	脂肪重量 (%)
1	DHA含有精製魚油加工食品	A	1320	66.5
2	EPA含有精製魚油加工食品	A	3648	71.8
3	EPA・DHA含有精製魚油配合食品	B	2025	60.5
4	EPA・DHA含有精製魚油・ α-リノレン酸含有シソ油配合食品	B	3060	57.7
5	DHA含有精製魚油加工食品	C	2020	64.7
6	EPA含有精製魚油加工食品	C	1299	66.9
7	精製魚油加工食品	D	1760	64.2
8	精製魚油加工食品	D	2300	62.3
9	EPA含有精製魚油加工食品	E	1610	71.2
10	DHA・EPA含有精製魚油加工食品	F	3066	72.4
11	DHA・EPA含有精製魚油加工食品	G	2700	73.8
12	DHA含有精製魚油加工食品	H	2212	68.2
13	EPA・DHA含有食品	I	4080	67.2
14	DHA・EPA含有精製魚油加工食品	J	3840	71.1
15	ドコサヘキサエン酸加工食品	K	2940	66.8
16	EPA含有精製魚油含有食品	L	4248	65.7
17	EPA含有精製魚油加工食品	M	2170	66.5
18	DHA、EPA含有加工食品	N	2040	63.6
19	DHA・EPA含有食品	O	1800	68.0
20	DHA含有精製魚油加工食品	O	3570	69.3
21	DHA含有加工食品	P	1200	73.3
22	EPA含有加工食品	P	1605	73.2
23	精製魚油含有食品	Q	2700	62.8
24	DHA含有精製魚油加工食品	R	1365	67.0
25	DHA・EPA含有精製魚油加工食品	R	2275	66.1
26	DHA含有精製魚油加工食品	S	2200	66.4
27	DHA・EPA含有精製魚油加工食品	T	1656	59.9
28	精製魚油加工食品	U	2400	64.0
29	DHA・EPA含有精製魚油加工食品	V	2700	63.1
30	精製魚油加工食品	W	3150	61.5
31	EPA・DHA含有精製魚油加工食品	X	1680	63.3
32	DHA・EPA含有精製魚油加工食品	Y	6600	66.3
33	スクアレン加工食品	D	2200	69.2
34	深海鮫精製肝油加工食品	F	2640	71.0
35	スクワレン加工食品	G	2700	72.3
36	深海鮫精製肝臓エキス食品	Z	2736	67.1
37	鮫肝油精製油含有食品	AA	1842	71.7

\* 表示されている一日に摂取する量の目安(粒数表示を重量に換算)

表 2-1 HRGC/HRMS によるデクロラン類の分析条件

GC conditions	
GC	Thermo Fisher Scientific TRACE 1310
Column type	Rtx-1614 (Restek, 0.25mm×15m, 0.1 μm)
Injection	Splitless
Injection volume	1 μL
Injector temperature	280 °C
Carrier gas (Flow rate)	He (1.0 mL/min)
Oven temperature program	120 °C (1 min) – 20 °C/min – 210 °C - 10 °C/min - 300 °C (8.5 min)
MS conditions	
MS	Thermo Fisher Scientific Double Focusing Sector Mass Spectrometer
Ionization mode	EI positive
Electron energy	45 eV
Source temperature	280 °C
Resolution	10,000
Target masses	
Dechlorane, Dec 602, DPs, CP	271.8102, 273.8072
Dec 603	262.8570, 264.8540
Dec 604	419.7006, 417.7026
<sup>13</sup> C <sub>10</sub> -Dechlorane, Dec 602, DPs	276.8269
<sup>13</sup> C <sub>12</sub> -PentaCB 111	337.9207

表 2-2 HRGC/HRMS による PBDEs の分析条件

GC conditions		
GC	Thermo Fisher Scientific TRACE 1310	
Column type	Rtx-1614 (Restek, 0.25mm×15m, 0.1 μm)	
Injection	Splitless	
Injection volume	1 μL	
Injector temperature	280 °C	
Carrier gas (Flow rate)	He (1.0 mL/min)	
Oven temperature program	120 °C (1 min) – 20 °C/min – 210 °C - 10 °C/min - 300 °C (8.5 min)	
MS conditions		
MS	Thermo Fisher Scientific Double Focusing Sector Mass Spectrometer	
Ionization mode	EI positive	
Electron energy	45 eV	
Source temperature	280 °C	
Resolution	10,000	
Target masses		
TriBDE	405.8027, 407.8006	
TetraBDE	485.7111, 483.7132	
PentaBDE	563.6216, 565.6196	
HexaBDE	483.6955, 485.6934	[M-2Br] <sup>+</sup>
HeptaBDE	561.6060, 563.6039	[M-2Br] <sup>+</sup>
OctaBDE	641.5145, 643.5124	[M-2Br] <sup>+</sup>
NonaBDE	719.4250, 721.4230	[M-2Br] <sup>+</sup>
DecaBDE	799.3335, 797.3355	[M-2Br] <sup>+</sup>
<sup>13</sup> C <sub>12</sub> -TriBDE	417.8429	
<sup>13</sup> C <sub>12</sub> -TetraBDE	497.7514	
<sup>13</sup> C <sub>12</sub> -PentaBDE	575.6619	
<sup>13</sup> C <sub>12</sub> -HexaBDE	495.7357	[M-2Br] <sup>+</sup>
<sup>13</sup> C <sub>12</sub> -HeptaBDE	573.6462	[M-2Br] <sup>+</sup>
<sup>13</sup> C <sub>12</sub> -OctaBDE	653.5547	[M-2Br] <sup>+</sup>
<sup>13</sup> C <sub>12</sub> -NonaBDE	731.4652	[M-2Br] <sup>+</sup>
<sup>13</sup> C <sub>12</sub> -DecaBDE	811.3737	[M-2Br] <sup>+</sup>

表 2-3 LC-MS/MS による HBCDs の分析条件

LC conditions	
LC	Waters Acquity UPLC H-Class Plus Binary
Column	Waters Acquity UPLC BEH C18 (2.1×100 mm, 1.7 μm)
Column temperature	40 °C
Injection volume	2 μL
Mobile phase	A: 2mM Ammonium acetate aqueous solution B: Acetonitrile
	0 min            A:B = 45:55
	0 → 8 min     A: 45 → 5, B: 55 → 95, linear gradient
	8 → 14 min    A:B = 5:95
	14 → 15 min   A: 5 → 45, B: 95 → 55, linear gradient
	15 → 20 min   A:B = 45:55
Flow rate	0.2 mL/min
MS condition	
MS	Waters Xevo TQ-XS
Ionization mode	ESI-Negative
Scan type	SRM
Desolvation temperature	400 °C
Capillary voltage	1.0 kV
Cone voltage	20 V
Collision energy	10 eV
SRM transition	
HBCD	638.6 > 78.9 (quantifier ion), 640.6 > 78.9 (qualifier ion)
<sup>13</sup> C <sub>12</sub> -HBCD	650.7 > 78.9 (quantifier ion), 652.7 > 78.9 (qualifier ion)
HBCD- <i>d</i> <sub>18</sub>	658.7 > 78.9

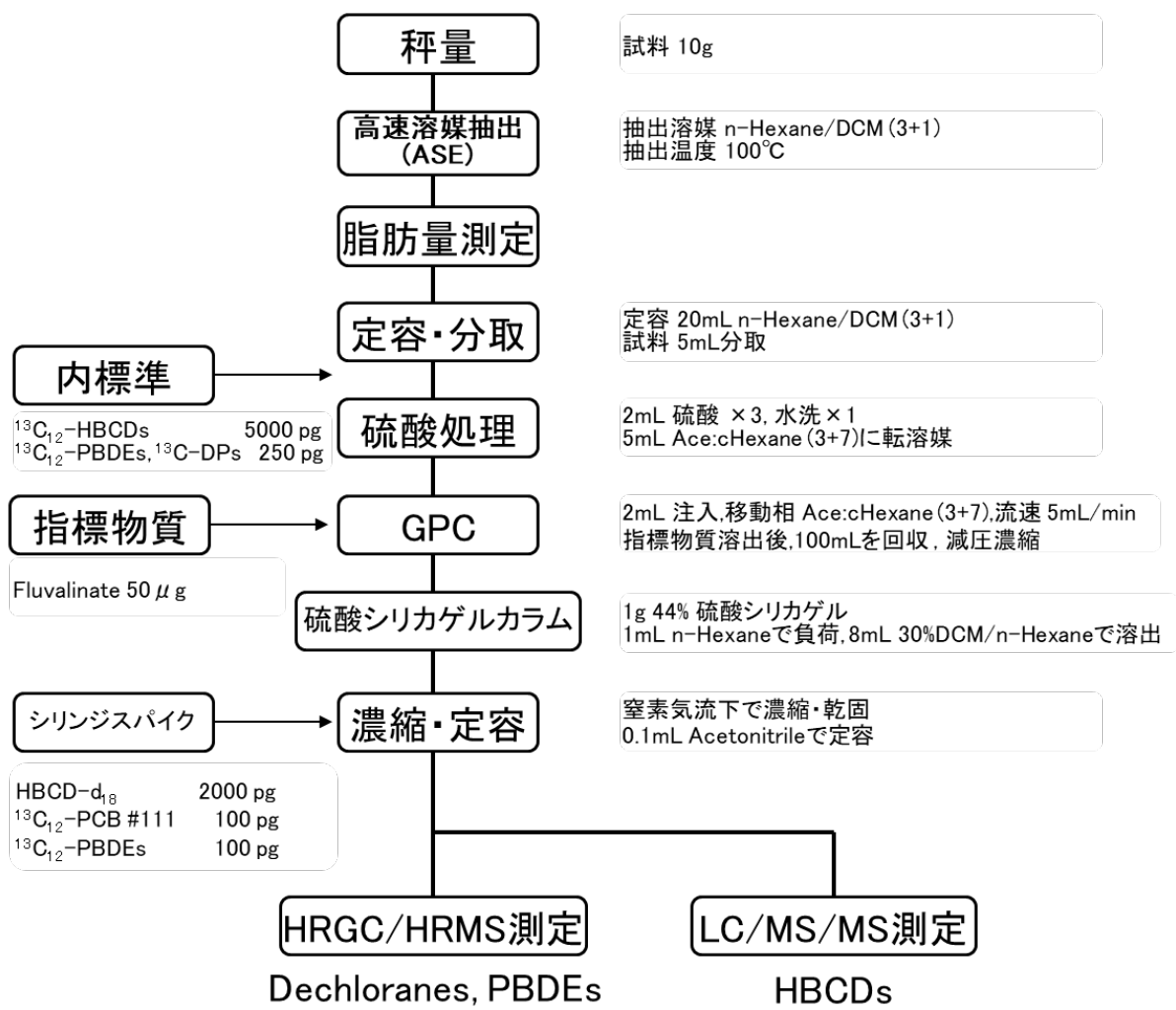


図 2-1 弁当類中のハロゲン系難燃剤の分析フロー



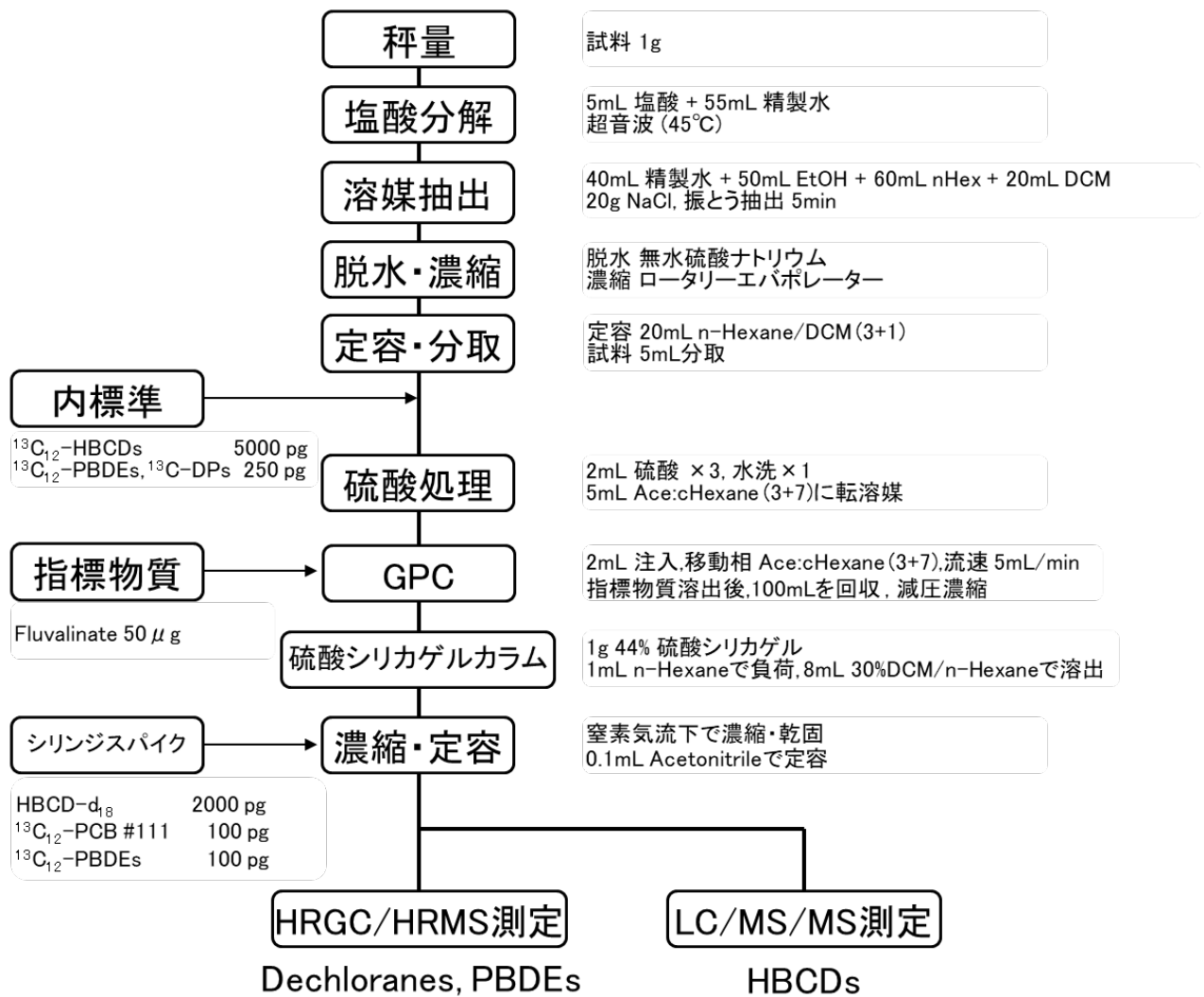


図 2-2 健康食品中のハロゲン系難燃剤の分析フロー

Std 20(20) ng/mL

20210210\_29

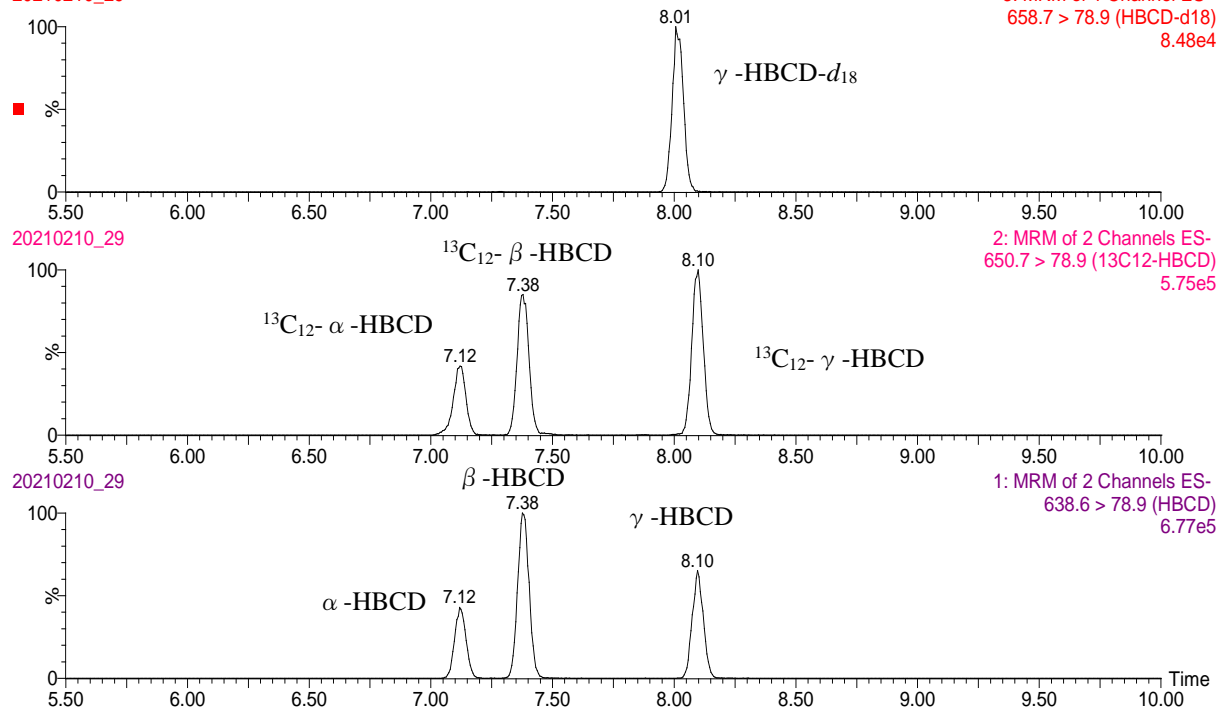
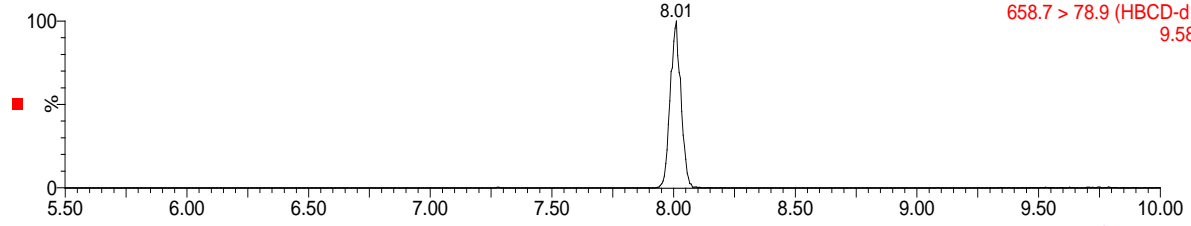


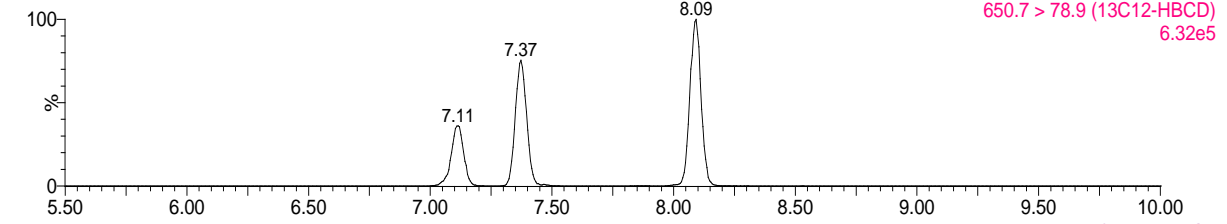
図 3-1 HBCDs の LC-MS/MS 測定クロマトグラム(標準溶液)

2019\_13\_Fish

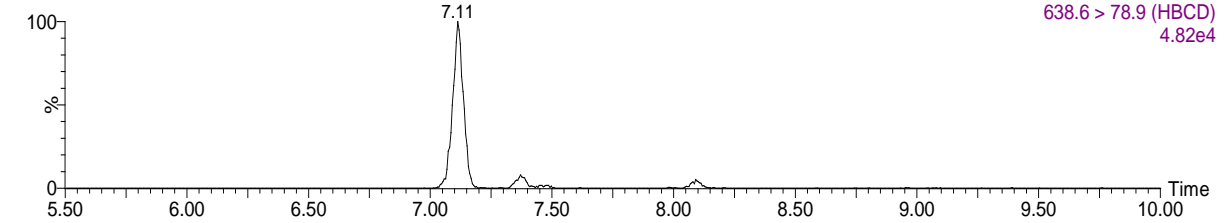
20210210\_65



20210210\_65

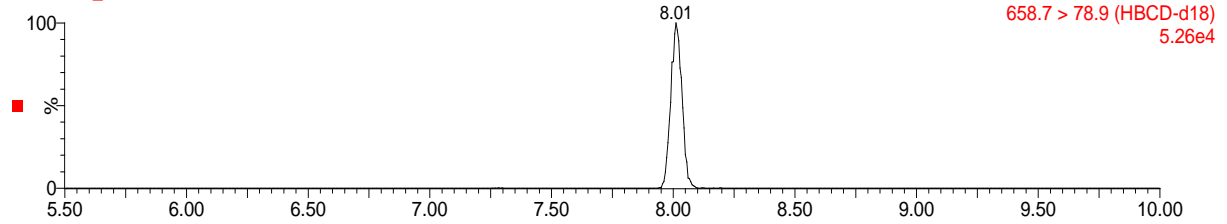


20210210\_65

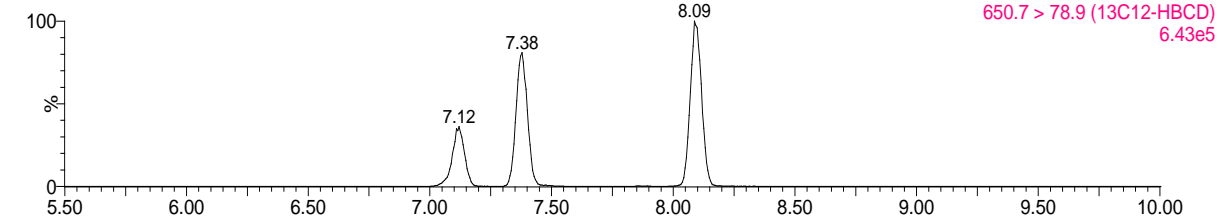


2021\_36

20210301\_25



20210301\_25



20210301\_25

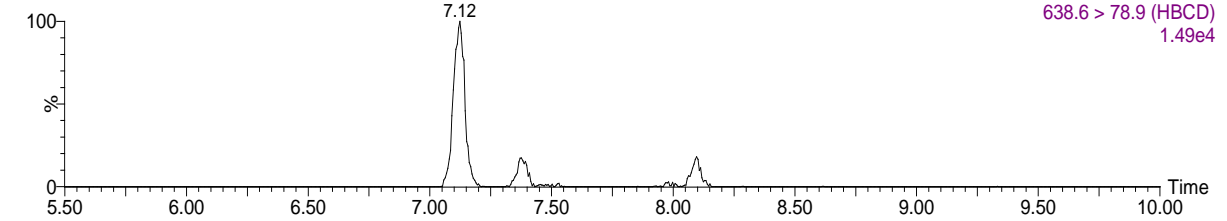


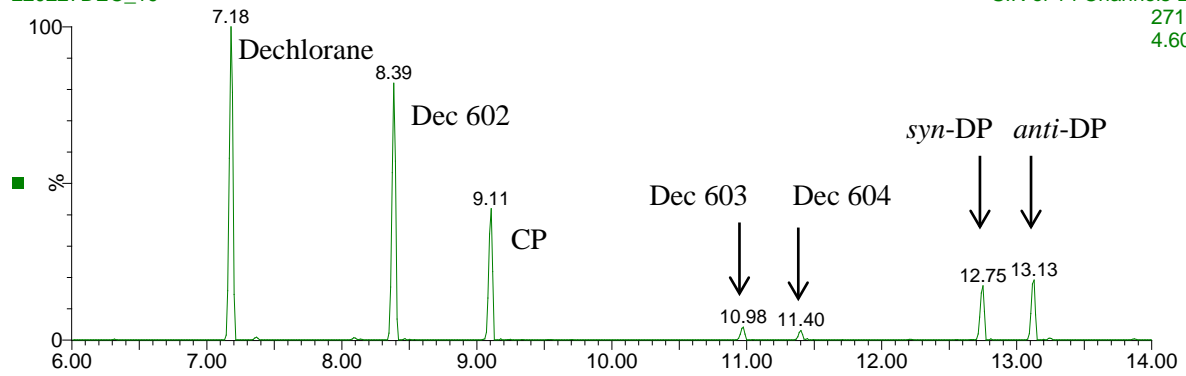
図 3-2 HBCDs の LC-MS/MS 測定クロマトグラム

(上段: 弁当類試料(魚介類部分) No.19、下段: 健康食品試料 No.25)

Std 0.5(0.5) ng/mL / Dechloranes

220227DEC\_19

SIR of 14 Channels EI+  
271.81  
4.60e4



220227DEC\_19

SIR of 14 Channels EI+  
276.827  
4.37e4

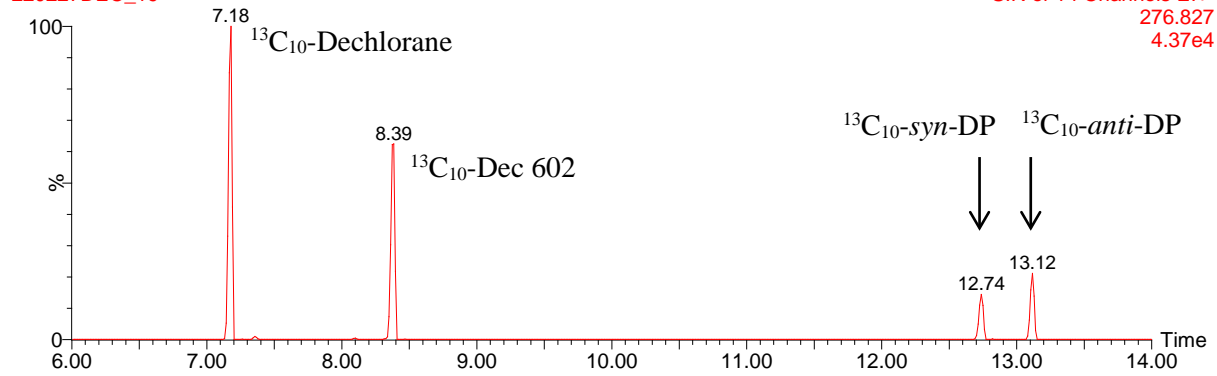
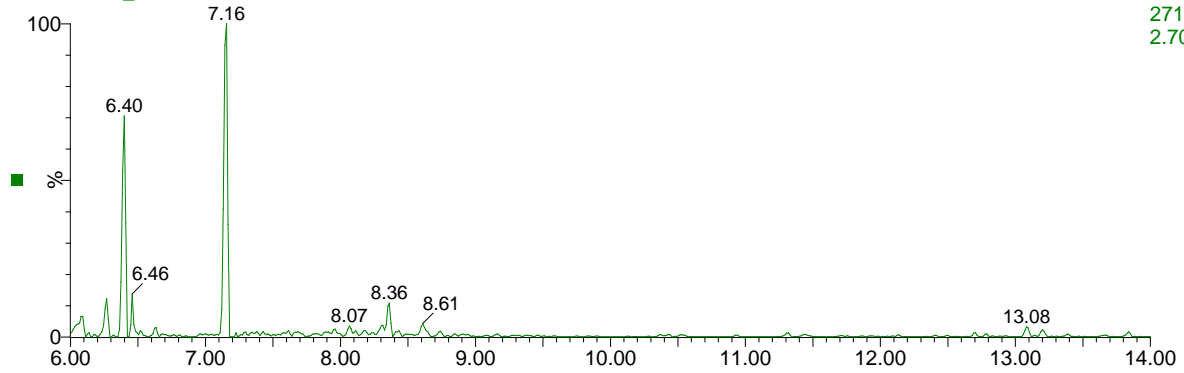


図 4-1 デクロラン類の HRGC/HRMS 測定クロマトグラム(標準溶液)

19-12 Fish / Dechloranes

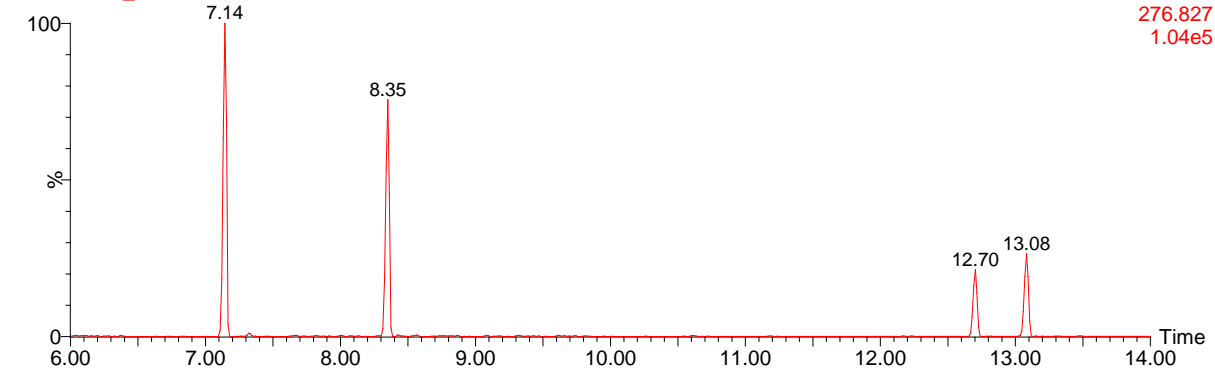
220227DEC\_26

SIR of 14 Channels EI+  
271.81  
2.70e4



220227DEC\_26

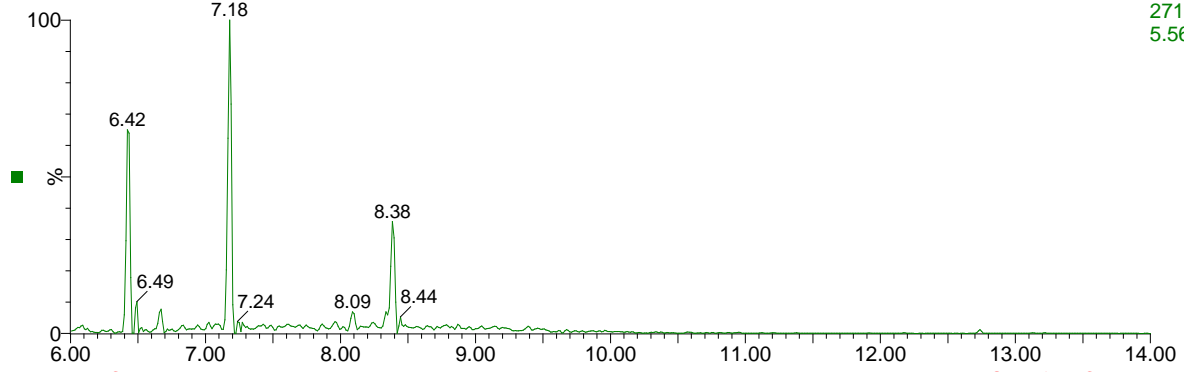
SIR of 14 Channels EI+  
276.827  
1.04e5



21-08 Supplement / Dechloranes

220303DEC\_27

SIR of 14 Channels EI+  
271.81  
5.56e4



220303DEC\_27

SIR of 14 Channels EI+  
276.827  
6.51e4

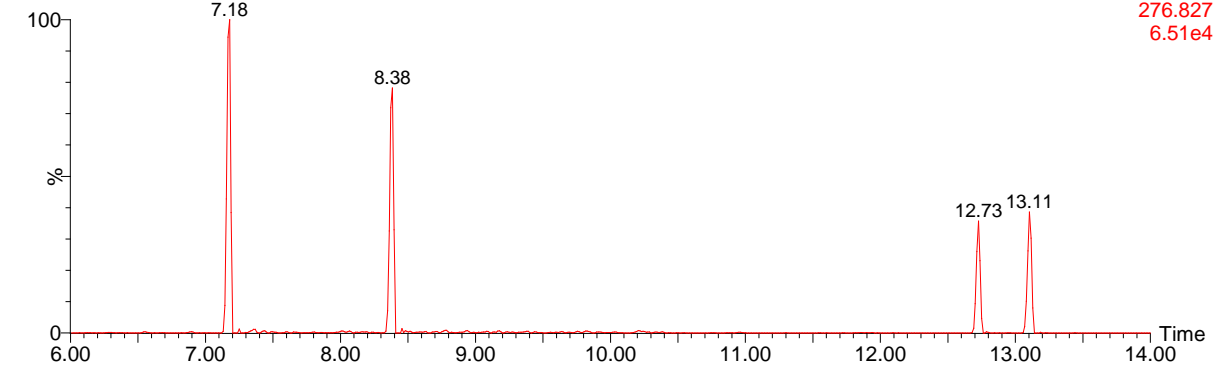


図 4-2 デクロラン類の HRGC/HRMS 測定クロマトグラム  
(上段: 弁当類試料(魚介類部分) No.13、下段: 健康食品試料 No.35)

**BFR CS5 / PBDEs**

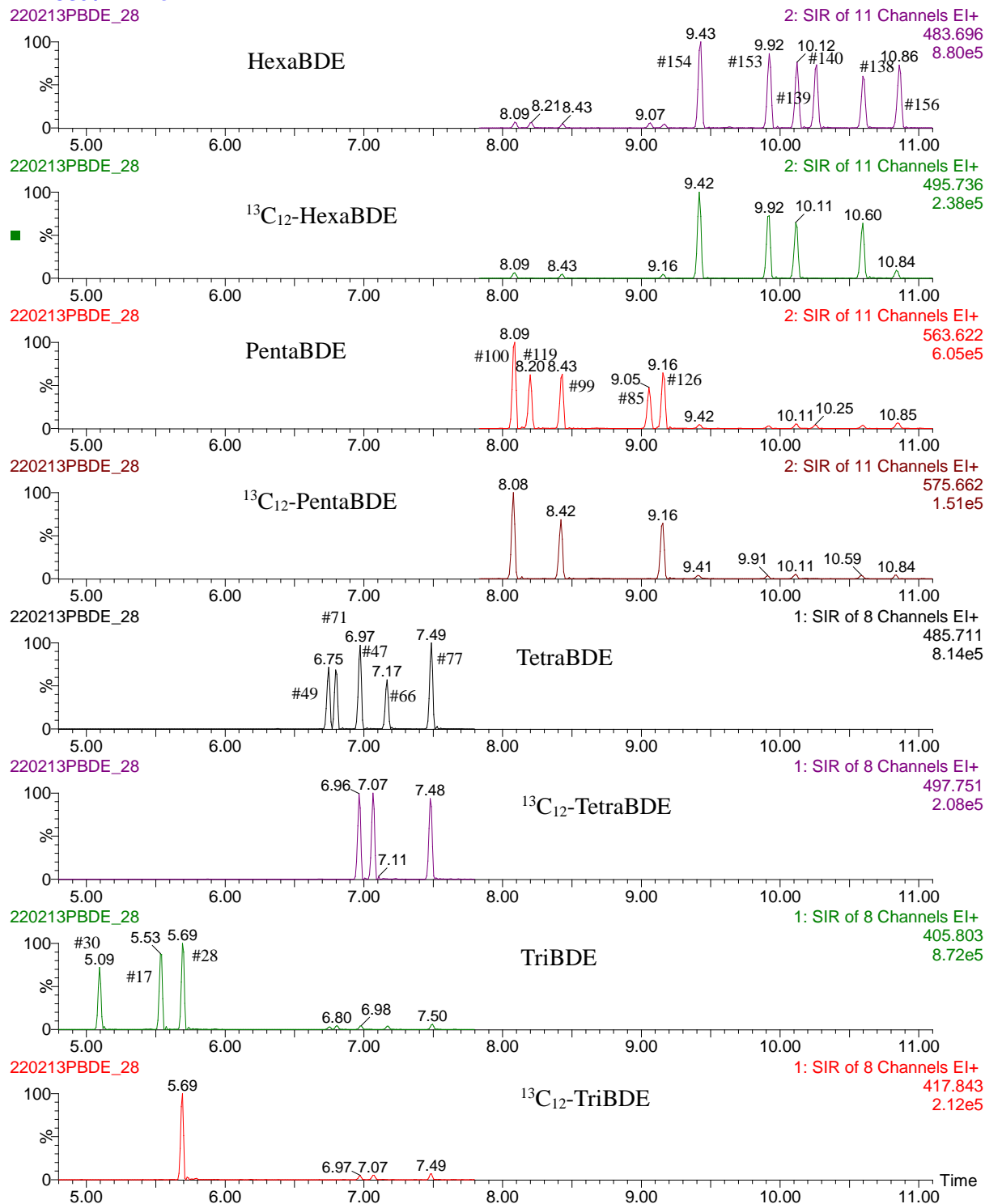
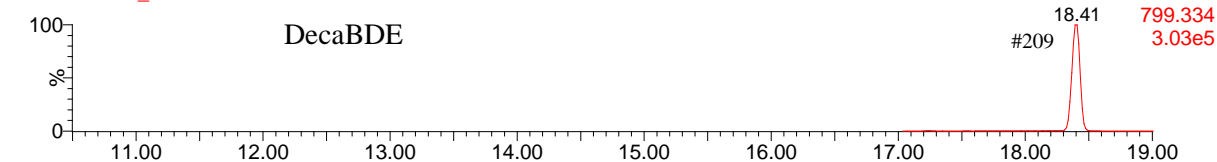


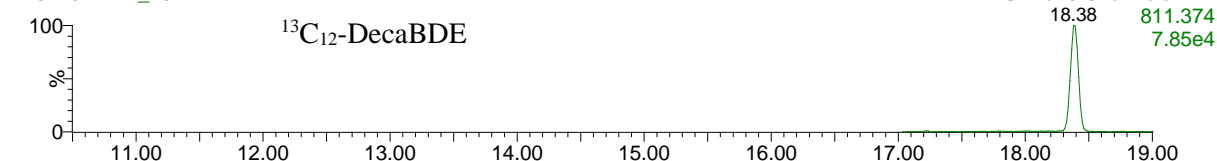
図 5-1 Tri-HexaBDEs標準溶液のHRGC/HRMS測定クロマトグラム

BFR CS5 / PBDEs

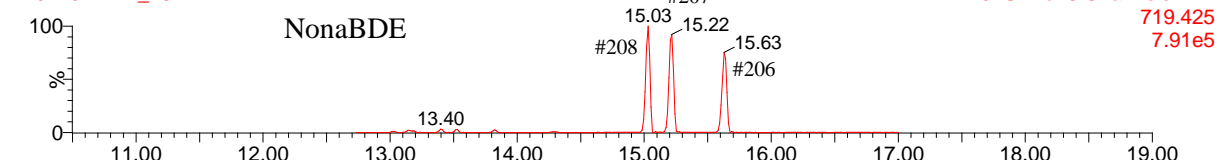
220213PBDE\_28



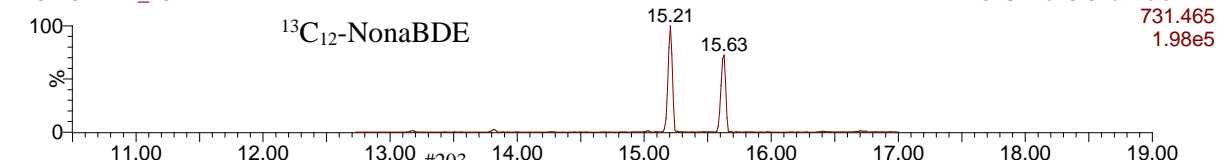
220213PBDE\_28



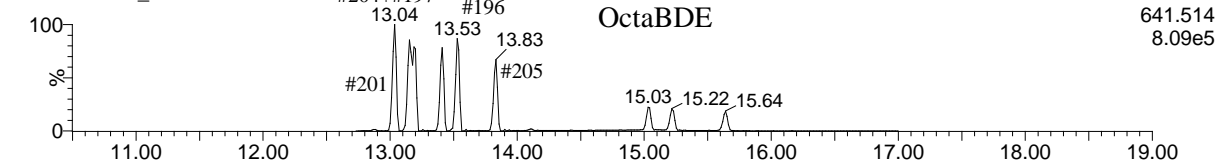
220213PBDE\_28



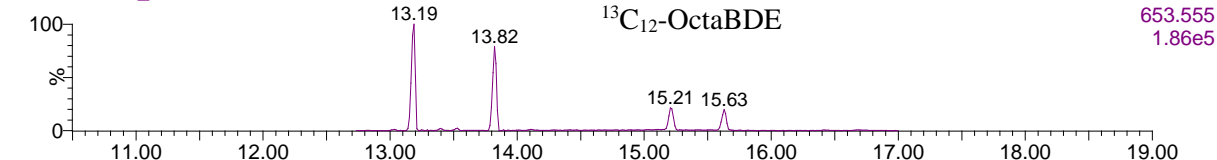
220213PBDE\_28



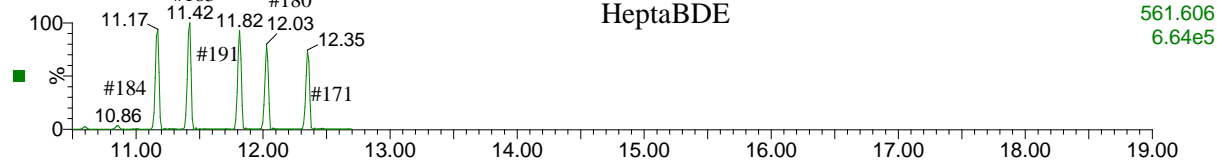
220213PBDE\_28



220213PBDE\_28



220213PBDE\_28



220213PBDE\_28

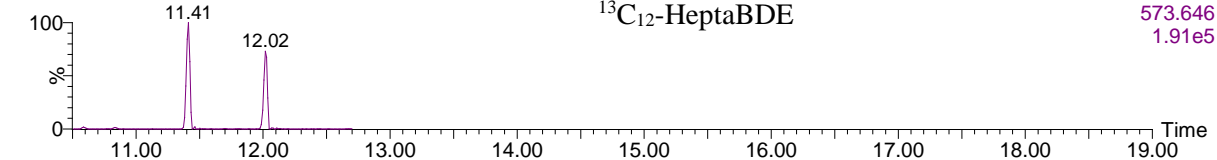
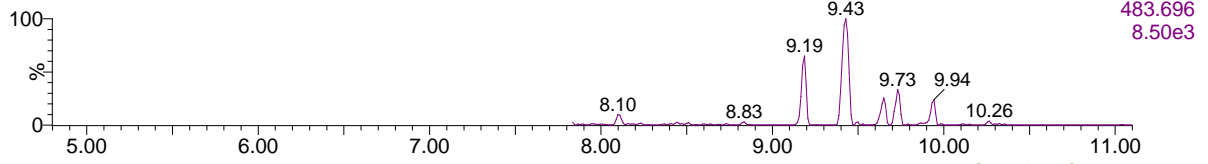


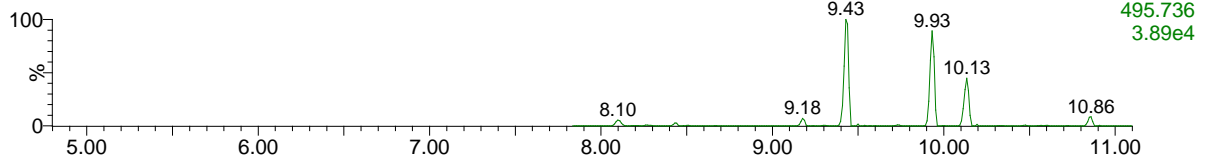
図 5-2 Hepta-DecaBDEs 標準溶液の HRGC/HRMS 測定クロマトグラム

19-12 Fish / PBDEs

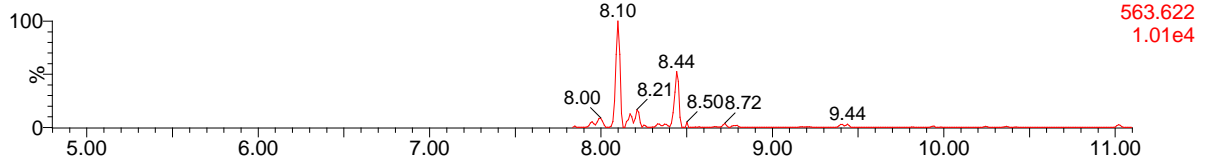
220213PBDE\_23



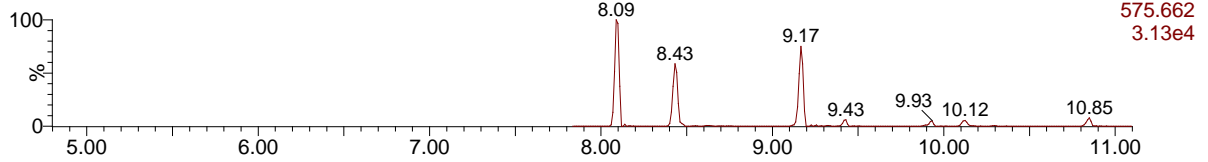
220213PBDE\_23



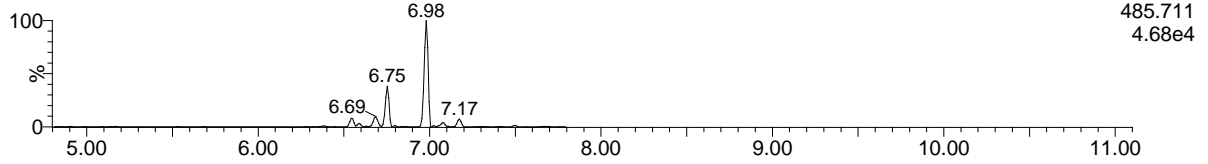
220213PBDE\_23



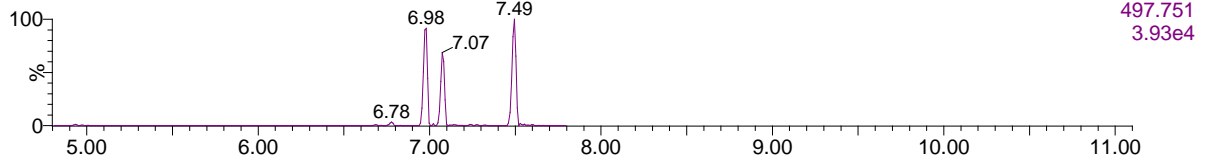
220213PBDE\_23



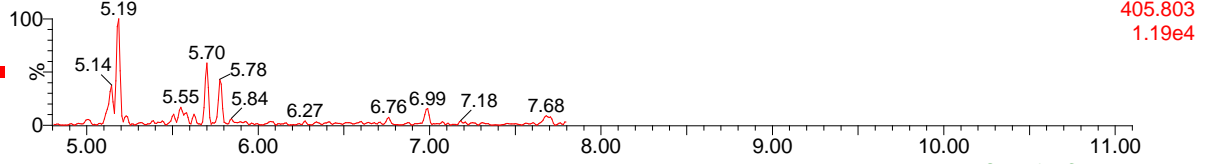
220213PBDE\_23



220213PBDE\_23



220213PBDE\_23



220213PBDE\_23

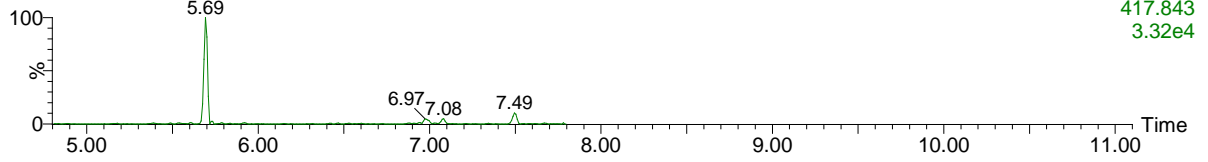
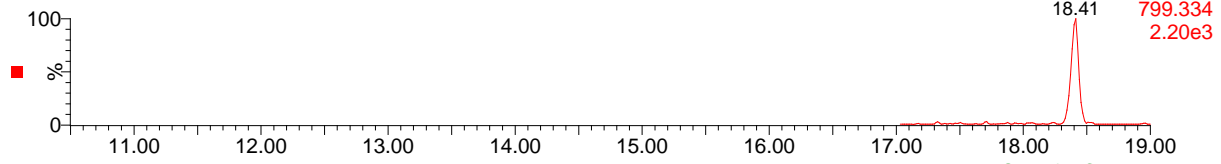


図 5-3 弁当類試料(魚介類部分) No.13 における Tri-HexaBDEs の HRGC/HRMS 測定クロマトグラム

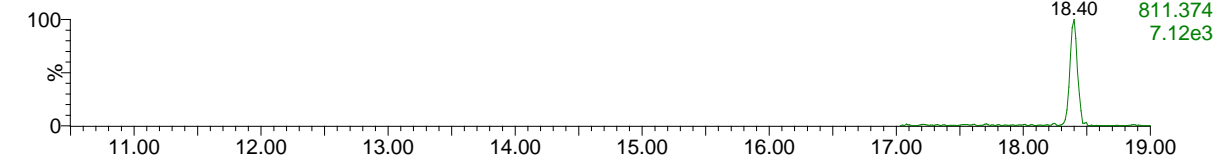


19-12 Fish / PBDEs

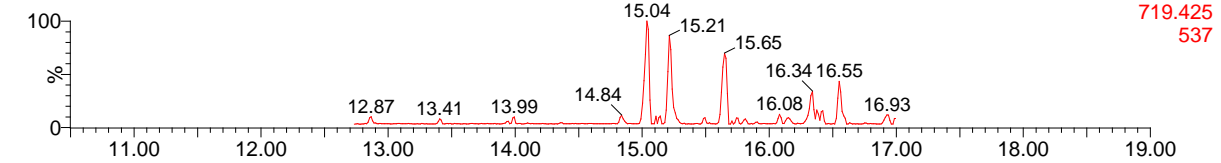
220213PBDE\_23



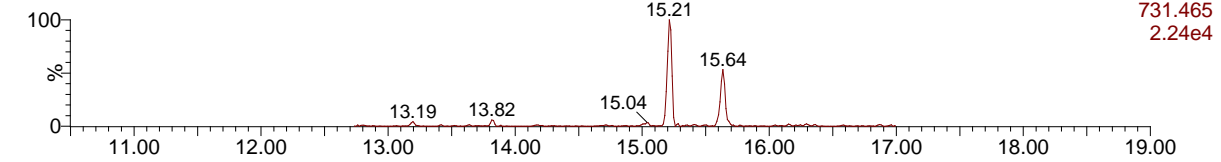
220213PBDE\_23



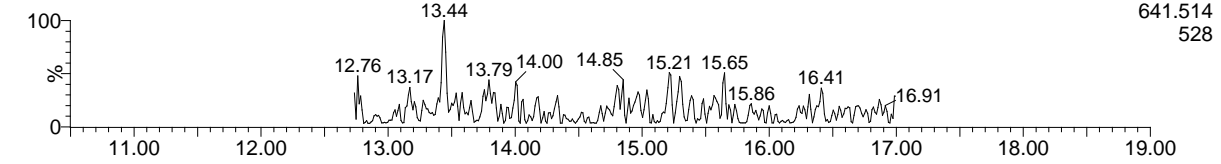
220213PBDE\_23



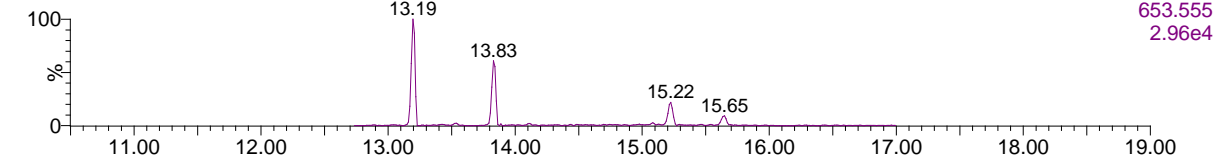
220213PBDE\_23



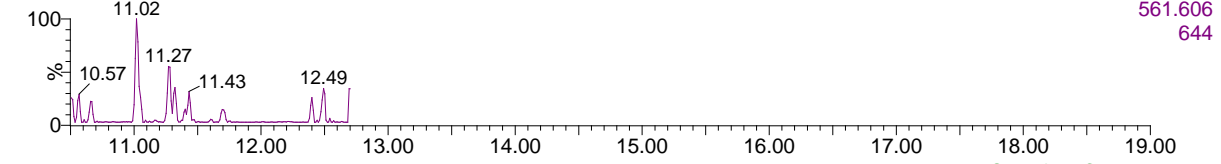
220213PBDE\_23



220213PBDE\_23



220213PBDE\_23



220213PBDE\_23

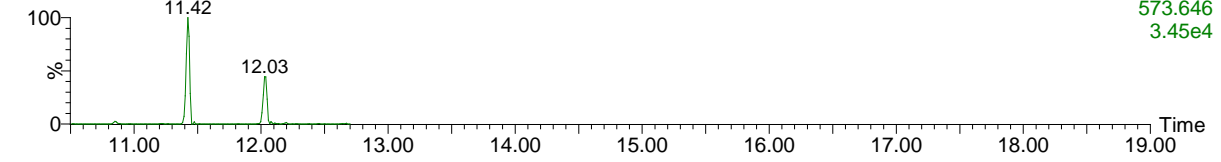


図 5-4 弁当類試料(魚介類部分) No.13 における Hepta-DecaBDEs の HRGC/HRMS 測定クロマトグラム

21-08 / PBDE

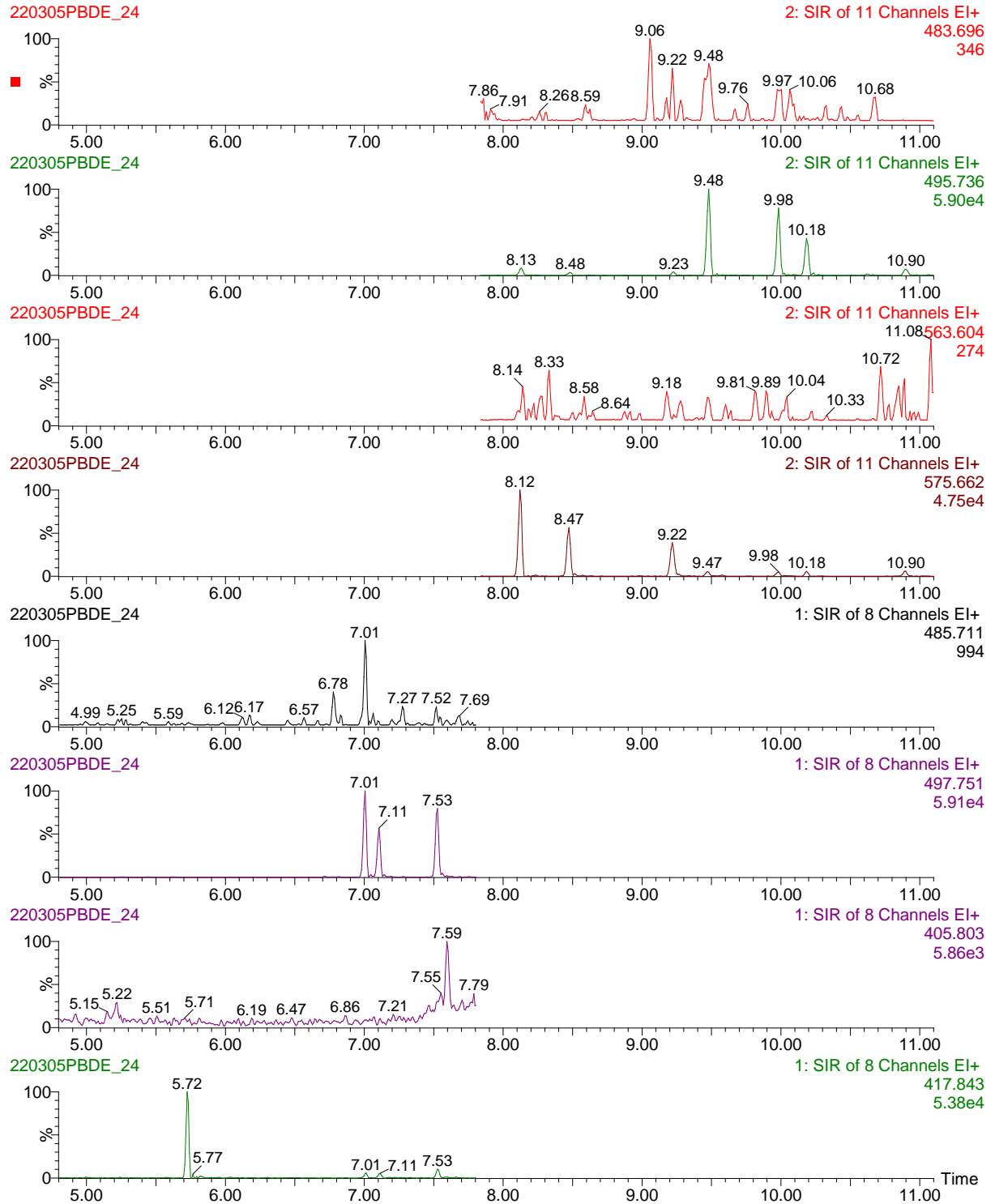
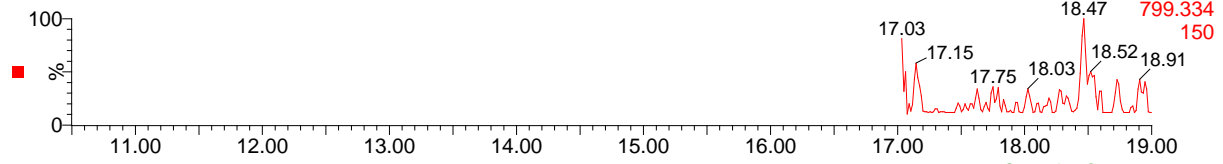


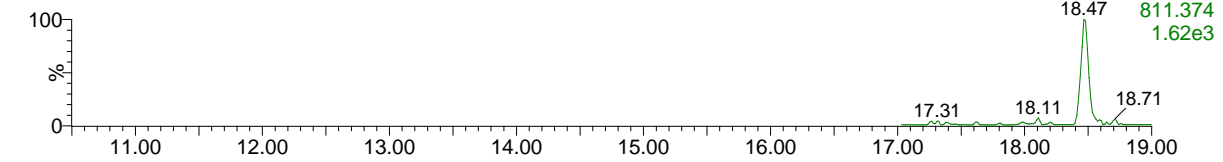
図 5-5 健康食品試料 No. 35 における Tri-HexaBDEs の HRGC/HRMS 測定クロマトグラム

21-08 / PBDE

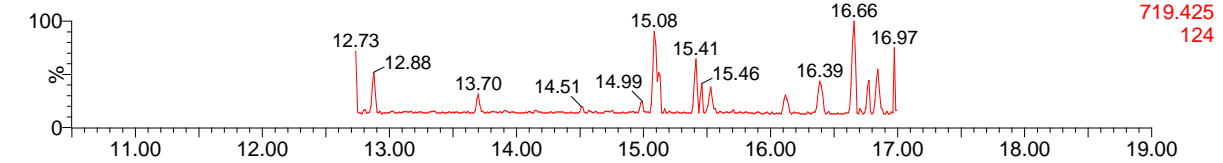
220305PBDE\_24



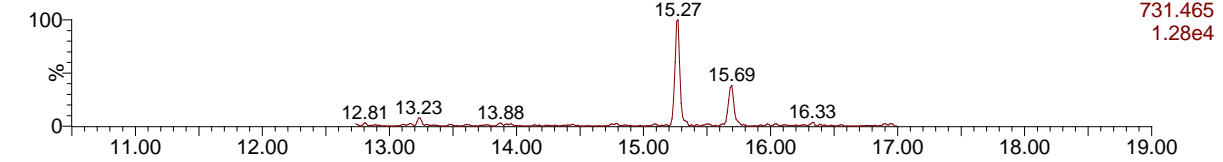
220305PBDE\_24



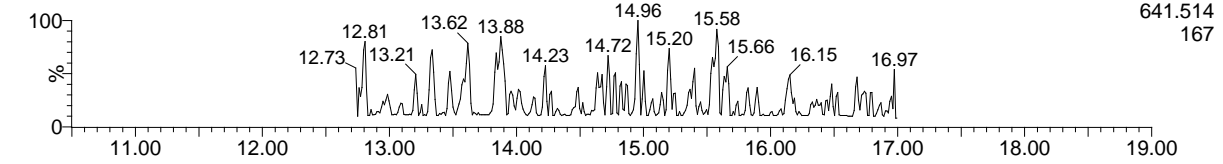
220305PBDE\_24



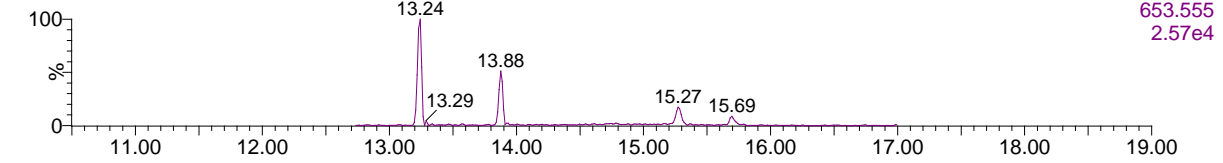
220305PBDE\_24



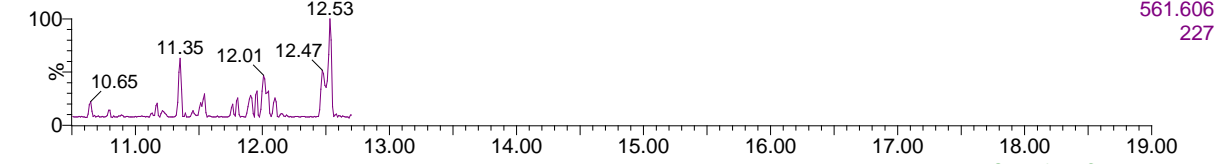
220305PBDE\_24



220305PBDE\_24



220305PBDE\_24



220305PBDE\_24

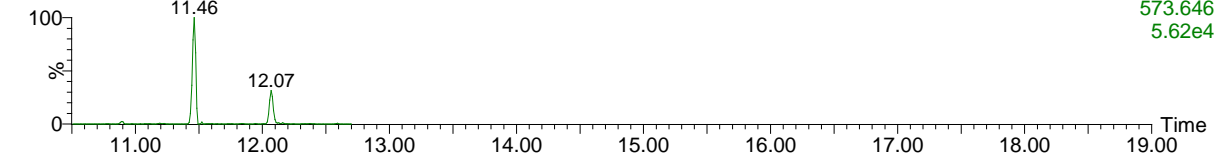


図 5-6 健康食品試料 No.35 における Hepta-DecaBDEs の HRGC/HRMS 測定クロマトグラム

表 3-1 一食分試料(弁当類)の魚介類部分におけるハロゲン系難燃剤濃度

No.	(pg/g)																									
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18	19	20	21	22	23	24	25	
α-HBCD	1240	174	158	73	529	56	258	76	65	130	176	215	164	143	130	300	320	158	337	345	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	
β-HBCD	45	12	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	17	45	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	11	< 10	< 10	< 10	13	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	
γ-HBCD	23	33	< 10	< 10	11	17	< 10	21	170	498	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	11	< 10	< 10	< 10	12	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	
total	1308	219	181	73	540	73	258	97	252	673	176	215	164	143	130	322	320	158	337	370	0	0	0	17	0	
Dechlorane602	1	< 1	2	15	2	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	3	3	3	2	3	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	3	
Dechlorane603	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	
Dechlorane604	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	
syn-DP	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	2	< 1	< 1	< 1	1	< 1	
anti-DP	< 1	1	< 1	3	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	2	1	3	2	1	< 1	5	2	< 1	6	< 1	22	3	3	< 1	
Chlordene Plus	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	
Dechlorane (Mirex)	45	12	25	30	71	8	30	< 1	4	8	47	51	26	26	18	16	22	10	20	18	1	1	7	< 1	46	
total	46	13	27	48	73	8	30	0	4	8	52	55	32	30	22	16	27	12	20	26	1	23	10	4	49	
TriBDE-30	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	
TriBDE-17	< 1	< 1	< 1	5	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	6	< 1	8	5	< 1	< 1	< 1	< 1	2	2	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	
TriBDE-28	5	3	< 1	6	6	1	3	< 1	< 1	19	26	18	16	15	4	4	2	5	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	
TetraBDE-49	20	11	15	10	33	5	7	9	< 2	2	103	95	121	72	82	16	10	< 2	14	12	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	
TetraBDE-71	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	
TetraBDE-47	109	54	65	53	120	42	20	47	14	22	287	252	253	187	206	20	21	11	21	20	2	< 2	17	2	7	
TetraBDE-66	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	29	29	30	18	22	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	
TetraBDE-77	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	
PentaBDE-100	17	10	12	36	22	6	< 2	14	< 2	< 2	67	55	52	46	47	< 2	< 2	< 2	< 2	7	< 2	< 2	< 2	2	4	
PentaBDE-119	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	14	13	11	4	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	
PentaBDE-99	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	3	< 2	< 2	< 2	< 2	67	42	45	28	39	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	
PentaBDE-85	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	
PentaBDE-126	< 2	< 2	< 2	7	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	
HexaBDE-154	8	5	19	< 2	28	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	56	50	56	33	52	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	
HexaBDE-153	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	11	8	8	3	8	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	
HexaBDE-139	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	
HexaBDE-140	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	
HexaBDE-138	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	
HexaBDE-156/169	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	
HeptaBDE-184	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	
HeptaBDE-183	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	
HeptaBDE-191	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	
HeptaBDE-180	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	
HeptaBDE-171	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	
OctaBDE-201	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	
OctaBDE-204/197	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	
OctaBDE-203	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	
OctaBDE-196	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	
OctaBDE-205	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4	
NonaBDE-208	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	34	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	
NonaBDE-207	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	51	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	
NonaBDE-206	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	32	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	
DecaBDE-209	< 10	< 10	19	< 10	< 10	< 10	< 10	705	< 10	< 10	< 10	< 10	293	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	443	< 10	124	< 10	12	33	< 10
total	159	83	130	117	209	57	30	892	14	24	659	570	895	412	471	40	35	13	506	41	126	0	29	37	11	







表 4-1 一食分試料（弁当類）からのハロゲン系難燃剤の摂取量

No.	(ng/meal)								
	HBCDs			デクロラン類			PBDEs		
	魚介類 部分	その他	合計	魚介類 部分	その他	合計	魚介類 部分	その他	合計
1	82	0	82	3	0	3	10	3	13
2	18	0	18	1	0	1	7	0	7
3	22	0	22	3	0	3	16	0	16
4	9	0	9	6	0	6	14	0	14
5	45	0	45	6	0	6	17	0	17
6	5	0	5	1	0	1	4	0	4
7	21	0	21	2	0	2	2	0	2
8	3	0	3	0	0	0	30	0	30
9	18	0	18	0	0	1	1	0	1
10	55	0	55	1	0	1	2	0	2
11	13	0	13	4	0	4	48	0	48
12	23	0	23	6	1	7	61	0	61
13	9	0	9	2	0	2	48	6	53
14	7	0	7	1	0	1	20	0	20
15	13	0	13	2	0	2	47	0	47
16	27	0	27	1	0	1	3	0	3
17	11	0	11	1	0	1	1	0	1
18	22	0	22	2	0	2	2	0	2
19	27	0	27	2	0	2	41	91	132
20	26	0	26	2	0	2	3	0	3
21	0	0	0	0	0	0	9	7	16
22	0	0	0	1	0	1	0	0	0
23	0	0	0	1	0	1	3	4	7
24	1	0	1	0	0	0	2	0	2
25	0	0	0	3	0	3	1	0	1

\* 不検出となったハロゲン系難燃剤については、ゼロとして摂取量を算出した。



表 4-2 弁当の種類別ハロゲン系難燃剤の摂取量の統計量

		(ng/meal)		
		HBCDs	デクロラン類	PBDEs
ウナギ弁当	平均値	35	4	14
	最小値	9	1	7
	中央値	22	3	14
	最大値	82	6	17
サケ弁当	平均値	20	1	8
	最小値	3	0	1
	中央値	18	1	2
	最大値	55	2	30
サバ弁当	平均値	13	3	46
	最小値	7	1	20
	中央値	13	2	48
	最大値	23	7	61
サンマ弁当	平均値	23	1	28
	最小値	11	1	1
	中央値	26	2	3
	最大値	27	2	132
白身魚フライ弁当	平均値	0	1	5
	最小値	0	0	0
	中央値	0	1	2
	最大値	1	3	16

表 4-3 一食分試料(弁当類)からのハロゲン系難燃剤の摂取量の統計量

				(ng/meal)
	HBCDs	デクロラン類	PBDEs	
平均値	18	2	20	
最小値	0	0	0	
中央値	13	2	7	
最大値	82	7	132	

表 5-1 健康食品からのハロゲン系難燃剤の摂取量

試料No.	(ng/day)		
	HBCDs	デクロラン類	PBDEs
1	0.9	0.0	0.0
2	0.9	0.1	0.8
3	1.4	0.1	1.7
4	0.9	0.0	1.8
5	0.3	0.0	0.0
6	0.0	0.0	0.0
7	0.3	0.0	0.0
8	0.0	0.0	0.6
9	0.7	0.0	0.0
10	2.2	0.0	1.3
11	1.0	0.1	2.9
12	0.0	0.0	0.1
13	0.0	0.0	0.0
14	0.0	0.0	0.0
15	3.1	0.0	6.0
16	0.0	0.0	0.0
17	0.7	0.0	0.0
18	1.1	0.0	0.7
19	0.5	0.0	0.0
20	3.3	0.0	1.4
21	0.9	0.0	0.5
22	0.0	0.0	0.0
23	0.0	0.1	0.0
24	1.2	0.0	0.0
25	3.0	0.1	0.0
26	0.4	0.0	0.0
27	1.2	0.0	0.0
28	0.4	0.0	0.0
29	2.9	0.1	1.4
30	0.0	0.0	0.1
31	0.0	0.0	0.0
32	3.3	0.0	2.6
33	0.0	1.7	0.3
34	0.0	2.6	0.0
35	0.0	3.3	0.7
36	0.0	0.9	0.0
37	0.0	1.1	0.3

\* 不検出となったハロゲン系難燃剤については、ゼロとして摂取量を算出した。

表 5-2 健康食品からのハロゲン系難燃剤の摂取量の統計量

	(ng/day)		
	HBCDs	デクロラン類	PBDEs
平均値	0.8	0.3	0.6
最小値	0	0	0
中央値	0.4	0	0
最大値	3.3	3.3	6.0

## Ⅱ. 分担研究報告書

(1) 食品の塩素化ダイオキシン類、PCB、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

(1-6) 自動前処理装置を用いた食品中のダイオキシン類分析の検討

研究分担者 堤 智昭

# 令和3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のための研究

## 分担研究報告書

(1) 食品の塩素化ダイオキシン類、PCB、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

(1-6) 自動前処理装置を用いた食品中のダイオキシン類分析の検討

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

食品中のダイオキシン類分析の迅速化・省力化を目的として、本年度は自動前処理装置の肉類及び卵類への適用性を検討した。牛肉及び鶏卵試料のアルカリ分解抽出液を硫酸処理し、自動前処理装置により精製した。ダイオキシン類の各異性体濃度を、自動前処理装置を用いた精製法と従来法（オープンカラム精製）とで比較した。自動前処理装置の各異性体濃度の平均値は、従来法に対して牛肉で90～112%、鶏卵で88～108%であり良く一致していた。さらに、種々の牛肉及び鶏卵（計5試料）を用いて自動前処理装置と従来法における異性体濃度の比較（各 $n = 1$ ）を行った。自動前処理装置の異性体濃度は、殆どの異性体について従来法の $\pm 20\%$ 以内となった。また、これらの試料の毒性当量濃度についても比較した結果、自動前処理装置の各試料の毒性当量濃度は従来法に対して91～103%であった。次に、牛肉及び鶏卵を用いてダイオキシン類の添加回収試験を実施した結果、各異性体濃度における真度は牛肉で88～104%、鶏卵で90～105%、併行精度は牛肉で1.1～7.2%、鶏卵で0.6～5.2%と良好であった。さらに、標準試料（鶏卵の凍結乾燥品）を分析した結果、検出された異性体は全て参照値の範囲内（付与値 $\pm 2SD$ ）であった。以上の結果から、自動前処理装置は肉類及び卵類のダイオキシン類分析の迅速化・省力化に有効であると考えられた。

### 研究協力者

国立医薬品食品衛生研究所

足立利華、高附 巧

愛媛大学

川嶋文人

三浦工業株式会社

山本一樹、上田祐子

類)に由来することが明らかになっている<sup>1)</sup>。そのため、これらの食品中のDXNs濃度を把握することは、リスク評価の観点から重要である。魚介類、肉類・卵類等の動物性食品を対象としたDXNs分析では、試料由来の種々の夾雑物を分解、除去するため、アルカリ分解・溶媒抽出後にオープンカラムクロマトグラフィーによる精製が一般に行われる。しかし、種々のカラム充填剤を使用して精製することから精製工程は多段階にわたり、かつ手作業により行われることから、DXNs分析に時間と労力を要することが課題となっている。また、カラムサイズが比較的大きいことか

### A. 研究目的

トータルダイエット調査によるダイオキシン類(DXNs)の摂取量推定結果では、DXNs 摂取量の約99%が10群(魚介類)及び11群(肉類・卵

ら、使用する溶媒量が多く、環境や実験従事者へ与える負担も大きい。

近年開発された自動前処理装置(GO-EHT、三浦工業株式会社)は、専用の精製カラムを用いて試料溶液を自動で精製する。所要時間は約1.5時間であり、従来の手作業によるオープンカラム精製(以下、従来法)と比べると大幅な所要時間の短縮が可能である。また、従来法と比べ小型の精製カラムを用いることから、使用する溶媒量も従来法の1/10程度に削減できる。本自動前処理装置はヨーロッパを中心に食品試料への適用が行われているものの、本装置のDXNs分析の性能評価データは非常に限られている。

本研究では食品中のDXNs分析の迅速化・省力化を目的として、本自動前処理装置を使用したDXNs分析法について検討する。令和元年度及び令和2年度に魚試料を対象に自動前処理装置の適用性を検討した結果、一部のDXNs異性体(1,2,3,7,8-PeCDF、1,2,3,4,7,8-HxCDF)に夾雑物の影響が認められたため、ノンオルトPCBs及びPCDD/Fs分画は、自動前処理装置による精製を2回行うことにした<sup>2)</sup>。その結果、魚中のDXNsを良好に分析することが可能であった。本年度は魚以外の動物性食品として肉類及び卵類について自動前処理装置の適用性を検討した。

## B. 研究方法

### 1. 試料

肉類として牛肉を使用した。牛肉は関東地方の小売店で購入し、可食部をホモジナイザーで均一化し分析に供した。卵類として鶏卵を使用した。鶏卵は関東地方の小売店、及びインターネットを介して購入した。可食部をホモジナイザーで均一化した後、使用するまで-20℃で冷凍保存した。

標準試料としてEDF-5491(鶏卵の凍結乾燥物)をCambridge Isotope Laboratories, Inc.より

購入した。

### 2. 試薬及び器具

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NK-LCS-AD、MBP-MXF、及びMBP-MXK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NK-SS-F及びMBP-79-500を購入した。PCDD/PCDFs混合溶液、ノンオルトPCB混合溶液、及びモノオルトPCB混合溶液は、(株)ウェリントンラボラトリージャパンよりそれぞれNK-ST-B4、BP-CP81、及びBP-MOを購入した。検量線用PCDD/PCDFs標準溶液は(株)ウェリントンラボラトリージャパンよりFDU-CS1～CS5を購入した。検量線用Co-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FAT-CS1～CS5を購入した。

アセトン(DXNs分析用)、メタノール(DXNs分析用)、ジクロロメタン(DXNs分析用)、水酸化カリウム(特級)、ヘキサン(DXNs分析用)、トルエン(DXNs分析用)、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(DXNs分析用)、硫酸(特級)、塩化ナトリウム(特級)は富士フィルム和光純薬(株)より購入した。ヘキサン洗浄水は、ミリポア Milli-Q Integral 10環境分析タイプから採取した超純水をヘキササンで洗浄し使用した。

多層シリカゲルカラム(内径15 mm、長さ30 cmのカラムにシリカゲル0.9 g、2%KOHシリカゲル3 g、シリカゲル0.9 g、44%硫酸シリカゲル4.5 g、22%硫酸シリカゲル6 g、シリカゲル0.9 g、10%硝酸銀シリカゲル3 g、シリカゲル0.9 g及び無水硫酸ナトリウム6 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。活性炭分散シリカゲルリバーカラムは関東化学(株)より購入した。自動前処理装置用に使用する精製カラム(標準タイプ20φ)は三浦工業株式会社より購入した。精

製カラムとして、10%硝酸銀シリカゲルカラム、44%硫酸シリカゲルカラム、炭素系カラム、及びアルミナカラムが含まれている。

GC キャピラリーカラムは、DB-5ms、DB-17 をアジレント・テクノロジー株式会社より、HT8 をSGE ジャパン(現トレイジャンサイエンティフィック ジャパン)より購入した。

### 3. 機器

ホモジナイザー: レッチェ社製 GM200

自動前処理装置: (GO-EHT、三浦工業株式会社)

高分解能 GC/MS: 7890B (Agilent Technologies) /MStation JMS-800D UltraFOCUS 日本電子(株)社製

### 4. 試験溶液の調製

#### 4.1 アルカリ分解・溶媒抽出

均一化した試料 40 g をビーカーに量りとり、クリーンアップスパイク ( $^{13}\text{C}$  標識した PCDD/PCDFs 各 40 pg (OCDD/OCDF は 80 pg)、ノンオルト PCBs 各 100 pg、モノオルト PCBs 各 2.5 ng) を加えた後、2 mol/L 水酸化カリウム水溶液を 200 mL 加え室温で約 16 時間放置した。このアルカリ分解液を分液ロートに移した後、メタノール 150 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。ヘキサン層を合わせ、2%塩化ナトリウム溶液 150 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。得られたヘキサン層を抽出液とした。

#### 4.2 オープンカラムによる精製(従来法)

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 200 mL で洗浄した後、試験溶液を注入し、ヘキサン 200 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 150 mL で洗浄後、2% (v/v) ジクロロメタン含有ヘキサン 180~200 mL でモノオルト PCBs 分画を溶出した。次いで、60% (v/v) ジクロロメタン含有ヘキサン 200 mL で PCDD/PCDFs 及びノンオルト PCBs 分画を溶出した。モノオルト PCBs 分画は溶媒を留去し、シリジンスパイク 500  $\mu\text{L}$  ( $^{13}\text{C}$  標識体 2.5 ng) を添加し高分解能 GC/MS に供した。PCDD/PCDFs 及びノンオルト PCBs 分画は溶媒を留去した後、活性炭分散シリカゲルリバーカラムに注入し、10 分程度放置した。25% (v/v) ジクロロメタン含有ヘキサン 80 mL でカラムを洗浄後、カラムを反転させ、トルエン 80 mL で PCDD/PCDFs 及びノンオルト PCBs 分画を溶出した。溶媒を留去後、シリジンスパイク 20  $\mu\text{L}$  (PCDD/PCDFs 用  $^{13}\text{C}$  標識体 40 pg、ノンオルト PCB 用  $^{13}\text{C}$  標識体 100 pg) を添加し高分解能 GC/MS に供した。

#### 4.3 自動前処理装置(GO-EHT)による精製

ヘキサン層の入った分液漏斗に濃硫酸を約 25 mL 加え、緩やかに振とうし、1 晩放置した。鶏卵では、翌日、硫酸層を除去し、再度、濃硫酸 (25 mL 程度) を加え緩やかに振とうし、1 時間程度静置後、硫酸層を除去した。この操作を 2 回繰り返した。牛肉では、翌日、硫酸層を除去し、再度、濃硫酸 (25 mL 程度) を加え緩やかに振とうし、更に 1 晩放置した。翌日、硫酸層を除去し、再度、濃硫酸 (25 mL 程度) を加え緩やかに振とうし、1 時間程度静置後、硫酸層を除去した。この操作を再度繰り返した。その後、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した。溶媒を留去し 1 mL 程度に濃縮した後、自動前処理装置に装着した精製カラム (標準タイプ 20  $\phi$ ) に負荷した。精製カラムは上から順に、硝酸銀シリカゲルカラム、

硫酸シリカゲルカラム、炭素系カラム、及びアルミナカラムを連結させた。ヘキサン 90 mL をカラムに通液後、逆方向からトルエンを送液した。アルミナカラムからトルエン約 1.0 mL でモノオルト PCBs 分画を溶出した。炭素系カラムからトルエン約 1.2 mL で PCDD/PCDFs 及びノンオルト PCBs 分画を溶出した。モノオルト PCBs 分画は溶媒を留去し、シリンジスパイク 500  $\mu$ L ( $^{13}$ C 標識体 2.5 ng) を添加し高分解能 GC/MS に供した。PCDD/PCDFs 及びノンオルト PCBs 分画は溶媒を留去後、シリンジスパイク 20  $\mu$ L (PCDD/PCDFs 用  $^{13}$ C 標識体 40 pg、ノンオルト PCB 用  $^{13}$ C 標識体 100 pg) を添加し高分解能 GC/MS に供した。

## 5. 高分解能 GC/MS 測定

### 1) GC 条件

① 2,3,7,8 - TCDD、1,2,3,7,8 - PeCDD、1,2,3,7,8 - PeCDF、1,2,3,4,7,8 - HxCDF、1,2,3,6,7,8 - HxCDF

カラム: DB-5ms (内径 0.32 mm  $\times$  60 m、膜厚 0.25  $\mu$ m)

注入方式: スプリットレス

注入温度: 250 $^{\circ}$ C

注入量: 1.5  $\mu$ L

昇温条件: 130 $^{\circ}$ C (2 分保持) - 30 $^{\circ}$ C/分 - 200 $^{\circ}$ C - 5 $^{\circ}$ C/分 - 220 $^{\circ}$ C (16 分保持) - 6 $^{\circ}$ C/分 - 300 $^{\circ}$ C (10 分保持)

キャリアーガス: ヘリウム (流速: 1.8 mL/分)

② 1,2,3,4,7,8 - HxCDD、1,2,3,6,7,8 - HxCDD、1,2,3,7,8,9 - HxCDD、1,2,3,4,6,7,8 - HpCDD、OCDD、2,3,7,8 - TCDF、2,3,4,7,8 - PeCDF、1,2,3,7,8,9 - HxCDF、2,3,4,6,7,8 - HxCDF、1,2,3,4,6,7,8 - HpCDF、OCDF

カラム: DB-17 (内径 0.25 mm  $\times$  60 m、膜厚 0.25  $\mu$ m)

注入方式: スプリットレス

注入温度: 250 $^{\circ}$ C

注入量: 2.0  $\mu$ L

昇温条件: 130 $^{\circ}$ C (2 分保持) - 30 $^{\circ}$ C/分 - 200 $^{\circ}$ C - 3 $^{\circ}$ C/分 - 280 $^{\circ}$ C (30 分保持)

キャリアーガス: ヘリウム (流速: 1.5 mL/分)

### ③ Co-PCBs

カラム: HT8 (内径 0.22 mm  $\times$  50 m、膜厚 0.25  $\mu$ m)

注入方式: スプリットレス

注入温度: 260 $^{\circ}$ C

注入量: 1.5  $\mu$ L

昇温条件: 130 $^{\circ}$ C (1 分保持) - 15 $^{\circ}$ C/分 - 220 $^{\circ}$ C (5 分保持) - 2 $^{\circ}$ C/分 - 300 $^{\circ}$ C (1 分保持)

キャリアーガス: ヘリウム (流速: 1.2 mL/分)

### 2) MS 条件

MS 導入部温度: 280 $^{\circ}$ C

イオン源温度: 280 $^{\circ}$ C

イオン化法: EI ポジティブ

イオン化電圧: 38 eV

イオン化電流: 600  $\mu$ A

加速電圧:  $\sim$ 10.0 kV

分解能: 10,000 以上

モニターイオン: 食品中の DXNs 分析の暫定ガイドライン<sup>3)</sup>(以下、ガイドライン)に従った。

## 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高分解能 GC/MS により測定し、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。また、操作ブランク試験を 6 回行い、ブランクが認められる DXNs 異性体については、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。

## C. 研究結果及び考察

### 1) 自動前処理装置におけるノンオルト PCBs 及び PCDD/PCDFs 分画の精製回数検討

昨年度に検討した魚試料のノンオルト PCBs



及び PCDD/PCDFs 分画については、一部の DXNs 異性体 (1,2,3,7,8-PeCDF、1,2,3,4,7,8-HxCDF) に夾雑物の影響が認められたため、自動前処理装置による精製を2回行う必要があった<sup>2)</sup>。そこで、今年度に検討する食品の中で、夾雑物を多く含むと考えられた鶏卵を用いて、当該分画の精製回数と夾雑物の影響について検討した。

鶏卵を自動前処理装置により1回及び2回精製した当該分画の SIM クロマトグラム (PeCDFs 及び HxCDFs) を、従来法の SIM クロマトグラムと併せて図 1 に示した。PeCDFs の SIM クロマトグラムを比較すると、2 回精製の方が 1 回精製より夾雑物のピークが少なくなり、従来法の SIM クロマトグラムにより近いものとなった。しかし、1 回精製の SIM クロマトグラムでも、魚試料で夾雑物の影響が認められた 1,2,3,7,8-PeCDF 及び 1,2,3,4,7,8-HxCDF (図中の矢印) に対する妨害ピークは殆ど認められなかった。また、表 1 には各精製方法における DXNs の分析結果を示した。自動前処理装置で 1 回精製した各異性体の濃度は、2 回精製及び従来法と顕著な違いは認められなかった。魚試料で夾雑物の影響が認められた 1,2,3,7,8-PeCDF 及び 1,2,3,4,7,8-HxCDF についても、良く一致した濃度が得られていた。また、自動前処理装置で 2 回精製した場合は、クリーンアップスパイク (CS) の回収率の低下が顕著であった。以上の結果から、肉類及び卵類については、ノンオルト PCBs 及び PCDD/PCDFs 分画の精製回数は 1 回が適切であると判断した。

## 2) 自動前処理装置と従来法の DXNs 異性体濃度の比較

自動前処理装置と従来法により牛肉と鶏卵 (各  $n=5$ ) を分析し、DXNs の各異性体濃度を比較した (表 2)。自動前処理装置の各異性体濃度の平均値は、従来法に対して牛肉で 90~112%、鶏卵で 88~108% であり良く一致していた。また、RSD (%) も牛肉で 16% 以内、鶏卵で 9% 以内であ

り、従来法 (牛肉で 23% 以内、鶏卵で 12% 以内) と比較して顕著に大きな値となることはなかった。

CS の回収率を図 2 に示した。自動前処理装置の CS の回収率は、牛肉で 46~113%、鶏卵で 41~112% あり、ガイドラインの許容範囲 (40~120%) に収まった。従来法の CS の回収率は、牛肉で 45~100%、鶏卵で 54~119% であり、鶏卵における自動前処理装置の CS の回収率は従来法よりも低値となることが多かった。

牛肉と鶏卵について、自動前処理装置と従来法の SIM クロマトグラムの一例を図 3 及び図 4 に示した。牛肉については、自動前処理装置と従来法の SIM クロマトグラムには大きな違いは認められなかった。一方、鶏卵については、自動前処理装置の PCDFs (特に PeCDFs 及び HxCDFs) の SIM クロマトグラムには、従来法では認められない夾雑物のピークが多数認められた。PCDFs が含まれる分画については、従来法と比較すると夾雑物の含有が多いと考えられた。今回使用した鶏卵には平飼いの表示があった。平飼いの鶏卵については DXNs やその他の環境汚染物質の濃度が高くなる報告がある<sup>4-6)</sup>。観察された夾雑物のピークは DXNs の定量に影響することはなかったものの、鶏の飼育環境 (平飼いなど) によっては鶏卵に環境汚染物質等に由来すると考えられる夾雑物が多く含まれる場合が想定されるため、これらの夾雑物の影響に注意を払う必要がある。また、これらの夾雑物については明らかではないが、本多らはポリ塩素化ジフェニルエーテルが PCDFs の SIM クロマトグラム上で妨害となることを報告している<sup>7)</sup>。ポリ塩素化ジフェニルエーテルは環境試料中に広く存在することから、今回認められた夾雑物ピークの原因として有力である。

## 3) 自動前処理装置の適用性の検証

自動前処理装置の適用性を検証するため、種々の牛肉及び鶏卵 (計 5 試料、各  $n=1$ ) を分析し、従来法の DXNs の異性体濃度と比較した (表 3)。自動前処理装置の異性体濃度は、殆どの

異性体について従来法の±20%以内に収まっており、概してよく一致していた。また、図5には、5試料のCSの回収率を示した。自動前処理装置のCSの回収率は54~108%であり、ガイドラインの許容範囲(40~120%)に収まった。従来法のCSの回収率(57~119%)と比較すると、自動前処理装置のCSの回収率は全体的にやや低値であった。

自動前処理装置と従来法のSIMクロマトグラム(PeCDFs)を図6に示した。鶏卵#2を除き、自動前処理装置と従来法のSIMクロマトグラムに大きな違いは無かった。鶏卵#2では自動前処理装置のSIMクロマトグラムに、従来法では認められない夾雑物のピークが多く認められた。鶏卵#2は平飼いの表示があり、前述したとおり、環境汚染物質等の影響が考えられた。定量するDXNs異性体に大きな影響はなかったものの、夾雑物の影響については引き続き注意が必要であると考えられる。

DXNs全体のリスク評価やリスク管理のためには、毒性当量濃度が用いられる。自動前処理装置と従来法により分析した5試料の毒性当量濃度を比較した(図7)。自動前処理装置の各試料の毒性当量濃度は、従来法に対して91~103%であり、非常に良く一致していた。

#### 4) DXNsの添加回収試験

自動前処理装置を用いたDXNsの分析性能(真度、及び併行精度)を添加回収試験により評価した。牛肉及び鶏卵に既知濃度(0.1~20 pg/g)の各異性体を添加し、5併行で分析した際の真度及び併行精度を表4に示した。牛肉における真度は88~104%、併行精度は7.2%以下、鶏卵における真度は90~105%、併行精度は5.2%以下であり、分析対象となる全ての異性体について良好な結果であった。

#### 5) 標準試料のDXNs分析

DXNs濃度が参照値として付与されている標準試料(EDF-5491、鶏卵の凍結乾燥品)を自動前

処理装置で分析した結果を表5に示した。2試行で分析をした結果、参照値を有する異性体については、全ての異性体でLODs以上の値が得られ、参照値の範囲内(付与値±2SD)であった。これらの結果から、自動前処理装置を用いたDXNs分析により得られた分析結果の信頼性が確認できた。

#### D. 結論

自動前処理装置の肉類及び卵類へのDXNs分析の適用性を検討した。昨年度に検討した魚試料では、夾雑物の影響のため、ノンオルトPCBs及びPCDD/PCDFs分画を自動前処理装置により2回精製する必要があったが、肉類及び卵類については1回精製で分析上の問題はなかった。牛肉及び鶏卵を用いた従来法との比較試験、添加回収試験、及び標準試料の分析から、自動前処理装置を用いたDXNs分析の信頼性は高いと考えられた。自動前処理装置を用いた精製は、所要時間が80分程度、溶媒使用量も少量(ヘキサン約115 mL、トルエン約16 mL)であり、従来法と比較すると迅速かつ必要な溶媒量は格段に少ないことから、肉類及び卵類のDXNs分析の迅速化・省力化に有用であると考えられる。

#### E. 参考文献

- 1) Tsutsumi T, Matsuda R, Yanagi T, Iizuka S, Isagawa S, Takatsuki S, Watanabe T, Teshima R, Akiyama H. : Dietary intake of dioxins in Japan in 2016 with time trends since 1998. Food Additives & Contaminants: Part A, 35, 1553-1564 (2018)
- 2) 令和2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 等の摂取量推定及び汚染実態の把握に関する研究)
- 3) 厚生労働省医薬食品局食品安全部監視安全課長通知“食品中のダイオキシン類測定方法暫定ガイドライン”平成20年2月28日, 食安監発第0228003号
  - 4) Schoeters G, Hoogenboom LA. Contamination of free-range chicken eggs with dioxins and dioxin-like polychlorinated biphenyls. *Molecular Nutrition & Food Research*, 50 (2006) 904-914.
  - 5) Van Overmeire, I, Pussemier L, Hanot V, De Temmerman L, Hoenig M, Goeyens L. Chemical contamination in eggs of free-range hens in Belgium. *Food Addit Contam.*, 23 (2006) 1109-1122.
  - 6) Sørensen S, Krüger L, Bossi R, Tl C, Kh L. Dioxins and PCBs in hen eggs from conventional and free-range farms from the Danish control program in 2012-13. *Organohalogen Compd.* 76 (2014) 3-6.
  - 7) 本多 隆, 植野康成, 馬場強三, 益田 宣: ダイオキシン類分析における妨害物質であるポリ塩素化ジフェニルエーテル類の除去方法の検討. 長崎県衛生公害研究所報 50, 10-17(2004)
- Akiyama H: Determination of dioxins in fish samples using an automatic sample preparation system. 41st International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (2021.11)

## F.研究業績

### 1. 論文発表

なし

### 2. 学会発表

- 1) 堤 智昭、足立利華、川嶋文人、山本一樹、上田祐子、岡本悠佑、高附 巧、穂山 浩:自動前処理装置を用いた魚中のダイオキシン類分析の検討, 第29回環境化学討論会 (2021.6).
- 2) Tsutsumi T, Adachi R, Kawashima A, Yamamoto K, Ueda Y, Okamoto Y, Takatsuki S,

表 1 各精製方法における鶏卵の DXNs 分析値

DXNs	DXNs (pg/g)			
	自動前処理装置		従来法	
	精製回数1回	精製回数2回		
PCDDs	2378-TeCDD	0.049	0.050	0.041
	12378-PeCDD	0.47	0.54	0.48
	123478-HxCDD	0.71	0.72	0.73
	123678-HxCDD	2.0	1.9	2.0
	123789-HxCDD	0.93	0.89	0.98
	1234678-HpCDD	11	10	11
	OCDD	87	97	91
PCDFs	2378-TeCDF	0.12	0.13	0.12
	12378-PeCDF	0.076	0.073	0.071
	23478-PeCDF	0.12	0.14	0.13
	123478-HxCDF	0.19	0.20	0.20
	123678-HxCDF	0.090	0.095	0.10
	123789-HxCDF	0.015	0.010	0.016
	234678-HxCDF	0.11	0.12	0.10
	1234678-HpCDF	0.41	0.38	0.40
	1234789-HpCDF	0.10	0.10	0.10
	OCDF	0.70	0.69	0.73
ノンオルトPCBs	33'44'-TeCB (#77)	1.9	2.0	2.0
	344'5'-TeCB (#81)	0.23	0.21	0.22
	33'44'5'-PeCB (#126)	1.5	1.5	1.7
	33'44'55'-HxCB (#169)	0.55	0.59	0.56
モノオルトPCBs	233'44'-PeCB (#105)	31	28	29
	2344'5'-PeCB (#114)	2.7	2.8	2.7
	23'44'5'-PeCB (#118)	85	84	87
	2'344'5'-PeCB (#123)	2.2	2.3	2.1
	233'44'5'-HxCB (#156)	13	13	14
	233'44'5'-HxCB (#157)	4.0	4.0	3.9
	23'44'55'-HxCB (#167)	8.8	8.7	8.7
	233'44'55'-HpCB (#189)	2.8	3.2	3.5

表 2 牛肉と鶏卵における自動前処理装置と従来法の DXNs 異性体濃度の比較

DXNs	牛肉 (n = 5)							鶏卵 (n = 5)						
	LOQ pg/g	自動前処理装置(A)		従来法(B)		比率, % (A/B)	LOQ pg/g	自動前処理装置(A)		従来法(B)		比率, % (A/B)		
		Mean±SD, pg/g	RSD, %	Mean±SD, pg/g	RSD, %			Mean±SD, pg/g	RSD, %	Mean±SD, pg/g	RSD, %			
PCDDs	2378-TeCDD	0.0031	0.020 ± 0.002	9.3	0.020 ± 0.001	7.2	100	0.0031	0.054 ± 0.002	4.5	0.052 ± 0.001	2.6	104	
	12378-PeCDD	0.0089	0.056 ± 0.006	11	0.056 ± 0.006	10	100	0.0089	0.53 ± 0.034	6.4	0.54 ± 0.038	7.1	98	
	123478-HxCDD	0.022	0.047 ± 0.004	8.5	0.052 ± 0.003	4.9	90	0.022	0.75 ± 0.032	4.3	0.71 ± 0.031	4.4	105	
	123678-HxCDD	0.023	0.12 ± 0.004	3.5	0.12 ± 0.009	7.3	102	0.023	2.0 ± 0.079	3.9	2.0 ± 0.067	3.4	102	
	123789-HxCDD	0.015	0.045 ± 0.003	6.1	0.046 ± 0.003	5.8	99	0.015	0.89 ± 0.035	4.0	0.86 ± 0.015	1.8	103	
	1234678-HpCDD	0.013	0.38 ± 0.015	3.9	0.38 ± 0.013	3.4	100	0.013	12 ± 0.395	3.4	11 ± 0.203	1.8	104	
	OCDD	0.0092	1.4 ± 0.032	2.2	1.4 ± 0.037	2.6	102	0.0092	92 ± 3.456	3.8	89 ± 2.833	3.2	102	
PCDFs	2378-TeCDF	0.0064	0.015 ± 0.001	8.5	0.013 ± 0.001	9.3	112	0.0064	0.13 ± 0.004	3.1	0.12 ± 0.005	4.4	108	
	12378-PeCDF	0.0027	0.0090 ± 0.001	14	0.010 ± 0.002	23	90	0.0027	0.076 ± 0.004	5.0	0.073 ± 0.005	6.8	105	
	23478-PeCDF	0.0027	0.18 ± 0.005	2.6	0.17 ± 0.006	3.6	102	0.0027	0.13 ± 0.008	5.8	0.13 ± 0.002	1.4	105	
	123478-HxCDF	0.0037	0.17 ± 0.010	5.7	0.17 ± 0.006	3.8	101	0.0037	0.21 ± 0.011	5.4	0.19 ± 0.007	3.5	106	
	123678-HxCDF	0.0049	0.15 ± 0.007	4.7	0.15 ± 0.004	3.0	98	0.0049	0.11 ± 0.005	4.5	0.10 ± 0.004	4.3	107	
	123789-HxCDF	0.0093	ND <sup>1)</sup>	-	ND	-	-	0.0093	0.010 ± 0.001	7.9	0.012 ± 0.001	12	88	
	234678-HxCDF	0.024	0.11 ± 0.006	5.7	0.11 ± 0.002	2.0	101	0.024	0.12 ± 0.005	4.5	0.11 ± 0.006	4.9	104	
	1234678-HpCDF	0.012	0.18 ± 0.008	4.6	0.18 ± 0.010	5.7	100	0.012	0.40 ± 0.010	2.6	0.40 ± 0.014	3.5	100	
	1234789-HpCDF	0.015	0.020 ± 0.003	14	0.021 ± 0.001	6.4	97	0.015	0.087 ± 0.006	7.3	0.088 ± 0.005	5.2	99	
	OCDF	0.026	0.037 ± 0.002	5.2	0.036 ± 0.003	7.3	102	0.026	0.67 ± 0.017	2.6	0.65 ± 0.028	4.3	102	
ハノホルトPCBs	33'44'-TeCB (#77)	0.046	0.28 ± 0.01	3.3	0.29 ± 0.03	9.4	97	0.046	2.0 ± 0.03	1.7	2.0 ± 0.04	1.9	101	
	344'5'-TeCB (#81)	0.034	0.17 ± 0.004	2.1	0.18 ± 0.02	11	98	0.034	0.22 ± 0.01	4.8	0.22 ± 0.01	2.8	98	
	33'44'5'-PeCB (#126)	0.010	0.64 ± 0.01	1.2	0.65 ± 0.03	4.4	99	0.010	1.5 ± 0.03	1.9	1.5 ± 0.03	2.0	102	
	33'44'55'-HxCB (#169)	0.030	0.17 ± 0.01	4.0	0.18 ± 0.03	15	95	0.030	0.57 ± 0.01	1.2	0.56 ± 0.02	4.2	101	
モノホルトPCBs	233'44'-PeCB (#105)	0.22	4.7 ± 0.17	3.7	4.5 ± 0.30	6.5	103	0.22	28 ± 1.12	4.0	27 ± 0.86	3.1	102	
	2344'5'-PeCB (#114)	0.26	0.76 ± 0.10	13	0.71 ± 0.06	9.1	108	0.26	2.7 ± 0.16	5.7	2.7 ± 0.15	5.6	103	
	23'44'5'-PeCB (#118)	0.31	15 ± 0.56	3.6	15 ± 0.62	4.3	105	0.31	83 ± 1.62	2.0	85 ± 2.34	2.8	98	
	2'344'5'-PeCB (#123)	0.26	0.47 ± 0.08	16	0.51 ± 0.03	6.7	93	0.26	2.2 ± 0.04	1.8	2.3 ± 0.13	5.7	96	
	233'44'5'-HxCB (#156)	0.58	1.8 ± 0.17	9.7	1.7 ± 0.08	4.7	103	0.58	14 ± 0.61	4.5	14 ± 0.82	5.9	99	
	233'44'5'-HxCB (#157)	0.55	Tr <sup>2)</sup>	-	Tr	-	-	0.55	3.9 ± 0.28	7.0	3.9 ± 0.16	4.1	100	
	23'44'55'-HxCB (#167)	0.60	0.88 ± 0.09	11	0.82 ± 0.08	9.3	107	0.60	8.9 ± 0.29	3.3	8.8 ± 0.48	5.4	101	
233'44'55'-HpCB (#189)	0.69	Tr	-	Tr	-	-	0.69	2.8 ± 0.24	8.5	3.1 ± 0.17	5.4	90		

1)ND: not detected

2)Tr: trace (LOD ≤ tr < LOQ)

表 3 種々の牛肉及び鶏卵における自動前処理装置と従来法の DXNs 異性体濃度の比較

DXNs	LOQ pg/g	DXNs (pg/g)															
		牛肉 #1(モモ、脂肪含量8.7%)			牛肉 #2(バラ、脂肪含量65%)			牛肉 #3(バラ、脂肪含量26%)			鶏卵 #1(脂肪含量10%)			鶏卵 #2(平飼い、脂肪含量9%)			
		自動前処理装置 (A)	従来法 (B)	比率,% (A/B)	自動前処理装置 (A)	従来法 (B)	比率,% (A/B)	自動前処理装置 (A)	従来法 (B)	比率,% (A/B)	自動前処理装置 (A)	従来法 (B)	比率,% (A/B)	自動前処理装置 (A)	従来法 (B)	比率,% (A/B)	
PCDDs	2378-TeCDD	0.0031	0.0044	0.0054	81	0.086	0.086	100	0.0055	0.0047	116	ND	ND	-	0.024	0.026	95
	12378-PeCDD	0.0089	0.026	0.030	85	0.90	0.84	107	0.027	0.030	90	ND	Tr	-	0.092	0.10	96
	123478-HxCDD	0.022	Tr	Tr	-	1.2	1.2	103	0.038	0.045	83	ND	ND	-	0.031	0.028	109
	123678-HxCDD	0.023	0.055	0.058	94	3.5	3.5	99	0.40	0.39	102	ND	ND	-	0.22	0.21	105
	123789-HxCDD	0.015	0.018	0.019	92	1.6	1.6	97	0.033	0.030	110	ND	ND	-	0.055	0.060	91
	1234678-HpCDD	0.013	0.15	0.18	86	21	20	102	0.81	0.82	99	0.045	0.045	100	0.18	0.18	103
OCDD	0.0092	0.65	0.70	93	108	101	107	1.6	1.7	96	1.0	1.1	94	0.90	0.90	100	
PCDFs	2378-TeCDF	0.0064	ND	ND	-	ND	ND	-	ND	ND	-	0.011	0.012	89	0.092	0.10	96
	12378-PeCDF	0.0027	Tr	Tr	-	0.0056	0.0048	116	ND	ND	-	0.0039	0.0046	84	0.041	0.037	109
	23478-PeCDF	0.0027	0.025	0.024	105	0.17	0.18	94	0.065	0.069	94	0.0058	0.0070	83	0.092	0.085	108
	123478-HxCDF	0.0037	0.025	0.027	92	1.3	1.3	101	0.089	0.089	100	0.0087	0.0080	109	0.027	0.029	95
	123678-HxCDF	0.0049	0.021	0.024	87	0.50	0.50	99	0.027	0.026	103	Tr	Tr	-	0.021	0.025	83
	123789-HxCDF	0.0093	ND	ND	-	ND	ND	-	ND	ND	-	ND	Tr	-	ND	ND	-
	234678-HxCDF	0.024	0.043	0.035	121	0.76	0.75	102	0.033	0.036	93	ND	ND	-	0.031	0.030	103
	1234678-HpCDF	0.012	0.040	0.039	104	2.8	2.9	97	0.076	0.086	89	Tr	Tr	-	0.027	0.024	111
	1234789-HpCDF	0.015	ND	ND	-	0.33	0.33	99	ND	ND	-	ND	ND	-	Tr	Tr	-
	OCDF	0.026	ND	ND	-	0.58	0.57	103	ND	ND	-	ND	ND	-	Tr	Tr	-
ノンオルトPCBs	33'44'-TeCB (#77)	0.046	0.064	0.069	93	0.059	0.052	114	Tr	Tr	-	0.25	0.20	121	1.7	1.7	100
	344'5-TeCB (#81)	0.034	Tr	Tr	-	Tr	Tr	-	Tr	Tr	-	Tr	Tr	-	0.19	0.18	103
	33'44'5-PeCB (#126)	0.010	0.10	0.11	91	0.26	0.28	94	1.7	1.7	101	0.044	0.036	120	1.2	1.2	104
	33'44'55'-HxCB (#169)	0.030	Tr	Tr	-	0.14	0.15	98	0.12	0.13	94	0.043	0.047	93	0.43	0.41	104
	233'44'-PeCB (#105)	0.22	0.86	1.0	91	3.3	3.1	104	273	248	110	1.1	1.3	91	2.4	2.5	94
モノオルトPCBs	2344'5-PeCB (#114)	0.26	ND	ND	-	0.39	0.47	82	70	70	101	Tr	Tr	-	2.2	2.5	87
	23'44'5-PeCB (#118)	0.31	3.2	3.0	105	14	14	104	2719	2635	103	5.1	4.9	105	82	88	94
	2'344'5-PeCB (#123)	0.26	ND	ND	-	Tr	Tr	-	29	27	109	Tr	Tr	-	1.8	2.0	93
	233'44'5-HxCB (#156)	0.58	Tr	Tr	-	1.7	1.5	115	430	410	105	0.67	0.70	96	12	13	96
	233'44'5'-HxCB (#157)	0.55	ND	ND	-	Tr	Tr	-	90	91	99	ND	ND	-	3.7	3.6	103
	23'44'55'-HxCB (#167)	0.60	ND	ND	-	0.81	0.68	118	135	136	100	Tr	Tr	-	8.3	7.7	108
	233'44'55'-HpCB (#189)	0.69	ND	ND	-	Tr	Tr	-	20	20	101	ND	ND	-	2.4	2.3	103

1)ND: not detected

2)Tr: trace (LOD≤tr<LOQ)

表 4 牛肉及び鶏卵を用いた添加回収試験結果

DXNs	牛肉 (n = 5)			鶏卵 (n = 5)			
	添加濃度	真度	併行精度	添加濃度	真度	併行精度	
	pg/g	%	RSD, %	pg/g	%	RSD, %	
PCDDs	2378-TCDD	0.1	96	7.2	0.1	94	4.0
	12378-PeCDD	0.1	93	3.7	0.1	94	4.1
	123478-HxCDD	0.2	99	2.1	0.2	102	3.5
	123678-HxCDD	0.2	104	3.7	0.2	98	3.2
	123789-HxCDD	0.2	99	3.8	0.2	104	3.9
	1234678-HpCDD	0.2	99	2.7	0.2	101	4.7
	OCDD	0.5	98	4.8	0.5	100	3.3
PCDFs	2378-TCDF	0.1	98	5.0	0.1	99	2.2
	12378-PeCDF	0.1	102	3.5	0.1	105	5.2
	23478-PeCDF	0.1	95	3.8	0.1	93	3.6
	123478-HxCDF	0.2	102	3.0	0.2	101	1.5
	123678-HxCDF	0.2	97	2.8	0.2	93	3.9
	123789-HxCDF	0.2	98	3.1	0.2	99	2.0
	234678-HxCDF	0.2	101	3.8	0.2	103	2.3
	1234678-HpCDF	0.2	99	4.4	0.2	99	1.8
	1234789-HpCDF	0.2	93	3.4	0.2	98	3.9
	OCDF	0.5	99	2.9	0.5	103	4.1
ノンオルト PCBs	33'44'-TCB (#77)	1	95	4.2	1	94	4.3
	344'5'-TCB (#81)	1	104	2.6	1	101	4.3
	33'44'5'-PeCB (#126)	1	98	1.8	1	99	2.2
	33'44'55'-HxCB (#169)	1	88	1.5	1	90	3.1
モノオルトPCBs	233'44'-PeCB (#105)	20	98	2.1	20	100	3.1
	2344'5'-PeCB (#114)	20	94	2.4	20	96	2.5
	23'44'5'-PeCB (#118)	20	94	2.3	20	97	3.5
	2'344'5'-PeCB (#123)	20	99	1.1	20	98	0.6
	233'44'5'-HxCB (#156)	20	101	3.4	20	98	2.5
	233'44'5'-HxCB (#157)	20	96	2.4	20	96	3.2
	23'44'55'-HxCB (#167)	20	93	1.9	20	91	1.5
	233'44'55'-HpCB (#189)	20	98	3.5	20	100	1.7

表 5 自動前処理装置を用いた標準試料 (EDF-5491) の分析結果

DXNs	DXNs (pg/g)			
	参照値 <sup>1)</sup>	自動前処理装置		
		1st	2nd	
PCDDs	2378-TCDD	0.21 ± 0.54	0.047	0.040
	12378-PeCDD	0.34 ± 0.46	0.18	0.19
	123478-HxCDD	0.16 ± 0.18	(0.13) <sup>2)</sup>	0.17
	123678-HxCDD	0.75 ± 1.88	0.37	0.35
	123789-HxCDD	0.34 ± 1.14	(0.036)	0.15
	1234678-HpCDD	1.21 ± 3.88	0.34	0.31
	OCDD	2.08 ± 2.44	0.93	1.00
PCDFs	2378-TCDF	0.47 ± 0.66	0.24	0.26
	12378-PeCDF	0.35 ± 0.34	0.18	0.19
	23478-PeCDF	0.56 ± 0.54	0.41	0.38
	123478-HxCDF	0.40 ± 0.32	0.25	0.27
	123678-HxCDF	1.98 ± 11.08	0.23	0.23
	123789-HxCDF	— <sup>3)</sup>	ND <sup>4)</sup>	ND
	234678-HxCDF	0.40 ± 0.52	0.24	0.21
	1234678-HpCDF	1.42 ± 6.90	0.11	0.13
	1234789-HpCDF	—	ND	ND
OCDF	—	ND	ND	
ノンオルト PCBs	33'44'-TCB (#77)	13.88 ± 16.12	9.2	8.8
	344'5'-TCB (#81)	1.20 ± 1.34	0.79	0.68
	33'44'5'-PeCB (#126)	6.62 ± 5.92	4.5	4.5
	33'44'55'-HxCB (#169)	4.30 ± 17.28	0.85	0.73
モノオルトPCBs	233'44'-PeCB (#105)	183.90 ± 165.76	161	164
	2344'5'-PeCB (#114)	10.67 ± 10.10	8.1	9.2
	23'44'5'-PeCB (#118)	510.66 ± 486.62	410	431
	2'344'5'-PeCB (#123)	9.74 ± 15.42	6.8	6.6
	233'44'5'-HxCB (#156)	109.00 ± 98.52	80	88
	233'44'5'-HxCB (#157)	24.49 ± 35.46	14	15
	23'44'55'-HxCB (#167)	50.38 ± 46.64	41	42
233'44'55'-HpCB (#189)	15.29 ± 12.98	13	13	

1)付与値の±2SD

2)( )の数字はLOD以上であるがLOQ未満

3) —: 参照値なし

4)ND: not detected



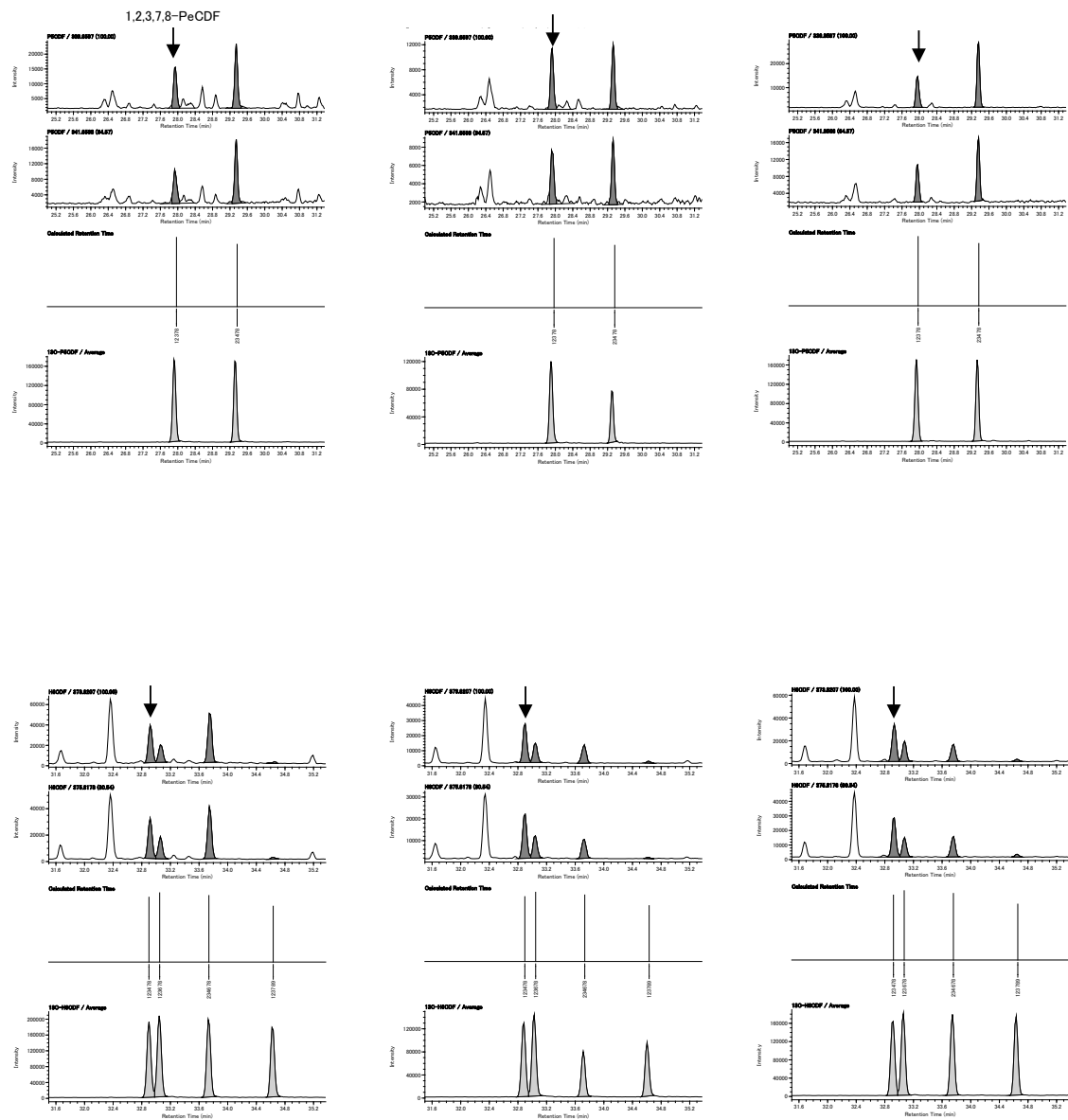


図 1 各精製方法における SIM クロマトグラム(鶏卵)

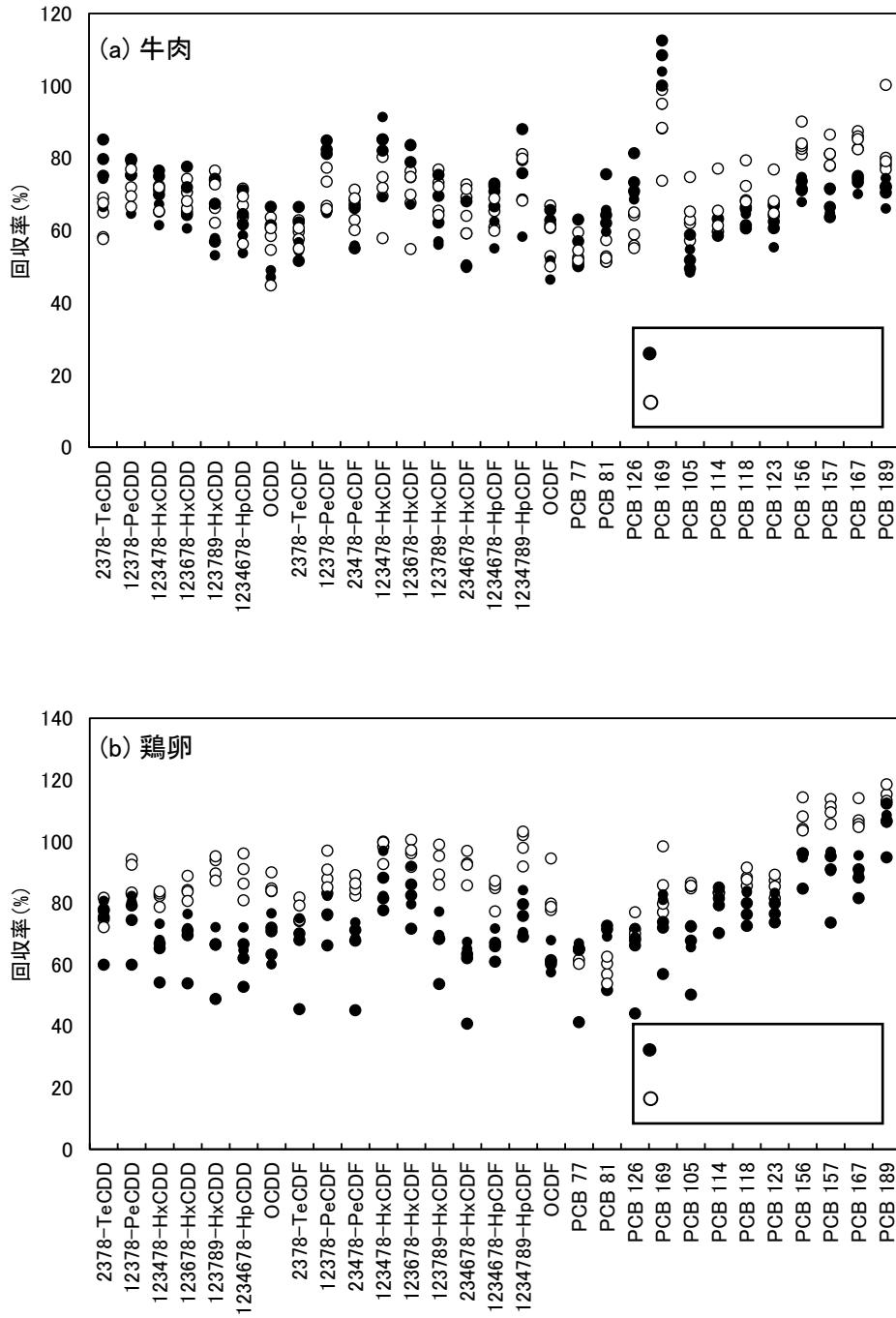


図 2 牛肉及び鶏卵分析時(各  $n = 5$ )のクリーンアップスパイク回収率

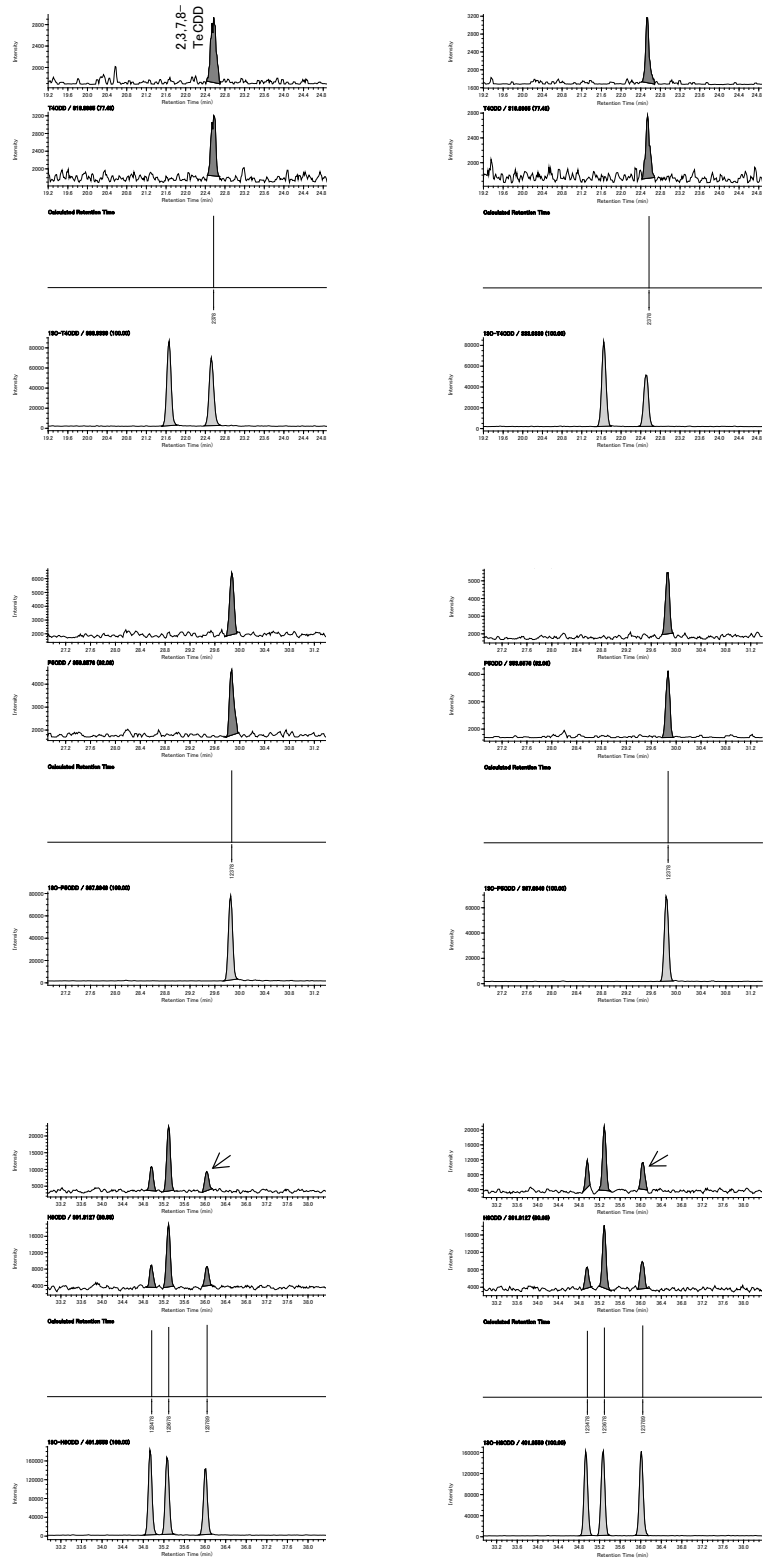


図 3 牛肉の SIM クロマトグラムの一例

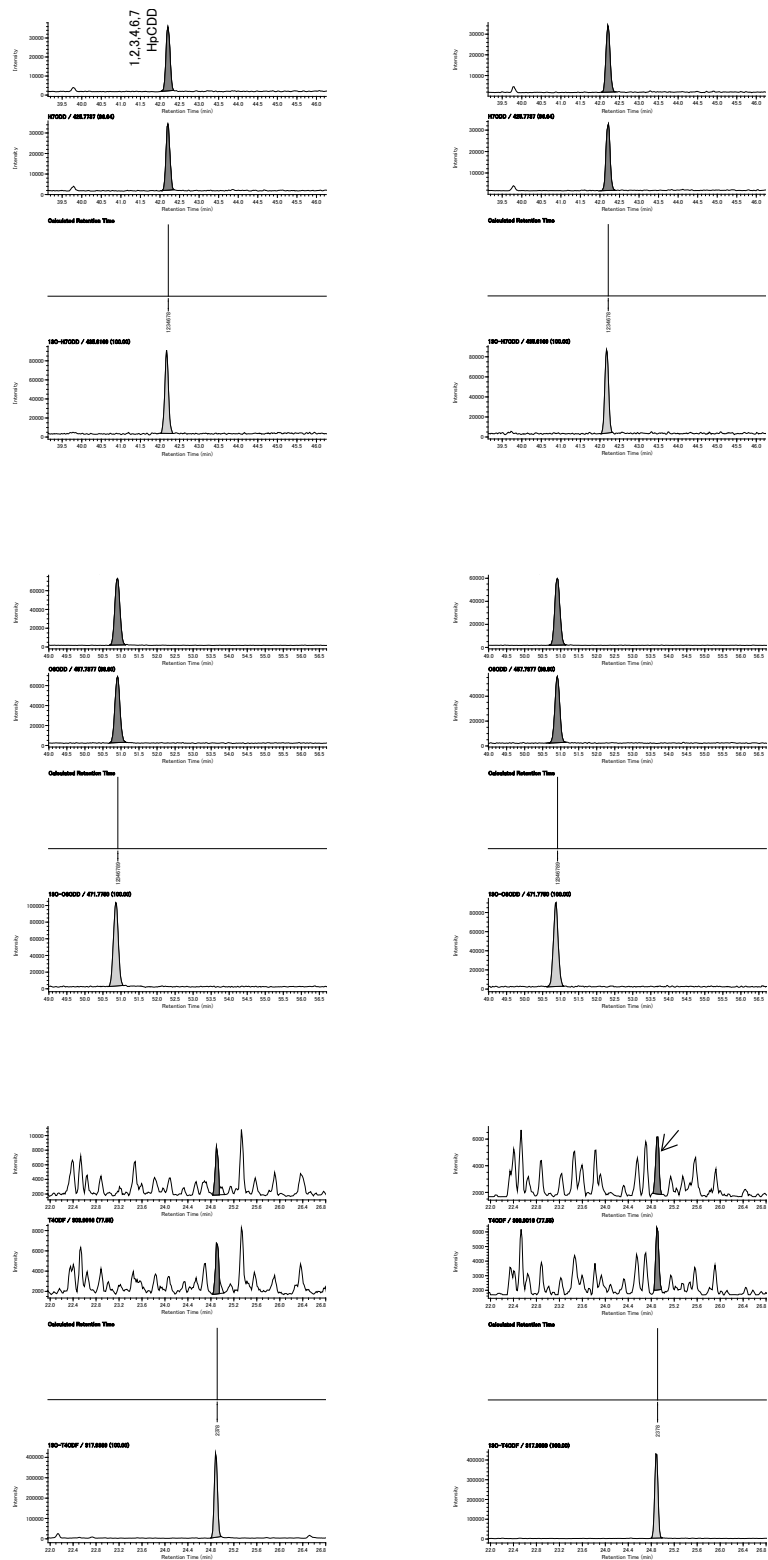


図 3 牛肉の SIM クロマトグラムの一例(つづき)

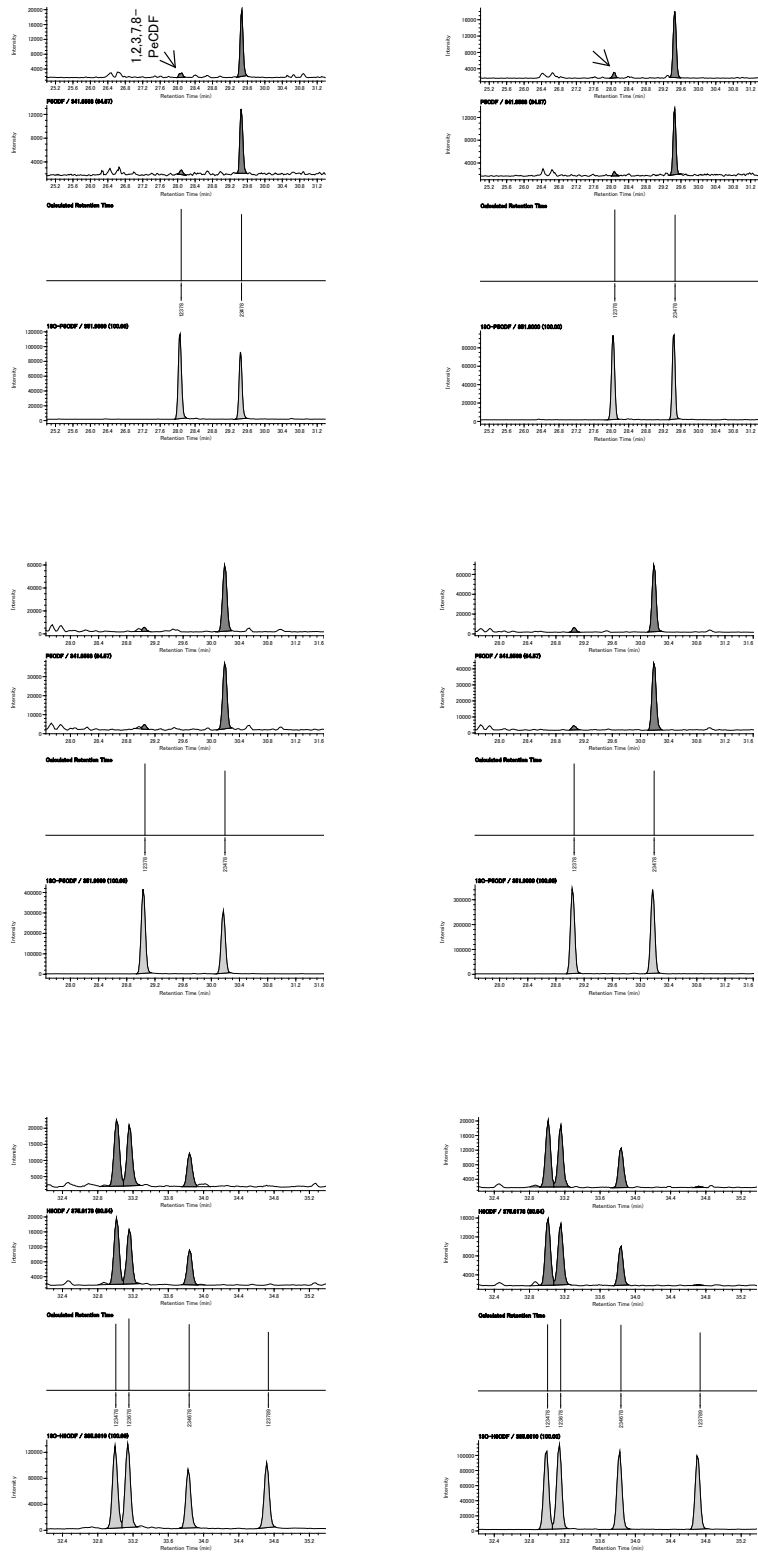


図 3 牛肉の SIM クロマトグラムの一例 (つづき)

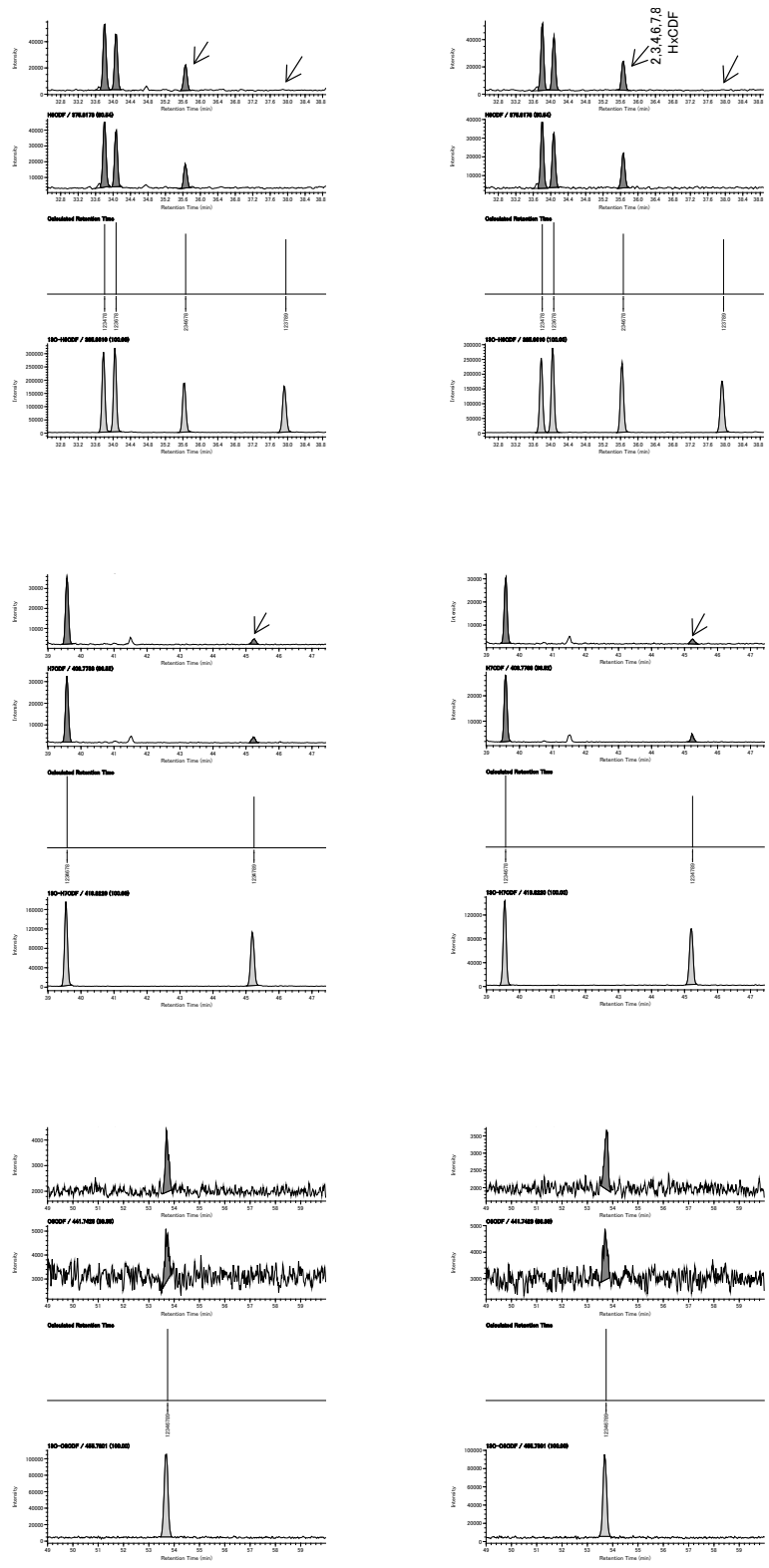


図 3 牛肉の SIM クロマトグラムの一例(つづき)

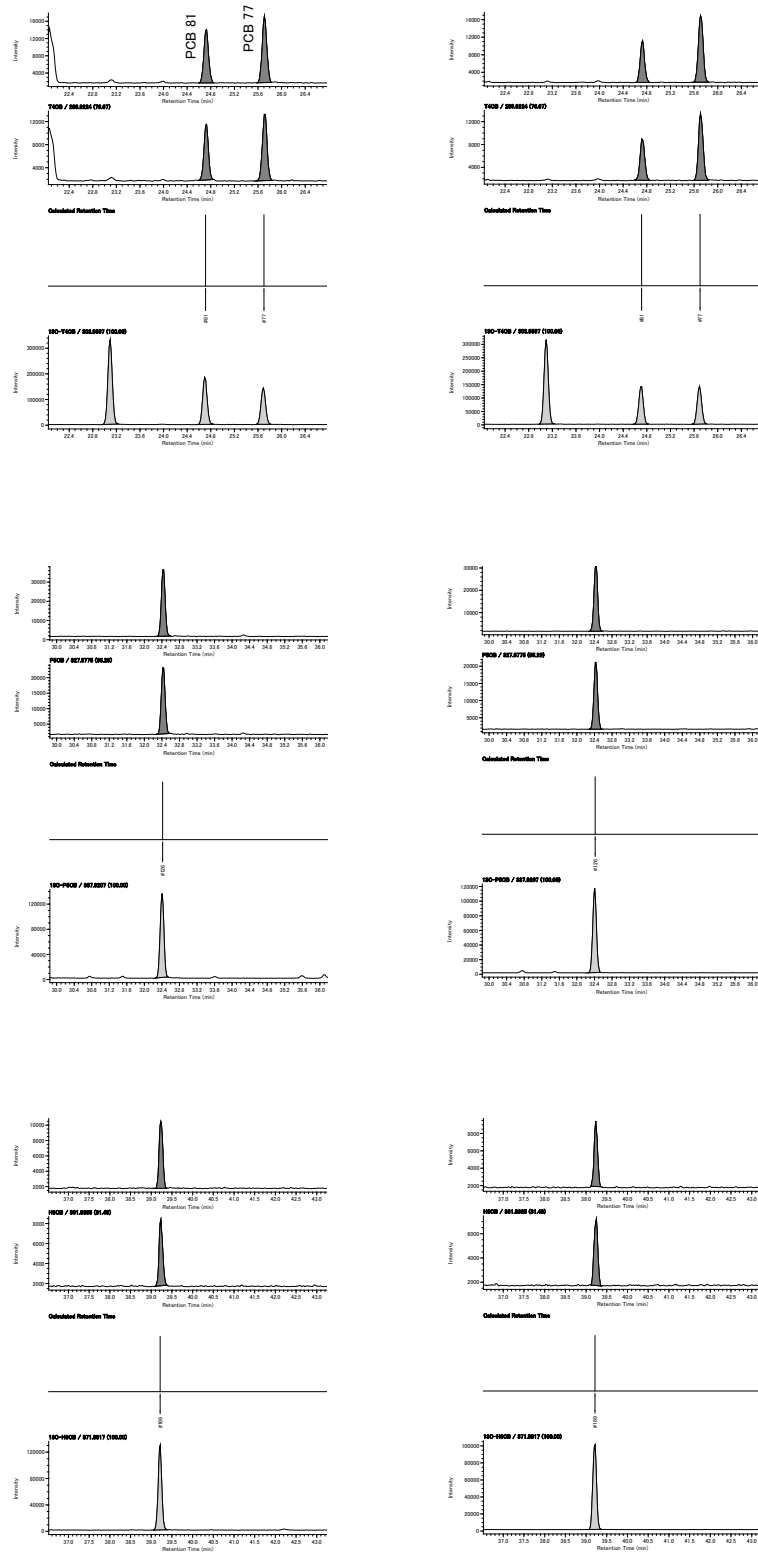


図 3 牛肉の SIM クロマトグラムの一例(つづき)

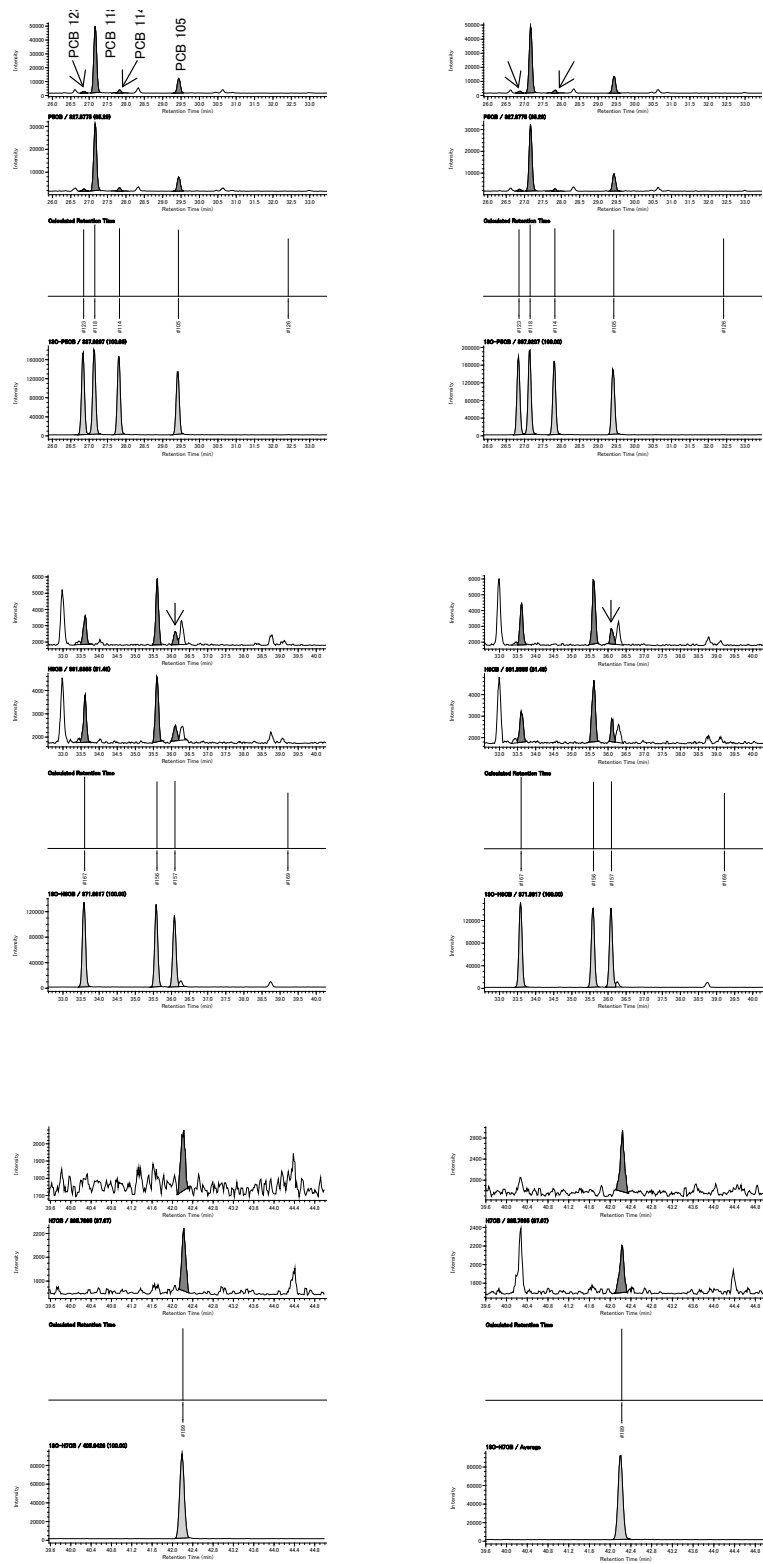


図 3 牛肉の SIM クロマトグラムの一例 (つづき)



# 自動前処理装

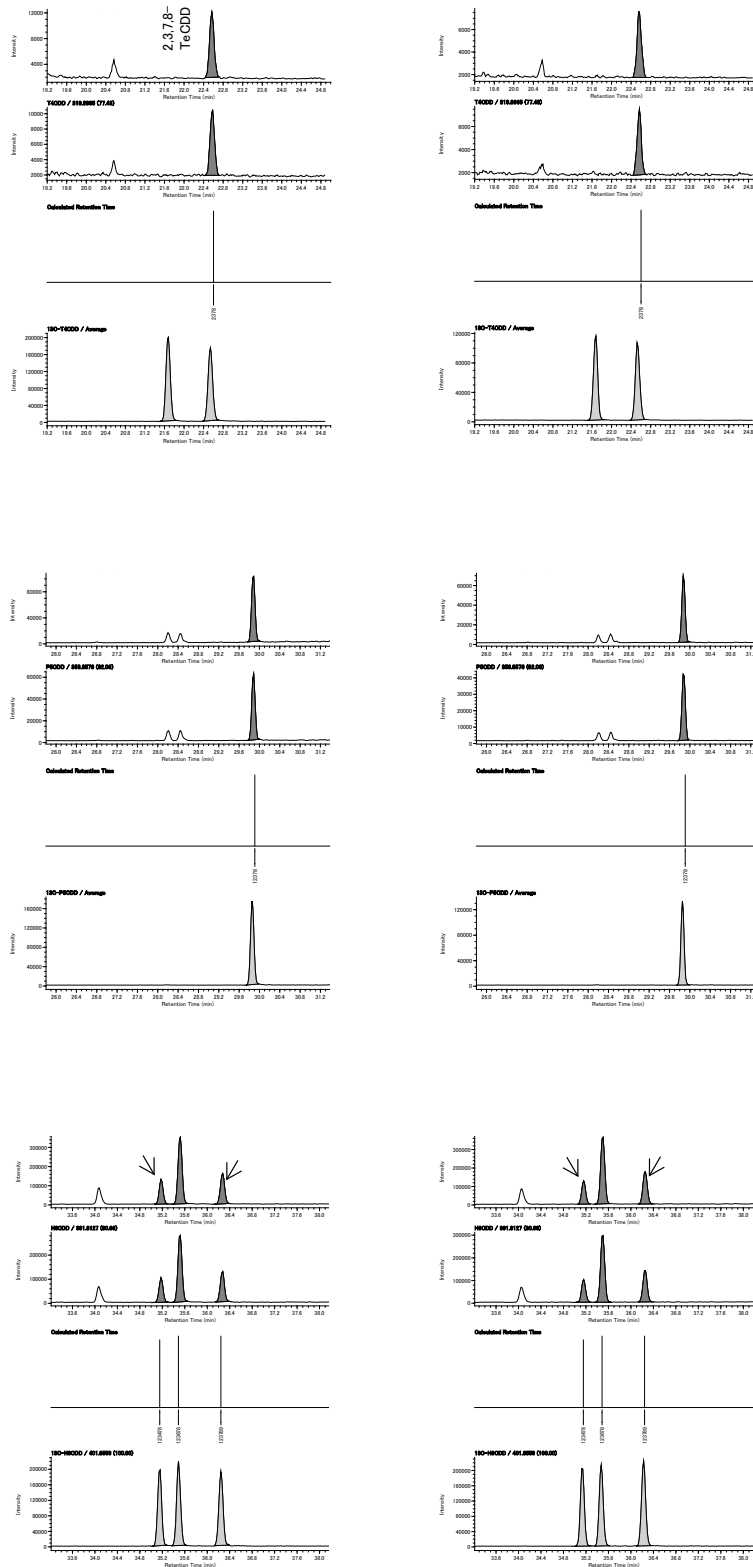


図 4 鶏卵の SIM クロマトグラムの一例

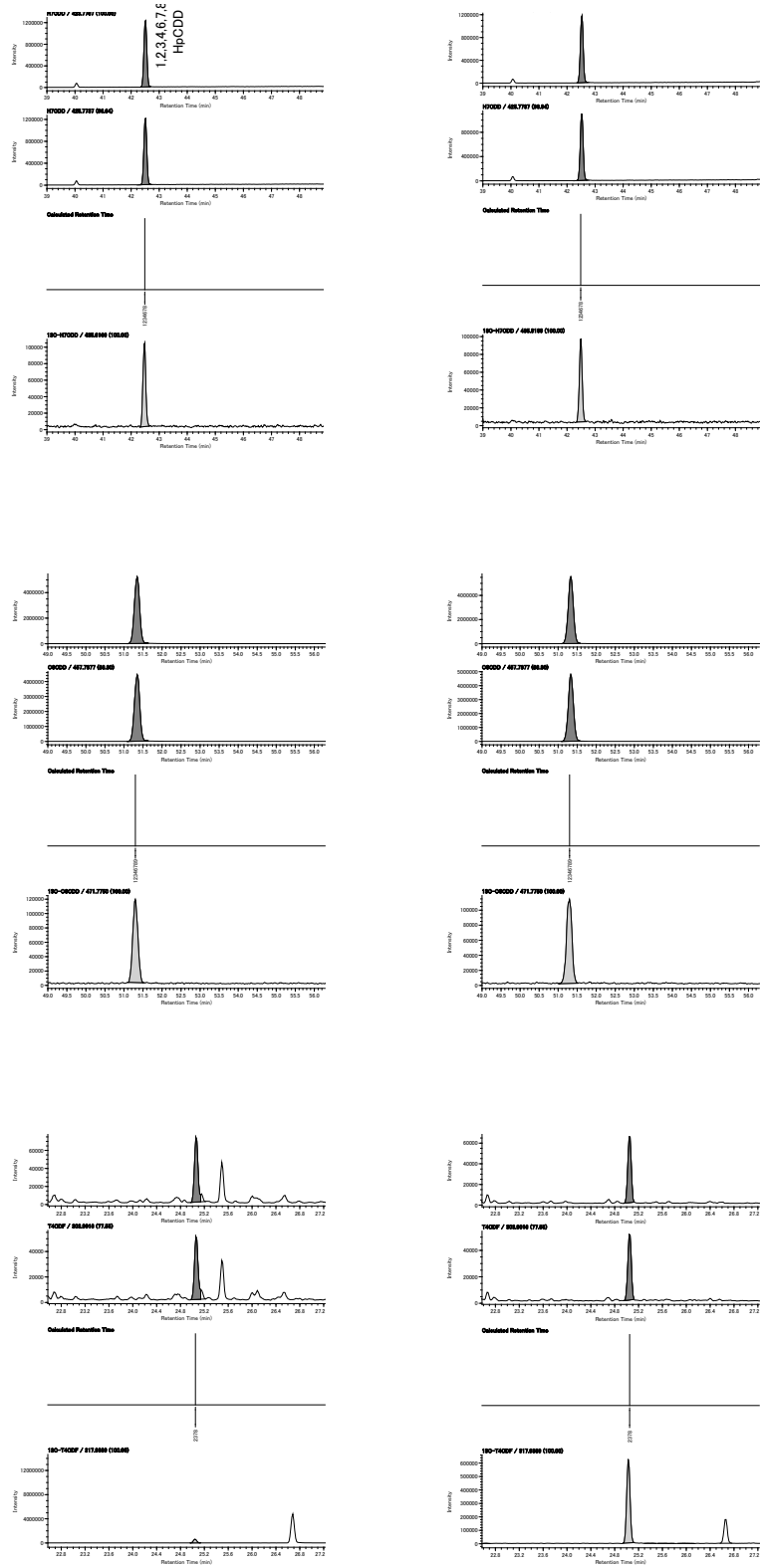


図 4 鶏卵の SIM クロマトグラムの一例 (つづき)

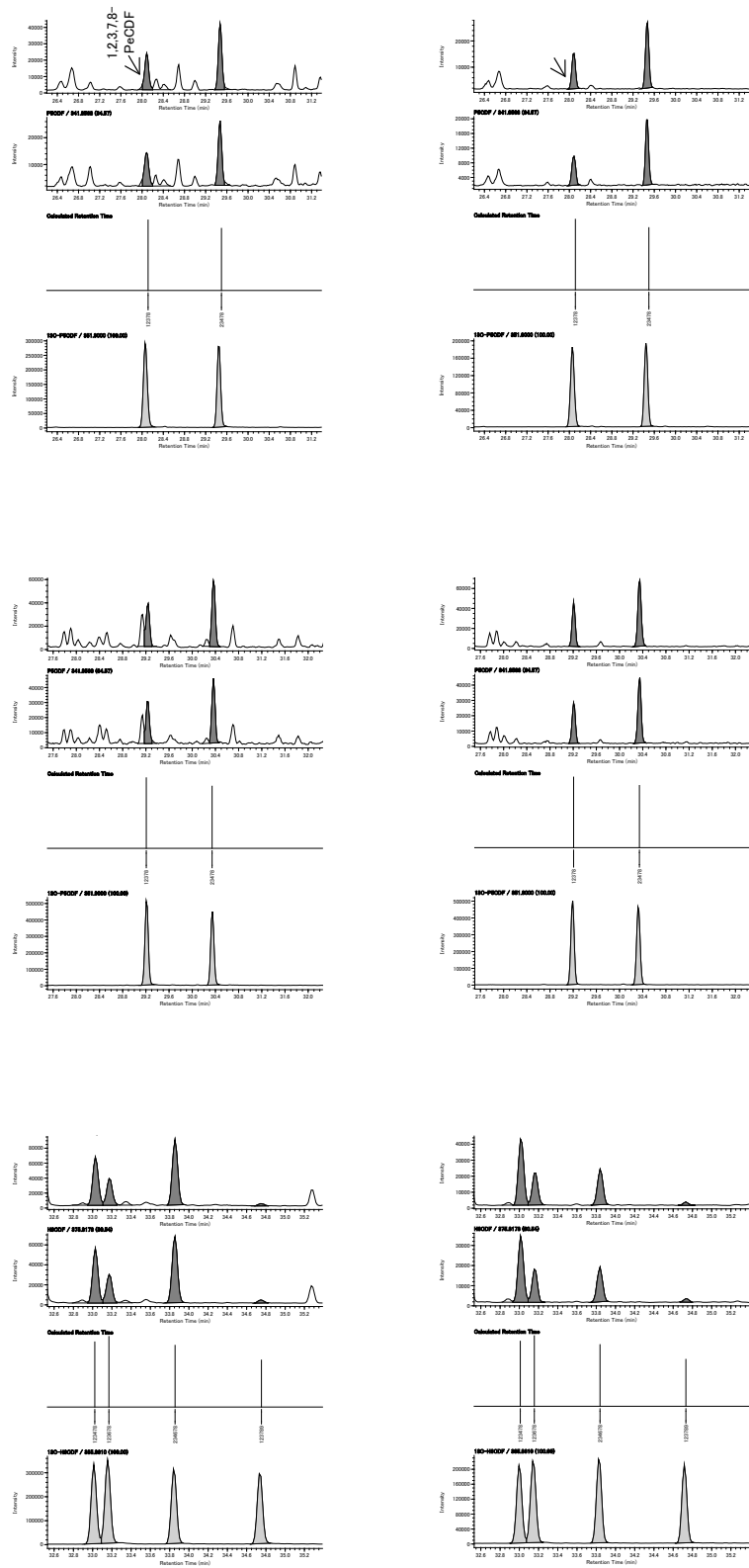


図 4 鶏卵の SIM クロマトグラムの一例 (つづき)

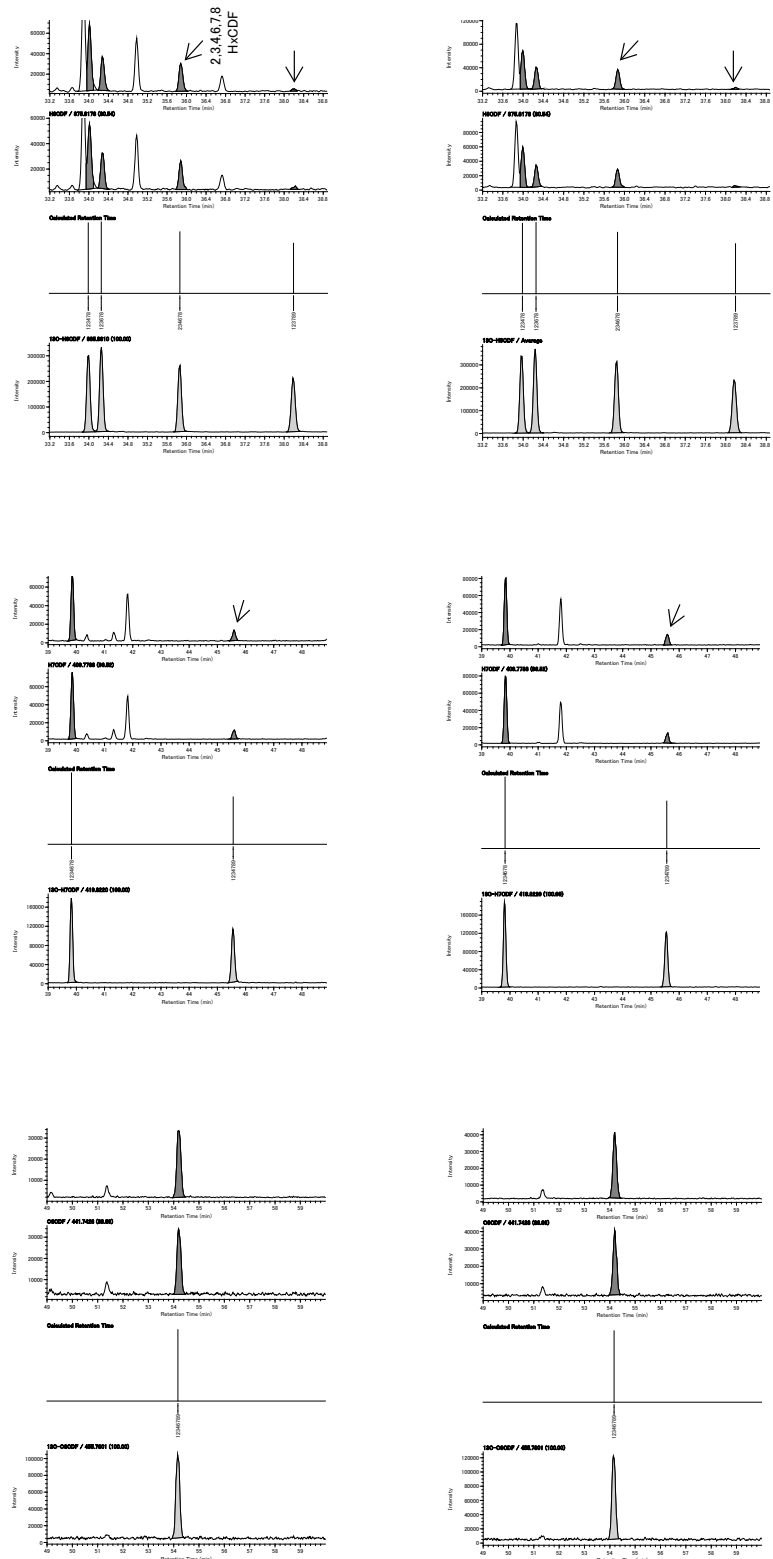


図 4 鶏卵の SIM クロマトグラムの一例(つづき)

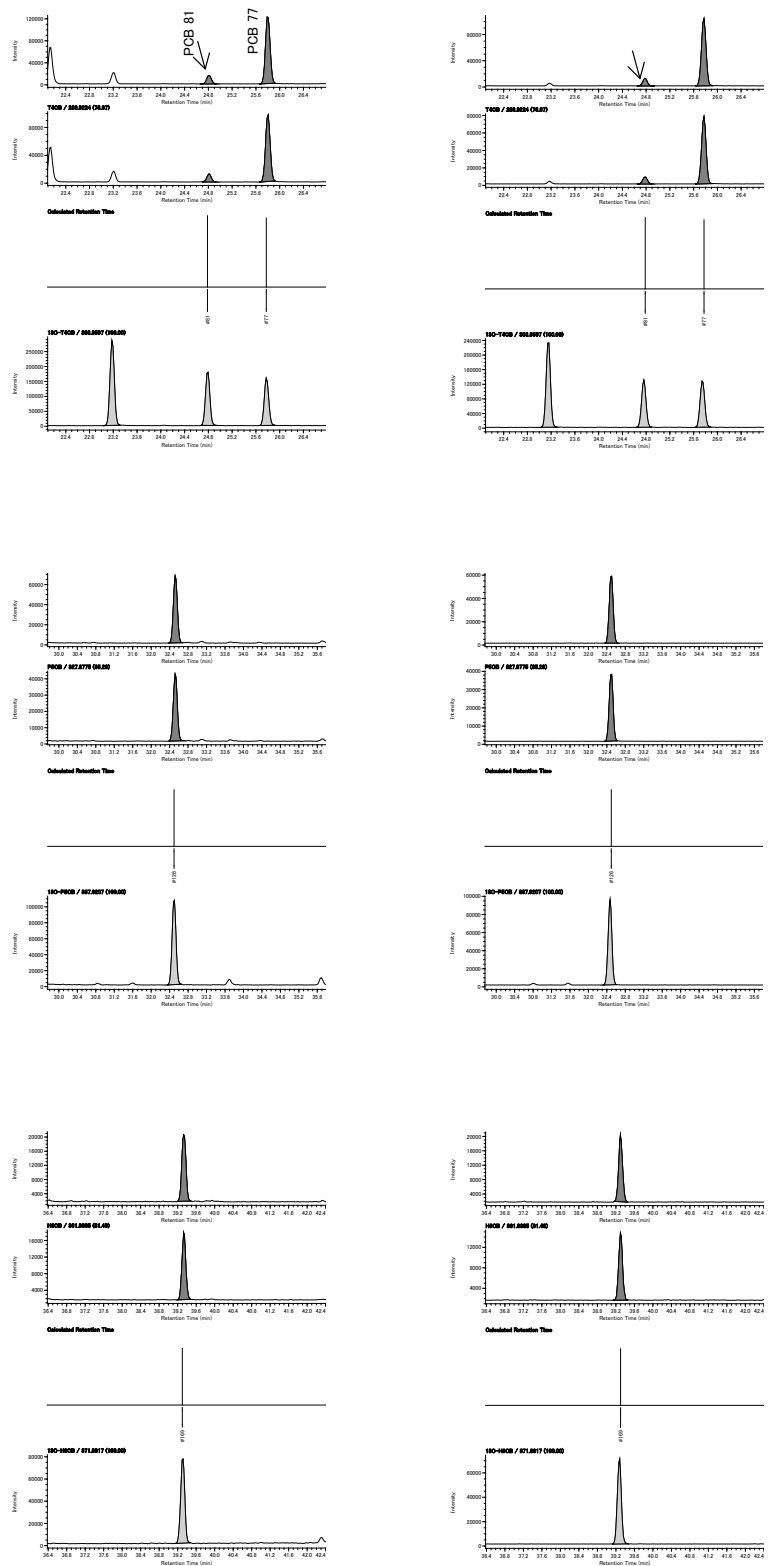


図 4 鶏卵の SIM クロマトグラムの一例(つづき)

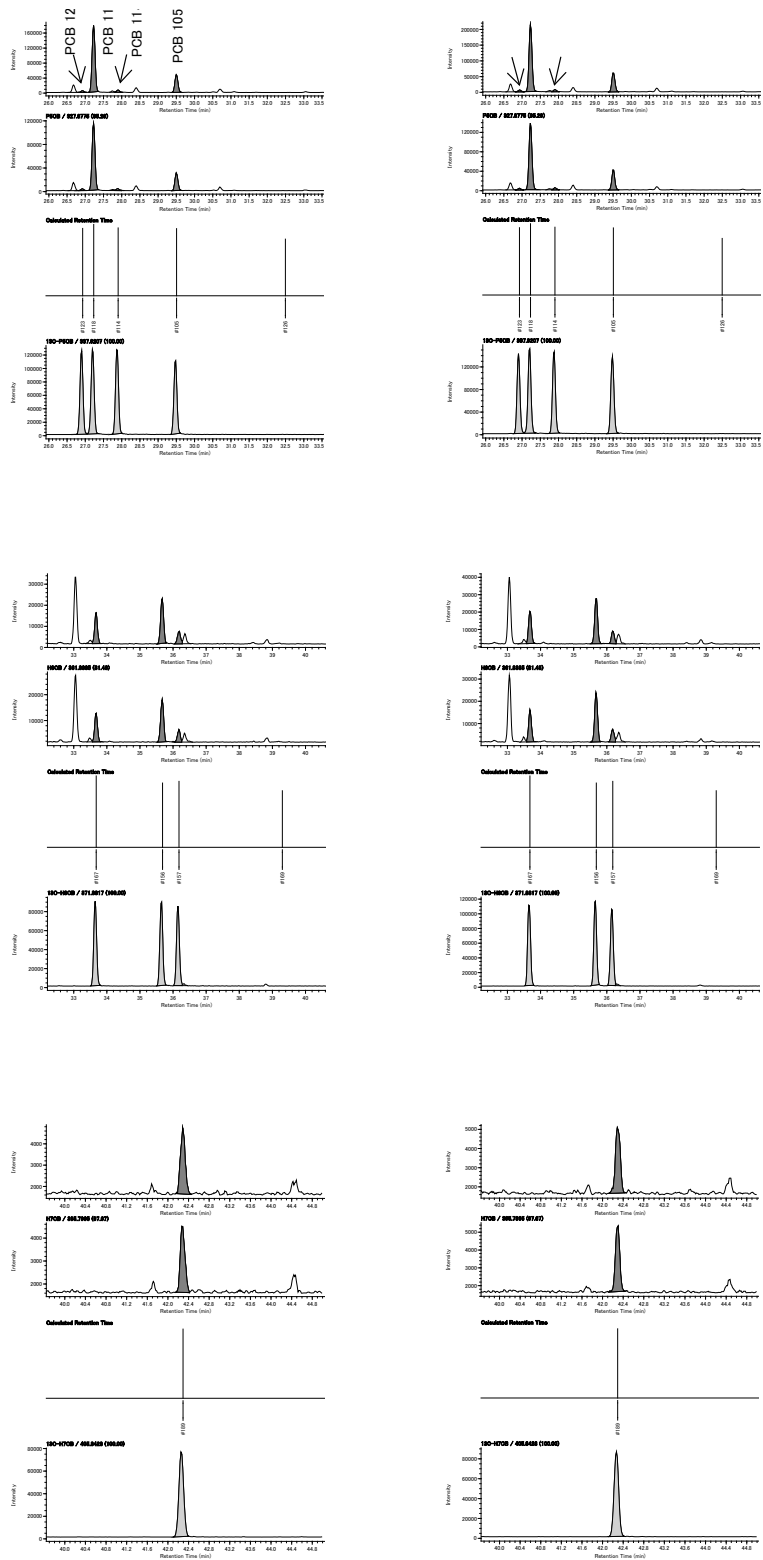


図 4 鶏卵の SIM クロマトグラムの一例 (つづき)

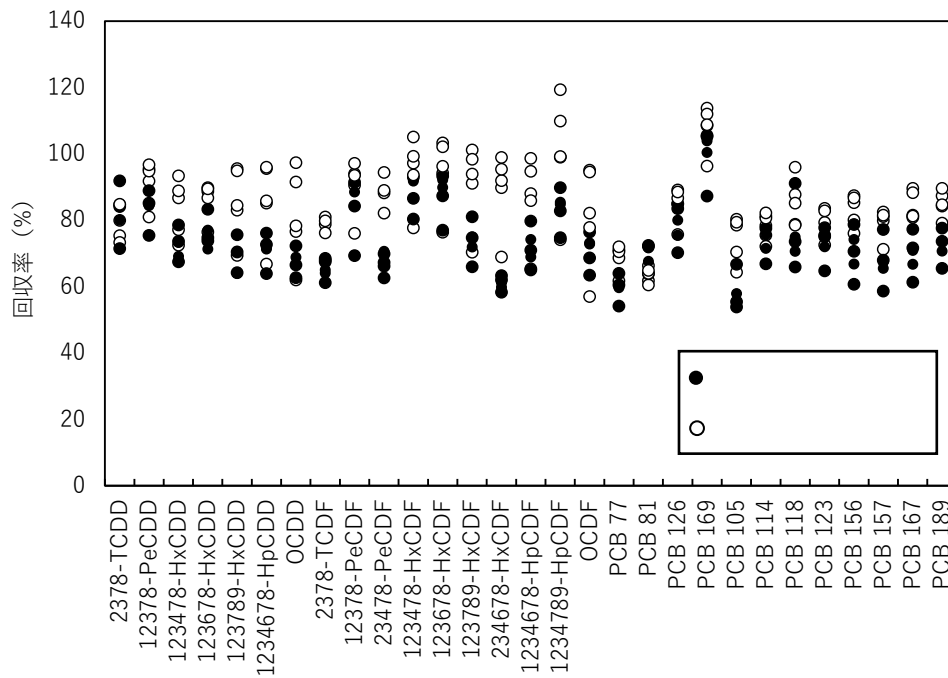


図 5 牛肉及び鶏卵(計 5 試料)分析時のクリーンアップスパイク回収率

従来法

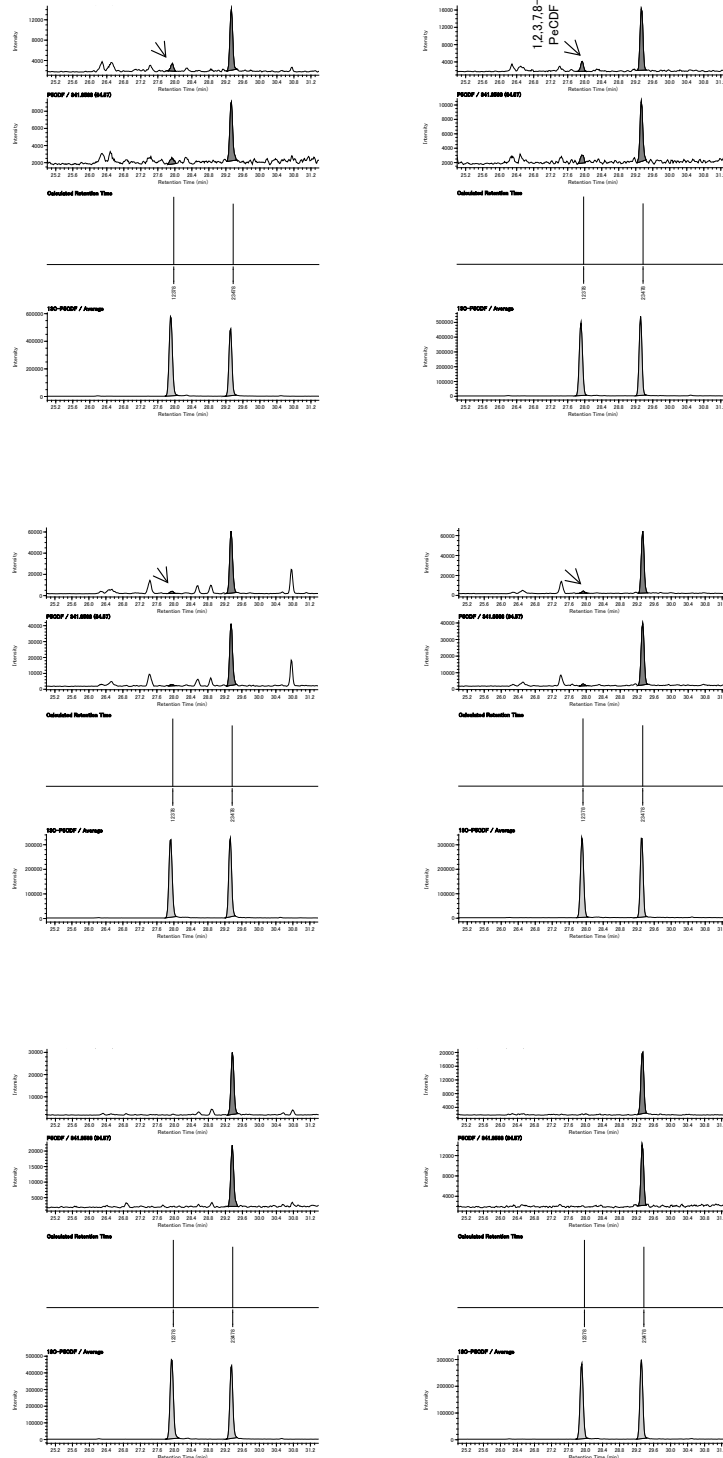


図 6 牛肉及び鶏卵 (計 5 試料) 分析時の SIM クロマトグラム (PeCDFs (DB-5ms))



従米法

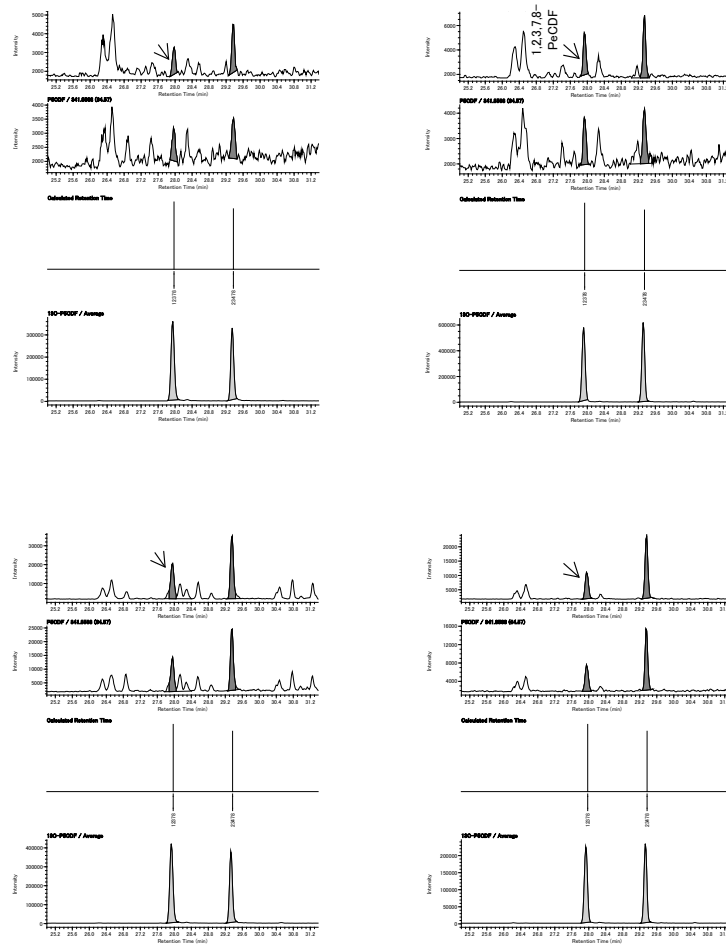


図 6 牛肉及び鶏卵(計 5 試料)分析時の SIM クロマトグラム(PeCDFs (DB-5ms))

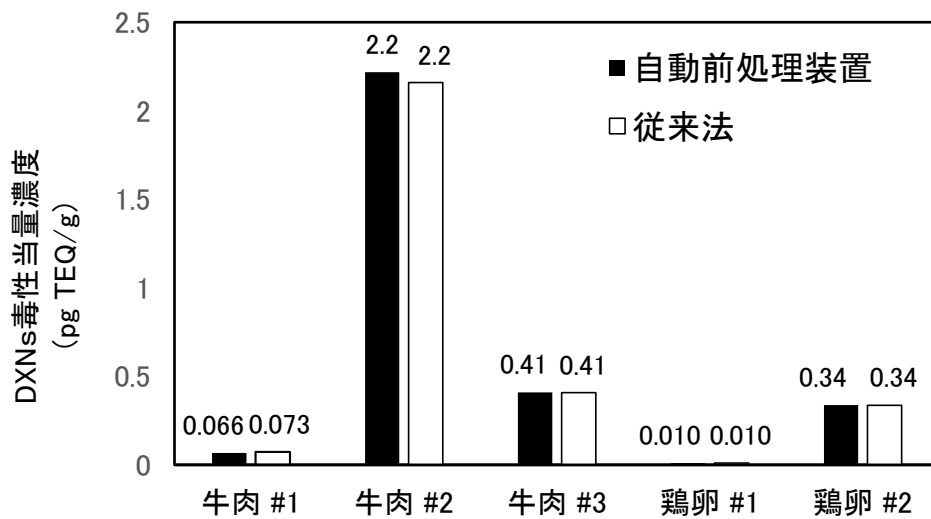


図 7 牛肉及び鶏卵(計 5 試料)における毒性当量濃度の比較

## Ⅱ. 分担研究報告書

### (2) 食品の有害元素の摂取量推定に関する研究

研究分担者 鈴木 美成

## 令和3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 その手法開発のための研究

#### 分担研究報告書

#### (2) 食品の有害元素の摂取量推定に関する研究

研究分担者 鈴木美成 国立医薬品食品衛生研究所食品部

#### 研究要旨

本研究では、2021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ット(TD)試料の分析を通じ、ヒ素[総ヒ素および無機ヒ素(iAs)を含むヒ素化学種]、カドミウム、水銀[総水銀及びメチル水銀(Me-Hg)]、鉛を含む41元素および5化学種の全国・全年齢層における平均摂取量(推定1日摂取量)を推定した。その結果、各元素類の推定1日摂取量は、B: 1715  $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$ , Al: 2498  $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$ , V: 27.5  $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$ , Cr: 101  $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$ , Mn: 4637  $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$ , Co: 12.3  $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$ , Ni: 197  $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$ , As: 322  $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$ , iAs: 22.8  $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$ , Se: 123  $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$ , Mo: 236  $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$ , Cd: 16.7  $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$ , Sn: 328  $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$ , Sb: 1.90  $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$ , Ba: 427  $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$ , Hg: 8.21  $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$ , Me-Hg: 7.02  $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$ , Pb: 5.60  $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$ , U: 1.29  $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$ であった。

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解析した。また、耐用摂取量等のHealth Based Guideline Value (HBGV)が設定されている元素類については、必要に応じて一日当たりの値に換算した後、推定1日摂取量とHBGVの比(ハザード比、HQ)を求めた。その結果、HQはiAsの1.36を筆頭に、Ni, Moが0.80以上、Se, Ba, Me-Hgが0.39-0.59、B, Cdが0.16-0.36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。また、金属ナノ粒子の摂取量評価として、Agナノ粒子の摂取量推定を行った。健康リスクの高いと考えられるAs, iAs, Cd, Hg, Pbの摂取量評価においては、ベイズ法を併用した二次元モンテカルロシミュレーションによる確率論的摂取量評価についても検討を試みた。また、年代別の摂取量推定も行った。

## 研究協力者

北海道立衛生研究所

新潟県保健環境科学研究所

横浜市衛生研究所

名古屋市衛生研究所

滋賀県衛生科学センター

香川県環境保健研究センター

福岡県保健環境研究所

沖縄県衛生環境研究所

青柳直樹

雅楽川憲子

櫻井有里子、越智直樹、五十嵐悠

宮崎仁志

三田村徳子

安永恵

新谷依子、飛石和大、堀就英

大城聡子、當間一晃、古謝あゆ子

## 1. 研究目的

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、及び行政施策の効果検証するための重要な科学的根拠となる。

これまでの研究班においては、健康リスクの大きさや懸念の蓋然性を指標に、摂取量評価の対象となる有害物質が選定されてきた。一方で、最近の研究動向としては、ノンターゲット分析(元素分析の研究分野においてメタロミクスといったオミクス研究)に代表される網羅的分析が発展してきている。機器分析の発展に伴いより低濃度の物質を測定することが容易になってきたこと、様々な物質が産業利用されるようになったことが、網羅的分析の必要性が高まってきた背景にある。

元素分析の分野においても、全ての元素は普遍的に含まれているという拡張元素普存説が提唱され、この考えを実証する研究成果が発表されてきている。つまり、食品を介した元素類の摂取は避けることのできないリスクであ

り、人為的に合成した化学物質とは異なる点となる。

誘導結合プラズマ質量分析(ICP-MS)法は、高いイオン化効率・広いダイナミックレンジ・多元素分析の適用性といった理由から、様々な試料中で30元素以上の網羅的分析の結果が報告されている。そこで本研究では、有害物質としてヒ素[総ヒ素(As)並びに無機ヒ素(iAs)を含無ヒ素化合物]、カドミウム(Cd)、水銀[総水銀(Hg)およびメチル水銀(Me-Hg)]、鉛(Pb)だけでなく、ICP-MS特性を活かした網羅的分析を行った。

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

本TDSに用いた試料(TD試料)は、全国10地域の地方衛生研究所等により調製された。TD試料中の各種元素類の分析は国立医薬品食品衛生研究所において実施した。

地方自治体所管の衛生研究所等に毎

年ご協力を受けながら、元素類の摂取量評価を継続している。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の推定を目的に、2021年に実施したTDSの成果を報告する。さらに、1977年以後に継続して推定しているAs, Cd, Hg, およびPbの摂取量については、情報を更新し報告する。

## 2. 研究方法

### 2.1. 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。

2014年から2016年に行われた国民健康・栄養調査のデータを解析し、該当地域における1日当たりの消費量の平均値を算出した。

TD試料の調製は、全国10地域の地方衛生研究所等で2021年5月から10月までの間に調製された。小売店から食品を購入し、該当地域における1日当たりの消費量に従って秤量し、茹でる、焼く等の一般的な調理を行ってから、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、元素濃度を算出する過程において考慮した。

TD試料は、混合・均質化の際に組み合わせる食品の種類に応じて、下記14群に分割して調製した。1群:米及びその加工品、2群:雑穀・芋、3群:砂糖・菓子類、4群:油脂類、5群:豆・豆加工品、6:果実類、7群:有色野菜、8群:その他の野菜・海草

類、9群:嗜好飲料、10群:魚介類、11群:肉・卵、12群:乳・乳製品、13群:調味料、14群:飲料水。14群の喫食量は250g/dayとした。

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。

### 2.2 試薬

超純水はMilli Q Element A10 (メルク社製)により製造したもの(比抵抗 > 18.2 MΩ・cm、TOC < 3 ppb)を使用した。硝酸(1.42 Ultrapur-100)、過酸化水素水(Ultrapure)、アセトン(残留農薬・PCB分析用)、トルエン(残留農薬・PCB分析用)、臭化カリウム(鹿特級)、硫酸銅(II)(鹿特級)、ひ素標準液(As 100)、および25%アンモニア水(有害金属測定用)は関東化学株式会社から購入したものを使用した。L-システイン塩酸塩一水和物(特級)、25%テトラメチルアンモニウムヒドロキシド(TMAH; 精密分析用)、1-ブタンシルホン酸ナトリウム、マロン酸(特級)、メタノール(液体クロマトグラフィー用)、メチルオレンジ(特級)は和光純薬製のものを使用した。

多元素混合標準溶液としてSPEX社製のXSTC-622とXSTC-1を用い、一部の元素標準溶液にはシグマアルドリッチ社製(1000 mg/L 水銀標準原液, Be, Ga, Y, In 標準溶液, Trace CERT)、あるいは関東化学製(Nd, Sm, Gd 標準溶液)のものをを用いた。

水銀分析には ICP-MS 用 1000 mg/L 水銀標準原液 (シグマアルドリッチ社)、L-システイン (ナカライテスク)、添加剤 B: 活性アルミナ (日本インスツルメンツ社) を用いた。

ヒ素の化学形態別分析には、ひ酸 [As(V)] 水溶液 (NMIJ CRM 7912-a) を、メチル水銀の分析には塩化メチル水銀 (ジーエルサイエンス) を用いた。

人口唾液には、和光純薬社製のαアミラーゼ (生化学用)、ムチン (ブタ胃由来)、尿酸 (99%)、塩化ナトリウム (残留農薬・PCB 試験用)、チオシアン酸ナトリウム (試薬特級)、リン酸二水素カリウム (試薬特級)、炭酸水素ナトリウム (食品添加物)、塩化カリウム (試薬特級)、塩化カルシウム二水和物 (試薬特級)、硫酸ナトリウム (残留農薬・PCB 試験用)、関東化学社製の尿素 (特級) を用いた。

ナノ粒子測定には Tween-20 (分子生物学用、関東化学)、パンクレアチン (ブタ膵臓由来、シグマアルドリッチ)、リパーゼ (ブタ膵臓由来、シグマアルドリッチ)、NaH<sub>2</sub>PO<sub>4</sub> (特級、和光純薬)、水酸化ナトリウム (特級、和光純薬)、銀ナノ粒子 (粒径 60 nm、シグマアルドリッチ)、二酸化ケイ素 (粒径 500nm、シグマアルドリッチ) を用いた。

### 2.3 分析機器

元素分析には ICP-MS (iCAPQ, サーマフィッシャーサイエンティフィック社製) を用いた。ICP-MS 分析の前処理に使用するマイクロ波分解装置は、ETHOS-One 及び ETHOS-TC (ともにマイルストーンゼネラル社製) を用いた。ヒ素および水銀の

化学形態別分析には、HPLC (Prominence, 島津製作所社製) と ICP-MS (iCAPRQ, サーマフィッシャーサイエンティフィック社製) を接続したハイフナーションシステムを採用した。T-Hg の分析には総水銀計 (MA-3000, 日本インスツルメンツ社) を用いた。

### 2.4 ICP-MS による元素分析

多元素分析は、分析用試料 0.50 g を石英製分解容器に量りとり、硝酸 5 mL 及び過酸化水素水 2 mL を加えた。水 5 mL 及び過酸化水素水 2 mL を加えた TFM 製分解容器に前述の石英製分解容器を入れ、マイクロ波分解装置により分解した。マイクロ波分解は次の条件で行った。70°C: 2 分間→50°C: 3 分間→8.3°C/分: 18 分間→200°C: 10 分間。

分解後の溶液に、混合内部標準溶液 0.5 mL を添加後、水で 50 mL に定容した。定容後の溶液を測定溶液として ICP-MS により測定した。

ただし、14 群の試料に対しては、試料 40 mL に対し硝酸 5 mL, 過酸化水素 2 mL を添加し、50 mL に定容したものを ICP-MS 用の分析試料とした。ICP-MS の装置条件は Table 1 に示すとおりである。

また、希土類元素によるヒ素へのスペクトル干渉は、以下で示した数値補正法を用いた補正を行った。

$$I_c^{75\text{As}} = I_m^{75\text{As}} - \alpha I_m^{150\text{Nd}} - \beta I_m^{150\text{Sm}}$$

$$= I_m^{75\text{As}} - \frac{5.6}{17.2} \alpha I_c^{146\text{Nd}} - \frac{7.38}{15} \beta I_c^{147\text{Sm}}$$

ここで、 $I_c^X$  と  $I_m^X$  はそれぞれ  $m/z=X$  における信号強度の補正值および測定値を、 $\alpha$

と $\beta$ はそれぞれ Nd と Sm の 2 価イオン生成率を示す。ただし,  $^{146}\text{Nd}$  と  $^{147}\text{Sm}$  の信号強度は, Ba の酸化物 ( $^{130}\text{Ba}^{16}\text{O}$ ) 及び水酸化物 ( $^{130}\text{Ba}^{16}\text{OH}$ ) の干渉を受けるため、下記の補正を行った上で上記の式に当てはめた。

$$\begin{aligned} I_c^{146\text{Nd}} &= I_m^{146\text{Nd}} - \gamma I_m^{130\text{Ba}} \\ &= I_m^{146\text{Nd}} - \gamma \frac{0.11}{11.2} I_m^{137\text{Ba}} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} I_c^{147\text{Sm}} &= I_m^{147\text{Sm}} - \varepsilon I_m^{130\text{Ba}} \\ &= I_m^{147\text{Sm}} - \varepsilon \frac{0.11}{11.2} I_m^{137\text{Ba}} \end{aligned}$$

ここで、 $\gamma$  と  $\varepsilon$  はそれぞれ Ba の酸化物と水酸化物の生成率を示す。これらの生成率は単一元素標準溶液を分析することで算出した。

## 2.5 ヒ素の化学形態別分析

試料 2.0 g を量り取り、0.3 mol/L 硝酸溶液 5 mL を加え、100°C で 2 時間静置した。なお、30 分おきによく振り混ぜた。2600×g で 10 分間遠心分離後、水層を 20 mL メスフラスコに移した。残渣に水 5.0 mL を加え、手でよく振とうした後、同様に遠心分離後、水層を上記のメスフラスコに合わせた。同様の操作を計 2 回行った。メスフラスコにメチルオレンジ溶液を 100  $\mu\text{L}$  加え、5%アンモニア水で約 pH 2.7 (溶液の色が薄い赤色～オレンジ) に調整した後、20 mL に定容した。この溶液を孔径 0.45  $\mu\text{m}$  の PTFE フィルターでろ過したものを、測定溶液とした。

測定試料 10  $\mu\text{L}$  を HPLC カラムに抽入し、Table 2 に示した条件にてヒ素の化学種別分析を行った。定量対象とした As 化

学種は、無機ヒ素 [iAs (As(III)と As(V)の合計)], モノメチルアルソン酸 (MMAs), ジメチルアルシン酸 (DMAs), およびアルセノベタイン (AsB) とした。得られた As ピーク面積値の濃度に対する一次回帰式を最小二乗法により求め、検量線を作成した。内部標準として移動相に添加した Te の信号を解析し、Te の信号強度の変動が認められた場合には、As/Te 比を用いて同様に定量を行った。

## 2.6 総水銀の分析

総水銀 (Hg) は総水銀計を用いて Table 3 の条件で測定を行った。標準溶液及び水銀濃度が 0.01 mg/kg 未満の試料の測定には低濃度用の吸光セル、水銀濃度が 0.01 mg/kg 以上の試料の測定には高濃度用の吸光セルを用いた。

サンプルポートは、5 mol/L 硝酸溶液に 12 時間以上浸け置きした後、水でよくすすぎ、使用する直前に 750°C で 3 時間加熱した。冷却後、総水銀計により 850°C で 4 分間再加熱したものを使用した。添加剤 B は使用する直前に 750°C で 5 時間加熱したものを、4 群の T-Hg 測定の際に添加した。標準原液を適宜量とり、0.01% L-システイン溶液で希釈し、検量線用標準溶液とした。

## 2.7 メチル水銀の分析

試料 2.0 g を量り取り、10% TMAH 溶液 5 mL を加え、80°C で 2 時間静置した。なお、30 分おきによく振り混ぜた。2600×g で 10 分間遠心分離後、上澄みを 20 mL メスフラスコに移した。塩酸を用



いて pH 2.3 に調整した後、20 mL に定容した。この溶液を孔径 0.45  $\mu\text{m}$  の PTFE フィルターでろ過したものを、測定溶液とした。

1 群の場合には、試料 2.0 g に対して人口唾液 (1.667 mg/mL NaCl, 0.5 mg/mL NaSCN, 1.833 mg/mL  $\text{Na}_2\text{SO}_4$ , 0.5 mg/mL  $\text{NaHCO}_3$ , 1.5 mg/mL KCl, 2.0 mg/mL  $\text{KH}_2\text{PO}_4$ ,  $\text{CaCl}_2\cdot\text{H}_2\text{O}$ , 0.833 mg/mL  $\alpha$ -アミラーゼ, 0.333 mg/mL 尿酸, 0.033 mg/mL 尿素, 2.5 mg/mL ムチン) を 3 mL 添加し、37°C で 15 分静置した後、25% TMAH を 2 mL 添加し 80°C で 2 時間静置した。以降の操作は、上記と同様に行った。

測定溶液は Table 4 に示した装置条件で分析した。分析の妥当性は、認証標準物質 (Sword fish, NMIJ CRM 7403-a; Tuna, ERM-CE 464; Cod, NMIJ CRM 7402-a) を用いて確認し、いずれの認証物質の分析結果も不確かさの範囲内で認証値と良い一致を示した (Table 5)。また、1 群については添加回収試験 ( $n = 3$ ) を行い、良好な回収率 ( $96.6 \pm 1.0\%$ ) を得た。

## 2.7 銀ナノ粒子の分析

試料 0.5 g を量り取り、酵素溶液 (3.0 mg/L パンクレアチン, 3.0 g/L リパーゼ, 0.2 mol/L  $\text{NaH}_2\text{PO}_4$ , 0.2 mol/L NaOH, pH=7.4) 7 mL を添加し超音波バスにて 10 分間処理を行い、ヒートブロック状で 37°C 60 分加熱した。室温に戻した後、遠心分離 (2600 $\times$ g, 30 分間) で得られた上清を 100 mL メスフラスコに移し、1% Tween-20 で定容した。溶存性の Ag を除くために、定容した溶液 1 mL を 50-kDa

のカットオフ値の限外濾過フィルターを用いて銀ナノ粒子 (Ag-NP) 画分を分離した。回収した Ag-NP 画分は 50 mL メスフラスコに移し、1% Tween-20 で定容し、測定溶液とした。

適宜 1% Tween-20 で希釈した後、単一粒子(single particle, sp)-ICP-MS 法を用いて、Ag-NP の粒子数濃度、粒子質量濃度、単一粒子質量分布を測定した。sp-ICP-MS 測定においては、信号の取り込み時間を 0.5 ms とし、1~5 分間の時間分解分析を行った。sp-ICP-MS での試料輸送効率、粒径 60 nm の銀ナノ粒子を用いて測定日ごとに算出した値を用いた。また、同様の方法で二酸化ケイ素ナノ粒子 ( $\text{SiO}_2$ -NP) も測定を行った。

## 2.9. 統計解析

空試験を 3 回以上行い、空試験の信号強度の標準偏差を 10 倍した値を検量線の傾きで除した値を定量下限値 (LOQ) とした。HPLC-ICP-MS によるヒ素化合物の分析においては、空試験のピーク範囲における信号を積分した値を利用し、信号強度が低い場合にはポアソン分布に近似していると仮定して、標準偏差はピーク面積値の 2 乗根を用いた。

LOQ 未満の結果を含むデータの取扱いに関しては、古典的には 0, 1/2LOQ, LOQ 等を代入する方法が用いられてきた。しかしながら、最近の研究・ガイドラインでは、代入法の適用範囲は限定されて来ており、その使用も推奨されなくなってきている。代入法以外の平均値推定法として、R (3.4.0) と R のパッケージ rstan (2.16.2) を用いた。

一方で、これまでと同様の手法で推定値を比較することも求められる。そこで、本研究では代入法に代わる解析法についても本研究への適用可能性を調査するとともに、LOQ 未満となったデータは 0 (ND=0) と 1/2LOQ (ND=0.5LOQ) の代入法両方で算出することを基本とした。

元素類摂取量は、TD 試料中化学物質濃度に食品消費量を乗じて推定した。この推定値は地域別の全年齢層平均摂取量 (地域別摂取量) に相当する。地域別摂取量を平均した値を全国・全年齢層平均摂取量 (推定 1 日摂取量) とした。

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。

モンテカルロシミュレーションの際には、14 群の体重当たり喫食量には 250/55 g/kg/day の定数を用いた。

## C. D. 結果及び考察

### 1. 各元素類の全国・全年齢層平均摂取量の推定

2021 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 41 元素 (B, Al, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Ge, As, Se, Rb, Sr, Zr, Mo, Cd, Sn, Sb, Cs, Ba, La, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu, W, Hg, Pb, U) について 10 地域の平均値として算出した推定一日摂取量を Table 6 に示す。また、ヒ素の化学種別の推定 1 日摂取量の平均値は Table 7 に示す。Table 8 には、地域ブロックごとの 1 群、10 群、および 11 群の

MeHg 摂取量, MeHg 割合を示す。また、全元素の摂取量分布を Fig. 1 に示す。

Fig. 1 より、V, Cr, Ge, Sn, 希土類元素, Pb 以外の元素では地域ブロック間の変動は小さかった。Ge と希土類元素は定量値が低くかったことから、測定精度を踏まえると妥当な変動幅であるといえた。

一方で、Sn は四分位範囲が広く、他の元素のパターンとは大きく異なった。これまでの調査においては、Al, Sn, Sb, Pb, U の摂取量に地域間の変動が大きいことが報告されている。Sn の変動が高くなる要因として、これまでの報告書では、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とされている。缶詰食品が利用されていた、5 群, 6 群, 7 群, 8 群に関して比較した。サンプル数が少ないため、統計的検定は行わなかったが、缶詰食品を使用したほうが、Sn 摂取量が高くなる傾向があった。しかしながら、8 群で缶詰食品の利用よりも、水煮タケノコが含まれているかどうかの影響が大きいと判断できた。これまでの研究においても水煮タケノコが TD 試料中の Sn 濃度を増加した可能性が指摘されている。タケノコの水煮には、保存中のチロシンの発生を抑制するためにクエン酸やアスコルビン酸を添加して pH を 1~3 に調整する方法がしばしば取られる。容器からの溶出が影響を与えたと考えられた。

### 4. 食品群ごとの寄与率

各元素の食品群ごとの平均寄与率を Fig. 2 および Fig. 3 に示す。多くの元素において、これまでの調査と同様の傾向を示した。毒性の高い、As, Cd, Hg, Pb についてその傾向を以下にまとめた。

As の摂取量における寄与率は、これまでの報告と同様に、10 群で 52.5%、次いで 8 群で 35.1%と大きかった。10 群の魚介類においては、ヒ素は毒性の低い AsB として存在していた (Table 7)。

一方で、iAs はコメや海藻の中でもヒジキには無機ヒ素が多く含まれており、そのリスクが懸念されている。2020 年の調査においても、1 群の寄与率は 56.0%、8 群の寄与率は 28.4%であった (Fig. 3)。

Cd の摂取量における寄与率は、これまでの報告と同様に、1 群で 30.3%、次いで 8 群の 21.3%と大きかった。

Hg の摂取量における寄与率は、これまでの報告と同様に、10 群の魚介類で多く 90.0%であった。10 群では 88.6%が毒性の高いメチル水銀として存在していた。Pb の摂取量における寄与率は、8 群で 22.6%、1 群で 13.3%であった。

2019 年度の調査から追加した元素である Ti, Ge, Rb, Sr, Zr, Cs, 希土類元素, W について、その特徴を以下にまとめる。Ti は 10 群の魚介類の寄与率が 20.0%と高かった。Ge は 9 群の嗜好飲料からの寄与が 23.0%と最も高かった。これは PET の合成触媒として Ge が使用されているためと考えられた。同じく触媒に利用されている Sb の寄与も 9 群で高かった結果 (23.7%)は、上記の推測と矛盾していない。Rb は 11 群 (24.1%) の寄与

が最も高かったが、他の食品群でも 5~12%の寄与が観測された。Sr は 8 群からの寄与が 45.2%と最も高かった。Cs は 11 群 (20.6%), 10 群 (14.1%), 9 群 (13.0%)で高かった。本研究で測定しているのは安定同位体の Sr と Cs であるが、放射性同位体の Sr と Cs の参考にはなると考えられる。Zr (57.6%) および W (31.5%) は 9 群での寄与が最も高かった。希土類元素は、元素によって多少異なるが、概ね 8 群で 26~53%と最も寄与率が高く、ついで 10 群の魚介類で 8~24%と高かった。

#### 4. Health-Based Guideline Value との比較

各元素の Health-Based Guideline Value (HBGV) を種々の公的機関のデータベースから参照し、推定した 1 日摂取量と比較からハザード比 (HQ) を算出した (Table 9)。

HQ が最も高かったのは iAs であり、最大で 136%であった。ここで、iAs の HGBV については、US EPA (アメリカ合衆国環境保護庁) が 1999 年に評価した経口暴露による心臓血管、皮膚障害の RfD と、ATSDR (米国健康福祉省の毒性物質疾病登録機関) が行った 2007 年に評価した非発がん毒性として皮膚病変の NOAEL と比較した。一方で、JECFA (FAO/WHO 合同食品添加物専門家会議) は BMDL<sub>0.5</sub>として 3.0 μg/kg/day を導出した。BMDL との比較は曝露マージン (MOE) として評価したところ、MOE は 7.3 となった。不確実係数としては、個人差として 10、摂取量推定の不確実性

として 4 を用いたところ、推定した MOE は不確実係数積よりも小さい値となった。

地域ごとの値を比較すると、HQ は 89–450%であり HQ が 100%を超えた地域もあった。現在のところ、食品安全委員会では HBGV を設定するためには、国内の曝露実態及び食事由来のヒ素曝露を明らかにした上で摂取量を評価する必要があるとしている。以上の点からも、iAs の HQ については、リスクが高い可能性があるものの正確な評価については今後のリスク評価結果を待つ必要があるだろう。

2 番目に HQ が最も高かったのは Ni であり、その値は 90%であった。Ni の推定 1 日摂取量における各食品群からの寄与率は、5 群 (21.3%) で最も高く、次いで 1 群 (19.6%) で高かった。

3 番目に HQ が最も高かったのは Mo であり、その値は 86%であった。Mo も iAs も推定 1 日摂取量における各食品群からの寄与率は 1 群 (52.6%) で最も高いことから、コメの喫食量については低値が望ましいのかもしれない。

毒性の高い元素である Cd と MeHg の HQ は 30–59%の範囲であり、今後とも食品を介した摂取量の変動に注視する必要があるだろう。

一方で、Pb に関しては、BMDL と比較するため、MOE による検討を行ったところ、MOE は 5–15 の範囲内であった。MOE が 1 でも健康リスクはほとんどないと考えられていることから、次節の経年変動の解析結果と合わせると、今後ともリスクは減少すると考えられた。

## 5. 経年変動

1977 年より継続的に行ってきた As, Cd, Hg, Pb の推定 1 日摂取量の経年変動を Fig. 4 に示す。2018 年以前の調査結果は、厚生労働科学研究費補助事業の研究報告書より引用した。

2013 年以前の調査では ND となったデータに 0 と 1/2LOQ (あるいは 1/2LOD)を代入した平均値が報告されていた。一方で、2013–2018 年の報告では ND となったデータには 0 を代入した値のみが報告されている。そのため、経年変動の解析においては、ND=0 を代入した値を用いた。ここでは、トレンドに関して変化点も踏まえて解析するために、prophet (ver. 1.0) パッケージを用いた解析を行った。なお、摂取量は正の実数であると考えられるため、対数変換した値を解析に用いた。

As の推定 1 日摂取量は、調査開始以降減少傾向にあったが、2007 年以降増加傾向に転じていた。国民健康・栄養調査のデータベースと比較すると As の寄与率が高い 10 群の喫食量は減少していて、8 群に含まれる海藻類の喫食量はほぼ一定の量を示している。これらのことから、食品中の As 濃度が増加している可能性がある。摂取量だけでなく、食品中濃度および変動を与える要因について注視する必要があるだろう。

毒性の高い iAs については、2014 年からのデータしか無く中長期での変動傾向を判断するのは難しいが、2014 年度以降における変動をふまえてその傾向を判断すると、ほぼ一定の濃度で推移

しているといえた (Fig. 5)。時系列解析を行うだけの十分なデータ数をそろえるためにも、継続的な調査が必要だろう。

Cd は 1977 年の調査開始以来摂取量は減少してきており、2013 年以降は摂取量のバラツキが小さくなってきた。1977 年の摂取量と比較すると半分以下まで減少していた。

コメ中 Cd の基準値は、1970 年以降 1.0 mg/kg 未満とされていた。また、その当時は Cd 濃度 0.4 mg/kg を超えるコメが生産される地域は、何らかのカドミウムによる環境汚染があると考えられていた。このような背景を受け、2010 年 4 月に食品衛生法に基づくコメのカドミウムの規格基準を「玄米及び精米で 0.4 mg/kg 以下」に改正し、2011 年 2 月末日に施行した。2012 年以前は、不規則に摂取量が高くなる年が 5~10 年に 1 度の頻度で観測されていたが、施工後の 2012 年以降は摂取量の変動が抑えられている。この結果は、何らかの要因で環境中の Cd 濃度が増加しコメに移行するといった突発的な汚染を、食品衛生法の改正によりコントロールできていることを示唆するものと考えられた。

Hg の推定 1 日摂取量は 1977-1978 年を除くと 5~12  $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$  の間を推移していたが、時系列解析の結果、少しずつ減少している傾向にあることが示された。2021 年における Hg の推定一日摂取量は 1977 年の半分以下であった。

厚生労働省は 2010 年に妊婦への魚介類の摂取と水銀に関する注意事項及び Q&A を更新し、特に水銀含有量の高い

魚介類を偏って多量に食べることに警鐘を鳴らした。2010 年以降の国民健康・栄養調査の各食品小分類のデータのみが、TD 試料の調製に反映されているのは、2016 年以降の調査であることを踏まえると、各機関におけるリスクコミュニケーションが上手くいって高濃度 Hg の喫食機会が低減されていることを示唆しているものと考えられた。

Pb はこれまで様々な目的で使用されてきて、日本においても 1960 年代までは鉛化合物を添加した有鉛ガソリンを使用していた。また工場等からの排気ガスに鉛が含まれていたことから、大気中の鉛濃度が高い状態であったと報告されている。

Pb の推定 1 日摂取量は 1977 年の調査以降継続して減少傾向にある。Pb の推定 1 日摂取量における 1977~1982 年における急激な減少には 1975 年の有鉛ガソリンの使用禁止が寄与しており、1996 年以降の緩やかな減少は焼却施設に設置されている排ガス除去装置の改善による廃棄物処理施設からの環境への排出量が減少したことが要因であると考えられる。これらの要因により、2021 年の推定 1 日摂取量は 1977 年の 10%以下まで減少していた。

## 6. 確率論的摂取量推定

媒体中濃度 (以後、食品中濃度) と媒体摂取量 (以後、喫食量) をそれぞれ確率密度分布として扱うことによる確率論的な摂取量評価は、摂取量を分布として評価できる。そのため、確率論的摂取量評価は不確かさ評価・任意のパーセン

タイル値が推定できる等の利点がある。乱数を生成することで数値シミュレーションを行うモンテカルロシミュレーション (MCS) は、確率論的摂取量推定において有用な計算方法である。しかしながら、MCS に用いるパラメーターをどのように設定するかの問題が生じる。とくにサンプルサイズが十分でない場合、分布の歪みが大きい場合、食品中濃度に定量下限値未満の観測値を含む場合には、推定されたパラメーター自体に不確実性を伴う。パラメーター推定の不確かさも含めて評価するには、パラメーター自身も分布を持つ (あるいは複数のパラメーターを検討する) ように 2 次元に拡張する必要がある。これまでの研究において、食品中濃度に不検出データが含まれている場合における確率分布の推定に、ベイズ推定が有用であることが示唆されている。このことから、不確実性を考慮しつつ食品中濃度の確率密度分布のパラメーターを推定するには、ベイズ推定法は適していると考えられる。

以上のことから、複数地域あるいは複数年にわたる MB 方式による TDS の分析結果に確率論的手法を適用することで、通常の MB 方式では算出できない各種パーセンタイル値や基準値を超過する確率等が計算できることが期待される。本研究では確率論的推計を行うために、MB 方式で作製されたコンポジット試料の濃度データおよび国民健康・栄養調査の喫食量データにベイズ推定を適用した。さらに、推定したパラメーターからさらに乱数を生成することで、二次

元 MCS (2D-MCS) を行うことで、パラメーター推定に伴う不確実性も加味した精緻な摂取量の推定を試みた。

ここでは、毒性の高い As, iAs, Cd, Hg および Pb の摂取量を対象として確率論的摂取量評価を試みた。体重当たりの喫食量には 2014-2016 年の国民健康・栄養調査のデータを用い、食品中 As, iAs, Cd, Hg および Pb の濃度データには 2019-2021 年に行った本研究のデータを用いた。

本研究では、確率的プログラミング言語 Stan を用いてベイズ推定を行うことで、確率密度分布のパラメーター推定を行った。食品中の化学物質濃度は正の実数であると考えられるため、対数正規分布・ガンマ分布・ワイブル分布を仮定した統計モデルを検討した。対数正規分布・ガンマ分布・ワイブル分布の確率密度関数はそれぞれ以下の式で示される。

対数正規分布:

$$f(Y|\mu, \sigma) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma Y} \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{\log Y - \mu}{\sigma}\right)^2\right]$$

ガンマ分布:

$$f(Y|\alpha, \beta) = \frac{\beta^\alpha}{\Gamma(\alpha)} Y^{\alpha-1} e^{-\beta Y}$$

ワイブル分布:

$$f(Y|m, \eta) = \frac{m}{\eta} \left(\frac{Y}{\eta}\right)^{m-1} \exp\left[-\left(\frac{Y}{\eta}\right)^m\right]$$

一方で、喫食量は非負値の実数であると考えられる。また、国民健康栄養調査のデータを解析したところ、全ての食品

群において 0 を含むデータが確認された。以上のことから、非負値の確率密度分布として、Tweedie 分布, ゼロ過剰対数正規 (ZILN) 分布およびゼロ過剰ガンマ (ZIG) 分布を検討した。

不検出例を含むデータの場合には、不検出例に確率密度関数  $f(Y|\theta)$  に代わって下限値 ( $L$ ) - 上限値 ( $U$ ) 間の累積確率関数  $F(L, U|\theta)$  を用いることで、以下のように尤度を算出できる。

$$L(Y|\theta) = \prod_{i=1}^{N_{\text{obs}}} f(Y_i|\theta) \times \prod_{j=1}^{N_{\text{cen}}} F(L_j, U_j|\theta)$$

ここで、 $N_{\text{obs}}$  は定量できたサンプルサイズを、 $N_{\text{cen}}$  は定量下限値未満のサンプルサイズを示す。

BE 法で得られる事後予測分布  $f_{\text{post}}(\theta|Y)$  は、ベイズの定理を用いて以下のようにあらわすことができる。

$$f_{\text{post}}(\theta|Y) = \frac{L(Y|\theta)f_{\text{pri}}(\theta)}{f_{\text{obs}}(Y)},$$

ここで、 $f_{\text{pri}}(\theta)$  は事前分布を、 $f_{\text{obs}}(Y)$  は観測値  $Y$  の確率密度分布を示す。観測値  $Y$  は観測後には変化しないため、定数とみなせるので、

$$f_{\text{post}}(\theta|Y) \propto L(Y|\theta)f_{\text{pri}}(\theta)$$

と簡略化することができる。つまり、ベイズ推定は尤度を事前知識に基づいて重み付したものであると解釈できる。

一般的に最尤推定 (MLE) 法は、サンプルサイズが小さい場合 (例えば 50 未満) には、使用を勧められていない。原因の一つとして、少ないサンプルサイズでは標本の偏りによる影響が大きいことが挙げられる。BE 法は、少ないサン

プルサイズの場合に生じる標本の偏りを補正するために、事前分布を利用して MLE 法を補正しているとも解釈できる。

喫食量に関するベイズ推定においては、サンプルサイズが十分なため、無情報事前分布として  $(-\infty, \infty)$  の一様分布を用いた。食品中元素濃度のベイズ推定においては、形状パラメーターの事前分布には、以下の確率密度関数であらわされるコーシー分布を用いた。

$$f(Y|y_0, \gamma) = \frac{1}{\pi} \frac{\gamma}{(Y - y_0)^2 + \gamma^2}$$

対数正規分布を仮定した場合には  $(y_0, \gamma) = (3, 1)$  を使い、ガンマ分布及びワイブル分布には  $(y_0, \gamma) = (1, 1)$  をコーシー分布のパラメーターに用いた。

パラメーターから変換した理論平均値の事前分布には、不検出例に定量下限値の半値を代入して求めた平均値  $\hat{\mu}^{\text{RL}/2}$  を用いて、 $N(\hat{\mu}^{\text{RL}/2}, \hat{\mu}^{\text{RL}/2})$  の正規分布を採用した。対数正規分布を仮定した Stan コードの例を Fig. 6 に示す。

各食品群の喫食量の確率密度分布は、6 つの食品群で Tweedie 分布が、5 つの食品群で ZIG 分布が、2 つの食品群で ZILN 分布が最も適していると判断できた (Table 10)。これまでの確率論的摂取量推定において、喫食量分布がゼロ過剰となる確率密度分布はほとんど利用されてこなかったが、生成した乱数のヒストグラムは国民健康・栄養調査のデータとよく似た形状を示していた。この結果は、喫食量に関する確率密度分布が適切に推定できたことを示している。

As, iAs, Cd, Hg, および Pb の各食品群および総暴露量のパーセントイル値等

を Table 11~15 に、そのヒストグラムを Fig. 7 に示す。2D-MCS を用いて推定した摂取量の 5, 25, 50, 75, 95 パーセントイル値は、それぞれ As (1.05, 2.60, 4.66, 7.77, 15.0  $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ )、iAs (0.129, 0.238, 0.346, 0.495, 0.810  $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ )、Cd (0.158, 0.242, 0.320, 0.422, 0.641  $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ )、Hg (0.009, 0.032, 0.087, 0.175, 0.377  $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ )、Pb (0.051, 0.087, 0.128, 0.197, 0.447  $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ ) であった。

摂取量への不確かさに影響する因子を把握するため、感度解析を行った。14 食品群の金属濃度と喫食量は互いに独立な変数だと考えられるため、食事性摂取量 (EDE) の合成不確かさ  $u_c(\text{EDE})$  は以下の式で計算できる。

$$\{u_c(\text{EDE})\}^2 = \sum_{i=1}^{14} [\{R_i u(C_i)\}^2 + \{C_i u(R_i)\}^2]$$

ここで、 $R_i$  は食品群  $i$  の喫食量、 $C_i$  は食品群  $i$  の元素濃度、 $u(x)$  は変数  $x$  の不確かさを示す。不確かさの値には標準偏差を用いた。

上記の式を用いて感度解析を行ったところ、As の EDE への不確かさには 8 群の濃度 (56.2%)、10 群の喫食量 (20.7%)、10 群の濃度 (17.1%) が、iAs は 8 群の濃度 (48.7%)、1 群の喫食量 (34.0%)、1 群の濃度 (11.6%) が、Cd は 1 群の濃度 (49.5%)、10 群の濃度 (11.7%)、8 群の濃度 (9.93%) が、Hg は 10 群の喫食量 (53.8%)、10 群の濃度 (45.3%) が、Pb は 1 群の濃度 (67.1%)、11 群の濃度 (10.7%) が寄与していた。Hg 以外の元素は濃度の不確かさの合計が 50%以上であったことから、MB 方式の TD 試料を用いた推定であっ

ても、濃度の不確かさは喫食量の不確かさ以上に EDE の不確かさに寄与していることが示された。

2D-MCS を用いることによる利点があるかどうかを検討するため、1D-MCS との比較を行った。その際には、不検出値に 1/2LOQ を代入して、幾何平均値と幾何標準偏差を求め、対数正規分布を仮定する方法 [1D-MSC (SMB)] と、ベイズ推定の事後平均値を用いる方法 [1D-MCS (BE)] の両方について検討した (Fig. 8)。比較を行ったいずれの元素においても、2D-MCS を用いると 90% 区間を広く推定する結果となった。また、1D-MCS と比較すると、5% タイル値にはそれほど大きな差が認められないのに対して、95% タイル値が大きな推定結果となる傾向があった。この結果は、2D-MCS を用いることで、より安全側に立った摂取量分布の推定結果を得られる可能性を示すものと考えられた。

## 7. 年代別摂取量の推定

国民健康栄養調査のデータを解析し、年代別 (A: 1-5, B: 6-11, C: 12-19, D: 20-59, E:  $\geq 60$  歳) の体重当たり喫食量の平均値を算出した。各食品群について、食品小分類の構成に顕著な差が認めなければ、現在の TD 試料は全年代に共通の食品小分類組成に基づき調製されたとみなせる。そこで、各食品群について、年代間に食品小分類の組成に差異があるかどうか、 $\chi^2$  検定を用いて検討した。多重検定による第一種の過誤の増大を調整するために、 $0.05/13=0.0038$  を有意水準としたところ、9 群 ( $p =$



$2.2 \times 10^{-16}$ ) と 12 群 ( $p = 3.8 \times 10^{-6}$ ) で食品小分類の組成に年代間で有意な差が認められた。他の食品群では食品分類の構成に有意な差異はないと判断できた。これらのデータを基に、2019-2021 年に行った本調査の結果を用いて年代別の iAs, Cd, MeHg, Pb の摂取量を推定した (Fig. 9)。iAs, Cd, および Pb については、9 群と 12 群由来の摂取量を除いた推定も行った。食品小分類の構成に年代間の差異が認められた 9 群と 12 群に関しては、データを除くことによる影響は小さかった。

iAs に関しては、19 歳以下のグループでは平均摂取量が EPA の RfD である  $0.3 \mu\text{g}/\text{kg}\text{-bw}/\text{day}$  を超過していた。また、20 歳以上のグループでも平均摂取量は RfD と同程度であった。現在、食品安全委員会では iAs に関する HBGV を設定するには国内の曝露実態及び食事由来のヒ素曝露を明らかにした上で摂取量を評価する必要があるとしている。年代別の iAs 摂取量の推定結果は、年齢が低いグループが EPA の RfD を超過していたことから、iAs 濃度の高い食品の喫食 (玄米やヒジキ) を避けるような提言が必要かもしれない。

Cd は 5 歳以下のグループにおいて一部の地域で食品安全委員会の TWI ( $7.0 \mu\text{g}/\text{kg}\text{-bw}/\text{week}$ ) および JECFA の PTMI ( $25 \mu\text{g}/\text{kg}\text{-bw}/\text{month}$ ) を超過する事例が認められた。しかしながら、平均摂取量はいずれの年代においても HBGV を下回っていた。

MeHg は iAs や Cd と比較すると、年代間の差異が小さかった。また、20-59

歳に比べて 60 歳以上における MeHg の摂取量が大きかった。60 歳以上の 10 群の体重当たり喫食量は、20-59 歳の約 1.5 倍ほどであることが要因と考えられた。

Pb は一部の地域で EFSA の BMDL ( $0.50\text{--}1.50 \mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ ) を超過していたが、中央値および幾何平均値はいずれの年代でも下回っていた。

## 8. 金属ナノ粒子の摂取量推定

2020 年に調製された東京および大阪の TD 試料について Ag-NP 分析を行ったところ、全ての食品群から Ag-NP が検出された。代表的な sp-ICP-MS 解析の結果を Fig. 10 に示す。最低の粒子濃度は 14 群の  $1.0 \times 10^2 \text{ particle}/\text{g}$  であり、最大は 3 群の  $25.6 \times 10^6 \text{ particle}/\text{g}$  であった (Table 16)。14 群、10 群においては、Total Ag に対する Ag-NP の割合は 0.1~100% であり、ほとんどの Ag は非粒子状として存在していた。一方で、1, 2, 8, 11 群では 24~75% の Ag が NP として存在していた。5, 7, 12 群では 80% 以上の Ag が Ag-NP として存在していた。今回前処理に用いた方法はタンパク質や脂質の分解を目的とした方法であったにもかかわらず、7 群の植物が主体の食品においても Total Ag に対する Ag-NP の割合が 90% 以上となったことから、次の 2 つの可能性が考えられた。1 つ目は、本研究で用いた前処理方法を他の食品群に適用しても、ある程度妥当な結果が得られた可能性である。2 つ目の可能性は、検出された Ag-NP は細胞内に取り込まれたものでなく、コンタミネーシ

オンにより付着した可能性である。

特に 2 つ目の可能性については、抗菌剤として使用されている Ag-NP が試料の調製過程で混入した可能性が考えられた。抗菌剤として使用されている Ag-NP はシリカゲルやゼオライトの表面に担持されているものが使用されるとのことから、二酸化ケイ素ナノ粒子 (SiO<sub>2</sub>-NP) についても sp-ICP-MS 分析を行った (Table 17)。また、抗菌スポンジ、抗菌マスク、あるいは菓子類の装飾に用いられるアラザンといったコンタミネーションの原因の可能性のある製品についても、1% Tween-20 溶液中に浸し 1 時間の超音波処理を行い、溶出された Ag-NP および SiO<sub>2</sub>-NP について解析を行った。TD 試料中の Ag-NP の粒径、SiO<sub>2</sub>-NP の粒径、粒子濃度比 (Ag-NP/SiO<sub>2</sub>-NP) を污染源候補のデータと比較した (Fig. 11)。ほとんどの TD 試料の粒子濃度比は、抗菌スポンジの粒子濃度比の 1/3~3 倍の範囲内 (0.55~4.96) に収まっていた。他の污染源候補と比較すると、抗菌スポンジの粒子濃度比は、多くの TD 試料と似た値を示した。この抗菌スポンジは、試料を調製した機関で使用していたことから、Ag-NP の污染源の可能性があるだろう。しかしながら、TD 試料中 Ag-NP の平均粒径は、抗菌スポンジよりも小さかったことから、容器や機材に残存していた Ag-NP が一部溶解して粒径が小さくなった NP による汚染と考えられた。

食事を介した Total Ag および Ag-NP の曝露は、1.91~4.87 および 1.78~1.79 µg/person/day と推定された。また、

粒子数としては  $1.4 \times 10^{10} \sim 1.5 \times 10^{10}$  p article/person/day と推察された。Hadrup と Lam [2014, DOI: 10.1016/j.yrtph.2013.11.002] は、Ag-NP の TDI を 2.5 µg/kg-bw/day と導出した。この値と比較すると、Ag-NP の HQ は 1.3% と推定された。現在得られたデータから判断すると、健康リスクは小さいと推定された。

## E. 結論

全国 10 地域より MB 方式により TD 試料を調製し、食品を介した元素類の摂取量評価を行った。HBGV と比較したところ、HQ が最も高かったのは iAs (1.36) であった。次いで、Ni (0.9)、Mo (0.86)、Cd と MeHg は 0.30~0.59 の範囲であり高い比率を示した。一方で、Pb の MOE (5~15) は不確実係数積 (1) よりも大きく健康リスクは小さいと考えられた。

これまでの調査と比較し経年変動を解析したところ、Cd, Hg, Pb は減少傾向にあり、これまでの政策との関連が示唆された。一方で、As については近年上昇傾向に転じていたが、iAs についてはほぼ一定の値を示していた。iAs は対 HBGV 比も高いことから、継続調査の必要性が改めて示された。

ベイズ法を併用した 2D-MCS による確率論的摂取量評価について検討を試みた。1D-MCS と比較すると、2D-MCS は 95% タイル値が大きな推定結果となる傾向があった。この結果は、2D-MCS を用いることで、より安全側に立った摂取量分布の推定結果を得られる可能性を示すものと考えられた。MB 方式の TD 試料においても 2D-MCS を用いた確率

論的摂取量の推定は有用であると考えられた。

年代別の摂取量を推定したところ、評価を行ったいずれの金属においても 1-5 歳の摂取量が最も高い結果となった。とくに、iAs は EPA の RfD を超過していたことから、iAs の摂取量を低減させるための取組が必要であると考えられた。

ナノ粒子として、Ag-NP の摂取量評価を行ったところ、1.8  $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$  と推定された。この値は、Hadrup と Lam (2014)が導出した TDI の 1.3%であり、健康リスクは小さいと推定された。

## F. 研究発表

### 1. 論文発表

Suzuki, Y, Kondo, M, Harimoto, M, Kitayama, I, Akiyama, H. 2022. Dietary exposure to arsenic species in Japan in 2019 using a total diet study based on composite sample with market basket approach at the national level. J Food Compost Anal. 104384, DOI: 10.1016/j.jfca.2022.104384.

### 2. 学会発表

鈴木美成, 近藤 翠, 北山育子, 穉山 浩, トータルダイエットスタディーによる食品を介したヒ素化学種の曝露量評価, 第 29 回環境化学討論会 (2021.6).

鈴木美成, 近藤 翠, 北山育子, 穉山 浩, 堤智昭, 二次元モンテカルロシミュレーションによる食事性鉛曝露量分布の推定: トータルダイエット試料への適用の試み, 日本食品衛生学会第 117 回学術講演会 (2021.10).

Table 1 ICP-MS の分析条件

項目	設定
RF power	1550 W
冷却ガス流量	14.0 L/min
ネブライザーガス流量	1.065 L/min
補助ガス流量	0.8 L/min
ネブライザー	PFA 同軸型
スプレーチャンバー	サイクロン型
サンプリング深さ	5.00 mm
セルガス流量	He: 4.2 mL/min (Se 以外), H <sub>2</sub> : 4.0 mL/min (Se)
積分時間	0.1 s
掃引数	10 回
繰り返し回数	3 回
内部標準	Be ( $m/z=11-27$ ), Y ( $m/z=47-95$ , ただし, As と Se には Te を内部標準とした), In ( $m/z=111-175$ ), Tl ( $m/z=208-238$ )
測定質量電荷比	<sup>11</sup> B, <sup>27</sup> Al, <sup>47</sup> Ti, <sup>51</sup> V, <sup>52</sup> Cr, <sup>55</sup> Mn, <sup>57</sup> Fe, <sup>59</sup> Co, <sup>60</sup> Ni, <sup>65</sup> Cu, <sup>66</sup> Zn, <sup>73</sup> Ge, <sup>75</sup> As, <sup>78</sup> Se, <sup>85</sup> Rb, <sup>88</sup> Sr, <sup>95</sup> Mo, <sup>111</sup> Cd, <sup>118</sup> Sn, <sup>121</sup> Sb, <sup>133</sup> Cs, <sup>137</sup> Ba, <sup>139</sup> La, <sup>140</sup> Ce, <sup>141</sup> Pr, <sup>146</sup> Nd, <sup>147</sup> Sm, <sup>153</sup> Eu, <sup>157</sup> Gd, <sup>159</sup> Tb, <sup>163</sup> Dy, <sup>165</sup> Ho, <sup>166</sup> Er, <sup>169</sup> Tm, <sup>172</sup> Yb, <sup>175</sup> Lu, <sup>182</sup> W, <sup>208</sup> Pb, <sup>238</sup> U

Table 2 ヒ素化学種分析の HPLC-ICP-MS 分析条件

項目	設定
HPLC	
カラム	L-column2 (内径 4.6 mm, 長さ 25 cm, 粒子径 3 μm)
カラム温度	25°C
移動相	0.05% (v/v) メタノール、12 mM 1-ブタンスルホン酸ナトリウム、4 mM マロン酸、1 mM TMAH 溶液、10 ng/g Te (pH 2.7)
グラジエント条件	Isocratic
流速	0.75 mL/min
注入量	10 μL
オートサンプラー温度	4 °C
ICP-MS	
RF power	1550 W
冷却ガス流量	14.0 L/min
ネブライザーガス流量	1.12 L/min
補助ガス流量	0.8 L/min
ネブライザー	PFA 同軸型
スプレーチャンバー	サイクロン型
セルガス流量	He: 4.85 mL/min
積分時間	0.05 s
掃引数	1 回
繰り返し回数	1 回
測定質量電荷比	<sup>75</sup> As, <sup>125</sup> Te

Table 3 水銀分析計の加熱条件

	加熱モード		
	乾燥	分解 1	分解 2
パーシ	-	-	850°C, 4 min
標準溶液	150°C, 1 min		800°C, 2 min
TD 試料	150°C, 1 min	250°C, 10 min	800°C, 2 min

Table 4 水銀化学種分析の HPLC-ICP-MS 分析条件

項目	設定
HPLC	
カラム	CAPCELL Pak ADME (内径 4.6 mm, 長さ 25 cm, 粒子径 3 μm)
カラム温度	25°C
移動相	5% (v/v) メタノール、0.5 g/L L-システイン、1 ng/g TI (pH 2.3)
グラジエント条件	Isocratic
流速	0.75 mL/min
注入量	10 (10 群), 100 (1 群および 11 群) μL
オートサンプラー温度	4 °C
ICP-MS	
RF power	1550 W
冷却ガス流量	14.0 L/min
ネブライザーガス流量	1.12 L/min
補助ガス流量	0.8 L/min
ネブライザー	PFA 同軸型
スプレーチャンバー	サイクロン型
セルガス流量	He: 4.85 mL/min
積分時間	0.10 s
掃引数	1 回
繰り返し回数	1 回
測定質量電荷比	<sup>201</sup> Hg, <sup>205</sup> Tl

Table 5 認証標準物質 (NMIJ CRM 7402-a, ERM-CE 464, and NMIJ CRM 7403-a) 中のメチル水銀分析結果 (n=3)

Sample	認証値 ( $\mu\text{g/g as Hg}$ )	分析値 <sup>a</sup> ( $\mu\text{g/g as Hg}$ )
Sword fish, NMIJ CRM 7403-a	$5.00 \pm 0.22$	$4.90 \pm 0.03$
Tuna, ERM-CE 464	$5.12 \pm 0.09^b$	$5.24 \pm 0.06$
Cod, NMIJ CRM 7402-a	$0.58 \pm 0.02$	$0.59 \pm 0.01$

a: 分析値は平均値  $\pm$  標準偏差を示す。

b: 認証値はメチル水銀の濃度として付されていたため、水銀濃度に換算した。

Table 6 2021年に実施したマーケットバスケット研究により推定した元素類の一日摂取量の平均値 (µg/person/day)

食品群	B		Al		Ti		V		Cr		Mn	
	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ
1群	71.7	71.7	0.00	63.2	1.00	2.19	0.35	0.38	7.68	14.3	1259	1259
2群	117	117	348	348	11.1	11.1	1.01	1.01	2.65	4.88	608	608
3群	31.2	31.2	46.3	46.9	3.55	3.55	0.29	0.29	2.53	2.57	128	128
4群	0.33	0.33	0.00	2.19	0.00	0.05	0.00	0.00	0.19	0.31	0.16	0.16
5群	244	244	79.3	79.3	4.50	4.50	0.31	0.31	2.04	2.08	487	487
6群	189	189	15.1	27.5	0.66	1.60	0.02	0.11	1.49	1.90	308	308
7群	189	189	95.9	98.1	4.53	4.53	0.26	0.27	3.11	4.20	245	245
8群	368	368	365	365	12.6	12.6	20.4	20.4	14.2	15.7	517	517
9群	176	176	583	583	5.07	7.61	2.16	2.23	12.6	21.9	559	559
10群	50.5	50.5	403	403	15.5	15.5	1.08	1.08	2.39	3.42	76.8	76.8
11群	21.8	21.8	137	146	6.80	6.80	0.12	0.13	4.99	8.17	49.5	49.5
12群	36.6	36.6	29.6	48.3	3.05	3.05	0.01	0.05	0.00	4.03	16.2	16.2
13群	205	205	280	280	4.20	4.30	0.84	0.84	16.4	17.3	382	382
14群	14.5	14.5	7.49	7.64	0.01	0.01	0.38	0.38	0.02	0.02	0.06	0.06
合計	1715	1715	2390	2498	72.6	77.4	27.3	27.5	70.2	101	4637	4637



Table 6 つづき

食品群	Fe		Co		Ni		Cu		Zn		Ge	
	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ
1群	130	244	0.70	0.70	36.4	38.6	393	393	2796	2796	0.30	0.30
2群	1237	1237	2.34	2.34	11.6	11.6	116	116	871	871	0.09	0.09
3群	450	450	0.62	0.62	5.59	5.59	39.7	39.7	248	248	0.03	0.03
4群	4.48	4.53	0.00	0.00	0.08	0.13	0.04	0.05	2.72	2.76	0.00	0.00
5群	1033	1033	1.10	1.10	42.0	42.0	166	166	879	879	0.07	0.07
6群	180	187	0.27	0.42	2.59	4.43	55.2	64.0	98	98	0.01	0.04
7群	476	476	0.95	0.94	6.42	6.47	64.9	64.9	328	328	0.05	0.05
8群	1479	1479	1.36	1.36	16.6	16.6	138	138	729	729	0.18	0.18
9群	474	605	1.48	1.51	25.8	25.8	78.0	78.0	186	186	0.37	0.37
10群	1008	1025	1.42	1.42	3.45	4.45	114	114	1124	1124	0.12	0.12
11群	2973	2973	0.34	0.34	7.51	7.59	136	136	4246	4246	0.23	0.23
12群	134	162	0.06	0.10	2.54	2.80	14.4	15.4	773	773	0.03	0.04
13群	943	943	1.44	1.44	30.8	30.8	71.4	71.4	510	510	0.09	0.09
14群	1.39	1.39	0.00	0.00	0.11	0.11	1.96	1.97	2.24	2.24	0.01	0.01
合計	10523	10819	12.1	12.3	191	197	1388	1398	12791	12791	1.57	1.62

Table 6 つづき

食品群	As		Se		Rb		Sr		Zr		Mo	
	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ
1群	20.8	20.8	3.40	3.40	164	164	21.7	21.7	0.00	0.28	124	124
2群	1.05	1.11	17.9	17.9	153	153	151	151	0.00	0.22	14.7	14.7
3群	0.49	0.49	1.48	1.48	58.9	58.9	27.0	27.0	0.07	0.09	3.87	3.87
4群	0.00	0.01	0.13	0.13	0.48	0.48	0.3	0.3	0.00	0.01	0.04	0.04
5群	0.41	0.41	2.72	2.72	118	118	110	110	0.10	0.12	34.6	34.6
6群	0.24	0.26	0.23	0.28	164	164	57.5	57.5	0.00	0.07	2.15	2.15
7群	0.10	0.15	0.47	0.47	162	162	83.6	83.6	0.00	2.82	4.84	4.84
8群	113	113	1.82	1.82	284	284	894	894	0.00	5.77	14.5	14.5
9群	0.10	0.56	0.80	1.34	241	241	45.2	45.2	0.00	18.2	0.00	1.98
10群	169	169	41.4	41.4	57.3	57.3	293	293	0.32	0.34	1.85	1.85
11群	6.08	6.08	40.2	40.2	579	579	37.7	37.7	2.20	2.21	8.18	8.18
12群	0.08	0.15	4.92	4.92	282	282	60.5	60.5	1.15	1.16	5.79	5.79
13群	9.91	9.91	6.66	6.66	140	140	183	183	0.26	0.26	19.5	19.5
14群	0.13	0.13	0.02	0.02	0.77	0.77	13.3	13.3	0.00	0.01	0.11	0.11
合計	322	322	122	123	2406	2406	1978	1978	4.11	31.6	234	236

Table 6 つづき

食品群	Cd		Sn		Sb		Cs		Ba		La	
	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ
1群	5.06	5.06	0.13	0.21	0.12	0.27	0.13	0.20	7.23	8.22	0.00	0.01
2群	2.38	2.38	0.49	0.53	0.02	0.10	0.46	0.46	92.6	92.6	0.20	0.20
3群	0.46	0.46	2.56	2.56	0.02	0.03	0.15	0.15	12.8	12.8	0.02	0.02
4群	0.00	0.00	0.02	0.02	0.00	0.00	0.00	0.00	0.24	0.25	0.00	0.00
5群	0.85	0.85	1.61	1.65	0.05	0.05	0.26	0.26	52.8	52.8	0.08	0.08
6群	0.06	0.06	73.3	73.3	0.01	0.03	0.65	0.65	24.4	24.4	0.16	0.16
7群	1.35	1.35	5.57	5.69	0.00	0.08	0.36	0.36	53.1	53.1	0.17	0.17
8群	3.55	3.55	242	242	0.04	0.18	0.67	0.67	69.2	69.2	0.53	0.53
9群	0.04	0.18	0.00	0.96	0.00	0.52	1.08	1.08	17.5	17.5	0.00	0.08
10群	1.97	1.97	0.35	0.35	0.08	0.09	1.17	1.17	11.5	11.5	0.32	0.32
11群	0.04	0.05	0.00	0.24	0.00	0.15	1.71	1.71	21.9	21.9	0.01	0.01
12群	0.00	0.03	0.07	0.27	0.00	0.14	0.71	0.71	10.5	10.5	0.01	0.01
13群	0.73	0.73	0.25	0.33	0.17	0.24	0.46	0.46	50.9	50.9	0.12	0.12
14群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.03	0.03	0.40	0.40	1.95	1.95	0.00	0.00
合計	16.5	16.7	326	328	0.54	1.90	8.20	8.27	426	427	1.62	1.71

Table 6 つづき

食品群	Ce		Pr		Nd		Sm		Eu		Gd	
	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ
1群	0.02	0.03	0.00	0.00	0.00	0.01	0.001	0.003	0.000	0.001	0.001	0.003
2群	0.16	0.16	0.03	0.03	0.11	0.11	0.020	0.020	0.005	0.005	0.027	0.027
3群	0.03	0.03	0.00	0.00	0.01	0.01	0.003	0.003	0.001	0.001	0.003	0.003
4群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
5群	0.08	0.08	0.01	0.01	0.05	0.05	0.011	0.011	0.002	0.002	0.014	0.014
6群	0.06	0.06	0.01	0.01	0.05	0.05	0.007	0.007	0.001	0.001	0.008	0.008
7群	0.14	0.14	0.02	0.02	0.07	0.07	0.013	0.013	0.002	0.002	0.017	0.017
8群	0.48	0.48	0.09	0.09	0.38	0.38	0.101	0.101	0.025	0.025	0.186	0.186
9群	0.03	0.14	0.00	0.01	0.02	0.04	0.010	0.011	0.001	0.002	0.012	0.015
10群	0.46	0.46	0.05	0.05	0.23	0.23	0.048	0.048	0.006	0.006	0.059	0.059
11群	0.02	0.02	0.00	0.00	0.00	0.01	0.002	0.002	0.000	0.000	0.002	0.003
12群	0.01	0.01	0.00	0.00	0.00	0.01	0.001	0.002	0.000	0.000	0.001	0.002
13群	0.23	0.23	0.03	0.03	0.10	0.10	0.021	0.021	0.004	0.004	0.026	0.026
14群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
合計	1.72	1.85	0.25	0.27	1.05	1.08	0.239	0.244	0.048	0.049	0.357	0.364

Table 6 つづき

食品群	Tb		Dy		Ho		Er		Tm		Yb	
	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ
1群	0.000	0.000	0.001	0.002	0.000	0.000	0.001	0.001	0.000	0.000	0.001	0.001
2群	0.004	0.004	0.025	0.025	0.005	0.005	0.015	0.015	0.002	0.002	0.011	0.011
3群	0.000	0.000	0.002	0.002	0.001	0.001	0.002	0.002	0.000	0.000	0.001	0.001
4群	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
5群	0.002	0.002	0.013	0.013	0.003	0.003	0.008	0.008	0.001	0.001	0.006	0.006
6群	0.001	0.001	0.005	0.005	0.001	0.001	0.004	0.004	0.000	0.000	0.002	0.002
7群	0.002	0.002	0.009	0.009	0.002	0.002	0.005	0.005	0.001	0.001	0.003	0.003
8群	0.022	0.022	0.132	0.132	0.027	0.027	0.071	0.071	0.009	0.009	0.057	0.057
9群	0.003	0.003	0.008	0.009	0.002	0.002	0.009	0.009	0.001	0.001	0.007	0.008
10群	0.006	0.006	0.030	0.030	0.006	0.006	0.015	0.015	0.002	0.002	0.011	0.011
11群	0.000	0.000	0.001	0.002	0.000	0.000	0.002	0.002	0.000	0.000	0.001	0.002
12群	0.000	0.000	0.001	0.001	0.000	0.000	0.002	0.002	0.000	0.000	0.001	0.001
13群	0.003	0.003	0.016	0.016	0.003	0.003	0.009	0.009	0.001	0.001	0.007	0.007
14群	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
合計	0.043	0.044	0.243	0.246	0.051	0.051	0.142	0.143	0.018	0.019	0.108	0.110

Table 6 つづき

食品群	Lu		W		Hg		Pb		U	
	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ
1群	0.000	0.000	0.00	1.57	0.43	0.43	0.50	0.75	0.00	0.02
2群	0.002	0.002	0.04	0.16	0.01	0.01	0.40	0.44	0.08	0.08
3群	0.000	0.000	0.24	0.24	0.01	0.01	0.13	0.14	0.01	0.01
4群	0.000	0.000	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00
5群	0.001	0.001	0.00	0.06	0.00	0.00	0.26	0.26	0.03	0.03
6群	0.000	0.000	0.68	0.72	0.00	0.00	0.20	0.21	0.00	0.00
7群	0.001	0.001	0.04	0.12	0.01	0.01	0.44	0.45	0.01	0.01
8群	0.009	0.009	0.00	0.17	0.07	0.07	1.27	1.27	0.80	0.80
9群	0.001	0.001	0.43	0.84	0.00	0.01	0.18	0.49	0.01	0.02
10群	0.001	0.001	0.00	0.31	7.39	7.39	0.65	0.62	0.21	0.21
11群	0.000	0.000	0.00	0.11	0.25	0.25	0.13	0.19	0.05	0.05
12群	0.000	0.000	0.47	0.52	0.00	0.00	0.16	0.21	0.02	0.02
13群	0.001	0.001	0.11	0.16	0.02	0.02	0.52	0.52	0.04	0.04
14群	0.000	0.000	0.02	0.02	0.00	0.01	0.05	0.05	0.00	0.00
合計	0.017	0.018	2.01	5.00	8.19	8.21	4.88	5.60	1.26	1.29

Table 7 2021 年に実施したマーケットバスケット研究により推定したヒ素化学種の日摂取量の平均値 (µg/person/day)

食品群	iAs		MMAs		DMAs		AsB	
	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ
1 群	12.7	12.7	0.05	0.05	3.37	3.37	0.01	0.03
2 群	0.77	0.77	0.00	0.02	0.05	0.05	0.00	0.02
3 群	0.19	0.19	0.00	0.00	0.06	0.06	0.01	0.01
4 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
5 群	0.10	0.11	0.00	0.01	0.02	0.02	0.00	0.01
6 群	0.23	0.24	0.00	0.01	0.00	0.01	0.00	0.01
7 群	0.09	0.10	0.00	0.01	0.00	0.01	0.00	0.01
8 群	6.46	6.47	0.03	0.04	2.96	2.96	0.31	0.31
9 群	0.23	0.35	0.00	0.06	0.02	0.06	0.07	0.12
10 群	0.42	0.43	0.63	0.63	1.33	1.33	78.8	78.8
11 群	0.08	0.10	0.01	0.02	0.07	0.07	0.21	0.22
12 群	0.18	0.20	0.00	0.01	0.00	0.01	0.00	0.01
13 群	0.90	0.90	0.04	0.04	0.20	0.20	2.14	2.14
14 群	0.15	0.16	0.00	0.00	0.01	0.01	0.00	0.00
合計	22.6	22.8	0.76	0.89	8.08	8.17	81.6	81.7

Table 8 各地域ブロックにおける水銀の形態別推定一日摂取量 (µg/person/day)

食品群 地域ブロック	Me-Hg				Me-Hg の割合 (%)		
	1 群	10 群	11 群	1+10+11 群	1 群	10 群	11 群
A	0.281	3.66	0.055	4.00	69.9	82.1	85.4
B	0.144	5.19	0.326	5.66	78.9	84.2	68.3
C	0.173	5.72	0.035	5.93	96.1	87.7	89.9
D	0.235	12.2	0.111	12.59	74.3	92.9	77.0
E	0.202	6.66	0.388	7.25	59.5	84.5	73.9
F	0.302	5.14	0.274	5.71	66.4	96.2	72.1
G	0.338	5.86	0.042	6.25	72.0	95.9	68.5
H	0.403	5.72	0.065	6.19	68.2	75.2	66.4
I	0.469	4.83	0.060	5.36	67.2	93.2	58.2
J	0.170	10.7	0.359	11.28	27.3	94.1	61.5
平均値	0.272	6.58	0.171	7.02	68.0	88.6	72.1



Table 9 2021 年に実施したマーケットバスケット研究により推定した 1 日摂取量の平均値と健康リスク評価

元素	HBGV <sup>a</sup> ( $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ )	出典および参照値	推定摂取量 <sup>b</sup> ( $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ )	ハザード比 (HQ)	曝露マージン (MOE)
B	96–200	US EPA (2004), RfD (Oral): 200 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ (発達) 食品安全委員会 (2012), TDI (Oral): 96 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$	31.2	0.16–0.33	–
Al	143–300	UE EFSA (2008), TWI (Oral): 1000 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{week}$ 食品安全委員会 (2017), TWI (Oral): 2100 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{week}$	45.4	0.15–0.32	–
Ni	4.0	食品安全委員会 (2012), TDI (Oral): 4.0 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ (皮膚炎)	3.6	0.9	–
iAs	0.3	US EPA (1999), RfD (Oral): 0.3 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ (心臓血管, 皮膚) US ATSDR, (2007), NOAEL: 0.3 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ (ヒト, 非発がん毒性として皮膚病変) JECFA (2011), BMDL <sub>0.5</sub> : 3.0 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ (ヒト肺癌)	0.41	1.36	7.3
Se	4.0–5.0	US EPA (1991), RfD (Oral): 5.0 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ (神経系, 血液系, 皮膚) 食品安全委員会 (2012), TDI (Oral): 4.0 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$	2.23	0.45–0.56	–
Mo	5.0	US EPA (1992), RfD (Oral): 5.0 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ (膀胱)	4.30	0.86	–
Cd	0.83–1.0	食品安全委員会 (2008), TWI (Oral): 7.0 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{week}$ WHO/JECFA (2013), PTMI: 25 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{month}$	0.30	0.30–0.36	–
Sb	0.4	US EPA (1987), RfD (Oral): 0.4 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ (血液系, Other)	0.03	0.075	–
Ba	20	食品安全委員会 (2012), TDI (Oral): 20 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ (高血圧, 心臓病, 腎臓病)	7.77	0.39	–
Hg	0.57	WHO/JECFA (2011), PTWI: 4 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{week}$	0.15	0.26	–
MeHg <sup>c</sup>	0.22–0.29	WHO/JECFA (2007), PTWI 1.6 $\mu\text{g}/\text{kg}$ bw/week 食品安全委員会 (2005), TWI (Oral): 2.0 $\mu\text{g}/\text{kg}$ bw/week	0.13	0.44–0.59	–
Pb	0.5–1.5	EFSA (2010), BMDL <sub>01</sub> : 0.50 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ (発達神経毒性), BMDL <sub>01</sub> : 1.50 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ (血圧への影響), BMDL <sub>10</sub> : 0.63 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ (慢性腎臓病)	0.10	–	5–15
U	0.6–3.0	US EPA (1989), RfD (Oral): 3.0 $\mu\text{g}/\text{kg}$ bw/day (膀胱, その他) EFSA Contam (2009), TDI (暫定): 0.6 $\mu\text{g}/\text{kg}$ bw/day	0.02	0.007–0.03	–

a: Health-based guideline value

b: ND=0.5LOQ を代入し、体重を 55 kg として算出した。

c: 1 群、10 群、および 11 群のみの総和から算出した。

Table 10 体重当たりの喫食量に関する確率密度分布のパラメーターに関するベイズ推定の結果

Food Group	Distribution	Parameter 1 <sup>a</sup>	Parameter 2 <sup>b</sup>	Parameter 3 <sup>c</sup>	Estimated theoretical mean	Estimated theoretical SD <sup>d</sup>
1	ZIG	0.965 ± 0.001	3.13 ± 0.03	0.488 ± 0.005	6.19 ± 0.02	3.75 ± 0.02
2	Tweedie	3.26 ± 0.02	1.059 ± 0.008	1.553 ± 0.005	3.26 ± 0.02	2.58 ± 0.01
3	ZILN	0.869 ± 0.002	0.321 ± 0.003	4.55 ± 0.03	0.88 ± 0.01	2.84 ± 0.07
4	Tweedie	0.901 ± 0.002	1.49 ± 0.01	6.63 ± 0.06	0.203 ± 0.001	0.187 ± 0.001
5	ZIG	0.759 ± 0.003	1.19 ± 0.01	0.750 ± 0.008	1.204 ± 0.009	1.44 ± 0.01
6	ZIG	0.659 ± 0.003	1.19 ± 0.01	0.356 ± 0.004	2.20 ± 0.02	2.94 ± 0.02
7	ZIG	0.940 ± 0.001	1.19 ± 0.01	0.574 ± 0.006	1.95 ± 0.01	1.91 ± 0.01
8	Tweedie	0.9937 ± 0.0005	2.14 ± 0.02	0.534 ± 0.005	3.98 ± 0.02	2.75 ± 0.02
9	Tweedie	11.54 ± 0.06	2.14 ± 0.02	1.527 ± 0.003	11.54 ± 0.06	9.46 ± 0.06
10	Tweedie	1.309 ± 0.009	1.26 ± 0.01	1.476 ± 0.003	1.309 ± 0.009	1.369 ± 0.009
11	ZIG	0.963 ± 0.001	2.08 ± 0.02	0.815 ± 0.008	2.46 ± 0.01	1.80 ± 0.01
12	Tweedie	0.746 ± 0.003	0.799 ± 0.007	0.196 ± 0.002	3.04 ± 0.03	4.32 ± 0.04
13	ZILN	0.9990 ± 0.0002	1.204 ± 0.006	2.299 ± 0.008	1.70 ± 0.01	1.70 ± 0.02

a: パラメーター1は頻度パラメーターで、Tweedie分布の  $\theta$ 、ZILN分布とZIG分布の  $p$  を示す。

b: パラメーター2は位置あるいは割合パラメーターで、Tweedie分布の  $\mu$ 、ZILN分布の  $e^\mu$ 、ZIG分布の  $\beta$ を示す。

c: パラメーター3は形状パラメーターで、Tweedie分布の  $\phi$ 、ZILNの  $e^\sigma$ 、ZIG分布の  $\alpha$ を示す。

d: standard deviation

Table 11 バイズ法と二次元モンテカルロ法を併用して推定した食品を介した As 摂取量推定値 (µg/kg/day)

Food Group	Mean	Standard deviation	5 <sup>th</sup> percentile	25 <sup>th</sup> percentile	50 <sup>th</sup> percentile	75 <sup>th</sup> percentile	95 <sup>th</sup> percentile	Contribution ratio (%)
1	0.34	0.23	0.05	0.17	0.29	0.45	0.78	10.0±11.2
2	0.02	0.03	0.00	0.01	0.01	0.03	0.08	0.8±1.5
3	0.01	0.05	0.00	0.00	0.00	0.01	0.04	0.3±1.4
4	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.0±0.0
5	0.01	0.01	0.00	0.00	0.00	0.01	0.03	0.2±0.6
6	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.02	0.1±0.5
7	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	0.1±0.2
8	2.33	4.14	0.15	0.54	1.22	2.67	8.00	38.8±27.2
9	0.01	0.01	0.00	0.00	0.00	0.01	0.02	0.2±0.5
10	3.04	3.50	0.00	0.45	2.00	4.38	9.89	44.0±31.0
11	0.05	0.12	0.00	0.01	0.02	0.05	0.18	1.4±3.5
12	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.0±0.0
13	0.14	0.28	0.01	0.03	0.07	0.15	0.51	4.0±6.9
14	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	0.1±0.2
Total	5.96	5.44	1.05	2.60	4.66	7.77	15.03	-

Table 12 ベイズ法と二次元モンテカルロ法を併用して推定した食品を介した iAs 摂取量推定値 ( $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ )

Food Group	Mean	Standard deviation	5 <sup>th</sup> percentile	25 <sup>th</sup> percentile	50 <sup>th</sup> percentile	75 <sup>th</sup> percentile	95 <sup>th</sup> percentile	Contribution ratio (%)
1	0.242	0.180	0.030	0.115	0.203	0.326	0.586	58.4 $\pm$ 22.7
2	0.015	0.021	0.000	0.004	0.009	0.019	0.049	4.9 $\pm$ 6.4
3	0.005	0.025	0.000	0.000	0.001	0.003	0.019	1.4 $\pm$ 4.2
4	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.03 $\pm$ 0.05
5	0.002	0.003	0.000	0.000	0.001	0.003	0.007	0.7 $\pm$ 1.3
6	0.004	0.008	0.000	0.000	0.001	0.004	0.016	1.2 $\pm$ 2.7
7	0.002	0.003	0.000	0.000	0.001	0.003	0.008	0.8 $\pm$ 1.3
8	0.053	0.134	0.002	0.007	0.019	0.050	0.196	12.0 $\pm$ 15.1
9	0.008	0.011	0.000	0.002	0.005	0.011	0.027	2.8 $\pm$ 3.9
10	0.041	0.073	0.000	0.004	0.018	0.048	0.156	10.6 $\pm$ 13.7
11	0.002	0.002	0.000	0.001	0.001	0.002	0.005	0.6 $\pm$ 0.8
12	0.003	0.008	0.000	0.000	0.001	0.003	0.012	0.9 $\pm$ 2.3
13	0.016	0.018	0.002	0.006	0.010	0.019	0.046	5.1 $\pm$ 6.0
14	0.002	0.004	0.000	0.000	0.001	0.002	0.007	0.7 $\pm$ 1.5
Total	0.394	0.239	0.129	0.238	0.346	0.495	0.810	-

Table 13 ベイズ法と二次元モンテカルロ法を併用して推定した食品を介した Cd 摂取量推定値 (µg/kg/day)

Food Group	Mean	Standard deviation	5 <sup>th</sup> percentile	25 <sup>th</sup> percentile	50 <sup>th</sup> percentile	75 <sup>th</sup> percentile	95 <sup>th</sup> percentile	Contribution ratio (%)
1	0.113	0.109	0.012	0.045	0.083	0.145	0.312	30.2 ± 18.3
2	0.048	0.040	0.002	0.019	0.039	0.068	0.124	14.7 ± 11.6
3	0.014	0.050	0.000	0.001	0.003	0.011	0.057	3.7 ± 7.6
4	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.00 ± 0.01
5	0.019	0.024	0.000	0.001	0.010	0.026	0.066	5.7 ± 7.3
6	0.001	0.003	0.000	0.000	0.000	0.002	0.006	0.5 ± 0.9
7	0.028	0.034	0.000	0.006	0.016	0.036	0.093	8.3 ± 9.2
8	0.069	0.059	0.010	0.029	0.053	0.090	0.182	20.3 ± 14.0
9	0.002	0.009	0.000	0.000	0.001	0.002	0.008	0.7 ± 1.8
10	0.041	0.073	0.000	0.004	0.018	0.048	0.156	10.6 ± 13.1
11	0.001	0.002	0.000	0.000	0.001	0.002	0.004	0.4 ± 0.8
12	0.000	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001	0.1 ± 0.2
13	0.015	0.016	0.002	0.005	0.010	0.018	0.042	4.7 ± 4.9
14	0.000	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001	0.1 ± 0.2
Total	0.351	0.164	0.158	0.242	0.320	0.422	0.641	-

Table 14 ベイズ法と二次元モンテカルロ法を併用して推定した食品を介した Hg 摂取量推定値 ( $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ )

Food Group	Mean	Standard deviation	5 <sup>th</sup> percentile	25 <sup>th</sup> percentile	50 <sup>th</sup> percentile	75 <sup>th</sup> percentile	95 <sup>th</sup> percentile	Contribution ratio (%)
1	0.008	0.007	0.001	0.003	0.006	0.010	0.020	16.4 $\pm$ 20.8
2	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001	0.6 $\pm$ 1.4
3	0.000	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001	0.6 $\pm$ 2.5
4	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.01 $\pm$ 0.06
5	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.2 $\pm$ 0.7
6	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001	0.4 $\pm$ 1.2
7	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001	0.7 $\pm$ 1.6
8	0.001	0.001	0.000	0.001	0.001	0.002	0.004	3.6 $\pm$ 6.4
9	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.3 $\pm$ 1.1
10	0.111	0.129	0.000	0.016	0.072	0.160	0.362	67.2 $\pm$ 35.3
11	0.004	0.007	0.000	0.001	0.002	0.005	0.014	8.2 $\pm$ 13.4
12	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.1 $\pm$ 0.4
13	0.001	0.001	0.000	0.000	0.000	0.001	0.002	1.4 $\pm$ 3.7
14	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.1 $\pm$ 0.4
Total	0.126	0.129	0.009	0.032	0.087	0.175	0.377	-

Table 15 ベイズ法と二次元モンテカルロ法を併用して推定した食品を介した Pb 摂取量推定値 ( $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ )

Food Group	Mean	Standard deviation	5 <sup>th</sup> percentile	25 <sup>th</sup> percentile	50 <sup>th</sup> percentile	75 <sup>th</sup> percentile	95 <sup>th</sup> percentile	Contribution ratio (%)
1	0.049	0.305	0.000	0.000	0.002	0.019	0.193	12.8 $\pm$ 21.5
2	0.023	0.065	0.000	0.002	0.007	0.021	0.089	12.5 $\pm$ 16.3
3	0.006	0.061	0.000	0.000	0.001	0.003	0.022	3.4 $\pm$ 8.3
4	0.000	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001	0.15 $\pm$ 0.58
5	0.006	0.012	0.000	0.000	0.002	0.007	0.026	4.8 $\pm$ 8.0
6	0.007	0.041	0.000	0.000	0.001	0.005	0.030	4.4 $\pm$ 9.3
7	0.008	0.015	0.000	0.001	0.004	0.009	0.030	6.0 $\pm$ 8.8
8	0.027	0.033	0.003	0.008	0.017	0.033	0.082	18.8 $\pm$ 16.5
9	0.009	0.013	0.000	0.001	0.005	0.012	0.032	7.0 $\pm$ 9.1
10	0.018	0.040	0.000	0.001	0.006	0.018	0.069	10.7 $\pm$ 14.7
11	0.016	0.095	0.000	0.001	0.003	0.010	0.059	7.8 $\pm$ 13.4
12	0.005	0.023	0.000	0.000	0.000	0.002	0.025	3.0 $\pm$ 8.5
13	0.009	0.013	0.001	0.002	0.005	0.011	0.031	7.2 $\pm$ 8.8
14	0.002	0.003	0.000	0.000	0.001	0.002	0.006	1.4 $\pm$ 2.6
Total	0.185	0.340	0.051	0.087	0.128	0.197	0.447	-

Table 16 東京および大阪の TD 試料中に含まれる銀ナノ粒子濃度および摂取量

Food Group	濃度		割合 <sup>a</sup> (%)		粒径		摂取量		
	Total-Ag (ng/g)	Ag-NP (ng/g)	Ag-NP (particle/g)	Ag-NP/Total-Ag	平均 (nm)	最大値 (nm)	Total-Ag <sup>b</sup> (μg/人/day)	Ag-NP (μg/人/day)	Ag-NP (particle/人/day)
1	0.51 – 0.68	0.31 – 0.38	$(1.8 – 2.2) \times 10^6$	45 – 75	31.5 – 32.1	142 – 145	0.15 – 0.22	0.10 – 0.11	$(5.8 – 6.4) \times 10^8$
2	1.24 – 1.51	0.30 – 1.02	$(2.1 – 7.9) \times 10^6$	24 – 67	28.6 – 29.7	118 – 124	0.20 – 0.24	0.05 – 0.16	$(3.4 – 12.6) \times 10^8$
3	1.53 – 9.27	0.26 – 10.4	$(1.8 – 25.6) \times 10^6$	17 – 100	29.5 – 42.0	93.5 – 283	0.05 – 0.25	0.01 – 0.28	$(0.6 – 6.8) \times 10^8$
4	<0.40 – 0.70	0.32 – 0.45	$(1.6 – 3.1) \times 10^6$	65 – 100	29.8 – 33.2	100 – 234	0.00 – 0.01	0.00 – 0.00	$(0.2 – 0.3) \times 10^8$
5	<0.40 – 0.42	0.36 – 0.43	$(1.4 – 4.4) \times 10^6$	84 – 100	26.2 – 35.9	110 – 225	0.01 – 0.03	0.02 – 0.02	$(2.4 – 9.5) \times 10^8$
6	<0.40	0.50 – 0.55	$(3.4 – 4.3) \times 10^6$	100	27.7 – 31.0	159 – 266	0.02 – 0.02	0.05 – 0.06	$(3.8 – 4.2) \times 10^8$
7	0.76 – 0.98	0.67 – 0.94	$(3.9 – 6.1) \times 10^6$	94 – 96	30.4 – 31.6	193 – 283	0.07 – 0.09	0.06 – 0.09	$(3.8 – 5.7) \times 10^8$
8	1.91 – 2.40	0.81 – 1.07	$(6.5 – 13.1) \times 10^6$	34 – 56	24.6 – 28.4	73 – 154	0.43 – 0.46	0.16 – 0.24	$(12.4 – 29.1) \times 10^8$
9	<0.40 – 0.47	0.74 – 1.42	$(5.4 – 12.6) \times 10^6$	100	27.4 – 29.2	136 – 209	0.13 – 0.32	0.37 – 0.95	$(26.9 – 84.6) \times 10^8$
10	5.35 – 42.0	1.04 – 1.70	$(8.0 – 21.5) \times 10^6$	4 – 20	24.3 – 28.7	257 – 279	0.34 – 3.37	0.07 – 0.14	$(5.1 – 17.3) \times 10^8$
11	0.92 – 0.93	0.46 – 0.55	$(3.0 – 4.1) \times 10^6$	50 – 60	29.1 – 30.6	197 – 198	0.11 – 0.12	0.06 – 0.07	$(3.8 – 4.8) \times 10^8$
12	<0.40	1.10 – 1.79	$(12.2 – 22.7) \times 10^6$	86 – 100	24.3 – 25.4	257 – 257	0.02 – 0.03	0.14 – 0.22	$(15.4 – 27.5) \times 10^8$
13	0.50 – 0.56	0.56 – 1.05	$(2.9 – 8.8) \times 10^6$	48 – 100	27.9 – 32.8	155 – 330	0.05 – 0.05	0.05 – 0.09	$(2.7 – 7.9) \times 10^8$
14	$(3.6 – 8.6) \times 10^{-3}$	$(1.0 – 1.2) \times 10^{-5}$	$(1.0 – 1.7) \times 10^2$	0.1 – 0.3	21.9 – 27.3	24.6 – 39.0	0.00 – 0.00	0.00 – 0.00	$(2.6 – 4.4) \times 10^4$
Total							1.91 – 4.87	1.78 – 1.79	$(1.4 – 1.5) \times 10^{10}$

a Ag-NP の質量濃度が Total Ag 濃度を超過した場合は割合を 100%とした。

b 不検出値には LOQ の半値を代入して摂取量を算出した。



Table 17 東京および大阪のTD 試料中に含まれる二酸化ケイ素ナノ粒子濃度および摂取量

Food Group	濃度		粒径 (nm)		摂取量	
	(ng/g)	(particle/g)	平均	最大値	( $\mu\text{g}/\text{人}/\text{day}$ )	(particle/人/day)
1	138 – 291	$(3.3 - 5.1) \times 10^6$	311 – 345	940 – 1283	39.5 – 93.5	$(9.5 - 16.5) \times 10^8$
2	132 – 573	$(2.5 - 12.8) \times 10^6$	319 – 336	946 – 1768	21.6 – 91.8	$(4.1 - 20.4) \times 10^8$
3	430 – 525	$(10.1 - 10.3) \times 10^6$	311 – 335	908 – 1353	11.5 – 18.1	$(2.8 - 3.5) \times 10^8$
4	154 – 279	$(1.5 - 3.7) \times 10^6$	378 – 418	641 – 1699	1.7 – 2.6	$(0.2 - 0.3) \times 10^8$
5	199 – 309	$(3.9 - 6.5) \times 10^6$	326 – 334	955 – 1717	11.0 – 20.9	$(2.1 - 4.4) \times 10^8$
6	129 – 270	$(2.4 - 5.2) \times 10^6$	334 – 338	922 – 1300	12.5 – 30.0	$(2.4 - 5.8) \times 10^8$
7	81.0 – 136	$(1.3 - 2.9) \times 10^6$	323 – 355	894 – 1288	7.5 – 13.3	$(1.2 - 2.9) \times 10^8$
8	119 – 220	$(1.7 - 4.6) \times 10^6$	327 – 369	948 – 1470	22.8 – 48.9	$(3.3 - 10.1) \times 10^8$
9	90.2 – 118	$(1.6 - 2.9) \times 10^6$	308 – 348	722 – 924	58.9 – 60.4	$(10.4 - 14.6) \times 10^8$
10	271 – 286	$(5.1 - 6.3) \times 10^6$	320 – 338	820 – 1097	17.3 – 23.0	$(3.3 - 5.1) \times 10^8$
11	66.8 – 83.8	$(1.3 - 1.6) \times 10^6$	333 – 335	876 – 1021	8.5 – 9.9	$(1.7 - 1.9) \times 10^8$
12	62.0 – 128	$(1.2 - 2.6) \times 10^6$	329 – 337	901 – 985	7.8 – 15.6	$(1.5 - 3.2) \times 10^8$
13	301 – 496	$(7.6 - 11.6) \times 10^6$	306 – 314	658 – 931	27.1 – 46.9	$(6.8 - 11.0) \times 10^8$
14	0.065 – 0.118	$(1.4 - 2.4) \times 10^3$	324 – 327	571 – 1580	0.02 – 0.03	$(3.5 - 6.1) \times 10^5$
Total					310 – 412	$(56.9 - 92.0) \times 10^8$

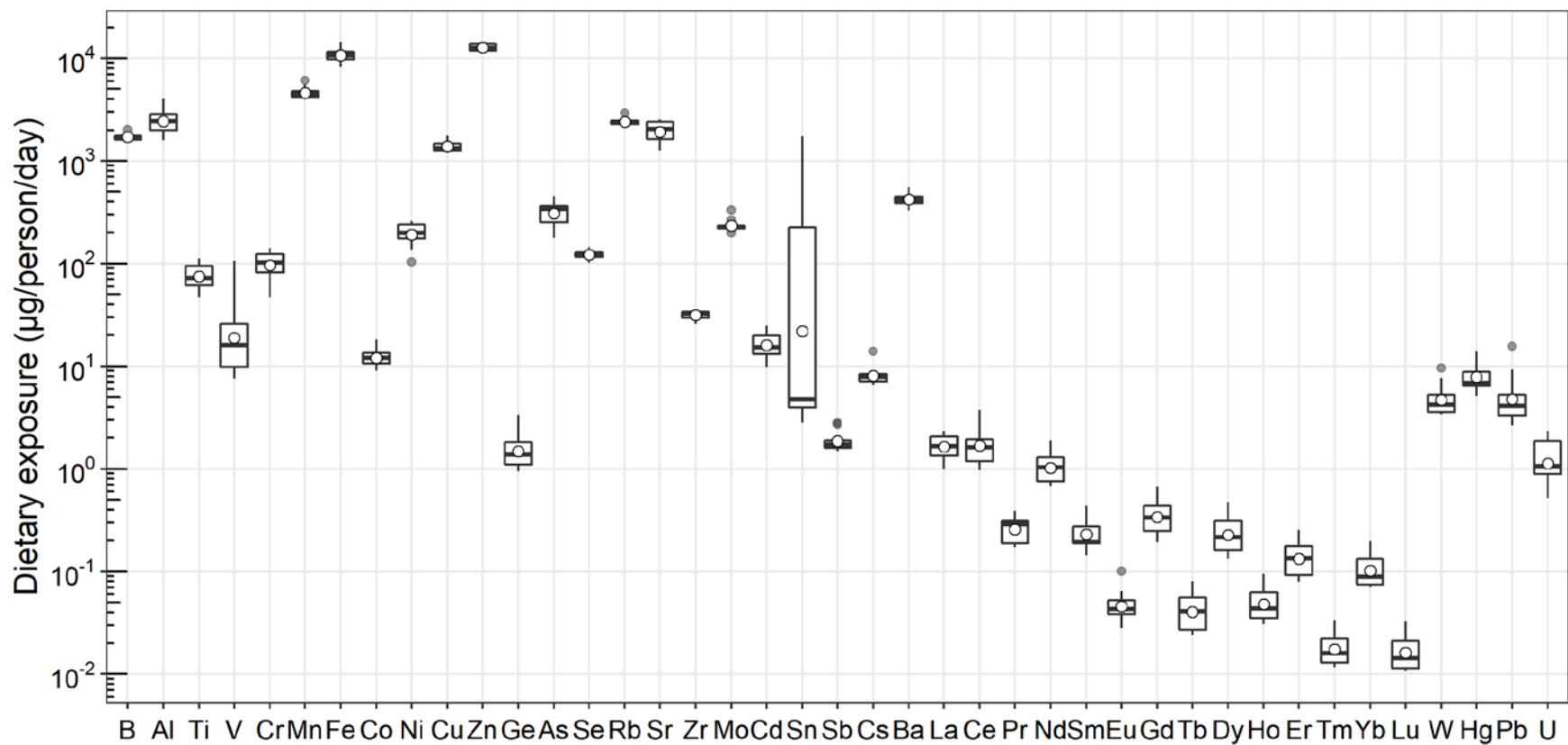


Fig. 1 2021年に10地域のTD試料から推定した元素類の推定1日摂取量

白丸: 平均値; 横線: 中央値; 箱: 四分位範囲; ひげ: 中央値±1.5×四分位範囲/2内の最大/最小値; 灰色丸: 外れ値

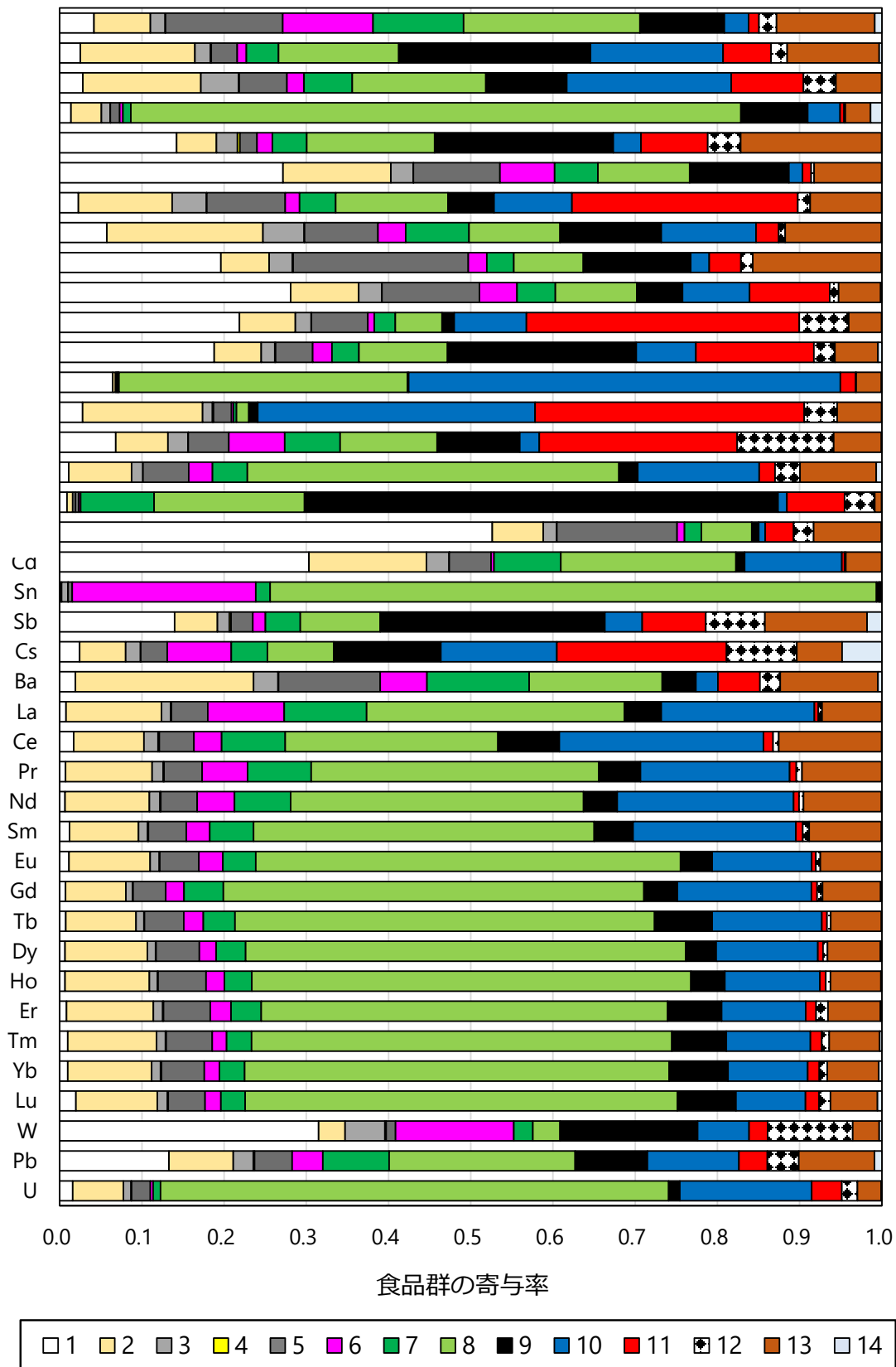


Fig. 2 2021年 TDS における有害類の摂取量における食品群の寄与率

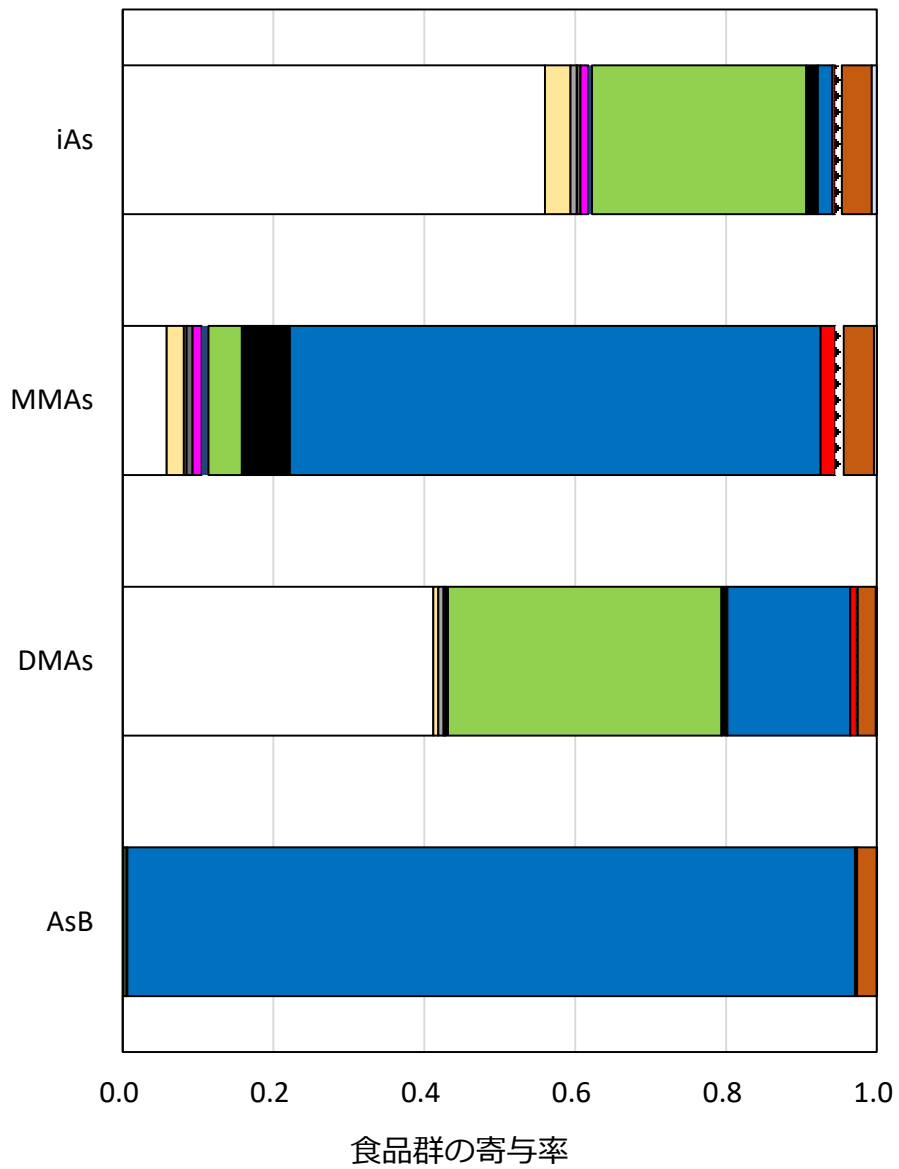


Fig. 3 As 化学種の摂取量における各食品群の寄与率

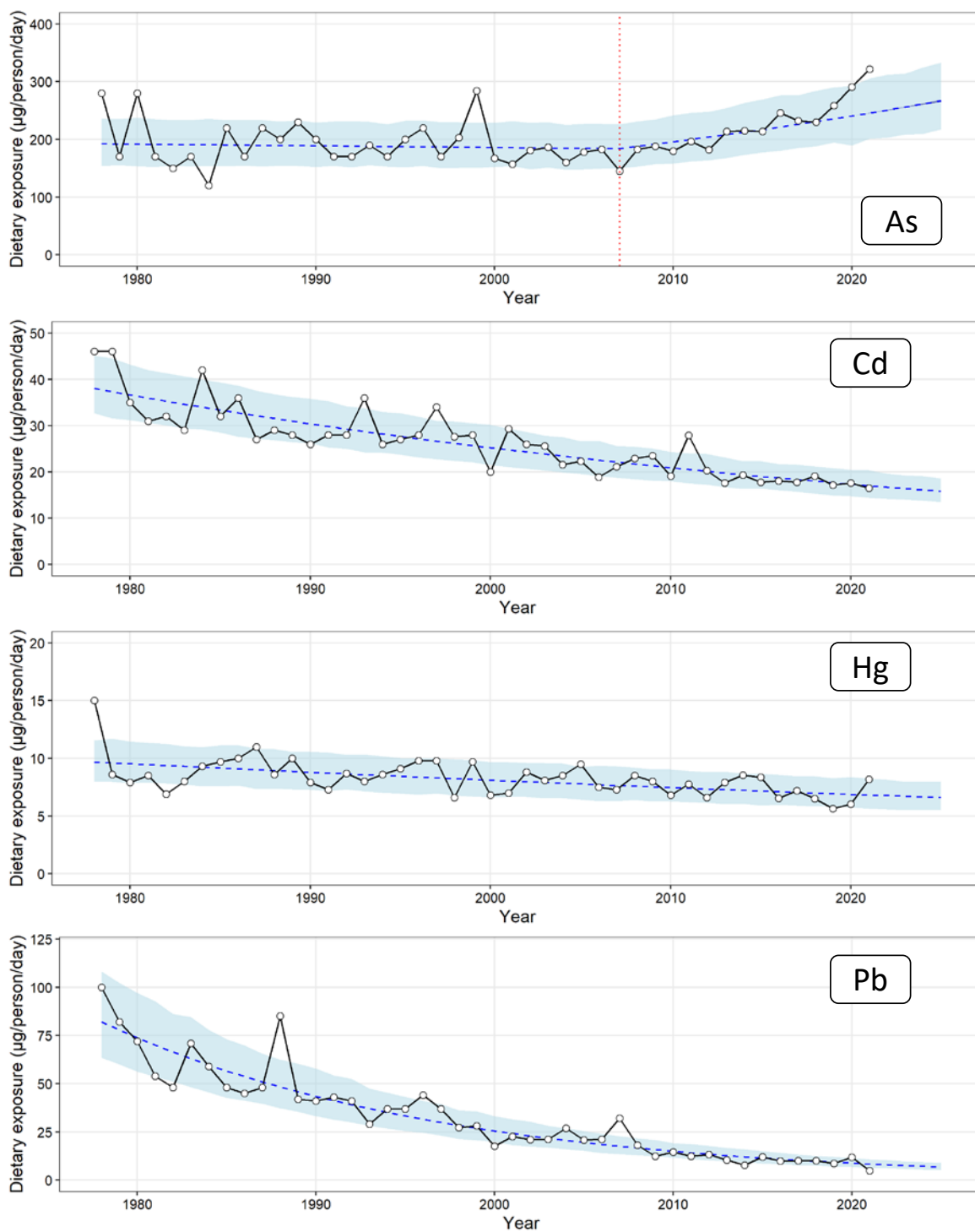


Fig. 4 As, Cd, Hg, Pb の推定 1 日摂取量の経年変動

1978 年のデータは 1977-1978 年に行ったデータ。ND となったデータには 0 を代入し平均値を算出した。青破線はトレンドを、水色のエリアはトレンドの 80% 予測区間を、赤点線は変化点を示す。

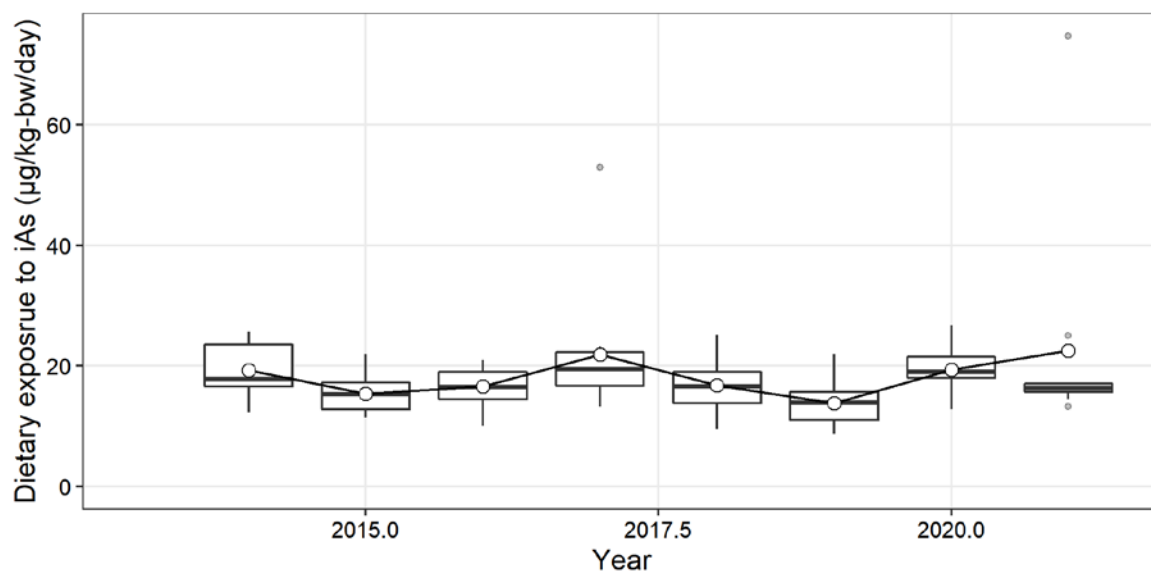


Fig. 5 iAs の摂取量の経年変動

ND となったデータには 0 を代入し算出した。白丸: 平均値; 横線: 中央値; 箱: 四分位範囲; ひげ: 中央値 $\pm$ 1.5 $\times$ 四分位範囲/2 内の最大/最小値 ; 灰色丸: 外れ値

```

1. data {
2.   int<lower=1> N;
3.   vector<lower=0>[N] Y_L;
4.   vector<lower=0>[N] Y_U;
5.   int<lower=1> N_new;
6. }
7.
8. transformed data {
9.   real<lower=0> mu_int;
10.
11.   mu_int = (mean(Y_L) + mean(Y_U))/2;
12. }
13.
14. parameters {
15.   real<lower=0> gm;
16.   real<lower=1> gsd;
17. }
18.
19. transformed parameters {
20.   real<lower=0> y_expect;
21.
22.   y_expect = exp(log(gm) + 0.5*(log(gsd))^2);
23. }
24.
25. model {
26.   // prior distribution
27.   gsd ~ cauchy(3,1);
28.   target += normal_lpdf(y_expect | mu_int, mu_int);
29.
30.   for (i in 1:N) {
31.     if (Y_L[i]==Y_U[i]) {
32.       target += lognormal_lpdf(Y_U[i] | log(gm), log(gsd));
33.     } else {
34.       if (Y_L[i]==0) {
35.         target += lognormal_lcdf(Y_U[i] | log(gm), log(gsd));
36.       } else {
37.         target += log( exp(lognormal_lcdf(Y_U[i] | log(gm), log(gsd))) - exp(lognormal_lcdf(Y_L[i] | log(gm),
38. log(gsd))));
39.       }
40.     }
41.   }
42.
43. generated quantities {
44.   real log_lik[N];
45.   real<lower=0> Y_new[N_new];
46.
47.   for (i in 1:N) {
48.     if (Y_L[i]==Y_U[i]) {
49.       log_lik[i] = lognormal_lpdf(Y_U[i] | log(gm), log(gsd));
50.     } else {
51.       if (Y_L[i]==0) {
52.         log_lik[i] = lognormal_lcdf(Y_U[i] | log(gm), log(gsd));
53.       } else {
54.         log_lik[i] = log(exp(lognormal_lcdf(Y_U[i] | log(gm), log(gsd))) - exp(lognormal_lcdf(Y_L[i] | log(gm),
55. log(gsd))));
56.       }
57.     }
58.     for (i in 1:N_new) Y_new[i] = lognormal_rng(log(gm), log(gsd));
59.   }
60. }

```

Fig. 6 対数正規分布を仮定した ND を含むデータに対するベイズ推定に用いた Stan コード

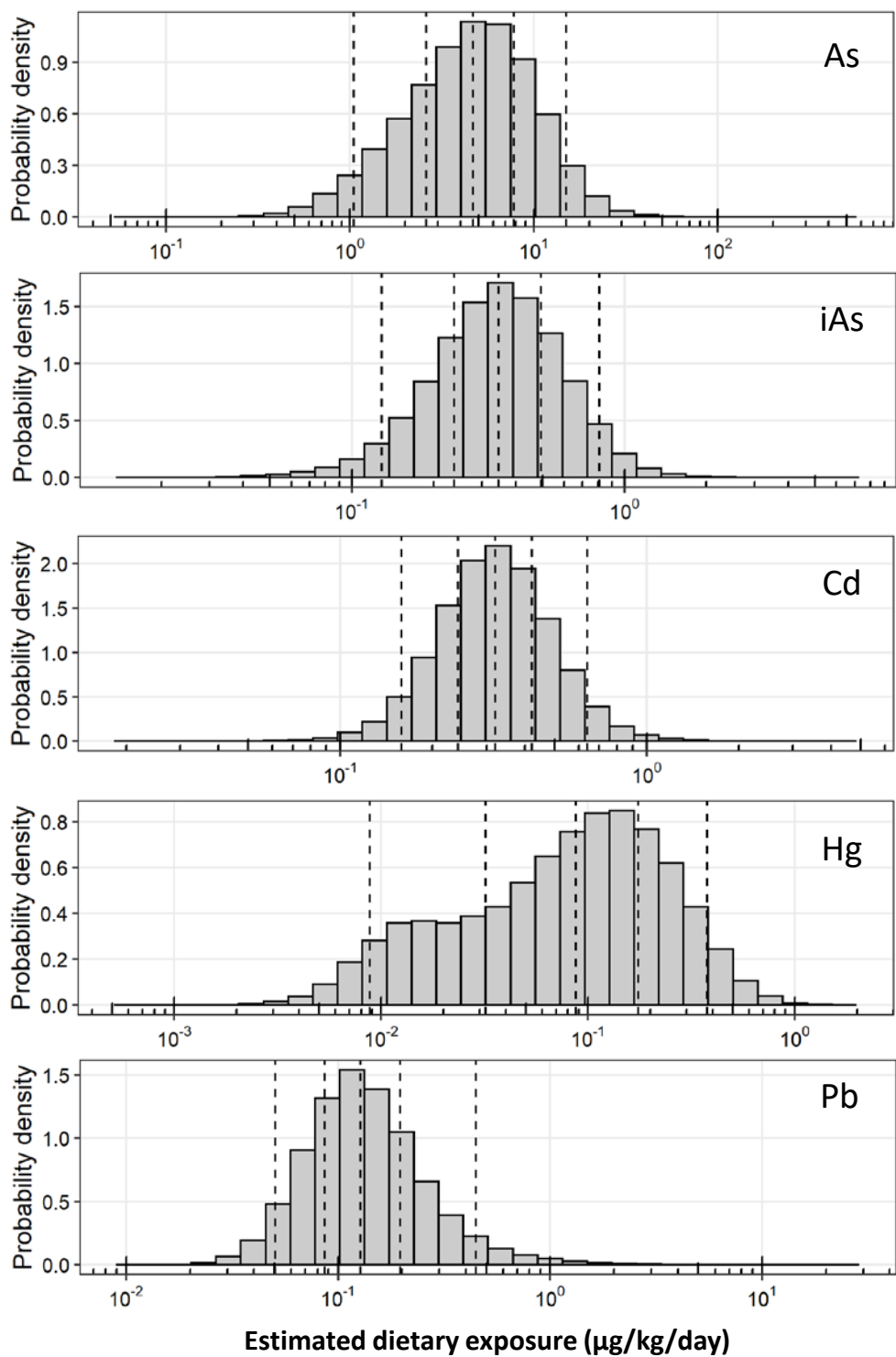


Fig. 7 バイズ法を適用した二次元モンテカルロシミュレーションによる As, iAs, Cd, Hg, および Pb の推定 1 日摂取量の分布  
破線は左から 5, 25, 50, 75, 95%タイル値を示す。



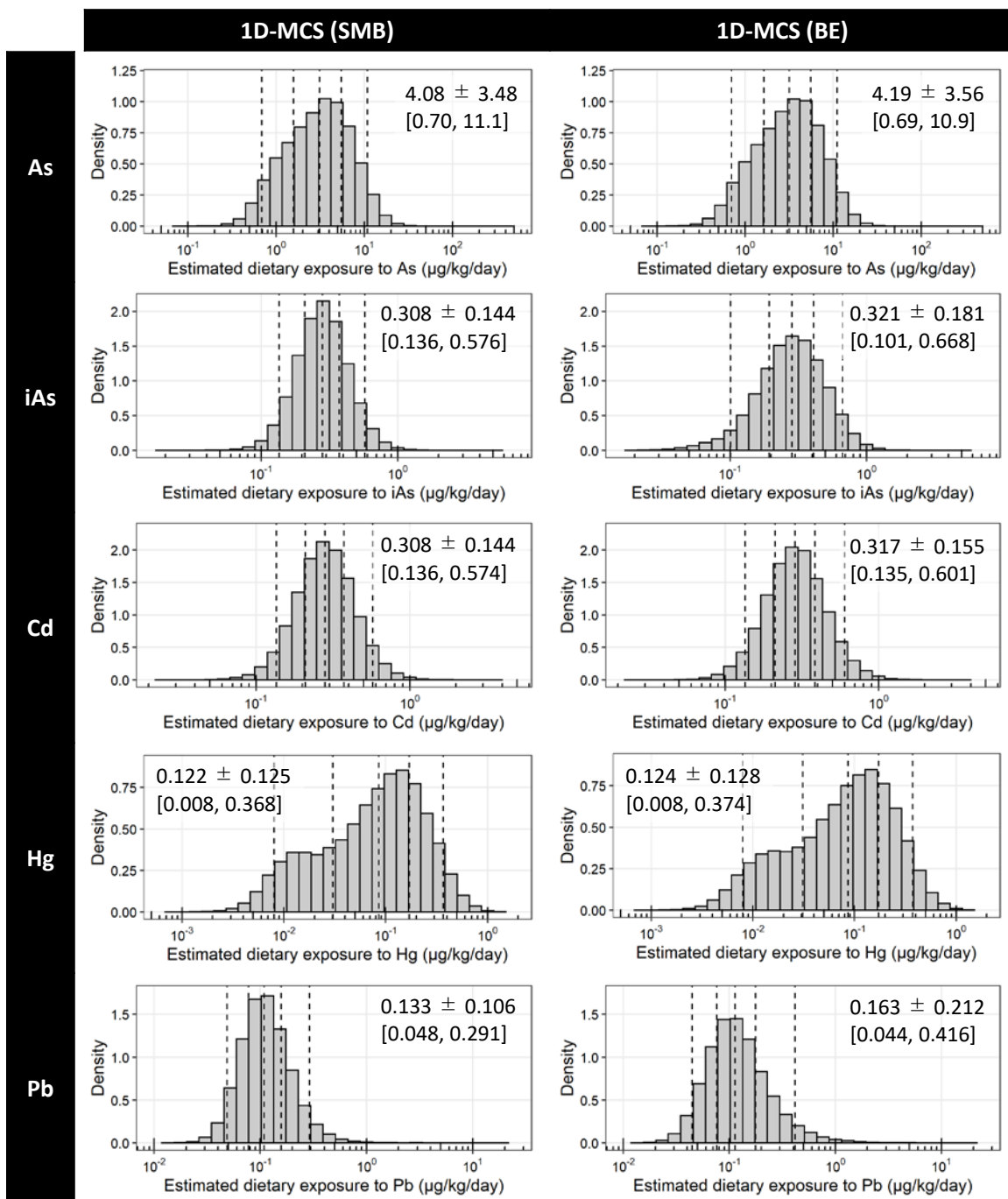


Fig. 8 一次元モンテカルロシミュレーションによるAs, iAs, Cd, Hg および Pb の推定 1 日摂取量分布

破線は左から 5, 25, 50, 75, 95% タイル値を示し、パネル内内の数値は平均値 ± 標準偏差 [90% 範囲] を示す。SMB: Substitute medium bound, BE: Bayesian estimation.

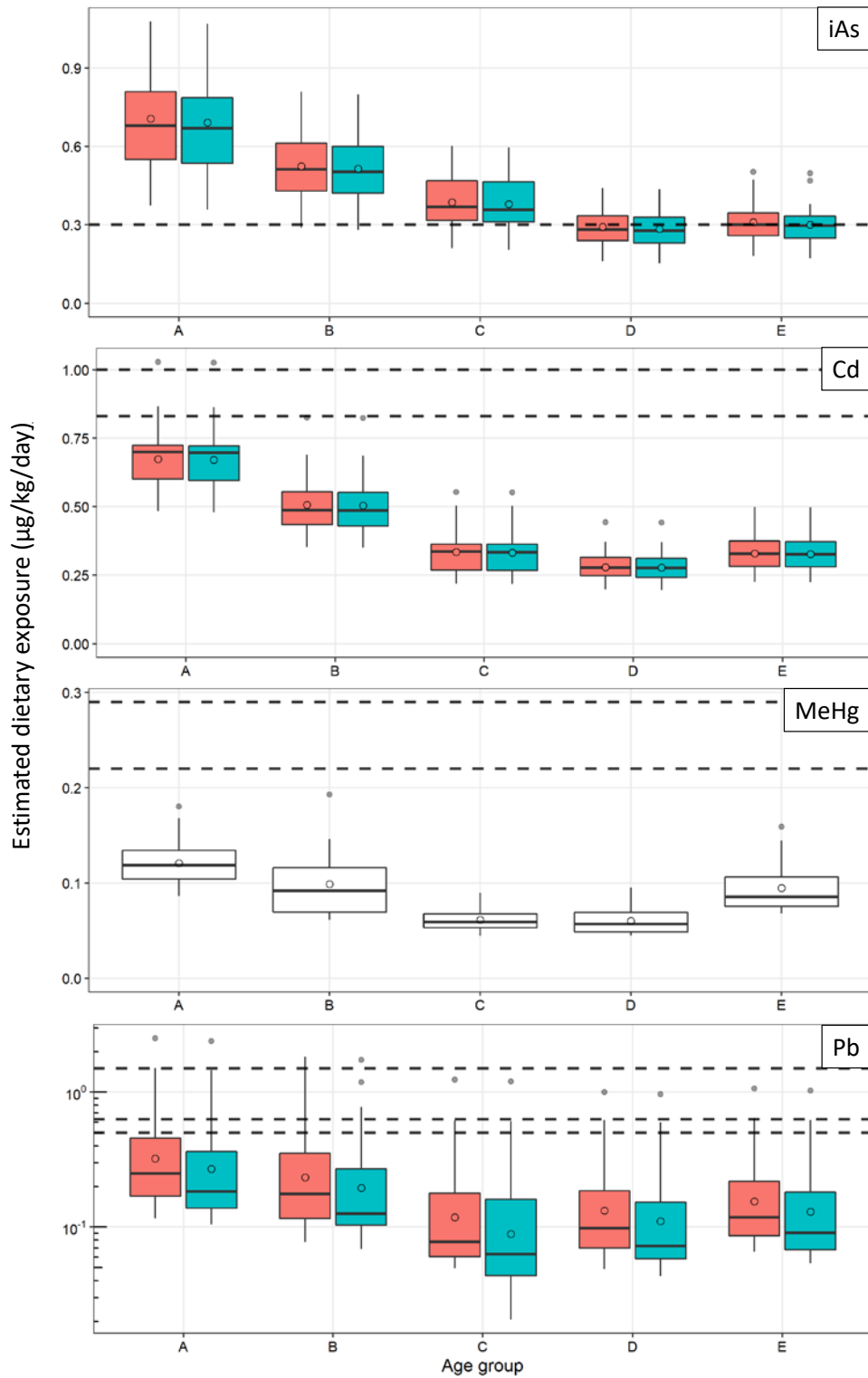


Fig. 9 年代別の iAs, Cd, MeHg および Pb の推定摂取量  
 赤は 14 食品群全ての合計値で、緑は 9 群と 12 群を除いた合計値を示す。MeHg は 10 群と 11 群の合計値を示す。

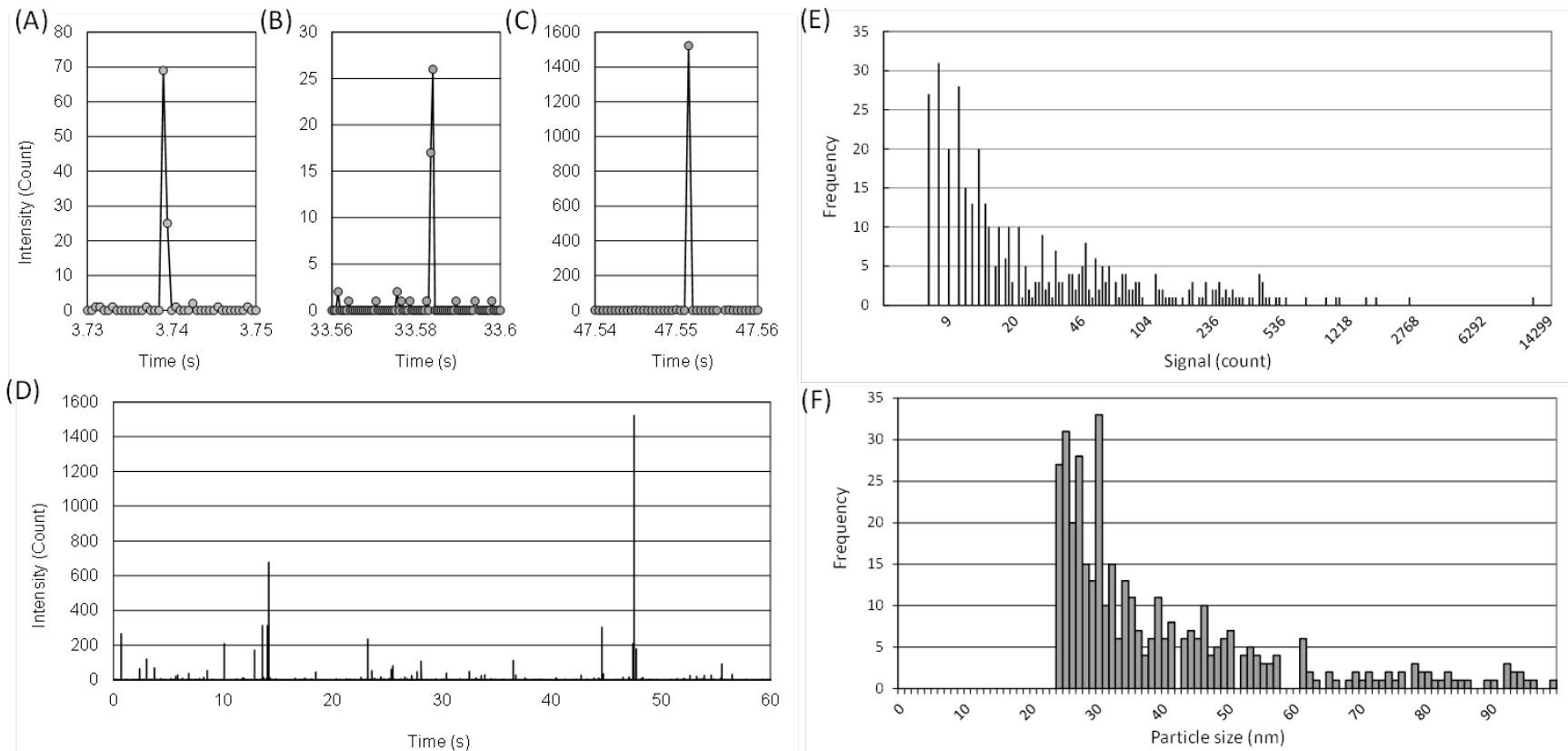


Fig. 10 sp-ICP-MS 法による銀ナノ粒子の解析例.

パネル A~C はパネル D の該当部分を拡大した図、パネル D は sp-ICP-MS 法で得られた time scan データ、パネル E は検出されたピークの信号強度のヒストグラム、パネル F は信号強度を粒径に換算して得られた Ag-NP の粒径分布を示す。

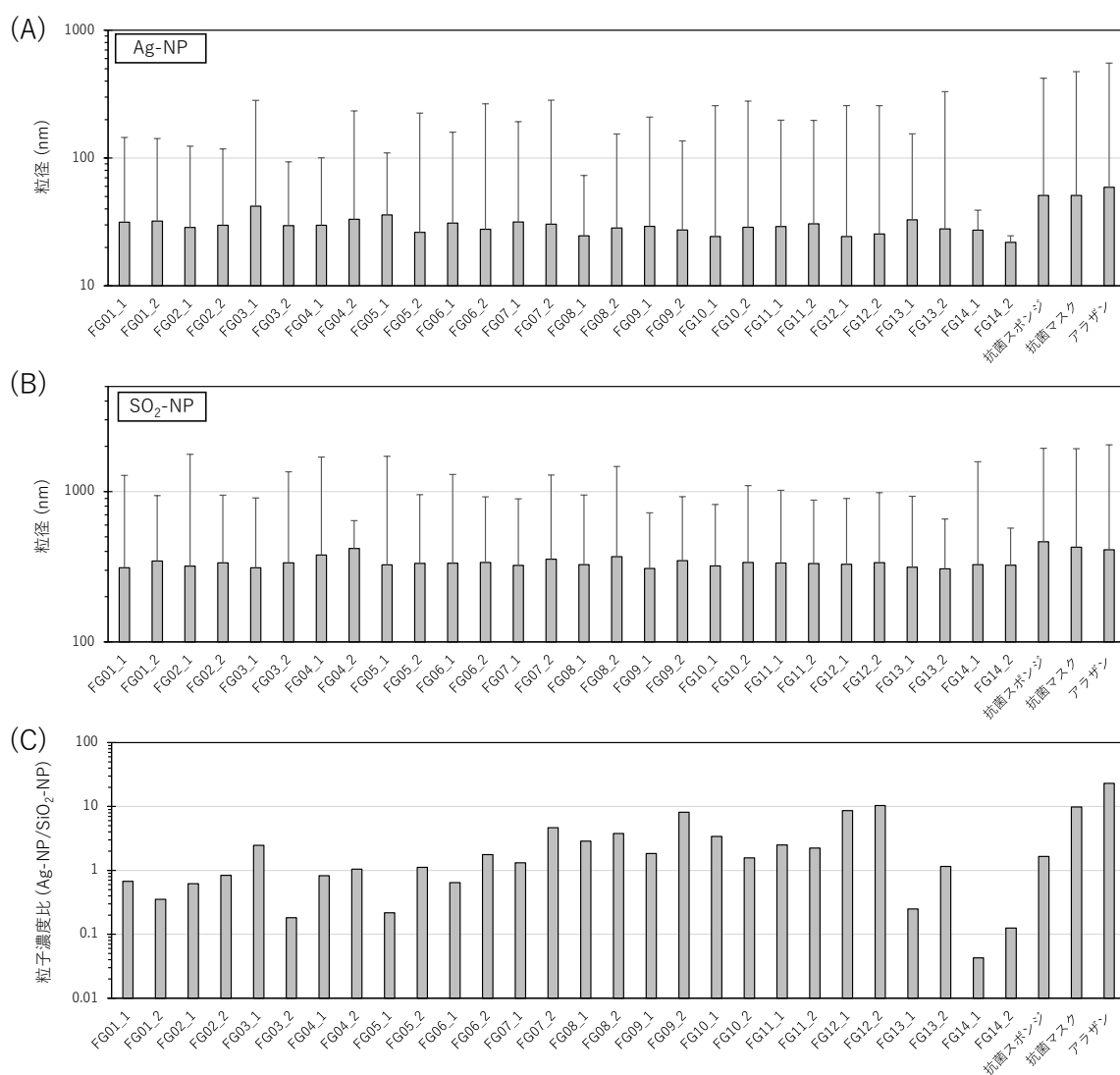


Fig. 11 TD 試料および汚染源候補に含まれる Ag-NP および SiO<sub>2</sub>-NP の特徴の比較  
 (A) Ag-NP の粒径、(B) SiO<sub>2</sub>-NP の粒径、(C) 粒子濃度比 (Ag-NP/SiO<sub>2</sub>-NP)  
 パネル A と B の棒は平均値を、エラーバーは最大値を示す。

## Ⅱ. 分担研究報告書

(3) 有害物質(有機フッ素化合物)摂取量推定に  
不可欠な分析法開発

研究分担者 井之上 浩一

## 令和3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のための研究

### 分担研究報告書

#### (3) 有害物質（有機フッ素化合物）摂取量推定に不可欠な分析法開発

研究分担者 井之上 浩一 立命館大学薬学部

#### 研究要旨

本研究では、有機フッ素化合物（PFCs）を対象とし、飲料水や食品からのヒト曝露に関する研究を進めている。前年度まで、国際的な情報収集と飲料水や食品を対象とした具体的な分析法開発に取り組んだ。本年度は、近年報告されている「食品汚染」についての論文報告例を取集した。また、昨年度の分析法開発において、分析装置環境からのPFCs汚染が認められたため、本年度においてもバックグラウンドの低減に取り組んだ。分析対象化合物を6種に限定し、Oasis WAXの固相抽出カラムを用いた前処理を検討した結果、試料5gを用いた時の定量範囲は0.1 ng/g~10 ng/gであった。さらに、トータルダイエット調査に向けた分析法の構築を試みた。トータルダイエット調査の試料は、令和3年度に作製した東京都と大阪府の試料とした。予備的な結果であるが、10群（魚介類）などから一部のPFCsが検出され、各食品群についても今後さらなる調査が必要と考えられた。

#### 研究協力者

五十嵐 由樹 立命館大学大学院薬学研究科  
薬科学専攻修士課程  
布目 真梨 立命館大学薬学部助教

#### A. 研究目的

有機フッ素化合物（Perfluorocompounds: PFCs）は複数のフッ素原子を持つ人工的な有機化合物の総称である。撥水・撥油性、熱・化学的安定性などの独特な性質を持つことから、容器包装材や界面活性剤、泡消化剤、調理用器具のコーティング剤など、幅広い製品に利用されている一方で、難分解性や高蓄積性、ヒトへの毒性などが報告され、国際的にPFCs汚染が注目されている。特に、8個の炭素を持つパーフルオロオクタンスルホン酸

（Perfluorooctanesulfonic acid : PFOS）及びパーフルオロオクタン酸（Perfluorooctanoic

acid : PFOA）は残留性が高く、様々な毒性研究が実施されている。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）において、2009年にPFOSが附属書B、2019年にPFOAが附属書Aに追加され、現在附属書Aへの追加検討として、新たにパーフルオロヘキサンスルホン酸（Perfluorohexanesulfonic acid : PFHxS）が議論されている。POPs条約を受けて、日本においても化審法でPFOS及びPFOAが第一種特定化学物質に指定され、PRTR法でPFOSが第一種指定化学物質に指定されている。ヒトへの曝露経路が飲料水や食品からの摂取と粉塵からの吸入であるとされており、特に、PFHxS、パーフルオロヘキサノ酸（Perfluorohexanoic acid : PFHxA）とパーフルオロヘプタン酸

（Perfluoroheptanoic acid : PFHpA）の主要な曝露経路は飲料水の摂取が総曝露の36

～53%，粉塵の摂取が総曝露の27～49%であると報告されている<sup>1)</sup>。ベトナムでは、PFOAが地表サンプルの98%と地表水サンプルの45%から検出される<sup>2)</sup>など、汚染された飲食物は身近に存在していることが海外から報告されている。

世界各国の実態調査に基づいて、食品からの曝露評価の重要性を示している。2016年にアメリカ合衆国環境保護庁 (Environmental Protection Agency: EPA) では生涯健康勧告値 (Health Advisory: HA) を70 ng/L (PFOSとPFOAの合算値) と設定し<sup>3)</sup>、2020年にデンマーク環境保護庁では飲料水中の最大値を2 ng/L (PFOA, PFOS, パーフルオロナノ酸 (Perfluorononanoic acid : PFNA), PFHxSの合算値) とした<sup>4)</sup>。また、欧州食品安全機関 (European Food Safety Authority: EFSA) では耐容週間摂取量 (tolerable weekly intake: TWI) を4.4 ng/kg-body weight/week (PFOS, PFOA, PFHxS, PFNAの合算値) と設定した<sup>5)</sup>。日本においても、2021年4月、PFOS及びPFOAを水道管理目標設定項目に位置付けし、その目標値を2物質の量の和として50 ng/Lとした<sup>6)</sup>。

本研究では、近年 (2021年～2022年) 報告されている食品の学術的論文の報告例を収集し、食品を対象とした前処理の検討及びトータルダイエット試料を用いた食品中のPFCsのプレリミナリーモニタリングの調査結果を報告する。

## B. 研究方法

論文調査：立命館大学情報管理システムにおけるものを用いた。

標準品：今回、分析対象としたPFCsの名称、略名、分子式、精密質量及び内標準物質を表1に示す。また、構造式を図1に示す。

試薬：本実験に用いた試薬は、アセトニトリル (富士フイルム和光純薬社製)、酢酸アンモニウム (富士フイルム和光純薬社製)、メタノール (富士フイルム和光純薬社製)、

アンモニア水 (シグマアルドリッチ社製)、酢酸 (富士フイルム和光純薬社製)、トリエチルアミン (富士フイルム和光純薬社製) である。

標準溶液の調製方法：本標準品はメタノールを用いて、1000 µg/mL (ppm) の標準原液に調製した。検量線用標準溶液は、各標準原液からメタノールで希釈し、100 ng/mLの混合液を調製した。その後、本溶液を段階的に希釈し、検量線用標準溶液を調製した。

遠心分離機：日立社製 CF15RN

ホモジナイザー：KINEMATICA社製ポリトロンホモジナイザーPT10-35GT

加熱濃縮装置：ジーエルサイエンス社製リアクティブアップ、リアクティブサーモ

固相抽出カラム：Waters社製 Oasis WAX (6 cc/150 mg)、ジーエルサイエンス社製 InertSep MA-2 (6 mL/250 mg)

LC装置：Waters社製 Acquity H Class

MS装置：Waters社製 Xevo TQD

Capillary voltage 2.0 kV

Extractor voltage 3 V

RF lens voltage 2.5 V

Source temperature 150°C

Desolvation temperature 400°C

Cone/desolvation gas flows 50/800 L/hr

MS/daughter scan ranges *m/z* 50-1200

Cone voltage 15-50 V

Collision energy 15-50 eV

イオン化モード：ESI ネガティブモード

分離カラム：TSKgel ODS-100V (2.0×150 mm, 3 mm, 東ソー社製)

Delayカラム：Delay Column for PFAS (3.0×30 mm, ジーエルサイエンス社製)

移動相：A 5 mmol/L 酢酸アンモニウム水溶液、B 5 mmol/L 酢酸アンモニウム含有メタノール (A/B=65/35 (0-2 min) →2/98 (15-23 min) →65/35 (23.1-25 min))

流速：0.2 mL/min

注入量：10 µL

## C. 研究結果

### C.1. 近年報告されている食品の調査結果

今回、2021年から2022年までの学術的論文を参考にして検討を行った。以下に、食品におけるPFCs汚染の報告を示す(表2)。ヨーロッパの陸生・海洋頂点捕食者など61サンプルから4つの魚類(鯛, ローチ, ニシン, うなぎ)からPFCsが検出され、PFOSはいずれのサンプルからも検出された<sup>7)</sup>。米国食品医薬品局(FDA)のトータルダイエット調査によると、加工食品172検体から缶詰のマグロ(PFOSが0.076 ng/g, PFDAが0.072 ng/g)、魚スティック(PFOSが0.033 ng/g, PFNAが0.05 ng/g)、プロテインパウダー(PFOSが0.14 ng/g)からPFCsが検出された<sup>8)</sup>。ギリシャで食べられている24種類の魚介試料から $\Sigma$ PFCs(PFOS, PFOA, PFNA, PFHxS)が<LOQ~20.4 ng/g(平均値2.5 ng/g)で検出された。PFOSがサンプルの50%, PFOAとPFNAはサンプルの10%で検出され、PFHxSはどのサンプルからも検出されなかった<sup>9)</sup>。また、ギリシャにおける86種の卵試料から $\Sigma$ PFCs(PFOS, PFOA, PFNA, PFHxS)が<LOQ~9.7 ng/g(平均値0.9 ng/g)で検出された<sup>9)</sup>。PFCsの摂取量を算出したところ、ギリシャの成人の一日平均摂取量は、魚消費量より0.92 ng/kg BW/day、卵消費量より0.16 ng/kg BW/dayであった<sup>9)</sup>。ギリシャのPFOAとPFOSへの食事曝露要因の50%は魚と卵であることが分かっている<sup>9)</sup>。バルト海の13種の魚介試料における検出値はPFOSが<LOQ~15.2 ng/g、PFNAが<LOQ~11.2 ng/g、PFDAが<LOQ~3.3 ng/gであり、EFSAが新たに導入した週間耐容摂取量(TWI)4.4 ng/kg BW/week(PFOS, PFOA, PFNA, PFHxSの4つのPFCsの合算値)を比較して評価した結果、13種の魚介試料のうち10種の魚がTWIを超過した<sup>10)</sup>。アフリカの乳児調査によると、 $\Sigma$ 15PFCs(PFBA, PFPeA, PFBS, PFHxA, PFHpA, PFHxS, PFOA, PFNA, PFOS, PFDA, PFUDa, PFDS, PFDoA, PFTrDA, PFTeDA)の推定一日摂取量(EDI)は、一部母乳で育てられた乳児は

184.92 ng/kg BW/day、人工的な乳で育てられた乳児は329.47 ng/kg BW/dayであり<sup>11)</sup>、これらのEDIはEFSAのEDIを下回っているが、乳製品の摂取による乳児の曝露が懸念される。一般的な食事を摂る人とビーガンと比較した横断的な疫学研究の結果、PFOS及びPFNAの血中濃度中央値がそれぞれ54%及び240%高いことが示され、特に肉類及び魚介類の摂取量に強い相関が見られた<sup>12)</sup>。以上の論文報告より、世界各国でPFCsが食品から検出されており、特に、魚類や卵類、乳類からの検出頻度が高い。一方で、韓国における作物の汚染量から算出されたEDIの寄与はPFOSで66.4%, PFOAで7.9%であり、特に、米はPFOSで30.9%, PFOAで4.8%であった<sup>13)</sup>。このことから、欧米諸国のリスク評価の報告が多くあるが、米を主食とする日本を含むアジア圏でのリスク評価も今後参考にしたい。北京の魚、肉、卵を測定した結果、ADONA(Dodecafluoro-3 H-4,8-dioxanonoate, PFOA代替化合物)やGenX(Hexafluoropropylene oxide dimer acid)HFPO-DA、PFOA代替化合物)は検出されなかったが、PFOSやPFOAの分岐異性体や代替化合物であるF-53B((6:2chlorinated polyfluoroalkyl ether sulphonates [6:2Cl-PFESA] and 8:2chlorinated polyfluoroalkyl ether sulphonate [8:2Cl-PFESA])PFOS代替化合物)が高頻度で検出され、F-53BのEDIは魚類が56 pg/kg/day、牛肉が2 pg/kg/dayであった<sup>14)</sup>。本論文の検出値を表3に示す。また、中国南部の北武湾の海洋生物からF-53Bが<LOD~0.1 ng/g(平均値0.05 ng/g、検出頻度44%)、PFOSが<LOD~1.5 ng/gで検出された<sup>15)</sup>。F-53Bは中国で開発されたPFOSの代替品であり、PFOSと構造が類似していることから、F-53Bも食物網を介して生物蓄積が拡大される可能性があるとして仮定されている<sup>16)</sup>。PFOS同様F-53Bも世界的に汚染が拡大される可能性があるため、代替品として使用されている化合物に関して



も、今後調査していく必要があると考えられる。

次に、容器包装による食品の PFCs 汚染の報告を示す。ファーストフードの包装やマフィン容器、ベーキングペーパー、プレート、電子レンジ用ポップコーン容器から複数の PFCs (特に PFOS, PFOA, PFBA, PFHxA, PFHpA) が検出された<sup>17)</sup>。43 種類のストロー (プラスチック素材 5 種, 紙素材 29 種, その他の植物素材 9 種) を測定した結果, 紙素材とその他の植物素材のストローから 21 種の PFCs (特に PFBA, PFOA, PFHxA) が検出され, 合計検出濃度の範囲は 0.043~29.1 ng/g であった<sup>18)</sup>。これらの容器包装のうち, 非常に高温状態になり, かつ脂肪酸と接触することが多いものについては, PFCs が食品に移行する可能性がある。アメリカにおいて, 包装されている食品 (アイスクリームやソーダなど) や魚の摂取量が多い子供ほど血中の PFOS を含む複数の PFCs 濃度が高く, 小児期の食事において包装容器ごとによる PFCs 曝露に相関があることが示唆された<sup>19)</sup>。これより, PFCs 摂取の曝露経路として食品接触製品として容器やストローなどが大きく寄与する可能性がある。

## C.2. 食品の前処理検討

昨年度までに, LC-MS/MS を用いた PFCs の一斉分析法を開発した。本分析法を用いて, ペットボトル水, お茶, ジュースの PFCs 分析へ応用することができた<sup>20)</sup>。しかしながら, 一部の PFCs において, 装置バックグラウンドや前処理での汚染など, 食品分析に伴う微量分析でそれらを排除する必要が求められた。そこで, 本年度は, 食品の前処理を想定したバックグラウンドを低減化させた LC-MS/MS 法を検討することとした。

LC-MS/MS 分析装置環境 (特に移動相, それまでの配管など) からの PFCs 汚染が確認されたため, そのバックグラウンドの保持時間を遅らせる目的で Delay カラムを移

動相の混合部と試料注入部の間に導入することでその低減化を実施した。さらに, バイタルのセプタムの変更, 精製水の検討, 各種器具のメタノール洗浄などを行い, バックグラウンドの削減を目指した (PFBA のバックグラウンド低減化検討結果を図 2 に示す)。Delay カラムの利用については, 近年の報告では一般的になっており, 特に Waters Atlantis T3 などを利用することがある<sup>21)</sup>。国内では, ジーエルサイエンス社より, Delay Column for PFAS (3.0 × 30 mm) が入手可能なため, 本研究においてはそれを用いることとした。

次に, 前処理の検討を実施した (図 3)。近年, FDA の報告でも WAX SPE カートリッジのような逆相-弱陰イオン交換ミックスモードの水湿潤性ポリマーを基質にしたカートリッジを使用する報告が多い<sup>8)</sup>。そこで, 本研究では, Oasis WAX 及び InterSep MA-2 カートリッジを用いて代表的な PFCs の回収率に関する比較検討を実施した (図 4)。その結果, R-SO<sub>3</sub>H 系及び炭素鎖の長い PFAS で低回収率となった。さらに, 溶出液に関するトリエチルアミンの含有量などを比較検討した (図 5)。また, 富士フイルム和光純薬から Presep PFC-2 及び C Agri カートリッジが販売されており, 今後はそれらも検討し, 絶対回収率 80%以上を目指す。それらを踏まえて, 内標準法による各種食品の添加回収実験を行った結果を図 6 に示す。いずれも, 分析対象と同じ安定同位体補正を行えば, 良好な回収率を示すことができる一方で, それとは異なる安定同位体では回収率の補正は困難であった。そこで, 今回の TD 試料への応用としては, 正確な定量値を求めるため, 安定同位体補正可能な PFBA, PFHxA, PFOA, PFUdA, PFHxS 及び PFOS に対象を絞った (表 1)。また, 今後は更なる安定同位体種類を増やして, モニタリングすることとする。

次に, 選択性の検討を実施した。まず, PFBA に関する TD の代表的な SRM クロマ

トグラムを図7に示す。本結果で示す通り、夾雑物の影響により擬陽性と判断できるクロマトグラムが得られる。Ullahらの報告では、移動相に複素環アミンを添加することで、PFBAなどの感度向上を示している<sup>22)</sup>。また、FDAの報告では、False positives due to chromatographyとしてPFBAとPFPeAについては擬陽性の可能性があることを指摘し、最終的な解決策としては高分解能質量分析(Q-Exactive Orbitrap)を利用している<sup>8)</sup>。

PFOSに関する代表的なTDのSRMクロマトグラムを図8に示す。本結果で示す通り、PFOSの保持時間に非常に近いピークが観察され、擬陽性と判断してしまう可能性が示された。PFOSは炭素鎖の異性体(isomers)が観察される場合があり、それらに注意する必要があるうえ、 $m/z$  499 > 80 モニタリングでは胆汁酸や脂質の影響を受ける可能性も示唆している<sup>23)</sup>。実際に、一部の胆汁酸については  $m/z$  498 付近からプロダクトイオン  $m/z$  80 付近と類似しており、PFCsのR-SO<sub>3</sub>H系とは誤認識してしまう恐れがある<sup>23)</sup>。

PFOAに関する代表的なSRMクロマトグラムを図9に示す。本結果で示す通り、PFOAと同じ保持時間にLOQ (0.1 ng/g) 未満であるがピークが検出される。概算値としては、0.03 ng/g 程度となる。本結果に類似して、PFHxA及びPFUdAについては、LOQを超えるピークを検出した(図10, 11)。これらのピークはLOQ付近(もしくは未満)であり、検出したものとして判断が難しい。本来であれば、定性イオンを確認する必要が望まれる。PFAS全般に炭素鎖に関するフラグメントイオンが検出され難く、定性イオンを設定することができない。そのため、擬陽性の可能性を完全に排除するためには、精密質量を分析する手段が有用と考える<sup>8)</sup>。

### C.3. 食品中のPFCs プレリミナリーモニタリング

C.2.の検討より改良した前処理を用い

て、令和3年度に調製した東京都及び大阪府のトータルダイエット試料を分析した。Commision Recommendation 2010/161/ECにおいて、LOQが1 µg/kg以下であることが望ましい<sup>20)</sup>とされていることから、本手法でのLOQを0.1 ng/gとし、定量範囲を0.1~10 ng/gとした。14群(飲料水)は試料5 mLとし、固相抽出過程のみで前処理した。分析対象化合物はC.2.と同様、PFOS, PFOA, PFHxS, PFHxA, PFBA, PFUdAの6つのPFCsを分析対象とした。今回は添加回収試験を行っておらず、プレリミナリーな分析評価としてバックグラウンドの定量を行った。また、前処理はn=1として、その定量値を示した(表4)。その結果、東京都の2群(米以外の穀類、種実類、いも類)、6群(果実、果汁)、7群(緑黄色野菜)、10群(魚介類)、11群(肉・卵類)、13群(調味料)からPFCsが検出された。また、大阪府の6群(果実、果汁)、7群(緑黄色野菜)、10群(魚介類)、11群(肉・卵類)、14群(飲料水)からPFCsが検出された。検出された試料の代表的なSRMクロマトグラムは図7~11に示す。また、LOQを0.1 ng/gとしたが、traceレベル(0.05~0.1 ng/g程度)で検出されるPFCsもあった。

### D. 考察

今年度は、2021年~2022年で報告された「食品の調査結果」をまとめた。食事からの曝露として、主に魚介類や乳類、卵類からのPFCs汚染が報告された。特に、EFSAが導入したTWIの対象であるPFOS, PFOA, PFHxS, PFNAを分析対象としており、他にも炭素鎖の短いPFBAや代替化合物であるF-53Bなどの報告もあり、今後注目すべき化合物であると思われる。また、世界各国ではEFSAが導入したTWIを超過する食品サンプルが確認されており、日本においてもトータルダイエット調査により、曝露評価を進める必要がある。食品を包む容器包装

ヤストローなどの PFCs 汚染により人が曝露することが示唆されている。

昨年度は飲料水を対象としたモニタリングを実施したが、本年度は LC-MS/MS による食品の前処理法の構築と、トータルダイエット試料を分析した。分析対象化合物は安定同位体による補正が可能な 6 種類の PFCs に限定し、LOQ を 0.1 ng/g として分析した。その結果、検出された PFCs は主に PFBA, PFHxA, PFUdA であり、PFOA は trace レベルで検出された。PFOS と PFHxS は検出限界未満であった。また、東京都と大阪府のサンプル間で検出頻度や濃度が異なり、東京都のサンプルからは様々な食品群から PFCs が検出された。また、大阪府の 10 群（魚介類）サンプルから PFUdA が検出された。しかしながら、夾雑物の影響もあるため、今後は更なる前処理の検討及び高選択的な分析法の求められると考える。また、今回はプレリミナリーな調査であるため、今後も更なる検証を進める必要がある。

## E. 結論

本検討より、下記のことを結論とした。

- ・昨年と同様バックグラウンドを低減させた LC-MS/MS による分析法により、安定同位体補正できる 6 種類の PFCs の一斉分析を提案した。
- ・試料 5 g を分析に供した時の定量範囲を 0.1~10 ng/g と設定した。
- ・東京都と大阪府のトータルダイエット試料を分析した結果、複数の食品群から数種類の PFCs が検出された。しかしながら、LOQ 付近のピークや夾雑物の影響で判断しにくい SRM クロマトグラムとなり、更なる改良が求められると考えた。

以上より、様々な食品に対応できる PFCs の前処理法のバリデーションを取る必要がある。今後、精度の高い分析法を用いて、日本の食事からの PFCs 曝露評価が求められ

る。

## F. 研究発表

1. 論文発表  
特になし
2. 学会発表  
真宮彩乃, 五十嵐由樹, 高橋未来, 堤智昭, 穂山浩, 井之上浩一: LC-MS/MS による有機フッ素化合物の食品分析の基礎検討バックグラウンド評価と食品からの前処理  
日本食品化学学会第 27 回総会・学術大会 (オンライン), 2021 年 6 月

## G. 知的財産権の出願, 登録状況

特になし

## H. 健康危機情報

特になし

## I. 参考文献

- 1) Vestergren, R., Berger, U., Glynn, A., Cousins, I.T. Dietary exposure to perfluoroalkyl acids for the Swedish population in 1999, 2005 and 2010. *Environ. Int.*, 49, 120-127 (2012)
- 2) Duong, H.T., Kadokami, K., Shirasaka, H., Hidaka, R., Chau, H., Kong, L., Nguyen, T.Q., Nguyen, T.T., Occurrence of perfluoroalkyl acids in environmental waters in Vietnam. *Chemosphere*, 122, 115-124 (2015)
- 3) U.S. EPA. Drinking Water Health Advisory for Perfluorooctane Sulfonate (PFOS). *Office of Water Document*, 822-R-16-004 (2016)
- 4) 「米国および EU における内分泌かく乱物質の規制動向」2021 年 8 月分, JFE テクノリサーチ
- 5) EFSA Panel on Contaminants in the Food Chain (CONTAM), Risk to human health related to the presence of perfluoroalkyl substances in food. *EFSA Journal*, 18, 6223 (2020)
- 6) 厚生労働省医薬・生活衛生局水道課長, 「水道基準に関する省令の一部改正等につ

いて」の留意事項について (2020)

- 7) Androulakakis, A., Alygizakis, N., Gkotsis, G., Nika, M.C., Nikolopoulou, V., Bizani, E., Chadwick, E., Cincinelli, A., Claßen, D., Danielsson, S., Dekker, R., Duke, G., Glowacka, N., Jansman, H., Krone, O., Martellini, T., Movalli, P., Persson, S., Roos, A., O'Rourke, E., Siebert, U., Treu, G., Brink, N.Q.V.D., Walker, L.A., Deaville, R., Slobodnik, J., Thomaidis, N.S. Determination of 56 per- and polyfluoroalkyl substances in top predators and their prey from Northern Europe by LC-MS/MS. *Chemosphere*, 287, 131775 (2022)
- 8) Genualdi, S., Beekman, J., Carlos, K., Fisher, C. M., Young, W., DeJager, L., Begley, T. Analysis of per- and poly-fluoroalkyl substances (PFAS) in processed foods from FDA's Total Diet Study. *Anal. Bioanal. Chem.*, 414, 1189-1199 (2022)
- 9) Costopoulou, D., Vassiliadou, I., Leondiadis, L. PFASs intake from fish, eggs and drinking water in Greece in relation to the safety limits for weekly intake proposed in the EFSA scientific opinion of 2020. *Chemosphere*, 286, 131851 (2022)
- 10) Kumar, E., Koponen, J., Rantakokko, P., Airaksinen, R., Ruokojärvi, P., Kiviranta, H., Vuorinen, P. J., Myllylä, T., Keinänen, M., Raitaniemi, J., Mannio, J., Junttila, V., Nieminen, J., Venäläinen, E. R., Jestoi, M. Distribution of perfluoroalkyl acids in fish species from the Baltic Sea and freshwaters in Finland. *Chemosphere*, 291, 132688 (2022)
- 11) Macheka, L.R., Olowoyo, J.O., Mugivhisa, L.L., Abafe, O.A. Determination and assessment of human dietary intake of per and polyfluoroalkyl substances in retail dairy milk and infant formula from South Africa. *Sci. Total Environ.*, 755, 142697 (2021)
- 12) Menzel, J., Abraham, K., Dietrich, S., Fromme, H., Völkel, W., Schwerdtle, T., Weikert, C. Internal exposure to perfluoroalkyl substances (PFAS) in vegans and omnivores. *Int. J. Hyg. Environ. Health*, 237, 113808 (2021)
- 13) Choi, G. H., Lee, D. Y., Bruce-Vanderpuije, P., Song, A. R., Lee, H. S., Park, S. W., Lee, J. H., Megson, D., Kim, J. H. Environmental and dietary exposure of perfluorooctanoic acid and perfluorooctanesulfonic acid in the Nakdong River, Korea. *Environ. Geochem. Health*, 43, 347-360 (2021)
- 14) Wang, X., Wang, Y., Li, J., Liu, J., Zhao, Y., Wu, Y. Occurrence and dietary intake of Perfluoroalkyl substances in foods of the residents in Beijing, China. *Food Addit. Contam. Part B*, 14, 1-11 (2021)
- 15) Pan, C. G., Xiao, S. K., Yu, K. F., Wu, Q., Wang, Y. H. Legacy and alternative per- and polyfluoroalkyl substances in a subtropical marine food web from the Beibu Gulf, South China: Fate, trophic transfer and health risk assessment. *J. Hazard Mater.*, 403, 123618 (2021)
- 16) Munoz, G., Liu, J., Duy, S.V., Sauve, S. Analysis of F-53B, Gen-X, ADONA, and emerging fluoroalkylether substances in environmental and biomonitoring samples: A review. *Trends in Environ. Anal. Chem.*, 23, e00066 (2019)
- 17) Ramírez Carnero, A., Lestido-Cardama, A., Vazquez Loureiro, P., Barbosa-Pereira, L., Rodríguez Bernaldo de Quirós, A., Sendón, R. Presence of Perfluoroalkyl and Polyfluoroalkyl Substances (PFAS) in Food Contact Materials (FCM) and Its Migration to Food. *Foods*, 10, 1443 (2021)
- 18) Timshina, A., Aristizabal-Henao, J. J., Da Silva, B. F., Bowden, J. A. The last straw: Characterization of per- and polyfluoroalkyl substances in commercially-available plant-based drinking straws. *Chemosphere*, 277, 130238 (2021)
- 19) Seshasayee, S.M., Rifas-Shiman, S.L., Chavarro, J.E., Carwile, J.L., Lin, P.D., Calafat,

A.M., Sagiv, S.K., Oken, E., Fleisch, A.F. Dietary patterns and PFAS plasma concentrations in childhood: Project Viva, USA. *Environ. Int.*, 151, 106415 (2021)

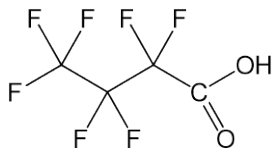
20) COMMISSION RECOMMENDATION of 17 March 2010 on the monitoring of perfluoroalkylated substances in food. 2010/161/EU; <https://eur-lex.europa.eu/LexUriServ/LexUriServ.do?uri=OJ:L:2010:068:0022:0023:EN:PDF>

21)厚生労働省, 令和元年国民健康・栄養調査報告, [https://www.mhlw.go.jp/stf/seisakunitsuite/bunya/kenkou\\_iryuu/kenkou/eiyuu/r1-houkoku\\_00002.html](https://www.mhlw.go.jp/stf/seisakunitsuite/bunya/kenkou_iryuu/kenkou/eiyuu/r1-houkoku_00002.html)

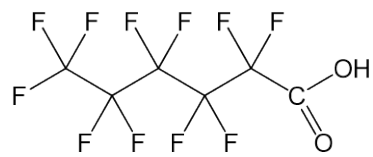
22) Ullah, S., Two trace analytical methods for simultaneous determination of three classes of perfluoroalkyl acids in food and drinking water. Department of applied environmental science. 106 91, (2012)

23) Genualdi, S., Beekman, J., Carlos, K., Fisher, C. M., Young, W., DeJager, L., & Begley, T. Analysis of per- and poly-fluoroalkyl substances (PFAS) in processed foods from FDA's Total Diet Study. *Anal. Bioanal. Chem.*, 413, 1189-1199 (2022)

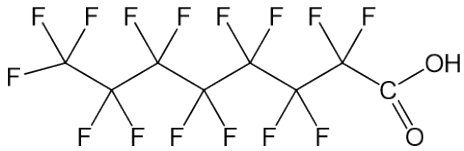
a)



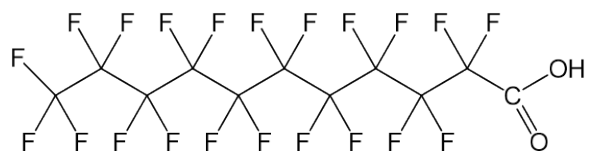
b)



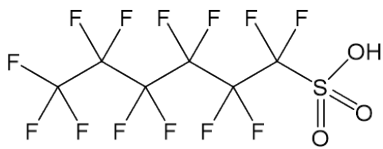
c)



d)



e)



f)

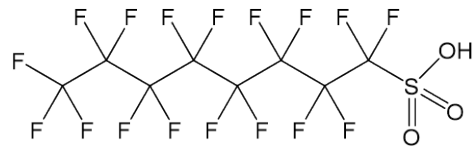


図 1. PFCs の構造式

a) PFBA、 b) PFHxA、 c) PFOA、 d) PFUdA、 e) PFHxS、 f) PFOS

分析装置(移動相)、LCバイアルのセプタム、精製水、プラスチック製器具

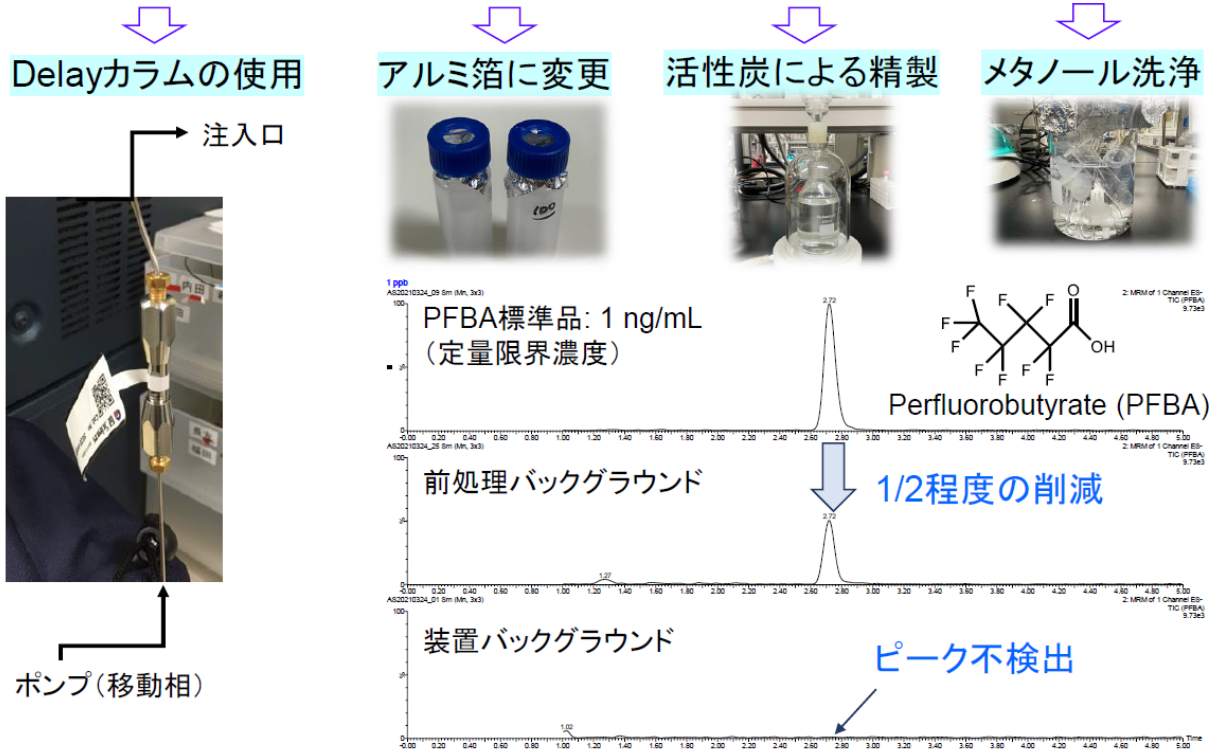


図 2. バックグラウンドの低減化の検討

PFBA ( $m/z$  213→169) をモニタリングした際のバックグラウンド検討

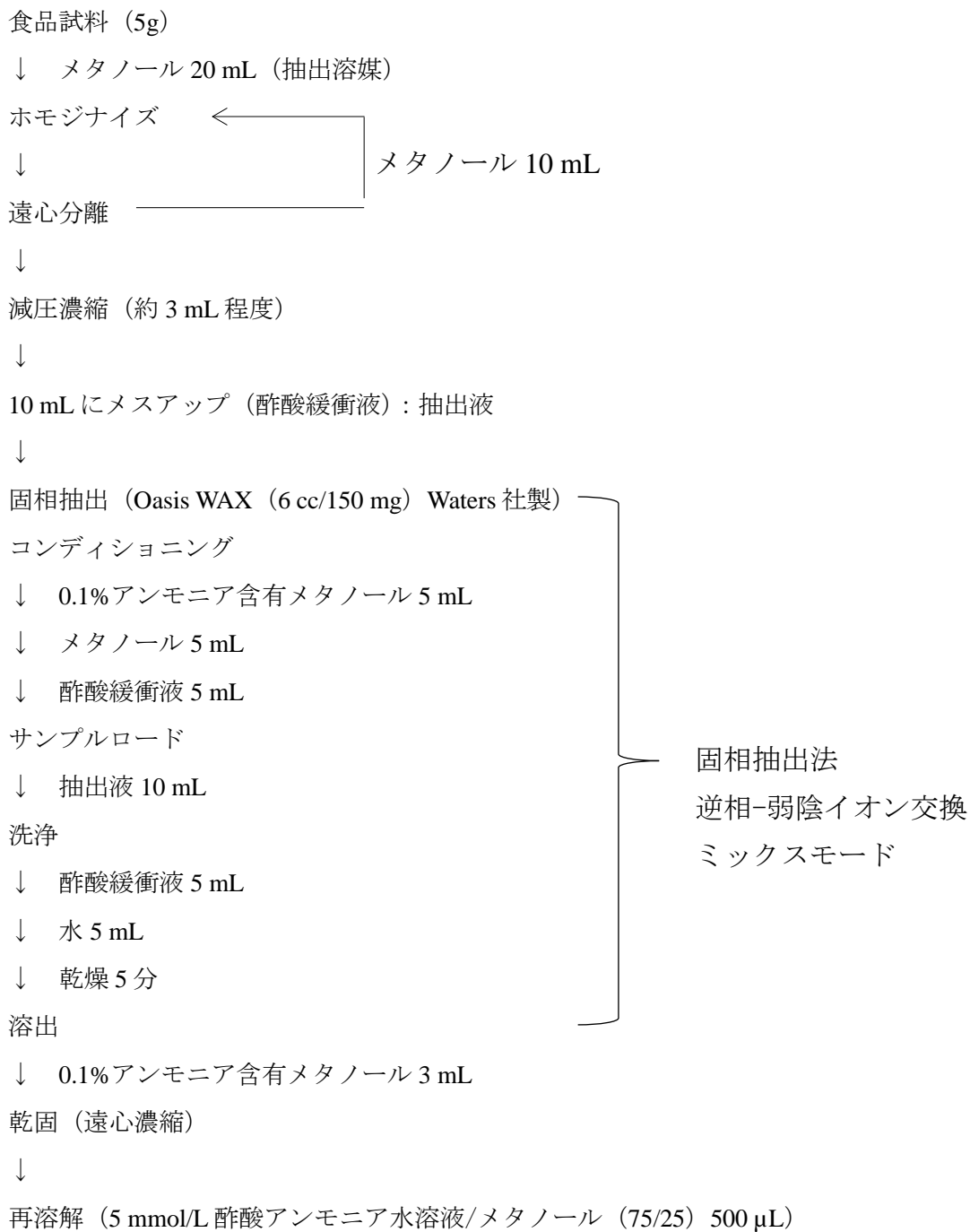
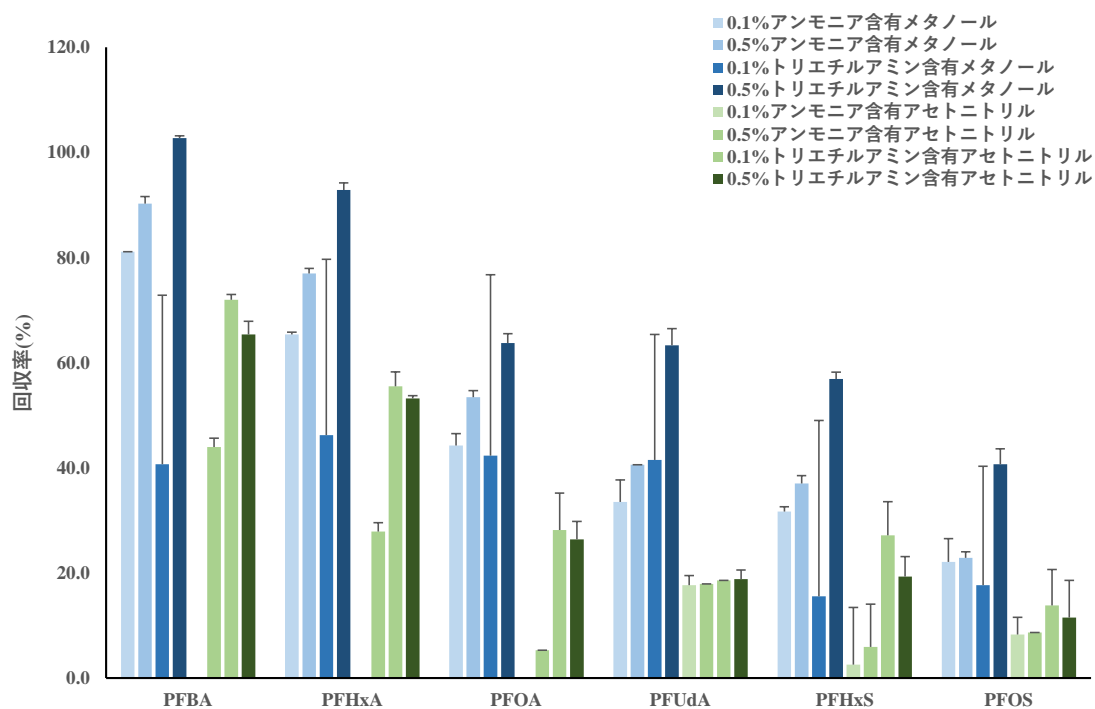


図 3. 食品試料の前処理フローチャート



【Oasis WAX (6 mL/120 mg) Waters 社製】



【InertSep MA-2 (6 mL/250 mg) GL Sciences 社製】

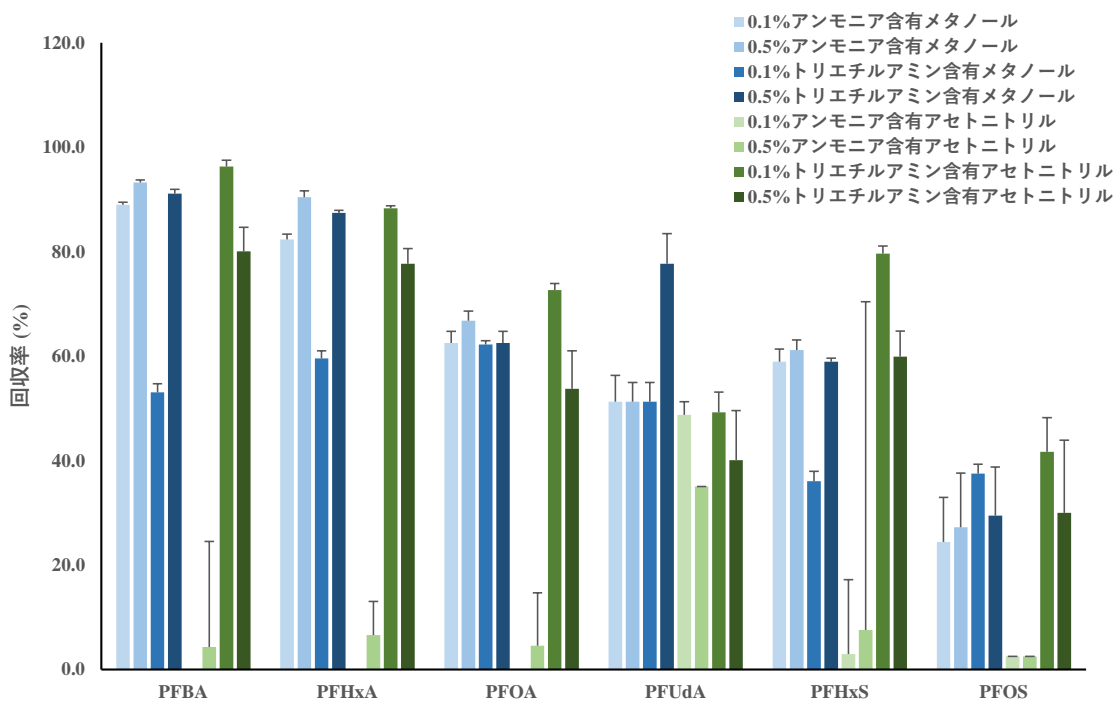


図 4. 固相カートリッジの検討結果 (n=3)

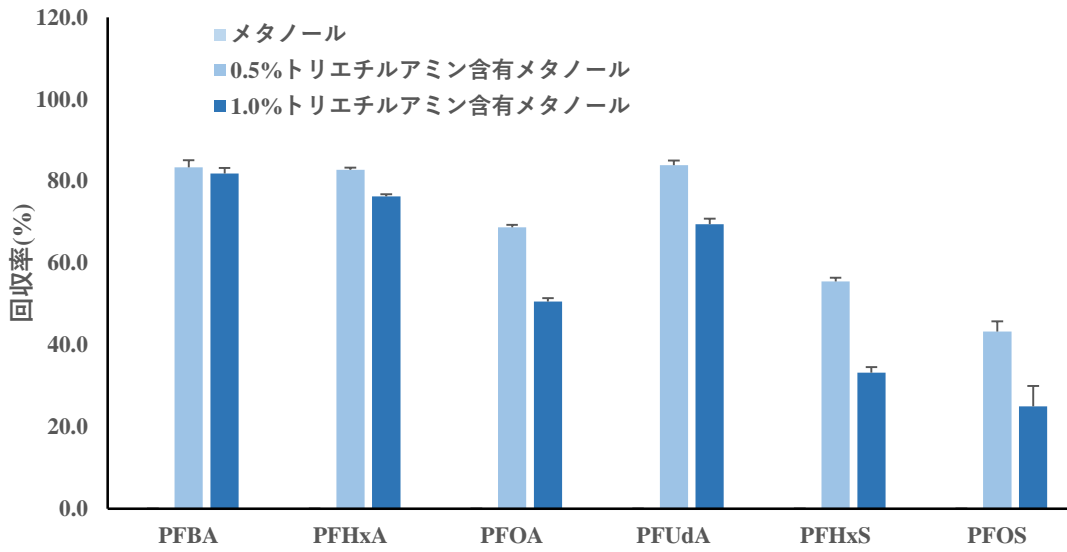


図 5. 抽出溶媒検討結果 (n=3)

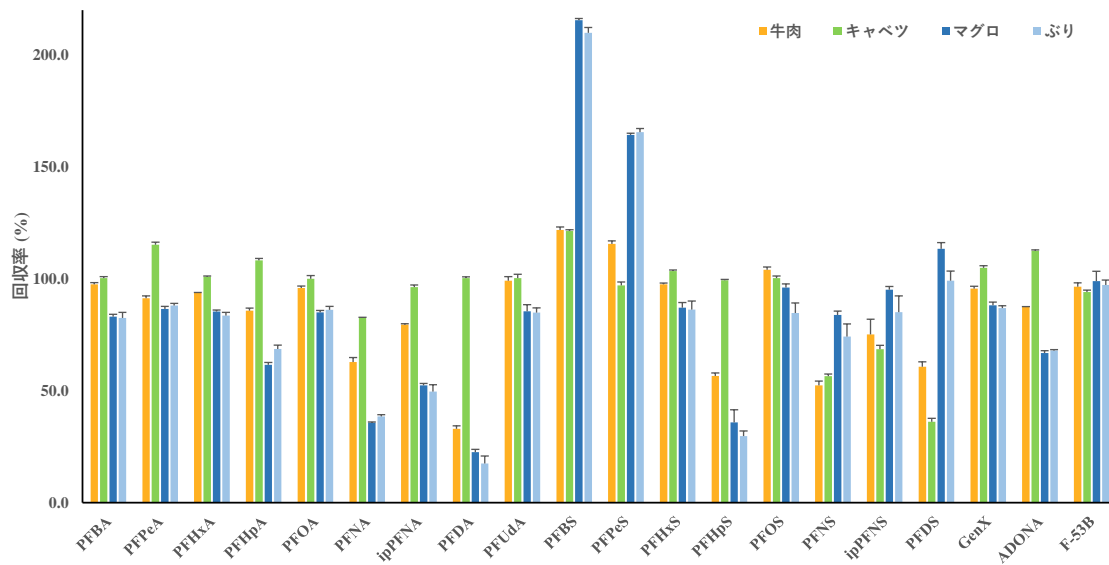
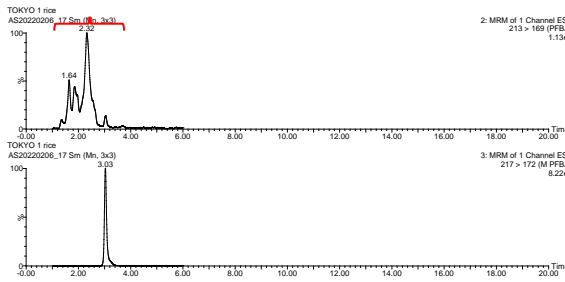
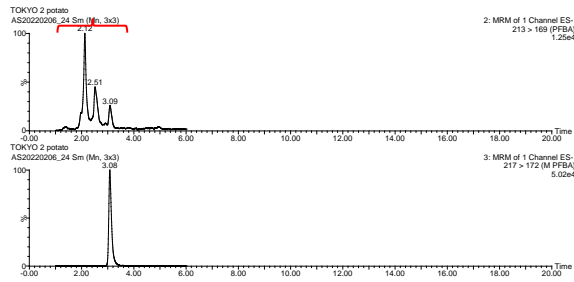


図 6. 内標準法による添加回収試験結果 (n=3)

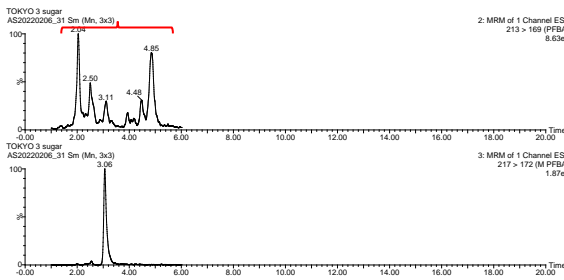
### 【東京 1 群】



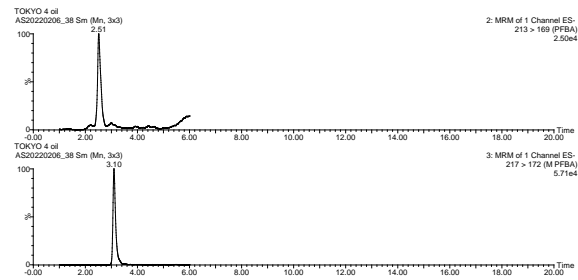
### 【東京 2 群】



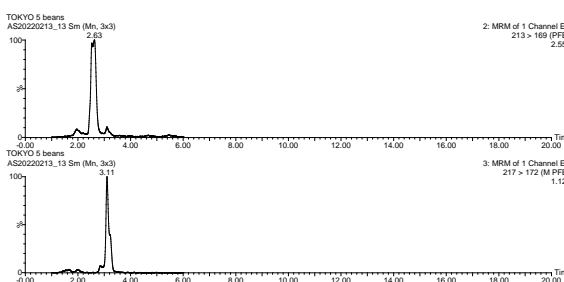
### 【東京 3 群】



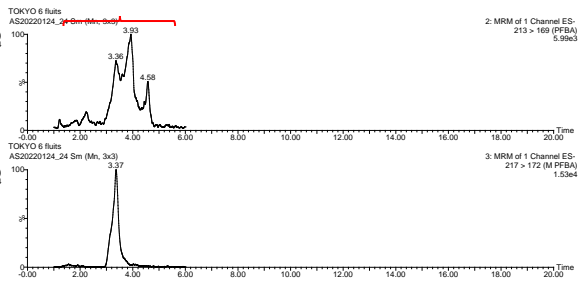
### 【東京 4 群】



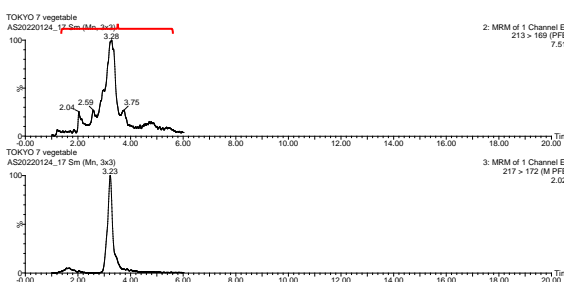
### 【東京 5 群】



### 【東京 6 群】



### 【東京 7 群】



### 【東京 8 群】

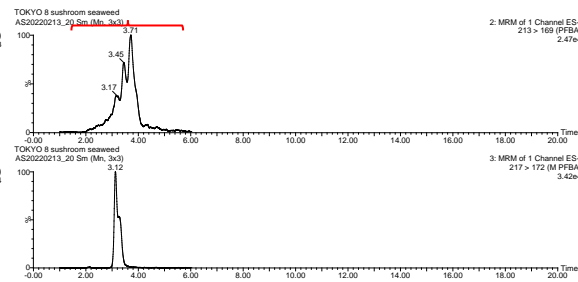
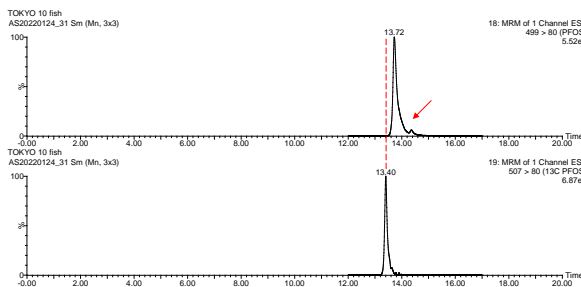
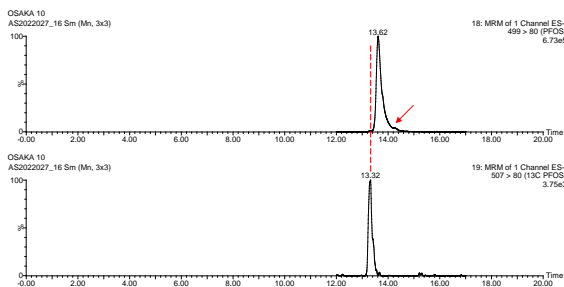


図 7. 代表的な PFBA の SRM クロマトグラム

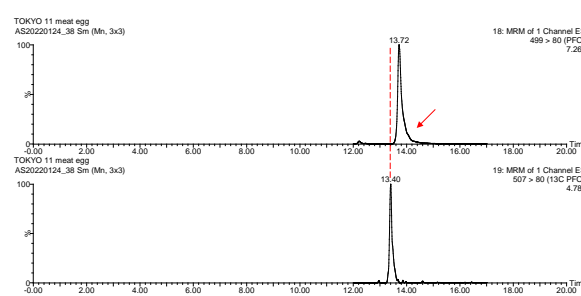
【東京 10 群】



【大阪 10 群】



【東京 11 群】



【大阪 11 群】

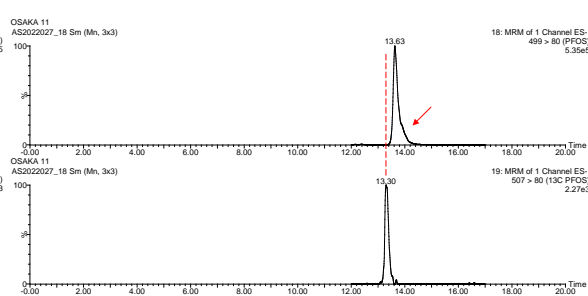
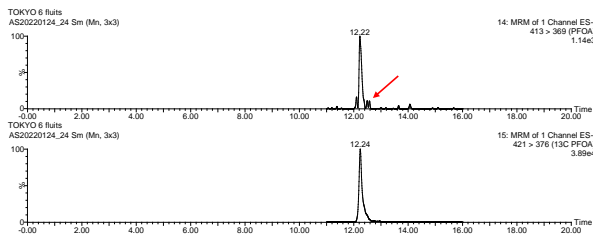
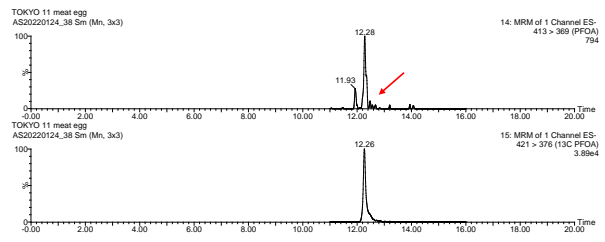


図 8. 代表的な PFOS の SRM クロマトグラム

【東京 6 群】



【東京 11 群】



【大阪 10 群】

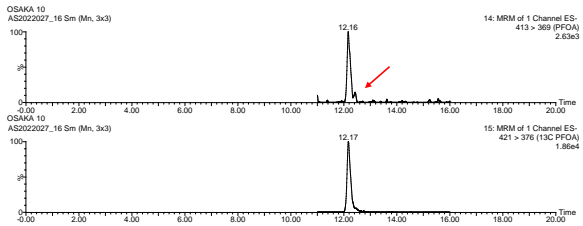
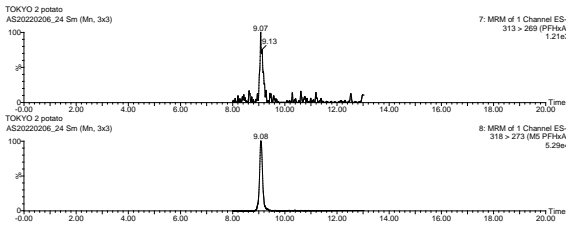
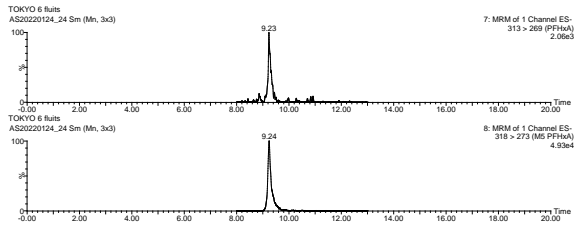


図 9. 代表的な PFOA の SRM クロマトグラム

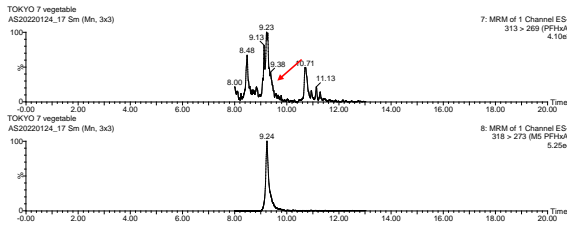
【東京 2 群】



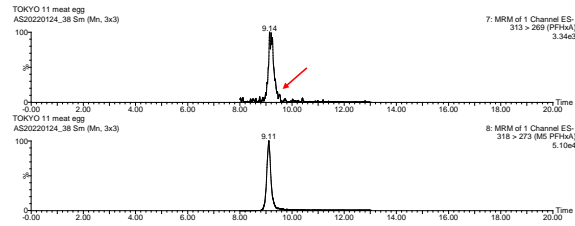
【東京 6 群】



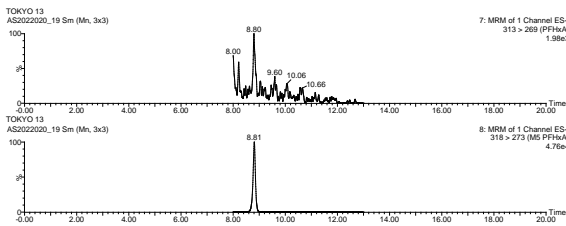
【東京 7 群】



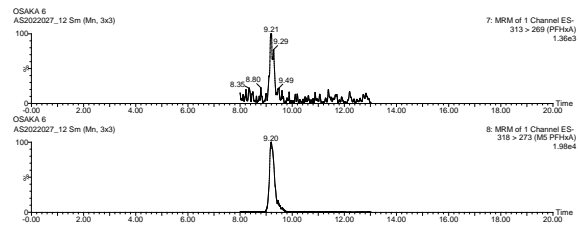
【東京 11 群】



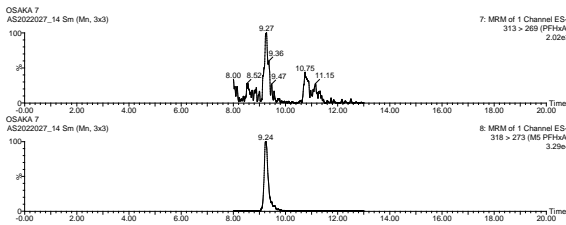
【東京 13 群】



【大阪 6 群】



【大阪 7 群】



【大阪 11 群】

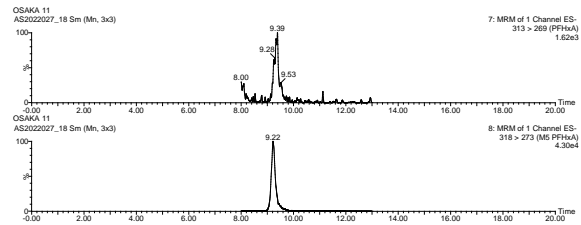


図 10. 代表的な PFHxA の SRM クロマトグラム

【東京 10 群】

【大阪 10 群】

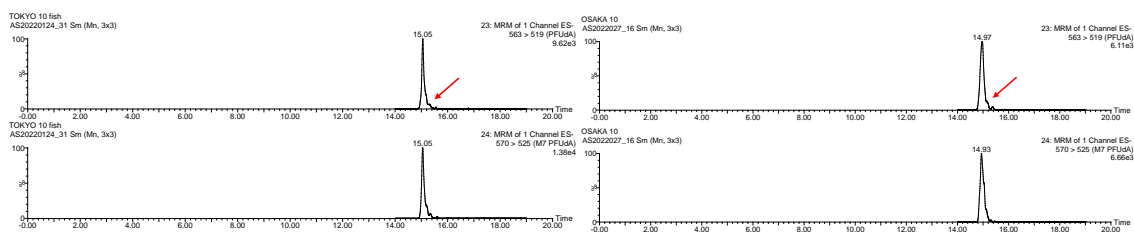


図 11. 代表的な PFUdA の SRM クロマトグラム

表 1. 分析対象 PFCs

略名	名称	分子式	精密質量	補正物質
PFBA	Perfluorobutanoic acid	C <sub>3</sub> F <sub>7</sub> -COOH	213.9865	<sup>13</sup> C <sub>4</sub> -PFBA
PFHxA	Perfluorohexanoic acid	C <sub>5</sub> F <sub>11</sub> -COOH	313.9801	<sup>13</sup> C <sub>5</sub> -PFHxA
PFOA	Perfluorooctanoic acid	C <sub>7</sub> F <sub>15</sub> -COOH	413.9737	<sup>13</sup> C <sub>8</sub> -PFOA
PFUdA	Perfluoroundecanoic acid	C <sub>10</sub> F <sub>21</sub> -COOH	563.9641	<sup>13</sup> C <sub>7</sub> -PFUdA
PFHxS	Perfluorohexanesulfonic acid	C <sub>6</sub> F <sub>13</sub> -SO <sub>3</sub> H	399.9439	<sup>13</sup> C <sub>3</sub> -PFHxS
PFOS	Perfluorooctanesulfonic acid	C <sub>8</sub> F <sub>17</sub> -SO <sub>3</sub> H	499.9375	<sup>13</sup> C <sub>8</sub> -PFOS



表 2. PFCs 食品分析の学術論文の総括

著者	地域	食品/容器 など	主な検出値など
Androulakis <i>et al.</i> (2022)	ヨーロッパ	陸生・海洋頂点捕食者	4つの魚類 (鯛, ローチ, ニシン, うなぎ) PFOS: 検出率100%
Gemualdi <i>et al.</i> (2022)	米国	加工食品	缶詰のマグロ (PFOS: 0.076 ng/g, PFDA: 0.072 ng/g) , 魚スティック (PFOS: 0.033 ng/g, PFNA: 0.05 ng/g) , プロテインパウダー (PFOS: 0.14 ng/g)
Costopoulou <i>et al.</i> (2022)	ギリシャ	魚介類、卵	魚 : ΣPFCs (PFOS, PFOA, PFNA, PFHxS) : <LOQ~20.4 ng/g (平均値2.5 ng/g) 検出率 PFOS: 50%, PFOA: 10%, PFNA: 10%, PFHxSは不検出 卵 : ΣPFCs (PFOS, PFOA, PFNA, PFHxS) : <LOQ~9.7 ng/g (平均値0.9 ng/g)
Kumar <i>et al.</i> (2022)	バルト海	魚介類	PFOS: <LOQ~15.2 ng/g, PFNA: <LOQ~11.2 ng/g, PFDA: <LOQ~3.3 ng/g 13種の魚介試料のうち10種の魚がFDA TWIを超過
Macheke <i>et al.</i> (2021)	アフリカ	乳製品、母乳	一部母乳で育てられた乳児は184.92 ng/kg BW/day, 人工的な乳で育てられた乳児は329.47 ng/kg BW/day
Choi <i>et al.</i> (2021)	韓国	作物	作物EDI寄与 PFOS: 66.4%, PFOA: 7.9% 米作物EDI寄与 PFOS: 30.9%, PFOA: 4.8%
Wang <i>et al.</i> (2021)	中国	魚、肉、卵	ADONA, GenXは不検出 EDI F-53B: 魚類56 pg/kg/day, 牛肉2 pg/kg/day
Pan <i>et al.</i> (2021)	中国	海洋生物	F-53B: <LOD~0.1 ng/g (平均値0.05 ng/g, 検出頻度44%) , PFOS: <LOD~1.5 ng/g
Ramirez <i>et al.</i> (2021)	スペイン	容器	ファーストフードの包装やマフィン容器, ベーキングペーパー, プレート, 電子レンジ用ポップコーン容器から複数のPFCs (特にPFOS, PFOA, PFBA, PFHxA, PFHpA) が検出
Timshima <i>et al.</i> (2021)		ストロー	21種PFCs (特にPFBA, PFOA, PFHxA) 合計検出濃度: 0.043~29.1 ng/g

表 3. 論文報告値（北京における実態調査）

食品タイプ	n	Statistics	PFHxS	PFOA	PFOS	PFNA	PFUdA	6:2Cl-PFESA
魚	11	平均値	3	11	444	35	258	158
		中央値	<1.7	<2	46	37	124	<1.7
		範囲	<1.7-32	<2-39	<3.3-3787	<1-73	<0.7-1211	<1.7-1450
豚肉	5	平均値	<3	21	<4.3	<1.2	<1.9	<4.3
		中央値	<3	19	<4.3	<1.2	<1.9	<4.3
		範囲	<3	10-35	<4.3	<1.2	<1.9	<4.3
鶏肉	9	平均値	<3	15	10	<1.2	<1.9	<4.3
		中央値	<3	16	<4.3	<1.2	<1.9	<4.3
		範囲	<3	<6.2-33	<4.3-42	<1.2	<1.9	<4.3
牛肉	5	平均値	<3	26	14	<1.2	<1.9	12
		中央値	<3	15	9	<1.2	<1.9	8
		範囲	<3	11-66	<4.3-33	<1.2	<1.9	<4.3-45
卵	2	平均値	<0.6	29	<1.5	<0.6	<0.6	<0.6
		中央値	<0.6	31	<1.5	<0.6	<0.6	<0.6
		範囲	<0.6	17-39	<1.5	<0.6	<0.6	<0.6
野菜	72	平均値	<6	<6	<15	5	<4	<15
		中央値	<6	<6	<15	<3	<4	<15
		範囲	<6	<6	<15	<3-396	<4	<15

表 4. トータルダイエツト調査 (令和 3 年度 東京・大阪試料)

	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
	米 米加工品	米以外の穀類 種実類 いも類	砂糖類 菓子類	油脂類	豆類 豆加工品	果実 果汁	緑黄色 野菜	他の野菜類 キノコ類 海藻類	酒類 嗜好飲料	魚介類	肉類 卵類	乳 乳製品	調味料	飲料水
東京	PFBA	UK	UK	UK	UK	UK	UK	UK	UK	UK	UK	UK	UK	UK
	PFHxA	N.D.	LOQ>	N.D.	N.D.	N.D.	LOQ>	0.15	N.D.	N.D.	N.D.	0.11	N.D.	LOQ>
	PFOA	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	LOQ>	N.D.	N.D.	N.D.	LOQ>	LOQ>	N.D.	N.D.
	PFUdA	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	1.04	N.D.	N.D.	N.D.
	PFHxS	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
	PFOS	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
大阪	PFBA	UK	UK	UK	UK	UK	UK	UK	UK	UK	UK	UK	UK	UK
	PFHxA	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	LOQ>	LOQ>	N.D.	N.D.	N.D.	LOQ>	N.D.	N.D.
	PFOA	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	LOQ>	N.D.	N.D.	LOQ>
	PFUdA	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	1.85	N.D.	N.D.	N.D.
	PFHxS	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
	PFOS	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.

N.D. : not detect, UK : unknown

## Ⅱ. 分担研究報告書

### (4) 母乳のダイオキシン類汚染の実態調査と乳幼児の発達への 影響に関する研究

研究分担者 岡 明

# 令和3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のための研究

### 分担研究報告書

#### (4) 母乳のダイオキシン類汚染の実態調査と乳幼児の発達への影響に関する研究

研究分担者 岡 明 埼玉県立小児医療センター

#### 研究要旨

ダイオキシン類は主に食物を介して摂取され、分解されることが少なく体内に蓄積される。これまでの厚生労働科学研究で、女性の場合に、母体が妊娠するまでに摂取したダイオキシン類が脂肪組織内に蓄積され、出産後に母乳内に分泌され、結果として乳児のダイオキシン類汚染の主な経路となっていることが明らかになっている。科学的に母乳は乳児にとって最適の栄養であることが示されているが、周産期のダイオキシン類曝露とその後の発達への影響が注目されてきており、母乳中のダイオキシン類濃度に注意する必要がある。平成9年度より厚生労働科学研究班では継続的に母乳中のダイオキシン類濃度を測定するとともに、児の健康発達へ影響調査を行ってきた。この継続的な調査結果により、母乳中ダイオキシン類濃度は1970年代に比して著明に改善していることが明らかになってきている。ただし、第1子が母乳で育てられている場合に、生後1か月の時点でダイオキシン類対策特別措置法にて規定されている耐用一日摂取量（TDI）の約10倍のダイオキシン類を摂取しており、ダイオキシン類汚染は母乳栄養の上で課題として残されている。本研究では引き続き、乳児への栄養食品という観点でダイオキシン類汚染の状況の評価を行った。初産婦の出産後1か月の母乳中のダイオキシン類濃度（PCDDs+PCDFs+Co-PCBsの合計）は、WHO2006年の毒性等価係数を用いた毒性等価量の計算では $5.60 \pm 2.24$  pg-TEQ/g-fat（平均±標準偏差）であった。平均値の経緯をみると長期的に認められている漸減傾向が継続している。ダイオキシン類対策が進んだ中で、母乳中のダイオキシン類濃度が今後さらに低下するかどうかが引き続き調査を継続する必要がある。2013年度から2021年度までの本研究班での調査した中で、児の発育発達について十分なデータが得られた181名を対象として、母乳中のダイオキシン類による影響について、濃度と児の身体発育や発達との関連を検討した。母乳中のダイオキシン類濃度による児の身体発育への影響については、出生時の頭囲と負の相関があり、重回帰分析でも相関は有意であった。これは妊娠中の母体内でのダイオキシン類曝露の影響が推測されるが、母乳中のダイオキシン類濃度と生後の発達については、明らかな影響は認められなかった。

#### 研究協力者

山口 暁 医療法人成和会山口病院病院長

#### A. 研究目的

乳児にとって母乳栄養は最適な栄養法であり、

厚生労働省では長年にわたり行政として母乳栄養を推進してきている。母乳は栄養価や移行免疫の点で優れている上に、授乳による育児中の母親および児への心理面での効果も高いことなどがあげられている。厚生労働省では「授乳・離乳の支援ガイド」を作成し、2019年にさらに改訂して、母乳育

児が安心して行える環境作りを推進している。

一方で、母乳は母体が摂取した環境からの影響を間接的に受けるため、母体への環境汚染が母乳を介して児に影響する可能性がある。特に脂溶性物質は母体内に蓄積しやすく、脂肪である母乳内に分泌される可能性がある。したがってダイオキシン類の様な人体への有害なことが知られている脂溶性物質については母乳を介した汚染に対する特別な注意が必要である。ベトナムの汚染地域でのコホート調査では、周産期のダイオキシン類汚染が、その後の言語発達などの影響があることが示されており、乳児期のダイオキシン類曝露には特別な注意が必要である。

ダイオキシン類は環境の中でも安定しており、人体での分解処理を受けず、長期間母体内の脂肪組織に蓄積されることが知られている。これまでの厚生労働科学研究での母乳内のダイオキシン類汚染についての調査結果より母体内に妊娠までに蓄積されたダイオキシン類は、特に第一子の授乳の際の母乳中に高濃度に分泌されることが明らかとなっており、第二子以降は有意に低濃度となることを示されている。ある意味では母体にとって出産までに蓄積したダイオキシン類の排出回路の一つとなっている。

また、第一子の母乳中のダイオキシン類分泌量が長期間におよぶ母体中のダイオキシン類の蓄積量を反映すると仮定すると、妊娠までの母体の長期のダイオキシン類汚染状況を反映するものであり、環境汚染の評価という観点からは、人体が長期間生活していた中で採取したダイオキシン類の総量を評価する指標ともいうことができる。

本研究班による母乳中のダイオキシン類濃度の測定は、平成 9 年より厚生省科学研究事業(主任研究者多田裕東邦大学名誉教授)として開始され、すでに 20 年間継続して母乳でのダイオキシン濃度のデータを蓄積してきている。また、それ以前から凍結保存されていた母乳での測定を含めると昭和 48 年から 38 年間に渡るデータを得ている。こうした研究により安全性を評価するとともに、環境中ダイオキシン類による母体の汚染の動向をモニターすることが可能になっている。

昨年度までの研究結果では、母乳中のダイオキ

シン類の汚染は 1970 年代などに比して格段に改善傾向になり、現在も漸減傾向にあることが示されている。これはダイオキシン類対策として平成 11 年に成立したダイオキシン類対策特別措置法の効果が明確に出てきているものと考えられる。

ただし、完全母乳栄養の児についての母乳から摂取されるダイオキシン類の量を計算すると、1 か月時にはダイオキシン類対策特別措置法にて規定されている耐用一日摂取量(TDI)の約 20 倍程度、1 年間を通じては 10 倍程度のダイオキシン類を摂取していることが明らかになっている。胎児や乳幼児などは特にダイオキシン類による影響を受けやすいことがWHOでも指摘されており、母乳栄養を推進する上でもダイオキシン類汚染のレベルはいまだに無視できない問題である。

こうした点から、乳児への主要な食品である母乳中のダイオキシン類濃度を継続して測定することは社会的にも重要であると考えられる。

本研究では、こうした観点から継続的に母乳中のダイオキシン類濃度を継続して測定している。そして、単に母乳のダイオキシン類汚染の現状を評価するだけでなく、乳児期のダイオキシン類汚染の影響について、身体面の発育と、精神面での発達の両面から影響評価を行ってきている。

この様に本研究は、母乳育児を推進する立場で、母乳中のダイオキシン類濃度を測定し、さらにその乳児についてコホートとして発達や発育状況の調査を行い、科学的にその安全性を検証することを目的としている。

## B. 研究方法

(1) 初産婦より、産後 1 か月の母乳の提供を受けダイオキシン類濃度を測定する。生後 1 か月と採取条件を一定とし、経年的な母乳汚染の変化を判断出来るように計画している。母乳中ダイオキシン類レベルは、初産婦と経産婦でその分布が異なるため、本研究では原則として初産婦に限定している。母乳採取の際には、同時に母親の年齢、喫煙歴や児の出生時の体格、1 か月時の発育状況などの調査用紙への記入を求めた。本年度は、医療法人成和会山口病院にて計 20 人から母乳の提供を

受けた。

(2)ダイオキシン類として、PCDD7 種類、PCDF10 種類、Co-PCB12 種類と、母乳中の脂肪含有量を公益財団法人北九州生活科学センターに委託して測定した。ダイオキシン類濃度の毒性等価量は、2006年のWHOの毒性等価係数を用いた。脂肪1g当たりの毒性等価量(脂肪重量換算)をpg-TEQ/g-fatとして表記した。PCDDs(7種)+PCDFs(10種)+Co-PCBs(12種)を総ダイオキシン類濃度と定義した。ダイオキシン類は高分解能GC/MSで測定し、脂肪1gあたりの毒性等価量で示した。実測濃度が定量下限値未満のダイオキシン類は定量下限値の1/2の濃度として計算した。

(3)1歳時に郵送にて質問紙表を送付し下記の点について郵送にて回答を依頼した。

・これまでにかかった病気:

・1歳までの発育・発達

運動発達(出来るようになった月齢)

首のすわり、寝返り、お座り(座位)、つかまり立ち、伝い歩き、一人歩き(2~3歩)

精神発達:(出来るようになった月齢)

禁止の理解:「いけません」というと、ちょっと手をひっこめる。

動作の理解:「バイバイ」や「さよなら」に反応する。

指示の理解:「おいで」「ちょうだい」「ねんね」などを1つでも理解できる。

発語:食物のことを「マンマ」という(他の有意義語でも良い)。

動作模倣:ブラシ、鉛筆などを使うまねをする。

(4)母乳中ダイオキシン類濃度と発育発達への影響については、出生時(生下時)の体重、頭囲、1歳時の身体発育、運動発達、精神発達との関係について、Parsonの相関係数、重回帰分析を行った。統計はSPSSソフトウェア(IBM SPSS Statistics 28.0.0.0)を使用した。

(倫理面への配慮) 調査研究は埼玉県立小児医療センター、医療法人成和会山口病院の倫理委員会の承認を得て実施した。調査時には、研究の目的や方法について文書で説明の上で、書面にて承諾を得た。解析については、個人情報を除いて匿名化したデータベースを用いて解析した。

## C. 研究結果

(1)初産婦の出産1か月後の母乳中のダイオキシン類濃度:ダイオキシン類としてPCDD7種類、PCDF10種類、Co-PCB12種類について測定をした(表1)。2006年のWHOの毒性等価係数による総ダイオキシン類濃度は、 $5.596 \pm 2.240$ pg-TEQ/g-fat(平均±標準偏差)、中央値が5.234、範囲が2.630~13.117であった。

(2)経年的な母乳中のダイオキシン類濃度の変化:厚生労働科学研究としてCo-PCB12種類を含めて測定を開始した平成10(1998)年度からの傾向として、平成25(2013)年度までは漸減傾向が認められ、その後、平成29(2017)年度までは横ばいを示したが、平成30年度以降は漸減傾向が認められた(図1)。

(3)母乳中ダイオキシン類濃度と発育発達への影響:2013年度から2021年度までの本研究班での調査した中で、児の発育発達について十分なデータが得られた181名を対象として、母乳中ダイオキシン類濃度と、生下時体重、生下時頭囲、母体年齢、母体喫煙、および発達に関する項目を獲得した月齢(禁止の理解、バイバイの理解、指示理解、発語、動作模倣、首の座り、寝返り、座位、つかまり立ち、伝い歩き)のPearsonの相関係数(両側)を評価した(表3)。5%以下の有意な相関を示したのは、正の相関は母体年齢(1%水準)で、負の相関を示したのは生下時体重、生下時頭囲、座位を獲得した月齢だった。運動発達や精神発達については、有意な相関を認めなかった。さらに重回帰分析を行ってダイオキシン類濃度と有意な相関が認められたのは出生時の頭囲だけであり(表4)、生後の発育や発達に関し有意な相関は認めなかった。

## D. 考察

今年度も引き続き乳児へのダイオキシン類汚染の原因として重要な初産婦の母乳中のダイオキシン類濃度の測定を行なった。時期をそろえる必要がある理由として、母乳は、出産後の時期によって母

乳内の脂肪成分などの組成も変化し、脂肪中に含まれるダイオキシン類量についても影響を受ける可能性があり、出産後 1 か月時に測定時期をそろえて測定を行った。

全体の毒性等価量の傾向としては、平成 9 年度の調査開始以来平成 25 年度まで認められていた長期漸減傾向は、平成 25 年度以降は明らかではなくなっていた。令和 3 年度(2021 年度)の平均値ではこれまでの測定の中も最も低い 5.596pg-TEQ/g fat であった(表2)。環境中のダイオキシン類汚染が改善しており、平成 25 年から平成 29 年にかけてはすでに基本的に下げ止まってプラトーに達している可能性も考えられるが、平成 30 年以降、漸減傾向と判断された。今後母乳中に排泄されるダイオキシン類量がさらに漸減するかどうかは今後の傾向を見る必要がある。

母乳中のダイオキシン類による影響について、濃度と児の身体発育や発達との関連を検討した。母乳中のダイオキシン類濃度は、母体に蓄積されたダイオキシン類が母乳中に分泌されることを反映し、母体年齢に相関が認められた。児の身体発育については、出生時の頭囲と負の相関があり、重回帰分析でも相関は有意であった。これは妊娠中の母体内でのダイオキシン類曝露の影響が推測されるが、母乳中のダイオキシン類濃度と生後の発達については、明らかな影響は認められなかった。

#### E. 結論

令和 3 年度(2021 年度)に提供を受けた初産婦の母乳中のダイオキシン類濃度は、昨年と同様に低値を示した。母乳中のダイオキシン類濃度は、調査開始時からの長期間的に見ると漸減傾向が続いている。今後母乳中に排泄されるダイオキシン

類量がさらに漸減するかどうかは今後の傾向を見る必要がある。

現在のレベルの濃度での母乳中ダイオキシン類では、生後の児の発育発達への明らかな影響は認められなかった。

#### F. 研究発表

##### 1. 論文発表

1. Ando T, Mori R, Takehara K, Asukata M, Ito S, Oka A. Effectiveness of Pediatric Teleconsultation to Prevent Skin Conditions in Infants and Reduce Parenting Stress in Mothers: A Randomized Controlled Trial. *JMIR Pediatr Parent*. 2022;5:e27615.
2. Mori T, Sato A, Oka A, Higuchi O, Mizuguchi M. Anti-lipoprotein receptor-related protein 4 antibody titer correlates with the clinical course of myasthenia gravis. *Pediatr Int*. 2022;64:e14916.

##### 2. 学会発表

なし。

#### G. 知的財産権の出願, 登録状況

なし。

#### H. 健康危機情報

なし。



(図表)

表1 母乳中ダイオキシン類濃度 (令和3 (2021) 年度)

ダイオキシン類 (pg-TEQ/g-fat)	平均	標準偏 差	中央値	最大	最小
PCDDs-TEQ	2.343	2.351	2.313	2.326	1.296
PCDFs-TEQ	1.104	0.359	1.105	2.238	0.544
PCDDs/PCDFs-TEQ	3.447	1.143	3.300	7.111	1.839
Non-ortho PCBs-TEQ	2.006	1.140	1.755	5.641	0.733
Mono-ortho PCBs-TEQ	0.143	0.071	0.122	0.366	0.058
Coplanar PCBs-TEQ	2.149	1.209	1.870	6.007	0.791
Total-TEQ	5.596	2.240	5.234	13.117	2.630

表2 平成25 (2013) 年度から令和2 (2020) 年度の母乳中のダイオキシン類濃度の動向 (初産婦の産後1か月の母乳中のダイオキシン類濃度の平均値をWHO2006年の毒性等価係数を用いて毒性等価量を計算。単位 pg-TEQ/g-fat)

年度	2013 年度	2014 年度	2015 年度	2016 年度	2017 年度	2018 年度	2019 年度	2020 年度	2021 年度
PCDDs-TEQ	3.00	3.06	4.45	3.40	3.85	3.49	2.74	3.05	2.34
PCDFs-TEQ	1.86	2.18	2.09	1.63	1.93	1.77	1.48	1.43	1.10
Coplanar PCBs-TEQ	2.43	2.98	3.24	2.96	3.48	2.84	2.65	2.63	2.15
Total-TEQ	7.30	8.22	9.78	8.00	9.27	8.10	6.87	7.11	5.60

図1 1998年度から2021年度の母乳中のダイオキシン類濃度の年度別変化

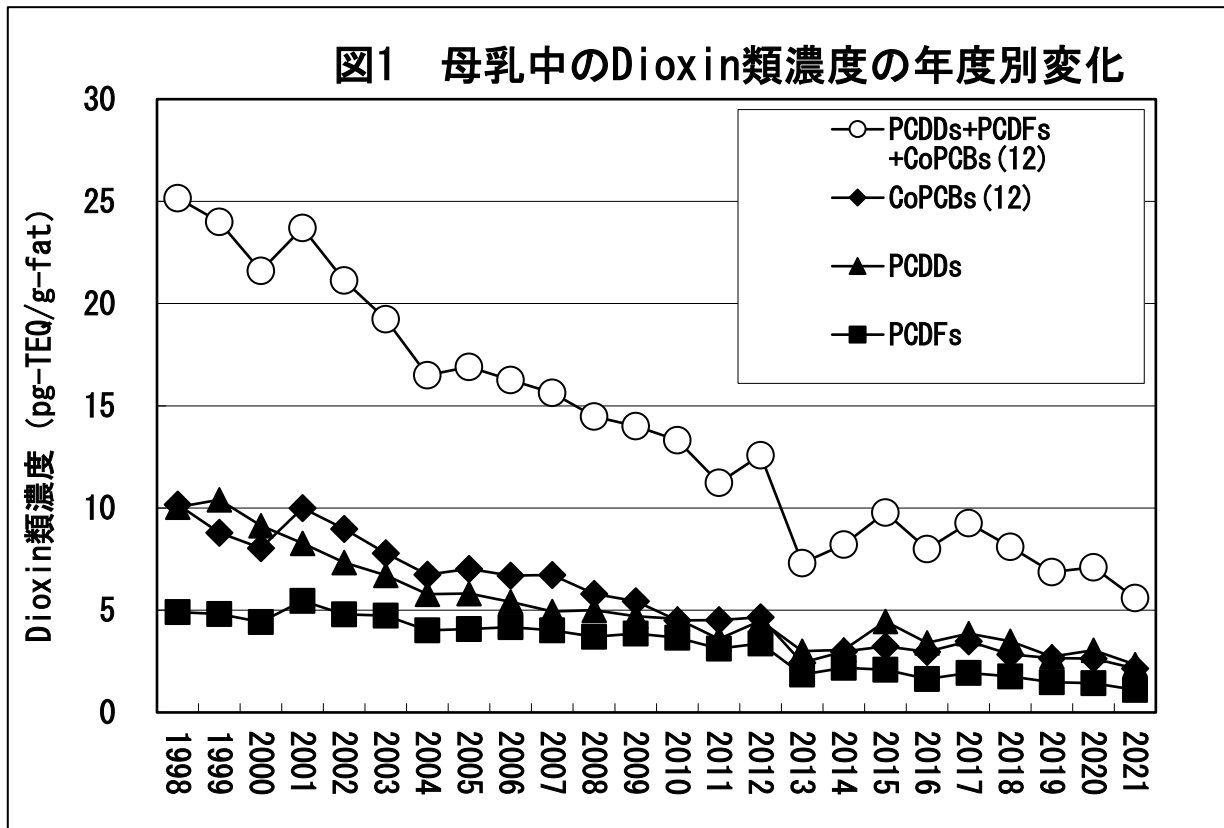


表3 Pearson の相関係数 (両側)

		母乳中 Dioxin類濃 度	生下時体重	生下時頭圍	母体年齢	母体喫煙	指示理解 (禁止)	ハイハイ	指示理解 (おいて)	発語 (マン マ)	動作模倣	首の座り	寝返り	座位	つかまり立ち	伝い歩き
母乳中 Dioxin類濃 度	相関係数	1	-.148*	-.161*	.470**	-0.020	0.064	0.055	0.054	0.030	0.110	-0.048	-0.079	-.180*	-0.118	-0.132
	有意確率		0.047	0.031	0.000	0.792	0.478	0.543	0.550	0.741	0.224	0.594	0.382	0.046	0.195	0.157
	度数	181	180	180	158	181	125	125	125	125	124	124	124	124	124	123
生下時体重	相関係数		1	.553**	-0.087	-0.083	-0.030	-.185*	-0.063	-0.172	-.186**	-0.072	-0.109	-.208*	-0.034	0.032
	有意確率			0.000	0.280	0.269	0.738	0.039	0.487	0.056	0.039	0.428	0.232	0.021	0.713	0.734
	度数		180	180	157	180	124	124	124	124	123	123	123	123	122	115
生下時頭圍	相関係数			1	0.065	-0.067	-0.086	-0.099	-0.004	-0.032	-0.144	-0.054	0.032	-0.080	0.021	0.032
	有意確率				0.416	0.374	0.340	0.275	0.962	0.727	0.113	0.553	0.722	0.377	0.815	0.731
	度数			180	157	180	124	124	124	124	123	123	123	123	122	115
母体年齢	相関係数				1	0.136	-0.112	0.021	0.049	.272**	-0.037	-0.108	0.127	-0.005	0.018	0.068
	有意確率					0.089	0.254	0.834	0.618	0.005	0.707	0.274	0.201	0.961	0.857	0.511
	度数				158	158	105	105	105	105	105	104	104	104	103	96
母体喫煙	相関係数					1	-0.142	0.109	-0.035	.210*	0.019	0.044	-0.041	0.050	-0.031	0.015
	有意確率						0.115	0.225	0.701	0.019	0.835	0.627	0.649	0.581	0.736	0.872
	度数					181	125	125	125	125	124	124	124	124	123	116
指示理解 (禁止)	相関係数						1	-0.030	0.055	-0.044	0.124	-0.025	-0.036	0.045	0.093	0.165
	有意確率							0.744	0.540	0.630	0.171	0.785	0.692	0.616	0.308	0.077
	度数						125	125	125	125	124	124	124	124	123	116
ハイハイ	相関係数							1	0.049	0.087	0.099	0.146	0.000	0.058	-0.122	-0.057
	有意確率								0.588	0.335	0.275	0.105	0.996	0.522	0.179	0.546
	度数							125	125	125	124	124	124	124	123	116
指示理解 (おいて)	相関係数								1	.209*	-0.017	0.156	0.153	.192*	.249**	.237*
	有意確率									0.020	0.849	0.084	0.091	0.032	0.005	0.010
	度数								125	125	124	124	124	124	123	116
発語 (マン マ)	相関係数									1	0.114	-0.044	0.164	0.006	0.036	0.047
	有意確率										0.207	0.629	0.069	0.944	0.695	0.619
	度数									125	124	124	124	124	123	116
動作模倣	相関係数										1	-0.027	0.017	-0.052	0.043	-0.018
	有意確率											0.767	0.855	0.568	0.641	0.845
	度数										124	123	123	123	122	115
首の座り	相関係数											1	0.026	0.074	0.080	0.062
	有意確率												0.778	0.416	0.380	0.511
	度数											124	124	124	123	116
寝返り	相関係数												1	.226*	.409**	.359*
	有意確率													0.012	0.000	0.000
	度数												124	124	123	116
座位	相関係数													1	.400**	.341*
	有意確率														0.000	0.000
	度数													124	123	116
つかまり立ち	相関係数														1	.861**
	有意確率															0.000
	度数														123	116
伝い歩き	相関係数															1
	有意確率															
	度数															116

表4 出生時頭圍 重回帰分析

モデル	非標準化係数		標準化係数	t 値	有意確率	相関			共線性の統計量	
	B	標準誤差	ベータ			ゼロ次	偏	部分	許容度	VIF
(定数)	18.583	4.389		4.234	0.000					
性別	-0.979	0.367	-0.209	-2.671	0.008	-0.128	-0.212	-0.200	0.921	1.086
胎生 (日数)	0.053	0.016	0.267	3.428	0.001	0.230	0.269	0.257	0.926	1.080
母体年齢	0.101	0.039	0.226	2.610	0.010	0.065	0.208	0.196	0.750	1.333
母体喫煙	-0.324	0.181	-0.138	-1.793	0.075	-0.070	-0.144	-0.134	0.947	1.056
母乳中ダイオキシン類濃度	-0.139	0.050	-0.237	-2.753	0.007	-0.165	-0.219	-0.206	0.755	1.324

## Ⅱ．分担研究報告書

- (5) 国際動向等を踏まえた摂取量推定すべき有害物質の探索と  
その摂取量推定に関する研究

研究分担者 畝山 智香子

## 令和3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のための研究

### 分担研究報告書

#### （5）国際動向等を踏まえた摂取量推定すべき有害物質の探索と その摂取量推定に関する研究

研究分担者 畝山智香子 国立医薬品食品衛生研究所安全情報部

#### 研究要旨

食品中にはしばしば環境や食品そのものに由来する有害化学物質が含まれるが、その実態やリスクの大きさについては必ずしも十分な情報があるわけではない。国民の健康保護のためには食品の安全性確保は重要課題であるが、全てのリスクを知ることや全てに対応することは不可能である。そこでリスクの大きさに基づいた、リスク管理の優先順位付けが必要になる。本課題では世界の食品安全担当機関が評価している各種汚染物質の暴露マージン（MOE）についての情報を継続的に収集している。また欧米でパーおよびポリフルオロ化合物（PFAS）についての研究や評価にいくつか重要な進展があったのでその経緯をまとめた。

#### 研究協力者

国立医薬品食品衛生研究所

登田 美桜

## A. 研究目的

国民の健康保護ための施策策定には、懸念される有害物質のリスク情報が必要となる。食品には意図的・非意図的に無数の化合物が含まれ、そのリスクの程度も多様なので、リスク管理の優先順位づけのために目安となる情報が必要になる。意図的に使用されるもの（食品添加物や残留農薬）についてはほとんどの国で許認可制をとっており、安全性に関する情報を吟味してリスクが管理されている一方、非意図的に食品に含まれる汚染物質については情報が少なく、リスクの高いものもある可能性がある。そこでリスクの大きさに基づいた、リスク管理の優先順位付けの参考として、世界の食品安全担当機関が評価している各種汚染物質の暴露マージン（MOE）についての情報を継続的に収集している。また世界各国の食品安全関連機関によるダイオキシン類等有害物質に関する最新情報についても情報収集を行っている。

## B. 研究方法

世界各国の食品安全担当機関やリスク評価担当機関によるここ数年の発表を収集した。学術発表やメディア報道に対応して何らかの発表を行っている場合にはもともとなった文献や報道についても可能であれば情報収集した。MOEについては評価書から抜き出した数値を表にまとめた。PFASについては時系列を年表にした。なお収集期間は2022年3月までである。

## C. D. 結果及び考察

MOEについては2021年の更新分を表1に示した。新たに評価されたのは非ダイオキシン様 PCB、ステリグマトシスチン、ヘキサブロモシクロドデカン（HBCDD）、各種酵素や新規食品である。近年 MOE を遺伝毒性発がん物質以外の評価に使う事例が増えてきたため、これまで収集した MOE のうち、エンドポイントががんでかつその値が1万以下のものを表2に記載した。がんがエンドポイントとなる優先順位の高い物質はこれまで通り無機ヒ素、アクリルアミド、ピロリジジナルカロイド、アフラトキシンを筆頭にしたカビ毒である。がん以外のエンドポイントでは鉛が最も安全側に余裕がない。

PFAS についての動向は資料の年表（表3）にまとめた。この1年で特筆すべきことはFSANZによる第27回オーストラリアトータルダイエツトスタディ（ATDS）でのリスク評価である。2020年にEFSAがPFASの新しいグループ TWI を4.4 ng/kg 体重/週と極めて小さい値に引き下げて以降、米国 EPA も同様に指標値を厳しくする方向で見直しが進んでいたがFSANZはそれに同調せず、PFOSのTDI 20 ng/kg bw/day、PFOAは160 ng/kg bw/dayを維持して評価している。FSANZの発表については参考資料で紹介した。

## E. 研究発表

### 1. 論文発表

1) 登田美桜、井上依子、河恵子、春田一絵、與那覇ひとみ、畝山智香子「食品安全情報

(化学物質)」のトピックスについて－令和  
2年度(2020)－ 衛研報告 139, 64-70  
(2021)

2. 単行本

1) 畝山智香子 ほんとうの「食の安全」  
を考える－ゼロリスクという幻想－  
DOJIN 文庫 6、 化学同人(2021)

資料 (次ページから)

FSANZ の第 27 回 TDS

表 1:MOE 更新 2021

表 2 MOE

表 3 PFAS 年表更新



## 第 27 回オーストラリアトータルダイエツトスタヂの結果発表

### Results of 27th Australian Total Diet Study released

10/12/2021

<https://www.foodstandards.gov.au/media/Pages/Results-of-27th-Australian-Total-Diet-Study-released.aspx>

オーストラリア・ニュージールランド食品基準局(FSANZ)は、本日、食品中のパー及びポリフルオロアルキル物質(PFAS)の濃度を調査する第 27 回オーストラリアトータルダイエツトスタヂの結果を発表した。その結果から、オーストラリアの消費者の食品による PFAS への暴露はとても少なく、食品安全上の懸念はないことが示された。

暫定最高責任者 Sandra Cuthbert 博士は、この結果はオーストラリアの消費者にとって良い知らせだと述べた。

「ATDS はオーストラリアの消費者の食品による化学物質への暴露の最も包括的な研究である。第 27 回 ATDS では、全オーストラリア州及び準州から調達した 112 の一般に食べられている食品を代表する 1,336 の複合サンプル中の 30 種類の PFAS を調べた。1 種類の PFAS、パーフルオロオクタンスルホン酸(PFOS)だけがサンプリングした全ての食品の 2%未満で低濃度で検出された。全体的に一般的なオーストラリア人の PFOS への食事暴露は耐容一日摂取量を十分下回っていた。ATDS から、PFAS の濃度が、FSANZ の現地調査のトリガーポイントや国立健康医療研究評議会の飲料水ガイドラインなど、オーストラリアのガイダンス値を十分下回っていることもわかった。」

#### 調査結果：

- ・一般的なオーストラリアの食品供給における PFAS の濃度は、合理的に達成可能な限り低い
- ・一般的なオーストラリア人に公衆衛生や安全上の懸念はない
- ・オーストラリアの食品中の PFAS 濃度は、欧州、米国、英国、中国で実施した海外の研究で見つかった量より一貫して低い
- ・オーストラリア・ニュージールランド食品基準規約で追加リスク管理対策(最大濃度など)の必要性は今のところない。

ATDS は、オーストラリア人の典型的な食事の広範な食品や飲料中の、農薬および動物用化学物質、汚染物質、自然毒、栄養素及び食品添加物などの物質の濃度を測定している。1970 年に着手したこの調査は、FSANZ が食品供給の安全性を監視するのに役立っている。

#### 報告書本文

#### 27th Australian Total Diet Study

#### Per- and poly-fluoroalkyl substances

December 2021

<https://www.foodstandards.gov.au/publications/Documents/27th%20ATDS%20report.pdf>

PFOS が検出されたのは哺乳類の内臓肉(0.63 $\mu$ g/kg)、ツナ缶(0.070  $\mu$ g/kg)、エビ (0.018  $\mu$ g/kg)、海水魚(0.011  $\mu$ g/kg) 、鶏卵(0.0069  $\mu$ g/kg)など

FSANZ による PFOS の TDI は 20 ng/kg bw/day、 PFOA は 160 ng/kg bw/day、  
NHMRC による飲料水ガイドライン値は PFOA について 0.56  $\mu$ g/L PFOS と PFHxS の  
合計について 0.07  $\mu$ g/L である。

PFAS と免疫調節 レビューと更新

PFAS and Immunomodulation Review and Update

<https://www.foodstandards.gov.au/publications/Documents/PFAS%20and%20Immunomodulatory%20Review%20and%20Update%202021.pdf>

PFAS とワクチンへの免疫応答、感染感受性、アレルギーを含む過敏反応の関連についてレビューした。結論としては、一部に統計的関連がみられるものの、環境曝露レベルの PFAS がヒト免疫系に有害だという一貫した根拠は無い。

表 1:MOE 更新 2021

物質	MOE	条件	機関、年度	POD	
PCB28 (非ダイオキシン様 PCB)	1000-53000	2 才以上のオーストラリア人、平均	FSANZ,2021	MED 2.8 microg/kgbw/d	<a href="https://www.foodstandards.gov.au/publications/Pages/26th-Australian-Total-Diet-Study.aspx">MED は毒性学的意味に疑問のある肝臓や甲状腺の病理組織の微細な変化</a> <a href="https://www.foodstandards.gov.au/publications/Pages/26th-Australian-Total-Diet-Study.aspx">https://www.foodstandards.gov.au/publications/Pages/26th-Australian-Total-Diet-Study.aspx</a>
	1000-30000	2 才以上のオーストラリア人、P90	FSANZ,2021	MED 2.8 microg/kgbw/d	
PCB52	40000-7567000	2 才以上のオーストラリア人、平均	FSANZ,2021	MED 107 microg/kgbw/d	
	26000-2405000	2 才以上のオーストラリア人、P90	FSANZ,2021	MED 107 microg/kgbw/d	
PCB128	2000-243000	2 才以上のオーストラリア人、平均	FSANZ,2021	MED 4.2 microg/kgbw/d	
	1000-66000	2 才以上のオーストラリア人、P90	FSANZ,2021	MED 4.2 microg/kgbw/d	
PCB153	3000-163000	2 才以上のオーストラリア人、平均	FSANZ,2021	MED 7 microg/kgbw/d	
	2000-48000	2 才以上のオーストラリア人、P90	FSANZ,2021	MED 7 microg/kgbw/d	
PCB180	40000-22031000	2 才以上のオーストラリア人、平均	FSANZ,2021	MED 107 microg/kgbw/d	
	26000-5996000	2 才以上のオーストラリア人、P90	FSANZ,2021	MED 107 microg/kgbw/d	
塩化ニコチンアミドリ ボシド	70	サプリメントに提案された使用量 300 mg/day	EFSA, 2021	ラット母体と胎児への毒性の NOAEL 325 mg/kg bw per day	<a href="https://efsa.onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.2903/j.efs.2021.6843">https://efsa.onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.2903/j.efs.2021.6843</a>
GM Aspergillus niger DP-Azw58 系統で作ったカタラーゼ	1.3 × 10 <sup>6</sup> 以上	認可申請された酵素の推定食事暴露量	EFSA, 2021	動物実験での最大投与量 1,288 mg TOS/kg bw per day (NOAEL)とみなす	<a href="https://www.efsa.europa.eu/en/efsajournal/pub/6787">https://www.efsa.europa.eu/en/efsajournal/pub/6787</a>
GMBacillus licheniformis DP-Dzb52 株由来食品酵	750 以上	認可申請された酵素の推定食事暴露量	EFSA, 2021	ラット試験での NOAEL (110 mg TOS/kg bw per day)	<a href="https://www.efsa.europa.eu/en/efsajournal/pub/6564">https://www.efsa.europa.eu/en/efsajournal/pub/6564</a>

素  $\alpha$  - アミラーゼ

(酵素に関しては MOE が評価されている、多数あり略)

ステリグマトシスチン	1.78 × 10 <sup>6</sup>		MFDS, 2021		<a href="https://www.mfds.go.kr/brd/m_99/view.do?seq=45201">https://www.mfds.go.kr/brd/m_99/view.do?seq=45201</a>
ヘキサブロモシクロドデカン(HBCDD)	15000-2600	香港平均的消費者	CFS(HK), 2021	EFSA を引用	<a href="https://www.cfs.gov.hk/english/programme/programme_rafts/files/Hexabromocyclododecanes_HBCDD_in_Food_Report_e.pdf">https://www.cfs.gov.hk/english/programme/programme_rafts/files/Hexabromocyclododecanes_HBCDD_in_Food_Report_e.pdf</a>
ヘキサブロモシクロドデカン(HBCDD)	5700-1600	香港高摂取群	CFS(HK), 2021	EFSA を引用	MOE 24 以上なら懸念なし
ヘキサブロモシクロドデカン(HBCDD)	400	英国	CFS(HK), 2021	EFSA を引用	
ヘキサブロモシクロドデカン(HBCDD)	400	日本	CFS(HK), 2021	EFSA を引用	
ヘキサブロモシクロドデカン(HBCDD)	900	スペイン	CFS(HK), 2021	EFSA を引用	
ヘキサブロモシクロドデカン(HBCDD)	1600-800	オランダ	CFS(HK), 2021	EFSA を引用	
ヘキサブロモシクロドデカン(HBCDD)	1,700	中国本土	CFS(HK), 2021	EFSA を引用	
ヘキサブロモシクロドデカン(HBCDD)	2,400	ベルギー	CFS(HK), 2021	EFSA を引用	
ヘキサブロモシクロドデカン(HBCDD)	2,900	韓国	CFS(HK), 2021	EFSA を引用	
ヘキサブロモシクロドデカン(HBCDD)	5500-2600	アイルランド	CFS(HK), 2021	EFSA を引用	

デカン(HBCDD)				
ヘキサブロモシクロド	8,700	米国	CFS(HK), 2021	EFSA を引用
デカン(HBCDD)				
ヘキサブロモシクロド	14,000	フランス	CFS(HK), 202	EFSA を引用
デカン(HBCDD)				

---

表2 これまでのMOEのうち発がん影響で1万以下のもの

物質	MOE	条件	機関、年度	POD
カルバミン酸エチル	>600	ブランデーとテキーラを飲む人	EFSA, 2007	動物実験のBMDL <sub>10</sub> 0.3mg/kg 体重/日
アクリルアミド	78-310	ラット乳腺腫瘍を指標	JECFA, 2010	動物実験のBMDL <sub>10</sub> 0.31mg/kg 体重/日
アクリルアミド	50-200	非発がん影響(神経形態)	JECFA, 2010	動物実験のNOAEL 0.2mg/kg 体重/日
アクリルアミド	45-180	マウスハーダー腺腫瘍	JECFA, 2010	動物実験のBMDL <sub>10</sub> 0.18mg/kg 体重/日
カルバミン酸エチル	3,800	高摂取群	JECFA, 2005	動物実験のBMDL <sub>10</sub> 0.3mg/kg 体重/日
アクリルアミド	133-429	オランダの2-6才の子ども	RIVM, 2009	動物実験のBMDL <sub>10</sub> 0.3mg/kg 体重/日
アクリルアミド	300-1,000	オランダの1-97才	RIVM, 2009	動物実験のBMDL <sub>10</sub> 0.3mg/kg 体重/日
アフラトキシン B1	63-1,130	オランダの2-6才の子ども	RIVM, 2009	動物実験のBMDL <sub>10</sub> 0.16x 10-3mg/kg 体重/日
フラン	480-960	食品由来	JECFA, 2010	動物実験のBMDL <sub>10</sub> 0.96mg/kg 体重/日
食品中ヒ素	余裕はない	ヨーロッパの平均的消費者(注1)(注2)	EFSA, 2009	ヒト疫学データのBMDL <sub>01</sub> 0.3 ~ 8 µg/kg 体重/日
食品中ヒ素	1.1-33	フランス成人平均	ANSES, 2011	ヒト疫学データのBMDL <sub>01</sub> 0.3 ~ 8 µg/kg 体重/日
食品中ヒ素	0.6-17	フランス成人 95 パーセンタイル	ANSES, 2011	ヒト疫学データのBMDL <sub>01</sub> 0.3 ~ 8 µg/kg 体重/日
食品中ヒ素	0.8-27	フランス子ども平均	ANSES, 2011	ヒト疫学データのBMDL <sub>01</sub> 0.3 ~ 8 µg/kg 体重/日
食品中ヒ素	0.4-13	フランス子ども 95 パーセンタイル	ANSES, 2011	ヒト疫学データのBMDL <sub>01</sub> 0.3 ~ 8 µg/kg 体重/日
アクリルアミド	419-721	フランス成人平均	ANSES, 2011	動物実験のBMDL <sub>10</sub> 0.18-0.31mg/kg 体重/日
アクリルアミド	176-304	フランス成人 95 パーセンタイル	ANSES, 2011	動物実験のBMDL <sub>10</sub> 0.18-0.31mg/kg 体重/日
アクリルアミド	261-449	フランス子ども平均	ANSES, 2011	動物実験のBMDL <sub>10</sub> 0.18-0.31mg/kg 体重/日
アクリルアミド	100-172	フランス子ども 95 パーセンタイル	ANSES, 2011	動物実験のBMDL <sub>10</sub> 0.18-0.31mg/kg 体重/日
無機ヒ素	9-32	香港平均	CFS, 2012	ヒト疫学データのBMDL <sub>05</sub> 3.0 µg/kg 体重/日(注3)
無機ヒ素	5-18	香港高摂取群	CFS, 2012	ヒト疫学データのBMDL <sub>05</sub> 3.0 µg/kg 体重/日

ヒ素	0.77-20.5(注 4)	男性	カタルーニャ州食品安全機 関,2012	ヒト疫学データの BMDL <sub>01</sub>	0.3 ~ 8 µg/kg 体重/日
ヒ素	0.66-17.7	女性	カタルーニャ州食品安全機 関,2012	ヒト疫学データの BMDL <sub>01</sub>	0.3 ~ 8 µg/kg 体重/日
ヒ素	0.32-8.6	子ども	カタルーニャ州食品安全機 関,2012	ヒト疫学データの BMDL <sub>01</sub>	0.3 ~ 8 µg/kg 体重/日
ヒ素	0.66-17.7	十代少年	カタルーニャ州食品安全機 関,2012	ヒト疫学データの BMDL <sub>01</sub>	0.3 ~ 8 µg/kg 体重/日
ヒ素	0.73-19.5	十代少女	カタルーニャ州食品安全機 関,2012	ヒト疫学データの BMDL <sub>01</sub>	0.3 ~ 8 µg/kg 体重/日
ヒ素	0.75-20	65 才以上男性	カタルーニャ州食品安全機 関,2012	ヒト疫学データの BMDL <sub>01</sub>	0.3 ~ 8 µg/kg 体重/日
ヒ素	0.83-22	65 才以上女性	カタルーニャ州食品安全機 関,2012	ヒト疫学データの BMDL <sub>01</sub>	0.3 ~ 8 µg/kg 体重/日
アクリルアミド	947-339(注 5)	1 才未満	ヘルスカナダ, 2012	動物実験の非発がん影響の NOAEL	200 microg/kg bw/day
アクリルアミド	328-132	1-3 才	ヘルスカナダ, 2012	動物実験の非発がん影響の NOAEL	200 microg/kg bw/day
アクリルアミド	335-144	4-8 才	ヘルスカナダ, 2012	動物実験の非発がん影響の NOAEL	200 microg/kg bw/day
アクリルアミド	452-192	9-13 才	ヘルスカナダ, 2012	動物実験の非発がん影響の NOAEL	200 microg/kg bw/day
アクリルアミド	562-220	14-18 才	ヘルスカナダ, 2012	動物実験の非発がん影響の NOAEL	200 microg/kg bw/day
アクリルアミド	694-270	19-30 才	ヘルスカナダ, 2012	動物実験の非発がん影響の NOAEL	200 microg/kg bw/day
アクリルアミド	806-368	31-50 才	ヘルスカナダ, 2012	動物実験の非発がん影響の NOAEL	200 microg/kg bw/day
アクリルアミド	1070-545	51-70 才	ヘルスカナダ, 2012	動物実験の非発がん影響の NOAEL	200 microg/kg bw/day
アクリルアミド	1274-651	71 才以上	ヘルスカナダ, 2012	動物実験の非発がん影響の NOAEL	200 microg/kg bw/day

アクリルアミド	853-305	1才未満	ヘルスカナダ, 2012	動物実験の BMDL <sub>10</sub> 0.18mg/kg 体重/日
アクリルアミド	296-119	1-3才	ヘルスカナダ, 2012	動物実験の BMDL <sub>10</sub> 0.18mg/kg 体重/日
アクリルアミド	302-130	4-8才	ヘルスカナダ, 2012	動物実験の BMDL <sub>10</sub> 0.18mg/kg 体重/日
アクリルアミド	407-173	9-13才	ヘルスカナダ, 2012	動物実験の BMDL <sub>10</sub> 0.18mg/kg 体重/日
アクリルアミド	506-198	14-18才	ヘルスカナダ, 2012	動物実験の BMDL <sub>10</sub> 0.18mg/kg 体重/日
アクリルアミド	625-243	19-30才	ヘルスカナダ, 2012	動物実験の BMDL <sub>10</sub> 0.18mg/kg 体重/日
アクリルアミド	726-331	31-50才	ヘルスカナダ, 2012	動物実験の BMDL <sub>10</sub> 0.18mg/kg 体重/日
アクリルアミド	963-490	51-70才	ヘルスカナダ, 2012	動物実験の BMDL <sub>10</sub> 0.18mg/kg 体重/日
アクリルアミド	1146-586	71才以上	ヘルスカナダ, 2012	動物実験の BMDL <sub>10</sub> 0.18mg/kg 体重/日
無機ヒ素	3	ベルギー成人	AFSCA, 2013	BMDL01: 0.3 μg/kg 体重/日
無機ヒ素	68	ベルギー成人	AFSCA, 2013	BMDL01: 7.5 μg/kg 体重/日
アクリルアミド	847	香港平均	CFS, 2013	動物実験の BMDL <sub>10</sub> 0.18mg/kg 体重/日 (マウス雄のハーダー腺腫瘍)
アクリルアミド	1,459	香港平均	CFS, 2013	動物実験の BMDL <sub>10</sub> 0.18mg/kg 体重/日
アクリルアミド	334	香港高摂取群	CFS, 2013	動物実験の BMDL <sub>10</sub> 0.31mg/kg 体重/日 (ラット雌の乳腺腫瘍)
アクリルアミド	576	香港高摂取群	CFS, 2013	動物実験の BMDL <sub>10</sub> 0.31mg/kg 体重/日
クロム(VI)	3100 - 21000	飲料水 乳児	EFSA, 2014	マウス小腸の腺腫とがんの合計の BMDL <sub>10</sub> 1.0 mg Cr(VI)/kg b.w. per day
クロム(VI)	3100 - 21000	飲料水 幼児	EFSA, 2014	マウス小腸の腺腫とがんの合計の BMDL <sub>10</sub> 1.0 mg Cr(VI)/kg b.w. per day
クロム(VI)	6600 - 360000	飲料水 その他の子ども	EFSA, 2014	マウス小腸の腺腫とがんの合計の BMDL <sub>10</sub> 1.0 mg Cr(VI)/kg b.w. per day
クロム(VI)	6300 - 71000	飲料水 全年齢	EFSA, 2014	マウス小腸の腺腫とがんの合計の BMDL <sub>10</sub> 1.0 mg Cr(VI)/kg b.w.



				per day
アクリルアミド	80-330	9ヶ月、平均	FSANZ, 2014	動物実験の BMDL <sub>10</sub> 0.31mg/kg 体重/日
アクリルアミド	40-170	9ヶ月、90パーセンタイル	FSANZ, 2014	動物実験の BMDL <sub>10</sub> 0.31mg/kg 体重/日
アクリルアミド	90-180	2-5才、平均	FSANZ, 2014	動物実験の BMDL <sub>10</sub> 0.31mg/kg 体重/日
アクリルアミド	60-110	2-5才、90パーセンタイル	FSANZ, 2014	動物実験の BMDL <sub>10</sub> 0.31mg/kg 体重/日
アクリルアミド	130-240	6-12才、平均	FSANZ, 2014	動物実験の BMDL <sub>10</sub> 0.31mg/kg 体重/日
アクリルアミド	80-140	6-12才、90パーセンタイル	FSANZ, 2014	動物実験の BMDL <sub>10</sub> 0.31mg/kg 体重/日
アクリルアミド	190-370	13-16才、平均	FSANZ, 2014	動物実験の BMDL <sub>10</sub> 0.31mg/kg 体重/日
アクリルアミド	120-200	13-16才、90パーセンタイル	FSANZ, 2014	動物実験の BMDL <sub>10</sub> 0.31mg/kg 体重/日
アクリルアミド	190-370	17才以上、平均	FSANZ, 2014	動物実験の BMDL <sub>10</sub> 0.31mg/kg 体重/日
アクリルアミド	130-480	17才以上、90パーセンタイル	FSANZ, 2014	動物実験の BMDL <sub>10</sub> 0.31mg/kg 体重/日
ピロリジジナルカロイド	7373-12268	ドイツの平均的お茶摂取	BfR, 2013	ラシオカルピンの動物実験での発がんの BMDL <sub>10</sub> 0.073 mg PA/kg bw/day
ピロリジジナルカロイド	1475-2454	比較的頻繁にいろいろなお茶を飲む	BfR, 2013	ラシオカルピンの動物実験での発がんの BMDL <sub>10</sub> 0.073 mg PA/kg bw/day
ピロリジジナルカロイド	2458-4089	そのうちハーブティーによるもの	BfR, 2013	ラシオカルピンの動物実験での発がんの BMDL <sub>10</sub> 0.073 mg PA/kg bw/day
ピロリジジナルカロイド	2368-2699	特定ブランドのハーブを平均的頻度で飲む	BfR, 2013	ラシオカルピンの動物実験での発がんの BMDL <sub>10</sub> 0.073 mg PA/kg bw/day
ピロリジジナルカロイド	7104-8098	そのうちハーブティーによるもの	BfR, 2013	ラシオカルピンの動物実験での発がんの BMDL <sub>10</sub> 0.073 mg PA/kg bw/day
ピロリジジナルカロイド	474-540	特定ブランドのハーブを頻繁に飲む	BfR, 2013	ラシオカルピンの動物実験での発がんの BMDL <sub>10</sub> 0.073 mg PA/kg bw/day

ピロリジンアルカロイド	789-900	そのうちハーブティーによるもの	BfR, 2013	ラシオカルピンの動物実験での発がんの BMDL10 0.073 mg PA/kg bw/day
アクリルアミド	143-500	7-15 才、50-99 パーセンタイル	RIVM, 2014	動物実験の BMDL <sub>10</sub> 0.3mg/kg 体重/日
アクリルアミド	214-1000	16-69 才、50-99 パーセンタイル	RIVM, 2014	動物実験の BMDL <sub>10</sub> 0.3mg/kg 体重/日
アクリルアミド	95-333	7-15 才、50-99 パーセンタイル	RIVM, 2014	動物実験の NOAEL 0.2 mg/kg 体重/日(神経毒性)
アクリルアミド	143-667	16-69 才、50-99 パーセンタイル	RIVM, 2014	動物実験の NOAEL 0.2 mg/kg 体重/日(神経毒性)
アクリルアミド	515	成人(15 歳以上)平均	AFSCA, 2014	動物実験の BMDL <sub>10</sub> 0.17mg/kg 体重/日
アクリルアミド	354	ティーンエイジャー(12.5~17.5 歳)平均	AFSCA, 2014	動物実験の BMDL <sub>10</sub> 0.17mg/kg 体重/日
アクリルアミド	236	子供(2.5~6.5 歳)平均	AFSCA, 2014	動物実験の BMDL <sub>10</sub> 0.17mg/kg 体重/日
アクリルアミド	113	成人(15 歳以上)97.5 パーセンタイル	AFSCA, 2014	動物実験の BMDL <sub>10</sub> 0.17mg/kg 体重/日
アクリルアミド	78	ティーンエイジャー(12.5~17.5 歳)97.5 パー センタイル	AFSCA, 2014	動物実験の BMDL <sub>10</sub> 0.17mg/kg 体重/日
アクリルアミド	53	子供(2.5~6.5 歳)97.5 パーセンタイル	AFSCA, 2014	動物実験の BMDL <sub>10</sub> 0.17mg/kg 体重/日
ピロリジンアルカロイド	2333 - 101449	ハーブティー、平均摂取量	RIVM,2015	リデリンの動物での発がんの BMDL10 0.3mg/kg bw/day
ピロリジンアルカロイド	1167 - 27668	ハーブティー、最悪シナリオ	RIVM,2015	リデリンの動物での発がんの BMDL10 0.3mg/kg bw/day
ピロリジンアルカロイド	5000 - 700000	ハーブサプリメント、推奨量の最小量	RIVM,2015	リデリンの動物での発がんの BMDL10 0.3mg/kg bw/day
ピロリジンアルカロイド	500 - 210000	ハーブサプリメント、推奨量の最高量	RIVM,2015	リデリンの動物での発がんの BMDL10 0.3mg/kg bw/day
無機ヒ素	1-32	4ヶ月-1 才、コメ製品の基準値を 0.1mg/kg にしたコメライスフレークを 20g 食べる	BfR, 2015	ヒト疫学データの BMDL <sub>01</sub> 0.3 ~ 8 µg/kg 体重/日
無機ヒ素	3-67	1-2 才、コメ製品の基準値を 0.1mg/kg にし たコメライスフレークを 20g 食べる	BfR, 2015	ヒト疫学データの BMDL <sub>01</sub> 0.3 ~ 8 µg/kg 体重/日
無機ヒ素	9-500	ドイツ子ども平均、コメ由来	BfR, 2015	ヒト疫学データの BMDL <sub>01</sub> 0.3 ~ 8 µg/kg 体重/日
無機ヒ素	2-143	ドイツ子ども 95 パーセンタイル、コメ由来	BfR, 2015	ヒト疫学データの BMDL <sub>01</sub> 0.3 ~ 8 µg/kg 体重/日

無機ヒ素	37-1000	ドイツ高齢者平均、コメ由来	BfR, 2015	ヒト疫学データの BMDL <sub>01</sub>	0.3 ~ 8 µg/kg 体重/日
無機ヒ素	12-320	ドイツ高齢者 95 パーセンタイル、コメ由来	BfR, 2015	ヒト疫学データの BMDL <sub>01</sub>	0.3 ~ 8 µg/kg 体重/日
ピロリジジナルカロイド	懸念が高い	お茶とハチミツを多く摂る成人	JECFA, 2015	リデリンによる雌ラット血管肉腫 BMDL <sub>10</sub>	182 µg/kg bw
ピロリジジナルカロイド	懸念が高い	お茶を平均的に飲む子ども	JECFA, 2015	リデリンによる雌ラット血管肉腫 BMDL <sub>10</sub>	182 µg/kg bw
ヒ素	>44.8->66.7	0-4 ヶ月の母乳のみの乳児	COT2016(案)	ヒト疫学データの BMDL <sub>01</sub>	0.3µg/kg 体重/日
ヒ素	2.4-3.4	0-4 ヶ月のミルクのみの乳児(水のヒ素濃度 中央値 0.4 microg/L)	COT2016(案)	ヒト疫学データの BMDL <sub>01</sub>	0.3µg/kg 体重/日
ヒ素	0.7-1.1	0-4 ヶ月のミルクのみの乳児(水のヒ素濃度 97.5 パーセンタイル 2.1 microg/L)	COT2016(案)	ヒト疫学データの BMDL <sub>01</sub>	0.3µg/kg 体重/日
ヒ素	0.6-1.5	4-12 ヶ月総食事	COT2016(案)	ヒト疫学データの BMDL <sub>01</sub>	0.3µg/kg 体重/日
ヒ素	0.3-0.4	12-24 ヶ月総食事	COT2016(案)	ヒト疫学データの BMDL <sub>01</sub>	0.3µg/kg 体重/日
ヒ素	0.3-0.5	24-60 ヶ月総食事	COT2016(案)	ヒト疫学データの BMDL <sub>01</sub>	0.3µg/kg 体重/日
無機ヒ素	30-15	アイルランド成人平均	FSAI, 2016	ヒト疫学データの BMDL <sub>01</sub>	0.3µg/kg 体重/日
無機ヒ素	5-4	アイルランド成人 97.5 パーセンタイル	FSAI, 2016	ヒト疫学データの BMDL <sub>01</sub>	0.3µg/kg 体重/日
無機ヒ素	10-6	アイルランド子ども平均	FSAI, 2016	ヒト疫学データの BMDL <sub>01</sub>	0.3µg/kg 体重/日
無機ヒ素	2-2	アイルランド子ども 97.5 パーセンタイル	FSAI, 2016	ヒト疫学データの BMDL <sub>01</sub>	0.3µg/kg 体重/日
無機ヒ素	800-400	アイルランド成人平均	FSAI, 2016	ヒト疫学データの BMDL <sub>01</sub>	8µg/kg 体重/日
無機ヒ素	133-100	アイルランド成人 97.5 パーセンタイル	FSAI, 2016	ヒト疫学データの BMDL <sub>01</sub>	8µg/kg 体重/日
無機ヒ素	267-160	アイルランド子ども平均	FSAI, 2016	ヒト疫学データの BMDL <sub>01</sub>	8µg/kg 体重/日
無機ヒ素	62-57	アイルランド子ども 97.5 パーセンタイル	FSAI, 2016	ヒト疫学データの BMDL <sub>01</sub>	8µg/kg 体重/日
アクリルアミド	1030-452	アイルランド成人平均	FSAI, 2016	動物実験の BMDL <sub>10</sub>	0.17mg/kg 体重/日
アクリルアミド	333-166	アイルランド成人 97.5 パーセンタイル	FSAI, 2016	動物実験の BMDL <sub>10</sub>	0.17mg/kg 体重/日
アクリルアミド	298-238	アイルランド子ども平均	FSAI, 2016	動物実験の BMDL <sub>10</sub>	0.17mg/kg 体重/日

アクリルアミド	136-119	アイルランド子ども 97.5 パーセンタイル	FSAI, 2016	動物実験の BMDL <sub>10</sub> 0.17mg/kg 体重/日
アフラトキシン	734-16	アイルランド成人平均	FSAI, 2016	BMDL <sub>10</sub> 170ng/kg 体重/日
アフラトキシン	218-6	アイルランド成人 97.5 パーセンタイル	FSAI, 2016	BMDL <sub>10</sub> 170ng/kg 体重/日
アフラトキシン	303-25	アイルランド子ども平均	FSAI, 2016	BMDL <sub>10</sub> 170ng/kg 体重/日
アフラトキシン	115-14	アイルランド子ども 97.5 パーセンタイル	FSAI, 2016	BMDL <sub>10</sub> 170ng/kg 体重/日
アクリルアミド	>400	母乳のみの乳児、UpperBound	COT, 2016	動物実験の BMDL <sub>10</sub> 0.17mg/kg 体重/日
アクリルアミド	1,800	ミルクのみの乳児、LowerBound	COT, 2016	動物実験の BMDL <sub>10</sub> 0.17mg/kg 体重/日
アクリルアミド	50-280	1-5 才の幼児	COT, 2016	動物実験の BMDL <sub>10</sub> 0.17mg/kg 体重/日
ヒ素(無機、DMA 含む)	0.7-6.7	0-4 ヶ月乳児、水や土壌由来を含む全ての 暴露	COT2016(案)	ヒト疫学データの BMDL01 0.3µg/kg 体重/日
ヒ素(無機、DMA 含む)	0.9-2.8	4-6 ヶ月	COT2016(案)	ヒト疫学データの BMDL01 0.3µg/kg 体重/日
ヒ素(無機、DMA 含む)	0.6-1.6	6-9 ヶ月	COT2016(案)	ヒト疫学データの BMDL01 0.3µg/kg 体重/日
ヒ素(無機、DMA 含む)	0.5-1.2	9-12 ヶ月	COT2016(案)	ヒト疫学データの BMDL01 0.3µg/kg 体重/日
ヒ素(無機、DMA 含む)	0.2-0.4	12-15 ヶ月	COT2016(案)	ヒト疫学データの BMDL01 0.3µg/kg 体重/日
ヒ素(無機、DMA 含む)	0.3-0.4	15-18 ヶ月	COT2016(案)	ヒト疫学データの BMDL01 0.3µg/kg 体重/日
ヒ素(無機、DMA 含む)	0.2-0.4	18-24 ヶ月	COT2016(案)	ヒト疫学データの BMDL01 0.3µg/kg 体重/日
ヒ素(無機、DMA 含む)	0.3-0.5	24-60 ヶ月	COT2016(案)	ヒト疫学データの BMDL01 0.3µg/kg 体重/日
グリシドール	2,100	ミルクしか飲まない乳児の P95 濃度を使っ たシナリオ	EFSA, 2016	雄ラットの腹膜中皮腫の T25 の 10.2 mg/kg bw per day (T25 なの で MOE は BMDL10 の 2.5 倍の 2500 を目安とする)
アクリルアミド	200-1200	1-4 ヶ月、平均-90 パーセンタイル	ANSES,2016(iTDS)	動物実験の BMDL <sub>10</sub> 0.17mg/kg 体重/日
アクリルアミド	200-600	5-6 ヶ月、平均-90 パーセンタイル	ANSES,2016(iTDS)	動物実験の BMDL <sub>10</sub> 0.17mg/kg 体重/日
アクリルアミド	200-400	7-12 ヶ月、平均-90 パーセンタイル	ANSES,2016(iTDS)	動物実験の BMDL <sub>10</sub> 0.17mg/kg 体重/日
アクリルアミド	100-200	13-36 ヶ月、平均-90 パーセンタイル	ANSES,2016(iTDS)	動物実験の BMDL <sub>10</sub> 0.17mg/kg 体重/日

フラン	3429-6857	1-4 ヶ月、平均-90 パーセンタイル	ANSES,2016(iTDS)	動物実験の BMDL <sub>10</sub> 0.96mg/kg 体重/日
フラン	744-1600	5-6 ヶ月、平均-90 パーセンタイル	ANSES,2016(iTDS)	動物実験の BMDL <sub>10</sub> 0.96mg/kg 体重/日
フラン	632-1143	7-12 ヶ月、平均-90 パーセンタイル	ANSES,2016(iTDS)	動物実験の BMDL <sub>10</sub> 0.96mg/kg 体重/日
フラン	1231-2595	13-36 ヶ月、平均-90 パーセンタイル	ANSES,2016(iTDS)	動物実験の BMDL <sub>10</sub> 0.96mg/kg 体重/日
アフラトキシン	21-∞	1-4 ヶ月、平均-90 パーセンタイル	ANSES,2016(iTDS)	BMDL <sub>10</sub> 170ng/kg 体重/日
アフラトキシン	27-∞	5-6 ヶ月、平均-90 パーセンタイル	ANSES,2016(iTDS)	BMDL <sub>10</sub> 170ng/kg 体重/日
アフラトキシン	29-∞	7-12 ヶ月、平均-90 パーセンタイル	ANSES,2016(iTDS)	BMDL <sub>10</sub> 170ng/kg 体重/日
アフラトキシン	41-35000	13-36 ヶ月、平均-90 パーセンタイル	ANSES,2016(iTDS)	BMDL <sub>10</sub> 170ng/kg 体重/日
無機ヒ素	0.6-3.2	1-4 ヶ月、平均-90 パーセンタイル	ANSES,2016(iTDS)	ヒト疫学データの BMDL <sub>01</sub> 0.3 μg/kg 体重/日
無機ヒ素	0.7-1.6	5-6 ヶ月、平均-90 パーセンタイル	ANSES,2016(iTDS)	ヒト疫学データの BMDL <sub>01</sub> 0.3 μg/kg 体重/日
無機ヒ素	0.4-1.0	7-12 ヶ月、平均-90 パーセンタイル	ANSES,2016(iTDS)	ヒト疫学データの BMDL <sub>01</sub> 0.3 μg/kg 体重/日
無機ヒ素	1.0-1.7	13-36 ヶ月、平均-90 パーセンタイル	ANSES,2016(iTDS)	ヒト疫学データの BMDL <sub>01</sub> 0.3 μg/kg 体重/日
無機ヒ素	17.0-86.0	1-4 ヶ月、平均-90 パーセンタイル	ANSES,2016(iTDS)	ヒト疫学データの BMDL <sub>01</sub> 8 μg/kg 体重/日
無機ヒ素	18.2-43.5	5-6 ヶ月、平均-90 パーセンタイル	ANSES,2016(iTDS)	ヒト疫学データの BMDL <sub>01</sub> 8 μg/kg 体重/日
無機ヒ素	9.5-25.8	7-12 ヶ月、平均-90 パーセンタイル	ANSES,2016(iTDS)	ヒト疫学データの BMDL <sub>01</sub> 8 μg/kg 体重/日
無機ヒ素	26.0-46.0	13-36 ヶ月、平均-90 パーセンタイル	ANSES,2016(iTDS)	ヒト疫学データの BMDL <sub>01</sub> 8 μg/kg 体重/日
グリシドール	8000-24000	成人平均(LB-UB)	JECFA83(2016)	雄ラット精巣鞘膜/腹膜中皮腫の BMDL <sub>10</sub> 2.4 mg/kg 体重/日
グリシドール	3000-12000	成人高摂取群(LB-UB)	JECFA83(2016)	雄ラット精巣鞘膜/腹膜中皮腫の BMDL <sub>10</sub> 2.4 mg/kg 体重/日
グリシドール	2400-12000	子ども平均(LB-UB)	JECFA83(2016)	雄ラット精巣鞘膜/腹膜中皮腫の BMDL <sub>10</sub> 2.4 mg/kg 体重/日
グリシドール	1100-6000	子ども高摂取群(LB-UB)	JECFA83(2016)	雄ラット精巣鞘膜/腹膜中皮腫の BMDL <sub>10</sub> 2.4 mg/kg 体重/日
グリシドール	670-24000	乳児平均(LB-UB)	JECFA83(2016)	雄ラット精巣鞘膜/腹膜中皮腫の BMDL <sub>10</sub> 2.4 mg/kg 体重/日
グリシドール	490-8000	乳児高摂取群(LB-UB)	JECFA83(2016)	雄ラット精巣鞘膜/腹膜中皮腫の BMDL <sub>10</sub> 2.4 mg/kg 体重/日
ステリグマトシスチン	4700-5000	アフリカ成人高摂取群(LB-UB)	JECFA83(2016)	雄ラット肝血管肉腫の BMDL <sub>10</sub> 0.16mg/kg 体重/日

アクリルアミド	59-120	1.5-3 才、平均-97.5 パーセンタイル	FSA,2017	動物実験の BMDL <sub>10</sub> 0.17mg/kg 体重/日
アクリルアミド	65-120	4-6 才、平均-97.5 パーセンタイル	FSA,2017	動物実験の BMDL <sub>10</sub> 0.17mg/kg 体重/日
アクリルアミド	77-160	7-10 才、平均-97.5 パーセンタイル	FSA,2017	動物実験の BMDL <sub>10</sub> 0.17mg/kg 体重/日
アクリルアミド	110-230	11-18 才、平均-97.5 パーセンタイル	FSA,2017	動物実験の BMDL <sub>10</sub> 0.17mg/kg 体重/日
アクリルアミド	160-300	19+才、平均-97.5 パーセンタイル	FSA,2017	動物実験の BMDL <sub>10</sub> 0.17mg/kg 体重/日
ピロリジジナルカロイド	>1,000,000-5,537	乳児平均 min LB-max UB(注)	EFSA, 2017	雌ラットのリデリン投与による肝血管肉腫の BMDL <sub>10</sub> である 237 μg/kg 体重/日
ピロリジジナルカロイド	>1,000,000-4,897	幼児平均 min LB-max UB(注)	EFSA, 2017	雌ラットのリデリン投与による肝血管肉腫の BMDL <sub>10</sub> である 237 μg/kg 体重/日
ピロリジジナルカロイド	338,571-6,910	その他子ども平均 min LB-max UB(注)	EFSA, 2017	雌ラットのリデリン投与による肝血管肉腫の BMDL <sub>10</sub> である 237 μg/kg 体重/日
ピロリジジナルカロイド	790,000-9,080	青少年平均 min LB-max UB(注)	EFSA, 2017	雌ラットのリデリン投与による肝血管肉腫の BMDL <sub>10</sub> である 237 μg/kg 体重/日
ピロリジジナルカロイド	1,185,000-8,229	成人平均 min LB-max UB(注)	EFSA, 2017	雌ラットのリデリン投与による肝血管肉腫の BMDL <sub>10</sub> である 237 μg/kg 体重/日
ピロリジジナルカロイド	79,000-5,940	高齢者平均 min LB-max UB(注)	EFSA, 2017	雌ラットのリデリン投与による肝血管肉腫の BMDL <sub>10</sub> である 237 μg/kg 体重/日
ピロリジジナルカロイド	60,769-5,670	超高齢者平均 min LB-max UB(注)	EFSA, 2017	雌ラットのリデリン投与による肝血管肉腫の BMDL <sub>10</sub> である 237 μg/kg 体重/日
ピロリジジナルカロイド	>1,000,000-1,280	乳児 95 パーセンタイル min LB-max UB (注)	EFSA, 2017	雌ラットのリデリン投与による肝血管肉腫の BMDL <sub>10</sub> である 237 μg/kg 体重/日
ピロリジジナルカロイド	>1,000,000-1,107	幼児 95 パーセンタイル min LB-max UB (注)	EFSA, 2017	雌ラットのリデリン投与による肝血管肉腫の BMDL <sub>10</sub> である 237 μg/kg 体重/日

ピロリジンアルカロイド	71,818-1,887	その他子ども 95 パーセンタイル min LB-max UB(注)	EFSA, 2017	雌ラットのリデリン投与による肝血管肉腫の BMDL10 である 237 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 体重/日
ピロリジンアルカロイド	296,250-2,492	青少年 95 パーセンタイル min LB-max UB (注)	EFSA, 2017	雌ラットのリデリン投与による肝血管肉腫の BMDL10 である 237 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 体重/日
ピロリジンアルカロイド	215,455-1,975	成人 95 パーセンタイル min LB-max UB (注)	EFSA, 2017	雌ラットのリデリン投与による肝血管肉腫の BMDL10 である 237 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 体重/日
ピロリジンアルカロイド	15,490-1,922	高齢者 95 パーセンタイル min LB-max UB (注)	EFSA, 2017	雌ラットのリデリン投与による肝血管肉腫の BMDL10 である 237 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 体重/日
ピロリジンアルカロイド	14,906-1,863	超高齢者 95 パーセンタイル min LB-max UB(注)	EFSA, 2017	雌ラットのリデリン投与による肝血管肉腫の BMDL10 である 237 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 体重/日
フラン	1328-9388	平均暴露、乳児	EFSA, 2017	がん影響: 雌マウス肝細胞腺腫とがんの BMDL10 である 1.31 mg/kg bw/d
フラン	821-4868	95 パーセンタイル暴露、乳児	EFSA, 2017	がん影響: 雌マウス肝細胞腺腫とがんの BMDL10 である 1.31 mg/kg bw/d
フラン	2022-5974	平均暴露、幼児	EFSA, 2017	がん影響: 雌マウス肝細胞腺腫とがんの BMDL10 である 1.31 mg/kg bw/d
フラン	1369-3866	95 パーセンタイル暴露、幼児	EFSA, 2017	がん影響: 雌マウス肝細胞腺腫とがんの BMDL10 である 1.31 mg/kg bw/d
フラン	2527-6917	平均暴露、その他の子ども	EFSA, 2017	がん影響: 雌マウス肝細胞腺腫とがんの BMDL10 である 1.31 mg/kg bw/d
フラン	1752-4532	95 パーセンタイル暴露、その他の子ども	EFSA, 2017	がん影響: 雌マウス肝細胞腺腫とがんの BMDL10 である 1.31 mg/kg bw/d
フラン	4240-11948	平均暴露、青少年	EFSA, 2017	がん影響: 雌マウス肝細胞腺腫とがんの BMDL10 である 1.31

					mg/kg bw/d
フラン	2629-6917	95 パーセンタイル暴露、青少年	EFSA, 2017		がん影響:雌マウス肝細胞腺腫とがんの BMDL10 である 1.31 mg/kg bw/d
フラン	2434-11948	平均暴露、成人	EFSA, 2017		がん影響:雌マウス肝細胞腺腫とがんの BMDL10 である 1.31 mg/kg bw/d
フラン	1114-6571	95 パーセンタイル暴露、成人	EFSA, 2017		がん影響:雌マウス肝細胞腺腫とがんの BMDL10 である 1.31 mg/kg bw/d
フラン	2155-10952	平均暴露、高齢者	EFSA, 2017		がん影響:雌マウス肝細胞腺腫とがんの BMDL10 である 1.31 mg/kg bw/d
フラン	1051-5476	95 パーセンタイル暴露、高齢者	EFSA, 2017		がん影響:雌マウス肝細胞腺腫とがんの BMDL10 である 1.31 mg/kg bw/d
フラン	1752-10110	平均暴露、超高齢者	EFSA, 2017		がん影響:雌マウス肝細胞腺腫とがんの BMDL10 である 1.31 mg/kg bw/d
フラン	1429-4868	95 パーセンタイル暴露、超高齢者	EFSA, 2017		がん影響:雌マウス肝細胞腺腫とがんの BMDL10 である 1.31 mg/kg bw/d
ニトロソアミン	10000 より小さい	肉製品由来の外來ニトロソアミン	EFSA, 2017		
ピロリジジナルカロイド	7406-2521	1.5 から 3 才の赤ちゃん用ハーブティーの平均-97.5 パーセンタイル	FSA, 2020		雌ラットのリデリン投与による肝血管肉腫の BMDL10 である 237 μg/kg 体重/日
ピロリジジナルカロイド	4558-1580	1.5 から 3 才のハーブティー*の平均-97.5 パーセンタイル	FSA, 2020		雌ラットのリデリン投与による肝血管肉腫の BMDL10 である 237 μg/kg 体重/日
ピロリジジナルカロイド	21544-5386	19 才以上のハーブティーの平均-97.5 パーセンタイル	FSA, 2020		雌ラットのリデリン投与による肝血管肉腫の BMDL10 である 237 μg/kg 体重/日



ピロリジンアルカロイド	132-33	19才以上のルリジサとコンフリーティーの平均-97.5パーセントイル	FSA, 2020	雌ラットのリデリン投与による肝血管肉腫のBMDL10である 237 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 体重/日
ピロリジンアルカロイド	7174	19才以上、ウスベニタチアオイカプセル(サプリメント)*	FSA, 2020	雌ラットのリデリン投与による肝血管肉腫のBMDL10である 237 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 体重/日
ピロリジンアルカロイド	5925	1.5から3才、大麦若葉粉末	FSA, 2020	雌ラットのリデリン投与による肝血管肉腫のBMDL10である 237 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 体重/日
ピロリジンアルカロイド	7406-2693	1.5から3才のルリジサ蜂蜜の平均-97.5パーセントイル	FSA, 2020	雌ラットのリデリン投与による肝血管肉腫のBMDL10である 237 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 体重/日
ピロリジンアルカロイド	16929-4016	19才以上のルリジサ蜂蜜の平均-97.5パーセントイル	FSA, 2020	雌ラットのリデリン投与による肝血管肉腫のBMDL10である 237 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 体重/日
アフラトキシン B1	2222-199	乳児(平均の中央値のLBとUB)	EFSA, 2020	雄ラットの肝細胞がんのBMDL10である 0.4 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 体重/日
アフラトキシン B1	625-75	幼児	EFSA, 2020	雄ラットの肝細胞がんのBMDL10である 0.4 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 体重/日
アフラトキシン B1	526-81	その他子ども	EFSA, 2020	雄ラットの肝細胞がんのBMDL10である 0.4 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 体重/日
アフラトキシン B1	1000-134	青少年	EFSA, 2020	雄ラットの肝細胞がんのBMDL10である 0.4 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 体重/日
アフラトキシン B1	1212-186	成人	EFSA, 2020	雄ラットの肝細胞がんのBMDL10である 0.4 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 体重/日
アフラトキシン B1	1538-211	高齢者	EFSA, 2020	雄ラットの肝細胞がんのBMDL10である 0.4 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 体重/日
アフラトキシン B1	1538-193	超高齢者	EFSA, 2020	雄ラットの肝細胞がんのBMDL10である 0.4 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 体重/日
アフラトキシン M1	7018-4938	乳児(P95の中央値のLBとUB)	EFSA, 2020	雄ラットの肝細胞がんのBMDL10である 0.4 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 体重/日
アフラトキシン M1	5882-3810	幼児	EFSA, 2020	雄ラットの肝細胞がんのBMDL10である 0.4 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 体重/日
アフラトキシン M1	11429-7692	その他子ども	EFSA, 2020	雄ラットの肝細胞がんのBMDL10である 0.4 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 体重/日
オクラトキシン	7513-2562	乳児(平均の中央値のLBとUB)	EFSA, 2020	ラット腎腫瘍のBMDL10である 14.5 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 体重/日
オクラトキシン	2535-1176	幼児	EFSA, 2020	ラット腎腫瘍のBMDL10である 14.5 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 体重/日
オクラトキシン	2883-1345	その他子ども	EFSA, 2020	ラット腎腫瘍のBMDL10である 14.5 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 体重/日

オクラトキシシ	4448-2409	青少年	EFSA, 2020	ラット腎腫瘍の BMDL10 である 14.5 microg/kg 体重/日
オクラトキシシ	6017-2849	成人	EFSA, 2020	ラット腎腫瘍の BMDL10 である 14.5 microg/kg 体重/日
オクラトキシシ	7005-3194	高齢者	EFSA, 2020	ラット腎腫瘍の BMDL10 である 14.5 microg/kg 体重/日
オクラトキシシ	6971-3208	超高齢者	EFSA, 2020	ラット腎腫瘍の BMDL10 である 14.5 microg/kg 体重/日
オクラトキシシ	7713-3806	妊娠女性	EFSA, 2020	ラット腎腫瘍の BMDL10 である 14.5 microg/kg 体重/日
オクラトキシシ	6872-3237	授乳中の女性	EFSA, 2020	ラット腎腫瘍の BMDL10 である 14.5 microg/kg 体重/日
オクラトキシシ	2114-1020	乳児 (P95 の中央値の LB と UB)	EFSA, 2020	ラット腎腫瘍の BMDL10 である 14.5 microg/kg 体重/日
オクラトキシシ	1189-659	幼児	EFSA, 2020	ラット腎腫瘍の BMDL10 である 14.5 microg/kg 体重/日
オクラトキシシ	1437-746	その他子ども	EFSA, 2020	ラット腎腫瘍の BMDL10 である 14.5 microg/kg 体重/日
オクラトキシシ	2214-1274	青少年	EFSA, 2020	ラット腎腫瘍の BMDL10 である 14.5 microg/kg 体重/日
オクラトキシシ	2665-1400	成人	EFSA, 2020	ラット腎腫瘍の BMDL10 である 14.5 microg/kg 体重/日
オクラトキシシ	3372-1684	高齢者	EFSA, 2020	ラット腎腫瘍の BMDL10 である 14.5 microg/kg 体重/日
オクラトキシシ	3652-1716	超高齢者	EFSA, 2020	ラット腎腫瘍の BMDL10 である 14.5 microg/kg 体重/日
オクラトキシシ	3571-2006	妊娠女性	EFSA, 2020	ラット腎腫瘍の BMDL10 である 14.5 microg/kg 体重/日
オクラトキシシ	3215-1762	授乳中の女性	EFSA, 2020	ラット腎腫瘍の BMDL10 である 14.5 microg/kg 体重/日
グリシドール	15952-7693	乳児用ミルクを飲む消費者(中央値-95th)	BfR,2020	T25 = 10,200 µg glycidol/kg BW and day
グリシドール	18489-7312	ドーナツを食べる子ども(中央値-95th)	BfR,2020	T25 = 10,200 µg glycidol/kg BW and day
グリシドール	24130-10833	フレンチフライを夕食する子ども(中央値-95th)	BfR,2020	T25 = 10,200 µg glycidol/kg BW and day
結合型グリシドール	14386-2819	乳児用ミルクを飲む消費者(中央値-95th)	BfR,2020	T25 = 10,200 µg glycidol/kg BW and day
グリシドール	71220-30252	揚げ油を食べる成人(中央値-95th)	BfR,2020	T25 = 10,200 µg glycidol/kg BW and day
グリシドール	57485-25920	スイートサンドイッチスプレッドを食べる成人(中央値-95th)	BfR,2020	T25 = 10,200 µg glycidol/kg BW and day

グリシドール	60389-27194	クロワッサンやペストリーを食べる成人(中央値-95th)	BfR,2020	T25 = 10,200 $\mu\text{g}$ glycidol/kg BW and day
結合型グリシドール	40208-15131	揚げ油を食べる成人(中央値-95th)	BfR,2020	T25 = 10,200 $\mu\text{g}$ glycidol/kg BW and day
ピロリジジナルカロイド	430909-2155	成人の普通の消費者	BfR,2020	雌ラットのリデリン投与による肝血管肉腫の BMDL10 である 237 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 体重/日
ピロリジジナルカロイド	54483-272	成人のハーブ摂取量の多い消費者(95th)	BfR,2020	雌ラットのリデリン投与による肝血管肉腫の BMDL10 である 237 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 体重/日
ピロリジジナルカロイド	36000-6900	成人が蜂蜜から、平均、高摂取群	JECFA, 2020	雌ラットのリデリン投与による肝血管肉腫の BMDL10 である 182 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 体重/日
ピロリジジナルカロイド	30000-2200	子どもが蜂蜜から、高摂取群	JECFA, 2020	雌ラットのリデリン投与による肝血管肉腫の BMDL10 である 182 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 体重/日
ピロリジジナルカロイド	140000-1400	成人がお茶から、平均	JECFA, 2020	雌ラットのリデリン投与による肝血管肉腫の BMDL10 である 182 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 体重/日
ピロリジジナルカロイド	18000-700	成人がお茶から、平均、高摂取群	JECFA, 2020	雌ラットのリデリン投与による肝血管肉腫の BMDL10 である 182 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 体重/日
ピロリジジナルカロイド	36000-10000	子どもがお茶から、平均	JECFA, 2020	雌ラットのリデリン投与による肝血管肉腫の BMDL10 である 182 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 体重/日
ピロリジジナルカロイド	6700-2400	子どもがお茶から、高摂取群	JECFA, 2020	雌ラットのリデリン投与による肝血管肉腫の BMDL10 である 182 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 体重/日
ピロリジジナルカロイド	140000	成人陰膳	JECFA, 2020	雌ラットのリデリン投与による肝血管肉腫の BMDL10 である 182 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 体重/日

COC : 食品、消費者製品、環境中化学物質のがん原性に関する科学委員会 (英国)

ANSES : フランス食品環境労働衛生安全庁

EFSA : 欧州食品安全機関

FSA : 英国食品基準庁

JECFA : FAO/WHO 合同食品添加物専門家会議

RIVM : オランダ 国立公衆健康環境研究所

CFS : 香港食物環境衛生署食品安全センター

BfR : ドイツ連邦リスク評価研究所

AFSCA:ベルギー連邦フードチェーン安全庁

FSAI : アイルランド食品安全局

ACSA : スペインカタルーニャ州食品安全機関

FDA : 米食品医薬品局

BMDL : ベンチマーク用量 95%信頼下限値

BMDL10 は腫瘍発生が 10%増加する BMDL

NOAEL : 無影響量、有害影響が観察されない最高投与量

(LB-UB) Lower bound-Upper bound

min LB-max UB      minimum LB-maximum UB

MED      Minimal Effect Dose

表 3 : PFAS 年表

年月日	米国	欧州	その他
2020.09.17		EFSA、PFAS の新しいグループ TWI 4.4 ng/kg body weight per week for PFOA, PFNA, PFHxS およ び PFOS 決定	<a href="http://www.efsa.europa.eu/en/news/pfas-food-efsa-assesses-risks-and-sets-tolerable-intake">http://www.efsa.europa.eu/en/news/pfas-food-efsa-assesses-risks-and-sets-tolerable-intake</a>
2021.01.12		欧州飲料水指令発効 0.5 µg/l for all PFAS	<a href="https://www.oecd.org/chemicalsafety/portal-perfluorinated-chemicals/countryinformation/european-union.htm">https://www.oecd.org/chemicalsafety/portal-perfluorinated-chemicals/countryinformation/european-union.htm</a>
2021.01.19	EPA が PFAS 行動計画の結果を公表		<a href="https://www.epa.gov/newsreleases/epa-delivers-results-pfas-action-plan">https://www.epa.gov/newsreleases/epa-delivers-results-pfas-action-plan</a>
2021.02.05		スウェーデン食品局、飲料水と自分でとった魚の PFAS についての解説更新	<a href="https://www.livmedelsverket.se/en/business-legislation-and-control/legislation-food-business/drinking-water-production-and-control/t">https://www.livmedelsverket.se/en/business-legislation-and-control/legislation-food-business/drinking-water-production-and-control/t</a>
2021.02.22	EPA が飲料水の PFAS 対応を発表		<a href="https://www.epa.gov/newsreleases/epa-takes-action-address-pfas-drinking-water">https://www.epa.gov/newsreleases/epa-takes-action-address-pfas-drinking-water</a>
2021.02.25	Environmental Toxicology and Chemistry (ET&C)が PFAS 特集号を発表		<a href="https://www.eurekalert.org/pub_releases/2021-02/soet-jpc022521.php">https://www.eurekalert.org/pub_releases/2021-02/soet-jpc022521.php</a>
2021.03.05	EPA、フッ素化高密度ポリエチレン容器由来の PFAS 検出について報告		<a href="https://www.epa.gov/newsreleases/epa-releases-testing-data-showing-pfas-contamination-fluorinated-containers">https://www.epa.gov/newsreleases/epa-releases-testing-data-showing-pfas-contamination-fluorinated-containers</a>
2021.04.19		RIVM 論文で PFOS と PFOA のヒトと動物での脂 質ホメオスタシスへの影響の違いは用量の違いによ るアーチファクト	<a href="https://www.rivm.nl/publicaties/systemic-pfos-and-pfoa-exposure-and-disturbed-lipid-homeostasis-in-humans-what-do-we">https://www.rivm.nl/publicaties/systemic-pfos-and-pfoa-exposure-and-disturbed-lipid-homeostasis-in-humans-what-do-we</a>

	ATSDR、パーフルオロアルキル化合物の毒性 学的プロファイルで経口最小リスクレベル (Minimal Risk Level: MRL) 導出 PFOA: 3 ng/kg 体重/日 (クリティカルエフェクト は、マウスにおける骨格への影響)	
2021.05.05	PFOS: 2 ng/kg 体重/日 (ラットにおける目の開きの遅れと子の体重減少) PFHxS: 20 ng/kg 体重/日 (ラットにおける甲状腺濾胞上皮肥大/過形成) PFNA: 3 ng/kg 体重/日 (マウスにおける体重減少と発達遅延)	<a href="https://www.cdc.gov/TSP/ToxProfiles/ToxProfiles.aspx?id=1117&amp;tid=237">https://www.cdc.gov/TSP/ToxProfiles/ToxProfiles.aspx?id=1117&amp;tid=237</a>
2021.05.19	EPA、Drinking Water Treatability Database (TDB)に PFAS 9 種を追加、合計 37 に	<a href="https://www.epa.gov/water-research/drinking-water-treatability-database-tdb">https://www.epa.gov/water-research/drinking-water-treatability-database-tdb</a>
2021.06.04	RIVM、Dordrecht、Papendrecht および Sliedrecht の菜園での GenX と PFOA のリスク評価改訂	<a href="https://www.rivm.nl/publicaties/herziening-risicobeoordeling-genx-en-pfoa-in-moestuigewassen-in-dordrecht-papendrecht-en-sliedrecht">https://www.rivm.nl/publicaties/herziening-risicobeoordeling-genx-en-pfoa-in-moestuigewassen-in-dordrecht-papendrecht-en-sliedrecht</a>
2021.06.04	RIVM、Helmond の菜園での PFOA のリスク評価改訂	<a href="https://www.rivm.nl/publicaties/herziening-risicobeoordeling-pfas-in-moestuigewassen-in-helmond">https://www.rivm.nl/publicaties/herziening-risicobeoordeling-pfas-in-moestuigewassen-in-helmond</a>
2021.06.04	RIVM、Helmond の Berkendonk 娯楽用水中 PFAS のリスク評価	<a href="https://www.rivm.nl/publicaties/riscoschatting-pfas-in-recreatieplas-berkendonk-in-helmond">https://www.rivm.nl/publicaties/riscoschatting-pfas-in-recreatieplas-berkendonk-in-helmond</a>
2021.06.10	EPA、各種 PFAS 対応を発表	<a href="https://www.epa.gov/newsreleases/epa-continues-take-action-pfas-protect-public">https://www.epa.gov/newsreleases/epa-continues-take-action-pfas-protect-public</a>
2021.07.06	COT の PFAS 声明 二次案、EFSA の TWI に疑問はあるが代替りの数値を提案できない、データのコミュニケーションに注意	<a href="https://cot.food.gov.uk/sites/default/files/2021-06/TOX-2021-35%20PFAS%20second%20draft%20statement.pdf">https://cot.food.gov.uk/sites/default/files/2021-06/TOX-2021-35%20PFAS%20second%20draft%20statement.pdf</a>

2021.06.30	FDA,食品中 PFAS の検査結果公表、検出は 94 検体中 1 件のみ		<a href="https://www.fda.gov/food/cfsan-constituent-updates/fda-issues-update-recent-activities-per-taining-pfas-food">https://www.fda.gov/food/cfsan-constituent-updates/fda-issues-update-recent-activities-per-taining-pfas-food</a>
2021.06.28		BfR,PFAS について HBGV 超過と公表	<a href="https://www.bfr.bund.de/en/press_information/2021/28/pfas_industrial_chemicals__some_population_groups_sometimes_exceed_the_health_based_guidance_value-277959.html">https://www.bfr.bund.de/en/press_information/2021/28/pfas_industrial_chemicals__some_population_groups_sometimes_exceed_the_health_based_guidance_value-277959.html</a>
2021.08.05	FDA,フッ化ポリエチレン食品接触容器について 業界に文書を発行		<a href="https://www.fda.gov/food/cfsan-constituent-updates/fda-issues-letter-industry-fluorinated-polyethylene-food-contact-containers">https://www.fda.gov/food/cfsan-constituent-updates/fda-issues-letter-industry-fluorinated-polyethylene-food-contact-containers</a>
2021.08.21		BfR,PFAS について EU 全体での制限提案に参加	<a href="https://www.bfr.bund.de/cm/349/pfas-industrial-chemicals-BfR-is-participating-in-the-eu-wide-restriction%20proposal.pdf">https://www.bfr.bund.de/cm/349/pfas-industrial-chemicals-BfR-is-participating-in-the-eu-wide-restriction%20proposal.pdf</a>
2021.08.26	FDA,加工食品中 PFAS の検査結果を利用可能に		<a href="https://www.fda.gov/food/cfsan-constituent-updates/fda-makes-available-pfas-testing-results-first-survey-processed-foods">https://www.fda.gov/food/cfsan-constituent-updates/fda-makes-available-pfas-testing-results-first-survey-processed-foods</a>
2021.08.27	Science, メイン州の PFASs 含有製品販売禁止 を伝える		<a href="https://www.sciencemag.org/news/2021/08/maine-s-ban-forever-chemicals-marks-big-win-some-scientists">https://www.sciencemag.org/news/2021/08/maine-s-ban-forever-chemicals-marks-big-win-some-scientists</a>
2021.09.14		BfR、PFAS リスクプロファイル発表	<a href="https://www.bfr.bund.de/cm/349/pfas-in-food-bfr-confirms-critical-exposure-to-industrial-chemicals.pdf">https://www.bfr.bund.de/cm/349/pfas-in-food-bfr-confirms-critical-exposure-to-industrial-chemicals.pdf</a>
2021.09.23		BfR,PFBA は肺と腎臓に過剰に蓄積しない	<a href="https://www.bfr.bund.de/cm/349/industrial-chemical-pfba-does-not-accumulate-excessively-in-lungs-and-kidneys.pdf">https://www.bfr.bund.de/cm/349/industrial-chemical-pfba-does-not-accumulate-excessively-in-lungs-and-kidneys.pdf</a>
2021.09		フィンランド食品局、「フィンランドの重要食品汚染物質－健康リスクと情報のギャップ」報告、PFAS 4 種を 長期暴露で中又は高リスクに分類	<a href="https://www.ruokavirasto.fi/globalassets/yhteisot/riskinarviointi/projektit/ruokaviraston_tutkimuksia_1_2021_220921.pdf">https://www.ruokavirasto.fi/globalassets/yhteisot/riskinarviointi/projektit/ruokaviraston_tutkimuksia_1_2021_220921.pdf</a>
2021.10.18	EPA、PFAS に対する包括的国家戦略(ロード マップ)を公表		<a href="https://www.epa.gov/newsreleases/epa-administrator-regan-announces-comprehensive-national-strategy-confront-pfas">https://www.epa.gov/newsreleases/epa-administrator-regan-announces-comprehensive-national-strategy-confront-pfas</a>
2021.10.25	EPA,GenX 化合物の最終ヒト健康毒性評価を 発表		<a href="https://www.epa.gov/newsreleases/epa-announces-key-step-advance-science-better-protect-communities-pfas-pollution">https://www.epa.gov/newsreleases/epa-announces-key-step-advance-science-better-protect-communities-pfas-pollution</a>

	Subchronic RfD (mg/kg-day) 0.00003 (3 x 10-5)		
	Chronic RfD (mg/kg-day) 0.000003 (3 x 10-6)		
2021.12.06	BfR, 飼料中 PFAS 最大量のために分析法改良を助言、現在の分析の定量限界は不十分であり、0.05 µg/kg 程度以下に大幅に下げることがある	<a href="https://www.bfr.bund.de/cm/349/pfas-maximum-levels-in-feedstuffs-bfr-recommends-improved-analytical-methods.pdf">https://www.bfr.bund.de/cm/349/pfas-maximum-levels-in-feedstuffs-bfr-recommends-improved-analytical-methods.pdf</a>	
2021.12.08	RIVM, ゴミ焼却炉排ガス中パー及びポリフッ化物質について報告	<a href="https://www.rivm.nl/publicaties/per-and-polyfluorinated-substances-in-waste-incinerator-flue-gases">https://www.rivm.nl/publicaties/per-and-polyfluorinated-substances-in-waste-incinerator-flue-gases</a>	
2021.12.10	FSANZ, 第 27 回オーストラリアトータルダイエツトスタディ発表 FSANZ による PFOS の TDI は 20 ng/kg bw/day、PFOA は 160 ng/kg bw/day 環境曝露レベルの PFAS がヒト免疫系に有害だという一貫した根拠は無いとして EFSA の評価とは異なる	<a href="https://www.foodstandards.gov.au/media/Pages/Results-of-27th-Australian-Total-Diet-Study-released.aspx">https://www.foodstandards.gov.au/media/Pages/Results-of-27th-Australian-Total-Diet-Study-released.aspx</a>	
2021.12.13	RIVM, オランダの地下水の PFAS 全国調査について報告	<a href="https://www.rivm.nl/publicaties/landsdekkend-beeld-van-pfas-in-nederlands-grondwater">https://www.rivm.nl/publicaties/landsdekkend-beeld-van-pfas-in-nederlands-grondwater</a>	
2021.12.20	EPA, 飲料水中の PFAS 全国モニタリングを発表	<a href="https://www.epa.gov/newsreleases/epa-announces-nationwide-monitoring-effort-better-understand-extent-pfas-drinking">https://www.epa.gov/newsreleases/epa-announces-nationwide-monitoring-effort-better-understand-extent-pfas-drinking</a>	
2021.12.21	AFSCA, フランドル地方の食品 PFAS 調査報告	<a href="https://www.favv-afsca.be/professionnels/publications/presse/2021/2021-12-22.asp">https://www.favv-afsca.be/professionnels/publications/presse/2021/2021-12-22.asp</a>	
2022.02.23	ECHA, 泡消火器の PFASs 禁止を提案	<a href="https://echa.europa.eu/-/proposal-to-ban-forever-chemicals-in-firefighting-foams-throughout-the-eu">https://echa.europa.eu/-/proposal-to-ban-forever-chemicals-in-firefighting-foams-throughout-the-eu</a>	



2022.02.24 FDA、PFAS データと対応更新

<https://www.fda.gov/food/efsa-constituent-updates/update-fdas-continuing-efforts-understand-and-reduce-exposure-pfas-foods>

2022.03.04

中国第 6 回トータルダイエツトスタディ

<https://weekly.chinacdc.cn/fileCCDCW/journal/img/cover/7d89c5bb-03c2-4c41-a6cb-da62430407fd.pdf>

---

### Ⅲ. 研究成果の刊行に関する一覧表

研究成果の刊行に関する一覧表

雑誌

	発表者氏名	論文タイトル	発表誌名	巻号	ページ	出版年
1	Sato T, Tobiishi K, Hori T, Tsutsumi T, Matsui T, Akiyama H	Exposure to hexabromocyclododecanes from boxed sushi	Organohalogen Compounds		(in press)	2021
2	Tobiishi K, Sato T, Hori T, Tsutsumi T, Akiyama H	Exposure to polybrominated diphenyl ethers through boxed sushi	Organohalogen Compounds		(in press)	2021
3	Shiono K, Tsutsumi T, Nabeshi H, Ikeda A, Yokoyama J, Akiyama H	Simple and rapid determination of biogenic amines in fish and fish products by LC-MS/MS using 2,4,6-triethyl-3,5-dimethyl pyrylium trifluoromethanesulfonate as a derivatization reagent	J. Chromatogr. A	1643	462046	2021
4	登田美桜、井上依子、河恵子、春田一絵、與那覇ひとみ、畝山智香子	「食品安全情報(化学物質)」のトピックスについてー令和2年度(2020)ー	衛研報告	139	64-70	2021
5	畝山智香子	ほんとうの「食の安全」を考えるーゼロリスクという幻想ー	DOJIN文庫6			2021

6	Suzuki Y, Kondo M, Harimoto M, Kitayama I, Akiyama H	Dietary exposure to arsenic species in Japan in 2019 using a total diet study based on composite sample with market basket approach at the national level	J Food Compost Anal.	108	104384	2022
7	Ando T, Mori R, Takehara K, Asukata M, Ito S, Oka A	Effectiveness of Pediatric Teleconsultation to Prevent Skin Conditions in Infants and Reduce Parenting Stress in Mothers: A Randomized Controlled Trial	JMIR Pediatr Parent	5	e27615	2022
8	Mori T, Sato A, Oka A, Higuchi O, Mizuguchi M	Anti-lipoprotein receptor-related protein 4 antibody titer correlates with the clinical course of myasthenia gravis	Pediatr Int.	64	e14916	2022

厚生労働大臣 殿

機関名 国立医薬品食品衛生研究所

所属研究機関長 職 名 所長

氏 名 合田 幸広

次の職員の令和3年度厚生労働科学研究費の調査研究における、倫理審査状況及び利益相反等の管理については以下のとおりです。

1. 研究事業名 食品の安全確保推進研究事業
2. 研究課題名 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
3. 研究者名 (所属部局・職名) 食品部 部長  
(氏名・フリガナ) 堤 智昭 ・ ツツミ トモアキ

## 4. 倫理審査の状況

	該当性の有無		左記で該当がある場合のみ記入 (※1)		
	有	無	審査済み	審査した機関	未審査 (※2)
人を対象とする生命科学・医学系研究に関する倫理指針 (※3)	<input type="checkbox"/>	<input checked="" type="checkbox"/>	<input type="checkbox"/>		<input type="checkbox"/>
遺伝子治療等臨床研究に関する指針	<input type="checkbox"/>	<input checked="" type="checkbox"/>	<input type="checkbox"/>		<input type="checkbox"/>
厚生労働省の所管する実施機関における動物実験等の実施に関する基本指針	<input type="checkbox"/>	<input checked="" type="checkbox"/>	<input type="checkbox"/>		<input type="checkbox"/>
その他、該当する倫理指針があれば記入すること (指針の名称: )	<input type="checkbox"/>	<input checked="" type="checkbox"/>	<input type="checkbox"/>		<input type="checkbox"/>

(※1) 当該研究者が当該研究を実施するに当たり遵守すべき倫理指針に関する倫理委員会の審査が済んでいる場合は、「審査済み」にチェックし一部若しくは全部の審査が完了していない場合は、「未審査」にチェックすること。

## その他 (特記事項)

(※2) 未審査の場合は、その理由を記載すること。

(※3) 廃止前の「疫学研究に関する倫理指針」、「臨床研究に関する倫理指針」、「ヒトゲノム・遺伝子解析研究に関する倫理指針」、「人を対象とする医学系研究に関する倫理指針」に準拠する場合は、当該項目に記入すること。

## 5. 厚生労働分野の研究活動における不正行為への対応について

研究倫理教育の受講状況	受講 <input checked="" type="checkbox"/> 未受講 <input type="checkbox"/>
-------------	---

## 6. 利益相反の管理

当研究機関におけるCOIの管理に関する規定の策定	有 <input checked="" type="checkbox"/> 無 <input type="checkbox"/> (無の場合はその理由: )
当研究機関におけるCOI委員会設置の有無	有 <input checked="" type="checkbox"/> 無 <input type="checkbox"/> (無の場合は委託先機関: )
当研究に係るCOIについての報告・審査の有無	有 <input checked="" type="checkbox"/> 無 <input type="checkbox"/> (無の場合はその理由: )
当研究に係るCOIについての指導・管理の有無	有 <input type="checkbox"/> 無 <input checked="" type="checkbox"/> (有の場合はその内容: )

(留意事項) ・該当する□にチェックを入れること。  
・分担研究者の所属する機関の長も作成すること。

厚生労働大臣

殿

機関名 国立医薬品食品衛生研究所

所属研究機関長 職名 所長

氏名 合田 幸広

次の職員の令和3年度厚生労働科学研究費の調査研究における、倫理審査状況及び利益相反等の管理については以下のとおりです。

1. 研究事業名 食品の安全確保推進研究事業
2. 研究課題名 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
3. 研究者名 (所属部局・職名) 食品部 室長  
(氏名・フリガナ) 鈴木 美成 ・スズキ ヨシナリ

## 4. 倫理審査の状況

	該当性の有無		左記で該当がある場合のみ記入 (※1)		
	有	無	審査済み	審査した機関	未審査 (※2)
人を対象とする生命科学・医学系研究に関する倫理指針 (※3)	<input type="checkbox"/>	<input checked="" type="checkbox"/>	<input type="checkbox"/>		<input type="checkbox"/>
遺伝子治療等臨床研究に関する指針	<input type="checkbox"/>	<input checked="" type="checkbox"/>	<input type="checkbox"/>		<input type="checkbox"/>
厚生労働省の所管する実施機関における動物実験等の実施に関する基本指針	<input type="checkbox"/>	<input checked="" type="checkbox"/>	<input type="checkbox"/>		<input type="checkbox"/>
その他、該当する倫理指針があれば記入すること (指針の名称: )	<input type="checkbox"/>	<input checked="" type="checkbox"/>	<input type="checkbox"/>		<input type="checkbox"/>

(※1) 当該研究者が当該研究を実施するに当たり遵守すべき倫理指針に関する倫理委員会の審査が済んでいる場合は、「審査済み」にチェックし一部若しくは全部の審査が完了していない場合は、「未審査」にチェックすること。

## その他 (特記事項)

(※2) 未審査の場合は、その理由を記載すること。

(※3) 廃止前の「疫学研究に関する倫理指針」、「臨床研究に関する倫理指針」、「ヒトゲノム・遺伝子解析研究に関する倫理指針」、「人を対象とする医学系研究に関する倫理指針」に準拠する場合は、当該項目に記入すること。

## 5. 厚生労働分野の研究活動における不正行為への対応について

研究倫理教育の受講状況	受講 <input checked="" type="checkbox"/> 未受講 <input type="checkbox"/>
-------------	---

## 6. 利益相反の管理

当研究機関におけるCOIの管理に関する規定の策定	有 <input checked="" type="checkbox"/> 無 <input type="checkbox"/> (無の場合はその理由: )
当研究機関におけるCOI委員会設置の有無	有 <input checked="" type="checkbox"/> 無 <input type="checkbox"/> (無の場合は委託先機関: )
当研究に係るCOIについての報告・審査の有無	有 <input checked="" type="checkbox"/> 無 <input type="checkbox"/> (無の場合はその理由: )
当研究に係るCOIについての指導・管理の有無	有 <input type="checkbox"/> 無 <input checked="" type="checkbox"/> (有の場合はその内容: )

(留意事項) ・該当する□にチェックを入れること。  
・分担研究者の所属する機関の長も作成すること。

厚生労働大臣 殿

機関名 立命館大学

所属研究機関長 職名 学長

氏名 仲谷 善雄

次の職員の令和3年度厚生労働科学研究費の調査研究における、倫理審査状況及び利益相反等の管理については以下のとおりです。

1. 研究事業名 食品の安全確保推進研究事業
2. 研究課題名 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(19KA2001)
3. 研究者名 (所属部局・職名) 薬学部 薬学科・教授  
(氏名・フリガナ) 井之上 浩一 ・ イノウエ コウイチ

## 4. 倫理審査の状況

	該当性の有無		左記で該当がある場合のみ記入 (※1)		
	有	無	審査済み	審査した機関	未審査 (※2)
人を対象とする生命科学・医学系研究に関する倫理指針 (※3)	<input type="checkbox"/>	<input checked="" type="checkbox"/>	<input type="checkbox"/>		<input type="checkbox"/>
遺伝子治療等臨床研究に関する指針	<input type="checkbox"/>	<input checked="" type="checkbox"/>	<input type="checkbox"/>		<input type="checkbox"/>
厚生労働省の所管する実施機関における動物実験等の実施に関する基本指針	<input type="checkbox"/>	<input checked="" type="checkbox"/>	<input type="checkbox"/>		<input type="checkbox"/>
その他、該当する倫理指針があれば記入すること (指針の名称: )	<input type="checkbox"/>	<input checked="" type="checkbox"/>	<input type="checkbox"/>		<input type="checkbox"/>

(※1) 当該研究者が当該研究を実施するに当たり遵守すべき倫理指針に関する倫理委員会の審査が済んでいる場合は、「審査済み」にチェックし一部若しくは全部の審査が完了していない場合は、「未審査」にチェックすること。

## その他 (特記事項)

(※2) 未審査の場合は、その理由を記載すること。

(※3) 廃止前の「疫学研究に関する倫理指針」、「臨床研究に関する倫理指針」、「ヒトゲノム・遺伝子解析研究に関する倫理指針」、「人を対象とする医学系研究に関する倫理指針」に準拠する場合は、当該項目に記入すること。

## 5. 厚生労働分野の研究活動における不正行為への対応について

研究倫理教育の受講状況	受講 <input checked="" type="checkbox"/> 未受講 <input type="checkbox"/>
-------------	---

## 6. 利益相反の管理

当研究機関におけるCOIの管理に関する規定の策定	有 <input checked="" type="checkbox"/> 無 <input type="checkbox"/> (無の場合はその理由: )
当研究機関におけるCOI委員会設置の有無	有 <input checked="" type="checkbox"/> 無 <input type="checkbox"/> (無の場合は委託先機関: )
当研究に係るCOIについての報告・審査の有無	有 <input checked="" type="checkbox"/> 無 <input type="checkbox"/> (無の場合はその理由: )
当研究に係るCOIについての指導・管理の有無	有 <input type="checkbox"/> 無 <input checked="" type="checkbox"/> (有の場合はその内容: )

(留意事項) ・該当する□にチェックを入れること。  
・分担研究者の所属する機関の長も作成すること。

令和 4 年 2 月 1 日

厚生労働大臣 殿

機関名 埼玉県立小児医療センター

所属研究機関長 職 名 病院長

氏 名 岡 明

次の職員の令和3年度厚生労働科学研究費の調査研究における、倫理審査状況及び利益相反等の管理については以下のとおりです。

1. 研究事業名 食品の安全確保推進研究事業
2. 研究課題名 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
3. 研究者名 (所属部署・職名) 埼玉県立小児医療センター・病院長  
(氏名・フリガナ) 岡 明・オカ アキラ

#### 4. 倫理審査の状況

	該当性の有無		左記で該当がある場合のみ記入 (※1)		
	有	無	審査済み	審査した機関	未審査 (※2)
人を対象とする生命科学・医学系研究に関する倫理指針 (※3)	<input checked="" type="checkbox"/>	<input type="checkbox"/>	<input checked="" type="checkbox"/>	埼玉県立小児医療センター	<input type="checkbox"/>
遺伝子治療等臨床研究に関する指針	<input type="checkbox"/>	<input checked="" type="checkbox"/>	<input type="checkbox"/>		<input type="checkbox"/>
厚生労働省の所管する実施機関における動物実験等の実施に関する基本指針	<input type="checkbox"/>	<input checked="" type="checkbox"/>	<input type="checkbox"/>		<input type="checkbox"/>
その他、該当する倫理指針があれば記入すること (指針の名称: )	<input type="checkbox"/>	<input checked="" type="checkbox"/>	<input type="checkbox"/>		<input type="checkbox"/>

(※1) 当該研究者が当該研究を実施するに当たり遵守すべき倫理指針に関する倫理委員会の審査が済んでいる場合は、「審査済み」にチェックし一部若しくは全部の審査が完了していない場合は、「未審査」にチェックすること。

#### その他 (特記事項)

(※2) 未審査に場合は、その理由を記載すること。

(※3) 廃止前の「疫学研究に関する倫理指針」、「臨床研究に関する倫理指針」、「ヒトゲノム・遺伝子解析研究に関する倫理指針」、「人を対象とする医学系研究に関する倫理指針」に準拠する場合は、当該項目に記入すること。

#### 5. 厚生労働分野の研究活動における不正行為への対応について

研究倫理教育の受講状況	受講 <input checked="" type="checkbox"/> 未受講 <input type="checkbox"/>
-------------	---

#### 6. 利益相反の管理

当研究機関におけるCOIの管理に関する規定の策定	有 <input checked="" type="checkbox"/> 無 <input type="checkbox"/> (無の場合はその理由: )
当研究機関におけるCOI委員会設置の有無	有 <input checked="" type="checkbox"/> 無 <input type="checkbox"/> (無の場合は委託先機関: )
当研究に係るCOIについての報告・審査の有無	有 <input checked="" type="checkbox"/> 無 <input type="checkbox"/> (無の場合はその理由: )
当研究に係るCOIについての指導・管理の有無	有 <input type="checkbox"/> 無 <input checked="" type="checkbox"/> (有の場合はその内容: )

(留意事項) ・該当する□にチェックを入れること。  
・分担研究者の所属する機関の長も作成すること。



厚生労働大臣  
(国立医薬品食品衛生研究所長) 殿  
(国立保健医療科学院長)

機関名 国立医薬品食品衛生研究所

所属研究機関長 職 名 所長

氏 名 合田 幸広

次の職員の令和3年度厚生労働科学研究費の調査研究における、倫理審査状況及び利益相反等の管理については以下のとおりです。

1. 研究事業名 食品の安全確保推進研究事業

2. 研究課題名 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

3. 研究者名 (所属部署・職名) 安全情報部 部長

(氏名・フリガナ) 畷山 智香子 (ウネヤマ チカコ)

## 4. 倫理審査の状況

	該当性の有無		左記で該当がある場合のみ記入 (※1)		
	有	無	審査済み	審査した機関	未審査 (※2)
人を対象とする生命科学・医学系研究に関する倫理指針 (※3)	<input type="checkbox"/>	<input checked="" type="checkbox"/>	<input type="checkbox"/>		<input type="checkbox"/>
遺伝子治療等臨床研究に関する指針	<input type="checkbox"/>	<input checked="" type="checkbox"/>	<input type="checkbox"/>		<input type="checkbox"/>
厚生労働省の所管する実施機関における動物実験等の実施に関する基本指針	<input type="checkbox"/>	<input checked="" type="checkbox"/>	<input type="checkbox"/>		<input type="checkbox"/>
その他、該当する倫理指針があれば記入すること (指針の名称: )	<input type="checkbox"/>	<input checked="" type="checkbox"/>	<input type="checkbox"/>		<input type="checkbox"/>

(※1) 当該研究者が当該研究を実施するに当たり遵守すべき倫理指針に関する倫理委員会の審査が済んでいる場合は、「審査済み」にチェックし一部若しくは全部の審査が完了していない場合は、「未審査」にチェックすること。

## その他 (特記事項)

(※2) 未審査に場合は、その理由を記載すること。

(※3) 廃止前の「疫学研究に関する倫理指針」、「臨床研究に関する倫理指針」、「ヒトゲノム・遺伝子解析研究に関する倫理指針」、「人を対象とする医学系研究に関する倫理指針」に準拠する場合は、当該項目に記入すること。

## 5. 厚生労働分野の研究活動における不正行為への対応について

研究倫理教育の受講状況	受講 <input checked="" type="checkbox"/> 未受講 <input type="checkbox"/>
-------------	---

## 6. 利益相反の管理

当研究機関におけるCOIの管理に関する規定の策定	有 <input checked="" type="checkbox"/> 無 <input type="checkbox"/> (無の場合はその理由: )
当研究機関におけるCOI委員会設置の有無	有 <input checked="" type="checkbox"/> 無 <input type="checkbox"/> (無の場合は委託先機関: )
当研究に係るCOIについての報告・審査の有無	有 <input checked="" type="checkbox"/> 無 <input type="checkbox"/> (無の場合はその理由: )
当研究に係るCOIについての指導・管理の有無	有 <input type="checkbox"/> 無 <input checked="" type="checkbox"/> (有の場合はその内容: )

(留意事項) ・該当する□にチェックを入れること。  
・分担研究者の所属する機関の長も作成すること。