

## Ⅱ．分担研究年度終了報告書

### (1) 食品に含まれる残留性有機汚染物質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ソ類摂取 量推定

研究分担者 堤 智昭

## 令和6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

### 分担研究年度終了報告書

- (1) 食品に含まれる残留性有機汚染物質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0.41(範囲:0.16~0.77) 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9割程度を占めていた。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10%であった。摂取量推定値の最大は0.77 pg TEQ/kg bw/dayであり、平均値の約1.9倍となり、耐容一日摂取量の19%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1.4~2.4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。

また、最近公表された新しいTEFs(2022 WHO-TEFs)を使用した場合のダイオキシン類の一日摂取量についても参考値として算出した。過去のダイオキシン類摂取量(全国平均値)を現行のTEFs(2005 WHO-TEFs)を使用した場合と比較すると、新しいTEFsを用いた場合の摂取量は、6割程度の値となった。

#### 研究協力者

国立医薬品食品衛生研究所

高附 巧、張 天齊、足立利華、鍋師裕美

#### 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。

## 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 29 年(2017 年)～令和元年(2019 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。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、海藻類
- 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(TEFs)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ン類測定方法ガイドライン」(以下、ガイドライン)<sup>1)</sup>に準じた

#### 3-1. 試験溶液の調製

##### 3-1-1. 3 群, 4 群, 9~13 群

均一化した試料 50 g(4 群は 10 g)をビーカーに量りとり、クリーンアップスパイク(<sup>13</sup>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。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 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。多層シリカゲルカラムをヘキサン 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 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  $\mu$  L(<sup>13</sup>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サカラムに注入し、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  $\mu$  L(PCDD/PCDFs 用 <sup>13</sup>C 標識体 40 pg、ノンオルト PCB 用 <sup>13</sup>C 標識体 100 pg)を添加し高分解能 GC/MS に供した。

##### 3-1-2. 1 群, 2 群, 5~8 群

均一化した試料 50 g をナスフラスコに量りとり、クリーンアップスパイク(<sup>13</sup>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、アセトン 150 mL、ヘキサン 150 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 50 mL、ヘキサン 50 mL を加え 15 分間振とうし、同様の操作を行なった。抽出液を分液ロートに合わせ、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。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 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 3-1-1 で記述したように多層シリカゲルカラム、アルミナカラム、及び活性炭分散シリカゲルリバーサカラムにより精製後、シリジンスパイクを添加し高分解能 GC/MS に供した。

##### 3-1-3. 14 群

試料 5 L を 1.25 L ずつ分液ロートに量りとり、各分液ロートにジクロロメタン 150 mL を加え 15 分間振とう抽出をした。ジクロロメタン層を分取

し、水層にジクロロメタン 150 mL を加え同様の操作を行った。ジクロロメタン層を合わせ、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、無水硫酸ナトリウムで脱水した。その後、溶媒を留去し、200 mL のヘキサンに溶解し分液ロートに移した。ヘキサン溶液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 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 3-1-1 で記述したように多層シリカゲルカラム、アルミナカラム、及び活性炭分散シリカゲルリバーサカラムにより精製後、シリンジスパイクを添加し高分解能 GC/MS に供した。

### 3-2. 高分解能 GC/MS 測定

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

#### 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 × 60 m、膜厚 0.25  $\mu\text{m}$ )

注入方式: スプリットレス

注入口温度: 250°C

注入量: 1.5  $\mu\text{L}$

昇温条件: 130°C (2 分保持) - 30°C/分 - 200°C - 5°C/分 - 220°C (16 分保持) - 6°C/分 - 300°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、1,2,3,4,7,8,9 - HpCDF、OCDF

カラム: DB-17 (内径 0.25 mm × 60 m、膜厚 0.25  $\mu\text{m}$ )

注入方式: スプリットレス

注入口温度: 250°C

注入量: 2.0  $\mu\text{L}$

昇温条件: 130°C (2 分保持) - 30°C/分 - 200°C - 3°C/分 - 280°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 × 50 m、膜厚 0.25  $\mu\text{m}$ )

注入方式: スプリットレス

注入口温度: 260°C

注入量: 1.5  $\mu\text{L}$

昇温条件: 130°C (1 分保持) - 15°C/分 - 220°C (5 分保持) - 2°C/分 - 300°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°C

イオン源温度: 280°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  $\mu\text{A}$

加速電圧:  $\sim 10.0$  kV

分解能: 10,000 以上

モニターイオン: ガイドライン<sup>1)</sup>に準じた。

### 4. ダイオキシン類摂取量の推定

TD 試料におけるダイオキシン類の毒性等量 (TEQ) 濃度に、各食品群の食品摂取量を乗じてダイオキシン類の一日摂取量を推定した。TEQ の算出には 2005 年に定められた TEFs (2005 WHO-TEFs) 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。また、一部については、最近公表された新しい TEFs (2022 WHO-TEFs)<sup>2)</sup> を用いた場合のダイオキシン類の一日摂取量も参考値として算出した。現行の TEFs と新しい TEFs を付表 1 に

示した。

なお、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>3)</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ン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、ダイオキシン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ン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ン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 7.23 (範囲: 2.53～16.12) 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: 0.05～0.32) pg TEQ/kg bw/day となった (表 1)。昨年度は平均 0.13 (範囲: 0.02～0.24) pg TEQ/kg bw/day であり<sup>4)</sup>、今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) 73.2%、11 群 (肉・卵類) 23.8% であり、これら 2 群で全体の 97.0% 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 13.10 (範囲: 5.39～27.66) pg TEQ/person/day と推定された。体重あたりの摂取量は平均 0.26 (範囲: 0.11～0.55) pg TEQ/kg bw/day であった (表 2)。昨年度は平均 0.27 (範囲: 0.10～0.59) pg TEQ/kg bw/day であり<sup>4)</sup>、今年度と昨年度の平均値はほぼ同じ値であった。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) 97.6%、11 群 (肉・卵類) 2.4% であり、これら 2 群で全体の 99.9% と大部分を占めた。

#### 3. 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 20.33 (範囲 7.92～38.53) pg TEQ/person/day と推定された。体重あたりの摂取量は平均 0.41 (範囲: 0.16～0.77) pg TEQ/kg bw/day であった (表 3)。平均値は日本のダイオキシン類の TDI (4 pg TEQ/kg bw/day) の約 10% であり、最大値は TDI の 19% 程度に相当した。昨年度は平均 0.40 (範囲: 0.12～0.79) pg TEQ/kg bw/day であり<sup>4)</sup>、今年度の平均値は昨年度の平均値とほぼ同じ値であった。

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) 88.9%、11 群 (肉・卵類) 10.0% であり、これら 2 つの食品群で全体の 98.9% 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、64% であった。一昨年度及び昨年度における割合は共に 67% 及び 69% であり、ほぼ 7 割で推移している。

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 1.4～2.4 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 1.2～3.1 倍であり<sup>4)</sup>、今年度の最小値と最大値の開きは昨年度と比べやや小さかった。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 5 年度厚生労働行政推進調査事業費補助金研究報告書<sup>4)</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(2024 年度)の全国平均値は 0.41 pg TEQ/kg bw/day であり、1998 年度以降の調査結果の中で 3 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 23%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。

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(クロロン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、10 群の食品消費量は近年ゆるやかな減少を示しており、今年度の 10 群の食品消費量は 1998 年と比較して約 65%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 15 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 4 年度(2022 年度)のダイオキシン類摂取量は 0.44 pg TEQ/kg bw/day と報告<sup>5)</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>6-12)</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。

#### 6. 新しい TEFs を使用したダイオキシン類摂取量との比較

最近公表された新しい TEFs (2022 WHO-TEFs)を用いて、平成 10(1998)年度以降のダイオキシン類摂取量(全国平均値)を再計算し、その結果を現行の TEFs を使用した場合と比較した(表 5)。新しい TEFs で算出した摂取量は、いず

れの年度においても現行の TEFs で算出した摂取量よりも小さくなり、平均すると 6 割程度の値となった。TD 試料中の TEQ 濃度に占める割合が高い異性体である PCB 126 は、新しい TEFs において現行の 1/2 となっていることから、このことが減少に大きく影響したものと考えられる。

#### 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 0.41 pg TEQ/kg bw/day と推定された。行政施策の効果等によりダイオキシン類の摂取量は徐々に減少しており、1998 年の摂取量と比較すると 23%程度に減少している。現在の摂取量の平均値は TDI の 10%程度であり、TDI を十分に下回っている状態である。しかし、ダイオキシン類は有害物質の中では TDI 等の健康影響に基づく指標値に占める割合が比較的高い方である。また、ダイオキシン類は環境残留性や生物難分解性が極めて高いことを考えると、長期的なリスク管理が望ましい。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) DeVito M, Bokkers B, van Duursen M, van Ede K, Feeley M, Fernandes Gáspár E, Haws L, Kennedy S, Peterson R, Hoogenboom R, Nohara K, Petersen K, Rider C, Rose M, Safe S, Schrenk D, Wheeler M, Wikoff D, Zhao B, van den Berg M: The 2022 world health organization reevaluation of human and mammalian toxic equivalency factors for polychlorinated dioxins, dibenzofurans and biphenyls. *Regulatory Toxicology and*

*Pharmacology*,2024;146:105525.

- 3) 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)
- 4) 令和 5 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(食品に含まれる残留性有機汚染物質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 4 年度 食事由来の化学物質等摂取量推計調査, [https://www.hokeniryo.metro.tokyo.lg.jp/kankyo/kankyo\\_eisei/senmoniinkai/kankyousenmoniinkai/r5\\_kagakubunkakai.files/02\\_r5siyou1.pdf.pdf](https://www.hokeniryo.metro.tokyo.lg.jp/kankyo/kankyo_eisei/senmoniinkai/kankyousenmoniinkai/r5_kagakubunkakai.files/02_r5siyou1.pdf.pdf)
- 6) Barone G, Storelli A, Busco A, Mallamaci R, Storelli MM: Polychlorinated dioxins, furans (PCDD/Fs) and dioxin-like polychlorinated biphenyls (dl-PCBs) in food from Italy: Estimates of dietary intake and assessment. *J Food Sci.* 2021;86:4741-4753.
- 7) Windal I, Vandevijvere S, Maleki M, Gosciniy 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) Lacomba I, Socas-Hernández C, López A, Pardo O, Yusà V, Isabel Beser Y, Marín S, Villalba P, Coscollà C: Levels, patterns and risk assessment of PCDD/Fs and dl-PCBs through dietary exposure in the Valencian Region (Spain). *Food Research International*, 2024;176: 113839.
- 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>
- Conference on Food Safety and 39th KoSFoS Annual Meeting, (2024.11)
- 3) 張天齊, 高附巧、武村奈穂, 鍋師裕美, 堤智昭: トータルダイエツト試料によるダイオキシン類の摂取量推定(令和5年度). 第61回全国衛生化学技術協議会年会 (2024.11)

#### 【謝辞】

TD 試料の調製にご協力いただいた研究機関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) Tsutsumi T, Zhang T, Takatsuki S, Nabeshi H: Estimation of dietary intakes of dioxins and polychlorinated biphenyls in Japan in 2023. 44th INTERNATIONAL SYMPOSIUM ON HALOGENATED PERSISTENT ORGANIC POLLUTANTS (POPS) (2024.9)
- 2) Tsutsumi T, Suzuki Y: Total Diet Studies on Food Contaminants in Japan: Current Findings with Time Trends. International

表1 令和6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 |      |       | 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 |      |       | 0.02 |
| 3群(砂糖類、菓子類)          | 0.03  |      |       | 0.03 |      |      | 0.03 |       |       | 0.03 |      |      | 0.03 |      |      | 0.03 |      |       | 0.03 |
| 4群(油脂類)              | 0.00  |      |       | 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 |      |       | 0.00 |
| 6群(果実、果汁)            | 0.00  |      |       | 0.00 |      |      | 0.00 |       |       | 0.00 |      |      | 0.00 |      |      | 0.00 |      |       | 0.00 |
| 7群(緑黄色野菜)            | 0.03  |      |       | 0.03 |      |      | 0.03 |       |       | 0.03 |      |      | 0.03 |      |      | 0.03 |      |       | 0.03 |
| 8群(他の野菜類、キノコ類、海草類)   | 0.08  |      |       | 0.08 |      |      | 0.08 |       |       | 0.08 |      |      | 0.08 |      |      | 0.08 |      |       | 0.08 |
| 9群(酒類、嗜好飲料)          | 0.00  |      |       | 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)             | 5.66  | 6.13 | 10.57 | 4.07 | 4.95 | 5.62 | 7.10 | 7.40  | 8.40  | 3.43 | 3.19 | 5.04 | 2.31 | 2.37 | 4.35 | 3.28 | 4.22 | 6.83  |      |
| 11群(肉類・卵類)           | 0.04  | 0.04 | 0.09  | 0.52 | 4.74 | 4.08 | 2.26 | 3.36  | 3.12  | 0.00 | 0.00 | 0.10 | 0.00 | 0.00 | 0.01 | 0.04 | 0.55 | 9.08  |      |
| 12群(乳・乳製品)           | 0.00  |      |       | 0.00 |      |      | 0.00 |       |       | 0.00 |      |      | 0.00 |      |      | 0.00 |      |       |      |
| 13群(調味料)             | 0.04  |      |       | 0.04 |      |      | 0.04 |       |       | 0.04 |      |      | 0.04 |      |      | 0.04 |      |       |      |
| 14群(飲料水)             | 0.00  |      |       | 0.00 |      |      | 0.00 |       |       | 0.00 |      |      | 0.00 |      |      | 0.00 |      |       |      |
| 総摂取量(pgTEQ/day)      | 5.92  | 6.39 | 10.87 | 4.81 | 9.90 | 9.91 | 9.58 | 10.97 | 11.73 | 3.65 | 3.41 | 5.35 | 2.53 | 2.59 | 4.57 | 3.53 | 4.99 | 16.12 |      |
| 摂取量(pgTEQ/kg bw/day) | 0.12  | 0.13 | 0.22  | 0.10 | 0.20 | 0.20 | 0.19 | 0.22  | 0.23  | 0.07 | 0.07 | 0.11 | 0.05 | 0.05 | 0.09 | 0.07 | 0.10 | 0.32  |      |

| 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 | 0.25   |
| 3群(砂糖類、菓子類)          | 0.03    |      |      | 0.03 |      |       | 0.03  | 0.00 | 0.43   |
| 4群(油脂類)              | 0.00    |      |      | 0.00 |      |       | 0.00  | 0.00 | 0.03   |
| 5群(豆・豆加工品)           | 0.00    |      |      | 0.00 |      |       | 0.00  | 0.00 | 0.03   |
| 6群(果実、果汁)            | 0.00    |      |      | 0.00 |      |       | 0.00  | 0.00 | 0.00   |
| 7群(緑黄色野菜)            | 0.03    |      |      | 0.03 |      |       | 0.03  | 0.00 | 0.43   |
| 8群(他の野菜類、キノコ類、海草類)   | 0.08    |      |      | 0.08 |      |       | 0.08  | 0.00 | 1.16   |
| 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)             | 4.36    | 4.75 | 5.29 | 5.02 | 4.77 | 7.89  | 5.29  | 1.98 | 73.20  |
| 11群(肉類・卵類)           | 0.01    | 0.06 | 4.10 | 0.49 | 4.74 | 3.91  | 1.72  | 2.39 | 23.83  |
| 12群(乳・乳製品)           | 0.00    |      |      | 0.00 |      |       | 0.00  | 0.00 | 0.04   |
| 13群(調味料)             | 0.04    |      |      | 0.04 |      |       | 0.04  | 0.00 | 0.59   |
| 14群(飲料水)             | 0.00    |      |      | 0.00 |      |       | 0.00  | 0.00 | 0.00   |
| 総摂取量(pgTEQ/day)      | 4.59    | 5.02 | 9.60 | 5.72 | 9.72 | 12.01 | 7.23  | 3.64 | 100.00 |
| 摂取量(pgTEQ/kg bw/day) | 0.09    | 0.10 | 0.19 | 0.11 | 0.19 | 0.24  | 0.14  | 0.07 |        |

\* 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 令和6年度トータルダイエツ試料(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)          | 0.00  |       |       | 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)             | 10.49 | 14.10 | 27.64 | 8.60  | 12.08 | 11.59 | 15.66 | 15.47 | 22.39 | 7.00 | 8.07 | 14.10 | 5.38 | 5.54 | 13.83 | 8.74 | 10.71 | 13.21 |  |
| 11群(肉類・卵類)           | 0.01  | 0.06  | 0.01  | 1.48  | 0.02  | 1.71  | 0.04  | 0.04  | 1.30  | 0.01 | 0.01 | 0.02  | 0.01 | 0.01 | 0.09  | 0.05 | 0.01  | 0.01  |  |
| 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)      | 10.51 | 14.16 | 27.66 | 10.09 | 12.11 | 13.30 | 15.72 | 15.51 | 23.70 | 7.02 | 8.09 | 14.13 | 5.39 | 5.55 | 13.92 | 8.80 | 10.73 | 13.23 |  |
| 摂取量(pgTEQ/kg bw/day) | 0.21  | 0.28  | 0.55  | 0.20  | 0.24  | 0.27  | 0.31  | 0.31  | 0.47  | 0.14 | 0.16 | 0.28  | 0.11 | 0.11 | 0.28  | 0.18 | 0.21  | 0.26  |  |

| 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 | 0.01   |
| 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 | 0.00   |
| 8群(他の野菜類、キノコ類、海藻類)   | 0.00    |       |       | 0.00  |       |       | 0.00  | 0.00 | 0.00   |
| 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)             | 11.01   | 11.99 | 18.23 | 11.12 | 11.44 | 18.40 | 12.78 | 5.15 | 97.60  |
| 11群(肉類・卵類)           | 0.01    | 0.04  | 0.03  | 0.01  | 0.45  | 1.94  | 0.31  | 0.61 | 2.35   |
| 12群(乳・乳製品)           | 0.00    |       |       | 0.00  |       |       | 0.00  | 0.00 | 0.04   |
| 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)      | 11.04   | 12.03 | 18.27 | 11.14 | 11.90 | 20.35 | 13.10 | 5.31 | 100.00 |
| 摂取量(pgTEQ/kg bw/day) | 0.22    | 0.24  | 0.37  | 0.22  | 0.24  | 0.41  | 0.26  | 0.11 |        |

\* 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6年度トータルダイエツ試料(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)              | 0.00  |       |       | 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)            | 0.03  |       |       | 0.03  |       |       | 0.03  |       |       | 0.03  |       |       | 0.03 |      |       | 0.03  |       |       |  |
| 8群(他の野菜類、キノコ類、海藻類)   | 0.08  |       |       | 0.08  |       |       | 0.08  |       |       | 0.08  |       |       | 0.08 |      |       | 0.08  |       |       |  |
| 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)             | 16.15 | 20.23 | 38.21 | 12.67 | 17.03 | 17.21 | 22.76 | 22.87 | 30.79 | 10.43 | 11.26 | 19.14 | 7.69 | 7.90 | 18.17 | 12.02 | 14.94 | 20.04 |  |
| 11群(肉類・卵類)           | 0.06  | 0.10  | 0.10  | 2.01  | 4.76  | 5.78  | 2.31  | 3.40  | 4.42  | 0.01  | 0.02  | 0.13  | 0.01 | 0.01 | 0.09  | 0.09  | 0.56  | 9.09  |  |
| 12群(乳・乳製品)           | 0.01  |       |       | 0.01  |       |       | 0.01  |       |       | 0.01  |       |       | 0.01 |      |       | 0.01  |       |       |  |
| 13群(調味料)             | 0.04  |       |       | 0.04  |       |       | 0.04  |       |       | 0.04  |       |       | 0.04 |      |       | 0.04  |       |       |  |
| 14群(飲料水)             | 0.00  |       |       | 0.00  |       |       | 0.00  |       |       | 0.00  |       |       | 0.00 |      |       | 0.00  |       |       |  |
| 総摂取量(pgTEQ/day)      | 16.43 | 20.55 | 38.53 | 14.90 | 22.01 | 23.21 | 25.29 | 26.49 | 35.43 | 10.67 | 11.50 | 19.48 | 7.92 | 8.14 | 18.48 | 12.33 | 15.72 | 29.35 |  |
| 摂取量(pgTEQ/kg bw/day) | 0.33  | 0.41  | 0.77  | 0.30  | 0.44  | 0.46  | 0.51  | 0.53  | 0.71  | 0.21  | 0.23  | 0.39  | 0.16 | 0.16 | 0.37  | 0.25  | 0.31  | 0.59  |  |

| 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)              | 0.00    |       |       | 0.00  |       |       | 0.00  | 0.00 | 0.01   |
| 5群(豆・豆加工品)           | 0.00    |       |       | 0.00  |       |       | 0.00  | 0.00 | 0.01   |
| 6群(果実、果汁)            | 0.00    |       |       | 0.00  |       |       | 0.00  | 0.00 | 0.00   |
| 7群(緑黄色野菜)            | 0.03    |       |       | 0.03  |       |       | 0.03  | 0.00 | 0.15   |
| 8群(他の野菜類、キノコ類、海藻類)   | 0.08    |       |       | 0.08  |       |       | 0.08  | 0.00 | 0.41   |
| 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)             | 15.38   | 16.73 | 23.52 | 16.14 | 16.21 | 26.29 | 18.07 | 7.02 | 88.92  |
| 11群(肉類・卵類)           | 0.02    | 0.10  | 4.13  | 0.50  | 5.20  | 5.85  | 2.03  | 2.63 | 9.99   |
| 12群(乳・乳製品)           | 0.01    |       |       | 0.01  |       |       | 0.01  | 0.00 | 0.04   |
| 13群(調味料)             | 0.04    |       |       | 0.04  |       |       | 0.04  | 0.00 | 0.21   |
| 14群(飲料水)             | 0.00    |       |       | 0.00  |       |       | 0.00  | 0.00 | 0.00   |
| 総摂取量(pgTEQ/day)      | 15.62   | 17.05 | 27.87 | 16.86 | 21.62 | 32.36 | 20.33 | 8.26 | 100.00 |
| 摂取量(pgTEQ/kg bw/day) | 0.31    | 0.34  | 0.56  | 0.34  | 0.43  | 0.65  | 0.41  | 0.17 |        |

\* 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<br>pg TEQ/kg bw/day | 対象とした<br>年齢層 | 検出下限値<br>の取り扱い* | 参考文献 |
|---------|---------------|--------------------------------|--------------|-----------------|------|
| 日本(全国)  | 2024年度(令和6年度) | 0.41                           | 1歳以上         | ND=0            | 本研究  |
| 日本(東京都) | 2022年度(令和4年度) | 0.44                           | 1歳以上         | ND=0            | 5)   |
| イタリア    | 2019年度        | 0.35(男)、0.38(女)**              | 18-64.9歳     | ND=0            | 6)   |
| ベルギー    | 2008年         | 0.61                           | 15歳以上        | ND=LOD/2        | 7)   |
| スペイン    | 2010-2011年    | 0.24 **                        | 6-15歳        | ND=0            | 8)   |
|         |               | 0.16 **                        | >15歳         | ND=0            |      |
| 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(定量)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(定量)下限値の1/2を当てはめた場合はND=LOD/2、検出(定量)下限値を当てはめた場合はND=LODと示した。

\*\* 原著では一週間あたりのDXNs摂取量が示されていたため、7日で除した値を一日摂取量として示した。

\*\*\* 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。

表 5 新しい TEFs を使用したダイオキシン類摂取量（全国平均値）との比較

| 年度   | ダイオキシン類摂取量 (pg TEQ/kg bw/day) |               |
|------|-------------------------------|---------------|
|      | 2005 WHO-TEFs                 | 2022 WHO-TEFs |
| 1998 | 1.8                           | 1.1           |
| 1999 | 1.9                           | 1.3           |
| 2000 | 1.2                           | 0.88          |
| 2001 | 1.4                           | 0.79          |
| 2002 | 1.3                           | 0.73          |
| 2003 | 1.1                           | 0.67          |
| 2004 | 1.2                           | 0.71          |
| 2005 | 1.0                           | 0.59          |
| 2006 | 0.90                          | 0.52          |
| 2007 | 0.93                          | 0.53          |
| 2008 | 0.92                          | 0.52          |
| 2009 | 0.84                          | 0.47          |
| 2010 | 0.81                          | 0.46          |
| 2011 | 0.68                          | 0.38          |
| 2012 | 0.69                          | 0.40          |
| 2013 | 0.58                          | 0.34          |
| 2014 | 0.69                          | 0.41          |
| 2015 | 0.64                          | 0.38          |
| 2016 | 0.54                          | 0.33          |
| 2017 | 0.65                          | 0.40          |
| 2018 | 0.51                          | 0.30          |
| 2019 | 0.46                          | 0.28          |
| 2020 | 0.40                          | 0.24          |
| 2021 | 0.44                          | 0.28          |
| 2022 | 0.42                          | 0.27          |
| 2023 | 0.40                          | 0.24          |
| 2024 | 0.41                          | 0.25          |

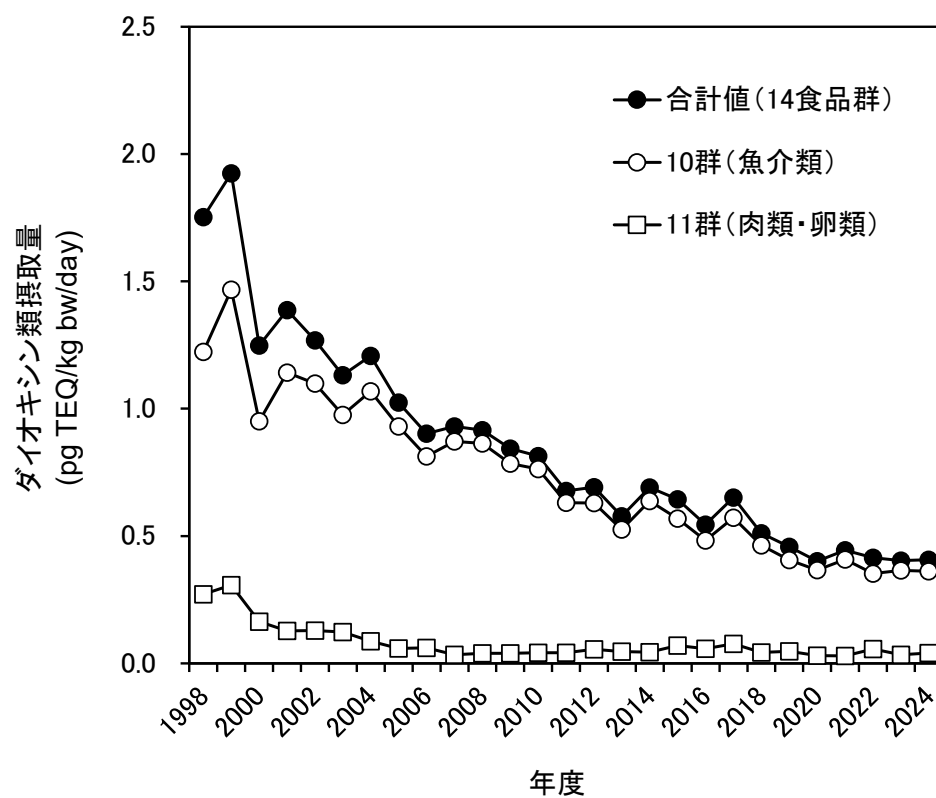


図1 ダイオキシン類摂取量（全国平均値）の経年変化

付表 1 現行の TEFs と新しい TEFs

| ダイオキシン類 |                      |                             | 2005 WHO-TEFs | 2022 WHO-TEFs |
|---------|----------------------|-----------------------------|---------------|---------------|
| PCDDs   | 2,3,7,8-TCDD         |                             | 1             | 1             |
|         | 1,2,3,7,8-PeCDD      |                             | 1             | 0.4           |
|         | 1,2,3,4,7,8-HxCDD    |                             | 0.1           | 0.09          |
|         | 1,2,3,6,7,8-HxCDD    |                             | 0.1           | 0.07          |
|         | 1,2,3,7,8,9-HxCDD    |                             | 0.1           | 0.05          |
|         | 1,2,3,4,6,7,8-HpCDD  |                             | 0.01          | 0.05          |
|         | 1,2,3,4,6,7,8,9-OCDD |                             | 0.0003        | 0.001         |
| PCDFs   | 2,3,7,8-TCDF         |                             | 0.1           | 0.07          |
|         | 1,2,3,7,8-PeCDF      |                             | 0.03          | 0.01          |
|         | 2,3,4,7,8-PeCDF      |                             | 0.3           | 0.1           |
|         | 1,2,3,4,7,8-HxCDF    |                             | 0.1           | 0.3           |
|         | 1,2,3,6,7,8-HxCDF    |                             | 0.1           | 0.09          |
|         | 1,2,3,7,8,9-HxCDF    |                             | 0.1           | 0.2           |
|         | 2,3,4,6,7,8-HxCDF    |                             | 0.1           | 0.1           |
|         | 1,2,3,4,6,7,8-HpCDF  |                             | 0.01          | 0.02          |
|         | 1,2,3,4,7,8,9-HpCDF  |                             | 0.01          | 0.1           |
|         | 1,2,3,4,6,7,8,9-OCDF |                             | 0.0003        | 0.002         |
| Co-PCBs | ノンオルトPCBs            | 3,3',4,4'-TCB(#77)          | 0.0001        | 0.0003        |
|         |                      | 3,4,4',5-TCB(#81)           | 0.0003        | 0.006         |
|         |                      | 3,3',4,4',5-PeCB(#126)      | 0.1           | 0.05          |
|         |                      | 3,3',4,4',5,5'-HxCB(#169)   | 0.03          | 0.005         |
|         | モノオルトPCBs            | 2,3,3',4,4'-PeCB(#105)      | 0.00003       | 0.00003       |
|         |                      | 2,3,4,4',5-PeCB(#114)       | 0.00003       | 0.00003       |
|         |                      | 2,3',4,4',5-PeCB(#118)      | 0.00003       | 0.00003       |
|         |                      | 2',3,4,4',5-PeCB(#123)      | 0.00003       | 0.00003       |
|         |                      | 2,3,3',4,4',5-HxCB(#156)    | 0.00003       | 0.00003       |
|         |                      | 2,3,3',4,4',5'-HxCB(#157)   | 0.00003       | 0.00003       |
|         |                      | 2,3,3',4,4',5'-HxCB(#157)   | 0.00003       | 0.00003       |
|         |                      | 2,3,3',4,4',5,5'-HpCB(#189) | 0.00003       | 0.00003       |



## Ⅱ．分担研究年度終了報告書

(1) 食品に含まれる残留性有機汚染物質等の摂取量推定及び  
汚染実態の把握に関する研究

(1-2) トータルダイエツト試料の分析によるポリ塩化ビフェニル  
摂取量推定

研究分担者 堤 智昭

## 令和6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

### 分担研究年度終了報告書

- (1) 食品に含まれる残留性有機汚染物質等の摂取量推定及び汚染実態の把握に関する研究  
(1-2) トータルダイエツト試料の分析によるポリ塩化ビフェニル摂取量推定

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

2024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、250 ng/person/dayと推定された。体重(50 kgと仮定)あたりでは5.0 ng/kg bw/dayと推定され、この値は日本の暫定一日摂取許容量の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耐容一日摂取量(TDI)と比較しても低い値であったが、WHOのTDIの25%程度に相当した。さらに、リスク評価の為の情報が不足している非ダイオキシン様PCBs(NDL-PCBs)の摂取量についても推定した。NDL-PCBsの全国平均摂取量は230 ng/person/day(体重50 kgで除した場合、4.6 ng/kg bw/day)、NDL-PCBsの指標異性体として用いられる6異性体の全国平均摂取量は80 ng/person/day(体重50 kgで除した場合、1.6 ng/kg bw/day)と推定された。NDL-PCBsについてはTDIが定まっていないため、代表的なNDL-PCBs異性体(PCB 28, 52, 128, 153, 180)の毒性データを用いてばく露マージンを計算した。その結果、これらの異性体に対するばく露マージンは10,672~764,062と十分に大きかった。

#### 研究協力者

国立医薬品食品衛生研究所

高附 巧、張 天齊、鍋師裕美

北海道立衛生研究所

青柳直樹、市橋大山、吉田優也

新潟県保健環境科学研究所

五井 千尋

横浜市衛生研究所

石井敬子、前川ゆずは、森田昌弘

名古屋市衛生研究所

野口昭一郎、高木恭子、宮崎仁志

和歌山県環境衛生研究センター

新宅沙織

香川県環境保健研究センター

安永 恵、櫻井 麻里南

沖縄県衛生環境研究所

仲眞弘樹

福岡県保健環境研究所

中村麻子、新谷依子、堀 就英

#### A. 研究目的

我が国では、通知「食品中に残留する PCB の規制について」<sup>1)</sup>の中で、ポリ塩化ビフェニル

(PCBs)の一日摂取許容量(ADI)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耐容一日摂取量(TDI)が定まっている。一方、NDL-PCBs の TDI は定まっておらず、JECFA 等でリスク評価のための情報を収集することが推奨されている。本分担研究ではリスク評価に資する情報を提供するため、平成 28 年度より NDL-PCBs の摂取量についても推定している。また、NDL-PCBs の指標異性体として欧州等で使用されている 6 種の PCBs (PCB 28, 52, 101, 138, 153, 180) (以下、6PCBs)の合計値についてもあわせて摂取量を推定した。

## B. 研究方法

### 1. TD 試料

国民平均の PCBs 摂取量を推定するための TD 試料は、全国 10 地域の衛生研究所等で調製した。厚生労働省が実施した平成 29 年～令和元年(2017～2019 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。過去の研究から PCBs 摂取量に占める割合の高い食品群は、10 群(魚介類)と 11 群(肉類、卵類)であることが判明しているため、これら二つの食品群を分析対象とした。作製した試料は、分析に供すまで-20℃で保存した。

## 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(富士フイ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)、濃硫酸(特級)、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、Milli-Q IQ7005 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

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。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。

## 2-4. 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)  $\rightarrow$  20 $^{\circ}$ C/分  $\rightarrow$  180 $^{\circ}$ C  $\rightarrow$  2 $^{\circ}$ C/分  $\rightarrow$  260 $^{\circ}$ C  $\rightarrow$  5 $^{\circ}$ C/分  $\rightarrow$  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: 290 $^{\circ}$ 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:

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

$^{13}\text{C}_{12}$  標識 MoCBs

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

$^{13}\text{C}_{12}$  標識 DiCBs

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

$^{13}\text{C}_{12}$  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(RRFss)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RRFss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RRFssを求めた。これらの値が、検量線作成時のRRF及びRRFss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RRFss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。TD試料においてLOD未満の異性体濃度

はゼロ(ND=0)として計算した。平成 25 年度より高分解能 GC/MS による PCBs 分析を実施することで、LOD を十分に低く設定できているため、仮に LOD 未満の濃度で極微量に含まれる PCBs 異性体が存在していても、推定される摂取量に与える影響はごく僅かである。今年度の 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。

## C. 研究結果及び考察

### 1) PCBs 摂取量の推定

全 10 地域で調製した 10 群及び 11 群の分析結果から推定した PCBs 摂取量を表 2 及び表 3 に示した。表には各地域における同族体ごとの PCBs 摂取量と、それらの合計となる総 PCBs 摂取量を示した。10 群からの総 PCBs 摂取量は 132～393 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 238 ng/person/day であった。また、11 群からの総 PCBs 摂取量は 4.4～43 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 13 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 256 ng/person/day、11 群からの総 PCBs 摂取量の全国平均値は 13 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低かったが、11 群の総 PCBs 摂取量の全国平均値は同程度であった。今年度は 10 群については地域 A、11 群については地域 C 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、10 群ではほぼ同程度、11 群では約 1.6 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 90% 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。11 群についても、TD 試料を作製した地域によらず同族体の割合に大きな違いは認められなかったが、10 群と比較すると低塩素 PCBs(1 塩素～3 塩素)の割合がやや高い地域があった(地域 A 及び地域 G 等)。低塩素 PCBs は KC-300 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 141～398 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 250 ng/person/day であった。昨年度の総 PCBs 摂取量の全国平均値は 270 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やや低い値であった。現在、日本では PCBs に暫定 ADI (5 µg/kg bw/day) が示されている。本研究で推定された総 PCBs 摂取量の全国平均値は 250 ng/person/day であり、体重(50 kg と仮定)あたりでは 5.0 ng/kg bw/day であった。この値は暫定 ADI 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 ADI 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 等の健康影響に基づく指標値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 25%に相当した。この値はカドミウムなどの有害元素の摂取量の TDI に対する割合<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つて

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。2023 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のための研究」<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、2 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 1/13 程度であった。

## 2)NDL-PCBs 摂取量の推定

各地域の TD 試料の分析結果より推定した NDL-PCBs 摂取量を表 5 に示した。また、NDL-PCBs 摂取量の指標異性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 120~357 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 219 ng/person/day であった。11 群からの NDL-PCBs 摂取量は 3.9~37 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 11 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、129~361 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 230 ng/person/day (体重 50 kg で除した場合、4.6 ng/kg bw/day)であった。10 群と 11 群からの総 PCBs 摂取量の全国平均値は 250 ng/person/day であることから、NDL-PCBs は総 PCBs 摂取量の 92%程度を占めていた。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 40~125 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 75 ng/person/day であった。11 群からの摂取量は 1.5~18 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 4.8 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、44~126 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 80 ng/person/day (体重 50 kg で除した場合、1.6 ng/kg bw/day)であった。

NDL-PCBs については TDI 等の健康影響に基づく指標値が定まっていないため、代表的な NDL-PCBs 異性体(PCB 28, 52, 128, 153, 180)の毒性データを用いて、ばく露マージンを計算した。ばく露マージンの計算は、各異性体の最小毒性量(minimal effect dose)<sup>5, 6)</sup>を、各異性体の摂取量(全国平均値)で除した。各異性体のばく露マージンは 10,672~764,062 であった(表 6)。NDL-PCBs は非遺伝毒性発がん物質と考えられるため、一般的にはばく露マージンが 100 以上であれば健康への懸念が低くリスク管理の優先度が低いと考えられる。いずれの異性体のばく露マージンも 100 を大きく上回っていた。

## 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 7 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。東京都における 2023 年度の PCBs 摂取量は 5.2 ng/kg bw/day と報告<sup>7)</sup>されており、本調査の結果と近い値であった。また、本研究の結果は、主な諸外国で報告されている PCBs 摂取量<sup>8~12)</sup>の範囲内であり、特に高いことはなかった。

また、表 8 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 1.6 ng/kg bw/day であり、諸外国で報告されている 6PCBs 摂取量<sup>6, 13~17)</sup>の範囲内であった。

#### D. 結論

全国 10 地区で調製した TD 試料(10 群及び 11 群)による PCBs の摂取量調査を実施した結果、総 PCBs 一日摂取量の全国平均値は 250 ng/person/day と推定された。体重あたりでは 5.0 ng/kg bw/day と推定され、この値は日本の暫定 ADI 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 25%となった。NDL-PCBs の一日摂取量の全国平均値は 230 ng/person/day と推定され、その指標異性体である 6PCBs 摂取量の全国平均値は 80 ng/person/day と推定された。代表的な NDL-PCBs 異性体(PCB 28, 52, 128, 153, 180)の毒性データを用いてばく露マージンを計算した結果、これらの異性体に対するばく露マージンは 10,672~764,062 と十分に大きかった。

#### 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 5 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(食品に含まれる残留性有機汚染物質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) 令和 5 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(食品に含まれる有害元素等の摂取量推定及び汚染実態の把握に関する研究)
- 5) WHO 2016. Safety evaluation of certain food additives and contaminants, supplement 1: non-dioxin-like polychlorinated biphenyls, prepared by the eightieth meeting of the Joint FAO/WHO Expert Committee on Food Additives (JECFA). (WHO food additives series; 71-S1). Geneva: World Health Organization.  
<https://apps.who.int/iris/handle/10665/246225>.
- 6) 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>
- 7) 東京都保健医療局健康安全部環境保健衛生課, 令和 5 度 食事由来の化学物質等摂取量推計調査, <https://www.hokeniryo.metro.tokyo.lg.jp/documents/d/hokeniryo/5shokuji>
- 8) Voorspoels S, Covaci A, Neels H. : Dietary PCB intake in Belgium, Environ. Toxicol. Pharmacol. 25, 179-182 (2008)
- 9) Schechter A, Colacino J, Haffner D, Patel K, Opel M, Pöpke O, Birnbaum L. : Perfluorinated compounds, polychlorinated biphenyls, and organochlorine pesticide contamination in composite food samples from Dallas, Texas, USA, Environ. Health Perspect. 118, 796-802 (2010)
- 10) 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)
- 11) 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)
  - 12) 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)
  - 13) 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)
  - 14) Sirot V, Tard A, Venisseau A, Brosseaud 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)
  - 15) Cimenci O, Vandevijvere S, Goscinnny 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)
  - 16) 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)
  - 17) 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)

## 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 |
|------|-----------------|-----------|-----------|------|-----------|-----------|-----------|
| MoCB | #1              | 0.00015   | 0.00050   | HxCB | #128      | 0.00002   | 0.00008   |
|      | #2              | 0.00010   | 0.00034   |      | #129      | 0.00002   | 0.00008   |
|      | #3              | 0.00011   | 0.00038   |      | #130      | 0.00002   | 0.00008   |
|      | #4              | 0.00044   | 0.00146   |      | #131      | 0.00002   | 0.00008   |
|      | #6              | 0.00006   | 0.00020   |      | #133      | 0.00002   | 0.00008   |
|      | #7              | 0.00002   | 0.00006   |      | #134      | 0.00002   | 0.00008   |
|      | #8/#5           | 0.00048   | 0.00160   |      | #135      | 0.00002   | 0.00008   |
|      | #9              | 0.00002   | 0.00006   |      | #136      | 0.00002   | 0.00008   |
|      | #10             | 0.00002   | 0.00005   |      | #137      | 0.00002   | 0.00008   |
|      | #11             | 0.00103   | 0.00342   |      | #138      | 0.00011   | 0.00038   |
| DiCB | #13/#12         | 0.00002   | 0.00006   |      | #140      | 0.00002   | 0.00008   |
|      | #14             | 0.00002   | 0.00006   |      | #141      | 0.00002   | 0.00008   |
|      | #15             | 0.00014   | 0.00048   |      | #142      | 0.00002   | 0.00008   |
|      | #16             | 0.00010   | 0.00034   |      | #143      | 0.00002   | 0.00008   |
|      | #17             | 0.00016   | 0.00052   |      | #144      | 0.00002   | 0.00008   |
|      | #18             | 0.00052   | 0.00175   |      | #145      | 0.00002   | 0.00008   |
|      | #19             | 0.00003   | 0.00011   |      | #146/#132 | 0.00002   | 0.00008   |
|      | #20/#33         | 0.00033   | 0.00111   |      | #147      | 0.00002   | 0.00008   |
|      | #21             | 0.00003   | 0.00011   |      | #148      | 0.00002   | 0.00008   |
|      | #22             | 0.00015   | 0.00050   |      | #149/#139 | 0.00002   | 0.00008   |
| TrCB | #23             | 0.00003   | 0.00011   |      | #150      | 0.00002   | 0.00008   |
|      | #24             | 0.00003   | 0.00011   |      | #151      | 0.00002   | 0.00008   |
|      | #25             | 0.00003   | 0.00011   |      | #152      | 0.00002   | 0.00008   |
|      | #26             | 0.00007   | 0.00024   |      | #153      | 0.00007   | 0.00025   |
|      | #27             | 0.00003   | 0.00011   |      | #154      | 0.00002   | 0.00008   |
|      | #28             | 0.00039   | 0.00128   |      | #155      | 0.00001   | 0.00005   |
|      | #29             | 0.00003   | 0.00011   |      | #156      | 0.00002   | 0.00007   |
|      | #30             | 0.00003   | 0.00011   |      | #157      | 0.00002   | 0.00008   |
|      | #31             | 0.00031   | 0.00105   |      | #158      | 0.00002   | 0.00008   |
|      | #32             | 0.00014   | 0.00047   |      | #159      | 0.00002   | 0.00008   |
| TrCB | #34             | 0.00003   | 0.00011   |      | #160      | 0.00002   | 0.00008   |
|      | #35             | 0.00004   | 0.00012   |      | #161      | 0.00002   | 0.00008   |
|      | #36             | 0.00003   | 0.00011   |      | #162      | 0.00002   | 0.00008   |
|      | #37             | 0.00015   | 0.00051   |      | #164/#163 | 0.00002   | 0.00008   |
|      | #38             | 0.00004   | 0.00013   |      | #165      | 0.00002   | 0.00008   |
|      | #39             | 0.00003   | 0.00011   |      | #166      | 0.00002   | 0.00008   |
|      | #40             | 0.00002   | 0.00006   |      | #167      | 0.00002   | 0.00007   |
|      | #41             | 0.00002   | 0.00006   |      | #168      | 0.00002   | 0.00008   |
|      | #42             | 0.00002   | 0.00006   |      | #169      | 0.00003   | 0.00010   |
|      | #43/#49         | 0.00012   | 0.00040   | HpCB | #170      | 0.00006   | 0.00019   |
| TrCB | #44             | 0.00011   | 0.00038   |      | #171      | 0.00005   | 0.00016   |
|      | #45             | 0.00002   | 0.00006   |      | #172      | 0.00005   | 0.00016   |
|      | #46             | 0.00002   | 0.00006   |      | #173      | 0.00005   | 0.00016   |
|      | #50             | 0.00002   | 0.00006   |      | #174      | 0.00005   | 0.00016   |
|      | #51             | 0.00002   | 0.00006   |      | #175      | 0.00005   | 0.00016   |
|      | #52/#69         | 0.00026   | 0.00086   |      | #176      | 0.00005   | 0.00016   |
|      | #53             | 0.00002   | 0.00006   |      | #177      | 0.00005   | 0.00016   |
|      | #54             | 0.00001   | 0.00004   |      | #178      | 0.00005   | 0.00016   |
|      | #55             | 0.00002   | 0.00006   |      | #179      | 0.00005   | 0.00016   |
|      | #56             | 0.00007   | 0.00024   |      | #180      | 0.00005   | 0.00018   |
| TrCB | #57             | 0.00001   | 0.00004   |      | #181      | 0.00005   | 0.00016   |
|      | #59             | 0.00002   | 0.00006   |      | #182/#187 | 0.00005   | 0.00017   |
|      | #60             | 0.00005   | 0.00015   |      | #183      | 0.00005   | 0.00016   |
|      | #61             | 0.00002   | 0.00006   |      | #184      | 0.00005   | 0.00016   |
|      | #62             | 0.00002   | 0.00006   |      | #185      | 0.00005   | 0.00016   |
|      | #63/#58         | 0.00002   | 0.00006   |      | #186      | 0.00005   | 0.00016   |
|      | #64             | 0.00006   | 0.00021   |      | #188      | 0.00004   | 0.00012   |
|      | #65/#75/#48/#47 | 0.00027   | 0.00090   |      | #189      | 0.00004   | 0.00015   |
|      | #67             | 0.00002   | 0.00006   |      | #190      | 0.00005   | 0.00016   |
|      | #68             | 0.00002   | 0.00006   | OcCB | #191      | 0.00005   | 0.00016   |
| TrCB | #70             | 0.00009   | 0.00030   |      | #192      | 0.00005   | 0.00016   |
|      | #72/#71         | 0.00002   | 0.00006   |      | #193      | 0.00005   | 0.00016   |
|      | #73             | 0.00002   | 0.00006   |      | #194      | 0.00004   | 0.00012   |
|      | #74             | 0.00007   | 0.00023   |      | #195      | 0.00002   | 0.00008   |
|      | #76             | 0.00002   | 0.00006   |      | #196      | 0.00002   | 0.00005   |
|      | #77             | 0.00004   | 0.00013   |      | #197      | 0.00002   | 0.00005   |
|      | #78             | 0.00002   | 0.00006   |      | #198      | 0.00002   | 0.00005   |
|      | #79             | 0.00002   | 0.00007   |      | #199      | 0.00002   | 0.00005   |
|      | #80/#66         | 0.00018   | 0.00059   |      | #200      | 0.00002   | 0.00005   |
|      | #81             | 0.00002   | 0.00007   |      | #201      | 0.00002   | 0.00005   |
| PeCB | #82             | 0.00002   | 0.00006   |      | #202      | 0.00001   | 0.00003   |
|      | #83             | 0.00002   | 0.00006   |      | #203      | 0.00001   | 0.00005   |
|      | #84/#92         | 0.00002   | 0.00006   |      | #204      | 0.00002   | 0.00005   |
|      | #85             | 0.00002   | 0.00006   |      | #205      | 0.00001   | 0.00005   |
|      | #86/#117/#97    | 0.00002   | 0.00006   | NoCB | #206      | 0.00002   | 0.00008   |
|      | #87/#115        | 0.00004   | 0.00012   |      | #207      | 0.00002   | 0.00007   |
|      | #88             | 0.00002   | 0.00006   |      | #208      | 0.00002   | 0.00007   |
|      | #89             | 0.00002   | 0.00006   | DeCB | #209      | 0.00005   | 0.00016   |
|      | #90             | 0.00002   | 0.00006   |      |           |           |           |
|      | #91             | 0.00002   | 0.00006   |      |           |           |           |
|      | #94             | 0.00002   | 0.00006   |      |           |           |           |
|      | #96             | 0.00002   | 0.00006   |      |           |           |           |
|      | #98/#95         | 0.00004   | 0.00013   |      |           |           |           |
|      | #99             | 0.00004   | 0.00014   |      |           |           |           |
|      | #100            | 0.00002   | 0.00006   |      |           |           |           |
|      | #101            | 0.00003   | 0.00010   |      |           |           |           |
|      | #102/#93        | 0.00002   | 0.00006   |      |           |           |           |
|      | #103            | 0.00002   | 0.00006   |      |           |           |           |
|      | #104            | 0.00002   | 0.00008   |      |           |           |           |
|      | #105            | 0.00008   | 0.00028   |      |           |           |           |
|      | #106            | 0.00002   | 0.00006   |      |           |           |           |
|      | #108            | 0.00002   | 0.00006   |      |           |           |           |
|      | #109/#107       | 0.00002   | 0.00006   |      |           |           |           |
|      | #110/#120       | 0.00010   | 0.00034   |      |           |           |           |
|      | #111            | 0.00002   | 0.00006   |      |           |           |           |
|      | #112/#119       | 0.00002   | 0.00006   |      |           |           |           |
|      | #113            | 0.00002   | 0.00006   |      |           |           |           |
|      | #114            | 0.00004   | 0.00014   |      |           |           |           |
|      | #118            | 0.00013   | 0.00044   |      |           |           |           |
|      | #121            | 0.00002   | 0.00006   |      |           |           |           |
|      | #122            | 0.00002   | 0.00006   |      |           |           |           |
|      | #123            | 0.00004   | 0.00012   |      |           |           |           |
|      | #124            | 0.00002   | 0.00006   |      |           |           |           |
|      | #125/#116       | 0.00002   | 0.00006   |      |           |           |           |
|      | #126            | 0.00004   | 0.00015   |      |           |           |           |
|      | #127            | 0.00002   | 0.00006   |      |           |           |           |

表 2 10 群からの PCBs 摂取量

| (ng/person/day) |      |      |      |      |      |      |      |      |      |      |
|-----------------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|
| PCBs            | 地域   |      |      |      |      |      |      |      |      |      |
| 同族体             | A    | B    | C    | D    | E    | F    | G    | H    | I    | J    |
| MoCBs           | 0.14 | 0.15 | 0.10 | 0.11 | 0.14 | 1.6  | 0.10 | 0.16 | 0.15 | 0.21 |
| DiCBs           | 1.3  | 1.3  | 1.9  | 1.0  | 0.95 | 3.7  | 1.2  | 0.92 | 1.1  | 4.6  |
| TrCBs           | 18   | 10   | 8.5  | 7.1  | 5.7  | 10   | 6.3  | 5.8  | 7.7  | 8.2  |
| TeCBs           | 70   | 39   | 33   | 24   | 24   | 42   | 24   | 31   | 34   | 33   |
| PeCBs           | 131  | 64   | 78   | 40   | 40   | 84   | 42   | 68   | 64   | 64   |
| HxCBs           | 131  | 70   | 110  | 44   | 54   | 134  | 50   | 108  | 79   | 90   |
| HpCBs           | 36   | 21   | 31   | 13   | 19   | 59   | 17   | 45   | 26   | 32   |
| OcCBs           | 5.0  | 4.2  | 3.9  | 2.6  | 3.7  | 14   | 2.8  | 11   | 4.1  | 7.2  |
| NoCBs           | 0.72 | 0.52 | 0.49 | 0.38 | 0.46 | 1.2  | 0.38 | 3.4  | 0.51 | 0.76 |
| DeCB            | 0.40 | 0.30 | 0.28 | 0.22 | 0.23 | 0.49 | 0.29 | 1.5  | 0.25 | 0.24 |
| 総PCBs           | 393  | 211  | 267  | 132  | 148  | 349  | 144  | 274  | 217  | 241  |

表 3 11 群からの PCBs 摂取量

| (ng/person/day) |        |       |       |       |       |       |       |       |       |       |
|-----------------|--------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|
| PCBs            | 地域     |       |       |       |       |       |       |       |       |       |
| 同族体             | A      | B     | C     | D     | E     | F     | G     | H     | I     | J     |
| MoCBs           | 0.027  | 0.10  | 0.016 | 0.057 | 0.048 | 0.12  | 0.12  | 0.052 | 0.20  | 0.013 |
| DiCBs           | 0.16   | 0.32  | 0.44  | 0.011 | 0.033 | 0.51  | 0.40  | 0.26  | 0.016 | 0.33  |
| TrCBs           | 0.30   | 0.21  | 0.50  | 0.09  | 0.12  | 0.29  | 0.15  | 0.14  | 0.15  | 0.36  |
| TeCBs           | 0.67   | 1.3   | 2.8   | 0.77  | 0.54  | 1.6   | 0.84  | 1.0   | 0.67  | 0.88  |
| PeCBs           | 1.0    | 3.2   | 9.4   | 2.4   | 1.4   | 3.1   | 1.6   | 2.2   | 1.5   | 1.7   |
| HxCBs           | 1.5    | 6.3   | 21    | 4.2   | 2.4   | 6.6   | 3.0   | 2.5   | 3.1   | 3.9   |
| HpCBs           | 0.57   | 2.8   | 7.3   | 1.3   | 1.1   | 3.2   | 1.3   | 1.0   | 1.3   | 2.6   |
| OcCBs           | 0.14   | 0.59  | 1.4   | 0.26  | 0.22  | 0.73  | 0.23  | 0.22  | 0.28  | 0.74  |
| NoCBs           | 0.030  | 0.13  | 0.20  | 0.050 | 0.033 | 0.17  | 0.051 | 0.044 | 0.060 | 0.082 |
| DeCB            | 0.0095 | 0.067 | 0.081 | 0.021 | 0.023 | 0.072 | 0.041 | 0.025 | 0.034 | 0.024 |
| 総PCBs           | 4.4    | 15    | 43    | 9.1   | 5.9   | 16    | 7.7   | 7.3   | 7.3   | 11    |

表 4 10 群と 11 群からの PCBs 摂取量の合計値

| (ng/person/day) |      |      |      |      |      |      |      |      |      |      |
|-----------------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|
| PCBs            | 地域   |      |      |      |      |      |      |      |      |      |
| 同族体             | A    | B    | C    | D    | E    | F    | G    | H    | I    | J    |
| MoCBs           | 0.16 | 0.26 | 0.12 | 0.17 | 0.19 | 1.7  | 0.22 | 0.21 | 0.35 | 0.22 |
| DiCBs           | 1.5  | 1.6  | 2.3  | 1.0  | 1.0  | 4.2  | 1.6  | 1.2  | 1.1  | 4.9  |
| TrCBs           | 18   | 10   | 9.0  | 7.2  | 5.8  | 11   | 6.5  | 5.9  | 7.9  | 8.6  |
| TeCBs           | 70   | 41   | 36   | 25   | 24   | 44   | 25   | 32   | 34   | 34   |
| PeCBs           | 132  | 67   | 88   | 42   | 41   | 87   | 44   | 70   | 66   | 65   |
| HxCBs           | 133  | 76   | 130  | 48   | 56   | 140  | 53   | 110  | 82   | 94   |
| HpCBs           | 37   | 24   | 38   | 14   | 21   | 62   | 18   | 46   | 27   | 35   |
| OcCBs           | 5.1  | 4.8  | 5.3  | 2.9  | 3.9  | 14   | 3.0  | 11   | 4.4  | 8.0  |
| NoCBs           | 0.75 | 0.64 | 0.69 | 0.43 | 0.49 | 1.3  | 0.43 | 3.4  | 0.57 | 0.84 |
| DeCB            | 0.41 | 0.37 | 0.36 | 0.24 | 0.25 | 0.56 | 0.33 | 1.5  | 0.29 | 0.27 |
| 総PCBs           | 398  | 226  | 310  | 141  | 154  | 366  | 152  | 282  | 224  | 252  |

表 5 10 群と 11 群試料からの 6PCBs 及び NDL-PCBs 摂取量

| (ng/person/day) |          |     |     |     |     |     |     |     |     |     |     |     |
|-----------------|----------|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|
| 食品群             | PCBs     | 地域  |     |     |     |     |     |     |     |     |     | 平均値 |
|                 |          | A   | B   | C   | D   | E   | F   | G   | H   | I   | J   |     |
| 10群             | 6PCBs    | 125 | 65  | 86  | 40  | 46  | 112 | 46  | 84  | 69  | 75  | 75  |
|                 | NDL-PCBs | 357 | 193 | 246 | 120 | 136 | 327 | 132 | 255 | 199 | 223 | 219 |
| 11群             | 6PCBs    | 1.5 | 5.6 | 18  | 3.6 | 2.1 | 5.6 | 2.7 | 2.4 | 2.9 | 4.3 | 4.8 |
|                 | NDL-PCBs | 3.9 | 14  | 37  | 8.2 | 5.2 | 15  | 7.0 | 6.6 | 6.5 | 9.6 | 11  |
| 10群と11群         | 6PCBs    | 126 | 71  | 104 | 44  | 48  | 118 | 49  | 87  | 72  | 79  | 80  |
| の合計             | NDL-PCBs | 361 | 206 | 283 | 129 | 142 | 341 | 139 | 262 | 206 | 232 | 230 |

表 6 主要な NDL-PCBs 異性体のばく露マージン

| NDL-PCBs | 最小毒性量*<br>( $\mu\text{g}/\text{kg}$ 体重/日) | 一日摂取量<br>( $\text{ng}/\text{kg}$ 体重/日) | ばく露マージン<br>(MOE) |
|----------|-------------------------------------------|----------------------------------------|------------------|
| PCB 28   | 2.8                                       | 0.058                                  | 48,032           |
| PCB 52   | 107                                       | 0.14                                   | 764,062          |
| PCB 128  | 4.2                                       | 0.039                                  | 106,332          |
| PCB 153  | 7.0                                       | 0.66                                   | 10,672           |
| PCB 180  | 107                                       | 0.16                                   | 677,500          |

\*参考文献5, 6

表 7 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<br>ng/kg bw/day (ng/day) | 検出（定量）下限値<br>の取り扱い | 測定対象   | 参考文献 |
|---------|---------------|-----------------|------------------------------------|--------------------|--------|------|
| 日本（全国）  | 2024年度（令和6年度） | 1歳以上            | 5.0（250）                           | <LOD=0             | 209異性体 | 本研究  |
| 日本（東京都） | 2023年度（令和5年度） | 1歳以上            | 5.2（260）                           | <LOQ=0             | — **   | 7)   |
| ベルギー    | 2005年         | —               | —（404）<br>—（535）                   | <LOQ=0<br><LOQ=LOQ | 23異性体  | 8)   |
| アメリカ    | 2009年         | —               | —（33）                              | <LOD=0             | 7異性体   | 9)   |
| デンマーク   | 1998-2003年    | 4-14歳<br>15-75歳 | 24.9（—）<br>12.6（—）                 | <LOD=1/3LOD        | 10異性体  | 10)  |
| スウェーデン  | 2005年         | 17-79歳          | 4.9（362）                           | <LOQ=1/2LOQ        | 28異性体  | 11)  |
| 韓国      | 2008-2011年    | 19歳以上           | 3.94（—）                            | —                  | 62異性体  | 12)  |

\*食品試料を集めた時期

\*\*未掲載

表 8 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<br>ng/kg bw/day | 検出（定量）下限値<br>の取り扱い                | 参考文献 |
|---------|---------------|-------------------------------|------------------------------|-----------------------------------|------|
| 日本      | 2024年度（令和6年度） | 1歳以上                          | 1.6                          | <LOD=0                            | 本研究  |
| イタリア    | 1994-1996年    | 0.5-6歳<br>7-12歳<br>13-94歳     | 24.6<br>16.1<br>10.9         | <LOQ=LOQ                          | 13)  |
| フランス    | 2005年、2007年   | 3-17歳<br>18-79歳               | 3.77<br>2.71                 | <LOD（LOQ）=1/2LOD（LOQ）             | 14)  |
| ベルギー    | 2008年         | 15歳以上                         | 5.33                         | <LOQ=0                            | 15)  |
| オーストリア  | 2006-2011年    | 6-15歳<br>19-65歳女性<br>19-65歳男性 | 3.37<br>3.19<br>2.64         | —**                               | 16)  |
| 香港      | 2010-2011年    | 20-84歳                        | 0.68<br>1.38                 | <LOD=0<br><LOD=LOD                | 17)  |
| オーストラリア | 2017-2018年    | 2歳以上                          | 0.1<br>8<br>16               | <LOR=0<br><LOR=1/2LOR<br><LOR=LOR | 6)   |

\*食品試料を集めた時期

\*\*未掲載

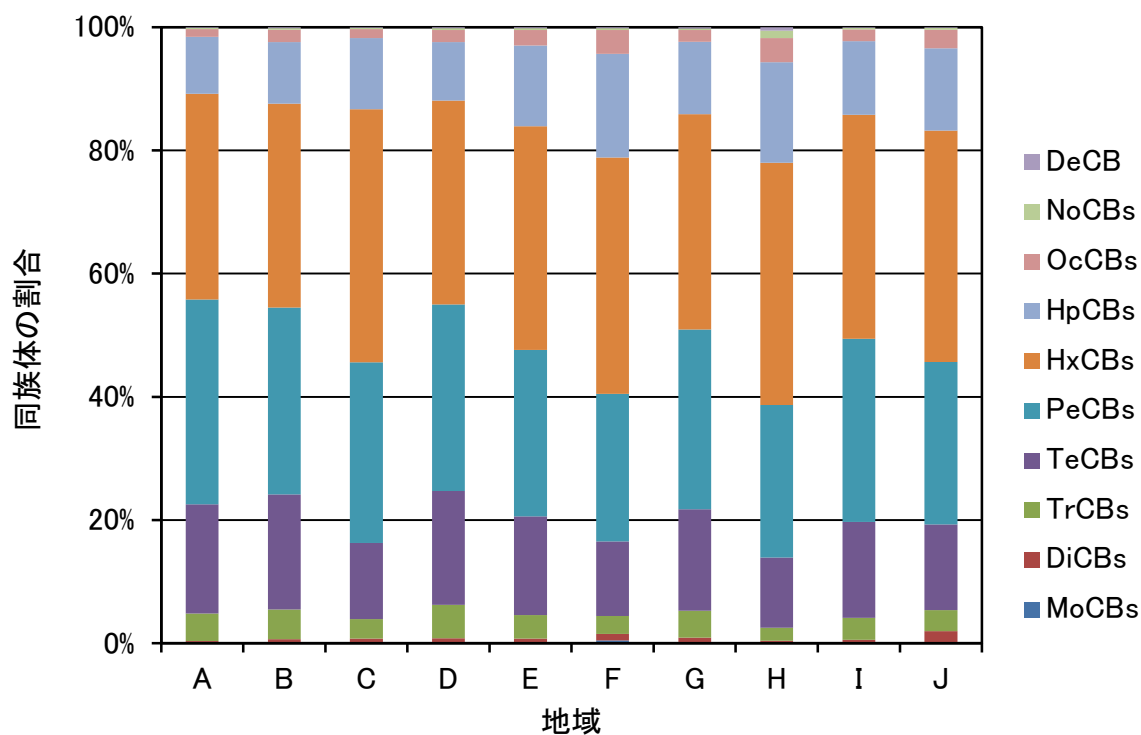


図 1 10 群からの PCBs 摂取量における PCBs 同族体の割合

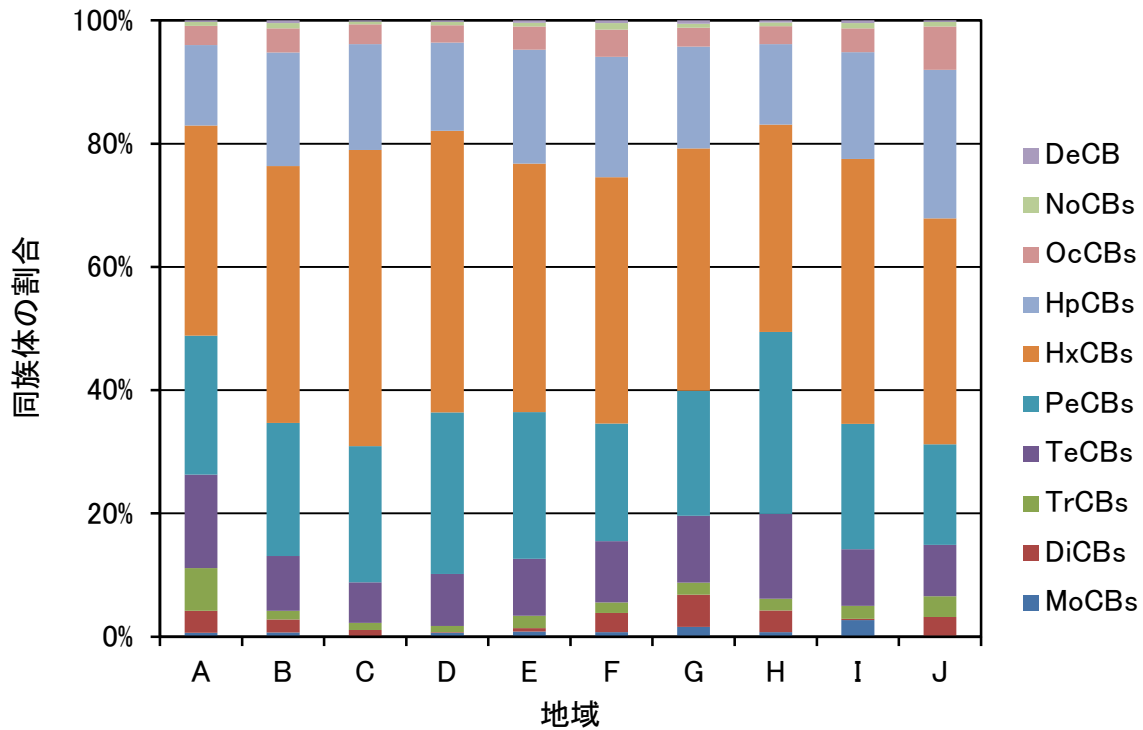


図 2 11 群からの PCBs 摂取量における PCBs 同族体の割合

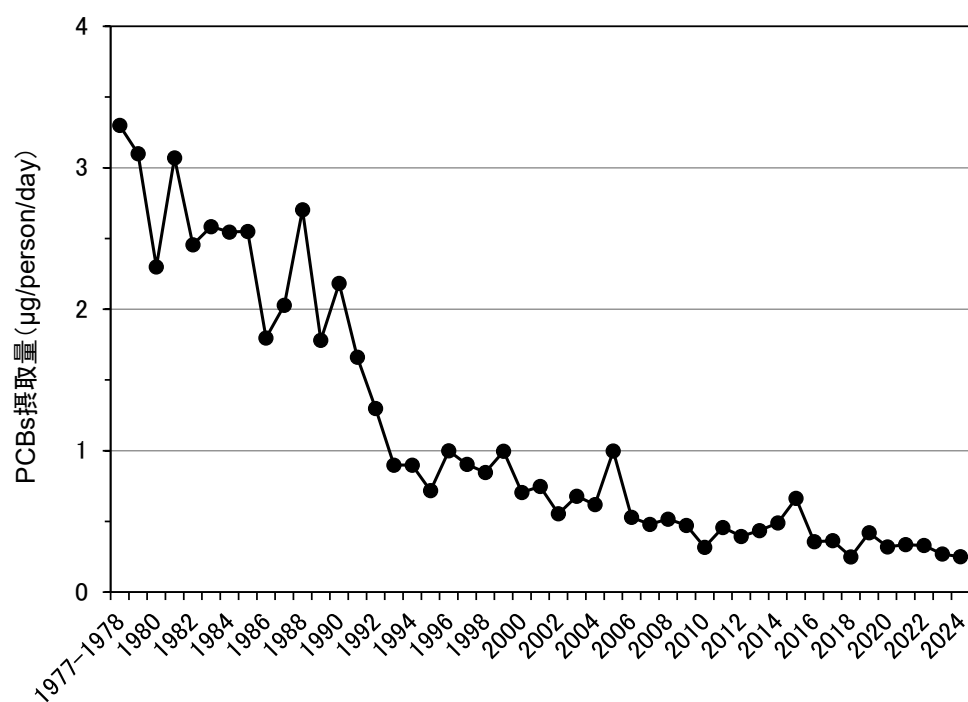


図3 総 PCBs 摂取量の経年変化(1977～2023 年)

## Ⅱ．分担研究年度終了報告書

(1) 食品に含まれる残留性有機汚染物質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有機フッ素化合物  
摂取量推定

(1-3-1) 食品中の有機フッ素化合物分析法の基礎検討

研究分担者 堤 智昭



## 令和6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

### 分担研究年度終了報告書

- (1) 食品に含まれる残留性有機汚染物質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有機フッ素化合物摂取量推定  
(1-3-1) 食品中の有機フッ素化合物分析法の基礎検討

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

本研究では、有機フッ素化合物(Per- and polyfluoroalkyl substances, PFAS)を対象とし、食品からのヒト曝露に関する研究を進めている。これまでの研究において、トータルダイエツトスタディー試料に含まれるPFASのLC-MS/MS分析を検討してきた。一連の検討の中で長鎖PFAS(C10以上)については、前処理時の損失が課題となった。今年度の研究では、これらの課題の解決に向け長鎖PFASの分析法開発に着手した。上記の懸念点から精確な長鎖PFAS分析のためには前処理に用いる固相カラムや洗浄方法の変更が必要であるものと考えられた。一方で、既存の手順の工程に変更を加えることになるため、可能な限り簡便で実現可能な方法に改良する方針とした。まず、コンディショニングが不要な固相カラムであるPRiME HLBカラムを検討した結果、4種食品における2添加濃度の絶対回収率は、PFHxDA(C16)及びPFODA(C18)を除いて全種で40%以上となった。一方で、内標準法でも対応する安定同位体標識体を有していない長鎖PFAS(PFTrDA, PFHxDA及びPFODA)の回収率については、いずれも目標値(65~135%)を満たさなかった。続く検討において、液液分散マイクロ抽出法を、牛肉試料を用いて検討した結果、絶対回収率は全種で30%以上となり、内標準法における回収率は目標値(65~135%)を満たした。試料由来のマトリックスの影響が懸念点として残るが、LCカラムの溶出条件等を変更することにより対応可能であると考えられる。

#### 研究協力者

井之上 浩一 立命館大学大学院薬学研究科  
教授  
高山 卓大 立命館大学薬学部薬学科  
助教  
加藤 紫花 立命館大学薬学部薬学科  
樋口 朋哉 立命館大学薬学部薬学科

有機フッ素化合物(Per- and polyfluoroalkyl substances, PFAS)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。そのため、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。その一方で、難分解性や高蓄積性、ヒトへの毒性の報告もあり、飲料水や食品からのヒト曝露に関して、国際的に厳密な規制が設定されてきている<sup>1~3)</sup>。ま

#### A. 研究目的

た、本邦においても、食品安全委員会において摂取量の設定が始められており、これまで以上に慎重な議論が求められている<sup>4)</sup>。我々の分担課題では、トータルダイエツトスタディー(TD)試料中のPFASを対象とした液体クロマトグラフィー-タンデム質量分析計(LC-MS/MS)を用いた分析法を検討してきた。そのなかで、PFASを短中長鎖に分けそれぞれに適切な分析法を開発する必要があると考えた。その上で、適切に分析が行えることを確認できた分析法を国立衛生医薬品食品研究所に移管し、TD試料の分析を実施していく方針と定めた。これまでに短鎖及び中鎖PFAS(C4～C9)に関しては、弱陰イオン交換型の固相抽出に基づく分析法として報告した<sup>5)</sup>。一方で、これまでの検討から、同一の分析条件での長鎖PFAS(C10以上)の分析は困難と考えられた。事実、本法に長鎖PFAS(C10以上)の分析を適用した場合、液体クロマトグラフィーでの保持が強く、溶出の安定しないカラムの洗浄工程での測定となること、また、前処理段階での非特異的吸着による損失が認められた。そこで、LCカラムをC8修飾型のものに変更して、長鎖PFASの溶出を改善することが出来たが、検討用に用いた牛肉試料の添加回収試験では絶対回収率が30%以下となり、適切な分析法に求められる性能として不十分であった。

今年度の研究では、上記の長鎖PFAS分析における課題点に対応するべく、さらなる分析法の改良を検討した。LC-MS/MSにおける溶出条件はこれまでに検討したものをを用い、固相抽出カラムや、液液分散マイクロ抽出に基づく方法を検討した。

## B. 研究方法

### 1. 試薬及び器具

標準品混合溶液は、(株)ウェリントンラボラトリージャパンよりPFAC-MXCを購入した。内標準物質(I.S.)混合溶液は、(株)ウェリントンラボラトリージャパンよりMPFAC-C-ESを購入した。それ

ぞれに含有されるPFASの名称を表1(なお、測定対象とする長鎖PFASには下線を付した。)に、測定対象物質の構造式を図1にまとめた。本実験に用いた試薬は、塩化ナトリウム(富士フイルム和光純薬社製)、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)、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)、クロロホルム(富士フイルム和光純薬社製)とした。超純水はMilli-Q EQ7000 system(Merck社製)にて精製したものを採取し、試験に用いた。

遠心分離機:日立社製 CF15RN

ホモジナイザー:KINEMATICA社製 ポリトンホモジナイザー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 PRiME HLB(1 mL/30 mg)

### 2. 測定機器及び条件

LC装置:Waters社製 Acquity H Class

MS装置:Waters社製 Xevo TQXS

Capillary voltage 2.0 kV

Extractor voltage 3 V

RF lens voltage 2.5 V

Source temperature 150°C

Desolvation temperature 400°C

MS mode MRM mode

Cone/desolvation gas flows 50/800 L/hr

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: InertSustainSwift C8 (2.1×100 mm, 1.9 mm, GL Sciences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アセトニトリル

グラジエントプログラム: A/B=50/50 (0 min) → 15/85 (13 min) → 2/98 (13.1-17 min) → 50/50 (17.1-20 min)

流速: 0.2 mL/min

注入量: 10  $\mu$ L

表 1 に対象物質のトランジションと設定した内標準物質 (I.S.) を示した。

### 3. 試験溶液の調製

標準溶液の調製方法: 標準品混合溶液は開封後、適宜分注して $-80^{\circ}\text{C}$ にて保管した。検量線用標準溶液としては、分注した標準品混合溶液をメタノールで段階希釈し、0.5~200 ng/mL の混合液を調製した。また、添加回収率試験用の標準品混合溶液として、メタノールを用いて同様に希釈した 1 及び 10 ng/mL の溶液を調製した。I.S. 混合溶液に関しても同様に、開封後、適宜分注して $-80^{\circ}\text{C}$ にて保管した。分注した溶液をメタノールにて希釈し、100 ng/mL の溶液 (I.S. 溶液) を試料調製供した。

検量線用試験溶液の調製: 検量線用標準溶液として調製した混合溶液 100  $\mu$ L と水 40  $\mu$ L 及び I.S. 溶液 10  $\mu$ L を混合し、攪拌した。得られた溶液を測定用バイアルに移して検量線用試験溶液とした。

食品試料溶液の調製 (洗浄工程まで): 食品としては牛肉、キャベツ、卵及び魚を検討した。

食品試料 5 g をアセトニトリル 20 mL を用いてホモジナイズ抽出を行った。I.S. 混合溶液の 50  $\mu$ L を添加し、内標準補正に用いた。添加回収試験実施時には、この段階で標準品混合溶液を添加した。その後、 $4^{\circ}\text{C}$ 、15,000 rpm で 10 分間遠心分離を行い、上清を回収した。さらに、残留物にアセトニトリル 10 mL を加えて同様にホモジナイズ抽出と遠心分離を行い、上清を回収した。回収した上清を、ロータリーエバポレーターを用いて約 3 mL に減圧濃縮した。この濃縮した溶液を酢酸緩衝液で約 10 mL に希釈し 1 次抽出液 (以降、食品抽出液) とした。

固相抽出カラムによる精製: 図 2 に簡潔なフロ

ーチャートとして示した。固相抽出カラム PRiME HLB (1 mL/30 mg, Waters 社製) を用いて、試料の精製及び濃縮を行った。まず、食品の抽出液 2 mL を通液し、分析対象物質を保持させた。通液後、0.1% ギ酸溶液 1 mL と水 1 mL を用いて洗浄を行い、3 分間カラムを乾燥させた。その後、0.5% トリエチルアミン含有アセトニトリル 2 mL を通して PFAS を溶出し、ポリプロピレン製の試験管に回収した。この抽出液を、窒素吹付機を用いて濃縮乾固し、100  $\mu$ L の 5 mmol/L 酢酸アンモニウム水溶液/アセトニトリル (50/50, v/v) によって再溶解した。この溶液 10  $\mu$ L を LC-MS/MS に注入した。

液液分散マイクロ抽出法による洗浄: 図 3 に簡潔なフローチャートとして示した。食品抽出液の 1 mL をポリプロピレン製チューブに分取しアセトニトリル 3 mL を添加して攪拌した。次いで NaCl 300 mg を加えて攪拌後、 $4^{\circ}\text{C}$ 、 $2,600\times g$  にて 3 分間、遠心分離を行った。その後、上清の 3.5 mL を分取し窒素吹付機を用いて約 0.7 mL まで濃縮した。これに pH 2.0 に調製した 6% の NaCl 液を 5 mL 加えた。ここにクロロホルム 800  $\mu$ L を加え攪拌後、 $4^{\circ}\text{C}$ 、 $2,600\times g$  にて 5 分間、遠心分離を行った。下層 (クロロホルム層) を全量、窒素吹付機を用いて濃縮乾固し、100  $\mu$ L の 5 mmol/L 酢酸アンモニウム水溶液/アセトニトリル (50/50, v/v) によって再溶解した。この溶液 10  $\mu$ L を LC-MS/MS に注入した。

## C. 研究結果及び考察

### 1. 固相抽出カラムの検討結果

昨年度までの検討において、短中鎖 PFAS 用の分析法における回収率を確認した。その結果、いずれの長鎖 PFAS も絶対回収率が 30% を下回っており、内標準補正を用いても目標とした回収率 (65~135%) (EURL ガイドライン (version 2.0)<sup>6)</sup> 参照) が得られなかった。上記の懸念点から精確な分析のためには前処理に用いる固相カラムや洗浄方法の変更が必要であるものと考えら

れた。一方で、既存の分析工程に変更を加えることになるため、可能な限り簡便に実現可能な方法を改良する方針とした。そこでまず、PRiME HLB を用いた検討を行った。本製品は幅広い対象物質に対して優れた吸着性と高い回収の再現性を有し、コンディショニングが不要であるため、簡潔な操作で適用可能である。中鎖 PFAS 分析法の手順を分岐させ、食品抽出液の一部を HLB 固相による処理を行うことで長鎖 PFAS に適用できないか検討した。

まず、標準品溶液を用いて溶出工程における溶媒の検討を行った。各溶媒を用いた回収率の結果を図 4 に示した。アセトニトリル、メタノール、0.5%トリエチルアミン含有アセトニトリル及び 0.5%アンモニア水含有アセトニトリルを検討した結果、いずれもアセトニトリルあるいはアセトニトリル含有溶液において、40%以上の絶対回収率が得られた。一方で、特に PFODA や PFHxDA において、著しい吸着効果から回収率が十分に確保できない傾向が認められた。これらの回収率の低下は、溶出液量を増やしても改善は認められなかった。そのため、今回の検討では溶出液として 0.5%TEA 含有アセトニトリル溶液を選択した。続いて本条件を用いて、4 種の食品における長鎖 PFAS の回収率を検討した。表 2 には内標準法による回収率の結果をまとめた。PFDA、PFUdA、PFDaA、PFTeDA、PFDS 及び PFDoS では内標準法に従う回収率が目標値(65~135%)を満たしており、摂取量調査への適用が期待できた。一方で、PFTrDA、PFHxDA 及び PFODA では内標準法による回収率は目標値から外れていた。これらの PFAS については類似する I.S.が混合液に含まれておらず、前処理における挙動あるいは質量分析における絶対的な応答が I.S.と異なるためであると考えられる。また、表 3 に示した絶対検量線法に基づく回収率に関して、特に PFHxDA 及び PFODA で 10%を切る場合があり不良であった。これら2種を含めて長鎖PFAS の中でも特に鎖長の長いものに関しては、溶出溶媒量を増やしても回収率が改善しなかったこと

から、固相担体への非特異的吸着が原因で回収率が低下した可能性が考えられた。そこで次に、固相カラムを用いない前処理法として、近年報告された液液分散マイクロ抽出法の適用を考えた。

## 2. 液液分散マイクロ抽出の検討結果

液液分散マイクロ抽出法を用いた PFAS の分析として、2021 年に Fernando らが Talanta 誌に報告している<sup>7)</sup>。本報告では、胎盤組織中の 10 種 PFAS の良好な分析(回収率が 88.2~113.9%)に成功しており、固相抽出に代わる簡便な前処理方法として期待ができる。今回、予備的な検討として、経験的に回収率の低下や試料マトリックスによる影響を受けやすいと考えられる牛肉を用いて、添加回収試験を実施した。食品抽出液を得た後の操作は極めて迅速であり、合計 1 時間程度で処理が完了する。表 4 には、内標準法と絶対検量線法に従う添加回収試験の結果を示した。内標準法において、全ての対象で目標とした回収率(65~135%)を満たしており、絶対検量線法においても全種で平均回収率 45%以上を達成した。従って、固相抽出カラムを用いた方法で認められた回収率の低下が改善しているものと考えられた。一方で、溶出位置の近い PFTrDA (6.1 分)、PFTeDA (7.2 分) 及び PFDS (5.9 分) において、目標値を上回っていたものの、絶対回収率の低下が認められた(図 5)。鎖長に相関性は無いため、5~7 分辺りに共溶出している夾雑成分によるマトリックスの影響が考えられる。そのため、これらの影響を完全に排除するためには、LC カラムの変更や追加の精製操作等が必要となるものと考えられる。

## D. 結論

食品中の長鎖 PFAS (C10 以上) の分析に向け検討を行った。まず初めに、食品抽出液の一部を用いて PRiME HLB による精製を検討した。その結果、PFDA、PFUdA、PFDaA、PFTeDA、PFDS 及び PFDoS では、内標準法に従う回収率

がいずれも目標値を満たしていた。一方で、PFTrDA, PFHxDA 及び PFODA では内標準法においても目標値から外れる場合が認められたため、固相担体への吸着が影響したものと考え、液液マイクロ分散抽出法の検討に取り組んだ。本分散抽出法の適用を行ったところ、牛肉試料において 9 種全種で良好な回収率が達成できた。

## E. 参考文献

- 1) 環境省(2020年):水質汚濁に係る人の健康の保護に関する環境基準等の施行等について。  
<https://www.env.go.jp/press/files/jp/114042.pdf>
- 2) European Food Safety Authority (2020), Risk to human health related to the presence of perfluoroalkyl substances in food.  
<https://efsa.onlinelibrary.wiley.com/doi/10.2903/j.efsa.2020.6223>.
- 3) United States Environmental Protection Agency (2022), EPA Announces New Drinking Water Health Advisories for PFAS Chemicals, \$1 Billion in Bipartisan Infrastructure Law Funding to Strengthen Health Protections.  
<https://www.epa.gov/newsreleases/epa-announces-new-drinking-water-health-advisories-pfas-chemicals-1-billion-bipartisan>
- 4) 食品安全委員会(2023年):第7回有機フッ素化合物(PFASワーキンググループ), PFAS リ ス ク 評 価 書  
<https://www.fsc.go.jp/fsciis/meetingMaterial/show/kai20240126so1>
- 5) Takayama T, Shnigu A, Nagatomo R, Tsutsumi T, Inoue K:Countermeasure for interfered monitoring ion of PFOS from intrinsic food samples based on strategic

LC-MS/MS analysis of per- and polyfluoroalkyl substances. *J. Food Composition and Analysis*, 133 , 10643 (2024)

- 6) Guidance Document on Analytical Parameters for the Determination of Per- and Polyfluoroalkyl Substances (PFAS) in Food and Feed ( Version 2.0 ), 10<sup>th</sup>, September (2024)
- 7) Vela-Soria F, García-Villanova J, Mustieles V, de Haro T, Antignac JP, Fernandez MF. Assessment of perfluoroalkyl substances in placenta by coupling salt assisted liquid-liquid extraction with dispersive liquid-liquid microextraction prior to liquid chromatography-tandem mass spectrometry. *Talanta*. 221, 121577 (2021).

## F.研究業績

1. 論文発表  
なし
2. 学会発表  
なし

表 1 PFAS 測定の SRM 条件

| Analytes of PFAS<br>(Abbreviation)            | Monitoring ions of<br>analytes | Cone voltage (V)<br>/Collision energy (eV) | I.S.                                          | Monitoring ions of<br>I.S. |
|-----------------------------------------------|--------------------------------|--------------------------------------------|-----------------------------------------------|----------------------------|
| Perfluorobutanoic acid (PFBA)                 | 213 > 169                      | 20/10                                      | $^{13}\text{C}_4$ -PFBA                       | 217 > 172                  |
| Perfluoropentanoic acid (PFPeA)               | 263 > 219                      | 20/10                                      | $^{13}\text{C}_5$ -PFPeA                      | 268 > 232                  |
| Perfluorohexanoic acid (PFHxA)                | 313 > 269                      | 20/10                                      | $^{13}\text{C}_5$ -PFHxA                      | 318 > 273                  |
| Perfluoroheptanoic acid (PFHpA)               | 363 > 319                      | 20/10                                      | $^{13}\text{C}_4$ -PFHpA                      | 367 > 322                  |
| Perfluorooctanoic acid (PFOA)                 | 413 > 369                      | 20/10                                      | $^{13}\text{C}_8$ -PFOA                       | 421 > 376                  |
| Perfluorononanoic acid (PFNA)                 | 463 > 419                      | 25/10                                      | $^{13}\text{C}_9$ -PFNA                       | 472 > 427                  |
| <u>Perfluorodecanoic acid (PFDA)</u>          | <u>513 &gt; 469</u>            | <u>25/10</u>                               | <u><math>^{13}\text{C}_{10}</math>-PFDA</u>   | <u>519 &gt; 474</u>        |
| <u>Perfluoroundecanoic acid (PFUdA)</u>       | <u>563 &gt; 519</u>            | <u>25/10</u>                               | <u><math>^{13}\text{C}_{11}</math>-PFUdA</u>  | <u>570 &gt; 525</u>        |
| <u>Perfluorododecanoic acid (PFDoA)</u>       | <u>613 &gt; 569</u>            | <u>25/10</u>                               | <u><math>^{13}\text{C}_{12}</math>-PFDoA</u>  | <u>615 &gt; 570</u>        |
| <u>Perfluorotridecanoic acid (PFTrDA)</u>     | <u>663 &gt; 619</u>            | <u>25/10</u>                               | <u><math>^{13}\text{C}_{12}</math>-PFDoA</u>  | <u>615 &gt; 570</u>        |
| <u>Perfluorotetradecanoic acid (PFTeDA)</u>   | <u>713 &gt; 669</u>            | <u>25/10</u>                               | <u><math>^{13}\text{C}_{14}</math>-PFTeDA</u> | <u>715 &gt; 670</u>        |
| <u>Perfluorohexadecanoic acid (PFHxDA)</u>    | <u>813 &gt; 769</u>            | <u>25/10</u>                               | <u><math>^{13}\text{C}_{16}</math>-PFTeDA</u> | <u>715 &gt; 670</u>        |
| <u>Perfluorooctadecanoic acid (PFODA)</u>     | <u>913 &gt; 869</u>            | <u>25/10</u>                               | <u><math>^{13}\text{C}_{18}</math>-PFTeDA</u> | <u>715 &gt; 670</u>        |
| Perfluorobutanesulfonic acid (PFBS)           | 299 > 80                       | 55/30                                      | $^{13}\text{C}_3$ -PFBS                       | 302 > 80                   |
| Perfluoropentanesulfonic acid (PFPeS)         | 349 > 80                       | 55/35                                      | $^{13}\text{C}_3$ -PFBS                       | 302 > 80                   |
| Perfluorohexanesulfonic acid (PFHxS)          | 399 > 80                       | 60/40                                      | $^{13}\text{C}_3$ -PFHxS                      | 402 > 80                   |
| Perfluoroheptanesulfonic acid (PFHpS)         | 449 > 80                       | 65/45                                      | $^{13}\text{C}_9$ -PFNA                       | 472 > 427                  |
| Perfluorooctanesulfonic acid (PFOS)           | 499 > 80                       | 65/50                                      | $^{13}\text{C}_8$ -PFOS                       | 507 > 80                   |
| Perfluorononanesulfonic acid (PFNS)           | 549 > 80                       | 60/50                                      | $^{13}\text{C}_7$ -PFUdA                      | 570 > 525                  |
| <u>Perfluorodecanesulfonic acid (PFDS)</u>    | <u>599 &gt; 80</u>             | <u>65/50</u>                               | <u><math>^{13}\text{C}_{10}</math>-PFOS</u>   | <u>507 &gt; 80</u>         |
| <u>Perfluorododecanesulfonic acid (PFDoS)</u> | <u>699 &gt; 80</u>             | <u>50/60</u>                               | <u><math>^{13}\text{C}_{12}</math>-PFOS</u>   | <u>507 &gt; 80</u>         |

※今年度の測定対象とした長鎖 PFAS には下線を付した。

表 2 PRiME HLB を用いた回収率検討(内標準法)

| Food      | 0.100 ng/g  | PFDA    | PFUdA  | PFDaA   | PFTTrDA | PFTeDA  | PFHxDA  | PFODA    | PFDS    | PFDoS   |
|-----------|-------------|---------|--------|---------|---------|---------|---------|----------|---------|---------|
|           | Average     | 0.1132  | 0.1104 | 0.1165  | 0.09150 | 0.1174  | 0.03963 | 0.02213  | 0.1178  | 0.1119  |
| Vegetable | Recovery(%) | 113.2   | 110.4  | 116.5   | 91.5    | 117.4   | 39.6    | 22.1     | 117.8   | 111.9   |
|           | RSD         | 0.4     | 0.5    | 1.0     | 1.5     | 1.3     | 7.2     | 16.4     | 1.2     | 2.5     |
|           | Average     | 0.1052  | 0.1038 | 0.1088  | 0.0847  | 0.1081  | 0.02437 | 0.0046   | 0.08277 | 0.07000 |
| Meet      | Recovery(%) | 105.2   | 103.8  | 108.8   | 84.7    | 108.1   | 24.4    | 4.6      | 82.8    | 70.0    |
|           | RSD         | 1.1     | 0.9    | 0.9     | 1.3     | 0.9     | 3.0     | 13.4     | 1.9     | 0.7     |
|           | Average     | 0.09927 | 0.1068 | 0.09780 | 0.1093  | 0.09593 | 0.03467 | 0.04117  | 0.09953 | 0.08033 |
| Fish      | Recovery(%) | 99.3    | 106.8  | 97.8    | 109.3   | 95.9    | 34.7    | 41.2     | 99.5    | 80.3    |
|           | RSD         | 1.3     | 1.5    | 1.3     | 0.5     | 0.4     | 1.6     | 7.3      | 1.2     | 2.4     |
|           | Average     | 0.1076  | 0.1123 | 0.1064  | 0.1181  | 0.1037  | 0.0372  | 0.009000 | 0.09977 | 0.07693 |
| Egg       | Recovery(%) | 107.6   | 112.3  | 106.4   | 118.1   | 103.7   | 37.2    | 9.0      | 99.8    | 76.9    |
|           | RSD         | 1.8     | 4.1    | 1.5     | 3.8     | 0.3     | 2.1     | 5.7      | 4.7     | 1.8     |
| Food      | 1.00 ng/g   | PFDA    | PFUdA  | PFDaA   | PFTTrDA | PFTeDA  | PFHxDA  | PFODA    | PFDS    | PFDoS   |
|           | Average     | 0.9651  | 0.9702 | 1.066   | 0.8418  | 1.070   | 0.3397  | 0.1824   | 1.124   | 1.076   |
| Vegetable | Recovery(%) | 96.5    | 97     | 106.6   | 84.2    | 107     | 34      | 18.2     | 112.4   | 107.6   |
|           | RSD         | 0.7     | 0.8    | 1.0     | 1.6     | 1.0     | 5.2     | 6.0      | 0.1     | 0.8     |
|           | Average     | 0.9648  | 0.9881 | 1.049   | 1.348   | 1.054   | 0.5517  | 0.2088   | 1.012   | 0.8344  |
| Meet      | Recovery(%) | 96.5    | 98.8   | 104.9   | 134.8   | 105.4   | 55.2    | 20.9     | 101.2   | 83.4    |
|           | RSD         | 0.7     | 0.7    | 0.7     | 5.8     | 1.4     | 1.9     | 4.0      | 3.3     | 2.1     |
|           | Average     | 0.9991  | 0.9983 | 1.002   | 1.25    | 1.01    | 0.4995  | 0.4188   | 1.065   | 0.8402  |
| Fish      | Recovery(%) | 99.9    | 99.8   | 100.2   | 125     | 101     | 50      | 41.9     | 106.5   | 84      |
|           | RSD         | 1.0     | 0.6    | 0.6     | 4.3     | 1.3     | 8.9     | 13.0     | 4.9     | 5.4     |
|           | Average     | 1.021   | 1.019  | 1.086   | 1.566   | 1.058   | 0.4636  | 0.1169   | 1.1     | 0.9234  |
| Egg       | Recovery(%) | 102.1   | 101.9  | 108.6   | 156.6   | 105.8   | 46.4    | 11.7     | 110.0   | 92.3    |
|           | RSD         | 0.7     | 1.3    | 0.7     | 3.3     | 0.7     | 2.8     | 13.0     | 2.0     | 1.9     |

表 3 PRiME HLB を用いた回収率検討(絶対検量線法)

| Food      | 0.100 ng/g  | PFDA    | PFUdA   | PFDaA   | PFTTrDA | PFTeDA  | PFHxDA   | PFODA    | PFDS    | PFDoS   |
|-----------|-------------|---------|---------|---------|---------|---------|----------|----------|---------|---------|
|           | Average     | 0.1054  | 0.0985  | 0.1002  | 0.07870 | 0.06007 | 0.01553  | 0.006433 | 0.101   | 0.0531  |
| Vegetable | Recovery(%) | 105.4   | 98.5    | 100.2   | 78.7    | 60.1    | 15.5     | 6.4      | 101     | 53.1    |
|           | RSD         | 0.2     | 0.6     | 0.6     | 1.7     | 0.4     | 12.5     | 33.7     | 2.1     | 4.7     |
|           | Average     | 0.09463 | 0.09907 | 0.09927 | 0.0749  | 0.04423 | 0.003333 | 0        | 0.07337 | 0.02153 |
| Meet      | Recovery(%) | 94.6    | 99.1    | 99.3    | 74.9    | 44.2    | 3.3      | 0        | 73.4    | 21.5    |
|           | RSD         | 4.2     | 2.3     | 3.2     | 1.7     | 4.4     | 7.9      | 0        | 3.6     | 5.5     |
|           | Average     | 0.10427 | 0.1207  | 0.09650 | 0.1097  | 0.08417 | 0.021    | 0.0334   | 0.0878  | 0.05987 |
| Fish      | Recovery(%) | 104.3   | 120.7   | 96.5    | 109.7   | 84.2    | 21       | 33.4     | 87.8    | 59.9    |
|           | RSD         | 1.4     | 4.7     | 3.6     | 1.2     | 1.5     | 7.9      | 11.7     | 1.8     | 0.2     |
|           | Average     | 0.04751 | 0.05766 | 0.08497 | 0.0999  | 0.07253 | 0.02167  | 0.003833 | 0.07527 | 0.0493  |
| Egg       | Recovery(%) | 47.5    | 57.7    | 85      | 99.9    | 72.5    | 21.7     | 3.8      | 75.3    | 49.3    |
|           | RSD         | 5.4     | 4.9     | 5.9     | 1.9     | 2.3     | 3.3      | 8.1      | 2.5     | 2.4     |
| Food      | 1.00 ng/g   | PFDA    | PFUdA   | PFDaA   | PFTTrDA | PFTeDA  | PFHxDA   | PFODA    | PFDS    | PFDoS   |
|           | Average     | 1.0654  | 1.028   | 0.9997  | 0.7965  | 0.607   | 0.1825   | 0.09437  | 1.020   | 0.5839  |
| Vegetable | Recovery(%) | 106.5   | 102.8   | 100     | 79.7    | 60.7    | 18.3     | 9.4      | 102.0   | 58.4    |
|           | RSD         | 2.4     | 2.4     | 1.7     | 2.2     | 3.8     | 7.6      | 6.1      | 0.9     | 2.8     |
|           | Average     | 0.8349  | 0.8385  | 0.9725  | 1.317   | 1.115   | 0.6247   | 0.2275   | 0.9264  | 0.907   |
| Meet      | Recovery(%) | 83.5    | 83.9    | 97.3    | 131.7   | 111.5   | 62.5     | 22.8     | 92.6    | 90.7    |
|           | RSD         | 2.1     | 4.6     | 8.5     | 1.6     | 4.2     | 1.5      | 6.2      | 5.2     | 1       |
|           | Average     | 0.7896  | 1.123   | 1.075   | 1.35    | 1.246   | 0.6352   | 0.5298   | 1.112   | 1.019   |
| Fish      | Recovery(%) | 79      | 112.3   | 107.5   | 135     | 124.6   | 63.5     | 53       | 111.2   | 101.9   |
|           | RSD         | 1.3     | 2       | 1.7     | 3.7     | 6       | 5.6      | 16.9     | 5.4     | 10.3    |
|           | Average     | 0.4681  | 0.5673  | 0.5787  | 0.8535  | 0.8714  | 0.3551   | 0.0887   | 0.5969  | 0.7018  |
| Egg       | Recovery(%) | 46.8    | 56.7    | 57.9    | 85.4    | 87.1    | 35.5     | 8.9      | 59.7    | 70.2    |
|           | RSD         | 11.4    | 10.4    | 16.3    | 12.0    | 6.1     | 4.5      | 13.6     | 13.7    | 4.4     |



表 4 液液分散マイクロ抽出法に従う回収率検討

| Food               | 1.00 ng/g   | PFDA   | PFUdA  | PFDoA  | PFTTrDA | PFTeDA | PFHxDA | PFODA  | PFDS   | PFDoS  |
|--------------------|-------------|--------|--------|--------|---------|--------|--------|--------|--------|--------|
| Meet<br>(Internal) | Average     | 1.08   | 1.157  | 1.126  | 0.8801  | 1.066  | 1.132  | 1.084  | 0.8939 | 1.09   |
|                    | Recovery(%) | 108    | 115.7  | 112.6  | 88      | 106.6  | 113.2  | 108.4  | 89.4   | 109    |
|                    | RSD         | 6.1    | 2.1    | 7.9    | 6.2     | 3.9    | 6.8    | 2.8    | 3.9    | 5.2    |
| Meet<br>(External) | Average     | 0.8515 | 0.8926 | 0.7649 | 0.5433  | 0.5579 | 0.7799 | 0.6681 | 0.4737 | 0.4682 |
|                    | Recovery(%) | 85.2   | 89.3   | 76.5   | 54.3    | 55.8   | 78     | 66.8   | 47.4   | 46.8   |
|                    | RSD         | 7.5    | 7.6    | 6.2    | 8.7     | 23.1   | 12.8   | 18.8   | 10.6   | 33     |

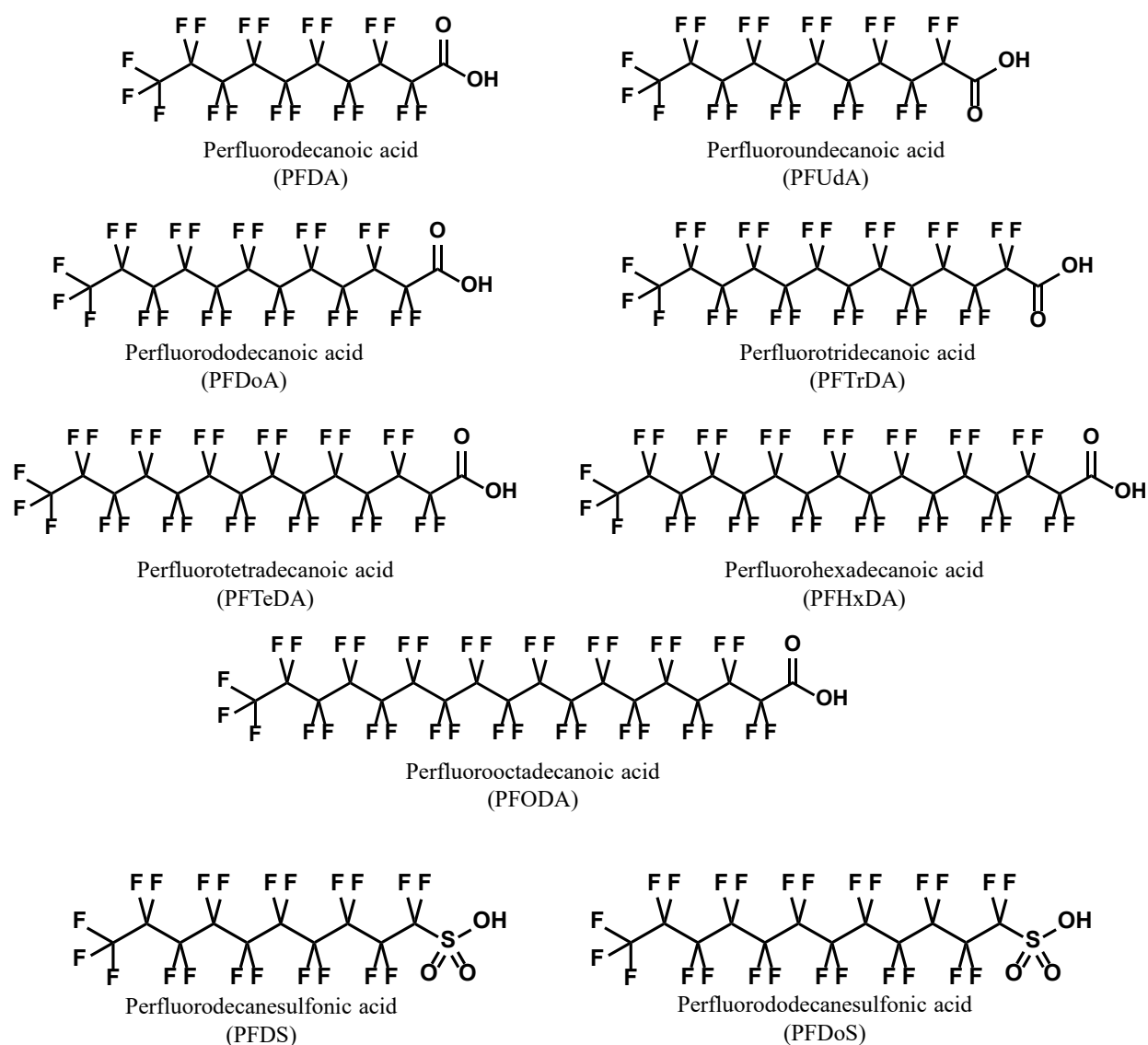


図 1 分析対象物質一覧

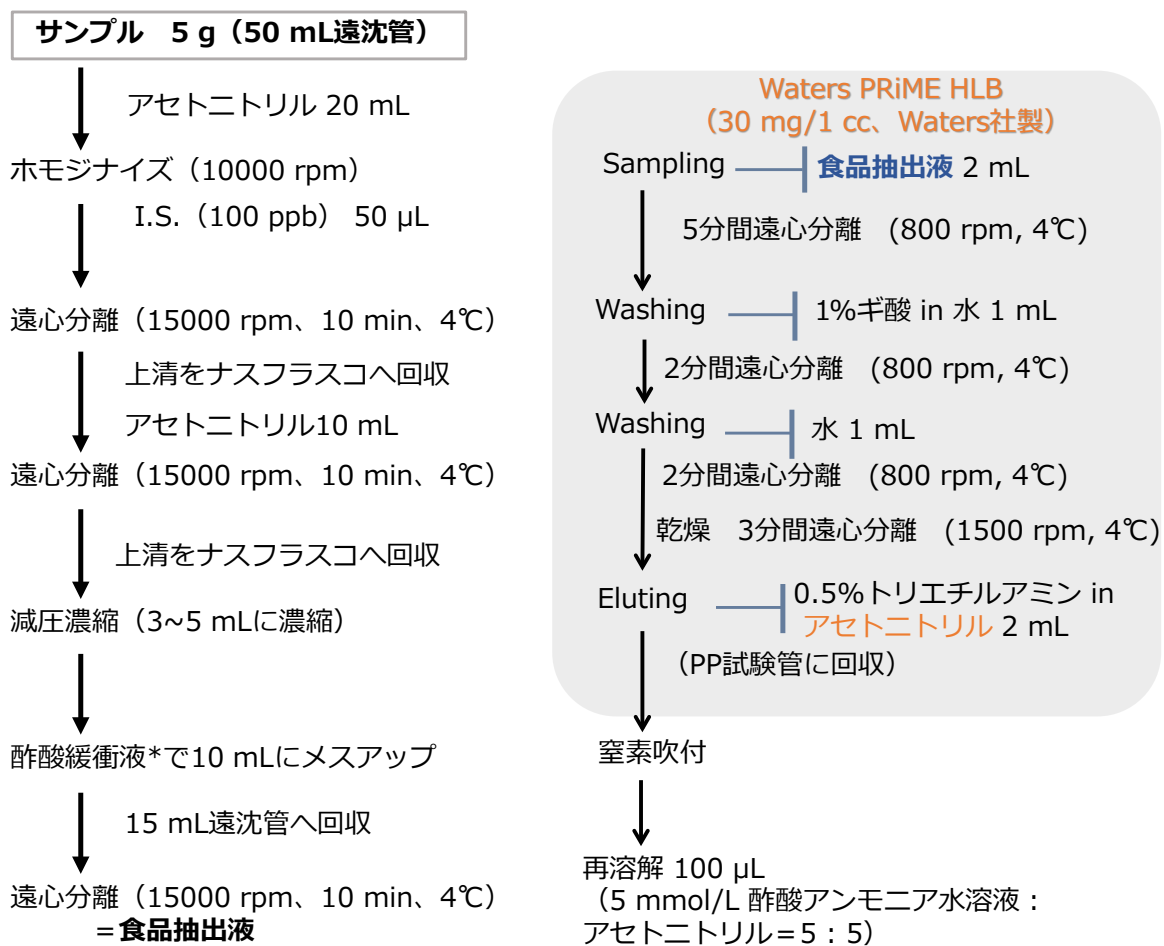
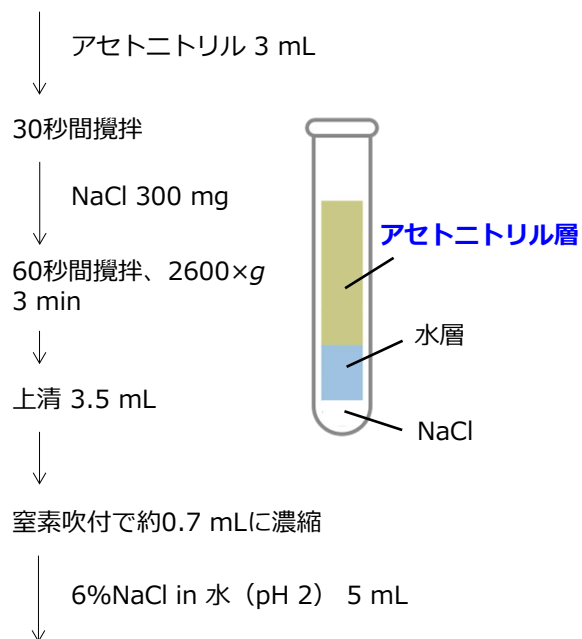


図 2 PRiME HLB を用いた前処理法のフローチャート

### 食品抽出液 1 mL



### DLLME sample

### DLLME sample

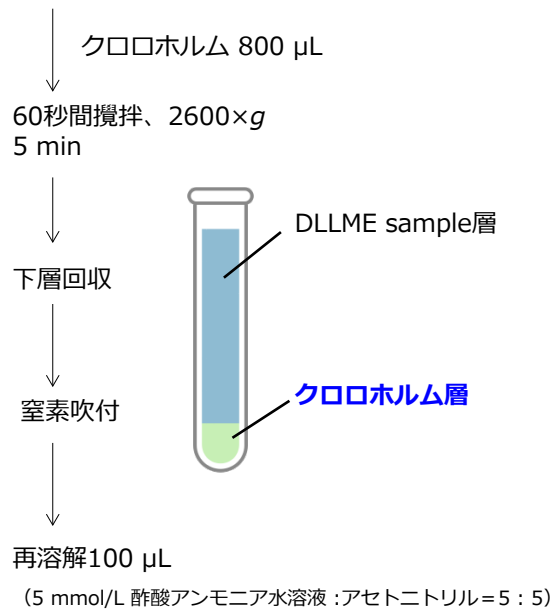


図3 液液マイクロ分散抽出法を用いた前処理法のフローチャート

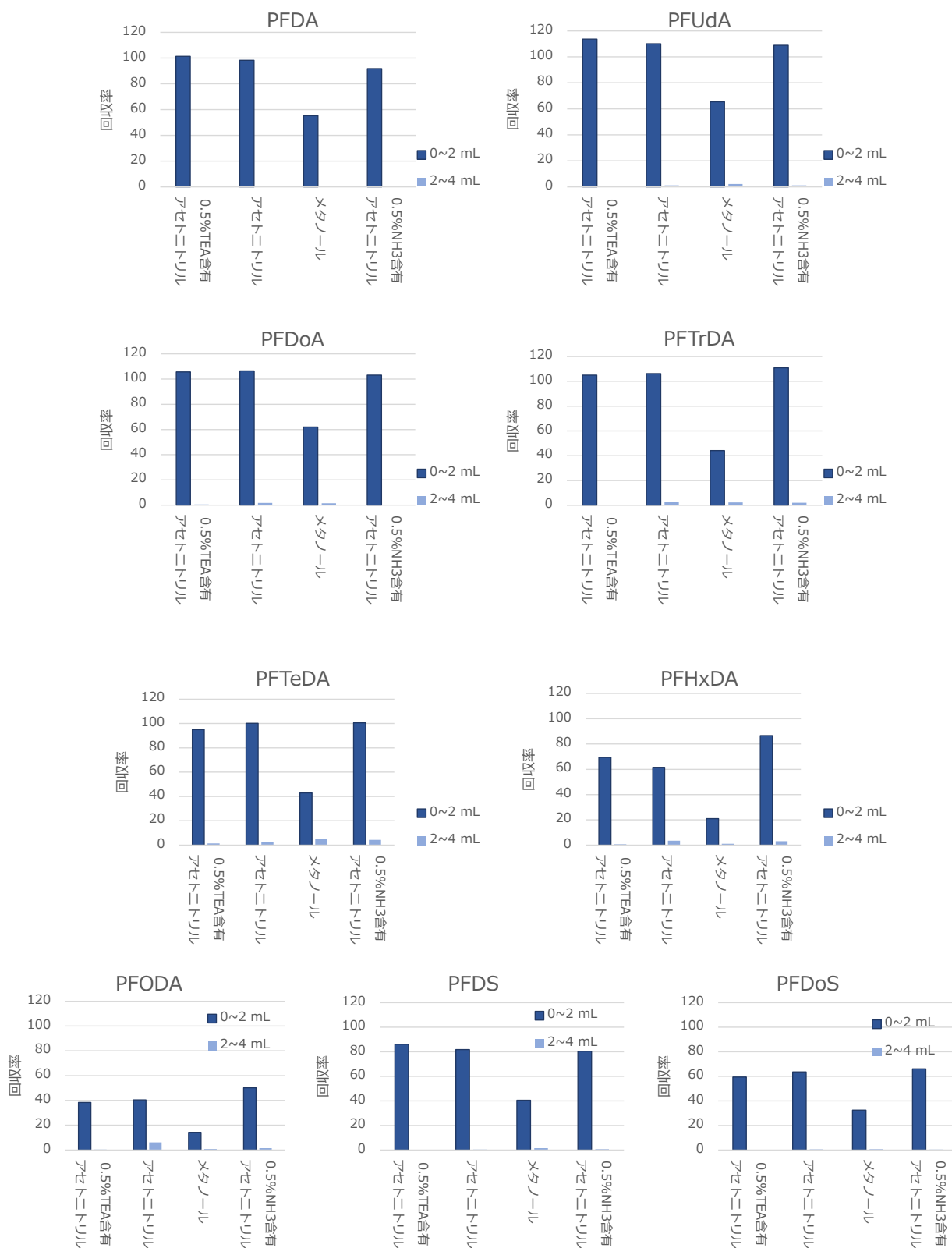


図 4 PRiME HLB 固相抽出条件の検討

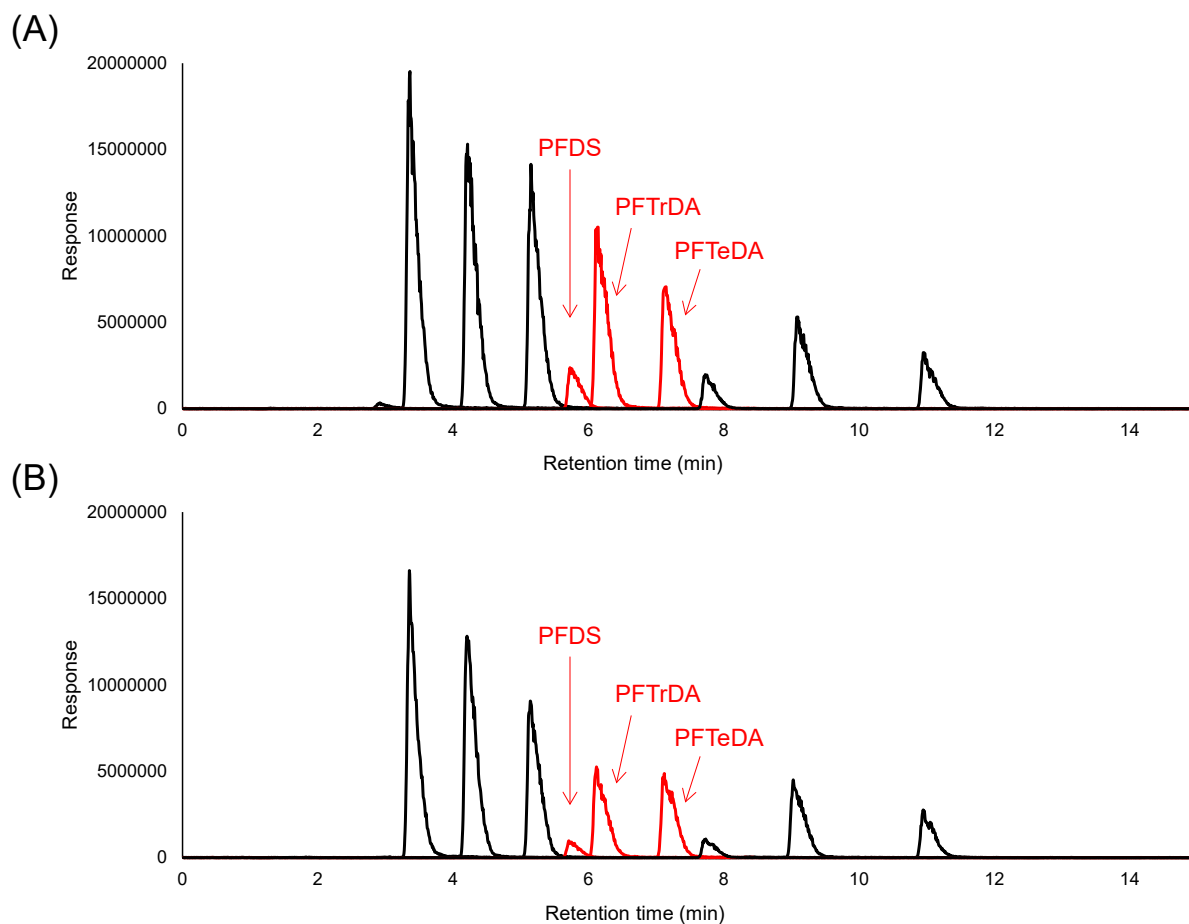


図 5 液液分散マイクロ抽出法に従う前処理液の MRM クロマトグラム

A: 標準品溶液及び B: 牛肉に添加した際のクロマトグラム。

赤線で表示した領域において顕著なマトリックス効果によるイオンサプレッションが観察される。

## Ⅱ．分担研究年度終了報告書

(1) 食品に含まれる残留性有機汚染物質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有機フッ素化合物  
摂取量推定

(1-3-2) トータルダイエツト試料中の有機フッ素化合物の分析  
及びその摂取量推定

研究分担者 堤 智昭

## 令和6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

### 分担研究年度終了報告書

(1) 食品に含まれる残留性有機汚染物質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有機フッ素化合物摂取量推定

(1-3-2) トータルダイエツト試料中の有機フッ素化合物の分析及びその摂取量推定

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

前年度に引き続き、2022年度及び2023年度に、マーケットバスケット方式により調製したトータルダイエツト(TD)試料を用いて、有機フッ素化合物(PFAS)の摂取量を推定した。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、2地域のTD試料を調製した。TD試料に含まれるパーフルオロオクタンスルホン酸(PFOS)、パーフルオロオクタン酸(PFOA)、パーフルオロヘキサンスルホン酸(PFHxS)及びパーフルオロノナン酸(PFNA)をLC-MS/MSを用いて分析し、各分子種の一日摂取量を推定した。その結果、体重(50 kgと仮定)あたりの一日摂取量(Lower-bound~Upper-bound)は、PFOSでは0.23~5.2 ng/kg bw/day、PFOAでは0.025~1.1 ng/kg bw/day、PFHxSでは0~0.44 ng/kg bw/day、PFNAでは0.063~2.0 ng/kg bw/dayの範囲と推定された。PFOS及びPFOAの推定摂取量は、食品安全委員会が食品健康影響の指標値として示した耐容一日摂取量(20 ng/kg bw/day)の1.1~26%及び0.13~5.6%に相当した。

#### 研究協力者

国立医薬品食品衛生研究所

山崎由貴、高橋未来、柏原奈央、北山育子、  
鈴木美成、中村公亮

立命館大学大学院薬学研究科

井之上 浩一、高山卓大

サンスルホン酸(PFHxS)は難分解性、高蓄積性及びヒトや高次捕食動物への長期毒性が懸念されている。これらの分子種について、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)及び化学物質の審査及び製造等の規制に関する法律(化審法)により製造・輸入が原則禁止された。2024年6月には、食品安全委員会が「有機フッ素化合物(PFAS)に係る食品健康影響評価」を公表し、現時点の科学的知見に基づいた耐容一日摂取量(TDI)として、PFOSについては20 ng/kg bw/day、PFOAについては20 ng/kg bw/dayの値が示された<sup>1)</sup>。さらに、水道法について、環境省はPFOS及びPFOAを水質管理目標設定項目から水質基準項目に引き上げることと決定し、その基準値をPFOS及びPFOAの合算

#### A. 研究目的

有機フッ素化合物(パーおよびポリフルオロアルキル物質、PFAS)は炭素-フッ素結合を持ち、撥水・撥油性、物理的及び化学的な安定性を有していることから、これまで多様な用途で使用されてきた。しかしながら、PFASの一種であるパーフルオロオクタンスルホン酸(PFOS)、パーフルオロオクタン酸(PFOA)及びパーフルオロヘキ



値として 50 ng/L に設定する予定である<sup>2)</sup>。こうした動向を受け、我が国における食品を通じた PFAS の摂取量を評価し、リスク管理の必要性について検討することが求められている。

前年度の調査では、2022 及び 2023 年度に調製した 2 地域のトータルダイエツト(TD)試料を分析し、PFOS、PFOA、PFHxS 及び PFNA の摂取量を推定した。その結果、PFOS 及び PFOA の推定摂取量は TDI の 2.0~16%及び 0.24~6.6%に相当し、食品安全委員会から示された TDI を下回ることが明らかとなった。本年度は、2022 及び 2023 年度に調製した TD 試料中のうち、前年度と異なる 2 地域の TD 試料中の PFAS を分析し、引き続き PFAS 摂取量の推定に取り組んだ。

## B. 研究方法

### 1. TD 試料

PFAS 摂取量を推定するための TD 試料は、次のように調製した。厚生労働省が実施した平成 29 年~令和元年(2017~2019 年)の国民健康・栄養調査の地域別食品摂取量(1 歳以上)を小分類ごとに平均し、各食品小分類の地域別摂取量とした。本分担研究課題では、令和 4 年度及び 5 年度(2022 年度及び 2023 年度)において、前年度と異なる 2 地域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。さらに飲料水(水道水)の群を加えて計 14 食品群とした。調製した試料は、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
- 2 群:穀類・芋類・種実類
- 3 群:砂糖類・菓子類
- 4 群:油脂類
- 5 群:豆類
- 6 群:果実類
- 7 群:緑黄色野菜

- 8 群:その他の野菜類・きのこ類・海藻類
- 9 群:嗜好飲料
- 10 群:魚介類
- 11 群:肉類・卵類
- 12 群:乳・乳製品
- 13 群:調味料類
- 14 群:飲料水

### 2. 分析対象分子種

分析対象とする PFAS 分子種は、食品安全委員会が TDI を示した PFOS 及び PFOA に加え、PFOS 及び PFOA とともに化審法に基づく第一種特定化学物質として指定されている PFHxS、及び EU において上記の 3 分子種との合計値として耐容週間摂取量が定められているパーフルオロノナン酸(PFNA)<sup>5)</sup>を含めた計 4 種とした。なお、PFAS には直鎖型及び分岐鎖型の複数の異性体が存在することが知られているが、前年度と同様に直鎖型のみを定量対象とした。

### 3. 分析

#### 3-1. 試薬

PFAS 混合標準溶液は(株)ウェリントンラボラトリージャパンよりPFAC-MXCを購入した。内部標準物質(IS)混合標準溶液は(株)ウェリントンラボラトリージャパンよりMPFAC-C-ESを購入した。

アセトニトリル(LC/MS 用)、メタノール(LC/MS 用)、アンモニア水(28.0~30.0%、特級)、1 mol/L 酢酸アンモニウム溶液(高速液体クロマトグラフィー用)及び蒸留水(LC/MS 用)は関東化学(株)より購入した。酢酸(LC/MS 用)は富士フイルム和光純薬(株)より購入した。

抽出用のステンレスボール(直径 9.5 mm)は Cole-Parmer 社より購入した。逆相-弱陰イオン交換ポリマーカートリッジカラム(WAX カラム、Strata-XL-AW、100 µm、500 mg/6 mL)は Phenomenex 社より購入した。ポリエーテルスルホン(PES)シリンジフィルター(孔径 0.2 µm、フィルター径 4 mm)は Agilent Technologies 社より購入した。

### 3-2. 機器

LC: ACQUITY UPLC CLASS-I (Waters 製)

MS: AB SCIEX Triple Quad 5500 System (SCIEX 製)

### 3-3. 試験溶液の調製

均一化した試料 5.0 g を 100 mL ポリプロピレンチューブに量りとり、各分子種の  $^{13}\text{C}$  標識体を 10 ng/mL の濃度で含む IS 混合標準溶液 0.1 mL を加えた(試料中濃度として 0.2 ng/g を添加)。次いで、3 群及び 13 群の試料については、水 5 mL も加えた。試料にアセトニトリル 20 mL を加え、ポリトロン (Model PT3100D、KINEMATICA 製) を用いて 1 分間ホモジナイズした後、0°C、3,000 rpm で 5 分間遠心分離を行った。得られた上清をナスフラスコに移した後、残渣にアセトニトリル 10 mL 及びステンレスボール 1 個を加え、振とう機 (エルビス EL 型、スギヤマゲン製) を用いて 5 分間振とうした。0°C、3,000 rpm で 5 分間遠心分離を行った後、得られた上清を合わせ、40°C で 10 mL 以下まで減圧濃縮した。これに 20 mM 酢酸緩衝液 (pH5.2) 15 mL を加えたものを抽出液とした。

WAX カラムに 2% (v/v) アンモニア水含有メタノール 10 mL、メタノール 10 mL 及び 20 mM 酢酸緩衝液 (pH5.2) 10 mL を順次注入し、コンディショニング及び平衡化を行った。このカラムに抽出液を全量負荷し、25 mM 酢酸アンモニウム水溶液 10 mL 及びメタノール 15 mL で洗浄した後、2% (v/v) アンモニア水含有メタノール 4 mL で溶出した。窒素気流により溶媒を留去し、メタノール 0.5 mL で再溶解した後、0.22  $\mu\text{m}$  PES フィルターでろ過したろ液を試験溶液とした。PFOS の分析では、必要に応じて、ろ液をメタノールで 5 倍希釈したものを試験溶液とした。

### 3-4. LC-MS/MS 測定条件

LC 分析カラム: Accura Triart C18 (YMC 製)、粒子径 1.9  $\mu\text{m}$ 、内径 2.1 mm、長さ 150 mm

ガードカートリッジカラム: Triart C18 (YMC 製)、粒子径 1.9  $\mu\text{m}$ 、細孔径 12 mm、内径 2.1 mm、長さ 5 mm

ディレイカラム: Delay column for PFAS (ジーエルサイエンス製)、内径 3.0 mm、長さ 30 mm

溶離液 A: 2.5 mM 酢酸アンモニウム水溶液

溶離液 B: アセトニトリル

流速: 0.25 mL/分

グラジエント条件: 30%B (0.0-0.5 分)  $\rightarrow$  30-95%B の直線グラジエント (0.5-15.5 分)  $\rightarrow$  95%B (15.5-21.5 分)

イオン化モード: ESI ネガティブ

カーテンガス: 30 psi

イオンスプレー電圧: -1500 V

ヒーター温度: 400°C

コリジョンガス: 10 (窒素)

ネブライザーガス: 30 psi

ターボガス: 80 psi

モニターイオン: 表 1 に示した通り

注入量: 2  $\mu\text{L}$

### 3-5. 検量線の作成

内部標準法により検量線を作成した。各分子種の濃度が 0.05、0.1、0.25、0.5、1、2、4、5、7.5 及び 10 ng/mL となるように、メタノールを用いて検量線作成用標準溶液 (10 点) を調製した。IS の濃度はいずれも 2 ng/mL とした。各標準溶液に対して 1 回測定を実施し、各分子種と対応する IS の面積比を算出した上で検量線を作成した。全ての分子種について、検量線の重み付けには  $1/x^2$  を用いた。

### 3-6. 試験溶液の測定

操作ブランクにおいて  $S/N \geq 3$  のピークが認められた場合には、試料及び添加試料における各分子種の面積値から操作ブランクにおける面積値を差し引いた上で定量を行った。

### 3-7. 定量下限値の推定

最低濃度の検量線作成用標準溶液 (0.05

ng/mL)及び操作ブランクをLC-MS/MSにより分析し、操作ブランクの寄与が30%以下<sup>6)</sup>かつS/N $\geq 10$ に相当する濃度を定量下限値(LOQ)として求めた。本分析法における各分子種のLOQは、前年度と同じく、TD 試料中の濃度として PFOS 及び PFHxS については 0.005 ng/g (ナトリウム塩として)、PFOA については 0.010 ng/g (酸として)、PFNA については 0.015 ng/g (酸として)とした。

#### 4. PFAS 摂取量の推定

TD 試料における各分子種の濃度に各群の食品摂取量を乗じ、PFOS、PFAS、PFHxS 及び PFNA の摂取量を推定した。なお、14 群(飲料水)の摂取量は 250 g/day とした。推定にあたっては、LOQ 未満の分析値を 0 として扱う場合(Lower-bound, LB)及び LOQ 未満の分析値を LOQ として扱う場合(Upper-bound, UB)の両方で摂取量を算出した。体重あたりの摂取量は、体重を 50 kg として仮定して算出した。

#### C. 研究結果及び考察

2022 及び 2023 年度に、それぞれ 2 地域において調製した TD 試料(2022-03、2022-04、2023-03 及び 2023-04)を分析し、各試料における PFOS、PFOA、PFHxS 及び PFNA の含有量を求めた(表 2)。各分子種の含有量は、いずれも酸として示した。8 群における PFOS 及び 10 群における PFHxS については、定量イオンに LOQ と同程度又は LOQ を大きく上回る夾雑物のピークが認められたことから、前年度と同様に定性イオンを用いて定量を行った。

PFOS、PFOA、PFHxS 及び PFNA について、いずれの TD 試料においても、IS 回収率は PFOS では 50~109%、PFOA では 50~105%、PFHxS では 78~108%及び PFNA では 49~113%を示し、EU のガイドラインにおける目標値(30~140%)<sup>3)</sup>を満たした。また、LOQ を上回る値を示した試料のうち、2022-03 の 11 群中の PFOS を除く全ての試料においてイオン比は PFOS では 96~119%、

PFOA では 92~99%、PFHxS では 100~105%及び PFNA では 99~103%を示し、EU のガイドラインにおける目標値(70~130%)<sup>3)</sup>を満たした。一方、2022-03 の 11 群中の PFOS についてのみ、イオン比は 68%と目標値を僅かに下回ったため、当該分析値は参考値とした。

表 2 の分析結果をもとに推定した各分子種の摂取量(LB~UB)は、PFOS では 11~262 ng/day、PFOA では 1.3~56 ng/day、PFHxS では 0~22 ng/day、PFNA では 3.2~98 ng/day であった(表 3)。日本人の平均体重を 50 kg と仮定して体重あたりの摂取量に換算すると、PFOS では 0.23~5.2 ng/kg bw/day、PFOA では 0.025~1.1 ng/kg bw/day、PFHxS では 0~0.44 ng/kg bw/day 及び PFNA では 0.063~2.0 ng/kg bw/day と推定された。PFOS 及び PFOA の推定摂取量は TDI(20 ng/kg bw/day)<sup>1)</sup>の 1.1~26%及び 0.13~5.6%に相当し、昨年度の結果と同様に、両分子種の摂取量は TDI を下回ることが示された。また、各分子種の総摂取量に対する各群の寄与率(表 4)を求めた結果、LB を用いた場合の 10 群の寄与率は、PFOS では 78.1~99.5%、PFOA では 100.0%、PFHxS では 100.0%及び PFNA では 100.0%を示したことから、PFAS の主な摂取源は 10 群であることが示唆された。

10 群のうち、2022-03 における各分子種の含有量は、PFOS では 2.561 ng/g、PFOA では 0.326 ng/g、PFHxS では 0.105 ng/g 及び PFNA では 0.627 ng/g を示し、他の試料と比べて高値であった(表 2)。最も含有量が高かった PFOS について、日本国内の調査結果とその含有量を比較した。農林水産省が令和 3 年及び 4 年度(2021 年度及び 2022 年度)に行った国内周辺水域で生産・水揚げされた水産物中に含まれる PFAS 含有量調査結果<sup>3)</sup>においては、PFOS 含有量の平均値は 0.468~0.469 ng/g(LB~UB)、最大値は 2.7 ng/g と報告されている。本研究の 2022-04、2023-03 及び 2023-04 の 10 群における PFOS 含有量(0.172~0.729 ng/g)は、農林水産省の調査結果の平均値(UB)と比較して 0.4~

1.6 倍程度と類似した値を示すことから、これらの試料における PFOS 含有量は妥当な値と考えられた。その一方、本研究の 2022-03 における PFOS 含有量は、他の試料に比較して高い値を示したものの、その含有量(2.6 ng/g)は農林水産省による調査結果の最大値(2.7 ng/g)と同程度であったことから、2022-03 に含まれる PFOS は、通常あり得ないほどの高濃度ではないと考えられた。したがって、2022-03 の 10 群試料には、PFAS を高濃度に含有する魚介類あるいはその加工品が偶発的に含まれたことが疑われた。

次に、推定された各分子種の摂取量について、先行調査との比較を行った。農林水産省が実施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スタディ(2012～2014 年度)では、体重あたりの平均摂取量(LB～UB)は、PFOS について 0.60～1.1 ng/kg bw/day、PFOA について 0.066～0.75 ng/kg bw/day と推定されており<sup>5)</sup>、本研究で推定された 2022-04、2023-03 及び 2023-04 の PFOS 及び PFOA 摂取量(0.23～1.6 ng/kg bw/day 及び 0.025～0.59 ng/kg bw/day、LB～UB)は、農林水産省の推定値と類似した値を示した。一方、2022-3 から推定された摂取量は、農林水産省が UB を用いて推定した摂取量に対して高値を示したが、これは前述の通り、当該試料に PFAS を高濃度に含有する食品が偶発的に含まれたことに起因すると考えられた。

また、EU の調査では、成人(18 歳以上 65 歳未満)の平均摂取量群における各分子種の推定摂取量(LB～UB)は、PFOS では 0.29～5.94 ng/kg bw/day、PFOA では 0.13～5.71 ng/kg bw/day、PFHxS では 0.06～5.06 ng/kg bw/day 及び PFNA では 0.02～5.25 ng/kg bw/day と報告されており<sup>6)</sup>、本研究において推定された各分子種の摂取量は、いずれも EU が示した推定摂取量の UB 未満の値を示した。このことから、我が国における PFAS の摂取量について、現時点で諸外国に比較して著しく高値を示す可能性は低いと考えられた。

## D. 結論

2022 及び 2023 年度に、それぞれ 2 地域において調製した TD 試料(2022-03、2022-04、2023-03 及び 2023-04)を分析し、PFOS、PFOA、PFHxS 及び PFNA の一日摂取量を推定した。各分子種の摂取量(LB～UB)は、PFOS では 11～262 ng/day、PFOA では 1.3～56 ng/day、PFHxS では 0～22 ng/day、PFNA では 3.2～98 ng/day と推定された。日本人の平均体重を 50 kg と仮定して体重あたりの摂取量に換算すると、PFOS では 0.23～5.2 ng/kg bw/day、PFOA では 0.025～1.1 ng/kg bw/day、PFHxS では 0～0.44 ng/kg bw/day、PFNA では 0.063～2.0 ng/kg bw/day と推定された。PFOS 及び PFOA の推定摂取量は、TDI の 1.1～26%及び 0.13～5.6%に相当し、その値は食品安全委員会から示された TDI を下回っていた。

## E. 参考文献

- 1) 食品安全委員会 有機フッ素化合物(PFAS)ワーキンググループ、有機フッ素化合物(PFAS)に係る食品健康影響評価 評価書(2024)。
- 2) 中央環境審議会水環境・土壌農薬部会 水道水質・衛生管理小委員会、水道における水質基準等の見直しについて(第1次報告)(案)(2024)。
- 3) European Union Reference Laboratory for halogenated POPs in Feed and Food, Guidance Document on Analytical Parameters for the Determination of Per- and Polyfluoroalkyl Substances (PFAS) in Food and Feed. Version 2.0 (2024)。
- 4) 農林水産省、令和3～4年度水産物中のパーフルオロアルキル化合物の実態調査結果(2023)。
- 5) 農林水産省、食品安全に関するリスクプロファイルシート(化学物質) パーフルオロアルキル化合物(2023)。
- 6) European Food Safety Authority (EFSA)。

Risk to human health related to the presence  
of perfluoroalkyl substances in food 2020.  
18(9):6223 (2020).

## F. 研究業績

### 1. 論文発表

なし

### 2. 学会発表

なし

表 1 LC-MS/MS 分析に用いたモニターイオン

| 分子種                                 | 定量イオン                           |                                |      |     |      |     | 定性イオン                           |                                |      |     |      |     |
|-------------------------------------|---------------------------------|--------------------------------|------|-----|------|-----|---------------------------------|--------------------------------|------|-----|------|-----|
|                                     | プリカーサー<br>イオン<br>( <i>m/z</i> ) | プロダクト<br>イオン<br>( <i>m/z</i> ) | DP   | EP  | CE   | CXP | プリカーサー<br>イオン<br>( <i>m/z</i> ) | プロダクト<br>イオン<br>( <i>m/z</i> ) | DP   | EP  | CE   | CXP |
| PFOS                                | 498.8                           | 80.0                           | -135 | -10 | -114 | -11 | 498.8                           | 98.9                           | -135 | -10 | -98  | -11 |
| PFOA                                | 412.9                           | 368.8                          | -60  | -10 | -14  | -31 | 412.9                           | 168.9                          | -60  | -10 | -24  | -15 |
| PFHxS                               | 398.9                           | 80.0                           | -45  | -10 | -90  | -7  | 398.9                           | 98.9                           | -45  | -10 | -42  | -9  |
| PFNA                                | 462.8                           | 418.8                          | -55  | -10 | -16  | -33 | 462.8                           | 218.8                          | -55  | -10 | -24  | -19 |
| <sup>13</sup> C <sub>8</sub> -PFOS  | 506.8                           | 80.0                           | -175 | -10 | -124 | -9  | 506.8                           | 98.9                           | -175 | -10 | -104 | -13 |
| <sup>13</sup> C <sub>8</sub> -PFOA  | 421.0                           | 375.8                          | -70  | -10 | -14  | -31 | 421.0                           | 171.9                          | -70  | -10 | -24  | -15 |
| <sup>13</sup> C <sub>3</sub> -PFHxS | 402.0                           | 98.9                           | -45  | -10 | -42  | -9  | 402.0                           | 79.9                           | -75  | -10 | -90  | -9  |
| <sup>13</sup> C <sub>9</sub> -PFNA  | 471.9                           | 426.8                          | -45  | -10 | -16  | -33 | 471.9                           | 222.8                          | -45  | -10 | -24  | -19 |

表 2 TD 試料における PFOS、PFOA、PFHxS 及び PFNA 分析結果

| PFOS                  |            |         |         |         |           |         |         |         |          |         |         |         |
|-----------------------|------------|---------|---------|---------|-----------|---------|---------|---------|----------|---------|---------|---------|
| 食品群                   | 含有量 (ng/g) |         |         |         | IS回収率 (%) |         |         |         | イオン比 (%) |         |         |         |
|                       | 2022-03    | 2022-04 | 2023-03 | 2023-04 | 2022-03   | 2022-04 | 2023-03 | 2023-04 | 2022-03  | 2022-04 | 2023-03 | 2023-04 |
| 1群 (米)                | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 75        | 79      | 81      | 79      | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |
| 2群 (穀類・芋類・種実類)        | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 105       | 81      | 101     | 81      | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |
| 3群 (砂糖類・菓子類)          | 0.011      | <LOQ    | 0.014   | <LOQ    | 91        | 92      | 89      | 80      | 112      | N/A     | 119     | N/A     |
| 4群 (油脂類)              | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 99        | 93      | 95      | 91      | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |
| 5群 (豆類)               | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 53        | 70      | 50      | 73      | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |
| 6群 (果実類)              | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 99        | 103     | 97      | 106     | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |
| 7群 (緑黄色野菜)            | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 84        | 87      | 90      | 89      | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |
| 8群 (その他の野菜類・きのこ類・海藻類) | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 109       | 84      | 102     | 82      | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |
| 9群 (嗜好飲料)             | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 100       | 101     | 102     | 103     | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |
| 10群 (魚介類)             | 2.561      | 0.198   | 0.729   | 0.172   | 102       | 105     | 79      | 100     | 99       | 102     | 98      | 99      |
| 11群 (肉類・卵類)           | (0.006)    | 0.008   | <LOQ    | 0.019   | 90        | 96      | 94      | 96      | 68       | 96      | N/A     | 102     |
| 12群 (乳・乳製品)           | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 99        | 98      | 98      | 98      | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |
| 13群 (調味料類)            | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 101       | 105     | 103     | 104     | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |
| 14群 (飲料水)             | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 96        | 95      | 97      | 98      | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |

| PFOA                  |            |         |         |         |           |         |         |         |          |         |         |         |
|-----------------------|------------|---------|---------|---------|-----------|---------|---------|---------|----------|---------|---------|---------|
| 食品群                   | 含有量 (ng/g) |         |         |         | IS回収率 (%) |         |         |         | イオン比 (%) |         |         |         |
|                       | 2022-03    | 2022-04 | 2023-03 | 2023-04 | 2022-03   | 2022-04 | 2023-03 | 2023-04 | 2022-03  | 2022-04 | 2023-03 | 2023-04 |
| 1群 (米)                | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 61        | 51      | 59      | 52      | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |
| 2群 (穀類・芋類・種実類)        | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 81        | 63      | 85      | 69      | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |
| 3群 (砂糖類・菓子類)          | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 85        | 86      | 83      | 79      | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |
| 4群 (油脂類)              | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 91        | 90      | 87      | 80      | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |
| 5群 (豆類)               | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 68        | 67      | 57      | 65      | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |
| 6群 (果実類)              | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 73        | 86      | 72      | 90      | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |
| 7群 (緑黄色野菜)            | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 86        | 81      | 91      | 70      | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |
| 8群 (その他の野菜類・きのこ類・海藻類) | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 92        | 83      | 91      | 84      | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |
| 9群 (嗜好飲料)             | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 101       | 98      | 97      | 101     | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |
| 10群 (魚介類)             | 0.326      | 0.024   | 0.054   | 0.051   | 94        | 96      | 103     | 105     | 99       | 98      | 92      | 96      |
| 11群 (肉類・卵類)           | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 84        | 95      | 88      | 96      | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |
| 12群 (乳・乳製品)           | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 84        | 89      | 99      | 83      | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |
| 13群 (調味料類)            | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 93        | 92      | 89      | 88      | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |
| 14群 (飲料水)             | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 95        | 50      | 91      | 83      | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |

| PFHxS                 |            |         |         |         |           |         |         |         |          |         |         |         |
|-----------------------|------------|---------|---------|---------|-----------|---------|---------|---------|----------|---------|---------|---------|
| 食品群                   | 含有量 (ng/g) |         |         |         | IS回収率 (%) |         |         |         | イオン比 (%) |         |         |         |
|                       | 2022-03    | 2022-04 | 2023-03 | 2023-04 | 2022-03   | 2022-04 | 2023-03 | 2023-04 | 2022-03  | 2022-04 | 2023-03 | 2023-04 |
| 1群 (米)                | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 97        | 94      | 102     | 93      | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |
| 2群 (穀類・芋類・種実類)        | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 106       | 87      | 105     | 97      | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |
| 3群 (砂糖類・菓子類)          | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 95        | 101     | 99      | 99      | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |
| 4群 (油脂類)              | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 101       | 97      | 95      | 95      | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |
| 5群 (豆類)               | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 85        | 85      | 78      | 80      | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |
| 6群 (果実類)              | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 82        | 93      | 82      | 97      | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |
| 7群 (緑黄色野菜)            | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 82        | 89      | 91      | 84      | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |
| 8群 (その他の野菜類・きのこ類・海藻類) | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 96        | 96      | 97      | 100     | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |
| 9群 (嗜好飲料)             | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 100       | 97      | 93      | 97      | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |
| 10群 (魚介類)             | 0.105      | <LOQ    | 0.020   | <LOQ    | 99        | 100     | 99      | 108     | 100      | N/A     | 105     | N/A     |
| 11群 (肉類・卵類)           | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 95        | 103     | 99      | 103     | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |
| 12群 (乳・乳製品)           | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 106       | 104     | 102     | 100     | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |
| 13群 (調味料類)            | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 104       | 104     | 106     | 106     | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |
| 14群 (飲料水)             | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 99        | 99      | 102     | 107     | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |

| PFNA                  |            |         |         |         |           |         |         |         |          |         |         |         |
|-----------------------|------------|---------|---------|---------|-----------|---------|---------|---------|----------|---------|---------|---------|
| 食品群                   | 含有量 (ng/g) |         |         |         | IS回収率 (%) |         |         |         | イオン比 (%) |         |         |         |
|                       | 2022-03    | 2022-04 | 2023-03 | 2023-04 | 2022-03   | 2022-04 | 2023-03 | 2023-04 | 2022-03  | 2022-04 | 2023-03 | 2023-04 |
| 1群 (米)                | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 53        | 52      | 54      | 49      | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |
| 2群 (穀類・芋類・種実類)        | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 83        | 61      | 84      | 64      | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |
| 3群 (砂糖類・菓子類)          | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 91        | 87      | 88      | 85      | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |
| 4群 (油脂類)              | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 93        | 90      | 89      | 82      | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |
| 5群 (豆類)               | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 80        | 83      | 67      | 72      | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |
| 6群 (果実類)              | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 72        | 81      | 72      | 88      | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |
| 7群 (緑黄色野菜)            | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 80        | 81      | 86      | 84      | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |
| 8群 (その他の野菜類・きのこ類・海藻類) | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 89        | 85      | 87      | 89      | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |
| 9群 (嗜好飲料)             | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 97        | 99      | 95      | 98      | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |
| 10群 (魚介類)             | 0.627      | 0.061   | 0.123   | 0.065   | 105       | 105     | 108     | 113     | 99       | 101     | 103     | 101     |
| 11群 (肉類・卵類)           | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 88        | 105     | 95      | 106     | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |
| 12群 (乳・乳製品)           | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 89        | 94      | 101     | 84      | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |
| 13群 (調味料類)            | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 93        | 94      | 94      | 91      | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |
| 14群 (飲料水)             | <LOQ       | <LOQ    | <LOQ    | <LOQ    | 93        | 59      | 90      | 85      | N/A      | N/A     | N/A     | N/A     |

( ): 参考値

N/A, not applicable: 分析値がLOQ未満を示したため、イオン比算出の対象外

表 3 TD 試料からの PFOS、PFOA、PFHxS 及び PFNA 摂取量

| PFOS                      |                | (ng/day) |         |         |                  |         |         |         |  |
|---------------------------|----------------|----------|---------|---------|------------------|---------|---------|---------|--|
| 食品群                       | LB (< LOQ = 0) |          |         |         | UB (< LOQ = LOQ) |         |         |         |  |
|                           | 2022-03        | 2022-04  | 2023-03 | 2023-04 | 2022-03          | 2022-04 | 2023-03 | 2023-04 |  |
| 1群(米)                     | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 2.37             | 1.92    | 2.37    | 1.92    |  |
| 2群(穀類・芋類・種実類)             | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 1.61             | 0.69    | 1.61    | 0.71    |  |
| 3群(砂糖類・菓子類)               | 0.43           | 0.00     | 0.57    | 0.00    | 0.43             | 0.15    | 0.57    | 0.15    |  |
| 4群(油脂類)                   | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 0.05             | 0.05    | 0.05    | 0.05    |  |
| 5群(豆類)                    | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 0.28             | 0.31    | 0.28    | 0.29    |  |
| 6群(果実類)                   | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 0.48             | 0.41    | 0.48    | 0.41    |  |
| 7群(緑黄色野菜)                 | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 0.40             | 0.35    | 0.40    | 0.36    |  |
| 8群(その他の野菜類・きのこ類・海藻類)      | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 0.92             | 0.81    | 0.92    | 0.81    |  |
| 9群(嗜好飲料)                  | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 2.52             | 3.19    | 2.52    | 3.19    |  |
| 10群(魚介類)                  | 249.99         | 10.37    | 69.08   | 8.89    | 249.99           | 10.37   | 69.08   | 8.89    |  |
| 11群(肉類・卵類)                | 0.84           | 1.12     | 0.00    | 2.50    | 0.84             | 1.12    | 0.72    | 2.50    |  |
| 12群(乳・乳製品)                | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 0.65             | 0.57    | 0.65    | 0.57    |  |
| 13群(調味料類)                 | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 0.33             | 0.31    | 0.33    | 0.31    |  |
| 14群(飲料水)                  | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 1.20             | 1.20    | 1.20    | 1.20    |  |
| 総摂取量                      | 251            | 11       | 70      | 11      | 262              | 21      | 81      | 21      |  |
| 体重あたりの総摂取量 (ng/kg bw/day) | 5.0            | 0.23     | 1.4     | 0.23    | 5.2              | 0.43    | 1.6     | 0.43    |  |

| PFOA                      |                | (ng/day) |         |         |                  |         |         |         |  |
|---------------------------|----------------|----------|---------|---------|------------------|---------|---------|---------|--|
| 食品群                       | LB (< LOQ = 0) |          |         |         | UB (< LOQ = LOQ) |         |         |         |  |
|                           | 2022-03        | 2022-04  | 2023-03 | 2023-04 | 2022-03          | 2022-04 | 2023-03 | 2023-04 |  |
| 1群(米)                     | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 4.95             | 4.01    | 4.95    | 4.00    |  |
| 2群(穀類・芋類・種実類)             | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 3.36             | 1.45    | 3.37    | 1.47    |  |
| 3群(砂糖類・菓子類)               | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 0.41             | 0.31    | 0.41    | 0.31    |  |
| 4群(油脂類)                   | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 0.11             | 0.11    | 0.11    | 0.11    |  |
| 5群(豆類)                    | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 0.59             | 0.65    | 0.59    | 0.60    |  |
| 6群(果実類)                   | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 1.00             | 0.86    | 1.00    | 0.86    |  |
| 7群(緑黄色野菜)                 | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 0.84             | 0.73    | 0.83    | 0.75    |  |
| 8群(その他の野菜類・きのこ類・海藻類)      | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 1.93             | 1.68    | 1.91    | 1.69    |  |
| 9群(嗜好飲料)                  | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 5.26             | 6.66    | 5.26    | 6.66    |  |
| 10群(魚介類)                  | 31.87          | 1.26     | 5.13    | 2.64    | 31.87            | 1.26    | 5.13    | 2.64    |  |
| 11群(肉類・卵類)                | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 1.51             | 1.33    | 1.50    | 1.31    |  |
| 12群(乳・乳製品)                | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 1.35             | 1.19    | 1.35    | 1.19    |  |
| 13群(調味料類)                 | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 0.69             | 0.65    | 0.69    | 0.65    |  |
| 14群(飲料水)                  | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 2.50             | 2.50    | 2.50    | 2.50    |  |
| 総摂取量                      | 32             | 1.3      | 5.1     | 2.6     | 56               | 23      | 30      | 25      |  |
| 体重あたりの総摂取量 (ng/kg bw/day) | 0.64           | 0.025    | 0.10    | 0.053   | 1.1              | 0.47    | 0.59    | 0.49    |  |

| PFHxS                     |                | (ng/day) |         |         |                  |         |         |         |  |
|---------------------------|----------------|----------|---------|---------|------------------|---------|---------|---------|--|
| 食品群                       | LB (< LOQ = 0) |          |         |         | UB (< LOQ = LOQ) |         |         |         |  |
|                           | 2022-03        | 2022-04  | 2023-03 | 2023-04 | 2022-03          | 2022-04 | 2023-03 | 2023-04 |  |
| 1群(米)                     | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 2.35             | 1.90    | 2.35    | 1.90    |  |
| 2群(穀類・芋類・種実類)             | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 1.59             | 0.69    | 1.59    | 0.70    |  |
| 3群(砂糖類・菓子類)               | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 0.19             | 0.15    | 0.19    | 0.15    |  |
| 4群(油脂類)                   | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 0.05             | 0.05    | 0.05    | 0.05    |  |
| 5群(豆類)                    | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 0.28             | 0.31    | 0.28    | 0.29    |  |
| 6群(果実類)                   | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 0.47             | 0.41    | 0.47    | 0.41    |  |
| 7群(緑黄色野菜)                 | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 0.40             | 0.35    | 0.39    | 0.36    |  |
| 8群(その他の野菜類・きのこ類・海藻類)      | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 0.91             | 0.80    | 0.91    | 0.80    |  |
| 9群(嗜好飲料)                  | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 2.49             | 3.16    | 2.49    | 3.16    |  |
| 10群(魚介類)                  | 10.30          | 0.00     | 1.91    | 0.00    | 10.30            | 0.25    | 1.91    | 0.24    |  |
| 11群(肉類・卵類)                | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 0.71             | 0.63    | 0.71    | 0.62    |  |
| 12群(乳・乳製品)                | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 0.64             | 0.56    | 0.64    | 0.56    |  |
| 13群(調味料類)                 | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 0.33             | 0.31    | 0.33    | 0.31    |  |
| 14群(飲料水)                  | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 1.18             | 1.18    | 1.18    | 1.18    |  |
| 総摂取量                      | 10             | 0.0      | 1.9     | 0.0     | 22               | 11      | 14      | 11      |  |
| 体重あたりの総摂取量 (ng/kg bw/day) | 0.21           | 0.0      | 0.038   | 0.0     | 0.44             | 0.21    | 0.27    | 0.21    |  |

| PFNA                      |                | (ng/day) |         |         |                  |         |         |         |  |
|---------------------------|----------------|----------|---------|---------|------------------|---------|---------|---------|--|
| 食品群                       | LB (< LOQ = 0) |          |         |         | UB (< LOQ = LOQ) |         |         |         |  |
|                           | 2022-03        | 2022-04  | 2023-03 | 2023-04 | 2022-03          | 2022-04 | 2023-03 | 2023-04 |  |
| 1群(米)                     | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 7.43             | 6.01    | 7.43    | 6.01    |  |
| 2群(穀類・芋類・種実類)             | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 5.04             | 2.17    | 5.05    | 2.21    |  |
| 3群(砂糖類・菓子類)               | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 0.61             | 0.47    | 0.61    | 0.47    |  |
| 4群(油脂類)                   | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 0.16             | 0.16    | 0.16    | 0.16    |  |
| 5群(豆類)                    | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 0.89             | 0.97    | 0.89    | 0.90    |  |
| 6群(果実類)                   | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 1.50             | 1.28    | 1.50    | 1.28    |  |
| 7群(緑黄色野菜)                 | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 1.26             | 1.09    | 1.25    | 1.13    |  |
| 8群(その他の野菜類・きのこ類・海藻類)      | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 2.89             | 2.52    | 2.87    | 2.53    |  |
| 9群(嗜好飲料)                  | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 7.89             | 9.99    | 7.89    | 9.99    |  |
| 10群(魚介類)                  | 61.18          | 3.17     | 11.66   | 3.35    | 61.18            | 3.17    | 11.66   | 3.35    |  |
| 11群(肉類・卵類)                | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 2.26             | 2.00    | 2.25    | 1.96    |  |
| 12群(乳・乳製品)                | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 2.02             | 1.79    | 2.02    | 1.79    |  |
| 13群(調味料類)                 | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 1.04             | 0.98    | 1.04    | 0.98    |  |
| 14群(飲料水)                  | 0.00           | 0.00     | 0.00    | 0.00    | 3.75             | 3.75    | 3.75    | 3.75    |  |
| 総摂取量                      | 61             | 3.2      | 12      | 3.3     | 98               | 36      | 48      | 36      |  |
| 体重あたりの総摂取量 (ng/kg bw/day) | 1.2            | 0.063    | 0.23    | 0.067   | 2.0              | 0.73    | 0.97    | 0.73    |  |



表 4 PFOS、PFOA、PFHxS 及び PFNA の総摂取量に対する各群の寄与率

| PFOS                 |                |         |         |         |                  |         |         |         |
|----------------------|----------------|---------|---------|---------|------------------|---------|---------|---------|
| 食品群                  | LB (< LOQ = 0) |         |         |         | UB (< LOQ = LOQ) |         |         |         |
|                      | 2022-03        | 2022-04 | 2023-03 | 2023-04 | 2022-03          | 2022-04 | 2023-03 | 2023-04 |
| 1群(米)                | 0.0            | 0.0     | 0.0     | 0.0     | 0.9              | 8.9     | 2.9     | 9.0     |
| 2群(穀類・芋類・種実類)        | 0.0            | 0.0     | 0.0     | 0.0     | 0.6              | 3.2     | 2.0     | 3.3     |
| 3群(砂糖類・菓子類)          | 0.2            | 0.0     | 0.8     | 0.0     | 0.2              | 0.7     | 0.7     | 0.7     |
| 4群(油脂類)              | 0.0            | 0.0     | 0.0     | 0.0     | 0.0              | 0.2     | 0.1     | 0.2     |
| 5群(豆類)               | 0.0            | 0.0     | 0.0     | 0.0     | 0.1              | 1.4     | 0.3     | 1.3     |
| 6群(果実類)              | 0.0            | 0.0     | 0.0     | 0.0     | 0.2              | 1.9     | 0.6     | 1.9     |
| 7群(緑黄色野菜)            | 0.0            | 0.0     | 0.0     | 0.0     | 0.2              | 1.6     | 0.5     | 1.7     |
| 8群(その他の野菜類・きのこ類・海藻類) | 0.0            | 0.0     | 0.0     | 0.0     | 0.4              | 3.8     | 1.1     | 3.8     |
| 9群(嗜好飲料)             | 0.0            | 0.0     | 0.0     | 0.0     | 1.0              | 14.9    | 3.1     | 14.9    |
| 10群(魚介類)             | 99.5           | 90.2    | 99.2    | 78.1    | 95.4             | 48.3    | 85.1    | 41.6    |
| 11群(肉類・卵類)           | 0.3            | 9.8     | 0.0     | 21.9    | 0.3              | 5.2     | 0.9     | 11.7    |
| 12群(乳・乳製品)           | 0.0            | 0.0     | 0.0     | 0.0     | 0.2              | 2.7     | 0.8     | 2.7     |
| 13群(調味料類)            | 0.0            | 0.0     | 0.0     | 0.0     | 0.1              | 1.5     | 0.4     | 1.5     |
| 14群(飲料水)             | 0.0            | 0.0     | 0.0     | 0.0     | 0.5              | 5.6     | 1.5     | 5.6     |
| 合計                   | 100.0          | 100.0   | 100.0   | 100.0   | 100.0            | 100.0   | 100.0   | 100.0   |

| PFOA                 |                |         |         |         |                  |         |         |         |
|----------------------|----------------|---------|---------|---------|------------------|---------|---------|---------|
| 食品群                  | LB (< LOQ = 0) |         |         |         | UB (< LOQ = LOQ) |         |         |         |
|                      | 2022-03        | 2022-04 | 2023-03 | 2023-04 | 2022-03          | 2022-04 | 2023-03 | 2023-04 |
| 1群(米)                | 0.0            | 0.0     | 0.0     | 0.0     | 8.8              | 17.1    | 16.7    | 16.2    |
| 2群(穀類・芋類・種実類)        | 0.0            | 0.0     | 0.0     | 0.0     | 6.0              | 6.2     | 11.4    | 6.0     |
| 3群(砂糖類・菓子類)          | 0.0            | 0.0     | 0.0     | 0.0     | 0.7              | 1.3     | 1.4     | 1.3     |
| 4群(油脂類)              | 0.0            | 0.0     | 0.0     | 0.0     | 0.2              | 0.4     | 0.4     | 0.4     |
| 5群(豆類)               | 0.0            | 0.0     | 0.0     | 0.0     | 1.0              | 2.8     | 2.0     | 2.4     |
| 6群(果実類)              | 0.0            | 0.0     | 0.0     | 0.0     | 1.8              | 3.7     | 3.4     | 3.5     |
| 7群(緑黄色野菜)            | 0.0            | 0.0     | 0.0     | 0.0     | 1.5              | 3.1     | 2.8     | 3.0     |
| 8群(その他の野菜類・きのこ類・海藻類) | 0.0            | 0.0     | 0.0     | 0.0     | 3.4              | 7.2     | 6.5     | 6.8     |
| 9群(嗜好飲料)             | 0.0            | 0.0     | 0.0     | 0.0     | 9.3              | 28.5    | 17.8    | 26.9    |
| 10群(魚介類)             | 100.0          | 100.0   | 100.0   | 100.0   | 56.5             | 5.4     | 17.3    | 10.7    |
| 11群(肉類・卵類)           | 0.0            | 0.0     | 0.0     | 0.0     | 2.7              | 5.7     | 5.1     | 5.3     |
| 12群(乳・乳製品)           | 0.0            | 0.0     | 0.0     | 0.0     | 2.4              | 5.1     | 4.6     | 4.8     |
| 13群(調味料類)            | 0.0            | 0.0     | 0.0     | 0.0     | 1.2              | 2.8     | 2.3     | 2.6     |
| 14群(飲料水)             | 0.0            | 0.0     | 0.0     | 0.0     | 4.4              | 10.7    | 8.4     | 10.1    |
| 合計                   | 100.0          | 100.0   | 100.0   | 100.0   | 100.0            | 100.0   | 100.0   | 100.0   |

| PFHxS                |                |         |         |         |                  |         |         |         |
|----------------------|----------------|---------|---------|---------|------------------|---------|---------|---------|
| 食品群                  | LB (< LOQ = 0) |         |         |         | UB (< LOQ = LOQ) |         |         |         |
|                      | 2022-03        | 2022-04 | 2023-03 | 2023-04 | 2022-03          | 2022-04 | 2023-03 | 2023-04 |
| 1群(米)                | 0.0            | N/A     | 0.0     | N/A     | 10.7             | 17.7    | 17.4    | 17.7    |
| 2群(穀類・芋類・種実類)        | 0.0            | N/A     | 0.0     | N/A     | 7.3              | 6.4     | 11.8    | 6.5     |
| 3群(砂糖類・菓子類)          | 0.0            | N/A     | 0.0     | N/A     | 0.9              | 1.4     | 1.4     | 1.4     |
| 4群(油脂類)              | 0.0            | N/A     | 0.0     | N/A     | 0.2              | 0.5     | 0.4     | 0.5     |
| 5群(豆類)               | 0.0            | N/A     | 0.0     | N/A     | 1.3              | 2.9     | 2.1     | 2.7     |
| 6群(果実類)              | 0.0            | N/A     | 0.0     | N/A     | 2.2              | 3.8     | 3.5     | 3.8     |
| 7群(緑黄色野菜)            | 0.0            | N/A     | 0.0     | N/A     | 1.8              | 3.2     | 2.9     | 3.3     |
| 8群(その他の野菜類・きのこ類・海藻類) | 0.0            | N/A     | 0.0     | N/A     | 4.2              | 7.4     | 6.7     | 7.5     |
| 9群(嗜好飲料)             | 0.0            | N/A     | 0.0     | N/A     | 11.4             | 29.4    | 18.5    | 29.4    |
| 10群(魚介類)             | 100.0          | N/A     | 100.0   | N/A     | 47.0             | 2.3     | 14.1    | 2.3     |
| 11群(肉類・卵類)           | 0.0            | N/A     | 0.0     | N/A     | 3.3              | 5.9     | 5.3     | 5.8     |
| 12群(乳・乳製品)           | 0.0            | N/A     | 0.0     | N/A     | 2.9              | 5.3     | 4.7     | 5.3     |
| 13群(調味料類)            | 0.0            | N/A     | 0.0     | N/A     | 1.5              | 2.9     | 2.4     | 2.9     |
| 14群(飲料水)             | 0.0            | N/A     | 0.0     | N/A     | 5.4              | 11.0    | 8.8     | 11.1    |
| 合計                   | 100.0          | N/A     | 100.0   | N/A     | 100.0            | 100.0   | 100.0   | 100.0   |

| PFNA                 |                |         |         |         |                  |         |         |         |
|----------------------|----------------|---------|---------|---------|------------------|---------|---------|---------|
| 食品群                  | LB (< LOQ = 0) |         |         |         | UB (< LOQ = LOQ) |         |         |         |
|                      | 2022-03        | 2022-04 | 2023-03 | 2023-04 | 2022-03          | 2022-04 | 2023-03 | 2023-04 |
| 1群(米)                | 0.0            | 0.0     | 0.0     | 0.0     | 7.6              | 16.5    | 15.4    | 16.5    |
| 2群(穀類・芋類・種実類)        | 0.0            | 0.0     | 0.0     | 0.0     | 5.2              | 6.0     | 10.4    | 6.1     |
| 3群(砂糖類・菓子類)          | 0.0            | 0.0     | 0.0     | 0.0     | 0.6              | 1.3     | 1.3     | 1.3     |
| 4群(油脂類)              | 0.0            | 0.0     | 0.0     | 0.0     | 0.2              | 0.4     | 0.3     | 0.4     |
| 5群(豆類)               | 0.0            | 0.0     | 0.0     | 0.0     | 0.9              | 2.7     | 1.8     | 2.5     |
| 6群(果実類)              | 0.0            | 0.0     | 0.0     | 0.0     | 1.5              | 3.5     | 3.1     | 3.5     |
| 7群(緑黄色野菜)            | 0.0            | 0.0     | 0.0     | 0.0     | 1.3              | 3.0     | 2.6     | 3.1     |
| 8群(その他の野菜類・きのこ類・海藻類) | 0.0            | 0.0     | 0.0     | 0.0     | 3.0              | 6.9     | 5.9     | 6.9     |
| 9群(嗜好飲料)             | 0.0            | 0.0     | 0.0     | 0.0     | 8.1              | 27.5    | 16.3    | 27.4    |
| 10群(魚介類)             | 100.0          | 100.0   | 100.0   | 100.0   | 62.5             | 8.7     | 24.1    | 9.2     |
| 11群(肉類・卵類)           | 0.0            | 0.0     | 0.0     | 0.0     | 2.3              | 5.5     | 4.7     | 5.4     |
| 12群(乳・乳製品)           | 0.0            | 0.0     | 0.0     | 0.0     | 2.1              | 4.9     | 4.2     | 4.9     |
| 13群(調味料類)            | 0.0            | 0.0     | 0.0     | 0.0     | 1.1              | 2.7     | 2.1     | 2.7     |
| 14群(飲料水)             | 0.0            | 0.0     | 0.0     | 0.0     | 3.8              | 10.3    | 7.8     | 10.3    |
| 合計                   | 100.0          | 100.0   | 100.0   | 100.0   | 100.0            | 100.0   | 100.0   | 100.0   |

N/A, not applicable: 分析値がLOQ未満を示したため、寄与率算出の対象外

## Ⅱ．分担研究年度終了報告書

(1) 食品に含まれる残留性有機汚染物質等の摂取量推定及び

汚染実態の把握に関する研究

(1-4) 乳幼児の一食分試料を用いたダイオキシン類摂取量調査

研究分担者 堤 智昭

## 令和6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

### 分担研究年度終了報告書

- (1) 食品に含まれる残留性有機汚染物質等の摂取量推定及び汚染実態の把握に関する研究  
(1-4) 乳幼児の一食分試料を用いたダイオキシン類摂取量調査

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

乳幼児は有害化学物質の影響を受けやすいと考えられることから、乳幼児期における食品を介した有害物質の摂取量を調査することは重要である。令和4年度に作製した一食分試料のDXNs分析を実施し、その分析結果に基づき乳幼児の昼食におけるDXNs摂取量を推定した。一食分試料からのDXNs摂取量の平均値(範囲)は、乳児で1.2 pg TEQ/食(0.042~15 pg TEQ/食)、幼児で5.7 pg TEQ/食(0.011~78 pg TEQ/食)であった。幼児の一食分試料の平均値は乳児と比較すると5倍程度高かった。幼児では脂肪含量が比較的高い魚を使用した一食分試料が多かったため、DXNs摂取量が高くなったと考えられた。乳児の体重を8.64 kg、幼児の体重を10.1 kgと仮定した場合、一食分試料からのDXNs摂取量(平均値)の日本の耐容一日摂取量(4 pg TEQ/kg bw/day)に占める割合は、乳児で3%程度、幼児で14%程度であった。一方で、一日に3回喫食したと仮定すると、TDIを超過する試料も認められたことから、特定の種類や産地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。

#### 研究協力者

国立医薬品食品衛生研究所

高附 巧、張 天斉、五十嵐敦子、川又香予、鍋師裕美

#### A. 研究目的

食事を介した有害物質の摂取量を推定することは、人の健康リスクの評価やリスク管理の必要性の検討に重要な情報を与える。本分担研究の他の研究課題ではマーケットバスケット方式により調製したトータルダイエツト(TD)試料を分析することで、ダイオキシン類(DXNs)やポリ塩化ビフェニル(PCBs)等の摂取量推定を継続して調査している。通常、TD 試料は、国民健康・栄養調

査で得られた食品小分類の一日摂取量(1歳以上の全年齢層)の平均値に基づいて作製される。従って、この様に作製された TD 試料を用いた有害物質の摂取量は国民の平均的な一日摂取量となる。しかし、乳幼児のように有害物質の影響を受けやすいと考えられる集団については、食品の摂取状況が全年齢層とは大きく異なるため、上述したTD 試料を用いた調査では乳幼児における摂取量を推定するのは困難と考えられる。

本研究では、保育園給食の献立を参考に乳幼児が食する一食分試料(昼食)を作製し、DXNs や PCBs の摂取量を推定するための試料とした。令和4年度には、乳幼児の一食分試料を作製した<sup>1)</sup>。令和5年度には、それらの試料の

PCBs 分析を行い、その分析結果に基づき乳幼児の昼食における PCBs 摂取量を推定した<sup>2)</sup>。今年度は、これらの一食分試料の DXNs 分析を実施し、その分析結果に基づき乳幼児の昼食における DXNs 摂取量を推定した。

## B. 研究方法

### 1. 一食分試料

令和4年度に作製した乳児(9~11ヶ月想定、32試料)及び幼児(1~2歳想定、32試料)の一食分試料を分析試料とした。一食分試料の詳細については、R5年度の報告書<sup>2)</sup>に示した。乳児の一食分試料は、各試料について“主食・汁物”(食品区分A)、“その他”(食品区分B)、及び“ミルク”(食品区分C)の3つに分けて均一化した後、各々をDXNs分析に供した。ただし、ミルクについては主な3つの製造会社の調製粉乳を各々の製品に記載の調製方法に従い調製した後、DXNs分析に供した。幼児の一食分試料は、各試料について“主食・汁物”(食品区分A)及び“その他”(食品区分B)の2つに分けて均一化した後、各々をDXNs分析に供した。全ての試料は分析に供すまで-30℃で保存した。

### 2. DXNs 分析

ダイオキシン類の分析法は、「食品中のダイオキシン類測定方法ガイドライン」(以下、ガイドライン)<sup>3)</sup>に準じた

#### 2-1. 試験溶液の調製

##### 2-1-1. “その他”及び“ミルク”の試料

均一化した試料100.0gをビーカーに量りとり、クリーンアップスパイク(<sup>13</sup>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。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 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。多層シリカゲルカラムをヘキサン 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 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 µL (<sup>13</sup>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サカラムに注入し、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 µL (PCDD/PCDFs 用 <sup>13</sup>C 標識体 40 pg、ノンオルト PCB 用 <sup>13</sup>C 標識体 100 pg) を添加し高分解能 GC/MS に供した。

##### 2-1-2. “主食・汁物”の試料

均一化した試料 100.0 g をナスフラスコに量りとり、クリーンアップスパイク (<sup>13</sup>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、アセトン 150 mL、ヘキサン 150 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 50 mL、ヘキサン 50mL を加え 15 分間振とうし、同様の操作を行なった。抽出液を分液ロートに合わせ、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。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 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 2-1-1 で記述したように多層シリカゲルカラム、アルミナカラム、及び活性炭分散シリカゲルリバースカラムにより精製後、シリンジスパイクを添加し高分解能 GC/MS に供した。

## 2-2. 高分解能 GC/MS 測定条件

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

### 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×60 m、膜厚 0.25 μm)

注入方式:スプリットレス

注入口温度:250℃

注入量:3.0 μL

昇温条件:130℃(2 分保持)-30℃/分-200℃-5℃/分-220℃(16 分保持)-6℃/分-300℃(10 分保持)

キャリアーガス:ヘリウム (流速: 1.8 mL/分)

②1,2,3,4,7,8-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、1,2,3,4,7,8,9-HpCDF、OCDF

カラム:DB-17(内径 0.25 mm×60 m、膜厚 0.25

μm)

注入方式:スプリットレス

注入口温度:250℃

注入量:3.0 μL

昇温条件:130℃(2 分保持)-30℃/分-200℃-3℃/分-280℃(30 分保持)

キャリアーガス:ヘリウム (流速: 1.5 mL/分)

### ③Co-PCBs

カラム:HT8(内径 0.22 mm×50 m、膜厚 0.25 μm)

注入方式:スプリットレス

注入口温度:260℃

注入量:3.0 μL

昇温条件:130℃(1 分保持)-15℃/分-220℃(5 分保持)-2℃/分-300℃(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℃

イオン源温度:280℃

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:ガイドライン<sup>3)</sup>に準じた。

## 2-3. 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。

DXNs 各異性体の検出下限値(LOD)は、最低濃度の検量線作成用標準液を 3 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)として求めた。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 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 とした。本分析法の検出下限値は、PCDD/PCDFs については、4 塩素化物及び 5 塩素化物が 0.001 pg/g、6 塩

素化物及び 7 塩素化物が 0.002 pg/g、8 塩素化物が 0.005 pg/g であった。Co-PCBs については、ノンオルト PCBs が 0.01 pg/g、及びモノオルト PCBs が 0.1 pg/g であった。

#### 2-4. DXNs 摂取量の推定

一食分試料における各食品区分の分析対象物の濃度に、各食品区分の食品重量を乗じて DXNs 摂取量を計算した。ただし、乳児の一食分試料のミルクについては、作製に使用する調製粉乳の DXNs 含有濃度は、製造工程を考慮すると狭い範囲であると予測された。そこで、主な 3 つの製造会社の調製粉乳より調製したミルクを分析し、それらの DXNs 濃度の平均値と一食分のミルクの食品重量 (80.0 g) を乗じた値をミルクからの DXNs 摂取量とし、全ての乳児の一食分試料に適用した。従って、乳児の各一食分試料のミルクからの DXNs 摂取量は同一の値となる。また、本研究では試料中の濃度が LOD 未満の異性体をゼロ (ND=0) として計算した

#### C. 研究結果及び考察

乳児及び幼児の一食分試料 (昼食、各 32 試料) からの DXNs 摂取量の詳細については、付表 1 及び付表 2 に示した。DXNs 摂取量のヒストグラムを図 1 に示した。いずれのヒストグラムも DXNs 摂取量が高い方に裾を引いた分布となった。両者のヒストグラムを比較すると、乳児の一食分試料からの DXNs 摂取量は、幼児と比較すると低い方に分布していた。乳児の一食分試料では水分含量が多い献立である 5 倍がゆや汁物等、一般的に DXNs 濃度が低い食品を含むために、一食分試料からの DXNs 摂取量が全体的に低くなったものと考えられた。また、一食あたりの DXNs 摂取量が 10 pg TEQ/食を超えた試料は、乳児では 1 試料 (No.18) のみであったが、幼児では 5 試料 (No. 5、No.10、No.20、No.28、No.29) あった。これらの試料はいずれも魚が食材に含まれていた。図 2 には一食分試料における各食品区

分の DXNs 摂取量に占める割合を示した。DXNs 摂取量が 10 pg TEQ/食を超えた上記の一食分試料については、いずれも魚の食材が含まれる“その他”からの DXNs 摂取量が多く、全体に占める割合が比較的高くなっていた (88%以上)。乳児の No.18 はメカジキ、幼児の No.5 はブリ、No.10 はサワラ、No.20 はムキガレイ、No.28 はサバ、No.29 はサケが含まれており、これらの食材の DXNs 濃度が比較的高かったことが推察される。特に幼児では脂肪含量が比較的高いブリ、サバ、ムキガレイ等を食材に使用していることから一食あたりの DXNs 摂取量が高くなったと考えられた。

一食分試料からの DXNs 摂取量の統計量を表 1 に示した。乳児の一食分試料からの DXNs 摂取量は、平均値が 1.2 pg TEQ/食、中央値が 0.24 pg TEQ/食、範囲が 0.042~15 pg TEQ/食であった。幼児の一食分試料からの DXNs 摂取量は、平均値が 5.7 pg TEQ/食、中央値が 1.2 pg TEQ/食、範囲が 0.011~78 pg TEQ/食であった。幼児の DXNs 摂取量の平均値は乳児と比較すると 5 倍程度高かった。体重あたりの摂取量については、平成 22 年乳幼児身体発育調査 (厚生労働省)<sup>4)</sup>を参考に、乳児については 10~11 ヶ月男女の平均体重 (8.64 kg)、幼児については 1 歳 6~7 ヶ月男女の平均体重 (10.1 kg) を用いて算出した。一食あたりの DXNs 摂取量の平均値は、乳児で 0.13 pg TEQ/kg bw/食、幼児で 0.56 pg TEQ/kg bw/食となり、日本の耐容一日摂取量 (TDI: 4 pg TEQ/kg bw/day) に占める割合は、乳児で 3%程度、幼児で 14%程度であった。今回は昼食のみを調査対象としていることから、朝食や夕食を含めた一日あたりの摂取量を推定することは難しいものの、今回の献立に基づいた一食分試料を一日に 3 回喫食したと仮定した場合の平均的な DXNs 摂取量についても TDI を下回ると考えられた。一方で、乳児で最大の摂取量となった No.18、及び幼児の No.5、No.10、No.20、No.28 については、一日に 3 回喫食したと仮定すると、TDI を超過する。DXNs 摂取量を

低減する観点からも、特定の種類や産地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。

#### D. 結論

一食分試料の DXNs 分析結果に基づき、乳幼児の昼食からの DXNs 摂取量を推定した。一食分試料からの DXNs 摂取量の平均値は乳児で 1.2 pg TEQ/食、幼児で平均値が 5.7 pg TEQ/食であった。幼児の一食分試料の平均値は乳児と比較すると 5 倍程度高かった。一食分試料からの DXNs 摂取量(平均値)の TDI に占める割合は、乳児で 3%程度、幼児で 14%程度であった。一方で、一日に 3 回喫食したと仮定すると、TDI を超過する試料も認められたことから、特定の種類や産地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。

#### E. 参考文献

- 1) 令和 4 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(食品に含まれる残留性有機汚染物質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 5 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(食品に含まれる残留性有機汚染物質等の摂取量推定及び汚染実態の把握に関する研究)
- 3) 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)

- 4) 厚生労働省雇用均等・児童家庭局 平成 22 年乳幼児身体発育調査報告書 平成 23 年 10 月

#### F.研究業績

1. 論文発表  
なし
2. 学会発表  
なし

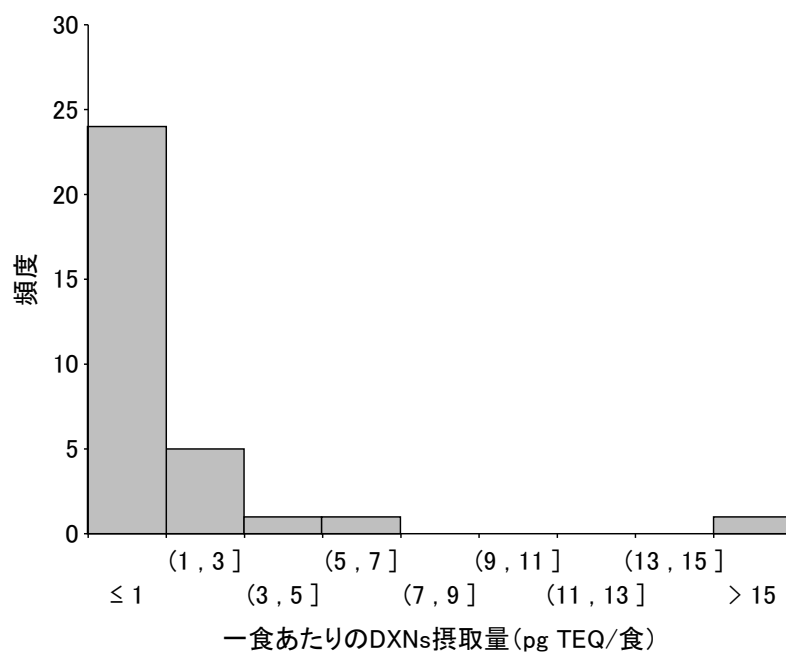
表1 一食分試料からの DXNs 摂取量の統計量

|            |                   | 乳児 ( $n = 32$ ) |           |           |        | 幼児 ( $n = 32$ ) |           |         |       |
|------------|-------------------|-----------------|-----------|-----------|--------|-----------------|-----------|---------|-------|
|            |                   | 平均値             | 最小値       | 中央値       | 最大値    | 平均値             | 最小値       | 中央値     | 最大値   |
| PCDD/PCDFs | pg TEQ/食          | 0.53            | 0.039     | 0.15      | 3.1    | 1.9             | 0.0037    | 0.66    | 15    |
|            | (pg TEQ/kg bw/食)* | (0.061)         | (0.0045)  | (0.018)   | (0.35) | (0.19)          | (0.00037) | (0.066) | (1.5) |
| Co-PCBs    | pg TEQ/食          | 0.64            | 0.0016    | 0.0057    | 12     | 3.8             | 0.0023    | 0.47    | 63    |
|            | (pg TEQ/kg bw/食)  | (0.074)         | (0.00019) | (0.00066) | (1.4)  | (0.38)          | (0.00023) | (0.046) | (6.2) |
| Dioxins ** | pg TEQ/食          | 1.2             | 0.042     | 0.24      | 15     | 5.7             | 0.011     | 1.2     | 78    |
|            | (pg TEQ/kg bw/食)  | (0.13)          | (0.0048)  | (0.028)   | (1.8)  | (0.56)          | (0.0011)  | (0.12)  | (7.7) |

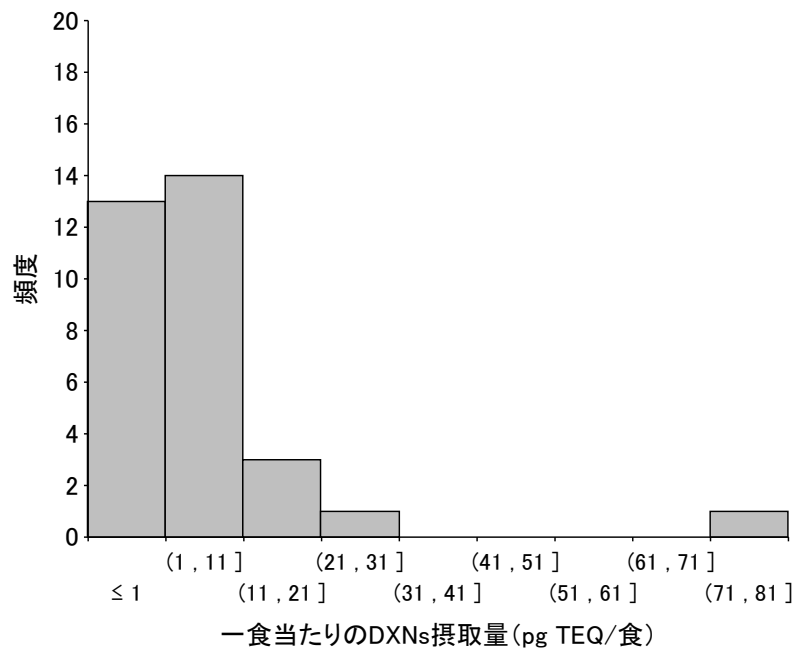
\* ( )内は体重あたりの摂取量を示す。平成22年乳幼児身体発育調査(厚生労働省)を参考に、乳児については10～11か月男女の平均体重(8.64 kg)、幼児については1歳6～7か月男女の平均体重(10.1 kg)を用いた。

\*\* PCDD/PCDFs+Co-PCBs



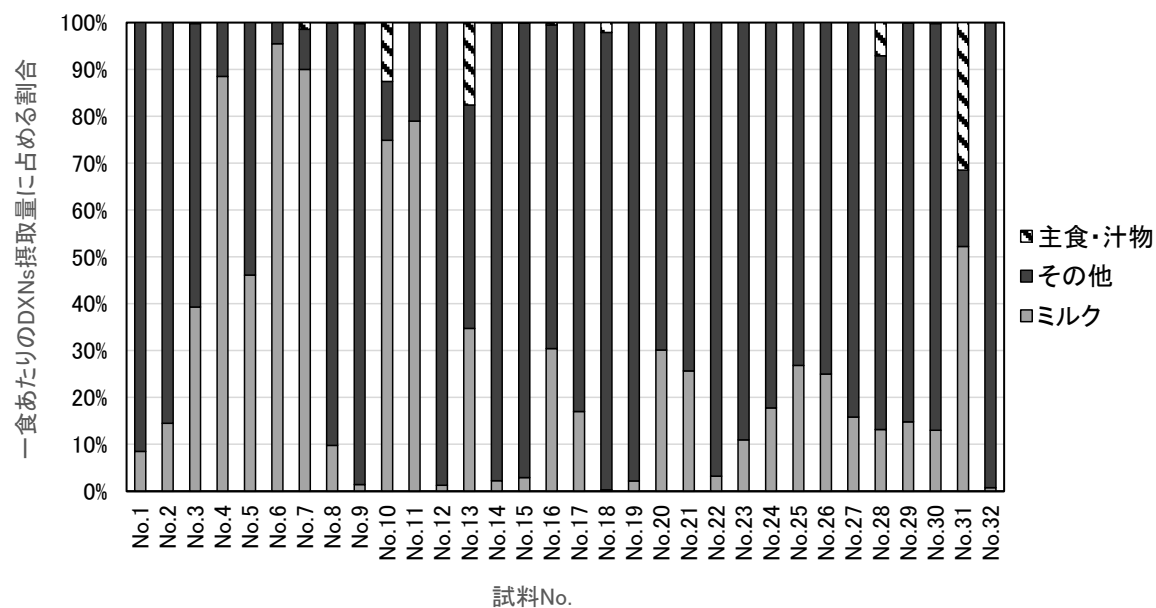


(a) 乳児の一食分試料

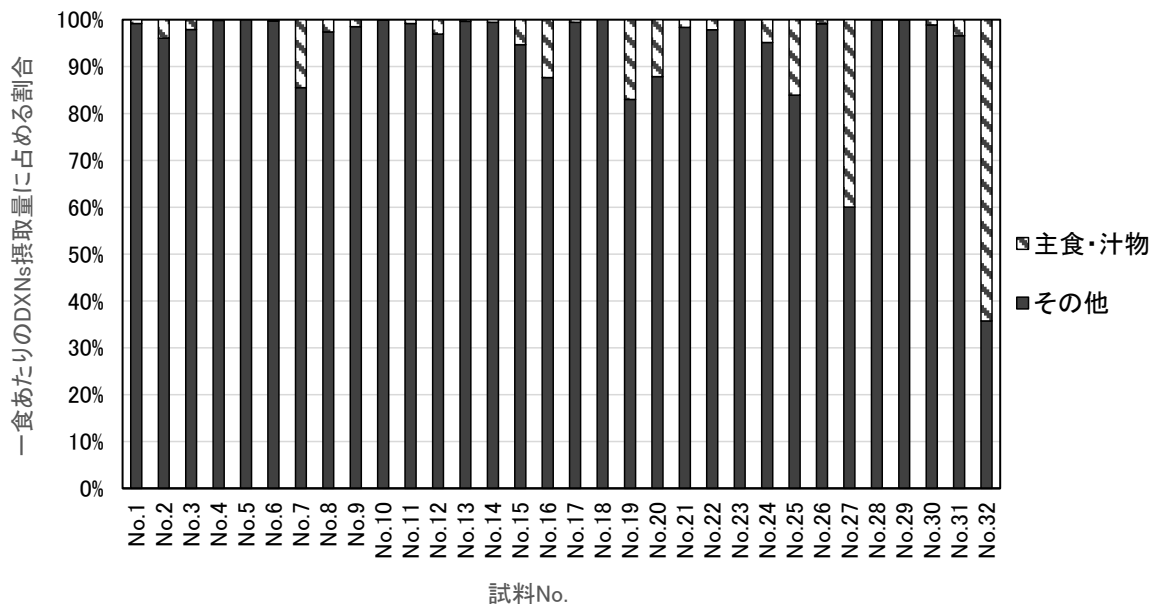


(b) 幼児の一食分試料

図 1 乳幼児の一食分試料からの DXNs 摂取量 (ヒストグラム)



(a) 乳児の一食分試料



(b) 幼児の一食分試料

図 2 一食あたりの総 PCBs 摂取量に占める各食品区分の割合

付表 1 乳児の一食分試料(昼食)からの DXNs 摂取量

| (pg TEQ/食) |            |         |                                 |
|------------|------------|---------|---------------------------------|
| No.        | PCDD/PCDFs | Co-PCBs | Dioxins<br>(PCDD/PCDFs+Co-PCBs) |
| 1          | 0.28       | 0.19    | 0.47                            |
| 2          | 0.27       | 0.0036  | 0.27                            |
| 3          | 0.065      | 0.036   | 0.10                            |
| 4          | 0.041      | 0.0039  | 0.045                           |
| 5          | 0.056      | 0.030   | 0.086                           |
| 6          | 0.039      | 0.0026  | 0.042                           |
| 7          | 0.041      | 0.0030  | 0.044                           |
| 8          | 0.085      | 0.32    | 0.41                            |
| 9          | 0.56       | 2.3     | 2.8                             |
| 10         | 0.051      | 0.0017  | 0.053                           |
| 11         | 0.048      | 0.0027  | 0.050                           |
| 12         | 2.8        | 0.34    | 3.2                             |
| 13         | 0.080      | 0.035   | 0.11                            |
| 14         | 1.6        | 0.22    | 1.8                             |
| 15         | 0.53       | 0.84    | 1.4                             |
| 16         | 0.056      | 0.075   | 0.13                            |
| 17         | 0.23       | 0.0052  | 0.23                            |
| 18         | 3.1        | 12      | 15                              |
| 19         | 1.8        | 0.0025  | 1.8                             |
| 20         | 0.13       | 0.0022  | 0.13                            |
| 21         | 0.15       | 0.0031  | 0.15                            |
| 22         | 1.2        | 0.0021  | 1.2                             |
| 23         | 0.36       | 0.0063  | 0.36                            |
| 24         | 0.086      | 0.14    | 0.22                            |
| 25         | 0.15       | 0.0018  | 0.15                            |
| 26         | 0.16       | 0.0016  | 0.16                            |
| 27         | 0.077      | 0.17    | 0.25                            |
| 28         | 0.18       | 0.12    | 0.30                            |
| 29         | 0.26       | 0.0046  | 0.27                            |
| 30         | 0.30       | 0.0029  | 0.31                            |
| 31         | 0.073      | 0.0029  | 0.076                           |
| 32         | 2.0        | 3.4     | 5.3                             |

付表 2 幼児の一食分試料(昼食)からの DXNs 摂取量

| (pg TEQ/食) |            |         |                                 |
|------------|------------|---------|---------------------------------|
| No.        | PCDD/PCDFs | Co-PCBs | Dioxins<br>(PCDD/PCDFs+Co-PCBs) |
| 1          | 0.94       | 3.1     | 4.0                             |
| 2          | 0.71       | 0.0037  | 0.71                            |
| 3          | 0.47       | 0.011   | 0.48                            |
| 4          | 0.67       | 0.49    | 1.2                             |
| 5          | 15         | 63      | 78                              |
| 6          | 0.12       | 0.17    | 0.28                            |
| 7          | 0.080      | 0.14    | 0.22                            |
| 8          | 0.38       | 0.16    | 0.54                            |
| 9          | 0.40       | 0.76    | 1.2                             |
| 10         | 5.7        | 10      | 16                              |
| 11         | 0.66       | 1.3     | 1.9                             |
| 12         | 0.23       | 0.48    | 0.71                            |
| 13         | 0.45       | 4.4     | 4.9                             |
| 14         | 0.99       | 1.1     | 2.1                             |
| 15         | 0.63       | 0.0072  | 0.64                            |
| 16         | 0.014      | 0.0055  | 0.019                           |
| 17         | 1.2        | 0.063   | 1.2                             |
| 18         | 0.027      | 0.0023  | 0.030                           |
| 19         | 0.26       | 0.16    | 0.42                            |
| 20         | 14         | 7.7     | 21                              |
| 21         | 2.5        | 0.010   | 2.5                             |
| 22         | 0.67       | 0.58    | 1.2                             |
| 23         | 0.38       | 2.3     | 2.7                             |
| 24         | 0.67       | 0.97    | 1.6                             |
| 25         | 0.0037     | 0.0071  | 0.011                           |
| 26         | 0.82       | 0.74    | 1.6                             |
| 27         | 2.7        | 0.0057  | 2.7                             |
| 28         | 5.9        | 14      | 20                              |
| 29         | 2.3        | 8.9     | 11                              |
| 30         | 0.15       | 0.0048  | 0.16                            |
| 31         | 0.97       | 0.46    | 1.4                             |
| 32         | 0.53       | 0.0084  | 0.54                            |