Ⅱ．分担研究報告書

(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)トータルダイエット試料の分析による塩素化ダイオキシン類摂取量推定

研究分担者　堤　智昭

令和 7 年度厚生労働行政推進調査事業費補助金（食品の安全確保推進研究事業）

食品を介したダイオキシン類等有害物質摂取量の評価とその手法開発のための研究

分担研究報告書

(1)食品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)トータルダイエッ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ット(TD)試料を用いて、ダイオキシン類(PCDD/Fs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、飲料水を含む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(肉類・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群及び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0.37(範囲:0.12～1.15) 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9%であった。摂取量推定値の最大値は1.15 pg TEQ/kg bw/dayであり、平均値の約3.2倍となり、耐容一日摂取量の29%程度に相当した。また、同一機関であっても推定されるダイオキシン類摂取量に1.6～4.5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

張 天斉、武村奈穂、足立利華、鍋師裕美

A. 研究目的

トータルダイエット(TD)試料を用いたダイオキシン類(PCDD/Fs 及び Co-PCBs)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令和 4 年～令和 5 年(2022～2023 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 200 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:米類
2 群:米以外の穀類・いも類・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:緑黄色野菜類
8 群:その他の野菜類・きのこ類・海藻類
9 群:嗜好飲料類
10 群:魚介類
11 群:肉類・卵類
12 群:乳類
13 群:調味料類
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 群及び 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 が毒性等価係数(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
PCDDs	(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
PCDFs			
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
Co-PCBs			
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の測定方法暫定ガイドライン」(以下、ガイドライン)[1)]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(^{13}C 標識した PCDD/Fs 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/Fs 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(^{13}C 標識体 2.5 ng)を添加し高分解能 GC/MS に供した。PCDD/Fs 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スカラムに注入し、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/Fs 及びノンオルト PCBs 分画を溶出した。溶媒を留去後、シリンジスパイク 20 μL(PCDD/Fs 用 ^{13}C 標識体 40 pg、ノンオルト PCB 用 ^{13}C 標識体 100 pg)を添加し高分解能 GC/MS に供した。

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(^{13}C 標識した PCDD/Fs 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。

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(13C 標識した PCDD/Fs 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。

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 μm)

注入方式:スプリットレス

注入口温度:250℃

注入量:1.5 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:2.0 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:1.5 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[1]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)[2]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 [3]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/Fs、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 群及び 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/Fs 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/Fs 摂取量

PCDD/Fs の一日摂取量は、平均 6.19(範囲: 1.26～32.78)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 0.12(範囲:0.03～0.66) pg TEQ/kg bw/day となった(表 1)。昨年度は平均 0.14(範囲:0.05～0.32) pg TEQ/kg bw/day であり [4]、今年度の平均値は昨年度と比較してわずかに低い値であったものの、大きな変化は認められなかった。最大の摂取量となった TD 試料は、九州地区で作製した 11 群試料(#3)であった。PCDD/Fs 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)71.3%、11 群(肉類・卵類)25.9%であり、これら 2 群で全体の 97.2%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 12.09(範囲: 4.90～24.88)pg TEQ/person/day と推定された。体重あたりの摂取量は平均 0.24(範囲:0.10～0.50)pg TEQ/kg bw/day であった(表 2)。昨年度は平均 0.26(範囲:0.11～0.55)pg TEQ/kg bw/day であり [4]、今年度の平均値は昨年度と比較してわずかに低い値であったものの、大きな変化は認められなかった。また、最大の摂取量となった TD 試料は、九州地区で作製した 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) 96.7%、11 群(肉類・卵類)3.2%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/Fs と Co-PCBs を合わせたダイオキシン類の一日摂取量は、平均 18.28(範囲:6.16～57.66)pg TEQ/person/day と推定された。体重あたりの摂取量は平均 0.37(範囲:0.12～1.15)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 9%であり、最大値は TDI の 29%程度に相当した。昨年度は平均 0.41(範囲:0.16～0.77)pg TEQ/kg bw/day であり [4]、今年度の平均値は昨年度と比較してわずかに低い値であった。

ダイオキシン類摂取量に対する寄与率が高い食品群は、10 群(魚介類)88.1%、11 群(肉類・卵類)10.9%であり、これら 2 つの食品群で全体の 99.0%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、66%であった。一昨年度及び昨年度における割合は共に 69%及び 64%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、同一機関で調製した試料であっても、推定されるダイオキシン類摂取量の最小値と最大値には 1.6～4.5 倍の開きが認められた。昨年度は同一機関における最小値と最大値の開きは 1.4～2.4 倍であり [4]、今年度の最小値と最大値の開きは昨年度と比べ大きかった。3 セットの試料は、同一機関（地域）において、種類、産地、メーカー等が異なる食品を使用して調製していることから、10 群及び 11 群に含まれる食品のダイオキシン類濃度は広い範囲に分布していることが推察された。1 セットの TD 試料に含めることが可能な食品の数は限られているため、本研究のように10群や 11 群の試料数を多くしてより広範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 6 年度厚生労働行政推進調査事業費補助金研究報告書 [4]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（2025 年度）の全国平均値は 0.37 pg TEQ/kg bw/day であり、1998 年度以降の調査結果の中で最も低い値であった。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 21%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/Fs を不純物として含むことが知られている農薬（クロロニトロフェン及びペンタクロロフェノール）の農薬登録が 1970 年代に失効している。さらには、1999 年に制定されたダイオキシン類対策特別措置法により、焼却施設等からのダイオキシン類の排出が大幅に抑制されている。ダイオキシン類摂取量の低下についてはこれらの行政施策の効果が窺われた。また、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 6 年度（2024 年度）のダイオキシン類摂取量は 0.28 pg TEQ/kg bw/day と報告 [5]されており、本調査結果より低い値であった。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、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 [6-12]されているダイオキシン類摂取量と比較し、特に高い値ではなかった。

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 については、新たな TEFs において現行の 1/2 となっていることから、このことが摂取量の減少に大きく影響したものと考えられた。

D. 結論

全国 7 地区 8 機関で調製した TD 試料の分析結果より、ダイオキシン類の国民平均一日摂取量は 0.37 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 21%程度に減少している。現在の摂取量の平均値は TDI の 9%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蓄積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把握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 6 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) 東京都保健医療局健康安全部環境保健衛生課, 令和 6 年度 食事由来の化学物質等摂取量推計調査, https://www.metro.tokyo.lg.jp/documents/d/tosei/20251223_19_01
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, Goscinny 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 26th Australian total diet study. https://www.foodstandards.gov.au/publications/Documents/26th%20ATDS%20report.pdf

F.研究業績

1. 論文発表

1) 堤 智昭:トータルダイエット調査による残留性有機汚染物質の摂取量推定:ダイオキシン類, ポリ塩化ビフェニル, 及び有機フッ素化合物, 食品衛生研究, 2025:75:7-20.

2. 学会発表

1) Tsutsumi T, Suzuki Y: Overview of Total Diet Studies on Food Contaminants in Japan: Recent Findings and Time Trends. 1st Asia-Pacific Regional Workshop on Total Diet Studies (2025.6)
2) 張天斉, 高附巧、武村奈穂, 鍋師裕美, 堤智昭: トータルダイエット試料によるダイオキシン類の摂取量推定(令和6年度). 第62回全国衛生化学技術協議会年会(2025.11)

【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。

表1　令和7年度トータルダイエット試料（1～14群）からのダイオキシン(PCDD/Fs)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 I			関東地区 II			中部地区			関西地区		
1群（米類）	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
2群（米以外の穀類・いも類・種実類）	0.03			0.03			0.03			0.03			0.03			0.03		
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）	0.02			0.02			0.02			0.02			0.02			0.02		
5群（豆類）	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
6群（果実類）	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
7群（緑黄色野菜類）	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
8群（その他の野菜類・きのこ類・海藻類）	0.05			0.05			0.05			0.05			0.05			0.05		
9群（嗜好飲料類）	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）	3.18	4.22	7.21	3.86	4.95	5.26	2.39	2.51	5.46	2.04	2.46	4.31	1.09	2.70	4.18	4.42	7.63	6.08
11群（肉類・卵類）	0.00	0.10	0.50	0.31	1.78	2.30	0.16	1.07	1.81	0.05	0.11	2.27	0.00	0.00	0.19	0.00	0.05	0.64
12群（乳類）	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
13群（調味料類）	0.03			0.03			0.03			0.03			0.03			0.03		
14群（飲料水）	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
総摂取量(pgTEQ/day)	3.36	4.49	7.88	4.34	6.90	7.73	2.73	3.75	7.44	2.27	2.75	6.76	1.26	2.87	4.55	4.60	7.85	6.89
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.07	0.09	0.16	0.09	0.14	0.15	0.05	0.08	0.15	0.05	0.05	0.14	0.03	0.06	0.09	0.09	0.16	0.14

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（米類）	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
2群（米以外の穀類・いも類・種実類）	0.03			0.03			0.03	0.00	0.45
3群（砂糖類・菓子類）	0.03			0.03			0.03	0.00	0.56
4群（油脂類）	0.02			0.02			0.02	0.00	0.38
5群（豆類）	0.00			0.00			0.00	0.00	0.04
6群（果実類）	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
7群（緑黄色野菜類）	0.00			0.00			0.00	0.00	0.02
8群（その他の野菜類・きのこ類・海藻類）	0.05			0.05			0.05	0.00	0.86
9群（嗜好飲料類）	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
	#1	#2	#3	#1	#2	#3			
10群（魚介類）	3.98	4.33	9.03	3.82	3.04	7.75	4.41	1.99	71.32
11群（肉類・卵類）	0.16	0.17	1.27	0.07	0.55	24.86	1.60	5.01	25.87
12群（乳類）	0.00			0.00			0.00	0.00	0.04
13群（調味料類）	0.03			0.03			0.03	0.00	0.44
14群（飲料水）	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
総摂取量(pgTEQ/day)	4.32	4.67	10.47	4.07	3.76	32.78	6.19	6.09	100.00
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.09	0.09	0.21	0.08	0.08	0.66	0.12	0.12	

＊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2　令和7年度トータルダイエット試料（1～14群）からのCo-PCBs類1日摂取量(ND=0)

(pgTEQ/day)

食品群	北海道地区			東北地区			関東地区 I			関東地区 II			中部地区			関西地区		
1群（米類）	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
2群（米以外の穀類・いも類・種実類）	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（豆類）	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
6群（果実類）	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
7群（緑黄色野菜類）	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
8群（その他の野菜類・きのこ類・海藻類）	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
9群（嗜好飲料類）	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）	7.58	11.43	15.97	8.80	11.69	19.40	8.01	8.78	16.76	5.47	8.29	11.28	4.89	7.10	15.30	10.88	12.51	15.34
11群（肉類・卵類）	0.01	0.01	1.64	0.03	0.05	1.73	0.03	0.03	0.03	0.01	0.01	0.02	0.01	0.01	0.02	0.01	0.02	3.13
12群（乳類）	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
13群（調味料類）	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)	7.59	11.45	17.61	8.84	11.74	21.14	8.05	8.82	16.80	5.49	8.30	11.30	4.90	7.12	15.32	10.90	12.53	18.47
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.15	0.23	0.35	0.18	0.23	0.42	0.16	0.18	0.34	0.11	0.17	0.23	0.10	0.14	0.31	0.22	0.25	0.37

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（米類）	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
2群（米以外の穀類・いも類・種実類）	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（豆類）	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
6群（果実類）	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
7群（緑黄色野菜類）	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
8群（その他の野菜類・きのこ類・海藻類）	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
9群（嗜好飲料類）	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
	#1	#2	#3	#1	#2	#3			
10群（魚介類）	8.40	12.86	18.79	8.75	9.93	22.60	11.70	4.61	96.74
11群（肉類・卵類）	0.03	0.04	0.03	0.01	0.12	2.27	0.39	0.86	3.20
12群（乳類）	0.00			0.00			0.00	0.00	0.04
13群（調味料類）	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)	8.44	12.90	18.83	8.76	10.05	24.88	12.09	5.19	100.00
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.17	0.26	0.38	0.18	0.20	0.50	0.24	0.10	

＊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7年度トータルダイエット試料（1～14群）からのダイオキシン類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（米類）	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
2群（米以外の穀類・いも類・種実類）	0.03			0.03			0.03			0.03			0.03			0.03		
3群（砂糖類・菓子類）	0.04			0.04			0.04			0.04			0.04			0.04		
4群（油脂類）	0.02			0.02			0.02			0.02			0.02			0.02		
5群（豆類）	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
6群（果実類）	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
7群（緑黄色野菜類）	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
8群（その他の野菜類・きのこ類・海藻類）	0.05			0.05			0.05			0.05			0.05			0.05		
9群（嗜好飲料類）	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）	10.76	15.65	23.18	12.66	16.64	24.66	10.41	11.29	22.22	7.51	10.75	15.60	5.97	9.80	19.48	15.30	20.13	21.42
11群（肉類・卵類）	0.01	0.11	2.14	0.34	1.83	4.03	0.20	1.10	1.84	0.06	0.12	2.28	0.01	0.01	0.21	0.02	0.07	3.76
12群（乳類）	0.01			0.01			0.01			0.01			0.01			0.01		
13群（調味料類）	0.03			0.03			0.03			0.03			0.03			0.03		
14群（飲料水）	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
総摂取量(pgTEQ/day)	10.95	15.94	25.50	13.18	18.65	28.87	10.78	12.57	24.24	7.75	11.05	18.06	6.16	9.99	19.86	15.49	20.38	25.36
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.22	0.32	0.51	0.26	0.37	0.58	0.22	0.25	0.48	0.16	0.22	0.36	0.12	0.20	0.40	0.31	0.41	0.51

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（米類）	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
2群（米以外の穀類・いも類・種実類）	0.03			0.03			0.03	0.00	0.15
3群（砂糖類・菓子類）	0.04			0.04			0.04	0.00	0.20
4群（油脂類）	0.02			0.02			0.02	0.00	0.13
5群（豆類）	0.00			0.00			0.00	0.00	0.01
6群（果実類）	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
7群（緑黄色野菜類）	0.00			0.00			0.00	0.00	0.01
8群（その他の野菜類・きのこ類・海藻類）	0.05			0.05			0.05	0.00	0.29
9群（嗜好飲料類）	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
	#1	#2	#3	#1	#2	#3			
10群（魚介類）	12.38	17.19	27.82	12.57	12.96	30.35	16.11	6.38	88.14
11群（肉類・卵類）	0.19	0.20	1.30	0.08	0.67	27.13	1.99	5.48	10.88
12群（乳類）	0.01			0.01			0.01	0.00	0.04
13群（調味料類）	0.03			0.03			0.03	0.00	0.15
14群（飲料水）	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
総摂取量(pgTEQ/day)	12.76	17.57	29.30	12.83	13.81	57.66	18.28	10.57	100.00
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.26	0.35	0.59	0.26	0.28	1.15	0.37	0.21	

＊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 4 日本と主な諸外国の TD 調査によるダイオキシン類摂取量推定値

国	調査時期	ダイオキシン類摂取量 pg TEQ/kg bw/day	対象とした 年齢層	検出下限値 の取り扱い*	参考文献
日本（全国）	2025年度（令和7年度）	0.37	1歳以上	ND=0	本研究
日本（東京都）	2024年度（令和6年度）	0.28	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 ** 0.16 **	6-15歳 >15歳	ND=0 ND=0	8）
中国	2010-2011年	0.73 ***	20-84歳	ND=LOD/2	9）
	2011年	0.59	18-45歳	ND=0	10）
イギリス	2011-2012年	0.52	19歳以上	ND=LOD	11）
オーストラリア	2017-2018年	0.21	2歳以上	ND=0	12）

* 検出（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
2025	0.37	0.22

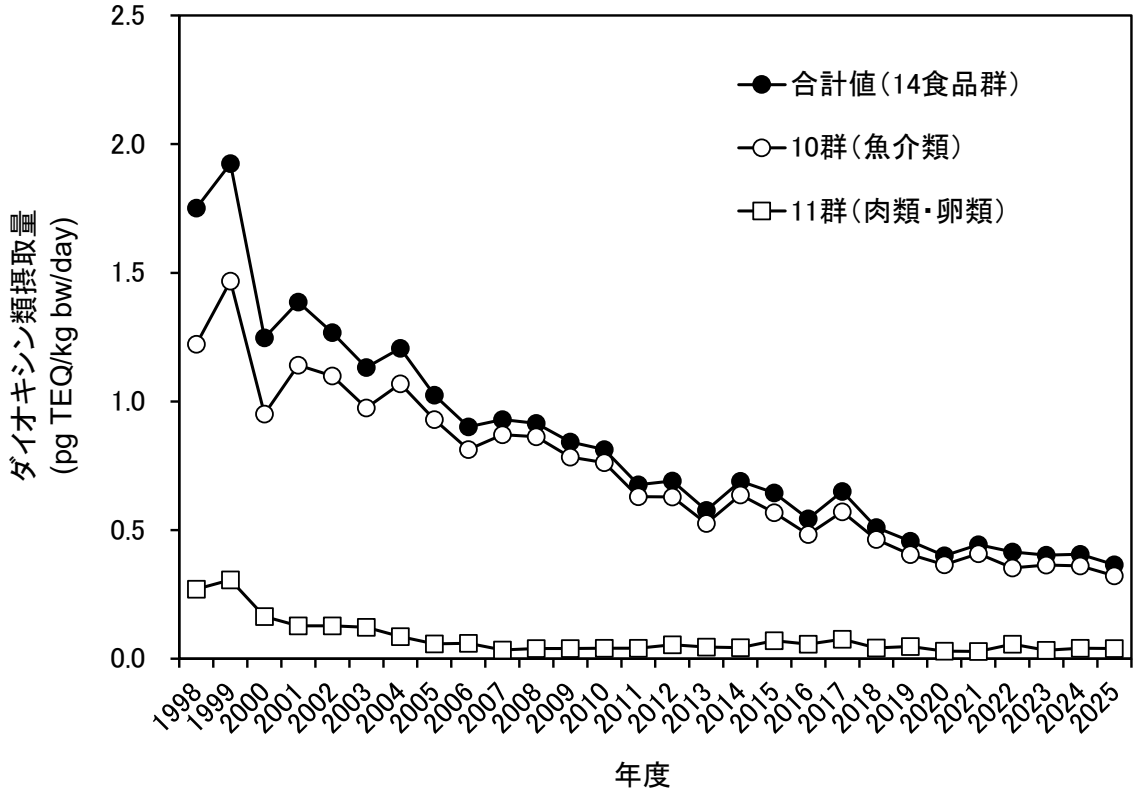


図 1 ダイオキシン類摂取量（全国平均値）の経年変化

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)トータルダイエッ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７年度厚生労働行政推進調査事業費補助金 （食品の安全確保推進研究事業）

食品を介したダイオキシン類等有害物質摂取量の評価とその手法開発のための研究

分担研究報告書

(1)食品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)トータルダイエッ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

2025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ット(TD)試料を用いて、ポリ塩化ビフェニル(PCBs)の国民平均一日摂取量を推定した。国民健康・栄養調査による地域別の平均食品摂取量に基づいて食品を購入し、TD試料を全国10地域で調製した。過去の研究からPCBs摂取量に占める割合の高い食品群である10群(魚介類)と11群(肉類・卵類)のみを対象にPCBs異性体の分析を実施した。その結果、総PCBsの全国平均摂取量は、238 ng/person/dayと推定された。体重(50 kgと仮定)あたりでは4.8 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、WHOの国際簡潔評価文書で提案された、より保守的な耐容一日摂取量(TDI)と比較しても低い値であったが、WHOのTDIの24%程度に相当した。さらに、リスク評価のための情報が不足している非ダイオキシン様PCBs(NDL-PCBs)の摂取量についても推定した。NDL-PCBsの全国平均摂取量は220 ng/person/day(体重50 kgで除した場合、4.4 ng/kg bw/day)、NDL-PCBsの指標異性体として用いられる6種の異性体の全国平均摂取量は78 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11,029～723,918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
張 天斉、武村奈穂、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
前川ゆずは、櫻井有里子、森田昌弘
名古屋市衛生研究所
野口昭一郎、高木恭子、宮﨑仁志
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
大城聡子、古謝あゆ子
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」[1)]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。トータルダイエット(TD)試料を用いたPCBsの摂取量調査は、1977年から毎年実施されており、国民の PCBs 摂取量とその経年推移に関する知見が得られている。最新の国民平均の PCBs 摂取量を推定するため、本年度も昨年度に引き続き、全国 10 地域において日本人の平均的な食品摂取に基づいた TD 試料を調製し、試料中の PCBs を分析し、一日摂取量を推定した。TD 試料の調製には、地方自治体所管の衛生研究所等にご協力を頂いた。

また PCBs はその毒性学的性質からダイオキシン様PCBs(Co-PCBsとも呼ばれる)と非ダイオキシン様 PCBs(NDL-PCBs)の二つに分類される。そのため、欧州では、Co-PCBs と NDL-PCBs に分けてリスク管理を行っている。Co-PCBsの12異性体についてはポリ塩化ジベンゾ-*p*-ジオキシン/ポリ塩化ジベンゾフラン(PCDD/Fs)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 等でより正確な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令和4年～令和5 年(2022～2023 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、必要に応じて食品を調理した後、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、分析に供するまで-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て使用した。

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 を順次充填)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、及び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 µL 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、スターラーで撹拌した。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 µL を加え、GC/MS 試験溶液とした。

2-4. 高分解能 GC/MS 測定条件

GC カラム:HT8-PCB(トレイジャンサイエンティフィック) 内径 0.25 mm×60 m
注入方式:スプリットレス
注入口温度:280℃
注入量:2.0 µL
昇温条件:100℃(1 分保持)-20℃/分-180℃-2℃/分-260℃-5℃/分- 300℃(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℃
イオン源温度:290℃
イオン化法:EI ポジティブ
イオン化電圧:38 eV
イオン化電流:600 µA
加速電圧:～10.0 kV
分解能:10,000 以上
モニターイオン:

一塩化ビフェニル モノクロロビフェニル(MoCBs)
定量用イオン: *m/z* 188.0393, 確認イオン:*m/z* 190.0364

二塩化ビフェニル ジクロロビフェニル(DiCBs)
定量用イオン:*m/z* 222.0003, 確認イオン:*m/z* 223.9974

三塩化ビフェニル トリクロロビフェニル(TrCBs)
定量用イオン:*m/z* 255.9613, 確認イオン:*m/z* 257.9587

四塩化ビフェニル テトラクロロビフェニル(TeCBs)
定量用イオン:*m/z* 289.9224, 確認イオン:*m/z* 291.9195

五塩化ビフェニル ペンタクロロビフェニル(PeCBs)
定量用イオン:*m/z* 323.8834, 確認イオン:*m/z* 325.8805

六塩化ビフェニル ヘキサクロロビフェニル(HxCBs)
定量用イオン:*m/z* 359.8415, 確認イオン:*m/z* 361.8386

七塩化ビフェニル ヘプタクロロビフェニル(HpCBs)
定量用イオン:*m/z* 393.8025, 確認イオン:*m/z* 395.7996

八塩化ビフェニル オクタクロロビフェニル(OcCBs)
定量用イオン:*m/z* 427.7636, 確認イオン:*m/z* 429.7606

九塩化ビフェニル ノナクロロビフェニル(NoCBs)
定量用イオン:*m/z* 461.7246, 確認イオン:*m/z* 463.7216

十塩化ビフェニル デカクロロビフェニル(DeCB)
定量用イオン:*m/z* 497.6826, 確認イオン:*m/z* 499.6797

$^{13}C_{12}$ 標識 MoCBs
定量用イオン:*m/z* 200.0795, 確認イオン:*m/z* 202.0766

$^{13}C_{12}$ 標識 DiCBs
定量用イオン:*m/z* 234.0406, 確認イオン:*m/z* 236.0376

$^{13}C_{12}$ 標識 TrCBs

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

$^{13}C_{12}$標識 TeCBs

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

$^{13}C_{12}$標識 PeCBs

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

$^{13}C_{12}$標識 HxCBs

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

$^{13}C_{12}$標識 HpCBs

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

$^{13}C_{12}$標識 OcCBs

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

$^{13}C_{12}$標識 NoCBs

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

$^{13}C_{12}$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 85～417 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 230 ng/person/day であった。また、11 群からの総 PCBs 摂取量は 4.0 ～ 16 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 8.7 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 238 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[2)]。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同程度であったが、11 群の総 PCBs 摂取量の全国平均値はやや低かった。今年度は 10 群については地域 I、11 群については地域 F 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 0.4 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顕著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、地域 G、地域 I 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 91～421 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。昨年度の総 PCBs 摂取量の全国平均値は 250 ng/person/day であり[2)]、今年度の総 PCBs 摂取量は昨年度と比較して僅かに低い値であった。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 238 ng/person/day であり、体重(50 kg と仮定)あたりでは 4.8 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。総 PCBs の摂取量は十分に低い水準にあると考えられるが、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)[3)]が作成された。この中で PCBs の混合物について TDI として 0.02 μg /kg bw/day が提案されている。この TDI と比較すると総 PCBs 摂取量の全国平均値は 24%に相当した。この値はカドミウムなどの有害元素の摂取量の TDI に対する割合[4)]に近い。ただし、本評価文書の TDI の導出の根拠になった毒性研究では、人の健康への重要性が十分に明確ではない免疫毒性学的影響が毒性の指標となっ

ている。また、PCBs に感受性の高いアカゲザルを使用していることもあり、過度の安全を見込んだ TDI となっている可能性に留意が必要である。

本年度までの総 PCBs 摂取量の全国平均値の経年推移を、図 3 に示した。2024 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」[2)]から引用した。総 PCBs 摂取量は 1990 年代前半までに急激に減少したが、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 が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、最も低い値であった。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 1/14 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 6PCBs 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 79～383 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 212 ng/person/day であった。11 群からの NDL-PCBs 摂取量は 3.7～14 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 7.8 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 NDL-PCBs 摂取量は、84～387 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 220 ng/person/day（体重 50 kg で除した場合、4.4 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 238 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 [2)]と同様であった。

NDL-PCBs の指標異性体として用いられる 6PCBs の 10 群からの摂取量は 28～144 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 1.4～5.7 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 3.0 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、31～145 ng/person/day の範囲で推定され、全国平均値は 78 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）[5, 6)]を、各異性体の摂取量（全国平均値）で除して算出した。各異性体のばく露マージンは 11,029～723,918 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も低いと考えられる。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 2024 年度の PCBs 摂取量は 11 ng/kg bw/day と報告 [7)]されており、本調査の結果はこれと比べてやや低い値であった。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 [8～12)]の範囲内であり、特に高いものではなかった。

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 [6, 13~17]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 238 ng/person/day と推定された。体重あたりでは 4.8 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保守的な 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 の約 24%となった。NDL-PCBs の一日摂取量の全国平均値は 220 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 78 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 11,029～723,918 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 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 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 26th 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 6 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/6shokuji
8) Voorspoels S, Covaci A, Neels H. : Dietary PCB intake in Belgium, Environ. Toxicol. Pharmacol. 25, 179-182 (2008)
9) Schecter A, Colacino J, Haffner D, Patel K, Opel M, Päpke 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, Goscinny 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

1) 堤 智昭:トータルダイエット調査による残留性有機汚染物質の摂取量推定:ダイオキシン類, ポリ塩化ビフェニル, 及び有機フッ素化合物, 食品衛生研究, 2025:75:7-20.

2. 学会発表

1) Tsutsumi T, Suzuki Y: Overview of Total Diet Studies on Food Contaminants in Japan: Recent Findings and Time Trends. 1st Asia-Pacific Regional Workshop on Total Diet Studies (2025.6)

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
MoCB	#1	0.00015	0.00050
	#2	0.00010	0.00034
	#3	0.00011	0.00038
DiCB	#4	0.00044	0.00146
	#6	0.00006	0.00020
	#7	0.00002	0.00006
	#8/#5	0.00048	0.00160
	#9	0.00002	0.00006
	#10	0.00002	0.00005
	#11	0.00103	0.00342
	#13/#12	0.00002	0.00006
	#14	0.00002	0.00006
	#15	0.00014	0.00048
TrCB	#16	0.00010	0.00034
	#17	0.00016	0.00052
	#18	0.00052	0.00175
	#19	0.00003	0.00011
	#20/#33	0.00033	0.00111
	#21	0.00003	0.00011
	#22	0.00015	0.00050
	#23	0.00003	0.00011
	#24	0.00003	0.00011
	#25	0.00003	0.00011
	#26	0.00007	0.00024
	#27	0.00003	0.00011
	#28	0.00039	0.00128
	#29	0.00003	0.00011
	#30	0.00003	0.00011
	#31	0.00031	0.00105
	#32	0.00014	0.00047
	#34	0.00003	0.00011
	#35	0.00004	0.00012
	#36	0.00003	0.00011
	#37	0.00015	0.00051
	#38	0.00004	0.00013
	#39	0.00003	0.00011
TrCB	#40	0.00002	0.00006
	#41	0.00002	0.00006
	#42	0.00002	0.00006
	#43/#49	0.00012	0.00040
	#44	0.00011	0.00038
	#45	0.00002	0.00006
	#46	0.00002	0.00006
	#50	0.00002	0.00006
	#51	0.00002	0.00006
	#52/#69	0.00026	0.00086
	#53	0.00002	0.00006
	#54	0.00001	0.00004
	#55	0.00002	0.00006
	#56	0.00007	0.00024
	#57	0.00001	0.00004
	#59	0.00002	0.00006
	#60	0.00005	0.00015
	#61	0.00002	0.00006
	#62	0.00002	0.00006
	#63/#58	0.00002	0.00006
	#64	0.00006	0.00021
	#65/#75/#48/#47	0.00027	0.00090
	#67	0.00002	0.00006
	#68	0.00002	0.00006
	#70	0.00009	0.00030
	#72/#71	0.00002	0.00006
	#73	0.00002	0.00006
	#74	0.00007	0.00023
	#76	0.00002	0.00006
	#77	0.00004	0.00013
	#78	0.00002	0.00006
	#79	0.00002	0.00007
	#80/#66	0.00018	0.00059
	#81	0.00002	0.00007
PeCB	#82	0.00002	0.00006
	#83	0.00002	0.00006
	#84/#92	0.00002	0.00006
	#85	0.00002	0.00006
	#86/#117/#97	0.00002	0.00006
	#87/#115	0.00004	0.00012
	#88	0.00002	0.00006
	#89	0.00002	0.00006
	#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

PCBs		LOD, ng/g	LOQ, ng/g
HxCB	#128	0.00002	0.00008
	#129	0.00002	0.00008
	#130	0.00002	0.00008
	#131	0.00002	0.00008
	#133	0.00002	0.00008
	#134	0.00002	0.00008
	#135	0.00002	0.00008
	#136	0.00002	0.00008
	#137	0.00002	0.00008
	#138	0.00011	0.00038
	#140	0.00002	0.00008
	#141	0.00002	0.00008
	#142	0.00002	0.00008
	#143	0.00002	0.00008
	#144	0.00002	0.00008
	#145	0.00002	0.00008
	#146/#132	0.00002	0.00008
	#147	0.00002	0.00008
	#148	0.00002	0.00008
	#149/#139	0.00002	0.00008
	#150	0.00002	0.00008
	#151	0.00002	0.00008
	#152	0.00002	0.00008
	#153	0.00007	0.00025
	#154	0.00002	0.00008
	#155	0.00001	0.00005
	#156	0.00002	0.00007
	#157	0.00002	0.00008
	#158	0.00002	0.00008
	#159	0.00002	0.00008
	#160	0.00002	0.00008
	#161	0.00002	0.00008
	#162	0.00002	0.00008
	#164/#163	0.00002	0.00008
	#165	0.00002	0.00008
	#166	0.00002	0.00008
	#167	0.00002	0.00007
	#168	0.00002	0.00008
	#169	0.00003	0.00010
HpCB	#170	0.00006	0.00019
	#171	0.00005	0.00016
	#172	0.00005	0.00016
	#173	0.00005	0.00016
	#174	0.00005	0.00016
	#175	0.00005	0.00016
	#176	0.00005	0.00016
	#177	0.00005	0.00016
	#178	0.00005	0.00016
	#179	0.00005	0.00016
	#180	0.00005	0.00018
	#181	0.00005	0.00016
	#182/#187	0.00005	0.00017
	#183	0.00005	0.00016
	#184	0.00005	0.00016
	#185	0.00005	0.00016
	#186	0.00005	0.00016
	#188	0.00004	0.00012
	#189	0.00004	0.00015
	#190	0.00005	0.00016
	#191	0.00005	0.00016
	#192	0.00005	0.00016
	#193	0.00005	0.00016
OcCB	#194	0.00004	0.00012
	#195	0.00002	0.00008
	#196	0.00002	0.00005
	#197	0.00002	0.00005
	#198	0.00002	0.00005
	#199	0.00002	0.00005
	#200	0.00002	0.00005
	#201	0.00002	0.00005
	#202	0.00001	0.00003
	#203	0.00001	0.00005
	#204	0.00002	0.00005
	#205	0.00001	0.00005
NoCB	#206	0.00002	0.00008
	#207	0.00002	0.00007
	#208	0.00002	0.00007
DeCB	#209	0.00005	0.00016

表 2　10 群からの PCBs 摂取量

(ng/person/day)

PCBs	地域										平均値
同族体	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J	
MoCBs	0.10	0.23	0.12	0.090	0.10	1.1	0.16	0.14	0.21	0.13	0.24
DiCBs	1.3	1.6	1.3	1.0	0.93	1.0	1.9	2.1	1.8	1.4	1.4
TrCBs	20	11	5.3	3.3	11	3.9	8.7	9.8	12	5.2	9.1
TeCBs	69	46	17	12	48	16	30	41	52	15	35
PeCBs	116	86	30	23	71	32	53	85	116	24	64
HxCBs	125	94	42	31	88	44	69	148	163	32	84
HpCBs	38	29	17	12	30	17	26	65	62	12	31
OcCBs	4.7	5.2	2.6	2.4	4.1	3.3	4.2	11	9.3	2.2	4.9
NoCBs	0.59	0.70	0.38	0.35	0.39	0.55	0.66	1.2	1.2	0.24	0.63
DeCB	0.31	0.35	0.25	0.27	0.20	0.37	0.39	0.59	0.58	0.10	0.34
総PCBs	375	275	116	85	254	120	194	365	417	93	230

表 3　11 群からの PCBs 摂取量

(ng/person/day)

PCBs	地域										平均値
同族体	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J	
MoCBs	0	0.090	0	0.019	0	0.079	0.19	0.025	0.23	0.095	0.072
DiCBs	0.25	0.49	0.26	0.0046	0.37	0.31	0.50	0.36	0.27	0.27	0.31
TrCBs	1.2	0.15	0.28	0.26	0.16	0.33	0.25	0.88	0.094	0.087	0.37
TeCBs	1.2	0.72	1.0	0.76	0.43	1.4	0.88	2.0	0.27	0.86	1.0
PeCBs	1.5	2.0	2.2	1.8	1.3	3.4	1.4	3.9	0.74	1.3	1.9
HxCBs	2.3	4.3	4.2	2.1	2.3	6.5	2.7	3.7	1.58	2.7	3.2
HpCBs	1.1	2.2	1.4	0.71	1.0	3.4	1.2	1.3	0.71	1.2	1.4
OcCBs	0.24	0.50	0.24	0.15	0.17	0.77	0.21	0.27	0.11	0.37	0.30
NoCBs	0.046	0.082	0.043	0.028	0.031	0.12	0.039	0.050	0.018	0.062	0.052
DeCB	0.021	0.037	0.028	0.010	0.010	0.074	0.018	0.030	0	0.023	0.025
総PCBs	7.8	11	10	5.8	5.8	16	7.4	13	4.0	6.9	8.7

表 4　10 群と 11 群からの PCBs 摂取量の合計値

(ng/person/day)

PCBs	地域										平均値
同族体	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J	
MoCBs	0.10	0.32	0.12	0.11	0.10	1.2	0.34	0.17	0.43	0.22	0.31
DiCBs	1.6	2.1	1.6	1.0	1.3	1.3	2.5	2.4	2.0	1.7	1.8
TrCBs	21	12	5.6	3.6	11.6	4.3	9.0	11	12	5.3	9.4
TeCBs	71	46	18	13	49	18	31	43	53	16	36
PeCBs	118	88	33	25	72	35	55	89	117	26	66
HxCBs	127	98	46	33	90	51	72	152	164	35	87
HpCBs	39	32	19	13	31	21	27	67	62	14	32
OcCBs	4.9	5.7	2.8	2.5	4.3	4.1	4.4	11	9.4	2.6	5.2
NoCBs	0.64	0.78	0.42	0.38	0.42	0.67	0.70	1.3	1.2	0.30	0.68
DeCB	0.33	0.38	0.28	0.28	0.21	0.45	0.41	0.62	0.58	0.12	0.37
総PCBs	383	285	126	91	260	136	202	378	421	100	238

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	89	38	28	76	36	61	121	144	29	75
	NDL-PCBs	344	251	108	79	236	111	179	342	383	86	212
11群	6PCBs	2.5	3.9	3.7	2.1	2.0	5.7	2.5	4.0	1.4	2.4	3.0
	NDL-PCBs	7.1	10	8.6	5.2	5.2	14	6.7	11	3.7	6.3	7.8
10群と11群	6PCBs	127	93	41	31	78	42	64	125	145	32	78
の合計	NDL-PCBs	351	261	116	84	241	125	186	354	387	93	220

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* (μg/kg体重/日)	一日摂取量 (ng/kg体重/日)	ばく露マージン (MOE)
PCB 28	2.8	0.061	46,035
PCB 52	107	0.15	723,918
PCB 128	4.2	0.038	111,660
PCB 153	7.0	0.63	11,029
PCB 180	107	0.16	674,490

*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 ng/kg bw/day(ng/day)	検出（定量）下限値の取り扱い	測定対象	参考文献
日本（全国）	2025年度(令和7年度)	1歳以上	4.8（238）	<LOD=0	209異性体	本研究
日本（東京都）	2024年度(令和6年度)	1歳以上	11（550）	<LOQ=0	－**	7)
ベルギー	2005年	－	－(404) －(535)	<LOQ=0 <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 15-75歳	24.9（－） 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 ng/kg bw/day	検出（定量）下限値の取り扱い	参考文献
日本	2025年度(令和7年度)	1歳以上	1.6	<LOD=0	本研究
イタリア	1994-1996年	0.5-6歳 7-12歳 13-94歳	24.6 16.1 10.9	<LOQ=LOQ	13)
フランス	2005年、2007年	3-17歳 18-79歳	3.77 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 19-65歳女性 19-65歳男性	3.37 3.19 2.64	－**	16)
香港	2010-2011年	20-84歳	0.68 1.38	<LOD=0 <LOD=LOD	17)
オーストラリア	2017-2018年	2歳以上	0.1 8 16	<LOR=0 <LOR=1/2LOR <LOR=LOR	6)

*食品試料を集めた時期
**未掲載

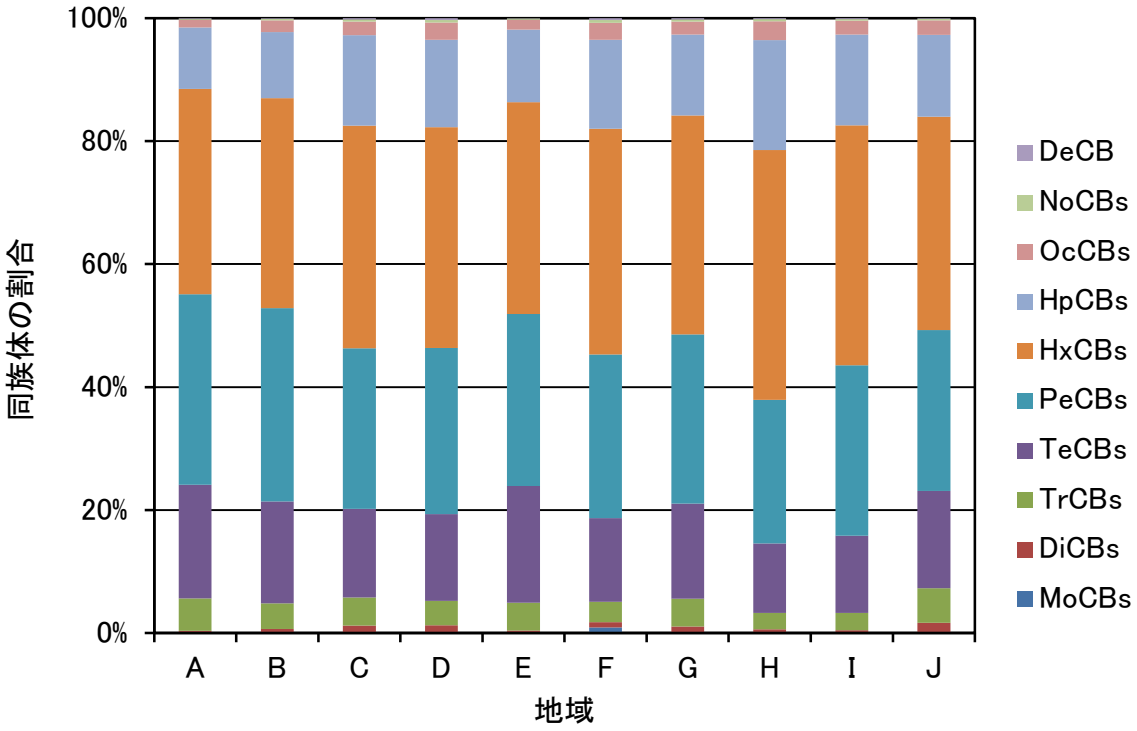


図 1　10 群からの PCBs 摂取量における PCBs 同族体の割合

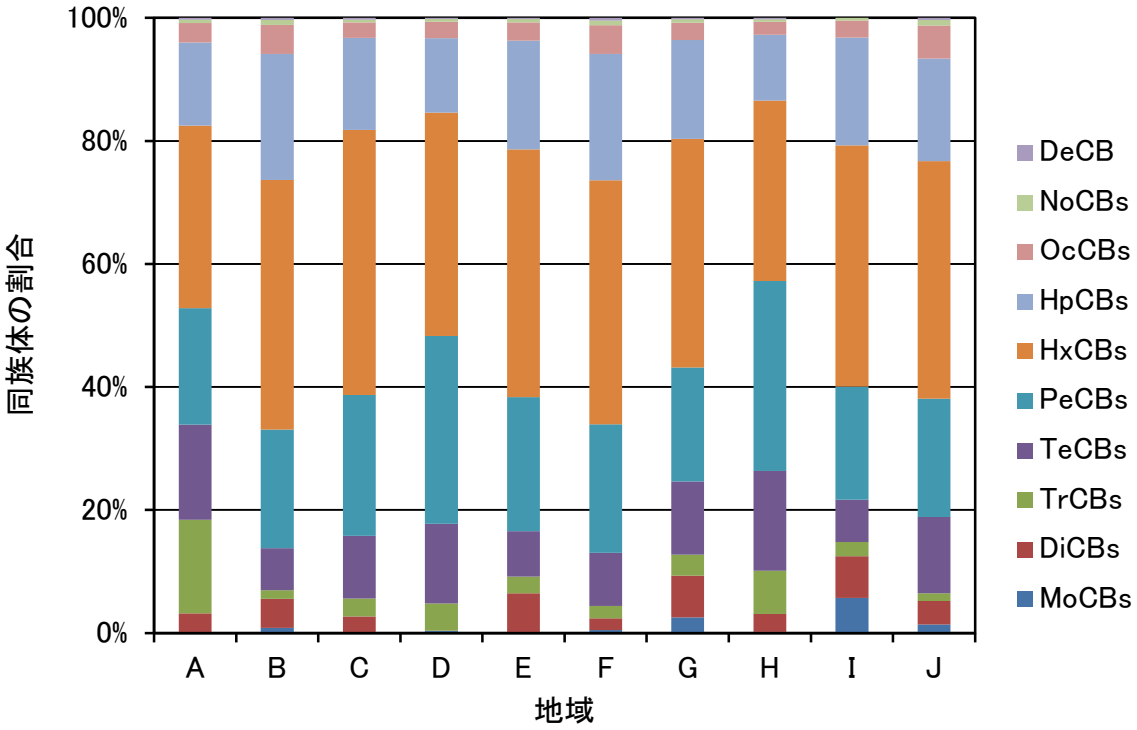


図 2　11 群からの PCBs 摂取量における PCBs 同族体の割合

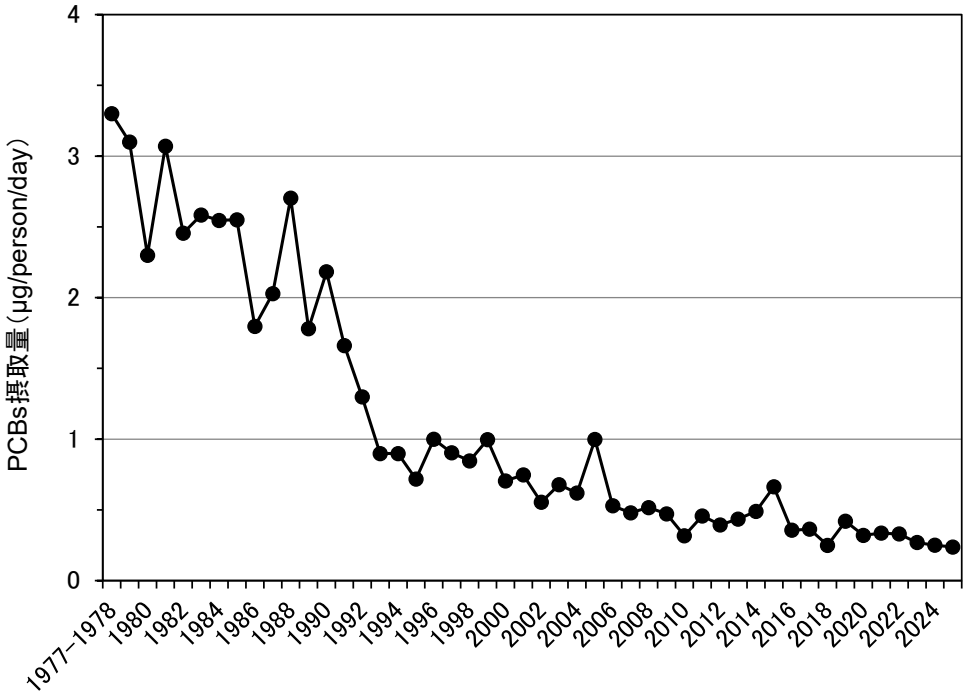


図3　総 PCBs 摂取量の経年変化（1977～2025 年度）

Ⅱ．分担研究報告書

(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)トータルダイエット試料の分析による有機フッ素化合物摂取量推定

研究分担者　堤　智昭

令和 7 年度厚生労働行政推進調査事業費補助金（食品の安全確保推進研究事業）

食品を介したダイオキシン類等有害物質摂取量の評価とその手法開発のための研究

分担研究報告書

(1)食品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)トータルダイエット試料の分析による有機フッ素化合物摂取量推定

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

2025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ット (TD) 試料を用いて、食品を通じた有機フッ素化合物 (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、6地域のTD試料を調製した。得られたTD試料に含まれるペルフルオロオクタンスルホン酸 (PFOS)、ペルフルオロオクタン酸 (PFOA)、ペルフルオロヘキサンスルホン酸 (PFHxS) 及びペルフルオロノナン酸 (PFNA) をLC–MS/MSにより分析し、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) あたりの平均一日摂取量 (Lower-bound–Upper-bound) は、PFOSでは0.31–0.51 ng/kg bw/day、PFOAでは0.076–0.67 ng/kg bw/day、PFHxSでは0.0093–0.23 ng/kg bw/day、PFNAでは0.089–0.69 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1.5–2.5%及び0.38–3.4%に相当し、TDIを大きく下回っていた。

研究協力者

国立医薬品食品衛生研究所

山﨑由貴、北山育子、鈴木美成

A. 研究目的

有機フッ素化合物 (ペル及びポリフルオロアルキル物質、PFAS) は、構造中に強固な炭素–フッ素結合を有し、物理的・化学的に極めて安定な化合物群である。フッ素で覆われた炭素鎖の表面自由エネルギーが非常に低く、撥水性及び撥油性を有していることから、その開発以来、溶剤、界面活性剤、表面処理剤、泡消火薬剤、フッ素ポリマー加工助剤等の様々な用途で使用されてきた[1,2]。しかしながら、PFAS については、難分解性、生物蓄積性及び長距離移動性が指摘されている他、一部の分子種についてはヒトや高次捕食動物への長期毒性も懸念されている[3–6]。こうした問題を受け、2009 年にペルフルオロオクタンスルホン酸 (PFOS) とその塩及びペルフルオロオクタンスルホニルフルオリド (PFOSF) が、2019 年にペルフルオロオクタン酸 (PFOA) とその塩及び PFOA 関連物質が、2022 年にペルフルオロヘキサンスルホン酸 (PFHxS) とその塩及び PFHxS 関連物質が、2025 年に長鎖ペルフルオロカルボン酸 (PFCA、C_9–C_{21}) とその塩及び長鎖 PFCA 関連物質が「残留性有機汚染物質に関するストックホルム条約 (POPs 条約)」の附属書 A 又は B に追加され、その製造及び使用について国際的な管理が進められている[7]。我が国においても、POPs 条約に基づき「化学物質の審査及び製造等の規制に関する法律 (化審法)」が改正され、これらの PFAS の製造、輸入及

び使用が制限されている[8]。また、2024 年 6 月には、食品安全委員会より「有機フッ素化合物(PFAS) に係る食品健康影響評価」が公表され、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 20 ng/kg bw/day、PFOA について 20 ng/kg bw/day の値が示された[9]。

PFAS のばく露経路としては食事、粉塵、水道水、食品包装、吸入ばく露、経皮ばく露等があるが、このうち最大のばく露要因は食事からの摂取、次いで水道水からの摂取であると考えられている[10]。水道水における PFOS 及び PFOA については、食品安全委員会が TDI を設定したこと、及び浄水における検出状況が分類見直しの要件を満たしたこと等を受け、水質基準が定められた (基準値:PFOS 及び PFOA の合算値として 0.00005 mg/L (50 ng/L)、2026 年 4 月 1 日施行)[11]。さらに、水道水に基準値が設定されたことに伴い、殺菌又は除菌を行うミネラルウォーターについても、PFOS 及び PFOA の成分規格が設定された (基準値:PFOS 及び PFOA の合算値として 0.00005 mg/L (50 ng/L)、2025 年 6 月 30 日施行)[12]。諸外国においても、飲料水中の PFAS について基準値やガイドライン値が設定されており、そのリスク管理が進められている。また、先に述べた通り、PFAS の最大のばく露要因は食事からの摂取であることから、食品中の PFAS についてもリスク管理を進める動きがある。こうした動向を受け、我が国においても、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望まれている。しかしながら、日本人における PFAS の摂取量推定に関する調査報告は限られており、十分な知見が得られていない[13]。

これらを踏まえ、研究分担者らは令和 5 年度より、PFAS のリスク管理の検討に資する情報を提供するため、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ット (TD) 試料中の PFAS を分析し、日本人における最新の PFAS 摂取量を推定してきた[15,16]。2022 年度及び 2023 年度に調製した 4 地域の TD 試料を分析した結果、PFOS 及び PFOA の推定摂取量は TDI の 1.1–26%及び 0.13–6.6%に相当し、食品安全委員会から示された TDI を下回ることが示されている。本年度は、令和 7 年度 (2025 年度) に調製した 6 地域の TD 試料を分析し、PFOS、PFOA、PFHxS 及びペルフルオロノナン酸 (PFNA) 摂取量の推定を試みた。なお、これまでに開発した TD 試料中の PFAS 分析法は、試験溶液の調製手順が煩雑であること、一部の試料において試験溶液が精製不足となること等の課題があった。そこで本年度は、より迅速かつ簡便で、試験溶液の精製度を高めた新たな PFAS 分析法を開発した上で、各地域の TD 試料を分析した。

B. 研究方法

1. TD 試料

日本人の日常的な食事からの PFAS 摂取量を推定するため、日常食のモデルとなる TD 試料をマーケットバスケット方式により調製した。混合・均質化の際に組み合わせる食品の小分類に応じて、下記の 14 群に分割して調製した。

1 群:米類
2 群:米以外の穀類・いも類・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:緑黄色野菜類
8 群:その他の野菜類・きのこ類・海藻類
9 群:嗜好飲料類
10 群:魚介類
11 群:肉類・卵類
12 群:乳類
13 群:調味料類
14 群:飲料水

TD 試料は、全国 6 地域の地方衛生研究所等において、令和 7 年 (2025 年) 7 月から 10 月ま

での間に調製された。厚生労働省が実施した令和 4 年～5 年 (2022～2023 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、地域別喫食量を算出した。小売店から食品を購入し、該当地域における一日あたりの喫食量に従って秤量し、茹でる・焼く等の一般的な調理を行った上で混合及び均質化したものを TD 試料とした。各地域で調製した TD 試料は、プラスチック製バッグに入れ冷凍した上で国立医薬品食品衛生研究所に収集された。試料は、分析に供するまで−30°C で保存した。TD 試料中の PFAS 分析は、いずれも国立医薬品食品衛生研究所において行った。

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 EU 及び EU 基準に整合した一部の周辺国で畜水産物における基準値が設定されている PFHxS 及び PFNA[16] を含めた計 4 種とした。なお、PFAS には直鎖体及び複数の分岐鎖異性体が存在することが知られているが、本研究においては直鎖体のみを定量対象とした。

3. 分析

3-1. 試薬

PFAS 混合標準溶液はウェリントンラボラトリージャパン社より PFAC-MXC を購入した。内部標準物質 (IS) 混合標準溶液はウェリントンラボラトリージャパン社より MPFAC-C-ES を購入した。分岐鎖異性体を含む各分子種の標準品は、ウェリントンラボラトリージャパン社より branched-PFOSK (br-PFOSK), br-PFOA, br-PFHxSK 及び br-PFNA を購入した。タウロウルソデオキシコール酸ナトリウム (TUDCA)、タウロケノデオキシコール酸ナトリウム (TCDCA) 及びタウロデオキシコール酸ナトリウム (TDCA) の標準品はメルク社より購入した。

アセトニトリル (LC/MS 用)、メタノール (LC/MS 用)、蒸留水 (LC/MS 用)、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)、ギ酸 (> 98.0%、高速液体クロマトグラフィー用) 及び酢酸 (> 99.7%、高速液体クロマトグラフィー用) は関東化学社より購入した。アンモニア水 (25%, HPLC LiChropur) 、Supel QuE QuEChERS tube (硫酸マグネシウム 6 g 及び塩化ナトリウム 1.5 g) 及び魚認証標準物質 [IRMM-427, Pike-perch (PFASs in fish tissue)] はメルク社より購入した。

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。Captiva EMR PFAS Food II (750 mg/6 mL) カートリッジカラム及び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。逆相–弱陰イオン交換ポリマーカートリッジカラム (Strata-XL-AW 100 μm Polymeric Weak Anion, 200 mg/6 mL) は Phenomenex 社より購入した。

3-2. 機器

ポリトロンホモジナイザー：PT3100D (KINEMATICA 製)

振とう機：ストロングシェーカーSR-2EW (TAITEC 製)

遠心分離機：5930 (KUBOTA 製)

吸引マニホールド：イナートセップ吸引マニホールドシステム (ジーエルサイエンス製)

液体クロマトグラフ・タンデム型質量分析計 (LC–MS/MS)：

LC：ACQUITY Premier (Waters 製)

MS：Xevo TQ Absolute (Waters 製)

データ取得ソフトウェア：MassLynx V4.2 (Waters 製)

データ処理ソフトウェア：TargetLynx XS V4.2 (Waters 製)

3-3. 試験溶液の調製

試料に各分子種の安定同位体標識化合物 (^{13}C 標識体) を IS として添加し、内部標準法

により定量を行った。

3-3-1. 1–13 群

抽出・塩析

均質化した試料 10.0 g を 100 mL ポリプロピレン (PP) チューブに量りとり、IS 混合標準溶液 0.5 mL を添加した。IS 混合標準溶液の濃度は、10 群では 2 ng/mL (試料中濃度として 0.1 ng/g)、10 群以外では 1 ng/mL (試料中濃度として 0.05 ng/g) とした。3 群及び 13 群の試料には、それぞれ水 7 mL 及び 5 mL を添加した。次いで、試料にアセトニトリル 25 mL を加え、ポリトロンホモジナイザーを用いて 1 分間ホモジナイズした後、4°C、3,000 rpm で 5 分間遠心分離を行った。得られた上清を 50 mL PP チューブに移した後、残渣にアセトニトリル 10 mL [3 群のみアセトニトリル/水 (9:1, v/v) 10 mL] 及びステンレスボール 1 個を加え、振とう機で 5 分間振とうした。4°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、アセトニトリルで 50 mL に定容した。

抽出液 10 mL (試料 2 g 相当) を新しい 50 mL PP チューブにとり、水 10 mL、ギ酸 150 µL 及び Supel QuE QuEChERS tube の内容物を加えた後、振とう機で 5 分間振とうした。4°C、3,000 rpm で 5 分間遠心分離を行い、得られた上清 (アセトニトリル層) を 15 mL PP チューブに移した。これに水 1 mL を加え、アセトニトリルで 10 mL に定容したものを負荷液①とした。

精製 (1–3 群、6 群、7 群及び 10–12 群)

Captiva EMR PFAS Food II カートリッジカラム (750 mg/6 mL) に酢酸/アセトニトリル/メタノール (1:50:50, v/v/v) 5 mL を注入し、コンディショニングを行った。このカラムに負荷液①全量を負荷した後、負荷液の調製に用いた 15 mL PP チューブをギ酸/アセトニトリル/水 (1.5:90:10, v/v/v) 1 mL で洗浄し、この溶液を同カラムに注入した。吸引マニホールドを用いてカラムを 1 分間吸引し、カラム内に残存した溶液を完全に溶出させた。溶出液全量を 50 mL ナスフラスコにとり、アセトニトリル適量を加えながら 40°C で 0.5 mL 以下まで減圧濃縮した。窒素気流により溶媒を除去し、メタノール 0.5 mL を正確に加えて再溶解した後、0.22 µm PES フィルターでろ過したろ液を試験溶液とした (4 g 試料/mL 相当)。10 群においては、試験溶液をメタノールで 10 倍希釈した溶液についても LC–MS/MS 測定に供した (0.4 g 試料/mL 相当)。

精製 (4 群、5 群、8 群、9 群及び 13 群)

Captiva EMR PFAS Food II カートリッジカラム (750 mg/6 mL) による精製は、1–3 群、6 群、7 群、10–12 群と同様の手順で行った。得られた溶出液から溶媒を除去し、メタノール 0.5 mL で再溶解した後、10 mM ギ酸アンモニウム溶液 (pH 5) 4.5 mL を添加し、負荷液②とした。WAX カラム (Strata-XL-AW 100 µm Polymeric Weak Anion, 200 mg/6 mL) に 0.5% (v/v) 濃アンモニア水含有メタノール 4 mL を注入してカラムを洗浄した後、メタノール 4 mL 及び 10 mM ギ酸アンモニウム溶液 (pH 5) 4 mL を順次注入し、同カラムのコンディショニング及び平衡化を行った。続いて、負荷液②全量をカラムに注入した。ナスフラスコを水 4 mL 及びメタノール 4 mL で洗浄し、この溶液をカラムに順次注入して洗浄した。ナスフラスコを 0.5% (v/v) 濃アンモニア水含有メタノール 4 mL で洗浄し、この溶液をカラムに注入した。溶出液を PP 製試験管にとり、窒素ガスを緩やかに吹き付けて 60°C で加温しながら溶媒を除去した。メタノール 0.5 mL を正確に加えて再溶解した後、0.22 µm PES フィルターでろ過したろ液を試験溶液とした (4 g 試料/mL 相当)。

3-3-2. 14 群

試料 5.00 g を 15 mL PP チューブに量りとり、1.25 ng/mL IS 混合標準溶液 0.2 mL を添加した (試料中濃度として 0.05 ng/g)。WAX カラム (Strata-XL-AW 100 µm Polymeric Weak Anion, 200 mg/6 mL) に 0.3% (w/v) アンモニア含有メタノール 5 mL を注入してカラムを洗浄した後、メタノール 5 mL 及び水 5 mL を順次注入し、同カラムのコンディショニング及び平衡化を行った。続いて、IS を添加した試料全量をカラムに注入した。試料の量りとりに用いた PP チューブを水 5

mL 及びメタノール 3 mL で洗浄し、この溶液をカラムに順次注入した。吸引マニホールドを用いてカラムを 1 分間脱水した後、試料の量りとりに用いた PP チューブを 0.3% (w/v) アンモニア含有メタノール 4 mL で洗浄し、この溶液をカラムに注入した。溶出液を PP 製試験管にとり、窒素ガスを緩やかに吹き付けて 60°C で加温しながら溶媒を除去した。メタノール 1 mL を正確に加えて再溶解した後、0.22 μm PES フィルターでろ過したろ液を試験溶液とした (5 g 試料/mL 相当)。

3-4. LC–MS/MS 測定

B.3-3 で得られた試験溶液を LC–MS/MS により測定した。本研究で用いた LC–MS/MS 測定条件を**表 1** に示した。食品群によっては、一部の分子種のクロマトグラムにおいて試料マトリックス由来の妨害ピークが認められたことから、分析する食品群に応じて移動相 B の組成を最適化した。

3-5. 検量線の作成

1–13 群においては各分子種の濃度が 0.01, 0.02, 0.05, 0.1, 0.2, 0.5, 0.75 及び 1 ng/mL となるように、14 群においては各分子種の濃度が 0.01, 0.025, 0.05, 0.1, 0.2, 0.5, 0.75 及び 1 ng/mL (PFOS 及び PFHxS はナトリウム塩としての濃度、PFOA 及び PFNA は酸としての濃度) となるように、メタノールを用いて検量線用標準溶液を調製した。検量線用標準溶液における IS の濃度は、10 群では 0.4 ng/mL、14 群では 0.25 ng/mL、10 群及び 14 群以外の食品群では 0.2 ng/mL ($^{13}C_8$-PFOS 及び $^{13}C_3$-PFHxS はナトリウム塩としての濃度、$^{13}C_8$-PFOA 及び $^{13}C_9$-PFNA は酸としての濃度) とした。これらの溶液を試験溶液と同様の条件で LC–MS/MS により測定し、各分子種と対応する IS との面積比を算出して検量線を作成した。いずれの分子種についても、検量線の重み付けには $1/x^2$ を用いた。

3-6. 操作ブランク

操作ブランクは、分析日ごとに設定した。1–13 群については、操作ブランクとして試料の代わりに市販の牛乳 0.50 g を量りとり、**B.3-3** と同様の方法で試験溶液を調製した。14 群については、試料の代わりに精製水 5.00 g を量りとり、**B.3-3** と同様の方法で試験溶液を調製した。操作ブランクにおいてシグナル対ノイズ比 (S/N) ≥ 3 のピークが認められた場合には、当該分子種について試料中濃度から操作ブランク中濃度を差し引いた値を用いて定量を行った。

3-7. 分析法の妥当性確認

3-7-1. 定量下限 (LOQ) の推定

各分子種の LOQ は、European Union Reference Laboratory for halogenated POPs in Feed and Food (EURL-POPs) の Guidance document[17] を参照した上で推定した。すなわち、操作ブランクの寄与が30%以下かつS/N≥10となる濃度を LOQ とした。

3-7-2. 添加回収試験

各群の TD 試料に PFOS、PFOA、PFHxS 及び PFNA を添加し、5 併行、試行回数 1 回の添加回収試験を実施した。ブランク試料としては、これまでに調査した各群の TD 試料のうち、各分子種の濃度が相対的に低値を示し、かつ残余のある試料を試験に用いた。添加濃度は、10 群、11 群及び 14 群では各群において最大濃度を示した分子種の約 3 倍相当の濃度 (10 群:0.6 ng/g、11 群:0.025 ng/g、14 群:0.01 ng/g) とし、その他の食品群では 4 分子種の LOQ のうち最も高い濃度 (0.015 ng/g) とした (PFOS 及び PFHxS はナトリウム塩としての濃度、PFOA 及び PFNA は酸としての濃度)。

3-7-3. 魚認証標準物質の分析

魚認証標準物質 (IRMM-427) 1.00 g を 100 mL PP チューブに量りとった。10 群の TD 試料と同様の手順で試験溶液を調製し、LC–MS/MS 測定を行った。

4. PFAS 摂取量の推定

TD 試料における各分子種の濃度に各食品群

の喫食量を乗じ、PFOS、PFOA、PFHxS 及び PFNA の摂取量を推定した。なお、14 群 (飲料水) の喫食量は、いずれの地域においても 250 g/day とした。摂取量の推定にあたっては、LOQ 未満のデータに 0 を代入する場合 (Lower-bound, LB) 及び LOQ 未満のデータに LOQ を代入する場合 (Upper-bound, UB) の両方で算出を行った。体重あたりの摂取量は、体重を 50 kg と仮定して算出した。

C. 研究結果及び考察

1. 分析法の妥当性確認

本年度に新たに開発した TD 試料中の PFAS 分析法について、その妥当性を確認した。

1-1. LOQ の推定

新たに開発した分析法における各分子種の LOQ は、1–13 群では PFOS 及び PFHxS で 0.005 ng/g、PFOA 及び PFNA で 0.015 ng/g と推定され、14 群では PFOS、PFOA、PFHxS 及び PFNA いずれについても 0.005 ng/g と推定された (TD 試料中の濃度は酸としての表記)。推定された LOQ は、令和 5 年度及び 6 年度に用いた分析法の LOQ と概ね同等であった。

1-2. 添加回収試験

各群の TD 試料において、PFOS、PFOA、PFHxS 及び PFNA の添加回収試験を実施した。得られたデータについて、EURL-POPs の Guidance document[17] 及び AOAC International の AOAC Standard Method Performance Requirements (SMPRs) 2023.003 に従い[18]、検量線の直線性、選択性、真度、併行精度、IS の回収率、イオン比及び native と IS の保持時間比を評価した。イオン比は確認イオン/定量イオンの面積比、native と IS の保持時間比は native/IS の保持時間比として算出し、いずれも理論値 (各濃度の検量線用標準溶液における当該比の平均値) に対する割合として示した。

得られた検量線について、各検量点の面積比を回帰式により逆算して求めた濃度の理論値からの偏差は 9% 以内を示し、EURL-POPs Guidance document の目標値 (≤ 20%) を満たしたことから、検量線の直線性は良好であることが示された。各群のブランク試料及び添加試料における PFOS、PFOA、PFHxS 及び PFNA のクロマトグラムを**図 1–14** に示す。11 群及び 13 群の PFHxS については、ピークの付近にマトリックス由来と思われる夾雑成分が認められたが、定量に及ぼす影響は軽微であると考えられた。その他の食品群及び分子種については、定量を妨害するピークは認められず、選択性は良好であると考えられた。

添加回収試験における真度、併行精度、IS 回収率、イオン比及び native と IS の保持時間比を**表 2** に示す。いずれの分子種及び食品群についても、真度は 90–106%、併行精度は 9.1%RSD 以内、イオン比は 88–115%、保持時間比は 100%を示し、EURL-POPs Guidance document 及び AOAC International SMPR の目標値 (真度 65–135%又は 80–120%、併行精度 ≤20%RSD 又は ≤ 25%RSD、イオン比 ± 30%及び native と IS の保持時間比 ± 1%) を満たした。IS 回収率については、5 群以外の食品群では 42–102%と EURL-POPs Guidance document の目標値 (30–140%) を満たしたが、5 群では 14–32%と目標値を下回った。5 群の試験溶液を 10 倍希釈して再測定したところ、IS 回収率は 47–62%まで上昇したことから、5 群における IS の低回収率は主にマトリックス効果に起因するものと考えられた。ただし、5 群においても IS 回収率以外の評価項目は目標値を満たしていたことから、IS 回収率が低値を示す場合でも、各分子種の定量は可能であると考えられた。以上の結果より、5 群における分析値は参考値扱いとなるものの、本分析法は TD 試料中の各 PFAS 分子種を精確に定量可能であることが示された。

1-3. 魚認証標準物質の分析

魚認証標準物質 (IRMM-427) の分析結果を

表 3 に示す。いずれの分析日においても、認証値が付与されている直鎖 PFOS、ペルフルオロデカン酸 (PFDA)、ペルフルオロウンデカン酸 (PFUdA) 及びペルフルオロドデカン酸 (PFDoA)、並びに参考値が示されているペルフルオロトリデカン酸 (PFTrDA) 及びペルフルオロテトラデカン酸 (PFTeDA) について、その分析値は拡張不確かさ (包含係数 $k = 2$) の範囲内に収まった。また、IS 回収率は 84–102%、イオン比は 84–103%及び native と IS の保持時間比は 100%を示し、いずれも EURL-POPs Guidance document の目標値を満たした。以上の結果より、本分析法は魚試料中の直鎖 PFOS、PFDA、PFUdA、PFDoA、PFTrDA 及び PFTeDA を精確に定量可能であることが示された。

1-4. PFOS 及び胆汁酸の分離

肉、牛乳、卵等の動物性食品においては、TUDCA、TCDCA、TDCA 等の胆汁酸が含まれている。これらの胆汁酸は、PFOS のモニターイオンのうち定量イオン (*m/z* 499 > 80) において検出されることが知られている。そのため、胆汁酸が含まれる食品を分析する際には、PFOS とこれらの胆汁酸をクロマトグラム上で分離する、もしくはグラファイトカーボンミニカラムによる精製を行い、胆汁酸を除去することが求められている[18,19]。TD 試料についても、一部の食品群については胆汁酸が含まれると考えられることから、PFOS 及び各胆汁酸の標準溶液を LC–MS/MS で測定し、本研究で用いた LC–MS/MS 条件における両者の分離を検討した。**図 15** に示した通り、移動相 B をアセトニトリルとした場合、及び移動相 B をアセトニトリル/メタノール (1:1, v/v) とした場合のいずれにおいても、TUDCA、TCDCA 及び TDCA のピークは直鎖 PFOS のピークと完全に分離されていることが確認された。したがって、試料中に胆汁酸が含まれていた場合でも、胆汁酸を直鎖 PFOS と誤同定することはないと考えられた。

1-5. 直鎖体及び分岐鎖異性体の分離

PFOS、PFOA、PFHxS 及び PFNA の分岐鎖異性体を含む標準品を LC–MS/MS で測定し、本研究で用いた LC–MS/MS 条件における各分子種の直鎖体及び分岐鎖異性体の分離を検討した。**図 16** 及び **17** に示した通り、移動相 B をアセトニトリルとした場合、及び移動相 B をアセトニトリル/メタノール (1:1, v/v) とした場合のいずれにおいても、各分子種の直鎖体及び分岐鎖異性体のベースライン分離が達成されていることが確認された。

2. PFAS 摂取量の推定

C.1 において妥当性が確認された分析法を用いて、2025 年度に調製された 6 地域の TD 試料における PFOS、PFOA、PFHxS 及び PFNA を分析した。各群の TD 試料における PFOS、PFOA、PFHxS 及び PFNA の濃度を**表 4** に示す。各分子種の濃度はいずれも酸として示した。なお、本研究では検出下限 (LOD) の推定は行わなかったことから、実際にはピークが認められなかった試料についても LOQ 未満としてデータを示した。各地域の TD 試料において、IS 回収率及びイオン比は概ね目標値 (30–140%及び ± 30%) を満たした (**表 5** 及び **6**)。また、native と IS の保持時間比は、いずれの試料においても目標値を満たした (**表 7**)。ただし、5 群における PFOS、PFOA、PFHxS 及び PFNA、地域 D の 13 群及び地域 E の 6 群における PFOA については IS 回収率が 30%を下回ったほか、地域 B 及び C の 10 群における PFHxS についてもイオン比が 70%を下回った。したがって、これらの分析値については参考値として示した。なお、添加回収試験と同様に、5 群試料の試験溶液を 10 倍希釈して再測定したところ、その IS 回収率は大きく上昇したことから (**表 5**)、5 群における IS の低回収率は主にマトリックス効果に起因するものと考えられた。

表 4 に示した通り、各地域の試料において、濃度が LOQ 以上であった食品群は、PFOS で 3 群、8 群、10 群、11 群及び 14 群、PFOA で 10 群

及び 14 群、PFHxS で 10 群及び 11 群、PFNA で 10 群であった。次いで、**表 4** に示した TD 試料中の各分子種の濃度より、PFOS、PFOA、PFHxS 及び PFNA の摂取量を推定した (**表 8**)。6 地域の平均摂取量 (LB–UB) は、PFOS は 15–25 ng/day、PFOA は 3.8–34 ng/day、PFHxS は 0.47–11 ng/day、PFNA は 4.4–35 ng/day の範囲と推定された。また、日本人の平均体重を 50 kg と仮定して体重あたりの平均摂取量 (LB–UB) に換算すると、PFOS は 0.31–0.51 ng/kg bw/day、PFOA は 0.076–0.67 ng/kg bw/day、PFHxS は 0.0093–0.23 ng/kg bw/day、PFNA は 0.089–0.69 ng/kg bw/day の範囲と推定された。推定された PFOS 及び PFOA の摂取量は、食品健康影響評価において示された TDI (20 ng/kg bw/day)[9] の 1.5–2.5%及び 0.38–3.4%に相当し、TDI を大きく下回っていた。

PFOS、PFOA、PFHxS 及び PFNA の各 PFAS の総摂取量に対する各食品群の寄与率を**表 9** に示した。LB 法を用いた場合の 10 群の寄与率は、PFOS は 52–100%、PFOA は 75–100%、PFHxS は 100% (10 群の寄与率が 0%であった地域 D 及び PFHxS の濃度が全食品群で LOQ 未満であった地域 A 及び F を除く)、PFNA は 100%を示し、いずれの分子種についても、10 群が主な摂取源であることが示された。10 群が PFAS 各分子種の主な摂取源であることについては、令和 5 年度及び 6 年度の調査と同様の傾向であった[14,15]。ただし、地域 D の PFHxS については、10 群の寄与率が 0%、11 群の寄与率が 100%となったことから、10 群の濃度によっては 11 群も主な摂取源となり得ることが示唆された。

本年度に調査を行った 6 地域の 10 群試料の中には、令和 5 年度及び 6 年度の調査において確認されたような、相対的に高濃度の PFOS (最大 2.6 ng/g) を含む試料は認められなかった。したがって、令和 5 年度及び 6 年度の調査においてこのような PFOS 濃度が認められたのは、当該年度の報告書において考察した通り、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によるものと推察された。より正確な摂取量推定を行うためには、ダイオキシン類の摂取量調査等と同様に、主な摂取源となる食品群について複数セットの試料を調製し、その平均値として摂取量を推定する手法が有効であると考えられる。また、EU においては、PFAS 含有量が魚種によって異なることも報告されており[20]、我が国に流通している魚介類についても、PFAS を高濃度に含有する魚種やその分布等について詳細を検討する必要があると考えられる。

PFAS には直鎖体及び複数の分岐鎖異性体が存在することが知られているが、今年度は前年度に引き続き、分析法の妥当性が確認された直鎖体のみを対象として摂取量推定を行った。一方、LOQ 以上の濃度を示した一部の試料においては、分岐鎖異性体と思われるピークの存在がわずかながら確認されたことから (data not shown)、より安全側に立ち、分岐鎖異性体も含めた摂取量を推定する必要があると考えられた。分岐鎖異性体の定量については、国際的に統一した方法が確立されておらず、用いる標準品やモニターイオン、定量方法等が異なる複数の手法が提唱されている[17,21–23]。推定結果が過度に過大評価又は過小評価とならないよう、分岐鎖異性体の定量にどのような手法を用いるかについて、十分に検討を行う必要がある。なお、先に述べた通り、動物性食品において PFOS を分析する際には、胆汁酸との干渉に注意を要する。本研究において用いた LC–MS/MS 条件のうち、移動相 B にアセトニトリル/メタノール (1:1, v/v) を用いた場合には、PFOS の一部の分岐鎖異性体 (保持時間 14.5 分前後) が TDCA と干渉する可能性がある (**図 15** 及び **17**)。本研究で用いた Captiva EMR PFAS Food II カートリッジカラムにはグラファイトカーボンが含まれており、一定量の胆汁酸は除去されているものと考えられるが、除去しきれずに残存した胆汁酸が PFOS の分岐鎖異性体に干渉する可能性は否定できない。この場合には、イオン比が PFOS 分岐鎖異性体の同定において重要な指標となるため、分岐鎖異

性体を含む標準品を用いてイオン比をあらかじめ把握しておくことが重要であると考えられる。

3. 過去の国内調査及び各国調査との PFAS 摂取量の比較

本年度の調査では、2025 年度に調製された 6 地域の TD 試料を分析し、各分子種の平均摂取量の推定を初めて試みた。その結果、各分子種における体重あたりの平均摂取量 (LB–UB) は、PFOS は 0.31–0.51 ng/kg bw/day、PFOA は 0.076–0.67 ng/kg bw/day、PFHxS は 0.0093–0.23 ng/kg bw/day、PFNA は 0.089–0.69 ng/kg bw/day と推定された (**表 8**)。このうち UB は、令和 5 年度及び 6 年度の調査結果[15,16]と比較して低値を示した。これは、令和 5 年度及び 6 年度の調査結果が地域ごとの個別データに基づく LB の最小値及び UB の最大値を示したものであること (複数地域の平均摂取量ではない)、並びに本年度の調査において 10 群で相対的に高濃度の PFAS を含む試料が認められなかったことに起因するものと思われる。令和 5 年度及び 6 年度の調査において 10 群で相対的に高濃度の PFAS が認められた地域・年を除き、各地域の個別摂取量を本年度と令和 5 年度及び 6 年度との間で比較したところ、その値は概ね同等であり、日本人における PFAS の摂取量は 2022 年度から 2025 年度の間に大きく変動していないものと考えられた。今後は調査対象地域数をさらに増やすことで、より信頼性の高い平均摂取量を推定するとともに、その経年変化等についても詳細な検討を行う予定である。

本研究で推定された摂取量を諸外国の調査結果と比較する際は、調査によって対象分子種や摂取量推定手法が異なることに留意する必要がある。既に報告されている値のうち、本研究と比較可能と考えられるのは、EU[20]及びオーストラリア[24]で行われた調査である。EU の調査においては、各分子種の推定摂取量が対象集団ごとに詳細に報告されており、例えば成人 (18 歳以上 65 歳未満) の平均摂取量群における摂取量の中央値 (LB–UB) は、PFOS は 0.58–4.47 ng/kg bw/day、PFOA は 0.18–4.18 ng/kg bw/day、PFHxS は 0.08–3.45 ng/kg bw/day、PFNA は 0.04–3.68 ng/kg bw/day と推定されている。また、オーストラリアの調査においては、2 歳以上における PFOS の平均摂取量 (LB–UB) は 0.011–1.7 ng/kg bw/day と推定されている。これらの報告と本研究の推定結果を比較すると、いずれの分子種についても、本研究において推定された平均摂取量の UB は EU 及びオーストラリアの UB に対して低値を示した。以上より、現時点では、我が国における PFAS の平均摂取量が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。

世界保健機関 (WHO) は現在、PFAS のリスク評価を進めている。2026 年 2 月には、WHO が今後リスク評価を行う 18 種の PFAS 分子種及び 6 種の健康影響が公表された[25]。これら 18 種の分子種には、本研究で分析対象としている PFOS、PFOA、PFHxS 及び PFNA の他、PFTrDA、PFDoA、PFUdA、ペルフルオロヘキサン酸 (PFHxA)、ペルフルオロヘプタン酸 (PFHpA)、PFTeDA、PFDA、ペルフルオロブタンスルホン酸 (PFBS)、ペルフルオロデカンスルホン酸 (PFDS)、ペルフルオロヘプタンスルホン酸 (PFHpS)、ヘキサフルオロプロピレンオキシドダイマー酸 (HFPO-DA)、ペルフルオロブタン酸 (PFBA)、ペルフルオロペンタン酸 (PFPeA) 及びトリフルオロ酢酸 (TFA) が含まれる。これらの分子種については、今後のリスク評価の結果次第で Codex 規格が設定される可能性もあり、食品からの摂取量を把握しておくことが重要になると考えられる。魚認証標準物質の分析結果 (**表 3**) に示した通り、本年度に開発した新たな分析法は、今回分析対象とした 4 種以外の分子種についても良好な定量性を示す可能性が示唆されている。今後は、各群の TD 試料における分析法の妥当性を 4 種以外の分子種についても検討するとともに、より広範な分子種を対象とした摂取量推定を試みたい。

D. 結論

2025 年度に調製した 6 地域の TD 試料を分析し、PFOS、PFOA、PFHxS 及び PFNA の平均摂取量を推定した。各分子種の平均摂取量 (LB–UB) は、PFOS は 15–25 ng/day、PFOA は 3.8–34 ng/day、PFHxS は 0.47–11 ng/day、PFNA は 4.4–35 ng/day の範囲と推定された。体重あたりに換算すると、PFOS は 0.31–0.51 ng/kg bw/day、PFOA は 0.076–0.67 ng/kg bw/day、PFHxS は 0.0093–0.23 ng/kg bw/day、PFNA は 0.089–0.69 ng/kg bw/day の範囲と推定された。推定された PFOS 及び PFOA の摂取量は、食品健康影響評価において示された TDI の 1.5–2.5%及び 0.38–3.4%に相当し、TDI を大きく下回っていた。このことから、現時点では、PFOS 及び PFOA の健康リスクは低いと考えられた。

E. 参考文献

1) Buck, R.C., Franklin, J., Berger, U., Conder, J.M., Cousins, I.T., de Voogt, P., Jensen, A.A., Kannan, K., Mabury, S.A. & van Leeuwen, S.P. (2011). Perfluoroalkyl and polyfluoroalkyl substances in the environment: Terminology, classification, and origins. *Integr Environ Assess Manag*, 7: 513–541.
2) Interstate Technology & Regulatory Council (ITRC). (2023). History and Use of Per- and Polyfluoroalkyl Substances (PFAS) found in the Environment.
3) United Nations Environment Programme (UNEP). (2006). Risk profile on perfluorooctane sulfonate (UNEP/POPS/POPRC.2/17/Add.5). Stockholm Convention on Persistent Organic Pollutants (POPs).
4) United Nations Environment Programme (UNEP). (2016). Risk profile for pentadecafluorooctanoic acid (PFOA, perfluorooctanoic acid), its salts and PFOA-related compounds (UNEP/POPS/POPRC.12/11/Add.2). Stockholm Convention on Persistent Organic Pollutants (POPs).
5) United Nations Environment Programme (UNEP). (2018). Risk profile on perfluorohexane sulfonic acid (PFHxS), its salts and PFHxS-related compounds (UNEP/POPS/POPRC.14/6/Add.1). Stockholm Convention on Persistent Organic Pollutants (POPs).
6) United Nations Environment Programme (UNEP). (2022). Risk profile for long-chain perfluorocarboxylic acids, their salts and related compounds (UNEP/POPS/POPRC.18/11/Add.4). Stockholm Convention on Persistent Organic Pollutants (POPs).
7) Stockholm Convention on Persistent Organic Pollutants (POPs). PFASs listed under the Stockholm Convention, Overview. https://www.pops.int/Implementation/IndustrialPOPs/PFAS/Overview/tabid/5221/Default.aspx (閲覧日:2026 年 4 月 23 日)
8) 化学物質の審査及び製造等の規制に関する法律 (昭和 48 年法律第 117 号).
9) 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).
10) Sunderland, E. M., Hu, X. C., Dassuncao, C., Tokranov, A. K., Wagner, C. C., & Allen, J. G. (2019). A review of the pathways of human exposure to poly- and perfluoroalkyl substances (PFASs) and present understanding of health effects. *J Expo Sci Environ Epidemiol*, 29(2):131–147.
11) 水質基準に関する省令の一部を改正する省令 (令和 7 年 6 月 30 日、環境省令第 19

号).
12) ミネラルウォーター類における PFAS (PFOS 及び PFOA) の成分規格の設定に関する食品、添加物等の規格基準の一部改正について (令和 7 年 6 月 30 日、消食基第 402 号、健生発 0630 第 5 号).
13) 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/ポリフルオロアルキル化合物 (2026).
14) 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, トータルダイエッ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. https://mhlw-grants.niph.go.jp/system/files/report_pdf/202323037A-buntan1_0.pdf (閲覧日:2026 年 4 月 23 日)
15) 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, 分担研究報告書, トータルダイエッ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. https://mhlw-grants.niph.go.jp/system/files/report_pdf/202423010A-buntan1_1.pdf (閲覧日:2026 年 4 月 23 日)
16) Commission Regulation (EU) 2023/915 of 25 April 2023 on maximum levels for certain contaminants in food and repealing Regulation (EC) No 1881/2006. Official Journal of the European Union, L 119, 5 May 2023, pp. 1–103.
17) European Union Reference Laboratory for halogenated POPs in Feed and Food (EURL-POPs). (2024). Guidance Document on Analytical Parameters for the Determination of Per- and Polyfluoroalkyl Substances (PFAS) in Food and Feed. Version 2.0.
18) U.S. Environmental Protection Agency (U.S. EPA). (2024). Method 1633, Revision A. Analysis of Per- and Polyfluoroalkyl Substances (PFAS) in Aqueous, Solid, Biosolids, and Tissue Samples by LC-MS/MS.
19) U.S. Food and Drug Administration (FDA). (2024). FDA Foods Program Compendium of Analytical Laboratory Methods: Chemical Analytical Manual (CAM). Method number: C-010.03. Determination of 30 Per and Polyfluoroalkyl Substances (PFAS) in Food and Feed using Liquid Chromatography-Tandem Mass Spectrometry (LC-MS/MS).
20) European Food Safety Authority (EFSA). (2020). Risk to human health related to the presence of perfluoroalkyl substances in food. 18(9):6223.
21) Sunkara, M., Peprah, E., Young, W., Popol, S., Santiago, M. M., Ng, B., Fisher, C. M., DeJager, L., & Genualdi, S. (2026). Validation of the U.S. Food and Drug Administration's Method for Detection of Per- and Polyfluoroalkyl Substances Analytes in Food and Feed: First Action 2025.06. J AOAC Int, qsag007.
22) 「清涼飲料水等の規格基準の一部改正に係る試験法について」の一部改正について (令和 7 年 11 月 14 日、消食基第 566 号).
23) European Committee for Standardization (CEN). (2024). Water quality – Determination of selected per- and polyfluoroalkyl substances in drinking water – Method using liquid chromatography/tandem-mass spectrometry (LC-MS/MS). EN 17892:2024.
24) Food Standards Australia New Zealand (FSANZ). (2021). 27th Australian Total Diet Study, Per- and poly-fluoroalkyl substances.
25) World Health Organization (WHO). Request for data on PFAS. 6 February 2026.

https://www.who.int/news-room/articles-detail/request-for-data-on-pfas (閲覧日:2026年4月23日)

F. 研究業績

1. 論文発表

総説・解説

1) 山﨑由貴, 鈴木美成, 堤智昭. 有機フッ素化合物 (PFAS) とは～食品安全分野における動向～. 食と健康, 2026 年 2 月号, pp. 8–17, 2026 年

2. 学会発表

講演・シンポジウム

1) 山﨑由貴. 有機フッ素化合物 (PFAS) とは～食品安全分野における国際動向～. 2025年度食品安全研究センター (FSRC) 研究会総会・講演会, 2025 年 7 月 11 日
2) 山﨑由貴, 鈴木美成. 食品中の有機フッ素化合物 (PFAS) 分析～ミネラルウォーター類における PFAS の規格基準設定にあたり～. 令和 7 年度地方衛生研究所全国協議会近畿支部理化学研修会, 2025年11月14日
3) 山﨑由貴, 鈴木美成. 有機フッ素化合物 (PFAS) とは～食品中に含まれる PFAS のリスク管理を中心として～. 令和7年度岐阜県食品衛生監視員等研修会, 2025年12月16日
4) 山﨑由貴, 鈴木美成, 堤智昭. 食品由来の PFAS 摂取量の推定～リスク評価・リスク管理の国際動向をふまえて～. 日本食品衛生学会 中国・四国ブロックセミナー, 2026年2月 19 日
5) 山﨑由貴. 食品中に含まれる有機フッ素化合物 (PFAS) のリスク管理, 日本薬学会第146年会, 2026 年 3 月 28 日

一般発表

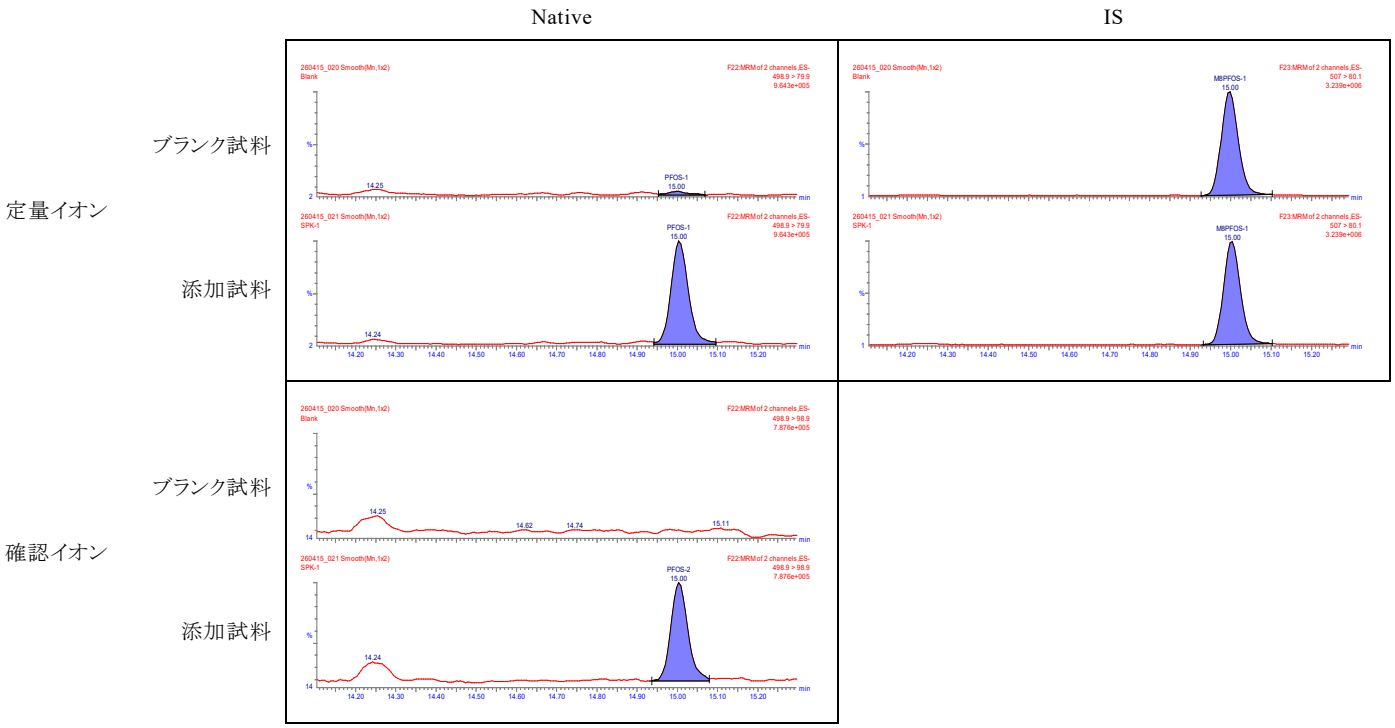
1) 山﨑由貴, 髙橋未来, 北山育子, 鈴木美成, 柏原奈央, 中村公亮, 高山卓大, 井之上浩一, 堤智昭. トータルダイエット試料中の有機フッ素化合物 (PFAS) の分析法開発と摂取量推定. 第11回次世代を担う若手のためのレギュラトリーサイエンスフォーラム, 2025 年 9 月 13 日
2) 山﨑由貴, 髙橋未来, 北山育子, 鈴木美成, 柏原奈央, 中村公亮, 高山卓大, 井之上浩一, 堤智昭. トータルダイエット試料の分析による有機フッ素化合物 (PFAS) の摂取量推定. 日本食品衛生学会第 121 回学術講演会, 2025 年 10 月 16 日 (若手優秀発表賞受賞)

表 1　本研究で用いた LC–MS/MS 条件

分析カラム	ACQUITY UPLC BEH C18、粒子径 1.7 µm、内径 2.1 mm、長さ 150 mm (Waters 製)				
ガードカートリッジカラム	ACQUITY UPLC BEH C18 VanGuard Pre-column、粒子径 1.7 µm、内径 2.1 mm、長さ 5 mm (Waters 製)				
ディレイカラム	Atlantis Premier BEH C18 AX Column、粒子径 5 µm、内径 2.1 mm、長さ 50 mm (Waters 製)				
移動相	A：2 mM 酢酸アンモニウム溶液 B：アセトニトリル (B1) 又はアセトニトリル/メタノール (1:1, v/v) (B2)				
	食品群	PFOS	PFOA	PFHxS	PFNA
	1 群	B2	B2	B2	B2
	2 群	B2	B2	B1	B2
	3 群	B2	B2	B2	B2
	4 群	B2	B2	B1	B2
	5 群	B2	B1	B1	B1
	6 群	B2	B2	B2	B2
	7 群	B2	B2	B2	B2
	8 群	B2	B2	B1	B2
	9 群	B2	B2	B2	B2
	10 群	B1	B1	B1	B1
	11 群	B2	B2	B2	B2
	12 群	B2	B2	B2	B2
	13 群	B2	B1	B1	B1
	14 群	B1	B1	B1	B1
流速	0.3 mL/分				
グラジエント条件	5%B (0.0–0.5 分) → 5-95%B の直線グラジエント (0.5–18.5 分) → 95%B (18.5–24.5 分)				
注入量	5 µL				
イオン化モード	ESI (−)				
MS パラメーター	キャピラリー電圧：−0.5 kV 脱溶媒ガス温度：500°C 脱溶媒ガス流量：1100 L/時間 コーンガス流量：150 L/時間 イオン源温度：150°C				

モニターイオン									
	分子種	定量イオン				確認イオン			
		プリカーサーイオン (*m/z*)	プロダクトイオン (*m/z*)	Cone (V)	Collision (eV)	プリカーサーイオン (*m/z*)	プロダクトイオン (*m/z*)	Cone (V)	Collision (eV)
	PFOS	499	80	5	42	499	99	5	38
	PFOA	413	369	7	10	413	169	7	18
	PFHxS	399	80	36	38	399	99	36	34
	PFNA	463	419	18	10	463	219	18	16
	$^{13}C_8$-PFOS	507	80	36	42	507	99	36	34
	$^{13}C_8$-PFOA	421	376	6	10	421	172	6	16
	$^{13}C_3$-PFHxS	402	99	13	30	402	80	13	34
	$^{13}C_9$-PFNA	472	427	7	10	472	223	7	18

PFOS



PFOA

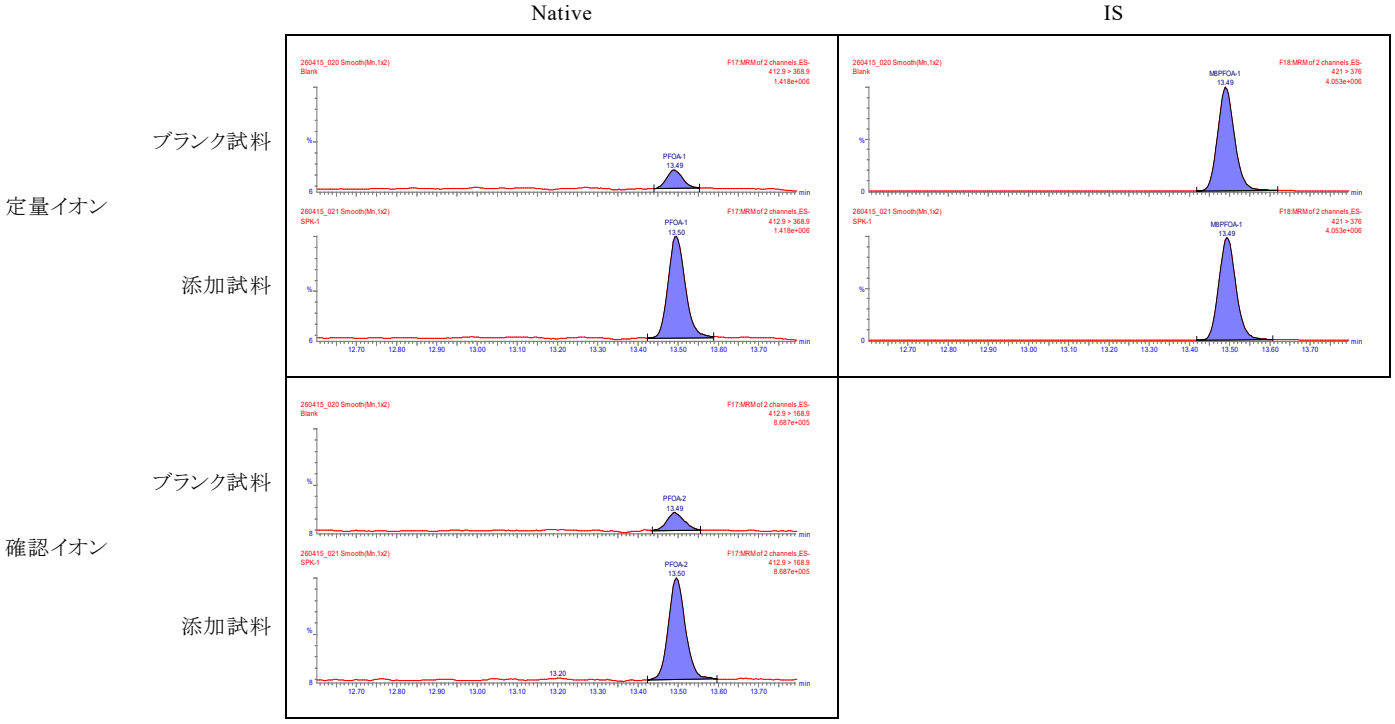
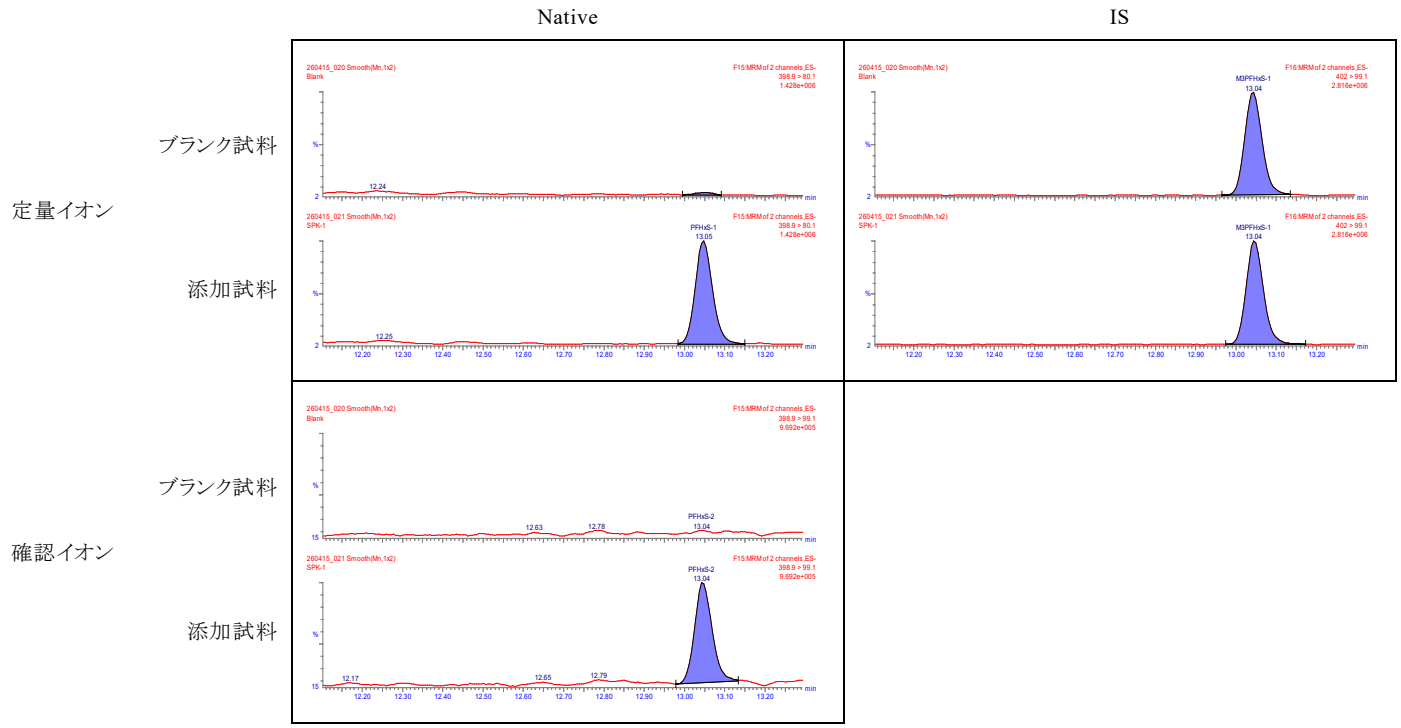


図 1　添加回収試験のブランク試料及び添加試料における native 及び IS のクロマトグラム (1 群)

PFHxS



PFNA

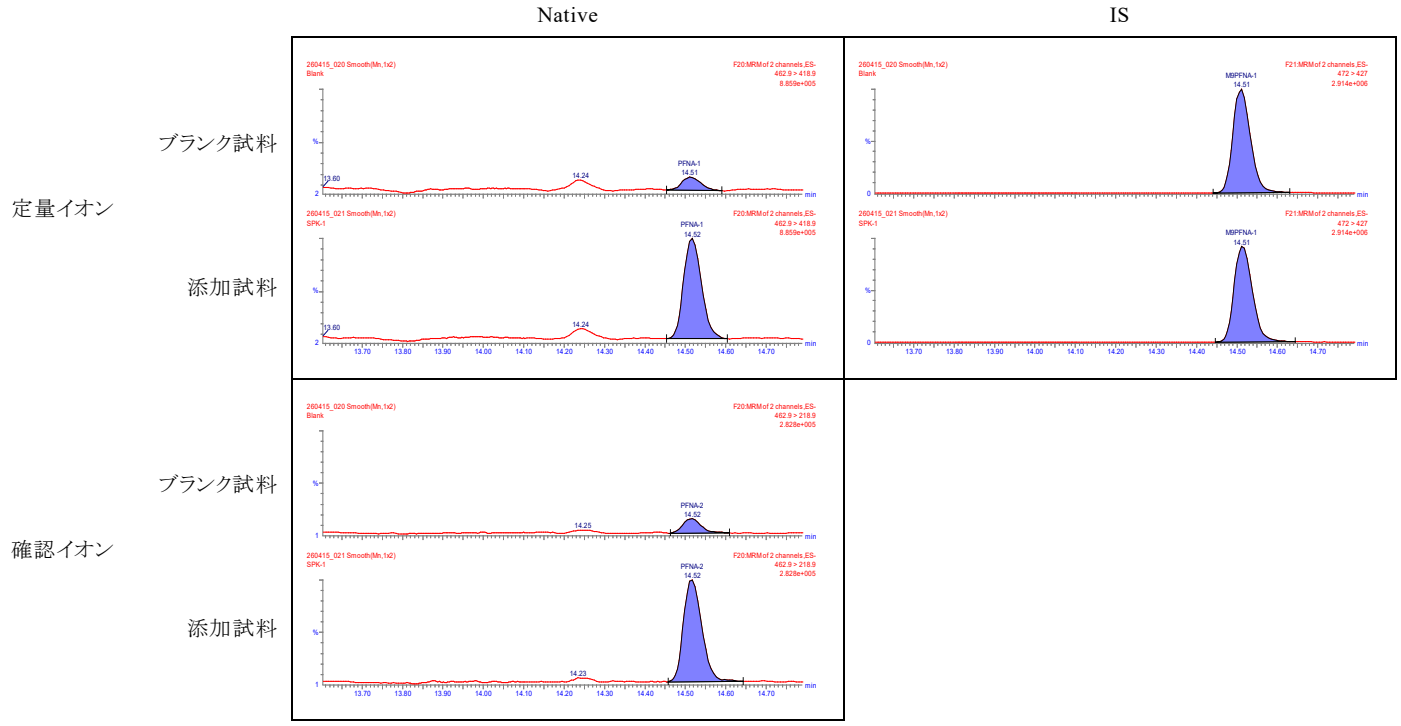
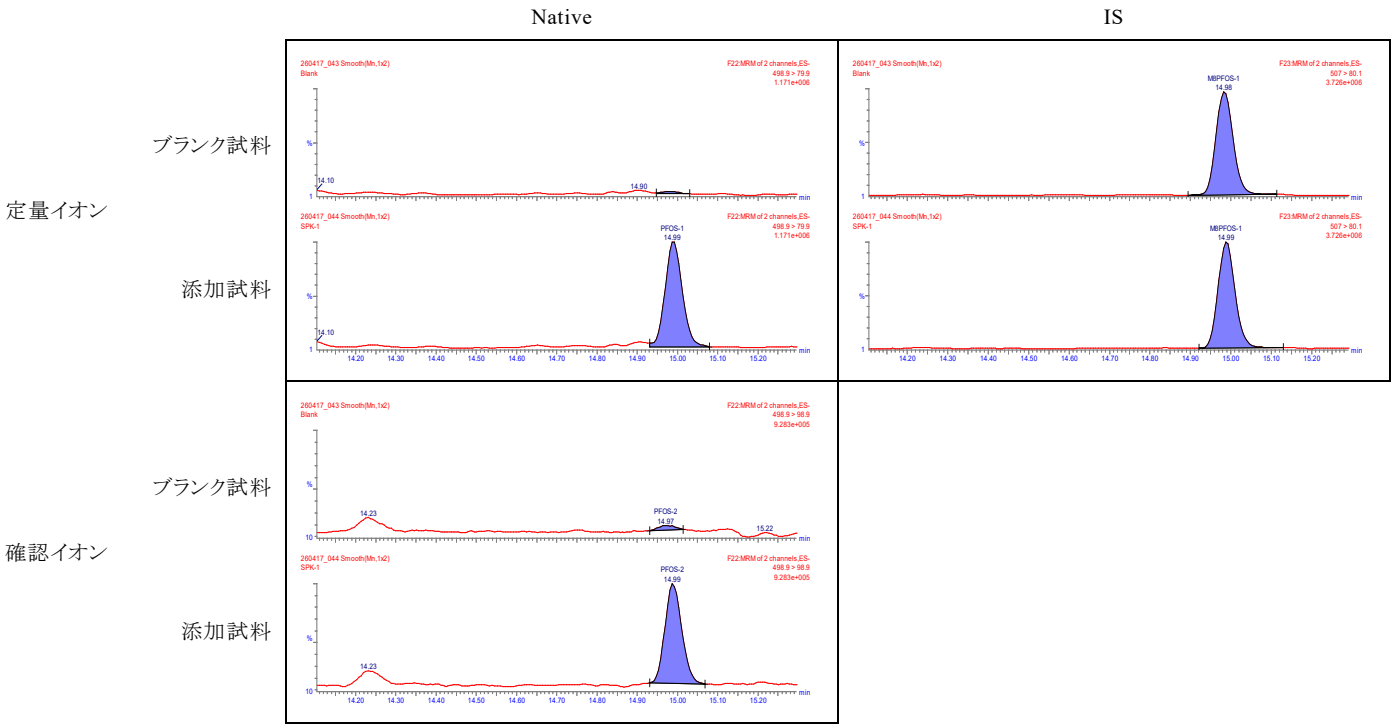


図 1 (続き)　添加回収試験のブランク試料及び添加試料における native 及び IS のクロマトグラム (1 群)

PFOS



PFOA

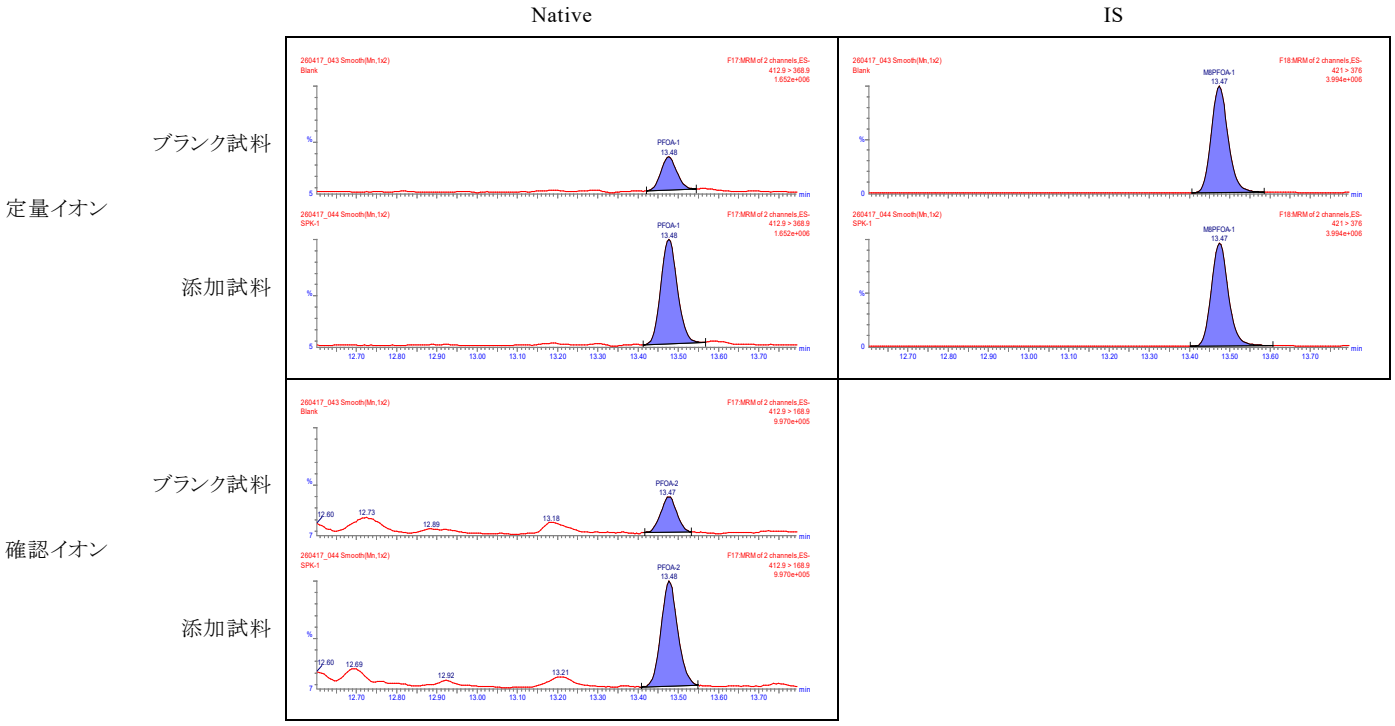
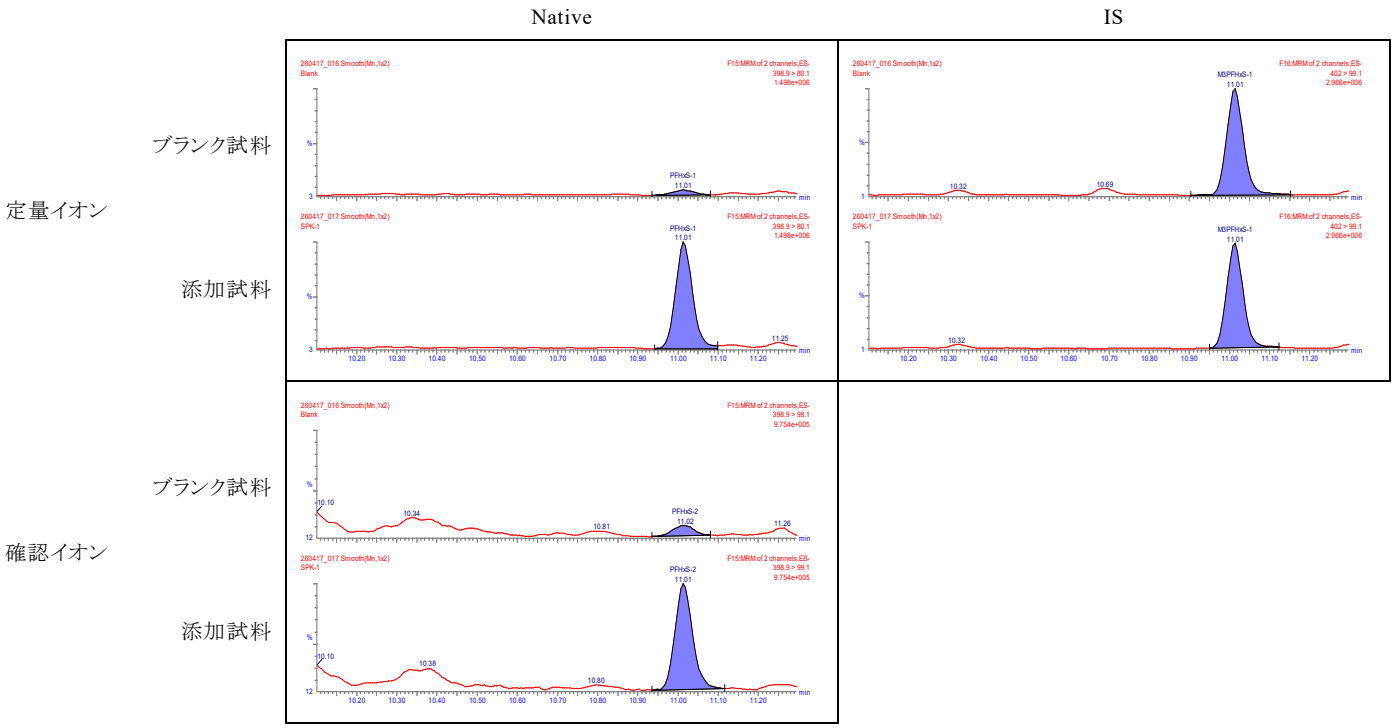


図 2　添加回収試験のブランク試料及び添加試料における native 及び IS のクロマトグラム (2 群)

PFHxS



PFNA

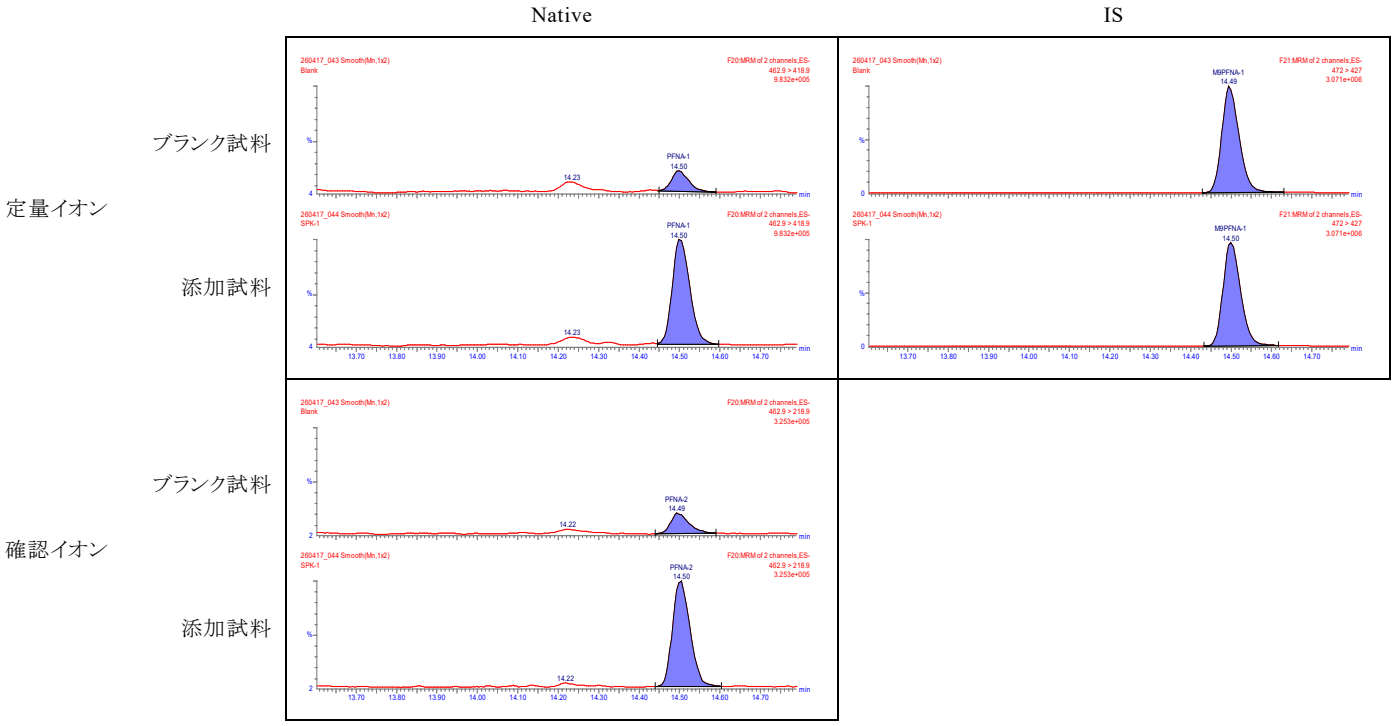
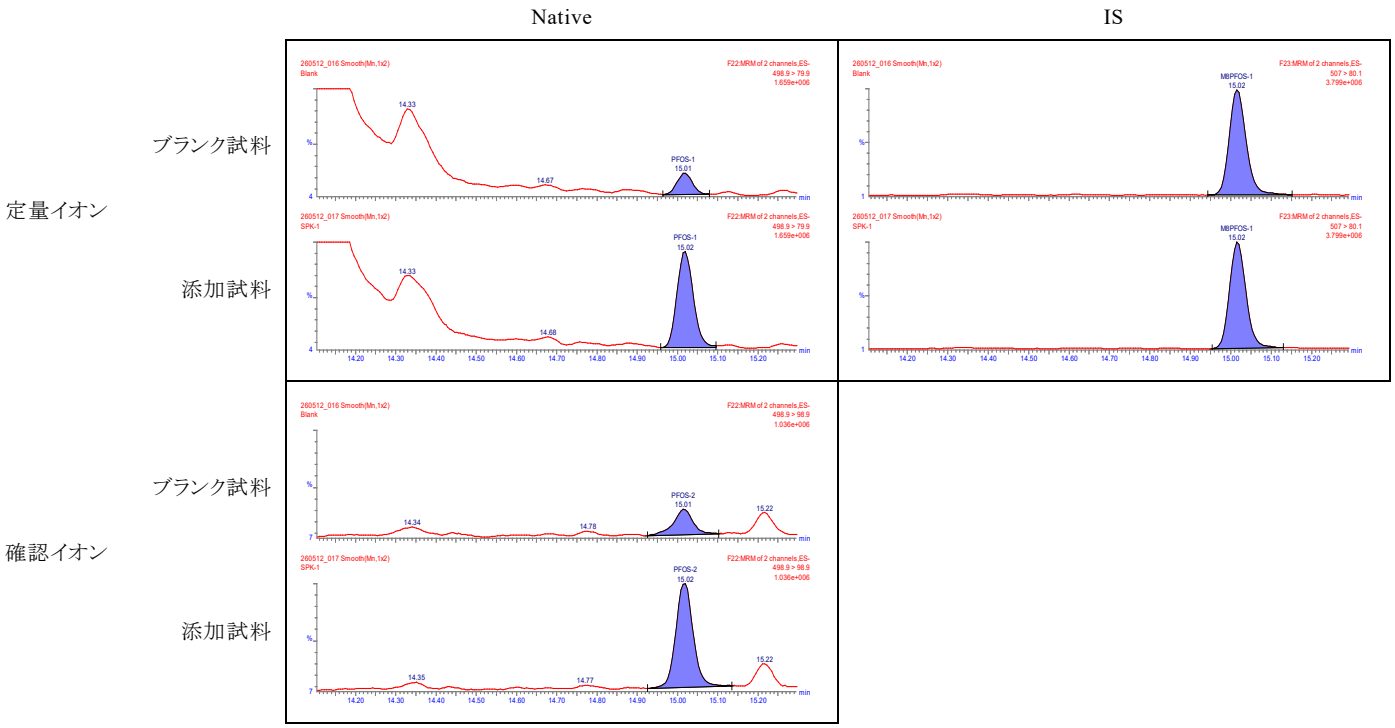


図 2 (続き)　添加回収試験のブランク試料及び添加試料における native 及び IS のクロマトグラム (2 群)

PFOS



PFOA

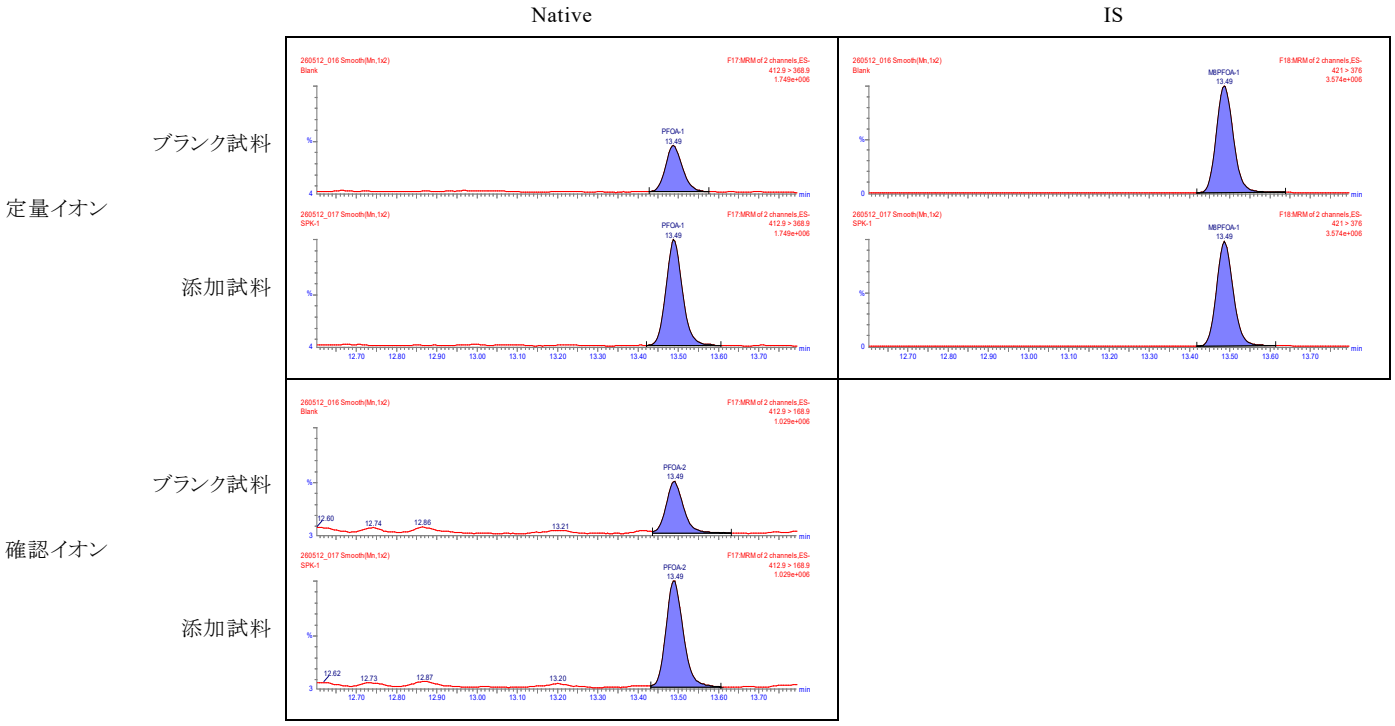
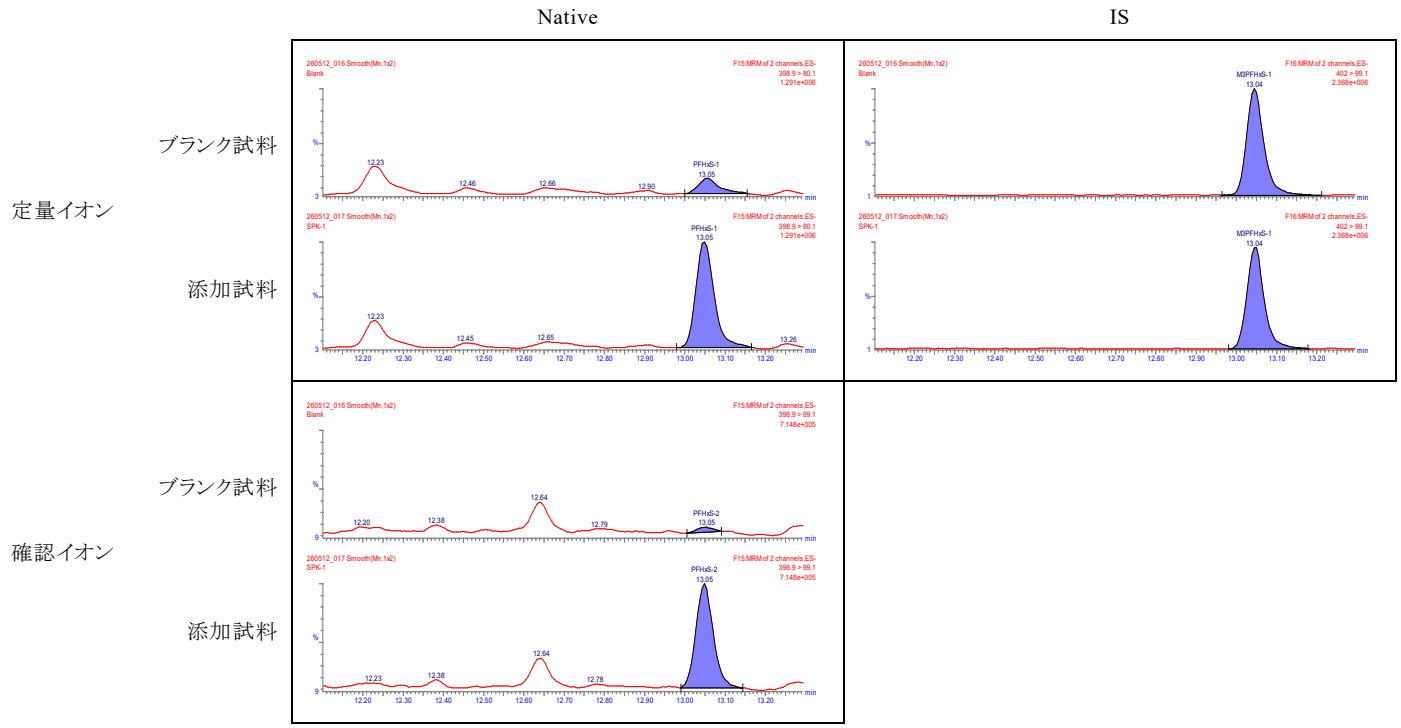


図 3　添加回収試験のブランク試料及び添加試料における native 及び IS のクロマトグラム (3 群)

PFHxS



PFNA

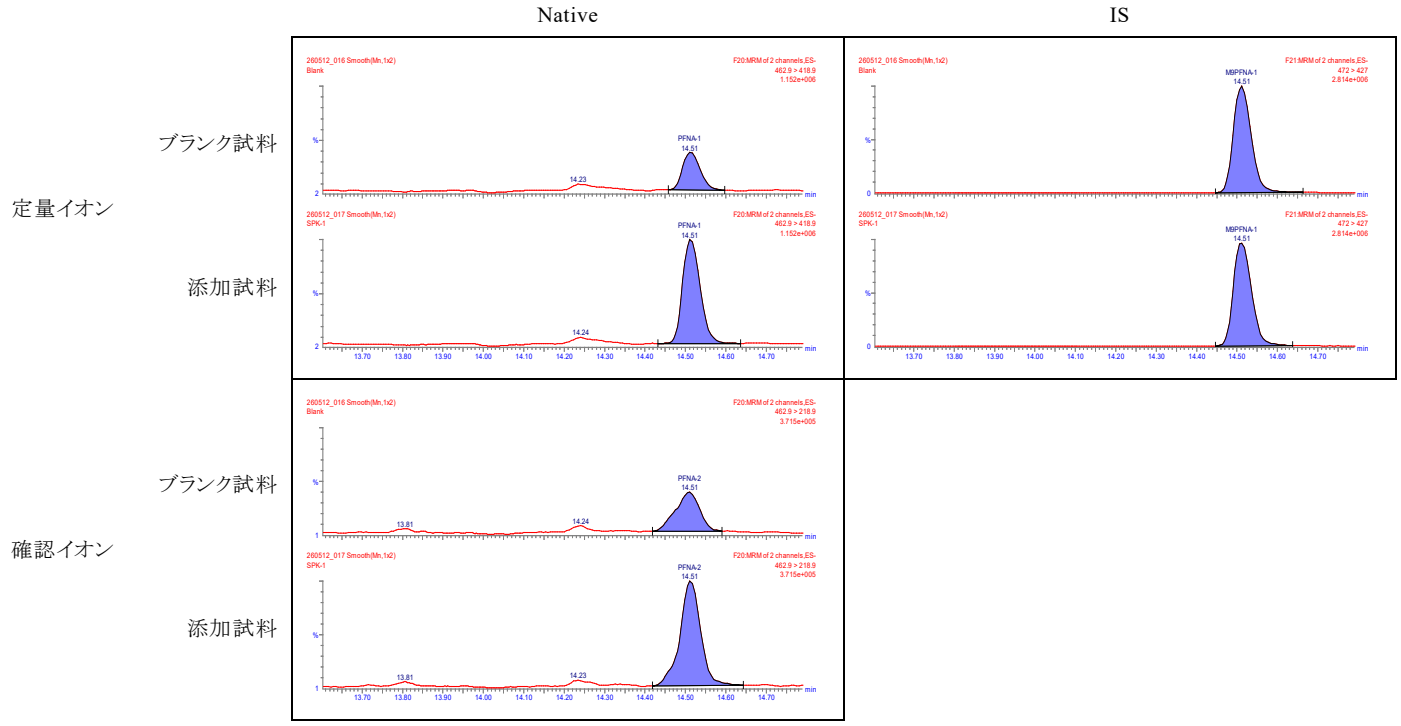
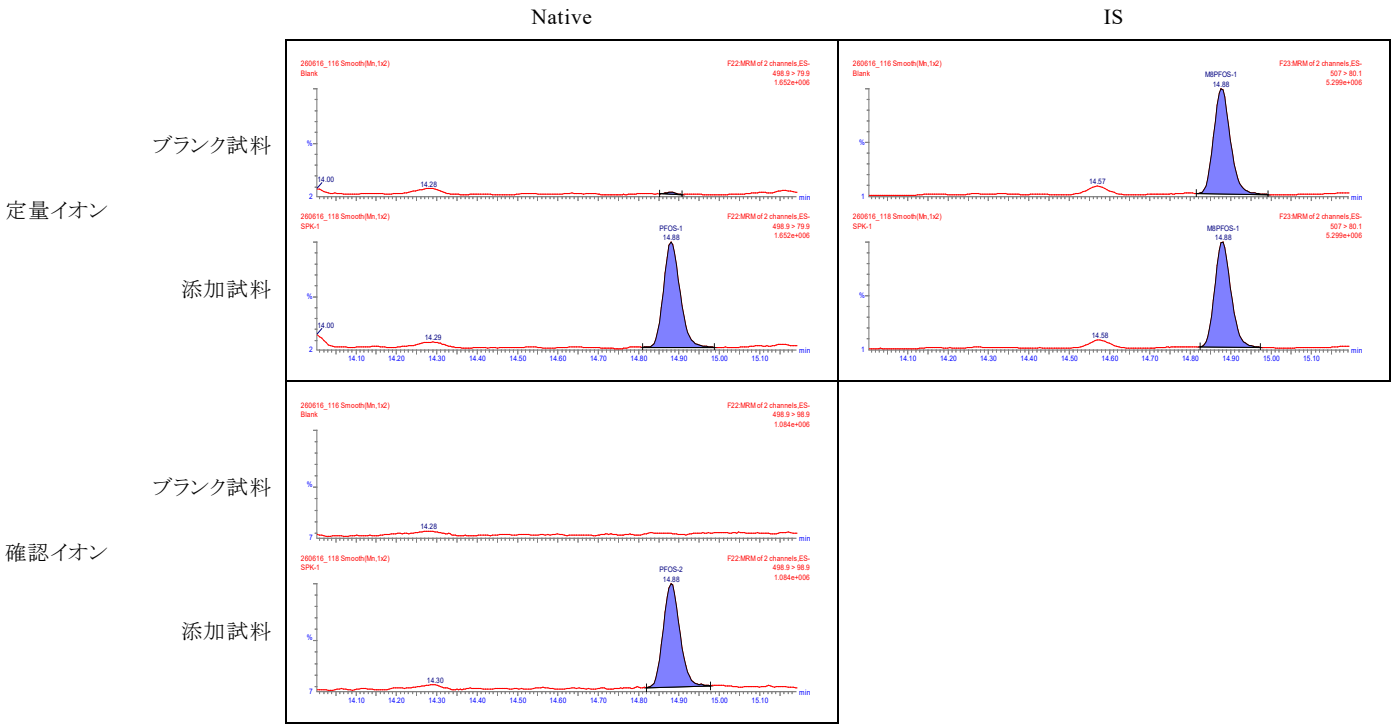


図 3 (続き)　添加回収試験のブランク試料及び添加試料における native 及び IS のクロマトグラム (3 群)

PFOS



PFOA

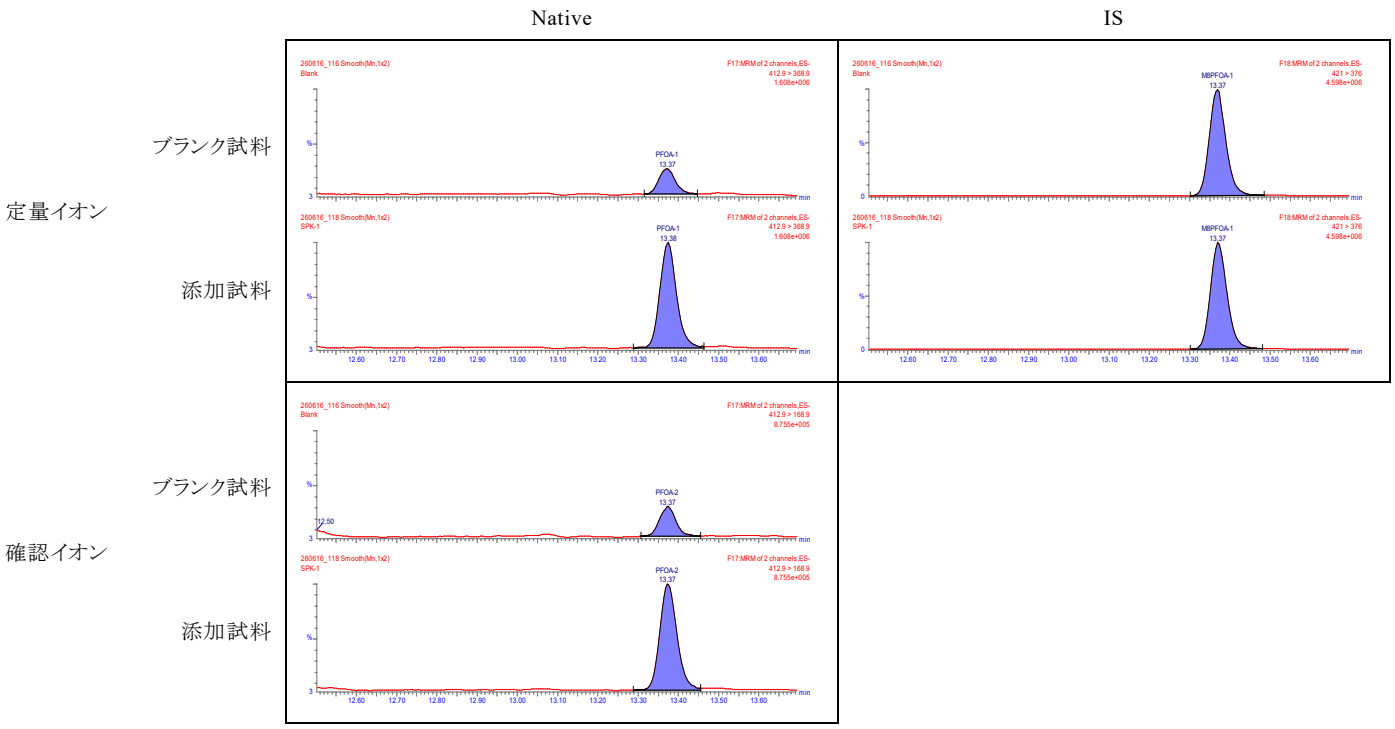
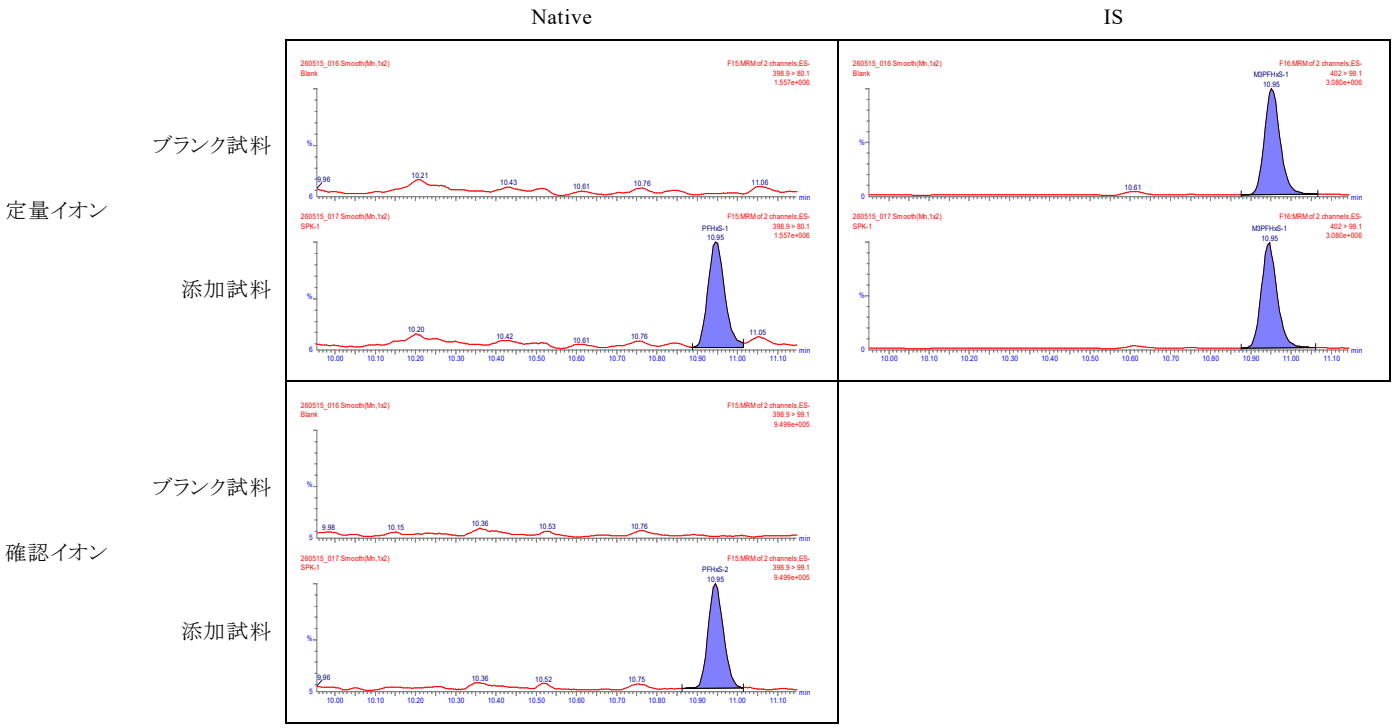


図 4　添加回収試験のブランク試料及び添加試料における native 及び IS のクロマトグラム (4 群)

PFHxS



PFNA

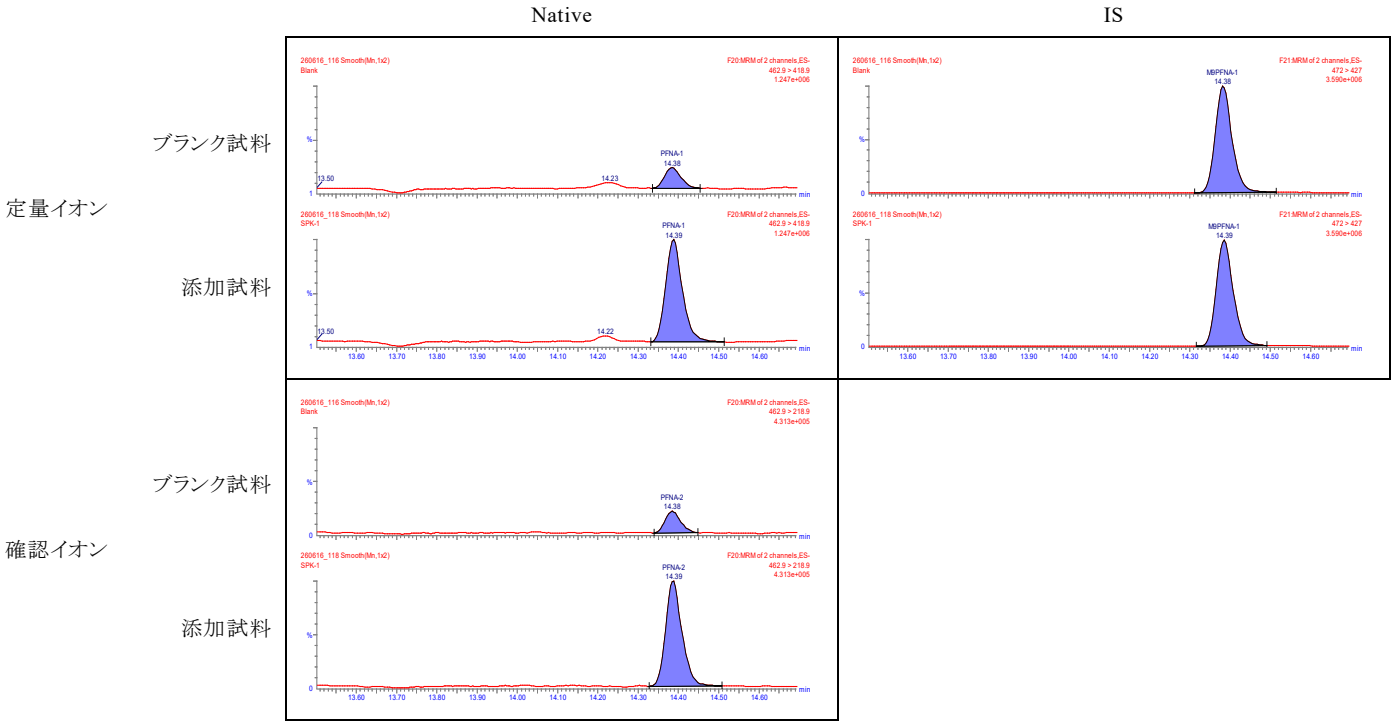
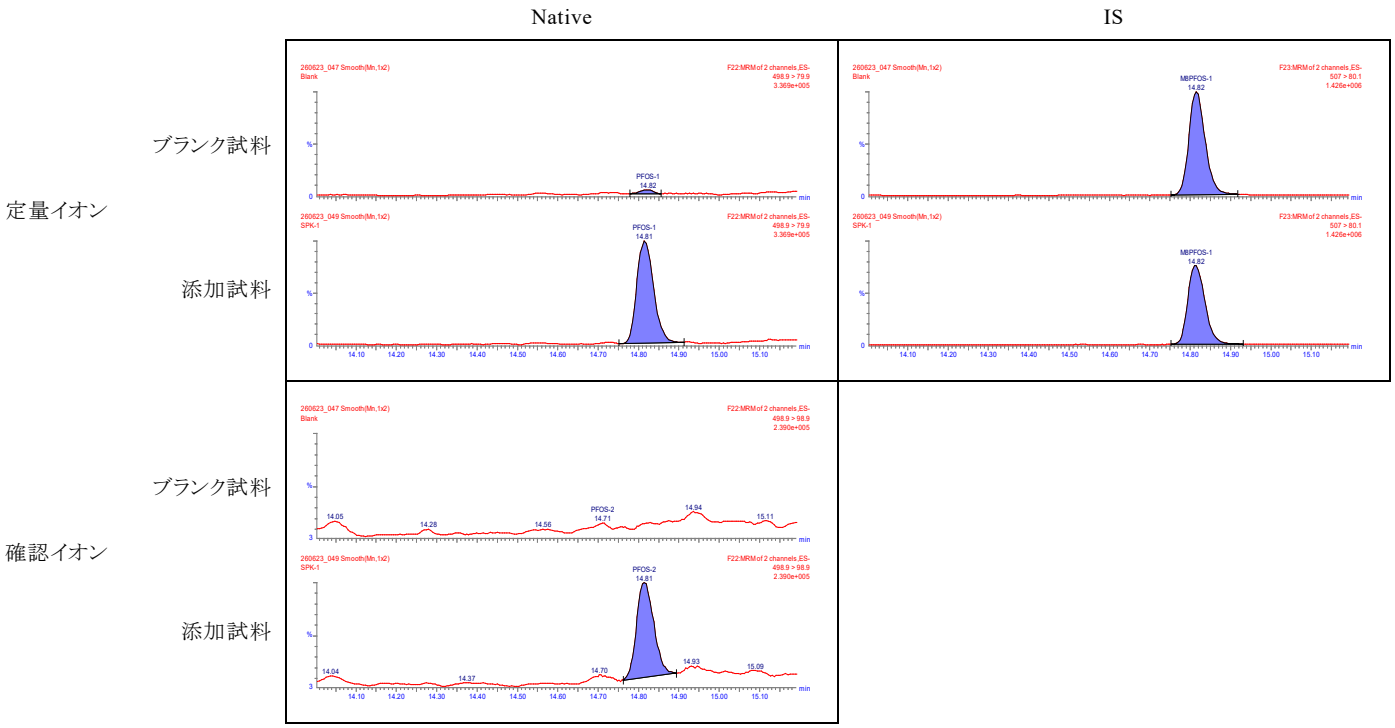


図 4 (続き)　添加回収試験のブランク試料及び添加試料における native 及び IS のクロマトグラム (4 群)

PFOS



PFOA

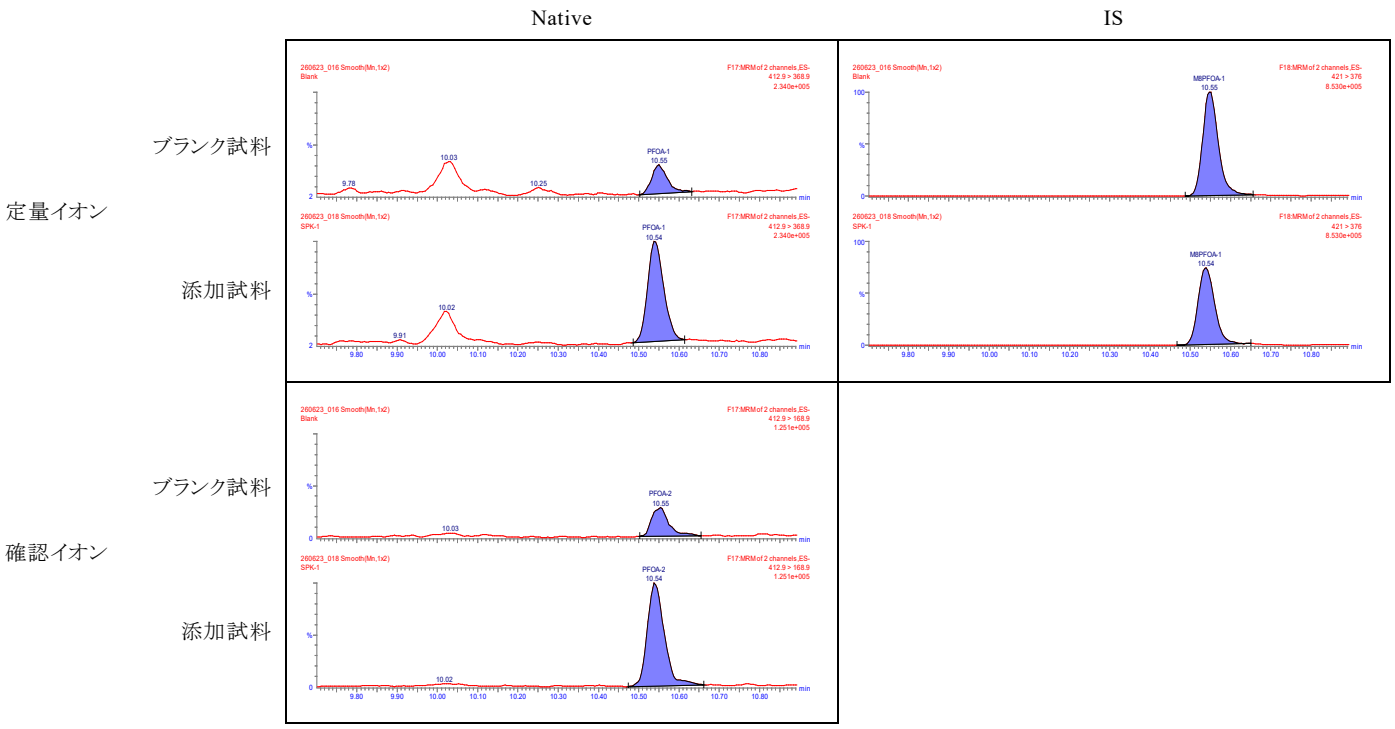
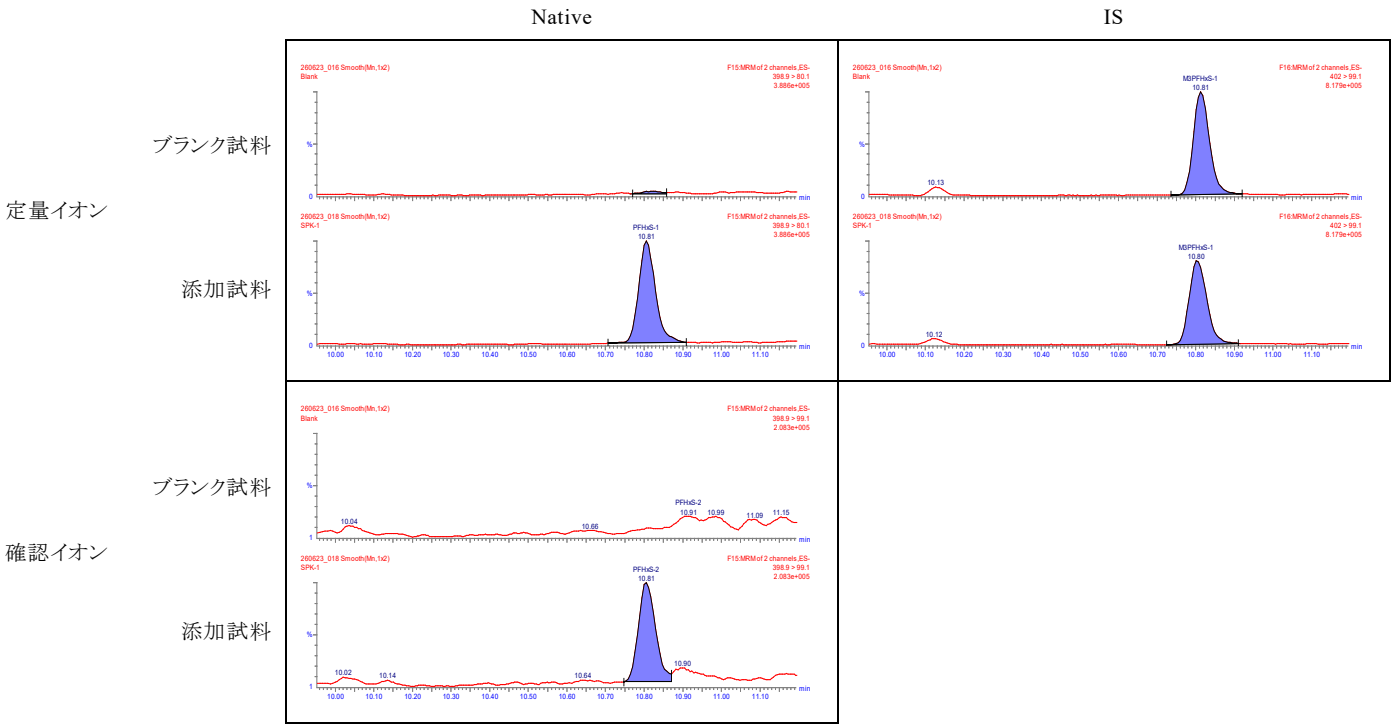


図 5　添加回収試験のブランク試料及び添加試料における native 及び IS のクロマトグラム (5 群)

PFHxS



PFNA

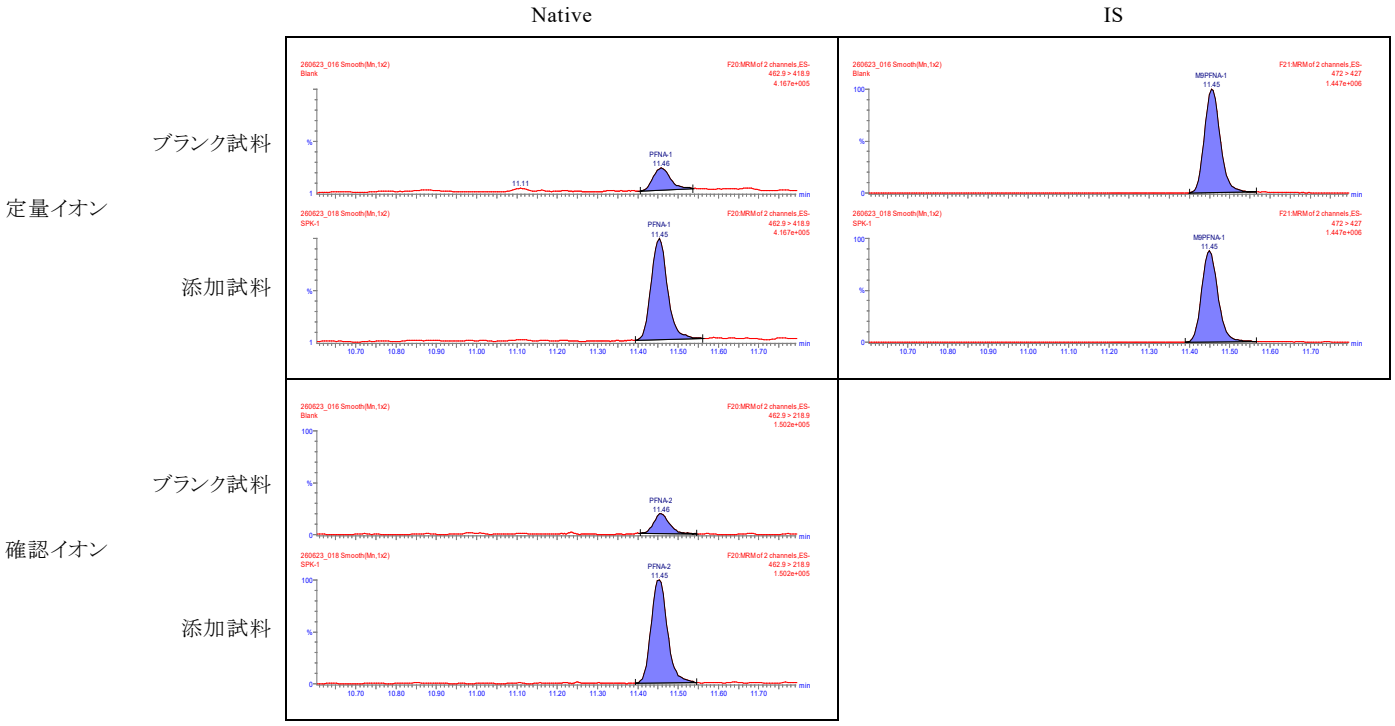
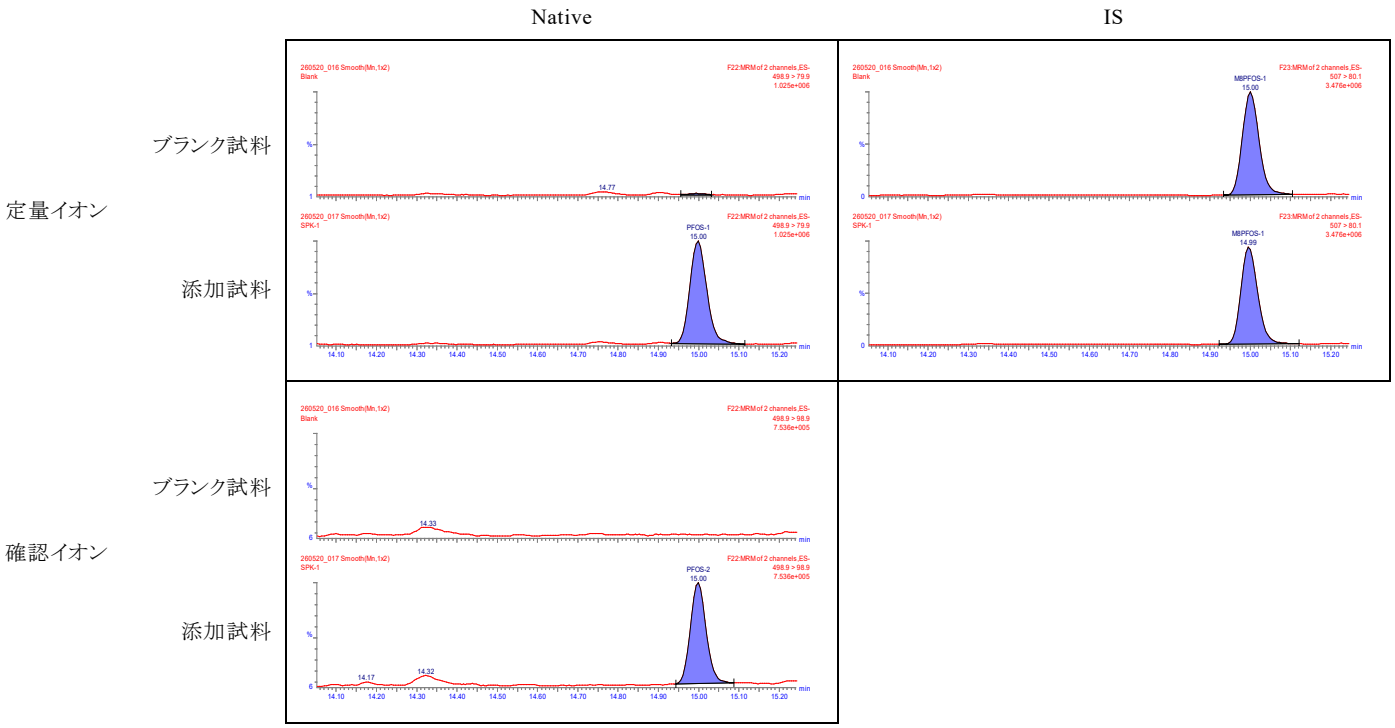


図 5 (続き)　添加回収試験のブランク試料及び添加試料における native 及び IS のクロマトグラム (5 群)

PFOS



PFOA

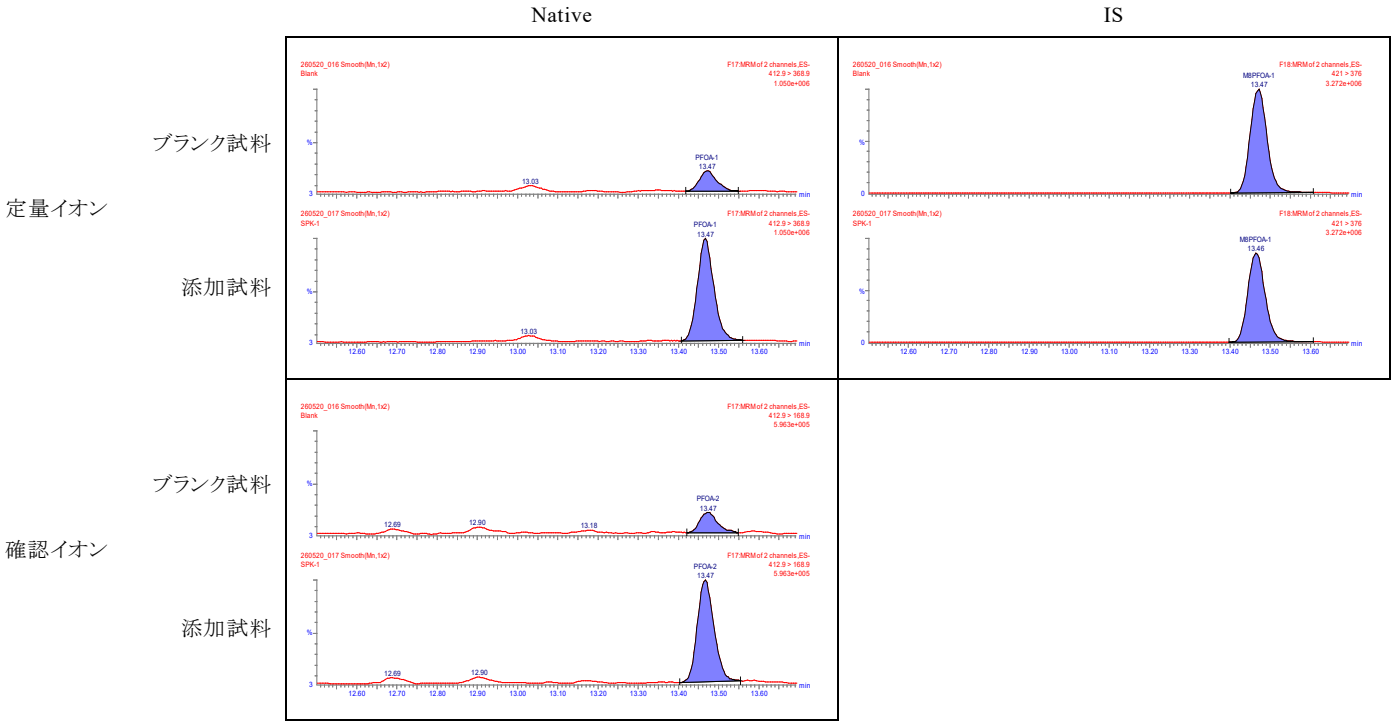
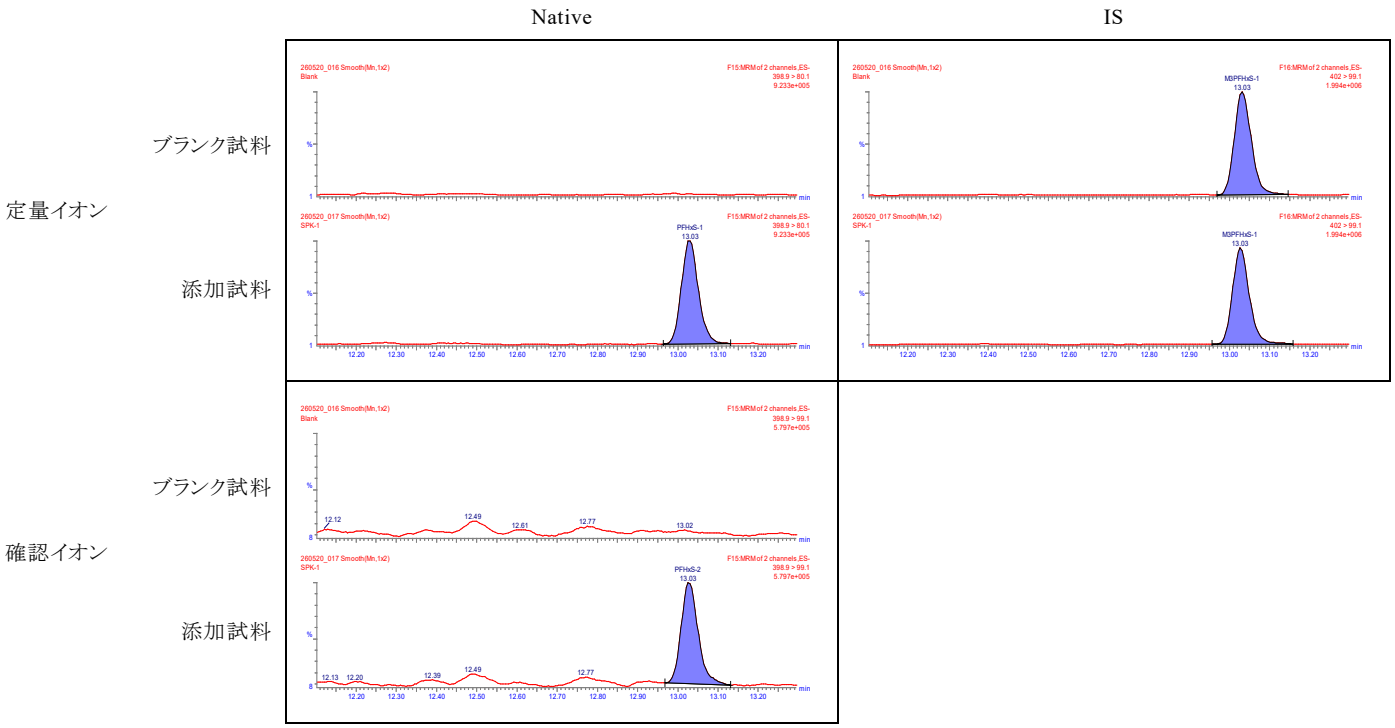


図 6　添加回収試験のブランク試料及び添加試料における native 及び IS のクロマトグラム (6 群)

PFHxS



PFNA

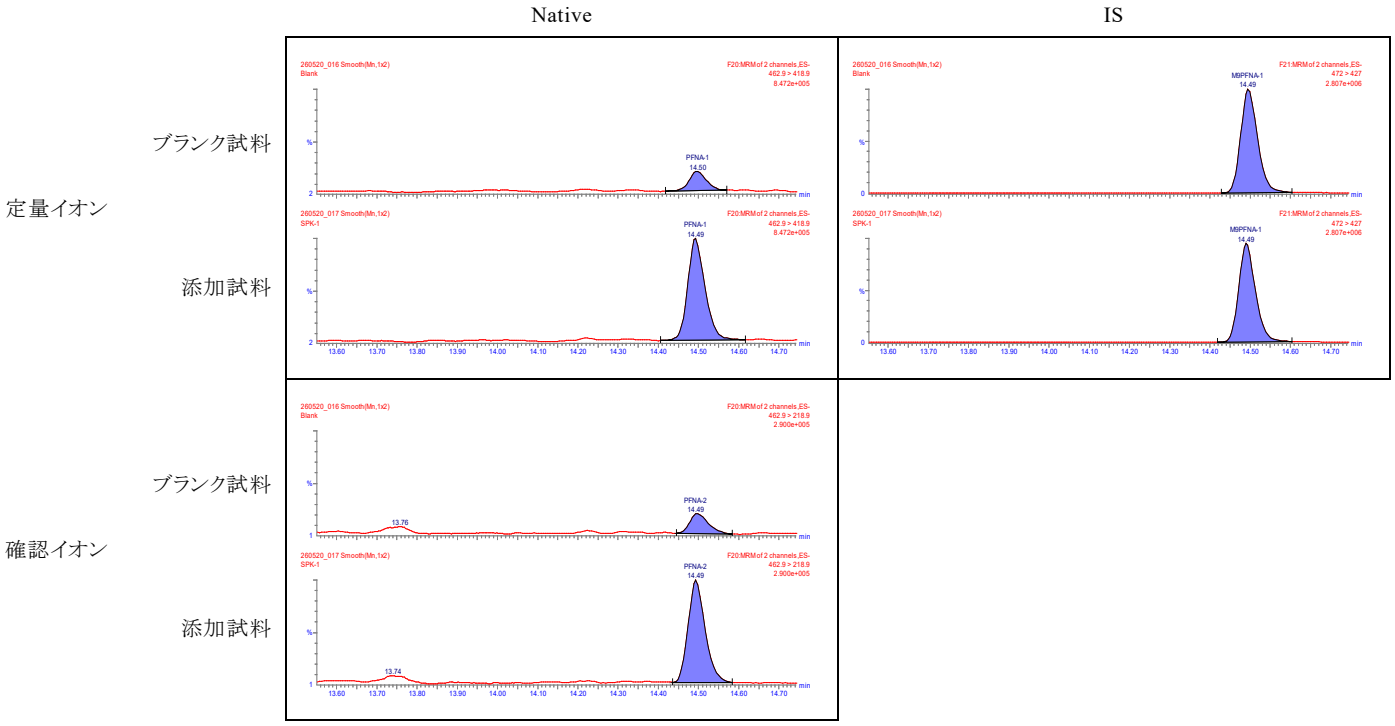
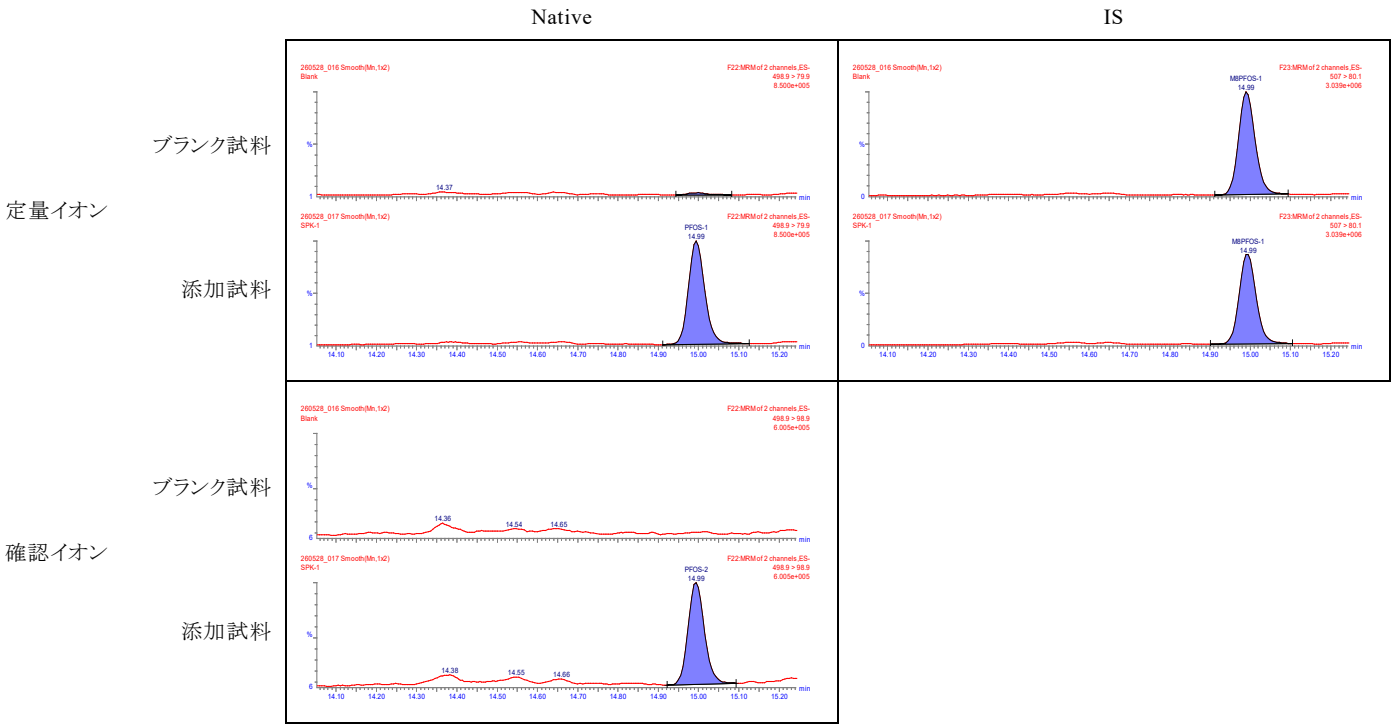


図 6 (続き)　添加回収試験のブランク試料及び添加試料における native 及び IS のクロマトグラム (6 群)

PFOS



PFOA

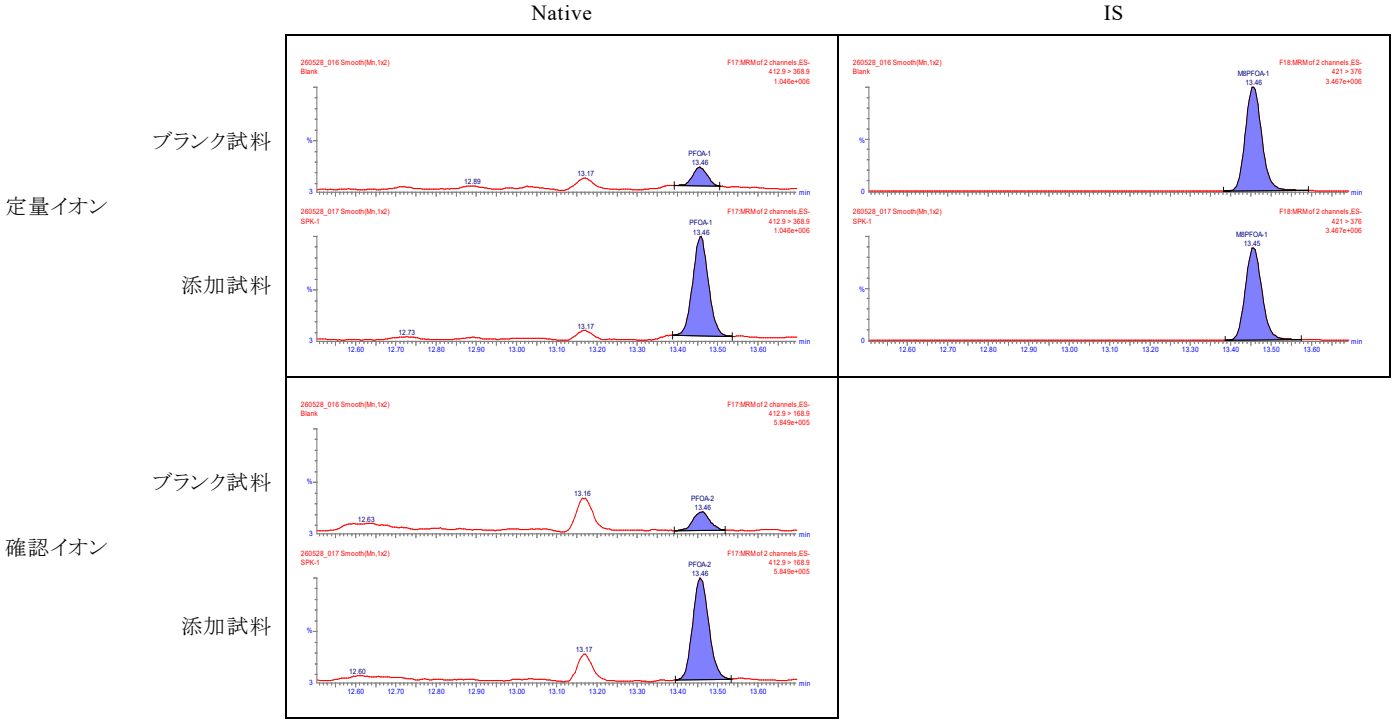
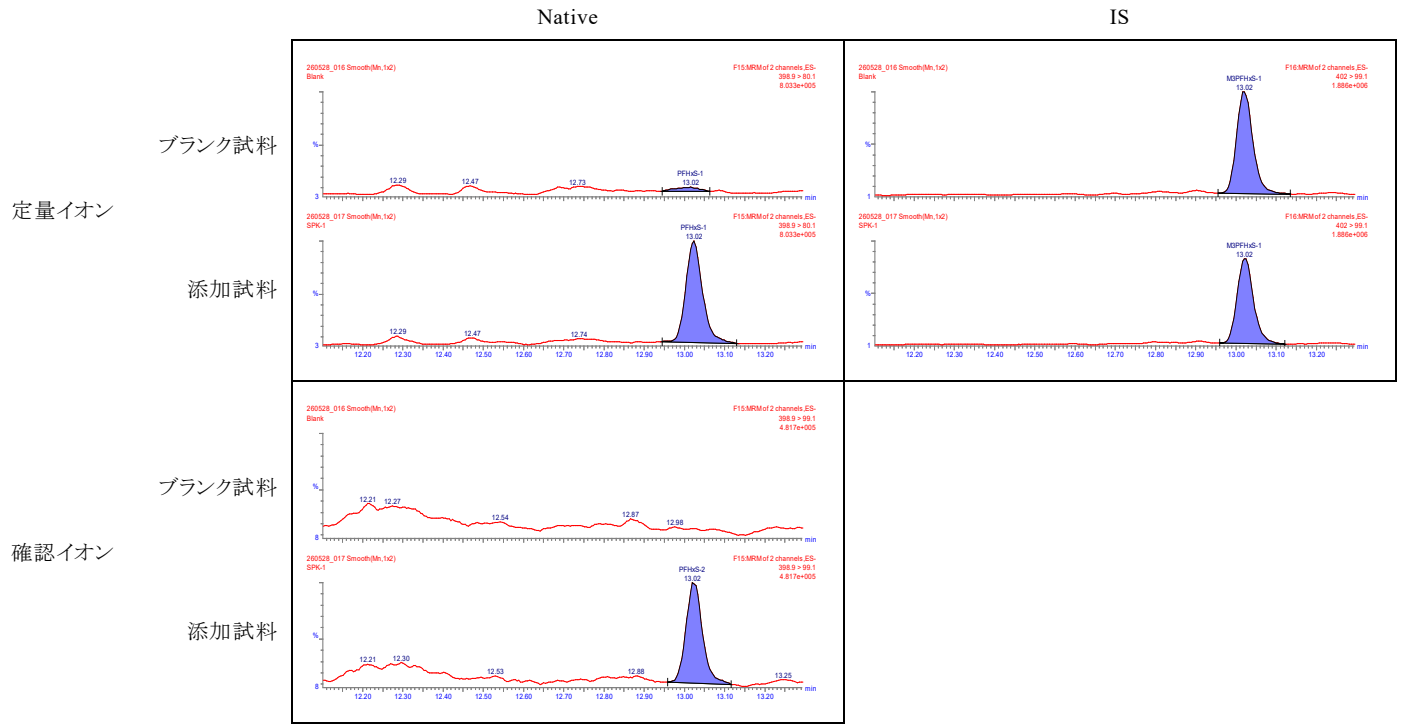


図 7　添加回収試験のブランク試料及び添加試料における native 及び IS のクロマトグラム (7 群)

PFHxS



PFNA

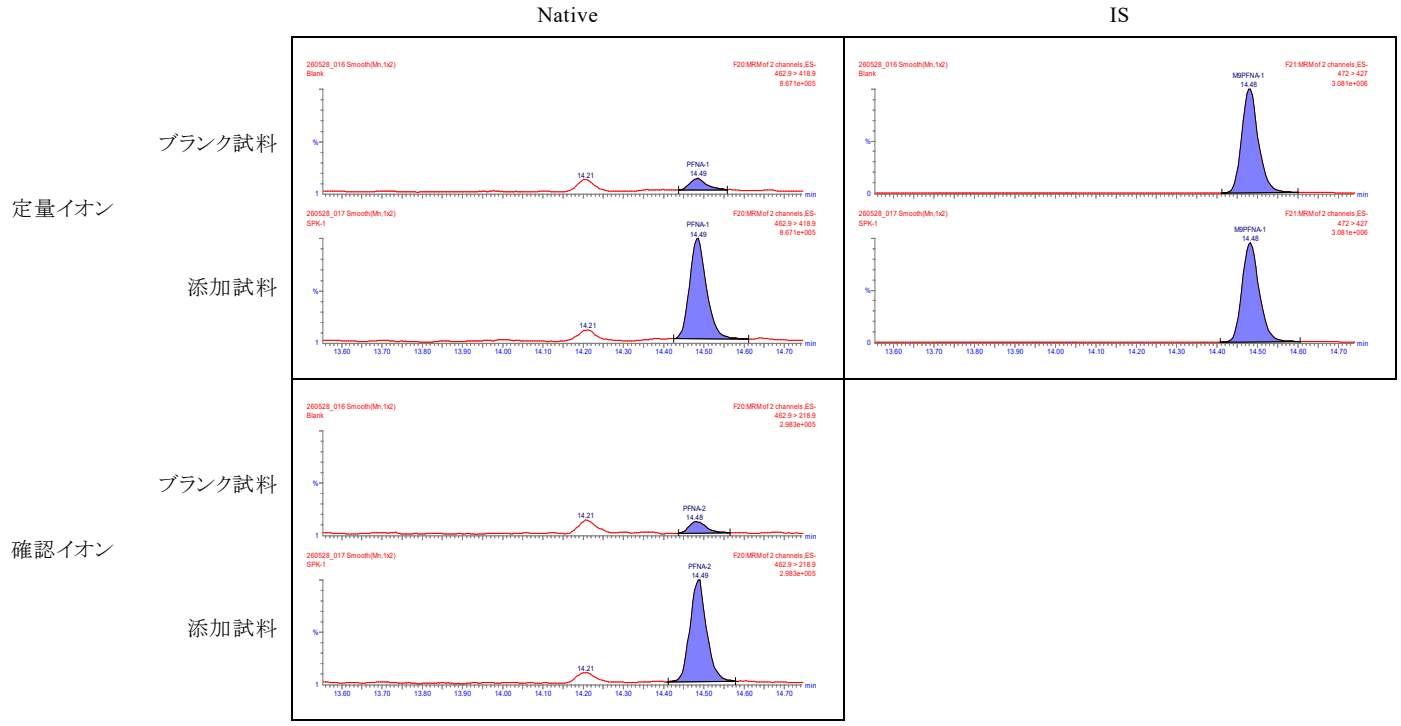
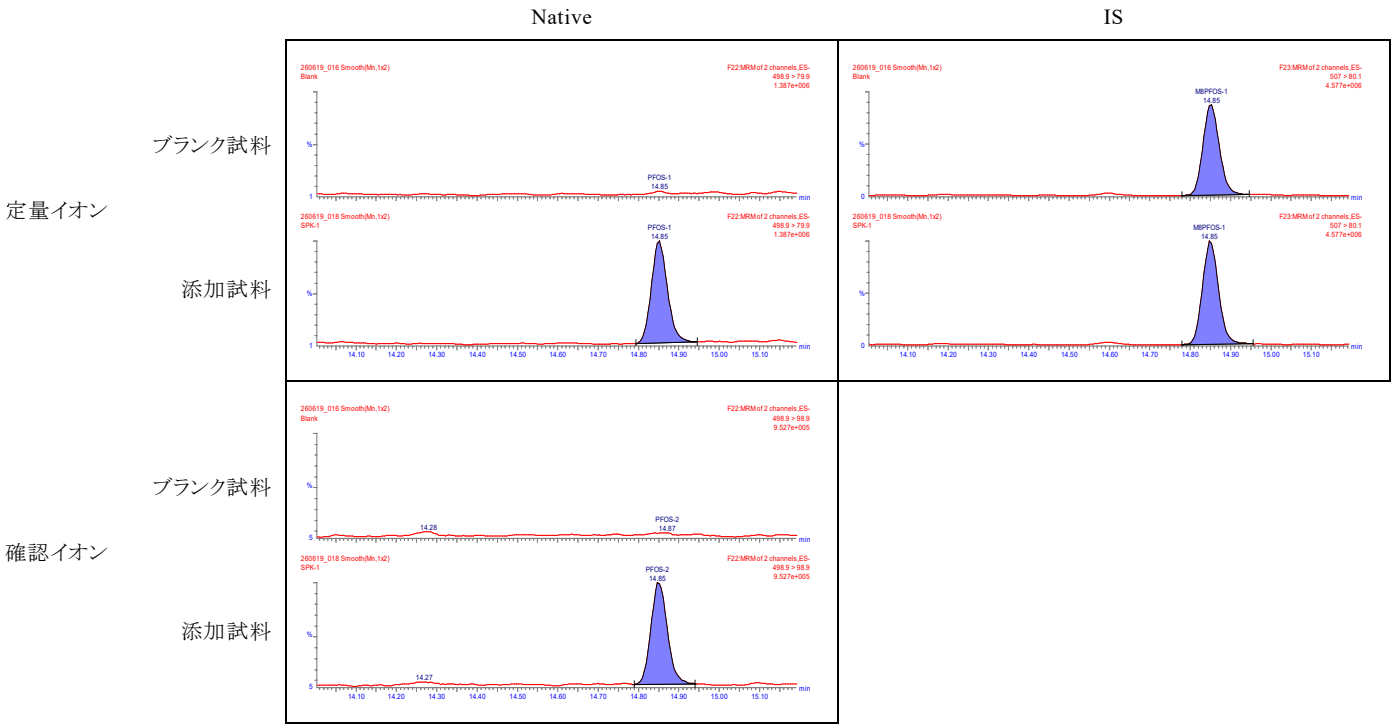


図 7 (続き)　添加回収試験のブランク試料及び添加試料における native 及び IS のクロマトグラム (7群)

PFOS



PFOA

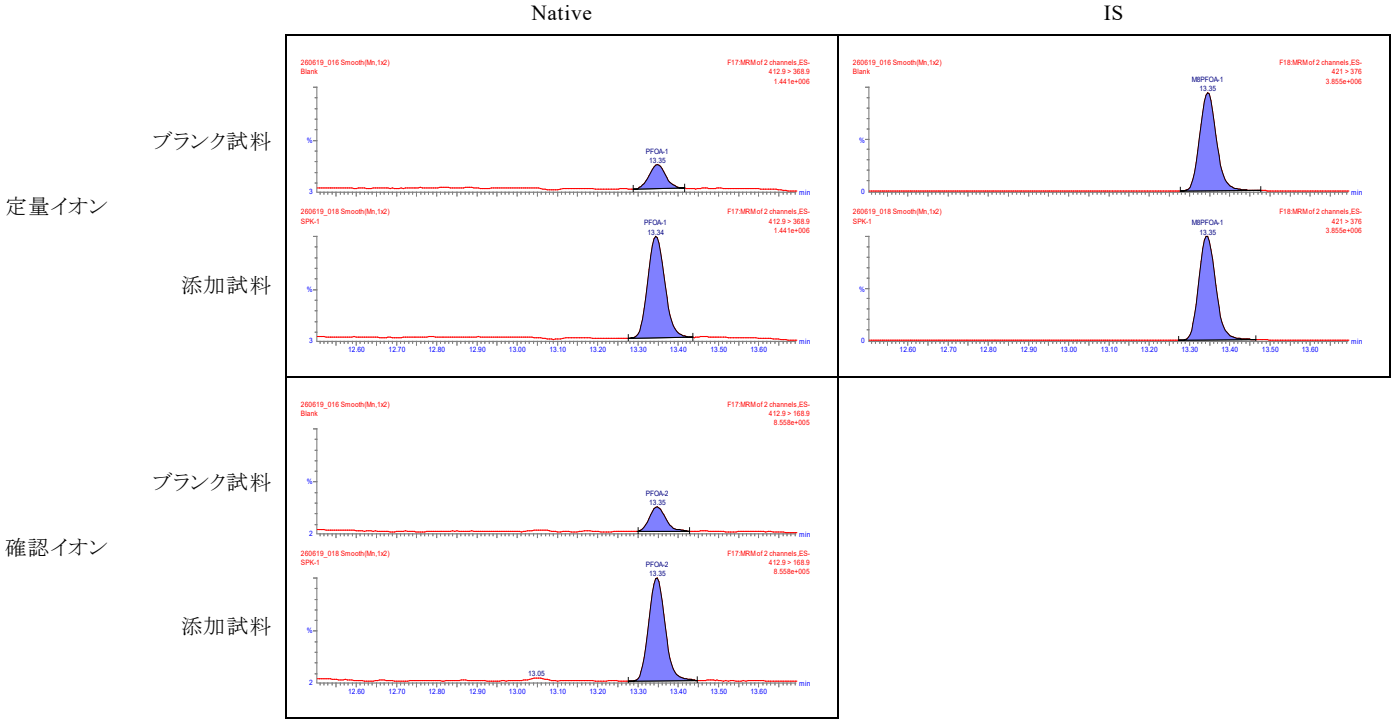
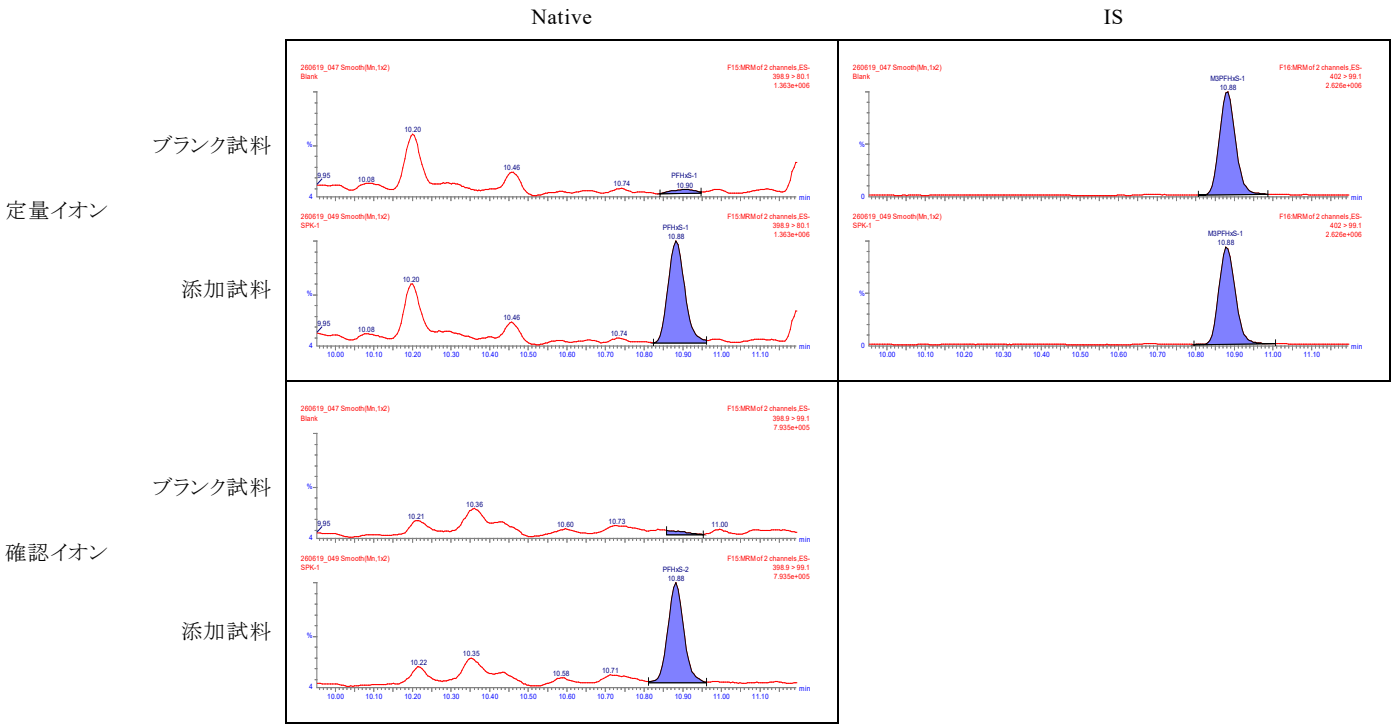


図 8　添加回収試験のブランク試料及び添加試料における native 及び IS のクロマトグラム (8 群)

PFHxS



PFNA

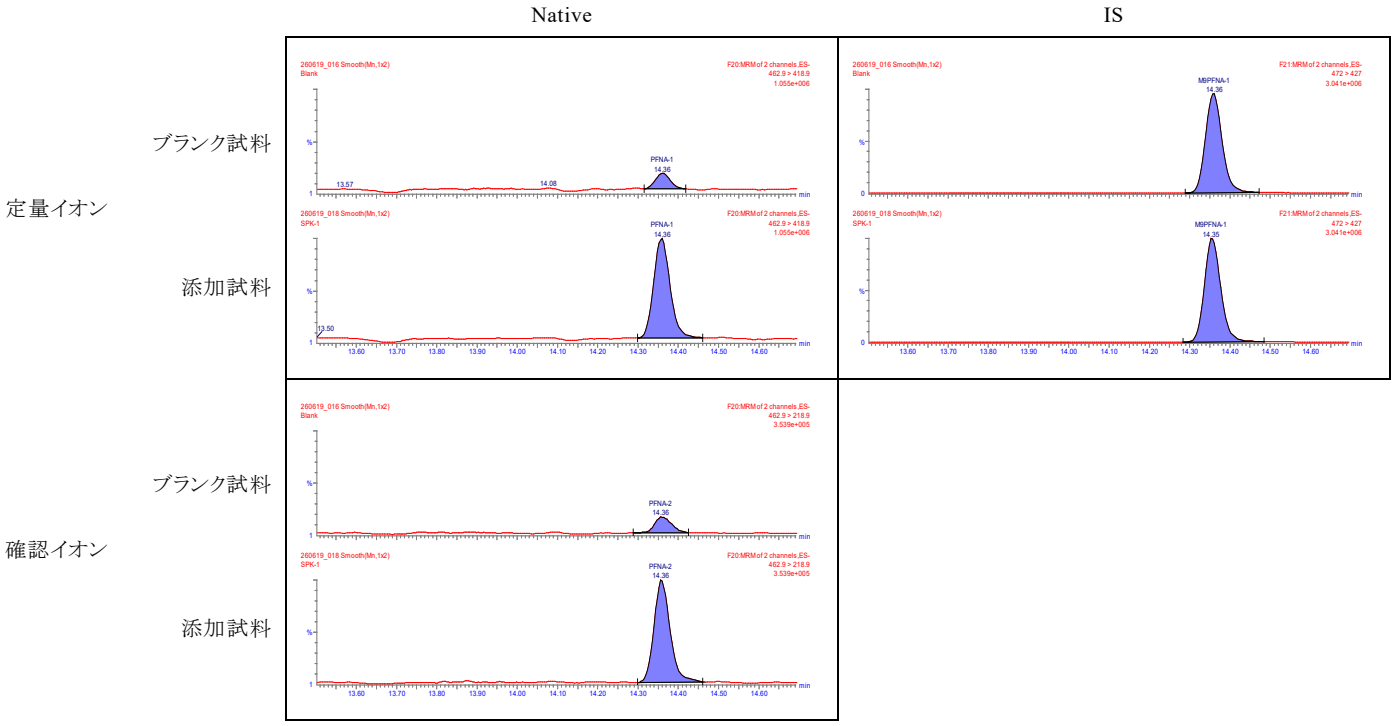
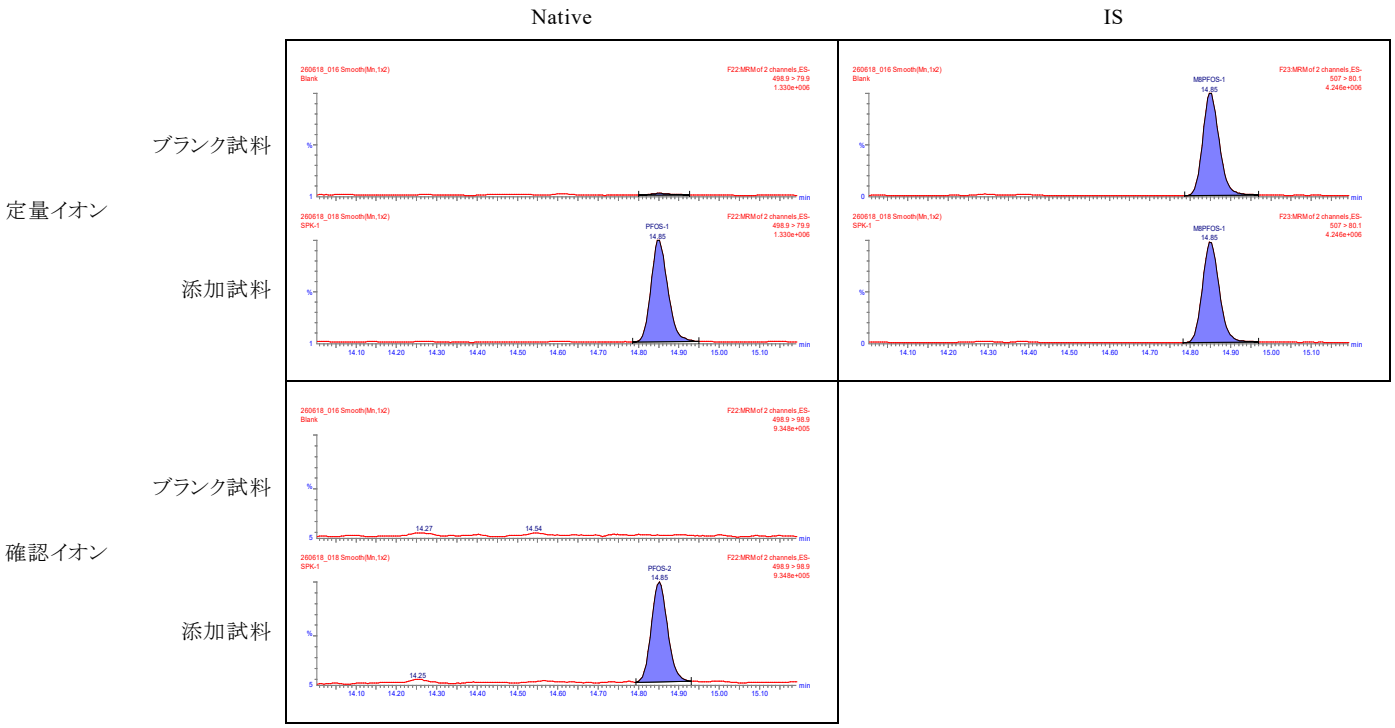


図 8 (続き)　添加回収試験のブランク試料及び添加試料における native 及び IS のクロマトグラム (8 群)

PFOS



PFOA

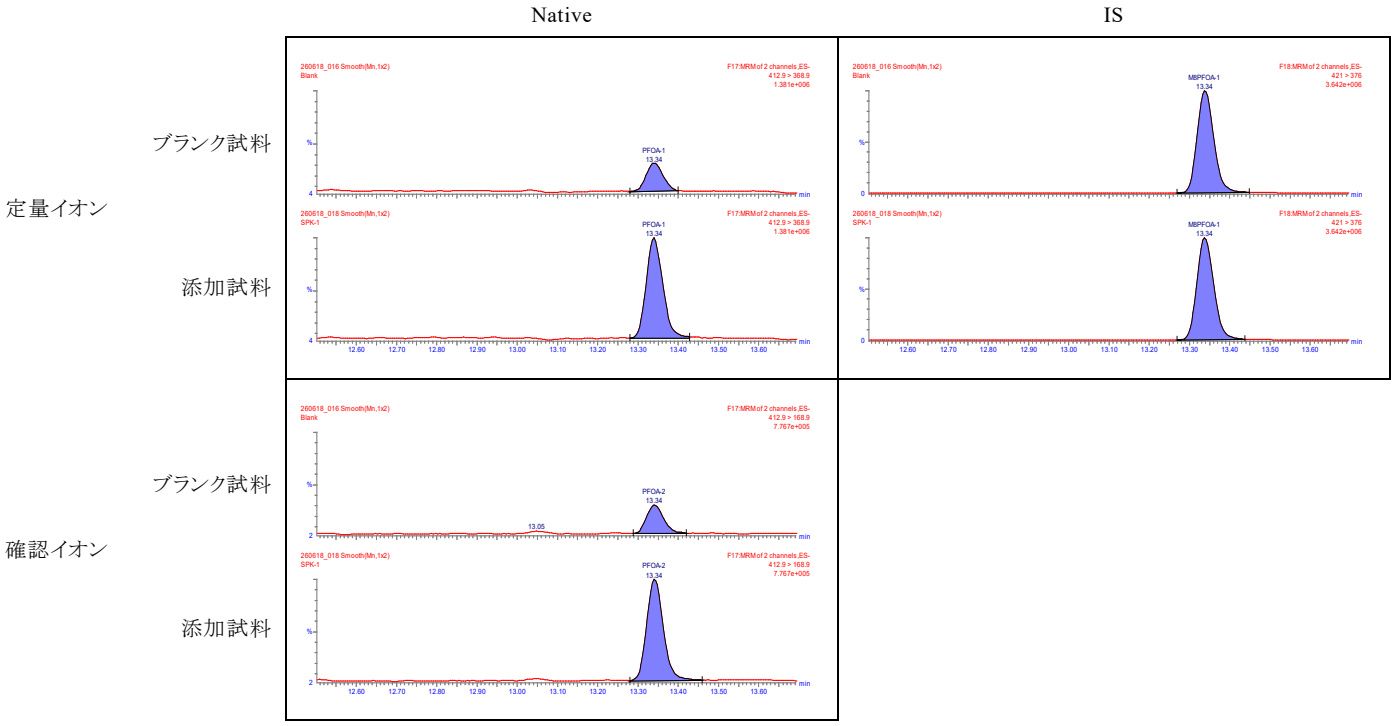
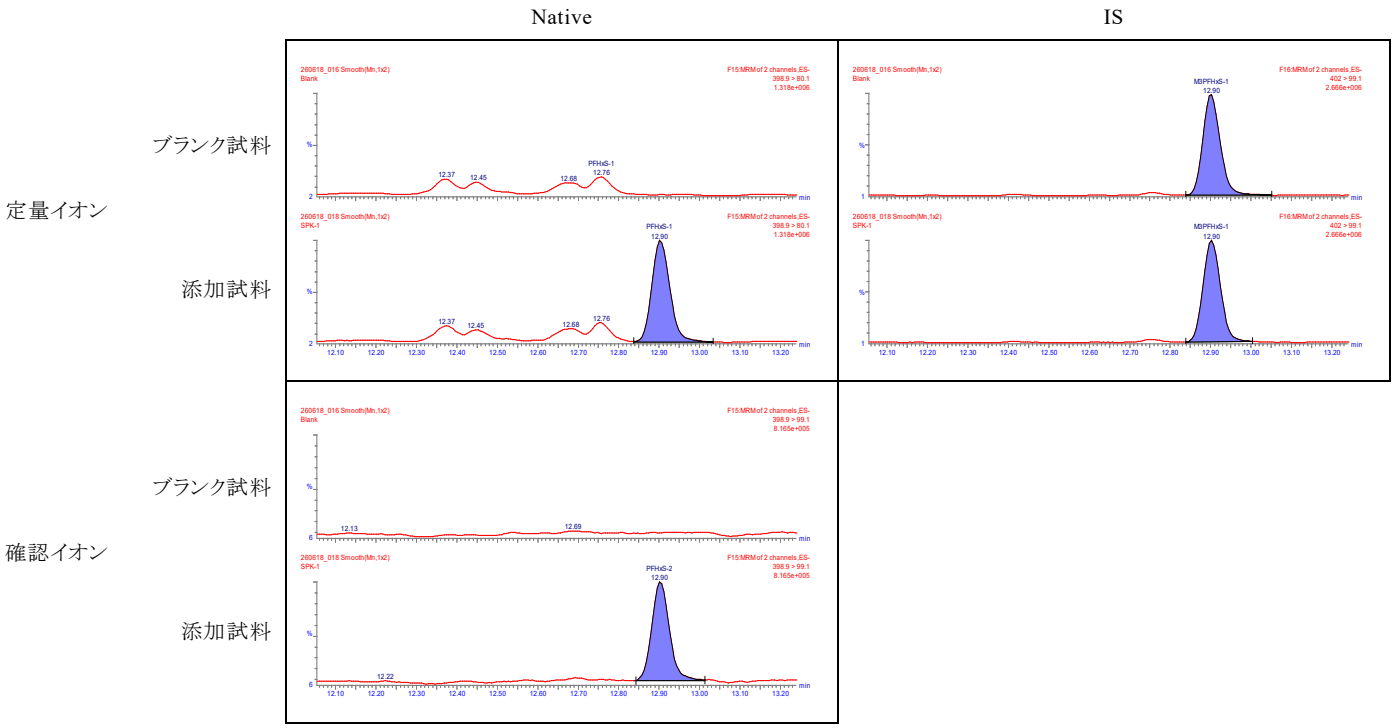


図 9　添加回収試験のブランク試料及び添加試料における native 及び IS のクロマトグラム (9 群)

PFHxS



PFNA

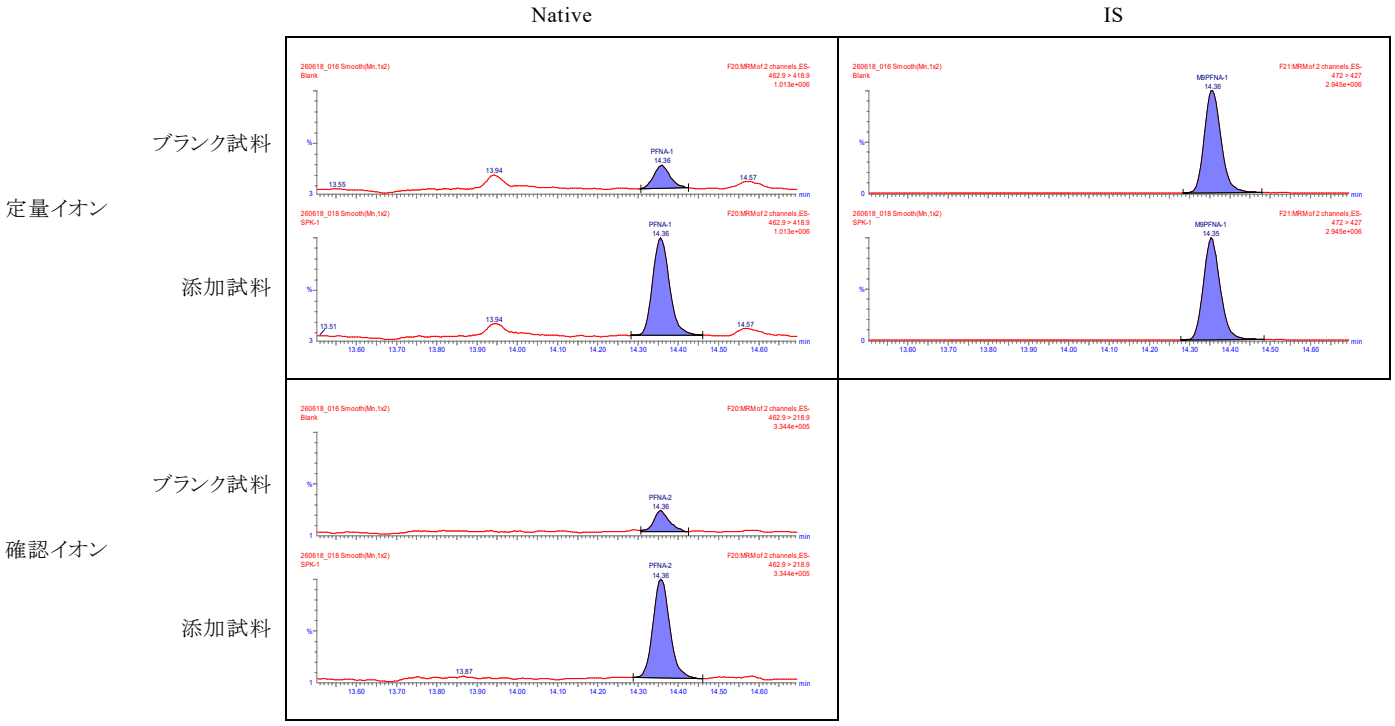
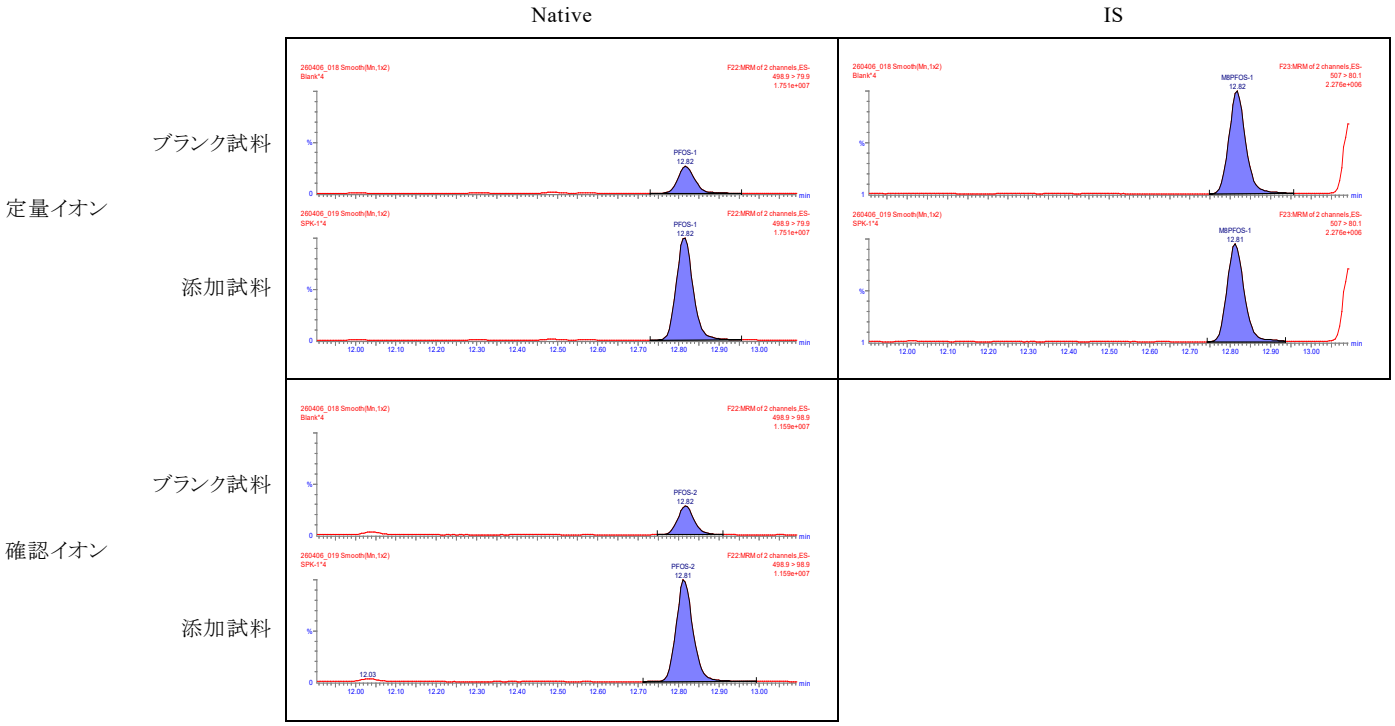


図 9 (続き)　添加回収試験のブランク試料及び添加試料における native 及び IS のクロマトグラム (9 群)

PFOS



PFOA

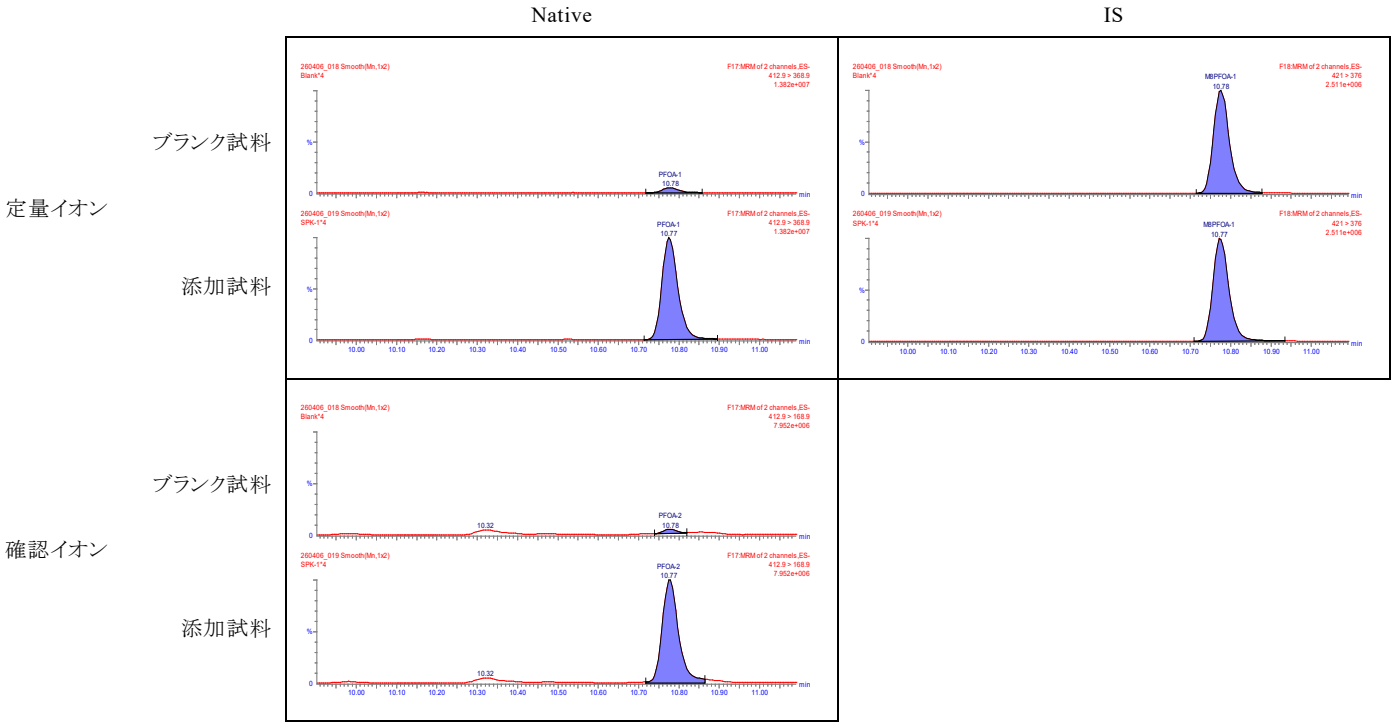
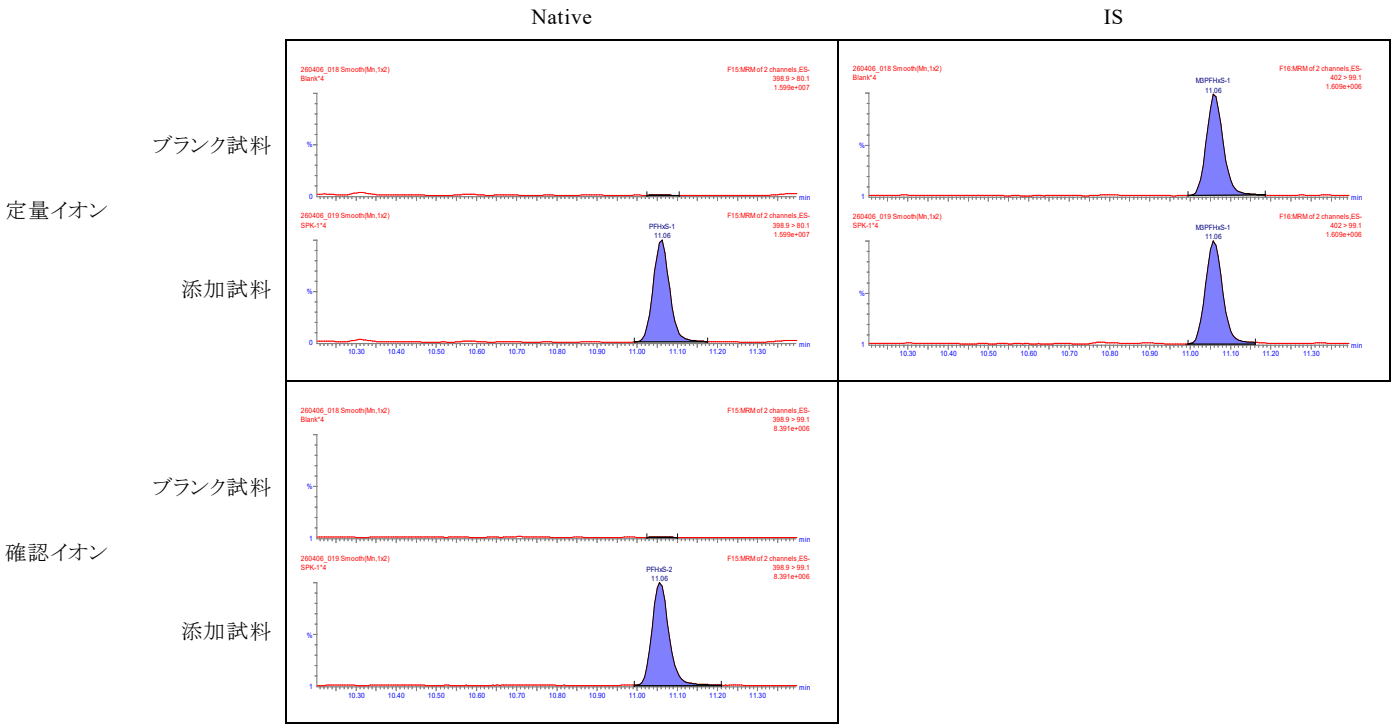


図 10　添加回収試験のブランク試料及び添加試料における native 及び IS のクロマトグラム (10 群)

PFHxS



PFNA

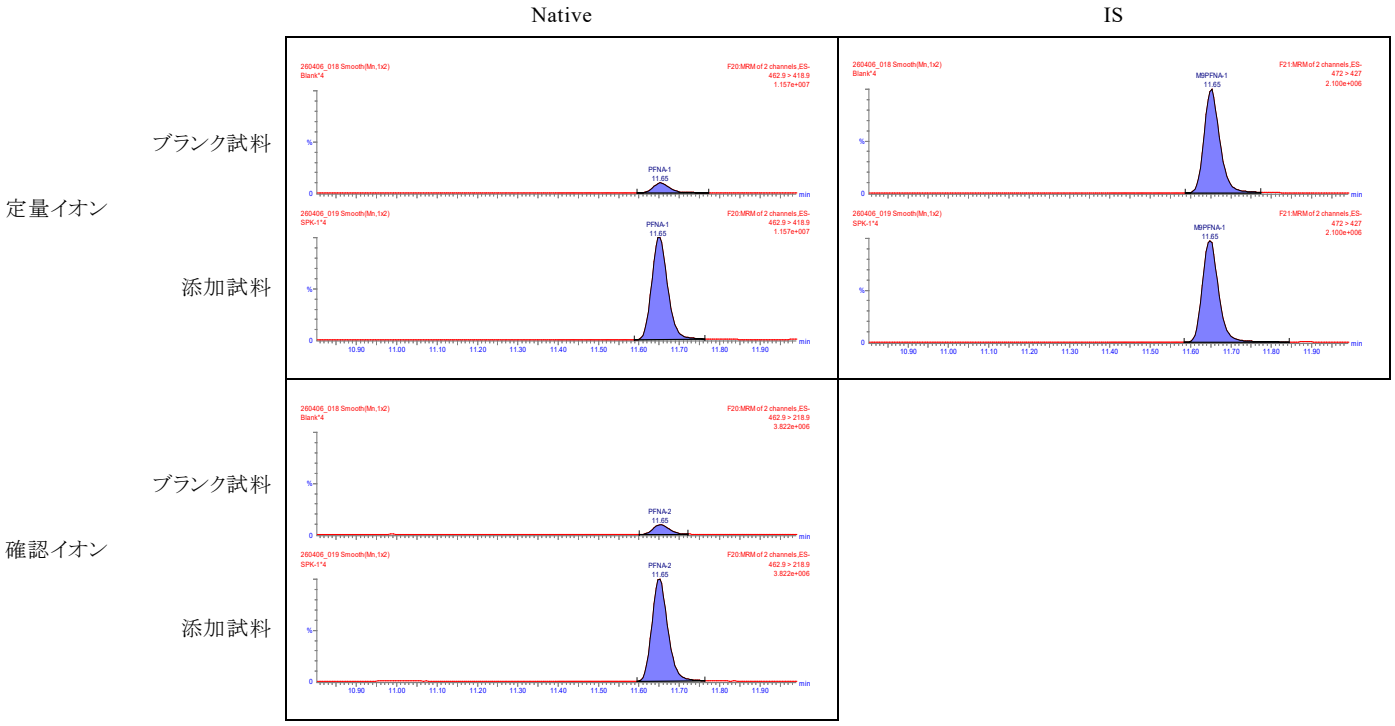
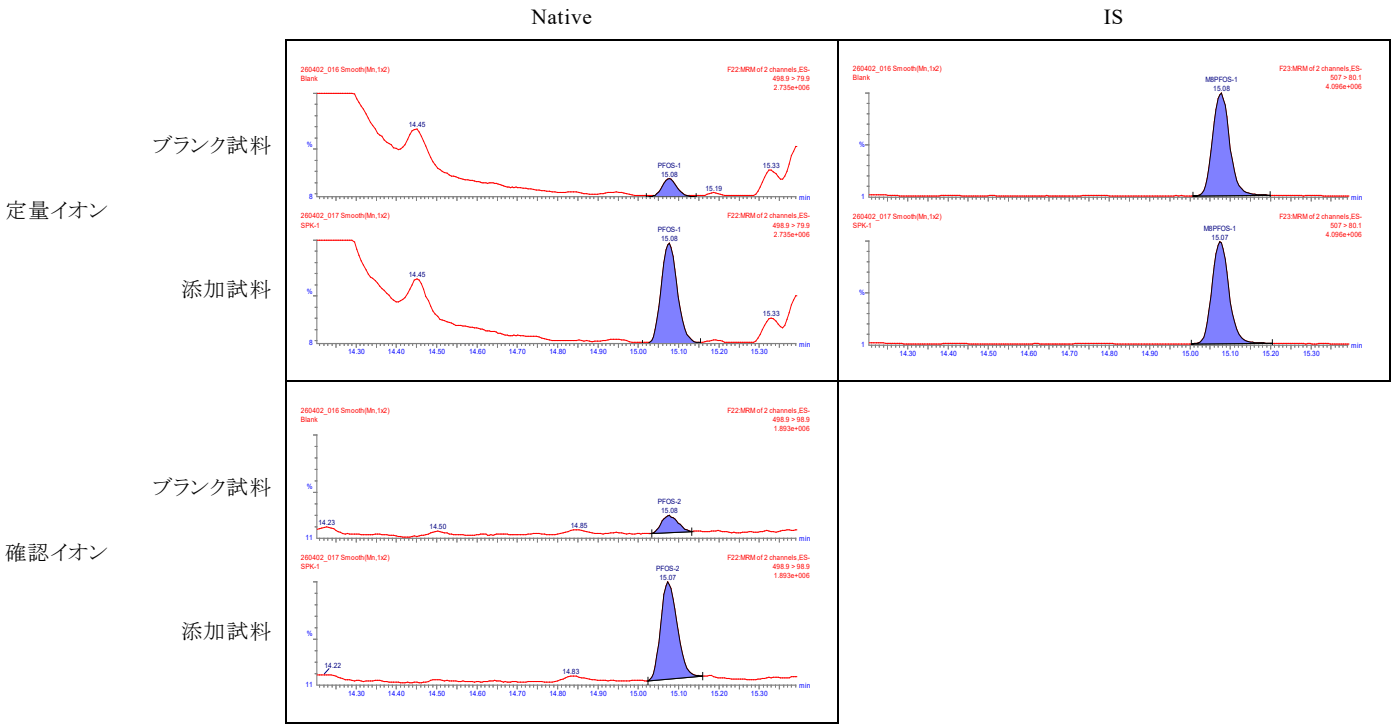


図 10 (続き)　添加回収試験のブランク試料及び添加試料における native 及び IS のクロマトグラム (10 群)

PFOS



PFOA

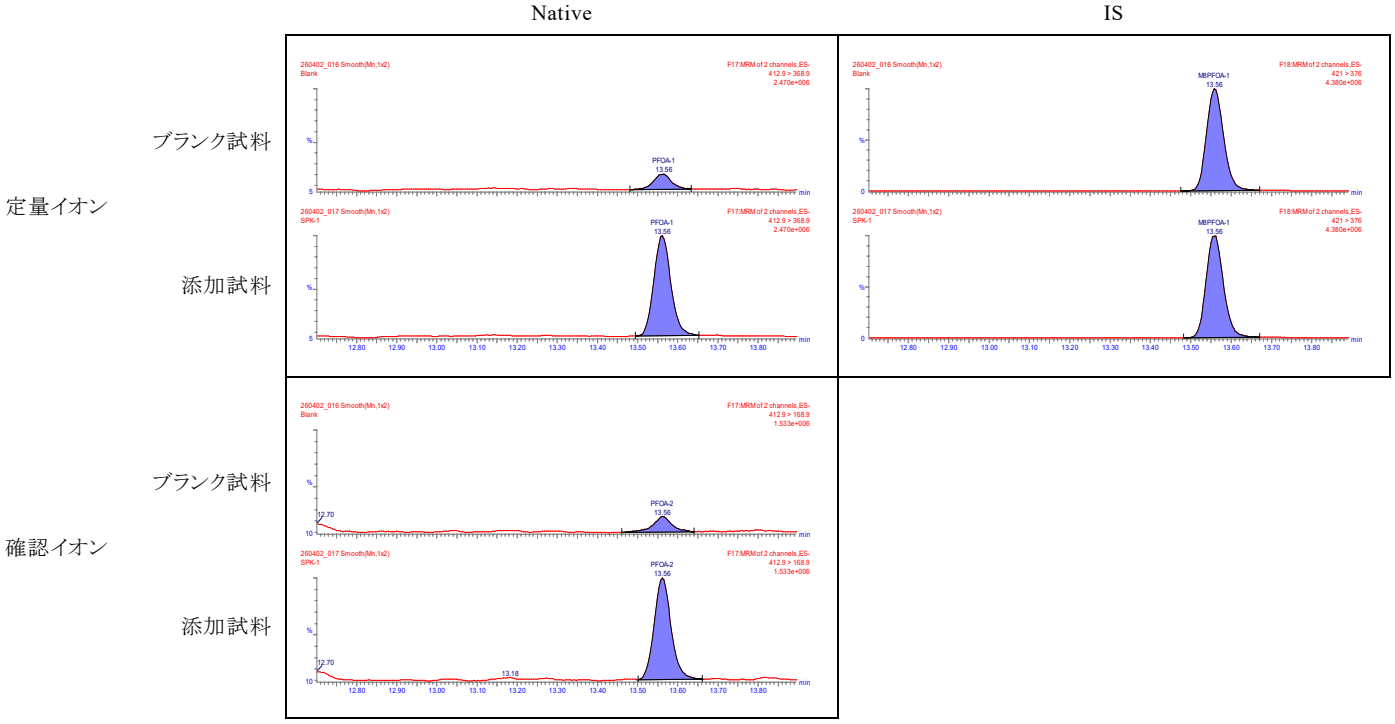
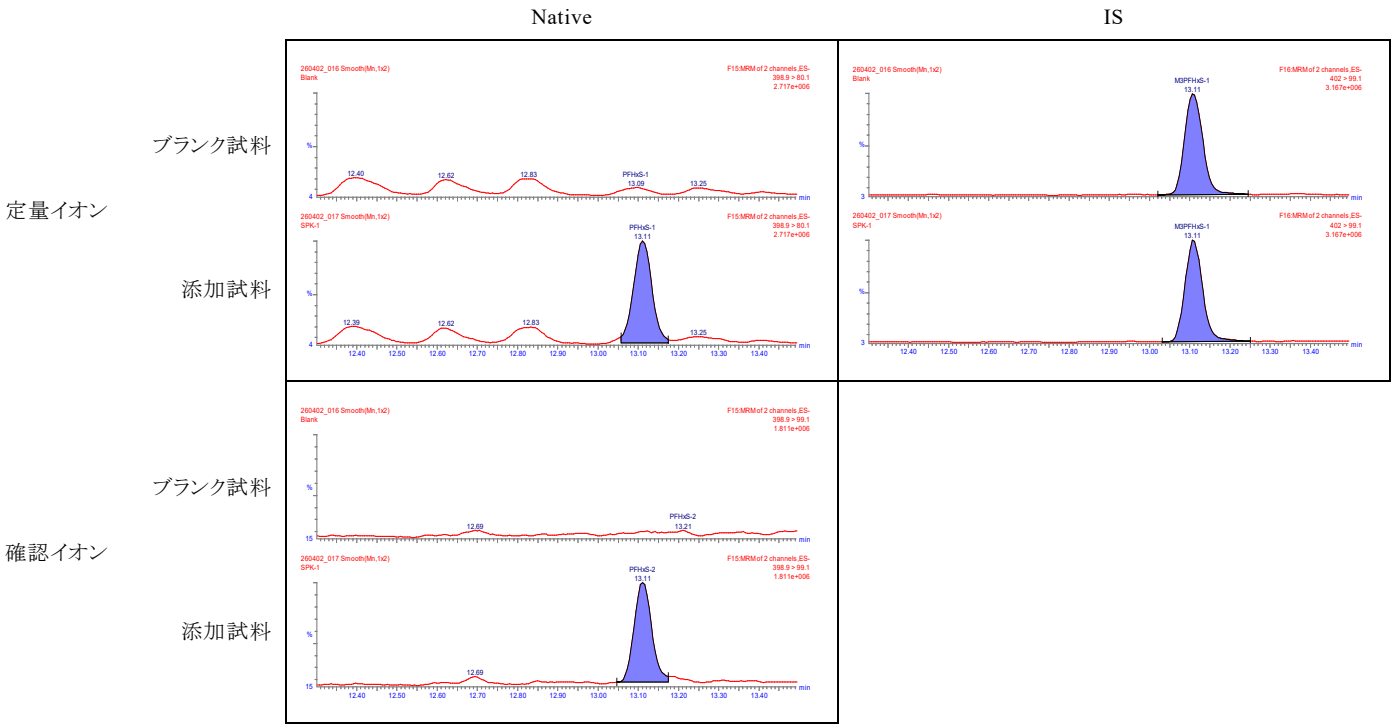


図 11　添加回収試験のブランク試料及び添加試料における native 及び IS のクロマトグラム (11 群)

PFHxS



PFNA

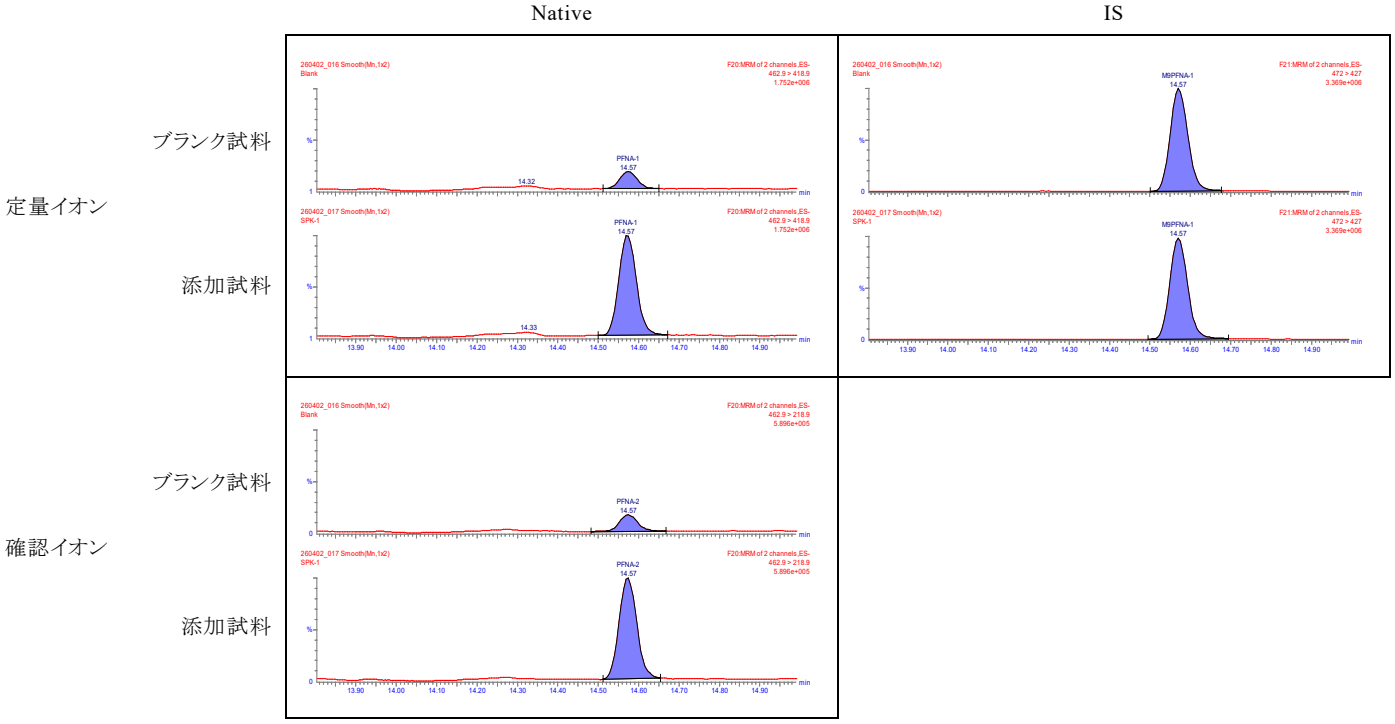
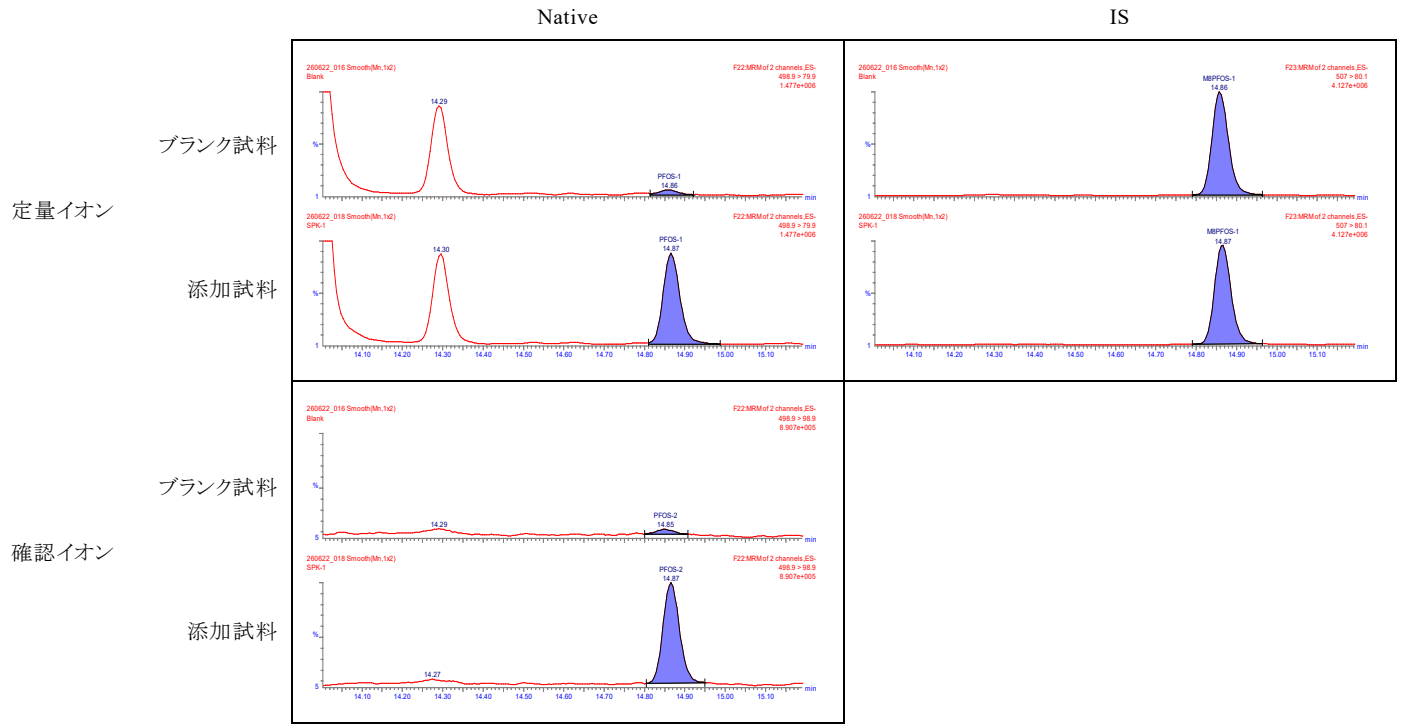


図 11 (続き)　添加回収試験のブランク試料及び添加試料における native 及び IS のクロマトグラム (11 群)

PFOS



PFOA

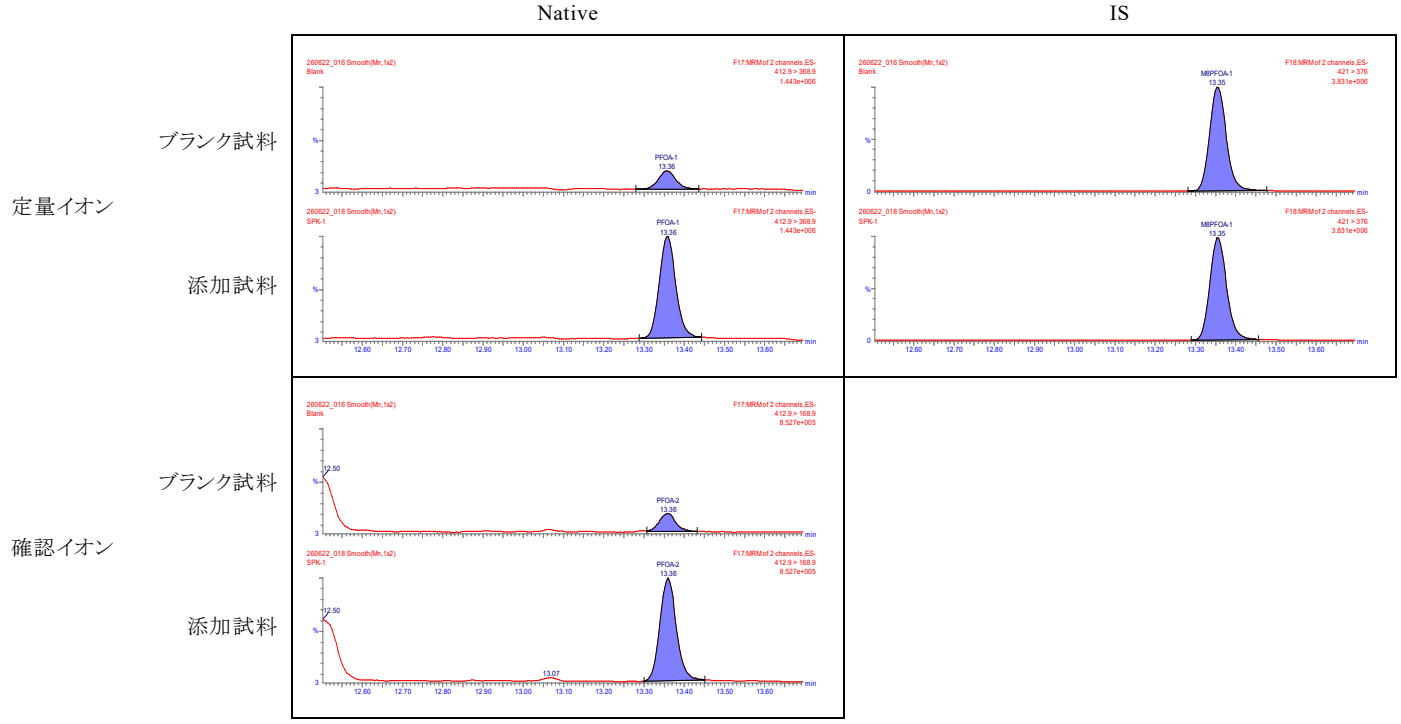
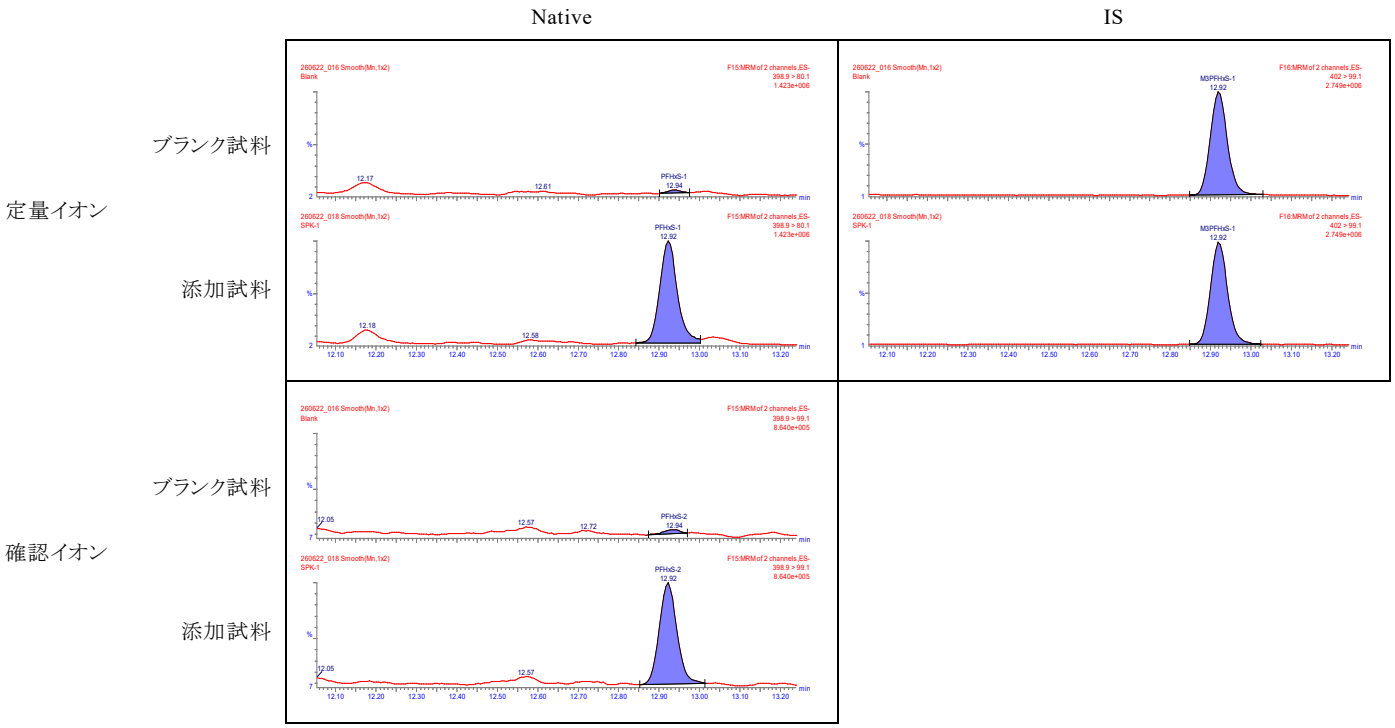


図 12　添加回収試験のブランク試料及び添加試料における native 及び IS のクロマトグラム (12 群)

PFHxS



PFNA

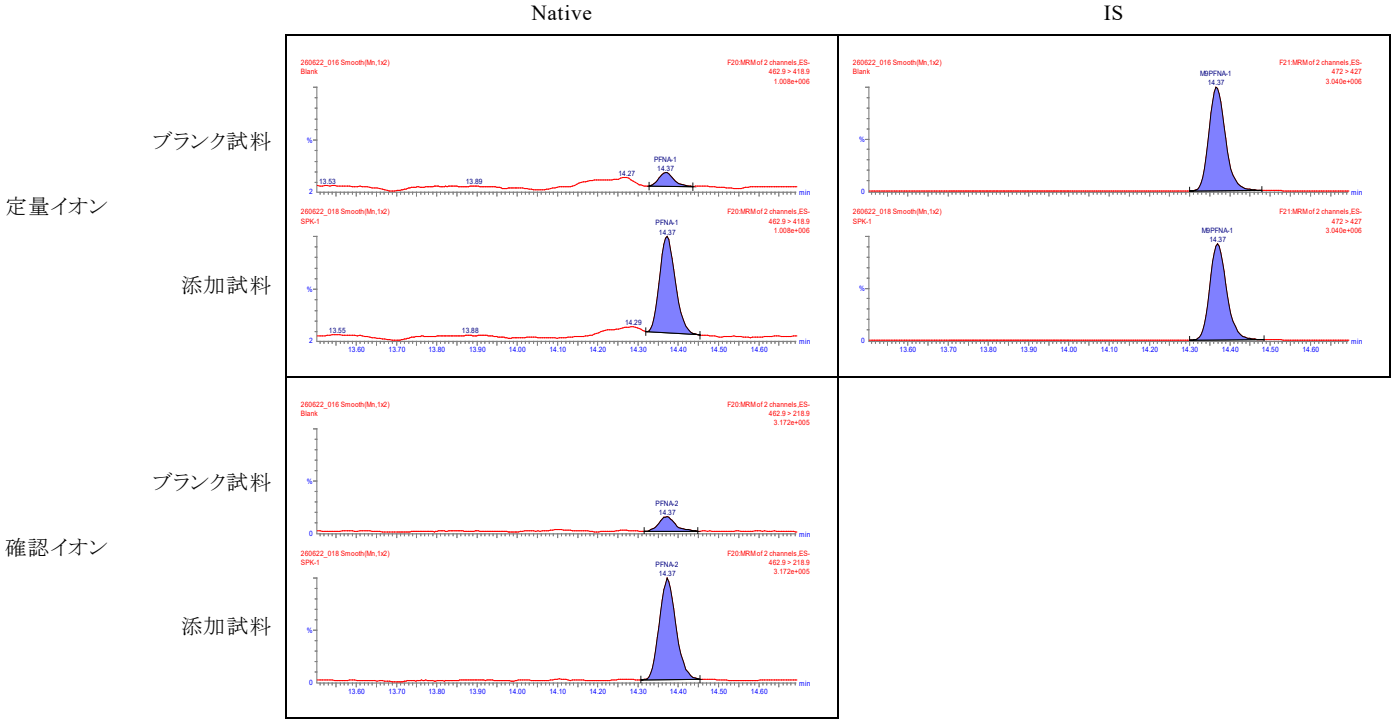
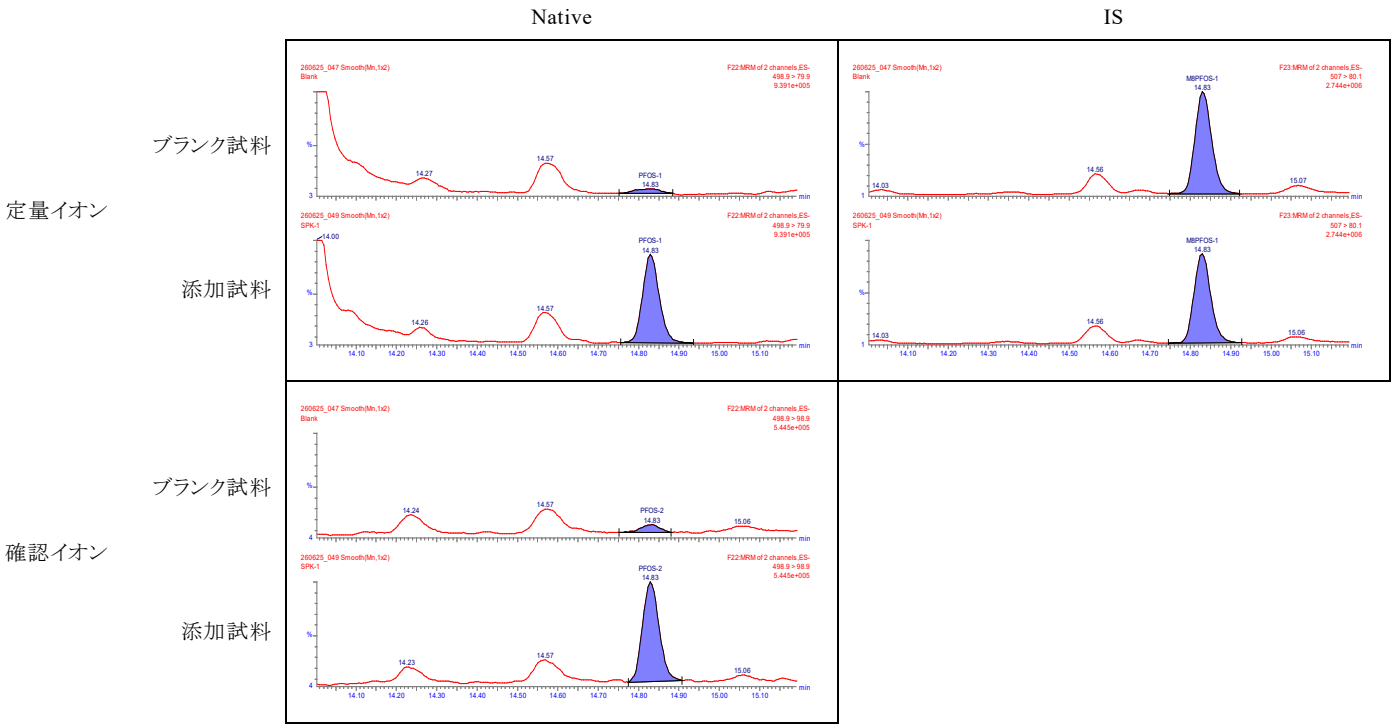


図 12 (続き)　添加回収試験のブランク試料及び添加試料における native 及び IS のクロマトグラム (12 群)

PFOS



PFOA

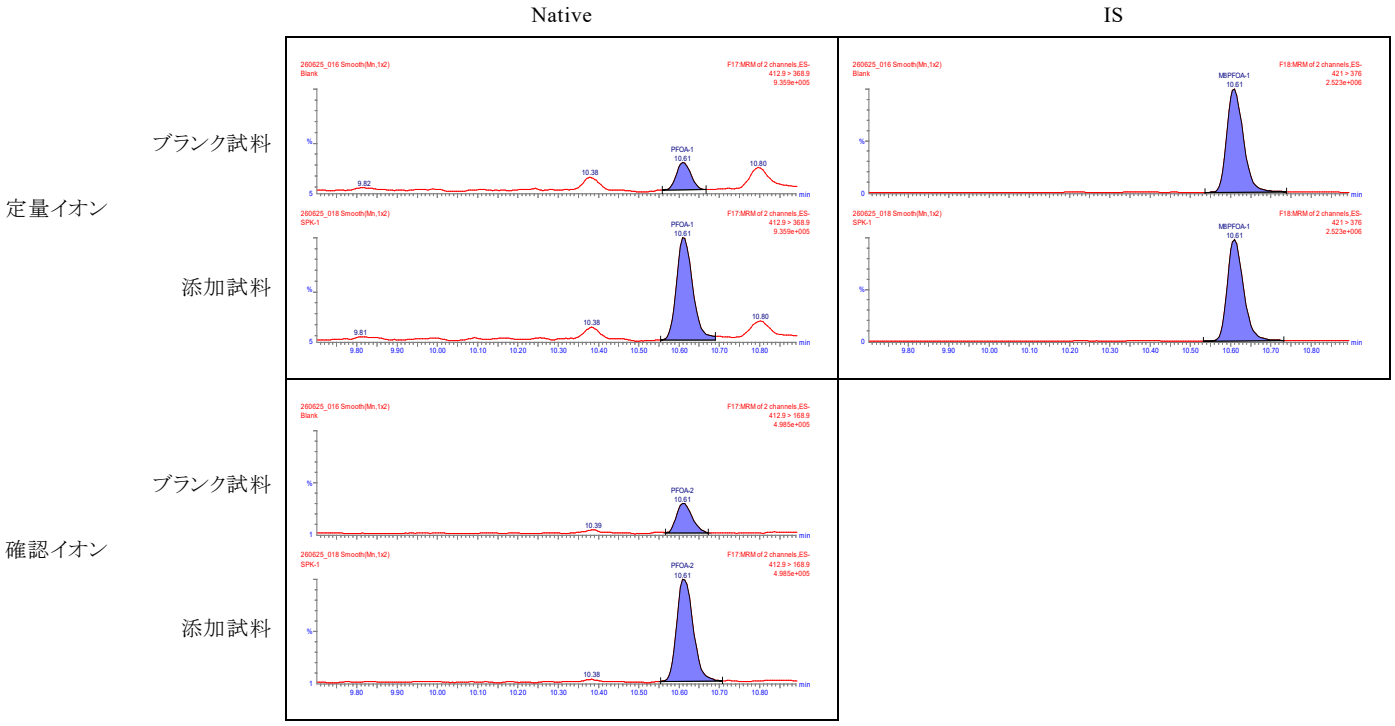
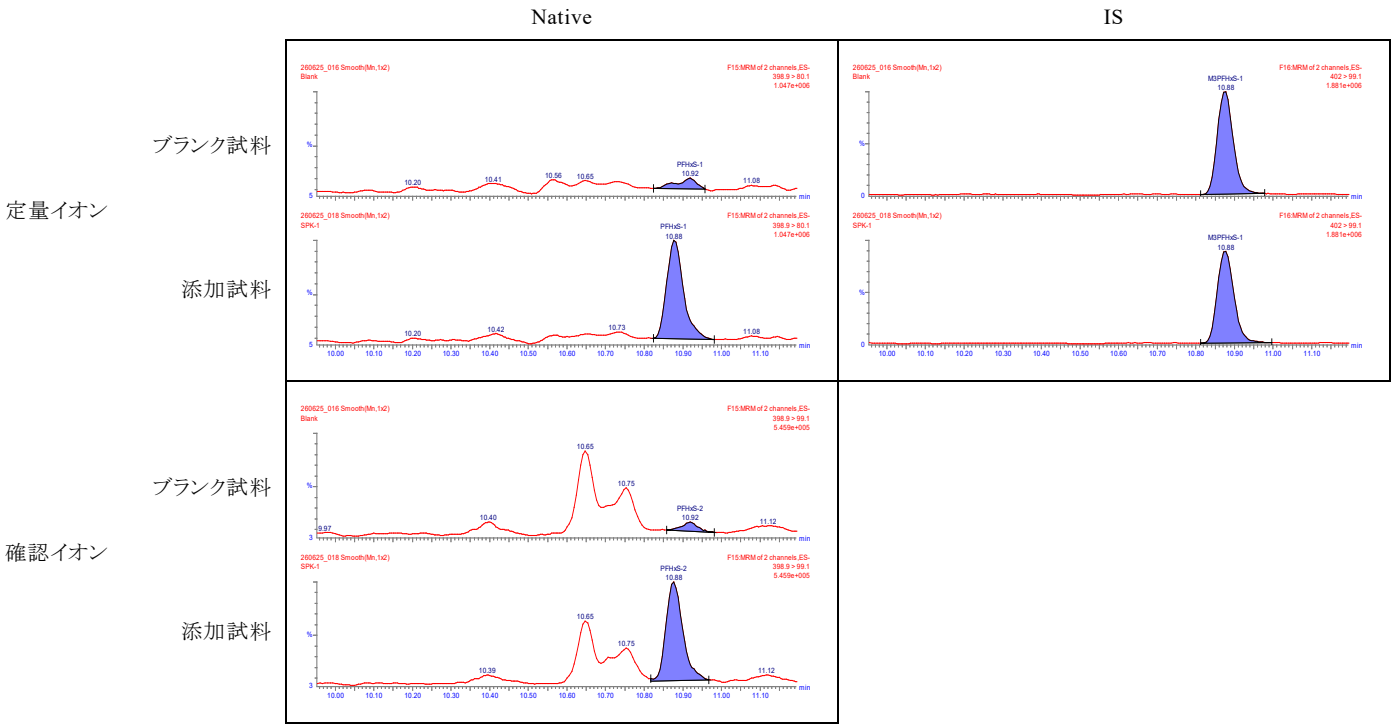


図 13　添加回収試験のブランク試料及び添加試料における native 及び IS のクロマトグラム (13 群)

PFHxS



PFNA

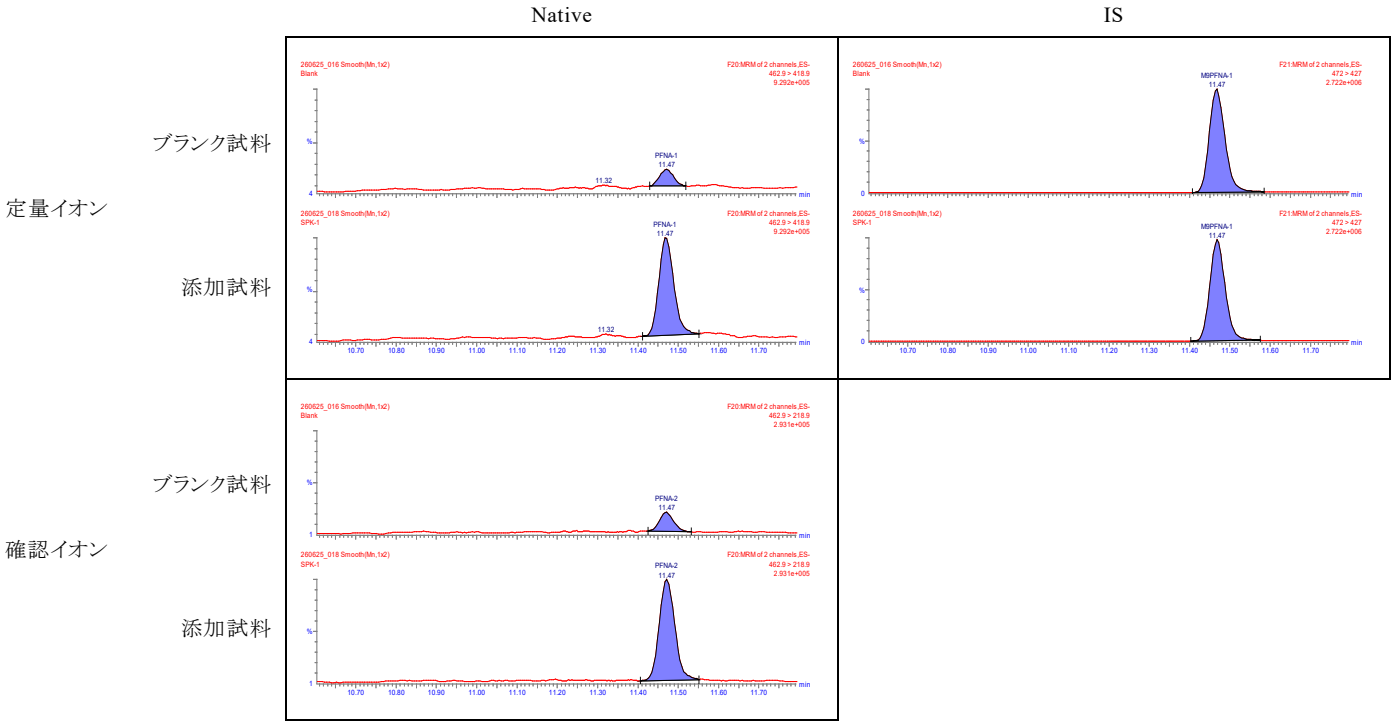
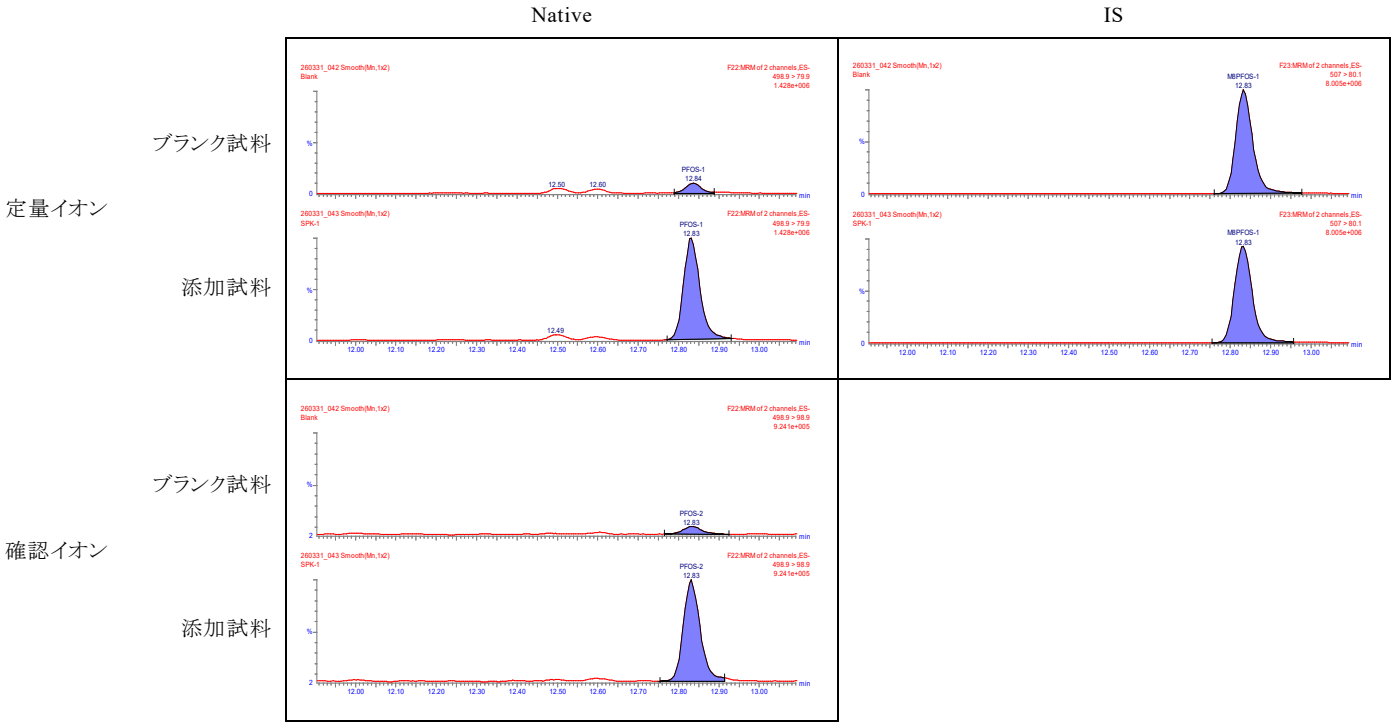


図 13 (続き)　添加回収試験のブランク試料及び添加試料における native 及び IS のクロマトグラム (13 群)

PFOS



PFOA

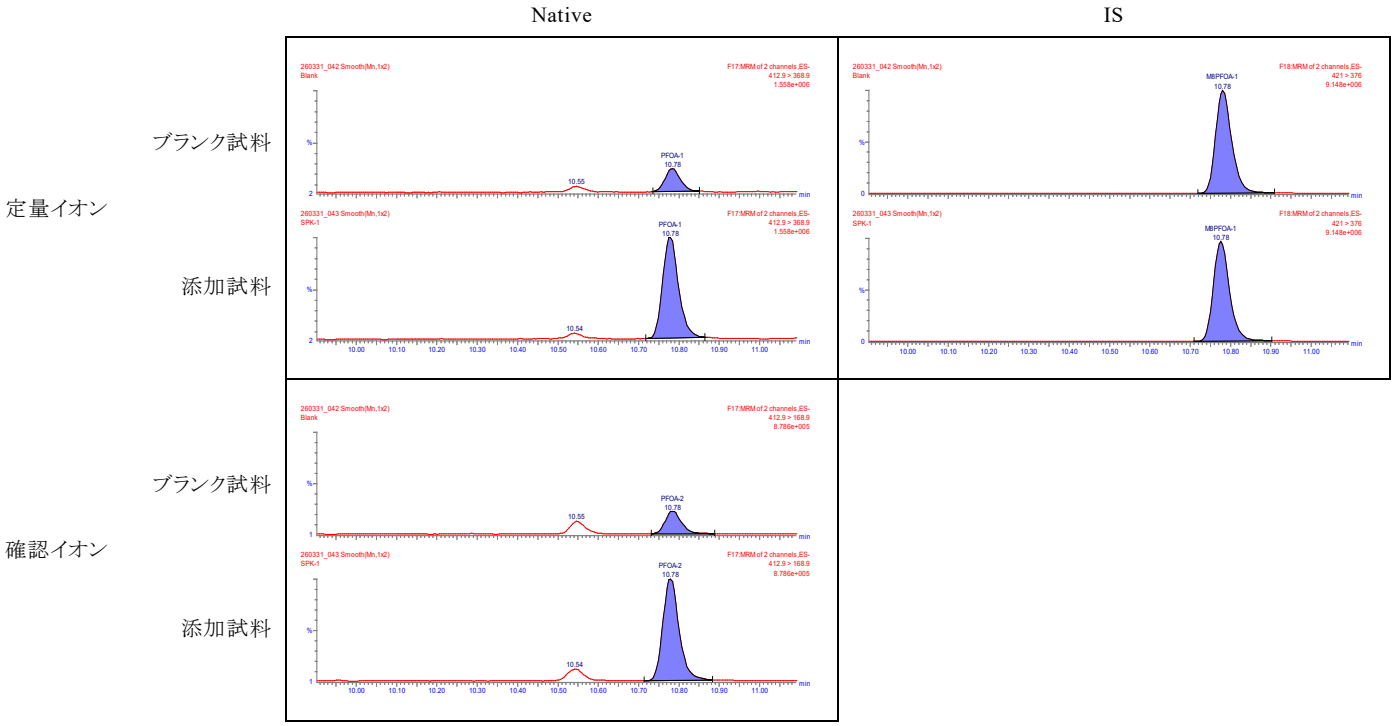
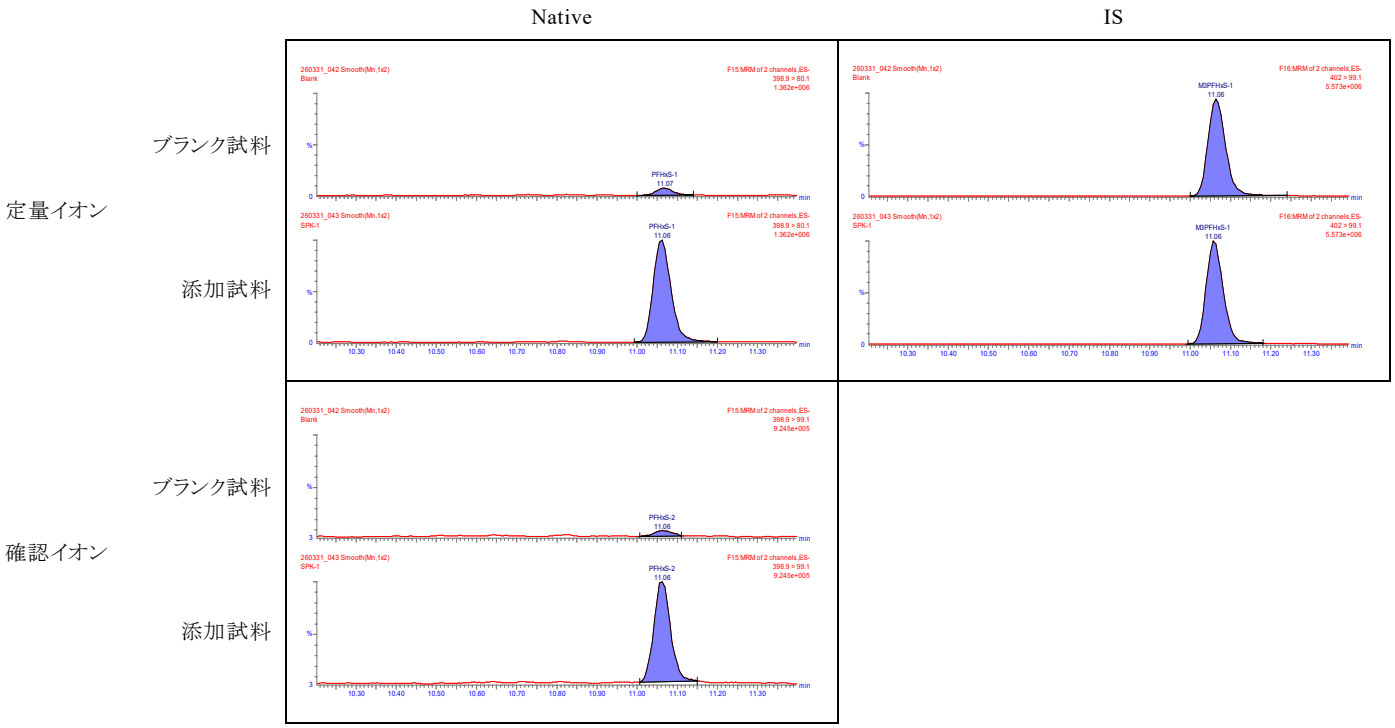


図 14　添加回収試験のブランク試料及び添加試料における native 及び IS のクロマトグラム (14 群)

PFHxS



PFNA

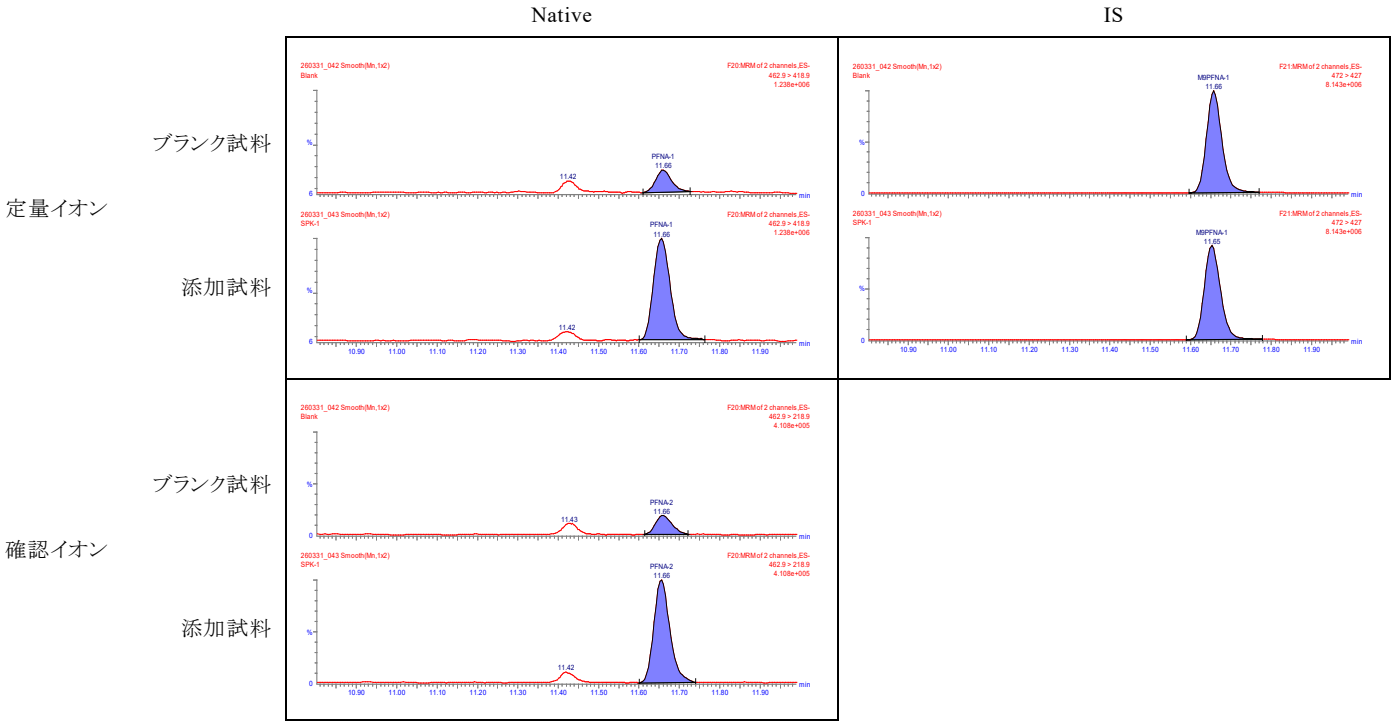


図 14 (続き)　添加回収試験のブランク試料及び添加試料における native 及び IS のクロマトグラム (14 群)

表 2 添加回収試験の結果

PFOS

食品群	添加濃度 (ng/g)※	真度 (%)	併行精度 (%RSD)	IS 回収率 (%)	イオン比 (%)	保持時間比 (%)
1 群 (米類)	0.015	94	1.6	75	94	100
2 群 (米以外の穀類・いも類・種実類)	0.015	100	0.7	76	98	100
3 群 (砂糖類・菓子類)	0.015	99	4.0	77	107	100
4 群 (油脂類)	0.015	101	2.1	93	94	100
5 群 (豆類)	0.015	97	2.9	27 [58]	96	100
6 群 (果実類)	0.015	100	0.5	69	96	100
7 群 (緑黄色野菜類)	0.015	99	0.6	53	101	100
8 群 (その他の野菜類・きのこ類・海藻類)	0.015	99	2.2	85	101	100
9 群 (嗜好飲料類)	0.015	96	1.4	83	99	100
10 群 (魚介類)	0.6	101	1.2	84	101	100
11 群 (肉類・卵類)	0.025	98	3.3	86	98	100
12 群 (乳類)	0.015	99	2.1	87	98	100
13 群 (調味料類)	0.015	99	1.2	58	97	100
14 群 (飲料水)	0.01	101	1.2	84	101	100

PFOA

食品群	添加濃度 (ng/g)※	真度 (%)	併行精度 (%RSD)	IS 回収率 (%)	イオン比 (%)	保持時間比 (%)
1 群 (米類)	0.015	96	2.6	83	101	100
2 群 (米以外の穀類・いも類・種実類)	0.015	101	1.5	72	103	100
3 群 (砂糖類・菓子類)	0.015	96	1.6	68	108	100
4 群 (油脂類)	0.015	106	9.1	85	98	100
5 群 (豆類)	0.015	100	1.5	14 [47]	100	100
6 群 (果実類)	0.015	104	3.1	55	98	100
7 群 (緑黄色野菜類)	0.015	92	4.5	56	101	100
8 群 (その他の野菜類・きのこ類・海藻類)	0.015	99	6.1	79	100	100
9 群 (嗜好飲料類)	0.015	96	5.3	72	99	100
10 群 (魚介類)	0.6	99	0.8	83	103	100
11 群 (肉類・卵類)	0.025	95	1.6	85	98	100
12 群 (乳類)	0.015	106	1.5	84	101	100
13 群 (調味料類)	0.015	101	1.8	47	109	100
14 群 (飲料水)	0.01	100	2.8	96	101	100

PFHxS

食品群	添加濃度 (ng/g)※	真度 (%)	併行精度 (%RSD)	IS 回収率 (%)	イオン比 (%)	保持時間比 (%)
1 群 (米類)	0.015	95	1.3	90	100	100
2 群 (米以外の穀類・いも類・種実類)	0.015	98	2.1	86	105	100
3 群 (砂糖類・菓子類)	0.015	98	2.7	65	88	100
4 群 (油脂類)	0.015	101	2.3	91	97	100
5 群 (豆類)	0.015	99	3.2	26 [57]	103	100
6 群 (果実類)	0.015	98	1.2	52	102	100
7 群 (緑黄色野菜類)	0.015	96	2.6	42	101	100
8 群 (その他の野菜類・きのこ類・海藻類)	0.015	100	2.5	74	97	100
9 群 (嗜好飲料類)	0.015	100	1.7	75	97	100
10 群 (魚介類)	0.6	100	1.6	83	98	100
11 群 (肉類・卵類)	0.025	104	3.6	93	92	100
12 群 (乳類)	0.015	99	0.9	88	100	100
13 群 (調味料類)	0.015	97	2.0	55	99	100
14 群 (飲料水)	0.01	97	5.4	102	102	100

PFNA

食品群	添加濃度 (ng/g)※	真度 (%)	併行精度 (%RSD)	IS 回収率 (%)	イオン比 (%)	保持時間比 (%)
1 群 (米類)	0.015	96	2.1	74	101	100
2 群 (米以外の穀類・いも類・種実類)	0.015	100	1.1	68	100	100
3 群 (砂糖類・菓子類)	0.015	96	2.8	72	115	100
4 群 (油脂類)	0.015	101	2.2	85	102	100
5 群 (豆類)	0.015	97	3.2	32 [62]	100	100
6 群 (果実類)	0.015	101	3.8	64	99	100
7 群 (緑黄色野菜類)	0.015	96	1.9	74	102	100
8 群 (その他の野菜類・きのこ類・海藻類)	0.015	101	2.5	81	100	100
9 群 (嗜好飲料類)	0.015	90	4.6	77	100	100
10 群 (魚介類)	0.6	98	0.9	81	101	100
11 群 (肉類・卵類)	0.025	96	1.9	83	102	100
12 群 (乳類)	0.015	99	2.0	83	105	100
13 群 (調味料類)	0.015	96	1.6	59	102	100
14 群 (飲料水)	0.01	99	1.2	97	99	100

※ PFOS 及び PFHxS についてはナトリウム塩の濃度、PFOA 及び PFNA については塩としての濃度で表記

[ ]: 試験溶液を 10 倍希釈した場合の IS 回収率 (%)

表 3 魚認証標準物質 (IRMM-427) の分析結果

認証値が付与されている分子種

	認証値 (ng/g)	拡張不確かさ $k = 2$ (ng/g)	分析値 (ng/g)			IS 回収率 (%)			イオン比 (%)			保持時間比 (%)		
			1 日目	2 日目	3 日目	1 日目	2 日目	3 日目	1 日目	2 日目	3 日目	1 日目	2 日目	3 日目
直鎖 PFOS	16.0	1.7	16.1	15.9	15.9	90	91	88	90	91	88	100	100	100
PFDA	1.28	0.17	1.22	1.20	1.26	86	86	84	86	86	84	100	100	100
PFUdA	0.74	0.20	0.77	0.79	0.79	101	98	102	101	98	102	100	100	100
PFDoA	0.97	0.21	0.89	0.91	0.90	89	93	90	89	93	90	100	100	100

参考値が示されている分子種

	参考値 (ng/g)	拡張不確かさ $k = 2$ (ng/g)	分析値 (ng/g)			IS 回収率 (%)			イオン比 (%)			保持時間比 (%)		
			1 日目	2 日目	3 日目	1 日目	2 日目	3 日目	1 日目	2 日目	3 日目	1 日目	2 日目	3 日目
PFTrDA	0.62	0.29	0.58	0.59	0.61	99	97	94	97	101	100	100	100	100
PFTeDA	0.45	0.30	0.53	0.55	0.51	95	102	98	102	103	102	100	100	100

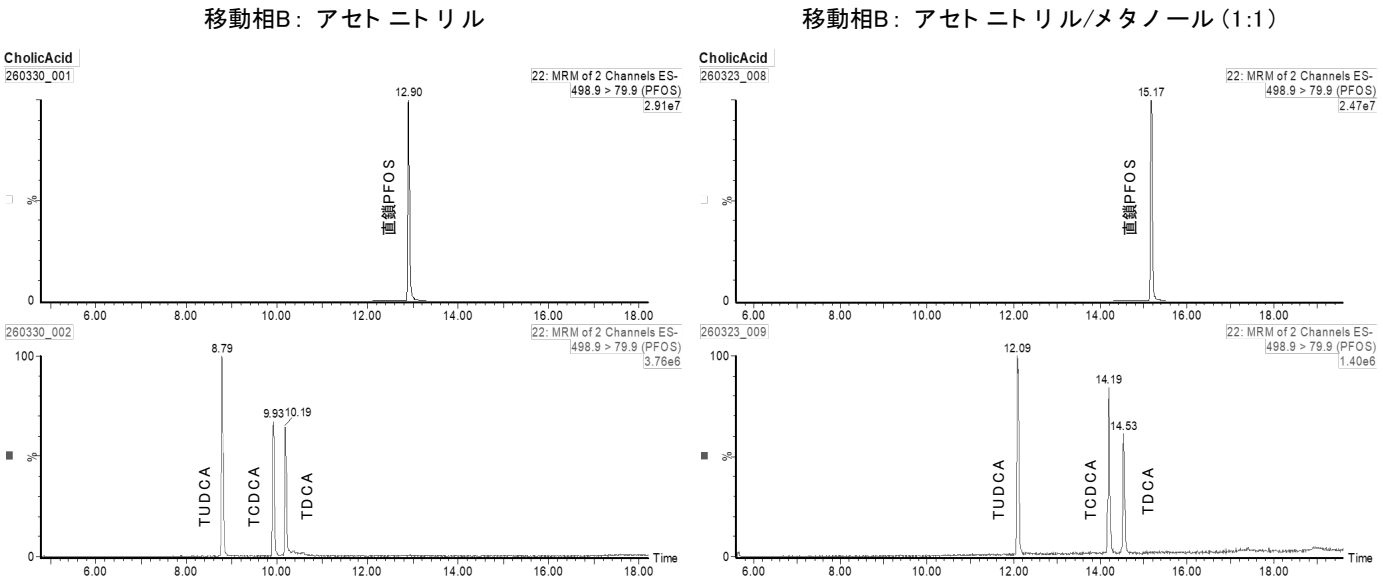


図 15 各移動相条件における直鎖 PFOS 及び胆汁酸塩の分離

モニターイオン: PFOS の定量イオン (*m/z* 498.9 > 79.9)

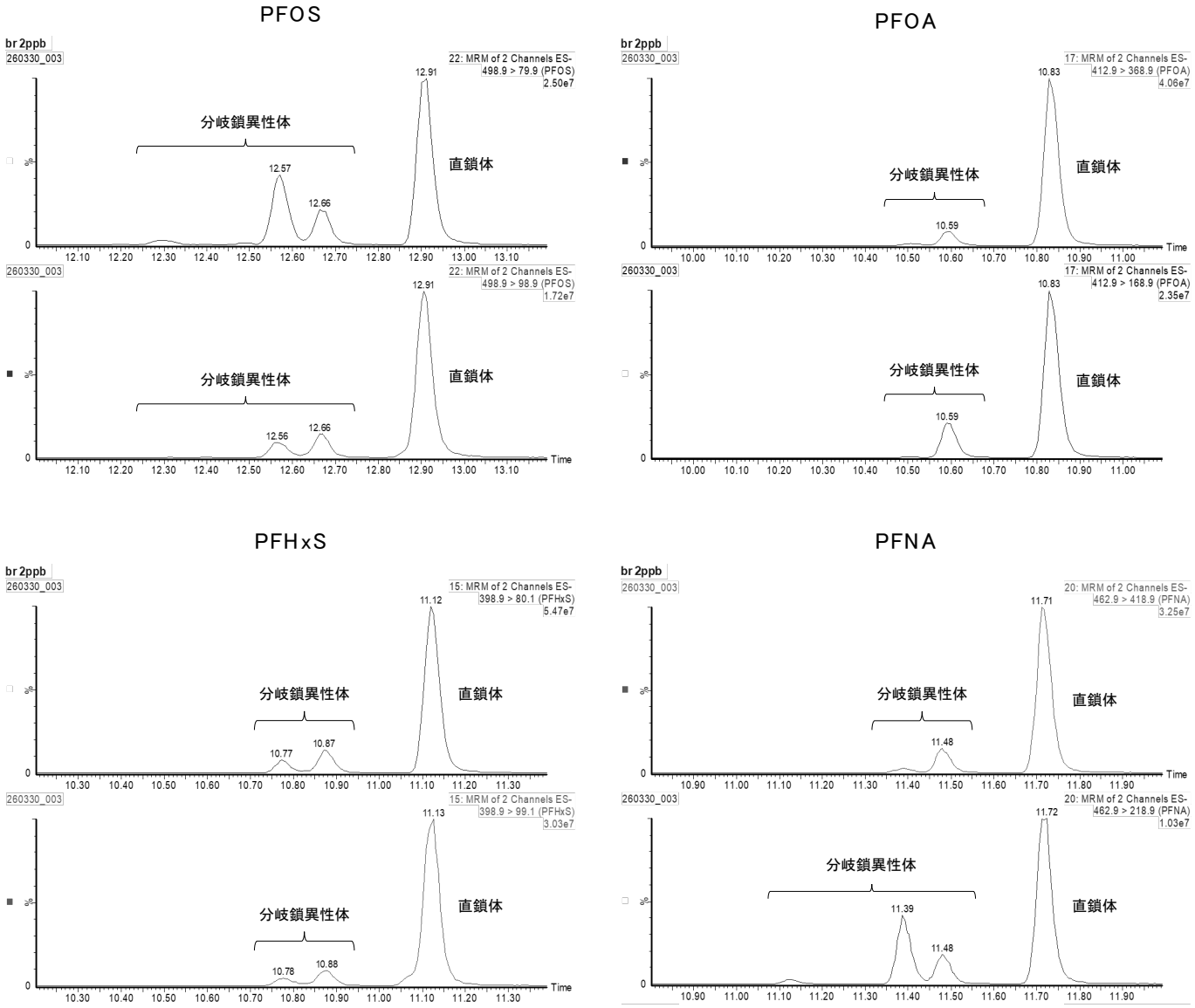


図 16　移動相 B にアセトニトリルを用いた場合の PFOS、PFOA、PFHxS 及び PFNA の直鎖体及び分岐鎖異性体の分離

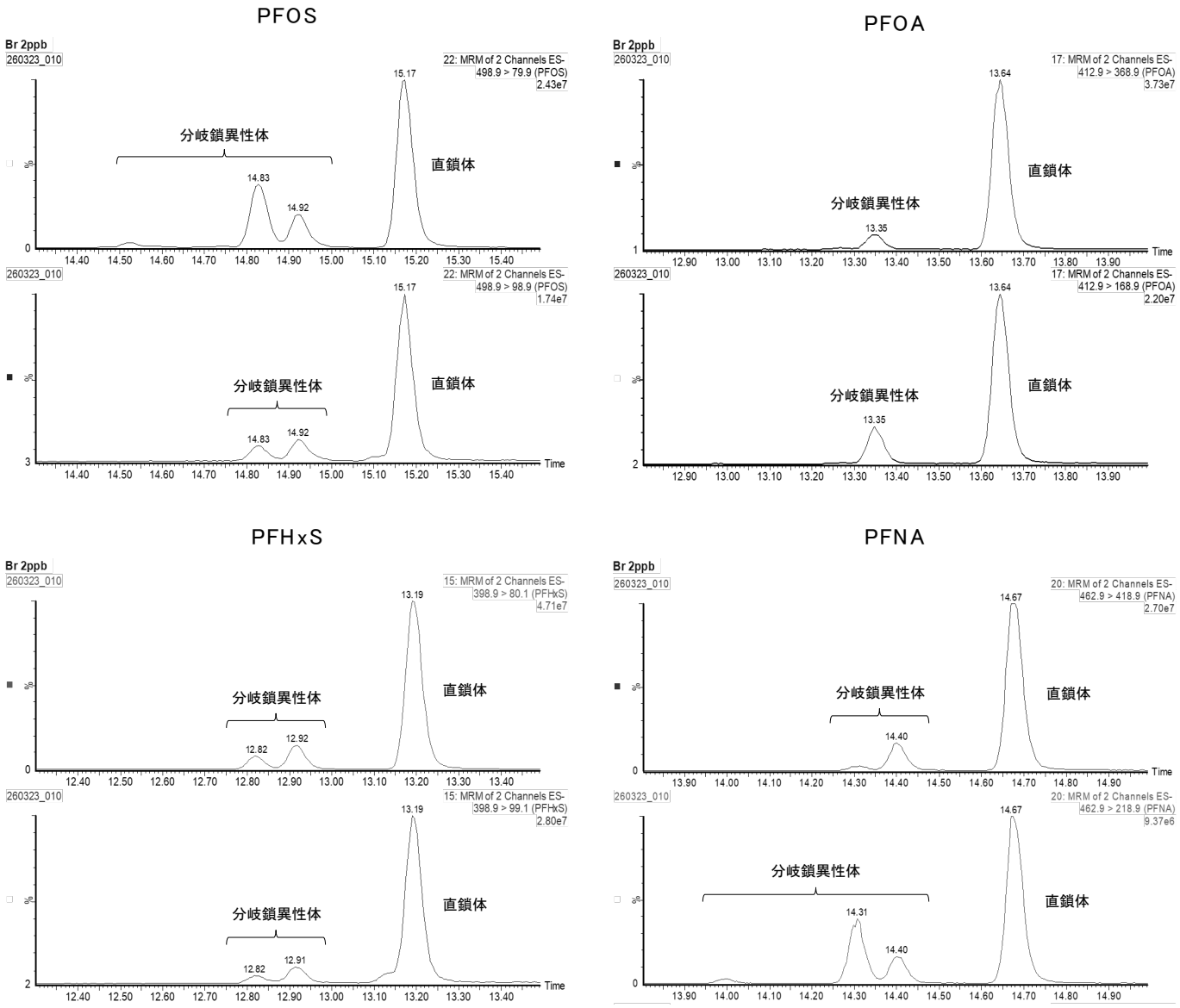


図 17　移動相 B にアセトニトリル/メタノール (1:1, v/v) を用いた場合の PFOS、PFOA、PFHxS 及び PFNA の直鎖体及び分岐鎖異性体の分離

表 4 各群の TD 試料における PFOS、PFOA、PFHxS 及び PFNA 濃度

PFOS

食品群	濃度 (ng/g)					
	地域 A	地域 B	地域 C	地域 D	地域 E	地域 F
1 群 (米類)	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
2 群 (米以外の穀類・いも類・種実類)	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
3 群 (砂糖類・菓子類)	0.007	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.015
4 群 (油脂類)	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
5 群 (豆類)	(<LOQ)	(<LOQ)	(<LOQ)	(<LOQ)	(<LOQ)	(<LOQ)
6 群 (果実類)	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
7 群 (緑黄色野菜類)	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
8 群 (その他の野菜類・きのこ類・海藻類)	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.007	<LOQ	<LOQ
9 群 (嗜好飲料類)	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
10 群 (魚介類)	0.110	0.131	0.273	0.111	0.585	0.126
11 群 (肉類・卵類)	<LOQ	0.040	0.008	0.009	<LOQ	<LOQ
12 群 (乳類)	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
13 群 (調味料類)	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
14 群 (飲料水)	<LOQ	0.010	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ

PFOA

食品群	濃度 (ng/g)					
	地域 A	地域 B	地域 C	地域 D	地域 E	地域 F
1 群 (米類)	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
2 群 (米以外の穀類・いも類・種実類)	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
3 群 (砂糖類・菓子類)	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
4 群 (油脂類)	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
5 群 (豆類)	(<LOQ)	(<LOQ)	(<LOQ)	(<LOQ)	(<LOQ)	(<LOQ)
6 群 (果実類)	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	(<LOQ)	<LOQ
7 群 (緑黄色野菜類)	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
8 群 (その他の野菜類・きのこ類・海藻類)	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
9 群 (嗜好飲料類)	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
10 群 (魚介類)	0.018	0.045	0.078	0.046	0.134	0.018
11 群 (肉類・卵類)	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
12 群 (乳類)	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
13 群 (調味料類)	<LOQ	<LOQ	<LOQ	(<LOQ)	<LOQ	<LOQ
14 群 (飲料水)	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.010	<LOQ

PFHxS

食品群	濃度 (ng/g)					
	地域 A	地域 B	地域 C	地域 D	地域 E	地域 F
1 群 (米類)	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
2 群 (米以外の穀類・いも類・種実類)	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
3 群 (砂糖類・菓子類)	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
4 群 (油脂類)	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
5 群 (豆類)	(<LOQ)	(<LOQ)	(<LOQ)	(<LOQ)	(<LOQ)	(<LOQ)
6 群 (果実類)	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
7 群 (緑黄色野菜類)	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
8 群 (その他の野菜類・きのこ類・海藻類)	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
9 群 (嗜好飲料類)	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
10 群 (魚介類)	<LOQ	(0.007)	(0.010)	<LOQ	0.016	<LOQ
11 群 (肉類・卵類)	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.006	<LOQ	<LOQ
12 群 (乳類)	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
13 群 (調味料類)	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
14 群 (飲料水)	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ

PFNA

食品群	濃度 (ng/g)					
	地域 A	地域 B	地域 C	地域 D	地域 E	地域 F
1 群 (米類)	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
2 群 (米以外の穀類・いも類・種実類)	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
3 群 (砂糖類・菓子類)	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
4 群 (油脂類)	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
5 群 (豆類)	<LOQ	(<LOQ)	(<LOQ)	<LOQ	<LOQ	(<LOQ)
6 群 (果実類)	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
7 群 (緑黄色野菜類)	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
8 群 (その他の野菜類・きのこ類・海藻類)	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
9 群 (嗜好飲料類)	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
10 群 (魚介類)	0.031	0.040	0.098	0.041	0.186	0.050
11 群 (肉類・卵類)	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
12 群 (乳類)	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
13 群 (調味料類)	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
14 群 (飲料水)	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ

( ): IS 回収率又はイオン比の目標値を満たさなかったため，参考値

表 5 各群の TD 試料における IS 回収率

PFOS

食品群	IS 回収率 (%)					
	地域 A	地域 B	地域 C	地域 D	地域 E	地域 F
1 群 (米類)	70	70	67	89	77	70
2 群 (米以外の穀類・いも類・種実類)	87	85	72	83	80	81
3 群 (砂糖類・菓子類)	80	69	69	72	76	76
4 群 (油脂類)	99	82	86	89	82	87
5 群 (豆類)	28 [70]	17 [61]	22 [55]	28 [61]	26 [62]	27 [64]
6 群 (果実類)	70	68	56	62	52	67
7 群 (緑黄色野菜類)	65	57	53	53	54	53
8 群 (その他の野菜類・きのこ類・海藻類)	99	81	82	82	80	93
9 群 (嗜好飲料類)	70	65	72	65	67	70
10 群 (魚介類)	78	72	93	73	94	71
11 群 (肉類・卵類)	93	92	86	88	88	89
12 群 (乳類)	77	73	79	86	80	87
13 群 (調味料類)	63	62	55	46	60	69
14 群 (飲料水)	98	99	96	101	98	104

PFOA

食品群	IS 回収率 (%)					
	地域 A	地域 B	地域 C	地域 D	地域 E	地域 F
1 群 (米類)	80	74	70	86	79	77
2 群 (米以外の穀類・いも類・種実類)	82	76	66	75	74	75
3 群 (砂糖類・菓子類)	71	57	61	63	69	65
4 群 (油脂類)	91	87	85	88	86	85
5 群 (豆類)	14 [59]	10 [49]	10 [54]	16 [63]	13 [57]	13 [66]
6 群 (果実類)	60	48	33	44	24	51
7 群 (緑黄色野菜類)	64	53	45	35	42	36
8 群 (その他の野菜類・きのこ類・海藻類)	79	70	68	68	74	77
9 群 (嗜好飲料類)	54	41	52	43	44	51
10 群 (魚介類)	70	62	57	61	59	59
11 群 (肉類・卵類)	88	91	85	88	89	84
12 群 (乳類)	70	58	74	87	75	85
13 群 (調味料類)	59	54	56	25	31	42
14 群 (飲料水)	95	99	91	93	97	103

PFHxS

食品群	IS 回収率 (%)					
	地域 A	地域 B	地域 C	地域 D	地域 E	地域 F
1 群 (米類)	87	81	77	91	84	87
2 群 (米以外の穀類・いも類・種実類)	94	87	79	88	85	87
3 群 (砂糖類・菓子類)	73	58	61	62	66	69
4 群 (油脂類)	92	92	89	88	87	90
5 群 (豆類)	25 [70]	20 [54]	20 [65]	27 [69]	25 [67]	22 [74]
6 群 (果実類)	58	57	48	53	45	60
7 群 (緑黄色野菜類)	53	51	43	38	40	38
8 群 (その他の野菜類・きのこ類・海藻類)	95	88	82	79	84	87
9 群 (嗜好飲料類)	54	39	52	43	46	53
10 群 (魚介類)	78	72	67	74	69	69
11 群 (肉類・卵類)	90	95	86	95	91	84
12 群 (乳類)	72	58	76	89	75	87
13 群 (調味料類)	74	67	64	35	39	53
14 群 (飲料水)	95	99	98	96	98	108

PFNA

食品群	IS 回収率 (%)					
	地域 A	地域 B	地域 C	地域 D	地域 E	地域 F
1 群 (米類)	71	66	65	83	73	67
2 群 (米以外の穀類・いも類・種実類)	80	76	61	73	70	70
3 群 (砂糖類・菓子類)	76	62	64	67	66	71
4 群 (油脂類)	89	86	85	89	83	87
5 群 (豆類)	33 [72]	26 [65]	27 [67]	33 [74]	32 [73]	29 [75]
6 群 (果実類)	70	65	54	59	51	61
7 群 (緑黄色野菜類)	82	76	74	68	77	72
8 群 (その他の野菜類・きのこ類・海藻類)	87	84	77	72	79	81
9 群 (嗜好飲料類)	64	53	62	57	57	62
10 群 (魚介類)	73	68	63	64	65	62
11 群 (肉類・卵類)	85	87	81	86	84	81
12 群 (乳類)	73	65	77	83	77	85
13 群 (調味料類)	70	67	68	37	45	55
14 群 (飲料水)	95	98	94	92	99	104

[ ]: 試験溶液を 10 倍希釈した場合の IS 回収率 (%)

表 6 各群の TD 試料におけるイオン比

PFOS

食品群	イオン比 (%)					
	地域 A	地域 B	地域 C	地域 D	地域 E	地域 F
1 群 (米類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
2 群 (米以外の穀類・いも類・種実類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
3 群 (砂糖類・菓子類)	122	N/A	N/A	N/A	N/A	95
4 群 (油脂類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
5 群 (豆類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
6 群 (果実類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
7 群 (緑黄色野菜類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
8 群 (その他の野菜類・きのこ類・海藻類)	N/A	N/A	N/A	98	N/A	N/A
9 群 (嗜好飲料類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
10 群 (魚介類)	100	99	97	99	103	100
11 群 (肉類・卵類)	N/A	91	95	95	N/A	N/A
12 群 (乳類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
13 群 (調味料類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
14 群 (飲料水)	N/A	116	N/A	N/A	N/A	N/A

PFOA

食品群	イオン比 (%)					
	地域 A	地域 B	地域 C	地域 D	地域 E	地域 F
1 群 (米類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
2 群 (米以外の穀類・いも類・種実類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
3 群 (砂糖類・菓子類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
4 群 (油脂類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
5 群 (豆類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
6 群 (果実類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
7 群 (緑黄色野菜類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
8 群 (その他の野菜類・きのこ類・海藻類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
9 群 (嗜好飲料類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
10 群 (魚介類)	103	97	95	98	97	102
11 群 (肉類・卵類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
12 群 (乳類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
13 群 (調味料類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
14 群 (飲料水)	N/A	N/A	N/A	N/A	101	N/A

PFHxS

食品群	イオン比 (%)					
	地域 A	地域 B	地域 C	地域 D	地域 E	地域 F
1 群 (米類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
2 群 (米以外の穀類・いも類・種実類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
3 群 (砂糖類・菓子類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
4 群 (油脂類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
5 群 (豆類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
6 群 (果実類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
7 群 (緑黄色野菜類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
8 群 (その他の野菜類・きのこ類・海藻類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
9 群 (嗜好飲料類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
10 群 (魚介類)	N/A	63	57	N/A	99	N/A
11 群 (肉類・卵類)	N/A	N/A	N/A	78	N/A	N/A
12 群 (乳類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
13 群 (調味料類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
14 群 (飲料水)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A

PFNA

食品群	イオン比 (%)					
	地域 A	地域 B	地域 C	地域 D	地域 E	地域 F
1 群 (米類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
2 群 (米以外の穀類・いも類・種実類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
3 群 (砂糖類・菓子類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
4 群 (油脂類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
5 群 (豆類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
6 群 (果実類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
7 群 (緑黄色野菜類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
8 群 (その他の野菜類・きのこ類・海藻類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
9 群 (嗜好飲料類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
10 群 (魚介類)	98	104	100	101	102	98
11 群 (肉類・卵類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
12 群 (乳類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
13 群 (調味料類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
14 群 (飲料水)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A

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

表 7 各群の TD 試料における native 及び IS の保持時間比

PFOS

食品群	保持時間比 (%)					
	地域 A	地域 B	地域 C	地域 D	地域 E	地域 F
1 群 (米類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
2 群 (米以外の穀類・いも類・種実類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
3 群 (砂糖類・菓子類)	100	N/A	N/A	N/A	N/A	100
4 群 (油脂類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
5 群 (豆類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
6 群 (果実類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
7 群 (緑黄色野菜類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
8 群 (その他の野菜類・きのこ類・海藻類)	N/A	N/A	N/A	100	N/A	N/A
9 群 (嗜好飲料類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
10 群 (魚介類)	100	100	100	100	100	100
11 群 (肉類・卵類)	N/A	100	100	100	N/A	N/A
12 群 (乳類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
13 群 (調味料類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
14 群 (飲料水)	N/A	100	N/A	N/A	N/A	N/A

PFOA

食品群	保持時間比 (%)					
	地域 A	地域 B	地域 C	地域 D	地域 E	地域 F
1 群 (米類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
2 群 (米以外の穀類・いも類・種実類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
3 群 (砂糖類・菓子類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
4 群 (油脂類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
5 群 (豆類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
6 群 (果実類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
7 群 (緑黄色野菜類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
8 群 (その他の野菜類・きのこ類・海藻類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
9 群 (嗜好飲料類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
10 群 (魚介類)	100	100	100	100	100	100
11 群 (肉類・卵類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
12 群 (乳類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
13 群 (調味料類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
14 群 (飲料水)	N/A	N/A	N/A	N/A	100	N/A

PFHxS

食品群	保持時間比 (%)					
	地域 A	地域 B	地域 C	地域 D	地域 E	地域 F
1 群 (米類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
2 群 (米以外の穀類・いも類・種実類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
3 群 (砂糖類・菓子類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
4 群 (油脂類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
5 群 (豆類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
6 群 (果実類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
7 群 (緑黄色野菜類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
8 群 (その他の野菜類・きのこ類・海藻類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
9 群 (嗜好飲料類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
10 群 (魚介類)	N/A	100	100	N/A	100	N/A
11 群 (肉類・卵類)	N/A	N/A	N/A	100	N/A	N/A
12 群 (乳類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
13 群 (調味料類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
14 群 (飲料水)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A

PFNA

食品群	保持時間比 (%)					
	地域 A	地域 B	地域 C	地域 D	地域 E	地域 F
1 群 (米類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
2 群 (米以外の穀類・いも類・種実類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
3 群 (砂糖類・菓子類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
4 群 (油脂類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
5 群 (豆類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
6 群 (果実類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
7 群 (緑黄色野菜類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
8 群 (その他の野菜類・きのこ類・海藻類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
9 群 (嗜好飲料類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
10 群 (魚介類)	100	100	100	100	100	100
11 群 (肉類・卵類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
12 群 (乳類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
13 群 (調味料類)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
14 群 (飲料水)	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A

N/A, not applicable: 分析値が<LOQ を示したため, 保持時間比算出の対象外

表 8 PFOS、PFOA、PFHxS 及び PFNA 摂取量の推定結果

PFOS (ng/day)

食品群	LB (<LOQ = 0)							UB (<LOQ = LOQ)						
	地域 A	地域 B	地域 C	地域 D	地域 E	地域 F	平均	地域 A	地域 B	地域 C	地域 D	地域 E	地域 F	平均
1 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00		2.48	1.66	1.38	2.00	1.41	1.91	
2 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00		1.49	0.83	0.92	1.48	0.90	0.82	
3 群	0.29	0.00	0.00	0.00	0.00	0.60		0.29	0.16	0.17	0.22	0.17	0.60	
4 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00		0.06	0.06	0.06	0.06	0.06	0.06	
5 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00		0.29	0.31	0.27	0.29	0.27	0.29	
6 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00		0.47	0.52	0.47	0.48	0.42	0.42	
7 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00		0.39	0.41	0.44	0.45	0.42	0.41	
8 群	0.00	0.00	0.00	1.25	0.00	0.00		0.88	0.93	0.80	1.25	0.77	0.90	
9 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00		2.17	2.48	2.93	3.05	3.13	3.31	
10 群	10.31	7.73	14.69	8.47	32.79	6.57		10.31	7.73	14.69	8.47	32.79	6.57	
11 群	0.00	4.50	0.92	1.40	0.00	0.00		0.80	4.50	0.92	1.40	0.63	0.79	
12 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00		0.60	0.63	0.68	0.65	0.63	0.56	
13 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00		0.30	0.33	0.32	0.32	0.30	0.32	
14 群	0.00	2.54	0.00	0.00	0.00	0.00		1.25	2.54	1.25	1.25	1.25	1.25	
総摂取量	11	15	16	11	33	7.2	15	22	23	25	21	43	18	25
体重あたりの総摂取量 (ng/kg bw/day)	0.21	0.30	0.31	0.22	0.66	0.14	0.31	0.44	0.46	0.51	0.43	0.86	0.36	0.51

PFOA (ng/day)

食品群	LB (<LOQ = 0)							UB (<LOQ = LOQ)						
	地域 A	地域 B	地域 C	地域 D	地域 E	地域 F	平均	地域 A	地域 B	地域 C	地域 D	地域 E	地域 F	平均
1 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00		7.43	4.98	4.13	5.99	4.22	5.72	
2 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00		4.47	2.49	2.76	4.43	2.69	2.46	
3 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00		0.60	0.48	0.50	0.66	0.52	0.62	
4 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00		0.17	0.17	0.18	0.18	0.18	0.18	
5 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00		0.87	0.93	0.82	0.86	0.81	0.86	
6 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00		1.40	1.55	1.40	1.45	1.25	1.27	
7 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00		1.16	1.22	1.32	1.34	1.26	1.23	
8 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00		2.65	2.78	2.39	2.66	2.32	2.71	
9 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00		6.51	7.45	8.78	9.15	9.39	9.94	
10 群	1.71	2.65	4.18	3.46	7.51	0.93		1.71	2.65	4.18	3.46	7.51	0.93	
11 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00		2.39	1.69	1.80	2.35	1.89	2.36	
12 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00		1.80	1.88	2.04	1.95	1.88	1.67	
13 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00		0.91	0.98	0.95	0.97	0.90	0.95	
14 群	0.00	0.00	0.00	0.00	2.51	0.00		1.25	1.25	1.25	1.25	2.51	1.25	
総摂取量	1.7	2.7	4.3	3.5	10	0.93	3.8	33	30	33	37	37	32	34
体重あたりの総摂取量 (ng/kg bw/day)	0.034	0.053	0.084	0.069	0.20	0.019	0.076	0.67	0.61	0.65	0.73	0.75	0.64	0.67

PFHxS (ng/day)

食品群	LB (<LOQ = 0)							UB (<LOQ = LOQ)						
	地域 A	地域 B	地域 C	地域 D	地域 E	地域 F	平均	地域 A	地域 B	地域 C	地域 D	地域 E	地域 F	平均
1 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00		2.48	1.66	1.38	2.00	1.41	1.91	
2 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00		1.49	0.83	0.92	1.48	0.90	0.82	
3 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00		0.20	0.16	0.17	0.22	0.17	0.21	
4 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00		0.06	0.06	0.06	0.06	0.06	0.06	
5 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00		0.29	0.31	0.27	0.29	0.27	0.29	
6 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00		0.47	0.52	0.47	0.48	0.42	0.42	
7 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00		0.39	0.41	0.44	0.45	0.42	0.41	
8 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00		0.88	0.93	0.80	0.89	0.77	0.90	
9 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00		2.17	2.48	2.93	3.05	3.13	3.31	
10 群	0.00	0.39	0.53	0.00	0.88	0.00		0.47	0.39	0.53	0.38	0.88	0.26	
11 群	0.00	0.00	0.00	0.99	0.00	0.00		0.80	0.56	0.60	0.99	0.63	0.79	
12 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00		0.60	0.63	0.68	0.65	0.63	0.56	
13 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00		0.30	0.33	0.32	0.32	0.30	0.32	
14 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00		1.25	1.25	1.25	1.25	1.25	1.25	
総摂取量	0.00	0.39	0.53	0.99	0.88	0.00	0.47	12	11	11	13	11	12	11
体重あたりの総摂取量 (ng/kg bw/day)	0.000	0.0079	0.011	0.020	0.018	0.000	0.0093	0.24	0.21	0.22	0.25	0.23	0.23	0.23

表 8 (続き) PFOS、PFOA、PFHxS 及び PFNA 摂取量の推定結果

PFNA (ng/day)

食品群	LB (<LOQ = 0)							UB (<LOQ = LOQ)						
	地域 A	地域 B	地域 C	地域 D	地域 E	地域 F	平均	地域 A	地域 B	地域 C	地域 D	地域 E	地域 F	平均
1 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00		7.43	4.98	4.13	5.99	4.22	5.72	
2 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00		4.47	2.49	2.76	4.43	2.69	2.46	
3 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00		0.60	0.48	0.50	0.66	0.52	0.62	
4 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00		0.17	0.17	0.18	0.18	0.18	0.18	
5 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00		0.87	0.93	0.82	0.86	0.81	0.86	
6 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00		1.40	1.55	1.40	1.45	1.25	1.27	
7 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00		1.16	1.22	1.32	1.34	1.26	1.23	
8 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00		2.65	2.78	2.39	2.66	2.32	2.71	
9 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00		6.51	7.45	8.78	9.15	9.39	9.94	
10 群	2.91	2.34	5.27	3.13	10.41	2.59		2.91	2.34	5.27	3.13	10.41	2.59	
11 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00		2.39	1.69	1.80	2.35	1.89	2.36	
12 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00		1.80	1.88	2.04	1.95	1.88	1.67	
13 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00		0.91	0.98	0.95	0.97	0.90	0.95	
14 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00		1.25	1.25	1.25	1.25	1.25	1.25	
総摂取量	2.9	2.3	5.3	3.1	10	2.6	4.4	35	30	34	36	39	34	35
体重あたりの総摂取量 (ng/kg bw/day)	0.058	0.047	0.11	0.063	0.21	0.052	0.089	0.69	0.60	0.67	0.73	0.78	0.68	0.69

表 9 PFOS、PFOA、PFHxS 及び PFNA の総摂取量に対する各食品群の寄与率

PFOS (%)

食品群	LB (<LOQ = 0)						UB (<LOQ = LOQ)					
	地域 A	地域 B	地域 C	地域 D	地域 E	地域 F	地域 A	地域 B	地域 C	地域 D	地域 E	地域 F
1 群	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	11.4	7.2	5.4	9.4	3.3	10.5
2 群	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	6.8	3.6	3.6	6.9	2.1	4.5
3 群	2.7	0.0	0.0	0.0	0.0	8.4	1.3	0.7	0.7	1.0	0.4	3.3
4 群	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.3	0.2	0.2	0.3	0.1	0.3
5 群	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	1.3	1.3	1.1	1.3	0.6	1.6
6 群	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	2.1	2.2	1.8	2.3	1.0	2.3
7 群	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	1.8	1.8	1.7	2.1	1.0	2.2
8 群	0.0	0.0	0.0	11.2	0.0	0.0	4.1	4.0	3.2	5.8	1.8	5.0
9 群	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	10.0	10.8	11.6	14.3	7.3	18.2
10 群	97.3	52.4	94.1	76.2	100.0	91.6	47.4	33.5	58.1	39.7	76.0	36.1
11 群	0.0	30.5	5.9	12.6	0.0	0.0	3.7	19.5	3.6	6.5	1.5	4.3
12 群	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	2.8	2.7	2.7	3.0	1.5	3.0
13 群	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	1.4	1.4	1.2	1.5	0.7	1.7
14 群	0.0	17.2	0.0	0.0	0.0	0.0	5.7	11.0	4.9	5.9	2.9	6.9
合計	100.0	100.0	100.0	100.0	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)					
	地域 A	地域 B	地域 C	地域 D	地域 E	地域 F	地域 A	地域 B	地域 C	地域 D	地域 E	地域 F
1 群	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	22.3	16.3	12.7	16.3	11.3	17.8
2 群	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	13.4	8.2	8.5	12.1	7.2	7.7
3 群	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	1.8	1.6	1.5	1.8	1.4	1.9
4 群	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.5	0.6	0.6	0.5	0.5	0.6
5 群	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	2.6	3.1	2.5	2.3	2.2	2.7
6 群	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	4.2	5.1	4.3	4.0	3.3	3.9
7 群	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	3.5	4.0	4.1	3.7	3.4	3.8
8 群	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	7.9	9.1	7.3	7.3	6.2	8.4
9 群	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	19.5	24.4	27.0	24.9	25.2	30.9
10 群	100.0	100.0	100.0	100.0	74.9	100.0	5.1	8.7	12.9	9.4	20.1	2.9
11 群	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	7.2	5.5	5.5	6.4	5.1	7.4
12 群	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	5.4	6.2	6.3	5.3	5.0	5.2
13 群	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	2.7	3.2	2.9	2.7	2.4	3.0
14 群	0.0	0.0	0.0	0.0	25.1	0.0	3.8	4.1	3.8	3.4	6.7	3.9
合計	100.0	100.0	100.0	100.0	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)					
	地域 A	地域 B	地域 C	地域 D	地域 E	地域 F	地域 A	地域 B	地域 C	地域 D	地域 E	地域 F
1 群	N/A	0.0	0.0	0.0	0.0	N/A	20.9	15.8	12.7	16.0	12.5	16.6
2 群	N/A	0.0	0.0	0.0	0.0	N/A	12.6	7.9	8.5	11.8	8.0	7.1
3 群	N/A	0.0	0.0	0.0	0.0	N/A	1.7	1.5	1.6	1.8	1.5	1.8
4 群	N/A	0.0	0.0	0.0	0.0	N/A	0.5	0.5	0.6	0.5	0.5	0.5
5 群	N/A	0.0	0.0	0.0	0.0	N/A	2.5	3.0	2.5	2.3	2.4	2.5
6 群	N/A	0.0	0.0	0.0	0.0	N/A	3.9	4.9	4.3	3.9	3.7	3.7
7 群	N/A	0.0	0.0	0.0	0.0	N/A	3.3	3.9	4.1	3.6	3.7	3.6
8 群	N/A	0.0	0.0	0.0	0.0	N/A	7.5	8.8	7.4	7.1	6.9	7.9
9 群	N/A	0.0	0.0	0.0	0.0	N/A	18.3	23.7	27.1	24.4	27.9	28.8
10 群	N/A	100.0	100.0	0.0	100.0	N/A	4.0	3.7	4.9	3.0	7.9	2.3
11 群	N/A	0.0	0.0	100.0	0.0	N/A	6.7	5.4	5.6	7.9	5.6	6.9
12 群	N/A	0.0	0.0	0.0	0.0	N/A	5.1	6.0	6.3	5.2	5.6	4.8
13 群	N/A	0.0	0.0	0.0	0.0	N/A	2.6	3.1	2.9	2.6	2.7	2.8
14 群	N/A	0.0	0.0	0.0	0.0	N/A	10.6	11.9	11.6	10.0	11.1	10.9
合計	N/A	100.0	100.0	100.0	100.0	N/A	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0

N/A, not applicable: 総摂取量が 0 のため寄与率算出の対象外

表 9 (続き)　PFOS、PFOA、PFHxS 及び PFNA の総摂取量に対する各食品群の寄与率

PFNA (%)

食品群	LB (<LOQ = 0)						UB (<LOQ = LOQ)					
	地域 A	地域 B	地域 C	地域 D	地域 E	地域 F	地域 A	地域 B	地域 C	地域 D	地域 E	地域 F
1 群	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	21.5	16.5	12.3	16.5	10.8	16.9
2 群	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	13.0	8.2	8.2	12.2	6.9	7.3
3 群	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	1.7	1.6	1.5	1.8	1.3	1.8
4 群	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.5	0.6	0.5	0.5	0.5	0.5
5 群	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	2.5	3.1	2.4	2.4	2.1	2.5
6 群	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	4.1	5.1	4.2	4.0	3.2	3.7
7 群	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	3.4	4.0	3.9	3.7	3.2	3.6
8 群	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	7.7	9.2	7.1	7.3	6.0	8.0
9 群	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	18.9	24.7	26.1	25.2	24.1	29.4
10 群	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	8.4	7.8	15.7	8.6	26.7	7.7
11 群	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	6.9	5.6	5.4	6.4	4.9	7.0
12 群	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	5.2	6.2	6.1	5.4	4.8	4.9
13 群	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	2.6	3.2	2.8	2.7	2.3	2.8
14 群	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	3.6	4.1	3.7	3.4	3.2	3.7
合計	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0