

## 2-2 マーケットバスケット試料の分析

本年度は九州地区について、マーケットバスケット方式による摂取量調査を行った。福岡県で調製された第1群から第13群までの試料中の臭素系ダイオキシン類、PBDEs、PBBs及びCo-PXBsを分析し、各試料中の濃度を定量した後、当該地域における各食品群の1日あたりの食事量からこれらの臭素系化合物1日摂取量を算出した。

表23に今回分析した臭素系ダイオキシン類及びその関連化合物(PBDEs、PBBs、Co-PXBs)の1日摂取量総括表を示す。臭素系ダイオキシン類については、暫定的に塩素化ダイオキシン類の毒性等価係数(TEF, 1998)を用いて算出した値を示す。

臭素系ダイオキシン類の1日摂取量は、不検出の異性体濃度を0(ND=0)とした場合、0.00384 pgTEQ/kg/日で、不検出の異性体を検出下限値の1/2(ND=1/2LOD)として1日摂取量を算出した場合は1.56 pgTEQ/kg/日であった。平成19年度の塩素化ダイオキシン類摂取量調査(分担研究者 米谷民雄)<sup>4)</sup>によると、塩素化ダイオキシン類の九州地区における摂取量は1.16 pgTEQ/kg/日、これらの摂取量に臭素系ダイオキシン類の摂取量を足し合わせた場合も、我が国の耐容1日摂取量(TDI)の4 pgTEQ/kg/日を下回ると推察された。

PBDEsの1日摂取量はND=0とした場合、3.14 ng/kg/日であり、ND=1/2LODとした場合は3.19 ng/kg/日であった。平成20年度に実施した関東、関西地区の摂取量調査では、関東地区が3.21 ng/kg/日

(ND=0とした場合)、関西地区が2.74 ng/kg/日(ND=0とした場合)であったことから、今回の九州地区の結果は昨年度に行った2地区とほぼ同程度であった。Darnerudらの報告<sup>5)</sup>ではPBDEのLOAEL(最小毒性発現量)は1 mg/kg/日と考えるのが妥当であるとされている。また、アメリカのATSDRによって導出された経口暴露に関するPBDEのMRL(最小リスクレベル)は、NOAEL(無毒性量)と不確実係数から0.03 mg/kg/日(急性経口MRL)及び0.007 mg/kg/日(亜慢性経口MRL)とされている<sup>6)</sup>。現在の食品からのPBDE摂取量はMRLの0.007 mg/kg/日と比較しても $2 \times 10^3$ 分の1以下と極めて低いレベルであることから、人体には影響がないレベルの汚染であると考えられる。

PBBsの1日摂取量はND=0とした場合、0.00648 ng/kg/日、ND=1/2LODとした場合は0.0617 ng/kg/日であった。平成20年度の関東、関西地区の摂取量は、関東地区が0.00755 ng/kg/日(ND=0とした場合)、関西地区が0.00337 ng/kg/日(ND=0とした場合)であったことから、今回の九州地区の結果はこれらの間の値であった。PBBsについて、アメリカのATSDRによって導出された経口暴露に関するMRLは、0.01 mg/kg/日(急性経口MRL)とされている<sup>6)</sup>。また、環境保健クライテリア<sup>7)</sup>によると、長期的な毒性を考慮した場合の安全な摂取量として $0.15 \mu\text{g/kg/日}$ が提案されている。これらのレベルと比較すると、PBBsの現在の1日摂取量は極めて低いと考えられた。一方、Co-PXBsはいずれの異性体も検出されなかったため、1日摂取量は

表 23 九州地区における臭素系ダイオキシン類及びその関連化合物質の一日摂取量総括表

異性体		1群	2群	3群	4群	5群	6群	7群	8群	9群	10群	11群	12群	13群	合計	体重50kgと 仮定した場合	
	一日食事量(g)	357.1	162.9	33.1	10.4	59.9	106.2	90.5	196.0	581.6	81.5	114.7	144.5	86.2	2025		
臭素系ダイオキシン類	ND=0	0	0	0	0.087	0	0	0	0	0	0.105	0	0	0	0.192	<b>0.00384</b> pgTEQ/kg/日	
	pgTEQ/日*	ND=1/2LOD	14.7	7.0	1.2	0.4	2.2	4.1	3.7	8.2	20.2	3.3	4.7	5.0	3.0	77.8	<b>1.56</b> pgTEQ/kg/日
Total PBDEs	ND=0	8.87	3.98	2.27	13.6	3.47	1.99	0.203	9.06	1.96	92.9	8.89	1.91	7.93	157	<b>3.14</b> ng/kg/日	
	ng/日	ND=1/2LOD	9.48	4.15	2.29	13.6	3.52	2.10	0.375	9.38	2.89	92.9	8.97	2.08	7.99	160	<b>3.19</b> ng/kg/日
Total PBBs	ND=0	0	0	0	0.006	0	0	0	0	0	0.309	0.010	0	0	0.324	<b>0.00648</b> ng/kg/日	
	ng/日	ND=1/2LOD	0.590	0.251	0.044	0.016	0.079	0.148	0.134	0.295	0.727	0.400	0.173	0.181	0.108	3.084	<b>0.0617</b> ng/kg/日
Total Co-PXBs	ND=0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	<b>0</b> ng/kg/日	
	ng/日	ND=1/2LOD	0.064	0.030	0.005	0.002	0.009	0.018	0.016	0.035	0.087	0.014	0.020	0.022	0.013	0.335	<b>0.00670</b> ng/kg/日

\*暫定的に塩素化ダイオキシン類の TEF (1998) を用いて算出した値

表 24 九州地区における臭素系ダイオキシン類の食品群別（第 1 群から第 13 群）一日摂取量

異性体	(pg/日)													合計*				
	1 群	2 群	3 群	4 群	5 群	6 群	7 群	8 群	9 群	10 群		11 群			12 群		13 群	
										A	B	A	B		A	B		
2,3,7,8-TeBDD	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
1,2,3,7,8-PeBDD	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
1,2,3,4,7,8/1,2,3,6,7,8-HxBDD	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
1,2,3,4,7,8-HxBDD	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
OBDD	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
2,3,7,8-TeBDF	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
1,2,3,7,8-PeBDF	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
2,3,4,7,8-PeBDF	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
1,2,3,4,7,8-HxBDF	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
1,2,3,4,6,7,8-HpBDF	—	—	—	8.7	—	—	—	—	—	21	—	—	—	—	—	—	—	19.2
Total PBDD/DFs	—	—	—	8.7	—	—	—	—	—	21	—	—	—	—	—	—	—	19.2
3-Br-2,7,8-TriCDF	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
2-Br-3,7,8-TriCDD	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
1-Br-2,3,7,8-TeCDF	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
1-Br-2,3,7,8-TeCDD	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
2-Br-3,6,7,8,9-PeCDD	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
1-Br-2,3,6,7,8,9-HxCDD	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
1-Br-2,3,4,6,7,8,9-HpCDD	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
Total MoBrPCDD/DFs	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
PBDD/DFs + MoBrPCDD/DFs pg/日	—	—	—	8.7	—	—	—	—	—	21	—	—	—	—	—	—	—	19.2
Total TEQ(ND=0) pgTEQ/日	0	0	0	0.087	0	0	0	0	0	0.21	0	0	0	0	0	0	0	0.192
Total TEQ(ND=1/2LOD) pgTEQ/日	14.7	7.0	1.2	0.4	2.2	4.1	3.7	8.2	20.2	3.3	3.2	4.6	4.7	5.0	5.0	3.0	77.8	

— : ND の異性体

合計\*は 10、11、12 群においては平均値を用いて計算した。

表 25 九州地区における PBDEs の食品群別（第 1 群から第 13 群）の一日摂取量

(ng/日)

異性体	1 群	2 群	3 群	4 群	5 群	6 群	7 群	8 群	9 群	10 群		11 群		12 群		13 群	合計*
										A	B	A	B	A	B		
2,2',4-TriBDE (#17)	—	—	0.006	0.001	—	—	—	—	—	0.046	0.737	—	—	—	—	—	0.399
2,4,4'-TriBDE (#28)	—	0.022	0.021	0.005	—	—	—	—	—	0.472	5.49	0.035	0.029	—	—	—	3.06
2,2',4,5'-TeBDE (#49)	—	—	0.023	0.025	—	—	—	—	—	2.06	13.7	0.033	0.018	—	—	—	7.97
2,3',4'6-TeBDE (#71)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
2,2',4,4'-TeBDE (#47)	—	0.127	0.595	1.35	0.028	0.014	—	—	—	5.05	50.6	3.89	0.784	0.303	0.201	0.070	32.6
2,3',4,4'-TeBDE (#66)	—	—	0.016	0.033	—	—	—	—	—	0.769	6.54	—	—	—	—	—	3.70
3,3',4,4'-TeBDE (#77)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.071	0.672	—	—	—	—	—	0.371
2,2',4,4',6-PeBDE (#100)	—	0.024	0.068	0.539	—	—	—	—	—	1.47	12.1	0.894	0.184	0.047	0.026	0.019	8.00
2,3',4,4',6-PeBDE (#119)	—	—	—	0.001	—	—	—	—	—	0.437	2.11	—	—	—	—	—	1.27
2,2',4,4',5-PeBDE (#99)	—	0.137	0.262	2.96	0.037	0.013	—	—	—	0.915	17.2	4.9	0.815	0.222	0.118	0.117	15.6
2,2',3,4,4'-PeBDE (#85)	—	—	—	0.186	—	—	—	—	—	—	0.009	0.139	0.033	—	—	0.009	0.286
2,2',4,4',5,6'-HxBDE (#154)	—	0.386	0.016	0.254	0.106	—	—	—	—	1.86	9.69	0.480	0.140	0.039	—	0.023	6.89
2,2',4,4',5,5'-HxBDE (#153)	0.043	—	0.014	0.385	0.012	—	—	—	—	0.401	5.32	0.784	0.203	0.044	—	0.019	3.85
2,2',3,4,4',5'-HxBDE (#138)	—	—	—	0.058	—	—	—	—	—	—	0.056	0.033	0.024	—	—	—	0.114
2,3,3',4,4',5-HxBDE (#156)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
2,2',3,4,4',6,6'-HpBDE(#184)	—	—	—	0.003	—	—	—	—	—	0.019	0.192	—	—	—	—	—	0.109
2,2',3,4,4',5',6-HpBDE(#183)	0.049	—	0.007	0.015	0.028	—	—	—	—	0.038	0.280	0.111	0.151	—	—	0.014	0.402
2,3,3',4,4',5',6-HpBDE(#191)	0.060	—	—	0.001	—	—	—	—	—	0.014	0.012	—	—	—	—	—	0.074
2,2',3,3',4,4',6,6'-OBDE(#197)	—	—	—	0.010	0.016	—	—	—	—	0.031	0.106	0.121	0.116	—	—	—	0.212
2,2',3,3',4,4',5,6'-OBDE(#196)	—	—	—	0.011	—	—	—	—	—	0.048	0.036	0.085	0.068	—	—	0.042	0.172
2,2',3,3',4,4',5,6,6'-NoBDE(#207)	—	0.124	0.026	0.165	0.082	0.114	—	—	—	0.847	0.484	0.168	0.250	0.094	—	0.098	1.53
2,2',3,3',4,4',5,5',6-NoBDE(#206)	—	0.121	0.035	0.185	0.095	0.092	—	0.143	—	1.03	0.435	—	0.091	—	0.091	0.198	1.69
DeBDE(#209)	8.72	3.04	1.18	7.44	3.06	1.75	0.203	8.92	1.96	33.2	11.1	—	3.18	2.21	0.425	7.32	68.7
Total PBDE (ND=0)	8.87	3.98	2.27	13.6	3.47	1.99	0.203	9.06	1.96	48.8	137	11.7	6.08	2.96	0.861	7.93	157
Total PBDE (ND=1/2LOD)	9.48	4.15	2.29	13.6	3.52	2.10	0.375	9.38	2.89	48.8	137	11.8	6.14	3.12	1.03	7.99	160

— : ND の異性体

合計\*は 10、11、12 群においては平均値を用いて計算した。

表 26 九州地区における PBBs 及び Co-PXBs の食品群別（第 1 群から第 13 群）の一日摂取量

異性体														(ng/日)			
	1群	2群	3群	4群	5群	6群	7群	8群	9群	10群		11群		12群		13群	合計*
										A	B	A	B	A	B		
2,2',5'-TriBB(#18)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.102	—	—	—	—	—	0.051
2,4,6-TriBB(#30)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
2,3',5'-TriBB(#26)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
2,4',5,6-TriBB(#31)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
2,2',5,6'-TeBB(#53)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
2,2',5,5'-TeBB(#52)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.029	0.102	—	—	—	—	—	0.066
2,2',4,5'-TeBB(#49)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.022	0.071	—	—	—	—	—	0.046
3,3',5,5'-TeBB(#80)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
3,3',4,4'-TeBB(#77)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
2,2',4,5',6-PeBB(#103)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
2,2',4,5,5'-PeBB(#101)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.016	—	—	—	—	—	—	0.008
2,2',4,4',6,6'-HxBB(#155)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.029	0.135	—	—	—	—	—	0.082
2,2',4,4',5,5'-HxBB(#153)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.020	0.091	0.019	—	—	—	—	0.065
3,3',4,4',4,4'-HxBB(#169)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
2,2',3,4,4',5,5'-HpBB(#155)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
2,2',3,3',4,4',5,5'-OeBB(#194)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
2,2',3,3',4,4',5,5',6-NoBB(#206)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
DeBB(#209)	—	—	—	0.006	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.006
Total PBBs (ND=0)	—	—	—	0.006	—	—	—	—	—	0.116	0.501	0.019	—	—	—	—	0.324
Total PBBs (ND=1/2LOD)	0.590	0.251	0.044	0.016	0.079	0.148	0.134	0.295	0.727	0.207	0.592	0.177	0.169	0.181	0.181	0.108	3.084
4'-Br-2,3',4,5'-TeCB	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
4'-Br-2,3,3',4'-TeCB	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
4'-Br-3,3',4,5'-TeCB	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
4'-Br-2,3,3',4,5'-PeCB	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
4'-Br-3,3',4,5,5'-PeCB	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
3',4',5'-Br-3,4-DiCB	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
Total PXBs (ND=0)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
Total PXBs (ND=1/2LOD)	0.064	0.030	0.005	0.002	0.009	0.018	0.016	0.035	0.087	0.014	0.014	0.020	0.020	0.022	0.022	0.013	0.335

— : ND の異性体

合計\*は 10、11、12 群においては平均値を用いて計算した。

ND=0とした場合は0であった。ND=1/2LODとした場合は0.00670ng/kg/日となった。さらにND=1/2LODとした場合のCo-PXBs摂取量について、暫定的にCo-PCBsに定められたTEF(1998)を用いてTEQ濃度を算出した場合0.24pgTEQ/kg/日となった。この値は耐容一日摂取量(TDI)の4pg/kg/日の10分の1以下であり、塩素化ダイオキシン類、臭素系ダイオキシン類の摂取量と合わせても、耐容1日摂取量(TDI)の4pg/kg/日を下回ると考えられた。

表24から表26に臭素系ダイオキシン類、PBDEs、PBBs及びCo-PXBsの詳細な食品群別及び異性体別の摂取量を示す。

臭素系ダイオキシン類では、第4群(油脂類)と第10群の試料の一つから7臭素化ジベンゾフランが検出された。摂取量にするとそれぞれ0.087pgTEQ/日、0.21pgTEQ/日と極めて微量であるため、健康影響が生じる可能性は低いと考えられる。

PBDEsの摂取量では、10群(魚介類)からの寄与率が最も高かった。続いて4群(油脂類)であった。異性体別に見ると、#209(10臭素化体)、続いて#47(4臭素化体)が高かった。

PBBsの結果では、異性体が検出された食品群は第4群、第10群であり、摂取量における寄与率は第10群から80%以上と極めて高かった。異性体では第4群の試料からは#209が、第10群の試料からは#18(3臭素化体)、#52、#49(4臭素化体)、#101(5臭素化体)、#155、#153(6臭素化体)が、第11群の試料から#153が検出された。

### 3 ヘキサブロモシクロデカン(HBCDs)及びテトラブロモビスフェノールA(TBBPA)のマーケットバスケット試料の分析

九州地区で調製したマーケットバスケット試料についてHBCDs及びTBBPAをそれぞれの個別分析法を用いて分析を行った。分析結果より算出した九州地区におけるHBCDsの1日摂取量を食品群別にまとめたものを表27に示す。マーケットバスケット試料の第1群から13群まで分析を行った中で、第10群の魚介類試料から $\alpha$ 、 $\beta$ 、 $\gamma$ のすべての異性体が検出され、その1日摂取量は平均値でそれぞれ85.5、0.9、68.7ng/日であった。また、第11群の肉・卵類の1試料から $\alpha$ 体が微量に検出され、1日摂取量は平均値で2.0ng/日であった。

昨年度のマーケットバスケット調査(関東、関西地区)と同様に、魚介類の中で最も高い濃度で検出されたのは $\alpha$ -HBCDで、次いで $\gamma$ -HBCD、 $\beta$ -HBCDの順であった。 $\beta$ -HBCDの濃度は $\alpha$ 、 $\gamma$ -HBCDに比べて非常に低濃度であった。日本人の平均体重を50kgと仮定し、体重1kgあたりのHBCDsの1日摂取量を求めたところ、ND=0とした場合は3.1ng/kg/日、ND=1/2LODとした場合は4.2ng/kg/日と算出された。昨年度の関東、関西地区における1日摂取量はそれぞれ2.4、1.8ng/kg/日(ND=0)であったことから、これらの値と比較すると今回の値は若干高めであった。

表 27 マーケットバスケット試料(九州地区)における HBCD s の 1 日平均摂取量

		HBCD (ng/日)							
		ND=0				ND=1/2LOD			
		$\alpha$	$\beta$	$\gamma$	$\Sigma$ HBCDs	$\alpha$	$\beta$	$\gamma$	$\Sigma$ HBCDs
第 1 群	(米類)	0	0	0	0	4.2	2.1	4.2	10.6
第 2 群	(米以外の穀類)	0	0	0	0	2.0	1.0	2.0	5.0
第 3 群	(砂糖・菓子類)	0	0	0	0	0.4	0.2	0.4	0.9
第 4 群	(油脂類)	0	0	0	0	0.1	0.1	0.1	0.3
第 5 群	(豆類)	0	0	0	0	0.6	0.3	0.6	1.6
第 6 群	(果実類)	0	0	0	0	1.2	0.6	1.2	3.0
第 7 群	(緑黄色野菜)	0	0	0	0	1.1	0.5	1.1	2.7
第 8 群	(その他の野菜)	0	0	0	0	2.4	1.2	2.4	5.9
第 9 群	(調味嗜好飲料)	0	0	0	0	5.8	2.9	5.8	14.5
第 10 群	(魚介類) *	85.5	0.9	68.7	155.1	85.5	1.1	68.7	155.3
第 11 群	(肉・卵類) *	2.0	0	0	2.0	2.6	0.7	1.3	4.6
第 12 群	(乳類) *	0	0	0	0	1.4	0.7	1.4	3.6
第 13 群	(調味料)	0	0	0	0	0.9	0.4	0.9	2.2
各 HBCD 摂取量 ng/日		85.5	0.9	68.7	157.1	108.2	11.8	90.1	210.1
$\Sigma$ HBCDs 推定摂取量 ng/kg 体重/日					3.1				4.2

\*1 日平均摂取量を算出する場合、第 10, 11, 12 群については各々平均摂取量を採用した。

$\alpha$ 、 $\gamma$ -HBCD の LOD 値は 0.02ng/g、 $\beta$ -HBCD の LOD 値は 0.01ng/g とした。

HBCDsの毒性については動物試験の結果から日本では10.2 mg/kg/日が無毒性量 (NOAEL)とされている<sup>8)</sup>。HBCDsのヒトへの影響は、長期に亘って摂取するという仮定の下では安全係数100 (動物種差10×固体別差10)で除した量 (耐容1日摂取量)<sup>9)</sup>と比較することが妥当と考えられており、HBCDsの場合は102 μg/kg/日と比較することとなる。今回得られた九州地区の摂取量の3.1 ng/kg/日 (ND=0)、4.2 ng/kg/日 (ND=1/2LOD)は耐容1日摂取量の約40,000分の一から20,000分の一となり、ただちに健康に問題がある量ではないと考えられた。しかし、その他の毒性についても報告されていることから<sup>10)-12)</sup>、今後も食品における汚染や摂取量の推移の観察は必須である。

次に、九州地区におけるTBBPAの1日摂取量を食品群別にまとめたものを表28に示す。TBBPAは第2群、4群、5群、10群、11群から検出された。その他の群では検出されなかった。検出頻度は16試料中6試料で37.5%であった。1日摂取量にすると、第2群の3.7 ng/日が最も多く、次いで第11群の3.3 ng/日であった。日本人の平均体重を50 kgと仮定し、体重1kgあたりの1日摂取量を求めたところ、ND=0とした場合は0.2 ng/kg/日、ND=1/2LODとした場合は0.4 ng/kg/日と算出された。昨年度の関東、関西地区における1日摂取量はそれぞれ0.6、2.8 ng/kg/日 (ND=0)であったことから、これらの値と比較すると今回の値は低かった。

表28 マーケットバスケット試料(九州地区)におけるTBBPAの1日平均摂取量

		TBBPA (ng/日)	
		ND=0	ND=1/2LOD
第1群	(米類)	0	2.1
第2群	(米以外の穀類)	3.7	3.7
第3群	(砂糖・菓子類)	0	0.2
第4群	(油脂類)	0.1	0.1
第5群	(豆類)	1.0	1.0
第6群	(果実類)	0	0.6
第7群	(緑黄色野菜)	0	0.5
第8群	(その他の野菜)	0	1.2
第9群	(調味嗜好飲料)	0	2.9
第10群	(魚介類)*	0.5	0.7
第11群	(肉・卵類)*	3.3	4.7
第12群	(乳類)*	0	0.7
第13群	(調味料)	0	0.4
TBBPA 摂取量 (ng/日)		8.5	18.8
TBBPA 推定摂取量 (ng/kg/日)		0.2	0.4

\*1日平均摂取量を算出する場合、第10, 11, 12群については各々平均摂取量を採用した。

TBBPA の毒性については、1995 年に IPCS/WHO<sup>13)</sup>によって報告された NOAEL 値 700 mg/kg 体重がある。ヒトへの外挿値として安全係数 100 で除した数値 7 mg/kg 体重と比べて、今回得られた摂取量は、極めて低いレベルであり、ヒトへの健康影響はないと考えられる。しかし、マウスにおいて胎児性暴露による神経発達障害や肝臓・腎臓での組織障害などの報告<sup>14)-16)</sup>もあることから、TBBPA の摂取量についても観察が必要であると考えられる。

## D 結論

1 臭素系ダイオキシン類、PBDEs、PBBs、Co-PXBs 及びテトラブロモビスフェノール A の高分解能ガスクロマトグラフ/質量分析計 (HRGC/HRMS) における測定条件検討では、これらの臭素系化合物計 66 異性体について、ガスクロマトグラフにおける分析カラムを交換することなく、すべて 1 種類のカラムで測定することが可能となった。カラム交換の手間や労力、カラム購入のためのコストを削減することができた。

2 魚試料の汚染調査では、アナゴから 7 臭素化ダイオキシンが微量に検出されたが、その他の魚からは PBDD/DFs は検出されなかった。PBDEs ではすべての魚から #28、#47、#99、#154、#206、#207、#209 などの異性体が検出され、PBBs では 4 検体中 3 検体の魚から 4-6 臭素化体の異性体が検出された。Co-PXBs はいずれの異性体も検出されなかった。

3 マーケットバスケット方式による九州地区の摂取量調査では、一日摂取量は臭素系ダイオキシン類が 0.00384

pgTEQ/kg/日 (ND=0) 及び 1.56 pgTEQ/kg/日 (ND=1/2LOD)、PBDEs が 3.14 ng/kg/日 (ND=0) 及び 3.19 ng/kg/日 (ND=1/2LOD)、PBBs が 0.00648 ng/kg/日 (ND=0) 及び 0.0617 ng/kg/日 (ND=1/2LOD) であった。Co-PXBs はいずれの食品群別試料からも検出されなかった。

4 マーケットバスケット方式による九州地区における HBCDs 及び TBBPA の摂取量調査では、HBCDs は 3.1 ng/kg/日 (ND=0)、4.2 ng/kg/日 (ND=1/2LOD)、TBBPA は 0.2 ng/kg/日 (ND=0)、0.4 ng/kg/日 (ND=1/2LOD) であった。マーケットバスケット試料の分析から求めた摂取量の差異は、地域や年度、試料調製時に選択した食品種の違いによるものもあり、平均摂取量の把握には、ある程度の期間観察する必要があると考えられる。

## E 研究発表

### 1 論文発表

1) Ashizuka, Y., Yasutake, D., Nakagawa, R., Shintani, Y., Hori, T., Tsutsumi, T.: Determination of polybrominated dibenzo-*p*-dioxins, Co-PXBs and brominated flame retardant in fish. *Organohalogen Compounds*, 71, 1251-1254, 2009.

### 2 学会・協議会発表

1) 中川礼子, 新谷依子, 芦塚由紀, 堀 就英, 堀江正一, 田中之雄, 柿本健作, 堤智昭: マーケットバスケット食品試料におけるヘキサブロモシクロドデカン (HBCDs) の分析法の検討とその 1 日摂取

量の推定. 第46回全国衛生化学技術協議会年会(2009.11).

2) 芦塚由紀, 中川礼子, 安武大輔, 新谷依子, 堀 就英, 堀江正一, 田中之雄, 堤 智昭: 臭素系ダイオキシン類及びその関連化合物質のマーケットバスケット方式による摂取量調査. 第46回全国衛生化学技術協議会年会(2009.11).

### 参考文献

1) Watanabe, K., Senthilkumar, K., Masunaga, S., Takasuga, T., Iseki, N., Morita, M. : Brominated organic contaminants in the liver and egg of the common cormorants (*Phalacrocorax carbo*) from Japan. Environ. Sci. Technol., 38, 4071-4077, 2004.

2) Ishikawa, Y., Nose, K., Suzuki, G., Takigami, H., Noma, Y., Sakai, S. : Quantitative analysis of polybrominated biphenyls (PBBs) in Japanese waste samples. Organohalogen Compounds, 68, 1776-1779, 2004.

3) Ohta, S., Tokusawa, H., Magota, H., Nakao, T., Aozasa, O., Miyata, H., Ochiai, T., Shimizu, Y. : Contamination levels of polychlorinated / brominated coplanar biphenyls (Co-PXBs) in the market foods and mother's milk of Japan. Organohalogen Compounds, 69, 2018-2021, 2007.

4) 厚生労働科学研究「ダイオキシン類等の有害化学物質による食品汚染実態の把握に関する研究」平成19年度 研究報告書

5) Darnerud, P. O., Eriksen, G. S., Jóhannesson, T., Larsen, P. B., Viluksela, M.: Polybrominated diphenyl ethers: occurrence, dietary exposure, and toxicology. Environ. Health Perspect., 109 supplement1 (2001) 49-68.

6) Hana, R.P., Stephen, B. : ATSDR's Guidance Values for Polybrominated Biphenyls (PBBs) and Polybrominated Diphenyl Ethers (PBDEs). Organohalogen Compounds, 61, 211-214, 2003.

7) IPCS/WHO: POLYBROMINATED BIPHENYLS. Environmental Health Criteria 152, Geneva, Switzerland. 1994.

8) Ema, M., Fujii, S., Hirata-koizumi, M., Matsumoto, M. : Two generation reproductive toxicity study of the flame retardant hexabromocyclo-dodecane in rats. Reprod. Toxicol. 25, 335-351, 2008.

9) NEDO事業における「初期リスク評価書」TDI (耐容一日摂取量) : <http://www.safe.nite.go.jp/risk.riskhykd01.html>.

10) Cantón, R. F., Peijnenburg, A. A. C. M., Hoogenboom, R. L. A. P., Piersma, A. H., van der Ven, L. T. M., van den Berg, Martin, Heneweer, M. :

- Subacute effects of hexabromocyclododecane (HBCD) on hepatic gene expression profiles in rats. *Toxicology and Applied Pharmacology* 231, 267-272 2008.
- 11) van der Ven L.T.M., Verhoef A., van de Kuil T., Slob W., Leonards P.E., Visser T.J., Harmers T., Herlin M., Hakansson H., Olausson H., Piersma A.H., Vos J.G., : A 28-day oral dose toxicity study enhanced to detect endocrine effects of hexabromocyclododecane in Wistar rats. *Toxicol. Sci.* 94, 281-292, 2006.
- 12) Germers T., Piersma A.H., van der Ven L, Kamyschnikow A., Fery Y., Schmitz H.J., Schrenk, D.: Subacute effects of the brominated flame retardants hexabromocyclododecane and tetrabromobisphenol A on hepatic cytochrome P450 levels in rats. *Toxicology* 218, 229-236, 2006.
- 13) IPCS/WHO: Tetrabromobisphenol A and derivatives. *Environmental Health Criteria* 172, Geneva, Switzerland. 1995.
- 14) Fukuda, N., Ito, Y., Yamaguchi, M., Mitumori, K., Koizumi, M., Hasegawa, R., Kamata, E., Ema, M., 2004. Unexpected nephrotoxicity induced by tetrabromobisphenol A in newborn rats. *Toxicol. Lett.* 150, 145-155. 2004.
- 15) Lilienthal H., Verwer, C. M., van der Ven, L.T.M., Piersma A.H., Vos J. G. : Exposure to tetrabromobisphenol A (TBBPA) in Wistar rats: Neuro-behavioral effects in offspring from a one-generation reproduction study. *Toxicol.* 246, 45-54, 2008.
- 16) Tada, Y., Fujitani, T., Yano, N., Takahashi, H., Yuzawa, K., Ando, H., Kubo, Y., Nagasawa, A., Ogata, A., Kamimura H.: Effects of tetrabromobisphenol A, brominated flame retardant, in ICR mice after prenatal and postnatal exposure. *Food and Chemical Toxicology* 44, 1408 - 1413, 2006.