

PBDE 類及び PFC 類のトータルダイエツスタディ

○永川 豊広¹、浮穴 学宗¹、木村 日都美¹、山田 友紀子¹

¹ 農林水産省消費・安全局

【目的】ポリブロモジフェニルエーテル類 (PBDE類)は難燃性のため、消火材や電気製品に、パーフルオロ化合物類 (PFC類)は撥油性・撥水性のため、フッ素加工品の製造助材に使用され、いずれも環境中で分解しにくい性質を持つ。臭素数や異性体の種類、炭素鎖長によって毒性は異なるものの、動物試験で発達神経毒性や肝臓への悪影響等が報告されている。その毒性や難分解性のためPOPs条約の対象となっており、PBDE類の4~7臭素化体やPFC類のスルホン酸 (PFOS)は製造・使用、輸出入が多く、多くの国で禁止・制限されている。

過去に放出されたPBDE類やPFC類は広く環境中に残留するが、世界における食品の調査データは少ない。そこで、食品に由来する消費者の健康リスクを予測するため、トータルダイエツスタディを実施した。

【方法】東京、大阪、福岡の地域ごとに、総合スーパー等の店舗をランダムに選定し、国民健康・栄養調査の17食品群を代表する食品と飲料水を購入した。購入試料は必要に応じて調理・加工後、消費量に比例した量を混合・均質化して分析用試料とした。

PBDE類は臭素数3~10のうち計31分子種をGC-MS法で分析した(合計を総PBDE濃度とした)。PFC類は酸(PFOA)とPFOSをLC-MS/MS法で分析した。平成23年国民健康・栄養調査の消費量や体重を用いて平均摂取量の下限值(LB: LOQ未満の濃度を0として算出)と上限値(UB: LOD未満の濃度をLOD、LOD以上LOQ未満の濃度

をLOQとして算出)を推定した。さらにPBDE類のUBを、欧州食品安全機関(EFSA)が動物試験における発達神経毒性のBMDL₁₀を基に算定したヒトへの毒性の指標と比較した。PFC類は、耐受一日摂取量(TDI)とUBを比較した。

【結果】表 推定平均摂取量 (単位:ng/kg bw/day)

対象物質	LB	UB	対象物質	LB	UB
総PBDE	1.2	2.8	PFOA	0.075	0.79
BDE-47	0.15	0.21	PFOS	0.69	1.2
BDE-99	0.043	0.10	※ PBDE類の異性体番号は Ballschmiter and Zell(1980)に基づく		
BDE-153	0.016	0.068			
BDE-209	0.69	0.74			

総PBDEのLBにおける各食品群の主たる寄与は、魚介類が34%、油脂類が30%、穀類が13%であり、PFOAとPFOSでは共に魚介類が90%以上であった。

BDE-47, 99, 153, 209について、EFSAの指標と本研究で推定したUBの比(指標/UB)はそれぞれ770, 42, 140, 2300000であった。PFOAやPFOSのUBはそれぞれのTDI(PFOA:1500, PFOS:150 (ng/kg bw))より十分低かった。

【考察】EFSAは、BDE-47, 99, 153, 209について指標/UBが2.5より高い場合、健康への懸念はほぼないとしている。従って現時点では、平均的な食生活において健康への懸念は考えられない。より詳細な推定のため、本研究で試料の種類が少なく、寄与の高い油脂類や消費量の多い穀類の含有実態を把握する。

PFOAやPFOSは、UBがTDIより十分低いため、現時点では、平均的な食生活において健康への懸念はない。

PBDE類及びPFC類のトータルダイエツスタディ

○永川豊広、浮穴学宗、木村日都美、山田友紀子
農林水産省消費・安全局

(本調査は、平成24年度及び平成25年度農林水産省
有害化学物質リスク管理基礎調査事業で実施した。)

1. 調査の背景と目的

- ポリブロモジフェニルエーテル類(PBDE類) (例)
 - 難燃性。消火材や電気製品に使用。
 - 動物試験で発達神経毒性や肝臓への悪影響等が報告。臭素数や異性体の種類によって毒性は異なる。
- パーフルオロ化合物類(PFC類)
 - 撥油性・撥水性。フッ素加工品の製造助材に使用。
 - 動物試験で内分泌かく乱性や肝臓への悪影響等が報告。炭素鎖長によって毒性は異なる。
- 両化合物類の毒性や難分解性のため、POPs条約の対象。PBDE類の4~7臭素化体やPFOSの製造・使用、輸出入を多くの国が禁止・制限。
- 過去に放出されたPBDE類やPFC類は広く環境中に残留。食品の調査データは少ない。
- 食品に由来する消費者の健康リスクを予測するため、トータルダイエツスタディを実施。

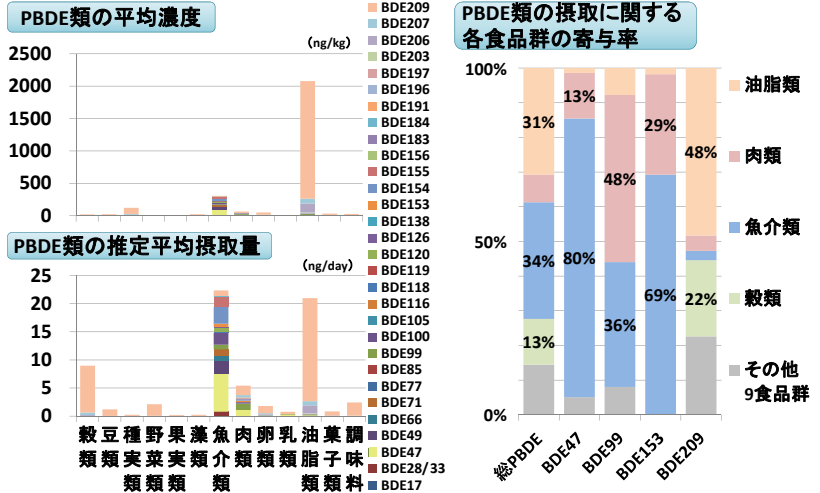
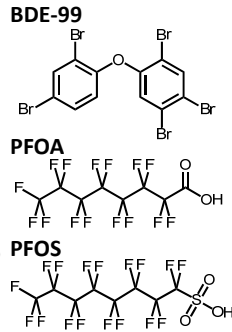


図1. 各食品群中のPBDE類の平均濃度(左上)、各食品群からのPBDE類の1日あたり推定平均摂取量(左下)、PBDE類の摂取に関する各食品群の寄与率(右)

* BDE-209のLODは油脂類: 10 ng/kg, 油脂類以外: 0.7~2 ng/kg, LOQは油脂類: 30 ng/kg, 油脂類以外: 2~6 ng/kg.
BDE-209以外のLODは油脂類: 1~4 ng/kg, 油脂類以外: 0.6~1 ng/kg, LOQは油脂類: 2~10 ng/kg, 油脂類以外: 2 ng/kg.
各物質の濃度はLOQ未満を0とした場合の3地域での濃度の平均値。推定平均摂取量は3地域の平均摂取量の下限値(LB)の平均値。寄与率はLBから算出。

2. 方法

- **調査試料:** 東京、大阪、福岡の地域ごとに、総合スーパー等の店舗をランダムに選定し、国民健康・栄養調査の17食品群を代表する食品と飲料水を購入。必要に応じて調理・加工後、消費量に比例した量を混合・均質化して分析。
- **分析法:** PBDE類は臭素数3~10のうち計31分子種※をGC-MS法、PFC類はPFOA及びPFOSの2分子種をLC-MS/MS法で分析。
※ BDE-17, 28, 33, 47, 49, 66, 71, 77, 85, 99, 100, 105, 116, 118, 119, 120, 126, 138, 153, 154, 155, 156, 183, 184, 191, 196, 197, 203, 206, 207, 209¹⁾
- **摂取量の推定:** 各物質の濃度と平成23年国民健康・栄養調査の食品消費量を用いて平均摂取量の下限値(LB: LOQ未満の濃度を0として算出)と上限値(UB: LOD未満の濃度をLOD、LOD以上LOQ未満の濃度をLOQとして算出)を推定。
- **推定摂取量と毒性指標との比較:** BDE-47, 99, 153, 209について、欧州食品安全機関(EFSA)が算定したヒトへの毒性の指標(EFSAが算出した動物試験における発達神経毒性のBMDL₁₀に基づくもの)²⁾とUBを比較。
PFOAとPFOSは、**耐受一日摂取量(TDI)³⁾とUBを比較。**

3. 結果

- 東京での調査で、PBDE類、PFC類について、18食品群(17食品群+飲料水)のうち、5食品群(いも類、砂糖類、きのこ類、嗜好飲料類、飲料水)の摂取寄与が小さいことを確認。
→ 大阪、福岡は13食品群を調査。

➤ PBDE類(図1参照)

- 各食品群中の総PBDE(31分子種の合計)濃度は、油脂類、魚介類の順に高かった。
- 油脂類中のPBDE類は9, 10臭素化体(BDE-206, 207, 209)が98%、魚介類中のPBDE類は3~6臭素化体(BDE-17~156)が93%。
- 食品からの総PBDEの一日摂取量は1.2~2.8 ng/kg bwの範囲(LB~UB)と推定。各食品群の主たる寄与は、魚介類が34%、油脂類が31%、穀類が13%。
- BDE-99の各食品群の主たる寄与は、肉類が48%、魚介類が36%。

➤ PFC類(図2参照)

- 3地域での調査で、13食品群のうちの藻類、魚介類以外の食品群中の濃度が定量限界未満。
- 食品からの一日摂取量はPFOA: 0.075~0.79, PFOS: 0.69~1.2 ng/kg bwの範囲と推定。
- PFOAの各食品群の主たる寄与は、魚介類が90%、藻類が10%。PFOSは魚介類の寄与が100%。

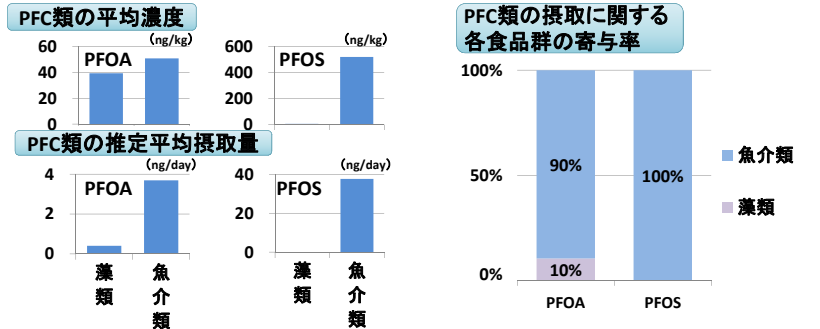


図2. 各食品群中のPFC類の平均濃度(左上)、各食品群からのPFC類の1日あたり推定平均摂取量(左下)、PFC類の摂取に関する各食品群の寄与率(右)

* PFOAのLODは飲料水: 2 ng/kg, 飲料水以外: 9~40 ng/kg, LOQは飲料水: 5 ng/kg, 飲料水以外: 30~110 ng/kg.
PFOSのLODは飲料水: 3 ng/kg, 飲料水以外: 3~20 ng/kg, LOQは飲料水: 8 ng/kg, 飲料水以外: 9~40 ng/kg.
各物質の濃度はLOQ未満を0とした場合の3地域の濃度の平均値。推定平均摂取量は3地域の平均摂取量の下限値(LB)の平均値。寄与率はLBから算出。

表1. 推定平均摂取量と毒性指標の比較

	全年齢				1~6歳				
	BDE-47	BDE-99	BDE-153	BDE-209	BDE-47	BDE-99	BDE-153	BDE-209	
推定平均摂取量 ^{*1} (ng/kg bw/day)	LB	0.15	0.043	0.016	0.69	0.29	0.10	0.030	1.8
	UB ^{*2}	0.21	0.10	0.068	0.74	0.44	0.24	0.17	1.9
ヒトへの毒性の指標 (ng/kg bw)	172	4.2	9.6	1.7 × 10 ⁶	172	4.2	9.6	1.7 × 10 ⁶	
指標/LB	1100	98	600	2.5 × 10 ⁶	570	42	320	9.7 × 10 ⁵	
指標/UB	770	42	140	2.3 × 10 ⁶	370	17	56	9.0 × 10 ⁵	
	全年齢		1~6歳						
	PFOA	PFOS	PFOA	PFOS					
推定平均摂取量 (ng/kg bw/day)	LB	0.075	0.69	0.12	1.2				
	UB	0.79	1.2	1.8	2.2				
耐受一日摂取量 (ng/kg bw)	1500	150	1500	150					

*1 全年齢の平均体重を54.9 kg、こども(1~6歳)の平均体重を15.5 kgとして推定。
*2 分析値がLOD未満の場合はLOD、分析値がLOD以上LOQ未満の場合はLOQとした場合の、3地域における13食品群(穀類、豆類、種実類、野菜類、果実類、藻類、魚介類、肉類、卵類、乳類、油脂類、菓子類、調味料)の摂取量の平均値と、東京都の他の5食品群の摂取量の合計値。

4. 考察

- EFSAは、BDE-47, 99, 153, 209について、指標/UBが2.5²⁾より高い場合、健康への懸念はほぼないとしている。従ってこれらBDEについて、現時点では、平均的な食生活において健康への懸念は低い。今後、より詳細に推定するため、本研究で試料の種類が少なかったが寄与率が高かった油脂類や、消費量の多い穀類の含有実態を把握する。また、BDE-99の摂取寄与率の高い肉類について、どの種類にBDE-99が多く含まれるかを調査する。
- PFOAやPFOSは、UBがTDIより十分低いため、現時点では、平均的な食生活において健康への懸念はない。

1) Ballschmiter and Zell, 1980. Analysis of polychlorinated biphenyls (PCB) by glass capillary gas chromatography. *Fresenius Z. Anal. Chem.* 302, 20-31
2) EFSA, 2012. Scientific Opinion on Brominated Flame Retardants (BFRs) in Food: Brominated Phenols and their Derivatives. *EFSA J.* 10(4):2634
3) EFSA, 2008. Perfluorooctane sulfonate (PFOS), perfluorooctanoic acid (PFOA) and their salts Scientific Opinion of the Panel on Contaminants in the Food chain. *EFSA J.* 6(5), 1-131