

平成 13 年度 内分泌攪乱化学物質に関する食事調査（フタル酸エステル類）

1 目的

食事と食品を対象として、食事経路におけるフタル酸エステル類の存在量の調査を行う。

2. 調査内容

2.1. 調査対象物質

以下の 9 物質について調査分析を実施した。

フタル酸ジ-2-エチルヘキシル	(DEHP)
フタル酸ブチルベンジル	(DBB)
フタル酸ジ-n-ブチル	(BBP)
フタル酸ジシクロヘキシル	(DCP)
フタル酸ジエチル	(DEP)
フタル酸ジ-n-ペンチル	(DPeP)
フタル酸ジヘキシル	(DHP)
フタル酸ジプロピル	(DPrP)
アジピン酸ジ-2-エチルヘキシル	(DEHA)

2.2. 調査媒体と調査時期

調査媒体；食事

調査時期；平成 13 年 8 月～9 月

2.3. 調査検体数

- ① 家庭内食事調査 81 検体（9 ブロック 3 家庭 3 日分）
（採取方法は、陰膳方式）
- ② 外食，インスタント食品，人工乳等調査 81 検体

2.4. 調査地点（家庭）及び調査食品（外食，インスタント食品，人工乳等）の選定

本調査のために設置した検討会*委員の助言等を尊重し、全国のフタル酸エステル類の暴露量を知るための基礎資料を得るためにもっとも適した調査地点（家庭）及び調査食品を選定した。

*石光 進、月岡 忠、豊田 正武、中澤 裕之、吉池 信男（五十音順）

3. 試料の収集

3.1. 家庭内食事調査（陰膳調査）

全国を 9 ブロック（北海道，東北，関東，中部，関西，中国，四国，北部九州，沖縄地区）として，各ブロックから 3 家庭を選定し，1 日分を 1 試料として連続 3 日間の食事を陰膳方式により集めた。

1 日分の食事試料は，毎食（朝，昼，夜および間食）ごとにネジロステンレスボトルにに入れて各家庭の冷蔵庫で保管し，翌日，宅配便（冷蔵）で分析機関に発送された。

3.2. 外食、インスタント食品調査

外食は、全国展開をしているチェーン店を中心に東京地区で入手可能な食事について収集した。それぞれ異なるファーストフード店 5 店、和風ファーストフード店 5 店、ファミリーレストラン 10 店、ステーキレストラン 5 店、すし店 5 軒、その他の食堂 5 店、デパート食堂 10 店において持ち出し可能な食事を各 1 食購入した。

食事内容としては、定食及びセットメニューを優先的に選定し、合計 45 点の食事試料を収集した。

インスタント食品は、東京地区のスーパーマーケットで入手可能なレトルトカレーライス 3 点、冷凍天丼 1 点、インスタントラーメン 3 点、カップうどん 3 点、カップラーメン 3 点、カップやきそば 3 点の合計 16 点を購入した。これらのインスタント食品は、パッケージ等に記載された方法に従い、簡単な調理を行い食事試料とした。

3.3. 人工乳等調査

人工乳等は、東京地区のスーパーマーケット及び薬店で入手可能な粉ミルク 4 点、離乳食として離乳初期用 4 点、離乳中期用 4 点、離乳後期用 4 点、離乳完了期用 4 点の合計 20 点を購入した。粉ミルクはパッケージ等に記載された方法に従い、哺乳瓶を用いて調製し試料とした。離乳食については、瓶詰品及びレトルト食品はそのまま、フリーズドライ食品はパッケージ等に記載された方法に従い、簡単な調理を行い試料とした。

4. 試料の分析

4.1. 試料調製

家庭内食事試料（陰膳試料）は、到着後速やかに、汚染に細心の注意を払いながら破碎混合し、調製した。

外食、インスタント食品、人工乳等は、入手後または調理後速やかに、汚染に細心の注意を払いながら破碎混合し調製した。

調製にはステンレス製ミキサーを用い、粉碎混合し、均一化した。

4.2. 試料の保管

試料調製後直ちに調査対象物質の分析に着手した。ただし、試料を分析まで保管する必要がある場合、分析直前まで冷凍庫中で保管した。

4.3. 分析法の概要

試料はアセトニトリルを用いて抽出し、ゲル浸透クロマトグラフィー(GPC)及びフロリジルカラムクロマトグラフィーで順次精製し、ガスクロマトグラフィー質量分析法(GC/MS)で定量した。

5. 調査結果

各調査対象物質の検出状況を表-1 及び 2 に示した。
調査結果の概略を以下に示す。

表-1 家庭内食事調査における調査対象物質の検出状況

調査対象物質	検出限界値以上を検出した食事試料数/調査試料数									全ブロック	範囲 (µg/kg)	平均値* (µg/kg)
	北海道	東北	関東	中部	関西	中国	四国	北部九州	沖縄			
フタル酸ジ-2- エチルヘキシル	9/9 (100%)	7/9 (78%)	9/9 (100%)	8/9 (89%)	7/9 (78%)	6/9 (67%)	9/9 (100%)	6/9 (67%)	7/9 (78%)	68/81 (84%)	n. d. ~ 330	68
フタル酸ブチル ベンジル	0/9 (0%)	0/9 (0%)	1/9 (11%)	0/9 (0%)	0/9 (0%)	0/9 (0%)	0/9 (0%)	0/9 (0%)	0/9 (0%)	1/81 (1%)	n. d. ~ 17	17
フタル酸ジ-n- ブチル	0/9 (0%)	0/9 (0%)	2/9 (22%)	2/9 (22%)	3/9 (33%)	2/9 (22%)	0/9 (0%)	1/9 (11%)	2/9 (22%)	12/81 (15%)	n. d. ~ 68	33
フタル酸ジシク ロヘキシル	0/9 (0%)	0/9 (0%)	0/9 (0%)	0/9 (0%)	0/9 (0%)	0/9 (0%)	0/9 (0%)	0/9 (0%)	0/9 (0%)	0/81 (0%)	n. d.	—
フタル酸ジエチ ル	0/9 (0%)	0/9 (0%)	0/9 (0%)	0/9 (0%)	0/9 (0%)	0/9 (0%)	0/9 (0%)	0/9 (0%)	0/9 (0%)	0/81 (0%)	n. d.	—
フタル酸ジ-n- ペンチル	0/9 (0%)	0/9 (0%)	0/9 (0%)	0/9 (0%)	0/9 (0%)	0/9 (0%)	0/9 (0%)	0/9 (0%)	0/9 (0%)	0/81 (0%)	n. d.	—
フタル酸ジ-n- ヘキシル	0/9 (0%)	0/9 (0%)	0/9 (0%)	0/9 (0%)	0/9 (0%)	0/9 (0%)	0/9 (0%)	0/9 (0%)	0/9 (0%)	0/81 (0%)	n. d.	—
フタル酸ジプロ ピル	0/9 (0%)	0/9 (0%)	0/9 (0%)	0/9 (0%)	0/9 (0%)	0/9 (0%)	0/9 (0%)	0/9 (0%)	0/9 (0%)	0/81 (0%)	n. d.	—
アジピン酸ジ-2- エチルヘキシル	2/9 (22%)	5/9 (56%)	7/9 (78%)	2/9 (22%)	0/9 (0%)	0/9 (0%)	4/9 (44%)	0/9 (0%)	2/9 (22%)	22/81 (27%)	n. d. ~ 46	17
合計	11/81 (14%)	12/81 (15%)	19/81 (25%)	12/81 (15%)	10/81 (12%)	8/81 (10%)	13/81 (16%)	7/81 (9%)	11/81 (14%)	103/729 (14%)	n. d. ~ 330	52
範囲 (µg/kg)	n. d. ~ 57	n. d. ~ 330	n. d. ~ 160	n. d. ~ 180	n. d. ~ 100	n. d. ~ 120	n. d. ~ 120	n. d. ~ 48	n. d. ~ 280	n. d. ~ 330		
平均値* (µg/kg)	35	69	44	48	51	56	49	36	83	52		

* : 検出されたものの平均値を示した。

表-2 外食, インスタント食品, 人工乳等調査における調査対象物質の検出状況

調査対象物質	検出限界値以上を検出した食事試料数/調査試料数									合計	範囲 ($\mu\text{g}/\text{kg}$)	平均値* ($\mu\text{g}/\text{kg}$)
	ファーストフード*	和風ファースト フード*	ファミー レストラン	ステーキレストラン	すし店	その他の 食堂	デパート 食堂	インスタ ント 食品	人工乳 離乳食			
フタル酸ジ-2- エチルヘキシル	4/5 (80 %)	2/5 (40 %)	9/10 (90 %)	5/5 (100 %)	4/5 (80 %)	5/5 (100 %)	10/10 (100 %)	15/16 (94 %)	16/20 (80 %)	70/81 (86 %)	n. d. ~ 170	74
フタル酸ブチル ベンジル	0/5 (0 %)	0/5 (0 %)	0/10 (0 %)	0/5 (0 %)	0/5 (0 %)	1/5 (20 %)	0/10 (0 %)	0/16 (0 %)	0/20 (0 %)	1/81 (1 %)	n. d. ~ 30	30
フタル酸ジ-n- ブチル	3/5 (60 %)	0/5 (0 %)	0/10 (0 %)	0/5 (0 %)	0/5 (0 %)	1/5 (20 %)	0/10 (0 %)	5/16 (31 %)	1/20 (5 %)	10/81 (12 %)	n. d. ~ 170	53
フタル酸ジシク ロヘキシル	0/5 (0 %)	0/5 (0 %)	0/10 (0 %)	0/5 (0 %)	0/5 (0 %)	0/5 (0 %)	0/10 (0 %)	0/16 (0 %)	0/20 (0 %)	0/81 (0 %)	n. d.	-
フタル酸ジエチ ル	0/5 (0 %)	0/5 (0 %)	0/10 (0 %)	0/5 (0 %)	0/5 (0 %)	0/5 (0 %)	0/10 (0 %)	0/16 (0 %)	0/20 (0 %)	0/81 (0 %)	n. d.	-
フタル酸ジ-n- ペンチル	0/5 (0 %)	0/5 (0 %)	0/10 (0 %)	0/5 (0 %)	0/5 (0 %)	0/5 (0 %)	0/10 (0 %)	0/16 (0 %)	0/20 (0 %)	0/81 (0 %)	n. d.	-
フタル酸ジ-n- ヘキシル	0/5 (0 %)	0/5 (0 %)	0/10 (0 %)	0/5 (0 %)	0/5 (0 %)	0/5 (0 %)	0/10 (0 %)	0/16 (0 %)	0/20 (0 %)	0/81 (0 %)	n. d.	-
フタル酸ジプロ ピル	0/5 (0 %)	0/5 (0 %)	0/10 (0 %)	0/5 (0 %)	0/5 (0 %)	0/5 (0 %)	0/10 (0 %)	0/16 (0 %)	0/20 (0 %)	0/81 (0 %)	n. d.	-
アジピン酸ジ-2- エチルヘキシル	0/5 (0 %)	0/5 (0 %)	0/10 (0 %)	0/5 (0 %)	0/5 (0 %)	0/5 (0 %)	1/10 (10 %)	2/16 (13 %)	3/20 (15 %)	6/81 (7 %)	n. d. ~ 56	27
合計	7/45 (16 %)	2/45 (4 %)	9/90 (10 %)	5/45 (11 %)	4/45 (9 %)	7/45 (16 %)	11/90 (12 %)	22/144 (15 %)	20/180 (11 %)	87/729 (12 %)	n. d. ~ 170	67
範囲 ($\mu\text{g}/\text{kg}$)	n. d. ~ 100	n. d. ~ 54	n. d. ~ 170	n. d. ~ 170	n. d. ~ 160	n. d. ~ 130	n. d. ~ 130	n. d. ~ 170	n. d. ~ 140	n. d. ~ 170		
平均値* ($\mu\text{g}/\text{kg}$)	52	51	84	105	94	48	67	67	60	67		

* : 検出されたものの平均値を示した。

2.1. 家庭内食事調査（陰膳調査）

食事調査の結果、フタル酸ジ-2-エチルヘキシル (DEHP)、フタル酸ジ-n-ブチル (DBP)、フタル酸ブチルベンジル (BBP) 及びアジピン酸ジ-2-エチルヘキシル (DEHP) が検出された。フタル酸ジシクロヘキシル (DCP)、フタル酸ジエチル (DEP)、フタル酸ジ-n-ペンチル (DPeP)、フタル酸ジ-n-ヘキシル (DHP) 及びフタル酸ジプロピル (DPrP) は検出されなかった。

表-3 家庭内食事調査（陰膳調査）で検出した物質の概況

検出した物質	検出率:%	平均値:µg/kg	最大値:µg/kg
フタル酸ジ-2-エチルヘキシル (DEHP)	84%	63	330
アジピン酸ジ-2-エチルヘキシル (DEHA)	27%	17	46
フタル酸ジ-n-ブチル (DBP)	15%	33	68
フタル酸ブチルベンジル (BBP)	1%	—	17

2.2. 外食調査・インスタント食品調査

外食調査・インスタント食品調査の結果、フタル酸ジ-2-エチルヘキシル (DEHP)、フタル酸ジ-n-ブチル (DBP)、フタル酸ブチルベンジル (BBP) 及びアジピン酸ジ-2-エチルヘキシル (DEHA) が検出された。フタル酸ジシクロヘキシル、フタル酸ジエチル、フタル酸ジ-n-ペンチル、フタル酸ジ-n-ヘキシル及びフタル酸ジプロピルは検出されなかった。

表-4 外食・インスタント食品調査で検出した物質の概況

検出した物質	検出率:%	平均値:µg/kg	最大値:µg/kg
フタル酸ジ-2-エチルヘキシル (DEHP)	89%	74	170
フタル酸ジ-n-ブチル (DBP)	15%	56	170
アジピン酸ジ-2-エチルヘキシル (DEHA)	5%	17	47
2 フタル酸ブチルベンジル (BBP)	2%	—	30

2.3. 人工乳、離乳食調査

フタル酸ジ-2-エチルヘキシル、フタル酸ジ-n-ブチル及びアジピン酸ジ-2-エチルヘキシルが検出された。フタル酸ジシクロヘキシル (DCP)、フタル酸ブチルベンジル (DBB)、フタル酸ジエチル (DEP)、フタル酸ジ-n-ペンチル (DPeP)、フタル酸ジ-n-ヘキシル (DHP) 及びフタル酸ジプロピル (DPrP) は検出されなかった。

表-5 人工乳、離乳食調査で検出した物質の概況

検出した物質	検出率:%	平均値:µg/kg	最大値:µg/kg
フタル酸ジ-2-エチルヘキシル (DEHP)	80%	68	140
アジピン酸ジ-2-エチルヘキシル (DEHA)	15%	28	56
フタル酸ジ-n-ブチル (DBP)	5%	—	30

平成 13 年度 内分泌攪乱化学物質に関する室内空気調査 (フタル酸エステル類)

1. 調査目的

家屋の室内空気を対象とし、室内空気中のフタル酸エステル類の存在量の調査を行う。

2. 調査内容

2.1 調査地点

全国 7 ブロックで計 95 世帯を対象として実施した。測定箇所は 1 住戸あたり居間、寝室および外気の 3 箇所につき実施した。

2.2 調査期間

調査期間 (サンプリング実施期間) は、平成 13 年 8 月 8 日～平成 13 年 9 月 13 日までの約 1 ヶ月であった。

2.3 調査対象物質

調査対象物質は SPEED'98 においてリストアップされたフタル酸エステル類 8 種類およびアジピン酸エステル 1 種類とした。詳細は表 1 の通りである。

表 1. 調査対象物質

物質名
フタル酸ジエチル
フタル酸ジ-n-プロピル
フタル酸ジ-n-ブチル
フタル酸ジ-n-ペンチル
フタル酸ジヘキシル
フタル酸ブチルベンジル
フタル酸ジシクロヘキシル
フタル酸ジ (2-エチルヘキシル)
アジピン酸ジ (2-エチルヘキシル)

2.4 その他

調査手法等の技術的な課題は検討会*を設置して検討を進めた。

*池田 耕一、瀬戸 博、中澤 裕之、松村 年郎、柳沢 幸雄 (五十音順)

3. 調査家屋

調査実施世帯数および調査実施日を表 2-1 に示す。ほぼ計画どおりの配分となった。また、調査世帯の家屋種類および築年数を集計したものを表 2-2 に示す。計画に対し、戸建および新築の比率が高い結果となった。

表 2-1. 調査地域

地域ブロック	協力保健所		調査世帯数	世帯数比率 (%)	調査実施日
	都道府県	保健所			
北海道	北海道	根室	5	5	9/12,13
東北	福島県	郡山市	5	5	8/9,10,11
関東・甲信越	千葉県	松戸	5	31	8/16,17
	東京都	池袋	4		8/14,15
	東京都	狛江調布	1		8/20,21
	東京都	杉並	5		8/22,23
	東京都	新宿	5		9/3,4
	神奈川県	高津	5		9/12,13
	新潟県	新津	5		8/30,31
北陸・中部	富山県	高岡	5	16	8/28,29
	愛知県	春日井	5		9/10,11,12
	愛知県	豊田	5		8/29,30,31
近畿	兵庫県	西宮	5	21	8/27,28
	大阪府	茨木	5		8/22,23
	大阪府	四条畷	5		8/9,10 9/3,4
	兵庫県	姫路	5		9/6,7
中国・四国	広島県	県福祉保健部	5	11	8/22,23,24
	高知県	安芸	5		8/29,30,31
九州・沖縄	福岡県	大牟田	5	11	8/8,9,10
	沖縄県	那覇中央	5		9/4,5,6
調査総数	20	20	95	100	49日(延べ)

表 2-2. 調査世帯の家屋種類および築年数集計結果

築年数/種類	戸建住宅	集合住宅
築1年以内	11	8
2~5年	17	8
6~10年	11	0
10年超	32	5
計	71	21
不明		3

4. 試料の採取

4.1 採取場所

室内（居間および寝室）の2箇所において、原則として壁から少なくとも1m以上離れた高さ1.2~1.5mの位置に、サンプラーを三脚に取り付けて設置した。

外気は外壁および空調排気口から2~5m離れた室内の測定高さと同等の高さのところを基本とした。

4.2 試料採取の条件

日常生活における状態で24時間採取した。採取開始時刻は任意とした。1家屋にかかる設置時間は約1時間程度であった。1日目に順次5世帯の設置を行い、2日目に同様に回収する場合を基本とした。

4.3 記録事項

試料採取については、採取を行う技術者によって以下の項目を記録した。

- ①室内の温度・湿度（24時間の最高値・最低値）、②設置日・回収日、
- ③試料採取開始時刻・終了時刻、④採取量、⑤流量、⑥天候、⑦その他（特記事項）

4.4 測定・分析方法概要

4.1項に示す条件に従い、サンプラーを設置し、フィルターに表1の調査対象物質のサロゲートを添加して捕集した。

空気採取後のフィルターを超音波抽出後、濃縮し、ガスクロマトグラフ-質量分析計（GC/MS）により定量した。

5. 分析結果

表3に各調査世帯の分析結果の各成分の最大値および最小値を表に示した。

表3 各成分の検出量最大値および最小値（単位：ng/m³）

物質名	最大値		最小値	
	室内	室外	室内	室外
フタル酸ジエチル	4500	180	<15	<15
フタル酸ジ-n-プロピル	17	4.8	<1	<1
フタル酸ジ-n-ブチル	5700	1400	26	16
フタル酸ジ-n-ペンチル	160	19	<5	<5
フタル酸ジヘキシル	37	15	<1	<1
フタル酸ブチルベンジル	170	100	<1	<1
フタル酸ジシクロヘキシル	110	100	<1	<1
フタル酸ジ(2-エチルヘキシル)	3400	510	23	40
アジピン酸ジ(2-エチルヘキシル)	270	25	<1	<1

以上