研究成果報告書

(国立情報学研究所の民間助成研究成果概要データベース・登録原稿)

研究テーマ (和文) AB		有機リン酸エステル系難燃剤による母乳汚染と乳児のリスク評価							
研究テーマ (欧文) AZ		Organophosphate flame retardants in human breast milk: Levels, patterns, and risk assessment for infants							
研究代表名	ከ ሃ ከታ cc	姓)クニスエ	名)タツヤ	研究期間 в	2014 ~ 2015 年				
	漢字 CB	国末	達也	報告年度 YR	2016 年				
	□-7 字 cz	Kunisue	Tatsuya	研究機関名	愛媛大学				
研究代表者 cp 所属機関・職名		愛媛大学 沿岸環境科学研究センター・教授							

概要 EA (600 字~800 字程度にまとめてください。)

リン酸エステル系難燃剤 (PFRs) は、樹脂製品や繊維製品に防燃性を付与する目的で添加される化学物質であり、世界で年間 30 万トンが生産されている。2009 年にポリ臭素化ジフェニルエーテル (PBDEs) 製剤の一部が、2013 年にヘキサブロモシクロドデカン (HBCDs) が、残留性有機汚染物質 (POPs) に関するストックホルム条約登録物質に指定されるなど、臭素系難燃剤 (BFRs) の生産・使用の規制が進行している。これらの規制に伴い、BFRs の代替物質としてPFRs の使用量が近年増加しており、環境影響や曝露リスクが危惧されている。しかしながら、PFRs によるヒト曝露の実態はほとんど理解されておらず、わが国におけるヒト母乳汚染の調査研究例は存在しない。そこで本研究では、2009~2014 年に採集したヒト母乳を対象に PFRs および BFRs を分析し、日本人の曝露実態を解明するとともに乳児のリスク評価を試みた。また、愛媛大学の生物環境試料バンク(es-BANK)に保存されていた 1999 年の母乳試料を分析し、これら難燃剤による汚染レベルの変動を解析した。

2009~2014 年に採集した母乳試料すべてから PFRs と BFRs が検出され、その濃度順位は PFRs (中央値: 19.1 ng/g lipid wt) ≒ HBCDs (19 ng/g lipid wt) > PBDEs (2.2 ng/g lipid wt)であったことから、PFRs による近年の曝露が示唆された。PFRs の化合物組成に着目すると、TBOEP (Tris-[2-butoxyethyl] phosphate)が最も高い割合で検出された。このことから、相対的に脂溶性が高い TBOEP (Log KOW 4.38)は近年の曝露があり、母乳へ移行したものと推察された。

1999 年に採集した母乳中 PFRs および BFRs 濃度と比較したところ、統計的な有意差は認められないが、PFRs と HBCDs 濃度は 2009-2014 年に採集した母乳中レベルは高い傾向を示した。一方、ポリ塩化ビフェニル (PCBs) 濃度は 1999 年に比べ 2009~2014 年の母乳で有意に低値であった。これらの結果は、2013 年に POPs 条約の登録物質に指定された HBCDs や規制対象外である PFRs のヒト曝露量が 1999 年以降増加したことを暗示している。とくに PFR 化合物の中で、TBOEP 濃度は 1999 年に比べ 2009~2014 年の母乳で有意に高値を示しており、組成割合も高かったことを考慮すると、近年の曝露が強く示唆された。TBOEP は主に木造建築の床研磨剤に添加されており、室内ダスト等を介したヒトへの曝露量が増大している可能性がある。

2009~2014 年の母乳から検出された PFRs と BFRs 濃度を用いて乳児の一日取込量を見積もったところ、PBDEs と HBCDs は WHO が定めた参照用量(Reference Dose: RfD)より低値を示した。しかしながら、PFR 化合物の中で TBOEP は一検体の母乳で RfD に匹敵する値が認められ、乳児の健康影響に関するさらなる調査が必要と考えられた。

キーワード FA	難燃剤	母乳	乳児	リスク

(以下は記入しないでください。)

助成財団コード тд				研究課題番号 🗚					
研究機関番号 AC				シート番号					

多	発表文献(この研究を発表した雑誌・図書について記入してください。)									
雑誌	論文標題GB									
	著者名 GA		雑誌名 gc							
	ページ GF	~	発行年 GE					巻号 GD		
雑	論文標題GB									
誌	著者名 GA		雑誌名 GC							
	ページ GF	~	発行年 GE					巻号 GD		
雑誌	論文標題GB									
	著者名 GA		雑誌名 GC							
	ページ GF	~	発行年 GE					巻号 GD		
図	著者名 на									
書	書名 HC									
	出版者 нв		発行年 HD					総ページ HE		
図書	著者名 HA									
	書名 HC									
	出版者 HB		発行年 HD					総ページ HE		

欧文概要 EZ

Organophosphate flame retardants (PFRs) are added to a wide range of consumer products, to prevent combustion and to delay the spread of fire after ignition. Recently, brominated flame retardants (BFRs) such as poly- (tetra-, penta-, hexa-, hepta-) brominated diphenyl ethers (PBDEs) and hexabromocyclododecanes (HBCDs) have been included in the list of restricted chemicals on the Stockholm Convention on persistent organic pollutants, and hence the usage of PFRs has been increasing, implying their indoor environmental contamination and exposure risk for humans. However, little information on human exposure to HBCDs and DecaBDE (BDE-209) that is still in use, and no data on PFRs are available in Japan. In this study, we attempted to elucidate the contamination status of PFRs, PBDEs, and HBCDs in human breast milk collected from Japanese mothers during 2009-2014. Furthermore, to evaluate the temporal variations in levels and profiles of these flame retardants, we analyzed Japanese breast milk samples archived in the Environmental Specimen Bank (es-BANK) at Ehime University, which were collected in 1999. PFRs and BFRs were detected in all the breast milk samples collected during 2009-2014 and the concentrations were in the order of PFRs ≈ HBCDs > PBDEs. Interestingly, the median concentrations of PFRs and HBCDs were higher than those of PCBs detected in the same sample set. As for the composition of eleven PFR compounds targeted in this study, tris-[2-butoxyethyl] phosphate (TBOEP) with relatively high lipophilicity (log Kow 4.38) showed the highest proportion, suggesting recent human exposure to TBOEP and transfer of this PFR to breast milk. When compared with data of BFRs and PFRs observed in the breast milk samples collected in 1999 (1999-samples), the median concentrations of HBCDs and PFRs were higher in those collected during 2009-2014 (2009-2014 samples). On the other hand, concentrations of PBDEs and PCBs in 2009-2014 samples were comparable to and lower than those in 1999-samples, respectively. These results imply that exposure levels of HBCDs and PFRs for Japanese people have been increasing since 1999. Especially, among the PFR compounds, TBOEP showed significantly higher concentrations in 2009-2014 samples compared to 1999-samples, strongly supporting recent human exposure to this PFR.