日本リスク研究学会第 26 回年次大会
講演論文集 (Vol.26, Nov.15-17, 2013)

副生 PCB を含有する有機顔料を使用した製品の健康リスク評価

Risk Assessment of human health about the products of organic pigments including PCB as a byproduct

片桐 律子, 石井 聡子, 吉川 治彦, 北村 公義, 片岡 敏行

Ritsuko KATAGIRI, Satoko ISHII, Haruhiko KIKKAWA,
Kimiyoshi KITAMURA, Toshiyuki KATAOKA

一般財団法人化学物質評価研究機構
（Chemicals Evaluation and Research Institute, Japan）

日本リスク研究学会第 26 回年次大会
講演論文集(Vol.26, Nov.15-17, 2013)

副生 PCB を含有する有機顔料を使用した製品の健康リスク評価

Risk Assessment of human health about the products of organic pigments including PCB as a byproduct

○片桐 律子*，石井 聡子*，吉川 治彦*，北村 公義*，片岡 敏行*
Ritsuko KATAGIRI, Satoko ISHII, Haruhiko KIKKAWA, Kimiyoshi KITAMURA, Toshiyuki KATAOKA

Abstract. A risk assessment of PCBs unintentionally formed in organic pigments was conducted. The products for the evaluation were printed textiles (T-shirts) and crayons. We made the assessment through the dermal route. The PCB detected in the organic pigments as a byproduct was assumed as 3,3-dichlorobiphenyl. We analysed the exposure assessment in a manner of data distribution (ex. PCB concentrations in the pigments). As a result of comparison of exposures estimated with the tolerable daily intake (TDI), there was no concern of health effect when the highest concentration of PCB in the pigments was adopted for the assessment.

Key Words: exposure assessment, PCB, pigment, byproduct

１．はじめに

ポリ塩化ビフェニル（PCB）は、化学物質の審査及び製造等の規制に関する法律（化審法）における第 1 種特定化学物質に指定され、製造及び輸入が禁止されている。

2012 年、国は有機顔料中に非意図的に副生した PCB が微量含有するという報告を受け、PCB を副生する可能性のある有機顔料を製造又は輸入している事業者に対し、有機顔料中の PCB の有無等について分析し、国へ報告するよう要請するとともに、副生 PCB を含有する有機顔料が使用された製品を使用した場合の健康影響について、リスク評価を実施した。

本発表では国が実施したリスク評価において著者らが関与した副生 PCB を含有する有機顔料が使用された製品のヒト健康リスク評価のうち、顔料含有率の高い製品、或いは乳幼児へのばく露が想定される製品を対象とした、経皮ばく露によるリスク評価について報告する。ばく露に関する情報収集にあたっては、有機顔料中 PCB 濃度の実測値や人の体重などの分布データを採用し、分布データを採用した場合の結果の解釈や課題などを明確にすることを目的として、モンテカルロ法を用いたリスク評価を行った。また、リスク評価に用いる評価対象物質の有害性情報に関しても、考察をおこなった。

２．試料及び方法

2.1 評価対象物質

本評価では、顔料中に副生する PCB のうち、顔料製品から最高濃度で検出された 3,3-ジクロロビフェニル（以下、PCB 11）を対象とした。PCB11 の構造を図 1 に示す。

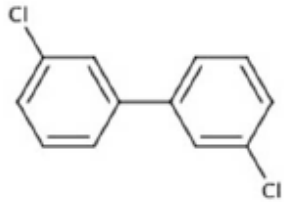

図 1　3,3-Dichlorobiphenyl　(PCB 11) の構造

2.2　評価対象とするばく露シナリオ

本評価で対象とする製品は、製品中顔料割合が大きく、接触時間が長いことが予想される顔料が捺染された衣類（以下、プリントＴシャツ）及び乳幼児へのばく露が想定される製品で、同じく製品中顔料割合が大きいクレヨンとし、ばく露シナリオは各製品を着用または使用時の経皮ばく露とした。

表 1　評価対象とするばく露シナリオ

シナリオ名	ばく露シナリオ
シナリオ①	顔料が捺染された衣類（プリント T シャツ）を着用することにより、PCB に経皮ばく露される。
シナリオ②	乳幼児がクレヨンを手で握ることにより、PCB に経皮ばく露される。

2.3　経皮ばく露量の算出方法

表 2 に示した暴露シナリオについて、以下の式を用いて皮膚を介する経皮ばく露量（D_{der}，μg/kg/日）の算出を行った。算出式は、EUSES (Europen Union System for the Evaluation of Substances), ConsExpo，消費者製品の推定ヒト暴露量推算ソフト（NITE）等で採用されている推定式に準じた。

$$D_{der} = \frac{W_{art} \times AREA_{der} \times Fc_{migr} \times T_{contact} \times n}{BW}$$

W_{art}：　製品単位面積当りの PCB 量 (μg/m^2)
$AREA_{der}$：　製品と皮膚との接触面積 (m^2)
Fc_{migr}：　製品中 PCB の皮膚への移行比
$T_{contact}$：　事象当たりの接触時間 (/日)
n：　事象回数 (/日)
BW：　体重 (kg)

2.4　有機顔料中の PCB 濃度

有機顔料中の PCB 濃度は、国が実施した“有機顔料中に副生する PCB の有無に関する実態調査結果（厚生労働省、経済産業省、環境省，2012）”に基づき、以下の通り、PCB 濃度データと同様の分布データと、PCB 濃度の最大値を用いた。

分布データ：　1.67±8.43 ppm、
　　最大値 280 ppm、対数正規分布
最大値　：　これまで確認された PCB 濃度の最大値 (2,000 ppm)

2.5　PCB の暫定一日許容摂取量

リスク評価に用いる有害性評価値は PCB の暫定一日許容摂取量の 5.0 μg/kg/日（厚生省通知, 昭和 47 年環食第 442 号）とした。

３．結果

3.1　経皮ばく露量の算出に用いた変数等

プリントＴシャツの着用による経皮暴露量の推定に用いた変数等を表 2 に、乳幼児がクレヨンを握ることによる経皮暴露量の推定に用いた変数等を表 3 に示す。

表 2　プリント T シャツの着用による経皮ばく露量の算出に用いた変数等（シナリオ①）

変数等	分布データ	最大値	採用値、計算方法等
顔料中 PCB 濃度（*PCB*）	1.67±8.43μg/g、Min=0.01, Max=280; 対数正規分布	2,000 μg/g	1.67：　実態調査分布データ 2,000 ：これまでの最大報告値
捺染部分顔料量（*PainD*）	7 g/m^2		T シャツ部分の単位面積あたりの重さ×プリント部分の顔料比
捺染部分の PCB 量	平均	14,000 μg/m^2	*PainD*×*PCB*

変数等	分布データ	最大値	採用値、計算方法等
（W_{art}）	11.69 μg/m^2 の分布データ		
皮膚との接触面積（$AREA_{der}$）	0.304 m^2		Ｔシャツ販売 HP 情報より T シャツ捺染部分面積は 0.304 m^2/枚
皮膚への移行比（FC_{migr}）	2.08×10^{-4}	2.08×10^{-4}	AMEM*1 による推定値
事象当たりの接触時間（$T_{contact}$）	1 日		1 日中、ワーストケース
事象回数（n）	1 回 /日		仮定
体重（BW）	55.6 kg±15.42 kg、Min=3, Max=200 kg; 正規分布		複数の統計情報を基に算出した分布データ

＊1：ADL Polymer Migration Estimation Model. 米国 EPA で開発された、高分子材料中の添加剤の移行率に関する推定モデル。一般的な一重または二重境膜的な拡散式を解くモデルであり、平板な樹脂形状における境膜と境界条件の設定により異なる解析解が選択される。

表 3　乳幼児がクレヨンを手で握ることによる経皮ばく露量の算出に用いた変数等（シナリオ②）

変数等	分布データ	最大値	採用値、計算方法等
顔料中 PCB 濃度（PCB）	1.67±8.43μg/g、Min=0.01, Max=280; 対数正規分布	2,000 μg/g	1.67： 実態調査分布データ 2,000 ：これまでの最大報告値
経皮ばく露に関する厚さ（$ResS$）	0.00225 m		表面から 0.225cm と仮定 (体積/側面積)
クレヨン密度（$ResD$）	1,310,582 g/m^3		直径 0.9 cm、長さ 6 cm で 5 g（円柱部分測定値）と仮定 $(5/(0.45\times0.45\times\pi\times6))\times100^3$
クレヨン中の顔料比（$RPig$）	0.05-0.31		0.05-0.31（日本中毒情報センター）一様分布
クレヨン中 PCB 量（W_{art}）	平均 1,527 μg/m^2 の分布データ	1,828,262 μg/m^2	$ResS\times ResD\times RPig\times PCB$ (m)・(g/m^3)・(μg/g)
皮膚との接触面積（$AREA_{der}$）	0.001696 m^2		直径 0.9 cm、長さ 6 cm のクレヨン側面から吸収されると仮定 $(0.9\times\pi\times6/100^2)$
皮膚への移行比（FC_{migr}）	1.48×10^{-3}	2.98×10^{-4}	AMEM による推定値
事象当たりの接触時間（$T_{contact}$）	0.083 /日		保育園園児に対する調査、遊び時間のアンケート最も長い結果 2 時間/日（郷間ら、2010）をワーストケースとして仮定(2h/24h 日)
事象回数（n）	1 /日		仮定
体重（BW）	8.24 kg±0.27 kg, 8.24 Min=3, Max=12, 正規分布		H22 厚生労働省乳幼児調査結果から算出した分布データ

3.2　経皮ばく露量

各ばく露シナリオにおける経皮ばく露量を表 4 に示す。各シナリオにおける経皮ばく露量の 95 パーセンタイルは 5.50×10^{-5}～2.92×10^{-2} μg/kg/日の範囲であった。

表 4　各シナリオの経皮ばく露量

ばく露シナリオ名	経皮暴露量の予測値 (μg/kg/日)					
	95 パーセンタイル	ベースケース	平均	中央	標準偏差	最大
シナリオ①分布データ	5.50×10^{-5}	1.33×10^{-5}	1.44×10^{-5}	2.76×10^{-6}	6.73×10^{-5}	1.09×10^{-2}
シナリオ①最大値	2.92×10^{-2}	1.59×10^{-2}	1.76×10^{-2}	1.59×10^{-2}	7.98×10^{-3}	2.90×10^{-1}
シナリオ②分布データ	8.57×10^{-5}	3.87×10^{-5}	2.18×10^{-5}	4.01×10^{-6}	8.32×10^{-5}	3.75×10^{-3}
シナリオ②最大値	8.97×10^{-3}	9.34×10^{-3}	5.43×10^{-3}	5.43×10^{-3}	2.27×10^{-3}	1.06×10^{-2}

＊試行回数：1.00×10^{5}

3.3 有害性評価

リスク評価に用いる PCB の許容摂取量としては、前述のとおり、暫定一日摂取許容量である 5.0 μg/kg/日を採用した。

3.4 リスク評価

対象製品のリスク判定結果を表 5 に示す。いずれのばく露シナリオから推定した経皮ばく露量についても、暫定一日許容摂取量との比は 1 を大幅に下回っており、健康影響の懸念は無いという結果となった。

表 5　対象製品のリスク評価

暴露シナリオ	経皮ばく露量(μg/kg/日)	暫定一日許容摂取量(μg/kg/日)	経皮ばく露量/暫定一日許容摂取量
シナリオ①分布データ	5.50×10^{-5}	5.0	1.10×10^{-5}
シナリオ①最大値	2.92×10^{-2}	5.0	5.84×10^{-3}
シナリオ②分布データ	8.57×10^{-5}	5.0	1.71×10^{-5}
シナリオ②最大値	8.97×10^{-3}	5.0	1.79×10^{-3}

４．考察

4.1　分布データを使用した評価について

副生 PCB を含有する有機顔料が使用された製品の経皮ばく露のヒト健康リスク評価を行った。対象とする製品は、製品中顔料割合が大きい或いは乳幼児へのばく露が想定される等の理由から、プリント T シャツ及びクレヨンとし、ばく露シナリオは各製品を着用または使用時の経皮ばく露とした。ばく露評価は、有機顔料中 PCB 濃度や人の体重などの分布データを採用したモンテカルロ法と代表値を用いた方法で行い、リスク評価を行った結果、いずれのばく露シナリオと方法に基づくリスク評価においても健康影響の懸念なしという結果となった。

具体的にはシナリオ①（分布データ）の場合、分布データを代表値（T シャツのプリント部分の PCB 量（平均）: 11.69 μg/m^2、体重（平均）:55.6 kg）に置き換え、推定暴露量を算出すると、1.33×10^{-5} μg/kg/日となった（表 6）。

表 6　シナリオ①分布データの推定ばく露量

	統計量	予測値
分布データ(試行回数：1.00×10^{5})	試行回数	1.00×10^{5}
	ベースケース	1.33×10^{-5}
	平均	1.44×10^{-5}
	中央	2.76×10^{-6}
	標準偏差	6.73×10^{-5}
	最大	1.09×10^{-2}
	95 パーセンタイル値	5.50×10^{-5}
代表値（捺染部分の PCB 量、体重）に置き換えた場合の算出結果		1.33×10^{-5}

一方、分布データを採用した場合には、推定ばく露量に関して、最大値、平均値、中央値、標準偏差、95 パーセンタイル値などの多くの情報が得られ、結果が存在する範囲や割合などが具体的に想定される。リスク判定結果においても、安全側に存在する値に関して、「95 パーセンタイル値に対して、リスク評価値は 0.0001 未満である」というような結果となる。実際には、もっと推定ばく露量の低い部分に多くの消費者が分布することが示唆され、より現実的な予測結果が得られると考えられる。

しかしながら、分布データを採用する場合には、注意すべき点もある。

まず、分布の範囲を明確にする必要がある。例えば、本評価で用いた日本人の体重データであれば、3 kg から 200 kg という範囲のデータである。この値は具体的には、乳幼児程度の体重から非常に大きな大人までを想定している。範囲を明確にしない場合、分布は果てしなく小さい、或いは果てしなく大きい値まで存在することになり、現実とはかけ離れた推定結果となる恐れがある。例えば先の体重の例では、0.1 kg から 500 kg というような範囲は、現実的な分布を示していない。

また、分布の種類を明確にすることも重要である。最小値と最大値で範囲を明確にした場合でも、対数正規分布なのか、一様分布なのかで、推定の結果は異なる。

4.2　PCB の有害性について

本評価では、PCB の有害性情報として、カネクロール等の有害性に基づく PCB の暫定一日摂取許容量 (5 μg/kg/日) を採用した。PCB には多くの同属体や異性体が存在するため、その有害性の強度や種類も様々であることが予想されるが、PCB の個々の同属体や異性体に関する有害性情報の多くは調査されていないのが現状である。

より現実的な評価を行うためには、PCB 11 等の顔料に特有の同属体や異性体に関する有害性情報を収集し、それをリスク評価に用いることが望ましい。

4.3　製品中化学物質の経皮経路のばく露

製品中化学物質に関する経皮経路のばく露に関しては、未だ定量的な評価が行われた例は多くはない。皮膚からの吸収を考えた場合、製品からの発生する割合（速度、量）は製品の状態（製品の素材、配合、形状など）により様々であり、また皮膚へ到達した物質の皮膚吸収率も考慮しなければならず、多くの情報を必要とすることがその原因のひとつと考えられる。本評価においては、US.EPA の開発した AMEM という推算ソフトを利用したが、今後も様々な製品に関して、溶出試験などの実測によるばく露情報の取得を含め、経皮経路の定量的なばく露評価のための検討が必要である。

5.　要約

有機顔料中に副生する PCB について、リスク評価を行った。対象製品は捺染繊維（プリント T シャツ）及びクレヨンとし、経皮経路のばく露について検討した。副生する PCB として有機顔料中に検出されたのは、3,3-ジクロロビフェニルであった。ばく露評価では、顔料中の PCB 濃度等のばく露に関する情報について、分布データを使用した。推定ばく露量と TDI との比較により、顔料中に検出された最高濃度を用いて評価を行った場合でも、対象製品を使用することによる消費者への健康影響の懸念は無いという結果となった。

謝辞

本研究は、平成 24 年度経済産業省環境対応技術開発等（有機顔料中に副生するポリ塩化ビフェニルに関する安全性調査）の成果の一部である。本研究成果を発表することにご承諾頂いた経済産業省に感謝の意を表します。

参考文献

経済産業省(2013)　有機顔料中に副生する PCB への対応について
[http://www.meti.go.jp/committee/kenkyukai/safety_security/yuuki_pcb/pdf/003_01_00.pdf]

郷間英世, 宮地友美, 鈴木万喜子, 立田瑞穂, 中市悠, 郷間安美子 (2012) 保育園に通う幼児の生活習慣の検討, 京都教育大学紀要, No.120, 29
[http://ir.kyokyo-u.ac.jp/dspace/bitstream/123456789/7628/1/S007v120p29-36_gohma.pdf.pdf]

厚生労働省 (2012) 平成 22 年乳幼児身体発育調査の概況について

厚生労働省、経済産業省、環境省（2012）第一次調査/ News Release 2012 年 5 月 28 日と第二次調査/ News Release 2012 年 8 月 30 日 : 厚生労働省、経済産業省、環境省