

## 食品健康影響評価に関する補足資料

### (1) 原材料のソースとソースコントロールについて

以下の原材料の回収の実態に関する資料

回収時の原材料の分別基準とその達成度

受け入れ時のリサイクル業者の原材料受け入れ基準、マニュアル

回収PETとそれ以外の割合

### (3) 代理汚染物質除去試験について、FDAが現在のように化学的分解法についてソースコントロールを緩めるようになった過去の科学的データ

#### (1) について

国内では「容器包装に係る分別収集及び再商品化の促進等に関する法律（容器包装リサイクル法）」でPETボトルの回収についての仕組みができております。ここで、消費者は分別排出する、市町村は分別収集する、事業者は自ら或いは委託して再商品化するという役割分担がなされております。

分別基準については、平成7年厚生省令第61号、12年10月20日改正「容器包装廃棄物の分別収集に関する省令」で定められております。リサイクルされる分別基準適合物は、飲料またはしょう油を充てんするためのポリエチレンテレフタレート製容器であることがこの省令に定められております。分別収集は市町村が責任を持って主体的に行っております。

同省令の中ではさらに次の分別基準が定められております。

- ・ 原材料として主として他の素材を利用した容器包装が混入していないこと
- ・ 容器包装以外のものが付着し、混入していないこと
- ・ 洗浄されていること
- ・ ポリエチレンテレフタレート製以外の主としてプラスチック製の容器包装が混入していないこと
- ・ ポリエチレンテレフタレート製のふた以外のふたが除去されていること

容器包装リサイクル法で収集された回収PETの品質基準は容器包装リサイクル協会によって品質ランクとして定められており、外観汚れの程度や異物の入ったボトル、中身が残っているPETボトルなど19項目についての基準が示されております（添付資料1）。検査は最低年1回行なわれ、達成度によって品質がA、B、Dの3つのランクに分けられております。最も品質の良い品質ランクAのものの割合は年々増加し、平成14年度には施設件数構成比で80.2%となっております（添付資料2）。

### ( 1 ) について

帝人グループのプロセスで使用する主な原料としては飲料またはしょうゆを充填するためのポリエチレンテレフタレート製容器としており、上記の通り分別収集されたものを受け入れます（なお将来、社会的要請があれば、事業系回収品についても、上記容器包装リサイクル協会の基準で分別収集された飲料またはしょうゆを充填するためのボトルについては使用することを想定しております）。受け入れた回収PETボトルは、目視検査を実施し比較的大きな異物を取り除いて使用します。

### ( 1 ) について

分別収集されたもの以外に、原料としては最終的に食品用途に使用されるPETを作る過程で発生する規格外品（分子量が所定の自社規格に合致しないもの等）が最大1%程度ありますが、これは化学物質で汚染されることのないよう、工程内で管理されたものです（決められた袋に入れて保管し、計画に従って使用しております）。

### ( 3 ) について

一方、分別収集されたボトルの中に消費者の誤用等で農薬等が付着したボトルが混入した場合等の考え方や評価方法などについては、FDA（米国食品医薬品局）が発表しているガイダンスに詳しく述べられております。

米国で化学分解法による再生プラスチックが初めて許可された1991年から1997年の間は、FDAの再生プラスチックの確認を得るためには、従来個別に再生工程の説明書（ソースコントロールについての説明書を含む）再生工程が汚染物質を除去しうることを示すために実施された代理汚染物質除去試験の結果そのプラスチックの使用条件に関する説明書を説明し、申請する必要がありました。

代理汚染物質除去試験とは、使用済みボトルに農薬やガソリン等が付着して回収される場合等、再生プラスチックに含まれる可能性のある化学物質は数万種類も存在し、それらをすべて確認することが不可能といわれる中で、化学物質の性質を分類して各々のカテゴリーから代表的な物質を『代理汚染物質』として選択、その数種類を組み合わせたもので原料を故意に汚染させたあと、再生工程で処理して、その除去性を調べる方法として開発された試験をいいます。FDAはこれを再生プラスチックの安全性確認のためのガイダンスとしてきました。

それによると代理汚染物質は、消費者にとっても一般的な材料であるべきであり、揮発性で無極性の有機物 揮発性で極性のある有機物 不揮発性で無極性の有機物 不揮発性で極性のある有機物 を含むものとなります。

たとえば揮発性無極性物質は誤混入のガソリン、シンナー等が代表的化学物質として例示でき、また揮発性極性物質ではしょうゆなどに含有される水やアルコール類、不揮発性無極性物質はワニス等の接着剤等が、不揮発性極性物質は誤混入の農薬（ダ

イアジノン、マラソン等)の物質が例示できます。FDAは、これらの化学物質全てについての除去性を確認する代わりに、同一の化学的性質を有する代理汚染物質で代用させようという考え方をとっております。この考え方は米国のみならず欧州でも採用されている考え方です。

安全性の判断基準についてはFDAは代理汚染物質の残存量が閾値 0.5ppb 以下ならリスクを無視できるとしております。

この制度の申請により化学分解法で初めて認可されたのは、1991年1月、Hoechst Celanese 社のPETをメタノールで分解してDMT (ジメチルテレフタレート)を製造するプロセスでした。同社は代理汚染物質として4種類の化学物質を選択して代理汚染物質除去試験を実施し、DMT中の代理汚染物質濃度を報告してNOL (Non Objection Letter) を得ております。

続いて同じく1991年に Eastman Chemical 社がメタノール分解法で認可を受けています。代理汚染物質としてダイアジノン、リンダンなど5種類の代理汚染物質を用いて除去試験を実施して報告しております。

3件目は同じく1991年に Goodyear 社がグリコール分解法でNOLを得ました。ここでは代理汚染物質としてダイアジノン、リンダンなど4種類を選択して試験を実施して報告しております。

4件目は1992年に DuPont 社がメタノール分解法で申請、代理汚染物質として塩化メチレン、リンダンなど4種類を選択して除去試験を実施して報告しNOLを得ました。

5件目は1995年に Hoechst Celanese 社が今度はグリコール分解法でNOLを得ました。クロロホルム、ベンゾフェノンなど4種類の代理汚染物質を用いて試験を実施して報告しております。

6件目は1996年に Wellman 社がグリコール分解法でNOLを得ております。クロロホルム、トルエンなど5種類の代理汚染物質を用いて試験を実施して報告しております。

7件目は Innovations in PET 社が1996年にグリコール分解法でNOLを得ております。リンダン、クロロホルムなど5種類の代理汚染物質を用いて試験を実施して報告しております。

8件目は1996年に Eastman Chemical 社がPETではなくPEN (ポリエチレンナフタレート)樹脂のメタノール分解法でNOLを得ております。ダイアジノン、リンダンなど5種類の代理汚染物質を用いて試験を実施して報告しております。

9件目は1997年に同じく Eastman Chemical 社がPETのグリコール分解法でNOLを得ております。ダイアジノン、リンダンなど4種類の代理汚染物質を用いて試験を実施して報告しております。

(詳細は以下の表の通り)

F D Aはこれら 9 件（メタノール分解法 4 件、グリコール分解法 5 件）の代理汚染物質除去試験の結果から、P E TあるいはP E Nの化学分解法リサイクル（F D Aでは、これをマテリアルリサイクルと区別して tertiary process と呼んでいます）においては食品接触用途に適した純度の最終ポリマーを作ることができる結論付けました。

申請代理人であるケラー & ヘックマン法律事務所の問い合わせに対し、F D Aが 2 0 0 1 年 7 月 1 6 日付けで回答した書簡の中で、F D Aはこの結論にいたった根拠として上記 9 件の代理汚染物質除去試験結果を示し、F D Aが化学分解法については承認を求める必要がなく、ソースコントロールも含めて申請が不要であると判断しております（第 1 回器具・容器包装専門調査会資料 5 添付資料 4 - 7）。

【 P E T , P E N からメタノール分解法で製造されたモノマー中の代理汚染物質濃度】

会社名、N O L の年次	代理汚染物質	出発時濃度 mg/kg PET	最終濃度 μg/kg DMT	最終濃度 μg/kg EG
Hoechst Celanese 1991 2L の消費済み PET ボトルを DMT に再生する プ ㊦		PET フレーク中		
	Chlordane	2 8 3	< 5 0 0	N / A
	Gasoline	-	< 1 0 0 0	N / A
	Copper acetoarsenite (Cu)	1 0 3 . 5	< 5 0 0	N / A
	" (As)	5 8	< 2 5	N / A
Eastman Chemical 1991 消費済み PET を EG と DMT に再生する プ ㊦		反応釜へ投入		
	Chloroform	1 0 0	< 1 0 0	< 1 0 0
	Toluene	1 0 0	< 1 0 0	1 2 3
	Diazinone	1 0 0	< 1 0 0	< 1 0 0
	Lindane	1 0 0	< 1 0 0	< 1 0 0
	Cadmium acetate (Cd)	1 0 0	< 1 0 0	< 1 0 0
DuPont 1992 消費済み PET を EG と DMT に再生する プ ㊦		PET フレーク中		
	Methylene Chloride	1 0 4 7	< 1 0 0	< 1 0 0
	Toluene	7 7 3	< 1 0 0	< 1 0 0
	Lindane	9 6 9	< 1 0 0	< 1 0 0
	Copper acetoarsenite (As)	1 1 8	< 1 0 0	< 1 0 0
Eastman Chemical 1996 消費済み PEN を多段メ ノール分解で DMN と EG に		PEN ペレット中*	最終 DMN 中	
	Chloroform	1 4 3	< 1 6	¥
	Toluene	1 0 4	< 1 4	¥
	Diazinone	1 1 9	< 1 8	¥

再生するPET	Lindane	101	< 20	¥
	Cadmium acetate (Cd)	130	< 10	¥

\* 別に 100mg/kg の各代理汚染物質を反応釜に投入している

¥ ガスクロマトグラフにおいて最終のEGが少なくとも市販のEGと同じ純度であることを示した。

【グリコール分解法で製造した再生PET中の代理汚染物質】

会社名、NOLの年次	代理汚染物質	出発時濃度 mg/kg PET	最終濃度 µg/kg PET	最終濃度 µg/kg 食品 (*)
Goodyear 1991 使用済みPETをグリコール分解でリコマーに再生するPET		反応釜へ投入		
	Chloroform	200	< 50	
	Toluene	200	< 100	
	Diazinone	100	< 10	
Hoechst Celanese 1995 使用済み及び産業廃棄PETをリコマーに再生するPET		PETフレーク中		
	Chloroform	1000	< 50	
	Toluene	1000	248	
	Benzophenone	1000	< 200	
Wellman 1996 消費済みPET(テポジットシステムで回収されたソーダ、ジュース、その他食品用容器)をリコマーに再生		反応釜へ投入		
	Chloroform	1000	< 215	
	Toluene	1000	< 215	
	Benzophenone	1000	< 215	
	Phenyldecane	1000	< 215	
Innovations in PET 1996 消費済みPETを多段階グリコール分解PETで再生する		反応釜へ投入		
	Chloroform	1000	< 100	
	Toluene	1000	< 100	
	Diazinone	1000	< 100	
	Lindane	1000	50	
Eastman Chemical 1997		反応釜へ投入		
	Chloroform	1000	< 25	

消費済みPETをグリコール分解で再生する	Toluene	1 0 0 0	< 5 0	
	Diazinone	1 0 0 0	< 2 0	
	Lindane	1 0 0 0	6 9	

\* ) 1 in<sup>2</sup>のポリマーが10gの食品に接触していると仮定している。

帝人グループが、今回開発した化学分解法の特徴は次の通りです。洗浄工程や精製工程が完備され、かつ高温で高圧、或いは高温で高真空下での反応工程を経ておりますので、異物や汚染物質等がもし原料ソースに混入しても除去できるプロセスと考えております。

工 程	特 徴
前処理工程	回収ボトルを粉碎後、風力分離、比重分離（同時に水洗浄）を実施。ラベル、キャップ等の異種ポリマーや金属異物、その他夾雑物を分離除去。
DMT工程	解重合反応でPETをBHETに変換：約200、常圧、数時間 エステル交換反応でBHETをDMTに変換：100未満、数時間 DMTを再結晶と減圧蒸留で精製（純度99.99%以上）
TPA工程	加水分解反応でDMTをTPAに変換：多量の水と高温・高圧スチームで反応。温度250以上、圧力40kg/cm <sup>2</sup> G以上
PET工程	得られたTPA（もしくは一部石油由来の市販TPAも併用して）とエチレングリコールとで重合反応。260～300高温、高真空反応。続いて200～220で窒素気流下20～30時間反応（石油由来のPET樹脂の製造工程と同一）

FDAでは上述の通り化学分解法については申請不要と判断されておりましたが、それ以降も事業者が求めればNOLを出すことを続けております。前述の書簡が出た2001年7月以降も、AIES社、NanYa Plastics社などが化学分解法でNOLを得ております。

帝人グループは、2001年11月にFDAに確認を申請し、同年12月にNOLを得ましたが、さらに代理汚染物質除去試験についても、お客様により安心してお使いいただくために、FDAのガイダンスを主として参照しさらに官能物質を加えて試験を実施いたしました。代理汚染物質として選択したのは次のとおりです。

揮発性・極性：クロロベンゼン、トリクロロエタン（目標添加量1000ppm）  
揮発性・無極性：トルエン（目標添加量1000ppm）

不揮発性・極性：ベンゾフェノン（目標添加量 1000 ppm）  
不揮発性・無極性：フェニルシクロヘキサン（目標添加量 1000 ppm）  
有機金属化合物：ステアリン酸亜鉛（目標添加量 1000 ppm）  
官能試験物質：トリクロロアニソール、モーターオイル（目標添加量 100 ppm）

官能試験物質については、FDAガイドラインでは特に規定されておりませんが、これらの物質は官能閾値が ppt オーダー前後と極めて低く、良好な指標となることより追加いたしました。

これらの代理汚染物質を吸着させたフレーク（吸着しきれずに残った代理汚染物質はそのまま解重合工程に追添加）を解重合反応以降の帝人プロセス（パイロットプラント）に通し、反応・精製後得られた DMT，TPA，PET 樹脂中の代理汚染物質残存量を測定いたしました。また、得られた PET 樹脂は成形メーカーにおいて PET ボトルを成形いただき材質試験、溶出試験を実施いたしました（分析は(財)日本食品分析センターに委託）。

その結果、PET 樹脂や PET ボトル材質中の代理汚染物質濃度は分析検出限界（0.05ppm，モーターオイルのみ 0.5ppm）以下であること、食品擬似溶媒への溶出量も検出限界（0.5ppb，モーターオイルのみ 50ppb）以下であることを確認いたしました。

なお、本評価に用いた PET ボトルは、清涼飲料メーカー、醤油メーカー、酒類メーカーにおいて官能試験も実施いただきましたが、石油由来の PET ボトルやガラス瓶入りのものと差はなかったとの結果も得ております。

**( 2 ) 内分泌攪乱性試験、変異原性試験について**

**各試験の実施理由**

内分泌攪乱性試験について、酵母菌を用いた、少し古い試験法でなく、動物の細胞を用いた試験法により行うべきでないかとの専門委員からの指摘に対する再生PET樹脂製造メーカーの考え。

品質に関する試験結果で、前述のとおり現在流通している石油由来PETボトル用の樹脂と同等であること、さらにリサイクル故に考慮すべき代理汚染物質除去試験で故意に添加した汚染物質が除去できていることが確認できていること、FDAでも安全性の確認に必要とはされていないことより、これらの試験は実施しなければならないものではないと考えております。しかし、お客様に、より安心してお使いいただくために、念のため内分泌攪乱性試験として簡便に実施できる酵母系を用いるエストロゲン評価の試験（本試験に実績のある **Huntingdon Life Sciences Ltd. -Cambridgeshire ENGLAND -** に委託）と変異原性試験（細菌を用いる復帰突然変異試験）（本試験に実績のある三菱化学安全科学研究所に委託）の2種類を選択し、試験を実施いたしました。

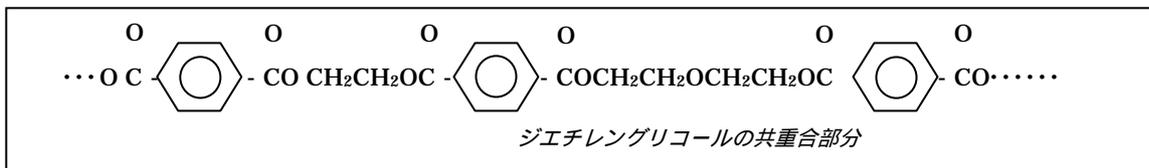
(4) 品質に関する試験成績について

ジエチレングリコールの自社規格の作成時期

(第1回器具・容器包装専門調査会会合 資料5.3(3)PET樹脂【品質管理項目】p6)

ジエチレングリコール( DEG )は重合反応中に発生する副生成物であり、ポリマー鎖中に共重合されております。資料の表中の分析結果はポリマーを分解させて測定したポリマー鎖中の DEG の共重合量です。ポリマー鎖中 DEG の量が変わると得られるボトルの物性が変わりますので古く昭和54年から自社規格で管理してきております。

過去も含めて各種PETボトル用樹脂のポリマー鎖中 DEG 含有量の自社規格と、実際に海外材料も含めてポリマー鎖中 DEG 量がどの程度かを下表にまとめました。



帝人グループ自社規格の推移

時期	用途	自社規格
昭和54年	清涼飲料PETボトル用	1.1 ~ 1.5 wt%
昭和55年	しょうゆPETボトル用	1.3 ~ 1.7 wt%
昭和56年	清涼飲料・しょうゆPETボトル用	1.8 ~ 2.2 wt%
昭和61年	清涼飲料耐熱タイプPETボトル用	0.8 ~ 1.2 wt%
平成4年	清涼飲料、耐熱タイプPETボトル用	1.1 ~ 1.5 wt%
〃	清涼飲料、炭酸飲料タイプPETボトル用	1.6 ~ 2.0 wt%
平成5年	しょうゆPETボトル用	1.6 ~ 2.0 wt%

現在のPETボトル用ポリマー品質

用途	市販PETボトルのポリマー鎖中 DEG 量
清涼飲料、耐熱タイプPETボトル用	1.2 ~ 1.4 wt%
炭酸飲料、無菌充填タイプPETボトル用	1.5 ~ 2.5 wt%
しょうゆPETボトル用	1.5 ~ 2.5 wt%

なお、石油由来の原料から作成したPETボトルを用いて当社内で測定した、ジエチレングリコールの食品擬似溶媒への溶出試験結果を以下に示します。どの食品擬似溶媒を使用した場合でもジエチレングリコールの溶出量は検出限界以下であることを確認しております。

食品擬似溶媒	保存条件	1ヶ月	3ヶ月	6ヶ月	12ヶ月
4%酢酸	室温	nd	nd	nd	nd
	37	nd	nd	nd	-
50%エタノール	室温	nd	nd	nd	nd
	37	nd	nd	nd	-

検出限界：0.05  $\mu\text{g}/\text{mL}$

実施：平成5年12月～平成7年3月（DEGの自社規格変更で、あるお客様からご要望があり実施したもの）

測定方法：

溶出後の液を濃縮乾固後、一定量のメタノールに溶解して、ガスクロマトグラフ法によりジエチレングリコールを測定。

## 追加資料

### 染色体異常試験および13週間反復経口投与毒性試験

これらの試験はFDAでも安全性の確認に必要とはされておらず、実施しなければならないものではないと考えておりますが、お客様に安心してお使いいただけるよう染色体異常試験と亜急性毒性試験についても追加実施してきました。前回の専門調査会終了後にこれらの試験結果が出てまいりましたので、今回の食品健康影響評価に際し、その結果を追加提出いたします。

#### \* 染色体異常試験（追加資料1）

雌チャイニーズハムスター肺由来の細胞株 CHL/IU を用い、リサイクル品および石油由来品の *in vitro* における染色体異常試験を実施いたしました。

サンプルは細胞を用いる復帰突然変異試験および内分泌攪乱性試験と同様の方法で作成したものを用いました。予備試験の結果に基づき、細胞増殖抑制試験の用量は、リサイクル品および石油由来品共に、短時間処理法の S9mix 非共存下および S9mix 共存下ならびに連続処理法の 24 時間処理で同じく、2v/v%、1v/v%、0.5v/v%、0.25v/v%、0.125v/v%を設定いたしました。

細胞増殖抑制試験の結果、リサイクル品および石油由来品共に、いずれの処理条件においても 50%以上の細胞増殖抑制は認められませんでした。

この結果に基づき、染色体異常試験の用量は、リサイクル品および石油由来品共に、すべての処理条件で同じく 2v/v%、1v/v%、0.5v/v%を設定いたしました。

染色体異常試験の標本観察の結果、リサイクル品、石油由来品とも、染色体構造異常または数的異常を持つ細胞の出現頻度は 5%未満でした。以上の結果より、リサイクル品および石油由来品は、本試験条件下において CHL/IU 細胞に対する染色体異常誘発性を有さないとの試験結果を受けております。

（試験実施は株式会社三菱化学安全科学研究所。報告書は添付資料をご参照ください）

#### \* 13週間反復経口投与毒性試験（追加資料2）

雌雄ラットを用いた13週間反復経口投与毒性試験を行いました。

投与量設定に当たっては、PETボトルに飲料を1年間保管した場合に溶出されるオリゴマー等の総溶出物濃度の十数倍にあたる約 1ppm (1mg/L) の総溶出物濃度の飲料を、体重 50kg のヒトが1日あたり 2L 摂取することを想定いたしました(2mg/50kg = 0.04mg/kg)。本試験では、想定した1日摂取量の 100 倍である 4mg/kg を最高投与量に設定いたしました。

被験物質は、油性食品の食品擬似溶媒である n - ヘプタンでの抽出乾固物、アルコール性食品の食品擬似溶媒である 50%エタノールでの抽出乾固物、酸性および水性食品については食品擬似溶媒の代わりに PET ボトル片を粉碎したファインパウダ

ーを用い、それぞれの混合物としました。

被験物質投与群には 1,2 及び 4mg/kg の用量の被験物質を、対照群には溶媒対照として 0.5w/v% hydroxy propylmethyl cellulose 溶液を雌雄各 10 匹のラットに 1 日 1 回、1 3 週間経口投与を行いました。

全例について、投与前および投与後の 1 日 2 回一般状態を観察し、体重、摂餌量および摂水量は週 1 回測定しました。尿検査については投与 1 2 週に行いました。部検前日に絶食を行い、翌日には血液学的検査および血液生化学検査用の検体を採取いたしました。部検時に器官の肉眼的観察および器官重量の測定を行いました。その後、ホルマリン固定した器官についてパラフィン切片を作製し、ヘマトキシリン・エオジン染色を施し、対照群と最高用量投与群について病理組織学的検査を行いました。

その結果、投与期間中に一般状態の異常および死亡例は認められず、各測定値および検査結果についても被験物質投与に起因すると考えられる変化は認められませんでした。

(試験実施は(財)日本食品分析センター。報告書は添付資料を参照ください)