

に分類した表 7 の結果では殆ど差がない。このようにホルモン濃度は生理的な影響が大きいと推測される。

部位、脂肪含量によるホルモン濃度には特に有意な点は認められない。しかし、雌に限定した検体でプロゲステロン濃度と脂肪含量の間に低い相関が得られた。プロゲステロン濃度は測定結果で示したように性周期の黄体期に高い傾向があり、このように要因を限定することにより、より高い相関が認められる可能性がある。また、文献でも未経産牛、早期去勢牛、肉用雄小牛の筋肉中と、脂肪組織中でプロゲステロン濃度は高まる傾向がみられる。一方、文献調査ではテストステロンは腎臓組織中で高く、脂肪組織中の濃度との相関はないようだ。

2) 牛（卵巣）の性周期と牛肉中のホルモン濃度

3 種のホルモンは性ホルモンであるため、性周期の影響を強く受けると考えられる。牛の尿、乳中のホルモン濃度は性周期により変動することは既に明らかにされており、黄体期にプロゲステロン濃度が上昇し、卵胞期にはエストラジオール濃度は二峰性のピークを示す。しかし、食肉中での変化は余り明確になっていない。

今回の食肉中の性周期による変化では表 8 及び結果で述べたようにプロゲステロン濃度は黄体期に高く、特に卵胞期の排卵直後で低い。また、エストラジオール濃度は卵胞期に高く、これらのことは尿、乳中の濃度変化に連動しているように思える。テストステロン濃度は黄体期に高く、プロゲステロン濃度と同調して、エストラジオール濃度に反比例しているようだ。これらの変化はいずれも性的な生理作用によると推測される。

3) 輸入牛肉中のホルモン濃度

輸入牛肉中のホルモン濃度は国産の牛肉と同様に文献調査の結果と比較して高い値とは言えない。しかし、アメリカ、オーストラリアとも肥育牛等にホルモン剤の使用が許可されている国である。合成型のゼラノール、トレンボロン、メレンゲストロールアセテートなどに、天然型の安息香酸エステル、エストラジオール、エストラジオール、プロゲステロン、テストステロンが耳根部への埋込法で使用されている。今回の調査では平均値及び最高値とも異常な値はなかった。適切な使用法のためか、天然型は代謝速度が速いため問題とならないことか不明である。合成のゼラノール、トレンボロンなどについては東京都の調査において、毎年調査を実施しているが特に問題となる値は得られていない。

4) 国内、外国産牛肉のホルモン濃度比較

結果に記載したようにこの値からは国内産はプロゲステロン及びテストステロン濃度が高く、外国産はエストラジオール-17 β 濃度が高い傾向にある。

品種別の脂肪含有量はホルスタインで 7.86 \pm 11.30 %、和牛で 7.32 \pm 7.41 %で平均 7.68%、オーストラリア産が 7.36、アメリカ産は 12.31%（外国産 9.83 \pm 6.29%）で、外国産、特にアメリカ産が高い。アメリカ産はフィードロット飼育が主流であり、オーストラリア産は牧草飼育が主流であり、飼料によるものか、試料の購入法か、その理由は不明である。

5) 第 52 回 JECFA 答申 A D I と牛肉中ホルモン濃度との比較

本年度（1999.2）ローマで開催された FAO/WHO による第 52 回 JECFA の会議において、天然ホルモンについては第 32 回 JECFA の評価から歳月を経ており、新た

な科学的な情報蓄積があったとして再評価された。その中で、表 13 に示すように ADI が提案されている。ADI (Acceptable Daily Intake: 1 日摂取許容量) は NOEL (No Observed Effect Level: 無作用量) に SF (Safety Factor: 安全係数) の 100 をかけて算出されている。一方、MRLs (Maximum Residue Limits: 最大残留濃度) は牛へのホルモン剤の投与により、各種組織への残留濃度は生理的な変動値を大きく上回ることはなく、残留中央値から理論的最大一日摂取許容量を算出すると ADI 値の最大 2% に達しないことから、MRLs を設定する必要はないこととなっている。ただし、エストラジオール-17 β の総摂取量は TMDI などから計算された「過剰摂取量」を越えないよう考慮すべきことが勧告された。

ところで、全国食品群栄養素等摂取量によると、一人当たり、肉類として 82.3g、牛肉として、24.6g である。表 13 に示したようにエストラジオールの ADI は 0 - 50 ng/kg/day、プロゲステロンの ADI は 0 - 30 μ g/kg/day、テストステロンの ADI は 0 - 2 μ g/kg/day で、日本人平均体重 50kg を加算すると、それぞれ、エストラジオールで 2,500 ng/day、プロゲステロン 1,500 μ g/day、テストステロン 100 μ g/day となる。

一方、国産牛肉の平均、エストラジオールは 1.15 ppt であり、最高 12.8 ppt であり、この最高濃度の牛肉を上記の肉類の摂取量で食したとすると、1.053ng/2,500ng/day で 0.042% (平均 0.004%) に相当する。同様にプロゲステロンは最高 2.963 μ g/1,500 μ g/day で 0.20% (平均 0.018%) に相当し、テストステロンは最高 278.35ng/100 μ g/day で 0.08% (平均 0.025%) に相当する。

輸入牛肉についてもエストラジオールは 0.823ng/2,500 ng/day であり、0.033% (平

均 0.01%) に相当するが、プロゲステロン、テストステロン濃度と同様に最高及び平均は国産のものより低い。

以上のようにいずれの値も、ADI を参考とした場合、今回の測定結果は極めて低い値であり、特に問題のあるレベルとはいえない。とくに、この ADI は無作用量 (NOEL) に安全係数の 100-1,000 倍を加算して算出されており、NOEL は内分泌かく乱作用を含めた作用が現れない量である。

文献検索の値と比較しても今回の国内及び輸入牛肉中のホルモン濃度結果はいずれも生理的な変動の範囲と推定されることから、食品の安全衛生上、特に問題はないと考えられる。

なお、国内産と輸入牛肉中のホルモン濃度に若干の差異があるように思える。国内産は外国産に比較して、プロゲステロン、テストステロン濃度が高く、外国産はエストラジオール濃度が高い。この原因は明確ではないが、試料の採取法などにより、影響を受ける可能性もある。また、輸入食肉に使用されているホルモン剤使用のためか、現在のところ推論の域をでていない。

E. 結論

本調査で得られたホルモン濃度は最高値及び平均値ともこれまでの文献調査から報告されている天然濃度範囲と推定され、さらに第 52 回の FAO/WHO (JECFA) 合同専門家会議のコーデックス委員会での ADI で示された、エストラジオール、プロゲステロン、テストステロン濃度から算定しても、この牛肉中のホルモン濃度は特に問題はない。すなわち、この FAO/WHO の JECFA で示された ADI 値には、内分泌かく乱作用を含めた無作用量 (NOEL) 及び最少無作用量 (LOEL) より決められた濃度であり、今回の測定結果からは内分泌かく乱作用は問題とならない。

F. 文献

- 1) 小久江栄一：本調査報告書（文献調査の部）（1999.3）
- 2) 橋本常生：本調査報告書（分析法の開発の部）（1999.3）
- 3) 第 52 回 FAO/WHO 合同食品添加物専門家会議(残留動薬)資料：11.Feb.1999

G. 謝辞

本調査研究は採取及び測定に関しては東京都立衛生研究所及び静岡県西部食肉衛生検査所が主に担当した。

さらに試料の収集において外国産牛肉はゼンチク（株式会社）及び系列会社の東京食肉安全検査センターが、国内産牛肉試料については静岡県西部食肉衛生検査所、芝浦食肉衛生検査所、北海道帯広食肉衛生検査所の協力を得て可能となりました。特に牛肉及び卵巣の収集に当たられた方々には大変な作業となりました。ここに関係各位に深く謝辞を表します。

表 1 試料採取記録表

試料採取記録表	
品 種	(ホルスタイン、和牛) (いずれかに○)
年 齢	
産地(道府県)	
生産者 (氏名) (住所)	
雌雄 (去勢有無等)	雌 (卵巣からの性周期 :) (経産、未経産) 雄 (去勢、未去勢) (いずれかに○)
試料の部位 (量)	(kg) 200g 以上で購入可能な最少量
ホルモン剤の 使用の有無 (製剤名)	有、無、不明 (いずれかに○) 使用の場合(製剤名 :) (使用の時期 :)
試料買い上げ日	平成 年 月 日
食肉検査所名	
備 考	

表. 2 国産牛肉試料採取記録及びホルモン測定結果 (whole basis)

No.	産地	品種	年齢	性別 (経産/去勢)	解体日	部位	脂肪 (%)	EST (ppt)	PRO (ppb)	TES (ppt)
1	福島	ホースタン	6	雌・経産	99/1/19	頭肉	1.1	1.4	5.6	34.4
2	〃	〃	6	〃	99/1/19	〃	1.6	2.4	1.7	10.6
3	〃	〃	6	〃	99/1/19	〃	2.5	1.2	0.40	10>
4	〃	〃	6	〃	99/1/19	〃	2.3	3.9	9.8	56.6
5	群馬	〃	6	〃	99/1/20	〃	3.1	2.2	6.4	25.8
6	千葉	〃	2	雄・去勢	99/1/14	〃	1.6	1>	0.06	10>
7	北海道	〃	2	〃	99/1/22	〃	1.9	1>	0.04u	10>
8	〃	〃	2	〃	99/1/22	〃	3.6	1>	0.06	10>
9	〃	〃	2	〃	99/1/22	〃	3.7	1>	0.04u	10>
10	〃	〃	2	〃	99/1/22	〃	5.0	1>	0.04	10>
11	栃木	和牛	4	雌・未經産	99/1/13	〃	4.6	12.8	5.6	11.0
12	北海道	〃	4	〃	99/1/21	〃	2.6	1.2	2.2	10>
13	〃	〃	4	〃	99/1/21	〃	3.5	5.2	0.90	10>
14	〃	〃	4	〃	99/1/21	〃	2.0	1>	11.8	19.8
15	〃	〃	4	〃	99/1/21	〃	1.3	1>	5.8	10>
16	群馬	〃	3	雄・去勢	99/1/13	〃	5.9	1>	0.04	13.6
17	栃木	〃	3	〃	99/1/13	〃	9.4	1>	0.04	10>
18	山形	〃	3	〃	99/1/13	〃	4.4	1>	0.12	10>
19	栃木	〃	3	〃	99/1/14	〃	5.0	1>	0.04u	10>
20	〃	〃	3	〃	99/1/20	〃	2.9	1>	0.12	10>
21	北海道	ホースタン	2	〃	99/1/13	モロ肉	10.5	1>	1.4	10>
22	〃	〃	2	〃	99/1/13	〃	9.2	1>	0.12	10>
23	〃	〃	2	〃	99/1/12	〃	7.8	1>	0.32	10>
24	〃	〃	2	〃	99/1/12	〃	7.6	1.3	0.08	10>
25	〃	〃	2	〃	99/1/12	〃	7.3	1>	0.66	16
26	〃	〃	2	〃	99/1/19	〃	15.0	1>	0.14	10>
27	〃	〃	2	〃	99/1/19	〃	10.1	1>	0.58	10>
28	〃	〃	2	〃	99/1/20	〃	12.9	1.1	1.52	15.0
29	〃	〃	2	〃	99/1/19	〃	16.2	2.1	0.38	21.0
30	〃	〃	2	〃	99/1/19	〃	6.5	1>	0.26	28.8
31	〃	〃	6	雌・経産	99/1/12	〃	2.0	1>	5.2	26.6
32	〃	〃	9	〃	99/1/13	〃	1.6	1>	0.04u	20.0
33	〃	〃	4	〃	99/1/13	〃	5.6	2.6	0.36	10>
34	〃	〃	4	〃	99/1/13	〃	2.2	1>	8.2	65.6
35	〃	〃	7	〃	99/1/12	〃	2.2	1>	2.8	10.4
36	〃	〃	不明	〃	99/1/14	〃	2.9	1>	9.4	75.4
37	〃	〃	不明	〃	99/1/18	〃	5.0	1.4	1.9	15.6
38	〃	〃	8	〃	99/1/18	〃	2.6	1>	0.06	14.6
39	〃	〃	5	〃	99/1/18	〃	5.1	1>	0.20	10>
40	〃	〃	5	〃	99/1/12	〃	1.5	1>	0.12	10>

No.	産地	品 種	年 齢	性別 (経産/去勢)	解体日	部位	脂肪 (%)	EST (ppt)	PRO (ppb)	TES (ppt)
41	鹿児島	和牛	3	雄・去勢	99/1/26	脰肉	4.4	1>	2.2	10
42	兵庫	〃	9	雄・未去勢	99/1/26	〃	2.6	5.8	0.28	952
43	秋 田	〃	3	雄・去勢	99/1/29	〃	9.5	1>	0.32	10>
44	〃	〃	3	〃	99/1/26	〃	30.7	1>	0.40	10>
45	〃	〃	3	〃	99/1/29	〃	8.3	1.1	0.12	10>
46	〃	和牛	3	〃	99/1/26	〃	3.9	1>	0.58	10>
47	〃	〃	3	〃	99/1/26	〃	45.4	1>	0.44	10>
48	〃	〃	3	〃	99/1/26	〃	60.2	1>	0.28	10>
49	北海道	〃	3	〃	99/2/12	〃	10.4	1>	0.46	10>
50	〃	〃	3	雄・未去勢	99/2/12	〃	7.1	1>	0.12	10>
51	熊本	和牛	3	雌・経産	99/2/19	〃	16.7	1.4	36	57.4
52	岐阜	〃	5	〃	99/2/26	頸肉	6.2	1>	6.6	30.6
53	〃	〃	5	〃	99/2/26	〃	1.7	1>	5.0	16.6
54	〃	〃	5	〃	99/2/26	〃	4.0	1>	8.0	23.4
55	〃	〃	5	〃	99/2/26	〃	20.7	1>	1.16	10>
56	静岡	和牛	3	雌・未経産	99/2/19	脰肉	12.6	1>	18	49.4
57	〃	〃	4	雌・経産	99/2/23	〃	2.8	1>	7.6	15.6
58	〃	〃	5	〃	99/2/23	〃	6.8	1>	12.8	42.8
59	〃	〃	8	〃	99/2/23	〃	2.8	1>	5.8	15.2
60	岐阜	〃	5	〃	99/2/26	頸肉	2.1	1>	0.7	10>

注 1): >, U は 以下を示す。

2): ESTはエストラジオール-17 β , PROはプロゲステロン、TESはテストステロンを示す。
(以下の表は同様の表記)

表. 3 卵巢の性周期の判定結果

No.	解体場所	品 種	年 齢	産 歴	産 地	判別結果
1	芝浦食肉	ホルスタイン	6	経産	福島	不明
2	//	//	6	//	//	卵胞期
3	//	//	6	//	//	卵胞期1)
4	//	//	6	//	//	不明
5	//	//	6	//	群馬	黄体期
11	//	和牛	4	未經産	栃木	卵胞膿種
12	//	//	4	//	北海道	黄体期
13	//	//	4	//	//	卵胞期1)
14	//	//	4	//	//	黄体期
15	//	//	4	//	//	膿種様黄体
31	帯広食肉	ホルスタイン	6	経産	//	卵胞膿種
32	//	//	9	//	//	不明
33	//	//	4	//	//	黄体期
34	//	//	4	//	//	//
35	//	//	7	//	//	//
36	//	//	?	//	//	膿種様黄体
37	//	//	?	//	//	黄体期
38	//	//	8	//	//	卵胞期1)
39	//	//	5	//	//	黄体期
40	//	//	5	//	//	不明
51	静岡西部食	和牛	3	//	熊本	黄体期
52	肉 //	//	5	//	岐阜	黄体期
53	//	//	5	//	//	黄体期
54	//	//	5	//	//	黄体期
55	//	//	5	//	//	卵胞期1)
56	//	ホルスタイン	3	未經産	静岡	卵胞期
57	//	//	4	経産	//	黄体期
58	//	//	5	//	//	黄体期
59	//	//	8	//	//	卵胞期1)
60	//	//	4	//	岐阜	黄体期

注)

- ① 黄体が認められたものを黄体期とした。
- ② 1)は排卵直後のもの
- ③ 判定結果は東京農工大学小久江教授及び田中助手（臨床繁殖学講座）による。

表. 4 国産牛肉の品種別ホルモン濃度

品 種	試料数	脂肪(%)	EST(ppt)	PRO(ppb)	TES(ppt)
ホルスタイン	40	1.1~60.2 7.86±11.30	1>~3.9 0.87± 0.76	0.04> ~18 2.62± 4.17	10> ~75.4 16.6± 18.1
和牛	20	1.3 ~30.7 7.32± 7.41	1> ~12.8 1.73± 3.02	0.04> ~36 4.34± 8.17	10> ~952 59.5±210.5
平均		7.68±10.11	1.15± 1.87	3.19± 5.80	30.9±122.1

注 1) エストラジオール-17β 1 ppt > は0.5 pptの数値を
 プロゲステロン 0.04 ppb> は0.02 ppbの数値を
 テストステロン 10 ppt> は5 pptの数値を入力して、データ処理を行った。
 (以下の表は同様に実施)

2) 表の上段は濃度範囲、下段は平均値±標準偏差を示す。(以下の表も同様)

表. 5 国産牛肉の性別ホルモン濃度

性別	試料数	脂肪(%)	EST(ppt)	PRO(ppb)	TES(ppt)
雌	30	1.1 ~12.6 4.39 ± 4.54	1> ~ 12.8 1.51± 2.41	0.04>~ 18 6.00± 7.20	10>~49.4 22.7± 20.2
雄	30	1.6 ~60.2 10.97 ±12.83	1> ~5.8 0.80± 1.01	0.04>~2.2 0.37± 0.50	10>~ 952 39.0±172.5
平均		7.68 ±10.11	1.15±1.87	3.19 ±5.80	30.9±122.1

表. 6 国産牛肉の性別(経産、未經産、去勢、未去勢)ホルモン濃度

性	試料数	脂肪(%)	EST(ppt)	PRO(ppb)	TES(ppt)
雌(経産)	24	1.1 ~20.7 4.38± 4.72	1>~ 3.9 1.02±0.92	0.04>~ 36 5.66±7.47	10>~75.4 24.5±20.8
(未經産)	6	1.3 ~12.6 4.43± 4.16	1>~12.8 3.45±4.93	0.9 ~ 18 7.38±6.43	10>~49.4 15.9±17.4
雄(去勢)	28	1.6 ~60.2 11.40±13.18	1>~ 2.1 0.63±0.36	0.04>~ 2.2 0.39±0.52	10>~28.8 7.7±5.9
(未去勢)	2	2.6 ~ 7.1 4.85± 3.18	1>~ 5.8 3.15±3.75	0.12~ 0.28 0.20±0.11	10>~ 952 478.5 ±669.6

表. 7 国産牛肉の性別（経産、未經産、去勢、未去勢）、品種別ホルモン濃度

性	試料数	脂肪(%)	EST(ppt)	PRO(ppb)	TES(ppt)	
雌・経産	和牛	19	2.94	1.11± 0.99	4.16± 4.03	23.9±21.6
	和牛	5	9.86±	0.68± 0.60	11.35±14.01	26.6±19.6
未經産	和牛	5	2.80	4.04± 2.8	5.26± 4.23	9.2± 6.5
	和牛	1	12.6	0.5	18	49.4
雄・去勢	和牛	19	12.57	0.66± 0.41	0.39± 0.43	8.2± 6.9
	和牛	9	8.94±	0.57± 0.20	0.38± 0.70	6.5± 3.1
未去勢	和牛	1	7.1	0.5	0.12	5
	和牛	1	2.6	5.8	0.28	952

表. 8 国産牛肉の性周期と牛肉中のホルモン濃度

性周期	EST(ppt)	PRO(ppb)	TES(ppt)
黄体期	1>~ 2.6 0.87±0.67	0.2 ~ 12.8 7.40±8.31	10>~ 75.4 24.9±22.5
卵胞期	1>~ 12.8 2.68±4.10	0.06 ~ 18 4.31±5.63	10>~ 49.4 15.8±14.4
卵胞期（排卵直後）	1>~ 1.2 0.68±0.35	0.06 ~ 5.8 1.86 ±2.67	10>~ 15.2 10.0± 5.7

表. 9 国産牛肉の部位別ホルモン濃度

部位	試料数	脂肪(%)	EST(ppt)	PRO(ppb)	TES(ppt)
モモ肉	35	1.5~60.2	1>~5.8	0.04>~36	10>~952
		10.23	0.87	3.40	43.90
頭肉	20	1.1~9.4	1>~12.8	0.04~11.8	10>~56.6
		3.40	1.82	2.54	11.84
頸肉	5	1.7~20.7	1 >	0.7 ~ 8	10>~30.6
		6.94	0.50	4.93	16.12

表. 10 外国産牛肉のデータ及びホルモン測定結果 (whole basis)

No.	原産国	検体原料名	ブランド	工場 番号	解体日	形態	脂肪 (%)	EST (ppt)	PRO (ppb)	TES (ppt)
1	豪州	Cb.Chuck Tender	CMG	7	98/12/2	冷蔵	5.8	3.3	0.14	10>
2	//	//	O'connor	1265	98/12/2	//	5.2	1.3	0.78	10>
3	//	//	R/Valley	235	98/12/4	//	7.9	2.2	0.12	10>
4	//	//	CMG	7	98/12/9	//	4.7	2.0	0.14	10>
5	//	//	Tancred	7	98/12/9	//	5.4	3.8	0.12	10>
6	//	//	O'connor	1265	8/12/10	//	6.5	1.8	0.40	10>
7	//	//	Kilkoy	640	8/12/10	//	4.0	2.3	0.42	10>
8	//	//	R/Valley	235	8/12/11	//	2.5	1>	0.06	10>
9	//	Cb.Chuck Rib	O'connor	1265	8/11/27	//	24.5	1>	1.0	10>
10	//	Cb.Chuck RibFlap	R/Valley	170	98/12/4	//	7.8	1.3	0.34	10>
11	//	Cb.Cube Roll	R/Valley	170	98/12/8	//	5.5	8.0	0.60	10>
12	//	//	R/Valley	170	98/12/9	//	5.7	1.4	0.36	10>
13	//	//	Tancred	7	98/12/9	//	6.7	1>	0.28	10>
14	//	//	R/Valley	170	8/12/11	//	6.5	2.2	1.06	23.2
15	//	//	R/Valley	170	8/12/14	//	10.1	4.7	0.54	10>
16	//	//	R/Valley	170	8/12/15	//	10.7	9.8	2.2	29.6
17	//	//	Tancred	7	8/12/16	//	3.7	6.7	0.04	10>
18	//	//	R/Valley	170	8/12/17	//	9.9	6.3	1.92	32.4
19	//	//	Tancred	7	98/12/9	//	5.9	3.0	0.20	10>
20	//	Fb.Navel	Tancred		98/6/2	冷凍	8.1	1>	0.20	10>
21	米国	Cb.Chuck Rib	IBP	245c	8/12/12	冷蔵	11.6	5.8	0.34	10>
22	//	//	Excel	86M	8/12/15	//	5.3	4.5	0.26	10>
23	//	Cb.Chuck EyeRoll	IBP	245c	8/12/15	//	12.2	1>	0.54	78.4
24	//	Cb.Chuck Roll(n)	IBP	//	8/12/10	//	8.0	1>	0.22	10>
25	//	Cb.Brisket	Meyer Me	19549	8/12/11	//	7.5	2.0	0.34	10>
26	//	Cb.Pastrami Eye	yer	//	8/12/11	//	24.2	1>	0.50	10>
27	//	Cb.Karubi Plate	IBP	//	98/12/5	//	17.2	9.4	0.24	10>
28	//	Cb.Shoulder Clod	IBP	245c	98/12/4	//	6.8	1>	0.94	12.6
29	//	Cb.Chuck Flaplip	IBP	//	98/12/5	//	10.4	3.8	0.30	10>
30	//	//	Excel	//	8/12/15	//	15.8	1.8	0.86	10>
31	//	Fb.Short Plate	IBP	//	98/7/20	冷凍	18.9	1.2	0.28	10>
32	//	//	IBP	86M	98/8/5	//	31.0	2.9	1.0	10>
33	//	//	Excel		98/8/14	//	13.4	10.0	1.58	10>
34	//	//	IBP		98/7/17	//	11.3	6.5	0.10	10>
35	//	//	Excel		98/7/26	//	3.0	3.4	0.08	10>
36	//	//	IBP		98/8/6	//	3.7	1>	0.16	10>
37	//	//	Monfort		98/9/28	//	6.2	5.7	0.90	10>
38	//	Fb.ChuckTailFlap	IBP		98/9/3	//	12.0	7.5	0.26	10>
39	//	Fb.Chuck Rib	PeckFood		98/6/19	//	13.2	1.3	0.16	10>
40	//	Fb.Tri Tip	G/Omaha		98/5/26	//	14.5	2.9	0.88	10>

表. 1 1 外国産別ホルモン濃度

輸出国	試料数	脂肪(%)	EST(ppt)	PRO(ppb)	TES(ppt)
オーストラリア	20	2.5~ 24.5 7.36± 4.56	1>~ 9.8 3.11± 2.68	0.04~ 2.2 0.55± 0.60	10>~ 32.4 8.51± 8.71
アメリカ	20	3.0~ 31.0 12.31± 6.88	1>~10.0 3.56± 3.03	0.08~ 1.58 0.50± 0.40	10>~ 78.4 9.05±16.41
平均		9.83± 6.29	3.33± 2.83	0.52± 0.50	8.78±12.97

表. 1 2 国産及び外国産牛肉のホルモン濃度比較

国	試料数	脂肪(%)	EST(ppt)	PRO(ppb)	TES(ppt)
外国産	40	2.5~ 31.0 9.83± 6.29	1>~ 10.0 3.33± 2.83	0.04~ 2.2 0.52± 0.50	10>~ 78.4 8.78±12.97
国産	60	1.1~ 60.2 7.68±10.11	1>~12.8 1.15± 1.87	0.04> ~36 3.19± 5.80	10>~ 952 30.9±122.1

表 1 3 第5 2回J E C F Aにより答申されたホルモンのA D I値

化合物名	無作用量 (NOEL)	安全係数 (SF)	一日摂取許容量 (ADI)
エストラジオール-17β	5 μg/kg	100	0 - 50 ng/kg
プロゲステロン	3.3 mg/kg	100	0 - 30 μg/kg
テストステロン	1.7 mg/kg (ヒト臨床用量)	100	0 - 2 μg/kg

図 1 雌牛の筋肉中のプロゲステロン濃度(ppb)とテストステロン濃度(ppt)の相関

図 2 雌牛の筋肉中のプロゲステロン濃度(ppb)と脂肪濃度(%)の相関

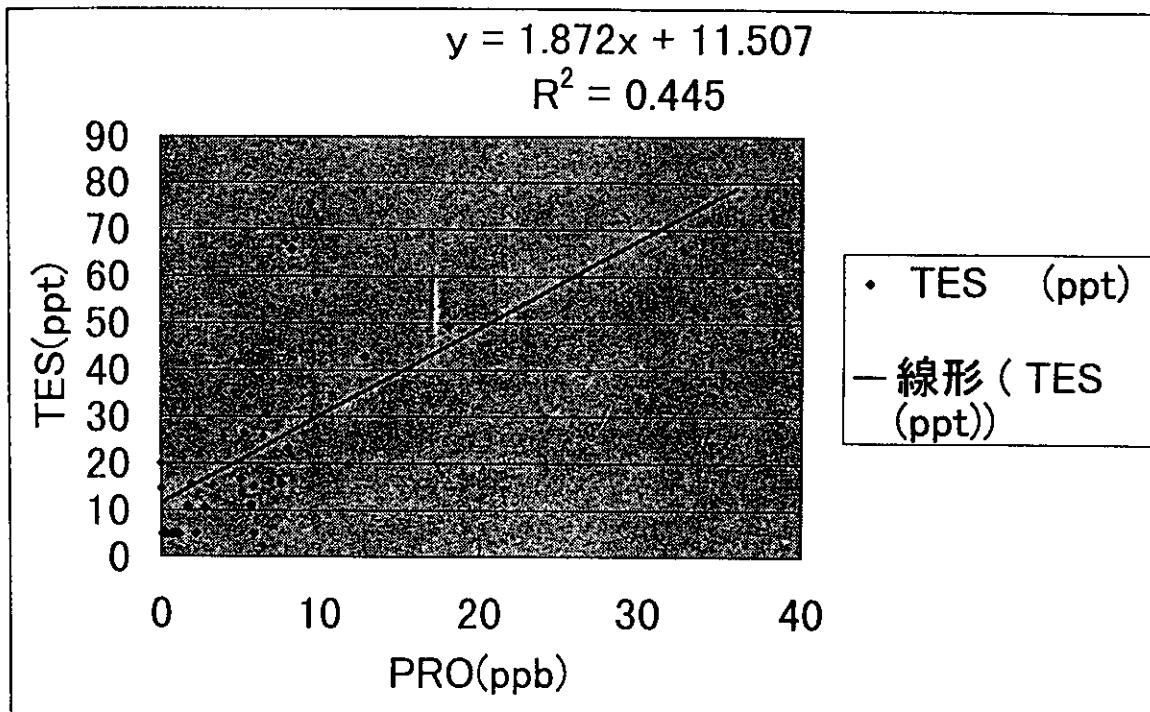


図 1 雌牛の筋肉中のプロゲステロン濃度 (ppb) とテストステロン濃度 (ppt) の相関

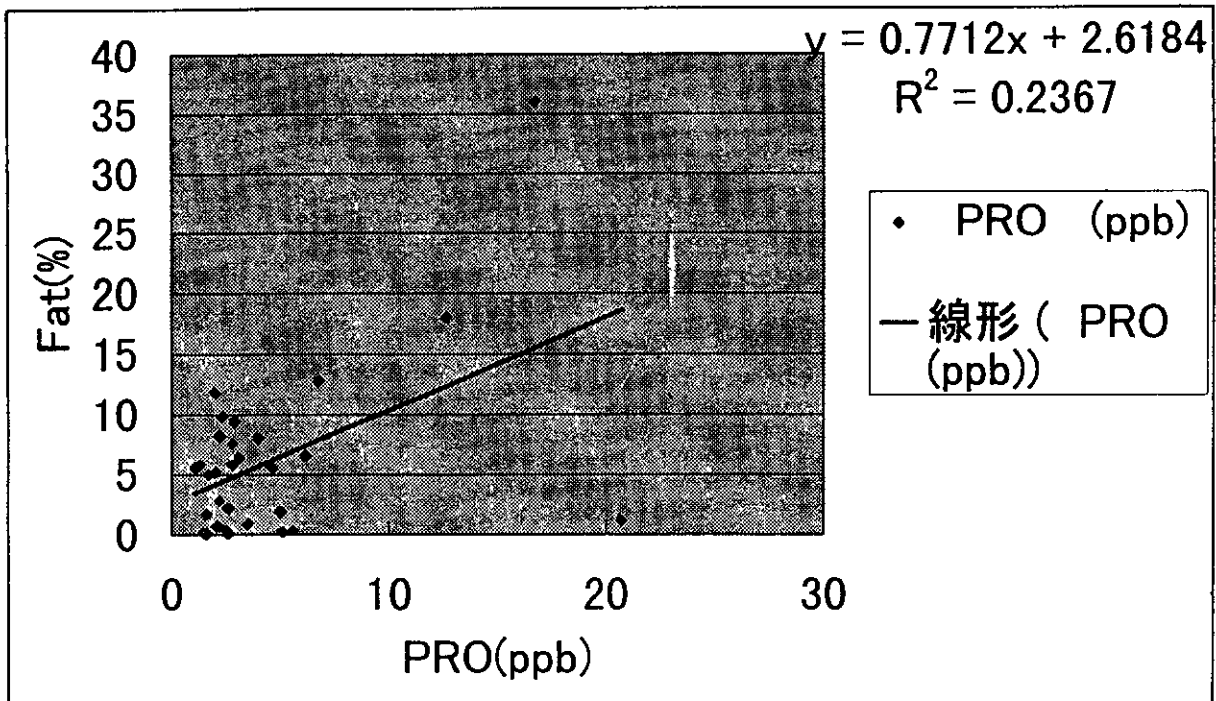


図 2 雌牛の筋肉中のプロゲステロン濃度(ppb)と脂肪濃度(%)の相関

分担研究報告書

- ・ビスフェノールA等フェノール化合物の暴露に関する調査研究
ーポリカーボネート食器、食品缶詰等からの
溶出に関する調査研究ー

分担研究者

渡辺 悠二

課題名：ビスフェノール A等フェノール化合物の暴露に
関する調査研究
ポリカーボネート食器、食品缶詰等からの
溶出に関する調査研究

研究要旨

近年、内分泌かく乱物質として指摘されているビスフェノールAおよびノニルフェノールについてプラスチック製食器具類からの溶出の実態調査を行った。

その結果、1. 一般食器具類（ポリカーボネート製、以下PCと略す）中のビスフェノールAの平均含有量は23.5mg/kgで、チタン（着色料）が添加された白色系の試料で含有量が多かった。また溶出試験（95℃の水・30分間保持）の結果、0.2～68.1ng/mLの範囲でビスフェノールAの溶出が認められ、白色系試料で高い溶出が認められた。また、エポキシ樹脂塗装のはしでは5割からnd～369ng/mLの範囲で溶出が認められた。

2. PC給食器の多くから0.4～120ng/mLの範囲でビスフェノールAの溶出が認められ、特にはしで高い溶出を認めた（はし：平均39.6ng/mL、その他：平均4.2ng/mL）。なお、給食時におけるビスフェノールAの摂取量は児童1回当たり約0.15μg/kgと推測される。

3. 新しいPCほ乳びんについて、繰り返し使用時におけるビスフェノールAの溶出量の消長を見た。煮沸消毒の場合、0.5%クエン酸溶出液で溶出を認めず、n-ヘプタン溶出液で使用開始後わずかに認められた。水溶出液（溶出条件：95℃の水を入れ、室温で30分間放置）では0.3～0.5ng/mLの範囲で継続的に溶出が認められた。電子レンジ用消毒バッグの場合、初め0.2～0.4ng/mLの溶出を認めたが、3～5回以降は溶出が認められなかった。使用済みほ乳びんからの溶出量は平均0.8ng/mLであった。なお、乳幼児のビスフェノールAの摂取量は約0.04μg/kg/日と推測される。

4. 缶詰食品、缶入り食品、瓶詰食品及びレトルト食品合計41食品について調査したところ、缶詰食品のうち清涼飲料水および果実シロップを除く魚肉、カレー、ミートソース等の17種の全食品から5～490ppbの範囲で、また紅茶等の清涼飲料水11種の食品のうちコーヒー飲料のみから13～35ppbの範囲でビスフェノールAが検出された。さらにレトルト食品では7種の食品のうち1種から8ppb検出された。また、缶入り食品及び瓶詰食品についてはすべて検出されなかった。内容物から考察すると高温で長時間の処理が施されたものほど含有濃度が高い傾向を示していると推測される。

5. プラスチック製品50種類をn-ヘプタン（25℃・1時間保持）による溶出試験を行った。その結果、ノニルフェノールを検出したものは16種類で、うちポリスチレンおよびポリプロピレンの5検体で、419～49,700ng/20cm²の範囲の高い溶出が認められ、最も高

い溶出を見たものはポリスチレン製コップであった。ポリエチレン製等その他のプラスチックからは有意に検出されないか、検出量が少なかった。

分担研究者

渡辺 悠二 東京都立衛生研究所
生活科学部食品添加物研究
科

協力研究者

高田 秀重 東京農工大学
農学部環境資源科学科
堀江 正一 埼玉県衛生研究所
食品研究科
西村 正美 (財)日本食品分析センター
多摩研究所衛生化学二部
松原 チヨ 東京薬科大学
生命科学部環境生命科学科

A. 研究目的

近年、一部の化学物質に極く微量で内分泌かく乱作用を有し、人の健康に影響を与える恐れのあることが指摘されている。特にわが国ではダイオキシン類とともにプラスチックに関連するいくつかの物質、すなわち、ポリカーボネート樹脂等の原料であるビスフェノールAや非イオン界面活性剤のアルキルフェノールポリエトキシレート分解生成物であるノニルフェノール等のフェノール化合物に社会的関心が寄せられている。一方、厚生省は内分泌かく乱化学物質の健康影響に関する検討会を設置し、平成10年11月中間報告を行っている。その中でこれらの物質について、未解明な点が多く、今後調査研究を推進する必要があるとしている。

本調査はポリカーボネート製の一般食器器具類、給食器、ほ乳びんおよびエポキシ樹脂でコーティングされた食品缶詰から溶出

するビスフェノールA並びに食品用プラスチック製品から溶出するノニルフェノールについて、その実態を把握するための調査を行った。

B. 研究方法

1. ポリカーボネートおよびエポキシ樹脂製食器具類からのビスフェノール Aの溶出
1) 一般食器具類

調理器具類、保存容器および乳幼児用器具類79品目について、材質中の含有量および食品類似溶媒（水、4%酢酸、20%エタノール、n-ヘプタン）による溶出試験を行い、高速液体クロマトグラフィー（フォトダイオードアレイ検出器または電気化学検出器付き）による定量を行った。また、ビスフェノール Aの食品類似溶媒への移行性を見るための試験を行った。

2) 給食器

給食施設で使用済みのポリカーボネート製給食器（深皿、小皿、仕切り皿、ボール、汁碗、はし（合計 290 検体）について、1)と同様の試験を行った。

3) ほ乳びん

国内産の未使用のほ乳びん 2 品目各 20 検体および病院等の使用済みほ乳びん 42 検体を試料として、煮沸（360 回）および電子レンジ用消毒バッグ（10 回）による消毒を繰り返した後、適宜 95 °Cの水を入れ、30 分間放置して得た水溶出液について溶出量の消長を見た。また、病院等で使用していたほ乳びんについても同様の調査を行った。

2. エポキシ樹脂塗装食用缶詰におけるビ

スフェノール A の溶出

紅茶、炭酸飲料、ビール等の飲料缶詰食品 11 種類 93 検体、飲料以外の缶詰食品 17 種類、缶入り食品 4 種類、瓶詰食品 2 種類およびレトルト食品 7 種類について調査した。試験は、各食品に適した前処理を行って試験溶液を調製し、高速液体クロマトグラフィー（蛍光検出器または質量分析器付き）で定量した。なお、検出限界は 5ppb とした。

3. プラスチック製品からのノニルフェノールの溶出

市販のプラスチック製食器具類 50 種類について、食品衛生法に従い、溶出試験を行い（n-ヘプタン、25℃・1時間保持）、得られた溶出液を減圧濃縮後、シリカゲルカラムによる精製、分離を行った。65%ジクロロメタン/ヘキサンによる分画液を減圧濃縮して乾固し、ヘキサンに溶解後 GC-MS により定量した。

C. 結果および考察

1. ビスフェノール A

1) 食品類似溶媒への移行性

ビスフェノール A の 4 種類の食品類似溶媒に対する溶解性は 4%酢酸、水、20%エタノールの順に強いが、同程度であり、n-ヘプタンではほとんど溶解が認められなかった。

2) 一般食器具類におけるビスフェノール A の含有量およびその溶出

(1) 製品（材質）中の含有量

国内で市販されているポリカーボネート製食器具類（54 種類）の材質中のビスフェノール A の含有量は 10mg/kg 未満：23 品目、10～30mg/kg：14 品目、31～50 品目：12 品目、50mg/kg 以上：5 品目で（平均 23.5mg/kg）、その多くは規格の 10 分の 1 以下であった。なお、含有量の多い検体

はすべて白色系の検体で、平均含有量は 57.4mg/kg（その他の平均は 12.8mg/kg）で乳幼児用器具に多い。白色系の試料について蛍光 X 線分析法でチタン（Ti）の存在が確認され、材質中それぞれ 3.9%、1.9%、0.7%、1.8%、0.8%（TiO₂ として）含有されていた。

(2) 一般食器類からのビスフェノール 溶出

ポリカーボネート製検体 54 種類およびポリカーボネート樹脂以外の試料 20 種類に 95℃の水を入れ、95℃の恒温器内で 30 分間保持した時の水溶出液における溶出量は次の通りであった。ポリカーボネート製検体では 1.0ng/mL 以下 60 検体、1.0ng/mL 以上：8 種類で、最大 68.1 ng/mL の溶出が認められた。また、白色系検体の溶出量は平均 10.7ng/mL で、その他の検体では同 0.3ng/mL であり、白色系検体で溶出量が多かった。なお、ポリカーボネート以外のプラスチックからはビスフェノール A の溶出は全く認められなかった。エポキシ樹脂塗装のはし（40 膳）からのビスフェノール A の溶出量は 5 割強から nd～369（平均 22.2）ng/mL の範囲で認められた。

(3) 繰り返し使用によるビスフェノール A の溶出

電子レンジ用品 17 検体（水を入れ 4 分間加熱後室温で 30 分間放置）および非電子レンジ用品 12 検体（80℃の水を入れ室温で 30 分間放置）について、繰り返し溶出試験を行ったところ（10 回）、いずれも白色系試料で初回 0.4～14.4ng/mL、2 回以降も継続的な溶出を認めたが、白色系以外の試料からは全く溶出が認められなかった。

3) 給食器からのビスフェノール A の溶出

渡辺らの調査によれば、給食器（深皿、小皿、仕切皿、ボール、汁わんおよびはし計 190 個）のすべてから 0.4～120ng/mL の

範囲でビスフェノール A の溶出を認めただが、特にはしで高い溶出が認められている（はし：平均 39.6ng/mL、その他：平均 4.2ng/mL）。なお、給食時におけるビスフェノール A の摂取量は児童（小学校中学年）1 回当たり約 0.15 μ g/kg と推測される。

4)ほ乳びんからのビスフェノール A の溶出

ほ乳びん 2 品目（各 20 本）を用いて、一般的な使用方法である煮沸消毒（360 回）と電子レンジ用バッグによる消毒（10 回）を繰り返し、その間適宜溶出試験を行った。

煮沸消毒（360 回）の場合、0.5%クエン酸溶出液で全く認めず、n-ヘプタン溶出液で 10 回目まで 0.5ng/mL、その後は認められなかった。水溶出液（溶出条件：95 $^{\circ}$ C の水を入れ、室温で 30 分間放置）では 0.3 ~ 0.5ng/mL の範囲で継続的に溶出が認められた。なお、使用後のほ乳びんに一部白化やクラックが認められたが、材質中の含有量は使用前に比べわずかな増減が認められたに過ぎなかった。電子レンジ用消毒バッグ（10 回）の場合、0.2 ~ 0.4ng/mL の溶出を認めただが、3 ~ 5 回以降は溶出が認められなかった。実験終了後のほ乳びんは内側にほとんどの外観上の変化は見られず、外側にわずかに白化やクラックが認められた。また、材質中のビスフェノール A の含有量は、使用前の含有量に比べわずかな増減が認められたに過ぎなかった。使用済みほ乳びんでは外観が正常なものでは 0.3 ~ 2.5ng/mL の範囲でビスフェノール A の溶出を見たが、シミ状の斑点のあるほ乳びんでは高い溶出（平均 42ng/mL）が認められた。

なお、乳幼児のビスフェノール A の摂取量は体重 6kg（月齢 2、3 ヶ月）、1 日ほ乳量 800g、溶出量 0.3ng/mL として 0.04 μ g/kg / 日と推測される。

5)食用缶詰等におけるビスフェノール A 含有量

内容物が容器の塗装面あるいはプラスチックと接触している種々の缶詰食品 28 種類、缶入り食品 4 種類（以上金属缶）、瓶詰食品 2 種類及びレトルト食品 7 種類について、内容物中のビスフェノール A の含有濃度を調査した。

その結果、清涼飲料および果実シロップ詰食品を除く魚肉、ミートソース、カレー等の缶詰食品から 5 ~ 480 ppb の範囲でビスフェノール A が検出された。特に魚肉缶詰では、シーチキンで 120 ppb 及び 27 ppb、サバ味噌煮で 350 ppb 及び 480 ppb、ずわいがにで 100 ppb 及び 130 ppb、サバ水煮で 190 ppb 及び 170 ppb、サンマの味付けでは 86 ppb 及び 93 ppb と他の素材より高い数値を示した。その他の食品では、ナメコが 92 ppb 及び 270 ppb と高濃度で含有されていた。清涼飲料および果実シロップ食品（11 種類）の場合、コーヒー飲料を除く飲料食品からは検出されず（検出限界 5ppb）、わずかにコーヒー飲料（5 検体）のみから 13 ~ 35ppb の範囲でビスフェノール A が検出された。また、缶入り食品及び蓋の内面に塗料としてエポキシ樹脂が使用されている瓶詰食品からは検出されなかった。レトルト食品については、微量ではあったが 7 試料のうち 1 試料（五目ごはんの具材）から検出（検出量：8 ppb 及び 7 ppb）された。検出された容器の種類や検出量から、容器内容物中にビスフェノール A が含有されている原因は、缶詰を製造する際の加熱殺菌工程にあると推測された。

2. ノニルフェノール

プラスチック製品 50 種類を n-ヘプタンで 25 $^{\circ}$ C・1 時間保持して溶出試験を行った。その結果、ノニルフェノールを検出し

たものは 16 種類（操作ブランク値の 2 倍量を有意の検出とした場合）で、うちポリスチレンおよびポリプロピレンの 5 検体で、419 ～ 49,700ng/20cm² の範囲の高い溶出が認められ、最も高い溶出を見たものはポリスチレン製コップであった。ポリエチレン製等その他のプラスチックからは有意

に検出されないか、検出量が少なかった。しかし、ポリスチレンやポリプロピレンでも検出されないものもあり、材質との関連は明確でなかった。なお、ポリスチレン製では無色透明かつ柔らかい製品でより高い検出量が認められた。

厚生科学研究費補助金(内分泌かく乱物質の健康影響に関する調査研究)
分担研究報告書

内分泌かく乱物質の食品、食器等からの暴露に関する調査研究
協力研究者 松原チヨ 東京薬科大学生命科学部教授

研究要旨 ビスフェノールA(BPA)は缶詰等の容器の内面にコーティングされているエポキシ樹脂の合成原料として用いられているため、食品等への溶出が懸念される。本研究では清涼飲料水、果実シロップ漬け缶詰等 93 検体の食品中のビスフェノール A の含有量を調査した。紅茶、煎茶、ウーロン茶、ブレンド茶、フルーツジュース、炭酸飲料、ビール、カクテル、ワイン、果実シロップ漬け缶詰は BPA は検出限界(5ppb)以下であった。しかしコーヒー飲料はすべて低い濃度 (13.5 ~ 35.2ppb) ではあるが BPA が検出された。

A.研究目的

内分泌かく乱物質は微量で生体内のホルモン系をかく乱し、生態系や人体に重大な影響を及ぼす事が懸念されている化学物質である。内分泌かく乱物質のヒトへの侵入経路は水、食品、空気などが考えられるが、そのうち主な経路は食品からと考えられている。しかし、内分泌かく乱物質の食品からヒトへの暴露量についてはほとんど把握されていないのが現状である。ビスフェノール A(BPA)は内分泌かく乱物質の一つと考えられており、食用缶詰の内面はコーティング剤としてビスフェノール A を原料としたエポキシ樹脂が多く使用されていることから、これらの合成樹脂に残存した BPA が食品に移行することが考えられる。本研究では清涼飲料水、果物シロップ漬け等の缶詰食品について BPA の含有量を調査したので報告する。

B.研究方法

試料

試料は都内のスーパーより購入した。購

入した缶詰は紅茶、煎茶、ウーロン茶、ブレンド茶、フルーツジュース、コーヒー、炭酸飲料、ビール、カクテル、ワイン、果実シロップ漬け缶詰の 11 種類で、調査した試料数は延べ 93 検体であった。調査した試料の詳細については表 1 に示した。

>表 1<

試薬

アセトニトリル、ジクロロメタンは高速液体クロマトグラフ用を用いた。またその他の試薬は残留農薬用または試薬特級を用いた。固相抽出用カートリッジ GL-Pak PLS2 および GC-MS 用誘導体調製試薬 BSTFA は GL サイエンス社製のものを用いた。

装置

HPLC は JASCO PU-980 型ポンプ、821-FP 型蛍光検出器を用いた。またデータ解析は JASCO 807 IT 型データ処理装置を用いた。分析用カラムは Inertsil ODS-3