

厚生労働科学研究費補助金

食品の安全性高度化推進研究事業

食品中の有害物質等の摂取量の調査及び

評価に関する研究

平成16年度 総括・分担研究報告書

主任研究者

国立医薬品食品衛生研究所 松田りえ子

分担研究者

国立医薬品食品衛生研究所 松田りえ子

国立医薬品食品衛生研究所 米谷 民雄

国立医薬品食品衛生研究所 小西 良子

国立保健医療科学院 杉山 英男

## 目 次

### I. 総括研究報告

- 食品中の有害物質等の摂取量の調査及び評価に関する研究 ..... 1  
松田りえ子

### II. 分担研究報告

1. 日常食の汚染物摂取量及び汚染物モニタリング調査研究 ..... 13  
松田りえ子
2. 必須アミノ酸製品等による健康影響に関する調査研究 ..... 31  
米谷 民雄
3. メチル水銀試験法の改良と鯨肉中水銀分布調査への応用 ..... 37  
米谷 民雄
4. カビ毒同時試験法開発と分布調査研究 ..... 53  
小西 良子
5. 食品中の放射性核種の摂取量調査・評価研究 ..... 67  
杉山 英男

# 総括研究報告

食品中の有害物質等の摂取量の調査及び評価に関する研究

松田 りえ子

平成 16 年度 厚生労働科学研究費補助金  
(食品の安全性高度化推進研究事業)  
総括研究報告書

食品中の有害物質等の摂取量の調査及び評価に関する研究

主任研究者 松田りえ子 国立医薬品食品衛生研究所食品部室長

研究要旨

本研究では、食品安全性評価のために広範囲の食品中に存在する有害物質に関するデータを収集するとともに、分析法に係わる関連研究を実施した。日常食の汚染物質摂取量調査研究においては、全国 9 カ所で各食品を通常の調理方に従って調製したトータルダイエット試料を調製し、その汚染物濃度を測定して、1 日当たりの汚染物摂取量を推定した。汚染物モニタリング調査研究においては、全国 48 カ所での食品中汚染物検査データ 30 万件を収集し、食品中の汚染物の検出率、複数の汚染物による汚染状況を明らかにした。2003 年度から 2004 年度までに公表された好酸球増多筋肉痛症 (EMS) および有毒油症 (TOS) に関する論文をまとめた。EMS に関しては、5-hydroxy-L-Tryptophan の安全性に関する報告がなされていた。有毒油症に関しては、患者に特有に発現するハプトグロビンタンパク、AP-1 の関与に関する報告があるとともに、TOS のような稀少疾患の研究に当たっての倫理的な見解が示された。メチル水銀試験法の改良に関する研究では、公定法におけるエマルジョン生成を抑制する抽出法を検討した。かび毒試験法の改良に関する研究においては、6 種類のトリコテセンマイコトキシン及びゼアラレノンの同時分析法を検討した。

分担研究者

松田りえ子 国立医薬品食品衛生研究所食品部室長

米谷 民雄 国立医薬品食品衛生研究所食品部長

小西 良子 国立医薬品食品衛生研究所食品部室長

杉山 英男 国立保健医療科学院生活環境部室長

## A. 研究目的

種々の化学物質のヒトへの曝露はその90%以上が食事を介していると考えられており、種々の食品中の有害物質の量とその分布状態を明らかにし、化学物質による健康影響へのリスクを正しく評価することは、食品衛生における基本課題である。本研究の一課題である、日常食の汚染物質摂取量調査研究と汚染物モニタリング調査研究では、食品衛生上重要な汚染物の食品中の存在状況を前者では平均化した見方で、後者では個別な見方から、長期間継続して調査することにより、個々の食品の汚染状況と日本国民が平均的に摂取する汚染物量の2つの側面から、食品の安全性を全体的に評価することを目的とした。

また、食品中に含まれる化学物質により引き起こされた重篤な健康影響の例である、必須アミノ酸であるL-トリプトファン製品の摂取により発生した好酸球増多筋肉痛症(EMS, eosinophilia-myalgia syndrome)ならびにアニリンで変性されたナタネ油の摂取により発生した有毒油症(TOS, toxic oil syndrome)の原因や症状について文献調査し、それにより国民の安全な食生活に寄与することを目的とした。

食品安全性評価のためには、食品中に存在する有害物質のデータを収集するだけでは不十分であり、正しい分析法によって得られた信頼性ある分析値に基づいて評価しなくてはならない。2004年3月にはJECFAがメチル水銀のPTWI(暫定耐容週間摂取量)を3.3 µg/kg体重/週から1.6 µg/kg体重/週に変更したことから、本研究では、魚介類中のメチル水銀分析法の改良を目的として、従来法をベースにタンパク質の影

響を軽減する目的でアルカリ/エタノール処理<sup>4)</sup>をした後、あるいは脂肪分の除去を目的にアセトン・トルエン処理をした後、塩酸酸性下におけるメチル水銀の抽出溶媒及び再抽出溶媒としてトルエンを使用する分析法について検討を行った。

また、カビ毒については複数のマイコトキシンによる汚染がしばしば報告され、ヒト、家畜への健康被害が懸念されており、暴露評価及び複合汚染実態を把握するための同時分析法の開発が必要である。そこで本研究では、デオキシニバレノール(DON)、ニバレノール(NIV)、フザレノンX(FX)、3-アセチルデオキシニバレノール(3ADON)、T-2トキシン(T2)、HT-2トキシン(HT2)の6種類のトリコセシマイコトキシンとそれらとの複合汚染の報告のあるゼアラレノン(ZEA)を加えた7種類のマイコトキシンについて同時分析法の検討を目的とした。

食品中の放射性物質によるヒトへの曝露状況は、その摂取状況に関する基礎資料が乏しく、明らかになっていないのが現状である。そこで、日常的に摂取される食品量に基づくトータルダイエット試料を分析し、摂取量ならびに被ばく線量評価を行う。さらに、食品中の放射性核種による健康へのリスク評価へと発展させ、原子力等の放射線緊急時等における食の安全対策、確保に資することを目的とする。

以上に示したように、本研究では健康に影響する汚染物質の摂取量・汚

染状況の把握，正確な汚染状況と健康リスクを推定するための分析法の整備，食品汚染物による健康影響危害の分析の三つの観点から，食品中の有害物質の評価を行うことを目的としている。

## B. 研究方法

### 1) 汚染物摂取量調査

全国9カ所でマーケットバスケット方式によるトータルダイエツト試料を調製し，重金属，農薬等の汚染物濃度を測定した。濃度と食品の摂取量から，1日あたりの食事からの汚染物摂取量を推定した。

なお，本年から国民栄養調査方式の変更に準拠して，食品分類を変更した。さらに，食品の重量の計量方式も変更となり，米は炊飯後の重量，乾物は水戻し後重量，茶・コーヒー等は水で抽出した出来上がり量となった。この結果，I群とIX群の重量が大幅に増加した。

### 2) 汚染物モニタリング調査

全国48カ所の地方衛生研究所から食品中の汚染物分析データ30万件を収集した。収集はあらかじめ入力用のフォームを入れたフロッピーディスクに入力する形式で行った。国立医薬品食品衛生研究所食品部に送付されたデータは再度エラーチェックを行い集計した後，食品部サーバー上に構築したデータベースに追加した。

### 3) EMS 及び TOS に関する文献調査

MEDLINE および STN を用いて，2003～2004 年度の間に発表された EMS および TOS に関する論文を検索した結果，8報に

到達した。この中から，7報について内容をまとめた。

### 4) メチル水銀及び水銀試験法の改良

#### 試料・試薬

試料はメバチマグロ3試料及びサバ1試料の筋肉部を用いた。メバチマグロは均一試料約1gを精秤し，1mol/L水酸化カリウム溶液に溶解後，10mlとして試験溶液とした。マサバは均一試料約100mgを精秤し，試験用の試料とした。

メチル水銀の測定には残留農薬分析用の試薬を，総水銀の測定には日本インスツルメンツ社製の添加剤を用いた。

#### 装置及び器具

・塩化メチル水銀

GC : Agilent Technologies 5890 SERIES II (ECD)

カラム : ULBON HR-Thermon-Hg (0.53 mm × 15 m)

カラム温度 : 100°C(1 min)-10°C/min-160°C(5 min)

注入口温度 : 200°C

検出器温度 : 230°C

キャリアガス : He (8～10 ml/min)

注入量 : 2 µl

・総水銀

半自動微量水銀分析装置 : 日本インスツルメンツ社製 [試料加熱気化・金アマルガム捕集装置 (マーキュリー/MA-1S)，水銀検出装置 (マーキュリー/MD-1)]

#### 分析法

・メチル水銀

抽出法として，アルカリ/エタノール処理—塩酸酸性トルエン抽出—システイン・アセテート溶液転溶—塩酸酸性トルエン再抽

出-キャピラリーカラム-ECD-GC法(抽出法Ⅰ), 及びアセトン・トルエン処理-塩酸酸性トルエン抽出-システイン・アセテート溶液転溶-塩酸酸性トルエン再抽出-キャピラリーカラム-ECD-GC法(抽出法Ⅱ)を検討した。

・総水銀

日本インスツルメンツ社製半自動微量水銀分析装置で分析した。

## 5) カビ毒試験法の検討

### 試薬および機器

7種のマイコトキシンの検出限界以下であることを確認した, 2003年産小麦玄麦を使用した。7種のマイコトキシン標準品はシグマ社製を用いた。前処理として使用した多機能固相抽出カラムは, Multi Sep #226 Romer社製を用いた。LC/MS分析に用いた試薬はすべてHPLCグレードを使用した。

### LCMS装置

LC: Shimadzu LC-2010C<sub>HT</sub>

MS: Shimadzu LCMS-2010A

### LCMS条件の検討

7種のマイコトキシンの標準品を用いて, LCMSでの定量分析に適したイオン化条件の検討を行った。イオン化条件として次の3条件を比較, 検討した。

- (1) エレクトロスプレーイオン化 (ESI) 法
- (2) 大気圧化学イオン化 (APCI) 法
- (3) 大気圧光イオン化 (APPI) 法

### HPLCの条件

カラム: Shimadzu Shim-Pack VP-ODS (150 mm×2 mm)

移動相: A; メタノール

B; 5 mM 酢酸アンモニウム

10% A/B - (5 min) - 10% A/B - (15 min) - 100% A/B - (10 min) - 100% A/B - (30 min) - 10% A/B

流速: 0.1 ml/min

カラムオープン温度: 40 °C

注入量: 10 µl

### 多機能固相抽出カラムを用いた同時精製法の検討

7種のマイコトキシンの標準品および小麦粉末に標準溶液を添加した試料を用いて, 多機能固相抽出カラムによる精製効率の検討を行った。

まず, マトリックスのない状態での7種のマイコトキシンの溶出パターンを検討した。次にマトリックス存在下での溶出パターンを検討するために, 粉碎した非汚染小麦粉末試料 10.0 g に 1 µg/ml 濃度の7種のマイコトキシン混合標準溶液を 1 ml 添加し 1 時間放置した。その後アセトニトリル-水 (85:15) 40 ml を加え, 30 分間振とう抽出したものを試料とした。

## 6) 放射性物質摂取量調査

日本国内4ブロック(札幌市, 千葉市, 名古屋市, 那覇市)においてトータルダイエット試料を調製した。試料中の人工ならびに天然のγ線放出核種(<sup>137</sup>Cs や <sup>40</sup>K, ウラン系列, トリウム系列)はγ線スペクトロメトリ, β線放出核種の Sr-90 は放射化学分析法, ウランは ICP-質量分析法により測定し, 食品からの放射性核種 1 日摂取量ならびに被ばく線量を推定した。

## C. 研究結果および考察

### 1) 汚染物摂取量調査

HCH類の中で摂取量の多いβ HCH摂取量の平均値は2002年、2003年に低下傾向を示したが、2004年はさらに低下した。一方、γ HCHが例年より増加したために、総HCHにはやや増加した。HCHを検出した機関は少ないために、中央値は個々の異性体、送料ともに0(ND)となった。総DDTの平均値は2002年まで減少傾向がみられたが、2002～2004年は平均値・中央値共にほぼ一定の値であった。ディルドリン及びHCBは例年よりもかなり大きな値となった。HCB及びPCBについては大きな変化は見られなかった。

有機リン系農薬3種類については、マラチオンが2カ所で、MEP及びダイアジノンがそれぞれ1カ所で検出された。千葉県では、Ⅶ群で高濃度のマラチオンが検出された。Ⅶ群調製に使用したセロリにおいて0.2 ppmのマラチオンが検出された。Ⅶ群の濃度は最初の測定では0.16 ppmであったが、再測定では0.04 ppmとなりかなり小さい結果であった。セロリのような野菜は粉碎されにくいために、試料中の分布が不均一となりやすく、このため2回の測定値が大きく異なると考えられる。

クロルピリホスメチルが高率で検出された。クロルピリホスメチルが検出されるのは、ほとんどが2群(雑穀)及び3群(砂糖・菓子)で、小麦への残留の可能性が高い。

金属類は例年と同程度の値であった。

汚染物の摂取量を食品群別毎にグ見ると、HCHは魚介及び加工食品から、DDTを初め塩素系の農薬及びPCBは主として魚介の群から摂取されている。Pb及びCdは米からの摂取が最も多く、ヒ素は野菜海草及

び魚介からの摂取が多かった。

## 2) 汚染物モニタリング調査

本年度は300,070件のデータが報告され、食品部サーバーには累計約380万件のデータが保存された。本年度報告数は例年よりもかなり増加している。

何らかの汚染物が検出されたデータは4,695件あり、検出率は1.6%で最近4年間の中で最も低率であった。また、報告されたデータの総試料数は22,164件であり、このうち何らかの汚染物が検出された試料は2,717あった。これより、試料数を基本とした検出率は11.7%となった。平成15年は16.2%、平成14年は21.6%、平成13年は24.2%で、試料をベースとした検出率も低下傾向にある。

検査数の大きな増加は、最近の未承認農薬検出事件の発生、ポジティブリスト化が近づいていることによるものと考えられる。

検査された汚染物は498種類であり、そのうち、農薬・動物薬等の意図的汚染物が418種類であった。昨年度検査された農薬数は386種類で、年々検査対象となる農薬は増加している。平成18年度にポジティブリスト制が施行されると、検査される汚染物の種類は急激に増加すると予想される。

農薬等に限定した試料ベースの検出率は5.9%で、昨年度の11.1%よりも大幅に減少した。この傾向が今後も継続し、検出率が低下するのかを注目する必要がある。

平成14年には、牛肉・卵・豚肉・鶏肉・牛乳等の動物性食品の検査数が上位を占めていたが、16年度は、野菜類の検査数が大きく増加している。最も検査数の多かったねぎは、16年度の3.4倍、ブロッコリーは



2.7倍、きゅうりが2.7倍と全体的に検査数が増加した。

農薬等の検出率の高い食品は、オレンジ、グレープフルーツ、レモン等の柑橘類（オルトフェニルフェノール、チアベンダゾール、イマザリル等）で、柑橘類における汚染物の検出率は20～25%程度であった。その他の検出率の高い食品は未成熟えんどう(27%)、りんご(19%)、日本なし(16%)、チンゲンサイ(13%)、すいか(12%)、きゅうり(11%)、ほうれんそう(10%)であった。検出率の高い食品は昨年度と同様であるが、検出率自体は低下している。

グレープフルーツ等の柑橘類は、イマザリル、チアベンダゾール、オルトフェニルフェノールのような防カビ剤の複数残留が多く見られた。柑橘類の他に1検体当たり多くの農薬が検出された作物は、りんご、桜桃、なしのような果実と未成熟インゲンであった。1件であるが、食用菊において7種類の農薬が検出された。

検査数の多い汚染物は、平成15年度と同様にクロルピリホス、マラチオン、フェニトロチオン、等の有機リン系農薬、ペルメトリン、シペルメトリン等のピレスロイド系農薬の検査数が多かった。

検出率の高い汚染物は、水銀、カドミウム、PCB、有機スズ、ヒ素等で、これらは魚介を中心とした試料から30%以上と高率で検出されている。次いで、鉛、クロム等の有害金属、オルトフェニルフェノール、イマザリルが20%以上の検出率であった。検査数の多いクロルピリホス等の農薬の検出率は、最も高いプロシミドンでも4%程度で、大部分の農薬の検出率は2%以下であった。

### 3) EMS及びTOSに関する文献調査

#### EMS

5-Hydroxy-L-tryptophan (5-HTP) はL-tryptophanの代替品として、うつ病改善、線維筋肉痛症の鎮痛作用、さらに不眠、頭痛などの不定愁訴緩和剤として使用されている。本製品摂取と28歳のカナダ人女性に発症したEMS様疾患発生との関連は現在否定的であり、20年間にわたり、疾患発生例は一例も無かったことになる。Dasらはこれらを踏まえ、5-HTPの安全性に問題はないとしている。

#### TOS

有毒油摂取に伴うTOS発症へのリスクファクターに遺伝的要因があることは明らかである。特異なタンパクの解析は、腎および肝不全、栄養失調、癌、AIDS、糖尿病、心疾患ならびに神経疾患等で既に検討されており、それが同定されれば、プロテオミックス技法により、生体が異物、毒物に暴露されたかどうかのモニタリングにおいてバイオマーカーライブラリーを供給したり、免疫学的なスクリーニングを可能にすることができる。毒性油を摂取したTOS患者ならびに非発症者の血清を二次元電気泳動で分離した後、各スポットを回収してレーザー飛行時間型質量分析に供し、35種類のタンパクがTOS患者血清中で3倍以上underexpressもしくはoverexpressしていることが見出されている。これらタンパクは多数のハプトグロビン同族体であることが判明し、TOS発症と関連すると思われる特徴的表現型を持っていた。ハプトグロビンの表現型は以前から生物学的、臨床的に重要な有意性を持つとされ、多くの疾患に対

してのリスクファクターであろうとしている。

AP-1は細胞増殖、分化、炎症、アポトーシスや免疫反応に関わり、毒性油等の暴露により即時に活性化される遺伝子を統括する転写因子の一つである。AP-1は *jun/fos* dimer family から構成され、*c-fos* は最も良く研究されている遺伝子である。PAP エステルは吸収されリン脂質同様の経路で代謝されることが判っているので、その代謝産物が AP-1 を含む異なる転写因子の調節に関わっている可能性がある。とりわけ、フォスホオリパーゼ D 活性は *c-fos* 活性化に関与していることが明らかなので、ヒト肺由来線維芽細胞における *c-fos* の誘導への効果が調べられた。PAP エステルは迅速かつ濃度依存的に *c-fos* 発現を誘導することから、フォスホオリパーゼ D の関与が強く示唆された。この知見により、AP-1 の様なある種の転写因子の脱統制化が TOS の病態形成に寄与するとしている。

ラセミ体の PAP ジオレイルエステルをヒトすい臓リパーゼ (hPL) と培養することで (S) 型光学異性体が優先的に生成してくるが、C-2 位がオレイル基のモノエステルが生成し、C-1 位にアシル基を持つレジオアイソマー (位置選択的 (優先的) 異性体) と平衡になる。結局、後者のアイソマーと hPL との培養では PAP 光学異性体の生成が起こり (S) 型が優先的になる。これらの結果は、摂取された PAP エステルが hPL の基質になり、肝臓やすい臓で生体内変換される際に、光学異性体的に偏りが起きているためであろうとしている<sup>4)</sup>。

TOS が発生した当時から原因物質究明や病態解析に関わって来た Terracini は、実

験的に再構成した油、事故関連油およびアニリン誘導体のいずれを用いても、モデル動物に対して TOS を再現できて初めて起因物質であると言えるが、残念なことに、これまでのところ、自然もしくは実験的に TOS に相当する疾患を惹起したという報告は皆無であるとして、疫学研究の困難さを述べている。

幼年期に TOS 既往を持つ 31 歳の女性が、出産後 4 週目にして左主冠状動脈解離を突発的に起こし、重症心筋梗塞、左心室機能障害および緊急外科的血行再建術を実施するも改善を見ない心臓性ショックを来し、一時的左心室サポートならびに心移植が必要であったという極めて希なケースが報じられ、病因ならびに治療結果が紹介されている。

TOS や希少疾患に対する生物医学的研究を行うに当たっての倫理の見解が報告されている。研究に使用される材料を二次的に使用する場合、Carlos III 研究所倫理委員会で採択された対処法に拠れば、二次使用の倫理的確性の議論が先決である。その後、プロスペクティブな研究を希望する研究者は参加者から、(1) 材料の二次使用があるか、そしてある場合には (2) 二次使用は研究のタイプによることに関して、インフォームドコンセントを文書で採るべきであるとしている。

#### 4) メチル水銀及び水銀試験法の改良 塩化メチル水銀のガスクロマトグラム及び 検量線

ULBON HR-Thermon-Hg (0.53 mm×15 m) キャピラリーカラムを用いて測定した。カラム温度を 160°C 一定条件で測定す

ると塩化メチル水銀のカラム分離及びピーク形状が悪かったが、カラム温度を 100℃ から 160℃まで 10℃/分の昇温条件で測定することによりそれらが改善された。

ピーク面積を用いた検量線は 0.005~0.1 µg/ml の範囲で良好な直線性 ( $R^2=0.9998$ ) を示した。ピーク高を用いた検量線もピーク面積と同様に良好な直線性を示したが、ピーク面積と比較するとやや劣っていた。

#### 抽出法 I のトルエン抽出工程までの塩化メチル水銀の回収率

1%システイン溶液 5 ml に塩化メチル水銀/エタノール溶液 (50 µg/ml) 100 µl を添加し、アルカリ分解、中和後、塩酸を加えて溶液中の塩酸濃度を 1.5 mol/L, 2.8 mol/L 及び 4 mol/L に調整した。各塩酸濃度溶液からトルエン 30 ml で 3 回抽出し、塩化メチル水銀の回収率を比較した。1.5 mol/L, 2.8 mol/L 及び 4 mol/L 塩酸濃度の間に大きな相違は見られないが、1.5 mol/L 塩酸濃度で僅かながら低かったことから、トルエンによる抽出は 3 mol/L 塩酸濃度で行うことにした。

#### 抽出法 I におけるトルエン抽出溶液から最終工程までの塩化メチル水銀の回収率

トルエン 90 ml に塩化メチル水銀/トルエン溶液 (20 µg/ml) 100 µl を添加し、塩化ナトリウム溶液で洗浄後、システイン・アセテート溶液 15 ml に転溶した。システイン・アセテート溶液 2.5~3 ml を採取し、2 mol/L, 3 mol/L 及び 4 mol/L の塩酸溶液としてから、それぞれトルエン 4 ml で再抽出し、塩化メチル水銀の回収率を比較した。3 mol/L 塩酸濃度が 98.5%と最も高い回収率を示したことから、システイン・アセテート溶液からのトルエンによる再抽出は 3

mol/L 塩酸濃度で行うことにした。

#### 抽出法 I による魚肉からの塩化メチル水銀の添加回収率

メバチマグロ試料 1 g あたり塩化メチル水銀 1 µg, マサバ試料 1 g あたり塩化メチル水銀 0.2 µg を添加した。塩化メチル水銀の添加回収率はメバチマグロ 73.6%, マサバ 72.9%であり、魚種、添加量による大きな相違はみられなかった。

トルエン抽出液からシステイン・アセテート溶液への転溶操作においてエマルジョンの形成が認められた。タンパク質とともにエマルジョン形成の主要な原因となる脂肪分の除去を行う目的で、2 mol/L 塩酸 10 ml を加えた後、ヘキサン 25 ml による 10 分間の振とう処理を加えた。メバチマグロ試料においてヘキサン処理を行ったところ、塩化メチル水銀濃度が約 38%減少した。ヘキサン等により脂肪分を除去する場合は、アルカリ処理より前に行う必要があることが示唆された。

#### 抽出法 I による魚肉中の総水銀に占めるメチル水銀の含有率

メバチマグロの総水銀濃度は 0.844~0.995 µg/g, マサバは 0.0493 µg/g と非常に異なるが、総水銀中のメチル水銀の含有率は 62.1~64.5%で、大きな相違はみられなかった。

#### 抽出法 II におけるトルエン抽出時の塩酸濃度の影響

アセトン、トルエン処理したメバチマグロ-3 の筋肉部に 6 mol/L, 7.5 mol/L 及び 9 mol/L 塩酸溶液 2.5 ml を加え、それぞれトルエン 20 ml で一回抽出し、トルエンの一部を GC 分析した結果、検出された塩化メチル水銀量は塩酸濃度に関係なく 1.64~

1.65 µg/g であった。トルエン回収量は 6 mol/L 塩酸溶液で 9.5~10.5 ml, 7.5 mol/L 塩酸溶液で 4~5 ml, 9 mol/L 塩酸溶液で 19 ml 以上であった。試料 1 g に 9 mol/L 塩酸溶液 2.5 ml を加えた場合、エマルジョンの形成はほぼ抑制されたことから、トルエン抽出時の塩酸濃度は 9 mol/L とした。トルエン抽出量を 25 ml, 30 ml 及び 35 ml と増加させても塩化メチル水銀の検出量はほとんど変化しなかった。

#### 抽出法Ⅱによるシステイン溶液に添加した塩化メチル水銀の回収率

塩化メチル水銀/トルエン溶液 (100 µg/ml) 1 ml を 1%システイン溶液 10 ml で振とう抽出し、その 100 µl を採取し (塩化メチル水銀として 1 µg), 同様に処理したとき、塩化メチル水銀の回収率は 93.1% であった。

#### 抽出法Ⅱによるメバチマグロ筋肉部からの塩化メチル水銀の添加回収率

アセトン, トルエン処理後, メバチマグロ 1 g に塩化メチル水銀 1 µg を添加した。塩化メチル水銀の添加回収率は 85.9% であった。抽出法Ⅰでは塩化メチル水銀の回収率は 72.9~73.6% であり, 抽出法Ⅱではメバチマグロのみであるが抽出法Ⅰと比較してやや高い回収率を示した。抽出法Ⅱではトルエン抽出液からシステイン・アセテート溶液への転溶操作においてエマルジョンの形成は認められなかった。抽出法Ⅱでは全行程を通してエマルジョン形成が抑制されており, これが回収率に影響している可能性が高いと考えられた。

#### 抽出法Ⅱによるメバチマグロ筋肉部中の総水銀に占めるメチル水銀の含有率

メバチマグロの筋肉部中における, 総水

銀に対するメチル水銀の含有率は 66.7% であった。抽出法Ⅰと抽出法Ⅱは塩化メチル水銀の添加回収率に関しては相違を示したが, 総水銀中のメチル水銀の含有率はほとんど同等であった。これらの結果は, 魚肉タンパク質に結合したメチル水銀とシステインに結合したメチル水銀では, 塩酸酸性条件下でのトルエンへの抽出率が異なる可能性を示唆していると考えられた。

### 5) カビ毒試験法の検討

#### LCMS 条件の検討

##### (1) ESI 法

フルスキャン分析の結果より, NIV 371(-), DON 355(-), FX 413(-), 3ADON 397(-), HT2 483(-), T2 484(+), ZEA 317(-)をモニタリングイオンとした。

検量線は 7 種のトキシインいずれでも 5 ng/ml 以上の濃度で直線性 (相関係数 0.99 以上) を示し, 定量限界 (S/N 比 10) 及び検出限界 (S/N 比 3) はそれぞれ NIV 0.79 ng/ml, 0.24 ng/ml, DON 2.84 ng/ml, 0.85 ng/ml, FX 2.55 ng/ml, 0.77 ng/ml, 3ADON 0.32 ng/ml, 0.10 ng/ml, HT2 2.16 ng/ml, 1.35 ng/ml, T2 4.50 ng/ml, 0.65 ng/ml, ZEA 0.56 ng/ml, 0.17 ng/ml であった。

##### (2) APCI 法

フルスキャン分析の結果より, NIV 371(-), DON 355(-), FX 413(-), 3ADON 339(+), HT2 483(-), T2 484(+), ZEA 317(-)をモニタリングイオンとした。

検量線は 7 種のトキシインいずれで

も 3 ng/ml 以上の濃度で直線性（相関係数 0.99 以上）を示し，定量限界及び検出限界はそれぞれ NIV 0.84 ng/ml, 0.25 ng/ml, DON 1.50 ng/ml, 0.45 ng/ml, FX 2.11 ng/ml, 0.63 ng/ml, 3ADON 2.78 ng/ml, 0.83 ng/ml, HT2 2.29 ng/ml, 0.50 ng/ml, T2 1.67 ng/ml, 0.68 ng/ml, ZEA 1.43 ng/ml, 0.43 ng/ml であった。

### (3) APPI 法

フルスキャン分析の結果より，NIV 371(-), DON 355(-), FX 413(-), 3ADON 397(-), HT2 483(-), T2 484(+), ZEA 317(-)をモニタリングイオンとした。

検量線は 7 種のトキシシンいずれでも 1 ng/ml 以上の濃度で直線性（相関係数 0.99 以上）を示し（図 1-7），定量限界及び検出限界はそれぞれ NIV 0.63 ng/ml, 0.18 ng/ml, DON 0.83 ng/ml, 0.25 ng/ml, FX 2.58 ng/ml, 0.77 ng/ml, 3ADON 0.70 ng/ml, 0.21 ng/ml, HT2 9.71 ng/ml, 2.91 ng/ml, T2 1.45 ng/ml, 0.43 ng/ml, ZEA 0.46 ng/ml, 0.13 ng/ml であった。

以上の結果から，トキシシンにより最適な感度を得られるイオン化法は異なる事がわかった。しかし，比較的汚染報告の多い NIV, DON, T-2, ZEA では APPI 法での検出限界が ESI 法, APCI 法よりも良好と考え，本研究では，APPI 法で測定することとした。

### 多機能固相抽出カラムを用いた同時精製法の検討

7 種のマイコトキシシン標準溶液のみをカラムに負荷した結果，NIV 以外の 6 種のトキシシンはカラムからの溶出が 4 ml 以降で回収率が 80 %以上に達するが，NIV は他のトキシシンより遅れて溶出してくることがわかった。

次に，7 種のマイコトキシシン添加小麦試料抽出溶液をカラムに負荷し，試料マトリックス非存在下の標準溶液で定量を行った結果，値のばらつきが大きくトキシシンによっては 140%を超える値を示した。そこで小麦試料から作成したマトリックス混合標準溶液を用いて，定量を行ったところ，7 種のトキシシンで 80%以上の妥当な回収率が得られ，標準溶液のみを負荷した際に見られた NIV の溶出の遅れも軽減された。この結果から，試料マトリックスがトキシシンの溶出に影響することが考えられる。

### 6) 放射性物質摂取量調査

人工の $\gamma$ 線放出核種として検出・定量されたのは  $^{137}\text{Cs}$  のみである。しかも，その放射能濃度は低いレベル (0.01 Bq/kg オーダ)であり，多くの食品群では  $^{137}\text{Cs}$  は検出されなかった。近年，その濃度実態の把握が求められている天然 $\gamma$ 線放射性核種の中でも代表的な  $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Bi}$ ,  $^{228}\text{Ac}$ ,  $^{212}\text{Pb}$ ,  $^{208}\text{Tl}$  は大多数の食品群では検出限界以下であった。各食品群混合試料中の  $^{90}\text{Sr}$  (0.013 -0.028 Bq/kg) およびウラン (0.004 -0.014 Bq/kg) の放射能濃度も低い濃度であった。今回，これら放射性核種の 1 日摂取量は小さく，被ばくへの寄与は小さいもの推定評価された。わが国では，食品中の有害物質の中で

も放射性核種の摂取量とその曝露評価に関する知見は限られていることから、今回、過去の大気圏内核実験やチェルノブイリ原発事故等に由来する人工放射性核種のみならず、天然の $\gamma$ 線放出核種や、 $\beta$ 線を放出し半減期の長い $^{90}\text{Sr}$ あるいは原子力関連分野等で使用されているウランなど多種にわたる放射性核種の1日摂取量について調べたが曝露量は大きくなかった。

## D. 結論

### 1) 汚染物質摂取量調査

9機関の協力の下に行われた日常食からの汚染物質摂取量調査研究（トータルダイエットスタディ）の結果、食品中有機塩素系農薬、PCB、有害金属等の摂取量は、例年通りであり、特に増加した汚染物質は見られなかった。

### 2) 汚染物質モニタリング調査

汚染物質モニタリング調査においては48機関からのデータを収集しデータベース化するとともに、一部をWHOに送付し、国際的調査に協力した。農薬等の意図的汚染物の検出率は、試料数を基準として5.9%であり、過去4年間で最低であった。また、徐々に低下している傾向が見られた。外部機関からの依頼により、データベースから鉛分析データを検索して、平均値、中央値、パーセンタイル値を提供した。

### 3) EMS 及び TOS に関する文献調査

20年の長きに亘る使用の間、副作用としての疾患の発生例が皆無であったにもかかわらず、安全性への危惧が払拭されなかった5-HTP製品に対する7項目挙げてのDas

らの発言は支持される。事故油のマーカ不純物であるPAPエステルが、フォスホオリパーゼDの作用を經由して*c-fos*発現を亢進させるという知見は興味深い。毒物を含む刺激で即時に活性化され、細胞増殖、炎症、免疫反応を統括制御する転写因子の一つであるAP-1活性の修飾が起きているなら、TOSの病因や病態の一部を説明できる可能性がある。TOS発症におけるこれら誘導期のイベントは、数多くの血清ハプトグロビン発現の特徴的变化に反映されているかもしれない。最終的な結論はヒトを含むモデル動物での再現を待たねばならないが、この操作が極めて困難であることもまた事実である。

### 4) メチル水銀及び水銀試験法の改良

現在の公定法は昭和48年に示された古い方法で、塩酸酸性ベンゼン抽出-システイン・アセテート溶液転溶-塩酸酸性ベンゼン再抽出-パックドカラム-ECD-GCによるものである。ベンゼン直接抽出ではエマルジョンが形成されるため、従来から問題となっていたが、未だ改定されていない。

一方、1991年に刊行された厚生省生活衛生局監修「食品衛生検査指針理化学編」においては、環境庁の赤木氏が開発した分析法が収載されており、基本的に同じ方法が平成17年3月の改訂版にも収載されている。また、その方法に準じた方法が「水銀分析マニュアル」として平成16年3月に環境省から出されている。

今年度は、システイン・アセテートを用いる公定法をベースに、エマルジョン形成抑制への、タンパク質の影響を軽減するためのアルカリ/エタノール処理と、脂肪除去

の目的のアセトン・トルエン処理の効果を検討した。その結果、アセトン・トルエン処理を加えた抽出法Ⅱによる塩化メチル水銀の添加回収率は85.9%に上昇したが、アルカリ/エタノール処理では70%台であった。しかし、総水銀に対するメチル水銀の含有率は、どちらも60%台であった。このような傾向は、平成15年6月3日に「水銀を含有する魚介類等の摂食に関する注意事項」を発した薬事・食品衛生審議会食品衛生分科会乳肉水産食品・毒性合同部会での資料においても見られる。すなわち、公定法を用いた「水産庁における実態調査結果（調査結果の概要）」（資料No.3-3）では、メチル水銀/総水銀比はメチル水銀がN.D.のデータを除いても60%であるのに対し、その他の参考資料として提出され、環境省法に準じた方法によると考えられる「国立水俣病総合研究センターでの総水銀及びメチル水銀の検査結果」では93%と高い値が報告されている。

そのため、次年度においては、錯形成剤としてシステイン・アセテートではなく、環境省法で採用されているジチゾンを用いる方法を検討すべきと考えられた。

#### 5) カビ毒試験法の検討

7種類のマイコトキシンについて多機能固相抽出カラムを用いた同時精製法及びLCMSを用いた同時分析法の検討を行った結果、LCMSの測定条件の検討においては3種のイオン化法のいずれにおいても7種全てのトキシンが測定可能であることが示された。しかし、各々のトキシンの検出感度はイオン化法により差異

が認められ、比較的汚染報告の多いNIV, DON, T2及びZEAでは、APPI法における感度が良好であった。多機能固相抽出カラムを用いた同時精製法の検討では、NIVの溶出が他のトキシンに比べやや遅かったが、カラムからの溶出が4ml以降で7種のトキシンのいずれでも回収率は80%以上であり、同時精製に適用可能であった。

また、試料マトリックスを混合していない標準溶液で定量した場合よりも、試料マトリックス混合標準溶液で定量した場合の方が、より安定した値が得られることが明らかになった。

以上の結果から、本研究で用いた7種のトキシンにおいて、多機能固相抽出カラム MultiSep #226で精製し、LCMS測定を行う方法の適用が可能であることが示された。

#### 6) 放射性物質摂取量調査

国内4ブロックで実施した食品中の放射性核種の摂取量調査研究の結果、人工ならびに天然のγ線放出核種、<sup>90</sup>Sr、ウランの摂取量の実態が明らかとなり、その摂取量は大きなものではなく、食品の安全・安心に対する1つの基礎的な資料が得られた。

# 分 担 研 究 報 告

日常食の汚染物摂取量及び汚染物モニタリング調査研究

松田 りえ子



# 厚生労働科学研究費補助金（食品の安全性高度化推進研究事業） 分担研究報告書

## 日常食の汚染物質摂取量及び汚染物モニタリング調査研究

分担研究者 松田りえ子 国立医薬品食品衛生研究所食品部室長

### 研究要旨

国内に流通している食品に含まれる汚染物質の濃度，及び食事を介した汚染物質の摂取量を明らかにすることを目的として，全国の衛生研究所の協力を得て，汚染物モニタリング調査と，マーケットバスケット方式によるトータルダイエツト試料を用いた汚染物摂取量調査を実施した。

汚染物モニタリングにおいては，全国48カ所での食品中汚染物検査データ22万件を収集し，食品中の汚染物の検出率，複数の汚染物による汚染状況を調査した。汚染物摂取量調査では，全国9カ所で各食品を通常の調理方法に従って調製したトータルダイエツト試料を調製し，その汚染物濃度を測定して，1日当たりの汚染物摂取量を推定した。

### 汚染物摂取量調査協力研究者

酒井洋，土田百合子（新潟県保健環境科学研究所），長谷川康行，橋本博之（千葉県衛生研究所），日高利夫，高橋京子（横浜市衛生研究所），田村征男，加藤陽康（名古屋市衛生研究所），田中之雄，阿久津和彦（大阪府立公衆衛生研究所），小嶋美穂子（滋賀県立衛生環境センター），西岡千鶴（香川県環境保健研究センター），玉那覇康二，古謝あゆ子（沖縄県衛生環境研究所）

### 汚染物モニタリング調査協力機関

北海道立衛生研究所，札幌市衛生研究所，青森県環境保健センター，岩手県環境保健研究センター，宮城県保健環境センター，仙台市衛生研究所，山形県衛生研究所，福島県衛生公害研究所，栃木県保健

環境センター，群馬県衛生環境研究所，埼玉県衛生研究所，東京都健康安全研究センター，神奈川県衛生研究所，横浜市衛生研究所，山梨県衛生公害研究所，新潟県保健環境科学研究所，新潟市衛生研究所，富山県衛生研究所，石川県保健環境センター，福井県衛生環境研究センター，岐阜県保健環境研究所，静岡県環境衛生科学研究所，三重県科学技術振興センター保健環境研究部，滋賀県立衛生環境センター，京都府保健環境研究所，京都市衛生公害研究所，大阪府立公衆衛生研究所，大阪市立環境科学研究所，堺市衛生研究所，神戸市環境保健研究所，姫路市環境衛生研究所，尼崎市衛生研究所，奈良県保健環境研究センター，鳥取県衛生環境研究所，島根県保健環境科学研究所，岡山県環境保健センター，広島県保

健康環境センター，徳島県保健環境センター，香川県環境保健研究センター，高知県衛生研究所，福岡県保健環境研究所，福岡市保健環境研究所，佐賀県衛生薬業センター，長崎県衛生公害研究所，宮崎県衛生環境研究所，沖縄県衛生環境研究所

## A 研究目的

近年、魚中の水銀をはじめ種々の化学物質の環境・食品汚染，及びヒトにたいする曝露や健康影響に関する国民の不安が広がり、社会的関心が高まっている。これら化合物のヒトへの曝露はその90%以上が食事を介していると考えられており、食品中の有害物質の量とその分布状態を明らかにして食品の安全性を確保することは、食品衛生における基本課題である。食品中の化学物質分布は非常に不均一であり、汚染状態を正確に把握するためには、多数の食品中の汚染物濃度データを全国的に継続的に収集し、解析しなくてはならない。また、食品中の汚染物へのヒトの曝露状態を把握するためには、単に個々の食品の濃度のみならず、日本人がその食品をどのくらい食べているかも考慮しなければならない。また、食品を調理加工した場合の汚染物レベルの変化も考慮する必要がある。日常的に摂取される食品の形態に基づいた推定が必要である。前者の目的のために、汚染物モニタリング研究，後者の目的のためにマーケットバスケット方式による汚染物摂取量調査研究を行った。

## B. 研究方法

1) 汚染物摂取量調査 全国9カ所でマーケットバスケット方式によるトータルダイエット試料を調製した。各食品の摂取量は、平成13年度に行われた国民栄養調査の結果を地域別に集計した結果によった。各地の小売店から食品を購入し、茹でる、焼く等の一般的な調理を行って

から、一日摂取量に従って混合して試料とし、重金属、農薬等の汚染物濃度を測定した。濃度と食品の摂取量から、人1日あたりの食事からの汚染物摂取量を推定した。

なお、本年から国民栄養調査方式の変更に伴って、あらたな食品分類に従って試料を調製した。食品群の変更点をTable 1に示す。この結果、従来加工食品のみであったⅩⅢ群に、味噌・マヨネーズ等の調味料が加わり、摂取量が増加した。さらに、食品の重量の計量方式も変更となり、米は炊飯後の重量、めん等もゆでた後の重量となった。春雨、切り干し大根、ひじきのような乾物は水戻し後重量となり、茶・コーヒー等は水で抽出した出来上がり量となった。この結果、Ⅰ群とⅨ群の重量が大幅に増加した。

2) 汚染物モニタリング調査 全国48カ所の地方衛生研究所から食品中の汚染物分析データ30万件を収集した。収集はあらかじめ入力用のフォームを入れたフロッピーディスクに入力する形式で行った。入力用フォームには、誤入力をチェックするプログラム(Microsoft Excel VBA)を含めておき、各協力者があらかじめ誤入力をチェックした後に送付し、無効なデータが入らないようにした。

国立医薬品食品衛生研究所食品部に送付されたデータは再度エラーチェックを行い集計した後、食品部サーバー上に構築したデータベースに追加した。

## C. 研究結果

### 1) 汚染物摂取量調査

Table 2に全参加機関から報告された、ヘキサクロロシクロヘキサン(HCH)類、DDT類、ディルドリン、ヘプタクロル、HCB、PCB、有機リン系農薬類(マラチオン、MEP、ダイアジノン)、金属類(鉛、カドミウム、ヒ素、水銀、銅、マンガン、亜鉛)の総摂取量の2000~2004年の年次推移を示す。代表値として、9箇所(平均値(mean)と中央値

(median)を示した。平均値については、NDの場合に濃度0とした場合(ND=0)と、定量下限の1/2の濃度とした場合(ND=1/2LQ)の2種類を示した。HCH類の中で摂取量の多いβ HCH摂取量の平均値は2002年、2003年に低下傾向を示したが、2004年はさらに低下した。一方、γ HCHが例年より増加したために、総HCHにはやや増加した。HCHを検出した機関は少ないために、中央値は個々の異性体、送料ともに0(ND)となった。総DDTの平均値は2002年まで減少傾向がみられたが、2002～2004年は平均値・中央値共にほぼ一定の値であった。ディルドリン及びHCBは例年よりもかなり大きな値となった。HCB及びPCBについては大きな変化は見られなかった。

有機リン系農薬3種類については、マラチオンが2カ所で、MEP及びダイアジノンがそれぞれ1カ所で検出された。千葉県では、Ⅷ群で高濃度のマラチオンが検出された。Ⅷ群調製に使用した野菜及びⅧ群試料の再測定を行ったところ、セロリにおいて0.2 ppmのマラチオンが検出された。Ⅷ群の濃度は最初の測定では0.16 ppmであったが、再測定では0.04 ppmとなりかなり小さい結果であった。セロリのような野菜は粉碎されにくいために、試料中の分布が不均一となりやすく、このため2回の測定値が大きく異なると考えられる。

金属類中、鉛は2003年に比較して25 %程度摂取量が増加した。特に、9群(嗜好品)からの摂取量の増加が顕著である。9群は調味料類が13群となったために、含まれる食品は減っているが、茶・コーヒーを水抽出して摂取する状態として計量することとされ、全体の重量は増加している。この結果、市販のペットボトル入り飲料等の扱いが変わった点が、2003年までとは異なっている。他の金属等は例年と同程度の値であった。

また、表には含まれていないが、各機関が自主的に分析したクロルピリホスメチルが高率で検出された。クロルピリホスメ

チルが検出されるのは、ほとんどが2群(雑穀)及び3群(砂糖・菓子)で、小麦への残留の可能性が高い。

Table 3に、各汚染物の食品群別摂取量を、Table 4には地域別比較を示す。また、Figure 1には汚染物の摂取量を食品群別毎にグラフで示した。HCHは魚介及び加工食品から、DDTを初め塩素系の農薬及びPCBは主として魚介の群から摂取されている。Pb及びCdは米からの摂取が最も多く、ヒ素は野菜海草及び魚介からの摂取が多かった。

## 2) 汚染物モニタリング調査

平成13年から16年に報告されたデータ数、汚染物検出状況をTable 5に示した。本年度は300,070件のデータが報告され、食品部サーバーには累計約380万件のデータが保存されている。

何らかの汚染物が検出されたデータは4,695件あり、検出率は1.6%で最近4年間の中で最も低率であった。また、報告されたデータの総試料数は22,164件であり、このうち何らかの汚染物が検出された試料は2,717あった。これより、試料数を基本とした検出率は11.7%となった。平成15年は16.2%、平成14年は21.6%、平成13年は24.2%で、試料をベースとした検出率も低下傾向にある。

検査数は非常に増加しているが、農薬・動物薬以外の汚染物データの数はほとんど増加していない。従って、最近の未承認農薬検出事件の発生、ポジティブリスト化が近づいていることから、農薬等の検査が増加したものと考えられる。

検査された汚染物は498種類であり、そのうち、農薬・動物薬等の意図的汚染物が418種類であった。昨年度検査された農薬数は386種類で、年々検査対象となる農薬は増加している。平成18年度にポジティブリスト制が施行されると、検査される汚染物の種類は急激に増加していくと予想される。

農薬等に限定した試料ベースの検出率

は5.9%で、昨年度の11.1%よりも大幅に減少した。この傾向が今後も継続し、検出率が低下するのかが注目する必要がある。

検査数の多い食品をTable 6に示す。平成14年には、牛肉・卵・豚肉・鶏肉・牛乳等の動物性食品が上位を占めているが、15年度は日本なしの検査数が1位であった。これは無登録農薬であるカプタホール（ダイホルタン）がなしに使用されるという事件の影響と考えられ、16年度は検査数の上位になしは入っていない。16年度は、野菜類の検査数が大きく増加している。最も検査数の多かったねぎは、16年度の3.4倍、ブロッコリーは2.7倍、きゅうりが2.7倍と全体的に検査数が増加した。

農薬等の検出率の高い食品は、オレンジ、グレープフルーツ、レモン等の柑橘類（オルトフェニルフェノール、チアベンダゾール、イマザリル等）で、柑橘類における汚染物の検出率は20~25%程度であった。その他の検出率の高い食品は未成熟えんどう(27%)、りんご(19%)、日本なし(16%)、チンゲンサイ(13%)、すいか(12%)、きゅうり(11%)、ほうれんそう(10%)であった。検出率の高い食品は昨年度と同様であるが、検出率自体は低下している。未成熟えんどうに関しては、昨年度と同程度の高い検出率であった。

グレープフルーツ等の柑橘類は、イマザリル、チアベンダゾール、オルトフェニルフェノールのような防カビ剤の複数残留が多く見られた。柑橘類の他に1検体当たりによくの農薬が検出された野菜・果実の例をTable 7に示す。複数残留が多く見られた作物は、りんご、桜桃、なしのような果実と未成熟インゲンであった。1件であるが、食用菊において7種類の農薬が検出された。

検査数の多い汚染物をTable 8に示す。平成15年度のデータと同様にクロルピ

リホス、マラチオン、フェニトロチオン、等の有機リン系農薬、ペルメトリン、シペルメトリン等のピレスロイド系農薬の検査数が多かった。

検出率の高い汚染物は、水銀、カドミウム、PCB、有機スズ、ヒ素等で、これらは魚介を中心とした試料から30%以上と高率で検出されている。次いで、鉛、クロム等の有害金属、オルトフェニルフェノール、イマザリルが20%以上の検出率であった。検査数の多いクロルピリホス等の農薬の検出率は、最も高いプロシミドンでも4%程度で、大部分の農薬の検出率は2%以下であった。

#### D. 結論

9機関の協力の下に行われた日常食からの汚染物質摂取量調査研究（トータルダイエツトスタディ）の結果、食品中有機塩素系農薬、PCB、有害金属等の摂取量は、例年通りであり、特に増加した汚染物は見られなかった。

汚染物モニタリング調査においては48機関からのデータを収集しデータベース化するとともに、一部をWHOに送付し、国際的調査に協力した。農薬等の意図的汚染物の検出率は、試料数を基準として5.9%であり、過去4年間で最低であった。また、徐々に低下している傾向が見られた。

外部機関からの依頼により、データベースから鉛分析データを検索して、平均値、中央値、パーセンタイル値を提供した。

#### E. 研究発表

##### 1. 論文発表

特になし

##### 2. 学会発表

松田りえ子、五十嵐敦子、豊田正武\*、米谷民雄：トータルダイエツト試料により推定した汚染物摂取量