

200939003B

厚生労働科学研究費補助金

食品の安心・安全確保推進研究事業

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19年度～21年度 総合研究報告書

研究代表者

国立医薬品食品衛生研究所

松田りえ子

研究分担者

国立医薬品食品衛生研究所

渡邊 敬浩

国立医薬品食品衛生研究所

堤 智昭

国立医薬品食品衛生研究所

長岡 恵

国立保健医療科学院

杉山 英男

差替版

目 次

I. 総合研究報告	
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
研究代表者 松田りえ子	
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	
渡邊敬浩	
摂取量調査の信頼性向上に関する研究	
松田りえ子, 渡邊敬浩, 長岡 恵	
硝酸塩の摂取量推定に関する研究	
松田りえ子	
芳香族炭化水素の摂取量に関する研究	
堤 智昭	
食品中の放射性核種の摂取量調査・評価研究	
杉山 英男	
II. 研究成果の刊行に関する一覧表	29
III. 研究成果の刊行物・別刷	

総 合 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

厚生労働科学研究費補助金（食品安心・安全確保推進研究事業）
平成 19～21 年 総合研究報告書

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
研究代表者 松田りえ子 国立医薬品食品衛生研究所食品部長

研究要旨

食品安全性評価のために広範囲の食品中の有害物質に係わる汚染データの収集、各種有害物質摂取量の推定、摂取量推定方法の改良について研究を実施した。

日常食の汚染物質摂取量調査研究及びモニタリング調査研究では、平均的な日本人の食事を再現したトータルダイエット(TD)試料を用いて、有機塩素系農薬、PCB、有害金属等の汚染物の摂取量を推定し、ADI との比較をおこなった。有機塩素系農薬類、有機リン系農薬類、PCB 摂取量の対 ADI 比は 1%以下で低いレベルにあったが、鉛は 7%、カドミウムでは 47%で、有機塩素系あるいは有機リン系農薬に比較して非常に高い値であった。汚染物モニタリング調査においては全国の機関からのデータを収集しデータベース化した。収集したデータ数は 3 年間で 170 万件である。農薬等の意図的汚染物の検出率は、試料数を基準として 15～20%であった。1 試料当たりを検査される農薬数も増加しており、ポジティブリスト制に伴い公開された一斉試験法が検査に導入されるに伴い、広範囲の農薬等を一斉に検査する方法が一般的になってきたためと考えられる。これらの研究課題は、1977 年から長期間継続して実施されており、食品の安全性を全体的に評価するとともに経年的な変化を把握することを目的としている。

摂取量調査の信頼性向上に関する研究では、より精確な摂取量推定手法の確立を目的として、平成 19 年度に各種の摂取量推定方法の調査、平成 20 年度に複数の推定方法によるトランス脂肪酸摂取量の比較を行った。異なる方式によって推定されたトランス脂肪酸(TFA)摂取量を比較した結果、個別食品摂取量から推定する方式では、試料に含める食品の種類により推定結果に大きな差が現れる可能性が考えられた。また、一種の陰膳方式である one serving 試料から得られた TFA 摂取量は、個別食品からの推定値に比較して大きな値となった。食品の摂取形態が多様化していることを考慮すると、調理によりその濃度が大きく変動する可能性のある物質の摂取量調査では、TD 試料による方式では正しい推定ができない場合があることから、その補正方法を検討する必要があると考えられた。平成 21 年度は、TD 試料作成の根拠としている国民健康・栄養調査が対象としておらず、食品摂取のデータが得られていない乳児における摂取量推定方法を検討する目的で、モデル離乳食を作成し鉛の摂取量を推定した。

硝酸塩の摂取量推定に関する研究では、平成 19 年度に TD 試料を分析し、食品からの硝酸塩の摂取量を推定するとともに、主要な摂取源となる野菜を特定した。この結果を基に、平成 20 年度は、大根、レタス、ホウレンソウ中の硝酸塩濃度の周年変動を調査し、ホウレンソウから摂取される硝酸塩が一日の総摂取量の 1/3 以上を占めており、ホウレンソウ中の硝酸塩濃度を低下させることが、硝酸塩摂取量を引き下げる有効な方策であることを明らかにした。

発ガン性の疑いがある物質を多く含む、多環芳香族炭化水素 (PAHs) を摂取量推定対象として取り上げ、検討対象とする PAHs の種類、および TD 試料のような複雑な

マトリクス中の PAHs を分析可能な方法の文献調査を行った。

放射性核種の摂取量調査研究では、放射性核種の 1 日摂取量ならびに曝露量（実効線量）に関する評価を行う事を目的として、全国 11 地域で TD 試料を調製し、 γ 線放出核種（人工および天然）ならびに α 線放出核種のポロニウム (^{210}Po) を分析し、各核種の摂取量並びに曝露量を推定した。

研究分担者

松田りえ子	国立医薬品食品衛生研究所
渡邊 敬浩	国立医薬品食品衛生研究所
堤 智昭	国立医薬品食品衛生研究所
長岡 恵	国立医薬品食品衛生研究所
杉山 英男	国立保健医療科学院

研究概要

近年、輸入食品から鉛あるいは農薬が検出されるなど、種々の化学物質による食品の汚染、さらにヒトに対する曝露や、それに伴う健康影響に関する不安が国民の間に広がり、社会的関心が高まっている。これら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、食品に含まれる有害化学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。本研究では、食品の摂取量からを正確に把握し、リスク評価に資することを目的とし

- ・ 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（平成 19-21 年度）
- ・ 摂取量調査の信頼性向上に関する研究（平成 19-21 年度）
- ・ 硝酸塩の摂取量推定に関する研究（平成 19-20 年度）
- ・ 芳香族炭化水素の摂取量に関する研究（平成 21 年度）
- ・ 食品中の放射性核種の摂取量調査・評価研

究（平成 19-21 年度）

を行った。

日常食の汚染物質摂取量調査研究及びモニタリング調査研究では、平均的な日本人の食事を再現したトータルダイエット(TD)試料を用いて、有機塩素系農薬、PCB、有害金属等の汚染物の摂取量を推定し、ADI との比較をおこなった。さらに、多数の食品の分析データを収集することにより食品全体の汚染状況を評価している。本課題は、1977 年から長期間継続して実施されており、食品の安全性を全体的に評価するとともに経年的な変化を把握することを目的としている。

摂取量調査の信頼性向上に関する研究では、より精確な摂取量推定手法の確立を目的として、平成 19 年度に各種の摂取量推定方法の調査、平成 20 年度に複数の推定方法によるトランス脂肪酸摂取量の比較を行った。平成 21 年度は、TD 試料作成の根拠としている国民健康・栄養調査が対象としておらず、食品摂取のデータが得られていない乳児における摂取量推定方法を検討した。

硝酸塩の摂取量推定に関する研究では、平成 19 年度に TD 試料を分析し、食品からの硝酸塩の摂取量を推定するとともに、主要な摂取源となる野菜を特定した。この結果を基に、平成 20 年度は、大根、レタス、ホウレンソウ中の硝酸塩濃度の周年変動を調査し、ホウレンソウから摂取される硝酸塩が一日の総摂取量の 1/3 以上を占めており、ホウレンソウ中の硝酸塩濃度を低下させることが、硝酸塩摂取量を引き下げる有効な方策であることを明らかにした。

硝酸塩に続く摂取量推定対象物質として、発ガン性の疑いがある物質を多く含む、多環芳香族炭化水素(PAHs)を取り上げた。平成 21 年度は、検討対象とする PAHs の種類、および TD 試料のような複雑なマトリクス中の PAHs を分析可能な方法の文献調査を行った。

放射性核種の摂取量調査研究では、放射性核種の 1 日摂取量ならびに曝露量(実効線量)に関する評価を行う事を目的として、全国 11 地域で TD 試料を調製し、 γ 線放出核種(人工および天然)ならびに α 線放出核種のポロニウム (^{210}Po) を分析し、各核種の摂取量並びに曝露量を推定した。

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

A. 研究目的

食品に含まれる有害化学物質の量及びその分布状態を明らかにすることは、食品の安全性を確保のみならず、健康へのリスク評価に重要であり、食品衛生における基本課題である。しかし、食品中の化学物質の存在分布を正確に知ることは非常に困難である。

化学物質は全ての食品中に均一に分布して

いるわけではなく、特定の食品に偏って存在することが多い。この偏在性が分布の把握の困難さの一つの原因である。一般に、偏在する分布の平均値等を推定するためには、サンプル数を多くすることによって、結果の信頼性を向上させなければならない。従って、食品中の化学物質濃度の分布を正確に把握には、多種多数の食品に含まれる化学物質の濃度データを全国的に収集し、解析することが必要である。

本研究では、食品に含まれる化学物質の濃度分布の推定を目的に、汚染物モニタリング調査研究を行った。また、有害であることが知られ、継続的に測定している化学物質(汚染物)の摂取量を推定するために、マーケットバスケット方式により調製した TD 試料を用いた、汚染物質摂取量調査研究を行った。

B. 研究方法

日常食の汚染物質摂取量調査では、地域による食品摂取パターンの違いについても考慮することを目的に、全国 10 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 14-16 年度の国民健康・栄養調査結果の平均値を使用した。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加工を行ってから、一日当たりの摂取量に従って秤量し、混合・均一化して試料とした。試料中の重金属、農薬等の濃度を測定し、得られた濃度と食品の摂取量を掛け合わせ、1 日あたりの食事からの汚染物質摂取量を推定した。摂取量調査の対象は、ヘキサクロロシクロヘキサン(HCH)類、DDT 類、ディルドリン、ヘプタクロルエポキシサイド(HCE)、ヘキサクロロベンゼン(HCB)、PCB、マラチオン、MEP、ダイ

アジノン, 鉛, カドミウム, ヒ素, 水銀, 銅, マンガン, 亜鉛とした。

汚染物モニタリング調査では, 毎年全国45-48カ所の地方衛生研究所から食品中の汚染物分析データを収集した。収集はあらかじめ入力用のフォームを配布し, それを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。このうち, FAO/WHO食品及び試料汚染物モニタリング計画に対応するデータを, WHOに送付した。

C. 研究結果及び考察

1. 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

Table 1 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2005(平成17)~2009(平成21)年の年次推移を示す。代表値として, 10機関の平均値(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。

過去5年間の総HCH類摂取量の平均値は, 平成18年の0.064 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ が最も高く, 平成21年度の0.016 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ が最も低い結果で

あった。また, 5年間を通じて, β 異性体の摂取量が最も大きかった。その他の異性体を含めて検出頻度が低いため, 中央値は0となることが多かった。

総DDT摂取量の平均値は0.3 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 付近でほぼ一定している。異性体中では, どの年もp,p'-DDEの摂取量が最も高かった。HCH類に比べ, DDT類の検出頻度は高いため, 中央値も0ではない値が得られている。ディルドリン摂取量は2004年から2009年にかけて減少傾向が見られている。一方, ヘプタクロルエポキシサイドは2008年に非常に低い値となったが, 2009年は以前と同程度の摂取量となり, 大きな変化はみられない。2007年から低い値が継続している。これら有機塩素系農薬の検出頻度も50%以下となることが多く, 中央値には0が多く見られる。PCB摂取量は2005年に1 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ に近い値を示したが, 2006年以降本年度まで, 0.5 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 付近の値が継続している。PCBの検出頻度は高いため, 平均値と中央値は同程度の値となった。

有機リン系農薬のマラチオン, ダイアジノン, MEPは検出の頻度は低く, 摂取量の中央値は5年間を通じて0 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ であった。

鉛の摂取量は2009年に過去5年間で最も低い12.3 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ となった。カドミウム摂取量は, 5年間ほぼ一定の20 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 付近のレベルが継続している。水銀及びヒ素摂取量も5年間を通して大きな変化が見られていない。

ADIに対する摂取量平均値の比は, 有機塩素系農薬, 有機リン系農薬およびPCBにおいて1%以下であった。2009年の鉛の摂取量平均値の対ADI比は7%, カドミウムでは47%であり, 有機塩素系あるいは有機リン系農薬に比

較して非常に高い値となった。

食品群別の汚染物の摂取傾向は例年変化無く、HCH, DDT, PCB, Hg, As, Znは、魚介の群からの摂取が多かった。

汚染物モニタリング調査において、収集されたデータ数及び汚染物が検出されたデータ数の推移を Table 2 に示す。報告件数は過去4年間で毎年 50,000 件以上増加している。全検査数にしめる汚染物検出データの率(汚染物検出率)は 2006 年には 1.3%であったが、年々低下している。分析された試料の総数はデータ数が毎年 10%程度増加しているのに比較して、あまり増加していない。試料数に基づく検出率(検出試料率)は 25 ~30%の範囲で、汚染物検出率よりも遥かに高い。農薬・動物薬等の意図的汚染物のデータ数は全体の 99%程度であり、検出率は 1 %以下、検出試料率は 15~20 %で、いずれも汚染物全体よりも低い。検査対象とされた農薬等の種類は年々増加しており、これは、ポジティブリスト制度施行及びそれに伴う分析法の普及を反映した結果であると考えられる。農薬等に限定すると、2005 年には 1 試料当たり平均 47.7 農薬が分析されていたが、2009 年には 87.3 農薬に増加している。対象農薬の増加と共に、GC-MS(MS)あるいは LC-MS (MS)による一斉分析法が開発され、同時に分析できる農薬数が増加したため、試料当たりの対象農薬が増加したと考えられる。

2005 年から野菜・果実の検査数が減少し、卵・肉のような畜産製品の検査数が相対的に上位となっている。2007 年以前には加工食品はほとんど検査されていなかったが、2008 年に 318 試料が検査されたのに続いて 2009 年には 217 試料が検査された。これは 2008 年 1 月

に、冷凍餃子に農薬が混入された事件が起こり、各地で冷凍食品が多く検査された結果、加工食品中の農薬分析方法が開発されたためと考えられる。

農薬等の検出率の高い食品は、桜桃、西洋なし、りんご、オレンジ、レモン、スイーティ、グレープフルーツ、日本なし、いちごで、柑橘類を含め果実が主であった。1 検体当たり多くの農薬が検出された作物は、な桜桃、日本なし、いちご、りんご等の果実が多く、これらの果実は農薬等の検出率も高いことから、多くの農薬が使用されていることが考えられる。複数残留する農薬はクレソキシムメチル、クロチアニジン、アゾキシストロビン、フェンプロパトリン、アセタミプリド、プロシミドン、ペルメトリン、メチダチオン等で、これらの農薬は全体に検出率も高く、使用頻度が高いと考えられる。

D. 結論

10 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、有機塩素系農薬類、有機リン系農薬類、PCB、金属等の摂取量は、概ね例年通りであった。有機塩素系農薬類、有機リン系農薬類、PCB 摂取量の対 ADI 比は 1%以下で低いレベルにあったが、鉛は 7%、カドミウムでは 47%で、有機塩素系あるいは有機リン系農薬に比較して非常に高い値であった。水銀は有機水銀と無機水銀で毒性に差があり、メチル水銀としての TDI は 0.292 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ (=14.6 $\mu\text{g}/\text{day}$)である。2009 年の水銀摂取量の平均値は 8.0 $\mu\text{g}/\text{day}$ であり、これが全てメチル水銀であるとすれば、TDI 比はかなり高い。しかし、分析法の制限から総水銀を分析対象としているため、あくまで可能

性である。正しいリスク評価のためには、メチル水銀と無機水銀を個別に分析し、評価することが必要である。逆にヒ素では無機ヒ素に 15 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{week}$ (107 $\mu\text{g}/\text{day}$)の PTWI が設定されている。食品からのヒ素摂取が全て無機ヒ素であれば摂取量は PTWI を上回っていることになり、ヒ素においても水銀と同様に、有機ヒ素と無機ヒ素の個別の評価が必要であり、今後の検討課題である。

汚染物モニタリング調査においては全国の機関からのデータを収集しデータベース化した。農薬等の意図的汚染物の検出率は、試料数を基準として 15~20%であった。1 試料当たりには検査される農薬数も増加しており、ポジティブリスト制に伴い公開された一斉試験法が検査に導入されるに伴い、広範囲の農薬等を一斉に検査する方法が一般的になってきたためと考えられる。

E. 研究発表

1. 論文発表

なし

2. 学会発表

- 1) 渡邊敬浩, 松田りえ子, 五十嵐敦子, 米谷民雄: トータルダイエツトスタディーにより推定される有害物質摂取量の推移, 日本食品化学学会第 14 回学術大会(2008.5)

3. その他

- 1) トータルダイエツト試料を用いた食品汚染物の 1 日摂取量調査 1977~2007 年度, 国立医薬品食品衛生研究所食品部
- 2) 渡邊敬浩: トータルダイエツトスタディーでわかること, 第 7 回食品安全フォーラム (平成 21 年 11 月 30 日) 講演

摂取量調査の信頼性向上に関する研究

A. 研究目的

本研究の課題である, 日常食からの汚染物摂取量推定では, トータルダイエツト試料を用いた方法を採用している。この方法では国民全体の平均的な摂取量を評価できるが, 摂取量の分布が得られない, 平均から外れた食品摂取を行うグループの情報が得られない等の欠点がある。これらの欠点を補完し, 摂取量推定値の信頼性を向上することを目的として

平成 19 年: 摂取量推定方法とその特性に関する調査

平成 20 年: 複数の摂取量推定方法によって得られる結果の比較

平成 21 年: 乳児を対象とした摂取量推定方法の検討を実施した。

摂取量推定方法とその特性に関する調査

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法, モンテカルロ法, 陰膳法, 生産流通量から推定する方法, 行政検査による方法, 香料分野で用いられている PCTT 法等の摂取量調査方法についてその特徴, 国内外での実施状況を調査した。方式ごとに長所と短所があり, 用いた仮定に依存して過少あるいは過大な推定値が得られる場合もある。方法の選択は, 推定の目的, 費やせる費用・労力・時間などによる。

1. 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による推定

厚生労働省が残留農薬, 食品添加物, ダイオキシン類の摂取量調査に採用している。国民健康・栄養調査による各食品の摂取量を基

にして、市販食品から食品群別に試料を作成する。食品の性質により簡易な調理を施す。作成した試料中の対象化合物の濃度と食品群の摂取重量を掛け合わせて、目的物の摂取量を得る。この方法では国民全体の平均摂取量や特定地域内での平均摂取量が推定される。長所としては、実際の試料を分析するため、結果の信頼性が高い事があげられる。短所は、費用と労力がかかることである。また、国民健康・栄養調査の実施時期の制約から、季節性の食品の影響は反映されにくい。また、多くの食品を混合するため、分析値がNDとなりやすい傾向がある。

2. モンテカルロ法

最近のリスク管理においては、高曝露群の摂取量が必要となる場合が多い。その際によく用いられるのが、確率論的手法であるモンテカルロ法である。この方法を採用するためには、食品中の対象化合物の濃度分布と、その食品の摂取量の分布が必要である。それぞれを確率論的に多数回掛け合わせることで、その食品からの対象化合物の摂取量分布が得られる。結果の正しさは、2つの分布の正しさに大きく依存する。わが国における米中カドミウムの実質的規制値 0.4 ppm の正当性を Codex に示すために、この方法が用いられた。

3. 陰膳法

特定の家庭が1日に摂取したすべての飲食物について、同じ種類の同じ量の食品を集め、分析する方法と、1週間程度のモデル献立表を作り、その内容で調理したものを分析する方法がある。実際に食した、あるいは食する予定の食品を分析するため、正確な値が得られ、特定対象者群の調査に適している。

特定の個人の値であり、日によって食事内容が異なるため、得られる数値は大きな幅を示す。トータルダイエット法のような、どの食品(群)の寄与が大きいかの情報は得られない。

4. 生産流通量から推定する方法

食品添加物の摂取量を推定するために用いられる方法の1つである。食品添加物の製造・輸入・流通業者や食品加工業者にアンケート調査して、年間の生産量や輸入量、食品への使用量を推定し、得られた数値を人口と日数で割り算して一日摂取量を推定する。アンケート調査結果の信頼性が、推定の正しさを左右する。

この方法の特徴は個々の食品添加物としての値が得られることである。また、分析を伴わないため、コストは低い。短所は、アンケートに回答された量の全てが食品に使用されたかが確認できない点である。食品に使用されたとしても、最終的にその全部を摂取するわけではない。さらに、輸入食品中に使用されている量は把握できないため、適切に見積もる必要がある。そのため、専門家によるデータの検討がなされたとしても、過大に推定される傾向がある。

5. 行政検査結果を用いる方法

この方法も食品添加物の摂取量調査に用いられている。膨大な数の行政検査結果を有効に利用して摂取量を求める。食品中の含有量には行政検査結果の平均値を用い、食品の摂取量としては国民健康・栄養調査結果を使用し、両者を乗じて摂取量を推定する。長所は、既存データを有効利用するため、費用および人員が少なくすむことである。食品毎の寄与を明らかにもできる。短所は、行政検査が

実施される食品と食品添加物の組み合わせが偏っているため、特定の用途（保存料や甘味料など）の食品添加物の推定のみが可能となることである。

6. 食品香料化合物の摂取量を推定するための方法

わが国で使用されている食品香料化合物の数は膨大であるのに加え、食品中の香料化合物の残存量が少ないため、マーケットバスケット方式などの方法を用いることができない。そこで、香料化合物の摂取量を推定するための多くの方法が考案されている。方法は大きく2つに分類される。1つは、食品の摂食量と、その食品への香料化合物の添加量を乗じて、それらの総和を求める方法である。もう一方は、香料化合物の総生産量から推定する方法である。この分類に属する PCTT(Per Capita X 10)法は JECFA やわが国で香料化合物の安全性評価の際に用いられている方法である。

PCTT 法は、人口の 10%のみがその香料化合物を摂取する（消費者人口＝人口×0.1）として、年間生産量を基に計算する方法で、アンケート調査の報告率（60%や 80%の数値が用いられる）で補正される。生産流通量から推定する方法では国民平均を用いる所、安全性評価の点から消費者人口を 10%として計算する。この方法は迅速簡便であり、過小評価になることはない。一方、データの検証法、輸出入される食品香料製品の見積もり、業者間での階層的取引の重複回避など、難問も多い。

食品汚染化学物質や食品添加物の摂取量調査には多くの方法が使用されているが、どの方法にも長所と短所があるため、いくつかの

方法を併用して相互に比較し、調査を繰り返して実施することが必要と考えられる。

トランス脂肪酸摂取推定値の推定方法による違い

平成 19 年度の「摂取量推定方法とその特性に関する調査」では、それぞれの方法にも長所と短所があるため、いくつかの方法を併用して相互に比較し、調査を繰り返して実施することが必要と考えられる、との結論が得られた。そこで、食事を介してのみ摂取されるトランス脂肪酸(TFA)を例として取り上げ、TD 試料による方法で得られた摂取量推定値と内閣府食品安全委員会により実施された調査の結果として報告されたマーガリン等の個別食品摂取量からの推定値を比較した。さらに、実際に一食として販売されている弁当等の食品(one serving 試料)中の TFA を測定し、TD 試料からの推定値との比較を行った。食品安全委員会により報告された TFA 摂取量として、ファクトシート¹⁾及び食品に含まれるトランス脂肪酸の評価基礎資料調査報告書²⁾に掲載されている値を採用した。TD 試料ならびに one serving 試料からの摂取量は、国立衛生研究所食品部で実施された分析の結果から推定した。さらに、我が国で一般的に流通している弁当等の食品のうち、TFA の摂取に大きく寄与すると考えられたファーストフードの「ハンバーガー」と「ピザ」、および「洋食」、「中華」、「和食」に区分される弁当等の 50 試料中の TFA を分析し、one serving からの摂取量とした。

TFA 濃度及び国民健康・栄養調査に基づいた該当する食品の摂取量から推定（積み上げ方式）された一日摂取量は 0.70 g/man/day、食

用加工油脂生産統計によるマーガリン・ショートニング生産量とTFA濃度からTFA供給量を推定し、人口で割った値をTFA摂取量とした推定（生産量からの推計方式）では1.31 g/man/dayであった。さらに、11地域で作成したTD試料分析により推定したTFA摂取量は0.39–1.54 g/man/dayの範囲にあり、平均は約0.71 g/man/dayで食品安全委員会の積み上げ方式から推定した値、0.70 g/man/dayに近い結果となった。One serving 試料から摂取されるTFA量の分布は広く、1食当たり0.11–2.12 gの範囲にあり、平均は0.64 gであった。

食品安全委員会は、積み上げ方式は外食で摂取される水素添加油脂量が完全に反映されていない、積み上げの対象とすべき食品が漏れている、等の原因から過小に評価される可能性があるとしている。一方、生産量からの推定方式では、水素添加油脂の生産量に一定の損耗率(0.654)を掛けて推定しているが、この値が適切であるかの判断は困難であり、過大に見積もられる可能性があるとしている。

TD 試料により推定された食品群毎の寄与割合は乳・乳製品が含まれる12群から44%、次いで油脂の群（4群）から20%、魚の群（10群）から14%、肉の群（11群）から10%、パン・菓子の群（2群及び3群）は11%であった。積み上げ方式結果では、油脂から31%、パン・菓子類から26%、乳・乳製品から23%、肉類から12%を摂取していると推定されており、TD 試料による方式の結果と寄与の大きさ及び順位に差が見られた。

2地域のTD 試料では12群からの摂取量が非常に大きく、全体の50%を越えていた。この2地域で12群の試料に植物性脂肪から製造されたコーヒークリームが含まれていた。こ

の特定の製品はTFA含量が特に高いことが事前から明らかとなっており、この事がこれら2地域の12群の摂取量を大きくしている。これらの地域を除いて、摂取量への寄与を再計算すると、乳・乳製品から32%、油脂の群から26%、肉の群から13%、パン・菓子の群から15%となり、食品安全委員会の結果とやや近くなった。このように、摂取量調査対象を極端に高い濃度で含有する特定の食品がある場合には、個別食品の摂取量に基づく推定方式では、試料とする食品の選択が結果に大きな変動を与える要因となる可能性がある。

積み上げ方式では、外食で摂取される水素添加油脂量が完全に反映されていない可能性がある。また、TD 試料の調製においては、油の群が設定されており、他の群の食品の調理には油で揚げる方法は含めていない。このため、高温調理過程で生成されるTFAの量は推定されない。One serving 試料は、そのまま食することのできる完全に調理済みの食品試料であり、調理過程で生成するTFAが含まれていると考えられる。従って、one serving 試料からのTFA摂取量推定値は、TD 試料で過小評価となる要因の程度を見積もるデータとなると期待される。

one serving 試料一食からのTFA摂取量は0.11–2.12 gであるが、試料区分毎に明らかな違いが見られる。ハンバーガーとピザからのTFA摂取量はそれぞれ平均0.72 gおよび1.11 gであった。ピザからの摂取量の最小値は0.82 gであり、積み上げ方式あるいはTD 試料方式から推定されたTFA一日摂取量の平均値である0.7 gあるいは0.58 gを超えていた。和食及び中華弁当類一食からのTFA摂取量は平均0.29 g (0.11–0.63 g) であり、TD 試料方式で

推定した一日摂取量(0.58 g/man/day)の50%程度であった。選択した試料には、揚げたあるいは炒めた副食が多く含まれていた。TD試料の調製過程にはこのような調理を含めていない事が原因となり、one serving 試料からの推定値がTD試料から推定した一食分(一日摂取量の1/3)よりやや高くなった可能性がある。洋食の弁当からのTFA摂取量の範囲は広く、最小は0.14 gで中華・和食と同程度であったが、最高は1.86 gでピザ等よりも高い結果となった。

One serving に類する食事の摂取量は、国民健康・栄養調査特別集計結果からは不明であるが、2007年の総務省家計支出調査によれば、弁当の100世帯当たりの購入頻度は2147であり、1世帯が年間21回弁当を購入すると考えられる。同様に、和食・中華・洋食・ハンバーガー・主食的外食に分類される外食の頻度は年間53回である。これを合計すると年間74回、1日当たり0.2食の外食あるいは弁当を摂取することになる。今回調査したone serving 試料に含まれるTFA量は平均0.64 g(0.11-2.12 g)であった。この1/5の0.13 gが外食によるTFA摂取への寄与と推定された。

異なる方式によって推定されたTFA摂取量を比較した結果、個別食品摂取量から推定する方式では、試料に含める食品の種類により推定結果に大きな差が現れる可能性が考えられた。また、一種の陰膳方式であるone serving 試料から得られたTFA摂取量は、個別食品からの推定値に比較して大きな値となった。食品の摂取形態が多様化していることを考慮すると、調理によりその濃度が大きく変動する可能性のある物質の摂取量調査では、TD試料方式では正しい推定ができない場合

があることから、その補正方法を検討する必要があると考えられた。

乳児を対象とした摂取量推定方法の検討

平成19年度の結果でも述べられているように、TD試料方式による推定では、対象とした集団における平均的な摂取量を評価できるが、平均から外れた食品摂取を行うグループについての情報は得られない。特に有害物質への感受性が高く、ハイリスクグループとされる集団についての評価は、平均的な食品摂取量を基本とした推定では不十分である。乳児はハイリスクグループと考えられるが、国民健康・栄養調査においても乳児の食品摂取量は調査されておらず、そのデータに基づき、乳児を対象としたTD試料を調製すること及びその分析により得られる結果に基づき有害物質摂取量の推定・評価を行えない状況である。本研究では、乳児の有害物質摂取量評価手法の確立を目的として、乳児の平均的な食事試料の作成を試みた。また作成した試料中の鉛濃度を測定し、乳児における鉛摂取量を評価した。

平成7年12月4日に厚生省児童家庭局母子保健課長から通知された、改定「離乳の基本」中の付表「離乳食の進め方の目安」を基本として、家庭で調理する離乳食のTD試料に当たるモデル離乳食試料を作成した。モデル離乳食試料は、「離乳食の進め方の目安」に従い、1. 穀類、2. 卵・豆腐・乳製品・魚・肉類、3. 野菜・果実、4. 油脂・砂糖の4群に分けて作成し、初期・中期・後期のそれぞれに3種類の試料を作成した。モデル離乳食試料調製に用いる材料食品はそれぞれ産地等の異なる3銘柄を購入して、組み合わせの異なる

試料3種類を作成した。離乳期、特に初期には母乳又は調製粉乳の摂取量が多いため、市販の乳児向け調製粉乳及び離乳後期のステップアップミルクをそれぞれ5製品購入し試料とした。

乳児期にはベビーフードの使用も多いことから、市販ベビーフード35種類を購入し試料とした。離乳食と同様に、離乳初期、中期、後期向けの製品を選択した。

日常食からの汚染物摂取量調査において、PTWI比として10～20%の摂取量となっている鉛を、分析対象とした。鉛のPTWIは、JECFAにより乳幼児で25 µg/kg bw/week (3.5 µg/kg bw/day)とされている(1986)。

鉛の分析は、硝酸・硫酸分解後、原子吸光法によって実施し、各試料について3回測定した。定量限界は0.01 µg/gとした。また、測定ブランクの標準偏差が0.00093 µg/gであったことから、その3倍の0.003 µg/gを検出限界とした。

調製粉乳試料からは定量限界を超える値が得られたが、他の試料からの結果は、ndあるいは検出限界以上定量限界未満となった。平均値の計算は、ndであった測定値を0 µg/gとする及び検出限界の1/2である0.0015 µg/gとする2つの方式で行った。

ndである分析結果の割合は、市販のベビーフードでは88.6% (105測定値中93)あり、nd以外の分析値は0.0030～0.0049 µg/gの範囲であった。試料毎の3測定結果の平均値は0(全ての測定値がnd)～0.0040 µg/gの範囲であった。モデル離乳食では測定結果の63.6% (99測定値中63)がndであり、nd以外の分析値は0.0035～0.0058 µg/gの範囲であった。試料毎の3測定結果の平均値は0(全ての測定

値がnd)～0.0045 µg/gの範囲であった。全体としてベビーフードの方がndの割合が高く、鉛濃度が若干低いと考えられた。

調製粉乳中の鉛濃度は、0.0116～0.0147 µg/gの範囲であった。この濃度はベビーフードあるいはモデル離乳食よりも数倍以上高かった。

試料中の鉛濃度及び食品の1日摂取量から、乳児における鉛の1日摂取量推定を試みた。鉛濃度として、作成した3試料の平均値を用いた。平均体重は平成12年度の厚生労働省調査結果を参照した。

ndを0 µg/gとして推定した乳児の鉛1日摂取量は、離乳初期には0.220 µg/kg/day、中期は0.185 µg/kg/day、後期は0.177 µg/kg/dayとなった。前述のように調製粉乳中の鉛濃度は、モデル離乳食試料よりも高く、また離乳初期においては調製粉乳の全食事中の割合が高いことから、このような減少傾向が見られている。一方、ndを0.0015 µg/gとして推定した鉛摂取量は、初期から後期にかけて0.22～0.24 µg/kg/dayとなり、月齢による変化は認められなかった。

市販ベビーフードの1包装に含まれる鉛の量は、ndを0 µg/gとした場合は1包装当たり0～0.319 µg、ndを0.0015 µg/gとした場合は0.0015～0.319 µgであった。ベビーフードの平均的な1日当たり摂取量のデータが得られていないため、モデル離乳食と同じような摂取量推定は困難であるが、ベビーフード中の鉛濃度はモデル離乳食よりも低いことから、離乳食を全てベビーフードに置き換えたとしても、モデル離乳食よりも低い摂取量となると考えられる。

また、離乳開始前の4ヶ月児が1日135 gの調製粉乳(調乳後は1000 mL)を飲むとする

と、鉛の摂取量は 1.7 μg となる。4 ヶ月児の平均体重は 7.04 kg であるので、摂取量は 0.25 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ と推定され、離乳期よりも高い摂取量となった。

鉛の PTWI である 25 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{week}$ は 3.57 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ に相当する。今回モデル離乳食及び調製粉乳の分析から推定した、離乳期の乳児における鉛の 1 日摂取量は、最大に見積もって 0.22~0.24 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ で、PTWI の 10% 以下であった。また、離乳前の乳児では、離乳期よりもやや高い摂取量となる傾向が認められた。

離乳初期から後期にわたり、鉛摂取への寄与が最も大きい食品は、調製粉乳であった。今回の推定では調製粉乳のみを考慮しており、母乳からの摂取量は推定されていない。正確な摂取量推定のためには、母乳中の鉛濃度のデータ及び母乳と調製粉乳の摂取割合が必要であり、乳児における有害物質の摂取量推定においては、これらのデータの整備が重要と考えられる。

乳幼児は鉛曝露により脳に影響を受けるとされている等、乳児における摂取量の推定はリスク評価に重要である。しかしながら、摂取量推定に重要な食品の摂取量データが乳児において整備されておらず、標準的な推定方法が確立されていないのが現状である。本研究では、厚生労働省の離乳指導等を参考にし、離乳食のモデル献立を作成して試料を調製し、鉛摂取量を推定した。結果は、成人の鉛摂取量と同程度であり、PTWI に対する比は 7% 程度であった。一方、今回の推定方法では母乳及びベビーフードの寄与を十分に考慮することができなかった。今後は、これらの寄与の評価方法を検討し、乳児における正確

な有害物摂取量の評価法を確立することが重要である。

E. 研究発表

1. 論文発表

なし

2. 学会発表

- 1) トータルダイエツト試料の分析によるトランス脂肪酸摂取量の推定, 渡邊敬浩, 松田りえ子, 米谷民雄, 第 95 回 日本食品衛生学会学術講演会 (平成 20 年 5 月 15-16 日)
- 2) 日常食からのトランス脂肪酸摂取量の推定, 渡邊敬浩, 高附 巧, 樽見和枝, 松田りえ子, 第 45 回全国衛生化学技術協議会年会 (平成 20 年 11 月 13-14 日)

3. その他

なし

硝酸塩の摂取量推定に関する研究

A. 研究目的

硝酸塩は植物中に含まれる成分であり、さらに発酵調整・発色の目的で食品添加物としても使用されている。硝酸塩自体の毒性は特に高いわけではないが、体内で代謝され亜硝酸塩に変化すると、メトヘモグロビン血症を引き起こす。また、亜硝酸塩がアミンと反応するとニトロソアミンが生成する。ニトロソアミンには強い発ガン性があることが知られている。このことから、EU はレタスとホウレンソウについて、硝酸塩の最大基準値を定めている。また、JECFA は硝酸塩の一日許容摂取量(ADI)として 3.7 mg/kg/day を定めている。

平成 15 年には、国内 3 カ所で作製した TD 試料を用いて、硝酸塩の摂取量調査が行われ、硝酸塩総摂取量は 184~227 mg/man/day、体重当たりでは 3.7~4.5 mg/kg/day と推定された。この値は、JECFA の定めた ADI を超えていた。この推定結果は試料数が少ないこと、さらに国民健康栄養調査の方式が変更され、対象となる食品等が増加したことから、全国 11 カ所の衛生研究所及び大学で調製した TD 試料中の硝酸塩濃度を測定し、現時点での硝酸塩摂取量実態調査を試みた。

EU はホウレンソウ、レタス類について硝酸塩の基準を定めており、ホウレンソウでは 4 月~9 月は 2,500 mg/kg、10 月~3 月は 3,000 mg/kg と、冬季の方が高く設定されている。また、レタス類も種類、露地栽培か施設栽培かにより基準値は異なっているが、やはり冬季の方が高く設定されている。これは、実際の濃度を勘案して定められたと考えられる。

TD 試料は夏から秋に調製されるため、冬

季の方が野菜中の硝酸塩濃度が高いとすれば、年間を平均した硝酸塩摂取量は 4.0 mg/kg bw/day よりも高い可能性がある。これを確認するために、硝酸塩濃度が高いことが報告されており、一年中販売されている野菜として、大根、レタス、ホウレンソウ中の硝酸塩濃度の年間変動を調査した。

B. 方法

試料

TD 試料は、「日常食の汚染物摂取量調査研究」と同様に作成した。

大根、レタス、ホウレンソウは、年間 6 回 (3, 5, 7, 9, 11, 1 月) 小売店から購入した。各回に産地の異なる 5 試料を選定した。

分析

試料 5 g に 0.5 mol/L 水酸化ナトリウム溶液 16 mL、80°C の水 30 mL、酢酸亜鉛溶液 (9→100) 16 mL を加えて、攪拌しながら 80°C で 20 分間加温後、室温まで冷却し水を加えて 100 mL に定容した。遠心分離した上清を、シリンジフィルターでろ過し、HPLC で分析した。野菜試料はタンパク量が少ないために、酢酸亜鉛溶液の添加は行わなかった。

HPLC 条件

カラム : Shodex Asahipak NH2P-50 4E, 4.6 mm×25 cm + 4.6 mm×1 cm

カラム温度 : 50°C

移動相 : 0.1 mol/L 過塩素酸ナトリウムを含む 10 mmol/L リン酸塩緩衝液

流量 : 1.0 mL/min

測定波長 : 210 nm

C. 研究結果及び考察

各群の硝酸塩濃度の平均値は、有色野菜群 (7 群) の濃度が約 700 µg/g で最も高く、そ

他の野菜の群（8群）がそれに続き、この2つの食品群中の硝酸塩濃度は他の群の20倍以上であった。雑穀（2群）、菓子（3群）、果実（6群）の群の硝酸塩濃度は平均20 µg/g程度であった。その他の食品群、米（1群）、油脂（4群）、豆類（5群）、魚介（10群）、肉・卵（11群）、乳製品（12群）では硝酸塩濃度は低く、10 µg/gを超える試料は見られなかった。

摂取量は140~250 mg/man/dayの範囲、平均は200 mg/man/dayであり、平成15年の調査結果184~227 mg/man/dayとほぼ同様であった。摂取量平均値200 mg/man/dayを体重当たりとすると、4 mg/kg/dayとなり、JECFAが定めた硝酸塩の一日許容摂取量(ADI) 3.7 mg/kg/dayを8%程度超えていた。食品群毎の濃度から予測されるように、野菜の2つの群からの摂取が90%以上であり、他の食品群からの摂取は全体として僅かであった。

今回の調査結果の平均である200 mg/man/dayは、平成10~11年及び15年の調査とほぼ同程度である。この結果から、日本人の硝酸塩摂取量は、JECFAの設定したADIをやや超えていることが示された。いずれの摂取量調査においても、硝酸塩は大部分が果実・野菜・海草の群から摂取されていた。

ハウレンソウ宙の硝酸塩濃度は3560 mg/kg、ターサイは670 mg/kg、チンゲンサイは3150 mg/kg、しゅんぎくは4410 mg/kg、サラダ菜は5360 mg/kg、サニーレタスは1230 mg/kg、白菜は1040 mg/kg、大根は1060 mg/kgと報告されている。前の4種類は7群に、残りは8群に含まれる。ハウレンソウの一日当たりの摂取量は19.8 gである。ハウレンソウ中の硝酸塩濃度3560 mg/kgから摂取量を計算する

と1.4 mg/kg/dayとなり、ADIの38%に相当する。同様に白菜及び大根からの摂取量はそれぞれ0.4 mg/kg/day及び0.8 mg/kg/dayであり、これら3種の野菜でADIのほぼ70%を摂取していることになる。

大根中の硝酸塩濃度は、平均1,712 mg/kgで、最も平均濃度が高い月は3月、低い月は7月で、冬季に硝酸塩濃度が高い結果となった。しかし、一元配置分散分析からは、月間で有意の差は無いという結果が得られた。

レタス中の硝酸塩濃度の平均は1,057 mg/kgで、最も平均濃度が高い月は1月、低い月は7月で、大根と概ね同じ結果となった。しかし、硝酸塩濃度のバラツキは大根よりもやや小さく、一元配置分散分析によっても、月毎の濃度に有意の差があるという結論が得られた。EUの結球レタス中の硝酸塩の基準値は、冬季2,500 mg/kg、夏季は2,000 mg/kgである。今回のレタスの測定結果には冬季においても2,000 mg/kgを越える試料はなく、国内でのレタス中の硝酸塩濃度は、それほど高くはないことが示された。また、冬季(11-3月)の平均濃度は夏季(5-9月)の1.5倍程度であり、EUの基準値と同様な変動を示した。

ハウレンソウ中の硝酸塩濃度の平均は3,872 mg/kgで、最も平均濃度が高い月は9月、低い月は3月で、夏季に硝酸塩濃度が高く、大根及びレタスとは反対の結果となった。一元配置分散分析によっても月毎の濃度に有意の差があるという結論が得られた。夏季(5-9月)の平均濃度は冬季(11-3月)の1.5倍であった。EUのハウレンソウ中硝酸塩の基準値は夏季は2,500 mg/kg、冬季は3,000 mg/kgで、レタスよりもやや低く設定されている。今回の測定結果中、硝酸塩濃度が3,000 mg/kg

を越えるハウレンソウ試料は、30 中 20 試料であった。特に夏季は 1 試料を除く全ての試料が 3,000 mg/kg 以上の硝酸塩を含んでおり、6 試料は 5,000 mg/kg を越えていた。国内のレタスがヨーロッパの硝酸塩基準にほぼ適合していたのに比較して、ハウレンソウは基準を超える場合が多く、また夏季に際だって硝酸塩濃度が上昇することから、ヨーロッパと栽培条件等が異なっていることが推察される。

国民健康・栄養調査によれば、ハウレンソウの一日摂取量は 19.8 g である。ハウレンソウ中の硝酸塩濃度の平均値 3,872 mg/kg を用いれば、ハウレンソウから摂取される硝酸塩の量は 77 mg(1.54 mg/kg bw/day)と推定される。一日の硝酸塩総摂取量は 200 mg と推定されており、ハウレンソウからの摂取が 1/3 以上を占めていることになる。ハウレンソウの栽培方法等の変更によって、硝酸塩濃度を低下させレタス程度の 2,000 mg/kg とできれば、ハウレンソウからの硝酸一日摂取量は 40 mg(0.8 mg/kg bw/day)となり、現在の摂取量推定値の 4 mg/kg bw/day が 3.3 mg/kg bw/day まで減少し、ADI 以下となることが期待される。

E. 研究発表

1. 論文発表

- 1) 酒井信夫, 松田りえ子, 杉本敏明, 米谷民雄: 野菜及び野菜加工食品に含まれる硝酸塩について, 日本食品化学学会誌, 15, 110-115 (2008)
- 2) 松田りえ子, 渡邊敬浩, 五十嵐敦子, 白政優子, 米谷民雄: トータルダイエツト試料の分析による硝酸塩の摂取量推定, 食品衛生学雑誌, 50, 29-33 (2009)

2. 学会発表

- 1) 松田りえ子, 白政優子, 渡邊敬浩, 米谷民雄: トータルダイエツト試料分析による硝酸塩摂取量の推定, 日本食品化学学会第 14 回学術大会(2008.5)

多環芳香族炭化水素の摂取量に関する研究

A. 研究目的

多環芳香族炭化水素(PAHs)は芳香環を二つ以上持つ炭化水素化合物の総称であり、ベンゾ[a]ピレンをはじめ、発ガン性の疑いがある物質が多く含まれている。人におけるPAHsの主たる曝露経路は食品摂取であるため、PAHsの食品汚染濃度を明らかにすることは食品の安全を確保するために重要である。PAHsは多くの化合物からなるため、選定する分析法により測定対象となるPAHsが異なる。リスク評価のためには毒性が懸念されるPAHs、例えば欧州食品科学委員会(SCF)や食品添加物専門家会議(JECFA)でモニタリングするべきと提案されている数十種のPAHsを網羅的に分析する必要がある。しかしJECFA及びSCFが提案しているPAHsを対象にした食品汚染調査は国内では殆ど無く、早急な汚染状況の把握が必要とされている。そこで本研究では、食品からのPAHsの摂取量を把握するため、毒性が懸念されるPAHsを網羅的に分析できる分析法の文献調査を行った。

B. 方法

米国国立生物工学情報センター(NCBI: National Center for Biotechnology Information)が一般公開している医学関係文献データベース(PubMed)により、PAHs分析法に関する文献を検索した。食品中のPAHs分析に主に関係し、年代が新しい68報を選定し精読した。これらの

文献について、分析対象としている PAHs、食品種、及び分析法について精査した。

C. 調査結果及び考察

1. 分析対象 PAHs

1980年頃にEPAが人に有害であろうと指定した汚染物質の中に16種のPAHsが含まれている。そのため、2000年はじめまでの文献では、EPAが指定した16種のPAHsを対象にした報告が多い。しかし、SCFが毒性試験データに基づき、2002年に提出した意見書で15種のPAHsをリスク評価に優先すべきPAHsとした。さらに、2005年にはJECFAが、PAHs類縁化合物について毒性を議論し、そのうち13種のPAHsを遺伝毒性と発ガン性があるとして、モニタリングすべきPAHsとしている。またJECFAでは13種のPAHsの他、ベンゾ[c]フルオレン(BcL)についてもその存在量を把握するため、モニタリングすることが望ましいと推奨している。分析対象としては、少なくともSCFとJECFAがモニタリングすべきとしている15種のPAHs(EU15種)、を分析対象とすることが、リスク評価の観点から現時点で重要であると考えられる。文献調査の結果、2005年以降はこれらのPAHsを対象にした報告が増加している。

2. 対象食品の種類

PAHs汚染が懸念される油脂、燻製及び乾燥食品、魚介類を対象とした報告が殆どであった。EUでは、ベンゾ[a]ピレン(BaP)について食用油脂、魚介類などに1.0 µg/kgから10 µg/kgの基準値を設定している。そのため、EUにおける食品中のPAHs汚染調査、及びPAHs分析法の開発に関する報告が多い。また、中国でもベンゾ[a]ピレンについて食用油脂に基準値を設定している。

3. PAHs 分析方法

調査した68文献の内、高速液体クロマトグラフ/蛍光検出器(HPLC/FL)が38、ガスクロマトグラフィ/質量分析装置(GC/MS)が28(そのうちGC/MS/MSが3、GC/高分解能(HR)MSが2、GC/飛行時間型(TOF)MSが1)、GC/水素炎イオン化検出器(FID)が1、バイオアッセイが1であった。PAHsの検出にはHPLC-FL、又はGC/MSが主に用いられている。EU15種を測定対象とした場合は、SCFにより分析対象に追加されたシクロペンタ[cd]ピレン(CPP)が蛍光を持たないため、HPLC-FLで測定できない。そのため、CPPについては紫外分光検出器(UV)により検出するため、HPLCを用いた場合は測定感度が高くなる欠点がある。

一方、GC/MSは選択性が高く、さらには安定同位体を使用した高精度な分析法の開発も可能であることから、PAHsの分析法として主流になると考えられる。食品中のEU15種を対象にしたGC/MS分析については、近年になり報告が増えている。使用するGCキャピラリーカラムの種類によっては、対象となるPAHsが一部、分離しないことから注意が必要である。例えば、汎用される低極性のGCカラム(DB-5など)を使用した場合は、一般には、ベンゾフルオラテン類(BbF、BjF及びBkF)の分離が困難である。これらのPAHsについては合計した総量として測定される場合がある。最近では中極性のカラム(DB-17ms、VF-17ms等)を使用して、これらのPAHsの良好な分離を達成している。

また、実試料を測定した際は、試料中に存在する類縁化合物による妨害についても考慮する必要がある。最近ではGC/MS/MSを使用した分析法の例もあり、より選択性の高い検出法によるPAHsの定量が可能になりつつある。魚、及び油に含まれるEU15種を対象にしたGC/MS/MS分

析では、S/N 比の向上、及び試料由来の夾雑物の影響を排除できている。また安定同位体 (^{13}C ラベル体) を使用した内標準法により PAHs を定量しており、高精度な測定を可能にしている。

PAHs の試料からの抽出法としては、アルカリケン化、溶媒抽出(浸とう、超音波など)が主に用いられている。アルカリケン化は抽出と同時に脂肪などの夾雑物も分解できるため、PAHs の抽出法としてよく利用されている。また、最近では高速溶媒抽出装置(ASE)等を用いた高速溶媒抽出も利用されており、抽出時間を短縮に寄与している。精製操作については、フロリジルカラムクロマトグラフィー、シリカゲルクロマトグラフィー、ゲル浸透クロマトグラフィー (GPC) 等を組み合わせて利用している。

EU15 種の PAHs に対する検出下限及び定量下限については、EU の BaP に対する基準値が $1.0 \mu\text{g}/\text{kg}$ から $10 \mu\text{g}/\text{kg}$ であることから、HPLC/FL、及び GC/MS 共に検出下限が $1.0 \mu\text{g}/\text{kg}$ 未満であることが多かった。但し、HPLC/UV による CPP の測定は前述したように感度が悪く、 $10 \mu\text{g}/\text{kg}$ を超える場合もみられた

D. 結論

食品由来の PAHs の摂取量を把握するための適切な PAHs 分析法を調査した。EU15 種を分析対象に含む分析法としては GC/MS 法が有効であると考えられた。特に GC/MS/MS を使用し、安定同位体を使用した内標準法により PAHs を定量することで、信頼性の高い測定結果がえられると考えられる。

E. 研究業績

1. 論文発表

なし

2. 学会発表

なし

食品中の放射性核種の摂取量調査・評価研究

A. 研究目的

食品中の有害物質の量とその分布状況を明らかにし、さらに、公衆による摂取量を推定、評価することは食品の安心・安全確保の推進に資する上での一つの重要な課題である。

本研究では、日本国内に流通する各種の食品を対象として、日常的に摂取される消費量データに基づき調製したトータルダイエツト試料について、人工ならびに天然 γ 線放出核種、 β 線放出の人工放射性核種ストロンチウム (^{90}Sr) および天然放射性核種のポロニウム (^{210}Po) の測定、分析を行う。これらの実測データをもとにして、各種食品群における放射性核種濃度と国内地域分布を明らかにする。さらに、このデータをもとにして日本人固有の食事摂取形態による放射性核種の暴露量(摂取量ならびに被ばく線量)を算出し、推定評価することを目的としてトータルダイエツトスタディ(以下、TDS と表記する)を実施した。

B. 研究方法

本 TDS は平成 19 年度から平成 21 年度までの 3 年間、その研究方法は基本的に同一とした。調査研究対象地域は平成 16-18 年の TDS の結果を踏まえて、日本国内の 8 地域から各年度 3 あるいは 4 都市を選定した。対象食品はすでに実施中の化学物質の TDS に準じて飲料水を含む全 14 食品群に区分して対象地域において流通品を購入し、各地域における消費量データに基づき各種食品群を個別に調理して調製試料を得た。放射性核種は放射性