

アンは韓国、中国で高く、1999年に台湾で報告された1日624ngと同等の値であった(参考文献2)。また短鎖塩素化パラフィン是中国で特に高く、工業的な使用実態との関係を検討する必要があると考えられた。

以上のように汚染物質濃度のパターンに日中韓それぞれ特徴が見られた。今後、輸入の変化に伴い、どのような曝露が懸念されるかを検討するのに役立つと考えられた。

#### E. 結論

短鎖塩素化パラフィンがppbオーダーの高濃度で中国の食事で検出され、日韓においても検出された。またマイレックスやトキサフェンのように国内での使用実態のなかったものも検出された。今後、越境汚染、食糧輸入の変化から日本人のこれら化学物質への曝露にもさらなる変化が出てくると考えられる。そのために各国で引き続き追跡評価していくことが必要である。

#### F. 健康危険情報

なし

#### G. 研究発表

##### 1. 論文発表

なし

##### 2. 学会発表・その他

なし

#### H. 知的財産権の出願・登録状況

##### 1. 特許取得

なし

##### 2. 実用新案登録

なし

##### 3. その他

なし

#### I. 文献

Haraguchi K et al. Levels and regional trend of persistent organochlorines and polybrominated diphenyl ethers in Asian breast milk demonstrated POPs signatures unique to individual countries Environ Int. 35(7):1072-1079, 2009

Doong, R.-A. Lee, C.-Y., Sun, Y.-C. Dietary intake and residues of organochlorine pesticides in foods from Hsinchu, Taiwan Journal of AOAC International Volume 82, Issue 3, May 1999, Pages 677-682

表1 残留農薬一斉分析試験(356項目)

No.	測定物質	Japan	Korea	China	定量下限 μg/g (wet)	測定方法		
						Japan②	Korea②	China②
1	1,1-ジクロロ-2,2-ビス(4-エチルフェニル)エタン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
2	EPN	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC法	GC法	GC法
3	XMC	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
4	アリナトリン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
5	アザコナゾール	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
6	アジンホスチル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC法	GC法	GC法
7	アセトクロール	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
8	アゾキシストロビン	検出せず	検出せず	検出せず	0.02ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
9	アトジン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
10	アニホロス	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
11	アマトリン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
12	アラクロール	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
13	アリトクロール	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
14	イザゾホス	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
15	イカルホス	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
16	イネキサゾフェンエチル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
17	イネキサチオン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC法	GC法	GC法
18	イソフェホス	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
19	イソプロカルブ	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
20	イソプロチオラン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
21	イソバリアカルブ	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
22	イブドホス	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC法	GC法	GC法
23	インドキサカルブ	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
24	ウコンナゾールP	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	LC/MS/MS法	GC/MS/MS法
25	エスプロカルブ	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
26	エタフルラリン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
27	エチオン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC法	GC法	GC法
28	エディフェンホス	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC法	GC法	GC法
29	エトキサゾール	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
30	エトフェンプロックス	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
31	エトメセト	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
32	エトプロフェス	検出せず	検出せず	検出せず	0.005ppm	GC法	GC法	GC法
33	エトリムホス	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC法	GC法	GC法
34	エンドスルファン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
35	オキサジアゾリン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
36	オキサジキシル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
37	オキシカルオルフェン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
38	オキササホス	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC法	GC法	GC法
39	カフェンチロール	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
40	カルフェントラゾンエチル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
41	カルボキシ	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
42	キナルホス	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC法	GC法	GC法
43	キノキサフェン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
44	キノラミン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
45	キントゼン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
46	クレソキシムメチル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
47	クロキソセツメキシル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
48	クロソホッププロパルキル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
49	クロソリネート	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
50	クロマゾン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
51	クロメプロップ	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
52	クロルタルジメチル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
53	クロルピリン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
54	クロルピリホス	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC法	GC法	GC法
55	クロルピリホスメチル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC法	GC法	GC法
56	クロルフェニル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
57	クロルフェンソ	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
58	クロルフェンホス	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC法	GC法	GC法
59	クロルプロファム	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
60	クロルプロファム	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
61	クロルベンシド	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
62	クロルネブ	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
63	クロルヘンジレート	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
64	サリチオン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC法	GC法	GC法
65	シアナジン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
66	シアノフェホス	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
67	シアノホス	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC法	GC法	GC法
68	ジエトエカルブ	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
69	ジネキサチオン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
70	ジクロンメト	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法

表2 残留農薬一斉分析試験(356項目)

70	ジクロシメクト	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
71	ジクロフェンチオン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
72	ジクロプロトザール	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
73	ジクロホップメチル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
74	ジクロラン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
75	ジコホール	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
76	ジスルホトン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
77	ジチオビル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
78	ジニドンエチル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
79	シハロリン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC法	GC法	GC法
80	シハロホップチル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
81	ジフェナシド	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
82	ジフェニルアミン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
83	ジフェノコナゾール	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
84	シナルリン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC法	GC法	GC法
85	シラルフェナシド	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
86	シプロコナゾール	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
87	シプロジニル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
88	シシムルリン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC法	GC法	GC法
89	シマジシ	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
90	シメタメリン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
91	シメチリン	検出せず	検出せず	検出せず	0.04ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
92	ジメチルピソホス	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
93	ジメチナシド	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
94	ジメトエト	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
95	シマトリン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
96	ジメハレレート	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
97	シラルオフェン	検出せず	検出せず	検出せず	0.05ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
98	スピロキサシ	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
99	スピロジクロフェン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
100	スルアロホス	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
101	ターハシル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
102	ダインジノン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC法	GC法	GC法
103	ダイアレート	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
104	チアソビル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
105	チオベンカルブ	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
106	チアルガシド	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
107	テクナゼン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
108	テトラクロルピソホス	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
109	テトラコナゾール	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
110	テラジシ	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
111	テニルクロール	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
112	テココナゾール	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	LC/MS/MS法	GC/MS/MS法
113	テフエンピラト	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
114	テラトリン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
115	デメトン-S-メチル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
116	デルタメリン及びトラロメリン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC法	GC法	GC法
117	テルアリン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
118	テルアホス	検出せず	検出せず	検出せず	0.005ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
119	トリアサメート	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
120	トリアジメノール	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
121	トリアジメホス	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
122	トリアレート	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
123	トリアファン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
124	トリアホス	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
125	トリアラリン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
126	トリアロキシストロピソ	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
127	トルクロホスメチル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC法	GC法	GC法
128	トルフェンピラト	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
129	ナプロバシド	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
130	ニロタールイソプロピル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
131	ルフルラジン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
132	バクプロトザール	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
133	バラチオン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC法	GC法	GC法
134	バラチオンメチル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC法	GC法	GC法
135	ハルフェンプロックス	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
136	ピコリナフェン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
137	ピテルタノール	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
138	ピフェノックス	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
139	ピフェントリン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC法	GC法	GC法
140	ピハロニルプロキソト	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法

表3 残留農薬一斉分析試験(356項目)

141 ビヘロホス	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
142 ビラゴホス	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC法	GC法	GC法
143 ビラゾホス	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
144 ビラゾフェンエチル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
145 ビリダフェンチオン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC法	GC法	GC法
146 ビリダヘン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
147 ビリフェノックス	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
148 ビリチカルブ	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
149 ビリアロキシンフェン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
150 ビリミバクメチル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
151 ビリホスメチル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC法	GC法	GC法
152 ビリメタニル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
153 ビロキロン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
154 ビンクロリン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
155 フェナホス	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
156 フェナニル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
157 フェトリチオン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC法	GC法	GC法
158 フェキサニル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
159 フェキサカルブ	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
160 フェチカルブ	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
161 フェトリン	検出せず	検出せず	検出せず	0.02ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
162 フェバカルブ	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
163 フェンクロホス	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
164 フェンシルホチオン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
165 フェンチオン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
166 フェントート	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC法	GC法	GC法
167 フェンバレルト	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC法	GC法	GC法
168 フェンコナゾール	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
169 フェンロバトリン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC法	GC法	GC法
170 フェンプロピモルフ	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
171 フサライド	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
172 フタクロール	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
173 フタフェンシリン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
174 フタホス	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC法	GC法	GC法
175 フビリメート	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
176 フプロジェン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
177 フラチオカルブ	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
178 フラムプロブメチル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
179 フリゾール	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
180 フルアクリリウム	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
181 フルキノキサゾール	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
182 フルシトリネート	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC法	GC法	GC法
183 フルシゾール	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
184 フルチアセトメチル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
185 フルトラニル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
186 フルトリアホール	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
187 フルバリネート	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC法	GC法	GC法
188 フルフェニルエチル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
189 フルミオキサジン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
190 フルミクロツクペンチル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
191 フルリド	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
192 フレチラクロール	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
193 フロシトリン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
194 フロチオホス	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC法	GC法	GC法
195 フロバクロール	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
196 フロバジン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
197 フロバニル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
198 フロバホス	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
199 フロバルキット	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
200 フロビコナゾール	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
201 フロビザミド	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
202 フロフェノホス	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC法	GC法	GC法
203 フロホキシル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
204 フロマシリン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
205 フロメリン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
206 フロモブチド	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
207 フロモプロヒレート	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
208 フロモホス	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
209 フロモホスエチル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
210 ヘキサコナゾール	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法

表4 残留農薬一斉分析試験(356項目)

211 ヘキサゾン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
212 ヘキソチアゾクス	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
213 ヘキサキシル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
214 ヘキサコール	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
215 ヘルメリン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS法	GC/MS法	GC/MS法
216 ヘキサゾール	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
217 ヘンシクロン	検出せず	検出せず	検出せず	0.05ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
218 ヘンディメタリン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
219 ヘンフルリン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
220 ヘンフレセート	検出せず	検出せず	検出せず	0.02ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
221 ホサロン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC法	GC法	GC法
222 ホスチアゼート	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
223 ホスファミン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
224 ホスメット	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC法	GC法	GC法
225 ホホス	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
226 ホルモチオン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
227 ホレート	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
228 ホラチオン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC法	GC法	GC法
229 ミクロブタール	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
230 マルハム	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
231 マクリホス	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
232 マラキシル及びメフェキサム	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
233 メチダチオン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC法	GC法	GC法
234 メキシクロール	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
235 メブレン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
236 メミノストロビン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
237 マラクロール	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
238 メンホス	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
239 メフェナセト	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
240 メンデルシエチル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
241 メブニル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
242 モリネート	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
243 ラトファン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法
244 レナシル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法	GC/MS/MS法

GC/MS/MS法:ガスクロマトグラフ-タンデム質量分析法

GC/MS法:ガスクロマトグラフ-質量分析法

GC法:ガスクロマトグラフ法

LC/MS/MS法:液体クロマトグラフ-タンデム質量分析法

LC/MS法:液体クロマトグラフ-質量分析法

注1.177番はフラチオカルブの代謝物であるカルボフラン及びカルボフランの代謝物である3-OHカルボフランを除く。

表5 残留農薬一斉分析試験(356項目)

No.	測定物質	Japan	Korea	China	定量下限 μg/g (wet)	測定方法 Japan②	Korea②	China②
<b>LC/MS/MS分析結果</b>								
245	アザメホス	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
246	アセタミプリド	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
247	アラマト	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
248	アルジカルブ	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
249	アルキシカルブ	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
250	イソクロン	検出せず	検出せず	検出せず	0.02ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
251	イソキサフルトール	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
252	イマザリル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
253	イミダクロプリド	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
254	インダナファン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
255	エホキシコナゾール	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
256	オキサジンクロメホス	検出せず	検出せず	検出せず	0.02ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
257	オキサミル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
258	オキシカルボキシ	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
259	オリザリド	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
260	カルハリル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
261	カルボキサミド	検出せず	検出せず	検出せず	0.1ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
262	クミクロン	検出せず	検出せず	検出せず	0.02ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
263	クロチアニジン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
264	クロフェンテジン	検出せず	検出せず	検出せず	0.02ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
265	クロフェキシド	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
266	クロダシオン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
267	クロロクソロン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
268	シアゾファミド	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
269	ジクロン	検出せず	検出せず	検出せず	0.02ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
270	ジフルヘンシロン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法

表6 残留農薬一斉分析試験(356項目)

No.	測定物質	Japan	Korea	China	定量下限 μg/g (wet)	測定方法		
						Japan②	Korea②	China②
271	シメナゾール	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
272	シホモルフ	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
273	ダイムロン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
274	チアクロプリド	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
275	チアホキサム	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
276	テブチロン	検出せず	検出せず	検出せず	0.02ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
277	テブフェンゾト	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
278	テフルヘンズロン	検出せず	検出せず	検出せず	0.02ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
279	トシクラゾール	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
280	トリフルムロン	検出せず	検出せず	検出せず	0.02ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
281	ナプロフェノール	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
282	ハバルロン	検出せず	検出せず	検出せず	0.02ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
283	ピラクロキスロピン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
284	ピラゾリネート	検出せず	検出せず	検出せず	0.02ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
285	ピリタリド	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
286	ピリカローブ	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
287	フェンピロキシメート	検出せず	検出せず	検出せず	0.02ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
288	フェンメテアラム	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
289	フルシチオキソニル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
290	フルフェナセト	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
291	フルフェクソロン	検出せず	検出せず	検出せず	0.02ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
292	フルバキザホップ	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
293	プロキフル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
294	ヘキサフルムロン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
295	ベンゾフェナップ	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
296	ベンダイオカルブ	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
297	ベンチキサゾリン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
298	ネキソム	検出せず	検出せず	検出せず	0.02ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
299	ネオカト	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
300	メヘンズチアスロン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
301	ネキソフェノゾト	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
302	モノニロン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
303	リニコソ	検出せず	検出せず	検出せず	0.02ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
304	ルフェスロン	検出せず	検出せず	検出せず	0.02ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
305	4-クロルフェノキシ酢酸	検出せず	検出せず	検出せず	0.02ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
306	アシメチルフェン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
307	アジメスルフロ	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
308	イマザキン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
309	イマザキックスアンモニウム塩	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
310	エタメツルフロメチル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
311	エトキシスルフロ	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
312	クロソナホップ酸	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
313	クロソホップ	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
314	クロソスラムメチル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
315	クロロムロエチル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
316	クロルメスルフロ	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
317	シクラニド	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
318	シクロスラム	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
319	シクロスルファミロン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
320	シクロソホップ	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
321	シノスルフロ	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
322	ジヘレリン	検出せず	検出せず	検出せず	0.02ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
323	スルフェントラゾ	検出せず	検出せず	検出せず	0.05ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
324	スルホスルフロ	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
325	チシアスロン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
326	チアフェスルフロメチル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
327	トリアスルフロ	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
328	トリクロピル	検出せず	検出せず	検出せず	0.03ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
329	トリフルスルフロメチル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
330	トリプロキシスルフロ	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
331	トリベスロンメチル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
332	ナブタム	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
333	ハロキシホップ	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
334	ハロスルフロメチル	検出せず	検出せず	検出せず	0.02ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
335	フェンヘキサミド	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
336	フラザスルフロ	検出せず	検出せず	検出せず	0.02ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
337	アリメスルフロメチル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
338	フルメツラム	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
339	フルロキシピル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
340	プロスルフロ	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法

表7 残留農薬一斉分析試験(356項目)

No. 測定物質	Japan	Korea	China	定量下限 μg/g (wet)	測定方法		
					Japan②	Korea②	China②
340 プロスルフロ	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
341 プロホキシカルバゾ	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
342 プロキシニル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
343 フロスラム	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
344 ヘンスルフロメチル	検出せず	検出せず	検出せず	0.02ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
345 ホメサフェン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
346 ホラムスルフロ	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
347 ホルカロールフェニロン	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
348 メアロップ	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
349 メソスルフロメチル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
350 外スルフロメチル	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法	LC/MS/MS法
有機塩素系農薬分析結果							
351 γ-BHC	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC法	GC法	GC法
352 BHC	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC法	GC法	GC法
353 DDT	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC法	GC法	GC法
354 アルドリン及びデルタリン	検出せず	検出せず	検出せず	0.005ppm	GC法	GC法	GC法
355 エンドリン	検出せず	検出せず	検出せず	0.005ppm	GC/MS法	GC/MS法	GC法
356 ヘプタクロ	検出せず	検出せず	検出せず	0.01ppm	GC法	GC法	GC法
特定の関心のある農薬							
メタドホス	検出せず			0.01ppm	LC/MS法		
アセフェート	検出せず			0.01ppm	LC/MS法		
ジクロロホス及びピナド	検出せず			0.01ppm	GC法		

表8 POPsおよびNew POPsの高感度分析

測定物質	サンプル名 サンプル I D サンプル量	Japan	Korea	China	操作ブランク 5 20g	MDL 20g	MQL 20g	測定方法
		1	3	2				
		20g pg/g(wet)	20.1g pg/g(wet)	20.1g pg/g(wet)				
o,p'-DDT		22	4.6	2.8	N.D.	0.5	1.3	GC/HRMS法
p,p'-DDT		86	18	12	N.D.	1	3	
o,p'-DDE		5.2	(0.8)	(1.6)	N.D.	0.7	2	
p,p'-DDE		300	33	78	(1.3)	0.7	1.9	
o,p'-DDD		11	2.7	(1.5)	N.D.	0.6	1.7	
p,p'-DDD		62	9.2	7.6	N.D.	0.6	1.5	
trans-Chlordane		16	3	(2)	(2)	1	3	
cis-Chlordane		36	3	(2)	(2)	1	3	
trans-Nonachlor		64	3	(2)	(1)	1	3	
cis-Nonachlor		21	N.D.	N.D.	N.D.	0.9	2.5	
Oxychlordane		9.6	(0.8)	N.D.	N.D.	0.7	1.8	
Dieldrin		62	(4)	(3)	N.D.	2	5	
Aldrin		N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	0.7	1.8	
Endrin		(4)	N.D.	N.D.	N.D.	2	5	
Heptachlor		(2)	N.D.	N.D.	N.D.	1	4	
cis-Heptachlor epoxide		13	11	N.D.	N.D.	1	3	
trans-Heptachlor epoxide		N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	2	5	
HCB		40	17	84	2.2	0.6	1.7	
Mirex		6.4	N.D.	(0.5)	N.D.	0.5	1.3	
a-HCH		20	8.4	27	(1.8)	0.8	2.2	
b-HCH		27	7.3	27	(1.1)	0.7	1.9	
g-HCH		24	6	17	N.D.	1	3	
d-HCH		(1.1)	4.4	14	N.D.	0.8	2	

表9 POPsおよびNew POPsの高感度分析

測定物質	サンプル名 サンプルID サンプル量	Japan 1 20g pg/g(wet)	Korea 3 20.1g pg/g(wet)	China 2 20.1g pg/g(wet)	操作ブランク 5 20g pg/g(wet)	MDL 20g pg/g(wet)	MQL 20g pg/g(wet)	測定方法
<b>Toxaphene (Parlar No.)</b>								GC/HRMS(NCI)法
P#26		20	N.D.	N.D.				
P#50		27.7	N.D.					
P#62		16.5	N.D.					
<b>DL-PCBs</b>								GC/HRMS法
TeCB #81		N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	0.1		
TeCB #77		0.8	0.1	0.1	N.D.			
PeCB #126		0.4	N.D.	N.D.	N.D.			
HxCB #169		N.D.	N.D.	N.D.	N.D.			
<b>Total Non-ortho PCBs</b>		1.2	0.1	0.1				
PeCB #123		0.7	N.D.	N.D.	N.D.			
PeCB #118		37	2.3	1.1	0.2			
PeCB #105		10	0.7	0.5	N.D.			
PeCB #114		0.7	N.D.	N.D.	N.D.			
HxCB #167		2.8	0.3	N.D.	N.D.			
HxCB #156		4.6	0.5	0.1	N.D.			
HxCB #157		1.1	0.2	N.D.	N.D.			
HpCB #189		0.5	N.D.	N.D.	N.D.			
<b>Total Mono-ortho PCBs</b>		57.4	4	1.7	0.2			
<b>Total Coplanar PCBs</b>		59	4.1	1.8	0.2			
<b>MCBs</b>		8	8	17	9	1		
DiCBs		16	34	45	7			
TrCBs		39	27	18	4			
TeCBs		84	18	10	2			
PeCBs		190	19	7	1			
HxCBs		250	46	4	2			
HpCBs		95	24	2	2			
OCBs		16	3	N.D.	N.D.			
NCBs		2	N.D.	N.D.	N.D.			
DeCB		1	N.D.	N.D.	N.D.			
<b>Total PCBs</b>		700	180	100	27			
<b>短鎖塩素化パラフィン(SCCP)</b>		pg/g	pg/g	pg/g				GC/HRMS(NCI)法
SCCP (炭素鎖C10)		16000	9500	250000				
SCCP (炭素鎖C11)		1700	1300	22000				
SCCP (炭素鎖C12)		13	210	9700				
SCCP (炭素鎖C13)		N.D.	N.D.	9400				
SCCP合計		17713	11010	291100				
<b>エンドスルファン</b>		pg/g	pg/g	pg/g				GC/HRMS(NCI)法
α-エンドスルファン		26.7	379	141				
β-エンドスルファン		16.9	333	140				
エンドスルファン合計		43.6	712	281				



表10 日中韓越での母乳中残留性有機汚染物質の比較

Table Comparison of mean concentrations (ng/g lipid) of organohalogen compounds in breast milk from different countries or regions

Country	Region	Year	n	ΣDDT	ΣCHL	HCB	ΣHCH	ΣPCB	ΣPBDE
Japan	Sendai (Miyagi)	2007	20	260	46	18	190	150	1.7
	Kyoto	2007-2008	20	160	31	13	77	110	1.4
	Takayama (Gifu)	2007	20	97	17	8.1	49	79	1.3
Korea	Seoul	2007	29	180	14	13	110	61	3.7
China	Beijing	2007	25	1300	3.8	86	570	56	1.9
Vietnam	Hanoi	2007	20	1200	0.75	7.4	140	84	0.42

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）  
分担研究報告書

汚染が懸念される物質のモニタリング—日中韓越の母乳試料：  
(1) 汚染が懸念される化学物質の評価

研究分担者 原口 浩一 第一薬科大学

研究要旨：

ヒトへの汚染が懸念される化学物質のうち、残留農薬toxaphene, mirexおよび難燃剤hexabromocyclododecane (HBCD)について、ヒト試料バンク（京都大学）に保管されている日本人、韓国人、中国人の母乳中の残留濃度を測定し、三国間での違いを評価した。toxapheneおよびmirexは、GC-MS (ECNI mode)で、HBCDはLC/MS/MS (APCI(-)mode)で測定した。いずれの母乳からもtoxapheneおよびmirexが検出され、toxapheneは日本 (22-37 ng/g lipid n=6 pooled) > 韓国 (9-14 ng/g lipid n=4 pooled) > 中国 (2.6-7.3 ng/g lipid n=4 pooled)の順に有意に高濃度であった。Mirexについては日本の母乳で0.63-0.72 ng/g lipidで残留し、韓国および中国母乳より高値を示した。この結果、toxapheneおよびmirexの汚染源は中国や韓国以外の輸入食品による越境汚染が考えられる。一方、HBCDの母乳残留濃度は4地域で1.3-3.6 ng/g lipidを示し、地域差は見られなかった。

A. 研究目的

トキサフェンはカンフェンを塩素化することによって合成されるポリ塩化ボルナンの総称で、発がん性も指摘される殺虫剤である。トキサフェン、マイレックスは化審法の第一種特定化学物質に指定され、POPs条約(残留性有機汚染物質に関するストックホルム条約)の対象物質になっている。海外ではトウモロコシ、ジャガイモなどの有機塩素系殺虫剤として登録されていたが、日本国内での農薬としての登録はない。これらは魚介類や脂肪の多い食品に残留が認められているため、食事を通じてヒトへの暴露影響が懸念されてきた。欧米ではヒトへのトキサフェン汚染は減少傾向にあるが、アジア人の実態については報告がほとんどみられない。

一方、臭素系難燃剤

hexabromocyclo- dodecane (HBCD) は第一種特定化学物質に指定される見込みの化学物質であり、POPs条約の対象物質となっている。最近HBCDが各種生物やヒトで分析され、環境負荷による影響が懸念されている。日本ではKakimotoらが母乳中のHBCD分析結果から増加傾向にあることを報告している。HBCDのヒト暴露はハウスダストやごみ焼却を発生源とし、食品摂取のほか、吸入によりヒト体内に暴露されると考えられる。そこでHBCDの母乳残留実態を明らかにし、その汚染源や汚染ルート解明の手掛かりとしたい。本年度は、ヒト由来試料バンクを利用して、日本、中国、韓国の母乳中に存在するトキサフェン、マイレックスおよびHBCD濃度を測定し、比較評価したので報告する。

## B. 研究方法

2007年から2008年に採取した中国母乳(北京20検体)、韓国母乳(釜山10検体、ソウル10検体)日本(仙台10検体、高山10検体、兵庫10検体)について5人からそれぞれ5mLをpoolし、合計25mLをトキサフェンおよびマイレックス分析試料とした。toxaphene成分はpalar 26, 50および62についてGC/MS-ECNI-SIMモード(m/z 377 (379) for palar #26, m/z 343 (341) for palar # and m/z 264 (262) for mirex)で定性定量を行った。試料の処理は従来の方法(Haraguchi et al 2009)に従い、標準溶液を用いた回収率は86-101% (n=4)と良好であった。

一方、HBCDについては、2007-2008年に採取した日本人(30名)、韓国人(20名)および中国人(20名)の母乳からそれぞれ1mLをとり合計10mLのpooled milkを作成した。試料にシユウ酸カリウム0.2g, ethanol: diethylether(1;1)5mL, hexane 10mLを加え、遠心分離して上層を抽出分離した。この抽出液を濃縮し、脂肪重量を測定した。脂肪量(300mg)に対し、 $^{13}\text{C}-\alpha$ -HBCD、 $^{13}\text{C}-\beta$ -HBCDおよび $^{13}\text{C}-\gamma$ -HBCDをそれぞれ2ngずつ添加し、Gel Permeation Chromatography (Bio-Beads SX3)にて脂肪を除去した。溶出液を乾固し、アセトニトリル溶液にしたものをLC/MS/MS試料とした。測定は既報に準じて条件設定を行った(Kato et al 2009)。装置: API 3200 Q Trap LC/MS/MS System (APCI negative ion mode), MRM (Q1 m/z 640→Q3 m/z 79 for HBCD, Q1 m/z 652→Q3 m/z 79 for  $^{13}\text{C}$ -HBCD), HPLCカラム: Pursuit XRs  $\text{C}_{18}$  (150 mm x 2.0mm, i.d., Varian) 移動相: 2 mM Ammonium acetate: methanol (1:1) to 100% methanol (gradient), 流速

0.12 mL/min.

## C. 研究結果

トキサフェンおよびマイレックスの分析結果をTable 1に示す。地域別にみると、トキサフェンは日本(22-37 ng/g lipid) > 韓国(9-14 ng/g lipid) > 中国(2.6-7.3 ng/g lipid)の順に濃度が高い傾向が見られた。2つの異性体(palar #26, #50)の比率に地域差はみられなかった。

次に、Table 2にHBCDの日本3地域、韓国2地域および中国1地域の母乳(pooled)中のHBCD濃度を示す。それによると、兵庫で3.6 ng/g lipid、高山で2.7 ng/g lipid、北京で2.9 ng/g lipid、ソウルで1.3 ng/g lipidを示し、仙台、釜山では検出されなかった(検出限界 0.5 ng/g lipid)。

## D. 考察

本研究で認められた日本母乳におけるtoxaphene値は、1996-1997年に報告されたロシア母乳toxaphene値(8-13 ng/g lipid)より高く(Polder et al 2003)、1997年Canadaの母乳データと同範囲である(Newsome and Ryan 1999)。日本ではトキサフェンは登録されたことはないが、中国や韓国からの越境よりも日本国内での汚染またはUSAやロシアから大気または輸入食品を通じて日本へ流入していることが考えられる。しかし、サンプル数が少ないことおよび限られた地域の試料であることから、さらに継続した調査が必要である。

HBCDのヒト体内暴露経路として食事の他にハウスダストの吸入が考えられる(Takigami et al 2009)。アジアではPBDEが1990年をピークに汚染状況は改善されているのに対し、HBCDは使用制限がなく、海洋哺乳動物中の

HBCD残留濃度は増加傾向にある

(Tababe et al 2008)。日本の母乳からHBCDがKakimotoらによって最初に検出され、近年HBCDは上昇傾向にあると報告されている (Kakimoto et al 2008)。今回のHBCD定量値はそれらとほぼ同じ範囲にあった。Shiら(2009)によると、中国母乳(24pooled)中のHBCDレベルはnd-2.8 ng/g lwであり、EDI (Estimated Daily Intake)は、6.7-17.3 ng/kg bw/dayの範囲でこの値はヨーロッパより低いとされる。日本では海産食品中のHBCDのレベルが<0.9-67 ng/g lipidと報告されている (Kakimoto et al 2007)。また、カツオのHBCDレベルが日本近海で25 ng/g lipid (Ueno et al 2006)、韓国の20海域のイガイから、6-500 ng/g lipidのHBCDが、また中国のYanz Liver淡水魚から12-330 ng/g lwのHBCDが検出されている (Ramu et al 2007; Xian et al. 2008)。

#### E. 結論

トキサフェン、マイレックスは日本では使われていないが、中国や韓国人よりも日本人に高濃度で汚染がみられることから、食品の安全性を確保するための継続したモニタリングが望まれる。一方、母乳mirexはロシアやアメリカにおける値とほぼ同様の値で、韓国および中国との濃度差はみられない(Polder et al 2008; Kutz 1985)。本研究データはpooled milkを使用しており、HBCDが食品由来よりもハウスダストや職業により暴露量が増加するとみられるため、それらを考慮したデータの集積を行う。

#### F. 健康危険情報

なし

#### G. 研究発表

##### 1. 論文発表

なし

##### 2. 学会発表・その他

なし

#### H. 知的財産権の出願・登録状況

##### 1. 特許取得

なし

##### 2. 実用新案登録

なし

##### 3. その他

なし

#### I. 文献

Newsome WH, Ryan JJ. Toxaphene and other chlorinated compounds in human milk from northern and southern Canada: a comparison. *Chemosphere* 1999, 39, 519-526. (POP human milk toxaphene pesticide).

Polder A, Odland JO, Tkachev A, Foreid S, Savinova TN, Skaare JU. Geographic variation of chlorinated pesticides, toxaphenes and PCBs in human milk from sub-arctic and arctic locations in Russia. *Sci Total Environ.* 2003, 306, 179-195. (POP human milk pesticide toxaphene).

Polder A, Gabrielsen GW, Odland JO, Savinova TN, Tkachev A, Loken KB, Kkaare JU. Spatial and temporal changes of chlorinated pesticides, PCBs, dioxins (PCDDs/PCDFs) and brominated flame retardants in human breast milk from Northern Russia. *Sci. Total Environ.* 2008, 391, 41-54.

Haraguchi K, Koizumi A, Inoue K, Harada KH, Hitomi T, Minata M, Tanabe M, Kato Y, Nishimura E, Yamamoto Y, Watanabe T, Takenaka K, Uehara S, Yang H-R, Kim M-Y, Moon C-S, Kim H-S, Wang P, Liu A, Hung NN. Levels and regional trends of persistent organochlorines and polybrominated diphenyl ethers in Asian breast milk demonstrate POPs signatures unique to individual countries. *Environ. Int.* 2009, 35, 1072-1079.

Kato Y, Okada S, Atobe K, Endo T, Matsubara F, Oguma T, Haraguchi K.

- Simultaneous determination by APCI-LC/MS/MS of hydroxylated and methoxylated polybrominated diphenyl ethers found in marine biota. *Anal Chem* 2009, 81, 5942-5948. APCI
- Polder A, Thomsen C, Lindstrom G, Loken KB, Skaare JU. Levels and temporal trends of chlorinated pesticides, polychlorinated biphenyls and brominated flame retardants in individual human breast milk samples from Northern and Southern Norway. *Chemosphere* 2008, 73, 14-23.
- Kutz FW, Strassman SC, Stroup CR, Carra JS, Leininger CC, Watts DL, Sparacino CM, The human body burden of mirex in the southeastern United States. *J Toxicol Environ Health*, 15, 385-94, 1985
- Ueno D, Alaee M, Marvin C, Muir DCG, Macinnis G, Reiner E, Crozier P, Furdui VI, Subramanian A, Fillmann G, Lam PKS, Zheng GJ, Muchtar M, Razak H, Prudente M, Chung K-H, Tanabe S. Distribution and transportability of hexabromocyclododecane (HBCD) in the Asia-Pacific region using skipjack tuna as a bioindicator *Environ Pollut* 2006, 144, 238-247.
- Tanabe S, Ramu K, Isobe T, Takahashi S. Brominated flame retardants in the environment of Asia-Pacific: an overview of spatial and temporal trends. *J Environ Monit.* 2008, 10, 188-197.
- Kakimoto K, Akutsu K, Konishi, Tanaka Y. Evaluation of hexabromocyclododecane in fish and marine mammal oil supplements. *Food Chem.* 2008, 107, 1724-1727.
- Kakimoto 2008, Kakimoto K, Akutsu K, Konishi Y, Tanaka Y. Time trend of hexabromocyclododecane in the breast milk of Japanese women. *Chemosphere* 2008, 71, 1110-1114.
- Takigami et al. 2009; Takigami H, Suzuki G, Hirai Y, Sakai S. Brominated flame retardants and other polyhalogenated compounds in indoor air and dust from two houses in Japan. *Chemosphere* 2009, 76, 270-277.
- Xian et al. 2008, Xian Q, Ramu K, Isobe T, Sudaryanto A, Liu X, Gao Z, Takahashi S, Yu H, Tanabe S. Levels and body distribution of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) and hexabromocyclododecanes (HBCDs) in freshwater fishes from the Yangtze River, China. *Chemosphere* 2008, 71, 268-276.
- Shi et al. 2009; Shi Z-X, Wu Y-N, Li J-G, Zhag Y-F, Feng J-F. Dietary exposure assessment of Chinese adults and nursing infants to tetrabromobisphenol-A and hexabromocyclododecanes: Occurrence measurements in foods and human milk. *Environ Sci Technol* 2009, 43, 4314-4319.
- Ramu K, Kajiwara N, Isobe T, Takahashi S, Kim E-Y, Min B-Y, We S-U, Tanabe S. Spatial distribution and accumulation of brominated flame retardants, polychlorinated biphenyls and organochlorine pesticides in blue mussels (*Mytilus edulis*) from coastal waters of Korea. *Environ Pollut* 2007, 138, 562-569.

**Table 1. Levels of toxaphenes and mirex in pooled breast milk collected in 2007–2008 from China, Korea and Japan**

Sample	Source	wet (g)	Concentration (ng/g lipid)		
			palar 26	palar 50	mirex
pooled milk	Beijing (no. 1-5)	5	1.0	1.8	0.34
pooled milk	Beijing (no. 6-10)	5	0.9	1.7	0.32
pooled milk	Bijing (no. 11-15)	5	0.8	3.4	0.36
pooled milk	Beijing (no. 16-20)	5	2.4	4.8	0.25
pooled milk	Seoul (no. 1-5)	5	2.0	4.9	0.20
pooled milk	Seoul (no. 6-10)	5	4.2	10.2	0.47
pooled milk	Busan (no. 1-5)	5	2.8	6.2	0.22
pooled milk	Busan (no. 6-10)	5	4.4	8.9	0.27
pooled milk	Sendai (no. 1-5)	5	10.0	24.6	0.72
pooled milk	Sendai (no. 6-10)	5	11.7	25.7	0.81
pooled milk	Takarazuka (no. 1-5)	5	11.3	24.5	0.63
pooled milk	Takarazuka (no. 6-10)	5	7.5	14.4	0.63
pooled milk	Takayama (no. 1-5)	5	7.5	15.4	0.68
pooled milk	Takayama (no. 6-10)	5	8.6	17.2	0.70

**Table 2. Levels of HBCDs in pooled breast milk collected in 2007–2008 from Japan, Korea and China.**

source	wet (g)	Concentration (ng/g lipid)			
		$\alpha$ -HBCD	$\beta$ -HBCD	$\gamma$ -HBCD	
pooled milk	Beijing (no. 1-10)	10	2.9	<0.5	<0.5
pooled milk	Beijing (no. 11-20)	10	<0.5	<0.5	<0.5
pooled milk	Seoul (no. 1-10)	10	1.3	<0.5	<0.5
pooled milk	Busan (no. 1-10)	10	<0.5	<0.5	<0.5
pooled milk	Sendai (no. 1-10)	10	<0.5	<0.5	<0.5
pooled milk	Takarazuka (no. 1-10)	10	3.6	<0.5	<0.5
pooled milk	Takayama (no. 1-10)	10	2.7	<0.5	<0.5

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）  
分担研究報告書

汚染が懸念される物質のモニタリング—日中韓越の母乳試料：  
(2) Positive list chemicalsの評価

研究分担者 原口 浩一 第一薬科大学

研究要旨：母乳中のポジティブリスト化学物質を評価する目的で、日本、韓国および母乳中の残留成分をGCMSスクリーニングを行った。まず、従来から残留が懸念されている化合物HCHs, HCB, DDTs, CHLsの濃度を測定した。ポジティブリスト52種の検索の結果、新規に母乳中にジコホールが検出された。HCH, DDTs, およびdicofolについては中国>韓国>日本の順に高濃度を示した。一方、CHLsは日本>韓国>中国の順に高濃度であった。この残留調査から、中国からの輸入食品によるHCH, DDT汚染が懸念される。とくに中国で使用されているdicofolが日本母乳にも検出されたことは、dicofolに不純物として含まれるDDTが食品に混入し、越境している可能性が考えられる。CHLsについては日本国内の食品またはアジア以外の国から食品流入が考えられる。本研究ではポジティブリスト52種のうち、14種がECNI[電子捕獲負イオン化:(electron capture negative ion)]法で高感度に検出できることがわかり、ECNIによるスクリーニング法で定量した。

A. 研究目的

ヒト由来試料バンクを利用した我々の母乳調査で、DDTs および HCHs が中国母乳で高濃度で残留すること、一方 PCB や CHL は比較的日本で高いことを報告している (Haraguchi et al 2009)。そのなかで DDTs の組成から汚染源を推定する方法として、o, p' - DDT/p, p' -DDE 比のほかに、o, p' - DDT/p, p' -DDT 比から汚染源を推定する試みがなされている。最近、中国で使用されているジコホールに不純物として DDT が含まれることが報告されている (Qiu et al 2005)。母乳に残留が懸念される化学物質を検出するにあたり、まず、ポジティブリストのうち、HCHs, HCB, CHLs および DDTs の母乳中の残留成分を対象に測定した。さ

らに ECNI 法で検出される化学物質を検索し、検出感度の高い化合物をリストアップし、それらについて、日本、中国、韓国の母乳中の成分の検索と定量を行うことを目的とした。

B. 研究方法

2007-2008年に採取した中国母乳（北京20）、韓国母乳（釜山10、ソウル10）日本（仙台10、高山10、兵庫10）の5mLについて、従来の方法に準じて、試料を処理した (Haraguchi et al 2009)。すなわち、母乳から脂肪を抽出したのち、ゲル浸透クロマトグラフィで脱脂したのち、抽出した化学物質をシリカゲルカラムにより精製したものをGC/MS試料とした。イオン化はEIおよびECNIモードを用い、ポジティ

ブリスト52種について最適な検出イオンを抽出し、ヒト試料バンクから提供された試料（母乳）中の化学物質を検索した。

### C. 研究結果

Table 1 に残留農薬 HCB, HCH ( $\alpha$ -,  $\beta$ -,  $\gamma$ -), CHL (oxychlordane, trans-chlordane, cis-chlordane, trans-nonachlor, cis-nonachlor) および DDTs (p,p'-DDE, p,p'-DDD, o,p'-DDT, p,p'-DDT) の濃度結果を示す。中国母乳では HCHs が 246 ng/g lipid を、DDTs が 1458 ng/g lipid を示し、日本および韓国の母乳レベルよりも 1 桁高い値であった。一方、CHLs については日本母乳で 25.8 ng/g lipid を示し、中国、韓国母乳より有意に高い値であった。ポジティブブリスト 52 種の検索の結果、新規にジコホールが検出された。検出イオンは EI 法では、m/z 139, 250 を、ECNI では m/z 250 イオンで確認した。濃度は中国母乳で 10.9 ng/g lipid であり、韓国および日本母乳でも低い値で検出された。

### D. 考察

母乳のポジティブブリスト化学物質の ECNI 法によるスクリーニングはまだ続行中である。ヒト由来試料におけるジコホールについての報告等は検索する限り該当するものがなく、比較評価できなかった。ジコホールは GC 上では分解物 (4,4'-dichlorobenzophenone =DCB) として検出され、直接的には定量できない。分解物自身がポジティブブリスト化学物質であり、また、環境汚染物質である trichlorophenyl ethanol も GC 上で一部分解されて DCB を生じることが分かった。さらに、ジコホールには不

純物として C1-DDT が含まれることが指摘される (Yang et al 2008) ほか、dicofol の DDE への化学変換も報告されている (Qiu et al 2005) ことから、母乳 DDT および dicofol の汚染源の解明と再評価が必要である。

### E. 結論

本研究ではポジティブブリスト52種のうち、14種がECNI[電子捕獲負イオン化:(electron capture negative ion)]法で高感度に検出できることが示された。

### F. 健康危険情報

なし

### G. 研究発表

#### 1. 論文発表

#### 2. 学会発表・その他

### H. 知的財産権の出願・登録状況

#### 1. 特許取得

なし

#### 2. 実用新案登録

なし

#### 3. その他

なし

### I. 文献

- Haraguchi K, Koizumi A, Inoue K, Harada KH, Hitomi T, Minata M, Tanabe M, Kato Y, Nishimura E, Yamamoto Y, Watanabe T, Takenaka K, Uehara S, Yang H-R, Kim M-Y, Moon C-S, Kim H-S, Wang P, Liu A, Hung NN. Levels and regional trends of persistent organochlorines and polybrominated diphenyl ethers in Asian breast milk demonstrate POPs signatures unique to individual countries. *Environ. Int.* 2009, 35, 1072-1079.
- Qiu X, Zhu T, Yao B, Hu J, Hu S. Contribution of dicofol to the



current DDT pollution in China.  
 Environ. Sci. Technol. 2005, 39,  
 4385-4390.  
 Yang X, Wang S, Bian Y, Chen F, Yu G,  
 Gu C, Jiang X. Dicofol application

resulted in high DDTs residue in  
 cotton fields from northern Jiangsu  
 province, China. J. Hazard. Materials.  
 2008, 150, 92-98.

**Table 1. Levels of major persistent pesticides in human breast milk (pooled) from China, Korea and Japan collected in 2007 - 2008**

	Concentration (ng/g lipid)		
	China (n=4)	Korea (n=4)	Japan (n=6)
Hexachlorobenzene (HCB)	20.3±10.3	17.4±2.41	16.6±6.34
ΣHCH	246±105	15.4±5.6	12.1±5.5
α-HCH	3.1±3.1	0.3±0.1	0.31±0.09
β-HCH	241±100	14.9±5.5	11.6±5.6
γ-HCH	2.3±2.5	0.3±0.1	0.14±0.12
Chlordanes (ΣCHLs)	4.1±1.8	10.3±1.8	25.8±6.11
oxy-CHL	0.7±0.3	3.2±0.7	3.2±0.6
trans-CHL	0.08±0.03	0.13±0.02	0.19±0.05
cis-CHL	0.09±0.03	0.14±0.01	0.36±0.18
trans-Nonachlor	2.7±1.2	5.9±1.1	19.2±5.1
cis-Nonachlor	0.5±0.3	1.0±0.2	2.9±0.9
ΣDDTs	1458±723	144±3.6	121±24
<i>p,p'</i> -DDE	1359±650	124±29	109±21
<i>p,p'</i> -DDD	11.2±4.5	4.22±0.74	3.5±1.5
<i>o,p'</i> -DDT	9.3±6.4	1.7±0.2	1.0±0.2
<i>p,p'</i> -DDT	78.5±63	12.6±6.3	6.8±1.5
dicofol	10.9±6.2	2.07±0.9	0.42±0.41

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）  
分担研究報告書

日本における難分解性汚染物質のモニタリング

研究分担者 原口 浩一 第一薬科大学

研究要旨：PCBやPBDEはヒト体内で代謝され、一部血液にOH-PCB、OH-PBDEとして残留し、内分泌系に影響を与えることが懸念される。そこで、2007-2008年に採取したヒト由来試料バンクの日本人の30-60代の女性の血清を研究材料として、PCB、PBDEとその代謝物の残留の有無および年齢との関連を調べた。日本人100名の血清からPCB、PBDEとともにOH-PCB、OH-PBDEを抽出し、それぞれGC/MS(EIおよびECNIモード)で測定した。血清中にはPCBが0.4-8.5 ng/g wet、OH-PCBが0.06-0.54 ng/g wetで残留し、両者とも年齢とともに増加傾向がみられた。また、PCBとOH-PCBの濃度間には正の相関がみられた。一方、PBDEは0.02-0.03 ng/g wet、OH-PBDEは0.18-0.22 ng/g wetで検出され、その主成分はBDE47および6-OH-BDE47であった。PBDEとOH-PBDEの濃度に相関性はなく、また両者とも年齢による増加傾向は見られなかった。6-OH-BDE47の発生源はBDE47の代謝物ではなく、天然で産生されたOH-PBDEが食品経路でヒト体内（血液）に残留しているものと考えられる。

A. 研究目的

PCBはヒト体内で代謝され、血液にOH-PCBとして残留する。一方、PBDEも一部代謝され、OH-PBDEとして血液中に検出されている（Athanasiadou 2008; Lacorte et al 2009; Qiu et al 2009）。OH-PCBやOH-PBDEは内分泌系に影響を与えることが懸念されている。そこで、本研究では、宮城県仙台市、岐阜県高山市、大阪府大阪市、京都府京都市、京都府宇治市5か所の30-60歳代女性の血清中のPCBおよびOH-PCBを調べ、年齢と濃度の関係を明らかにする。同時にPBDEおよびその代謝物についても検索する。

B. 研究方法

宮城県仙台市、岐阜県高山市、大阪

府大阪市、京都府京都市、京都府宇治市5か地域に在住する30、40、50、60代の女性5名（計100名）の血清1.5mLにPCB分析のISとして<sup>13</sup>C-PCB153を5ng添加した。OH-PCB分析のISとして、<sup>13</sup>C-4-OH-PCB107、<sup>13</sup>C-4-OH-PCB146、<sup>13</sup>C-4-OH-187をそれぞれ0.2ngを添加した。次に塩酸、acetone/hexaneを加え、抽出液を濃縮し脂肪量を測定。GPC処理後、neutralとphenolic fractionに分離した。Neutral fractionはシリカゲルカラムで精製しGC/MS(EI)でPCBの9異性体を分析した。Phenolic fractionは5検体をpooled sampleとし、HCl酸性としたのちdiethylether/hexaneで逆抽出した。この液を濃縮し、ジアゾメタンにてO-メチル化を行った後、シリカ

ゲルカラムで精製し、GC/MSの試料とした。GC/MSはAgilent GC/MSDのEI-SIM ion channelsでPCBを定量した。phenolic fractionは、6異性体：4-OH-CB107, 3-OH-CB153, 4-OH-CB146, 3'-OH-CB138, 4-OH-CB187および4'-OH-CB172を分析対象とした。PBDEおよびOH-PBDEはECNI-SIMモードでm/79およびm/81のイオンを用いて定性、定量した。

### C. 研究結果

血清(n=100)中のPCB総濃度(13 isomers)は432-8532 pg/g wet (mean 2008 pg/g wet)であった。年齢とPCB濃度の関係をFig 1. に示す。30, 40代のPCBレベルは50, 60代と比べて有意に低かった。一方、OH-PCB総濃度は60-536 pg/g wet (mean 249 pg/g wet)を示し、年代の上がるにつれて有意に上昇した(Fig. 2)。OH-PCBの主成分は、4-OH-CB107, 4-OH-CB146および4-OH-CB187で、ほかに3-OH-CB153, 3'-OH-CB138, 4'-OH-CB172が検出された。PCB濃度とOH-PCB濃度の間に正の相関がみられた(Fig. 3)。一方、PBDE濃度は18-29 ng/g wetであり、各年代による濃度の変化に有意差はみられなかった。OH-PBDEを検索した結果、6-OH-BDE47が主成分として検出され、2'-OH-BDE68および2,2'-dihydroxy-3,3',5,5'-tetrabromo-biphenyl (2,2'-diOH-BB80)が検出された。これらの総濃度は202 pg/g wetを示し、PBDE濃度より1桁高い値であった。Neutral fractionには2'-MeO-BDE68が10 pg/g wet以下の濃度で検出された。

### D. 考察

今回得られた血清PCB, OH-PCB濃度はこれまでに国内で報告されている

定量値の範囲内である(Nomiyama et al.)。日本人血液中のPCB濃度は欧米と比べ低いことを確認した。PCBの使用が禁止された1970年代以降に生まれた30代のPCB濃度はかなり低く、PCBの食品汚染がかなり改善されていることを示唆する。しかし、高年齢世代はPCB濃度は依然として高い。一方、OH-PCBの濃度では、年齢とともに上昇し、60代のOH-PCBレベル(440 pg/g wet)は30代のOH-PCB(120 pg/g wet)レベルより3倍ほど高い。異性体別で見ると代謝物-母化合物の濃度の相関性はいずれも有意に高かった(Table 2)。このことはPCBが体内に蓄積されれば血中のOH-PCBレベルも増加することを意味する。

一方、PBDEレベルは欧米で報告されている値より低く、主成分BDE47のレベルは欧米の1/10以下であった(Haraguchi et al 2009)。6-OH-BDE47などのOH-PBDEは血液のtransthyretin (TTR)に親和性が高く、TTRと結合して甲状腺ホルモンの恒常性に影響を与えることが指摘されている(Meerts et al 2000; Legner 2002)。血清で検出された6-OH-BDE47および2'-OH-BDE68の由来はPBDE代謝物でなく、海藻など(Malmvarm et al 2005)が産出する化学物質OH-PBDEやMeO-PBDEが食物連鎖を通じてヒトへ到達している可能性がある。

### E. 結論

血清中にはPCBが0.4-8.5 ng/g wet、OH-PCBが0.06-0.54 ng/g wetで残留し、両者とも年齢とともに増加傾向がみられた。また、PCBとOH-PCBの濃度間には正の相関がみられた。

一方、PBDEは0.02-0.03 ng/g wet、OH-PBDEは0.18-0.22 ng/g wetで検出され、その主成分はBDE47および

6-OH-BDE47であった。PBDEとOH-PBDEの濃度に相関性はなく、また両者とも年齢による増加傾向は見られなかった。6-OH-BDE47の発生源はBDE47の代謝物ではなく、天然で産生されたOH-PBDEが食品経由でヒト体内（血液）に残留しているものと考えられる。

#### F. 健康危険情報

なし

#### G. 研究発表

##### 1. 論文発表

なし

##### 2. 学会発表・その他

なし

#### H. 知的財産権の出願・登録状況

##### 1. 特許取得

なし

##### 2. 実用新案登録

なし

##### 3. その他

なし

#### I. 文献

Park 2008: Chemosphere; Placental transfer of polychlorinated biphenyls, their hydroxylated metabolites and pentachlorophenol in pregnant women from eastern Slovakia. (4-OH-107, 3-OH-CB153, 4-OH-CB146, 3'-OH-CB138, 4-OH-CB187, and 4'-OH-CB172 were quantified. The mean concentrations of 17PCBs and 6OH-PCBs were 6.13 and 0.65 ng/g wet, respectively.)

Park 2009 in press: Hydroxylated PCB metabolites (OH-PCBs) in archived serum from 1950-60s California mothers: a pilot study. (カリフォルニア 1950-1960s の血清 mother PCB 3.1 ng/mL OH-PCB 0.39 ng/mL median The levels of OH-PCBs were dependent on PCB levels ( $r=0.58$ ,  $p<0.05$ ) Ratio 0.14,

4-OH-187>4-OH-CB107 Both interfere with the thyroid system in in vitro, animal, and human studies.)

Dirtu 2009 in press: Distribution of PCBs, their hydroxylated metabolites, and other phenolic contaminants in human serum from two European countries; (Sum PCBs median 3.1 ng/mL for Romanian (n=53) and 3.4 ng/mL for Belgian (n=22). Sum OH-PCB median 0.175 ng/mL Romanian, and 0.310 ng/mL for Belgian. Differences in the PCB profiles between populations can lead to the formation of different OH-PCB profiles)

Nomiyama 2009 in press: Determination and characterization of hydroxylated polychlorinated biphenyls (OH-PCBs) in serum and adipose tissue of Japanese women diagnosed with breast cancer. (乳がん患者の血清と脂肪中の OH-PCB 0.63 ng/g wet serum 0.14 ng/g wet adipose OH-PCB と T3/T4 Level に関連性はみられない。

Park et al 2007: Park J-S, Linderholm L, Charles MJ, Athanasiadou M, Petrik J, Kocan A, Drobna B, Trnovec T, Bergman A, Hertz-Picciotto I. Polychlorinated biphenyls and their hydroxylated metabolites (OH-PCBs) in pregnant women from eastern Slovakia. Environ Health Perspect. 2007, 115, 20-27. (PCB 5.7 ng/g wet (Michalovce), 2.82 ng/g wet (Svidnik), OH-PCB 0.55 ng/g wet (Michalovce), 0.32 ng/g wet (Svidnik) ratio 0.10

Soechitram et al. 2004. Soechitram SD, Athanasiadou M, Hovander L, Bergman A, Sauer PJJ. Fetal exposure to PCBs and their hydroxylated metabolites in a Dutch cohort. Environ Health Perspect. 2004, 112, 1208-1212. (オランダ母親 PCB n=51, 2-293 ng/g lipid plasma, OH-PCB nd-0.62 ng/g fresh weight, cord plasma PCB level は maternal の 50%)  
Legner 2002 Legner J, Cenijin PH, Malmberg T, Bergman A, Brower A, Determination of the endocrine disrupting potency of hydroxylated PCBs and flame retardants with in vitro bioassays. Organohalogen Compds. 2002, 56, 53-56.