

とはならないが、検討としては有益と考え、これら2種の有機ヒ素も完全に分離できるようにならないか、移動相の組成を検討した。移動相に添加しているイオンペア試薬は下記の2種類あり、その濃度を検討した。

1) 1-ブタンスルホン酸ナトリウム(塩基性用イオンペア試薬： $C_4H_9-SO_3^- Na^+$)

2) TMAH(酸性用イオンペア試薬： $(CH_3)_4-N^+ OH^-$)

まず、1-ブタンスルホン酸ナトリウムの濃度のみを初期条件から変更して検討を行った。このときの1-ブタンスルホン酸ナトリウムの濃度の範囲は、8 mM~14 mMとした。結果を図 6-1 に示した。その結果、1-ブタンスルホン酸ナトリウムの濃度が初期条件から高くても、逆に低くてもTMAOとTeMAのピーク同士が重なることが判明した。そこで、選択する1-ブタンスルホン酸ナトリウムの濃度として、10 mMと12 mMを候補とした。

次に、TMAHの濃度のみを初期条件から変更して検討を行った。このときのTMAHの濃度の範囲は、1 mM~8 mMとした。結果を図 6-2 に示した。その結果、TMAHの濃度が低いほどTMAOとTeMAのピークの分離度が高くなる傾向が認められた。したがって、選択するTMAHの濃度として、1 mMと2 mMを候補とした。

最後に、1-ブタンスルホン酸ナトリウムとTMAHについて、候補とした濃度を組み合わせてTMAOとTeMAのピークの分離を検討した。結果を図 6-3 に示した。その結果、1-ブタンスルホン酸ナトリウムの濃度が10mM、TMAHの濃度が1 mM

の組み合わせが最もTMAOとTeMAのピークの分離度が高かったが、逆にAs(III)とMMAのピークの分離度は検討した組み合わせの中では低い方であった。そのため、TMAOとTeMAのピークの分離以外に、As(III)とMMAおよびDMAとAsBのピークの分離なども考慮して、1-ブタンスルホン酸ナトリウムの濃度は12mM、TMAHの濃度は1 mMを選択することとした。

以上の結果より、HPLCの移動相を0.05%メタノール、12 mM 1-ブタンスルホン酸ナトリウム、1 mM TMAH、4mMマロン酸の溶液(pH3)とした。

E. 結論

研究 1：暫定的規制値への適合判定を目的としたメチル水銀分析法の開発

これまでに検討したフェニル誘導体化GC-MS法の改良を検討し、その頑健性や操作性が向上した。また、複数の魚試料を用いて構築した分析法の性能を評価し、暫定的規制値への適合判定を行う分析法として、妥当な分析結果を得られる方法であると判断した。

研究 2：摂取量推定に使用可能なメチル水銀分析法の開発

研究 1 で改良したGC-MS法をGC-MS/MSを測定機器に用いることで、選択性と感度のより優れた分析法に改良した。これにより、試料に含まれるより微量のメチル水銀の定量が可能となった。今後は、必要に応じてさらなる改良の検討を行い、TD試料や様々な食品を用いたメチル水銀の摂取量推定をしていく予定

である。

研究 3: 摂取量推定に使用可能な化学形態別ヒ素分析法の開発

無機ヒ素(2種類)と有機ヒ素化合物(6種類)を、汎用的な分析機器である HPLC を用いた ODS カラムによる逆相イオンペアクロマトグラフィーにより分離し、ICP-MS で検出するための測定条件を設定した。今後は、ヒ素含有量の高い食品や摂取量推定に使用する分析用試料(主に、トータルダイエツト試料)からの各種ヒ素化合物の抽出法を検討し、本検討で構築した測定法と併せて、ヒ素の化学形態別分析法を開発する。また、これら試料からのヒ素の化学形態別摂取量推定も検討する予定である。

F. 研究発表

1. 論文発表

なし

2. 学会発表

菊地博之、渡邊敬浩、赤木浩一、松田りえ子「魚介類中のメチル水銀を対象とした GC-MS 分析法の改良」第 105 回日本食品衛生学会学術講演会(2013).

3. その他

表 1 試料由来のマトリクスによるメチルフェニル水銀のピーク面積への影響

マトリクス	試料	PEG200の 共注入	ピーク面積			Ave.	SD	RSD(%)
			n=1	n=2	n=3			
無	標準溶液	無	2391	2499	2761	2550	190	7.5
		有	3860	3940	3852	3884	49	1.3
	タラ	無	2321	2225	2163	2236	80	3.6
		有	3402	3471	3425	3433	35	1.0
	メバチマグロ	無	4975	4988	4683	4882	172	3.5
		有	7818	7865	7801	7828	33	0.4
有	サバ	無	2455	3069	2768	2764	307	11
		有	4124	4128	4169	4140	25	0.6
	カツオ	無	2325	2294	2124	2248	108	4.8
		有	3667	3658	3564	3630	57	1.6

マトリクス	試料	ピーク面積の平均値の比 (PEG共注入有/PEG共注入無)
無	標準溶液	1.53
	タラ	1.54
有	メバチマグロ	1.60
	サバ	1.51
	カツオ	1.62

表 2 PSA カラム精製によるメチルフェニル水銀のピーク面積への影響

試料	カラム精製	ピーク面積			Ave.	SD	RSD(%)
		n=1	n=2	n=3			
標準溶液	無	1772	1687	1740	1733	43	2.5
	有	1711	1712	1706	1710	3	0.2
タラ	無	1624	1596	1540	1587	43	2.7
	有	1577	1649	1546	1591	53	3.3
メバチマグロ	無	3696	3856	3868	3807	96	2.5
	有	3751	3732	3865	3783	72	1.9
サバ	無	1855	1805	1836	1832	25	1
	有	1825	1813	1855	1831	22	1.2
カツオ	無	1550	1436	1507	1498	58	3.8
	有	1488	1489	1535	1504	27	1.8

試料	ピーク面積の平均値の比 (カラム精製有/カラム精製無)
標準溶液	1.01
タラ	1.00
メバチマグロ	1.01
サバ	1.00
カツオ	1.00

表 3-1 改良メチル水銀分析法(GC-MS 法)の性能評価結果(認証標準試料)

(a) 国立医薬品食品衛生研究所 1

試料	認証値 (mg/kg)		定量値(mg/kg)					平均値 (mg/kg)	真度 [*] (%)	併行精度 (RSD%)	室内精度 (RSD%)
			1st	2nd	3rd	4th	5th				
CRM 7402-a (タラ魚肉粉末)	0.58 ± 0.02 (as Hg)	Portion 1	0.53	0.48	0.50	0.51	0.50	0.50	87	0.8	3.9
		Portion 2	0.53	0.48	0.50	0.51	0.51				
BCR-463 (マグロ魚肉粉末)	3.04 ± 0.16 (as MeHg)	Portion 1	3.08	2.95	3.03	3.09	3.00	2.98	98	4.6	4.6
		Portion 2	3.06	3.14	2.90	2.91	2.68				
ERM-CE464 (マグロ魚肉粉末)	5.50 ± 0.17 (as MeHg)	Portion 1	5.43	6.03	5.08	4.94	5.32	5.23	95	6.0	6.5
		Portion 2	5.32	5.09	4.87	4.98	5.20				
CRM 7403-a (メカジキ魚肉粉末)	5.00 ± 0.22 (as Hg)	Portion 1	4.56	4.62	4.42	4.46	4.43	4.62	92	6.0	6.0
		Portion 2	5.30	4.50	4.85	4.48	4.58				

*真度は認証値を真値として推定した。

(b) 国立医薬品食品衛生研究所 2

試料	認証値 (mg/kg)		定量値(mg/kg)					平均値 (mg/kg)	真度 [*] (%)	併行精度 (RSD%)	室内精度 (RSD%)
			1st	2nd	3rd	4th	5th				
CRM 7402-a (タラ魚肉粉末)	0.58 ± 0.02 (as Hg)	Portion 1	0.57	0.54	0.55	0.51	0.53	0.54	94	1.4	4.3
		Portion 2	0.58	0.56	0.56	0.52	0.53				
BCR-463 (マグロ魚肉粉末)	3.04 ± 0.16 (as MeHg)	Portion 1	3.00	2.90	2.84	2.92	2.86	2.94	97	3.0	3.0
		Portion 2	2.91	3.08	2.86	3.06	3.01				
ERM-CE464 (マグロ魚肉粉末)	5.50 ± 0.17 (as MeHg)	Portion 1	5.33	5.29	4.83	5.15	5.37	5.25	95	2.6	3.8
		Portion 2	5.46	5.15	5.09	5.44	5.35				
CRM 7403-a (メカジキ魚肉粉末)	5.00 ± 0.22 (as Hg)	Portion 1	4.75	4.72	4.70	4.78	4.84	4.75	95	0.9	1.6
		Portion 2	4.82	4.69	4.62	4.72	4.86				

*真度は認証値を真値として推定した。

(c) 福岡市保健環境研究所

試料	認証値 (mg/kg)		定量値(mg/kg)					平均値 (mg/kg)	真度 [*] (%)	併行精度 (RSD%)	室内精度 (RSD%)
			1st	2nd	3rd	4th	5th				
CRM 7402-a (タラ魚肉粉末)	0.58 ± 0.02 (as Hg)	Portion 1	0.52	0.48	0.52	0.44	0.44	0.49	85	5.5	7.3
		Portion 2	0.50	0.51	0.54	0.46	0.52				
BCR-463 (マグロ魚肉粉末)	3.04 ± 0.16 (as MeHg)	Portion 1	2.96	2.75	2.79	2.74	2.68	2.80	92	6.7	6.8
		Portion 2	2.70	2.66	2.86	3.26	2.61				
ERM-CE464 (マグロ魚肉粉末)	5.50 ± 0.17 (as MeHg)	Portion 1	5.61	4.81	4.74	5.09	4.66	5.01	91	3.6	6.1
		Portion 2	5.34	4.85	5.18	4.99	4.87				
CRM 7403-a (メカジキ魚肉粉末)	5.00 ± 0.22 (as Hg)	Portion 1	5.18	4.19	4.33	4.76	4.41	4.48	90	4.9	6.9
		Portion 2	4.60	4.23	4.29	4.37	4.42				

*真度は認証値を真値として推定した。

表 3-2 改良メチル水銀分析法(GC-MS 法)の性能評価結果(添加試料)

(a) 国立医薬品食品衛生研究所 1

試料	添加濃度 (mg/kg)		定量値*(mg/kg)					平均値 (mg/kg)	真度(%)	併行精度 (RSD%)	室内精度 (RSD%)
			1st	2nd	3rd	4th	5th				
タラ	0	Portion 1	0.08	0.07	0.08	0.07	0.09	0.08	-	-	-
		Portion 2	0.08	0.08	0.08	0.08	0.09				
	0.3	Portion 1	0.24	0.26	0.27	0.28	0.27	0.27	89	1.2	5.0
		Portion 2	0.25	0.26	0.28	0.28	0.27				
キハダマグロ	0	Portion 1	0.09	0.11	0.10	0.09	0.10	0.10	-	-	-
		Portion 2	0.09	0.09	0.09	0.10	0.11				
	0.3	Portion 1	0.26	0.26	0.24	0.24	0.29	0.27	88	6.7	8.1
		Portion 2	0.26	0.28	0.29	0.25	0.29				

*添加試料の定量値は、ブランク試料の全定量値の平均値を差し引いた値として示した。

(b) 国立医薬品食品衛生研究所 2

試料	添加濃度 (mg/kg)		定量値*(mg/kg)					平均値 (mg/kg)	真度(%)	併行精度 (RSD%)	室内精度 (RSD%)
			1st	2nd	3rd	4th	5th				
タラ	0	Portion 1	0.09	0.09	0.09	0.10	0.09	0.09	-	-	-
		Portion 2	0.09	0.09	0.09	0.10	0.09				
	0.3	Portion 1	0.30	0.29	0.28	0.28	0.29	0.29	95	4.4	4.4
		Portion 2	0.28	0.29	0.27	0.31	0.27				
キハダマグロ	0	Portion 1	0.11	0.11	0.10	0.13	0.10	0.11	-	-	-
		Portion 2	0.11	0.11	0.11	0.12	0.12				
	0.3	Portion 1	0.27	0.33	0.27	0.32	0.31	0.29	98	6.3	7.6
		Portion 2	0.30	0.30	0.27	0.29	0.30				

*添加試料の定量値は、ブランク試料の全定量値の平均値を差し引いた値として示した。

表 4 SRM 測定における最適なコリジョンエネルギーの検討

プリカーサーイオン(m/z)	コリジョンエネルギー(V)	プロダクトイオン(m/z 277)の強度
292	5	4.9 x 10 ⁴
	10	3.3 x 10 ⁴
	15	8.0 x 10 ³
	20	3.8 x 10 ³
プリカーサーイオン(m/z)	コリジョンエネルギー(V)	プロダクトイオン(m/z 279)の強度
294	5	1.0 x 10 ⁵
	10	5.4 x 10 ⁴
	15	7.7 x 10 ³
	20	4.9 x 10 ³

表5 各濃度の検量線用測定溶液のから得られたSN比と戻しバイアス

メチル水銀濃度 (ng/mL)	SN比				
	測定1	測定2	測定3	測定4	測定5
0.1	169	46	23	17	10
0.5	618	560	226	1359	370
1	821	1531	290	685	656
2.5	1105	2564	1887	1552	2834
5	1435	2368	3835	4937	4240

メチル水銀濃度 (ng/mL)	戻しバイアス(%)				
	測定1	測定2	測定3	測定4	測定5
0.1	75	-24	48	28	57
0.5	-14	-9.6	0.1	-10	6.8
1	-2.9	10	-7.8	2.5	-14
2.5	0.9	-1.2	1.2	0.0	1.8
5	0.7	-1.8	-0.4	1.6	0.1

表6 メチル水銀分析法(GC-MSM/MS法)の真度および併行精度の推定結果(n=4)

SEMP試料	添加濃度 (mg/kg)	定量値 [*] (mg/kg)				平均値 (mg/kg)	真度 (%)	併行精度 (RSD%)
		n=1	n=2	n=3	n=4			
10群	0	0.029	0.028	0.025	0.028	0.027	-	-
	0.05	0.041	0.045	0.041	0.040	0.042	84	4.9
11群	0	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	-	-
	0.005	0.0051	0.0047	0.0048	0.0048	0.0048	97	3.3

*添加試料の定量値は、ブランク試料の全定量値の平均値を差し引いた値として示した。

表7 HPLCによる測定の初期条件

HPLC条件
カラム: CAPCELL PAK C18MG (資生堂社製) (内径4.6 mm 長さ25 cm 粒子径5 μm)
移動相: 0.05 % メタノール 10 mM 1-ブタンサルホン酸ナトリウム 4 mM TMAH 4 mM マロン酸 溶液(pH3)
流速: 0.75 mL/min
カラム温度: 25 °C
注入量: 20 μL

表8 検討したHPLCカラムの種類

カラム	サイズ
1 CAPCELL PAK C18MG (資生堂社製)	内径4.6 mm 長さ15 cm 粒子径3 μm
2 Inerisil AS (GL-Science社製)	内径2.1 mm 長さ25 cm 粒子径3 μm
3 Inert Sustain (GL-Science社製)	内径4.6 mm 長さ25 cm 粒子径3 μm
4 Mightysil RP-18 GP (関東化学社製)	内径4.6 mm 長さ25 cm 粒子径3 μm
5 L-column2 (化学物質研究評価機構社製)	内径4.6 mm 長さ25 cm 粒子径3 μm

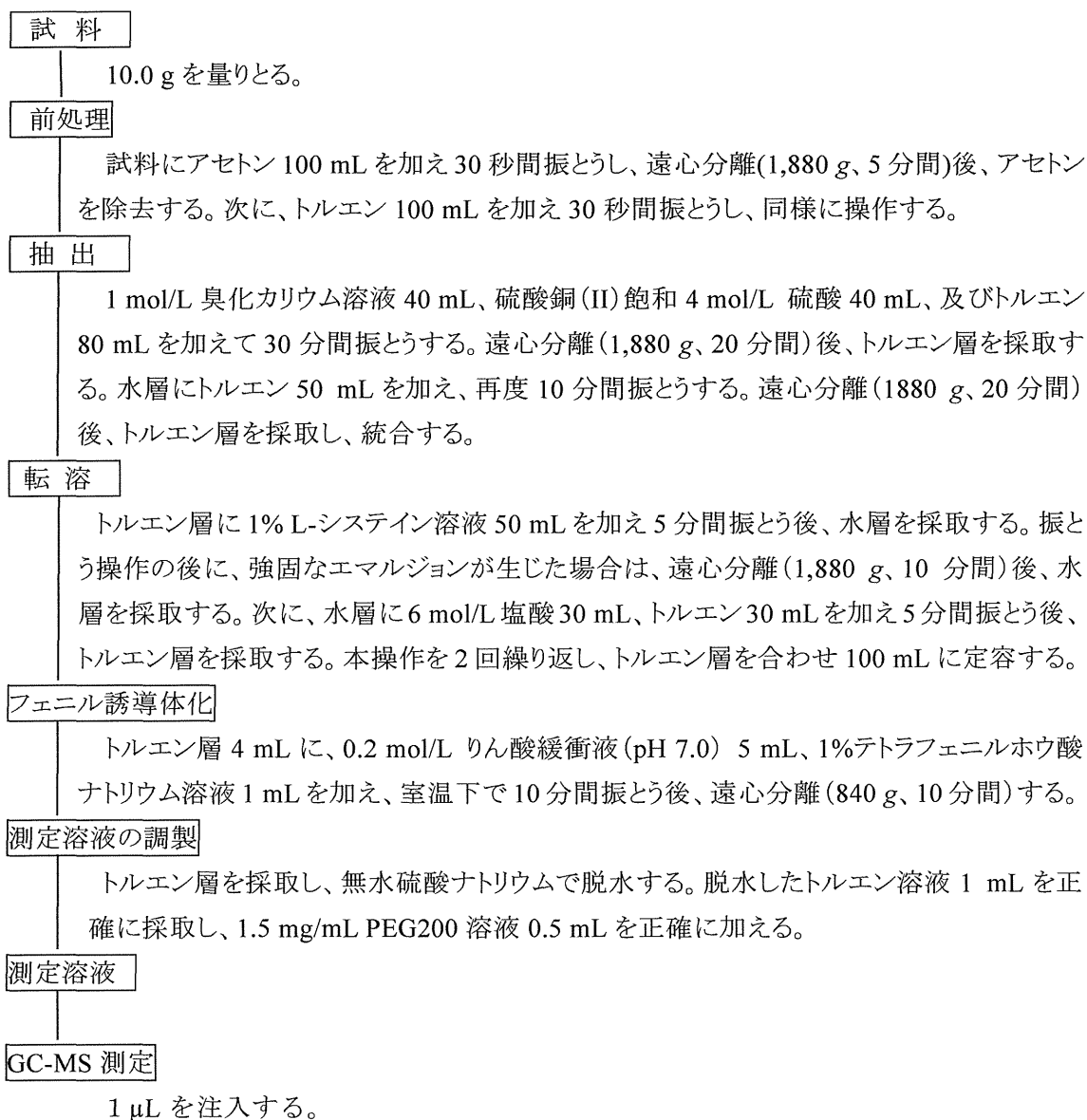


図 1 改良 GC-MS 法のフローチャート

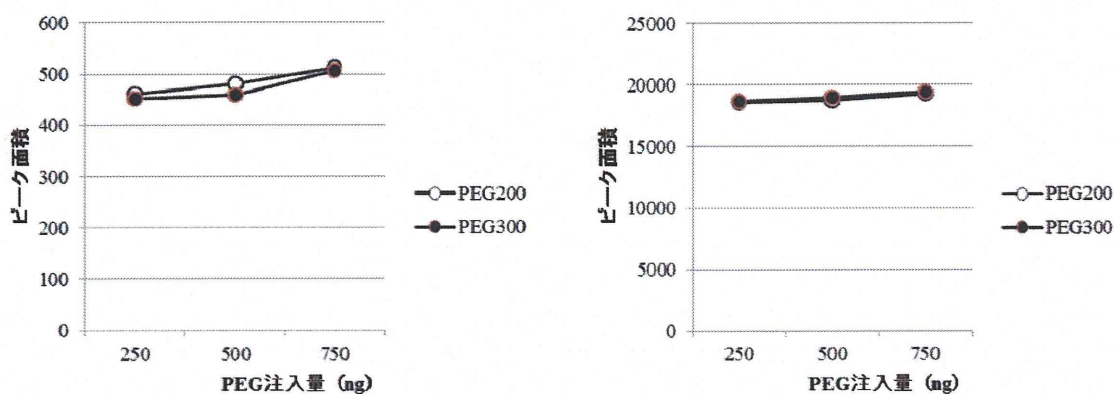


図 2-1 PEG の共注入量によるメチルフェニル水銀のピーク面積への影響

左図：2.5 ng/mL のメチルフェニル水銀溶液、右図：100 ng/mL のメチルフェニル水銀溶液

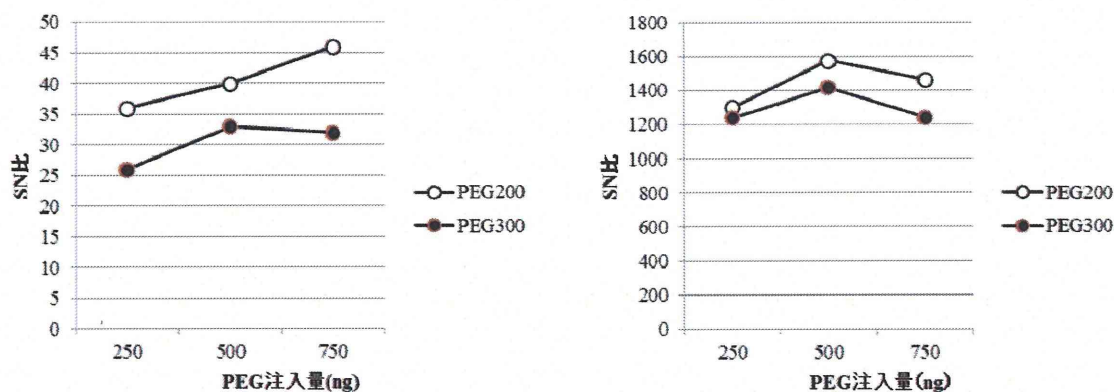
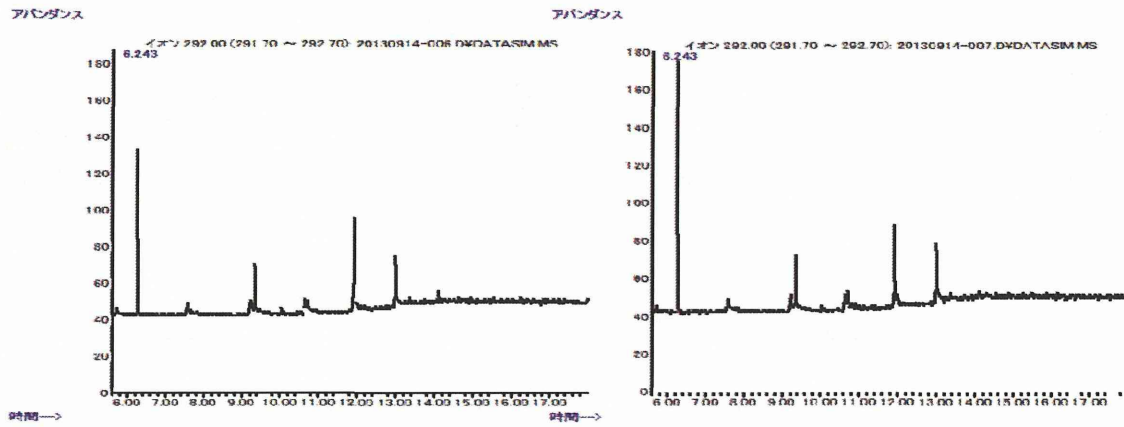


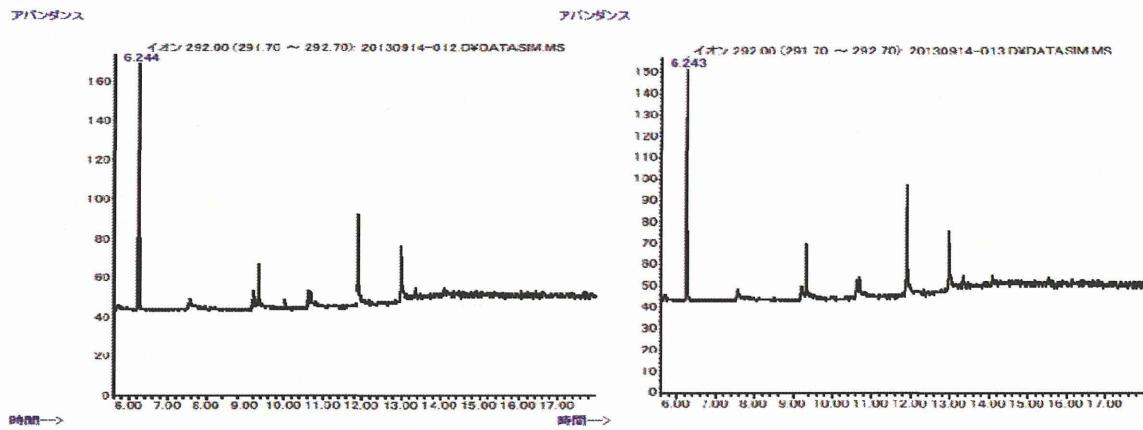
図 2-2 PEG の共注入量によるメチルフェニル水銀の SN 比への影響

左図：2.5 ng/mL のメチルフェニル水銀溶液、右図：100 ng/mL のメチルフェニル水銀溶液

(a) 試料：メチル水銀標準溶液



(b) 試料：タラ



(c) 試料：メバチマグロ

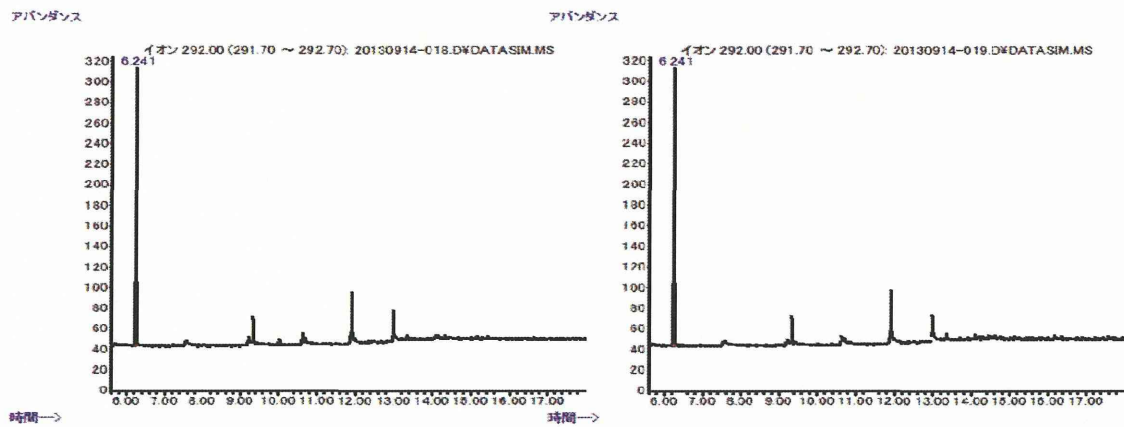
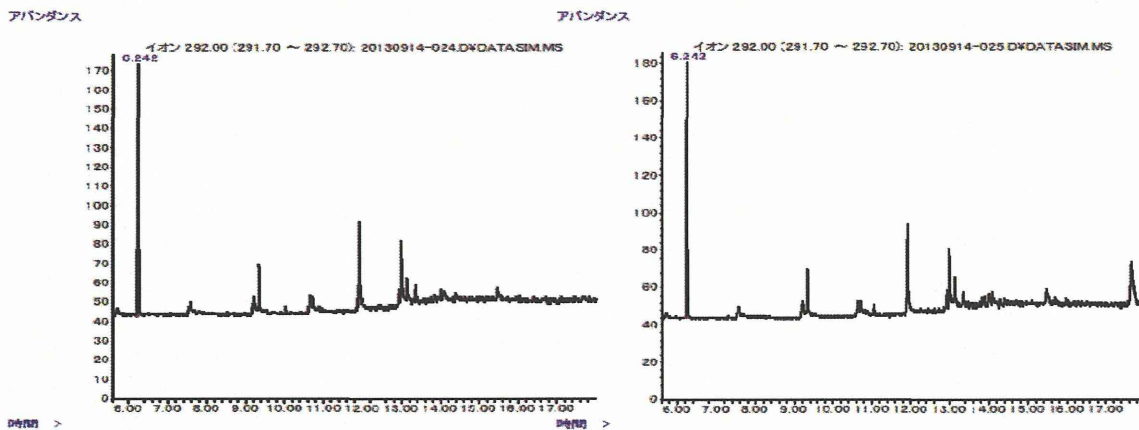


図3 PSA カラム精製によるクロマトグラムへの影響

左図：PSA カラム精製無、右図：PSA カラム精製有

(d) 試料：サバ



(e) 試料：カツオ

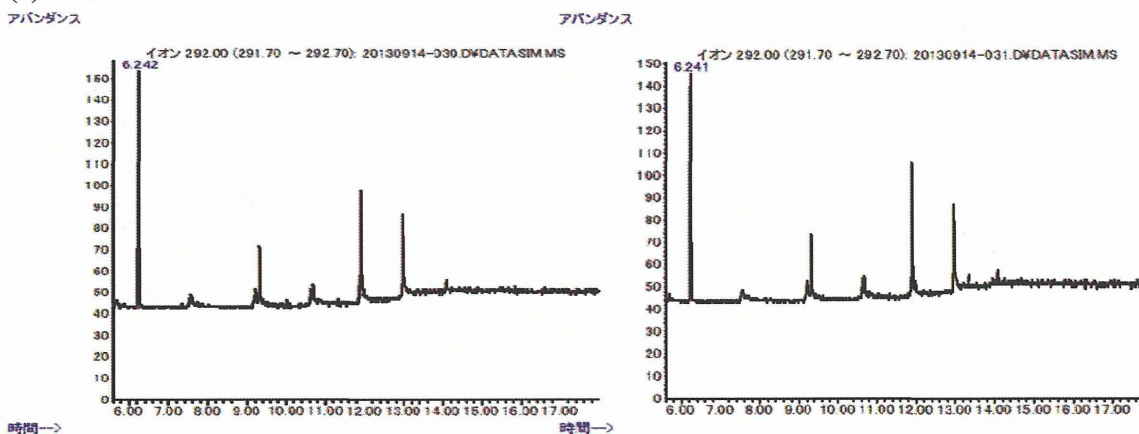


図3 PSA カラム精製によるクロマトグラムへの影響(続き)

左図：PSA カラム精製無、右図：PSA カラム精製有

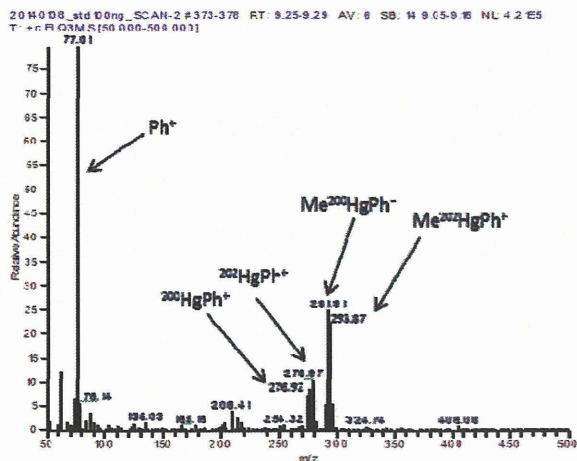
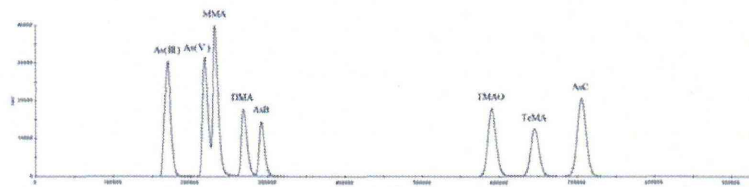
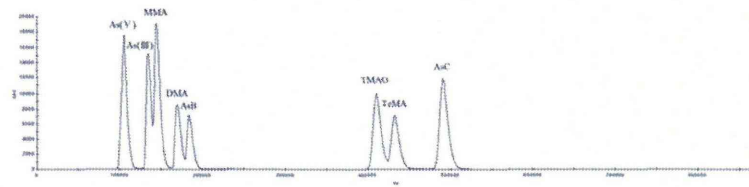


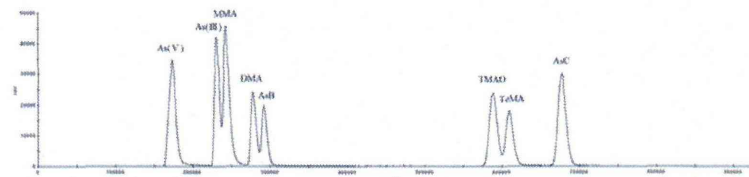
図4 メチルフェニル水銀のマススペクトル



(a)



(c)



(e)

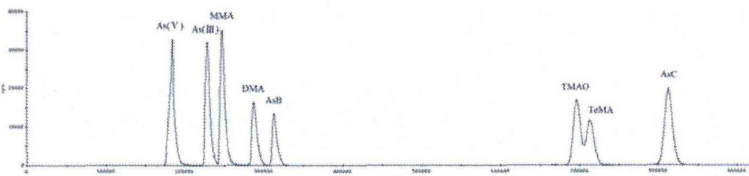
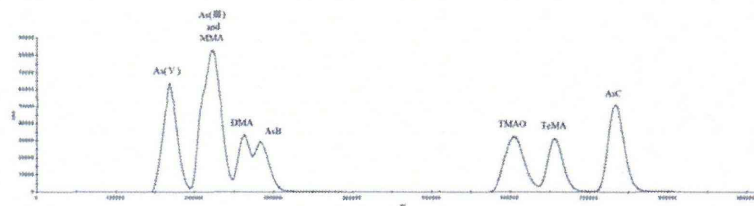


図 5-1 初期条件における化学形態別ヒ素の測定

(HPLC カラム: CAPCELL PAK C18 MG; 内径 4.6 mm 長さ 25 cm 粒子径 5 μm)

(b)



(d)

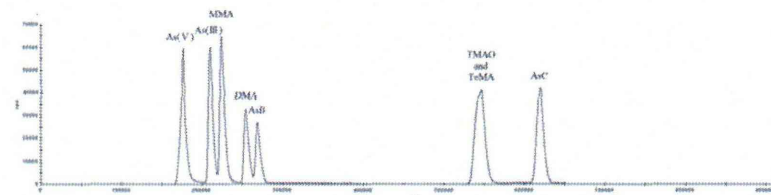


図 5-2 HPLC カラムの検討

(a) CAPCELL PAK C18MG (内径 4.6 mm 長さ 15 cm 粒子径 3 μm)

(b) Inerisil AS (内径 2.1 mm 長さ 25 cm 粒子径 3 μm)

(c) Inert Sustain (内径 4.6 mm 長さ 25 cm 粒子径 3 μm)

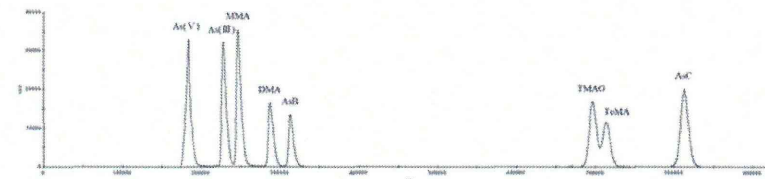
(d) Mightysil RP-18 GP (内径 4.6 mm 長さ 25 cm 粒子径 3 μm)

(e) 化学物質研究評価機構 L-column2 (内径 4.6 mm 長さ 25 cm 粒子径 3 μm)

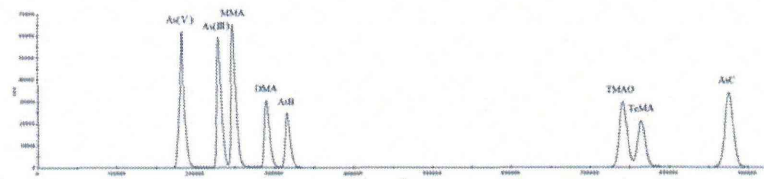
(a)



(b)



(c)



(d)

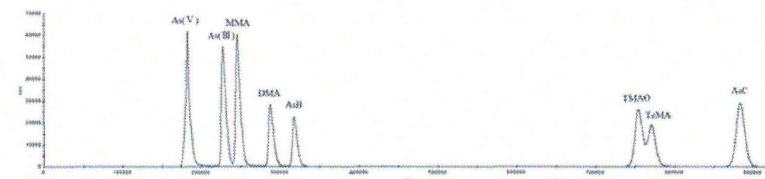
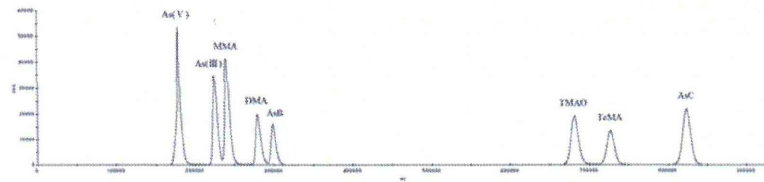
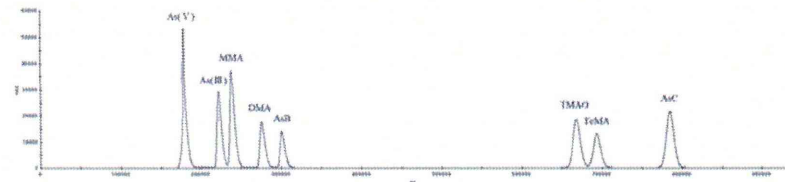


図 6-1 1-ブタンスルホン酸ナトリウム濃度の検討
(a) 8 mM (b) 10 mM (初期条件) (c) 12 mM (d) 14 mM

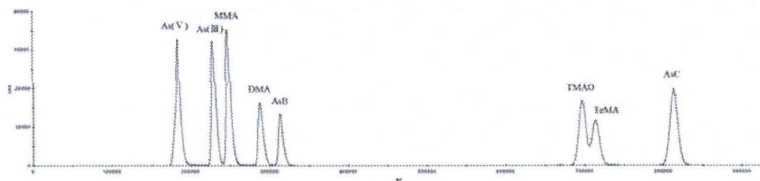
(a)



(b)



(c)



(d)

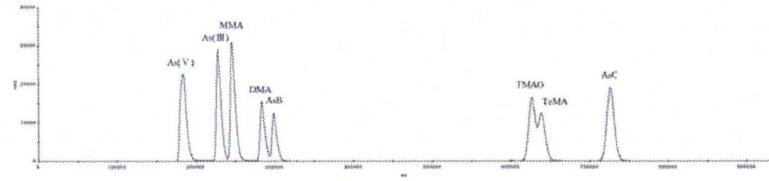
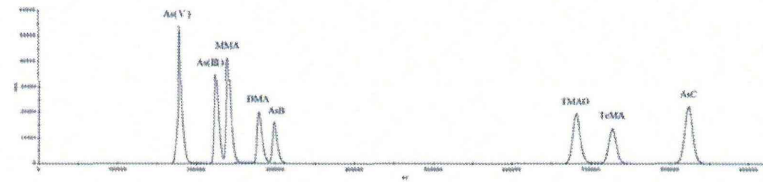


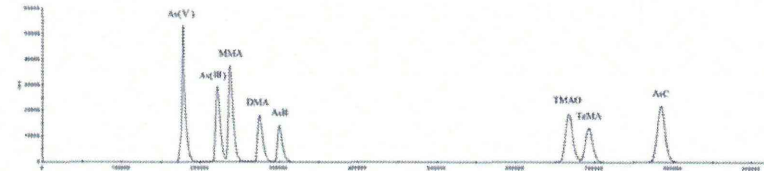
図 6-2 TMAH 濃度の検討

(a) 1 mM (b) 2 mM (c) 4 mM (初期条件) (d) 8 mM

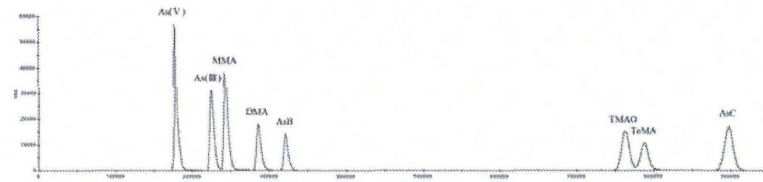
(a)



(b)



(c)



(d)

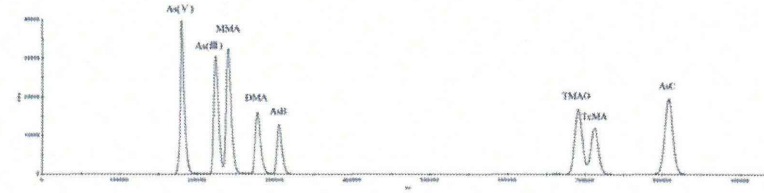


図 6-3 1-ブタンスルホン酸ナトリウムおよび TMAH 濃度の検討

- (a) 1-ブタンスルホン酸ナトリウム 10 mM、TMAH 1 mM
- (b) 1-ブタンスルホン酸ナトリウム 10 mM、TMAH 2 mM
- (c) 1-ブタンスルホン酸ナトリウム 12 mM、TMAH 1 mM
- (d) 1-ブタンスルホン酸ナトリウム 12 mM、TMAH 2 mM

II. 分担研究報告 4

リスクを考慮した精密摂取量推定手法開発に関する研究

松田りえ子

平成 25 年度厚生労働科学研究補助金 食品の安全確保推進研究事業

食品を介したダイオキシン類等有害物質摂取量の評価と
その手法開発に関する研究

リスクを考慮した精密摂取量推定手法開発に関する研究

研究代表者 渡邊 敬浩 国立医薬品食品衛生研究所食品部第三室長
研究分担者 松田りえ子 国立医薬品食品衛生研究所食品衛生管理部主任研究官

研究要旨

幼児、高齢者のように有害化学物質の影響を受けやすいと考えられるグループは、その食品摂取の状況も全体の平均とは異なっているため、国民全体の有害物質摂取量推定値のみで、これらのグループのリスクを評価することはできず、個々のグループ毎に摂取量を推定する必要がある。本分担課題では、特定のグループにおける摂取量推定を行う基礎情報として、年代別の食品摂取量パターンの比較を行うとともに、幼児における TD 試料の作成を試みた。

国民健康・栄養調査結果の、食品小分類毎の一日の摂取量の平均値を 1-3 歳（幼児 1）、4-6 歳（幼児 2）、7-12 歳（学童）、13-18 歳（中学・高校生）、19-64 歳（成人）、65 歳以上（高齢者）の年齢区分毎に求めた。全食品の摂取量は、幼児 1 から成人まで年代と共に増加し、高齢者においてやや減少している。成人の 1 日の食品摂取量は 1-3 歳の幼児の 1.8 倍であった。全体に対する食品群の割合の変化が最も大きいのは、12 群（乳）と 9 群（嗜好飲料）であった。幼児ではこの 2 つの群の摂取割合は 17% 程度でほぼ等しいが、成年の 9 群（嗜好飲料）の摂取割合 32% に増加する一方、12 群（乳）の摂取割合は 4% に減少した。体重当たりの食品摂取量は、1-3 歳の幼児で最も大きく、成長と共に小さくなり、高齢者でやや増加した。食品群別では、5 群（豆）、9 群（嗜好飲料）、10 群（魚介）以外の群は、幼児から成人にかけて体重当たりの摂取量が減少し、5 群（豆）、9 群（嗜好飲料）、10 群（魚介）の体重当たり摂取量は中学・高校生で最少となり、成人及び高齢者でやや増加した。体重当たりの食品摂取量が多いことから、有害物質摂取量も幼児で最も大きくなる可能性が高い。そこで、1-3 歳の幼児の平均的食事を模した TD 試料を作製した。

研究協力者 五十嵐敦子 国立医薬品食品衛生研究所食品部

A. 研究目的

有害物質の摂取量推定は、基準値や規格値、規制値等、行政による管理の指標となる数値の設定や、それら行政施策の効果検証に不可欠である。推定された摂取量を科学的根拠として、人の健康危害に対する実際的な影響が評価され、管理のための数値は決定される。化学物質のヒトへの暴露量の 90% 以上は、食事を介していると考えられて

いることから、本研究の他の分担課題において、マーケットバスケット方式により調製したトータルダイエット(TD)試料を分析することにより、重金属類、PCB のような有害物質の摂取量推定を、継続して実施している。

マーケットバスケット方式によるトータルダイエット(TD)試料の調製は、国民健康・栄養調査で得られた、それぞれの食品小分類の 1 日摂取重量

の平均値に基づいている。従って、この方法で得られる有害物質の摂取量は、国民全体を平均した食事からの値となる。しかし、国民全体の食品摂取は一律ではない。特に、幼児、高齢者のように有害化学物質の影響を受けやすいと考えられるグループは、その食品摂取の状況も全体の平均とは異なっているため、国民全体の有害物質摂取量推定値のみで、これらのグループのリスクを評価することはできず、個々のグループ毎に摂取量を推定する必要がある。

本分担課題では、上記の議論を踏まえ、年代別の食品摂取量パターンの比較を行うとともに、幼児における TD 試料の作成を試みた。

B. 研究方法

年代別食品摂取量の算出

平成 20-22 年に行われた国民健康・栄養調査結果の、食品小分類毎の一日の摂取量の平均値を求めた。全データの他に、1-3 歳 (幼児 1)、4-6 歳 (幼児 2)、7-12 歳 (学童)、13-18 歳 (中学・高校生)、19-64 歳 (成人)、65 歳以上 (高齢者) の年齢区分毎の平均値を求めた。

各年齢区分の平均体重は、国民健康・栄養調査の身体・生活習慣データ中の体重を年齢区分毎に平均した値とした。

幼児 (1-3 歳) の TD 試料作製

年代別食品摂取量の算出で求めた、食品小分類毎の 1-3 歳の一日量平均値を用いて、TD 試料を作製した。

食材は東京都世田谷区のスーパーマーケット及び小売店で購入し、13 の群に分別し、必要に応じて茹でる・焼く等の調理を行った後に、上記の一日摂取量に従って混合し、13 群の試料を作製した。各群の内容は、米 (1 群)、雑穀・芋 (2 群)、砂糖・菓子 (3 群)、油脂 (4 群)、豆 (5 群)、果実 (6 群)、有色野菜 (7 群)、その他の野菜・漬物・

きのこ・海藻 (8 群)、嗜好飲料 (9 群)、魚介 (10 群)、肉・卵 (11 群)、乳 (12 群)、調味料 (13 群) とした。

年齢区分による有害物質摂取量の比較を目的としたことから、本研究費の他の分担課題で作成した通常の TD 試料と同時に調製し、可能な限り共通する食材を使用した。作成した幼児の TD 試料に含めた食品とその量を Table 1 に示す。

C.D. 研究結果及び考察

年代毎の食品摂取パターン

Fig.1 に年代区分毎の食品摂取量を示す。全食品の摂取量は、幼児 1 から成人まで年代と共に増加し、高齢者においてやや減少した。成人の 1 日の食品摂取量は 1-3 歳の幼児の 1.8 倍となった。食品群別では、1 群 (米) の摂取量は幼児から中学・高校生まで増加するが、成人以降は減少した。2 群 (雑穀・芋)、3 群 (砂糖・菓子) も 1 群と同じ傾向であるが、増加量はわずかであった。一方、4 群 (油脂) の摂取量は 12 g 以下と少ないが、幼児から中学・高校生までの増加とそれ以降の減少の変化の割合は大きく、1 群 (米) と同程度であった。5 群 (豆) の摂取量は年齢と共に増加が見られ、高齢者の摂取量が最大であった。6 群 (果実) の摂取量は大きな変化ではないが、幼児から成人になるにつれて減少し、高齢者でやや増加していた。7 群 (有色野菜) と 8 群 (その他の野菜・海藻) の摂取量は、5 群 (豆) と同じく、年齢と共に増加がみられた。9 群 (嗜好飲料) の摂取量は年齢の増加と共に大きく増加した。この増加傾向は幼児から成人まで継続し、高齢者ではやや減少する。変化の割合は大きく、成人の摂取量は 1-3 歳幼児の 3.3 倍に達している。10 群 (魚介) の摂取量は年齢と共に増加する一方、11 群 (肉・卵) の摂取量は中学・高校生まで上昇し、その後減少した。高齢者の 11 群摂取量は、学童と同程度にな

っている。12群(乳)の摂取量は、幼児から学童までは増加し、その後急激に減少した。中学・高校生の12群(乳)の摂取量は幼児と同程度、成人及び高齢者の摂取量は幼児の1/2となった。13群(調味料)の摂取量は、幼児から成人までで2倍程度増加し、高齢者でやや減少した。

Fig.2は、各食品群の摂取した全食品に対する割合を示している。主食である1群(米)の割合は中学・高校性まで増加するが、成人になると減少した。2群(雑穀・芋)、3群(砂糖・菓子)の割合は、幼児から高齢者まで単調に減少が見られた。4群(油脂)も中学・高校性まで増加が見られるが、全体に占める割合は非常に小さかった。5群(豆)は年代の上昇と共に摂取割合が増加しているが、6群(果実)は年代と共に割合が減少した。7群(有色野菜)と8群(その他の野菜・海藻)は年代間で大きな変化は見られなかった。9群(嗜好飲料)は年代と共に割合が最も顕著に増加した。動物性食品である10群(魚介)と11群(肉・卵)の割合は、幼児から中学・高校生まで共に増加するが、その後、10群は増加、11群は減少した結果、高齢者における量群の摂取割合は同程度となった。12群(乳)の割合は、幼児～学童では15%以上となり、主食である1群と同程度であるが、中学・高校生から激減し、成人では4%まで低下した。13群(調味料)の割合は、年代間で大きな差は認められなかった。

食品群中で摂取割合の変化が最も大きいのは、12群(乳)と9群(嗜好飲料)であった。幼児ではこの2つの群の摂取割合は17%程度でほぼ等しいが、成年の9群(嗜好飲料)の摂取割合32%に増加する一方、12群(乳)の摂取割合は4%に減少した。これらの群は、幼児と成年の食品摂取パターンを特徴づけていると考えられる。

幼児から成人に成長し、体格が大きくなることから、食品の摂取量が増えるのは当然である。し

かし、有害物質の摂取量は体重当たりで評価されることから、年代区分毎の食品一日摂取量を平均体重で除した値が、摂取量よりも重要と考えられる。Fig.3に、年代区分毎の食品一日摂取量を平均体重で除した値を示す。Fig.1の食品摂取量とは逆に、体重当たりの食品摂取量は、1-3歳の幼児で最も大きく、成長と共に小さくなり、高齢者でやや増加した。食品群別では、5群(豆)、9群(嗜好飲料)、10群(魚介)以外の群は、幼児から成人にかけて体重当たりの摂取量が減少した。5群(豆)、9群(嗜好飲料)、10群(魚介)の体重当たり摂取量は中学・高校生で最少となり、成人及び高齢者でやや増加した。中でも9群(嗜好飲料)の増加率は大きかった。

有害物質の濃度が、幼児と成人の食品で大きく変わらないとすれば、体重当たりの有害物質摂取量は幼児で最も大きくなる可能性が高い。また、幼児期において摂取割合の高い、乳に含まれる有害物質の影響は、特に幼児において大きいと考えられる。国民全体平均の摂取量推定の結果は、ダイオキシン・PCBのようなPOPs、水銀は10群(魚介)から大部分を摂取していることを示している。幼児期は10群の摂取割合は小さいが、体重当たりの摂取量は他の年代区分よりも大きく、影響も大きいと考えられる。また、高齢者においても、10群の体重当たり摂取量は、全体平均を上回っている。

以上の考察の結果から、本年度は1-3歳の幼児の平均的食事を模したTD試料を作製することとした。

幼児(1-3歳)のTD試料作製

幼児用TD試料に含める食品は、基本的に全体平均のTD試料に使用した食品と統一したが、一般に幼児が食べないと考えられる、刺激の強い食品等は、別の食品でおきかえた。Table 1では、こ

これらの食品をマーキングした。

TD 試料作製の基礎としている、国民健康・栄養調査結果は、Table 1 にあるように、調査対象者が調査日に喫食した食品重量を、小分類毎にまとめて提供される。それぞれの小分類には、多数の食品が含まれており、実際に TD 試料に含める食品の選択は試料作製者に委ねられている。本研究のように、年代別の TD 試料を調製する際には、小分類の重量だけではなく、その年代で多く摂取される食品を含めることも、重要と考えられるため、小分類だけでなく実際に摂取した食品の情報が得られれば、より精密な評価が可能となると思われる。

今後は、本分担課題で作成した、幼児の TD 試料中の、重金属、ダイオキシンを分析して摂取量を推定し、全体平均の試料から推定した摂取量と比較する予定である。

E. 研究発表

1. 論文発表

なし

2. 学会発表

なし

Table 1 TD試料に含めた食材

群	小分類 番号	小分類名	1-3歳幼児		全体	
			個別品目	一日摂 取量()	個別品目	一日摂 取量()
			I	1	米	精白米めし 精白米めし 玄米めし
	2	米加工品	赤飯	1.6	赤飯	4.9
	3	小麦粉類	ホットケーキミックス粉	2.8	ホットケーキミックス粉	3.5
	4	パン類	クロワッサン ナン	16.6	クロワッサン ナン	33.2
	5	菓子パン類	チョココロネ	2.2	チョココロネ	4.2
	6	うどん、中華麺類	中華そば(蒸し) 冷凍うどん	19.0	中華そば(蒸し) 冷凍うどん	36.4
	7	即席中華めん	焼きそばカップめん	0.9	焼きそばカップめん	4.4
	8	パスタ	乾スパゲッティ	4.8	乾スパゲッティ	13.0
	9	その他の小麦加工品	餃子の皮	1.9	餃子の皮	5.3
II	10	そば・加工品	ゆでそば	1.3	ゆでそば	9.4
	11	とうもろこし・加工品	コーンフレーク	0.93	コーンフレーク	0.57
	12	その他の穀類	オートミール	0.7	オートミール	2.1
	13	さつまいも・加工品	さつまいも	5.7	さつまいも	6.3
	14	じゃがいも・加工品	じゃがいも	12.5	じゃがいも	23.5
	15	その他のいも・加工品	さといも ながいも	4.2	さといも ながいも	15.0
	16	でんぷん・加工品	タピオカパール(ゆで)	0.9	タピオカパール(ゆで)	1.9
	24	種実類	甘栗	0.8	カシューナッツ	1.9
	17	砂糖・甘味料類	上白糖 メープルシロップ	2.4	コーヒーシュガー メープルシロップ	5.9
	81	和菓子類	カステラ どら焼き タルト	4.4	カステラ どら焼き タルト	11.5
III	82	ケーキ・ペストリー類	シュークリーム ショートケーキ	4.7	シュークリーム ショートケーキ	6.2
	83	ビスケット類	ウェハース	2.0	ウェハース	1.6
	84	キャンデー類	ゼリーキャンデー	0.7	ゼリーキャンデー	0.2
	85	その他の菓子類	プリン・カスタードプディング ゼリー ミルクチョコレート	6.6	プリン・カスタードプディング ポテトチップス ミルクチョコレート	6.1
	76	バター	バター	0.48	無塩バター	1.08
	77	マーガリン	マーガリン	0.63	マーガリン	1.08
IV	78	植物性油脂	オリーブ油 サラダ油 ごま油	3.2	オリーブ油 サラダ油 ごま油	7.6
	79	動物性油脂	ラード	0.3	ラード	0.1
	80	その他の油脂	ショートニング	0.00	ショートニング	0.01
	18	大豆(全粒)・加工品	煮豆	0.6	乾燥大豆	1.0
	19	豆腐	木綿豆腐 充填豆腐	10.4	木綿豆腐 充填豆腐	27.5
V	20	油揚げ類	油揚げ	1.2	油揚げ	6.2
	21	納豆	糸引き納豆	3.7	糸引き納豆	6.8
	22	その他の大豆加工品	調整豆乳	2.3	調整豆乳	4.5
	23	その他の豆・加工品	こしあん グリーンピース(揚げ豆)	0.6	こしあん グリーンピース(揚げ豆)	1.5