

201327033A

厚生労働科学研究費補助金

食品の安全確保推進研究事業

基準値の策定に資する食品汚染カビ毒の実態調査
と生体影響評価に関する研究

平成 25 年度 総括・分担研究報告書

研究代表者 局 博一

東京大学大学院農学生命科学研究科

平成 26 (2014) 年 3 月

目 次

I. 総括研究報告書

基準値の策定に資する食品汚染カビ毒の実態調査と生体影響評価 に関する研究	1
局 博一	

II. 分担研究報告書

1. カビ毒の食品汚染実態調査と生態調査、曝露量評価

食品汚染カビ毒の実態調査	11
小西 良子	

国内流通食品における <i>Fusarium</i> 属菌の分布状況	20
渡辺 麻衣子	

カビ毒産生菌の生態学的研究	28
作田 庄平	

我が国におけるデオキシニバレノールの年齢別曝露評価	33
小西 良子	

2. 毒性評価

かび毒の発達神経毒性評価	37
渋谷 淳	

T-2 トキシンの経口摂取による心拍・体温・活動量への影響	50
局 博一	

III. 個表

厚生労働科学研究費補助金
(食品の安全確保推進研究事業)

総括研究報告書

基準値の策定に資する食品汚染かび毒の実態調査
と生体影響評価に関する研究

研究代表者 局 博一

東京大学大学院農学生命科学研究科附属食の安全研究センター特任教授

研究要旨

1. カビ毒の食品汚染実態調査と生態調査、曝露量評価

1) 食品汚染カビ毒の実態調査

2010年～2013年の調査に引き続いて3種のアフラトキシン(T-2 トキシン、HT-2 トキシン及びゼアラレノン)を対象に市販食品における実態調査を行った。本年度は14品目298検体について分析を行った。ゼアラレノンは、主に大麦、ゴマ、小豆及び雑穀米で、T-2 トキシンとHT-2 トキシンはライ麦粉、ハト麦加工品、ビール及び小豆から検出された。汚染濃度については、ハト麦粉と小豆ではゼアラレノンの下限平均濃度が15 $\mu\text{g}/\text{kg}$ を超えていた。T-2 トキシンについては、下限平均濃度が1 $\mu\text{g}/\text{kg}$ を超えた食品はなく、HT-2 トキシンについては、ライ麦粉、ハト麦加工品及び小豆において下限平均濃度が1 $\mu\text{g}/\text{kg}$ を超えており、小豆における平均濃度が最も高く、7.1 $\mu\text{g}/\text{kg}$ であった。カビ毒の汚染には年次変化があることを踏まえ、汚染が認められる試料を重点的に調査していく必要性が示唆された。

2) 国内流通食品における *Fusarium* 属菌の分布状況

国内で流通している国産小豆および対照として国産大豆・外国産小豆の計20検体について *Fusarium* 属菌の分布状況を調べた。その結果、*Fusarium* 属菌の陽性検体数は、国産小豆では8検体(88.9%)、国産大豆では4検体(57.1%)、外国産小豆では0検体(0.0%)であった。国産小豆の陽性検体率は、国産大豆および外国産小豆と比較して有意に高かった。*Fusarium* 属菌種には産地によって偏りがみられた。また、検出菌種にはトリコテセン系マイコトキシン等の産生菌が含まれた。今後、供試検体のマイコトキシン汚染状況および分離株のマイコトキシン産生性について解析を進めるとともに、産地数と1産地あたりの検体数を増やして調査を継続する必要があると考えられた。

3) カビ毒産生菌の生態学的研究

上記の2)の調査により分離された *Fusarium* 属菌の代謝産物を分析する方法の検討を行った。4種のカビ毒(T-2 トキシン、HT-2 トキシン、ネオソラニオールおよびジアセトキシシルペノール)が良好に分析できるLC-TOF/MSの分析条件を用いて、11種の

カビについて代謝産物を調べた。その結果、11種合計で580の代謝産物が検出され、また、標準品とした4種のカビ毒の生産性については、T-2トキシン生産菌が1株、ジアセトキシシルペノール生産株が4株であった。本分析法は、次年度以降で行う多くの菌株についての代謝産物の分析に有効であると考えられた。

4) 我が国におけるデオキシニバレノール (DON) の年齢別暴露評価

DONの汚染が報告されている国内流通の食品につき、日本人への曝露量を統計学的に評価した。汚染量調査の対象となった食品のうち、そもそも汚染量がきわめて少ないもの及び、摂取者の割合が少ないものを除き、小麦、大麦、ビール、小豆についての曝露量を年齢層ごとに求め、それを合算した総量によって、日本人のDONの曝露評価を年齢層ごとに行った。GEMS-FOODの最新の勧告に基づき、lower boundとupper boundの二つの場合のそれぞれについてシミュレーションを行った。結果として99.8%タイルで1~6才、7~14才、15~19才、20才以上のどの年齢層でも暫定一日耐容摂取量(1.0 $\mu\text{g}/\text{体重 kg}/\text{日}$)を上回らなかった。99.9%タイルでの結果とも合わせて考察すると、日本人のDON摂取による健康被害は極めて小さいものと推定された。

2. 毒性評価

1) かび毒の発達神経毒性評価

妊娠ICRマウスを用いてT-2トキシン(0、1、3、9 ppm)の発達期暴露試験(各群12匹)を行った。妊娠6日目から離乳時(生後21日目)まで母動物に対して混餌投与することにより、経胎盤・経乳的に児動物に暴露し、暴露終了時と生後77日目にそれぞれ解剖を行った。母動物は9 ppmで分娩後に体重の低値、前胃粘膜の過形成、肝臓重量の高値が認められた。また、1 ppmから胸腺重量の低値が認められた。児動物では、9 ppmで投与期間を通じて体重低値を示し、離乳後も出生後77日まで体重低値が継続した。また、離乳時脳絶対重量の低値が3 ppmから認められ、9 ppmでの体重や諸臓器の重量低値と併せてT-2トキシンによる発達障害が示唆された。出生後77日の児動物では雌9 ppmで肝臓及び胸腺重量の低値がみられたが、出生時に比較して変化の程度は小さく、回復性のある変化であると考えられた。離乳時の雄児動物における脳海馬歯状回の免疫組織学的検査の結果、顆粒細胞層下帯でのTbr2陽性細胞が3 ppmから減少し、T-2トキシンによるtype 2前駆細胞を標的としたニューロン新生障害が起きているものと考えられた。歯状回門部ではreelin陽性細胞の増加が9 ppmで認められ、前駆細胞の移動異常を反映して介在ニューロンからの産生が増加した可能性が考えられた。

2) T-2トキシンの経口摂取による心拍・体温・活動量への影響

T-2トキシンの経口摂取による全身機能(循環機能、体温および活動量)に及ぼす影響を自由行動下のラットのテレメトリー観察によって行った。実験群は3群(0 ppm、6 ppm、12 ppm;各群6匹)とした。その結果、12 ppm-T2トキシン摂取群および6 ppm-T2トキシン摂取群で、摂取期間中(5日間)に心拍数、活動量および体温のレベルおよび日周リズムへの影響が摂取開始の翌日から認められ、その影響は12 ppm-T2トキシン摂取群は6 ppm-T2トキシン摂取群に比べて大きい傾向がみられた。心拍数、活動量、体温周期性の変化はT-2トキシンの摂取を中止すると摂取前の状態近くまで回復した。摂食量および体重(実験終了日)は12 ppm-T2トキシン摂取群、6 ppm-T2トキシン摂取群、0 ppm-Tトキシン群の順に低値を示した。これらの試験結果から、6 ppm~12 ppmのT-2トキシンの短期間経口摂取によって全身性指標である循環機能などに可逆性の機能的影

響が生じることが明らかになった。

上述のとおり、国内流通食品におけるフザリウム毒素およびフザリウム菌の汚染実態と T-2 トキシンの毒性影響の一端が明らかになった。これらの研究は食品衛生上重要な知見を含むことから引き続き詳細な研究を行う必要性が考えられた。

A.研究目的

諸外国から輸入される様々な食品および国内産食品の安全性を確保するため、国際標準に準じた我が国の成分規格策定やリスク評価を行っていく必要がある。そのため我が国におけるカビ毒の実態調査・暴露評価および毒性評価に関して継続的に調査研究を行う必要がある。また、予防的措置として、欧米等で注目される新規カビ毒、あるいはまだ毒性評価されていないカビ毒複合体を対象に情報収集を行うとともに、輸入食品を汚染するカビ毒産生菌の実態およびその毒素産生能を検討し、モニタリング対象カビ毒の選定を検討する必要性もある。

本研究グループでは平成 22 年～24 年度までに 15 食品目、約 800 検体のカビ毒汚染調査（カビ毒陽性検出率、汚染濃度）を実施し、とくに T-2 トキシン、HT-2 トキシン、ゼアラレノンの汚染状況を明らかにしてきた。実態調査の結果、比較的高頻度に汚染が検出されている現状を重要視し、平成 25 年度からは一部新たな食品目を加えさらに 3 年間の実態調査を行う方針で進めている。本年度では食品汚染カビ毒（フザリウム毒素）を対象に、汚染実態調査、暴露量評価、食品中のフザリウム属菌の生態調査ならびに毒性評価を行った。

B.研究方法

1. カビ毒の食品汚染実態調査と生態調査、暴露量評価

1) 食品汚染カビ毒の実態調査

調査対象品目：農林水産省から提供された国産小麦（試料数：40）及び国産大麦（試料数：10）のほか、ランダムに購入した市販の食品目（13 種類）

の合計 298 試料を検査対象とした。T-2 トキシン、HT-2 トキシン及びゼアラレノンの分析は、試料（25 g）からメタノール溶媒で抽出、イムノアフィニティカラムで精製後、LC-MS/MS を用いて測定した。

2) 国内流通食品における *Fusarium* 属菌の分布状況

国内に流通する小豆を中心とした食品について、産地別に *Fusarium* 属菌の分布状況を検討した。国産小豆および対照として国産大豆・外国産小豆の計 20 検体を供試した。小豆および大豆の全粒を寒天平板培地上で培養後、*Fusarium* 属菌の特徴を示すコロニーの発育がみられた粒数を計測した。発育したコロニーを単離し、形態観察および分子生物学的指標によって菌種を同定した。

3) カビ毒産生菌の生態学的研究

上記の 2) の調査により分離された *Fusarium* 属菌の代謝産物を分析する方法の検討を行った。4 種のカビ毒（T-2 トキシン、HT-2 トキシン、ネオソラニオールおよびジアセトキシスシルペノール）が良好に分析できる LC-TOF/MS の分析条件を用いて、11 種のカビについて代謝産物を調べた。

4) 我が国におけるデオキシニバレノール（DON）の年齢別暴露評価

DON の汚染が報告されている国内流通の食品につき、日本人への曝露量を統計学的に評価した。汚染量調査の対象となった食品のうち、汚染量がきわめて少ない食品や摂取者の割合が少ない食品を除き、小麦、大麦、ビール、

小豆についての曝露量を年齢層ごとに求め、それを合算した総量によって、日本人の DON の曝露評価を年齢層ごとに行った。GEMS-FOOD の最新の勧告に基づき、lower bound と upper bound の二つの場合のそれぞれについてシミュレーションを行った。

2. 毒性評価

1) かび毒の発達神経毒性評価

妊娠 ICR マウスを計 4 群 (12 匹/群) に分け、T-2 トキシンを 0、1、3、9 ppm の用量で妊娠 6 日から分娩後 21 日まで混餌投与した。出生後 4 日目以降は各母動物に雄 8 匹、雌 2 匹を確保するよう児動物数を調整した。検査項目としては、着床数、産仔数、臓器 (脳、肝臓、胸腺、脾臓) の重量および病理学的、免疫組織学的変化を観察した。

離乳時の雄児動物において、新生ニューロンの分化指標である Sox2、Tbr2 及び doublecortin 陽性細胞数を海馬歯状回の顆粒細胞層下帯において検索した。一方、GABA 性介在ニューロンの指標である reelin 及び parvalbumin、成熟ニューロンの指標である NeuN については、海馬歯状回門における陽性細胞数の検索を行った。

2) T-2 トキシンの経口摂取による心拍・体温・活動量への影響

T-2 トキシンの経口摂取による全身機能 (循環機能、体温および活動量) に及ぼす影響を自由行動下のラットのテレメトリー観察によって行った。実験群は 3 群 (0 ppm、6 ppm、12 ppm ; 各群 6 匹) とした。Wistar 系ラット (雄、8 週齢) の背部皮下にテレメトリー送信機を埋入後、7 日間の術後回復期を経て 3 日間の対照期間、5 日間の試験餌 (T-2 トキシン混餌) 摂取期間および 5 日間の試験餌終了期間における心電図、活動量、皮下体温を同時に連続記録した。試験結果は心拍数、活動量、体温のレベル変化および日周リズムの

変化を中心に分析した。

C. 研究結果

1. カビ毒の食品汚染実態調査と生態調査、曝露量評価

1) 食品汚染カビ毒の実態調査

①ゼアラレノン

【検出率 (%)】国産大麦 (100)、雑穀米 (95)、小豆 (90)、ゴマ (90)、ソバ (75)、ハト麦加工品 (70)、国産小麦 (60) で高かった。

【下限平均濃度 ($\mu\text{g}/\text{kg}$)】小豆 (33.4)、ハト麦加工品 (15.3)、雑穀米 (6.2)、国産大麦 (1.2)、ライ麦粉 (1.0) 国産小麦 (0.8) などであった。

【最大濃度 ($\mu\text{g}/\text{kg}$)】ハト麦加工品 (170)、小豆 (103)、雑穀米 (59.5)、国産小麦 (22)、ゴマ (11.8)、ライ麦粉 (10.3) などであった。

②T-2 トキシン

【検出率 (%)】ビール (95)、小豆 (75)、グラノーラ (40)、ハト麦加工品 (40)、雑穀米 (35)、コーングリッツ (25) などであった。

【下限平均濃度 ($\mu\text{g}/\text{kg}$)】ハト麦加工品 (1.0)、小豆 (0.8)、雑穀米 (0.5) などであった。

【最大濃度 ($\mu\text{g}/\text{kg}$)】ハト麦加工品 (9.5)、雑穀米 (4.4)、小豆 (4.2)、ライ麦粉 (1.7) などであった。

③HT-2 トキシン

【検出率 (%)】ビール (85.0)、小豆 (85.0)、ライ麦粉 (60.0)、ライ麦加工品 (50.0)

【下限平均濃度 ($\mu\text{g}/\text{kg}$)】小豆 (7.1)、ライ麦粉 (1.7)、ハト麦加工品 (1.4)、グラノーラ (1.0) などであった。

【最大濃度 ($\mu\text{g}/\text{kg}$)】小豆 (103)、ハト麦加工品 (10.3)、ライ麦粉 (8.4)、ソバ (8.3)、国産大麦 (7.9)、国産小麦 (6.4) などであった。

④T-2 トキシン+HT-2 トキシン

【下限平均濃度 ($\mu\text{g/kg}$)】小豆 (7.9)、ハト麦加工品 (2.3)、ライ麦粉 (1.9)、グラノーラ (1.3) などであった。

【最大濃度 ($\mu\text{g/kg}$)】小豆 (104)、ハト麦加工品 (19.9)、ライ麦粉 (10.1)、ソバ (9.5)、国産大麦 (9.3)、国産小麦 (7.1) などであった。

(2001年に行われた JECFA における毒性評価は、T-2 トキシン及び HT-2 トキシンの合計として一日耐容摂取量を規定している。そのため、本実態調査においても同様に合計汚染量を計算した。その結果、最も下限平均濃度が高かったのは小豆の $7.9\ \mu\text{g/kg}$ であり、その次がハト麦加工品の $2.3\ \mu\text{g/kg}$ であった。最大値は小豆の $104\ \mu\text{g/kg}$ であった。)

2) 国内流通食品における *Fusarium* 属菌の分布状況

Fusarium 属菌の陽性検体数は、国産小豆では 8 検体(88.9%)、国産大豆では 4 検体(57.1%)、外国産小豆では 0 検体(0.0%)となり、外国産小豆からは *Fusarium* 属菌の検出は無く、国産小豆の陽性検体率は、国産大豆および外国産小豆と比較して有意に高かった ($p < 0.05$)。小豆・大豆 100 粒あたりの *Fusarium* 属菌の陽性粒率が最も高かった検体は、国産小豆では北海道産で 9.0%であった。各地域の大豆・小豆から検出された *Fusarium* 属菌種には、産地によって偏りがみられ、*Fusarium* 属菌の地理的分布が異なる可能性が示唆された。また、検出菌種にはトリコセセン系マイコトキシン等の産生菌が含まれた。

3) カビ毒産生菌の生態学的研究

今回採用した分析法が既知のカビ毒を検出できるかどうかを調べるために、4 種のカビ毒標準品を測定し問題がないことを確認した上で、上記 2) の調査により分離された *Fusarium* 属菌の代謝産物を分析する方法の検討を行っ

た。カビ無添加の培地と 11 種のカビの培養液の酢酸エチル抽出物 LC-TOF/MS で分析した。イオンカウントが 10000 以上のものを選択し、カビ無添加の培地で検出された化合物を除いた結果、580 種の化合物が検出された。標準品と保持時間が一致することからリスト中の推定分子量 $\text{C}_{24}\text{H}_{37}\text{NO}_9$ の化合物は T-2 トキシン、 $\text{C}_{19}\text{H}_{29}\text{NO}_7$ の化合物は DAS と考えられた。T-2 トキシン生産菌が 1 株、ジアセトキシスシルペノール生産株が 4 株見出された。

4) 我が国におけるデオキシニバレノール (DON) の年齢別暴露評価

小麦、大麦、ビール、小豆についての曝露量を年齢層ごとに求め、それを合算した総量によって、日本人の DON の曝露評価を年齢層ごとに行った。その際、汚染量の LOD 以上 LOQ 未満の検出値の取り扱いに関する GEMS-FOOD の最新の勧告に基づき、lower bound と upper bound の二つの場合それぞれについてシミュレーションを行った。結果として 99.8%タイルでは 1~6 歳、7~14 歳、15~19 歳、20 歳以上のどの年齢層でも暫定一日耐容摂取量を上回ったものはなかった。すなわち、99.9%タイルにおいては 1~6 歳では lower bound も upper bound も約 $112\ \text{ng/体重 Kg/日}$ 、7~14 歳では lower bound で約 $105\ \text{ng/体重 Kg/日}$ であるほか、7~14 歳の upper bound および 20 歳以上はいずれも約 $103\ \text{ng/体重 Kg/日}$ 、また 15~19 歳はいずれも約 $70\ \text{ng/体重 Kg/日}$ となっており、日本人の DON 摂取による健康被害は極めて小さいものと推定された。

2. 毒性評価

1) かび毒の発達神経毒性評価

母動物は 9 ppm で分娩後 7~14 日にかけて体重低値を示し、分娩後 21 日目までの間に摂餌量、摂水量の低値を認めた。また、9 ppm で前胃粘膜の過形

成を示唆する肥厚性変化が認められた。更に、1 ppm から胸腺重量の低値がみられ、9 ppm では肝臓重量の高値がみられた。母動物では、一般毒性的変化は 9 ppm に集中的に見られたものの、免疫系への影響は最も鋭敏であった。児動物では、9 ppm で投与期間を通じて体重低値を示し、離乳後も出生後 77 日まで体重低値が継続した。また、離乳時脳絶対重量の低値が 3 ppm から認められ、9 ppm での体重や諸臓器の重量低値と併せて T-2 トキシンによる発達障害が示唆された。出生後 77 日の児動物では雌 9 ppm で肝臓及び胸腺重量の低値がみられたが、出生時に比較して変化の程度は小さく、回復性のある変化であると考えられた。離乳時の雄児動物を対象とした脳海馬歯状回における免疫染色の結果、顆粒細胞層下帯での Tbr2 陽性細胞が 3 ppm から減少し、T-2 トキシンによる type 2 前駆細胞を標的としたニューロン新生障害が起きているものと考えられた。歯状回門部では reelin 陽性細胞の増加が 9 ppm で認められ、前駆細胞の移動異常を反映して介在ニューロンからの産生が増加した可能性が考えられた。

2) T-2 トキシンの経口摂取による心拍・体温・活動量への影響

12 ppm-T2 トキシン摂取群および 6 ppm-T2 トキシン摂取群で、摂取期間中に心拍数、活動量および体温のレベルおよび日周リズムへの影響が摂取開始の翌日から認められ、その影響は 12 ppm-T2 トキシン摂取群が 6 ppm-T2 トキシン摂取群に比べて大きい傾向がみられた。これらの変化は T-2 トキシンの摂取を中止すると摂取前の状態近くまで回復した。心拍数を例にとると、T-2 トキシン混餌の摂取期間中は多くの個体で自己相関係数の低下と周期性の変化が観察された。自己相関係数の明瞭なピークが認められず本来の規則的な周期性が消失した個体も出現した。

その個体数は 12 ppm-T2 トキシン群では 6 匹中 2 匹、6 ppm-T2 トキシン群では 6 匹中 1 匹であった。自己相関係数（コレログラム）の分析では、12 ppm-T2 トキシン群では T-2 トキシンの摂取前、摂取中、摂取後の期間で有意差（一元配置分散分析、 $P < 0.01$ ）が認められ、T-2 トキシン摂取中の自己相関係数は摂取前および摂取後に比較して有意に低かった（ $P < 0.01$ ）。また 6 ppm-T2 トキシン群では、T-2 トキシンの摂取期間中に有意差ではないものの自己相関係数の低下傾向がみられた（一元配置分散分析、 $P = 0.08$ ）。

これらの試験結果から、少なくとも 6 ppm~12 ppm の T-2 トキシンの短期間経口摂取によって全身性指標である循環機能などに可逆性の機能的影響が生じることが明らかになった。

D. 考察

1. カビ毒の食品汚染実態調査と生態調査、曝露量評価

1) 食品汚染カビ毒の実態調査

本年度の実態調査において、ゼアラレノンについてはハト麦加工品、小豆及び雑穀米における汚染が他の試料よりも高かった。T-2 トキシンについてはゼアラレノンと同様にハト麦加工品、小豆及び雑穀米で他の試料よりも汚染が高かった。しかし 2012 年度にはハト麦加工品で平均 3.4 $\mu\text{g}/\text{kg}$ /kg、小豆で平均 15.4 $\mu\text{g}/\text{kg}$ /kg の汚染が認められており、今年度の汚染レベルは低下していた。HT-2 トキシンについては、小豆における汚染が他の試料よりも高かった。

T-2 と HT-2 の合算値については、小豆が最も高く、平均 7.9 $\mu\text{g}/\text{kg}$ /kg、次いでハト麦加工品の平均 2.3 $\mu\text{g}/\text{kg}$ /kg、ライ麦粉の平均 1.9 $\mu\text{g}/\text{kg}$ /kg であった。小豆とハト麦加工品について年次変化はあるものの、他の試料よりも T-2、HT-2 汚染レベルが高いことがこれまでの実態調査結果からもわかっており、

今後も調査を続ける必要がある。

小麦粉については国産品を原料としたものと輸入品を原料としたものを区別して調査を行った。両者とも合計値の下限平均濃度は0.5 µg/kg/kg以下と低く、また最大値についても大きな差は認められなかった。

今年度初めて調査を行ったソバについては、合計値の平均が1.0 µg/kg/kg、最大値が9.5 µg/kg/kgであり、国産の小麦や大麦の値を上回っていた。今年度は12検体のみの調査であったが、来年度以降は調査数を増やす必要がある。

2) 国内流通食品における *Fusarium* 属菌の分布状況

我が国ではこれまで、*Fusarium* 属菌の地理的分布について、網羅的な地域および菌種を対象とした検討が行われておらず、全体像が明らかになっていなかった。そこで北海道、東北、関東、九州と地理的に異なる地域産の小豆および大豆を対象に *Fusarium* 属菌の汚染状況の調査を行った。

Fusarium 属菌の陽性検体率および検出菌種について、国産大豆、国産小豆および外国産大豆の間で比較検討を行ったところ、国産小豆では88.9%の検体から *Fusarium* 属菌が検出されており、国産大豆よりも有意に高い結果となった。近年の食品のフザリウムトキシン汚染実態調査において、国産小豆では最大でゼアラレノンが125.0 ppb、T-2 トキシンが48.4 ppb、HT-2 トキシンが45.7 ppb 検出されており、一方で国産大豆では最大でゼアラレノンが0.0 ppb、T-2 トキシンが4.3 ppb、HT-2 トキシンが3.1 ppbと低く、国産小豆での高い汚染傾向が示されており、本研究において得られた国産小豆における高い *Fusarium* 属菌汚染状況は国産小豆の高濃度・高頻度なフザリウムトキシン汚染状況と一致した傾向を示した。

各地域の小豆および大豆から検出された *Fusarium* 属菌の割合について、北海道産および熊本県産から検出された *Fusarium* 属菌種の傾向の違いが示され、

国内において *Fusarium* 属菌の地理的分布が異なる可能性が示唆された。しかし、外国産小豆同様に今回の検討で用いた供試検体数および産地数には限りがあり、今後1産地あたりの供試検体数を増やすとともに、様々な地域の検体について調査を継続する必要がある。

3) カビ毒産生菌の生態学的研究

多くの *Fusarium* 属菌それぞれの株が生産する代謝産物を特徴付けるためには、サンプルの調製が簡便であることと、1回の分析で多数の化合物の存在を推定できることが重要となる。今年度検討したLC-TOF/MSによる分析は、少量の培養液の酢酸エチル抽出物を用いて行うためサンプル調製に手間がかからず、また、数百の代謝産物を区別して分析することが可能である。従って、今回は4種の標準品についての生産性が示されたが、他の標準品やTICにおいて特徴的な化合物について今後調べて行くことにより、それぞれの菌株のマイコトキシン生産性についての情報を得ることが可能になったと考えられる。

4) 我が国におけるデオキシニバレノール (DON) の年齢別暴露評価

WHO GEMS FOOD の新しい勧告によれば、LOD 以上 LOQ 未満の取り扱いについて、最初のステップとして、lower bound で LOQ 未満は「0」として、upper bound は LOQ 未満を「LOQ の値」として、両者の差が少なく、かつ規制値よりも低い値であれば、upper bound を使うことが推奨されている。本研究の場合はこの最初の条件に合うので、各年齢層の暴露量推計は upper bound を使うこととした。

食品摂取による DON 曝露の健康被害リスク評価を行った。平成23年度報告による30%の推定誤差を用いても、暫定一日耐容摂取量を超えるのは、99.8%の1才から6才および、99.9%タイルの全年齢層だけである。99.75%タ

イルまではどの年齢層においても、30%増しにしても暫定一日耐容摂取量を超えなかった。

コンピュータシミュレーションであるモンテカルロ法では、得られたサンプルから対数正規分布を仮定することにより母集団のデータを作り出すことから、作成したサンプルデータの一部には通常では存在しえない高値のデータが存在していたことは否定できない。それゆえ、シミュレーション結果の解釈には慎重であるべきと思われる。しかしながら、このような値は暴露量を過大に評価することはあっても、過小評価するわけではないこと、またこうした値は分布のかなり右側に存在するので、健康被害リスクの評価基準となる95%タイル付近には影響はないことなどから、DONの曝露による日本人の健康被害リスクは極めて小さいものと思われる。

2. 毒性評価

1) かび毒の発達神経毒性評価

妊娠 ICR マウスに T-2 トキシンを 9 ppm を最高用量として妊娠 6 日から分娩後 21 日まで混餌投与することで、児動物に経胎盤、経乳的に暴露させ、暴露終了時ならびに出生後 77 日における影響について解析した。その結果、母動物は 9 ppm で分娩後 7~14 日にかけて体重低値を示し、主に 9 ppm で分娩後 21 日目までの間に摂餌量、摂水量の低値を認めた。また、9 ppm で前胃粘膜の過形成を示唆する肥厚性変化が認められ、摂餌量ならびに摂水量の低下に影響した可能性が考えられた。一方、1 ppm から胸腺重量の低値がみられ、9 ppm では肝臓重量の高値がみられた。このことから母動物では、一般毒性的変化は 9 ppm に集中的に見られたものの、免疫系への影響は最も鋭敏に認められた。児動物では、9 ppm で投与期間を通じて体重低値を示し、離乳後も出生後 77 日まで体重低値が継続した。一方、離乳時の児動物では脳絶対重量の低値が 3 ppm から認められ、9 ppm での体重

や諸臓器の重量低値と併せて T-2 トキシンによる発達障害が示唆された。出生後 77 日の児動物では雌 9 ppm で臓器重量低値がみられたが、出生時と比較して変化の程度は小さく、雄では出生時の変化が消失していることから、回復性のある変化であると考えられた。

離乳時の雄児動物を対象とした脳海馬歯状回における免疫染色の結果、Tbr2 (Type2 前駆細胞に発現) 陽性細胞が 3 ppm から減少し、T-2 トキシンによるニューロン新生障害が起きているものと考えられた。9 ppm でみられた reelin 陽性細胞の増加は前駆細胞の移動異常を反映して介在ニューロンからの産生が増加した可能性が考えられた。

2) T-2 トキシンの経口摂取による心拍・体温・活動量への影響に関する研究

平成 22~24 年度にかけての研究で、成熟ラットへの T-2 トキシン (0.1 mg ~1.0 mg/kg) の皮下投与によって投与直後の一過性の心拍数増加に続き循環機能異常 (房室伝導障害、心室期外収縮、洞性徐脈、上室性頻拍など) が 3 日間にわたって生じやすくなること、また投与直後には自律神経機能バランスの明瞭な変化が生じることが明らかになっている (Ngampongsa, S. 2012 ら)。また、ラット心筋細胞への T-2 トキシンの直接作用によってミトコンドリア電子伝達系機能の抑制が生じることがわかっている (Ngampongsa, S. 2013 ら)。しかしながら、これらの変化は直接投与による変化であるため、実際の摂食を介した影響がどの程度現れるかについては不明である。今回、このような観点からラットに T-2 トキシンを含む餌を自由経口摂取した際の全身影響を心電図、活動量、体温を指標として調べた。その結果、T-2 トキシン摂取群では摂取期間中に心拍数の変化とともに心拍リズム、活動量リズムおよび体温リズムに変化が認められた。その変

化は 12 ppm 摂取群は 6 ppm 摂取群にくらべて大きかった。また T-2 トキシンの摂取を中止すると、上記の日周リズムが回復する傾向がみられた。そのため、これらの変化は明らかに T-2 トキシンの生体影響としてとらえることができる。T-2 トキシンの摂取期間中の最初の 2 日間の明期における心拍数は対照群や T-2 トキシンの摂取前に比較して増加する傾向が示された。このような初期変化は T-2 トキシンの皮下投与実験で得られた結果に類似していた。

T-2 トキシンの摂取終了後の心拍数は 12 ppm、6 ppm、0 ppm (対照) の順に減少度が大きかった。正常ラットでは心拍数は加齢に伴って減少することが通常の現象であるが、T-2 トキシンの摂取群では対照群に比べて減少度が大きい傾向がみられたが、その再現性や原因をさらに詳しく調べる必要がある。T-2 トキシンの摂取期間中の心拍数の変化の一部は活動量の変化に起因する可能性があるが、活動量の増減と心拍数変化とが一致していない個体も観察されたことから、心拍数の変化は必ずしも活動量の変化による二次的な要因によるとは限らず、T-2 トキシンの自律神経系あるいは心臓への直接作用が影響している可能性も否定できない。一方、6 ppm および 12 ppm のいずれも対照群に比べて摂食量と体重の低値が示されたことから、これらの変化も T-2 トキシンの全身影響とみなされる。このような変化をもたらす要因として T-2 トキシンの混餌に対するラットの忌避行動や消化器障害などの生体内部の変化が考えられる。

E. 結論

1. カビ毒の食品汚染実態調査と生態調査、曝露量評価

1) 食品汚染カビ毒の実態調査

今年度は、6 年間通年で 3 種のフザリウムトキシンの (T-2 トキシンの、HT-2 トキシンの及びゼアラレノン) を測定す

る 4 年目となる。

毒性の高い T-2 トキシンの及び HT-2 トキシンのが今年度も小麦、大麦、麦類加工品で検出された。その他、ソバ、小豆、雑穀米からも検出されたが、全体的に昨年度よりも汚染レベルが低い傾向にあった。カビ毒の汚染には年次変化があることを踏まえ、汚染が認められる試料を重点的に調査していく必要性が示唆された。

2) 国内流通食品における *Fusarium* 属菌の分布状況

本研究の結果から、国産小豆はある程度の頻度および濃度で *Fusarium* 属菌に汚染されていることが明らかとなり、フザリウムトキシンの汚染状況を裏付ける結果が得られた。今、今回供試した検体のマイコトキシン汚染状況および分離株のマイコトキシン産生性について解析を進め、さらに 1 産地あたりの検体数や産地のバリエーションを増やして調査を継続し、日本各地の小豆におけるマイコトキシン汚染とその原因、産生地域別のリスクについて明らかにする必要があると考えられた。

3) カビ毒産生菌の生態学的研究

国産大豆、国産小豆等から分離された *Fusarium* 属菌の代謝産物を、簡便かつ多種に渡り分析する方法を確立した。

4) 我が国におけるデオキシニバレノール (DON) の年齢別曝露評価

小麦のみならず、その他の汚染事例が報告された食品を加えた総合的な曝露評価を行ったが、日本人の食品摂取による DON 曝露の健康被害リスクは極めて小さいものと思われる。

2. 毒性評価

1) カビ毒の発達神経毒性評価

T-2 トキシンの発達期曝露により、母動

物と児動物への影響は主に9 ppmで認められたが、母動物では1 ppmより胸腺重量の低下がみられ、児動物では3 ppmより脳の絶対重量の低値と海馬歯状回におけるtype2前駆細胞を標的とするニューロン新生障害を示唆する変化が認められた。

2) T-2 トキシンの経口摂取による心拍・体温・活動量への影響

12 ppm および 6 ppm の T-2 トキシンを含む粉餌を自由経口摂取したラットにおいて、摂取期間中に心拍数、活動量および体温（最低体温）レベルの変化、心拍数や活動量の日周リズムの変化が生じることが明らかになった。また、12 ppm は 6 ppm に比べて影響の度合いが大きかった。心拍数や活動量の日周リズムは餌を T-2 トキシンを含まない通常の餌に戻すことによって回復する傾向が示された。これらの結果から少なくとも 6 ppm 以上の T-2 トキシンの短期間経口摂取によって自由行動下のラットにおいて循環系を始めとする全身機能におそらくは可逆性の影響が生じることが明らかになった。

F.研究業績

[学会発表]

- 1) 吉成知也：日本の市販品におけるデオキシニバレノール、T-2 トキシン、HT-2 トキシン及びゼアラレノンの汚染実態。日本マイコトキシン学会、第73回学術講演会（2013.9）。
- 2) 竹内浩、吉成知也、青山幸二、中島正博、谷口賢、橋口成喜、甲斐茂美、田端節子、田中敏嗣、佐藤孝史、松井好之、小木曾基樹、石黒瑛一、小西良子：日本に流通する食品中の T-2 トキシン、HT-2 トキシンおよびゼアラレノンを対象とした 3 年間サーベイランス。第 106 回日本食品衛生学会学術講演会(2013.11)

- 3) 渡辺麻衣子、後藤慶一、小西良子、鎌田洋一、工藤由起子。マイクロプレートを用いた DNA-DNA ハブリダイゼーションによる *Fusarium* 属菌近縁種間における全ゲノム塩基配列比較手法の検討。第 34 回日本食品微生物学会学術総会、東京、2013.10.

- 4) Maiko Watanabe. Utility of the Phylotoxigenic Relationships among Trichothecene-Producing *Fusarium* species for Predicting Their Mycotoxin Producing Potential.48th Session of the Joint UJNR Panel on Toxic Microorganisms (2014.1) (Tokyo)

- 5) 局 博一、スチトラ・ガンボンサ：T-2 トキシンおよびデオキシニバレノールの心筋細胞ミトコンドリア機能に及ぼす影響。日本マイコトキシン学会第 73 回学術講演会（2013 年 9 月 13 日、於大阪府立大学）

[論文発表]

- 1) Maiko Watanabe, Takahiro Yonezawa, Yoshiko Sugita-Konishi, Yoichi Kamata. Application of phylotoxigenic relationships among trichothecene-producing *Fusarium* species to the prediction about the potential mycotoxin-productivity. Food Addit Contam Part A Chem Anal Control Expo Risk Assess. 30:1370-1381. 2013.
- 2) Ngampongsa S, Hanafusa M, Ando K, Ito K, Kuwahara M, Yamamoto Y, Yamashita M, Tsuru Y, Tsubone H.: Toxic effects of T-2 toxin and deoxynivalenol on the mitochondrial electron transport system of cardiomyocytes in rats. J Toxicol Sci. 38(3): 495-502. 2013.

厚生労働科学研究費補助金
(食品の安全確保推進研究事業)

分担研究報告書

食品汚染カビ毒の実態調査

研究分担者 小西 良子 麻布大学

研究要旨

カビ毒は、農業を営んでいる世界中のすべての地域にも存在し、防御や予防が非常に難しいことから、国際的にも農業規範や食品規格の策定が急がれている。また、地球温暖化などのカビ毒汚染への影響が深刻さをましてきている。

我が国は、輸入食品への依存性が高く、輸入食品の安全性を確保するために、JECFA などにおいて評価されうるカビ毒及び我が国において問題となるカビ毒を対象に、我が国の汚染実態を把握し、然るべき対策をとる必要がある。

2010年から2012年の3年間に亘って、3種のフザリウムトキシン(T-2 トキシン、HT-2 トキシン及びゼアラレノン)を対象に実態調査を行った結果、様々な市販食品中にそれらカビ毒の汚染が認められることがわかった。そのため、暴露評価に必要なデータを収集するために、さらに3年間対象を広げた調査を実施することとした。本研究に使う分析法は「カビ毒試験法評価委員会」で評価した。

今年度の実態調査は14種298品数を対象に行った。ゼアラレノンは、主に大麦、ゴマ、小豆及び雑穀米で、T-2 トキシンとHT-2 トキシンはライ麦粉、ハト麦加工品、ビール及び小豆から検出された。汚染濃度については、ハト麦粉と小豆のゼアラレノンの下限平均濃度が15 µg/kgを超えていた。T-2 トキシンについては、下限平均濃度が1 µg/kgを超えた食品はなく、HT-2 トキシンについては、ライ麦粉、ハト麦加工品及び小豆において下限平均濃度が1 µg/kgを超えており、小豆における平均濃度が最も高く、7.1 µg/kgであった。

研究協力者

吉成 知也 国立医薬品食品衛生研究所
甲斐 茂美 神奈川県衛生研究所
竹内 浩 三重県保健環境研究所
田中 敏嗣 神戸市環境保健研究所
谷口 賢 名古屋市衛生研究所
田端 節子 東京都健康安全研究センター
橋口 成喜 川崎市健康安全研究所
中島 正博 名古屋市衛生研究所
永山 敏廣 (明治薬科大学)

堀江 正一 (大妻女子学家政部)
内藤 成弘 ((独) 農業・食品産技術総合研究機構)
秋山 裕 (一財) 日本冷凍食品協会
伊佐川 聡 (一財) 日本食品分析センター
石黒 瑛一 (一財) 日本食品分析センター
佐藤 孝史 (一財) 食品分析開発センター
SUNATEC

A. 研究目的

食品を汚染するカビ毒は、国際的に JECFA やコーデックス委員会などで毒性評価や規格策定の準備が行われており、我が国においてもその対応が急がれている。JECFA では、2007 年以降総アフラトキシン、オクラトキシン A、デオキシニバレノール、フモニシンなどの摂取量の見直しが行われた。コーデックス委員会では、穀物中の総アフラトキシンやデオキシニバレノールの規格策定への動きも出てきており、我が国に関係する事項も多い。

国際的にもカビ毒に対する対策が整えられていることから、我が国でまだ規制値が決まっていないカビ毒に関して、輸入食品の安全性を確保するために、我が国の汚染実態を把握し、しかるべき対策をとる必要がある。

いままでに我が国では、パツリン（リンゴジュースの成分規格）及び総アフラトキシン（食品衛生法第 6 条 2 項）に規制値が決められている。デオキシニバレノールには今のところ暫定基準値が設定されているが、今後国際動向を見ながら、見直しを検討する必要がある。

本研究事業で対象とした T-2 トキシン、HT-2 トキシン及びゼアラレノンは、すでに JECFA において毒性評価がされているカビ毒であるが、コーデックス委員会での規格はまだ作られていない。これらのカビ毒はフザリウム属真菌が産生することから、フザリウム毒素とも言われている。フザリウム属真菌は、温帯地方に生息しており、我が国も生息地の一つである。そのため、2010 年度から 2012 年の 3 年間に亘って、麦類、トウモロコシ及びその加工品、豆類、米類などを中心に実態調査を行った。その結果、小麦、大麦、ハト麦加工品、小豆などの国産の農作物や輸入された小麦に T-2、HT-2 及びゼアラレノン汚染が認められた。そのためフザリウム毒素汚染に対して寄与率

の高い食品を対象に実態調査を続け、より正確な暴露評価が可能となるデータをさらに 3 年間収集することとした。本年度は、これまでに調査を実施した国産小麦、国産大麦、小麦粉、ライ麦粉、ハト麦加工品、グラノーラ、ビール、コーングリッツ、ゴマ、小豆、雑穀米、精米に加え、新たにソバとコーンフレークを対象とした。

B. 研究方法

実態調査に用いた国産小麦（40 点）及び国産大麦（10 点）は農林水産省から提供いただいた。その他の食品は、日本各地の小売店などからランダムに購入したものをを用いた。

T-2 トキシン、HT-2 トキシン及びゼアラレノンの分析は、以下の方法で実施した。

抽出は、試料 25 g に抽出溶媒メタノール：水（75：25）100 mL を加え、30 分間振盪することで行った。添加回収試験の場合はそれぞれのカビ毒で定めた用量を添加し、暗所に 1 時間放置した後に抽出を行った。遠心分離（1410g、10 分間）により抽出液を分離した。

精製はイムノアフィニティーカラム（R-Biopharm Rhone 社、DZT MS-PREP）を用いた。抽出液 10 mL を正確にピペッターなどで 50 mL のメスフラスコにとり、PBS で 50 mL にメスアップした後、ガラス繊維ろ紙でろ過した。ろ液 10 mL を IAC に添加し、蒸留水で洗浄後、メタノール 2 mL で溶出した。溶出液を窒素気流により乾固後、残渣を HPLC 移動相 0.5 mL に溶解し、試験溶液とした。

なお、2005 年から 2010 年に EU で実施された T-2 及び HT-2 の汚染実態調査の結果と本実態調査の結果の比較を容易にするために、本年度からは平均濃度の算出を以下の様にした。

下限平均濃度：定量限界値（LOQ）未満の値を全て 0 とし、平均値を算出

する。

上限平均濃度：検出限界値 (LOD) 未満の値を検出限界値に、検出限界値以上定量限界値未満の値を定量限界値とし、平均値を算出する。

<LC-MS/MS の測定例>

HPLC

カラム：Inertsil ODS-4

3×50 mm, 2 μm

カラム温度：40°C

移動相：A 10 mM 酢酸アンモニウム

B メタノール

分離条件：0分 A : B = 95 : 5

8分 A : B = 10 : 90

14分まで保持

流速：0.2 mL/分

注入量：10 μL MS

イオン化：ESI

モニタリングイオン：

T-2 トキシシン(positive) 484/305

HT-2 トキシシン(positive) 442/263

ゼアラレノン(negative) 317/131

C. 研究結果

(1) ゼアラレノン (表 1、図 1)

麦類については、国産小麦で検出率が 60%、国産大麦では 100%で、下限平均濃度はそれぞれ 0.8、1.2 μg/kg/kg であり、最大濃度は国産小麦の 22 μg/kg であった。

麦類加工品については、ライ麦粉における検出率が 55%、ハト麦加工品で 70%、国産小麦粉で 19.4%、輸入小麦粉で 16%、グラノーラで 30%、ビールで 10%であり、下限平均濃度はそれぞれ 1.0、15.3、0.2、0.05、0.5、0.007 μg/kg/kg であり、最大濃度はハト麦加工品の 170 μg/kg/kg であった。

トウモロコシ加工品については、コーングリッツで検出率が 30%、コーンフレークで 53.3%であり、下限平均濃度はいずれも 0.5 μg/kg/kg であり、最大濃度はコーングリッツの 2.4 μg/kg であった。

その他、ソバで検出率が 75%、ゴマで 90%、小豆で 90%、雑穀米で 95%であり、下限平均濃度はそれぞれ 0.6、1.7、33.4、6.2 μg/kg/kg であった。小豆で最大 103 μg/kg/kg 検出される試料が認められた。精米からは検出されなかった。

(2) T-2 トキシシン (表 2、図 2)

麦類については、国産小麦、国産大麦共に 10%で、下限平均濃度はそれぞれ 0.04、0.1 μg/kg/kg であり、最大濃度は国産大麦の 1.5 μg/kg/kg であった。麦類加工品については、ライ麦粉における検出率が 15%、ハト麦加工品で 40%、国産小麦粉で 8.3%、輸入小麦粉で 12%、グラノーラで 40%、ビールで 95%であり、下限平均濃度はそれぞれ 0.2、1.0、0.02、0.02、0.3、0.03 μg/kg/kg であり、最大濃度はハト麦加工品の 9.5 μg/kg/kg であった。

トウモロコシ加工品については、コーングリッツで検出率が 25%、コーンフレークで 6.7%であり、下限平均濃度はそれぞれ 0.2、0.01 μg/kg/kg であり、最大濃度はコーングリッツの 1.0 μg/kg/kg であった。

その他、ソバで検出率が 8.3%、小豆で 75%、雑穀米で 35%であり、下限平均濃度はそれぞれ 0.1、0.8、0.5 μg/kg/kg であった。雑穀米で最大 4.4 μg/kg/kg 検出される試料が認められた。ゴマと精米からは検出されなかった。

(3) HT-2 トキシシン (表 3、図 3)

麦類については、国産小麦で検出率が 17.5%、国産大麦では 10%であり、下限平均濃度はそれぞれ 0.5、0.8 μg/kg/kg であり、最大濃度は国産大麦の 7.9 μg/kg/kg であった。

麦類加工品については、ライ麦粉における検出率が 60%であり、ハト麦加工品で 50%、国産小麦粉で 8.3%、輸入小麦粉で 20%、グラノーラで 40%、ビールで 85%であり、下限平均濃度はそれぞれ 1.7、1.4、0.1、0.3、1.0、0.2 μg/kg/kg であり、最大濃度はハト麦加工品の

10.3 µg/kg /kg であった。

トウモロコシ加工品については、コーングリッツで検出率が 15%、下限平均濃度は 0.2 µg/kg /kg、最大濃度は 1.4 µg/kg /kg であった。コーンフレークからは検出されなかった。

その他、ソバで検出率が 41.7%、小豆で 85%、雑穀米で 40%であり、下限平均濃度はそれぞれ 0.9、7.1、0.7 µg/kg /kg であった。小豆で最大 103 µg/kg /kg 検出される試料が認められた。ゴマと精米からは検出されなかった。

(4) T-2 トキシン及び HT-2 トキシン (表 4、図 4)

2001 年に行われた JECFA における毒性評価は、T-2 トキシン及び HT-2 トキシンの合計として一日耐容摂取量を規定している。そのため、本実態調査においても同様に合計汚染量を計算した。その結果、最も下限平均濃度が高かったのは小豆の 7.9 µg/kg /kg であり、その次がハト麦加工品の 2.3 µg/kg /kg であった。最大値は小豆の 104 µg/kg /kg であった。

D. 考察

本年度の実態調査において、ゼアラレノンについてはハト麦加工品、小豆及び雑穀米における汚染が他の試料よりも高かった。ハト麦加工品では 2010 年度から今年度まで毎年平均 8~18 µg/kg /kg の汚染が認められている。小豆では 2010 年度にはほとんど汚染が見られなかったが、2011 年度から今年度まで毎年平均 32~46 µg/kg /kg の汚染が認められている。雑穀米はハト麦加工品や小豆よりは汚染レベルは低いものの、2011 年度以降は毎年平均数 µg/kg /kg の汚染が認められている。

T-2 トキシンについてはゼアラレノンと同様にハト麦加工品、小豆及び雑穀米で他の試料よりも汚染が高かった。しかし 2012 年度にはハト麦加工品で平均 3.4 µg/kg /kg、小豆で平均 15.4 µg/kg /kg の汚染が認められており、今

年度の汚染レベルは低下していた。

HT-2 トキシンについては、小豆における汚染が他の試料よりも高かった。

T-2 と HT-2 の合算値については、小豆が最も高く、平均 7.9 µg/kg /kg、次いでハト麦加工品の平均 2.3 µg/kg /kg、ライ麦粉の平均 1.9 µg/kg /kg であった。小豆とハト麦加工品について年次変化はあるものの、他の試料よりも T-2、HT-2 汚染レベルが高いことがこれまでの実態調査結果からもわかっており、今後も調査を続ける必要がある。ライ麦粉については昨年度から調査を開始しており、昨年度は T-2 と HT-2 の合計が 150 µg/kg /kg 検出された試料があったため、今年度は調査数を増やした。今年度の結果では合計値が最も高いもので 10.1 µg/kg /kg と、昨年度ほど高い試料はなかったものの、平均汚染濃度は他の試料と比較した高いため、今度も調査を続ける必要がある。小麦粉については国産品を原料としたものと輸入品を原料としたものを区別して調査を行った。両者とも合計値の下限平均濃度は 0.5 µg/kg /kg 以下と低く、また最大値についても大きな差は認められなかった。ライ麦粉とハト麦加工品以外の麦類加工品では、グラノーラの汚染が平均 1.3 µg/kg /kg でライ麦粉に次いで高い傾向にあった。グラノーラは 2011 年度にも調査を行っており、合計値の平均が 2.3 µg/kg /kg であり、毎年一定レベルの汚染は認められている。今年度初めて調査を行ったソバについては、合計値の平均が 1.0 µg/kg /kg、最大値が 9.5 µg/kg /kg であり、国産の小麦や大麦の値を上回っていた。今年度は 12 検体のみの調査であったが、来年度以降は調査数を増やす必要がある。

海外における汚染実態については、2005~2010 年にかけてヨーロッパにおいて大規模な調査が実施され、その結果が公表されている。その調査では、22 ヶ国が参加し、麦類、トウモロコシ

類、コメやそれらの加工品、計 20519 サンプルが対象とされた。例えば小麦においては、計 4738 サンプルが調査され、検出率が 27%、T-2 と HT-2 の合算値の平均値が 4.9 (下限平均濃度) ~15 (上限平均濃度) $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{kg}$ 、最大値が 1165 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{kg}$ という結果が報告されている。調査数が大きく異なるため比較は困難ではあるが、日本の食品における T-2、HT-2 汚染はヨーロッパよりも低い傾向が認められた。

E. 結論

今年度は、6 年間通年で 3 種のフザリウムトキシン (T-2 トキシン、HT-2 トキシン及びゼアラレノン) を測定する 4 年目となる。

毒性の高い T-2 トキシン及び HT-2 トキシンが今年度も小麦、大麦、麦類加工品で検出された。その他、ソバ、小豆、雑穀米からも検出されたが、全体的に昨年度よりも汚染レベルが低い傾向にあった。カビ毒の汚染には年次変化があることを踏まえ、汚染が認められる試料を重点的に調査していく必要性が示唆された。

F. 研究業績

【学会発表】

- 1) 吉成知也：日本の市販品におけるデオキシニバレノール、T-2 トキシン、HT-2 トキシン及びゼアラレノンの汚染実態。日本マイコトキシン学会第 73 回学術講演会 (2013.9)
- 2) 竹内浩、吉成知也、青山幸二、中島正博、谷口賢、橋口成喜、甲斐茂美、田端節子、田中敏嗣、佐藤孝史、松井好之、小木曾基樹、石黒瑛一、小西良子：日本に流通する食品中の T-2 トキシン、HT-2 トキシンおよびゼアラレノンを対象とした 3 年間サーベイランス。第 106 回日本食品衛生学会学術講演会(2013.11)

G. 参考文献

- 1) European Food Safety Authority. (2011). T-2 and HT-2 toxins in food and feed. EFSA Journal, 9, 2481.

表 1 ゼアラレノンの汚染実態

試料名	調査数	検出率 (%)	LOD (μg/kg)	LOQ (μg/kg)	下限平均濃度 (μg/kg)	上限平均濃度 (μg/kg)	最大濃度 (μg/kg)
国産小麦	40	60.0	0.02	0.05	0.8	0.8	22.0
国産大麦	10	100	0.02	0.05	1.2	1.2	6.0
ライ麦粉	20	55.0	0.07	0.2	1.0	1.1	10.3
ハト麦加工品	20	70.0	0.05	0.2	15.3	15.3	170
小麦粉(国産小麦)	36	19.4	0.02	0.06	0.2	0.2	2.5
小麦粉(輸入小麦)	25	16.0	0.02	0.06	0.05	0.1	0.9
グラノーラ	10	30.0	0.1	0.3	0.5	0.6	1.6
ビール	20	10.0	0.01	0.02	0.007	0.02	0.1
コーングリッツ	20	30.0	0.1	0.3	0.5	0.6	2.4
コーンフレーク	15	53.3	0.02	0.05	0.5	0.5	2.3
ソバ	12	75.0	0.05	0.2	0.6	0.7	2.4
ゴマ	20	90.0	0.01	0.03	1.7	1.7	11.8
小豆	20	90.0	0.2	0.6	33.4	33.5	103
雑穀米	20	95.0	0.2	0.6	6.2	6.2	59.5
精米	10	0	0.6	2	0	0.6	-

表 2 T-2 トキシンの汚染実態

試料名	調査数	検出率 (%)	LOD (μg/kg)	LOQ (μg/kg)	下限平均濃度 (μg/kg)	上限平均濃度 (μg/kg)	最大濃度 (μg/kg)
国産小麦	40	10.0	0.02	0.07	0.04	0.06	0.7
国産大麦	10	10.0	0.02	0.07	0.1	0.2	1.5
ライ麦粉	20	15.0	0.07	0.2	0.2	0.3	1.7
ハト麦加工品	20	40.0	0.07	0.2	1.0	1.0	9.5
小麦粉(国産小麦)	36	8.3	0.03	0.1	0.02	0.05	0.4
小麦粉(輸入小麦)	25	12.0	0.03	0.1	0.02	0.05	0.3
グラノーラ	10	40.0	0.1	0.3	0.3	0.3	1.5
ビール	20	95.0	0.003	0.01	0.03	0.03	0.1
コーングリッツ	20	25.0	0.1	0.3	0.2	0.3	1.0
コーンフレーク	15	6.7	0.02	0.07	0.01	0.03	0.1
ソバ	12	8.3	0.07	0.2	0.1	0.2	1.2
ゴマ	20	0	0.02	0.05	0	0.02	-
小豆	20	75.0	0.04	0.1	0.8	0.9	4.2
雑穀米	20	35.0	0.04	0.1	0.5	0.5	4.4
精米	10	0	0.1	0.3	0	0.1	-

表3 HT-2 トキシンの汚染実態

試料名	調査数	検出率 (%)	LOD (μg/kg)	LOQ (μg/kg)	下限平均濃度 (μg/kg)	上限平均濃度 (μg/kg)	最大濃度 (μg/kg)
国産小麦	40	17.5	0.1	0.4	0.5	0.7	6.4
国産大麦	10	10.0	0.1	0.4	0.8	0.9	7.9
ライ麦粉	20	60.0	0.3	1	1.7	2.1	8.4
ハト麦加工品	20	50.0	0.1	0.3	1.4	1.5	10.3
小麦粉(国産小麦)	36	8.3	0.1	0.3	0.1	0.3	2.3
小麦粉(輸入小麦)	25	20.0	0.1	0.3	0.3	0.4	3.5
グラノーラ	10	40.0	0.4	1	1.0	1.2	5.2
ビール	20	85.0	0.02	0.05	0.2	0.2	0.6
コーングリッツ	20	15.0	0.4	1	0.2	0.5	1.4
コーンフレーク	15	0	0.1	0.4	0	0.1	-
ソバ	12	41.7	0.1	0.3	0.9	1.0	8.3
ゴマ	20	0	0.08	0.3	0	0.1	-
小豆	20	85.0	0.05	0.2	7.1	7.1	103
雑穀米	20	40.0	0.05	0.2	0.7	0.8	3.0
精米	10	0	1	4	0	1.0	-

表4 T-2 トキシンのHT-2 トキシンの合算値

試料名	調査数	下限平均濃度 (μg/kg)	最大濃度 (μg/kg)
国産小麦	40	0.6	7.1
国産大麦	10	0.9	9.3
ライ麦粉	20	1.9	10.1
ハト麦加工品	20	2.3	19.9
小麦粉(国産小麦)	36	0.2	2.4
小麦粉(輸入小麦)	25	0.4	3.7
グラノーラ	10	1.3	6.8
ビール	20	0.2	0.7
コーングリッツ	20	0.4	2.4
コーンフレーク	15	0.01	0.1
ソバ	12	1.0	9.5
ゴマ	20	0	0
小豆	20	7.9	104
雑穀米	20	1.2	7.3
精米	10	0	0

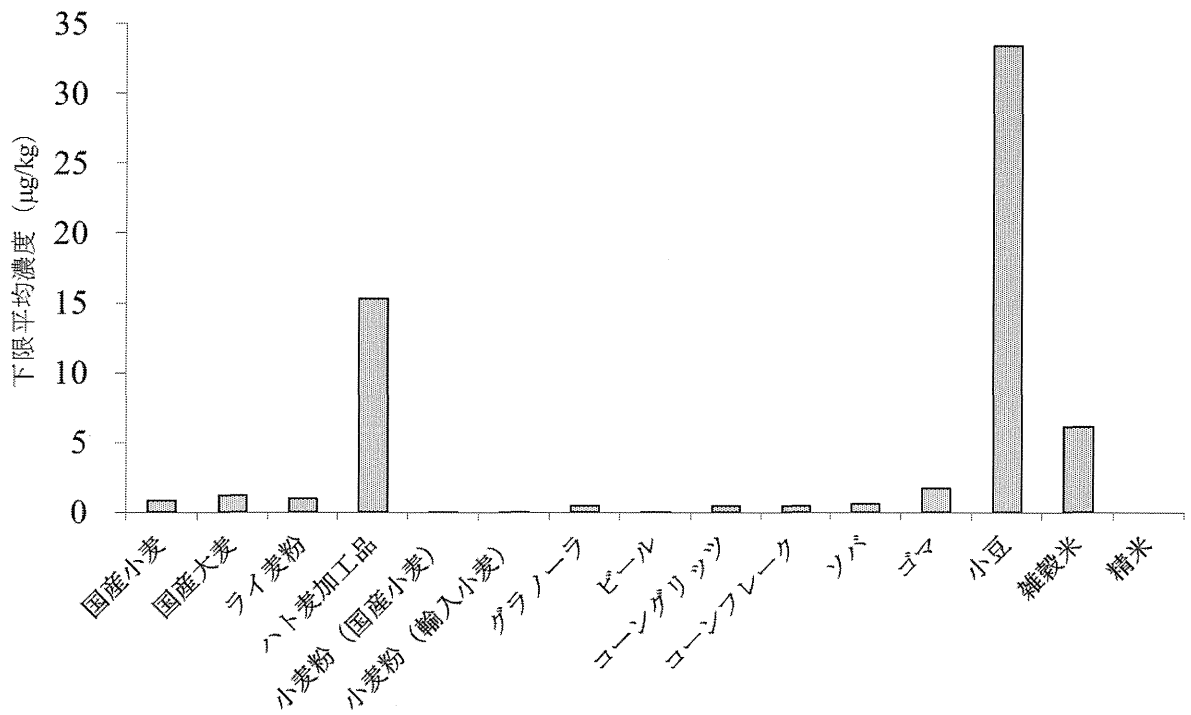


図1 ゼアラレノンの汚染実態

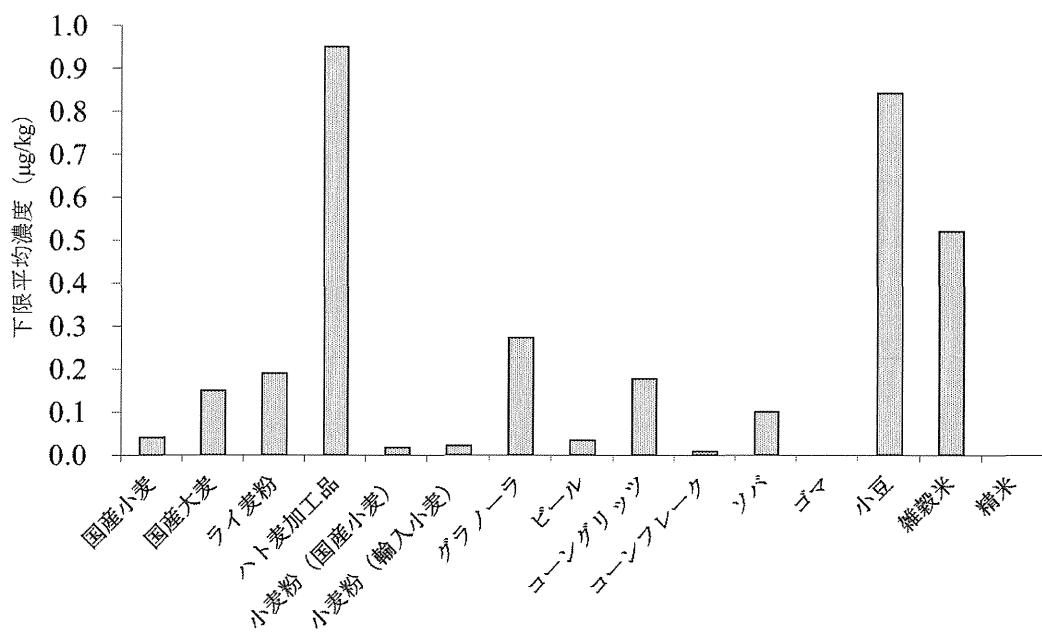


図2 T-2 トキシンの汚染実態