

表4 平成27年度トータルダイエツト(1~14群)からのダイオキシソ(PCDDs+PCDFs)1日摂取量(ND=L0D/2)

食品群	(pgTEQ/day)																	
	北海道地区			東北地区			関東地区						中部地区			関西地区		
							I			II								
1群(米、米加工品)	7.42			7.42			7.42			7.42			7.42			7.42		
2群(米以外の穀類、種実類、いも類)	4.24			4.24			4.24			4.24			4.24			4.24		
3群(砂糖類、菓子類)	0.71			0.71			0.71			0.71			0.71			0.71		
4群(油脂類)	0.90			0.90			0.90			0.90			0.90			0.90		
5群(豆・豆加工品)	1.03			1.03			1.03			1.03			1.03			1.03		
6群(果実、果汁)	2.01			2.01			2.01			2.01			2.01			2.01		
7群(緑黄色野菜)	1.67			1.67			1.67			1.67			1.67			1.67		
8群(他の野菜類、キノコ類、海藻類)	3.51			3.51			3.51			3.51			3.51			3.51		
9群(酒類、嗜好飲料)	10.96			10.96			10.96			10.96			10.96			10.96		
	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3
10群(魚介類)	3.94	13.13	16.51	6.07	6.57	9.06	3.37	8.41	8.48	7.11	6.91	8.93	5.62	10.88	9.57	6.82	11.89	11.95
11群(肉類・卵類)	3.99	2.70	2.70	1.92	1.95	1.96	2.42	2.82	5.46	1.76	1.97	1.85	1.97	2.16	2.80	3.53	2.19	3.59
12群(乳・乳製品)	2.11			2.11			2.11			2.11			2.11			2.11		
13群(調味料)	1.81			1.81			1.81			1.81			1.81			1.81		
14群(飲料水)	0.05			0.05			0.05			0.05			0.05			0.05		
総摂取量(pgTEQ/day)	44.36	52.26	55.64	44.42	44.94	47.45	42.22	47.66	50.37	45.30	45.31	47.21	44.01	49.46	48.80	46.78	50.50	51.96
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.89	1.05	1.11	0.89	0.90	0.95	0.84	0.95	1.01	0.91	0.91	0.94	0.88	0.99	0.98	0.94	1.01	1.04

食品群	中国・四国地区			九州地区			平均摂取量	標準偏差	比率(%)
1群(米、米加工品)	7.42			7.42			7.42	0.00	15.53
2群(米以外の穀類、種実類、いも類)	4.24			4.24			4.24	0.00	8.86
3群(砂糖類、菓子類)	0.71			0.71			0.71	0.00	1.49
4群(油脂類)	0.90			0.90			0.90	0.00	1.89
5群(豆・豆加工品)	1.03			1.03			1.03	0.00	2.16
6群(果実、果汁)	2.01			2.01			2.01	0.00	4.21
7群(緑黄色野菜)	1.67			1.67			1.67	0.00	3.49
8群(他の野菜類、キノコ類、海藻類)	3.51			3.51			3.51	0.00	7.34
9群(酒類、嗜好飲料)	10.96			10.96			10.96	0.00	22.93
	#1	#2	#3	#1	#2	#3			
10群(魚介類)	7.51	7.86	9.11	6.94	10.96	11.84	8.73	3.01	18.26
11群(肉類・卵類)	2.76	3.01	2.68	2.30	2.29	2.69	2.65	0.84	5.53
12群(乳・乳製品)	2.11			2.11			2.11	0.00	4.42
13群(調味料)	1.81			1.81			1.81	0.00	3.79
14群(飲料水)	0.05			0.05			0.05	0.00	0.10
総摂取量(pgTEQ/day)	46.70	47.29	48.22	45.67	49.68	50.96	47.80	3.14	100.00
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.93	0.95	0.96	0.91	0.99	1.02	0.96	0.06	

* 一部の地域(北海道及び東北地区、中国・四国及び九州地区)の食品群1~9、12~14群は共通試料を使用した。

** 食品群10及び11におけるダイオキシソ類(PCDDs+PCDFs+Co-PCBs)摂取量(ND=0)の最小値の組み合わせを#1、中央値の組み合わせを#2、最大値の組み合わせを#3とした。

表5 平成27年度トータルダイエツト(1~14群)からのCo-PCBs類1日摂取量(ND=LOD/2)

(pgTEQ/day)

食品群	北海道地区			東北地区			関東地区						中部地区			関西地区		
							I			II								
1群(米、米加工品)	2.53			2.53			2.53			2.53			2.53			2.53		
2群(米以外の穀類、種実類、いも類)	1.45			1.45			1.45			1.45			1.45			1.45		
3群(砂糖類、菓子類)	0.24			0.24			0.24			0.24			0.24			0.24		
4群(油脂類)	0.30			0.30			0.30			0.30			0.30			0.30		
5群(豆・豆加工品)	0.35			0.35			0.35			0.35			0.35			0.35		
6群(果実、果汁)	0.69			0.69			0.69			0.69			0.69			0.69		
7群(緑黄色野菜)	0.57			0.57			0.57			0.57			0.57			0.57		
8群(他の野菜類、キノコ類、海藻類)	1.19			1.19			1.19			1.19			1.19			1.19		
9群(酒類、嗜好飲料)	3.74			3.74			3.74			3.74			3.74			3.74		
	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3
10群(魚介類)	10.50	20.51	37.82	14.31	16.11	19.99	7.73	9.17	29.18	15.43	17.29	22.64	17.81	17.13	31.72	15.63	18.21	29.54
11群(肉類・卵類)	0.85	2.77	2.74	0.64	2.00	1.94	0.72	2.18	2.16	0.61	0.68	0.62	0.77	0.81	0.87	1.26	2.98	40.30
12群(乳・乳製品)	0.72			0.72			0.72			0.72			0.72			0.72		
13群(調味料)	0.59			0.59			0.59			0.59			0.59			0.59		
14群(飲料水)	0.02			0.02			0.02			0.02			0.02			0.02		
総摂取量(pgTEQ/day)	23.74	35.66	52.96	27.34	30.50	34.32	20.83	23.74	43.73	28.42	30.36	35.64	30.97	30.33	44.98	29.28	33.58	82.24
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.47	0.71	1.06	0.55	0.61	0.69	0.42	0.47	0.87	0.57	0.61	0.71	0.62	0.61	0.90	0.59	0.67	1.64

食品群	中国・四国地区			九州地区			平均摂取量	標準偏差	比率(%)
1群(米、米加工品)	2.53			2.53			2.53	0.00	7.06
2群(米以外の穀類、種実類、いも類)	1.45			1.45			1.45	0.00	4.03
3群(砂糖類、菓子類)	0.24			0.24			0.24	0.00	0.68
4群(油脂類)	0.30			0.30			0.30	0.00	0.85
5群(豆・豆加工品)	0.35			0.35			0.35	0.00	0.98
6群(果実、果汁)	0.69			0.69			0.69	0.00	1.92
7群(緑黄色野菜)	0.57			0.57			0.57	0.00	1.60
8群(他の野菜類、キノコ類、海藻類)	1.19			1.19			1.19	0.00	3.31
9群(酒類、嗜好飲料)	3.74			3.74			3.74	0.00	10.43
	#1	#2	#3	#1	#2	#3			
10群(魚介類)	14.73	18.96	21.25	22.73	29.35	30.43	20.34	7.63	56.72
11群(肉類・卵類)	0.89	1.02	1.59	0.68	1.20	4.79	3.13	7.98	8.72
12群(乳・乳製品)	0.72			0.72			0.72	0.00	2.01
13群(調味料)	0.59			0.59			0.59	0.00	1.64
14群(飲料水)	0.02			0.02			0.02	0.00	0.05
総摂取量(pgTEQ/day)	28.01	32.37	35.23	35.80	42.94	47.61	35.86	12.62	100.00
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.56	0.65	0.70	0.72	0.86	0.95	0.72	0.25	

* 一部の地域(北海道及び東北地区、中国・四国及び九州地区)の食品群1~9、12~14群は共通試料を使用した。

** 食品群10及び11におけるダイオキシン類(PCDDs+PCDFs+Co-PCBs)摂取量(ND=0)の最小値の組み合わせを#1、中央値の組み合わせを#2、最大値の組み合わせを#3とした。

表6 平成27年度トータルダイエツト(1~14群)からのダイオキシソ類1日摂取量(ND=L0D/2)

(pgTEQ/day)

食品群	北海道地区			東北地区			関東地区						中部地区			関西地区		
							I			II								
1群(米、米加工品)	9.95			9.95			9.95			9.95			9.95			9.95		
2群(米以外の穀類、種実類、いも類)	5.68			5.68			5.68			5.68			5.68			5.68		
3群(砂糖類、菓子類)	0.95			0.95			0.95			0.95			0.95			0.95		
4群(油脂類)	1.21			1.21			1.21			1.21			1.21			1.21		
5群(豆・豆加工品)	1.38			1.38			1.38			1.38			1.38			1.38		
6群(果実、果汁)	2.70			2.70			2.70			2.70			2.70			2.70		
7群(緑黄色野菜)	2.24			2.24			2.24			2.24			2.24			2.24		
8群(他の野菜類、キノコ類、海藻類)	4.69			4.69			4.69			4.69			4.69			4.69		
9群(酒類、嗜好飲料)	14.70			14.70			14.70			14.70			14.70			14.70		
	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3
10群(魚介類)	14.43	33.64	54.34	20.38	22.68	29.05	11.09	17.58	37.66	22.54	24.20	31.57	23.43	28.01	41.29	22.45	30.10	41.49
11群(肉類・卵類)	4.84	5.46	5.44	2.56	3.95	3.90	3.14	5.01	7.62	2.37	2.65	2.47	2.74	2.97	3.67	4.79	5.17	43.89
12群(乳・乳製品)	2.84			2.84			2.84			2.84			2.84			2.84		
13群(調味料)	2.40			2.40			2.40			2.40			2.40			2.40		
14群(飲料水)	0.07			0.07			0.07			0.07			0.07			0.07		
総摂取量(pgTEQ/day)	68.09	87.92	108.59	71.76	75.45	81.77	63.05	71.40	94.10	73.73	75.67	82.85	74.99	79.79	93.77	76.06	84.09	134.20
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	1.36	1.76	2.17	1.44	1.51	1.64	1.26	1.43	1.88	1.47	1.51	1.66	1.50	1.60	1.88	1.52	1.68	2.68

食品群	中国・四国地区			九州地区			平均摂取量	標準偏差	比率(%)
1群(米、米加工品)	9.95			9.95			9.95	0.00	11.90
2群(米以外の穀類、種実類、いも類)	5.68			5.68			5.68	0.00	6.79
3群(砂糖類、菓子類)	0.95			0.95			0.95	0.00	1.14
4群(油脂類)	1.21			1.21			1.21	0.00	1.44
5群(豆・豆加工品)	1.38			1.38			1.38	0.00	1.65
6群(果実、果汁)	2.70			2.70			2.70	0.00	3.23
7群(緑黄色野菜)	2.24			2.24			2.24	0.00	2.68
8群(他の野菜類、キノコ類、海藻類)	4.69			4.69			4.69	0.00	5.61
9群(酒類、嗜好飲料)	14.70			14.70			14.70	0.00	17.57
	#1	#2	#3	#1	#2	#3			
10群(魚介類)	22.24	26.82	30.36	29.67	40.31	42.27	29.07	10.06	34.75
11群(肉類・卵類)	3.66	4.02	4.27	2.98	3.49	7.49	5.77	8.24	6.90
12群(乳・乳製品)	2.84			2.84			2.84	0.00	3.39
13群(調味料)	2.40			2.40			2.40	0.00	2.87
14群(飲料水)	0.07			0.07			0.07	0.00	0.08
総摂取量(pgTEQ/day)	74.71	79.66	83.44	81.47	92.61	98.57	83.66	14.96	100.00
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	1.49	1.59	1.67	1.63	1.85	1.97	1.67	0.30	

* 一部の地域(北海道及び東北地区、中国・四国及び九州地区)の食品群1~9、12~14群は共通試料を使用した。

** 食品群10及び11におけるダイオキシソ類(PCDDs+PCDFs+Co-POBs)摂取量(ND=0)の最小値の組み合わせを#1、中央値の組み合わせを#2、最大値の組み合わせを#3とした。

表7 機関別ダイオキシン類一日摂取量の経年推移（平成10～27年度）¹⁾

地区	PCDDs+PCDFs+Co-PCBs (pgTEQ/kgbw/day) ND=0																		
	H10年度	H11年度	H12年度	H13年度	H14年度	H15年度	H16年度	H17年度	H18年度	H19年度	H20年度	H21年度	H22年度	H23年度	H24年度	H25年度	H26年度	H27年度	
北海道地区	A	2.43	1.10	0.72	0.57	0.74	0.71	0.41	0.59	0.33	0.92	1.05	0.37	0.43	0.39	0.64	0.45	0.37	0.31
					0.80	0.92	0.85	1.54	0.39	1.28	1.22	0.92	0.52	0.55	0.67	0.73	0.85	0.73	
					1.23	1.13	2.15	3.06	1.50	1.34	1.90	1.20	1.14	0.74	0.86	0.77	0.89	1.14	
東北地区	A	1.10	1.27	0.95	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	B	-	1.40	1.63	1.68	0.97	0.60	0.41	0.53	0.46	0.40	0.13	0.57	0.54	0.59	0.42	0.44	0.36	0.40
					1.27	0.75	0.70	0.99	0.90	0.60	0.75	0.92	0.60	0.74	0.50	0.62	0.39	0.49	
関東地区	A	1.84	3.33	1.10	0.88	1.26	0.67	1.42	0.47	0.51	0.68	0.48	0.28	0.90	0.39	0.62	0.28	0.47	0.23
					1.66	1.63	1.49	0.76	0.81	0.89	1.24	0.48	1.21	0.70	0.67	0.74	0.60	0.41	
					2.30	2.55	1.64	1.11	1.28	1.12	1.70	0.69	1.61	0.95	1.14	0.97	1.08	0.88	
	B	1.84	1.43	1.51	1.70	1.17	0.75	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
					2.02	0.86	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
					2.99	2.31	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
C		1.76	1.46	1.28	1.21	0.76	0.86	0.88	0.59	0.68	0.70	0.61	0.68	0.63	0.53	0.30	0.23	0.45	0.45
					0.95	0.92	1.46	1.11	0.87	0.85	0.78	1.06	1.04	0.60	0.75	0.51	0.52	0.48	
					1.26	1.74	2.04	1.74	1.22	2.51	1.10	1.39	1.46	0.85	1.00	0.69	0.78	0.64	
中部地区	A	-	1.35	1.23	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
		1.70	1.37	1.24	1.44	1.18	1.15	0.61	0.59	0.58	0.68	0.60	0.70	-	-	-	-	-	-
	B					1.43	1.30	0.76	0.68	0.76	0.76	0.96	0.77	-	-	-	-	-	-
					1.63	1.55	1.57	1.22	0.87	1.19	1.11	0.91	-	-	-	-	-	-	-
	C	1.75	2.08	1.50	1.32	0.52	0.49	0.52	0.40	0.40	0.35	0.63	0.36	0.47	0.52	0.36	0.18	0.26	0.46
関西地区	A	-	5.93	1.73	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
		2.29	1.55	1.22	1.12	0.83	0.67	1.14	0.58	0.86	0.64	0.57	0.63	0.48	0.44	0.76	0.41	0.78	0.51
	B					1.18	0.98	1.62	0.70	1.32	0.82	0.61	0.97	0.56	0.71	0.83	0.61	0.86	0.67
					2.36	1.38	1.95	1.23	1.54	1.08	1.16	1.14	0.74	1.54	1.00	0.86	0.91	1.67	
	C	-	1.60	1.74	1.72	1.18	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
					1.53	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
中国四国地区	A	-	3.06	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
		-	-	0.85	0.76	0.69	0.53	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	B					0.81	1.06	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
					1.03	1.35	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	C	1.07	1.26	1.23	1.36	0.63	0.90	1.06	1.01	0.82	0.67	0.61	0.59	0.48	0.50	0.69	0.55	0.65	0.43
九州地区	A					1.81	1.76	1.48	1.47	1.64	1.17	1.11	1.49	0.73	0.94	0.92	0.66	0.80	0.62
		1.75	1.57	1.31	2.89	0.47	0.73	0.52	0.56	0.54	0.37	0.54	0.57	0.70	0.36	0.22	0.55	0.34	0.61
					1.00	0.90	0.84	0.91	0.56	1.03	0.60	1.08	0.90	0.40	0.44	0.64	0.60	0.84	
					1.55	1.55	1.07	1.24	1.38	1.56	1.37	1.45	1.44	1.06	0.67	0.87	0.96	0.96	
	B	-	1.04	0.72	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	平均	1.75	1.92	1.25	1.39	1.27	1.13	1.21	1.02	0.90	0.93	0.92	0.84	0.81	0.68	0.69	0.58	0.69	0.64

1) 平成10～12年度の摂取量は、平成12年度厚生科学研究費補助金研究事業「ダイオキシン類の食品経路摂取量調査研究報告書」から、平成13～15年度の摂取量は、平成15年度厚生労働科学研究費補助金研究事業「ダイオキシンの汚染実態把握及び摂取低減化に関する研究報告書」から、平成16～18年度の摂取量は、平成18年度厚生労働科学研究費補助金研究事業「ダイオキシン類による食品汚染実態の把握に関する研究報告書」から引用した。平成19～21年度の摂取量は、平成21年度厚生労働科学研究費補助金研究事業「ダイオキシン類等の有害化学物質による食品汚染実態の把握に関する研究」から引用した。平成22～24年度の摂取量は、平成24年度厚生労働科学研究費補助金研究事業「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」から引用した。平成25及び26年度の摂取量は、平成25及び26年度厚生労働科学研究費補助金研究事業「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」から引用した。全て2005 TEFを使用して算出した摂取量である。

表 8 日本と主な諸外国における食品からのダイオキシン類一日摂取量

国	調査時期 ¹⁾	ダイオキシン類平均摂取量 pg TEQ/kg bw/day	対象年齢	使用したTEF	検出（定量）下限値 の取り扱い ²⁾	参考文献
日本	2015年	0.64 (0.76) ³⁾	1歳以上	2005 TEF 1998 TEF	ND=0 ND=0	本研究
フィンランド	1997-1999年	1.5	24-64歳	1998 TEF	ND=0	3)
イタリア	— ⁴⁾	2.28	13-94歳	1998 TEF	ND=L0D	4)
ベルギー	2008年	0.61	15歳以上	2005 TEF	ND=L0D/2	5)
スペイン（ヴァレンシア）	2006-2008年	2.86	17歳以上	1998 TEF	ND=L0D	6)
スペイン（カタロニア）	2008年	0.60	成人	2005 TEF	ND=L0D/2	7)
フランス	2006-2007年	0.57	18歳以上	1998 TEF	ND=L0D/2	8)
イギリス	2011-2012年	0.49	19-64歳	2005 TEF	ND=0	9)
中国	2007年	0.71	成人	1998 TEF	ND=L0D ⁵⁾	10)
アイルランド	2003-2010年	0.3	18-90歳	2005 TEF	ND=L0D	11)

1) 食品試料を集めた時期

2) 検出（定量）下限値未満のダイオキシン類をゼロとして計算した場合はND=0、検出（定量）下限値の1/2を当てはめた場合はND=L0D/2、検出（定量）下限値を当てはめた場合はND=L0Dと示す。

3) 1998 TEFを用いて再計算した参考値

4) 不明

5) 植物性食品に対してはND=0

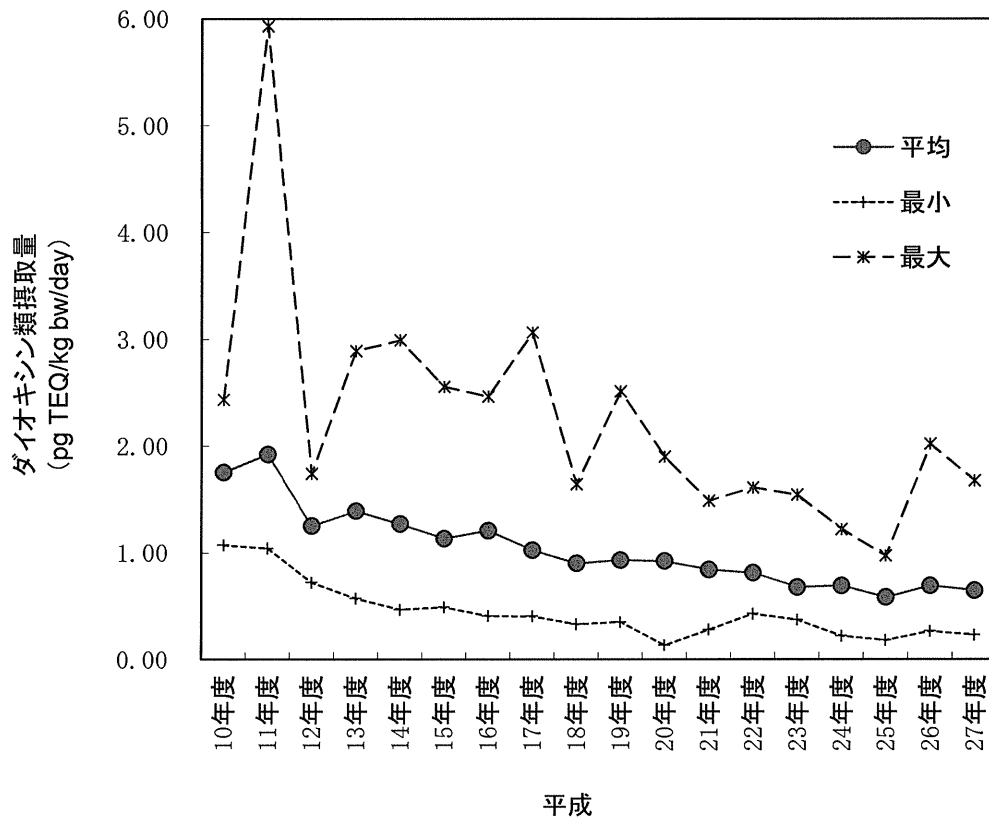


図1 ダイオキシン類摂取量の経年変化(平成10~27年度)

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

分担研究報告書

食品からの塩素化ダイオキシン類の摂取量調査に関する研究
個別食品中の塩素化ダイオキシン類の実態調査

研究代表者 渡邊敬浩 国立医薬品食品衛生研究所食品部
研究分担者 堤 智昭 国立医薬品食品衛生研究所食品部

研究要旨

食肉及び卵について、ダイオキシン類濃度の調査を行った。食肉 30 試料(牛肉、豚肉、鶏肉、羊肉(レバー含む)、馬肉、フォアグラについて各 5 試料)を調査した結果、ダイオキシン類濃度は 0~0.47 pg TEQ/g(中央値 0.012 pg TEQ/g)の範囲であった。鶏卵 6 試料を調査した結果、ダイオキシン類濃度は 0.0048~0.036 pg TEQ/g(中央値 0.017 pg TEQ/g) の範囲であった。

また、市販のベビーフードについて、ダイオキシン類濃度の調査を行った。市販のベビーフード(42 試料)を調査した結果、ダイオキシン類濃度は 0~0.0016 pg TEQ/g(中央値 0.000023 pg TEQ/g)の範囲であった。ダイオキシン類摂取量が最も多かったベビーフードから摂取するダイオキシン類の TDI に占める割合は、仮に一日三食同じものを食したとしても最大で 1.2%程度であった。

研究協力者

(一財)日本食品分析センター

伊佐川 聡、柳俊彦、飯塚誠一郎

国立医薬品食品衛生研究所

高附 巧、植草義徳

摂取への寄与が大きい食品のダイオキシン類汚染実態を把握し、精密な摂取量推定に必要なデータの蓄積を目的に、個別食品中のダイオキシン類濃度の実態を調査してきた。本年度は食肉及び卵についてダイオキシン類濃度の実態を調査した。また、ハイリスク集団と考えられる乳幼児が食する食品についてはダイオキシン類濃度を調査したデータが少ない。離乳食として市販のベビーフードが広く売られていることから、市販ベビーフード中のダイオキシン類濃度を調査することは、乳幼児のダイオキシン

A. 研究目的

トータルダイエット試料によるダイオキシン類の摂取量推定調査により、人が摂取するダイオキシン類の約 99%が魚介類、肉・卵類に由来することが明らかになっている。そこで、これら

類摂取量の評価に有用である。我々は平成 13 年度¹⁾及び平成 14 年度²⁾に市販の乳幼児用の飲料、菓子等を含む市販ベビーフードを対象としたダイオキシン類濃度の実態調査を実施して以来、市販ベビーフードについて調査を実施していない。そこで、本年度は人におけるダイオキシン類の主要な摂取源と考えられている魚介類、肉・卵類を使用した乳幼児用の市販ベビーフードを対象にダイオキシン類濃度の実態を調査した。

B. 研究方法

1. 試料

試料は東京都内及び神奈川県内のスーパーマーケット、あるいはインターネットを介して購入した。

2. 分析項目及び検出限界

ダイオキシン類

WHO が毒性等価係数(TEF)を定めた下記の PCDDs 7 種、PCDFs 10 種及び Co-PCBs 12 種の計 29 種を分析対象とした。

()内の数字は目標とした検出限界値(pg/g)を示す。

PCDDs

- 2,3,7,8-TCDD, 1,2,3,7,8-PeCDD (0.01)
- 1,2,3,4,7,8-HxCDD, 1,2,3,6,7,8-HxCDD, 1,2,3,7,8,9-HxCDD, 1,2,3,4,6,7,8-HpCDD (0.02)
- 1,2,3,4,6,7,8,9-OCDD (0.05)

PCDFs

- 2,3,7,8-TCDF, 1,2,3,7,8-PeCDF, 2,3,4,7,8-PeCDF (0.01)
- 1,2,3,4,7,8-HxCDF, 1,2,3,6,7,8-HxCDF, 1,2,3,7,8,9-HxCDF, 2,3,4,6,7,8-HxCDF, 1,2,3,4,6,7,8-HpCDF, 1,2,3,4,7,8,9-HpCDF (0.02)

- 1,2,3,4,6,7,8,9-OCDF (0.05)

Co-PCBs

- 3,3',4,4'-TCB(#77), 3,4,4',5-TCB(#81), 3,3',4,4',5-PeCB(#126), 3,3',4,4',5,5'-HxCB (#169) (0.1)
- 2,3,3',4,4'-PeCB(#105), 2,3,4,4',5-PeCB (#114), 2,3',4,4',5-PeCB(#118), 2',3,4,4',5-PeCB(#123), 2,3,3',4,4',5-HxCB (#156), 2,3,3',4,4',5'-HxCB (#157), 2,3',4,4',5,5'-HxCB(#167), 2,3,3',4,4',5,5'-HpCB(#189) (1)

3. 分析方法

ダイオキシン類の分析は、「食品中のダイオキシン類の測定方法暫定ガイドライン」(厚生労働省、平成 20 年 2 月)に従った。

4. 分析結果の表記

測定結果は湿重量あたりの毒性等量(pg TEQ/g)で示した。ダイオキシン類の毒性等量の計算には、TEF(WHO 2005)を用いた。目標とした検出限界値未満の異性体濃度はゼロとして計算した。

C. 研究結果及び考察

1. 食肉及び卵中のダイオキシン類濃度の実態調査結果

食肉及び卵(7種、36試料)のダイオキシン類分析結果を表 1 に示した。また、食品種毎のダイオキシン類濃度の概要を表 2 に示した。

牛肉(5 試料)のダイオキシン類濃度は、0.00036～0.44 pg TEQ/g(中央値 0.21 pg TEQ/g)の範囲であった。豚肉(5 試料)のダイオキシン類濃度は、0.000035～0.0083 pg TEQ/g(中央値 0.00046 pg TEQ/g)の範囲であった。鶏肉(5 試料)のダイオキシン類濃度

は、0～0.47 pg TEQ/g(中央値 0.0017 pg TEQ/g)の範囲であった。レバーを含む羊肉(5 試料)のダイオキシン類濃度は、0.000050～0.13 pg TEQ/g(中央値 0.028 pg TEQ/g)の範囲であった。馬肉(5 試料)のダイオキシン類濃度は、0.011～0.072 pg TEQ/g(中央値 0.046 pg TEQ/g)の範囲であった。フォアグラ(5 試料)のダイオキシン類濃度は、0.0030～0.024 pg TEQ/g(中央値 0.016 pg TEQ/g)の範囲であった。鶏卵(6 試料)のダイオキシン類濃度は、0.0048～0.036 pg TEQ/g(中央値 0.017 pg TEQ/g)の範囲であった。

2. 市販ベビーフード中のダイオキシン類濃度の実態調査結果

市販ベビーフード(42 試料)のダイオキシン類濃度及び一食あたりのダイオキシン類の摂取量を表 3 に示した。市販ベビーフード試料中のダイオキシン類濃度は 0～0.0016 pg TEQ/g(中央値 0.000023 pg TEQ/g)の範囲であった。市販のベビーフード中のダイオキシン類濃度は、最大でも 0.002 pg TEQ/g 未満と非常に低い値であった。

各ベビーフード一食あたりのダイオキシン類摂取量は、0～0.13 pg TEQ/食(中央値 0.0016 pg TEQ/食)であった。厚生労働省の平成 22 年度乳幼児身体発育調査報告(<http://www.mhlw.go.jp/stf/houdou/0000042861.html>)に示された市販ベビーフードの対象となる各月齢の体重(中央値)から、各月齢の乳幼児1人あたりの TDI(pg TEQ/day)を求めた(表 4)。これを基に市販ベビーフード一食あたりから摂取するダイオキシン類量が TDI に占める割合を求めると、男児で 0～0.38%、女児で 0～0.41%であった。最大の割合を示した市販ベビーフードを仮に一日三食食したとしても TDI

に占める割合は約 1.2%と非常に低かった。

市販ベビーフード中のダイオキシン濃度の報告としては Schecter ら³⁾のアメリカ合衆国内の7つの州で畜肉類を使用した市販ベビーフードの調査結果の 0.028～0.226 pg TEQ/g と、平成13年度及び平成14年度の厚生労働科学研究^{1,2)}の<0.001～0.135 pg TEQ/gがある。これらの結果は TEF(WHO 1998)を使用しているので、比較ために本研究の測定結果について TEF(WHO 1998)を用いてダイオキシン類濃度を求めると 0～0.0016 pg TEQ/g(中央値 0.0000081 pg TEQ/g)となり、過去に報告されている濃度と比較して低かった。

D. 結論

1. 食肉及び卵(7種、36 試料)のダイオキシン類濃度を調査した。食肉 6 種 30 試料のダイオキシン類濃度は 0～0.47 pg TEQ/g(中央値 0.012 pg TEQ/g)の範囲内であった。鶏卵 6 試料のダイオキシン類濃度は 0.0048～0.036 pg TEQ/g(中央値 0.017 pg TEQ/g)の範囲内であった。
2. 市販ベビーフード(42 試料)を調査した結果、0～0.0016 pg TEQ/g(中央値 0.000023 pg TEQ/g)の範囲であった。ダイオキシン類摂取量が最も多くなるベビーフードを仮に一日三食食しても、TDI に占める割合は 1.2%程度であった。また、過去に実施された国内及びアメリカ合衆国の市販ベビーフードの調査結果と比較すると、ダイオキシン類濃度は低かった

E. 参考文献

- 1) 平成13年度厚生労働科学研究補助金研究報告書「ダイオキシンの汚染実態把握及び摂取低減化に関する研究」(分担報告書 個別食品中のダイオキシン類濃度調査)

2)平成 14 年度厚生労働科学研究補助金研究報告書「ダイオキシンの汚染実態把握及び摂取低減化に関する研究」(分担報告書 個別食品中のダイオキシン類濃度調査)

3) Arnold Schechter et. al., Dioxin in Commercial United States Baby Food, J. Toxicology and Environmental Health, Part A, 65, 1937-1943 (2002).

F. 研究業績

1. 論文発表

なし

2. 学会発表

1) 高附 巧、植草義徳、堤 智昭、穂山 浩、手島玲子、渡邊敬浩:乳幼児用調製粉乳中の塩素化ダイオキシン類実態調査, 第 52 回全国衛生化学技術協議会年会 (2015.12).

表 1 食肉及び卵中のダイオキシン類濃度測定結果

食 品			ダイオキシン類濃度 (pgTEQ/g) ¹⁾		
			PCDD/Fs	Co-PCBs	Total
食肉	牛肉1	国産	0.0038	0.00013	0.0039
	牛肉2	国産	0.37	0.068	0.44
	牛肉3	国産	0.23	0.073	0.30
	牛肉4	輸入	0.17	0.039	0.21
	牛肉5	輸入	0.00030	0.000058	0.00036
	豚肉1	国産	0.00031	0.00015	0.00046
	豚肉2	国産	0.0038	0.000039	0.0038
	豚肉3	国産	0.0046	0.0037	0.0083
	豚肉4	輸入	0	0.000035	0.000035
	豚肉5	輸入	0.000036	0.000068	0.00010
	鶏肉1	国産	0.0012	0.00052	0.0017
	鶏肉2	国産	0	0.00024	0.00024
	鶏肉3	国産	0	0	0
	鶏肉4	輸入	0.45	0.017	0.47
	鶏肉5	輸入	0.011	0.000067	0.011
	羊レバー1	輸入	0.012	0	0.012
	羊レバー2	輸入	0.015	0.013	0.028
	羊レバー3	輸入	0.091	0.038	0.13
	羊肉1	輸入	0	0.000050	0.000050
	羊肉2	国産	0.048	0.020	0.068
	馬肉1	輸入	0.046	0.00018	0.046
	馬肉2	輸入	0.061	0.011	0.072
	馬肉3	国産	0.053	0.011	0.064
	馬肉4	国産	0.00060	0.010	0.011
	馬肉5	国産	0.00060	0.011	0.012
フォアグラ1	輸入	0.013	0.010	0.024	
フォアグラ2	輸入	0.0030	0.010	0.013	
フォアグラ3	輸入	0.0025	0.00044	0.0030	
フォアグラ4	輸入	0.0098	0.010	0.020	
フォアグラ5	輸入	0.0054	0.011	0.016	
卵	鶏卵-1	国産	0.0086	0.018	0.027
	鶏卵-2	国産	0.0018	0.012	0.013
	鶏卵-3	国産	0.0043	0.00068	0.0050
	鶏卵-4	国産	0.019	0.017	0.036
	鶏卵-5	国産	0.021	0.00030	0.021
	鶏卵-6	国産	0.0044	0.00042	0.0048

1) 目標検出下限値未満の異性体濃度はゼロとし、WHO 2005 TEFを用いて計算

表 2 食肉及び卵中のダイオキシン類濃度の概要

食品		試料数	ダイオキシン類濃度 (pg TEQ/g) ¹⁾			
			平均値	中央値	最大値	最小値
食肉	牛肉	5	0.19	0.21	0.44	0.00036
	豚肉	5	0.0026	0.00046	0.0083	0.000035
	鶏肉	5	0.097	0.0017	0.47	0
	羊肉(レバー含む)	5	0.048	0.028	0.13	0.000050
	馬肉	5	0.041	0.046	0.072	0.011
	フォアグラ	5	0.015	0.016	0.024	0.0030
卵	鶏卵	6	0.018	0.017	0.036	0.0048

1) 目標検出下限値未満の異性体濃度はゼロとし、WHO 2005 TEFを用いて計算

表3 ベビーフード中のダイオキシン類濃度測定結果

食品	対象月齢	メーカー	原材料(畜肉、魚介類)	ダイオキシン類濃度 (pgTEQ/g) ¹⁾			一食あたりのダイオキシン類摂取量 (pg TEQ/食)	
				PCDD/Fs	Co-PCBs	Total		
ベビーフード	1	5	A	牛乳、すけとうだら、全粉乳	0	0.000095	0.000095	0.0068
	2	5	A	牛乳、ほたて貝柱	0	0.000011	0.000011	0.00080
	3	5	B	たら、クリームチーズ	0	0.000033	0.000033	0.0020
	4	5	B	たら	0	0	0	0
	5	7	A	鶏肉、かれい	0.000018	0.000056	0.000075	0.0092
	6	7	A	鶏ささみ、かれい	0	0.000073	0.000073	0.0090
	7	7	A	鶏肉、鶏レバー、牛乳	0.000016	0.00031	0.00033	0.023
	8	7	B	鶏肉	0.000017	0.000011	0.000028	0.0022
	9	7	B	鶏肉	0.0016	0	0.0016	0.13
	10	7	B	鶏肉	0	0.000072	0.000072	0.0056
	11	7	C	しらす、鶏肉	0	0.000045	0.000045	0.0070
	12	7	C	しらす	0	0.00018	0.00018	0.027
	13	7	C	まぐろ	0	0	0	0
	14	7	C	さけ	0.000024	0.000071	0.000094	0.0074
	15	9	A	かれい	0	0.000039	0.000039	0.0031
	16	9	A	豚肉	0	0	0	0
	17	9	B	鶏肉	0	0	0	0
	18	9	B	鶏肉	0.000023	0	0.000023	0.0017
	19	9	B	たら	0.000016	0	0.000016	0.0012
	20	9	B	鶏肉	0.000020	0	0.000020	0.0016
	21	9	B	豚肉、乳たんぱく	0	0	0	0
	22	9	C	たい、卵白、豚肉	0	0	0	0
	23	9	C	鶏肉	0	0	0	0
	24	9	C	まぐろ	0	0	0	0
	25	9	C	鶏肉	0	0	0	0
	26	9	D	豚肉	0	0	0	0
	27	9	D	液卵黄、鶏肉	0.0012	0.000073	0.0012	0.071
	28	9	D	まぐろ水煮、牛乳、クリーム	0.000018	0	0.000018	0.0011
	29	9	E	豚肉、卵白	0	0	0	0
	30	9	E	鯛	0	0.00019	0.00019	0.015
	31	12	A	鶏肉、鶏卵、乾燥卵白	0	0.000035	0.000035	0.0043
	32	12	A	鶏肉、鶏卵	0.000024	0.000044	0.000068	0.0084
	33	12	B	鶏卵、豚肉	0.000041	0.000044	0.000085	0.0066
	34	12	B	鶏肉	0.000031	0	0.000031	0.0025
	35	12	C	豚肉、鶏レバー、鶏肉、卵白、牛肉	0.000018	0	0.000018	0.0030
	36	12	C	鶏肉	0	0	0	0
	37	12	D	えび	0.000023	0	0.000023	0.0013
	38	12	D	鶏肉	0.000025	0	0.000025	0.0015
	39	12	E	鶏肉、豚肉	0	0.000063	0.000063	0.0075
	40	12	E	まぐろ水煮、全粉乳、バター	0	0	0	0
	41	12	F	たら	0	0	0	0
	42	12	F	鶏卵	0	0	0	0

1) 目標検出下限値未満の異性体濃度はゼロとし、WHO 2005 TEFを用いて計算

表 4 各月齢の乳幼児の体重とTDI

月齢	男		女	
	体重の中央値(kg) ¹⁾	各月齢の乳幼児1人あたりのTDI(pg TEQ/day) ²⁾	体重の中央値(kg) ¹⁾	各月齢の乳幼児1人あたりのTDI(pg TEQ/day) ²⁾
5～6	7.66	31	7.14	29
7～8	8.27	33	7.75	31
9～10	8.70	35	8.17	33
12～13	9.24	37	8.68	35

1) 厚生労働省の平成22年度乳幼児身体発育調査報告書

(<http://www.mhlw.go.jp/stf/houdou/0000042861.html>)より

2) 体重あたりのTDI(4 pg TEQ/kg bw/day)に各月齢の体重(中央値)を乗じた値

II. 分担研究報告 3

有害化学物質摂取量推定に不可欠な分析法開発に関する研究

片岡洋平

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

研究分担報告書

有害化学物質摂取量推定に不可欠な分析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 片岡洋平 国立医薬品食品衛生研究所食品部主任研究官

研究要旨

精米及び玄米に含まれる無機ヒ素を分析するために必要な分析法、並びに、無機ヒ素及び有機ヒ素化合物を化学形態別に分析可能な一斉分析法を検討した。

検討 1) 精米及び玄米を分析対象とした無機ヒ素分析法の開発

昨年度までに開発した摂取量推定に使用可能なトータルダイエツト試料を分析対象とする無機ヒ素分析法について、分析対象を精米及び玄米に特化させた無機ヒ素分析法に改良した。分析法の改良では、測定時間の短縮、クロマトグラムのピーク形状や分離の改善を目的に移動相条件、及び分析に供する試料量を検討した。改良した無機ヒ素分析法の性能を、精米及び玄米を基材とする認証標準試料、及び 3 価ヒ素と 5 価ヒ素の標準溶液を用いて調製した添加試料(精米及び玄米)を計画的に分析することで評価した。得られた分析値から推定された真度は、認証標準試料に対し 99~100%、両添加試料に対し 100~102%であった。また、併行精度(RSD%)は認証標準試料に対し 1.0~1.6%、両添加試料に対し 1.5~2.6%と推定された。これらの結果より、改良した無機ヒ素分析法は精米及び玄米に適用可能な分析性能を有していると判断した。

検討 2) LC-MS/MS 等を用いた無機ヒ素及び有機ヒ素化合物の化学形態別分析法の開発

ヒ素化合物の検出にタンデム型質量分析計(MS/MS)を用いる事により、HPLC により各ヒ素化合物が完全には分離できなくとも定量可能な方法の開発を目的とし、LC-MS/MS の分析条件について検討を行った。認証標準試料の測定及び添加回収試験を実施し、希釈してマトリクス成分の影響を除くことで定量可能であることを確認した。また、LC-QTOF/MS で標準品の精密質量測定を行い、有機ヒ素の測定イオン形態を確認した。

研究協力者 渡邊敬浩 林恭子 国立医薬品食品衛生研究所

研究協力者 宮崎悦子 戸渡寛法 福岡市保健環境研究所

赤木浩一 福岡市水道局水道水質センター (元福岡市保健環境研究所)

A. 研究目的

食品には、時として環境や食品そのものに由来する有害物質が含まれている場合がある。しかし、どのような有害物質が、どのような食品にどれだけの量が含まれているかといった実態については、情報が不足している場合が多いのが現状である。

ヒ素は食品に含まれ、日常的に摂取される可能性の高い有害物質の一つに挙げられる。食品を含む環境中には、価数が3価または5価の無機ヒ素、メチル基を官能基として有する複数のヒ素化合物やアルセノ糖のような有機ヒ素化合物の存在が知られている。ヒ素化合物は化学形態によって生体内動態や毒性が異なり、一般に有機ヒ素化合物はヒトに対して低毒性であるが、無機ヒ素は有毒であるとされる。したがって、総ヒ素のみならず化学形態別にヒ素化合物の濃度を知ることが重要であると言える。

米や一部の海産物といった特定の食品には、ヒ素が高頻度に比較的高濃度で含まれていることが知られており、製造規範の策定や食品規格の設定等が、国際的なレベルで活発に議論されている。現在、FAO/WHO 合同国際食品規格委員会 (Codex 委員会)、中国、オーストラリア、ニュージーランドが、食品に含まれるヒ素

の基準値を設定し、WHO は飲料水中のヒ素についてガイドライン値を設定している。特に、米については Codex 委員会 が、2014 年 7 月に精米の無機ヒ素の最大基準値を 0.2 mg/kg とすることを採択し、玄米の無機ヒ素の最大基準値を 0.35 mg/kg とすることの予備採択が行われている。

本課題では、昨年度までに摂取量推定を目的に使用可能な無機ヒ素分析法について検討し、その成果としてトータルダイエツト試料を分析対象とする無機ヒ素分析法を開発した。今年度は、Codex 委員会等での無機ヒ素への国際的な食品規格策定の動向を踏まえ、トータルダイエツト試料を分析対象とする無機ヒ素分析法を基礎とし、精米及び玄米を分析対象とする無機ヒ素分析法を検討した。また、主に摂取量推定を目的とし、化学形態別に無機ヒ素及び有機ヒ素化合物を分析可能な一斉分析法の検討も昨年度に引き続き実施した。

検討 1) 精米及び玄米を分析対象とした無機ヒ素分析法の開発

昨年度までに、希硝酸による抽出法と HPLC と ICP-MS を用いた測定法を組み合わせた無機ヒ素分析法(HPLC-ICP-MS 法)を開発したが、本年度は、精米及び玄米に

分析対象を限定し、HPLC-ICP-MS法の改良を試みた。分析法の改良では、文献等を参考に、測定時間の短縮の検討とクロマトグラムのピーク形状や分離の改善を目的に測定条件を最適化した。また、文献情報、精米及び玄米が分析試料であることの特性、並びにHPLC-ICP-MS法の基本的な性能などを考慮し、分析に供する試料量についても検討した。併せて、改良した無機ヒ素分析法について、その性能を評価したので報告する。

検討 2) LC-MS/MS等を用いた無機ヒ素及び有機ヒ素化合物の化学形態別分析法の開発

検討 1)で化学形態別のヒ素化合物の検出器として用いられているICP-MSでは、Asの質量数75を共通して観測するため、導入前に各ヒ素化合物が十分に分離していることが重要である。しかし、上記有機ヒ素化合物に3価と5価の無機ヒ素を加えた全てのヒ素化合物を、互いの測定に影響のないよう、完全に分離することは難しい。また、イオンペア試薬を用いた分離方法が採用されているが、高濃度のイオンペア試薬を用いるため、機器の汚染や感度低下が心配される。

本研究ではイオンペア試薬を用いず、またICP-MS導入前の各ヒ素化合物の完全分離を必要としない方法として、LC-MS/MSを用いる分析法(LC-MS/MS法)を検討したので報告する。なお、検討は福岡市保健環境研究所で実施した。

B. 研究方法

検討 1) 精米及び玄米を分析対象とした無機ヒ素分析法の開発

分析対象化合物

無機ヒ素である亜ヒ酸；As(III)、及びヒ酸；As(V)を分析対象化合物とした。

試料

改良した無機ヒ素分析法の性能を評価する際には、下記の認証標準試料の他に、精米試料と玄米試料を使用した。

認証標準試料：白米粉末；NMIJ CRM 7503-a (産業技術総合研究所製) (As(III)認証値：Asとして 0.0711 ± 0.029 mg/kg、As(V)認証値：Asとして 0.0130 ± 0.009 mg/kg)、

玄米粉末；NMIJ CRM 7532-a (産業技術総合研究所製) (無機ヒ素化合物認証値：Asとして 0.0298 ± 0.008 mg/kg)

精米試料及び玄米試料：平成27年8月から12月に全国で流通していた玄米30試料を購入し、玄米試料とした。また、とう精後の玄米試料を精米試料とした。

試薬及び試液等

25%テトラメチルアンモニウムヒドロキシド(以下、TMAH) (精密分析用)、1-ブタンスルホン酸ナトリウム、マロン酸(特級)、メタノール(液体クロマトグラフィー用)、メチルオレンジ(特級)、25%アンモニア水(有害金属測定用)、1 mol/L リン酸二水素アンモニウム溶液(高速液体クロマト

グラフ用)は和光純薬社製のものを用いた。
硝酸 1.42(超高純度試薬)は関東化学社製を用いた。

水:メルク社製装置(Element A10)により製造した超純水(比抵抗 > 18.2MΩ・cm、TOC < 3 ppb)を用いた。

標準品:下記の5種類を使用した。

亜ヒ酸; As(III):ヒ素標準液(As 100)(関東化学社製)

ヒ酸; As(V):ヒ酸[As(V)]水溶液(NMIJ CRM 7912-a)(産業技術総合研究所製)

ジメチルアルシン酸(DMA)水溶液(NMIJ CRM 7913-a)(産業技術総合研究所製)

アルセノベタイン(AsB)水溶液(NMIJ CRM 7901-a)(産業技術総合研究所製)

モノメチルアルシン酸(MMA)(トリケミカル研究所製)

標準原液: MMA 標準品 93.410 mg を正確に量りとり、水で 50 mL に定容した(ヒ素濃度として 1000 mg/L)。

MMA 以外については、購入した標準品を標準原液として用いた。

添加用標準溶液: As(III)の添加用標準溶液は、0.1 µg/mL になるように 0.3 mol/L 硝酸溶液で希釈した(以下、添加用標準溶液 A)。As(V)の添加用標準溶液は、0.1 µg/mL になるように 0.3 mol/L 硝酸溶液で希釈した(以下、添加用標準溶液 B)。さらに、添加用標準溶液 B を 0.01 µg/mL になるように 0.3 mol/L 硝酸溶液で 10 倍希釈した(以下、添加用標準溶液 C)。

0.30 mol/L 硝酸溶液: 硝酸 9.6 mL を量りとり、水で 500 mL に定容した。

メチルオレンジ溶液:メチルオレンジ 0.1 g を量りとり、水で 100 mL に定容後、孔径 0.45 µm の PTFE フィルター(メルク社製)でろ過した。

5% アンモニア水: 25%アンモニア水 10 mL を水で 50 mL に定容した。

HPLC 用移動相: 25% TMAH 0.3645 g、1-ブタンスルホン酸ナトリウム 1.922 g、マロン酸 0.416 g、1 mol/L リン酸二水素アンモニウム溶液 5mL を量りとり、水を加え、0.30 mol/L 硝酸溶液で pH2.7 に調整した後、メタノール 0.5 mL を添加し、水で 1 L に定容した。

0.45 µm フィルター: Millex-HP(メルク社製)を用いた。

分析機器

HPLC: 島津製作所社製 Prominence を用いた。

ICP-MS: サーモフィッシャーサイエンティフィック社製 X-Series2 を用いた。

HPLC-ICP-MS 測定条件

HPLC 条件

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

移動相: 0.05 (v/v%) メタノール、12 mM 1-ブタンスルホン酸ナトリウム、1 mM TMAH、5mM リン酸二水素アンモニウム、4 mM マロン酸溶液(pH2.7)

流速: 0.75 mL/min

カラム温度: 25°C

オートサンプラー温度：4℃

注入量：20 μL

測定時間：7 min

ICP-MS 条件

測定モード：CCT モード

(コリジョンモード)

コリジョンガス：He

コリジョンガス流量：8.5 mL/min

測定ポイント時間：50 ms

測定質量数：75

その他の条件は、機器の自動チューニングプログラムによって設定した。

測定溶液の調製

試料からの測定溶液の調製方法を以下に示した。

試料 1.0 g を量り取り、0.30 mol/L 硝酸溶液 5 mL を加え、100℃で 2 時間静置した。なお、30 分おきによく振り混ぜた。2600 g で 10 分間遠心分離後、水層を 20 mL メスフラスコに移した。残渣に水 5 mL を加え、手でよく振とうした後、同様に遠心分離後、水層を上記のメスフラスコに合わせた。同様の操作を計 2 回行った。メスフラスコにメチルオレンジ溶液を 100 μL 加え、5%アンモニア水で約 pH3.0 (溶液の色が薄い赤色～オレンジ)に調整した後、20 mL に水で定容した。この溶液を孔径 0.45 μm フィルターでろ過し、測定溶液とした。

検量線の作成

各標準原液を適宜量りとり、0.30 mol/L

硝酸溶液を 5 mL 加えた。メチルオレンジ溶液を 100 μL 加え、5%アンモニア水で約 pH3.0(溶液の色が薄い赤色～オレンジ)に調整した後、定容した溶液を孔径 0.45 μm フィルターでろ過し、検量線用測定溶液とした。各検量線用溶液 20 μL を HPLC-ICP-MS に注入し、得られたピーク面積値の濃度に対する一次回帰式を最小二乗法により求め、検量線を作成した。検量線用溶液の濃度は As(III)、As(V)共に、0、0.25、0.5、1、2.5、5、10、25、50 ng/mL とした。

測定及び各無機ヒ素濃度の算出

測定溶液を HPLC-ICP-MS に注入し、測定値を得た。次いで、作成した検量線の各変数を用いて下式にしたがい、測定溶液の各分析対象化合物濃度を逆推定した。

$$\text{測定溶液の各無機ヒ素濃度(mg/L)} \\ = \{(\text{Signal}_{\text{analyte}} - \text{intercept}) / \text{slope}\} / 100$$

Signal_{analyte}: 各無機ヒ素の測定値

Intercept: 検量線の切片

Slope: 検量線の傾き

測定溶液の各無機ヒ素濃度から下式に従い試料の各無機ヒ素濃度(mg/kg)を算出し、分析値とした。

$$\text{試料の各無機ヒ素濃度(mg/kg)} = \text{測定溶液の各無機ヒ素濃度(mg/L)} \times 0.02 \text{ (L)} / 0.001 \text{ (kg)}$$

検量は、作製した検量線に内挿することで行った。