

**平成 25 年度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**

**食品を介したダイオキシン類等有害物質摂取量とそ  
の手法開発に関する研究**

**総括・分担報告書**

研究代表者

国立医薬品食品衛生研究所食品部

**渡邊敬浩**

研究分担者

国立医薬品食品衛生研究所食品部

**堤 智昭**

国立医薬品食品衛生研究所食品部

**片岡洋平**

国立医薬品食品衛生研究所食品衛生管理部

**松田りえ子**

松山大学薬学部

**天倉吉章**

国立医薬品食品衛生研究所安全情報部

**畝山智香子**

**平成 26 年(2014 年) 5 月**

## 目次

### I. 総括研究報告

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 渡邊敬浩.....	1
--	---

### II. 分担研究報告

1. 各種有害物質の適時及び継続的な摂取量推定研究 渡邊敬浩 有害物質摂取量推定の部.....	61
有害物質濃度実態調査の部.....	118
ハロゲン系難燃剤の食品汚染実態調査.....	119
食品中に含まれる多環芳香族炭化水素類の実態調査.....	139
2. 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 堤 智昭 塩素化ダイオキシン類のトータルダイエット調査.....	159
塩素化ダイオキシン類の個別食品汚染調査.....	174
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.....	182
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.....	209
5. ダイオキシン様活性を有する新規有害物質に関する研究 天倉吉章.....	219
6. 国際動向を踏まえた摂取量推定すべき有害化学物質の探索に関する研究 畝山智香子.....	232

### III. 研究成果の刊行に関する一覧表

# I. 総括研究報告

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

渡邊敬浩

## 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 総括研究報告書

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
研究分担者	片岡洋平	国立医薬品食品衛生研究所食品部
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
研究分担者	天倉吉章	松山大学薬学部
研究分担者	畝山智香子	国立医薬品食品衛生研究所安全情報部

#### 研究概要

有害物質の摂取量推定値は、ヒトの健康危害リスク管理のための基礎データであり、高い信頼性と精密さが要求される。リスク管理の施策策定には、懸念される有害物質の摂取量推定値が適時に必要となる。同時に、リスクへの寄与が大きい有害物質の摂取量推定値を継続的に監視し、施策効果を検証する必要がある。本研究では、様々な有害物質の信頼できる摂取量を適時にまた必要に応じて継続的に推定する事を目的に、有害物質の摂取量推定、摂取量の信頼性向上と精密化、摂取量を推定すべき新規有害物質の選定の3つに大別できる研究を実施した。

有害物質の摂取量推定研究では、マーケットバスケット方式により全国10地域においてトータルダイエツト試料を調製し、その分析を通じて各種有害物質の摂取量を推定した。摂取量を推定した有害物質は、耐用摂取量(TDI)が設定されているホウ素、アルミニウム、ニッケル、セレン、カドミウム、アンチモン、バリウム、鉛、ウランに加え、一斉に分析可能としたヒ素、総水銀、スズ、クロム、コバルト、モリブデンの元素類、メチル水銀、PCBs、ダイオキシン類(PCDD/PCDFs及びCo-PCBs)である。研究の成果として、元素類の全国平均摂取量はB:1523.8 µg/man/day、Al:4687 µg/man/day、Ni:156.8 µg/man/day、Se:90.2 µg/man/day、Cd:17.6 µg/man/day、Sb: 2.2 µg/man/day、Ba:468.4 µg/man/day、Pb:10.4 µg/man/day、U: 1.0 µg/man/day、As:213.9 µg/man/day、Sn:228.9 µg/man/day、Cr:30.2 µg/man/day、Co:9.0 µg/man/day、Mo:225.3 µg/man/dayと推定された。またメチル水銀とPCBsの全国平均摂取量は、それぞれ6.7µg/man/day、436 ng/man/dayと推定された。ダイオキシン類の全国平均摂取量は0.58(範囲：0.18～0.97)pg TEQ/kg bw/dayと推定された。

さらにダイオキシン類の摂取量については、精密化の一環として、ハイリスク集団と考えられる幼児におけるダイオキシン類の1日摂取量を推定するため、幼児用のTD試料を調製しダイオキシン類を分析した。その結果、幼児によるダイオキシンの摂取量は、0.46 pg TEQ/kg bw/dayと推定された。

TDIが設定されている元素類のうち、ニッケル、メチル水銀、ホウ素、アルミニウム、セレン、カドミウム、バリウム、ウランのそれぞれの摂取量が耐用摂取量に占める割合(対TDI比)は、ニッケルの78.4%を筆頭に、メチル水銀が50%以上、ホウ素、アルミニウム、セレン、カドミウム、バリウムが30%以上、ウランが10%以上となった。ダイオキシン類の全国平均摂取量は、平成24年度の調査結果よりやや低い値で推定された。摂取量の推定値の最大は0.97 pg TEQ/kg bw/dayであり平均値の約1.7倍であったが、日本におけるTDI(4 pg TEQ/kg bw/day)の24%程度であった。

その他、摂取量推定が必要かを判断するため、毒性や国際的な規制等の動向から優先度が高いと判断した多環芳香族炭化水素類(PAHs)、臭素系難燃剤(ヘキサプロモシクロドデカン：HBCD)、塩素系難燃剤(デクロランプラス：DP)を対象に食品濃度の実態等を調査した。PAHsの含有実態調査では、燻製魚、なまり節、焼き魚、燻製肉、燻製卵、鰹削り節、及び鰹節等を風味原料に使用したダシパック及びつゆの計43試料を分析した。その結果、鰹削り節やダシパックのPAHs濃度が高い傾向が認められた。PAHs16種の中でも分子量の小さいBenzo[a]anthracene、Cyclopenta[c,d]pyrene等はほぼ100%の割合で検出され、濃度も高かった。燻製魚介類の調査結果を用いてBAP摂取量を試算した結果、多めに見積もっても11.3 ng/kg体重/日程度と推定された。暴露マージンを計算すると約8,800であったことから、人の健康への懸念は大きいとは言えなかった。HBCDの含有実態調査では、魚介類20試料すべてから検出され、その湿重量当たりの濃度範囲は0.12 ng/g～22 ng/g(平均3.1 ng/g)であった。異性体別の濃度は $\alpha$ 体が0.12～16 ng/g、 $\beta$ 体がND～0.11 ng/g、 $\gamma$ 体がND～6.2 ng/gであった。濃度が高い試料について光学異性体分析を行った結果、光学異性体構成比は $\alpha$ 体が0.49～0.56、 $\gamma$ 体が0.50～0.55であり、光学異性体による明確な差異は見られなかった。DPの含有実態調査では、魚介類20試料中17試料からDPが検出された。得られた濃度値(湿重量あたり)は $syn$ 体がND～7.0 pg/g(平均2.2 pg/g)、 $anti$ 体はND～13 pg/g(平均3.7 pg/g)であり、DPの $syn$ 体と $anti$ 体の濃度合計値(Total DP)の範囲はND～20 pg/g(平均5.9 pg/g)であった。

摂取量の信頼性向上と精密化研究では、1)摂取量推定を目的とした分析法の性能評価手法の開発、2)リスクを考慮した精密摂取量推定手法開発、3)メチル水銀分析法及びヒ素形態別分析法の開発について検討した。摂取量推定を目的とした分析法の性能評価手

法の開発の成果として、マーケットバスケット方式によるTD試料を模した性能評価用試料(SEMP)が開発された。摂取量推定を目的とする分析法の一例として多元素一斉分析法を取りあげ、本法を用いてSEMPを分析した結果から、食品に本来含まれている元素が元素ごとに異なる濃度で含まれていたものの、その均質性は非常に高いことが示された。さらに、SEMPの分析結果及び、推定すべき摂取量の大きさを踏まえ濃度を決め、調製した添加試料の計画的な分析の結果から、多元素一斉分析法の真度と精度を推定した。その結果、一部の元素と試料の組合せを除き、真度は90～110%、併行精度は15%未満と推定された。

年代別の食品摂取量パターンの比較のため、国民健康・栄養調査結果の、食品小分類ごとの1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)の年齢区分ごとに求めた。その結果、年齢区分に応じた食品摂取重量のパターン等、有害物質の摂取量を推定する上で不可欠な情報が得られた。得られた情報を踏まえ、1-3歳の幼児の平均的食事を模したTD試料が作製された。

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を基礎とし、主にGC-MS/MSを測定機器に採用することにより、摂取量推定を目的とした分析に使用可能な方法を開発した。本分析法の妥当性は、メチル水銀の主たる摂取源と考えられる10群(魚介)及び11群(肉・卵)を模したSEMP試料に、それぞれ0.05 mg/kg、0.005 mg/kgになるよう標準品を添加した試料を5併行分析した結果から推定された真度と併行精度によって確認した。本法により10群試料を分析した結果から推定された真度及び精度(RSD%)はそれぞれ84%と4.9%、11群試料を試料を分析した結果から推定された真度及び精度はそれぞれ97%と3.3%であった。ヒ素の形態別分析法として、2種の無機ヒ素(亜ヒ酸、ヒ酸)と6種の有機ヒ素(モノメチルアルソン酸、ジメチルアルシン酸、トリメチルアルシンオキサイド、アルセノベタイン、アルセノコリン、テトラメチルアルソニウム)の選択的な定量分析法の開発を検討した。高速液体クロマトグラフィー-誘導結合プラズマ質量分析計(HPLC-ICP-MS)による形態別分析法に着目し、無機ヒ素と有機ヒ素を合わせた計8つのヒ素化合物を分離し測定するための測定法を検討した。特に毒性が高いとされる無機ヒ素を高分解能で分析可能なODSカラムの選定、及び逆相イオンペアクロマトグラフィーによる分離のための移動相条件の最適化を行った。

摂取量を推定すべき新規有害物質の選定研究では、ダイオキシン類バイオアッセイの鍵となるアリル炭化水素レセプター(AhR)と76種の有害物質の相互作用を評価した他、暴露マージン(MOE)の大きさで分類した化合物のリストを作成した。AhRとの相互作用

を評価したPAHs及びその誘導体、残留農薬、アミノ酸及びその代謝物のうち、PAHsの多くは、顕著なAhR活性を濃度依存的に示した。PAHsの誘導体については、環の数が多くなれば活性が強くなる傾向が認められた。ハロゲン化体は、塩素の数が多くなるほど活性が弱まった。ニトロ化及びアミノ化体では、本検討だけでは置換基の数や位置で活性の強弱は考察できなかった。一方、農薬では、インドール骨格を有するcarbendazim、thiabendazoleの2種の化合物に強い活性が認められた。アミノ酸及びその代謝物についても同様、インドール化合物tryptamineに活性が認められた。MOEを指標作成した化合物リストからは、MOEが一桁と評価されている化合物、すなわち、アクリルアミド、テトラクロロエタン、アフラトキシンB1、鉛、エタノール、ダイオキシン、フラン、無機ヒ素、アクロレイン、テトラクロロエタン、テトラプロモビスフェノールA、カルバミン酸エチル、Sudan I、酸化カドミウム、ホルムアルデヒド、メチルオイゲノール、ゲニステインが比較的摂取量推定の優先順位の高い化合物である可能性が示された。

# 1. 有害物質の摂取量推定研究

## 1-1. 各種有害物質の適時及び継続的な摂取量推定

### A. 研究目的

本研究では、有害物質の適時及び継続的な摂取量推定を目的に、過去の研究成果や耐用摂取量が設定されていることを基準に、各種有害元素、メチル水銀及び PCBs を対象とした。各種有害元素、メチル水銀及び PCBs の摂取量は、マーケットバスケット (MB)方式によるトータルダイエット (TD)研究の一環として推定した。なお、これら摂取量推定のための分析は、新たに開発した元素一斉分析法、メチル水銀分析法及び異性体別 PCBs 分析法の性能を確認した後、国立医薬品食品衛生研究所で実施した。

### B. 研究方法

#### 1)-1. TD 試料の調製

日本人が日常的に飲食する食事 (日常食)からの有害物質摂取量を推定するため、日常食のモデルとなる TD 試料を MB 方式により調製した。TD 試料の調製は、試料に含める食品数を多くすることと、地域による食品摂取パターンの違いを考慮し、全国 10 カ所の衛生研究所等で行った。該当する各地域における個々の食品の摂取量には、平成 20 年度～22 年度

の 3 カ年に行われた国民健康・栄養調査の結果を入手し、地域別に集計した結果(3 年間の平均値)を用いた。

TD 試料は、下記 14 群に分割して調製した。1 群:米及びその加工品、2 群:雑穀・芋、3 群:砂糖・菓子類、4 群:油脂類、5 群:豆・豆加工品、6:果実類、7 群:有色野菜、8 群:その他の野菜・海草類、9 群:嗜好飲料、10 群:魚介類、11 群:肉・卵、12 群:乳・乳製品、13 群:調味料、14 群:飲料水。

調製された TD 試料は変質等による分析結果への影響に配慮し、不活性容器に入れ冷凍状態を保ちつつ、国立医薬品食品衛生研究所に収集した。全ての分析は、国立医薬品食品衛生研究所で実施した。

#### 1)-2. 元素の一斉分析

##### 1)-2-1. 試薬・試液

分析に使用した主たる試薬を以下に示す。

・水:メルク社製装置(Milli Q Element A10)により製造した超純水。(比抵抗  $> 18.2\text{M}\Omega \cdot \text{cm}$ 、TOC  $< 3 \text{ ppb}$ )

・硝酸:硝酸 1.42 Ultrapur-100 (関東化学株式会社)

・過酸化水素水:Ultrapure (関東化学



株式会社)

- ・各種元素標準原液 (ウランを除く): Trace CERT ICP用 (シグマアルドリッチ社製)
- ・ウラン標準原液: XSTC-289 (西進商事)
- ・混合内部標準溶液: ベリリウム(Be)、ガリウム(Ga)、イットリウム(Y)、インジウム(In)、タリウム(Tl)の濃度がそれぞれ 50 mg/L、20 mg/L、2 mg/L、10 mg/L、0.5 mg/L になるように各元素の標準原液から適量を分取し、硝酸 14 mL を加えた後、水で 100 mL に定容した。

#### 1)-2-2. 機器

- ・マイクロ波分解装置: ETHOS-One 及び ETHOS-TC (マイルストーンゼネラル社製)
- ・ICP-MS: ICP-MS iCAP Q (サーモフィッシャーサイエンティフィック社製)

#### 1)-2-3. 分析法

##### 測定溶液の調製

各分析用試料から 0.5 g をマイクロ波分解装置用容器に量りとった。硝酸 7 mL 及び過酸化水素水 1 mL を加え、分解した。分解後の溶液に、混合内部標準溶液 0.5 mL を添加後、水で 50 mL に定容した。定容後の溶液を測定溶液として

ICP-MS により測定した。

##### 試料の分解条件

マイクロ波分解装置による分解は、以下の条件で行った。

70 ; 2 分間 → 50 ; 3 分間 → 200 ; 18 分間 (50 から 200 までの温度変化に要する時間)。200 に到達した後、同温度でさらに 10 分間分解させた。

##### 測定条件

ICP-MS による測定は、以下の条件で行った。なお、各測定パラメーターは、標準試薬を用いた機器のキャリブレーション結果に基づき設定した。

- ・スプレーチャンバー: (ペルチェ冷却ジャケット付)サイクロン型
- ・コリジョンガス: ヘリウム(99.9999%)
- ・測定モード: KED(Kinetic Energy Discrimination: 運動エネルギー弁別)モード
- ・元素あたりの測定時間: 1 秒  
(積分時間(s): 0.1、チャンネル数: 1、スペース(u): 0.1、掃引数(回): 10)
- ・繰り返し測定回数: 3

##### 分析対象元素の測定質量数

分析対象とした 14 種の元素と測定質量数は以下の通りである。(括弧内の数字が測定質量数)

ホウ素: B(11)、アルミニウム: Al(27)、クロム: Cr(52)、コバル

ト:Co(59)、ニッケル:Ni(60)、ヒ素:As(75)、セレン:Se(78)、モリブデン:Mo(95)、カドミウム:Cd(111)、スズ:Sn(118)、アンチモン:Sb(121)、バリウム:Ba(137)、鉛:Pb(208)、ウラン:U(238)。

### **内部標準元素の測定質量数**

内部標準とした元素と測定質量数は以下の通りである。(括弧内の数字が測定質量数)

Be(9)、Ga(71)、Y(89)、In(115)、Tl(205)。

#### **1)-2-4. 検出下限及び定量下限**

試料を含めず全分析操作を実施する操作ブランク実験を、試料の分解に使用するすべての容器(計 54)を用いて行い、得られた定量値から標準偏差( $\sigma$ )を推定し、その 3 倍の値( $3\sigma$ )を検出下限(LOD)、10 倍の値( $10\sigma$ )を定量下限(LOQ)として推定した(表 3)。LOD を下回った値は ND とした。

#### **1)-3. メチル水銀分析**

##### **1)-3-1. 試薬・試液**

メチル水銀の分析に使用した主たる試薬を以下に示す。

- ・塩化メチル水銀：ジーエルサイエンス
- ・アセトン及びトルエン：残留農薬・PCB 分析用(関東化学株式会社製)

・臭化カリウム：特級(和光純薬工業株式会社)

・硫酸銅(II)：鹿特級(関東化学株式会社)

・L-システイン塩酸塩一水和物：特級(和光純薬工業株式会社)

・テトラフェニルホウ酸ナトリウム：和光純薬工業株式会社

・ポリエチレングリコール 200：一級(和光純薬工業株式会社)

・1 mol/L 臭化カリウム溶液：臭化カリウム 119.0 g を水に溶解し、1 L とした。

・硫酸銅(II)飽和 4 mol/L 硫酸：水 600 mL に硫酸 200 mL を加え、放冷後、水を加えて 900 mL にした後、無水硫酸銅(II)を飽和するまで溶解させた。

・1% L-システイン溶液：L-システイン塩酸塩一水和物 10.0 g、酢酸ナトリウム三水和物 8.0 g、無水硫酸ナトリウム 125.0 g を水に溶解し、1 L とした。

・0.2 mol/L リン酸緩衝液(pH 7.0)：リン酸二水素ナトリウム二水和物 31.2 g を水に溶解して 1 L とし、これを第一液とした。リン酸水素二ナトリウム十二水和物 71.6 g を水に溶解して 1 L とし、これを第二液とした。第一液 380mL と第二液 610mL を混合し、必要に応じて、第一液を用いて pH を 7.0 に調整した。

##### **1)-3-2. 機器**

・GC-MS/MS：TSQ Quantum XLS (サーモフィッシャーサイエンティフィック社製)

### 1)-3-3. 分析法

#### 測定溶液の調製

各分析用試料から 10.0 g を量りとり、アセトン 100 mL を加え 30 秒間振とうした。アセトンを除去後、トルエン 100 mL を加え 30 秒間振とうした。遠心後、トルエンを除去し、1 mol/L 臭化カリウム溶液 40 mL、硫酸銅(II)飽和 4 mol/L 硫酸 40 mL 及びトルエン 80 mL を加え、30 分間激しく振とうした。遠心後、トルエン層を採取した。水層にトルエン 50 mL を加え 10 分間振とう後、同様に操作して得られたトルエン層を合わせた。1% L-システイン溶液 50 mL を加え 5 分間振とうし、静置後、水層を採取した。6 mol/L 塩酸 30 mL、トルエン 30 mL を加え 5 分間振とう後、トルエン層を採取した。水層にトルエン 30 mL を加え 5 分間振とうし、トルエン層を合わせ、正確に 100 mL とした。トルエン溶液 4mL に 0.2 mol/L リン酸緩衝液(pH 7.0) 5 mL、1% テトラフェニルホウ酸ナトリウム溶液 1 mL を加え、室温に 10 分間静置後、遠心した。トルエン層を脱水後、1 mL を採取し、1.5 mg/mL PEG200 0.5 mL を正確に加え混合したものを測定溶液と

した。

#### 測定条件

GC-MS/MS による測定は、以下の条件で行った。

- ・カラム: InertCap 5MS/NP (内径 0.25 mm、長さ 30 m、膜厚 0.25  $\mu$ m)
- ・オープン温度: 70 (1 min)  $\rightarrow$ 10 /min $\rightarrow$ 160 (0 min) $\rightarrow$ 20 /min $\rightarrow$ 280 (5 min)
- ・注入口温度: 250
- ・トランスファライン温度: 280
- ・イオン源温度: 280
- ・溶媒待ち時間: 6 分
- ・注入量: 1  $\mu$ L
- ・キャリアガス(He)流量: 1.0 mL/min
- ・イオン化法: EI
- ・分析モード: SRM
- ・モニターイオン:  $m/z$  294 $\rightarrow$  $m/z$  279(コリジョンエネルギー: 5 V)

### 1)-4. 異性体別 PCBs 分析

#### 1)-4-1. 試薬・試液

異性体別 PCBs の分析に使用した主たる試薬を以下に示す。

- ・検量線用 PCB 標準液: TPCB-CSL-A、CS1-A、CS2-A、CS3-A、CS4-A、CS5-A (関東化学株式会社)
- ・クリーンアップスパイク標準液: TPCB-CL-A100 (関東化学株式会社)
- ・シリンジスパイク標準液: TPCB-SY-A100 (関東化学株式会社)
- ・209 異性体確認用標準液:

M-1668A-1-0.01X、2-0.01X、3-0.01X、4-0.01X、5-0.01X (和光純薬工業株式会社)等容量混合したもの

・高分解能質量数補正用試薬：パーフルオロケロセン(PFK：L16596)(日本電子株式会社)

・アセトン、エタノール、ジクロロメタン、ヘキサン、ノナン：ダイオキシン類分析用(関東化学株式会社製)

・ヘキサン洗浄水：残留農薬試験用(関東化学株式会社製)

・塩化ナトリウム：残留農薬試験・PCB 試験用(関東化学株式会社製)

・無水硫酸ナトリウム：PCB 試験用(関東化学株式会社製)

・水酸化カリウム：特級(関東化学株式会社製)

・アルミナ(関東化学株式会社製)：ダイオキシン類分析用(関東化学株式会社製)

・多層シリカゲルカラム：内径 15 mm、長さ 30 cm のカラムに無水硫酸ナトリウム 2 g、シリカゲル 0.9 g、44%硫酸シリカゲル 3 g、シリカゲル 0.9 g、及び無水硫酸ナトリウム 2 g が順次充填されたもの(ジーエルサイエンス株式会社製)

・アルミナカラム：内径 15 mm、長さ 30 mm のカラムに無水硫酸ナトリウム 2 g、アルミナ 15 g、無水硫酸ナトリウム 2 g を順次充填し作製した。

・GC キャピラリーカラム：HT8-PCB(内径 0.25 mm x 60 m)(関東化学株式会社製)

#### 1)-4-2. 機器

・GC：HP 6890 Series GC System Plus (Hewlett Packard 社製)

・MS：JMS-700 (日本電子株式会社製)

#### 1)-4-3. 分析法

##### 測定溶液の調製

均一化した試料 20.0 g をビーカーに量りとり、クリーンアップスパイク 100  $\mu$ L を加えた後、1 mol/L 水酸化カリウム・エタノール溶液を 100 mL 加え室温で 16 時間、スターラーで攪拌した。このアルカリ分解液を分液ロートに移した後、水 100 mL、ヘキサン 100 mL を加え 10 分間振とう抽出した。静置後、ヘキサン層を分取し、水層にヘキサン 70 mL を加え同様の操作を 2 回行った。ヘキサン抽出液を合わせ、2%塩化ナトリウム溶液 100 mL を加えて緩やかに揺り動かし、静置後、水層を除き同様の操作を繰り返した。ヘキサン層の入った分液ロートに濃硫酸を適量加え、緩やかに振とうし、静置後、硫酸層を除去した。この操作を硫酸層の着色が薄くなるまで繰り返した。ヘキサン層をヘキサン

洗浄水 10 mL で2回洗浄し、無水硫酸ナトリウムで脱水後、溶媒を減圧留去し約 2 mL のヘキサンに溶解した。この溶液を、ヘキサン 120 mL で洗浄した後の多層シリカゲルカラムに負荷し、ヘキサン 50 mL で溶出した。溶出液は溶媒を減圧留去し、約 2 mL のヘキサンに溶解した。この溶液を、ヘキサンで湿式充填したアルミナカラム負荷し、ヘキサン100 mL で洗浄後、20%(v/v)ジクロロメタン含有ヘキサン 100 mL で溶出した。溶媒を窒素気流下ではほぼ完全に留去後、シリンジスパイク 100  $\mu$ L を加え、GC-MS 測定溶液とした。

### **測定条件**

GC-MS による測定は、以下の条件で行った。

- ・注入方式：スプリットレス
- ・注入口温度：280
- ・注入量：2.0  $\mu$ L
- ・昇温条件：100 (1分保持)-20 /分-180 -2 /分-260 -5 /分- 300 (4分保持)
- ・MS 導入部温度：280
- ・イオン源温度：280
- ・イオン化法：EI ポジティブ
- ・イオン化電圧：38 eV
- ・イオン化電流：600  $\mu$ A
- ・加速電圧：~ 10.0 kV
- ・分解能：10,000 以上

### **分析対象**

PCBs 全 209 異性体を分析対象とした。

#### **1)-4-4. 検出下限及び定量下限**

最低濃度の検量線作成用標準液 (TPCB-CSL-A) をノナンで 5 倍に希釈した溶液を GC-MS により測定し、その結果から、S/N=3 に相当する濃度を LOD、S/N=10 に相当する濃度を LOQ とした。

### **C.D. 結果及び考察**

MB方式により全国10地域でTD試料を調製し、その分析により得られた値、すなわち各種(有害)物質のTD試料濃度と、各地域の食品摂取重量に基づき、各種(有害)物質の摂取量を推定した。

#### **1. 各種元素の摂取量推定**

TD試料の分析を通じ、各種元素の摂取量を推定した。一斉分析法の対象となる14元素(B、Al、Ni、Se、Cd、Sb、Ba、Pb、U、AS、Sn、Cr、Co、Mo)の摂取量は、試料濃度を0あるいはLOD/2 (ND=0あるいはND=LOD/2)とする2つの方式で推定したが、2つの方式で推定した摂取量はほぼ一致した。この結果は、十分に感度の高い分析法を採用することで、分析結果がNDとなる機会を極力減らし、LODがより低濃度に設

定された効果といえる。ほぼ一致する推定値ではあるが、より安全側に立脚した推定に配慮し、2方式により摂取量を推定した場合には、2/LODの値を以後の集計と考察に用いた。

今回推定した総摂取量の値(食品群別摂取量推定値の総和)は全10地域を通じ、元素ごとに以下の範囲にあった。B:1294 ~ 1854  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Al:1632 ~ 23160  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Ni:103 ~ 214  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Se:78.2 ~ 98.8  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Cd:11.9 ~ 32.4  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Sb: 0.9 ~ 8.8  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Ba:270 ~ 754  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Pb:3.8 ~ 30.9  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、U: 0.5 ~ 1.9  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、As:159.3 ~ 285.7  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Sn:2.4 ~ 1127.8  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Cr:18.3 ~ 46.6  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Co:5.3 ~ 16.3  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Mo:158.5 ~ 314.6  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 。

地域・食品群別摂取量推定値を集計し、食品群別摂取量と総摂取量の全国平均を推定した。全国平均は以下の通り推定された。B:1523.8  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Al:4687  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Ni:156.8  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Se:90.2  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Cd:17.6  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Sb: 2.2  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Ba:468.4  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Pb:10.4  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、U: 1.0  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、As:213.9  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Sn:228.9  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Cr:30.2  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Co:9.0  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Mo:225.3  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 。

総摂取量推定値に対する各群摂取

量推定値の寄与率算出した結果、食品群別摂取量の総摂取量への寄与率のパターンは元素によって大きく異なることがわかった。しかし、本年度の研究によってはじめて摂取量を推定した元素については、寄与率が一般的といえるか判断できない。つまり、ある特定の元素の摂取量を考察するうえで、総摂取量に対する寄与率が特定の食品群において高くあるいは低くなることは、現時点では判断できない。今後の継続研究の結果を待たなければならない。しかし、過去の研究の結果とも一致することから、1)Pbは特定の食品によらず様々な食品から摂取される、2)Asは主に魚介類から摂取され、それに準じてその他野菜・海藻類からの摂取量が多い、3)Cdは米から最も多く摂取されるといえる。

元素としての特徴から一斉分析には向かない総水銀(Hg)は、別途ICP-MS法により分析した。また、これまでの研究の成果として、Hgはほぼ魚介類(10群)と肉類(11群)からしか検出されず、かつ10群摂取量が支配的であることが明らかとなっていた。このことを踏まえ、効率的に摂取量を推定するために、10群と11群のTD試料のみを分析した。Hg摂取量はND=0とND=LOD/2の2つの方式で推定したが、結果はほぼ一致した。また、10群と11群それぞれの摂取量の和をHg摂取量とし

各群の寄与率を計算すると、10群の寄与率が最も低い地域であっても95.9%となり、支配的であることが確認された。このHg摂取量の推定結果を踏まえ、メチル水銀の分析は10群のみを対象とし実施した。10群のTD試料の分析を通じてメチル水銀摂取量を推定した結果、メチル水銀摂取量は、全10地域を通じ2.11 ~ 15.92  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ の範囲にあり、全国平均は6.7 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ と推定された。

## 2. PCB類の摂取量推定

TD試料の分析を通じ、PCBs類の摂取量を推定した。今年度の研究から、高分解能GC-MS法を用いることで、209あるPCBsの異性体別測定を可能とし、同じ塩素化数の異性体をまとめた同族体別摂取量、また同族体別摂取量の総和として総PCBs摂取量を推定した。またメチル水銀摂取量推定の場合と同様に、これまでの研究からPCBsはほぼ10群と11群からしか検出されず、かつ10群からの摂取量が支配的であることが明らかになっていることを踏まえ、10群と11群のTD試料のみを分析した。

PCBs摂取量は $\text{ND}=0$ と $\text{ND}=\text{LOD}/2$ の2つの方式により推定した。2つの方式により推定された摂取量を比較すると、10群ではほぼ一致している。11群からの摂取量推定値は、推定方式を

$\text{ND}=\text{LOD}/2$ とした場合にやや高めとなっているが、大きく乖離してはいない。この結果は、十分に感度の高い分析法を採用することで、分析結果がNDとなる機会を極力減らし、LODをより低濃度に設定した効果といえる。ほぼ一致する推定値ではあるが、より安全側に立脚した推定に配慮し、2方式により摂取量を推定した場合には、 $2/\text{LOD}$ の値を以後の集計と考察に用いた。

全10地域を通じ、10群からの総PCBs摂取量は223 ~ 558  $\text{ng}/\text{man}/\text{day}$ の範囲、11群から総PCBs摂取量は13.3 ~ 88.1  $\text{ng}/\text{man}/\text{day}$ の範囲で推定された。

総PCBs摂取量に占める各同族体摂取量の割合を算出した結果、10群からの総PCBs摂取量は主に3 ~ 7塩素化同族体摂取量によって占められており、TD試料の調製地域に依存した変化はなかった。このことから、魚介類からの総PCBs摂取量は主に3 ~ 7塩素化同族体摂取量によって占められるのが一般的といえるかもしれない。一方の11群には、この特徴が認められず、総PCBs摂取量に各同族体摂取量が占める割合は地域(試料)ごとに大きく変わっている。11群に分類される畜肉等に含まれるPCBsは、魚介類が海洋環境に含まれるPCBsを食物連鎖も経て蓄積するのに対し、主に餌となる牧草等の摂取によって蓄積されたものと考えられる。PCBsを蓄積する経路の違いや、

生体内での代謝の異なりが、今回得られた同族体摂取量割合の違いの原因であり、10群と11群から摂取するPCBs同族体の特徴といえるのかもしれない。継続研究によって確認すべき課題である。

10群と11群試料の分析からそれぞれ推定したPCBs摂取量の和を求め、推定したPCBs総摂取量は10地域を通じて239～629 ng/man/dayの範囲にあり、全国平均は436 ng/man/dayとなった。

### 3. 有害元素及びPCBs摂取量の対TDI比と経年変化

今年度本研究で摂取量を推定した元素のうち、耐用摂取量(TDI)の設定されている有害元素(B、Al、Ni、Se、Cd、Sb、Ba、Pb、U)、メチル水銀、PCBs摂取量の対TDI比を求めた。ヒ素の有害性を疑う余地はないが、JECFAによって撤回されたのち、新たな耐用摂取量の設定はされていないため、対TDI比の算出は控えた。今回の推定結果に基づけば、Ni摂取量の対TDI比が78.4%と計算され最も高い。この値に準じてメチル水銀摂取量の対TDI比も50%を超えている。そのほか、B、Al、Se、Cd、Ba摂取量の対TDI比が30%を超えており、年次推移を監視すべきと考える。U摂取量とPb摂取量の対TDI比はそれぞれ約10%と6%であり、上記の有害元素に比べれば低値であるが、Uにつ

いては初めて摂取量を推定した有害元素であるため複数年にわたる監視が必要と考える。

これまで30年以上にわたり推定してきたPb、Cd、As、Hg、PCBsについて、今年度の結果も加えた摂取量推定値の経年変化を解析したところ、As、Hg、Cdの摂取量は30年間にわたりわずかに減少が認められるもののほぼ一定の値で推移していることが確認された。PbとPCBs摂取量は1990年代までに大きく減少して以降ほぼ下げ止まり、安定して推移していた。

対TDI比を指標としてPbとPCBsの摂取量を他の有害元素等の摂取量と比較すると、十分に低下しているとも評価できる。しかし、規制等の場面においてALARAの原則等の適用が図られることに鑑みると、少ないながらも摂取量が推定される間は、検出頻度を踏まえて分析するTD試料の群を限定することや、隔年で摂取量を推定するなどの効率化を図りつつ、継続して監視する必要があると考える。

昨年度までは、TD試料を調製する各協力機関でそれぞれ分析された結果に基づき摂取量を推定してきた。本年度からは、協力機関が調製したすべてのTD試料を国立医薬品食品衛生研究所に集め、同所一機関で分析することに大きく方向転換を図った。分析には、事前に性能評価した分析法を用いた



が、これは分析法の性能に関する客観的な証拠を準備し第三者に開示可能とすることで、摂取量推定値の信頼性を確保することが目的である。年次推移をみる限り、本年度推定された摂取量は、これまでに推定されてきた摂取量と矛盾なく一致している。この一致によって、昨年度までに推定されてきた摂取量の信頼性も、より増したと考える。

## E. 結論

本研究により、元素類の全国平均摂取量は B:1523.8  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Al:4687  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Ni:156.8  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Se:90.2  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Cd:17.6  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Sb: 2.2  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Ba:468.4  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Pb:10.4  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、U: 1.0  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、As:213.9  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Sn:228.9  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Cr:30.2  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Co:9.0  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Mo:225.3

$\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ と推定された。またメチル水銀とPCBsの全国平均摂取量は、それぞれ6.7 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、436 ng/man/dayと推定された。耐用摂取量(TDI)が設定されている有害物質については、推定された摂取量推定値が占める割合(対TDI比)を求めた。その結果、Niの78.4%を筆頭に、メチル水銀が50%以上、B、Al、Se、Cd、Baが30%以上、Uが10%以上となった。これら有害物質の摂取量推定は、積極的に継続して実施すべきと考える。またPbとPCBsの対TDI比はそれぞれ5.8%と0.2%であり、上記の有害物質の対TDI比に比べ小さな値ではあるが、規制等の場面においてALARAの原則等の適用が図られることに鑑みると、少ないながらも摂取量が推定される間は、推定方法の効率化を図りつつ、継続して監視する必要があると考える。

## 1-2. 塩素化ダイオキシン類のトータルダイエット調査

### A. 研究目的

TD 試料を用いたダイオキシン類の摂取量推定は、平成9年から厚生科学研究(現在は厚生労働科学研究)費補助金により、ごと年実施されており、国民のダイオキシン類暴露量

とその経年推移に関する知見が得られている。国民平均のダイオキシン類摂取量を推定するため、本年度は全国7地区8機関において日本人の平均的な食品摂取に従ったTD試料を調製し、試料中のダイオキシン類

を分析し、1日摂取量を推定した。また、今年度は新たにハイリスク集団と考えられる幼児におけるダイオキシン類摂取量を推定するため、幼児の食品摂取に従ったTD試料を作製し、試料中のダイオキシン類を分析し、1日摂取量を推定した。

## B. 研究方法

### 1. 試料

#### 1-1. 日本人の平均的なTD試料

国民平均のダイオキシン類摂取量を推定するためのTD試料は、全国7地区の8機関で調製した。厚生労働省が実施した平成20～22年度の国民健康・栄養調査の地域別食品摂取量(1歳以上)を項目ごとに平均し、各食品の地域別摂取量とした。TD試料は、有害物質の摂取量推定研究と同様、14群に分けて調製した。

1～9群、及び12～14群の試料は、各機関で1セット調製した。10及び11群はダイオキシン類の主要な摂取源であるため、8機関が各群3セットずつ調製した。これら3セットの試料は、魚種、産地、メーカー等が異なる食品を合一し調製した。昨年度までの研究では、12群についても各機関で3セットの試料調製を実施したが、12群のダイオキシン類摂取量に占める割合が低下しており、平成19年度以降の割合は2.1%以下であった。

そのため、12群からのダイオキシン類摂取量は全体に占める割合が高いとは言えないため、今年度より各機関で1セットの試料作製とした。

各機関で3セットずつ調製した10及び11群の試料はそれぞれの試料を分析に供した。一方、1～9群及び12～14群は、各機関の食品摂取量に応じた割合で混合した共通試料とし、分析に供した。

#### 1-2. 幼児のTD試料

国民健康栄養調査データ(平成20～22年度)を集計し、幼児(1-3歳)の食事摂取に従ったTD試料を作製した。なお、14群として分類される飲料水については、ダイオキシン類摂取量に対する寄与が極めて少ないことが現在までの研究により明らかとなっているため、分析対象より除いた。

### 2. 分析対象項目及び検出限界

分析対象項目は、WHOが毒性係数(TEF)を定めたPCDDs 7種、PCDFs 10種及びCo-PCBs 12種の計29種とした。

### 3. 分析方法

ダイオキシン類の分析法は、「食品中のダイオキシン類測定方法ガイドライン」(厚生労働省、平成20年2

月)に従った。

#### 4. 推定結果の表記

推定結果は、1日摂取量を体重あたりの毒性等量(pgTEQ/kg bw/day)で示した。TEQの算出には2005年に定められたTEFを使用し、分析値が検出限界値未満の異性体濃度をゼロとして計算した値(以下、ND=0と略す)と、個々の異性体の検出限界値濃度の1/2として計算した値(以下、ND=LOD/2と略す)を示した。

### C. 研究結果及び考察

#### 1. 国民平均のダイオキシン類摂取量推定

7地区の8機関において調製した平均的な食品摂取を模したTD試料を分析し、ダイオキシン類摂取量及び各群からの摂取割合を算出した。

##### 1-1. PCDD/PCDFs 摂取量

PCDD/PCDFsの1日摂取量は、ND=0として推定した場合、平均9.15(範囲:1.48~22.23)pgTEQ/dayであった。これを、日本人の平均体重を50kgとして、体重(kg)あたりの1日摂取量に換算すると、平均0.18(範囲:0.03~0.44)pgTEQ/kg bw/dayとなった。平成24年度は平均0.21(範囲:0.07~0.43)pgTEQ/kg bw/dayであり、今年度の平均値はほぼ同等で

あった。

ND=LOD/2として推定した場合のPCDD/PCDFsの1日摂取量は、平均48.11(範囲:41.38~59.72)pgTEQ/dayであり、体重あたり平均0.96(範囲:0.83~1.19)pgTEQ/kg bw/dayであった。

PCDD/PCDFs摂取量に対する寄与率が高い食品群は、ND=0の場合、10群(魚介類)80.1%、11群(肉・卵類)17.4%であり、これら2群で全体の97.6%を占めた。

ND=LOD/2の場合は、高い順に9群(酒類、嗜好飲料)22.8%、10群16.7%、1群(米、米加工品)15.8%であった。ND=0の場合には、9群及び1群の寄与はほとんどゼロであるが、これらの食品群は摂取量が多いため、全てのダイオキシン類分析値がNDであっても、それをLOD/2の濃度として計算に含め推定値を算出すると、その結果として摂取量が高く推定され、寄与率も高くなっている。

##### 1-2. Co-PCBs 摂取量

Co-PCBsの1日摂取量は、ND=0の場合、平均19.71(範囲:7.74~32.9)pgTEQ/dayであり、体重あたり平均0.39(範囲:0.15~0.66)pgTEQ/kg bw/dayであった。平成24年度は平均0.48(範囲:0.15~0.85)pgTEQ/kg bw/dayであり、今年度の平均値はや

や低い値であった。

ND=LOD/2 の場合の摂取量は、平均 32.69( 範囲 : 20.91 ~ 45.58)pgTEQ/day であり、体重あたりとすれば、平均 0.65(範囲 : 0.42 ~ 0.91)pgTEQ/kg bw/day であった。

Co-PCBs 摂取量に対する寄与率が高い食品群は、ND=0 の場合、10 群(魚介類)96.2%、11 群(肉・卵類)3.5%であり、これら 2 群で全体の 99.7%を占めた。

ND=LOD/2 の場合は、高い順に 10 群 58.0%、9 群 11.4%、1 群 7.9%であった。PCDD/PCDFs の場合と同様に、9 群及び 1 群からの寄与率が高くなった。

### 1-3 . ダイオキシン類摂取量

PCDD/PCDFs と Co-PCBs を合わせたダイオキシン類の 1 日摂取量は、ND=0 の場合、平均 28.86(範囲 : 9.22 ~ 48.37)pgTEQ/day であり、体重あたり摂取量は平均 0.58(範囲 : 0.18 ~ 0.97)pgTEQ/kg bw/day であった。日本における TDI(4 pgTEQ/kg bw/day) の 15%程度であり、最大値の 0.97 pgTEQ/kg bw/day も TDI の 25%程度であった。平成 24 年度は平均 0.69 (範囲 : 0.22 ~ 1.22)pgTEQ/kg bw/day であり、今年度の平均値はやや低い値であった。

ND=LOD/2 の場合の 1 日摂取量は、

平均 80.79( 範囲 : 62.29 ~ 98.96)pgTEQ/day であり、体重あたり摂取量は平均 1.62(範囲 : 1.25 ~ 1.98) pgTEQ /kg bw/day であった。

ダイオキシン類摂取量に対する寄与率が高い食品群は、ND=0 の場合、10 群(魚介類)91.1%、11 群(肉・卵類)7.9%であり、これら 2 群で全体の 99.0%を占めた。ND=LOD/2 の場合は、高い順に 10 群 33.4%、9 群(酒類、嗜好飲料)18.2%、1 群(米、米加工品)12.6%であり、PCDD/PCDFs 及び Co-PCBs の場合と同じく 1 群及び 9 群の寄与率が高かった。

ダイオキシン類摂取量に占める Co-PCBs の割合は、ND=0 の場合、68%であった。Co-PCBs からの摂取率は平成 23 ~ 24 年度が 70%であり、ほぼ 7 割を推移している。

本調査研究では、ダイオキシン類摂取への寄与が大きい 10 群、及び 12 群の試料を各機関で各 3 セット調製し、ダイオキシン類摂取量の最小値、中央値及び最大値を求めている。これまでの調査結果と同様に、同一機関であっても、推定されるダイオキシン類摂取量の最小値と最大値には 1.2 ~ 3.5 倍の開きがあった(平成 25 年度)。3 セットの試料は同一地域で市販食品を購入し調製されているが、各試料に合一した魚種、個体等の差が影響しているものと考えられる。

特に10群からの摂取量推定値の差は大きく、魚介類中のダイオキシン類濃度の分布が広いことが推察された。1セットのTD試料に合一することが可能な食品の数は限られているため、本研究のように10群として調製する試料数を多くして、全試料を通じて広範な魚介類が試料に含まれるようにすることが、国民平均のダイオキシン類摂取量の精密な推定に有用であると考えられる。

#### 1-4. ダイオキシン類摂取量の経年推移

平成10～18年度の推定値は、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総摂取量調査研究報告書」、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」、及び平成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、平成19～21年度の推定値は、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報告書」から、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、ダイオキシン類摂取量の経年推移を解析した(平成19～21年度の推定値は2005年のTEFを用いて再計算した)。

平成25年度のダイオキシン類摂取量(平均値)は0.58 pgTEQ/kg bw/dayであり、平成10年度以降の調査結果の中で最も低い値であった。また、調査研究が開始された平成10年度及び11年度のダイオキシン類摂取量は1.75及び1.92 pgTEQ/kg bw/dayであり、これらの値と比較すると、最近の摂取量は40%以下まで低下している。低下率は平成10年度から18年度までが大きく、18年度以降は小さくなっている。また、各年度で推定されたダイオキシン類摂取量の最大値として、平成11年の関西地区AにおいてTDIである4 pgTEQ/kg bw/dayを超えたことがあった。しかし、それ以降は最大値でTDIを超える摂取量は推定されておらず、平成20年度以降は継続して2 pgTEQ/kg bw/dayを下回っており、特に本年度の最大値は1 pgTEQ/kg bw/day以下となった。

ダイオキシン類摂取量が減少している要因の一つとして、平成11年7月に成立、平成12年1月に施行されたDXNs対策特別措置法が考えられ

る。これに基づき環境基準が設定されたことにより、焼却施設等からのダイオキシン類の排出が大幅に抑制されたことが、摂取量の低下に大きく寄与していると考えられる。また、その他の要因としては、魚介類の摂取量が過去に比べ減少していることが挙げられる。平成 10 年度のダイオキシン類摂取量の推定に用いた魚介類の 1 日摂取量は 97.0 g/day であったが、平成 25 年度の調査では 70.7 g/day であり、27%程度減少している。

## 2. 幼児のダイオキシン類摂取量推定

幼児用の TD 試料の分析結果に基づき推定されたダイオキシン類 1 日摂取量は、ND=0 の場合は PCDD/PCDFs が 2.08 pgTEQ/day、Co-PCBs が 3.66 pgTEQ/day、及びその和であるダイオキシン類が 5.74 pgTEQ/day であった。幼児の平均体重を 12.6 kg と仮定した場合、体重(kg)あたりの 1 日摂取量に換算すると、PCDD/PCDFs が 0.17 pgTEQ /kg bw/day、Co-PCBs が 0.29 pgTEQ /kg bw/day、及びダイオキシン類が 0.46 pgTEQ /kg bw/day であった。ダイオキシン類摂取量推定値の対 TDI 比は、約 12%であった。また、幼児によるダイオキシン類の摂取量推定値は本年度の国民平均の摂取量推定値(0.58 pg TEQ/kg be/day)と大差はなかった。

幼児の体重は、当然のことながら国民平均と比較して小さいが、ダイオキシン類の主要な暴露経路である魚介類の摂取量もまた国民平均と比較して少ないため、両者のダイオキシン類摂取量に顕著な差が生じなかったと考えられる。

また、ND=LOD/2 の場合の 1 日摂取量は PCDD/PCDFs が 16.78 pgTEQ/day、Co-PCBs が 8.67 pgTEQ/day、及びその和であるダイオキシン類が 25.45 pgTEQ/day であり、体重あたりの摂取量はそれぞれ、1.33、0.69、2.02 pgTEQ /kg bw/day と推定された。

ダイオキシン類摂取量に対する寄与率が高い食品群は、ND=0 の場合、10 群(魚介類)91.0%、次いで 7 群(緑黄色野菜)6.6%であり、これら 2 つの群で全体の 97.5%を占めた。通常は 7 群からの総ダイオキシン類摂取量への寄与は小さいが、今回調製した 7 群試料からは、TEF が大きい 1,2,3,7,8-PeCDD が検出下限値近い低濃度ではあるが検出されたため、摂取量推定値が大きくなった。

ND=LOD/2 の場合は、寄与率が高い順に 10 群 21.4%、9 群(酒類、嗜好飲料)13.5%、12 群(乳・乳製品)13.0%、1 群(米、米加工品)11.5%であり、ND=0 の場合と比較すると、1 群、9 群、及び 12 群の寄与率が高かった。

これらの食品群についてはダイオキシン類がほとんど検出されていないが、摂取量が多いため  $ND=LOD/2$  で計算した場合の摂取量推定値が高くなった。

日本において幼児のダイオキシン類の摂取量を推定した事例としては、2002年に東京都が実施した調査がある。この調査では、国民健康・栄養調査の2歳～6歳の食品摂取量に基づき調製したTD試料を分析している。得られた分析結果に基づき、ダイオキシン類摂取量は  $30.4 \text{ pg TEQ/日}$  ( $2.03 \text{ pg TEQ/kg/day}$ )と推定されている。本研究が対象とした年齢層や、推定の実施時期(試料の調製時期)等が異なるため、推定された摂取量を直接比較することは困難であるが、二つの摂取量推定値には約4倍の違

いがある。

#### D. 結論

1. 全国7地区8機関で調製したTD試料の分析を通じ、ダイオキシン類の摂取量を推定した結果、平均1日摂取量は  $0.69 \text{ pgTEQ/kg bw/day}$  であり、日本におけるTDIの約17%であった。ダイオキシン摂取量は経年的に減少傾向にあるが、食品の安全を確保するため、今後もダイオキシン類摂取に対する寄与が大きい魚介類に重点を置いた調査を継続し、動向を見守る必要がある。

2. 幼児(1歳～3歳)を対象にしたTD試料を用いてダイオキシン類の摂取量調査を実施した結果、1日摂取量は  $0.46 \text{ pg TEQ/kg w/day}$  と推定された。

### 1-3. ハロゲン化難燃剤の実態調査

#### A. 研究目的

難燃剤には、ハロゲン系やリン系などの有機系難燃剤及び金属酸化物やアンチモン系などの無機系難燃剤があり、このうちハロゲン系難燃剤はその効率の良さからプラスチック製品の難燃剤として幅広く使用されている。

ハロゲン系難燃剤のうち、臭素系

難燃剤は、人体への影響や、より毒性が高い臭素系ダイオキシン類の発生等への懸念がある。高臭素化難燃剤であるヘキサブプロモシクロドデカン(HBCD)は、分子量641.7の臭素系化合物で、16の立体異性体があり、主な異性体は 体、 体及び 体である。HBCDは難燃剤として優れた性質を持つ一方、環境中での残留性

や生物蓄積性を有することから、平成 25 年にストックホルム条約(POPs 条約)の締結国会議において同条約付属書 A(廃絶)に追加されることが決定され、日本においても化学物質審査規制法の第一種特定化学物質への指定が決定した。しかし、HBCD を使用した製品の廃棄が今後増加していくことから、環境や食品における汚染実態調査を継続的に行っていく必要がある。HBCD についてはこれまでの研究において、マーケットバスケット方式により調製された 10 群(魚介類)試料からのみから検出されている。そのため、魚介類の個別試料を分析することで、食品汚染の実態を把握することができると考えられる。

一方、デクロランプラス(Dechlorane Plus、以下 DP)は、分子量 653.7 の塩素系化合物である。化学名(IUPAC 名)は 1, 2, 3, 4, 7, 8, 9, 10, 13, 13, 14, 14-dodecachloro-, 4, 4a, 5, 6, 6a, 7, 10, 10a, 11, 12, 12a-dodecahydro-1,4:7,10-dimethanodibenzo [a, e] cyclooctene であり、*syn* 体と *anti* 体の二つの異性体が存在する。DP は POPs 条約で指定された塩素系難燃剤・マイレックス(Mirex)の代替製品として需要が増大傾向にあり、近年環境汚染物質として注目されている物質である。食品中の DP

については、国内で魚介類から検出した事例が報告されているが、食品汚染実態に関する十分なデータが得られていないのが現状である。

上記の現状に鑑み、本研究では臭素系難燃剤である HBCD 及び塩素系難燃剤である DP について、魚介類試料中の汚染実態調査を行った。

## B. 研究方法

### 1 試料・試薬等

#### 1.1 試料

平成 25 年度に福岡県内の食料品店で購入した生鮮魚介類 20 試料(主に九州地区を産地とする)を調査対象とした。各々の可食部を採取し、細切・均一化したものを分析に用いた。

#### 1.2 標準物質

-、 -、 -HBCD 標準品、及び -、 -、  $^{13}\text{C}_{12}$  ラベル化 HBCD は Cambridge Isotope Laboratories 社製を用いた。各異性体をメタノールで適宜希釈・混合して分析に用いた。

DP の標準溶液は、Wellington Laboratories 社製を使用した。DP の *syn* 体と *anti* 体の各々についてネイティブ体標準液と  $^{13}\text{C}$ -ラベル体標準液を購入し、これらをノナンで適宜希釈・混合して分析に用いた。シリジスパイクには、 $^{13}\text{C}$ -2,3,3',55'-pentaCB( $^{13}\text{C}$ -PCB111)を使用した。



### 1.3 試薬及び器材

アセトン、ヘキサン、ジクロロメタン、ノナン、メタノール、蒸留水(ヘキサン洗浄品)、無水硫酸ナトリウム及び塩化ナトリウムは関東化学社製のダイオキシン類分析用又は残留農薬・PCB 試験用を用いた。硫酸は和光純薬工業社製の有害金属測定用を使用した。44%硫酸シリカゲルは和光純薬工業社製ダイオキシン類分析用を用いた。珪藻土は International Sorbent Technology 社製の BULK ISOLUTE SORBENT HM-Nを用いた。フロリジルカートリッジカラムは Waters 社製の Sep-pak Vac RC (500 mg)を使用した。スルホキシドカラムは Supelco 社製の Supelclean Sulfoxide(3 g)を用いた。

## 2 機器及び使用条件

### 2.1 液体クロマトグラフ・タンデム型質量分析計(LC-MS/MS)

HBCD 分析には LC-MS/MS(Waters 社製 2695 / Quattro Ultima Pt)を用いた。

### 2.2 高分解能ガスクロマトグラフ・質量分析計(HRGC-HRMS)

HRGC-HRMS は下記の 2 つのシステムを使用した。

システム 1 :

HRGC : Agilent 6890N(スプリット

レス注入)-HRMS : Micromass AutoSpec Premier

システム 2 :

HRGC : Agilent 7890N(大量注入装置アイスティサイエンス社製 LVI-S200 付き)-HRMS : Micromass AutoSpec Premier

### 2.3 GPC 装置

GPC として、ポンプはジーエルサイエンス社製の PU 714、カラムオーブンはジーエルサイエンス社製の CO 705、検出器はジーエルサイエンス社製の GL-7452、分画装置は東京理化学器械社製の DC-1500 を使用した。プレカラム及び分離カラムは昭和電工社製 Shodex CLNpak EV-G AC 及び EV-2000 AC を用い、移動相はアセトン/シクロヘキサン(3:7, v/v)、流速 5 mL/min とした。

### 2.4 高速溶媒抽出装置

高速溶媒抽出(ASE)には DIONEX 社製の大容量型装置 ASE-350 を使用した。抽出条件は下記の通りであった。

セル温度:100、セル圧力:1500psi、加熱時間:5分、静置時間:10分、抽出サイクル数:2、抽出溶媒:ヘキサン

## 3 実験操作

### 3.1 HBCD の分析操作

試料約 5 g を秤取して精製水 5 mL を加え、 $^{13}\text{C}_{12}$ -、 $^{13}\text{C}_{12}$ -及び  $^{13}\text{C}_{12}$ -HBCD 各 1 ng を内部標準として添加した。これに抽出溶媒としてメタノール 20 mL を加え 2 分間高速ホモジナイザーにより攪拌抽出した。これをろ過し、ろ液は 300 mL 分液ポートに移した。残渣は、メタノール 10 mL と 10%ジクロロロメタン/ヘキサンの混液(以下 DCM/Hex)10 mL で再度ホモジナイズ抽出を行い、さらに 10% DCM/Hex 20mL で抽出を行った。ろ紙をメタノール及び 10% DCM/Hex 各 10 mL で洗い、ろ液及び洗液を 300 mL 分液ポートに合わせ、あらかじめジクロロメタンで洗浄した 5% NaCl 水溶液 120 mL を加えて 5 分間振とうした後、静置した。分離した有機層は綿栓した三角ポート上の無水硫酸ナトリウムを通過させ、ナス型フラスコに採った。その後、10% DCM/Hex 40 mL で同様の液-液抽出及び脱水を 2 回行った。得られた有機層はエバポレーターで減圧濃縮し、アセトン/シクロヘキサン (3 : 7)に置換し 10 mL に定容した。そのうちの 2 mL を GPC 装置に注入し、粗脂肪溶出直後の HBCD 溶出画分(溶出時間 12.5 分~18.5 分)を採取して濃縮乾固した。残渣を少量のヘキサンに溶解し、パスツールピペッ

トに 44%硫酸シリカゲルを 1 g 充填したミニカラムに負荷した。20% DCM/Hex 8mL で溶出し、窒素ガス吹付け乾燥した。少量のジクロロメタンに溶解させインサートバイアルに移し、自然乾燥後にメタノール 50  $\mu$  L を加えて溶解させ、LC-MS/MS で測定した。

### 3.2 DP 分析の分析操作

均一化した魚介類試料の約 10 g を 250 mL 容テフロン製遠沈管に秤量し、珪藻土約 20g を加えて混合した。混合物を ASE-350 用のステンレス製抽出セル(99mL 容)に充填し、クリーンアップスパイク ( $^{13}\text{C}$ -syn-DP 及び  $^{13}\text{C}$ -anti-DP の 2 成分を各 250 pg 相当) を添加し、2.3 項に示した条件で抽出を行った。抽出液は 250 mL 容の捕集ボトルに回収し、2%塩化ナトリウム水溶液 50 mL を加えて緩やかに振り混ぜて抽出液を洗浄した。抽出液を 300 mL 容ナス型フラスコに移し、ロータリーエバポレーターで約 10 mL になるまで濃縮した。

この濃縮液を、風袋を量った 100 mL 容ビーカーに移し、室温下で一夜静置して大部分の有機溶媒を揮散させた。その後、105 に設定したアルミブロック上で 3 時間加熱し乾燥させた。放冷後重量を測定し、得られた抽出物(脂肪成分)の重量を求めた。

抽出物を少量のヘキサンで再溶解し、試験管内で硫酸と反応させ、脂肪成分や色素等の有機物を除去した(硫酸処理)。脂肪含量が10%以上の試料では、50 mL 容共栓遠沈管を用いて抽出液約30 mL に対して硫酸10 mL を添加し、一夜静置した。脂肪含量が10%に満たない試料においては、10 mL 容共栓スピッツ管を用い、抽出液約6 mL に対して硫酸2 mL で処理を行った。硫酸処理は有機層の着色が無くなるまで繰り返して行った。

硫酸処理後のヘキサン層に対して減圧濃縮や窒素ガス気流による濃縮を行い、最終的に10 mL 容先細型スピッツ管内で全量約1 mL に調製した。ここに蒸留水(ヘキサン洗浄品)をパスツールピペットで数滴加え、試験管ミキサーで緩やかに混和してヘキサン層を洗浄した。次に2,500 rpm で10分間遠心分離を行い、得られた上清(ヘキサン層)をフロリジルカラムによる精製操作に供した。

フロリジル精製は先山らの方法<sup>8)</sup>を参考に行った。あらかじめヘキサン10 mL でコンディショニングしたカラムに上記のヘキサン層を負荷し、5%ジクロロメタン/ヘキサン7 mL で溶出した。得られた溶出液を窒素ガス気流で穏やかに濃縮し、濃縮液を測定バイアルに移し、シリンジスパイク(<sup>13</sup>C-PCB111を125 pg相当)を

添加した。ノナンで全量を約50 µLとしたものを最終検液とし、このうち2 µL をHRGC-HRMS(2.2項に記載したシステム1)に注入して測定した。定量下限値は、*syn* 体及び *anti* 体ともに湿重量あたり1 pg/gであった。

## C. 研究結果及び考察

### 1 市販魚介類試料中の HBCD 濃度

HBCD は20試料すべてから検出され、その湿重量当たりの濃度範囲は0.12 ng/g ~ 22 ng/g(平均3.1 ng/g)であった。異性体別では、*syn* 体は20試料全てから検出されたが、*anti* 体は20試料中6試料、*syn* 体は20試料中11試料から検出され、濃度範囲は *syn* 体が0.12 ~ 16 ng/g(平均2.4 ng/g)、*anti* 体がND ~ 0.11 ng/g(ND=0としたときの平均0.01 ng/g)、*syn* 体が0.02 ~ 6.2 ng/g(ND=0としたときの平均0.65 ng/g)であった。魚介中のHBCD異性体の濃度割合は、*syn* 体 > *anti* 体 > *syn* 体であった。

魚種別に見ると、HBCD濃度はマグロ及びブリで高い傾向が見られ、サバは2検体中1検体が高い濃度であった。また、異性体については、マグロの *syn* 体の割合が他の魚種に比べて高い傾向を示していた。今回の分析では魚種あたりの検体数が1~4検体と少ないため、魚種ごとの異性体別濃度の傾向を詳細に把握するた

めにはさらに検体数を増やして分析する必要がある。

全 20 試料の湿重量あたりの Total HBCD 濃度に対する各試料の脂肪含量 (%) との間には相関が見られた ( $r^2=0.529$ )。

## 2 市販魚介類試料中の DP 濃度

DP は 20 試料中 17 試料から検出され、これら 17 試料のうち 2 試料では *syn* 体は定量限界値未満(ND)であり、*anti* 体のみが定量下限値(1.0 pg/g)以上の濃度で検出された。

全 20 試料の検出濃度範囲は *syn* 体が ND ~ 7.0 pg/g(平均 2.2 pg/g)、*anti* 体は ND ~ 13 pg/g(平均 3.7 pg/g)であった。DP の *syn* 体と *anti* 体の濃度合計値 (Total DP) の範囲は ND ~ 20 pg/g(平均 5.9 pg/g)であった。

我が国における DP 濃度の過去の実態調査事例としては、食用魚介類 20 種類の分析を行い、ND(< 0.2 pg/g) ~ 14.2 pg/g の結果が得られている。魚種や試料採取地が異なるが、本研究で得られた結果はこの過去の実態調査事例で報告された結果と近似した値であった。

全 20 試料の湿重量あたりの Total DP 濃度に対する各試料の脂肪含量 (%) との間には、弱い相関が認められた ( $r^2=0.212$ )。

水質や土壌等の環境媒体から DP

を検出したこれまでの報告では、環境動態の観点から、異性体の *syn* 体と *anti* 体の濃度比を求め、両者の残留傾向が比較されている。今回分析を行った魚介類 20 試料のうち、*syn* 体と *anti* 体の双方が検出された 15 試料について Total DP 濃度に対する *anti* 体濃度の比率( $f_{anti}$ )を算出したところ、 $f_{anti}$  値の範囲は 0.58 ~ 0.65(平均 : 0.62)であった。米国で工業生産されている DP 製品の  $f_{anti}$  値は 0.64 ~ 0.85、中国で生産される製品の分析事例では 0.59 ~ 0.60 と報告されている。本研究の魚介類 15 試料の  $f_{anti}$  値は、中国製品に近い値を示し、柿本らによる魚介類 12 試料における報告(範囲 : 0.56 ~ 0.72、平均 : 0.62)と近い値であった。一方、国内における屋外沈着物(0.81 ~ 0.85)、土壌(0.81)、底質(0.77 ~ 0.84)等)と比較して低い傾向が認められた。

## D. 結論

魚介類中の HBCD 濃度の実態調査では、測定した 20 試料すべてから HBCD が検出された。その湿重量当たりの濃度範囲は 0.12 ng/g ~ 22 ng/g(平均 3.1 ng/g)であった。魚種別ではマグロやブリで濃度が高い傾向があり、脂肪含量との相関が見られた。HBCD の生産量は今後減少すると考えられるが、環境への放出は長

期間続くと予想される。本研究で得られた実態調査結果からは、現時点でも魚介類の汚染頻度が高いことが示唆されており、従って、今後も魚介類を中心とした調査を継続して行う必要がある。

魚介類 20 試料のうち 17 試料から DP が検出され、Total DP の濃度範囲

は ND ~ 20 pg/g(平均：5.9 pg/g)であった。今後も、魚介類を中心に調査データの蓄積・拡充を図り、汚染実態を把握するとともに、トータルダイエツト試料等の分析等を通じ、喫食に由来する摂取量の把握が必要と考えられる。

#### 1-4. 多環芳香族炭化水素類の実態調査

##### A. 研究目的

多環芳香族炭化水素類(PAHs)は芳香環を二つ以上持つ炭化水素化合物の総称であり、Benzo[a]pyrene(BAP)をはじめ、発ガン性の疑いがある物質が多く含まれている。PAHs は、食品の燻製や乾燥、加熱(直火調理)などの製造過程で生成されることが知られており、これらの加工処理をした食品からの PAHs 摂取が懸念されている。食品中には種々の PAHs が存在するが、欧州食品科学委員会(SCF)や食品添加物専門家会議(JECFA)を中心に PAHs のリスク評価が行われ、モニタリングすべき 16 種の PAHs(以下、PAHs16 種と表記)が提案されている。また、日本では食品衛生法に基づく PAHs の基準値は設定されていないが、現在、EU、カナダ、中国及び韓国等で食品中の BAP に基準値

が設定されている。さらに、EU では BAP と共に、Benzo[a]anthracene(BAA)、Chrysene(CHR)、Benzo[b]fluoranthene(BBF)を含めた PAHs4 種の合計値について 2012 年 9 月より基準値が施行されている。

日本国内において食品に含まれる PAHs に対して、何らかの行政施策を講じる必要があるか判断するため、PAHs 汚染が懸念される食品の含有実態調査が望まれるが、報告は少ない。そのため、昨年度の厚生労働科学研究費では、PAHs 含有実態調査への利用を目的として、PAHs16 種を対象とする GC-MS/MS 法を検討した。本法の性能評価を燻製食品について実施した結果、発ガン性が最も強い BAP を含む殆どの PAHs16 種を良好に測定することが可能であった。

本年度は、昨年度に検討した分析法を用いて、燻製食品や加熱調理食品を対象に PAHs 含有実態調査を実施した。さらに、鰹削り節や鰹節等を使用したダシパックについては、ダシ(うま味を抽出した液体)を作製するために使用されることが多いことから、これらの食品からダシへの PAHs の移行率についてもあわせて検討した。

## B. 研究方法

### 1. 試薬

PAHs として、Benzo[c]fluorine (BCL)、BAA、Cyclopenta[c,d]pyrene (CPP)、CHR、5-methylchrysene (5MC)、BBF、Benzo[k]fluorathene (BKF)、Benzo[j]fluoranthene (BJF)、BAP、Indeno[1,2,3-c,d]pyrene (ICP)、Dibenzo[a,h]anthracene (DHA)、Benzo[g,h,i]perylene (BGP)、Dibenzo[a,l]pyrene (DLP)、Dibenzo[a,e]pyrene (DEP)、Dibenzo[a,i]pyrene (DIP)、Dibenzo[a,h]pyrene (DHP)を、PAHs の安定同位体として重水素(D)標識した D<sub>12</sub>-BAA、D<sub>12</sub>-CHR、D<sub>12</sub>-BBF、D<sub>12</sub>-BKF、D<sub>12</sub>-BAP、D<sub>12</sub>-ICP、D<sub>14</sub>-DHA、D<sub>12</sub>-BGP、D<sub>14</sub>-DIP、D<sub>12</sub>-Perylene(PYL)を AccuStandard 社、Cambridge Isotope Laboratories 社及び Chiron 社より購入した。

シリカゲルミニカラムは、GL Sciences 社製の InertSep SI FF(担体量 1 g)を使用した。PSA ミニカラムは、GL Sciences 社製の InertSep PSA(担体量 1 g)を使用した。

ゲル浸透クロマトグラフィー(GPC)カラムは、昭和電工社製の Shodex CLNpak EV-2000 AC(300×20 mm i.d.)、またプレカラムとして Shodex CLNpak EV-G AC(100×20 mm i.d.)を使用した。

GC キャピラリーカラムは、Varian 社製の VF-17ms を使用した。

アセトニトリル 5000(PCB 試験用)、アセトン 5000(PCB 試験用及び高速液体クロマトグラフィー用)、エタノール 5000(PCB 試験用)、水酸化カリウム(特級)、シクロヘキサン(高速液体クロマトグラフィー用)、トルエン 5000(PCB 試験用)、ヘキサン 5000(PCB 試験用)、ポリエチレングリコール(PEG)300、無水硫酸ナトリウム(PCB 試験用)は関東化学(株)より購入した。

### 2. 試料

食品試料は東京都内の小売店及びインターネットを介して購入した。購入した食品は、ホモジナイザーで均一化し分析に供した。

### 3. 装置

ホモジナイザー：レッチェ社製  
GM200

ポリトロン：Kinematica社製 Polytron  
PT 10-35 GT

GPC：GL Sciencences社製 G-Prep  
GPC8100 plus

GC-MS/MS：Agilent(Hewlett-Packard)  
社製 7890A/7000B

## 4. PAHs 分析

### 4-1. 抽出

均一化した試料 20.0 g(鰹削り節及びダシパックについては 2.0 g)を量りとった。これにサロゲート溶液(D 標識 PAHs9 種)を加え、室温で 30 分放置した。その後、鰹削り節及びダシパックについては、水 8 mL を加えて 1 時間膨潤させた。水 20 mL とアセトン-ヘキサン(1:2)100 mL を加えてポリトロンによりホモジナイズ(15,000 rpm、約 90s)した後、1,000 rpm で 3 分間遠心分離し、有機層を分取した。残渣を含む水層にヘキサン 50 mL を加えて同様にホモジナイズした後、遠心分離し、有機層を合わせた。さらに、つゆについては、残った水層にヘキサン 100 mL を加え、振とう抽出を 2 回行い得られた有機層を合わせた。有機層に適量の無水硫酸ナトリウムを加えて 15 分放置後、無水硫酸ナトリウムをろ別した。予め重量を測定しておいたナスフラス

コにろ液を受け、40 以下で溶媒を留去した後、残留物の重量を測定し、これを粗脂肪重量とした

### 4-2. 精製

抽出操作により得られた粗脂肪をヘキサン 30 mL に溶解し、ヘキサン飽和アセトニトリル 30 mL で 3 回振とう抽出した。アセトニトリル層を合わせ、40 以下で溶媒を留去した後、残留物をアセトン-シクロヘキサン(4:6)6 mL に溶解した。この溶液を、2,500 rpm で 5 分間遠心分離し、上澄み液 5 mL を GPC に導入した。GPC 精製条件を下記に示した。

#### 【GPC 精製条件】

GPC 精製装置：G-Prep GPC8100 plus  
カラム：CLNpak EV-2000 AC(300 × 20 mm I.D.)

ガードカラム：CLNpak EV-G AC(100 × 20 mm I.D.)

カラムオープン：40

溶離液：アセトン-シクロヘキサン  
(4:6)

流速：5 mL/min

検出器：UV 254 nm

アセトン-シクロヘキサン(4:6)を移動相として用い、トリシクラゾールの溶出終了から 25 分間の画分を分取し、40 以下で溶媒を留去した。残留物をアセトン-ヘキサン(1:1)3 mL に溶解し、この溶液を、予めアセ

トン-ヘキサン(1:1)15 mL で洗浄した PSA ミニカラムに負荷し、さらにアセトン-ヘキサン(1:1)7 mL を注入した。負荷液を含む全溶出液の溶媒を 40 以下で留去し、残留物に D<sub>12</sub>-PYL(0.5 µg/mL トルエン溶液)200 µL を添加し試験溶液とした。

鰹削り節及びダシパックについては PSA ミニカラム後にシリカゲルミニカラムによる追加精製を行った。PSA ミニカラムからの溶出液の溶媒を留去後、アセトン - ヘキサン(1:99)3 mL に溶解した。この溶液を、予めアセトン-ヘキサン(1:99)15 mL で洗浄したシリカゲルミニカラムに負荷し、さらにアセトン-ヘキサン(1:99)9 mL を注入した。負荷液を含む全溶出液の溶媒を 40 以下で留去し、残留物に D<sub>12</sub>-PYL(0.5 µg/mL トルエン溶液)200 µL を添加し試験溶液とした。

#### 4-3. GC-MS/MS 測定

下記に最終的に選択した GC-MS/MS 条件を示す。

##### 【GC 条件】

カラム:VF-17ms(長さ 30 m×内径 0.25 µm、膜厚 0.15 µm)

昇温条件 : 140 (1 min)→30 /min→210 →2.5 /min→245 →2 /min→260 (3 min)→8 /min→350 (1.5 min),

total=40.5 min

流速 : 1.1 mL/min(ヘリウム)

インサート : シングルテーパライナー

注入量 : 2.5 µL(スプリットレス注入、PEG300 共注入(500 ng/injection))

注入口温度 : 350

##### 【MS/MS 条件】

イオン化法 : EI ; イオン化電圧 : 70 eV ; トランスファーライン温度 : 350 ; イオン源温度 : 320 ; 四重極温度 : 150 ; 測定モード : MRM

内部標準法により PAHs16 種を定量した。サロゲートには D 標識した PAHs を使用した。PAHs16 種全ての D 標識体を手に入れることは不可能であったため、測定対象物の化学構造が直接対応する D 標識体がない場合は、リテンションタイムが近い D 標識体をサロゲートとして使用した。シリンジスパイクには D 標識したペリレンを使用した。

#### 5. 鰹削り節及びダシパックからのダシの調製

ダシへの PAHs の移行率を検討するため、鰹削り節 2 種(薄削り、厚削り)とダシパック 1 種からダシを調製した。鰹削り節については一般的な方法、ダシパックについては該当製品に記載の方法によりダシを調製し



た(各3試行)。

薄削りの鰹削り節については、水 500 mL をビーカーで沸騰させた後、20.0 g の鰹削り節を加え、弱火で 1 分間煮出した。篩(目開き 500  $\mu$ m)で濾してダシ殻を除いた液体をダシとした。

厚削りの鰹削り節については、水 500 mL をビーカーで沸騰させた後、15.0 g の鰹削り節を加え、弱火で 20 分間煮出した。篩(目開き 500  $\mu$ m)で濾してダシ殻を除いた液体をダシとした。

ダシパックについては、水 400 mL をビーカーで沸騰させた後、1 袋(内容量 8 g 程度)を入れ中火で 5 分間煮出した。その後、出し殻となるダシパックを取り除いた液体をダシとした。

ダシは全量を使用して、前述したつゆの分析方法に従い PAHs 分析を行った。また、浸出前の鰹削り節、ダシパック、及びそれらの出し殻についても、前述した鰹削り節及びダシパックの分析方法に従い PAHs 分析を行った。

## C. 研究結果及び考察

### 1. PAHs 分析法の性能評価

実態調査の主な対象とした食品について、本法の真度及び併行精度を評価した。各試料の PAHs の添加濃

度は、ブランク試料に含まれる PAHs に影響されず定量可能と考えられる最も低い濃度を選択した。燻製サケ及び燻製ソーセージでは 0.5  $\mu$ g/kg、燻製卵及びつゆでは 1.0  $\mu$ g/kg、鰹削り節では 10  $\mu$ g/kg の濃度となる様に各 PAHs を添加した。これらの添加試料について 1 日 5 併行で分析し、得られた分析値より真度及び併行精度を推定した。実態調査を実施するにあたり、真度は 80~120%、併行精度は 10%以内を目標値として本法の適用性を評価した。その結果、燻製サケ、燻製ソーセージ及びつゆでは、全ての PAHs について真度は 92~113%、97~120%、及び 82~115%、併行精度は 0.3~3.2%、0.3~4.6%、及び 0.2~5.6%と推定され、真度と併行精度は目標値の範囲内であった。燻製卵では、DHP の真度が 80%を僅かに下回り目標値を外れたが、それ以外の PAHs については真度が 91~109%、併行精度は 0.3~5.5%と目標値の範囲内であった。また、鰹削り節については、DLP、DEP 及び DHP の真度が 20%以上乖離し目標値を外れたが、それらを除いた PAHs の真度は 102~119%、併行精度は 0.2%~3.1%と目標値の範囲内であった。燻製サケ、燻製ソーセージ、燻製卵、及び鰹削り節で推定された真度及び併行精度は、昨年度の報告とほぼ同

様の結果であった。

なお、本法の BCL 及び CHR に対する選択性については、PAHs 類縁化合物(分析対象以外の PAHs など)が共存する場合は、これら化合物と分離が不十分となる可能性を昨年度に報告している。実態調査で対象となる食品試料の中には、物理化学的な性質が PAHs16 種と類似する PAHs 類縁化合物が含まれることが考えられるため、これら化合物の影響についても十分に注意を払う必要がある。鰹削り節、ダシパック以外の食品では、BCL、CHR、及び DHP の分析値の信頼性は十分でないと判断し参考値とした。鰹削り節及びマトリックスが類似すると考えられるダシパックについては、それらに加え、DLP 及び DEP の分析値についても参考値とした。DHP については、複数の食品種で真度が 80%を下回るか、それに近い値が得られたため、現段階では対象とする全ての食品について参考値とした。また、定量下限値については、性能評価時の PAHs 添加濃度とした。

## 2. 食品中の PAHs 含有実態調査

燻製又は焼く等の加工がされている可能性のある食品、及び鰹節等の燻製食品を風味原料に使用しているダシパック及びつゆを対象に、PAHs

の含有実態を調査した。調査した試料の詳細は、燻製サバ 1 試料、サバのなまり節 5 試料、カツオのなまり節 6 試料、焼サケ 4 試料、焼サバ 4 試料、燻製鶏 3 試料、燻製鴨 3 試料、燻製卵 5 試料、鰹削り節 2 試料、鰹節等を風味原料に含むダシパック 5 試料とつゆ 5 試料の計 43 試料である。鰹削り節とダシパックでは多くの PAHs が定量下限値以上となり、その割合は低分子量の PAHs(BAA 及び CPP、並びに参考値ではあるが BCL 及び CHR)で 100%に近かった。燻製魚及びなまり節でも定量下限値以上となった PAHs は比較的多く、最高で 80%程度であった。燻製肉では定量下限値以上となった PAHs は最高で 30%程度であった。一方、焼き魚と燻製卵、及びつゆでは定量下限値以上となった PAHs はゼロに近かった。

燻製魚、なまり節、燻製肉、鰹削り節、ダシパックについては、複数の試料で定量下限値以上であった PAHs が認められたため、それらの PAHs 濃度を比較した。鰹削り節やダシパックの PAHs 濃度は高く、特に低分子量の PAHs の濃度は 100 µg/kg を超える場合も多かった。鰹削り節等が高い濃度の PAHs を含有することは、農林水産省の有害化学物質含有実態調査でも明らかにされている。

また、燻製魚、なまり節、燻製肉について、EU で設定されている BAP の基準値(5  $\mu\text{g}/\text{kg}$ )を適用すると、これを超過した試料は 47 試料中 5 試料であった。また、鰹削り節については 10 試料中 9 試料で 12-39  $\mu\text{g}/\text{kg}$  の BAP が、ダシパックについては 10 試料中 8 試料で 20-52  $\mu\text{g}/\text{kg}$  の BAP が検出された。しかし、これらの食品は加工により水分含量が大幅に低下しているため、EU の基準値を適用する際は加工係数等を考慮する必要があると考えられる。さらに、ダシパックについては、直接消費するよりは、その浸出液をダシとして利用することが殆どと考えられるため、ダシへの PAHs 移行率についての情報が重要と考えられる。

次に PAHs 含有濃度が高かった燻製魚、なまり節や鰹削り節からの BAP 摂取量の試算しリスク評価を試みた。これらの食品の個々の詳細な食品摂取量は入手できなかったが、平成 24 年国民健康・栄養調査結果を集計した結果、これらの食品が含まれる魚介(塩蔵、生干し、乾物)の摂取量の国民平均は 14.5 g となった。そこで、調査した燻製食品、なまり節、及び鰹削り節において BAP の最高濃度であった 39  $\mu\text{g}/\text{kg}$  を用いて BAP 摂取量を推定した。その結果、BAP の 1 日摂取量は 566 ng と推定され、体

重を 50 kg と仮定すると、11.3 ng/kg 体重/日であった。JECFA より提案されている BAP のベンチマーク用信頼下限値(BMDL)である 100,000 ng/kg 体重/日を用いて、暴露マージンである MOE(BMDL/BAP 摂取量)を算出すると、約 8,800 であった。EFSA では MOE が 10,000 以上であれば、‘国民の健康への懸念が低くリスク管理の優先度が低い’としている。今回の BAP 摂取量の試算においては、BAP 濃度として鰹削り節の最大値を使用しており、また食品摂取量についても魚の干物等も含んでいることから、BAP 摂取量は過大に見積もられている可能性が高い。このような試算方法でも、10,000 に近い MOE が得られたことから、今回の調査結果からは燻製魚介類からの BAP 摂取による人の健康への懸念は大きいとは言えなかった。

### 3. 鰹削り節及びダシパックからのダシへの PAHs 移行率

鰹削り節及び鰹節等を風味原料としたダシパックの PAHs 濃度が高いことが実態調査で明らかとなった。これらの食品については、その浸出液がダシとして広く用いられている。そのため、浸出操作により、これらの食品に含まれる PAHs がダシに移行する割合を調査しておくことが実

際の PAHs 摂取量を把握するために重要である。そこで、鰹削り節 2 種(薄削り、厚削り)とダシパック 1 種を使用し、一般的な浸出操作を行った場合のダシへの PAHs 移行率について調べた。鰹削り節についてはそれぞれ一般的な方法、ダシパックについては商品に記載の方法によりダシを作製した(各 3 試行)。

ダシの PAHs 濃度は低く、定量可能であった PAHs について移行率を求めると、薄削りの鰹削り節で 1.7 ~ 2.1%、厚削りの鰹削り節で 2.5 ~ 3.0%、ダシパックで 0.4 ~ 1.6%であった。いずれの試料でもダシへの PAHs の移行率は非常に低かったが、厚削りの鰹削り節の PAHs 移行率が若干高い傾向がうかがえた。厚削りの鰹削り節では煮出す時間が他の試料よりも大幅に長かったため、PAHs の移行率がやや高くなったことが考えられる。一方で、ダシ殻における PAHs の残存率はいずれの試料でも高く、91%以上であった。PAHs の Log Pow は 5.8 ~ 7.7 である。移行率が低かった要因の一つとして、PAHs は脂溶性が高いため、水溶性の浸出液に移行しにくいことが推察された。

このように鰹削り節やダシパック

は PAHs 濃度が高かったが、ダシとしての使用に限れば、PAHs 摂取量は大幅に減少すると考えられる。一方で、ダシ殻には殆どの PAHs が残存するため、食用とした場合は PAHs 摂取量を増加させるため留意が必要である。

#### D. 結論

- 1) PAHs 含有実態調査への使用を目的に本法の性能を評価した。鰹削り節及びダシパック以外の食品では BCL、CHL、及び DHP の分析値の信頼性は十分でないと判断し参考値とした。鰹削り節とダシパックについては、それらに加え、DLP 及び DEP の分析値についても参考値とした。
- 2) 実態調査の結果、鰹削り節とダシパックの PAHs 含有濃度が高いことが明らかとなった。特に低分子量の PAHs の含有濃度が高い傾向があった。今回の調査結果を用いて BAP 摂取量を試算した結果、燻製魚介類からの BAP 摂取による人の健康への懸念は大きいとは言えなかった。
- 3) 鰹削り節やダシパックからのダシへの PAHs 移行率は非常に低く、殆どの PAHs はダシ殻に残存した。

## 1-5. 塩素化ダイオキシン類の個別食品汚染調査

### A. 研究目的

TD 試料によるダイオキシン類の摂取量推定結果では、ダイオキシン類摂取量の約 99%が魚介類、肉・卵類に由来している。そこで、これら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、個人別暴露量を正確に評価するためのデータ蓄積を目的に、今年度は魚介類及びそれらの加工品のダイオキシン類濃度の実態を調査した。また、ヨーロッパなどではケージ飼いよりも平飼いの鶏卵に含まれるダイオキシン類が高い傾向にあることが報告されている。そこで、国内の平飼いの鶏卵を対象にダイオキシン類濃度の実態を調査した。さらに、平成 23 年度の調査結果により、ダイオキシン類が比較的高濃度に含まれていることが判明した鮫肝油加工食品の 1 製品について、平成 24 年度に引き続きフォローアップ調査を実施した。

### B. 研究方法

#### 1. 試料

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

#### 2. 分析項目

WHO が毒性等価係数(TEF)を定めた

PCDDs 7 種、PCDFs 10 種及び Co-PCBs 12 種の計 29 種を分析対象とした。

### 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

分析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以下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. 魚介類及びそれらの加工品のダイオキシン類実態調査結果

魚介類及びそれらの加工品(8 種、50 試料)のダイオキシン類を分析した。その結果、ダイオキシン類濃度はカツオでは 0.21 ~ 0.50 pg TEQ/g(中央値 0.29 pg TEQ/g)、サバでは 0.71 ~ 1.4 pg TEQ/g(中央値 0.91 pg TEQ/g)であった。魚介類の加工品中のダイオキシン類濃度は、カツオのなまり節では 0.036 ~ 0.34 pg TEQ/g(中央値 0.065 pg

TEQ/g)、サバのなまり節では 0.70 ~ 2.3 pg TEQ/g(中央値 1.3 pg TEQ/g)、カニ味噌では 1.3 ~ 14 pg TEQ/g(中央値 8.9 pg TEQ/g)、キャビアでは 0.47 ~ 1.4 pg TEQ/g(中央値 0.83 pg TEQ/g)、鰹節では 0.11 ~ 0.91 pg TEQ/g(中央値 0.14 pg TEQ/g)、及び鰹節を含むふりかけでは 0.037 ~ 0.29 pg TEQ/g(中央値 0.069 pg TEQ/g)であった。平成 10 年よりダイオキシン類の個別食品汚染調査は継続して実施しているが、カニ味噌の分析は初めてであり、比較的高い濃度のダイオキシン類を含んでいることが明らかとなった。

## 2. 平飼いの鶏卵のダイオキシン類実態調査結果

平飼い表示の鶏卵 33 試料と、対照として平飼い表示の無い鶏卵 9 試料のダイオキシン類を分析した。その結果、ダイオキシン類濃度は平飼いの鶏卵では、0.0056 ~ 1.4 pg TEQ/g(中央値 0.12 pg TEQ/g)、平飼い表示のない卵では 0.0016 ~ 0.15 pg TEQ/g(中央値 0.034 pg TEQ/g)であった。平飼い表示の無い鶏卵の調査数が少ないため比較には注意が必要であるが、平飼いの鶏卵のダイオキシン類濃度は表示の無い鶏卵と比較すると、やや高い傾向があった。

ヨーロッパにおける平飼い鶏卵中のダイオキシン類濃度について、PCDD/Fs 濃度の中央値は 0.85 pg TEQ/g fat、95

パーセンタイル値は 3.36 pg TEQ/g fat、Co-PCBs 濃度の中央値は 0.34 pg TEQ/g fat、95 パーセンタイル値は 3.97 pg TEQ/g fat と報告されている。これらの鶏卵中のダイオキシン類濃度は一見すると高いように見えるが、脂肪重量当たりに換算されている。文部科学省の食品成分データベース (<http://fooddb.mext.go.jp/>)によると鶏卵中の脂肪量は、全卵 100 g 中で 10.3 g、すなわち 10.3% である。今回の調査結果を約 9.7 倍すれば、大凡の脂肪重量当たりのダイオキシン類濃度に換算できると考えられる。これに従うと、今回調査した平飼い鶏卵の脂肪重量当たりのダイオキシン類濃度は、PCDD/Fs の中央値は 0.61 pg TEQ/g fat、95 パーセンタイル値は 4.3 pg TEQ/g fat、Co-PCBs の中央値は 0.53 pg TEQ/g fat、95 パーセンタイル値は 1.8 pg TEQ/g fat 程度であると推察される。今回の調査では試料の脂肪重量を実測していないため比較には注意を要するが、これらのダイオキシン類濃度はヨーロッパで報告されている平飼い鶏卵のダイオキシン類濃度と大差が無かった。

## 3. 健康食品のフォローアップ調査

平成 23 年度の個別食品調査の結果、鮫肝油加工食品の 1 製品のダイオキシン類濃度が高いことが判明した。そこで、該当する製品のダイオキシン類濃度に

ついてフォローアップ調査を平成 24 年度に引き続き実施した。平成 25 年度に同一製品を新たに 2 試料購入し、ダイオキシン類を分析したが、ダイオキシン類濃度は 69 及び 61 pg TEQ/g と、よく似た値であった。平成 23 から 24 年度の調査における同一製品のダイオキシン類濃度は 67 ~ 73 pg TEQ/g であり、当該製品のダイオキシン類濃度に大きな変化は認められず、依然として高濃度のダイオキシン類が含まれていた。

該当の鮫肝油加工食品について、製品に記載されている最大の食品摂取量に基づいて、ダイオキシン類摂取量を推定した。今年度に調査した製品(#4 及び #5)のダイオキシン類摂取量は、120 ~ 130 pg TEQ/日と推定され、これは TDI の 58 ~ 66%に相当した。本年度のトータルダイエツト調査による国民平均のダイオキシン類摂取量は 28.9 pg TEQ/日であることから、他の一般的な食品からのダイオキシン類摂取量を加味しても TDI を超えることはない。しかし、健康食品は同じ製品を比較的長期に渡り摂取する傾向があり、本製品の摂取には注意を払う必要がある。

#### D. 結論

1. 魚介類及びそれらの加工品(8 種、

50 試料)のダイオキシン類濃度を調査した。魚(カツオ、サバについて各 5 試料)のダイオキシン類濃度は、0.021 ~ 1.4 pg TEQ/g(中央値 0.61 pg TEQ/g)の範囲であった。なまり節(カツオ、サバについて各 5 試料)のダイオキシン類濃度は、0.036 ~ 2.3 pg TEQ/g(中央値 0.52 pg TEQ/g)の範囲であった。カニ味噌(5 試料)のダイオキシン類濃度は、1.3 ~ 14 pg TEQ/g(中央値 8.9 pg TEQ/g)の範囲であった。キャビア(5 試料)のダイオキシン類濃度は、0.47 ~ 1.4 pg TEQ/g(中央値 0.83 pg TEQ/g)の範囲であった。鯉節及び鯉節を含むふりかけ(20 試料)のダイオキシン類濃度は、0.037 ~ 0.91 pg TEQ/g(中央値 0.12 pg TEQ/g)の範囲であった。

2. 平飼い表示されている鶏卵(33 試料)を調査した結果、ダイオキシン類濃度は 0.0056 ~ 1.4 pg TEQ/g(中央値 0.12 pg TEQ/g)であった。

2. フォローアップ調査としてダイオキシン類濃度が高かった鮫肝油加工食品を追加購入し、ダイオキシン類分析を実施した。その結果、平成 23 及び 24 年度の調査結果と同様に、ダイオキシン類を高濃度を含むことが明らかになった。

## 2. 摂取量の信頼性向上と精密化研究

### 2-1. 摂取量推定を目的とした分析法の性能評価手法の開発

#### A. 研究目的

TD 研究の一環として実施される摂取量推定では、人の食事を模したモデル試料の分析値と、食事の量(摂取食品重量)が根拠となる。従って、モデル試料が摂取量推定の目的に沿って適切に分析され、一定品質の分析値が得られていることが、摂取量推定値の信頼性確保には不可欠な要件となる。そこで本研究では、摂取量推定値の信頼性保証スキームの構築を目的とし、摂取量推定に用いる分析法の性能評価手法の開発を検討した。

#### B. 研究方法

##### 1. 摂取量推定を目的とした分析法の性能評価用試料 (Samples for evaluation of methods performance; SEMP)の開発

##### SEMP 開発のコンセプト

SEMP の開発は、以下を基本的な考え方として検討した。

・ 摂取する食品の種類及びそれらの重量が大きく変化する影膳方式による試料ではなく、国民が平均的に摂取する食品の種類とその重量を反映した MB 方式による TD 試料のモデ

ルとなること。

・ MB 方式による試料のモデルとなる試料を開発することから、全ての食品をその類似性から 13 の群に分割し、群ごとに SEMP を開発すること。また、MB 方式による試料のモデルとすることから、必要に応じ各食品に基本的な調理加工を施すこと。

・ 各群を構成する食品は、摂取量の多さ(より大きいこと)を考慮して選択すると同時に、分析法の性能評価の対象となる有害物質等の持ち込みの可能性を極力低下させるために、食品の種類を制限すること。さらに、実際に SEMP の調製に使用する食品は、その商品情報(たとえば有機栽培といった)を十分に考慮の上、選択すること。

・ 十分な均質性が担保できる混合方法を採用すること。

##### SEMP のレシピ

開発コンセプトに従い、各群の SEMP を 3000 ~ 5000 g 程度調製することを計画した。このように多量の食品をその均質性を担保しつつ混合することは、通常の試験室では難しい。そこで、食品製造事業者との共同研究体制を組織し、当



該事業者が保有する食品製造用のプラントを用いて、SEMP は調製した。調製した SEMP は、約 100 g ずつ不活性容器に分取し小分け試料とした。

### **SEMP を用いた分析法の性能評価手法の開発**

各種有害物質の適時及び継続的な摂取量推定で実施した 14 種の(有害)元素の摂取量推定のために用いる分析法の性能評価をモデルとして、その手法を検討した。

規定濃度の標準品を添加した SEMP の計画的な分析により得られた分析値の解析から、分析法の真度及び精度の推定を試みた。

### **C.D. 結果及び考察**

TD 研究では、MB 方式あるいは陰膳方式によって調製された試料(TD 試料)を分析する。この分析に用いる方法については、1985年にWHOが公表したガイドライン「Guidelines for the study of dietary intakes of chemical contaminants」や2011年にEFSA、WHO、FAOが共同で公表したガイドライン「Towards a harmonised Total Diet Study approach: a guidance document」において、摂取量推定の目的に合致した方法を選択すると同時に、その妥当性を確認することが指示されている。前述のとおり、摂取量推定を

目的として使用する分析法の妥当性確認への国際的な要求が示されているが、その具体的な方法(摂取量推定に使用する分析法の性能評価手法)は未発達である。

本研究ではMB方式によるTD試料を模した分析法性能評価用試料(SEMP)の開発を検討した。また開発した SEMP を用い、本年度の摂取量推定にも使用した元素の一斉分析法を一つのモデルとして、性能評価手法の開発を検討した。

SEMP は、MB 方式による TD 試料の区分に従い、1~13の群(これに試料調製機関で採水した水道水を加えた14の群)別の試料として開発した。各群に含める個々の食品は、1)候補となる食品の内、摂取重量が基本的に上位5位に入ること、2)食品成分表や販売時に付帯している商品表示に情報がある場合にはそれを参照し、可能な限り分析対象となる元素濃度が低いと考えられることを規準に選別した。摂食に必要な最低限の調理を施した後、食品の種類と重量によって各群試料を構成し、合一した。分析法の性能評価用試料であるため、SEMP が分析対象となる元素濃度の分布をもつこと(その分布の幅が広いこと)は望ましくない。つまり、SEMP にはより高い均質性が要求される。このより高い均質性を達成するために、合一した食品の混合は、

食品製造用のプラントを用い、食品製造事業者の経験を踏まえて実施した。混合後の試料は、100 gを単位として不活性容器に小分けした。

約 30 個に小分けした試料から無作為に 5 個の試料を抜き出し、元素一斉分析法により分析した。その結果、分析対象の一部は、本来的に食品に含まれている元素であるため、SEMP から検出され、その濃度がある程度の分布をもつことが明らかとなった。たとえば SEMP1 群の B 濃度の平均値は 0.2 mg/kg であり、そのバラツキは RSD%として約 4%である。この分析値のバラツキには、分析によるバラツキが寄与していることを考えると、SEMP1 群の B 濃度の分布は極めて小さい。一方、分布の観点から結果をみれば、SEMP8 群の As 濃度等のバラツキが RSD%として 200%超え、一見大きい様に感じられる。しかし、濃度の平均値は 0.000004 mg/kg であり、総摂取量への寄与の点からは無視できるほど小さい。分析による分析値のバラツキの寄与も大きいと推察される。

SEMP を用いた分析法の性能評価手法として、適切な濃度を添加し、添加した試料を一定の計画に従って分析し得られた分析値から、分析法の真度と精度を推定する手順について検討した。添加濃度決定の基本的

な考え方としては、1)分析による分析値のバラツキの SEMP 濃度分布への寄与が無視できるほどに高い濃度がそもそも SEMP に含まれていた場合には、その濃度の 2 倍量を添加する、2)分析による分析値のバラツキが SEMP 濃度分布への寄与に対し支配的であることが疑われる低い濃度が SEMP に含まれていた場合には、SEMP から得られた分析値の平均+2 標準偏差に相当する濃度を求め、継続して摂取量推定している有害元素に関しては過去の推定時に検出された濃度に比べ低いことを確認した後に添加することとした。添加した SEMP を 5 併行で分析して得られた分析値から推定した、元素一斉分析法の性能として、全 14 群と分析対象全 14 元素の組合せ(組合せ総数 194)を通じ、真度は 80~128%、精度は RSD%として 0.3~17.9%の範囲で推定された。ある特定の元素の SEMP 全群を通じた真度、精度が低い、あるいは SEMP の特定の群での全元素の真度、精度が低いといった傾向も認められない。以上の結果から、摂取量推定のための分析法が有すべき性能として、妥当な性能であることが確認できたと判断した。

## E. 結論

摂取量推定ではその推定のための算術に LOD の値を用いる。この LOD の値は、本研究でも実施したように、分析対象となる試料を含まないブランクを操作する実験の結果等から推定される、いわば分析系の性能を表す値である。しかし実際には、試料に含まれているある濃度が、どのくらいの性能で分析され、どのよ

うな値を取り得るのかを検証し保証することが必要である。この検証に使用するのに適した試料として SEMP は開発され、実際に元素の一斉分析法をモデルに、添加濃度の決定も含めた信頼性保証手順が構築された。今後、異なる分析対象への適用検討が期待される。

## 2-2. リスクを考慮した精密摂取量推定手法開発

### 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 TD 試料を分析することにより、重金属類、PCBs 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

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様ではない。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、個々のグループごと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、食品小分類ごとの 1 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)の年齢区分ごとの平均値を求めた。

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ごと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、食品小分類ごとの 1-3 歳の 1 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 1 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。

## C.D. 研究結果及び考察

### 年代ごとの食品摂取パターン

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。

各食品群の全食品に対する割合を算出した結果、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)は年代間での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、年代区分ごとの食品1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。そこで年代区分ごとの食品1日摂取量を平均体重で除した値を求めた。その結果、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 試料に含め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。

TD 試料作製の基礎としている、国民健康・栄養調査結果は、調査対象者が調査日に喫食した食品重量を、小分類ごと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。

## 2-3. 有害化学物質摂取量推定に不可欠な分析法開発

### A. 研究目的

水銀やヒ素は、官能基により修飾されることで、複数の化学形態を生じ、その化学形態により生体内動態や毒性が異なることが知られている。水銀の化学形態の一つであるメチル水銀は、難分解性のため環境中に蓄積しやすく、また脂溶性が高いため生物凝縮もされやすい。そのため、食物連鎖の上位に位置する鯨・イルカ・マグロなどの水産物の摂食により健康危害リスクの高い物質とされる。ヒ素もまた環境中に広く存在し生物濃縮の恐れもあることから、ヒ素を高濃度で含有する食品の摂食による健康危害リスクへの関心は国際的にも高い。これまでの報告から、食事を通じたヒ素の摂取源は、主に海産物であることが示されている。海水産物など、多くの食品に含有されるヒ素の化学形態は、毒性の低い有機ヒ素化合物あることが明らかとなっているが、毒性の高い無機ヒ素化合物である亜ヒ酸やヒ酸もまた、食品に少量ではあるが含有されていることが知られる。しかし分析の困難さから、これら化学形態別のヒ素摂取量は十分に推定されていない、そこで本研究では、摂取量推定の目的に叶った感度や

選択性に優れたメチル水銀及び化学形態別ヒ素の分析法構築を目的に下記の3つの研究を実施した。

### 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

現在、環乳第99号により、一部の魚介類を除きメチル水銀には、暫定的規制値として0.3 ppmが設定されている。この暫定規制値への適合を判定するための分析法として検討してきたメチル水銀分析法(以下、GC-MS法)の検討を更に進め、改良した分析法の性能を評価した。

### 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

本研究では、上記GC-MS法を基礎とし、分解能と選択性に優れ、より高感度な測定が可能であるGC-MS/MSを測定機器に採用することで、摂取量推定に使用可能なメチル水銀分析法の開発を検討した。

### 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

現在、Codex委員会食品汚染物質部会(CCCF)では、コメの国際食品規格として、無機ヒ素を項目とすることが検討されている。規格の設定

に当たっては、その根拠となる摂取量推定値が不可欠である。特に、コメを主食とする我が国にとって、米飯の摂食を通じた無機ヒ素の摂取量は、健康危害リスクの有無あるいはその大きさを知るために不可欠な科学的根拠でもある。また、総無機ヒ素摂取量に対するコメ由来の無機ヒ素摂取量の寄与を知ることもしリスク管理上重要である。

本研究では、有害物質摂取量推定の目的に合致した形態別ヒ素摂取量推定を目的とし、それに必要となる形態別ヒ素定量分析法の開発を検討した。

## B. 研究方法

### 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

#### 試料

##### 認証標準試料

認証標準試料(CRM 7402-a:タラ魚肉粉末、BCR-463:マグロ魚肉粉末、ERM-CE464:マグロ魚肉粉末、CRM 7403-a:メカジキ魚肉粉末)は、西進商事(株)を通じ入手した。また、分析時には、1.0 g を量りとり、水 9.0 g を加え混合したものを試料とした。

##### 魚試料

東京都内のスーパーマーケット

で購入したタラ、キハダマグロ、メバチマグロ、サバ、カツオの切り身を用いた。

購入した切り身を GM200(レッチェ社製)により十分に混合することで試料を調製した。

#### 試薬等

塩化メチル水銀は、ジーエルサイエンス社製のものを用いた。臭化カリウム、無水硫酸銅(II)、硫酸、システイン塩酸塩一水和物、酢酸ナトリウム三水和物、りん酸二水素ナトリウム二水和物、りん酸水素二ナトリウム十二水和物、テトラフェニルホウ酸ナトリウム、ポリエチレングリコール 200(PEG 200)は、和光純薬工業社製のものを使用した。その他の試薬類は残留農薬分析用または試薬特級に準じたものを使用した。

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

メチル水銀標準原液 (1000  $\mu$ g/mL): 塩化メチル水銀標準品 58.2 mg を正確に量りとり、トルエンで 50 mL に定容した。

添加用メチル水銀標準溶液 (3  $\mu$ g/mL): 塩化メチル水銀 58.2 mg を正確に量りとり、水に溶解し正確に 500 mL とした。本溶液 3 mL を正確



に取り、水で 100 mL に定容した。

1 mol/L 臭化カリウム溶液：臭化カリウム 119.0 g を量りとり水で 1 L に定容した。

硫酸銅(II)飽和 4 mol/L 硫酸：水 600 mL に濃硫酸 200 mL を加え、放冷後、水で 900 mL に定容した後、無水硫酸銅(II)を飽和するまで溶解した。

1% L-システイン溶液：L-システイン塩酸塩一水和物 10.0 g、酢酸ナトリウム三水和物 8.0 g、無水硫酸ナトリウム 125.0 g を量りとり、水で 1 L に定容した。

0.2 mol/L リン酸緩衝液(pH 7.0)：第一液として、リン酸二水素ナトリウム二水和物 31.2 g を量りとり、水で 1 L とした。第二液として、リン酸水素二ナトリウム十二水和物 71.6 g を量りとり、水で 1 L とした。第一液 380 mL と第二液 610 mL を混合し、第一液を用いて pH を 7.0 に調整した。

1%テトラフェニルホウ酸ナトリウム溶液：テトラフェニルホウ酸ナトリウム 0.2 g を量りとり、0.2 mol/L リン酸緩衝液(pH 7.0)で 20 mL に定容した。本溶液は、用事調製した。

1.5 mg/mL ポリエチレングリコール 200(PEG200)溶液：PEG200 150 mg を量りとり、トルエンで 100 mL とした。

## **分析機器**

遠心分離機：久保田商事社製高速冷却遠心機 model 6200 を用いた。

GC-MS：Agilent 社製 6890N GC 及び 5975 MSD を用いた。

## **GC-MS 測定条件**

カラム：InertCap 5MS/NP (内径 0.25 mm、長さ 30 m、膜厚 0.25 μm)

オープン温度：70 (1 min) 20 /min 280 (5 min)

注入口温度：250

トランスファライン温度：280

イオン源温度：230

注入量：1 μL

キャリアガス流量：1.0 mL/min (He)

イオン化法：EI

分析モード：SIM

モニターイオン： $m/z$  292\*、294、277

\*定量イオン

## **メチル水銀分析法(GC-MS 法)**

### **試料の前処理**

試料 10.0 g にアセトン 100 mL を加え 30 秒間振とうした後、1,880 g で 5 分間遠心分離し、デカンテーションによりアセトンを除去した。残渣にトルエン 100 mL を加え、同様に操作した。

### **抽出**

前処理した試料に、1 mol/L 臭化カリウム溶液 40 mL、硫酸銅(II)飽和 4 mol/L 硫酸 40 mL 及びトルエ

ン 80 mL を加えて、振とう機で 30 分間振とうした。1,880 g で 20 分間遠心分離した後、上層のトルエン層を 200 mL の分液漏斗に移した。再度、水層にトルエン 50 mL を加え、振とう機で 10 分間振とうした。同様に遠心分離後、トルエン層を上記の分液漏斗に合わせた。

### **転溶**

トルエン層に 1% L-システイン溶液 50 mL を加え 5 分間振とうした。静置後、水層を 200 mL の分液漏斗に移した。これに 6 mol/L 塩酸 30 mL、トルエン 30 mL を加え 5 分間振とうし、トルエン層を 100 mL メスフラスコに移した。上記と同様の操作をあと 2 回繰り返す、トルエンで 100 mL に定容した。

### **メチル水銀のフェニル誘導体化**

試験管に定容後のトルエン溶液 4 mL を正確に量りとり、0.2 mol/L リン酸緩衝液(pH 7.0) 5 mL、1% テトラフェニルホウ酸ナトリウム溶液 1 mL を加えた。室温で 10 分間振とうした。

### **測定溶液の調製**

誘導体化反応後の溶液を 840 g で 10 分遠心分離し、トルエン層をガラスチューブに移し、無水硫酸ナトリウムで脱水した。脱水したトルエン溶液 1 mL を正確にバイアルに量りとり、1.5 mg/mL PEG200 0.5

mL を正確に加えて測定溶液とした。

### **分析法の妥当性確認**

分析法の性能を評価するために、4 種の認証標準試料及び 2 種の添加試料を計画的に分析して得られた定量値の解析結果から、真度と精度を推定した。

### **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**

#### **試料**

摂取量推定を目的とした分析に使用する分析法の性能を評価するためのモデル試料 Sample for Evaluation of Methods Performance(以下、SEMP)を用いた。また、水銀はこれまでの本研究課題の成果として、ほぼ魚介類(10 群)と肉類(11 群)からしか検出されないことが明らかとなっていることから、10 群と 11 群を試料とした。

#### **試薬等**

研究 1 と同じ試薬を用いた。

#### **分析機器**

GC-MS/MS: サーモフィッシャーサイエンティフィック社製 TRACEGC ULTRA 及び TSQ Quantum を用いた。

#### **GC-MS/MS 測定条件**

カラム: InertCap 5MS/NP (内径 0.25 mm、長さ 30 m、膜厚 0.25  $\mu$ m)  
オープン温度: 70 (1 min) 10

/min 160 (0 min) 20 /min  
280 (5 min)

注入口温度：250

トランスファライン温度：280

イオン源温度：280

注入量：1  $\mu$ L

キャリアガス流量：1.0 mL/min (He)

イオン化法：EI

分析モード：SRM

モニターイオン： $m/z$  294 279(定

量イオン)、 $m/z$  292 277(確認イ

オン)

### **メチル水銀分析法(GC-MS/MS 法)**

#### **試料の前処理～測定溶液の調製**

GC-MS 法に同じ。

### **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**

#### **試薬等**

硝酸 1.42(超微量分析用)、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) は和光純薬社製のものをを用いた。

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

標準品：下記の 8 種類を使用した。

As( )：ヒ素標準液(As 100) (和光純薬社製)

As(V)：ヒ酸[As(V)] 水溶液 (NMIJ CRM 7912-a)

アルセノベタイン水溶液(NMIJ CRM 7901-a)

ジメチルアルシン酸水溶液(NMIJ CRM 7913-a)

メチルアルソン酸、アルセノコリンブロマイド、トリメチルアルシンオキシド、ヨウ化テトラメチルアルソニウム (トリケミカル研究所製)

標準原液：メチルアルソン酸、アルセノコリン、トリメチルアルシンオキシド、テトラメチルアルソン酸については各 1000 mg/L になるように、それぞれ下記のとおり標準原液を調製した。

・メチルアルソン酸標準品 50 mg を正確に量りとり、水で 50 mL に定容した。

・アルセノコリンブロマイド標準品 74.2 mg を正確に量りとり、水で 50 mL に定容した。

・トリメチルアルシンオキシド標準品 50.0 mg を正確に量りとり、水で 50 mL に定容した。

・ヨウ化テトラメチルアルソニウム標準品 97.0 mg を正確に量りとり、水で 50 mL に定容した。

上記以外のヒ素化合物については、

購入した水溶液を標準原液として用いた。

0.15 mol/L 硝酸溶液：硝酸 4.8 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  $\mu\text{m}$  のディスミックスフィルター(アドバンテック東洋社製)でろ過した。

2.5% アンモニア水：25%アンモニア水 5 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、メタノール 0.5 mL を量りとり、水を加え、25%アンモニア水で pH3.0 に調整した後、1 L に定容した。なお、この溶液は用事調製した。

### **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 測定条件**

カラム：L-column2(内径 4.6 mm 長さ 25 cm 粒子径 3  $\mu\text{m}$ ) (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、4 mM マロン酸、1 mM TMAH

溶液(pH3.0)

流速：0.75 mL/min

カラム温度：25

オートサンプラー温度：4

注入量：20  $\mu\text{L}$

測定時間：15 min

### **ICP-MS 測定条件**

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

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**

検討に用いた測定溶液の調製方法を以下に示した。なお、測定溶液は各ヒ素化合物の濃度が 10 ng/mL となる混合溶液とした。

各標準原液を適量量りとり、0.15 mol/L 硝酸溶液を 10 mL 加えた。これにメチルオレンジ溶液をパスツールピペットで一滴(約 10  $\mu\text{L}$ )加え、2.5%アンモニア水で約 pH3 に調整し水で 50 mL に定容した。

## **C.D. 研究結果及び考察**

### **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**

#### **C.D. 1-1 メチル水銀分析法(GC-MS**

## 法)の改良

### C.D. 1-1-1 測定溶液の調製に用いるポリエチレングリコール(PEG)と注入量の検討

改良前の GC-MS 法では、測定時に機器への吸着を疑い、ポリエチレングリコール 300(PEG300)を混合して測定溶液を調製することを手順としていた。

本検討では、メチルフェニル水銀の損失を抑えることにより適した PEG を選定するための検討をした。この時、メチルフェニル水銀の分子量を考慮し、PEG200 と PEG300 について検討した。

メチルフェニル水銀標準溶液に PEG200 と PEG300 が 250、500、750 ng 共注入されるように測定溶液をそれぞれ調製し、1  $\mu$ L を GC-MS 測定した。その結果、PEG200 と PEG300 ではピーク面積値に差がなかったことから、より沸点が低く、GC カラムの昇温条件での最終到達温度を下げる事が可能な PEG200 を選択した。また、PEG200 の共注入量は必要最小量の 500 ng とした。

さらに、GC-MS への注入量を 1  $\mu$ L とした場合にも、検量線の最下点濃度として設定した 2.5 ng/mL メチルフェニル水銀溶液から SN 比が 40 以上のピークが得られた。この濃度は暫定規制値に相当する濃度(メチル

フェニル水銀として 30 ng/mL)の 1/10 以下の濃度であり、GC-MS への注入量を減少させても問題ないと判断した。

### C.D. 1-1-2 試料マトリクスが測定溶液におよぼす影響の検討

本検討では試料由来のマトリクス存在下における PEG200 の効果を検討した。検討では、試料由来のマトリクスの有無と PEG200 共注入の有無とでのメチルフェニル水銀のピーク面積を比較した。魚試料(タラ、メバチマグロ、カツオ、サバ)から調製したメチルフェニル水銀溶液に PEG200 の添加した測定溶液と添加しない測定溶液の 2 種類を調製し、GC-MS で測定した。また、メチル水銀標準溶液も同様に操作した。測定の結果、マトリクスの有無に関わらず全ての測定溶液で PEG200 を添加した場合に、ピーク面積が 1.51 ~ 1.62 倍に高くなった。これらの測定結果に基づき、PEG200 の効果は、試料由来のマトリクスの有無に因らないと判断した。逆に、試料由来マトリクスによるメチルフェニル水銀の損失抑制効果は、PEG200 による抑制効果よりも小さいことが示唆された。

### C.D. 1-1-3 PSA カラムによる精製操作の検討

改良前の GC-MS 法では、フェニル誘導体化反応後の溶液に含まれる試料由来のマトリクスや誘導体化試薬などの除去を目的に、導体化反応後の溶液を PSA カラムにより精製していた。本検討では、精製の効果を検証した。魚試料(タラ、メバチマグロ、カツオ、サバ)から抽出、誘導体化したメチルフェニル水銀溶液を PSA カラム精製した測定溶液と精製しない測定溶液の 2 種類を調製し、GC-MS 測定した。また、メチル水銀標準溶液も同様に操作した。その結果、カラム精製の有無によるクロマトグラムの変化は認められず、PSA カラム精製の効果は少ないと評価し、PSA カラム精製の操作は分析手順から除くこととした。

#### C.D. 1-2 メチル水銀法(GC-MS法)の妥当性確認

改良した GC-MS 法の妥当性を確認した。国立医薬品食品衛生研究所並びに福岡市保健環境研究所で計 3 名による認証標準試料と添加試料の分析を実施し、得られた分析値から真度と精度を推定した。その結果、全ての試料と人を通じて真度は 85 ~ 100%の範囲、室内精度(RSD%)は 1.6 ~ 7.3%の範囲で推定された。いずれの推定値もガイドラインの目標値を満たしていたことから、暫定的規制

値への適合判定に使用する分析法としての妥当性が確認された。

#### 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

##### C.D. 2-1 GC-MS/MS 測定条件の検討

メチルフェニル水銀のフラグメントパターンを確認するため、 $m/z$  50 ~ 500 の範囲でスキャン測定した結果、それぞれ、 $\text{Me}^{202}\text{HgPh}^+$ 、 $\text{Me}^{200}\text{HgPh}^+$ に由来すると考えられる分子イオンピーク  $m/z$  294、292 が観察された。コリジョンエネルギーの条件を 5、10、15、20 V と変化させた測定の結果、いずれのコリジョンエネルギーの条件でも、 $m/z$  294 をプリカーサーイオンとした場合は、プロダクトイオン  $m/z$  279 が、 $m/z$  292 をプリカーサーイオンとした場合は、 $m/z$  277 のみが主なプロダクトイオンとして検出された。また、コリジョンエネルギーが 5V のときにプロダクトイオンの強度は最大となった。以上の結果より、最適なコリジョンエネルギーは 5 V と判断し、プリカーサーイオン  $m/z$  294 と 292 のプロダクトイオンとしてそれぞれ  $m/z$  279 と 277 を選択した。また、 $m/z$  279 の方が  $m/z$  277 と比較して強度が高かったため、 $m/z$  279 を定量イオン、 $m/z$  277 を確認イオンと設定した。

### C.D. 2-2 GC-MS/MS 法の真度と併行精度の推定

SEMP の 10 群と 11 群試料及び、それぞれの試料に 0.05mg/kg あるいは 0.005 mg/kg になるようメチル水銀を添加した試料を 4 併行で分析した結果から分析法の真度と併行精度を推定した。

添加試料の分析結果から推定した真度と併行精度を表 6 に示した。4 併行分析結果の平均値と添加量との比率として推定した真度は、10 群試料で 84%、11 群試料で 97%であった。併行精度(RSD%)は 10 群試料で 4.9%、11 群試料で 3.3%であった。

### 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

今年度は、化学形態別ヒ素の測定法を検討した。既報を参考に、HPLC を用いて ODS カラムにより分離し、ICP-MS で検出する HPLC-ICP-MS 法を選択した。この方法における HPLC の分離モードは、ブタンスルホン酸を主なイオンペア試薬とした、逆相イオンペアクロマトグラフィーである。検討では、既報と同じ HPLC の測定条件を初期条件に設定し、よりよいピーク分離のために測定条件を改良した。

### C.D. 3-1 分析対象化合物の選定

標準品が入手可能な 亜ヒ酸：  
As(III)、ヒ酸：As(V)、(モノ)メチルアルソン酸：MMA、ジメチルアルシン酸(別名:カコジル酸):DMA、  
トリメチルアルシンオキサイド：  
TMAO、アルセノベタイン：AsB、  
アルセノコリン：AsC、テトラメチルアルソニウム：TeMA を分析対象化合物とした。

### C.D. 3-2 HPLC カラムの検討

最初に HPLC による測定法の初期条件で As(III) の混合標準溶液の測定をした。その結果、As(III) と MMA のピークの分離がよくないことが判明した。ヒ素の形態別分析法では、無機ヒ素と有機ヒ素とを分別して定量する能力が重要であり、これらの化学形態に由来するピークが十分に分離していることが必要である。そこで、As(III) と MMA の分離がよい HPLC カラムの検討を行った。国内メーカーの HPLC カラムでエンドキャップがよいとされる製品を中心に選択した。また、理論段数が高まることによるピーク分離度の向上及び分析時間の短縮を目的に、充填剤の粒子径が 3 μm の製品を検討した。その結果、同じ ODS カラムでも製品の違いにより、無機ヒ素と有機ヒ素の分離が異なることが判明した。しかし、As(III) と MMA のピークを完

全に分離できる HPLC カラムはなかったため、検討した中で最良の分離が得られた L-column2 を選択した。

#### C.D. 3-3 HPLC 移動相条件の検討

他のカラムに比べると、L-column2 での TMAO と TeMA の分離が良いとは言えない。分析法の本来の目的からすると、これら 2 つの有機ヒ素の分離は問題とはならないが、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可能な移動相組成を検討した。まず、1-ブタンスルホン酸ナトリウム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範囲は、8 mM ~ 14 mM とした。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、また逆に低くても TMAO と TeMA のピークが重なることが判明した。そこで、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 の濃度範囲は、1 mM ~ 8 mM とした。その結果、TMAH の濃度が低いほど TMAO と TeMA のピークの見分け度が高くなる傾向が認められた。そこで、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 のピークの見分け度を検討した。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 のピークの見分け度が高かったが、逆に As( ) と MMA のピークの見分け度は検討した組み合わせの中では低くなった。そのため、TMAO と TeMA のピークの見分け度以外に、As( ) と MMA 及び DMA と AsB のピークの見分けなども考慮して、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 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、トータルダイエット試料)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。

### 3. 摂取量を推定すべき新規有害物質の選定研究

#### 3-1. ダイオキシン様活性を有する新規有害物質に関する研究

##### A. 研究目的

食品中には多様な有害物質が存在しており、これら摂取による健康リスクを評価・管理することが課題の一つとしてあげられている。対象となる有害物質には、通常の食品に極微量しか含まれてないものもある。それらの健康へのリスクは非常に低く、残留上限の基準値を設定することがリスク管理施策となる。食品中の残留有害物質であるダイオキシン類(DXNs)や多環芳香族炭化水素(PAHs)といった環境汚染物質はその一例としてあげられる。

DXNs や PAHs は化合物群の種類が多く、現在の分析法においては、標準品を指標に、GC/MS 分析による定量結果の総和を評価値として用いる等としている。一方で、分析法が煩雑で費用が高価であることから、簡易分析法が提案されてもいる。例えば DXNs においては、バイオアッセイによる簡易分析法が環境分野における公定法として採用されている。そのバイオアッセイで鍵となっているアрил炭化水素レセプター(AhR)は、DXNs 等の環境汚染物質をリガンドとするため別名ダイオキシンレ

セプターとも呼ばれ、それらの生体毒性発現に関与していることが指摘されている。DXNs の簡易分析法は、このメカニズムを利用したバイオアッセイであり、スクリーニングとして用いることが可能となっている。一方で、AhR は一部 PAHs をリガンドとし活性化されることが報告されている。

バイオアッセイは迅速で低廉であるため、スクリーニングとして有用である。上述したような有害物質を簡便に、総合的にスクリーニングできるようなシステムがあり、それを用いて総合的なリスク管理値のようなものが算出できれば、食品の安全性における新たなリスク評価・管理の施策実施に有意義である。そこで本研究では、DXNs の簡便測定法として採用されている AhR を用いた技術開発を進める。AhR については、DXNs 及び一部 PAHs 以外の有害物質との相互作用に関する情報が少ない。研究の初段階として、基礎データの構築を目的に、DXNs 様活性を有する有害物質の探索及び活性と物質の構造相関の解明を試みる。本年度はまだデータの乏しい PAHs(ニト

口化、ハロゲン化体、アミノ化体を含む)39 種及び食品に残留する農薬 23 種、さらに食品成分としてあげられるアミノ酸及びその代謝物 14 種等について、AhR 活性をバイオアッセイにより評価した。

## B . 研究方法

### 1. 試料及び試薬

PAHs(ニトロ化、ハロゲン化、アミノ化を含む)(39 種) :  
benzo[*c*]fluorene, 1,2-benzanthracene (benzo[*a*]anthracene),  
cyclopenta[*c,d*]pyrene, chrysene,  
5-methylchrysene,  
benzo[*b*]fluoranthene,  
benzo[*k*]fluoranthene,  
benzo[*j*]fluoranthene, benzo[*a*]pyrene,  
indeno[*1,2,3-c,d*]pyrene,  
dibenzo[*a,h*]anthracene,  
benzo[*g,h,i*]perylene,  
dibenzo[*a,l*]pyrene,  
dibenzo[*a,e*]pyrene,  
dibenzo[*a,i*]pyrene,  
dibenzo[*a,h*]pyrene,  
1-amino-4-nitronaphthalene,  
9,10-dinitroanthracene,  
1,3-dinitronaphthalene,  
1,5-dinitronaphthalene,  
1,8-dinitronaphthalene,  
2-nitroanthracene, 9-nitroanthracene,  
7-nitrobenzo[*a*]anthracene,

6-nitrobenzo[*a*]pyrene,  
1-nitronaphthalene, 2-nitronaphthalene,  
1-chloronaphthalene,  
2-chloronaphthalene,  
1,4-dichloronaphthalene,  
octachloronaphthalene,  
1,2,3,4-tetrachloronaphthalene,  
1-aminoanthracene,  
2-aminoanthracene,  
1-aminonaphthalene,  
1,8-diaminonaphthalene, naphthalene,  
anthracene, fluorene(いずれも関東化学社製)を用いた。

農薬(23 種): malathion, chlorpyrifos, diazinon, prothiofos, pirimiphos methyl, fenitrothion, ethyl-*p*-nitrophenyl phenylthiophosphonothiate (EPN), tolclofos methyl, parathion methyl, phenthoate, chlorpyrifos methyl, methidathion, imazalil, carbendazim, leucomalachite green, imadacloprid, acetamiprid, thiabendazole, azoxystrobin, tribenuron methyl, flufenoxuron, pyraclostrobin, kresoxim methyl(いずれも関東化学社製)を用いた。

アミノ酸及びその代謝物(14 種) :  
tryptamine, L-tryptophan,  
4-aminobutanoic acid, L-glutamic acid,  
tyramine, L-tyrosine, putrescine,  
cadaverine, L-lysine, L-arginine,

histamine, histidine(和光純薬工業社製), L-ornithine, agmatine(東京化成工業社製)を用いた。

ウイスキー、かつお節、紅茶は、市販のものを用いた。抽出(かつお節、紅茶)は 80%エタノールでホモジナイズ後、吸引ろ過し、ろ液を減圧濃縮して行った。ウイスキーは原液を減圧濃縮した。

ジメチルスルホキシド(DMSO)(生化学用)は和光純薬工業社製を用いた。RPMI1640 培地、ペニシリン/ストレプトマイシン溶液、リン酸緩衝生理食塩水、0.25%トリプシン溶液はナカライテスク社製を用いた。牛胎児血清(FBS)は Invitrogen 社製を、Lysis 試薬、ルシフェラーゼアッセイシステムは Promega 社製を用いた。マイクロプレートリーダーは Perkin Elmer 社製の Enspire を使用した。

## 2. 評価方法

評価はレポータージーンアッセイ〔ルシフェラーゼ遺伝子を導入した培養細胞を利用したレポータージーンアッセイ(ケイラックスアッセイ)〕により行った。ケイラックスアッセイは、DXNs 応答性組換え細胞 H1L6.1c2 を用いたレポータージーンアッセイを利用して DXNs の毒性等量を測定する方法である。具体的な評価方法を以下に記す。

ケイラックスアッセイ：化合物及び抽出物を DMSO に溶解し、試料溶液とした(コントロールは DMSO)。試料溶液は 4~6 段階の濃度(0.1~100,000 nM の範囲で 4~6 段階)に DMSO で希釈して調製した。試料 4  $\mu$ L を試験管に入れ、RPMI1640 培地(+8% FBS +1%ペニシリン/ストレプトマイシン)400  $\mu$ L を加えて攪拌後、そのうち 200  $\mu$ L を一晩前培養した 96 穴マイクロプレート中の DXNs 応答性組換え細胞 H1L6.1c2(約  $1.5 \times 10^5$  cell/well)に 1 ウェルずつ暴露し、CO<sub>2</sub> インキュベーター(37 °C, 5% CO<sub>2</sub> 濃度)で 20~24 時間培養した。培養後、培地を取り除き、ウェルを洗浄後、顕微鏡下で細胞の生存を確認した。Lysis 試薬 300  $\mu$ L で細胞壁を溶解後、プレートミキサーで 10 分間振とうした。振とう後、10 分間放置し、基質としてルシフェリン 50  $\mu$ L を加え、ルミノメーターにより発光度(RLU)を測定した。

## C. 研究結果及び考察

### 1. PAHs

PAHs(19 種)の AhR 活性について、ケイラックスアッセイによる評価した結果、cyclopenta[*c,d*]pyrene、benzo[*g,h,i*]perylene、dibenzo[*a,l*]pyrene、anthracene を除く

15種の化合物に、濃度依存的に顕著な活性が認められ、fluoreneに弱い活性が認められた。

PAHsの誘導体(ニトロ化、ハロゲン化、アミノ化 PAHs)(20種)について、AhR活性を評価した結果、強い活性が認められたのは、7-nitrobenzo[*a*]anthracene、6-nitrobenzo[*a*]pyrene、2-chloronaphthalene、1,4-dichloronaphthalene、1-aminonaphthaleneで、次いで2-nitroanthracene、2-aminoanthraceneが若干の活性を示した。このように、供試したPAHsの大半は顕著なAhR活性を示した。一方、一部化合物(dibenzo[*a,l*]pyrene, benzo[*g,h,i*]perylene)に活性が認められなかった。PAHsの毒性に関する科学的知見の“発がん性”をみると、活性を示さなかったdibenzo[*a,l*]pyreneはグループ2Aに、一方のbenzo[*g,h,i*]peryleneはグループ3にリスト化されており、今回の結果だけでは本活性の有無と対応しなかった。AhR活性とPAHsの毒性の度合いとの関連については、さらなる検討が必要である。

近年、PAHsの誘導体(ニトロ化体、ハロゲン化体、アミノ化体)の食品への含有も懸念されている。そこでそれら化合物についてAhR活性を検

討した結果、全体として環の数が多くなれば活性が強くなる傾向が認められた。ハロゲン化体(塩素化物)をみると、塩素の数が多い化合物は活性が弱まる傾向が認められた。ニトロ化体では、ニトロ基の数や位置で活性の強弱は考察できなかったが、環の数が4以上になると活性が認められた。アミノ化体では、1-aminonaphthaleneで活性が認められたのみで、構造活性相関的考察はできなかった。

PAHsのケイラックスアッセイとの感度は、TCDDと比較すると約1000倍弱い傾向であったが、最大となるRLUは約2倍の値が観察された。ケイラックスアッセイでは評価する上でTCDDを基準に比較を行っているが、細胞への暴露24時間後の代謝物を検出しており、TCDDより代謝物量の多いPAHsが多く認められた。DXNsとPAHsでは代謝速度や関与する遺伝子が若干異なること等に起因する可能性がある。一方で、本結果は本アッセイの食品中PAHs分析への応用を示唆するデータでもあり、今後の発展が期待できる。

## 2. 残留農薬

食品の残留農薬23種について検討した結果、carbendazim、thiabendazoleの2種の化合物に強い

活性が認められた。活性を示した化合物はいずれもインドール骨格を有する化合物であった。これまでの報告から、インドール骨格を有する化合物は AhR 活性を示す傾向があるという構造活性相関的考察が示唆されており、本結果も同様の結果であった。

### 3. アミノ酸及びその代謝

14 種について検討した結果、tryptamine のみ活性を認め、Tryptamine もインドール骨格を有する化合物であり、同様の結果であった。

### 4. 食品分析

PAHs の簡易分析への応用が示唆されたため、PAHs を検出した報告のある食品について抽出物を調製し、AhR 活性を評価した。その結果、ウイスキー、かつお節、紅茶のいずれの抽出物においても濃度依存的に

AhR 活性が認められた。特にかつお節は活性が強く、この結果は市販食品の PAHs 分析した結果と対応した。

### D. 結論

DXNs 様活性を有する新規有害物質の探索及び活性と物質の構造相関の解明を試みるため、PAHs(ニトロ化体、ハロゲン化体、アミノ化体を含む)39 種及び食品に残留する農薬 23 種、さらに食品中のアミノ酸およびそれら代謝物約 14 種について、AhR 活性をバイオアッセイにより評価した。その結果、供試した PAHs の大半は、顕著な AhR 活性を示した。PAHs の誘導体については、全体として環の数が多くなれば活性が強くなる傾向が認められた。ハロゲン化体は塩素の数が増えるほど、活性が弱まる傾向が認められた。ニトロ化およびアミノ化体では、本検討だけでは置換基の数や位置で活性の強弱は考察できなかった。

## 3-2. 国際動向を踏まえた摂取量推定すべき有害化学物質の探索に関する研究

### A. 研究目的

国民の健康保護ための施策策定には、懸念される有害物質のリスク情報が必要となる。食品には意図的・

非意図的に無数の化合物が含まれ、そのリスクの程度も多様なので、リスク管理の優先順位づけのために目安となる情報が必要になる。食品は

世界的に取引されているので国際動向も考慮しながら、限られたリソースを効果的に使ったリスク管理が求められている。そこで食品からの有害化学物質の摂取量を推定して詳細リスク評価を実施する必要性を判断するための材料となる、世界的に問題になっている、関心の高い化合物についての情報収集を行った。国際会議等で具体的な検討が始まるより学術情報が先行することが多いので、まず学術論文をベースに、近年非意図的汚染物質のリスク評価に使われることが増えてきた暴露マージン(MOE)についての情報を収集した。

## B. 研究方法

2013年8月時点でPubMedをMargin of Exposure (MOE)で検索し、140文献をリストアップした。それらのうち要約部分から化合物の

MOEを評価したと考えられる文献124報を集め、記載されている数値データを抽出した。結果的に75報の論文から877組のデータを収集した。それらを数値の小さい順に並べおおまかにグループ分けした。

## C. 結果及び考察

MOEが一桁と評価されているもの、すなわち、アクリルアミド、テトラクロロエタン、アフラトキシンB1、鉛、エタノール、ダイオキシン、フラン、無機ヒ素、アクロレイン、テトラクロロエタン、テトラプロモビスフェノールA、カルバミン酸エチル、Sudan I、酸化カドミウム、ホルムアルデヒド、メチルオイゲノール、ゲニステインが比較的優先順位の高い化合物である可能性がある。

## その他

### 知的財産権の出願・登録情報

#### 1. 特許取得

なし

#### 2. 実用新案登録

なし

#### 3. その他

なし

### 健康危害情報

なし

## **II. 分担研究報告 1**

**各種有害物質の適時及び継続的な摂取量推定研究**

**渡邊敬浩**



## 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 研究分担報告書

各種有害物質の適時及び継続的な摂取量推定研究

研究代表者及び研究分担者

渡邊敬浩 国立医薬品食品衛生研究所食品部

#### 研究要旨

有害物質の摂取量推定値は、健康危害リスクの管理を目的に行政が規格値等を設定し、その後の経過を継続的に監視することで施策効果を検証するための科学的根拠である。また、自らがどのような有害物質のどのくらいの量を摂取しているかという、素直な国民の関心への答えとなる。従って、健康危害リスクの大きさを踏まえ、懸念が生じる蓋然性の高い有害物質の摂取量を適時かつ継続的に、より高い信頼性をもって推定することが必要である。

本研究では、1)各種有害物質の適時及び継続的な摂取量推定、2) 摂取量推定値の信頼性保証スキームの構築、3) 摂取量推定の実施の判断に必要な有害物質濃度の実態調査、の大きく3つに区分される研究を実施した。

1)各種有害物質の適時及び継続的な摂取量推定：健康危害リスクが生じる蓋然性の高い有害物質として、鉛、カドミウム、ヒ素、メチル水銀を含む有害元素及び PCBs を取り上げマーケットバスケット方式によるトータルダイエット研究の一環として、摂取量を推定した。

2)摂取量推定値の信頼性保証スキームの構築：分析値の信頼性が担保されていなければ、摂取量推定値を信頼することはできない。そこで、摂取量推定を目的とした分析に使用する方法の性能を評価するための試料(SEMP)を開発し、実際に摂取量推定のための分析に用いる多元素一斉分析法をモデルとし、性能評価手法を検討した。

3)摂取量推定の実施の判断に必要な有害物質濃度の実態調査：毒性や国際的な規制等の動向から優先度が高いと判断した多環芳香族炭化水素類(PAHs)、臭素系難燃剤(ヘキサブロモシクロドデカン)、塩素系難燃剤(デクロランプラス)を対象に食品濃度の実態等を調査した。

・有害物質摂取量調査研究協力者

国立医薬品食品衛生研究所食品部

片岡洋平、林智子、堤 智昭、植草義徳、高附巧、五十嵐敦子、手島玲子

国立医薬品食品衛生研究所食品衛生管理部 松田りえ子

北海道立衛生研究所 平間祐志、高橋哲夫

新潟県保健環境科学研究所 吉崎麻友子

横浜市衛生研究所 石井敬子

福井県衛生環境センター 中村雅子

名古屋市衛生研究所 寺田久屋、加藤陽康、加藤友香里

滋賀県衛生科学センター 小林博美

香川県環境保健研究センター 石川順子、安永恵

宮崎県衛生環境研究所 野崎祐司

沖縄県衛生環境研究所 古謝あゆ子

・有害物質実態調査研究協力者

福岡県保健環境研究所 高橋浩司、堀 就英、宮脇 崇

公益財団法人北九州生活科学センター 山本貴光

国立医薬品食品衛生研究所食品部 堤 智昭、足立利華

国立医薬品食品衛生研究所食品衛生管理部 松田りえ子

有害物質の摂取量推定値は、健康危害リスクの管理を目的に行政が規格値等を設定し、その後の経過を継続的に監視することで施策効果を検証するための科学的根拠である。また、自らがどのような有害物質のどのくらいの量を摂取しているかという、素直な国民の関心への答えとなる。従って、健康危害リスクを踏まえ、懸念が生じる蓋然性の高い有害物質の摂取量を適時かつ継続的に、より高い信頼性をもって推定することが必要である。

本研究では、1)各種有害物質の適時及

び継続的な摂取量推定、2)摂取量推定値の信頼性保証スキームの構築、3)摂取量推定の蓋然性の判断に必要な有害物質濃度の実態調査を目的に、大きく3つに区分される研究を実施した。

本分担課題で実施した研究内容は上記の通り多岐にわたるため、研究1)と研究2)とをまとめ、有害物質摂取量推定の部としてまず報告する。次いで、研究3)について、有害物質濃度実態調査の部として報告する。有害物質濃度の実態調査研究はハロゲン系難燃剤の部とPAHsの部とに分けて報告する。

**各種有害物質の適時及び継続的な摂取量推定研究・研究報告書  
有害物質摂取量推定の部**

## 各種有害物質の適時及び継続的な摂取量推定研究・研究報告書

### 有害物質摂取量推定の部

#### 研究要旨

1)各種有害物質の適時及び継続的な摂取量推定：本研究では、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試料の分析を通じ、鉛、カドミウム、ヒ素を含む14種の元素類、メチル水銀及びPCBsの摂取量を推定した。その結果、元素類の全国平均摂取量は B:1523.8 µg/man/day、Al:4687 µg/man/day、Ni:156.8 µg/man/day、Se:90.2 µg/man/day、Cd:17.6 µg/man/day、Sb: 2.2 µg/man/day、Ba:468.4 µg/man/day、Pb:10.4 µg/man/day、U: 1.0 µg/man/day、As:213.9 µg/man/day、Sn:228.9 µg/man/day、Cr:30.2 µg/man/day、Co:9.0 µg/man/day、Mo:225.3 µg/man/day と推定された。またメチル水銀とPCBsの全国平均摂取量は、それぞれ 6.7µg/man/day、436 ng/man/day と推定された。耐用摂取量(TDI)が設定されている有害物質については、推定された摂取量推定値が占める割合(対TDI比)を求めた。その結果、Niの78.4%を筆頭に、メチル水銀が50%以上、B、Al、Se、Cd、Baが30%以上、Uが10%以上となった。

2)摂取量推定値の信頼性保証スキームの構築:分析値の信頼性が担保されていなければ、摂取量推定値を信頼することはできない。そこで、摂取量推定を目的に使用する分析法の性能を評価するための試料(SEMP)を開発し、実際に摂取量推定のための分析に用いる多元素一斉分析法をモデルとし、性能評価手法を検討した。SEMPは通常の商品を選択の上合一、均質化した試料である。このため、SEMPには多元素一斉分析法の対象となる14元素が元素ごとに異なる濃度で含まれていた。しかし、分析値のバラツキは小さく、均質な試料であることが示された。SEMPの分析結果及び、推定すべき摂取量の大きさを踏まえ濃度を決め調製した添加試料の計画的な分析の結果から、多元素一斉分析法の真度と精度を推定した。その結果、一部の元素と試料の組合せを除き、真度は90~110%、併行精度は15%未満と推定された。

#### 研究協力者

国立医薬品食品衛生研究所食品部

片岡洋平、林智子、堤 智昭、植草義徳、高附巧、五十嵐敦子、手島玲子

国立医薬品食品衛生研究所食品衛生管理部

松田りえ子

北海道立衛生研究所

平間祐志、高橋哲夫

新潟県保健環境科学研究所

吉崎麻友子

横浜市衛生研究所	石井敬子
福井県衛生環境センター	中村雅子
名古屋市衛生研究所	寺田久屋、加藤陽康、加藤友香里
滋賀県衛生科学センター	小林博美
香川県環境保健研究センター	石川順子、安永恵
宮崎県衛生環境研究所	野崎祐司
沖縄県衛生環境研究所	古謝あゆ子

## A. 研究目的

### 研究 1) 各種有害物質の適時及び継続的な摂取量推定

本研究では、有害物質の適時及び継続的な摂取量推定を目的に、過去の研究成果や耐用摂取量が設定されていることを基準に、各種有害元素、メチル水銀及び PCBs を対象とした。各種有害元素、メチル水銀及び PCBs の摂取量は、マーケットバスケット(MB)方式によるトータルダイエツト(TD)研究の一環として推定した。なお、これら摂取量推定のための分析は、新たに開発した元素一斉分析法、メチル水銀分析法及び異性体別 PCBs 分析法の性能を確認した後、国立医薬品食品衛生研究所で実施した。

### 研究 2) 摂取量推定値の信頼性保証スキームの構築

TD 研究の一環として実施される摂取量推定では、人の食事を模したモデル試料の分析値と、食事の量(摂取食品重量)が根拠となる。従って、モデル試料が摂取量推定の目的に沿って適切に分析され、一定品質の分析値が得られているこ

とが、摂取量推定値の信頼性確保には不可欠な要件となる。そこで本研究では、摂取量推定値の信頼性保証スキームの構築を目的とし、摂取量推定に用いる分析法の性能評価手法の開発を検討した。

## B. 研究方法

### 研究 1) 各種有害物質の適時及び継続的な摂取量推定

#### 1)-1. TD 試料の調製

日本人が日常的に飲食する食事(日常食)からの有害物質摂取量を推定するため、日常食のモデルとなる TD 試料を MB 方式により調製した。TD 試料の調製は、試料に含める食品数を多くすることと、地域による食品摂取パターンの違いを考慮し、全国 10 カ所の衛生研究所等で行った。該当する各地域における個々の食品の摂取量には、平成 20 年度～22 年度の 3 カ年に行われた国民健康・栄養調査の結果を入手し、地域別に集計した結果(3 年間の平均値)を用いた。各地の小売店から食品を購入し、茹でる、焼く等の一般的な調理加工を行ってから、1 日当たりの摂取量に従って秤量し、混

合・均質化することで試料を調製した。

TD 試料は、混合・均質化の際に組み合わせる食品の種類に応じて、下記 14 群に分割して調製した。1 群:米及びその加工品、2 群:雑穀・芋、3 群:砂糖・菓子類、4 群:油脂類、5 群:豆・豆加工品、6:果実類、7 群:有色野菜、8 群:その他の野菜・海藻類、9 群:嗜好飲料、10 群:魚介類、11 群:肉・卵、12 群:乳・乳製品、13 群:調味料、14 群:飲料水。

調製された TD 試料は変質等による分析結果への影響に配慮し、不活性容器に入れ冷凍状態を保ちつつ、国立医薬品食品衛生研究所に収集した。全ての分析は、国立医薬品食品衛生研究所で実施した。

## 1)-2. 元素の一斉分析

### 1)-2-1. 試薬・試液

分析に使用した主たる試薬を以下に示す。

- ・水：メルク社製装置(Milli Q Element A10)により製造した超純水。(比抵抗 > 18.2MΩ・cm、TOC < 3 ppb)
- ・硝酸：硝酸 1.42 Ultrapur-100 (関東化学株式会社)
- ・過酸化水素水：Ultrapure (関東化学株式会社)
- ・各種元素標準原液 (ウランを除く)：Trace CERT ICP用 (シグマアルドリッチ社製)
- ・ウラン標準原液：XSTC-289 (西進商事)
- ・混合内部標準溶液：ベリリウム(Be)、ガリウム(Ga)、イットリウム(Y)、インジ

ウム(In)、タリウム(Tl)の濃度がそれぞれ 50 mg/L、20 mg/L、2 mg/L、10 mg/L、0.5 mg/L になるように各元素の標準原液から適量を分取し、硝酸 14 mL を加えた後、水で 100 mL に定容した。

### 1)-2-2. 機器

- ・マイクロ波分解装置：ETHOS-One 及び ETHOS-TC (マイルストーンゼネラル社製)
- ・ICP-MS：ICP-MS iCAP Q (サーモフィッシャーサイエンティフィック社製)

### 1)-2-3. 分析法

#### 測定溶液の調製

各分析用試料から 0.5 g をマイクロ波分解装置用容器に量り取った。硝酸 7 mL 及び過酸化水素水 1 mL を加え、分解した。分解後の溶液に、混合内部標準溶液 0.5 mL を添加後、水で 50 mL に定容した。定容後の溶液を測定溶液として ICP-MS により測定した。

#### 試料の分解条件

マイクロ波分解装置による分解は、以下の条件で行った。

70 ; 2 分間 50 ; 3 分間 200 ; 18 分間(50 から 200 までの温度変化に要する時間)。200 に到達した後、同温度でさらに 10 分間分解させた。

#### 測定条件

ICP-MS による測定は、以下の条

件で行った。なお、各測定パラメータは、標準試薬を用いた機器のキャリブレーション結果に基づき設定した。

・スプレーチャンバー：(ペルチェ冷却ジャケット付)サイクロン型

・コリジョンガス：ヘリウム(99.9999%)

・測定モード：KED(Kinetic Energy Discrimination: 運動エネルギー弁別)モード

・元素あたりの測定時間：1秒

(積分時間(s)：0.1、チャンネル数：1、スペース(u)：0.1、掃引数(回)：10)

・繰り返し測定回数：3

### **分析対象元素の測定質量数**

分析対象とした14種の元素と測定質量数は以下の通りである。(括弧内の数字が測定質量数)

ホウ素：B(11)、アルミニウム：Al(27)、クロム：Cr(52)、コバルト：Co(59)、ニッケル：Ni(60)、ヒ素：As(75)、セレン：Se(78)、モリブデン：Mo(95)、カドミウム：Cd(111)、スズ：Sn(118)、アンチモン：Sb(121)、バリウム：Ba(137)、鉛：Pb(208)、ウラン：U(238)。

### **内部標準元素の測定質量数**

内部標準とした元素と測定質量数は以下の通りである。(括弧内の数字が測定質量数)

Be(9)、Ga(71)、Y(89)、In(115)、Tl(205)。

### **測定値の補正における内部標準元素と分析対象元素の組み合わせ**

各分析対象元素に由来する測定値を、以下の組み合わせで内部標準

元素に由来する測定値により除し、補正した。

・Be：B、Al

・Ga：Cr、Co、Ni

・Y：As、Se

・In：Mo、Cd、Sn、Sb、Ba

・Tl：Pb、U

### **検量線の設計**

分析対象とした各種元素標準原液を量り取り、混合内部標準溶液0.5 mLを加えた後、適宜硝酸を加え水で50 mLに定容することにより、検量線作成用の混合標準溶液(検量線用溶液)を調製した。検量線は、分析対象とした元素ごとにブランクを含む16点(STD 0~15)の検量点を設定することを基本に設計した。ただし、ウランは混合標準溶液には含めず、別途、検量線用溶液を調製した。(ウラン分析用にはSTD0~11の12点を設定した)。設計した検量線の各検量点の濃度を表1及び表2に示した。

検量線用溶液をICP-MSに注入し、分析対象元素の測定値と内部標準元素の測定値の比(内標補正值)を算出し、内標補正值の対象元素濃度に対する一次回帰式を求め検量線を作成した。

定量に使用した検量線の範囲は、下式に示す戻し値バイアスが、検量点に設定した全濃度について15%未満(ただし、検量線の最下点

は 20%未満)になる範囲とした。

戻し値バイアス(%)=(戻し値-規定濃度)/規定濃度 × 100

戻し値：検量線の作成に使用した測定値を作成した検量線により検量して得られる値

### **各対象元素濃度の算出**

測定溶液から得られた測定値から内標補正值を算出した。次いで、作成した検量線の各パラメーターを用い、下式に従い測定溶液中の対象元素濃度を逆推定した。

測定溶液中の対象元素濃度 (mg/kg) = (Signal<sub>analyte</sub> / Signal<sub>IS</sub> - intercept) / slope

Signal<sub>analyte</sub>:対象元素由来の信号強度

Signal<sub>IS</sub>:内部標準元素由来の信号強度

Intercept:検量線の切片

Slope:検量線の傾き

測定溶液中濃度に、溶液調製時の試料の希釈倍率を乗じ、試料中濃度 (mg/kg) を算出し分析値とした。

### **1)-2-4. 検出下限及び定量下限**

試料を含めず全分析操作を実施する操作ブランク実験を、試料の分解に使用するすべての容器(計 54)を用いて行い、得られた定量値から標準偏差(σ)を推定し、その 3 倍の値(3σ)を

検出下限(LOD)、10 倍の値(10σ)を定量下限(LOQ)として推定した(表 3)。LOD を下回った値は ND とした。

### **1)-2-5. 分析計画**

1 つの TD 試料から 3 つの分析試料を採取し、3 併行分析を実施した。個々の分析試料の対象元素の濃度を求め、その平均値を分析値とし、摂取量推定に用いた。

### **1)-3. メチル水銀分析**

#### **1)-3-1. 試薬・試液**

メチル水銀の分析に使用した主たる試薬を以下に示す。

- ・塩化メチル水銀：ジーエルサイエンス
- ・アセトン及びトルエン：残留農薬・PCB 分析用(関東化学株式会社製)
- ・臭化カリウム：特級(和光純薬工業株式会社)
- ・硫酸銅(II)：鹿特級(関東化学株式会社)
- ・L-システイン塩酸塩一水和物：特級(和光純薬工業株式会社)
- ・テトラフェニルホウ酸ナトリウム：和光純薬工業株式会社
- ・ポリエチレングリコール 200：一級(和光純薬工業株式会社)
- ・1 mol/L 臭化カリウム溶液：臭化カリウム 119.0 g を水に溶解し、1 L とした。
- ・硫酸銅(II)飽和 4 mol/L 硫酸：水 600 mL に硫酸 200 mL を加え、放冷後、水を加えて 900 mL にした後、無水硫酸銅(II)を飽和するまで溶解させた。



・1% L-システイン溶液：L-システイン塩酸塩一水和物 10.0 g、酢酸ナトリウム三水和物 8.0 g、無水硫酸ナトリウム 125.0 g を水に溶解し、1 L とした。

・0.2 mol/L リン酸緩衝液(pH 7.0)：リン酸二水素ナトリウム二水和物 31.2 g を水に溶解して 1 L とし、これを第一液とした。リン酸水素二ナトリウム十二水和物 71.6 g を水に溶解して 1 L とし、これを第二液とした。第一液 380mL と第二液 610mL を混合し、必要に応じて、第一液を用いて pH を 7.0 に調整した。

#### 1)-3-2. 機器

・GC-MS/MS：TSQ Quantum XLS (サーモフィッシャーサイエンティフィック社製)

#### 1)-3-3. 分析法

##### 測定溶液の調製

各分析用試料から 10.0 g を量りとり、アセトン 100 mL を加え 30 秒間振とうした。アセトンを除去後、トルエン 100 mL を加え 30 秒間振とうした。遠心後、トルエンを除去し、1 mol/L 臭化カリウム溶液 40 mL、硫酸銅(II)飽和 4 mol/L 硫酸 40 mL 及びトルエン 80 mL を加え、30 分間激しく振とうした。遠心後、トルエン層を採取した。水層にトルエン 50 mL を加え 10 分間振とう後、同様に操作して得られたトルエン層を合わせた。1% L-システイン溶液 50 mL を加え 5 分間振とうし、静置後、水

層を採取した。6 mol/L 塩酸 30 mL、トルエン 30 mL を加え 5 分間振とう後、トルエン層を採取した。水層にトルエン 30 mL を加え 5 分間振とうし、トルエン層を合わせ、正確に 100 mL とした。トルエン溶液 4mL に 0.2 mol/L リン酸緩衝液(pH 7.0) 5 mL、1% テトラフェニルホウ酸ナトリウム溶液 1 mL を加え、室温に 10 分間静置後、遠心した。トルエン層を脱水後、1 mL を採取し、1.5 mg/mL PEG200 0.5 mL を正確に加え混合したものを測定溶液とした。

##### 測定条件

GC-MS/MS による測定は、以下の条件で行った。

- ・カラム：InertCap 5MS/NP (内径 0.25 mm、長さ 30 m、膜厚 0.25 μm)
- ・オープン温度：70 (1 min) 10 /min→160 (0 min) 20 /min 280 (5 min)
- ・注入口温度：250
- ・トランスファライン温度：280
- ・イオン源温度：280
- ・溶媒待ち時間：6 分
- ・注入量：1 μL
- ・キャリアガス(He)流量：1.0 mL/min
- ・イオン化法：EI
- ・分析モード：SRM
- ・モニターイオン： $m/z$  294  $m/z$  279(コリジョンエネルギー：5 V)

##### 検量線の設計

0、0.5、1.0、2.5、5.0 ng/mL の 5 点を検量点とする検量線を設計した。各濃度の塩化メチル水銀標準溶液を誘導体化

後、測定溶液の調製と同様に操作して、その 1 μL を GC-MS/MS に注入し、得られた測定値のメチル水銀濃度に対する一次回帰式を求め検量線を作成した。

#### 1)-4. 異性体別 PCBs 分析

##### 1)-4-1. 試薬・試液

異性体別 PCBs の分析に使用した主たる試薬を以下に示す。

- ・検量線用 PCB 標準液：TPCB-CSL-A、CS1-A、CS2-A、CS3-A、CS4-A、CS5-A (関東化学株式会社)
- ・クリーンアップスパイク標準液：TPCB-CL-A100 (関東化学株式会社)
- ・シリンジスパイク標準液：TPCB-SY-A100 (関東化学株式会社)
- ・209 異性体確認用標準液：M-1668A-1-0.01X、2-0.01X、3-0.01X、4-0.01X、5-0.01X (和光純薬工業株式会社)等容量混合したもの
- ・高分解能質量数補正用試薬：パーフルオロケロセン(PFK:L16596)(日本電子株式会社)
- ・アセトン、エタノール、ジクロロメタン、ヘキサン、ノナン：ダイオキシン類分析用(関東化学株式会社製)
- ・ヘキサン洗浄水：残留農薬試験用(関東化学株式会社製)
- ・塩化ナトリウム：残留農薬試験・PCB 試験用(関東化学株式会社製)
- ・無水硫酸ナトリウム：PCB 試験用(関東化学株式会社製)

・水酸化カリウム：特級(関東化学株式会社製)

・アルミナ(関東化学株式会社製)：ダイオキシン類分析用(関東化学株式会社製)

・多層シリカゲルカラム：内径 15 mm、長さ 30 cm のカラムに無水硫酸ナトリウム 2 g、シリカゲル 0.9 g、44%硫酸シリカゲル 3 g、シリカゲル 0.9 g、及び無水硫酸ナトリウム 2 g が順次充填されたもの(ジーエルサイエンス株式会社製)

・アルミナカラム：内径 15 mm、長さ 30 mm のカラムに無水硫酸ナトリウム 2 g、アルミナ 15 g、無水硫酸ナトリウム 2 g を順次充填し作製した。

・GC キャピラリーカラム：HT8-PCB(内径 0.25 mm x 60 m)(関東化学株式会社製)

##### 1)-4-2. 機器

・GC：HP 6890 Series GC System Plus (Hewlett Packard 社製)

・MS：JMS-700 (日本電子株式会社製)

##### 1)-4-3. 分析法

###### 測定溶液の調製

均一化した試料 20.0 g をビーカーに量りとり、クリーンアップスパイク 100 μL を加えた後、1 mol/L 水酸化カリウム・エタノール溶液を 100 mL 加え室温で 16 時間、スターラーで攪拌した。このアルカリ分解液を分液ロートに移した後、水 100 mL、ヘキサン 100 mL

を加え 10 分間振とう抽出した。静置後、ヘキサン層を分取し、水層にヘキサン 70 mL を加え同様の操作を 2 回行った。ヘキサン抽出液を合わせ、2%塩化ナトリウム溶液 100 mL を加えて緩やかに揺り動かし、静置後、水層を除き同様の操作を繰り返した。ヘキサン層の入った分液ロートに濃硫酸を適量加え、緩やかに振とうし、静置後、硫酸層を除去した。この操作を硫酸層の着色が薄くなるまで繰り返した。ヘキサン層をヘキサン洗浄水 10 mL で 2 回洗浄し、無水硫酸ナトリウムで脱水後、溶媒を減圧留去し約 2 mL のヘキサンに溶解した。この溶液を、ヘキサン 120 mL で洗浄した後の多層シリカゲルカラムに負荷し、ヘキサン 50 mL で溶出した。溶出液は溶媒を減圧留去し、約 2 mL のヘキサンに溶解した。この溶液を、ヘキサンで湿式充填したアルミナカラム負荷し、ヘキサン 100 mL で洗浄後、20%(v/v)ジクロロメタン含有ヘキサン 100 mL で溶出した。溶媒を窒素気流下でほぼ完全に留去後、シリンジスパイク 100  $\mu$ L を加え、GC-MS 測定溶液とした。

### **測定条件**

GC-MS による測定は、以下の条件で行った。

- ・注入方式：スプリットレス
- ・注入口温度：280
- ・注入量：2.0  $\mu$ L
- ・昇温条件：100 (1 分保持)-20 /分

-180 -2 /分-260 -5 /分- 300 (4 分保持)

- ・MS 導入部温度：280
- ・イオン源温度：280
- ・イオン化法：EI ポジティブ
- ・イオン化電圧：38 eV
- ・イオン化電流：600  $\mu$ A
- ・加速電圧：~ 10.0 kV
- ・分解能：10,000 以上

### **分析対象**

表 4 に挙げる PCBs 全 209 異性体を分析対象とした。

### **設定質量数**

各 PCBs 同族体の測定用設定質量数並びに、質量校正用に使用したパーフルオロケロセン(PFK)の設定質量数を表 5 に示す。

### **検量線の設計**

化学物質環境実態調査実施の手引き-平成 20 年度版-(環境省、平成 21 年 3 月)及び、排ガス中の POPs 測定方法マニュアル(環境省、平成 23 年 3 月)(以下、マニュアル)を参考にして、相対感度係数(RRF)法により検量線を作成した。

表 6 に示した検量線作成用標準液(TPCB-CSL-A、CS1-A、CS2-A、CS3-A、CS4-A、CS5-A の 6 点)をそれぞれ 3 回測定し、それら標準液に含まれる分析対象異性体について計 18 点の測定値を得た。またクリーンアップスパイク標準液及びシリンジスパイク標準液を測定し、それら溶液に含まれる標識された異性

体の測定値を得た。これら測定値のうち、検量線作成用標準液とクリーンアップスパイク標準液中の対応する異性体の測定値から RRF を、クリーンアップスパイク標準液とシリンジスパイク標準液中の対応する異性体の測定値から相対感度係数(RRF<sub>ss</sub>)を算出した。検量線作成用標準液に含まれる分析対象異性体のうち、同一の化学構造をもつ標識された異性体がない場合には、クリーンアップスパイク標準液に含まれる全異性体から得られた測定値の平均値を使用して RRF を算出した。これら RRF 及び RRF<sub>ss</sub> の変動は、10%(RSD%)以内になることを目標とした。

#### 1)-4-4. 検出下限及び定量下限

最低濃度の検量線作成用標準液 (TPCB-CSL-A) をノナンで 5 倍に希釈した溶液を GC-MS により測定し、その結果から、S/N=3 に相当する濃度を LOD、S/N=10 に相当する濃度を LOQ とした。標準液に含まれていない異性体については、同族体の標準品から得られた S/N の平均値に基づき LOD 及び LOQ を算出した。また、操作ブランク試験を 5 回行い、検出された異性体については、その測定値の標準偏差の 3 倍及び 10 倍の値を算出し、S/N から算出した値と比較後、より大きな値を LOD、又は LOQ とした。本分析法の異性体ごとの

LOD と LOQ を表 7 に示した。

#### 1)-4-5. 測定溶液の測定

測定溶液の測定開始時には、正しく測定できることを確認するために、3 濃度の標準液を測定し、RRF 及び RRF<sub>ss</sub> を求めた。これら測定開始時に得られた値が、検量線作成時の RRF 及び RRF<sub>ss</sub> と比較し、± 15% 以内にあることをもって、正しく測定できることの確認とした。

検量線作成時の RRF を用いて、測定溶液に含まれる各異性体を定量した。測定溶液から得られた異性体の信号が検量線の濃度範囲外となった場合は、外挿した。操作ブランク値が認められた異性体の定量では、操作ブランク値を差し引いた。なお、検量線作成用標準液に含まれない異性体の溶出位置は、209 全異性体を含む標準液を使用して決定した。

また、RRF<sub>s</sub> 値を用いクリーンアップスパイク標準液中の各異性体濃度を定量することで、定量精度が異常なく維持されていることを常に確認した。

### 研究 2) 摂取量推定値の信頼性保証スキームの構築

#### 2)-1. 摂取量推定を目的とした分析法の性能評価用試料 (Samples for evaluation of methods performance;

## SEMP)の開発

### SEMP 開発のコンセプト

SEMP の開発は、以下を基本的な考え方として検討した。

- ・摂取する食品の種類及びそれらの重量が大きく変化する影膳方式による試料ではなく、国民が平均的に摂取する食品の種類とその重量を反映した MB 方式による TD 試料のモデルとなること。

- ・MB 方式による試料のモデルとなる試料を開発することから、全ての食品をその類似性から 13 の群に分割し、群ごとに SEMP を開発すること。また、MB 方式による試料のモデルとすることから、必要に応じ各食品に基本的な調理加工を施すこと。

- ・各群を構成する食品は、摂取量の多さ(より大きいこと)を考慮して選択すると同時に、分析法の性能評価の対象となる有害物質等の持ち込みの可能性を極力低下させるために、食品の種類を制限すること。さらに、実際に SEMP の調製に使用する食品は、その商品情報(たとえば有機栽培といった)を十分に考慮の上、選択すること。

- ・十分な均質性が担保できる混合方法を採用すること。

### SEMP のレシピ

開発コンセプトに従い、各群 SEMP の調製に用いた各食品種名、それらの重量(混合量並びに混合割合)、調理加工の有無等、必要な情報をまとめたレシピを表 7 に示す。

表 7 に示した通り、各群の SEMP を 3000 ~ 5000 g 程度調製することを計画した。このように多量の食品をその均質性を担保しつつ混合することは、通常の試験室では難しい。そこで、食品製造事業者との共同研究体制を組織し、当該事業者が保有する食品製造用のプラントを用いて、SEMP は調製した。調製した SEMP は、約 100 g ずつ不活性容器に分取し小分け試料とした。

### SEMP を用いた分析法の性能評価手法の開発

研究 1 で実施した 14 種の(有害)元素の摂取量推定のために用いる分析法の性能評価をモデルとして、その手法を検討した。

規定濃度の標準品を添加した SEMP の計画的な分析により得られた分析値の解析から、分析法の真度及び精度の推定を試みた。

## C . D. 結果及び考察

### 研究 1)各種有害物質の適時及び継続的な摂取量推定

MB方式により全国10地域でTD試料を調製し、その分析により得られた値、すなわち各種(有害)物質のTD試料濃度と、各地域の食品摂取重量に基づき、各種(有害)物質の摂取量を推定した。

これらの摂取量を考察するに当たり、地域間比較は慎重に行わなければならない。TD試料の群として比較すれば、食品

摂取重量の地域差は最大でも2倍程度である。従って、摂取量推定値の地域差が2倍以上であった場合には、地域ごとに調製されたTD試料の濃度に差があることになる。しかしTD試料は、その地域にある時点で流通する食品を買い上げ、それらを組み合わせて調製される日常食のモデルであり、調製を一つの地域に限ったとしても、食品を買い上げる時期や、買い上げる食品の種類に応じて多様である。あるときに買い上げた一組みの食品から調製されたTD試料の濃度が仮に高かったからといって、常にその地域において摂取量が高めになるとは言えない。ある地域における摂取量を考察するのであれば、その地域における摂取量を複数の機会にわたって推定する必要がある。

本研究により得られた結果として、各種(有害)物質の地域別摂取量推定値を示すが、記述するにとどめ比較等を行わない。全国平均値についてのみ考察する。

#### 1)-1. 各種元素の摂取量推定

TD試料の分析を通じ、各種元素の摂取量を推定した。一斉分析法の対象となる14元素(B、Al、Ni、Se、Cd、Sb、Ba、Pb、U、As、Sn、Cr、Co、Mo)の地域・食品群別摂取量推定値を表9-1～表9-14に示す。LOD未満の分析結果が含まれる場合にのみ、試料濃度を0あるいはLOD/2 (ND=0あるいはND=LOD/2)とする2つの方式で摂取量を推定した。この場合には、Cd、Sb、Ba、Sn、Cr、Coの6元素が該当

した。上記元素の摂取量推定値を示した、表9-5、表9-6、表9-7、表9-11、表9-12、表9-13に明らかとなり、2つの方式で推定した摂取量はほぼ一致した。この結果は、十分に感度の高い分析法を採用することで、分析結果がNDとなる機会を極力減らし、LODがより低濃度に設定された効果といえる。ほぼ一致する推定値ではあるが、より安全側に立脚した推定に配慮し、2方式により摂取量を推定した場合には、2/LODの値を以後の集計と考察に用いる。

今回推定した総摂取量の値(食品群別摂取量推定値の総和)は全10地域を通じ、元素ごとに以下の範囲にあった。B:1294～1854 µg/man/day、Al:1632～23160 µg/man/day、Ni:103～214 µg/man/day、Se:78.2～98.8µg/man/day、Cd:11.9～32.4 µg/man/day、Sb: 0.9～8.8 µg/man/day、Ba:270～754 µg/man/day、Pb:3.8～30.9 µg/man/day、U: 0.5～1.9 µg/man/day、As:159.3～285.7 µg/man/day、Sn:2.4～1127.8 µg/man/day、Cr:18.3～46.6 µg/man/day、Co:5.3～16.3 µg/man/day、Mo:158.5～314.6 µg/man/day。

地域・食品群別摂取量推定値を集計し、食品群別摂取量と総摂取量の全国平均を表10に示した。ND=0とND=LOD/2として推定した2つの摂取量を示しているが、前述のとおりほぼ一致していることから、ND=LOD/2として推定した摂取量について以下述べる。また表は、耐用摂取量が設定されている元素(有害元素：B、Al、

Ni、Se、Cd、Sb、Ba、Pb、U)とそれ以外の元素(Sn、Cr、Co、Mo)に2分割して示した。Asの耐用摂取量は撤回されているが、有害元素の表に含めた。表に0.0の数値が含まれているが、これは小数点以下1桁で摂取量推定値を表記しているためであって、0ではない。各元素摂取量の全国平均は以下の通り推定された。B:1523.8 µg/man/day、Al:4687 µg/man/day、Ni:156.8 µg/man/day、Se:90.2 µg/man/day、Cd:17.6 µg/man/day、Sb: 2.2 µg/man/day、Ba:468.4 µg/man/day、Pb:10.4 µg/man/day、U: 1.0 µg/man/day、As:213.9 µg/man/day、Sn:228.9 µg/man/day、Cr:30.2 µg/man/day、Co:9.0 µg/man/day、Mo:225.3 µg/man/day。

総摂取量推定値に対する各群摂取量推定値の寄与率を図1に示した。図1を俯瞰することで、食品群別摂取量の総摂取量への寄与率のパターンは元素によって大きく異なることがわかる。本年度の研究によってはじめて摂取量を推定した元素については、図1に示した寄与率が一般的といえるか判断できない。つまり、ある特定の元素の摂取量を考察するうえで、総摂取量に対する寄与率が特定の食品群において高くあるいは低くなることは、現時点では判断できない。今後の継続研究の結果を待たなければならない。しかし、過去の研究の結果とも一致することから、Pb、As、Cdについては、図1に示した摂取寄与率が一般的であることが確認できる。つまり、1)Pbは特定の食品によらず様々な食品から摂取される、2)Asは主に

魚介類から摂取され、それに準じてその他野菜・海藻類からの摂取量が多い、3)Cdは米から最も多く摂取されるといえる。

元素としての特徴から一斉分析には向かない総水銀(Hg)は、別途ICP-MS法により分析した。また、これまでの研究の成果として、Hgはほぼ魚介類(10群)と肉類(11群)からしか検出されず、かつ10群摂取量が支配的であることが明らかとなっていた。このことを踏まえ、効率的に摂取量を推定するために、10群と11群のTD試料のみを分析した。全国10地域で調製された10群と11群のTD試料のHg分析結果に基づく摂取量推定値を表11に示す。

地域Jで調製された11群からは唯一Hgが検出されなかった。そのためHg摂取量はND=0とND=LOD/2の2つの方式で推定したが、結果はほぼ一致した。また、10群と11群それぞれからの摂取量の和をHg摂取量とし各群の寄与率を計算すると、10群の寄与率が最も低い地域であっても95.9%となり、支配的であることが確認された(表12)。このHg摂取量の推定結果を踏まえ、メチル水銀の分析は10群のみを対象とし実施した。10群のTD試料の分析を通じてメチル水銀摂取量を推定した結果、メチル水銀摂取量は、全10地域を通じ2.11～15.92 µg/man/dayの範囲にあり、全国平均は6.7µg/man/dayと推定された(表13)。

## 1)-2. PCB類の摂取量推定

TD試料の分析を通じ、PCBs類の摂取

量を推定した。今年度の研究から、高分解能GC-MS法を用いることで、209あるPCBsの異性体別測定を可能とし、同じ塩素化数の異性体をまとめた同族体別摂取量、また同族体別摂取量の総和として総PCBs摂取量を推定した。またメチル水銀摂取量推定の場合と同様に、これまでの研究からPCBsはほぼ10群と11群からしか検出されず、かつ10群摂取量が支配的であることが明らかになっていることを踏まえ、10群と11群のTD試料のみを分析した。

10群の分析結果に基づくPCBs摂取量推定値を表14に、11群の分析結果に基づくPCBs摂取量推定値を表15に示した。一部異性体の分析結果がLOD未満であったため、摂取量は $ND=0$ と $ND=LOD/2$ の2つの方式により推定した。2つの方式により推定された摂取量を比較すると、10群ではほぼ一致している。11群からの摂取量推定値は、推定方式を $ND=LOD/2$ とした場合にやや高めとなっているが、大きく乖離してはいない。この結果は、十分に感度の高い分析法を採用することで、分析結果がNDとなる機会を極力減らし、LODをより低濃度に設定した効果といえる。ほぼ一致する推定値ではあるが、より安全側に立脚した推定に配慮し、2方式により摂取量を推定した場合には、 $2/LOD$ の値を以後の集計と考察に用いる。

全10地域を通じ、10群からの総PCBs摂取量は223～558 ng/man/dayの範囲、11群から総PCBs摂取量は13.3～88.1

ng/man/dayの範囲で推定された。

図2には、総PCBs摂取量に占める各同族体摂取量の割合を示した。10群からの総PCBs摂取量は主に3～7塩素化同族体摂取量によって占められており、TD試料の調製地域に依存していない。このことから、魚介類からの総PCBs摂取量は主に3～7塩素化同族体摂取量によって占められるのが一般的といえるかもしれない。一方の11群には、この特徴が認められず、総PCBs摂取量に各同族体摂取量が占める割合は地域(試料)ごとに大きく変わっている。11群に分類される畜肉等に含まれるPCBsは、魚介類が海洋環境に含まれるPCBsを食物連鎖も経て蓄積するのに対し、主に餌となる牧草等の摂取によって蓄積されたものと考えられる。PCBsを蓄積する経路の違いや、生体内での代謝の異なりが、今回得られた同族体摂取量割合の違いの原因であり、10群と11群から摂取するPCBs同族体の特徴といえるのかもしれない。継続研究によって確認すべき課題である。

10群と11群試料の分析からそれぞれ推定したPCBs摂取量の和を求め、PCBs総摂取量として表16に示した。PCBs総摂取量は10地域を通じて239～629 ng/man/dayの範囲にあり、全国平均は436 ng/man/dayと推定された。

### 1)-3. 有害元素及びPCBs摂取量の対TDI比と経年変化

今年度本研究で摂取量を推定した元素



のうち、耐用摂取量(TDI)の設定されている有害元素(B、Al、Ni、Se、Cd、Sb、Ba、Pb、U)、メチル水銀、PCBs摂取量の対TDI比を求め、表17に示した。ヒ素の有害性を疑う余地はないが、JECFAによって撤回されたのち、新たな耐用摂取量の設定はされていないため、対TDI比の算出は控えた。今回の推定結果に基づけば、Ni摂取量の対TDI比が78.4%と計算され最も高い。この値に準じてメチル水銀摂取量の対TDI比も50%を超えている。そのほか、B、Al、Se、Cd、Ba摂取量の対TDI比が30%を超えており、年次推移を監視すべきと考える。U摂取量とPb摂取量の対TDI比はそれぞれ約10%と6%であり、上記の有害元素に比べれば低値であるが、Uについては初めて摂取量を推定した有害元素であるため複数年にわたる監視が必要と考える。

これまで30年以上にわたり推定してきたPb、Cd、As、Hg、PCBsについて、今年度の結果も加えた摂取量推定値の経年変化を図3～図7に示した。As、Hg、Cdの摂取量は30年間にわたりわずかに減少が認められるもののほぼ一定の値で推移している。PbとPCBs摂取量は1990年代までに大きく減少して以降ほぼ下げ止まり、安定して推移している。

対TDI比を指標としてPbとPCBsの摂取量を他の有害元素等の摂取量と比較すると、十分に低下しているとも評価できる。しかし、規制等の場面においてALARAの原則等の適用が図られることに鑑みる

と、少ないながらも摂取量が推定される間は、検出頻度を踏まえて分析するTD試料の群を限定することや、隔年で摂取量を推定するなどの効率化を図りつつ、継続して監視する必要があると考える。

昨年度までは、TD試料を調製する各協力機関でそれぞれ分析された結果に基づき摂取量を推定してきた。本年度からは、協力機関が調製したすべてのTD試料を国立医薬品食品衛生研究所に集め、同所一機関で分析することに大きく方向転換を図った。分析には、事前に性能評価した分析法を用いたが、これは分析法の性能に関する客観的な証拠を準備し第三者に開示可能とすることで、摂取量推定値の信頼性を確保することが目的である。年次推移をみる限り、本年度推定された摂取量は、これまでに推定されてきた摂取量と矛盾なく一致している。この一致によって、昨年度までに推定されてきた摂取量の信頼性も、より増したことと考える。

## 研究 2) 摂取量推定値の信頼性保証スキームの構築

TD研究では、MB方式あるいは陰膳方式によって調製された試料(TD試料)を分析する。この分析に用いる方法については、1985年にWHOが公表したガイドライン「Guidelines for the study of dietary intakes of chemical contaminants」や2011年にEFSA、WHO、FAOが共同で公表したガイドライン「Towards a harmonised Total Diet Study

approach: a guidance document」において、摂取量推定の目的に合致した方法を選択すると同時に、その妥当性を確認することが指示されている。前述のとおり、摂取量推定を目的として使用する分析法の妥当性確認への国際的な要求が示されているが、その具体的な方法(摂取量推定に使用する分析法の性能評価手法)は未発達である。

本研究ではMB方式によるTD試料を模した分析法性能評価用試料(SEMP)の開発を検討した。また開発したSEMPを用い、本年度の摂取量推定にも使用した元素の一斉分析法を一つのモデルとして、性能評価手法の開発を検討した。

## 2)-1. 開発したSEMPの元素濃度

SEMPは、MB方式によるTD試料の区分に従い、1～13の群(これに試料調製機関で採水した水道水を加えた14の群)別の試料として開発した。各群に含める個々の食品は、1)候補となる食品の内、摂取重量が基本的に上位5位に入ること、2)食品成分表や販売時に付帯している商品表示に情報がある場合にはそれを参照し、可能な限り分析対象となる元素濃度が低いと考えられることを規準に選別した。摂食に必要な最低限の調理を施した後、表8に挙げた食品の種類と重量によって各群試料を構成し、合一した。分析法の性能評価用試料であるため、SEMPが分析対象となる元素濃度の分布をもつこと(その分布の幅が広いこと)は望ましくない。つまり、SEMPにはより高い均質性が要求される。このより高

い均質性を達成するために、合一した食品の混合は、食品製造用のプラントを用い、食品製造事業者の経験を踏まえて実施した。混合後の試料は、100 gを単位として不活性容器に小分けした。

約30個に小分けした試料から無作為に5個の試料を抜き出し、元素一斉分析法により分析して得られた結果を表18に示す。表18-1には5個の試料から得られた分析値の平均を、表18-2には、そのバラツキ(標準偏差)を示した。分析対象の一部は、本来的に食品に含まれている元素であるため、SEMPからも検出され、その濃度がある程度の分布をもつことが分かる。たとえばSEMP1群のB濃度の平均値は0.2 mg/kgであり、そのバラツキはRSD%として約4%である。この分析値のバラツキには、分析によるバラツキが寄与していることを考えると、SEMP1群のB濃度の分布は極めて小さい。一方、分布の観点から結果をみれば、SEMP8群のAs濃度等のバラツキがRSD%として200%超え、一見大きい感じられる。しかし、濃度の平均値は0.000004 mg/kgであり、総摂取量への寄与の点からは無視できるほど小さい。分析による分析値のバラツキの寄与も大きいだろう。

SEMPを用いた分析法の性能評価手法として、適切な濃度を添加し、添加した試料を一定の計画に従って分析し得られた分析値から、分析法の真度と精度を推定する手順について検討した。

添加濃度決定の基本的な考え方としては、1)分析による分析値のバラツキの SEMP 濃度分布への寄与が無視できるほどに高い濃度がそもそも SEMP に含まれていた場合には、その濃度の 2 倍量を添加する、2)分析による分析値のバラツキが SEMP 濃度分布への寄与に対し支配的であることが疑われる低い濃度が SEMP に含まれていた場合には、SEMP から得られた分析値の平均+2 標準偏差に相当する濃度を求め、継続して摂取量推定している有害元素に関しては過去の推定時に検出された濃度に比べ低いことを確認した後に添加することとした。このような考え方に基づき決定した添加濃度の一覧を表 19 に示した。

表 19 に示した濃度で各元素を添加した SEMP を 5 併行で分析して得られた分析値から推定した、元素一斉分析法の真度と精度を表 21 に示す。SEMP 全 14 群と分析対象全 14 元素の組合せ(組合せ総数 194)を通じ、真度は 80 ~ 128%、精度は RSD%として 0.3 ~ 17.9%の範囲で推定された。ある特定の元素の SEMP 全群を通じた真度、精度が低い、あるいは SEMP の特定の群での全元素の真度、精度が低いといった傾向も認められない。以上の結果から、摂取量推定のための分析法が有すべき性能として、妥当な性能であることが確認できたと判断した。

摂取量推定ではその推定のための算術に LOD の値を用いる。この LOD の値は、本研究でも実施したように、分析対象となる試料を含まないブランクを操作する実験の結果等から推定される、いわば分析系の性能を表す値である。しかし実際には、試料に含まれているある濃度が、どのくらいの性能で分析され、どのような値を取り得るのかを検証し保証することが必要である。この検証に使用するのに適した試料として SEMP は開発され、実際に元素の一斉分析法をモデルに、添加濃度の決定も含めた信頼性保証手順が構築された。今後、異なる分析対象への適用検討が期待される。

#### 4)まとめ

##### 研究 1)各種有害物質の適時及び継続的な摂取量推定

本研究により、元素類の全国平均摂取量は B:1523.8  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Al:4687  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Ni:156.8  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Se:90.2  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Cd:17.6  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Sb: 2.2  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Ba:468.4  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Pb:10.4  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、U: 1.0  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、As:213.9  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Sn:228.9  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Cr:30.2  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Co:9.0  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Mo:225.3  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ と推定された。またメチル水銀とPCBsの全国平均摂取量は、それぞれ 6.7 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、436 ng/man/dayと推定された。耐用摂取量(TDI)が設定されている有害物質については、推定された摂取量推

定値が占める割合(対TDI比)を求めた。その結果、Niの78.4%を筆頭に、メチル水銀が50%以上、B、Al、Se、Cd、Baが30%以上、Uが10%以上となった。これら有害物質の摂取量推定は、積極的に継続して実施すべきと考える。またPbとPCBsの対TDI比はそれぞれ5.8%と0.2%であり、上記の有害物質の対TDI比に比べ小さな値ではあるが、規制等の場面においてALARAの原則等の適用が図られることに鑑みると、少ないながらも摂取量が推定される間は、推定方法の効率化を図りつつ、継続して監視する必要があると考える。

## 研究 2) 摂取量推定値の信頼性保証スキームの構築

摂取量推定を目的とした分析法の性能評価用試料(SEMP)が開発され、実際に元素の一斉分析法をモデルに、添加濃度の決定も含めた信頼性保証手順が構築された。今後、異なる分析対象への適用検討が期待される。

## E. 研究発表

### 1. 論文発表

渡邊敬浩、石川智子、松田りえ子；GC-FIDを用いたトランス脂肪酸分析法の性能評価手法および性能基準値の検討、食品衛生学雑誌、54(1)、31-48、2013

### 2. 学会発表

中村雅子、平井知里、酒井康行、

五十嵐麻衣、山崎慶子、石畝史(福井県衛生環境研究センター)、青木保憲(福井県坂井健康福祉センター)、渡邊敬浩(国立医薬品食品衛生研究所)；福井県における日常食中の汚染物質摂取量調査。第41回北陸公衆衛生学会(2013.11)

渡邊敬浩、片岡洋平、五十嵐敦子、高橋哲夫、清水正法、高津和弘、寺田久屋、小林博美、中村雅子、石川順子、山本雄三、古謝あゆ子、松田りえ子、手島玲子；有害物質摂取量の推移と今後の推定について。第106回日本食品衛生学会学術講演会(2013.11)

分析対象	濃度 (ng/mL)															
	STD 0	STD 1	STD 2	STD 3	STD 4	STD 5	STD 6	STD 7	STD 8	STD 9	STD 10	STD 11	STD 12	STD 13	STD 14	STD 15
B, Al	0	2	4	5	10	25	50	75	100	250	500	750	1000	1500	2000	2500
Se	0	-	0.25	0.5	0.75	1	2.5	5	10	25	50	100	250	500	750	1000
Ba	0	0.1	0.25	0.5	0.75	1	2.5	5	10	25	50	100	250	500	750	1000
As	0	-	-	0.05	0.075	0.1	0.25	0.5	1	2.5	5	10	25	50	100	250
Co, Cr, Ni, Mo, Sn, Cd, Sb, Pb	0	0.01	0.025	0.05	0.075	0.1	0.25	0.5	1	2.5	5	10	25	50	100	250

表 1 元素一斉分析法において設計した検量線 (ウランを除く)

分析対象	濃度 (ng/mL)											
	STD 0	STD 1	STD 2	STD 3	STD 4	STD 5	STD 6	STD 7	STD 8	STD 9	STD 10	STD 11
U	0	0.01	0.025	0.05	0.075	0.1	0.25	0.5	1	2.5	5	10

表 2 ウラン分析に用いた検量線

	LOD	LOQ
	(mg/kg)	(mg/kg)
B	0.0111	0.0370
Al	0.0304	0.101
Ni	0.00133	0.00444
Se	0.00135	0.00451
Cd	0.0000423	0.000141
Sb	0.000471	0.00157
Ba	0.000947	0.00316
Pb	0.00242	0.00808
U	0.0000605	0.000202
As	0.000570	0.00190
Sn	0.00102	0.00339
Cr	0.00178	0.00594
Co	0.0000687	0.000229
Mo	0.00000369	0.0000123

表 3 元素一斉分析法の検出下限及び定量下限の値

IUPAC No.	異性体	IUPAC No.	異性体	IUPAC No.	異性体
MoCBs	1 2-Chlorobiphenyl	TeCBs	40 22'33'-Tetrachlorobiphenyl	PeCBs	82 22'33'4'-Pentachlorobiphenyl
	2 3-Chlorobiphenyl		41 22'34'-Tetrachlorobiphenyl		83 22'33'5'-Pentachlorobiphenyl
	3 4-Chlorobiphenyl		42 22'34''-Tetrachlorobiphenyl		84 22'33'6'-Pentachlorobiphenyl
DiCBs	4 22'-Dichlorobiphenyl		43 22'35'-Tetrachlorobiphenyl		85 22'344'-Pentachlorobiphenyl
	5 23'-Dichlorobiphenyl		44 22'35''-Tetrachlorobiphenyl		86 22'345'-Pentachlorobiphenyl
	6 23'-Dichlorobiphenyl		45 22'36'-Tetrachlorobiphenyl		87 22'345''-Pentachlorobiphenyl
	7 24'-Dichlorobiphenyl		46 22'36''-Tetrachlorobiphenyl		88 22'346'-Pentachlorobiphenyl
	8 24'-Dichlorobiphenyl		47 22'44'-Tetrachlorobiphenyl		89 22'346''-Pentachlorobiphenyl
	9 25'-Dichlorobiphenyl		48 22'45'-Tetrachlorobiphenyl		90 22'345'5'-Pentachlorobiphenyl
	10 26'-Dichlorobiphenyl		49 22'45''-Tetrachlorobiphenyl		91 22'346'6'-Pentachlorobiphenyl
	11 33'-Dichlorobiphenyl		50 22'46'-Tetrachlorobiphenyl		92 22'355'-Pentachlorobiphenyl
	12 34'-Dichlorobiphenyl		51 22'46''-Tetrachlorobiphenyl		93 22'356'-Pentachlorobiphenyl
	13 34'-Dichlorobiphenyl		52 22'55'-Tetrachlorobiphenyl		94 22'356''-Pentachlorobiphenyl
	14 35'-Dichlorobiphenyl		53 22'56'-Tetrachlorobiphenyl		95 22'356'6'-Pentachlorobiphenyl
	15 44'-Dichlorobiphenyl		54 22'66'-Tetrachlorobiphenyl		96 22'366'-Pentachlorobiphenyl
TrCBs	16 22'3-Trichlorobiphenyl		55 233'4'-Tetrachlorobiphenyl		97 22'345'5'-Pentachlorobiphenyl
	17 22'4-Trichlorobiphenyl		56 233'4''-Tetrachlorobiphenyl		98 22'346'6'-Pentachlorobiphenyl
	18 22'5-Trichlorobiphenyl		57 233'5'-Tetrachlorobiphenyl		99 22'44'5'-Pentachlorobiphenyl
	19 22'6-Trichlorobiphenyl		58 233'5''-Tetrachlorobiphenyl		100 22'44'6'-Pentachlorobiphenyl
	20 233'-Trichlorobiphenyl		59 233'6'-Tetrachlorobiphenyl		101 22'455'-Pentachlorobiphenyl
	21 234'-Trichlorobiphenyl		60 2344'-Tetrachlorobiphenyl		102 22'456'-Pentachlorobiphenyl
	22 234'-Trichlorobiphenyl		61 2345'-Tetrachlorobiphenyl		103 22'456''-Pentachlorobiphenyl
	23 235'-Trichlorobiphenyl		62 2346'-Tetrachlorobiphenyl		104 22'466'-Pentachlorobiphenyl
	24 236'-Trichlorobiphenyl		63 2345'-Tetrachlorobiphenyl		105 233'44'-Pentachlorobiphenyl
	25 23'4'-Trichlorobiphenyl		64 234'6'-Tetrachlorobiphenyl		106 233'45'-Pentachlorobiphenyl
	26 23'5'-Trichlorobiphenyl		65 2356'-Tetrachlorobiphenyl		107 233'45''-Pentachlorobiphenyl
	27 23'6'-Trichlorobiphenyl		66 23'44'-Tetrachlorobiphenyl		108 233'46'-Pentachlorobiphenyl
	28 244'-Trichlorobiphenyl		67 23'45'-Tetrachlorobiphenyl		109 233'4'5'-Pentachlorobiphenyl
	29 245'-Trichlorobiphenyl		68 23'45''-Tetrachlorobiphenyl		110 233'4'6'-Pentachlorobiphenyl
	30 246'-Trichlorobiphenyl		69 23'46'-Tetrachlorobiphenyl		111 233'55'-Pentachlorobiphenyl
	31 24'5'-Trichlorobiphenyl		70 23'4'5'-Tetrachlorobiphenyl		112 233'56'-Pentachlorobiphenyl
	32 24'6'-Trichlorobiphenyl		71 23'4'6'-Tetrachlorobiphenyl		113 233'5'6'-Pentachlorobiphenyl
	33 (23'4')2'34'-Trichlorobiphenyl		72 23'55'-Tetrachlorobiphenyl		114 2344'5'-Pentachlorobiphenyl
	34 (23'5')2'35'-Trichlorobiphenyl		73 23'5'6'-Tetrachlorobiphenyl		115 2344'6'-Pentachlorobiphenyl
	35 33'4'-Trichlorobiphenyl		74 244'5'-Tetrachlorobiphenyl		116 23456'-Pentachlorobiphenyl
	36 33'5'-Trichlorobiphenyl		75 244'6'-Tetrachlorobiphenyl		117 234'56'-Pentachlorobiphenyl
	37 344'-Trichlorobiphenyl		76 23'4'5'-Tetrachlorobiphenyl		118 23'44'5'-Pentachlorobiphenyl
	38 345'-Trichlorobiphenyl		77 33'44'-Tetrachlorobiphenyl		119 23'44'6'-Pentachlorobiphenyl
	39 34'5'-Trichlorobiphenyl		78 33'45'-Tetrachlorobiphenyl		120 23'45'5'-Pentachlorobiphenyl
	79 33'45''-Tetrachlorobiphenyl	121 23'45'6'-Pentachlorobiphenyl			
	80 33'55'-Tetrachlorobiphenyl	122 233'4'5'-Pentachlorobiphenyl			
	81 344'5'-Tetrachlorobiphenyl	123 23'44'5'-Pentachlorobiphenyl			
		124 23'4'55'-Pentachlorobiphenyl			
		125 23'4'5'6'-Pentachlorobiphenyl			
		126 33'44'5'-Pentachlorobiphenyl			
		127 33'455'-Pentachlorobiphenyl			

表 4-1 分析対象とした全 209 異性体 (MoCBs ~ PeCBs まで)

IUPAC No.	異性体	IUPAC No.	異性体			
HxCBs	128	22'33'44'-Hexachlorobiphenyl	HpCBs	170	22'33'44'5'-Heptachlorobiphenyl	
	129	22'33'45'-Hexachlorobiphenyl		171	22'33'44'6'-Heptachlorobiphenyl	
	130	22'33'45'-Hexachlorobiphenyl		172	22'33'455'-Heptachlorobiphenyl	
	131	22'33'46'-Hexachlorobiphenyl		173	22'33'456'-Heptachlorobiphenyl	
	132	22'33'46'-Hexachlorobiphenyl		174	22'33'456'-Heptachlorobiphenyl	
	133	22'33'55'-Hexachlorobiphenyl		175	22'33'45'6'-Heptachlorobiphenyl	
	134	22'33'56'-Hexachlorobiphenyl		176	22'33'466'-Heptachlorobiphenyl	
	135	22'33'56'-Hexachlorobiphenyl		177	22'33'4'56'-Heptachlorobiphenyl	
	136	22'33'66'-Hexachlorobiphenyl		178	22'33'55'6'-Heptachlorobiphenyl	
	137	22'344'5'-Hexachlorobiphenyl		179	22'33'566'-Heptachlorobiphenyl	
	138	22'344'5'-Hexachlorobiphenyl		180	22'344'55'-Heptachlorobiphenyl	
	139	22'344'6'-Hexachlorobiphenyl		181	22'344'56'-Heptachlorobiphenyl	
	140	22'344'6'-Hexachlorobiphenyl		182	22'344'56'-Heptachlorobiphenyl	
	141	22'3455'-Hexachlorobiphenyl		183	22'344'5'6'-Heptachlorobiphenyl	
	142	22'3456'-Hexachlorobiphenyl		184	22'344'66'-Heptachlorobiphenyl	
	143	22'3456'-Hexachlorobiphenyl		185	22'3455'6'-Heptachlorobiphenyl	
	144	22'345'6'-Hexachlorobiphenyl		186	22'34566'-Heptachlorobiphenyl	
	145	22'3466'-Hexachlorobiphenyl		187	22'34'55'6'-Heptachlorobiphenyl	
	146	22'34'55'-Hexachlorobiphenyl		188	22'34'566'-Heptachlorobiphenyl	
	147	22'34'56'-Hexachlorobiphenyl		189	233'44'55'-Heptachlorobiphenyl	
	148	22'34'56'-Hexachlorobiphenyl		190	233'44'56'-Heptachlorobiphenyl	
	149	22'34'5'6'-Hexachlorobiphenyl		191	233'44'5'6'-Heptachlorobiphenyl	
	150	22'34'66'-Hexachlorobiphenyl		192	233'455'6'-Heptachlorobiphenyl	
	151	22'355'6'-Hexachlorobiphenyl		193	233'4'55'6'-Heptachlorobiphenyl	
	152	22'3566'-Hexachlorobiphenyl		OcCBs	194	22'33'44'55'-Octachlorobiphenyl
	153	22'44'55'-Hexachlorobiphenyl			195	22'33'44'56'-Octachlorobiphenyl
	154	22'44'56'-Hexachlorobiphenyl			196	22'33'44'56'-Octachlorobiphenyl
	155	22'44'66'-Hexachlorobiphenyl			197	22'33'44'66'-Octachlorobiphenyl
	156	233'44'5'-Hexachlorobiphenyl			198	22'33'455'6'-Octachlorobiphenyl
157	233'44'5'-Hexachlorobiphenyl	199	22'33'455'6'-Octachlorobiphenyl			
158	233'44'6'-Hexachlorobiphenyl	200	22'33'4566'-Octachlorobiphenyl			
159	233'455'-Hexachlorobiphenyl	201	22'33'45'66'-Octachlorobiphenyl			
160	233'456'-Hexachlorobiphenyl	202	22'33'55'66'-Octachlorobiphenyl			
161	233'45'6'-Hexachlorobiphenyl	203	22'344'55'6'-Octachlorobiphenyl			
162	233'4'55'-Hexachlorobiphenyl	204	22'344'566'-Octachlorobiphenyl			
163	233'4'56'-Hexachlorobiphenyl	205	233'44'55'6'-Octachlorobiphenyl			
164	233'4'5'6'-Hexachlorobiphenyl	NoCBs	206		22'33'44'55'6'-Nonachlorobiphenyl	
165	233'55'6'-Hexachlorobiphenyl		207	22'33'44'566'-Nonachlorobiphenyl		
166	2344'56'-Hexachlorobiphenyl		208	22'33'455'66'-Nonachlorobiphenyl		
167	23'44'55'-Hexachlorobiphenyl	DeCB	209	22'33'44'55'66'-Decachlorobiphenyl		
168	23'44'5'6'-Hexachlorobiphenyl					
169	33'44'55'-Hexachlorobiphenyl					

表 4-2 分析対象とした全 209 異性体 (HxCBs ~ DeCB まで)

		設定質量数	
		定量用イオン	確認用イオン
分析対象物質	MoCBs	188.0393	190.0364
	DiCBs	222.0003	223.9974
	TrCBs	255.9613	257.9587
	TeCBs	289.9224	291.9195
	PeCBs	323.8834	325.8805
	HxCBs	359.8415	361.8386
	HpCBs	393.8025	395.7996
	OcCBs	427.7636	429.7606
	NoCBs	461.7246	463.7216
	DeCB	497.6826	499.6797
内標準物質	<sup>13</sup> C <sub>12</sub> -MoCBs	200.0795	202.0766
	<sup>13</sup> C <sub>12</sub> -DiCBs	234.0406	236.0376
	<sup>13</sup> C <sub>12</sub> -TrCBs	268.0016	269.9986
	<sup>13</sup> C <sub>12</sub> -TeCBs	301.9629	303.9597
	<sup>13</sup> C <sub>12</sub> -PeCBs	335.9237	337.9207
	<sup>13</sup> C <sub>12</sub> -HxCBs	371.8817	373.8788
	<sup>13</sup> C <sub>12</sub> -HpCBs	405.8428	407.8398
	<sup>13</sup> C <sub>12</sub> -OcCBs	439.8038	441.8008
	<sup>13</sup> C <sub>12</sub> -NoCBs	473.7648	475.7619
<sup>13</sup> C <sub>12</sub> -DeCB	509.7229	511.7199	
質量校正用PFK	1,2,3塩素化同族体	242.9856	
	4,5,6,7塩素化同族体	380.9760	
	8,9,10塩素化同族体	430.9729	

表5 分析対象同族体及び内標準(標識された同族体)の測定における設定質量数



	同族体	異性体 (IUPAC No.)					濃度 (ng/mL)						
							標準液	CSL-A	CS1-A	CS2-A	CS3-A	CS4-A	CS5-A
分析対象異性体	MoCBs	1	3					0.4	2	10	50	200	1000
	DiCBs	4	8	10	11	12	15	0.4	2	10	50	200	1000
	TrCBs	18	19	28	31	33	35	0.2	1	5	25	100	500
		37	38					0.2	1	5	25	100	500
	TeCBs	44	49	52	54	57	66	0.2	1	5	25	100	500
		70	74	77	78	79	81	0.2	1	5	25	100	500
	PeCBs	87	95	99	101	104	105	0.2	1	5	25	100	500
		110	114	118	123	126		0.2	1	5	25	100	500
	HxCBs	138	149	153	155	156	157	0.2	1	5	25	100	500
		162	167	169				0.2	1	5	25	100	500
	HpCBs	170	174	180	187	188	189	0.2	1	5	25	100	500
	OcCBs	194	195	200	202	203	205	0.4	2	10	50	200	1000
	NoCBs	206	208					0.4	2	10	50	200	1000
DeCB	209						0.4	2	10	50	200	1000	
標識異性体 (クリーンアップ スパイク用)	<sup>13</sup> C <sub>12</sub> -MoCBs	3L						50	50	50	50	50	50
	<sup>13</sup> C <sub>12</sub> -DiCBs	8L						50	50	50	50	50	50
	<sup>13</sup> C <sub>12</sub> -TrCBs	28L	31L					25	25	25	25	25	25
		52L	77L	81L				25	25	25	25	25	25
	<sup>13</sup> C <sub>12</sub> -PeCBs	101L	105L	114L	118L	123L	126L	25	25	25	25	25	25
	<sup>13</sup> C <sub>12</sub> -HxCBs	153L	156L	157L	167L	169L		25	25	25	25	25	25
		170L	180L	189L				25	25	25	25	25	25
	<sup>13</sup> C <sub>12</sub> -OcCBs	194L						50	50	50	50	50	50
	<sup>13</sup> C <sub>12</sub> -NoCBs	206L						50	50	50	50	50	50
<sup>13</sup> C <sub>12</sub> -DeCB	209L						50	50	50	50	50	50	
標識異性体 (シリンジスパイク用)	<sup>13</sup> C <sub>12</sub> -DiCBs	9L						50	50	50	50	50	50
	<sup>13</sup> C <sub>12</sub> -TrCBs	19L						25	25	25	25	25	25
	<sup>13</sup> C <sub>12</sub> -TeCBs	70L						25	25	25	25	25	25
	<sup>13</sup> C <sub>12</sub> -PeCBs	111L						25	25	25	25	25	25
	<sup>13</sup> C <sub>12</sub> -HxCBs	138L						25	25	25	25	25	25
	<sup>13</sup> C <sub>12</sub> -HpCBs	178L						25	25	25	25	25	25
<sup>13</sup> C <sub>12</sub> -OcCBs	205L						50	50	50	50	50	50	

表6 検量線作製(RRF及びRRF<sub>ss</sub>算出)用標準液の組成

PCBs	Isomer (IUPAC No.)	検出下限 (ng/g)	定量下限 (ng/g)	PCBs	Isomer (IUPAC No.)	検出下限 (ng/g)	定量下限 (ng/g)
MoCBs	#1	0.00015	0.00050	PeCBs	#106	0.00010	0.00034
	#2	0.000035	0.00012		#108	0.00010	0.00034
	#3	0.000082	0.00027		#109/#107	0.00010	0.00034
DiCBs	#4	0.00021	0.00069		#111	0.00010	0.00034
	#6	0.000060	0.00020		#112/#119	0.00010	0.00034
	#7	0.000060	0.00020		#113	0.00010	0.00034
	#8/#5	0.00027	0.00089		#114	0.00010	0.00033
	#9	0.000060	0.00020		#118	0.00011	0.00036
	#10	0.000043	0.00014		#120/#110	0.000075	0.00025
	#11	0.00036	0.0012		#121	0.00010	0.00034
	#13/#12	0.000073	0.00024		#122	0.00010	0.00034
	#14	0.000060	0.00020		#123	0.00015	0.00050
	#15	0.00025	0.00082		#124	0.00010	0.00034
TrCBs	#16	0.00017	0.00056		#125/#116	0.00010	0.00034
	#17	0.000057	0.00019		#126	0.00016	0.00053
	#18	0.00037	0.0012		#127	0.00010	0.00034
	#19	0.000080	0.00027	HxCBs	#128	0.000079	0.00026
	#20/#33	0.00039	0.0013		#129	0.000079	0.00026
	#21	0.000057	0.00019		#130	0.000079	0.00026
	#22	0.00018	0.00061		#131	0.000079	0.00026
	#23	0.000057	0.00019		#132	0.000079	0.00026
	#24	0.000057	0.00019		#133	0.000079	0.00026
	#25	0.000089	0.00030		#134	0.000079	0.00026
	#26	0.00023	0.00077		#135	0.000079	0.00026
	#27	0.000057	0.00019		#136	0.000079	0.00026
	#28	0.0010	0.0033		#137	0.000079	0.00026
	#29	0.000057	0.00019		#138	0.000082	0.00027
	#30	0.000057	0.00019		#140	0.000079	0.00026
	#31	0.00052	0.0017		#141	0.000079	0.00026
	#32	0.00019	0.00064		#142	0.000079	0.00026
	#34	0.000057	0.00019		#143	0.000079	0.00026
	#35	0.000063	0.00021		#144	0.000079	0.00026
	#36	0.000057	0.00019		#145	0.000079	0.00026
	#37	0.0010	0.0034		#146	0.000079	0.00026
	#38	0.000067	0.00022		#147	0.000079	0.00026
	#39	0.000057	0.00019		#148	0.000079	0.00026
TeCBs	#40	0.000067	0.00022		#149/#139	0.000058	0.00019
	#41	0.000067	0.00022		#150	0.000079	0.00026
	#42	0.000067	0.00022		#151	0.000079	0.00026
	#43	0.000067	0.00022		#152	0.000079	0.00026
	#44	0.00014	0.00047		#153	0.000079	0.00026
	#45	0.000067	0.00022		#154	0.000079	0.00026
	#46	0.000067	0.00022		#155	0.000072	0.00024
	#48/#47	0.00052	0.00174		#156	0.000063	0.00021
	#49	0.000074	0.00025		#157	0.000078	0.00026
	#50	0.000067	0.00022		#158	0.000079	0.00026
	#51	0.000067	0.00022		#159	0.000079	0.00026
	#52/#69	0.00062	0.0021		#160	0.000079	0.00026
	#53	0.000067	0.00022		#161	0.000079	0.00026
	#54	0.000040	0.00013		#162	0.000095	0.00032
	#55	0.000067	0.00022		#164/#163	0.000079	0.00026
	#56	0.000067	0.00022		#165	0.000079	0.00026
	#57	0.000044	0.00015		#166	0.000079	0.00026
	#58	0.000067	0.00022		#167	0.000059	0.00020
	#59	0.000067	0.00022		#168	0.000079	0.00026
	#60	0.000067	0.00022		#169	0.00012	0.00041
	#61	0.000067	0.00022	HpCBs	#170	0.00018	0.00059
	#62	0.000067	0.00022		#171	0.00012	0.00041
	#63	0.000067	0.00022		#172	0.00012	0.00041
	#64	0.000067	0.00022		#173	0.00012	0.00041
	#65/#75	0.000067	0.00022		#174	0.00012	0.00041
	#66	0.00070	0.00233		#175	0.00012	0.00041
	#67	0.000067	0.00022		#176	0.00012	0.00041
	#68	0.000067	0.00022		#177	0.00012	0.00041
	#70	0.00039	0.0013		#178	0.00012	0.00041
	#71	0.000067	0.00022		#179	0.00012	0.00041
	#72	0.000067	0.00022		#180	0.00010	0.00033
	#73	0.000067	0.00022		#181	0.00012	0.00041
	#74	0.000065	0.00022		#182/#187	0.000081	0.00027
	#76	0.000067	0.00022		#183	0.00012	0.00041
	#77	0.000091	0.00030		#184	0.00012	0.00041
	#78	0.000076	0.00025		#185	0.00012	0.00041
	#79	0.000065	0.00022		#186	0.00012	0.00041
	#80	0.000067	0.00022		#188	0.000066	0.00022
	#81	0.000091	0.00030		#189	0.00019	0.00065
PeCBs	#82	0.00010	0.00034		#190	0.00012	0.00041
	#83	0.00010	0.00034		#191	0.00012	0.00041
	#84	0.00010	0.00034		#192	0.00012	0.00041
	#85	0.00010	0.00034		#193	0.00012	0.00041
	#86/#117/#97	0.00010	0.00034	OcCBs	#194	0.00030	0.0010
	#87/#115	0.000091	0.00030		#195	0.00029	0.00095
	#88	0.00010	0.00034		#196	0.00038	0.0013
	#89	0.00010	0.00034		#197	0.00038	0.0013
	#90	0.00010	0.00034		#198	0.00038	0.0013
	#91	0.00010	0.00034		#199	0.00038	0.0013
	#92	0.00010	0.00034		#200	0.00052	0.0017
	#94	0.00010	0.00034		#201	0.00038	0.0013
	#96	0.00010	0.00034		#202	0.00035	0.0012
	#98/#95	0.000087	0.00029		#203	0.00048	0.0016
	#99	0.00011	0.00037		#204	0.00038	0.0013
	#100	0.00010	0.00034		#205	0.00034	0.0011
	#101	0.000072	0.00024	NoCBs	#206	0.00071	0.0024
	#102/#93	0.00010	0.00034		#207	0.00059	0.0020
	#103	0.00010	0.00034		#208	0.00048	0.0016
	#104	0.000063	0.00021	DeCB	#209	0.00025	0.00083
	#105	0.00012	0.00041				

表7 PCBs分析法の検出下限及び定量下限の値

試料群	食品名	混合量 (g)	混合比 (%)	群総重量 (g)	調理の有無	調理の方法
I	米飯	5250	100.0	5250	有	炊飯器を用いて炊飯した
II	食パン	1277	27.5	4639	無	
	ゆでうどん	1530	33.0		有	乾麺を3分間ゆでた
	ゆでジャガイモ	1047	22.6		有	15分間ゆでた後、皮をむいた
	ゆでサトイモ	785	16.9		有	15分間ゆでた後、皮をむいた
III	上白糖	998	21.9	4548	無	
	水ようかん	1680	36.9		無	
	ショートケーキ	993	21.8		無	
	プリン	877	19.3		無	
IV	有塩バター	793	24.0	3309	無	
	マーガリン	1825	55.1		無	
	オリーブ油	692	20.9		無	
V	絹ごし豆腐	3382	71.7	4717	無	
	生揚げ	734	15.6		無	
	納豆	600	12.7		無	
VI	みかん	971	22.2	4368	無	外皮を除去した
	バナナ	651	14.9		無	外皮を除去した
	りんご	885	20.3		無	外皮及び芯を除去した
	パインアップル	1398	32.0		無	外皮及び芯を除去した
	オレンジジュース	464	10.6		無	
VII	トマト	907	18.3	4958	無	へたを除去した
	にんじん	1095	22.1		無	外皮及びへたを除去した
	ほうれん草	978	19.7		無	根を除去した
	アスパラガス	1979	39.9		無	根を除去した
VIII	キャベツ	852	15.6	6113	無	最外葉から数葉及び芯を除去した
	大根	1338	21.9		無	外皮及びへたを除去した
	たまねぎ	1170	19.1		無	外皮を除去した
	はくさい	848	13.9		無	最外葉から数葉及び芯を除去した
	なす	1805	29.5		無	へたを除去した
IX	煎茶	3948	57.8	6834	無	
	コーヒー飲料	1656	24.2		無	
	サイダー	1229	18.0		無	
X	まあじ(鮮魚)	979	22.5	4353	有	三枚おろしにし、頭、胸鰭、尻尾、骨を除去した
	あなご(加工品)	851	19.6		無	
	まあじ開き干し	1596	36.7		有	頭、胸鰭、尻尾、骨を除去した
	ちくわ	927	21.3		無	
XI	和牛ロース	793	12.2	6495	無	
	豚肉ロース	1825	28.1		無	
	ロースハム	692	10.7		無	
	とりもも肉	1219	18.8		無	
	ゆで卵	1967	30.3		有	15分間ゆでた後、殻を除去した
XII	牛乳	5168	80.0	6462	無	
	プレーンヨーグルト	1294	20.0		無	
XIII	濃い口しょうゆ	763	18.1	4222	無	
	赤だし味噌	555	13.1		無	
	本みりん	2904	68.8		無	

表 8 摂取量推定を目的とした分析法の性能評価用試料(SEMP)の調製レシピ

MB試料(群)	地域									
	A	B	C	D	E	F	G	H	H	J
1	85.1	94.7	68.5	61.0	58.2	53.4	98.7	79.3	76.3	83.8
2	92.8	108	79.5	97.3	77.7	96.5	100	107	142	72.3
3	37.1	39.4	19.7	22.2	36.7	35.0	35.1	41.1	19.0	20.5
4	0.218	0.224	0.229	0.107	0.159	0.185	0.222	0.128	0.283	0.113
5	179	214	180	207	170	93.9	190	153	194	210
6	175	354	180	142	172	192	232	192	130	209
7	136	201	147	126	166	155	192	179	167	160
8	189	270	823	197	213	233	347	457	263	273
9	68.0	235	98.5	198	210	197	145	169	213	43.8
10	49.5	46.8	37.0	35.4	40.8	37.3	46.9	32.7	85.9	48.4
11	11.5	9.69	11.3	22.2	18.7	19.0	9.49	11.7	11.8	22.2
12	24.3	26.3	27.1	31.3	31.8	27.7	38.7	21.2	24.4	27.8
13	276	243	171	218	179	152	182	174	206	133
14	79.7	10.7	10.2	4.43	4.68	2.52	2.36	5.68	8.78	3.72
総和	1404	1854	1853	1362	1378	1294	1620	1624	1543	1307

μg/man/day

表 9-1 ホウ素の地域・食品群別摂取量

MB試料(群)	地域									
	A	B	C	D	E	F	G	H	H	J
1	8.28	14.0	10.4	9.60	1.56	20.5	33.9	37.3	19.5	2.65
2	93.1	406	1060	394	90.2	120	146	130	186	379
3	543	394	39.6	38.7	285	337	280	445	163	469
4	0.172	0.567	0.224	0.178	0.188	0.205	0.210	0.144	3.05	0.316
5	14.6	73.1	27.4	50.5	37.8	18.9	70.6	72.8	28.4	119
6	14.0	12.1	25.8	14.1	4.79	21.1	25.6	22.3	14.6	22.5
7	127	100	124	213	87.1	138	42.1	39.0	95.2	157
8	102	126	20425	154	59.6	861	459	91.8	136	147
9	445	2174	752	782	533	1723	1453	882	1356	262
10	77.8	104	242	202	269	267	548	116	357	416
11	30.5	252	153	83.9	82.6	120	58.7	51.1	189	69.0
12	0.97	2.01	3.46	5.81	2.24	5.47	9.78	1.31	1.42	0.864
13	175	54.9	297	648	295	135	142	113	171	197
14	0.744	0.0683	1.64	4.81	2.71	1.72	0.270	5.49	4.04	3.00
総和	1632	3712	23160	2601	1750	3768	3269	2008	2723	2244

μg/man/day

表 9-2 アルミニウムの地域・食品群別摂取量

MB試料(群)	地域									
	A	B	C	D	E	F	G	H	H	J
1	17.7	30.1	28.7	13.1	13.9	10.2	19.4	20.3	11.9	24.5
2	9.09	9.07	16.6	19.5	9.31	13.0	9.37	8.95	11.7	5.52
3	3.50	8.75	4.90	5.43	4.27	4.86	4.56	4.57	0.879	6.68
4	0.0288	0.00699	0.0232	0.0202	0.0132	0.0183	0.0164	0.0186	0.0115	0.0644
5	13.0	27.5	28.2	31.2	40.9	16.3	34.4	24.6	49.2	33.7
6	10.6	15.9	11.9	5.76	7.33	10.0	13.1	3.34	2.38	5.94
7	1.76	26.0	6.36	4.64	4.83	15.3	3.80	11.0	48.5	3.67
8	9.95	20.8	67.7	20.1	5.68	6.27	23.7	13.9	9.11	12.3
9	9.42	39.0	25.2	14.1	8.61	78.1	13.6	17.1	42.0	12.4
10	6.14	2.18	1.73	0.798	1.43	0.968	4.32	0.626	5.04	2.57
11	0.605	0.874	0.985	3.13	1.31	3.78	1.13	0.944	1.15	1.17
12	0.625	0.0103	0.0816	0.178	0.206	0.179	0.387	0.0397	0.229	0.0922
13	20.8	33.3	15.3	22.9	21.4	18.3	28.6	16.1	21.4	14.8
14	0.0245	0.365	0.230	0.0472	0.138	0.0311	0.0259	0.0705	0.0559	0.134
総和	103	214	208	141	119	177	156	122	204	124

μg/man/day

表 9-3 ニッケルの地域・食品群別摂取量

MB試料(群)	地域									
	A	B	C	D	E	F	G	H	H	J
1	3.68	7.84	2.67	1.74	4.41	2.23	5.87	4.64	2.29	6.14
2	13.5	17.6	23.2	18.5	23.2	14.8	13.1	11.8	16.0	21.5
3	0.522	1.22	1.36	0.700	1.03	1.06	1.01	0.630	0.983	0.689
4	0.0259	0.0296	0.0498	0.0390	0.0340	0.0224	0.0494	0.0483	0.0527	0.00921
5	0.358	2.26	1.00	3.26	1.43	5.61	4.97	2.16	1.66	2.66
6	0.205	0.340	0.252	0.270	0.193	0.226	0.255	0.177	0.157	0.126
7	0.170	0.413	0.362	0.164	0.092	0.160	0.108	0.179	0.149	0.329
8	0.787	0.745	4.29	0.744	0.829	0.988	1.03	0.345	0.370	0.480
9	0.364	0.647	0.680	0.568	0.243	0.868	1.29	0.765	0.619	0.369
10	26.4	33.2	33.6	35.7	24.0	30.9	37.3	31.7	44.7	29.4
11	20.4	21.7	22.3	25.2	22.7	26.5	18.19	24.2	22.5	24.3
12	3.25	2.58	3.21	3.15	2.74	2.71	3.28	2.40	2.57	2.99
13	8.18	2.17	2.00	8.36	4.42	5.19	3.09	3.73	2.80	3.10
14	0.340	0.434	0.314	0.474	0.262	0.500	0.436	0.499	0.662	0.548
総和	78.2	91.2	95.3	98.8	85.6	91.8	90.0	83.4	95.6	92.6

μg/man/day

表 9-4 セレンの地域・食品群別摂取量

MB試料(群)	地域										
	A	B	C	D	E	F	G	H	H	J	
1	2.21	6.80	1.61	7.74	2.32	4.66	8.17	8.71	1.86	20.7	
2	2.15	1.90	2.06	2.19	2.34	2.15	3.50	1.50	2.53	1.87	
3	0.277	0.426	0.243	0.447	0.420	0.500	0.588	0.365	0.0786	0.283	
4	0.000104	0.000153	0.0000858	0.000176	0.000147	0.000256	0.000297	0.00000577	0.000117	0.000187	
5	0.391	0.705	0.943	0.580	0.732	0.964	1.17	0.408	1.52	0.543	
6	0.128	0.322	0.0441	0.204	0.0339	0.0520	0.150	0.0770	0.129	0.0444	
7	1.72	1.76	1.11	0.817	2.27	1.51	0.917	3.18	1.35	1.06	
8	2.01	3.42	7.16	2.21	2.09	1.92	5.96	2.97	1.40	3.94	
9	0.0154	0.296	0.379	0.0467	0.0365	0.0536	0.0993	0.277	0.384	0.0268	
10	1.82	1.06	1.51	0.829	0.682	2.43	2.32	0.673	2.95	3.32	
11	0.0178	0.0395	0.157	0.0376	0.0487	0.0609	0.0832	0.0229	0.128	0.0602	
12	0.00281	0.00405	0.00287	0.00462	0.00930	0.00496	0.00472	0.00235	0.00223	0.00196	
13	0.760	0.903	0.654	0.945	0.870	0.637	0.627	1.02	0.852	0.521	
14	0.000000	0.000000	0.00362	0.000000	0.000000	0.000000	0.00	0.000000	0.000000	0.0115	
総和	11.5	17.6	15.9	16.0	11.9	14.9	23.6	19.2	13.2	32.4	

μg/man/day

表 9-5 カドミウムの地域・食品群別摂取量(ND=0)

MB試料(群)	地域										
	A	B	C	D	E	F	G	H	H	J	
1	2.21	6.80	1.61	7.74	2.32	4.66	8.17	8.71	1.86	20.7	
2	2.15	1.90	2.06	2.19	2.34	2.15	3.50	1.50	2.53	1.87	
3	0.277	0.426	0.243	0.447	0.420	0.500	0.588	0.365	0.0786	0.283	
4	0.000104	0.000153	0.0000858	0.000176	0.000147	0.000256	0.000297	0.00000577	0.000117	0.000187	
5	0.391	0.705	0.943	0.580	0.732	0.964	1.17	0.408	1.52	0.543	
6	0.128	0.322	0.0441	0.204	0.0339	0.0520	0.150	0.0770	0.129	0.0444	
7	1.72	1.76	1.11	0.817	2.27	1.51	0.917	3.18	1.35	1.06	
8	2.01	3.42	7.16	2.21	2.09	1.92	5.96	2.97	1.40	3.94	
9	0.0154	0.296	0.379	0.0467	0.0365	0.0536	0.0993	0.277	0.384	0.0268	
10	1.82	1.06	1.51	0.829	0.682	2.43	2.32	0.673	2.95	3.32	
11	0.0178	0.0395	0.157	0.0376	0.0487	0.0609	0.0832	0.0229	0.128	0.0602	
12	0.00281	0.00405	0.00287	0.00462	0.00930	0.00496	0.00472	0.00235	0.00223	0.00196	
13	0.760	0.903	0.654	0.945	0.870	0.637	0.627	1.02	0.852	0.521	
14	0.00529	0.00529	0.00362	0.00529	0.00529	0.00529	0.00529	0.00529	0.00529	0.0115	
総和	11.5	17.6	15.9	16.1	11.9	15.0	23.6	19.2	13.2	32.4	

μg/man/day

表 9-5 カドミウムの地域・食品群別摂取量(ND=LOD/2)

MB試料(群)	地域									
	A	B	C	D	E	F	G	H	H	J
1	0.0658	0.102	0.0823	0.130	0.107	0.102	0.0736	0.209	0.121	0.141
2	0.111	0.0623	0.208	0.0845	0.0479	0.130	0.0558	0.0702	0.0737	0.149
3	0.0448	0.105	0.0297	4.52	0.0290	0.0270	0.0227	0.0312	0.0214	0.0208
4	0.000416	0.00252	0.00124	0.000217	0.000940	0.000406	0.00161	0.000793	0.000425	0.00548
5	0.000000	0.00418	0.0175	0.00439	0.00235	0.00790	0.00585	0.0111	0.00144	0.000000
6	0.0678	0.0473	0.0373	0.123	0.0222	0.0239	0.0725	0.0638	0.0290	0.0319
7	0.0402	0.0846	0.0379	0.117	0.0951	0.0618	0.0476	0.0306	0.0317	0.123
8	0.110	0.179	0.380	0.405	0.0657	0.342	0.157	0.211	0.288	0.281
9	0.128	0.489	0.401	0.337	0.168	0.196	0.208	0.286	0.683	0.166
10	0.0995	0.134	0.0890	0.0475	0.0433	0.0355	0.0869	0.0943	0.140	0.101
11	0.0434	0.238	0.148	0.697	0.591	1.30	0.0827	0.0735	0.0343	0.425
12	0.0258	0.0125	0.0683	0.0385	0.0104	0.0261	0.0254	0.0214	0.0212	0.0214
13	0.0733	0.0795	0.0516	2.24	0.0943	0.122	0.0970	0.152	0.0565	0.0971
14	0.0738	0.0269	0.0339	0.0502	0.0318	0.0120	0.0257	0.0253	0.00114	0.00255
総和	0.9	1.6	1.6	8.8	1.3	2.4	1.0	1.3	1.5	1.6

μg/man/day

表 9-6 アンチモンの地域・食品群別摂取量(ND=0)

MB試料(群)	地域									
	A	B	C	D	E	F	G	H	H	J
1	0.0658	0.102	0.0823	0.130	0.107	0.102	0.0736	0.209	0.121	0.141
2	0.111	0.0623	0.208	0.0845	0.0479	0.130	0.0558	0.0702	0.0737	0.149
3	0.0448	0.105	0.0297	4.52	0.0290	0.0270	0.0227	0.0312	0.0214	0.0208
4	0.000416	0.00252	0.00124	0.000217	0.000940	0.000406	0.00161	0.000793	0.000425	0.00548
5	0.0102	0.00418	0.0175	0.00439	0.00235	0.00790	0.00585	0.0111	0.00144	0.0162
6	0.0678	0.0473	0.0373	0.123	0.0222	0.0239	0.0725	0.0638	0.0290	0.0319
7	0.0402	0.0846	0.0379	0.117	0.0951	0.0618	0.0476	0.0306	0.0317	0.123
8	0.110	0.179	0.380	0.405	0.0657	0.342	0.157	0.211	0.288	0.281
9	0.128	0.489	0.401	0.337	0.168	0.196	0.208	0.286	0.683	0.166
10	0.0995	0.134	0.0890	0.0475	0.0433	0.0355	0.0869	0.0943	0.140	0.101
11	0.0434	0.238	0.148	0.697	0.591	1.30	0.0827	0.0735	0.0343	0.425
12	0.0258	0.0125	0.0683	0.0385	0.0104	0.0261	0.0254	0.0214	0.0212	0.0214
13	0.0733	0.0795	0.0516	2.24	0.0943	0.122	0.0970	0.152	0.0565	0.0971
14	0.0738	0.0269	0.0339	0.0502	0.0318	0.0120	0.0257	0.0253	0.00114	0.00255
総和	0.9	1.6	1.6	8.8	1.3	2.4	1.0	1.3	1.5	1.6

μg/man/day

表 9-6 アンチモンの地域・食品群別摂取量(ND=LOD/2)

MB試料(群)	地域									
	A	B	C	D	E	F	G	H	H	J
1	4.60	34.0	22.1	13.9	8.30	8.11	26.0	12.3	16.6	7.41
2	57.0	121	71.7	113	81.8	69.8	101	166	106	107
3	19.0	20.2	35.5	11.6	12.5	16.7	12.8	12.5	11.2	13.0
4	0.000000	0.0981	0.0199	0.000000	0.000000	0.000000	0.499	0.0610	0.651	0.000000
5	17.4	22.4	52.5	30.8	51.6	32.7	86.4	23.3	64.6	54.4
6	11.4	28.4	43.3	17.3	20.1	54.5	53.8	31.2	23.9	26.3
7	30.0	28.7	124	25.2	67.0	56.1	97.7	30.5	82.8	30.4
8	31.0	48.9	296	47.1	36.2	87.7	120	33.6	75.7	82.1
9	8.09	46.5	27.2	15.7	11.2	32.2	18.7	26.9	34.6	6.20
10	9.24	7.26	7.94	4.06	12.8	5.44	8.36	5.28	24.5	6.87
11	15.2	53.3	33.8	39.4	36.8	12.2	15.6	25.9	13.1	8.57
12	13.1	9.72	12.7	11.9	10.3	10.1	13.2	8.75	8.24	7.07
13	51.7	53.4	25.3	89.8	53.8	37.7	58.5	37.2	38.9	48.3
14	1.98	2.24	2.07	0.756	1.96	2.06	2.53	2.45	2.46	1.54
総和	270	476	754	421	404	425	615	416	503	399

μg/man/day

表 9-7 バリウムの地域・食品群別摂取量(ND=0)

MB試料(群)	地域									
	A	B	C	D	E	F	G	H	H	J
1	4.60	34.0	22.1	13.9	8.30	8.11	26.0	12.3	16.6	7.41
2	57.0	121	71.7	113	81.8	69.8	101	166	106	107
3	19.0	20.2	35.5	11.6	12.5	16.7	12.8	12.5	11.2	13.0
4	0.00388	0.0981	0.0199	0.00469	0.00442	0.00424	0.499	0.0610	0.651	0.00434
5	17.4	22.4	52.5	30.8	51.6	32.7	86.4	23.3	64.6	54.4
6	11.4	28.4	43.3	17.3	20.1	54.5	53.8	31.2	23.9	26.3
7	30.0	28.7	124	25.2	67.0	56.1	97.7	30.5	82.8	30.4
8	31.0	48.9	296	47.1	36.2	87.7	120	33.6	75.7	82.1
9	8.09	46.5	27.2	15.7	11.2	32.2	18.7	26.9	34.6	6.20
10	9.24	7.26	7.94	4.06	12.8	5.44	8.36	5.28	24.5	6.87
11	15.2	53.3	33.8	39.4	36.8	12.2	15.6	25.9	13.1	8.57
12	13.1	9.72	12.7	11.9	10.3	10.1	13.2	8.75	8.24	7.07
13	51.7	53.4	25.3	89.8	53.8	37.7	58.5	37.2	38.9	48.3
14	1.98	2.24	2.07	0.756	1.96	2.06	2.53	2.45	2.46	1.54
総和	270	476	754	421	404	425	615	416	503	399

μg/man/day

表 9-7 バリウムの地域・食品群別摂取量(ND=LOD/2)



MB試料(群)	地域									
	A	B	C	D	E	F	G	H	H	J
1	0.125	0.286	0.291	0.357	0.125	1.49	1.49	0.497	0.429	0.490
2	2.33	0.632	0.414	0.513	0.299	15.5	1.89	0.589	0.695	0.516
3	0.239	0.0957	0.0943	0.183	0.242	0.463	0.189	0.145	0.0925	0.485
4	0.0119	0.00477	0.00446	0.0138	0.00339	0.00836	0.00531	0.00265	0.00534	0.0149
5	0.148	0.323	0.131	0.454	0.179	0.424	0.427	0.255	0.187	0.272
6	0.334	0.318	0.270	0.757	0.166	0.985	0.447	0.149	0.503	0.517
7	0.571	0.488	0.413	0.727	0.282	0.353	0.868	0.214	0.284	0.341
8	0.364	0.401	12.9	2.18	0.467	1.43	2.10	0.685	0.646	0.559
9	0.609	1.23	0.752	0.552	0.692	2.34	1.48	1.04	1.40	0.759
10	4.19	0.691	0.749	0.328	0.542	0.658	1.31	0.464	0.532	1.22
11	0.196	0.118	0.110	0.441	0.289	3.25	0.392	0.112	0.204	0.244
12	0.157	0.078	0.051	0.102	0.060	0.452	0.172	0.054	0.099	0.074
13	0.687	0.658	0.686	0.878	0.471	3.522	0.778	0.353	0.181	1.84
14	0.0109	0.124	0.189	0.00632	0.0152	0.00337	0.00540	0.000807	0.0397	0.0792
総和	10.0	5.4	17.1	7.5	3.8	30.9	11.6	4.6	5.3	7.4

μg/man/day

表 9-8 鉛の地域・食品群別摂取量

MB試料(群)	地域									
	A	B	C	D	E	F	G	H	H	J
1	0.244	0.00168	0.00155	0.00190	0.000103	0.000697	0.00110	0.00257	0.00230	0.000980
2	0.0101	0.0297	0.0360	0.0534	0.0163	0.0242	0.116	0.0405	0.0558	0.0785
3	0.00882	0.00621	0.0114	0.00613	0.00461	0.00315	0.0144	0.00713	0.00353	0.0118
4	0.0000229	0.0000593	0.00224	0.0000331	0.0000236	0.0000829	0.000117	0.000429	0.0000713	0.000132
5	0.00802	0.0120	0.00710	0.0158	0.00934	0.0163	0.0146	0.0232	0.00822	0.00790
6	0.00364	0.0561	0.00120	0.00196	0.000651	0.00117	0.000978	0.00210	0.0149	0.000947
7	0.0177	0.0123	0.0108	0.0139	0.00840	0.00538	0.00325	0.00411	0.00640	0.0190
8	0.0316	0.0515	1.53	0.964	0.697	0.452	0.774	0.290	0.399	0.164
9	0.00851	0.0794	0.0106	0.0124	0.0123	0.0251	0.0213	0.0369	0.0418	0.00870
10	0.131	0.182	0.199	0.0874	0.237	0.122	0.340	0.207	0.240	0.273
11	0.00708	0.00798	0.00538	0.00367	0.00744	0.0105	0.0290	0.0325	0.0117	0.0167
12	0.00208	0.00127	0.00429	0.00261	0.00380	0.0662	0.0208	0.00357	0.0372	0.00948
13	0.340	0.0911	0.104	0.137	0.101	0.105	0.0404	0.0434	0.0733	0.0501
14	0.00164	0.00110	0.000715	0.000973	0.00117	0.000150	0.000138	0.00130	0.000471	0.0000420
総和	0.8	0.5	1.9	1.3	1.1	0.8	1.4	0.7	0.9	0.6

μg/man/day

表 9-9 ウランの地域・食品群別摂取量

MB試料(群)	地域									
	A	B	C	D	E	F	G	H	H	J
1	11.5	22.9	18.5	19.0	19.1	9.92	23.6	14.0	8.22	18.7
2	0.643	0.597	0.451	0.403	0.423	0.611	0.365	2.37	1.11	3.04
3	0.118	0.311	0.113	0.581	0.247	0.578	0.406	0.168	0.170	0.920
4	0.0240	0.0224	0.0174	0.0155	0.00868	0.00798	0.0115	0.0105	0.00870	0.0144
5	0.178	0.420	0.124	0.455	0.111	0.756	0.119	0.0885	0.163	0.0804
6	0.210	0.339	0.0756	0.391	0.463	0.234	0.107	0.143	0.0533	0.0447
7	0.270	0.218	0.0943	0.169	0.147	0.0922	0.134	0.0558	0.0363	0.186
8	10.7	13.9	97.9	43.1	39.1	55.4	90.4	101	40.5	20.3
9	0.566	0.747	0.559	0.672	0.706	0.784	0.497	0.814	4.09	0.425
10	128	204	122	147	94.7	99.8	168	106	179	129
11	0.397	0.502	0.605	0.401	1.59	1.12	0.555	1.04	0.616	0.734
12	0.118	0.0956	0.0918	0.0898	0.0724	0.0775	0.102	0.0458	0.0414	0.0392
13	10.5	2.06	1.77	3.61	2.37	10.4	1.65	7.01	1.66	1.43
14	1.21	0.232	0.204	0.175	0.211	0.122	0.116	0.149	0.115	0.0866
総和	164.6	246.5	243.0	216.3	159.3	179.9	285.7	232.9	235.9	175.1

表 9-10 ヒ素の地域・食品群別摂取量

MB試料(群)	地域									
	A	B	C	D	E	F	G	H	H	J
1	0.000000	0.000000	0.0537	0.00290	0.632	0.0496	0.0355	0.000000	0.346	0.000000
2	0.607	0.252	0.157	0.121	0.224	1.02	1.21	0.673	0.282	0.649
3	0.112	0.0791	0.126	0.241	0.0873	0.147	0.107	0.0366	4.42	0.0492
4	0.0230	0.00397	0.00344	0.00257	0.00150	0.00188	0.00253	0.0221	0.00191	0.00498
5	0.0928	0.0693	0.0322	0.112	0.0599	16.9	0.0895	0.0862	0.124	0.103
6	1.24	0.271	0.0802	0.292	0.0778	0.0915	0.101	0.126	1120	0.204
7	0.0719	0.0976	0.0859	0.0997	0.0670	0.0963	0.189	0.0628	0.104	0.0190
8	0.0799	0.177	2.04	503	0.113	605	0.523	0.252	0.749	0.225
9	0.173	0.569	0.202	0.272	0.295	1.43	1.37	0.437	0.589	0.455
10	0.449	0.487	0.305	0.242	0.191	0.301	0.295	0.602	0.389	0.238
11	0.0814	0.152	2.23	0.173	0.122	0.348	0.0805	0.502	0.158	0.154
12	0.00150	0.000000	0.000000	0.00570	0.000236	0.0120	0.708	0.00413	0.0137	0.00276
13	0.868	1.31	0.632	0.894	0.391	0.450	1.10	1.81	0.229	0.454
14	0.000000	0.000000	0.000000	0.000000	0.000000	0.000000	0.000000	0.000000	0.000000	0.000000
総和	3.8	3.5	6.0	505.0	2.3	625.8	5.8	4.6	1127.7	2.6

μg/man/day

表 9-11 スズの地域・食品群別摂取量(ND=0)

MB試料(群)	地域									
	A	B	C	D	E	F	G	H	H	J
1	0.152	0.271	0.0537	0.00290	0.632	0.0496	0.0355	0.313	0.346	0.303
2	0.607	0.252	0.157	0.121	0.224	1.02	1.21	0.673	0.282	0.649
3	0.112	0.0791	0.126	0.241	0.0873	0.147	0.107	0.0366	4.42	0.0492
4	0.0230	0.00397	0.00344	0.00257	0.00150	0.00188	0.00253	0.0221	0.00191	0.00498
5	0.0928	0.0693	0.0322	0.112	0.0599	16.9	0.0895	0.0862	0.124	0.103
6	1.24	0.271	0.0802	0.292	0.0778	0.0915	0.101	0.126	1120	0.204
7	0.0719	0.0976	0.0859	0.0997	0.0670	0.0963	0.189	0.0628	0.104	0.0190
8	0.0799	0.177	2.044	503	0.113	605	0.523	0.252	0.749	0.225
9	0.173	0.569	0.202	0.272	0.295	1.43	1.37	0.437	0.589	0.455
10	0.449	0.487	0.305	0.242	0.191	0.301	0.295	0.602	0.389	0.238
11	0.0814	0.152	2.23	0.173	0.122	0.348	0.0805	0.502	0.158	0.154
12	0.00150	0.0565	0.0565	0.00570	0.000236	0.0120	0.708	0.00413	0.0137	0.00276
13	0.868	1.31	0.632	0.894	0.391	0.450	1.10	1.81	0.229	0.454
14	0.127	0.127	0.127	0.127	0.127	0.127	0.127	0.127	0.127	0.127
総和	4.1	3.9	6.1	505.2	2.4	625.9	5.9	5.1	1127.8	3.0

μg/man/day

表 9-11 スズの地域・食品群別摂取量(ND=LOD/2)

MB試料(群)	地域									
	A	B	C	D	E	F	G	H	H	J
1	0.214	2.01	0.814	0.824	1.67	0.430	0.646	0.872	1.94	0.494
2	6.20	1.94	3.50	2.81	5.13	1.72	1.85	1.93	2.84	2.54
3	1.20	1.12	2.05	2.08	1.76	2.56	1.80	1.24	0.626	1.55
4	0.0190	0.0161	0.0548	0.00823	0.00726	0.00656	0.0113	0.0185	0.00741	0.0120
5	0.483	1.02	0.564	0.987	0.911	0.449	0.729	0.819	0.891	1.30
6	1.39	0.864	0.858	0.378	0.227	0.769	0.739	0.466	1.15	0.308
7	1.86	0.692	0.972	1.10	0.568	1.41	0.396	1.22	2.15	0.433
8	1.42	1.12	30.2	2.00	1.14	0.961	16.2	1.43	2.89	0.867
9	0.213	10.0	1.23	0.953	0.940	1.07	0.450	7.76	7.76	0.717
10	11.1	4.54	1.25	0.673	2.28	2.14	3.45	0.651	10.0	3.03
11	1.02	3.85	1.83	15.0	5.39	4.45	2.51	3.89	2.95	1.83
12	0.292	0.223	0.261	0.171	0.218	0.198	6.57	0.0958	0.481	0.203
13	5.85	2.29	2.76	4.93	4.10	4.36	2.19	3.34	2.90	4.83
14	0.000000	0.000000	0.000000	0.000000	0.000000	0.000000	0.000000	0.000000	0.000000	0.000000
総和	31.3	29.7	46.4	31.9	24.4	20.5	37.6	23.7	36.6	18.1

μg/man/day

表 9-12 クロムの地域・食品群別摂取量(ND=0)

MB試料(群)	地域									
	A	B	C	D	E	F	G	H	H	J
1	0.214	2.01	0.814	0.824	1.67	0.430	0.646	0.872	1.94	0.494
2	6.20	1.94	3.50	2.81	5.13	1.72	1.85	1.93	2.84	2.54
3	1.20	1.12	2.05	2.08	1.76	2.56	1.80	1.24	0.626	1.55
4	0.0190	0.0161	0.0548	0.00823	0.00726	0.00656	0.0113	0.0185	0.00741	0.0120
5	0.483	1.02	0.564	0.987	0.911	0.449	0.729	0.819	0.891	1.30
6	1.39	0.864	0.858	0.378	0.227	0.769	0.739	0.466	1.15	0.308
7	1.86	0.692	0.972	1.10	0.568	1.41	0.396	1.22	2.15	0.433
8	1.42	1.12	30.2	2.00	1.14	0.961	16.2	1.43	2.89	0.867
9	0.213	10.0	1.23	0.953	0.940	1.07	0.450	7.76	7.76	0.717
10	11.1	4.54	1.25	0.673	2.28	2.14	3.45	0.651	10.0	3.03
11	1.02	3.85	1.83	15.0	5.39	4.45	2.51	3.89	2.95	1.83
12	0.292	0.223	0.261	0.171	0.218	0.198	6.57	0.0958	0.481	0.203
13	5.85	2.29	2.76	4.93	4.10	4.36	2.19	3.34	2.90	4.83
14	0.223	0.223	0.223	0.223	0.223	0.223	0.223	0.223	0.223	0.223
総和	31.5	29.9	46.6	32.2	24.6	20.7	37.8	24.0	36.8	18.3

μg/man/day

表 9-12 クロムの地域・食品群別摂取量(ND=LOD/2)

MB試料(群)	地域									
	A	B	C	D	E	F	G	H	H	J
1	0.551	0.534	0.591	0.313	0.350	0.277	0.430	0.383	0.370	0.572
2	0.720	2.68	0.834	1.69	0.784	0.861	1.07	1.16	1.12	0.507
3	0.279	0.409	0.417	0.368	0.421	0.488	0.319	0.390	0.127	0.619
4	0.000000	0.000000	0.000000	0.000000	0.000000	0.000000	0.000000	0.000000	0.000000	0.000000
5	0.606	0.821	0.828	0.772	0.713	0.309	0.739	0.568	0.885	0.627
6	0.278	0.414	0.402	0.370	0.509	0.796	0.486	0.337	0.322	0.318
7	0.196	2.49	0.676	0.306	0.321	0.854	0.473	0.773	0.939	0.683
8	0.696	0.899	7.93	0.857	1.51	0.876	1.84	0.643	1.10	0.668
9	0.382	2.83	1.78	0.756	0.855	2.62	0.724	1.88	1.77	0.917
10	0.437	0.410	0.878	0.299	0.486	0.378	1.15	0.266	0.666	0.451
11	0.208	0.106	0.136	0.337	0.146	0.244	0.393	0.130	0.336	0.220
12	0.0659	0.0403	0.0484	0.0434	0.0515	0.0500	0.0628	0.0443	0.0457	0.0621
13	0.858	1.04	1.76	1.37	1.09	1.04	0.923	2.00	0.913	0.839
14	0.000000	0.0116	0.0181	0.00228	0.000000	0.000000	0.000228	0.000000	0.000000	0.000000
総和	5.3	12.7	16.3	7.5	7.2	8.8	8.6	8.6	8.6	6.5

μg/man/day

表 9-13 コバルトの地域・食品群別摂取量(ND=0)

MB試料(群)	地域									
	A	B	C	D	E	F	G	H	H	J
1	0.551	0.534	0.591	0.313	0.350	0.277	0.430	0.383	0.370	0.572
2	0.720	2.68	0.834	1.69	0.784	0.861	1.07	1.16	1.12	0.507
3	0.279	0.409	0.417	0.368	0.421	0.488	0.319	0.390	0.127	0.619
4	0.000282	0.000317	0.000338	0.000340	0.000320	0.000308	0.000316	0.000307	0.000315	0.000314
5	0.606	0.821	0.828	0.772	0.713	0.309	0.739	0.568	0.885	0.627
6	0.278	0.414	0.402	0.370	0.509	0.796	0.486	0.337	0.322	0.318
7	0.196	2.49	0.676	0.306	0.321	0.854	0.473	0.773	0.939	0.683
8	0.696	0.899	7.93	0.857	1.51	0.876	1.84	0.643	1.10	0.668
9	0.382	2.83	1.78	0.756	0.855	2.62	0.724	1.88	1.77	0.917
10	0.437	0.410	0.878	0.299	0.486	0.378	1.15	0.266	0.666	0.451
11	0.208	0.106	0.136	0.337	0.146	0.244	0.393	0.130	0.336	0.220
12	0.0659	0.0403	0.0484	0.0434	0.0515	0.0500	0.0628	0.0443	0.0457	0.0621
13	0.858	1.04	1.76	1.37	1.09	1.04	0.923	2.00	0.913	0.839
14	0.00858	0.0116	0.0181	0.00228	0.00858	0.00858	0.000228	0.00858	0.00858	0.00858
総和	5.3	12.7	16.3	7.5	7.2	8.8	8.6	8.6	8.6	6.5

μg/man/day

表 9-13 コバルトの地域・食品群別摂取量(ND=LOD/2)

MB試料(群)	地域									
	A	B	C	D	E	F	G	H	H	J
1	86.0	155	102	154	115	81.4	153	110	76.5	123
2	13.1	13.0	16.0	14.9	15.9	17.4	14.3	11.8	14.4	13.9
3	4.70	6.21	3.61	7.06	4.47	5.01	8.45	2.25	1.90	2.79
4	0.0472	0.0285	0.0430	0.0259	0.0564	0.0401	0.0405	0.0205	0.0289	0.0111
5	13.0	62.3	18.9	47.0	48.4	21.1	38.7	33.9	25.0	35.9
6	1.60	2.65	0.671	1.57	0.528	0.842	2.05	0.769	1.46	0.649
7	1.88	4.62	4.77	3.45	3.18	1.89	4.31	4.89	2.33	4.65
8	6.59	15.2	15.3	6.37	6.85	14.6	19.9	47.9	13.4	18.9
9	0.768	1.88	2.83	1.02	0.793	0.739	1.26	1.51	1.66	0.408
10	0.683	0.994	0.614	0.530	0.505	0.547	1.01	0.479	0.814	1.23
11	2.05	2.15	5.83	4.83	4.38	5.61	2.72	2.49	5.43	4.63
12	4.68	4.08	4.51	4.54	4.32	4.11	4.54	3.51	3.46	3.84
13	23.2	46.2	23.9	28.2	28.2	20.6	18.3	13.1	23.2	19.3
14	0.287	0.323	0.293	0.261	0.214	0.162	0.208	0.173	0.101	0.0524
総和	158.5	314.6	199.3	273.7	232.8	174.0	268.8	232.8	169.6	228.8

μg/man/day

表 9-14 モリブデンの地域・食品群別摂取量

ND=0		摂取量 (µg/man/day)													
有害元素	1群	2群	3群	4群	5群	6群	7群	8群	9群	10群	11群	12群	13群	14群	総和
B	75.9	97.4	30.6	0.2	179.0	198.0	162.9	326.6	157.7	46.1	14.8	28.1	193.3	13.3	1523.8
Al	15.8	300.4	299.3	0.5	51.3	17.7	112.2	2256.2	1036.1	259.8	109.0	3.3	222.9	2.4	4687.0
Ni	19.0	11.2	4.8	0.0	29.9	8.6	12.6	18.9	26.0	2.6	1.5	0.2	21.3	0.1	156.8
Se	4.2	17.3	0.9	0.0	2.5	0.2	0.2	1.1	0.6	32.7	22.8	2.9	4.3	0.4	90.2
Cd	6.5	2.2	0.4	0.0	0.8	0.1	1.6	3.3	0.2	1.8	0.1	0.0	0.8	0.0	17.6
Sb	0.1	0.1	0.5	0.0	0.0	0.1	0.1	0.2	0.3	0.1	0.4	0.0	0.3	0.0	2.2
Ba	15.3	99.5	16.5	0.1	43.6	31.0	57.2	85.8	22.7	9.2	25.4	10.5	49.5	2.0	468.4
Pb	0.6	2.3	0.2	0.0	0.3	0.4	0.5	2.2	1.1	1.1	0.5	0.1	1.0	0.0	10.4
U	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.5	0.0	0.2	0.0	0.0	0.1	0.0	1.0
As	16.5	1.0	0.4	0.0	0.2	0.2	0.1	51.3	1.0	137.8	0.8	0.1	4.2	0.3	213.9

ND=0		摂取量 (µg/man/day)													
元素	1群	2群	3群	4群	5群	6群	7群	8群	9群	10群	11群	12群	13群	14群	総和
Sn	0.1	0.5	0.5	0.0	1.8	112.3	0.1	111.2	0.6	0.3	0.4	0.1	0.8	0.0	228.7
Cr	1.0	3.0	1.6	0.0	0.8	0.7	1.1	5.8	3.1	3.9	4.3	0.9	3.8	0.0	30.0
Co	0.4	1.1	0.4	0.0	0.7	0.4	0.8	1.7	1.5	0.5	0.2	0.1	1.2	0.0	9.0
Mo	115.5	14.5	4.6	0.0	34.4	1.3	3.6	16.5	1.3	0.7	4.0	4.2	24.4	0.2	225.3

表 10-1 元素(水銀を除く)摂取量の群別平均値及び総摂取量(ND=0)

ND=LOD/2		摂取量 (µg/man/day)													
有害元素	1群	2群	3群	4群	5群	6群	7群	8群	9群	10群	11群	12群	13群	14群	総和
B	75.9	97.4	30.6	0.2	179.0	198.0	162.9	326.6	157.7	46.1	14.8	28.1	193.3	13.3	1523.8
Al	15.8	300.4	299.3	0.5	51.3	17.7	112.2	2256.2	1036.1	259.8	109.0	3.3	222.9	2.4	4687.0
Ni	19.0	11.2	4.8	0.0	29.9	8.6	12.6	18.9	26.0	2.6	1.5	0.2	21.3	0.1	156.8
Se	4.2	17.3	0.9	0.0	2.5	0.2	0.2	1.1	0.6	32.7	22.8	2.9	4.3	0.4	90.2
Cd	6.5	2.2	0.4	0.0	0.8	0.1	1.6	3.3	0.2	1.8	0.1	0.0	0.8	0.0	17.6
Sb	0.1	0.1	0.5	0.0	0.0	0.1	0.1	0.2	0.3	0.1	0.4	0.0	0.3	0.0	2.2
Ba	15.3	99.5	16.5	0.1	43.6	31.0	57.2	85.8	22.7	9.2	25.4	10.5	49.5	2.0	468.4
Pb	0.6	2.3	0.2	0.0	0.3	0.4	0.5	2.2	1.1	1.1	0.5	0.1	1.0	0.0	10.4
U	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.5	0.0	0.2	0.0	0.0	0.1	0.0	1.0
As	16.5	1.0	0.4	0.0	0.2	0.2	0.1	51.3	1.0	137.8	0.8	0.1	4.2	0.3	213.9

ND=LOD/2		摂取量 (µg/man/day)													
元素	1群	2群	3群	4群	5群	6群	7群	8群	9群	10群	11群	12群	13群	14群	総和
Sn	0.2	0.5	0.5	0.0	1.8	112.3	0.1	111.2	0.6	0.3	0.4	0.1	0.8	0.1	228.9
Cr	1.0	3.0	1.6	0.0	0.8	0.7	1.1	5.8	3.1	3.9	4.3	0.9	3.8	0.2	30.2
Co	0.4	1.1	0.4	0.0	0.7	0.4	0.8	1.7	1.5	0.5	0.2	0.1	1.2	0.0	9.0
Mo	115.5	14.5	4.6	0.0	34.4	1.3	3.6	16.5	1.3	0.7	4.0	4.2	24.4	0.2	225.3

表 10-2 元素(水銀を除く)摂取量の群別平均値及び総摂取量(ND=LOD/2)

摂取量	地域										平均値
	A	B	C	D	E	F	G	H	H	J	
10群	3.03	6.67	12.2	8.82	7.66	10.3	4.75	6.21	9.28	9.24	7.8
11群	0.0482	0.289	0.0689	0.0744	0.204	0.318	0.0163	0.166	0.0176	0.00	0.1
和	3.1	7.0	12.3	8.9	7.9	10.6	4.8	6.4	9.3	9.2	7.9

μg/man/day

表 11-1 10 群と 11 群試料の分析値に基づく総水銀摂取量(ND=0)

摂取量	地域										平均値
	A	B	C	D	E	F	G	H	H	J	
10群	3.03	6.67	12.2	8.82	7.66	10.3	4.75	6.21	9.28	9.24	7.8
11群	0.0482	0.289	0.0689	0.0744	0.204	0.318	0.0163	0.166	0.0176	0.00501	0.1
和	3.1	7.0	12.3	8.9	7.9	10.6	4.8	6.4	9.3	9.2	7.9

μg/man/day

表 11-2 10 群と 11 群試料の分析値に基づく総水銀摂取量(ND=LOD/2)

寄与率	地域										平均値
	A	B	C	D	E	F	G	H	H	J	
10群	98.4	95.9	99.4	99.2	97.4	97.0	99.7	97.4	99.8	100.0	98.5
11群	1.6	4.1	0.6	0.8	2.6	3.0	0.3	2.6	0.2	0.0	1.5

%

表 12-1 総水銀総摂取量に対する 10 群及び 11 群からの摂取量の寄与率(ND=0)

寄与率	地域										平均値
	A	B	C	D	E	F	G	H	H	J	
10群	98.4	95.9	99.4	99.2	97.4	97.0	99.7	97.4	99.8	99.9	98.5
11群	1.6	4.1	0.6	0.8	2.6	3.0	0.3	2.6	0.2	0.1	1.5

%

表 12-2 総水銀総摂取量に対する 10 群及び 11 群からの摂取量の寄与率(ND=LOD/2)



摂取量	地域										平均値
	A	B	C	D	E	F	G	H	H	J	
10群	2.11	5.13	15.92	5.97	5.50	8.53	4.16	4.77	7.08	7.38	6.7

μg/man/day

表 13 10 群試料の分析値に基づくメチル水銀摂取量

PCBs 同族体	地域									
	A	B	C	D	E	F	G	H	H	J
MoCBs	0.331	0.302	0.130	0.153	0.273	0.386	0.428	0.585	0.255	0.178
DiCBs	13.8	3.17	1.74	1.87	6.72	14.8	9.37	8.62	4.34	3.36
TrCBs	63.1	12.4	12.3	12.3	24.5	78.4	26.3	30.7	18.0	18.5
TeCBs	85.5	49.1	45.7	44.7	58.4	87.0	89.3	72.8	55.7	74.1
PeCBs	88.3	93.5	89.0	75.0	72.6	114	167	131	98.2	148
HxCBs	53.2	93.3	115	65.5	72.4	129	180	210	132	195
HpCBs	12.8	31.6	41.7	19.4	23.7	42.9	62.3	88.4	55.5	82.8
OcCBs	2.26	6.03	8.31	3.07	5.03	6.38	12.6	13.9	9.18	14.7
NoCBs	0.436	1.01	1.46	0.417	1.42	1.25	1.87	1.22	1.04	1.26
DeCB	0.293	0.939	0.645	0.213	0.697	0.757	1.11	0.513	0.553	0.339
total PCBs	320	291	316	223	266	474	550	558	375	538

ng/man/day

表 14-1 10 群試料からの PCBs 摂取量(ND=0)

PCBs 同族体	地域									
	A	B	C	D	E	F	G	H	H	J
MoCBs	0.331	0.302	0.130	0.153	0.273	0.386	0.428	0.585	0.255	0.178
DiCBs	13.8	3.17	1.74	1.87	6.72	14.8	9.37	8.62	4.34	3.37
TrCBs	63.1	12.4	12.3	12.3	24.5	78.4	26.3	30.7	18.0	18.5
TeCBs	85.5	49.2	45.7	44.7	58.4	87.0	89.4	72.8	55.7	74.2
PeCBs	88.3	93.5	89.0	75.1	72.7	114	167	131	98.2	148
HxCBs	53.2	93.3	115	65.6	72.4	129	180	210	132	195
HpCBs	12.8	31.6	41.7	19.4	23.7	42.9	62.3	88.5	55.5	82.8
OcCBs	2.30	6.03	8.31	3.08	5.05	6.39	12.6	14.0	9.18	14.7
NoCBs	0.436	1.01	1.46	0.417	1.42	1.25	1.87	1.22	1.04	1.26
DeCB	0.293	0.939	0.645	0.213	0.697	0.757	1.11	0.513	0.553	0.339
total PCBs	320	291	316	223	266	474	550	558	375	538

ng/man/day

表 14-2 10 群試料からの PCBs 摂取量(ND=2/LOD)

PCBs 同族体	地域									
	A	B	C	D	E	F	G	H	H	J
MoCBs	0.179	0.0568	0.0270	0.0744	0.131	0.270	0.371	1.10	0.0644	0.145
DiCBs	10.7	0.699	1.20	0.383	1.17	5.91	8.05	2.65	2.20	1.96
TrCBs	37.0	1.06	4.22	0.371	1.74	37.3	20.9	3.71	0.613	1.38
TeCBs	15.6	2.28	22.1	1.93	6.45	19.2	22.9	5.36	1.57	2.12
PeCBs	5.02	4.76	43.4	4.20	13.1	3.67	10.5	6.27	2.20	3.17
HxCBs	4.22	7.02	14.0	5.72	9.07	3.12	9.85	8.43	3.94	4.99
HpCBs	1.26	2.90	2.27	2.01	2.32	1.11	3.98	3.37	1.68	2.07
OcCBs	0.142	0.556	0.407	0.404	0.434	0.156	0.914	0.642	0.334	0.347
NoCBs	0	0.0711	0	0	0	0	0	0	0	0
DeCB	0.0531	0.0807	0.0417	0.0487	0.0444	0.0397	0.0901	0.0615	0.0928	0.123
total PCBs	74.3	19.5	87.7	15.1	34.5	70.8	77.6	31.6	12.7	16.3

ng/man/day

表 15-1 11 群試料からの PCBs 摂取量(ND=0)

PCBs 同族体	地域									
	A	B	C	D	E	F	G	H	H	J
MoCBs	0.179	0.0568	0.0344	0.0744	0.131	0.270	0.371	1.10	0.0644	0.145
DiCBs	10.7	0.713	1.21	0.389	1.18	5.92	8.06	2.66	2.24	1.97
TrCBs	37.1	1.13	4.23	0.486	1.82	37.3	20.9	3.81	0.704	1.49
TeCBs	15.7	2.32	22.1	1.98	6.50	19.3	23.0	5.42	1.62	2.20
PeCBs	5.13	4.84	43.5	4.29	13.2	3.74	10.7	6.40	2.31	3.31
HxCBs	4.31	7.09	14.1	5.79	9.14	3.19	9.97	8.52	4.01	5.09
HpCBs	1.35	2.93	2.32	2.06	2.37	1.17	4.09	3.43	1.73	2.15
OcCBs	0.371	0.663	0.542	0.510	0.589	0.314	1.119	0.805	0.460	0.551
NoCBs	0.105	0.119	0.0876	0.0791	0.101	0.0802	0.153	0.121	0.0820	0.122
DeCB	0.0531	0.0807	0.0417	0.0487	0.0444	0.0397	0.0901	0.0615	0.0928	0.123
total PCBs	75.0	19.9	88.1	15.7	35.1	71.3	78.4	32.3	13.3	17.2

ng/man/day

表 15-2 11 群試料からの PCBs 摂取量(ND=LOD/2)

PCBs 同族体	地域										平均値
	A	B	C	D	E	F	G	H	H	J	
MoCBs	0.510	0.359	0.165	0.227	0.404	0.655	0.799	1.687	0.320	0.323	0.54
DiCBs	24.5	3.88	2.95	2.26	7.89	20.7	17.43	11.28	6.58	5.34	10
TrCBs	100.2	13.5	16.5	12.8	26.3	115.7	47.2	34.5	18.7	20.0	41
TeCBs	101.2	51.5	67.8	46.7	64.9	106.3	112.3	78.2	57.4	76.4	76
PeCBs	93.5	98.4	132.5	79.3	85.9	117	178	137	100.5	152	117
HxCBs	57.6	100.4	129	71.3	81.5	132	190	219	136	200	132
HpCBs	14.2	34.6	44.0	21.5	26.0	44.1	66.4	91.9	57.3	84.9	48
OcCBs	2.68	6.69	8.85	3.59	5.64	6.71	13.7	14.8	9.64	15.3	8.8
NoCBs	0.541	1.13	1.55	0.497	1.52	1.33	2.02	1.34	1.12	1.38	1.2
DeCB	0.346	1.019	0.686	0.261	0.741	0.796	1.20	0.575	0.646	0.463	0.67
total PCBs	395	311	404	239	301	546	629	590	388	555	436

ng/man/day

表 16 PCBs 総摂取量(10 群及び 11 群からの摂取量の和)

	TDI (μg/man/day)	摂取量 (μg/man/day)	対TDI比(%)
B	4800	1523.8	31.7
Al	14286	4687.0	32.8
Ni	200	156.8	78.4
Se	200	90.2	45.1
Cd	50	17.6	35.3
Sb	300	2.2	0.7
Ba	1000	468.4	46.8
Pb	179	10.4	5.8
U	10	1.0	10.1
MeHg	11.43	6.7	58.2
PCBs	250	0.4	0.2
As	-	213.9	-
total Hg	-	7.9	-
Sn	-	228.9	-
Cr	-	30.2	-
Co	-	9.0	-
Mo	-	225.3	-

表 17 有害元素摂取量推定値の対 TDI 比

測定対象	濃度(mg/kg)													
	1群	2群	3群	4群	5群	6群	7群	8群	9群	10群	11群	12群	13群	14群
B	0.229	0.534	0.219	0.00731	4.06	1.46	1.36	1.44	0.0927	0.522	0.118	0.248	1.58	ND
Al	0.0301	1.13	0.902	ND	0.645	ND	3.11	ND	1.00	0.189	2.64	0.0164	0.407	ND
Cr	0.000629	0.0147	0.0220	0.00298	0.0174	0.00439	0.00712	0.00442	0.0140	0.0160	0.0307	0.0146	0.0218	ND
Co	0.00150	0.00933	0.00126	0.0000207	0.0187	0.00270	0.00866	0.00415	0.00170	0.00469	0.000962	0.000454	0.0226	0.000164
Ni	0.152	0.0381	0.0266	0.00144	0.749	0.0266	0.0164	0.0177	0.0309	0.0220	0.00446	0.00566	0.203	0.000110
As	0.0547	0.00153	ND	ND	0.000839	0.000157	0.000151	0.00000432	ND	1.50	0.00106	ND	0.0102	0.0000299
Se	0.0274	0.0641	0.0135	0.000930	0.106	0.00107	0.00211	0.00174	ND	0.396	0.200	0.0209	0.0250	0.000654
Mo	0.381	0.0677	0.0696	0.00213	0.859	0.00660	0.0302	0.0229	ND	0.00731	0.0177	0.0383	0.122	0.0000380
Cd	0.0331	0.0262	0.000743	0.0000102	0.0237	0.00193	0.0114	0.00723	0.0000180	0.00199	0.000143	0.0000167	0.00271	0.0000181
Sn	0.000108	0.000194	0.000738	0.0000620	ND	0.0000274	0.0000685	ND	ND	0.00313	0.000229	ND	0.000604	0.000257
Sb	0.000191	0.000759	0.000902	0.000175	0.000301	0.000150	0.000300	0.000135	0.000199	0.00159	0.00178	0.000170	0.00104	0.00000473
Ba	0.0400	0.448	0.131	0.00301	0.738	0.193	0.713	0.323	0.0145	0.307	0.269	0.0824	0.412	0.0126
Pb	0.00108	0.00190	0.00137	0.000648	0.00149	0.000627	0.00210	0.000449	0.000408	0.00352	0.000700	0.000457	0.00225	0.000152
U	0.00000289	0.000111	0.000514	0.000140	0.000218	0.0000169	0.0000434	0.00000432	0.0000621	0.00343	0.0000407	0.0000731	0.000271	0.0000461

表 18-1 SEMP の元素濃度(平均値、n=5)

測定対象	濃度(mg/kg)													
	1群	2群	3群	4群	5群	6群	7群	8群	9群	10群	11群	12群	13群	14群
B	0.00982	0.00792	0.00679	0.00422	0.0237	0.00860	0.0258	0.0914	0.0104	0.0239	0.00757	0.0144	0.0498	ND
Al	0.0111	0.0672	0.0207	ND	0.0417	ND	0.592	ND	0.0265	0.0274	0.0837	0.0119	0.148	ND
Cr	0.000911	0.000927	0.00819	0.000664	0.00197	0.000881	0.000718	0.00332	0.000253	0.00391	0.00192	0.0009467	0.000935	ND
Co	0.000545	0.000232	0.000112	0.0000124	0.00102	0.0000616	0.000868	0.000327	0.0000561	0.000126	0.0000575	0.0000208	0.000441	0.000242
Ni	0.0218	0.000863	0.00413	0.000739	0.0122	0.000348	0.00141	0.000952	0.000449	0.00350	0.000722	0.000619	0.00243	0.000238
As	0.00130	0.000499	ND	ND	0.000497	0.0000927	0.0000792	0.00000966	ND	0.0589	0.000594	ND	0.000516	0.0000668
Se	0.00222	0.00227	0.00121	0.000251	0.00338	0.000773	0.00131	0.000888	ND	0.0134	0.006636	0.00113	0.000729	0.000601
Mo	0.00873	0.00151	0.000911	0.00117	0.0156	0.000155	0.00183	0.00459	ND	0.000409	0.000476	0.000333	0.00106	0.0000850
Cd	0.00101	0.000320	0.0000550	0.00000902	0.000649	0.0000698	0.00128	0.00228	0.00000466	0.0000843	0.0000270	0.00000662	0.0000178	0.0000294
Sn	0.0000733	0.000172	0.000238	0.000139	ND	0.0000285	0.0000681	ND	ND	0.00101	0.000181	ND	0.000383	0.000440
Sb	0.0000263	0.000337	0.000383	0.0000353	0.000180	0.0000414	0.0000847	0.0000828	0.0000185	0.000267	0.0000597	0.000146	0.000337	0.00000853
Ba	0.00156	0.00645	0.00277	0.000159	0.0213	0.00407	0.0181	0.0295	0.000278	0.0614	0.00448	0.000617	0.0114	0.000161
Pb	0.000132	0.0000581	0.000295	0.000409	0.000224	0.0000663	0.000285	0.000177	0.000284	0.000723	0.0000940	0.0000436	0.00139	0.0000320
U	0.00000276	0.0000519	0.0000429	0.0000100	0.0000599	0.0000168	0.0000152	0.00000966	0.0000166	0.00103	0.0000207	0.0000122	0.0000566	0.0000330

表 18-2 SEMP の元素濃度のバラツキ(標準偏差、n=5)

測定対象	添加濃度(mg/kg)													
	1群	2群	3群	4群	5群	6群	7群	8群	9群	10群	11群	12群	13群	14群
B	0.5	1	0.5	0.5	10	5	5	5	0.5	1	0.5	0.5	5	0.5
Al	0.5	5	5	0.5	5	0.5	10	0.5	5	5	10	0.5	5	0.5
Cr	0.01	0.05	0.05	0.01	0.05	0.05	0.05	0.01	0.05	0.05	0.1	0.05	0.05	0.005
Co	0.005	0.05	0.005	0.005	0.05	0.01	0.05	0.01	0.005	0.01	0.005	0.005	0.05	0.005
Ni	0.5	0.1	0.05	0.01	5	0.1	0.05	0.05	0.1	0.05	0.05	0.05	0.5	0.005
As	0.1	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	5	0.01	0.01	0.01	0.01
Se	0.05	0.1	0.05	0.05	0.5	0.05	0.05	0.05	0.05	1	0.5	0.05	0.05	0.05
Mo	1	0.5	0.5	0.01	5	0.05	0.1	0.05	0.01	0.05	0.05	0.1	0.5	0.005
Cd	0.05	0.05	0.005	0.005	0.05	0.005	0.05	0.01	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005
Sn	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005
Sb	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005
Ba	0.1	1	0.5	0.05	1	0.5	1	0.5	0.05	0.5	0.5	0.5	1	0.05
Pb	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.01	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005
U	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005

表 19 SEMP への各元素の添加濃度 (SEMP の濃度として)

測定対象	濃度(mg/kg)													
	1群	2群	3群	4群	5群	6群	7群	8群	9群	10群	11群	12群	13群	14群
B	0.500	1.01	0.492	0.462	10.0	4.98	4.99	5.07	0.490	0.907	0.484	0.502	5.15	0.515
Al	0.467	5.07	4.91	0.412	5.39	0.459	10.7	0.478	4.93	5.01	9.85	0.479	5.50	0.509
Cr	0.0102	0.0537	0.0453	0.0102	0.0557	0.0483	0.0514	0.00800	0.0493	0.0537	0.106	0.0495	0.0580	0.00578
Co	0.005447	0.0523	0.00509	0.00489	0.0544	0.0101	0.0515	0.0100	0.00493	0.0109	0.00524	0.00506	0.0548	0.00488
Ni	0.500	0.103	0.0469	0.00973	5.30	0.0977	0.0500	0.0461	0.0965	0.0539	0.0516	0.0491	0.523	0.00533
As	0.103	0.0111	0.0107	0.0111	0.0117	0.0102	0.0102	0.00963	0.00913	5.56	0.0107	0.00947	0.0129	0.0101
Se	0.0503	0.106	0.0510	0.0599	0.576	0.0502	0.0523	0.0528	0.0528	1.10	0.553	0.0522	0.0521	0.0529
Mo	1.01	0.535	0.518	0.0105	5.65	0.0500	0.103	0.0483	0.00928	0.0533	0.0545	0.101	0.561	0.00543
Cd	0.0497	0.0527	0.00523	0.00538	0.0547	0.00536	0.0511	0.0105	0.00503	0.00514	0.00515	0.00500	0.00546	0.00494
Sn	0.00507	0.00517	0.00507	0.00463	0.00453	0.00490	0.00492	0.00473	0.00463	0.00557	0.00498	0.00487	0.00523	0.00488
Sb	0.00496	0.00463	0.00505	0.00511	0.00471	0.00468	0.00468	0.00455	0.00461	0.00535	0.00505	0.00460	0.00567	0.00504
Ba	0.0962	1.01	0.526	0.0505	0.990	0.499	1.04	0.491	0.0511	0.428	0.524	0.505	1.04	0.0627
Pb	0.00507	0.00548	0.00523	0.00481	0.00489	0.00493	0.00497	0.00937	0.00494	0.00469	0.00528	0.00521	0.00462	0.00510
U	0.00492	0.00499	0.00518	0.00502	0.00453	0.00489	0.00477	0.00479	0.00494	0.00427	0.00485	0.00510	0.00487	0.00512

表 20-1 SEMP(添加試料)から得られた分析値 (平均値、n=5)

測定対象	濃度(mg/kg)													
	1群	2群	3群	4群	5群	6群	7群	8群	9群	10群	11群	12群	13群	14群
B	0.0125	0.0220	0.00898	0.00799	0.105	0.0874	0.0646	0.118	0.0170	0.00541	0.0118	0.0383	0.0684	0.00753
Al	0.0155	0.0716	0.179	0.0169	0.0694	0.0134	0.376	0.0148	0.0311	0.414	0.115	0.00753	0.172	0.0933
Cr	0.000604	0.000883	0.00280	0.00157	0.00368	0.000651	0.000595	0.000233	0.000554	0.00306	0.00148	0.00119	0.00228	0.000507
Co	0.0000673	0.000605	0.000145	0.0000488	0.000410	0.000140	0.000741	0.000187	0.0000613	0.000183	0.0000725	0.0000668	0.000710	0.0000345
Ni	0.0114	0.00146	0.00163	0.000402	0.0172	0.00107	0.000802	0.000893	0.00135	0.00924	0.000498	0.000673	0.00637	0.000365
As	0.00155	0.000386	0.000484	0.000270	0.000150	0.000443	0.000496	0.000297	0.000424	0.110	0.000646	0.000700	0.000646	0.000391
Se	0.00218	0.00363	0.00443	0.00189	0.00445	0.000339	0.00225	0.00891	0.00235	0.0195	0.0336	0.00296	0.00246	0.000708
Mo	0.0128	0.00753	0.00427	0.000186	0.128	0.000273	0.00162	0.00174	0.000208	0.000964	0.00125	0.00101	0.0144	0.000132
Cd	0.000961	0.00121	0.000172	0.000123	0.000652	0.0000711	0.00148	0.000810	0.0000873	0.000139	0.000110	0.000116	0.000196	0.0000623
Sn	0.000297	0.000298	0.0000585	0.000178	0.0000860	0.000147	0.000172	0.000211	0.0000567	0.000427	0.000105	0.000253	0.000386	0.0000530
Sb	0.000265	0.000265	0.000767	0.0000973	0.000453	0.0000581	0.0000973	0.000337	0.000133	0.0000626	0.000222	0.000100	0.000644	0.000102
Ba	0.00122	0.0158	0.00635	0.000643	0.0269	0.0107	0.0219	0.0249	0.000462	0.0445	0.0105	0.00400	0.00797	0.000435
Pb	0.000179	0.000449	0.000169	0.000121	0.000217	0.0000824	0.000186	0.000174	0.000223	0.000306	0.000668	0.000932	0.000140	0.0000343
U	0.0000454	0.0000832	0.0000558	0.0000483	0.0000646	0.0000428	0.0000284	0.0000557	0.0000423	0.000691	0.0000811	0.0000222	0.0000644	0.0000630

表 20-2 SEMP(添加試料)から得られた分析値のバラツキ(標準偏差、n=5)



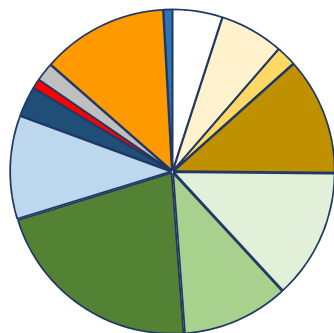
測定対象	真度(%)													
	1群	2群	3群	4群	5群	6群	7群	8群	9群	10群	11群	12群	13群	14群
B	100	101	98	92	100	100	100	101	98	91	97	100	103	103
Al	93	101	98	82	108	92	107	96	99	100	99	96	110	102
Cr	102	107	91	102	111	97	103	80	99	107	106	99	116	116
Co	109	105	102	98	109	101	103	100	99	109	105	101	110	98
Ni	100	103	94	97	106	98	100	92	96	108	103	98	90	107
As	103	111	107	111	117	102	102	96	91	111	107	95	129	101
Se	101	106	102	120	115	100	105	106	106	110	111	104	104	106
Mo	101	107	104	105	113	100	103	97	93	107	109	101	112	109
Cd	99	105	105	108	109	107	102	105	101	103	103	100	109	99
Sn	101	103	101	93	91	98	98	95	93	111	100	97	105	98
Sb	99	93	101	102	94	94	94	91	92	107	101	92	113	101
Ba	96	101	105	101	99	100	104	98	102	86	105	101	104	125
Pb	101	110	105	96	98	99	99	94	99	94	106	104	92	102
U	98	100	104	100	91	98	95	96	99	85	97	102	97	102

表 21-1 SEMP(添加試料)の分析値から推定した各元素と試料群の組合せ分析時の分析法の真度

測定対象	併行精度(RSD%)													
	1群	2群	3群	4群	5群	6群	7群	8群	9群	10群	11群	12群	13群	14群
B	2.5	2.2	1.8	1.7	1.0	1.8	1.3	2.3	3.5	0.6	2.4	7.6	1.3	1.5
Al	3.3	1.4	3.6	4.1	1.3	2.9	3.5	3.1	0.6	8.3	1.2	1.6	3.1	18.3
Cr	5.9	1.6	6.2	15.4	6.6	1.3	1.2	2.9	1.1	5.7	1.4	2.4	3.9	8.8
Co	1.2	1.2	2.8	1.0	0.8	1.4	1.4	1.9	1.2	1.7	1.4	1.3	1.3	0.7
Ni	2.3	1.4	3.5	4.1	0.3	1.1	1.6	1.9	1.4	17	1.0	1.4	1.2	6.9
As	1.5	3.5	4.5	2.4	1.3	4.4	4.9	3.1	4.6	2.0	6.1	7.4	5.0	3.9
Se	4.3	3.4	8.7	3.1	0.77	0.67	4.3	17	4.5	1.8	6.1	5.7	4.7	1.3
Mo	1.3	1.4	0.8	1.8	2.3	0.5	1.6	3.6	2.2	1.8	2.3	1.0	2.6	2.4
Cd	1.9	2.3	3.3	2.3	1.2	1.3	2.9	7.7	1.7	2.7	2.1	2.3	3.6	1.3
Sn	5.9	5.8	1.2	3.8	1.9	3.0	3.5	4.5	1.2	7.7	2.1	5.2	7.4	1.1
Sb	5.4	5.7	15.2	1.9	9.6	1.2	2.1	7.4	2.9	1.2	4.4	2.2	11	2.0
Ba	1.3	1.6	1.2	1.3	2.7	2.1	2.1	5.1	0.9	10	2.0	0.8	0.8	0.7
Pb	3.5	8.2	3.2	2.5	4.4	1.7	3.7	1.9	4.5	6.5	13	18	3.0	0.7
U	0.9	1.7	1.1	1.0	1.4	0.88	0.59	1.2	0.9	16	1.7	0.4	1.3	1.2

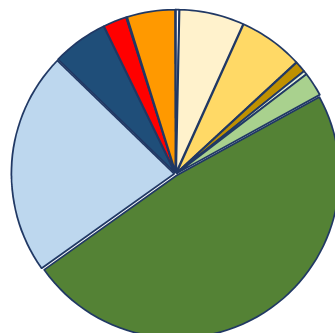
表 21-2 SEMP(添加試料)の分析値から推定した各元素と試料群の組合せ分析時の分析法の併行精度

総摂取量への各群の寄与率 (B)



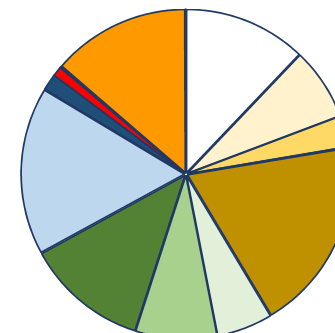
□1群 □2群 □3群 □4群 □5群 □6群 □7群  
 ■8群 □9群 ■10群 ■11群 □12群 □13群 ■14群

総摂取量への各群の寄与率 (Al)



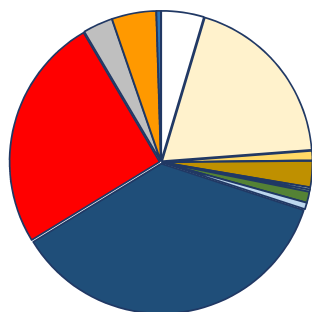
□1群 □2群 □3群 □4群 □5群 □6群 □7群  
 ■8群 □9群 ■10群 ■11群 □12群 □13群 ■14群

総摂取量への各群の寄与率 (Ni)



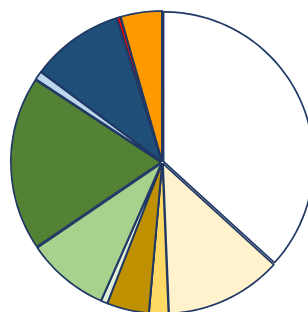
□1群 □2群 □3群 □4群 □5群 □6群 □7群  
 ■8群 □9群 ■10群 ■11群 □12群 □13群 ■14群

総摂取量への各群の寄与率 (Se)



□1群 □2群 □3群 □4群 □5群 □6群 □7群  
 ■8群 □9群 ■10群 ■11群 □12群 □13群 ■14群

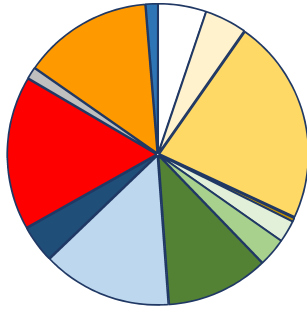
総摂取量への各群の寄与率 (Cd)



□1群 □2群 □3群 □4群 □5群 □6群 □7群  
 ■8群 □9群 ■10群 ■11群 □12群 □13群 ■14群

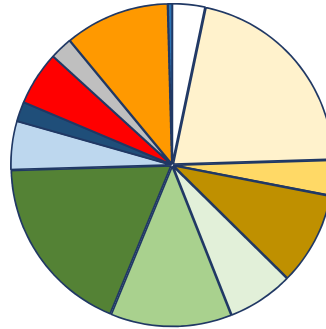
図 1-1 各元素の総摂取量に対する各群摂取量の寄与率 (ホウ素、アルミニウム、ニッケル、セレン、カドミウム)

総摂取量への各群の寄与率 (Sb)



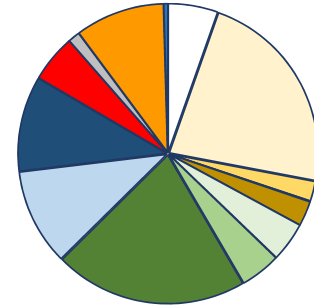
□1群 □2群 □3群 □4群 □5群 □6群 □7群  
 ■8群 □9群 ■10群 ■11群 □12群 □13群 ■14群

総摂取量への各群の寄与率 (Ba)



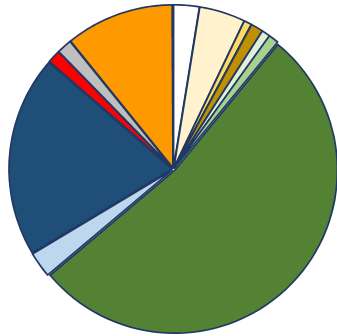
□1群 □2群 □3群 □4群 □5群 □6群 □7群  
 ■8群 □9群 ■10群 ■11群 □12群 □13群 ■14群

総摂取量への各群の寄与率 (Pb)



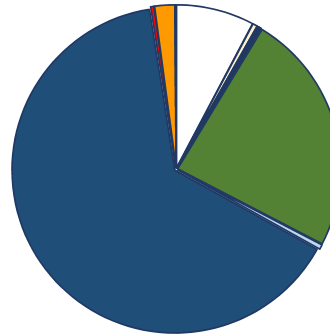
□1群 □2群 □3群 □4群 □5群 □6群 □7群  
 ■8群 □9群 ■10群 ■11群 □12群 □13群 ■14群

総摂取量への各群の寄与率 (U)



□1群 □2群 □3群 □4群 □5群 □6群 □7群  
 ■8群 □9群 ■10群 ■11群 □12群 □13群 ■14群

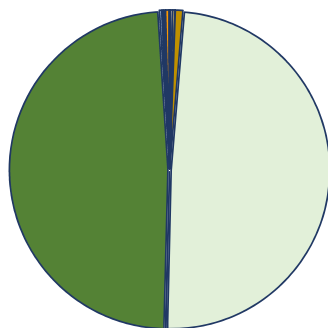
総摂取量への各群の寄与率 (As)



□1群 □2群 □3群 □4群 □5群 □6群 □7群  
 ■8群 □9群 ■10群 ■11群 □12群 □13群 ■14群

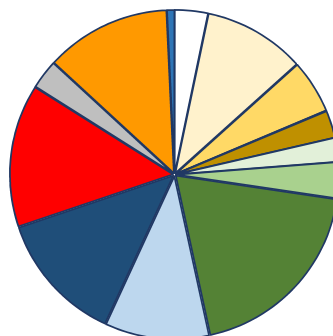
図 1-2 各元素の総摂取量に対する各群摂取量の寄与率 (アンチモン、バリウム、鉛、ウラン、ヒ素)

総摂取量への各群の寄与率 (Sn)



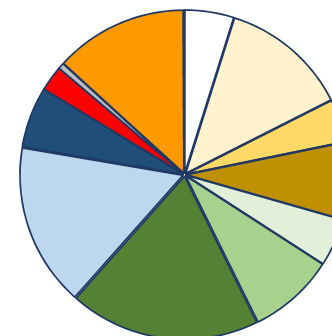
- 1群 □ 2群 □ 3群 □ 4群 □ 5群 □ 6群 □ 7群
- 8群 □ 9群 ■ 10群 ■ 11群 □ 12群 □ 13群 ■ 14群

総摂取量への各群の寄与率 (Cr)



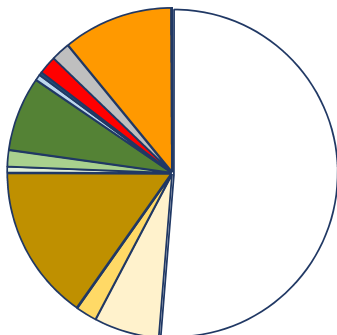
- 1群 □ 2群 □ 3群 □ 4群 □ 5群 □ 6群 □ 7群
- 8群 □ 9群 ■ 10群 ■ 11群 □ 12群 □ 13群 ■ 14群

総摂取量への各群の寄与率 (Co)



- 1群 □ 2群 □ 3群 □ 4群 □ 5群 □ 6群 □ 7群
- 8群 □ 9群 ■ 10群 ■ 11群 □ 12群 □ 13群 ■ 14群

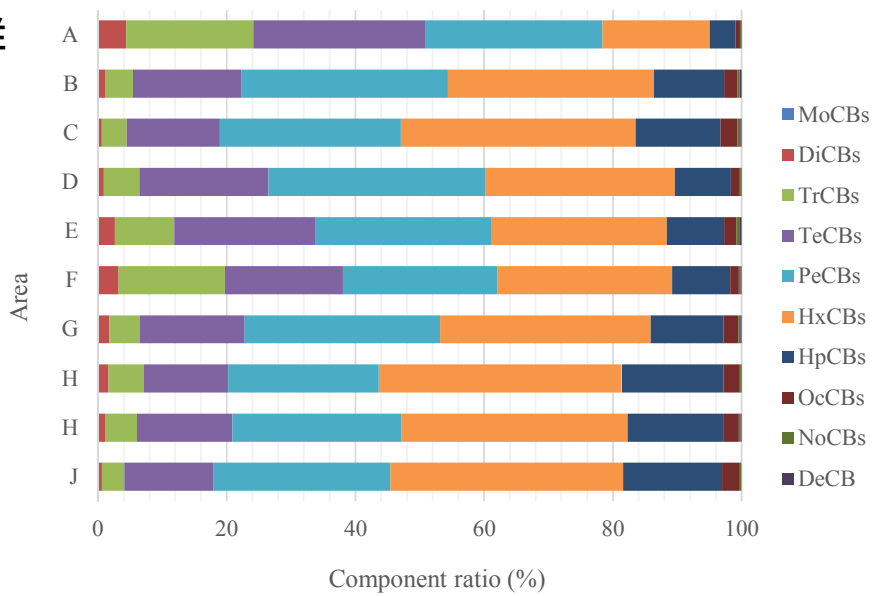
総摂取量への各群の寄与率 (Mo)



- 1群 □ 2群 □ 3群 □ 4群 □ 5群 □ 6群 □ 7群
- 8群 □ 9群 ■ 10群 ■ 11群 □ 12群 □ 13群 ■ 14群

図 1-3 各元素の総摂取量に対する各群摂取量の寄与率 (スズ、クロム、コバルト、モリブデン)

# 10群



# 11群

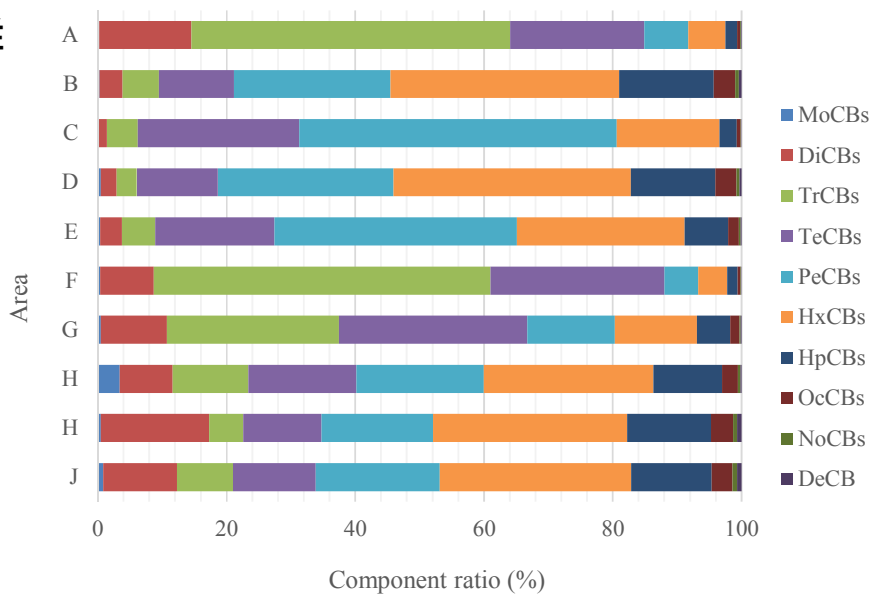


図2 地域食品群組合せ別 PCBs 同族体摂取量割合

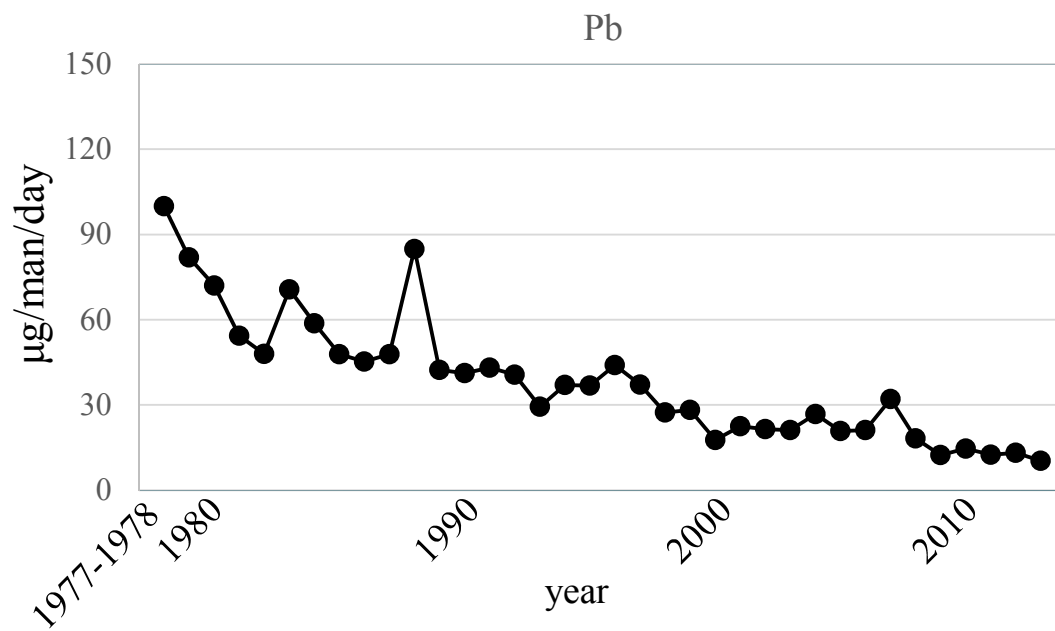


図3 鉛摂取量の経年変化 (1977-2013)

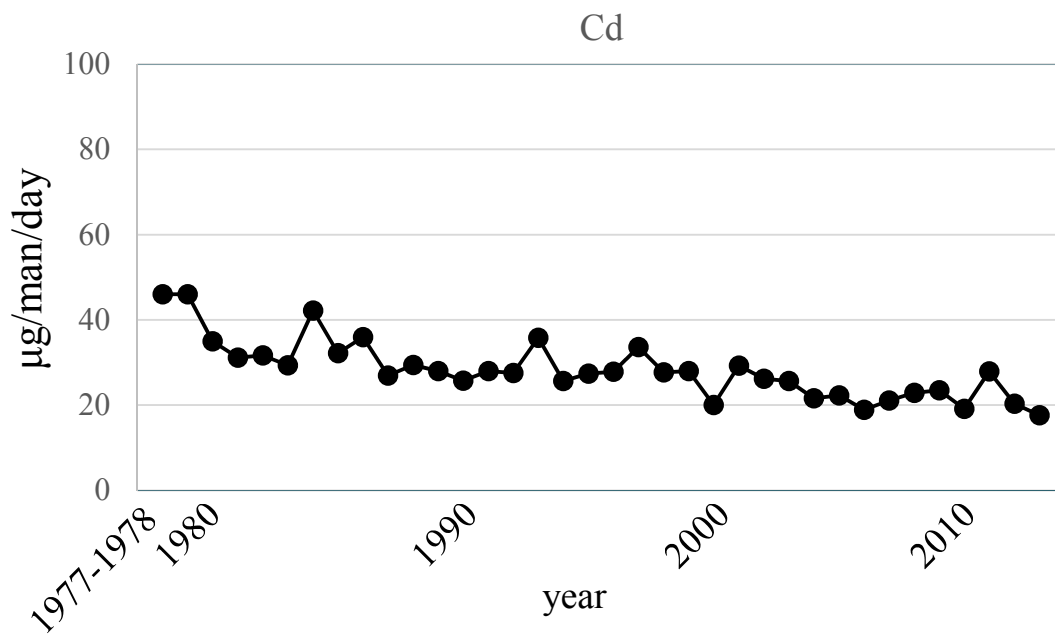


図4 カドミウム摂取量の経年変化 (1977-2013)

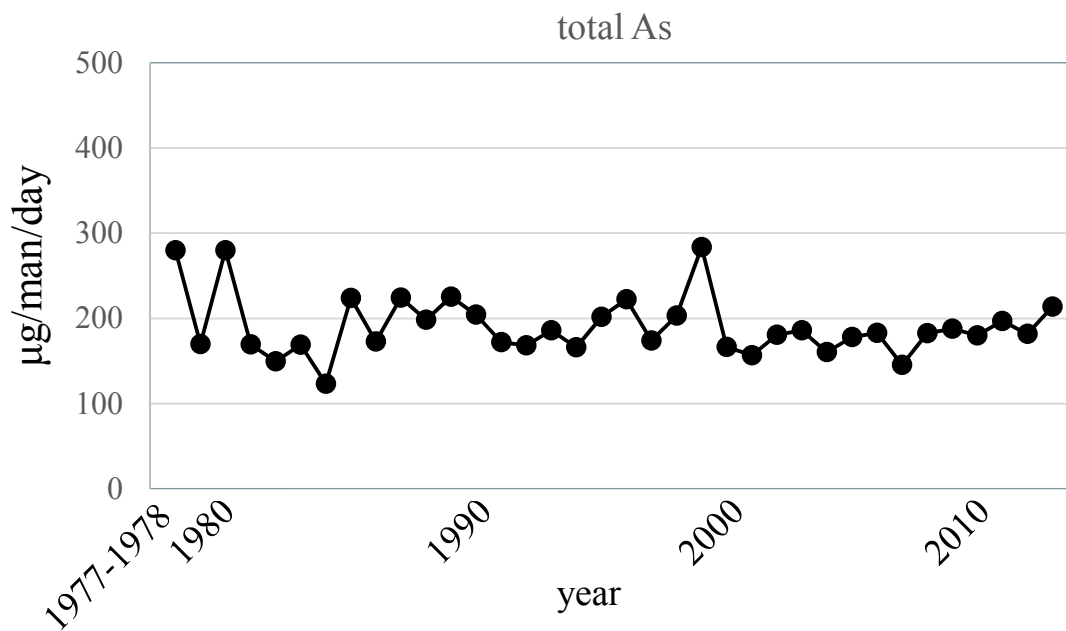


図5 総ヒ素摂取量の経年変化 (1977-2013)

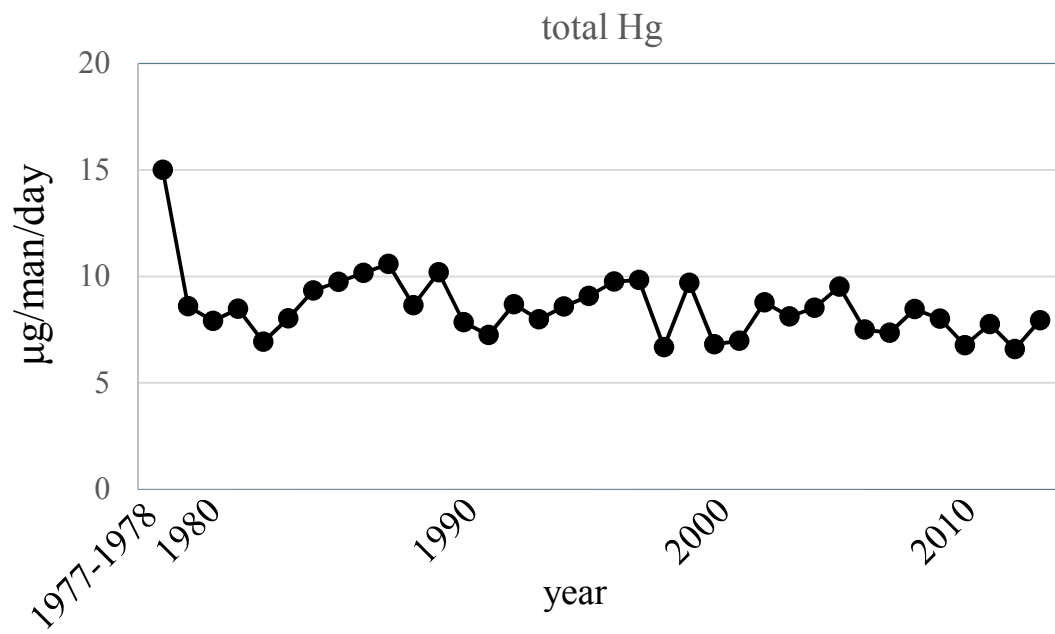


図 6 総水銀摂取量の経年変化 (1977-2013)



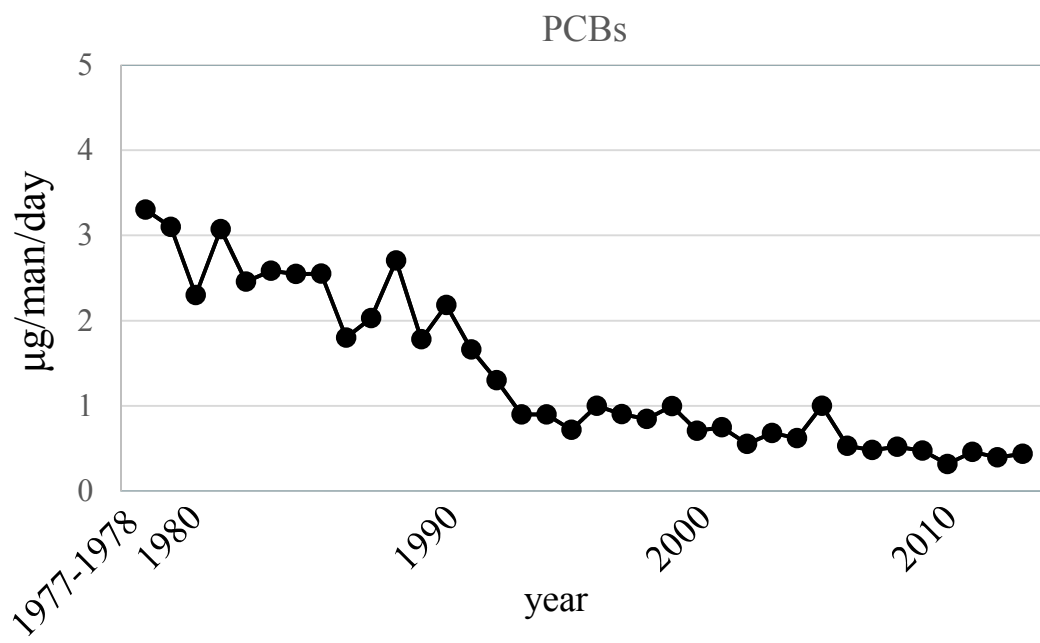


図7 総 PCBs 摂取量の経年変化 (1977-2013)

**各種有害物質の適時及び継続的な摂取量推定研究・研究報告書**

**有害物質濃度実態調査の部**

有害物質濃度実態調査の部

ハロゲン系難燃剤の食品汚染実態調査

研究要旨

ハロゲン系難燃剤による食品汚染実態を把握することを目的として、福岡県内で購入した魚介類試料について、臭素系難燃剤のヘキサブプロモシクロドデカン(HBCD)及び塩素系難燃剤のデクロランプラス(DP)の分析を行った。

HBCD はホモジナイズ抽出し、LC-MS/MS により測定を行った。その結果、魚介類 20 試料すべてから検出され、その湿重量当たりの濃度範囲は 0.12 ng/g ~ 22 ng/g(平均 3.1 ng/g)であった。異性体別の濃度は 体が 0.12 ~ 16 ng/g、 体が ND ~ 0.11 ng/g、 体が ND ~ 6.2 ng/g であった。濃度が高い試料について光学異性体分析を行った結果、光学異性体構成比は 体で 0.49 ~ 0.56、 体で 0.50 ~ 0.55 であり、光学異性体による明確な差異は見られなかった。

DP 分析では高速溶媒抽出法(ASE)を用いて魚介類の抽出を行い、測定には高分解能ガスクロマトグラフ・質量分析計(HRGC/HRMS)を用いた。DP の *syn* 体と *anti* 体の 2 種類の異性体を対象に定量分析を行った結果、魚介類 20 試料中 17 試料から DP が検出された。得られた濃度値(湿重量あたり)は *syn* 体が ND ~ 7.0 pg/g(平均 2.2 pg/g)、*anti* 体は ND ~ 13 pg/g(平均 3.7 pg/g)であり、DP の *syn* 体と *anti* 体の濃度合計値(Total DP)の範囲は ND ~ 20 pg/g(平均 5.9 pg/g)であった。DP の定量下限値は各異性体につき 1 pg/g(湿重量あたり)であった。

研究協力者

福岡県保健環境研究所

高橋浩司、堀 就英、宮脇 崇

公益財団法人北九州生活科学センター

山本貴光

A 研究目的

難燃剤は、プラスチック、ゴム、繊維等の高分子有機材料を難燃化するために広く使用されている。難燃剤には、ハロゲン系やリン系などの有機系難燃剤及び金属酸化物やアンチモン系などの無機系難燃剤があり、このうちハロゲン系難燃剤はその効率の良さからプラスチック製品の難燃剤とし

て幅広く使用されている。

ハロゲン系難燃剤のうち、臭素系難燃剤は、人体への影響や、より毒性が高い臭素系ダイオキシン類の発生等への懸念がある。そのため国内では 1990 年以降、臭素化ジフェニルエーテル類(PBDEs)の使用はメーカーの自主規制により減少している。しかし、環境中での残留性が高い高臭素化体のデカブロモジフェニルエーテル(DeBDE)や、生

物濃縮性が高いヘキサブロモシクロドデカン(HBCD)は現在も使用されており、さらに DeBDE の代替品としてデカプロモジフェニルエタン(DBDPE)が使用されている。

HBCD は、分子量 641.7 の臭素系化合物で、16 の立体異性体があり、主な異性体は 体、 体及び 体である(図 1)。主に樹脂用及び繊維用の難燃剤として用いられており、平成 23 年度の製造・輸入数量の合計は約 2,600 トンである<sup>1)</sup>。HBCD は難燃剤として優れた性質を持つ一方、環境中での残留性や生物蓄積性を有することから、平成 25 年にストックホルム条約(POPs 条約)の締結国会議において同条約付属書 A(廃絶)に追加されることが決定され、日本においても化学物質審査規制法の第一種特定化学物質への指定が決定した。しかし、HBCD を使用した製品の廃棄が今後増加していくことから、環境や食品における汚染実態調査を継続的に行っていく必要がある。HBCD についてはこれまでの研究において国内 3 地区のマーケットバスケット方式による摂取量調査を行い、第 10 群(魚介類)のみから検出された<sup>2)3)4)</sup>。そのため、魚介類の個別試料を測定することで、食品汚染の実態を把握することができると考えられる。

一方、デクロランプラス(Dechlorane Plus、以下 DP)は、分子量 653.7 の塩素系化合物である。化学名(IUPAC 名)は 1, 2, 3, 4, 7, 8, 9, 10, 13, 13, 14, 14-dodecachloro-, 4, 4a, 5, 6, 6a, 7, 10, 10a, 11, 12, 12a-dodecahydro-1, 4:7,10-dimethanodibenzo [a, e] cyclooctene であり、*syn* 体と *anti* 体の二つの異性体が存

在する(図 2)。

DP は POPs 条約で指定された塩素系難燃剤・マイレックス(Mirex)の代替製品として需要が増大傾向にあり、近年環境汚染物質として注目されている物質である。DP の水 - オクタノール分配係数(log  $K_{ow}$ )の 9.3<sup>5)</sup> は代表的な PCB 異性体やダイオキシン類と同等の値であり、生物濃縮性の観点から注視が必要な物質である。食品中の DP 濃度については、国内で柿本ら<sup>6)7)</sup>によって魚介類から検出した事例が報告されているが、食品汚染実態に関する十分なデータが得られていないのが現状である。

上記の現状に鑑み、本分担研究では臭素系難燃剤である HBCD 及び塩素系難燃剤である DP について、魚介類試料中の汚染実態調査を行った。

## B 研究方法

### 1 試料・試薬等

#### 1.1 試料

平成 25 年度に福岡県内の食料品店で購入した生鮮魚介類 20 試料(主に九州地区を産地とする)を調査対象とした(表 1)。各々の可食部を採取し、細切・均一化したものを分析に用いた。

#### 1.2 標準物質

、 、 -HBCD 標準品、及び 、 、 <sup>13</sup>C<sub>12</sub> ラベル化 HBCD は Cambridge Isotope Laboratories 社製を用いた。各異性体をメタノールで適宜希釈・混合して分析に用いた。

DP の標準溶液は、Wellington Laboratories 社製を使用した。DP の *syn* 体と *anti* 体の各々についてネイティブ体標準液と  $^{13}\text{C}$ -ラベル体標準液を購入し、これらをノナンで適宜希釈・混合して分析に用いた(表 2)。シリンジスパイクには、 $^{13}\text{C}$ -2,3,3',5,5'-pentaCB( $^{13}\text{C}$ -PCB111)を使用した。

DP 標準品は低温保存によって保存容器壁面へ吸着し、特に *anti* 体が溶液中の濃度低下を起こしやすいという報告<sup>8)</sup>があるため、購入後の標準原液や希釈調製した標準溶液及び最終試料(測定バイアル)は常時室温で保管し、実験に使用した。

### 1.3 試薬及び器材

アセトン、ヘキサン、ジクロロメタン、ノナン、メタノール、蒸留水(ヘキサン洗浄品)、無水硫酸ナトリウム及び塩化ナトリウムは関東化学社製のダイオキシン類分析用又は残留農薬・PCB 試験用を用いた。硫酸は和光純薬工業社製の有害金属測定用を使用した。44%硫酸シリカゲルは和光純薬工業社製ダイオキシン類分析用を用いた。珪藻土は International Sorbent Technology 社製の BULK ISOLUTE SORBENT HM-N を用いた。フロリジルカートリッジカラムは Waters 社製の Sep-pak Vac RC (500 mg)を使用した。スルホキシドカラムは Supelco 社製の Supelclean Sulfoxide(3 g)を用いた。

## 2 機器及び使用条件

### 2.1 液体クロマトグラフ・タンデム型質量分析計(LC-MS/MS)

HBCD 分析には LC-MS/MS(Waters 社製 2695 / Quattro Ultima Pt)を用いた。表 3 に示す条件により測定を行った。

### 2.2 高分解能ガスクロマトグラフ・質量分析計(HRGC-HRMS)

HRGC-HRMS は下記の 2 つのシステムを使用した。

システム 1 :

HRGC : Agilent 6890N(スプリットレス注入)-HRMS : Micromass AutoSpec Premier

システム 2 :

HRGC : Agilent 7890N(大量注入装置アイステイサイエンス社製 LVI-S200 付き)-HRMS : Micromass AutoSpec Premier

### 2.3 GPC 装置

GPC として、ポンプはジーエルサイエンス社製の PU 714、カラムオーブンはジーエルサイエンス社製の CO 705、検出器はジーエルサイエンス社製の GL-7452、分画装置は東京理化学器械社製の DC-1500 を使用した。プレカラム及び分離カラムは昭和電気社製 Shodex CLNpak EV-G AC 及び EV-2000 AC を用い、移動相はアセトン/シクロヘキサン(3:7, v/v)、流速 5 mL/min とした。

### 2.4 高速溶媒抽出装置

高速溶媒抽出(ASE)には DIONEX 社製の大容量型装置 ASE-350 を使用した。抽出条件は下記の通りであった。

セル温度 : 100 、セル圧力 : 1500psi、加熱時間 : 5 分、静置時間 : 10 分、抽出サイクル数 : 2、抽出溶媒 : ヘキサン

### 3 実験操作

#### 3.1 HBCD の分析操作

図 3 に示す操作フローに従い、HBCD の分析を実施した。

試料約 5 g を秤取して精製水 5 mL を加え、 $^{13}\text{C}_{12}$ -、 $^{13}\text{C}_{12}$ - 及び  $^{13}\text{C}_{12}$ -HBCD 各 1 ng を内部標準として添加した。これに抽出溶媒としてメタノール 20 mL を加え 2 分間高速ホモジナイザーにより攪拌抽出した。これをろ過し、ろ液は 300 mL 分液ロートに移した。残渣は、メタノール 10 mL と 10% ジクロロロメタン/ヘキサンの混液(以下 DCM/Hex)10 mL で再度ホモジナイズ抽出を行い、さらに 10% DCM/Hex 20 mL で抽出を行った。ろ紙をメタノール及び 10% DCM/Hex 各 10 mL で洗い、ろ液及び洗液を 300 mL 分液ロートに合わせ、あらかじめジクロロロメタンで洗浄した 5% NaCl 水溶液 120 mL を加えて 5 分間振とうした後、静置した。分離した有機層は綿栓した三角ロート上の無水硫酸ナトリウムを通過させ、ナス型フラスコに採った。その後、10% DCM/Hex 40 mL で同様の液 - 液抽出及び脱水を 2 回行った。得られた有機層はエバポレータで減圧濃縮し、アセトン/シクロヘキサン(3 : 7)に置換し 10 mL に定容した。そのうちの 2 mL を GPC 装置に注入し、粗脂肪溶出直後の HBCD 溶出画分(溶出時間 12.5 分 ~ 18.5 分)を採取して濃縮乾固した。残渣を少量のヘキサンに溶解し、パスツールピペットに 44%硫酸シリカゲルを 1 g 充填したミニカラムに負荷した。20%

DCM/Hex 8 mL で溶出し、窒素ガス吹付け乾燥した。少量のジクロロロメタンに溶解させインサートバイアルに移し、自然乾燥後にメタノール 50  $\mu\text{L}$  を加えて溶解させ、LC-MS/MS で測定した。

#### 3.2 DP の分析操作

##### 3.2.1 DP 分析法の検討

分析法の予備検討として、フロリジルカラム及びスルホキシドカラムにおける DP 標準品の溶出挙動の確認、フロリジルカラムにおける魚由来成分の除去効果、について検討した。

の検討では DP 標準品を固相カラムに負荷して溶媒で溶出し、標準品回収率を調べた。ではマグロ抽出物をフロリジルカラムに負荷し、油状成分等のマトリックスが十分に取り除けるか調べた。

機器分析においては、HRGC-HRMS に DP 標準品を注入して、良好なピークが得られる測定条件(イオン化電圧、カラムオープン温度等)を検討した。

##### 3.2.2 魚介類試料中の DP 分析

図 4 に示す操作フローに従い、DP の分析を実施した。

均一化した魚介類試料の約 10 g を 250 mL 容テフロン製遠沈管に秤量し、珪藻土約 20g を加えて混合した。混合物を ASE-350 用のステンレス製抽出セル(99 mL 容)に充填し、クリーンアップスパイク( $^{13}\text{C}$ -syn-DP 及び  $^{13}\text{C}$ -anti-DP の 2 成分を各 250 pg 相当)を添加し、2.3 項に示した条件

で抽出を行った。抽出液は 250 mL 容の捕集ボトルに回収し、2%塩化ナトリウム水溶液 50 mL を加えて緩やかに振り混ぜて抽出液を洗浄した。抽出液を 300 mL 容ナス型フラスコに移し、ロータリーエバポレーターで約 10 mL になるまで濃縮した。

この濃縮液を、風袋を量った 100 mL 容ビーカーに移し、室温下で一夜静置して大部分の有機溶媒を揮散させた。その後、105 に設定したアルミブロック上で 3 時間加熱し乾燥させた。放冷後重量を測定し、得られた抽出物(脂肪成分)の重量を求めた。

抽出物を少量のヘキサンで再溶解し、試験管内で硫酸と反応させ、脂肪成分や色素等の有機物を除去した(硫酸処理)。脂肪含量が 10%以上の 2 試料(No.5 及び 11)では、50 mL 容共栓遠沈管を用いて抽出液約 30 mL に対して硫酸 10 mL を添加し、一夜静置した。脂肪含量が 10%に満たない試料においては、10 mL 容共栓スピッツ管を用い、抽出液約 6 mL に対して硫酸 2 mL で処理を行った。硫酸処理は有機層の着色が無くなるまで繰り返して行った。

硫酸処理後のヘキサン層に対して減圧濃縮や窒素ガス気流による濃縮を行い、最終的に 10 mL 容先細型スピッツ管内で全量約 1 mL に調製した。ここに蒸留水(ヘキサン洗浄品)をパスツールピペットで数滴加え、試験管ミキサーで緩やかに混和してヘキサン層を洗浄した。次に 2,500 rpm で 10 分間遠心分離を行い、得られた上清(ヘキサン層)をフロリジルカラムによる精製操作に供した。

フロリジル精製は先山らの方法<sup>8)</sup>を参考に行った。あらかじめヘキサン 10 mL でコンディショニングしたカラムに上記のヘキサン層を負荷し、5%ジクロロメタン/ヘキサン 7 mL で溶出した。得られた溶出液を窒素ガス気流で穏やかに濃縮し、濃縮液を測定バイアルに移し、シリンジスパイク(<sup>13</sup>C-PCB111 を 125 pg 相当)を添加した。ノナンで全量を約 50 µL としたものを最終検液とし、このうち 2 µL を HRGC-HRMS(2.2 項に記載したシステム 1)に注入して測定した。定量下限値は、*syn* 体及び *anti* 体ともに湿重量あたり 1 pg/g であった。

### 3.3 DP 標準品の添加回収試験

魚介類 20 試料と同じ分析フロー(図 4)に従い、エビ均一化試料を用いて DP の添加回収試験を行った(n=4)。試料 10 g に DP 標準物質(*syn*-DP 及び *anti*-DP の 2 成分を各 2 ng 相当)を添加し ASE で抽出した。抽出液の精製は 3.2 項と同様に行い、最終測定試料にクリーンアップスパイク(<sup>13</sup>C-*syn*-DP 及び <sup>13</sup>C-*anti*-DP の 2 成分を各 2 ng 相当)を添加して測定した。ネイティブ体とラベル体のピーク面積比より前者の添加回収率を算出した。

## C 研究結果及び考察

### 1 HBCD の実態調査結果

#### 1.1 市販魚介類試料中の HBCD 濃度

魚介類 20 試料の HBCD の分析結果を表 4 に示す。HBCD は 20 試料すべてから検出され、その湿重量当たりの濃度範囲は 0.12 ng/g ~ 22 ng/g(平均 3.1 ng/g)であった。異性

体別では、体は 20 試料全てから検出されたが、体は 20 試料中 6 試料、体は 20 試料中 11 試料から検出され、濃度範囲は体が 0.12 ~ 16 ng/g(平均 2.4 ng/g)、体が ND ~ 0.11 ng/g(ND=0 としたときの平均 0.01 ng/g)、体が 0.02 ~ 6.2 ng/g(ND=0 としたときの平均 0.65 ng/g)であった。魚介中の HBCD 異性体の濃度割合は、体 > 体 > 体であり、これまでの報告<sup>9)</sup>と同様の傾向であった。

各試料の HBCD の濃度を図 5 に、異性体の割合を図 6 に示す。魚種別に見ると、HBCD 濃度はマグロ及びブリで高い傾向が見られ、サバは 2 検体中 1 検体が高い濃度であった。また、異性体については、マグロの体の割合が他の魚種に比べて高い傾向を示していた。今回の分析では魚種あたりの検体数が 1 ~ 4 検体と少ないため、魚種ごとの異性体別濃度の傾向を詳細に把握するためにはさらに検体数を増やして分析する必要がある。

HBCD 濃度について魚介類の脂肪含量との関連を調べた。その結果を図 7 に示す。全 20 試料の湿重量あたりの Total HBCD 濃度に対する各試料の脂肪含量(%)との間には相関が見られた( $r^2=0.529$ )。

## 1.2 HBCD の光学異性体分析

今回分析した試料のうち、各異性体の濃度が 1 ng/g 以上の試料(6 試料)について、光学異性体を測定した。Janák らの方法<sup>10)</sup>を参考にし、キラルカラム(Marcherey- Nagel 社製 Nucleodex -PM(4.0 × 200 mm i.d., 5

μm))を用いて LC-MS/MS による測定を行った。光学異性体構成比(EF)は、ピーク面積(A)から次式により計算した。

$$EF = \frac{(+A)}{(-)A + (+)A}$$

測定結果を表 5 に示す。今回分析した試料(サバ 1 検体、ブリ 3 検体、マグロ 2 検体)について、EF 値は体で 0.49 ~ 0.56、体で 0.50 ~ 0.55 であり、光学異性体による明確な差異は見られなかった。

## 2 DP の分析調査

### 2.1 DP 分析条件の検討

これまでに水質<sup>11)-13)</sup>や大気<sup>11),14)</sup>、土壌<sup>15)</sup>、底質<sup>13),16),17)</sup>等の環境試料、ハウスダスト<sup>8),18)</sup>、生物試料<sup>12),19)</sup>等から DP を検出した事例が報告されている。DP の抽出方法としては、主に液 - 液分配抽出、ソックスレー抽出、固 - 液抽出や加圧流体抽出(PFE)<sup>20)</sup>等が用いられている。本研究では、抽出効率が高く、操作を迅速に行うことが可能な ASE を用いて分析を実施した。抽出溶媒には魚試料に対して適用事例があるヘキサン<sup>21)</sup>を使用した。魚均一化試料(表 1)を珪藻土粉末と混合して抽出を行ったところ、全ての魚介類試料でエマルジョンの形成は認められず、均質性の高い抽出液を得ることができた。

固相カートリッジカラム(フロリジルカラム及びスルホキッドカラム)における標準品回収率を調べた。ヘキサン 1mL を試験管に取り、クリーンアップスパイク(<sup>13</sup>C-syn-DP 及び<sup>13</sup>C-anti-DP の 2 成分を各 2



ng 相当)を添加し、この溶液を固相に負荷して溶媒で溶出し、測定した(n=3)。結果として、両固相カラムからの標準品の回収率は良好であった(表 6)。今年度の魚試料の分析にスルホキシドカラムは使用しなかったが、DP 分析における精製方法の選択肢のひとつとして、フロリジルカラムとともに DP の溶出挙動を把握することができた。

魚介類全 20 試料の分析に先立ち、フロリジルカラムにおける魚抽出物の精製効果を調べた。魚介類 20 試料の中で最も脂肪含量が高かった魚試料 No.11(マグロ)10 g を用い、図 4 の分析フローに従い調製した抽出液をフロリジルカラムで精製して、溶出液を濃縮乾固したところ、油状成分の残存はほとんど認められなかった。この結果から、フロリジルカラムを用いて魚 10 g 相当量のマトリックス成分をほぼ除去できることが分かった。

HRGC-HRMS は先山らの報告<sup>8)</sup>に従い初期条件を設定した。DP 混合標準溶液(1 ng/mL)を繰り返し測定し、良好なピーク形状と感度が得られる条件を検討した(表 7)。DP 混合標準溶液の測定クロマトグラムを図 8 に示した。測定の結果、標準物質の分解や容器への吸着による異性体比率の変化等の現象は認められなかった。

## 2.2 DP 標準品の添加回収試験結果

エビ均一化試料を用いて標準品の添加回収試験(n=4)を行ったところ、*syn*-DP 及び *anti*-DP の回収率は、それぞれ 96 ~ 101% 及び 92 ~ 95% の範囲となり、良好であった(表

8)。

## 2.3 市販魚介類試料中の DP 濃度

魚介類中の DP 分析クロマトグラムの一例を図 9 に示す。クロマトグラム上に著しい妨害ピークの出現は認められなかった。

魚介類 20 試料の分析結果を表 9 に示す。DP は 20 試料中 17 試料から検出され、これら 17 試料のうち 2 試料では *syn* 体は定量限界値未満(ND)であり、*anti* 体のみが定量下限値(1.0 pg/g)以上の濃度で検出された。

全 20 試料の検出濃度範囲は *syn* 体が ND ~ 7.0 pg/g(平均 2.2 pg/g)、*anti* 体は ND ~ 13 pg/g(平均 3.7 pg/g)であった。DP の *syn* 体と *anti* 体の濃度合計値(Total DP)の範囲は ND ~ 20 pg/g(平均 5.9 pg/g)であった。

我が国における DP 濃度の実態調査事例として、柿本らが食用魚介類 20 種類の分析を行い、ND(< 0.2 pg/g) ~ 14.2 pg/g の結果を得ている<sup>6)</sup>。魚種や試料採取地が異なるが、本研究で得られた結果は柿本らの調査結果と近似した値であった。

全 20 試料の湿重量あたりの Total DP 濃度に対する各試料の脂肪含量(%)との間には、弱い相関が認められた( $r^2=0.212$ )。

水質や土壌等の環境媒体から DP を検出したこれまでの報告では、環境動態の観点から、異性体の *syn* 体と *anti* 体の濃度比を求め、両者の残留傾向が比較されている。今回分析を行った魚介類 20 試料のうち、*syn* 体と *anti* 体の双方が検出された 15 試料について Total DP 濃度に対する *anti* 体濃度の比率( $f_{anti}$ )を算出したところ、 $f_{anti}$  値の範囲

は 0.58 ~ 0.65(平均 : 0.62)であった(表 9)。米国で工業生産されている DP 製品の  $f_{anti}$  値は 0.64 ~ 0.85、中国で生産される製品の分析事例では 0.59 ~ 0.60 と報告されている<sup>8)22)23)</sup>。本研究の魚介類 15 試料の  $f_{anti}$  値は、中国製品に近い値を示し、柿本らによる魚介類 12 試料における報告(範囲 : 0.56 ~ 0.72、平均 : 0.62)と近い値であった<sup>6)</sup>。一方、国内における屋外沈着物(0.81 ~ 0.85)、土壌(0.81)、底質(0.77 ~ 0.84)等と比較して低い傾向が認められた<sup>8)</sup>。

魚介類試料中の DP 分析で今後検討を要する課題として、検出感度の向上が挙げられる。本研究における DP の定量下限値(湿重量あたり)は 1 pg/g であり、柿本らによる報告にある定量下限値 0.2 pg/g には及ばない<sup>6)</sup>。定量下限の向上のため、現在大量注入装置を取り付けた HRGC-HRMS(2.2.1 項のシステム 2)を用いて DP を高感度に検出できる機器条件の検討を行っている。

また、HRGC-HRMS で一連の魚介類試料を分析する前後に標準溶液の測定を行ったところ、クリーンアップスパイクに対するシリンジスパイクの相対感度係数(RRF<sub>SS</sub>)が最大で 6 倍程度変動していることが分かった。原因は明らかでないが、魚試料中のマトリックス成分が機器に影響を与えた可能性が考えられる。RRF<sub>SS</sub> 値の変動は回収率の評価に影響を与えるため、スルホキシドカラム等を用いて試料の追加精製を行った場合、RRF<sub>SS</sub> 値の変動が改善するか検討する予定である。また本研究ではシリンジスパイクに <sup>13</sup>C-PCB111 を用いたが、

HRGC-HRMS における感度変動が起きにくく DP と保持時間の近い PCB 異性体に変更することも別途検討する計画である。

## D 結論

魚介類中の HBCD 濃度の実態調査では、測定した 20 試料すべてから HBCD が検出され、その湿重量当たりの濃度範囲は 0.12 ng/g ~ 22 ng/g(平均 3.1 ng/g)であり、魚種別ではマグロやブリで濃度が高い傾向があり、脂肪含量との相関が見られた。光学異性体分析を行った結果からは、各異性体の濃度比について、試料間での明確な差異は見られなかった。HBCD の生産量は今後減少すると考えられるが、環境への放出は長期間続くと予想される。本研究で得られた実態調査結果からは、現時点でも魚介類の汚染頻度が高いことが示唆されており、従って、今後も魚介類を中心とした調査を継続して行う必要がある。

魚介類中の DP 分析においては、抽出操作に ASE を、機器分析には HRGC-HRMS を用いて DP の *syn* 体と *anti* 体を分離定量した。エビ均一化試料を用いて行った標準品添加回収実験の結果は良好であり、湿重量あたりの定量下限値は各異性体で 1 pg/g であった。今回の調査では、魚介類 20 試料のうち 17 試料から DP が検出され、Total DP の濃度範囲は ND ~ 20 pg/g(平均 : 5.9 pg/g)であった。今後も、魚介類を中心に調査データの蓄積・拡充を図り、汚染実態を把握するとともに、トータルダイエツト試料等の分析等を通じ、喫食に由来する摂取量の把握が必要と考えられる。

## E 参考文献

- 1) 経済産業省「化審法の施行状況(平成 24 年)」. [http://www.meti.go.jp/policy/chemical\\_management/kasinhou/files/information/sekou/sekou\\_h24.pdf](http://www.meti.go.jp/policy/chemical_management/kasinhou/files/information/sekou/sekou_h24.pdf).
- 2) 平成 22 年度厚生労働科学研究費補助金 食品の安心・安全確保推進研究事業「食品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 食品における有機臭素系化合物の汚染調査」研究分担報告書.
- 3) 平成 23 年度厚生労働科学研究費補助金 食品の安心・安全確保推進研究事業「食品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 食品における有機臭素系化合物の汚染調査」研究分担報告書.
- 4) 平成 24 年度厚生労働科学研究費補助金 食品の安心・安全確保推進研究事業「食品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 食品における有機臭素系化合物の汚染調査研究」研究分担報告書.
- 5) 米国 EPA ホームページ資料:<http://www.epa.gov/HPV/pubs/summaries/dechlorp/c15635tp.pdf>.
- 6) 柿本健作、永吉晴奈、山口貴弘、吉田仁、安達史恵、高木総吉、小西良昌 食用魚中の塩素系難燃剤デクロランプラス. 第 21 回環境化学討論会講演要旨集、633-634.
- 7) Kakimoto K, Nagayoshi H, Takagi S, Akutsu K, Konishi Y, Kajimura K, Toriba A, Hayakawa K. Intake assessment of Dechlorane Plus and polybrominated diphenyl ethers via inhalation and diet in Japan. *Organohalogen Compounds* (2013) 75, 157-160.
- 8) 先山孝則、中野武 高分解能 GC/MS 法を用いる環境中の塩素系難燃剤 Dechlorane Plus の分析. *分析化学*、第 60 号、(2012)745-754.
- 9) Nakagawa R, Murata S, Ashizuka Y, Shintani Y, Hori T, Tsutsumi T. Hexabromocyclododecane determination in seafood samples collected from Japanese coastal areas. *Chemosphere* (2010) 81, 445-452.
- 10) Janák K, Covaci A, Voorspoels S, Becher G. Hexabromocyclododecane in marine species from the Western Scheldt Estuary: diastereoisomer- and enantiomer-specific accumulation. *Environ Sci. Technol.* (2005) 39, 1987-1994.
- 11) Moller A, Xie Z, Sturm R, Ebinghaus R. Large-scale distribution of Dechlorane Plus in air and seawater from the Arctic to Antarctica. *Environ. Sci. Technol.* (2010) 44, 8977-8982.
- 12) Jia H, Sun Y, Liu X, Yang M, Wang D, Qi H, Shen L, Sverko E, Reiner E.J., Li Y.F. Concentration and bioaccumulation of Dechlorane compounds in coastal environment of northern China. *Environ. Sci. Technol.* (2011) 45, 2613-2618.
- 13) Qi H, Liu L, Jia H, Li Y.F., Ren N.Q., You H, Shi X, Fan L, Ding Y. Dechlorane Plus in

- surficial water and sediment in a northeastern Chinese river. *Environ. Sci. Technol.* (2010) 44, 2305-2308.
- 14) Ben N, Sverko E, Li Y.F., Zhang Z, Harner T, Wang D, Wan X, Mccarry B.E. Levels and isomer profiles of Dechlorane Plus in Chinese Air. *Environ. Sci. Technol.* (2008) 42, 6476-6480.
- 15) Yu Z, Lu S, Gao S, Wang J, Li H, Zeng X, Sheng G, Fu J. Levels and isomer profiles of Dechlorane Plus in the surface soils from e-waste recycling areas and industrial areas in South China. *Environmental Pollution* (2010) 158, 2920-2925.
- 16) Qiu X, Marvin C.H., Hites R.A. Dechlorane Plus and other flame retardants in a sediment core from Lake Ontario. *Environ. Sci. Technol.* (2007) 41, 6014-6019.
- 17) Sverko E, Tomy G.T., Marvin C.H., Zaruk D, Reiner E, Helm P.A., Hill B, Mccarry B.E. Dechlorane Plus levels in sediment of the lower Great Lakes. *Environ. Sci. Technol.* (2008) 42, 361-366.
- 18) Zhu J, Feng Y.L., Shoeib M, Detection of Dechlorane Plus in residential indoor dust in the city of Ottawa, Canada. *Sci. Technol.* (2007) 41, 7694-7698.
- 19) Gauthier L.T., Letcher R.J. Isomers of Dechlorane Plus flame retardant in the eggs of herring gulls (*Larus argentatus*) from the Laurentian Great Lakes of North America: Temporal changes and spatial distribution. *Chemosphere* (2009) 75, 115-120.
- 20) Tomy G.T., Pleskach K, Ismail N, Whittle D.M., Helm P.A., Sverko E, Zaruk D, Marvin C.H. Isomers of Dechlorane Plus in Lake Winnipeg and Lake Ontario food webs. *Environ. Sci. Technol.* (2007) 41, 2249-2254.
- 21) Shen L, Reiner E.J., Macpherson K.A., Kolic, T.M., Sverko E, Helm P.A., Bhavsar S.P., Brindleid I.D., Marvin C.H. Identification and screening analysis of halogenated norbornene flame retardants in the Laurentian Great Lakes: Dechloranes 602, 603, and 604. *Environ. Sci. Technol.* (2010) 44, 760-766.
- 22) Hoh E, Zhu L, Hites R.A. Dechlorane Plus, a chlorinated flame retardant, in the Great Lakes. *Environ. Sci. Technol.* (2006) 40, 1184-1189.
- 23) Wang D.G., Yang M, Qi H, Sverko E, Ma W.L., Li Y.F., Alae M, Reiner E.J., Shen L. An Asia-specific source of Dechlorane Plus: concentration, isomer profiles, and other related compounds. *Environ. Sci. Technol.* (2010) 44, 6608-6613.

## F. 研究業績

### 1. 論文発表

なし

### 2. 学会発表

- 1) Takahashi K, Nakagawa R, Kajiwara J, Ashizuka Y, Yasutake D, Watanabe T, Tsutsumi T, Matsuda R. Determination of brominated flame retardants in food samples of Japan. The 33rd International

Symposium on Halogenated Persistent  
Organic Pollutants (2013.8).

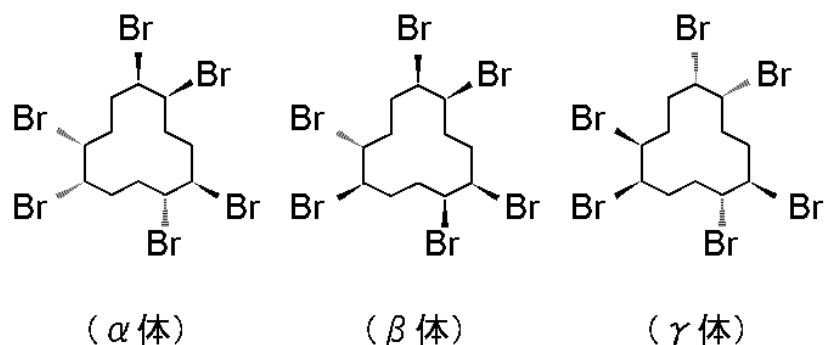


図1 ヘキサブロモシクロドデカン(HBCD)の化学構造

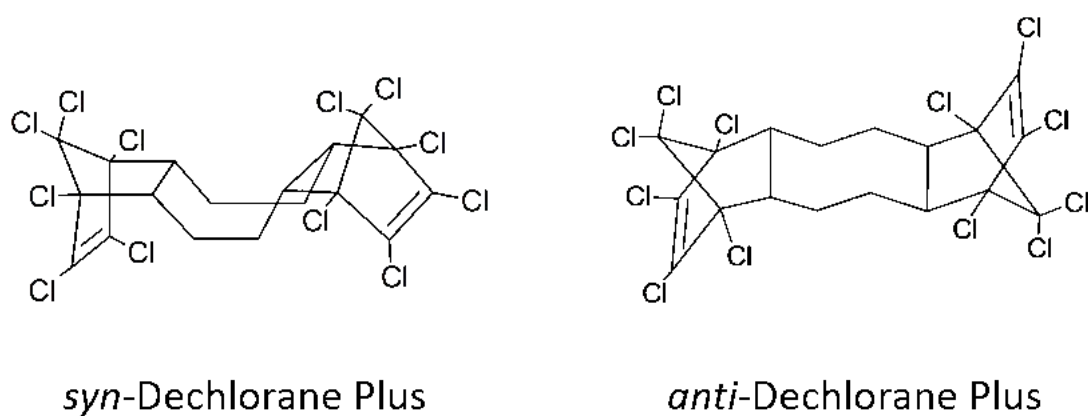


図2 デクロランプラス(DP)の化学構造

表1 分析に用いた魚介類試料

No	サンプル名	産地	No	サンプル名	産地
1	イワシ	中国・四国地方	11	マグロ1	九州地方
2	サバ1	九州地方	12	マグロ2	九州地方
3	サバ2	九州地方	13	アジ1	九州地方
4	ブリ1	九州地方	14	アジ2	九州地方
5	ブリ2	九州地方	15	アジ3	九州地方
6	ブリ3	中国・四国地方	16	アジ4	九州地方
7	スズキ1	九州地方	17	タラ	東北地方
8	スズキ2	九州地方	18	タチウオ	九州地方
9	タイ1	中国・四国地方	19	ヤズ	九州地方
10	タイ2	九州地方	20	カンパチ	九州地方

表 2 DP 標準溶液の組成と濃度

	相対感度係数 測定用溶液1 (ng/mL)	相対感度係数 測定用溶液2 (ng/mL)	クリーンアップス バイク用溶液 (ng/mL)	シリンジスパイク 用溶液1 (ng/mL)	シリンジスパイク 用溶液2 (ng/mL)
ネイティブ体					
<i>syn</i> -Dechlorane Plus	10	1	-	-	-
<i>anti</i> -Dechlorane Plus	10	1	-	-	-
ラベル体					
<sup>13</sup> C- <i>syn</i> -Dechlorane Plus	10	1	10	-	-
<sup>13</sup> C- <i>anti</i> -Dechlorane Plus	10	1	10	-	-
<sup>13</sup> C-2,3,3',5,5'-pentaCB	10	1	-	50	5

表 3 LC-MS/MS による HBCD の分析条件

カラム	GL Sciences 社製 Intertsil ODS-4 (150 × 2.1 mm i.d., 5 μ m) Marcherey-Nagel 社製 Nucleodex -PM (200 × 4.0 mm i.d., 5 μ m)
カラム温度	40
注入量	5 μ L
移動相	10 mM 酢酸アンモニウム : メタノール : アセトニトリル = 20 : 50 : 30 (2 分) ~ 0 : 70 : 30 (7-13 分) ~ 20 : 50 : 30 (14-20 分) 2 mM 酢酸アンモニウム入りメタノール/水(1:1) : メタノール/アセトニトリル (3:7) = 50 : 50 (0 分) ~ 0 : 100 (4.5-10 分) ~ 50 : 50 (16-20 分)
移動相流量	0.2 mL/min    0.3 mL/min
測定モード	ESI negative MRM 測定
キャピラリー電圧	2.0 kV
イオン源温度	120
モニターイオン	Native-HBCD; 641>79 (定量)、639>79 (確認) <sup>13</sup> C <sub>12</sub> -HBCD; 653>79 (定量)、651>79 (確認)

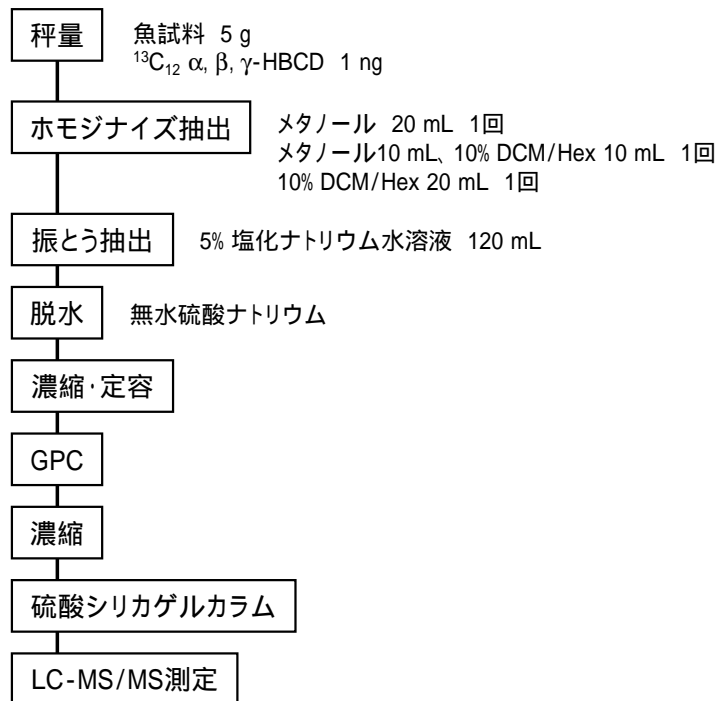


図3 魚試料中のHBCD分析フロー

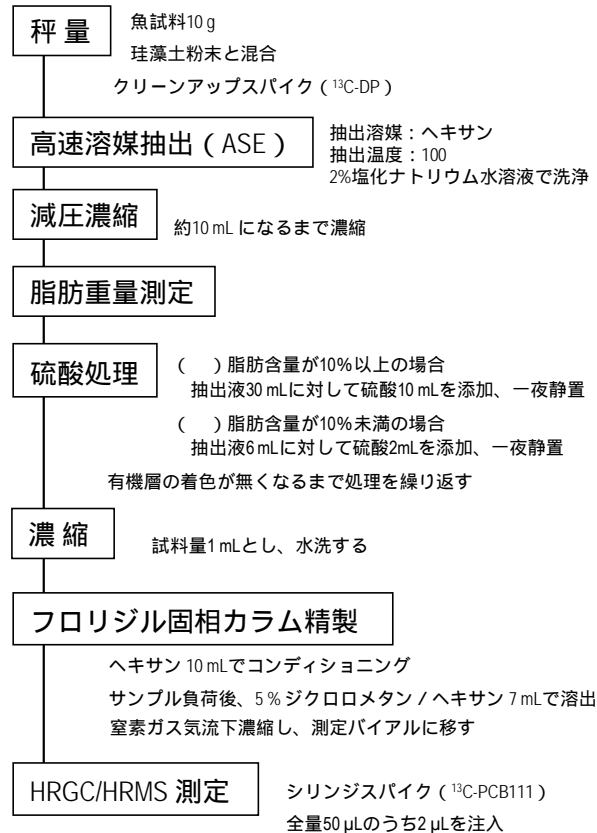


図4 魚試料中のDP分析フロー



表 4 魚介類試料中の HBCD 分析結果

No.	サンプル名	産地	脂肪含量 (%)	濃度(ng/g、湿重量あたり)			
				-HBCD	-HBCD	-HBCD	Total HBCD
1	イワシ	中国・四国地方	1.3	0.33	ND	0.02	0.35
2	サバ1	九州地方	3.8	0.60	0.01	0.06	0.67
3	サバ2	九州地方	4.1	14	0.11	5.2	19
4	ブリ1	九州地方	3.5	4.2	ND	0.02	4.2
5	ブリ2	九州地方	11	3.5	0.02	0.15	3.7
6	ブリ3	中国・四国地方	1.7	2.9	0.01	0.15	3.1
7	スズキ1	九州地方	0.54	0.22	ND	0.02	0.24
8	スズキ2	九州地方	0.41	0.62	ND	0.04	0.66
9	タイ1	中国・四国地方	5.0	0.34	ND	ND	0.35
10	タイ2	九州地方	0.96	0.13	ND	ND	0.13
11	マグロ1	九州地方	18	16	0.10	6.2	22
12	マグロ2	九州地方	2.8	3.3	0.02	1.1	4.4
13	アジ1	九州地方	0.39	0.12	ND	ND	0.12
14	アジ2	九州地方	0.11	0.20	ND	ND	0.20
15	アジ3	九州地方	0.32	0.23	ND	ND	0.23
16	アジ4	九州地方	1.4	0.70	ND	ND	0.70
17	タラ	東北地方	0.078	0.18	ND	ND	0.18
18	タチウオ	九州地方	2.9	0.21	ND	0.02	0.23
19	ヤズ	九州地方	0.14	0.42	ND	ND	0.42
20	カンパチ	九州地方	0.029	0.13	ND	ND	0.13

ND: -HBCD 0.02ng/g 未満、 -HBCD 0.01ng/g 未満、 -HBCD 0.02ng/g 未満

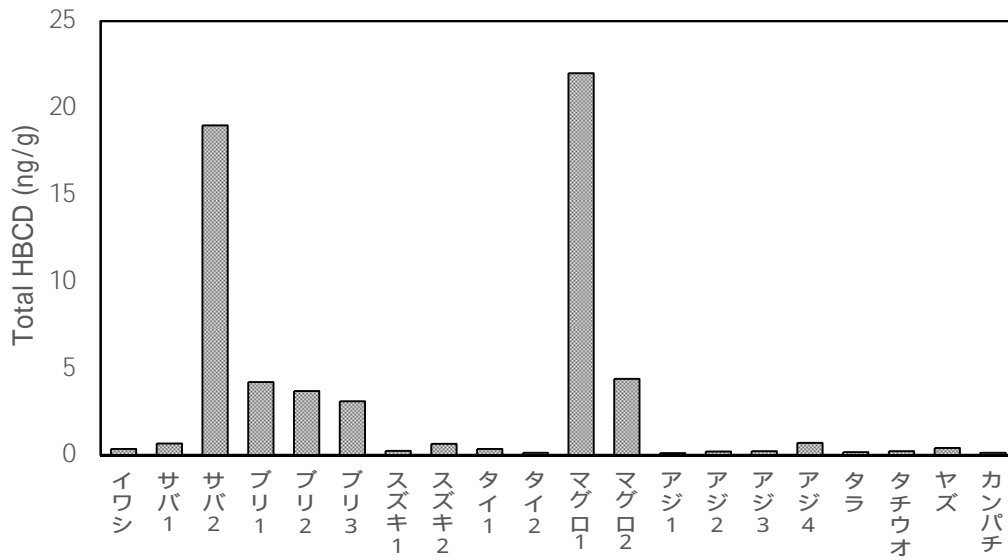


図5 魚介類試料中の HBCD 濃度

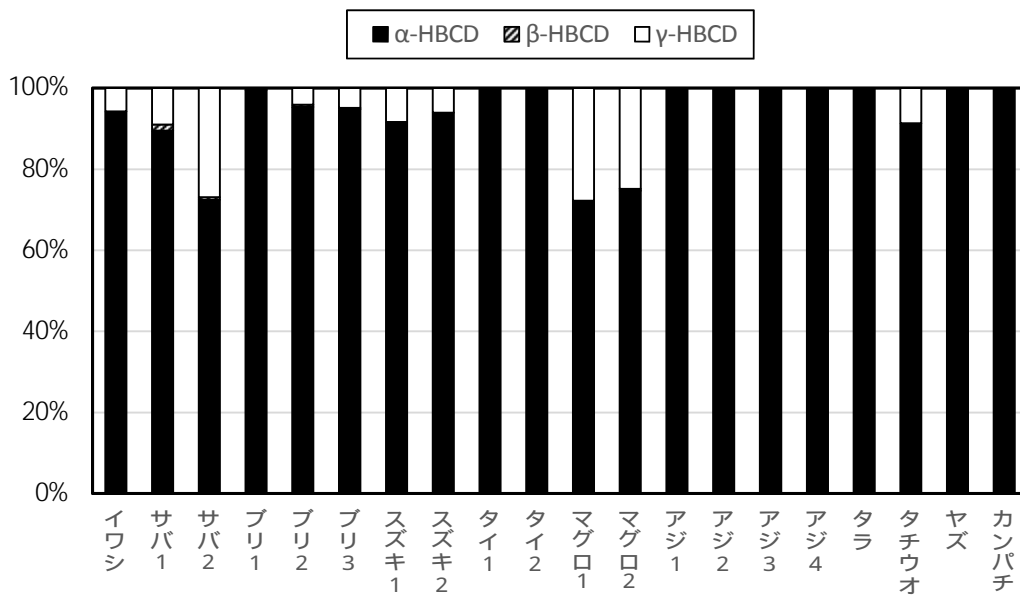


図6 魚介類試料中の HBCD 異性体の割合

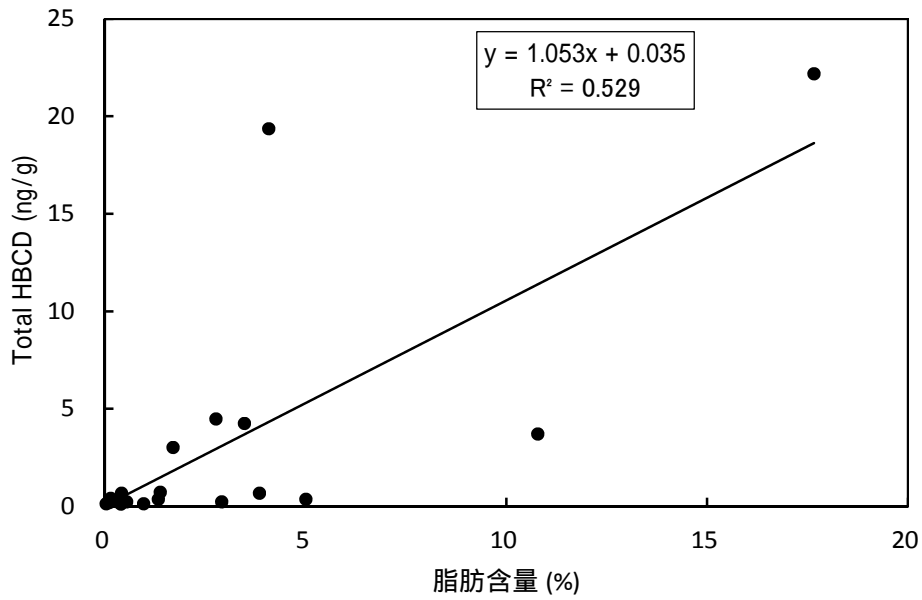


図7 魚介類試料の脂肪含量とHBCD濃度との相関

表5 魚介類試料中のHBCDの光学異性体比

No.	サンプル名	産地	-HBCD		-HBCD	
			濃度 (ng/g)	EF	濃度 (ng/g)	EF
3	サバ2	九州地方	14	0.51	5.2	0.50
4	ブリ1	九州地方	4.2	0.49	0.02	- *
5	ブリ2	九州地方	3.5	0.50	0.15	-
6	ブリ3	中国・四国地方	2.9	0.51	0.15	-
11	マグロ1	九州地方	16	0.50	6.2	0.55
12	マグロ2	九州地方	3.3	0.56	1.1	0.55

\* 濃度が低いため測定不能

表6 固相カラムにおける DP 標準品の回収率 . a) フロリジルカラム、  
b) スルホキシドカラム

	回収率 (%)			回収率 (%)	
	<i>syn</i> -DP	<i>anti</i> -DP		<i>syn</i> -DP	<i>anti</i> -DP
1回目	113	119	1回目	100	102
2回目	103	108	2回目	92	96
3回目	115	122	3回目	84	88
平均	110	116	平均	92	95

表7 DP 分析における HRGC/HRMS 測定条件

GC条件	
カラム	HT8-PCB (関東化学、0.25mm × 60m)
インジェクションモード (注入量)	スプリットレス (2 μL)
インジェクター温度	290
キャリアーガス (流量)	ヘリウム (1.0 mL/min)
オープン温度	130 (2min保持) - 20 /min - 340 (17.5min保持)
MS条件	
イオン化法	EI
イオン源温度	290
分解能	10000以上
モニターイオン	ネイティブ体: 271.8102、273.8072 ラベル体: 276.8269、278.8240 シリジンスパイク: 337.9207、339.9626 ロックマス (PFK): 292.9824

表8 エピ試料を用いた DP 標準品の添加回収実験結果

	回収率 (%)	
	<i>syn</i> -DP	<i>anti</i> -DP
1回目	98	94
2回目	96	93
3回目	101	92
4回目	100	93
平均	99	93

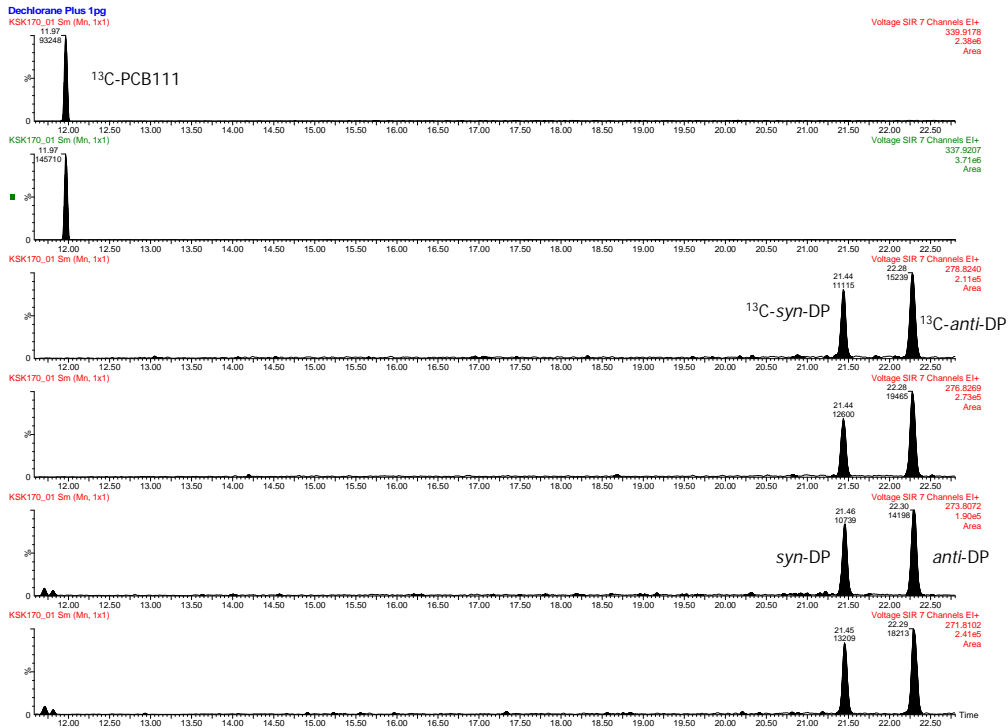


図 8 DP 標準品の HRGC/HRMS 測定クロマトグラム

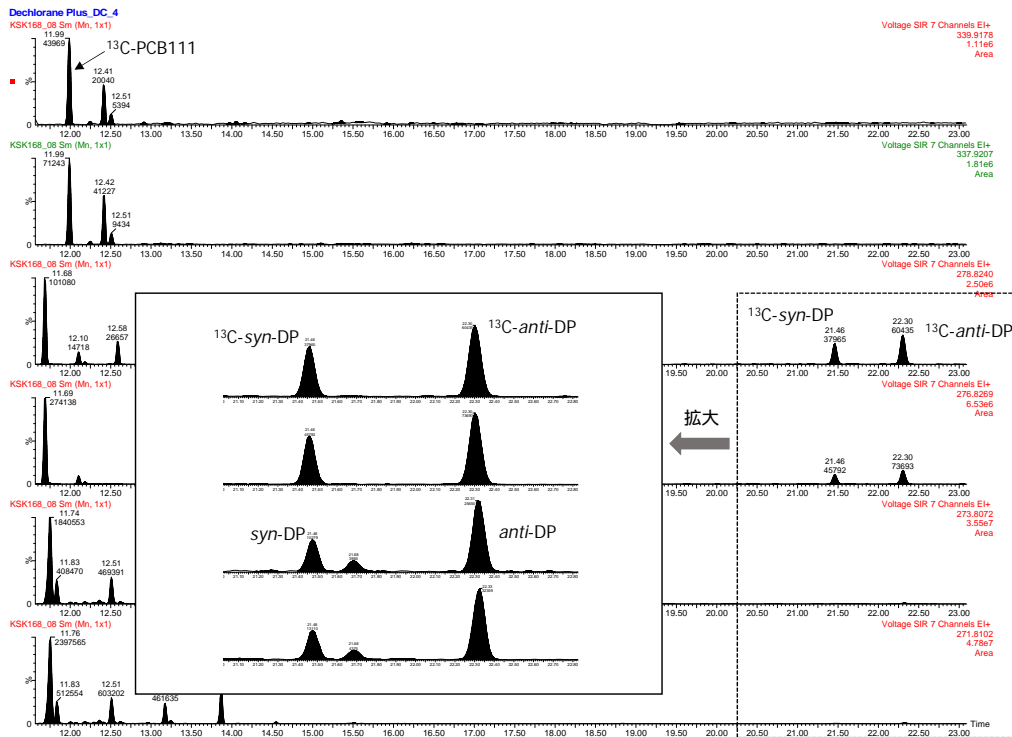


図 9 魚介類試料(試料 No.4(プリ 1))の HRGC/HRMS 測定クロマトグラム

表9 魚介類試料中の DP 分析結果

No.	サンプル名	脂肪含量 (%)	濃度 (pg/g, 湿重量あたり)			$f_{\text{anti}}$
			<i>syn</i> -DP	<i>anti</i> -DP	Total DP	
1	イワシ	1.3	3.6	5.6	9.2	0.61
2	サバ1	3.8	2.3	3.4	5.6	0.60
3	サバ2	4.1	ND	ND	-	-
4	ブリ1	3.5	7.0	13	20	0.64
5	ブリ2	11	2.4	4.4	6.8	0.65
6	ブリ3	1.7	2.2	3.9	6.0	0.64
7	スズキ1	0.54	3.2	5.8	9.0	0.65
8	スズキ2	0.41	2.8	5.0	7.8	0.64
9	タイ1	5.0	ND	1.0	1.0	-
10	タイ2	0.96	1.5	2.7	4.2	0.65
11	マグロ1	18	6.9	9.4	16	0.58
12	マグロ2	2.8	2.6	4.6	7.2	0.64
13	アジ1	0.39	2.7	4.7	7.4	0.64
14	アジ2	0.11	1.2	1.8	3.0	0.59
15	アジ3	0.32	ND	ND	-	-
16	アジ4	1.4	1.4	2.7	4.1	0.65
17	タラ	0.078	ND	ND	-	-
18	タチウオ	2.9	1.8	2.5	4.3	0.59
19	ヤズ	0.14	1.8	2.7	4.5	0.60
20	カンパチ	0.029	ND	1.0	1.0	-

ND: 1pg/g未満

## 各種有害物質の適時及び継続的な摂取量推定研究・研究報告書

### 有害物質濃度実態調査の部

#### 食品中に含まれる多環芳香族炭化水素類の実態調査

##### 研究要旨

多環芳香族炭化水素類(PAHs)にはBenzo[a]pyrene(BAP)をはじめとする発がん性が懸念される物質が含まれている。本研究では、PAHsの含有が懸念される燻製食品を中心に、EU等でモニタリングが推奨されているPAHs16種を対象としてPAHs含有実態調査を実施した。

分析法の性能評価を実施した上で、燻製魚、なまり節、焼き魚、燻製肉、燻製卵、鰹削り節、及び鰹節等を風味原料に使用したダシパック及びつゆを対象に実態調査を実施した。その結果、鰹削り節やダシパックのPAHs濃度が高い傾向が認められた。PAHs16種の中でも分子量の小さいBenzo[a]anthracene、Cyclopenta[c,d]pyrene等はほぼ100%の割合で検出され、濃度も高かった。燻製魚介類の調査結果を用いてBAP摂取量を試算した結果、多めに見積もっても11.3 ng/kg体重/日程度と推定された。暴露マージンを計算すると約8,800であったことから、人の健康への懸念は大きいとは言えなかった。

さらに、ダシとしての利用が考えられる鰹削り節やダシパックについては、ダシへのPAHsの移行率を調査した。一般的なダシの作製方法を検討した結果、ダシへのPAHsの移行率は最大でも3%であり、ダシにはPAHsは殆ど移行しないことが分かった。

##### 研究協力者

国立医薬品食品衛生研究所 堤 智昭、足立利華、松田りえ子

##### A. 研究目的

多環芳香族炭化水素類(PAHs)は芳香環を二つ以上持つ炭化水素化合物の総称であり、Benzo[a]pyrene(BAP)をはじめ、発ガン性の疑いがある物質が多く含まれている。PAHsは、食品の燻製や乾燥、加熱(直火調理)などの製造過程で生成されることが知られており、これらの加工処理をした食品からのPAHs摂取が懸念されている。食品中には種々のPAHsが存在するが、欧州食品科学委員会(SCF)や食品添加物専門家会議(JECFA)を中心にPAHsのリスク評価が行われ、モニタリングすべき16種のPAHs(以下、PAHs16種と表記)が提案されている。

表1には、PAHs16種の構造等の情報を示した。日本では食品衛生法に基づくPAHsの基準値は設定されていないが、現在、EU、カナダ、中国及び韓国等で食品中のBAPに基準値が設定されている。さらに、EUではBAPと共に、Benzo[a]anthracene(BAA)、Chrysene (CHR)、Benzo[b]fluoranthene (BBF)を含めたPAHs4種の合計値について2012年9月より基準値が施行されている。

日本国内において食品に含まれるPAHsに対して、何らかの行政施策を講じる必要があるか判断するため、PAHs汚染が懸念される食品の含有実態調査が望まれるが、報告は少ない。そのため、昨年度の厚生労

働科学研究費<sup>1)</sup>では、PAHs含有実態調査への利用を目的として、PAHs16種を対象とするGC-MS/MS法を検討した。本法の性能評価を燻製食品について実施した結果、発がん性が最も強いBAPを含む殆どのPAHs16種を良好に測定することが可能であった。

本年度は、昨年度に検討した分析法を用いて、燻製食品や加熱調理食品を対象にPAHs含有実態調査を実施した。なお、新たな食品に対する本法の性能評価の追加と共に、昨年度とシリアル番号が異なる分析機器(GC-MS/MS装置)を使用したため、昨年度に性能評価を実施した食品についても再評価を実施した上で、実態調査を実施した。さらに、鰹削り節や鰹節等を使用したダシパックについては、ダシ(うま味を抽出した液体)を作製するために使用されることが多いことから、これらの食品からダシへのPAHsの移行率についてもあわせて調査した。

## B. 研究方法

### 1. 試薬

PAHsとして、Benzo[c]fluorine (BCL)、BAA、Cyclopenta[c,d]pyrene (CPP)、CHR、5-methylchrysene (5MC)、BBF、Benzo[k]fluorathene (BKF)、Benzo[j]fluoranthene (BJF)、BAP、Indeno[1,2,3-c,d]pyrene (ICP)、Dibenzo[a,h]anthracene (DHA)、Benzo[g,h,i]perylene (BGP)、Dibenzo[a,l]pyrene (DLP)、Dibenzo[a,e]pyrene (DEP)、Dibenzo[a,i]pyrene (DIP)、Dibenzo[a,h]pyrene (DHP)を、PAHsの安定同

位体として重水素(D)標識したD<sub>12</sub>-BAA、D<sub>12</sub>-CHR、D<sub>12</sub>-BBF、D<sub>12</sub>-BKF、D<sub>12</sub>-BAP、D<sub>12</sub>-ICP、D<sub>14</sub>-DHA、D<sub>12</sub>-BGP、D<sub>14</sub>-DIP、D<sub>12</sub>-Perylene(PYL)をAccuStandard社、Cambridge Isotope Laboratories社及びChiron社より購入した。

シリカゲルミニカラムは、GL Sciences社製のInertSep SI FF(担体量 1 g)を使用した。PSAミニカラムは、GL Sciences社製のInertSep PSA(担体量 1 g)を使用した。

ゲル浸透クロマトグラフィー(GPC)カラムは、昭和電工社製のShodex CLNpak EV-2000 AC(300×20 mm i.d.)、またプレカラムとしてShodex CLNpak EV-G AC(100×20 mm i.d.)を使用した。

GCキャピラリーカラムは、Varian社製のVF-17msを使用した。

アセトニトリル 5000(PCB試験用)、アセトン 5000(PCB試験用及び高速液体クロマトグラフィー用)、エタノール 5000(PCB試験用)、水酸化カリウム(特級)、シクロヘキサン(高速液体クロマトグラフィー用)、トルエン 5000(PCB試験用)、ヘキサン 5000(PCB試験用)、ポリエチレングリコール(PEG)300、無水硫酸ナトリウム(PCB試験用)は関東化学(株)より購入した。

### 2. 試料

食品試料は東京都内の小売店及びインターネットを介して購入した。購入した食品は、ホモジナイザーで均一化し分析に供した。

### 3. 装置

ホモジナイザー: レッチェ社製 GM200



ポリトロン：Kinematica 社製 Polytron PT 10-35 GT

GPC: GL Sciencetes 社製 G-Prep GPC8100 plus

GC-MS/MS: Agilent(Hewlett-Packard) 社製 7890A/7000B

## 4. PAHs 分析

### 4-1. 抽出

均一化した試料 20.0 g(鰹削り節及びダシパックについては 2.0 g)を量りとった。これにサロゲート溶液(D 標識 PAHs9 種)を加え、室温で 30 分放置した。その後、鰹削り節及びダシパックについては、水 8 mL を加えて 1 時間膨潤させた。水 20 mL とアセトン-ヘキサン(1:2)100 mL を加えてポリトロンによりホモジナイズ(15,000 rpm、約 90s)した後、1,000 rpm で 3 分間遠心分離し、有機層を分取した。残渣を含む水層にヘキサン 50 mL を加えて同様にホモジナイズした後、遠心分離し、有機層を合わせた。さらに、つゆについては、残った水層にヘキサン 100 mL を加え、振とう抽出を 2 回行い得られた有機層を合わせた。有機層に適量の無水硫酸ナトリウムを加えて 15 分放置後、無水硫酸ナトリウムをろ別した。予め重量を測定しておいたナスフラスコにろ液を受け、40 以下で溶媒を留去した後、残留物の重量を測定し、これを粗脂肪重量とした

### 4-2. 精製

抽出操作により得られた粗脂肪をヘキサン 30 mL に溶解し、ヘキサン飽和アセトニトリル 30 mL で 3 回振とう抽出した。アセ

トニトリル層を合わせ、40 以下で溶媒を留去した後、残留物をアセトン-シクロヘキサン(4:6)6 mL に溶解した。この溶液を、2,500 rpm で 5 分間遠心分離し、上澄み液 5 mL を GPC に導入した。GPC 精製条件を下記に示した。

#### 【GPC 精製条件】

GPC 精製装置: G-Prep GPC8100 plus

カラム : CLNpak EV-2000 AC(300 × 20 mm I.D.)

ガードカラム: CLNpak EV-G AC(100 × 20 mm I.D.)

カラムオープン : 40

溶離液: アセトン-シクロヘキサン(4 : 6)

流速 : 5 mL/min

検出器 : UV 254 nm

アセトン-シクロヘキサン(4:6)を移動相として用い、トリシクラゾールの溶出終了から 25 分間の画分を分取し、40 以下で溶媒を留去した。残留物をアセトン-ヘキサン(1:1)3 mL に溶解し、この溶液を、予めアセトン-ヘキサン(1 : 1)15 mL で洗浄した PSA ミニカラムに負荷し、さらにアセトン-ヘキサン(1 : 1)7 mL を注入した。負荷液を含む全溶出液の溶媒を 40 以下で留去し、残留物に D<sub>12</sub>-PYL(0.5 µg/mL トルエン溶液)200 µL を添加し試験溶液とした。

鰹削り節及びダシパックについては PSA ミニカラム後にシリカゲルミニカラムによる追加精製を行った。PSA ミニカラムからの溶出液の溶媒を留去後、アセトン - ヘキサン(1 : 99)3 mL に溶解した。この溶液を、予めアセトン-ヘキサン(1 : 99)15 mL で洗浄したシリカゲルミニカラムに負荷し、さらにアセトン-ヘキサン(1 : 99)9 mL を注入し

た。負荷液を含む全溶出液の溶媒を 40 以下で留去し、残留物に D<sub>12</sub>-PYL(0.5 µg/mL トルエン溶液)200 µL を添加し試験溶液とした。

#### 4-3. GC-MS/MS 測定

下記に最終的に選択した GC-MS/MS 条件を示す。

##### 【GC 条件】

カラム:VF-17ms(長さ 30 m×内径 0.25 µm、膜厚 0.15 µm)

昇温条件 : 140 (1 min)→30 /min→210 →2.5 /min→245 →2 /min→260 (3

min)→8 /min→350 (1.5 min), total=40.5 min

流速: 1.1 mL/min(ヘリウム)

インサート: シングルテーパライナー

注入量: 2.5 µL(スプリットレス注入、PEG300 共注入(500 ng/injection))

注入口温度: 350

##### 【MS/MS 条件】

イオン化法: EI; イオン化電圧: 70 eV; トランスファーライン温度: 350 ; イオン源温度: 320 ; 四重極温度: 150 ; 測定モード: MRM

内部標準法により PAHs16 種を定量した。サロゲートには D 標識した PAHs を使用した。PAHs16 種全ての D 標識体を入手することは不可能であったため、測定対象物の化学構造が直接対応する D 標識体が無い場合は、リテンションタイムが近い D 標識体をサロゲートとして使用した<sup>1)</sup>。シリンジスパイクには D 標識したペリレンを使用した。測定対象物質と内標準物質の MRM 測

定条件を表 2 に示した。

#### 5. 鰹削り節及びダシパックからのダシの調製

ダシへの PAHs の移行率を検討するため、鰹削り節 2 種(薄削り、厚削り)とダシパック 1 種からダシを調製した。鰹削り節については一般的な方法、ダシパックについては該当製品に記載の方法によりダシを調製した(各 3 試行)。

薄削りの鰹削り節については、水 500 mL をビーカーで沸騰させた後、20.0 g の鰹削り節を加え、弱火で 1 分間煮出した。篩(目開き 500 µm)で濾してダシ殻を除いた液体をダシとした。

厚削りの鰹削り節については、水 500 mL をビーカーで沸騰させた後、15.0 g の鰹削り節を加え、弱火で 20 分間煮出した。篩(目開き 500 µm)で濾してダシ殻を除いた液体をダシとした。

ダシパックについては、水 400 mL をビーカーで沸騰させた後、1 袋(内容量 8 g 程度)を入れ中火で 5 分間煮出した。その後、出し殻となるダシパックを取り除いた液体をダシとした。

ダシは全量を使用して、前述したつゆの分析方法に従い PAHs 分析を行った。また、浸出前の鰹削り節、ダシパック、及びそれらの出し殻についても、前述した鰹削り節及びダシパックの分析方法に従い PAHs 分析を行った。

#### C. 研究結果及び考察

##### 1. PAHs 分析法の性能評価

実態調査で対象となる主な食品について、本法の真度及び併行精度について評価した。

鰹節を風味原料とするつゆの評価を追加すると共に、昨年度とシリアル番号が異なる GC-MS/MS 装置を使用したことから、昨年度に既に評価した燻製サケ、燻製ソーセージ、燻製卵、及び鰹削り節についても、再度、評価を実施した。各試料の PAHs の添加濃度は、ブランク試料に含まれる PAHs に影響されず定量可能と考えられる最も低い濃度を選択した。燻製サケおよび燻製ソーセージでは 0.5 µg/kg、燻製卵及びつゆでは 1.0 µg/kg、鰹削り節では 10 µg/kg の濃度となる様に各 PAHs を添加した。これらの添加試料について 1 日 5 併行で分析し、得られた分析値より真度及び併行精度を推定した。実態調査を実施するにあたり、真度は 80～120%、併行精度は 10%以内を目標値として本法の適用性を評価した。

推定された真度と併行精度を表 3 に示した。燻製サケ、燻製ソーセージ及びつゆでは、全ての PAHs について真度は 92～113%、97～120%、及び 82～115%、併行精度は 0.3～3.2%、0.3～4.6%、及び 0.2～5.6%と推定され、真度と併行精度は目標値の範囲内であった。燻製卵では、DHP の真度が 80%を僅かに下回り目標値を外れたが、それ以外の PAHs については真度が 91～109%、併行精度は 0.3～5.5%と目標値の範囲内であった。また、鰹削り節については、DLP、DEP 及び DHP の真度が 20%以上乖離し目標値を外れたが、それらを除いた PAHs の真度は 102～119%、併行精度は 0.2%～3.1%と目標値の範囲内であった。燻製サケ、燻製ソーセージ、燻製卵、及び鰹削り節で推定された真度及び併行精度は、昨年度の報告<sup>1)</sup>とほぼ同様の結果であった。

なお、本法の BCL 及び CHR に対する選択性については、PAHs 類縁化合物(分析対象以外の PAHs など)が共存する場合は、これら化合物と分離が不十分となる可能性を昨年度に報告<sup>1)</sup>している。実態調査で対象となる食品試料の中には、物理化学的な性質が PAHs16 種と類似する PAHs 類縁化合物が含まれることが考えられるため、これら化合物の影響についても十分に注意を払う必要がある。従って、BCL と CHR については、十分な選択性が確保できない可能性が高いため、実態調査においては参考値とすることが望ましいと判断した。

以上の結果を考慮し、実態調査で対象となる食品をマトリックスが類似する種別に分類し、各々で定量可能であると判断した PAHs と、それらの定量下限値を表 4 に示した。鰹削り節、ダシパック以外の食品では、BCL、CHR、および DHP の分析値の信頼性は十分でないと判断し参考値とした。鰹削り節及びマトリックスが類似すると考えられるダシパックについては、それらに加え、DLP および DEP の分析値についても参考値とした。DHP については、複数の食品種で真度が 80%を下回るか、それに近い値が得られたため、現段階では対象とする全ての食品について参考値とした。また、定量下限値については、性能評価時の PAHs 添加濃度とした。

## 2. 食品中の PAHs 含有実態調査

燻製又は焼く等の加工がされている可能性のある食品、及び鰹節等の燻製食品を風味原料に使用しているダシパック及びつゆを対象に、PAHs 含有実態調査を実施した。

今年度は、燻製サバ1試料、サバのなまり節5試料、カツオのなまり節6試料、焼サケ4試料、焼サバ4試料、燻製鶏3試料、燻製鴨3試料、燻製卵5試料、鰹削り節2試料、鰹節等を風味原料に含むダシパック5試料とつゆ5試料の計43試料の実態調査を実施した。これらの試料の分析結果を、昨年度に実施した調査結果<sup>1)</sup>とあわせて、表5、表6、及び表7に示した。また、定量下限値以上となった各PAHsの割合を食品種毎に表8に示した。鰹削り節とダシパックでは多くのPAHsが定量下限値以上となり、その割合は低分子量のPAHs(BAA及びCPP、並びに参考値ではあるがBCL及びCHR)で100%に近かった。燻製魚及びなまり節でも定量下限値以上となったPAHsは比較的多く、最高で80%程度であった。燻製肉では定量下限値以上となったPAHsは最高で30%程度であった。一方、焼き魚と燻製卵、及びつゆでは定量下限値以上となったPAHsはゼロに近かった。

燻製魚、なまり節、燻製肉、鰹削り節、ダシパックについては、複数の試料で定量下限値以上であったPAHsが認められたため、それらのPAHs濃度を比較した(図1)。鰹削り節やダシパックのPAHs濃度は高く、特に低分子量のPAHsの濃度は100 µg/kgを超える場合も多かった。鰹削り節等が高い濃度のPAHsを含有することは、農林水産省の有害化学物質含有実態調査でも明らかにされている<sup>2)</sup>。また、燻製魚、なまり節、燻製肉について、EUで設定されているBAPの基準値(5 µg/kg)<sup>3)</sup>を適用すると、これを超過した試料は47試料中5試料であった。また、鰹削り節については10試料中

9試料で12-39 µg/kgのBAPが、ダシパックについては10試料中8試料で20-52 µg/kgのBAPが検出された。しかし、これらの食品は加工により水分含量が大幅に低下しているため、EUの基準値を適用する際は加工係数等を考慮する必要があると考えられる。さらに、ダシパックについては、直接消費するよりは、その浸出液をダシとして利用することが殆どと考えられるため、ダシへのPAHs移行率についての情報が重要と考えられる。

次にPAHs含有濃度が高かった燻製魚、なまり節や鰹削り節からのBAP摂取量の試算しリスク評価を試みた。これらの食品の個々の詳細な食品摂取量は入手できなかったが、平成24年国民健康・栄養調査結果を集計した結果、これらの食品が含まれる魚介(塩蔵、生干し、乾物)の摂取量の国民平均は14.5 gとなった。そこで、調査した燻製食品、なまり節、及び鰹削り節においてBAPの最高濃度であった39 µg/kgを用いてBAP摂取量を推定した。その結果、BAPの一日摂取量は566 ngと推定され、体重を50 kgと仮定すると、11.3 ng/kg体重/日であった。JECFAより提案されているBAPのベンチマーク信頼下限値(BMDL)である100,000 ng/kg体重/日を用いて、暴露マージンであるMOE(BMDL/BAP摂取量)を算出すると、約8,800であった。EFSAではMOEが10,000以上であれば、“国民の健康への懸念が低くリスク管理の優先度が低い”としている。今回のBAP摂取量の試算においては、BAP濃度として鰹削り節の最大値を使用しており、また食品摂取量についても魚の干物等も含んでいるこ

とから、恐らく BAP 摂取量は過大に見積もられている可能性が高い。このような試算方法でも、10,000 に近い MOE が得られたことから、今回の調査結果からは燻製魚介類からの BAP 摂取による人の健康への懸念は大きいとは言えなかった。

### 3. 鰹削り節及びダシパックからのダシへの PAHs 移行率

鰹削り節及び鰹節等を風味原料としたダシパックの PAHs 濃度が高いことが実態調査で明らかとなった。これらの食品については、その浸出液がダシとして広く用いられている。そのため、浸出操作により、これらの食品に含まれる PAHs がダシに移行する割合を調査しておくことが実際の PAHs 摂取量を把握するために重要である。そこで、鰹削り節 2 種(薄削り、厚削り)とダシパック 1 種を使用し、一般的な浸出操作を行った場合のダシへの PAHs 移行率について調べた。鰹削り節についてはそれぞれの一般的な方法、ダシパックについては商品に記載の方法によりダシを作製した(各 3 試行)。

浸出前の試料、ダシ、及びダシ殻の PAHs 分析の結果を表 9、表 10、及び表 11 に示した。ダシの PAHs 濃度は低く、定量可能であった PAHs について移行率を求めると、薄削りの鰹削り節で 1.7~2.1%、厚削りの鰹削り節で 2.5~3.0%、ダシパックで 0.4~1.6%であった。いずれの試料でもダシへの PAHs の移行率は非常に低かったが、厚削りの鰹削り節の PAHs 移行率が若干高い傾向がうかがえた。厚削りの鰹削り節では煮出す時間が他の試料よりも大幅に長かった

ため、PAHs の移行率がやや高くなったことが考えられる。一方で、ダシ殻における PAHs の残存率はいずれの試料でも高く、91%以上であった。PAHs は一般的に脂溶性が高く、対象となった PAHs の Log Pow は 5.8~7.7<sup>4)</sup>である。移行率が低かった要因の一つとして、PAHs は脂溶性が高いため、水溶性の浸出液に移行しにくいことが推察された。

このように鰹削り節やダシパックは PAHs 濃度が高かったが、ダシとしての使用に限れば、PAHs 摂取量は大幅に減少すると考えられる。一方で、ダシ殻には殆どの PAHs が残存するため、食用とした場合は PAHs 摂取量を増加させるため留意が必要である。

### D. 結論

- 1) PAHs 含有実態調査への使用を目的に本法の性能評価を実施した。鰹削り節及びダシパック以外の食品では BCL、CHL、及び DHP の分析値の信頼性は十分でないと判断し参考値とした。鰹削り節とダシパックについては、それらに加え、DLP 及び DEP の分析値についても参考値とした。
- 2) 実態調査の結果、鰹削り節とダシパックの PAHs 含有濃度が高いことが明らかとなった。特に低分子量の PAHs の含有濃度が高い傾向があった。今回の調査結果を用いて BAP 摂取量を試算した結果、燻製魚介類からの BAP 摂取による人の健康への懸念は大きいとは言えなかった。
- 3) 鰹削り節やダシパックからのダシへの PAHs 移行率は非常に低く、殆どの PAHs はダシ殻に残存した。

## E.参考文献

- 1) 平成 24 年度厚生労働科学研究費補助金研究報告書「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」(分担報告書 食品中の多環芳香族炭化水素分析法の開発)
- 2) 農林水産省、有害化学物質含有実態調査結果データ集(平成 15~22 年度)
- 3) COMMISSION REGULATION (EU) No 835/2011 of 19 August 2011, amending Regulation (EC) No 1881/2006 as regards maximum levels for polycyclic aromatic hydrocarbons in foodstuffs
- 4) WHO, IARC monographs on the evaluation of carcinogenic risks to humans, Some non-heterocyclic polycyclic aromatic hydrocarbons and some related exposures, Vol.92 (2010).

## F.研究業績

### 1.論文発表

なし

### 2.学会発表

- 1) 堤 智昭, 足立 利華, 松田 りえ子: 燻製食品中の多環芳香族炭化水素の分析, 第 105 回日本食品衛生学会学術講演会 (2013.5).
- 2) 堤 智昭, 足立 利華, 渡邊敬浩, 松田 りえ子, 手島玲子: 燻製食品中の多環芳香族炭化水素の含有実態調査, 第 50 回全国衛生科学技術協議会年会 (2013.11).
- 3) 堤 智昭, 足立 利華, 松田 りえ子: 燻製食品中に含まれる多環芳香族炭化水

素の実態調査, 第 106 回日本食品衛生学会学術講演会 (2013.11).

表 1 測定対象となる PAHs16 種

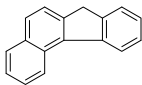
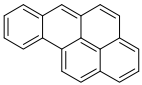
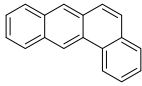
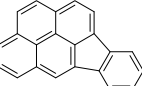
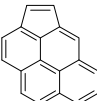
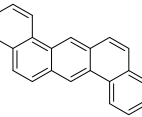
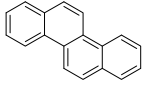
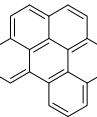
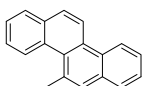
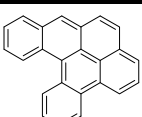
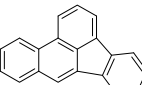
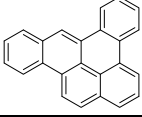
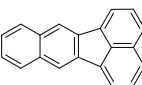
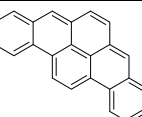
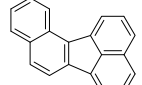
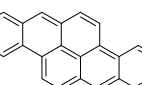
化合物名	略称	分子式	HRGC/MS	Structural Formulae	IARC Classification	化合物名	略称	分子式	HRGC/MS	Structural Formulae	IARC Classification
Benzo[c]fluorene	BCL	C17H12	216.0939		Group 3	Benzo[a]pyrene	BAP	C20H12	252.0939		Group 1
Benzo[a]anthracene	BAA	C18H12	228.0939		Group 2B	Indeno[1,2,3-c,d]pyrene	ICP	C22H12	276.0939		Group 2B
Cyclopenta[c,d]pyrene	CPP	C18H10	226.07825		Group 2A	Dibenzo[a,h]anthracene	DHA	C22H14	278.10955		Group 2A
Chrysene	CHR	C18H12	228.0939		Group 2B	Benzo[g,h,i]perylene	BGP	C22H12	276.0939		Group 3
5-methylchrysene	5MC	C19H14	242.10955		Group 3	Dibenzo[a,l]pyrene	DLP	C24H14	302.10955		Group 2A
Benzo[b]fluoranthene	BBF	C20H12	252.0939		Group 2B	Dibenzo[a,e]pyrene	DEP	C24H14	302.10955		Group 3
Benzo[k]fluoranthene	BKF	C20H12	252.0939		Group 2B	Dibenzo[a,i]pyrene	DIP	C24H14	302.10955		Group 2B
Benzo[j]fluoranthene	BJF	C20H12	252.0939		Group 2B	Dibenzo[a,h]pyrene	DHP	C24H14	302.10955		Group 2B

表2 測定対象物質と内標準物質のMRM測定条件

	化合物名	略称	保持時間 (min)	プリカーサーイオン	プロダクトイオン (定量)	コリジョンエネルギー (定量, eV)	プロダクトイオン (定性)	コリジョンエネルギー (定性, eV)
測定対象物質	Benzo[c]fluorene	BCL	10.63	216.1	215.1	26	189.1	50
	Benzo[a]anthracene	BAA	15.17	228.1	226.1	39	202.1	35
	Cyclopenta[c,d]pyrene	CPP	15.49	226.1	224.1	49	200.1	42
	Chrysene	CHR	15.64	228.1	226.1	39	202.1	35
	5-methylchrysene	5MC	18.52	242.1	239.1	49	215.1	25
	Benzo[b]fluoranthene	BBF	22.75	252.1	250.1	40	226.1	34
	Benzo[k]fluorathene	BKF	23.08	252.1	250.1	40	226.1	34
	Benzo[j]fluoranthene	BJF	23.29	252.1	250.1	40	226.1	34
	Benzo[a]pyrene	BAP	26.00	252.1	250.1	40	226.1	39
	Indeno[1,2,3-c,d]pyrene	ICP	33.03	276.1	274.1	50	250.1	40
	Dibenzo[a,h]anthracene	DHA	33.19	278.1	276.1	40	252.1	40
	Benzo[g,h,i]perylene	BGP	34.26	276.1	274.1	50	275.1	35
	Dibenzo[a,i]pyrene	DLP	37.64	302.1	300.1	45	298.1	60
	Dibenzo[a,e]pyrene	DEP	38.39	302.1	300.1	45	276.1	45
	Dibenzo[a,i]pyrene	DIP	38.76	302.1	300.1	45	276.1	45
Dibenzo[a,h]pyrene	DHP	38.98	302.1	300.1	45	276.1	45	
サロゲート	Benzo[a]anthracene - d12	D <sub>12</sub> -BAA	15.01	240.2	236.2	40	-	-
	Chrysene - d12	D <sub>12</sub> -CHR	15.46	240.2	236.2	40	-	-
	Benzo[b]fluoranthene - d12	D <sub>12</sub> -BBF	22.58	264.2	260.2	45	-	-
	Benzo[k]fluorathene - d12	D <sub>12</sub> -BKF	22.91	264.2	260.2	45	-	-
	Benzo[a]pyrene - d12	D <sub>12</sub> -BAP	25.78	264.2	260.2	45	-	-
	Indeno[1,2,3-c,d]pyrene - d12	D <sub>12</sub> -ICP	32.93	288.2	284.2	55	-	-
	Dibenzo[a,h]anthracene - d14	D <sub>14</sub> -DHA	33.05	292.2	288.2	44	-	-
	Benzo[g,h,i]perylene - d12	D <sub>12</sub> -BGP	34.16	288.2	284.2	55	-	-
	Dibenzo[a,i]pyrene - d14	D <sub>14</sub> -DIP	38.67	316.2	312.2	48	-	-
シリンジスパイク	Perylene - d12	D <sub>12</sub> -PYL	26.92	264.3	260.1	47	-	-

\* 直接対応するサロゲートが無い測定対象物については、RTが近いID体をサロゲートとして使用した。



表3 PAHs 分析の性能評価結果<sup>1)</sup>

PAHs	燻製サケ			燻製ソーセージ			燻製卵			鯉削り節			つゆ		
	添加濃度 ( $\mu\text{g}/\text{kg}$ )	真度 (%)	併行精度 (RSD,%)	添加濃度 ( $\mu\text{g}/\text{kg}$ )	真度 (%)	併行精度 (RSD,%)	添加濃度 ( $\mu\text{g}/\text{kg}$ )	真度 (%)	併行精度 (RSD,%)	添加濃度 ( $\mu\text{g}/\text{kg}$ )	真度 (%)	併行精度 (RSD,%)	添加濃度 ( $\mu\text{g}/\text{kg}$ )	真度 (%)	併行精度 (RSD,%)
BCL	0.5	101	1.9	0.5	106	2.2	1.0	91	1.8	10	115	3.1	1.0	97	5.2
BAA	0.5	109	0.7	0.5	108	0.5	1.0	100	0.3	10	115	0.9	1.0	113	0.5
CPP	0.5	113	3.2	0.5	109	4.6	1.0	98	5.5	10	118	1.2	1.0	105	5.6
CHR	0.5	110	0.6	0.5	105	1.6	1.0	97	2.1	10	116	1.3	1.0	115	0.5
5MC	0.5	110	1.2	0.5	107	2.8	1.0	99	3.6	10	104	0.9	1.0	104	1.4
BBF	0.5	108	0.6	0.5	102	0.3	1.0	98	0.4	10	108	0.4	1.0	103	0.2
BKF	0.5	106	0.5	0.5	102	0.4	1.0	104	0.5	10	109	0.4	1.0	102	0.3
BJF	0.5	107	0.6	0.5	120	1.7	1.0	104	0.9	10	111	0.4	1.0	105	0.3
BAP	0.5	110	1.0	0.5	107	0.4	1.0	100	0.6	10	109	0.6	1.0	106	0.3
ICP	0.5	106	0.3	0.5	97	1.6	1.0	99	0.3	10	107	0.9	1.0	100	0.5
DHA	0.5	106	0.9	0.5	104	0.9	1.0	100	0.7	10	106	0.2	1.0	100	0.6
BGP	0.5	107	0.6	0.5	106	0.7	1.0	100	0.7	10	108	0.6	1.0	105	0.5
DLP	0.5	96	2.0	0.5	104	1.6	1.0	96	1.7	10	142	1.6	1.0	109	0.7
DEP	0.5	107	1.4	0.5	109	1.9	1.0	109	2.6	10	126	1.5	1.0	110	1.2
DIP	0.5	107	0.4	0.5	104	1.4	1.0	94	1.7	10	102	1.6	1.0	103	1.5
DHP	0.5	92	1.9	0.5	99	4.6	1.0	79	2.8	10	78	4.2	1.0	82	3.2

1)各食品について0.5～10  $\mu\text{g}/\text{kg}$ のPAHsを添加した試料を繰り返し分析した(1日5併行)。

**表 4 実態調査で対象とする食品における定量可能な PAHs と定量下限値(μg/kg)**

PAHs	燻製魚、なまり節、 焼き魚	燻製肉	燻製卵	鰹削り節、 ダシパック	つゆ
BCL	(0.5) <sup>1)</sup>	(0.5)	(1)	(10)	(1)
BAA	0.5	0.5	1	10	1
CPP	0.5	0.5	1	10	1
CHR	(0.5)	(0.5)	(1)	(10)	(1)
5MC	0.5	0.5	1	10	1
BBF	0.5	0.5	1	10	1
BKF	0.5	0.5	1	10	1
BJF	0.5	0.5	1	10	1
BAP	0.5	0.5	1	10	1
ICP	0.5	0.5	1	10	1
DHA	0.5	0.5	1	10	1
BGP	0.5	0.5	1	10	1
DLP	0.5	0.5	1	(10)	1
DEP	0.5	0.5	1	(10)	1
DIP	0.5	0.5	1	10	1
DHP	(0.5)	(0.5)	(1)	(10)	(1)

1) ( )のPAHsは参考値とする。

表5 燻製魚、なまり節、及び焼き魚の PAHs 含有実態調査結果

食品		PAHs (µg/kg) <sup>1)</sup>															
		BCL <sup>2)</sup>	BAA	CPP	CHR <sup>2)</sup>	5MC	BBF	BKF	BJF	BAP	ICP	DHA	BGP	DLP	DEP	DIP	DHP <sup>2)</sup>
燻製魚	サーモン	#1 <sup>3)</sup>	- <sup>4)</sup>	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
		#2	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
		#3	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
		#4	(1.0) <sup>5)</sup>	0.55	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
		#5	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
		#6	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	サンマ、ニシン、シシャモ、ホッケ	#1	(26)	20	19	24	-	4.4	2.2	3.9	4.1	1.8	-	1.8	-	-	-
		#2	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
		#3	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
		#4	(2.1)	1.7	-	1.4	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
		#5	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
		#6	(0.70)	-	-	0.54	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
		#7	(1.5)	1.3	1.2	1.4	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	サバ	#1	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
		#2	(49)	72	27	117	-	19	8.7	14	12	6.0	-	5.1	-	-	-
		#3	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
		#4	(13)	13	11	14	-	3.3	1.3	2.3	3.6	1.8	-	1.7	-	-	-
		#5	(1.1)	0.55	0.62	0.63	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
		#6	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
#7		(1.7)	0.59	-	1.0	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	
なまり節	サバ	#1	(1.2)	1.9	1.9	2.5	-	0.53	-	-	0.59	-	-	-	-	-	
		#2	-	0.6	-	1.0	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	
		#3	(21)	20	5.9	28	-	7.3	2.5	4.7	7.2	3.3	0.70	3.7	-	-	
		#4	(33)	36	6.9	67	-	14	5.6	9.8	6.2	4.0	0.80	3.8	-	-	
		#5	(28)	39	18	62	-	12	5.5	9.5	8.7	3.5	0.64	3.4	-	-	
	カツオ	#1	(2.7)	2.1	0.56	2.7	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	
		#2	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	
		#3	(16)	17	5.5	28	-	5.7	1.9	3.7	5.1	1.8	-	2.0	-	-	
		#4	(1.8)	3.0	2.4	4.9	-	1.1	0.49	0.86	0.80	-	-	-	-	-	
		#5	(5.5)	4.0	1.4	6.4	-	0.77	0.40	0.66	0.63	-	-	-	-	-	
		#6	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	
	焼き魚	サケ	#1	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
#2			-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	
#3			-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	
#4			-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	
サバ		#1	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	
		#2	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	
		#3	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	
		#4	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	

1) 定量範囲は0.5~10 µg/kgとした。定量範囲の上限値を超過した場合も外挿により定量値を算出した。、2) 参考値とする。、3) 下線の試料は平成24年度の厚生労働科学研究費補助金研究報告書「食品を介したダイオキシン類等有害化学物質摂取量の評価とその手法開発に関する研究」にて報告した。、4) 定量下限値未満、5) ( ) は定量イオンと定性イオンの比が標準溶液と比較し±20%を超過

**表 6 燻製肉及び燻製卵の PAHs 含有実態調査結果**

食品			PAHs (µg/kg) <sup>1)</sup>																
			BCL <sup>2)</sup>	BAA	CPP	CHR <sup>2)</sup>	5MC	BBF	BKF	BJF	BAP	ICP	DHA	BGP	DLP	DEP	DIP	DHP <sup>2)</sup>	
燻製肉	豚	#1 <sup>3)</sup>	- <sup>4)</sup>	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	
		#2	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
		#3	(2.5) <sup>5)</sup>	2.2	2.3	1.9	-	0.52	-	-	0.58	-	-	-	-	-	-	-	-
		#4	(2.0)	1.5	1.8	1.3	-	-	-	-	0.52	-	-	-	-	-	-	-	-
		#5	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
		#6	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
		#7	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
		#8	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
		#9	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
		#10	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	鶏	#1	(1.1)	1.1	1.2	0.95	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	
		#2	(0.68)	-	0.60	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	
		#3	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	
	鴨	#1	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	
		#2	(0.60)	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	
		#3	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	
	燻製卵	#1	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	
		#2	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	
		#3	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	
#4		-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-		
#5		-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-		
#6		-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-		
#7		-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-		
#8		-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-		
#9		-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-		
#10		4.1	4.0	3.6	4.9	-	1.2	-	1.1	1.6	1.0	-	-	-	-	-	-		

1) 定量範囲は燻製肉で0.5~10 µg/kg、燻製卵で1.0~10 µg/kgとした。定量範囲の上限値を超過した場合も外挿により定量値を算出した。2) 参考値とする。3) 下線の試料は平成24年度の厚生労働科学研究費補助金研究報告書「食品を介したダイオキシン類等有害化学物質摂取量の評価とその手法開発に関する研究」にて報告した。4) 定量下限値未満, 5) ( )は定量イオンと定性イオンの比が標準溶液と比較し±20%を超過

表7 鰹削り節、ダシバック及つゆの PAHs 含有実態調査結果

食品	PAHs ( µg/kg) <sup>1)</sup>															
	BCL <sup>2)</sup>	BAA	CPP	CHR <sup>2)</sup>	5MC	BBF	BKF	BJF	BAP	ICP	DHA	BGP	DLP <sup>3)</sup>	DEP <sup>3)</sup>	DIP	DHP <sup>2)</sup>
鰹削り節	#1 <sup>4)</sup>	(73) <sup>5)</sup>	105	76	158	- <sup>6)</sup>	29	14	22	24	10	-	-	-	-	-
	#2	(74)	71	34	98	-	15	-	13	14	-	-	-	-	-	-
	#3	(82)	129	47	218	-	45	18	29	32	13	-	(11)	-	-	-
	#4	(86)	125	60	207	-	37	17	28	26	14	-	(12)	-	-	-
	#5	(64)	108	32	179	-	32	15	25	25	-	-	-	-	-	-
	#6	(40)	35	10	58	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	#7	(59)	53	31	71	-	12	-	11	12	-	-	-	-	-	-
	#8	(75)	107	62	173	-	34	15	25	25	12	-	(11)	-	-	-
	#9	(106)	148	81	213	-	44	21	37	39	21	-	19	-	-	-
	#10	(43)	53	25	79	-	14	-	11	13	-	-	-	-	-	-
ダシバック (鰹節等を風味原料に使用)	#1	(189)	205	91	305	-	55	26	40	44	24	-	21	-	-	-
	#2	(12)	18	-	30	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	#3	(104)	136	58	234	-	42	19	32	28	15	-	12	-	-	-
	#4	(165)	184	70	285	-	36	15	26	29	10	-	-	-	-	-
	#5	(141)	181	78	286	-	51	23	39	38	17	-	15	-	-	-
	#6	(197)	221	106	324	-	65	28	48	52	24	-	20	-	-	-
	#7	(44)	50	22	77	-	12	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	#8	(99)	114	36	194	-	33	12	22	22	-	-	-	-	-	-
	#9	(91)	92	46	151	-	23	10	17	20	11	-	-	-	-	-
	#10	(128)	185	62	313	-	59	25	41	41	18	-	17	-	-	-
つゆ (鰹節等を風味原料に使用)	#1	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	#2	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	#3	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	#4	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	#5	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	#6	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	#7	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	#8	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	#9	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	#10	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-

1) 定量範囲は鰹削り節とダシバックで10～100 µg/kg、つゆで1.0～10 µg/kgとした。定量範囲の上限値を超過した場合も外挿により定量値を算出した。、2) 参考値とする。、3) 鰹削り節及びダシバックのみ参考値とする。、4) 下線の試料は平成24年度の厚生労働科学研究費補助金研究報告書「食品を介したダイオキシン類等有害化学物質摂取量の評価とその手法開発に関する研究」にて報告した。、5) ( )は定量イオンと定性イオンの比が標準溶液と比較±20%を超過、6) 定量下限値未満

**表 8 PAHs 含有実態調査において定量下限値以上であった PAHs の割合**

PAHs	定量下限値以上の割合 (%)							
	燻製魚 20試料	なまり節 11試料	焼魚 8試料	燻製肉 16試料	燻製卵 10試料	鰹削り節 10試料	だしパック 10試料	つゆ 10試料
BCL	45	73	0	31	0	100	100	0
BAA	40	82	0	19	0	100	100	0
CPP	25	73	0	25	0	100	90	0
CHR	40	82	0	19	0	100	100	0
5MC	0	0	0	0	0	0	0	0
BBF	15	64	0	6	0	90	90	0
BKF	15	55	0	0	0	60	80	0
BJF	15	55	0	0	0	90	80	0
BAP	15	64	0	13	0	90	80	0
ICP	15	36	0	0	0	50	70	0
DHA	0	27	0	0	0	0	0	0
BGP	15	36	0	0	0	40	50	0
DLP	0	0	0	0	0	0	0	0
DEP	0	0	0	0	0	0	0	0
DIP	0	0	0	0	0	0	0	0
DHP	0	0	0	0	0	0	0	0

表9 鰹削り節(薄削り)からダシへのPAHs移行率

PAHs	鰹削り節 (n=2) <sup>1)</sup>		ダシ (n=3) <sup>1)</sup>						ダシ殻(n=3) <sup>1)</sup>						PAHs 回収率 (%) <sup>2)</sup>
	濃度(μg/kg)	含有量(μg)	濃度(μg/kg)		含有量(μg)		移行率(%)		濃度(μg/kg)		含有量(μg)		残存率(%)		
			平均	SD	平均	SD	平均	SD	平均	SD	平均	SD	平均	SD	
BCL	103	2.1	0.11	0.014	0.044	0.0056	2.1	0.3	27	3.1	2.0	0.17	97	8.1	99
BAA	144	2.9	0.12	0.020	0.049	0.0080	1.7	0.3	38	3.0	2.8	0.23	96	7.9	98
CPP	80	1.6	0.080	0.012	0.032	0.0045	2.0	0.3	21	1.2	1.6	0.10	97	6.3	99
CHR	203	4.1	0.17	0.030	0.070	0.012	1.7	0.3	53	3.9	3.9	0.26	97	6.3	98
5MC	- <sup>3)</sup>	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
BBF	42	0.83	0.036	0.0084	0.015	0.003	1.8	0.4	11	0.8	0.80	0.06	97	7.0	98
BKF	20	0.41	-	-	-	-	-	-	5.4	0.3	0.40	0.022	97	5.5	-
BJF	35	0.70	-	-	-	-	-	-	9	0.6	0.67	0.05	96	6.5	-
BAP	39	0.78	0.036	0.0082	0.015	0.0032	1.9	0.4	10	0.8	0.77	0.07	98	8.6	100
ICP	20	0.39	-	-	-	-	-	-	5.2	0.2	0.38	0.019	97	4.8	-
DHA	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
BGP	18	0.37	-	-	-	-	-	-	4.9	0.2	0.36	0.014	99	3.7	-
DLP	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
DEP	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
DIP	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
DHP	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-

1) 定量下限値: 鰹削り節は10 μg/kg、ダシは0.024 ~ 0.025 μg/kg、ダシ殻は1.3 ~ 1.4 μg/kg、2) 回収率=ダシとダシ殻のPAHs含量/使用した鰹削り節のPAHs含量 × 100、3) 定量下限値未滿

表 10 鰹削り節(厚削り)からダシへの PAHs 移行率

PAHs	鰹削り節 (n=2) <sup>1)</sup>		ダシ (n=3) <sup>1)</sup>						ダシ殻(n=3) <sup>1)</sup>						PAHs 回収率 (%) <sup>2)</sup>
	濃度(μg/kg)	含有量(μg)	濃度(μg/kg)		含有量(μg)		移行率(%)		濃度(μg/kg)		含有量(μg)		残存率(%)		
			平均	SD	平均	SD	平均	SD	平均	SD	平均	SD	平均	SD	
BCL	54	0.81	0.069	0.007	0.021	0.0027	2.6	0.3	32	1.9	0.8	0.056	94	6.8	96
BAA	75	1.1	0.094	0.016	0.029	0.0033	2.5	0.3	45	5.0	1.1	0.133	95	11.8	98
CPP	40	0.61	0.051	0.013	0.015	0.0026	2.5	0.4	23	2.2	0.55	0.060	91	9.8	94
CHR	118	1.8	0.150	0.023	0.046	0.0041	2.6	0.2	71	8.2	1.7	0.217	97	12.3	99
5MC	- <sup>3)</sup>	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
BBF	26	0.39	0.036	0.0073	0.011	0.0013	2.8	0.3	16	2.4	0.38	0.06216	97	16.0	100
BKF	11	0.17	-	-	-	-	-	-	6.9	1.1	0.17	0.02923	97	17.2	-
BJF	19	0.29	0.027	0.0053	0.0081	0.00090	2.8	0.3	12	1.6	0.28	0.0411	97	14.1	100
BAP	21	0.32	0.031	0.0069	0.0094	0.0012	3.0	0.4	13	2.0	0.30	0.0525	96	16.6	99
ICP	10	0.15	-	-	-	-	-	-	6.3	0.91	0.15	0.02358	98	15.3	-
DHA	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
BGP	10	0.15	-	-	-	-	-	-	6.1	0.86	0.15	0.02229	98	15.0	-
DLP	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
DEP	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
DIP	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
DHP	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-

1) 定量下限値; 鰹削り節は10 μg/kg、ダシは0.015 ~ 0.019 μg/kg、ダシ殻は3.1 ~ 3.2 μg/kg、2) 回収率=ダシとダシ殻のPAHs含量/使用した鰹削り節のPAHs含量 × 100、3) 定量下限値未滿



表 11 ダシパックからダシへの PAHs 移行率

PAHs	ダシパック (n=2) <sup>1)</sup>		ダシ (n=3) <sup>1)</sup>						ダシ殻(n=3) <sup>1)</sup>						PAHs 回収率 (%) <sup>2)</sup>
	濃度(μg/kg)	含有量(μg)	濃度(μg/kg)		含有量(μg)		移行率(%)		濃度(μg/kg)		含有量(μg)		残存率(%)		
			平均	SD	平均	SD	平均	SD	平均	SD	平均	SD	平均	SD	
BCL	134	1.2	0.016	0.0053	0.0050	0.0018	0.4	0.1	55	1.8	1.2	0.013	100	1.1	101
BAA	152	1.4	0.022	0.0063	0.0071	0.0021	0.5	0.2	59	2.1	1.3	0.011	97	0.8	97
CPP	41	0.37	0.012	0.0018	0.0037	0.00062	1.0	0.2	15	0.64	0.33	0.007	89	1.9	90
CHR	258	2.3	-	-	-	-	-	-	103	3.4	2.3	0.016	98	0.7	-
5MC	- <sup>3)</sup>	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
BBF	49	0.44	0.0089	0.0021	0.0028	0.0007	0.6	0.2	19	0.74	0.42	0.00066	96	0.2	97
BKF	21	0.19	-	-	-	-	-	-	8.3	0.29	0.19	0.00089	97	0.5	-
BJF	36	0.33	-	-	-	-	-	-	14	0.48	0.31	0.0018	97	0.6	-
BAP	26	0.23	0.012	0.00092	0.0037	0.0003	1.6	0.1	10	0.36	0.22	0.0010	95	0.4	96
ICP	18	0.16	-	-	-	-	-	-	6.9	0.26	0.15	0.00047	96	0.3	-
DHA	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
BGP	17	0.15	-	-	-	-	-	-	6.5	0.25	0.15	0.00027	97	0.2	-
DLP	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
DEP	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
DIP	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
DHP	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-

1) 定量下限値; 鰹削り節は10 μg/kg、ダシは0.030 ~ 0.034 μg/kg、ダシ殻は1.9 ~ 2.1 μg/kg, 2) 回収率=ダシとダシ殻のPAHs含量/使用した鰹削り節のPAHs含量 × 100, 3) 定量下限値未滿

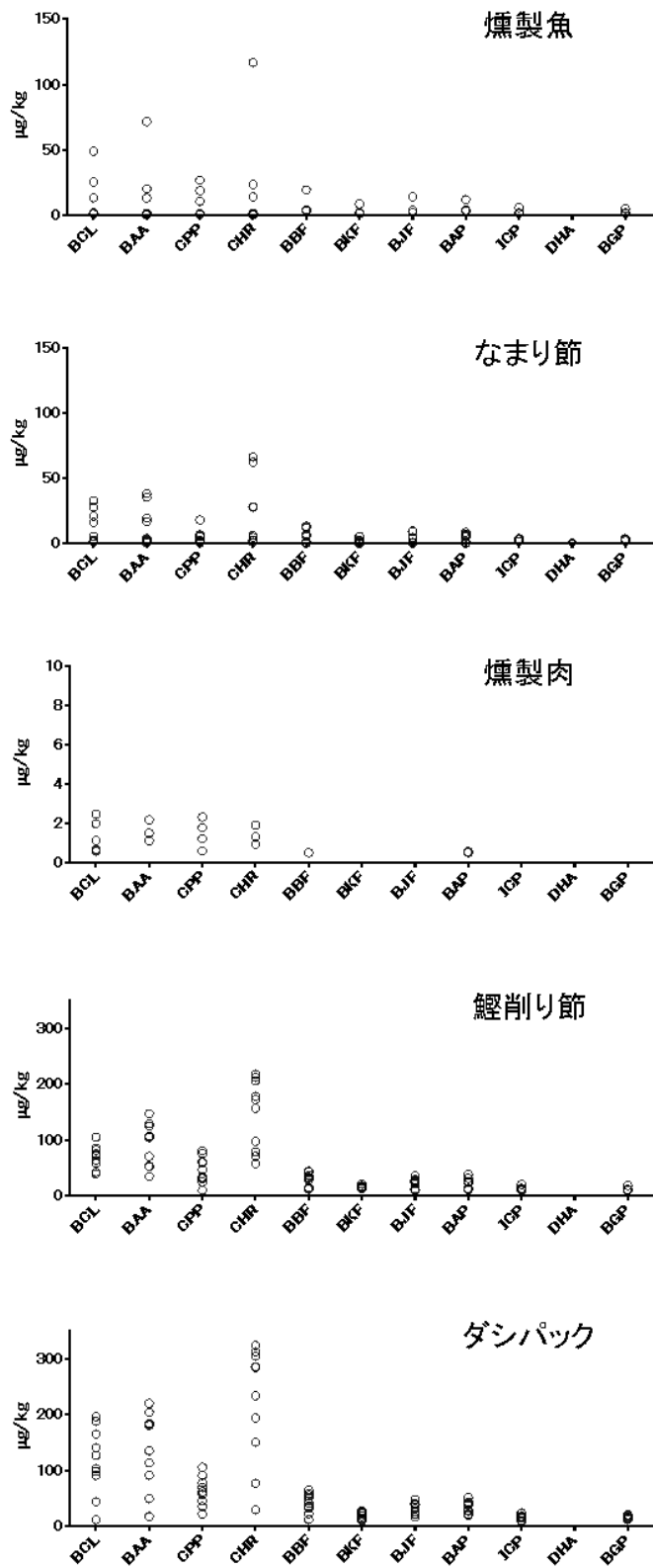


図 1 実態調査における PAHs 濃度の比較

## **II. 分担研究報告 2**

**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**

**堤 智昭**

## 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

#### 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 塩素化ダイオキシン類のトータルダイエツト調査

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

マーケットバスケット方式によるトータルダイエツト (TD) 試料を用いて、ダイオキシン類(PCDD/PCDFs及びCo-PCBs)の国民平均一日摂取量を求めた。国民健康・栄養調査による地域別の国民平均食品摂取量に基づいて食品を購入し、飲料水を含め14群から成るTD試料を全国7地区8機関で調製した。ダイオキシン類濃度が高い食品を含む第10群(魚介類)及び11群(肉・卵類)については、各機関がそれぞれ各3セットの試料を調製し、その他の食品群は各1セットの試料を調製した。10及び11群については試料毎にダイオキシン類を分析し、その他の群は全地区の試料を混合して分析し、ダイオキシン類の一日摂取量を求めた。その結果、ダイオキシン類の国民平均一日摂取量は0.58 (範囲: 0.18~0.97) pg TEQ/kg bw/dayと推定された。平均の摂取量は、平成24年度の調査結果よりやや低い摂取量であった。摂取量の推定値の最大は0.97 pg TEQ/kg bw/dayであり平均値の約1.7倍であったが、日本における耐容一日摂取量(4 pg TEQ/kg bw/day)の24%程度であった。

また、ハイリスク集団と考えられる幼児におけるダイオキシン類の一日摂取量を推定するため、幼児用のTD試料を調製しダイオキシン類を分析した。ダイオキシン類の一日摂取量は0.46 pg TEQ/kg bw/dayであった。TDIの12%程度であり、国民平均の一日摂取量と近い値であった。

#### 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  
松田りえ子、五十嵐敦子

#### A. 研究目的

トータルダイエツト(TD)試料を用いたダイオキシン類の摂取量調査は、平成9年から厚

生科学研究(現在は厚生労働科学研究)費補助金により、毎年実施されており、国民のダイオキシン類暴露量とその経年推移に関する知見が得られている。国民平均のダイオキシン類摂取量を推定するため、本年度は全国7地区8機関において日本人の平均的な食品摂取に従ったTD試料を調製し、試料中のダイオキシン類を分析し、一日摂取量を求めた。また、今年度は新たにハイリスク集団と考え

られる幼児におけるダイオキシン類摂取量を推定するため、幼児の食品摂取に従った TD 試料を作製し、試料中のダイオキシン類を分析し、一日摂取量を求めた。

## B. 研究方法

### 1. 試料

#### 1-1. 日本人の平均的な TD 試料

国民平均のダイオキシン類摂取量を推定するための TD 試料は、全国 7 地区の 8 機関で調製した。厚生労働省が実施した平成 20～22 年度の国民健康・栄養調査の地域別食品摂取量（1 歳以上）を項目ごとに平均し、各食品の地域別摂取量とした。食品は 13 群に大別して試料を調製した。各機関はそれぞれ約 120 品目の食品を購入し、地域別食品摂取量に基づいて、それらの食品を計量し、食品によっては調理した後、食品群ごとに混合均一化したものを試料とした。作製した TD 試料は、分析に供すまで -20℃ で保存した。

13 食品群の内訳は、次のとおりである。

- 第 1 群：米、米加工品
- 第 2 群：米以外の穀類、種実類、いも類
- 第 3 群：砂糖類、菓子類
- 第 4 群：油脂類
- 第 5 群：豆類、豆加工品
- 第 6 群：果実、果汁
- 第 7 群：緑黄色野菜
- 第 8 群：他の野菜類、キノコ類、海草類
- 第 9 群：酒類、嗜好飲料
- 第 10 群：魚介類
- 第 11 群：肉類、卵類
- 第 12 群：乳、乳製品
- 第 13 群：調味料
- 第 14 群として飲料水(水道水)を加えている。

第 1～9 群、及び第 12～14 群は、各機関で 1 セットの試料を調製した。第 10 及び 11 群はダイオキシン類の主要な摂取源であるため、8 機関が各群 3 セットずつ調製した。これら 3 セットの試料調製では、魚種、産地、メーカー等が異なる食品を含めた。昨年度の調査ま

では、第 12 群についても各機関で 3 セットの試料調製を実施したが、12 群のダイオキシン類摂取量に占める割合が低下しており、平成 19 年度以降の割合は 2.1%以下であった。そのため、12 群からのダイオキシン類摂取量は全体に占める割合が高いとは言えないため、今年度より各機関で 1 セットの試料作製とした。

各機関で 3 セットずつ調製した第 10 及び 11 群の試料はそれぞれの試料を分析に供した。一方、第 1～9 群及び第 12～14 群は、各機関の食品摂取量に応じた割合で混合した共通試料とし、分析に供した。

#### 1-2. 幼児の TD 試料

国民健康栄養調査データ（平成 20～22 年度）を集計し、幼児（1-3 歳）の食事摂取に従った TD 試料を作製した<sup>1)</sup>。なお、第 14 群である飲料水については、ダイオキシン類摂取量に対する寄与が極めて少ないことが現在までの研究により明らかとなっているため、分析対象より除いた。表 1 に TD 試料を作製する際に基とした食品群毎の一日摂取量を示した。日本人の平均的な TD 試料と比較すると、第 6 群の果実・果汁、及び第 12 群の乳・乳製品の摂取割合が大きく、一方で第 9 群の酒類・嗜好飲料の摂取割合が小さい。

## 2. 分析対象項目及び検出限界

分析対象項目は、WHO が毒性係数（TEF）を定めた PCDDs 7 種、PCDFs 10 種及び Co-PCBs 12 種の計 29 種とした。

ダイオキシン類各異性体の検出限界値は以下のとおりである。

PCDDs	検出限界		
	1-3,5-13群	4群	14群
	(pg/g)	(pg/g)	(pg/L)
2,3,7,8-TCDD	0.01	0.05	0.1
1,2,3,7,8-PeCDD	0.01	0.05	0.1
1,2,3,4,7,8-HxCDD	0.02	0.1	0.2
1,2,3,6,7,8-HxCDD	0.02	0.1	0.2
1,2,3,7,8,9-HxCDD	0.02	0.1	0.2
1,2,3,4,6,7,8-HpCDD	0.02	0.1	0.2
1,2,3,4,6,7,8,9-OCDD	0.05	0.2	0.5

PCDFs			
2,3,7,8-TCDF	0.01	0.05	0.1
1,2,3,7,8-PeCDF	0.01	0.05	0.1
2,3,4,7,8-PeCDF	0.01	0.05	0.1
1,2,3,4,7,8-HxCDF	0.02	0.1	0.2
1,2,3,6,7,8-HxCDF	0.02	0.1	0.2
1,2,3,7,8,9-HxCDF	0.02	0.1	0.2
2,3,4,6,7,8-HxCDF	0.02	0.1	0.2
1,2,3,4,6,7,8-HpCDF	0.02	0.1	0.2
1,2,3,4,7,8,9-HpCDF	0.02	0.1	0.2
1,2,3,4,6,7,8,9-OCDF	0.05	0.2	0.5

Co-PCBs			
3,3',4,4'-TCB(#77)	0.1	0.5	1
3,4,4',5-TCB(#81)	0.1	0.5	1
3,3',4,4',5-PeCB(#126)	0.1	0.5	1
3,3',4,4',5,5'-HxCB(#169)	0.1	0.5	1
2,3,3',4,4'-PeCB(#105)	1	5	10
2,3,4,4',5-PeCB(#114)	1	5	10
2,3',4,4',5-PeCB(#118)	1	5	10
2',3,4,4',5-PeCB(#123)	1	5	10
2,3,3',4,4',5-HxCB(#156)	1	5	10
2,3,3',4,4',5'-HxCB(#157)	1	5	10
2,3',4,4',5,5'-HxCB(#167)	1	5	10
2,3,3',4,4',5,5'-HpCB(#189)	1	5	10

### 3. 分析方法

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

### 4. 分析結果の表記

調査結果は、一日摂取量を体重あたりの毒性等量 (pgTEQ/kg bw/day) で示した。TEQの算出には2005年に定められたTEFを使用し、分析値が検出限界値未満の異性体濃度をゼロとして計算した値(以下、ND=0と略す)と、個々の異性体の検出限界値濃度の1/2として計算した値(以下、ND=LOD/2と略す)を示した。

## C. 研究結果及び考察

### 1. 国民平均のダイオキシン類摂取量推定

7地区の8機関において調製した平均的な食品摂取を模したTD試料を分析し、ダイオキシン類摂取量及び各群からの摂取割合を算出した。表2~4には、ND=0の場合のPCDD/PCDFs、Co-PCBs及び両者を合わせたダイオキシン類の値を示した。また、表5~7にはND=LOD/2の場合のそれぞれの値を示した。第10及び11群は機関毎に3試料からの分析値が得られるので、表2~7では第10~12群の各群からのダイオキシン類摂取量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と示した。従って、PCDDs/PCDFs摂取量及びCo-PCBs摂取量の最小値、中央値、最大値と#1、#2、#3とは必ずしも一致しない。

#### 1-1. PCDD/PCDFs 摂取量

PCDD/PCDFsの1日摂取量は、ND=0の場合、平均9.15(範囲:1.48~22.23)pgTEQ/dayであった。これを、日本人の平均体重を50kgとして、体重(kg)あたりの1日摂取量に換算すると、平均0.18(範囲:0.03~0.44)pgTEQ/kg bw/dayとなった(表2)。平成24年度は平均0.21(範囲:0.07~0.43)pgTEQ/kg bw/dayであり、今年度の平均値はほぼ同等であった。

ND=LOD/2の場合のPCDD/PCDFsの1日摂取量は、平均48.11(範囲:41.38~59.72)pgTEQ/dayであり、体重あたり平均0.96(範囲:0.83~1.19)pgTEQ/kg bw/dayであった(表5)。

PCDD/PCDFs摂取量に対する寄与率が高い食品群は、ND=0の場合、10群(魚介類)80.1%、11群(肉・卵類)17.4%であり、これら2群で全体の97.6%を占めた。

ND=LOD/2の場合は、高い順に9群(酒類、嗜好飲料)22.8%、10群16.7%、1群(米、米加工品)15.8%であった。ND=0の場合には、9群及び1群の寄与はほとんどゼロであるが、これらの食品群は摂取量が多いため、全てのダイオキシン類分析値がNDであっても、それをLOD/2の濃度として計算するため、結果として高い摂取量が得られ、寄与率が高く

なっている。

### 1-2 . Co-PCBs 摂取量

Co-PCBs の 1 日摂取量は、ND=0 の場合、平均 19.71 ( 範囲 : 7.74 ~ 32.9 ) pgTEQ/day であり、体重あたり平均 0.39( 範囲 : 0.15 ~ 0.66 ) pgTEQ/kg bw/day であった ( 表 3 )。平成 24 年度は平均 0.48( 範囲 : 0.15 ~ 0.85 ) pgTEQ/kg bw/day であり、今年度の平均値はやや低い値であった。

ND=LOD/2 の場合の摂取量は、平均 32.69 ( 範囲 : 20.91 ~ 45.58 ) pgTEQ/day であり、体重あたりとすれば、平均 0.65 ( 範囲 : 0.42 ~ 0.91 ) pgTEQ/kg bw/day であった ( 表 6 )。

Co-PCBs 摂取量に対する寄与率が高い食品群は、ND=0 の場合、10 群 ( 魚介類 ) 96.2%、11 群 ( 肉・卵類 ) 3.5% であり、これら 2 群で全体の 99.7% を占めた。

ND=LOD/2 の場合は、高い順に 10 群 58.0%、9 群 11.4%、1 群 7.9% であった。PCDD/PCDFs の場合と同様に、9 群及び 1 群からの寄与率が高くなった。

### 1-3 . ダイオキシン類摂取量

PCDD/PCDFs と Co-PCBs を合わせたダイオキシン類の一日摂取量は、ND=0 の場合、平均 28.86 ( 範囲 : 9.22 ~ 48.37 ) pgTEQ/day であり、体重あたり摂取量は平均 0.58( 範囲 : 0.18 ~ 0.97 ) pgTEQ/kg bw/day であった ( 表 4 )。日本における TDI ( 4 pgTEQ/kg bw/day ) の 15% 程度であり、最大値の 0.97 pgTEQ/kg bw/day も TDI の 25% 程度であった。平成 24 年度は平均 0.69 ( 範囲 : 0.22 ~ 1.22 ) pgTEQ/kg bw/day であり、今年度の平均値はやや低い値であった。

ND=LOD/2 の場合の 1 日摂取量は、平均 80.79 ( 範囲 : 62.29 ~ 98.96 ) pgTEQ/day であり、体重あたり摂取量は平均 1.62( 範囲 : 1.25 ~ 1.98 ) pgTEQ /kg bw/day であった ( 表 7 )。

ダイオキシン類摂取量に対する寄与率が高い食品群は、ND=0 の場合、10 群 ( 魚介類 ) 91.1%、11 群 ( 肉・卵類 ) 7.9% であり、これら 2 群で全体の 99.0% を占めた。ND=LOD/2 の場

合は、高い順に 10 群 33.4%、9 群 ( 酒類、嗜好飲料 ) 18.2%、1 群 ( 米、米加工品 ) 12.6% であり、PCDD/PCDFs および Co-PCBs の場合と同じく 1 群及び 9 群の寄与率が高かった。

ダイオキシン類摂取量に占める Co-PCBs の割合は、ND=0 の場合、68% であった。Co-PCBs からの摂取率は平成 23 ~ 24 年度が 70% であり、ほぼ 7 割を推移している。

本調査研究では、ダイオキシン類摂取への寄与が大きい第 10 群、及び第 12 群の試料を各機関で各 3 セット調製し、ダイオキシン類摂取量の最小値、中央値及び最大値を求めている。これまでの調査結果と同様に、同一機関であっても、推定されるダイオキシン類摂取量の最小値と最大値には 1.2 ~ 3.5 倍の開きがあった ( 平成 25 年度 )。3 セットの試料は同一地域で市販食品を購入し調製されているが、購入した魚種、個体等の差が影響しているものと考えられる。特に 10 群からの摂取量の差は大きく、魚介類中のダイオキシン類濃度は広い範囲に分布していると推察された。1 セットの TD 試料に含めることが可能な食品の数は限られているため、本研究のように 10 群の試料数を多くして、広範な魚介類を含めることが、国民平均のダイオキシン類摂取量の精密な推定に有用であると考えられる。

### 1-4 . ダイオキシン類摂取量の経年推移

ダイオキシン類摂取量の経年推移を、表 8 に示した。平成 10 ~ 18 年度の調査結果は、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総摂取量調査研究報告書」、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」、及び平成 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、2005 年の TEF を用いて再計算した。平成 19 ~ 21 年度の調査結果は、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報告書」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 年度のダイオキシン類摂取量(平均値)は 0.58 pgTEQ/kg bw/day であり、平成 10 年度以降の調査結果の中で最も低い値であった。また、調査研究が開始された平成 10 年度及び 11 年度のダイオキシン類摂取量は 1.75 および 1.92 pgTEQ/kg bw/day であり、これらの値と比較すると、最近の摂取量は 40% 以下まで低下している。平成 10 年度から 18 年度までは低下傾向が大きかったが、18 年度以降の低下傾向は小さくなっている。また、各年度で推定されたダイオキシン類摂取量の最大値については、平成 11 年の関西地区 A において耐容 1 日摂取量 (TDI) である 4 pgTEQ/kg bw/day を超える摂取量が推定された。しかし、それ以降は最大値に関しても TDI を超える摂取量は推定されておらず、平成 20 年度以降は継続して 2 pgTEQ/kg bw/day を下回っており、特に本年度の最大値は 1 pgTEQ/kg bw/day 以下となった。

ダイオキシン類摂取量が減少している要因の一つとして、平成 11 年 7 月に成立、平成 12 年 1 月に施行された DXNs 対策特別措置法が考えられる。これに基づき環境基準が設定されたことにより、焼却施設等からのダイオキシン類の排出が大幅に抑制された効果が影響していると考えられる。また、その他の要因として、魚介類の摂取量が過去と比較して減少していることも影響していると考えられる。平成 10 年度の調査に用いた魚介類の一日摂取量は 97.0 g/day であったが、平成 25 年度の調査では 70.7 g/day であり、一日摂取量が 27%程度減少している。

## 2. 幼児のダイオキシン類摂取量推定

幼児用の TD 試料の分析結果より推定されたダイオキシン類摂取量を表 9 及び表 10 に示した。ND=0 の場合の一日摂取量は PCDD/PCDFs が 2.08 pgTEQ/day、Co-PCBs が 3.66 pgTEQ/day、及びダイオキシン類が

5.74 pgTEQ/day であった。幼児の平均体重を 12.6 kg と仮定した場合、体重 (kg) あたりの一日摂取量に換算すると、PCDD/PCDFs が 0.17 pgTEQ /kg bw/day、Co-PCBs が 0.29 pgTEQ /kg bw/day、及びダイオキシン類が 0.46 pgTEQ /kg bw/day であった。ダイオキシン類摂取量は TDI

の約 12%であった。また、ダイオキシン類摂取量は本年度の国民平均の摂取量 (0.58 pgTEQ/kg be/day) と大差はなかった。幼児の体重は国民平均と比較して小さいが、ダイオキシン類の主要な暴露経路である魚介類の摂取量も国民平均と比較して少ないため、両者のダイオキシン類摂取量に顕著な差が生じなかったと考えられる。

また、ND=LOD/2 の場合の一日摂取量は PCDD/PCDFs が 16.78 pgTEQ/day、Co-PCBs が 8.67 pgTEQ/day、及びダイオキシン類が 25.45 pgTEQ/day であり、体重あたりの摂取量はそれぞれ、1.33、0.69、2.02 pgTEQ /kg bw/day であった。

ダイオキシン類摂取量に対する寄与率が高い食品群は、ND=0 の場合、10 群 (魚介類) 91.0%、次いで 7 群 (緑黄色野菜) 6.6% であり、これら 2 つの群で全体の 97.5% を占めた。通常は 7 群からのダイオキシン類の摂取割合は小さいが、今回調製した 7 群試料では、TEF が大きい 1,2,3,7,8-PeCDD が検出下限値近くではあるが検出されたため、摂取量が大きくなった。

ND=LOD/2 の場合は、寄与率が高い順に 10 群 21.4%、9 群 (酒類、嗜好飲料) 13.5%、12 群 (乳・乳製品) 13.0%、1 群 (米、米加工品) 11.5% であり、ND=0 の場合と比較すると、1 群、9 群、及び 12 群の寄与率が高かった。これらの食品群についてはダイオキシン類がほとんど検出されていないが、摂取量が多いため ND=LOD/2 で計算した場合の摂取量が高くなった。

日本における幼児のダイオキシン類摂取量の調査としては、2002 年に東京都が実施した調査がある。この調査では、国民健康・栄養調査の 2 歳～6 歳の摂取量データに従った TD



試料を分析した結果、ダイオキシン類摂取量は 30.4 pg TEQ/日 (2.03 pg TEQ/kg/day) と推定している<sup>2)</sup>。今回の調査とは、対象とした年齢層や、調査の実施時期等が異なるため、推定された摂取量を直接比較することは困難であるが、本調査より約 4 倍の高い摂取量が得られている。

#### D. 結論

1. 全国 7 地区 8 機関で調製した TD 試料によるダイオキシン類の摂取量調査を実施した結果、平均一日摂取量は 0.69 pgTEQ/kg bw/day であり、日本における TDI の約 17% であった。ダイオキシン摂取量は経年的に減少傾向にあるが、食品の安全を確保するため、今後もダイオキシン類摂取に対する寄与が大きい魚介類に重点を置いた調査を継続し、動向を見守る必要がある。

2. 幼児 (1 歳 ~ 3 歳) を対象にした TD 試料を用いてダイオキシン類の摂取量調査を実施した結果、一日摂取量は 0.46 pg TEQ/kg w/day と推定された。

#### E. 参考文献

- 1) 平成 25 年度厚生労働科学研究補助金研究報告書「食品を介したダイオキシン類等有害化学物質摂取量の評価とその手法開発に関する研究」(分担報告書 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)
- 2) 笹本剛生：東京都における食事由来のダイオキシン類曝露量，東京都健康安全研究センター研究年報，2010:61:93-101．

#### F. 研究業績

##### 1. 論文発表

- 1) 堤 智昭，松田 りえ子：食品からのダイオキシン類摂取量推定，食品衛生研究，2013:63:7-19．

##### 2. 学会発表

なし

#### 【謝辞】

TD 試料の調製にご協力いただいた 7 地区 8 研究機関の諸氏に感謝いたします。

**表 1 国民平均及び幼児の各食品群の一日摂取量**

食品群	一日摂取量, g/day	
	国民平均(1歳以上)	幼児(1~3歳)
1群(米、米加工品)	316.1 (17) <sup>1)</sup>	112.1 (15)
2群(米以外の穀類、種実類、いも類)	154.6 (8)	75.6 (10)
3群(砂糖類、菓子類)	30.3 (2)	20.9 (3)
4群(油脂類)	9.2 (0)	4.6 (1)
5群(豆・豆加工品)	52.4 (3)	18.8 (2)
6群(果実、果汁)	104.0 (5)	69.4 (9)
7群(緑黄色野菜)	94.5 (5)	39.2 (5)
8群(他の野菜類、キノコ類、海草類)	191.1 (10)	59.5 (8)
9群(酒類、嗜好飲料)	575.3 (30)	131.8 (17)
10群(魚介類)	70.7 (4)	19.6 (3)
11群(肉類・卵類)	108.3 (6)	48.9 (6)
12群(乳・乳製品)	107.7 (6)	126.4 (17)
13群(調味料)	86.2 (5)	32.8 (4)
<b>総摂取量</b>	<b>1900.4</b>	<b>759.4</b>

1) 総摂取量に対する割合(%)

表2 平成25年度トータルダイエツト(1~14群)からのダイオキシン(PCDDs+PCDFs)1日摂取量(ND=0)

(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		
	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3
1群(米、米加工品)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
2群(米以外の穀類、種実類、いも類)	0.01			0.01			0.01			0.01			0.01			0.01		
3群(砂糖類、菓子類)	0.02			0.02			0.02			0.02			0.02			0.02		
4群(油脂類)	0.01			0.01			0.01			0.01			0.01			0.01		
5群(豆・豆加工品)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
6群(果実、果汁)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
7群(緑黄色野菜)	0.03			0.03			0.03			0.03			0.03			0.03		
8群(他の野菜類、キノコ類、海藻類)	0.04			0.04			0.04			0.04			0.04			0.04		
9群(酒類、嗜好飲料)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
10群(魚介類)	7.44	11.21	9.72	4.82	8.81	9.01	4.04	7.61	11.45	2.78	6.12	9.87	1.25	4.95	4.28	5.29	7.61	8.72
11群(肉類・卵類)	0.26	0.29	0.63	0.14	0.37	0.41	0.50	1.40	10.56	0.60	1.22	2.29	0.00	0.02	0.91	0.54	4.04	8.42
12群(乳・乳製品)	0.02			0.02			0.02			0.02			0.02			0.02		
13群(調味料)	0.08			0.08			0.08			0.08			0.08			0.08		
14群(飲料水)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
総摂取量(pgTEQ/day)	7.92	11.73	10.58	5.18	9.41	9.64	4.77	9.24	22.23	3.60	7.56	12.39	1.48	5.19	5.42	6.06	11.87	17.37
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.16	0.23	0.21	0.10	0.19	0.19	0.10	0.18	0.44	0.07	0.15	0.25	0.03	0.10	0.11	0.12	0.24	0.35

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	#2	#3	#1	#2	#3			
1群(米、米加工品)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
2群(米以外の穀類、種実類、いも類)	0.01			0.01			0.01	0.00	0.11
3群(砂糖類、菓子類)	0.02			0.02			0.02	0.00	0.24
4群(油脂類)	0.01			0.01			0.01	0.00	0.16
5群(豆・豆加工品)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.02
6群(果実、果汁)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
7群(緑黄色野菜)	0.03			0.03			0.03	0.00	0.33
8群(他の野菜類、キノコ類、海藻類)	0.04			0.04			0.04	0.00	0.48
9群(酒類、嗜好飲料)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
10群(魚介類)	7.16	9.28	9.53	6.61	9.24	9.24	7.33	2.66	80.12
11群(肉類・卵類)	0.00	0.04	1.40	0.62	2.44	1.18	1.60	2.63	17.43
12群(乳・乳製品)	0.02			0.02			0.02	0.00	0.26
13群(調味料)	0.08			0.08			0.08	0.00	0.85
14群(飲料水)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
総摂取量(pgTEQ/day)	7.38	9.54	11.16	7.45	11.91	10.64	9.15	4.44	100.00
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.15	0.19	0.22	0.15	0.24	0.21	0.18	0.09	

\*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3 平成25年度トータルダイエット(1~14群)からのCo-PCBs類1日摂取量(ND=0)

(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		
	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3
1群(米、米加工品)	0.00	0.00	0.00	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
2群(米以外の穀類、種実類、いも類)	0.01			0.01			0.01			0.01			0.01			0.01		
3群(砂糖類、菓子類)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
4群(油脂類)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
5群(豆・豆加工品)	0.01			0.01			0.01			0.01			0.01			0.01		
6群(果実、果汁)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
7群(緑黄色野菜)	0.01			0.01			0.01			0.01			0.01			0.01		
8群(他の野菜類、キノコ類、海藻類)	0.03			0.03			0.03			0.03			0.03			0.03		
9群(酒類、嗜好飲料)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
10群(魚介類)	14.27	24.64	26.41	16.04	19.59	23.69	9.11	27.65	26.02	7.62	17.86	21.82	7.54	11.64	17.05	12.07	18.66	22.08
11群(肉類・卵類)	0.02	0.01	1.23	0.93	1.79	1.80	0.04	0.05	0.05	0.16	0.02	0.02	0.14	0.18	1.23	2.20	0.04	3.43
12群(乳・乳製品)	0.01			0.01			0.01			0.01			0.01			0.01		
13群(調味料)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
14群(飲料水)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
総摂取量(pgTEQ/day)	14.35	24.71	27.71	17.03	21.45	25.56	9.22	27.77	26.14	7.84	17.95	21.91	7.74	11.89	18.35	14.33	18.76	25.58
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.29	0.49	0.55	0.34	0.43	0.51	0.18	0.56	0.52	0.16	0.36	0.44	0.15	0.24	0.37	0.29	0.38	0.51

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)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
2群(米以外の穀類、種実類、いも類)	0.01			0.01			0.01	0.00	0.04
3群(砂糖類、菓子類)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.02
4群(油脂類)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
5群(豆・豆加工品)	0.01			0.01			0.01	0.00	0.03
6群(果実、果汁)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
7群(緑黄色野菜)	0.01			0.01			0.01	0.00	0.06
8群(他の野菜類、キノコ類、海藻類)	0.03			0.03			0.03	0.00	0.13
9群(酒類、嗜好飲料)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
	#1	#2	#3	#1	#2	#3			
10群(魚介類)	20.05	19.79	20.45	19.65	19.76	31.49	18.96	6.29	96.17
11群(肉類・卵類)	0.04	0.04	1.43	0.23	0.03	1.35	0.69	0.92	3.48
12群(乳・乳製品)	0.01			0.01			0.01	0.00	0.05
13群(調味料)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.01
14群(飲料水)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
総摂取量(pgTEQ/day)	20.15	19.91	21.95	19.95	19.85	32.90	19.71	6.52	100.00
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.40	0.40	0.44	0.40	0.40	0.66	0.39	0.13	

\*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4 平成25年度トータルダイエット(1~14群)からのダイオキシン類1日摂取量(ND=0)

(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		
	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3
1群(米、米加工品)	0.00	0.00	0.00	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
2群(米以外の穀類、種実類、いも類)	0.02			0.02			0.02			0.02			0.02			0.02		
3群(砂糖類、菓子類)	0.03			0.03			0.03			0.03			0.03			0.03		
4群(油脂類)	0.01			0.01			0.01			0.01			0.01			0.01		
5群(豆・豆加工品)	0.01			0.01			0.01			0.01			0.01			0.01		
6群(果実、果汁)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
7群(緑黄色野菜)	0.04			0.04			0.04			0.04			0.04			0.04		
8群(他の野菜類、キノコ類、海藻類)	0.07			0.07			0.07			0.07			0.07			0.07		
9群(酒類、嗜好飲料)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
10群(魚介類)	21.71	35.85	36.14	20.86	28.40	32.69	13.15	35.26	37.47	10.40	23.98	31.69	8.79	16.59	21.34	17.35	26.26	30.80
11群(肉類・卵類)	0.27	0.30	1.86	1.07	2.17	2.21	0.55	1.45	10.61	0.75	1.24	2.32	0.14	0.20	2.14	2.74	4.08	11.86
12群(乳・乳製品)	0.03			0.03			0.03			0.03			0.03			0.03		
13群(調味料)	0.08			0.08			0.08			0.08			0.08			0.08		
14群(飲料水)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
総摂取量(pgTEQ/day)	22.27	36.44	38.29	22.22	30.86	35.20	13.99	37.01	48.37	11.44	25.51	34.30	9.22	17.08	23.77	20.39	30.64	42.95
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.45	0.73	0.77	0.44	0.62	0.70	0.28	0.74	0.97	0.23	0.51	0.69	0.18	0.34	0.48	0.41	0.61	0.86

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	#2	#3	#1	#2	#3			
1群(米、米加工品)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
2群(米以外の穀類、種実類、いも類)	0.02			0.02			0.02	0.00	0.07
3群(砂糖類、菓子類)	0.03			0.03			0.03	0.00	0.09
4群(油脂類)	0.01			0.01			0.01	0.00	0.05
5群(豆・豆加工品)	0.01			0.01			0.01	0.00	0.03
6群(果実、果汁)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
7群(緑黄色野菜)	0.04			0.04			0.04	0.00	0.15
8群(他の野菜類、キノコ類、海藻類)	0.07			0.07			0.07	0.00	0.24
9群(酒類、嗜好飲料)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
10群(魚介類)	27.20	29.07	29.98	26.26	29.00	40.73	26.29	8.63	91.08
11群(肉類・卵類)	0.04	0.09	2.83	0.85	2.47	2.52	2.28	2.97	7.90
12群(乳・乳製品)	0.03			0.03			0.03	0.00	0.12
13群(調味料)	0.08			0.08			0.08	0.00	0.28
14群(飲料水)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
総摂取量(pgTEQ/day)	27.53	29.45	33.11	27.40	31.76	43.55	28.86	10.13	100.00
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.55	0.59	0.66	0.55	0.64	0.87	0.58	0.20	

\* 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5 平成25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)

(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		
	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3
1群(米、米加工品)	7.59			7.59			7.59			7.59			7.59			7.59		
2群(米以外の穀類、種実類、いも類)	4.25			4.25			4.25			4.25			4.25			4.25		
3群(砂糖類、菓子類)	0.73			0.73			0.73			0.73			0.73			0.73		
4群(油脂類)	0.91			0.91			0.91			0.91			0.91			0.91		
5群(豆・豆加工品)	1.01			1.01			1.01			1.01			1.01			1.01		
6群(果実、果汁)	2.04			2.04			2.04			2.04			2.04			2.04		
7群(緑黄色野菜)	1.74			1.74			1.74			1.74			1.74			1.74		
8群(他の野菜類、キノコ類、海藻類)	3.55			3.55			3.55			3.55			3.55			3.55		
9群(酒類、嗜好飲料)	10.96			10.96			10.96			10.96			10.96			10.96		
10群(魚介類)	8.76	11.98	11.07	5.76	9.29	9.48	4.49	8.03	11.80	3.49	6.61	10.17	2.56	5.91	4.84	5.63	8.01	9.10
11群(肉類・卵類)	2.42	2.52	2.66	1.77	1.86	1.91	2.29	2.32	11.16	2.29	2.76	3.30	2.06	2.16	2.79	2.31	5.11	9.06
12群(乳・乳製品)	2.13			2.13			2.13			2.13			2.13			2.13		
13群(調味料)	1.80			1.80			1.80			1.80			1.80			1.80		
14群(飲料水)	0.05			0.05			0.05			0.05			0.05			0.05		
総摂取量(pgTEQ/day)	47.94	51.26	50.49	44.30	47.91	48.16	43.54	47.12	59.72	42.55	46.14	50.23	41.38	44.83	44.39	44.70	49.89	54.93
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.96	1.03	1.01	0.89	0.96	0.96	0.87	0.94	1.19	0.85	0.92	1.00	0.83	0.90	0.89	0.89	1.00	1.10

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)	7.59			7.59			7.59	0.00	15.78
2群(米以外の穀類、種実類、いも類)	4.25			4.25			4.25	0.00	8.84
3群(砂糖類、菓子類)	0.73			0.73			0.73	0.00	1.51
4群(油脂類)	0.91			0.91			0.91	0.00	1.88
5群(豆・豆加工品)	1.01			1.01			1.01	0.00	2.10
6群(果実、果汁)	2.04			2.04			2.04	0.00	4.25
7群(緑黄色野菜)	1.74			1.74			1.74	0.00	3.62
8群(他の野菜類、キノコ類、海藻類)	3.55			3.55			3.55	0.00	7.38
9群(酒類、嗜好飲料)	10.96			10.96			10.96	0.00	22.78
	#1	#2	#3	#1	#2	#3			
10群(魚介類)	8.05	10.01	10.28	7.51	9.78	9.79	8.02	2.60	16.67
11群(肉類・卵類)	2.66	2.70	3.55	2.82	3.97	3.40	3.33	2.24	6.91
12群(乳・乳製品)	2.13			2.13			2.13	0.00	4.44
13群(調味料)	1.80			1.80			1.80	0.00	3.74
14群(飲料水)	0.05			0.05			0.05	0.00	0.10
総摂取量(pgTEQ/day)	47.47	49.47	50.59	47.10	50.51	49.96	48.11	4.04	100.00
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.95	0.99	1.01	0.94	1.01	1.00	0.96	0.08	

\*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6 平成25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=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		
	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3
1群(米、米加工品)	2.59			2.59			2.59			2.59			2.59			2.59		
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)	0.25			0.25			0.25			0.25			0.25			0.25		
4群(油脂類)	0.31			0.31			0.31			0.31			0.31			0.31		
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)	0.70			0.70			0.70			0.70			0.70			0.70		
7群(緑黄色野菜)	0.60			0.60			0.60			0.60			0.60			0.60		
8群(他の野菜類、キノコ類、海藻類)	1.22			1.22			1.22			1.22			1.22			1.22		
9群(酒類、嗜好飲料)	3.74			3.74			3.74			3.74			3.74			3.74		
10群(魚介類)	14.27	24.64	26.41	16.04	19.59	23.69	9.11	27.65	26.02	7.62	17.86	21.82	7.54	11.64	17.05	12.07	18.66	22.08
11群(肉類・卵類)	0.78	0.79	1.42	1.06	1.93	1.94	0.72	0.59	0.68	0.80	0.65	0.64	0.83	0.90	1.40	2.35	0.73	3.44
12群(乳・乳製品)	0.73			0.73			0.73			0.73			0.73			0.73		
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)	27.58	37.96	40.37	29.64	34.05	38.16	22.36	40.78	39.24	20.96	31.05	35.00	20.91	25.08	30.99	26.95	31.92	38.06
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.55	0.76	0.81	0.59	0.68	0.76	0.45	0.82	0.78	0.42	0.62	0.70	0.42	0.50	0.62	0.54	0.64	0.76

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)	2.59			2.59			2.59	0.00	7.92
2群(米以外の穀類、種実類、いも類)	1.45			1.45			1.45	0.00	4.44
3群(砂糖類、菓子類)	0.25			0.25			0.25	0.00	0.75
4群(油脂類)	0.31			0.31			0.31	0.00	0.93
5群(豆・豆加工品)	0.35			0.35			0.35	0.00	1.06
6群(果実、果汁)	0.70			0.70			0.70	0.00	2.13
7群(緑黄色野菜)	0.60			0.60			0.60	0.00	1.83
8群(他の野菜類、キノコ類、海藻類)	1.22			1.22			1.22	0.00	3.74
9群(酒類、嗜好飲料)	3.74			3.74			3.74	0.00	11.44
	#1	#2	#3	#1	#2	#3			
10群(魚介類)	20.05	19.79	20.45	19.65	19.76	31.49	18.96	6.29	57.99
11群(肉類・卵類)	0.94	0.95	1.65	1.06	0.88	1.55	1.19	0.68	3.66
12群(乳・乳製品)	0.73			0.73			0.73	0.00	2.24
13群(調味料)	0.59			0.59			0.59	0.00	1.81
14群(飲料水)	0.02			0.02			0.02	0.00	0.05
総摂取量(pgTEQ/day)	33.52	33.28	34.63	33.25	33.17	45.58	32.69	6.42	100.00
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.67	0.67	0.69	0.66	0.66	0.91	0.65	0.13	

\*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7 平成25年度トータルダイエット(1~14群)からのダイオキシン類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		
	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3
1群(米、米加工品)	10.18			10.18			10.18			10.18			10.18			10.18		
2群(米以外の穀類、種実類、いも類)	5.71			5.71			5.71			5.71			5.71			5.71		
3群(砂糖類、菓子類)	0.97			0.97			0.97			0.97			0.97			0.97		
4群(油脂類)	1.21			1.21			1.21			1.21			1.21			1.21		
5群(豆・豆加工品)	1.36			1.36			1.36			1.36			1.36			1.36		
6群(果実、果汁)	2.74			2.74			2.74			2.74			2.74			2.74		
7群(緑黄色野菜)	2.34			2.34			2.34			2.34			2.34			2.34		
8群(他の野菜類、キノコ類、海藻類)	4.77			4.77			4.77			4.77			4.77			4.77		
9群(酒類、嗜好飲料)	14.70			14.70			14.70			14.70			14.70			14.70		
10群(魚介類)	23.03	36.62	37.48	21.80	28.87	33.17	13.60	35.68	37.83	11.11	24.48	31.99	10.10	17.55	21.89	17.70	26.67	31.19
11群(肉類・卵類)	3.20	3.31	4.08	2.84	3.79	3.85	3.00	2.91	11.84	3.10	3.41	3.93	2.89	3.06	4.19	4.66	5.84	12.50
12群(乳・乳製品)	2.87			2.87			2.87			2.87			2.87			2.87		
13群(調味料)	2.39			2.39			2.39			2.39			2.39			2.39		
14群(飲料水)	0.07			0.07			0.07			0.07			0.07			0.07		
総摂取量(pgTEQ/day)	75.53	89.22	90.86	73.94	81.96	86.32	65.91	87.89	98.96	63.50	77.18	85.22	62.29	69.91	75.38	71.65	81.80	92.98
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	1.51	1.78	1.82	1.48	1.64	1.73	1.32	1.76	1.98	1.27	1.54	1.70	1.25	1.40	1.51	1.43	1.64	1.86

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)	10.18			10.18			10.18	0.00	12.60
2群(米以外の穀類、種実類、いも類)	5.71			5.71			5.71	0.00	7.06
3群(砂糖類、菓子類)	0.97			0.97			0.97	0.00	1.21
4群(油脂類)	1.21			1.21			1.21	0.00	1.50
5群(豆・豆加工品)	1.36			1.36			1.36	0.00	1.68
6群(果実、果汁)	2.74			2.74			2.74	0.00	3.39
7群(緑黄色野菜)	2.34			2.34			2.34	0.00	2.90
8群(他の野菜類、キノコ類、海藻類)	4.77			4.77			4.77	0.00	5.91
9群(酒類、嗜好飲料)	14.70			14.70			14.70	0.00	18.19
10群(魚介類)	28.10	29.81	30.73	27.16	29.54	41.28	26.97	8.55	33.39
11群(肉類・卵類)	3.59	3.64	5.20	3.88	4.85	4.95	4.52	2.49	5.60
12群(乳・乳製品)	2.87			2.87			2.87	0.00	3.55
13群(調味料)	2.39			2.39			2.39	0.00	2.96
14群(飲料水)	0.07			0.07			0.07	0.00	0.08
総摂取量(pgTEQ/day)	80.99	82.75	85.22	80.34	83.68	95.53	80.79	9.75	100.00
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	1.62	1.65	1.70	1.61	1.67	1.91	1.62	0.19	

\* 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8 機関別ダイオキシン類一日摂取量の経年推移（平成10～25年度）<sup>1)</sup>

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	
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
	B					0.80	0.92	0.85	1.54	0.39	1.28	1.22	0.92	0.52	0.55	0.67	0.73
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
関東地区	A					1.23	1.13	2.15	3.06	1.50	1.34	1.90	1.20	1.14	0.74	0.86	0.77
	B					1.75	1.13	2.46	1.38	1.57	0.68	0.85	1.33	0.94	0.98	0.56	0.70
	C	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
	A					1.66	1.63	1.49	0.76	0.81	0.89	1.24	0.48	1.21	0.70	0.67	0.74
	B					2.30	2.55	1.64	1.11	1.28	1.12	1.70	0.69	1.61	0.95	1.14	0.97
	C	1.84	1.43	1.51	1.70	1.17	0.75	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
中部地区	A					2.02	0.86	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	B					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
	A	-	1.35	1.23	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	B	1.70	1.37	1.24	1.44	1.18	1.15	0.61	0.59	0.58	0.68	0.60	0.70	-	-	-	-
	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
関西地区	A					0.57	0.96	0.58	0.50	0.62	0.45	0.69	0.44	0.55	0.52	0.52	0.34
	B					1.11	1.26	1.73	1.37	1.01	1.48	1.69	0.96	0.78	0.59	1.22	0.48
	C					1.26	1.74	2.04	1.74	1.22	2.51	1.10	1.39	1.46	0.85	1.00	0.69
	A	-	5.93	1.73	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	B	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
	C	-	1.60	1.74	1.72	1.18	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
中国四国地区	A					1.53	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	
	B					1.72	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	
	C					1.72	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	
	A	-	3.06	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	
	B	-	-	0.85	0.76	0.69	0.53	-	-	-	-	-	-	-	-	-	
	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
九州地区	A					1.03	1.35	-	-	-	-	-	-	-	-	-	
	B					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
	A	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
	B					1.81	1.76	1.48	1.47	1.64	1.17	1.11	1.49	0.73	0.94	0.92	0.66
	C					1.32	1.31	1.20	1.34	0.92	0.90	0.64	0.81	0.69	0.67	0.84	0.59
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	

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別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9 幼児におけるダイオキシン類摂取量の推定 (ND=0)**

食品群	ダイオキシン類摂取量, pg TEQ/day		
	PCDDs/PCDFs	Co-PCBs	ダイオキシン類
1群(米、米加工品)	0.00	0.00	0.00 (0.0) <sup>1)</sup>
2群(米以外の穀類、種実類、いも類)	0.00	0.00	0.01 (0.1)
3群(砂糖類、菓子類)	0.01	0.00	0.02 (0.3)
4群(油脂類)	0.00	0.00	0.00 (0.1)
5群(豆・豆加工品)	0.00	0.00	0.00 (0.0)
6群(果実、果汁)	0.00	0.00	0.00 (0.0)
7群(緑黄色野菜)	0.38	0.00	0.38 (6.6)
8群(他の野菜類、キノコ類、海草類)	0.04	0.00	0.04 (0.7)
9群(酒類、嗜好飲料)	0.00	0.00	0.00 (0.0)
10群(魚介類)	1.59	3.63	5.22 (90.9)
11群(肉類・卵類)	0.05	0.01	0.06 (1.1)
12群(乳・乳製品)	0.00	0.00	0.01 (0.2)
13群(調味料)	0.00	0.00	0.00 (0.0)
総摂取量	2.08	3.66	5.74
摂取量(pgTEQ/kg bw/day) <sup>2)</sup>	0.17	0.29	0.46

1) 総ダイオキシン類摂取量に占める比率

2) 幼児の体重は12 kgと仮定した。

**表10 幼児におけるダイオキシン類摂取量の推定 (ND=L0D/2)**

食品群	ダイオキシン類摂取量, pg TEQ/day		
	PCDDs/PCDFs	Co-PCBs	ダイオキシン類
1群(米、米加工品)	2.18	0.74	2.93 (11.5) <sup>1)</sup>
2群(米以外の穀類、種実類、いも類)	1.61	0.55	2.15 (8.5)
3群(砂糖類、菓子類)	0.42	0.14	0.56 (2.2)
4群(油脂類)	0.45	0.15	0.60 (2.4)
5群(豆・豆加工品)	0.37	0.12	0.49 (1.9)
6群(果実、果汁)	1.35	0.46	1.81 (7.1)
7群(緑黄色野菜)	0.91	0.24	1.15 (4.5)
8群(他の野菜類、キノコ類、海草類)	1.17	0.39	1.55 (6.1)
9群(酒類、嗜好飲料)	2.57	0.88	3.44 (13.5)
10群(魚介類)	1.80	3.63	5.44 (21.4)
11群(肉類・卵類)	0.87	0.29	1.16 (4.6)
12群(乳・乳製品)	2.46	0.84	3.30 (13.0)
13群(調味料)	0.64	0.22	0.86 (3.4)
総摂取量	16.78	8.67	25.45
摂取量(pgTEQ/kg bw/day) <sup>2)</sup>	1.33	0.69	2.02

1) 総ダイオキシン類摂取量に占める比率

2) 幼児の体重は12 kgと仮定した。

## 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

#### 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 塩素化ダイオキシン類の個別食品汚染調査

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

魚介類及びそれらの加工品(8種、50試料)のダイオキシン類濃度を調査した。魚(カツオ、サバについて各5試料)のダイオキシン類濃度は、0.021~1.4 pg TEQ/g(中央値0.61 pg TEQ/g)の範囲内であった。なまり節(カツオ、サバについて各5試料)のダイオキシン類濃度は、0.036~2.3 pg TEQ/g(中央値0.52 pg TEQ/g)の範囲内であった。カニ味噌(5試料)のダイオキシン類濃度は、1.3~14 pg TEQ/g(中央値8.9 pg TEQ/g)の範囲内であった。キャビア(5試料)のダイオキシン類濃度は、0.47~1.4 pg TEQ/g(中央値0.83 pg TEQ/g)の範囲内であった。鰹節及び鰹節を含むふりかけ(20試料)のダイオキシン類濃度は、0.037~0.91 pg TEQ/g(中央値0.12 pg TEQ/g)の範囲内であった。

また、平飼いの鶏卵については、ヨーロッパでダイオキシン類の含有が懸念されている。そこで、国産の平飼い表示の鶏卵(33試料)を調査した結果、ダイオキシン類濃度は、0.0056~1.4 pg TEQ/g(中央値0.12 pg TEQ/g)の範囲内であった。

さらに、平成23年度の調査結果により、ダイオキシン類が比較的高濃度に含まれていた鮫肝油加工食品(1製品)について、平成24年度に引き続きフォローアップ調査を実施した。今年度は該当製品について2試料を購入し、ダイオキシン類濃度を調査した。ダイオキシン類濃度は61 pg TEQ/g及び69 pg TEQ/gであり、平成23及び24年度の調査結果とほぼ同じ濃度であった。

#### 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

量の約99%が魚介類、肉・卵類に由来している。そこで、これら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、個人別暴露量を正確に評価するためのデータ蓄積を目的に、今年度は魚介類及びそれらの加工品のダイオキシン類濃度の実態を調査した。また、ヨーロッパなどではケージ飼いよりも平飼いの鶏卵に含まれるダイオキシン類が高い傾向にあることが報告されている<sup>1,2)</sup>。そこで、

#### 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結果では、ダイオキシン類摂取

国内の平飼いの鶏卵を対象にダイオキシン類濃度の実態を調査した。さらに、平成 23 年度の調査結果により、ダイオキシン類が比較的高濃度に含まれていることが判明した鮫肝油加工食品の 1 製品について、平成 24 年度に引き続きフォローアップ調査を実施した。

## B. 研究方法

### 1. 試料

試料は東京都内及び神奈川県のスーパーマーケット、及び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。但し、健康食品 (鮫肝油加工食品) は分析に使用する試料量を減じたため検出下限値が異なる (4,5 塩素化 PCDD/Fs: 0.05、6,7 塩素化 PCDD/Fs: 0.1、8 塩素化 PCDD/Fs: 0.2、ノンオルト PCBs: 0.5、モノオルト PCBs: 5)。

#### 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以下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. 魚介類及びそれらの加工品のダイオキシン類実態調査結果

魚介類及びそれらの加工品 (8 種、50 試料) のダイオキシン類分析結果を表 1 に示した。また、食品毎のダイオキシン類濃度の概要を表 2 に示した。

魚介類中のダイオキシン類濃度はカツオが 0.21 ~ 0.50 pg TEQ/g (中央値 0.29 pg TEQ/g)、サバが 0.71 ~ 1.4 pg TEQ/g (中央値 0.91 pg TEQ/g) であった。魚介類の加工品中のダイオキシン類濃度は、カツオのなまり節が 0.036 ~ 0.34 pg TEQ/g (中央値 0.065 pg TEQ/g)、サバのなまり節が 0.70 ~ 2.3 pg TEQ/g (中央値 1.3 pg TEQ/g)、カニ味噌が

1.3～14 pg TEQ/g(中央値 8.9 pg TEQ/g)、  
キャビアが 0.47～1.4 pg TEQ/g(中央値 0.83  
pg TEQ/g)、鰹節が 0.11～0.91 pg TEQ/g  
(中央値 0.14 pg TEQ/g)、及び鰹節を含むふ  
りかけが 0.037～0.29 pg TEQ/g(中央値  
0.069 pg TEQ/g)であった。平成 10 年より実  
施してきたダイオキシン類の個別食品汚染調  
査においてカニ味噌の調査は今回初めて実  
施したが、比較的高い濃度のダイオキシン類  
を含んでいた。

## 2. 平飼いの鶏卵のダイオキシン類実態調査 結果

平飼い表示の鶏卵 33 試料と、対照として平  
飼い表示の無い鶏卵 9 試料のダイオキシン類  
分析結果を表 3 に示した。また、それらのダイ  
オキシン類濃度の概要を表 4 に示した。平飼  
いの鶏卵では、0.0056～1.4 pg TEQ/g(中央  
値 0.12 pg TEQ/g)、平飼い表示のない卵で  
は 0.0016～0.15 pg TEQ/g(中央値 0.034 pg  
TEQ/g)であった。平飼い表示の無い鶏卵の  
調査数が少ないため比較には注意が必要で  
あるが、平飼いの鶏卵のダイオキシン類濃度  
は表示の無い鶏卵と比較すると、ダイオキシ  
ン類濃度がやや高い傾向があった。ヨーロッ  
パでは平飼いの鶏卵中のダイオキシン類濃  
度が、平飼いでないケージ飼いの鶏卵よりも  
高い傾向であることが報告されている<sup>1,2)</sup>。本  
調査結果はこれらの結果と同様であった。

Schoesters<sup>1)</sup>らは、ヨーロッパにおける平飼  
い鶏卵中のダイオキシン類濃度について、  
PCDD/Fs 濃度の中央値は 0.85 pg TEQ/g  
fat、95 パーセンタイル値は 3.36 pg TEQ/g fat、  
Co-PCBs 濃度の中央値は 0.34 pg TEQ/g fat、  
95 パーセンタイル値は 3.97 pg TEQ/g fat と  
報告している。これらの鶏卵中のダイオキシ  
ン類濃度は一見すると高いように見えるが、脂  
肪重量当りに換算されている。文部科学省  
の食品成分データベース  
(<http://fooddb.mext.go.jp/>)によると鶏卵中の

脂肪量は、全卵 100 g 中で 10.3 g、すなわち  
10.3%である。今回の調査結果を約 9.7 倍すれ  
ば、大凡の脂肪重量当たりのダイオキシン類  
濃度に換算できると考えられる。これに従うと、  
今回調査した平飼い鶏卵の脂肪重量当たり  
のダイオキシン類濃度は、PCDD/Fs の中央  
値は 0.61 pg TEQ/g fat、95 パーセンタイル値  
は 4.3 pg TEQ/g fat、Co-PCBs の中央値は  
0.53 pg TEQ/g fat、95 パーセンタイル値は  
1.8 pg TEQ/g fat 程度であると推察される。今  
回の調査では試料の脂肪重量を実測してい  
ないため比較には注意を要するが、これらの  
ダイオキシン類濃度はヨーロッパで報告され  
ている平飼い鶏卵のダイオキシン類濃度と大  
差が無かった。

## 3. 健康食品のフォローアップ調査

平成 23 年度の個別食品調査の結果、鮫肝  
油加工食品の 1 製品のダイオキシン類濃度  
が高いことが判明した<sup>3)</sup>。そこで、該当する製品  
のダイオキシン類濃度についてフォローアッ  
プ調査を平成 24 年度に引き続き実施した。平  
成 25 年度に同一製品を新たに 2 試料購入し、  
ダイオキシン類分析した結果を、平成 23 及び  
24 年度の調査結果とあわせて表 5 に示した。  
賞味期限の異なる 2 試料を分析したが、ダイ  
オキシン類濃度は 69 及び 61 pg TEQ/g と、  
よく似た値であった。平成 23 から 24 年度の調  
査における同一製品のダイオキシン類濃度は  
67～73 pg TEQ/g であり、当該製品のダイオ  
キシン類濃度に大きな変化は認められず、依  
然として高濃度のダイオキシン類が含まれて  
いた。

該当の鮫肝油加工食品について、製品に  
記載されている最大の食品摂取量に基づい  
て、ダイオキシン類摂取量を推定した。今年  
度に調査した製品(#4 及び#5)のダイオキシ  
ン類摂取量は、120～130 pg TEQ/日と推定さ  
れ、これは TDI の 58～66%に相当した。本年  
度のトータルダイエット調査による国民平均の

ダイオキシン類摂取量は 28.9 pg TEQ/日であることから<sup>4)</sup>、他の一般的な食品からのダイオキシン類摂取量を加味しても TDI を超えることはない。しかし、健康食品は同じ製品を比較的長期に渡り摂取する傾向があり、本製品の摂取には注意を払う必要がある。

#### D. 結論

1. 魚介類及びそれらの加工品(8 種、50 試料)のダイオキシン類濃度を調査した。魚(カツオ、サバについて各 5 試料)のダイオキシン類濃度は、0.021 ~ 1.4 pg TEQ/g(中央値 0.61 pg TEQ/g)の範囲内であった。なまり節(カツオ、サバについて各 5 試料)のダイオキシン類濃度は、0.036 ~ 2.3 pg TEQ/g(中央値 0.52 pg TEQ/g)の範囲内であった。カニ味噌(5 試料)のダイオキシン類濃度は、1.3 ~ 14 pg TEQ/g(中央値 8.9 pg TEQ/g)の範囲内であった。キャビア(5 試料)のダイオキシン類濃度は、0.47 ~ 1.4 pg TEQ/g(中央値 0.83 pg TEQ/g)の範囲内であった。鰹節及び鰹節を含むふりかけ(20 試料)のダイオキシン類濃度は、0.037 ~ 0.91 pg TEQ/g(中央値 0.12 pg TEQ/g)の範囲内であった。
2. 平飼表示されている鶏卵(33 試料)を調査した結果、ダイオキシン類濃度は 0.0056 ~ 1.4 pg TEQ/g(中央値 0.12 pg TEQ/g)であった。
2. フォローアップ調査としてダイオキシン類濃度が高かった鮫肝油加工食品を追加購入し、ダイオキシン類分析を実施した。その結果、平成 23 及び 24 年度の調査結果と同様に、ダイオキシン類を高濃度に含むことが明らかになった。

#### E. 参考文献

- 1) Schoeters G, Hoogenboom LA. Contamination of free-range chicken eggs

with dioxins and dioxin-like polychlorinated biphenyls. *Molecular Nutrition & Food Research*, 50(2006)904-914.

- 2) Vries MD, Kwakkel RP, Kijstra A, Dioxin in organic eggs: a review, *NJAS*, 52 (2006) 207-221.

- 3)平成 23 年度厚生労働科学研究補助金研究報告書「食品を介したダイオキシン類等有害化学物質摂取量の評価とその手法開発に関する研究」(分担報告書 塩素化ダイオキシンの個別食品汚染調査)

- 4)平成 25 年度厚生労働科学研究補助金研究報告書「食品を介したダイオキシン類等有害化学物質摂取量の評価とその手法開発に関する研究」(分担報告書 塩素化ダイオキシン類のトータルダイエット調査)

#### F. 研究業績

1. 論文発表  
なし

2. 学会発表

- 1)高附 巧, 堤 智昭, 前田 朋美, 松田 りえ子, 手島 玲子:冷凍・レトルト食品中の塩素化ダイオキシン類実態調査, 第 50 回全国衛生化学技術協議会年会 (2013.11).

表1 魚介類及びそれらの加工品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 (pg TEQ/g) <sup>1)</sup>		
			PCDD/Fs	Co-PCBs	Total
魚介類	カツオ 1	国産 天然	0.031	0.22	0.25
	カツオ 2	国産 天然	0.043	0.24	0.29
	カツオ 3	国産 天然	0.076	0.42	0.50
	カツオ 4	国産 天然	0.012	0.20	0.21
	カツオ 5	国産 天然	0.069	0.25	0.32
	サバ 1	国産 天然	0.25	0.66	0.91
	サバ 2	国産 天然	0.18	0.59	0.77
	サバ 3	国産 天然	0.22	0.76	0.98
	サバ 4	国産 天然	0.40	1.0	1.4
	サバ 5	国産 天然	0.18	0.53	0.71
魚介類 加工品	カツオ なまり節 1	国産	0.0070	0.056	0.063
	カツオ なまり節 2	国産	0.0060	0.069	0.075
	カツオ なまり節 3	国産	0.0060	0.059	0.065
	カツオ なまり節 4	国産	0.0030	0.033	0.036
	カツオ なまり節 5	国産	0.071	0.27	0.34
	サバ なまり節 1	国産	0.25	0.78	1.0
	サバ なまり節 2	国産	0.55	1.7	2.3
	サバ なまり節 3	国産	0.18	0.52	0.70
	サバ なまり節 4	国産	0.38	0.92	1.3
	サバ なまり節 5	国産	0.66	1.3	2.0
	カニ味噌 1	国産	5.7	7.3	13
	カニ味噌 2	国産	6.4	8.1	14
	カニ味噌 3	輸入	2.8	4.0	6.8
	カニ味噌 4	輸入	3.3	5.6	8.9
	カニ味噌 5	輸入	0.41	0.92	1.3
	キャビア 1	輸入	0.72	0.70	1.4
	キャビア 2	輸入	0.39	0.44	0.83
	キャビア 3	輸入	0.13	0.34	0.47
	キャビア 4	輸入	0.16	0.34	0.49
	キャビア 5	輸入	0.57	0.33	0.90
	鰹節 1	国産	0.033	0.11	0.15
	鰹節 2	国産	0.016	0.12	0.14
	鰹節 3	国産	0.016	0.16	0.18
	鰹節 4	国産	0.015	0.11	0.13
	鰹節 5	国産	0.014	0.11	0.12
	鰹節 6	国産	0.20	0.72	0.91
	鰹節 7	国産	0.028	0.12	0.15
	鰹節 8	国産	0.011	0.10	0.11
	鰹節 9	国産	0.29	0.32	0.62
	鰹節 10	国産	0.031	0.088	0.12
ふりかけ(鰹節を含む) 1	-	0.0072	0.072	0.079	
ふりかけ(鰹節を含む) 2	-	0.000015	0.053	0.053	
ふりかけ(鰹節を含む) 3	-	0.083	0.21	0.29	
ふりかけ(鰹節を含む) 4	-	0.013	0.055	0.068	
ふりかけ(鰹節を含む) 5	-	0.0081	0.029	0.037	
ふりかけ(鰹節を含む) 6	-	0.007	0.062	0.070	
ふりかけ(鰹節を含む) 7	国産	0.012	0.094	0.11	
ふりかけ(鰹節を含む) 8	-	0.0047	0.037	0.041	
ふりかけ(鰹節を含む) 9	-	0.010	0.066	0.076	
ふりかけ(鰹節を含む) 10	-	0.0059	0.031	0.037	

1) WHO 2005 TEFにより計算

**表2 魚介類及びそれらの加工品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) <sup>1)</sup>			
		平均値	中央値	最小値	最大値
カツオ	5	0.31	0.29	0.21	0.50
サバ	5	0.96	0.91	0.71	1.4
カツオ なまり節	5	0.12	0.065	0.036	0.34
サバ なまり節	5	1.5	1.3	0.70	2.3
カニ味噌	5	8.9	8.9	1.3	14
キャビア	5	0.82	0.83	0.47	1.4
鰹節	10	0.26	0.14	0.11	0.91
ふりかけ (鰹節を含む)	10	0.086	0.069	0.037	0.29

1) WHO 2005 TEFにより計算



表3 鶏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 (pg TEQ/g) <sup>1)</sup>			
		PCDD/Fs	Co-PCBs	Total	
鶏卵	鶏卵 1	平飼い	0.0096	0.019	0.029
	鶏卵 2		0.012	0.029	0.040
	鶏卵 3		0.096	0.057	0.15
	鶏卵 4		0.080	0.073	0.15
	鶏卵 5		0.063	0.021	0.084
	鶏卵 6		0.079	0.27	0.35
	鶏卵 7		0.65	0.12	0.77
	鶏卵 8		0.15	0.028	0.18
	鶏卵 9		0.11	0.16	0.27
	鶏卵 10		0.0099	0.045	0.054
	鶏卵 11		0.046	0.046	0.092
	鶏卵 12		0.017	0.12	0.14
	鶏卵 13		0.086	0.15	0.23
	鶏卵 14		0.0051	0.012	0.017
	鶏卵 15		0.0099	0.049	0.059
	鶏卵 16		0.11	0.029	0.14
	鶏卵 17		0.30	0.088	0.39
	鶏卵 18		0.16	0.18	0.35
	鶏卵 19		0.032	0.082	0.11
	鶏卵 20		0.022	0.018	0.041
	鶏卵 21		0.022	0.023	0.046
	鶏卵 22		0.0086	0.025	0.034
	鶏卵 23		0.0093	0.015	0.024
	鶏卵 24		0.016	0.054	0.071
	鶏卵 25		0.0054	0.00020	0.0056
	鶏卵 26		0.011	0.046	0.057
	鶏卵 27		0.0096	0.074	0.083
	鶏卵 28		1.3	0.076	1.4
	鶏卵 29		0.091	0.10	0.19
	鶏卵 30		0.13	0.11	0.24
	鶏卵 31		0.12	0.078	0.20
	鶏卵 32		0.073	0.052	0.12
	鶏卵 33		0.15	0.20	0.35
	鶏卵 34	平飼い 表記なし	0.0016	0.00067	0.0023
	鶏卵 35		0.030	0.026	0.055
	鶏卵 36		0.039	0.11	0.15
	鶏卵 37		0.0064	0.027	0.034
	鶏卵 38		0.0054	0.00034	0.0057
	鶏卵 39		0.0024	0.00016	0.0026
	鶏卵 40		0.021	0.021	0.041
	鶏卵 41		0.020	0.017	0.038
	鶏卵 42		0.0014	0.00016	0.0016

1) WHO 2005 TEFにより計算

**表4 鶏卵中のダイオキシン類濃度の概要**

	鶏卵の種類	試料数	ダイオキシン類濃度 (pg TEQ/g) <sup>1)</sup>						
				平均値	中央値	最小値	5%タイル	95%タイル	最大値
鶏卵	平飼い	33	PCDD/Fs	0.12	0.063	0.0051	0.0073	0.44	1.3
			Co-PCBs	0.074	0.054	0.00020	0.014	0.19	0.27
			Total	0.20	0.12	0.0056	0.021	0.54	1.4
	平飼い 表示無し	9	PCDD/Fs	0.014	0.0064	0.0014	0.0015	0.035	0.039
			Co-PCBs	0.023	0.017	0.00016	0.00016	0.079	0.11
			Total	0.037	0.034	0.0016	0.0019	0.11	0.15

1) WHO 2005 TEFにより計算

**表5 ダイオキシン類濃度が高かった健康食品のフォローアップ調査**

				ダイオキシン類濃度 (pg TEQ/g) <sup>1)</sup>		
				PCDD/Fs	Co-PCBs	Total
健康食品	鮫肝油 加工食品	#1	平成23年度購入 <sup>2)</sup>	14	53	67
		#2	平成24年度購入 <sup>2)</sup>	14	54	67
		#3	平成24年度購入 <sup>2)</sup>	15	58	73
		#4	平成25年度購入	13	56	69
		#5	平成25年度購入	14	47	61

1) WHO 2005 TEFにより計算

2) 平成23年度及び24年度 厚生労働科学研究補助金研究報告書「食品を介したダイオキシン類等有害化学物質摂取量の評価とその手法開発に関する研究」より引用した。

## 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**

## 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

#### 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

メチル水銀の暫定的規制値への適合判定やメチル水銀および形態別ヒ素の摂取量推定に不可欠な下記 3 つの研究を実施した。

#### 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

これまでに開発した分析法の操作手順を見直し、より頑健で操作性に優れた分析法に改良した。改良した分析法の性能を 4 種の認証標準試料、及びメチル水銀標準溶液を用いて調製した添加試料を計画的に分析し、真度と精度を推定した。推定値は、食安発第 0926001 号「食品中の金属に関する試験法の妥当性評価ガイドライン」にしたがって評価した。その結果、推定した真度と精度のすべてがガイドラインの目標値を満たした。このことにより暫定的規制値への適合判定に用いる分析法としての妥当性を確認した。

#### 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

摂取量推定に使用可能なメチル水銀分析法を開発するため、測定機器としてより低濃度まで分析可能な、GC-MS/MS を用いる分析法を検討した。検討した分析法を用いて、性能評価用モデル試料の魚介類(10 群)と肉類(11 群)について、メチル水銀標準溶液を用いて調製した添加試料を計画的に分析し、真度と精度を推定した。推定した真度は、10 群試料で 84%、11 群試料で 97%であった。併行精度(RSD%)は 10 群試料で 4.9%、11 群試料で 3.3%であった。

#### 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

2 種の無機ヒ素(亜ヒ酸、ヒ酸)と 6 種の有機ヒ素(モノメチルアルソン酸、ジメチルアルシン酸、トリメチルアルシンオキサイド、アルセノベタイン、アルセノコリン、テトラメチルアルソニウム)の選択的な定量分析法の開発を検討した。高速液体クロマトグラフィー - 誘導結合プラズマ質量分析計(HPLC-ICP-MS)による形態別分析法に着目し、無機ヒ素と有機ヒ素を合わせた計 8 つのヒ素化合物を分離し測定するための測定法を検討した。特に毒性が高いとされる無機ヒ素を高分解能で分析可能な ODS カラムの選定、および逆相イオンペアクロマトグラフィーによる分離のための移動相条件の最適化を行った。

研究協力者 菊地博之、林 智子  
松田りえ子  
赤木浩一

国立医薬品食品衛生研究所食品部  
国立医薬品食品衛生研究所食品衛生管理部  
福岡市保健環境研究所

## A. 研究目的

水銀やヒ素は、ある官能基により修飾されることで、複数の化学形態を生じ、その化学形態により生体内動態や毒性が異なることが知られている。なかでも、有機水銀化合物の一つであるメチル水銀は、分解されにくい特性を持ち、環境中に蓄積しやすく脂溶性も高いため生物凝縮もされやすい。そのため、生物連鎖の上位に位置する鯨・イルカ・マグロなどの水産物の摂食により、健康危害リスクの高い物質とされる。

同様にヒ素も環境中に多く存在しており、生物濃縮された食品の摂食による健康危害リスクに関心が寄せられている。これまでの報告から、食生活で摂取される大部分のヒ素は海水産物からである。ヒ素化合物には無機ヒ素化合物と有機ヒ素化合物があり、海水産物など食品に含まれるヒ素の化学形態の多くは、毒性が低いとされる有機ヒ素化合物であるとされている。一方で、無機ヒ素化合物である亜ヒ酸やヒ酸は生体内でタンパク質などの生体物質と結合することで毒性が表れるとされ、食品に少ないながらも含有されている。

以上のような背景から、健康危害リスクの影響評価を目的とし、毒性の異なる複数の化学形態が存在する場合には、当該する化学物質を形態別に分析、選択的

に定量する必要がある。こうすることで食品を介したこれら有害物質の摂取量を精密に推定可能であると考えられる。

そこで本研究では、メチル水銀および化学形態別ヒ素について、その分析の目的ごとに感度や選択性などに優れた分析法の構築を目的に下記の3つの研究を実施した。

### 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

現在、環乳第 99 号により、一部の魚介類を除きメチル水銀には、暫定的規制値として 0.3 ppm が置かれている。この暫定規制値への適合を判定する分析法として、メチル水銀をフェニル誘導体化後、GC-MS で測定する分析法(以下、GC-MS 法)をこれまで検討してきた。

本研究では、より優れた分析法に改良することを目的に、分析法の操作手順を見直し、改良した分析法の性能を評価した。

### 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

本研究では、摂取量推定に使用可能なメチル水銀分析法について検討した。精密な摂取量の推定には試料に含まれるメチル水銀を可能な限り低濃度まで分析する必要がある。そのため、分

析機器として GC-MS よりも、分解能と選択性に優れ、より高感度に測定が可能である GC-MS/MS を用いた分析法に GC-MS 法を改良する検討した。

### **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**

現在、コーデックス委員会食品汚染物質部会(CCCF)は、米の国際食品規格の設定に関連し、無機ヒ素を項目とすることを含めて検討が進められている。これは、ヒ素がその化学形態によって毒性が大きく異なる事実に基づいている。日本では食品からのヒ素の摂取量において、米の寄与が大きいことが明らかになっているが、規制値は設定されていない。ヒ素は以前から分析されてきているが、化学形態別ではなく総ヒ素として分析されてきた。しかし、人への健康影響を検討する上では、総ヒ素の摂取量だけでなく、化学形態別ヒ素の摂取量を知ることが重要である。

本研究では、有害物質摂取量推定の目的に合致した形態別ヒ素摂取量推定を目的とし、そのための形態別ヒ素定量分析法を検討した。論文等でこれまでに報告があり、測定の際に形態別ヒ素の分離に汎用的な HPLC とその検出に ICP-MS を利用した分析法に着目した。本年度は、より選択的に高感度測定を可能とすることを目的に、HPLC の測定条件といった分析法の改良に必要な基礎検討を実施した。

## **B. 研究方法**

### **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**

#### **試料**

##### 認証標準試料

認証標準試料(CRM 7402-a:タラ魚肉粉末、BCR-463:マグロ魚肉粉末、ERM-CE464:マグロ魚肉粉末、CRM 7403-a:メカジキ魚肉粉末)は、西進商事(株)を通じ入手した。また、分析時には、1.0 g を量りとり、水 9.0 g を加え混合したものを試料とした。

##### 魚試料

東京都内のスーパーマーケットで購入したタラ、キハダマグロ、メバチマグロ、サバ、カツオの切り身を用いた。購入した切り身を GM200(レッチェ社製)により十分に混合することで試料を調製した。

#### **試薬等**

塩化メチル水銀は、ジーエルサイエンス社製のものを用いた。臭化カリウム、無水硫酸銅(II)、硫酸、システイン塩酸塩一水和物、酢酸ナトリウム三水和物、りん酸二水素ナトリウム二水和物、りん酸水素二ナトリウム十二水和物、テトラフェニルホウ酸ナトリウム、ポリエチレングリコール 200(PEG 200)は、和光純薬工業社製のものを使用した。その他の試薬類は残留農薬分析用

または試薬特級に準じたものを使用した。

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

メチル水銀標準原液(1000  $\mu$ g/mL)：塩化メチル水銀標準品 58.2 mg を正確に量りとり、トルエンで 50 mL に定容した。

添加用メチル水銀標準溶液(3  $\mu$ g/mL)：塩化メチル水銀 58.2 mg を正確に量りとり、水に溶解し正確に 500 mL とした。本溶液 3 mL を正確に取り、水で 100 mL に定容した。

1 mol/L 臭化カリウム溶液：臭化カリウム 119.0 g を量りとり水で 1 L に定容した。

硫酸銅(II)飽和 4 mol/L 硫酸：水 600 mL に濃硫酸 200 mL を加え、放冷後、水で 900 mL に定容した後、無水硫酸銅(II)を飽和するまで溶解した。

1% L-システイン溶液：L-システイン塩酸塩一水和物 10.0 g、酢酸ナトリウム三水和物 8.0 g、無水硫酸ナトリウム 125.0 g を量りとり、水で 1 L に定容した。

0.2 mol/L リン酸緩衝液(pH 7.0)：第一液として、リン酸二水素ナトリウム二水和物 31.2 g を量りとり、水で 1 L とした。第二液として、リン酸水素二ナトリウム十二水和物 71.6 g を量りとり、水で 1 L とした。第一液 380 mL と第二液 610 mL を混合し、第一液を用いて

pH を 7.0 に調整した。

1%テトラフェニルホウ酸ナトリウム溶液：テトラフェニルホウ酸ナトリウム 0.2 g を量りとり、0.2 mol/L リン酸緩衝液(pH 7.0)で 20 mL に定容した。本溶液は、用事調製した。

1.5 mg/mL ポリエチレングリコール 200(PEG200)溶液：PEG200 150 mg を量りとり、トルエンで 100 mL とした。

## **分析機器**

遠心分離機：久保田商事社製高速冷却遠心機 model 6200 を用いた。

GC-MS：Agilent 社製 6890N GC 及び 5975 MSD を用いた。

## **GC-MS 測定条件**

カラム：InertCap 5MS/NP (内径 0.25 mm、長さ 30 m、膜厚 0.25  $\mu$ m)

オープン温度：70 (1 min) 20 /min 280 (5 min)

注入口温度：250

トランスファライン温度：280

イオン源温度：230

注入量：1  $\mu$ L

キャリアガス流量：1.0 mL/min (He)

イオン化法：EI

分析モード：SIM

モニターイオン： $m/z$  292\*、294、277

\*定量イオン

## **メチル水銀分析法(GC-MS 法)**

暫定的規制値への適合判定を目的と

し、改良したメチル水銀分析法を以下に示した。また、操作のフローチャートを図 1 に示した。

### **試料の前処理**

試料 10.0 g にアセトン 100 mL を加え 30 秒間振とうした後、1,880 g で 5 分間遠心分離し、デカンテーションによりアセトンを除去した。残渣にトルエン 100 mL を加え、同様に操作した。

### **抽出**

前処理した試料に、1 mol/L 臭化カリウム溶液 40 mL、硫酸銅(II)飽和 4 mol/L 硫酸 40 mL 及びトルエン 80 mL を加えて、振とう機で 30 分間振とうした。1,880 g で 20 分間遠心分離した後、上層のトルエン層を 200 mL の分液漏斗に移した。再度、水層にトルエン 50 mL を加え、振とう機で 10 分間振とうした。同様に遠心分離後、トルエン層を上記の分液漏斗に合わせた。

### **転溶**

トルエン層に 1% L-システイン溶液 50 mL を加え 5 分間振とうした。静置後、水層を 200 mL の分液漏斗に移した。これに 6 mol/L 塩酸 30 mL、トルエン 30 mL を加え 5 分間振とうし、トルエン層を 100 mL メスフラスコに移した。上記と同様の操作をあと 2 回繰り返して、トルエンで 100 mL に定容した。

### **メチル水銀のフェニル誘導体化**

試験管に定容後のトルエン溶液 4 mL を正確に量りとり、0.2 mol/L リン酸緩衝液(pH 7.0) 5 mL、1% テトラフェニルホウ酸ナトリウム溶液 1 mL を加えた。室温で 10 分間振とうした。

### **測定溶液の調製**

誘導体化反応後の溶液を 840 g で 10 分遠心分離し、トルエン層をガラスチューブに移し、無水硫酸ナトリウムで脱水した。脱水したトルエン溶液 1 mL を正確にバイアルに量りとり、1.5 mg/mL PEG200 0.5 mL を正確に加え測定溶液とした。

### **検量線の作成**

メチル水銀標準原液を適宜量りとり、トルエンで希釈することにより、検量線作成用溶液を調製した。その濃度は、0、5、10、25、50、75 及び 100 ng/mL とした。試料と同様に、これらの検量線作成用溶液もフェニル誘導体化以降の操作を行い、検量線用測定溶液を調製した。検量線用測定溶液 1  $\mu$ L を GC-MS に注入し、メチル水銀の誘導体であるメチルフェニル水銀測定値(ピーク面積)のメチル水銀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。

### **測定及びメチル水銀濃度の算出**

測定溶液を GC-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、下式に従い、測定溶液中のメチル水銀濃度を逆推定した。

測定溶液中のメチル水銀濃度(mg/kg)

$$= (\text{Signal}_{\text{analyte}} - \text{intercept}) / \text{slope}$$

Signal<sub>analyte</sub>:メチルフェニル水銀の測定値

Intercept:検量線の切片

Slope:検量線の傾き

その後、測定溶液中濃度に分析操作による希釈の倍率である 0.1 を乗じ、試料中メチル水銀濃度を算出し、定量値とした。

### **分析法の妥当性確認**

分析法の性能を評価するために、4 種の認証標準試料及び 2 種の添加試料を計画的に分析して得られた定量値の解析結果から、真度と精度を推定した。具体的な分析計画を以下に示す。

認証標準試料:1 日に 4 種の試料をそれぞれ 2 併行で分析し、この分析を 5 日間実施した。

添加試料:1 日に タラ、キハダマグロのブランク試料と添加試料をそれぞれ 2 併行で分析し、この分析を 5 日間実施した。

ブランク試料は、予め各試料を GC-MS 法により分析し、メチル水銀が各試料共に 0.1 mg/kg 未満であること

を確認した。

添加試料は、ブランク試料 10.0 g に、添加用メチル水銀水溶液(3 µg/mL)を正確に 1 mL 加え、よく混合し 30 分間静置したものを試料とした。

各添加試料から得られた分析値から、対応する全ブランク試料から得られた分析値の平均値を差し引いた後、真度と精度を推定した。本性能評価は、国立医薬品食品衛生研究所と福岡市保健環境研究所で実施した。国立医薬品食品衛生研究では分析者 2 名、福岡市保健環境研究所では分析者 1 名でそれぞれ独立して分析を実施した。推定値は、食安発第 0926001 号「食品中の金属に関する試験法の妥当性評価ガイドライン」にしたがって評価した。

### **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**

#### **試料**

摂取量推定を目的とした分析に使用する分析法の性能を評価するためのモデル試料 Sample for Evaluation of Methods Performance(以下、SEMP)を用いた。

また、水銀はこれまでの本研究課題の成果として、ほぼ魚介類(10 群)と肉類(11 群)からしか検出されず、かつ 10 群摂取量の寄与が支配的であることが明らかとされている。そこで、メチル水銀の摂取量に寄与する割合が比較的

大きいと考えられる、10群と11群の試料を用いた。

### **試薬等**

研究1と同じ試薬を用いた。

### **分析機器**

GC-MS/MS：サーモフィッシャーサイエンティフィック社製 TRACEGC ULTRA 及び TSQ Quantum を用いた。

### **GC-MS/MS 測定条件**

カラム：InertCap 5MS/NP (内径 0.25 mm、長さ 30 m、膜厚 0.25 μm)

オープン温度：70 (1 min) 10 /min 160 (0 min) 20 /min 280 (5 min)

注入口温度：250

トランスファライン温度：280

イオン源温度：280

注入量：1 μL

キャリアガス流量：1.0 mL/min (He)

イオン化法：EI

分析モード：SRM

モニターイオン： $m/z$  294 279(定量イオン)、 $m/z$  292 277(確認イオン)

### **メチル水銀分析法(GC-MS/MS 法)**

開発した摂取量推定を目的とするメチル水銀分析法を以下に示す。

### **試料の前処理～測定溶液の調製、測定及びメチル水銀濃度の算出**

前述した GC-MS 法にしたがった。

### **検量線の作成**

検量線用測定溶液の調製方法は前述した GC-MS 法にしたがったが、その濃度は、0、0.5、1、2.5、及び 5 ng/mL とした。

### **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**

### **試薬等**

硝酸 1.42(超微量分析用)、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)は和光純薬社製のものを用いた。

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

標準品：下記の8種類を使用した。

As( )：ヒ素標準液(As 100) (和光純薬社製)

As(V)：ヒ酸[As(V)] 水溶液 (NMIJ CRM 7912-a)

アルセノベタイン水溶液(NMIJ CRM 7901-a)

ジメチルアルシン酸水溶液(NMIJ CRM 7913-a)

メチルアルソン酸、アルセノコリンブ

ロマイド、トリメチルアルシンオキシド、ヨウ化テトラメチルアルソニウム (トリケミカル研究所製)

標準原液：メチルアルソン酸、アルセノコリン、トリメチルアルシンオキシド、テトラメチルアルソン酸については各 1000 mg/L になるように、それぞれ下記のとおり標準原液を調製した。

・メチルアルソン酸標準品 50 mg を正確に量りとり、水で 50 mL に定容した。

・アルセノコリンプロマイド標準品 74.2 mg を正確に量りとり、水で 50 mL に定容した。

・トリメチルアルシンオキシド標準品 50.0 mg を正確に量りとり、水で 50 mL に定容した。

・ヨウ化テトラメチルアルソニウム標準品 97.0 mg を正確に量りとり、水で 50 mL に定容した。

上記以外のヒ素化合物については、購入した水溶液を標準原液として用いた。

0.15 mol/L 硝酸溶液：硝酸 4.8 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 のディスミックフィルター(アドバンテック東洋社製)でろ過した。

2.5% アンモニア水：25%アンモニア水 5 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、メタノール 0.5 mL

を量りとり、水を加え、25%アンモニア水で pH3.0 に調整した後、1 L に定容した。なお、この溶液は用事調製した。

### **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 測定条件**

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、4 mM マロン酸、1 mM TMAH 溶液(pH3.0)

流速：0.75 mL/min

カラム温度：25

オートサンプラー温度：4

注入量：20 μL

測定時間：15 min

### **ICP-MS 測定条件**

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

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**

検討に用いた測定溶液の調製方法を以下に示した。なお、測定溶液は各ヒ素化合物の濃度が 10 ng/mL となる混合溶液とした。

各標準原液を適量量りとり、0.15 mol/L 硝酸溶液を 10 mL 加えた。これにメチルオレンジ溶液をパスツールピペットで一滴(約 10  $\mu$ L)加え、2.5%アンモニア水で約 pH3 に調整し水で 50 mL に定容した。

#### C.D. 研究結果及び考察

##### **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**

#### C.D. 1-1 メチル水銀分析法(GC-MS法)の改良

##### C.D. 1-1-1 測定溶液の調製に用いるポリエチレングリコール(PEG)と注入量の検討

改良前の GC-MS 法では、測定時に機器への吸着を疑い、それによるメチルフェニル水銀の損失を抑えることを目的に、測定溶液にポリエチレングリコール 300(PEG300)を混合して測定溶液を調製することを手順としていた。

本検討では、メチルフェニル水銀の損失を抑えることにより適した PEG を選定するための検討をした。この時、メチルフェニル水銀の分子量を考慮し、PEG200 と PEG300 について検討した。

メチルフェニル水銀標準溶液に PEG200 と PEG300 が 250、500、750 ng 共注入されるように測定溶液をそれぞれ調製し、1  $\mu$ L を GC-MS 測定した。

PEG200 もしくは PEG300 の共注入量とメチルフェニル水銀のピーク面積、SN 比の関係を図 2-1 および図 2-2 に示した。図 2-1 より、ピーク面積は PEG 注入量とともに僅かに増加したが、PEG200 と PEG 300 では効果に差がないと判断した。

以上の結果より、PEG200 は PEG 300 よりも沸点が低く、GC カラムの昇温条件での最終到達温度を下げる事が可能であるため、PEG200 を共注入する PEG に選択した。かつ、PEG200 は分析対象外であるため、必要以上に注入することによる測定機器への汚染なども考慮して、測定溶液への PEG200 の共注入量は必要最小量の 500 ng とした。

一方、改良前の GC-MS 法では測定溶液の GC-MS への注入量を 2.5  $\mu$ L としていた。しかし、図 2-2 より注入量 1  $\mu$ L の場合でも、2.5 ng/mL メチルフェニル水銀溶液における SN 比が 40 以上のクロマトグラムが得られた。この濃度は暫定規制値に相当する濃度(メチルフェニル水銀として 30 ng/mL)の 1/10 以下の濃度であり、この時の SN 比が 10 以上であることなどから、注入量を減少させても問題ないと判断した。したがって、GC-MS への注入量を 1  $\mu$ L に変更することとした。

##### C.D. 1-1-2 試料マトリクスが測定溶液におよぼす影響の検討

C.D.1-1-1 の検討では、標準溶液を用いた検討であったが、本検討では試料由来のマトリクス存在下における PEG200 によるメチルフェニル水銀の損失抑制効果を検討した。検討は、試料由来のマトリクスの有無と PEG200 共注入の有無でメ

チルフェニル水銀のピーク面積を比較した。

魚試料(タラ、メバチマグロ、カツオ、サバ)から調製したメチルフェニル水銀溶液に PEG200 の共注入した測定溶液と添加しない測定溶液の 2 種類を調製し、GC-MS で測定した。また、メチル水銀標準溶液も同様に操作した。なお、これら測定溶液の調製は 3 併行で行った。結果を表 1 に示した。

表 1 より、試料由来のマトリクスの有無に関わらず全ての測定溶液で PEG200 を共注入した方が共注入しない場合に比べ、ピーク面積が平均で 1.51~1.62 倍に高くなった。また、その比は測定の際のばらつきによる変動を考慮しても、同程度であると判断した。

以上の結果より、試料由来のマトリクスの有無に因らず、PEG200 によるメチルフェニル水銀の損失抑制効果は得られると判断した。逆に、試料由来マトリクスによるメチルフェニル水銀の損失抑制効果は、PEG200 による抑制効果よりも小さいことが示唆された。

#### C.D. 1-1-3 PSA カラムによる精製操作の検討

改良前の GC-MS 法では、メチル水銀のフェニル誘導体化反応後の溶液を PSA カラムにより精製し、測定溶液を調製することを手順としていた。これは、フェニル誘導体化反応後の溶液に含まれる試料由来のマトリクスや誘導体化試薬などの除去を目的とするものであった。本検討では、精製の効果を検証し、カラム精製の有効性について検討した。検討は、

カラム精製の有無で SIM のクロマトグラムおよびメチルフェニル水銀のピーク面積を比較した。

魚試料(タラ、メバチマグロ、カツオ、サバ)から調製したメチルフェニル水銀溶液に、PSA カラム精製して調製した測定溶液と PSA カラム精製せず調製した測定溶液の 2 種類を調製し、GC-MS 測定した。また、メチル水銀標準溶液も同様に操作した。なお、これら測定溶液の調製は 3 併行で行った。

メチル水銀標準溶液および魚試料のクロマトグラムを図 3 に示した。また、各メチルフェニル水銀のピーク面積の結果を表 2 に示した。

図 3 より、カラム精製の有無によるクロマトグラムの変化は認められなかった。また、表 2 より、標準溶液を試料とした場合には、カラム精製有りの場合のピーク面積の平均値とカラム精製無しの場合のピーク面積の平均値の比は 1.01 であった。一方、魚試料でのカラム精製有りの場合のピーク面積の平均値とカラム精製無しの場合のピーク面積の平均値の比は、タラで 1.00、メバチマグロで 1.01、サバで 1.00、カツオで 1.00 となり、いずれも 1 に近い値が得られた。ピーク面積の変動を考慮しても、カラム精製の有無によるピーク面積の大きさは同程度と判断した。

以上の結果から、PSA カラム精製の有無によるクロマトグラムやピーク面積への影響はほとんどなく、精製の効果も少ないと評価し、PSA カラム精製の操作は分析手順から除くこととした。

## C.D. 1-2 メチル水銀法(GC-MS法)の妥当性確認

C.D. 1-1-1 ~ C.D. 1-1-3 で改良した GC-MS 法の妥当性を確認した。

各試料から得られた定量値の解析結果に基づき推定された真度、併行精度並びに室内精度を表 3-1 及び表 3-2 に示した。国立医薬品食品衛生研究所で実施した 2 名の分析者から得られたデータを国立医薬品食品衛生研究所 1 および国立医薬品食品衛生研究所 2 と表記した。

国立医薬品食品衛生研究所 1 で実施した認証標準試料を対象とした場合の推定された真度は 87 ~ 98%、併行精度(RSD%)は 0.8 ~ 6.0%、室内精度(RSD%)は 3.9 ~ 6.5%であった。また、添加試料を対象とした場合では、推定された真度は、タラで 89%、キハダマグロで 88%であった。併行精度(RSD%)は、タラで 1.2%、キハダマグロで 6.7%、室内精度(RSD%)は、タラで 5.0%、キハダマグロで 8.1%であった。

国立医薬品食品衛生研究所 2 で実施した認証標準試料を対象とした場合の推定された真度は 94 ~ 97%、併行精度(RSD%)は 0.9 ~ 3.0%、室内精度(RSD%)は 1.6 ~ 4.3%であった。また、添加試料を対象とした場合では、推定された真度は、タラで 95%、キハダマグロで 98%であった。併行精度(RSD%)は、タラで 4.4%、キハダマグロで 6.3%、室内精度(RSD%)は、タラで 4.4%、キハダマグロで 7.6%であった。

福岡市保健環境研究所で実施した認証標準試料を対象とした場合の推定された真度は 85 ~ 92%、併行精度(RSD%)は 3.6 ~ 6.7%、室内精度(RSD%)は 6.1 ~ 7.3%であ

った。

これらの結果は、分析者や試料によらず、測定結果から推定された真度及び精度が、ガイドラインの目標値を満たしていた。

以上より、暫定規制値への適合判定に用いる分析法の性能としての妥当性を確認した。

## 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

### C.D. 2-1 GC-MS/MS 測定条件の検討

#### C.D. 2-1-1 プリカーサーイオンの検討

メチルフェニル水銀のフラグメントパターンを確認するため、 $m/z$  50 ~ 500 の範囲でスキャン測定した。図 4 に、そのマススペクトルを示した。分子イオンピーク  $m/z$  294、292 は、それぞれ、 $\text{Me}^{202}\text{HgPh}^+$ 、 $\text{Me}^{200}\text{HgPh}^+$ に由来するピークと考えられた。また、フラグメントイオン  $m/z$  279、277 は、それぞれ、分子イオンからメチル基が脱離した  $^{202}\text{HgPh}^+$ 、 $^{200}\text{HgPh}^+$ に由来するピークと推定した。イオン強度が最も高いピーク(基準ピーク)の  $m/z$  77 は、 $\text{C}_6\text{H}_5^+$ に由来するイオンと考えられた。

以上の結果より、質量数が 200 と 202 である水銀を含む分子イオンピークを一定の強度で確認した、 $m/z$  294 と 292 をプリカーサーイオンに設定した。

#### C.D. 2-1-2 プロダクトイオンの検討

2 種のプリカーサーイオンの、それぞれに最適なプロダクトイオンを選択するために、コリジョンエネルギーを変化させてプロダクトイオンの検討を行った。コリジョンエネルギーの条件を 5、10、15、20 V と変化させ、プロダクトイオン

の強度を比較した。結果を表 4 に示した。いずれのコリジョンエネルギーの条件でも、 $m/z$  294 をプリカーサーイオンとした場合は、プロダクトイオン  $m/z$  279 が、 $m/z$  292 をプリカーサーイオンとした場合は、 $m/z$  277 のみが主なプロダクトイオンとして検出された。また、コリジョンエネルギーが 5V のときにプロダクトイオン強度が最大となった。

以上の結果より、最適なコリジョンエネルギーは 5V と判断し、プリカーサーイオン  $m/z$  294 と 292 のプロダクトイオンとしてそれぞれ  $m/z$  279 と 277 を選択した。また、 $m/z$  279 の方が  $m/z$  277 と比較して、プロダクトイオン強度が高かったため、 $m/z$  279 を定量イオン、 $m/z$  277 を確認イオンと設定した。

#### C.D. 2-2 検量線用測定溶液濃度の検討

GC-MS/MS の使用により高感度測定が可能であるため、GC-MS 法の検量線の最低濃度よりもさらに低い濃度で検討した。0、0.1、0.5、1、2.5 及び 5 ng/mL の濃度のメチル水銀標準溶液から調製したメチルフェニル水銀溶液を GC-MS/MS で測定した。0~5 ng/mL まで順に測定する一連の測定を 1 回として、この測定を 5 回繰り返し、1 回の測定ごとに、そのピーク面積から検量線をそれぞれ作成した。

表 5 に測定により得られた、SN 比、戻しバイアスを示した。戻しバイアスとは、検量線の作成に使用した信号を作成した検量線により検量して得られる値を戻し値とした時、下記の式で求められる値である。  
戻し値バイアス(%)=(戻し値-規定濃度)/

規定濃度 × 100

以上の結果より、SN 比 10 以上、戻しバイアス 15%程度を指標に、SN 比の変動も考慮して検量線用測定溶液の濃度を 0、0.5、1、2.5、5 ng/mL と決定した。

#### C.D. 2-3 GC-MS/MS 法の真度と併行精度の推定

SEMP の 10 群と 11 群試料を 4 点併行で分析した結果から分析法の真度と併行精度を推定した。予め各試料を GC-MS/MS 法により分析し、メチル水銀が 11 群試料では含まれていなかったものの、10 群試料では 0.03 mg/kg 未満であることを確認した。

真度と精度を確認するための添加試料としては、上記の確認を行った後、ブランク試料 50.0 g に、添加用メチル水銀水溶液(10 群では 2.5 µg/mL、11 群では 0.25 µg/mL)を正確に 1 mL 加え、よく混合し 30 分間静置して調製した。これを 10.0 g 量りとり、分析に用いた。

添加試料の分析結果から推定した真度と併行精度を表 6 に示した。4 併行分析結果の平均値と添加量との比率として推定した真度は、10 群試料で 84%、11 群試料で 97%であった。併行精度(RSD%)は 10 群試料で 4.9%、11 群試料で 3.3%であった。

#### 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

今年度の検討としては、化学形態別ヒ素の測定法の検討を行った。既報<sup>1)2)</sup>を参考に化学形態別ヒ素の測定法として、HPLC を用いて ODS カラムにより分離し、

ICP-MS で検出する HPLC-ICP-MS 法を選択した。この方法における HPLC の分離モードは、ブタンスルホン酸を主なイオンペア試薬とした、逆相イオンペアクロマトグラフィーである。検討では、既報と同じ HPLC の測定条件を初期条件に設定し、よりよいピーク分離のために測定条件の改良を試みた。HPLC による測定の初期条件を表 7 に示した。

1) Nishimura, T., Nagaoka, H, M., Sakakibara, N., Abe, T., Maekawa, Y., Maitani, T. Determination Method for total arsenic and partial-digestion method with nitric acid for inorganic arsenic speciation in several varieties of rice. J. Food Hyg. Soc. Jpn., 51, 178-181 (2010)

2) Nagaoka, M. H., Nishimura, T., Matsuda, R., Maitani, T. Evaluation of a Nitric Acid-based Partial-digestion Method for Selective Determination of Inorganic Arsenic in Rice. J. Food Hyg. Soc. Jpn., 49, 95-99 (2008)

### C.D. 3-1 分析対象化合物の選定

ヒ素はその形態別に、無機ヒ素と有機ヒ素に分類される。無機ヒ素には 亜ヒ酸：As(III) や 五ヒ酸：As(V) があり、有機ヒ素には主に、(モノ)メチルアルソン酸：MMA、ジメチルアルシン酸(別名：カコジル酸)：DMA、トリメチルアルシンオキサイド：TMAO、アルセノベタイン：AsB、アルセノコリン：AsC、テトラメチルアルソニウム：TeMA、アルセノシュガーがある。このうちアルセノシュガーについては、標準品が入手不可であるため、検討を行う化学形態

別ヒ素の項目としては、アルセノシュガーを除く標準品が入手可能な 8 化合物とした。

### C.D. 3-2 HPLC カラムの検討

最初に HPLC による測定法の初期条件で 100% の混合標準溶液の測定をした。結果を図 5-1 に示した。その結果、As(III) と MMA のピーク分離がよくないことが判明した。無機ヒ素の方が有機ヒ素よりも毒性が高いことを考慮すると、無機ヒ素と有機ヒ素とを分別して定量する能力が重要であり、これらのピークが十分に分離していることが必要である。そこで、As(III) と MMA の分離がよい HPLC カラムの検討を行った。国内メーカーの HPLC カラムでエンドキャップがよいとされる製品を中心に選択した。また、理論段数が高まることによるピーク分離度の向上および分析時間の短縮を目的に、充填剤の粒子径が 3 μm の製品で検討した。検討した HPLC カラムを表 8 に、結果を図 5-2 に示した。

その結果、同じ ODS カラムでも製品の違いにより、無機ヒ素と有機ヒ素の分離が異なることが判明した。しかし、As(III) と MMA のピークを完全に分離できる HPLC カラムはなかったため、検討した中では最も As(III) と MMA の分離がよかった L-column2 を選択することにした。

### C.D. 3-3 HPLC 移動相条件の検討

他のカラムに比べると、L-column2 での TMAO と TeMA の分離が良いとは言えない。分析法開発の本来の目的からすると、これら 2 つの有機ヒ素の分離は問題



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( ) 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( ) 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
有	タラ	1.54
	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	$4.9 \times 10^4$
	10	$3.3 \times 10^4$
	15	$8.0 \times 10^3$
	20	$3.8 \times 10^3$
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	$1.0 \times 10^5$
	10	$5.4 \times 10^4$
	15	$7.7 \times 10^3$
	20	$4.9 \times 10^3$

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-ブタンス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
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

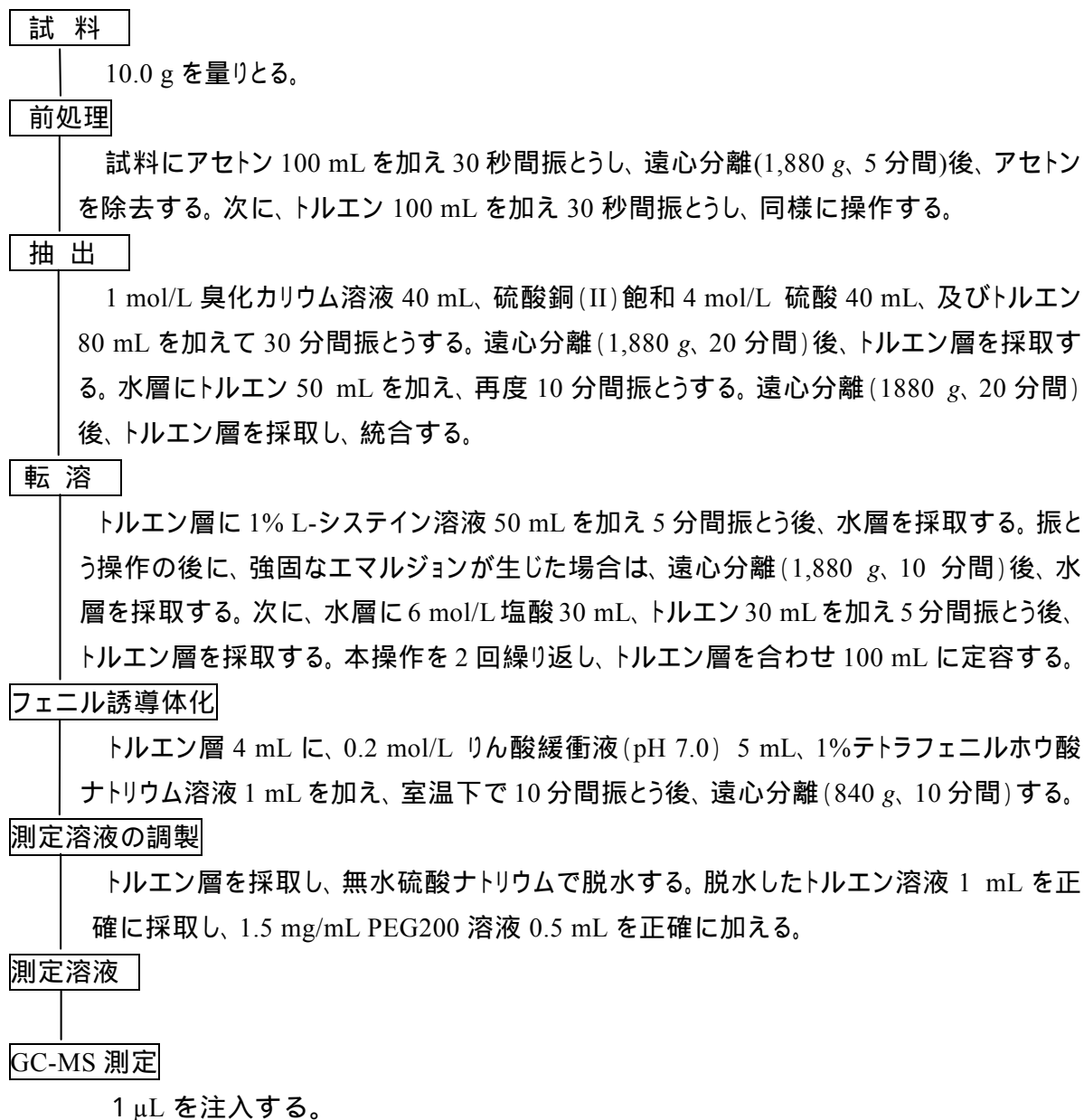


図 1 改良 GC-MS 法のフローチャート

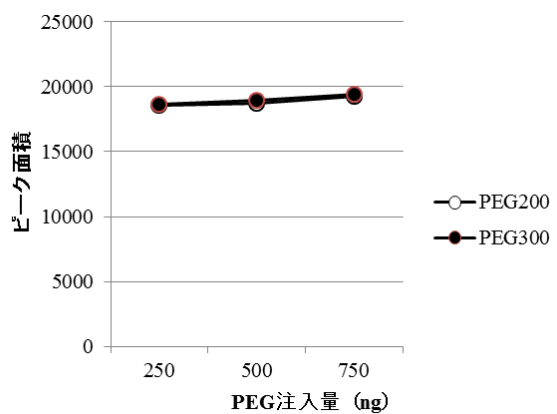
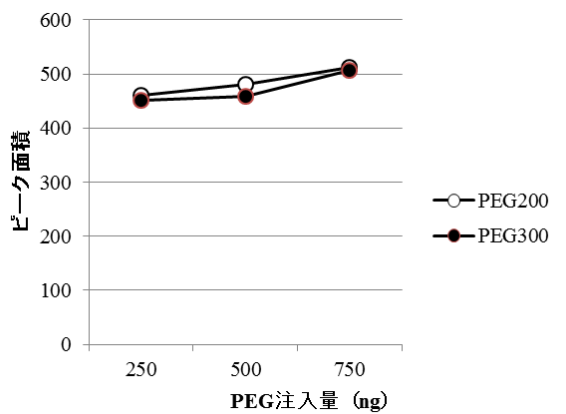


図 2-1 PEG の共注入量によるメチルフェニル水銀のピーク面積への影響

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

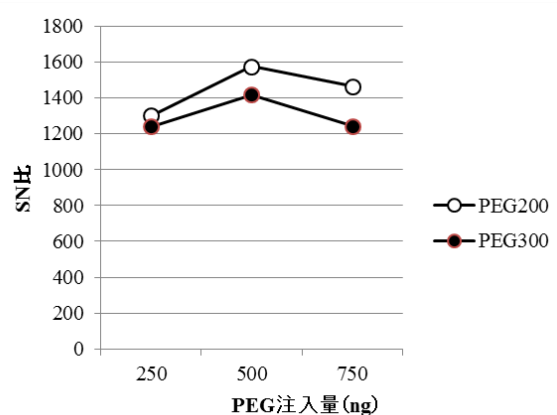
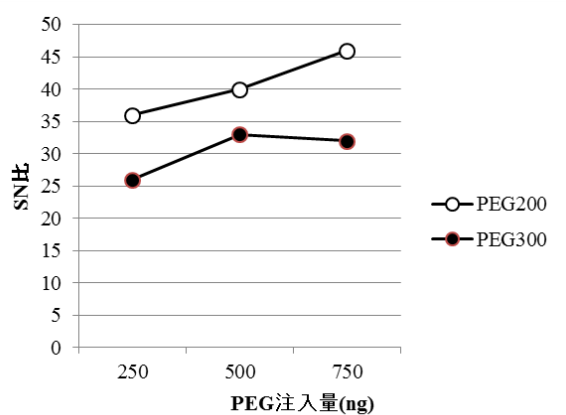
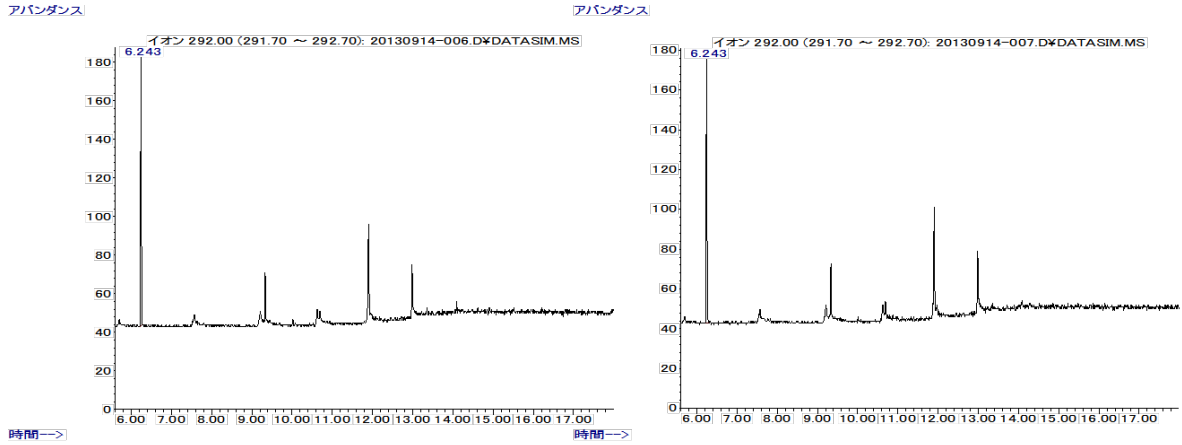


図 2-2 PEG の共注入量によるメチルフェニル水銀の SN 比への影響

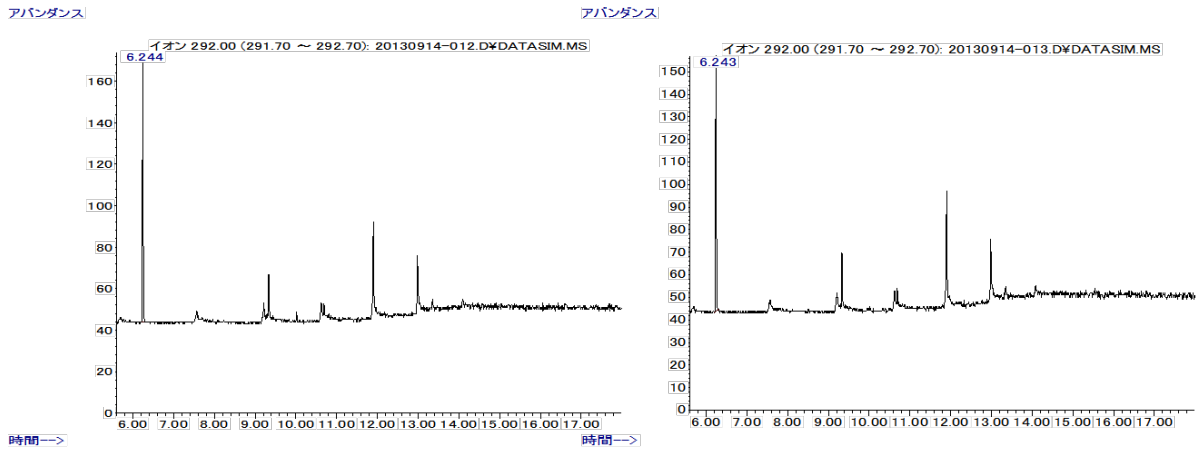
左図：2.5 ng/mL のメチルフェニル水銀溶液、右図：100 ng/mL のメチルフェニル水銀溶液



(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

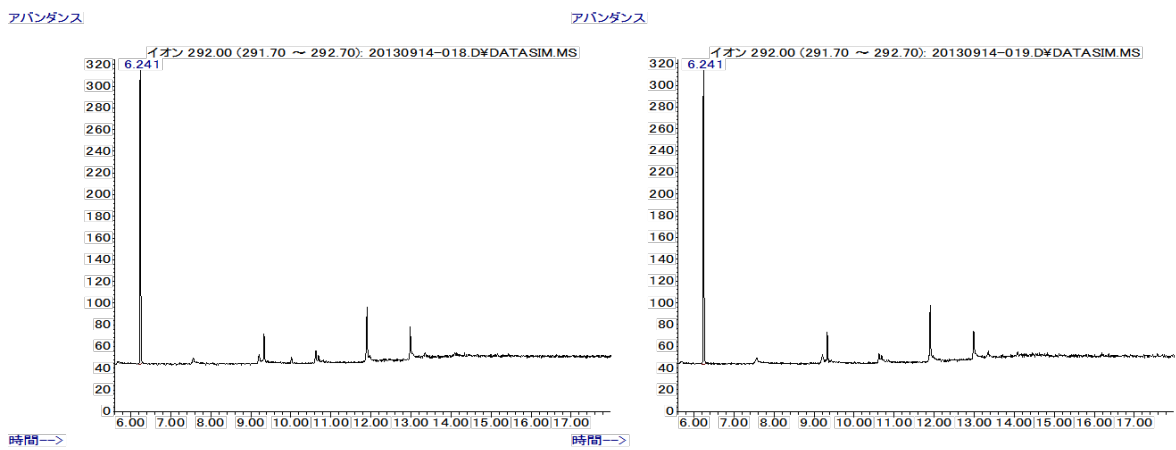
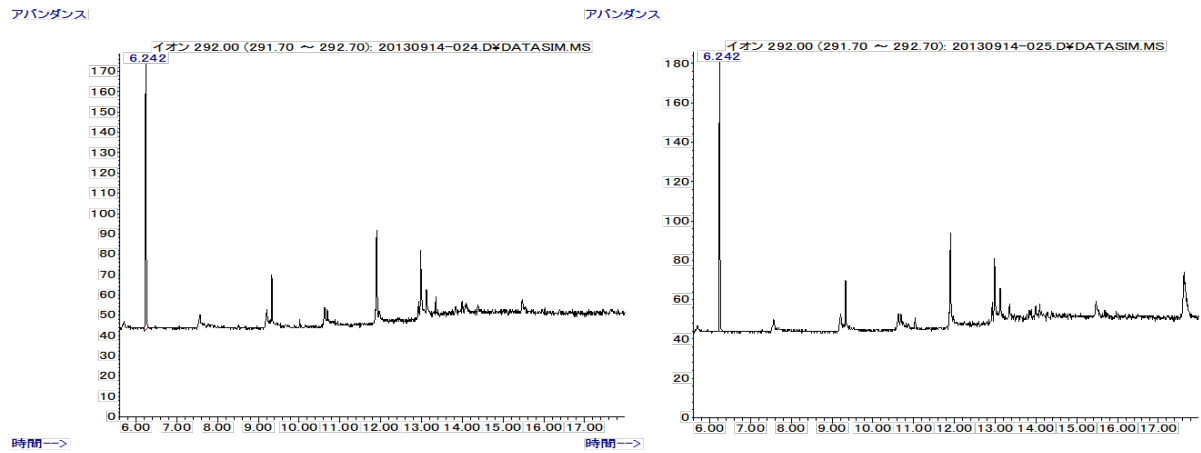


図3 PSA カラム精製によるクロマトグラムへの影響

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

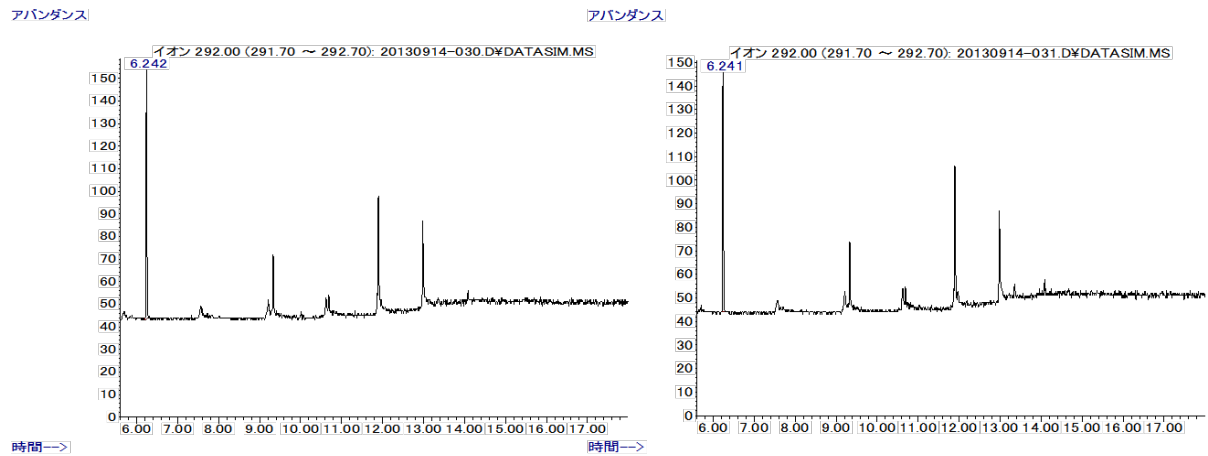


図3 PSA カラム精製によるクロマトグラムへの影響(続き)

左図：PSA カラム精製無、右図：PSA カラム精製有

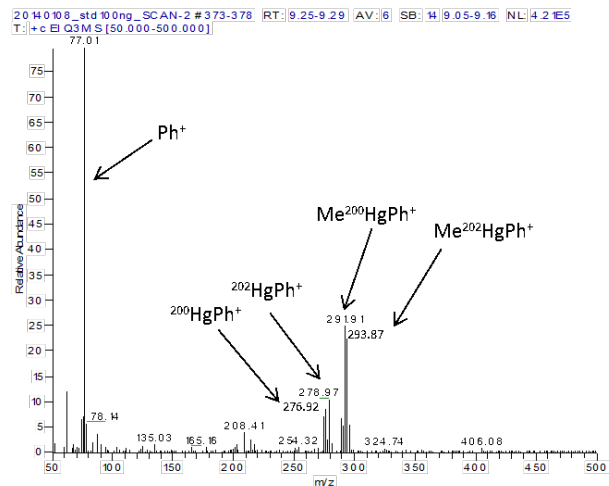
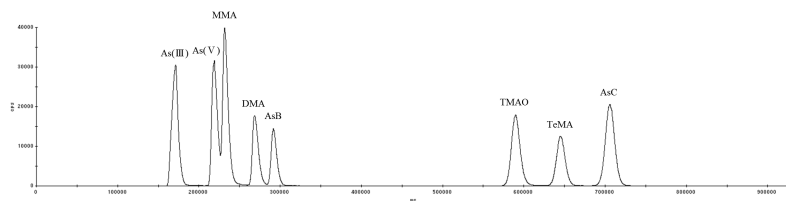
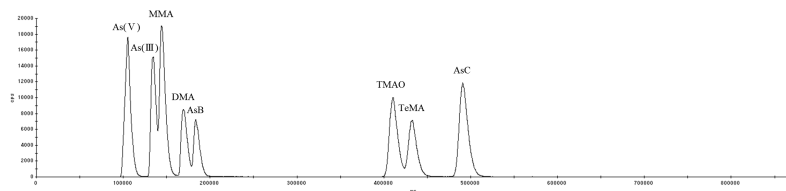


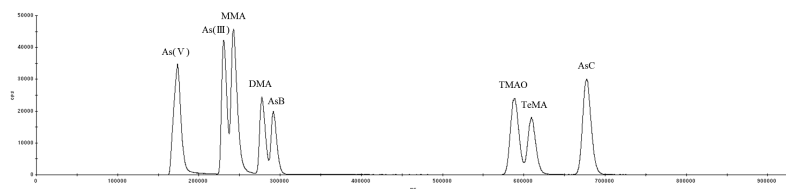
図4 メチルフェニル水銀のマススペクトル



(a)



(c)



(e)

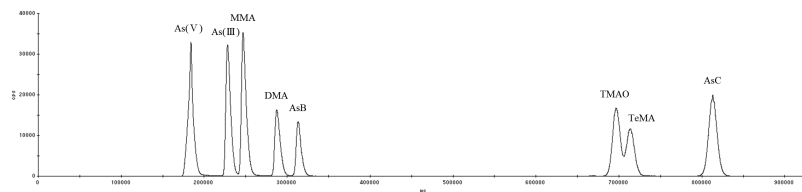
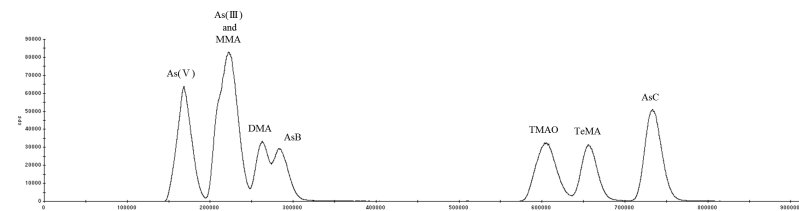


図 5-1 初期条件における化学形態別ヒ素の測定

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

(b)



(d)

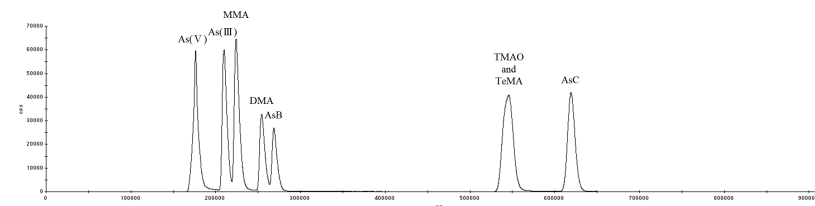


図 5-2 HPLC カラムの検討

(a) CAPCELL PAK C18MG (内径 4.6 mm 長さ 15 cm 粒子径 3  $\mu$ m)

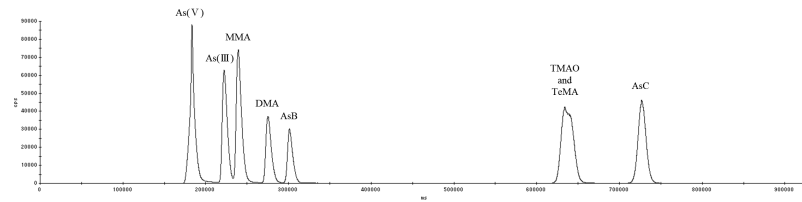
(b) Inerisil AS (内径 2.1 mm 長さ 25 cm 粒子径 3  $\mu$ m)

(c) Inert Sustain (内径 4.6 mm 長さ 25 cm 粒子径 3  $\mu$ m)

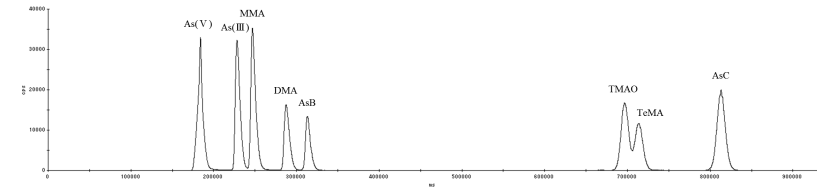
(d) Mightysil RP-18 GP (内径 4.6 mm 長さ 25 cm 粒子径 3  $\mu$ m)

(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  $\mu$ m)

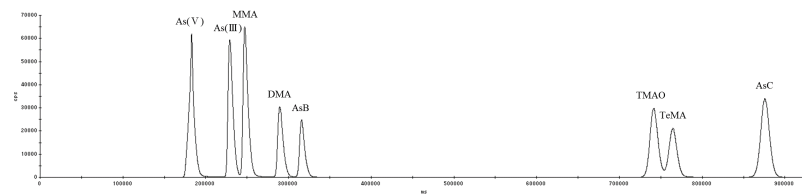
(a)



(b)



(c)



(d)

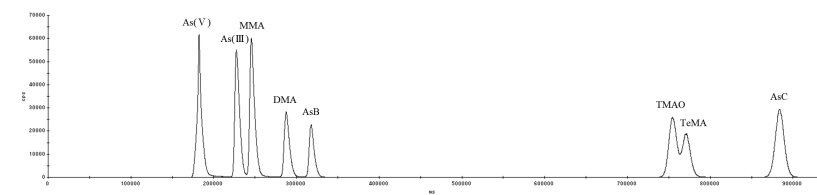
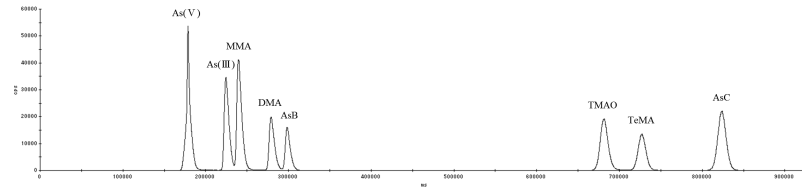


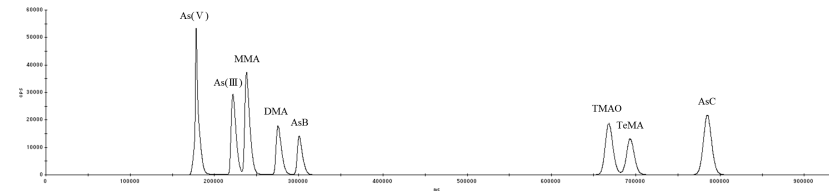
図 6-1 1-ブタンスルホン酸ナトリウム濃度の検討

(a) 8 mM (b) 10 mM (初期条件) (c) 12 mM (d) 14 mM

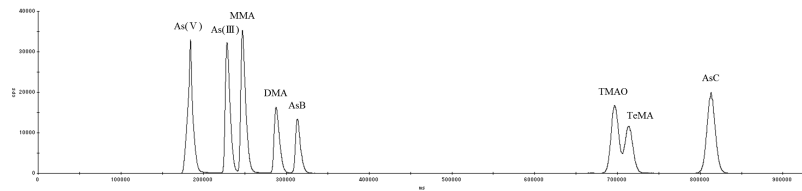
(a)



(b)



(c)



(d)

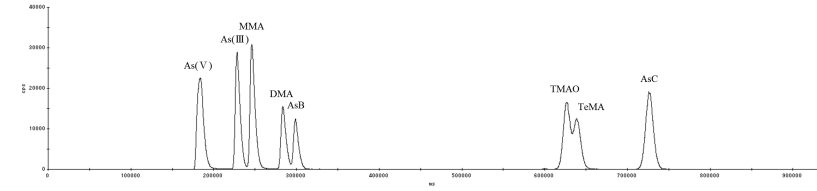
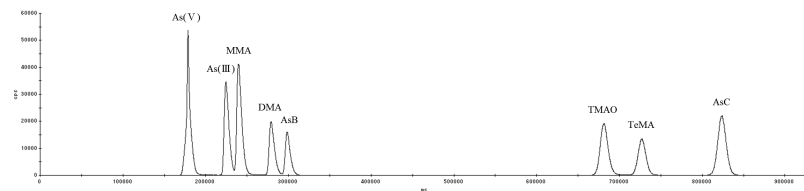


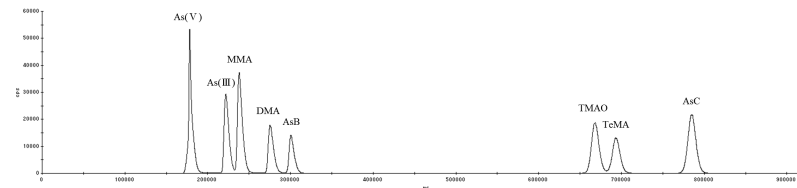
図 6-2 TMAH 濃度の検討

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

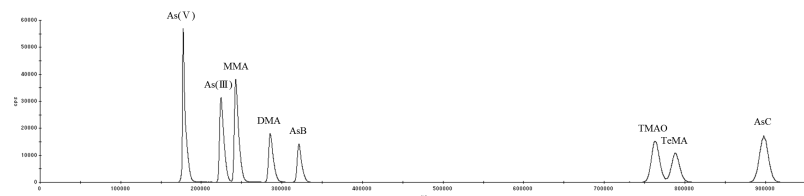
(a)



(b)



(c)



(d)

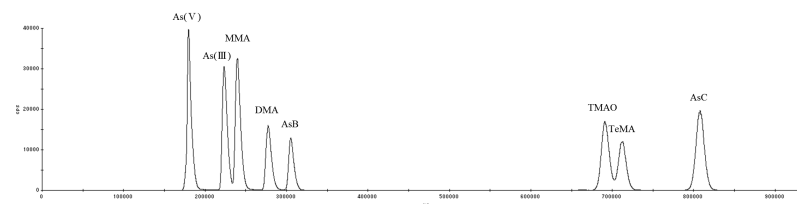


図 6-3 1-ブタンサルホン酸ナトリウムおよび TMAH 濃度の検討

(a) 1-ブタンサルホン酸ナトリウム 10 mM、TMAH 1 mM

(b) 1-ブタンサルホン酸ナトリウム 10 mM、TMAH 2 mM

(c) 1-ブタンサルホン酸ナトリウム 12 mM、TMAH 1 mM

(d) 1-ブタンサ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様ではない。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)は年代間での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	110.5	精白米めし	276.9
			精白米めし		精白米めし	
			玄米めし		玄米めし	
	2	米加工品	赤飯	1.6	赤飯	4.9
II	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	16.6	クロワッサン	33.2
			ナン		ナン	
	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)	19.0	中華そば(蒸し)	36.4
			冷凍うどん		冷凍うどん	
	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
	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	4.2	さといも	15.0
			ながいも		ながいも	
			生いもこんにゃく		生いもこんにゃく	
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	
III	17	砂糖・甘味料類	上白糖	2.4	コーヒーシュガー	5.9
			メープルシロップ		メープルシロップ	
	81	和菓子類	カステラ	4.4	カステラ	11.5
			どら焼き		どら焼き	
			タルト		タルト	
	82	ケーキ・ペストリー類	シュークリーム	4.7	シュークリーム	6.2
			ショートケーキ		ショートケーキ	
	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	6.6	プリン・カスタードプディング	6.1
ゼリー			ポテトチップス			
ミルクチョコレート			ミルクチョコレート			
IV	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
	78	植物性油脂	オリーブ油	3.2	オリーブ油	7.6
			サラダ油		サラダ油	
			ごま油		ごま油	
	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	
V	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	10.4	木綿豆腐	27.5
			充填豆腐		充填豆腐	
	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	0.6	こしあん	1.5	
		グリーンピース(揚げ豆)		グリーンピース(揚げ豆)		

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()
VI	39	いちご	いちご	0.59	いちご	0.08
	40	柑橘類	オレンジ	16.5	グレープフルーツ	21.5
	41	バナナ	みかん		みかん	
	42	バナナ	バナナ	13.9	バナナ	15.2
	43	りんご	りんご	7.9	りんご	20.9
	43	その他の生果	キウイフルーツ	8.0	キウイフルーツ	32.7
			柿		柿	
			巨峰		巨峰	
44	ジャム	アボカド		アボカド		
44	ジャム	イチゴジャム	0.8	イチゴジャム	1.3	
45	果汁・果汁飲料	りんごジュース	21.7	アセロラ果汁入り飲料	13.8	
		濃縮還元オレンジジュース		濃縮還元オレンジジュース		
VII	25	トマト	トマト	5.2	トマト	18.7
	26	にんじん	にんじん	9.4	にんじん	17.7
	27	ほうれん草	ほうれん草	3.6	ほうれん草	14.3
	28	ピーマン	赤ピーマン	1.0	赤ピーマン	3.8
	29	その他の緑黄色野菜	アスパラガス	11.1	アスパラガス	30.1
			さやえんどう		さやえんどう	
			オクラ		オクラ	
36	野菜ジュース	カボチャ		カボチャ		
36	野菜ジュース	トマトジュース	8.9	トマトジュース	10.5	
VIII	30	キャベツ	キャベツ	5.6	キャベツ	23.1
	31	きゅうり	きゅうり	2.6	きゅうり	9.3
	32	大根	大根	8.9	大根	26.3
	33	たまねぎ	たまねぎ	13.1	たまねぎ	26.6
	34	はくさい	はくさい	7.2	はくさい	15.8
	35	その他の淡色野菜	枝豆	10.5	枝豆	47.4
			カリフラワー		カリフラワー	
			スイートコーン(缶詰)		ごぼう	
	37	葉類漬物	ズッキーニ		ズッキーニ	
	37	葉類漬物	白菜漬物	0.5	キムチ	3.8
	38	たくあん・その他の漬物	きゅうり浅漬け	1.1	ザーサイ	9.5
			ラッキョウ酢漬け		しょうが・酢漬	
			だいこん・べったら漬		だいこん・べったら漬	
46	きのこ類	えのきたけ	5.7	えのきたけ	13.8	
		シイタケ		まいたけ		
47	藻類	ワカメ	4.2	干しあおさ	8.9	
		味付けのり		味付けのり		
		青のり		青のり		
86	日本酒	日本酒	1.5	吟醸酒	10.2	
87	ビール	発泡酒	3.4	発泡酒	55.8	
				淡色ビール		
88	洋酒・その他	梅酒	0.1	梅酒	25.3	
				ウイスキー		
89	茶	ほうじ茶	29.0	紅茶(無糖、ペットボトル)	267.3	
				ウーロン茶(ペットボトル)		
				煎茶(ペットボトル)		
90	コーヒー・ココア	ココア	2.0	アイスコーヒー(ミルク入り)	115.9	
				ミルクココア(アイス)		
91	その他の嗜好飲料	イオン飲料	95.8	コーラ(ペットボトル)	83.2	
		麦茶(ペットボトル)		麦茶(ペットボトル)		

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()
	48	あじ、イワシ類	まあじ	2.1	まあじ	8.3
			さんま		さんま	
	49	さけ、ます	紅鮭	2.5	紅鮭	4.2
	50	たい、かれい類	まだい	1.7	まだい	4.4
			まこがれい		まこがれい	
	51	まぐろ、かじき類	びんちょうまぐろ(刺身)	1.0	びんちょうまぐろ(刺身)	6.2
			かつお(刺身)		かつお(刺身)	
	52	その他の生魚	かさご	2.4	かさご	5.6
			あなご(蒸し)		あなご(蒸し)	
			いさき(刺身)		いさき(刺身)	
			いわな		いわな	
	53	貝類	あさり	0.5	あさり	3.8
			牡蛎		ほたて貝柱(刺身)	
					かき	
	54	いか、たこ類	するめいか(刺身)	0.7	するめいか(刺身)	4.5
	55	えび、かに類	あまえび(刺身)	1.1	くるとまえび(刺身)	4.1
			ズワイガニ		ズワイガニ	
					あまえび(刺身)	
	56	魚介(塩蔵、生干し、乾物)	しらす干し	3.4	しらす干し	14.7
			ほっけ(開き干し)		ほっけ(開き干し)	
まあじ(開き干し)			まあじ(開き干し)			
たらこ			辛子明太子			
57	魚介(缶詰)	さば水煮缶詰	1.0	さば水煮缶詰	2.0	
		マグロ油漬け缶詰		マグロ油漬け缶詰		
58	魚介(佃煮)	あさり(佃煮)	0.1	あさり(佃煮)	0.3	
		かつお(角煮)		かつお(角煮)		
59	魚介(練り製品)	白はんぺん	2.4	白はんぺん	7.4	
60	魚肉ハム、ソーセージ	魚肉ソーセージ	0.7	魚肉ソーセージ	0.5	
	61	牛肉	和牛(ロース)	5.4	和牛(ロース)	13.4
			ローストビーフ		ローストビーフ	
			コンビーフ缶詰		コンビーフ缶詰	
			牛肉(もも)		牛肉(もも)	
	62	豚肉	国産豚肉(ばら)	9.8	国産豚肉(ばら)	31.8
			国産豚肉(ロース)		国産豚肉(ロース)	
	63	ハム、ソーセージ類	ウイナーソーセージ(皮付き)	9.0	ウイナーソーセージ(皮付き)	12.0
			ベーコン		ベーコン	
			ロースハム		ロースハム	
			生ハム		生ハム	
	64	その他の畜肉	ラム肉	0.05	ラム肉	0.07
	65	鶏肉	鶏肉(ささみ)	10.5	鶏肉(ささみ)	19.8
			鶏肉(ムネ)		鶏肉(ムネ)	
	66	その他の鳥肉	(あいがも)	0.04	(あいがも)	0.02
	67	肉類(内臓)	豚レバー	0.2	豚レバー	1.6
	68	鯨肉	(くじら肉)	0.1	(くじら肉)	0.0
	69	その他の肉・加工品	(いなご佃煮)	0.03	(いなご佃煮)	0.01
	70	卵類	温泉卵	13.7	温泉卵	28.8
			ゆで卵		ゆで卵	
			だし巻き卵		だし巻き卵	

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()	
	71	牛乳	低脂肪加工乳	83.3	低脂肪加工乳	78.6	
			普通牛乳		普通牛乳		
			ステップアップミルク		普通牛乳		
	72	チーズ	粉チーズ	1.6	粉チーズ	2.8	
			カマンベールチーズ		カマンベールチーズ		
			ベビーチーズ		プロセスチーズ		
	73	発酵乳・乳酸菌飲料	プレーンヨーグルト	19.8	プレーンヨーグルト	23.4	
			プレーンヨーグルト		プレーンヨーグルト		
			乳酸菌飲料・乳製品		乳酸菌飲料・乳製品		
	74	その他の乳製品	フルーツ乳飲料	18.4	フルーツ乳飲料	7.0	
			加糖練乳		加糖練乳		
			アイスクリーム		アイスクリーム		
	75	その他の乳類	ヤギ乳	3.22	ヤギ乳	0.14	
		92	ソース	中濃ソース	0.5	中濃ソース	1.8
		93	しょうゆ	うす口しょうゆ	3.9	うす口しょうゆ	13.1
たまりしょうゆ				たまりしょうゆ			
94		塩	食塩	0.4	食塩	1.4	
95		マヨネーズ	マヨネーズ(全卵)	1.1	マヨネーズ(全卵)	2.8	
96		味噌	赤色辛みそ	3.7	赤色辛みそ	10.0	
			ペースタイプ即席みそ		ペースタイプ即席みそ		
97		その他の調味料	本みりん	23.1	本みりん	58.3	
			フレンチドレッシング		豆板醤		
			米酢		米酢		
			かつおだし(だし汁)		かつおだし(だし汁)		
			こんぶだし(だし汁)		こんぶだし(だし汁)		
			鶏がらだし(だし汁)		鶏がらだし(だし汁)		
	中華だし(だし汁)		中華だし(だし汁)				
	固形コンソメ(スープ)		固形コンソメ(スープ)				
トマトピューレ	トマトピューレ						
98	香辛料・その他	ゼラチン	0.1	マスタード	0.3		
		カレー粉		カレー粉			
				黒こしょう			

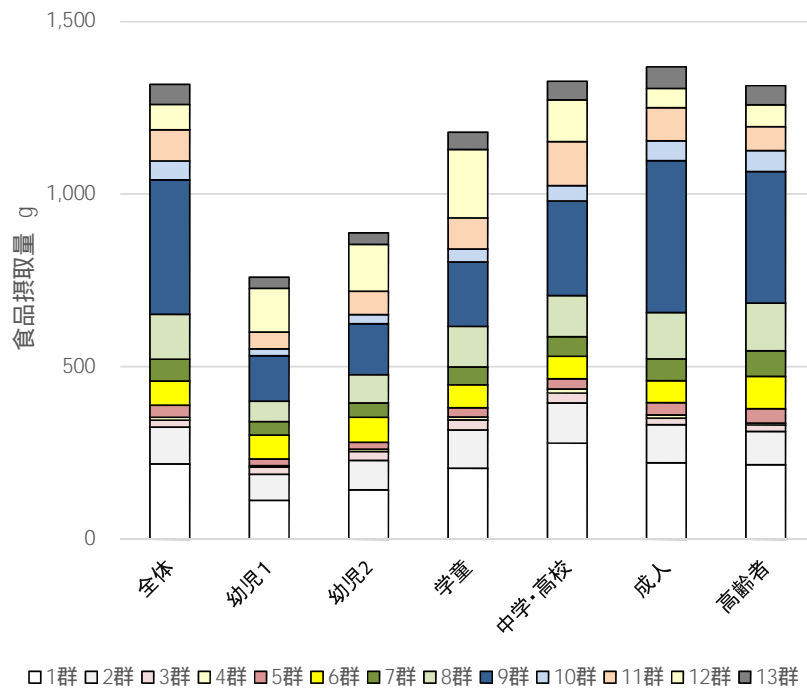


Fig.1 年代区分毎の食品摂取量

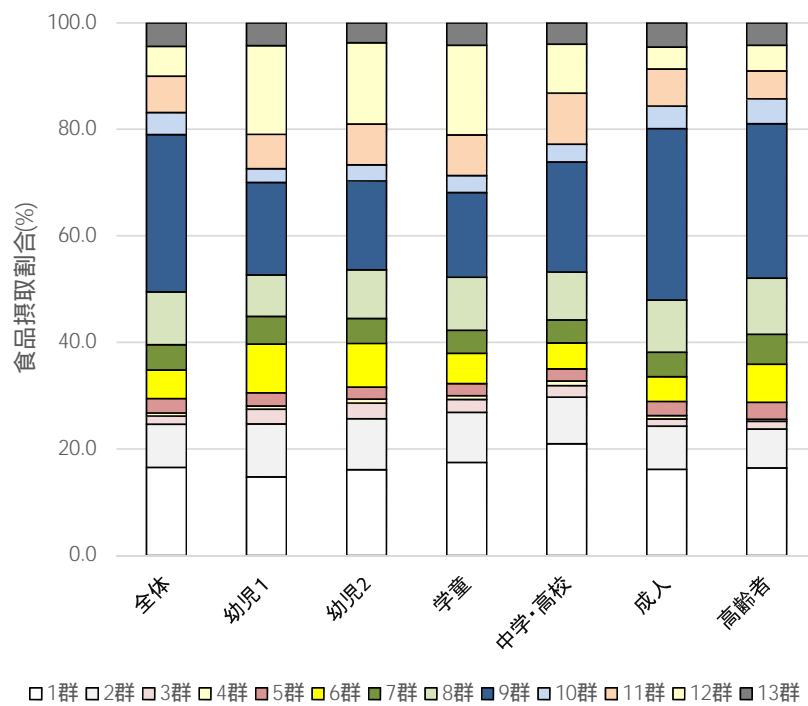


Fig.2 年代区分毎の食品群別摂取割合



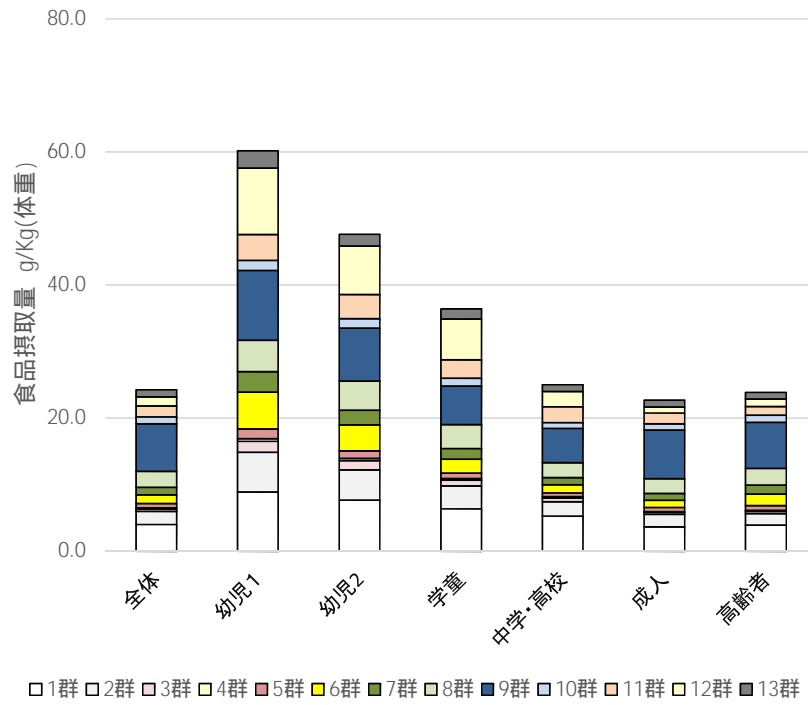


Fig.3 年代区分毎の体重当たり食品摂取量

## **II. 分担研究報告 5**

**ダイオキシン様活性を有する新規有害物質に関する研究**

**天倉吉章**

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

ダイオキシン様活性を有する新規有害物質に関する研究

研究代表者 渡邊 敬浩 国立医薬品食品衛生研究所食品部  
研究分担者 天倉 吉章 松山大学薬学部

**研究要旨**

食品中のダイオキシン類 (DXNs) 簡易測定生物検定法 (バイオアッセイ) の他有害物質への評価応用のための基礎検討を行った。まず、基礎データの構築も目指し、そのバイオアッセイの鍵となっているアрил炭化水素レセプター (AhR) と有害物質の相互作用 (DXNs 様活性) について評価した。今回対象としたのは、まだデータの乏しい多環芳香族炭化水素類 (PAHs) およびその誘導体 (ニトロ化体, ハロゲン化体, アミノ化体) 39 種, 食品中の残留農薬 23 種, さらに食品中アミノ酸およびその代謝物 14 種について, それらの AhR 活性をバイオアッセイ (ケイラックスアッセイ) により測定した。その結果, PAHs の多くは, 顕著な AhR 活性を濃度依存的に示した。PAHs の誘導体については, 環の数が多くなれば活性が強くなる傾向が認められた。ハロゲン化体は, 塩素の数が多くなるほど活性が弱まった。ニトロ化およびアミノ化体では, 本検討だけでは置換基の数や位置で活性の強弱は考察できなかった。これら結果を踏まえ, PAHs 検出の報告がある食品 (ウイスキー, かつお節, 紅茶) について抽出物を調製し, AhR 活性を測定した。その結果, すべての試料において濃度依存的に AhR 活性が認められた。一方, 農薬では, インドール骨格を有する carbendazim, thiabendazole の 2 種の化合物に強い活性が認められた。アミノ酸およびその代謝物についても同様, インドール化合物 tryptamine に活性が認められた。

**研究協力者**

松山大学 薬学部

好村 守生, 米原 茜

国立医薬品食品衛生研究所食品部

堤 智昭

株式会社 日吉

中村 昌文, 半田 洋士

**A. 研究目的**

食品中には多様な有害物質が存在しており, これら摂取による健康リスクを評価・管理することが課題の一つとしてあげられている<sup>1)</sup>。対象となる有害物質は, 通常の食品に極微量しか含まれてないものもある。それらの健康へのリスクは非常に低く, 残

留上限の基準値を設定することがリスク管理施策となる。食品中の残留有害物質であるダイオキシン類 (DXNs) や多環芳香族炭化水素 (PAHs) といった環境汚染物質はその一例としてあげられる。

DXNs や PAHs は化合物群の種類が多く、現在の分析法においては標準品を指標に、GC/MS 分析による定量結果の総和を評価値として用いる等としている<sup>2)</sup>。一方で、分析法が煩雑で費用が高価であることから、簡易分析法の提案もなされている。例えば、DXNs においては、バイオアッセイによる簡易分析法が環境分野における公定法として採用されている<sup>3)</sup>。そのバイオアッセイで鍵となっているアрил炭化水素レセプター (AhR) は、DXNs 等の環境汚染物質をリガンドとするため別名ダイオキシンレセプターとも呼ばれ、それらの生体毒性発現に関与していることが指摘されている。DXNs の簡易分析法は、このメカニズムを利用したバイオアッセイであり、スクリーニングとして用いることが可能となっている。一方で、AhR は一部 PAHs をリガンドとし活性化されることが報告されている<sup>4)</sup>。

バイオアッセイは迅速で低廉であるため、スクリーニングとして有用である。もし上述したような有害物質を簡便に、総合的にスクリーニングできるようなシステムがあり、それをを用いて総合的なリスク管理値のようなものが算出できれば、食品の安全性における新たなリスク評価・管理の施策実施に有意義である。そこで本研究では、DXNs の簡便測定法として採用されている AhR を用いた技術開発を進める。AhR については、DXNs および一部 PAHs 以外の有害物質との相互作用に関する情報が少ない。まずは基礎データの構築として、DXNs 様活性を有する有害物質の探索および活性と物質の構造相関の解明を試みる。本年度は

まだデータの乏しい PAHs (ニトロ化体、ハロゲン化体、アミノ化体を含む) 39 種および食品に残留する農薬 23 種、さらに食品成分としてあげられるアミノ酸およびその代謝物 14 種等について、AhR 活性をバイオアッセイにより評価した。

## B. 研究方法

### 1. 試料および試薬

PAHs (ニトロ化、ハロゲン化、アミノ化を含む) (39 種): benzo[*c*]fluorene, 1,2-benzanthracene (benzo[*a*]anthracene), cyclopenta[*c,d*]pyrene, chrysene, 5-methylchrysene, benzo[*b*]fluoranthene, benzo[*k*]fluoranthene, benzo[*j*]fluoranthene, benzo[*a*]pyrene, indeno[1,2,3-*c,d*]pyrene, dibenzo[*a,h*]anthracene, benzo[*g,h,i*]perylene, dibenzo[*a,l*]pyrene, dibenzo[*a,e*]pyrene, dibenzo[*a,i*]pyrene, dibenzo[*a,h*]pyrene, 1-amino-4-nitronaphthalene, 9,10-dinitroanthracene, 1,3-dinitronaphthalene, 1,5-dinitronaphthalene, 1,8-dinitronaphthalene, 2-nitroanthracene, 9-nitroanthracene, 7-nitrobenzo[*a*]anthracene, 6-nitrobenzo[*a*]pyrene, 1-nitronaphthalene, 2-nitronaphthalene, 1-chloronaphthalene, 2-chloronaphthalene, 1,4-dichloronaphthalene, octachloronaphthalene, 1,2,3,4-tetrachloronaphthalene, 1-aminoanthracene, 2-aminoanthracene, 1-aminonaphthalene, 1,8-diaminonaphthalene, naphthalene, anthracene, fluorene(いずれも関東化学製)を用いた。

農薬 (23 種): malathion, chlorpyrifos, diazinon, prothiofos, pirimiphos methyl, fenitrothion, ethyl-*p*-nitrophenyl phenylthiophosphonothiate (EPN), tolclofos methyl, parathion methyl, phenthoate, chlorpyrifos methyl, methidathion, imazalil,

carbendazim, leucomalachite green, imadacloprid, acetamiprid, thiabendazole, azoxystrobin, tribenuron methyl, flufenoxuron, pyraclostrobin, kresoxim methyl (いずれも関東化学製) を用いた。

アミノ酸およびその代謝物 (14 種): tryptamine, L-tryptophan, 4-aminobutanoic acid, L-glutamic acid, tyramine, L-tyrosine, putrescine, cadaverine, L-lysine, L-arginine, histamine, histidine (和光純薬工業製), L-ornithine, agmatine (東京化成工業製) を用いた。

ウイスキー, かつお節, 紅茶は, 市販のものを用いた。抽出 (かつお節, 紅茶) は 80% エタノールでホモジナイズ後, 吸引ろ過し, ろ液を減圧濃縮して調製した。ウイスキーは原液を減圧濃縮した。

ジメチルスルホキシド (DMSO) (生化学用) は和光純薬工業社製を用いた。RPMI1640 培地, ペニシリン/ストレプトマイシン溶液, リン酸緩衝生理食塩水, 0.25% トリプシン溶液はナカライテスク社製を用いた。牛胎児血清 (FBS) は Invitrogen 社製を, Lysis 試薬, ルシフェラーゼアッセイシステムは Promega 社製を用いた。マイクロプレートリーダーは Perkin Elmer 社製の Enspire を使用した。

## 2. 評価方法

評価はレポーター遺伝子アッセイ [ルシフェラーゼ遺伝子を導入した培養細胞を利用したレポーター遺伝子アッセイ (ケイラックスアッセイ)] により行った。ケイラックスアッセイは, ダイオキシン類応答性組換え細胞 H1L6.1c2 を用いたレポーター遺伝子アッセイを利用してダイオキシン類の毒性等量を測定する方法 (ダイオキシン類応答性組換え細胞 H1L6.1c2 は, ホタルルシフェラーゼ遺伝子の上流域に 4 個のダイ

オキシン応答配列 DRE を含むシトクロム P450 (CYP1A1) プロモーターを持つプラスミド pGudLuc6.1 をマウス肝ガン細胞 Hepa1c1c7 に導入した細胞) である<sup>5)</sup>。具体的な評価方法を以下に記す。

ケイラックスアッセイ: 化合物および抽出物を DMSO に溶解し, 試料溶液とした (コントロールは DMSO)。試料溶液は 4~6 段階の濃度 (0.1~100,000 nM の範囲で 4~6 段階) に DMSO で希釈して調製した。試料 4  $\mu$ L を試験管に入れ, RPMI1640 培地 (+8% FBS +1% ペニシリン/ストレプトマイシン) 400  $\mu$ L を加えて攪拌後, そのうち 200  $\mu$ L を一晩前培養した 96 穴マイクロプレート中のダイオキシン類応答性組換え細胞 H1L6.1c2 (約  $1.5 \times 10^5$  cell/well) に 1 ウェルずつ暴露し, CO<sub>2</sub> インキュベーター (37 °C, 5% CO<sub>2</sub> 濃度) で 20~24 時間培養した。培養後, 培地を取り除き, ウェルを洗浄後, 顕微鏡下で細胞の生存を確認した。Lysis 試薬 300  $\mu$ L で細胞壁を溶解後, プレートミキサーで 10 分間振とうした。振とう後, 10 分間放置し, 基質としてルシフェリン 50  $\mu$ L を加え, ルミノメーターにより発光度 (RLU) を測定した。

## C. 研究結果及び考察

供試した化合物の化学構造を図 1 に示す。また, 活性を示した化合物の AhR 活性の結果を図 2 に記す。

### 1. PAHs

PAHs (19 種) の AhR 活性について, ケイラックスアッセイによる評価した結果, cyclopenta[*c,d*]pyrene, benzo[*g,h,i*]perylene, dibenzo[*a,l*]pyrene, anthracene を除く 15 種の化合物に, 濃度依存的に顕著な活性が認められ, fluorene に弱い活性が認められた。PAHs の誘導体 (ニトロ化, ハロゲン化, アミノ化 PAHs) (20 種) について, AhR 活

性を評価した結果，強い活性が認められたのは，7-nitrobenzo[*a*]anthracene, 6-nitrobenzo[*a*]pyrene, 2-chloronaphthalene, 1,4-dichloronaphthalene, 1-aminonaphthalene で，次いで 2-nitroanthracene, 2-aminoanthracene が若干の活性を示した．このように，供試した PAHs の大半は顕著な AhR 活性を示した．一方，一部化合物（dibenzo[*a,l*]pyrene, benzo[*g,h,i*]perylene）に活性が認められなかった．PAHs の毒性に関する科学的知見の“発がん性”をみると<sup>6)</sup>，活性を示さなかった dibenzo[*a,l*]pyrene はグループ 2A（ヒトに対しておそらく発がん性がある）に，一方の benzo[*g,h,i*]perylene はグループ 3（ヒトに対する発がん性について分類できない）にリスト化されており，今回の結果だけでは本活性の有無と対応しなかった．これらが PAHs の毒性の度合いと関連しているのかどうかについては，さらなる検討が必要とされる．

近年，PAHs の誘導体（ニトロ化体，ハロゲン化体，アミノ化体）の食品への含有も懸念されている<sup>7)</sup>．そこでそれら化合物について AhR 活性を検討した結果，全体として環の数が多くなれば活性が強くなる傾向が認められた．ハロゲン化体（塩素化物）をみると，塩素の数が多い化合物は活性が弱まる傾向が認められた．ニトロ化体では，ニトロ基の数や位置で活性の強弱は考察できなかったが，環の数が 4 以上になると活性が認められた．アミノ化体では，1-aminonaphthalene で活性が認められたのみで，構造活性相関的考察はできなかった．

PAHs のケイラックスアッセイとの感度は，TCDD と比較すると約 1000 倍弱い傾向であったが，最大となる RLU は約 2 倍の値が観察された．ケイラックスアッセイでは評価する上で TCDD を基準に比較を行っているが，細胞への暴露 24 時間後の代謝物を

検出しており，TCDD より代謝物量の多い PAHs が多く認められた．DXNs と PAHs では代謝速度や関与する遺伝子が若干異なること等，起因する可能性がある．一方で，本結果は本アッセイの食品中 PAHs 分析への応用を示唆するデータでもあり，今後の応用が期待できる．

## 2. 残留農薬

食品の残留農薬 23 種について検討した結果，carbendazim, thiabendazole の 2 種の化合物に強い活性が認められた．活性を示した化合物はいずれもインドール骨格を有する化合物であった．これまでの報告から，インドール骨格を有する化合物は AhR 活性を示す傾向があるという構造活性相関的考察が示唆されており<sup>2)</sup>，本結果も同様の結果であった．

## 3. アミノ酸およびその代謝

14 種について検討した結果，tryptamine のみ活性を認めた．Tryptamine もインドール骨格を有する化合物であり，同様の結果であった．

## 4. 食品分析

PAHs の簡易分析への応用が示唆されたため，PAHs を検出した報告のある食品について抽出物を調製し，AhR 活性を評価した．その結果，ウイスキー，かつお節，紅茶のいずれの抽出物においても濃度依存的に AhR 活性が認められた．特にかつお節は活性が強く，この結果は市販食品の PAHs 分析した結果<sup>2)</sup>と対応した．

## D. 結論

DXNs 様活性を有する新規有害物質の探索および活性と物質の構造相関の解明を試みるため，PAHs（ニトロ化体，ハロゲン化

体, アミノ化体を含む) 39 種および食品に残留する農薬 23 種, さらに食品中のアミノ酸およびそれら代謝物約 14 種について, AhR 活性をバイオアッセイにより評価した。その結果, 供試した PAHs の大半は, 顕著な AhR 活性を示した。PAHs の誘導体については, 全体として環の数が多くなれば活性が強くなる傾向が認められた。ハロゲン化体は塩素の数が多くなるほど, 活性が弱まる傾向が認められた。ニトロ化およびアミノ化体では, 本検討だけでは置換基の数や位置で活性の強弱は考察できなかった。

## E. 参考文献

- 1) 松田りえ子, 渡邊敬浩: 食品からの有害物質摂取量推定とその意義, *ファルマシア*, 49 (2013), 17-21.
- 2) 平成 24 年度厚生労働科学研究補助金研究報告書「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」分担報告書 2 食品からの塩素化ダイオキシン類の摂取量調査研究, 5 難分解性汚染物 (POPs) の摂取量推定に必要な分析法の開発研究)。
- 3) 環境省 水・大気環境局総務課ダイオキシン対策室:「ダイオキシン類に係る生物検定法マニュアル (排ガス, ばいじん及び燃え殻)」, 平成 20 年 3 月。
- 4) Misaki K, Kawami H, Tanaka T, Handa Y, Nakamura F, Matsui S, Matsuda T: Aryl hydrocarbon receptor ligand activity of polycyclic aromatic ketones and polycyclic aromatic quinones, *Environ. Toxicol. Chem.*, 26 (2007), 1370-1379.
- 5) Tsutsumi T, Amakura Y, Nakamura M, Brown DJ, Clark GC, Sasaki K, Toyoda M: Validation of the CALUX bioassay for the screening of PCDD/Fs and dioxin-like PCBs

in retail fish, *Analyst*, 128 (2003), 486-492.

- 6) 国際がん研究機構 (IARC): Some Non-heterocyclic polycyclic aromatic hydrocarbons and some related exposures, IARC monographs on the evaluation of carcinogenic risks to humans, 29 (2010).
- 7) 早川和夫, 唐寧, 鳥羽陽, 亀田貴之: 東アジアの有害大気汚染 - 多環芳香族炭化水素とニトロ多環芳香族炭化水素 -, *ぶんせき* (2008), 278-284.

## F. 研究業績

### 1. 論文発表

- 1) Amakura, Y., Yoshimura, M., Takaoka, M., Toda, H., Tsutsumi, T., Matsuda, R., Teshima, R., Nakamura, M., Handa, H., Yoshida, T.: Characterization of natural aryl hydrocarbon receptor agonists from cassia seed and rosemary, *Molecules*, **19**, 4956-4966 (2014).

### 2. 学会発表

なし

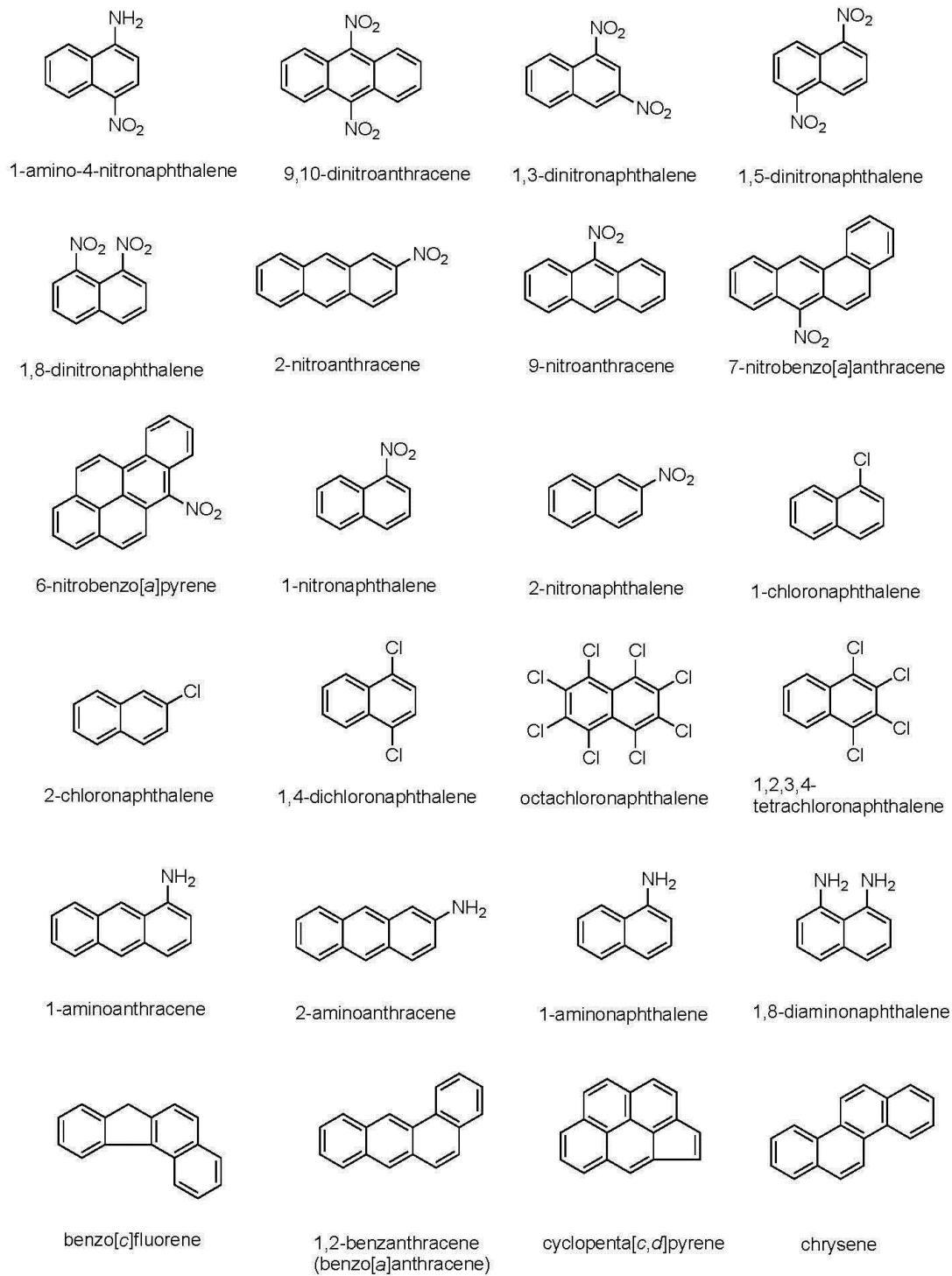


図 1 . 供試した化合物の化学構造



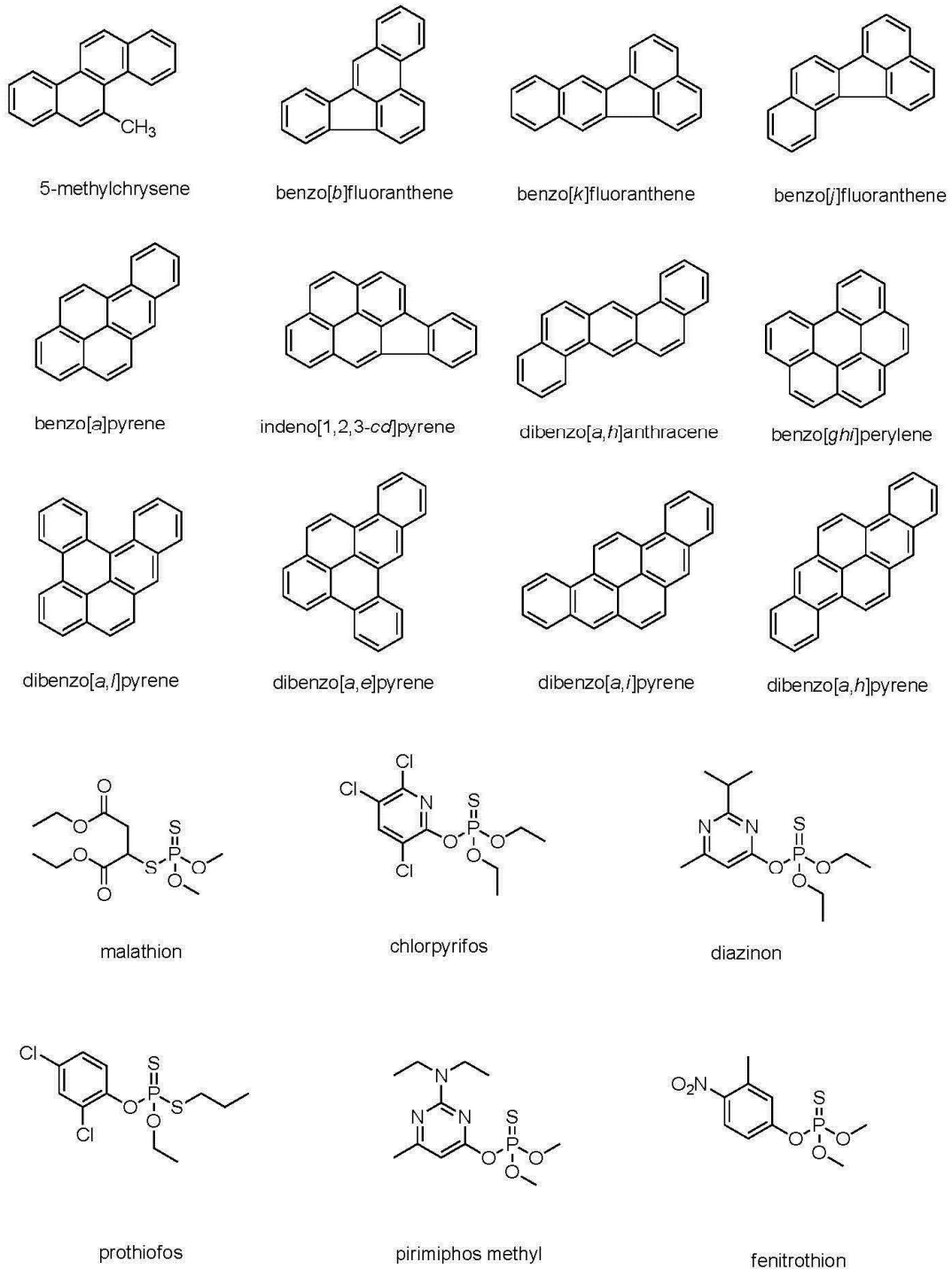
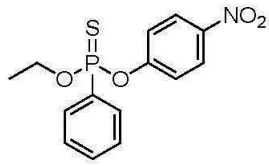


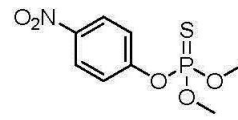
図 1 ( 続き )



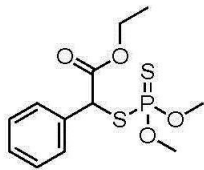
EPN



tolclofos methyl



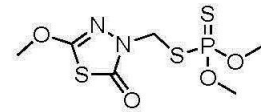
parathion methyl



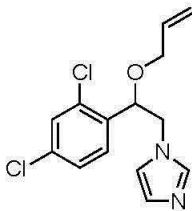
phenthoate



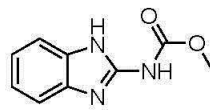
chlorpyrifos methyl



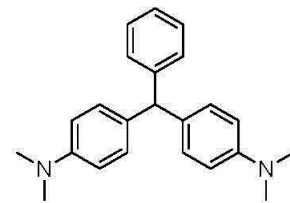
methidathion



imazalil



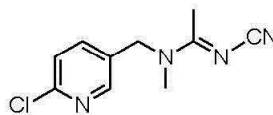
carbendazim



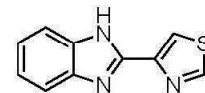
leucomalachite green



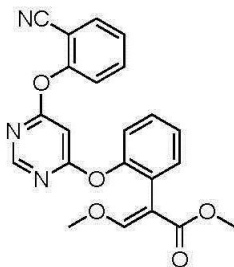
imidacloprid



acetamiprid



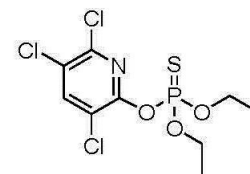
thiabendazole



azoxystorbin

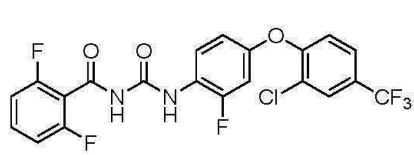


tribenuron methyl

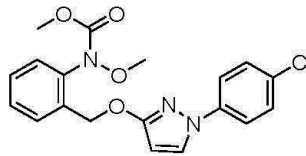


chlorpyrifos

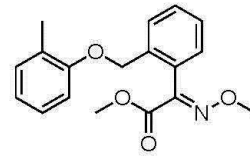
図 1 ( 続き )



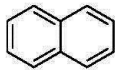
flufenoxuron



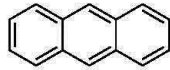
pyraclostrobin



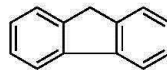
kresoxim methyl



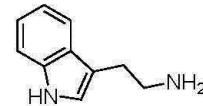
naphthalene



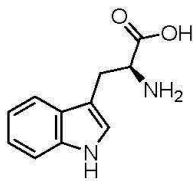
anthracene



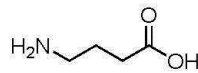
fluorene



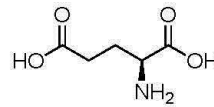
tryptamine



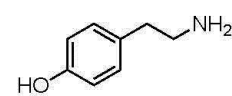
L-tryptophan



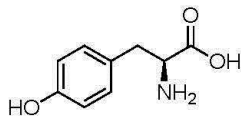
4-aminobutanoic acid



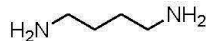
L-glutamic acid



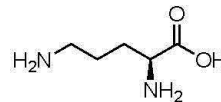
tyramine



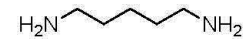
L-tyrosine



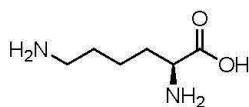
putrescine



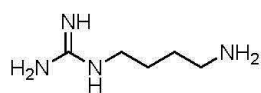
L-ornithine



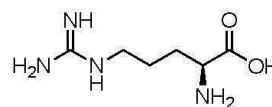
cadaverine



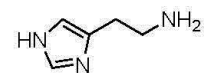
L-lysine



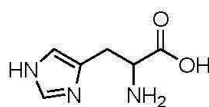
agmatine



L-arginine



histamine



histidine

図 1 ( 続き )

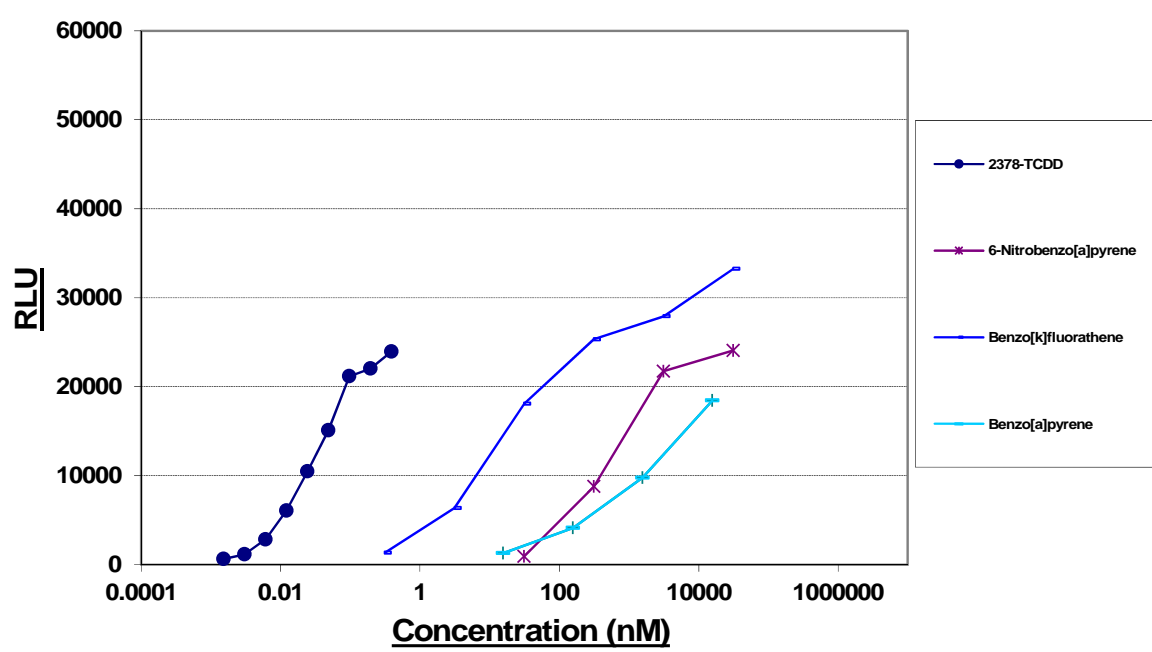
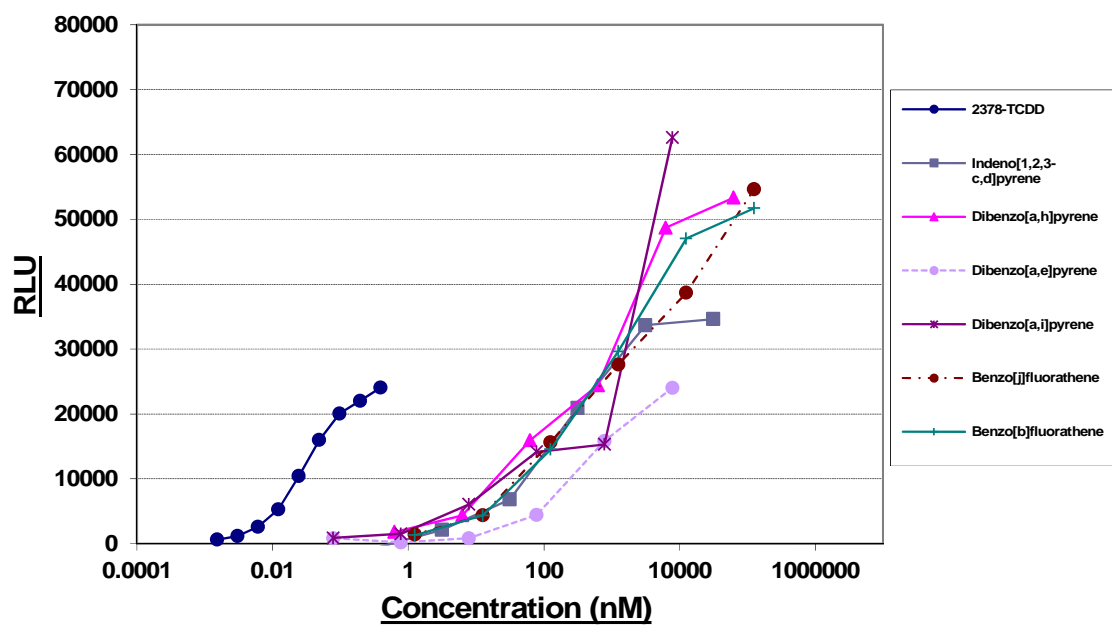


図2. 化合物の AhR 活性

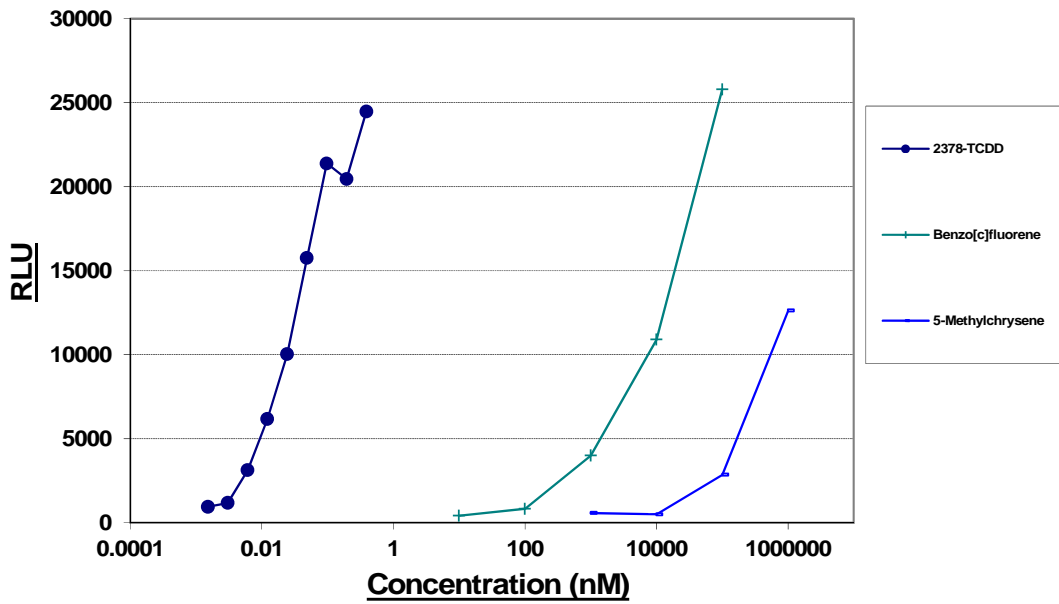
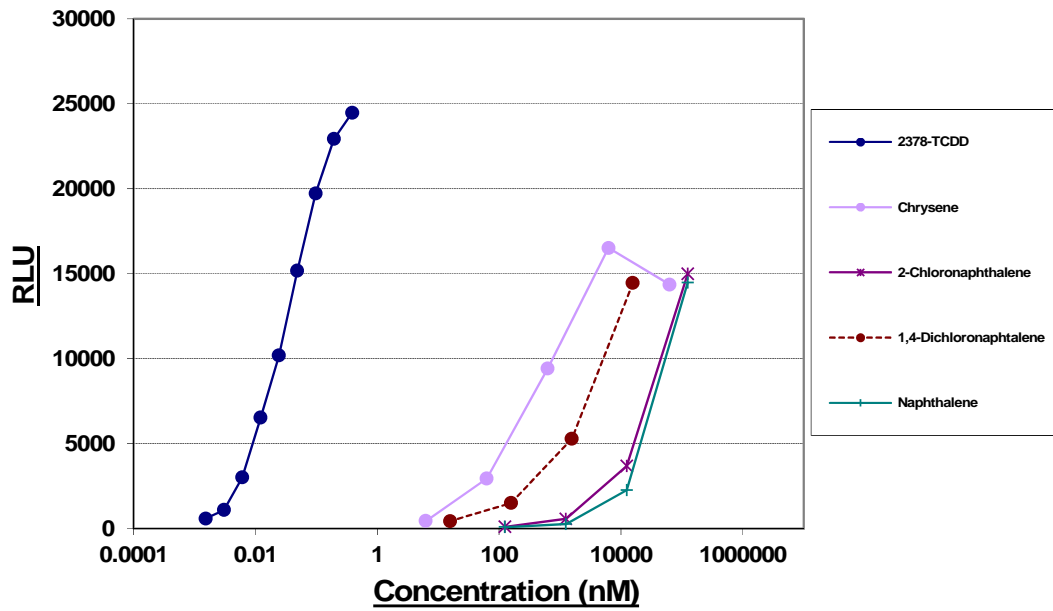


図 2 ( 続き )

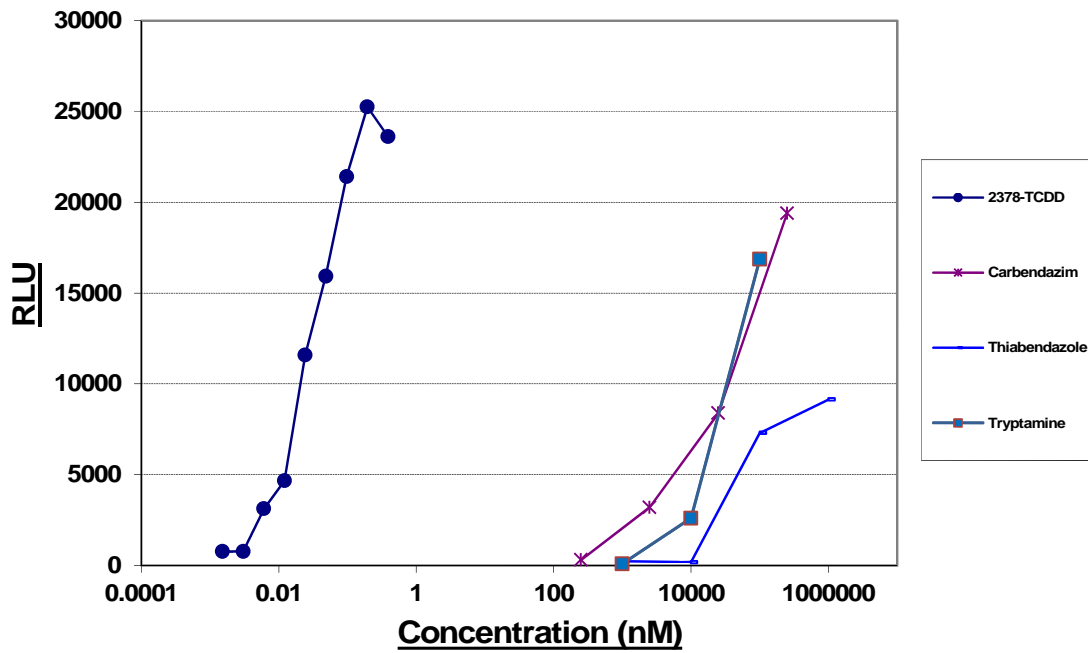
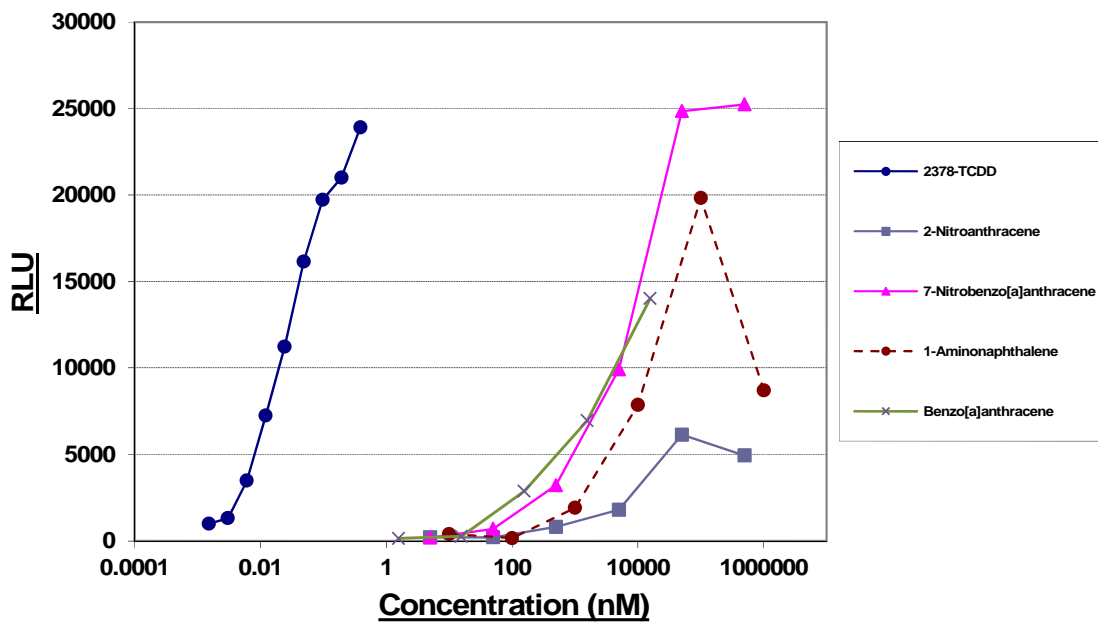


図 2 ( 続き )

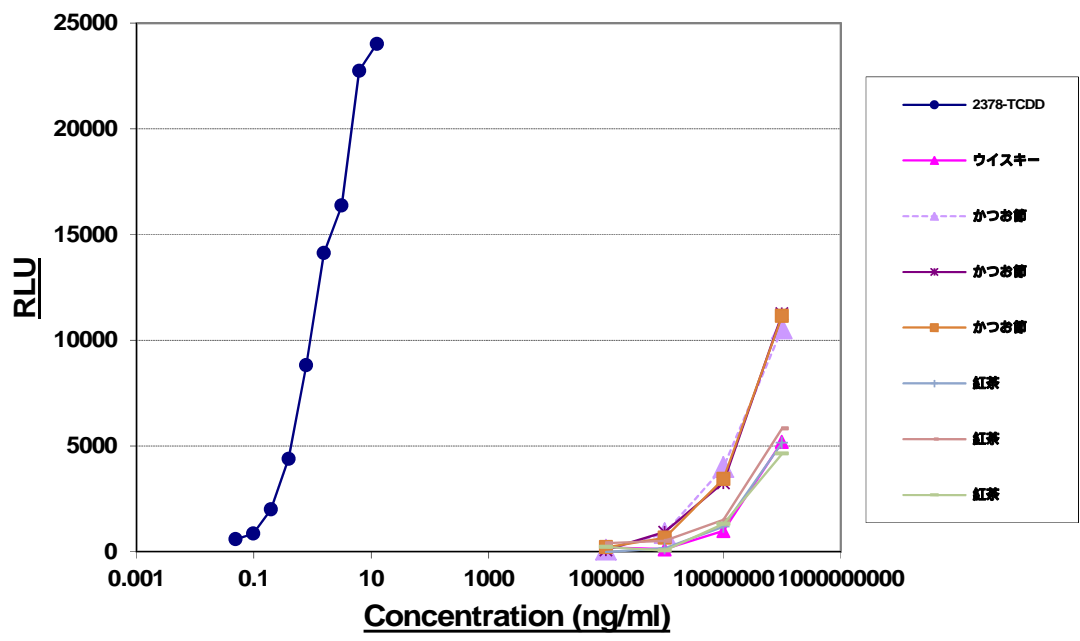


図 2 ( 続き )

## **II. 分担研究報告 6**

**国際動向を踏まえた摂取量推定すべき有害物質の探索に  
関する研究**

**畝山智香子**



## 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

#### 国際動向を踏まえた摂取量推定すべき有害化学物質の探索に関する研究

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 畝山 智香子 国立医薬品食品衛生研究所安全情報部第三室長

研究要旨：食品中にはしばしば環境や食品そのものに由来する有害化学物質が含まれるが、その実態やリスクの大きさについては情報が圧倒的に不足している。国民の健康保護ためには食品の安全性確保は重要課題であるが、有害化合物のリスクを評価するには摂取量の推定が必須である。食品中に含まれる無数の化合物について、全ての摂取量を推定するのは不可能なので優先順位をつける必要がある。そこで国際的に問題となる可能性の高そうなものを、文献情報をもとに検討した。リスクの大きさの指標として暴露マージン (MOE) を検討している学術文献を検索して数値を抽出し、MOE の大きさを分類した化合物のリストを作成した。

研究協力者 登田美桜 国立医薬品食品衛生研究所安全情報部第三室

研究協力者 與那覇ひとみ 国立医薬品食品衛生研究所安全情報部第三室

研究協力者 渡邊敬浩 国立医薬品食品衛生研究所食品部 第三室長

#### A . 研究目的

国民の健康保護ための施策策定には、懸念される有害物質のリスク情報が必要となる。食品には意図的・非意図的に無数の化合物が含まれ、そのリスクの程度も多様なので、リスク管理の優先順位づけのために目安となる情報が必要になる。食品は世界的に取引されているので国際動向も考慮しながら、限られたリソースを効果的に使ったリスク管理が求められている。そこで食品からの有害化学物質の摂取量を推定して詳細リスク評価を実施する必要性を判断するための材料となる、世界的に問題になっている、関心の高い化合物についての情報収集を行った。国際会議等で具体的な検討が始まるより学術情報が先行することが多いので、まず学術論文をベースに、近年非意図的汚染物質のリスク評価に使われることが増えてきた暴露マ

ージン (MOE) についての情報を収集した。

#### B . 研究方法

2013 年 8 月時点で PubMed を Margin of Exposure (MOE) で検索し、140 文献をリストアップした。それらのうち要約部分から化合物の MOE を評価したと考えられる文献 124 報を集め、記載されている数値データを抽出した。結果的に 75 報の論文から 877 組のデータを収集した。それらを数値の小さい順に並べたものが表 1 である。表 2 にはそれをおおまかにグループ分けしたものを示す。

#### C . 結果及び考察

表 2 の MOE が一桁と評価されているもの、すなわち、アクリルアミド、テトラクロロエタン、アフラトキシン B1、鉛、エタノール、ダイオ

キシシ、フラン、無機ヒ素、アクロレイン、テトラクロロエタン、テトラブロモビスフェノール A、カルバミン酸エチル、Sudan I、酸化カドミウム、ホルムアルデヒド、メチルオイゲノール、ゲニステインが比較的優先順位の高い化合物である可能性がある。

## **E . 健康危険情報**

なし

## **F . 研究発表**

### **1. 論文発表**

- 1) 畝山智香子：食の安全とは，日本食品安全協会会報, 8 ( 2 ) , 47-51, 2013
- 2) 畝山智香子：食品中化学物質のリスク評価について，イルシー，115，15-20 ( 2013)

.

### **2. 学会発表**

- 1) 畝山智香子：健康食品やサプリメントの安全性、第 23 回日本医療薬学会年会 ( 2013.9 )

### **3. その他**

## **G . 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

表1. MOE リスト (個別化合物毎)

物質	MOE	条件	POD	文献
アクリルアミド	0	米国平均暴露量 0.001 mg/kg 体重/ 日	雌ラットの乳腺腫瘍の BMDL01 0.00 mg/kg 体重/日	49
アクリルアミド	0	米国 90th 暴露量 0.004 mg/kg 体重/ 日	雌ラットの乳腺腫瘍の BMDL01 0.00 mg/kg 体重/日	49
テトラクロロエタン	0.01	母親がドライクリ ーニング溶媒に暴 露された母乳を飲 んでいる乳児	経口参照用量 0.01 mg/kg/day	104
アフラトキシン B1	0.2	アジア	ラ ッ ト が ん の BMDL05(0.069-0.250microg/kg 体重/日)	40
アフラトキシン B1	0.3	アフリカ	ラ ッ ト が ん の BMDL01(0.014-0.171microg/kg 体重/日)	40
鉛	0.4	その他アルコール 一日標準量 4 杯:最 悪汚染	ヒト心血管系影響の BMDL01 の 0.0015mg/kg 体重/日	63
エタノール	0.48	ヘビードリンカー1 日 4 杯	ヒト疫学データの BMDL1.5 26g/日	65
鉛	0.5	ワイン一日標準量 4 杯:最悪汚染	ヒト心血管系影響の BMDL01 の 0.0015mg/kg 体重/日	63
ダイオキシン	0.5	日本の焼却場地域 住民	サルの神経行動影響の NOAEL 母親の体負荷 (LOAEL 19 ng/kg 体重 を 2 で割る)	8
ダイオキシン	0.5	日本の魚を多く食 べる人	サルの神経行動影響の NOAEL 母親の体負荷 (LOAEL 19 ng/kg 体重 を 2 で割る)	8
フラン	0.7	欧州成人高摂取群	雌ラット胆管がんの BMDL10 の 0.0012 mg/kg 体重/日	77
ダイオキシン	0.7	日本の焼却場地域 住民	サルの神経行動影響の NOAEL 母親の体負荷 (LOAEL 19 ng/kg 体重 を 2 で割る)	8
エタノール	0.8	一日標準量 4 杯	ラット経口投与肝細胞腺腫の BMDL10 の 700 mg/kg 体重/日	63
鉛	0.9	スピリッツ一日標	ヒト心血管系影響の BMDL01	63

		準量 4 杯 : 最悪汚染	の 0.0015mg/kg 体重/日	
アフラトキシン B1	0.9	アフリカ	ラ ッ ト が ん の BMDL05(0.069-0.250microg/kg 体重/日)	40
アフラトキシン B1	0.9	アジア	ラ ッ ト が ん の BMDL01(0.014-0.171microg/kg 体重/日)	40
無機ヒ素	0.91	カメルーン TDS	0.3 microg/kg/day	28
エタノール	0.96	カナダの男性向け ガイドラインであ る 1 日 2 杯	ヒト疫学データの BMDL1.5 26g/日	65
エタノール	0.96	カナダの男性向け ガイドラインであ る 1 週間 14 杯	ヒト疫学データの BMDL1.5 26g/日	65
ヒ素	1	ビール一日標準量 4 杯 : 最悪汚染	ヒト肺がん (水由来) の BMDL0.5 の 0.003 mg/kg 体重/ 日	63
アフラトキシン B1	1	アフリカ	ラ ッ ト が ん の BMDL10(0.14-0.306microg/kg 体重/日)	40
ダイオキシン	1	日本の一般人	サルの神経行動影響の NOAEL 母親の体負荷 (LOAEL 19 ng/kg 体重 を 2 で割る)	8
アクロレイン	1	喫煙者	ラット雄喉頭扁平上皮化生	45
フラン	1.2	欧州乳児高摂取群	雌ラット胆管がんの BMDL10 の 0.0012 mg/kg 体重/日	77
エタノール	1.23	カナダ人 15 才以上 の平均	ヒト疫学データの BMDL1.5 26g/日	65
エタノール	1.49	カナダの女性向け ガイドラインであ る 1 週間 9 杯	ヒト疫学データの BMDL1.5 26g/日	65
鉛	1.5	その他アルコール 一日標準量 1 杯 : 最 悪汚染	ヒト心血管系影響の BMDL01 の 0.0015mg/kg 体重/日	63
フラン	1.5	欧州成人平均	雌ラット胆管がんの BMDL10 の 0.0012 mg/kg 体重/日	77
テトラクロロエタン	1.7	母親がドライクリ ーニング溶媒に暴 露された母乳を飲 んでいる乳児	ヒト肝肥大の 1.4 mg/kg/day	104

鉛	1.9	ワイン一日標準量1杯：最悪汚染	ヒト心血管系影響の BMDL01 の 0.0015mg/kg 体重/日	63
エタノール	1.91	カナダの女性向けガイドラインである1日1杯	ヒト疫学データの BMDL1.5 26g/日	65
アクロレイン	2	喫煙者	ラット雄上皮変性	45
ダイオキシン	2.4	日本の魚を多く食べる人	サルの神経行動影響の NOAEL 母親の体負荷 (LOAEL 19 ng/kg 体重を2で割る)	8
鉛	2.8	ワイン一日標準量4杯：平均的汚染	ヒト心血管系影響の BMDL01 の 0.0015mg/kg 体重/日	63
アフラトキシン B1	3	アジア	ラットがんの BMDL05(0.069-0.250microg/kg 体重/日)	40
アクロレイン	3	喫煙者	ラット雄喉頭扁平上皮化生	45
エタノール	3.1	一日標準量1杯	ラット経口投与肝細胞腺腫の BMDL10 の 700 mg/kg 体重/日	63
エタノール	3.1	平均的マウスウォッシュを酒の代わりに毎日1杯飲む	BMDL あるいは NOAEL	47
鉛	3.5	スピリッツ一日標準量1杯：最悪汚染	ヒト心血管系影響の BMDL01 の 0.0015mg/kg 体重/日	63
フラン	4	欧州乳児平均	雌ラット胆管がんの BMDL10 の 0.0012 mg/kg 体重/日	77
ダイオキシン	4	1950年代に日本で生まれた女の子	妊娠ラットの NOAEL 体負荷 28.6 ng/kg(こどもの奇形への影響)	9
アクロレイン	4	喫煙者	ラット雄鼻呼吸上皮過形成	45
アクロレイン	4	喫煙者	ラット雌鼻呼吸上皮扁平上皮化生 中隔	45
アクロレイン	4	喫煙者	ラット 鼻呼吸上皮扁平上皮化生 中隔	45
エタノール	4.1	1日一杯の平均的ワイン	発がんの BMDL	61
鉛	4.4	ビール一日標準量4杯：最悪汚染	ヒト心血管系影響の BMDL01 の 0.0015mg/kg 体重/日	63
テトラプロモビスフェノール A	4.7	ヨーロッパ 0.19 mg/kg/day	ラットの子どもの行動への影響の BMDL 0.9 mg/kg	123
ヒ素	5	ビール一日標準量1杯：最悪汚染	ヒト肺がん(水由来)の BMDL0.5 の 0.003 mg/kg 体重/	63

			日	
カルバミン酸エチル	5	果物スピリッツー 日標準量 4 杯:最悪 汚染	マウス経口投与肺胞腺腫の BMDL 0.3 mg/kg 体重/日	63
Sudan I	5	中央アフリカ	雄ラット肝細胞腺腫の BMDL01 の 1.157 mg/kg 体重/日、雌ラッ トの 0.780 mg/kg 体重/日	44
アフラトキシン B1	5	アジア	ラ ッ ト が ん の BMDL10(0.14-0.306microg/kg 体重/日)	40
ダイオキシン	5	米 国 95th ( 13.3 ppt )	新生児 FT4 変化の BMD10 70 ngTEQ/kg lipid	14
ダイオキシン	5	1950 年代に日本で 生まれた女の子	妊娠ラットの NOAEL 体負荷 28.6 ng/kg( こどもの奇形への影 響 )	9
ダイオキシン	5	1960 年代に日本で 生まれた女の子	妊娠ラットの NOAEL 体負荷 28.6 ng/kg( こどもの奇形への影 響 )	9
ダイオキシン	5.3	日本の一般人	サルの神経行動影響の NOAEL 母親の体負荷 (LOAEL 19 ng/kg 体重 を 2 で割る )	8
ダイオキシン	6	1960 年代に日本で 生まれた女の子	妊娠ラットの NOAEL 体負荷 28.6 ng/kg( こどもの奇形への影 響 )	9
ダイオキシン	6	日本の魚を多く食 べる人	動物実験の内臓症の NOAEL37 pg/kg/day	8
酸化カドミウム	6	喫煙者	ラット雌総肺がん(ダスト)	45
ダイオキシン	6	韓国一般成人	認知機能	22
ダイオキシン	8	米国メジアン ( 9.2 ppt )	新生児 FT4 変化の BMD10 70 ngTEQ/kg lipid	14
ダイオキシン	8	1970 年代に日本で 生まれた女の子	妊娠ラットの NOAEL 体負荷 28.6 ng/kg( こどもの奇形への影 響 )	9
ホルムアルデヒド	8	喫煙者	ラット雌雄鼻扁平上皮化生	45
アクリルアミド	8.5	米国 90th 暴露量 0.004 mg/kg 体重/ 日	雌ラットの乳腺腫瘍の BMDL05 0.03 mg/kg 体重/日	49
ダイオキシン	9	1970 年代に日本で 生まれた女の子	妊娠ラットの NOAEL 体負荷 28.6 ng/kg( こどもの奇形への影 響 )	9

アクロレイン	9	喫煙者	ラット雄鼻呼吸上皮過形成 背部鼻道	45
メチロイゲノール	10	高摂取群	NTP ラット試験全腫瘍の BMDL01 の 0.87 mg/kg 体重/日	56
アクリルアミド	10	米国 90th 暴露量 0.004 mg/kg 体重/日	ラットの傍精巣領域中皮腫の BMDL01 0.04 mg/kg 体重/日	49
ホルムアルデヒド	10	喫煙者	ラット雄鼻腔上皮細胞の扁平上皮化生を伴う過形成	45
ホルムアルデヒド	10	喫煙者	ラット鼻限局性呼吸上皮過形成 雌微弱	45
ゲニステイン	10	アジア人の食事	子宮肥大試験尾の ED01-ED05	112
鉛	11	ワインー日標準量 1 杯：平均的汚染	ヒト心血管系影響の BMDL01 の 0.0015mg/kg 体重/日	63
ダイオキシン	11	日本の焼却場地域住民	動物実験の内臓症の NOAEL37 pg/kg/day	8
アクロレイン	11	喫煙者	ラット雌鼻呼吸上皮扁平上皮化生 背部鼻道	45
ホルムアルデヒド	11	喫煙者	ラット雄鼻呼吸上皮扁平上皮化生	45
ダイオキシン	12	1980 年代に日本で生まれた女の子	妊娠ラットの NOAEL 体負荷 28.6 ng/kg( こどもの奇形への影響 )	9
アジンホスメチル	12	散布後 14 日以内にりんご園に入る労働者の中央値	ラット経皮暴露の EPA の NOAEL 560 microg/kg/day	90
アフラトキシン B1	14	アフリカ	ラットがんの BMDL01(0.014-0.171microg/kg 体重/日)	40
ダイオキシン	14	1980 年代に日本で生まれた女の子	妊娠ラットの NOAEL 体負荷 28.6 ng/kg( こどもの奇形への影響 )	9
ダイオキシン	14	日本の一般人	動物実験の内臓症の NOAEL37 pg/kg/day	8
シアン化水素	15	中国で販売されているタバコの主流煙由来、平均		99
8:2 フルオロテロマーアルコール	15	室内空気からの吸入、労働者	雄ラット弱い肝壊死 BMDL10 3.7 mg/kg/day	122
カルバミン酸エチル	16	スピリッツー日標準量 4 杯：最悪汚染	マウス経口投与肺胞腺腫の BMDL 0.3 mg/kg 体重/日	63
ダイオキシン	16	日本の焼却場地域	動物実験の内臓症の NOAEL37	8

		住民	pg/kg/day	
アセトアルデヒド	17	スピリッツー日標準量 4 杯:最悪汚染	ラット経口投与雄全がんの BMDL10 である 56 mg/kg 体重/日	63
鉛	17	スピリッツー日標準量 4 杯:平均的汚染	ヒト心血管系影響の BMDL01 の 0.0015mg/kg 体重/日	63
鉛	17	その他アルコールー日標準量 4 杯:平均的汚染	ヒト心血管系影響の BMDL01 の 0.0015mg/kg 体重/日	63
1,3-ブタジエン	17.5	中国で販売されているタバコの主流煙由来、平均		99
アクロレイン	17.5	中国で販売されているタバコの主流煙由来、平均		99
鉛	17.6	ビールー日標準量 1 杯:最悪汚染	ヒト心血管系影響の BMDL01 の 0.0015mg/kg 体重/日	63
アフラトキシン B1	18	アフリカ クラスタ-J	ラットがんの BMDL01(0.014-0.171microg/kg 体重/日)	40
カルバミン酸エチル	19	果物スピリッツー日標準量 1 杯:最悪汚染	マウス経口投与肺胞腺腫の BMDL 0.3 mg/kg 体重/日	63
カルバミン酸エチル	19	その他アルコールー日標準量 4 杯:最悪汚染	マウス経口投与肺胞腺腫の BMDL 0.3 mg/kg 体重/日	63
Sudan I	19	中央アフリカ	雄ラット肝細胞腺腫の BMDL05 の 4.648 mg/kg 体重/日、雌ラットの 7.194 mg/kg 体重/日	44
アフラトキシン B1	19	米国	ラットがんの BMDL01(0.014-0.171microg/kg 体重/日)	40
ホルムアルデヒド	19	喫煙者	ラット雌雄鼻扁平上皮化生/過形成	45
アフラトキシン B1	20	ヨーロッパ平均	ラットがんの BMDL01(0.014-0.171microg/kg 体重/日)	40
ヒ素	22	ワインー日標準量 4 杯:最悪汚染	ヒト肺がん(水由来)の BMDL0.5 の 0.003 mg/kg 体重/日	63
アフラトキシン B1	22	アフリカ クラスタ-J	ラットがんの BMDL01(0.014-0.171microg/kg 体重/日)	40



アセトアルデヒド	24	その他アルコール 一日標準量 4 杯:最 悪汚染	ラット経口投与雄全がんの BMDL10である 56 mg/kg 体重/ 日	63
Sudan I	24	ヨーロッパ	雄ラット肝細胞腺腫の BMDL01 の 1.157 mg/kg 体重/日、雌ラッ トの 0.780 mg/kg 体重/日	44
テトラクロロエタン	24	母親がドライクリ ーニング溶媒に暴 露された母乳を飲 んでいる乳児	マウス肝臓変化の NOAEL 20 mg/kg/day	104
ダイオキシン	25	米国 95th ( 13.3 ppt )	ヒト CYP1A2 活性の BMD10 340 ngTEQ/kg lipid	14
無機ヒ素	25	カメルーン TDS	8 microg/kg/day	28
DEET	25	12 才未満の子ど も、40%の製品を使 用、亜慢性毒性	ラット 90 日亜慢性試験、経皮の NOEL 300 mg/kg/day	82
ラムダシハロトリン	26	屋内スプレー経皮 吸収、成人男性	急性毒性 NOAEL 0.04 mg/kg/day	72
酸化カドミウム	27	喫煙者	ラット雌腺がん(ダスト)	45
アセトアルデヒド	28	ワイン一日標準量 4 杯:最悪汚染	ラット経口投与雄全がんの BMDL10である 56 mg/kg 体重/ 日	63
ダイオキシン	28	韓国一般成人	認知機能	22
アジンホスメチル	29	散布後 14 日以降に りんご園に入る労 働者の中央値	ラット経皮暴露の EPA の NOAEL 560 microg/kg/day	90
DEHP	29	職業暴露、規制値	マウスペルオキシソームの増殖 の NOEL 20 mg/kg/day	89
Sudan I	30	中央アフリカ	雄ラット肝細胞腺腫の BMDL10 の 7.323 mg/kg 体重/日、雌ラッ トの 15.91 mg/kg 体重/日	44
アクリルアミド	30	米国平均暴露量 0.001 mg/kg 体重/ 日	雌ラットの乳腺腫瘍の BMDL05 0.03 mg/kg 体重/日	49
ダイオキシン	30	米国 95th ( 13.3 ppt )	ヒト歯の欠損の BMD10 450-1300 ngTEQ/kg lipid	14
ダイオキシン	30	日本の魚を多く食 べる人	動物実験の内臓症の NOAEL37 pg/kg/day	8
SudanI	30	中央アフリカ最大 0.2482 mg/kg/day	ラット雄肝細胞腺腫の BMDL10 7.32 mg/kg/day	38

カドミウム	31	ビール一日標準量4杯：最悪汚染	ヒト食品由来 NOAEL の 0.01 mg/kg 体重/日	63
鉛	33	ビール一日標準量4杯：平均的汚染	ヒト心血管系影響の BMDL01 の 0.0015mg/kg 体重/日	63
ホルムアルデヒド	34	喫煙者	ラット鼻限局性呼吸上皮過形成雄微弱	45
カドミウム	35	ワイン一日標準量4杯：最悪汚染	ヒト食品由来 NOAEL の 0.01 mg/kg 体重/日	63
ダイオキシン	35	米国メジアン (9.2 ppt)	ヒト CYP1A2 活性の BMD10 340 ngTEQ/kg lipid	14
塩化カドミウム	38	喫煙者	ラット雄肺腺腫	45
ホルムアルデヒド	38	喫煙者	ラット雄鼻炎	45
アセトアルデヒド	39	ビール一日標準量4杯：最悪汚染	ラット経口投与雄全がんの BMDL10 である 56 mg/kg 体重/日	63
ヒ素	39	スピリッツ一日標準量4杯：最悪汚染	ヒト肺がん (水由来) の BMDL0.5 の 0.003 mg/kg 体重/日	63
酸化カドミウム	39	喫煙者	マウス雌気道リンパ節過形成	45
アクリルアミド	40	米国平均暴露量 0.001 mg/kg 体重/日	ラットの傍精巣領域中皮腫の BMDL01 0.04 mg/kg 体重/日	49
アクリルアミド	40	米国 90th 暴露量 0.004 mg/kg 体重/日	雌ラットの乳腺腫瘍の BMDL10 0.16 mg/kg 体重/日	49
塩化カドミウム	40	喫煙者	ラット雄総肺がん	45
ホルムアルデヒド	40	喫煙者	ラット鼻限局性呼吸上皮角質化雌極微弱	45
アクリルアミド	40	高摂取 (0.004 mg/kg/day)	ラット雌乳腺腫瘍の BMDL10 0.16 mg/kg/day	38
アクリロニトリル	42	喫煙者	ラット雌鼻甲介呼吸上皮平坦化	45
DEET	42	12 才未満の子ども、40%の製品を使用、慢性毒性	ラットがん原性試験雌雄の NOEL 100 mg/kg/day	82
DEHP	44	血液透析、1年	マウスペルオキシソームの増殖の NOEL 20 mg/kg/day	89
ピカリジン	45	12 才未満の子ども、15%の製品を使用、亜慢性毒性	ラット 90 日亜慢性試験、経皮の NOEL 200 mg/kg/day	82
ピカリジン	45	12 才未満の子ども	ラット経皮がん原性試験の	82

		も、15%の製品を使用、慢性毒性	NOEL 200 mg/kg/day	
アフラトキシン B1	49	アフリカ	ラットがんの BMDL05(0.069-0.250microg/kg 体重/日)	40
ダイオキシン	49	日本の魚を多く食べる人	動物実験のがんの NOAEL 1000 pg/kg/day	8
ダイオキシン	49	日本の魚を多く食べる人	動物実験の生殖影響の NOAEL 1000 pg/kg/day	8
アクリロニトリル	49	中国で販売されているタバコの主流煙由来、平均		99
ダイオキシン	50	米国メジアン(9.2 ppt)	ヒト歯の欠損の BMD10 450-1300 ngTEQ/kg lipid	14
エストラゴール	50	全ての食品由来	雌マウス肝細胞がんの BMDL 10 3.3-6.5 mg/kg/day	4
酸化カドミウム	51	喫煙者	ラット雄喉頭上皮変性	45
DEET	51	13-17才、40%の製品を使用、亜慢性毒性	ラット 90日亜慢性試験、経皮の NOEL 300 mg/kg/day	82
アフラトキシン B1	54	ヨーロッパ平均	ラットがんの BMDL01(0.014-0.171microg/kg 体重/日)	40
アクリロニトリル	58	喫煙者	ラット雄鼻粘膜細胞過形成	45
ホルムアルデヒド	58	喫煙者	ラット鼻限局性呼吸上皮角質化 雄微弱	45
イソプレン	58	中国で販売されているタバコの主流煙由来、平均		99
アフラトキシン B1	61	アフリカ クラスタ-J	ラットがんの BMDL05(0.069-0.250microg/kg 体重/日)	40
カルバミン酸エチル	62	スピリッツー日標準量1杯:最悪汚染	マウス経口投与肺胞腺腫の BMDL 0.3 mg/kg 体重/日	63
アフラトキシン B1	63	米国	ラットがんの BMDL05(0.069-0.250microg/kg 体重/日)	40
ホルムアルデヒド	63	喫煙者	マウス雄鼻腔扁平上皮化生	45
アセトアルデヒド	67	スピリッツー日標準量1杯:最悪汚染	ラット経口投与雄全がんの BMDL10である 56 mg/kg 体重/日	63
鉛	68	スピリッツー日標準量1杯:平均的汚染	ヒト心血管系影響の BMDL01の 0.0015mg/kg 体重/日	63

DEET	68	成人女性、40%の製品を使用、亜慢性毒性	ラット 90 日亜慢性試験、経皮の NOEL 300 mg/kg/day	82
アフラトキシン B1	69	ヨーロッパ平均	ラットがんの BMDL05(0.069-0.250microg/kg 体重/日)	40
鉛	70	その他アルコール 一日標準量 1 杯：平均的汚染	ヒト心血管系影響の BMDL01 の 0.0015mg/kg 体重/日	63
メチルオイゲノール	70	高摂取群	NTP ラット試験全腫瘍の BMDL05 の 4.3 mg/kg 体重/日	56
アフラトキシン B1	71	アフリカ	ラットがんの BMDL10(0.14-0.306microg/kg 体重/日)	40
DEHP	71	職業暴露、40 年間 暴露	マウスペルオキシソームの増殖 の NOEL 20 mg/kg/day	89
ホウ素	72	環境由来、男性	ラットの胎児の発育への影響の NOAEL 9.6 mg/kg/day	100
ホスフィンガス	72	労働暴露		59
ダイオキシン	73	日本の一般人	動物実験の内臓症の NOAEL37 pg/kg/day	8
テトラクロロエタン	73	母親がドライクリ ーニング溶媒に暴 露された母乳を飲 んでいる乳児	急性中毒の NOAEL 60 mg/kg/day	104
アフラトキシン B1	74	アフリカ クラスタ ーJ	ラットがんの BMDL05(0.069-0.250microg/kg 体重/日)	40
Sudan I	75	ドイツ	雄ラット肝細胞腺腫の BMDL01 の 1.157 mg/kg 体重/日、雌ラッ トの 0.780 mg/kg 体重/日	44
ダイオキシン	75	韓国一般成人	子宮内膜症	22
カルバミン酸エチル	78	その他アルコール 一日標準量 1 杯：最 悪汚染	マウス経口投与肺胞腺腫の BMDL 0.3 mg/kg 体重/日	63
ホルムアルデヒド	78	喫煙者	マウス雌鼻腔扁平上皮化生	45
ヒ素	79	ワイン一日標準量 4 杯：平均的汚染	ヒト肺がん（水由来）の BMDL0.5 の 0.003 mg/kg 体重/ 日	63
DEET	80	成人男性、40%の製	ラット 90 日亜慢性試験、経皮の	82

		品を使用、亜慢性毒性	NOEL 300 mg/kg/day	
アフラトキシン B1	80	一般人	BMDL10 0.00016 mg/kg/day	109
メチルオイゲノール	80	全ての食品由来	雄ラット肝細胞がんの BMDL 10 15.3-34.0 mg/kg/day	4
ヒ素	81	スピリッツー日標準量 4 杯:平均的汚染	ヒト肺がん (水由来) の BMDL0.5 の 0.003 mg/kg 体重/ 日	63
DEET	85	12 才未満の子ども、40%の製品を使用、急性毒性	ラット強制経口投与神経毒性の NOEL 200 mg/kg/day	82
ホルムアルデヒド	86	喫煙者	ラット鼻限局性呼吸上皮角質化 雌微弱	45
DEET	86	13-17 才、40%の製品を使用、慢性毒性	ラットがん原性試験雌雄の NOEL 100 mg/kg/day	82
ヒ素	87	ワインー日標準量 1 杯:最悪汚染	ヒト肺がん (水由来) の BMDL0.5 の 0.003 mg/kg 体重/ 日	63
カドミウム	87	スピリッツー日標準量 4 杯:最悪汚染	ヒト食品由来 NOAEL の 0.01 mg/kg 体重/日	63
カドミウム	87	その他アルコール 一日標準量 4 杯:最悪汚染	ヒト食品由来 NOAEL の 0.01 mg/kg 体重/日	63
ダイオキシン	88	日本の焼却場地域 住民	動物実験のがんの NOAEL 1000 pg/kg/day	8
ダイオキシン	88	日本の焼却場地域 住民	動物実験の生殖影響の NOAEL 1000 pg/kg/day	8
アフラトキシン B1	89	アフリカ クラスタ ーJ	ラットがんの BMDL10(0.14-0.306microg/kg 体重/日)	40
エストラゴール	90	全ての食品由来	雌マウス肝細胞がんの BMDL 10 3.3-6.5 mg/kg/day	4
ピカリジン	91	13-17 才、15%の製品を使用、亜慢性毒性	ラット 90 日亜慢性試験、経皮の NOEL 200 mg/kg/day	82
ピカリジン	91	13-17 才、15%の製品を使用、慢性毒性	ラット経皮がん原性試験の NOEL 200 mg/kg/day	82
塩化カドミウム	92	喫煙者	ラット雄類表皮がん	45
アフラトキシン B1	93	米国	ラットがんの BMDL10(0.14-0.306microg/kg	40

			体重/日)	
アセトアルデヒド	95	その他アルコール 一日標準量 1 杯:最 悪汚染	ラット経口投与雄全がんの BMDL10である 56 mg/kg 体重/ 日	63
ダイオキシン	95	米 国 95th ( 13.3 ppt )	ヒト 歯 の 欠 損 の BMD10 450-1300 ngTEQ/kg lipid	14
Sudan I	98	ヨーロッパ	雄ラット肝細胞腺腫の BMDL05 の 4.648 mg/kg 体重/日、雌ラッ トの 7.194 mg/kg 体重/日	44
酸化カドミウム	98	喫煙者	マウス雄肺胞上皮過形成	45
メチルオイゲノール	100	平均摂取	NTP ラット試験全腫瘍の BMDL01 の 0.87 mg/kg 体重/日	56
メチルオイゲノール	100	高摂取群	NTP ラット試験全腫瘍の BMDL10 の 7.9 mg/kg 体重/日	56
ロイコマラカイトグリー ン	100	高魚摂取群	NTP 雌マウス肝細胞腺腫とがん の合計の BMDL01 の 0.0047 mg/kg 体重/日	53
アフラトキシン B1	100	南アメリカ	ラ ッ ト が ん の BMDL01(0.014-0.171microg/kg 体重/日)	40
アフラトキシン B1	100	高 暴 露 地 域 ( 0.0000026 mg/kg/day )	ラット雄肝細胞がんの BMDL10 0.00025 mg/kg/day	38
メチルオイゲノール	100	高 摂 取 0.006 mg/kg/day	ラット雄肝細胞腺腫とがんの BMDL10 7.9 mg/kg/day	38
クロルピリホス(等有機リン系農薬)	100	サリナス溪谷の農 業従事妊娠女性の 85%th	コリンエステラーゼ活性が 10% 低下する BMD10 の 148 microg/kg/day	16
有機リン農薬合計	100	全ての食品からの 累積暴露	AChE の 20%阻害	86
ゲニステイン	100	西洋人の食事	子宮肥大試験尾の ED01-ED05	112
テトラクロロエタン	100	母親がドライクリ ーニング溶媒に暴 露された母乳を飲 んでいる乳児	経口参照用量 0.01 mg/kg/day	104
Sudan I	101	アマゾン & カリブ 海	雄ラット肝細胞腺腫の BMDL01 の 1.157 mg/kg 体重/日、雌ラッ トの 0.780 mg/kg 体重/日	44
アフラトキシン B1	102	ヨーロッパ平均	ラ ッ ト が ん の BMDL10(0.14-0.306microg/kg	40

			体重/日)	
ホルムアルデヒド	102	中国で販売されているタバコの主流煙由来、平均		99
アクリルアミド	103	米国 90th 暴露量 0.004 mg/kg 体重/ 日	ラットの傍精巣領域中皮腫の BMDL05 0.41 mg/kg 体重/日	49
ダイオキシン	104	日本の一般人	動物実験のがんの NOAEL 1000 pg/kg/day	8
ダイオキシン	104	日本の一般人	動物実験の生殖影響の NOAEL 1000 pg/kg/day	8
酸化カドミウム	104	喫煙者	ラット雌腸管膜リンパ節炎症	45
アフラトキシン B1	109	アフリカ クラスタ -J	ラットがんの BMDL10(0.14-0.306microg/kg 体重/日)	40
アクリルアミド	110	ビール一日標準量 4 杯：最悪汚染	マウス経口投与ハーダー腺腫瘍 BMDL10 の 0.18 mg/kg 体重/日	63
アセトアルデヒド	112	ワイン一日標準量 1 杯：最悪汚染	ラット経口投与雄全がんの BMDL10 である 56 mg/kg 体重/ 日	63
DEET	113	成人女性、40%の製 品を使用、慢性毒性	ラットがん原性試験雌雄の NOEL 100 mg/kg/day	82
1,3-ブタジエン	114	喫煙者	マウス雄 肺胞/気管支がんまたは腺腫	45
安息香酸	116	平均的マウスウォ ッシュを酒の代わ りに毎日 1 杯飲む	BMDL あるいは NOAEL	47
ホルムアルデヒド	119	喫煙者	ラット雄鼻扁平上皮がん	45
ピカリジン	121	成人女性、15%の製 品を使用、亜慢性毒 性	ラット 90 日亜慢性試験、経皮の NOEL 200 mg/kg/day	82
ピカリジン	121	成人女性、15%の製 品を使用、慢性毒性	ラット経皮がん原性試験の NOEL 200 mg/kg/day	82
酸化カドミウム	122	喫煙者	ラット雌気管支肺胞腺腫（ダス ト）	45
カドミウム	123	ビール一日標準量 1 杯：最悪汚染	ヒト食品由来 NOAEL の 0.01 mg/kg 体重/日	63
ダイオキシン	127	日本の焼却場地域 住民	動物実験のがんの NOAEL 1000 pg/kg/day	8
ダイオキシン	127	日本の焼却場地域 住民	動物実験の生殖影響の NOAEL 1000 pg/kg/day	8
ハウ素	129	環境由来、女性	ラットの胎児の発育への影響の	100

			NOAEL 9.6 mg/kg/day	
アクリルアミド	130	一般人	BMDL10 0.31 mg/kg/day	109
酸化カドミウム	131	喫煙者	ラット雄肺胞組織球浸潤	45
酸化カドミウム	131	喫煙者	ラット雌肺胞組織球浸潤	45
酸化カドミウム	131	喫煙者	ラット雄肺胞上皮化生	45
酸化カドミウム	131	喫煙者	ラット雌肺胞上皮化生	45
鉛	132	ビール一日標準量 1 杯：平均的汚染	ヒト心血管系影響の BMDL01 の 0.0015mg/kg 体重/日	63
DEET	133	成人男性、40%の製品を使用、慢性毒性	ラットがん原性試験雌雄の NOEL 100 mg/kg/day	82
塩化カドミウム	135	喫煙者	ラット雄気管支肺胞腺腫	45
シフルトリン	139	屋内スプレー経皮吸収、成人男性	急性毒性の NOAEL 0.07 mg/kg/day	72
ダイオキシン	140	米国メジアン (9.2 ppt)	ヒト歯の欠損の BMD10 450-1300 ngTEQ/kg lipid	14
カルバミン酸エチル	140	一般人	BMDL10 0.28 mg/kg/day	109
カドミウム	141	ワイン一日標準量 1 杯：最悪汚染	ヒト食品由来 NOAEL の 0.01 mg/kg 体重/日	63
カルバミン酸エチル	141	果物スピリッツ一日標準量 4 杯：平均的汚染	マウス経口投与肺胞腺腫の BMDL 0.3 mg/kg 体重/日	63
チモール	141	平均的マウスウォッシュを酒の代わりに毎日 1 杯飲む	BMDL あるいは NOAEL	47
ピカリジン	142	成人男性、15%の製品を使用、亜慢性毒性	ラット 90 日亜慢性試験、経皮の NOEL 200 mg/kg/day	82
ピカリジン	142	成人男性、15%の製品を使用、慢性毒性	ラット経皮がん原性試験の NOEL 200 mg/kg/day	82
アセトアルデヒド	143	喫煙者	ラット雄鼻腺がん	45
ビスフェノール A	149	ほ乳瓶でミルクを与えられている乳児	TDI 0.05 mg/kg/day	24
フラン	150	2 才以上ヨーロッパ高暴露群	雄ラット肝細胞がんの BMDL01 の 0.232 mg/kg 体重/日	42
パーフルオロオクタン酸	150	ヒト高暴露集団	マウス IgM 抗体合成抑制の BMDL 1.75 mg/kg	17
サリチル酸メチル	151	平均的マウスウォッシュを酒の代わ	BMDL あるいは NOAEL	47



		りに毎日1杯飲む		
Sudan I	154	ヨーロッパ	雄ラット肝細胞腺腫のBMDL10 の7.323 mg/kg 体重/日、雌ラッ トの15.91 mg/kg 体重/日	44
ホルムアルデヒド	154	喫煙者	ラット雌鼻扁平上皮がん	45
ホルムアルデヒド	154	喫煙者	ラット雄鼻扁平上皮がん	45
ヒ素	155	スピリッツー日標 準量1杯:最悪汚染	ヒト肺がん(水由来)の BMDL0.5の0.003 mg/kg 体重/ 日	63
アセトアルデヒド	156	ビールー日標準量1 杯:最悪汚染	ラット経口投与雄全がんの BMDL10である56 mg/kg 体重/ 日	63
ホルムアルデヒド	157	喫煙者	ラット雄鼻扁平上皮がん	45
ホルムアルデヒド	158	喫煙者	マウス雌気管扁平上皮化生	45
サフロール	159	リキュール/食前酒 ー日標準量4杯:最 悪汚染	マウス経口肝腫瘍の BMDL10 の3mg/kg 体重/日	63
アクリルアミド	160	米 国 平 均 暴 露 量 0.001 mg/kg 体重/ 日	雌ラットの乳腺腫瘍のBMDL10 0.16 mg/kg 体重/日	49
アフラトキシン B1	166	ビールー日標準量4 杯:最悪汚染	ヒト肝臓がん(食品由来)の BMDL10の0.00087 mg/kg 体重 /日	63
アセトアルデヒド	166	中国で販売されているタバコの主流煙由来、平均		99
アフラトキシン B1	167	アジア	ラ ッ ト が ん の BMDL01(0.014-0.171microg/kg 体重/日)	40
アフラトキシン B1	167	南アメリカ	ラ ッ ト が ん の BMDL01(0.014-0.171microg/kg 体重/日)	40
リモネン	169	化粧品の使用によ る経皮吸収	NTP マウス試験 NOAEL、有害 影響は肝細胞巨大細胞 250 mg/kg	73
DEET	171	13-17才、40%の製 品を使用、急性毒性	ラット強制経口投与神経毒性の NOEL 200 mg/kg/day	82
アセトアルデヒド	174	ワインー日標準量4 杯:平均的汚染	ラット経口投与雄全がんの BMDL10である56 mg/kg 体重/ 日	63
酸化カドミウム	175	喫煙者	マウス雌肺炎症	45
カルバミン酸エチル	176	ワインー日標準量4	マウス経口投与肺胞腺腫の	63

		杯：最悪汚染	BMDL 0.3 mg/kg 体重/日	
アフラトキシン B1	183	ヨーロッパ平均	ラットがんの BMDL05(0.069-0.250microg/kg 体重/日)	40
ホルムアルデヒド	186	喫煙者	マウス雄喉頭扁平上皮化生	45
アセトアルデヒド	187	喫煙者	動物での総がん BMDL 56 mg/kg/day	1
酸化カドミウム	191	喫煙者	ラット雄気道リンパ節炎症	45
カドミウム	196	中国で販売されているタバコの主流煙由来、平均		99
酸化カドミウム	197	喫煙者	マウス雄肺繊維症	45
ホルムアルデヒド	198	喫煙者	マウス雌喉頭扁平上皮化生	45
カルバミン酸エチル	200	アルコールも含む	マウス経口投与肺胞腫瘍の BMDL01 の 0.016 mg/kg 体重/日	54
アクリルアミド	200	平均推定摂取量 ( 0.001 mg/kg/day )	ラット雌乳腺腫瘍の BMDL10 0.16 mg/kg/day	38
SudanI	200	欧州最大 0.0475 mg/kg/day	ラット雄肝細胞腺腫の BMDL10 7.32 mg/kg/day	38
ピリミホスメチル	200	全ての食品からの累積暴露	AChE の 20%阻害	86
メチルオイゲノール	200	全ての食品由来	雄ラット肝細胞がんの BMDL 10 15.3-34.0 mg/kg/day	4
DEHP	202	血液透析、一生のうち 15 年	マウスペルオキシソームの増殖の NOEL 20 mg/kg/day	89
カルバミン酸エチル	209	その他アルコール 一日標準量 4 杯：平均的汚染	マウス経口投与肺胞腺腫の BMDL 0.3 mg/kg 体重/日	63
アセトアルデヒド	217	その他アルコール 一日標準量 4 杯：平均的汚染	ラット経口投与雄全がんの BMDL10 である 56 mg/kg 体重/日	63
PCB77,105,126,153,156	220	女性 P5	肝レチノイドの低下、各化合物により違う	94
酸化カドミウム	224	喫煙者	マウス雌肺繊維症	45
DEET	227	成人女性、40%の製品を使用、急性毒性	ラット強制経口投与神経毒性の NOEL 200 mg/kg/day	82
フラン	230	乳児米国高暴露群	雄ラット肝細胞がんの BMDL01 の 0.232 mg/kg 体重/日	42
フラン	230	乳児ヨーロッパ高暴露群	雄ラット肝細胞がんの BMDL01 の 0.232 mg/kg 体重/日	42

アクリロニトリル	230	喫煙者	ラット雄鼻甲介過形成	45
ダイオキシン	234	日本の魚を多く食べる人	動物実験のがんの NOAEL 1000 pg/kg/day	8
ダイオキシン	234	日本の魚を多く食べる人	動物実験の生殖影響の NOAEL 1000 pg/kg/day	8
アクリロニトリル	244	喫煙者	ラット雌鼻甲介炎症	45
アクリルアミド	250	米国 90th 暴露量 0.004 mg/kg 体重/日	ラットの傍精巣領域中皮腫の BMDL10 1.00 mg/kg 体重/日	49
アフラトキシン B1	250	一般人	T25 0.0005 mg/kg/day	109
カテコール	251	中国で販売されているタバコの主流煙由来、平均		99
酸化カドミウム	257	喫煙者	マウス雄肺炎症	45
ホルムアルデヒド	259	喫煙者	マウス雄気管扁平上皮化生	45
DEET	266	成人男性、40%の製品を使用、急性毒性	ラット強制経口投与神経毒性の NOEL 200 mg/kg/day	82
酸化カドミウム	268	喫煙者	ラット雄肺繊維症	45
酸化カドミウム	268	喫煙者	ラット雌肺繊維症	45
酸化カドミウム	268	喫煙者	マウス雌肺胞上皮過形成	45
アフラトキシン B1	269	ヨーロッパ平均	ラットがんの BMDL10(0.14-0.306microg/kg 体重/日)	40
アセトアルデヒド	274	ビール一日標準量 4 杯：平均的汚染	ラット経口投与雄全がんの BMDL10 である 56 mg/kg 体重/日	63
アクリルアミド	280	一般人	T25 0.65 mg/kg/day	109
アセトアルデヒド	296	スピリッツ一日標準量 4 杯：平均的汚染	ラット経口投与雄全がんの BMDL10 である 56 mg/kg 体重/日	63
フラン	300	2 才以上ヨーロッパ平均	雄ラット肝細胞がんの BMDL01 の 0.232 mg/kg 体重/日	42
アクリルアミド	300	高摂取 ( 0.004 mg/kg/day )	ラット雄精巣周囲中皮腫の BMDL10 1.0mg/kg/day	38
オメトエート	300	全ての食品からの累積暴露	AChE の 20%阻害	86
アジンホスメチル	300	全ての食品からの累積暴露	AChE の 20%阻害	86
メチルオイゲノール	300	全ての食品由来	雌ラット肝細胞がんの BMDL 10 48.8-73.6 mg/kg/day	4
1,4-ジオキサン	300	日本人、工場近傍住	吸入の NOAEL 25 mg/kg/day	25

		人、吸入暴露、工場 A		
酸化カドミウム	301	喫煙者	マウス雄鼻嗅上皮変性	45
Sudan I	302	ドイツ	雄ラット肝細胞腺腫の BMDL05 の 4.648 mg/kg 体重/日、雌ラッ トの 7.194 mg/kg 体重/日	44
アセトアルデヒド	311	食品の香料	動物での総がん BMDL 56 mg/kg/day	1
ヒ素	317	ワインー日標準量 1 杯：平均的汚染	ヒト肺がん（水由来）の BMDL0.5 の 0.003 mg/kg 体重/ 日	63
ヒ素	322	スピリッツー日標 準量 1 杯：平均的汚 染	ヒト肺がん（水由来）の BMDL0.5 の 0.003 mg/kg 体重/ 日	63
イソプレン	325	喫煙者	マウス鼻甲介鼻上皮変性	45
酸化カドミウム	328	喫煙者	ラット雄腸管膜リンパ節炎症	45
酸化カドミウム	328	喫煙者	ラット雄鼻呼吸上皮炎症	45
酸化カドミウム	328	喫煙者	ラット雌鼻呼吸上皮炎症	45
アセトアルデヒド	329	受動喫煙	動物での総がん BMDL 56 mg/kg/day	1
4-(メチルニトロソアミノ -1-(3-ピリジル)-1-ブタノ ン (NNK)	338	喫煙者	ラット雄肺腫瘍 飲水投与	45
アフラトキシン B1	340	南アメリカ	ラットがんの BMDL05(0.069-0.250microg/kg 体重/日)	40
フラン	346	ベルギーベビーフ ード、2.5%th	肝細胞腺腫とがんの BMDL10 0.96 mg/kg/day	31
カドミウム	349	スピリッツー日標 準量 1 杯：最悪汚染	ヒト食品由来 NOAEL の 0.01 mg/kg 体重/日	63
カドミウム	349	その他アルコール ー日標準量 1 杯：最 悪汚染	ヒト食品由来 NOAEL の 0.01 mg/kg 体重/日	63
アセトアルデヒド	350	食品の香料	動物での総がん BMDL 56 mg/kg/day	1
ホルムアルデヒド	364	スピリッツー日標 準量 4 杯：最悪汚染	ラット経口口腔消化器粘膜の組 織学的変化の NOEL の 15 mg/kg 体重/日	63
ダイオキシン	365	韓国一般成人	がん	22
オクラトキシン A	377	ワインー日標準量 4	ラット経口腎腺腫およびがんの	63

		杯：最悪汚染	BMDL10 の 0.025 mg/kg 体重/日	
ユーカリプトール	383	平均的マウスウォッシュを酒の代わりに毎日 1 杯飲む	BMDL あるいは NOAEL	47
カルバミン酸エチル	400	ビール一日標準量 4 杯：最悪汚染	マウス経口投与肺胞腺腫の BMDL 0.3 mg/kg 体重/日	63
メチルオイゲノール	400	平均摂取	NTP ラット試験全腫瘍の BMDL05 の 4.3 mg/kg 体重/日	56
フラン	400	2 才以上米国高暴露群	雄ラット肝細胞がんの BMDL01 の 0.232 mg/kg 体重/日	42
フラン	400	2 才以上ヨーロッパ高暴露群	雄ラット肝細胞がんの BMDL05 の 0.729 mg/kg 体重/日	42
カルバミン酸エチル	400	スピリッツを飲むブラジル人	マウス経口投与肺胞腺腫の BMDL 0.3 mg/kg 体重/日	3
フェンチオン	400	全ての食品からの累積暴露	AChE の 20%阻害	86
ジクロールボス	400	全ての食品からの累積暴露	AChE の 20%阻害	86
メチルオイゲノール	400	全ての食品由来	雌ラット肝細胞がんの BMDL 10 48.8-73.6 mg/kg/day	4
ホルムアルデヒド	402	喫煙者	マウス雌気管支扁平上皮化生	45
Sudan I	404	アマゾン & カリブ海	雄ラット肝細胞腺腫の BMDL05 の 4.648 mg/kg 体重/日、雌ラットの 7.194 mg/kg 体重/日	44
アクリルアミド	410	米国平均暴露量 0.001 mg/kg 体重/日	ラットの傍精巣領域中皮腫の BMDL05 0.41 mg/kg 体重/日	49
酸化カドミウム	426	喫煙者	マウス雌鼻嗅上皮変性	45
アセトアルデヒド	437	喫煙者	ラット雌鼻腔腺がん	45
アクリルアミド	440	ビール一日標準量 1 杯：最悪汚染	マウス経口投与ハーダー腺腫瘍 BMDL10 の 0.18 mg/kg 体重/日	63
ピカリジン	451	12 才未満の子ども、15%の製品を使用、急性毒性	急性毒性試験の最高量 2000 mg/kg/day (有害影響観察できなかった)	82
5-ヒドロキシメチルフルフラール	465	欧州アルコール飲料由来	雌マウス鼻上皮化生の BMDL10 79 mg/kg 体重/日	20
Sudan I	476	ドイツ	雄ラット肝細胞腺腫の BMDL10 の 7.323 mg/kg 体重/日、雌ラットの 15.91 mg/kg 体重/日	44

カドミウム	489	ビール一日標準量4杯：平均的汚染	ヒト食品由来 NOAEL の 0.01 mg/kg 体重/日	63
アセトアルデヒド	498	アルコール由来、平均 0.112 mg/kg/day	動物での総がん BMDL 56 mg/kg/day	1
アフラトキシン B1	500	南アメリカ	ラットがんの BMDL10(0.14-0.306microg/kg 体重/日)	40
SudanI	500	ドイツ最大 0.0154 mg/kg/day	ラット雄肝細胞腺腫の BMDL10 7.32 mg/kg/day	38
カルバミン酸エチル	500	一般人	T25 1.0 mg/kg/day	109
Sudan I	510	フランス	雄ラット肝細胞腺腫の BMDL01 の 1.157 mg/kg 体重/日、雌ラットの 0.780 mg/kg 体重/日	44
酸化カドミウム	525	喫煙者	ラット雄肺炎症	45
酸化カドミウム	525	喫煙者	ラット雌肺炎症	45
ベンゼン	552	中国で販売されているタバコの主流煙由来、平均		99
DEHP	556	輸液、高頻度、1-2年	マウスペルオキシソームの増殖の NOEL 20 mg/kg/day	89
ダイオキシン	559	日本の一般人	動物実験のがんの NOAEL 1000 pg/kg/day	8
ダイオキシン	559	日本の一般人	動物実験の生殖影響の NOAEL 1000 pg/kg/day	8
カルバミン酸エチル	563	果物スピリッツー日標準量1杯：平均的汚染	マウス経口投与肺胞腺腫の BMDL 0.3 mg/kg 体重/日	63
アフラトキシン B1	567	南アメリカ	ラットがんの BMDL05(0.069-0.250microg/kg 体重/日)	40
PCB77,105,126,153,156	570	男性 P5	肝レチノイドの低下、各化合物により違う	94
ダイオキシン	576	韓国一般成人	生殖影響	22
Sudan I	579	アマゾン & カリブ海	雄ラット肝細胞腺腫の BMDL01 の 1.157 mg/kg 体重/日、雌ラットの 0.780 mg/kg 体重/日	44
カドミウム	581	スピリッツー日標準量4杯：平均的汚染	ヒト食品由来 NOAEL の 0.01 mg/kg 体重/日	63
フラン	600	乳児米国平均	雄ラット肝細胞がんの BMDL01 の 0.232 mg/kg 体重/日	42

アフラトキシン B1	600	低 暴 露 地 域 ( 0.0000004 mg/kg/day )	ラット雄肝細胞がんの BMDL10 0.00025 mg/kg/day	38
SudanI	600	アマゾンカリブ最 大 0.0115 mg/kg/day	ラット雄肝細胞腺腫の BMDL10 7.32 mg/kg/day	38
カドミウム	600	フランスゴミ焼却 炉排気、50%th	ガイドライン値	101
酸化カドミウム	601	喫煙者	マウス雄鼻嗅上皮呼吸上皮化生	45
サフロール	634	リキュール/食前酒 一日標準量 1 杯:最 悪汚染	マウス経口肝腫瘍の BMDL10 の 3mg/kg 体重/日	63
サッカリン	636	平均的マウスウォ ッシュを酒の代わ りに毎日 1 杯飲む	BMDL あるいは NOAEL	47
Sudan I	637	アマゾン & カリブ 海	雄ラット肝細胞腺腫の BMDL10 の 7.323 mg/kg 体重/日、雌ラッ トの 15.91 mg/kg 体重/日	44
1,3-ブタジエン	640	喫煙者	マウス雌肺胞/気管支新生物	45
アフラトキシン B1	640	一般人	BMDL10 0.00016 mg/kg/day	109
クロム	646	中国で販売されているタバコの主流煙由来、平均		99
m/p クレゾール	648	喫煙者	マウス雌肺気管支過形成	45
カルバミン酸エチル	655	スピリッツを飲む メキシコ人	マウス経口投与肺胞腺腫の BMDL 0.3 mg/kg 体重/日	64
PAH8	656	フラッシュ	BMDL10 0.49 mg/kg 体重/日 ( EFSA )	15
アフラトキシン B1	666	ビール一日標準量 1 杯:最悪汚染	ヒト肝臓がん(食品由来)の BMDL10 の 0.00087 mg/kg 体重 /日	63
DEHP	667	一般人の食事由来	マウスペルオキシソームの増殖 の NOEL 20 mg/kg/day	89
ラムダシハロトリン	677	殺虫剤練り込み蚊 帳	急性毒性 NOAEL 0.04 mg/kg/day	72
アセトアルデヒド	693	喫煙者	ラット雌喉頭扁平上皮化生	45
アセトアルデヒド	696	ワイン一日標準量 1 杯:平均的汚染	ラット経口投与雄全がんの BMDL10 である 56 mg/kg 体重/ 日	63
フラン	700	乳児米国高暴露群	雄ラット肝細胞がんの BMDL05 の 0.729 mg/kg 体重/日	42
フラン	700	乳児ヨーロッパ高	雄ラット肝細胞がんの BMDL05	42

		暴露群	の 0.729 mg/kg 体重/日	
カルバミン酸エチル	704	ワイン一日標準量 1 杯：最悪汚染	マウス経口投与肺胞腺腫の BMDL 0.3 mg/kg 体重/日	63
オクラトキシン A	733	ビール一日標準量 4 杯：最悪汚染	ラット経口腎腺腫およびがんの BMDL10 の 0.025 mg/kg 体重/日	63
アセトアルデヒド	746	受動喫煙	動物での総がん BMDL 56 mg/kg/day	1
フラン	750	欧州成人高摂取群	雄ラット肝細胞がんの BMDL10 の 1.28 mg/kg 体重/日	77
フラン	750	2才以上ヨーロッパ高暴露群	雄ラット肝細胞がんの BMDL10 の 1.277 mg/kg 体重/日	42
1,3-ブタジエン	752	喫煙者	マウス雄肺胞/気管支上皮過形成	45
アクリルアミド	760	一般人	BMDL10 0.31 mg/kg/day	109
酸化カドミウム	765	喫煙者	ラット雌鼻嗅上皮変性	45
酸化カドミウム	765	喫煙者	マウス雄呼吸上皮ヒアリン滴	45
酸化カドミウム	765	喫煙者	マウス雌呼吸上皮ヒアリン滴	45
フラン	769	店のコーヒー由来 16-18 才の男性、摂取量 P95 コーヒー中濃度 P95	BMDL10 1.28mg/kg/day	33
ホルムアルデヒド	780	その他アルコール一日標準量 4 杯：最悪汚染	ラット経口口腔消化器粘膜の組織学的変化の NOEL の 15 mg/kg 体重/日	63
アクリロニトリル	790	喫煙者	マウス雌肺がん	45
メントール	799	平均的マウスウォッシュを酒の代わりに毎日 1 杯飲む	BMDL あるいは NOAEL	47
メチルオイゲノール	800	平均摂取	NTP ラット試験全腫瘍の BMDL10 の 7.9 mg/kg 体重/日	56
フラン	800	2 才以上米国平均	雄ラット肝細胞がんの BMDL01 の 0.232 mg/kg 体重/日	42
フラン	800	乳児ヨーロッパ平均	雄ラット肝細胞がんの BMDL01 の 0.232 mg/kg 体重/日	42
メチルオイゲノール	800	平均摂取 0.01 mg/kg/day	ラット雄肝細胞腺腫とがんの BMDL10 7.9 mg/kg/day	38
メチダチオン	800	全ての食品からの累積暴露	AChE の 20%阻害	86
フラン	817	ベルギーベビーフード、中央値	肝細胞腺腫とがんの BMDL10 0.96 mg/kg/day	31



アフラトキシン B1	833	アジア	ラットがんの BMDL10(0.14-0.306microg/kg 体重/日)	40
アフラトキシン B1	833	南アメリカ	ラットがんの BMDL10(0.14-0.306microg/kg 体重/日)	40
カルバミン酸エチル	837	その他アルコール 一日標準量 1 杯:平 均的汚染	マウス経口投与肺胞腺腫の BMDL 0.3 mg/kg 体重/日	63
ホスフィンガス	855	労働暴露		59
アセトアルデヒド	868	その他アルコール 一日標準量 1 杯:平 均的汚染	ラット経口投与雄全がんの BMDL10である 56 mg/kg 体重/ 日	63
フラン	900	2才以上ヨーロッパ 平均	雄ラット肝細胞がんの BMDL05 の 0.729 mg/kg 体重/日	42
ホスメット	900	全ての食品からの 累積暴露	AChE の 20%阻害	86
Sudan I	904	中央アフリカ	雄ラット肝細胞腺腫の BMDL01 の 1.157 mg/kg 体重/日、雌ラッ トの 0.780 mg/kg 体重/日	44
1,3-ブタジエン	905	喫煙者	マウス雄肺胞/気管支新生物	45
ピカリジン	912	13-17 才、15%の製 品を使用、急性毒性	急性毒性試験の最高量 2000 mg/kg/day (有害影響観察できな った)	82
酸化カドミウム	929	喫煙者	ラット雄鼻嗅上皮変性	45
フラン	953	9ヶ月 95%th	T25 1.4mg/kg/day	29
4-(メチルニトロソアミノ -1-(3-ピリジル)-1-ブタノ ン (NNK)	973	喫煙者	ラット雄肺腫瘍 皮下投与	45
N-ニトロソジメチルアミ ン	981	ビール一日標準量 4 杯:最悪汚染	経口総肝腫瘍の BMDL10 の 0.029 mg/kg 体重/日	63
フラン	997	6ヶ月 95%th	T25 1.4mg/kg/day	29
フラン	1000	欧州乳児高摂取群	雄ラット肝細胞がんの BMDL10 の 1.28 mg/kg 体重/日	77
ロイコマラカイトグリー ン	1000	平均的魚摂取群	NTP 雌マウス肝細胞腺腫とがん の合計の BMDL01 の 0.0047mg/kg 体重/日	53
フラン	1000	乳児米国高暴露群	雄ラット肝細胞がんの BMDL10 の 1.277 mg/kg 体重/日	42
フラン	1000	乳児ヨーロッパ高	雄ラット肝細胞がんの BMDL10	42

		暴露群	の 1.277 mg/kg 体重/日	
アクリルアミド	1000	米国平均暴露量 0.001 mg/kg 体重/ 日	ラットの傍精巣領域中皮腫の BMDL10 1.00 mg/kg 体重/日	49
アクリルアミド	1000	平均推定摂取量 ( 0.001 mg/kg/day )	ラット雄精巣周囲中皮腫の BMDL10 1.0mg/kg/day	38
フラン	1000	0-1 才 90%tile ( 0.001 mg/kg/day )	ラット雄肝細胞腺腫とがんの BMDL10 1.28 mg/kg/day	38
クロルピリホス	1000	全ての食品からの 累積暴露	AChE の 20%阻害	86
クロルピリホス	1000	米国	動物での AChE 阻害	12
アセトアルデヒド	1022	喫煙者	ラット雄喉頭扁平上皮化生	45
カルバミン酸エチル	1050	アルコールを含ま ない	マウス経口投与肺胞腫瘍の BMDL01 の 0.016 mg/kg 体重/ 日	54
カドミウム	1056	ワイン一日標準量 4 杯：平均的汚染	ヒト食品由来 NOAEL の 0.01 mg/kg 体重/日	63
アセトアルデヒド	1095	ビール一日標準量 1 杯：平均的汚染	ラット経口投与雄全がんの BMDL10 である 56 mg/kg 体重/ 日	63
カルバミン酸エチル	1125	スピリッツ一日標 準量 4 杯：平均的汚 染	マウス経口投与肺胞腺腫の BMDL 0.3 mg/kg 体重/日	63
アセトアルデヒド	1131	喫煙者	ラット雌鼻扁平上皮化生	45
フラン	1164	ベルギー成人、食事 90%th	肝細胞腺腫とがんの BMDL10 0.96 mg/kg/day	30
フラン	1172	12 ヶ月 95%th	T25 1.4mg/kg/day	29
アセトアルデヒド	1181	喫煙者	ラット雌喉頭化生を伴う変性	45
アセトアルデヒド	1184	スピリッツ一日標 準量 1 杯：平均的汚 染	ラット経口投与雄全がんの BMDL10 である 56 mg/kg 体重/ 日	63
アセトアルデヒド	1187	喫煙者	ラット雄鼻化生を伴う変性	45
アセトアルデヒド	1197	喫煙者	ラット雄喉頭化生を伴う変性	45
フラン	1200	欧州 9 ヶ月乳児高 摂取量	雄ラット肝細胞がんの BMDL10 の 1.28 mg/kg 体重/日	75
フラン	1200	2 才以上米国高暴露 群	雄ラット肝細胞がんの BMDL05 の 0.729 mg/kg 体重/日	42
ピカリジン	1209	成人女性、15%の製	急性毒性試験の最高量 2000	82

		品を使用、急性毒性	mg/kg/day (有害影響観察できなかった)	
アセトアルデヒド	1264	喫煙者	ラット雌鼻化生を伴う変性	45
アセトアルデヒド	1268	喫煙者	ラット雄鼻扁平上皮がん	45
アセトアルデヒド	1338	喫煙者	ラット雄気道化生を伴う変性	45
BaP	1346	ナイジェリア燻製/ グ リ ル 魚 / 肉 Mudfish 100g 市販 品	BMDL10 0.07 mg/kg /day(EFSA)	27
アンモニア	1373	中国で販売されているタバコの主流煙由来、平均		99
カルバミン酸エチル	1375	アルコールも含む	マウス経口投与肺胞腫瘍の BMDL05 の 0.107 mg/kg 体重/ 日	54
ホルムアルデヒド	1378	ワイン一日標準量4 杯：最悪汚染	ラット経口口腔消化器粘膜の組 織学的変化の NOEL の 15 mg/kg 体重/日	63
ヒ素	1378	中国で販売されているタバコの主流煙由来、平均		99
PCB77,105,126,153,156	1380	女性 P50	肝レチノイドの低下、各化合物 により違う	94
ピカリジン	1418	成人男性、15%の製 品を使用、急性毒性	急性毒性試験の最高量 2000 mg/kg/day (有害影響観察できな った)	82
ダイオキシン	1425	韓国一般成人	がん	22
フラン	1429	欧州 12 ヶ月乳児高 摂取量	雄ラット肝細胞がんの BMDL10 の 1.28 mg/kg 体重/日	75
ホルムアルデヒド	1457	スピリッツ一日標 準量 1 杯：最悪汚染	ラット経口口腔消化器粘膜の組 織学的変化の NOEL の 15 mg/kg 体重/日	63
アセトアルデヒド	1469	喫煙者	ラット雌気道化生を伴う変性	45
酸化カドミウム	1476	喫煙者	ラット雌鼻嗅上皮化生	45
m/p クレゾール	1500	喫煙者	ラット雄鼻杯細胞過形成	45
フラン	1508	ビール一日標準量4 杯：最悪汚染	マウス経口肝細胞腺腫の BMDL10 の 0.96 mg/kg 体重/日	63
オクラトキシン A	1509	ワイン一日標準量1 杯：最悪汚染	ラット経口腎腺腫およびがんの BMDL10 の 0.025 mg/kg 体重/ 日	63
キノリン	1528	中国で販売されているタバコの主流煙由来、平均		99
ピリジン	1552	中国で販売されているタバコの主流煙由来、平均		99
フラン	1555	コーヒー由来 16-18	BMDL10 1.28mg/kg/day	33

		才の男性、摂取量 P95 コーヒー中濃 度 P95		
フラン	1584	店のコーヒー由来 16-18 才の男性、摂 取量 P95 コーヒー 中濃度平均	BMDL10 1.28mg/kg/day	33
カルバミン酸エチル	1600	ビール一日標準量 1 杯：最悪汚染	マウス経口投与肺胞腺腫の BMDL 0.3 mg/kg 体重/日	63
フラン	1600	欧州成人平均	雄ラット肝細胞がんの BMDL10 の 1.28 mg/kg 体重/日	77
フラン	1600	2 才以上ヨーロッパ 平均	雄ラット肝細胞がんの BMDL10 の 1.277 mg/kg 体重/日	42
アクリルアミド	1600	一般人	T25 0.65 mg/kg/day	109
フラン	1609	欧州 6 ヶ月乳児高 摂取量	雄ラット肝細胞がんの BMDL10 の 1.28 mg/kg 体重/日	75
4-(メチルニトロソアミノ -1-(3-ピリジル)-1-ブタノ ン (NNK)	1685	喫煙者	ラット雄鼻腫瘍 皮下投与	45
カルバミン酸エチル	1800	1 日 100mL のスピ リッツ(テキーラな ど) 汚染濃度 P90	マウス経口投与肺胞腺腫の BMDL 0.3 mg/kg 体重/日	64
フラン	1800	乳児米国平均	雄ラット肝細胞がんの BMDL05 の 0.729 mg/kg 体重/日	42
PaH8	1816	ナイジェリア燻製/ グ リ ル 魚 / 肉 Mudfish 100g 市販 品	BMDL10 0.49 mg/kg 体重/日 (EFSA)	27
フラン	1861	欧州 9 ヶ月乳児平 均	雄ラット肝細胞がんの BMDL10 の 1.28 mg/kg 体重/日	75
4-(メチルニトロソアミノ -1-(3-ピリジル)-1-ブタノ ン (NNK)	1881	喫煙者	ラット雄鼻腫瘍 飲水投与	45
ナフタレン	1900	米国平均推定	理論的発がん BMDL1.8 mg/kg/day or mg/m3	117
サフロール	1900	コーラ風味ソフト ドリンク由来、英国 1-4 才	動物での腫瘍発生の BMDL10 1.9-5.1 mg/kg/day	51
カドミウム	1955	ビール一日標準量 1 杯：平均的汚染	ヒト食品由来 NOAEL の 0.01 mg/kg 体重/日	63

ベンゾ[a]ピレンと多環芳香族炭化水素	2000	平均	マウス総腫瘍の BMDL01 の 0.016 mg/kg 体重/日	39
フラン	2000	20歳以上90%tile (0.001 mg/kg/day)	ラット雄肝細胞腺腫とがんの BMDL10 1.28 mg/kg/day	38
ジメトエート	2000	全ての食品からの累積暴露	AChE の 20%阻害	86
アフラトキシン B1	2000	一般人	T25 0.0005 mg/kg/day	109
エストラゴール	2000	スパイス、食品、エッセンシャルオイル	雌マウス肝細胞がんの BMDL10 3.3-6.5 mg/kg/day をエレミシンのデータで補正した 36.3-71.5	4
メチルオイゲノール	2000	スパイス、食品、エッセンシャルオイル	雄ラット肝細胞がんの BMDL10 15.3-34.0 mg/kg/day をエレミシンのデータで補正した 30.6-68.0	4
イソプレン	2010	喫煙者	マウス雄肺胞/気管支腺がん	45
アルファシペルメトリン	2021	屋内スプレー経皮吸収、成人男性	急性毒性 NOEL 2.7 mg/kg/day	72
Sudan I	2048	フランス	雄ラット肝細胞腺腫の BMDL05 の 4.648 mg/kg 体重/日、雌ラットの 7.194 mg/kg 体重/日	44
フラン	2082	店のコーヒー由来 16-18 歳の男性、摂取量メジアンコーヒー中濃度 P95	BMDL10 1.28mg/kg/day	33
フラン	2100	20歳以上米国高暴露群	雄ラット肝細胞がんの BMDL10 の 1.277 mg/kg 体重/日	42
BaP	2218	ナイジェリア燻製/グリル魚/肉 Croaker 100g 市販品	BMDL10 0.07 mg/kg /day(EFSA)	27
フラン	2221	欧州 12 ヶ月乳児平均	雄ラット肝細胞がんの BMDL10 の 1.28 mg/kg 体重/日	75
エチレンオキシド	2239	喫煙者	マウス雄肺胞/気管支がんまたは腺腫	45
フラン	2244	3 ヶ月 95%th 54 microg/kg 食品	T25 1.4mg/kg/day	29
イソプレン	2273	喫煙者	マウス雄肺胞/気管支腺腫	45
メタミドホス	2292	ジャガイモ畑に散	NOEL 1100 microg/m3	71

		布した近くに住む 子ども、急性吸入		
1,3-ブタジエン	2296	喫煙者	マウス雌気管支腺腫またはがん	45
Sudan I	2324	アマゾン & カリブ 海	雄ラット肝細胞腺腫の BMDL05 の 4.648 mg/kg 体重/日、雌ラッ トの 7.194 mg/kg 体重/日	44
カドミウム	2326	スピリッツー日標 準量 1 杯:平均的汚 染	ヒト食品由来 NOAEL の 0.01 mg/kg 体重/日	63
PaH8	2338	ナイジェリア燻製/ グリル魚 / 肉 Croaker 100g 市販 品	BMDL10 0.49 mg/kg 体重/日 (EFSA)	27
フラン	2400	2 才以上米国平均	雄ラット肝細胞がんの BMDL05 の 0.729 mg/kg 体重/日	42
フラン	2400	乳児ヨーロッパ平 均	雄ラット肝細胞がんの BMDL05 の 0.729 mg/kg 体重/日	42
フラン	2458	欧州 6 ヶ月乳児平 均	雄ラット肝細胞がんの BMDL10 の 1.28 mg/kg 体重/日	75
カルバミン酸エチル	2466	スピリッツを飲む ブラジル人	マウス経口投与肺胞腺腫の BMDL 0.3 mg/kg 体重/日	3
DEHP	2500	室内空気からの吸 入	雄ラット弱い肝壊死 BMDL10 3.7 mg/kg/day	121
ベンゼン	2639	ビールー日標準量 4 杯:最悪汚染	ヒトリンパ球数(吸入から経口 に換算)の BMDL10 の 1.2 mg/kg 体重/日	63
スチレン	2644	中国で販売されているタバコの主流煙由来、平均		99
シフルトリン	2664	殺虫剤練り込み蚊 帳	急性毒性の NOAEL 0.07 mg/kg/day	72
1,3-ブタジエン	2773	喫煙者	マウス雌気管支腺腫	45
サフロール	2800	コーラ風味ソフト ドリンク由来、英国 4-18 才	動物での腫瘍発生の BMDL10 1.9-5.1 mg/kg/day	51
ペルメトリン	2830	殺虫剤練り込み蚊 帳、高用量	急性毒性 NOEL 11 mg/kg/day	72
フラン	2858	9 ヶ月中央値	T25 1.4mg/kg/day	29
オクラトキシン A	2933	ビールー日標準量 1 杯:最悪汚染	ラット経口腎腺腫およびがんの BMDL10 の 0.025 mg/kg 体重/ 日	63
PCB77,105,126,153,156	2970	男性 P50	肝レチノイドの低下、各化合物	94

			により違う	
フラン	2991	6ヶ月中央値	T25 1.4mg/kg/day	29
フラン	3000	乳児米国平均	雄ラット肝細胞がんのBMDL10 の 1.277 mg/kg 体重/日	42
カルバミン酸エチル	3000	アルコール飲料込み ( 0.00008 mg/kg/day )	マウス雌雄肺胞/気管支腺腫とが んの合計の BMDL10 0.25 mg/kg/day	38
フラン	3000	0-1才平均(0.0004 mg/kg/day)	ラット雄肝細胞腺腫とがんの BMDL10 1.28 mg/kg/day	38
SudanI	3000	フランス最大 0.00227 mg/kg/day	ラット雄肝細胞腺腫のBMDL10 7.32 mg/kg/day	38
サフロール	3000	コーラ風味ソフト ドリンク由来、アイ ルランド 1-4 才	動物での腫瘍発生の BMDL10 1.9-5.1 mg/kg/day	51
NNK	3038	中国で販売されているタバコ の主流煙由来、平均		99
ラムダシハロトリン	3085	殺虫剤練り込み蚊 帳	慢性毒性 NOAEL 0.04 mg/kg/day	72
ホルムアルデヒド	3119	その他アルコール 一日標準量 1 杯:最 悪汚染	ラット経口口腔消化器粘膜の組 織学的変化の NOEL の 15 mg/kg 体重/日	63
カルバミン酸エチル	3125	アルコールも含む	マウス経口投与肺胞腫瘍の BMDL10 の 0.254 mg/kg 体重/ 日	54
イソブレン	3266	喫煙者	マウス雄肺胞上皮過形成	45
硫酸カドミウム	3283	喫煙者	ラット雌気管支肺胞腺腫	45
N-ニトロソノルニコチン (NNN)	3295	喫煙者	ラット雄鼻腫瘍 皮下投与	45
Sudan I	3326	フランス	雄ラット肝細胞腺腫のBMDL10 の 7.323 mg/kg 体重/日、雌ラッ トの 15.91 mg/kg 体重/日	44
フラン	3515	12ヶ月中央値	T25 1.4mg/kg/day	29
カルバミン酸エチル	3600	1日50mLのスピリ ッツ(テキーラな ど)汚染濃度 P90	マウス経口投与肺胞腺腫の BMDL 0.3 mg/kg 体重/日	64
PaH8	3605	ナイジェリア燻製/ グ リ ル 魚 / 肉 Antelope100g 市販 品	BMDL10 0.49 mg/kg 体重/日 (EFSA)	27
Sudan I	3631	中央アフリカ	雄ラット肝細胞腺腫のBMDL05 の 4.648 mg/kg 体重/日、雌ラッ	44

			トの 7.194 mg/kg 体重/日	
フラン	3642	欧州 3 ヶ月乳児高 摂取量	雄ラット肝細胞がんの BMDL10 の 1.28 mg/kg 体重/日	75
Sudan I	3662	アマゾン & カリブ 海	雄ラット肝細胞腺腫の BMDL10 の 7.323 mg/kg 体重/日、雌ラッ トの 15.91 mg/kg 体重/日	44
m/p クレゾール	3677	喫煙者	ラット雄鼻呼吸上皮腺過形成	45
1,3-ブタジエン	3743	喫煙者	マウス雄 肺胞/気管支がん	45
フラン	3857	コーヒー由来 16-18 才の男性、摂取量 P95 コーヒー中濃 度平均	BMDL10 1.28mg/kg/day	33
N-ニトロソジメチルアミ ン	3925	ビールー日標準量 1 杯：最悪汚染	経口総肝腫瘍の BMDL10 の 0.029 mg/kg 体重/日	63
フラン	4000	2 才以上平均 ( 0.0003 mg/kg/day )	ラット雄肝細胞腺腫とがんの BMDL10 1.28 mg/kg/day	38
SudanI	4000	アマゾンカリブ最 小 0.002 mg/kg/day	ラット雄肝細胞腺腫の BMDL10 7.32 mg/kg/day	38
エストラゴール	4000	スパイス、食品、エ ッセンシャルオイル	雌マウス肝細胞がんの BMDL 10 3.3-6.5 mg/kg/day をエレミ シンのデータで補正した 36.3-71.5	4
メチルオイゲノール	4000	スパイス、食品、エ ッセンシャルオイル	雄ラット肝細胞がんの BMDL 10 15.3-34.0 mg/kg/day をエレ ミシンのデータで補正した 30.6-68.0	4
フラン	4164	ベルギーベビーフ ード、97.5%th	肝細胞腺腫とがんの BMDL10 0.96 mg/kg/day	31
PaH8	4177	ナイジェリア燻製/ グリル魚 / 肉 Suya100g 市販品	BMDL10 0.49 mg/kg 体重/日 ( EFSA )	27
4-(メチルニトロソアミノ -1-(3-ピリジル)-1-ブタノ ン ( NNK )	4180	喫煙者	マウス雌肺腫瘍 腹腔投与	45
カドミウム	4225	ワインー日標準量 1 杯：平均的汚染	ヒト食品由来 NOAEL の 0.01 mg/kg 体重/日	63
フラン	4292	店のコーヒー由来 16-18 才の男性、摂	BMDL10 1.28mg/kg/day	33



		取量メジアンコー ヒー中濃度平均		
エチレンオキシド	4293	喫煙者	マウス雌雄肺腫瘍	45
フラン	4300	欧州乳児平均	雄ラット肝細胞がんの BMDL10 の 1.28 mg/kg 体重/日	77
フラン	4300	2 才以上米国平均	雄ラット肝細胞がんの BMDL10 の 1.277 mg/kg 体重/日	42
フラン	4300	乳児ヨーロッパ平 均	雄ラット肝細胞がんの BMDL10 の 1.277 mg/kg 体重/日	42
ジメチルニトロソアミン	4300	一般人	BMDL10 0.06 mg/kg/day	109
ペルメトリン	4307	屋外トラック積荷	急性毒性 NOEL 11 mg/kg/day	72
エチレンオキシド	4375	喫煙者	マウス雄肺胞/気管支がん	45
8:2 フルオロテロマーアル コール	4400	室内空気からの吸 入、労働者	雄ラット弱い肝壊死 BMDL10 3.7 mg/kg/day	122
カルバミン酸エチル	4500	1 日 100mL のスピ リッツ( テキーラな ど)汚染濃度メジ アン	マウス経口投与肺胞腺腫の BMDL 0.3 mg/kg 体重/日	64
タラゴン	4500	フランス子ども、 1421microg/kg/day	ラ ッ ト 経 口 遺 伝 毒 性 6500mg/kh/day	79
カルバミン酸エチル	4501	スピリッツー日標 準量 1 杯:平均的汚 染	マウス経口投与肺胞腺腫の BMDL 0.3 mg/kg 体重/日	63
1-メチルシクロプロペン とその不純物 1-クロロ-2- メチルプロペンと 3-クロ ロ-2-メチルプロペン	5000	フランス子ども P95、不純物が無く ならない	ラット鼻腔腫瘍の BMDL01 の 1.36 mg/kg 体重/日	52
ベンゼン	5000	飲料高摂取群	ラ ッ ト Zymbal 腺 が ん の BMDL10 の 0.2488 mg/kg 体重/ 日	55
モノクロトホス	5000	全ての食品からの 累積暴露	AChE の 20%阻害	86
サフロール	5000	コーラ風味ソフト ドリンク由来、英国 1-4 才	動物での腫瘍発生の BMDL10 1.9-5.1 mg/kg/day	51
サフロール	5000	コーラ風味ソフト ドリンク由来、アイ ルランド 4-18 才	動物での腫瘍発生の BMDL10 1.9-5.1 mg/kg/day	51
BaP	5015	ナイジェリア燻製/ ゲリル魚 / 肉	BMDL10 0.07 mg/kg /day(EFSA)	27

		Suya100g 市販品		
PaH8	5096	ナイジェリア燻製/ ゲリル魚 / 肉 Mackerel 100g 市 販品	BMDL10 0.49 mg/kg 体重/日 (EFSA)	27
ベンゼン	5279	ビール一日標準量 4 杯 : 平均的汚染	ヒトリンパ球数 (吸入から経口 に換算) の BMDL10 の 1.2 mg/kg 体重/日	63
エチレンオキシド	5310	喫煙者	マウス雄肺胞/気管支腺腫	45
ホルムアルデヒド	5511	ワイン一日標準量 1 杯 : 最悪汚染	ラット経口口腔消化器粘膜の組 織学的変化の NOEL の 15 mg/kg 体重/日	63
Sudan I	5721	中央アフリカ	雄ラット肝細胞腺腫の BMDL10 の 7.323 mg/kg 体重/日、雌ラッ トの 15.91 mg/kg 体重/日	44
アセトアルデヒド	5740	平均的マウスウォ ッシュを酒の代わ りに毎日 1 杯飲む	BMDL あるいは NOAEL	47
フラン	5763	コーヒー由来 16-18 才の男性、摂取量メ ジアンコーヒー中 濃度 P95	BMDL10 1.28mg/kg/day	33
サフロール	5800	コーラ風味ソフト ドリンク由来、英国 19-64 才	動物での腫瘍発生の BMDL10 1.9-5.1 mg/kg/day	51
サフロール	5900	コーラ風味ソフト ドリンク由来、アイ ルランド 19-64 才	動物での腫瘍発生の BMDL10 1.9-5.1 mg/kg/day	51
SudanI	6000	中央アフリカ最小 0.00128 mg/kg/day	ラット雄肝細胞腺腫の BMDL10 7.32 mg/kg/day	38
サフロール	6000	コーラ風味ソフト ドリンク由来、フィン ランド 25-74 才	動物での腫瘍発生の BMDL10 1.9-5.1 mg/kg/day	51
フラン	6033	ビール一日標準量 1 杯 : 最悪汚染	マウス経口肝細胞腺腫の BMDL10 の 0.96 mg/kg 体重/日	63
カルバミン酸エチル	6338	ワイン一日標準量 4 杯 : 平均的汚染	マウス経口投与肺胞腺腫の BMDL 0.3 mg/kg 体重/日	63
イソプレン	6565	喫煙者	マウス雄肺胞/気管支腺がん	45
BaP	6652	ナイジェリア燻製/ ゲリル魚 / 肉	BMDL10 0.07 mg/kg /day(EFSA)	27

		Antelope100g 市販品		
フラン	6733	3 ヶ月中央値 20 microg/kg/食品	T25 1.4mg/kg/day	27
m/p クレゾール	6735	中国で販売されているタバコの主流煙由来、平均		99
エチレンオキシド	6890	喫煙者	マウス雌肺胞/気管支がんまたは腺腫	45
1-メチルシクロプロペンとその不純物 1-クロロ-2-メチルプロペンと 3-クロロ-2-メチルプロペン	7000	フランス子ども P95、不純物が無くない	ラット鼻腔腫瘍の BMDL01 の 1.36 mg/kg 体重/日	52
N-ニトロソジメチルアミン	7000	オランダの小さい子ども、魚と野菜の料理由来	ラット肝臓がんの BMDL10 11mg/kg 体重/日	118
フラン	7022	欧州 3 ヶ月乳児平均	雄ラット肝細胞がんの BMDL10 の 1.28 mg/kg 体重/日	75
PAH8	7067	フラッシュ	BMDL10 0.49 mg/kg 体重/日 (EFSA)	15
カルバミン酸エチル	7200	1日25mLのスピリッツ(テキーラなど)汚染濃度メジアン P90	マウス経口投与肺胞腺腫の BMDL 0.3 mg/kg 体重/日	64
m/p クレゾール	7281	喫煙者	ラット雄鼻上皮過形成	45
カルバミン酸エチル	7300	アルコールを含まない	マウス経口投与肺胞腫瘍の BMDL05 の 0.107 mg/kg 体重/日	54
PAH8	7313	修理	BMDL10 0.49 mg/kg 体重/日 (EFSA)	15
d-フェノトリン	7456	屋外トラック積荷	慢性毒性 NOEL 0.291 mg/kg/day	72
サフロール	7500	コーラ風味ソフトドリンク由来、英国 4-18 才	動物での腫瘍発生の BMDL10 1.9-5.1 mg/kg/day	51
ペルメトリン	7587	殺虫剤練り込み軍服	急性毒性 NOEL 11 mg/kg/day	72
PhIP	8000	欧州 90 パーセントイル	雄ラット前立腺がんの BMDL05 の 0.25 mg/kg 体重/日	43
PhIP	8000	欧州 90 パーセントイル	雌ラット乳腺がんの BMDL05 の 0.37 mg/kg 体重/日	43
クロルフェンピホス	8000	全ての食品からの	AChE の 20%阻害	86

		累積暴露		
BaP	8008	ナイジェリア燻製/ グ リ ル 魚 / 肉 Mackerel 100g 市 販品	BMDL10 0.07 mg/kg /day(EFSA)	27
サフロール	8200	コーラ風味ソフト ドリンク由来、アイ ルランド 1-4 オ	動物での腫瘍発生の BMDL10 1.9-5.1 mg/kg/day	51
PaH8	8379	ナイジェリア燻製/ グ リ ル 魚 / 肉 Jackfish 100g 実験 室調理	BMDL10 0.49 mg/kg 体重/日 (EFSA)	27
PaH8	8437	ナイジェリア燻製/ グ リ ル 魚 / 肉 Jackfish 100g 市販 品	BMDL10 0.49 mg/kg 体重/日 (EFSA)	27
エチレンオキシド	8470	喫煙者	マウス雌肺胞/気管支腺腫	45
ベンゾ[a]ピレンと多環芳 香族炭化水素	8500	平均	マウス総腫瘍の BMDL05 の 0.098 mg/kg 体重/日	39
カルバミン酸エチル	9000	1日50mLのスピリ ッツ(テキーラな ど)汚染濃度メジア ン	マウス経口投与肺胞腺腫の BMDL 0.3 mg/kg 体重/日	64
メタミドホス	9000	全ての食品からの 累積暴露	AChE の 20%阻害	86
N-ニトロソノルニコチン (NNN)	9078	喫煙者	ラット雌鼻腫瘍 皮下投与	45
エチレンオキシド	9381	喫煙者	マウス雌肺胞/気管支がん	45
塩化メチレン(肺)	9500	米国平均推定	理論的発がん BMDL123.9 mg/kg/day ormg/m3	117
塩化メチレン(肝臓)	10000	米国平均推定	理論的発がん BMDL129.9 mg/kg/day ormg/m3	117
ペルメトリン	10000	殺虫剤練り込み軍 服	慢性毒性 NOEL 11 mg/kg/day	72
ペルメトリン	10000	殺虫剤練り込み蚊 帳、高用量	慢性毒性 NOEL 11 mg/kg/day	72
シフルトリン	10000	殺虫剤練り込み蚊 帳	慢性毒性 NOAEL 0.02 mg/kg/day	72
スクラロース	10235	平均的マウスウォ ッシュを酒の代わ	BMDL あるいは NOAEL	47

		りに毎日1杯飲む		
ホルムアルデヒド	10465	スピリッツー日標準量4杯:平均的汚染	ラット経口口腔消化器粘膜の組織学的変化の NOEL の 15 mg/kg 体重/日	63
ベンゼン	10557	ビールー日標準量1杯:最悪汚染	ヒトリンパ球数(吸入から経口に換算)の BMDL10 の 1.2 mg/kg 体重/日	63
エチレンオキシド	10941	喫煙者	マウス雄肺胞上皮過形成	45
ジメチルニトロソアミン	11000	一般人	T25 0.15 mg/kg/day	109
オクラトキシン A	11482	ワインー日標準量4杯:平均的汚染	ラット経口腎腺腫およびがんの BMDL10 の 0.025 mg/kg 体重/日	63
1,2,3-トリクロロプロパン	12000	米国平均推定	理論的発がん BMDL 2.9 mg/kg/day or mg/m3	117
トルエン	12023	中国で販売されているタバコの主流煙由来、平均		99
ホルムアルデヒド	12189	ワインー日標準量4杯:平均的汚染	ラット経口口腔消化器粘膜の組織学的変化の NOEL の 15 mg/kg 体重/日	63
N-ニトロソジメチルアミン	12757	ビールー日標準量4杯:平均的汚染	経口総肝腫瘍の BMDL10 の 0.029 mg/kg 体重/日	63
ホルムアルデヒド	12778	欧州99%th飲酒量、99%th濃度	雄ラット腫瘍の BMDL 23 mg/kg/day	2
フラン	12797	ビールー日標準量4杯:平均的汚染	マウス経口肝細胞腺腫の BMDL10 の 0.96 mg/kg 体重/日	63
PaH8	13152	ナイジェリア燻製/グリル魚/肉 Antelope 100g 実験室調理	BMDL10 0.49 mg/kg 体重/日 (EFSA)	27
PaH8	13237	ナイジェリア燻製/グリル魚/肉 Mudfish 100g 実験室調理	BMDL10 0.49 mg/kg 体重/日 (EFSA)	27
4-(メチルニトロソアミノ)-1-(3-ピリジル)-1-ブタノン (NNK)	13364	喫煙者	ラット雌鼻腫瘍 皮下投与	45
カルバミン酸エチル	14000	一般人	BMDL10 0.28 mg/kg/day	109
テトラクロロエタン	14000	母親がドライクリーニング溶媒に暴露された母乳を飲んでいる乳児	ヒト肝肥大の 1.4 mg/kg/day	104

サフロール	14000	コーラ風味ソフトドリンク由来、アイルランド 4-18 才	動物での腫瘍発生の BMDL10 1.9-5.1 mg/kg/day	51
フラン	14300	コーヒー由来 16-18 才の男性、摂取量メジアンコーヒー中濃度平均	BMDL10 1.28mg/kg/day	33
Sudan I	14462	フランス	雄ラット肝細胞腺腫の BMDL01 の 1.157 mg/kg 体重/日、雌ラットの 0.780 mg/kg 体重/日	44
ベンゾ[a]ピレンと多環芳香族炭化水素	15000	平均	マウス総腫瘍の BMDL10 の 0.122 mg/kg 体重/日	39
サフロール	15000	コーラ風味ソフトドリンク由来、英国 19-64 才	動物での腫瘍発生の BMDL10 1.9-5.1 mg/kg/day	51
BaP	15251	ナイジェリア燻製/グリル魚 / 肉 Jackfish 100g 実験室調理	BMDL10 0.07 mg/kg /day(EFSA)	27
フラン	15346	インスタントコーヒー由来 16-18 才の男性、摂取量 P95 コーヒー中濃度 P95	BMDL10 1.28mg/kg/day	33
タラゴン	15500	フランス成人、419microg/kg/day	ラット経口遺伝毒性 6500mg/kh/day	79
N-ニトロソノルニコチン (NNN)	15674	喫煙者	ラット雌悪性鼻腫瘍 胃内投与	45
1,4-ジオキサン	15960	日本人、工場近傍住人、吸入暴露、工場 B	吸入の NOAEL 25 mg/kg/day	25
PFOS	16000	カナダ人	サル 26 週試験の LOEL 0.03 mg/kg/day	66
サフロール	16000	コーラ風味ソフトドリンク由来、アイルランド 19-64 才	動物での腫瘍発生の BMDL10 1.9-5.1 mg/kg/day	51
サフロール	16000	コーラ風味ソフトドリンク由来、フィンランド 25-74 才	動物での腫瘍発生の BMDL10 1.9-5.1 mg/kg/day	51
アセトアルデヒド	16185	ブラジル、労働環境	動物での総がん BMDL 56	1

			mg/kg/day	
1,4-ジオキサン	16270	日本人、工場近傍住人、吸入暴露、工場A	吸入のNOAEL 25 mg/kg/day	25
カルバミン酸エチル	16600	アルコールを含まない	マウス経口投与肺胞腫瘍のBMDL10の0.254 mg/kg体重/日	54
BaP	17722	ナイジェリア燻製/グリル魚/肉 Jackfish 100g 市販品	BMDL10 0.07 mg/kg /day(EFSA)	27
カルバミン酸エチル	18000	1日25mLのスピリッツ(テキーラなど)汚染濃度メジアン	マウス経口投与肺胞腺腫のBMDL 0.3 mg/kg 体重/日	64
カルバミン酸エチル	18000	スピリッツを飲むメキシコ人	マウス経口投与肺胞腺腫のBMDL 0.3 mg/kg 体重/日	64
8:2 フルオロテロマーアルコール	18000	室内空気からの吸入、小売店	雄ラット弱い肝壊死 BMDL10 3.7 mg/kg/day	122
4-(メチルニトロソアミノ-1-(3-ピリジル)-1-ブタン( NNK )	18319	喫煙者	ラット雌肺腫瘍 皮下投与	45
BaP	18864	ナイジェリア燻製/グリル魚/肉 Antelope 100g 実験室調理	BMDL10 0.07 mg/kg /day(EFSA)	27
アフラトキシン B1	19135	ビール一日標準量4杯:平均的汚染	ヒト肝臓がん(食品由来)のBMDL10の0.00087 mg/kg体重/日	63
BaP	19698	ナイジェリア燻製/グリル魚/肉 Mudfish 100g 実験室調理	BMDL10 0.07 mg/kg /day(EFSA)	27
PhIP	20000	欧州 90 パーセントイル	雄ラット前立腺がんのBMDL10の0.48 mg/kg 体重/日	43
1-メチルシクロプロペンとその不純物 1-クロロ-2-メチルプロペンと 3-クロロ-2-メチルプロペン	20000	フランス子ども P95、不純物が無くない	ラット鼻腔腫瘍の BMDL05 の 5.79 mg/kg 体重/日	52
BaP	20000	平均暴露量	マウス総腫瘍の BMDL10 0.12	38

		( 0.000008 mg/kg/day )	mg/kg/day	
カルバミン酸エチル	20000	アルコール飲料抜き ( 0.000015 mg/kg/day )	マウス雌雄肺胞/気管支腺腫とが んの合計の BMDL10 0.25 mg/kg/day	38
PhIP	20000	高摂取 0.00002 mg/kg/day	ラット腹側前立腺がんの BMDL10 0.48 mg/kg/day	38
DEHP	20000	輸液、生涯平均	マウスペルオキシソームの増殖 の NOEL 20 mg/kg/day	89
ペルメトリン	20000	屋外トラック積荷	慢性毒性 NOEL 11 mg/kg/day	72
ペルメトリン	20000	殺虫剤練り込み蚊 帳、低用量	急性毒性 NOEL 11 mg/kg/day	72
アルファシペルメトリン	20000	殺虫剤練り込み蚊 帳	急性毒性 NOEL 2.7 mg/kg/day	72
N-ニトロソノルニコチン ( NNN )	20824	喫煙者	ラット雄悪性鼻腫瘍 胃内投与	45
ベンゼン	21114	ビール一日標準量 1 杯：平均的汚染	ヒトリンパ球数（吸入から経口 に換算）の BMDL10 の 1.2 mg/kg 体重/日	63
PaH8	21989	ナイジェリア燻製/ グ リ ル 魚 / 肉 Suya100g 実験室調 理	BMDL10 0.49 mg/kg 体重/日 ( EFSA )	27
オクラトキシン A	21994	ビール一日標準量 4 杯：平均的汚染	ラット経口腎腺腫およびがんの BMDL10 の 0.025 mg/kg 体重/ 日	63
PaH8	22867	ナイジェリア燻製/ グ リ ル 魚 / 肉 Croaker 100g 実験 室調理	BMDL10 0.49 mg/kg 体重/日 ( EFSA )	27
PaH8	23386	ナイジェリア燻製/ グ リ ル 魚 / 肉 Mackerel 100g 実 験室調理	BMDL10 0.49 mg/kg 体重/日 ( EFSA )	27
ホルムアルデヒド	23784	その他アルコール 一日標準量 4 杯：平 均的汚染	ラット経口口腔消化器粘膜の組 織学的変化の NOEL の 15 mg/kg 体重/日	63
4-(メチルニトロソアミノ -1-(3-ピリジル)-1-ブタノ ン ( NNK )	23937	喫煙者	マウス雌肺腺腫 単回投与	45



1,3-DCP	24000	高暴露 0.136 microg/kg/day	BMDL10 3.3 mg/kg/day	36
セレン	24901	中国で販売されているタバコの主流煙由来、平均		99
PhIP	25000	欧州平均	雄ラット前立腺がんの BMDL05 の 0.25 mg/kg 体重/日	43
PhIP	25000	欧州平均	雌ラット乳腺がんの BMDL05 の 0.37 mg/kg 体重/日	43
カルバミン酸エチル	25352	ワインー日標準量 1 杯：平均的汚染	マウス経口投与肺胞腺腫の BMDL 0.3 mg/kg 体重/日	63
o-クレゾール	27984	中国で販売されているタバコの主流煙由来、平均		99
アセトン	28443	中国で販売されているタバコの主流煙由来、平均		99
BaP	28664	ナイジェリア燻製/ グリル魚 / 肉 Suya100g 実験室調 理	BMDL10 0.07 mg/kg /day(EFSA)	27
1-メチルシクロプロペン とその不純物 1-クロロ-2- メチルプロペンと 3-クロ ロ-2-メチルプロペン	30000	フランス子ども P95、不純物が無く ならない	ラット鼻腔腫瘍の BMDL05 の 5.79 mg/kg 体重/日	52
ベンゼン	30000	飲料平均	ラット Zymbal 腺がんの BMDL10 の 0.2488 mg/kg 体重/ 日	55
1,4-ジオキサン	31920	日本人、工場近傍住 人、吸入暴露、工場 B	吸入の NOAEL 25 mg/kg/day	25
m/p クレゾール	34106	喫煙者	ラット雌鼻呼吸上皮過形成	45
フェノール	34119	中国で販売されているタバコの主流煙由来、平均		99
フラン	34628	インスタントコー ヒー由来 16-18 才 の男性、摂取量 P95 コーヒー中濃度平 均	BMDL10 1.28mg/kg/day	33
メタミドホス	36666	ジャガイモ畑に散 布した近くに住む 子ども、亜慢性吸入	吸入毒性の NOAEL 1100 microg/m3	71
ホスホジエステラーゼ製 品	38000	一般人	ラット 13 週試験の NOEL 317 mg/kg/day	95
BaP	39200	ナイジェリア燻製/ グリル魚 / 肉 Croaker 100g 実験	BMDL10 0.07 mg/kg /day(EFSA)	27

		室調理		
PhIP	40000	欧州 90 パーセント イル	雌ラット乳腺がんの BMDL10 の 0.74 mg/kg 体重/日	43
1-メチルシクロプロペン とその不純物 1-クロロ-2- メチルプロペンと 3-クロ ロ-2-メチルプロペン	40000	フランス子ども P95、不純物が無く ならない	ラット鼻腔腫瘍の BMDL10 の 10.99 mg/kg 体重/日	52
1-クロロ-2-メチルプロペン	40000	最悪シナリオ高摂 取 ( 0.0003 mg/kg/day )	ラット雄鼻がんの BMDL10 11.0 mg/kg/day	38
PhIP	40000	高摂取 0.00002 mg/kg/day	ラット乳腺がんの BMDL10 0.74 mg/kg/day	38
レスメトリン	40000	屋外トラック積荷	急性毒性 LOAEL 28.2 mg/kg/day	72
フラン	41569	インスタントコー ヒー由来 16-18 オ の男性、摂取量メジ アンコーヒー中濃 度 P95	BMDL10 1.28mg/kg/day	33
m/p クレゾール	41771	喫煙者	ラット雄鼻扁平上皮細胞化生	45
ホルムアルデヒド	41860	スピリッツー日標 準量 1 杯:平均的汚 染	ラット経口口腔消化器粘膜の組 織学的変化の NOEL の 15 mg/kg 体重/日	63
2-ブタノン	43620	中国で販売されているタバコの主流煙由来、平均		99
オクラトキシン A	45928	ワインー日標準量 1 杯:平均的汚染	ラット経口腎腺腫およびがんの BMDL10 の 0.025 mg/kg 体重/ 日	63
ホルムアルデヒド	48754	ワインー日標準量 1 杯:平均的汚染	ラット経口口腔消化器粘膜の組 織学的変化の NOEL の 15 mg/kg 体重/日	63
カルバミン酸エチル	50000	一般人	T25 1.0 mg/kg/day	109
Sudan I	50304	ヨーロッパ	雄ラット肝細胞腺腫の BMDL01 の 1.157 mg/kg 体重/日、雌ラッ トの 0.780 mg/kg 体重/日	44
N-ニトロソジメチルアミ ン	51026	ビールー日標準量 1 杯:平均的汚染	経口総肝腫瘍の BMDL10 の 0.029 mg/kg 体重/日	63
フラン	51186	ビールー日標準量 1 杯:平均的汚染	マウス経口肝細胞腺腫の BMDL10 の 0.96 mg/kg 体重/日	63
m/p クレゾール	52160	喫煙者	ラット雄鼻炎症	45
1,4-ジクロロベンゼン	54000	米国平均推定	理論的発がん BMDL 26.9	117

			mg/kg/day or mg/m <sup>3</sup>	
Sudan I	58100	フランス	雄ラット肝細胞腺腫の BMDL05 の 4.648 mg/kg 体重/日、雌ラッ トの 7.194 mg/kg 体重/日	44
BaP	58464	ナイジェリア燻製/ グ リ ル 魚 / 肉 Mackerel 100g 実 験室調理	BMDL10 0.07 mg/kg /day(EFSA)	27
アセトアルデヒド	59072	ブラジル、労働環境	動物での総がん BMDL 56 mg/kg/day	1
1-メチルシクロプロペン とその不純物 1-クロロ-2- メチルプロペンと 3-クロ ロ-2-メチルプロペン	60000	フランス子ども P95、不純物が無く ならない	ラット鼻腔腫瘍の BMDL10 の 10.99 mg/kg 体重/日	52
1-クロロ-2-メチルプロペ ン	60000	最悪シナリオ平均 摂取 ( 0.0002 mg/kg/day )	ラット雄鼻がんの BMDL10 11.0 mg/kg/day	38
ホルムアルデヒド	63889	欧州平均飲酒量、 95%th 濃度	雄ラット腫瘍の BMDL 23 mg/kg/day	2
PAH8	63913	修理	BMDL10 0.49 mg/kg 体重/日 ( EFSA )	15
1,3-DCP	65000	平均暴露 0.051 microg/kg/day	BMDL10 3.3 mg/kg/day	36
1,3-ジクロロ-2-プロパノ ール	70000	高摂取群	雄ラット腎臓腺腫とがんの BMDL10 の 9.62 mg/kg 体重/日	57
1,3-ジクロロ-2-プロパノ ール	70000	高摂取 ( 0.000136 mg/kg/day )	ラット雄腎臓がんと腺腫の合計 の BMDL10 9.62 mg/kg/day	38
ペルメトリン	70000	殺虫剤練り込み蚊 帳、低用量	慢性毒性 NOEL 11 mg/kg/day	72
アルファシペルメトリン	70000	殺虫剤練り込み蚊 帳	慢性毒性 NOEL 2.7 mg/kg/day	72
1,3-DCP	70000	高暴露 0.136 microg/kg/day	ラット腎腫瘍の BMDL10 9.62 mg/kg/day	36
N-ニトロソノルニコチン ( NNN )	71168	喫煙者	マウス雌肺腫瘍 腹腔投与	45
PAH4	72000	フランストータル ダイエットスタデ ィ、こども P95	BMDL10 0.34 mg/kg 体重/日 ( EFSA )	21
N-ニトロソジメチルアミ ン	73000	オランダ成人、魚と 野菜の料理由来	ラット肝臓がんの BMDL10 11mg/kg 体重/日	118

DEHP	75000	室内空気からの吸入	雄ラット弱い肝壊死 BMDL10 3.7 mg/kg/day	121
アフラトキシン B1	76540	ビール一日標準量1杯：平均的汚染	ヒト肝臓がん（食品由来）の BMDL10の0.00087 mg/kg体重/日	63
5-ヒドロキシメチルフルフラール	79000	欧州アルコール飲料由来	雌マウス鼻上皮化生のBMDL10 79 mg/kg 体重/日	20
PhIP	80000	欧州平均	雄ラット前立腺がんのBMDL10 の0.48 mg/kg 体重/日	43
ベンゼン	80000	飲料低摂取群	ラット Zymbal 腺がんの BMDL10の0.2488 mg/kg 体重/日	55
PhIP	80000	平均摂取 0.000006 mg/kg/day	ラット腹側前立腺がんの BMDL10 0.48 mg/kg/day	38
デルタメトリン	80000	殺虫剤練り込み蚊帳	急性毒性 NOAEL 1 mg/kg/day	72
1,3-DCP	84000	香港高暴露 0.009-0.04 microg/kg/day	BMDL10 3.3 mg/kg/day	36
メチレンジアニリン	85000	ポリウレタンフォーム製造労働暴露		59
メチレンジフェニルイソシアネート	85000	ポリウレタンフォーム製造労働暴露		59
4-(メチルニトロソアミノ-1-(3-ピリジル)-1-ブタノン (NNK)	85128	喫煙者	ハムスター雄気道腫瘍 単回皮下投与	45
N-ニトロソノルニコチン (NNN)	87793	喫煙者	ハムスター雄気管腫瘍 腹腔投与	45
オクラトキシン A	87977	ビール一日標準量1杯：平均的汚染	ラット経口腎腺腫およびがんの BMDL10の0.025 mg/kg 体重/日	63
SudanI	90000	フランス最小 0.00008 mg/kg/day	ラット雄肝細胞腺腫のBMDL10 7.32 mg/kg/day	38
m/p クレゾール	90983	喫煙者	マウス雄鼻呼吸上皮過形成	45
Sudan I	91538	フランス	雄ラット肝細胞腺腫のBMDL10 の7.323 mg/kg 体重/日、雌ラットの15.91 mg/kg 体重/日	44
8:2 フルオロテロマーアルコール	92000	室内空気からの吸入	雄ラット弱い肝壊死 BMDL10 3.7 mg/kg/day	122

フラン	93802	インスタントコー ヒー由来 16-18 オ の男性、摂取量メジ アンコーヒー中濃 度平均	BMDL10 1.28mg/kg/day	33
プリリアントグリーン	95000	ペーパータオルで 拭いた魚を食べる	BMDL10 20 mg/kg/day	50
ホルムアルデヒド	95137	その他アルコール 一日標準量 1 杯:平 均的汚染	ラット経口口腔消化器粘膜の組 織学的変化の NOEL の 15 mg/kg 体重/日	63
m/p クレゾール	97473	喫煙者	マウス雌鼻呼吸上皮過形成	45
ロイコマラカイトグリー ン	100000	高魚摂取群	NTP 雌マウス肝細胞腺腫とがん の合計の BMDL05 の 6.81 mg/kg 体重/日	53
1,3-ジクロロ-2-プロパノ ール	100000	平均摂取群	雄ラット腎臓腺腫とがんの BMDL10 の 9.62 mg/kg 体重/日	57
ベンゼン	100000	飲料高摂取群	ラット Zymbal 腺がんの BMDL05 の 5.18 mg/kg 体重/日	55
1,3-ジクロロ-2-プロパノ ール	100000	平均推定摂取量 ( 0.00009 mg/kg/day )	ラット雄腎臓がんと腺腫の合計 の BMDL10 9.62 mg/kg/day	38
PhIP	100000	平均摂取 0.000006 mg/kg/day	ラット乳腺がんの BMDL10 0.74 mg/kg/day	38
1,3-DCP	100000	平均暴露 0.09 microg/kg/day	ラット腎腫瘍の BMDL10 9.62 mg/kg/day	36
4-(メチルニトロソアミノ -1-(3-ピリジル)-1-ブタノ ン (NNK)	110000	喫煙者	マウス雌肺腺腫 単回投与	45
PAH4	113000	フランストータル ダイエツスタデ ィ、成人 P95	BMDL10 0.34 mg/kg 体重/日 ( EFSA )	21
ホルムアルデヒド	115000	欧州 95%th 飲酒量、 平均濃度	雄ラット腫瘍の BMDL 23 mg/kg/day	2
PhIP	120000	欧州平均	雌ラット乳腺がんの BMDL10 の 0.74 mg/kg 体重/日	43
PhIP	120000	欧州 90 パーセンタ イル	雄ラット大腸腫瘍の BMDL05 の 2.48 mg/kg 体重/日	43
4-(メチルニトロソアミノ -1-(3-ピリジル)-1-ブタノ	120000	喫煙者	ハムスター雄肺腫瘍 単回皮下 投与	45

ン (NNK)				
アセトアルデヒド	121172	アルコール入りマウスウォッシュを使ったことによる唾液中アセトアルデヒドの平均的シナリオ	BMDL 56 mg/kg/day	62
4-メチルイミダゾール	125681	カラメルを使ったビール一日標準量4杯：最悪汚染	マウス経口肺がんの NOAEL の 80 mg/kg 体重/日	63
ベンゾ(a)ピレン	130000	一般人	BMDL10 2.0 mg/kg/day	109
ベンゾ[a]ピレン	140000	喫煙者	ハムスター雄気管腫瘍	45
ブリリアントグリーン	140000	手を洗ったあとペーパータオルで手を拭く：高暴露	BMDL10 20 mg/kg/day	50
PAH4	150000	フランストータルダイエットスタディ、こども平均	BMDL10 0.34 mg/kg 体重/日 (EFSA)	21
PhIP	150000	欧州 90 パーセントイル	雄ラット大腸腫瘍の BMDL05 の 2.71 mg/kg 体重/日	43
ベンゾ[a]ピレン	160000	喫煙者	ハムスター雄肺胞気管支腫瘍	45
ベンゾ(a)ピレン	160000	一般人	T25 2.4 mg/kg/day	109
ホスフィンガス	165942	労働暴露		59
PhIP	170000	一般人	BMDL10 1.25 mg/kg/day	109
1,3-DCP	174000	香港平均暴露 0.003-0.019 microg/kg/day	BMDL10 3.3 mg/kg/day	36
8:2 フルオロテロマーアルコール	180000	室内空気からの吸入、小売店	雄ラット弱い肝壊死 BMDL10 3.7 mg/kg/day	122
N-ニトロソノルニコチン (NNN)	190000	喫煙者	ハムスター雄鼻腔腫瘍 腹腔投与	45
PAH4(BaP,Chr,BaA,BbF)	198100	ポーランド平均、パン由来、1.7 ng/kg/day	EFSA 準拠	34
4-メチルイミダゾール	199336	カラメルを使ったワイン一日標準量4杯：最悪汚染	マウス経口肺がんの NOAEL の 80 mg/kg 体重/日	63
ベンゾ(a)ピレン	200000	一般人	BMDL10 2.0 mg/kg/day	109
テトラクロロエタン	200000	母親がドライクリーニング溶媒に暴	マウス肝臓変化の NOAEL 20 mg/kg/day	104

		露された母乳を飲んでいる乳児		
ラムダシハロトリン	200000	屋内スプレー経皮吸収、成人男性	慢性毒性 NOAEL 0.04 mg/kg/day	72
d-フェノトリン	200000	屋内スプレー経皮吸収、成人男性	急性毒性 NOEL 0.291 mg/kg/day	72
Sudan I	202087	ヨーロッパ	雄ラット肝細胞腺腫の BMDL05 の 4.648 mg/kg 体重/日、雌ラットの 7.194 mg/kg 体重/日	44
BaP	213700	ポーランド平均、パン由来、0.5ng/kg/day	EFSA 準拠	34
アセトアルデヒド	217604	アルコール入りマウスウォッシュを使ったことによる唾液中アセトアルデヒドの 90%th シナリオ	BMDL 56 mg/kg/day	62
PAH4	230000	フランストータルダイエットスタディ、成人平均	BMDL10 0.34 mg/kg 体重/日 (EFSA)	21
ベンゾ(a)ピレン	240000	一般人	T25 2.4 mg/kg/day	109
PhIP	260000	一般人	BMDL10 1.25 mg/kg/day	109
PhIP	260000	一般人	T25 2.0 mg/kg/day	109
1,4-ジオキサン	263200	日本人、シャンプー等消費者製品由来経皮暴露	経皮の NOAEL 10 mg/kg/day	25
NNN	263982	中国で販売されているタバコの主流煙由来、平均		99
PFOA	270000	カナダ人	二世代生殖毒性試験の F0 と F1 雄ラットの肝相対重量増加の BMDL10 0.6 mg/kg/day	66
ベンゾ[a]ピレン	280000	喫煙者	ハムスター雄喉頭腫瘍	45
ホルムアルデヒド	287500	欧州平均飲酒量、平均濃度	雄ラット腫瘍の BMDL 23 mg/kg/day	2
4-(メチルニトロソアミノ-1-(3-ピリジル)-1-ブタノン (NNK)	290000	喫煙者	ハムスター雌鼻粘膜腫瘍 単回皮下投与	45
ベンゾ[a]ピレン	300000	喫煙者	ハムスター雄咽頭腫瘍	45
SudanI	300000	欧州最小 0.000023	ラット雄肝細胞腺腫の BMDL10 7.32 mg/kg/day	38

		mg/kg/day		
Sudan I	318391	ヨーロッパ	雄ラット肝細胞腺腫の BMDL10 の 7.323 mg/kg 体重/日、雌ラッ トの 15.91 mg/kg 体重/日	44
ベンゼン	320000	12 ヶ月乳児、全て のジュース、平均	BMDL 1.2 mg/kg/day	46
1,3-DCP	355000	香 港 高 暴 露 0.009-0.04 microg/kg/day	BMDL10 3.3 mg/kg/day	36
ジメチルアルシン酸 (DMA)	360000	米国人飲料水由来	膀胱細胞壊死の NOEL 0.79 mg/kg/day	
4-(メチルニトロソアミノ -1-(3-ピリジル)-1-ブタノ ン (NNK)	370000	喫煙者	ハムスター雄鼻粘膜腫瘍 単回 皮下投与	45
8:2 フルオロテロマーアル コール	370000	屋外空気からの吸 入	雄ラット弱い肝壊死 BMDL10 3.7 mg/kg/day	122
Sudan I	385667	ドイツ	雄ラット肝細胞腺腫の BMDL01 の 1.157 mg/kg 体重/日、雌ラッ トの 0.780 mg/kg 体重/日	44
4-メチルイミダゾール	391007	カラメルを使った ビールー日標準量 4 杯：平均的汚染	マウス経口肺がんの NOAEL の 80 mg/kg 体重/日	63
1,4-ジオキサン	396800	日本人、シャンプー 等消費者製品由来 吸入暴露	吸入の NOAEL 25 mg/kg/day	25
PhIP	400000	欧州平均	雄ラット大腸腫瘍の BMDL05 の 2.48 mg/kg 体重/日	43
ロイコマラカイトグリー ン	400000	高魚摂取群	NTP 雌マウス肝細胞腺腫とがん の合計の BMDL10 の 20.44 mg/kg 体重/日	53
ベンゼン	400000	飲料高摂取群	ラット Zymbal 腺がんの BMDL10 の 17.56 mg/kg 体重/ 日	55
ベンゼン	400000	食品からの暴露：高 ( 0.00005 mg/kg/day )	ラット雌 Zymbal 腺がんの BMDL10 17.6 mg/kg/day	38
ロイコマラカイトグリー ン	400000	高摂取 0.00005 mg/kg/day	マウス雌肝細胞腺腫とがんの合 計の BMDL10 20.4 mg/kg/day	38
デルタメトリン	400000	殺虫剤練り込み蚊 帳	慢性毒性 NOAEL 1 mg/kg/day	72



PhIP	420000	一般人	T25 2.0 mg/kg/day	109
PhIP	450000	欧州平均	雄ラット大腸腫瘍の BMDL05 の 2.71 mg/kg 体重/日	43
レスベラトロール	459937	1日一杯の平均的ワイン	がん予防の BMDL	61
4-メチルイミダゾール	502723	カラメルを使った ビール一日標準量 1 杯：最悪汚染	マウス経口肺がんの NOAEL の 80 mg/kg 体重/日	63
ベンゼン	530000	9ヶ月乳児、全ての ジュース、平均	BMDL 1.2 mg/kg/day	46
アセトアルデヒド	560000	化粧品	動物での総がん BMDL 56 mg/kg/day	1
テトラクロロエタン	600000	母親がドライクリ ーニング溶媒に暴 露された母乳を飲 んでいる乳児	急性中毒の NOAEL 60 mg/kg/day	104
ベンゼン	630000	12ヶ月乳児、全て の乳児用ジュース、 平均	BMDL 1.2 mg/kg/day	46
ベンゼン	700000	飲料平均	ラット Zymbal 腺がんの BMDL05 の 5.18 mg/kg 体重/日	55
ベンゾ[a]ピレン	700000	喫煙者	ハムスター雄気管支腫瘍	45
ベンゼン	700000	9ヶ月乳児、全ての 乳児用ジュース、平 均	BMDL 1.2 mg/kg/day	46
PAH8	735000	オランダ水道水通 常	BMDL10 0.49 mg/kg 体重/日 (EFSA)	15
2-アミノナフタレン	793994	中国で販売されているタバコの主流煙由来、平均		99
4-メチルイミダゾール	797342	カラメルを使った ワイン一日標準量 1 杯：最悪汚染	マウス経口肺がんの NOAEL の 80 mg/kg 体重/日	63
レゾルシノール	906322	中国で販売されているタバコの主流煙由来、平均		99
ベンゾ[a]ピレン	965182	中国で販売されているタバコの主流煙由来、平均		99
ロイコマラカイトグリーン	1000000	平均的魚摂取群	NTP 雌マウス肝細胞腺腫とがん の合計の BMDL05 の 6.81 mg/kg 体重/日	53
塩化ビニル	1000000	喫煙者	マウス雄肺腫瘍	45
アセフェート	1000000	全ての食品からの 累積暴露	AChE の 20%阻害	86
シフルトリン	1000000	屋内スプレー経皮	慢性毒性 NOAEL 0.02	72

		吸収、成人男性	mg/kg/day	
d-フェノトリン	1000000	屋外トラック積荷	急性毒性 NOEL 0.291 mg/kg/day	72
1,3-DCP	1100000	香港平均暴露 0.003-0.019 microg/kg/day	BMDL10 3.3 mg/kg/day	36
ベンゼン	1200000	6ヶ月乳児、全ての ジュース、平均	BMDL 1.2 mg/kg/day	46
ベンゼン	1200000	6ヶ月乳児、全ての 乳児用ジュース、平 均	BMDL 1.2 mg/kg/day	46
アルファシペルメトリン	1200000	屋内スプレー経皮 吸収、成人男性	慢性毒性 NOEL 2.7 mg/kg/day	72
キャプタン	1200000	米国		67
ベンゾ[a]ピレン	1300000	喫煙者	ハムスター雄気管腫瘍	45
PAH8	1470000	オランダ水道水通 常	BMDL10 0.49 mg/kg 体重/日 (EFSA)	15
ベンゾ[a]ピレン	1500000	喫煙者	マウス雌喉頭乳頭腫/がん	45
レスメトリン	1500000	屋外トラック積荷	慢性毒性 LOAEL 28.2 mg/kg/day	72
Sudan I	1549333	ドイツ	雄ラット肝細胞腺腫のBMDL05 の 4.648 mg/kg 体重/日、雌ラッ トの 7.194 mg/kg 体重/日	44
4-メチルイミダゾール	1564027	カラメルを使った ビール一日標準量1 杯：平均的汚染	マウス経口肺がんの NOAEL の 80 mg/kg 体重/日	63
マラカイトグリーン	1800000	欧州子ども急性暴 露	NTP の LOEL 13 mg/kg 体重	7
塩化ビニル	1900000	喫煙者	ラット雄肺血管肉腫	45
ベンゼン	2000000	飲料平均	ラット Zymbal 腺がんの BMDL10 の 17.56 mg/kg 体重/ 日	55
ベンゼン	2000000	飲料低摂取群	ラット Zymbal 腺がんの BMDL05 の 5.18 mg/kg 体重/日	55
ベンゼン	2000000	飲料からの暴露 ( 0.000008 mg/kg/day )	ラット雌 Zymbal 腺がんの BMDL10 17.6 mg/kg/day	38
SudanI	2000000	ドイツ最小 0.000003 mg/kg/day	ラット雄肝細胞腺腫のBMDL10 7.32 mg/kg/day	38

ピペロニルブトキシド	2000000	屋外トラック積荷	急性毒性 NOAEL 630 mg/kg/day	72
ベンゼン	2300000	12 ヶ月乳児、ニンジンジュース、平均	BMDL 1.2 mg/kg/day	46
Sudan I	2441000	ドイツ	雄ラット肝細胞腺腫の BMDL10 の 7.323 mg/kg 体重/日、雌ラットの 15.91 mg/kg 体重/日	44
ベンゼン	2800000	9 ヶ月乳児、全ての乳児用ニンジンジュース、平均	BMDL 1.2 mg/kg/day	46
ベンゼン	2900000	12 ヶ月乳児、全ての乳児用ニンジンジュース、平均	BMDL 1.2 mg/kg/day	46
ベンゼン	3200000	9 ヶ月乳児、ニンジンジュース、平均	BMDL 1.2 mg/kg/day	46
マラカイトグリーン	3400000	欧州成人慢性暴露	NTP の LOEL 13 mg/kg 体重	7
ロイコマラカイトグリーン	4000000	平均的魚摂取群	NTP 雌マウス肝細胞腺腫とがんの合計の BMDL10 の 20.44 mg/kg 体重/日	53
ロイコマラカイトグリーン	4000000	平均 0.000005 mg/kg/day	マウス雌肝細胞腺腫とがんの合計の BMDL10 20.4 mg/kg/day	38
塩化ビニル	4800000	喫煙者	マウス雄気管支肺胞腺腫	45
ベンゼン	6000000	飲料低摂取群	ラット Zymbal 腺がんの BMDL10 の 17.56 mg/kg 体重/日	55
ベンゼン	6000000	食品からの暴露: 低 ( 0.000003 mg/kg/day )	ラット雌 Zymbal 腺がんの BMDL10 17.6 mg/kg/day	38
8:2 フルオロテロマーアルコール	6100000	室内空気からの吸入	雄ラット弱い肝壊死 BMDL10 3.7 mg/kg/day	122
塩化ビニル	8000000	喫煙者	マウス雄気管支肺胞腺腫	45
ベンゼン	8200000	6 ヶ月乳児、全ての乳児用ニンジンジュース、平均	BMDL 1.2 mg/kg/day	46
1-メチルシクロプロペンとその不純物 1-クロロ-2-メチルプロペンと 3-クロロ-2-メチルプロペン	9000000	フランス子ども P95、不純物が減少する	ラット鼻腔腫瘍の BMDL01 の 1.36 mg/kg 体重/日	52
塩化ビニル	9900000	喫煙者	マウス雄肺血管肉腫	45
ベンゼン	10000000	6 ヶ月乳児、ニンジン	BMDL 1.2 mg/kg/day	46

		ンジュース、平均		
4-アミノピフェニル	12735088	中国で販売されているタバコの主流煙由来、平均		99
塩化ビニル	13000000	喫煙者	マウス雌気管支肺胞腺腫	45
1-メチルシクロプロペンとその不純物 1-クロロ-2-メチルプロペンと 3-クロロ-2-メチルプロペン	14000000	フランス子ども P95、不純物が減少する	ラット鼻腔腫瘍の BMDL01 の 1.36 mg/kg 体重/日	52
ブリリアントグリーン	14000000	手を洗ったあとペーパータオルで手を拭く:低暴露	BMDL10 20 mg/kg/day	50
1-アミノナフタレン	16089654	中国で販売されているタバコの主流煙由来、平均		99
d-フェノトリン	20000000	屋内スプレー経皮吸収、成人男性	慢性毒性 NOEL 0.291 mg/kg/day	72
ニッケル	31197530	中国で販売されているタバコの主流煙由来、平均		99
塩化ビニル	33000000	喫煙者	ラット雌肺血管肉腫	45
ベンゼン	39000000	3ヶ月乳児、全ての乳児用ニンジンジュース、平均	BMDL 1.2 mg/kg/day	46
1-メチルシクロプロペンとその不純物 1-クロロ-2-メチルプロペンと 3-クロロ-2-メチルプロペン	40000000	フランス子ども P95、不純物が減少する	ラット鼻腔腫瘍の BMDL05 の 5.79 mg/kg 体重/日	52
ピペロニルブトキシド	40000000	屋外トラック積荷	慢性毒性 LOAEL 3.91 mg/kg/day	72
マラカイトグリーン	49000000	欧州子ども慢性暴露	NTP の LOEL 13 mg/kg 体重	7
ベンゼン	57000000	3ヶ月乳児、ニンジンジュース、平均	BMDL 1.2 mg/kg/day	46
1-メチルシクロプロペンとその不純物 1-クロロ-2-メチルプロペンと 3-クロロ-2-メチルプロペン	60000000	フランス子ども P95、不純物が減少する	ラット鼻腔腫瘍の BMDL05 の 5.79 mg/kg 体重/日	52
1-メチルシクロプロペンとその不純物 1-クロロ-2-メチルプロペンと 3-クロロ-2-メチルプロペン	70000000	フランス子ども P95、不純物が減少する	ラット鼻腔腫瘍の BMDL10 の 10.99 mg/kg 体重/日	52
1-クロロ-2-メチルプロペン	70000000	シナリオ B 高摂取 ( 0.00000015 mg/kg/day )	ラット雄鼻がんの BMDL10 11.0 mg/kg/day	38
1-メチルシクロプロペン	100000000	フランス子ども	ラット鼻腔腫瘍の BMDL10 の	52

とその不純物 1-クロロ-2-メチルプロペンと 3-クロロ-2-メチルプロペン		P95、不純物が減少する	10.99 mg/kg 体重/日	
1-クロロ-2-メチルプロペン	100000000	シナリオ B 平均摂取 ( 0.0000001 mg/kg/day )	ラット雄鼻がんの BMDL10 11.0 mg/kg/day	38
ベンゼン	100000000	3ヶ月乳児、全ての乳児用ジュース、平均	BMDL 1.2 mg/kg/day	46
ベンゼン	130000000	3ヶ月乳児、全てのジュース、平均	BMDL 1.2 mg/kg/day	46
トリクロロエタン	1000000000	フランスゴミ焼却炉排気、50%th	ガイドライン値	101
塩化ビニル	1500000000	喫煙者	マウス雄気管支肺胞腺腫	45
8:2 フルオロテロマーアルコール	1800000000	屋外空気からの吸入	雄ラット弱い肝壊死 BMDL10 3.7 mg/kg/day	122

**表 2. MOE 毎の化合物リスト**

MOE	化合物
0-10	アクリルアミド テトラクロロエタン アフラトキシン B1 鉛 エタノール ダイオキシン フラン 無機ヒ素 アクロレイン テトラクロロエタン テトラプロモビスフェノール A カルバミン酸エチル Sudan I 酸化カドミウム ホルムアルデヒド メチルオイゲノール ゲニステイン

10-100	鉛 ダイオキシン アクロレイン ホルムアルデヒド アジンホスメチル アフラトキシン B1 シアン化水素 8:2 フルオロテロマーアルコール カルバミン酸エチル アセトアルデヒド 1,3-ブタジエン カルバミン酸エチル Sudan I ヒ素 テトラクロロエタン DEET ラムダシハロトリン 酸化カドミウム DEHP アクリルアミド カドミウム アクリロニトリル ピカリジン エストラゴール イソブレン メチルオイゲノール ハウ素 ホスフィンガス ロイコマラカイトグリーン クロルピリホス（等有機リン系農薬） 有機リン農薬合計 ゲニステイン
--------	--

100-1000	<p> Sudan I  アフラトキシン B1  ホルムアルデヒド  アクリルアミド  ダイオキシン  酸化カドミウム  アセトアルデヒド  DEET  1,3-ブタジエン  安息香酸  ピカリジン  ハウ素  鉛  シフルトリン  カルバミン酸エチル  チモール  ビスフェノール A  フラン  パーフルオロオクタン酸  サリチル酸メチル  サフロール  リモネン  ピリミホスメチル  メチルオイゲノール  DEHP  PCB77,105,126,153,156  アクリロニトリル  カテコール  オメトエート  アジンホスメチル  1,4-ジオキサソ  ヒ素  イソブレン  4-(メチルニトロソアミノ-1-(3-ピリジル)-1-ブタノン (NNK)  カドミウム  オクラトキシン A  ユーカリプトール  フェンチオン  ジクロロボス  5-ヒドロキシメチルフルフラール </p>
----------	---



ベンゼン  
サッカリン  
1,3-ブタジエン  
クロム  
m/p クレゾール  
PAH8  
ラムダシハロトリン  
アクリロニトリル  
メントール  
メチダチオン  
ホスフィンガス  
ホスメット  
N-ニトロソジメチルアミン  
ロイコマラカイトグリーン  
クロルピリホス

1000-10000	<p>           アセトアルデヒド            カルバミン酸エチル            カドミウム            フラン            ピカリジン            BaP            アンモニア            ホルムアルデヒド            ヒ素            PCB77,105,126,153,156            ダイオキシン            酸化カドミウム            m/p クレゾール            オクラトキシン A            キノリン            ピリジン            アクリルアミド            4-(メチルニトロソアミノ-1-(3-ピリジル)-1-ブタノン (NNK)            PaH8            フラン            ナフタレン            サフロール            ベンゾ[a]ピレンと多環芳香族炭化水素            ジメトエート            アフラトキシン B1            エストラゴール            メチルオイゲノール            イソブレン            アルファシベルメトリン            Sudan I            エチレンオキシド            フラン            イソブレン            メタミドホス            1,3-ブタジエン            DEHP            ベンゼン            スチレン            シフルトリン            ペルメトリン         </p>
------------	---

ラムダシハロトリン  
硫酸カドミウム  
N-ニトロソノルニコチン (NNN)  
N-ニトロソジメチルアミン  
ペルメトリン  
カルバミン酸エチル  
タラゴン  
1-メチルシクロプロペンとその不純物 1-クロロ-2-メチルプロペンと 3-クロ  
ロ-2-メチルプロペン  
モノクロトホス  
d-フェノトリン  
ペルメトリン  
PhIP  
クロルフェンビンホス  
塩化メチレン (肺)  
塩化メチレン (肝臓)

10000 ~	スクラロース ホルムアルデヒド ベンゼン エチレンオキシド ジメチルニトロソアミン オクラトキシン A 1,2,3-トリクロロプロパン トルエン N-ニトロソジメチルアミン フラン PaH8 4-(メチルニトロソアミノ-1-(3-ピリジル)-1-ブタノン (NNK) カルバミン酸エチル テトラクロロエタン サフロール Sudan I ベンゾ[a]ピレンと多環芳香族炭化水素 BaP タラゴン N-ニトロソノルニコチン (NNN) 1,4-ジオキサン PFOS アセトアルデヒド 1,4-ジオキサン 8:2 フルオロテロマーアルコール アフラトキシン B1 PhIP 1-メチルシクロプロペンとその不純物 1-クロロ-2-メチルプロペンと 3-クロロ-2-メチルプロペン DEHP ペルメトリン アルファシペルメトリン セレン o-クレゾール アセトン m/p クレゾール フェノール ホスホジエステラーゼ製品 1-クロロ-2-メチルプロペン レスメトリン
---------	--

2-ブタノン  
N-ニトロソジメチルアミン  
1,4-ジクロロベンゼン  
1,3-ジクロロ-2-プロパノール  
5-ヒドロキシメチルフルフラール  
デルタメトリン  
メチレンジアニリン  
メチレンジフェニルイソシアネート  
8:2 フルオロテロマーアルコール  
ブリリアントグリーン  
ロイコマラカイトグリーン  
1,3-ジクロロ-2-プロパノール  
4-(メチルニトロソアミノ-1-(3-ピリジル)-1-ブタノン (NNK)  
4-メチルイミダゾール  
ホスフィンガス  
テトラクロロエタン  
ラムダシハロトリン  
d-フェノトリン  
PFOA  
ジメチルアルシン酸 (DMA)  
レスベラトロール  
テトラクロロエタン  
2-アミノナフタレン  
レゾルシノール  
塩化ビニル  
アセフェート  
シフルトリン  
キャプタン  
レスメトリン  
ピペロニルブトキシド  
マラカイトグリーン  
4-アミノビフェニル  
1-アミノナフタレン  
ニッケル  
トリクロロエタン

## 文献

(番号は表の文献番号に対応)

1. *Addiction* D. W. Lachenmeier, F. Kanteres, J. Rehm, Carcinogenicity of acetaldehyde in alcoholic beverages: risk assessment outside ethanol metabolism **104**, 533 (Apr, 2009).
2. *Arh Hig Rada Toksikol* Y. B. Monakhova, J. A. Jendral, D. W. Lachenmeier, The margin of exposure to formaldehyde in alcoholic beverages **63**, 227 (Jun 1, 2012).
3. *BMC Cancer* D. W. Lachenmeier *et al.*, Cancer risk assessment of ethyl carbamate in alcoholic beverages from Brazil with special consideration to the spirits cachaca and tiquira **10**, 266 (2010).
4. *Chem Res Toxicol* d. B. S. J. van *et al.*, Physiologically based kinetic models for the alkenylbenzene elemicin in rat and human and possible implications for risk assessment **25**, 2352 (Nov 19, 2012).
7. *Chemosphere* A. Schuetze, T. Heberer, S. Juergensen, Occurrence of residues of the veterinary drug malachite green in eels caught downstream from municipal sewage treatment plants **72**, 1664 (Aug, 2008).
8. *Chemosphere* K. Yoshida, S. Ikeda, J. Nakanishi, Assessment of human health risk of dioxins in Japan **40**, 177 (Jan, 2000).
9. *Chemosphere* K. Yoshida, J. Nakanishi, Estimation of dioxin risk to Japanese from the past to the future **53**, 427 (Oct, 2003).
12. *Dose Response* J. E. Goodman, R. L. Prueitt, L. R. Rhomberg, Incorporating Low-dose Epidemiology Data in a Chlorpyrifos Risk Assessment **11**, 207 (2013).
14. *Environ Health Perspect* L. L. Aylward, J. E. Goodman, G. Charnley, L. R. Rhomberg, A margin-of-exposure approach to assessment of noncancer risks of dioxins based on human exposure and response data **116**, 1344 (Oct, 2008).
15. *Environ Health Perspect* E. J. Blokker, d. V. B. M. van, J. C. M. de, P. G. Slaats, Health implications of PAH release from coated cast iron drinking water distribution systems in The Netherlands **121**, 600 (May, 2013).
16. *Environ Health Perspect* R. Castorina *et al.*, Cumulative organophosphate pesticide exposure and risk assessment among pregnant women living in an agricultural community: a case study from the CHAMACOS cohort **111**, 1640 (Oct, 2003).
17. *Environ Health Perspect* J. C. Dewitt, C. B. Copeland, M. J. Strynar, R. W. Luebke, Perfluorooctanoic acid-induced immunomodulation in adult C57BL/6J or C57BL/6N female mice **116**, 644 (May, 2008).
20. *Environ Health Toxicol* Y. B. Monakhova, D. W. Lachenmeier, The Margin of Exposure of 5-Hydroxymethylfurfural (HMF) in Alcoholic Beverages **27**, e2012016 (2012).
21. *Environ Int* B. Veyrand *et al.*, Human dietary exposure to polycyclic aromatic hydrocarbons: results of the second French Total Diet Study **54**, 11 (Apr, 2013).
22. *Environ Monit Assess* Y. Lim, J. Yang, Y. Kim, Y. Chang, D. Shin, Assessment of human health risk of dioxin in Korea **92**, 211 (Mar, 2004).
24. *Environ Res* W. Volkel, M. Kiranoglu, H. Fromme, Determination of free and total bisphenol A in urine of infants **111**, 143 (Jan, 2011).
25. *Environ Sci* R. Makino, H. Kawasaki, A. Kishimoto, M. Gamo, J. Nakanishi, Estimating health risk from exposure to 1,4-dioxane in Japan **13**, 43 (2006).

27. *Food Addit Contam Part A Chem Anal Control Expo Risk Assess* V. O. Akpambang *et al.*, Determination of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in commonly consumed Nigerian smoked/grilled fish and meat **26**, 1096 (Jul, 2009).
28. *Food Addit Contam Part A Chem Anal Control Expo Risk Assess* M. M. Gimou *et al.*, Dietary exposure and health risk assessment for 11 minerals and trace elements in Yaounde: the Cameroonian Total Diet Study **18**, 18 (Jul 18, 2013).
29. *Food Addit Contam Part A Chem Anal Control Expo Risk Assess* D. W. Lachenmeier, H. Reusch, T. Kuballa, Risk assessment of furan in commercially jarred baby foods, including insights into its occurrence and formation in freshly home-cooked foods for infants and young children **26**, 776 (Jun, 2009).
30. *Food Addit Contam Part A Chem Anal Control Expo Risk Assess* G. Scholl *et al.*, Risk assessment of Belgian adults for furan contamination through the food chain **29**, 345 (2012).
31. *Food Addit Contam Part A Chem Anal Control Expo Risk Assess* G. Scholl *et al.*, Preliminary assessment of the risk linked to furan ingestion by babies consuming only ready-to-eat food **30**, 654 (2013).
33. *Food Addit Contam Part A Chem Anal Control Expo Risk Assess* J. Waizenegger *et al.*, Analysis and risk assessment of furan in coffee products targeted to adolescents **29**, 19 (2012).
34. *Food Chem* M. Ciecierska, M. W. Obiedzinski, Polycyclic aromatic hydrocarbons in the bakery chain **141**, 1 (Nov 1, 2013).
36. *Food Chem Toxicol* S. Andres, K. E. Appel, A. Lampen, Toxicology, occurrence and risk characterisation of the chloropropanols in food: 2-Monochloro-1,3-propanediol, 1,3-dichloro-2-propanol and 2,3-dichloro-1-propanol **58**, 467 (Aug, 2013).
38. *Food Chem Toxicol* D. Benford *et al.*, Application of the Margin of Exposure (MOE) approach to substances in food that are genotoxic and carcinogenic **48 Suppl 1**, S2 (Jan, 2010).
39. *Food Chem Toxicol* D. Benford, M. Dinovi, R. W. Setzer, Application of the margin-of-exposure (MoE) approach to substances in food that are genotoxic and carcinogenic e.g.: benzo[a]pyrene and polycyclic aromatic hydrocarbons **48 Suppl 1**, S42 (Jan, 2010).
40. *Food Chem Toxicol* D. Benford, J. C. Leblanc, R. W. Setzer, Application of the margin of exposure (MoE) approach to substances in food that are genotoxic and carcinogenic: example: aflatoxin B1 (AFB1) **48 Suppl 1**, S34 (Jan, 2010).
42. *Food Chem Toxicol* P. Carthew, M. DiNovi, R. W. Setzer, Application of the margin of exposure (MoE) approach to substances in food that are genotoxic and carcinogenic: example: furan (CAS No. 110-00-9) **48 Suppl 1**, S69 (Jan, 2010).
43. *Food Chem Toxicol* P. Carthew, M. DiNovi, S. R. Woodrow, Application of the Margin of Exposure (MOE) approach to substances in food that are genotoxic and carcinogenic: example: CAS No: 105650-23-5 PhIP (2-amino-1-methyl-6-phenylimidazo[4,5-b]pyridine) **48 Suppl 1**, S98 (Jan, 2010).
44. *Food Chem Toxicol* M. Coulet, J. C. Leblanc, S. R. Woodrow, Application of the margin of exposure (MoE) approach to substances in food that are genotoxic and carcinogenic: EXAMPLE 12: Sudan I (CAS No. 842-07-9) **48 Suppl 1**, S106 (Jan, 2010).

45. *Food Chem Toxicol* F. H. Cunningham, S. Fiebelkorn, M. Johnson, C. Meredith, A novel application of the Margin of Exposure approach: segregation of tobacco smoke toxicants **49**, 2921 (Nov, 2011).
46. *Food Chem Toxicol* D. W. Lachenmeier *et al.*, Benzene in infant carrot juice: further insight into formation mechanism and risk assessment including consumption data from the DONALD study **48**, 291 (Jan, 2010).
47. *Food Chem Toxicol* D. W. Lachenmeier, Y. B. Monakhova, M. Markova, T. Kuballa, J. Rehm, What happens if people start drinking mouthwash as surrogate alcohol? A quantitative risk assessment **51**, 173 (Jan, 2013).
49. *Food Chem Toxicol* B. P. Michael, J. C. Leblanc, S. R. Woodrow, Application of the Margin of Exposure (MoE) approach to substances in food that are genotoxic and carcinogenic: EXAMPLE: acrylamide (CAS No. 79-06-1) **48 Suppl 1**, S25 (Jan, 2010).
50. *Food Chem Toxicol* M. Oplatowska, R. F. Donnelly, R. J. Majithiya, K. D. Glenn, C. T. Elliott, The potential for human exposure, direct and indirect, to the suspected carcinogenic triphenylmethane dye Brilliant Green from green paper towels **49**, 1870 (Aug, 2011).
51. *Food Chem Toxicol* A. Raffo, A. D'Aloise, A. L. Magri, C. Leclercq, Quantitation of tr-cinnamaldehyde, safrole and myristicin in cola-flavoured soft drinks to improve the assessment of their dietary exposure **59C**, 626 (Jul 8, 2013).
52. *Food Chem Toxicol* A. Renwick, J. C. Leblanc, R. W. Setzer, Application of the margin of exposure (MoE) approach to substances in food that are genotoxic and carcinogenic - example: 1-methylcyclopropene and its impurities (1-chloro-2-methylpropene and 3-chloro-2-methylpropene) **48 Suppl 1**, S81 (Jan, 2010).
53. *Food Chem Toxicol* A. Renwick, J. C. Leblanc, R. W. Setzer, Application of the margin of exposure (MOE) approach to substances in food that are genotoxic and carcinogenic. Example: leucomalachite green **48 Suppl 1**, S75 (Jan, 2010).
54. *Food Chem Toxicol* J. Schlatter, M. Dinovi, R. W. Setzer, Application of the margin of exposure (MoE) approach to substances in food that are genotoxic and carcinogenic: example: ethyl carbamate (CAS 51-79-6) **48 Suppl 1**, S63 (Jan, 2010).
55. *Food Chem Toxicol* B. Smith, P. Cadby, M. DiNovi, R. W. Setzer, Application of the Margin of Exposure (MoE) approach to substances in food that are genotoxic and carcinogenic: example: benzene, CAS: 71-43-2 **48 Suppl 1**, S49 (Jan, 2010).
56. *Food Chem Toxicol* B. Smith, P. Cadby, J. C. Leblanc, R. W. Setzer, Application of the margin of exposure (MoE) approach to substances in food that are genotoxic and carcinogenic: example: methyleugenol, CASRN: 93-15-2 **48 Suppl 1**, S89 (Jan, 2010).
57. *Food Chem Toxicol* G. Williams, J. C. Leblanc, R. W. Setzer, Application of the margin of exposure (MoE) approach to substances in food that are genotoxic and carcinogenic: example: (CAS No. 96-23-1) 1,3-dichloro-2-propanol (DCP) **48 Suppl 1**, S57 (Jan, 2010).
59. *Hum Exp Toxicol* T. A. Lewandowski, A. W. Hayes, B. D. Beck, Risk evaluation of occupational exposure to methylene dianiline and toluene diamine in polyurethane foam **24**, 655 (Dec, 2005).
61. *Int J Cancer* D. W. Lachenmeier, R. Godelmann, B. Witt, K. Riedel, J. Rehm, Can resveratrol in wine protect against the carcinogenicity of ethanol? A probabilistic dose-response assessment **20**, 28336 (Jun



- 20, 2013).
62. *Int J Cancer* D. W. Lachenmeier *et al.*, Salivary acetaldehyde increase due to alcohol-containing mouthwash use: a risk factor for oral cancer **125**, 730 (Aug 1, 2009).
63. *Int J Cancer* D. W. Lachenmeier, M. C. Przybylski, J. Rehm, Comparative risk assessment of carcinogens in alcoholic beverages using the margin of exposure approach **131**, E995 (Sep 15, 2012).
64. *Int J Environ Res Public Health* D. W. Lachenmeier, F. Kanteres, T. Kuballa, M. G. Lopez, J. Rehm, Ethyl carbamate in alcoholic beverages from Mexico (tequila, mezcal, bacanora, sotol) and Guatemala (cuxa): market survey and risk assessment **6**, 349 (Jan, 2009).
65. *Int J Epidemiol* D. W. Lachenmeier, F. Kanteres, J. Rehm, Epidemiology-based risk assessment using the benchmark dose/margin of exposure approach: the example of ethanol and liver cirrhosis **40**, 210 (Feb, 2011).
66. *J Agric Food Chem* S. A. Tittlemier *et al.*, Dietary exposure of Canadians to perfluorinated carboxylates and perfluorooctane sulfonate via consumption of meat, fish, fast foods, and food items prepared in their packaging **55**, 3203 (Apr 18, 2007).
67. *J Appl Toxicol* E. Gordon, Captan: transition from 'B2' to 'not likely'. How pesticide registrants affected the EPA Cancer Classification Update **27**, 519 (Sep-Oct, 2007).
71. *J Expo Sci Environ Epidemiol* J. Ramaprasad *et al.*, Children's inhalation exposure to methamidophos from sprayed potato fields in Washington State: exploring the use of probabilistic modeling of meteorological data in exposure assessment **19**, 613 (Sep, 2009).
72. *J Toxicol Environ Health A* P. A. Macedo, R. K. Peterson, R. S. Davis, Risk assessments for exposure of deployed military personnel to insecticides and personal protective measures used for disease-vector management **70**, 1758 (Oct, 2007).
73. *J Toxicol Environ Health B Crit Rev* Y. W. Kim *et al.*, Safety evaluation and risk assessment of d-Limonene **16**, 17 (2013).
75. *Matern Child Nutr* D. W. Lachenmeier *et al.*, Detailed exposure assessment of dietary furan for infants consuming commercially jarred complementary food based on data from the DONALD study **8**, 390 (Jul, 2012).
77. *Mol Nutr Food Res* S. Moro *et al.*, Furan in heat-treated foods: formation, exposure, toxicity, and aspects of risk assessment **56**, 1197 (Aug, 2012).
79. *Mutat Res* F. Nessler, D. Parent-Massin, D. Marzin, Risk assessment of consumption of methylchavicol and tarragon: the genotoxic potential in vivo and in vitro **696**, 1 (Feb, 2010).
82. *Regul Toxicol Pharmacol* F. B. Antwi, L. M. Shama, R. K. Peterson, Risk assessments for the insect repellents DEET and picaridin **51**, 31 (Jun, 2008).
86. *Regul Toxicol Pharmacol* S. Bosgra, d. V. H. van, P. E. Boon, W. Slob, An integrated probabilistic framework for cumulative risk assessment of common mechanism chemicals in food: an example with organophosphorus pesticides **54**, 124 (Jul, 2009).
89. *Regul Toxicol Pharmacol* J. Doull *et al.*, A cancer risk assessment of di(2-ethylhexyl)phthalate: application of the new U.S. EPA Risk Assessment Guidelines **29**, 327 (Jun, 1999).
90. *Regul Toxicol Pharmacol* R. A. Fenske, C. L. Curl, J. C. Kissel, The effect of the 14-day agricultural restricted entry interval on azinphosmethyl exposures in a group of apple thinners in Washington state

94. *Regul Toxicol Pharmacol* F. Kalantari *et al.*, Establishment of the cumulative margin of exposure for a group of polychlorinated biphenyl (PCB) congeners using an improved approach that accounts for both variability and uncertainty **65**, 325 (Apr, 2013).
95. *Regul Toxicol Pharmacol* M. Kondo, S. Nishimura, N. Tanaka, M. Flood, Safety evaluation of phosphodiesterase produced from *Penicillium citrinum*: summary of toxicological data **33**, 2 (Feb, 2001).
99. *Regul Toxicol Pharmacol* J. Xie *et al.*, A probabilistic risk assessment approach used to prioritize chemical constituents in mainstream smoke of cigarettes sold in China **62**, 355 (Mar, 2012).
100. *Reprod Toxicol* P. A. Fail, R. E. Chapin, C. J. Price, J. J. Heindel, General, reproductive, developmental, and endocrine toxicity of boronated compounds **12**, 1 (Jan-Feb, 1998).
101. *Risk Anal* C. Boudet, D. Zmirou, M. Laffond, F. Balducci, J. L. Benoit-Guyod, Health risk assessment of a modern municipal waste incinerator **19**, 1215 (Dec, 1999).
104. *Risk Anal* J. S. Schreiber, Predicted infant exposure to tetrachloroethene in human breastmilk **13**, 515 (Oct, 1993).
106. *Sci Total Environ* K. H. Watanabe, F. W. Desimone, A. Thiagarajah, W. R. Hartley, A. E. Hindrichs, Fish tissue quality in the lower Mississippi River and health risks from fish consumption **302**, 109 (Jan 20, 2003).
109. *Toxicol Lett* E. Dybing, J. O'Brien, A. G. Renwick, T. Sanner, Risk assessment of dietary exposures to compounds that are genotoxic and carcinogenic--an overview **180**, 110 (Aug 15, 2008).
112. *Toxicol Lett* M. J. A. van, d. B. M. van, J. T. Sanderson, A. Verhoef, A. H. Piersma, Estrogenic effects of mixtures of phyto- and synthetic chemicals on uterine growth of prepubertal rats **170**, 165 (Apr 25, 2007).
117. *Toxicol Sci* R. S. Thomas *et al.*, Application of transcriptional benchmark dose values in quantitative cancer and noncancer risk assessment **120**, 194 (Mar, 2011).
118. *Toxicol Sci* M. J. Zeilmaier, M. I. Bakker, R. Schothorst, W. Slob, Risk assessment of N-nitrosodimethylamine formed endogenously after exposure **149**, 1 (Aug 14, 2000).
121. *Toxicology* J. S. Hansen, S. T. Larsen, L. K. Poulsen, G. D. Nielsen, Adjuvant effects of inhaled mono-2-ethylhexyl phthalate in BALB/cJ mice **232**, 79 (Mar 22, 2007).
122. *Toxicology* M. W. Himmelstein *et al.*, 8:2 fluorotelomer alcohol: a one-day nose-only inhalation toxicokinetic study in the Sprague-Dawley rat with application to risk assessment **291**, 122 (Jan 27, 2012).
123. *Toxicology* H. Lilienthal, C. M. Verwer, d. V. L. T. van, A. H. Piersma, J. G. Vos, Exposure to tetrabromobisphenol A (TBBPA) in Wistar rats: neurobehavioral effects in offspring from a one-generation reproduction study **246**, 45 (Apr 3, 2008).

### **III. 研究成果の刊行に関する一覧表**

## 研究成果に関する刊行物一覧表

整理番号	発表者氏名	論文タイトル	発表誌名	巻号	ページ	出版年
1	渡邊敬浩、石川智子、松田りえ子	GC-FIDを用いたトランス脂肪酸分析法の性能評価手法および性能基準値の検討	食品衛生学雑誌	54	31-48	2013
2	堤 智昭、松田りえ子	食品からのダイオキシン類摂取量推定	食品衛生研究	63	7-19	2013
3	Amakura, Y., Yoshimura, M., Takaoka, M., Toda, H., Tsutsumi, T., Matsuda, R., Teshima, R., Nakamura, M., Handa, H., Yoshida, T.	Characterization of natural aryl hydrocarbon receptor agonists from cassia seed and rosemary	<i>Molecules</i>	19	4956-4966	2014
4	畝山智香子	食の安全とは	日本食品安全協会 会報	8	47-51	2013
5	畝山智香子	食品中化学物質のリスク評価について	イルシー	115	15-20	2013