

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

食品用器具・容器包装等 に使用される 化学物質に関する研究

平成28～30年度総合研究報告書

平成30(2019)年3月

研究代表者 六鹿 元雄 国立医薬品食品衛生研究所

目 次

. 総合研究報告書	
食品用器具・容器包装等に使用される化学物質に関する研究	1
六鹿 元雄	
. 研究成果の刊行に関する一覧表	38

食品用器具・容器包装等に使用される化学物質に関する研究

研究代表者 六鹿 元雄 国立医薬品食品衛生研究所

研究要旨

食品用器具・容器包装、おもちゃ及び洗浄剤（以下、「器具・容器包装等」）の安全性は、食品衛生法の規格基準により担保されているが、製品の多様化、新規材質の開発、再生材料の使用、諸外国からの輸入品の増加等により多くの課題が生じている。さらに近年では、食品の安全性に関する関心が高まり、その試験及び分析に求められる信頼性の確保も重要な課題となっている。また、食品には農薬、動物用医薬品、食品添加物、器具・容器包装からの移行物など多種多様な化学物質が混入する可能性があるが、それらの相互作用については情報収集が不十分である。そこで本研究では、器具・容器包装等の安全性に対する信頼性確保及び向上を目的として、規格試験法の性能に関する研究、市販製品に残存する化学物質に関する研究及び食品添加物等の複合影響に関する研究を実施した。

規格試験法の性能に関する研究では、器具・容器包装またはおもちゃにおけるフタル酸エステル類の材質試験及び溶出試験、乳及び乳製品の成分規格等に関する省令（乳等省令）のヒ素試験、おもちゃにおける着色料試験、蒸発残留物試験における蒸発乾固後の乾燥操作に関する検討、ホルムアルデヒド試験の簡易化についての性能評価または改良法の実施を実施した。その結果、規格試験法及びその代替試験法の性能把握や問題点の抽出を行うことができた。また、開発した改良法を規格試験として採用することにより、試験精度の向上、試験時間の短縮、試験経費の削減などの効果が見込まれる。この成果は及び試験検体数の増加にもつながるため厚生労働行政に大きく貢献できるほか、消費者の市販製品の安全性に対する信頼性の確保に貢献できる。

市販製品に残存する化学物質に関する研究では、ポリ塩化ビニル（PVC）製玩具に含まれる可塑剤の調査、植物油総溶出物量試験法の改良法の検討、紙製品中の蛍光物質の検査法改良に関する検討、ポジティブリスト制度（PL制度）の施行後の合成樹脂製品の検査・監視等に資する添加剤の分析法開発、器具・容器包装における溶出試験の精度の検証を実施した。その結果、規格基準が設定されていない物質等について、製品中の残存量や食品等への移行量の実態を明らかにした。これらの結果は、器具・容器包装等の安全性を確保及び向上させるための規格基準の改正や製品の検査・監視等に有用である。

食品添加物等の複合影響に関する研究では、食品添加物の複合影響に関する文献調査を実施した。我が国で使用が許可され、かつ、その成分規格が設定されている食品添加物 689 品目を対象として調査した結果、多数の文献が複合影響に関連するものとしてヒットした。そこで、使用頻度及び摂取量が多いと考えられる 20 品目に対象を絞り、食品添加物としての複合影響に関する文献調査を行ったところ、悪影響を与えるとする文献は 1 件のみであ

った。しかしながら、本文献では、食品添加物の実際の使用濃度でのヒトへの複合影響については、今後の検討が必要と結論しており、明らかに複合影響を与えるとする文献を見出すことはできなかった。食品添加物及び食品の組合せは無限に存在することから、情報の収集は困難であり、継続的且つ体系的な調査が必要であると考えられた。

研究分担者

六鹿元雄：国立医薬品食品衛生研究所
阿部 裕：国立医薬品食品衛生研究所
杉本直樹：国立医薬品食品衛生研究所

研究協力者

佐藤恭子、西崎雄三、増本直子、山口未来、
四柳道代、河村葉子、高橋怜子：国立医薬品
食品衛生研究所

吉川光英、羽石奈穂子、鈴木公美、荻本真美、
高梨麻由、岩越景子、宮川弘之、塩澤 優：
東京都健康安全研究センター

吉田栄充、大坂郁恵、山元梨津子：埼玉県衛
生研究所

近藤貴英、外岡大幸、山田恭平：さいたま市
健康科学研究センター

大森清美、関戸晴子、内山陽介：神奈川県衛
生研究所

牛山温子、高居久義：川崎市健康安全研究所
山崎喜与子、小林千恵：静岡県環境衛生科学
研究所

齋藤直樹、木村亜莉沙：静岡市環境保健研究
所

天野保希、安藤景子：長野県環境保全研究所
猪飼誉友、服部靖子、後藤智美、加藤千佳、

富田浩嗣、堀田沙希：愛知県衛生研究所
大野浩之、鈴木昌子、藪谷充孝、櫻木大志：
名古屋市衛生研究所

尾崎麻子、野村千枝、岸 映里：(地独)大阪
健康安全基盤研究所

佐藤 環：福岡県保健環境研究所

松山重倫、田中秀幸、大畑昌輝、城野克広：
国立研究開発法人 産業技術総合研究所

阿部智之、谷戸雅和：(公社)日本食品衛生協
会

村上 亮：前(公社)日本食品衛生協会
阿部 孝、中西 徹、石原絹代、渡邊雄一、
風間貴充、黒山あかね：(一財)日本食品分
析センター

早川雅人、渡辺一成、高島秀夫：(一財)化学
研究評価機構

平川佳則、花澤耕太郎、岩佐直史、斎藤敬之：
(一財)食品環境検査協会

菌部博則、竹中 佑：(一財)日本文化用品安
全試験所

柴田 博、永井慎一郎：(一財)東京顕微鏡院
山田悟志、會澤弘城、三浦俊彦、照井善光、
宇木千晶：(一財)日本食品検査

大野雄一郎：(一財)千葉県薬剤師会検査セン
ター

小林 尚、大脇進治、岩崎祐季：(一財)食品
分析開発センターSUNATEC

柿原芳輝、内田晋作：(一財)日本穀物検定協
会

高坂典子、平林尚之：(一財)食品薬品安全セ
ンター

田中 葵、宮脇麻衣：(一社)日本海事検定協
会

A. 研究目的

食品用器具・容器包装、おもちゃ及び洗浄剤（以下、「器具・容器包装等」）の安全性は、食品衛生法の規格基準により担保されているが、製品の多様化、新規材質の開発、再生材料の使用、諸外国からの輸入品の増加等により多くの課題が生じている。さらに近年では、食品の安全性に関する関心が高まり、その試験及び分析に求められる信頼性の確保も重要な課題となっている。また、食品には農薬、動物用医薬品、食品添加物、器具・容器包装からの移行物など多種多様な化学物質が混入する可能性があるが、それらの相互作用については情報収集が不十分である。そのため、健康に影響を及ぼすような相互作用が起こり得る組み合わせやそれらの食品中の濃度について把握することは重要である。そこで本研究では、器具・容器包装等並びに食品の安全性に対する信頼性確保及び向上を目的として、規格試験法の性能に関する研究、市販製品に残存する化学物質に関する研究、食品添加物等の複合影響に関する研究を実施した。

食品衛生法では、器具・容器包装等の安全性を確保するための規格基準とともに、その規格基準を満たしているか否かを判定するための試験法が定められている。しかし、多くの試験法については、その性能について十分な評価が行われていない。また、技術の進歩に伴い、近年では様々な簡便で有用な代替法が開発されており、これらの代替法による試験の実施を希望する試験機関も存在する。そこで、規格試験法の性能に関する研究として、器具・容器包装またはおもちゃにおけるフタル酸エステル類の材質試験及び溶出試験、乳及び乳製品の成分規格等に関する省令（乳等省令）のヒ素試験、おもちゃにおける着色料試験、蒸発残留物試験における蒸発乾固後の乾燥操作に関する検討、ホルムアルデヒド試験の簡易化についての性能評価または改良法

の開発を実施した。

器具・容器包装等は合成樹脂、ゴム、金属など多種多様な材質で製造される。製品には原料、添加剤、不純物等の様々な化学物質が残存し、これらの化学物質は食品や唾液を介してヒトを曝露する可能性がある。したがって、器具・容器包装等の安全性を確保するためには、製品に残存する化学物質やその溶出量を把握することが重要である。また、これらの化学物質には分析法がないものや、分析法があっても改良すべき課題を有するものがあるため、これらを解決するための検討も必要である。そこで、市販製品に残存する化学物質に関する研究として、ポリ塩化ビニル（PVC）製玩具に含まれる可塑剤の調査、植物油総溶出物量試験法の改良法の検討、紙製品中の蛍光物質の検査法改良に関する検討、ポジティブリスト制度（PL 制度）の施行後の合成樹脂製品の検査・監視等に資する添加剤の分析法開発、器具・容器包装における溶出試験の精度の検証を実施した。

食品には農薬、動物用医薬品、食品添加物、器具・容器包装からの移行物など多種多様な化学物質が混入する可能性があるが、それらの個別の相互作用については未だ情報収集が不十分である。そこで、食品添加物等の複合影響に関する研究として、第 9 版食品添加物公定書に記載されている 689 品目について、食品添加物としての複合影響に関する文献調査を行った。

B. 研究方法

1. 規格試験法の性能評価に関する研究

1) フタル酸エステル材質試験の性能評価 試験室間共同試験

検体として 4 種の PVC 製のシート（表 1）の小片を作成し、これを公的な衛生研究所など合計 20 機関に濃度非明示で配付し、1 検体につき 2 回のフタル酸エステル材質試験を実施した。

表 1 フタル酸エステル材質試験の試験室間共同試験における検体の処方

化合物	検体1	検体2	検体3	検体4
PVC	312	312	312	312
DBP	0.48	-	0.32	0.60
BBP	-	0.48	0.60	0.32
DEHP	0.48	-	0.60	0.32
DNOP	-	0.48	0.32	0.32
DINP	0.48	-	0.60	0.32
DIDP	-	0.48	0.32	0.60
DEHTP	0.48	-	-	0.32
DCHP	-	0.48	-	0.32
アセチルクエン酸トリブチル	80	80	80	80
ジオクチルスズメルカプト系安定剤	3.2	3.2	3.2	3.2
ジオクチルスズマレート系安定剤	3.2	3.2	3.2	3.2
ステアリン酸カルシウム	1.6	1.6	1.6	1.6

単位：g

結果の解析

各試験機関から収集した結果について一元配置の分散分析を行い、ISO 5725-2 及び JIS Z 8402-2 に基づいて Cochran 検定（併行）、Grubbs 検定（試験室間）を行った。これらの検定の結果、有意水準1%で異常値と判定されたものを精度の外れ値とした。さらに、併行精度（ RSD_r %）及び室間再現精度（ RSD_R %）の性能パラメーターの値を食品中に残留する農薬等に関する試験法の妥当性評価ガイドラインに従って求めた。各性能パラメーターの目標値は、このガイドラインを参考に RSD_r は10%以下、 RSD_R は25%以下とした。ただし、検体中の各フタル酸エステル含有量は検体作成時の揮散等により配合量とは必ずしも一致せず、各フタル酸エステルの正確な含有量が不明であるため、真度は算出しなかった。さらに、カラム温度、装置メーカー、標準品メーカーごとに分け、それぞれについて同様に性能パラメーターの値を算出して比較した。

2) 器具・容器包装におけるフタル酸エステル溶出試験の性能評価

試験室間共同試験

検体として4種の溶液を作成し（表2）、これを公的な衛生研究所など合計19機関に濃度非明示で配付し、提示した試験法（提案法）により1検体につき2回のフタル酸エステル溶出試験を実施した。

結果の解析

各試験機関から収集した結果について一元配置の分散分析を行い、ISO 5725-2 及び JIS Z 8402-2 に基づいて Cochran 検定（併行）、Grubbs 検定（試験室間）を行った。これらの検定の結果、有意水準1%で異常値と判定されたものを精度の外れ値とした。さらに、同試験機関による2併行試験の平均値から真度を求め、この値が80~110%の範囲から外れたものを真度の外れ値とした。

一元配置の分散分析の結果から併行精度（ RSD_r %）及び室間再現精度（ RSD_R %）の性

表2 フタル酸エステル溶出試験の試験室間共同試験における検体中のフタル酸エステルの濃度

検体No.	浸出用液	添加量 (µg/mL)					
		DBP	BBP	DEHP	DNOP	DINP	DIDP
1	水	1.1	1.2	-	-	-	-
2	4%酢酸	0.90	1.1	-	-	-	-
3	20%EtOH	1.2	0.90	-	-	-	-
4	ヘプタン	1.1	0.90	1.1	0.90	9.0	11

- : 添加せず

能パラメーターの値を食品中に残留する農薬等に関する試験法の妥当性評価ガイドラインに従って求めた。また、有効データの平均値から真度を求めた。各性能パラメーターの目標値はこのガイドラインを参考に、真度は80~110%、RSD_Fは10%以下、RSD_Rは25%以下とした。

さらに、カラム温度、装置メーカー、標準品メーカーごとに分け、それぞれについて同様に性能パラメーターの値を算出して比較した。

3) 乳等省令におけるヒ素試験法の改良

試料

ポリエチレン(PE)標準物質:JSM P700-1 (ヒ素認証値 9.1 µg/g) JFE テクノリサーチ 製

ポリプロピレン(PP)標準物質:113-01-002 (ヒ素推定値 16.9 µg/g) KRIS 製

PE 標準試料:PE 標準物質 0.17 g に、ヒ素不検出の PE 製袋の粉碎品を加えて 1.00 g としたもの。

PP 標準試料:PP 標準物質 0.09 g に、ヒ素不検出の PP 製食品用トレーの粉碎品を加えて 1.00 g としたもの。

上記の割合で混合した場合、As₂O₃として 2 µg/g を含む。

ブランク試料:標準試料作製に用いたヒ素不検出の試料

試験溶液の調製法(硝酸マグネシウム・エタノール法)

試料 1 g を磁製のるつぼに採り、硝酸マグネシウムのエタノール溶液(1→10)10 mL を試料が完全に浸るように注意深く加え、点火棒でエタノールに点火して試料を燃焼させた。炎が消えるのを確認した後、るつぼを電気炉に入れ、250 °C まで昇温し、50 分間保持した後、520 °C まで昇温し、16 時間保持し灰化した。炉内温度が 200 °C まで下がった時点で、るつぼを電気炉から取り出し、室温まで冷ました後、残留物に塩酸(1→4)10 mL を加え、沸騰水浴上で加熱して溶かし、試験溶液とした。この試験溶液を用いてヒ素試験を行った。

吸光度の測定

ヒ素試験により呈色した吸収液をねじ口付セルに採り、30 分以内に 525 nm における吸光度を測定した。

4) おもちゃにおける着色料試験の試験室間共同試験

参加機関

試験室間共同試験の計画及びプロトコール作成には民間の登録検査機関、公的な衛生研究所など 26 機関が参加し、試験 1 では着色料試験を実施した経験を有する民間の登録検査機関 10 機関、公的な衛生研究所など 4 機関、試験 2~5 では 26 機関(109 名)が参加した。また、すべての試験機関に同型の簡易照度計を配布し、試験時の照度を測定した。

試験 1 (試験機関ごとの判定結果の検証)

検体は、赤、黄、青、橙、紫、緑のそれぞれ Lv 1 (濃) ~ Lv 5 (淡) の 5 段階の濃度とし、赤、黄、青の Lv 3 のみ n=3 とした。これにブランク検体を加え、合計 39 検体とした (表 3)。

試験は、各試験機関において通常の試験業務として実施している方法により行い、検体の着色の有無について、試験機関としての判定結果を報告した。

試験 2 及び 3 (判定結果への影響要因に関する検討)

検体は試験 1 と同様のものを用いた (表 3)。試験 2 では、検体を一つずつ白色を背景として上方及び側方から観察し、水、比較液または他の検体との比較は行わずに着色の有無について、試験者個人の判断による判定結果を報告した。試験 3 では、水を比較液として着色の有無を判定した。

さらに、試験参加者の 109 名全員について、試験経験の有無、性別、年齢層、眼鏡等の使用の有無、試験を実施した時間帯、試験時の照度等の情報を調査した。

試験 4 及び 5 (比較液の導入による判定結果の一致率の向上に関する検証)

試験 1 ~ 3 の結果を基に設定した比較液 (赤 : Lv 2、黄 : Lv 2、青 : Lv 5、橙 : Lv 1、紫 : Lv 2、緑 : Lv 3) 比較液の濃度レベルを中心とした 3 段階の濃度 (濃、同、淡) の検体にブランク検体を加え、合計 32 検体とした (表 4)。

検体を一つずつ白色を背景として上方及び側方から観察し、試験 4 では 3 色 (赤、黄、青) 試験 5 では 6 色の比較液の中から検体と近い色調の比較液を選択し、試験者ごとの判定結果を報告した。ただし、検体の色が比較液よりも濃い場合を「着色有」、同等以下の場合を「着色無」と報告した。

表 3 着色料試験の試験室間共同試験 (試験 1 ~ 3) における検体

検体 No.	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
検体 Lv	青-Lv3	赤-Lv3	黄-Lv3	緑-Lv5	Blank 1	赤-Lv2	紫-Lv1	赤-Lv5	赤-Lv3	紫-Lv2
検体 No.	11	12	13	14	15	16	17	18	19	20
検体 Lv	黄-Lv2	紫-Lv5	青-Lv1	青-Lv3	緑-Lv2	橙-Lv1	Blank 2	緑-Lv4	黄-Lv1	黄-Lv3
検体 No.	21	22	23	24	25	26	27	28	29	30
検体 Lv	緑-Lv3	青-Lv4	橙-Lv5	赤-Lv1	赤-Lv3	赤-Lv4	緑-Lv1	紫-Lv4	黄-Lv5	黄-Lv3
検体 No.	31	32	33	34	35	36	37	38	39	
検体 Lv	橙-Lv3	青-Lv2	橙-Lv2	青-Lv5	青-Lv3	黄-Lv4	Blank 3	紫-Lv3	橙-Lv4	

Blank : 10%酢酸

試験は検体番号順に実施

表 4 着色料試験の試験室間共同試験 (試験 4 及び 5) における検体

検体 No.	1	2	3	4	5	6	7	8
検体	紫-淡	赤-濃	橙-淡	青-淡	黄-淡	赤-淡	緑-淡	橙-同
検体 No.	9	10	11	12	13	14	15	16
検体	青-濃	Blank 4	黄-同	紫-同	緑-同	赤-同	青-同	紫-濃
検体 No.	17	18	19	20	21	22	23	24
検体	緑-濃	緑-淡	橙-淡	黄-淡	橙-同	赤-同	青-淡	橙-濃
検体 No.	25	26	27	28	29	30	31	32
検体	緑-同	Blank 5	黄-濃	紫-同	黄-同	紫-淡	青-同	赤-淡

Blank : 10%酢酸

試験は検体番号順に実施

結果の解析

各試験における判定結果、試験者及び試験状況の情報を集計した。試験者の80%以上が「着色有」と判断した濃度レベルを「判定可能レベル」、試験者の80%以上が「着色無」と判断した濃度レベルを「認識不能レベル」とした。ただし、試験2及び3においては、試験3のブランク3検体のうち1検体以上を「着色有」と判定した試験者17名の試験データを棄却するとともに、疑義のあるケースについてはその判定結果を補正して解析した。

5) 蒸発残留物試験における蒸発乾固後の乾燥操作に関する検討

共同試験

試験室間共同試験の計画及びプロトコール作成には民間の登録検査機関、公的な衛生研究所など10機関において、5種類(シリコンオイル、テレフタル酸ビス(2-エチルヘキシル)、ビスフェノールA、アセチルクエン酸トリブチル及びセバシン酸ジブチル)または2種(アセチルクエン酸トリブチル及びセバシン酸ジブチル)の添加剤等を用いて共同試験を実施した。

各試験機関において600 µg/mLのアセトン溶液を調製し、10 mLを容器に入れ自然乾燥によりアセトンを除去した。容器をデシケーター内で1時間~1晩静置して乾燥したのち、容器の重量を測定した。この時、乾燥操作前の残留物量が5.5~6.5 mgの範囲になった容器を使用して次の操作を行った。乾燥器内に容器及び空試験用容器を置き、105℃で2時間加熱した。冷後、容器をデシケーター内で1時間~1晩静置したのち、容器の重量を測定した。

6) ホルムアルデヒド試験法の簡易化に関する検討

試料

ニトリルブタジエンゴム製手袋、シリコー

ンゴム製シート、エチレンプロピレンゴム製シート、天然ゴム製シート、フッ素ゴム製シート、クロロプレンゴム製シート、メラミン樹脂製スプーン、メラミン樹脂製椀、ポリアセタール製プレート、フェノール樹脂製椀の10種。これらはいずれもインターネット等で入手した。

ホルムアルデヒドの定量

水蒸気蒸留法

公定法に準じた。すなわち、試験溶液10 mLに20%リン酸1 mLを加え、受器に水10 mLを入れた後、水蒸気蒸留を行い、留液が約190 mLになったとき蒸留をやめ、水を加えて200 mLとした。この液5 mLとアセチルクエン酸試液5 mLを混和後、沸騰水浴中で10分間加熱した。冷却後の溶液を測定溶液とし、分光光度計を用いて波長415 nmにおける吸光度を測定し、別に作成した検量線から試験溶液中のホルムアルデヒド濃度を求めた。

直接法

水蒸気蒸留法と同じ希釈倍率となるよう、試験溶液10 mLに水を加え200 mLとした。この液5 mLとアセチルクエン酸試液5 mLを混和後、60℃の水浴で10分間加温した。冷却後の溶液を測定溶液とし、分光光度計を用いて測定した。

活性炭法

試験溶液20 mLに活性炭約0.05 gを加えて約10分間放置した後、ろ紙でろ過を行った。次に、水蒸気蒸留法と同じ希釈倍率となるよう、ろ液10 mLを分取し、水を加えて200 mLとした。この液5 mLとアセチルクエン酸試液5 mLを混和後、60℃の水浴で10分間加温した。冷却後の溶液を測定溶液とし、分光光度計を用いて測定した。

DNPH誘導体化法

試験溶液を必要に応じて水で適宜希釈した液1 mLに20%リン酸20 µL及び0.1%DNPH試液50 µLを加え、常温で20分

間反応させた。これを測定溶液とし、HPLCを用いて別に作成した検量線から試験溶液中のホルムアルデヒド濃度を求めた。

添加回収試験

各試料について、水、95 30 分間の溶出試験を行った。得られた試験溶液にホルムアルデヒド濃度が 4 µg/mL となるように添加した溶液を添加試験溶液とした。試験溶液及び添加試験溶液について各試験法に従いホルムアルデヒド濃度を求めた。回収率は添加試験溶液中のホルムアルデヒド濃度から添加前の試験溶液中のホルムアルデヒド濃度を差し引いた値を用いて算出した。

2. 市販製品に残存する化学物質に関する研究

1) ポリ塩化ビニル製玩具から溶出する可塑剤とリスク評価

試料

PVC 製玩具：ボール、人形、風呂用玩具など約 50 検体。

試験溶液の調製

試料を 3×2.5 cm (両面 15 cm²) に切断し、ガラス試験管に入れ、あらかじめ 40 で加温した人工唾液 30 mL に浸漬した。すみやかに 40 に設定したヒーター式インキュベーター内に設置した回転式振とう機にガラス試験管

をセットし、毎分 300 回転で 30 分間振とうした。試験後すぐに試料を取り除いた溶液を試験溶液とし GC/MS で測定した。

溶出試験は各 3 試行で行い、溶出量(µg/mL) は平均値±標準偏差(相対標準偏差、%) で示した。

GC/MS 条件

カラム：DB-5MS (0.25 mm i.d. × 30 m, 膜厚 0.25 µm, Agilent Technologies 社製)、カラム温度：100 -20 /min-320 (10 min)、注入口温度：250 、注入モード：スプリットレス、注入量：1 µL、キャリアーガス及び流量：He 1.0 mL/min (一定流量)、トランスファーライン温度：280 、イオン源温度：230 、四重極温度：150 、測定モード：SIM、定量イオン及び確認イオン (*m/z*): 表 5

2) 植物油総溶出量試験法の改良

試料

LLDPE 製厚手成形品 (表面積 40.37 cm²、厚さ 約 0.6 ~ 1.5 mm で不均一)

抽出用試料の調製

溶出前の試料質量 (*W_a* mg) を求めた後、オリーブ油に 80 で 60 分間浸漬させたのち、試料を取り出し試料表面に付着したオリーブ油をろ紙などにより十分に除去した。溶出後の試料質量 (*W_b* mg) を求め、溶出前後の質量

表 5 測定対象とした可塑剤とその定量イオン及び確認イオン

可塑剤	CAS番号	純度 (%)	定量イオン (<i>m/z</i>)	確認イオン (<i>m/z</i>)	定量限界 (µg/mL)
TMPD	6846-50-0	>97	71	43	
DIBP	84-69-5	>98	149	223	
TBC	77-94-1	>98	185	259, 129	
ATBC	77-90-7	>90	185	259, 129	
DEHA	103-23-1	>98	129	241, 259	全て 0.01
DINA	33703-08-1	-	129	255	
DEHP	117-81-7	>99	149	167, 279	
DINCH	166412-73-8	-	155	281	
DEHTP	6422-86-2	>98	261	149, 279	

差 ($W_b - W_a$) を算出した。質量差がほぼ一定の範囲にあるものを抽出用試料とした。

抽出温度及び抽出時間の検討

抽出用試料に内標準溶液及びシクロヘキサンを加え、40 または 70 で振とう抽出して抽出液を採取した。新たなシクロヘキサンを加え振とう抽出を繰り返した。これらの抽出液についてメチルエステル化を行い、試験溶液を調製し、ガスクロマトグラフィーで測定し絶対検量線法によりオリブ油量を定量した。

GC 条件

カラム：DB-WAX (0.25 mm i.d.×30 m, 膜厚 0.5 μ m)、Agilent Technologies 社製、カラム温度：100 (2 min), 100~250 (20 /min, 昇温), 250 (5 min)、注入口温度：250、検出器温度：250、スプリット比：1:50、キャリアーガス流量：ヘリウム 2.0 mL/min、検出器：水素炎イオン化検出器 (FID)

3) 紙製品中の蛍光物質の検査法改良に関する検討

試料

紙製品 40 検体。内訳は、食品用器具・容器包装 26 検体(ペーパーナプキン、コーヒーフィルター、ケーキ用箱など)及び食品用途以外のその他紙製品として印刷用紙 6 検体、原紙 5 検体、一般紙製品 3 検体(ペーパータオル、紙製箱)

試験

公定法による試験は昭和 45 年 9 月 16 日環食第 402 号及び平成 16 年 1 月 17 日付食安基発第 0107001 号/食安監発第 0107001 号に記載の方法に従って実施した。

TLC ビジュアルライザーを用いた蛍光の有無の確認は、露光時間を試料の場合は 200 マイクロ秒 (ms)、ガーゼ試料の場合は 500 ms とし、試料もしくはガーゼ試料を装置ステージ上に置き、366 nm の紫外線を照射したときの蛍光の強さを確認し、参考事例として示されている写真と比較し、これと同等以上と判

断した場合は強い蛍光、これよりも低いと判断した場合は弱い蛍光とした。

分光蛍光光度計を用いた蛍光強度の測定は、試料は紙製品を 5×2.5 cm 程度の大きさに切断したもの、ガーゼ試料は二つ折りにして石英プレートで挟み込んだものを、固体試料固定用セルにセットし、ホトマル電圧を 400 V に設定し、励起波長 (Ex) を 366 nm、蛍光波長 (Em) を 450 nm の蛍光強度を測定した。

4) 合成樹脂製の器具・容器包装における溶出試験の精度の検証

試験室間共同試験

試験室間共同試験には民間の登録検査機関、公的な衛生研究所など 22 機関が参加し、計画書に従って、各検体につき 2 回の試験を行い、各物質の定量を行った。試薬、試液、装置及び試験操作は、各試験機関における通常の規格試験業務と同様とした。

高密度ポリエチレン (HDPE)、ポリプロピレン (PP)、耐衝撃性ポリスチレン (HIPS)、ポリアミド (PA)、ポリエチレンテレフタレート (PET)、ポリ塩化ビニリデン (PVDC)、軟質及び硬質のポリ塩化ビニル (PVC) の 8 種類とし、8~10 物質を含有量が 0.5% もしくは 1% となるように配合した厚さ約 1 mm のシートを作製した(表 6)。ただし、軟質 PVC は可塑剤であるアセチルクロエン酸トリブチル (ATBC) の配合量を 20% とした。これらのシートを 2×5 cm に裁断したものを検体とした。各検体 3 枚を濃度非明示で平成 30 年 10 月 2 日に各試験機関に配付した。検体は原則として冷蔵庫(約 5)で保存し、表 7 に示す温度・時間の溶出試験を 2 ヶ月以内に実施した。

結果の解析

各試験機関から収集した定量値のうち、各検体の少なくとも一方の定量値が定量下限値未満であった結果、得られたすべての結果を総合した考察により試験操作等で何らかの間

表6 溶出試験に用いた試料の処方

化合物	略号または一般名	Log P _{ow} *	HDPE	PP	HIPS	PA	PET	硬質PVC	軟質PVC	PVDC
イソフタル酸ジメチル	DMP	1.7	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	1.0	1.0	
ジフェニルスルホン	DPS	2.6	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	1.0	1.0	1.0
ベンゾフェノン	BZP	3.2	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	1.0	1.0	1.0
アセチルケエン酸トリブチル	ATBC	4.3	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	1.0	20	1.0
p-tert-ブチルフェニルサリシレート	TBPS	5.7	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	1.0	1.0	1.0
2-シアノ-3,3-ジフェニルアクリル酸2-エチルヘキシル	Octocrylene	6.9	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	1.0		
アジピン酸ビス(2-エチルヘキシル)	DEHA	8.1	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	1.0	1.0	1.0
4,4'-チオビス(6-tert-ブチル-m-クレゾール)	Santonox	8.2	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	1.0	1.0	1.0
2,2'-チオジエチルビス[3-(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオナート]	BNX1035	10.4	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	1.0	1.0	1.0
3-(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオン酸ステアリル	Irganox1076	13.4	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	1.0	1.0	1.0

* : 配合せず、単位 : %

† : KOWWIN v1.68 estimate

表7 溶出試験条件

条件No	試料材質	温度	時間	浸出用液
1	PA	20 ±2	2日間	95%EtOH
2	HIPS	40 ±2	10日間	50%EtOH
3	HDPE	60 ±3	30分間	20%EtOH
4	硬質PVC	60 ±3	90分間	イソオクタン
5	軟質PVC	60 ±3	16時間	95%EtOH
6	PET	60 ±3	2日間	イソオクタン
7	PVDC	90 ±5	30分間	4%酢酸
8	PP	120 ±5	30分間	水

題があった可能性が高いと判断した結果を除外したものを有効データとし、5機関以上の有効データが得られた場合のみ一元配置の分散分析を行い、ISO 5725-2 及びJIS Z 8402-2 に基づいてCochran検定及びGrubbs検定を行った。これらの検定の結果、有意水準1%で異常値と判定されたものをそれぞれ外れ値（併行）、外れ値（室間）とした。

さらに、JIS Z 8402-2 に示された分散分析により解析を行い、併行精度（RSD_r %）及び室間再現精度（RSD_R %）を求めた。なお、Horwitzの修正式から予測される室間再現標精度（PRSD_R %）を用い、下式によりHorRat（r）及びHorRat（R）値を求めた。

$$\text{HorRat}(r) = \text{RSD}_r / \text{PRSD}_R$$

$$\text{HorRat}(R) = \text{RSD}_R / \text{PRSD}_R$$

5) 合成樹脂製器具・容器包装の製造に使用される化学物質の分析法に関する検討

対象物質

合成樹脂の製造に使用される化学物質のうち EU または米国の法規制において使用が認められている 886 種。

GC/MS 条件

注入温度: 250°C、カラム: DB-5ms (Agilent Technologies 社製) 長さ 15 m、内径 0.25 mm、膜厚 0.1 µm、カラム温度: 50°C - (20°C/min、昇温) - 320°C (20 min)、キャリアーガス及び流量: He 1.0 mL/min、インターフェース温度: 280°C、注入量: 1 µL スプリットレス、イオン化電圧: 70 eV、検出モード: SCAN (m/z 40 ~ 800) または SIM、チューニング: DFTPP (Decafluorotriphenylphosphine) 法

保持時間及びマススペクトル等の確認

標準原液 (1 mg/mL) 及び検量線溶液 (0.01、0.02、0.05、0.1、0.2、0.5、1、2、5、10 µg/mL) を GC/MS に注入し、保持時間及びマススペクトルを確認した。モニターイオンの中から最もイオン強度の高いものを定量イオンと

し、そのピーク面積により検量線を作成した。定量下限値は、ピーク面積の濃度依存性が確認できた濃度範囲のうち、最も低い濃度とした。定量下限 1 µg/mL 以下であった物質については検量線の形状を確認した。

3 . 食品添加物等の複合影響に関する研究

1) 検索対象及び方法

第9版食品添加物公定書(平成29年刊行予定)に成分規格が記載される予定の689品目を検索対象とした。

文献調査の検索エンジンとして Google Scholar³⁾を用いた。検索範囲は、期間指定は行わず、「特許部分」及び「引用部分」を除外した。検索時期は平成29年6月～7月上旬である。

検索語には、検索対象の食品添加物の品目名(和名に対応する英名)と複合影響を示す用語 combined effect、cumulative effect、synergistic effect のいずれかを検索欄に共に入力し、「(半角カンマ)」でそれを区切った。Google の検索エンジンにおいてダブルクォーテーション「 ” 」で文言を括った場合、フレーズ検索と見なされ、複数語であってもその順序で用いられているものを選択的に検索することができる。検索語句の優先順位は“combined effect”、“cumulative effect”、“synergistic effect”の順とした(step 1)。さらに食品摂取に絞り込むため、“food”、“react”、“human”、“toxic”の検索語を加え、得られた検索結果を調査した(step 2)。

2) 検索結果の集計

各品目について、用いた検索用語、検索ヒット数、ヒットした文献から複合影響について記述されていると確認された該当文献数を整理した。また、それぞれの要旨(abstract)を確認後、複合影響に関する記述が本調査の目的に相応しいとされた1~3文献について

は、雑誌名、巻、号、ページ、年、筆頭著者名、タイトル、複合影響の対象物質を品目毎に整理した。

3) 文献検索と要旨の確認

上記の集計結果から複合影響に関連すると考えられる文献が多くヒットした品目の内、流通量、生産量、使用頻度が高いと考えられる20品目に調査対象を絞り、文献検索を行った。検索エンジンとして Google Scholar を用いた。検索範囲は、期間指定は行わず、「特許部分」及び「引用部分」を除外した。検索語には、検索対象の食品添加物の品目名(和名に対応する英名)と複合影響を示す用語 combined effect、cumulative effect、synergistic effect のいずれかを検索欄に共に入力した。複合検索によりヒットした文献の要旨を全て確認し、複合影響に関する文献のみを選出し、文献要旨を確認した。

C . 研究結果及び考察

1 . 規格試験法の性能評価に関する研究

1) フタル酸エステル材質試験の性能評価

フタル酸エステル試験法について試験室間共同試験を行い、その性能を評価した。今回の定量法の結果では、すべての試験機関の定量下限値が規格値より低く、外れ値となる結果も少なかった。さらに、いずれのフタル酸エステルにおいても性能パラメーターの値は良好であり、定量法は器具・容器包装及びおもちゃの規格試験法として十分な性能を有していることが判明した。しかし、フタル酸ベンジルブチル(BBP)とフタル酸ジ-*n*-オクチル(DNOP)のRSD_Rの値については、カラム温度や装置メーカーの違いによる差が見られ、特に検量線の形状が2次曲線である場合は、マトリックスによる増感効果を受けることで試験溶液の濃度がやや高くなる傾向があった(表8)。

表8 フタル酸エステル材質試験の試験室間共同試験における条件ごとの併行精度と室間再現精度

性能パラメーター	条件	DBP	BBP	DEHP	DNOP	DINP	DIDP		
RSD _r	全体	3.1-4.2	3.0-4.1	2.9-6.7	2.9-4.6	3.1-5.2	3.6-8.1		
	カラム温度	条件A	2.6-3.1	2.8-4.0	2.8-4.9	2.9-4.7	3.9-5.3	3.6-8.4	
		条件B	3.7-5.3	2.9-4.4	2.9-8.1	3.0-5.0	1.7-4.4	3.7-7.8	
	装置メーカー	a	2.8-4.7	2.4-4.0	3.2-7.3	3.4-4.6	3.8-4.2	3.7-8.0	
		b	3.0-4.1	2.3-5.4	1.7, 6.5	1.3-5.9	1.8-6.9	3.8, 4.1	
	標準品メーカー	w	2.3-3.7	2.4-3.8	1.9-7.4	2.8-4.1	3.2-4.8	3.9-8.3	
		x	4.0-4.9	4.0-5.1	4.2-5.4	3.1-5.5	2.4-5.2	3.0-7.7	
	RSD _R	全体	8.0-10.1	17.0-21.9	10.2-16.2	12.3-14.2	15.8-16.4	17.0-20.0	
		カラム温度	条件A	4.5-6.5	14.7-18.4	9.4-11.0	10.5-13.4	9.9-10.8	15.4-20.1
			条件B	10.2-13.8	19.0-25.3	11.2-20.7	14.6-15.9	7.6-14.6	18.9-21.1
装置メーカー		a	7.7-12.0	10.7-11.7	9.0-17.1	10.5-13.3	9.9-11.1	19.5-21.3	
		b	6.2-10.4	23.1-27.9	12.5, 18.0	14.8-17.4	9.8-16.2	15.6, 22.3	
標準品メーカー		w	8.3-11.7	10.3-17.3	9.4-15.2	9.2-12.7	7.1-10.4	11.4-13.6	
		x	5.6-8.6	25.8-32.8	10.2-21.2	12.9-17.1	10.1-17.2	25.2-29.5	
(条件A) 100 /min-320 (10min), (条件B) 50 (1min)-20 /min-200 -10 /min-320 (10min)									

表9 フタル酸エステルの定量値と比較法による判定結果

定量値	判定数		判定結果の 一致率(%)	成分	検体No.
	<	>			
0.76	40	0	100%	DBP	検体3
0.78	35	5	88%	DNOP	検体3
0.80	32	4	89%	DNOP	検体4
0.86	30	10	75%	BBP	検体4
0.87	30	10	75%	DINP	検体4
0.90	28	12	70%	DIDP	検体3
1.01	11	15	58%	DEHP	検体4
1.02	12	28	70%	DBP	検体1
1.19	2	38	95%	DEHP	検体1
1.19	6	34	85%	DIDP	検体2
1.33	0	40	100%	DNOP	検体2
1.40	0	40	100%	DEHP	検体3
1.42	2	38	95%	BBP	検体3
1.42	0	40	100%	DINP	検体1
1.42	0	40	100%	DIDP	検体4
1.43	2	38	95%	DBP	検体4
1.50	0	40	100%	BBP	検体2
1.68	0	40	100%	DINP	検体3

定量値は定量法における全体の平均値

< : 標準溶液と比べて試験溶液のピーク面積値が小さい

> : 標準溶液と比べて試験溶液のピーク面積値が大きい

判定結果の一致率(%) =

(「<」の判定数が多い場合) 「<」の判定数 / 総判定数 × 100

(「>」の判定数が多い場合) 「>」の判定数 / 総判定数 × 100

また、比較法の結果では、試験溶液と標準溶液のピーク面積値が明らかに異なる場合は正確な判定を行うことができるが、試験溶液と標準溶液のピーク面積値が近い場合は使用する装置やその状態、試験溶液中のマトリクスなどの様々な要因によって一部の試験機関が他の試験機関とは異なる判定結果を出してしまう可能性がある(表9)。特に検量線を作成した際に2次曲線となるような場合は、検量線が1次直線となるような状態に整備したうえで再測定することにより結果を検証する必要がある。

さらに、今回の試験室間共同試験では、一部の試験機関がテレフタル酸ビス(2-エチルヘキシル)(DEHTP)をDNOP、フタル酸ジシクロヘキシル(DCHP)をフタル酸ビス(2-エチルヘキシル)(DEHP)と誤認していた。DEHTPは規制対象のフタル酸エステルの代

替としての使用頻度が増加しており、DNOPと疑われるピークが検出された場合は、必ず保持時間やマススペクトルをDEHTPと比較して定性する必要がある(図1)。一方、DCHPについてはこれまでに市販製品から検出された例はないが、規制対象のフタル酸エステルの代替として使用される可能性があるため、DEHPと混同しないよう注意する必要がある。

2) 器具・容器包装におけるフタル酸エステル溶出試験の性能評価

器具・容器包装に対して6種のフタル酸エステルの規格が設定されることを想定し、これらの溶出試験法について試験室間共同試験を行い、その性能を評価した。その結果、現行のDEHPと同じ溶出限度値が設定されるならば、提案法は規格試験法として十分な性能を有することが確認された(表10)。しかし、

外れ値となる結果が散見されたことから、各試験機関においては十分な精度管理を実施する必要があった。

3) 乳等省令におけるヒ素試験法の改良

乳等省令のヒ素試験法における試験溶液の調製法の代替法として、硝酸マグネシウム・エタノール法の適用性を検証した。公定法である硫硝酸法では、試料を分解し試験溶液を調製するまで1週間以上を要する場合があるが、硝酸マグネシウム・エタノール法では2

日間であった。また、硫硝酸法では灰化終了まで常時観察を続けることが必要だが、本法では、強酸等も使用しないため安全であり、試料を10分程度燃焼させた後は電気炉で灰化させるため、常に観察する必要はなく、操作は非常に簡便であった(図2)。さらに、試験溶液の調製操作による結果のばらつきも小さく、標準色及び標準試料は、ほぼ同じ吸光度を示した。以上より、本法は、試験溶液調製法の代替法として使用可能と考えられた。

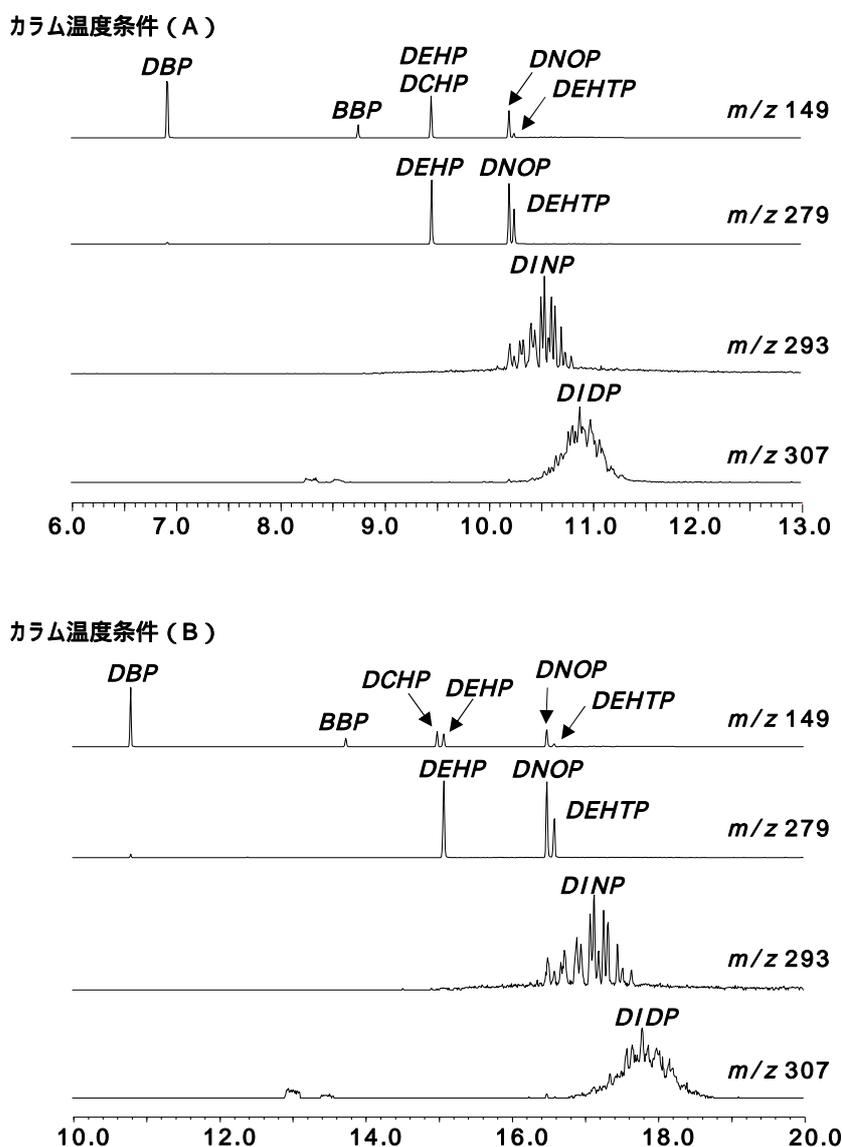


図1 検体4のマスクロマトグラムの一例

カラム温度条件(A) : 100 -20 /min-320 (10min)

カラム温度条件(B) : 50 (1min)-20 /min-200 -10 /min-320 (10min)

表 10 フタル酸エステル溶出試験の試験室間共同試験における条件ごとの併行精度と室間再現精度

性能 パラメーター	条件	検体1			検体2			検体3			検体4			
		DBP	BBP	DBP	BBP	DBP	BBP	DBP	BBP	DBP	DEHP	DNOP	DINP	DIDP
真度	全体	95.9	85.0	96.9	91.9	88.8	98.4	97.5	104.5	97.0	95.7			
(試験法)	カラム温度	条件A	92.3	80.6	97.1	92.5	95.1	92.7	99.5	95.9	98.2	104.5	97.1	96.1
		条件B	100.0	90.0	96.7	91.3	91.5	89.2	97.1	99.5	96.6	104.5	96.9	95.2
	装置メーカー	a	92.2	82.7	95.8	89.6	94.7	91.3	98.6	95.6	94.2	100.7	100.6	98.0
	標準品メーカー	w	95.2	84.1	95.6	91.1	91.6	91.3	96.8	98.4	96.7	106.6	95.5	94.7
	x	97.8	87.2	99.9	93.8	-	101.7	95.9	100.1	100.1	97.8			
RSD _r	全体	4.1	6.0	3.6	2.9	3.1	3.2	3.2	3.2	2.9	3.1	3.7	4.8	
カラム温度	条件A	2.8	3.7	3.2	2.9	2.4	2.7	3.1	3.1	3.1	3.9	3.6		
	条件B	5.1	7.4	4.0	2.8	3.7	3.8	3.5	3.2	2.7	3.5	6.1		
	装置メーカー	a	4.1	5.3	3.7	2.5	3.2	1.0	1.4	1.0	1.8	3.2	4.9	
	標準品メーカー	w	3.5	4.7	4.2	3.2	3.3	3.8	3.9	3.5	3.7	5.3		
	x	5.3	8.1	1.6	1.7	-	1.7	1.2	2.0	3.8				
RSD _R	全体	11.2	14.0	7.1	8.0	16.1	6.4	9.0	10.7	11.8	10.6	11.6		
カラム温度	条件A	6.1	12.7	7.0	7.9	13.0	5.9	9.1	5.5	12.4	11.3	13.1		
	条件B	13.9	13.6	7.5	8.6	7.4	7.1	8.9	15.5	11.9	10.3	10.2		
	装置メーカー	a	7.4	10.2	7.0	7.4	7.3	9.4	10.9	10.2	6.4	10.1		
	標準品メーカー	w	11.1	12.0	6.6	8.3	9.1	6.3	7.3	11.5	12.0	10.8	11.2	
	x	12.5	19.1	7.9	7.8	-	5.6	12.4	9.6	11.0	10.3	13.2		

- : 有効データ数が5未満であったため解析せず

(条件A) 100 -20 /min-320 (10min), (条件B) 50 (1min)-20 /min-200 -10 /min-320 (10min)

	乳等省令	第8版食品添加物公定書 ヒ素試験法第4法
試料	1 g	別に規定する量
試験溶液 または検液 の調製法	<p>硝酸 20 mL</p> <p>↓</p> <p>弱く加熱</p> <p>↓</p> <p>内容物が流動状になるまで</p> <p>↓ 冷後</p> <p>硫酸 5 mL</p> <p>↓</p> <p>・白煙が発生するまで加熱 ・液がなお褐色を呈するときは</p> <p>↓ 冷後</p> <p>硝酸 5 mL</p> <p>↓</p> <p>褐色 無色または淡黄色になるまで</p> <p>[] を繰り返す</p> <p>↓ 冷後</p> <p>飽和シュウ酸アンモニウム溶液 15 mL</p> <p>↓</p> <p>白煙が発生するまで加熱</p> <p>↓ 冷後</p> <p>水を加えて20 mLとする(試験溶液) このうち10 mLを用いて試験を行う</p> <p>↓</p>	<p>硝酸マグネシウムのエタノール 溶液(1:10) 10 mL 第3法は硝酸マグネシウムのエタノール溶液(1:50) 10 mL</p> <p>↓</p> <p>エタノールに点火</p> <p>↓</p> <p>燃焼</p> <p>↓</p> <p>・徐々に加熱して450~550 で灰化 ・炭化物が残るときは少量の 硝酸マグネシウムのエタノール溶液 (1:50)で潤し再び強熱して 450~550 で灰化する</p> <p>↓ 冷後</p> <p>塩酸 3 mL</p> <p>↓</p> <p>水浴上で加温し溶かす(検液)</p> <p>↓</p>
ヒ素試験	B法 As ₂ O ₃ として2 μg/g以下	B法

図2 ヒ素試験法における試験溶液または検液の調製法

4) おもちゃにおける着色料試験の試験室間共同試験

機関ごとの判定結果の検証(試験1)

着色料試験における試験溶液の着色の有無の判定方法を調査するとともに、同一の試験溶液を用いた試験室間共同試験を実施し、その結果について検証した。

ネスラー管については、現在おもちゃの製造基準で規定されている「底から栓の下面までの距離 20 cm」のネスラー管は市販されていないことから「底からネスラー管の上端までの距離 20 cm」に変更すべきと考えられた。また、試験機関によって試験室の環境は様々であり、試験時の明るさも異なっていたが、判定結果への影響は認められなかった。

「判定可能レベル」は、赤、黄、紫、緑ではLv 2、橙ではLv 1、青ではLv 5であった。一方、「認識不能レベル」は、橙及び紫でLv 5であったが、その他の色調ではLv 5よりも低い濃度に存在し、今回の検体では認識不能レベルを設定できなかった。このように大部分の試験機関が「着色有」と認識可能な濃度と認識できない濃度に大きな濃度差が存在した(表11)。

おもちゃの着色料試験のうち、繊維、紙、木製以外のおもちゃでは着色の有無の判定基準が明確に定められていないため、試験機関間で判定方法や結果が異なるケースや、試験機関内で同じ検体の判定結果が異なるケースが存在した。さらに、着色している検体を見逃さないようにと厳しく判断することにより、ブランク試料を「着色有」と判定した結果も見られた。今回のような試験者により判断が分かれる濃度の検体では、試験経験を有する試験機関であっても判定結果が異なり、現行の

試験法では機関間での判定結果の一致率の向上や試験の精度管理が困難であることが伺えた。

判定結果への影響要因に関する検討(試験2及び3)

着色料試験における判定結果に影響を及ぼす要因を検証するため、試験経験がない試験者も含めた個々の試験者レベルでの試験室間共同試験を実施し、その判定結果について解析した。さらに、水を比較液とした試験も実施し、比較液を用いない場合との判定結果の違いを確認した。

その結果、比較液を用いない場合は、試験経験の有無で、黄と紫の「判定可能レベル」に差がみられた。また、試験経験者では黄、試験未経験者では青の判定結果が試験者や試験時の状況により影響を受けやすいと考えられた(表12)。一方、水を比較液として用いた場合は、試験経験の有無により緑の検体の「判定可能レベル」に差が生じた。さらに、試験経験者では緑、試験未経験者では赤と黄の判定結果が試験者や試験時の状況により影響を受けやすいと考えられた(表13)。

比較液として水を用いた場合は判断基準が明確となり、比較液を用いない場合と比べて、誤判定率及び同一濃度の検体における併行精度が向上し、検体の濃度と判定結果が逆転するような疑義がある結果も減少した。しかし、着色料試験において水は最も厳しい比較液であるため、全体的に判断が厳しくなり、より低い濃度まで「着色有」と判定された。また、「判定可能レベル」と「認識不能レベル」には差が存在し、水を比較液として用いても試験者間または試験機関間の判定結果を一致させることができなかった。

表1.2 着色料試験の試験室間共同試験（試験2）における試験者または試験条件ごとの判定結果

試験者または試験条件の区分	赤					黄					青											
	Lv1	Lv2	Lv3	Lv4	Lv5	判断可能Lv	認識不能Lv	Lv1	Lv2	Lv3	Lv4	Lv5	判断可能Lv	認識不能Lv	Lv1	Lv2	Lv3	Lv4	Lv5	判断可能Lv	認識不能Lv	
試験者または試験条件の区分	Lv1	Lv2	Lv3	Lv4	Lv5	判断可能Lv	認識不能Lv	Lv1	Lv2	Lv3	Lv4	Lv5	判断可能Lv	認識不能Lv	Lv1	Lv2	Lv3	Lv4	Lv5	判断可能Lv	認識不能Lv	
全体	92	100	99	73	36	22	-	100	99	76	64	44	44	-	100	100	100	93	90	100	100	100
経験	有	46	100	100	76	40	23	100	100	91	85	67	Lv4	-	100	100	100	100	100	100	100	100
無	46	100	98	71	32	21	-	100	98	61	42	21	Lv2	-	100	100	100	87	80	100	100	100
年齢	23	100	100	78	35	17	-	100	100	83	74	43	Lv3	-	100	100	100	98	93	100	100	100
35	100	100	70	37	23	Lv2	-	100	100	83	59	41	Lv3	-	100	100	100	89	89	100	100	100
22	100	95	73	32	14	Lv2	Lv5	100	100	70	70	59	Lv2	-	100	100	100	98	89	100	100	100
12	100	100	75	42	42	Lv2	-	100	92	54	46	25	Lv2	-	100	100	100	92	92	100	100	100
性別	35	100	97	74	37	23	Lv2	100	97	76	63	47	Lv2	-	100	100	100	90	87	100	100	100
57	100	100	73	35	21	Lv2	-	100	100	76	64	42	Lv2	-	100	100	100	96	92	100	100	100
性別	61	100	100	70	37	25	Lv2	100	98	82	68	47	Lv3	-	100	100	100	98	96	100	100	100
性別	31	100	97	79	34	15	Lv5	100	100	65	55	39	Lv2	-	100	100	100	85	79	100	100	100
UV	13	100	100	69	46	38	Lv2	100	100	77	50	42	Lv2	-	100	100	100	100	92	100	100	100
無	48	100	100	71	34	22	Lv2	100	98	83	73	48	Lv3	-	100	100	100	97	97	100	100	100
時刻	25	100	100	64	10	10	Lv4	100	96	64	50	30	Lv2	-	100	100	100	88	84	100	100	100
56	100	98	81	51	29	Lv3	-	100	100	81	69	50	Lv3	-	100	100	100	96	94	100	100	100
11	100	100	55	18	9	Lv2	Lv4	100	100	77	68	45	Lv2	-	100	100	100	95	86	100	100	100
屋外	65	100	98	76	37	20	Lv2	100	100	76	60	42	Lv2	-	100	100	100	92	89	100	100	100
27	100	100	67	33	26	Lv2	-	100	96	76	72	48	Lv2	-	100	100	100	96	93	100	100	100
照度	26	100	100	54	17	13	Lv4	100	96	65	50	27	Lv2	-	100	100	100	88	85	100	100	100
37	100	97	86	57	38	Lv3	-	100	100	80	62	47	Lv3	-	100	100	100	96	93	100	100	100
26	100	100	71	25	6	Lv2	Lv5	100	100	79	75	54	Lv2	-	100	100	100	94	90	100	100	100
試験者または試験条件の区分	Lv1	Lv2	Lv3	Lv4	Lv5	判断可能Lv	認識不能Lv	Lv1	Lv2	Lv3	Lv4	Lv5	判断可能Lv	認識不能Lv	Lv1	Lv2	Lv3	Lv4	Lv5	判断可能Lv	認識不能Lv	
全体	92	99	78	33	21	9	Lv1	96	83	60	38	22	Lv2	-	100	100	90	68	51	100	100	
経験	有	46	100	91	39	23	5	100	97	83	53	27	Lv3	-	100	100	100	88	71	100	100	
無	46	98	65	27	20	13	Lv1	91	70	38	23	16	Lv1	Lv5	100	100	80	49	30	100	100	
年齢	23	100	91	33	20	0	Lv2	100	85	63	35	17	Lv2	Lv5	100	100	100	70	48	100	100	
35	97	74	31	24	13	Lv1	Lv5	91	77	59	43	20	Lv1	-	100	100	86	67	43	100	100	
22	100	82	41	20	11	Lv2	Lv5	100	95	61	36	27	Lv2	-	100	100	91	75	66	100	100	
12	100	58	25	17	13	Lv1	Lv4	92	75	58	33	25	Lv1	-	100	100	83	58	50	100	100	
性別	35	97	77	47	21	13	Lv1	91	80	59	34	17	Lv2	Lv5	100	100	94	70	63	100	100	
57	100	79	25	21	7	Lv1	Lv5	98	85	61	40	25	Lv2	-	100	100	88	68	43	100	100	
性別	61	98	82	39	22	8	Lv2	97	86	66	39	21	Lv2	-	100	100	95	74	56	100	100	
性別	31	100	71	23	19	11	Lv1	94	77	48	35	23	Lv1	-	100	100	81	58	40	100	100	
UV	13	100	85	38	12	4	Lv2	100	88	69	42	19	Lv2	Lv5	100	100	100	73	65	100	100	
無	48	98	81	39	25	9	Lv2	96	85	66	39	22	Lv2	-	100	100	94	74	53	100	100	
時刻	25	100	60	36	28	16	Lv1	88	76	44	26	18	Lv1	Lv5	100	100	80	52	34	100	100	
56	98	88	34	20	5	Lv2	Lv5	98	83	65	38	17	Lv2	Lv5	100	100	96	77	57	100	100	
11	100	73	23	14	14	Lv1	Lv4	100	100	73	64	55	Lv2	-	100	100	82	64	55	100	100	
屋外	65	98	75	38	22	11	Lv1	97	84	58	32	20	Lv2	-	100	100	91	68	49	100	100	
27	100	85	22	19	6	Lv2	Lv4	93	81	67	52	26	Lv2	-	100	100	89	69	54	100	100	
照度	26	100	65	23	15	8	Lv1	85	73	42	35	15	Lv1	Lv5	100	100	85	46	33	100	100	
37	100	84	35	18	7	Lv2	Lv4	100	85	64	31	15	Lv2	Lv5	100	100	92	73	57	100	100	
26	96	81	33	23	8	Lv2	Lv5	100	88	73	50	35	Lv2	-	100	100	92	81	58	100	100	

数値は着色者と判定した試験者の割合（％）

表 1.3 着色料試験の試験室共同試験（試験3）における試験者または試験条件ごとの判定結果

試験者または試験条件の区分	赤										黄										青									
	試験					試験					試験					試験					試験					試験				
	者数	Lv1	Lv2	Lv3	Lv4	Lv5	判定可能Lv	認識不能Lv	認識不能Lv	判定可能Lv	Lv1	Lv2	Lv3	Lv4	Lv5	判定可能Lv	認識不能Lv	認識不能Lv	判定可能Lv	Lv1	Lv2	Lv3	Lv4	Lv5	判定可能Lv	認識不能Lv	認識不能Lv			
全体	92	100	100	97	72	54	Lv3	-	Lv3	-	100	100	95	83	63	Lv4	-	Lv4	-	100	100	100	99	96	Lv5	-	Lv5	-		
経験 有	46	100	100	96	64	45	Lv3	-	Lv3	-	100	100	98	92	75	Lv4	-	Lv4	-	100	100	100	100	96	Lv5	-	Lv5	-		
経験 無	46	100	100	98	80	63	Lv4	-	Lv4	-	100	100	92	73	50	Lv3	-	Lv3	-	100	100	100	99	97	Lv5	-	Lv5	-		
年齢	23	100	100	100	70	52	Lv3	-	Lv3	-	100	100	100	85	63	Lv4	-	Lv4	-	100	100	100	100	96	Lv5	-	Lv5	-		
	35	100	100	94	73	53	Lv3	-	Lv3	-	100	100	96	84	63	Lv4	-	Lv4	-	100	100	100	100	97	Lv5	-	Lv5	-		
	22	100	100	95	68	50	Lv3	-	Lv3	-	100	100	91	91	73	Lv4	-	Lv4	-	100	100	100	100	95	Lv5	-	Lv5	-		
	12	100	100	100	83	67	Lv4	-	Lv4	-	100	100	92	58	42	Lv3	-	Lv3	-	100	100	100	99	96	Lv5	-	Lv5	-		
性別 男	35	100	100	97	79	53	Lv3	-	Lv3	-	100	100	91	73	61	Lv3	-	Lv3	-	100	100	100	99	96	Lv5	-	Lv5	-		
性別 女	57	100	100	96	68	54	Lv3	-	Lv3	-	100	100	97	89	63	Lv4	-	Lv4	-	100	100	100	100	96	Lv5	-	Lv5	-		
メカネ 有	61	100	100	95	67	52	Lv3	-	Lv3	-	100	100	93	84	66	Lv4	-	Lv4	-	100	100	100	99	96	Lv5	-	Lv5	-		
メカネ 無	31	100	100	100	82	56	Lv4	-	Lv4	-	100	100	98	79	55	Lv3	-	Lv3	-	100	100	100	100	97	Lv5	-	Lv5	-		
UV 有	13	100	100	100	62	62	Lv3	-	Lv3	-	100	100	92	81	73	Lv4	-	Lv4	-	100	100	100	100	92	Lv5	-	Lv5	-		
UV 無	48	100	100	94	69	50	Lv3	-	Lv3	-	100	100	94	85	65	Lv4	-	Lv4	-	100	100	100	99	97	Lv5	-	Lv5	-		
時刻 有	25	100	100	95	73	45	Lv3	-	Lv3	-	100	100	86	73	55	Lv3	-	Lv3	-	100	100	100	98	89	Lv5	-	Lv5	-		
時刻 無	56	100	100	98	73	61	Lv3	-	Lv3	-	100	100	97	83	68	Lv4	-	Lv4	-	100	100	100	100	98	Lv5	-	Lv5	-		
屋外 有	11	100	100	95	70	45	Lv3	-	Lv3	-	100	100	100	93	58	Lv4	-	Lv4	-	100	100	100	100	100	Lv5	-	Lv5	-		
屋外 無	65	100	100	97	72	50	Lv3	-	Lv3	-	100	100	95	81	64	Lv4	-	Lv4	-	100	100	100	100	95	Lv5	-	Lv5	-		
照度 有	27	100	100	96	74	63	Lv3	-	Lv3	-	100	100	94	87	59	Lv4	-	Lv4	-	100	100	100	98	98	Lv5	-	Lv5	-		
照度 無	26	100	100	92	52	36	Lv3	-	Lv3	-	100	100	88	66	50	Lv3	-	Lv3	-	100	100	100	98	94	Lv5	-	Lv5	-		
試験者または試験条件の区分	37	100	100	97	83	69	Lv4	-	Lv4	-	100	100	97	89	64	Lv4	-	Lv4	-	100	100	100	100	94	Lv5	-	Lv5	-		
全体	26	100	100	100	73	48	Lv3	-	Lv3	-	100	100	98	88	68	Lv4	-	Lv4	-	100	100	100	100	100	Lv5	-	Lv5	-		
試験者または試験条件の区分	者数	Lv1	Lv2	Lv3	Lv4	Lv5	判定可能Lv	認識不能Lv	認識不能Lv	判定可能Lv	Lv1	Lv2	Lv3	Lv4	Lv5	判定可能Lv	認識不能Lv	認識不能Lv	判定可能Lv	Lv1	Lv2	Lv3	Lv4	Lv5	判定可能Lv	認識不能Lv	認識不能Lv			
全体	92	100	92	67	49	17	Lv2	Lv5	-	Lv2	100	93	56	38	22	Lv2	-	Lv2	-	99	100	98	85	65	Lv4	-	Lv4	-		
経験 有	46	100	93	73	58	13	Lv2	Lv5	-	Lv2	100	100	71	49	27	Lv2	-	Lv2	-	100	100	100	90	82	Lv5	-	Lv5	-		
経験 無	46	100	90	61	40	21	Lv2	-	Lv2	100	86	41	27	16	16	Lv2	Lv5	-	Lv2	99	100	96	79	49	Lv3	-	Lv3	-		
年齢	23	100	96	80	63	17	Lv3	Lv5	-	Lv3	100	98	59	37	17	Lv2	Lv5	-	Lv2	98	100	100	93	80	Lv5	-	Lv5	-		
	35	100	89	59	37	13	Lv2	Lv5	-	Lv2	100	89	56	34	19	Lv2	Lv5	-	Lv2	100	100	97	81	56	Lv4	-	Lv4	-		
	22	100	91	68	50	9	Lv2	Lv5	-	Lv2	100	100	50	36	27	Lv2	-	Lv2	-	100	100	100	86	68	Lv4	-	Lv4	-		
	12	100	96	63	54	42	Lv2	-	Lv2	100	83	63	54	29	29	Lv2	-	Lv2	-	100	100	92	75	58	Lv3	-	Lv3	-		
性別 男	35	100	90	74	53	16	Lv2	Lv5	-	Lv2	100	84	50	39	19	Lv2	Lv5	-	Lv2	99	100	94	83	63	Lv4	-	Lv4	-		
性別 女	57	100	93	62	46	18	Lv2	Lv5	-	Lv2	100	98	60	38	24	Lv2	-	Lv2	-	100	100	100	86	67	Lv4	-	Lv4	-		
メカネ 有	61	100	92	66	49	21	Lv2	-	Lv2	100	97	60	40	22	22	Lv2	-	Lv2	-	100	100	98	86	66	Lv4	-	Lv4	-		
メカネ 無	31	100	92	69	48	8	Lv2	Lv5	-	Lv2	100	85	48	34	21	Lv2	-	Lv2	-	98	100	97	82	63	Lv4	-	Lv4	-		
UV 有	13	100	85	69	46	23	Lv2	-	Lv2	100	100	58	38	38	38	Lv2	-	Lv2	-	100	100	100	92	69	Lv4	-	Lv4	-		
UV 無	48	100	94	65	50	21	Lv2	-	Lv2	100	96	60	41	18	18	Lv2	Lv5	-	Lv2	100	100	98	84	66	Lv4	-	Lv4	-		
時刻	25	100	86	64	41	20	Lv2	-	Lv2	100	82	43	20	11	11	Lv2	Lv5	-	Lv2	100	100	91	84	43	Lv4	-	Lv4	-		
	56	100	91	67	52	14	Lv2	Lv5	-	Lv2	100	95	55	35	18	Lv2	Lv5	-	Lv2	99	100	100	87	73	Lv4	-	Lv4	-		
	11	100	100	70	50	20	Lv2	-	Lv2	100	100	73	65	43	43	Lv2	-	Lv2	-	100	100	100	80	70	Lv4	-	Lv4	-		
屋外	65	100	92	71	52	18	Lv2	Lv5	-	Lv2	100	92	56	33	16	Lv2	Lv5	-	Lv2	99	100	98	84	62	Lv4	-	Lv4	-		
	27	100	93	57	43	15	Lv2	Lv5	-	Lv2	100	96	56	50	35	Lv2	-	Lv2	-	100	100	96	87	72	Lv4	-	Lv4	-		
照度	26	100	84	50	28	10	Lv2	Lv5	-	Lv2	100	84	26	14	4	Lv2	Lv4	-	Lv2	100	100	92	58	30	Lv3	-	Lv3	-		
	37	100	93	68	51	25	Lv2	-	Lv2	100	93	65	44	26	26	Lv2	-	Lv2	-	99	100	100	94	78	Lv4	-	Lv4	-		
	26	100	96	77	59	7	Lv2	Lv5	-	Lv2	100	100	66	52	34	Lv2	-	Lv2	-	100	100	100	95	80	Lv5	-	Lv5	-		

数値は着色と判定した試験者の割合（％）

比較液の導入による判定結果の一致率の向上に関する検証（試験4及び5）

着色の有無の判断をより明確化させる目的で、着色した溶液を比較液として試験室間共同試験を実施し、試験者レベルでの判定結果の一致率について検証した。

その結果、比較液を用いることにより試験者及び試験機関の判定結果をある程度一致させることができた。さらに、判定結果の併行精度の向上やブランク検体の誤判定率の低減化にも有効であった（表14）。

以上の結果から、着色試験の判定に比較液を用いることを提案した。比較液としては、赤は0.2 mg/mL 塩化コバルト溶液、黄は0.004 mg/mL クロム酸カリウム溶液、青は0.125 mg/mL 硫酸銅溶液が適当と考えられた。また、必要に応じて橙の比較液として20 mg/mL 塩化コバルト溶液（赤の比較液）と0.4 mg/mL クロム酸カリウム溶液（黄の比較液）を等量混合し50倍希釈した溶液、緑の比較液として0.4 mg/mL クロム酸カリウム溶液（黄の比較液）と50 mg/mL 硫酸銅溶液（青の比較液）を等量混同し200倍希釈した溶液を調製して用いるとよい。さらに、比較液と同濃度の検体を判定する場合には、各試験機関においてあらかじめ再現性が得られるような総合判定

の方法を検討しておく必要がある。

5) 蒸発残留物試験における蒸発乾固後の乾燥操作に関する検討

蒸発残留物試験における蒸発乾固後の乾燥操作が試験結果に与える影響について9または10機関が参加した共同試験を行った。その結果、105 に設定した各試験機関の乾燥器内の位置による温度差は自然対流方式より強制送風方式の方が少ない傾向にあった（表15）。しかし、105 において揮散の程度が異なる5種類の可塑剤等を試験対象物質として105 2時間加熱の乾燥操作後の残存率を調べたところ、揮散しやすい物質では、残存率及びそのばらつきは試験機関による差が大きく、しかもその傾向は乾燥器が自然対流方式より強制送風方式の場合に顕著であった。また、乾燥器内の温度と残存率に相関はみられなかった（表16）。すなわち、乾燥器内の温度が概ね105 ±5 の範囲内であれば、残存率の低下やばらつきに影響を及ぼす可能性は低いと考えられた。

送風量及び容器の形状については、送風量は少なく、容器の高さは高い方が残存率は高くなる傾向があった。蓋が有る場合は、蓋が無い場合と比較すると、残存率はいずれも大

表14 着色料試験の試験室間共同試験（試験4及び5）における試験者または試験条件ごとの判定結果

試験	条件	区分	比較液よりも濃い検体						比較液と同じ検体						比較液よりも薄い検体						Blank
			赤	黄	青	橙	紫	緑	赤	黄	青	橙	紫	緑	赤	黄	青	橙	紫	緑	
試験4	全体	全体	99	100	84	96	97	96	35	39	28	74	39	52	3	5	14	6	2	7	
		照度	95	100	86	100	95	95	31	45	26	71	29 [#]	57	5	5	17	12	0	19 [*]	2
	時刻	9:00-12:00	100	100	84	95	100	90	41	33	31	79	49 [*]	51	3	0	8	5	0	3	0
		13:00-15:30	100	100	81	94	97	100	44	29	27	77	39	55	6	13	16	8	0	10	0
		15:31-18:00	98	100	89	100	95	95	32	41	24	70	38	51	3	3	13	9	3	8	2
		全体	100	100	82	94	100	94	32	44	35	76	41	51	0	0	15	1	1	4	0
試験5	全体	全体	99	100	77	99	96	98	31	39	26	37	33	36	5	5	13	4	2	8	
		照度	100	100	52 [#]	100	87	96	26	28 [#]	24	26 [#]	26	20 [#]	2	0	9	0	0	2	0
	時刻	9:00-12:00	98	100	87 [*]	98	98	98	37	43	27	44	35	38	7	9	14	6	4	10	3
		13:00-15:30	100	100	75	100	100	100	24	37	29	26 [#]	34	45	3	0	16	3	0	13	0
		15:31-18:00	100	100	62 [#]	100	96	96	31	35	19	29	21 [#]	38	13	15 [*]	15	10	2	13	2
		全体	100	100	77	97	97	100	24	31	28	41	37	37	6	3	13	4	3	9	3
全体	98	100	84	100	96	98	36	45	28	37	37	34	1	2	13	1	2	6	1		

数値は着色有（比較液よりも濃い）と判定した試験者の割合（%）

試験時の照度の区分： ~400、401~700、701~1000、1001~

試験時刻の区分： 9:00-12:00、13:00-15:30、15:31-18:00

*：全体の割合よりも10%以上高い

#：全体の割合よりも10%以上低い

表 1 5 乾燥器の送風方式と温度差

送風方式	試験機関	温度分布*	位置ごとの 最低温度 ()	位置ごとの 最高温度 ()	最低温度と 最高温度の差 ()
強制送風	1	±2.5 (210)	103.1	105.6	2.5
	3	±4 (250)	103.2	108.5	5.3
	7	±2.5 (210)	103.7	104.4	0.7
	8	±0.5 (100) ±1.5 (200)	(標準設定時) 105.5	(標準設定時) 107.0	(標準設定時) 1.5
			(微風設定時) 100.9	(微風設定時) 105.5	(微風設定時) 4.6
9	±2.5 (210)	103.1	104.3	1.2	
自然対流	2	±10 (300)	102.2	109.8	7.6
	4	±7 (270)	102.3	106.6	4.3
	5	±8 (300)	103.5	110.1	6.6
	6	±10 (250)	103.4	108.2	4.8
	10	±8 (260)	100.5	107.4	6.9

* : 取扱説明書等に記載の温度分布

表 1 6 共同試験の結果

試験機関		1	3	7	8	9	2	4	5	6	10
乾燥器の送風方式		強制送風					自然対流				
容器		蒸発皿	るつぼ	蒸発皿	結晶皿	ビーカー*	結晶皿	蒸発皿	蒸発皿	蒸発皿	ビーカー*
試験数		n=12	n=16	n=12	n=12	n=9	n=16	n=12	n=9	n=16	n=9
シリコン オイル	平均残存率 (%)	100.0	99.6	98.5	93.2	100.5	98.4	103.6	93.7	96.3	101.1
	標準偏差 (%)	1.9	3.3	1.9	2.6	2.0	0.8	4.3	2.7	1.6	1.5
DEHTP	平均残存率 (%)	93.7	76.6	94.3	72.4	85.7	95.3	103.7	98.1	98.4	92.9
	標準偏差 (%)	2.6	6.3	2.7	2.9	5.1	1.6	4.8	2.2	4.2	6.0
BPA	平均残存率 (%)	89.1	87.1	94.9	78.0	82.5	98.1	101.6	96.6	90.9	94.9
	標準偏差 (%)	2.1	6.4	2.7	9.9	3.4	0.9	3.2	2.7	3.7	4.7
ATBC	平均残存率 (%)	57.1	22.6	56.5	45.2	32.3	60.4	72.0	81.5	60.9	56.3
	標準偏差 (%)	21.0	9.9	9.4	28.7	9.9	8.6	13.0	6.4	6.9	19.9
DBS	平均残存率 (%)	22.9	18.9	40.3	<17 (1.0)	<17 (14.6)	43.4	40.8	57.0	55.4	30.8
	標準偏差 (%)	11.7	9.7	11.4	(1.8)	(6.8)	14.1	13.6	11.1	11.3	18.9

* : ビーカーの上部を切断したもので、形状は結晶皿に近い

表 17 容器の種類と蓋の有無による残存率の比較

物質	試験 機関	乾燥器の 送風方式	残存率 (%)	蓋無し		時計皿で蓋		アルミ箔で蓋	
				結晶皿	ビーカー	結晶皿	ビーカー	結晶皿	ビーカー
ATBC	2	自然対流	平均値 (%)	62.6	80.2	95.6	97.8	98.9	99.4
			標準偏差 (%)	6.5	4.2	1.9	0.9	0.9	1.0
	8	強制送風	平均値 (%)	24.7	58.5	92.2	97.2	90.4	94.4
			標準偏差 (%)	8.2	9.5	1.9	0.9	6.4	0.9
DBS	2	自然対流	平均値 (%)	42.5	72.7	91.1	95.6	95.6	97.8
			標準偏差 (%)	7.5	5.3	2.0	1.0	1.0	1.0
	8	強制送風	平均値 (%)	<17	45.2	68.1	93.3	65.8	88.7
			標準偏差 (%)	6.8	12.0	16.2	1.6	8.8	1.0

n=3

幅に高くなり、標準偏差もほとんどの場合で小さくなった(表 17)。これにより、容器内の残留物に風があたることによって揮散量が増加することが示唆された。

現行公定法の規定に準拠している「蒸発皿、結晶皿等」より背が高いビーカーを使用すると、乾燥器の送風方式にかかわらず、残存率が増加し、試験機関間のばらつきも改善された。また、送風方式別に比較すると、自然対流方式が残存率、標準偏差はともに良好であり、強制送風方式より望ましいと考えられた。また、強制送風方式を使用する場合は、容器をビーカーに変更することで、残存率が高くなりばらつきも改善することが分かった。さらに、容器に蓋をして効果を調べたところ、風に影響が抑えられ、残存率が大幅に高くなり、ばらつきも改善した。しかしながら、蒸発残留物試験において試験機関間の結果にばらつきを生じさせている根本的な要因は、規格の対象となる溶出物の範囲が明確に定められていないことにあると考えられる。そのため、さらに試験精度を向上させるためには、蒸発残留物の規格の意義や目的を明確にし、その意義や目的に適した範囲の物質を精度よく測定できる試験法を検討する必要がある。

6)ホルムアルデヒド試験法の簡易化に関する検討

ホルムアルデヒド試験法の簡易化を目的として、アセチルアセトン試液の反応条件の

改良、蒸留操作の省略、並びに蒸留操作の代替として活性炭を用いた方法の検討を行った。合成樹脂及びゴム製器具・容器包装、金属缶の規格試験で規定されるホルムアルデヒドの試験法では、溶出試験で得られた試験溶液を水蒸気蒸留し、その留液 5 mL にアセチルアセトン試液 5 mL を加え、沸騰水浴中で 10 分間加熱後、冷却し、呈色を確認するよう規定している。これはホルムアルデヒドがアンモニアの存在下でアセチルアセトンと反応し、3,5-ジアセチル-1,4-ジヒドロルチジンを生成して黄色に呈色することを利用している。このように公定法において反応条件が沸騰水浴中で 10 分間と定められているため、溶出試験で使用する 95 又は 60 の水浴を、ホルムアルデヒドの試験に用いることができず、沸騰水浴を準備しなければならない。しかし、溶出試験で使用する水浴をアセチルアセトン試液との反応時にそのまま利用することができれば、沸騰水浴を準備する必要がなくなり試験作業が効率的となる。そこで、試験法の簡易化に関する検討を行った。

アセチルアセトン試液の反応条件については、温度と時間を検討した結果、水浴中で 60 10 分間加温すれば、現行の反応条件である沸騰水浴で 10 分間加熱した時と同等の値が得られたことから、反応条件を 60 10 分間に簡易化することが可能であった。

また、現行の水蒸気蒸留の操作は、試験溶

液に着色や濁りがある場合や、試験溶液中にアセチルアセトンとの反応を妨害する物質が含まれている場合に必要であるが、このようなケースは少ないため、大部分の試験溶液では蒸留操作を必要としない。そこで、水蒸気蒸留を省略した直接法との同等性を検証した。その結果、大部分の試験溶液では同等の測定値が得られたことから、試験法として同等以上の性能を有することが確認できた（表18）。一方この過程において、一部の試験溶液では蒸留操作中にホルムアルデヒドが生成するケースが存在することが判明した。

そこで、試験溶液中の夾雑物の除去方法として活性炭法の検証を行った。その結果、定量値及び回収率は直接法と同程度であった。本法は操作が簡便であるほか、試験溶液の加熱や酸溶媒の添加が不要であるため処理操作で夾雑物からホルムアルデヒドが生成することがない。そのため、活性炭法は蒸留操作でホルムアルデヒドが生成する試験溶液の前処理法として水蒸気蒸留の代替法となり得る可能性が示唆された。しかし、試験溶液の着色や反応を妨害する成分の除去能力については、今後、適切な試料または試験溶液を用いて検証する必要がある。

表18 水蒸気蒸留法と直説法におけるホルムアルデヒド定量値と添加回収率

材質	水蒸気蒸留法		直接法	
	溶出量 ($\mu\text{g/ml}$)	添加回収率 (%)	溶出量 ($\mu\text{g/ml}$)	添加回収率 (%)
NBR	ND	94 \pm 10	ND	99 \pm 4
Q	ND	93 \pm 8	ND	98 \pm 1
EPDM	ND	98 \pm 5	ND	99 \pm 4
NR	ND	98 \pm 10	ND	98 \pm 4
FKM	ND	98 \pm 7	ND	97 \pm 5
CR	ND	91 \pm 6	ND	100 \pm 3
MF	5.25 \pm 0.38	88 \pm 8	5.24 \pm 0.26	95 \pm 5
MF	4.68 \pm 0.87	100 \pm 6	4.59 \pm 0.45	95 \pm 3
POM	6.34 \pm 0.38	100 \pm 11	3.17 \pm 0.26	100 \pm 5
PF	ND	101 \pm 11	ND	95 \pm 6

溶出量は5回の平均値 \pm 標準偏差で示した。

添加回収率は5回の平均値 \pm 標準偏差で示した。

NBR：ニトリルブタジエンゴム，Q：シリコンゴム，EPDM：エチレンプロピレンゴム，NR：天然ゴム

FKM：フッ素ゴム，CR：クロロプレンゴム，MF：メラミン樹脂，POM：ポリアセタール，PF：フェノール樹脂

ND：< 2 $\mu\text{g/ml}$

2. 市販製品に残存する化学物質に関する研究

1) ポリ塩化ビニル製玩具から溶出する可塑剤とリスク評価

PVC 製玩具に含有される可塑剤の溶出量を測定し、溶出挙動を比較した。また、推定一日曝露量を算出し、PVC 製玩具中の可塑剤による乳幼児へのリスクを評価した。さらに、玩具に対する可塑剤の許容含有量を算出した。

人工唾液と回転式振とう機を用いた動的な溶出試験の結果、溶出量は ATBC 及びアジピン酸ビス(2-エチルヘキシル)(DEHA)で高く、最大で 67.6 及び 59.4 µg/mL であった。その他はほとんどが 40 µg/mL 未満であった(表 19)。得られた溶出量を基に可塑剤ごとに推定一日曝露量を求めたところ、いずれも TDI を下回っていた。したがって、PVC 製玩具から溶出する可塑剤による乳幼児への健康リスク

表 19 各可塑剤の溶出量

可塑剤	試料	対象年齢*	厚さ (mm)	含有量 (%)	溶出量 (µg/mL)**	溶出率 (%)	可塑剤	試料	対象年齢*	厚さ (mm)	含有量 (%)	溶出量 (µg/mL)**	溶出率 (%)	
DEHTP	ボール1	1.5歳以上	1.7	32.0	39.6 ± 6.6 (16.8)	0.21	TMPD	人形70	3歳以上	1.4	19.0	3.2 ± 1.1 (32.9)	0.03	
	ボール8A	1.5歳以上	0.2	22.4	4.3 ± 0.3 (7.4)	0.28		人形41	3歳以上	2.2	11.3	5.0 ± 0.9 (17.1)	0.07	
	フ口14F	6ヶ月以上	1.8	16.5	21.1 ± 0.6 (17.5)	0.26		人形23	3歳以上	3.0	10.8	5.0 ± 0.4 (8.6)	0.13	
	フ口9B	10ヶ月以上	2.0	14.7	4.8 ± 6.1 (12.6)	0.06		人形84A	6歳以上	3.6	8.1	4.0 ± 0.2 (5.4)	0.05	
	ボール20B	3歳以上	0.2	13.9	2.6 ± 0.7 (27.4)	0.27		人形76	3歳以上	2.6	4.8	15.2 ± 3.1 (20.2)	0.48	
	人形51	2歳以上	2.2	13.2	5.7 ± 0.8 (14.1)	0.06		人形51	2歳以上	2.2	4.2	5.7 ± 0.6 (10.3)	0.18	
	空気11A	-	0.2	13.1	2.9 ± 1.3 (43.6)	0.38		ボール19B	1.5歳以上	1.6	3.7	5.2 ± 1.2 (22.2)	0.23	
	人形33	3歳以上	2.1	9.1	0.78 ± 0.3 (41.6)	0.02		ボール19A	1.5歳以上	2.2	3.0	3.5 ± 0.6 (18.3)	0.21	
	人形76	3歳以上	2.6	4.8	<0.1	-		ボール19C	1.5歳以上	1.7	2.7	7.7 ± 0.4 (5.8)	0.56	
	人形41	3歳以上	2.2	4.4	0.71 ± 0.2 (21.8)	0.03		人形26	3歳以上	2.2	2.0	5.3 ± 0.1 (1.4)	0.43	
	ボール9	3歳以上	1.0	3.7	4.7 ± 0.9 (19.4)	0.49		人形17C	6歳以上	0.8	1.2	1.8 ± 0.9 (49.1)	0.45	
	ボール22	1.5歳以上	1.2	3.2	2.9 ± 0.7 (22.3)	0.18		人形10	6ヶ月以上	2.2	0.49	0.73 ± 0.1 (9.6)	0.28	
	ボール30	1.5歳以上	1.5	3.2	1.1 ± 0.4 (33.5)	0.08		ボール1	1.5歳以上	1.7	0.24	0.71 ± 0.1 (18.1)	0.51	
	ボール31	1.5歳以上	2.3	2.5	3.8 ± 0.7 (19.4)	0.33		フ口5C	1.5歳以上	2.4	0.14	0.18 ± 0.0 (1.6)	0.21	
	空気3A	6歳以上	0.2	1.3	<0.1	-		フ口1B	1.5歳以上	2.3	0.11	0.20 ± 0.0 (25.3)	0.27	
	空気4B	6歳以上	0.1	1.1	<0.1	-		ボール24A	-	2.0	0.06	0.18 ± 0.0 (10.0)	0.58	
	フ口15A	1.5歳以上	2.3	0.92	<0.1	-		人形103	6ヶ月以上	1.6	0.06	0.11 ± 0.0 (21.4)	0.33	
	ボール25A	6歳以上	1.8	0.88	<0.1	-		DNA	ボール19B	1.5歳以上	1.6	18.4	26.8 ± 6.2 (23.3)	0.24
	人形28	2歳以上	1.6	0.83	<0.1	-			ボール19C	1.5歳以上	1.7	15.4	31.7 ± 1.3 (4.1)	0.40
	ボール8	3歳以上	0.4	0.70	<0.1	-			ボール19A	1.5歳以上	2.2	13.2	13.9 ± 3.0 (21.8)	0.18
ボール26B	6歳以上	1.5	0.65	0.13 ± 0.0 (14.3)	0.04	人形12	2歳以上		2.0	12.9	12.4 ± 1.5 (11.8)	0.18		
空気18A	7歳以上	0.2	0.56	<0.1	-	人形28	2歳以上		1.6	10.8	9.5 ± 2.1 (21.6)	0.24		
人形103	6ヶ月以上	1.6	0.10	<0.1	-	人形62	6ヶ月以上		2.2	9.9	25.9 ± 1.5 (5.9)	0.64		
ATBC	ボール23C	-	2.2	29.2	32.7 ± 1.9 (5.8)	0.24	ボール13		-	1.6	1.7	5.2 ± 0.3 (6.4)	0.60	
	ボール16B	3歳以上	1.0	29.0	48.0 ± 8.7 (18.2)	0.46	ボール12		-	1.5	1.6	3.9 ± 1.0 (25.7)	0.48	
	ボール24A	-	2.0	25.7	67.6 ± 1.9 (2.8)	0.51	ボール14		-	1.8	1.5	3.1 ± 0.4 (12.5)	0.46	
	ボール28B	6歳以上	1.9	25.0	21.4 ± 2.2 (27.0)	0.17	人形33		3歳以上	2.1	0.14	<0.1	-	
	ボール23B	-	2.2	22.4	22.8 ± 2.3 (10.2)	0.20	DEHA	ボール13	-	1.6	21.5	59.4 ± 3.6 (6.1)	0.54	
	人形26	3歳以上	2.2	21.4	50.4 ± 1.6 (3.3)	0.39		ボール14	-	1.8	17.7	24.6 ± 0.6 (2.5)	0.31	
	フ口7	6歳以上	1.9	19.2	56.1 ± 4.1 (7.3)	0.52		ボール12	-	1.5	20.7	47.9 ± 4.8 (23.3)	0.44	
	人形12	2歳以上	2.0	12.5	13.5 ± 1.2 (8.9)	0.20		ボール19B	1.5歳以上	1.6	13.5	20.6 ± 3.9 (19.0)	0.25	
	人形28	2歳以上	1.6	11.9	8.2 ± 2.2 (27.0)	0.19		ボール19C	1.5歳以上	1.7	12.0	26.1 ± 2.5 (9.7)	0.42	
	人形62	6ヶ月以上	2.2	8.8	26.5 ± 5.2 (19.7)	0.74		ボール19A	1.5歳以上	1.7	10.9	11.0 ± 2.1 (19.0)	0.18	
	人形33	3歳以上	2.1	8.1	1.7 ± 0.3 (17.4)	0.06		その他4	-	0.3	0.1	<0.1	-	
	フ口17	0ヶ月以上	2.3	6.3	4.7 ± 0.5 (10.1)	0.12		DEHP	空気18A	7歳以上	0.2	16.9	7.5 ± 0.1 (1.3)	0.76
	フ口9B	10ヶ月以上	2.0	5.4	6.2 ± 0.6 (9.6)	0.22			空気4B	6歳以上	0.1	13.5	4.0 ± 0.9 (23.4)	0.52
	その他19	6歳以上	1.9	2.3	<0.1	-			空気3A	6歳以上	0.2	12.1	9.0 ± 1.2 (13.5)	1.35
	ボール14	-	1.8	0.6	0.70 ± 0.3 (37.9)	0.26	その他19		6歳以上	1.9	3.6	4.0 ± 1.0 (24.2)	0.84	
	人形41	3歳以上	2.2	0.51	<0.1	-	ボール24A		-	2.0	0.20	<0.1	0.04	
	ボール12	-	1.5	0.46	1.4 ± 0.2 (15.8)	0.58	空気11A		-	0.2	0.11	<0.1	0.00	
	ボール26B	6歳以上	1.5	0.28	<0.1	-	ボール26B		6歳以上	1.5	0.07	<0.1	0.00	
	ボール13	-	1.6	0.20	0.68 ± 0.1 (8.3)	0.66	TBC		ボール26B	6歳以上	1.5	32.7	32.5 ± 1.5 (4.8)	0.20
	人形23	3歳以上	3.0	0.13	<0.1	-			ボール25A	6歳以上	1.8	31.3	25.1 ± 1.4 (5.4)	0.15
人形70	3歳以上	1.4	0.05	<0.1	-	ボール29B			6歳以上	1.4	21.7	41.7 ± 5.0 (12.0)	0.37	
DINCH	人形9	6ヶ月以上	2.0	39.0	23.6 ± 1.7 (7.1)	0.17		人形17C	6歳以上	0.8	13.6	19.1 ± 12.3 (64.4)	0.41	
	人形10	6ヶ月以上	2.2	35.4	34.0 ± 5.4 (15.9)	0.18	フ口14F	6ヶ月以上	1.8	1.4	3.6 ± 0.6 (17.5)	0.53		
	人形44	6ヶ月以上	2.4	30.5	27.0 ± 6.8 (25.1)	0.15	DBP	ボール29A	6歳以上	1.2	34.1	14.9 ± 1.1 (7.2)	0.10	
	人形103	6ヶ月以上	1.6	26.3	20.6 ± 1.2 (5.9)	0.14		ボール17	6歳以上	0.6	22.2	9.4 ± 1.2 (12.3)	0.18	
	人形45	6ヶ月以上	1.9	25.8	21.9 ± 1.9 (8.8)	0.17		その他19	6歳以上	1.9	10.0	2.6 ± 0.4 (16.3)	0.20	
	フ口5C	1.5歳以上	2.4	24.7	26.9 ± 0.4 (1.4)	0.18		その他4	-	0.3	4.5	<0.1	-	
	フ口18A	1.5歳以上	2.0	21.2	17.7 ± 1.1 (6.1)	0.23		ボール29B	6歳以上	1.4	1.7	0.13 ± 0.0 (15.7)	0.01	
	フ口1B	1.5歳以上	2.3	19.2	22.3 ± 3.1 (13.9)	0.18								
	フ口15A	1.5歳以上	2.3	13.3	34.3 ± 2.9 (8.3)	0.44								
	フ口17	0ヶ月以上	2.2	11.3	4.7 ± 0.7 (15.6)	0.07								
人形76	3歳以上	2.6	10.8	16.7 ± 2.2 (12.9)	0.23									
人形26	3歳以上	2.2	0.27	0.16 ± 0.0 (18.9)	0.10									
人形84A	6歳以上	3.6	0.14	0.22 ± 0.1 (24.6)	0.17									

* : 無記名もしくは不明, **平均値 ± 標準偏差 (相対標準偏差, %) (n=3)

表 2 0 各可塑剤の許容含有量の推定

可塑剤	許容一日曝露量* (mg/bw kg/day)	許容溶出量** (µg/mL)	近似式***	許容含有量 (%)
DEHTP	0.1	28.2	y=0.9136x-3.163	34.3
ATBC	0.1	28.2	y=1.6888x-1.2142	17.4
DINCH	0.1	28.2	y=0.6997x+5.3171	32.7
DEHA	0.03	8.5	y=3.5783-25.779	9.6

*1/10 TDI, **許容一日曝露量から計算された溶出量, ***図6中の近似式, x = 含有量 (%), y = 溶出量 (µg/mL)

一例として DEHTP 許容含有量の計算式を示す。

許容含有量 (DEHTP) = [(0.1×8.45×1000/30)+3.163]/0.9136 (下線は許容溶出量)

は小さいと考えられた。

含有量と溶出量には高い相関関係が認められたため、推定一日曝露量が TDI の 1/10 となる含有量を許容含有量として算出した (表 2 0)。その結果、DEHTP、ATBC 及びジイソノニル シクロヘキサン-1,2-ジカルボン酸 (DINCH) については、主可塑剤として乳幼児用玩具に使用しても健康被害を引き起こす可能性は低いと考えられた。

2) 植物油総溶出量試験法の改良

平成 25 年度及び 26 年度の本研究において、油脂及び脂肪性食品用器具・容器包装に対する溶出物の総量試験法である EN 1186-2 の改良法を確立した。EN 1186-2 で植物油の抽出が困難な試料については、EN 1186-10 で試験を行うことを推奨している。しかし、この試

験法は極めて煩雑である上に試験性能に不安がある。そこで今年度は、残存植物油の抽出に長時間を要する直鎖状低密度ポリエチレン (LLDPE) 製厚手成形品について、改良法の適用を検討した。

改良法における残存植物油の抽出条件は浸漬振とう抽出 40 2 時間であるが、この条件で得られたオリブ油量は EN 法より低く、しかも 1 時間抽出を追加するとオリブ油量が増加することから、オリブ油と内標準の平衡化は不十分であることが判明した (表 2 1)。そこで、抽出条件の見直しを行い、70 5 時間の浸漬振とう抽出で EN 法と同等のオリブ油量が得られることが判明した (表 2 2)。EN 法で抽出に 49 時間かかる試料も 5 時間という短時間で抽出可能であった。

当該製品以外の植物油を抽出することが困

表 2 1 40 浸漬振とう抽出における各回数までの合計オリブ油量

定量法	合計オリブ油量 (mg)							
	抽出1回 (2時間)	抽出2回 (3時間)	抽出3回 (4時間)	抽出4回 (5時間)	抽出5回 (6時間)	抽出6回 (7時間)	抽出7回 (8時間)	抽出8回 (9時間)
絶対検量線法	11.42	13.31	14.48	15.77	16.81	17.29	18.04	18.37
内標準法	11.12	12.92	14.44	15.48	16.36	17.19	17.66	18.22

() : 積算抽出時間

表 2 2 70 浸漬振とう抽出における各回までの合計オリブ油量

定量法	合計オリブ油量 (mg)				
	抽出1回 (2時間)	抽出2回 (3時間)	抽出3回 (4時間)	抽出4回 (5時間)	抽出5回 (6時間)
絶対検量線法 ¹⁾	17.78	18.31	18.49	18.57	18.57
内標準法 ²⁾	18.11	18.66	18.84	19	18.96

¹⁾ : 各回の抽出量の積算、²⁾ : 混合試験液を測定

難な試料またはその可能性のある試料についても、改良法変法である 70 5 時間の浸漬振とう抽出と確認のための 1 時間の抽出、必要があればさらに追加の抽出を行うことにより、植物油総溶出物量試験改良法を適用することが可能である。

この改良法変法は欧州標準規格で推奨する EN 1186-10 よりもはるかに簡便であり、極めて有用な試験法である。

3) 紙製品中の蛍光物質の検査法改良に関する検討

紙製品中の蛍光物質の試験において、公定法では蛍光の有無を紫外線ランプ照射による目視で判定している。蛍光の有無の判定については、参考事例の写真が示されているが、種々の条件等により見え方が異なるため、試験者や試験機関により判定結果に差が生じることが危惧された。そこで、試験者または試験機関間における判定精度の向上を目的として、分析機器を用いた分析法の検討を行うと

ともに、蛍光の強さを同じ条件下で比較するための標準試料の作製を試みた。

食品用及び一般用の紙製品 40 試料について試験を行ったところ、予試験の試料を直接測定した場合も本試験のガーゼ試料においても、公定法による判定結果は露光時間を調整した TLC ビジュアルライザーによる判定結果とよく一致しており、分光蛍光光度計により得られた蛍光強度との相関も見られた(表 2 3)。すなわち、公定法の紫外線ランプの照射による目視判定のかわりに、TLC ビジュアルライザーの目視判定や分光蛍光光度計の蛍光強度による判定が適用できることが示された。

しかし、いずれの方法においても、蛍光の有無の判別をより正確に行うためには比較対象となる標準試料が必須であるため、比較の対象となる標準ガーゼ試料と予試験用標準試料を作成した。これらを用いることにより、より正確な判定が可能となり、また分光蛍光光度計を用いれば Good Laboratory Practice にも対応可能となることが期待された。

表 2 3 予試験の公定法と分析機器による蛍光の有無または蛍光強度の比較

試料番号	種類	結果**			試料番号	種類	結果**		
		公定法	TLC ビジュ アライ ザー	分光蛍 光度 計			公定法	TLC ビジュ アライ ザー	分光蛍 光度 計
1		x	x	45	21			290	
2		x	x	52	22	x	x	370	
3		○	○	> 10,000	23			514	
4		○	○	6,490	24	x	x	103	
5				151	25	x	x	211	
6		x	x	44	26			1,340	
7		x	x	52	27	○	○	4,677	
8		○	○	5,040	28	○	○	2,450	
9		x	x	80	29	○	○	8,534	
10	食品用	x	x	246	30	○	○	> 10,000	
11		x	x	95	31	○	○	2,970	
12				137	32	○	○	3,870	
13				929	33	○	○	6,380	
14			1,460	34	その他	○	○	3,570	
15		x	x	181		35	○	○	3,360
16				490		36	○	○	2,360
17		x	x	69		37	○	○	5,580
18				129		38	○	○	6,590
19				101		39	○	○	3,160
20		x	x	318		40	○	○	5,110

* 海外にて入手

** 目視および TLC ビジュアルライザーの結果：○ = 強い蛍光を確認， = 弱い蛍光を確認，x = 蛍光無し

4) 合成樹脂製の器具・容器包装における溶出試験の精度の検証

食品用器具・容器包装において、溶出試験は器具・容器包装の規格適合性や安全性を確認するうえで重要な試験法であるが、試験室間共同試験もほとんど実施されておらず、その精度は十分に把握されていない。そこで、合成樹脂製の器具・容器包装の溶出試験について、その精度を把握することを目的として、器具・容器包装の材質として汎用されている8種類の合成樹脂のシートを作製し、試験室間共同試験を実施し、溶出試験の精度を検証した。

その結果、HorRat (r) は大部分が基準を満たしたが、HorRat (R) は基準を超過したものが多かった(表2.4)。そのため、溶出試験の併行精度については概ね問題はないが、室間再現精度には問題があり、定量値が試験機関によって異なる場合があることが示唆された。この主な原因としては、試験機関間における溶出操作時の温度や時間管理等の試験溶液の調製操作の違いによるものと考えられた。

物質ごとにもみると、HorRat (r) が基準を超えた割合は0~25.0%で、特に物質による傾向は見られなかった。一方、HorRat (R) が基準を超えた割合は16.7~75.0%であり、ATBC及びDEHAは70%以上の割合で基準を満たさず、機関間のばらつきが大きいと判定された。ATBCは外れ値率も9.3%と高く、特に食品擬似溶媒にイソオクタンを用いた条件4及び6においてLC/MS/MSで測定した結果に外れ値が散見された。そのため、イソオクタンを食品擬似溶媒とした試験溶液をLC/MS/MSで測定する場合は使用する装置に合うよう条件設定を慎重に行う必要があると考えられた。また、DEHAはLC/MS/MSにおいてHorRat (R) が基準を超える割合が高かった。DEHAは定量操作において環境中からの汚染を受けやすいため、各機関における定量法が多岐に及んだ。このことが各機関の定量値に差を生じさ

せたため、HorRat (R) が高くなったと推測された。一方、DMP、DPS、BZP及びATBCでは測定法による差は見られなかった。TBPS、Octocrylene、DEHA、Santonox、BNX 1035及びIrganox 1076はGC/MSを用いた際に多くの機関が定量下限値未満となり、HorRat値が算出できたケースが少なかったことから測定装置間の比較は困難であった。

定量値別で解析した結果、定量値が高くなるほどRSD_rは小さくなる傾向を示し、最も定量値の高い区分ではすべて10%未満となった。HorRat (r) も最も定量値が高い区分では基準を満たさない割合が0%と最も低く、高濃度では精度よく定量することが可能であった。一方、RSD_Rについては、定量値が高い区分では低い区分と比べて小さくなったが、15~35%程度と大きな改善はみられなかった。そのため、HorRat (R) は最も溶出量が高い区分ではすべてが基準を満たさない結果となった。このことから、室間再現精度と定量値はあまり関連せず、溶出量が多い試料であっても試験機関間の溶出操作等に由来するばらつきは小さくならないことが判明した。

今回の試験室間共同試験では、溶出操作に用いる容器を指定し、加温方法についても指示したため、その他の指定していない細かい操作がばらつきの原因となった可能性が高いと考えられた。また、定量操作に由来するばらつきについては、定量値が数ng/mLから数千μg/mLまで非常に濃度範囲が広く、多段階の希釈が必要となったことから、操作が煩雑になったことや、溶出量が高い試験溶液の分析後にはMSの感度変動が起きた可能性が高く、今回の試験では全機関が内標準物質を用いずに絶対検量線法を用いていたことから、正確に定量できなかった可能性も示唆された。

今後、十分な精度を有する溶出試験法を確立するために、試験室間におけるばらつきの具体的な要因を解明していく必要がある。

表24 試験室間共同試験における結果一覧

条件No.	試料材質	溶出条件	浸出用液	DMP	DPS	BZP	ATBC	TPBS ¹⁾	Octocrylene	DEHA	Santonox	BNX 1035 ¹⁾	Iriganox 1076	全体		
1	PA	20 ±2 2日間 95%EtOH	平均値 (ng/mL)	21,373	36,139	41,879	3	3	11,482	11,517	8,423	4,370	3,049			
			HorRat (r)	1.2	1.3	1.5	3	3	0.9	0.9	1.4	1.0	0.8	1.1	2/8 (25.0%) ⁶⁾	
			HorRat (R)	2.0	2.2	2.1	3	3	1.9	1.9	1.8	2.0	1.9	2.5	3/8 (37.5%) ⁷⁾	
			外れ値数 (率) ²⁾	0/22 (0%)	0/22 (0%)	0/22 (0%)	3	3	0/22 (0%)	0/22 (0%)	0/22 (0%)	0/22 (0%)	0/19 (0%)	1/22 (4.5%)	1/173 (0.58%) ²⁾	
2	HIPS	40 ±2 10日間 50%EtOH	平均値 (ng/mL)	2,875	1,650	2,769	427	360	378	788	242	194	78.6			
			HorRat (r)	1.6	1.3	1.5	1.0	0.8	0.9	0.9	0.9	0.8	0.8	0.3	2/10 (20.0%) ⁶⁾	
			HorRat (R)	1.7	1.5	1.5	1.0	0.8	0.9	0.9	1.4	1.1	0.8	1.7	0/10 (0%) ⁷⁾	
			外れ値数 (率) ²⁾	0/15 (0%)	0/16 (0%)	1/14 (7.1%)	0/10 (0%)	1/10 (10.0%)	0/9 (0%)	0/9 (0%)	0/11 (0%)	0/9 (0%)	0/9 (0%)	0/9 (0%)	2/112 (1.8%) ²⁾	
3	HDPE	60 ±3 30日間 20%EtOH	平均値 (ng/mL)	7,255	15,055	7,638	1,431	212	249	23.3	476	4	4	4		
			HorRat (r)	1.0	0.7	0.9	0.3	0.2	0.3	0.4	0.4	0.2	0.2	0.4	0.4	0/10 (0%) ⁶⁾
			HorRat (R)	1.3	1.5	1.1	2.3	0.7	2.5	2.9	2.2	2.2	2.2	2.2	2.2	4/8 (50.0%) ⁷⁾
			外れ値数 (率) ²⁾	1/21 (4.7%)	0/22 (0%)	1/21 (4.8%)	1/15 (6.7%)	2/10 (20.0%)	0/10 (0%)	1/8 (12.5%)	2/12 (16.7%)	2/12 (16.7%)	2/12 (16.7%)	2/12 (16.7%)	8/119 (6.7%) ²⁾	
4	硬質PVC イソオクタン	60 ±3 90分間	平均値 (ng/mL)	537	319	545	111	138	85.1	234	40.2	72.2	68.6			
			HorRat (r)	0.4	0.5	0.4	0.9	0.5	0.4	0.7	0.7	0.6	0.6	0.7	0/10 (0%) ⁶⁾	
			HorRat (R)	1.7	1.7	1.6	2.1	1.6	1.8	2.3	1.8	1.8	1.8	2.3	4/10 (40.0%) ⁷⁾	
			外れ値数 (率) ²⁾	1/22 (4.5%)	1/22 (4.5%)	1/22 (4.5%)	4/22 (18.2%)	1/20 (5.0%)	1/20 (5.0%)	1/22 (4.5%)	1/14 (7.1%)	0/7 (0%)	0/7 (0%)	2/15 (13.3%)	13/186 (7.0%) ²⁾	
5	軟質PVC 16時間 95%EtOH	60 ±3 16時間	平均値 (ng/mL)	185,818	238,943	208,966	2,375,045	165,427	5	218,750	42,971	47,426	76,263			
			HorRat (r)	1.0	0.7	0.8	1.3	1.0	0.5	0.9	0.9	1.4	0.8	1.2	0/9 (0%) ⁶⁾	
			HorRat (R)	2.5	2.6	2.7	5.5	2.7	5	2.8	2.9	2.9	4.3	4.0	9/9 (100%) ⁷⁾	
			外れ値数 (率) ²⁾	0/22 (0%)	0/22 (0%)	0/22 (0%)	0/22 (0%)	0/22 (0%)	0/22 (0%)	0/22 (0%)	1/22 (4.5%)	1/22 (4.5%)	1/20 (5.0%)	0/22 (0%)	2/196 (1.0%) ²⁾	
6	PET 2日間 イソオクタン	60 ±3 2日間	平均値 (ng/mL)	650	561	702	71.9	3	99.2	231	49.0	22.4	86.0			
			HorRat (r)	0.8	1.4	1.1	1.7	3	1.1	1.6	1.6	1.2	0.8	0.5	3/9 (33.3%) ⁶⁾	
			HorRat (R)	1.6	2.6	1.7	2.7	3	1.9	2.1	1.9	1.9	2.0	1.8	3/9 (33.3%) ⁷⁾	
			外れ値数 (率) ²⁾	0/20 (0%)	0/20 (0%)	0/21 (0%)	3/21 (14.3%)	3	0/17 (0%)	0/20 (0%)	0/14 (0%)	0/14 (0%)	1/6 (16.7%)	0/15 (0%)	4/154 (2.6%) ²⁾	
7	PVDC 4%酢酸	90 ±5 30分間	平均値 (ng/mL)	17,731	17,731	12,452	1,385	299	5	50.9	658	4	56.6			
			HorRat (r)	0.4	0.4	0.7	0.4	0.5	0.5	1.1	1.1	0.9	0.9	0.8	0/7 (0%) ⁶⁾	
			HorRat (R)	1.9	1.9	2.1	2.5	1.6	5	3.2	3.0	3.0	3.0	2.6	5/7 (71.4%) ⁷⁾	
			外れ値数 (率) ²⁾	0/22 (0%)	0/22 (0%)	0/22 (0%)	2/15 (13.3%)	1/11 (9.1%)	0/17 (0%)	0/6 (0%)	0/11 (0%)	0/11 (0%)	0/11 (0%)	0/7 (0%)	3/94 (3.2%) ²⁾	
8	PP 30分間 水	120 ±5 30分間	平均値 (ng/mL)	53,733	63,500	25,367	1,336	97	120	85	630	4	4			
			HorRat (r)	0.8	1.1	0.6	0.3	0.4	0.4	2.2	2.2	0.4	0.4	0.8	1/8 (12.5%) ⁶⁾	
			HorRat (R)	2.1	2.0	2.4	1.5	1.4	2.0	3.8	2.1	2.1	2.1	2.1	4/8 (50.0%) ⁷⁾	
			外れ値数 (率) ²⁾	0/18 (0%)	0/18 (0%)	0/18 (0%)	1/13 (7.7%)	0/8 (0%)	0/9 (0%)	0/5 (0%)	0/9 (0%)	0/9 (0%)	0/9 (0%)	0/5 (0%)	1/88 (1.0%) ²⁾	
全体																
HorRat (r) > 1.3 (14.3%) (12.5%) (25.0%) (14.2%) (0%) (25.0%) (0%) (0%) (0%) (25.0%) (0%) (0%) (0%) (0%) (0%)																
HorRat (R) > 2 (28.6%) (37.5%) (50.0%) (71.4%) (16.7%) (75.0%) (50.0%) (40.0%) (40.0%) (16.7%) (75.0%) (50.0%) (40.0%) (40.0%) (66.7%)																
外れ値数 (率) ²⁾ 2/140 (1.4%) (1.4%) (0.61%) (1.9%) (7.5%) (7.5%) (1.9%) (9.3%) (1.1%) (1.7%) (1.7%) (1.7%) (1.7%) (1.7%) (2.2%)																

RSD_r : 併行精度, RSD_D : 室内再現精度, HorRat (r) : RSD_r/PRSD_D, HorRat (R) : RSD_D/PRSD_r

*1 : 参考値, *2 : 外れ値, コクラン検定またはグラス検定における異常値 (危険率 < 1%), *3 : 材質中含有量が定量下限未満のため解析せず, *4 : 有効数字が少ないため解析せず, *5 : 未配合

*6 : HorRat (r) > 1.3となった検出数及び割合, *7 : HorRat (R) > 2となった検出数及び割合

5) 合成樹脂製器具・容器包装の製造に使用される化学物質の分析法に関する検討

PL 制度施行後の合成樹脂製品の検査・監視等に資することを目的として、国内の業界団体の自主基準、EU または米国の法規制において食品用合成樹脂製器具・容器包装の製造への使用が認められている 886 物質について GC/MS 分析を行うための情報を収集した。

その結果、236 物質の保持時間、マススペクトル及び定量下限を確認でき、そのうち 199 物質の検量線の形状を確認した(表 2 5)。これにより、既報のものとあわせて約 300 種類の物質が GC/MS で分析可能となった。ポジティブリストに掲載される物質数は約 1000~2000 種におよぶと予想され、既に書籍や論文等で分析条件、保持時間等の情報が示されている物質を加えても検査・監視を行うには不十分である。そのため、今回の条件では検出できなかった物質の条件検討も含め、試験法や分析法が確立されていない物質について、今後も検討を行い、情報を収集して行く必要がある。

3. 食品添加物等の複合影響に関する研究

第 9 版食品添加物公定書に記載されている食品添加物 689 品目を対象として複合影響に関する文献調査を行った。その結果、多数の文献が複合影響に関連するものとしてヒットした。さらに、食品添加物として使用頻度が高い、あるいは摂取量が多いと考えられる 20 品目に調査対象を絞り、複合影響に関する文献調査を行った(表 2 6)。その結果、明らかに複合影響について論じている文献として見いだせたものは食用赤色 40 号 (allura red AC) のみであった。この文献では、複合影響が生じる可能性を認めるものの、実際の使用量において複合影響が生じるかどうかの判断は今後の検討が必要と結論している。

食品添加物同士、食品添加物と食品成分との組合せは無数にあることから、現時点において化学的な評価や短期間での体系的な調査が困難であると考えられる。したがって、食品添加物等の複合影響について体系的に調査を行ったが、今回新たな知見を十分に得ることができなかった。継続的かつ体系的な調査が今後必要であると考えられる。したがって、これらのヒットした文献を一つ一つ精査し、食品添加物の複合影響が具体的に研究対象となっている事例を抽出するなど、さらに詳細な調査が必要と考えられた。

表 2-5 GC/MSで測定可能であった物質の保持時間、検量線の形状及び定量下限

EU	US	三衛協	化合物名	CAS番号	Formula	Mass	SML (mg/kg)	Rt (min)	定量イオン (m/z)	確認イオン (m/z)	確認イオン (m/z)	検量線	LOQ (µg/mL)	
			piperonyl butoxide	0000051-03-6	C ₁₉ H ₂₆ O ₃	338.44		9.29	176	149	193	2次	1	
			tributyltin acetate	0000056-36-0	C ₁₄ H ₃₀ O ₂ Sn	349.10		5.59	269	155	211	2次	1	
			D-α-tocopherol acetate	0000058-95-7	C ₃₁ H ₅₂ O ₃	472.74		12.00	431	165	207	1次	0.2	
			D-α-tocopherol	0000059-02-9	C ₂₉ H ₅₀ O ₂	430.71		11.78	430	165	205	2次	0.1	
			toluenesulfonamide, p-	0000070-55-3	C ₇ H ₇ NO ₂ S	171.22		5.58	91	171	155	2次	0.1	
			N,N'-diphenyl-1,4-phenylenediamine	0000074-31-7	C ₁₈ H ₁₆ N ₂	260.33		10.31	260	183	167	-	5	
			2,2-bis(4-hydroxyphenyl)butane	0000077-40-7	C ₁₈ H ₂₀ O ₂	242.31		8.67	213	119	242	1次	0.05	
			triethyl O-acetylacrylate	0000077-89-4	C ₁₄ H ₂₀ O ₄	318.32		6.00	157	203	213	1次	0.05	
			citric acid, triethyl ester	0000077-93-0	C ₁₂ H ₂₀ O ₇	276.28	60 (32)	5.72	157	115	203	2次	0.05	
			tris(4-1-butylphenyl)phosphate	0000078-33-1	C ₃₈ H ₅₈ O ₄ P	494.61		12.57	479	494	232	1次	0.2	
			tris(2-ethylhexyl) phosphate	0000078-42-2	C ₂₄ H ₅₀ O ₄ P	434.64		9.52	99	113	211	2次	0.2	
			2,5-di-tert-amyhydroquinone	0000079-74-3	C ₁₈ H ₂₂ O ₂	250.38		7.15	221	250	192	2次	0.5	
			2,2-bis(4-hydroxyphenyl) propane	0000080-05-7	C ₁₅ H ₁₆ O ₂	228.12	0.6	8.28	213	228	119	1次	0.01	
			4,4'-dichlorodiphenyl sulphone	0000080-07-9	C ₁₂ H ₈ O ₂ SCl ₂	265.96	0.05	8.57	159	266	111	2次	0.01	
			4,4'-diaminodiphenyl sulphone	0000080-08-0	C ₁₂ H ₁₀ N ₂ O ₂ S	248.06		5	11,22	108	248	140	1次	0.5
			4,4'-dihydroxydiphenyl sulphone	0000080-09-1	C ₁₂ H ₁₀ O ₄ S	250.03	0.05	10.52	141	250	110	-	2	
			N-cyclohexyl-p-toluenesulfonamide	0000080-30-8	C ₁₄ H ₁₈ NO ₂ S	253.36		8.19	210	155	253	1次	0.5	
			N-ethyl-p-toluenesulfonamide	0000080-39-7	C ₉ H ₁₃ NO ₂ S	199.27		6.08	91	155	184	1次	0.2	
			D-panthenol	0000081-13-0	C ₈ H ₁₅ NO ₄	205.25		6.63	133	102	157	-	>10	
			diphenyl phthalate	0000084-62-8	C ₂₀ H ₁₄ O ₄	318.32		9.55	225	77	104	1次	0.05	
			ethyl phthalyl ethyl glycolate	0000084-72-0	C ₁₄ H ₁₆ O ₄	280.27		7.04	149	177	235	1次	0.01	
			phthalic acid, dibutyl ester	0000084-74-2	C ₁₈ H ₂₂ O ₄	276.15	0.3	7.32	149	223	205	2次	0.01	
			dihexyl phthalate	0000084-75-3	C ₂₀ H ₃₄ O ₄	334.45		8.82	149	251	233	1次	0.01	
			di-n-decyl phthalate	0000084-77-5	C ₂₈ H ₄₆ O ₄	446.66		11.60	149	307	167	2次	1	
			butyl octyl phthalate, tech	0000084-78-6	C ₂₀ H ₃₆ O ₄	334.45		9.01	149	223	205	2次	0.5	
			1,4-bis(2'-methyl-4'-hydroxy-5'-t-butylphenyl)butane	0000085-60-9	C ₂₈ H ₃₈ O ₂	382.58		10.10	339	148	382	1次	0.5	
			phthalic acid, benzyl butyl ester	0000085-68-7	C ₁₉ H ₂₀ O ₄	312.14	30	9.02	149	206	91	1次	0.01	
			butyl phthalyl butyl glycolate	0000085-70-1	C ₁₈ H ₂₂ O ₄	336.38		8.69	149	263	207	1次	0.05	
			2-nitrobiphenyl	0000086-00-0	C ₁₂ H ₉ O ₂	199.21		5.94	152	115	171	2次	0.5	
			salicylic acid, 4-tert-butylphenyl ester	0000087-18-3	C ₁₇ H ₁₈ O ₃	270.13	12	8.06	121	270	135	1次	0.01	
			pentachlorophenol	0000087-86-5	C ₆ HCl ₅	266.32		6.17	266	165	202	1次	1	
			4-chloro-3,5-xyleneol	0000088-04-0	C ₈ H ₉ OCl	156.61		4.11	121	156	91	1次	0.02	
			o-toluenesulfonamide	0000088-19-7	C ₇ H ₇ NO ₂ S	171.21		5.53	106	171	137	1次	1	
			2,5-di-tert-butylhydroquinone	0000088-58-4	C ₁₄ H ₂₀ O ₂	222.32		6.32	207	222	137	1次	0.1	
			2-aminobenzamide	0000088-68-6	C ₇ H ₈ N ₂ O	136.06	0.05	5.03	119	136	92	2次	0.2	
			pyromellitic anhydride	0000089-32-7	C ₁₀ H ₂ O ₃	217.99	0.05	6.38	174	102	74	-	>10	
			n-phenyl-1-naphthylamine	0000090-30-2	C ₁₆ H ₁₃ N	219.28		7.89	219	109	204	2次	0.2	
			2,4,6-tris(dimethylamino)methylphenol	0000090-72-2	C ₁₆ H ₂₇ N ₃ O	265.39		6.66	176	220	265	-	10	
			2,4-diamino-6-phenyl-1,3,5-triazine	0000091-76-9	C ₈ H ₈ N ₆	187.09	5	7.59	187	103	76	2次	0.1	
			4-phenylphenol	0000092-69-3	C ₁₃ H ₁₀ O	170.21		5.84	170	141	115	1次	0.01	
			phenothiazine	0000092-84-2	C ₁₂ H ₈ NS	199.27		7.53	199	167	154	1次	0.05	
			4,4'-dihydroxybiphenyl	0000092-88-6	C ₁₂ H ₁₀ O ₂	186.07	6	7.69	186	157	128	2次	0.2	
			4-nitrobiphenyl (100ug/ml in toluene)	0000092-93-3	C ₁₂ H ₉ NO ₂	199.21		6.75	152	199	169	2次	0.1	
			propyl 4-hydroxybenzoate	0000094-13-3	C ₁₀ H ₁₂ O ₃	180.20		5.55	121	138	180	1次	0.05	
			dimethyl 1,4-cyclohexanedicarboxylate (cis- and trans- mixture)	0000094-60-0	C ₁₀ H ₁₆ O ₄	200.23		4.54	81	140	108	1次	0.01	
			2-mercaptiazoline	0000096-53-7	C ₃ H ₄ NS ₂	119.21		4.96	119	59	72	2次	0.2	
			4,4'-thiobis(6-tert-butyl-3-methylphenol)	0000096-69-5	C ₂₂ H ₃₀ O ₂ S	356.20	0.48	10.60	358	343	136	1次	0.02	
			2-tert-butyl-4-ethylphenol	0000096-70-8	C ₁₂ H ₁₆ O	178.28		4.40	163	178	135	2次	0.01	
			2,2'-dihydroxy-5,5'-dichlorodiphenylmethane	0000097-23-4	C ₁₃ H ₁₀ O ₂ Cl ₂	268.01	12	9.47	128	268	141	-	2	
			1,3-di-o-tolylguanidine	0000097-39-2	C ₁₈ H ₁₇ N ₃	239.32		8.14	107	239	224	2次	0.5	
			tetramethylthiuram monosulfide	0000097-74-5	C ₈ H ₁₆ N ₂ S ₃	208.37		7.30	88	73	208	2次	1	
			4-tert-butylcatechol	0000098-29-3	C ₁₀ H ₁₄ O ₂	166.22		4.67	151	123	166	-	2	
			piperidinium pentamethylenedithiocarbamate	0000098-77-1	C ₁₁ H ₂₂ N ₂ S ₂	246.44		6.73	84	212	128	1次	0.1	
			nicotinamide	0000098-92-0	C ₆ H ₆ N ₂ O	122.12		4.19	122	106	78	-	5	
			isophthaloyl chloride	0000099-63-8	C ₈ H ₆ O ₂ Cl ₂	203.02	5 (27)	4.32	167	103	139	-	5	
			methyl 4-hydroxybenzoate	0000099-76-3	C ₉ H ₈ O ₃	152.15		4.55	121	152	93	1次	0.1	
			triphenylguanidine	0000101-01-9	C ₁₈ H ₁₅ N ₃	287.36		9.77	194	93	287	1次	0.05	
			triphenyl phosphite	0000101-02-0	C ₁₈ H ₁₅ O ₃ P	310.29		8.67	217	310	153	2次	0.05	
			4,4'-methylenebis(2-chloroaniline)	0000101-14-4	C ₁₃ H ₁₀ N ₂ Cl ₂	267.15		9.50	231	266	195	2次	0.05	
			triallyl cyanurate	0000101-37-1	C ₁₂ H ₁₅ N ₃ O ₃	249.27		6.22	82	125	208	1次	0.05	
			4,4'-dimethoxydiphenylamine	0000101-70-2	C ₁₄ H ₁₄ NO ₂	228.28		7.91	214	229	199	1次	0.05	
			4-isopropylaminodiphenylamine	0000101-72-4	C ₁₅ H ₁₈ N ₂	226.32		7.80	211	226	183	1次	0.1	
			4,4'-methylenedianiline	0000101-77-9	C ₁₃ H ₁₂ N ₂	198.26		7.88	198	106	182	2次	0.05	
			dicyclohexylamine	0000101-83-7	C ₁₂ H ₂₂ NO	181.32		4.35	138	181	56	1次	0.1	
			resorcinol diglycidyl ether	0000101-90-6	C ₁₂ H ₁₄ O ₃	222.09	ND	7.15	57	222	110	2次	0.5	
			diphenyl carbonate	0000102-09-0	C ₁₃ H ₁₀ O ₃	214.06	0.05	5.96	77	214	141	2次	0.01	
			1,3-bis(2-hydroxyethoxy) benzene	0000102-40-9	C ₁₀ H ₁₄ O ₃	198.09	0.05	6.47	44	110	198	2次	0.2	
			triethanolamine	0000102-71-6	C ₆ H ₁₅ NO ₃	149.11	0.05	4.87	118	74	149	1次	1	
			4-(benzyloxy)phenol	0000103-16-2	C ₁₃ H ₁₂ O ₂	200.23		6.75	91	65	200	1次	0.1	
			adipic acid, bis(2-ethylhexyl) ester	0000103-23-1	C ₂₂ H ₄₀ O ₄	370.31	18	9.24	129	147	112	1次	0.01	
			diethylamine	0000103-49-1	C ₄ H ₁₁ N	197.28		5.92	91	106	196	1次	0.1	
			N-(4-hydroxyphenyl) acetamide	0000103-90-2	C ₈ H ₉ NO ₂	151.06	0.05	6.02	80	109	151	2次	0.2	
			2,2'-(phenylenedioxy)diethanol	0000104-38-1	C ₁₀ H ₁₄ O ₃	198.22		6.26	110	198	154	2次	0.2	
			p-n-nonylphenol	0000104-40-5	C ₁₅ H ₂₂ O	220.35		6.69	107	220	77	1次	0.05	
			diethylene glycol monophenyl ether	0000104-68-7	C ₁₀ H ₁₄ O ₃	182.22		4.92	94	182	121	-	5	
			laureyl peroxide	0000105-74-8	C ₂₄ H ₄₆ O ₂	398.62		8.42	71	99	310	2次	0.5	
			dibutyl fumarate	0000105-75-9	C ₁₂ H ₂₀ O ₄	228.28		5.39	117	155	173	2次	0.2	
			1,4-phenylenediamine	0000106-50-3	C ₆ H ₈ N ₂	108.14		4.20	133	148	92	1次	0.05	

表 2 5 GC/MSで測定可能であった物質の保持時間、検量線の形状及び定量下限

EU	US	三衛協	化合物名	CAS番号	Formula	Mass	SML (mg/kg)	Rt (min)	定量イオン (m/z)	確認イオン (m/z)	確認イオン (m/z)	検量線	LOQ (µg/mL)
			dimethyl sebacate	0000106-79-6	C ₁₂ H ₂₂ O ₄	230.30	-	5.53	74	125	199	2次	0.2
			isobutyl palmitate	0000110-34-9	C ₂₀ H ₄₀ O ₂	312.53	-	7.98	57	239	257	1次	0.05
			butyl palmitate	0000111-06-8	C ₂₀ H ₄₀ O ₂	312.53	-	8.35	257	239	312	1次	0.01
			triethylene glycol diacetate	0000111-21-7	C ₁₀ H ₁₈ O ₆	234.25	-	4.98	87	117	99	1次	0.1
			vinyl stearate	0000111-63-7	C ₂₀ H ₃₈ O ₂	310.51	-	8.00	57	267	71	1次	0.1
			triethylenetetramine	0000112-24-3	C ₆ H ₁₆ N ₄	146.23	-	6.80	70	113	182	-	5
			methyl palmitate	0000112-39-0	C ₁₇ H ₃₄ O ₂	270.45	-	6.97	74	143	270	1次	0.05
			n-dodecylmercaptan	0000112-55-0	C ₁₂ H ₂₆ S	202.40	-	4.91	97	202	168	2次	0.2
			tetraethylenepentamine	0000112-57-2	C ₈ H ₂₀ N ₄	189.30	-	8.31	113	182	125	-	5
			tetraethyleneglycol	0000112-60-7	C ₈ H ₁₈ O ₄	194.23	-	4.74	45	264	58	-	5
			methyl oleate	0000112-62-9	C ₁₉ H ₃₈ O ₂	296.49	-	7.77	55	264	296	1次	0.1
			1-tridecanol	0000112-70-9	C ₁₃ H ₂₈ O	200.37	-	5.30	97	111	154	1次	0.5
			hexachloroendomethylenetetrahydrophthalic anhydride	0000115-27-5	C ₈ H ₂ O ₆ Cl ₆	367.81	ND	7.49	263	370	237	-	>10
			hexachloroendomethylenetetrahydrophthalic acid	0000115-28-6	C ₈ H ₄ O ₆ Cl ₆	385.82	ND	7.43	263	237	193	1次	0.5
			triphenyl phosphate	0000115-86-6	C ₁₈ H ₁₅ O ₄ P	326.28	-	8.92	326	215	170	1次	0.01
			phosphoric acid, trichloroethyl ester	0000115-96-8	C ₆ H ₁₂ O ₇ PCl ₃	283.95	ND	6.33	63	249	143	1次	0.02
			tetrachlorophthalic anhydride	0000117-08-8	C ₈ O ₄ Cl ₄	285.90	-	6.89	242	214	286	-	2
			3-chlorophthalic anhydride	0000117-21-5	C ₈ H ₅ O ₃ Cl	181.98	0.05	4.77	138	182	110	-	>10
			phthalic acid, bis(2-ethylhexyl) ester	0000117-81-7	C ₂₄ H ₃₈ O ₄	390.28	1.5	9.79	149	279	167	1次	0.01
			phthalic acid bis(2-butoxyethyl) ester	0000117-83-9	C ₂₀ H ₃₀ O ₆	366.45	-	9.54	149	193	176	2次	1
			isallylic acid phenyl ester	0000118-55-8	C ₁₃ H ₁₆ O ₂	214.22	-	6.04	121	93	214	1次	0.02
			n-octyl-n-decylphthalate <fatty alcohol (C8, C10)>	0000119-07-3	C ₂₆ H ₄₂ O ₄	418.61	-	10.95	149	279	307	1次	0.1
			benzophenone	0000119-61-9	C ₁₃ H ₁₀ O	182.07	0.6	5.60	105	182	77	1次	0.02
			O-benzyl-p-chlorophenol	0000120-32-1	C ₁₃ H ₁₁ OCl	218.68	-	6.84	218	183	140	1次	0.5
			ethyl 4-hydroxybenzoate	0000120-47-8	C ₉ H ₁₀ O ₃	166.17	-	4.97	121	138	166	1次	0.05
			diethylene glycol dibenzoate	0000120-55-8	C ₁₈ H ₁₈ O ₆	314.33	-	9.56	149	105	77	-	5
			dimethyl terephthalate	0000120-61-6	C ₁₆ H ₁₄ O ₄	194.18	-	4.80	163	194	135	1次	0.02
			4-hydroxy-3-tert-butylanisole	0000121-00-6	C ₁₁ H ₁₆ O ₂	180.25	-	4.80	165	137	180	1次	0.02
			propyl gallate	0000121-79-9	C ₁₉ H ₂₂ O ₆	212.20	30 (20)	7.50	342	283	327	1次	0.05
			diphenylamine	0000122-38-4	C ₁₂ H ₁₁ N	169.22	-	5.36	169	83	65	1次	0.05
			butyl stearate	0000123-95-5	C ₂₂ H ₄₂ O ₂	340.58	-	9.19	285	267	340	1次	0.01
			hexamethylenediamine	0000124-09-4	C ₆ H ₁₆ N ₂	116.13	2.4	4.87	70	126	140	-	5
			octa-O-acetyl D-(+)-sucrose	0000126-14-7	C ₂₈ H ₃₈ O ₁₉	678.59	-	11.45	169	211	331	2次	0.1
			phosphoric acid tri-n-butyl ester (tri-n-butyl phosphate)	0000126-73-8	C ₁₂ H ₂₇ O ₇ P	266.31	-	5.47	99	155	211	1次	0.01
			2,4,7,9-tetramethyl-5-decyne-4,7-diol (DL- and meso- mixture)	0000126-86-3	C ₁₄ H ₂₆ O ₂	226.36	-	4.29	109	151	169	1次	0.05
			diphenyl sulphone	0000127-63-9	C ₁₂ H ₁₀ O ₂ S	218.04	3	7.10	125	218	77	1次	0.01
			2,6-di-tert-butyl-p-cresol	0000128-37-0	C ₁₈ H ₂₆ O	220.18	3	4.89	205	220	145	1次	0.01
			pyrene	0000129-00-0	C ₁₆ H ₁₀	202.26	-	7.97	202	101	174	1次	0.01
			cis-endo-5-norbornene-2,3-dicarboxylic anhydride	0000129-64-6	C ₉ H ₈ O ₃	164.16	-	4.34	91	66	120	1次	0.01
			phthalic acid, diallyl ester	0000131-17-9	C ₁₄ H ₁₄ O ₄	246.09	ND	6.22	149	189	104	1次	0.02
			2,4-dihydroxybenzophenone	0000131-56-6	C ₁₃ H ₁₀ O ₃	214.22	6 (8)	7.96	213	137	77	-	2
			captan	0000133-06-2	C ₈ H ₁₀ NO ₂ SCl ₂	300.59	-	7.82	79	149	264	2次	0.5
			1-naphthylamine	0000134-32-7	C ₁₀ H ₉ N	143.19	-	5.00	143	115	89	1次	0.2
			2-naphthol	0000135-19-3	C ₁₀ H ₈ O	144.17	-	4.98	144	115	89	2次	1
			phenyl-naphthylamine (free of naphthylamine)	0000135-88-6	C ₁₆ H ₁₃ N	219.29	-	8.28	219	108	191	1次	0.01
			6-O-palmitoyl-L-ascorbic acid	0000137-66-6	C ₂₂ H ₃₈ O ₇	414.53	-	8.20	115	239	171	-	2
			methyl O-acetylricinoleate	0000140-03-4	C ₂₁ H ₃₈ O ₄	354.52	-	9.12	43	294	262	2次	1
			bis(2-ethylhexyl) fumarate	0000141-02-6	C ₂₈ H ₃₈ O ₄	340.50	-	8.58	70	112	211	1次	0.2
			methyl 12-hydroxystearate	0000141-23-1	C ₁₉ H ₃₄ O ₃	314.50	-	8.94	197	143	229	1次	0.2
			methyl ricinoleate	0000141-24-2	C ₁₉ H ₃₆ O ₃	312.49	-	8.84	55	166	124	-	5
			bis(2-ethylhexyl) maleate	0000142-16-5	C ₂₈ H ₃₈ O ₄	340.50	-	8.19	117	100	83	2次	0.1
			butyl oleate	0000142-77-8	C ₂₂ H ₄₀ O ₂	338.57	-	8.91	97	265	222	1次	0.1
			oleyl alcohol	0000143-28-2	C ₁₈ H ₃₆ O	268.48	-	7.76	82	96	250	1次	0.5
			2-mercaptobenzothiazole	0000149-30-4	C ₇ H ₆ NS ₂	167.25	-	7.13	167	135	108	2次	1
			N,N'-diphenylethylenediamine	0000150-61-8	C ₁₄ H ₁₂ N ₂	212.29	-	7.79	106	77	212	1次	0.05
			4,4'-difluorobenzophenone	0000345-92-6	C ₁₃ H ₈ OF ₂	218.05	0.05	5.40	123	218	95	1次	0.01
			palmitoleic acid	0000373-49-9	C ₁₆ H ₃₀ O ₂	254.41	-	7.20	69	83	236	-	5
			4,6-di-tert-butyl-m-cresol	0000497-39-2	C ₁₈ H ₂₆ O	220.35	-	5.46	205	57	220	1次	0.02
			abietic acid	0000514-10-3	C ₂₀ H ₃₀ O ₂	302.45	-	7.78	254	239	183	2次	1
			dibenzyl phthalate	0000523-31-9	C ₂₂ H ₁₈ O ₄	346.38	-	10.58	91	149	107	1次	0.5
			4-cumylphenol	0000599-64-4	C ₁₃ H ₁₈ O	212.12	0.05	6.80	197	212	103	2次	0.01
			4,4'-dihydroxybenzophenone	0000611-99-4	C ₁₃ H ₁₀ O ₃	214.22	6 (8)	9.13	121	214	93	2次	0.5
			octadecyl acetate	0000822-23-1	CH ₃ (C ₁₇) ₂	312.54	-	8.50	43	224	83	2次	1
			2,6-naphthalenedicarboxylic acid, dimethyl ester	0000840-65-3	C ₁₄ H ₁₂ O ₄	244.07	0.05	7.90	213	244	185	1次	0.1
			triethyl phosphonoacetate	0000867-13-0	C ₈ H ₁₇ O ₅ P	224.19	-	4.21	123	197	179	2次	0.5
			lauro lactam	0000947-04-6	C ₁₂ H ₂₃ NO	197.18	5	6.41	41	197	100	1次	0.05
			2-phenylindole	0000948-65-2	C ₁₄ H ₁₁ N	193.09	15	7.91	193	165	89	2次	0.05
			2,4-bis(octylmercapto)-6-(4-hydroxy-3,5-di-tert-butylamino)-1,3,5-triazine	0000991-84-4	C ₃₃ H ₅₈ N ₄ OS ₂	588.95	30	16.74	589	541	476	2次	1
			n-octyl gallate	0001034-01-1	C ₁₈ H ₃₀ O ₆	282.33	30 (20)	9.63	300	285	412	-	2
			1,4-cyclohexanedicarboxylic acid	0001076-97-7	C ₈ H ₁₂ O ₄	172.07	5	5.32	44	126	108	-	5
			4-cyclohexylphenol	0001131-60-8	C ₁₂ H ₁₈ O	176.25	-	5.58	133	176	120	1次	0.01
			1,3-butylene glycol dimethacrylate	0001189-08-8	C ₁₂ H ₁₈ O ₄	226.27	-	4.31	69	87	141	1次	0.1
			phosphoric acid, diphenyl 2-ethylhexyl ester	0001241-94-7	C ₂₀ H ₃₇ O ₇ P	362.16	2.4	9.34	251	362	94	1次	0.01
			propylene glycol monostearate	0001323-39-3	C ₂₁ H ₄₀ O ₄	342.56	-	9.49	98	267	298	2次	1
			isophthalic acid, dimethyl ester	0001459-93-4	C ₁₀ H ₁₀ O ₄	194.06	0.05	4.93	163	135	194	1次	0.02
			tributyltin chloride	0001461-22-9	C ₁₂ H ₂₇ ClSn	325.51	-	5.63	269	213	155	2次	0.2
			1,3-benzendimethanamine	0001477-55-0	C ₈ H ₁₂ N ₂	136.10	0.05	6.53	130	175	102	-	>10
			2,6-bis(2-hydroxy-5-methylbenzyl)-4-methylphenol	0001620-68-4	C ₂₃ H ₃₀ O ₃	348.43	-	11.17	284	404	269	1次	0.5
			2,2-bis(4-glycidyloxyphenyl)propane	0001675-54-3	C ₂₁ H ₂₄ O ₄	340.41	-	1					

表 2-5 GC/MSで測定可能であった物質の保持時間、検量線の形状及び定量下限

EU	US	三衛協	化合物名	CAS番号	Formula	Mass	SML (mg/kg)	Rt (min)	定量イオン (m/z)	確認イオン (m/z)	確認イオン (m/z)	検量線	LOQ (µg/mL)	
			dehydroabietic acid	0001740-19-8	C ₂₀ H ₃₀ O ₂	300.44		9.25	239	285	300		>10	
			N-[3-(trimethoxysilyl)propyl]ethylenediamine	0001760-24-3	C ₉ H ₂₂ N ₂ O ₃ Si	222.36		5.52	160	247	192		>10	
			bis(4-aminocyclohexyl)methane	0001761-71-3	C ₁₂ H ₂₄ N ₂	210.21	0.05	8.44	58	152	234		>10	
			octylphenol, p-	0001806-26-4	C ₁₄ H ₂₂ O	206.32		6.13	107	206	77	1x	0.01	
			octadecyl 3-(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyphenyl)propionate	0002082-79-3	C ₃₅ H ₆₂ O ₃	530.47		6	13.24	57	531	219	1x	0.05
			methacrylic acid, diester with 1,4-butanediol	0002082-81-7	C ₁₂ H ₁₈ O ₄	226.12	0.05	5.10	69	126	140	1x	0.01	
			vinyl laurate (stabilized with MEHQ)	0002146-71-6	C ₁₈ H ₃₂ O ₂	226.36		5.22	183	95	109	1x	0.02	
			diethyl itaconate (stabilized with HQ)	0002155-60-4	C ₁₃ H ₂₂ O ₄	242.31		5.43	113	169	131	2x	0.2	
			acrylic acid, dodecyl ester	0002156-97-0	C ₂₁ H ₃₈ O ₂	240.21	0.05	5.99	55	168	127	1x	0.01	
			bis(2,6-diisopropylphenyl) carbodiimide	0002162-74-5	C ₂₃ H ₃₈ N ₂	362.27	0.05	9.09	347	362	319	2x	0.01	
			pentachloropyridine	0002176-62-7	C ₅ Cl ₅ N	251.31		4.75	251	215	109	1x	0.01	
			diethylene glycol bis(methacrylate)	0002358-84-1	C ₁₇ H ₁₈ O ₄	242.27		5.24	69	113	86	1x	0.05	
			1,4-butanediol bis(2,3-epoxypropyl)ether	0002425-79-8	C ₁₀ H ₁₈ O ₃	202.12	ND	5.39	71	100	129	1x	0.05	
			4-hydroxyphenyl benzoate	0002444-19-1	C ₁₃ H ₁₀ O ₃	214.22		7.45	105	77	214	2x	0.5	
			triglycidyl isocyanurate	0002451-62-9	C ₁₂ H ₁₂ N ₄ O ₃	297.26		8.63	255	267	297		2	
			trimethyl trimellitate	0002459-10-1	C ₁₂ H ₁₂ O ₆	252.22		6.84	221	252	162	1x	0.05	
			2,4-bis(2,4-dimethylphenyl)-6-(2-hydroxy-4-n-octyloxyphenyl)-1,3,5-triazine	0002725-22-6	C ₃₃ H ₄₈ N ₂ O ₂	509.30	0.05	17.72	132	509	131	1x	0.1	
			1,3-bis(2-isocyanato-2-propyl)benzene	0002778-42-9	C ₁₁ H ₁₆ N ₂ O ₂	244.29		5.57	229	186	244	1x	0.02	
			1-amino-3-aminomethyl-3,5,5-trimethylcyclohexane	0002855-13-2	C ₁₁ H ₂₂ N ₂	170.18	6	5.43	178	235	164	1x	0.05	
			diethyl maleate	0002915-53-9	C ₁₀ H ₁₆ O ₂	340.50		8.14	117	71	112	1x	0.02	
			2-(2h-benzotriazol-2-yl)-4-(1,1,3,3-tetramethylbutyl)phenol	0003147-75-9	C ₂₈ H ₃₈ N ₂ O	323.44		9.69	252	323	224	2x	0.5	
			1,1,1-trimethylpropane trimethacrylate	0003290-92-4	C ₁₈ H ₂₈ O ₆	338.17	0.05	7.60	69	253	41	1x	0.02	
			3,3,4,4-tetrachlorosulfolane	0003377-41-5	C ₂ H ₂ Cl ₄ S	257.93		5.00	96	157	121	2x	1	
			2-(3,5'-di-1-butyl-2-hydroxyphenyl)-5-chlorobenzotriazole	0003864-99-1	C ₂₃ H ₃₀ N ₂ OCl	357.88	30 (12)	10.17	342	357	286	1x	0.05	
			2,2'-methylenebis(6-cyclohexyl-p-cresol)	0004066-02-8	C ₂₇ H ₄₈ O ₂	392.57	3 (5)	12.23	203	190	392	2x	0.05	
			2,6-di-tert-butyl-4-ethylphenol	0004130-42-1	C ₁₈ H ₂₆ O	234.20		4.8	5.18	219	234	57	1x	0.01
			isopropyl 4-hydroxybenzoate	0004191-73-5	C ₁₀ H ₁₂ O ₃	180.20		5.16	121	138	180	1x	0.5	
			pentaerythritol tetrabenzoate	0004196-86-5	C ₃₃ H ₃₀ O ₈	552.58		15.11	105	176	204	1x	0.01	
			neopentyl glycol dibenzoate	0004196-89-8	C ₁₉ H ₂₀ O ₄	312.36		8.97	105	77	190	1x	0.01	
			4,4'-cyclohexylidenebis(2-cyclohexylphenol)	0004221-68-5	C ₂₈ H ₄₆ O ₂	432.64		13.15	432	307	225	1x	0.05	
			2-cyano-3,3-diphenylacrylic acid, ethyl ester	0005232-99-5	C ₁₇ H ₁₅ NO ₂	277.11	0.05	8.23	204	277	232	1x	0.05	
			polyoxyethylene (4) lauryl ether	0005274-68-0	C ₂₂ H ₄₂ O ₆	362.54		9.50	88	57	103	1x	0.5	
			benzyl bromoacetate	0005437-45-6	C ₉ H ₉ BrO ₂	229.07		4.67	107	91	149	1x	0.5	
			12-cyano-3,3-diphenylacrylic acid, 2-ethylhexyl ester	0006197-30-4	C ₂₄ H ₃₁ NO ₂	361.20	0.05	10.22	249	204	360	1x	0.01	
			terephthalic acid, bis(2-ethylhexyl)ester	0006422-86-2	C ₂₆ H ₄₂ O ₄	390.28	60	10.57	70	261	279	1x	0.01	
			2,2,4-trimethyl-1,3-pentanediol diisobutyrate	0006846-50-0	C ₁₈ H ₃₄ O ₄	286.21	5	5.39	71	243	159	1x	0.01	
			1,3'-dimethyl-4,4'-diaminodicyclohexylmethane	0006864-37-5	C ₁₇ H ₃₀ N ₂	238.24	0.05	8.58	58	166	262		>10	
			2,5-bis(5-tert-butyl-2-benzoxazolyl)thiophene	0007128-64-5	C ₂₈ H ₃₈ N ₂ O ₂ S	430.17	0.6	13.93	415	434	201	1x	0.01	
			didodecyl dimethylammonium chloride	0007173-51-5	C ₂₇ H ₅₄ NCl	362.08		7.88	184	84	31	2x	0.2	
			isobornyl methacrylate	0007534-94-3	C ₁₄ H ₂₂ O ₂	222.33		4.44	95	136	121	1x	0.1	
			polyoxyethylene(4) stearyl ether	0009005-00-9	C ₃₂ H ₆₂ O ₆	506.57		7.89	97	111	125	1x	0.2	
			4,4'-bis(2,2-dimethylbenzyl)diphenylamine	0010081-67-1	C ₂₆ H ₃₂ N	405.57		13.04	390	405	187	1x	0.05	
			L-ascorbyl stearate	0010605-09-1	C ₂₈ H ₄₈ O ₆	442.59		9.06	115	267	429		2	
			1,4,7,10,13,16-hexaoxacyclooctadecane	0017455-13-9	C ₁₂ H ₂₂ O ₆	264.32		6.70	45	89	133	1x	0.05	
			4-sec-butyl-2,6-di-tert-butylphenol	0017540-75-9	C ₁₉ H ₃₀ O	262.44		5.59	233	247	262	1x	0.01	
			dihexyl fumarate	0019139-31-2	C ₁₈ H ₃₂ O ₄	284.39		7.43	117	183	201	1x	0.05	
			14-(diiodomethylsulfonyl)toluene	0020018-09-1	C ₁₀ H ₈ O ₂ I ₂	422.02		8.39	139	267	422		2	
			dipentyl fumarate	0020314-74-3	C ₁₈ H ₃₂ O ₄	256.34		6.43	117	169	187	2x	0.2	
			1,6-hexamethylene-bis(3-(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyphenyl)propionamide)	0023128-74-7	C ₄₀ H ₆₄ N ₂ O ₄	636.49	45	19.73	44	636	219		>10	
			4-ethoxybenzoic acid, ethyl ester	0023676-09-7	C ₁₁ H ₁₄ O ₃	194.09	3.6	5.00	121	194	149	1x	0.01	
			tert-butyl-4-hydroxyanisole	0025013-16-5	C ₁₁ H ₁₄ O ₂	180.24	30	4.78	165	180	137	1x	0.01	
			2-(3,5-di-tert-amyl-2-hydroxyphenyl)benzotriazole	0025973-55-1	C ₂₂ H ₃₄ N ₂ O	351.49		10.20	322	351	336	2x	0.2	
			monocaprin	0026402-22-2	C ₁₇ H ₃₂ O ₂	246.34		6.94	155	173	215	2x	1	
			bis(2,4-di-tert-butylphenyl) pentaerythritol	0026741-53-7	C ₃₃ H ₅₀ O ₆	604.31	0.6	13.79	57	604	287	1x	0.05	
			diphosphite	0026896-48-0	C ₁₂ H ₁₈ O ₂	196.15	0.05	6.43	91	165	147	2x	0.2	
			tricyclodecanedimethanol	0027138-31-4	C ₂₇ H ₄₂ O ₂	342.39		9.49	105	149	163	2x	0.1	
			Polycizer® DP 500, 1000 µg/mL in hexane	0027194-74-7	C ₁₂ H ₂₂ O ₂	258.40		11.06	183	241	259	2x	0.2	
			di-tert-dodecyl disulfide	0027458-90-8	C ₂₄ H ₄₆ S ₂	402.34	0.05	9.44	57	189	85		>10	
			1,3,5-tris(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxybenzyl)-1,3,5-triazine-2,4,6-(1H,3H,5H)-trione	0027676-62-6	C ₄₈ H ₇₈ N ₂ O ₆	783.52	5	19.47	219	783	436	1x	0.2	
			1,1,1-tris(4-hydroxyphenyl)ethane	0027955-94-8	C ₁₅ H ₁₆ O ₃	268.13	0.005	11.67	291	306	197	1x	0.05	
			octadecyl methacrylate	0032360-05-7	C ₂₈ H ₅₀ O ₂	338.58		9.15	87	97	111	2x	0.02	
			N,N'-bis(3-(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyphenyl)propionyl)hydrazide	0032687-78-8	C ₃₄ H ₅₂ N ₂ O ₄	552.39	15	14.32	219	552	292	1x	0.2	
			1,6-hexamethylene-bis(3-(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyphenyl)propionate)	0035074-77-2	C ₄₀ H ₆₄ O ₆	638.45	6	15.39	219	638	378	1x	0.01	
			1,2-dibromo-2,4-dicyanobutane	0035691-65-7	C ₄ H ₄ N ₂ Br ₂	265.93		4.89	185	106	144	1x	1	
			1,1-bis(2-hydroxy-3,5-di-tert-butylphenyl)ethane	0035958-30-6	C ₂₀ H ₃₀ O ₂	438.35	5	9.43	233	438	217	1x	0.01	
			triethyleneglycol bis(3-(3-tert-butyl-4-hydroxy-5-methylphenyl)propionate)	0036443-68-2	C ₃₄ H ₅₀ O ₆	586.35	9	15.30	177	586	368	1x	0.05	
			1-hexadecanol	0036653-82-4	C ₁₆ H ₃₄ O	242.44		6.92	97	196	224	2x	0.5	
			1,3,5-tris(4-tert-butyl-3-hydroxy-2,6-dimethylbenzyl)-1,3,5-triazine-2,4,6-(1H,3H,5H)-trione	0040601-76-1	C ₅₀ H ₇₈ N ₂ O ₆	699.42	6	22.67	191	700	190	1x	0.2	
			1,1-dithiolan bis(3-(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyphenyl)propionate)	0041484-35-9	C ₃₈ H ₅₈ O ₆ S	642.40	2.4	15.92	219	642	249	1x	0.02	
			sebacic acid bis(2,2,6,6-tetramethyl-4-piperidyl)ester	0052829-07-9	C ₂₈ H ₅₂ N ₂ O ₄	480.73		11.55	124	98	342	2x	0.2	
			13-iodo-2-propynyl N-butylcarbamate	0055406-53-6	C ₁₂ H ₁₇ NO ₂ I	281.09		5.80	165	182	127	2x	0.5	
			1,3-propanediol bis(4-aminobenzoate)	0057609-64-0	C ₁₇ H ₂₁ N ₂ O ₄	314.34		11.94	120	314	178		10	
			mercaptoethyl octanoate	0057813-59-9	C ₁₄ H ₂₆ O ₂ S	204.33		4.68	60	145	127		2	
			13,5-di-tert-butyl-4-hydroxybenzoic acid, hexadecyl ester	0067845-93-6	C ₃₁ H ₅₄ O ₃	474.76		12.32	235	459	474	1x	0.05	

表 2 6 “複合影響”の検索対象とした品目とその検索結果一覧

Code No.	食品添加物(名)	(実名)	Step 1 search term			Step 2 search term				Step 1 = 2 hit No.	Step 3 hit No.	
			^h combined effect ^t	^h cumulative effect ^t	^h synergistic effect ^t	^h toxic ^t	^h toxic ^t	^h toxic ^t	^h toxic ^t			^h toxic ^t
FA053200	プロピオン酸ナトリウム	Sodium propionate	^h Sodium propionate ^t	^h combined effect ^t	^h toxic ^t					97	0	
			^h Sodium propionate ^t	^h cumulative effect ^t	^h toxic ^t					28	0	
			^h Sodium propionate ^t	^h synergistic effect ^t	^h toxic ^t	^h toxic ^t	^h human ^t	^h toxic ^t			32	0
FA010500	エチレンジアミン四酢酸 二ナトリウム	disodium ethylenediaminetetraacetate	^h disodium ethylenediaminetetraacetate ^t	^h combined effect ^t	^h toxic ^t					28	0	
			^h disodium ethylenediaminetetraacetate ^t	^h cumulative effect ^t	^h toxic ^t					4	0	
			^h disodium ethylenediaminetetraacetate ^t	^h synergistic effect ^t	^h toxic ^t					70	0	
FA051800	フマル酸	Fumaric acid	^h Fumaric acid ^t	^h combined effect ^t	^h toxic ^t	^h toxic ^t	^h human ^t	^h toxic ^t		49	0	
			^h Fumaric acid ^t	^h cumulative effect ^t	^h toxic ^t					60	0	
			^h Fumaric acid ^t	^h synergistic effect ^t	^h toxic ^t	^h toxic ^t	^h human ^t	^h toxic ^t			96	0
FA001100	L-アスコルビン酸	Ascorbic acid, L-Ascorbic acid	^h Ascorbic acid, L-Ascorbic acid ^t	^h combined effect ^t	^h toxic ^t					3	0	
			^h Ascorbic acid, L-Ascorbic acid ^t	^h cumulative effect ^t	^h toxic ^t					1	0	
			^h Ascorbic acid, L-Ascorbic acid ^t	^h synergistic effect ^t	^h toxic ^t					26	0	
FA046100	パントテン酸カルシウム	calcium pantothenate	^h calcium pantothenate ^t	^h combined effect ^t	^h toxic ^t	^h toxic ^t	^h human ^t	^h toxic ^t		11	0	
			^h calcium pantothenate ^t	^h cumulative effect ^t	^h toxic ^t					63	0	
			^h calcium pantothenate ^t	^h synergistic effect ^t	^h toxic ^t	^h toxic ^t	^h human ^t	^h toxic ^t			12	0
FA043700	二酸化チタン	Titanium dioxide	^h Titanium dioxide ^t	^h combined effect ^t	^h toxic ^t	^h toxic ^t	^h human ^t	^h toxic ^t		34	0	
			^h Titanium dioxide ^t	^h cumulative effect ^t	^h toxic ^t	^h toxic ^t	^h human ^t	^h toxic ^t			12	0
			^h Titanium dioxide ^t	^h synergistic effect ^t	^h toxic ^t	^h toxic ^t	^h human ^t	^h toxic ^t			98	0
FA036200	ソルビン酸	Sorbic acid	^h Sorbic acid ^t	^h combined effect ^t	^h toxic ^t	^h toxic ^t	^h human ^t	^h toxic ^t		39	0	
			^h Sorbic acid ^t	^h cumulative effect ^t	^h toxic ^t	^h toxic ^t	^h human ^t	^h toxic ^t			139	0
			^h Sorbic acid ^t	^h synergistic effect ^t	^h toxic ^t	^h toxic ^t	^h human ^t	^h toxic ^t			117	0
FA036300	ソルビン酸カリウム	Potassium sorbate	^h Potassium sorbate ^t	^h combined effect ^t	^h toxic ^t	^h toxic ^t	^h human ^t	^h toxic ^t		32	0	
			^h Potassium sorbate ^t	^h cumulative effect ^t	^h toxic ^t	^h toxic ^t	^h human ^t	^h toxic ^t			132	0
			^h Potassium sorbate ^t	^h synergistic effect ^t	^h toxic ^t	^h toxic ^t	^h human ^t	^h toxic ^t			24	0
FA032500	食用黄色4号	Tartrazine	^h Tartrazine ^t	^h combined effect ^t	^h toxic ^t	^h toxic ^t	^h human ^t	^h toxic ^t		53	0	
			^h Tartrazine ^t	^h cumulative effect ^t	^h toxic ^t	^h toxic ^t	^h human ^t	^h toxic ^t			37	0
			^h Tartrazine ^t	^h synergistic effect ^t	^h toxic ^t	^h toxic ^t	^h human ^t	^h toxic ^t			164	0
FA000700	亜酸化窒素	Nitrous oxide	^h Nitrous oxide ^t	^h combined effect ^t	^h toxic ^t	^h toxic ^t	^h human ^t	^h toxic ^t		2	0	
			^h Nitrous oxide ^t	^h cumulative effect ^t	^h toxic ^t	^h toxic ^t	^h human ^t	^h toxic ^t			168	0
			^h Nitrous oxide ^t	^h synergistic effect ^t	^h toxic ^t	^h toxic ^t	^h human ^t	^h toxic ^t			241	0
FA012500	カオリン	Aluminium silicate	^h Aluminium silicate ^t	^h combined effect ^t	^h toxic ^t					61	0	
			^h Aluminium silicate ^t	^h cumulative effect ^t	^h toxic ^t					13	0	
			^h Aluminium silicate ^t	^h synergistic effect ^t	^h toxic ^t					68	0	
FA012500	カオリン	Kaolin	^h Kaolin ^t	^h combined effect ^t	^h toxic ^t	^h toxic ^t	^h human ^t	^h toxic ^t		80	0	
			^h Kaolin ^t	^h cumulative effect ^t	^h toxic ^t	^h toxic ^t	^h human ^t	^h toxic ^t			38	0
			^h Kaolin ^t	^h synergistic effect ^t	^h toxic ^t	^h toxic ^t	^h human ^t	^h toxic ^t			170	0
FA036600	タウリン (抽出物)	Taurine	^h Taurine ^t	^h combined effect ^t	^h toxic ^t	^h toxic ^t	^h human ^t	^h toxic ^t		32	0	
			^h Taurine ^t	^h cumulative effect ^t	^h toxic ^t	^h toxic ^t	^h human ^t	^h toxic ^t			278	0
			^h Taurine ^t	^h synergistic effect ^t	^h toxic ^t	^h toxic ^t	^h human ^t	^h toxic ^t			0	0
FA032100	食用赤色102号	Ponceau 4R, Cochineal Red A	^h Ponceau 4R, Cochineal Red A ^t	^h combined effect ^t	^h toxic ^t					2	0	
			^h Ponceau 4R, Cochineal Red A ^t	^h cumulative effect ^t	^h toxic ^t					2	0	
			^h Ponceau 4R, Cochineal Red A ^t	^h synergistic effect ^t	^h toxic ^t	^h toxic ^t	^h human ^t	^h toxic ^t			48	0
FA016500	キシリトール	Xylitol	^h Xylitol ^t	^h combined effect ^t	^h toxic ^t	^h toxic ^t	^h human ^t	^h toxic ^t		79	0	
			^h Xylitol ^t	^h cumulative effect ^t	^h toxic ^t	^h toxic ^t	^h human ^t	^h toxic ^t			97	0
			^h Xylitol ^t	^h synergistic effect ^t	^h toxic ^t	^h toxic ^t	^h human ^t	^h toxic ^t			3	1
FA031900	食用赤色40号	Allura Red AC	^h Allura Red AC ^t	^h combined effect ^t	^h toxic ^t					3	0	
			^h Allura Red AC ^t	^h cumulative effect ^t	^h toxic ^t					24	0	
			^h Allura Red AC ^t	^h synergistic effect ^t	^h toxic ^t					2	0	
FA036000	D-ソルビトール	Sorbitol	^h Sorbitol ^t	^h combined effect ^t	^h toxic ^t					1	0	
			^h Sorbitol ^t	^h cumulative effect ^t	^h toxic ^t					3	0	
			^h Sorbitol ^t	^h synergistic effect ^t	^h toxic ^t					56	1	
FA035200	ステビア抽出物	Stevioside	^h Stevioside ^t	^h combined effect ^t	^h toxic ^t					16	0	
			^h Stevioside ^t	^h cumulative effect ^t	^h toxic ^t	^h toxic ^t	^h human ^t	^h toxic ^t			20	0
			^h Stevioside ^t	^h synergistic effect ^t	^h toxic ^t	^h toxic ^t	^h human ^t	^h toxic ^t			0	0
FA032200	食用赤色104号	phlovanic BK	^h phlovanic BK ^t	^h combined effect ^t	^h toxic ^t					0	0	
			^h phlovanic BK ^t	^h cumulative effect ^t	^h toxic ^t					1	0	
			^h phlovanic BK ^t	^h synergistic effect ^t	^h toxic ^t	^h toxic ^t	^h human ^t	^h toxic ^t			34	0
FA015750	カンダキサンチン	Candaxanthin	^h Candaxanthin ^t	^h combined effect ^t	^h toxic ^t	^h toxic ^t	^h human ^t	^h toxic ^t		59	1	
			^h Candaxanthin ^t	^h cumulative effect ^t	^h toxic ^t	^h toxic ^t	^h human ^t	^h toxic ^t			100	0
			^h Candaxanthin ^t	^h synergistic effect ^t	^h toxic ^t	^h toxic ^t	^h human ^t	^h toxic ^t				

D．結論

器具・容器包装等の安全性に対する信頼性確保及び向上を目的として、規格試験法の性能に関する研究、市販製品に残存する化学物質に関する研究及び食品添加物等の複合影響に関する研究を実施した。

規格試験法の性能に関する研究では、規格試験法の性能に関する研究として、器具・容器包装またはおもちゃにおけるフタル酸エステル類の材質試験及び溶出試験、乳及び乳製品の成分規格等に関する省令（乳等省令）のヒ素試験、おもちゃにおける着色料試験、蒸発残留物試験、器具・容器包装のホルムアルデヒド試験の簡易化についての性能評価または改良法の開発を実施した。その結果、規格試験法の性能把握や問題点の抽出を行うことができた。また、開発した改良法を規格試験として採用することにより、試験精度の向上、試験時間の短縮、試験経費の削減などの効果が見込まれる。この成果は及び試験検体数の増加にもつながるため厚生労働行政に大きく貢献できるほか、消費者の市販製品の安全性に対する信頼性の確保に貢献できる。

市販製品に残存する化学物質に関する研究では、ポリ塩化ビニル（PVC）製玩具に含まれる可塑剤の調査、植物油総溶出物量試験法の改良法の検討、紙製品中の蛍光物質の検査法改良に関する検討、ポジティブリスト制度（PL制度）の施行後の合成樹脂製品の検査・監視等に資する添加剤の分析法開発、器具・容器包装における溶出試験の精度の検証を実施した。その結果、規格基準が設定されていない物質等について、製品中の残存量や食品等への移行量の実態を明らかにした。これらの結果は、器具・容器包装等の安全性を確保及び向上させるための規格基準の改正や製品の検査・監視等に有用である。

食品添加物等の複合影響に関する研究では、食品添加物の複合影響に関する文献調査を実施した。我が国で使用が許可され、且つ、そ

の成分規格が設定されている食品添加物 689 品目を対象として調査した結果、多数の文献が複合影響に関連するものとしてヒットした。そこで、使用頻度及び摂取量が多いと考えられる 20 品目に対象を絞り、食品添加物としての複合影響に関する文献調査を行ったところ、悪影響を与えるとする文献は 1 件のみであった。しかしながら、本文献では、食品添加物の実際の使用濃度でのヒトへの複合影響については、今後の検討が必要と結論しており、明らかに複合影響を与えるとする文献を見出すことはできなかった。食品添加物及び食品の組合せは無限に存在することから、情報の収集は困難であり、継続的且つ体系的な調査が必要であると考えられた。

E．健康危害情報

なし

F．研究発表

1．論文発表

- 1) 菌部博則ら：ポリスチレン製器具・容器包装における揮発性物質試験の試験室間共同試験、食品衛生学雑誌、57、169-178（2016）
- 2) 渡辺一成ら：ナイロン製器具・容器包装におけるカプロラクタム試験の試験室間共同試験、食品衛生学雑誌、57、222-229（2016）
- 3) 阿部 裕、山口未来、六鹿元雄、穠山 浩、河村葉子：ポリウレタン、ナイロンおよび布製玩具中の芳香族第一級アミン類および着色料の調査、食品衛生学雑誌、57、23-31（2016）
- 4) 阿部 裕、山口未来、六鹿元雄、佐藤恭子、穠山 浩：GC/MS を用いたフタル酸エステル測定において共存可塑剤が定量値へ与える影響、日本食品化学学会誌、24、119-124（2017）
- 5) 大野浩之ら：器具・容器包装における蒸

- 発残留物試験の試験室間共同試験（第1報）食品衛生学雑誌、59、55-63 (2018)
- 6) 大野浩之ら：器具・容器包装における蒸発残留物試験の試験室間共同試験（第2報）食品衛生学雑誌、59、64-71 (2018)
- 7) 中西 徹、河村葉子、城市 香、渡邊雄一、杉本敏明、阿部 裕、六鹿元雄：油脂および脂肪性食品用器具・容器包装のための植物油への総溶出物試験法の確立、食品衛生学雑誌、59、193-199 (2018)
- 8) 尾崎麻子、岸映里、大嶋智子、角谷直哉、阿部 裕、六鹿元雄、山野哲夫：ヘッドスペース - GC-MSによる食品用ラミネートフィルム中の残留有機溶剤の分析、食品衛生学雑誌、印刷中
- 9) 河村葉子、和田岳成、山口未来、六鹿元雄：油脂および脂肪性食品用合成樹脂製器具・容器包装の蒸発残留物試験に関する考察、食品衛生学雑誌、印刷中
- 六鹿元雄、佐藤恭子：揮発性物質試験におけるスチレンメモリー現象に関する検討、第112回日本食品衛生学会学術講演会（2016.10）
- 6) 尾崎麻子、岸 映里、大嶋智子、角谷直哉、阿部 裕、六鹿元雄、山野哲夫：食品用ラミネートフィルムに含まれる残留有機溶剤の分析、第112回日本食品衛生学会学術講演会（2016.10）
- 7) 中西 徹、河村葉子、阿部 裕、六鹿元雄：植物油総溶出量試験法の改良 その5 改良試験法の試験室間共同試験、第112回日本食品衛生学会学術講演会（2016.10）
- 8) Mutsuga M, Abe Y, Yamaguchi M, Sato K: Interlaboratory study on migration tests for food contact material, 6th International Symposium on Food Packaging (2016.11)
- 9) Ozaki A, Kishi E, Ooshima T, Kakutani N, Abe Y, Mutsuga M, Yamano T: Determination of elements and residual solvents in laminated films used for food packaging, 6th International Symposium on Food Packaging (2016.11)
- 10) Nakanishi T, Kawamura Y, Sugimoto T, Abe Y, Mutsuga M: Improvement of the test methods for overall migration into vegetable oil, 6th International Symposium on Food Packaging (2016.11)
- 11) 高橋怜子、阿部 裕、山口未来、伊藤裕才、六鹿元雄、佐藤恭子：ポリ塩化ビニル製玩具から溶出する可塑剤とリスク評価、日本食品化学学会 第23回学術大会（2017.6）
- 12) 阿部智之ら：おもちゃにおけるフタル酸エステル試験の試験室間共同試験、日本食品化学学会第23回学術大会（2017.6）
- 13) Yutaka Abe: Performance Evaluation for the Analytical Methods of Metals in Food Contact Materials, 254th ACS National

2. 講演、学会発表等

- 1) 山口未来、木嶋麻乃、阿部 裕、伊藤裕才、六鹿元雄、佐藤恭子：ポリ塩化ビニル製玩具中の可塑剤使用実態調査、日本食品化学学会 第22回総会・学術大会（2016.6）
- 2) 大野浩之ら：器具・容器包装における蒸発残留物試験の試験室間共同試験（その1）第112回日本食品衛生学会学術講演会（2016.10）
- 3) 大野浩之ら：器具・容器包装における蒸発残留物試験の試験室間共同試験（その1）第112回日本食品衛生学会学術講演会（2016.10）
- 4) 阿部 裕、山口未来、阿部智之、大野浩之、六鹿元雄、佐藤恭子：カプロラクタム試験におけるピーク形状改善のためのGC測定条件の検討、第112回日本食品衛生学会学術講演会（2016.10）
- 5) 阿部智之、阿部 裕、山口未来、大野浩之、

- Meeting & Exposition Fall 2017 (2017. 8)
- 14) 阿部裕：乳幼児用玩具および食品用器具・容器包装に含まれる化学物質の実態調査に関する研究、第 113 回日本食品衛生学会学術講演会 (2017.11)
 - 15) 六鹿元雄、河村葉子、有菌幸司、大野浩之、尾崎麻子、金子令子、中西徹、羽石奈穂子、松井秀俊、渡辺一成：生活用品試験法 器具・容器包装および玩具試験法 プラスチック製品からの金属類の溶出試験法、日本薬学会第 138 年会 (2018.3)
 - 16) 六鹿元雄、平成 30 年度食品安全行政講習会、「器具・容器包装の法規制と事業者における自主的管理について」(2018.6)
 - 17) 六鹿元雄、日本輸入食品安全推進協会第三回勉強会、「我が国と欧米の器具・容器包装（食品接触材料）に関する規制等について」(2018.7)
 - 18) 六鹿元雄ら：おもちゃにおける着色料試験の試験室間共同試験<その 1>、第 114 回日本食品衛生学会学術講演会 (2018.11)
 - 19) 佐藤 環ら：おもちゃにおける着色料試験の試験室間共同試験<その 2>、第 114 回日本食品衛生学会学術講演会 (2018.11)
 - 20) 中西 徹ら：おもちゃにおける着色料試験の試験室間共同試験<その 3>、第 114 回日本食品衛生学会学術講演会 (2018.11)
 - 21) 六鹿元雄、第 34 回食品化学シンポジウム、「器具・容器包装の PL 化について」(2018.11)
 - 22) 阿部 裕、平成 30 年度器具・容器包装研修会、「紙製品中の蛍光物質の検査法について」(2018.11)
 - 23) 六鹿元雄、平成 30 年度器具・容器包装研修会、「器具・容器包装の試験法に係る検討事項について」(2018.11)
 - 24) 六鹿元雄、育児用品衛生連絡協議会勉強会、「器具・容器包装の PL 化について」(2019.3)
 - 25) 六鹿元雄、河村葉子、有菌幸司、大野浩之、尾崎麻子、金子令子、中西徹、羽石奈穂子、松井秀俊、渡辺一成：生活用品試験法 器具・容器包装および玩具試験法 ゴム製品からの N-ニトロソアミン類の溶出試験法、日本薬学会第 139 年会 (2019.3)
 - 26) 尾崎麻子、河村葉子、有菌幸司、大野浩之、金子令子、中西徹、羽石奈穂子、松井秀俊、六鹿元雄、渡辺一成：生活用品試験法 器具・容器包装および玩具試験法 プラスチック製品の有機溶剤試験法、日本薬学会第 139 年会 (2019.3)
- G . 知的財産権の出願・登録状況**
なし

研究成果の刊行に関する一覧表

雑 誌

発表者氏名	論文タイトル名	発表誌名	巻号	ページ	出版年
阿部 裕、山口未来、六鹿元雄、穠山 浩、河村葉子	ポリウレタン、ナイロンおよび布製玩具中の芳香族第一級アミン類および着色料の調査	食品衛生学 雑誌	57	23-31	2016
藺部博則、六鹿元雄、阿部 孝、阿部智之、阿部 裕、大坂郁恵、大野春香、大野浩之、大野雄一郎、大畑昌輝、尾崎麻子、柿原芳輝、小林 尚、柴田 博、関戸晴子、高坂典子、竹中 佑、但馬吉保、田中 葵、外岡大幸、中西 徹、野村千枝、羽石奈穂子、早川雅人、疋田晃典、松山重倫、三浦俊彦、山口未来、渡辺一成、佐藤恭子、穠山 浩	ポリスチレン製器具・容器包装における揮発性物質試験の試験室間共同試験	食品衛生学 雑誌	57	169-178	2016
渡辺一成、六鹿元雄、阿部 孝、阿部智之、阿部 裕、大坂郁恵、大野春香、大野浩之、大野雄一郎、尾崎麻子、柿原芳輝、小林 尚、近藤貴英、柴田 博、城野克広、関戸晴子、藺部博則、高坂典子、但馬吉保、田中 葵、田中秀幸、中西 徹、野村千枝、羽石奈穂子、早川雅人、疋田晃典、三浦俊彦、山口未来、佐藤恭子、穠山 浩	ナイロン製器具・容器包装におけるカプロラクタム試験の試験室間共同試験	食品衛生学 雑誌	57	222-229	2016
阿部 裕、山口未来、六鹿元雄、佐藤恭子、穠山 浩	GC/MSを用いたフタル酸エステル測定において共存可塑剤が定量値へ与える影響	日本食品化学学会誌	24	119-124	2017

大野浩之、六鹿元雄、阿部智之、阿部 裕、天野保希、石原絹代、大坂郁恵、大野春香、大野雄一郎、尾崎麻子、柿原芳輝、小林 尚、櫻木大志、柴田 博、城野克広、関戸晴子、高坂典子、竹中 佑、但馬吉保、田中 葵、田中秀幸、外岡大幸、中西 徹、野村千枝、羽石奈穂子、早川雅人、三浦俊彦、山口未来、渡辺一成、佐藤恭子	器具・容器包装における蒸発残留物試験の試験室間共同試験（第1報）	食品衛生学 雑誌	59	55-63	2018
大野浩之、六鹿元雄、阿部智之、阿部 裕、天野保希、石原絹代、大坂郁恵、大野春香、大野雄一郎、尾崎麻子、柿原芳輝、小林 尚、櫻木大志、柴田 博、城野克広、関戸晴子、高坂典子、竹中 佑、但馬吉保、田中 葵、田中秀幸、中西 徹、野村千枝、羽石奈穂子、早川雅人、三浦俊彦、山口未来、山田恭平、渡辺一成、佐藤恭子	器具・容器包装における蒸発残留物試験の試験室間共同試験（第2報）	食品衛生学 雑誌	59	64-71	2018
中西 徹、河村葉子、城市 香、渡邊雄一、杉本敏明、阿部 裕、六鹿元雄	油脂および脂肪性食品用器具・容器包装のための植物油への総溶出物試験法の確立	食品衛生学雑誌	59	193-199	2018
尾崎麻子、岸映里、大嶋智子、角谷直哉、阿部裕、六鹿元雄、山野哲夫	ヘッドスペース - GC-MSによる食品用ラミネートフィルム中の残留有機溶剤の分析	食品衛生学 雑誌	60	印刷中	2019
河村葉子、和田岳成、山口未来、六鹿元雄	油脂および脂肪性食品用合成樹脂製器具・容器包装の蒸発残留物試験に関する考察	食品衛生学 雑誌	60	印刷中	2019