

厚生労働行政推進調査事業費補助金（化学物質リスク研究事業）
R5 年度終了報告書

家庭用品中有害物質の試験法及び規制基準設定に関する研究

改正試験法の妥当性評価に関する研究
未規制物質の分析法開発と実態に関する研究

研究分担者 西 以和貴 神奈川県衛生研究所 理化学部 主任研究員
研究協力者 吉富 太一 神奈川県衛生研究所 理化学部 主任研究員

要旨

現在、有害物質を含有する家庭用品の規制に関する法律（家庭用品規制法）では、クレオソート油及びその処理木材中の 3 種の多環芳香族炭化水素類（PAHs）が規制されている。一方、欧州連合（EU）では消費者向け製品に対し、わが国の規制対象 3 種に 5 種を加えた 8 種の PAHs を制限対象としている。

先行研究では、以上の 8 種に加え、欧州食品安全機関（EFSA）がモニタリングを推奨している PAHs を網羅した、10 種の PAHs をクレオソート油製品中から分析する方法を開発した。今年度の研究では、この分析法の妥当性を評価するために、7 つの異なる機関によるバリデーションを実施した。バリデーションでは、クレオソート油及びクレオソート油で処理された木材にそれぞれ、基準値（10 µg/g 及び 3 µg/g）、基準値の 1/2、基準値の 1/10 の分析対象物質を添加した試料を調製し、それぞれの機関に配付した。

バリデーションの結果、基準値及び基準値の 1/2 を添加した試料において、厚生労働省の「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」での目標値を満たす、良好な結果が得られた。このことから、開発した分析法が改正試験法として有効だと考えられた。一方で、基準値の 1/10 のレベルでは、クレオソート油で処理された木材の試料で上記妥当性評価ガイドラインの目標値を満たしたが、クレオソート油の試料で一部の項目が目標値を満たせなかった。原因として、クレオソート油に大量に含まれる夾雑成分による妨害が、基準値の 1/10 という低濃度の分析では大きな影響を与えたことが考えられた。

また、EU ではゴム・プラスチック製品中の PAHs も制限対象としているため、それらについても検討を行うこととした。今年度はゴム製品中の PAHs の分析法を、クレオソート油製品の分析法開発で得られた知見を元に考案し、その添加回収試験を行った。その結果、回収率は 74.6~106.7%、相対標準偏差は 1.8~8.4%であり、良好な結果が得られ、実態調査を行うための分析法を構築できたと考えられた。

A. 研究目的

わが国では、有害物質を含有する家庭用品の規制に関する法律（昭和48年10月12日法律第102号、以下「家庭用品規制法」）により、クレオソート油及びクレオソート油で処理された木材に含まれる3種の多環芳香族炭化水素類（PAHs；ジベンゾ[a,h]アントラセン、ベンゾ[a]アントラセン、ベンゾ[a]ピレン）が規制されている。一方で、欧州連合（EU）ではREACH規則にて皮膚などに直接接触する成形品中のPAHs含量を規制しており、わが国で規制対象となっている3種の他に、5種のPAHs（ベンゾ[e]ピレン、ベンゾ[b]フルオランテン、ベンゾ[k]フルオランテン、ベンゾ[j]フルオランテン、クリセン）を加えた合計8種を規制対象としている。¹⁾

また、これらの現行試験法には発がん性の疑われるジクロロメタンの使用が規定されている等、いくつかの課題が指摘されてきた。そこで先行研究では、前述のEUでの制限対象8種に加え、欧州食品安全機関（EFSA）がモニタリングを推奨するPAHs²⁾を網羅した、クレオソート油製品中10種PAHsの分析法を新たに開発した。³⁾

今年度の研究では、先行研究で開発した分析法の妥当性を確認するため、7つの異なる機関によるバリデーションを実施した。

さらに、EUではゴム・プラスチック製品中のPAHsが制限対象となっているが、わが国でのこれらの製品中のPAHs含有量の実態は明らかになっていない。そこで、今年度の研究において、クレオソート油製品の分析法を応用したゴム製品中PAHsの分析法を構築した。分析法の構築にあたっては、昨今のヘリウム不足を考慮し、水素キャリ

アガス-GC-MS/MSを用いた検討を行った。

B. 研究方法

B1. 妥当性評価

B1.1 参加機関

国立医薬品食品衛生研究所、北海道立衛生研究所、東京都健康安全研究センター、神奈川県衛生研究所、川崎市健康安全研究所、名古屋市衛生研究所、大阪健康安全基盤研究所の7機関で実施した（機関1~7、順不同）。

B1.2. 試料

クレオソート油及びクレオソート油で処理された木材（以下、処理木材）をインターネット通販にて購入し、試料とした。木材は表面からおおよそ1cmの部分を対象とし、削り取ったものを細かく刻み、以降の検討に用いた。

また、ゴム手袋を店舗から購入し、2-3mm角程度に細かく刻んだものを試料として用いた。

B1.3. 配付試料の調製

家庭用品規制法では、ジベンゾ[a,h]アントラセン、ベンゾ[a]アントラセン、ベンゾ[a]ピレンに対し、基準値をクレオソート油で10µg/g、処理木材で3µg/gに設定している。今回の妥当性評価では、市販のクレオソート油及び処理木材に、基準値、基準値の1/2、基準値の1/10の分析対象物質を添加した試料を調製した（クレオソート油：OA、OB、OC、処理木材：WA、WB、WC）。分析対象物質は表1に、設定濃度は表2に示した。添加前の試料をn=3で分析し、検出されたPAHsについては添加濃度に加算し

たものを設定濃度とした。試料は各濃度につき 3 回繰り返すことのできる量を配付した。

配付試料の均一性を確認するため、クレオソート油では調製した各濃度の試料を分注する際に、最初・中間・最後の試料を採り、それぞれ分析を行った。処理木材については、調製した各濃度の試料からランダムに 3 つずつを採り、それらを分析した。

B1.4. 試薬類

PAHs の標準溶液として、AccuStandard 社の PAH Standard (Quebec Ministry of Environ. PAH Mix) を用いた。内部標準物質は BaA-*d*₁₂、CRY-*d*₁₂、BbF-*d*₁₂、BaP-*d*₁₂ をトルエンで 10 µg/mL に調製し、内部標準溶液及び保持指標の基準として用いた。各種溶媒は富士フイルム和光純薬製の残留農薬・PCB 試験用のものを用いた。

試料前処理カラムは Waters 社の Sep-pak Silica (1 g)、GL サイエンス社の Inert Sep SAX (500 mg) を用いた。

妥当性評価参加機関には上記の溶媒以外の試薬・器材を配布した。

B1.5. 分析操作

分析操作のフローチャートを図 1 に示した。以下にその詳細を記載する。

クレオソート油：

試料 0.5 g を 15 mL PP 製遠沈管にとり、ヘキサン 3 mL を加え攪拌後、3000 rpm で 5 分間遠心処理した。この上清を、予めアセトン 5 mL 及びヘキサン 10 mL でコンディショニングした Sep-Pak Silica に全て負荷し、溶出液を採取した。さらに、ジエチルエーテ

ル/ヘキサン(1/9 v/v)3 mL で遠沈管を洗いこんで Sep-Pak Silica に流し込んだ後、Sep-Pak Silica にジエチルエーテル/ヘキサン(1/9 v/v)3 mL を流して溶出した。ガラス試験管に溶出液を合わせ、窒素気流下で 2 mL 以下まで濃縮した後、メスフラスコに移し、ヘキサンで 10 mL に定容した。

この溶液 1 mL を予めアセトン 3 mL 及びヘキサン 6 mL でコンディショニングした InertSep SAX に負荷した後、ジエチルエーテル/ヘキサン(1/9 v/v) 6 mL を流してカートリッジを洗浄した。続いて、アセトン/ヘキサン(1/9 v/v) 6 mL でガラス試験管に溶出し、この溶出液を窒素気流下で 1 mL 以下に濃縮後、ヘキサンで 1 mL とした。これに内部標準溶液を 50 µL 加え、攪拌した。クリセン以外は DB-17ms を装着した GC-MS で分析し、クリセンはカラムを SLB-ILPAH に交換後に分析した。

処理木材：

試料 1 g を 50 mL 容ネジロガラス遠心管にとり、アセトン 20 mL を加えて蓋をし、37°C で 24 時間抽出を行った。得られた抽出液をガラスろ過器でろ過してメスフラスコに移し、ロータリーエバポレーターで濃縮した。これを PP 遠沈管に移し、窒素気流下で 1 mL 以下に濃縮した。以降は上記クレオソート油と同様に操作した。

B1.6. GC-MS 条件

装置は Agilent Technologies 社の 7890B /5977B を用いた。カラムは DB-17MS (Agilent Technologies 社, Length 30 m, I.D. 0.25 mm, Film thickness 0.15 µm) または SLB-ILPAH (Merck 社, Length 20 m, I.D. 0.18 mm,

Film thickness 0.05 μm) を用いた。キャリアガスはヘリウムを用い、流量は 1.0 mL/min とした。試験溶液は 1 μL をパルスドスプリットレスモード (25 psi, 1min) で注入した。DB-17MS を用いた際のカラムオーブンプログラムは 100°C (0.5min) \rightarrow 30°C/min \rightarrow 230°C \rightarrow 2°C/min \rightarrow 310°C (5min) に設定した。また、SLB-ILPAH を用いた際のカラムオーブンプログラムは 100°C (5min) \rightarrow 20°C/min \rightarrow 200°C \rightarrow 4°C/min \rightarrow 300°C (5min) に設定した。トランスファーライン温度はカラムオーブンプログラムの最終温度と同一にした。注入口温度及びイオン源温度は 300°C に設定した。定量イオン及び定性イオンは表 3 に示した。

妥当性評価時の手順書ではカラム流量を 0.8 mL/min、その他は上記と同様のものを条件として示したが、各機関の状況に応じて条件変更を可能とした。また、マトリックス効果の対策として Polyethylene glycol 300 (PEG) の共注入を行えることとした。なお、分析に必要なカラムは各機関に配付した。各機関における GC-MS 条件は表 4、5 に示した。

B1.7. 各機関の分析結果の解析

真度は表 1 に示した設定値に対する、報告値の平均値の割合により算出した。併行精度 (RSD_r) 及び室間精度 (RSD_R) は厚生労働省の「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」⁴⁾ (以下、妥当性評価ガイドライン) に示された方法により算出した。なお、ガイドライン中の「室内精度」は「室間精度」に読み替えた。精度を算出する際は Microsoft 社の Excel 2016 を用い、一元配置分散分析を行

った。一元配置分散分析で算出される「グループ内分散」及び「グループ間分散」から、以下の式により併行標準偏差 (σ_r) 及び室間標準偏差 (σ_R) を算出した。

$$\sigma_r = \sqrt{\text{グループ内分散}}$$

$$\sigma_R = \sqrt{\frac{\text{グループ間分散} - \text{グループ内分散}}{3}}$$

RSD_r 及び RSD_R は σ_r 及び σ_R とデータの総平均 (\bar{x}) を用いて以下のように求めた。

$$RSD_r(\%) = \frac{\sigma_r}{\bar{x}} \times 100$$

$$RSD_R(\%) = \frac{\sqrt{\sigma_r^2 + \sigma_R^2}}{\bar{x}} \times 100$$

B2. ゴム製品中 PAHs

B2.1 試薬類

妥当性評価試験と同じものを使用した。

B2.2 分析法の検討

市販のゴム手袋を細切し、その 0.5 g に各 PAHs を 100 μg 添加したものを試料とした。試料の抽出はドイツの GS マーク認証に用いられる分析法を参考に、試料にトルエン 20 mL を加え、60°C で 60 分間超音波抽出することにより行った。抽出液の上清 10 mL をナスフラスコに採り、ロータリーエバポレーター用いて乾固した後、アセトン/ヘキサン(1/9 v/v) 1 mL で溶解した。この溶液を、予めアセトン 5 mL 及びヘキサン 10 mL でコンディショニングした Sep-Pak Silica に全て負荷し、溶出液を採取した。さらに、ジエチルエーテル/ヘキサン(1/9 v/v) 3 mL でナスフラスコを洗いこんで Sep-Pak Silica に流し込んだ後、Sep-Pak Silica にジエチルエーテ

ル/ヘキサン(1/9 v/v) 3 mL を流して溶出した。ガラス試験管に溶出液を合わせ、窒素気流下で乾固後、ジエチルエーテル/ヘキサン(1/9 v/v) 1 mL に溶解した。この溶液を予めアセトン 3 mL 及びヘキサン 6 mL でコンデューションした InertSep SAX に負荷し、溶出液は廃棄した。次にジエチルエーテル/ヘキサン(1/9 v/v) 3 mL でガラス試験管を洗いこんで InertSep SAX に流し込み、カートリッジからの溶出液は廃棄した。さらにジエチルエーテル/ヘキサン(1/9 v/v) 3 mL を流してカートリッジを洗浄した。続いて、アセトン/ヘキサン(1/9 v/v) 6 mL でガラス試験管に溶出し、この溶出液を窒素気流下で 1 mL 以下に濃縮後、ヘキサンで 1 mL とした。これに内部標準溶液を 50 µL 加え、攪拌したものを試験溶液とし、GC-MS/MS で分析した。

B2.3. GC-MS/MS 条件

装置は Agilent Technologies 社の 8890 /7000D を用いた。カラムは Rxi-PAH (Restek 社, Length 40 m, I.D. 0.18 mm, Film thickness 0.07 µm) を用いた。キャリアガスは水素を用い、流量は 0.8 mL/min とした。試験溶液は 1 µL をパルスドスプリットレスモード (50 psi, 0.7 min) で注入した。カラムオープンプログラムは 100°C (1 min) → 50°C/min → 210°C → 3°C/min → 270°C → 25°C/min → 340°C (10 分) に設定した。トランスファーライン温度は 340°C、注入口温度及びイオン源温度は 300°C に設定した。MS/MS トランジションは表 6 に示した。

C. 結果及び考察

C1 妥当性評価試験

C1.1 バリデーション試料の調製

分析対象物質を添加する前の試料を分析したところ、クレオソート油では BaA 及び CRY がそれぞれ 0.21 µg/g (Relative standard deviation :RSD, 2.9%) 及び 0.20 µg/g (RSD, 1.4%) 検出され、処理木材では BaA が 0.03 µg/g (RSD, 8.8%) 検出された。したがって、分析対象物質添加後の試料の設定濃度はこれらの値を加算した表 1 に示した濃度とした。

また、これらの試料を調製後、均一性を確認したところ、表 7 の結果が得られた。クレオソート油で回収率が 78.2~112.7%、RSD が 1.0~7.4% であった。クレオソート油処理された木材では回収率が 79.6~111.7%、RSD が 0.3~6.0% であった。RSD はいずれも 10% 未満であり、均一な試料が調製できたと考えられた。

C1.2. バリデーションにおける各機関の分析条件

各機関の GC-MS 条件については表 4, 5 にまとめた。装置のメーカーは 1 社に偏っておらず、Thermo fischer scientific、Agilent Technologies、島津製作所の 3 社に渡っていた。

GC-MS による PAHs の分析では、沸点が様々な化合物の混合試料において高沸点化合物がカラムに導入されにくくなるディスクリミネーションという現象が問題となる。この対策として、注入口温度は 300°C 以上とし高圧注入を行うことが推奨されている。⁶⁾すべての機関で注入口温度は 300°C に設定されており、高圧注入に関してもほとんどの機関が設定していた。また、イオン源温度を 300°C 以上に設定することで PAHs の

ピーク形状が良好になることが報告されている。⁷⁾イオン源温度に関してもほとんどの機関が 300°C 以上に設定していた。

検量線に関しては、良好に直線に近似できた機関と、二次曲線化した機関があった。二次曲線化した機関は機関 2,6,7 であったが、直線近似できた機関と分析条件の差は見いだせなかったことから、装置の違いや状態の影響だと考えられた。

PEG 共注入は DB-17MS での分析において機関 1 及び 3 で実施されていた。その内、機関 1 から PEG 共注入により検量線が直線化したとの報告を受けたことから、検量線の二次曲線化の解消を望む場合はこのような対策が有効と考えられた。なお、機関 3 はマトリックス効果の影響を避けるために、予防的に PEG 共注入を行ったと報告を受けた。

C1.3. バリデーションにおける各機関の報告値と結果の評価

各機関の報告値と真度を表 8~17 に示した。妥当性評価ガイドラインによる真度の目標値は 70~120%⁴⁾であるが、全機関の報告値の平均値では、いずれの結果もこれを満足する良好な結果が得られた。一方で、機関ごとに真度を算出したところ、機関 7 の試料 OC の BjF 及び BaP で 120%を超えていた (図 2)。しかし、添加濃度が基準値及び基準値の 1/2 である OA 及び OB ではすべての機関で目標値である 70~120%を満たしていた。また、処理木材の試料である WA~WC ではすべての機関で 70~120%を満たす、非常に良好な真度が得られた。

RSD_rを表 18 に示した。妥当性評価ガイドラインでは併行精度の目標値を 10%未満

⁴⁾としているが、今回の結果はそれをすべて満足した。

RSD_Rについては、妥当性評価ガイドラインに目標値が設定されていない。しかし、室内精度の目標値は 15%未満⁴⁾と設定されており、一般に室内精度<RSD_Rである⁷⁾ことから、本研究では RSD_Rの目標値を 15%未満として評価した。RSD_Rの一覧を表 19 に示したが、OC の BjF 及び BeP 以外は、すべてで目標値である 15%を下回る良好な結果であった。

本研究で実施した妥当性評価では、基準値 (OA, WA) 及び基準値の 1/2 (OB, WB) のレベルで良好な結果が得られることを確認できた。したがって、先行研究で開発した分析法が改正試験法として有効だと考えられた。

基準値の 1/10 のレベルでは、処理木材の試料 (WC) は良好な結果が得られたが、クレオソート油の試料 (OC) では BjF 及び BeP のみ室内精度目標値を満たせなかった。また、真度を機関ごとに見ると、1 機関でのみ BjF 及び BaP で 120%を超えていた。クレオソート油は数百から数千の化学物質が含まれる、非常に夾雑成分の多い鉱油である。⁹⁾今回、クレオソート油試料の低濃度域で良好な結果が得られなかった原因として、このような夾雑成分の影響が低濃度の分析では大きかったことが考えられた。

C4. ゴム製品中 PAHs の分析法構築

水素キャリアガス-GC/MS/MS の MS/MS 条件の最適化を行ったところ、良好なクロマトグラムが得られ、検量線も 20~1000 ng/mL の範囲で良好なものが得られた (図 3、4)。水素キャリアガスを用いると、イオ

ン源に汚れが蓄積されにくくなることが知られており、夾雑成分が多いと考えられるゴム製品抽出物の分析を安定して実施できると考えられた。また、検出器に MS/MS を用いることで、夾雑成分による妨害を抑えられ、より正確な定量値を得ることが出来ると考えられた。これらのことから、水素キャリアガス-GC/MS/MS はゴム製品の分析に適していると考えられた。

次に、前処理法の検討を行った。トルエン抽出後の溶液を、先行研究で開発したクレオソート油製品の分析法と同様にシリカゲルカートリッジ及び SAX カートリッジで精製する前処理法を構築し、添加回収試験 (n=5) を行った。その結果、回収率は 74.6~106.7%、相対標準偏差は 1.8~8.4% であり、良好な結果が得られた (表 20)。定量下限値は 0.03~0.15 µg/g であり、REACH 規則の PAHs 制限値の中で最も低い 0.5 µg/g¹⁾ を十分に下回った。したがって、本研究によりゴム製品の実態調査を行うための分析法が開発できたと考えられた。

D. まとめ

先行研究で開発したクレオソート製品中の 10 種の PAHs 分析法について、7 機関が参加するバリデーションを実施した。その結果、基準値及び基準値の 1/2 を添加した試料ではすべての分析対象物質で妥当性評価ガイドラインの目標を満足する良好な結果が得られた。このことから、開発した分析法はこれらの濃度レベルでの妥当性が確認され、改正試験法として有効だと考えられた。なお、基準値の 1/10 を添加した試料については、処理木材の試料では良好な結果が得られた一方、クレオソート油の試料で

は一部の項目で良好な結果が得られなかった。この原因として、クレオソート油は非常に多くの夾雑成分を有する試料であり、それらが分析結果に影響を及ぼした結果だと考えられた。

さらに、本年度の研究ではゴム製品中 PAHs 分析法の検討を行った。分析に当たっては、昨今のヘリウム不足を考慮し、水素キャリアガス-GC-MS/MS を用いた。構築した分析法を用いて添加回収試験を行ったところ、良好な回収率及び RSD が得られた。定量下限値については 0.03~0.15 µg/g であり、REACH 規則の制限値の中で最も低い 0.5 µg/g を十分に下回った。以上のことから、次年度以降の実態調査に利用可能な分析法が開発できたと考えられた。

E. 研究発表

E1. 論文発表

- 1) Nishi I, Yoshitomi T, Nakano F, Uemura H, Tahara M, Kawakami T: Development of a Safer and Improved Analytical Method for Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Creosote Products., J. Chromatogr. A, 1698, 464007, 2023.

E.2 学会発表

- 1) 西以和貴・吉富太一・田原麻衣子・河上強志 クレオソート油及びその処理木材中多環芳香族炭化水素類試験法の検討—精製法及び改正試験法の添加回収試験—, 第 59 回全国衛生化学技術協議会年会, (2022.10)

F. 知的所有権の取得状況

1. 特許取得

- なし
- 2. 実用新案登録
なし
- 3. その他
なし

https://www.baua.de/DE/Aufgaben/Geschaeftsfuehrung-von-Ausschuessen/AfPS/pdf/AfPS-GS-2019-01-PAK-EN.pdf?__blob=publicationFile&v=5/1000 (2024.3.14 閲覧)

G. 引用文献

- 1) ECHA, ANNEX XVII TO REACH – Conditions of restriction, Entry 50, <https://echa.europa.eu/documents/10162/4f099937-658f-8b86-2f62-5e767fab4d6e> (2024.3.7 閲覧)
- 2) European Food Safety Authority, Polycyclic aromatic hydrocarbons in food—scientific opinion of the panel on contaminants in the food chain, EFSA J. 6 (2008) 1–114. <https://doi.org/10.2903/j.efsa.2008.724>. (2024.3.14 閲覧)
- 3) Nishi I, Yoshitomi T, Nakano F, Uemura H, Tahara M, Kawakami T: Development of a Safer and Improved Analytical Method for Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Creosote Products., J. Chromatogr. A, 1698, 464007, 2023.
- 4) Ministry of Health, Labour and Welfare, “Syokuanhatsu 1224 Dai 1 Gou, 2010”: https://www.mhlw.go.jp/web/t_doc?dataId=00tb6662&dataType=1&pageNo=1 (2024.3.14 閲覧)
- 5) A.f.ü.r. Produktsicherheit (AfPS), Testing and assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in the course of awarding the GS mark—Specification pursuant to article 21(1), AfPS GS 2019:01 PAK, 2019.
- 6) Agilent Technologies, Polycyclic Aromatic Hydrocarbons Analysis in Environmental Samples https://www.agilent.com/cs/library/brochures/brochure_pah_enviro_gc-ms_5994-2060en_agilent.pdf. (2024.3.14 閲覧)
- 7) M. Szelewski, Synchronous SIM/Scan LowLevel PAH Analysis Using the Agilent Technologies 6890/5975 inert GC/MSD, Agilent Technologies, publication 5989-4184EN.
- 8) Ministry of Health, Labour and Welfare, “Syokuankihatsu 1208 Dai 1 Gou, 2011”: <https://www.mhlw.go.jp/topics/bukyoku/iyaku/syoku-anzen/zanryu3/dl/111208-1.pdf> (2024.3.14 閲覧)
- 9) World Health Organization (WHO), Coal tar creosote, Concise Int. Chem. Assess. Doc. 62. <https://apps.who.int/iris/bitstream/handle/10665/42943/9241530626.pdf> (2024.3.14 閲覧)

表 1 バリデーションにおける分析対象物質

No.	Compound	Abbreviation	CASRN ^a	Japanese law ^b	REACH ^c	EFSA ^d
1	Benz[a]anthracene	BaA	56-55-3	✓	✓	✓
2	Chrysene	CRY	218-01-9		✓	✓
3	Benzo[b]fluoranthene	BbF	205-99-2		✓	✓
4	Benzo[k]fluoranthene	BkF	207-08-9		✓	✓
5	Benzo[j]fluoranthene	BjF	205-82-3		✓	
6	Benzo[e]pyrene	BeP	192-97-2		✓	
7	Benzo[a]pyrene	BaP	50-32-8	✓	✓	✓
8	Indeno[1,2,3-cd]pyrene	IcdP	193-39-5			✓
9	Dibenz[a,h]anthracene	DahA	53-70-3	✓	✓	✓
10	Benzo[ghi]perylene	BghiP	191-24-2			✓

a Chemical abstract service registry number.

b Three PAHs restricted by Japanese law (Act on Control of Household Products Containing Harmful Substances).

c Eight PAHs restricted by REACH regulation Annex XVII entry ¹⁾

d Eight PAHs that EFSA has identified as suitable indicators for occurrence of PAHs in food.²⁾

表 2 調製したバリデーション試料とその設定値

	Sample name	Set value (µg/g)									
		BaA*	CRY*	BbF	BkF	BjF	BeP	BaP	IcdP	DahA	DghiP
Creosote	OA	10.21	10.20	10.00	10.00	10.00	10.00	10.00	10.00	10.00	10.00
	OB	5.21	5.20	5.00	5.00	5.00	5.00	5.00	5.00	5.00	5.00
	OC	1.21	1.20	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00
Creosote-treated wood	WA	3.03	3.00	3.00	3.00	3.00	3.00	3.00	3.00	3.00	3.00
	WB	1.53	1.50	1.50	1.50	1.50	1.50	1.50	1.50	1.50	1.50
	WC	0.33	0.30	0.30	0.30	0.30	0.30	0.30	0.30	0.30	0.30

* These values are the spiked concentration plus the concentration originally contained in the sample.

表 3 分析対象物質の定量イオン、定性イオン、及び対応する内部標準物質 (バリデーション時に各機関に 1 例として示したもの)

Compound	Quantifying ion (m/z)	Qualifying ion (m/z)		Internal standard
BaA	228	226	229	BaA- <i>d</i> ₁₂
CRY	228	226	229	BaA- <i>d</i> ₁₂
BbF	252	250	253	BbF- <i>d</i> ₁₂
BkF	252	250	253	BbF- <i>d</i> ₁₂
BjF	252	250	253	BbF- <i>d</i> ₁₂
BeP	252	250	253	BaP- <i>d</i> ₁₂
BaP	252	250	253	BaP- <i>d</i> ₁₂
IcdP	276	274	138	BaP- <i>d</i> ₁₂
DahA	278	279	139	BaP- <i>d</i> ₁₂
BghiP	276	274	277	BaP- <i>d</i> ₁₂
BaA- <i>d</i> ₁₂	240	120	241	
CRY- <i>d</i> ₁₂	240	120	241	
BbF- <i>d</i> ₁₂	264	265	132	
BaP- <i>d</i> ₁₂	264	265	132	

表 4 各機関の GC-MS 条件 (CRY 以外の PAHs9 種)

	Institute 1	Institute 2	Institute 3	Institute 4	Institute 5	Institute 6	Institute 7
Gas chromatograph							
Injector temperature (°C)	Trace 1310 (ThermoFisher Scientific) 300	7890B (Agilent technologies) 300	GCMS-QP2010 (Shimadzu) 300	8890 (Agilent technologies) 300	GCMS-QP2010 Ultra (Shimadzu) 300	8890 (Agilent technologies) 300	8890 (Agilent technologies) 300
Injection mode	Splitless w/Surge (100 kPa, 1 min) PEG co-injection	Pulsed splitless (25 psi, 1 min)	Splitless (High- pressure Injection, 180 kPa, 1 min) PEG co-injection	Pulsed splitless (25 psi, 1 min)	Splitless	Pulsed splitless (172 kPa, 1 min)	Pulsed splitless (25 psi, 1 min)
Injection volume (μL)	1	1	1	1	1	1	1
Column	DB-17MS 30 m×0.25 mm, 0.15 μm (Agilent technologies)	DB-17MS 30 m×0.25 mm, 0.15 μm (Agilent technologies)	DB-17MS 30 m×0.25 mm, 0.15 μm (Agilent technologies)	DB-17MS 30 m×0.25 mm, 0.15 μm (Agilent technologies)	DB-17MS 30 m×0.25 mm, 0.15 μm (Agilent technologies)	DB-17MS 30 m×0.25 mm, 0.15 μm (Agilent technologies)	DB-17MS 30 m×0.25 mm, 0.15 μm (Agilent technologies)
Oven program	100°C(0.5min)- 30°C/min-230°C- 2°C/min- 310°C(5min)	100°C(0.5min)- 30°C/min-230°C- 2°C/min- 310°C(5min)	100°C(0.5min)- 30°C/min-230°C- 2°C/min- 310°C(5min)	100°C(0.5min)- 30°C/min-230°C- 2°C/min- 310°C(5min)	100°C(0.5min)- 30°C/min-230°C- 2°C/min- 310°C(7.17min)	100°C(0.5 min)- 30°C/min-230°C- 2°C/min-310°C(5 min)	100°C(0.5min)- 30°C/min-230°C- 2°C/min- 310°C(5min)
Carrier gas	He (1 mL/min)	He (0.8 mL/min)	He (0.8 mL/min)	He (0.8 mL/min)	He (0.8 mL/min)	He (0.8 mL/min)	He (1 mL/min)
Mass spectrometer							
Transfer line temperature (°C)	ISQ 7000 (ThermoFisher Scientific) 300	5977B (Agilent technologies) 310	GCMS-QP2010 (Shimadzu) 300	5977B (Agilent technologies) 300	GCMS-QP2010 Ultra (Shimadzu) 300	5977B (Agilent technologies) 300	7010B (Agilent technologies) 300
Ion source temperature (°C)	300	300	260	300	300	300	300
Ionization	EI (70 eV)	EI (70 eV)	EI (70 eV)	EI (70 eV)	EI (70 eV)	EI (70 eV)	EI (70 eV)

表 5 各機関の GC-MS 条件 (CRY)

	Institute 1	Institute 2	Institute 3	Institute 4	Institute 5	Institute 6	Institute 7
Gas chromatograph							
Trace 1310	7890B	GCMS-QP2010	8890	GCMS-QP2010 Ultra	8890	8890	8890
(ThermoFisher Scientific)	(Agilent technologies)	(Shimadzu)	(Agilent technologies)	(Shimadzu)	(Agilent technologies)	(Agilent technologies)	(Agilent technologies)
Injector temperature (°C)	300	300	300	300	300	300	300
Injection mode	Splitless w/Surge (100 kPa, 1 min)	Splitless	Splitless	Pulsed splitless (25 psi, 1 min)	Splitless	Splitless	Splitless
Injection volume (µL)	1	1	1	1	1	1	1
Column	SLB-ILPAH 20 m×0.18 mm, 0.07 µm (Restek)	SLB-ILPAH 20 m×0.18 mm, 0.07 µm (Restek)	SLB-ILPAH 20 m×0.18 mm, 0.07 µm (Restek)	SLB-ILPAH 20 m×0.18 mm, 0.07 µm (Restek)			
Oven program	100°C(0.5min)- 30°C/min-230°C- 2°C/min- 310°C(5min)	100°C(0.5min)- 20°C/min-200°C- 4°C/min- 300°C(5min)	100°C(0.5min)- 20°C/min-200°C- 4°C/min- 300°C(5min)	100°C(0.5min)- 20°C/min- 200°C- 4°C/min- 300°C(5min)	100°C(5min)- 20°C/min- 200°C- 4°C/min- 300°C(5min)	100°C(5min)- 20°C/min- 200°C- 4°C/min- 300°C(10min)	100°C(5min)- 20°C/min-200°C- 4°C/min- 300°C(10min)
Carrier gas	He (1 mL/min)	He (1 mL/min)	He (1 mL/min)	He (0.8 mL/min)	He (1 mL/min)	He (1 mL/min)	He (0.8 mL/min)
Mass spectrometer							
ISQ 7000	5977B	GCMS-QP2010	5977B	GCMS-QP2010 Ultra	5977B	7010B	7010B
(ThermoFisher Scientific)	(Agilent technologies)	(Shimadzu)	(Agilent technologies)	(Shimadzu)	(Agilent technologies)	(Agilent technologies)	(Agilent technologies)
Transfer line temperature (°C)	300	300	300	300	300	300	300
Ion source temperature (°C)	300	300	260	300	300	300	300
Ionization	EI (70 eV)	EI (70 eV)	EI (70 eV)	EI (70 eV)	EI (70 eV)	EI (70 eV)	EI (70 eV)

表 6 MSMS トランジション一覧

Compound	Quantifying transition		Qualifying transition			
	Monitoring ion (m/z)	Collision Energy (V)	Monitoring ion (m/z)	Collision Energy (V)	Monitoring ion (m/z)	Collision Energy (V)
BaA	228>226	35	228>202	30	226>224	40
CRY	228>226	35	228>202	30	226>224	40
BbF	252>250	40	252>226	30	250>248	40
BkF	252>250	40	252>226	30	250>248	40
BjF	252>250	35	252>226	30	250>248	40
BeP	252>250	40	252>226	35	250>248	40
BaP	252>250	40	252>226	30	250>248	40
IcdP	276>274	40	274>272	40	274>248	30
DahA	279>277	35	278>276	40	278>252	35
BghiP	276>274	40	274>272	40	274>248	35
BaA- <i>d</i> ₁₂	240>236	35	240>212	30	236>232	40
BbF- <i>d</i> ₁₂	264>260	40	264>236	35	260>256	40
BaA- <i>d</i> ₁₂	264>260	40	264>236	35	260>256	40

表7 バリデーション試料調製後の均一性の確認

	BaA		CRY		BbF		BkF		BjF		BeP		BaP		IcdP		DahA		BghiP	
	Rec. ^a	RSD (%)																		
OA	97.7	5.1	93.1	2.1	93.6	2.1	89.1	2.9	85.7	1.9	90.5	4.0	87.4	2.1	78.2	3.1	86.6	4.1	79.1	3.1
OB	101.8	2.3	97.7	2.4	103.9	2.5	96.3	1.7	90.5	1.8	101.3	5.9	97.4	2.6	82.9	2.4	90.2	4.5	85.5	5.3
OC	102.5	7.3	99.1	3.2	108.6	2.9	102.5	5.7	100.5	3.4	112.7	6.2	105.1	2.4	82.6	6.0	85.3	7.4	81.6	5.5
WA	89.6	1.0	91.7	0.4	87.4	2.0	90.5	0.5	79.6	0.9	99.9	0.8	84.4	2.5	84.5	0.8	88.9	0.3	92.7	0.6
WB	89.9	1.4	91.6	0.6	89.9	3.6	93.2	1.4	81.9	1.7	104.3	0.4	85.6	1.0	86.3	3.1	90.7	0.9	94.4	0.9
WC	105.6	4.3	106.1	4.5	101.5	4.5	105.9	4.5	99.0	3.8	111.7	4.6	86.0	5.0	80.9	6.0	101.8	5.8	97.1	3.0

^a Recovery

表 8 BaA の報告値と真度

	Reported concentration ($\mu\text{g/g}$)					
	OA	OB	OC	WA	WB	WC
Institute 1	8.41	4.37	1.07	2.56	1.34	0.32
	8.40	4.39	1.06	2.56	1.32	0.32
	8.31	4.36	1.08	2.62	1.30	0.33
Institute 2	9.57	5.16	1.08	2.79	1.45	0.29
	9.97	5.08	1.17	2.72	1.43	0.30
	9.68	5.18	1.09	2.80	1.37	0.30
Institute 3	8.86	4.96	1.05	2.61	1.19	0.28
	8.64	4.84	1.09	2.63	1.30	0.28
	9.22	4.94	1.06	2.55	1.25	0.29
Institute 4	8.56	4.64	1.07	2.68	1.34	0.30
	8.33	4.49	1.12	2.64	1.36	0.31
	8.31	4.47	1.11	2.64	1.33	0.31
Institute 5	8.97	4.45	0.95	2.57	1.21	0.24
	8.64	4.39	0.91	2.56	1.13	0.28
	7.37	4.51	0.90	2.55	1.20	0.27
Institute 6	7.92	4.02	0.92	2.45	1.22	0.28
	8.05	3.96	0.88	2.46	1.23	0.29
	7.62	4.04	0.90	2.42	1.22	0.29
Institute 7	7.21	4.05	0.91	2.46	1.14	0.27
	7.47	4.05	0.98	2.46	1.18	0.26
	7.18	4.05	0.95	2.31	1.17	0.27
Average ($\mu\text{g/g}$)	8.41	4.50	1.02	2.57	1.27	0.29
Trueness (%)	82.4	86.3	84.1	84.9	83.0	87.9

表9 CRY の報告値と真度

	Reported concentration ($\mu\text{g/g}$)					
	OA	OB	OC	WA	WB	WC
Institute 1	9.02	4.61	1.05	2.67	1.38	0.30
	9.15	4.69	1.07	2.64	1.36	0.30
	9.01	4.65	1.05	2.70	1.34	0.31
Institute 2	9.78	5.28	1.25	2.95	1.56	0.29
	10.06	5.16	1.27	2.88	1.52	0.31
	9.86	5.34	1.28	2.96	1.44	0.31
Institute 3	9.24	4.98	1.04	2.81	1.27	0.29
	9.02	4.94	1.06	2.80	1.38	0.29
	9.74	5.06	1.02	2.72	1.35	0.30
Institute 4	10.15	5.46	1.11	3.10	1.58	0.34
	10.21	5.20	1.16	3.03	1.58	0.36
	10.09	5.27	1.20	3.14	1.58	0.31
Institute 5	9.52	4.83	1.05	3.06	1.50	0.32
	9.46	4.72	1.08	2.99	1.40	0.32
	9.34	4.90	0.86	3.01	1.47	0.33
Institute 6	8.32	4.34	0.94	2.51	1.26	0.25
	8.51	4.21	0.88	2.51	1.26	0.26
	8.05	4.28	0.88	2.48	1.25	0.26
Institute 7	8.73	4.61	1.09	2.71	1.34	0.31
	8.71	4.48	1.10	2.71	1.36	0.29
	8.72	4.55	1.08	2.60	1.40	0.30
Average ($\mu\text{g/g}$)	9.27	4.84	1.07	2.81	1.41	0.30
Trueness (%)	90.9	93.0	89.3	93.6	93.8	101.0

表 10 BbF の報告値と真度

	Reported concentration ($\mu\text{g/g}$)					
	OA	OB	OC	WA	WB	WC
Institute 1	8.39	4.36	1.10	2.49	1.29	0.30
	8.48	4.39	1.12	2.50	1.30	0.30
	8.31	4.38	1.09	2.57	1.26	0.30
Institute 2	9.80	5.31	1.05	2.75	1.43	0.25
	10.10	5.21	1.11	2.72	1.30	0.27
	9.93	5.33	1.10	2.63	1.36	0.28
Institute 3	8.32	4.52	0.80	2.47	1.12	0.24
	7.96	4.50	0.85	2.50	1.21	0.23
	8.46	4.54	0.83	2.45	1.18	0.24
Institute 4	7.94	4.23	0.91	2.52	1.25	0.27
	7.62	4.09	0.90	2.51	1.29	0.27
	7.66	4.12	0.89	2.53	1.25	0.26
Institute 5	8.32	4.24	0.91	2.59	1.22	0.26
	8.18	4.08	0.86	2.55	1.14	0.29
	8.33	4.26	0.90	2.58	1.20	0.29
Institute 6	7.90	4.13	0.79	2.52	1.24	0.27
	8.14	4.10	0.75	2.51	1.25	0.30
	8.09	4.11	0.76	2.50	1.24	0.29
Institute 7	7.66	4.28	1.00	2.29	1.06	0.25
	7.79	4.15	1.11	2.29	1.10	0.24
	7.60	4.23	1.11	2.05	1.13	0.24
Average ($\mu\text{g/g}$)	8.33	4.41	0.95	2.50	1.23	0.27
Trueness (%)	83.3	88.1	94.8	83.4	82.0	89.5

表 11 BkF の報告値と真度

	Reported concentration ($\mu\text{g/g}$)					
	OA	OB	OC	WA	WB	WC
Institute 1	7.89	4.00	0.93	2.40	1.25	0.30
	7.97	4.01	0.95	2.38	1.22	0.31
	7.76	4.05	0.94	2.48	1.23	0.31
Institute 2	9.00	4.83	0.95	2.61	1.35	0.24
	9.33	4.81	0.99	2.58	1.30	0.25
	9.16	4.89	0.95	2.68	1.28	0.25
Institute 3	8.54	4.64	0.87	2.52	1.13	0.25
	8.16	4.64	0.95	2.53	1.22	0.24
	8.72	4.70	0.91	2.47	1.19	0.25
Institute 4	8.27	4.46	1.07	2.54	1.33	0.29
	7.66	4.34	1.08	2.64	1.36	0.28
	8.06	4.37	1.05	2.59	1.32	0.27
Institute 5	8.04	4.15	0.93	2.57	1.19	0.29
	7.99	3.98	0.86	2.53	1.12	0.32
	7.97	4.15	0.90	2.52	1.17	0.31
Institute 6	8.21	4.29	0.95	2.51	1.18	0.26
	8.45	4.28	0.86	2.58	1.24	0.27
	8.37	4.30	0.88	2.42	1.20	0.27
Institute 7	7.93	4.74	1.04	2.39	1.09	0.28
	8.34	4.63	1.15	2.39	1.15	0.26
	8.22	4.69	1.16	2.12	1.23	0.27
Average ($\mu\text{g/g}$)	8.29	4.43	0.97	2.50	1.23	0.27
Trueness (%)	82.9	88.5	97.1	83.2	81.8	91.6

表 12 BjF の報告値と真度

	Reported concentration ($\mu\text{g/g}$)					
	OA	OB	OC	WA	WB	WC
Institute 1	8.24	4.20	1.00	2.47	1.28	0.31
	8.35	4.18	1.01	2.46	1.25	0.31
	8.20	4.20	1.00	2.56	1.27	0.31
Institute 2	9.25	4.91	0.96	2.66	1.37	0.25
	9.53	4.84	1.00	2.63	1.33	0.26
	9.37	4.97	0.96	2.53	1.31	0.26
Institute 3	8.32	4.50	0.85	2.48	1.12	0.25
	8.02	4.50	0.86	2.51	1.20	0.26
	8.58	4.56	0.83	2.46	1.18	0.25
Institute 4	7.72	4.08	0.85	2.43	1.24	0.28
	7.15	3.96	0.85	2.52	1.29	0.26
	7.48	3.99	0.84	2.47	1.24	0.25
Institute 5	8.66	4.56	1.19	2.69	1.28	0.33
	8.68	4.44	1.16	2.64	1.20	0.36
	8.66	4.64	1.18	2.64	1.26	0.35
Institute 6	7.34	3.77	0.80	2.31	1.11	0.25
	7.49	3.79	0.73	2.36	1.14	0.26
	7.37	3.79	0.75	2.25	1.12	0.26
Institute 7	7.88	4.63	1.19	2.42	1.15	0.31
	7.71	4.47	1.30	2.41	1.23	0.30
	7.48	4.49	1.32	2.08	1.30	0.30
Average ($\mu\text{g/g}$)	8.17	4.36	0.98	2.47	1.23	0.28
Trueness (%)	81.7	87.1	98.3	82.5	82.2	94.7

表 13 BeP の報告値と真度

	Reported concentration ($\mu\text{g/g}$)					
	OA	OB	OC	WA	WB	WC
Institute 1	8.63	4.52	1.14	2.55	1.34	0.31
	8.69	4.58	1.17	2.56	1.34	0.32
	8.57	4.63	1.16	2.66	1.29	0.32
Institute 2	9.96	5.35	1.04	3.16	1.55	0.31
	10.32	5.09	1.14	3.13	1.49	0.31
	10.19	5.28	1.12	3.22	1.55	0.32
Institute 3	8.94	4.80	1.06	2.53	1.16	0.24
	9.04	4.84	1.06	2.61	1.27	0.25
	9.54	4.92	1.05	2.52	1.20	0.26
Institute 4	8.42	4.77	1.19	2.52	1.21	0.27
	8.25	4.44	1.15	2.59	1.26	0.27
	8.02	4.52	1.17	2.55	1.22	0.26
Institute 5	8.50	4.41	1.02	2.55	1.19	0.24
	8.55	4.20	1.04	2.57	1.12	0.26
	8.20	4.40	1.01	2.58	1.18	0.26
Institute 6	9.20	4.87	0.82	2.63	1.32	0.31
	9.39	4.86	0.80	2.65	1.35	0.34
	9.15	5.02	0.81	2.63	1.35	0.33
Institute 7	7.97	3.66	0.74	2.52	1.21	0.28
	7.23	3.54	0.77	2.66	1.22	0.26
	7.00	3.51	0.79	2.36	1.18	0.27
Average ($\mu\text{g/g}$)	8.75	4.58	1.01	2.65	1.29	0.28
Trueness (%)	87.5	91.6	101.2	88.5	85.7	94.9

表 14 BaP の報告値と真度

	Reported concentration ($\mu\text{g/g}$)					
	OA	OB	OC	WA	WB	WC
Institute 1	7.77	4.03	0.95	2.37	1.23	0.31
	7.92	4.02	0.97	2.35	1.20	0.32
	7.78	4.08	0.96	2.45	1.21	0.32
Institute 2	9.62	5.07	0.87	2.65	1.35	0.24
	9.99	4.98	0.94	2.62	1.26	0.25
	9.77	5.04	0.91	2.72	1.29	0.26
Institute 3	8.42	4.76	1.02	2.46	1.14	0.22
	8.38	4.72	1.07	2.53	1.22	0.21
	8.80	4.90	1.02	2.43	1.16	0.21
Institute 4	7.98	4.32	1.11	2.66	1.34	0.29
	7.73	4.14	1.03	2.71	1.37	0.30
	7.72	4.21	1.02	2.69	1.33	0.28
Institute 5	8.18	4.40	1.00	2.52	1.19	0.28
	8.39	4.13	1.02	2.51	1.13	0.30
	8.24	4.31	0.96	2.53	1.19	0.30
Institute 6	8.10	3.92	0.73	2.50	1.20	0.30
	8.26	3.92	0.76	2.52	1.27	0.33
	8.07	4.09	0.79	2.49	1.27	0.33
Institute 7	8.53	4.75	1.16	2.48	1.21	0.29
	8.32	4.56	1.23	2.53	1.23	0.27
	8.20	4.32	1.25	2.27	1.27	0.30
Average ($\mu\text{g/g}$)	8.39	4.41	0.99	2.52	1.24	0.28
Trueness (%)	83.9	88.3	98.9	84.1	82.7	93.8

表 15 IcdP の報告値と真度

	Reported concentration ($\mu\text{g/g}$)					
	OA	OB	OC	WA	WB	WC
Institute 1	7.86	3.93	0.80	2.36	1.21	0.31
	7.76	3.94	0.80	2.32	1.20	0.30
	7.80	3.92	0.78	2.46	1.19	0.30
Institute 2	8.72	4.65	0.78	2.79	1.43	0.25
	9.08	4.55	0.88	2.78	1.33	0.26
	9.04	4.63	0.86	2.89	1.36	0.27
Institute 3	7.90	4.44	0.82	2.42	1.12	0.23
	7.96	4.42	0.83	2.47	1.22	0.24
	8.54	4.56	0.84	2.37	1.17	0.24
Institute 4	7.63	4.01	0.91	2.45	1.26	0.26
	7.38	3.86	0.89	2.42	1.30	0.28
	7.44	3.98	0.79	2.43	1.25	0.27
Institute 5	9.00	4.77	1.08	2.74	1.28	0.33
	9.16	4.61	1.07	2.67	1.20	0.36
	8.99	4.71	1.05	2.67	1.23	0.35
Institute 6	8.58	4.39	0.86	2.47	1.20	0.25
	8.88	4.40	0.83	2.47	1.18	0.29
	8.59	4.43	0.84	2.50	1.21	0.27
Institute 7	7.41	3.80	0.73	2.33	1.21	0.28
	7.53	3.85	0.80	2.53	1.21	0.27
	7.50	3.87	0.81	2.13	1.17	0.27
Average ($\mu\text{g/g}$)	8.23	4.27	0.86	2.51	1.24	0.28
Trueness (%)	82.3	85.4	86.0	83.6	82.4	93.3

表 16 DahA の報告値と真度

	Reported concentration ($\mu\text{g/g}$)					
	OA	OB	OC	WA	WB	WC
Institute 1	8.28	4.20	0.98	2.36	1.22	0.32
	8.09	4.27	0.99	2.36	1.21	0.32
	7.81	4.20	0.96	2.45	1.20	0.32
Institute 2	9.76	5.21	0.96	2.73	1.55	0.28
	10.13	5.05	1.06	2.73	1.33	0.24
	10.14	5.29	1.04	3.17	1.35	0.24
Institute 3	7.92	4.34	0.74	2.39	1.12	0.23
	7.98	4.28	0.74	2.45	1.20	0.23
	8.40	4.42	0.77	2.34	1.14	0.23
Institute 4	8.05	4.17	0.97	2.54	1.32	0.26
	7.74	4.09	0.99	2.55	1.40	0.29
	7.92	4.15	0.98	2.51	1.35	0.27
Institute 5	8.79	4.74	1.07	2.68	1.27	0.32
	9.16	4.54	1.04	2.68	1.20	0.34
	8.87	4.63	1.02	2.67	1.24	0.35
Institute 6	8.93	4.61	0.94	2.50	1.24	0.28
	9.26	4.60	0.91	2.42	1.22	0.28
	8.87	4.73	0.95	2.52	1.21	0.27
Institute 7	9.44	4.66	1.15	2.62	1.27	0.29
	8.85	4.73	1.20	2.70	1.27	0.28
	8.80	4.80	1.21	2.31	1.24	0.29
Average ($\mu\text{g/g}$)	8.72	4.56	0.98	2.56	1.26	0.28
Trueness (%)	87.2	91.2	98.3	85.2	84.3	94.3

表 17 BghiP の報告値と真度

	Reported concentration ($\mu\text{g/g}$)					
	OA	OB	OC	WA	WB	WC
Institute 1	8.01	4.05	0.81	2.42	1.24	0.31
	7.87	3.94	0.81	2.40	1.24	0.31
	7.81	4.04	0.78	2.53	1.26	0.31
Institute 2	9.10	4.89	0.83	2.91	1.50	0.27
	9.52	4.68	0.95	2.91	1.50	0.28
	9.46	4.87	0.94	3.01	1.42	0.28
Institute 3	8.18	4.64	0.90	2.51	1.18	0.24
	8.26	4.40	0.90	2.55	1.25	0.25
	8.66	4.58	0.81	2.48	1.21	0.26
Institute 4	7.51	4.01	0.75	2.45	1.25	0.24
	7.29	3.79	0.73	2.50	1.29	0.25
	7.18	3.92	0.70	2.46	1.23	0.25
Institute 5	8.66	4.36	0.97	2.56	1.21	0.29
	8.48	4.18	0.94	2.58	1.14	0.32
	8.23	4.32	0.91	2.57	1.17	0.31
Institute 6	8.39	4.25	0.83	2.39	1.17	0.24
	8.61	4.17	0.83	2.38	1.16	0.27
	8.17	4.34	0.83	2.39	1.18	0.26
Institute 7	7.74	3.78	0.78	2.13	1.07	0.23
	7.38	3.75	0.83	2.30	1.07	0.22
	7.31	3.83	0.85	1.88	1.02	0.22
Average ($\mu\text{g/g}$)	8.18	4.23	0.84	2.49	1.23	0.27
Trueness (%)	81.8	84.6	84.1	83.0	81.8	88.9

表 18 各機関の報告値から算出した RSD_r

Compound	RSD _r (%)					
	OA	OB	OC	WA	WB	WC
BaA	4.36	1.25	2.74	1.72	2.59	2.96
CRY	1.95	1.74	4.69	1.60	2.85	3.83
BbF	1.82	1.33	3.39	2.44	3.15	3.87
BkF	2.39	1.22	3.81	3.04	3.27	3.39
BjF	2.24	1.43	3.22	3.46	3.20	2.94
BeP	3.02	2.38	2.55	2.56	2.60	3.54
BaP	1.85	2.64	3.42	2.48	2.75	3.75
IcdP	2.19	1.34	4.37	3.46	2.80	4.05
DahA	2.75	1.73	3.04	5.02	4.21	4.20
BghiP	2.55	2.24	4.59	3.53	2.45	3.63

表 19 各機関の報告値から算出した RSD_R

Compound	RSD _R (%)					
	OA	OB	OC	WA	WB	WC
BaA	9.85	9.35	9.12	4.96	7.69	7.91
CRY	7.15	7.95	11.57	7.66	8.27	8.61
BbF	9.25	9.44	14.74	6.22	7.47	9.13
BkF	5.65	7.17	9.46	5.04	6.40	9.21
BjF	8.97	8.82	19.07	6.15	6.29	12.86
BeP	10.32	11.80	16.15	8.93	10.03	11.32
BaP	8.17	9.15	14.39	4.91	5.68	13.52
IcdP	8.36	8.38	11.67	7.72	6.03	13.11
DahA	8.90	7.95	13.64	7.87	7.80	13.74
BghiP	8.68	8.80	9.19	10.44	10.64	12.56

表 20 ゴム製品中 PAHs の分析法の添加回収試験の結果

	BaA	CRY	BbF	BkF	BjF	BeP	BaP	IcdP	DahA	BghiP
Recovery (%)	86.9	94.0	86.4	83.0	74.6	106.7	82.2	84.1	80.0	91.4
RSD(%)	7.1	7.4	5.3	1.8	5.0	6.9	7.7	6.8	4.5	8.4
LOQ(μg/g)	0.12	0.14	0.09	0.03	0.08	0.15	0.13	0.11	0.07	0.15

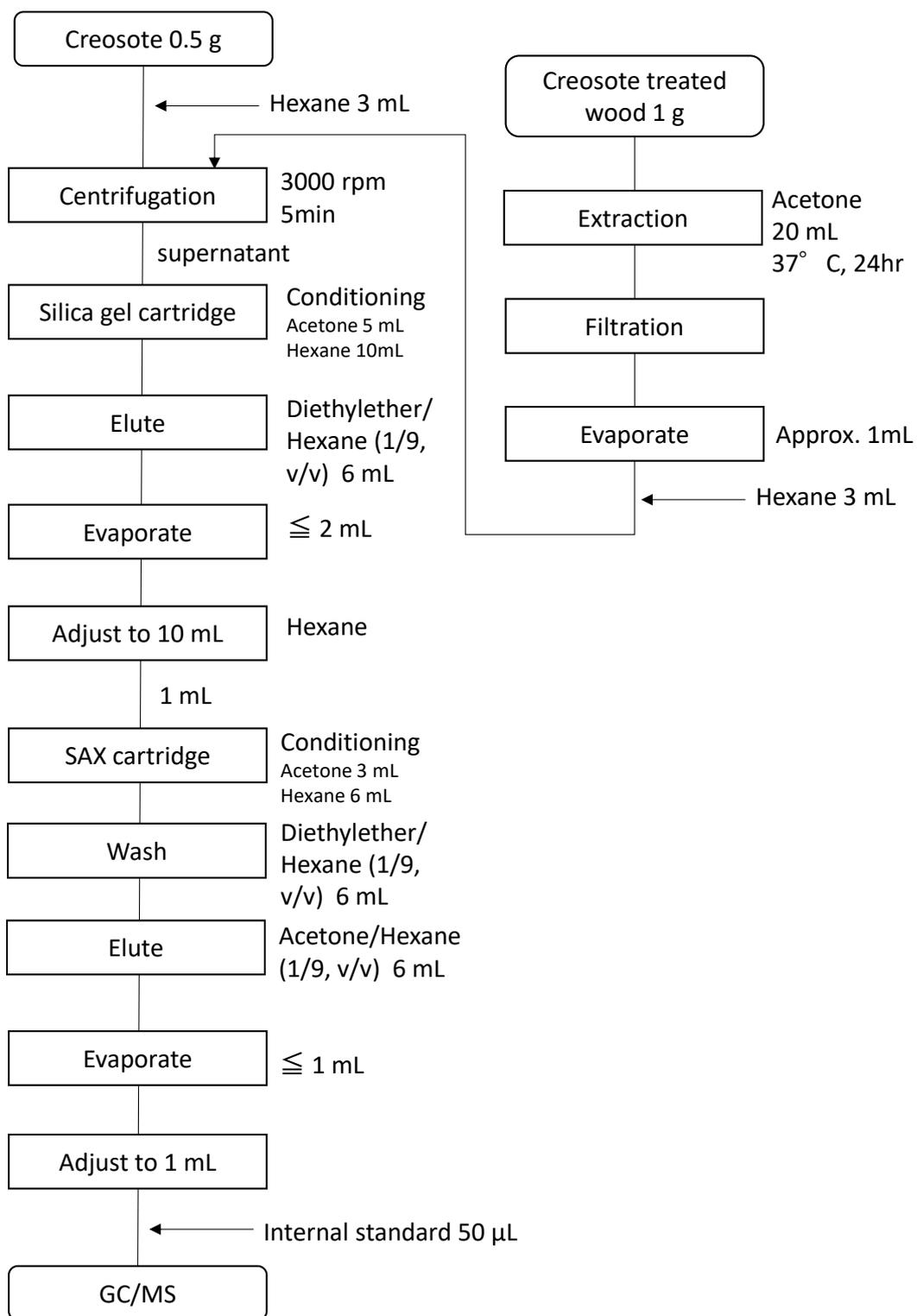


図1 バリデーションにおける分析操作のフローチャート

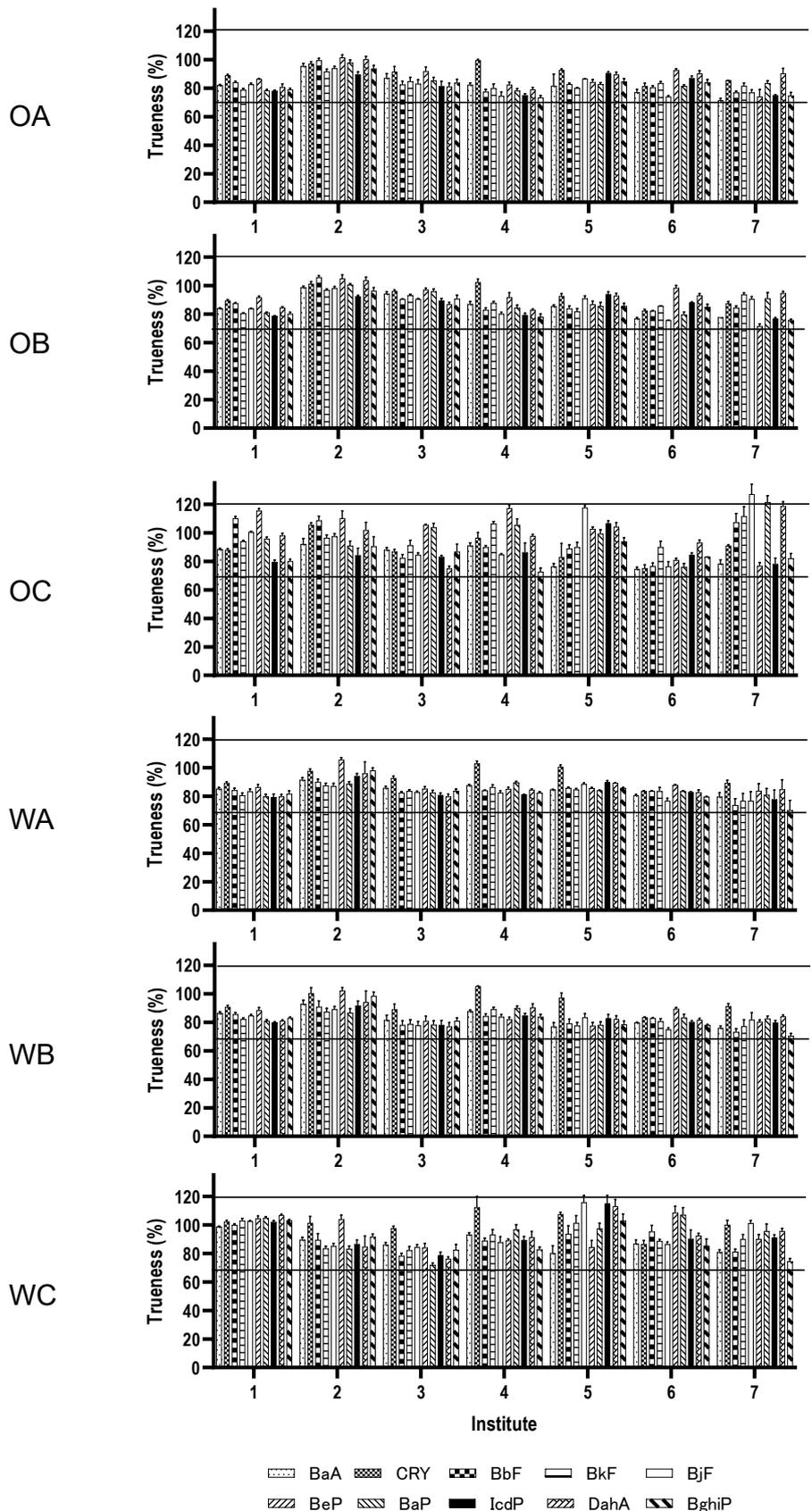


図2 バリデーションにおける各機関の真度（図中の横線は妥当性評価ガイドラインの目標値である 70%及び 120%）

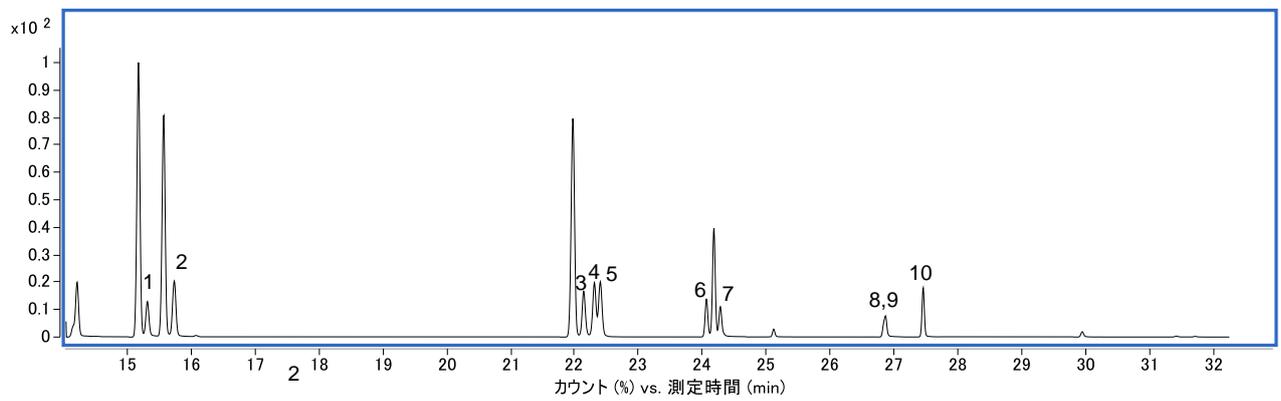


図 3 水素キャリアガス-GC-MS/MS の TIC クロマトグラム
 (図中の番号は表 1 に対応、8,9 はモニターするトランジションが異なるため分離可能)

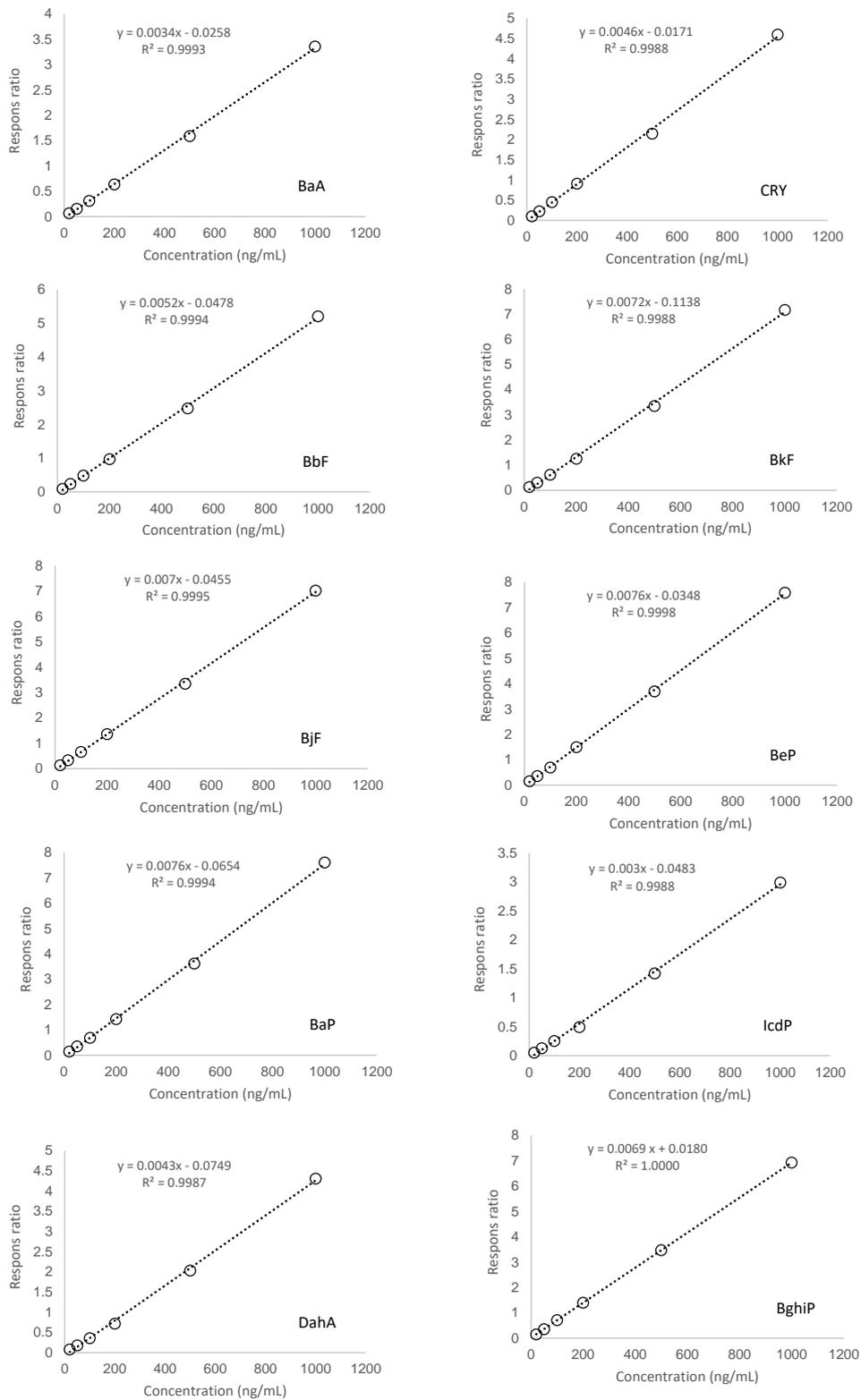


図4 水素キャリアガス-GC-MS/MSにおける検量線