

加工食品中のアクリルアミド分析法の確立と含有実態調査

鍋師裕美[#], 高附巧, 堤智昭, 手島玲子, 穂山浩

Development of an analysis method for acrylamide in processed foods and a survey on the level of acrylamide in processed foods

Hiromi Nabeshi[#], Satoshi Takatsuki, Tomoaki Tsutsumi,
Reiko Teshima, Hiroshi Akiyama

To survey acrylamide (AA) levels in processed foods, we developed a liquid chromatography-tandem mass spectrometry (LC-MS/MS) method to directly determine AA levels in various foods without derivatization, and surveyed AA levels in 5 kinds of processed foods (potato chip, french fry, biscuit, roasted green tea, and coffee bean; total 100 samples). The processed foods were spiked with $^{13}\text{C}_3$ -AA as an internal standard prior to water extraction. The extract was purified with a solid phase extraction cartridge comprised of hydrophilic/lipophilic copolymer sorbent and cation/anion exchange sorbent prior to LC-MS/MS determination. Accuracy (recovery) of AA in processed food fortified at 100ng/g (potato chip, french fry, and biscuit) or 300ng/g (roasted green tea and coffee bean) ranged from 96 to 102%, and the relative standard deviations ranged from 1.2 to 3.2%. The limit of quantitation of the developed method was 10ng/g for all the tested processed foods. In the survey of AA levels in the processed foods, the level of AA ranged from 52 to 3,100ng/g for potato chip, 50 to 1,000ng/g for french fry, 16 to 570ng/g for biscuit, 120 to 1,600ng/g for roasted green tea, and 110 to 300ng/g for coffee bean. These results indicated that the AA levels varied extensively among identical kinds of the processed foods. Among the AA levels detected in the 100 samples of analyzed in this study, the AA levels in 7 samples of the potato chips, 5 samples of the french fries, and 3 samples of the biscuits for infant were larger than indicative acrylamide values (1,000ng/g for potato chip, 600ng/g for french fry and 200ng/g for biscuit for infant) set by the EU.

Keywords: acrylamide, LC-MS/MS, survey, processed foods

1. 緒言

近年、食品の製造、加工及び調理の過程で副生成物として生じるアクリルアミド (AA) の健康影響が懸念されている。AAは発がん性、遺伝毒性、神経毒性などを有する化合物であり、発がん性のIARCリスク評価でGroup2A (ヒトに対して恐らく発がん性を示す) に分類されている。2002年にスウェーデン政府とストックホルム大学により、AAがポテトチップス、フライドポテト、

ビスケットやシリアルのような高温で調理する加工食品中に高濃度で含まれていることが発表され^{1,2)}、その後、日本を含め様々な国で加工食品中にAAが含まれていることが報告された^{3,4)}。2016年4月には、食品安全委員会から「発がん影響のリスクについては、疫学研究において、職業性ばく露等の高ばく露集団も含め、アクリルアミドばく露量とがんの発生率との関連に一貫した傾向はみられていないことから、ヒトにおける健康影響は明確ではないが、動物実験から求めたBMDL₁₀と日本人の食品からのアクリルアミドの推定摂取量から算出したばく露マージンが十分ではないことから、公衆衛生上の観点から懸念がないとは言えないと判断した」との評価がなされている⁵⁾。

AAは120℃以上の高温調理中に食品中のアスパラギンと還元糖 (グルコースやフルクトース等) がメイラー

[#] To whom correspondence should be addressed:
Hiromi Nabeshi; Division of Foods, National Institute of Health Sciences, 1-18-1 Kamiyoga, Setagaya-ku, Tokyo 158-8501, Japan; Tel: +81-3-3700-1141 ext.260; Fax: +81-3-3700-9348; E-mail: nabeshi@nihs.go.jp

ド反応を起こす過程で副生成物として生成されることが知られている⁶⁻⁹⁾。AAは揚げる、焼くなどの食品の製造・加工工程で非意図的に生成することから、実態調査の結果を踏まえた上でALARA (As Low As Reasonably Achievable) の原則に基づいたリスク管理の在り方を検討していくことが望ましいと考えられる。そのためにはAAの検出頻度が高い加工食品等を対象に実態調査を実施し、AA含有濃度や摂取量を把握する必要があると考えられる。

そこで本研究では、加工食品中のAA含有実態調査を行うために、多種多検体の加工食品の微量分析が適用可能となる簡便な前処理及び夾雑物の影響を抑制したAA分析法の確立を目的に、AAを誘導体化せずに迅速な測定が可能なLC-MS/MS法の確立を行った。本法のAA検出頻度が高い加工食品5種（ポテトチップス、フライドポテト、ビスケット類、ほうじ茶葉、コーヒー）への適用性を明らかにするとともに、確立した方法を用いて加工食品5種類100試料を対象にAA含有濃度実態を調査した。

2. 実験方法

2. 1 試料及び試薬等

2. 1. 1 試料

ポテトチップス、フライドポテト、ビスケット類、ほうじ茶葉、コーヒー豆は東京都内の小売店で購入した。各試料は、分析法の実試料への適用検討用として各4～5試料、AA含有実態調査用として各20試料を購入した。

2. 1. 2 試薬等

AA標準品：関東化学（株）社製、食品分析用、純度99.0%

$1,2,3\text{-}^{13}\text{C}_3$ 標識 AA：Cambridge Isotope Laboratories, Inc. 製、純度 $\geq 98.0\%$, $1,2,3\text{-}^{13}\text{C}_3$ 置換率 99%

水、メタノール：関東化学（株）社製、LC/MS用

ギ酸：関東化学（株）社製、高速液体クロマトグラフィー用

Oasis HLBカートリッジ：Waters社製、200mg/6mL

Bond Elute Accucat：Agilent Technologies社製、200mg/3mL

遠心フィルターチューブ：Grace Davison Discovery Science社製、Maxi Spin Filter, 0.45 μm , PVDF

AA認証試料ラスク：European Reference Materials社製、ERM-BD274

AA認証試料クリスブレッド：European Reference Materials社製、ERM-BD272

2. 2 機器

ブレンダー：大阪ケミカル（株）社製、フォースミル
ミキサー：タイテック（株）社製、インビトロシェーカー Mix-VR

遠心分離機：BECKMAN社製、Avanti HP-25

久保田商事（株）製、KUBOTA 5930

LC-MS/MS：Waters社製、LC部：UPLC Acquity I class、MS/MS部：Xevo TQ-S

2. 3 AAの分析

2. 3. 1 試験溶液の調製

試料の前処理は、適用食品範囲の広いRoachらの前処理方法¹⁰⁾を参考にした。各食品の試料溶液調製方法をFig. 1に示した。ブレンダーで粉碎均一化した試料1.00gを50mL遠心チューブに量り取り、これに内部標準物質 ($^{13}\text{C}_3$ -AA, 100ng/mL) 1mLを添加して5分間静置後、水9mLを加えた。ボルテックスミキサーで30秒間混合した後、ミキサーにより20分間振とうし、遠心分離 (Avanti HP-25; 13,064 $\times$ g, 4 $^{\circ}\text{C}$, 15min) した。水層 (中間層) 約5mLを遠心フィルターチューブにとった後、遠心分離 (KUBOTA 5930; 840 $\times$ g, 5min) してろ過液を得た。Oasis HLBカートリッジカラムをメタノール3.5mL、次いで水3.5mLでコンディショニングした後、上記のろ過液1.5mLを分取し、カラムに負荷した。水0.5mLで洗浄後、水1.5mLでAAを溶出した。Bond Elute Accucatカートリッジカラムをメタノール2.5mL、次いで水2.5mLでコンディショニングした後、上記の溶出液1.5mLをカラムに負荷した。最初の流出液0.5mLを捨て、残りを全てAA溶出液として回収し、試験溶液とした。

2. 3. 2 LC-MS/MSによるAA分析

LC-MS/MS測定法については、汎用性の高いRiedikerらのLC-MS/MS測定法¹¹⁾を参考にし、測定条件を検討した。下記にLC-MS/MS分析条件を示す。なお、ほうじ茶葉およびコーヒー豆のLC条件は、AAと夾雑物ピークの分離および内部標準物質の回収率の向上のため、他の試料の条件と異なる条件とした。

【LC条件】

カラム：Shodex RSpak DE-413L (内径4.6 $\times$ 250mm, 粒径4 μm)

移動相：0.01% (v/v) ギ酸溶液-メタノール (8:2)

0.01% (v/v) ギ酸溶液-メタノール (99.5:0.5)：ほうじ茶葉及びコーヒー豆分析時

流速：0.8mL/min (装置流入速度 0.40mL/min)

0.4mL/min (装置流入速度 0.20mL/min)：ほうじ茶葉及びコーヒー豆分析時

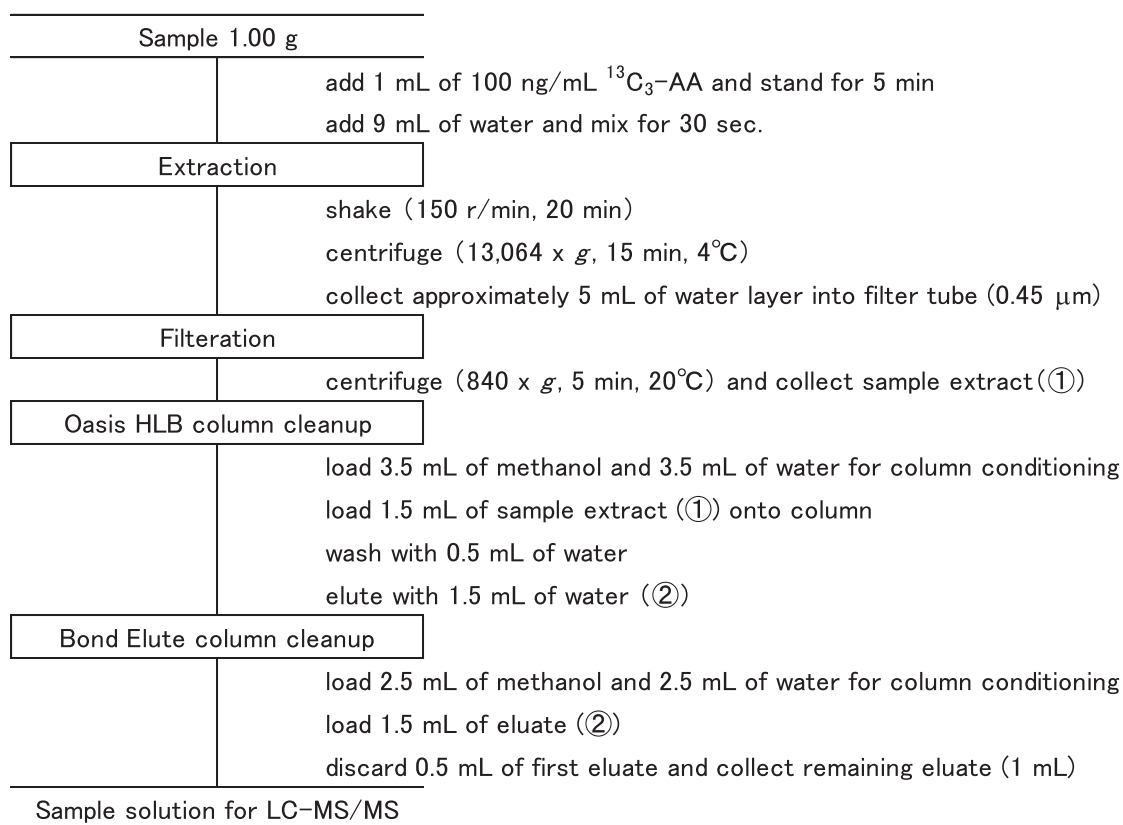


Fig. 1. Flow chart of the pretreatment procedure

注入量：50 μL

カラム温度：40°C

【MS/MS条件】

イオン化法：ESIポジティブ

キャピラリー電圧：0.6kV

イオン源温度：150°C

コーンガス流量：150L/hr

脱溶媒ガス温度：600°C

脱溶媒ガス流量：1,000L/hr

モニターイオン：AA：定量イオン72→55（コリジョンエネルギー：8V），
定性イオン72→27（コリジョンエネルギー：12V）

$^{13}\text{C}_3$ -AA：定量イオン75→58（コリジョンエネルギー：9V），
定性イオン75→29（コリジョンエネルギー：12V）

コーン電圧：AA：22V

$^{13}\text{C}_3$ -AA：20V

2. 3. 3 検量線

検量線作成のために，AA標準品を1mg/mLに調製したAA標準溶液を水で希釈し，1，2，10，50，100及び

200ng/mLの6点の濃度に，内部標準物質を10ng/mL含むように調製した．各検量液の測定結果より，AAの濃度を横軸に，面積比を縦軸にプロットし，最小二乗法により一次回帰直線を作製し検量線とした．

3. 結果及び考察

3. 1 LC-MS/MS条件の最適化

MS/MS条件はESIポジティブモードを選択し，移動相として0.01%（v/v）ギ酸溶液及びメタノール（8：2）混液を用いたアイソクラティック溶出により，直接導入したAAと $^{13}\text{C}_3$ -AAのイオン化条件を検討した．プロトン付加分子[M+H]⁺として，AAからはm/z 72， $^{13}\text{C}_3$ -AAからはm/z 75が感度良く検出された．これらのイオンをプレカーサーイオンとして選択し，コリジョンエネルギー，キャピラリー電圧，及び脱溶媒ガス温度について検討し，観察されたプロダクトイオンの中で最も強度の大きいイオンを定量イオン，二番目に強度の大きいイオンを定性イオンとした．その結果，AAの定量イオンとしてはm/z 55，定性イオンとしてはm/z 27を， $^{13}\text{C}_3$ -AAの定量イオンとしてはm/z 58，定性イオンとしてはm/z 29を選択した．

LC条件については，有機溶媒存在下でもAAが比較的良くカラムに保持され，テーリングも生じにくいと考

えられるポリマー系逆相HPLCカラムを使用した。高い分離能を得るため、理論段数が最も高いサイズ（内径 4.6×250 mm, 粒径 $4\mu\text{m}$ ）のカラムを選択した。また、Riedikerら¹¹⁾は移動相におけるメタノール濃度を40%としているが、実試料の試験溶液を用いて移動相条件を検討した結果、メタノール濃度が20%の方が夾雑ピークとAAの分離が良好であったことからメタノール濃度20%の条件を選択した。さらに、良好なピーク形状を得るためカラムへの流入速度を 0.8mL/min に設定したが、ESIにおいてはやや流量が大きすぎるためイオン化が不安定になると考えられた。そこで、カラムからの流出液を分割し、MS/MS検出器に流入する流量を 0.4mL/min に調整した。

ただし、ほうじ茶葉及びコーヒー豆を試料とした場合には、 $^{13}\text{C}_3\text{-AA}$ の定量イオンとした m/z 75→58に試料由来の夾雑物ピークが検出され、内部標準物質として添加した $^{13}\text{C}_3\text{-AA}$ の面積値の算出に影響を及ぼした。LC条件について検討を行い、夾雑物ピークと $^{13}\text{C}_3\text{-AA}$ のピークを分離するため、移動相を0.01% (v/v) ギ酸溶液及びメタノール (99.5:0.5) 混液に変更し、カラム流速を 0.4mL/min に設定した。

3. 2 検量線の定量範囲の設定

検量線の定量範囲は各検量点の検量線への適合性により判断した。検量線にその作成に使用した各検量点より得られた面積比を代入して算出される濃度の理論濃度に対する比率を指標とし、この比率の100%からの乖離の程度が10%以下である濃度範囲を検量線の定量範囲とした。異なる日に得られた5本の検量線のデータよりAAの各検量点における理論濃度に対する割合を算出した結果、 $1.0 \sim 200\text{ng/mL}$ の範囲では乖離の程度が $\pm 10\%$ に収まっており、この範囲を定量範囲とすることが可能であった。この検量範囲の最低濃度となる 1.0ng/mL は、 1g の試料を使用した時の試料中濃度に換算すると、 10ng/g であり、これを本分析法における定量下限値(LOQ)とした。なお、最低濃度である 1.0ng/mL の検量液におけるAAピークのS/Nは10以上であった。

3. 3 試験溶液のマトリクス効果の検証

試験溶液中に含まれる試料夾雑物（マトリクス）がLC-MS/MS測定に与える影響を添加試験により検討した。AAを含まない食品試料の入手が困難であったため、AAと物理的・化学的性質がほぼ同じ $^{13}\text{C}_3\text{-AA}$ を添加試験に用いた。5種の加工食品各4～5試料中のAA濃度を測定し、最もAA濃度が低かった試料を用いて調製した試験溶液に $^{13}\text{C}_3\text{-AA}$ を添加し、得られた面積値を同じ濃度の標準溶液の面積値と比較した結果、5種の加

工食品の試験溶液における面積値は、標準溶液の面積値を100%とした時、49～119%であった（データ示さず）。ポテトチップス及びビスケット類ではイオン化促進、それ以外の食品ではイオン化抑制の影響が認められた。しかし、本分析法はAAを安定同位体で標識した $^{13}\text{C}_3\text{-AA}$ を内部標準物質に使用して定量するため、試料夾雑物のAA定量値への影響を内部標準物質により補正することが可能であると考えられた。但し、イオン化抑制によりAAの強度が検量液の最低濃度より著しく小さくなる場合は、補正精度が低下する可能性が考えられるため定量値の取り扱いに注意が必要となる。

3. 4 実態調査の対象とする加工食品への適用性の検証

本分析法によりポテトチップス、フライドポテト、ビスケット類、ほうじ茶葉、コーヒー豆（各4～5試料）分析し、近接する妨害ピークの有無や、 $^{13}\text{C}_3\text{-AA}$ の回収率を明らかにし、これら食品への適用性を検証した。その結果、ポテトチップス及びほうじ茶葉などでAA濃度が $1,000\text{ng/g}$ を超える試料が認められた。各食品のクロマトグラムは、コーヒー豆を除き、AA及び $^{13}\text{C}_3\text{-AA}$ のピークに近接する妨害ピークは認められず（データ示さず）、本分析法の実態調査の対象とする加工食品への適用性が確認された。 $^{13}\text{C}_3\text{-AA}$ の回収率はポテトチップスで60～115%、フライドポテトで74～101%、ビスケット類で45～81%、ほうじ茶葉で30～56%、コーヒー豆で44～52%であった。添加回収試験の結果と同様に、ほうじ茶葉及びコーヒー豆の $^{13}\text{C}_3\text{-AA}$ の回収率が低くなる傾向が認められた。

3. 5 添加回収試験

本分析法の加工食品5種を対象としたAA含有濃度実態調査への適用性については、添加回収試験より得られた回収率から推定された真度及び併行精度により評価した。実態調査では低濃度の含有実態を把握する必要があるため、各試料のAAの添加濃度は、添加回収試験に用いた各試料に含まれるAAに影響されずに定量可能な濃度として、ポテトチップス、ビスケット類及びフライドポテトには 100ng/g 、ほうじ茶葉、コーヒー豆には 300ng/g を添加した。なお、添加回収試験には3.3試験溶液のマトリクス効果の検証に用いた試料と同一の試料を用いた。

各食品の添加試料を1日5併行で分析し、得られた回収率から推定した真度と併行精度をTable 1に示した。ポテトチップス、フライドポテト、ビスケット類、ほうじ茶葉及びコーヒー豆におけるAAの真度（回収率）はそれぞれ99%、98%、99%、96%及び102%、併行精度はそれぞれ3.1、1.3、2.0、1.2%及び3.2%と推定された。添

Table 1. Accuracy (recovery) and RSD assessed by recovery test of AA in processed food

Sample	Accuracy ¹⁾ (% mean)	RSD (%)
Potato chip	99	3.1
French fry	98	1.3
Biscuit	99	2.0
Roasted green tea	96	1.2
Coffee bean	102	3.2

1) Spiked level: 100 (potato chip, french fry and biscuit) or 300 (roasted green tea and coffee bean) ng/g, $n=5$

加試料のクロマトグラムは添加したAA, $^{13}\text{C}_3\text{-AA}$ について、コーヒー豆以外の試料では、対象ピークの近傍に明らかな妨害ピークは確認されなかった（データ示さず）。コーヒー豆については $^{13}\text{C}_3\text{-AA}$ の定量イオンのクロマトグラムに妨害ピークが認められ、 $^{13}\text{C}_3\text{-AA}$ と完全には分離できなかったが（データ示さず）、真度と併行精度は良好であった。また、添加回収試験時の $^{13}\text{C}_3\text{-AA}$ の回収率は、ポテトチップスで82～108%、フライドポテトで63～88%、ビスケット類で106～139%、ほうじ茶葉で51～57%、コーヒー豆で39～42%であった。3.3の検討で示したように、フライドポテト、ほうじ茶葉及びコーヒー豆では試験溶液中の夾雑物により33～51%のイオン化抑制が観察された。そのため、回収率の値が低下した要因としては、試験溶液中に含まれる夾雑物の影響が主要因であり、前処理操作における $^{13}\text{C}_3\text{-AA}$ の損失は大きくないものと考えられた。

3. 6 認証標準試料の分析

本分析法で得られる分析値の信頼性を確認するため、AA認証標準物質の分析を実施した。ラスク及びクリスプブレッドの2種の認証標準物質を本法により3併行で分析し、得られたAA濃度と認証値を比較した（Table 2）。ラスクの分析結果は全て認証値の範囲内に収まった。一方、クリスプブレッドの分析結果については認証値の範囲より全体にやや低い値となったが、その程度は小さかった。その要因として、クリスプブレッドから調製した試料溶液はラスクと比較して粘性が高く、本法で用いた振とう抽出のみでは完全にAAの抽出ができなかった可能性が考えられた。しかし、得られた定量値は認証値より大幅に低値を示した訳ではないため、実態調査に用いる分析法としては許容できるものと考えられた。

Table 2. Concentration of AA in two kinds of certified reference samples

Certified reference samples	trial	Concentration of AA (ng/g)	mean $\pm$ SD (ng/g)	certified value ¹⁾ (ng/g)
Risk	1	75	77 $\pm$ 2	74 $\pm$ 7
	2	79		
	3	78		
Crisp bread	1	807	829 $\pm$ 24	980 $\pm$ 90
	2	855		
	3	826		

1) mean $\pm$ 95% confidence range

3. 7 5種類の加工食品における実態調査

適用性を確認した本法を用いて、ポテトチップス、フライドポテト、ビスケット類、ほうじ茶葉及びコーヒー豆の5種類の加工食品について各20試料（合計100試料）を分析した。その結果、すべての試料から定量下限値（10 ng/g）以上のAAが検出された。それぞれの加工食品中のAA含有濃度範囲は、ポテトチップスで52～3,100 ng/g、フライドポテトで50～1,000 ng/g、ビスケット類で16～570 ng/g、ほうじ茶葉で120～1,600 ng/g、コーヒー豆で110～300 ng/gであった。なお、ポテトチップス1試料で定量範囲外の値となったため、外挿により定量値を算出し、参考値とした。各食品中のAA含有濃度（中央値）を比較したところ、ポテトチップスが最もAA含有濃度が高く、次いでほうじ茶葉、フライドポテト、コーヒー豆、ビスケット類の順であった（Fig. 2）。本調査結果は、農林水産省が実施した有害物質含有実態調査（平成15～22年度）¹²⁾で報告されているAA含有濃度の範囲とよく一致していたが（Table 3）、ポテトチップスでは、平均値、中央値ともに農水省の調査より30～40%低くなっていた。これは、一部メーカーでのAA低減に向けた取り組みと関連している可能性が考えられた。試料ごとにAA含有濃度を比べると、同種の食品でも商品によってAA含有濃度に大きな差があり、特にポテトチップスやほうじ茶葉で顕著な差が認められた。一方、コーヒー豆では試料間のAA含有濃度差は小さかった。

各加工食品について試料の特徴ごとにAA含有濃度を比較した（Fig. 3）。分析数に偏りがあるため注意が必要であるが、ポテトチップスでは、生のじゃがいもをそのままスライスして作られるスライスポテトチップスの方が、成形ポテトチップスよりもAA含有濃度が高い傾向が認められた。また、スライスポテトチップスで細切りにされている試料は特にAA含有濃度が高かった。フライドポテトは、ストレートカットで試料間の濃度差が大きいものの、クリスピーカット、シューストリング、ストレートカット、ナチュラルカットの順に、すなわち細

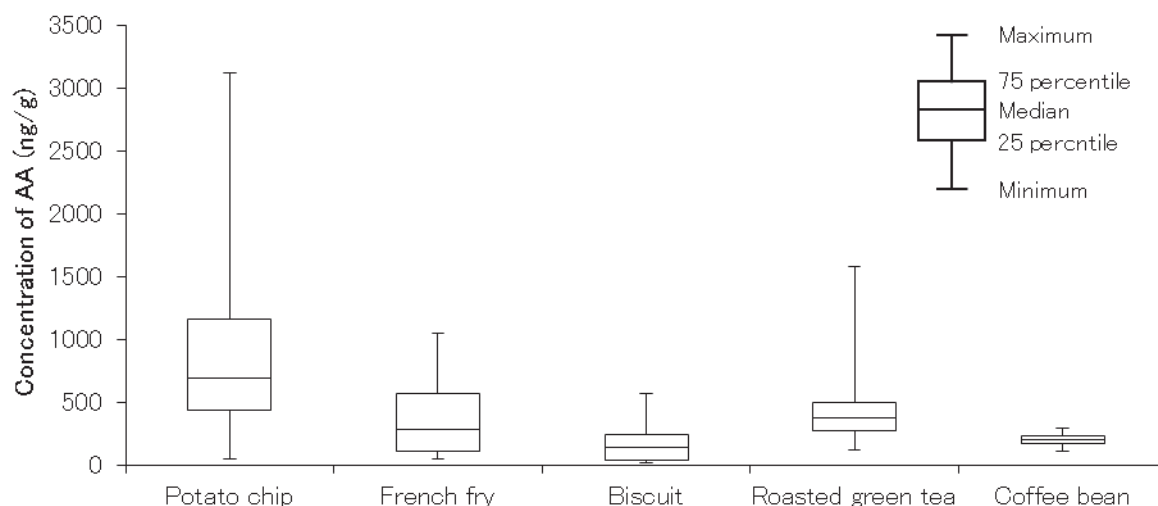


Fig. 2. Boxplot of concentration of AA in processed foods

Each boxplot was made by concentration of AA determined in the processed foods ($n=20$). Box shows 25 and 75% percentiles and the center line shows the median. The end of whiskers show the maximum and minimum values.

Table 3. Comparison between present data and survey data by Ministry of Agriculture, Forestry and Fisheries of Japan

Present data

Sample	Number of samples	LOQ (ng/g)	Number of samples below LOQ	Concentration of AA (ng/g)			
				mean	median	maximum	minimum
Potato chip	20	10	0	830	690	3100	52
French fry	20	10	0	380	280	1000	50
Biscuit	20	10	0	170	140	570	16
Roasted green tea	20	10	0	500	380	1600	120
Coffee bean	20	10	0	200	200	300	110

Survey data by Ministry of Agriculture, Forestry and Fisheries of Japan¹²⁾

Sample	Number of samples	LOQ (ng/g)	Number of samples below LOQ	Concentration of AA (ng/g)			
				mean	median	maximum	minimum
Potato snack	541	20	1	1100	940	5500	<20
French fry	180	20	0	410	380	1500	90
Biscuit	30	20	1	180	160	460	<20
Roasted green tea	18	20	0	450	360	1100	190
Coffee bean	121	8	0	160	160	330	73

いフライドポテトほどAA含有濃度が高い傾向が認められた。ビスケット類では、名称がビスケットである試料とクッキーである試料を比較した。高濃度のAAを含有するクッキーが1試料検出されているが、ビスケットの方が、クッキーよりもAA含有濃度が高い傾向があった。公正取引規約では糖分と脂肪分の合計が40%以上のものをクッキーと定めており、クッキーの方がビスケッ

トよりも糖分の含有量が多いと考えられるが、分析試料としたクッキーは比較的厚みがあり、ソフトな食感を持つものが多かったことから、ビスケットとの焼成度合いの違いなどがAA含有濃度に影響していると考えられた。ビスケットでも、ショートブレッドのように厚みがあり、焼き色の薄い試料はAA含有濃度が低く抑えられていた。ほうじ茶葉中のAA含有濃度は、葉茶、茎茶と

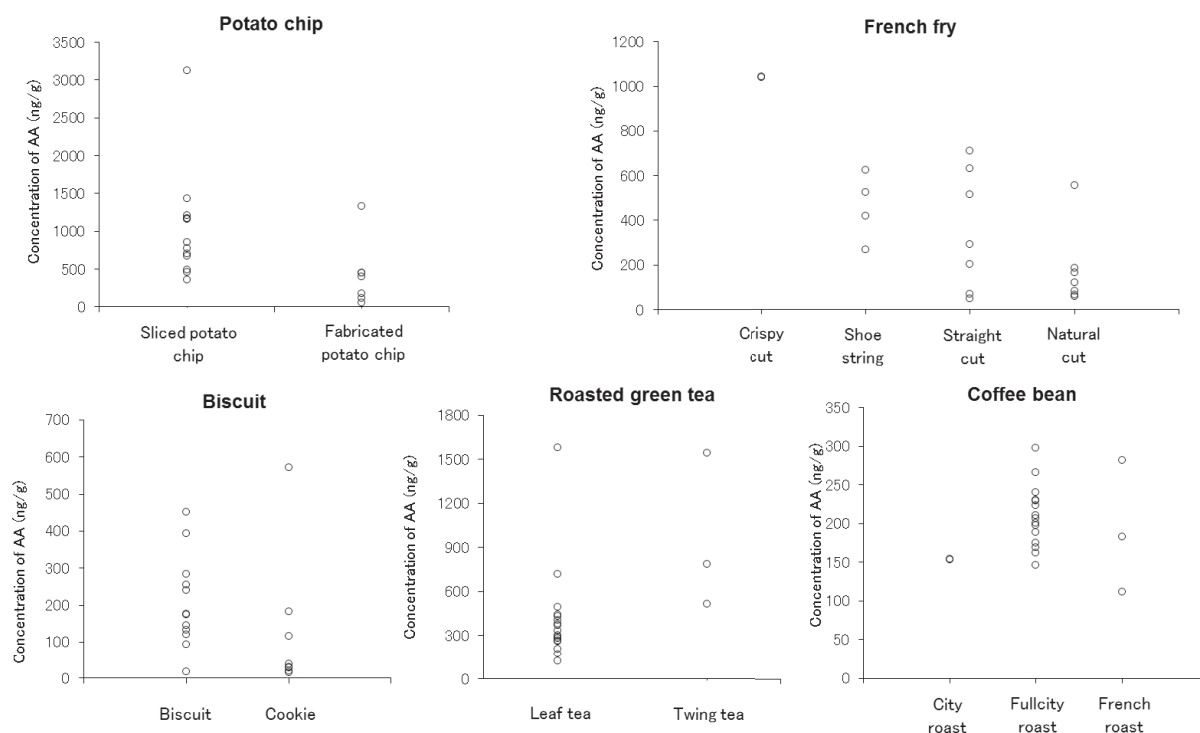


Fig. 3. Investigation of concentration of AA in the processed foods

Each processed food was classified into some categories depending on the property. Potato chips were classified into sliced potato chips ($n=13$) and fabricated potato chips ($n=7$). French fries were classified into crispy cut ($n=2$), shoe strings ($n=4$), straight cut ($n=7$) and natural cut ($n=7$). Biscuits were classified into biscuit ($n=12$; including 5 samples for infant) and cookie ($n=8$; including 2 samples for infant). Roasted green teas were classified into leaf tea ($n=17$) and twing tea ($n=3$). Coffee beans were classified into city roast ($n=2$), fullcity roast ($n=15$) and french roast ($n=3$).

もに広い濃度分布を示した。コーヒー豆では焙煎度合いの低い順に、中煎り（シティロースト）、中深煎り（フルシティロースト）、深煎り（フレンチロースト）の試料を比較した。分析数に偏りがあるため判断が難しいが、焙煎度合いによるAA含有濃度の差は明確でなかった。本研究では、ほうじ茶葉およびコーヒー豆自体のAA含有濃度を調査したが、これら加工食品の実際の摂取状況を考えると浸出液が摂取されるため、食品からのAAの摂取量の推定には浸出液中のAA濃度を用いるのが適切であると考えられる。平成28年1月に国立環境研究所から発表された「食品由来のアクリルアミド摂取量の推定に関する研究」の中間報告書¹³⁾では、ほうじ茶葉中のAA濃度から浸出液中のAA濃度の換算には0.022、コーヒー豆中のAA濃度からコーヒー浸出液中のAA濃度の換算には0.067という係数が用いられている。ほうじ茶については過去の報告¹⁴⁾におけるほうじ茶葉中のAA濃度とほうじ茶浸出液中のAA濃度の関係から導かれた係数であるが、コーヒー豆については、豆10gに対して水150mLを用いると仮定し、移行率を100%と仮定して求めた係数であることから、実際のコーヒー浸出液中のAA濃度をどの程度反映しているかは不明である。食品からのAAの摂取量の推定に向けたAA含有実態把握の

ためには、ほうじ茶葉やコーヒー豆だけではなく浸出液中のAA含有濃度を調査することも重要であると考えられた。

EUでは、2007-2012年の実態調査データに基づいて算出された指標値（安全性の基準値ではなく、調査の必要性についての示唆を得ることを目的とした値）を超える濃度のAAを含む製品があれば、その製造・加工方法について詳細な調査を行うことが勧告されている¹⁵⁾。EUが定めた指標値は、ポテトチップスで1,000ng/g、フライドポテトで600ng/g、ビスケット類で500ng/g（乳幼児用ビスケット類200ng/g）、コーヒー豆（焙煎コーヒー）で450ng/gである¹³⁾。今回調査した100試料のうち、この指標値を超える試料が、ポテトチップスで7試料、フライドポテトで5試料、ビスケット類で3試料（いずれも乳幼児用ビスケット）検出された。コーヒー豆については、EUの指標値を超える試料はなかった。

4. まとめ

加工食品5種に含まれるAAの含有濃度実態調査への利用が可能なLC-MS/MS分析法を確立した。本法を用いて、加工食品5種類（100試料）についてAA含有濃度実態を調査した結果、加工食品5種類中のAA含有濃

度（中央値）は、ポテトチップス、ほうじ茶葉、フライドポテト、コーヒー豆、ビスケット類の順に高い結果となった。また、コーヒー豆を除く加工食品では、試料によってAA含有濃度に大きな差があったが、その濃度範囲は過去に農林水産省が実施した有害物質含有実態調査で報告されているAA含有濃度の範囲とよく一致していた。またEUが定める指標値と比較した結果、ポテトチップスで7試料、フライドポテトで5試料、ビスケット類で3試料（いずれも乳幼児用ビスケット）がEUの指標値を上回る濃度のAAを含有していることが明らかとなった。

謝辞

本研究は、厚生労働省食品等試験検査費（食品中の製造副生成物に関する試験検査、及び食品中の製造副生成物に関する実態調査）により実施された。

引用文献

- 1) Tareke E, Rydberg P, Karlsson P, Eriksson S, Törnqvist M: *J Agric Food Chem*. 2002;50:4998-5006.
- 2) Rosén J, Hellenäs EK: *Analyst*. 2002;127:880-2.
- 3) Nemoto S, Takatsuki S, Sasaki K, Maitani T: *J Food Hyg Soc Japan*. 2002;43:371-6.
- 4) Takatsuki S, Nemoto S, Sasaki K, Maitani T: *J Food Hyg Soc Japan*. 2003;44:89-95.
- 5) 食品安全委員会: 評価書 加熱時に生じるアクリルアミド, 2016年4月.
https://www.fsc.go.jp/osirase/acrylamide1.data/acrylamide_hyokasyo1.pdf
- 6) Mottram DS, Wedzicha BL, Dodson AT: *Nature*. 2002;419:448-9.
- 7) Stadler RH, Blank I, Varga N, Robert F, Hau J, Guy PA, Robert MC, Riediker S: *Nature*. 2002;419:449-50.
- 8) Becalski A, Lau BP-Y, Lewis D: *J Agric Food Chem*. 2003;51:802-8.
- 9) Yaylayan VA, Wnorowski A, Locas CP: *J Agric Food Chem*. 2003;51:1753-7.
- 10) Roach JAG, Andrzejewski D, Gay LM, Nortrup D, Musser MS: *J Agric Food Chem*. 2003;51:7547-54.
- 11) Riediker S, Stadler RH: *J Chromatogr A*. 2003;1020:121-30.
- 12) 農林水産省: 有害物質含有実態調査 結果データ集 (平成15～22年度), 2012年10月
<http://www.maff.go.jp/j/press/syouan/seisaku/pdf/chem15-22r.pdf>
- 13) 国立研究開発法人 国立環境研究所 環境リスク研究センター: 平成27年度食品健康影響評価技術研究「食品由来のアクリルアミド摂取量の推定に関する研究」中間報告書, 2016年1月
<https://www.fsc.go.jp/fsciis/technicalResearch/show/cho99920151507>
- 14) Mizukami Y, Kohata K, Yamaguchi Y, Hayashi N, Sawai Y, Chuda Y, Ono H, Yada H, Yoshida M: *J Agric Food Chem*. 2006;54:7370-7.
- 15) EC: Official Journal of the European Union. 2013;L301:15-7.
<http://eur-lex.europa.eu/LexUriServ/LexUriServ.do?uri=OJ:L:2013:301:0015:0017:EN:PDF>