調査・資料

ワイン, 魚介類, 精米, 乳, 粉乳およびヨーグルト中の
過塩素酸塩濃度の実態調査

(平成 22 年 7 月 20 日受理)

高 附 巧* 渡 邊 敬 浩 松 田 り え 子

Surveillance of Perchlorate Level in Wine, Seafood,
Polished Rice, Milk, Powdered Milk and Yogurt

Satoshi TAKATSUKI*, Takahiro WATANABE and Rieko MATSUDA

National Institute of Health Sciences: 1-18-1 Kamiyoga, Setagaya-ku,
Tokyo 158-8501, Japan; *Corresponding author

Perchlorate, which may be naturally occurring or artificial in origin, inhibits iodide uptake into the thyroid gland and disturbs thyroid function. In order to investigate perchlorate contamination in foods in Japan, perchlorate levels in 28 wine samples, 20 seafood samples, 10 polished rice samples, 30 milk (include whole milk, composition modified milk, low fat milk, processed milk, milk drink) samples, 10 powdered milk samples and 10 yogurt samples were measured. Perchlorate was found in all wine, milk, powdered milk and yogurt samples tested. Perchlorate levels ranged from 0.2 ng/g to 103 ng/g in wine samples, from 2 ng/g to 11 ng/g in milk samples, from 3 ng/g to 35 ng/g in powdered milk samples, and from 2 ng/g to 11 ng/g in yogurt samples. Perchlorate levels in the seafood samples were under the LOQ (0.8 ng/g) in 8 samples and ranged from 0.8 ng/g to 72 ng/g in 12 samples. In all polished rice samples, perchlorate level was under the LOQ (1.0 ng/g).

(Received July 20, 2010)

Key words: 過塩素酸塩 perchlorate; イオンクロマトグラフィー-タンデム質量分析法 IC-MS/MS; ワイン wine; 魚介類 seafood; 精米 polished rice; 乳 milk; 粉乳 powdered milk; ヨーグルト yogurt

緒 言

過塩素酸塩は天然に広く存在するとともに、固形ロケット燃料、花火、電池などに広く使用されている。過塩素酸塩には甲状腺でのヨウ素の取り込みを阻害する作用があり、ヨウ素欠乏状態にある女性において、過塩素酸塩暴露と甲状腺機能低下に有意な関連があるとの報告がある¹⁾。米国では、国立および民間の研究機関などが野菜、果実、飲料水、牛乳、魚介類などのさまざまな食品中の過塩素酸塩濃度調査^{2)~4)}、*1、*2や、マーケットバスケット方式によるトータルダイエツスタディー (TDS)*1、*3を実施し、それらの結果を報告している。

既報⁵⁾において、わが国における食品中の過塩素酸塩濃度の実態を把握するために、国内で市販されている葉菜を中心とした野菜およびミネラルウォーター中の過塩素酸塩濃度を測定し、その結果を報告した。今回、上記食品以外で過塩素酸塩が含まれていることが報告されている⁶⁾、*1、*3ワイン、魚介類、乳 (牛乳、成分調整牛乳、低脂肪牛乳、加工乳、乳飲料)、粉乳、ヨーグルトおよび、過塩素酸塩が含まれている報告はないが主食であり摂取量の多い精米中の過塩素酸塩濃度の実態を調査した結果を報告する。

実験方法

1. 試 料

2008 年 12 月から 2009 年 2 月にかけて、東京都の小売店で販売されていた乳 (牛乳 20 試料、成分調整牛乳 1 試料、低脂肪牛乳 3 試料、加工乳 1 試料、乳飲料 5 試料) 計 30 試料、魚介類 20 試料およびヨーグルト 10 試料を購

* 連絡先

国立医薬品食品衛生研究所: 〒158-8501 東京都世田谷区上野賀 1-18-1

*1 <http://www.fda.gov/Food/FoodSafety/FoodContaminantsAdulteration/ChemicalContaminants/Perchlorate/ucm077572.htm>, 2009*2 <http://www.fda.gov/Food/FoodSafety/FoodContaminantsAdulteration/ChemicalContaminants/Perchlorate/ucm077685.htm>, 2009*3 <http://www.fda.gov/Food/FoodSafety/FoodContaminantsAdulteration/ChemicalContaminants/Perchlorate/ucm077615.htm>, 2009

入し検体とした。また, 2008年10月から12月に国産および輸入ワイン計28試料, 2007年12月に精米10試料および2008年12月に粉乳10試料を, インターネットを通じて購入し, 検体とした。

2. 試薬および試液

1) 標準品および標準溶液 過塩素酸ナトリウム, $^{18}\text{O}_4$ -標識過塩素酸ナトリウム 内部標準 (IS) および標準溶液は, 既報⁵⁾に従い用いた。

2) その他試薬および試液 超純水: Mili Q 水 (超純水を用いることでIC-MS/MSのベースラインが低くなったので既報⁵⁾の蒸留水から変更した)。酢酸, アセトニトリル, 酢酸アンモニウム, 1%酢酸溶液および固相抽出カートリッジは, 既報⁵⁾に従った。

3. 器具および器材

マイクロシリンジ: 容量 100 μL および 250 μL (Hamilton 社製)。シリンジフィルター, ディスポーザブルシリンジ, ポリプロピレン製遠心管, フードプロセッサおよびカラム吸引装置は既報⁵⁾に従った。粉碎器: ミルサー IFM-800 (岩谷産業(株)製), 遠心分離機: ユニバーサル冷却遠心機 5930, ローター RS-3011M ((株)久保田製作所製), 振とう機: RECIPRO SHAKER SR-2w (タイテック(株)製)。

4. IC-MS/MS 装置および測定条件 IC 装置, MS/MS 装置および測定条件は既報⁵⁾に従った。

5. 試験溶液の調製 FDA がインターネット上に公表している分析法^{*4}および文献 7, 8 を参考に以下に示すとおり, 試験溶液を調製した。

1) 抽出

魚介類は, フードプロセッサで, 精米は粉碎器で均一になるまで粉碎した。ワインおよび魚介類は 10.0 g を, 乳およびヨーグルトは 5.0 g を, 粉乳は 1.0 g をポリプロピレン製遠心管に量り採った。100 μL シリンジを用いて, ワインおよび魚介類は, 1.5 $\mu\text{g/mL}$ IS 溶液 100 μL を, 乳, ヨーグルトおよび粉乳は 2.0 $\mu\text{g/mL}$ IS 溶液 100 μL を添加し, ワインは 1%酢酸溶液 20 mL を, 魚介類は 1%酢酸溶液 5 mL およびアセトニトリル 15 mL を, 精米は 1%酢酸溶液 20 mL およびアセトニトリル 20 mL を, 乳およびヨーグルトは 1%酢酸溶液 5 mL およびアセトニトリル 20 mL を, 粉乳は 1%酢酸溶液 10 mL およびアセトニトリル 20 mL を加えた後, 密栓して 2 分間振とうした後, 毎分 2,000 回転で 5 分間遠心分離した。

2) 精製

ワイン, 魚介類および精米: あらかじめアセトニトリル 6 mL および 1%酢酸溶液 6 mL を通し吸引により 30 秒間乾燥させた固相抽出 (SPE) カートリッジに, 遠心後の上清を全量注入し, 溶出液をポリプロピレン製遠心管に集めた。SPE カートリッジからの溶出が毎秒 2 滴になるよ

うに吸引装置の減圧率を調整した。溶出液をシリンジフィルターでろ過し試験溶液とした。

乳, ヨーグルトおよび粉乳: あらかじめアセトニトリル 6 mL および 1%酢酸溶液 6 mL を通した SPE カートリッジに, 遠心後の上清を全量注入し, 溶出液をポリプロピレン製遠心管に集めた。次いで, カラムに 1%酢酸溶液 6 mL を注入し, 溶出液を先の容器に集めた。SPE カートリッジからの溶出が毎秒 2 滴になるように吸引装置の減圧率を調整した。溶出液を 1%酢酸溶液で 40 mL とした後, シリンジフィルターでろ過し試験溶液とした。

6. 定 量

既報⁵⁾と同様に行った。検量線は常に原点を通る直線が得られ, 決定係数 (R^2) は 0.9999~1.0000 であった。

結果および考察

1. 分析方法の室内バリデーション

分析を実施する試験室における方法と手順を含む一連の分析システムの性能を評価するために, 室内バリデーションを実施した。

1) 操作ブランク 分析ごとに, 超純水を試料として, ブランク試験を実施した。操作ブランク中の過塩素酸塩濃度は, 検量線用の 0.0 ng/mL 溶液を超えることはなかった。

2) 回収率および併行精度, 室内精度の評価 ワイン, 魚介類, 精米および牛乳について, 無添加および過塩素酸塩を 2.0 ng/g, 4.0 ng/g (牛乳は 5.0 ng/g, 10.0 ng/g) 添加した試料を調製し, 1 日各 2 併行で, 5 日間, 1 人が分析方法に従って操作した。無添加試料から得た定量結果の平均値 ($n = 10$) は, ワイン 0.121 ng/g, 魚介類 0.385 ng/g, 精米 0.136 ng/g, 牛乳 1.949 ng/g であった。添加試料の結果から無添加試料の平均を差し引いた値の平均値を添加量で除して回収率を求めた。また, 一元配置の分散分析により算出された分散に基づき, 併行精度, 室内精度を推定した。それらの結果を Table 1 に示す。いずれの添加量でも, 回収率は 90% 以上, 併行精度および室内精度は相対標準偏差 (RSD) として 7% 以下であり, 実態調査の目的に適合していると考えられた。IC-MS/MS クロマトグラムの一例として, 0.1 ng/mL 標準溶液 (IS 5.0 ng/mL) および無添加ワインの試験溶液の結果を Fig. 1 に示した。

3) 検出限界および定量限界 既報⁵⁾と同様に, 各無添加試料の定量結果の標準偏差の 3 倍および 10 倍をそれぞれ検出限界 (LOD) と定量限界 (LOQ) とした。ワインの LOD は 0.03 ng/g, LOQ は 0.1 ng/g, 魚介類の LOD は 0.2 ng/g, LOQ は 0.8 ng/g, 精米の LOD は 0.3 ng/g, LOQ は 1.0 ng/g, 牛乳の LOD は 0.1 ng/g, LOQ は 0.4 ng/g となった。ヨーグルトは牛乳と同様の方法のため, LOD および LOQ は牛乳と同一とみなした。粉乳は試料量が牛乳の 5 分の 1 であるため LOD および LOQ が牛乳の 5 倍となるものと想定し, LOD は 0.7 ng/g, LOQ は 2.2 ng/g とした。

*4 <http://www.fda.gov/Food/FoodSafety/FoodContaminantsAdulteration/ChemicalContaminants/Perchlorate/ucm077793.htm>, 2009

Table 1. The performance characteristics of the analytical system in the laboratory

Foods	Fortification level* ¹ (ng/g)	Recovery (%)	Repeatability		Intermediate precision	
			SD* ² (ng/g)	RSD* ³ (%)	SD (ng/g)	RSD (%)
Wine	2.0	98.1	0.016	0.81	0.028	1.41
	4.0	97.9	0.021	0.55	0.037	0.95
Seafoods	2.0	101.3	0.070	3.46	0.130	6.49
	4.0	101.4	0.130	3.15	0.140	3.46
Polished rice	2.0	91.9	0.100	5.18	0.100	5.18
	4.0	98.0	0.180	4.50	0.180	4.50
Whole milk	5.0	99.8	0.036	0.73	0.100	2.01
	10.0	98.4	0.020	0.21	0.200	2.03

*¹ Perchlorate anion level*² SD: Standard deviation*³ RSD: Relative standard deviation **Fig. 1.** IC-MS/MS chromatograms of standard solution at 0.1 ng/mL and a wine sample

A: Standard solution (perchlorate: 0.1 ng/mL, IS: 5.0 ng/mL)

B: Wine sample (IS: 5.0 ng/mL)

(1) m/z 98.9→83.1 perchlorate primary transition(2) m/z 100.8→84.9 perchlorate secondary transition(3) m/z 106.8→88.9 IS primary transition(4) m/z 108.9→91.1 IS secondary transition

2. 実態調査

各試料中の過塩素酸塩濃度の測定結果を Table 2～7 に示す。また、Fig. 2 には試料ごとの過塩素酸塩濃度をグラフにプロットして示した。

1) ワイン

28 試料すべての試料に 0.2～102.6 ng/g の過塩素酸塩が含まれ、その平均値は 19.9 ng/g、中央値は 3.2 ng/g であった。多くの試料中の濃度は 10 ng/g 未満であった。

Table 2. Concentration of perchlorate in 28 wine samples

Sample No.	Kinds of wine	Area of production	Concentration (ng/g)*
1	Red	Domestic	0.7
2	Red	Domestic	0.4
3	Red	France	0.3
4	Red	France	1.0
5	Red	Italy	1.1
6	Red	USA	1.6
7	Red	Australia	3.4
8	Red	Chile	8.2
9	Red	Chile	5.9
10	Red	Chile	13.0
11	Red	Chile	10.7
12	Red	Chile	56.9
13	Red	Spain	11.8
14	Red	Germany	10.6
15	White	Domestic	0.3
16	White	Domestic	0.3
17	White	France	0.4
18	White	France	0.2
19	White	Italy	2.2
20	White	USA	3.0
21	White	Australia	1.6
22	White	Chile	102.6
23	White	Chile	86.6
24	White	Chile	72.2
25	White	Chile	97.9
26	White	Chile	57.3
27	White	Spain	3.7
28	White	Germany	3.0

* Perchlorate anion level

Table 3. Concentration of perchlorate in 20 seafood samples

Sample No.	Commodity	Area of production	Concentration (ng/g)* ¹
1	Matsubara stingfish	USA	0.9
2	Walleye pollack	USA	0.9
3	Sablefish	USA	4.1
4	Peeled shrimp	India	NQ (0.35)* ²
5	Squid tube	China	2.9
6	Grilled mackerel	China	ND* ³
7	Herring	Norway	NQ (0.64)
8	Seed flounder	USA	0.8
9	Snow crab leg-meat	China	NQ (0.32)
10	Nile perch	Tanzania	NQ (0.37)
11	Japanese smelt	China	1.5
12	Salmon	Chile	NQ (0.54)
13	Split and dried saurel	Holland	NQ (0.52)
14	Atka mackerel	USA	NQ (0.37)
15	Dried roundnose flounder	Scotland	5.0
16	Peeled shrimp	Myanmar	1.3
17	Black tiger prawn	Indonesia	1.8
18	Prawn	India	0.9
19	Whiteleg shrimp	Indonesia	71.6
20	Angler	China	4.8

*¹ Perchlorate anion level*² 0.2 ng/g ≤ NQ < 0.8 ng/g*³ ND < 0.2 ng/g

Table 4. Concentration of perchlorate in 10 polished rice samples

Sample No.	Product name	Area of production	Concentration (ng/g)* ¹
1	Nanatsuboshi	a	ND* ²
2	Hitomebore	b	ND
3	Akita-komachi	c	NQ (0.70)* ³
4	Fusaotome	d	NQ (0.63)
5	Koshi-ibuki	e	NQ (0.73)
6	Milkyqueen	f	NQ (0.58)
7	Koshihikari	g	ND
8	Koshihikari	h	ND
9	Koshihikari	i	ND
10	Yumeshizuku	j	ND

*¹ Perchlorate anion level*² 0.3 ng/g ≤ NQ < 1.0 ng/g*³ ND < 0.3 ng/g**Table 5.** Concentration of perchlorate in 30 milk samples

Sample No.	Type of milk	Manufacturing company	Concentration (ng/g)* ¹
1	Whole milk	A	6.5
2	Whole milk	A	3.2
3	Milk drink	A	5.7
4	Milk drink	A	7.7
5	Milk drink	A	5.3
6	Whole milk	A	5.6
7	Whole milk	B	2.0
8	Whole milk	C	4.1
9	Whole milk	C	3.7
10	Whole milk	C	6.9
11	Whole milk	C	4.5
12	Whole milk	C	5.0
13	Composition modified milk* ²	C	8.4
14	Low-fat milk	C	5.6
15	Low-fat milk	C	6.7
16	Processed milk	C	7.0
17	Whole milk	D	8.4
18	Low-fat milk	D	7.6
19	Whole milk	E	6.6
20	Whole milk	E	2.7
21	Whole milk	F	6.0
22	Whole milk	F	6.1
23	Whole milk	G	8.0
24	Whole milk	H	6.7
25	Whole milk	I	7.7
26	Whole milk	I	10.6
27	Whole milk	J	6.6
28	Milk drink	J	4.2
29	Whole milk	K	7.0
30	Milk drink	K	7.9

*¹ Perchlorate anion level*² Milk fat that was adjusted to 2–3%

Table 6. Concentration of perchlorate in 10 powdered milk samples

Sample No.	Type of powdered milk	Manufacturing company	Concentration (ng/g)* ¹	
			In powder	In prepared
1	Early infant formula	K	3.2	0.4
2	Follow-on and toddler formula	K	11.4	1.5
3	Early infant formula	D	7.4	1.0
4	Follow-on and toddler formula	D	2.5	0.3
5	Early infant formula	L	6.3	0.8
6	Follow-on and toddler formula	L	35.3	4.9
7	Early infant formula	M	4.1	0.5
8	Follow-on and toddler formula	M	13.9	1.9
9	Early infant formula	N	9.0	1.2
10	Modified milk powder	D	7.6	—* ²

*¹ Perchlorate anion level*² Not reduced**Table 7.** Concentration of perchlorate in 10 yogurt samples

Sample No.	Major additives	Manufacturing company	Concentration (ng/g)* ¹
1	Suger-agar	E	5.5
2	Suger-agar-fresh cream	O	10.9
3	Suger-coconut oil	D	7.7
4	Suger-gelatine	P	9.0
5	Suger	Q	2.1
6	Suger-sweetener	K	6.0
7	Suger	K	7.2
8	Suger-fructose-agar-gelatine-cream	C	5.4
9	Suger-fructose-sweetener-agar-gelatine-cream	C	4.9
10	Plain	A	6.9

*¹ Perchlorate anion level **Fig. 2.** Distribution of perchlorate concentrations in 6 kinds of foods

—: concentration range, ×: mean, —: median, □: 25 and 75 percentile ranges,
(): number of samples

が, チリ産の赤ワイン3試料および白ワイン5試料, スペインおよびドイツ産の赤ワイン各1試料の計10試料については10 ng/gを超えていた。チリでは土壤中に過塩素酸塩が含まれていることが知られており^{*1}, チリ産ワイン中の過塩素酸塩の濃度が高いのは, このことが原因と考えられる。また, Aribi ら⁶⁾により報告されたワイン77試

料中の過塩素酸塩濃度は, 0.01~50.3 mg/Lの範囲であり, それらの平均値が5.0 mg/Lであった。また, 含有量が高いワインの産地はチリを中心としており, 本調査によっても同様の傾向が確認できたと言える。

2) 魚介類

輸入魚介類20試料中12試料に0.8~71.6 ng/gの範囲

で過塩素酸塩が含まれ、それらの平均は 5.0 ng/g、中央値は 0.9 ng/g であった。過塩素酸塩濃度が 10 ng/g を超えた試料はインドネシア産のエビ (71.6 ng/g) の 1 試料のみであり、他の 11 試料は 5 ng/g 以下であった。その他の試料については、LOD (0.2 ng/g) 以下が 1 試料、LOQ (0.8 ng/g) 以下の濃度が検出された試料が 7 試料あった。FDA が 2004 および 2005 年に実施した過塩素酸塩濃度の調査^{*2}では、魚介類 23 試料中、LOD (1.00 ng/g) 以下が 17 試料、LOQ (3.00 ng/g) 以下が 3 試料、残りの 3 試料から 23.2、23.5 および 50.5 ng/g の過塩素酸塩が検出されている。この 3 試料はいずれもエビで、産地はそれぞれインド、タイ、ベトナムと異なっていた。本調査結果では、エビから高濃度の過塩素酸塩を検出したことは FDA の結果とも類似している。他の試料の過塩素酸塩濃度は、魚種が多岐にわたっているが、1 例ずつで、すべて輸入品なので国産品を含めた産地などを増やして調査する必要があるものと思われる。

3) 精米

10 試料中 LOD (0.3 ng/g) 以下の試料が 6 試料、LOQ (1.0 ng/g) 以下の濃度で検出された試料が 4 試料で、LOQ 以上の濃度の過塩素酸塩を含む試料はなかった。これらの結果は FDA の調査結果^{*2}とも一致している。

4) 乳

国産品である 30 試料すべてに過塩素酸塩が 2.0~10.6 ng/g の範囲で含まれ、それらの平均は 6.1 ng/g、中央値は 6.6 ng/g であった。Dyke ら⁹⁾は、アメリカ産牛乳 104 試料の調査結果 (1.5~11.3 µg/L、平均値 5.74 µg/L、中央値 5.56 µg/L) と日本産牛乳 54 試料の調査結果 (5.45~16.40 µg/L、平均値 9.39 µg/L、中央値 9.34 µg/L) を比較し、日本産の牛乳にはより高濃度の過塩素酸塩が含まれる傾向にあると報告している。FDA は 2004 および 2005 年の調査結果^{*2}として、125 試料中 LOD (1.00 ng/mL) 以下が 3 試料、LOQ (3.00 ng/mL) 以下が 2 試料、他の試料中の過塩素酸塩濃度は 3.16~11.3 ng/mL と報告しており、この結果は本調査とも一致していると言える。

5) 粉乳

乳同様、国産品である 10 試料すべてに過塩素酸塩が 2.5~35.3 ng/g の範囲で含まれ、その平均値は 10.1 ng/g、中央値は 7.5 ng/g であった。これらは粉乳の単位重量当たりの濃度である。実際に飲む乳としての濃度に換算すると、0.3~4.9 ng/g (平均値 1.4 ng/g) となり、牛乳より低濃度であった。No. 10 の試料はコーヒーなどに加えることを用途とする粉乳であり、乳幼児の粉乳より少ない量をコーヒーなどに溶解するのでこちらも特に高い値とはいえない。

6) ヨーグルト

10 試料すべてに過塩素酸塩が 2.1~10.9 ng/g の範囲で含まれ、その平均値は 6.6 ng/g、中央値は 6.4 ng/g であった。

FDA の 2005 および 2006 年の調査報告^{*3}には、粉乳

およびヨーグルトが含まれており、粉乳 8 試料中の過塩素酸塩濃度は ND (<1.00 ng/mL)~3.6 ng/mL、ヨーグルトは 1.7~10.5 ng/g と報告されている。FDA は 4 つの異なる地域の都市からマーケットバスケット方式で試料を集め、各都市ごとにトータルダイエツトスタディのデータを求めているので、これらの値を各都市における平均的な濃度と考えると、本調査結果と比較して特に異なるとは考えられない。

これまでに報告されている調査結果と本調査の結果を俯瞰的に比較すると、ワインおよび魚介類試料中に高濃度の過塩素酸塩を含む試料が数点認められたが、試料別の過塩素酸塩含有量平均値には、大きな差は認められなかった。

ま と め

日本で流通する食品の過塩素酸塩の含有量を調査するため、既報⁵⁾で報告した葉菜類および飲料水に引き続き、ワイン、魚介類、精米、乳、粉乳およびヨーグルトについて調査を行った。その結果、チリ産を中心とするワイン中に比較的高濃度の過塩素酸塩を含む試料が認められたが、その他の食品中の濃度は、ほぼ 10 ng/g 以下であった。本調査の結果は米国での調査結果ともよく一致しており、わが国で流通する食品を摂食することで、過塩素酸塩による健康被害を生じる可能性は低いと考えられる。しかし、産地および調査対象の食品を拡大し、さらに混入する原因を調査するなど、わが国の食品中の過塩素酸塩の含有実態を把握していく必要があるものと考えられる。

文 献

- 1) Blount, B. C., Pirkle, J. L., Osterloh, J. D., Valentin-Blasini, L., Caldwell, K. L. Urinary perchlorate and thyroid hormone levels in adolescent and adult men and women living in the United States. *Environmental Health Perspective*, **114**, 1865-1871 (2006).
- 2) Martinelango, P. K., Tian, K., Dasgupta, P. K. Perchlorate in seawater bioconcentration of iodide and perchlorate by various seaweed species. *Anal. Chim. Acta*, **567**, 100-107 (2006).
- 3) Jackson, W. A., Joseph, P., Laxman, P., Tan, K., Smith, P. N., Yu, L., Anderson, T. A. Perchlorate accumulation in forage and edible vegetation. *J. Agric. Food Chem.*, **53**, 369-373 (2005).
- 4) Sanchez, C. A., Krieger, R. I., Khandaker, N., Moore, R. C., Holts, K. C., Neidel, L. L. Accumulation and perchlorate exposure potential of lettuce produced in the lower colorado river region. *J. Agric. Food Chem.*, **53**, 5479-5486 (2005).
- 5) Takatsuki, S., Watanabe, T., Sakai, T., Matsuda, R., Maitani, T. Surveillance of perchlorate level in leafy vegetables and bottled water. *Shokuhin Eiseigaku Zasshi (J. Food Hyg. Soc. Japan)*, **50**, 184-189 (2009).
- 6) Aribi, H. E., Blanc, Y. J. C. L., Antonsen, S., Sakuma, T. Analysis of perchlorate in foods and beverages by ion chromatography coupled with tandem mass spec-

- trometry (IC-ESI-MS/MS), *Anal. Chim. Acta*, **567**, 39–47 (2006).
- 7) Krynitsky, A. J., Niemann, R. A., Nortrup, D. A. Determination of perchlorate anion in foods by ion chromatography-tandem mass spectrometry. *Anal. Chem.*, **76**, 5518–5522 (2004).
- 8) Krynitsky, A. J., Niemann, R. A., Williams, A. D., Hopper, M. L., Streamlined sample preparation procedure for determination of perchlorate anion in food by ion chromatography-tandem mass spectrometry. *Anal. Chim. Acta*, **567**, 94–99 (2006).
- 9) Dyke, J. V., Ito, K., Obitsu, T., Hisamatsu, Y., Dasgupta, P. K., Blount, B. C. Perchlorate in dairy milk. Comparison of Japan versus the United States. *Environ. Sci. Technol.*, **41**, 88–92 (2007).