

汚染化学物質の食事経路による1日摂取量の推定

—別府市における調査研究—

松本比佐志*¹、木村慎太郎²

【要 旨】

別府市内で市販食品（113～118品目）を購入し、その摂取量に応じて13群の試料を調製した。各試料中のポリ塩化ビフェニル、有機塩素系農薬21種、有機リン系農薬14種、重金属7種の濃度を分析し、各々の1日摂取量を求めた。各化合物の4年間の平均値を一日許容摂取量や耐容週間摂取量と比較したところそれらの値を超えるものはなかった。銅、亜鉛の摂取量は推定平均必要量を満たしていたが、マンガンでは摂取目安量を満たしていなかったと推測される。

【キーワード】

1日摂取量、ポリ塩化ビフェニル（PCB）、有機塩素系農薬、有機リン系農薬、重金属

緒 言

汚染化学物質のうち農薬などによる食を介した摂取により、ヒトに健康被害が生じる危険性を危惧する人々は少なくない。最近、輸入食品に基準値を大幅に超える農薬が混入し、その喫食者に健康被害が生じる事例^{1,2)}が報告された。そのような事例により食品の安全性に対する不安が生じ、食品中の汚染化学物質による健康被害を危惧する人々がさらに増加するおそれがある。

しかし、近年、国内に流通する食品の調査では、農薬等の濃度が残留基準値を下回るものが大部分であり、基準値を大幅に超える汚染が検出される例は皆無と言って良い³⁻⁵⁾。検疫所における最近の輸入食品の統計においても、違反事例は届出件数の0.1%程度であり、さらにその中で基準値を超えた農薬が占める食品の件数は特に多いとは言えない⁶⁾。

日本人が食を介して摂取する汚染物質の量は、以前より国内で継続調査されてきている⁷⁻⁹⁾。近年では、有機化合物の1日摂取量は一日許容摂取量（ADI）を超えることは無く、ADIの1%以下と報告されているが、金属類のうちカドミウム（Cd）の1日摂取量が多い〔（暫定耐容週間摂取量（PTWI）から得られる耐容一日摂取量（TDI）の約50%）⁹⁾〕ことが明らかとなっている。また、硝酸は、ほとんどADI値に等しい量を摂取している¹⁰⁾。

* 連絡者・別冊請求先（E-mail：hmatsumo@beppu-u.ac.jp）

¹ 別府大学食物栄養科学部（874-8501 大分県別府市北石垣82）

² 日本食品分析センター大阪支所（564-0051 大阪府吹田市豊津町3番1号）

一方、大分県別府市の人々においても汚染物質などの摂取量は他の地域における従来の検出値とそれほど変わらない値と想定される。しかし、どの程度摂取しているか調査することは、食の安全を科学的に裏付ける上で重要なことと考えられる。著者らは、大分県別府市において、摂取量調査として比較的繁用度の高いマーケットバスケット方式によるトータルダイエツト法¹¹⁻¹³⁾を用いて試料を調製し、試料中のポリ塩化ビフェニル (PCB)、有機塩素系農薬、有機リン系農薬、ならびに重金属を分析し、その1日摂取量を4年間調査したので報告する。

実 験 方 法

1. 分析試料の調製

試料の調製は、2006から2009年の夏季に毎年1回行った。2006年の試料は2001から2003年の日本人の国民健康・栄養調査、2007から2009年の試料は2002から2004年の国民健康・栄養調査に基づき試料を調製した。すなわち、日本人の国民健康・栄養調査から得られた国民栄養調査成績食品群別摂取量表(北九州地域)に基づき、その摂取量に応じて年毎に別府市内のスーパーマーケットで購入した食品(113~118食品)を13群に分類し、そのまま、あるいは通常調理を行う食品には簡単な調理(煮る、炒める、焼くなど)を加えて試料を調製し、これらを群毎に混合して汚染物質の分析試料とした。14群の飲料水は水道水を用いた。Table 1に2009年の食品群別表とその一日摂取量などを示した。

2. 分析対象化合物

分析項目は、有機塩素系化合物としてポリ塩化ビフェニル (PCB)、ヘキサクロロシクロヘキサン (HCH) 類 (α -, β -, γ -, δ -HCH)、ジクロロジフェニルトリクロロエタン (DDT) 関連化合物 [o, p' -ジクロロジフェニルジクロロエタン (DDD)、 p, p' -DDD、 o, p' -ジクロロジフェニルジクロロエチレン (DDE)、 p, p' -DDE、 o, p' -DDT、 p, p' -DDT)]、クロルデン類 ($trans$ -, cis -ノナクロル、 $trans$ -, cis -クロルデン、オキシクロルデン)、ヘプタクロル、ヘプタク

Table 1 List of classified foods of total diet sample in 2009.

| No. | Group of foods | No. of foods | Representative foods | Cooking methods | Weight (g/day) |
|-----|-------------------------------|--------------|-----------------------------|-------------------|----------------|
| 1 | Rice and rice processed foods | 2 | White rice, rice cake | Cooked, etc | 357 |
| 2 | Cereals except rice | 15 | Bread, wheat noodle, potato | Boiled, etc | 163 |
| 3 | Sugar and bakery | 6 | Sugar, biscuit, cream puff | Raw | 33 |
| 4 | Lipids | 3 | Rapeseed oil, butter | Raw | 10 |
| 5 | Pulse | 6 | Bean curd, natto, soy milk | Raw | 60 |
| 6 | Fruits | 10 | Citrus, apple, banana | Raw | 106 |
| 7 | Green and yellow vegetables | 10 | Carrot, tomato, squash | Boiled, etc | 91 |
| 8 | Other vegetables and seaweed | 13 | Radish, onion, cabbage | Boiled, etc | 196 |
| 9 | Beverages | 7 | Green tea, beer, coffee | Raw | 582 |
| 10 | Fish and shellfish | 21 | Mackerel, salmon, shrimp | Grilled, raw, etc | 82 |
| 11 | Meats and egg | 7 | Beef, pork, chicken | Stir-fried, etc | 115 |
| 12 | Milk and dairy products | 4 | Milk, yogurt, cheese | Raw | 145 |
| 13 | Seasonings | 10 | Soy sauce, vinegar, miso | Raw | 86 |
| 14 | Drinking water | 1 | Tap water | Raw | 250 |

One hundred fifteen foods were used for total diet study and the total weight of daily intake was 2,276 g/day.

ロルエポキシド、ヘキサクロロベンゼン、ディルドリン、アルドリン、エンドリンを、有機リン系農薬では、アニロフォス、クロロピリフォス、ダイアジノン、ジクロロポス、ジメトエート、ジスルフォトン、フェニトロチオン、フェンチオン、イプロベンフォス、イソフェンフォス、マラチオン、メチダチオン、フェントエート、ピペロフォスを対象とした。重金属は総水銀(Hg)、鉛(Pb)、Cd、ヒ素(As)、銅(Cu)、マンガン(Mn)、亜鉛(Zn)を分析した。

3. 分析方法

有機化学物質は、既報の方法^{4,7)}に準じて分析を行った。ただし、有機塩素系農薬、有機リン系農薬はガスクロマトグラフィー/マススペクトロメトリー(GC/MS)を用い、選択イオンモニタリング法で検出した。分析に用いた各化合物のモニターイオンをTable 2に示した。

GC/MSは島津製作所製GCMS-QP5050Aを用い、分析条件は以下の通りであった。カラム：DB-1キャピラリーカラム(内径0.25 mm×長さ30 m、膜厚0.25 μ m、J & W Scientific社製)及びBPX5キャピラリーカラム(内径0.25 mm×長さ30 m、膜厚0.25 μ m、SGE社製)。気化室温度：230°C、インターフェース温度：280°C、キャリアーガス：He、流量：1 ml/分、スプリット比：1/60、カラムオープン温度プログラム：50°C(2分)-10°C/分-200°C-5°C/分-280°C。

PCBはHP-1カラム(内径0.53 mm×10 m、膜厚2.65 μ m、Agilent Technology社製)を装着した電子捕獲型検出器付きGCにより分析した。重金属は、衛生試験法・注解に準じて試料の前処理を行った後、原子吸光光度法または誘導結合プラズマ発光分光分析法により測定した¹⁴⁾。

結果と考察

ヒトが食を介して摂取する汚染化学物質の量を求めるにはいくつかの方法がある⁹⁾。その一つは、行政分析機関が行った分析結果を利用する方法で、これらの機関による汚染物質などの残留値を基に個別の食品からの摂取量を求めることができる^{15,16)}。一方、農薬や重金属などの摂取量を測定する方法には、本実験で用いたマーケットバスケット方式⁷⁻¹⁰⁾や、すでに調理された個々の食事を分析する陰膳方式などがある^{8,9)}。前者の方法は、ある地域における分析時の平均的な摂取量が求まるが、その値が食品の選び方によって変動する危険性がある。また、後者の方法では、様々な食品に対応して多くの試料を分析する必要がある。また、リスク管理において高暴露群の摂取量が必要な場合は、確率論的手法であるモンテカルロ法¹⁷⁾がよく用いられる。一方で、アンケートを基に生産流通量から推定する方法も試みられている。しかし、時間や労力を含む費用面、得られる情報の信頼性などを考えるとどの方法にも長所・短所が認められる。

これまでに汚染物質の経口的摂取量の推定に、欧米や日本などではマーケットバスケット方式によるトータルダイエツト法が比較的多く実施され、摂取量の分析値が集積されている^{7-10,13)}。そこで、著者らはこの方法に基づき、別府市の人々がどの程度汚染物質を経口的に摂取しているかを調べるため、試料を調製し、その分析を行った。検出された化合物から得られた摂取量の4年間の結果をTable 3に示す。なお、分析項目の化合物のうち、4年間で検出が認められなかった化合物はこの表に記載していない。

1. 有機化合物の1日摂取量の推定

PCBや一部の有機塩素系農薬に微量の摂取量検出が認められたが、有機リン系農薬の検出はほとんど認められなかった。PCB、有機塩素系農薬や有機リン系農薬の一部が使用禁止されて以来、その濃度は急激に減少傾向を示しており、近年ではそれらの値は未検出かほぼ横ばいの定常

Table 2 Monitoring ions of organic compounds for GC/MS analysis.

| Chemicals | Monitoring ions (m/z) | | Chemicals | Monitoring ions (m/z) | |
|-------------------------|--------------------------|-----|---------------|--------------------------|-----|
| α -HCH | 219 | 183 | Dieldrin | 277 | 263 |
| β -HCH | 219 | 183 | Aldrin | 263 | 265 |
| γ -HCH | 219 | 183 | Endrin | 263 | 265 |
| δ -HCH | 219 | 183 | Anilofos | 226 | 184 |
| <i>o, p'</i> -DDD | 235 | 237 | Chloropyrifos | 199 | 197 |
| <i>p, p'</i> -DDD | 235 | 237 | Diazinon | 179 | 137 |
| <i>o, p'</i> -DDE | 246 | 248 | Dichlorovos | 109 | 79 |
| <i>p, p'</i> -DDE | 318 | 246 | Dimethoate | 87 | 125 |
| <i>o, p'</i> -DDT | 235 | 237 | Disulfoton | 88 | 97 |
| <i>p, p'</i> -DDT | 235 | 237 | Fenitrothion | 277 | 260 |
| <i>trans</i> -Nonachlor | 409 | 407 | Fenthion | 278 | 125 |
| <i>cis</i> -Nonachlor | 409 | 407 | Iprobenfos | 91 | 204 |
| <i>trans</i> -Chlordane | 373 | 375 | Isofenphos | 213 | 121 |
| <i>cis</i> -Chlordane | 373 | 375 | Malathion | 127 | 173 |
| Oxychlordane | 389 | 387 | Methidathion | 145 | 85 |
| Heptachlor | 272 | 274 | Phenthoate | 274 | 125 |
| Heptachlor epoxide | 353 | 355 | Piperophos | 320 | 140 |
| Hexachlorobenzene | 284 | 286 | | | |

HCH : Hexachlorocyclohexane, DDD : Dichlorodiphenyldichloroethane,
DDE : Dichlorodiphenyldichloroethylene, DDT : Dichlorodiphenyltrichloroethane.

的な値を示している³⁻⁵⁾。そこで、著者らは得られた汚染物質の濃度の平均値を求め、この値をADIおよび暫定ADIと比較した。

有機塩素系化合物のうち、HCH類の摂取量はそのADIの0.02%、DDT関連化合物の摂取量はそのADIの0.2%、ディルドリン（アルドリンを含む）の摂取量はそのADIの0.42%、ヘキサクロロベンゼンの摂取量はそのADIの0.02%、クロルデン類の摂取量はそのADIの0.28%、PCBの摂取量では暫定ADIの0.17%となった。したがって、個別の有機化合物のADIと比較した結果から、経口摂取によるこれらの化合物の摂取量は、特にヒトに健康被害をもたらす量とは考えられなかった。

2. 重金属の1日摂取量の推定

重金属は分析した7項目すべてに検出が認められた。

Cdでは、そのPTWI (7 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{週}$: FAO/WHO 合同食品添加物専門家会議による) から50 kg ヒト体重に換算すると、TDIとして50 $\mu\text{g}/\text{日}$ が計算される。本実験で得られた1日摂取量はその値の52%となった。しかし、Cdの生物学的半減期の長さを考慮して暫定耐容月間摂取量が新しく設定され¹⁸⁾、これによるとTDIが42 $\mu\text{g}/\text{日}$ と算出されるため、本実験の4年間の平均値はその値の62%となった。日本人の食品からのCd摂取量の年次推移を見ると経年的に0.3~0.4 $\mu\text{g}/\text{年}$ 程度の減少傾向が見られ¹⁹⁾、米食を摂取する割合が減少していることが主因と考えられているが、本実験のような短期間の調査では摂取量の減少傾向は認められなかった。

PbのPTWI (25 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{週}$) からTDI値は179 $\mu\text{g}/\text{日}$ が計算され、本実験の1日摂取量はその値の9.5%となった。しかし、2010年、閾値が不明であるとしてそのPTWIは撤回され、新しいPTWIは設定されていない¹⁸⁾。また、Hgの1日摂取量はそのPTWI (5 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{週}$) から得られ

た TDI 値 $36 \mu\text{g}/\text{日}$ と比べるとその 22% の値となった。この検出値の Hg がすべてメチル水銀だと仮定しても、その PTWI ($1.6 \mu\text{g}/\text{kg}/\text{週}$) から算出された TDI ($11.4 \mu\text{g}/\text{日}$) を超えてはいない。しかし、より厳密なリスク評価を行うためには、Hg とメチル水銀の分析を個別に行うことが必要となる。無機 As の PTWI ($15 \mu\text{g}/\text{kg}/\text{週}$) から算出された TDI ($107 \mu\text{g}/\text{日}$) から考えると本実験の As の 1 日摂取量はこの値を超えていた。As についても有機 As が海草などに多く含まれていること²⁰⁾から、有機 As と無機 As を分別して分析する必要がある。

Cu の食事摂取基準²¹⁾において推定平均必要量 (EAR) は成人女性で $0.5 \text{ mg}/\text{日}$ および $0.6 \text{ mg}/\text{日}$ 、成人男性で $0.6 \text{ mg}/\text{日}$ である。摂取推奨量 (RDA) は成人女性で $0.7 \text{ mg}/\text{日}$ 、成人男性で $0.8 \text{ mg}/\text{日}$ である。また、どちらも上限量は $10 \text{ mg}/\text{日}$ である。本実験の平均値は成人男女で RDA を上回っていると考えられた。

Zn の食事摂取基準²¹⁾において EAR は成人女性で $6 \text{ mg}/\text{日}$ 、成人男性で $7 \text{ mg}/\text{日}$ および $8 \text{ mg}/\text{日}$ である。RDA は成人女性で $6 \text{ mg}/\text{日}$ 、成人男性で $8 \text{ mg}/\text{日}$ および $9 \text{ mg}/\text{日}$ である。また、どちらも上限量は $30 \text{ mg}/\text{日}$ である。本実験の平均値は成人男女で EAR を上回っており、成人女性では RDA を満たしていたが、成人男性では RDA を満たしていなかったと推測される。

Mn の食事摂取基準²¹⁾において摂取目安量は成人女性で $3.5 \text{ mg}/\text{日}$ 、成人男性で $4.0 \text{ mg}/\text{日}$ であり、どちらも上限量は $11 \text{ mg}/\text{日}$ である。本実験の平均値は成人男女ともに摂取目安量を上回っていないと推測される結果となった。

Cu、Zn、Mn の 3 元素は生体にとって必須元素であり、酵素反応に関与することが判明している²²⁾。特に本実験の Mn の摂取量は他の報告^{23,24)}の範囲 ($3 \sim 4 \text{ mg}/\text{日}$) と比べると、やや低い値になっており、穀類、豆類や海藻類を摂食する機会が減少してきていることが主因と推測される。

3. 各化合物の検出割合及び群別の寄与率

HCH 類のうち、最も検出割合が高かったのは β -HCH で、64% を占めた。DDT 関連化合物のうち、最も検出割合が高かったのは p, p' -DDE の 41% で、次いで p, p' -DDT の 26% であった (Table 3)。クロルデン類では *trans*-ノナクロルの検出割合が 42% と最も高く、次いで *cis*-ノナクロルと *cis*-クロルデンのそれぞれ 25% であった (Table 3)。

ここには示していないが、HCH 類、DDT 関連化合物、クロルデン類の有機塩素系農薬は 10 群の魚介類、11 群の食肉・卵類に高率に検出され、総摂取量に対する寄与率の高いことが分かった。それゆえ、脂肪を多く含む食品中の有機塩素系化合物を分析してそれらの一日摂取量を概算する方法が実施されてきた^{25,26)}。また、PCB、As 及び Hg も 10 群魚介類に多く検出された。

Cu は 1 群の米・米加工品と 2 群の米以外の穀類、次いで 5 群の豆類に、Pb は比較的 1 群に多く検出された。Mn は 1、2、5、13 群に多く検出された。この傾向は、国立医薬品食品衛生研究所が取りまとめた 10 機関に基づくものと同様であった⁹⁾。

4. 検出値に対する検証

別府市における 4 年間の分析平均値を国立医薬品食品衛生研究所が取りまとめた分析値⁹⁾のそれと比較してみると、HCH 類で 3.1 倍、DDT 関連化合物で 1.5 倍と高い値を示したが、ヘキサクロロベンゼン、ヘプタクロロエポキシド、ディルドリン、PCB は 13~87% と低い値を示した。重金属の比較では、81%~115% とほぼ変わらない値を示したことから、有機塩素系化合物 (特に HCH 類、DDT 関連化合物) が生物濃縮を受けた食品を採取し、分析を行った可能性が推察

Table 3 Daily intakes of chemicals by total diet study for 4 years.

| Chemicals | Daily intakes ($\mu\text{g/day}$) | | | | | ADI ^{f)} or TDI ^{g)} ($\mu\text{g/day}$) |
|--------------------------------|-------------------------------------|---------|---------|---------|---------------------------|---|
| | in 2006 | in 2007 | in 2008 | in 2009 | Av \pm SD ^{e)} | |
| α -HCH | 0.047 | 0.023 | 0.033 | nd | 0.026 \pm 0.020 | |
| β -HCH | 0.046 | 0.143 | 0.068 | 0.056 | 0.078 \pm 0.044 | |
| γ -HCH | 0.031 | nd | 0.042 | nd | 0.018 \pm 0.022 | |
| Total-HCH ^{a)} | 0.124 | 0.166 | 0.143 | 0.056 | 0.122 \pm 0.047 | 625 ^{h)} |
| <i>o, p'</i> -DDD | 0.016 | nd | 0.034 | 0.048 | 0.025 \pm 0.021 | |
| <i>o, p'</i> -DDT | 0.036 | 0.065 | 0.048 | 0.076 | 0.056 \pm 0.018 | |
| <i>p, p'</i> -DDD | 0.058 | 0.074 | 0.064 | 0.127 | 0.081 \pm 0.032 | |
| <i>p, p'</i> -DDE | 0.170 | 0.221 | 0.151 | 0.280 | 0.205 \pm 0.058 | |
| <i>p, p'</i> -DDT | 0.129 | 0.101 | 0.109 | 0.180 | 0.130 \pm 0.036 | |
| Total-DDT ^{b)} | 0.409 | 0.460 | 0.406 | 0.710 | 0.496 \pm 0.145 | 250 ^{h)} |
| HCB | 0.010 | 0.011 | nd | nd | 0.005 \pm 0.006 | 30 ⁱ⁾ |
| Dieldrin | 0.026 | nd | 0.058 | nd | 0.021 \pm 0.028 | 5 ⁱ⁾ |
| Heptachlor epoxide | nd ^{d)} | 0.021 | nd | nd | 0.005 \pm 0.011 | |
| <i>cis</i> -Chlordane | 0.017 | 0.018 | 0.018 | 0.018 | 0.018 \pm 0.000 | |
| Oxychlordane | nd | nd | nd | 0.021 | 0.005 \pm 0.011 | |
| <i>trans</i> -Nonachlor | 0.025 | 0.039 | 0.018 | 0.038 | 0.030 \pm 0.010 | |
| <i>cis</i> -Nonachlor | 0.012 | 0.012 | 0.016 | 0.031 | 0.018 \pm 0.009 | |
| Total Chlordanes ^{c)} | 0.054 | 0.070 | 0.053 | 0.108 | 0.071 \pm 0.026 | 25 ⁱ⁾ |
| PCB | 0.828 | 0.163 | 0.298 | 0.450 | 0.435 \pm 0.287 | 250 ^{j)} |
| Hg | 6.7 | 7.7 | 8.2 | 9.0 | 7.9 \pm 1.0 | 36 ^{k)} |
| Pb | 1.8 | nd | 56 | 9.0 | 17 \pm 26 | 179 ^{k)} |
| Cd | 29 | 24 | 22 | 28 | 26 \pm 3.4 | 50 ^{k)} |
| As | 206 | 156 | 188 | 220 | 193 \pm 28 | |
| Cu | 1920 | 1150 | 1210 | 1080 | 1340 \pm 390 | |
| Mn | 4420 | 2520 | 3300 | 2480 | 3180 \pm 909 | |
| Zn | 10100 | 7070 | 6850 | 7560 | 7900 \pm 1500 | |

a) total amounts of α -, β -, γ -, and δ -HCH.

b) total amounts of *o, p'*-DDD, *o, p'*-DDE, *o, p'*-DDT, *p, p'*-DDD, *p, p'*-DDE and *p, p'*-DDT.

c) total amounts of *trans*-, *cis*-chlordane, oxychlordane, *trans*- and *cis*-nonachlor.

d) not detected (under limit of quantitation).

e) calculated as nd is nothing.

f) acceptable daily intake : calculated assuming that Japanese weight is 50 kg.

g) tolerable daily intake : calculated assuming that Japanese weight is 50 kg.

h) ADI established by The Japanese Ministry of Health, Labor and Welfare.

i) ADI established by FAO/WHO JMPR.

j) provisional ADI established by The Japanese Ministry of Health, Labor and Welfare.

k) calculated on the basis of provisional tolerable weekly intake of FAO/WHO JECFA.

されるが、その詳細は不明である。

今回の調査結果では、検出されなかった試料は不検出 (nd) の値を 0 として算出した。この値は各群の検出限界によって異なり、検出感度を高くすれば検出値が増加する可能性があるが、感度を低く設定すればほとんど検出されないおそれがある。したがって、得られた値の検出感度に対しその際に残留する可能性のある最大値を考慮して定量限界 (LOQ)²⁷⁾ の半分量の 1/2 LOQ の値を最大可能摂取量として考慮することが妥当と考えられる。WHO の GEMS では汚染物質の代表値を計算する際に、nd では無いデータが全体の 6 割以上ある場合には、nd のデータを 1/2 LOQ として計算することを推奨している²⁸⁾。金属分析の Cu、Mn、Zn のようにほとんどの群で検出が認められる場合は nd の値を 1/2 LOQ としても nd = 0 の総量とほとんど差異は無いと

考えられるが、わずかの群のみに化学物質が検出される場合では $nd = 1/2 \text{ LOQ}$ とすることで極めて高い値が算出されるおそれがあるため、その場合は参照値となる。

また、本試料の分析は、分析に係わる利便性から夏期にのみ行ったが、春夏秋冬の四季に試料を調製することや、分析試料の食品数を可能な限り多くすることにより、より正確で平均的な摂取量値が求められるものと考えられる。

本研究は、厚生労働科学研究費補助金のうち、食品の安心・安全確保推進事業：食品中の有害物質等の摂取量の調査及び評価に関する研究の分担協力研究として行われたものであり、国立医薬品食品衛生研究所米谷民雄元部長、松田りえ子部長、渡邊敬浩室長ならびに各スタッフに深謝致します。また、試料の調製にご協力頂いた別府大学の学生達に感謝の意を表します。

文 献

- 1) 厚生労働省食品安全部、中国産冷凍餃子を原因とする薬物中毒事案について－行政及び事業者等の対応の検証と改善策－、<http://www.mhlw.go.jp/topics/bukyoku/iyaku/syoku-anzen/china-gyoza/dl/01.pdf>、平成20年7月
- 2) 厚生労働省食品安全部、中国産冷凍いんげんからの農薬の検出について、<http://www.mhlw.go.jp/houdou/2008/10/h1015-1.html>、平成20年10月15日
- 3) Ishikawa S, Naetoko E, Kawamura S, Yamaguchi R, Higuchi M, Kojima T, Yamato Y, Takahashi M. Investigation of pesticide residues in foods distributed in Kitakyushu city, *Shokuhin Eiseigaku Zasshi (Food Hygiene and Safety Science)*, **45**, 87–94 (2004)
- 4) Matsumoto H, Kuwabara K, Murakami Y, Murata H. Survey of PCB and organic pesticides in meats and processed meat products collected in Osaka, Japan, *Shokuhin Eiseigaku Zasshi (Food Hygiene and Safety Science)*, **47**, 127–135 (2006)
- 5) Kobayashi M, Takano I, Tamura Y, Tomizawa S, Tateishi Y, Sakai N, Kamijo K, Ibe A, Nagayama T. Survey of pesticide residues in imported cereal products (1994.4~2006.3), *Shokuhin Eiseigaku Zasshi (Food Hygiene and Safety Science)*, **49**, 249–260 (2008)
- 6) 厚生労働省、輸入食品等の食品衛生法違反事例（平成18年度）、<http://www.mhlw.go.jp/topics/yunyu/1-4/0604-0703.html>
- 7) Kuwabara K, Matsumoto H, Murakami Y, Hori S. Daily dietary intakes of PCBs and organochlorine pesticides during 19 years from 1977 to 1995 by adults in Osaka evaluated by the total diet study method, *Shokuhin Eiseigaku Zasshi (Food hygiene and Safety Science)*, **38**, 286–295 (1997)
- 8) Kojima N, Tsuda T, Harada H. Market basket and duplicate portion estimation of daily intake of chemical contaminants, *Jpn. J. Food Chem.*, **4**, 42–47 (1997)
- 9) 松田りえ子、食品の安心・安全確保推進研究事業：食品中の有害物質等の摂取量の調査及び評価に関する研究、厚生労働科学研究費補助金平成19年度～21年度総合研究報告書（2009）
- 10) Matsuda R, Watanabe T, Ikarashi A, Shiramasa Y, Maitani T. Estimation of the daily intake of nitrate based on analysis of total diet samples, *Shokuhin Eiseigaku Zasshi (Food hygiene and Safety Science)*, **50**, 29–33 (2009)
- 11) トータルダイエットスタディーに関するガイドライン、http://www.maff.go.jp/j/syouan/seisaku/risk_analysis/tds/pdf/totaldiet_gl.pdf
- 12) Fourth International Workshop on Total Diet Studies, Beijing, China, 23–27 October 2006, <http://www.who>.

- int/foodsafety/chem/meetings/tds_Beijing06/en/index.html
- 13) Total Diet Study, <http://www.fda.gov/Food/FoodSafety/FoodContaminantsAdulteration/TotalDietStudy/default.htm>
 - 14) 日本薬学会編、衛生試験法・注解2005、金原出版、p. 28-47 (2005)
 - 15) Ishiwata H, Sugita T, Kawasaki Y, Takeda Y, Yamada T, Nishijima M, and Fukasawa Y. Estimation of anti-fungal agent concentrations allowed as food additives in food and their daily intake based on official inspection results in Japan in fiscal year 1996, *Shokuhin Eiseigaku Zasshi (Food hygiene and Safety Science)*, **40**, 407-416 (1999)
 - 16) MacIntosh DL, Spengler JD, Özkaynak H, Tsai L, Ryan PB. Dietary exposures to selected metals and pesticides, *Environ. Health Perspect.*, **104**, 202-209 (1996)
 - 17) カドミウムの最大基準値案 (ステップ3) に対する日本政府の意見 (仮訳)、http://www.maff.go.jp/j/study/codex/11/pdf/ref_data03.pdf
 - 18) Joint FAO/WHO Expert Committee on Food Additives Seventy-third meeting [Summary and Conclusion], <http://www.fao.org/ag/agn/agns/jecfa/JECFA73%20Summary%20Report%20final.pdf>
 - 19) Kayama F. Current trends of international evaluation and setting a new tolerable intake of cadmium at JECFA, *Food Sanit. Res.*, **60 (11)**, 35-40 (2010)
 - 20) 日本食品衛生学会編、食品安全の事典、朝倉書店、p. 240-242 (2009)
 - 21) 厚生労働省健康局、日本人の食事摂取基準 (2005年版) について - 食事摂取基準 (別添) -, p. 39-42、平成16年11月22日
 - 22) 日本薬学会編、環境・健康科学辞典、丸善、p. 3, p. 457, p. 669-670 (2005)
 - 23) 白石久二雄、微量元素の摂取量、臨床栄養、**84**, 381-389 (1994)
 - 24) 上岡薫、岩淵美香、若村明子、岡山和代、内野美恵、鈴江緑衣郎、国民栄養調査に基づく無機質 (クロム、マンガ、セレン) の摂取状況に関する研究、昭和女子大学大学院生活機構研究科紀要、**4**, 53-62 (1995)
 - 25) Nakagawa R, Hirakawa H, Hori T. Estimation of 1992-1993 dietary intake of organochlorine and organophosphorus pesticides in Fukuoka, Japan, *J. AOAC Int.*, **78**, 921-929 (1995)
 - 26) Herrera A, Arino A, Conchello P, Lazaro R, Bayarri S, Perez-Arquillue C, Garrido MD, Jodral M, Pozo R. Estimates of mean daily intakes of persistent organochlorine pesticides from Spanish fatty foodstuffs, *Bull. Environ. Contam. Toxicol.*, **56**, 173-177 (1996)
 - 27) Armbruster DA, Pry T. Limit of blank, limit of detection and limit of quantitation, *Clin. Biochem. Rev.*, **29** Suppl (i), S49-S52 (2008)
 - 28) WHO : Global Environment Monitoring System - Food Contamination Monitoring and Assessment Programme (GEMS/Food), <http://www.who.int/foodsafety/chem/gems/en/index.html>

**Estimates on daily dietary intakes of chemical contaminants
- An investigation of the residents in Beppu city,
located in the north area of Kyusyu, Japan -**

Hisashi MATSUMOTO*¹ and Shintaro KIMURA²

Summary : A total diet study using market basket method was performed for 4 years at Beppu city, located in north area of Kyusyu, Japan. After purchasing foodstuffs (113~118

items) in accordance with the average intakes of Japanese food consumption of this area, they were prepared based on usual cooking methods. They were classified into 13 groups of samples, such as fruits, pulse and beverages, and then each was mixed with or without water. We analyzed PCB, 21 organochlorine pesticides, 14 organophosphorous pesticides, 7 heavy metals in the samples and tap water and therefore obtained average daily dietary intakes (DDIs) of these chemicals. When compared with either acceptable daily intake (ADI) or provisional ADI or provisional tolerable weekly intake (PTWI), these DDIs were the values from 0.02% to 52% of these certified intakes. It was concluded that DDIs of these compounds might not be harmful for health of residents of Beppu city. Based on Japanese dietary reference intakes, DDI of Cu was more than both the estimated average requirement (EAR) and the recommended dietary allowance (RDA). DDI of Zn was higher than the EAR for both men and women, but it was the value below the RDA for men although it was above that for women. DDI of Mn was less than the adequate intake.

Key words : daily intake, PCB, organochlorine pesticide, organophosphorous pesticide, heavy metal

* Corresponding author (E-mail : hmatsumo@beppu-u.ac.jp)

¹ Faculty of Food and Nutritional Sciences, Beppu University, 82, Kita-ishigaki, Beppu, Oita, 874-8501, Japan

² Osaka Branch, Japan Food Research Laboratories, 3-1, Toyotsu-cho, Suita, Osaka, 564-0051, Japan