

加工食品由来の防かび剤の一日摂取量について

Daily Intake of Fungicides from Processed Foods

千葉貴子 千田有美 安永恵
 Takako CHIBA Yumi SENDA Megumi YASUNAGA
 西岡千鶴 山下みよ子
 Chiduru NISHIOKA Miyoko YAMASHITA

要 旨

食品添加物を含む食品の安全性を確保するため、厚生労働省の委託研究として「食品添加物1日摂取量調査」をマーケットバスケット方式により実施している。平成16年度は、加工食品由来の防かび剤（OPP, DP, TBZ, IMZ）について調査を行った。4種類の防かび剤のうちTBZのみ第6群（砂糖類, 菓子類）, 第7群（果実類, 野菜類, 海藻類）から検出され、平均一日摂取量は0.000047mg/日/人であった。

キーワード：食品添加物一日摂取量 マーケットバスケット方式 防かび剤

I はじめに

食品添加物を含む食品の安全性を確保するため、厚生労働省の委託研究として「食品添加物一日摂取量調査」を全国6機関（札幌市衛生研究所, 仙台市衛生研究所, 東京都健康安全研究センター, 香川県環境保健研究センター, 北九州市環境科学研究所, 沖縄県衛生環境研究センター）でマーケットバスケット方式により実施している。平成16年度は加工食品由来の防かび剤（オルトフェニルフェノール（以下OPP）, ジフェニール（以下DP）, チアベンダゾール（以下TBZ）, イマザリル（以下IMZ））の摂取量について調査を行ったので、その結果について報告する。

II 方法

1 試料

マーケットバスケット方式により食品喫食量リストに基づき147種類343食品を購入し、表1に示した7食品群に分け、等量の水を加えて均質磨砕したもの（1群は希釈なし）を試料とした。

2 試薬

標準, 有機溶媒等は和光純薬工業（株）製, 残留農薬分析用を使用した。

3 分析方法

東京都立衛生研究所（現：東京都健康安全研究センター）開発による分析方法^{1) 2)}に準じ（移動相を変更）, 各試料群を20g（第1群については40g）採取し定量を行った。分析フローチャートを図1に示す。

表1 試料群及び食品の分類

群名	大分類	状態	主成分	喫食量
1	調味し好飲料	液体	水, アルコール	386.7g
2	穀類	固体	澱粉	117.1g
3	いも類18.1g, 豆類70.3g, 種実類1.2g	固体	澱粉	89.6g
4	魚介類41.1g, 肉類13.8g	固体	蛋白質	54.9g
5	油脂類16.4g, 乳類60.7g	半固体	脂肪	77.1g
6	砂糖類1.4g, 菓子類42.0g	固体	炭水化物	43.4g
7	果実類1.79g, 野菜類26.1g, 海藻類2.7g	半固体	繊維	30.6g

4 装置及び測定条件

分析装置及び測定条件を表2, 3に示す。

表2 防かび剤のHPLC測定条件

装置	島津 LC10ADvp
カラム	Inertsil OD-3 (4.6×250mm)
カラム温度	40°C
移動相	アセトニトリル：メタノール：水 (40：25：35) 0.01M SDS pH2.3~2.5
流量	1.0ml/分 温度：40°C 注入量：20µl
波長	OPP, DP, TBZ, EX ; 285nm, EM ; 325nm, IMZ ; UV230nm

表3 防かび剤のGC/MS測定条件

装置	島津 QP-5050
カラム	DB-5 (30m×0.25mm, 0.25µm)
カラム温度	60°C (2min) -25°C/min -280°C (5min)
注入口温度	230°C
イオン化法	EI法

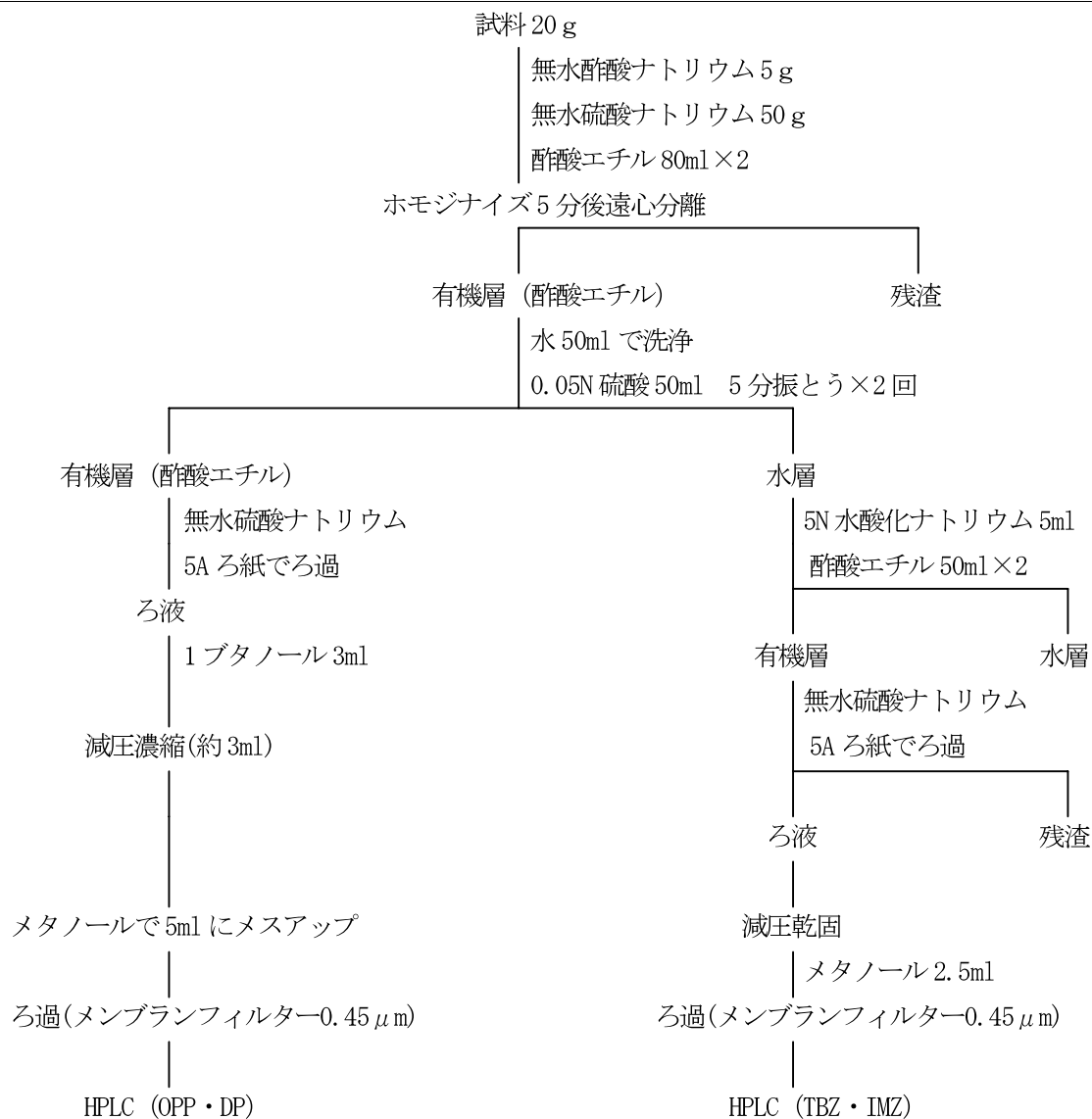


図1 分析フローチャート (OPP, DP, TBZ, IMZ)

5 添加回収実験

実質試料として20gに10 μ g及び50 μ g添加し回収実験を行った。添加回収率及びJ I S HPLC通則法に従い算出した検出限界、定量限界の結果を表4に示す。ま

た標準を添加したクロマトグラムを図2, 3, 4に示す。添加回収率はOPP83.3~98.0%, DP66.3~91.1%, TBZ77.3~92.3%, IMZ72.9%~92.3%であった。

表4 OPP, DP, TBZ, IMZの添加回収率 (%)

	添加量	食品群1	2	3	4	5	6	7
OPP	10 μ g	95.1	96.5	95.3	95.2	83.3	96.3	90.5
	50 μ g	91.1	98.0	97.1	97.9	84.4	93.3	87.1
DP	10 μ g	89.0	83.0	85.2	81.4	66.3	86.6	90.3
	50 μ g	91.1	80.2	80.0	82.9	72.5	87.6	88.3
TBZ	10 μ g	86.2	83.8	88.1	87.2	81.3	84.3	92.3
	50 μ g	87.7	87.5	85.6	85.8	77.3	85.8	88.1
IMZ	10 μ g	81.3	81.6	81.6	87.2	72.9	89.7	92.3
	50 μ g	81.4	88.9	88.3	83.7	73.2	83.9	88.6

試料採取量 20g n=3

OPP 検出限界:0.00036 定量限界:0.002

DP 検出限界:0.0008 定量限界:0.005

TBZ 検出限界:0.00016 定量限界:0.0005

IMZ 検出限界:0.0012 定量限界:0.005 (単位: μ g/g)

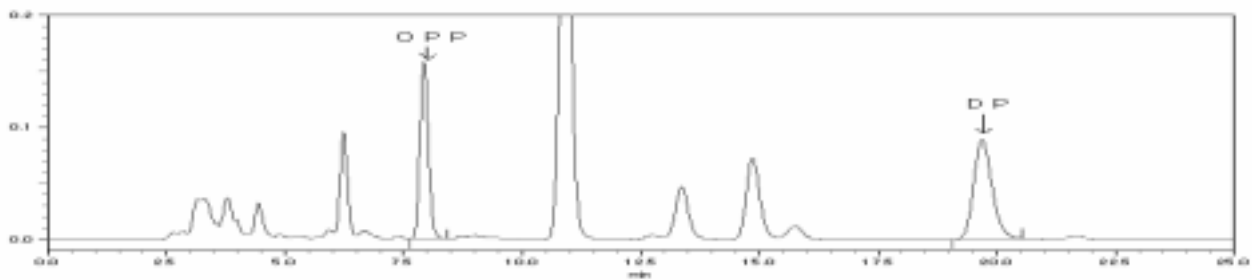


図2 標準を添加した香川第6群試料のクロマトグラム (OPP, DP)

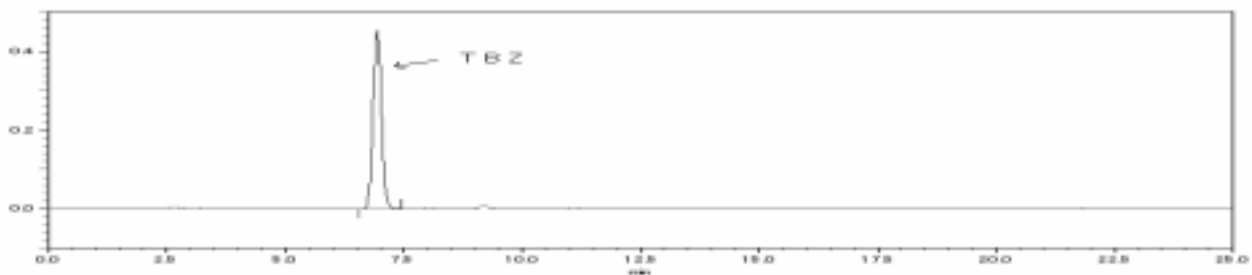


図3 標準を添加した香川第6群試料のクロマトグラム (TBZ)

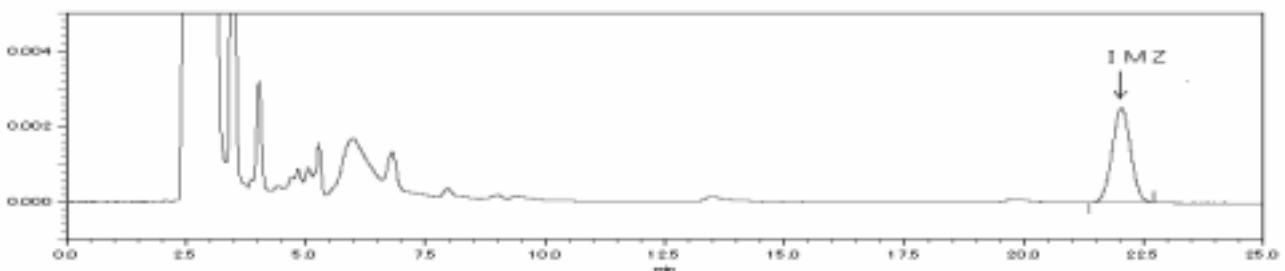


図4 標準を添加した香川第6群試料のクロマトグラム (IMZ)

表5 各機関別・食品群別OPP, DP, TBZ, IMZの含有量

機関名		1群	2群	3群	4群	5群	6群	7群	総含有量
札幌	OPP	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
	DP	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
	TBZ	ND	ND	ND	ND	ND	0.0015	0.0034	0.0049
	IMZ	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
仙台	OPP	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
	DP	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
	TBZ	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
	IMZ	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
東京	OPP	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
	DP	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
	TBZ	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
	IMZ	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
香川	OPP	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
	DP	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
	TBZ	ND	ND	ND	ND	ND	0.0013	0.0009	0.0022
	IMZ	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
北九州	OPP	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
	DP	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
	TBZ	ND	ND	ND	ND	ND	0.0006	ND	0.0006
	IMZ	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
沖縄	OPP	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
	DP	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
	TBZ	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
	IMZ	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
平均	OPP	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
	DP	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
	TBZ	ND	ND	ND	ND	ND	0.00057	0.00072	0.00129
	IMZ	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND

単位：μg/g

表6 各機関別・食品群別OPP, DP, TBZ, IMZの一日摂取量

機関名		1群	2群	3群	4群	5群	6群	7群	総摂取量
札幌	OPP	0	0	0	0	0	0	0	0
	DP	0	0	0	0	0	0	0	0
	TBZ	0	0	0	0	0	0.000065	0.000104	0.000169
	IMZ	0	0	0	0	0	0	0	0
仙台	OPP	0	0	0	0	0	0	0	0
	DP	0	0	0	0	0	0	0	0
	TBZ	0	0	0	0	0	0	0	0
	IMZ	0	0	0	0	0	0	0	0
東京	OPP	0	0	0	0	0	0	0	0
	DP	0	0	0	0	0	0	0	0
	TBZ	0	0	0	0	0	0	0	0
	IMZ	0	0	0	0	0	0	0	0
香川	OPP	0	0	0	0	0	0	0	0
	DP	0	0	0	0	0	0	0	0
	TBZ	0	0	0	0	0	0.000056	0.000028	0.000084
	IMZ	0	0	0	0	0	0	0	0
北九州	OPP	0	0	0	0	0	0	0	0
	DP	0	0	0	0	0	0	0	0
	TBZ	0	0	0	0	0	0.000026	0	0.000026
	IMZ	0	0	0	0	0	0	0	0
沖縄	OPP	0	0	0	0	0	0	0	0
	DP	0	0	0	0	0	0	0	0
	TBZ	0	0	0	0	0	0	0	0
	IMZ	0	0	0	0	0	0	0	0
平均	OPP	0	0	0	0	0	0	0	0
	DP	0	0	0	0	0	0	0	0
	TBZ	0	0	0	0	0	0.000025	0.000022	0.000047
	IMZ	0	0	0	0	0	0	0	0

単位：mg/日/人

Ⅲ 結果及び考察

1 食品群別防かび剤の含有量と一日摂取量

1群から7群の各食品群中の防かび剤(OPP, DP, TBZ, IMZ)について分析を行った。防かび剤の含有量と一日摂取量の結果を表5, 表6に示す。4種類の防かび剤のうちTBZのみ第6群(札幌, 香川, 北九州)第7群(札幌, 香川)から検出された。TBZの含有量は平均で第6群0.00057 μ g/g, 第7群0.00072 μ g/gであった。

各群試料の含有量と一日喫食量から算出したTBZの一日摂取量は0~0.000104 mg/日/人であり, TBZの機関平均一日摂取量は0.000047mg/日/人であった。これは一日許容摂取量(ADI:0.1mg/kg/day, 体重50kgでは5mg/日)のわずか0.00094%で安全性に問題のない量であった。

2 個別食品について

購入したすべての食品の原材料名を確認したが、「防かび剤」使用記載のある食品はなかった。しかし第6群(砂糖類, 菓子類), 第7群(果実類, 野菜類, 海藻類)からTBZが検出された。

第6群について防かび剤を使用していると考えられる食品を, 検出している札幌, 香川, 北九州について検討した。防かび剤は柑橘類によく使用されることから, 各機関調製に使用している「オレンジマーマレード」が疑われた。そこで香川第6群に調製した「オレンジマーマレード」について検査したところ, TBZ0.048 μ g/g, OPP0.049 μ g/g, IMZ0.008 μ g/gが検出され「オレンジマーマレード」が原因食品の一つであることが想定できた。第6群試料調製時の「オレンジマーマレード」の採取量と個別分析したTBZの結果から全体での含有量を単純計算すると0.0005 μ g/gとなり, 第6群のTBZの含有量の約40%であった。

第7群についてもTBZの原因食品を検討した。第7群でTBZを検出しているのは札幌と香川だけであることから, 2機関に共通の「輸入みかん缶詰(原産国:中華人民共和国)」に着眼した。しかし両機関とも試料調製後の残品がなく分析できなかった。そこで中華人民共和国のみかん缶詰(粒のサイズが異なる, 輸入者が異なる)を札幌, 香川あわせて5種類分析したがTBZは検出されなかった。また札幌第7群で調製した「フルーツ蜜豆缶詰(ロットが異なる)」, 香川第7群で調製した残品の「乾燥果実(レーズン・プルーン)」からもTBZは検出

されず, 原因食品を特定することはできなかった。

今回第6群, 第7群に検出された防かび剤は, 食品への使用記載はなかったが加工原料に使用していたものが移行したと考えられた。人体に問題のない量ではあるが今後も継続的な調査が必要と思われる。

3 防かび剤の一日摂取量の推移

マーケットバスケット方式による防かび剤の一日摂取量の推移³⁾を表7に示す。今回の調査で算出されたTBZの値は前回の1997年の結果とほぼ同量であった。

またOPP, DP, IMZはTBZに比べ定量限界が高いため, 含有していても定量されていない場合があると考えられた。

表7 防かび剤の一日摂取量の推移

年	1991	1994	1997	2004
OPP	0	0	0	0
DP	0	0	0	0
TBZ	0	0.000117	0.000051	0.000047
IMZ	-	0	0	0

単位: mg/日/人

Ⅳ まとめ

食品添加物一日摂取量調査において防かび剤(オルトフェニルフェノール, ジフェニール, チアベンダゾール, イマザリル)の調査を行った。

防かび剤4種類のうちチアベンダゾールのみ第6群(砂糖類, 菓子類), 第7群(果実類, 野菜類, 海藻類)から検出され, 全国平均一日摂取量は0.000047mg/日/人で一日許容摂取量のわずか0.00094%であり安全性に問題のない数値であった。

文献

- 1) 中里光男ら: 高速液体クロマトグラフィーによる柑橘類中のイマザリル, ジフェニール, チアベンダゾール, オルトフェニルフェノール及びバナナ中のイマザリル, チアベンダゾールの分析, 衛生化学, Vol. 41 (5), 392-397, (1995)
- 2) 厚生省生活環境局食品化学課: 第2版食品中の食品添加物分析法, 71-77, (2000)
- 3) 厚生省生活環境局食品化学課による食品添加物一日摂取量実態調査研究班: あなたはどんな食品添加物をどのくらい食べているか, (2000)