

表 1. 食品一般の成分規格

- 1 抗生物質及び合成抗菌剤の含有禁止（ただし、基準値がある場合などの例外規定も示されている）
- 2 組換え DNA 技術応用食品（今回は内容の改正なし）
- 3 組換え DNA 技術応用添加物（今回は内容の改正なし）
- 4 特定保健用食品（今回は内容の改正なし）
- 5 全食品で不検出とされる物質、試験法、検体部位（当初 15 項目⇒現在 19 項目）
- 6 残留基準（告示当時の現行基準とその後設定された本基準）、農薬等、本基準値、検体部位、さらに不検出の食品がある場合はその試験法
- 7 暫定基準、農薬等、暫定基準値、検体部位、さらに不検出の食品がある場合はその試験法
- 8 自然に含まれる物質の取扱い方。その食品に通常含まれる量を超えてはならない
- 9 加工食品の残留基準（暫定基準）
- 10 加工食品の原材料が 6～9 の規格に適合していれば、その加工食品は適
- 11 加工食品の原材料が一律基準に適合していれば、その加工食品は適（平成 19 年 2 月 27 日に追加）

り個々に示す形にされたため、現在（平成 19 年 6 月末）では 19 項目になっている。「不検出」の物質については、どのような試験法で不検出かを規定し統一しておく必要があるため、その試験法が告示されている。

6 の目は、当時の現行基準がそのまま残留基準（本基準）として残ったものと、その後設定された本基準からなる部分である。農薬等の名称、基準値、検体部位のほか、一部の食品で基準値が「不検出」とされている場合には、その試験法が規定されている。

7 の目は、平成 17 年 11 月 29 日の官報告示の大部分を占めるものであり、ポジティブリスト制度の暫定基準に関する部分である。農薬等の名称、暫定基準値、検体部位、さらに不検出の食品がある場合にはその試験法が示されている。ポジティブリスト制度スタート時の品目数は、5 の目（全食品で不検出）が 15、6 の目（従来の残留基準で変更のないもの）が 41 であったが、7 の目（不検出以外の暫定基準を設定したものは 743 もあった。なお、食品安全委員会による食品健康影響評価の結果に基づき、各農薬等について順次本基準化が進められているため、7 の目の農薬が徐々に 6 の目に移行しているのが現状である。

8 の目は、5 から 7 の目で成分規格が定められていない場合で、農薬等の成分である物質が自然に食品に含まれている場合には、その食品に通常含まれている量を超えてはならない、という規格である。たとえば、鉛は一部の食品にしか基準がなく、また、一律基準以上に含まれている場合が多いと予想されるため、このような規定が設けられた。なお、通常どれくらいの量が含まれているかについては、別途、情報が収集されている段階である。

9 の目は、加工食品の暫定基準値であり、コーデックスにおいて加工食品基準がある場合には、わが国でもその値を暫定基準として設定したものである。農薬等の名称、加工食品名、暫定基準値が示されている。

10 の目は、加工食品の原材料がそれぞれ 6～9 の規格に適合していれば、その原材料を使用して製造された加工食品は成分規格に適しているとするものである。今回のポジティブリスト制度では加工食品も対象になるが、一部の加工食品にしか基準値がないため、基準がない加工食品に対しては一律基準をそのまま適用するのではなく、使用し

た原材料の基準値への適合性からも判断するというものである。

11 の目は、平成 19 年 2 月 27 日に追加されたもので、10 の目で原材料にも基準値がない場合は、原材料が一律基準に適合していれば、それから製造された加工食品は適と判断するというものであり、10 の目でカバーしていなかった部分を補うものである。

以上のような枠組みの中で、今回の「農薬等のポジティブリスト制度」の膨大な中味が示されたわけである。

3. 不検出の試験法

「不検出」の物質については、どのような試験法で試験して不検出であるかを統一しておく必要があるため、不検出基準の告示の際には試験法も告示されている。表 2 に不検出基準のある農薬等と、試験法の基になった試験法、及び検出限界を示す。平成 17 年 11 月 29 日に暫定基準等が告示された際に全食品あるいは一部の食品で不検出とされた農薬等では、その試験法が上述の官報（平成 17 年 11 月 29 日厚生労働省告示第 499 号）で告示された。不検出とされた品目は従来も不検出であったものが多いため、試験法は既存の試験法をポジティブリスト制度の内容にマッチするよう修文したものが多く、厚生労働省検討班で新たに開発したものもかなりある。

ポジティブリスト制度スタート直後の平成 18 年 5 月 30 日には、動物用医薬品マラカイトグリーンが全食品中で「不検出」と告示され、マラカイトグリーンとその代謝物であるロイコマラカイトグリーンを分析対象とする試験法が告示された。この最初の試験法ではウナギ等の脂の多い食品においてはロイコマラカイトグリーンの回収率が悪くなるため、平成 18 年 11 月 30 日に精製法や移動相条件等が変更された（告示第 645 号）。また、クロラムフェニコール試験法についても、平成 18 年 6 月 23 日に、回収率が低いちみつ及びローヤルゼリーに適用できるようにするため、抽出法と精製法が追加され（告示第 394 号）、また、平成 18 年 11 月 30 日には試験法が一部変更された（告示第 645 号）。

一方、ニトロフラン類（動物用医薬品）ではフラゾリドン、ニトロフラントイン、フララトドン、ニトロフラゾン

表 2. 「不検出」基準のある農薬等の試験法と検出限界（平成 17 年 11 月 29 日当時）

*例外あり

| 品目名 | 主な用途 | 基になった試験法 | 検出限界 (ppm) |
|-----------------------------------|------|-------------|------------|
| 2,4,5-T | 農薬 | 既存告示法 | 0.05 |
| アゾシクロチン及びシヘキサチン | 農薬 | 既存シヘキサチン試験法 | 0.02 |
| アミトロール | 農薬 | 既存告示法 | 0.025* |
| アルドリノ, エンドリン, ディルドリン | 農薬 | 既存告示法 | 0.005* |
| カプタホール | 農薬 | 既存告示法 | 0.01 |
| カルバドックス | 動物薬 | 既存告示法 | 0.001 |
| クマホス | 動物薬 | 既存 EPN 等試験法 | 0.01 |
| クレンブテロール | 動物薬 | 開発 (国立衛研) | 0.00005 |
| クロラムフェニコール | 動物薬 | 既存通知法 | 0.0005 |
| クロロプロマジン | 動物薬 | 開発 (国立衛研) | 0.0001 |
| ジェチルスチルベストロール | 動物薬 | 既存通知法 | 0.0005 |
| ジメトリダゾール | 動物薬 | 開発 (東京都) | 0.0002 |
| メトロニダゾール | 動物薬 | 開発 (東京都) | 0.0001 |
| ロニダゾール | 動物薬 | 開発 (東京都) | 0.0002 |
| ダミノジッド | 農薬 | 既存告示法 | 0.1 |
| デキサメタゾン | 動物薬 | 開発 (名古屋市) | 0.00005 |
| トリアゾホス | 農薬 | 既存告示法 | 0.05* |
| パラチオン | 農薬 | 既存告示法 | 0.01 |
| α -トレンボロン, β -トレンボロン | 動物薬 | 既存告示法 | 0.002 |
| 二臭化エチレン | 農薬 | 既存通知法 | 0.001 |
| ニトロフラン類 | 動物薬 | 既存通知法 | 0.001 |
| プロファム | 農薬 | GC/MS 一斉試験法 | 0.01 |

の 4 種を不検出とし、それぞれ代謝物である 3-アミノ-2-オキサゾリドン (AOZ), 1-アミノヒダントイン (AHD), 3-アミノ-5-モルフォリノメチル-2-オキサゾリドン (AMOZ), セミカルバジド (SEM) を分析対象として規制していたが, SEM がアゾジカルボンアミドを使ったプラスチックガスケットでも生成するなど、動物用医薬品以外から混入してくる可能性が明らかになったため、ニトロフラゾンだけは親化合物で規制することになり、従来のニトロフラン類試験法が「ニトロフラゾン試験法」(LC/MS) と「ニトロフラントイン, フラゾリドン及びフラルタドン試験法」(LC/MS/MS) に分けられた。試験法の検出感度としては、1 ppb とそのままである。この「ニトロフラゾン試験法」は当所で一斉試験法 I を基に作成したものである。

4. 通知試験法（一斉試験法と個別試験法）

今回のポジティブリスト制度では、暫定基準であっても、試験法を通知で示すことになった。ただし、「不検出」の場合とは異なり通知試験法であるため、同等以上の性能を有する他の試験法も使用が認められる（平成 11 年 10 月 1 日 生衛発第 1422 号）。この試験法の開発は平成 15 年度から現在に至るまで、筆者が座長を務めさせていただいている大編成の「残留農薬等分析法検討会」において実施してきている。その中では、多数の地方衛生研究所や登録検査機関等にご協力いただいている。今回のポジティブリスト制度では対象となる農薬等の数が非常に多いため一斉試験法を中心に据え、一斉試験法が適用できないものについては個別試験法（あるいはグループ試験法）で対応している。

1) 一斉試験法

これまでに通知された一斉試験法を表 3 に示す。暫定基準等が告示された平成 17 年 11 月 29 日付けで、農薬用 4 法 ((1)-(4)) と動物用医薬品用 2 法 ((1)-(2)) の一斉試験法が通知されたが、さらに、平成 18 年 10 月 3 日に農薬用の新たな一斉試験法として「LC/MS による農薬等の一斉試験法 (畜水産物)」が、平成 19 年 7 月 13 日に動物用医薬品用の一般試験法 III が通知された。なお、すべての通知試験法は、「食品に残留する農薬、飼料添加物又は動物用医薬品の成分である物質の試験法」(試験法集)²⁾ に順々に追加していく形で収載されている。各品目にその一般試験法が適用できるかを判定した際の試験結果も、上記試験集に別表として示されている。これら一斉試験法の詳細については、厚生労働省のホームページを参照していただきたい。

ところで、一斉試験法と個別試験法を通じて一番問題になったのが、「抹茶以外の茶」の場合の抽出法である。今回の暫定基準を設定する際には環境省の登録保留基準も参考にされたが、そこでは茶は飲茶として基準が示されている。一方、今回のポジティブリスト制度では、原則として農産物の茶葉として、基準が設定されている。そこで、抽出した液（お茶）について基準が設定されている農薬については、前処理法を明確にしておく必要があるため、試験に使用する個別試験法が平成 18 年 7 月 14 日付けで通知された。暫定基準が示された当時から、どちらでの基準が紛らわしく、通知試験法においても明確でなく、分析担当者から問い合わせが多かったものである。

一方、畜水産物中に残留する農薬用の「GC/MS による農薬等の一斉試験法 (畜水産物)」においては、ゲル浸透

表 3. 通知された一斉試験法

- | | |
|------------|---|
| I. 農薬 | |
| (1) | GC/MSによる農薬等の一斉試験法(農産物) ①穀類, 豆類及び種実類の場合, ②果実, 野菜, ハーブ, 茶及びホップの場合 |
| (2) | LC/MSによる農薬等の一斉試験法 I (農産物) ①②同上 |
| (3) | LC/MSによる農薬等の一斉試験法 II (農産物) ①②同上 |
| (4) | GC/MSによる農薬等の一斉試験法(畜水産物) 抽出法: ①筋肉, 脂肪, 肝臓, 腎臓及び魚介類の場合, ②乳, 卵及びはちみつの場合 精製法: ①筋肉, 脂肪, 魚介類, 乳及び卵の場合, ②肝臓及び腎臓の場合, ③はちみつの場合 |
| (5) | LC/MSによる農薬等の一斉試験法(畜水産物) 抽出法および精製法の区分は(4)に同じ |
| II. 動物用医薬品 | |
| (1) | HPLCによる動物用医薬品等の一斉試験法 I (畜水産物) 検出器: HPLC-DAD 又は HPLC-FL 又は LC/MS |
| (2) | HPLCによる動物用医薬品等の一斉試験法 II (畜水産物) 検出器: HPLC-DAD 又は HPLC-ECD 又は LC/MS 抽出法: ①筋肉, 肝臓, 腎臓, 乳及びその他の食用部分の場合, ②脂肪の場合 |
| (3) | HPLCによる動物用医薬品等の一斉試験法 III (畜水産物) 検出器: LC/MS 又は LC/MS/MS |

クロマトグラフィー(GPC)を用いて試験溶液の精製を行いGC/MSを用いて定量する方法が採用されているが、エンドスルフェンの試験において、GPCの使用が困難な場合にはアセトニトリル-*n*-ヘキサン分配やシリカゲルドライカラムを用いた精製法を用いてもよいこと、定量では電子捕獲型検出器付きガスクロマトグラフを用いても差し支えないことが、平成18年8月8日付けで通知された。

2) 個別試験法・グループ試験法

一斉試験法が適用できない農薬等については、既存の試験法の適用を検討したり、新規に個別試験法やグループ試験法の開発を試みてきた。それらの研究結果を基に、個別試験法(グループ試験法)が順次通知されたり、既存試験法の分析対象化合物に加えられたりしている。具体的な個別試験法・グループ試験法については、上記の「食品に残留する農薬、飼料添加物又は動物用医薬品の成分である物質の試験法」を参照されたい。なお、一斉試験法の場合にも記載したように、茶の場合の抽出法を明確にするために、「食品に残留する農薬、飼料添加物又は動物用医薬品の成分である物質の試験法について」の中で、茶の抽出液について試験する農薬の各試験法において、抽出法③として「抹茶以外の茶の場合」の処理法が、平成18年7月14日に追加された。

また、各分析法の告示(告示・通知)については、筆者が座長を務めている「残留農薬等公示分析法検討会」において、試験法(案)の文章チェックを行っている。また、雑誌「食品衛生研究」の各号において、残留農薬等公示分析法検討会の報告として、実際に案を作成した委員等が試験法の解説を行っているので、参考にしていただきたい。

5. ポジティブリスト制度における安全性確保

1) 食品健康影響評価の依頼

最初に述べたように、リスク管理機関が食品安全のための施策を実施する際には、前もって食品安全委員会に食品

健康影響評価を依頼する必要がある。しかし、今回のポジティブリスト制度においては、時間的制約のために事前に評価を依頼することができず、事後評価を依頼することになった。この措置の根拠となるのは、食品安全基本法第11条「食品健康影響評価の実施」の例外規定であり、同条では「食品の安全性の確保に関する施策の策定に当たっては、(中略)、人の健康に及ぼす影響についての評価(以下「食品健康影響評価」という)が施策ごとに行われなければならない。ただし、次に掲げる場合は、この限りでない。」として、「人の健康に悪影響が及ぶことを防止し、又は抑制するため緊急を要する場合で、あらかじめ食品健康影響評価を行ういとまがない」場合には、事後評価の依頼が認められている。ただし、「事後において、遅滞なく、食品健康影響評価が行われなければならない」と明記されている。

新たに暫定基準を設定した農薬等は約750物質あり、5年後には暫定基準の見直しが予定されている。そのため、最長5年間にわたり評価を依頼するとしても、1年間に150物質に達する。その品目選定にあたっては、農薬・動物用医薬品部会に「食品健康影響評価依頼物質選定検討会」が作られ、筆者も参加している。ポジティブリスト制度の内容すべてについて評価依頼するため、一律基準や対象外物質の評価についても依頼している。

個別の物質としては、平成18年度に優先品目5物質(アレスリン、オキシロニック酸、キシラジン、スルファチアゾール、タイロシン)を含め、192物質の食品健康影響評価を依頼した。平成19年度は優先評価物質はなく、それ以外の146物質を依頼する予定である。分類すると、(1)ポジティブリスト制度施行後の検疫所の輸入検査において、基準値を超えて複数回検出されたもの(ジフェノコナゾール、チアクロプリド、フェンバレレート、ペルメトリンなど)

(2)清涼飲料水の規格基準の設定に当たり、食品安全委員会に意見聴取を行っているもの

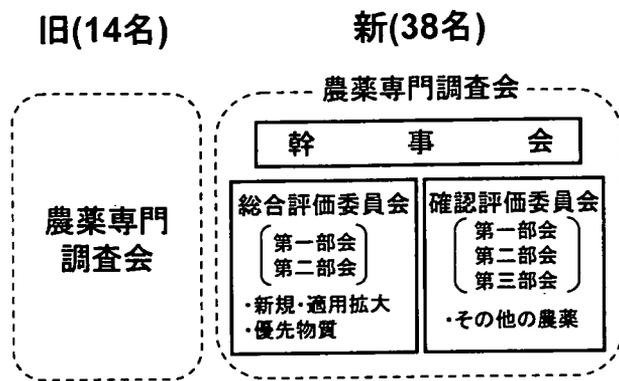


図1. 新旧の農業専門調査会の体制

- (3) マーケットバスケット調査で実際には検出されないが検出下限の20%で算出した場合にADI比が比較的大きくなったもの(ファミフル(動葉, 殺虫剤); 豪のADIがきわめて小さいためにADI比が大きな数値になる)
- (4) カルボフラン類(国内登録農薬2つを含む。カルボスルファン, ベンフラカルブ, カルボフラン, プラチオカルブ)
- (5) 国内で登録がない農薬及び食用動物を対象とする効能の承認がない動葉であって, 海外では登録や承認がされているもの(評価書があるが, 平成18年度は候補にならなかったもの), に分けられる。

ただし, 平成18年度分においても資料がそろわないなどの理由で, 実際には諮問ができていない物質が数十物質積み残されたようで, 食品安全委員会からは次年度に再度依頼するように指摘されている。評価が1年遅れたと誤解されるのを嫌っての指摘であろう。

一方, 評価を依頼される食品安全委員会では, 従来の体制のままでは対応できないため, 農業専門調査会が拡大・改組され, 図1のような2階建ての体制になっている。一階部分は対象となる農薬により2つの委員会(5部会からなる)に分けられ, それらの審議結果が2階部分の幹事会で審議調査された後に, 食品安全委員会(親委員会)に送られ, 一般からの意見・情報の募集が行われる。農業専門調査会ではポジティブリスト制度への対応に加え, 適用拡大が申請された農薬にも対応しているため, 作業量が大変多くなっている。また, 評価書を受け取った厚生労働省の農業・動物用医薬品部会では, 評価書の文章の修正が望ましいとの意見が出たことを伝えたりしている。あくまでも, リスク評価は食品安全委員会の権限であるためである。

2) 食品残留農薬一日摂取量実態調査

ポジティブリスト制度における安全性を確保するために, 厚生労働省では食品健康影響評価を依頼するほかに, 自身で食品残留農薬一日摂取量実態調査を実施している。厚生労働省は平成3年度からマーケットバスケット方式による残留農薬一日摂取量調査を実施してきたが, ポジティブリスト制度導入を機に, 一斉試験法を採用し, 農薬等の数を大幅に増やして調査を実施している。平成17

年度には一斉試験法によるもの194品目, 個別試験法によるもの12品目を対象として, 全国自治体の研究所や検査機関が参加して, 調査が実施されている。

なお, 食品残留農薬一日摂取量実態調査の結果については厚生労働省のホームページ上に順次掲載されているが, 数年遅れで公表されているのが実情である。

6. スタート時の基準値の見直し

1) 暫定基準から本基準へ

前報¹⁾の2-3)で述べたように, 農薬取締法の改正により, 登録農薬であっても適用作物以外の農作物に使用することが禁止され, 罰則も強化された。しかしながら, マイナー作物等に対しては登録農薬の適用拡大がなされてこなかったため, 農林水産省では必要な作物残留データなどを集めて適用拡大を推進する方針がとられた。作成された安全性データや作物残留データが食品安全委員会に送られて食品健康影響評価が次々と実施され, 評価書がADIの数値とともに厚生労働省に送られてきている。厚生労働省では適用拡大農作物を含めた基準値を設定することになるが, その際には従来の暫定基準は削除され, 本基準が設定される。このように, 作物残留データに基づく基準値の追加や暫定基準の本基準化への作業が進んでおり, 平成19年度に入ってから, 農業・動物用医薬品部会の審議品目が大幅に増加している。

2) 類型6-4

今回のポジティブリスト制度では, 基準未設定の農薬(等)/食品の組み合わせについては一律基準(0.01 ppm)が適応されるが, そのレベルでの分析が困難と考えられる場合には, 分析法の定量限界に相当すると考えられる値をもって暫定基準としている。これが類型6-4と呼ばれるものである。当初, 類型6-4に該当する基準値を含んでいた95農薬等を表4に示す。

その後, LC/MS等を使用して0.01 ppmレベルが分析可能になった品目があり, また, 「食品に残留する農薬, 飼料添加物又は動物用医薬品の成分である物質の試験法」の第1章総則の5.分析上の留意事項の(3)として, 「試験の対象となる食品の残留基準(一律基準を含む)に相当する濃度を測定することが困難な場合には, 機器の測定条件(例えば, カラムの種類, カラム温度, 移動相の流速及び組成, キャリヤガスの流速, 質量分析の場合には測定モード, 測定イオン, 電圧)を変更する, 機器への試験溶液注入量を増やす, 試験溶液を濃縮する, 精製を追加してノイズを減らす, 試料量を増やすことなどにより対応する必要がある。また, 一斉試験法など, 他の試験法が通知されている場合には, その採用についても検討することとする。」の項目が付け加えられたため, 多くの品目で0.01 ppmまでの分析が可能となった。そのため, 6.1)で述べた本基準を設定する際に, 類型6-4基準を削除し, 一律基準で規制する(基準値を定めない)ようになった。ノバルロン(農薬)やアゾキシストロビン(農薬)をはじめとし

表 4. 類型 6-4 に該当する基準を含む 95 農薬等

○印はその後一律基準化*

| | | | |
|---------------|-------------|----------------------|------------|
| 1-ナフタレン酢酸 | ジアフェンチウロン | トリフルムロン | ベンスリド |
| 2,2-DPA | シアン化水素 | ニテンピラム | ベンスルフロメチル |
| 4-クロルフェノキシ酢酸 | ジウロン | ノバルロン○ | ペンタゾン |
| DBEDC | シクロキシジム | バミドチオン | ホキシム |
| sec-ブチルアミン | シクロプロトリン | ハロスルフロメチル | ホセチル |
| アザペロン | ジチオカルバメート | ヒドロキシニルフェニル硫酸銅 | マレイン酸ヒドラジド |
| アシュラム | ジフェンゾコート | ビペラジン | ミルベメクチン |
| アセキノシル | シフルトリン | ヒメキサゾール | メベンダゾール |
| アゾキシストロビン○ | ジフルフェンゾピル | ピラゾリネート | メロキシカム |
| アロキシジム | ジフルベンズロン | ピレトリン | リニューロン |
| イオドスルフロメチル | ジベレリン | ファミール | ルフェヌロン |
| イソウロン | ジメチピン | フェノトリン | エチプロール |
| イプロジオン | シモキサニル | フェンチン | オキサジクロメホン |
| イマゼタピルアンモニウム塩 | シラフルオフエン | フェンピロキシメート | カルプロバミド |
| イミノクタジン | シロマジン | フラザスルフロ | カンタキササンチン |
| エチクロゼート | スルフェントラゾン | プラジクアンテル | クミルロン○ |
| エトキシキン | チアベンダゾール | フルオメツロン | ジクロメジン |
| オキシベンダゾール | テブチウロン | フルオリミド | テレフタル酸銅 |
| グリカルピラミド | テブラロキシジム | フルフェノクスロン○ | トリクラミド |
| クロジナホッププロバルギル | テフルベンズロン | プロヘキサジオンカルシウム塩 | トリシクラゾール |
| クロフェンテジン | デメトン-S-メチル | プロベナゾール | ピリダリル |
| クロルスロン | トリクロピル | ヘキサフルムロン | フラメトピル |
| クロルフルアズロン | トリネキサパックエチル | ペンシクロン | モリネート |
| 酸化フェンブタズ | トリフルミゾール | ベンジルアデニン又はベンジルアミノプリン | |

*平成 19 年 7 月 17 日現在

て、次々と類型 6-4 基準が削除されている。これは、表 4 の 95 農薬等のうち、53 農薬等の類型 6-4 基準が 0.02 ppm であるためである。定量限界が 0.01 ppm と大きく異なる品目においては、今後の対応に悩まされるかもしれない。

7. 魚介類への基準値設定

農薬のドリフト問題と並んで当初から予想された問題に、環境中に放出された農薬による魚介類の汚染がある。農薬の中には水系を通じて魚介類に残留することが想定されるものがあるが、ポジティブリスト制度のスタート時には個別の暫定基準が設定されなかったために、一律基準を超える汚染事例が見つかるようになった。たとえば、島根県の宍道湖や神西湖のシジミ中にチオベンカルブ(除草剤)、シラフルオフエン(殺虫剤)、ペンディメタリン(除草剤)などが、鳥取県の東郷池のシジミからクミルロン(除草剤)が、また琵琶湖のシジミからチオベンカルブ(除草剤)が検出されるなど、シジミにおける農薬汚染の報告が相次いだ。

これらが公表された際には、そのようなシジミを食べ続けても ADI と比較して健康への影響は考えられないことが付記されていたが、操業を自粛せざるをえない状況になっていることから、農林水産省から厚生労働省に個別基準値の設定要請がなされた。

そこで、基準値の設定方法が緊急的に、平成 19 年度厚生労働科学研究費「食品中に残留する農薬等におけるリスク管理手法の精密化に関する研究」(主任研究者: 加藤保博氏)の中で検討され、その結果が平成 19 年 6 月 22 日の

農薬・動物用医薬品部会に報告された。

基準値の算出方法としては、農薬が適正に使用された場合の環境中の推定濃度や生物濃縮を考慮して設定するのが適当と考えられた。具体的には水産動植物被害予測濃度(水産 PEC)と生物濃縮係数(BCF)を用いて、推定残留量 = 水産 PEC × BCF × 5 で計算するというものである。水質 PEC は環境省が登録保留基準の新たな設定方法として、平成 15 年に示したもので、水産動植物の被害防止に係る農薬登録保留基準を改定する過程で提案されたものである。中央環境審議会土壌農薬部会農薬専門委員会において審議していた当時は筆者自身も頭を悩ませたものであるが、今では導入しておいてよかったと思っている。BCF を求める試験法のガイドラインについても、すでに農林水産省から示されていた。

この算定方法を採用することが上記の部会で了承され、さっそく平成 19 年 7 月 3 日の同部会にクミルロン(除草剤)とシメコナゾール(殺菌剤)の基準値案が提出された。クミルロンの基準値はこれまで米の 0.1 ppm のみが設定されていたが、今回、魚介類の基準値 0.4 ppm (PEC としては水田 PEC tier2 が採用されている)が追加された。TMDI (理論最大一日摂取量) 試算による暴露評価では、除草剤であるにもかかわらず、米からの摂取量の約 2 倍を魚介類から摂取するという計算になる。今後、このような魚介類の基準値設定が多くなると考えられるが、TMDI 試算による暴露評価で ADI の 80% を超えた場合の、次の試算方法を考えておく必要がある。農作物であれば作物残留試験データを使用した推定一日摂取量(EDI) 試算がなされるが、計算値を用いて設定された魚介

| | 基準設定農薬数 | 一律基準 |
|-------------|------------------------------------|---|
| 米国 | 約 350 (平成 15 年 4 月現在) | 0.01~0.1 ppm で運用 |
| カナダ | 約 150 (平成 15 年 6 月現在) | 0.1 ppm (見直し中) |
| ニュージーランド | 約 150 (※) (平成 14 年 12 月現在) | 0.1 ppm (カナダを基に設定) |
| ドイツ | 約 400 | 0.01 ppm |
| EU (未施行) | 未定 (暫定基準を含め平成 18 年 4 月までに設定) | 0.01 ppm 但し、一般的な分析法を 勘案し、必要に応じ、 各農薬ごとに設定 |

※動物用医薬品を含む。

(平成 17 年 4 月 21 日開催 第 91 回食品安全委員会の資料 2-2 より)

図 2. 諸外国における残留農薬のポジティブリスト制度

(貝)類の基準値案では、魚介(貝)類を種や捕獲水域などで細かく分けて基準値案を設定するなどして、推定暴露量を精密化していくのであろうか。

シメコナゾールについては、水田および非水田ともに使用されることから、水田 PECTier2 と非水田 PECTier1 が比較され、大きいほうの前者が算定に使用され、その計算結果から提案された 0.02 ppm の基準値案が了承された。こちらのほうは一律基準の倍の値にしかならず、また、実際の汚染も見つかっていないようである。魚介類への基準値設定で対象となる農薬は百数十ある。農林水産省からは設定順を示して各農薬の基準値設定が要請されており、それに対応するための試験法の設定も考えておかなければならない。

8. 諸外国のその後の動向

農薬等のポジティブリスト制度の導入について審議する中で、諸外国における残留農薬のポジティブリスト制度をまとめた資料が配付されている(図 2^{*3})。その中には各国のポジティブリスト制度の一律基準値や対象品目数が掲載されているが、カナダと EU については、近いうちに動きがあることも記載されている。そこで、カナダと EU のその後の動きについて簡単に説明しておく。

1) カナダの場合

2003 年 1 月にカナダの PMRA (Pest Management Regulatory Agency) は、食品中の残留農薬の一律基準 (General Maximum Residue Limit) を現行の 0.1 ppm からそれ以下の値に置き換えるための Discussion Document^{*4} を公表した。設定当時よりも分析技術が進歩しており、また、諸外国の規制と合わなくなったためである。

^{*3} 食品安全委員会ホームページ内「諸外国における残留農薬のポジティブリスト制度」(<http://www.fsc.go.jp/iinkai/i-dai91/dai91kai-siryou2-2.pdf>) (2005)。

^{*4} Pest Management Regulatory Agency: Revocation of the 0.1 ppm. General Maximum Residue Limit for Food Pesticide Residues (2003). (<http://www.pmra-arla.gc.ca/english/pdf/dis/dis2003-01-e.pdf>)

図 2 はその情報に基づくものと考えられるが、PMRA はその後 2006 年 6 月にそれに対するパブリックコメントの募集を開始している^{*5}。

また、カナダでは 35 年以上経過したそれまでの農薬管理法 (PCPA) に代わって、新しい法律が 2006 年 6 月 28 日に施行されている^{*6}。カナダ保健省 (Health Canada) では PMRA がこの PCPA を所管している。

2) EU の場合

2006 年 7 月に欧州委員会 (EC) は農薬 (plant protection products) に関して新しい EU 規則を発表した^{*7}。農薬登録の規則を簡潔明瞭化し、その手続きを簡素化することなどを目的としたものである。EU を気候と環境から 3 つのゾーンに分け、ゾーン内の 1 国で許可された農薬は自動的にそのゾーン内では使用できるようにするとされている。ただし、必要な場合には、各国が独自のリスク軽減措置をとることができるとも記されている。この規則は 2008 年に実施される見込みである。

また、EU の欧州食品安全機関 (EFSA) は 2007 年 3 月に、農薬の MRL (最大残留基準) を EU 内で完全に統一するための第一歩として、各農薬の暫定 MRL 案の評価結果について発表した^{*8}。EU はすでに農薬中の有効成分

^{*5} Pest Management Regulatory Agency: Revocation of 0.1 ppm as a General Maximum Residue Limit for Food Pesticide Residues (2006). (<http://www.pmra-arla.gc.ca/english/pdf/dis/dis2006-01-e.pdf>)

^{*6} Pest Management Regulatory Agency: Information Note. The New Pest Control Products Act (2006). (<http://www.pmra-arla.gc.ca/english/highlights/in20060621-e.html>)

^{*7} 欧州連合 (EU): Press Releases. Commission proposes new rules for plant protection product (2006). (<http://europa.eu.int/rapid/pressReleasesAction.do?reference=IP/06/982&format=HTML&aged=0&language=EN&guiLanguage=en>)

^{*8} 欧州食品安全機構 (EFSA): Reasoned opinion on the potential chronic and acute risk to consumers' health arising from proposed temporary EU MRLs (2007). (http://www.efsa.europa.eu/en/science/praper/maximum_residue_levels/mrl_opinion.html)

250についてMRLを設定していたが、今回新たに236物質を評価している。その結果、92物質については消費者にリスクを与えることはありそうにないと評価したが、他の144物質については、この一次スクリーニングでは消費者への潜在的なリスクの可能性を否定できず、今後さらに暫定MRLの設定に向けての検討が必要であるとしている。

このように、EUにおいては、EU内での統一MRLの設定に向けた活動が進行中である。

9. 今後の問題点 ポストハーベスト農薬

わが国では、ポジティブリスト制度の施行により残留農薬等に関するリスク管理の根幹ができあがったが、今後さらに対応策を明確にしておくべき問題にポストハーベスト農薬がある。「ポストハーベスト」(post-harvest)とは収穫後の品質を保持するためのポストハーベストアプリケーション(収穫後の措置)のことで、貯蔵時の温湿度制御や食品照射、高圧保存などを含む語であるが、ポストハーベストの語だけでも、ポストハーベスト農薬の意味で使われることも多い。このポストハーベスト農薬は、病害虫の防除や輸送時の腐敗防止の目的で使用されるが、プレハーベスト農薬の場合に比べて日光や風雨などにさらされることがないため、残留性が高いといわれている。

わが国ではポストハーベスト農薬は燻蒸目的だけが認められており、植物防疫法により輸入検疫時の燻蒸処理などが行われる。わが国の農薬取締法第一条の二では、農薬とは「農作物等を害する病害虫の防除に用いられる殺菌剤、殺虫剤その他の薬剤及び農作物等の生理機能の増進又は抑制に用いられる成長促進剤、発芽抑制剤その他の薬剤をいう」と用途で規定されており、収穫の前や後などの規定はない。また、国内で販売・使用される農薬が対象である。

一方の食品衛生法では、第四条第2項で(食品)添加物とは「食品の製造の過程において又は食品の加工若しくは保存の目的で、食品に添加、混和、浸潤その他の方法によって使用する物をいう」と規定されており、明確に収穫後の食品の「保存」目的がうたわれている。輸入食品の輸送中におけるカビやカビ毒の発生を防止する目的で殺菌剤を使用することは「保存」にあたり、それに使用する殺菌剤は食品添加物に該当すると判断されている。

現在、この目的殺菌剤(防かび剤)として認められている食品添加物は、イマザリル(みかんを除くかんきつ類およびバナナ)、オルトフェニルフェノール(opp)とそのナトリウム塩(みかんを除くかんきつ類およびバナナ)、ジフェニル(グレープフルーツ、レモン、オレンジ類)、チアベンダゾール(かんきつ類やバナナ)の4種類である。食品添加物であるので表示義務があるのはもちろんのこと、重要な使用目的であるため、「物質名と用途名を併記」する必要がある。また、スーパーなどでのバラ売りにおいても、売り場に表示する必要があり、防かび剤(OPP)などの表示を見られたこともあろう。

このようにカビによる品質低下を防止する保存目的は、食品添加物としての使用目的に該当するが、害虫による品質低下を防止する目的では食品添加物と見なされないため、食品添加物としての表示義務もない。

一方、FAOの文書では農薬とは「production, processing, storage, transport or marketing」で使用される物質とされ、「either before or after harvest to protect the commodity from deterioration during storage and transport」というように、収穫後の作物の貯蔵や輸送において使用することも明記されている^{*)}。また、米国においては使用時期で農薬を区別していないが、殺虫剤、殺菌剤などの一般農薬を収穫後に使用することが認められており、ポストハーベスト農薬としての登録がある場合には、そのことを明示して残留基準が設定されている³⁾。

コーデックスが収穫の前と後を区別していないため、世界的には今後ともポストハーベスト使用を認めようとする方向で動いていくであろう。海外でのポストハーベスト農薬の使用に適切に対応するためにも、輸出国のポストハーベスト農薬に関する規制方法や使用状況に関する最新の情報を入手し、必要な人に常に提供できるようにしておくことが大切である。なお、ポストハーベスト農薬に関する各国の実情については、東京都の詳しい調査報告³⁾がある。参考にされたい。

なお、食品添加物として扱われているポストハーベスト農薬4品目についても農薬等のポジティブリスト制度の対象になっており、試験法が通知されている。しかし、「オルトフェニルフェノール及びジフェニル試験法(農産物)」については食品添加物分析法をもとに作成されているため、農薬分析法としては著しく定量限界が高い。そのため、平成19年度に高感度化を目指した検討を実施する予定である。

また、ポストハーベストアプリケーションの1つである食品照射については、現在、行政的に大きく動いているところである。動きの1つとして、放射線照射された香辛料の試験法としての熱ルミネセンス(TL)法が、平成19年7月6日付食安発第0706002号で厚生労働省の各検疫所長宛に通知されたところである。今後は対象食品を広げていくつかの試験法が通知されていくと考えられる。このテーマについても、当情報ひろばで取り上げられるものと思われる。

<追記>

9.で述べたポストハーベスト農薬については、平成19年8月29日に開催された薬事・食品衛生審議会農薬・動物用医薬品部会において、今後の方針を示す1つの動き

^{*)} 国際連合食糧農業機関(FAO): International Code of Conduct on the Distribution and Use of Pesticides (Revised Version) (2002). (<http://www.fao.org/WAICENT/FAOINFO/AGRICULT/AGP/AGPP/Pesticid/Code/Download/Code.doc>)

があった。当該部会においては、農薬（殺菌剤）フェンヘキサミドの残留基準値が審議されたが、国際基準のキウイの基準値と米国でのなしの基準値が、ポストハーベスト使用のみの作物残留試験に基づいて設定されたものであることが判明したため、国内的には食品添加物（防かび剤）としての指定後に基準値を検討することにし、今回は基準値を提案しないとの説明がなされ、了承された。外国基準の基になった試験の内容をきちんと調べているということであり、当然のこととはいえ事務局の努力を評価したい。なお、食品添加物としての指定は、国際汎用のものではない限り、企業が申請すべきものである。

10. おわりに

ポジティブリスト制度が施行されて1年数か月が経過した。試験法については、全国の機関の協力を得て開発してきており、山を越えた感はあるが終わりのない作業である。一方、分析機関において通知試験法を修正したり新規に方法を開発した場合に、その方法を用いて試験を実施する場合には、通知試験法と比較して同等又はそれ以上であることを確認する必要がある。その試験法の妥当性を評価するためのガイドラインが平成19年11月15日食安発第1115001号として示された。御覧になっていただきたい。

文 献

- 1) Maitani, T., Introduction of the "Positive List" System for agricultural Chemicals in Foods and development of Analytical methods. *Shokuhin Eiseigaku Zasshi* (J. Food Hyg. Soc. Japan), 46, J-327-J-334 (2005).
- 2) 厚生労働省医薬食品局食品安全部長通知「食品に残留する農薬、飼料添加物又は動物用医薬品の成分である物質の試験法」平成17年1月24日、食安発第0124001号(2005). (<http://www.mhlw.go.jp/topics/bukyoku/iyaku/syoku-anzen/zanryu3/index.html>)
- 3) 東京都生活文化局消費生活部：収穫後使用の農薬に関する調査(その2)平成12年度委託調査報告書(2001). (http://www.anzen.metro.tokyo.jp/pdf/report_102.pdf)

執筆者の PROFILE

米谷民雄 (Tamio MAITANI)

国立医薬品食品衛生研究所 食品部長
京都大学大学院薬学研究科博士課程修了
薬学博士 (京都大学)

(専門分野) 分析化学, 食品衛生学

(主な著書) 「衛生試験法・注解 2005」(編集幹事,

編集執筆) 金原出版 (2005)

「食品衛生検査指針理化学編」(委員会委員, 分担執筆) 日本食品衛生協会 (2005)

「食品検査とリスク回避のための防御技術」(編集執筆) シーエムシー出版 (2006)

「食品分析法の妥当性確認ハンドブック」(分担執筆) サイエンスフォーラム (2007)

A Statistical Approach for Estimating the Distribution of Usual Dietary Intake to Assess Nutritionally At-Risk Populations Based on the New Japanese Dietary Reference Intakes (DRIs)

Asako ISHIWAKI^{1,2}, Tetsuji YOKOYAMA³, Hiroko FUJII¹, Kyoko SARTO¹, Miho NOZUE¹, Katsushi YOSHITA¹ and Nobuo YOSHIKE¹

¹National Institute of Health and Nutrition, 1–23–1 Toyama, Shinjuku-ku, Tokyo 162–8636, Japan

²Institute of Environmental Science and Human Life, Ochanomizu University, 2–1–1 Ohtsuka, Bunkyo-ku, Tokyo 112–8610, Japan

³Department of Technology Assessment and Biostatistics, National Institute of Public Health, 2–3–6 Minami, Wako, Saitama 351–0197, Japan

(Received December 1, 2006)

Summary The health of individuals is not markedly affected by the nutrients ingested in a single day; rather it is influenced by dietary habits over a long period of time. However, it is impossible to survey usual intake directly because recording diet over a long period of time is burdensome for the subjects, so usual dietary intake is rarely measured directly. Instead, we estimated the distribution of selected nutrients in subjects' usual dietary intake using a statistical method (Best-Power method) described previously. And we assessed the proportion of nutritionally at-risk subjects in individual groups based on the new Japanese Dietary Reference Intakes (DRIs), the Estimated Average Requirement (EAR), or the tentative dietary goal for preventing life-style related diseases (DG) as cut-points. We collected the survey data from 208 men and 251 women, aged 50 to 69 y in 2004 and 2005. The survey was carried out on three non-consecutive days four times each year: in spring, summer, autumn, and winter. The distribution of nutrients in the usual intake was estimated from a dietary survey of 3 d using one-way analyses of variance. We found that the proportion of the population at risk for nutrient deficiency was overestimated in the 1-d intake distribution. On the other hand, the fraction that was nutritionally at-risk in terms of salt intake, according to DG as the cut-point, was underestimated in the 1-d intake distribution: 74.0% of men and 82.5% of women in the 1-d intake, and 90.5% and 93.2%, respectively, for the estimated usual intake adjusted for seasonal variation.

Key Words dietary assessment, DRIs (Dietary Reference Intakes), EAR (Estimated Average Requirement), usual intake, statistical method

The health of individuals is not markedly affected by the nutrients ingested in a single day; rather it is influenced by dietary habits over a long period of time. It is difficult to estimate usual intakes from surveys carried out for a short period because of the large day-to-day variations of dietary intakes within an individual (1–8). However, it is impossible to survey usual intake directly because recording diet over a long period of time is burdensome for the subjects, so usual dietary intake is rarely measured directly.

The dietary reference intakes (DRIs) for Japanese were revised in 2005 (9). Dietary assessments typically entail estimating the proportion of the population who are “at risk” for diet-related health problems. The variable of interest is not a person's dietary intake on any one day, but the “usual” dietary intake taken over a period long enough to affect the person's health. However, the National Health and Nutritional Survey, a representative nutritional survey in Japan (NHNS-J) (10), is carried out on only one day in November, and conse-

quently cannot assess the “usual intake” of individuals over long periods of time.

In 1986, the National Research Council (NRC) (11) proposed a statistical procedure for correcting the bias in the variance of the distribution of average dietary intake. The variance of this adjusted distribution of average dietary intake is an unbiased estimate of the variance of usual dietary intake. The NRC adjustment procedure can be applied to a few days of dietary intake data from a subset of individuals in a sample. It involves one-way analysis of variance (ANOVA) and must be followed if day-to-variability is to be removed from observed intake data. In 1996, Nusser and Iowa State University developed a statistical procedure that better accounts for some of the characteristics of dietary intake data (12). Extrapolating from the original NRC report (11), Nusser et al. (12) also proposed a simplified alternative to the Iowa State University method. This so-called Best-Power method shares the applicability of Nusser's method to complex surveys, but uses only a one-stage power or log-transformation (12, 13). These methods are commonly used to estimate the distribu-

E-mail: asako-i@nih.go.jp

tion of usual intake from a few days of dietary intake data under the assumption that dietary intakes are distributed almost normally. If the data have a highly skewed distribution, then the distribution obtained by taking the logarithm of each observation may be symmetric, and therefore be better approximated by a normal distribution. The expression that relates values in the transformed scale to usual intake data in the original scale is called the back-transformation. The NRC method uses a simple back-transformation that is just the inverse of the original transformation, assuming that the transformed data for 1-d dietary intake is an unbiased estimator of the transformed usual intake. By contrast, the Nusser et al. and Best-Power methods use a back-transformation with a bias-adjustment term, assuming that the data for 1-d dietary intake is an unbiased estimator of usual intake in the untransformed scale (12, 13). The latter assumption follows directly from the definition of usual intake if within-person variation in 1-d dietary intake is solely due to day-to-day variability in diet, but in general they require that all components of within-person variation tend to average out in the original scale. Under these conditions, the latter assumption may be more attractive from a practical standpoint (13).

The National Health and Nutrition Examination Survey (NHANES) in the USA was conducted to estimate the distribution of nutrients in the usual intake using the NRC, Nusser, and Best-Power methods (14, 15). These statistical methods are expected to be introduced into Japan as well for assessment of nutritionally at-risk populations.

In this study, we assessed nutritionally at-risk populations based on the new Japanese DRIs using the Best-Power method, which estimated the distributions of usual intake from 3 d of dietary intake data. The Estimated Average Requirement (EAR) cut-point method is a well-known procedure for evaluating nutrient intakes of groups (16–18), and we adopted it to assess the proportion of the population at risk for inadequacy. To evaluate the proportion of the population at risk for nutrient excess (and calcium deficiency) we used the dietary goals for preventing life-style related diseases (DG) on the adjusted and unadjusted distributions of dietary intake data.

METHODS

1) Subjects and settings. The subjects were volunteers in districts that cooperated in the dietary survey in 2004 and 2005. The districts are 14 areas of 12 prefectures: Aomori, Akita, Iwate, Yamagata, Nagano, Gunma, Chiba, Okayama, Tokushima, Kochi, Fukuoka, and Miyazaki. The subjects were limited to those who were aged 50 to 69 y according to the age divisions of the DRIs. As a result, 221 men and 275 women were included. Of the original subjects, 13 men and 24 women taking dietary supplements of vitamins or minerals were excluded, so that the analysis was carried out on data from 208 men (average age \pm SD: 61.0 \pm 5.4) and 251 women (60.1 \pm 5.4). The survey was carried

out four times each year: in May and June (spring), August and September (summer), and November and December (autumn), and February and March (winter). In each season, the survey was carried out on three non-consecutive days, two of which were weekdays and one of which fell on a weekend. The interval from the first to the third day was less than 2 wk in each season.

Nutrient intakes were estimated according to the NHNS-J, whereby a household kept a 1-d diet record of the intake per person of "approximate proportions" (semi-weighed) (10, 19). Dietitians explained the survey method to the subjects, and checked the questionnaires through inquiries when collecting them. Nutrient intakes were calculated using the Fifth Revision of the Standard Food Composition Table (20).

This study was approved by the ethics committee of the National Institute of Health and Nutrition in Japan. Sufficient explanations were given orally and by visual materials to all the households from which data were collected. All participants gave written consent for collaboration in this study.

2) Data analyses. All analyses were performed using SAS version 8 (21). For each nutrient, the usual intake distribution was estimated using the Best-Power method, with the assumption that a 1-d dietary intake is an unbiased estimate of usual intake in the untransformed scale. The method used was the same as that described previously (12). The basic approach consisted of three steps: 1) Transformation of observed dietary intake data to normality; 2) Removal of measurement error in the normal scale; 3) Back-transformation to the original scale.

We estimated the distributions of the intake of energy and the following seven nutrients: protein, fat as energy percentage, sodium as salt, calcium, iron, folic acid, and vitamin C. We chose these nutrients because a deficient or excessive consumption of any one of them can have negative impacts on a person's health. For example, a deficiency of calcium, iron, folic acid, vitamin C, or protein can cause significant health problems, and an excessive consumption of fat and salt is associated with certain diseases. We evaluated the nutritionally at-risk population by comparing the estimated intakes with DRIs (9). In regard to the nutrients for which EAR has been determined, namely protein, iron, folic acid, and vitamin C, the proportion of inadequate intake was assessed using the EAR cut-point method. The proportion of the population that was consuming less calcium than the DG, more salt than the DG or that was obtaining more energy from fat than specified in the DG was calculated. It is difficult to evaluate the proportion of a population not meeting the iron requirement using the EAR cut-point method because the presence of menstruating women causes the distribution of requirements to be heavily skewed (16, 18). However, in this study the age of the subjects was 50 y or more. We therefore assumed that the women were post-menopausal, and we adopted the EAR cut-point method for iron.

Results are given as mean \pm SD. First, two-way

Table 1. Characteristics of subjects and nutrient intake data for: 12 d throughout a year and over 3 d each season for men.

| Men (n=208) | | 12 d | | Spring (3 d) | | Summer (3 d) | | Autumn (3 d) | | Winter (3 d) | | ANOVA p value |
|------------------------|---------|-----------|--------|--------------|--------|--------------|--------|--------------|--------|--------------|--------|------------------|
| | | Mean ±SD | Median | Mean ±SD | Median | Mean ±SD | Median | Mean ±SD | Median | Mean ±SD | Median | |
| Age | y | 60.9±5.6 | 61.5 | 60.5±5.6 | 61.0 | 60.7±5.7 | 61.0 | 61.0±5.6 | 62.0 | 61.2±5.6 | 62.0 | |
| Weight | kg | 64.6±8.4 | 64.0 | 64.6±8.5 | 64.0 | 64.4±8.5 | 64.0 | 64.6±8.5 | 64.0 | 64.7±8.4 | 64.0 | |
| BMI | | 23.3±2.6 | 23.3 | 23.3±2.6 | 23.2 | 23.2±2.7 | 23.2 | 23.3±2.6 | 23.3 | 23.4±2.5 | 23.4 | |
| Dietary intake per day | | | | | | | | | | | | |
| Energy | kcal | 2,379±404 | 2,325 | 2,396±456 | 2,306 | 2,407±488 | 2,332 | 2,346±471 | 2,304 | 2,366±493 | 2,303 | |
| Protein | g | 89.3±16.3 | 87.4 | 92.4±19.7 | 90.5 | 88.9±20.5 | 86.2 | 87.1±18.9 | 86.6 | 89.0±20.3 | 86.1 | ** |
| Fat | g | 58.5±14.5 | 55.6 | 58.9±16.7 | 56.2 | 59.5±18.9 | 56.1 | 57.4±20.4 | 53.9 | 58.4±19.0 | 54.9 | |
| Fat | %energy | 22.2±3.8 | 22.0 | 22.0±4.6 | 21.7 | 22.0±4.7 | 21.8 | 21.7±4.8 | 21.2 | 21.9±4.7 | 21.9 | |
| Salt | g | 14.1±3.3 | 13.9 | 14.5±4.6 | 13.6 | 14.5±4.4 | 14.0 | 13.9±4.2 | 12.9 | 13.6±3.9 | 13.3 | ** |
| Calcium | mg | 648±189 | 617 | 661±239 | 625 | 634±231 | 613 | 643±223 | 609 | 654±218 | 620 | |
| Iron | mg | 10.4±2.5 | 10.0 | 10.7±3.1 | 10.4 | 10.2±4.0 | 9.8 | 10.1±2.9 | 9.9 | 10.4±2.9 | 10.1 | |
| Folate | µg | 430±135 | 404 | 444±155 | 415 | 430±252 | 401 | 420±172 | 396 | 427±166 | 398 | |
| Vitamin C | mg | 128±49 | 121 | 120±53 | 112 | 124±84 | 106 | 145±81 | 136 | 125±61 | 117 | *** |

p*<0.05, *p*<0.01, ****p*<0.001.

Table 2. Characteristics of subjects and nutrient intake data for: 12 d throughout a year and over 3 d each season for women.

| Women (n=251) | | 12 d | | Spring (3 d) | | Summer (3 d) | | Autumn (3 d) | | Winter (3 d) | | ANOVA p value |
|------------------------|---------|-----------|--------|--------------|--------|--------------|--------|--------------|--------|--------------|--------|------------------|
| | | Mean ±SD | Median | Mean ±SD | Median | Mean ±SD | Median | Mean ±SD | Median | Mean ±SD | Median | |
| Age | y | 59.9±5.4 | 60.5 | 59.6±5.4 | 60.0 | 59.8±5.4 | 60.0 | 60.0±5.4 | 61.0 | 60.3±5.4 | 61.0 | |
| Weight | kg | 54.0±7.1 | 53.6 | 54.1±7.2 | 53.5 | 53.8±7.2 | 53.0 | 54.0±7.1 | 54.0 | 54.0±7.1 | 54.0 | |
| BMI | | 23.1±2.9 | 22.9 | 23.1±2.9 | 22.8 | 23.0±3.0 | 22.8 | 23.1±3.0 | 23.0 | 23.1±2.9 | 23.1 | |
| Dietary intake per day | | | | | | | | | | | | |
| Energy | kcal | 1,870±307 | 1,858 | 1,880±344 | 1,877 | 1,864±391 | 1,823 | 1,867±358 | 1,937 | 1,871±363 | 1,833 | |
| Protein | g | 74.6±14.1 | 72.8 | 76.5±15.8 | 75.8 | 73.8±18.1 | 71.7 | 73.9±16.7 | 71.5 | 74.3±17.0 | 73.5 | |
| Fat | g | 51.0±12.3 | 48.8 | 52.2±15.8 | 50.3 | 50.7±14.9 | 49.2 | 50.3±17.6 | 48.0 | 50.8±15.5 | 47.9 | |
| Fat | %energy | 24.5±3.6 | 24.2 | 24.5±4.9 | 24.4 | 24.2±4.7 | 24.0 | 23.7±4.7 | 23.5 | 24.1±4.6 | 24.0 | |
| Salt | g | 12.2±3.0 | 11.8 | 12.3±3.8 | 11.7 | 12.4±4.3 | 11.8 | 12.1±3.7 | 11.6 | 11.8±3.4 | 11.4 | * |
| Calcium | mg | 631±188 | 619 | 646±236 | 620 | 616±231 | 605 | 634±224 | 617 | 630±230 | 606 | |
| Iron | mg | 9.6±2.8 | 9.2 | 9.6±2.8 | 9.3 | 9.5±5.3 | 8.6 | 9.5±3.0 | 9.1 | 9.7±3.3 | 9.2 | |
| Folate | µg | 406±141 | 375 | 406±136 | 385 | 406±335 | 346 | 406±160 | 370 | 403±144 | 377 | |
| Vitamin C | mg | 138±58 | 126 | 132±77 | 120 | 123±85 | 112 | 158±84 | 143 | 137±77 | 121 | *** |

p*<0.05, *p*<0.01, ****p*<0.001.

ANOVA (individual and season) were used to test for differences across the four seasons. Second, we assessed the differences among the five dietary intake distributions: 1) 1-d data (the first day) for a weekday in autumn, 2) mean intake data for 3 d in autumn, 3) mean intake data for 12 d throughout a year, and 4) the usual intake distribution estimated using the Best-Power method from the 3-d data in autumn, 5) the usual intake distribution adjusted for seasonal variation by adding the difference between the average for 12 d throughout a year and the average for 3 d in autumn to the estimated usual intake from data for 3 d in autumn. Finally, after categorizing the five patterns, we computed the percentages of the population that were at risk.

RESULTS

The characteristics of the subjects are shown in Tables 1 and 2. The means and standard deviations, and medians of nutrient intakes are presented for 3 d in

each season. In both men and women, the intake of vitamin C was highest in autumn (*p*<0.001).

Table 3 shows four different descriptive statistics on dietary intake, i.e. a weekday in autumn, an average of 3 d in autumn, an average of 12 d throughout a year, and usual intakes estimated by the Best-Power method. It was found that the usual intake distributions of many nutrients were markedly narrower than the distributions of 1-d intake data. The season-adjusted estimation of the usual intake distribution was similar to the distribution for 12 d.

Table 4 illustrates the proportion of the population estimated to be nutritionally at risk using the EAR or DG as cut-points. The proportion of the population at risk for nutrient deficiency was overestimated in the 1-d intake distribution. For calcium, based on the 1-d intake distribution, 48.6% of men and 48.2% of women were at risk of deficiency, compared to the estimates of 45.2% for men and 46.5% for women derived from season-adjusted estimation of the usual intake. For folate,

Table 3. Descriptive statistics of the intake of 8 nutrients in men and women for: raw data from 1 d, means of 3 d and 12 d and estimating usual intake by Best-Power method.

| (1) Energy, kcal | | | | | | | | | | | |
|---|------------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|------|
| | Percentile | | | | | | | | | Mean | SD |
| | 1st | 5th | 10th | 25th | 50th | 75th | 90th | 95th | 99th | | |
| Men | | | | | | | | | | | |
| 1 d | 1.441 | 1.613 | 1.705 | 1.979 | 2.312 | 2.610 | 3.095 | 3.269 | 3.707 | 2.339 | 506 |
| 3 d mean | 1.439 | 1.656 | 1.791 | 2.004 | 2.304 | 2.631 | 2.989 | 3.190 | 3.626 | 2.346 | 471 |
| 12 d mean | 1.610 | 1.841 | 1.934 | 2.078 | 2.325 | 2.605 | 2.989 | 3.062 | 3.466 | 2.379 | 404 |
| Usual | 1.505 | 1.725 | 1.850 | 2.052 | 2.300 | 2.602 | 2.907 | 3.086 | 3.451 | 2.345 | 421 |
| Usual ¹ | 1.538 | 1.758 | 1.883 | 2.084 | 2.333 | 2.635 | 2.940 | 3.119 | 3.484 | 2.378 | 421 |
| Women | | | | | | | | | | | |
| 1 d | 1.011 | 1.259 | 1.359 | 1.579 | 1.814 | 2.154 | 2.444 | 2.590 | 3.140 | 1.876 | 429 |
| 3 d mean | 1.150 | 1.358 | 1.449 | 1.623 | 1.837 | 2.088 | 2.320 | 2.411 | 2.914 | 1.867 | 358 |
| 12 d mean | 1.246 | 1.435 | 1.516 | 1.681 | 1.858 | 2.060 | 2.247 | 2.314 | 2.891 | 1.870 | 307 |
| Usual | 1.223 | 1.426 | 1.508 | 1.687 | 1.849 | 2.042 | 2.237 | 2.334 | 2.754 | 1.867 | 298 |
| Usual ¹ | 1.226 | 1.429 | 1.511 | 1.690 | 1.852 | 2.045 | 2.240 | 2.337 | 2.757 | 1.870 | 298 |
| ¹ Adjusted for seasonal variation. | | | | | | | | | | | |
| (2) Protein, g | | | | | | | | | | | |
| | Percentile | | | | | | | | | Mean | SD |
| | 1st | 5th | 10th | 25th | 50th | 75th | 90th | 95th | 99th | | |
| Men | | | | | | | | | | | |
| 1 d | 39.6 | 52.6 | 57.7 | 70.2 | 84.9 | 101.1 | 118.5 | 127.1 | 147.9 | 86.4 | 23.2 |
| 3 d mean | 50.6 | 58.1 | 64.4 | 74.3 | 86.6 | 98.4 | 110.7 | 122.7 | 141.3 | 87.1 | 18.9 |
| 12 d mean | 60.9 | 66.7 | 68.8 | 77.7 | 87.4 | 99.6 | 111.1 | 121.8 | 131.1 | 89.3 | 16.3 |
| Usual | 52.2 | 63.5 | 68.1 | 76.0 | 86.4 | 96.7 | 107.6 | 114.1 | 128.5 | 87.1 | 16.0 |
| Usual ¹ | 54.5 | 65.7 | 70.4 | 78.2 | 88.7 | 98.9 | 109.8 | 116.3 | 130.7 | 89.3 | 16.0 |
| Women | | | | | | | | | | | |
| 1 d | 36.1 | 42.5 | 48.6 | 58.8 | 71.8 | 84.3 | 97.0 | 108.5 | 133.7 | 73.0 | 20.3 |
| 3 d mean | 42.1 | 51.0 | 55.1 | 62.0 | 71.5 | 82.5 | 96.3 | 106.5 | 124.6 | 73.9 | 16.7 |
| 12 d mean | 45.0 | 53.2 | 59.0 | 65.0 | 72.8 | 82.4 | 91.9 | 99.5 | 112.1 | 74.6 | 14.1 |
| Usual | 46.4 | 53.7 | 57.5 | 64.6 | 73.1 | 81.8 | 91.3 | 97.6 | 112.5 | 73.9 | 13.5 |
| Usual ¹ | 47.2 | 54.4 | 58.3 | 65.3 | 73.8 | 82.5 | 92.0 | 98.3 | 113.2 | 74.6 | 13.5 |
| ¹ Adjusted for seasonal variation. | | | | | | | | | | | |
| (3) Fat, %energy | | | | | | | | | | | |
| | Percentile | | | | | | | | | Mean | SD |
| | 1st | 5th | 10th | 25th | 50th | 75th | 90th | 95th | 99th | | |
| Men | | | | | | | | | | | |
| 1 d | 8.7 | 11.7 | 13.7 | 17.6 | 21.5 | 25.7 | 29.6 | 33.8 | 37.7 | 21.7 | 6.2 |
| 3 d mean | 11.9 | 13.4 | 15.5 | 18.9 | 21.4 | 24.6 | 28.1 | 30.0 | 34.0 | 21.9 | 5.0 |
| 12 d mean | 14.4 | 15.9 | 17.2 | 19.6 | 22.0 | 24.8 | 27.0 | 28.2 | 30.4 | 22.2 | 3.8 |
| Usual | 14.2 | 15.7 | 17.0 | 19.3 | 21.6 | 24.1 | 26.1 | 27.7 | 30.1 | 21.7 | 3.6 |
| Usual ¹ | 14.5 | 16.0 | 17.3 | 19.6 | 21.9 | 24.3 | 26.4 | 27.9 | 30.4 | 22.0 | 3.6 |
| Women | | | | | | | | | | | |
| 1 d | 9.7 | 13.9 | 15.7 | 19.3 | 23.5 | 27.9 | 31.3 | 33.6 | 38.8 | 23.6 | 6.4 |
| 3 d mean | 15.1 | 16.6 | 18.2 | 20.7 | 23.8 | 27.1 | 29.5 | 32.2 | 36.2 | 24.0 | 5.0 |
| 12 d mean | 17.0 | 19.3 | 20.0 | 21.9 | 24.2 | 27.0 | 29.2 | 30.1 | 32.7 | 24.5 | 3.6 |
| Usual | 16.7 | 18.5 | 19.7 | 21.4 | 23.8 | 26.0 | 27.6 | 28.7 | 31.0 | 23.7 | 3.2 |
| Usual ¹ | 17.2 | 18.9 | 20.2 | 21.9 | 24.2 | 26.4 | 28.1 | 29.2 | 31.5 | 24.2 | 3.2 |
| ¹ Adjusted for seasonal variation. | | | | | | | | | | | |
| (4) Salt, g | | | | | | | | | | | |
| | Percentile | | | | | | | | | Mean | SD |
| | 1st | 5th | 10th | 25th | 50th | 75th | 90th | 95th | 99th | | |
| Men | | | | | | | | | | | |
| 1 d | 5.9 | 7.1 | 8.0 | 9.9 | 12.9 | 16.3 | 20.2 | 22.7 | 27.8 | 13.6 | 4.8 |
| 3 d mean | 6.5 | 8.3 | 9.6 | 11.0 | 12.9 | 16.0 | 19.9 | 21.4 | 26.4 | 13.9 | 4.2 |
| 12 d mean | 6.8 | 9.2 | 10.2 | 11.9 | 13.9 | 16.0 | 18.8 | 19.7 | 23.8 | 14.1 | 3.3 |
| Usual | 7.5 | 9.0 | 9.8 | 11.3 | 13.6 | 15.8 | 18.6 | 19.9 | 23.2 | 13.9 | 3.5 |
| Usual ¹ | 7.7 | 9.3 | 10.1 | 11.6 | 13.9 | 16.0 | 18.8 | 20.2 | 23.5 | 14.1 | 3.5 |
| Women | | | | | | | | | | | |
| 1 d | 4.9 | 6.1 | 6.9 | 9.0 | 11.3 | 14.1 | 17.3 | 18.8 | 24.8 | 11.9 | 4.1 |
| 3 d mean | 5.7 | 7.1 | 7.8 | 9.6 | 11.6 | 13.9 | 17.1 | 18.7 | 24.1 | 12.1 | 3.7 |
| 12 d mean | 6.3 | 8.1 | 8.7 | 10.1 | 11.8 | 14.1 | 15.9 | 17.1 | 22.0 | 12.2 | 3.0 |
| Usual | 6.2 | 7.6 | 8.4 | 10.0 | 11.7 | 13.9 | 15.9 | 17.9 | 21.3 | 12.1 | 3.1 |
| Usual ¹ | 6.2 | 7.7 | 8.5 | 10.1 | 11.8 | 14.0 | 15.9 | 17.9 | 21.4 | 12.2 | 3.1 |
| ¹ Adjusted for seasonal variation. | | | | | | | | | | | |

Table 3. (Continued)

(5) Calcium, mg

| | Percentile | | | | | | | | | Mean | SD |
|--------------------|------------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|---------|---------|-------|-------|
| | 1st | 5th | 10th | 25th | 50th | 75th | 90th | 95th | 99th | | |
| Men | | | | | | | | | | | |
| 1 d | 227.6 | 290.7 | 339.5 | 418.2 | 611.8 | 789.6 | 943.3 | 1,100.2 | 1,335.5 | 628.7 | 264.0 |
| 3 d mean | 255.1 | 344.8 | 385.6 | 470.9 | 609.1 | 786.7 | 926.1 | 1,069.1 | 1,218.3 | 642.6 | 222.6 |
| 12 d mean | 317.6 | 398.1 | 434.6 | 513.0 | 616.8 | 767.6 | 910.5 | 974.6 | 1,137.1 | 647.9 | 189.2 |
| Usual | 317.5 | 372.6 | 421.2 | 492.1 | 617.2 | 764.0 | 901.3 | 992.6 | 1,155.0 | 642.5 | 189.2 |
| Usual ¹ | 322.9 | 378.0 | 426.5 | 497.4 | 622.5 | 769.3 | 906.7 | 997.9 | 1,160.3 | 647.8 | 189.2 |
| Women | | | | | | | | | | | |
| 1 d | 143.7 | 279.9 | 360.3 | 442.2 | 607.9 | 784.0 | 977.9 | 1,121.8 | 1,517.9 | 633.7 | 261.7 |
| 3 d mean | 199.5 | 319.0 | 387.3 | 464.3 | 616.7 | 717.9 | 933.9 | 1,020.4 | 1,242.9 | 633.5 | 223.6 |
| 12 d mean | 297.3 | 357.5 | 406.5 | 483.9 | 618.7 | 747.2 | 873.2 | 951.7 | 1,137.0 | 631.3 | 187.6 |
| Usual | 275.3 | 351.7 | 404.3 | 491.5 | 618.0 | 749.9 | 897.3 | 980.0 | 1,209.4 | 633.5 | 194.2 |
| Usual ¹ | 273.1 | 349.6 | 402.1 | 489.4 | 615.8 | 747.7 | 895.1 | 977.9 | 1,207.2 | 631.4 | 194.2 |

¹ Adjusted for seasonal variation.

(6) Iron, mg

| | Percentile | | | | | | | | | Mean | SD |
|--------------------|------------|-----|------|------|------|------|------|------|------|------|-----|
| | 1st | 5th | 10th | 25th | 50th | 75th | 90th | 95th | 99th | | |
| Men | | | | | | | | | | | |
| 1 d | 4.6 | 5.9 | 6.2 | 7.6 | 9.4 | 11.8 | 14.3 | 16.5 | 21.0 | 10.1 | 3.5 |
| 3 d mean | 5.7 | 6.4 | 6.8 | 8.1 | 9.9 | 11.6 | 13.7 | 15.1 | 18.5 | 10.1 | 2.9 |
| 12 d mean | 6.0 | 7.4 | 7.7 | 8.5 | 10.0 | 11.7 | 13.5 | 14.7 | 17.1 | 10.4 | 2.5 |
| Usual | 5.8 | 7.0 | 7.4 | 8.5 | 9.9 | 11.4 | 12.8 | 14.0 | 16.7 | 10.1 | 2.4 |
| Usual ¹ | 6.0 | 7.2 | 7.6 | 8.7 | 10.1 | 11.7 | 13.0 | 14.2 | 17.0 | 10.4 | 2.4 |
| Women | | | | | | | | | | | |
| 1 d | 4.1 | 5.1 | 6.0 | 7.2 | 8.9 | 11.0 | 13.8 | 15.4 | 20.5 | 9.5 | 3.4 |
| 3 d mean | 4.6 | 5.7 | 6.6 | 7.7 | 9.1 | 11.0 | 13.1 | 13.7 | 16.2 | 9.5 | 3.0 |
| 12 d mean | 5.2 | 6.2 | 7.1 | 7.9 | 9.2 | 10.8 | 12.4 | 13.9 | 17.7 | 9.6 | 2.8 |
| Usual | 5.2 | 6.5 | 7.0 | 8.0 | 9.2 | 10.7 | 12.3 | 13.5 | 15.8 | 9.5 | 2.5 |
| Usual ¹ | 5.2 | 6.5 | 7.0 | 8.0 | 9.2 | 10.7 | 12.3 | 13.5 | 15.8 | 9.5 | 2.5 |

¹ Adjusted for seasonal variation.

(7) Folate, µg

| | Percentile | | | | | | | | | Mean | SD |
|--------------------|------------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|---------|-------|-------|
| | 1st | 5th | 10th | 25th | 50th | 75th | 90th | 95th | 99th | | |
| Men | | | | | | | | | | | |
| 1 d | 160.3 | 194.3 | 227.5 | 295.4 | 380.6 | 498.9 | 616.4 | 701.4 | 1,050.9 | 413.0 | 191.8 |
| 3 d mean | 173.3 | 223.9 | 244.9 | 308.7 | 395.6 | 507.0 | 609.0 | 659.7 | 803.4 | 420.1 | 171.5 |
| 12 d mean | 211.7 | 265.6 | 291.9 | 342.8 | 403.5 | 506.0 | 579.4 | 640.2 | 770.5 | 430.1 | 135.4 |
| Usual | 191.4 | 237.5 | 267.5 | 321.6 | 401.5 | 493.6 | 565.9 | 629.8 | 894.2 | 418.3 | 150.5 |
| Usual ¹ | 201.3 | 247.4 | 277.4 | 331.5 | 411.4 | 503.5 | 575.9 | 639.8 | 904.2 | 428.2 | 150.5 |
| Women | | | | | | | | | | | |
| 1 d | 119.6 | 189.8 | 227.7 | 284.6 | 352.1 | 479.7 | 595.6 | 733.3 | 1,069.0 | 394.6 | 170.3 |
| 3 d mean | 145.7 | 218.4 | 251.5 | 298.2 | 369.6 | 483.1 | 594.9 | 679.4 | 1,080.0 | 405.5 | 159.7 |
| 12 d mean | 198.9 | 246.7 | 275.0 | 310.9 | 375.2 | 488.7 | 561.9 | 625.7 | 760.8 | 405.8 | 141.1 |
| Usual | 176.9 | 234.4 | 261.3 | 319.1 | 382.7 | 466.5 | 552.9 | 621.5 | 849.0 | 404.3 | 140.8 |
| Usual ¹ | 177.2 | 234.7 | 261.6 | 319.4 | 383.1 | 466.8 | 553.2 | 621.8 | 849.3 | 404.6 | 140.8 |

¹ Adjusted for seasonal variation.

(8) Vitamin C, mg

| | Percentile | | | | | | | | | Mean | SD |
|--------------------|------------|------|------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|
| | 1st | 5th | 10th | 25th | 50th | 75th | 90th | 95th | 99th | | |
| Men | | | | | | | | | | | |
| 1 d | 18.8 | 37.7 | 51.4 | 82.0 | 124.0 | 179.4 | 238.3 | 302.9 | 473.1 | 141.8 | 92.5 |
| 3 d mean | 37.4 | 43.8 | 61.6 | 89.6 | 136.4 | 182.2 | 237.2 | 300.1 | 359.4 | 145.0 | 81.4 |
| 12 d mean | 48.9 | 60.6 | 69.0 | 91.7 | 121.1 | 158.1 | 189.5 | 216.2 | 270.9 | 128.3 | 48.5 |
| Usual | 34.6 | 57.7 | 71.0 | 96.6 | 137.0 | 177.9 | 222.7 | 260.0 | 349.2 | 144.6 | 72.9 |
| Usual ¹ | 17.9 | 41.0 | 54.3 | 79.9 | 120.3 | 161.2 | 206.0 | 243.3 | 332.5 | 127.9 | 72.9 |
| Women | | | | | | | | | | | |
| 1 d | 24.3 | 40.0 | 54.0 | 83.2 | 139.1 | 206.6 | 266.3 | 324.3 | 518.2 | 157.0 | 102.3 |
| 3 d mean | 40.3 | 54.2 | 70.6 | 98.1 | 142.7 | 196.5 | 267.2 | 328.2 | 467.3 | 157.8 | 83.8 |
| 12 d mean | 51.7 | 68.1 | 78.6 | 95.1 | 125.2 | 170.6 | 207.5 | 227.3 | 330.5 | 137.3 | 58.2 |
| Usual | 41.8 | 64.0 | 80.3 | 107.2 | 146.8 | 194.1 | 248.4 | 287.7 | 397.8 | 157.7 | 72.9 |
| Usual ¹ | 21.5 | 43.7 | 59.9 | 86.9 | 126.5 | 173.8 | 228.0 | 267.4 | 377.4 | 137.4 | 72.9 |

¹ Adjusted for seasonal variation.

Table 4. Estimated proportion of the population below or above at risk intake levels for: raw data from 1 d, means of 3 d and 12 d and estimating usual intake by Best-Power method.

| Gender | Nutrient | | At risk level | % of population at risk ¹ | | | | |
|--------|-----------|---------|-------------------|--------------------------------------|----------|-----------|-------|--------------------|
| | | | | Raw 1 d | 3 d mean | 12 d mean | Usual | Usual ² |
| Men | Protein | g | <50 | 3.9 | 1.0 | 0 | 0.5 | 0.2 |
| | Fat | %energy | 25 \leq | 27.9 | 22.1 | 24.0 | 17.5 | 18.6 |
| | Salt | g | 10 \leq | 74.0 | 86.5 | 90.9 | 88.9 | 90.5 |
| | Calcium | mg | <600 | 48.6 | 47.1 | 46.2 | 46.3 | 45.2 |
| | Iron | mg | <6 | 7.2 | 3.4 | 1.0 | 1.6 | 1.0 |
| | Folate | μ g | <200 | 5.8 | 2.9 | 0.5 | 1.3 | 1.0 |
| | Vitamin C | mg | <85 | 27.9 | 21.6 | 19.7 | 18.6 | 28.0 |
| Women | Protein | g | <40 | 2.4 | 0 | 0 | 0 | 0 |
| | Fat | %energy | 25 \leq | 39.8 | 37.8 | 43.0 | 35.2 | 40.8 |
| | Salt | g | 8 \leq | 82.5 | 88.4 | 96.0 | 93.0 | 93.2 |
| | Calcium | mg | <600 | 48.2 | 48.6 | 45.0 | 46.2 | 46.5 |
| | Iron | mg | <5.5 ³ | 6.0 | 3.2 | 2.0 | 1.6 | 1.6 |
| | Folate | μ g | <200 | 6.4 | 3.2 | 1.2 | 1.7 | 1.7 |
| | Vitamin C | mg | <85 | 25.1 | 17.1 | 15.1 | 13.0 | 23.8 |

¹Percentage below EAR or above DG.

²Adjusted for seasonal variation.

³EAR of post-menopausal women; the EAR cut-point method would be inappropriate for menstruating women, because the theoretical distribution of requirement for iron intake is heavily skewed.

those at risk of deficiency in the 1-d intake distribution were 5.8% of men and 6.4% of women; considering the season-adjusted estimated usual intakes, they were 1.0% and 1.7%, respectively. Regarding salt intake, the proportion of the population above the DG was underestimated in the 1-d intake distribution; based on the 1-d intake data, 74.0% of men and 82.5% of women were at risk for overconsumption of salt compared to the season-adjusted estimates for usual intake, which were 90.5% and 93.2%, respectively.

DISCUSSION

The number of days necessary for data collection to estimate usual intake differs with the nutrient being considered. In general, the minimum number of days required for estimating individual usual intake ranges from 3 to 10 d for energy and macronutrients, whereas 20 to 50 d are needed for food components with large day-to-day variation, such as cholesterol and vitamins A and C (22). Therefore, it is impossible to survey usual intake directly because recording diet over a long period of time is burdensome for the subjects. Instead, several methods have been proposed to estimate usual intake from a few days of dietary intake data (11–13). Both of these procedures have been used in previous studies for evaluating nutritionally at-risk populations (23–28).

However, estimates of the usual intake distribution of the population using a national representative sample have rarely been reported. Mackerras and Rutishauser estimated the usual intake distribution from the Australian National Nutrition Survey in 1995 using the NRC method (29). They selected about 10% of the first interview group as a sub-sample for the second interview. The second interview was conducted on a different day

of the week within 10 d of the first interview. Their results took in all nutrients except vitamin A, and the 10th–90th percentile range was expressed as a percentage of its median. The transformation of the raw data resulted in a narrowing of the width of the distribution. They defined the nutritionally at-risk population using cut-points set at 70% of the recommended dietary intake (RDI) for all nutrients and at the EAR of the UK and the USA because the EAR had not been determined in Australia. Their result was similar to our result; the proportion of nutritionally at-risk individuals from the adjusted intake data was lower than the proportion calculated from the unadjusted intake data using the EAR cut-point method. The EAR cut-point method is very simple though it has some errors. In addition, we showed that the proportion of the population above the DG was underestimated by the 1-d intake distribution. Therefore salt intake in the NHNS-J is possibly underestimated.

The Goldberg cut-off method is commonly used to correct the overall bias of underreporting at the group level using the ratio between energy intake (EI) and the basal metabolic rate (BMR) (30). However, this method of correcting the energy intake distribution did not serve the purpose of this study and therefore was not used. Nor was the relationship between usual energy intake and body mass index (BMI), a useful indicator of the energy intake–expenditure relationship, investigated.

A statistical model to estimate the usual intakes of a large population is still under investigation owing to these and other problems. In this study, the usual intake was estimated by the Best-Power method from 3 d of data collected in autumn. Consequently, it is possible

that there is a difference between the "true" and usual intake, especially since the daily intake of vitamin C has been shown to vary with season (31, 32). Therefore we adjusted differences for seasonal differences by adding the differences between the 12-d average (throughout a year) and the 3-d autumn average to the estimated usual intake from data for 3 d in autumn.

The size of the subgroup sample and the number of days necessary for collection of the second intake data are under discussion (5, 24–26). Hoffmann et al. (25) demonstrated that estimated percentiles of usual intake are similar for surveys of 2 and 7 d, as in the second study. Owing to the burden experienced by the subjects, the duration of the survey cannot be increased indefinitely. It will be necessary to examine the size and the duration of the sub-sample survey that is carried out as part of a large-scale survey. We suggest that the NHNS-J would conduct a second survey of some subjects as it is necessary to estimate usual intake using a statistical method in the future, because the proportion of nutritionally at-risk subjects in individual groups are either underestimated or overestimated in the present NHNS-J, which is carried out over 1 d.

There was a limitation in this study. The subjects were not selected randomly because the difficulty of a 12-d dietary survey makes it highly likely that many randomly selected subjects would drop out of the study. However, the regional bias was lessened because the survey was carried out over a wide area of Japan.

Acknowledgments

The authors are grateful to local staff in different areas of Japan and especially to the dietitians for collecting dietary intake data. This study was funded by project and research grants from the Japanese Ministry of Health, Welfare and Labor.

REFERENCES

- 1) Hankin JH, Reynolds WE, Margen S. 1967. A short dietary method for epidemiologic studies. *Am J Clin Nutr* **20**: 935–945.
- 2) Beaton GH, Milner J, Corey P, McGuere V, Cousins M, Stewart E, de Ramos M, Hewitt D, Grambsch PV, Kassim N, Little JA. 1979. Sources of variation in 24-hour dietary recall data: implications for nutrition study design and interpretation. *Am J Clin Nutr* **32**: 2546–2559.
- 3) Block G. 1982. A review of validations of dietary assessment methods. *Am J Epidemiol* **115**: 492–505.
- 4) Hartman AM, Brown CC, Palmgren J, Pietinen P, Verkasalo M, Myer D, Virtamo J. 1990. Variability in nutrient and food intakes among older middle-aged men. *Am J Epidemiol* **132**: 999–1012.
- 5) Oh SY, Hong MH. 1999. Within- and between-person variation of nutrient intakes of older people in Korea. *Eur J Clin Nutr* **53**: 625–629.
- 6) Ogawa K, Tsubono Y, Nishino Y, Watanabe Y, Ohkubo T, Watanabe T, Nakatsuka H, Takahashi N, Kawamura M, Tsuji I, Hisamichi S. 1999. Inter- and intra-individual variation of food and nutrient consumption in a rural Japanese population. *Eur J Clin Nutr* **52**: 781–785.
- 7) Black AE, Cole TJ. 2001. Biased over- or under-reporting is characteristic of individuals whether over time or by different assessment methods. *J Am Diet Assoc* **101**: 70–80.
- 8) Cai H, Shu XO, Hebert JR, Jin F, Yang C, Liu DK, Gao YT, Zheng W. 2004. Variation in nutrient intakes among women in Shanghai, China. *Eur J Clin Nutr* **58**: 1604–1611.
- 9) Ministry of Health and Welfare. 2005. Dietary Reference Intakes for Japanese, 2005. Daiichi Publishing, Tokyo (in Japanese).
- 10) Ministry of Health and Welfare. 2004. Kokumin eiyu no genjou (Annual Report of the National Health and Nutrition Survey in 2004). Daiichi Publishing, Tokyo (in Japanese).
- 11) Subcommittee on Criteria for Dietary Evaluation, Coordinating Committee on Evaluation of Food Consumption Surveys, Food and Nutrition Board, National Research Council. 1986. Nutrient Adequacy Assessment Using Food Consumption Surveys. National Academies Press, Washington DC.
- 12) Nusser SM, Carriquiry AL, Dodd KW, Fuller WA. 1996. A semiparametric transformation approach to estimating usual daily intake distributions. *J Am Stat Assoc* **91**: 1440–1449.
- 13) Dodd KW, Guenther PM, Freedman LS, Subar AF, Kipnis V, Midthune D, Toozé JA, Krebs-Smith SM. 2006. Statistical methods for estimating usual intake of nutrients and foods: a review of the theory. *J Am Diet Assoc* **106**: 1640–1650.
- 14) Carriquiry AL. 2003. Estimation of usual intake distributions of nutrients and foods. *J Nutr* **133**: 601S–608S.
- 15) Dwyer J, Picciano MF, Raiten DJ. 2003. Estimation of usual intake: What we eat in America—NHANES. *J Nutr* **133**: 609S–623S.
- 16) Carriquiry AL. 1999. Assessing the prevalence of nutrient inadequacy. *Public Health Nutr* **2**: 23–33.
- 17) de Lauzon B, Volatier JL, Martin A. 2004. A Monte Carlo simulation to validate the EAR cut-point method for assessing the prevalence of nutrient inadequacy at the population level. *Public Health Nutr* **7**: 893–900.
- 18) The Subcommittee on Interpretation and Uses of Dietary Reference Intakes and the Standing Committee on the Scientific Evaluation of Dietary Reference Intakes. 2000. Dietary Reference Intakes Applications in Dietary Assessment. Institute of Medicine, National Academy Press, Washington DC.
- 19) Iwaoka H, Yoshiike N, Date C, Shimada T, Tanaka H. 2001. A validation study on a method to estimate nutrient intake by family members through a household based food-weighing survey. *J Nutr Sci Vitaminiol* **47**: 222–227.
- 20) Resources Council of the Science and Technology Agency. 2005. Standard Tables of Food Composition in Japan. Fifth Revised and Enlarged Edition. Ministry of Finance Printing Bureau, Tokyo (in Japanese).
- 21) SAS Institute. 1999. SAS OnlineDoc, Version 8, SAS Institute Inc, Cary, NC.
- 22) Buzzard M. 1998. 24-Hour dietary recall and food record methods. In: Nutritional Epidemiology (Willett W, ed), 2nd ed, p 50–73. Oxford University Press, New York, NY.
- 23) Guenther PM, Kott PS, Carriquiry AL. 1997. Development of an approach for estimating usual nutrient intake distributions at the population level. *J Nutr* **127**: 1106–1112.

- 24) Barr SI, Murphy SP, Poos MI. 2002. Interpreting and using the dietary references intakes in dietary assessment of individuals and groups. *J Am Diet Assoc* **102**: 780–788.
- 25) Hoffmann K, Boeing H, Dufour A, Volatier JL, Telman J, Virtanen M, Becker W, De Henauw S. 2002. Estimating the distribution of usual dietary intake by short-term measurements. *Eur J Clin Nutr* **56** (Suppl 2): S53–S62.
- 26) Palaniappan U, Cue RI, Payatte H, Gray-Donald K. 2003. Implications of day-to-day variability on measurements of usual food and nutrient intakes. *J Nutr* **133**: 232–235.
- 27) Carriquiry AL, Camano-Garcia G. 2006. Evaluation of dietary intake data using the tolerable upper intake levels. *J Nutr* **136**: 507S–513S.
- 28) Jahns L, Arab L, Carriquiry A, Popkin BM. 2005. The use of external within-individual variance estimates to adjust nutrient intake distributions over time and across populations. *Public Health Nutr* **8**: 69–76.
- 29) Mackerras D, Rutishauser I. 2005. 24-Hour national dietary survey data: how do we interpret them most effectively? *Public Health Nutr* **8**: 657–665.
- 30) Goldberg GR, Black AE, Jebb SA, Cole TJ, Murgatroyd PR, Coward WA, Prentice AM. 1991. Critical evaluation of energy intake data using fundamental principles of energy physiology: 1. Derivation of cut-off limits to identify under-recording. *Eur J Clin Nutr* **45**: 569–581.
- 31) Tokudome Y, Imaeda N, Nagaya T, Ikeda M, Fujiwara N, Sato J, Kuriki K, Kikuchi S, Maki S, Tokudome S. 2002. Daily, weekly, seasonal, within- and between-individual variation in nutrient intake according to four season consecutive 7 day weighed diet records in Japanese female dietitians. *J Epidemiol* **12**: 85–92.
- 32) Fahey MT, Sasaki S, Kobayashi M, Akabane M, Tsugane S. 2003. Seasonal misclassification error and magnitude of true between-person variation in dietary nutrient intake: a random coefficients analysis and implications for the Japan Public Health Center (JPHC) Cohort Study. *Public Health Nutr* **6**: 385–391.