調査・資料

日本人の食事経由のトリブチルスズ、ジブチルスズ、トリフェニルスズ
及びジフェニルスズ化合物の摂取量

(平成 12 年 2 月 10 日受理)

豊田正武^{*1} 酒井 洋^{*2} 小林ゆかり^{*2} 小松雅美^{*2}
 星野庸二^{*3} 堀江正一^{*3} 佐伯政信^{*4} 長谷川康行^{*4}
 辻 元 宏^{*5} 小嶋美穂子^{*5} 豊村 敬 郎^{*6}
 熊野眞佐代^{*6} 谷村 顕 雄^{*7}

Daily Dietary Intake of Tributyltin, Dibutyltin, Triphenyltin and Diphenyltin Compounds
According to a Total Diet Study in a Japanese Population

Masatake TOYODA^{*1}, Hiroshi SAKAI^{*2}, Yukari KOBAYASHI^{*2}, Masami KOMATSU^{*2}, Yoji HOSHINO^{*3},
 Masakazu HORIE^{*3}, Masanobu SAEKI^{*4}, Yasuyuki HASEGAWA^{*4}, Motohiro TSUJI^{*5},
 Mihoko KOJIMA^{*5}, Keiro TOYOMURA^{*6}, Masayo KUMANO^{*6} and Akio TANIMURA^{*7}

(^{*1}National Institute of Health Sciences: 1-18-1, Kamiyoga, Setagaya-ku, Tokyo 158-8501, Japan;
^{*2}Niigata Prefectural Research Laboratory for Health and Environment: 314-1, Sowa, Niigata,
 950-2144, Japan; ^{*3}Saitama Prefectural Institute of Public Health, 639-1, Kamiokubo, Urawa,
 Saitama 338-0824, Japan; ^{*4}Public Health Laboratory of Chiba Prefecture, 666-2, Nitona-cho,
 Chuo-ku, Chiba 260-8715, Japan; ^{*5}Shiga Prefectural Institute of Public Health and
 Environmental Sciences: 13-45, Gotenham, Ohtsu, Shiga 520-0834, Japan; ^{*6}Nagasaki
 Prefectural Institute of Public Health and Environmental Sciences: 1-9-5, Nameishi,
 Nagasaki 852-8061, Japan; ^{*7}Showa Women's University: 1-7-57, Taishido,
 Setagaya-ku, Tokyo 154-8533, Japan)

We report here on the dietary exposures of Japanese consumers to four kinds of organotin compounds, tributyltin (TBT), dibutyltin (DBT), triphenyltin (TPT) and diphenyltin (DPT), based on analyses with the 1998 total diet samples (14 food group composites). Daily intake was 1.7 μg /person (0~4.7 μg /person) for TBT, 0.45 μg /person (0~1.7 μg /person) for DBT, 0.09 μg /person (0~0.25 μg /person) for TPT, and 0 μg /person for DPT, calculated based on ND (not detected)=0. Among 14 food groups, only food group 10 (fish and shellfish) contributed to the intakes of TBT and TPT. As compared with the data obtained by the Japanese total diet study in 1991, daily intakes of TBT had decreased by half and those of TPT by approximately 2%. Dietary exposures were generally low and below the provisional tolerable daily intake for TBT (2%) and the JMPR (Joint Meetings of the FAO and WHO Panel of Experts on Pesticides Residues) tolerable daily intake for TPT (0.3%).

(Received February 10, 2000)

Key words: 有機スズ化合物 organotin compounds; トリブチルスズ tributyltin; トリフェニルスズ triphenyltin; トータルダイエツトスタヂー total diet study; 1 日摂取量 daily intake

緒 言

有機スズ化合物の中で、トリブチルスズ化合物とトリ

フェニルスズ化合物は軟体動物や藻類などへの毒性が強く、長期間有効であるため漁網や船底の防汚塗料などに使

^{*1} 国立医薬品食品衛生研究所: 〒158-8501 東京都世田谷区上用賀 1-18-1

^{*2} 新潟県保健環境科学研究所: 〒950-2144 新潟県新潟市曾和 314-1

^{*3} 埼玉県衛生研究所: 〒338-0824 埼玉県浦和市上大久保 639-1

^{*4} 千葉県衛生研究所: 〒260-8715 千葉市中央区仁戸名町 666-2

^{*5} 滋賀県立衛生環境センター: 〒520-0834 滋賀県大津市御殿浜 13-45

^{*6} 長崎県衛生公害研究所: 〒852-8061 長崎県長崎市滑石 1-9-5

^{*7} 昭和女子大学: 〒154-8533 東京都世田谷区太子堂 1-7-57

用され、また塩化ビニール樹脂の安定剤として使用されていたことから、環境がこれら化合物により広く汚染されることになった¹⁾。環境庁の1998年度の生物モニタリング調査結果によると、スズキで痕跡量 $\sim 0.14 \mu\text{g/g}$ のトリブチルスズ化合物が検出され、トリフェニルスズ化合物も検出限界 $\sim 0.12 \mu\text{g/g}$ 検出されている²⁾。特に大阪湾や瀬戸内海産のもので最大値が得られている。またムラサキガイからもトリブチルスズ化合物が最大 $0.24 \mu\text{g/g}$ 、トリフェニルスズ化合物が最大 $0.07 \mu\text{g/g}$ 検出されている。このように有機スズ化合物は、魚介類から検出されることから、人の健康への影響が懸念されている³⁾。更に、これら化合物は、多くの貝類にインボセックスを誘導することが報告されるようになり、いわゆる内分泌攪乱化学物質であることが疑われるようになった⁴⁾。

しかしながら、我が国における有機スズ化合物の平均的摂取量を全国的な規模でトータルダイエツト試料を用いて測定した報告はほとんど見られないことから、全国5地区から集めたトータルダイエツト試料中の濃度を測定し、食事由来の摂取量を推定した。また主要な暴露源である魚介類由来の摂取量の経年変化の傾向も調査した。

実験方法

1. 試料

トータルダイエツト試料は、約120品目を厚生省の平成6年度の国民栄養調査による食品群別摂取量表を基にして、1997年6月から1998年1月にかけて5地区（新潟県、埼玉県、千葉県、滋賀県、長崎県）で購入した。試料を14群に分け、各食品を実際の食事形態に従い、そのままあるいは簡単に調理した後、各群をそれぞれ混合しホモジナイズしたものを分析用試料とし、 -20°C で保存した。調理として、米は炊く、麺は茹でる、パンは焼く、いも及び豆腐は煮る、野菜は煮る、炒める又は茹でる、魚は焼く又は煮る、貝類は煮る、肉は焼く又は煮るなどの処理を行った。1群は米・米加工品、2群は米以外の穀類・種実類・芋類、3群は砂糖類・菓子類、4群は油脂類、5群は豆類・豆加工品、6群は果実類、7群は緑黄色野菜、8群は他の野菜・きのこ類・海藻類、9群は調味・嗜好飲料、10群は魚介類、11群は肉類・卵類、12群は乳・乳製品類、13群はその他の食品（カレールーなど）、14群は飲料水（水道水）である。

また第10群の魚介類の季節変動調査用の試料は、1997年6月から1998年1月にかけて購入した。すなわち、新潟県では1997年6月に40種食品及び12月に31種食品、埼玉県では同年9月に23種食品、千葉県では同年6月及び10月にそれぞれ23種食品、滋賀県では同年6～7月に33種食品及び10月に41種食品、また長崎県では同年12月～1998年2月に2回29種食品をそれぞれ購入した。経年変化調査用の試料については、1991年度から1997年度の間各年度ごとにトータルダイエツト試料と同様に調製した。

2. 試薬及び標準品

塩化トリブチルスズ (TBTC) は、市販標準溶液（関東化学(株)社製 TBTC (1 mg/mL トルエン溶液)) あるいは、東京化成工業(株)社製（純度95%以上）を用い精ひょうして *n*-ヘキサンで $100 \mu\text{g/mL}$ となるように溶解した。塩化ジブチルスズ (DBTC) は Aldrich Chemical Company, Inc. 製（純度96%以上）を用い、精ひょうしてアセトンで 5 mg/mL となるように、あるいは東京化成工業(株)社製（純度97%以上）を用い精ひょうして *n*-ヘキサンで $100 \mu\text{g/mL}$ となるように溶解した。塩化トリフェニルスズ (TPTC) は市販標準溶液（関東化学(株)社製 TPTC (1 mg/mL トルエン溶液))、あるいは和光純薬工業(株)社製（純度95%以上）を用い精ひょうして *n*-ヘキサンで $100 \mu\text{g/mL}$ となるように溶解した。塩化ジフェニルスズ (DPTC) は Aldrich Chemical Company, Inc. 製（純度96%以上）を用い精ひょうしてアセトンで 5 mg/mL となるように、あるいは *n*-ヘキサンで $100 \mu\text{g/mL}$ になるように溶解した。

測定用標準溶液は、市販標準溶液あるいは上記希釈液を *n*-ヘキサンで $10 \mu\text{g/mL}$ 、又は $1 \mu\text{g/mL}$ に希釈して用いた。

フロリジル PR は和光純薬工業(株)社製、シリカゲルはシリカゲル 60 extra pure メルク社製、あるいは和光純薬工業(株)社製、グリニャール試薬（エチルマグネシウムブロマイドあるいはプロピルマグネシウムブロマイド）は東京化成工業(株)社製、テトラエチルホウ素化ナトリウムは Aldrich Chemical Company, Inc. 製、四水素化ホウ素ナトリウムはナカライテスク(株)製、あるいは和光純薬工業(株)社製、セップバックフロリジルカートリッジはミリポア社製、その他の試薬及び試液は、すべて特級あるいは残留農薬試験用を用いた。

3. 分析方法

環境庁通知の水素化法の改良法⁵⁾ 又は厚生省通知のアルキル化法^{6), 7)} に準じて行った。

水素化法においては、各群の試料 3～15 g に塩酸 3 mL 及びメタノール 70 mL を加えてホモジナイズした後吸引ろ過し、ろ液に 10% 塩化ナトリウム溶液 200 mL と酢酸エチル-*n*-ヘキサン (3:2) 混液 50 mL を加え振とう抽出、あるいは試料に水 100 mL、塩化ナトリウム 15 g、塩酸 10 mL 及び酢酸エチル 60 mL を加え振とう抽出した後、1% テトラエチルホウ素化ナトリウム溶液 0.5 mL 又は 2.5% 四水素化ホウ素ナトリウム溶液 3 mL を用いてエチル化もしくは水素化し、そのまましくは *n*-ヘキサン抽出物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製後、ガスクロマトグラフに供した。飲料水は、200 g に塩酸 3 mL を加えた後、酢酸エチル-*n*-ヘキサン (3:2) 混液 50 mL で2回抽出したものを同様に処理した。

アルキル化法においては、各群の試料 5 g 相当を含む試料をメタノール 10 mL で抽出した後、3 mol/L 塩酸 150 mL で塩化物とし、エーテル-*n*-ヘキサン (3:2) 混液

Table 1. Daily Dietary Intake of Organotin Compounds in 5 Prefectures in 1998

Organotin compounds	Prefecture					Average
	Niigata	Saitama	Chiba	Shiga	Nagasaki	
Tri- <i>n</i> -butyltin chloride (TBTC)	0.32	0.84	2.80	4.70	0.00	1.73
Di- <i>n</i> -butyltin dichloride (DBTC)	0.00	1.72	0.00	0.52	0.00	0.45
Triphenyltin chloride (TPTC)	0.00	0.25	0.00	0.22	0.00	0.09
Diphenyltin dichloride (DPTC)	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
Total intake	0.32	2.81	2.80	5.44	0.00	2.27

100 mL で抽出した。もしくは試料から 0.1 mol/L 塩酸含有酢酸エチル-メタノール (1:1) 混液 30 mL で均質化後、酢酸エチル-*n*-ヘキサン (3:2) 混液 30 mL で 2 回抽出した。抽出液をフロリジルカラムクロマトグラフィーでクリーンアップし、グリニャール試薬 2 mL でプロピル化し、セップバックフロリジルカートリッジもしくはフロリジルカラムクロマトグラフィーで再精製し、ガスクロマトグラフに供した。

定量は FPD-GC を用いて行い、結果の数値は塩化物として示し、摂取量は検出限界以下の場合ゼロとして計算した。

GC 用装置として GC-14A FPD (Sn フィルター) 及び GC-14APFFp ((株)島津製作所製) 又は HP-5890 Series II (Hewlett-Packard 社製) を用い、カラムには DB-1 (0.53 mm×30 m, 1.5 μ m) 又は DB-5 (0.32 mm×30 m), DB1701 (0.53 mm×30 m) (J&W Scientific 社製), MDN-5S (0.32 mm×30 m, 0.25 μ m) (スベルコ社製), Ultra 1 (0.32 mm×25 m, 0.17 μ m) (Hewlett-Packard 社製) を用い、各カラムに最適な昇温条件で行った。

検出限界はいずれも 0.005 μ g/g であった。

結果及び考察

1. トータルダイエットスタディーによる 1 日摂取量

Table 1 に 1998 年度に実施した 4 種有機スズ化合物の 5 地区別 1 日摂取量をまとめて示した。TBTC の 1 日摂取量は平均 1.73 μ g/人 (範囲 0~4.70 μ g/人), DBTC は平均 0.45 μ g/人 (範囲 0~1.72 μ g/人) であった。また、TPTC の 1 日摂取量は平均 0.09 μ g/人 (範囲 0~0.25 μ g/人), DPTC の摂取量は 0 であり、TPTC の摂取量は TBTC の摂取量の約 1/20 であった。厚生省の報告によれば³⁾, 1992 年度の TBTC の 1 日摂取量は平均 5.1 μ g/人, TPTC の 1 日摂取量は平均 2.8 μ g/人であり、1998 年度の 1 日摂取量はいずれもその 1/3 となっている。また滋賀県における 1991 及び 1992 年度のトータルダイエットスタディーによる 1 日摂取量は TBTC がそれぞれ 6.9 及び 6.7 μ g/人で、TPTC が 5.4 及び 1.3 μ g/人と報告されている⁸⁾。これらの値と比較しても摂取量が減少していることが分かる。TBTC と TPTC の平均値の合計は 1.82 μ g/人 (範囲 0~4.92 μ g/人) となった。また 4 種有機スズ化合物の総計では 2.27 μ g/人 (範囲 0~5.44 μ g/人)

となった。

Table 2~4 に 4 種有機スズ化合物の 5 地区別の 14 食品群別の摂取量を示した。TBTC と TPTC の摂取はすべて 10 群の魚介類由来であることが分かった。DBTC は第 10 群の魚介類以外の第 2 群, 4 群, 5 群, 8 群からも検出されるが、これらは加工食品が含まれる食品群であることから、TBTC の分解物ではなく、プラスチック (塩化ビニール製容器, 手袋など), クッキングシートなどに使用された DBTC が食品に移行したものと推定される^{9), 10)}。

2. トータルダイエットスタディーによる魚介類由来の 1 日摂取量の季節変動

TBTC 及び TPTC の摂取量は魚介類由来が大部分であることから、魚介類由来のこれら有機スズ化合物の摂取量の季節変動の有無を調べる目的で夏期, 秋期, 冬期に収集したトータルダイエットの第 10 群の 9 試料を分析した結果を Fig. 1 に示した。4 種有機スズ化合物の 1 日総摂取量は 6~7 月購入試料で 5.17 μ g/人と最も高く、次いで 10 月購入の 1 試料が 3.45 μ g/人, 6 月購入の 1 試料が 2.80 μ g/人となり、更に 10 月購入の他の試料が 1.84 μ g/人, 9 月購入試料が 1.26 μ g/人となっており、6 月購入の他の試料と 12 月購入の試料がそれぞれ 0.32 及び 0.93 μ g/人となっていた。12 月~2 月購入の試料からは検出されなかった。三浦半島油壺 (神奈川県三浦市) のマリーナにおける海水中有機スズ化合物濃度には季節変動のあることが報告され¹¹⁾, TBTC は夏から秋に高くなり、DBTC は夏にのみ高くなることが示されている。また西日本港湾 4 か所の海水中有機スズ化合物濃度を測定した結果、4~5 月と 7 月に濃度が高く 11 月に濃度が低いことが報告されている¹²⁾。これらは本研究における魚介類由来摂取量の季節変動の傾向と類似している。したがって、魚介類中濃度変化が海水中濃度変化の影響を受けているとも考えられるが、本結果は同一地域で 3 季節を観察したものではないことから、採取試料の地区差の影響も考えられ、今後同一地区の魚介類での年間変動を調べる必要があろう。なお季節変動調査に用いた第 10 群 9 試料からの TBTC の平均 1 日摂取量は 1.62 μ g/人であり、Table 1 の第 10 群の 5 試料による平均 1 日摂取量と大差なく、TPTC の場合も平均 1 日摂取量は 0.09 μ g/人となり、Table 1 の値に一致している。

Table 2. TBTC Intake from 14 Food Groups Composites in 5 Prefectures

Prefecture	Food groups														Total intake $\mu\text{g/day/person}$
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	
	Rice	Cereals	Sugars	Fats and oils	Pulses	Fruits	Green vegetables	Other vegetables	Seasoning and beverages	Fish and shellfish	Meat and eggs	Milk and dairy products	Prepared foods	Water	
Niigata	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.32	0.00	0.00	0.00	0.00	0.32
Saitama	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.84	0.00	0.00	0.00	0.00	0.84
Chiba	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	2.80	0.00	0.00	0.00	0.00	2.80
Shiga	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	4.70	0.00	0.00	0.00	—	4.70
Nagasaki	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
Average	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	1.73	0.00	0.00	0.00	0.00	1.73
% Ratio to total intake	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	100	0.0	0.0	0.0	0.0	100

Table 3. DBTC Intake from 14 Food Groups Composites in 5 Prefectures

Prefecture	Food groups														Total intake $\mu\text{g/day/person}$
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	
	Rice	Cereals	Sugars	Fats and oils	Pulses	Fruits	Green vegetables	Other vegetables	Seasoning and beverages	Fish and shellfish	Meat and eggs	Milk and dairy products	Prepared foods	Water	
Niigata	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
Saitama	0.00	0.80	0.00	0.06	0.28	0.00	0.00	0.41	0.00	0.17	0.00	0.00	0.00	0.00	1.72
Chiba	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
Shiga	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.27	0.00	0.25	0.00	0.00	0.00	—	0.52
Nagasaki	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
Average	0.00	0.16	0.00	0.01	0.06	0.00	0.00	0.14	0.00	0.08	0.00	0.00	0.00	0.00	0.45
% Ratio to total intake	0.0	35.7	0.0	2.7	12.5	0.0	0.0	30.4	0.0	18.8	0.0	0.0	0.0	0.0	100

Table 4. TPTC Intake from 14 Food Groups Composites in 5 Prefectures

Prefecture	Food groups														$\mu\text{g/day/person}$
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	
	Rice	Cereals	Sugars	Fats and oils	Pulses	Fruits	Green vegetables	Other vegetables	Seasoning and beverages	Fish and shellfish	Meat and eggs	Milk and dairy products	Prepared foods	Water	Total intake
Niigata	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
Saitama	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.25	0.00	0.00	0.00	0.00	0.25
Chiba	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
Shiga	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.22	0.00	0.00	0.00	—	0.22
Nagasaki	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
Average	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.09	0.00	0.00	0.00	0.00	0.09
% Ratio to total intake	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	100	0.0	0.0	0.0	0.0	100

Fig. 1. Seasonal variations of daily dietary intake of organotin compounds from fish and shellfish (10th food group) in 1998~1999
(Calculated based on ND=0)

Table 5. Daily Dietary Intake of Organotin Compounds from Fish and Shellfish (10th Food Group) from 1991 to 1998

Year	µg/day/person	
	Tri-n-butyltin chloride (TBTC)	Triphenyltin chloride (TPTC)
1991	3.72	4.15
1992	2.92	1.51
1993	1.89	0.61
1994	2.58	0.38
1995	2.02	0.26
1996	1.48	0.26
1997	0.98	0.37
1998	1.73	0.09

* Average of 5 prefectures

3. 魚介類由来の1日摂取量の経年変化

上記の結果から明らかであるように、有機スズ化合物の全食品群由来の摂取量の経年変化は第10群の経年変化を反映していると考えられる。そこで、1991年度からの第10群由来のTBTC及びTPTCの年度別摂取量をTable 5に示した。TPTCの摂取量は1993年まで顕著に減少し、以降の摂取量は少ない。一方、TBTCの摂取量は実験開始の1991年以降年度により差は見られるが、序々に減少する傾向にある。1998年度にはTBTCは1991年度の1/2に低下し、TPTCは1/44に低下し、TPTCの暴露量減少が著しい。これら減少傾向は1991年1月からの我が国における有機スズ化合物の使用規制¹³⁾により、海水中の有機スズ化合物の残留濃度が低下し、そこに棲息する魚介類中の濃度も低下したものと考えられる。しかし、近隣諸国ではこれら有機スズ化合物に対する使用規制がないか一部に限られていること³⁾からそのレベルが今後減少するかどうかについては更に検証が必要である。

1998年度のTBTCの平均1日摂取量1.73 µg/人は、

我が国のTBTOの暫定1日許容摂取量の1.6 µg/kgbw/day (80 µg/人)の2%に相当し、最大摂取量の4.7 µg/人は6%に相当した。一方TPTCの平均1日摂取量0.094 µg/人は、FAO/WHO合同残留農薬専門家会議(JMPR: Joint Meetings of the FAO and WHO Panel of Experts on Pesticides Residues)の許容1日摂取量0.5 µg/kgbw/day (25 µg/人)¹⁴⁾の0.3%相当の低い値であり、最大1日摂取量0.25 µg/人の場合でも1%相当の低い値であった。これらの値は通常の魚介類の摂取量では特に問題があるとは考えられないが、我が国で多く消費される魚介類から継続的に微量検出されていることから今後も調査が必要である。

謝 辞

本研究は、平成3年度から平成10年度の厚生科学研究費第2種特定化学物質研究により行われた。データの整理にご協力いただきました当所食品部の五十嵐敦子氏、浅野里佐子氏に深謝致します。

文 献

- 1) Environmental Health Criteria 15: Tin and organotin compounds, p. 38-40 (1980) WHO, Geneva.
- 2) Environmental Health and Safety Division, Environmental and Health Department, Environmental Agency: Chemicals in the environment, 1998th Biomonitoring report, p. 183-184 (1998).
- 3) Sekizawa, J., Health and environmental risk assessment of organotin pollution in Japan. Bulletin of National Institute of Health Sciences, **116**, 126-131 (1998).
- 4) Horiguchi, T., Shiraishi, H., Inposex in sea snails, caused by organotin (tributyltin and triphenyltin) pollution in Japan: a survey. Applied Org. Chem., **11**, 451-455 (1997).

- 5) Tsuda, S., Nakanishi, H., Aoki, S., Takebayashi, J., Determination of butyltin and phenyltin compounds in biological and sediment samples by electron-capture gas chromatography. *J. Chromatogr.*, **387**, 361-370 (1987).
- 6) Authorized by Pharmaceutical Society of Japan: Standard methods of analysis for hygienic chemists—with commentary, p. 611 (1990).
- 7) Ministry of Health and Welfare, Notification (Kannyu) No. 20 (25, Feb., 1994), Refer to organotin compounds in fish and shellfish.
- 8) Tsuda, T., Inoue, T., Kojima, M., Aoki, S., Daily intake of tributyltin and triphenyltin compounds from meals. *J. AOAC Int.*, **78**, 941-943 (1995).
- 9) Takahashi, S., Mukai, H., Tanabe, S., Sakayama, K., Miyazaki, T., Masuno, H., Butyltin residues in livers of humans and wild terrestrial mammals and in plastic products. *Environmental Pollution*, **106**, 213-218 (1999).
- 10) Kawamura, Y., Maehara, T., Suzuki, T., Yamada, T., Determination of organotin compounds in kitchen utensils, food packages and toys by gas chromatography/atomic emission detection method, *Shokuhin Eiseigaku Zasshi (J. Food Hyg. Soc. Japan)*, **41**, 246-253 (2000).
- 11) Suzuki, T., Yamada, H., Yamamoto, I., Nisimura, K., Kondo, K., Murayama, M., Uchiyama, M., Chemical species of organotin compounds in seawater and their seasonal variations. *J. Agric. Food Chem.*, **44**, 3,989-3,995 (1996).
- 12) Takahashi, K., Determination of dibutyltin and tributyltin compounds in seawater and the distribution of them in seawater of several bays. *Nippon Kagaku Kaishi*, **1991**, 367-374 (1991).
- 13) 環境庁 “化学物質の審査及び製造等の規制に関する法律” 昭和 61 年改正.
- 14) IPCS, Fentin, in “Pesticide residues in food—1991”, p. 173-208 (1992) WHO, Geneva.