

日常食からの汚染物質の一日摂取量 (1981~1990)

望月恵美子 近藤 学 小林 浩 深澤喜延 中山 昭

Dietary Intake of Contaminants in Yamanashi from 1981 to 1990

Emiko MOCHIZUKI, Manabu KONDO, Hiroshi KOBAYASHI,
Yoshinobu FUKASAWA and Akira NAKAYAMA

国立衛生試験所を中心に数カ所の試験研究機関が参加して、1977年度より、日常食からの汚染物質摂取量調査研究 (Dietary Intake of Contaminants) を行なってきた。この調査研究は、国民栄養調査に基づいたマーケットバスケット方式で食品を購入し、調理後、種々の汚染物質を測定し、それらの一日摂取量を推定するものである。われわれは1981年より、この調査研究に参加する機会を得て、山梨における日常食品からの汚染物質等の一日摂取量調査を行い、調査結果の一部を本誌に報告してきた¹⁻⁴⁾。

今回は、1981年から1990年までに実施した日常食品からの汚染物質の一日摂取量調査結果についてまとめたので報告する。

調査の方法

1. 試料

当該年に厚生省保健医療局健康栄養増進課が編集、発行した国民栄養調査成績の地域ブロック別食品群別摂取量の関東Ⅱの値に基づいて、分析用の試料量を算出し、マーケットバスケット方式により、甲府市内の小売店から約100食品を購入し、下記のように13群に分別した。

- 1群 米類
- 2群 麦, 種子, 芋類
- 3群 砂糖, 菓子類
- 4群 油脂類
- 5群 豆類 (味噌, 豆腐等)
- 6群 果実類
- 7群 緑黄色野菜
- 8群 その他の野菜, 茸, 海藻類
- 9群 調味嗜好飲料

10群 魚介類

11群 肉, 卵類

12群 乳類 (牛乳, チーズ等)

13群 加工食品 (ぎょうざ, コロッケ等)

14群 飲料水

分析用試料の調製は既報¹⁾に準じて処理した。

2. 分析方法

13群の食品群と飲料水を加えた14試料について、既報¹⁾と同様の方法で分析した。

結果と考察

1. 有機塩素系化合物

(1) HCH類

1981年から1990年までの総HCHの一日摂取量の平均は1.54 μ g, 0.015~3.2 μ gの範囲にあった。全国平均は減少傾向を示しているが、山梨における総HCHの摂取量は年変動が大きかった (図1-A)。総HCHに占める異性体は、どの年も α , β 異性体の比率が高く (図1-D)、1, 2群を除くすべての群より検出された。また、動物性食品群 (10, 11, 12群) からの摂取量が総摂取量の1/4以上を占めていた。しかし、4群を含む植物性食品からも検出されていたということは、土壤に残留していたHCHの植物体による吸収、あるいは大豆、そば粉に代表されるような輸入農産物からの移行による汚染ばかりではなく、HCHの環境中への汚染による影響も考えられる。つまり、内山⁵⁾、深澤ら²⁾も指摘してきたように、雨水あるいは粉塵等の植物体への汚染の可能性が考えられる。木川ら⁶⁾、藤本ら⁷⁻⁹⁾は雨水中のHCHについて測定を行い、現在、国外で使用されているHCHが

汚染源となっている可能性を論じている。

(2) DDT類

1981年から1990年までの総DDTの一日摂取量の平均は、 $1.4\mu\text{g}$ であった。1982年以降の摂取量は $2\mu\text{g}$ を超えることはなく、全国平均と同様の緩やかな減少傾向を示し(図1-B)、ほぼ平衡状態に達していると思われる。摂取源は圧倒的に動物性食品群であったが、1988年は1群の占める割合(33%)が高かった。総DDTに占める異性体はDDEがDDTより多く(図1-J)、深澤が以前の調査で指摘したように、環境中に放出されたDDT類が河川等から海洋に流入し、そこで食物連鎖を通じて代謝され、動物性食品に残留した状態となっている²⁾ことによるものと思われる。

(3) ディルドリン

ディルドリンの一日摂取量の平均は $0.26\mu\text{g}$ で、全国平均 $0.41\mu\text{g}$ より低かった。1981年から1985年までは3群から8群、10群から13群の各群に残留がみられた。1985年は、6群の果実類、10群の魚介類からの摂取量が高かった(図1-C)。ディルドリンは1984年、横浜市できゅうりに検出された¹⁰⁾が、現在でも依然として汚染が続いていると報告されている¹¹⁾。アルドリン、エンドリンは、全く検出されなかった。

(4) ヘプタクロル、クロルデン類

ヘプタクロルは全く検出されなかった。ヘプタクロルの代謝物とされているヘプタクロルエポキシドは散発的に検出されており、1988年は、1, 2群に高く残留していた。その他の年は6, 7, 8, 10, 12群に散らばって検出された。全国平均は $0.16\mu\text{g}$ で横ばい状態を示していた(図1-D)。ヘプタクロルはディルドリン、エンドリン、クロルデンなどと同族の環状ジエン系農薬で、工業用原体クロルデンに含まれている。

クロルデンは1978年より農薬としての使用は禁止されたが、法的規制のない家屋のシロアリ防除及び木材、合板用のヒラタキクイムシ防除に使われた。昭和50年から60年代にかけてその使用量は急増し、クロルデン汚染が懸念されたが、1986年に制定された化審法でクロルデンは特定化学物質に指定され、その製造、輸出、使用は禁止された。それ以来、環境中の残留レベルは低下傾向にあるといわれる¹²⁾。クロルデン類も10群を主に α 、 γ クロルデンが若干検出された(図2-R)ところから、シロアリ防除に使用された薬剤の残留によるものと考えられる。マーケットバスケット方式での、クロルデン類の一日摂取量は $0.25\sim 1.1\mu\text{g}$ とされており¹²⁾、母乳や魚介類中への残留が報告されている。

(5) HCB

HCBの平均一日摂取量は、 $0.11\mu\text{g}$ で、植物性食品群よりも動物性食品群からの摂取の方が高かった。摂取量が最も高かったのは1984年で、 $0.35\mu\text{g}$ であった。全国平均は $0.12\mu\text{g}$ であった。HCB摂取の経年変化は全国平均とほぼ同じ傾向を示しているといえる(図1-E)。

(6) PCB

PCBの一日摂取量は平均 $2.78\mu\text{g}$ 、 $0.76\sim 6.75\mu\text{g}$ の範囲であった。全国平均は $2.4\mu\text{g}$ で、ほぼ平衡状態にあるものと考えられる(図1-F)。有機塩素系化合物の中でも安定で、分解しにくいPCBは、1971年に魚介類汚染が発表され、続いて1972年に高濃度の母乳汚染が発表された。しかし、魚介類、肉類、乳製品を中心に暫定規制値が決められてからは食品への汚染は減少傾向を示している¹²⁾といわれる。PCB摂取のほとんどは、10~13群の動物性食品群が占め、そのうちでも魚介類からの摂取量が高かった。

(7) 低沸点有機ハロゲン化合物

ドライクリーニング施設やIC工場の排水中に含まれるトリクロロエチレン、テトラクロロエチレン等の有機溶剤による地下水汚染が近年社会問題となってきた。そこで、前二者について、1988年より一日摂取量の測定を開始した。1988年は、トリクロロエチレンが12群に検出され、一日摂取量は $0.35\mu\text{g}$ であった。1990年の調査では、トリクロロエチレンが5群に検出され、一日摂取量は $0.13\mu\text{g}$ 、テトラクロロエチレンは2~5群、10~12群に検出され、一日摂取量は $1.3\mu\text{g}$ であった。

2. 有機リン化合物

有機リン化合物は、マラチオン、MEPがほぼ毎年検出されたほか、サイアノックス、クロルピリホス、PA P、EPN、MPPが散発的に検出された。MEPの一日平均摂取量は $0.68\mu\text{g}$ (全国平均 $1.3\mu\text{g}$)、マラチオンは $0.95\mu\text{g}$ (全国平均 $1.1\mu\text{g}$)と全国平均とほぼ同様の摂取傾向を示していた(図1-G,H)。これらの摂取源は2, 3, 7群の植物性食品群であるが、そのほかに、13, 14群にも残留がみられた。オーストラリア、ビルマでは、小麦、ライ麦等の穀類及びその製品に有機リン剤が貯穀害虫防除のため使用されている¹⁶⁾。また、輸入穀物中のマラチオン、クロルピリホスメチル、MEP等の残留が報告されている^{17, 18)}ところから、収穫後に使用された農薬が、輸入穀類等に残留していたものと推察される。一方、微量ではあるが1984, 1985年と続けて14群から検出された有機リン剤は、松くい虫防除に施用されたMEP-NAC合剤が、水系を通じて流入した⁵⁾ものとも考え

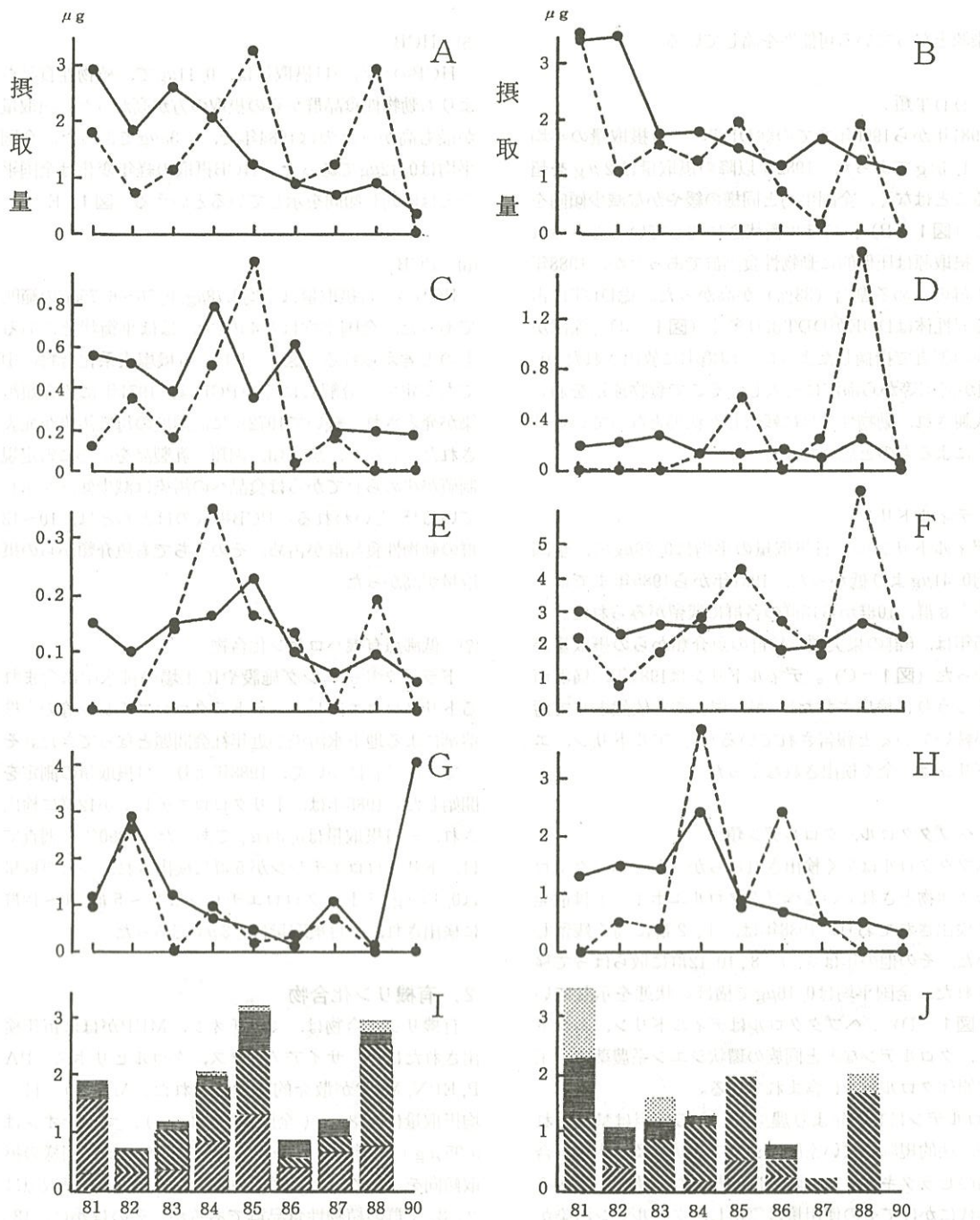


図1 各種汚染物質の一日摂取量の年次推移

— 全国平均 山梨

A : 総HCH

B : 総DDT

C : ディルドリン

D : ヘプタクロルエポキド

E : HCB

F : PCB

G : MEP

H : マラチオン

I : HCHの異性体比率

α-HCH

β-HCH

γ-HCH

δ-HCH

J : DDTの異性体比率

p,p'-DDT

p,p'-DDE

p,p'-DDD

o,p'-DDT

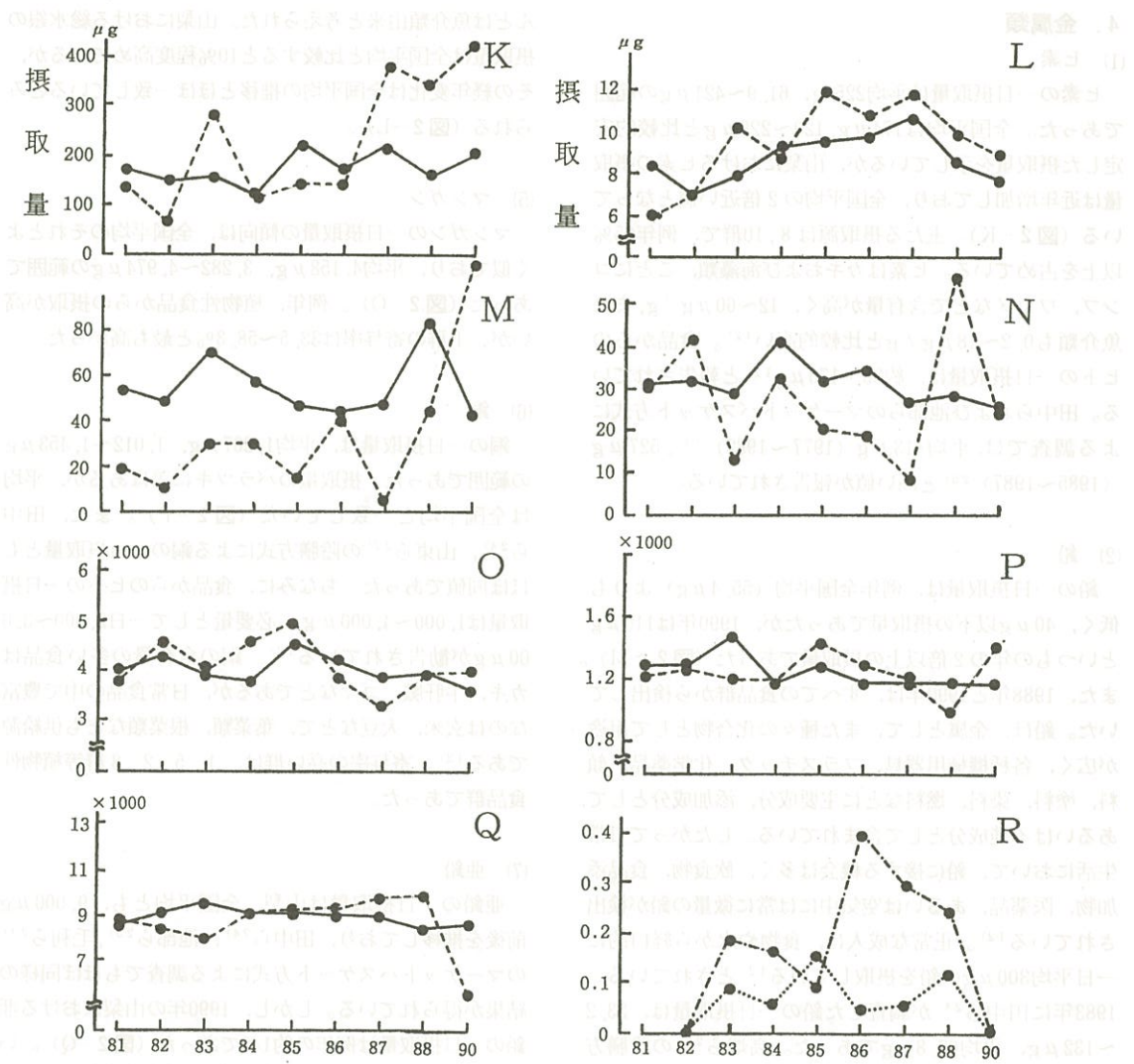


図2 各種汚染物質の一日摂取量の年次推移

— 全国平均 山梨
 K: ヒ素 L: 総水銀 M: 鉛 N: カドミウム O: マンガン P: 銅 Q: 亜鉛
 R: クロルデン — α-クロルデン γ-クロルデン (山梨のみ)

られる。

3. 有機スズ化合物

養殖漁業では甲殻類、海藻等の付着を防止する目的で、トリブチルスズ化合物を使用してきたが、近年これら有機スズ化合物による海洋汚染、また魚介類への移行残留が問題となってきた¹⁹⁾。有機スズ化合物の汚染実態に

ついては各地で調査結果が報告されているが²⁰⁻²³⁾、汚染物一日摂取量調査では、1990年からTBTC（トリ塩化ブチルスズ）、TPTC（トリ塩化フェニルスズ）の試験を追加項目とした。1990年は、TBTC、TPTC共、10群の魚介類のみから検出され一日摂取量はそれぞれ3、1.5μgであった。

4. 金属類

(1) ヒ素

ヒ素の一日摂取量は平均225 μg 、61.9~421 μg の範囲であった。全国平均は174 μg 、120~220 μg と比較的安定した摂取量を示しているが、山梨におけるヒ素の摂取量は近年増加しており、全国平均の2倍近い値となっている(図2-K)。主たる摂取源は8,10群で、例年95%以上を占めている。ヒ素はカキおよび海藻類、ことにコンブ、ワカメなどで含有量が高く、12~60 $\mu\text{g}/\text{g}$ 、また魚介類も0.2~18 $\mu\text{g}/\text{g}$ と比較的高い¹²⁾。食品からのヒトの一日摂取量は、約30~170 μg ¹²⁾と報告されている。田中らおよび池部らのマーケットバスケット方式による調査では、平均413 μg (1977~1982)²⁴⁾、527 μg (1985~1987)²⁵⁾と高い値が報告されている。

(2) 鉛

鉛の一日摂取量は、例年全国平均(55.4 μg)よりも低く、40 μg 以下の摂取量であったが、1990年は110 μg といつもの年の2倍以上の摂取量であった(図2-M)。また、1988年と1990年は、すべての食品群から検出していた。鉛は、金属として、また種々の化合物として用途が広く、各種機械用器具、プラスチック、化学薬品、顔料、塗料、染料、燃料などに主要成分、添加成分として、あるいは不純成分として含まれている。したがって日常生活において、鉛に接する機会は多く、飲食物、食品添加物、医薬品、あるいは空気中には常に微量の鉛が検出されている¹²⁾。正常な成人は、食物や水から経口的に一日平均300 μg の鉛を摂取している¹²⁾とされている。1983年に田中ら²⁴⁾が調査した鉛の一日摂取量は、23.2~132 μg 、平均69.8 μg であった。高畑ら²⁹⁾の陰膳方式による一日摂取量調査では、仙台で50.4 μg 、沖縄で24.9 μg と大きなばらつきがみられた。

(3) カドミウム

カドミウムの一日摂取量は、平均27.8 μg 、9~58 μg の範囲であった。1982,1988年を除き、全国平均より低かった(図2-N)。食品中にはすべてカドミウムが検出され、植物性食品では穀物に多いとされている¹²⁾が、摂取源は、主に1,2,7,8,10群の植物性食品群であった。食品からのヒトの一日摂取量は20~60 μg と報告されている¹²⁾。田中ら、池部らの調査によると、カドミウムの一日摂取量は20.2~76.2 μg 、平均43.9 μg (1977~1982)²⁴⁾、33.0 μg (1985~1987)²⁵⁾であった。

(4) 総水銀

総水銀の摂取量は平均9.6 μg 、6~12 μg の範囲であった。10,11群のみから検出されていたが、そのほと

んどは魚介類由来と考えられた。山梨における総水銀の摂取量は全国平均と比較すると10%程度高めであるが、その経年変化は全国平均の推移とほぼ一致しているとみられる(図2-L)。

(5) マンガン

マンガンの一日摂取量の傾向は、全国平均のそれとよく似ており、平均4,158 μg 、3,282~4,974 μg の範囲であった(図2-O)。例年、植物性食品からの摂取が高いが、1群の寄与率は33.5~58.3%と最も高かった。

(6) 銅

銅の一日摂取量は、平均1,267 μg 、1,012~1,453 μg の範囲であった。摂取量のバラツキに差はあるが、平均は全国平均と一致していた(図2-P)。また、田中ら²⁴⁾、山東ら²⁷⁾の陰膳方式による銅の一日摂取量ともほぼ同値であった。ちなみに、食品からのヒトの一日摂取量は1,000~4,000 μg 、必要量として一日2,000~3,000 μg が勧告されている¹²⁾。銅の含有量の多い食品は、カキ、牛肝臓、ゴマなどであるが、日常食品の中で豊富なのは玄米、大豆などで、葉菜類、根菜類なども供給源である¹²⁾。寄与率の高い群は、1,5,2,8群等植物性食品群であった。

(7) 亜鉛

亜鉛の一日摂取量は山梨、全国平均とも、9,000 μg 前後を推移しており、田中ら²⁴⁾、池部ら²⁵⁾、毛利ら²³⁾のマーケットバスケット方式による調査でもほぼ同様の結果が得られている。しかし、1990年の山梨における亜鉛の一日摂取量は例年の約1/2であった(図2-Q)。いずれの食品群においても、銅の摂取量は半減していた。食品からのヒトの亜鉛一日摂取量は、10,000~15,000 μg と報告されており、亜鉛含有量の多い食品は、牛、豚、鶏肉、魚肉、カキ、大豆等蛋白食品が主である¹²⁾。例年、寄与率が高かったのは、1,11,10,5群であったが、その他の群からもむらなく摂取していた。

ま と め

1981年から1990年までの、山梨における日常食中の各種汚染物質の一日摂取量をマーケットバスケット方式により調査した。

1. 有機塩素系化合物は、PCBが2.78 $\mu\text{g}/\text{day}/\text{man}$ 、総HCHが1.54 $\mu\text{g}/\text{day}/\text{man}$ 、総DDT1.36 $\mu\text{g}/\text{day}/\text{man}$ の摂取量であった。他の物質は、1 $\mu\text{g}/\text{day}/\text{man}$ 以下であり、ほぼ平衡状態に達しているとみられた。PCB、DDT類は魚介類を中心とした動物性食品

からの摂取が高かった。低沸点有機化合物は、地下水等での汚染、また、有機スズ化合物も魚介類への残留が、依然として報告されているところから、今後も継続的な調査が必要と考えられた。

2. 有機リン化合物は、ポストハーベスト使用とみられる穀類を中心とした植物性食品群より検出されたが、摂取量は $1 \mu\text{g}/\text{day}/\text{man}$ 以下であった。
3. ヒ素、鉛、カドミウム、総水銀の有害金属およびマンガ、銅、亜鉛の必須金属は経年的減少傾向はほとんど認められなかった。ヒ素と水銀はもっぱら魚介類から摂取されていた。

謝 辞

1981年から1990年までの日常食中の汚染物摂取量調査の分析には下記の諸氏に協力していただきました。感謝の意を表します。

赤池美知恵、雨宮英子、岩下まさ子、笠井和平、久保田寿々代、小林 裕、小宮山美弘、清水源治、田中 久、沼田 一、山田一郎。

文 献

- 1) 清水源治、深澤喜延：山梨衛公研年報，26，19～21 (1981)
- 2) 深澤喜延ら：山梨衛公研年報，27，10～15 (1983)
- 3) 深澤喜延ら：山梨衛公研年報，30，9～12 (1986)
- 4) 山田一郎ら：山梨衛公研年報，33，8～11 (1989)
- 5) 厚生省食品汚染物質研究班(班長 内山充)：昭和57年度汚染物摂取量調査報告会項目別研究報告書，50～61 (1983)
- 6) 木川寛，河村太郎：横浜衛研年報，24，111 (1985)
- 7) 藤本文一：尼崎市立衛生研究所，13，55～60 (1986)
- 8) 藤本文一：尼崎市立衛生研究所，14，47～49 (1987)
- 9) 馬部芳明，藤本文一：尼崎市立衛生研究所，17，62～65 (1990)
- 10) 細井志郎ら：横浜衛研年報，23，71～75 (1984)
- 11) 厚生省食品汚染物質研究班(班長 斎藤行生)：平成2年度汚染物摂取量調査報告会発表 (1991)
- 12) 日本薬学会編：衛生試験法・注解，85～88，602～603，113，618～619，129～132，567～583，金原出版 (1990)
- 13) 土田由里子ら：新潟県衛生公害研究所年報，3，72～75 (1987)
- 14) 小西良昌ら：大阪府立公衛研所報 食品衛生編，20，35～42 (1989)
- 15) 都築英明ら：京都府衛公研年報，33，22～29 (1988)
- 16) 服部準之助：第14回農薬残留分析研究会資料集，98～107 (1990)
- 17) 小西良昌，吉田精作：栄養・食糧誌，40，374～380 (1987)
- 18) 永山敏広ら：食衛誌，3，438～443 (1989)
- 19) 日本経済新聞 9月7日 (1989)
- 20) 水石和子ら：東京衛研年報，40，121～126 (1989)
- 21) 竹内正博ら：東京衛研年報，40，127～132 (1989)
- 22) 佐藤真貴子ら：宮城保健環境センター年報，8，81～83 (1990)
- 23) 堀孝美ら：食品衛生学会第60回学術講演会 (1990)
- 24) 田中涼一ら：食衛誌，24，488～499 (1983)
- 25) 池部克彦ら：食衛誌，30，444～446 (1989)
- 26) 高畑寿太郎ら：衛生化学，35，167～171 (1989)
- 27) 山東英幸ら：和歌山衛公研年報，36，39～43 (1990)
- 28) 毛利孝明ら：香川県衛生研究所報，14，71～78 (1985)