

山口県における食品汚染物質の一日摂取量の年次推移

山口県衛生公害研究センター (所長: 宮村恵宣)

岡日出生・田坂美和子・佐伯清子

熊谷 洋・宮村恵宣・田中一成*

Daily Intake of Food Contaminants in Yamaguchi Prefecture from 1984 to 1991

Hideo OKA, Miwako TASAKA, Kiyoko SAEKI

Hiroshi KUMAGAI, Shigenori MIYAMURA, Kazushige TANAKA

Yamaguchi Prefectural Research Institute of Health (Director: Dr. Shigenori MIYAMURA)

はじめに

近年、農薬、ポリ塩化ビフェニール(PCB)、重金属等による環境汚染が進んでいる。また、これらの環境汚染物質による食品の汚染が問題¹⁻³⁾となっている。現在、一部の農薬、重金属、PCB等の化学物質については、食品衛生法により食品中の残留量が規制されているが、まだ規制されていないものも多い。個々の食品の農薬残留量や重金属含量を調査し、規格基準などと比較して安全性を評価することも重要であるが、日常の食事を通して汚染物質をどの程度摂取しているか、汚染の実態を知ることも重要である。

厚生省は1977年に食品汚染物質研究班を組織し、マーケットバスケット方式により食品中の汚染物質残留量を測定し、汚染物質の一日摂取量調査を進めてきた。

当研究センターは1984年から研究班の一員として参加してきたので、1991年までの山口県における8年間の結果をまとめた。

実験方法

1 試料 厚生省国民栄養調査の食品群別摂取量

の中国地域ブロックのデータ⁴⁾に基づき、山口市内の小売店から約100種の食品を購入し、表1に示したようにI~XIIIの群に類別した。更に飲料水を加え、これをXIV群とした。個々の食品は日常摂取する状態に、調理を要するものはゆでる、蒸す、焼く等の処理をした。各群毎に1日摂取量の割合になるように秤りとり、よく混合し分析試料とした。

2 対象汚染物 有機汚染物質として「化学物質の審査及び製造等の規制に関する法律」によって特定化学物質に指定されているヘキサクロロシクロヘキサン(HCH)、ジクロロジフェニルトリクロロエタン(DDT)、ドリノ剤(アルドリノ、ディルドリン、エンドリン)、PCB、ヘキサクロルベンゼン(HCB)のほか、ヘプタクロルエポキシド(HCE)等11種の塩素系農薬及びマラチオン等8種の有機りん系農薬、無機汚染物質として食品衛生法で規制されているヒ素(As)、水銀(Hg)、鉛(Pb)、カドミウム(Cd)の有害金属のほか、銅(Cu)、亜鉛(Zn)、マンガン(Mn)及びニッケル(Ni)を対象とした。

3 分析方法 PCBはA.O.A.C法⁵⁾、他の有機汚染物質はドラフト法⁶⁾又は衛生試験法・注解⁷⁾無

* マツダ (株) 防府工場診療所: 防府市西浦888-1

機汚染物質のうちHgは先に著者らが報告した方法⁹⁾、その他の金属は衛生試験法・注解⁷⁾によった。

結果及び考察

1984~1991年における各種の汚染物質の食品群別一日摂取量を表2に示した。

また、1984~1991年の有機汚染物質(総HCH, 総DDT, ディルドリン, PCB, HCE)及び無機汚染物質(Pb, Cd, Hg, As, Cu, Mn, Zn)の一日摂取量を図1に示した。

総HCH: 1971年に農薬取締法が改正され、DDTやドリノ剤とともに全面使用禁止になった農薬の一つである。使用禁止措置後、食品中の農薬残留量は斉藤⁹⁾の示しているデータをもみても年々減少し続けているが、1984年は前年に比べやや増加している食品が見られる。山口県においてもこの調査を始めた1984年の各種の食品群からHCHが検出され、一日当たり4.3 μ gの摂取量であった。1985年には約1/10に減少しているが、1984年がたまたま高い値であったのか、高い値で推移してきたのか不明である。その後多少の変動があるものの、現在でも0.3 μ g程度の摂取が続いている。山口県のHCH摂取量の年次推移を全国平均¹⁰⁾と比較すれば、摂取量は1984年を除き、ほぼ全国並みであった。

斉藤¹¹⁾によれば、カナダにおけるHCHの一日摂取量は1973年に2.29 μ gであったものが、1974年には0.92 μ gと急激に減少している。また、アメリカでは1973~1979年は1 μ g前後の摂取量で推移していたが、1980年に0.98 μ gとなった。日本では1986年ようやく0.89 μ gと1 μ g/人/日未満となった。この減少の遅れの主な原因は欧米諸国では γ -HCHのみを使用し、我が国では数種の異性体を含むテクニカルHCHを使用していたこと、及びHCHに汚染された主な食品は魚介類、肉、卵、乳製品等であり、比較的多量の魚を摂取する日本人の食生活をあげている。

群別摂取量をみると、1984年にはほとんどの群より摂取され、米や果実・野菜類からの摂取もかなりあった。しかし、年ごとに野菜類からの摂取

は少なくなり、魚介類や肉・卵類などの動物性食品からは、ほぼコンスタントに摂取されている。これは斉藤¹¹⁾の報告とよく一致している。

総DDT: 工業原体はop'-DDTを20~30%含有している。ここではDDTの分解産物であるDDEやDDDを含めている。DDTは非常に安定な物質⁷⁾で、平均的土壤中90%以上分解するのに10年近く必要といわれている。山口県においては1984年の色々な群から検出され、総DDTとして2 μ g程度の摂取量であった。その後、年次による変動もみられるが、HCHのような減少はみられず、1991年でも約0.5 μ gを摂取している。全国的には1991年になってはじめて1 μ g/人/日未満の摂取量¹⁰⁾となっている。群別摂取量はほぼHCHと同様な傾向が見られた。

ディルドリン: エンドリンの異性体でアルドリンの酸化によっても生成する。評価はアルドリンを含めた値を用いることが多い。

アルドリン及びエンドリンは各年度とも検出されなかった。

ディルドリンの年次摂取量はHCHとほぼ同様の傾向にあるが、その量は0.05 μ gと非常に少ない。群別摂取量はHCHやDDTとほぼ同様である。

PCB: PCBは1972年に全面使用禁止となったが、今日でも魚介類を中心に検出されている。山口県におけるPCB摂取量の年次推移は、HCHやDDTと異なり大きな減少は見られない。また、全国平均と比べても高い傾向がうかがわれる。

山口県におけるPCBの一日摂取量を一日許容摂取量(250 μ g/体重50Kg)⁹⁾と比較すれば、1/10以下の数値であり直接人に害を及ぼす量ではない。

PCBが他の有機塩素系農薬と比べて減少率が悪いのは、難分解性のためであろう。また、群別寄与率はX群の魚介類が主で、いずれの年も74%以上であった。福岡県衛生部の報告¹²⁾によれば、1978~1984年の平均でX群の寄与率は79.8%である。これはPCBが農薬と違って、食物や土壤に散布するものでなく、工場排水などととも河川や海に直接流出するためと考えられる。

HCE: 山口県におけるHCEの平均摂取量は

0.07 μg で1984年を除き、いずれの年も全国平均を下回っていた。

HCB: 山口県では1986年に0.14 μg の摂取があったのみで、それ以降検出されていない。

その他の有機塩素系農薬: クロルデン(オキシクロルデン, トランスクロルデン, トランスノクロル, シスクロルデン, シスノクロル), ジコホール, ダコニール, キャプタン, クロロベンジレート及びクロルピリホスについても調査したが、クロルデンが1986, 1988及び1989年に主にX群から検出され、摂取量は平均で0.25 μg であった。他はいずれの年も検出されなかった。

有機りん系農薬: マラチオン, ダイアジノン, フェニトロチオン, パラチオン, ジメトエート, EPN, クロロフェンビンフォス及びDDVPについて調査したがいずれの年も検出されなかった。

As: 全国平均の年次別Asの一日摂取量¹⁰⁾をみると、120 μg から230 μg の範囲で変動はあるが、増加や減少の傾向はみられない。望月ら¹³⁾の1981~1990年の調査によると、As摂取量は近年増加の傾向にあると報告している。また、前田ら¹⁴⁾、村上ら¹⁵⁾の大阪地区の調査では342~738 μg (1977~1980年)と高い値が報告されている。山口県の場合は1989年までは全国並の摂取量であったが、1990年及び1991年には約40 μg 及び70 μg と減少している。1989年まではVIII群とX群が主な寄与群であったが、1990年、1991年はVIII群からの摂取はなく、またX群からの摂取量も少ない。これはVIII群、X群の試料内容の変化に起因すると考えられる。Asの主たる寄与群はVIII群、X群であることは多くの報告¹³⁻¹⁶⁾にみられるが、これは海藻類に多く含まれている¹⁷⁾ためであろう。

Hg: 全国におけるHgの摂取量¹⁰⁾は7.3 μg ~11 μg の範囲で年による変化は小さい。山口県も1989年と1991年を除けば、全国レベルよりも低い摂取量であった。しかし、1989年は12.4 μg とわずかではあるが全国を上回り、しかもX群からのみの摂取であった。このときの原因食品を調べていないので明らかではないが、Hg含量が高いといわれているまぐろ等^{18, 19)}の影響が考えられる。

1991年はX群以外に、XI群、I群及びII群からも検出され、摂取量も約15.5 μg と全国の約2倍の量であった。特に、XI群からは平年の15倍以上の摂取量であった。そこで、その原因を調べるため、個々の食品についてHg含量を測定したところ、鯨肉から25.4ppmのHgが検出され、この鯨肉が原因食品と考えられた。1990年以前にもXI群には鯨肉が含まれていたが、いずれの年も0.5 μg 以下の摂取量であった。これは商業捕鯨の禁止により、従来捕獲されていたヒゲ鯨に変わり、Hg含量が高いといわれている肉食性の歯鯨^{20, 21)}が市場に出回っているためと考えられる。

Pb: 全国におけるPbの摂取量¹⁰⁾は1988年の約90 μg を除き、50 μg 前後でほぼ一定している。山口県では1987年までは全国を上回っていたが、1988年より全国を下回るようになった。しかし、この原因については明らかでない。Pbはいずれの年度においてもほとんどの群から検出されており、Pbによる食品の汚染がかなり進行していると考えられる。

Cd: 全国におけるCdの摂取量¹⁰⁾は約30 μg 前後であり、年による変動は小さい。山口県ではいずれの年も全国平均を下回っている。特に、この2, 3年は全国平均の1/3以下の摂取量であった。群別に摂取量をみると、1984年は各群から摂取されていたが、ここ数年は摂取されない群がかなりみられた。主な寄与群はI群、II群、VIII群、X群などである。特に、I群は50%以上の寄与率であった。

その他の金属: Znは全国並みの摂取量で、年次による変動も小さかった。Mn及びCuは全国平均より低いレベルで推移していた。また、Niについては報告例¹⁰⁾が少なく、全国レベルとの比較はできないが、山口県では平均137 μg の摂取量であった。

まとめ

マーケットバスケット方式により山口県における食品汚染物質の一日摂取量の1984~1991年の年次推移を調査した。

表1 食品群別一日摂取量 (1984~1991)

(単位: g)

群	食品名	最低	最高	平均	群	食品名	最低	最高	平均
I	精白米	189.9	217.7	204.0	VIII	ブロッコリー・セロリ	6.0	8.0	7.2
	もち・団子粉	4.2	12.9	7.3		大根	35.5	48.6	40.8
II	押し麦	0.3	0.8	0.5		たまねぎ	22.3	25.7	23.8
	薄力粉	4.7	7.8	6.4		キャベツ	18.7	21.8	20.2
	食パン	38.7	58.6	44.6		きゅうり	7.8	11.2	9.1
	あんぱん	5.3	7.3	6.2		はくさい	22.7	29.8	25.8
	ゆでめん	25.5	31.4	28.2		アスパラガス	5.0	13.1	10.2
	そうめん	2.6	5.5	3.0		さやえんどう・いんげん	10.0	16.0	12.9
	即席めん	1.5	3.7	2.3		なす	10.0	22.4	14.4
	コーンフレーク	0.3	1.6	0.8		たかな漬物	6.3	10.5	8.5
	くり	1.1	1.6	1.4	たくあん	7.3	12.5	9.4	
	さつまいも	9.7	13.8	12.0	しいたけ	6.3	11.1	9.3	
じゃがいも	22.8	25.9	24.0	浅草のり・わかめ・もつく	4.1	5.0	4.9		
さといも	10.9	15.5	12.6	IX	醤油	19.7	23.1	21.6	
こんにゃく	10.0	15.7	13.4		ウスターソース	3.0	6.5	4.2	
III	精白糖	11.2	14.6		12.3	塩	1.4	3.0	1.8
	いちごジャム	0.5	1.2		0.7	トマトケチャップ・めんつゆ	11.6	11.6	11.6
	キャラメル	0.5	0.7		0.6	日本酒	21.2	28.2	23.9
	せんべい	1.4	2.4		1.9	ビール	19.5	35.2	29.4
	カステラ	2.7	5.2		4.0	ウイスキー	2.6	6.4	5.0
	ビスケット	1.2	4.7		2.4	コーヒー	7.7	37.5	15.0
	まんじゅう	3.7	8.0		4.9	スポーツ飲料	7.7	30.0	14.4
	ういろう・スナック	3.0	4.5		3.8	日本茶	10.0	20.0	17.6
	チョコレート	3.0	5.0	3.9	X	まぐろ	2.3	4.8	3.2
	IV	バター	0.7	1.3		1.0	たい・かれい	7.2	9.7
マーガリン		1.8	2.6	2.3		あじ・さば・いわし	12.5	17.2	13.7
サラダ油		8.8	10.3	9.8		さけ	0.0	2.0	1.1
牛脂		0.1	0.2	0.1		その他の魚(3種)	16.5	20.4	16.9
マヨネーズ		3.5	5.3	4.3		たこ・いか	10.8	21.8	16.8
V		みそ	12.2	13.5		12.9	あさり	3.6	5.5
	とうふ	37.5	45.4	42.9		塩さば	3.7	6.2	4.8
	あぶらげ・あつあげ	3.2	9.4	7.9		あじ干物	5.5	6.2	5.8
	なっとう	3.5	5.8	4.7		まぐろ缶詰	0.9	1.6	1.3
あずき(ゆで)	1.6	2.6	2.1	いかなご佃煮	0.0	0.6	0.2		
VI	夏みかん・みかん・オレンジ	50.3	81.7	58.9	かまぼこ	12.1	17.7	14.8	
	りんご	21.9	26.3	24.0	魚肉ソーセージ	0.3	1.6	1.0	
	バナナ	4.5	8.3	6.4	XI	牛肉(ばら)	21.1	29.0	23.7
	いちご	0.3	1.3	0.5		豚肉(ばら)	17.0	22.2	19.3
	すいか	13.7	25.1	18.4		鶏肉(手羽)	16.0	21.6	17.8
	ぶどう・もも	10.0	20.0	14.4		鯨肉	0.2	1.2	0.6
	マスクメロン	7.4	17.8	10.9		マトン	0.1	1.7	0.5
	オレンジジュース	2.1	6.4	4.2		プレスハム	7.6	12.6	8.8
VII	にんじん	13.1	16.3	14.6		鶏卵	42.4	44.5	43.6
	ほうれん草	17.4	23.7	20.4		XII	市乳	107.6	139.4
	ピーマン	2.7	3.8	3.4	プロセスチーズ		0.9	1.3	1.1
	トマト	4.1	7.7	5.9	アイスクリーム		4.6	10.7	7.0
	かぼちゃ	6.2	9.3	8.0	XIII	加工食品(2~12種)	4.1	17.3	11.3
レタス	6.2	9.3	7.9	XIV		水道水	600.0	600.0	600.0

表2 各種汚染物質の食品群別一日摂取量 (1984~1991)

(単位: μg)

汚染物質名	食品群													計	
	I 米・加工品	II 雑穀・芋	III 砂糖・菓子	IV 油脂類	V 豆・加工品	VI 果実類	VII 有色野菜	VIII 野菜・海藻	IX 調味・嗜好	X 魚介・加工品	XI 肉・卵類	XII 乳・加工品	XIII 加工食品		XIV 水道水
PCB	最低値	0	0	0	0.018	0	0	0	0	1.185	0	0	0	0	1.292
	最高値	0	0.323	0.085	0.050	0	0	0	0	3.400	0.720	0.392	0	0	3.400
	平均値	0	0.040	0.011	0.010	0	0	0	0	2.007	0.292	0.103	0	0	2.462
HCH	最低値	0	0	0	0	0	0	0	0	0.083	0	0	0	0	0.199
	最高値	0.354	0.065	0.050	0.178	0.097	0.073	0.898	0.057	0.315	0.377	0.740	0.019	0	4.331
	平均値	0.044	0.010	0.022	0.037	0.033	0.015	0.117	0.007	0.149	0.153	0.158	0.004	0	0.910
DDT	最低値	0	0	0	0	0	0	0	0	0.162	0.057	0.004	0	0	0.310
	最高値	0.088	0.032	0.015	0.416	0.052	0.070	0.440	0	0.869	0.211	0.487	0.010	0	2.072
	平均値	0.011	0.004	0.006	0.060	0.009	0.041	0.072	0	0.451	0.124	0.124	0.005	0	0.919
7種DPO	最低値	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0.014
	最高値	0.310	0	0.003	0.005	0.032	0.142	0.422	0	0.105	0.276	0.922	0.029	0	2.072
	平均値	0.039	0	0.000	0.001	0.011	0.024	0.059	0	0.027	0.055	0.139	0.004	0	0.370
HCE	最低値	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	最高値	0.088	0	0.003	0.009	0.022	0.024	0.076	0.014	0.020	0.037	0.076	0.005	0	0.256
	平均値	0.011	0	0.000	0.001	0.005	0.005	0.010	0.002	0.006	0.011	0.016	0.001	0	0.063
HCB	最低値	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	最高値	0	0.077	0	0.005	0	0	0	0	0.030	0.017	0.012	0	0	0.141
	平均値	0	0.010	0	0.001	0	0	0	0	0.004	0.002	0.002	0	0	0.018
As	最低値	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	最高値	22.1	0	0	1.1	0	0	72.9	1.9	143.5	2.8	0	0.8	0	179.6
	平均値	7.9	0	0	0.1	0	0	34.1	0.2	76.7	0.4	0	0.1	0	119.1
Hg	最低値	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	最高値	1.3	0.65	0	0	0	0	0.15	0.18	12.44	7.30	0	0.03	0	15.49
	平均値	0.24	0.08	0	0	0	0.04	0.02	0	5.81	1.07	0	0.00	0	7.28
Pb	最低値	0	1.0	0.3	0	0	0	1.4	0	1.2	0	0	0	0	10.5
	最高値	30.2	9.5	2.0	1.7	5.4	4.3	13.9	8.6	8.6	7.5	6.2	1.3	2.4	89.7
	平均値	14.0	4.1	1.2	0.5	2.8	2.6	5.8	2.8	4.1	3.6	1.9	0.5	0.7	46.3
Cd	最低値	6.23	1.00	0	0	0.62	0	0.69	0	0	0	0	0	0	9.37
	最高値	16.37	4.16	0.81	0.24	1.87	1.08	1.93	6.23	5.64	1.47	1.81	1.28	0.60	40.15
	平均値	10.75	2.19	0.37	0.03	1.14	0.22	1.35	2.70	1.45	0.23	0.23	0.24	0.08	21.20
Cu	最低値	198.9	71.0	22.0	1.7	56.9	23.8	34.0	5.4	42.4	25.2	0.9	0.8	4.2	580.6
	最高値	493.1	144.6	60.8	3.6	128.6	96.8	97.2	18.8	104.3	68.9	14.3	15.4	7.8	1153.0
	平均値	352.6	103.6	45.7	2.2	95.3	56.0	62.6	10.6	74.4	53.0	8.7	8.6	5.5	905.4
Zn	最低値	195.3	41.4	96	12	368	151	121	155	457	1368	34	5	4	6468
	最高値	3874	598	185	35	704	70	375	583	900	2514	499	110	10	9006
	平均値	2550	506	138	25	534	104	182	391	612	1846	374	41	8	7539
Mn	最低値	518	251	39	2	213	64	127	194	13	5	0.3	3	1	1731
	最高値	1669	409	91	3	433	149	208	378	41	42	7	44	1	3314
	平均値	1179	320	61	2	323	99	131	282	25	16	4	16	1	2671
Ni	最低値	16.3	0	2.7	0.4	7.6	2.5	0.6	8.1	0	0.9	0	0.2	0	51.0
	最高値	52.8	22.4	8.8	1.7	20.3	13.5	5.2	55.6	22.3	28.5	9.5	3.9	1.2	214.5
	平均値	31.4	10.6	4.6	1.1	13.7	8.2	3.5	26.1	8.4	9.0	2.8	2.0	0.3	137.0

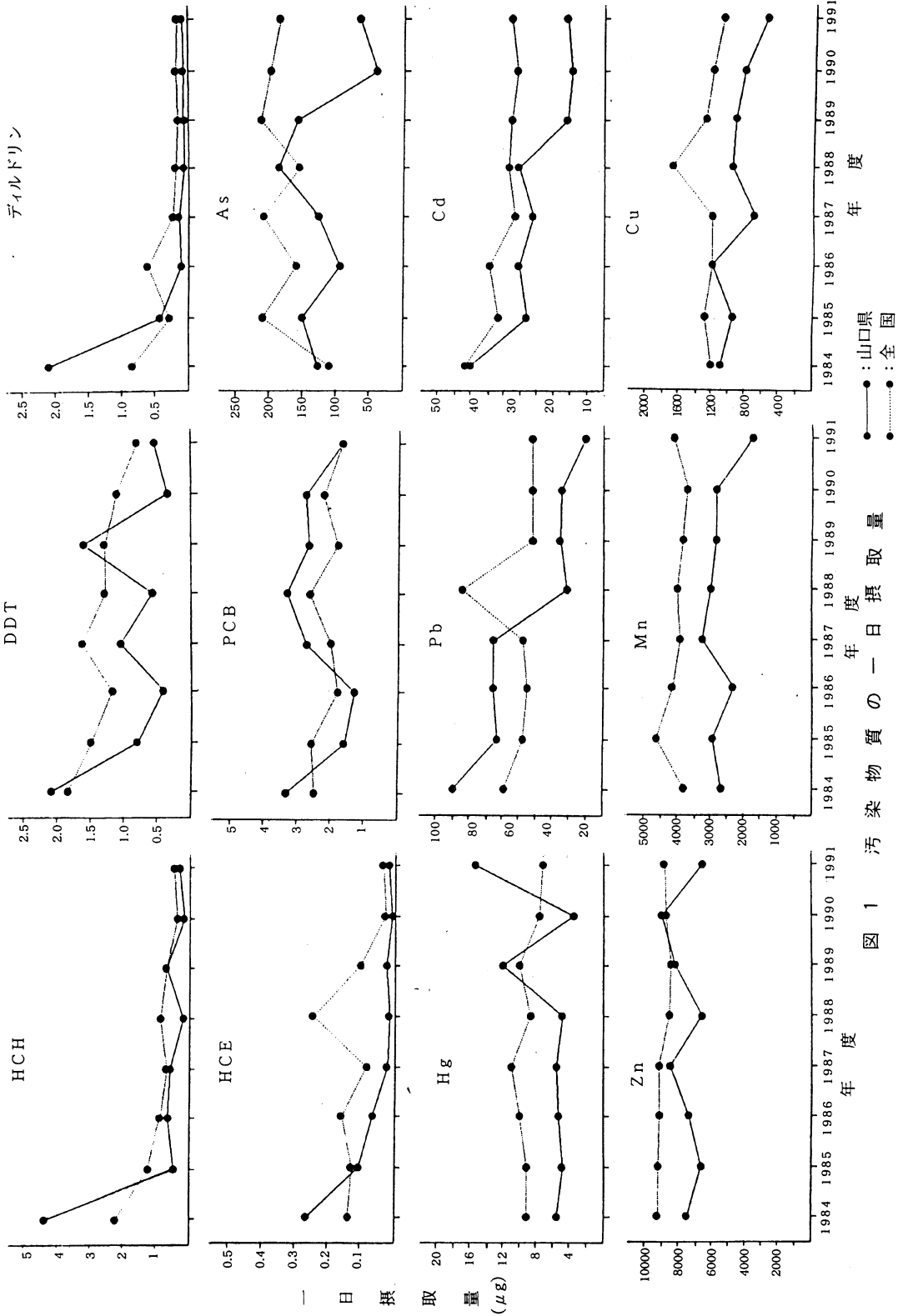


図1 汚染物質の一日摂取量

DDTやHCHなどの有機塩素系農薬やPCBなどは、使用禁止措置がとられて20年を経過した今日でも、多くの食品から検出された。しかし、量的には一日許容摂取量と比較しても、はるかに低い量であった。群別では特にX群の魚介類の寄与が大きかった。

重金属の摂取量は金属の種類によって大きく異なった。しかし、ほとんどの金属で全国平均を下回った。また、年度により大きく変動した金属もあったが、PbとCdは減少する傾向がみられた。

文 献

- 1) 環境庁長官官房総務課編：環境・公害関係資料集。帝国地方行政学会，201～1695p. 1974
- 2) 宝月欣二ほか：環境の化学。第3版。東京，日本放送出版協会，28～107p. 1973
- 3) 植村振作ほか：農薬毒性の辞典。第1版。東京，三省堂，16～201p. 1988
- 4) 厚生省健康医療局健康増進栄養課編：国民栄養の現状。1984～1991年
- 5) Official Method of Analysis of the A. O. A. C. :13th. Washington , 466～472p. 1980
- 6) 厚生省生活衛生局食品化学課編：残留農薬分析法。4～29p. 1986
- 7) 日本薬学会編：衛生試験法。注解。東京，金原出版，49～630p. 1990
- 8) 熊谷 洋，佐伯清子：食衛誌。17，200～203 (1976)
- 9) 河端俊治ほか：実務食品衛生。東京，中央法規出版，104～107p. 1987
- 10) 厚生省食品汚染物質研究班(班長，齊藤行生)：平成3年度汚染物質摂取量調査報告会資料，1992
- 11) 齊藤行生：食品衛生研究。37(8)，7～29 (1987)
- 12) 福岡県衛生部：福岡県における日常食品からの汚染物質摂取量調査(昭和53年～昭和59年)。1985
- 13) 望月恵美子ほか：山梨衛公研年報。(34)，16～21(1990)
- 14) 前田浩一郎ほか：大阪府立公衛研所報。食品衛生編，10，83～89(1979)
- 15) 村上保行ほか：大阪府立公衛研所報。食品衛生編，12，61～66(1981)
- 16) 田村征男ほか：名古屋市衛生研究所報。27，26～30(1980)
- 17) 塩見一雄：食衛誌。33，1～10(1992)
- 18) 藤村 豊：日衛誌。18，402～411(1964)
- 19) 滝沢行雄：科学。42，512～515(1972)
- 20) 富田美佐子，西村正雄：日衛誌。28，59 (1973)
- 21) 長倉克男ほか：東海水研報。78，41～46 (1974)