# 新潟県における日常食からの汚染物質１日摂取量調査（1979～2011 年）

吉﨑麻友子，小林ゆかり，青柳由美子

# Report on Daily Intake of Environmental Chemicals from Diet in Niigata (1979 ~ 2011)

Mayuko Yoshizaki, Yukari Kobayashi and Yumiko Aoyagi


## 要　　旨

1979 年から新潟県における日常食からの汚染物質の１日摂取量をマーケットバスケット方式により調査してきた．今回，調査対象物質を農薬７種，Pb，Cd，Hg，As，Cu，Mn，Zn 及び PCB とし，2011 年までの摂取量の経年変化をまとめた．その結果，摂取量は調査開始当時に比べほとんどの物質で減少したが，1994 年以降ではほとんど横ばいの状態であった．また，1994 年以降の各汚染物質の摂取量は摂取許容量を概ね下回っていた．


Keywords：１日摂取量，マーケットバスケット方式，有機塩素系農薬，有機リン系農薬，金属

## １　はじめに

1977 年から国立医薬品食品衛生研究所を中心とし８～12 の地方衛生研究所等により「日常食中の汚染物質摂取量調査研究」が継続して行われている．本県は 1979 年から同調査に参加して各種汚染物質の摂取量を調査してきた（ただし 1985 年から 1993 年は不参加）．今回，1979 年から 2011 年までの調査結果についてとりまとめたので報告する．

## ２　調査方法

### 2.1　試料

各年毎に，直近の国民栄養調査の食品群別摂取量（北陸地域）に基づいて約 200 品目の食品をマーケットバスケット方式により購入した．各食品を 13 食品群及び飲料水の群に分け，実際の摂取形態に従い，一般的な調理加工を行った後，混合・均質化したものを試料とした．表１に各食品群名と例として 2011 年の主な食品，調理法及び１日摂取量を示した．

### 2.2　調査項目

調査項目は，有機塩素系農薬のα-HCH，β-HCH，γ-HCH，δ-HCH，o,p’-DDT，p,p’-DDD，p,p’-DDE，p,p’-DDT，Dieldrin，Heptachlor epoxide(HCE)，Hexachlorobenzene (HCB)，有機リン系農薬の Malathion，Fenitrothion(MEP)，Diazinon，金属の Pb，Cd，Hg，As，Cu，Mn，Zn 及び PCB の合計 22 項目である．

### 2.3　分析方法

#### 2.3.1　農薬

主に，アセトニトリル抽出及びケイソウ土カラム精製後，脂肪の多い群はアセトニトリル・ヘキサン分配を行い，GPC による精製後，フロリジルカラム又はシリカゲルカラム及び PSA カラムで精製し，GC/ECD，FPD 又は GC/MS で測定した．

#### 2.3.2　PCB

アルカリ分解後，ヘキサン抽出し，フロリジルカラムで精製し，GC/ECD で測定した．

**表1　食品群名と主な食品及び1日摂取量の例(2011 年)**

| 群 | 食品群名 | 主な食品 | 調理法 | 1日摂取量(g) |
|---|---|---|---|---|
| Ⅰ | 米・米加工品 | 精白米，もち，赤飯 | 炊く，加熱 | 367.9 |
| Ⅱ | 穀類・いも類・種子類 | 薄力粉，食パン，菓子パン，うどん，即席カップ麺，マカロニ，焼麸，そば，コーンフレーク，じゃがいも，ながいも，さといも，緑豆はるさめ，くるみ | 焼く，茹でる | 156.5 |
| Ⅲ | 砂糖・菓子類 | 上白糖，甘納豆，どら焼き，ようかん，かりんとう，せんべい，シュークリーム，ビスケット，キャラメル，オレンジゼリー，プリン，ポテトチップス | － | 33.9 |
| Ⅳ | 油脂類 | バター，ファットスプレッド，オリーブ油，ごま油，なたね油，牛脂 | － | 9.7 |
| Ⅴ | 豆・豆加工品 | ゆで大豆，きな粉，絹ごし豆腐，木綿豆腐，油揚げ，がんもどき，納豆，豆乳，豆乳飲料，ゆであずき，うずら豆 | 茹でる | 48.7 |
| Ⅵ | 果実類 | みかん，バレンシアオレンジ，レモン，バナナ，りんご，キウイフルーツ，すいか，ぶどう，イチゴジャム，オレンジジュース，リンゴジュース | － | 118.3 |
| Ⅶ | 有色野菜 | トマト，にんじん，ほうれん草，青ピーマン，アスパラガス，絹さや，オクラ，にら，ブロッコリー，トマトミックスジュース | 茹でる，炒める | 102.4 |
| Ⅷ | その他野菜・海藻・きのこ類 | キャベツ，きゅうり，大根，たまねぎ，はくさい，枝豆，緑豆もやし，レタス，キムチ，たくあん漬，梅干し，えのきたけ，生しいたけ，味付けのり | 茹でる，炒める | 220.4 |
| Ⅸ | 嗜好飲料 | 清酒，ビール，発泡酒，梅酒，煎茶，紅茶，インスタントコーヒー，調整ココア，炭酸飲料果実色，コーラ，麦茶 | 溶かす，抽出 | 551.7 |
| Ⅹ | 魚介類 | さんま，さけ，かれい，きはだまぐろ，きす，あさり，まだこ，あまえび，あじ(開干)，まぐろ油漬缶詰，しじみ(つくだ煮)，焼きちくわ，魚肉ソーセージ | 焼く，茹でる | 93.7 |
| ⅩⅠ | 肉・卵類 | 牛肉(和牛)，牛肉(輸入牛)，豚もも，豚ばら，豚ロース，ウインナーソーセージ，ロースハム，鶏むね，鶏もも，鶏砂肝，うずら卵(水煮)，鶏卵 | 焼く，茹でる | 104.8 |
| ⅩⅡ | 乳・乳製品 | 牛乳，成分調整牛乳，カマンベールチーズ，プロセスチーズ，プレーンヨーグルト，ヨーグルトドリンク，コーヒー乳飲料，生クリーム | － | 111.9 |
| ⅩⅢ | 調味料・その他 | 中濃ソース，濃口しょうゆ，食塩，マヨネーズ，米みそ，本みりん，米酢，めんつゆ(希釈用)，トマトケチャップ，ノンオイルドレッシング，ひきからし | － | 77.7 |
| ⅩⅣ | 飲料水 | 水道水 | － | 250.0 |

＊国民栄養調査の変更に伴い，2004年から一部分類が見直された．
（変更点：Ⅸ;調味料・嗜好飲料，ⅩⅢ;その他 → Ⅸ;嗜好飲料，ⅩⅢ;調味料・その他，　Ⅲ群ジャム→Ⅵ群，　Ⅳ群マヨネーズ→ⅩⅢ群，　Ⅴ群味噌→ⅩⅢ群　等）

2.3.3　金属

Pb は乾式灰化後溶媒抽出し，原子吸光光度法（フレームレス）により測定した．

Cd は乾式灰化後溶媒抽出，又はマイクロ波による湿式灰化後，原子吸光光度法（フレームレス）により測定した．

Hg は石英管燃焼法による分解後，還元気化原子吸光光度法により測定した．

As は主に乾式灰化後，水素化物発生原子吸光法により測定した．

Cu，Mn 及び Zn は乾式灰化後，原子吸光光度法により測定した．

## 3　結果と考察

図１及び図２に新潟県における汚染物質の１日摂取量(以下，摂取量) 及び全国平均値[1-4]の年次推移(1979～2011 年)を示した．

また，滋賀県の例[5]にならい，表２に調査開始当時である 1979～1984 年及び 2006～2011 年の汚染物質の平均摂取量とその比較を示した．

3.1　農薬

3.1.1　有機塩素系

HCH は調査開始当時２μg/man/day 程度の摂取量であったが，調査を再開した 1994 年以降は概ね 0.1μg/man/day 以下となり大幅に減少した．全国平均と比較しても同レベルの摂取量であった．調査開始当時はほとんどの群から摂取されていたが，近年はＸ群からの摂取が多い．

DDT は調査開始当時３μg/man/day 程度であった摂取量が，調査再開後は概ね１μg/man/day 以下で推移している．DDT を始め有機塩素系農薬の HCH，Dieldrin，HCE 等は現在国内では使用できないが，HCH 等が定量下限値未満となる年もあるのに対し，DDT は毎年検出され，1998 年には３μg/man/day と高い値となった．全国平均と比較すると同レベル

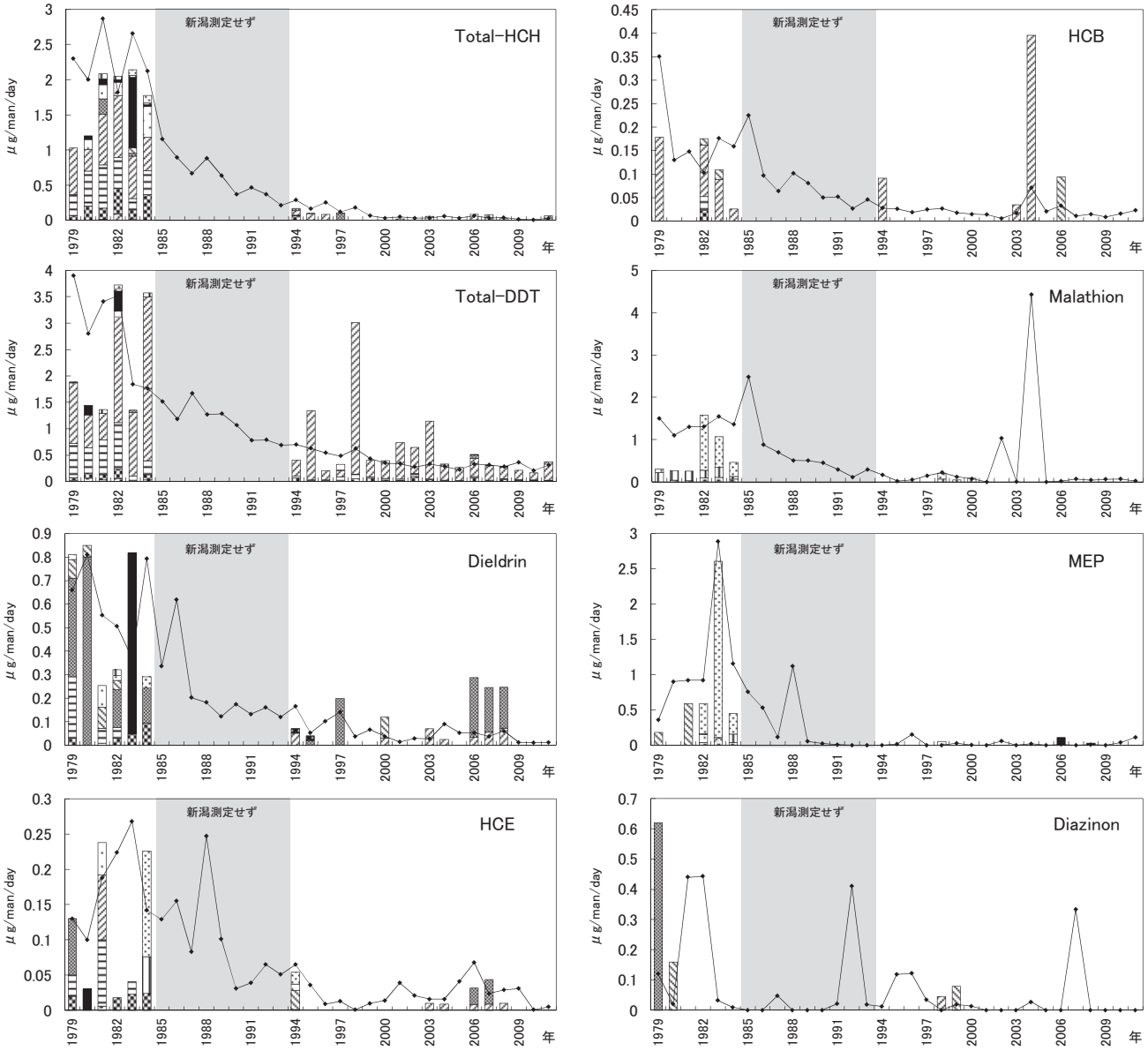


**図1　農薬の食品群別摂取量の年次推移**（棒；新潟（1985～1993 年は測定せず），折線；全国）

か若干高かった．HCH と同様に調査開始当時はほとんどの群から摂取され，中でもＸ，ＸＩ群などの動物性食品からの摂取が多かった．近年はＸ群からの摂取が８割を占めている．

Dieldrin は調査開始当時 0.5μg/man/day 程度で毎年検出されたが，調査再開後は散発的に検出されている．2006～2008 年には 0.3μg/man/day と高い値となりその摂取量は年によりばらつきがあるが，30 年前と比較して減少傾向にある．概ね全国平均と同レベルの摂取量であり，主な摂取源はⅦ，Ⅷ群であった．

HCE は Dieldrin と同様に調査開始当時は毎年検出され 0.2μg/man/day 程度であった．調査再開後は散発的に検出され 0.05μg/man/day 程度の摂取量となり，30 年前と比較して減少した．主な摂取源は Dieldrin と同様にⅦ，Ⅷ群などの野菜類であるが，Ｘ群からの摂取も多い．

HCB は散発的に検出され，概ね 0.1μg/man/day 程度の摂取量であった．しかし 2004 年にはＸ群から多く検出され 0.4μg/man/day と高い値となった．全国平均はこの 30 年で減少傾向にあるものの，本県は定量下限値未満の年が多く摂取量の経年的変化は把握できない．ほとんどが動物性食品由来であるが，近年Ⅶ群からも検出された．

3.1.2　有機リン系

Malathion は調査開始当時は主にⅡ群から 1 μg/man/day 程度で毎年検出されたが，調査再開後は 1998～2000 年のみ検出され 0.05～0.2μg/man/day の摂取量であった．全国平均と同レベルの摂取量であり 30 年前と比較して減少した．

MEP は Malathion と同様に調査開始当時は主にⅡ群から 1 μg/man/day 程度で毎年検出されたが，調査再開後は定量下限値未満がほとんどであり，30 年前と比較して減少した．全国平均と同レベルの摂取量であった．

Diazinon は本調査期間中において４年（1979, 1980, 1998 及び 1999 年）しか検出されなかった．いずれも全国平均と同レベルであった．主な摂取源はⅦ，Ⅷ群であった．

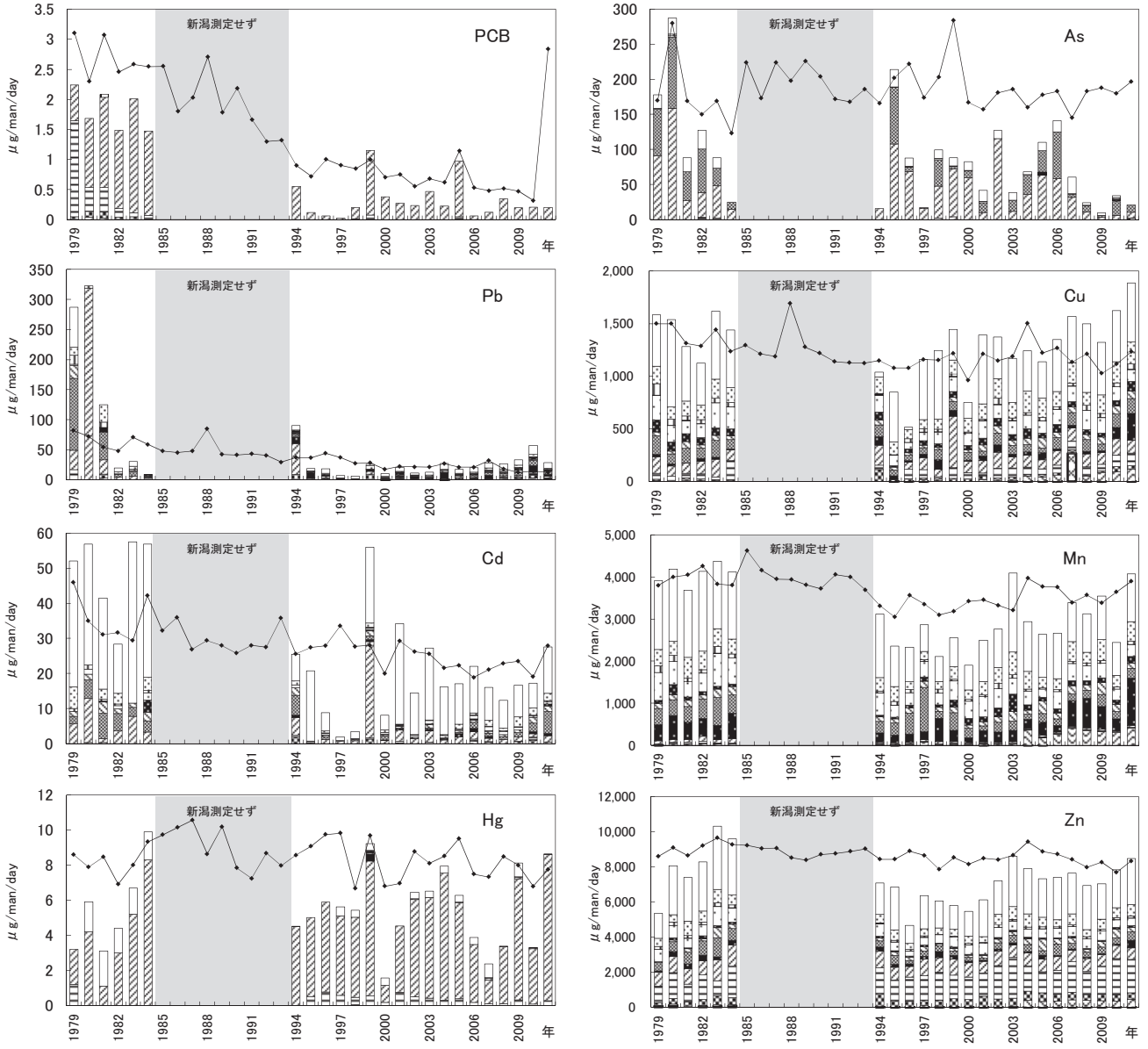


**図2　PCB 及び金属の食品群別摂取量の年次推移**（棒;新潟(1985～1993 年は測定せず)，折線;全国）

□ Ⅰ米・米加工品　▦ Ⅱ穀類・いも類・種子類　▥ Ⅲ砂糖・菓子類　■ Ⅳ油脂類　▫ Ⅴ豆・豆加工品　▩ Ⅵ果実類　▧ Ⅶ有色野菜　▨ Ⅷその他野菜・海藻・きのこ類
■ Ⅸ嗜好飲料　▨ Ⅹ魚介類　▭ ⅩⅠ肉・卵類　▩ ⅩⅡ乳・乳製品　☑ ⅩⅢ調味料・その他　☑ ⅩⅣ飲料水　—● 全国平均

表2　食品汚染物質の平均1日摂取量(30年前との比較)

| 物質名 | 1日摂取量(μg/man/day) 過去最高値 (括弧内は検出年) | 1979-1984年 平均値(A) | 2006-2011年 平均値(B) | B/A (%) |
|---|---|---|---|---|
| Total-HCH | 2.14 (84) | 1.71 | 0.044 | 2.56 |
| Total-DDT | 3.72 (82) | 2.22 | 0.308 | 13.9 |
| Dieldrin | 0.850 (80) | 0.557 | 0.129 | 23.2 |
| HCE | 0.238 (81) | 0.114 | 0.014 | 12.4 |
| HCB | 0.395 (04) | 0.081 | 0.016 | 19.3 |
| Malathion | 1.57 (82) | 0.656 | N.D. | − |
| MEP | 2.61 (83) | 0.737 | 0.022 | 3.01 |
| Diazinon | 0.620 (79) | 0.130 | N.D. | − |
| PCB | 2.24 (79) | 1.83 | 0.187 | 10.2 |
| Pb | 322 (80) | 132 | 32.1 | 24.3 |
| Cd | 57.5 (83) | 48.9 | 18.6 | 38.1 |
| Hg | 9.90 (84) | 5.53 | 4.94 | 89.3 |
| As | 287 (80) | 132 | 48.4 | 36.6 |
| Cu | 1,890 (11) | 1,430 | 1,540 | 108 |
| Mn | 4,370 (83) | 4,070 | 3,210 | 78.8 |
| Zn | 10,300 (83) | 8,170 | 7,560 | 92.5 |

3.2　PCB及び金属

3.2.1　PCB

PCBは調査開始当時２μg/man/day程度の摂取量であったが，調査再開後は概ね0.5μg/man/dayとなり，更に近年においては30年前と比較して１割程度まで減少した(表２)．全国平均と比較して同レベルか少ない摂取量であった．調査開始当時はX群以外の動物性食品からの摂取もあったが，調査再開後はそのほとんどをX群から摂取している．

3.2.2　Pb

Pbは調査開始当時300μg/man/day程度の摂取量で，全国平均と比べ多かったが，近年は30μg/man/day程度となり全国平均と同レベルの摂取量となった．しかし，2010年は摂取量が60μg/man/dayとなり，散発的に高い値が検出された．近年はⅠ群からの摂取が比較的多い．

3.2.3　Cd

Cdは調査開始当時50μg/man/day程度の摂取量であった．1999年にX群から多く検出され60μg/man/dayと高い値となった．近年は概ね20μg/man/day程度となり，その摂取量は30年前の半分以下に減少した（表２）．また全国平均と比較して，調査開始当時は本県の方が多かったが，調査再開後は概ね全国平均を下回る摂取量で推移している．主な摂取源はⅠ群であるが，調査開始当時には７割程度あった摂取割合が近年では５割程度まで減少してきている．

3.2.4　Hg

Hgの摂取量は調査開始当時からほとんど変化せず，10μg/man/day程度で推移している．全国平均と比較して本県の摂取量は少ない傾向にあった．調査開始当時はX群から７割，Ⅰ群から２割程度摂取していたが，調査再開後はX群からの摂取が９割を占めている．

3.2.5　As

Asは1980年及び1995年に200～300μg/man/day程度の摂取量となった他は概ね100μg/man/day程度の摂取量で推移しており，ほぼ全国平均を下回っている．また全国平均では経年的な変化はあまり見られないが，本県ではばらつきは大きいもののこの30年間で減少傾向が見られた．全体の８割をⅦ群及びX群から摂取しており，調査開始当時からその割合にあまり変化はない．

3.2.6　Cu，Mn，Zn

Cuの摂取量は経年変化を示さず，1,200μg/man/day程度で推移しており，全国平均と同レベルであった．

Mnの摂取量は調査開始当時4,000μg/man/day程度であったが，調査再開後は2,500～3,000μg/man/dayとなり微減した．全国平均と比較して少ない傾向にあった．

Znの摂取量もCuと同様に経年変化を示さず7,000μg/man/day程度で推移しているが，全国平均と比べると本県は少ない傾向にあった．

３元素ともⅠ群からの摂取割合が比較的多いが，Mnは動物性食品からの摂取が少なく，Znはそれとは逆に動物性食品からの摂取が３割を占めていた．

3.3　30年間の摂取量の経年変化

表２に示したとおり，ほとんどの農薬及びPCBの最近（2006～2011年）の摂取量は調査開始当時（1979～1984年）即ち30年前の20%以下にまで減少した．金属の摂取量はHg，Cu等30年前とほとんど変化していないものもあったが，Pb，Cd及びAsは30年前の40%以下の摂取量となった．

いずれの汚染物質も，調査を再開した1994年以降明らかな減少又は増加傾向を示したものはなかった．しかし，時にやや高い値を示す物質があり，また現在国内で製造・使用が禁止されている物質が僅かながら検出されるなど，今後も継続して調査を行う必要があると考えられた．

3.4　１日摂取許容量(ADI)との比較

表３に各汚染物質のADIと摂取量との比較を示した．なお，本調査項目のHg及びAsの許容量は設定されていないため，Hgはよりリスクの高いメチルHgの耐容週間摂取量（TWI）[6]との比較値を，Asは毒性の強い無機Asの暫定TWI（PTWI）[7]との比較値を参考として示した．

金属以外のほとんどの物質の摂取量が，摂取量の多かった調査開始当時も含め，ADIの2.5%以下となっていた．過去最高値をみても，高くてDieldrin 17%，HCE 4.8%等であ

表3　食品汚染物質摂取量と1日摂取許容量(ADI)との比較

| 物質名 | 1日摂取許容量*1 (μg/man/day) (体重50kg) | 1日摂取量/1日摂取許容量(%) 過去最高値 | 1979-1984年 平均値 | 2006-2011年 平均値 |
|---|---|---|---|---|
| Total-HCH | 625 | 0.342 | 0.274 | 0.007 |
| Total-DDT | 250 | 1.49 | 0.889 | 0.123 |
| Dieldrin | 5 | 17.0 | 11.1 | 2.59 |
| HCE | 5 *2 | 4.76 | 2.28 | 0.283 |
| HCB | 40 | 0.988 | 0.203 | 0.039 |
| Malathion | 1,000 | 0.157 | 0.066 | − |
| MEP | 250 | 1.04 | 0.295 | 0.009 |
| Diazinon | 100 | 0.620 | 0.130 | − |
| PCB | 250 | 0.897 | 0.731 | 0.075 |
| Pb | 179 | 181 | 74.0 | 18.0 |
| Cd | 50 | 115 | 97.7 | 37.2 |
| Hg(参考値) | 14 *3 | 69.3 | 38.7 | 34.6 |
| As(参考値) | 107 *4 | 268 | 123 | 45.1 |
| Cu | 10,000 | 18.9 | 14.3 | 15.4 |
| Mn | 11,000 | 39.8 | 37.0 | 29.2 |
| Zn | 40,000 | 25.8 | 20.4 | 18.9 |

＊1：食品安全委員会等で定めた許容量[6-11]から算出
＊2：HeptachlorのADIから算出
＊3：メチルHgのTWIから算出
＊4：無機AsのPTWIから算出

り，いずれもADIを大きく下回っていた．

一方，金属の摂取量は農薬等に比べADIに対する割合が高く，2006～2011年で15.4～45.1%であり，過去にはADIを超えた年も見られた．調査再開後は概ねADIの30%程度の摂取量となっているが，Cd摂取量は近年になってもADIの50%を超える年もあり今後も注意が必要である．

Asはその摂取がすべて無機Asだと仮定すると，ADIを大きく超過する年が多々あった．Asはその形態により毒性が異なるため，Asの摂取リスクを評価するためには形態別の摂取量調査を行う必要がある．

Cu，Mn及びZnは必須微量元素であり，日本人の食事摂取基準[11]において上限量と共に推奨量又は目安量が設定されている．Cuの推奨量（成人男性）は900μg/man/dayで，本調査におけるCu摂取量は推奨量を十分満たしていた．Mnは調査開始当時は目安量（4,000μg/man/day）を満たしていたが，調査再開後は８割程度の摂取量となっている．Znは全調査期間で推奨量である12,000μg/man/dayの６～８割程度の摂取量にとどまった．

## ４ ま と め

新潟県における1979～2011年の日常食からの汚染物質の１日摂取量をマーケットバスケット方式により調査した．

摂取量は調査開始当時に比べほとんどの物質で減少したが，調査を再開した1994年以降ではほとんど横ばいの状態であった．また，農薬及びPCBの摂取量は全調査期間でADIを大きく下回り，金属の摂取量は1994年以降概ねADIを下回った．

## 文 献


１）松田りえ子 他：トータルダイエット試料を用いた食品汚染物質の１日摂取量調査1977～2007年度，(国立医薬品食品衛生研究所食品部編)（2008）．

２）松田りえ子，渡邉敬浩，堤智昭，杉山英男：食品中の有害物質等の摂取量の調査及び評価に関する研究 平成21年度 総括・分担研究報告書，p.13（2010）．

３）松田りえ子 他：食品を介したダイオキシン類等有害物質摂取量評価とその手法開発に関する研究 平成22年度 総括・分担研究報告書，p.17（2011）．

４）松田りえ子 他：食品を介したダイオキシン類等有害物質摂取量評価とその手法開発に関する研究 平成23年度 総括・分担研究報告書，p.23（2012）．

５）小嶋美穂子，藤田直樹，瀧野昭彦，徳田三郎：滋賀県立衛生環境センター所報，**37**，55（2002）．

６）厚生労働省医薬食品局食品安全部基準審査課長通知：妊婦への魚介類の摂食と水銀に関する注意事項について，平成17年11月２日，食安基発第1102001号．

７）米谷民雄：食品衛生研究，**61**(9)，25（2011）．

８）(社)日本食品衛生学会編：食衛誌，**53**，J-33（2012）．

９）TOXNET IRISホームページ：hexachlorobenzene(http://toxnet.nlm.nih.gov/cgi-bin/sis/htmlgen?IRIS)．

10）厚生省環境衛生局長通知：食品中に残留するPCBの規制について，昭和47年８月24日，環食第442号．

11）食事による栄養摂取量の基準，平成22年３月18日，厚生労働省告示第86号．