

厚生科学研究費補助金研究報告書

平成 11 年 4 月 10 日

厚生大臣 宮下創平 殿

住 所	フリカナ	マツダリエコ
研究者 氏 名		松 田 り え 子
(所属施設)		国立医薬品食品衛生研究所)

平成 10 年度厚生科学研究費補助金（厚生科学特別 研究事業）に係る研究事業を完了したので次のとおり報告する。

研究課題名（課題番号）： 食品中に溶出するアルミニウムの摂取に関する研究
 (H-10-特別-041)

国庫補助金精算所要額 : 金 3,000,000 円也

1. 厚生科学研究費補助金総括研究報告書概要版及びこれを入力したフロッピーディスク (別添1のとおり)
2. 厚生科学研究費補助金総括研究報告書 (別添2のとおり)

4. 研究成果の刊行に関する一覧表

刊行書籍又は雑誌名（雑誌のときは雑誌名、巻号数、論文名）	刊行年月日	刊 行 書 店 名	執筆者氏名
な し			

5. 研究成果による特許権等の知的財産権の取得状況
なし

平成 10 年度厚生科学特別研究費研究報告書

食品中に溶出するアルミニウムの摂取実態に関する研究

主任研究者 松田りえ子（国立医薬品食品衛生研究所）

食品中に溶出するアルミニウムの摂取実態に関する研究

主任研究者 松田りえ子 国立医薬品食品衛生研究所
食品部主任研究官

研究要旨

アルミニウムは、アルツハイマー病等の脳神経疾患との関連の可能性も示唆されていることから、その摂取実態を正確に把握することが必要である。アルミニウム摂取の主な経路は食品の摂食によると考えられる。この経路には、原料食品に含まれるアルミニウムに加えて、食品添加物、調理器具・包装容器として用いられているアルミニウム製品からの移行も含まれる。これらの経路からのアルミニウム摂取量を評価するために、全国 10 カ所の衛生研究所において、通常摂食する食品に通常の調理加工を行って調製したトータルダイエツトスタディ試料中のアルミニウム濃度を測定して一日摂取量の推定を行った。この結果、10 機関の結果から求めたアルミニウムの平均一日摂取量は 5.0mg であったが、測定機関間で大きな差が認められ、最大値は最小値の 7 倍程度であった。アルミニウムの摂取量は嗜好品、野菜、雑穀類、魚介類の群からが多く、また、アルミニウム濃度が高い群は、菓子類、加工食品、嗜好品、魚介類の群であった。さらに、本年度は、標準試料の測定を行って、分析法のバリデーションを行ない、信頼性の高い摂取量を求める事ができた。

協力研究者

酒井 洋 新潟県衛生公害研究所
青柳由美子 新潟県衛生公害研究所
佐伯政信 千葉県衛生研究所
長谷川康行 千葉県衛生研究所
遠藤幸男 千葉県衛生研究所
水野惇雄 横浜市衛生研究所
日高利夫 横浜市衛生研究所
石井敬子 横浜市衛生研究所
望月恵美子 山梨県衛生公害研究所
山本敬男 山梨県衛生公害研究所
宮部正樹 名古屋市衛生研究所
田村征男 名古屋市衛生研究所
堀 伸二郎 大阪府公衆衛生研究所
青木 茂 滋賀県立衛生環境センター

小嶋美穂子 滋賀県立衛生環境センター
宮村恵宣 山口県立衛生公害センター
岡 日出夫 山口県立衛生公害センター
田坂美和子 山口県立衛生公害センター
西岡千鶴 香川県衛生研究所
毛利孝明 香川県衛生研究所
大城善昇 沖縄県衛生環境研究所
山城興博 沖縄県衛生環境研究所
豊田正武 国立医薬品食品衛生研究所

A. 研究目的

アルミニウムは軽量・高い熱伝導度といった特性を持っているため、多くの方面で使用されており、日常生活においても調理器具、容器、包装材料と

して人が接触する頻度の高い金属である。アルミニウムの毒性は高くないと考えられていたが、近年、アルツハイマー病とアルミニウムに因果関係があるという学説が提出されており、健康への影響が懸念されている。しかしながら、アルミニウムの健康影響を評価するためには、先ずその摂取量を正確に把握することが重要である。

日常生活におけるアルミニウムの摂取量・摂取経路についての報告はあまり多くないが、石川県で行われた陰膳方式の調査ではアルミニウム一日摂取量 1.44mg ~ 37.6mg (平均 6.8mg) と報告されている¹⁾。大阪府で行われた同様の調査では、0.5mg ~ 36.1mg (平均 3.14mg) であった²⁾。また、1984 年の食品添加物総摂取量調査では、加工食品からの一日摂取量として 1.25 ~ 5.42mg (平均 3.41mg)³⁾、1989 年の同調査では 1.54 ~ 9.27mg (平均 4.26mg)⁴⁾が報告されており、食品添加物からのアルミニウム摂取が多いことが考えられる。上記のデータの特徴は、いずれも摂取量の範囲が広いことである。

食品からのアルミニウム摂取としては、材料食品の成分、食品添加物の他に、調理器具、包装容器として用いられるアルミニウム製品から食品への移行も考えられる。従って、試料調製のために選択した食品の種類・調理器具・方法によって試料中アルミニウム濃度が大きく変化することが、アルミニウム摂取量の幅が大きい原因と考えられる。従って、アルミニウムの摂取実態を知るためには、広い範囲で多数の

試料による測定を行う必要がある。

本研究では、一昨年より行っている全国 10 カ所でマーケットバスケット方式により調製されたトータルダイエツトスタディ試料中のアルミニウム量調査を継続し、日常食からの一日摂取量の推定を試みた。マーケットバスケット方式は、通常摂食される広い範囲の食品に、一般的に行われる調理加工を施して試料を調製する方法であり、日本人が食事より摂取するアルミニウム量を正確に推定できる。また、日本全国中の 10 カ所での調査であり、試料中に含まれる食品の種類も多数に及んでいることから、日本における食事からの摂取実態をよく反映している。

先にも述べたように、アルミニウムの摂取量報告値はかなり広い範囲に分布している。これは用いた食品の差の他に、分析法による変動の可能性も否定できない。この可能性を評価するため、昨年は標準試料を各機関に配布し、各機関でアルミニウムを添加して、回収率・操作ブランクを求め各機関の分析法の評価を行った。本年は、NIST より標準試料を購入し、その測定値に基づいて各機関の評価を行った。

B. 研究方法

1) 試料調製

全国 10 カ所の自治体研究機関において、試料調製とアルミニウム量の測定を行った。試料はマーケットバスケット方式に従って調製した。食品を I ~ XIV の 14 群に分け、それぞれの食品を通常の方法に従って調理し、一日摂取

量に従って混合して、試料とした。

通常摂食する食事由来以外のアルミニウムの混入をさけるために、食品の調理、試料の保存には、アルミホイル、アルミケースを使用しないこととした。しかし、本調査は通常の食事からの摂取評価を目的としているため、通常の調理で使用されるアルミニウム製のなべ・やかんのような調理器具の使用は、特に制限しなかった。また、アルミ缶等のアルミニウム製容器に入っている食品及びアルミ製包装の食品についても、通常の食品選択方法に従って選択し、特に除かないこととした。

2) アルミニウム分析法

アルミニウムの分析は、通常、原子吸光法、ICP 発光、ICP-MS 等で行われる。また、試料の前処理法についても、湿式灰化・乾式灰化・マイクロウェーブによる分解法などがある。本研究で使用した分析法の概略をTable 1に示した。

3) アルミニウム分析法の評価

各機関に NIST の標準試料、Reference Material 8414 (試料 1)、及び 8436 (試料 2) を配布した。試料 1 は牛肉を乾燥し粉末としたもの、試料 2 は小麦を粉末としたものである。各機関では、各自の方法で試料を分析し、その結果を報告した。

C. 研究結果

1) アルミニウム分析法の評価

Table 2 に各機関での 2 種の標準試料の分析結果を示す。食品に近いマトリックスであり、トータルダイエツトス

タディ試料と同程度のアルミニウム濃度の試料として、これら 2 種の標準試料を選択した。試料 1 のアルミニウム含量の認証値は 1.7 ± 1.4 ($0.3 \sim 3.1$) $\mu\text{g}/\text{g}$ 、試料 2 は 11.7 ± 4.7 ($7.0 \sim 16.4$) $\mu\text{g}/\text{g}$ である。試料 1 については、機関 C 及び H が認証値の範囲外の値を報告した。機関 C の測定値と認証値の差はわずかであったが、機関 H は非常に異なる結果であった。試料 2 では、機関 A のみが認証値の範囲外の結果となった。他の機関は認証値の範囲内の結果を報告しており、今回の調査の分析値は概ね正確であると考えられる。

2) アルミニウム一日摂取量

Table 3 に各機関で測定したアルミニウム一日摂取量、および各食品群からの摂取量を示す。本年度のアルミニウム摂取量の平均値は、大人 1 人 1 日当たり 5.0mg であった。一昨年度の調査での摂取量の平均値は 7.7mg、昨年度は 4.3mg であった。各機関で測定したアルミニウム一日摂取量を比較すると、最小値は一日 1.8mg、最大値は 13.2mg であった。

各食品群からの摂取量をみると、機関間でやや差があるものの、傾向は類似していた。平均値で比較すると、アルミニウム摂取量が大きい群は、IX 群 (嗜好品、1.4mg)、VIII 群 (野菜・海草、0.9mg)、II 群 (雑穀・芋、0.7mg)、X 群 (魚介類、0.4mg) であった。

3) 食品群別アルミニウム含有濃度

各食品群試料毎のアルミニウム濃度

を、Table 4 に示す。アルミニウムは、Ⅲ群（砂糖・菓子、10.4 $\mu\text{g/g}$ ）、Ⅸ群（嗜好品、6.3 $\mu\text{g/g}$ ）、ⅩⅢ群（加工食品、6.2 $\mu\text{g/g}$ ）、Ⅹ群（魚介類、4.8 $\mu\text{g/g}$ ）中に高濃度に含まれていた。

4) 3年間の結果の比較

機関別の三年間の結果の比較を、Figure 1 に示す。機関 B、F、J は、1996 年度の値がその後の 2 年度の値の倍以上であった。また、機関 A と H は本年度の値がやや高い。しかし、全体的には 1997 年度と 1998 年度は同程度の結果が報告されている。平均値でも、1997 年度と 98 年度はアルミニウム総摂取量が 4.3mg と 5.0mg でほぼ同程度であるが、1996 年度は 7.7mg でやや高い結果であった。

食品群別の摂取量の推移を Figure 2 に示す。大部分の群で、1996 年度の値が最も高かった。摂取量の高い群をみると、1996 年度はⅧ、Ⅰ、Ⅸ、Ⅱ、Ⅹ群の順に摂取量が多く、1997 年度はⅨ、Ⅱ、Ⅹ、Ⅷ、Ⅲ群、本年度はⅨ、Ⅷ、Ⅱ、Ⅹ、Ⅲの順に摂取量が多かった。アルミニウム摂取の多い食品群は、3 年間でほぼ同じであったが、Ⅰ群（米類）からのアルミニウム摂取量は 1996 年度には 1.2mg で 2 番目に高い群であったが、97 年度、98 年度では 0.3mg 及び 0.2mg で特に摂取量の多いグループではなかった。

食品群別のアルミニウム濃度の比較を Figure 3 に示す。Ⅸ群を除き、全ての群で 1996 年度の濃度が最も高かった。各年度で特に濃度の高い群は、199

6 年度はⅢ・Ⅹ・ⅩⅢ・Ⅶ・Ⅷ群、1997 年度はⅢ・ⅩⅢ・Ⅹ・Ⅸ・Ⅶ群、1998 年度はⅢ・Ⅸ・ⅩⅢ・Ⅹ・Ⅷであり、どの年もⅢ群とⅩⅢ群での濃度が特に高かった。

考察

1) 分析法について

アルミニウム分析には多くの誤差要因が含まれる。誤差の要因としては、試料調製法を含めた分析法の違い、使用した器具、試薬からのアルミニウムのコンタミネーションが考えられる。アルミニウムは広く使用される金属で、環境中に遍在していることから、環境からの影響を防ぐことが特に重要である。このため各機関では灰化容器をテフロン製とする、容量器をガラス製品からポリプロピレン製のものに変更する、各器具の洗浄法を改良するといった分析法の変更を加えた結果、1996 年度では、1 $\mu\text{g/g}$ 程度のブランク値を報告した機関もあったが、今年度の精度管理試料1の測定でのブランク値は0~0.19 $\mu\text{g/g}$ の範囲であった。1996 年度に得られたアルミニウム摂取量よりも、1997・1998年度の報が低くなったのは、分析法の改良によりコンタミネーションが低下したことも要因の1つと考えられる。今回測定した精度管理試料及びトータルダイエット試料中のアルミニウム濃度は、数 $\mu\text{g/g}$ のレベルであり、ブランク値はかなり低く、分析に大きな影響を与えることはないと考えられる。

標準試料を使用した精度管理も、3 機関を除いて満足できる結果であった。

機関 H が試料 1 で非常に高い値を報告した理由は不明である。

2) 各食品群からのアルミニウム摂取量

Table 3 に示した通り、日常食からのアルミニウム摂取量は平均 5.0mg であった。全ての機関の平均値では、IX、VIII、II、X群の合計でアルミニウムのほぼ 69 % を摂取している。昨年度も同様で、これらの群からのアルミニウム摂取は全体の 59 % をしめており、嗜好品、野菜・海草、雑穀・芋、魚介が主要なアルミニウムの摂取源と考えられる。

アルミニウム濃度の高い食品群は、濃度の平均値からはIII、IX、XIII、X群の順であった。これらの群は昨年の結果でも、最もアルミニウム濃度の高い群であり、一昨年ではIII、IX、X群が高い濃度を示した。

3年間の調査において、III群は常に最も高いアルミニウム濃度を示した。III群での食品中のアルミニウム濃度は1998年度は10.4 μ g/g、1997年度は10.6 μ g/gであった。この群は、砂糖・菓子類の群で、カステラ、ビスケット、ケーキなどがほぼ6～7g含まれており、これらがIII群の20%程度をしめている。このような、穀類加工品、特にベーキングパウダーを加えて焼いた製品はミョウバンを使用するために、アルミニウムの含量が高いと考えられる。アメリカでもアルミニウム含量の高い食品として、コーンブレッド・パンケーキ・マフィンがあげられている⁹⁾。これらの焼き菓子類のアルミニウム濃度は、

100～400 μ g/g程度と報告されている。III群は摂取する量が少ないため、全体の摂取量におけるIII群の割合は10%以下であるが、子供はこの群を摂取する割合が大人よりも大きいと予想され、子供においてはアルミニウムの大きな摂取源となる可能性がある。

XIII群にはカレーウ等の加工食品が含まれる。この群でのアルミニウム濃度は、機関・年度によって変動が大きく、0～32 μ g/gの値が報告されている。加工食品は多くの原料・食品添加物から作られており、また近年その数・種類が急速に増加している。トータルダイエット試料に含まれる加工食品の種類は、各機関1～10種類にとどまっており、選択した食品によって濃度が増える可能性がある。

IX群は、しょう油・ソース等の調味料及びビール・酒・清涼飲料が含まれる。この群は、アルミニウムの摂取量としても大きかった。この群ではアルミ缶入りの飲料、アルミシールを使用した製品も多く含まれており、これらからのアルミニウム溶出が高濃度の原因とも考えられる。今回及び昨年の調査においても、機関間で各群の濃度の変動が大きく、また、同一機関であっても年度によって変動が見られる。試料調製のため購入した食品により、アルミニウム濃度に大きな差があり、このために変動が大きいと考えられる。

アルミニウム摂取量、濃度ともに小さい群は、XIV群（飲料水）とIV群（油脂）であった。

E. 結論

全国 10 か所で調製された試料から、アルミニウムの日摂取量が 5.0mg と推定された。これは昨年度の調査と比較してほぼ同程度の値である。

アルミニウム摂取量調査では、本研究結果を含めて、得られた摂取量の推定値の最大値と最小値の差が大きいことが多い。この原因は、食品中のアルミニウム濃度が食品間で大きく異なっていることが一つの原因であろう。また、マーケットバスケット試料は、均一にすることが困難であり、サンプリングの誤差もバラツキの原因となりうる。このようなことから、摂取量の精密な推定には多数の試料からの分析値が必要であるが、今回の調査では、10 か所で調製した試料の平均を用いており、信頼性は高い。

また、今回の調査では標準試料を用いて分析法のバリデーションを行っており、この点からもアルミニウム摂取量の推定値の信頼性も高い。

摂取量の精密な推定のためには、多くの試料数を用いるだけではなく、使用された分析法の性能を明らかにし、正しくバリデートされた分析値を用いることが重要である。本調査は、これらの条件を満足しており、実際に摂食されるアルミニウム量の範囲を正確に推定していると考えられる。

参照文献

- 1) 牛島等 ; 石川保環年報、30, 374(1993)
- 2) 池辺等 ; 大阪府立公衛研所報、20, 57 (1989)
- 3) 四方田等 ; 日本栄養・食糧学会誌、39, 273 (1986)
- 4) 三島等 ; 仙台市衛生研究所報、19, 25 0 (1989)
- 5) J.A.T.Pennington and S.A.Schoen; Food Additives and Contaminants, 12, 119(1995)

Table 1 精度管理試料分析結果

	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J	認証値
試料1	2.60	2.55	3.17	1.02	1.49	2.08	1.02	15.48	1.54	1.08	1.7±1.4
試料2	4.90	14.23	14.41	9.14	9.05	9.70	9.43	11.21	9.49	11.28	11.7±4.7

Table 2 各機関におけるアルミニウム分析法 (1998)

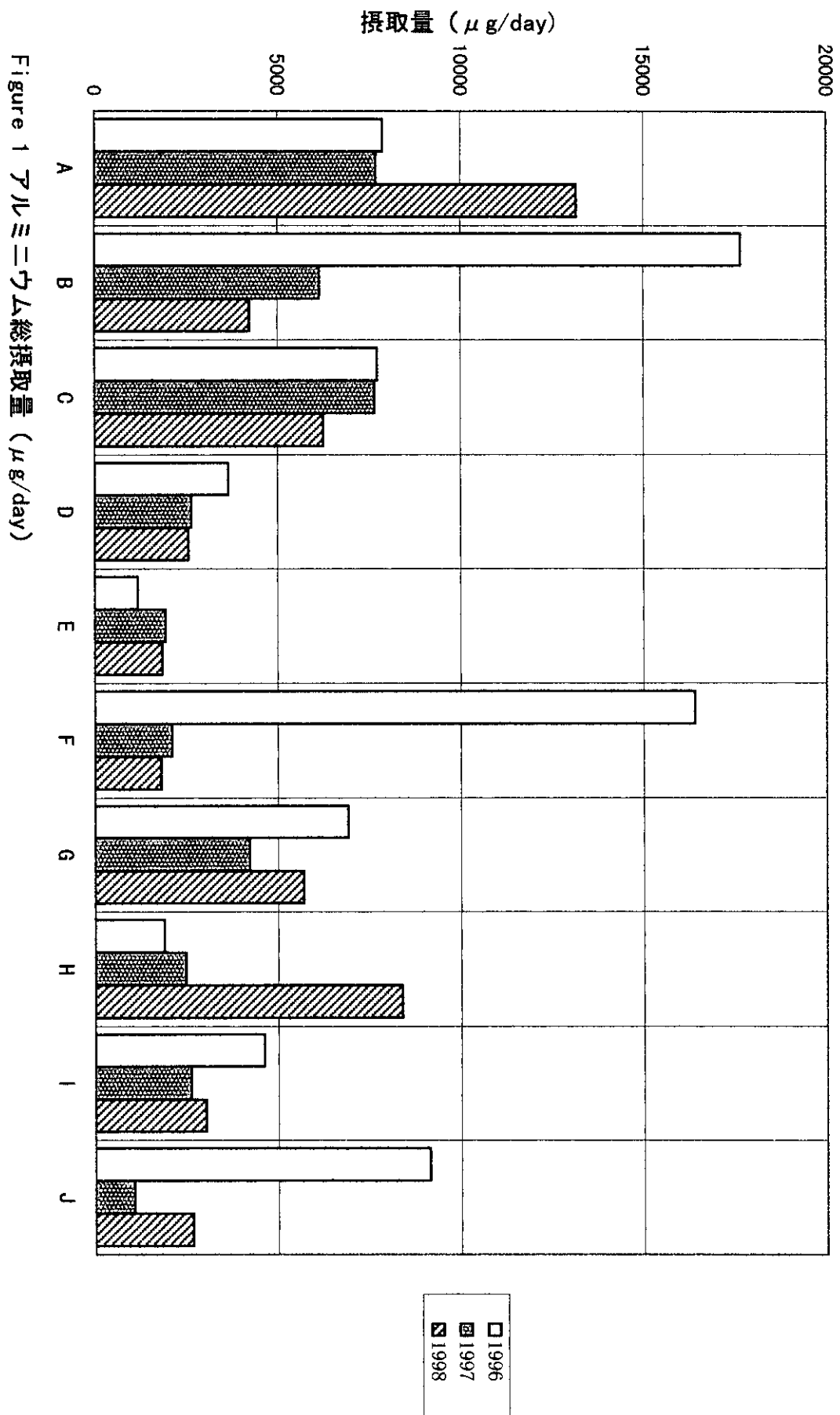
機関	灰化法	測定法	検出値
A	硝酸を加え電気炉で灰化 (ガラス容器)	原子吸光フリュームス	0.08 μ g/g
B	高周波分解装置 (テフロン試験管)	原子吸光フリュームス	0.12 μ g/g
C	硝酸を加えマイクロウェーブ (テフロン容器)	原子吸光フリュームス	0.08 μ g/g
D	硝酸を加え電気炉で灰化 (テフロン容器)	原子吸光 (高温バーナー)	0.17 μ g/g
E	マイクロウェーブ (テフロン容器)	原子吸光フリュームス	0 μ g/g
F	乾式灰化 (石英るつぼ)	ICP-AES	0.11 μ g/g
G	硝酸を加えマイクロウェーブ (テフロン容器)	ICP-MS	0.19 μ g/g
H	電気炉で灰化 (磁製るつぼ)	原子吸光フリュームス	0.19 μ g/g
I	硝酸を加えマイクロウェーブ (テフロン容器)	原子吸光フリュームス	0.06 μ g/g
J	硝酸を加えホットプレートで灰化 (テフロン容器)	原子吸光フリュームス	0.06 μ g/g

Table 3 アルミニウムの一日摂取量 (μg) 1998年度

食品群	機 関 名										最大値	最小値	平均値
	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J			
I 米	356	300	217	37	43	107	573	793	77	31	793	31	253
II 雑穀・芋	1001	969	1099	545	313	242	545	1713	659	11	1713	11	710
III 砂糖・菓	580	251	100	367	350	456	176	438	616	4	616	4	334
IV 油脂	5	16	8	7	10	4	22	23	1	1	23	1	10
V 豆・豆加	454	87	208	193	104	48	147	77	114	5	454	5	144
VI 果実	413	598	23	34	13	16	380	958	20	9	958	9	246
VII 有色野菜	660	414	124	356	145	183	240	212	191	12	660	12	254
VIII 野菜・海	3975	275	370	345	87	289	645	65	201	2507	3975	65	876
IX 嗜好品	4241	204	3213	239	320	145	2123	2975	263	5	4241	5	1373
X 魚介	578	700	510	94	152	241	440	1010	673	22	1010	22	442
X I 肉・卵	151	66	133	271	204	21	209	97	112	9	271	9	127
X II 乳・乳製	165	154	153	9	5	0	84	26	7	7	165	0	61
X III 加工食品	591	13	70	66	88	40	112	0	60	0	591	0	104
X IV 飲料水	4	180	25	0	6	15	6	0	23	44	180	0	30
総摂取量	13171	4228	6252	2561	1839	1806	5702	8387	3018	2667	13171	1806	4963

Table 4 食品群中アルミニウム濃度 ($\mu\text{g/g}$) 1998年度

食品群	機 関 名										最大値	最小値	平均値	
	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J				
I	米	0.9	3.7	0.7	0.1	0.1	0.3	0.7	2.5	0.2	0.1	3.7	0.1	0.91
II	雑穀・芋	5.1	8.8	5.3	3.2	1.7	1.4	3.1	9.4	3.8	0.1	9.4	0.1	4.18
III	砂糖・菓	11.5	14.0	3.2	12.4	11.2	14.8	5.2	9.2	22.6	0.2	22.6	0.2	10.42
IV	油脂	0.3	2.5	0.4	0.4	0.6	0.2	1.4	1.3	0.1	0.0	2.5	0.0	0.72
V	豆・豆加	6.2	6.4	3.3	1.6	1.6	0.8	2.2	1.1	1.7	0.1	6.4	0.1	2.49
VI	果実	3.4	1.2	0.2	0.3	0.1	0.1	3.2	12.9	0.2	0.1	12.9	0.1	2.17
VII	有色野菜	9.0	2.1	1.5	4.2	2.0	2.6	3.0	1.3	2.3	0.2	9.0	0.2	2.83
VIII	野菜・海	19.0	1.7	1.8	1.7	0.5	2.0	3.4	0.4	1.5	14.0	19.0	0.4	4.60
IX	嗜好品	6.1	1.5	10.4	1.0	1.3	0.3	8.3	32.5	1.4	0.0	32.5	0.0	6.29
X	魚介	7.6	4.9	5.9	1.0	1.8	2.8	4.6	10.6	8.4	0.3	10.6	0.3	4.79
X I	肉・卵	1.5	1.2	1.3	2.1	2.1	0.2	1.9	0.7	1.6	0.1	2.1	0.1	1.25
X II	乳・乳製	1.3	5.6	1.1	0.1	0.0	0.0	0.7	6.8	0.1	0.1	6.8	0.0	1.57
X III	加工食品	21.9	1.2	11.6	2.6	16.2	1.6	4.9	0.0	2.0	0.1	21.9	0.0	6.20
X IV	飲料水	0.0	0.1	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.1	0.1	0.0	0.03



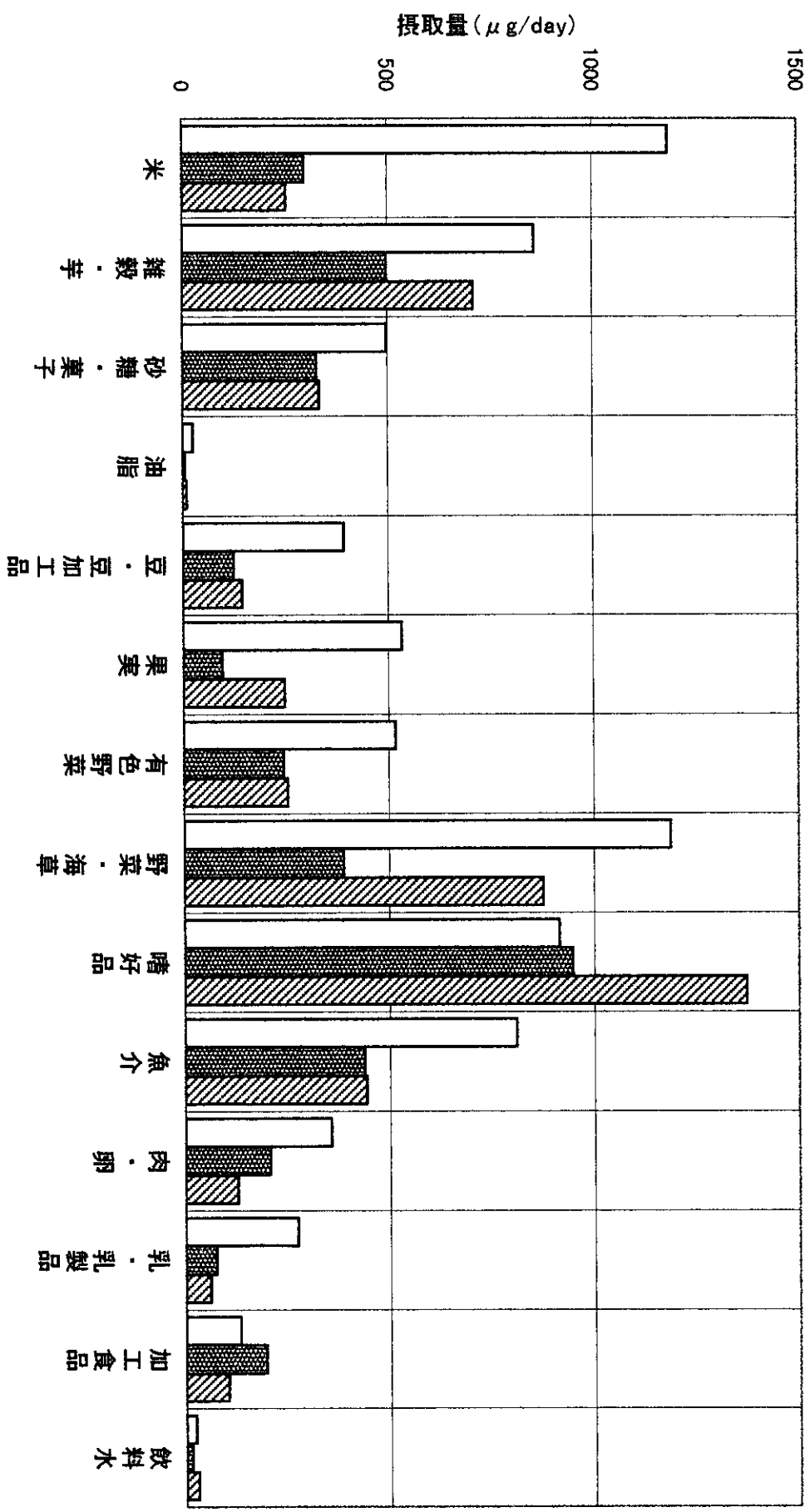


Figure 2 食品群別アルミニウム摂取量

Graph8

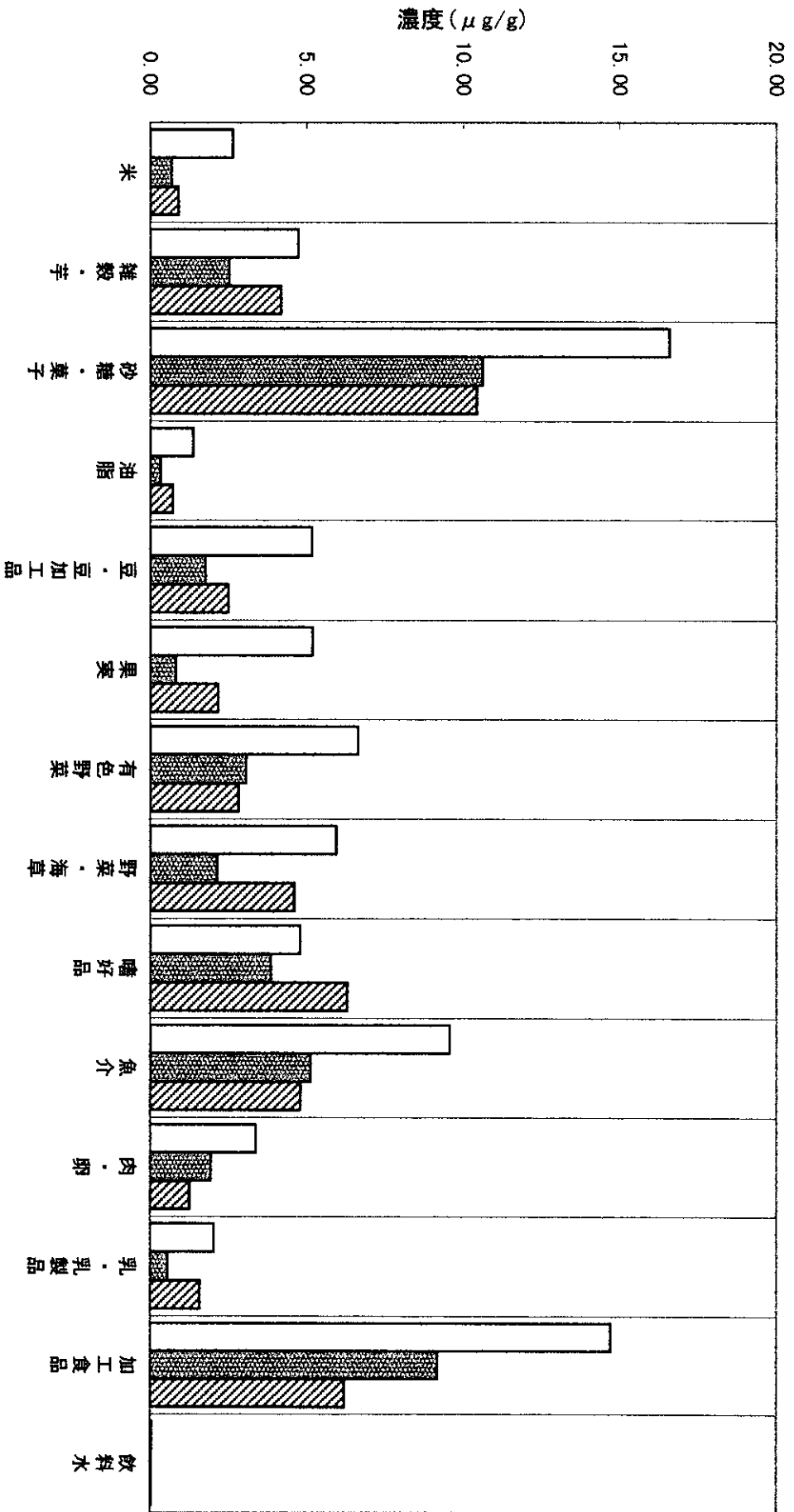


Figure 3 食品群別アルミニウム濃度