

表3 血液中、尿中、糞中Cd濃度

	氷見	婦中町	F地域	A地域(前回調査)	E地域(前回調査)
Cd-B (μg/L)					
All ages	2.22 (1.56) (range 0.71-6.19)	3.30 (1.80) (0.51-15.42)	4.19 (1.68) (1.44-31.2)	2.00 (1.58) (ND-6.81)	3.61 (1.63) (0.55-13.07)
30-39 yr	-	-	3.06 (1.65)	-	1.86 (1.66)
40-49 yr	1.96 (1.46)	2.46 (1.87)	3.41 (1.50)	1.82 (1.73)	3.45 (1.61)
50-59 yr	2.19 (1.57)	3.07 (1.70)	3.80 (1.62)	2.07 (1.59)	3.43 (1.58)
60-69 yr	2.61 (1.52)	4.10 (1.69)	4.50 (1.63)	2.07 (1.50)	3.93 (1.57)
70-79 yr	-	-	5.73 (1.89)	2.03 (1.37)	4.93 (1.49)
Cd-U/Cr (μg/g cr)					
All ages	3.40 (1.83) (range 0.33-13.22)	6.35 (1.95) (0.43-23.67)	6.60 (1.67) (1.35-29.66)	2.63 (1.74) (ND-7.93)	4.08 (1.74) (0.51-27.26)
30-39 yr	-	-	4.39 (1.77)	-	2.32 (1.49)
40-49 yr	2.36 (2.01)	3.42 (2.21)	4.29 (1.50)	2.14 (1.59)	3.59 (1.75)
50-59 yr	3.74 (1.71)	6.29 (1.62)	6.11 (1.64)	2.53 (1.86)	4.01 (1.68)
60-69 yr	4.42 (1.48)	9.12 (1.53)	7.82 (1.53)	3.10 (1.65)	4.50 (1.72)
70-79 yr	-	-	9.01 (1.56)	2.70 (1.73)	4.83 (1.77)
Cd-R (μg/g)					
All ages	-	-	0.141 (2.41) (range 0.010-0.687)	0.022 (2.29) (0.010-0.178)	0.156 (2.01) (0.005-0.971)

Data are presented by GM (GSD)

表4-1 尿中Cd濃度分布($\mu\text{g/g cr}$)

	水見			婦中町			F地域			A地域(前回調査)			E地域(前回調査)			
	N	%	N	%	N	%	N	%	N	%	N	%	N	%	N	%
<10	133	97.8	104	74.8	181	80.8	187	100.0	511	95.0						
10≤、<20	3	2.2	33	23.7	38	17.0	0	0.0	26	4.8						
20≤	0	0.0	2	1.4	5	2.2	0	0.0	1	0.2						
Total	136	100.0	139	100.0	224	100.0	187	100.0	538	100.0						

表4-2 F地域における米中Cd濃度分布($\mu\text{g/g}$)

	N	%
<0.2	129	57.6
0.2≤、<0.4	75	33.5
0.4≤	20	8.9
Total	224	100.0

表5 腎機能平均値

		水見	婦中町	F地域	A地域(前回調査)	E地域(前回調査)
Urinary α 1 MG/Cr (mg/g Cr)	All ages	4 68 (1 96) (range ND-30 14)	5 18 (2 21) (ND-117 10)	4 35 (2 27) (ND-48 56)	4 94 (2 00) (ND-37 33)	4 75 (2 08) (ND-56 04)
	30-39 yr	-	-	1 69 (2 15)	-	2 43 (1 79)
	40-49 yr	3 84 (1 68)	3 47 (1 76)	2 93 (1 90)	3 25 (1 86)	2 95 (1 79)
	50-59 yr	4 67 (1 94)	4 73 (1 90)	3 30 (2 09)	4 88 (1 87)	4 64 (2 03)
	60-69 yr	6 24 (1 93)	6 98 (2 50)	5 37 (2 02)	5 88 (1 95)	5 79 (1 94)
	70-79 yr	-	-	8 93 (2 33)	7 60 (2 04)	8 59 (2 13)
Urinary β 2 MG/Cr (μ g/g Cr)	All ages	133 5 (2 02) (range ND-1394 3)	201 4 (3 28) (ND-54640 0)	173 5 (2 89) (ND-15331 8)	148 (2 41) (ND-9352)	163 (2 32) (ND-5689)
	30-39 yr	-	-	76 7 (1 44)	-	94 5 (1 80)
	40-49 yr	104 9 (1 71)	127 0 (1 97)	95 3 (2 05)	94 (1 96)	111 (1 88)
	50-59 yr	132 6 (1 79)	161 0 (2 13)	145 1 (2 24)	147 (2 05)	164 (2 17)
	60-69 yr	173 1 (2 36)	349 7 (4 55)	202 3 (2 54)	169 (2 57)	178 (2 27)
	70-79 yr	-	-	482 0 (4 16)	266 1 (3 20)	356 2 (3 25)

Data are presented by GM (GSD)

表6.腎機能分布(Urinary β 2 MG、 $\mu\text{g/g cr}$)

	水見			婦中町			F地域			A地域(前回調査)			E地域(前回調査)		
	N	%	N	%	N	%	N	%	N	%	N	%	N	%	%
<300	120	88.2	107	77.0	172	76.8	152	81.3	435	80.9					
300≤、< 1000	14	10.3	21	15.1	37	16.5	30	16.0	83	15.4					
1000≤、< 10000	2	1.5	8	5.8	14	6.3	5	2.7	20	3.7					
10000≤	0	0.0	3	2.2	1	0.4	0	0.0	0	0.0					
Total	136	100.0	139	100.0	224	100.0	187	100.0	538	100.0					

表7 痴臥中βミクログロブリンの検査所見

A.水腫

	年齢	RBC	Hb	Ht	MCV	MCH	MCHC	Fe	7ujf/	S-Ce	S-P	AIP	Osteo	BNTX	BRD-Pyr	U-Oa/Cr	Br α 1Mg/Cr	Br β 2Mg/Cr	Cd-B (μg/L)	Cd-U/Cr	骨密度	若年者比較(T%)	高年者比較(Z%)
水見-1	72	394	115	38.8	93	29.2	31.3	64	15.6	91	34	62.2	93	55.7	16.7	105.3	21.06	1541.4	6.19	6.78	0.26	54.1	87.6
水見-2	66	432	13.4	39.6	92	31	33.8	77	95.3	103	41	44.7	122	63.4	8.3	31.4	16.03	1015.3	5.48	7.22	0.332	69	99.6

B.痴中-軽

	年齢	RBC	Hb	Ht	MCV	MCH	MCHC	Fe	7ujf/	S-Ce	S-P	AIP	Osteo	BNTX	BRD-Pyr	U-Ca/Cr	Br α 1Mg/Cr	Br β 2Mg/Cr	Cd-B (μg/L)	Cd-U/Cr	骨密度	若年者比較(T%)	高年者比較(Z%)
痴中-1	69	442	13.2	40.9	93	29.9	32.3	63	74.8	9.5	2.8	18.2	6	20.8	5.8	286.9	108.69	1544.0	9.04	23.67	0.207	43	64.8
痴中-2	66	397	12.8	38.0	98	32.5	33.2	11.0	27.5	9.6	3.6	53.6	18.1	31.8	10.3	300.9	117.10	1512.0	15.42	16.07	0.221	45.9	45.9
痴中-3	68	272	8.8	26.9	99	32.4	32.7	52	87.6	9	4.3	39.1	23.5	80.2	4.8	47.6	56.56	2892.0	11.17	8.36	0.207	43	64.9
痴中-4	62	307	10.5	32.1	105	34.2	32.7	75	95.8	9.1	3.8	32.2	12.7	132	19.3	129.5	17.59	4901	5.31	15.65	0.281	54.2	71
痴中-5	61	453	12.6	40.3	89	27.8	31.3	76	11.5	8.9	3.4	28.9	11.5	82.1	8	83.3	18.99	316.4	3.36	10.39	0.335	69.7	91.3
痴中-6	60	430	13.9	41.2	96	32.3	33.7	70	32.5	9.3	3.5	42.3	9.7	49.2	9.5	284.0	6.17	134.8	3.95	7.75	0.339	81.1	104.3
痴中-7	50	440	13.3	42.2	96	30.2	31.5	59	12.3	9.3	3.4	34.2	9.8	102	13.5	85.6	7.90	129.0	2.51	6.26	0.449	93.3	99.3
痴中-8	67	413	13.3	40.1	97	32.2	32.2	57	69	9.3	3.9	30.6	10.1	98.8	8.8	80.1	14.47	1122.4	5.55	9.68	0.31	64.4	93
痴中-9	67	518	15.2	40.4	90	29.3	32.6	102	124	9.8	4	32.3	9.6	88.6	8.2	304.9	9.96	116.4	3.88	10.39	0.421	87.5	126.4
痴中-10	53	472	13.8	40.6	86	29.2	34	77	15.6	9.8	3.8	27.9	8.4	89.3	1.1	289.5	12.47	116.5	4.59	13.02	0.496	103.2	116.3
痴中-11	62	417	13.2	40.4	97	31.7	32.7	107	88.3	9.5	3.9	21.7	7.2	72.5	8.1	105.4	16.01	1119.5	3.15	8.50	0.362	79.5	106.2

C.F地塊

	年齢	RBC	Hb	Ht	MCV	MCH	MCHC	Fe	7ujf/	S-Ce	S-P	AIP	Osteo	BNTX	BRD-Pyr	U-Ca/Cr	Br α 1Mg/Cr	Br β 2Mg/Cr	Cd-B (μg/L)	Cd-U/Cr	骨密度	若年者比較(T%)	高年者比較(Z%)
F-1	75	411	11.2	37.5	91	27.3	29.9	67	27	8.9	4.2	42.1	9.9	96.2	7.5	178.1	46.68	15133.18	31.20	18.81	0.228	47.4	82.1
F-2	72	324	9.6	31.0	96	29.6	31	82	298	9.5	4	20	8.8	70.8	3.3	28.1	28.89	5067.2	15.03	5.97	0.35	72.7	117.8
F-3	77	422	13.2	41.4	98	31.3	31.9	59	58.8	9.5	3.3	15	8.8	68.2	4.5	481.0	26.73	699.3	13.87	21.69	0.209	43.5	79.8
F-4	68	426	12.9	39.0	92	30.3	33.1	88	30.5	9.5	3.6	30.8	8.5	35.7	6.6	35.0	23.44	3327.7	7.89	11.08	0.384	75.7	109.3
F-5	68	435	13.1	41.4	95	30.1	31.8	58	43.2	9.3	4.4	42.2	10.8	70.3	7.2	133.5	18.82	5446.1	8.07	13.05	0.287	59.7	92.4
F-6	72	435	9.7	33.4	77	22.3	29	21	54	9.7	3.3	42.6	11.2	122	9.4	233.1	28.82	275.1	6.28	6.14	0.245	51	82.6
F-7	76	423	13.1	41.2	97	31	31.8	111	59.5	9.1	3.7	26.7	8.7	74.2	8	250.0	18.35	245.19	6.36	10.87	0.246	51.1	90.4
F-8	76	450	14.3	43.6	97	31.8	32.8	129	169	9.6	3.7	24.9	9.5	74.4	6.4	197.5	27.70	154.65	3.98	8.02	0.339	81.1	148.1
F-9	67	488	15.1	48.6	95	30.9	32.4	112	74.1	9.5	3.6	37.8	11.4	80.1	8.9	245.9	12.50	186.82	9.25	10.04	0.303	62.9	93.4
F-10	76	434	13.0	40.9	94	30	31.8	108	94	9.1	2.8	32.9	10.3	29.8	6.9	49.5	12.98	162.1	9.41	5.50	0.249	51.7	91.5
F-11	63	439	13.2	43.6	99	30.1	30.3	27	20.6	9.3	4.1	29	9.4	97.1	7.1	142.8	20.45	124.5	11.26	13.21	0.344	71.4	95.5
F-12	58	521	15.1	47.1	90	29	32.1	97	62.8	9.9	3.8	40.5	12.2	103	3.9	123.3	14.97	132.7	3.99	5.87	0.424	88.1	106.8
F-13	63	455	14.0	43.3	95	30.8	32.3	108	85.6	9.6	3.4	30.9	9.8	48.6	5.7	28.3	15.50	127.6	6.17	11.33	0.421	87.5	117
F-14	53	401	13.2	40.0	100	32.9	33	96	125	9.1	3.3	38.5	13.2	115	9.3	302.3	11.57	113.13	2.79	3.92	0.46	95.6	107.7
F-15	69	412	13.2	40.0	98	32	32.5	61	208	97	4	52.3	10.9	169	13.1	282.5	12.15	107.67	9.71	19.48	0.262	54.5	82.2

表7 露天中Bミミクロゴブノの生活圏

A.水質

	居住層	汚染地層住年	富山県層住年	その他層住年	汚染地層住年	富山県層住年	米沢地層
水見-1	水質のみ				0 20歳-69歳	0 20歳-69歳	自家作
水見-2	水質のみ				0 0歳-56歳	0 0歳-56歳	自家作

B.地中帯

	居住層	汚染地層住年	富山県層住年	その他層住年	汚染地層住年	富山県層住年	米沢地層
地中-1	汚染地と富山県	49	20	0	0 20歳-69歳	0 20歳-69歳	自家作
地中-2	汚染地のみ	65	0	0	0 0歳-56歳	0 0歳-56歳	自家作
地中-3	汚染地と富山県	47	21	0	0 21歳-69歳	0 21歳-69歳	自家作
地中-4	汚染地のみ	62	0	0	0 0歳-52歳	0 0歳-52歳	市販
地中-5	汚染地と富山県	12	49	0	0 49歳-62歳	0 49歳-62歳	市販
地中-6	汚染地と富山県	31	22	7 22歳-32歳 39歳-61歳	7 22歳-32歳 39歳-61歳	地域内(~22歳) 自家作(22歳~)	自家作(22歳~)
地中-7	汚染地と富山県	33	17	0 0歳-51歳 51歳-50歳	0 0歳-51歳 51歳-50歳	自家作(~35歳) 地域内(~43歳) 市販(43歳~)	自家作(~35歳) 地域内(~43歳) 市販(43歳~)
地中-8	汚染地のみ	67	0	0	0 0歳-67歳	0 0歳-67歳	自家作
地中-9	汚染地と富山県	45	22	0 22歳-67歳	0 22歳-67歳	自家作(~16歳) JAカントリー(16歳~)	自家作(~16歳) JAカントリー(16歳~)
地中-10	汚染地のみ	53	0	0	0 0歳-53歳	0 0歳-53歳	自家作(~16歳) 自家作(~25歳) 地域内(~31歳) 市販(32歳~)
地中-11	汚染地と富山県	50	12	0 7歳-6歳 26歳-51歳	0 7歳-6歳 26歳-51歳	自家作(~16歳) 自家作(~25歳) 地域内(~31歳) 市販(32歳~)	自家作(~16歳) 自家作(~25歳) 地域内(~31歳) 市販(32歳~)

C.地表

	居住層	汚染地層住年	富山県層住年	その他層住年	汚染地層住年	富山県層住年	米沢地層
F-1	F地域のみ	75	0	0	0 0歳-75歳	0 0歳-75歳	自家作
F-2	F地域と他地域	62	0	10 0歳-15歳 28歳-72歳	10 0歳-15歳 28歳-72歳	自家作(~15歳) 市販(~27歳) 自家作(28歳~)	自家作(~15歳) 市販(~27歳) 自家作(28歳~)
F-3	F地域のみ	77	0	0	0 0歳-77歳	0 0歳-77歳	自家作
F-4	F地域のみ	68	0	0	0 0歳-68歳	0 0歳-68歳	自家作
F-5	F地域のみ	69	0	0	0 0歳-69歳	0 0歳-69歳	自家作
F-6	F地域のみ	72	0	0	0 0歳-72歳	0 0歳-72歳	自家作
F-7	F地域のみ	76	0	0	0 0歳-76歳	0 0歳-76歳	自家作
F-8	F地域と他地域	73	0	3 0歳-14歳 17歳-19歳 20歳-77歳	3 0歳-14歳 17歳-19歳 20歳-77歳	自家作(~14歳) 市販(~17歳) 自家作(~20歳) 自家作(~65歳) 市販(65歳~)	自家作(~14歳) 市販(~17歳) 自家作(~20歳) 自家作(~65歳) 市販(65歳~)
F-9	F地域のみ	67	0	0	0 0歳-67歳	0 0歳-67歳	自家作
F-10	F地域のみ	76	0	0	0 0歳-76歳	0 0歳-76歳	自家作
F-11	F地域のみ	63	0	0	0 0歳-63歳	0 0歳-63歳	自家作
F-12	F地域のみ	58	0	0	0 0歳-58歳	0 0歳-58歳	自家作
F-13	F地域のみ	62	0	0	0 0歳-62歳	0 0歳-62歳	自家作(~15歳) 市販(~22歳) 地域内(23歳~)
F-14	F地域とD地域	32	21	0 22歳-54歳	0 22歳-54歳	自家作	自家作
F-15	F地域のみ	69	0	0	0 0歳-69歳	0 0歳-69歳	自家作

表8 腎機能異常者の病歴、出産歴、仕事歴

	現在の病気		既往歴		出産	仕事歴
	婦中-1 腰痛	婦中-2 無し	婦中-3 骨粗鬆症、甲状腺機能低下、胃潰瘍	F-1 腰・背痛		
婦中-1 腰痛	無し				3人	農業(20-69)、土建業(33-48)
婦中-2 無し					3人	農業(20-66)、ガソリンスタンド(31-65)
婦中-3 骨粗鬆症、甲状腺機能低下、胃潰瘍		子宮筋腫、心筋梗塞、脳外科手術			3人	農業(17-62)、裁縫(17-20)
F-1 腰・背痛		腰・背痛(12週間寝たきり)			3人	農業(15-75)、鉱山関係(40-52)

註，F地域-1の被験者は、40-52歳の13年間鉱山関係の仕事に従事しており、職業性Cd曝露の可能性が否定できなかったため、食品中のCdの経口摂取による健康影響を評価することが困難と考えられた。

厚生労働科学研究費補助金（食品安全確保研究事業）

分担研究報告書

カドミウム汚染地域における食品からのカドミウム摂取量調査

分担研究者 香山不二雄

自治医科大学保健科学講座 環境免疫学・毒性学部門 主任教授

研究要旨

カドミウム(Cd)の暫定耐容週間摂取量 Provisional Tolerable Weekly Intake (PTWI) $7 \mu\text{g}/\text{kg}/\text{week}$ に非常に近いまたは超える Cd 曝露を受けている可能性のある日本人の集団がある。今回、PTWI と同等または超えると考えることが有ると考えられる地域の農家女性の Cd 曝露評価を、トータルダイエット・スタディ方式と陰膳法との二つの方法を用いて行った。

13 群の食品群から代表的な食品と、Cd の含有量が高く食品摂取量が多く、Cd 曝露の寄与が高いと考えられる食品を 94 品目、一品目につき最低 3~19 サンプル、合計 530 サンプルを採取し、原子吸光法で濃度を測定した。また、この地域での疫学調査被験者 964 名のそれぞれの食品の摂取量を掛け合わせることにより Cd 摂取量を計算した。また、陰膳法では、地域 E において過去の健康調査に参加した農家女性の中から調査の目的を理解し、陰膳の作成が出来る人、17 名を選び、3 日間の食事、間食、飲料を含めた陰膳を収集し、原子吸光法で Cd 濃度を測定し、それぞれの摂取量と掛け合わせて総 Cd 摂取量を求めた。

トータルダイエット・スタディ方式で求められた結果は、 $115 \mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ すなわち 7 日間に換算して $8 \mu\text{g}/\text{kg}/\text{week}$ となり PTWI を超える結果となった。陰膳法による一日摂取量は $0.44 \mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ となり、陰膳法の方が約半分の結果を示していた。陰膳法では、個人内の日間変動が献立により大きく変動することが明らかとなり、特に魚介類、根菜類の摂取がある時に高い値を示すことが明らかとなった。3 日間では、その個人の Cd 摂取量を代表していないことは明らかであり、被験者の選抜も協力可能な個人を選ぶことがこのような調査の前提である。このような理由から、かなり大きな差があったと考えられる。陰膳法で集められた食品の量は多く、意図的に小食を装うようなことはなかったと考えられ、過小評価につながったことは今回の陰膳法ではなかったと考えている。

Cd汚染がある地域でのCd摂取量調査は、平均値で $1\text{ }15\text{ }\mu\text{g/kg/day}$ であり、米からのCd曝露は約50%を占めていた。Cd曝露の寄与の高いものは、米および魚介類、海草類、きのこなどの順であった。米等のCd汚染のない地域でも、魚介類、海草類を頻繁に食する日本の食習慣はCd負荷量が大きくなることは明らかである。今後、魚介類、海草類からのCd曝露の評価および影響評価も重要なことが明らかとなった。

研究協力者

堀口兵剛 (自治医科大学保健科学講座 環境免疫学・毒性学部門 助教授)
小熊悦子 (自治医科大学保健科学講座 環境免疫学・毒性学部門)
宮本佳代子 (同上)
池田陽子 (同上)
佐々木敏 ((独)国立健康・栄養研究所)
松野康二 (産業医科大学生態情報研究センター)

weekに非常に近いまたは超えるカトミウム曝露を受けている可能性のある集団がある。この集団の健康影響を調査することは、非常に重要な食品衛生上の課題である。しかし、実際の曝露量の推定は、個人間の食生活の多様性や個人内の日間変動などがあるため、必ずしも簡単ではない。今回、PTWIと同等または超えると考えることが有ると考えられる地域の農家女性のカトミウム曝露評価を、トータルダイエットスタディ方式と陰膳法との二つの方法を用いて行った。

A 研究目的

日本の土壤には過去の鉱山活動や火山性の地質のためにカドミウム濃度が高い地域があり、その地域で耕作される主要農産物である米や大豆にはカドミウムの蓄積が多い。現在、61st FAO/WHO Joint Expert Committee on Food Additives (JECFA)にて定められた暫定耐容週間摂取量 Provisional Tolerable Weekly Intake (PTWI) $7\text{ }\mu\text{g/kg}/$

B. 研究方法

トータルダイエット・スタディ

(ア) 調査地域の決定

これまでの全国5地域の調査地域の中から、もっともカドミウム曝露の高い地域Eおよび隣接するF地域(平成15年度調査地域)にて行った。

(イ) 厚生労働省が実施しているトータルダイエット・スタディに基づ

いて、13群の食品群から代表的な食品と、カドミウムの含有量が高く食品摂取量が多く、カドミウム曝露の寄与が高いと考えられる食品を94品目、一品目につき最低3~19サンプル、合計530サンプルを採取した。採取にあたっては、少なくと同一の食品3点の一部を探り合わせて、均一になるようにしてその一部を1サンプルとした。サンプル中カドミウム濃度測定は(財)日本食品分析センター多摩研究所に依頼したため、サンプルは冷蔵状態で宅急便を使って送付した。

(ウ) 食品サンプルの前処理は、トータルダイエット・スタディに準した。可食部のみを取り出して、サンプルとした。加熱等の調理をして食するものも、カドミウムは加熱によって変化することはないので、加熱は行わなかった。乾燥食品は水に戻して食材とするが、水に戻した時の重量の換算率をかけ算することで、実際の食するときの重量を求めた。

(エ) 食品試料中のカドミウム分析方法

① 試薬

水 イオン交換水(電気伝導度 1 $\mu\text{s}/\text{cm}$ 以下)

硝酸 精密分析用

硫酸 精密分析用

アンモニア水 精密分析用

酢酸ブチル 特級

チモールブルー指示薬

チモールブルー 0.1 g をエタノール 100 ml に溶解する。

50%クエン酸水素二アンモニウム溶液

クエン酸水素二アンモニウム(原子吸光分析用)500 g を水 250ml 及びアンモニア水 250 ml に溶解して 1L とし、3%APDC 溶液 5 ml を加えたのち、更に酢酸ブチル 20 ml を加えて 5 分間振とうしたのち下層を用いる。

3%ピロリジンシチオカルバミン酸アンモニウム(APDC)・硫酸アンモニウム溶液

APDC(原子吸光分析用) 3 g 及び硫酸アンモニウム(特級)10 g を水に溶解して 100 ml とし、酢酸ブチル 20 ml を加えて 5 分間振とうしたのち下層を用いる。

カドミウム標準溶液

市販のカドミウム標準溶液(100 $\mu\text{g}/\text{ml}$)を標準原液とする。

② 試料溶液の調製

試料 10~20 g をケルダールフラスコに精密に量り硝酸 20 ml を加え穏やかに加熱する。激しい反応が終了したら硫酸 5 ml を加え、再び加熱する。内容液が褐色~黒色となるときは更に少量の硝酸を加え、内容液が淡黄色となるまで加熱する。放冷後、ケルダールフラスコの内壁を水でよく洗い込み、

硫酸の白煙が生じるまで再び加熱する。放冷後、適量の水を加えて内容物を溶解して以後の試料溶液とする。試料溶液を分液ロートにとり、50%クエン酸水素二アンモニウム溶液10mlを加える。チモールブルー指示薬を加え、アンモニア水で中和した後、水を加えて約100mlとする。3%APDC・硫酸アンモニウム溶液5mlを加えた後、更に酢酸ブチル10mlを正確に加え5分間振とうする。静置後、酢酸ブチル層を分取する。

③ 検量線の作成

標準原液を1%塩酸を用いて希釈し、検量線作成用の標準溶液0.4μg/ml及び0.8μg/mlを調製する。標準溶液0.4μg/mlを5ml、標準溶液0.8μg/mlを5ml及び10mlそれぞれ分液ロートにとり試料溶液と同様に操作する。

酢酸ブチル層を原子吸光光度計により測定し、標準溶液の濃度と得られた吸光度から検量線を作成する。

④ 原子吸光光度計操作条件

機種 AA-890(日本シーラル・アッシュ株式会社)

光源 カドミウム中空陰極ランプ
ランプ電流 5 Ma

測定波長 228.8 nm

フレーム アセチレン
0.7 L/min,

空気 7.0 L/min

⑤ 定量

原子吸光光度計により試料溶液の吸光度を測定する。検量線と試料溶液の吸光度から、次式により農作物中のカドミウム濃度を算出する。

a) カドミウム濃度の算出

$$\text{カドミウム濃度}(\text{mg/kg})$$

$$= C \times 10 \times 1/S$$

C 試料溶液のカドミウム濃度
(μg/ml)

S 試料量(g)

b) 検出限界(定量下限)

穀類 0.01 mg/kg

その他 0.005 mg/kg

飲料水 0.001 mg/L

(オ) 食品中カドミウム濃度と各食品摂取量から求める方法

その食品サンプル中のカドミウムを測定し、これまでの調査で得たこれら地域の農家女性965名の各食品の摂取量をかけ算することにより、カドミウム曝露量を推定した。但し、重量換算率(乾燥食品のもどし率)は、5訂食品成分表、調理のためのベーシックデータ(女子栄養大学出版部)を参考として、精白米を米飯に換算するために2.3倍、大豆は2倍、塩蔵わかめ2倍、乾燥わかめ14倍、ひじき4倍を用いて計算を行った。

陰膳法による方法

(ア) 被験者の人選

地域Eにおいて過去の健康調査に参加した農家女性の中から調査の目的を理解し、陰膳の作成が出来る人、17名を選んだ。

(イ) 日程

12月15日（月）午後2時より研究協力者への説明会

12月16日（火）陰膳採取第一日目

12月17日（水）朝に16日分の陰膳収集、同時に問題点や質問等の聴取

12月18日（木）陰膳採取第二日目

12月19日（金）陰膳採取第三日目、朝に18日分の陰膳収集

12月20日（土）朝に19日分の陰膳収集

(ウ) 陰膳採取方法

- ・朝起床時から、夜の就寝まで、飲食されたすべての食品と同じ物を同じ量だけ用意する（陰膳）。
- ・朝・昼・夕食に関しては、全体の写真を一枚撮っておく。
- ・陰膳は、朝食、昼食、夕食、間食の4種類に分け、さらに以下の専用の容器物にそれぞれ分けて保存する。

朝・昼・夕食

- ① 主食（御飯、麺、パン等）→ビニール袋(Ziplock)に

② 固形の副食→ビニール袋(Ziplock)に

③ 汁物の副食（味噌汁、スープ、麺類の汁等）→ポリ瓶に
間食

① 固形物（菓子、ケーキ等）→ビニール袋(Ziplock)に

② 自宅の水やそれで煎れたお茶やコーヒー等→ポリ瓶に

③ それ以外の飲み物（ジュース、牛乳等）→ポリ瓶に

- ・食事記録表と間食記録表にその内容をその都度記入する。
- ・ジップロックと瓶には、日付け、食品の種類（朝・昼・夕・間食、主食・副食、等）、氏名をラベルに記入して貼付ける。

- ・保存・運搬用発泡スチロール箱に陰膳を入れ、冷所に保存する。
- ・翌朝、回収スタッフに箱と食事・間食記録表を渡す。最終日にはカメラ回収。

(エ) 収集および輸送

収集されたビニール袋中およびポリ瓶中の陰膳は冷蔵で産業医科大学生態情報研究センター分析機器室に輸送した。

(オ) 秤量および灰化

分析室では、陰膳の秤量後、凍結乾燥機で乾燥させ、乳鉢で粉碎後に一部分をとり、湿式灰化を行った。

(カ) 原子吸光分析

さらに1N硝酸にメスアップした

のち、フレームレス原子吸光分析装置で、試料中のカドミウム濃度の定量を行った。

(キ) 計算

食品中カトミウム濃度とそれぞれの主食、副食、間食等の食品摂取量をかけ算し、それぞれの陰暦を合計することにより、一日あたりのカドミウム摂取量を算定した。

C. 研究結果

トータルダイエット・スタディ

(ア) 食品中カドミウム濃度

(表 1)

食品の中で、米以外ではホタテや牡蠣などの貝類、海草類、魚介類が高いものもあった。また、根菜類のサトイモ、ゴボウなどやキノコ類が高いものが見いだされた。また、枝豆の中にはカドミウム濃度が高いサンプルがあり、枝豆はこの地域で採取されたものであると考えられた。

(イ) 食品群別摂取量平均

(表 2)

第 1 群の米類は $30.0 \mu\text{g/day}$ と約 50% を占めていた。次に第 8 群のその他の野菜、きのこ類、海草類が $8.8 \mu\text{g/day}$ 、第 10 群の魚介類が $6.2 \mu\text{g/day}$ と大きな値を示していた。第 8 群の中でもきのこおよび海草類の寄与が高く 8 割を占める。また、第 10 群の中では、ホタテ、アサリ、シジミなどのその他の貝類、および牡蠣

類、イカ塩辛の寄与が高かった。のり、ひじき、昆布などの海草類もカドミウム濃度が高く、頻繁に食へる習慣のある個人にとっては比較的カドミウム摂取が大きくなることが推測できる。

体重当たりカドミウム摂取量は年齢と共に上昇していて、年齢が高いほどカドミウム曝露が多くなる傾向が見られた(図 1)。また、精白米からの 1 日当たりの Cd 摂取量が高く、持参した米中カドミウム濃度が高い被験者で、1 日当たりカドミウム摂取量が増加する傾向があった。(図 2, 3)

(ウ) 地域 E および地域 F のカドミウム摂取量の度数分布

地域 E および地域 F での疫学調査で得られた個人の各食品別摂取量のデータと地域 E および地域 F で収集された食品中のカトミウム濃度の平均値をかけ算することによって求められた個人のカトミウム曝露推計値の度数分布を求めた。分布は対数正規分布に近いと考えられた。(図 4, 5, 6)

(エ) 年齢階層別摂取量(表 3, 図 7)

高齢者より若年者の持参した精白米のカドミウム濃度が低かった。等に 20 歳代の被験者の米中カドミウム濃度は $0.15 \mu\text{g/kg}$ と最も低かった。また、若い人ほど米の摂取量が少ないとから、今回の調査から

は若年者のカドミウム摂取量推計値が低めになっていることが明らかとなった。一日あたりのカドミウム摂取量は40歳代以下では、PTWIを下回る人が多く、それ以上高齢になるとPTWIを超える人が増えることが明らかとなった。

(オ) まとめ

トータルダイエットスタディ方式で収集された食品のカドミウム濃度とこの地域の農家女性の食品摂取量とを掛け合わせることで得られたカドミウム摂取量の推定値は、 $57.4 \mu\text{g/day}$ であり、体重 50 kg でわり算すると、 $1.15 \mu\text{g/kg/day}$ となり、PTWIを超える結果となった。

陰膳法

(ア) 陰膳法からもとめたカドミウム摂取量の平均値（表4）

今回の陰膳法によるカドミウム摂取量の全被験者の平均は、 $23.9 \mu\text{g/day}$ 、 $0.44 \pm 0.21 \mu\text{g/kg/day}$ であった。 $1.00 \mu\text{g/kg/day}$ を超える被験者はいなかった。米の寄与が高い個人が2名居り、米からのみが 0.59 、 $0.44 \mu\text{g/kg/day}$ と大きな値を示していた（図8）。米以外からの食品からのカドミウム摂取量が $0.40 \mu\text{g/kg}$ を超える個人が3名あり、魚介類摂取の寄与が高いことが明らかである。全体の平均では、被験者個人の日間変動が大きく個人差も大きいが、全体として、PTWI $7 \mu\text{g/kg/week}$ と比較

すると、およそそれ以下に収まっていることが明らかとなった。

個人内の変動について（図9、表5）

カドミウム曝露量は個人がどのような食生活をしているかによって定まってくることが明らかとなった。すなわち、食している米中カドミウムが大きな寄与をしており、米中カドミウム濃度が高い被験者はよりカドミウムを曝露することになる。（図8）今回被験者は、農家中年女性であり、米は自家保有米を食しているので、米飯からのカドミウム摂取量は3日間毎日あまり変動しなかった（図10）。しかし、副食からのカドミウム摂取量はその日の副食や間食により大きく変動することが明らかとなった（図11）。食事調査から確認すると、海産物（イカ、魚、昆布）およびこの地域の一部の野菜（根菜類、枝豆等）が献立に含まれているときにカドミウム摂取量が上昇することが明らかとなった。その日の米以外の食品からのCd摂取量が $0.4 \mu\text{g/kg/day}$ を超える日が、全被験者3日間の延べ日数51日中に10日間あった。その日に高い原因となった献立を調べると、7日間はイカ、魚、昆布が原因と考えられ、それ以外3日間は根菜類と肉とを食していた。このことからも、魚介類、貝類の摂取が個人のカドミウム摂取量の日間

変動の大きな原因となっていることが明らかとなった。

カドミウム摂取量と生体曝露指標との関係

尿中カドミウム濃度は過去からの長期間の曝露使用であり、血中カドミウム濃度は現時点および最近の曝露量を反映していると考えられている。陰膳法の調査に参加した被験者の血中カドミウムと尿中カドミウム濃度との関係はかなりよい相関関係を示していた（図 12）。被験者の陰膳法から求めた体重当たりの一日カドミウム摂取量と血中カドミウム濃度との相関は低かった（図 13）。

D. 考察

トータルダイエット・スタディ方式と陰膳法により求められた結果は、前者が $115 \mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ となり、PTWI を超える結果となり、後者が $0.44 \mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ となり、陰膳法の法が約半分の結果を示していた。トータルダイエット・スタディ方式では、食品の測定サンプル数を増やすことでその地域の食品の品目の代表値を求めようとし、さらに 965 名の検診参加者の過去一ヶ月の食品摂取量を用いてより、一般的なカドミウム摂取量の推定値を求めようとした。一方、陰膳法では、17 名の被験者の 3 日間のカドミウム曝露量を陰膳中の

カドミウム濃度を測定することで評価した。陰膳法では、個人内の日間変動が献立により大きく変動するとか明らかとなり、特に魚介類、根菜類の摂取がある時に高い値を示すことが明らかとなった。3 日間では、その個人のカドミウム摂取量を代表していないことは明らかであり、被験者の選抜も協力可能な個人を選ぶことがこのような調査の前提である。このような理由から、かなり大きな差があったと考えられる。陰膳法で集められた食品の量は多く、意図的に小食を装うようなことはなかったと考えられ、過小評価につながったことは今回の陰膳法ではなかったと考えている。

E. 結論

カドミウム汚染がある地域でのカドミウム摂取量調査は、平均値で $115 \mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ であり、米からのカドミウム曝露は約 50% を占めていた。カドミウム曝露の寄与の高いものは、米および魚介類、海草類、きのこなどの順であった。米等のカドミウム汚染のない地域でも、魚介類、海草類を頻繁に食する日本の食習慣はカドミウム負荷量が大きくなることは明らかである。今後、魚介類、海草類からのカドミウム曝露の評価および影響評価も重要であることが明らかとなった。

F 健康危険情報

特記すべきものはない。

G 研究発表

論文発表

- 1 Horiguchi H, Oguma E, Sasaki S, Miyamoto K, Ikeda Y, Machida M, Kayama F
Dietary exposure to cadmium at close to the current provisional tolerable weekly intake does not affect renal function among female Japanese farmers
Environ Res 2004 May 95(1)
20-31
- 2 Horiguchi H, Oguma E, Sasaki S, Miyamoto K, Ikeda Y, Machida M, Kayama F
Comprehensive study of the effects of age, iron deficiency, diabetes mellitus, and cadmium burden on dietary cadmium absorption in cadmium-exposed female Japanese farmers
Toxicol Appl Pharmacol 2004 Apr 1, 196(1) 114-23
- 3 Horiguchi H, Oguma E, Sasaki S, Miyamoto K, Ikeda Y, Machida M, Kayama F
Environmental exposure to cadmium at a level

insufficient to induce renal tubular dysfunction does not affect bone density among female Japanese farmers
Environ Res 2004 in press,
proofreading

H. 知的財産権の出願・登録状況
なし。

表 1

カドミウム分析結果(単位 mg/kg)					
No.	識別	品目番号	検体	備考	カドミウム
1	F地域	1-1	きりたんぽ		0.102
2	F地域	1-2	きりたんぽ		0.034
3	F地域	1-3	きりたんぽ		0.069
4	F地域	2-1	もち米		0.06
5	F地域	2-2	もち米		0.06
6	F地域	2-3	もち米		0.04
7	F地域	3-1	もち		0.182
8	F地域	3-2	もち		0.035
9	F地域	3-3	もち		0.087
10	F地域	4-1	和かし		0.015
11	F地域	4-2	和かし		0.011
12	F地域	4-3	和かし		0.0025
13	F地域	4-4	和かし		0.013
14	F地域	5-1	食パン		0.018
15	F地域	5-2	食パン		0.017
16	F地域	5-3	食パン		0.02
17	F地域	6-1	あんパン		0.008
18	F地域	6-2	あんパン		0.013
19	F地域	6-3	あんパン		0.010
20	F地域	8-1	うどん	ゆでうどん	0.0025
21	F地域	8-2	うどん	ゆでうどん	0.0025
22	F地域	8-3	うどん	ゆでうどん	0.0025
23	F地域	9-1	そば	ゆでそば	0.018
24	F地域	9-2	そば	生そば	0.034
25	F地域	9-3	そば	ゆでそば	0.014
26	F地域	10-1	ごま	いり黒ごま	0.110
27	F地域	10-2	ごま	すり黒ごま	0.067
28	F地域	10-3	ごま	ごま	0.021
29	F地域	11-1	さつまいも		0.016
30	F地域	11-2	さつまいも		0.008
31	F地域	11-3	さつまいも		0.0025
32	F地域	12-1	しゃがいも		0.098
33	F地域	12-2	しゃがいも		0.010
34	F地域	12-3	しゃがいも		0.022
35	F地域	13-1	里いも		0.069
36	F地域	13-2	里いも		0.036
37	F地域	13-3	里いも		0.200
38	F地域	14-1	長いも		0.022
39	F地域	14-2	長いも		0.0025
40	F地域	14-3	長いも		0.008
41	F地域	14-4	山いも		0.060
42	F地域	15-1	大豆	大豆(秋田県産)	0.06
43	F地域	15-2	大豆	大豆(秋田県産)	0.1

44	F地域	16-1	絹とうふ		0.013
45	F地域	16-2	絹とうふ		0.011
46	F地域	17-1	もめんとうふ		0.016
47	F地域	17-2	もめんとうふ		0.014
48	F地域	17-3	もめんとうふ		0.013
49	F地域	18-1	あふらあげ		0.083
50	F地域	18-2	あふらあげ		0.046
51	F地域	18-3	あふらあげ		0.069
52	F地域	19-1	納豆		0.037
53	F地域	19-2	納豆		0.031
54	E地域	19-3	納豆		0.011
55	F地域	20-1	みそ	味噌(秋田県産)	0.118
56	F地域	20-2	みそ	味噌(秋田県産)	0.259
57	F地域	20-3	みそ	味噌(秋田県産)	0.026
58	F地域	21-1	枝豆		0.085
59	F地域	21-2	枝豆		0.293
60	F地域	21-3	枝豆		0.140
61	F地域	21-4	枝豆		0.115
62	F地域	22-1	にんじん		0.018
63	F地域	22-2	にんしん		0.107
64	F地域	22-3	にんじん		0.068
65	F地域	23-1	ホウレンソウ		0.122
66	F地域	23-2	ホウレンソウ		0.043
67	F地域	23-3	ホウレンソウ		0.060
68	F地域	24-1	トマト		0.0025
69	F地域	24-2	トマト		0.008
70	F地域	25-1	かぼちゃ		0.018
71	F地域	25-2	かぼちゃ		0.024
72	F地域	25-3	かぼちゃ		0.019
73	F地域	26-1	ブロッコリー		0.006
74	F地域	26-2	ブロッコリー		0.0025
75	F地域	26-3	ブロッコリー		0.008
76	F地域	27-1	大根		0.023
77	F地域	27-2	大根		0.005
78	F地域	27-3	大根		0.0025
79	F地域	28-1	玉ねぎ		0.012
80	F地域	28-2	玉ねぎ		0.026
81	F地域	29-1	キャベツ		0.010
82	F地域	29-2	キャベツ		0.007
83	F地域	29-3	キャベツ		0.006
84	F地域	30-1	白菜		0.011
85	F地域	30-2	白菜		0.020
86	F地域	30-3	白菜		0.020
87	F地域	31-1	ごぼう		0.017
88	F地域	31-2	ごぼう		0.038
89	F地域	31-3	ごぼう		0.025
90	F地域	32-1	せり		0.0025
91	F地域	32-2	せり		0.0025
92	F地域	32-3	せり		0.014
93	F地域	33-1	なす		0.011
94	F地域	33-2	なす		0.0025
95	F地域	33-3	なす		0.012
96	F地域	34-1	春菊		0.031
97	F地域	34-2	春菊		0.244
98	F地域	35-1	小松菜		0.033
99	F地域	35-2	小松菜		0.042
100	F地域	35-3	小松菜		0.230

101	F地域	36-1	チンゲン菜		0010
102	F地域	36-2	チンゲン菜		0010
103	F地域	36-3	チンゲン菜		0101
104	F地域	37-1	ピーマン		0006
105	F地域	37-2	ピーマン		0006
106	F地域	38-1	にんにく		0010
107	F地域	38-2	にんにく		0142
108	F地域	38-3	にんにく		0077
109	F地域	39-1	オクラ		0012
110	F地域	39-2	オクラ 加工品		0100
111	F地域	40-1	とんふり		0091
112	F地域	40-2	とんふり		0095
113	F地域	40-3	とんふり		0075
114	F地域	41-1	しいたけ		0315
115	F地域	41-2	しいたけ		0367
116	F地域	41-3	しいたけ		0065
117	F地域	41-4	しいたけ		0522
118	F地域	42-1	まいたけ		0031
119	F地域	42-2	まいたけ		0046
120	F地域	42-3	まいたけ		0023
121	F地域	43-1	りんご		00025
122	F地域	43-2	りんご		00025
123	F地域	43-3	りんご		00025
124	F地域	44-1	キウイフルーツ		00025
125	F地域	45-1	わかめ		0069
126	F地域	45-2	わかめ		0182
127	F地域	45-3	わかめ		0367
128	F地域	46-1	昆布		0492
129	F地域	46-2	昆布		0689
130	F地域	46-3	昆布		178
131	F地域	47-1	のり		0660
132	F地域	48-1	ひじき		104
133	F地域	48-2	ひじき		0959
134	F地域	50-1	もずく		00025
135	F地域	50-2	もずく		0010
136	F地域	50-3	もずく		00025
137	F地域	51-1	さけ		00025
138	F地域	51-2	さけ		00025
139	F地域	51-3	さけ		00025
140	F地域	52-1	まぐろ		0013
141	F地域	52-2	まぐろ		00025
142	F地域	52-3	まぐろ		0012
143	F地域	53-1	たら		00025
144	F地域	53-2	たら		00025
145	F地域	53-3	たら		00025
146	F地域	54-1	あじ		0015
147	F地域	54-2	あじ		0015
148	F地域	54-3	あじ		0011
149	F地域	55-1	さば		0014
150	F地域	55-2	さば		0018
151	F地域	55-3	さば		0011

152	F地域	56-1	はたはた 卵なし		0010
153	F地域	56-2	はたはた 卵なし		0010
154	F地域	56-3	はたはた 卵なし		0011
155	F地域	57-1	はたはた 卵あり		0018
156	F地域	57-2	はたはた 卵あり		0016
157	F地域	57-3	はたはた 卵あり		0016
158	F地域	58-1	いか		0018
159	F地域	58-2	いか		0032
160	F地域	58-3	いか		0081
161	F地域	59-1	たこ		00025
162	F地域	59-2	たこ		0009
163	F地域	59-3	たこ		00025
164	F地域	60-1	えび		0032
165	F地域	60-2	えび		0019
166	F地域	60-3	えび		0125
167	F地域	61-1	たらこ		00025
168	F地域	61-2	たらこ		0010
169	F地域	61-3	たらこ		0006
170	F地域	62-1	いくら		00025
171	F地域	62-2	いくら		00025
172	F地域	63-1	ほたて 内臓なし		0019
173	F地域	63-2	ほたて 内臓なし		0103
174	F地域	63-3	ほたて 内臓なし		0046
175	F地域	64-1	ほたて 内臓あり		3.51
176	F地域	64-2	ほたて 内臓あり		5.29
177	F地域	65-1	あさり		0270
178	F地域	65-2	あさり		0036
179	F地域	66-1	しじみ		0550
180	F地域	66-2	しじみ		0235
181	F地域	67-1	かき貝		0672
182	F地域	67-2	かき貝		0486
183	F地域	67-3	かき貝		0583
184	F地域	68-1	はんへん		0005
185	F地域	68-2	はんべん		00025
186	F地域	68-3	はんべん		00025
187	F地域	69-1	しらす干し		0012
188	F地域	69-2	しらす干し		0020
189	F地域	69-3	しらす干し		0007
190	F地域	70-1	うなぎ		0008
191	F地域	70-2	うなぎ		0009
192	F地域	70-3	うなぎ		00025
193	F地域	71-1	牛肉		00025
194	F地域	71-2	牛肉		00025
195	F地域	71-3	牛肉		00025
196	F地域	72-1	ふた肉		00025
197	F地域	72-2	ふた肉		00025
198	F地域	72-3	ふた肉		00025
199	F地域	73-1	とり肉		00025
200	F地域	73-2	とり肉		00025