

厚生労働科学研究費補助金

食品の安心・安全確保推進研究事業

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18年度 総括・分担研究報告書

主任研究者

国立医薬品食品衛生研究所 松田りえ子

分担研究者

国立医薬品食品衛生研究所 松田りえ子

国立医薬品食品衛生研究所 米谷 民雄

国立保健医療科学院 杉山 英男

## 目 次

### I. 総括研究報告

- 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 ..... 1  
松田りえ子

### II. 分担研究報告

1. 日常食の汚染物摂取量及び汚染物モニタリング調査研究 ..... 13  
松田りえ子
2. メチル水銀試験法の改良と魚肉中水銀分布調査への応用 ..... 31  
米谷 民雄
3. 食品中の放射性核種の摂取量調査・評価研究 ..... 55  
杉山 英男

### III. 研究成果の刊行に関する一覧表

# 総括研究報告

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

松田 りえ子

平成18年度 厚生労働科学研究費補助金  
(食品の安心・安全確保推進研究事業)

総括研究報告書

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

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室長

研究要旨

本研究では、食品安全性評価のために広範囲の食品中に存在する有害物質に関するデータを収集するとともに、メチル水銀分析法に係わる関連研究を実施した。

日常食の汚染物質摂取量調査研究においては、全国10カ所で各食品を通常の調理方に従って調製したトータルダイエツト試料を調製し、その汚染物濃度を測定して、1日当たりの汚染物摂取量を推定した。汚染物モニタリング調査研究においては、全国47カ所での食品中汚染物検査データ38万件を収集し、食品中の汚染物の検出率、複数の汚染物による汚染状況を明らかにした。

魚介類中のメチル水銀分析法として高濃度塩酸酸性トルエン抽出-システイン・アセテート溶液転溶-塩酸酸性トルエン再抽出-キャピラリーカラム-ECD-GC法(抽出法I)を採用し、同時に、環境省法のように、抽出処理した検量線を用いる方法を検討した。その結果、抽出処理したメチル水銀標準溶液の検量線の各測定値は、無処理のメチル水銀標準溶液の80~89%(平均85%)であり、この方法を用いると、キハダマグロ筋肉部からのメチル水銀の添加回収率は101%であった。4魚種8試料の筋肉中の総水銀に対するメチル水銀含有率も84~100%(平均92%)と高い値であった。さらに、この方法について、メバチマグロ乾燥粉末試料を用いて、3機関による共同試験を行った。その結果、メチル水銀の測定精度は非常に高く、多機関での共同試験が実施可能であると考えられた。なお、共同試験の結果、総水銀に対するメチル水銀の比率は91~100%であった。

食品中の放射性核種の摂取量調査では、全国4地域(関東I、関東II、北陸、近畿II)において、トータルダイエツト試料を調製し、 $\gamma$ 線放出核種(人工放射性核種の放射性Csおよび天然放射性核種の $^{40}\text{K}$ や $^{214}\text{Bi}$ 、 $^{212}\text{Pb}$ などのウラン系列、トリウム系

列),  $\beta$ 線を放出する人工放射性核種の $^{90}\text{Sr}$ ,  $\text{U}$  ( $^{238}\text{U}$ )の測定, 分析を行った. 対象放射性核種の各食品群中の放射能濃度を明らかにした後, これらの濃度を基本としてその1日摂取量と被ばく線量を推定した. その結果, いずれの放射性核種も濃度ならびに1日摂取量は小さく, 各地域における分布状況についても大きな差はみられなかった. これより, 食品摂取に伴う国内各地域の公衆の成人に対する被ばく線量は小さいことが評価され, 食品中の放射能に対する安心・安全確保を推進するための一つの基礎的な資料が集積された.

分担研究者

松田りえ子 国立医薬品食品衛生研究所食品部室長

米谷 民雄 国立医薬品食品衛生研究所食品部長

杉山 英男 国立保健医療科学院生活環境部室長

## A. 研究目的

種々の化学物質のヒトへの曝露はその90%以上が食事を介していると考えられており, 多数の食品中の有害物質の量とその分布状態を明らかにし, 化学物質による健康影響へのリスクを正しく評価することは, 食品衛生における基本課題である. 本研究の課題の一つである, 日常食からの汚染物質摂取量調査研究と汚染物モニタリング調査研究では, 食品衛生上重要な汚染物の食品中の存在状況を, 前者では平均化した見方で, 後者では個別の見方から, 長期間継続して調査することにより, 個々の食品の汚染状況と日本国民が平均的に摂取する汚染物量の2つの側面から, 食品の安全性を全体的に評価することを目的としている.

食品安全性評価のためには, 食品中に存在する有害物質のデータを収集するだけでは不十分であり, 正しい分析法によって得られた信頼性ある分析値に基づいて評価しなくては

ならない. 2004年3月にはJECFAがメチル水銀のPTWI(暫定耐容週間摂取量)を3.3 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 体重/週から1.6 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 体重/週に変更した(ただし, 総水銀のPTWIは5 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 体重/週のまま継続されている). さらに, 平成17年8月12日に厚生労働省は, 「妊婦への魚介類の摂食と水銀に関する注意事項」の変更案を示した. これらを背景として, 魚介類中のメチル水銀分析法の改良を試みた. 平成16年度はアルカリ分解-システイン抽出法及びアセトン/トルエン前処理法について検討し, 平成17年度に環境省法としても採用されているアルカリ分解-ジチゾン抽出法に準拠し, 添加回収, 再現性及び実用性等について検証を行った. 今年度は, 魚介類中のメチル水銀分析法として高濃度塩酸酸性トルエン抽出-システイン・アセテート溶液転溶-塩酸酸性トルエン再抽出-キャピラリーカラム-ECD-GC法(抽出法I)を採用し, 同時に, 環境省

法のように、抽出処理した検量線を用いる方法を検討した。また、アセトン・トルエン前処理を追加する方法（抽出法Ⅱ）を4魚種の筋肉試料に応用して、抽出法Ⅰとの比較を行った。さらに、メバチマグロ乾燥粉末試料を用いて3機関による共同試験を実施し、メチル水銀分析法の確立を目的とした。

食品中の放射性物質によるヒトへの曝露状況は、その摂取状況に関する基礎資料が乏しく、明らかになっていないのが現状である。日本国内に流通する各種の食品を対象として、日常的に摂取される消費量データに基づき調製したトータルダイエツト試料について、人工ならびに天然 $\gamma$ 線放出核種、 $\beta$ 線放出核種（人工放射性核種）の $^{90}\text{Sr}$ および $^{238}\text{U}$ の測定、分析を行い、各種食品区分群における放射性核種濃度と国内地域分布を明らかにする。さらに、日本人固有の食事摂取形態による放射性核種の暴露（摂取量ならびに被ばく線量）に関する評価を行うことを目的とした。

以上に示したように、本研究では健康に影響する汚染物質の摂取量・汚染状況の把握、正確な汚染状況と健康リスクを推定するための分析法の整備の観点から、食品中の有害物質の評価を行うことを目的としている。

## B. 研究方法

### 汚染物摂取量調査

全国 10 カ所でマーケットバスケット方式によるトータルダイエツト試料を調製し、重金属、残留農薬等の汚染物濃度を測定した。汚染物濃度と食品の摂取量から、1日あたりの食事からの汚染物摂取量を推定した。

### 汚染物モニタリング調査

全国 47 カ所の地方衛生研究所から食品中

の汚染物分析データ 38 万件を収集した。収集はあらかじめ入力用のフォームを入れたフロッピーディスクに入力する形式で行った。国立医薬品食品衛生研究所食品部に送付されたデータは再度エラーチェックを行い集計した後、食品部サーバー上に構築したデータベースに追加した。

## メチル水銀及び水銀試験法の改良

### 試験法検討

#### 試料・試薬

試料はキハダマグロ（赤身）、マサバ（筋肉）、キダイ（筋肉）及び養殖クロマグロ（中トロ）各 2 試料を用いた。

メチル水銀の測定には残留農薬分析用の溶媒を、総水銀の測定には日本インスツルメンツ社製の添加剤を用いた。

メチル水銀標準溶液：塩化メチル水銀 125.2 mg をトルエンに溶解し、100 ml とした（水銀として  $1000\ \mu\text{g/ml}$ ）。さらに、これをトルエンで 10 倍及び 100 倍希釈し、それぞれメチル水銀標準溶液（水銀として 100 及び  $10\ \mu\text{g/ml}$ ）とした。

#### 装置及び器具

##### 塩化メチル水銀

GC: Agilent Technologies 5890 SERIES II (ECD)

カラム: ULBON HR-Thermon-Hg (0.53mm × 15m)

カラム温度:  $100^\circ\text{C}$  (1min) -  $10^\circ\text{C}/\text{min}$  -  $160^\circ\text{C}$  (5min)

注入口温度:  $200^\circ\text{C}$

検出器温度:  $230^\circ\text{C}$

キャリアーガス: He (8 ~ 10ml/min)

注入量:  $2\ \mu\text{l}$

## 総水銀

半自動微量水銀分析装置：日本インスツルメンツ社製〔試料加熱気化・金アマルガム捕集装置（マーキュリー/MA-1S）、水銀検出装置（マーキュリー/MD-1）〕

## 分析法

塩化メチル水銀

## 抽出法 I

高濃度塩酸酸性トルエン抽出－システイン・アセテート溶液転溶－塩酸酸性トルエン再抽出－キャピラリーカラム-ECD-GC 法。

## 抽出法 II

アセトン・トルエン処理－高濃度塩酸酸性トルエン抽出－システイン・アセテート溶液転溶－塩酸酸性トルエン再抽出－キャピラリーカラム-ECD-GC 法

## 総水銀

日本インスツルメンツ社製半自動微量水銀分析装置で分析した。均一試料 30mg～100mg を精秤して試験用の試料とした。

## 共同試験

### 試料の調製

市販のメバチマグロ可食部を凍結乾燥した。凍結乾燥し粉碎均一化した後、密閉容器 50 個にそれぞれ約 5 g 入れ、分析用模擬試料を作製した。

模擬試料からランダムに選択した 10 個を均質性試験、5 個を安定性試験に供した。

なお、陰性検体として市販のムキエビを購入した。これを均一化し、添加回収試験用の試料とした。

### 試料の均一性試験および安定性試験

作製した分析用模擬試料について、その均質性確認のため均質性試験を実施した。また、共同試験実施期間中の安定性確認のために、

共同試験終了後安定性試験を実施した。安定性試験を実施するまでは、試料は冷凍状態で保管した。均質性試験及び安定性試験とも 5 回分析操作を実施した。

### 共同試験プロトコル

分析用模擬試料（メバチマグロ）のメチル水銀の分析を行い、別途総水銀を分析した。総水銀に対するメチル水銀の比率も算出した。

添加回収試験用試料（ムキエビ）1 g にメチル水銀を 50 ng（水銀として）添加し、3 回分析操作を実施し、その回収率を求めた。

## 放射性物質摂取量調査

日本国内 4 地域（東京都渋谷区、長野市、金沢市、奈良市）において飲料水を含む全 14 群に区分した食品をマーケットバスケット方式により購入し、日本人の日常食を再現したトータルダイエツト試料を調製した。試料は凍結乾燥あるいは乾熱乾燥後に、450℃で約 24 時間灰化处理した。人工ならびに天然の  $\gamma$  線放出核種（ $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{40}\text{K}$ 、ウラン系列、トリウム系列）の測定は、各食品群個別にプラスチック製容器（容量 100mL）に封入し、シリコーンシーラントを充填させて密閉し 2 週間程度放置し  $\gamma$  線スペクトロメトリーで行った。油脂類（食品群 IV）は調製試料の状態でマリネリ容器（容量 1L）に封入し測定用試料とし計測した。 $^{90}\text{Sr}$  は放射化学分離-低バックグラウンド  $\beta$  線測定装置、U（ $^{238}\text{U}$ ）は ICP-質量分析（ICP-MS）法により分析した。

## C. 研究結果および考察 汚染物摂取量調査

HCH類の中で摂取量の多い  $\alpha$  及び  $\beta$

HCH摂取量の平均値は2002年～2004年に低下傾向を示したが、2005年は $\beta$ -HCHがやや増加し、2006年には $\alpha$ 、 $\beta$ 共に増加した。 $\alpha$ -HCHは5機関で、 $\beta$ -HCHは4機関で検出された。一方、 $\gamma$ -HCHの摂取量は2004年に高値を示したが2005及び2006年には例年通りの値となった。2006年の総HCH摂取量は $\alpha$ 及び $\beta$ 体摂取量の増加により2004年の値よりも高くなり、他の年の倍程度となった。

2002～2006年の間の総DDT摂取量の平均値は概ね一定であった。異性体中では、 $p, p'$ -DDEの摂取量が最も高く、10機関中9機関で検出された。ディルドリン摂取量は2005年と同程度であった。ヘプタクロルエポキシサイドは2005年に続いて高い摂取量となったが、一箇所の機関が大きな摂取量を報告したための増加であり、中央値は0であった。HCB摂取量は2004年にはやや高かったが、本年度は例年通りの値であった。PCB摂取量は2005年に $1 \mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ に近い値を示したが、本年度は例年通りの摂取量となった。

有機リン系農薬のマラチオンとMEPはそれぞれ1機関で検出され、ダイアジノン全ての機関で検出されなかった。例年検出の頻度は低く、摂取量の中央値は5年間を通じて $0 \mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ であった。

金属類中、鉛摂取量は2004年に例年より25%程度が増加したが、2005及び2006年は例年通りの値となった。カドミウム摂取量にはやや低下の傾向がみられ、2006年もこの傾向が続いている。水銀の摂取量も5年間を通して最低となった。

HCHは魚介類、肉類、砂糖・菓子類から、DDTは魚介類、肉類乳製品から摂取されている。ディルドリンは有色以外の野菜類及び魚介類から、ヘプタクロルエポキシサイドは有色

野菜から、HCBは魚介類と有色野菜から摂取されている。PCBはDDTと同様に主として魚介の群から摂取され、肉・卵類からも僅かに摂取されている。

鉛及びカドミウムは米からの摂取が最も多く、他の食品群からも少しずつ摂取されている。一方、水銀の主要な摂取源は魚介類であり、他の食品群からの摂取はほとんど見られない。ヒ素は野菜海草、魚介類及び米からの摂取が多かった。

#### 汚染物モニタリング調査

本年度は382,746件のデータが報告され、報告件数は過去4年間で最高となった。

何らかの汚染物が検出されたデータは4,882件あり、検出率は1.3%で最近4年間の中で最も低率であった。また、報告されたデータの総試料数は9,296件であり、このうち何らかの汚染物が検出された試料は2,535あった。試料数が2004年を境に半分程度に低下しているにもかかわらず、検査数は増加していることから、1試料当たりには検査された汚染物数が増えていると考えられる。試料数を基本とした検出率は27.3%であった。2003年から2006年まで、検出率は低下しているが、試料をベースとした検出率は2005年から大きく増加した。1試料当たりには分析する汚染物が増えているため、検出率が増加したと考えられる。ポジティブリスト制度の施行に伴い、GC/MSあるいはLC/MSにより多数の農薬等を一斉に分析できる方法が普及したことから、1試料あたりの農薬等の検査数が増加したものと考えられる。

検査された汚染物は592種類であり、昨年より80種増加している。新たに分析されるようになった汚染物は、ほとんどが農

薬・動物薬であり、年々検査対象となる農薬・動物薬は増加している。農薬等に限定した試料ベースの検出率は16.9%で、昨年度と同じであった。

検査数の多い食品は、卵・肉のような畜産製品が相対的に上位となっている。検査数の多い野菜は、ねぎ、ブロッコリー、キャベツ等であった。

農薬等の検出率の高い食品は、西洋なし(76.2%)、りんご(68.3%)、オレンジ(61.9%)、レモン(59.4%)、スイーティ(57.1%)、グレープフルーツ(56.4%)、ピーマン(50.0%)、桜桃(50.0%)、日本なし(45.5%)、いちご(45.3%)で、柑橘類を含め果実が主であった。西洋なしでは、フェンプロパトリン・クロルピリホス・クレソキシムメチルが、日本なしではシペルメトリン・クレソキシムメチルが高頻度で検出された。りんごでは、フェンプロパトリン・キャプタン・クロルピリホス・クレソキシムメチル・カルベンダジムが検出され、果実でクレソキシムメチルの検出が目立った。ピーマンでは、クロルフェナピル・プロシミドンの検出が目立った。オレンジ等の柑橘類ではイマザリル・チアベンダゾール、オルトフェニルフェノール等の他にクロルピリホスが高率に検出された。

農薬等の複数残留が多く見られた作物は、なし、リンゴが多く、他にトマト、セロリ、未成熟インゲンであった。

検査数の多い汚染物は、クロルピリホス、マラチオン、フェニトロチオン、等の有機リン系農薬、ペルメトリン、シペルメトリン等のピレスロイド系農薬であった。

検出率の高い汚染物は、水銀、カドミウム、PCB、有機スズ、ヒ素等の環境汚染に関連する物質で、これらは魚介を中心とした試料か

ら高率で検出されている。次いで、鉛等の有害金属、オルトフェニルフェノール、イマザリルが10%以上の検出率であった。検出率の高かったイミダクロプロリド、カルプロパミド、アセタミプリド等の農薬の検査数はそれほど多くなく、また検査数の多いクロルピリホス等の有機リン系農薬の検出率は、比較的高率のプロシミドンで3.5%、クロルピリホスで3.1%であった。

### メチル水銀及び水銀試験法の改良

#### 1. トルエンによる高濃度塩酸溶液からのメチル水銀の添加回収率

メチル水銀・システイン標準溶液(10 $\mu$ g/ml)80 $\mu$ l(水銀として0.800 $\mu$ g)に9mol/L塩酸溶液2.5mlを加え、トルエン20mlで1, 2, 3及び4回抽出した場合のメチル水銀の添加回収率を求めた。回収率は抽出回数の増加とともに高くなり、抽出4回では約99%に達した。そこで、トルエンによる抽出は4回行うことにした。

#### 2. 抽出処理したメチル水銀標準溶液の検量線

抽出処理したメチル水銀標準溶液の検量線は0.0025~0.100 $\mu$ g/ml(添加量0.020~0.800 $\mu$ g)の範囲で良好な直線性( $R^2=0.9994$ )を示し、各測定値は無処理メチル水銀標準溶液の80~89(平均85)%であり、昨年度に検討したアルカリ分解-ジチゾン法の結果と同程度であった。

#### 3. 抽出法Iによるキハダマグロ筋肉からのメチル水銀の添加回収率

キハダマグロ1.00gにメチル水銀・システイン標準溶液(10 $\mu$ g/ml)80 $\mu$ l(水銀として0.800 $\mu$ g)を添加した場合のメチル水銀の添加回収率は101%であった。また、

無添加試料中に含まれるメチル水銀濃度の 5 回の繰返し試験における変動係数は 1.5%であった。

#### 4. 魚類筋肉中のメチル水銀濃度と総水銀に対するメチル水銀含有率

抽出法 I 及び II における 4 魚種 8 試料の筋肉中のメチル水銀濃度（水銀として）はそれぞれ 0.05~0.48, 0.05~0.49  $\mu\text{g/g}$  の範囲にあり、いずれの魚種においても相違はほとんどみられなかった。

4 魚種 8 試料の筋肉中の総水銀濃度は 0.05~0.57  $\mu\text{g/g}$  の範囲にあり、総水銀に対するメチル水銀の含有率は 84~100% (平均 92%) であった。マグロ類 2 種 4 試料の平均メチル水銀含有率は 91% であった。

メチル水銀の抽出は使用する前日にブレンダーで均一にした魚類筋肉を用いており、魚類筋肉からのエマルジョン形成はほとんどみられなかった。しかし、均一試料を 6 ヶ月以上凍結保存すると、抽出時にエマルジョンを形成してトルエンの回収量に影響を及ぼす事例があったことから、均一試料の長期保存は避ける方が望ましいと考えられた。

本法は抽出処理した検量線を用いることにより、昨年度報告したアルカリ分解—ジチゾン法と同様に高い添加回収率及び総水銀に対するメチル水銀含有率を示した。しかも、抽出操作が公定法と類似しており、短時間の訓練により精度の高い分析結果を得ることが可能と考えられた。

#### 4. 共同試験のための試料作製

共同試験を行うために、メバチマグロ乾燥粉末試料を作製した。メバチマグロ乾燥前の重量は 3,076.44 g, かつ乾燥後の重量は 744.11 g, となり水分含量は 75.8% であった。

#### 5. メチル水銀標準溶液の検量線の直線性及

#### び再現性

検量線は陰性試料確認及び添加回収試験実施時、均質性試験実施時、安定性試験実施時の 3 回作成した。3 回とも相関係数が 0.995 以上であり、直線性は良好であった。また、再現性も問題ないと考えられた。

#### 6. 均質性試験

均質性試験におけるメチル水銀は平均値 2.77  $\mu\text{g/g}$ , 標準偏差 0.082  $\mu\text{g/g}$ , 変動係数 3.0%, 総水銀については平均値 3.33  $\mu\text{g/g}$ , 標準偏差 0.23  $\mu\text{g/g}$ , 変動係数 6.8% であり、作製した標準試料の均質性は概ね担保されていると思われた。

#### 7. 安定性試験

安定性試験におけるメチル水銀は平均値 2.76  $\mu\text{g/g}$ , 標準偏差 0.11  $\mu\text{g/g}$ , 変動係数 4.0%, 総水銀については平均値 3.37  $\mu\text{g/g}$ , 標準偏差 0.11  $\mu\text{g/g}$ , 変動係数 3.3% であった。

均質性試験結果との比較から、作製した分析用模擬試料における共同試験実施期間中の安定性は確保されているものと考えられた。

#### 8. 共同試験結果

メチル水銀の回収率は 83.9~110%, 総水銀の回収率は 88.9~103% と、良好な回収率が得られた。今回、改良分析法において、各濃度の標準溶液は試験溶液と同様の操作を行って調製した。したがって、このように検量線を作成し、試料中のメチル水銀を定量した場合、良好な回収率が得られることが示された。

実試料として、メバチマグロ試料を用いた共同試験では、メチル水銀の平均値は 2.82~2.97  $\mu\text{g/g}$ , 室内精度は 4.5~5.5%, 総水銀の平均値は 2.99~3.09  $\mu\text{g/g}$ , 室内

精度は1.9～2.9%と良好であった。3機関での共同試験によって、室内精度もよく、平均値もバラつかないことから、この改良法を用い、多機関での共同試験の実施が可能と考えられた。

メチル水銀の総水銀に対する比率は91.3～99.6%で、メバチマグロ中のメチル水銀は総水銀量のほとんどを占めることが示された。

## 放射性物質摂取量調査

### 1. 食品中の放射性核種の濃度

#### γ線放出核種の放射能濃度

今回の4地域において人工のγ線放出核種として検出・定量されたのは $^{137}\text{Cs}$ のみである。その放射能濃度は4地域ともに0.1 Bq/kg以下であり、多くの食品群では $^{137}\text{Cs}$ は検出下限値以下であった。今回定量された全食品群中の $^{137}\text{Cs}$ 濃度の内訳は最小値は金沢市の食品群I（米・米加工品類）の0.004 Bq/kg、その最大値は長野市の食品群X（魚介類）の0.099 Bq/kgであった。食品群別では3地域でX群の魚介類が最大濃度を示した。東京都では食品群VIII（其他野菜、キノコ、海藻類）の0.092 Bq/kgが最大値で、次いで食品群X（魚介類）の0.067 Bq/kgであった。魚介類が全食品群の中でも高い濃度を示す傾向は平成16年度および平成17年度のTDSにおいても認められている。ちなみに、厚生労働省が実施しているヨーロッパ産輸入食品の放射能検査における放射性Csの暫定限度は370 Bq/kg（ $^{137}\text{Cs}$ と $^{134}\text{Cs}$ の合計値）である。この数値との比較の上からも過去の大気圏内核爆発実験やチェルノブイリ原子力発電所事故等に由来する $^{137}\text{Cs}$ の国内流通食品中の濃度レベルは低い。また、他の全13食品群の中では肉類・卵類、乳類から $^{137}\text{Cs}$ が定量される傾向

も平成16年度および平成17年度TDSと同様であった。

なお、チェルノブイリ原子力発電所事故により放出された人工放射性核種の $^{134}\text{Cs}$ は全ての食品群で検出されなかった。

天然放射性核種の $^{40}\text{K}$ は食品の多量元素であるKの同位体の一つとして約0.012%存在している。このため、4地域の食品群すべてから $^{40}\text{K}$ が検出、定量された。飲料水を除く $^{40}\text{K}$ 濃度は大多数の食品では数10 Bq/kg程度（4地域：11.0～106.3 Bq/kg）であった。食品群別には食品群V（豆類）の濃度が高く、低濃度は食品群IX（調味・嗜好飲料）、次いで食品群I（米・米加工品）、食品群IV（油脂類）であった。飲料水は極めて低い濃度（4地域：0.019～0.061 Bq/kg）であった。

天然γ線放射性核種の $^{214}\text{Pb}$ 、 $^{214}\text{Bi}$ 、 $^{228}\text{Ac}$ 、 $^{212}\text{Pb}$ 、 $^{208}\text{Tl}$ 濃度は4地域、各食品群ともに低濃度あるいは検出下限値以下にあり、食品中の存在量の小さいことが明らかとなった。核種別にはとくに $^{228}\text{Ac}$ と $^{208}\text{Tl}$ の検出が困難であった。一方、 $^{214}\text{Pb}$ は食品群II（穀類・種実類・芋類）、III（砂糖類・菓子類）、VIII（其他野菜・きのこ・海藻類）、XI（肉類・卵類）、XIII（其他食品）などで0.1～0.5 Bq/kg、 $^{214}\text{Bi}$ は食品群II、III、VIII、X（魚介類）、XIIIなどで0.04～0.64 Bq/kgが検出された。

#### $^{90}\text{Sr}$ の放射能濃度

$^{90}\text{Sr}$ およびU( $^{238}\text{U}$ )の放射能濃度は食品群XIVの飲料水を除く全13食品群を調理混合した調製試料を分析して求めた。

$^{90}\text{Sr}$ 濃度は16～26 mBq/kgの範囲であった。国内12地域での $^{90}\text{Sr}$ の濃度は13～29 mBq/kgの範囲で平均値±標準偏差は23±

5.6 mBq/kg (C. V. =24.3%)であった。これより、日本国内各地域で購入した食品の<sup>90</sup>Sr濃度は地域間による差は比較的小さいことが示された。

#### U(<sup>238</sup>U)の放射能濃度

<sup>238</sup>U放射能濃度は5.0~8.1 mBq/kgの範囲であった。国内12地域での<sup>238</sup>U放射能濃度は4.0~14 mBq/kgの範囲で平均値±標準偏差は7.3±2.9 mBq/kg (C. V. =39.7%)であった。なお、ウラン含有量としては0.32~1.1 μg/kgであった。

これより、日本国内各地域で購入した食品の<sup>238</sup>Uの濃度は<sup>90</sup>Srに比べて地域による差がやや大きいことが認められた。

## 2. 放射性核種の1日摂取量

放射性核種の1日摂取量は放射能濃度と成人による消費量データをもとに求めた。

#### γ線放出核種の1日摂取量

γ線放出核種の摂取量評価は、今回測定した8種類の核種(<sup>137</sup>Cs, <sup>134</sup>Cs, <sup>40</sup>K, <sup>214</sup>Pb, <sup>214</sup>Bi, <sup>228</sup>Ac, <sup>212</sup>Pb, <sup>208</sup>Tl)を対象として、それぞれ個別の食品群ごとに1日摂取量を求めた後、全14食品群の摂取量を積算した合計値を1日摂取量(mBq/day)とした。1日摂取量の評価にあたっては、いわゆる“不検出”試料の摂取量はゼロとせずその検出下限値を摂取量と見なすよう考慮した。

4地域におけるγ線放出核種の1日摂取量は、人工放射性核種の<sup>137</sup>Csでは、最小値としては東京都渋谷区、長野市、奈良市、金沢市の順に下回った(32.3, 26.6, 20.8, 18.7 mBq/day)。最大値としては東京都と長野市、奈良市、金沢市の順であった(<52.4, <38.3, <35.2 mBq/day)。各地域とも共通して食品群X(魚介類)から摂取量が多い。また、東京

都と長野市では食品群VIII(その他野菜・きのこ・海藻類)の寄与がとくに大きいのに対して金沢市では小さいことが分かる。きのこ中の<sup>137</sup>Cs濃度は他の食品に比べて特異的に高いことが知られており、その寄与が一因として考えられる。

なお、チェルノブイリ原子力発電所事故に由来する人工放射性核種の<sup>134</sup>Csは全12地域の食品からは検出されていない。従って、その1日摂取量は評価に値しないものとする。

天然放射性核種<sup>40</sup>Kの1日摂取量の合計値は4地域において64824~<78082 mBq/dayであった。

天然放射性核種の<sup>214</sup>Pb, <sup>214</sup>Biは<sup>238</sup>Uを、また、<sup>228</sup>Ac, <sup>212</sup>Pb, <sup>208</sup>Tlは<sup>232</sup>Thを起源としてウラン系列ならびにトリウム系列を構成している。近年、これら天然由来の放射性核種濃度の実態を把握し、摂取量と被ばく線量への寄与を評価することが求められており本TDSにおいても対象核種としてきている。今回のTDSによる1日摂取量は、<sup>214</sup>Pbは合計値の最小値としては10.2~71.2 mBq/day、同じく最大値は<73.2~<102.2 mBq/day、同様に<sup>214</sup>Biは最小値12.9~95.5 mBq/day、最大値<69.2~<116.7 mBq/day、<sup>212</sup>Pbは最小値0~44.0 mBq/day、最大値<54.2~<152.3 mBq/dayであった。<sup>228</sup>Acと<sup>208</sup>Tlは3地域において全14食品群からの検出はなかった。これら5核種ともに検出下限値を下回る食品群が多数であった。したがって、地域別あるいは食品群別にその摂取量の分布の評価には至っていない。

#### <sup>90</sup>Srの1日摂取量

4地域における<sup>90</sup>Srの1日摂取量は27.2~60.0 mBq/dayの範囲であった。日本国内

各地域で購入した食品からの<sup>90</sup>Srの1日摂取量は地域間による差は比較的小さいことが示された。

#### ウランU (<sup>238</sup>U) の1日摂取量

4地域における<sup>238</sup>U放射能の1日摂取量は9.7~18.7 mBq/dayの範囲であった。4地域における<sup>238</sup>U重量の1日摂取量は0.80~1.52 μg/dayの範囲であった。

<sup>238</sup>Uの1日摂取量には、最小値に対して最大値は3.5倍以上高く、平均値に対しては40%近い地域間誤差がみられ、その差は<sup>90</sup>Srの場合より大きいことが示された。<sup>238</sup>Uはとくに海藻類などに多く含まれることが知られていることから、今回のTDSにおける結果は各地域における食品群ごとの素材の構成や摂食量の差が一因と考えられる。

### 3. 被ばく線量推定評価

#### 線量評価方法

食品の摂取にともなう放射性核種による被ばく線量(Sv)評価の基本的な考え方は、食品の摂取に起因する各放射性核種の摂取量(Bq)と実効線量換算係数(mSv/Bq)に依存することである。本TDSで用いた一般的な算出式の例は以下のとおりである。

$$A_{mj} = C_{mj} \cdot M_m \cdot f_{mm} \cdot f_{dm} \cdot t_m$$

$A_{m,i}$ : 食品  $m$  の摂取に起因する放射性核種  $i$  の摂取量(Bq)

$C_{m,i}$ : 採取時における評価対象食品  $m$  中放射性核種  $i$  濃度(Bq/kg)  $t_m$ : 食品  $m$  の摂取期間(d)

$M_m$ : 食品  $m$  の1日あたりの摂取量(kg/d)

$f_{mm}$ : 食品  $m$  の市場希釈係数(-)

$f_{dm}$ : 食品  $m$  の調理による除染係数(-)

この計算式において、食品試料の採取時から測定時の間の物理的減衰は無視できる。すなわち、本TDSで対象とする物理的半減期の長い放射性核種の場合、放射性核種  $i$  の摂取量(Bq)は以下の式で求めることができる。

$$H = \sum_m \sum_i K_i \cdot A_{m,i}$$

ここで、

$H$ : 食品摂取に起因する実効線量(mSv)

$K_i$ : 放射性核種  $i$  の経口摂取による実効線量への換算係数(mSv/Bq)

本TDSでは、上記の算出式をもとにして各放射性核種の被ばく線量を算定評価した。なお、線量換算係数は国際放射線委員会(ICRP Publication 72)の成人に対する数値を適用した。

#### γ線放出核種による被ばく線量評価

γ線放出核種のうち、<sup>137</sup>Csの被ばく線量(線量換算係数は $1.3 \times 10^{-5}$  mSv/Bq)は、最小値は0.089~0.153 μSv/year、最大値は<0.167~<0.249 μSv/yearと算出された。

天然放射性核種の<sup>214</sup>Pb(線量換算係数は $1.4 \times 10^{-7}$  mSv/Bq)、<sup>214</sup>Bi(線量換算係数は $1.1 \times 10^{-7}$  mSv/Bq)、<sup>228</sup>Ac(線量換算係数は $4.3 \times 10^{-7}$  mSv/Bq)、<sup>212</sup>Pb(線量換算係数は $6.0 \times 10^{-6}$  mSv/Bq)はカッコ内に示した線量換算係数を用いて年実効線量を算出した。さきに示したとおり、これら放射性核種の各食品群はその多くが検出下限値以下であった。したがって、本TDSでは評価の一方法として1日摂取量で求めた合計値の中からいわゆる最小値と最大値をもとに線量算出を試みた。その結果を各放射性核種別に表示すると、<sup>214</sup>Pbの最小値~最大値は0.0005~<0.0052 μSv/yearであった。<sup>214</sup>Biは

0.0005~<0.0047  $\mu\text{Sv}$ ,  $^{228}\text{Ac}$  は 0.007~<0.032  $\mu\text{Sv/year}$ ,  $^{212}\text{Pb}$  は 0~<0.193  $\mu\text{Sv/year}$  と算出された。

なお,  $^{208}\text{Tl}$  は本 TDS で引用する ICRP Publication に線量換算係数の記載がないために, 線量算出の対象外とした。

本 TDS の結果より, 食品摂取に伴う放射性核種の被ばく寄与は  $^{40}\text{K}$  が一番大きいこと, また  $^{137}\text{Cs}$  と同様に日本国内全 12 地域において大きな差はないことが明らかとなった。

#### $^{90}\text{Sr}$ による被ばく線量評価

4 地域における  $^{90}\text{Sr}$  の年実効線量は 0.28~0.61  $\mu\text{Sv/year}$  の範囲であった。本 TDS による国内 12 地域での  $^{90}\text{Sr}$  の年実効線量は 0.21~0.61  $\mu\text{Sv/year}$  の範囲で平均値±標準偏差は  $0.41 \pm 0.11 \mu\text{Sv/year}$  (C.V.=26.8%) と算定された。この線量推定値は国連科学委員会 2000 年報告 (UNSCEAR 2000) の 0.56  $\mu\text{Sv/year}$  と比較的良い一致を示している。 $^{137}\text{Cs}$  は 4 地域で比較的同レベルにあるが,  $^{90}\text{Sr}$  は長野市と奈良市では他の 2 都市に比べて高い線量にあり奈良市では 2 倍程度である。

#### $^{238}\text{U}$ による被ばく線量評価

4 地域における  $^{238}\text{U}$  の年実効線量は 0.16~0.31  $\mu\text{Sv/year}$  の範囲であった。本 TDS による国内 12 地域での  $^{90}\text{Sr}$  の年実効線量は 0.11~0.38  $\mu\text{Sv/year}$  の範囲で平均値±標準偏差は  $0.21 \pm 0.082 \mu\text{Sv/year}$  (C.V.=39.0%) と算定された。

今回の 4 地域における  $^{238}\text{U}$  の年実効線量の推定値は, UNSCEAR 2000 の 0.14~0.30  $\mu\text{Sv/year}$  あるいは(財)日本分析センターの日本国内調査による日常食の平均値 0.22  $\mu\text{Sv/year}$  (0.09~0.46  $\mu\text{Sv/year}$ ) と同程度にあった。

#### 線量評価総括

用いた年実効線量 ( $\mu\text{Sv/year}$ ) の評価法は, 原子力関連施設等周辺の環境放射能モニタリングで一般的に用いられている比較的簡便な方法を適用したものである。今回, 線量へ換算するためのパラメータの一つである 1 日摂取量 ( $\text{mBq/day}$ ) は, 定量が不可能であった場合の検出下限値もデータとして採用したために過大な評価が与えられることとなる。しかしながら, 本 TDS で検討した被ばく線量は, このことを考慮した上でも一般公衆の線量限度である 1  $\text{mSv/year}$  (ICRP 1990 年勧告) あるいは自然放射性核種の食品摂取に伴い成人が受ける年平均実効線量 0.29  $\text{mSv/year}$  (UNSCEAR 2000) に比較して十分に小さい数値であった。

## D. 結論

### 汚染物摂取量調査

10 機関の協力の下に行われた日常食からの汚染物質摂取量調査研究 (トータルダイエットスタディ) の結果, 食品中有機塩素系農薬, PCB, 有害金属等の摂取量は, 例年通りであり, 特に増加した汚染物は見られなかった。

### 汚染物モニタリング調査

汚染物モニタリング調査においては 47 機関からのデータを収集しデータベース化した。農薬等の意図的汚染物の検出率は, 試料数を基準として 17%であり, 昨年に続き高い検出率となった。これは, ポジティブリスト制の実施を受けて, 広範囲の農薬を検査する方法が一般的になってきたためと考えられる。

### メチル水銀及び水銀試験法の改良

- ・抽出処理したメチル水銀標準溶液の検量

線の各測定値は、無処理のメチル水銀標準溶液の80～89（平均85）%であった。

- この方法を用いると、キハダマグロ筋肉部からのメチル水銀の添加回収率は101%であった。
- キハダマグロ筋肉部中のメチル水銀濃度の5回繰返し試験における変動係数は1.5%であった。
- 4魚種8試料の筋肉中の総水銀に対するメチル水銀含有率は84～100%（平均92%）であった。
- 実試料としてメバチマグロを用いて3機関による共同試験を行った結果、メチル水銀の測定の精度は非常に高いことが示された。この改良法を用いて、多機関での共同試験の実施が可能と考えられた。なお、メバチマグロの場合、総水銀に対するメチル水銀の比率は91～100%と、非常に高い結果となった。

#### 放射性物質摂取量調査

平成18年度に国内4地域（関東Ⅰ，関東Ⅱ，北陸，近畿Ⅱ地域）を対象に食品中の放射性核種の摂取量調査研究（トータルダイエツトスタヂィ；TDS）を実施した。その結果、対象とした放射性核種の1日摂取量は小さく、成人の被ばく線量（年実効線量）への寄与は小さいことが評価された。わが国では、食品中の有害物質の中でも放射性核種の摂取量とその暴露評価に関する知見は限られている。したがって、平成16年度より引き続きTDSを実施したことにより、多種にわたる放射性核種について1日摂取量ならびに被ばく線量に関して一定の科学的評価が可能となった。このことは放射線緊急時等を含めた食品の安全・安心確保、健康危機管理などの政策的対応に

対して一つの基礎資料としての活用が見込まれる。

#### E. 研究発表

##### 1. 論文発表

- J. Kobayashi, H. Terada, H. Sugiyama. Distribution of aluminium in aqueous environments. J. Tsuruma Health Science Society Kanazawa Univ. 30(1) 1-7 (2006).
- H. Sugiyama, H. Terada, M. Takahashi, I. Iijima, K. Isomura Contents and a daily intakes of gamma-ray emitting nuclides, <sup>90</sup>Sr, and <sup>238</sup>U using market-basket studies in Japan. J. Health Sci. 53(1) 107-118 (2007).

##### 2. 学会発表

- 寺田宙，飯島育代，磯村公郎，高橋光子，杉山英男. 日本国内各地域における食事由来の放射性核種量・被ばく線量に関する研究. 日本放射線影響学会第49回大会, 2006;
- 杉山英男，高橋光子，寺田宙，前田千佳，加藤文男. キノコ (*Pleurotus ostreatus*) によるCsの高濃縮性と局在性に関する検討. フォーラム2006 衛生薬学・環境トキシコロジー, 2006

# 分担研究報告

日常食の汚染物摂取量及び汚染物モニタリング調査研究

松田 りえ子

# 厚生労働科学研究費補助金（食品の安心・安全確保推進研究事業） 分担研究報告書

## 日常食の汚染物質摂取量及び汚染物モニタリング調査研究

分担研究者 松田りえ子 国立医薬品食品衛生研究所食品部室長

### 研究要旨

国内に流通している食品に含まれる汚染物質の濃度，及び食事を介した汚染物質の摂取量を明らかにすることを目的として，全国の衛生研究所の協力を得て，汚染物モニタリング調査と，マーケットバスケット方式によるトータルダイエツト試料を用いた汚染物摂取量調査を実施した。

汚染物モニタリングにおいては，全国47カ所での食品中汚染物検査データ32万件を収集し，食品中の汚染物の検出率，複数の汚染物による汚染状況を調査した。汚染物摂取量調査では，全国10カ所で各食品を通常の調理方法に従って調製したトータルダイエツト試料を調製し，その汚染物濃度を測定して，1日当たりの汚染物摂取量を推定した。

### 汚染物摂取量調査協力研究者

高橋哲夫（北海道衛生研究所），酒井洋，土田由里子（新潟県保健環境科学研究所），長谷川康行（千葉県衛生研究所），日高利夫，石井敬子（横浜市衛生研究所），田村征男，加藤陽康（名古屋市衛生研究所），田中之雄，田口修三，（大阪府立公衆衛生研究所），龍野昭彦（滋賀県立衛生科学センター），西岡千鶴，安永恵（香川県環境保健研究センター），玉那覇康二，古謝あゆ子（沖縄県衛生環境研究所），松本比佐志（別府大学）

### 汚染物モニタリング調査協力機関

北海道立衛生研究所，札幌市衛生研究所，函館市衛生試験所，青森県環境保健センタ

一，秋田県健康環境センター，岩手県環境保健研究センター，宮城県保健環境センター，仙台市衛生研究所，山形県衛生研究所福島県衛生研究所，新潟県保健環境科学研究所，新潟市衛生環境研究所，茨城県衛生研究所，栃木県保健環境センター，群馬県衛生環境研究所，埼玉県衛生研究所，東京都健康安全研究センター，神奈川県衛生研究所，横浜市衛生研究所，川崎市衛生研究所，横須賀市健康安全科学センター，山梨県衛生公害研究所，長野県環境保全研究所，静岡県環境衛生科学研究所，富山県衛生研究所，石川県保健環境センター，福井県衛生環境研究センター，愛知県衛生研究所，岐阜県保健環境研究所，三重県科学技術振

興センター保健環境研究部，滋賀県衛生科学センター，京都府保健環境研究所，京都市衛生公害研究所，大阪府立公衆衛生研究所，大阪市立環境科学研究所，堺市衛生研究所，兵庫県立健康環境科学研究所，神戸市環境保健研究所，姫路市環境衛生研究所，尼崎市立衛生研究所，奈良県保健環境研究センター，和歌山県環境衛生研究センター，和歌山市衛生研究所，鳥取県衛生環境研究所，島根県保健環境科学研究所，岡山県環境保健センター，広島県立総合技術研究所保健環境センター，広島市衛生研究所，香川県環境保健研究センター，徳島県保健環境センター，高知県衛生研究所，福岡県保健環境研究所，福岡市保健環境研究所，北九州市環境科学研究所，佐賀県衛生薬業センター，長崎県環境保健研究センター，熊本県保健環境科学研究所，宮崎県衛生環境研究所，鹿児島県環境保健センター，沖縄県衛生環境研究所

## A. 研究目的

近年、魚中の水銀をはじめ種々の化学物質の環境・食品汚染、及びヒトにたいする曝露や健康影響に関する国民の不安が広がり、社会的関心が高まっている。これら化合物のヒトへの曝露はその90%以上が食事を介していると考えられており、食品中の有害物質の量とその分布状態を明らかにして食品の安全性を確保することは、食品衛生における基本課題である。食品中の化学物質分布は非常に不均一であり、汚染状態を正確に把握するためには、多数の食品中の汚染物濃度データを全国的に継続的に収集し、解析しなくてはならない。また、食品中の汚染物へのヒトの曝露状態を把握

するためには、単に個々の食品の濃度のみならず、日本人がその食品をどのくらい食べているかも考慮しなければならない。また、食品を調理加工した場合の汚染物レベルの変化も考慮する必要がある。日常的に摂取される食品の形態に基づいた推定が必要である。本研究では、前者の目的のために、汚染物モニタリング研究、後者の目的のためにマーケットバスケット方式による汚染物摂取量調査研究を行った。

## B. 研究方法

1) 汚染物摂取量調査 全国10カ所でマーケットバスケット方式によるトータルダイエツト試料を調製した。各食品の摂取量は、平成13年度～15年度に行われた国民栄養調査の結果を地域別に集計した結果の平均値とした。各地の小売店から食品を購入し、茹でる、焼く等の一般的な調理を行ってから、一日当たりの摂取量に従って混合して試料とし、重金属、農薬等の汚染物濃度を測定した。汚染物の濃度と食品の摂取量から、人1日あたりの食事からの汚染物摂取量を推定した。

2) 汚染物モニタリング調査 全国47カ所の地方衛生研究所から食品中の汚染物分析データ38万件を収集した。収集はあらかじめ入力用のフォームを入れたフロッピーディスクに入力する形式で行った。入力用フォームには、誤入力をチェックするプログラム(Microsoft Excel VBA)を含めておき、各協力者があらかじめ誤入力をチェックした後に送付し、無効なデータが入らないようにした。

国立医薬品食品衛生研究所食品部に送付されたデータは再度エラーチェックを行い

集計した後、食品部サーバー上に構築したデータベースに追加した。

## C. 研究結果

### 1) 汚染物摂取量調査

**Table 1** に全参加機関から報告された、ヘキサクロロシクロヘキサン(HCH)類、DDT類、ディルドリン、ヘプタクロルエポキシサイド、HCB、PCB、有機リン系農薬類(マラチオン、MEP、ダイアジノン)、金属類(鉛、カドミウム、ヒ素、水銀、銅、マンガン、亜鉛)の総摂取量の2002~2006年の年次推移を示す。代表値として、10箇所の平均値(mean)と中央値(median)を示した。平均値については、汚染物濃度が定量下限以下(ND)の場合に濃度を0として計算した場合(ND=0)と、定量下限の1/2の濃度とした場合(ND=1/2LQ)の二種類を示した。

HCH類の中で摂取量の多い $\alpha$ 及び $\beta$  HCH摂取量の平均値は2002年~2004年に低下傾向を示したが、2005年は $\beta$  HCHがやや増加し、2006年には $\alpha$ 、 $\beta$ 共に増加した。 $\alpha$ -HCHは5機関で、 $\beta$ -HCHは4機関で検出された。一方、 $\gamma$  HCHの摂取量は2004年に高値を示したが2005及び2006年には例年通りの値となった。 $\delta$ -HCHを検出した機関はなかった。総HCH摂取量は $\alpha$ 及び $\beta$ 体摂取量の増加により2004年の値よりも高くなり、他の年の倍程度となった。

2002~2006年の間の総DDT摂取量の平均値は概ね一定であった。異性体中では、p,p'-DDEの摂取量が最も高く、10機関中9機関で検出された。ディルドリン摂取量は2005年と同程度であった。ヘプタクロルエポキシサイドは2005年に続いて高い摂取量となったが、一箇所の機関が大きな摂取量を

報告したための増加であり、中央値は0であった。HCB摂取量は2004年にはやや高かったが、本年度は例年通りの値であった。PCB摂取量は2005年に1  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ に近い値を示したが、本年度は例年通りの摂取量となった。

有機リン系農薬のマラチオンとMEPはそれぞれ1機関で検出され、ダイアジノンは全ての機関で検出されなかった。例年検出の頻度は低く、摂取量の中央値は5年間を通じて0  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ であった。

金属類中、鉛摂取量は2004年に例年より25%程度が増加したが、2005及び2006年は例年通りの値となった。カドミウム摂取量にはやや低下の傾向がみられ、2006年もこの傾向が続いている。水銀の摂取量も5年間を通して最低となった。

**Table 2**に、各汚染物の食品群別摂取量を、**Table 3**には地域別比較を示す。また、**Figure 1**には汚染物の摂取量を食品群別毎にグラフで示した。HCHは魚介類、肉類、砂糖・菓子類から、DDTは魚介類、肉類乳製品から摂取されている。ディルドリンは有色以外の野菜類及び魚介類から、ヘプタクロルエポキシサイドは有色野菜から、HCBは魚介類と有色野菜から摂取されている。PCBはDDTと同様に主として魚介の群から摂取され、肉・卵類からも僅かに摂取されている。

鉛及びカドミウムは米からの摂取が最も多く、他の食品群からも少しずつ摂取されている。一方、水銀の主要な摂取源は魚介類であり、他の食品群からの摂取はほとんど見られない。ヒ素は野菜海草、魚介類及び米からの摂取が多かった。

### 2) 汚染物モニタリング調査

2003年から2006年に報告されたデータ数、汚染物検出状況を **Table 4** に示した。本年度は 382,746 件のデータが報告され、食品部サーバーには累計約 400 万件以上のデータが保存されている。報告件数は過去 4 年間で最高となった。

何らかの汚染物が検出されたデータは 4,882 件あり、検出率は 1.3 %で最近 4 年間で最も低率であった。また、報告されたデータの総試料数は 9,296 件であり、このうち何らかの汚染物が検出された試料は 2,535 あった。試料数が 2004 年を境に半分程度に低下しているにもかかわらず、検査数は増加していることから、1 試料当たり検査された汚染物数が増えていると考えられる。試料数を基本とした検出率は 27.3 %となった。2003 年から 2006 年まで、検出率は低下しているが、試料をベースとした検出率は 2005 年から大きく増加した。1 試料当たり分析する汚染物が増えているため、検出率が増加したと考えられる。ポジティブリスト制度の施行に伴い、GC/MS あるいは LC/MS により多数の農薬等を一齐に分析できる方法が普及したことから、1 試料あたりの農薬等の検査が増加したものと考えられる。

検査された汚染物は 592 種類であり、昨年より 80 種増加している。そのうち、農薬・動物薬等の意図的汚染物が 523 種類であり、新たに分析されるようになった汚染物は、ほとんどが農薬・動物薬であり、年々検査対象となる農薬は増加している。農薬等に限定した試料ベースの検出率は 16.9 %で、昨年度と同じ。

検査数の多い食品を **Table 5** に示す。2005 年から、野菜・果実の検査数が減少した結

果、卵・肉のような畜産製品が相対的に上位となっている。検査数の多い野菜は、ねぎ、ブロッコリー、キャベツ等であった。

農薬等の検出率の高い食品は、西洋なし(76.2%)、りんご(68.3%)、オレンジ(61.9%)、レモン(59.4%)、スイーティ(57.1%)、グレープフルーツ(56.4%)、ピーマン(50.0%)、桜桃(50.0%)、日本なし(45.5%)、いちご(45.3%)で、柑橘類を含め果実が主であった。西洋なしでは、フェンプロパトリン・クロルピリホス・クレソキシムメチルが、日本なしではシペルメトリン・クレソキシムメチルが高頻度で検出された。りんごでは、フェンプロパトリン・キャプタン・クロルピリホス・クレソキシムメチル・カルベンダジムが検出され、果実でクレソキシムメチルの検出が目立った。ピーマンでは、クロルフェナピル・プロシミドンの検出が目立った。オレンジ等の柑橘類ではイマザリル・チアベンダゾール、オルトフェニルフェノール等の他にクロルピリホスが高率に検出された。

1 検体当たり多くの農薬が検出された野菜・果実の例を **Table 6** に示す。複数残留が多く見られた作物は、なし、リンゴが多く、他にトマト、セロリ、未成熟インゲンであった。

検査数の多い汚染物を **Table 7** に示す。平成 16 年度のデータと同様にクロルピリホス、マラチオン、フェニトロチオン、等の有機リン系農薬、ペルメトリン、シペルメトリン等のピレスロイド系農薬の検査数が多かった。

検出率の高い汚染物は、水銀、カドミウム、PCB、有機スズ、ヒ素等の環境汚染に関連する物質で、これらは魚介を中心とし