

した試料から高率で検出されている。Table 8には検出率の高かった農薬等を示す。クロルデン類の検出率は17%程度、オルトフェニルフェノール(OPP)、イマザリルが10%程度の検出率であった。他の検出率の高い農薬は、アセタミプリド、イミダクロプリド、アゾキシストロピン、クレソキシムメチル等で、検査数の多い有機リン系農薬はクロルピリホスを除いて検出率はあまり高くなかった。

#### D. 結論

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、PCB、金属等の摂取量は、概ね例年通りであった。ほとんどの試料で検出されていない、有機塩素系農薬及び有機リン系農薬では、 $ND=0$ として計算した摂取量の平均値が減少している一方、 $ND=LQ/2$ として計算した値は逆に増加した。これは定量限界が高い濃度に設定されていることが原因であり、調査結果の信頼性を確保するためには、定量限界の設定を実際の汚染状況を勘案してある程度以下に統一する必要があると考えられた。

汚染物モニタリング調査においては45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20.1%であり、2007年よりやや高い検出率であった。全検査数に対する検出率は減少傾向にあるが、試料数を基準とした検出率は上昇しており、ポジティブリスト制に伴い公開された一斉試験法が検査に導入されるに伴い、広範囲の農薬等を一斉に検査する方法が一般的になってきたためと考えられる。

#### E. 研究発表

##### 1. 論文発表

なし

##### 2. 学会発表

- 1) 渡邊敬浩, 松田りえ子, 五十嵐敦子, 米谷民雄: トータルダイエットスタディーにより推定される有害物質摂取量の推移, 日本食品化学学会第14回学術大会(2008.5)

##### 3. その他

トータルダイエット試料を用いた食品汚染物の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

Table 1 污染物摄入量年次推移

LQ: 各機関独自, 単位:  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 

| YEAR          | MEAN  |          |       |          |       |          |       |          |       |          |       |          | MEDIAN |          |       |          |       |          | ADI (FAO/WHO)<br>$\mu\text{g}/50\text{kg}$ |       |          |       |       |       |        |
|---------------|-------|----------|-------|----------|-------|----------|-------|----------|-------|----------|-------|----------|--------|----------|-------|----------|-------|----------|--|-------|----------|-------|-------|-------|--------|
|               | 2004  |          | 2005  |          | 2006  |          | 2007  |          | 2008  |          | 2004  |          | 2005   |          | 2006  |          | 2007  |          |  | 2008  |          |       |       |       |        |
|               | ND=0  | ND=1/2LQ | ND=0  | ND=1/2LQ | ND=0  | ND=1/2LQ | ND=0  | ND=1/2LQ | ND=0  | ND=1/2LQ | ND=0  | ND=1/2LQ | ND=0   | ND=1/2LQ | ND=0  | ND=1/2LQ | ND=0  | ND=1/2LQ |  | ND=0  | ND=1/2LQ |       |       |       |        |
| 機関数           | 9     |          | 9     |          | 10    |          | 10    |          | 10    |          | 10    |          | 10     |          | 9     |          | 9     |          | 9  |       | 10       |       | 10    |       | 10     |
| $\alpha$ -HCH | 0.008 | 0.117    | 0.006 | 0.166    | 0.022 | 0.190    | 0.011 | 0.343    | 0.012 | 0.164    | 0.012 | 0.164    | 0.011  | 0.343    | 0.000 | 0.013    | 0.000 | 0.013    | 0.000                                      | 0.000 | 0.000    | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000  |
| $\beta$ -HCH  | 0.007 | 0.116    | 0.019 | 0.177    | 0.029 | 0.197    | 0.019 | 0.349    | 0.024 | 0.174    | 0.024 | 0.174    | 0.019  | 0.349    | 0.000 | 0.000    | 0.000 | 0.000    | 0.000                                      | 0.000 | 0.000    | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000  |
| $\gamma$ -HCH | 0.045 | 0.154    | 0.007 | 0.168    | 0.013 | 0.183    | 0.004 | 0.336    | 0.005 | 0.157    | 0.005 | 0.157    | 0.004  | 0.336    | 0.000 | 0.000    | 0.000 | 0.000    | 0.000                                      | 0.000 | 0.000    | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000  |
| $\delta$ -HCH | 0.000 | 0.110    | 0.000 | 0.161    | 0.000 | 0.172    | 0.000 | 0.333    | 0.000 | 0.153    | 0.000 | 0.153    | 0.000  | 0.333    | 0.000 | 0.000    | 0.000 | 0.000    | 0.000                                      | 0.000 | 0.000    | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000  |
| total-HCH     | 0.060 | 0.167    | 0.032 | 0.185    | 0.064 | 0.231    | 0.034 | 0.364    | 0.041 | 0.188    | 0.041 | 0.188    | 0.034  | 0.364    | 0.000 | 0.018    | 0.000 | 0.018    | 0.000                                      | 0.000 | 0.000    | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.0125 |
| p,p'-DDT      | 0.049 | 0.173    | 0.063 | 0.234    | 0.077 | 0.257    | 0.071 | 0.425    | 0.070 | 0.231    | 0.070 | 0.231    | 0.071  | 0.425    | 0.044 | 0.064    | 0.044 | 0.064    | 0.044                                      | 0.044 | 0.044    | 0.044 | 0.044 | 0.044 | 0.074  |
| p,p'-DDE      | 0.174 | 0.290    | 0.128 | 0.291    | 0.179 | 0.349    | 0.171 | 0.507    | 0.151 | 0.303    | 0.151 | 0.303    | 0.171  | 0.507    | 0.164 | 0.191    | 0.164 | 0.191    | 0.164                                      | 0.164 | 0.164    | 0.164 | 0.164 | 0.164 | 0.144  |
| p,p'-DDD      | 0.054 | 0.177    | 0.022 | 0.197    | 0.046 | 0.229    | 0.053 | 0.409    | 0.052 | 0.227    | 0.052 | 0.227    | 0.053  | 0.409    | 0.047 | 0.031    | 0.047 | 0.031    | 0.047                                      | 0.047 | 0.047    | 0.047 | 0.047 | 0.047 | 0.057  |
| o,p'-DDT      | 0.010 | 0.233    | 0.010 | 0.185    | 0.025 | 0.303    | 0.018 | 0.467    | 0.014 | 0.277    | 0.014 | 0.277    | 0.018  | 0.467    | 0.000 | 0.014    | 0.000 | 0.014    | 0.000                                      | 0.000 | 0.000    | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.007  |
| total-DDT     | 0.286 | 0.402    | 0.223 | 0.362    | 0.330 | 0.490    | 0.314 | 0.656    | 0.283 | 0.442    | 0.283 | 0.442    | 0.314  | 0.656    | 0.271 | 0.266    | 0.271 | 0.266    | 0.271                                      | 0.271 | 0.271    | 0.271 | 0.271 | 0.271 | 0.269  |
| Dieldrin      | 0.090 | 0.324    | 0.053 | 0.333    | 0.053 | 0.334    | 0.037 | 0.399    | 0.060 | 0.238    | 0.060 | 0.238    | 0.037  | 0.399    | 0.011 | 0.000    | 0.011 | 0.000    | 0.011                                      | 0.011 | 0.011    | 0.011 | 0.011 | 0.011 | 0.004  |
| Hep-Epoxide   | 0.016 | 0.124    | 0.046 | 0.199    | 0.068 | 0.236    | 0.024 | 0.353    | 0.029 | 0.180    | 0.029 | 0.180    | 0.024  | 0.353    | 0.000 | 0.000    | 0.000 | 0.000    | 0.000                                      | 0.000 | 0.000    | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000  |
| HCB           | 0.071 | 0.221    | 0.021 | 0.224    | 0.033 | 0.240    | 0.011 | 0.383    | 0.015 | 0.208    | 0.015 | 0.208    | 0.011  | 0.383    | 0.022 | 0.017    | 0.022 | 0.017    | 0.022                                      | 0.022 | 0.022    | 0.022 | 0.022 | 0.022 | 0.008  |
| PCB           | 0.619 | 1.637    | 0.998 | 2.033    | 0.529 | 1.595    | 0.480 | 1.488    | 0.517 | 1.493    | 0.517 | 1.493    | 0.480  | 1.488    | 0.379 | 0.572    | 0.379 | 0.572    | 0.379                                      | 0.379 | 0.379    | 0.379 | 0.379 | 0.379 | 0.435  |
| Malathion     | 4.426 | 6.256    | 0.000 | 1.812    | 0.019 | 2.958    | 0.069 | 3.445    | 0.045 | 1.696    | 0.045 | 1.696    | 0.069  | 3.445    | 0.000 | 0.000    | 0.000 | 0.000    | 0.000                                      | 0.000 | 0.000    | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000  |
| MEP           | 0.020 | 1.902    | 0.000 | 1.821    | 0.011 | 2.903    | 0.000 | 3.562    | 0.008 | 1.848    | 0.008 | 1.848    | 0.011  | 2.903    | 0.000 | 0.000    | 0.000 | 0.000    | 0.000                                      | 0.000 | 0.000    | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000  |
| Diazinon      | 0.027 | 1.767    | 0.000 | 1.694    | 0.000 | 1.951    | 0.333 | 3.560    | 0.000 | 1.672    | 0.000 | 1.672    | 0.333  | 3.560    | 0.000 | 0.000    | 0.000 | 0.000    | 0.000                                      | 0.000 | 0.000    | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000  |
| Pb            | 26.8  | 30.3     | 20.8  | 26.2     | 21.1  | 28.9     | 32.0  | 39.7     | 18.2  | 30.6     | 18.2  | 30.6     | 32.0   | 39.7     | 27.0  | 17.1     | 27.0  | 17.1     | 27.0                                       | 27.0  | 27.0     | 27.0  | 27.0  | 27.0  | 15.8   |
| Cd            | 21.6  | 22.2     | 22.3  | 22.7     | 18.9  | 20.0     | 21.1  | 22.1     | 22.9  | 23.4     | 22.9  | 23.4     | 21.1   | 22.1     | 22.3  | 19.3     | 22.3  | 19.3     | 22.3                                       | 22.3  | 22.3     | 22.3  | 22.3  | 22.3  | 22.8   |
| Hg            | 8.5   | 9.4      | 9.5   | 10.7     | 7.5   | 9.5      | 7.3   | 8.9      | 8.5   | 10.5     | 8.5   | 10.5     | 7.3    | 8.9      | 8.0   | 8.8      | 8.0   | 8.8      | 8.0  | 8.0   | 8.0      | 8.0   | 8.0   | 8.0   | 8.5    |
| As            | 160   | 164      | 178   | 184      | 183   | 188      | 145   | 150      | 183   | 186      | 183   | 186      | 145    | 150      | 152   | 157      | 152   | 157      | 152  | 152   | 152      | 152   | 152   | 152   | 214    |
| Cu            | 1504  | 1506     | 1223  | 1226     | 1270  | 1272     | 1135  | 1139     | 1214  | 1217     | 1214  | 1217     | 1135   | 1139     | 1241  | 1140     | 1241  | 1140     | 1241                                       | 1241  | 1241     | 1241  | 1241  | 1241  | 1202   |
| Mn            | 3971  | 3974     | 3769  | 3771     | 3760  | 3761     | 3395  | 3396     | 3570  | 3571     | 3570  | 3571     | 3395   | 3396     | 3513  | 3732     | 3513  | 3732     | 3513                                       | 3513  | 3513     | 3513  | 3513  | 3513  | 3398   |
| Zn            | 9433  | 9434     | 8884  | 8884     | 8731  | 8737     | 8425  | 8434     | 7983  | 7992     | 7983  | 7992     | 8425   | 8434     | 8807  | 8735     | 8807  | 8735     | 8807                                       | 8807  | 8807     | 8807  | 8807  | 8807  | 7864   |



Table 2-1 污染物摄入量食品群別比較

| 汚染物              | ND=0 LQ=各機関独自 単位= $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ |            |       |        |       |       |       |       |        |       |       |       |       |       |       |
|------------------|---|------------|-------|--------|-------|-------|-------|-------|--------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|
|                  | I   | II         | III   | IV     | V     | VI    | VII   | VIII  | IX     | X     | XI    | XII   | XIII  | XIV   | Total |
|                  | 米   | 雑穀・芋・砂糖・菓子 | 油脂    | 豆・豆加工品 | 果実    | 有色野菜  | 野菜海草  | 嗜好品   | 魚介     | 肉・卵   | 乳・乳製品 | 加工食品  | 飲料水   |       |       |
| $\alpha$ -HCH    | 0.000   | 0.000      | 0.000 | 0.000  | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.012  | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.012 |
| $\beta$ -HCH     | 0.000   | 0.000      | 0.000 | 0.000  | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.018  | 0.005 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.024 |
| $\gamma$ -HCH    | 0.000   | 0.000      | 0.000 | 0.000  | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.005  | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.005 |
| $\delta$ -HCH    | 0.000   | 0.000      | 0.000 | 0.000  | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000  | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 |
| Total-HCH        | 0.000   | 0.000      | 0.000 | 0.000  | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.036  | 0.005 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.041 |
| P,p'-DDT         | 0.000   | 0.000      | 0.000 | 0.000  | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.060  | 0.008 | 0.000 | 0.002 | 0.000 | 0.000 | 0.070 |
| P,p'-DDE         | 0.000   | 0.000      | 0.000 | 0.001  | 0.000 | 0.000 | 0.002 | 0.000 | 0.100  | 0.016 | 0.033 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.151 |
| P,p'-DDD         | 0.000   | 0.000      | 0.000 | 0.000  | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.050  | 0.002 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.051 |
| $\alpha$ ,p'-DDT | 0.000   | 0.000      | 0.000 | 0.000  | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.014  | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.014 |
| Total-DDT        | 0.000   | 0.000      | 0.000 | 0.001  | 0.000 | 0.000 | 0.002 | 0.000 | 0.219  | 0.025 | 0.033 | 0.003 | 0.000 | 0.000 | 0.283 |
| Dieldrin         | 0.000   | 0.000      | 0.000 | 0.000  | 0.001 | 0.000 | 0.000 | 0.038 | 0.021  | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.060 |
| Hep. Epoxide     | 0.000   | 0.000      | 0.000 | 0.000  | 0.000 | 0.000 | 0.001 | 0.027 | 0.000  | 0.001 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.029 |
| HCB              | 0.000   | 0.000      | 0.000 | 0.000  | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.015  | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.015 |
| PCB              | 0.000   | 0.000      | 0.000 | 0.000  | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.502  | 0.015 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.517 |
| Malathion        | 0.000   | 0.018      | 0.000 | 0.000  | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000  | 0.000 | 0.015 | 0.012 | 0.000 | 0.000 | 0.045 |
| MEP              | 0.000   | 0.000      | 0.000 | 0.008  | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000  | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.008 |
| Diazinon         | 0.000   | 0.000      | 0.000 | 0.000  | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000  | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 |
| Pb               | 6.40  | 0.56       | 0.30  | 0.09   | 0.74  | 0.91  | 1.28  | 2.60  | 1.36   | 1.32  | 1.84  | 0.75  | 0.00  | 0.00  | 18.2  |
| Cd               | 8.40  | 2.39       | 0.44  | 0.00   | 1.16  | 0.15  | 1.56  | 3.61  | 3.19   | 0.17  | 1.05  | 0.73  | 0.00  | 0.00  | 22.9  |
| Hg               | 0.48  | 0.00       | 0.01  | 0.00   | 0.00  | 0.00  | 0.00  | 0.00  | 7.83   | 0.13  | 0.00  | 0.01  | 0.00  | 0.00  | 8.5   |
| As               | 10.63   | 0.85       | 0.46  | 0.01   | 0.26  | 0.16  | 0.12  | 57.18 | 108.20 | 0.52  | 0.16  | 3.34  | 0.17  | 0.00  | 183   |
| Cu               | 350   | 156        | 41    | 0      | 156   | 52    | 44    | 79    | 122    | 115   | 10    | 58    | 0     | 0     | 1214  |
| Mn               | 972   | 462        | 84    | 0      | 374   | 139   | 164   | 252   | 640    | 48    | 4     | 409   | 0     | 0     | 3570  |
| Zn               | 2204  | 603        | 152   | 1      | 553   | 77    | 280   | 408   | 823    | 1794  | 547   | 367   | 4     | 4     | 7983  |

Table 2-2 污染物攝取量食品群別比較

| 汚染物           | LQ=各機關獨自 單位= $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ |       |       |       |        |       |       |       |       |        |       |       |       |       |       |
|---------------|--|-------|-------|-------|--------|-------|-------|-------|-------|--------|-------|-------|-------|-------|-------|
|               | I  | II    | III   | IV    | V      | VI    | VII   | VIII  | IX    | X      | X I   | X II  | X III | X IV  | Total |
|               | 米  | 雜穀・芋  | 砂糖・菓子 | 油脂    | 豆・豆加工品 | 果実    | 有色野菜  | 野菜海草  | 嗜好品   | 魚介     | 肉・卵   | 乳・乳製品 | 加工食品  | 飲料水   |       |
| $\alpha$ -HCH | 0.028  | 0.014 | 0.002 | 0.003 | 0.004  | 0.008 | 0.006 | 0.013 | 0.041 | 0.116  | 0.008 | 0.010 | 0.007 | 0.002 | 0.164 |
| $\beta$ -HCH  | 0.028  | 0.014 | 0.002 | 0.003 | 0.004  | 0.008 | 0.006 | 0.013 | 0.041 | 0.022  | 0.012 | 0.010 | 0.007 | 0.002 | 0.174 |
| $\gamma$ -HCH | 0.028  | 0.014 | 0.002 | 0.003 | 0.004  | 0.008 | 0.006 | 0.013 | 0.041 | 0.010  | 0.008 | 0.010 | 0.007 | 0.002 | 0.157 |
| $\delta$ -HCH | 0.028  | 0.014 | 0.002 | 0.003 | 0.004  | 0.008 | 0.006 | 0.013 | 0.041 | 0.006  | 0.008 | 0.010 | 0.007 | 0.002 | 0.153 |
| Total-HCH     | 0.028  | 0.014 | 0.002 | 0.003 | 0.004  | 0.009 | 0.006 | 0.013 | 0.041 | 0.036  | 0.012 | 0.010 | 0.007 | 0.002 | 0.188 |
| p, p'-DDT     | 0.032  | 0.015 | 0.003 | 0.004 | 0.005  | 0.009 | 0.007 | 0.015 | 0.047 | 0.056  | 0.016 | 0.011 | 0.009 | 0.003 | 0.231 |
| p, p'-DDE     | 0.030  | 0.014 | 0.003 | 0.005 | 0.005  | 0.009 | 0.008 | 0.014 | 0.044 | 0.100  | 0.022 | 0.039 | 0.007 | 0.004 | 0.303 |
| p, p'-DDD     | 0.032  | 0.015 | 0.003 | 0.004 | 0.005  | 0.009 | 0.007 | 0.015 | 0.047 | 0.053  | 0.010 | 0.011 | 0.008 | 0.004 | 0.223 |
| o, p'-DDT     | 0.049  | 0.024 | 0.004 | 0.005 | 0.008  | 0.015 | 0.011 | 0.025 | 0.071 | 0.018  | 0.013 | 0.017 | 0.012 | 0.005 | 0.277 |
| Total-DDT     | 0.032  | 0.015 | 0.003 | 0.005 | 0.005  | 0.009 | 0.008 | 0.015 | 0.047 | 0.220  | 0.031 | 0.039 | 0.010 | 0.003 | 0.442 |
| Dieldrin      | 0.034  | 0.016 | 0.003 | 0.005 | 0.006  | 0.010 | 0.008 | 0.049 | 0.049 | 0.026  | 0.009 | 0.012 | 0.008 | 0.003 | 0.238 |
| Hep. Epoxide  | 0.028  | 0.014 | 0.002 | 0.003 | 0.004  | 0.008 | 0.007 | 0.039 | 0.041 | 0.007  | 0.008 | 0.010 | 0.007 | 0.002 | 0.180 |
| HCB           | 0.036  | 0.018 | 0.003 | 0.004 | 0.006  | 0.010 | 0.008 | 0.018 | 0.051 | 0.020  | 0.010 | 0.012 | 0.009 | 0.004 | 0.208 |
| PCB           | 0.183  | 0.091 | 0.015 | 0.114 | 0.026  | 0.044 | 0.034 | 0.083 | 0.217 | 0.502  | 0.049 | 0.061 | 0.048 | 0.026 | 1.493 |
| Malathion     | 0.341  | 0.182 | 0.029 | 0.019 | 0.043  | 0.082 | 0.066 | 0.141 | 0.401 | 0.074  | 0.091 | 0.120 | 0.075 | 0.033 | 1.696 |
| MEP           | 0.369  | 0.184 | 0.032 | 0.027 | 0.047  | 0.090 | 0.072 | 0.154 | 0.449 | 0.078  | 0.098 | 0.122 | 0.074 | 0.051 | 1.848 |
| Diazinon      | 0.341  | 0.172 | 0.029 | 0.019 | 0.043  | 0.082 | 0.066 | 0.141 | 0.401 | 0.074  | 0.091 | 0.113 | 0.067 | 0.033 | 1.672 |
| Pb            | 8.32   | 1.92  | 0.49  | 0.14  | 1.12   | 1.59  | 1.73  | 3.53  | 4.00  | 1.68   | 1.81  | 2.75  | 1.24  | 0.24  | 30.6  |
| Cd            | 8.40   | 2.39  | 0.45  | 0.01  | 1.16   | 0.20  | 1.56  | 3.61  | 3.34  | 3.19   | 0.21  | 1.12  | 0.73  | 0.03  | 23.4  |
| Hg            | 0.82   | 0.21  | 0.04  | 0.03  | 0.07   | 0.11  | 0.09  | 0.18  | 0.55  | 7.83   | 0.20  | 0.13  | 0.09  | 0.13  | 10.5  |
| As            | 10.63  | 1.28  | 0.52  | 0.06  | 0.41   | 0.44  | 0.34  | 57.18 | 2.13  | 108.20 | 0.69  | 0.50  | 3.49  | 0.48  | 186   |
| Cu            | 350  | 156   | 41    | 1     | 156    | 52    | 44    | 79    | 32    | 122    | 115   | 10    | 58    | 1     | 1217  |
| Mn            | 972  | 462   | 84    | 1     | 374    | 139   | 164   | 252   | 640   | 48     | 21    | 5     | 409   | 1     | 3571  |
| Zn            | 2204   | 603   | 152   | 1     | 553    | 77    | 280   | 408   | 178   | 823    | 1794  | 547   | 367   | 5     | 7992  |



Table 3-1 汚染物摂取量地域別比較

| 汚染物          | ND=0 LQ=各機関独自 |       |        |       |       |       |       |       |       |       |       | 単位=μg/man/day |        |        |  |
|--------------|---------------|-------|--------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|---------------|--------|--------|--|
|              | 北海道           | 新潟    | 東京     | 横浜    | 名古屋   | 大阪    | 滋賀    | 香川    | 別府    | 沖縄    | MEAN  | S. D          | MEDIAN | 90%ile |  |
| α-HCH        | 0.038         | 0.026 | 0.026  | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.033 | 0.000 | 0.012 | 0.015         | 0.000  | 0.033  |  |
| β-HCH        | 0.051         | 0.000 | 0.066  | 0.052 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.068 | 0.000 | 0.024 | 0.029         | 0.000  | 0.066  |  |
| γ-HCH        | 0.000         | 0.000 | 0.0085 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.042 | 0.000 | 0.005 | 0.013         | 0.000  | 0.012  |  |
| δ-HCH        | 0.000         | 0.000 | 0.000  | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000         | 0.000  | 0.000  |  |
| Total-HCH    | 0.089         | 0.026 | 0.100  | 0.052 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.143 | 0.000 | 0.041 | 0.050         | 0.013  | 0.104  |  |
| p,p'-DDT     | 0.102         | 0.039 | 0.117  | 0.098 | 0.038 | 0.074 | 0.074 | 0.054 | 0.109 | 0.000 | 0.070 | 0.036         | 0.074  | 0.11   |  |
| p,p'-DDE     | 0.348         | 0.166 | 0.291  | 0.073 | 0.121 | 0.156 | 0.069 | 0.138 | 0.151 | 0.000 | 0.151 | 0.098         | 0.14   | 0.30   |  |
| p,p'-DDD     | 0.128         | 0.066 | 0.085  | 0.083 | 0.039 | 0.049 | 0.000 | 0.000 | 0.064 | 0.000 | 0.052 | 0.041         | 0.06   | 0.09   |  |
| o,p'-DDT     | 0.026         | 0.013 | 0.026  | 0.000 | 0.000 | 0.025 | 0.000 | 0.000 | 0.048 | 0.000 | 0.014 | 0.016         | 0.01   | 0.03   |  |
| Total-DDT    | 0.603         | 0.285 | 0.518  | 0.253 | 0.197 | 0.304 | 0.069 | 0.192 | 0.406 | 0.000 | 0.283 | 0.178         | 0.27   | 0.53   |  |
| Dieldrin     | 0.091         | 0.245 | 0.199  | 0.000 | 0.000 | 0.008 | 0.000 | 0.000 | 0.058 | 0.000 | 0.060 | 0.087         | 0.004  | 0.20   |  |
| Hep. Epoxide | 0.000         | 0.010 | 0.278  | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.029 | 0.083         | 0.00   | 0.04   |  |
| HCB          | 0.051         | 0.000 | 0.045  | 0.021 | 0.015 | 0.016 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.015 | 0.018         | 0.01   | 0.05   |  |
| PCB          | 0.639         | 0.344 | 0.340  | 0.451 | 1.204 | 0.419 | 0.725 | 0.501 | 0.298 | 0.248 | 0.517 | 0.269         | 0.43   | 0.77   |  |
| Malathion    | 0.000         | 0.000 | 0.000  | 0.307 | 0.146 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.045 | 0.097         | 0.00   | 0.162  |  |
| MEP          | 0.000         | 0.027 | 0.055  | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.008 | 0.018         | 0.00   | 0.029  |  |
| Diazinon     | 0.000         | 0.000 | 0.000  | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000 | 0.000         | 0.00   | 0.000  |  |
| Pb           | 17.8          | 26.6  | 13.8   | 7.5   | 0.0   | 28.8  | 5.5   | 7.1   | 55.8  | 19.1  | 18.2  | 15.33         | 15.8   | 31.5   |  |
| Cd           | 20.8          | 12.3  | 30.4   | 27.6  | 8.5   | 33.5  | 23.6  | 18.2  | 22.0  | 31.7  | 22.9  | 7.85          | 22.8   | 31.9   |  |
| Hg           | 9.4           | 3.4   | 11.4   | 12.5  | 15.2  | 4.4   | 8.8   | 5.9   | 8.2   | 5.4   | 8.5   | 3.59          | 8.5    | 12.8   |  |
| As           | 237           | 24    | 258    | 163   | 57    | 73    | 297   | 290   | 206   | 223   | 183   | 94            | 214    | 290    |  |
| Cu           | 1309          | 1500  | 1376   | 1193  | 871   | 1131  | 1299  | 1052  | 1207  | 1197  | 1214  | 166           | 1202   | 1388   |  |
| Mn           | 3611          | 3127  | 3428   | 4399  | 2859  | 3775  | 4585  | 3243  | 3301  | 3368  | 3570  | 520           | 3398   | 4418   |  |
| Zn           | 8893          | 6940  | 9353   | 9435  | 7152  | 7933  | 7794  | 7996  | 6853  | 7478  | 7983  | 903           | 7864   | 9361   |  |

Table 3-2 汚染物摂取量地域別比較

| 汚染物          | ND=1/2LQ LQ=各機関独自 |       |       |       |       |       |       |       |       |       | 単位=μg/man/day |       |        |        |
|--------------|-------------------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|---------------|-------|--------|--------|
|              | 北海道               | 新潟    | 東京    | 横浜    | 名古屋   | 大阪    | 滋賀    | 香川    | 別府    | 神郷    | MEAN          | S.D   | MEDIAN | 90%ile |
| α-HCH        | 0.140             | 0.126 | 0.146 | 0.106 | 0.099 | 0.115 | 0.526 | 0.132 | 0.141 | 0.106 | 0.164         | 0.122 | 0.129  | 0.184  |
| β-HCH        | 0.153             | 0.104 | 0.181 | 0.154 | 0.099 | 0.115 | 0.526 | 0.132 | 0.171 | 0.106 | 0.174         | 0.121 | 0.142  | 0.215  |
| γ-HCH        | 0.108             | 0.104 | 0.129 | 0.106 | 0.099 | 0.115 | 0.526 | 0.132 | 0.150 | 0.106 | 0.157         | 0.124 | 0.111  | 0.188  |
| δ-HCH        | 0.108             | 0.104 | 0.125 | 0.106 | 0.099 | 0.115 | 0.526 | 0.132 | 0.112 | 0.106 | 0.153         | 0.125 | 0.110  | 0.171  |
| Total-HCH    | 0.153             | 0.126 | 0.215 | 0.157 | 0.099 | 0.115 | 0.526 | 0.132 | 0.252 | 0.106 | 0.188         | 0.122 | 0.142  | 0.279  |
| p,p'-DDT     | 0.204             | 0.139 | 0.232 | 0.292 | 0.133 | 0.180 | 0.526 | 0.179 | 0.212 | 0.212 | 0.231         | 0.107 | 0.208  | 0.32   |
| p,p'-DDE     | 0.435             | 0.166 | 0.397 | 0.262 | 0.217 | 0.267 | 0.574 | 0.256 | 0.247 | 0.212 | 0.303         | 0.119 | 0.26   | 0.45   |
| p,p'-DDD     | 0.230             | 0.166 | 0.205 | 0.287 | 0.145 | 0.160 | 0.526 | 0.132 | 0.167 | 0.212 | 0.223         | 0.110 | 0.19   | 0.31   |
| o,p'-DDT     | 0.127             | 1.011 | 0.146 | 0.211 | 0.111 | 0.135 | 0.524 | 0.132 | 0.156 | 0.212 | 0.277         | 0.270 | 0.15   | 0.57   |
| Total-DDT    | 0.691             | 0.369 | 0.624 | 0.440 | 0.279 | 0.415 | 0.574 | 0.310 | 0.502 | 0.212 | 0.442         | 0.148 | 0.43   | 0.63   |
| Dieldrin     | 0.180             | 0.423 | 0.309 | 0.211 | 0.099 | 0.119 | 0.526 | 0.132 | 0.166 | 0.212 | 0.238         | 0.133 | 0.195  | 0.43   |
| Hep. Epoxide | 0.108             | 0.110 | 0.387 | 0.106 | 0.098 | 0.115 | 0.526 | 0.132 | 0.112 | 0.106 | 0.180         | 0.142 | 0.11   | 0.40   |
| HCB          | 0.153             | 0.520 | 0.165 | 0.122 | 0.122 | 0.127 | 0.526 | 0.132 | 0.112 | 0.106 | 0.208         | 0.158 | 0.13   | 0.52   |
| PCB          | 2.196             | 0.850 | 2.135 | 0.554 | 2.145 | 0.918 | 1.228 | 1.646 | 1.911 | 1.345 | 1.493         | 0.570 | 1.50   | 2.15   |
| Malathion    | 1.083             | 1.040 | 1.246 | 1.196 | 1.052 | 1.235 | 1.052 | 6.361 | 1.565 | 1.127 | 1.696         | 1.562 | 1.16   | 2.045  |
| MEP          | 1.083             | 1.061 | 1.296 | 1.028 | 0.979 | 1.235 | 1.052 | 6.361 | 1.565 | 2.816 | 1.848         | 1.592 | 1.16   | 3.171  |
| Diazinon     | 1.083             | 1.040 | 1.246 | 1.028 | 0.979 | 1.235 | 1.052 | 6.361 | 1.565 | 1.127 | 1.672         | 1.572 | 1.10   | 2.045  |
| Pb           | 35.2              | 28.0  | 35.5  | 10.2  | 29.4  | 33.4  | 9.4   | 7.1   | 97.6  | 19.8  | 30.6          | 24.67 | 28.7   | 41.7   |
| Cd           | 21.3              | 12.7  | 30.8  | 28.1  | 9.0   | 34.0  | 26.1  | 18.3  | 22.0  | 31.9  | 23.4          | 7.90  | 24.0   | 32.1   |
| Hg           | 10.1              | 4.3   | 12.5  | 13.6  | 15.9  | 12.4  | 9.7   | 6.6   | 13.1  | 6.5   | 10.5          | 3.51  | 11.3   | 13.9   |
| As           | 238               | 30    | 258   | 171   | 57    | 85    | 299   | 290   | 206   | 231   | 186           | 92    | 218    | 291    |
| Cu           | 1309              | 1500  | 1376  | 1193  | 871   | 1131  | 1299  | 1052  | 1223  | 1219  | 1217          | 166   | 1221   | 1388   |
| Mn           | 3611              | 3127  | 3428  | 4399  | 2861  | 3776  | 4585  | 3243  | 3305  | 3374  | 3571          | 519   | 3401   | 4418   |
| Zn           | 8893              | 6940  | 9353  | 9435  | 7155  | 7939  | 7872  | 7996  | 6853  | 7478  | 7992          | 902   | 7906   | 9361   |

**Table 4** 汚染物の検出状況

全データ

|       |     | 総数      | 検出数   | 検出率(%) |
|-------|-----|---------|-------|--------|
| 2008年 | 検査数 | 594,089 | 5,448 | 0.9    |
|       | 試料数 | 9,282   | 2,775 | 29.9   |
| 2007年 | 検査数 | 503,127 | 5,226 | 1.0    |
|       | 試料数 | 9,235   | 2,736 | 29.6   |
| 2006年 | 検査数 | 382,746 | 4,882 | 1.3    |
|       | 試料数 | 9,296   | 2,535 | 27.3   |
| 2005年 | 検査数 | 323,124 | 4,831 | 1.5    |
|       | 試料数 | 8,939   | 2,525 | 28.2   |

農薬・動物用医薬品データ

|       |     | 総数      | 検出数   | 検出率(%) |
|-------|-----|---------|-------|--------|
| 2008年 | 検査数 | 586,327 | 2,995 | 0.5    |
|       | 試料数 | 6,835   | 1,371 | 20.1   |
| 2007年 | 検査数 | 495,317 | 2,788 | 0.6    |
|       | 試料数 | 6,880   | 1,336 | 19.4   |
| 2006年 | 検査数 | 375,403 | 2,299 | 0.6    |
|       | 試料数 | 7,083   | 1,199 | 16.9   |
| 2005年 | 検査数 | 315,157 | 2,301 | 0.73   |
|       | 試料数 | 6,609   | 1,117 | 16.9   |

Table 5 検査数の多い食品

| 2008年     |     | 2007年    |     | 2006年    |     |
|-----------|-----|----------|-----|----------|-----|
| ぶた肉       | 324 | ぶた肉      | 317 | 卵        | 301 |
| 上記以外の加工食品 | 318 | 牛肉       | 281 | ぶた肉      | 300 |
| 鶏肉        | 284 | 鶏肉       | 269 | 牛肉       | 268 |
| 卵         | 274 | 卵        | 266 | 鶏肉       | 259 |
| 牛肉        | 271 | きゅうり     | 208 | きゅうり     | 205 |
| きゅうり      | 165 | トマト      | 197 | トマト      | 174 |
| 牛乳        | 163 | 牛乳       | 194 | ほうれんそう   | 171 |
| トマト       | 157 | だいこんの根   | 168 | グレープフルーツ | 163 |
| ブロッコリー    | 138 | キャベツ     | 149 | 牛乳       | 163 |
| なす        | 137 | ブロッコリー   | 147 | キャベツ     | 160 |
| キャベツ      | 131 | ほうれんそう   | 145 | バナナ      | 156 |
| だいこんの根    | 119 | なす       | 132 | ブロッコリー   | 154 |
| グレープフルーツ  | 117 | かぼちゃ     | 123 | だいこんの根   | 151 |
| バナナ       | 115 | ねぎ       | 122 | なす       | 126 |
| ほうれんそう    | 113 | グレープフルーツ | 121 | りんご      | 120 |
| ねぎ        | 109 | バナナ      | 118 | いちご      | 117 |
| りんご       | 105 | ピーマン     | 117 | ねぎ       | 117 |
| かぼちゃ      | 99  | りんご      | 104 | にんじん     | 110 |
| たまねぎ      | 88  | いちご      | 103 | オレンジ     | 105 |
| レタス       | 83  | たまねぎ     | 96  | まだい      | 102 |



Table 6 複数の農薬等が残留した野菜・果実例

| 食品名        | 残留農薬数 | 残 留 農 薬   |
|------------|-------|---|
| グリーンアスパラガス | 17    | XMC, アシベンゾラルSメチル, アトラジン, アメトリン, イソキサチオン, イソフェンホス, エトキサゾール, エトフェンブロックス, キザロホップエチル, キナルホス, クロルフェナビル, クロルベンジレート, ジクロフェンチオン, ジフェノコナゾール, ジメテナミド, スピロジクロフェン, テフルトリン |
| きゅうり       | 10    | アセタミプリド, オキサジキシル, キャプタン, クロルフェナビル, クロロタロニル, テトラコナゾール, プロシミドン, ベルメトリン, ポスカリド, メタラキシル   |
| いちご        | 8     | クレソキシムメチル, トリフルミゾール, ビテルタノール, ピリフェノックス, フルバリネート, プロシミドン, ミクロブタニル, メパニピリム  |
| いちご        | 8     | エトキサゾール, ジクロフルアニド, テブフェンピラド, フェンピロキシメート, フルバリネート, プロシミドン, ヘキシチアゾクス, ミルベメクチン   |
| リンゴ        | 8     | アセタミプリド, イプロジオン, カルベンダジム, クレソキシムメチル, クロルピリホス, クロルフェナビル, シプロジニル, チアメトキサム   |
| 桜桃         | 7     | イプロジオン, クロチアニジン, ジフェノコナゾール, テブコナゾール, ビフェントリン, フェンブコナゾール, ヘキシチアゾクス   |
| リンゴ        | 7     | アセタミプリド, クレソキシムメチル, ジノテフラン, シプロジニル, シラフルオフエン, チアクロプリド, チアメトキサム  |
| キャベツ       | 6     | イプロジオン, チオジカルブ, トルクロホスメチル, プロシミドン, ベルメトリン, メソミル   |
| グレープフルーツ   | 6     | OPP, アゾキシストロビン, イマザリル, ビテルタノール, フェリムゾン, フェンプロバトリン   |
| ピーマン       | 6     | クロルフェナビル, クロロタロニル, シベルメトリン, ビリダベン, フルフェノクスロン, ルフェヌロン  |
| きゅうり       | 5     | アセタミプリド, クロルフェナビル, フェンブコナゾール, プロシミドン, メタラキシル  |
| リンゴ        | 5     | クレソキシムメチル, クロルフェナビル, テブフェンピラド, フェンプロバトリン, プロバルギット   |

Table 7 検査数の多い農薬

| 2008年     |      | 2007年     |      |
|-----------|------|-----------|------|
| 汚染物名      | 検査数  | 汚染物名      | 検査数  |
| マラチオン     | 4327 | クロルピリホス   | 4370 |
| クロルピリホス   | 4318 | マラチオン     | 4324 |
| フェニトロチオン  | 4292 | フェニトロチオン  | 4314 |
| ダイアジノン    | 4289 | ダイアジノン    | 4281 |
| フェントエート   | 4125 | プロチオホス    | 4132 |
| フェンチオン    | 4113 | ピリミホスメチル  | 4094 |
| プロチオホス    | 4107 | パラチオンメチル  | 4068 |
| ピリミホスメチル  | 4078 | トルクロホスメチル | 3922 |
| EPN       | 4042 | フェンチオン    | 3883 |
| パラチオンメチル  | 4005 | フェンバレレート  | 3852 |
| ジメトエート    | 3936 | EPN       | 3843 |
| メチダチオン    | 3883 | ブタミホス     | 3834 |
| ブタミホス     | 3822 | ペルメトリン    | 3803 |
| テフルトリン    | 3735 | シペルメトリン   | 3771 |
| トルクロホスメチル | 3688 | フェントエート   | 3746 |
| ペンディメタリン  | 3669 | エトリムホス    | 3730 |
| ペルメトリン    | 3650 | キナルホス     | 3725 |
| キナルホス     | 3619 | エトプロホス    | 3687 |
| シアノホス     | 3617 | クロルプロファム  | 3566 |
| フェンバレレート  | 3558 | パラチオン     | 3560 |

Table 8 検出率の高い農薬

| 農薬名            | 分析数  | 検出数 | 検出率(%) |
|----------------|------|-----|--------|
| クロルデン類         | 1607 | 271 | 16.9   |
| オルトフェニルフェノール   | 242  | 23  | 9.5    |
| イマザリル          | 975  | 89  | 9.1    |
| 酸化フェンブタスズ      | 123  | 10  | 8.1    |
| チアベンダゾール       | 1178 | 85  | 7.2    |
| クミルロン          | 272  | 17  | 6.3    |
| DDT類           | 7591 | 433 | 5.7    |
| カルベンダジム        | 264  | 14  | 5.3    |
| アセタミプリド        | 1539 | 74  | 4.8    |
| イミダクロプリド       | 993  | 46  | 4.6    |
| アゾキシストロビン      | 932  | 39  | 4.2    |
| クレソキシムメチル      | 2662 | 88  | 3.3    |
| クロルピリホス        | 4474 | 147 | 3.3    |
| プロシミドン         | 2729 | 86  | 3.2    |
| チアメトキサム        | 861  | 25  | 2.9    |
| クロルフェナピル       | 2799 | 75  | 2.7    |
| クロロタロニル        | 1478 | 37  | 2.5    |
| メパニピリム         | 363  | 9   | 2.5    |
| クロチアニジン        | 687  | 17  | 2.5    |
| ボスカリド          | 367  | 8   | 2.2    |
| トリフルミゾール       | 873  | 19  | 2.2    |
| シベルメトリン        | 3875 | 79  | 2.0    |
| エントスルファンサルフェート | 101  | 2   | 2.0    |



Figure 1 各群からの汚染物摂取量 (ND=0)

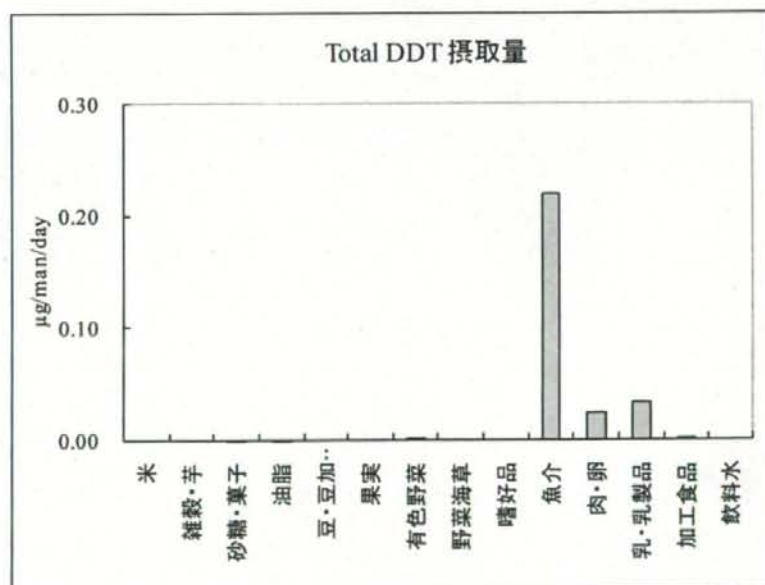
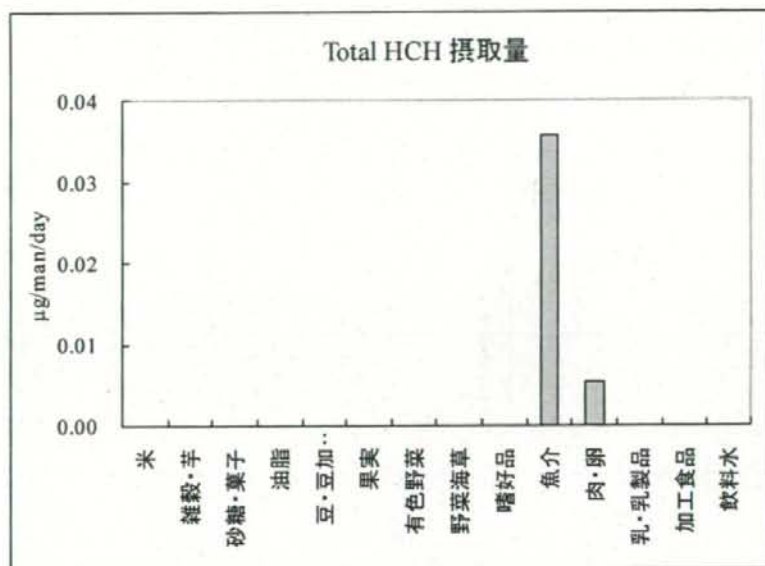


Figure 1 続き

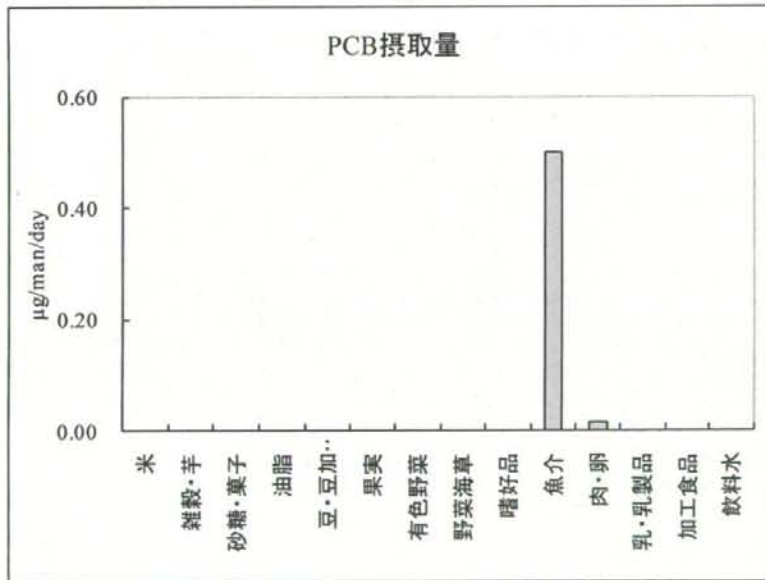
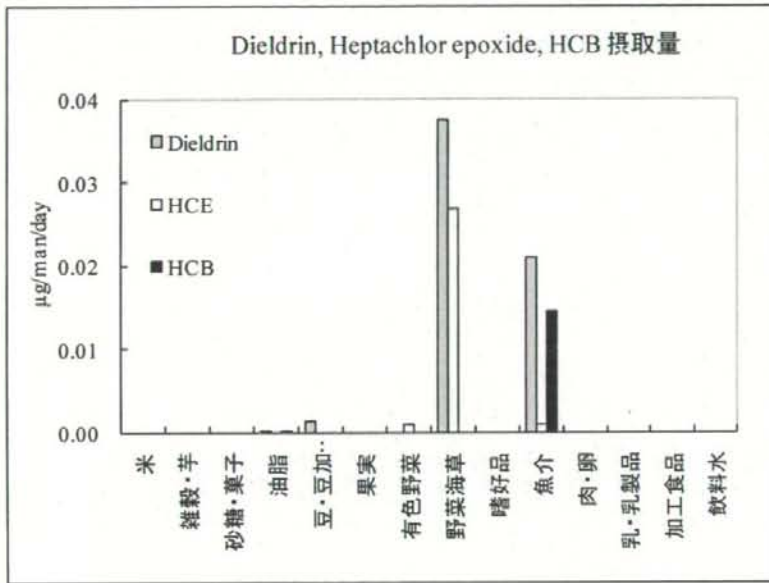


Figure 1 続き

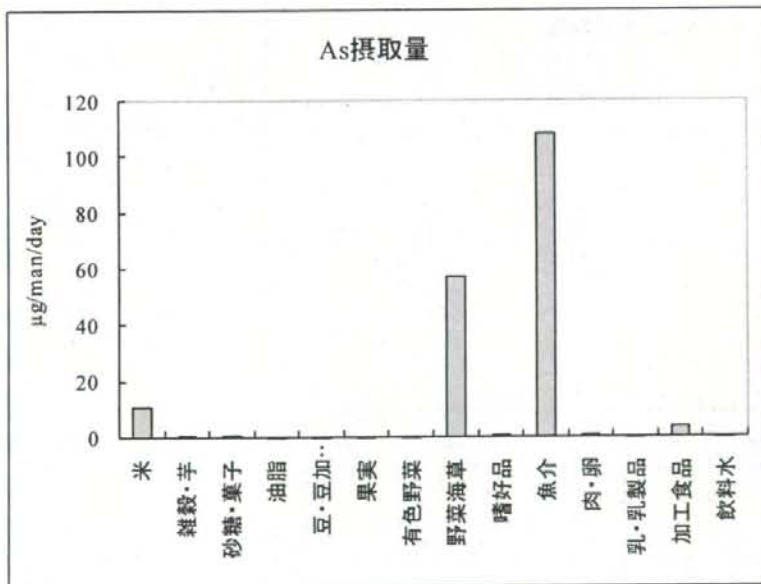
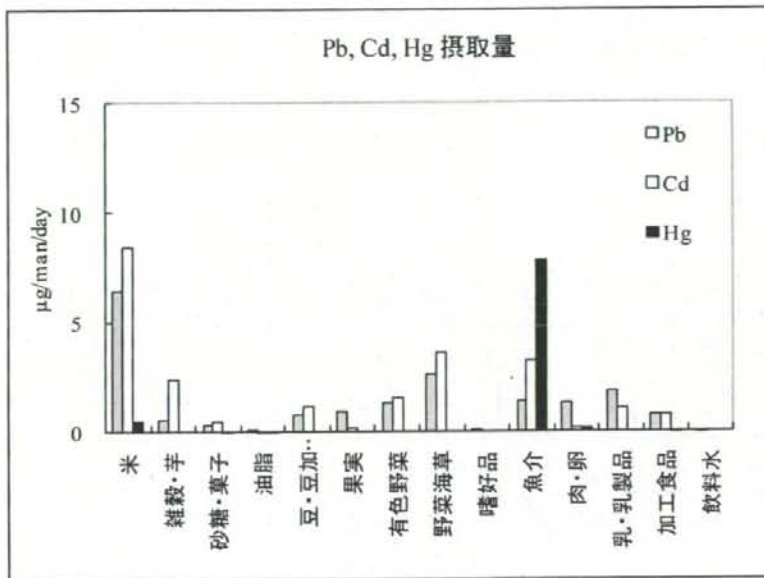
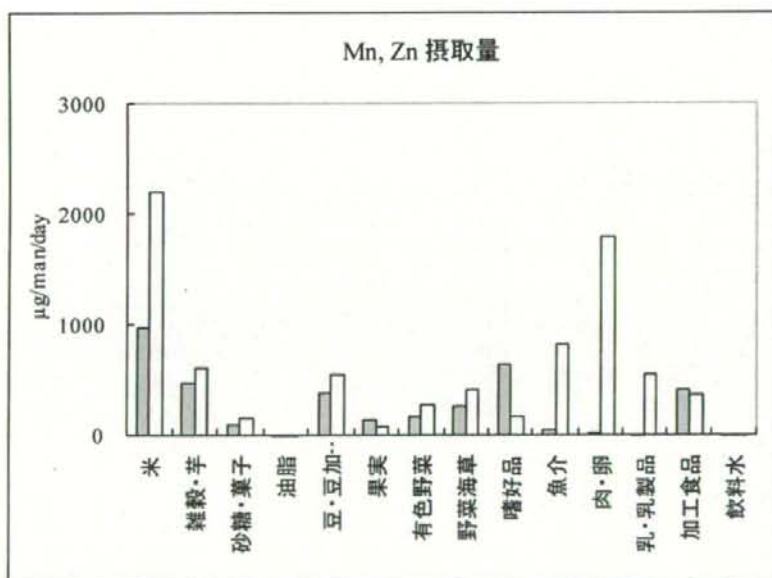
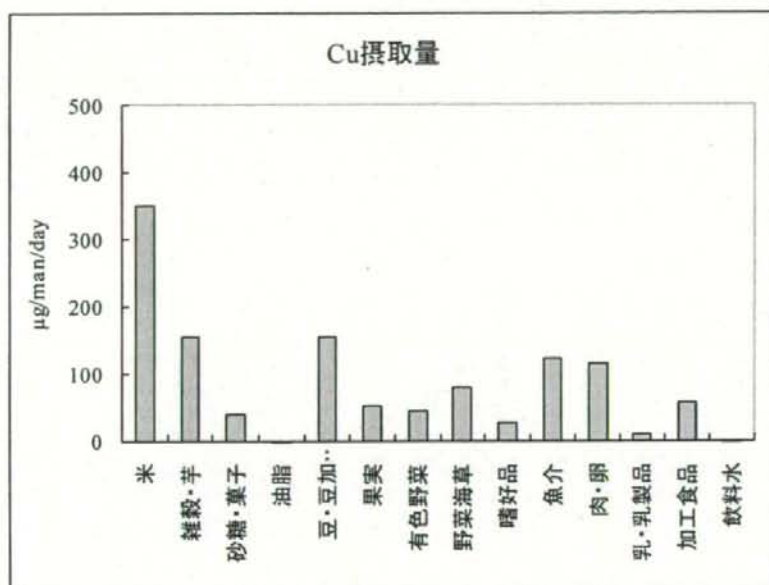




Figure 1 統計



# 分 担 研 究 報 告

硝酸塩の摂取量推定に関する研究

松田りえ子

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

研究分担報告書

硝酸塩の摂取量推定に関する研究

研究代表者 松田りえ子 国立医薬品食品衛生研究所食品部第三室長  
研究分担者 松田りえ子 国立医薬品食品衛生研究所食品部部长

研究要旨

硝酸塩濃度が高いと予想される大根、レタス、ホウレンソウ中の硝酸塩濃度の周年変動を調査したところ、大根とレタスでは冬季に硝酸塩濃度が高く、ホウレンソウでは逆に夏季に硝酸塩濃度が上昇することが明らかとなった。また、これら 3 種の野菜中、ホウレンソウは特に硝酸塩濃度が高く、ヨーロッパにおける基準を大きく上回る試料が多数あった。

文献調査の結果から、ヨーロッパではレタスとホウレンソウ中の硝酸塩濃度を比較すると、レタスの方がやや高く、日本での順序とは異なっている。また、日本の調査結果は ADI を越えた硝酸塩が摂取されていることを示しているが、ヨーロッパで実施された硝酸塩摂取量調査による一日摂取量は ADI よりもかなり低い。我が国のホウレンソウから摂取される硝酸塩の量は 77 mg(1.54 mg/kg bw/day)で、一日の総摂取量の摂取が 1/3 以上を占めており、ホウレンソウ中の硝酸塩濃度を低下させることが、硝酸塩摂取量を引き下げる有効な方策と考えられる。

研究協力者 白政優子、小山陽子 国立医薬品食品衛生研究所食品部

A. 研究目的

硝酸塩は野菜を含めた植物中に広く存在している成分である。また、硝酸カリウム、硝酸ナトリウムは食品添加物として使用されている。

硝酸塩が体内で亜硝酸塩となると、メトヘモグロビン血症を引き起こし、またニトロソ化合物生成に関連する可能性があることから、JECFA は硝酸イオンとしての ADI を 3.7 mg/kg bw/day と設定している。昨年度の本研究では、全国 11 カ所で作成したトータルダイエット試料(TDS)中の硝酸塩濃度を測定し、摂取量を調査した。その結果、硝酸塩の平均

摂取量は 4.0 mg/kg bw/day と推定され、JECFA の設定した ADI を 8%超過していた。また、主要な摂取源は野菜(TDS 試料 7 群及び 8 群)であり、硝酸塩の 80%以上がこの 2 つの群から摂取されていた。

EU はホウレンソウ、レタス類について硝酸塩の基準を定めており、ホウレンソウでは 4 月～9 月は 2,500 mg/kg、10 月～3 月は 3,000 mg/kg と、冬季の方が高く設定されている。また、レタス類も種類、露地栽培か施設栽培かにより基準値は異なっているが、やはり冬季の方が高く設定されている。これは、実際の濃度を勘案して定められたと考えられる。



TDSは夏から秋に調製されるため、冬季の方が野菜中の硝酸塩濃度が高いとすれば、年間を平均した硝酸塩摂取量は4.0 mg/kg bw/dayよりも高い可能性がある。これを確認するために、硝酸塩濃度が高いことが報告されており、一年中販売されている野菜として、大根、レタス、ホウレンソウ中の硝酸塩濃度の年間変動を調査した。

また硝酸塩の健康影響についての文献調査を合わせて行った。

## B. 研究方法

### 試料

年間6回(3, 5, 7, 9, 11, 1月)ホウレンソウ、レタス、大根を小売店から購入し試料とした。各回に産地の異なる5試料を選定したため、総数は各野菜30試料となった。各試料の産地をTable 1に示した。

### 硝酸塩分析

硝酸塩の分析は昨年度のTDS試料分析と同じ方法を用いた。試料中のタンパク量は少ないために、酢酸亜鉛溶液の添加は行わなかった。

### 分析方法

試料5gを量り、0.5 mol/L水酸化ナトリウム溶液16 mL、80°Cの水30 mLを加えて、攪拌しながら80°Cで20分間加温後、室温まで冷却し水を加えて100 mLに定容した。遠心分離した上清を、シリンジフィルターでろ過し、HPLCで分析した。

硝酸塩濃度が高く、検量線範囲を外れる場合には水により適宜希釈した。HPLC条件を以下に示す。

### HPLC条件

カラム: Shodex Asahipak NH2P-50 4E, 4.6

mm×25 cm + 4.6 mm×1 cm

カラム温度: 50°C

移動相: 0.1 mol/L 過塩素酸ナトリウムを含む10 mmol/L リン酸緩衝液

流量: 1.0 mL/min

測定波長: 210 nm

## C. 研究結果及び考察

Fig.1に大根中の硝酸塩濃度の季節変動を示した。硝酸塩濃度の総平均は1,712 mg/kgで、最も平均濃度が高い月は3月、低い月は7月で、冬季に硝酸塩濃度が高い結果となった。しかし、同じ月であっても硝酸塩濃度は試料間で広く分布しており、一元配置分散分析からは、月間で有意の差は無いという結果が得られた。

Fig.2にはレタス中の硝酸塩濃度の季節変動を示した。硝酸塩濃度の総平均は1,057 mg/kgで、最も平均濃度が高い月は1月、低い月は7月で、冬季に硝酸塩濃度が高く、大根と概ね同じ結果となった。しかし、大根の硝酸塩濃度の各月のRSDが20-70%であったのに対し、レタスは11-42%でややバラツキが小さく、このため一元配置分散分析によっても、月毎の濃度に有意の差があるという結論が得られた。

EUの結球レタス中の硝酸塩の基準値は、冬季2,500 mg/kg、夏季2,000 mg/kgである。今回のレタスの測定結果には冬季においても2,000 mg/kgを越える試料はなく、国内でのレタス中の硝酸塩濃度は、それほど高くはないことが示された。また、冬季(11-3月)の平均濃度は夏季(5-9月)の1.5倍程度であり、EUの基準値と同様な変動を示した。

Fig.3にホウレンソウの結果を示した。硝酸塩濃度の総平均は3,872 mg/kgで、最も平均

濃度が高い月は9月、低い月は3月で、夏季に硝酸塩濃度が高く、大根及びレタスとは反対の結果となった。各月の硝酸塩濃度のRSDは10-38%で、大根及びレタスよりも小さく、一元配置分散分析によっても月毎の濃度に有意の差があるという結論が得られた。夏季(5-9月)の平均濃度は冬季(11-3月)の1.5倍であった。

先にも述べたように、EUのハウレンソウ中硝酸塩の基準値は夏季は2,500 mg/kg、冬季は3,000 mg/kgで、レタスよりもやや低く設定されている。今回の測定結果中、硝酸塩濃度が3,000 mg/kgを越える試料は、30中20試料であった。特に夏季は1試料を除く全ての試料が3,000 mg/kg以上の硝酸塩を含んでおり、6試料は5,000 mg/kgを越えていた。国内のレタスがヨーロッパの硝酸塩基準にほぼ適合していたのに比較して、ハウレンソウは基準を超える場合が多く、また夏季に際だつて硝酸塩濃度が上昇することから、ヨーロッパと栽培条件等が異なっていることが推察される。

藤沼ら<sup>1)</sup>は野菜中の硝酸根濃度を報告しており、それによればレタス中の硝酸塩濃度は平均1,100(340-1,700) mg/g、大根は1,500(ND-6,500) mg/kg、ハウレンソウは2,400(490-6,200) mg/kgであった。この結果と今回の調査結果を比較すると、大根及びレタス中の硝酸塩濃度は概ね等しいが、ハウレンソウでは今回の調査結果の方がやや高かった。また、藤原ら<sup>2)</sup>は、京都府で市販されるハウレンソウ中の硝酸塩濃度の周年変化を調査し、7-9月は6,000 mg/kg、1-3月は2,000 mg/kgと報告している。藤原らの調査対象とした試料の生産地は、京都府が最も多く、次いで兵庫県、徳島県、北海道、岐阜県、島根県の順で

あった。Table 1に示すように東京の小売店頭品は北海道～関東地方産が多く、藤原らの調査とは産地が異なっているが、硝酸塩濃度とその変化は同様であった。

#### D. 硝酸塩に係わる文献調査

JECFAの硝酸塩に係わる報告<sup>3)</sup>によれば、硝酸塩そのものには変異原性はなく、非常に大量の硝酸塩とニトロソ化される前駆体が摂取された場合を除いては、発ガン性も認められない。ADIとして設定された、3.7 mg/kg bw/dayはラットにより実施された長期毒性試験から得られたNOEL 370 mg/kg bw/dayに基づいている。一方、亜硝酸塩のNOELは6 mg/kg bw/dayであるので、硝酸塩から亜硝酸塩の変換を5%とすれば、硝酸塩のADIは3.2 mg/kg bw/dayと計算される。これら2つの値は同等とみなされ、ADIが、3.7 mg/kg bw/dayと設定された。

飲料水中の硝酸イオン濃度と、再発性口内炎及びメトヘモグロビンをヘモグロビンに還元するチトクロームb還元酵素の活性の相関を調べるための疫学調査が行われた<sup>4)</sup>。飲料水中濃度26-460 mg/Lの地域での調査の結果、飲料水中の硝酸イオンにより誘導されたチトクロームb還元酵素の活性上昇が再発性口内炎の原因と結論されている。

Suzukiら<sup>5)</sup>は、2 mmol/Lの硝酸イオン摂取後の、唾液、食道、胃の各部における硝酸イオン濃度を測定し、胃と食道の接合部で硝酸イオンと一酸化窒素の比が最も高く、胃におけるニトロソ化はこの部分で最も起こりやすいと結論している。また、食事から摂取した硝酸イオンからの一酸化窒素生成は、胃と食道接合部と噴門部で最も高いことも報告されている<sup>6)</sup>。胃腸モデルを用いたIn vitro実験で



は、ADI の 0.1, 1, 10 倍の硝酸イオンにより、急速な pH 低下条件では、ニトロソジメチルアミンが 2.3~16,420  $\mu\text{g}$  生成することが報告されており<sup>7)</sup>これらの結果は、大量の硝酸イオン摂取で発ガン物質が生成することを示唆している。

飲料水中の硝酸イオン濃度とガンによる死亡率の関係に関する疫学研究が多数行われている。スペインの調査<sup>8)</sup>では、硝酸イオン濃度 50 mg/l 以上の飲料水を摂取するグループは、低濃度グループと比較して、胃ガンのリスクが男性で 1.9 倍、女性で 1.8 倍と報告されている。一方、台湾の調査<sup>9)</sup>では、飲料水中の硝酸イオン濃度の異なるグループ間での、胃ガン死亡率の差は見られず、水の硬度との間に負の相関が観察されている。英国の調査<sup>10)</sup>では、飲料水中の硝酸イオン濃度と胃及び食道ガン発生率間に関連は見られなかったが、脳及び中枢神経系のガンの発生率は硝酸イオン濃度との関連が見られた。カナダの調査結果<sup>11)</sup>では、硝酸イオン濃度 0-91 mg/l の範囲で胃ガン発生率と負の関連が統計的に見いだされている。

オランダにおける 6.3 年のコホート研究<sup>12)</sup>では、硝酸イオン摂取量として 0.01 mg/day から 1.4 mg/day の範囲で、摂取量と胃ガンリスクに強い関連があるとは言えないと結論している。フィンランドの 24 年間のコホート研究でも、硝酸イオン摂取と消化器系ガンリスク間に有意の関連は見られなかった。同様に、米国のコホート調査<sup>13)</sup>では硝酸塩濃度と各種のガンリスク間で、正、負、あるいは無関係という結果が得られている。正の関係がみられたのは、膀胱ガンおよび卵巣ガンであった。

以上のように、疫学調査からは、硝酸塩の摂取と発ガンリスクの関連を示す一貫した結

果は得られていない。同様に、飲料水中の硝酸イオン濃度と糖尿病の関連を扱った 2 つの研究<sup>14)15)</sup>では、関連性について相反する結果が得られている。

乳児におけるメトヘモグロビン血症と硝酸イオン摂取の関連についても、確実な結果は得られておらず、飲料水中の硝酸イオン濃度の異なる地域間の調査でメトヘモグロビン症との関連を示す報告<sup>16)</sup>がある一方、飲料水中の硝酸イオン濃度とメトヘモグロビン症の割合に相関が無かったという報告<sup>17)</sup>もある。また、硝酸塩摂取の低い状態でも、急性下痢<sup>18)</sup>あるいは消化不良状態でメトヘモグロビン症が現れたという例も報告されている。以上のように、硝酸塩摂取とその健康影響が定量的に関連づけられてはいないのが現状である。

スウェーデン、デンマーク、韓国、英国において、野菜中の硝酸塩濃度調査が行われている。スウェーデンではレタスとホウレンソウの 95%以上が EC の基準値以下であり、有機栽培による野菜中の硝酸塩濃度は従来の栽培法に比較して低いことが報告されている<sup>19)</sup>。デンマークの調査では、調査した野菜中の硝酸塩濃度の変動幅は大きい、最も高い値はレタスで得られている<sup>20)</sup>。英国の調査では、レタス中の平均硝酸塩濃度が露地栽培では 1,085 mg/kg、施設栽培では 2,382 mg/kg (夏季)及び 3,124 mg/kg (冬季)であり、ホウレンソウは 1,900 mg/kg で、両者には大きな差は見られていない<sup>21)</sup>。日本での藤沼ら<sup>1)</sup>あるいは本年度の調査では、レタスよりもホウレンソウ中の硝酸塩濃度が高く、韓国の調査<sup>22)</sup>でもホウレンソウ中の硝酸塩が他の野菜よりも高いことが報告されている。このことから、東アジアで栽培されるホウレンソウはヨーロッパよりも硝酸塩濃度が高いと考えられ、硝酸