

# 沖縄県における日常食品からの環境汚染物質及び無機元素の1日摂取量調査

—12年間の推移(2001—2012)—\*

國仲奈津子・古謝あゆ子・佐久川さつき・真保栄陽子・仲間幸俊・玉那覇康二\*\*

## Studies on the Daily Intakes of Environmental Chemicals and Metals from Diet in Okinawa Prefecture

-The Changes in The Last Twelve Years (2001-2012)-\*

Natsuko KUNINAKA, Ayuko KOJA, Satsuki SAKUGAWA, Yoko MAHOE, Yukitoshi NAKAMA and Koji TAMANAHA\*\*

**要旨:** 沖縄県における2001年度から2012年度の日常食からの環境汚染物質等の1日摂取量調査をマーケットバスケット方式により実施した。有機塩素系化合物、有機リン系農薬、ピレスロイド系農薬について、1日摂取量はすべてADI値を大きく下回っていた。カドミウムの1日摂取量については2011年度に暫定耐容月間摂取量をわずかに上回る換算値となったが直ちに有害性があったとは考えにくいものであった。

**Abstract:** The daily intakes of environmental chemicals from diet in Okinawa prefecture were studied in fiscal year 2011 to 2012 based on market basket method. Daily intake of Organochlorine pesticides, Organophosphorus pesticides and Pyrethroid pesticides fall much below each ADI. Daily intake of cadmium was slightly higher than PTMI(Provisional Tolerable Monthly Intake) in fiscal year 2011, it didn't lead immediate hazard.

**Key words:** 1日摂取量, Daily intake, 有機塩素系農薬, Organochlorine pesticides, PCB, 有機リン系農薬, Organophosphorus pesticides, ピレスロイド系農薬, Pyrethroid pesticides, 有機スズ, Organic tin, 必須金属, Essential metals, 重金属, Heavy metals

## I はじめに

わが国における日常食からの環境汚染物質等の摂取量調査(トータルダイエット調査)は1977年に開始され、国立医薬品食品衛生研究所を中心に地方衛生研究所8—12機関の協力のもとで継続実施されている。当所も1986年より独自で、また1988年からは本調査に参加し、調査結果を逐次報告してきた。今回、これまで過去12年間(2001—2012年度)に蓄積された結果をまとめ、全国平均値及びADI値(1日許容摂取量( $\mu\text{g}/50\text{kg}/\text{day}$ ))等との比較、1日摂取量の食品群別寄与率について報告する。

## II 方法

試料は、国民栄養調査の地域ブロック別食品群別摂取量(南九州)に基づき国立医薬品食品衛生研究所食品部が作製した表によって選定し、マーケットバスケット方式により収集、1—14の群に分別した。2004年度に分別表の見直しがあり9群が調味料・嗜好飲料から嗜好飲料

へ、13群がその他食品から調味料・その他となった。食品群別試料内訳及び2012年度調査における1日喫食割合を表1に示す。

試料の調製法、分析方法については多少の変更はあるものの、おおむね既報<sup>1,2)</sup>に準じた。分析項目については、12年間で追加等あった。表2に2012年度の分析項目の一覧を示す。

## III 結果

### 1. 有機塩素系化合物

例年、主に10群(魚介類)から微量検出され、1日摂取量はADI値と比較しても十分に低い値であった。PCBについては全国平均より高い値で推移してきたが徐々に減少し、ここ数年は全国平均を下回っている。表3に2001年度から2012年度の沖縄県における推定摂取量、全国平均値及びADI値等を示した。

\* 本研究は厚生労働科学研究「食品を介したダイオキシン類等有害物質摂取量の評価とその手法開発に関する研究」の一部分担として実施した。

\*\* 現所属：沖縄県環境生活部生活衛生課

表1. 食品群別試料内訳及び2012年度調査における1日喫食割合.

1日喫食割合は四捨五入のため合計しても必ずしも100%とはならない.

群	1日喫食割合 (%)	採取食品	採取食品例
1 群	15.6	米	精白米・赤飯・もち粉等
2 群	7.1	雑穀・芋	パン類・パスタ類・芋類
3 群	1.2	砂糖・菓子	白糖・せんべい・クッキー等
4 群	0.4	油脂	植物油脂・バター等
5 群	3.0	豆・豆加工品	豆腐・豆乳・小豆等
6 群	4.3	果実	ミカン・リンゴ・サクランボ等
7 群	3.6	有色野菜	トマト・ニンジン・カボチャ等
8 群	8.6	野菜・海草	キャベツ・えのきだけ・もずく等
9 群	30.4	嗜好飲料	ビール・日本酒・お茶・炭酸飲料等
10 群	2.7	魚介類	マグロ・サンマ・イカ・タコ等
11 群	4.4	肉・卵	牛肉・豚肉・鶏肉等
12 群	4.3	乳・乳製品	牛乳・チーズ等
13 群	3.7	調味料・その他	塩・しょうゆ・ドレッシング等
14 群	10.8	水道水	水道水

## 2. 有機リン系農薬

クロルピリホスメチル (ADI:500 µg/50kg/day) が1日摂取量 0.03—0.54 µg の範囲で2群 (雑穀・芋) 及び3群 (砂糖・菓子) から断続的に検出されてきたが, 2007年度以降は検出されていない. クロルピリホスメチルは国内では野菜に使用されている農薬であるため, 海外の小麦由来によるものであると推測される. その他の有機リン系農薬については2003年度には7群 (有色野菜) からEPN (ADI: 70 µg/50kg/day) が1日摂取量 3.18 µg, 2004年度には2群 (雑穀・芋) からピリミホスメチル (ADI: 1250 µg/50kg/day) が1日摂取量 0.81 µg, 2009年度には7群 (有色野菜) からマラチオン (ADI: 1500 µg/50kg/day)

が1日摂取量 0.56 µg と散発的に検出が認められた.

## 3. ピレスロイド系農薬

2006年度より調査を開始したところ, 2008年度を除き毎年6群 (果実) または7群 (有色野菜) から検出されてきた. 1日摂取量についてはすべてADI値を大きく下回っていた. 検出農薬の1日摂取量及びADI値を表4に示す.

## 4. 有機スズ化合物

有機スズ化合物については7群 (有色野菜), 8群 (野菜海草), 10群 (魚介類), 11群 (肉・卵) についてのみ調査を行ってきた. TBTCが2001年度から2005年度ま

表2. 沖縄県における日常食品からの環境汚染物質等の1日摂取量調査の主な分析項目.

有機塩素系化合物 (23項目) :

*α*-HCH, *β*-HCH, *γ*-HCH, *δ*-HCH, *o,p'*-DDT, *o,p'*-DDD, *o,p'*-DDE, *p,p'*-DDT, *p,p'*-DDD, *p,p'*-DDE, *γ*-Chlordane, *trans*-Chlordane, *cis*-Chlordane, *trans*-Nonachlor, *cis*-Nonachlor, *oxy*-Chlordane, HCB, Heptachlor, Heptachlor-Epoxide, Dieldrin, Aldrin, Endrin, PCB

有機リン系農薬 (28項目) :

Diazinon, Phenthoate(PAP), Fenthion(MPP), EPN, Parathion, Fenitrothion(MEP), Malathion, Chlorpyrifos, Chlorpyrifos-methyl, Chlorfenvinphos(CVP), Dimethoate, Phosalone, Butamifos, Edifenphos, Etrimfos, Fensulfothion, Methyl-parathion, Pirmiphos-methyl, Prothiophos, Quinalphos, Terbufos, Cadusafos, Ethoprophos, Tolclofos-methyl, Fosthiazate, Pyraclofos, Dimethylvinphos, Triazophos

ピレスロイド系農薬 (13項目) :

Acinathrin, Bifenthrin, Cyfluthrin, Cyhalothrin, Cypermethrin, Deltamethrin, Fenprothrin, Fenvalerate, Flucythrinate, Fluvalinate, Halfenprox, Permethrin, Tefluthrin

有機スズ化合物 (2項目) :

Tributhyltin chloride (TBTC), Triphenyltin chloride (TPTC)

金属類その他 (13項目)

必須金属 : Na, K, Ca, Mg, Fe, Mn, Cu, Zn 有害金属 : Pb, Cd, As, Hg その他 : P

表3. 沖縄県における有機塩素系化合物の1日摂取量の経年推移(2001-2012)とADI等との比較. ADI: 1日許容摂取量(μg/50kg体重/day),  
一: 調査無し, または設定無し.

物質名	単位	2001	2002	2003	2004	2005	2006	2007	2008	2009	2010	2011	2012	ADI
γ-HCH	沖縄	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	250 <sup>2)</sup>
	全国 <sup>1)</sup>	0	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.05	0	0	0.001	0	
T-HCH	沖縄	0.16	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	—
	全国 <sup>1)</sup>	0.05	0.02	0.02	0.06	0.02	0.05	0.03	0.04	0.02	0.01	0.03	0.05	
T-DDT	沖縄	0.10	0.14	0.08	0.00	0.04	0.19	0.00	0.00	0.03	0.05	0	0	250 <sup>3)</sup>
	全国 <sup>1)</sup>	0.34	0.25	0.33	0.29	0.21	0.32	0.31	0.28	0.36	0.21	0.30	0.18	
T-Chlordane	沖縄	0.19	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0.06	0	25 <sup>3)</sup>
	全国 <sup>1)</sup>	0.08	0.04	0.05	0.19	0.07	0.12	0.03	0.04	0.07	—	—	—	
Dieldrin	沖縄	0.02	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	5 <sup>3)</sup>
	全国 <sup>1)</sup>	0.01	0.03	0.03	0.02	0.08	0.05	0.04	0.06	0.01	0.01	0.01	0.01	
Heptachlor epoxide	沖縄	0.25	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	5 <sup>2)</sup>
	全国 <sup>1)</sup>	0.03	0.03	0.02	0.02	0.06	0.08	0.02	0.03	0.03	0	0.01	0	
HCB	沖縄	0.03	0	0	0	0	0	0	0	0	0.04	0.05	0.04	—
	全国 <sup>1)</sup>	0.01	0.01	0.02	0.07	0.02	0.03	0.01	0.01	0.01	0.02	0.02	0.02	
PCB	沖縄	1.41	1.09	1.11	2.16	2.48	1.78	0.55	0.25	0.74	0.12	0.39	0.19	250 <sup>4)</sup>
	全国 <sup>1)</sup>	0.80	0.66	0.70	0.62	0.95	0.59	0.48	0.52	0.47	0.32	2.83	0.39	

<sup>1)</sup>参加機関の平均値, <sup>2)</sup>日本食品衛生調査会で定めた値から算出, <sup>3)</sup>JMPRで定めた暫定耐容1日摂取量から算出, <sup>4)</sup>旧厚生省通知による暫定的摂取許容量から算出.

表 4. 2006年度から2012年度に検出されたピレスロイド系農薬の1日摂取量及びADI.

検出農薬名	検出食品群	1日摂取量 (µg)						ADI (µg/50kg/day)
		2006 年度	2007 年度	2009 年度	2010 年度	2011 年度	2012 年度	
シペルメトリン	7群 (有色野菜)			6.16		3.23		2500
ピフェントリン	6群 (果実)			1.03	0.75			500
フルバリネート	7群 (有色野菜)	0.53						250
ペルメトリン	6群 (果実)		1.12		1.39		1.87	2500

で毎年、10群より1日摂取量0.14–1.90 µg 検出されてきたが、2006年度以降検出限界未満が続いている。TBTCのADI値等は設定されていないが有機スズ化合物のひとつであるTBTOの経口暴露に対する指針値FAO/WHO合同残留農薬専門家会議(JMPR)によって15 µg/50kg/dayと設定されている。

#### 5. 金属類およびリン

##### (1) 必須金属およびリン

ナトリウム、カリウム、カルシウム、マグネシウム、鉄、銅、マンガン、亜鉛及びリンについて、2001年度から2012年度の沖縄県における1日摂取量、全国平均摂取量及び1日所要量を表5に示す。1日摂取量は特記すべき大きな変化はなく、全国平均及び1日所要量と比較しても概ね同等の摂取量となった。

##### (2) 有害金属

鉛、カドミウム、ヒ素、水銀について2001年度から2012年度の沖縄県における1日摂取量、全国平均摂取量及び暫定耐容1日摂取量(暫定耐容月間摂取量からの換算値)を表5に示す。

鉛については2007年度調査で例年の2倍超となる摂取量が推定されたが当時の暫定耐容週間摂取量25 µg/kg/week<sup>3)</sup>と比較して十分低いものであった。2007年度の鉛摂取量の80%が1群(米)によるものであったが、購入した米は沖縄県外産のものであり沖縄県以外の参加機関で1群からの鉛の摂取量が高くなった事例はなかった。

カドミウムは1群からの摂取が平均して約39%を占

めていた。2011年度の調査ではFAO/WHO合同食品添加物専門家会議(JECFA)によって2010年に設定された暫定耐容月間摂取量25 µg/kg体重<sup>3)</sup>(暫定耐容1日摂取量に算出した場合41.7 µg/50kg/day)を上回ったが超過量がわずかなものであったため直ちに有害性があつたとは考えにくい。

ヒ素については、総ヒ素を測定しており8群(野菜・海草)及び10群(魚介類)からの摂取が71–96%を占めている。耐容摂取量については現在は設定がない<sup>3)</sup>。

水銀については、総水銀を測定しておりその摂取は10群(魚介類)からであった。推定された摂取量のすべてをメチル水銀だと仮定してもその暫定耐容週間摂取量を超えたことはなかった。

## IV 参考文献

- 1) 照屋菜津子・玉那覇康二・古謝あゆ子・上原隆(2002) 沖縄県における日常食品からの環境汚染物質および無機元素の1日摂取量調査—10年間の推移(1991～2000)—。沖縄県衛生環境研究所報, 36: 55–71.
- 2) 古謝あゆ子・照屋菜津子・大城直雅・玉那覇康二(2007) 沖縄県における日常食品からの環境汚染物質等の1日摂取量調査(2006)。沖縄県衛生環境研究所報, 41: 177–186.
- 3) 米谷民男(2011) 微量元素をめぐる動向12 微量元素と放射性物質の連載を終るにあたって。食品衛生研究, 61: 25–31.

表5. 沖縄県における金属類及びびリンの1日摂取量の経年推移(2001-2012)と1日所要量または暫定耐容1日摂取量との比較.  
 1日所要量: 18歳~29歳の成人男女における値 (mg), 暫定耐容1日摂取量 (µg/50kg/日) - : 調査無し, または設定無し.

物質名	単位	2001	2002	2003	2004	2005	2006	2007	2008	2009	2010	2011	2012	1日所要量または 暫定耐容1日摂取量	
Na	mg	沖縄	4153	3153	3248	2745	4503	5428	4838	5909	4332	4592	3696	3574	-
		全国 <sup>1)</sup>	4157	4338	4304	5616	4772	4536	4603	4745	4338	-	-	-	-
K	mg	沖縄	2143	2237	2546	4437	1869	2071	2150	2135	2363	2259	1902	2136	2000 <sup>2)</sup>
		全国 <sup>1)</sup>	2245	2307	2268	2848	2346	2205	2207	2128	2275	-	-	-	-
Ca	mg	沖縄	556	688	736	330	437	463	512	462	504	396	407	394	600-700 <sup>2)</sup>
		全国 <sup>1)</sup>	517	857	578	529	488	439	441	396	470	-	-	-	-
Mg	mg	沖縄	280	239	259	567	261	321	319	240	263	259	234	255	240-320 <sup>2)</sup>
		全国 <sup>1)</sup>	273	252	243	346	250	246	252	242	256	-	-	-	-
P	mg	沖縄	1116	1038	1201	2025	971	679	994	913	1146	642	964	813	700 <sup>2)</sup>
		全国 <sup>1)</sup>	1074	1005	1064	1232	1042	957	1104	1009	1082	-	-	-	-
Fe	mg	沖縄	6.3	6.3	11.1	17.1	10.1	9.0	6.3	5.9	6.8	6.9	7.6	6.3	10-12 <sup>2)</sup>
		全国 <sup>1)</sup>	8.7	7.9	9.2	10.4	7.3	7.3	6.8	5.6	6.1	-	-	-	-
Cu	mg	沖縄	1.8	1.4	1.5	2.8	1.5	1.7	1.1	1.2	1.2	1.2	1.4	1.4	1.4-1.8 <sup>2)</sup>
		全国 <sup>1)</sup>	1.2	1.2	1.2	1.5	1.2	1.3	1.1	1.2	1.0	1.1	1.2	1.3	-
Mn	mg	沖縄	3.8	3.7	3.3	4.9	3.2	3.8	3.1	3.4	3.9	3.9	4.5	4.0	3.0-4.0 <sup>2)</sup>
		全国 <sup>1)</sup>	3.5	3.3	3.3	3.9	3.8	3.8	3.4	3.6	3.4	3.6	3.9	3.8	-
Zn	mg	沖縄	9.5	9.9	9.9	16.1	9.3	10.9	8.4	7.5	9.6	8.7	9.5	9.4	9-12 <sup>2)</sup>
		全国 <sup>1)</sup>	8.6	8.5	8.7	9.4	8.7	8.7	8.7	32.0	8.0	7.7	8.3	8.0	-
Pb	µg	沖縄	21.2	25.9	38.2	55.8	20.8	60.4	119.9	19.1	40.0	19.1	13.6	10.0	-
		全国 <sup>1)</sup>	23.0	24.0	23.0	27.0	22.0	21.7	21.7	21.1	18.2	12.3	12.5	13.2	-
Cd	µg	沖縄	37.1	23.8	26.1	28.1	20.9	38.0	35.0	31.7	27.1	25.7	46.6	24.0	41.7 <sup>3)</sup>
		全国 <sup>1)</sup>	29.0	25.0	26.0	21.0	21.0	18.7	145.0	22.9	23.5	19.1	27.9	20.3	-
As	µg	沖縄	110	106	84	306	202	267	133	233	262	99	192	102	-
		全国 <sup>1)</sup>	144	170	180	160	181	173	145	183	145	180	197	182	-
Hg	µg	沖縄	7	4	8	7	7	7	6	5	7	8	10	7	-
		全国 <sup>1)</sup>	7	9	8	9	10	7	7	9	7	7	8	7	-

<sup>1)</sup>参加機関の平均値, <sup>2)</sup>厚生労働省第6次改定日本人の栄養所要量, <sup>3)</sup>WHOで定めた暫定耐容月間摂取量から算出.