

シンポジウム

わが国における土壤汚染の実態とその修復をめぐって

講演資料

日時：1999年6月4日(金) 13:00～17:30

場所：日本学術会議2階大会議室

主催：日本学術会議土壤・肥料・植物栄養学研究連絡委員会
同自然保護研究連絡委員会，社団法人 日本土壤肥料学会

プログラム

- 13：00 開 会 岡崎正規(東京農工大学大学院
生物システム応用科学研究科)
- 13：00～13：10 本シンポジウムのめざすもの 久馬一剛(滋賀県立大学環境科学部)
- セッション1 司会 藤井国博(農業環境技術研究所環境資源部)
- 13：10～14：00 わが国土壌の重金属など有害金属による汚染の実態
-とくにカドミウム汚染をめぐる最近の諸問題-
浅見輝男(茨城大学名誉教授)
- 14：00～14：50 重金属等有害元素による汚染土壌の修復
川地 武(株式会社大林組技術研究所)
- 14：50～15：10 休 憩
- セッション2 司会 伊達 昇(財団法人農業技術協会)
- 15：10～16：00 わが国土壌の有機化学物質による汚染の実態
上路雅子(農業環境技術研究所資材動態部)
- 16：00～16：50 有機化学物質による汚染土壌の修復について
宮下清貴(農業環境技術研究所環境生物部)
- 16：50～17：30 総合討論
司会 藤井国博(農業環境技術研究所環境資源部)
同 伊達 昇(財団法人農業技術協会)
- 17：30 閉 会 吉羽雅昭(東京農業大学応用生物科学部)

目次

本シンポジウムのめざすもの-----	1
	久馬一剛(滋賀県立大学環境科学部)
わが国土壌の重金属など有害金属による汚染の実態-----	3
-とくにカドミウム汚染をめぐる最近の諸問題-	
	浅見輝男(茨城大学名誉教授)
重金属等有害元素による汚染土壌の修復-----	50
	川地 武(株式会社大林組技術研究所)
わが国土壌の有機化学物質による汚染の実態-----	54
	上路雅子(農業環境技術研究所資材動態部)
有機化学物質による汚染土壌の修復について-----	64
	宮下清貴(農業環境技術研究所環境生物部)

本シンポジウムのめざすもの

日本学会議 土壌・肥料・植物栄養学研究連絡委員会
委員長 久馬一剛(滋賀県立大学環境科学部)

わが国における重金属など有害元素による土壌や底質の汚染は、明治期の足尾、別子、日立などでの銅の採掘・精錬に伴う鉱毒事件以来、近年の水俣、土呂久、神通川流域における公害問題に至るまで、常に社会的な大事件と結びついて問題とされてきた。

土壌は多くの重金属イオンに対して「特異吸着」とよばれる高い吸着力を示すだけでなく、pH条件や酸化還元条件、土壌有機物の質や量などに応じ、いろいろな難溶性化合物を作って沈殿させることにより、これら有害元素の表流水や地下水への移行を妨げる、いわばプラスの環境的效果を發揮するが、それは同時に土壌中における有害元素の集積、そこからの継続的な植物への吸収移行というマイナスの側面の大きいことをも意味している。したがって土壌は、これら有害元素によって一度汚染されると、それを修復することが極めて困難になるという特性をもっている。

このように、重金属などの有害元素による土壌汚染が、農畜産物の生産を通じて人の健康を損なう恐れのあることから、1970年には「農用地の土壌の汚染防止等に関する法律(土壌汚染防止法)」が制定され、環境庁は1971年以後農用地土壌の汚染実態と対策について毎年報告書を出してきている。しかし、この法律が対象としているのはカドミウム、銅、砒素の3元素だけであって、これら以外にも鉛、亜鉛をはじめ環境中に排出され土壌中に蓄積される恐れのある元素は多い。しかも、これら有害元素によるわが国土壌の汚染の実態については、土壌研究者にすら必ずしもよく知られているとはいえない状況にある。したがって本日のシンポジウムではまず、これら有害元素によるわが国土壌の汚染の実態について、この問題に最も詳しい浅見輝男氏からお話をうかがうこととした。また、わが国のみならず国際的にも、現在土壌中のこれら元素の含有量の基準値を制定あるいは改訂しようとする動きがあるので、そのときの考え方などについても学ぼうと考えた。

重金属汚染のように長い歴史をもたないが、ダイオキシンによる土壌汚染は最近最も社会的関心の高い問題の一つである。ベトナム戦争における枯葉剤中のダイオキシンが重篤な奇形などの健康被害を引き起こしたことはまだ記憶に新しいところであるが、われわれの身近にあるゴミ焼却場からそのダイオキシンが排出され続けてきたという事実の認識は極めて深刻な社会不安を生じさせている。このダイオキシンの土壌中での含有レベルや挙動については、まだほとんど研究の蓄積がなく、いままさに研究手法を標準化して本格的な研究を始めようとしている段階にある。

ダイオキシンだけでなく、各種農薬や有機溶剤など有機化学物質の土壌や底質中の挙動についても、これまでの大学や公的研究機関における研究蓄積は必ずしも多くない。これは土壌の生物性一般についての研究の立ち後れと結びついている部分が多いと言えるが、それだけでなく土壌の有機・無機成分についてもその存在状態や表面反応性についての理解が十分でないことによっていると考えられる。

土壌の有機化学物質による汚染は、いわゆる環境ホルモンとの関係においても現在最もホットな問題となっている。本日のシンポジウムでは、ダイオキシン、有機合成農薬などによる土壌汚染の実態について、農水省で長くこの問題の研究に当たっておられる上路雅子氏からお話をおうかがいするとともに、有機汚染との関係における今後の土壌学研究の方向などについても示唆を得たいと考えている。

ところで、重金属などの有害元素による汚染であれ、ダイオキシンなど有機化学物質による汚染であれ、汚染された土壌をどのようにして修復するかの問題は、今後ますます重要となると思われる。それは安全性の回復という観点から緊要であるばかりでなく、限られた土地資源の有効利用という点でもなおざりにできない重さをもつからである。国際的にも汚染土壌の修復問題は10年ぐらい前から広く取り上げられるようになり、昨年（2007年）の第16回世界土壌科学会議でも幾つかのシンポジウムの主題となっただけでなく、多くのポスターが発表されていた。

本シンポジウムでは、重金属汚染土壌の修復問題を大林組の川地武氏に、また有機化学物質による汚染土壌の修復については農水省の宮下清貴氏からお話をおうかがいする。修復の手法としては物理的手法、化学的手法、生物学的手法、あるいはそれらを混合した手法などがあるが、いずれも多くはなおより効果的で、より費用の少ない方法を模索している段階にあると思われる、ここでは現在までの到達点について解説していただきたいと考えている。

本日のシンポジウムは日本学術会議土壌・肥料・植物栄養学研究連絡委員会、同自然保護研究連絡委員会、ならびに社団法人日本土壌肥料学会の3者共催によって開催されるものである。本日のシンポジウムが公開であるのはもちろんであるが、主催者の意図としては、どちらかといえば土壌学、植物栄養学関連領域の研究者が、土壌汚染とその修復に関連した問題について知識を拡げかつ深める機会となることを願って企画したものである。本日の主題は、今後のわが国の農業・環境政策を考える上でも極めて重要な問題をはらんでいるが、主催者の意図はあくまで将来の研究の発展のために科学的な知見を共有し、かつ深化させることを目指したものであることを付言しておきたい。

わが国土壌の重金属など有害金属による汚染の実態 -とくにカドミウム汚染をめぐる最近の諸問題-

浅見輝男

日本学術会議会員(第6部)

日本学術会議自然保護研究連絡委員会委員長

1. はじめに

ダートマス医科大学微量元素研究所のシュレーダーは「カドミウム、ベリリウム、アンチモン、水銀、鉛の5つの元素は有害元素であり、人間の健康を考える際には特に注意する必要がある。アメリカでの死亡原因の少なくとも半数、また治療不能の難病の大多数は、これら5元素が何らかの関連をもっている」と想定されるからである(シュレーダー、1976)。」と述べている。また米国のEPAはアンチモン、ヒ素、ベリリウム、カドミウム、クロム、銅、鉛、水銀、ニッケル、セレン、銀、タリウム、亜鉛を優先汚染物質(priority pollutants)に指定している(Keith and Tillard, 1979)。さらに1983年に西ベルリンで開かれた「金属の生物地球化学的サイクルの変化と人間健康に関するワークショップ」では、鉛、カドミウム、水銀、ヒ素のような「古典的Jな汚染元素と同時に、潜在的な新しい汚染元素として、タリウム、インジウム、ビスマス、アンチモン、スズ、クロムに関する評価が必要であると指摘された(Andreae et al., 1984)。

今回はまず有害金属類による日本の土壌とくに農地土壌の汚染についての述べ、次に最近問題になっているカドミウムによる汚染に関する問題について述べることにしたい。なお、必要に応じて非農用地土壌の汚染についても触れることにしたい。また、銅や亜鉛のように植物が必要とする元素も有害性を発揮する濃度の場合を取り扱うので、一律に有害元素と表現したことをお断りしておく。濃度は原則として、土壌は乾土あたり ppm、生物は生重あたりppmで表示した。

2. 各種有害金属による土壌汚染

1) 各種有害金属の生産量と消費量

日本においてその土壌汚染が認められている若干の有害金属についての生産量と輸入量を表1(資源エネルギー庁官房鉱業課、1970、1997)に示した。消費量は示さなかったが、生産・輸入量が消費されていたと考えられる。なお、ヒ素、ベリリウム、インジウム、テルル及びタリウムのデータは「鉱業便覧」に記載されていなかった。表1には1965年度から5年おきの生産量、輸入量及びそれらの合量、並びに1995年度における日本の使用量の順位と世界の全使用量に対する日本の使用量の百分率を示した。カドミウムの輸入量については1988年度から通関統計が発表されている。従って、それ以前の輸入量は1965年度以外は不明である。水銀の生産量はほぼ全量が再生水銀である。

水銀以外の金属は1965年度から1970年度にかけて生産・輸入量が著しく増加している

ものが多い。この時期は高度経済成長期である。その後は伸びが停滞している金属と相変わらず増加している金属とがある。生産・輸入量が1970年度に比べて1995年度において約2倍以上増加している金属は、銀(2.2倍)、カドミウム(3.4倍)、銅(1.8倍)、ニッケル(6.6倍)、セレン(3.0倍)、三酸化アンチモン(7.7倍)である。1995年度の世界における日本の使用量順位は1位がカドミウムとニッケル、2位が銅、3位がモリブデン、鉛、亜鉛、4位が銀、5位がクロムである。特にカドミウムの使用量が世界の43.4%であることは、日本におけるカドミウム汚染の深刻さを暗示していると言えよう。「？」が書いてある金属は各国の消費量の表示がなかったものである。

2)有害金属による土壌汚染の実態

(1)土壌汚染防止法によるカドミウム、銅、ヒ素調査結果

農用地の土壌の特定有害物質による汚染を防止および除去等の必要な処置を講ずることにより、人の健康を損なうおそれのある農畜産物が生産され、または、農作物等の育成が阻害されることを防止し、もって、国民の健康の保護及び生活環境の保全に資することを目的とした「農用地の土壌の汚染防止等に関する法律(土壌汚染防止法)」が1970年12月に制定され、1971年6月から施行されている。特定有害物質としてはカドミウム、銅、ヒ素のみが指定されているので、まずはじめにこの3元素による汚染の実態について述べる。

環境庁水質保全局は毎年、これら3元素による汚染と汚染対策の状況について報告書をだしている。環境庁水質保全局(1998)によれば、1998年10月31日現在における農用地土壌汚染対策の進捗状況は表2のとうりである。基準値以上検出地域はカドミウムは92地域6610ha、銅は36地域1400ha、ヒ素は14地域390haであり、合計129地域7140haである。そのうち土壌汚染防止法によって指定をうけているのは、67地域6270haである。指定地域では順次対策計画が立てられ、復元対策が実施されつつある。図1に指定面積・対策事業面積等の推移を示した。小面積の地域は県単独事業として対策が実施された。現在30地域420haが未指定のままになっている。従って、現在でも指定は続いており、一番最近では1998年3月3日に指定が行われている。しかも、カドミウムによる汚染の場合、陸稲を作付けした畑は指定の対象(実際には安中の小面積のみ指定)になるが、その他は水田のみが指定の対象になっており、畑や林等は手つかずのまま放置されている。対策地域の概要と位置は表3および図2に示した。

指定要件を簡単に述べれば、カドミウムでは「生産された玄米に1.0ppm以上のカドミウムを含むか、その可能性が高い農用地」、銅では「土壌中に0.1M塩酸抽出銅が125ppm以上含まれていること」、ヒ素では「土壌中に1M塩酸抽出ヒ素が15ppm以上含まれていること」となっており、指定地は氷山の一角である。なお、カドミウムについて土壌の基準がないのは不可解である。

(2)概況調査による土壌と作物中カドミウム、銅、亜鉛、鉛、ヒ素濃度

1971年から「全農用地を対象として重金属類の土壌中の一般的賦存量を把握するとともに、汚染の進行状況等を明らかにするため、定点により継続的に土壌調査を実施し、
・ ・ 1971年度から都道府県に対する国の補助事業として発足した」所謂概況調査がある。

定点には水田約1000haに1点、畑と樹園地は約2000haに1点が定められており、初期3年は全体の調査を実施したが、その後3年で一巡するように調査を行っているとのことである。調査事業として経験を積んだと思われる3年日のデーターによって、日本における農用地汚染の実体を見てみよう。

表4(農林省農蚕園芸局、1974)は試料採取地点を水田、畑、樹園地に分け、さらにそれぞれを全地点、一般地点、汚染地点に分けてカドミウム、銅、亜鉛、鉛、ヒ素の濃度を表示している。なお、銅と亜鉛については作物中濃度を表示していない。表4の欄外にも書いたが、「汚染地点」とは都道府県がその地点が汚染されているか、その可能性があると思われた地点であって、土壌中の重金属濃度が高い地点でも汚染原因を推定できない場合は「一般地点」とし、土壌中濃度が低くとも汚染原因を推定できる場合には「汚染地点」にしているとのことである。土壌のデータを見れば、一般地点に汚染地点が紛れ込んでいることは明らかである。土壌中濃度はカドミウム、銅、亜鉛が0.1N塩酸抽出、鉛が1N酢酸アンモニウム抽出、ヒ素は過塩素酸分解法によって定量している。従って、ヒ素以外は全量分析ではなく、特に銅、亜鉛、鉛は全量より可成り低い値になっている。次に述べる外国の基準濃度は全量表示かそれに近い値を用いているので、日本でも全量分析の必要があろう。作物は水田では玄米であるが、普通畑や樹園地の場合には可食部と言うのみで具体的な作物名が判らない。表示は土壌が乾物あたり、作物が新鮮物あたりppmである。

汚染地点と認められた地点の割合は各元素でほぼ同様であり、水田で9.5%、普通畑で3.2%、樹園地で7.5%である。一般地点でも明らかに汚染されている地点があると思われるので、この値は最低の割合である。

(3)土壌と作物中金属濃度の基準値

カドミウムについては、後で詳しく述べるが、ここでは土壌と食品についての2、3の外国の基準値とFAO/WHOの下部組織である食品添加物および汚染物に関するコーデックス部会(CCFAC)の鉛に関する基準値について示すことにする。

表5は農地におけるドイツ及びスイスの金属に関するガイドライン値である(Ewers, 1991)。ドイツではタリウムが1ppmと最も低く、水銀が2ppm、カドミウムが3ppm、アンチモン、モリブデン、ウランが5ppmである。しかし、スイスではカドミウムと水銀が0.8ppmでタリウムはドイツと同じ1ppmであった。また、オランダでは表6に示すように、粘土と腐植含量を考慮してガイドライン値が決められていた(Ewers 1991)。

表7にはドイツにおける各種食品中の鉛、カドミウム、水銀の基準値を示した(Ewers, 1991)。また、表8には1999年3月に開催されたCCFACに対してデンマークから提出された食品中鉛の最大許容基準案を示した(Draft maximum levels for lead, CX/FAC99/11, Dec. 1998)。カドミウムについては後で論ずることにして、概況調査による食品中鉛の値とこれらの基準値とを比較してみよう。概況調査による作物中鉛の値は、全地点の平均値で水田(玄米)が0.20ppm、普通畑が0.34ppm、樹園地が0.16ppmである。この平均値ではドイツの基準を大体クリアしているようであるが、CCFACに提案された値よりも米、野菜、果樹のいずれでも可成り高いようである。最高値はドイツの基準値よりも大分高いのでドイツの基準値を上回る作物も可成りあると考えられる。現在、食品中のカドミウムが大きな問題になっているが、まもなく鉛でも同様な問題が起こる可能性

がある。

(4)各種有害金属による土壤汚染

先に土壤汚染防止法に基づくカドミウム、銅、ヒ素による農用地土壤の汚染状況について述べ、ついで概況調査による日本全国の農用地土壤と作物のカドミウム、鉛、ヒ素の含有率、および農用地土壤中の銅、亜鉛含有率について述べた。ここでは、個々の汚染地の状況についてごく簡単に触れることにする。はじめに最も汚染が問題になっているカドミウムとその類縁元素である亜鉛、鉛、銅について述べ、次には原子番号順に、ベリリウム、クロム、ヒ素、銀、インジウム、アンチモンとビスマス、テルル、水銀、タリウムについて述べる。ただし、ビスマスはアンチモンと同時に存在することが多いので、一纏めにして述べる。

A. カドミウム、亜鉛、鉛、銅

カドミウムは亜鉛、鉛、銅と化学的性質が近く、これら4種類の元素によって同時に汚染されている土壤が多い。表9には健康障害が認められている5地域について、土壤汚染防止法に基づいて各県で調査した土壤と玄米中のカドミウム含量を示した(Asami, 1997)。表9に示した5地域のうち神通川流域では1993年までに164人のイタイイタイ病患者が公害健康被害補償法によって認定され、また富山県は要観察患者として388人を認定した。さらに、イタイイタイ病患者と同じ病像を持つ患者が生野鉱山周辺地域で5人、佐須川及び椎根川流域で11人、梯川流域で2人見いだされている。ただし、これらの患者はイタイイタイ病患者として国から認定されてはいない。また表9の5地域ではすべて腎障害患者が見いだされている(Asami, 1997)。

表2に示したように、カドミウム汚染地域は土壤汚染防止法に基づく調査によるだけでも92カ所、銅汚染地域は36カ所もあるので、これらのうち若干の地域について亜鉛、鉛、銅を含めて簡単に触れたい。これらの地域の汚染源はほとんど非鉄鉱山・製錬所である。

柳沢ら(1984)による神通川流域水田土壤作土1157点の平均カドミウム濃度は0.1N塩酸抽出法で1.37ppm、過塩素酸分解法で2.13ppmであり、平均亜鉛濃度はそれぞれ59.3ppm、349ppm、平均銅濃度はそれぞれ6.3ppm、21.5ppmであった。また、玄米中カドミウム濃度は2570点中0.4ppm未満が61.8%、0.40-0.99ppmが36.9%、1.00ppm以上が9.0%であり、平均0.37(0.00-5.20)ppmであった。玄米中亜鉛濃度は平均25.2ppm、銅は平均4.5ppmであった。亜鉛と銅の値は非汚染地並の値であった。

生野鉱山周辺地域については、浅見ら(1981, 1982, 1983)が河川底質、水田土壤のカドミウム、亜鉛、鉛、銅含量と玄米中カドミウム含量について報告している。生野町は丁度分水嶺にあり、南へ市川が、北へ円山川が流れている。汚染水田土壤作土の重金属含量は生野町から下流地域に向かって減少している。生野より南側に向かっている市川流域では、生野町と最下凍域の姫路市でそれぞれカドミウム 7.17 ± 1.67 、 1.92 ± 2.02 ppm、亜鉛 1205 ± 279 、 393 ± 215 ppm、鉛 231 ± 28 、 132 ± 156 ppm、銅 192 ± 69 、 66 ± 33 ppmであった。円山川本流流域でも類似の傾向が認められた。玄米中カドミウムの濃度は市川流域の生野町では当時作付け停止のため試料を採取出来なかった。次の大河内町でも一部の水田は作付け停止であったが、採取できた玄米中カドミウム含量は 0.61 ± 0.64 、最高1.73ppmであり、姫

路市でも 0.25 ± 0.20 ppm、最高1.50ppmであった。円山川本流流域でも類似の傾向が認められた。

秋田県における指定面積は富山県(1630ha)に次いで多く1562haほどあるが、汚染地が21カ所もある(表3)。尾川(1994)によれば、概況調査141点中汚染地は18点で12.8%が汚染地であり、全国平均9.5%より高い。汚染地土壌作土の平均重金属濃度はカドミウム2.11、銅31.5、亜鉛34.4、鉛22.3、ヒ素10.9ppmであった。汚染地の玄米中カドミウムの平均濃度は最高値を示した昭和50年が0.52ppm量であった。個々の汚染地については本論文等を見ていただきたい。

大竹(1992)によれば、山形県においてはカドミウム汚染地域として19地域、356haが確認された。そのうち面積が大きいのは吉野川流域の南陽市のみである。南陽市の水田作土中カドミウム含量は試料数333点の平均の2.47(0.27-16.5)ppmであり、玄米中カドミウム濃度は同じく333点の平均が0.33(0.00-1.56)ppmで、1.0ppm以上が16点、0.4-1.0ppm未満が91点、0.4ppm未満が226点あった。

館川(1978)は福島県内のカドミウム汚染地について報告している。昭和45年日曹金属(株)会津製錬所周辺の水田作土と玄米を85点採取して分析した結果、作土の全重金属濃度の平均値(最低-最高)はカドミウム14.4(2.4-49.2)ppm、亜鉛842(222-2958)ppm、鉛381(47.8-1552)ppm、銅55.0(18.9-146.3)ppmであり、玄米はカドミウム0.20(0.00-1.11)ppm、亜鉛23.7(16.8-31.4)ppm、鉛0.34(0.12-0.82)ppm、銅2.3(0.8-4.1)ppmであった。また、会津製錬所の排水が流入する日橋川下流域の会津盆地もカドミウムなど重金属に汚染されており、昭和45年に水田作土と玄米を56点採取して分析した。その結果、作土の全重金属含有量はカドミウム7.5(2.7-12.4)ppm、亜鉛444(136-2137)ppm、鉛20(13-54)ppm、銅34(22-50)ppmであり、玄米はカドミウム0.25(0.01-0.99)ppm、亜鉛21.2(19.9-24.4)ppm、鉛0.29(0.21-0.63)ppm、銅2.5(1.2-2.8)ppmであったという。玄米中カドミウム含量の最高値が0.99ppmであり、1.0ppm以下であるとの理由で、会津盆地東側の水田は対策地域として指定されなかった。しかし、昭和45年の著者らの網査によれば、会津盆地の汚染地において1.0ppm以上のカドミウムを含む玄米が3点検出されている(浅見、1972)。

水田土壌の汚染の程度が最も高い例は、ニッケル・カドミウム電池の解体工場を汚染源として、藤沢市の小出川流域で発生した。高濃度汚染水田2枚の水田作土をそれぞれ8点ずつ採取して分析したところ、カドミウム濃度は677(33-3304)ppmであった(松崎ら、1987)。また、1.0ppm以上の玄米が生産された水田で、最も低い土壌中カドミウム濃度を示したのは熊本県荒尾市の0.3ppmであり、この値は熊本県内非汚染水田作土中カドミウム濃度の平均値以下であった(三角ら、1987)。

カドミウム汚染源は非鉄鉱山・製錬所以外にも各種工場がある。また、都市ゴミ焼却場も汚染源になる。松本ら(1979)は千葉県下の焼却場周辺水田の作土と産米中カドミウム濃度の調査を実施したところ、玄米では松戸市、市川市、野田市および成田市で1.0ppm以上、流山市および我孫子市で0.4ppm以上、市原市および木更津市0.3ppm以上が検出された。土壌でも市原市と成田市で5ppm以上のカドミウムが検出された。これらのカドミウムは排水と焼却灰の飛散・混入によると考察されていた。浅見(1987)によれば茨城県守谷町にある焼却場の煙突から排出されたカドミウムによって、1.0ppm以上のカドミウムを含む玄米が生産された。最近ダイオキシンの発生を押さえるために焼却温度を高くする必

要があると言われている。しかし、このためにカドミウムの排出量は増加する可能性がある。

表2に示したように、カドミウムが基準値以上検出された地域は92地域6610haあり、そのうち58地域6110haが農用地土壌汚染対策地域として指定されている。すべての地域について紹介する事は不可能であるので、以上で終わりにするが、土肥誌、各県の研究報告、各県の公害(環境)白書などには汚染地についての情報が載っている。各県の研究報告には汚染地の実態調査報告よりむしろ復元のための試験結果の報告が多いようである。重金属汚染水田の復元のための基礎研究は伊藤・飯村(1976)、飯村・伊藤(1978)に詳しい。また、日本における重金属汚染に関する成書には渋谷政夫編著(1979)、Kitagishi, K and Yamane, I. eds. (1981)、日本土壌肥料学会編(1991)などがある。

B. ベリリウム

農用地のベリリウム汚染の研究はないようである。ここでは非農用地の汚染について述べる。日本の表層土壌(n=27)のベリリウム濃度は 1.17 ± 0.43 (0.27-1.95)ppmであった(Asami and Fukazawa, 1985)。また、諸外国の非汚染表層土壌中ベリリウム濃度もほぼ日本土壌と同様であった(Asami and Kubota, 1995)。日本にはベリリウムを製錬し製品を造っていた工場が4カ所あったので、それらの周辺の表層土壌を採取して分析した(浅見・深沢, 1981a)。1972年と1976年の2回の調査では、日本碍子熱田工場の周辺500m以内でそれぞれ平均で7.39および8.56ppm、500m以遠でそれぞれ2.78および2.22ppmであり、2度の調査の値はほぼ等しい。このことは、ベリリウム作業の重点を知多工場へ移したためであると考えられる。知多工場周辺の表土中ベリリウム濃度はこの間に約2倍になっていた。すなわち、500m以内で2.92および6.53ppm、500m以遠で1.14および2.07ppmであった。工場周辺の雑草も明らかに汚染されていた(浅見・深沢, 1981b)。なお、浅見(1996)による総説がある。

C. クロム

農用地のクロム汚染の論文は見あたらない。そこで、非農用地のクロム汚染について述べる。日本化工小松川工場より排出したクロム鉍滓によって、地盤沈下によって使えなくなった市川市儀兵衛新田の水田が埋め立てられた。クロム鉍滓に硫酸第一鉄を混合し、その上を土壌で覆ったが、鉍滓中には未反応の多量の6価クロムが残存していたため、地表や排水中に大量の6価クロムが検出された(浅見, 1973; 浅見・三瓶, 1977)。また、同工場の鉍滓は東京都にも大量に捨てられた(蜷木, 1979)。東京都は鉍滓に硫酸第一鉄を混合してその上を非汚染土壌で覆ったが、6価クロムの還元が不十分のために、最近でもクロムの流出が続いている(久保田ら, 1995)。なお、1937-1975年におけるクロム鉍滓総排出量は1146532 tであり、日本電工栗山工場(北海道)、同徳島工場、日本化工小松川工場、同徳山工場からの排出量がそのほとんどを占めていた(毎日新聞, 1975.8.22)。

蛇紋岩風化土ではクロム汚染があると考えられるが、報告は見あたらなかった。

D. ヒ素

表2に示したように、ヒ素が基準値以上検出された地域は14地域、390haあり、その

うち7地域、160haが農用地土壌汚染対策地域として指定されている。7地域のうち宮崎県の岩戸川流域土呂久地域の高千穂町および島根県の笹ヶ谷鉱山下流域の津和野町と日原町は健康障害についての指定地域となっており、認定患者がそれぞれ145人、および21人いた。

土呂久鉱山の下流域にあたる延岡市内の五ヶ瀬川流域の土壌中に高濃度のヒ素を見出し、土壌肥料学会九州支部講演会(1963年11月)で報告したのは斉藤文次宮崎大学教授であった。斉藤(1964)は2カ所の水田作土からAs₂O₃として301および838ppmのヒ素を検出した。しかし、土呂久のヒ素公害が表に出たのは、1971年に岩戸小の斉藤教諭が宮崎県の教育研究集会で鉱毒調査結果を発表したことによる。宮崎県(1972)の報告書に土壌中ヒ素濃度が載っている。土呂久水田土壌作土7点のヒ素濃度は274(44.2-424)ppmであり、畑土壌作土1点は1302ppmであった。ヒ素で高濃度に汚染されている水田は土呂久だけではなく、その下流域全体に及んでいた。土呂久地区の指定面積は13.5haである。

笹ヶ谷鉱山周辺の土壌汚染については山根(1979, 1989)の報告がある。本地域における水田土壌74点の全ヒ素濃度は作土で36.7(7.6-137.9)ppm、次層で85.5(24.0-358.4)ppmであり、次層の方が明らかに高い。2対照地水田土壌の全ヒ素平均濃度は作土で5.0ppm、次層で10.4ppmであった。1N塩酸可溶ヒ素は本地域水田作土が23.3(2.8-101.6)ppm、次層が10.1(0.9-36.5)ppmであり、次層の方が低かった。したがって、全ヒ素に対する可溶性ヒ素の割合は作土の方が明らかに高い。対照地水田では作土が3.2ppm、次層が4.6ppmであった。

E. モリブデン

野田ら(1994)によれば、島根県南東部に位置する花崗岩地帯には輝水鉛鉱(MoS₂)の鉱床があり、各地で採掘が行われていた。小馬木鉱山の排水が流入する水田土壌はモリブデンによって汚染されており、鉱山近くの水田土壌は705、466、212ppmと極めて高濃度のモリブデンを含んでいた。その下流でも30-40ppm、鉱山から約3Km下流でも2-9ppmのモリブデンが水田土壌に含まれていた。なお、非汚染土壌のモリブデン濃度は約2ppmである。モリブデン鉱滓が混入した大豆畑では304ppmのモリブデンが検出された。土壌中のモリブデン濃度が高い場合、植物は過剰吸収しやすく、和牛の被毛の白化現象は牧草のモリブデン含有過多による。水稻の生育もモリブデン過剰によって阻害される。高見ら(1994)は水稻のモリブデン過剰害の防止対策について研究している。

F. 銀

銀の毒性は高く、労働環境の空気中に含まれる銀の許容濃度は0.01mg/m³でカドミウムや水銀の許容濃度(共に0.05 mg/m³や、鉛の許容濃度(0.1 mg/m³より厳しい(日本産業衛生学会、1995)。

日本の非汚染表層土24点の銀濃度の平均(範囲)は0.084(0.024-0.167)ppmであり、下層土90点では0.062(0.009-0.206)ppmであった。銀は親銅元素であるので、非鉄鉱山・製錬所から排出されると考えられる。兵庫県市川流域7水田土壌作土の銀濃度は2.16(0.27-6.89)ppmであった。安中製錬所周辺の199点の畑作土では0.274(0.050-2.42)ppmの銀が検出された。また、宮城県の細倉鉱山周辺の水田作土15点、畑作土3点、山林表土

1点計19点の銀濃度は1.69(0.13-7.43)ppmであった。なお、細倉鉱山廃水が流入する河川底質(10点)中銀濃度は非常に高く、33.0(0.54-125)ppmであった。ただし、幾何平均は11.8ppmであった。日立鉱山・製錬所周辺表土18点の銀濃度は0.718(0.085-9.05)ppmであった。茨城県高取鉱山周辺水田作土6点の銀濃度は0.197(0.086-0.417)ppmであった(浅見ら, 1995; 佐伯, 1997)。

最近抗菌商品が氾濫している。抗菌剤として銀化合物を含むものが多いのは問題であると考え(浅見, 1995)。

G. インジウム

4種のカナダのreference soilsのインジウム濃度は0.050(0.017-0.0088)ppm,日本の非汚染土壌4断面II試料では0.037(0.016-0.078)ppmであった。神通川流域水田作土のインジウムの最高値は0.103ppm、安中土壌の最高値は1.92ppmであり、日本の非汚染土壌の平均値のそれぞれ3および52倍の値を示していた。周期表でインジウムの上にあるガリウムの汚染は両地域の土壌で認められなかった(Asami et al., 1990)。

なお、村尾・安藤(1989)によればインジウムはメッキ、合金、その他窓ガラス、SOXランプ、太陽電池、ウインドシールド、各種ディスプレイ、半導体、トレーサー、潤滑油の添加剤などとして用いられている。インジウムは亜鉛の副産物として回収されている。1986年における全世界のインジウム生産量は約115tであり、そのうち日本の生産量は16tで世界第1位である。

H. アンチモン、ビスマス

日本の非汚染土壌表土25点のアンチモン濃度は0.37(0.13-0.91)ppmであり、ビスマス濃度は0.34(0.12-0.91)ppmである(浅見ら, 1988)。

石田・片山(1978)によれば、滋賀県米原町にある日比野金属工業(株)は1967年以来アンチモンを製錬しており、1978年頃には年産4000tの規模であったという。工場から排出されるアンチモンによって周囲の土壌は汚染され、濃度分布は工場を中心にして同心円状を呈し、最高380ppmであった。排水中にも1-30ppmという高濃度のアンチモンが含まれていた。最近になって森田ら(1997)は同工場周辺土壌中アンチモンの分析を行ったが、工場周辺の作土で200-400ppm程度のアンチモンを検出したという。したがって、一旦土壌が汚染されると、アンチモンは長期間にわたって土壌中に存在するものと考えられる。なお、森田ら(1997)の論文では、試料採取地点の地図に"Smelter", "RiverA", "RiverB"などと書かれており、具体的な場所や工場名が書かれていなかったが、石田・片山(1978)の「工場周辺の概略図」と鉄道、道路、河川の位置関係が全く同じであったので両者は同一工場であると判断した。論文は他の研究者が追試出来ることが必要であるので、森田ら(1997)のような論文は価値が低いと考えられる。

Asami and Kubota(1993)は日本の17カ所の鉱山・製錬所・各種工場周辺土壌のアンチモンとビスマス濃度について報告している(図3、表10)。データの詳細は浅見ら(1984)、久保田ら(1988)、久保田ら(1989)、久保田ら(1990)、久保田ら(1992)、Kubota et al.,(1990)で報告した。

・テルル

非汚染土壌表層25点のテルル濃度は0.047(0.010-0.109)ppmであり、幾何平均は0.041ppmであった(土橋、1995)。

久保田ら(1995)によれば、日立鉱山周辺表土18試料のテルル濃度は0.482(0.011-6.55)ppm、三菱マテリアル大阪工場周辺表土10試料の濃度は1.81(0.043-6.17)ppm、北海道共和町にある住友金属鉱山国富工業所周辺表土24試料の濃度は0.964(0.079-6.74)ppmであった。テルルは植物によって比較的吸収され易く、日立鉱山周辺で採取されたヨモギ2点、ヘビネコザ9点の乾物当たり濃度は4.64(1.79-9.18)ppmであった。なお、非汚染のヨモギ3点のテルルの乾物当たり濃度は平均0.021ppm、ヘビネコザ1点の濃度は0.033ppmであった。ダイズ、トウモロコシ、コマツナを用いた水耕実験でもテルルは大変よく吸収され、地下部に高濃度に集積することが判った(土橋、1995)。

J. 水銀

水銀汚染としては、水俣湾や阿賀野川流域における工場排水による海水・河川水、底質、魚介類の有機水銀による汚染と人体被害としての水俣病が有名である。しかし、ここでは陸地土壌の汚染問題に限ることとする。

後藤(1982)の水銀に関する総説によれば、非汚染土壌の水銀濃度はヨーロッパ、アメリカ、カナダの調査結果によると0.020-0.100ppmの範囲にあり、九州地方の土壌では0.031-0.079ppmの範囲にあった。浅見ら(1979)によれば、農林省農事試験場の4水田心土の平均水銀濃度は0.099ppm、児島湾干拓地の5水田心土では0.081ppmであった。これらの心土は水銀で汚染されていないと考えられた。したがって、非汚染土壌の水銀濃度は0.1ppm以下であろう。

1973年度に環境庁水質保全局(1974)が行った土壌・農作物等の一般調査によれば、47都道府県469作土中水銀濃度は0.29(ND-5.36)ppmであり、大部分はND-1.5ppmの範囲にあった。農作物464試料(うち玄米203試料)では0.01(ND-0.17)ppmであった。なお、有機水銀はほとんど検出されなかった。作土の水銀濃度が高いのは、水銀農薬の散布に基づくことは周知の事実である。水銀鉱山や水銀使用工場周辺ではこれとは別に詳細調査を行った。23都道府県、58調査地域において、238点づつの作土と作物を採取して水銀の分析を行った。作土中水銀濃度は0.07-67ppmで、0.07-1.50ppmの作土が86.9%あった。最高値は三重県勢和村の丹生鉱山周辺で作土10点の水銀濃度は26.75(0.63-67)ppmであった。鹿児島県大口市の大口鉱山周辺作土は1点しか採取しなかったが、28.3ppmの水銀が含まれていた。玄米は196点あったが、表7の米中水銀の基準値0.03ppmを越えているものが22.4%あった。先述の丹生鉱山周辺玄米10点には0.04(0.02-0.07)ppmの水銀が含まれていた。

Nakagawa and Yumita(1998)は新潟県の水田作土を1989年に122点、1997年に120点採取して水銀を分析した。水銀濃度は1989年は0.155(0.019-0.62)ppm、1997年は0.146(0.015-0.34)ppmであり、この間ほとんど減少していなかった。

三重県勢和村の丹生鉱山周辺水田作土と玄米中水銀濃度についてMorishita et al.(1982)が報告している。鉱山のある丹生集落の水田作土8試料では36.5(5.05-98.6)ppm、玄米8試料には0.031(0.010-0.060)ppmの水銀が含まれていた。その他の集落の水田土壌も高濃

度の水銀を含んでいた。

K. タリウム

Asami et al. (1996)によれば、非汚染土壌表層土18点の平均タリウム濃度は0.33 (0.10-0.56)ppm、幾何平均は0.31ppmであった。外国の土壌についてもこれに近い値が報告されている。

宮城県の細倉鉱山は以前少量のタリウムを生産していた。そこで細倉鉱山・製錬所の排水が流入する河川底質と工場周辺土壌および下流域の水田土壌作土を採取して各種重金属の分析を行った。図4に試料採取地点を示し、表11に河川底質、表12に土壌のタリウムとその他の重金属の濃度を示した。細倉鉱山周辺はすでに「二迫川」流域がカドミウム汚染地として指定されている。表11で明らかなように、河川底質はカドミウムとタリウムのみならずその他の重金属によっても高濃度に汚染されていた。タリウムの幾何平均(範囲)は17.5(4.81-79.9)ppmであった。土壌も明らかに汚染が認められ、タリウムも幾何平均(範囲)が0.58(0.26-2.39)ppmを示した(浅見ら、1997; Asami et al. in press)。

タリウムは植物によって容易に吸収される。特に、アブラナ属の植物によって大量に吸収されるようである(浅見ら、1999a; 浅見ら、1999b)。ドイツにおける土壌中タリウム濃度許容基準は1ppmであり、食物中タリウムの最大許容基準は生重当り0.1ppmである(Kemper and Bertram, 1991)。茨城大学農学部附属農場の淡色クロボク土(タリウム含量0.448ppm)で栽培したコマツナに生重当たり0.028ppmのタリウムが含まれていた。したがって、低濃度汚染地においても0.1ppm以上のタリウムを含む野菜が生産される可能性がある(浅見ら、1999b)。

3. カドミウム汚染をめぐる最近の諸問題

ここでは最近問題になっている、食品添加物・汚染物質に関するコーデックス部会による食品中カドミウムの最大許容基準について述べ、ついで日本の玄米中カドミウム濃度の基準値1.0ppmが決まったいきさつなどについて述べることにする。前段については既に浅見(1998a、1998b)が報告しており、後段については浅見(1971、1974、1975、1994)およびAsami(1981)が報告している。従って以下の内容はこれらと重複することをお断りしておく。

1) コーデックス委員会による国際安全基準の国際標準化

(1) コーデックス委員会、食品添加物・汚染物質に関するコーデックス部会およびFAO/WHO合同食品添加物専門家委員会

嘉田良平(1997)によれば、FAO/WHOによる食品規格委員会(Codex Alimentarius Commission[CAC]: コーデックス委員会)は、1962年に、世界の消費者の健康を保護し、食品の健全な貿易慣行を確保し、国際貿易を促進するために、食品の国際基準を作成することを目的として設立された。日本は1966年に加盟している。コーデックス委員会は全体に係わる問題を横断的に検討する委員会と、品目別・地域別に問題を検討する部会等か

ら構成されている。その1つである、World-Wide General Subjects Codex Committeeの下にある食品添加物・汚染物質に関するコーデックス部会(Codex Committee on Food Additives and Contaminants[CCFAC])で問題の食品中カドミウムの最大許容基準値が議論されている。CCFACは年1回会議を開き、コーデックス委員会に報告書(ALINORM報告)を連出する。CCFACは加盟国政府が提供するデータおよびFAO/WHO合同食品添加物専門家委員会(Joint FAO/WHO Expert Committee on Food Additives[JECFA])の勧告および査定に基づいて活動している。

JECFAは1955年に個人の資格で執務する専門家によって構成されている専門家委員会として作られた。この専門家委員会は入手可能なあらゆる科学的データに基づいて、食品添加物と食品汚染物質を評価して「1日摂取許容量(ADI)」および「食品添加物の同定及び純度に関する細則事項」などを決めている。JECFAの結論はWHOによりFAO Food and Nutrition(以前はFAO Nutrition Meeting Report Series)として出版される。JECFAの見解と勧告は、CCFACによる食品の安全性に関する決定、また食品に添加されようとする添加物の決定のための基礎資料として用いられる。

(2)コーデックス基準値の作成手続き

さて、食品添加物や食品に含まれる汚染物質についてのコーデックス基準値(Codex Standards)の作成手続きにはStep1からStep8までである。詳しくは”Procedures for the Elaboration of Codex Standards”を見て頂きたい。また、その内容は嘉田(1997)によって要約されている。現在カドミウム問題はStep7にある。Step7とは「受理されたコメントは、事務局によって、このコメントを考察し暫定基準値を修正する能力を有する補助機関(Subsidiary Body)あるいは他国関係機関に送られる。」というStepである。最後のStep8は「コーデックス規格として採用する目的で、暫定基準値は、Step8における修正のための参加国および関係国際機関からの文書提案と共に、事務局からコーデックス委員会に提出される。」というものであって、要するに最終決定のためのStepである。

(3)食品のカドミウム基準値検討の状況

JECFAは1972年に会議を開き、その結果はWHO(1972)から出版された。この会議は食品汚染物質としての水銀、鉛、カドミウムなどの評価を行うために開かれた。日本からは、厚生省食品衛生課小島康平課長と新潟大学医学部椿 忠雄教授が委員として、橋本道夫もオブザーバーとして参加した。この委員会はカドミウムについて「職業的にカドミウムに曝露されてはいない大人の腎皮質中のカドミウムのレベルはスウェーデンでは約30mg/kg(FW、以下同じ)、アメリカで25-50 mg/kg、日本で50-100 mg/kg程度である。腎皮質のカドミウムが200 mg/kg を超えると腎障害がおこる可能性があるので、本委員会は腎のカドミウムレベルを現在以上に増加させるべきではないと考える。もし、カドミウムの全摂取量が体重1kg当たり1日1 μ gを超えないと仮定し、腸管吸収率を5%、1日の排泄量を体内の全カドミウムの0.005%とすると、腎皮質中のカドミウムは50mg/kgを超えることはありそうにない。それゆえ本委員会は1週間の許容摂取量を400-500 μ gとすべきことを提案する。」としている。そして、Annex2 Evaluation of some contaminants and additives という表で、カドミウムの暫定許容1週間摂取量(Provisional tolerable weekly intake, PTWI)

を0.4-0.5mg/人および0.0067-0.0083mg/Kg体重としている。同時に全水銀について0.3mg/人、0.005 mg/Kg体重、メチル水銀(Hgとして)について0.2mg/人、0.0033mg/Kg体重、鉛について3mg/人、0.05 mg/Kg体重としている。(ただし、鉛の値は幼児と子供には適用しないと書かれている。) WHO(1989)によれば、第33回JECFAにおいてカドミウムのPTWIは7 µg/kg体重と訂正した。

1995年にフランスからCCFACの27回会議に提出されたPosition Paper on Cadmium(CX/FA C 95/19 Nov. 1994)によれば、1993年に開かれたJECFAの会議においてもPTWIとして7 µg/kg体重が確認された。フランスのPosition Paperによれば「Population Critical Concentration(PCC)-10%の人が尿細管性蛋白尿を示す-は腎皮質中200 µg/gと見積もられ、体重60kgの人に50年間以上にわたって1日カドミウム摂取量175 µg(1週間当たり125 µgに相当する)に一致する。この摂取量はJECFAが設定した7 µg/kg体重の約3倍である。」

「PCC2%は50年以上1日カドミウム摂取量100 µgに相当する。過去10年間数カ国における平均1日食物由来カドミウム摂取量は7.5-40 µg、すなわち体重60kgの人であると1週間摂取量は1.1-4.7 µg/kg体重である(1.1は0.88の計算違い)。この値はPTWIより低いが、safty marginは小さいし、過去や現在の工業活動による汚染地に住んでいる人々のカドミウム摂取量はPTWIを十分超えるであろう。」と述べている。以上はJECFAの文事に基づいた記述である。

さて、CCFACにおける検討は1995年の第27回会議から始まったと考えられる。著者が所有しているのは1996、1997、1998年の報告書(ALINORM 97/12 97/12A 99/12)のみである。

1996年の第28回会議のカドミウムについての結論は「当部会はコーデックス委員会第20回会議が、穀物と豆類のカドミウム(0.1mg/kg)および鉛(0.5mg/kg)の暫定指導基準値について、Step6で追加のコメントを依頼するとの穀類および豆類に関するコーデックス部会(CCCPL)の第9回会議の決定に同意したことに注目した。コーデックス委員会の第21回会議がCCCPLを無期限に延期したので、当部会(CCFAC)がこの問題について今後の検討の責任を負っている。」「鉛とカドミウムのレベルは食品によって非常に異なっているので、検討を更に進めることが必要である。当部会は(各国)のコメントとJECFAからの情報を更に求めるために、穀類と豆類中カドミウムと鉛の暫定指導基準値をStep6に戻すことを決定した。」

1997年の第29回会議のカドミウムについての結論は「当部会はJECFAが1999年の会議においてカドミウムを再評価することに留意し、したがって、Step7にある穀類および豆類の0.1mg/kgという暫定指導基準値を存続することを決定した。次回の会議のためにカドミウムに関する既存のデータをとりまとめたいとのデンマークの申し出が同意された。これにはフランスとオランダが協力する。」

1998年の第30回会議のカドミウムについての結論は「デンマーク代表は、フランスとオランダの協力を得て作成したDiscussion Paperを提出した。1999年に予定されていたJECFAによるカドミウムの評価は、日本とその他の国からのデータの提出を認めたために2000年に延期された。当部会は第31回CCFACでのコメントや考察のためにDiscussion Paper を修正するというデンマークの申し出を受諾した。」なお、この会議に出

席した厚生省の今井(1998)によると「わが国から、現在ラットを用いた2年間の長期投与試験を実施中であり、その結果は2000年のJECFAに提出可能であることから、再評価の時期を2000年まで1年間延長することを提案し、了承された。」とのことである。

4) デンマークが提出したDiscussion Paperの内容

デンマークからのDiscussion Paper (CX/FAC 98/22 Jan. 1998 ; CX/FAC 99/21 Dec 1998)は2度提出されている。1998年のCCFACの会議のために提出されたPaperは前のPaperを修正したものであるため、それについて簡単に紹介する。

CX/FAC 99/21は9頁からなっている。その主な内容は次のとおりである。

「平均的消費者の主要なカドミウム摂取源は穀類とジャガイモを含む野菜である。」

「穀類は食事における主要なカドミウム源である。カドミウムは主に穀粒の外側にあり、製粉の過程で完全にまたは部分的に除去されるので、粉やパン中のカドミウム濃度は穀粒の濃度より低い。全粒粉タイプのパンでは、他のパンより多量のカドミウムを含んでいるが、パンの平均濃度が0.1mg/kgを超えることはめったにない。」

「米のカドミウム濃度はほとんどの場合0.1mg/kg以下である。日本は以前かなり高濃度であると報告したが、その後の調査では濃度が減少しており、最近の日本の調査ではたった23%が0.1mg/kgを超えていた(CX/FAC 97/22-表13参照)。さらに、ある種の穀類のカドミウムは化学的に結合しており、生物利用性は制限されている。しかし、この件については今後研究する必要がある。Step7にある穀類及び豆類の暫定ガイドライン値は0.1mg/kgである。」

「世界の多くの国における1日カドミウム摂取量は、平均的には10-50 µgである。」

「極端な消費者のためには『極端な1日曝露量』を同様に見積もることが出来る。概算値として典型的な曝露量を3倍して求めることが出来る(表14では $23 \times 3 = 69 \mu\text{g}$)。他の方法はイギリスによって提案されているように、高濃度消費者の摂取式として曝露に最も寄与する2つの食物群(カドミウムでは穀類と野菜)と他の食品群の平均値を合計して、その97.5% fractileをとるというものである。この計算法では52 µgとなる。」

「理論的1日最大摂取量(TMDI)が計算された(表-14)。それは農薬の理論的摂取量の計算法と類似の方法である。この方法で算出したTMDI 52 µg (58 µgの計算間違い)のカドミウムはJECFAのPTWIから計算した70kgの人で70 µg (60kgの人で60 µg)という許容摂取量に匹敵する。この計算法は理論的であり、フィロソフィカルであると言われるかもしれないが、表13に提案したMLは理論的には平均的消費者を完全にはカバーしないことを示している。」

「平均曝露量を3倍して求めた『極端な1日曝露量』はJECFAの許容1日摂取量や許容1週間摂取量を超えている。工業により特に汚染されている消費者の曝露量はこの範疇にはいる。」

「表1(本報告では表14)にコーデックス最大基準値(ML's)と平均的な消費者のカドミウム1日摂取量に寄与する種々の食品中カドミウムの一般的な含量を示している。」

米のカドミウムの暫定基準は0.1ppmであり、デンマークの提案では0.2ppmとなっている。豆類は0.1ppmである。

(5)日本の米中カドミウム濃度

日本のいわゆる非汚染地で生産された米のうち、0.1または0.2ppm以上のカドミウムを含む米はどれくらいあるであろうか。森次・小林(1963)、千葉農試(1972)、静岡県(1975)、伊藤・原田(1980)、内山(1982)、表13のデータをまとめたのが表15である。CCFACで問題になる食品中カドミウムは米では当然白米が問題となるであろう。白米についてのデータは更に少ない。表15から判るように、玄米中カドミウム濃度は白米より明らかに高い。CCFACに日本から提出された米(表13の No.7)は玄米であると考えられるので、白米はNo.1とNo.6だけである。白米中0.1ppm以上のカドミウムを含む割合は23.3-39%であり、0.2ppm以上の白米は4.0-10%である。一方玄米で0.1ppm以上のカドミウムを含むものは37-44%、0.2ppm以上のものが10-24.4%もあった。玄米を精米するとカドミウム濃度は減少するが、減少の程度は研究者により可成り異なるようである。日本の米のカドミウム基準値は玄米で1.0ppm、白米で0.9ppmとなっている。長谷川ら(1996)の最近の研究によれば、35%程度の極端な搗精をかけた白米でも玄米濃度の90%のカドミウム濃度を示したという。今後、米粒中におけるカドミウムの分布状態についての研究が必要である。

2)日本のカドミウム基準、玄米1.0ppm、白米0.9ppmを決めた方法

1969年9月11日厚生省は「カドミウムによる環境汚染暫定要領」を決め、玄米のカドミウム濃度の暫定基準を0.4ppmと定めた(環境庁企画調整局公害保健課、1974a)。厚生省の委託によって行われたイタイタイ病およびカドミウム中毒の鑑別診断と、カドミウムの摂取、蓄積に関して1969年度に行った調査結果が1970年3月30日に発表された(日本公衆衛生協会、1970)。その結果を使って、厚生省環境衛生局公害部(1970)は1970年7月7日に、米のカドミウム基準値を玄米1.0ppm、白米0.9ppmに決めた(参考資料1)。さらに、その2週間後の7月24日に微量金属調査研究会(参考資料2)は別の方法を使って、玄米中1.0ppmを追認した(環境庁企画調整局公害保健課、1974b)。そして、食品添加物等の規格基準の一部を改正して「米(玄米のこと)に含まれるカドミウムおよびカドミウム化合物は、カドミウム(Cd)として1.0ppm以下でなければならない。」とした(官報 第13147号1970年10月15日、1970年10月24日適用)。

また、1970年暮れの第64国会において成立した「農用地の土壌の汚染防止等に関する法律」に基づいて指定される対策地域は、カドミウムを1.0ppm以上含む玄米が生産されると認められる地域、またはそのおそれが著しいと認められる地域となった(土壌汚染対策審議会、1971 a、b)。ここでは、厚生省が1970年7月7日に決めた方法、微量重金属調査研究会の決め方、および土壌汚染対策審議会の決定方針について批判的に述べることにする。

(1)厚生省によるカドミウム玄米中1.0ppm、白米中0.9ppmの決め方と問題点

A. 厚生省による決定方法

全文は参考資料1に採録したので、詳しくはそれを見て頂きたい。決定方法の概略は次のとおりである。すなわち、当時カドミウム汚染地域として知られていた鉛川・二迫川流

域、碓氷川・柳瀬川流域、佐須川・椎根川流域でイタイタイ病の要観察地域と対照地域からそれぞれ20人ずつ40人について一日当たりのカドミウム摂取量と尿によるカドミウム排泄量を求め、 $y=33.9x+2.5$ (ただし、 y は尿中カドミウム排泄量 $\mu\text{g}/\text{日}$ 、 x はカドミウム摂取量 $\text{Cd mg}/\text{日}$)の関係を得た(参考資料1の図)。この関係式に尿中カドミウム排泄量 $30\mu\text{g}/\text{L}$ 、すなわち、 $45\mu\text{g}/\text{日}$ (1日の尿量を 1.5L と仮定)を代入して、これに対応する摂取カドミウム量 $1\cdot 254\text{mg}/\text{日}$ を得、この値を1日1人当たりの摂取食品量で割り、カドミウム 0.99ppm を算出し、更に要観察地域および対照地域で生産された米やその他の食品中のカドミウム濃度や、それらの摂取割合を勘案して計算し、玄米中の許容基準 1.0ppm を算出している。なお、イタイタイ病患者が多数いた神通川流域の調査結果を使わなかったことは理解に苦しむ。

B. 厚生省による決定方法の問題点

この決定方法に対しては小林(1971)も種々の間者点を指摘している。最も問題なのは尿中カドミウム $30\mu\text{g}/\text{L}$ ($45\mu\text{g}/\text{日}$)以内ならば一応安全であるという尺度をもうけたことであろう。この数字は労働衛生学者であるElkins(1959)のデータを用いたものである。彼の著書は前半に各元素の毒性についての説明があり、その第15章が「最大許容濃度」となっている。カドミウムについての説明は34-39頁にあるが、そこにはカドミウムの最大許容基準が尿中 $100\mu\text{g}/\text{L}$ などという記述はない。尿中カドミウム濃度についてはただ1例だけ慢性被曝とわざわざ付記してある例があり、 $0.01-0.02\text{mg}/\text{L}$ (すなわち $10-20\mu\text{g}/\text{L}$)と記載されている。 $100\mu\text{g}/\text{L}$ という値は第15章最大許容濃度の中にある表のうち、その最後にある「体液および組織」という項のなかに、有害量の下限量として尿中 $0.1\text{mg}/\text{L}$ という数字が括弧つきで記載してある。この($0.1\text{mg}/\text{L}$)の文献的根拠はどこにも示されていない。この値の約3分の1を安全尺度として用いたものである。以上から明らかなように、厚生省が用いている $100\mu\text{g}/\text{L}$ という数字は労働衛生基準としても根拠薄弱であることが判る。労働衛生基準としてさえ根拠薄弱な値を米の許容基準を求める計算の基礎に使うことは看過できない。当時から日本で問題になっていたイタイタイ病は、30年、40年という長期間にわたったカドミウムの摂取の結果おきた慢性カドミウム中毒であるので、労働衛生基準がたとえ妥当なものであっても、そのままでは米の許容基準決定の基礎にはなり得ない。公衆に対する基準は職業人に対する許容基準よりもはるかに低いものにしなければならぬのは周知の事実である。

さらに、竹内(1974)の指摘のように回帰式の値が丁度 $45\mu\text{g}/\text{日}$ になるようにカドミウム摂取量 x を決めれば、 y が危険な限界 $45\mu\text{g}/\text{日}$ を超える確率は50%となり、安全基準としては無意味であり、一応安全と思われる許容基準を算出するとすれば、その値は厚生省の求めた値より遥かに小さくしなければならないことは明らかである。

これら以外でも、少数の人についてのたった1日の値であること、バラツキが多きことや、分析法上の問題も指摘されていた。

以上のように批判がつぎつぎになされたためか、環境庁改訂公害保健読本(1974)に掲載してあるカドミウムの基準値の説明には、この厚生省の見解は掲載されていない。掲載されているのは次に述べる微量重金属調査研究会の報告のみである。

(2) 微量重金属調査研究会による米の安全基準算出方法とその問題点

A. 微量重金属調査研究会による米中カドミウムの安全基準算出方法

本報告の全文は参考資料2にあるので読んでいただきたい。その内容を簡単に述べれば次のとおりである。

微量重金属調査研究会(会長 土屋健三郎慶応大学医学部教授)はカドミウムを1.0ppm含む米500g、すなわちカドミウム500 μ g、米以外の食品から150 μ g、水から15 μ g、合計665 μ gを毎日摂取しても安全であるか否かという問題を設定する(米以外の食品からの150 μ gは調査による最大値、水は飲料水についての暫定基準0.01ppmのものを1.5L飲むと仮定した)。

次に労働衛生基準(当時)0.1mg/m³(Cdとして0.1mg/m³であったので、0.088mg/m³の間違い)若干高いので、この値の半分0.05mg/m³とすれば8時間の呼気中のカドミウム量は約500 μ gとなる。その10%が血中に入るとすると吸収量は約50 μ gと推定される。一方、経口摂取については腸管吸収率2%をとる。先に述べた665 μ gの2%は約13 μ gであり、この値は経気道吸収量(約50 μ g)よりも低い。

また、Anwarによる犬を用いた実験では、カドミウム10ppmを含む水を与え、4年間飼っても優位の腎障害をみとめなかった。この犬は毎日カドミウムを約1000 μ g/kg摂取した。したがって、大人1日665 μ g(13 μ g/kg)の摂取量は十分安全性がある。

以上の2つの計算結果から「1.0ppmという数値については、これが人体に有害であると判断することはできない。」と述べた。

B. 微量重金属調査研究会による米中カドミウムの安全基準値算出方法の問題点

微量重金属調査研究会の見解のうち第1の問題点は、労働衛生基準をそのまま一般人の基準として用いている点であろう。本委員会の論法を逆に使えば、カドミウムを経口的にほとんど摂取しないところでは、大気中のカドミウム濃度が50/3 μ g/m³ = 17 μ g/m³(労働時間は8時間であるから、1日24時間では3分の1にする)あっても差し支えないということになりかねない。空気中のカドミウムから問題を考察するのであれば労働衛生基準を持ち出すのではなく、環境基準を用いるべきである。厚生省が1969年9月11日に出した「カドミウムによる環境汚染暫定対策要領(環境庁企画調整局公害保健課、1974a)」によれば「・・・環境大気中カドミウム濃度が0.88-2.93 μ g/m³以下となるように排出濃度について指導を行う必要がある。・・・」と述べた後、「注」として「労働衛生上の許容濃度としては、酸化カドミウムで0.1mg/m³, (Cdとして0.088mg/m³)が用いられているが、地域環境濃度としては、安全を見込んで、その1/100-1/30以下をとるのが通例である。」と述べている。この地域環境濃度を基準にすれば呼気中のカドミウム量は1日26-88 μ gであるから、吸収率を10%とすれば血中移行カドミウム量は2.6-8.8 μ gとなつて、前述の経口摂取の場合の吸収率13 μ gより明らかに小さい。

第2の問題点はカドミウムの消化管による吸収率を低く見積もっていることである。上記委員会ではマウスの実験から2%という値を採用している。しかし、当時すでにSuzuki et al.(1969)はマウスの実験で、1回経口投与したカドミウムの24時間後の吸収率は、平均6.6(2.8-11.4)%という値を得ている。なお、現在WHOなどでは人による消化管吸収率を5%としているようである。

このように労働衛生基準をそのまま用い、さらにカドミウムの経口摂取の場合の吸収率を低く見積もった計算方法に対する批判のためか、その後の国会における政府答弁では後半のAnwarによる犬の実験を基礎にした説明だけをしている。たとえば、1975年3月6日、衆議院農林水産委員会において厚生省環境衛生局長石丸隆治は、「一応われわれが1ppmの基準を定めました際、用いました実験はアンワールの行った実験でございます・・・」と述べている。そして、Anwarの実験ではカドミウムを1000 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 摂取しても異常を認めなかった。75倍の安全率をかけると、13.3 $\mu\text{g}/\text{kg}$ となる。これを50kgの成人に換算すると665 μg となり、米以外の食品と水からのカドミウム摂取量165 μg を差し引くと米から摂取可能なカドミウム量は500 μg となり、1日に米500gを食べると仮定すると1.0ppmになるという意味の説明をしている。

Anwarら(1961)は生後6週間の雌犬9匹を用い、1匹を対照にし、他の8匹を2匹ずつ4群に分けた(この9匹の犬は同種の犬ではない)。カドミウムを0.5、2.5、5.0、および10ppm含む水を与え、対照の犬には水道水を与え、水の摂取は任意に行わせた(従って、カドミウム10ppmの水を与えられた犬がカドミウムを1000 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{日}$ 摂取したというのは推定である。この推定では水を0.1L/kg/日摂取したことになる)。4年後に殺して種々の調査を実施した。カドミウム中毒について長年研究しているFribergら(1971)はこの論文について「・・・Anwarらは論文の要約において、カドミウムを与えられた犬には病理学的変化はなかったと述べている。しかし、本文の議論のところで彼らは高濃度(2匹は5ppm、2匹は10ppm)のカドミウムを含む水を与えられた2群の犬の近位尿管に多量の脂肪を発見したこと、また、1匹の犬には萎縮した細管を見出したと記述している。彼らはいく匹かの犬はレプトスピラに感染していると考えたので、ある種の病変はレプトスピラのためであろうと結論した。実験に用いた犬が少ないので、このデータは僅かの価値しか持たない。そして、いずれにせよ長期間にわたるカドミウムの経口摂取が腎臓の損傷を引き起こさないであろうという証拠としてこのデータを用いることはできない」と批判している。

1.0ppmの許容基準は、Anwarの実験結果に75倍(当局は100倍と言う場合もある)の安全率を掛けているから安全だと主張する当局は、本当にそう信じているのであろうか。1ppmは米500gに換算すると0.5mgになるから、その75倍は38mgである。カドミウムの経口摂取による急性中毒は食器などにふくまれていたカドミウムが、食物や飲物に入り、それを飲食した場合に起こっているようである。当時既に次のようなデータが存在していた。人体実放でカドミウム15mgで嘔吐したとの報告がある(Schwarz et al., 1923)。また、Front and Kleeman(1941)は13-15ppmのカドミウムを含むアイスクャンデーを食べた学童29人全員が激しい吐き気を覚えたと述べている。食べたアイスクャンデーの量が書かれていないが、100g食べたとすれば、カドミウム1.3-1.5mgにしかならない(1kg食べても13-15mg)。したがって、38mgは慢性毒性どころか急性毒性を起こす量であろう。したがって、Anwarらの実験結果を基礎とするカドミウム1.0ppmの許容基準のきめ方にもかなり問題があり、Anwarらの実験は玄米中カドミウムの許容基準をきめる基礎にはなり得ないものと考えられる。

(3)農用地土壌汚染対策地域の指定要件決定の経緯

1971年6月10日と6月18日の土壌汚染対策審議会において、上記指定要件は農林省

原案どおりに答申され、それに基づいて「農用地の土壌の汚染防止等に関する法律施行令(政令第204号)」および農林省令(第46、47号)が施行された。この答申のための2回にわたる審議会においては何人かの委員が米中カドミウム濃度1.0ppmを基準にするのは高すぎる。もっと低い値を基準にすべきであると主張した。これらの意見は簡単に退けられたが、その背景には1.0ppmには100倍の安全率をみこんでいるという厚生省の係官の発言が大きく作用していると考えられる。そこで、土壌汚染対策審議会(1971a、1971b)に基づいてその間の事情を跡づけてみることにする。

K委員(東大名誉教授)「私はただ感じなんですけど、また聞きですからはっきりしないんですが、WHOの人の専門家あたりでは、日本が1ppmの基準をつくったというのは少し高すぎるんじゃないか、もう少し低く置くべきじゃないかという意見を言われたということを開いたんですが、これはしかし専門家がきめられたことですから、これに対して私云々するわけじゃないんです。ただ感じとしてもうちょっと、・・・これは危険性が強すぎるんじゃないかという気がするんですけどね。・・・(第1回会議録、p.60)」

U委員(厚生事務次官[代理])「・・・米の1ppmのカドミウムの許容量をきめましたときに、計算致しましたのは、・・・米1ppmのものを1日に500g、これは平均が栄養調査によりますと334gになってございますが、多い目にとると考えまして一応500g。したがって1ppmですから500 μ gの1日摂取量になります。それから米以外の食品につきましては、要観察地域で陰膳方式で食習慣を調べまして、そのカドミウムの量を全部調べました。その最高値をとります。それが150 μ g。それから水の方は環境基準がございまして、これは0.01ppmそれを1日に1.5L飲むと考えますと15 μ g。したがって1日の総摂取量が665 μ g。これが人体に対して一生食べても安全かどうかということで学者の先生方に意見ををお聞きしたわけでございますが、動物実験等の成績から勘案しまして、だいたい100倍ぐらいの安全率を見込んで安全であるという結論が出たわけでございます。・・・(第1回、p.74)」

I農地局長「・・・先ほど厚生省からご説明がありましたように人間が食べて有害であるという米は1ppm以上だということで、これは安全率100倍みているということでございまして、毎日食べても、100倍の安全率をみてそれ未満は有害でない。それ以上は有害だ。こういう一応の線が出ているわけでありまして、こういう対策を考えます場合にはやはりそれをよりどころにせざるを得ないだろう・・・」(第1回、p.87)。

H委員(NHK解説委員)「・・・1ppmというものがあくまでも暫定的な基準であるということ、そういうことからすれば、そういうふうにかまっているから、その数値を、1ppmをここで使うんだという考え方にわたしは賛成しかねる。逆にさっきから何べんもくどくど申し上げているように0.4という数字、これは私、科学的な根拠というものはいろいろまた異論があるかと思うんですけども、一応人為的な汚染がないという一つの数値として出ているならば、その数値を使うべきではないかというふうに私は考えるわけでございます。・・・」(第1回、p.113)。

S委員(神戸消費者協会専務理事)私も1ppmですね。これはちょっと賛成しかねるという気持ちを持っているんです。・・・」(第1回、p.113)

Y会長(大日本蚕糸会会頭、前農林次官、現在中央公害審議会委員)「じゃ、要するにその辺が一番問題なわけなんでしょう。問題のわけなんだが、いまのように暫定基準がど

うかという問題については、これはどうも厚生省のお考え以外には、われわれの方としてはあんまり、ここでそうきめつけて、これは暫定だと言うわけにもいかない。将来研究が変わってくれば別ですけれども、安全率が100%とったとかというようなお話でありますと、これを日本政府としては、ほかの基準をもってくるというのはなかなかむずかしいんじゃないかと思いますが・・・」(第1回、p.115)。

M委員(東大名誉教授)「・・・安全係数が100倍かかっているというお話ですから、・・・」(第1回、p.126)。

H委員(NHK解説委員)「・・・食糧庁が・・・0.4ppm以上のものはしいて配給しないというような趣旨のことを通達でございますが、おだしになったことがございますけれども、その場合0.4ppm以上のものは配給しないという風にされた根拠と申しますか、その辺につきましてはちょっと意地悪な質問ですけど、なぜ0.4ppmという数字をお使いになったかということをお見解を承っておきたいという風に思います。」(第2回、p.25)。

H'委員(金属鉱物採鉱促進事業団理事長)「・・・はっきり害がないんだという風に専門の方が、専門の組織がそういうことを言っておる。この議事録を拝見しても1ppmというのは100倍の安全率をとってあると書いてあるわけですから、そういうことから判断して専門の組織がそういうふうにきめておられることをなをかつまだそれは甘いんじゃないかと、どちらかと申しますと専門でない方がそういう判断をしてきめてしまうということはおかしいんじゃないかという感じを実は持つわけです。・・・」(第2回、p.27)。

以上は会議録の抜粋であり、各委員の発言のあいだには何人かの委員の発言がある場合もあるわけであるが、だいたいこのような調子で審議が進められ、結局農用地土壌汚染防止対策地域の指定要件を農林省の原案どおり、玄米中のカドミウム濃度の許容基準1ppmを基にして決めることを答申したわけである。この場合も厚生省は微量重金属調査研究会の報告のみについて説明している。

4)WHOと能川らの報告からの米中カドミウム許容濃度の算出

ICPS(1992a)はカドミウムについてのWHOの報告書である。ICPSはThe International Programme on Chemical Safetyのことである。これと同時に環境におけるカドミウムの問題についての報告(ICPS、1992b)も出ているが、作業グループに土壌学や植物栄養学の専門家がいないこともあって、土壌や植物中カドミウム濃度やカドミウムの作物に対する影響などについてはほとんど書かれていない。

ICPS(1992a)には「長年1日140-260 μg のカドミウムを摂取した人、または約2000mg以上の累積摂取をした人は、カドミウム曝露と低分子量蛋白排泄増加との関連性が推定される。」なお、低分子量蛋白尿は腎障害の指標である。本文中では期間を50年としているので、2000mgの累積摂取期間を50年としてWHOの結論から米のカドミウム基準値を計算してみよう。

カドミウム200mg/50年は1日あたり110 μg に相当するので、1日あたり110、140、260 μg について計算する。米からのカドミウム摂取量は全摂取量の約50%である(ICPS、1992a)なので、米からの摂取量は半分の55、70、130 μg となる。1988における日本人の米摂取量は1日200.9g(厚生省、1990)であるので、200gとして計算すると、55、70、130 μg のカドミウムが200gの米に含まれているとすると、カドミウム濃度はそれぞれ0.275、0.350、

0.650ppmとなる。しかし、WHOの報告(IPCS、1992a)にも引用されているように、住民の10%はある食品の平均摂取量の2倍、住民の2.5%は3倍摂取することである(Sherlock and Walters, 1983)。そこで、米摂取量が2倍の400gではそれぞれ0.138、0.175、0.325 ppmに、3倍の600gでは0.092、0.117、0.217ppmとなる。

いずれにせよ、玄米中カドミウム1.0ppmの基準点が高すぎることは明らかである。なお、WHOの結論は「生物学的モデルによれば」となっているが、この結論は疫学的調査に基づくNogawaら(1989)の結論と一致している。WHOの報告にも引用されているが、能川らはカドミウムの最大許容摂取量を求めるために、梯川流域でカドミウム曝露住民1850人、非曝露者294人について疫学研究を行った。健康に及ぼすカドミウムの影響(腎障害)の指標として尿中の β_2 -ミクログロブリン(低分子量蛋白)を、カドミウム曝露の指標として農家保有米中カドミウム濃度を用いた。 β_2 -ミクログロブリンと全カドミウム摂取量から回帰曲線を求めたところ、1日当たりカドミウム摂取量が男440 μ g、女350 μ gのときに、50%の人に腎障害(β_2 -ミクログロブリン1000 μ g/L以上を腎障害とした)が生じることが判った。また腎障害発生率20、10、5%に対応する1日当たりカドミウム摂取量は男で220、150、110 μ g、女で200、150、120 μ g、となる。この値を使って米中濃度を求めたのが表16である。また能川らは男女とも一生に2000mgのカドミウムを摂取すると腎障害を生じると述べている。

これらの数字をみれば、コーデックス部会による米の暫定基準値0.1ppmやデンマークが提案している米中カドミウム濃度の最高基準値0.2ppmも合理的な値であると考えられる。どの値を採るかは腎障害患者何%を許容するかで決まるわけである。

(5)腎障害とイタイイタイ病

カドミウム曝露量と人体被害との関係については、図5に示したように、曝露量が増加するにつれて、非特異的疾患、カドミウム腎症、軽症のイタイイタイ病、典型的なイタイイタイ病、重症のイタイイタイ病が発症するようである(加藤孝之、1990)。腎障害はイタイイタイ病の前段階をなすものである。

次にイタイイタイ病患者が多数いる神通川流域の発症率と農家保有米中カドミウム濃度との関係についてのべる(Nogawa et al., 1983)。保有米は32の集落から集められた。表17に示したように対照地域にはイタイイタイ病患者はいなかった。イタイイタイ病と腎症(腎障害の指標として尿蛋白と尿糖同時検出が当時用いられていた)の発症率は米中カドミウム濃度の増加と共に増加した。集落の保有米中カドミウム平均濃度0.82ppmで50歳以上の婦人の21%がイタイイタイ病になり、45%が腎障害を発症していたとのことである。

玄米中カドミウムの基準値1.0ppmがいかに現実を無視したものであるか判るであろう。

最近、Nogawa et al.(1998)はカドミウム汚染がない千葉県房総半島の1地域について、環境のカドミウムに由来する腎障害の存在を示唆する結果を得ている。彼らは、今後非汚染地における環境カドミウムに由来する腎障害について調査研究を進めるべきであると述べている。

(6)世界と日本におけるいわゆる非汚染米と非汚染土壤中カドミウム濃度

表18と表19に世界各国のいわゆる非汚染米と非汚染土壤中カドミウム濃度のデータを

取りまとめた(浅見、1997)。「いわゆる」とは、非汚染と称するものの中に、汚染されたものが含まれる可能性があるからである。

表18には世界各国の非汚染米あるいは輸入米のカドミウム濃度が各報告の平均値の少ない方から並べてある。値はppbである。日本以外の値は点数も少なく、採取方法に問題があるかもしれないが、他に適当な報告はない。表18から明らかなように、日本の米の値は、台湾の74.66ppmを除いてすべての場合に他の国の値より高く、一番低いブラジルの約25-70倍である。先に述べたWHOの結論の一つである50年間にカドミウム2000mg摂取および1日米200g摂取の場合の米中カドミウム濃度0.275ppmの約6分の1から2分の1になっており、日本のいわゆる非汚染米のカドミウム濃度と腎障害を起こす可能性のあるカドミウム濃度の間の差は著しく小さいことが判るであろう。

日本の米中カドミウム濃度が高いのは、日本の土壌はもともとカドミウム濃度が高いからだ、などという俗論が時々農学者以外の人たちによってデータを示すことなく述べられることがある。そこで、世界各国の非汚染土壌中カドミウム濃度を取りまとめたのが、表19である。この表の値にも試料採取方法、分析法などに問題があるかもしれないが、他に適当なデータがない。日本土壌のカドミウム濃度の平均値は3種の報告で0.30-0.44ppmであり、他の20カ国に比べて特に高いと言うことは出来ないと考えられる。

4. おわりに

以上、まず日本における有害金属による土壌汚染について簡単に述べた。次いで最近におけるカドミウム問題に関する国際的動向と、それとの関連で日本における米中カドミウムの基準値の決定方法と、カドミウムによる土壌汚染の指定要件の決定方法について批判的に説明した。

最近出版されたHarris,C.E., Pritchard,M.S., and Rabins, M.J.“Engineering Ethics, Concepts and Cases(1995)が翻訳されて、日本技術士会訳編「科学技術者の倫理、その考え方と事例」(1998)として丸善から出版された。この本はアメリカにおいて大学の「技術業倫理」の教科書である。翻訳書の付録に「全米プロフェッショナル・エンジニア協会(NSPE)」の「技術者のための倫理規程」が採録されている。倫理規定の . 基本綱領の1.に「公衆の安全、健康、および福利を最優先する。」と書かれている。アメリカにおいてこの倫理規定がどのように遵守されているか筆者は知らない。しかし、輸血用の非加熱製剤によるエイズ患者の発生や最近のダイオキシン問題を見るにつけ、このような倫理規定が日本でも必要であると考えが如何なものであろうか。

さて、厚生省や微量重金属調査研究会による米の基準値の決定や、カドミウムによって汚染された土壌復元のための指定要件決定に関与した科学技術者達は、十分倫理的に行動したと言えるであろうか。この辺に、混迷した日本の各種問題解決の基本があるのかもしれない。

1959年茨城県石岡市の国営アルコール工場は廃液を山王川へ放流し、山王川の水を灌漑水として利用している水田の稲に大きな被害を与えた。被害農民121人が国を相手取って起こした損害賠償請求訴訟は、最高裁まで10年間にわたって争われた。そして、1968年4月23日の最高裁判決により農民側の勝利に終わった。今から約40年前、国家権力を相手に闘った農民を勝利に導いた要因の一つが、茨城県農業試験場石岡試験地に勤務して

いた鈴木竜彦による原因解明のための調査研究であった。山王川も流入する霞ヶ浦の水質汚染が問題となってから久しい。霞ヶ浦やその他陸水の汚染問題は本質的にはこの山王川汚染問題の延長上にある。この意味において、今から40年も前に孤立を恐れず、有形・無形の圧力にも屈せず、被害農民と一致した立場からこの山王川流域の工場廃液放出による稲作被害問題に取り組んだ鈴木竜彦の態度は歴史の流れを洞察した慧眼であったと言える(森下、1973)。

引用文献

- Andreae,M.O., Asami,T., Bertine,K.K., Buat-Menard,P.E., duce,R.A.,Filip,Z., Forstner,U., Goldberg,E.D., Heinrichs,H., Jernelov,A.B., Pacyna,J.M., Thornton,I.,Tobschall,H.J., Zoller,W.H.(1984) Changing biochemical cycles,: in Changing Metal Cycles and Human Health(Nriagu,J.O.ed.), p.359-373,Springer-Verlag,Berlin,Heidelberg,New York, Tokyo
- Anwar , R.A., Langham,R.F.,Hoppert,C.A.,Alfredson,B.V. and Byerrum,R.C.(1961)Chronic toxicitiy studies III.Chronic toxicity of cadmium and chromium in dogs, Arch.Environ.Health,3:456-460
- 浅見輝男(1971)玄米中のカドミウム濃度の許容基準1.0ppmの検討、日本の科学者、6(9) : 35-39 .
- 浅見輝男(1972)日曹金属会津製錬所の排煙、排水に含まれるカドミウム、亜鉛、鉛および銅による水田土壌汚染、土肥誌、43 : 339-343 .
- 浅見輝男(1973)埋立資材として用いられたクロム鉱滓による環境汚染、土肥誌、44:223 - 225
- 浅見輝男(1974)玄米中のカドミウム濃度の許容基準1.0ppmの検討(その2)、日本の科学者、9(8) : 39-43
- 浅見輝男(1975)玄米中のカドミウムの許容基準について、農土誌、43 : 678-681 .
- Asami,T(1981)Maximum allowable limits of heavy metals in rice and soil; in Heavy Metal Pollution in Soils of Japan(Kitagishi,K. and Yamane,I. eds), p.257-274, Japan Scientific Societies Press, Tokyo
- 浅見輝男(1987)都市ゴミ焼却場周辺における水稻玄米のカドミウムによる汚染、人間と環境、13(2) : 3-13 .
- 浅見輝男(1994)玄米中のカドミウム濃度の許容基準1.0ppmの検討(その3)、日本の科学者、29(6) : 38-44 .
- 浅見輝男(1995)抗菌商品と銀、金属、65 : 1061-1064 .
- 浅見輝男(1996)ベリリウムによる環境汚染と人体被害、人間と環境、22:114-133 .
- Asami,T(1997) Cadmiun pollution of paddy fields and human health in Japan; in Biogeochemistry of Trace Metals(Adriano,D.C., Chen,Z-S., Yang,S-S, and Iskandar,I.K. eds.), p.217-264, Science Revidws, Northwood.(印刷ミスが極めて多い)
- 浅見輝男(1997)産業廃棄物と重金属、木村真人編 土壌環境と地球環境問題、p.78-93 .
- 浅見輝男(1998a)FAO/WHOによる穀類と豆類のカドミウム基準値設定の動向、人間と環境、24 : 108-115 .
- 浅見輝男(1998b)米のカドミウム基準値に関する国際的動向、土肥誌、69:657 .
- 浅見輝男・深沢文雄(1981a)ベリリウム製錬工場周辺のベリリウムによる土壌汚染、

- 土肥誌、52：1-7 .
- 浅見輝男・深沢文雄(1981b)ベリリウム製錬工場周辺のベリリウムによる植物汚染、土肥誌、52：8-10 .
- Asami,T. and Fukazawa,F.(1985) Beryllium contents of contaminated soils and sediments in Japan, *Soil Sci.Plant Nutr.*,31:43-53
- 浅見輝男・本間 慎・田辺晃生・畑 明郎(1981)生野鉱山などから排出されたカドミウム、亜鉛、鉛、銅による市川・円山川底質の汚染、土肥誌、52：433-438
- 浅見輝男・本間 慎・田辺晃生・畑 明郎(1982)生野鉱山などから排出されたカドミウム、亜鉛、鉛、銅による市川・円山川流域水田土壌の汚染、土肥誌、53：507-512 .
- 浅見輝男・本間 慎・和田利之・中島恭一・久保田正亜(1983)生野鉱山などから排出されたカドミウムによる市川・円山川流域水田産米の汚染、土肥誌、54：30-36 .
- 浅見輝男・本間 慎・久保田正亜(1984)鉛蓄電池製造工場周辺の鉛、アンチモン、カドミウムなどによる土壌汚染、人間と環境、10(2)：3-8 .
- 浅見輝男・久保田正亜・南沢 究(1988)土壌中のカドミウム、アンチモン、ビスマスなど重金属元素の自然界値、土肥誌、59：197-199 .
- Asami,T. and Kubota,M.(1993) Antimony and bismuth pollution of soils in Japan ,Intern. Conf., *Heavy Metals in the Environ.*, vol 2:140-143
- Asami,T. and Kubota,M(1995) Background levels of soil beryllium in several countries, *Environ. Geochem. Health*, 17:32-38
- Asami,T.,Mizui,C., Shimada,T., and Kubota,M.(1996) Determination of thallium in soils by flame atomic absorption spectrophotometry, *Fresenius J.Anal Chem.*, 356:348-351
- 浅見輝男・水井千鶴・野上尚子・久保田正亜(1997)タリウムによる環境汚染、日本環境学会第23回研究発表会予稿集、p . 114-117 .
- 浅見輝男・水井千鶴・野上尚子・久保田正亜(1999a) 3種幼植物の成長およびタリウム含量におよぼす水耕液中タリウム濃度の影響、土肥誌(印刷中) .
- 浅見輝男・三浦孝誠・中島由美子・水井千鶴・佐合隆一・久保田正亜(1999b)コマツナの成長およびタリウム含量におよぼす土壌中タリウム濃度の影響、土肥誌(印刷中) .
- Asami,T.,Saeki,S.,Mizui,C.,Nogami,N.,Takahashi,M.,Nishikawa,K., and Kubota,M.:
Contamination of the sediments and soils with thallium and the related harmful metals Discharged from the hosokura Mine and Smelter, Miyagi Prefecture, *Environ geochem. Health*(in press)
- 浅見輝男・小野美起子・三瓶英敏(1979)霞ヶ浦及び流入河川底質の重金属分布(第1報) 霞ヶ浦底質の水銀、全炭素、全窒素の分布、土肥誌、50：138-142 .
- 浅見輝男・佐伯 聡・久保田正亜(1995)銀による環境汚染、日本環境学会第21回研究発表会予稿集、p.6-7 .
- 浅見輝男・三瓶英敏(1977)埋立資材として用いられたクロム鉱滓による環境汚染(その2)、48：323-328 .
- Asami,T.,Yoshino,A.,Kubota,M., and Gotoh,S.(1990)Background level of indium and gallium in Soil with special reference to the pollution of the soils from zinc and lead smelters, *Z.Pflanzen Ernahr.Bodenk.*, 153:257-259

- 千葉農試(1972)昭和46年度 土壤汚染調査関係成績書、pp57 .
- 土居真介(1995)カドミウム、ビスマス、工業レアメタル No . 111 : 137-139
- 土壤汚染対策審議会(1971a)第1回土壤汚染対策審議会会議録、pp.129.
- 土壤汚染対策審議会(1971b)第2回土壤汚染対策審議会会議録、pp.85.
- Edwars,U(1991):Standards,guidelines, and legislative regulations concernig metals and their compounds , in Metals and Their Compounds in the Environment,(Merian,E. ed.)p687-711, VCH,Weinheim, New York,Basel,Cambridge.
- Elkins,H.B.(1959)The Chemistry of Industrial Toxicology,2nd ed., John Wiley and Sons Inc., New York.
- Friberg,L.et al.(1971) Cadmium in the Environment, p88 CRC, Ohio.
- Front,S. and Kleeman,I.(1941) Cadmiun "food poisoning", Jour.A.M.A. 117:86-89
- 後藤重義(1982)土壤環境と水銀、土肥誌、53 : 550-558
- 長谷川栄一・斎藤益郎・龍野栄子(1996)玄米及び数種の穀類中への無機養分及び重金属の集積様式、宮城農セ報、No . 62 : 46-63 .
- ICPS(1992a) Environmental Health Criteria134,pp280,WHO,Geneva
- ICPS(1992b) Environmental Health Criteria134,pp156,WHO,Geneva
- 飯村康二・伊藤秀文(1978)水田土壤中における重金属の行動と収支、北陸農試報、No21 : 95-145 .
- 今井美津子(1998)FAO/WHO合同食品規格計画第30回食品添加物・汚染物質部会の報告について、食品衛生研究、48(5) : 57-66 .
- 石田紀郎・片山幸士(1978)アンチモンによる環境汚染、科学、48 : 509-515 .
- 伊藤秀文・飯村康二(1976)水稲によるカドミウム吸収・移行および生育障害-亜鉛との対比において、北陸農試報、No . 19 : 71-139 .
- 伊藤弘一・原田裕文(1980)都内搬入米におけるカドミウム含有量について、東京衛研年報、31(1) : 142-148 .
- 嘉田良平(1997)世界の食品安全基準、p . 152-174、農文協 .
- 環境庁企画調整局公害保健課(1974a)改訂 公害保健読本、p . 216-221、中央法規出版 .
- 環境庁企画調整局公害保健課(1974b)改訂 公害保健読本、p . 229-230、中央法規出版
- 環境庁水質保全局(1974)昭和48年度全国環境(土壌農作物等)調査結果の概要(水銀編) pp . 22 .
- 加藤孝之(1990)イタイイタイ病研究の成果について、第9回イタイイタイ病セミナー-講演集、p . 5-29、イタイイタイ病対策協議会・神通川流域カドミウム被害団体連絡協議会、富山 .
- Keith,L.H. and Telliard,W.A.(1991) Priority pollutants, Environ.Sci.Technol , 13 : 416-423 .
- Kemper,F.H. and Bertram,H.P.(191)Thallium; in Metals and Their compounds in the Environment (Merian,E.ed.) p1227-1241,VCH,Weinheim,New York,Basel,Cambridge.
- Kitagishi,K. and Yamane,I.(1981)Heavy Metal Pollution in Soils of Japan, pp.302,Japan Scientific societies Press,Tokyo
- 小林 純(1997)水の健康診断、pp . 206、岩波書店 .
- 厚生省(1990)日本人の栄養状態-1988、第一出版 .

- 厚生省環境衛生局公害部(1970)カドミウム環境汚染要観察地域に関する44年度研究・調査の要約および厚生省の見解と今後の対策, p. 20-22.
- 久保田正亜・浅見輝男・松木正浩(1988)茨城県七会村のカドミウム汚染水田土壌および河川底質のアンチモン、ビスマス含有率、土肥誌、59: 614-616.
- 久保田正亜・浅見輝男・松木正浩(1989)秋田県のカドミウムなどによる汚染土壌のアンチモン、ビスマス含有率、人間と環境、15(2): 28-32.
- 久保田正亜・浅見輝男・松木正浩・櫻村 亮(1990)ビスマス製錬工場周辺土壌のビスマスなど重金属元素による汚染、土肥誌、61: 190-192.
- Kubota,M.,Asami,T.Matuki,M.(1990)Antimony and bismuth contents of Japanese soils polluted by cadmium and the related elements, Trans, 14th Intern.Congr.Soil Sci., Vol.2:371-372
- 久保田正亜・浅見輝男・松木正浩・櫻村 亮・南澤 究(1992)アンチモン製錬工場周辺の道路わき粉じんおよび土壌のアンチモン等重金属による汚染、土肥誌、63: 719-722.
- 久保田正亜・浅見輝男・南沢 究・土橋幸司(1995)日本化学工業株式会社小松川工場跡地周辺の土壌等のクロム汚染、人間と環境、21: 15-18.
- 久保田正亜・土橋幸司・浅見輝男(1995)テルルによる土壌汚染、日本環境学会第21回研究発表会予稿集、p. 2-5.
- 松本直治・日暮規夫・三好 洋(1976)都市塵芥焼却場周辺水田の重金属汚染、千葉県農試研報、No. 17: 140-149.
- 松崎敏英・岡本 保・矢吹俊一(1987)高濃度カドミウム汚染田におけるカドミウムの動態と水稻に及ぼす影響、神奈川農総研報、No. 129: 50-57.
- 三角正俊・土田通彦・堀 克也・森田節男(1989)荒尾市における大気降下物による土壌汚染、熊本農試研報、No. 12: 185-211.
- 宮崎県(1972)土呂久地区の鉱害にかかわる社会医学的調査成績、昭和47年7月.
- 森下豊昭(1973)国営アルコール工場廃液による茨城県山王川流域の農業被害損害賠償問題、総合農学、20: 12-21.
- Morishita,T.,Kishino,K., and Idaka,S.(1982)Mercury contamination of soils, rice plants, and Human hair in the vicinity of a mercury mine in Mie Prefecture, Soil Sci.Plant Nutr., 28:523-534
- 森田真史・堀内将人・颯田尚哉・森澤真輔(1997)製錬工場周辺環境における土壌-作物系でのアンチモンの動態と健康リスク、環境工学研究論文集、34: 9-16.
- 森次益三・小林 純(1963)生体内における微量金属の研究(第2報)白米中のカドミウム含有率、農学研究、50: 37-49.
- 森脇達夫(1997) カドミウム、ビスマス、工業レアメタル、NO. 113: 138-140.
- 村尾 智・安藤 厚(1989)レアメタル資源3・インジウム、地質ニュース、No. 417: 29-45.
- Nakakagawa,R. and Yumita,Y.(1998)Change and behavior of residual mercury in paddy soils and rice of Japan, Chemosphere, 37:1483-1487
- 日本土壌肥料学会編(1991)土壌の有害金属汚染、pp. 135、博友社.
- 日本公衆衛生協会(1970)要観察地域におけるカドミウムの摂取と蓄積に解する研究、pp. 49.
- 日本産業衛生学会(1995)許容濃度等の勧告(1995)、産業衛生学雑誌、37: 259-282.
- 蜷木 翠(1979)クロムによる土壌汚染、渋谷政夫編著: 土壌汚染の機構と解析、p. 100-128、

- 産業図書 .
- 野田 滋・高見有一・山根忠昭・山路 健(1994)水稲のモリブデン過剰障害(第1報)過剰害の実態と発生条件、島根農試研報、No . 28 : 27-39 .
- Nogawa,K.,Honda,R.,Kido,T.,Tsurutani,I., Ymada,Y.,Ishizaki,M., and Yamaya.H.(1989)
A dose-response analysis of cadmiun in the general environment with special reference to total cadmiun intake limit,Environ.res.,48:7-16
- Nogawa,K.,Yamada,Y.,Honda,R.,Ishizaki,M.,Tsuritani,I.,Kawano,S., and Kato,T.(1983) The relationship between Itai-itai disease among inhabitants of the Jinzu River basin and cadmiun in rice ,toxcol.Lett.,17:268-266
- 農林省農蚕園芸局(1974) 昭和48年度土壤汚染防止対策調査成績、pp . 193 .
- 尾川文朗(1994) 秋田県における水稲のカドミウム汚染の実態とその被害軽減に関する研究、秋田県農試研報、No . 35 : 1-64 .
- 大竹俊博(1992)カドミウム汚染土壌における水稲のカドミウム吸収およびその抑制に関する研究、山形農試特別研報、No . 20 : 1-77 .
- 佐伯 聡(1997)土壌-植物系における銀の分布と挙動(東京農工大学連合農学研究科博士論文) .
- 斉藤文次(1964)土肥要旨集、第10集、昭和38年度支部講演会要旨集、p . 30 .
- Schwarz,E.W. and Alsborg,C.L.(1923) Pharmacol.experi.Therap.,21:1(鈴木継美・鈴木庄亮 (1970)カドミウム中毒、臨床薬理、1 : 22-37より引用) .
- Sherlock,J. and Walters,B.(1983) Dietary intake of heavy metals and its estimation,Chem.Ind. 13:505-508
- 資源エネルギー庁長官官房鉱業課監修(1970)鉱業便覧 昭和54年度版、pp . 304、通商産業出版部 .
- 資源エネルギー庁長官官房鉱業課監修(1997)鉱業便覧 平成9年度版、pp . 457、通商産業出版部 .
- 渋谷政夫編著(1979)土壤汚染の機構と解析、pp . 317、産業図書 .
- シュレーダー , H. A . 著 磯野直秀訳(1976) 重金属汚染、p . 14 . 日本経済新聞社
- 静岡県(1975)土壤汚染防止対策重金属類概況調査成績書、(昭和46-48年度)、pp . 25 .
- 高見有一・野田 滋・山根忠昭・山路 健(1994)水稲のモリブデン過剰障害(第2報)過剰害の防止対策、島根農試研報、No . 28 : 41-49 .
- 竹内 啓(1974)許容基準の定め方 -汚染に対する安全基準の問題-、応用統計学、3 : 1-13 .
- 館川 洋(1978)福島県における水田の重金属、とくにカドミウム汚染の解析とその対策に関する研究、福島農試特別研報、No . 1 : 1-64 .
- 土橋幸司(1995)テルルの土壌-植物系における分布と挙動(茨城大学修士論文) .
- 内山 充(1982)食品汚染モニタリングデータ(1971-1980)、p . 14-15、厚生省国立衛生試験所 .
- WHO(1972)Evaluation of certain food additives and the contaminants, mercury,lead, and cadmiun(Sixteenth Report of the Joint FAO/WHO Expert Committee on Food additives) ,pp . 32 .
- WHO(1999) Evaluation of certain food additives and contaminants(Thirty-third Report of the

- Joint FAO/WHO Expert Committee on Food Additives), pp64
- Yamanaka,O., Kobayashi,E., Nogawa,K. Suwazono,Y., Sakurai,I., and Kido,T.(1998) Association between renal effects and cadmium exposure in cadmium-nonpolluted areas in Japan
Environ.Res.,77:1-8
- 山根忠昭(1979)島根県におけるヒ素汚染の実態と対策、渋谷政夫編著、土壌汚染の機構と対策、p . 38-71.
- 山根忠昭(1989)水稲におけるヒ素被害の発生機構とその対策、島根県農試報、No . 24 : 1-94 .
- 柳沢宗男、新村善男、山田信明、瀬川篤忠、喜田健治(1984)神通川流域における重金属汚染の実態調査と土壌復元工法に関する研究、富山県農試研報、No . 15 : 1-110 .

表1 各種有害金属の5年おきの生産・輸入量

金属		'65	'70	'75	'80	'85	'90	'95	'95の世界全使用量 中日本使用量の順位と割合
銀(t)	生産	751	1127	1148	1270	1748	2368	2227	世界4位 16.8%
	輸入	117	358	481	570	549	999	1005	
	計	868	1485	1629	1840	2297	3367	3232	
ビスマス(t)	生産	611	679	632	369	636	434	573	?
	輸入	33	32	-	-	-	-	-	
	計	644	711	632	369	636	434	573	
カドミウム(t)	生産	1480	2546	2610	2107	2611	2445	2693	世界1位 43.3%
	輸入	23	?	?	?	?	3426 ^a	6006 ^b	
	計	1503	2546	2610	2107	2611	5871	8699	
クロム鉱(kt)	生産	40	34	23	13	11	8	-	世界5位 6.3%
	輸入	371	1290	1269	931	965	767	668	
	計	411	1324	1292	944	976	775	668	
銅(kt)	生産	376	711	818	1025	935	1022	1216	世界2位 11.9%
	輸入	64	155	151	221	327	657	380	
	計	440	866	969	1246	1262	1679	1596	
水銀(t)	生産	344	202	23	72	665	123	41	?
	回収	617	12	118	294	12	5	3	
	輸入計	805	999	58	66	17	26	3	
	計	1766	1213	199	432	694	154	47	
モリブデン鉱(t)	生産	530	486	270	100	-	-	-	世界3位 16.4%
	輸入	5413	14363	13900	19816	21450	25592	27607	
	計	5943	14849	14170	19916	21450	25592	27607	
ニッケル(地金等)(t)	生産	6308	14721	15365	23616	24422	22209	66667	世界1位 20.9%
	輸入	2240	12326	10468	15821	29179	53865	111293	
	計	8548	27047	25833	39437	53601	76074	177960	
鉛(kt)	生産	106	207	203	222	287	265	223	世界3位 6.2%
	輸入	38	0	17	72	36	70	70	
	計	144	207	220	294	323	335	293	
セレン(t)	生産	158	204	429	479	506	571	637	?
	輸入	-	5	-	-	-	-	-	
	計	158	209	429	479	506	571	637	
アンチモン(t)	生産	1932	5624	2403	343	264	264	73	?
	輸入	167	20	516	1499	4514	6641	6866	
	計	2099	5644	2919	1842	4778	6905	6939	
三酸化アンチモン(t)	生産	1217	2773	3603	5867	7834	10237	10042	?
	輸入	-	-	25	615	2711	7545	11258	
	計	1217	2773	3628	6482	10545	17782	21300	
亜鉛(kt)	生産	394	676	695	709	728	696	660	世界3位 9.7%
	輸入	3	24	24	38	67	145	112	
	計	397	700	719	747	795	841	772	

資源エネルギー庁長官官房鉱業課(1970、1997)より作成。As、Be、Tlのデータはなかった。
^a土居(1995)ただし1991年度輸入量。^b森脇(1997)。
 なお、カドミウムの通関統計は1988年からある。

表2 農用地土壌汚染対策の進捗状況

(上段：面積、下段：地域数)

(平成10年10月31日現在)

特定有害物質	①基準値以上検出地域										
	②指定地域		③対策計画策定地域					⑦対策事業未完了地域	⑧対策計画未策定地域	⑨県単独事業等完了地域	⑩未指定地域
			④対策事業完了地域								
		⑤指定解除地域			⑥未解除地域						
カドミウム	6,610 ha (92)	6,110 ha (58)	6,030 ha (58)	4,970 ha (58)	3,660 ha (42)	1,300 ha (24)	1,060 ha (17)	90 ha (1)	320 ha (34)	180 ha (17)	
銅	1,400 ha 36	1,220 ha 12	1,220 ha 12	1,190 ha (12)	1,120 ha 11	70 ha 2	40 ha (2)	- ha -	60 ha 16	120 ha 8	
砒素	390 ha (14)	160 ha (7)	160 ha 7	160 ha 7	80 ha 5	80 ha 2	- ha -	- ha -	90 ha (2)	140 ha (6)	
計	面積	7,140 ha	6,270 ha	6,180 ha	5,110 ha	3,740 ha	1,360 ha	1,070 ha	90 ha	460 ha	420 ha
	地域数	(129)	(67)	(67)	(67)	(49)	(24)	(18)	(1)	(49)	(30)

注) (1)「基準値以上検出地域」は、平成9年度までの細密調査等の結果による。
 (2)各、縦の欄の面積、地域数を加算したものが、合計欄のそれと一致しないのは、重複汚染があるためである。
 (3)横の欄の地域数を加算したものが、合計及び「基準値以上検出地域」と一致しないのは、分割指定した地域及び部分解除した地域等があるためである。() の地域数は重複があるものである。
 (4)「対策計画策定地域の事業完了」及び「県単独事業等完了地域」には、他用途転用面積を含む。
 (5)「対策計画策定地域の事業完了」は、国の助成に係る対策事業の面工事が完成している(平成10年度未完了予定を含む)地域である。

図1 地域指定面積、対策事業完了面積等の推移

単位：ha

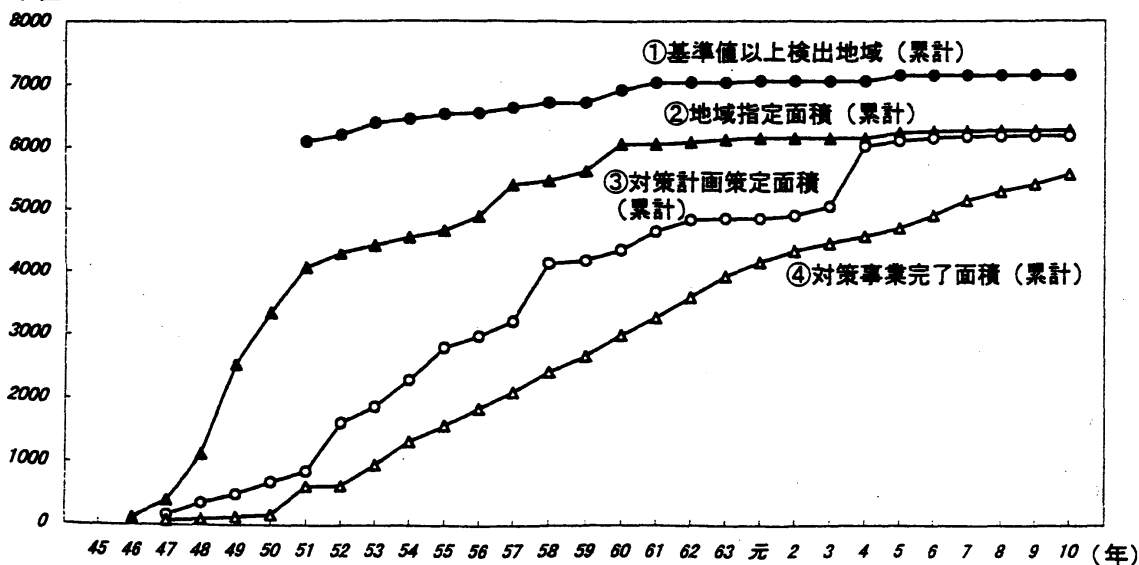


表3 農用地土壌汚染対策地域の概要

(平成10年10月31日現在) (単位: ha)

番号 ()書きは 全部解除	県名	地域名	汚染物質	所在地	指定面積		当初指定年月日 当初対策計画承認 最終解除年月日*	備考
					全体	未解除		
(1)	福島	日曹金属株式会社製錬所 周辺	Cd	耶麻郡磐梯町	112.0	-	S47. 3. 2 S49. 6.15 S55.11.21	全部解除
2	群馬	碓氷川流域	Cd	安中市, 高崎市	139.1	29.3	S47. 4.17 S47. 8.11 < S58. 3. 3 >	事業実施中 <部分解除>
(3)	兵庫	生野鉱山周辺	Cd	朝来郡生野町 神崎郡大河内町	54.9	-	S47. 4.27 S48. 1.30 S55.11.11	全部解除
(4)	兵庫	東芝電気太子 分工場周辺	Cd	携保郡太子町	22.9	-	S47. 4.27 S51. 4. 9 S55.11.11	全部解除
5	群馬	渡良瀬川流域	Cd Cu	桐生市, 太田市	377.8	53.3	S47. 5. 8 S55.10. 8 < H 6. 1.17 >	事業実施中 <部分解除>
(6)	長崎	佐須川及び 椎根川流域	Cd	下県郡巖瀬町	57.8	-	S47. 5.18 S53.10.16 S62. 5.11	全部解除
(7)	岐阜	畑 笠	Cd	郡上郡明方村	8.6	-	S47.11.28 S48.11.28 S64. 2.13	全部解除
(8)	秋田	杉沢, 柳沢	Cd	仙北郡西仙北町	32.2	-	S48. 2.22 S49. 6.24 S53.12.18	全部解除
(9)	愛知	刈谷市恵田川, 下り松川, 弁天川	Cd	刈谷市	164.9	-	S48. 7.30 S49. 1.19 S63. 3.20	全部解除
10	富山	黒 部	Cd	黒部市	129.5	129.5	S48. 8. 9 H 3.11 6 -	事業実施中
11	福岡	大 牟 田	Cd	大牟田市	123.4	123.4	S48. 8.30 H 6. 9. 8 -	事業実施中
(12)	長野	中 野	Cd	中野市	20.1	-	S48.10.23 S48.12.26 S62. 3.17	全部解除

* < >書は部分解除の年月日とする。

(単位: ha)

番号 ()書きは 全部解除	県名	地域名	汚染物質	所在地	指定面積		当初指定年月日	備考
					全体	未解除	当初対策計画承認 最終解除年月日	
13	熊本	関川流域	Cd	荒尾市	39.0	3.0	S48.12.11. S56. 8.31 < H 4. 4.14 >	事業完了 <部分解除>
(14)	秋田	小坂	Cd Cu	鹿角郡小坂町	47.9	-	S49. 2.22 S57. 8.13 H 5. 3.11	全部解除
(15)	青森	坪川流域	Cu	上北郡天間林村	10.4	-	S49. 4.23 S50. 8.18 S55. 3.21	全部解除
16	富山	神通川流域※ (左岸)	Cd	富山市 播磨郡埴中町 八尾町	1,018.4	623.9	S49. 8.27 S55.1.28(1) S58.12. 23(2) H4.1.23(3) < H 9. 8.11 >	事業実施中 <部分解除>
17	熊本	浦川流域	Cd	荒尾市	16.0	16.0	S49.11.27 H 5.10. 5 -	事業完了
(18)	秋田	能代	Cd	能代市	43.6	-	S49.12.19 S54.12.26 S63. 2.29	全部解除
(19)	秋田	新城・床舞	Cd	湯沢市 雄勝郡羽後町	140.4	-	S49.12.19 S50. 8.27 S58. 3.29	全部解除
(20)	秋田	鷹巣	Cd	北秋田郡鷹巣町	46.2	-	S49.12.19 S50. 8.27 S55.12. 9	全部解除
(21)	秋田	京福寺	Cd Cu	雄勝郡福川町	56.9	-	S49.12.19 S52. 3. 1 S57. 5.29	全部解除
(22)	山形	吉野川流域	Cd	南陽市	291.6	-	S50. 2.24 S52.12.24 H 3. 3.27	全部解除
(23)	石川	梯川流域	Cd Cu	小松市	518.6	-	S50. 3.31 S52. 6. 8 H 4. 3.30	全部解除
(24)	岩手	柴沼	Cd	花巻市	26.9	-	S50. 6. 8 S51. 6.18 S58. 9.22	全部解除

※神通川流域の対策計画は、左岸、右岸を1地域として1次地区96.4ha、2次地区450.5ha、3次地区99.1haを認めている。

表3 (その2)

(単位: ha)

番号 ()書きは 全部解除	県名	地域名	汚染物質	所在地	指定面積		当初指定年月日 当初対策計画承認 最終解除年月日	備考
					全体	未解除		
25	宮崎	岩戸川流域 (東岸寺)	Cd	西臼杵郡 高千穂町	53.3	53.3	S50. 9.16 S51.12.20 -	事業完了
26	富山	神通川流域※ (右岸)	Cd	富山市 上新川郡 大沢野町	482.2	230.7	S50.10.17 S55.1.28(1) S58.12. 23(2) H4.1.23(3) < H 9. 8.11 >	事業実施中 <部分解除>
(27)	鳥根	宝満山	Cd Cu	八東郡八雲村 東出雲町	66.8	-	S50.12. 5 S52.12.24 H 5. 4.27	全部解除
(28)	岐阜	本巣	Cd	本巣郡本巣町 糸貫町	212.4	-	S50.12. 5 S54. 4.19 H 4. 3.21	全部解除
29	鳥根	笹ヶ谷鉱山 下流域	Cd As	鹿足郡津和野町 日原町	66.1	66.1	S51. 3.19 S52.12.24 -	事業完了
(30)	栃木	小山, 野木	Cd	小山市 下都賀郡野木町	14.6	-	S51. 3.31 S54. 2. 8 S59. 3.28	全部解除
31	宮城	二迫川	Cd	栗原郡雫沢町	24.7	0.8	S51. 9. 1 S55. 4. 9 < H 3. 1.21 >	事業完了 <部分解除>
(32)	宮城	新堀出来川 上流	Cd	古川市	47.7	-	S51. 9. 1 S53. 6.30 H 3. 1.21	全部解除
(33)	兵庫	有賀鉱山周辺	Cu	穴栗郡波賀町	9.0	-	S52. 3.15 S53. 6.30 S56.10.15	全部解除
(34)	愛知	岩倉	Cd	岩倉市	26.0	-	S52. 4.20 S53.10.16 S58. 9.19	全部解除
(35)	秋田	増田	Cd	平賀郡増田町	25.1	-	S52. 9.12 S52.12.24 S57. 5.29	全部解除
(36)	愛知	犬山	Cd Cu	犬山市	54.0	-	S53. 3.20 S58.12.23 H 4. 3.25	全部解除

※神通川流域の対策計画は、左岸、右岸を1地域として1次地区96.4ha、2次地区450.5ha、3次地区953.7haを承認している。

(単位: ha)

番号 ()書きは 全部解除	県名	地域名	汚染物質	所在地	指定面積		当初指定年月日 当初対策計画承認 最終解除年月日		備考
					全体	未解除			
(37)	秋田	萩 袋	Cd	平鹿郡増田町	18.1	-	S53. 8. 4 S54. 1.25 S59. 2. 2	全部解除	
(38)	秋田	東部磯崎	Cd	平鹿郡平鹿町	72.9	-	S53. 8. 4 S54. 1.25 S61. 9.29	全部解除	
(39)	山形	上有無川流域	Cd	東置賜郡高島町	1.5	-	S63.12.22 S54. 4. 7 S58. 3.31	全部解除	
40	宮崎	岩戸川流域 土呂久	As	西臼杵郡 高千穂町	13.5	13.5	S54.12. 1 S55.10.13 -	事業完了	
(41)	秋田	上 鍋 倉	Cd	平鹿郡十文字町	54.2	-	S54.12. 4 S54.12.28 S63. 2.29	全部解除	
(42)	鳥根	五 十 猛	As	大田市	7.3	-	S54.12.25 S55. 4.19 H 2. 1.25	全部解除	
(43)	鳥根	左 ヶ 山	As	益田市	27.3	-	S54.12.25 S56. 4.10 H 3. 2.28	全部解除	
44	秋田	籠 花	Cd	平鹿郡増田町	78.3	1.6	S55. 8.22 S55.12.24 < H 6. 3. 1 >	事業完了 <部分解除>	
(45)	北海道	銭 亀 沢	Cu	函館市	5.6	-	S55. 9.27 S56. 8.31 S61. 4.23	全部解除	
(46)	青森	菅野部川	Cu As	下北郡川内町	13.5	-	S56. 3.19 S57.11.29 H 2. 3.12	全部解除	
(47)	茨城	上 福 吉	Cd	新治郡千代田村	10.6	-	S56. 5.29 S57. 6. 2 H元. 2.27	全部解除	
(48)	秋田	第二上鍋倉	Cd	平鹿郡平鹿町 十文字町	107.3	-	S56. 6.20 S56.10.23 H 5. 3.11	全部解除	

表3 (その3)

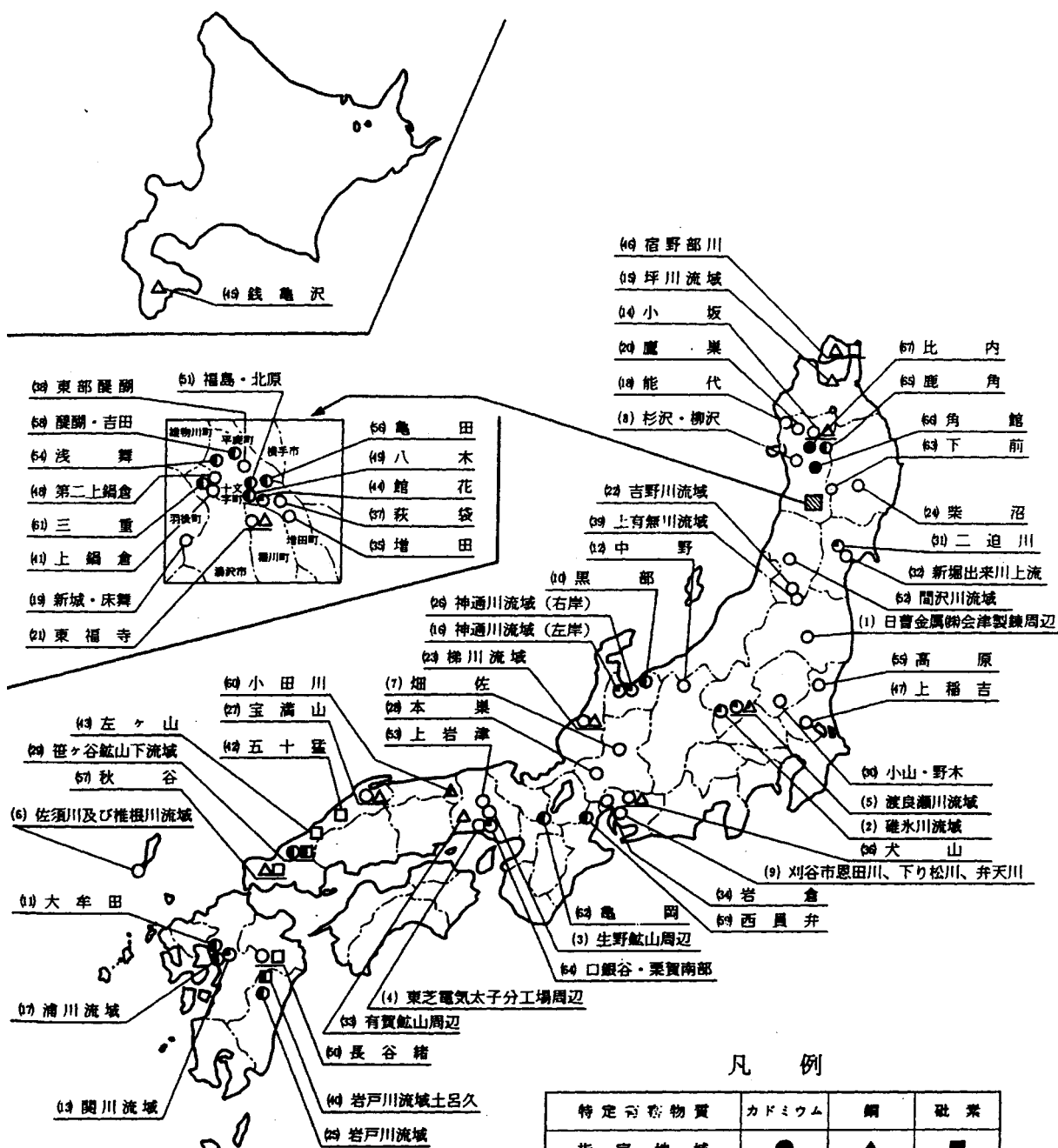
(単位: ha)

番号 ()書きは 全部解除	県名	地域名	汚染物質	所在地	指定面積		当初指定年月日	備考
					全体	未解除	当初対策計画承認 最終解除年月日	
49	秋田	八木	Cd	平鹿郡増田町 十文字町	145.8	145.8	S57.10.7 S57.11.29 -	事業完了
(50)	大分	長谷穂	Cd As	大野郡緒方町	27.7	-	S58.3.3 S61.4.21 H6.3.31	全部解除
51	秋田	福島・北原	Cd	平鹿郡増田町 十文字町, 平鹿町	235.4	235.4	S58.3.29 S59.2.10 -	事業実施中
(52)	山形	関沢川流域	Cd	西村山郡西川町	4.5	-	S58.3.31 H2.7.3 H8.3.13	全部解除
(53)	兵庫	上岩津	Cd	朝来郡朝来町 生野町	13.2	-	S58.5.19 S62.12.15 H4.9.11	全部解除
54	秋田	浅舞	Cd	平鹿郡平鹿町	49.4	49.4	S59.2.2 S59.11.29 -	事業完了
(55)	茨城	高原	Cd	多賀郡十王町	20.1	-	S59.7.6 S60.4.10 H4.3.9	全部解除
56	秋田	亀田	Cd	平鹿郡増田町 平鹿町	136.5	136.5	S59.11.30 S60.10.21 -	事業完了
(57)	山口	秋谷	Cu As	美祿郡美東町	8.4	-	S60.1.22 S60.10.21 H5.4.9	全部解除
58	秋田	磯崎・吉田	Cd	平鹿郡平鹿町	214.5	214.5	S60.9.17 S61.10.14 -	事業実施中
59	三重	西員井	Cd	員井郡北勢町 大安町, 藤原町	168.9	168.9	S60.12.20 S62.9.24 -	事業実施中
60	鳥取	小田川	Cu	岩美郡岩美町	53.4	53.4	S61.2.14 S61.9.12 -	事業実施中

(単位: ha)

番号 ()書きは 全部解除	県名	地域名	汚染物質	所在地	指定面積		当初指定年月日	備考
					全体	未解除	当初対策計画承認” 最終解除年月日	
61	秋田	三 重	Cd	平鹿郡十文字町	24.6	24.6	S63. 2.29 H元. 3.30 -	事業完了
62	京都	亀 岡	Cd	亀岡市	44.2	44.2	S63. 4.25 H 2. 1.17 -	事業実施中
(63)	岩手	下 前	Cd	和賀郡湯田町	23.0	-	H元.11.27 H 3. 3.29 H10. 3.17	全部解除
64	兵庫	口線谷・ 栗賀南部	Cd	朝来郡生野町 神崎郡神崎町	70.9	70.1	H 5. 3.12 H 5.11. 5 < H 6.12. 5 >	事業実施中 <部分解除>
65	秋田	鹿 角	Cd	鹿角市	28.7	28.7	H 6. 3. 1 H 7. 3. 8 -	事業実施中
66	秋田	角 館	Cd	仙北郡角館町	3.3	3.3	H 7. 3.20 H 8. 4. 8 -	事業実施中
67	秋田	比 内	Cd	北秋田郡比内町	3.4	3.4	H 10. 3. 3 - -	対策計画策定中
合 計				現指定面積	2,517.2	ha	対策計画承認地域数 及び合計 66 地域 6,176.2 ha	
				指定解除面積	3,744.2	ha		
				指定面積累計	6,264.8	ha		

図2 農用地土壌汚染対策地域位置図



凡例

特定有害物質	カドミウム	銅	砒素
指定地域	●	▲	■
うち対策計画策定地域	◎	△	□
うち指定解除地域	○	△	□

- 注) 1. ◎▲などの下線は、複数の特定有害物質による汚染であることを示す。
 2. ◎▲は、それぞれカドミウム、銅に係る指定地域で一部について指定解除された地域であることを示す。

表4 概況調査による重金属別総括表(1973年度)

(濃度はppm)

物質名	地目	とりまとめ 区分	土 壌 中 濃 度			作 物 中 濃 度		
			点 数	平均値	最高値	点 数	平均値	最高値
Cd	水田	全地点	3041	0.4	13.8	2998	0.10	3.25
		一般地点	2753	0.4	7.3	2715	0.10	0.88
		汚染地点	288	1.0	13.8	283	0.19	3.25
	普通畑	全地点	744	0.3	7.5	723	0.04	0.46
		一般地点	720	0.3	4.0	701	0.04	0.46
		汚染地点	24	0.8	7.5	22	0.06	0.28
	樹園地	全地点	308	0.4	2.3	297	0.02	0.42
		一般地点	285	0.3	1.2	274	0.02	0.42
		汚染地点	23	0.6	2.3	23	0.01	0.04
Cu	水田	全地点	3041	9.1	338.6	—————		
		一般地点	2753	7.2	120.2	—————		
		汚染地点	288	27.5	338.6	—————		
	普通畑	全地点	744	2.6	61.3	—————		
		一般地点	720	2.3	38.8	—————		
		汚染地点	24	9.8	61.3	—————		
	樹園地	全地点	307	24.4	369.0	—————		
		一般地点	284	20.5	369.0	—————		
		汚染地点	23	72.3	185.0	—————		
Zn	水田	全地点	3041	15.2	666.1	—————		
		一般地点	2753	12.1	357.8	—————		
		汚染地点	288	47.2	666.1	—————		
	普通畑	全地点	743	10.4	297.6	—————		
		一般地点	719	9.8	297.6	—————		
		汚染地点	24	29.7	197.6	—————		
	樹園地	全地点	307	22.9	167.0	—————		
		一般地点	284	22.6	167.0	—————		
		汚染地点	23	26.8	80.6	—————		
Pb	水田	全地点	3042	6.7	1667.7	2890	0.20	2.11
		一般地点	2754	4.7	264.6	2616	0.19	2.11
		汚染地点	288	21.2	1667.7	274	0.26	0.81
	普通畑	全地点	744	3.0	332.5	708	0.34	10.34
		一般地点	720	2.3	17.4	686	0.34	9.21
		汚染地点	24	22.3	332.5	22	0.63	10.34
	樹園地	全地点	308	21.9	347.2	273	0.16	4.67
		一般地点	285	10.7	242.1	250	0.17	4.67
		汚染地点	23	65.4	347.2	23	0.04	0.28
As	水田	全地点	3036	8.5	480.1	2998	0.16	2.20
		一般地点	2749	7.7	104.8	2712	0.16	1.76
		汚染地点	287	15.9	480.1	283	0.18	2.20
	普通畑	全地点	744	9.5	206.0	713	0.05	1.00
		一般地点	720	9.0	62.9	692	0.05	1.00
		汚染地点	24	26.6	206.0	21	0.03	0.21
	樹園地	全地点	308	22.6	302.1	295	0.02	0.51
		一般地点	285	16.0	222.2	272	0.02	0.51
		汚染地点	23	104.1	302.1	23	0.01	0.03

農林省農蚕園芸局(1974)。「汚染地点」とは都道府県が当該調査地点に係わる汚染源が明確であるか、あるいは推定し得るとした地点である。土壌中Cd, Cu, Znは0.1N-HCl抽出、Pbは1N-CH₃COONH₄抽出、Asは過塩素酸分解法による。土壌は乾物当たりppm、作物は可食部の新鮮物あたりppmで表示した。

表 5 Guideline Values for Tolerable Metal Concentrations in Agricultural Soil. Units: mg/kg dry weight

Metal	Guideline Values According to KLOKE ^a		Guideline Values According to the Swiss Ordinance on Soil Contaminants ^b	
	Common Concentration Range	Maximum Tolerable Concentration	Total ^c	Water Soluble ^d
Antimony	<0.1-0.5	5	-	-
Arsenic	2-20	20	-	-
Boron	5-30	25	-	-
Beryllium	1-5	10	-	-
Cadmium	0.1-1	3	0.8	0.03
Chromium	2-50	100	75	-
Cobalt	1-10	50	25	-
Copper	1-20	100	50	0.7
Gallium	<0.5-10	10	-	-
Lead	0.1-20	100	50	1.0
Mercury	0.1-1	2	0.8	-
Molybdenum	<1-5	5	5	-
Nickel	2-50	50	50	0.2
Selenium	0.1-5	10	-	-
Tin	1-20	50	-	-
Thallium	<0.1-0.5	1	1	-
Uranium	<0.1-1	5	-	-
Vanadium	10-100	50	-	-
Zinc	3-50	300	200	0.5
Zirconium	<10-300	300	-	-

^a Source: KLOKE (1980), Mitteilungen des Verbandes Deutscher Landwirtschaftlicher Untersuchungs- und Forschungsanstalten (VDLUFA) Heft 1-3 (1980)

^b Ordinance on Soil Contaminants (1986) issued under Sections 33 and 39 of the Environmental Protection Law (1983)

^c Extractable with concentrated HNO₃

^d Extractable with aqueous NaNO₃ solution

表 6 Dutch Guideline Values for Metal Concentrations in Soil and Groundwater for the Judgement of Contaminant Levels in Soil^a. A: reference levels; B: levels, which should give rise to a more detailed examination; C: levels, which should give rise to a detailed examination of the area with regard to redevelopment measures

Metal	Soil (mg/kg dry weight)			Groundwater (µg/L)		
	A	B	C	A	B	C
Arsenic	15 + 0.4 (L + H) ^b	30	50	10	30	100
Barium	200	400	2000	50	100	500
Cadmium	0.4 + 0.007 (L + 3H)	5	20	1.5	2.5	10
Cobalt	20	50	300	20	50	200
Copper	15 + 0.6 (L + H)	100	500	15	50	200
Chromium	50 + 2L	250	800	1	50	200
Lead	50 + L + H	150	600	15	50	200
Mercury	0.2 + 0.0017 (2L + H)	2	10	0.05	0.5	2
Molybdenum	10	40	200	5	20	100
Nickel	10 + L	100	500	15	50	200
Tin	20	50	300	10	30	150
Zinc	50 + 1.5(2L + H)	500	3000	150	200	800

^a Leidraad Bodemsanering. Aflevering 4. November 1988, Staatsuitgeverij's, Gravenhage

^b L = percentage of clay; H = percentage of organic matter in soil

表7 Guideline Values for Cadmium, Lead and Mercury in and on Foodstuffs Recommended by the West-German Federal Health Agency. Units: mg/kg fresh weight or mg/L Relating to the Edible Constituents^a

	Lead	Cadmium	Mercury
Milk	0.03	0.0025	0.01
Condensed milk	0.3	0.05	0.01
Cheese	—	0.05	0.01
Cheese (except hard cheese)	0.25	—	—
Hard cheese	0.5	—	—
Eggs	0.25	0.05	0.03
Beef	0.25	0.1	0.03
Veal	0.25	0.1	0.03
Pork	0.25	0.1	0.03
Ground meat	0.25	0.1	0.03
Chicken meat	0.25	0.1	0.03
Bovine liver	0.8	0.5	0.1
Calf liver	0.8	0.5	0.1
Pork liver	0.8	0.5	0.1
Bovine kidney	0.8	1.0	0.1
Calf kidney	0.8	0.5	0.1
Pork kidney	0.8	1.0	0.1
Meat products	0.25	0.1	0.05
Sausages	0.25	0.1	0.05
Fish	0.5	0.1	1.0 ^b
Fish products	0.5	0.1	1.0 ^b
Canned fish	1.0	0.1	1.0 ^b
Wheat grains	0.3	0.1	0.03
Rye grains	0.4	0.1	0.03
Rice grains	0.4	0.1	0.03
Potatoes	0.25	0.1	0.02
Green vegetables (except kale, herbs and spinach)	0.8	0.1	0.05
Kale	2.0	—	—
Pot herbs	2.0	—	—
Spinach	—	0.5	—
Sprout vegetables	0.5	0.1	0.05
Fruit vegetables	0.25	0.1	0.05
Root vegetables	—	0.1	—
Celery	—	0.2	—
Pomaceous fruits	0.5	0.05	0.03
Fruits with stones	0.5	0.05	0.03
Berries, small fruits	0.5	0.05	0.03
Citrus fruits	0.5	0.05	0.03
Other fruits	0.5	0.05	0.03
Hard/shelled fruits	0.5	0.05	0.03
Refreshing drinks	0.2	0.05	0.01
Wine	0.3 ^c	0.01 ^c	0.01
Beer	0.2	0.03	0.01

^a Source: *Bundesgesundheitsblatt* 29 (1986), pp. 22 – 23

^b Maximum contaminant levels according to the Ordinance on Mercury in Fish and Seafood (1975)

^c Maximum contaminant levels according to the Wine Ordinance

表 8

Data used to Calculate Typical Exposure and Theoretical Maximum Daily Intake (TMDI) for Lead

Food	ML mg/kg	Daily intake range (g)	Lead range mg/kg	Typical exposure µg/day	TMDI µg/day
Fruit	0.1	100-500 (200)	0.01-0.1 (0.02)	4	20
Vegetables -except brassica, leafy vegetables, potatoes	0.1	50-500 (200)	0.01-0.05 (0.02)	4	20
Brassica - except kale Leafy vegetables	0.3	10-100 (50)	0.05-0.5 (0.1)	5	15
Cereals Pulses Legume vegetables	0.1	50-500 (200)	0.02-0.1 (0.03)	6	20
Meat of cattle, poultry, pig and sheep	0.05	50-500 (150)	0-0.05 (0.02)	3	7.5
Fat from meat and poultry Vegetable oils	0.05	10-100 (50)	0-0.03 (0.01)	0.5	2.5
Edible offal of cattle, pig and poultry	0.5	0-10 (5)	0.1-0.5 (0.2)	1	2.5
Milk	0.02	200-500 (400)	0-0.01 (0.001)	0.4	8
Fish	0.2	10-50 (30)	0.03-0.5 (0.1)	3	6
Crustaceans	1	0-5 (2)	0.05-3 (0.5)	1	2
Bivalve molluscs	2	0-5 (2)	0.05-3 (0.5)	1	4
Fruit juices	0.05	50-500 (100)	0-0.02 (0.01)	1	5
Wine	0.5	0-500 (100)	0.05-0.1 (0.1)	10	20 ^b
Instant formulae	0.02	-	-	-	-
Total				48 ^a	146 ^c

著者注：aは40、bは50、cは163の間違い。

表 9 健康被害が認められた5箇所の指定地域の土壌と玄米のカドミウム濃度

地 域	土壌(mg/kgDW) ^a			玄米(mg/kgADW)			文献
	試料数	平均	範 囲	試料数	平均	範 囲	
神通川流域	544	1.12	0.46- 4.85	544	0.99	0.25-4.23	A
生野鉱山周辺	19	6.38	3.90-12.16	19	1.06	0.79-1.44	B
佐須川及び椎根川流域	69	5.6	1.0-12.0	400	0.90	0.20-3.64	C
梯川流域	122	3.11	1.01-17.70	122	0.81	0.41-2.84	D
小 坂	-	4.01	1.43-11.33	-	0.78	0.16-4.81	E

文献：A;柳沢ら(1984) B;兵庫県(1972) C;長崎県対馬支庁農務課(1979) D;石川県(1980)
E;尾川ら(1985)^a 0.1 M HCl抽出法

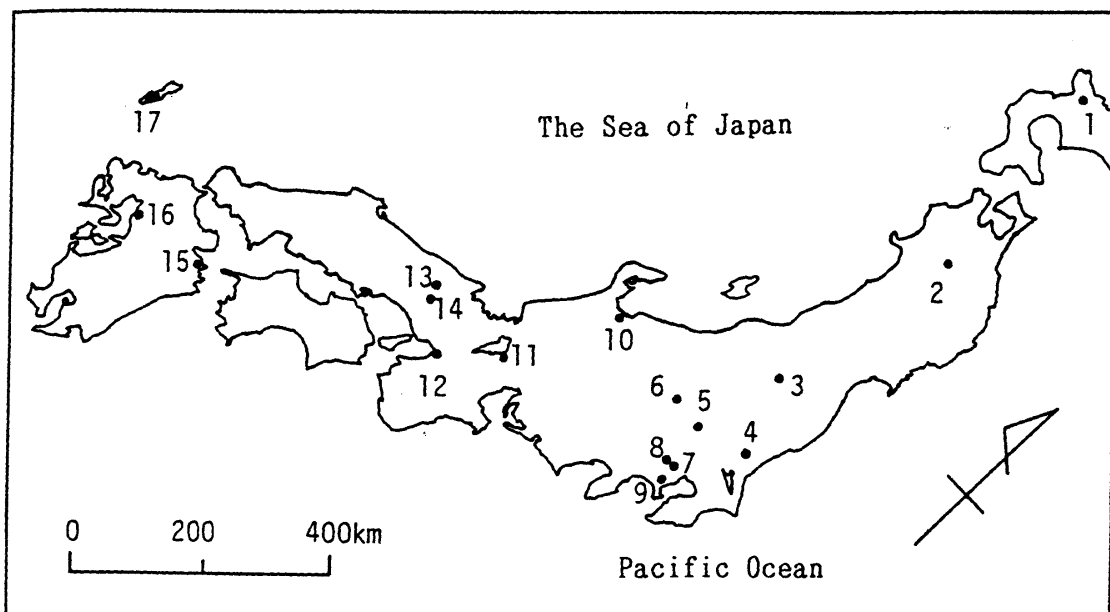


図3 Sampling locations

表10 Sb and Bi contents in the surface soils polluted by heavy metals (mg/kgDW)

No.	Name	Location (Prefecture)	Pollution sources	n	Sb		Bi	
					Mean*(Min ~ Max)	Mean*(Min ~ Max)	Mean*(Min ~ Max)	Mean*(Min ~ Max)
1)	Kunitomi	Hokkaido	Cu, Pb, Bi-M&S	24	7.04 (0.612~37.3)	17.1 (0.448~122)		
2)	Kosaka	Akita	Cu-M	4	0.894(0.502~1.10)	1.64 (0.437~3.52)		
3)	Bandai	Fukushima	Pb, Zn-S	86	0.630(0.194~3.79)	0.760(0.180~4.72)		
4)	Nanakai	Ibaraki	Cu-M	6	0.613(0.475~0.874)	1.02 (0.407~2.36)		
5)	Ohta	Gunma	Cu-M&S	2	1.16 (0.922~1.40)	2.99 (1.81 ~4.17)		
6)	Annaka	Gunma	Pb, Zn-S	199	0.758(0.260~7.23)	0.431(0.181~2.72)		
7)	Fuchu	Tokyo	Factories	3	1.34 (0.999~1.58)	0.929(0.660~1.17)		
8)	Akishima	Tokyo	Factories	1	3.44	0.800		
9)	Yokohama	Kanagawa	Battery-F	23	16.8 (1.39 ~202)	0.500(0.170~1.00)		
10)	Fuchu	Toyama	Pb, Zn-M&S	5	0.824(0.335~1.47)	1.83 (0.380~3.70)		
11)	Maibara	Shiga	Sb-S	39	17.2 (2.07 ~136)	0.683(0.348~1.67)		
12)	Osaka	Osaka	Sb-S	8	110 (3.23 ~277)	0.637(0.297~0.855)		
13)	Sekinomiya	Hyogo	Sb-M&S	41	50.3 (0.881~321)	0.239(0.053~0.501)		
14)	Ikuno	Hyogo	Pb, Zn-M&S	5	1.36 (0.66 ~2.33)	1.59 (0.576~3.44)		
15)	Saganoseki	Ohita	Cu, Pb-S	2	8.04 (1.38 ~14.7)	2.69 (0.790~4.58)		
16)	Ohmuta	Kumamoto	Zn-S	3	0.845(0.672~1.03)	1.67 (1.31 ~2.09)		
17)	Tsushima	Nagasaki	Zn-M&S	10	4.79 (0.120~31.6)	0.799(0.269~2.35)		
Uncontaminated soils				25	0.42	0.37		

* Arithmetic mean, M: mine, S: smelter, F: factory.

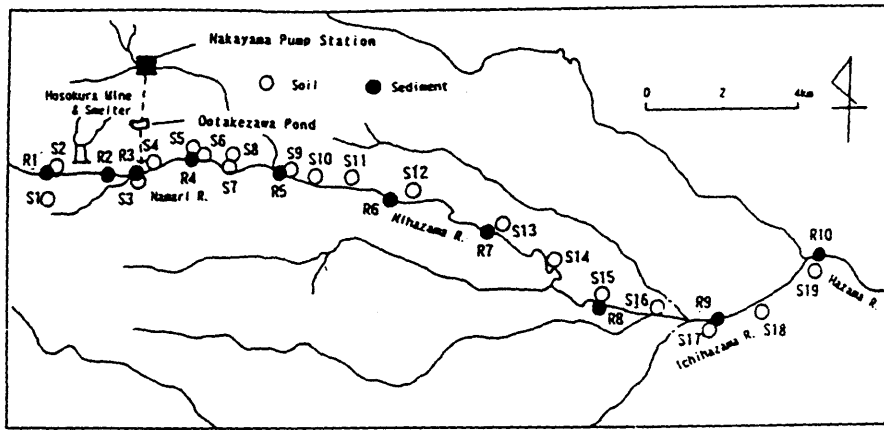


図4 試料採取地点

表1 1 鉛川およびその下流河川底質中のTlおよび関連有害金属の濃度 (mg kg⁻¹乾土)

No.	Cu	Zn	As	Ag	Cd	Sb	Te	Tl	Pb	Bi
鉛川底質										
R1	433	12000	98.4	8.66	88.6	32.1	2.70	17.8	3520	18.9
R2	2170	5550	436	100	120	388	102	26.5	13600	327
R3	1730	10400	499	125	257	367	46.4	79.9	15200	183
R4	991	9980	404	56.9	87.1	177	29.2	31.3	9860	74.8
二迫川底質										
R5	223	2400	86.7	8.94	21.8	14.7	6.74	10.8	1240	5.47
R6	309	5210	225	13.1	54.6	29.2	10.5	21.1	1950	10.4
R7	160	2990	79.2	6.10	39.0	13.8	5.21	17.4	1100	4.32
R8	162	3600	91.5	7.55	57.9	22.9	8.78	17.9	1260	8.84
一迫川底質										
R9	76.8	1260	49.2	2.92	22.8	10.7	2.36	6.59	539	3.01
迫川底質										
R10	28.8	587	26.1	0.54	6.06	2.60	0.21	4.81	115	0.49
幾何平均	302	3930	132	11.8	49.5	35.4	7.55	17.5	2080	13.9
最低	28.8	587	26.1	0.54	6.06	2.60	0.21	4.81	115	0.49
最高	2170	12000	499	125	257	388	102	79.9	15200	327

表1 2 細倉鉱山・製錬所周辺および鉛川とその下流域の土壤中Tlおよび関連有害金属濃度 (mg kg⁻¹乾土)

No.	Cu	Zn	As	Ag	Cd	Sb	Te	Tl	Pb	Bi
S 1 ^A	181	404	91.0	3.70	13.2	25.2	1.88	2.39	2630	7.10
S 2 ^B	204	1720	84.7	7.43	13.6	22.2	1.19	2.05	2350	4.03
S 3	136	1760	23.2	4.68	3.96	11.0	0.67	0.78	1230	2.98
S 4	55.5	542	20.0	1.74	2.68	5.07	0.32	0.51	343	1.78
S 5	25.9	240	9.3	0.35	3.11	2.48	0.17	0.60	161	0.83
S 6 ^B	33.2	313	11.6	0.61	2.94	2.54	0.21	0.35	246	1.09
S 7 ^B	51.2	275	17.7	0.89	2.24	3.04	0.23	0.44	172	1.42
S 8	64.3	678	16.7	1.16	3.81	4.96	0.31	0.43	290	1.78
S 9	24.6	117	25.3	0.16	0.69	1.93	0.05	0.28	59	0.20
S 10	44.3	635	56.4	0.65	3.06	4.32	0.10	0.40	184	0.35
S 11	46.5	1010	60.1	1.45	4.05	4.97	0.10	0.52	313	0.48
S 12	52.5	967	60.8	2.07	4.88	5.86	0.21	1.55	557	0.36
S 13	86.7	588	25.5	2.00	2.72	4.12	0.10	0.61	438	0.32
S 14	45.7	703	41.1	0.84	4.02	3.60	0.11	0.70	217	0.31
S 15	34.8	627	30.3	1.81	4.41	4.01	0.14	0.51	404	0.31
S 16	39.6	708	44.5	1.95	3.58	5.02	0.13	0.49	453	0.34
S 17	24.7	150	10.0	0.13	0.59	1.00	0.13	0.34	32	0.18
S 18	18.4	150	11.5	0.14	0.67	1.07	0.11	0.42	31	0.18
S 19	23.2	232	16.2	0.27	1.02	1.37	0.11	0.26	58	0.20
幾何平均	48.4	472	27.0	0.96	2.85	4.03	0.19	0.58	263	0.65
最低	18.4	117	9.3	0.13	0.59	1.00	0.05	0.26	31	0.18
最高	204	1760	91.0	7.43	13.6	25.2	1.88	2.39	2630	7.10

A, 森林土壌; B, 畑土壌; その他, 水田土壌。

表 1 3

Data for Cadmium content of food in Japan

Name of the foods (year of the inspection)	Number of samples	Detection limit (ppm)	Average content, (ppm)	Max. cont. (ppm)	Min. cont. (ppm)	Percentage of the samples which Cd cont. exceed 0.1ppm (>0.1ppm)
<u>Fruit</u> (1995)						
Japanese pear	13	0.01	ND	ND	ND	
Mandarin orange	17	0.01	ND	ND	ND	
<u>Cereal</u> (1995, 1996)						
Rice	713	0.01	0.07	0.44	ND	23%
Wheat flour	26	0.01	0.10	0.02	0.02	0%
<u>Pulse, legume</u> (1995, 1996)						
Kidney bean	44	0.01	0	0.02	ND	0%
Soy bean	59	0.01	0.11	0.37	0.02	36%
Red bean	39	0.01	0	0.04	ND	0%
<u>Vegetable</u> (1995, 1996)						
Horse radish	5	0.005	0	0.01	ND	
Cabbage	10	0.005	ND	ND	ND	
Tomato	5	0.05	ND	ND	ND	
Cucumber	5	0.05	ND	ND	ND	
Spinach	5	0.05	ND	ND	ND	
<u>Meat, poultry</u> (1989-1991)						
Pork	8	0.005	ND	ND	ND	
Beef	7	0.005	ND	ND	ND	
Chicken	8	0.005	ND	ND	ND	
<u>Edible oil</u> (1990-1991)						
Margarine	104	0.01	ND	ND	ND	
Fat spread	15	0.01	ND	ND	ND	
Lard	25	0.01	ND	ND	ND	
Tallow	6	0.01	ND	ND	ND	
<u>Fish</u> (1996)						
sardine	15	0.01	0	0.03	ND	
mackerel	15	0.01	0	0.01	ND	
flatfish	15	0.01	ND	ND	ND	
flatfish flounder	15	0.01	ND	ND	ND	
eel	15	0.01	ND	ND	ND	
ayu	15	0.01	0	0.04	ND	
tuna	15	0.01	0	0.02	ND	
skipjack	15	0.01	0	0.04	ND	
<u>Crustacean, Mollusc</u> (1996)						
giant pacific oyster	15	0.01	0.31	0.48	0.18	
short-neck clam	15	0.01	0.05	0.07	0.03	
scallop	15	0.01	0.17	0.51	0.01	
squid	15	0.01	0.09	0.17	0.04	
common octopus	15	0.01	0	0.06	ND	
kuruma prawn	15	0.01	0.07	0.41	ND	
red snow crab	15	0.01	0.13	0.35	0.04	

著者注：wheat flourの数字は明らかに間違い。

表 1 4 Cadmium in food

Food	ML (mg- /kg)	Daily Intake Range (g) (<i>Typical intake</i>)	Cadmium Range (mg/kg) (<i>Typical level</i>)	Typical ex- posure (µg/day)	MDI µg/day)
<u>Fruit</u>	-	100-500 (200)	0-0.05 (0.01)	2	-
<u>Vegetables</u> (incl. pota- toes)	0.05	100-800 (300)	0-0.1 (0.03)	9	15
<u>Oilseeds and cocoa— beans</u>	-	0-5 (1)	0.1-1 (0.5)	0.5	-
<u>Cereals, pulses and legumes</u> except wheat grain and rice	0.1	50-800 (200)	0-0.2 (0.02)	4	20
<u>Wheat grain and rice</u>	0.2	20 - 100 (50)	0-0.2 (0.05)	2.5	5 b
<u>Meat of cattle, poultry, pig and sheep</u>	0.05	100-250 (150)	0-0.1 (0.02)	3	7.5
<u>Meat of horse</u>	0.2	0-25 (2)	0-2 (0.1)	0.2	0.4
<u>Liver of cattle, poultry, pig and sheep</u>	0.5	0-10 (5)	0-0.5 (0.1)	0.5	2.5
<u>Kidney of cattle, poultry, pig and sheep</u>	1	0-2 (1)	0-2 (0.5)	0.5	1
<u>Fish</u>	-	10-50 (30)	0-0.05 (0.02)	0.6	-
<u>Crustaceans, molluscs</u>	0.5	0-10 (3)	0-2 (<i>crustaceans, molluscs: 0.25</i>)	0.8	1.5
Total				23 a	52 c

著者注：aは24、bは10、cは58の間違い。

表15 非汚染米中カドミウムの濃度別分布率

No.	種類	n	<0.1	≥0.1	≥0.2	≥0.3	算術平均(最小-最大)	文献
			mg/kg					
1	白米	202	76.7%	23.3%	4.0%	2.5%	0.066(0.005-0.472)	森次・小林(1963)
2	玄米	90	61.6	38.8	24.4	12.2	0.13(0.00-0.90)	千葉農試(1972)
3	玄米	171	62.0	38.0	10.0	1.8	0.10(0.01-0.39)	静岡県(1975)
4	玄米	1196	63.0	37.0	14.7	7.0	0.105(N.D.-3.04)	伊藤・原田(1980)
5	玄米	3379	56	44	22	10	0.1326	内山(1982)
6	白米	491	61	39	10	?	0.0990	内山(1982)
7	(玄米)	713	77	23	?	?	0.07(N.D.-0.44)	日本(1997)

[備考] 1:40都道府県の農業試験場の1959年産米、10%精白。最高値は東京都農試。
 2:千葉県内の1971年度産米、概況調査結果。
 3:静岡県内の1971, 1972, 1973年度産米、概況調査結果。
 4:1973年12月~1980年3月に都内米穀倉庫に搬入された玄米。幾何平均は0.062 mg/kg。濃度別分布率は0.04mg/kgごとのヒストグラムから作成したグラフより求めた。
 5, 6:地方衛生研究所全国協議会所属の全国67カ所の衛生研究所および国立衛生研究所において、1971~1980年に分析された各種食品汚染物のデータを集計・整理したもの。米中カドミウムを分析した機関はこのうちの一部である。玄米の50%値は0.0808mg/kg、白米の50%値は0.0788mg/kgである。濃度別分布率は10%値、50%値、90%値をグラフ化して求めたものである。精度は低い。
 7:1995・1996年産米であり、多分玄米であろう。1997年3月のCCFACのために、日本の科学技術庁科学技術政策局から1996年12月24日にCCFAC事務局にFAXで送られたと考えられるデータ(Comments on Cadmium as an Industrial Contaminant[from Japan](CX/FAC 97/22))。

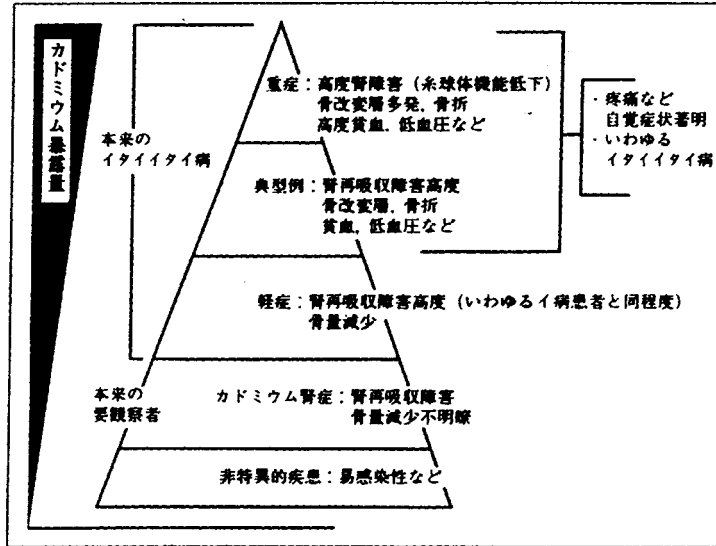


図5 カドミウム曝露量と病状との関係

加藤孝之:イタイイタイ病研究の成果について、第9回イタイイタイ病セミナー講演集、p.5-29、イタイイタイ病対策協議会・神通川流域カドミウム被害団体連絡協議会、富山(1990)より

表 1 6 Cd concentrations (mg/kg ADW in rice grains for various response rates on renal dysfunction.

Amount of rice consumed (g/day)		Response rate(%)			
		5	10	20	50
— mg Cd/kgADW in rice grain —					
200	Male	0.28	0.38	0.55	1.10
	Female	0.30	0.38	0.50	0.88
400	Male	0.14	0.19	0.28	0.55
	Female	0.15	0.19	0.25	0.44
600	Male	0.09	0.13	0.18	0.37
	Female	0.10	0.13	0.17	0.29

Estimated from Nogawa et al., Ministry of Health and Welfare, and Sherlock and Waters.

表 1 8 世界各国の産米および輸入米中のカドミウム濃度 (ng/g 風乾物)

国	Cd	(N)	文献	国・地域	Cd	(N)	文献
ブラジル	2 ±1	(11)	A	アメリカ合衆国	11.54±1.68	(8)	B
イラン	8 ±7	(10)	A		42 ±51	(16)	D
中国	7.58±3.43	(12)	B	マレーシア	17.80±3.09	(3)	C
	11.60±3.79	(30)	C		36.13±1.63	(18)	B
オーストラリア	9.07±2.81	(11)	B	香港	28.17±3.20	(11)	B
インド	9.58±2.79	(15)	B	インドネシア	20.65±3.61	(10)	B
バングラデシュ	11 ±4	(4)	A		29.00±4.02	(52)	C
パキスタン	11.09±2.41	(7)	B		40 ±42	(116)	G
タイ	13.58±1.77	(12)	B	フィジー	37 ±49	(4)	A
	14.55±3.03	(75)	C	ペルー	40 ±58	(6)	A
韓国	15.59±2.63	(35)	C	イタリア	42.54±1.74	(5)	B
	13.12±2.23	(6)	B	台湾	30 ±11	(5)	A
イエメン	17 ±20	(7)	A		46 ±21	(8)	D
フィリピン	13 ±14	(8)	A		74.66±2.15	(11)	B
	13.53±2.87	(9)	C	日本	49.55±3.59	(374)	C
シンガポール	20.69±3.64	(22)	B		50 ±19	(15)	J
	5.90±2.09	(7)	C		52.45±2.37	(29)	B
	11.54±1.68	(18)	B		61	(88)	E
	41 ±56	(5)	A		62 ±28	(1196)	H
スイス	19 ±5	(4)	A		65 ±96	(8)	A
ガテマラ	20 ±21	(5)	A		66 ±5	(203)	D
ネパール	21.18±2.71	(8)	B		90	(8163)	F
ドミニカ	23 ±23	(3)	A		141	(3379)	I

文献 A: Masironi et al. (1977), B: Watanabe et al. (1989), C: Rivai et al. (1989),

D: Moritsugu and Kobayashi (1964), E: 伊藤・飯村(1979), F: Iimura (1981),

G: Suzuki et al. (1980), H: 伊藤・原田(1980), I: Uchiyama (1982), J: 浅見(未発表).

1) 文献 B, C, H の値は幾何平均±幾何標準偏差, 文献: A, D, E, F, I, J の値は算術平均±算術標準偏差.

2) 白米: 文献 A, B, D, 玄米: 文献 C, E, F, H, I, J, 両者の混合: 文献 G.

3) イエメン, シンガポール, スイスの米は輸入, ガテマラとフィジーの各 1 試料は輸入, 他は自国産米.

表 1 7

PREVALENCES OF ITAI-ITAI DISEASE AND PROTEINURIA WITH GLUCOSURIA IN RELATION TO HAMLET AVERAGE RICE-CADMIUM CONCENTRATIONS

Cd in rice ($\mu\text{g/g}$)	N ^a	Itai-itai disease	Females over 50 years of age	
			N ^b	Proteinuria with glucosuria
Control 0.05-0.32 (0.15 ^c)	446	0 (0 ^d)	408	20 (4.9 ^d)
Polluted hamlet				
0.30-0.49 (0.40)	280	19 (6.8)	258	56 (21.7)
0.50-0.69 (0.61)	255	43 (16.9)	240	70 (29.2)
0.70-1.05 (0.82)	105	22 (21.0)	100	45 (45.0)

^aPopulation of hamlet on July 1st, 1967.

^bNumber of women examined.

^cMeans in parentheses.

^dPercentage of people with indicated condition.

表 1 9 世界の非汚染土壌中カドミウム濃度 (mg/kg 乾土)

国・地域	試料数	平均値	範囲	文献
オーストリア		0.20	0.01-0.71	Angelone and Bini(1992)
ベルギー		0.33	0.12-0.54	"
ブルガリア		0.44 ^a	0.24-0.71	Kabata-Pendias <i>et al.</i> (1992)
カナダ		0.07	0.01-0.1	Alloway(1990)
中国		0.15 ^a	0.10-0.19	楊・久保井(1989)
デンマーク	65	0.215	0.012-0.494	Christensen and Tjell(1991)
フィンランド	86	0.21	0.04-0.76	Sippola and Makela-Kurtto(1986)
フランス		0.74	0.05-2.00	Angelone and Bini(1992)
ドイツ		0.52	0.06-2.90	"
イタリア		0.44	0.07-0.80	Bini <i>et al.</i> (1988)
日本	465	0.44	0.03-2.53	Iimura(1981)
"	633	0.35	ND-2.30	日本土壌協会(1984)
"	25	0.30	0.06-0.80	浅見ら(1988)
オランダ	925	0.40±0.19		Boo(1990)
ノルウェー		0.95	0.4-2.0	Angelone and Bini(1992)
ポーランド		0.39 ^a	0.08-1.80	Kabata-Pendias <i>et al.</i> (1992)
ルーマニア		0.90 ^a	0.20-2.70	"
スコットランド		0.47	0.01-2.40	Angelone and Bini(1992)
スペイン	121	0.65±0.20		Aller <i>et al.</i> (1989)
スウェーデン	361	0.22	0.03-2.3	Andersson(1977)
台湾	1240	0.06	ND-0.22	Chen(1992)
イギリス		1.0 ^a	0.01-2.4	Alloway(1990)
アメリカ合衆国	3305	0.27	0.005-2.4	"
世界の土壌		0.35	0.01-2	Bowen(1979)

a 各種土壌型のカドミウム平均値の平均値。

b 平均的な値であって、平均値ではない。

参考資料 1

カドミウム環境汚染要観察地域に関する 44 年度研究・調査の要約および厚生省の見解と今後の対策

[抜粋]

昭和 45 年 7 月 7 日

厚生省環境衛生局公害部

2 - 2 Cd の摂取と蓄積について

(1) 食物からの Cd 摂取量については 6 種類の方法で推定が行われいずれの要観察地域もすくなくとも一つ以上の推定方式で、Cd 環境汚染要観測地域判断尺度である成人 1 人 1 日当たり Cd 接種量 0.3mg(厚生省暫定対策要領)を超えていたのでひきつづきこれらの地域を要観察地域として対策を進めて行くものとする。

(2) Cd 摂取量の正確な推定は極めて困難であるうえに、摂取された Cd の吸収率が極めて低いこと。一方尿中に排出された Cd は、確実に一旦体内に吸収されたものであり、尿中 Cd 濃度の測定は、Cd 摂取量の把握よりもずっと容易かつ正確に行えることから、今後 Cd 摂取量 0.3mg/day に対応するものとして尿中 Cd 濃度 9 µg/l(ただし 30 人以上の平均値)と要観察地域判断尺度としてとりあげることとする。

2 - 3 保有米の Cd 濃度の考え方について(Cd 摂取減少対策)

カドミウム中毒の診断の場合、尿中に高濃度の Cd が検出されることが一つの大きな決め手である。Cd 環境汚染要観察地域住民健康調査方式においては、尿中 Cd 30 µg/l を第一次検診から第二次検診へのスクリーニングの基準の一つとしている。

Cd を含む食品の摂取によって、第二次検診へまわるようなこの尿中 Cd 濃度(30 µg/l)をもたらさないためには、注 1 に示す計算から保有米中の Cd 濃度を新鮮物で平均(注 2) 0.9ppm(9~10%精白米中 Cd 濃度、玄米ならば 1.0ppm とする)未満とすることが適当であり、この濃度以上の自家保有米を常時継続的に摂取しないような方策がとらえることが望ましい(平均として約 1/4 の安全率を見込んでいる)。

この措置についてはこれらの米の Cd 汚染を引き起こした企業の責任において行われるべきであると考ええる。

なお、高濃度の Cd を含む米が生産された水田土壌についての対策に関しては農林省、関係県農林部局等において検討されるように申し入れる。

(注 1) 尿中 Cd 濃度 30 µg/l は、成人の平均 1 日尿量を 1.5 l とすれば、45 µg/day に相当し、図 5 の回帰方程式($y = 33.9x + 2.5$)からこの尿中 Cd 排泄量(y)に対応する Cd 摂取量(x)は 1,254mg である。さて、摂取蓄積研究班報告、結論(1)に述べられているように国民栄養調査方式による平均 1 人 1 日食品摂取量は、1263.5 グラムであるので、この中に上記 Cd 量 1,254mg が含有されていると、Cd 濃度は 1254mg/1263.5g=0.99ppm となる。

そこで、要観察地域地元産食品中 Cd 濃度を A (ppm)、要観察地域以外の地域(これを他地域という)産の食品中 Cd 濃度を B (ppm)、地元産食品摂取量と他地域産食品摂取量との比(地域/他地域)を R とすると食品中の平均 Cd 濃度が 0.99ppm 未満であるためには、次の不等式が満足されねばならない。

$$\frac{A \times R + B \times 1}{R + 1} < 0.99 \quad \text{即ち} \quad A < \frac{0.99 - B}{R} + 0.99 \quad (\text{注 2})$$

B は表 3 から 0.04~0.13ppm、R は表 4 から 0.74~2.38 の範囲にある。最も安全をみて、B と R を最大値(それぞれ 0.13ppm、2.38)とすると $A < 1.35\text{ppm}$ となる。すなわち第二次検診にまわるような尿中 Cd 濃度(30 µg/l)をもたらさないためには地元産食品中 Cd 濃度(A)を平均 1.35ppm 未満とすべきである。

次に、要観察地域の地元産米(保有米)中 Cd 濃度(実際に食される形態として、9~10%精白米中濃度とする)を a(ppm)、米をのぞく地元産食品中 Cd 濃度を b(ppm)地元産米(保有米)摂取量と米を除く地元産食品の摂取量との比(保有米摂取量/米を除く地元食品摂取量)を r とすると地元産食品中平均 Cd 濃度が

1.25ppm 未満であるためには、次の不等式が満足されねばならない。

$$\frac{a \times r + b \times 1}{r + 1} < 1.35 \quad \text{即ち} \quad a < \frac{1.35 - b}{r} + 1.35$$

さて、摂取蓄積研究班報告表 4 から計算すると、b は 0.16 ~ 0.35ppm、r は 0.57 ~ 1.1 の範囲内にある。最も安全をみて b を最大値の 2 倍、r を最大値(それぞれ 0.70ppm、1.1)とすると、保有米中の Cd 濃度 $a < 1.94\text{ppm}$ となる。

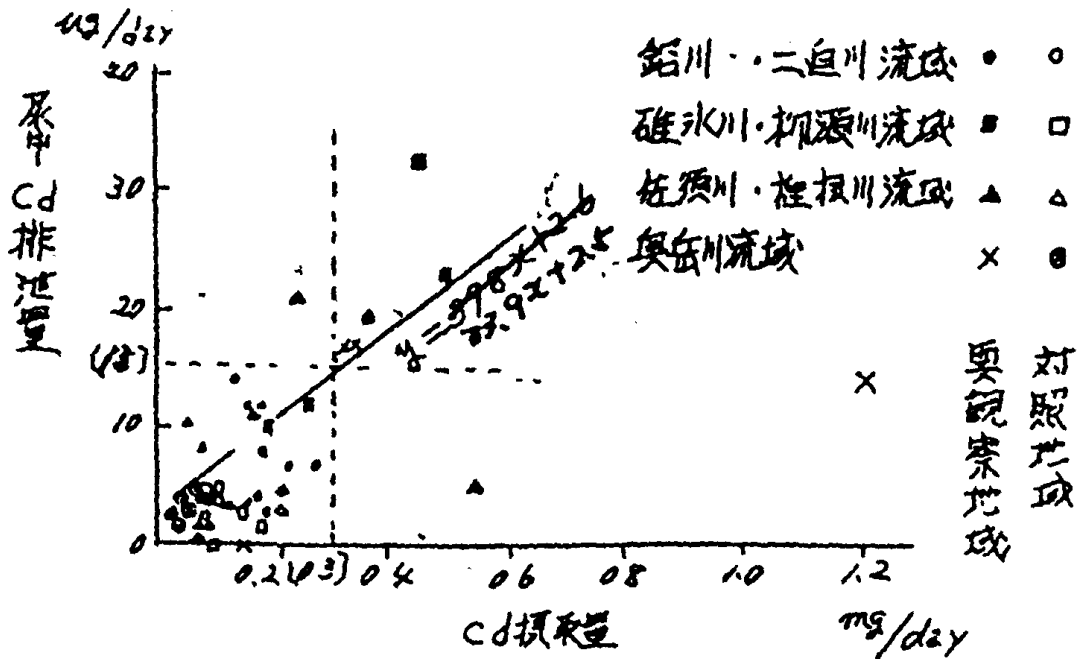
ところでこの濃度(1.94ppm)は、最初に基礎として、平均の食品摂取量(1263.5g)から出発しているので、地域住民の健康保護の観点から個人差を考慮して、安全率を 1/2 以上とって、平均 0.9ppm 未満(9 ~ 10%精白米中 Cd 濃度)とすることが適当である。

(注 2) 保有米については、対象世代が保有しているすべての俵および袋から均等に取り出したものを十分混合して、その中から 400 g をとり、200 g ずつ分けて分析試料とし、2ヶ所の分析機関で分析を行い、いずれの分析値も前記の数値をこえないことが望ましい。いずれか一方のみがこえた場合は再検査を行うべきである。

水道から採取する場合は、その世帯が所有しているすべての水田から、もみを水口、中央、水尻に分けて均等に採取して充分混合し、その中から 400 g (玄米として)を分析試料として、以下上記と同様に分析を行う。

(注 3) 図 3 の回帰方程式($y=38.9x+1.9$)から計算すると、 $30 \mu\text{g}/\text{l}$ は摂取食物中 Cd 濃度 0.72ppm に対応する。しかし、摂取食物には、水分が含まれているので、これを訂正すると、 $0.72\text{ppm} \times (1819\text{g}/1263.5\text{g})=1.04\text{ppm}$ (摂取食物平均重量、摂取蓄積研究班報告 12 頁)となり、図 5 の回帰方程式を使った場合(0.99ppm)より大きくなる。そこで安全サイドに立ってより厳しい数値の得られる図 5 の回帰方程式を用いた。

図 5 Cd 摂取量と尿中 Cd 排出量との関係



参考資料2

環境庁企画調整局公害保健課 改定公害保健読本、P. 229-230中央法規出版(1974) 米のカドミウムの安全基準についての報告

1970年7月24日 微量重金属調査研究会

カドミウムによる米の汚染について、厚生省は昨年米のカドミウム(Cd)濃度を指標とする環境汚染の判断尺度として0.4ppmの数値を定め、また、先般Cd環境汚染要観察地域における保有米の安全基準として、玄米1.0ppm(精白米0.9ppm)の数値を発表した。

環境汚染基準と安全基準を同一視することによる誤解、および安全基準が食品としての米一般について設定されていないことによる一般の不安が生じたため、本研究会は厚生省の依頼により、Cdを含んだ米の安全性について検討を行なった。

なお、先般、厚生省が発表した安全基準はCd摂取量と尿中Cd排せつ量との相関関係を基礎とし、Cd環境汚染要観察地域住民健康調査方式における第1次検診から第2次検診への、スクリーニングの基準の一つとして採用されている30 µg/Lを出発点として計算し、このような尿中Cd濃度をもたらさないためには、保有米中のCd濃度を1.0ppm未満(玄米)とすべきであるというものであるが、本研究会は、別の観点に立つて本問題の検討を行なった。

米のCd含有量に関し、上述の1.0ppmをとりあげた場合、大人が1日に摂取するCdの量を求めると、米の1日平均摂取量は334.7g(昭和41年11月国民栄養調査成績)であるので、大き目にみて500gとすると、その中に500 µgのCdが含まれる。つぎに、汚染地域における米以外の食物に由来するCd 1日摂取量は、約82 - 150 µg(昭和44年度厚生省公害調査研究費による)であるので、その最高をとって米のCdに加えると650 µgとなる。さらに、水に由来するものとして実態の最高値0.01 ppmのものを1日1.5 L摂るとするとCd摂取量は15 µgとなり、合計665 µgとなる。このようなCdの連続摂取が安全か否かということになる。

さて、労働衛生において、わが国ほか諸外国ではCdヒュームの場合0.1 mg/m³が空気中の許容限度として採用されている。しかし、この濃度は必ずしも安全であるとはいえないという報告もあるので、この値を0.05mg/m³とすれば8時間の吸気中のCd量は約500 µgとなる。十分に安全をみこんでかりにその10%が血中に入るとすればその量は約50 µgと推定される。

一方、経口摂取した場合の腸管吸収についての研究は多くはないが、現在まで知られている知見によると、その吸収率は一般に低く、マウスにおいて2%と報告されているので、この数値を採用すると、前述の665 µgの2.0%である13 µgが血中に入ることになる。この数値は前述の経気道摂取による血中移行量約50 µgに比べて低い。

Cdによる人の慢性中毒については、従来Cdの吸入による中毒例が多数報告され、その点も主な中毒症状は肺と腎の障害であり、前者は吸入されたCdの局所に与える反応によるものと考えられるので、経口摂取時においては腎障害を指標として考えるべきであろう。

従来Cdの動物実験における慢性毒性研究は少なくないが、食品の許容量設定という立場から参考とし得るものはきわめて限られている。しかしAnwarらがイヌで行なった実験は有用であると考えられる。

この実験は、Cdを水に加えて4年間与えたものであるが、10ppmの濃度で有意の腎障害を認めなかったという。この濃度からイヌが毎日摂取するCd量を計算すると約1,000 µg/kgとなる。さらに他のいくつかの動物実験においてCdを水溶液として与えるよりも飼料に混ぜて投与した場合の方が毒性の発現が弱いという事実を勘案すると、さきに述べた大人1日665 µg(13 µg/kg)という値は十分の安全性があると考えられる。

前述のごとく現存する科学的事実に基づいて検討した結果1.0ppmという数値については、これが人体に有害であると判断することはできない。しかし、このような判断に至った科学的事実、たとえば慢性毒性や吸収等の問題については、なお研究すべき点があるので早急にこれを行ない、その結果をまとめてさらに安全性を検討する必要があると考えられる。

1.はじめに

我が国における土壌汚染は1960年代の農地の重金属等による汚染をきっかけとする公害に始まり、以後工場跡地や市街地でも問題化し、現在に至っている。欧米でもほぼ同様に土壌汚染が問題となり、現在では土壌汚染対策に関する国際会議¹⁾が定期的開催されている。汚染土壌の対策は土地の用途、周辺環境、汚染レベル、修復に関する考え方等の違いにより国により異なるが、ここでは主として我が国の市街地土壌に対する対策、技術の現状について述べる。

2. 汚染土壌とは

土壌の汚染性の判定は汚染の人体への影響経路を考慮してなされる。すなわち、直接的な吸入、植物経由の摂取、地下水経由の飲用などが土壌中の汚染物質の人体への侵入経路となる。我が国の土壌汚染の判定では地下水経由の侵入を主体に考え、試験方法、判定基準が設けられている。試験は環境庁告示46号により、風乾土を10倍量の水に懸濁させ、振とう抽出した検液の汚染物質の濃度レベルの測定によって行う。この測定値を土壌汚染に係わる環境基準と比較し汚染性が判定される。現在、環境基準は25項目について設定されているが、重金属等に関するものを表1に示す。ここに示される基準値は地下水環境基準と同一であり、さらに地下水環境基準は飲用水基準とほぼ同等である。なお、土壌・地下水汚染に係わる調査・対策指針および運用基準²⁾が環境庁により公表されている。

表-1 重金属等に係わる土壌環境基準

カドミウム	0.01mg/L 以下 農地では 1mg/米 kg 未満	総水銀	0.0005mg/L 以下
全シアン	検液中に検出されないこと	アルキル水銀	検液中に検出されないこと
鉛	0.01mg/L 以下	セレン	0.01mg/L 以下
六価クロム	0.05mg/L 以下	銅	農地では 15mg/土 kg 未満
砒素	0.01mg/L 以下 農地では 15mg/土 kg 未満	PCB	検液中に検出されないこと

このように、土壌の汚染性が望ましい環境目標である土壌環境基準のみで判定されることは、農業地域、市街地、工場地帯など土地利用形態や周辺環境が考慮されないことであり、汚染範囲の決定や修復目標の設定など具体的に修復を行う際の課題を与えているように思われ、これらを考慮したリスク評価を基礎とする汚染土壌の修復体系を構築するには、土中での汚染物質の挙動に関する情報の蓄積が不足しているともいえよう。

3. 修復技術の開発

重金属等により汚染された土壌の修復技術として実用化あるいは開発中のものを表2に示す。この表には必ずしも修復とはいえない汚染拡散の防止技術も含めている。重金属系の汚染の場合、有機系汚染の場合と異なり分解による手法が適用できないため、選択肢がやや少ないが、汚染の程度、周辺環境、修復目標等を考慮して最適な手法が選択される。以下に個々の手法について適用事例や課題を述べる。

表-2 重金属等汚染土壌対策技術

分類		対象物質・適用条件など
拡散防止	遮断型構造	溶出量が基準を超える汚染土の埋め立て
	管理型構造	不溶化処理土などの埋め立て
	遮水壁	原位置の拡散防止、 10^{-6} cm/sec以下の止水性
	浄化壁	移動性の汚染物質を透水性の壁で浄化
溶出防止	不溶化・固形化	薬剤・コンクリートなどによる
	ガラス固化	地盤を1500℃前後まで電気加熱し、土をガラス状に固形化
抽出除去	洗浄	重金属や油による汚染土を地上プラントで水や薬剤液で洗浄
	電気泳動	原地盤に直流電気を通じ、汚染物質を水とともに抽出・除去
	加熱・焼却	
		水銀、砒素などの気化抽出、共存する有機物質の分解

拡散防止

工場跡地や廃棄物処分場跡地などで汚染物質の周辺への拡散を防止する応急的な対策として汚染土を収納する構造物に処分し管理する場合があります。この場合、構造の密閉性により遮断型と管理型の処分がある。前者では土からの汚染物質の溶出性が表-1の環境基準を満足できない場合に鉄筋コンクリート製の容器に収納・管理する。一方、汚染物質の溶出を薬剤などで防止した土の場合、管理型処分場に処分し、浸出水の水処理を行う。この場合の処分場の構造は一般廃棄物の場合と同様であり、厚生省により構造基準が定められている。一方、原位置で汚染物質を封じ込めるため止水性の高い遮水壁を汚染場所の周囲にめぐらす方法も採用されるが、この場合遮水壁の止水性が透水係数で 10^{-6} ppm/sec以下と高いものが必要とされる。また、この壁の一部を通水性とし、通水中に汚染物質を処理する機能を備えた反応・浄化壁が検討されている^{3,4)}。VOC汚染地盤の地下水対策として開発中であるが、移動性の重金属にも適用可能と思われる。

溶出防止

汚染物質の溶出を防ぎ地下水への影響を除く手法であり、通常は不溶化剤や固化剤を混合し、溶出防止を図るもので、採用事例が多い。その際、原位置で不溶化処理をする場合と処理土を管理型処分場へ処分する場合がある。この手法では汚染物質の種類、形態による適切な薬剤の選定、土と薬剤の確実な混合のための混合プラントや施工方法の選定、施工管理が重要である。なお、この手法で問題となるのは、不溶化効果の持続性、安定性であり、乾燥、pH変化、還元化などによる再溶出の有無が事前に検討される⁵⁾。

最近、汚染土あるいは地盤に高電圧の電流を流し、ジュール熱により土を溶融し、ガラス状に固形成することにより汚染物質を固定化する技術が開発されている。溶出防止効果は高いが、我が国のように地下水が豊富で住宅・工場が密集する条件では原位置処理技術としての適用性には限界があろう。

汚染物質の抽出・除去

汚染物質を土から抽出する技術は、本来の汚染土の修復に相当する。汚染物質を含んだ形で長期にわたって管理する必要のある上述の拡散防止や溶出防止に比べて、汚染物質から解放されるため、より高度な対策といえる。土から特定の物質のみを抽出・除去する技術は採鉱分野の有価金属の抽出・回収の延長技術⁶⁾であり、汚染物質の種類、形態、目標とする修復程度などにより各種の技術が選択できる。洗浄・分級による方法は汚染物質が土のシルト・粘土の粒径部分に吸着あるいは沈着する傾向が高い現象に着目したもので、掘削した汚染土を物理的に砂と細粒分に湿式分級し、汚染物質を泥状の細粒部に集め、この部分を脱水し、上述の の手法で処理するとともに浄化された砂部分を回収し、清浄土として利用する。この方法は汚染土の細粒分が10%以下の土では有効といわれ、洗浄・分級する際に界面活性剤あるいはキレート剤などを用いる場合もある。

また、地盤に微弱な直流電流を流し、溶出性の重金属を電気泳動させ、陽イオンは陰極に、陰イオンは陽極に集め、水に溶けた汚染物質を電極部の排水により除去する電気化学的な処理方法が開発されている⁷⁾。汚染物質の種類により最適な通電条件、排水方法などが異なり、また浄化に要する期間が比較的長い。この方法は汚染土を掘削することなく原位置で重金属を除去できる点に特徴がある。

また、水銀、砒素、鉛などで汚染された土壌には熱処理⁸⁾が有効である。これらの汚染物質は500℃前後と比較的低温で揮発するため、ロータリーキルンなどの地上プラントで加熱し、気化あるいは粉塵としてフィルターで捕捉する。処理された土は汚染物質が除去された清浄土であるが、土としての物性も相当変化している。また、温度によっては他の物質が活性化し、溶出しやすくなる場合があるので注意が必要である。なお、加熱処理は重金属と油や揮発性有機物質などとの複合汚染の場合には特に効果的である。

4. おわりに

汚染土壌の浄化、修復技術は技術的には周辺分野の技術の応用や改良により実用レベルとす

ることが可能であろう。問題は土をどの程度に修復し、修復後の土の利用目的を明確にすることであり、またそのためにどの程度のコストと期間を許容するかであろう。これらは多分に国土政策的な課題であるが、同時に方向性を的確に示すためには土中の汚染物質の挙動に関する深い知識が必要とされる。この点で現在の土壌科学はこの課題に十分に答えうるかどうか、環境土壌学の有効性が問われていると思われる。

参考文献

- 1)たとえば, K f K/TNO Conference on Conaminated Soil
- 2)土壌・地下水汚染に係わる調査・対策および運用基準、土壌環境センター(1999)
- 3)W.W.Kovalick, Jr & John Kingscott: Proc. of Second Conf.on Environmental Geotechnics, 1515-1530(1997)
- 4)今村他：第33回地盤工学研究発表会講演集、245-246(1998)
- 5)田口・川地：第32回地盤工学研究発表会講演集、115-116(1997)
- 6)田淵他：資源と素材、Vol . 13, 1115-1120(1997)
- 7)久保・川地・松本：第33回地盤工学研究発表会講演集、253-254(1998)
- 8)白鳥：第14回環境工学連合講演会講演論文集, 121-127(1999)

1. はじめに

土壌中には多種多様な有機化学物質が意図的あるいは非意図的に混入し、それらが土壌中に生存する生物に影響を及ぼしたり、土壌を介して作物生産に負荷を与えることが考えられる。土壌を汚染する有機化学物質としては、焼却施設が主排出源であるダイオキシン類、病害虫・雑草防除等に使用される農薬、トリクロロエチレンやテトラクロロエチレン等の有機溶剤、ポリ塩化ビニルやプラスチック製品中のフタル酸エステル等が挙げられ、それらの毒性と残留性が問題になる。特に、近年社会問題になっている内分泌かく乱作用(いわゆる環境ホルモン)が疑われる化合物が含まれており、極微量の暴露によっても生態系への影響を及ぼすことが懸念される。また、作物生産という面からは、長期残留農薬による薬害発生や、土壌中に残留する有機化学物質の吸収に伴う作物汚染として、ヒトに健康被害を及ぼすことが想定される。

このような問題を未然に防止するため、各種の環境基準や農薬取締法等の法的規制が策定されたり、さらに各省庁や自治体レベルでの実態調査を通じた監視が続けられている。特に、ダイオキシン類に関しては、世界保健機構(WHO)の耐容一日摂取量(tolerable daily intake TDI)の見直しに対応して、我が国でも新たなTDIと、土、水、大気等の環境基準の設定について検討することが、ダイオキシン対策関係閣僚会議において、決定された。また、農薬に関しても環境中における生態影響評価について、21世紀を目指した新たな評価方針が環境庁より提示される等、有機化学物質の安全性を目指した検討が各方面において進められている。ここでは、土壌(特に農地土壌)を汚染する有機化学物質(主としてダイオキシン類と農薬)について、汚染(残留)実態、残留要因となる土壌と化学物質との相互関係、政策的な対応等について紹介する。

2. ダイオキシン類による土壌汚染とリスク評価

図1に示すように、ダイオキシン類には置換する塩素の数と位置によって多種多様な異性体があり、ポリ塩化ジベンゾオキシン(PCDDs)75種、ポリ塩化ジベンゾフラン(PCDFs)135種、計210種を総称する。ダイオキシンは正確にはPCDDsのみであるが、通常報道

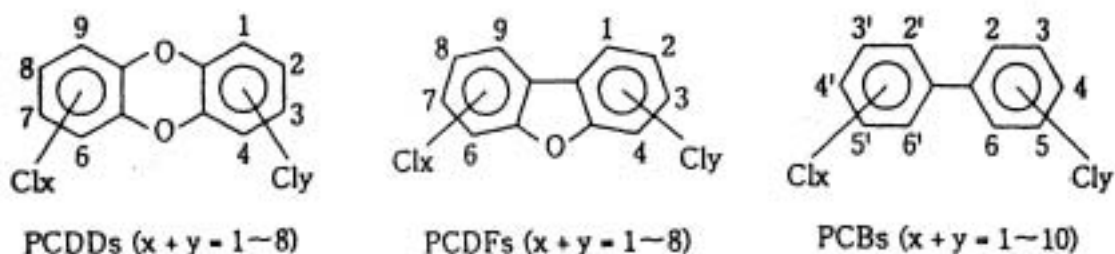


図1 ダイオキシン類の化学構造

等で使われる「ダイオキシン」はPCDDsとPCDFsの両者を含めて表現している。ダイオキシン類の毒性やリスクの評価に関しては、毎年開催される「塩素化ダイオキシンとその関連物質の国際シンポジウム」及びWHOを中心とする国際的機関により検討が繰り返されている。環境中におけるダイオキシン類の全異性体について存在量の一元的な把握や毒性評価をするために、毒性の最も強い2,3,7,8-TCDDを1とし、他異性体については一定の換算係数(表1)を掛け2,3,7,8-TCDD等価値として、各異性体の毒性和(TEQ:toxic equivalents)を算出している。この際、毒性評価の対象は、毒性が認められるPCDDsの7異性体とPCDFsの10異性体とされている。また、電気縁体等で使用されたPCBの中で偏平構造をもつ12種のCo-PCBも生体作用がPCDDs やPCDFsと類似することから、ダイオキシン類に加えて評価する方向で検討されている。なお、これらのダイオキシン類の毒性は、2,3,7,8-TCDDのモルモットへの急性経口投与による半数致死濃度が0.6~2.0µg/kgであるように、合成化学物質の中で最も強い。体重減少、胸腺萎縮、性ホルモン・甲状腺ホルモン・免疫機能の異常、発ガン性の増強、催奇形性等の様々な症状を呈し、内分泌かく乱作用も疑われている。

表1 ダイオキシン類の毒性等価係数

< PCDDs >		< PCDFs >		< Co-PCBs >	
2,3,7,8-TCDD	1	2,3,7,8-TCDF	0.1	3,4,4',5-TCB	0.0001
1,2,3,7,8-PCDD	0.5 (1)	1,2,3,7,8-PCDF	0.05	3,3',4,4'-TCB	0.0001
1,2,3,4,7,8-HCDD	0.1	2,3,4,7,8-PCDF	0.5	3,3',4,4',5-PCB	0.1
1,2,3,6,7,8-HCDD	0.1	1,2,3,4,7,8-HCDF	0.1	2,3',4,4',5-PCB	0.0001
1,2,3,7,8,9-HCDD	0.1	1,2,3,6,7,8-HCDF	0.1	2,3,3',4,4'-PCB	0.0001
1,2,3,4,6,7,8-HpCDD	0.01	1,2,3,7,8,9-HCDF	0.1	2,3,4,4',5-PCB	0.0005
OCDD	0.001 (0.0001)	2,3,4,6,7,8-HCDF	0.1	2',3,4,4',5-PCB	0.0001
		1,2,3,4,6,7,8-HpCDF	0.01	3,3',4,4',5,5'-HCB	0.01
		1,2,3,4,7,8,9-HpCDF	0.01	2,3,3',4,4',5-HCB	0.0005
		OCDF	0.001 (0.0001)	2,3,3',4,4',5-HCB	0.0005
				2,3',4,4',5,5'-HCB	0.00001
				2,3,3',4,4',5,5'-HpCB	0.0001

() 内及び Co-PCB の数値は、WHO で提案されているが、わが国でのリスク評価には採用されていない。

(1)ダイオキシン類の特性

我が国におけるダイオキシン類の排出源の90%以上は焼却施設からであり、年間約5000ng-TEQと推定されている。また、過去に使用された農薬の中に副産物として含まれていたダイオキシン類も土壤中に残留している。これらの環境中に放出されたダイオキシン類が、間接的に作物、魚介類、家畜等に取り込まれる可能性が高く、農林水産物への影響が懸念される。なお、排出源によって特異的な異性体パターンを示し、過去に使用された除草剤CNPでは毒性評価ゼロの1,3,6,8-TCDD及び1,3,7,9-TCDD、除草剤・殺菌剤あるいは木材防腐剤として使用されたPCPIはOCDD(塩素数8個のPCDD)が大きなピークとして検出される。焼却施設からは焼却物の内容に差異があるものの、総じてすべての異

性体が生成される。このことは、環境や食品中のダイオキシン類を分析しパターンを比較することによって、排出源をある程度特定することが可能であることを示している。

ダイオキシン類の特性は各異性体により異なる。物理化学的特性からみると、一般に有機溶媒に僅かに溶解するが水にはほとんど溶解しない(2,3,7,8-TCDDで7.2ng/l)。蒸気圧も低く、酸、アルカリに対しても安定である。熱分解は>700 (生成しやすい温度は180~400)であり、熱分解も受けにくい。光化学的には、310nm付近の紫外線により緩やかに分解されるため、太陽光の届く土壌表面では重要な分解要因になる。土壌と水との間におけるダイオキシン類の分配は「オクタノール：水分配係数」で推定される(表2)。置換塩素数が少ないと水溶解性がやや高まるものの、いずれの異性体も水への分配度は低い。このような水溶解性は、ダイオキシン類が土壌中に存在する場合、土壌水分よりも土壌粒子の方に分配される可能性の高いことを示している。

表2 ダイオキシン類の各異性体の分配係数

異性体	水への溶解度 (相対比)	オクタノール・水 分配係数	土壌との分配係数 (相対値)
M ₁ CDD	100	9.8×10^3	0.07
D ₂ CDD	30	5.6×10^3	0.04
T ₁ CDD	5	2.8×10^3	0.2
T ₂ CDD (2,3,7,8-T ₂ CDD)	1	1.4×10^3	1
P ₁ CDD	0.2	7.0×10^3	5
H ₁ CDD	0.04	4.2×10^3	30
H ₂ CDD	0.007	1.4×10^3	100
O ₁ CDD	0.001	9.8×10^3	700

2,3,7,8-T₂CDDの水溶解度：0.0072mg/l

また、ダイオキシン類は微生物による好氣的及び嫌氣的な生物的分解も大きくない。置換した塩素の脱塩素反応は、特に塩素数が多くなると起こりにくくなり、OCDDの室内試験では15ヶ月経過後でもほとんど分解が認められていない¹⁾。また、水田土壌中におけるOCDDの経年変化は、PCPが使用禁止になった直後の1977年をピークに漸減しているが、半減に約15年間を要している²⁾。このようにダイオキシン類は水溶解性が低いこと、物理化学的にも生物的にも分解を受けにくいこと等から、一旦、土壌粒子に吸着すると安定状態になり、非常に長期間土壌中に残留することになる。

(2)土書中の汚染実態

廃棄物焼却施設周辺でのダイオキシン類汚染が健康影響の観点から社会問題になり、平成10年度以降、自治体等による大気、降下煤塵等と合わせて土壌中での汚染調査が始まった。土壌汚染は、焼却施設を中心として、施設からの距離や風向等の気象条件によって局所的に存在する可能性も大きい。また、分析に供する試料の採取方法や分析方法等による測定値の変動も予想された。そのため、環境庁では平成10年1月に「ダイオキシン類に係る土壌調査暫定マニュアル」³⁾を策定し、土壌調査の標準化に向けた一般的な技術手

法を示した。マニュアルでは、試料の採取、分析方法、分析結果の表示方法、分析値の精度管理、安全管理が記載されており、その中での特記事項は下記の通りである。

試料採取地点の選定：調査目的に応じて異なるが、10m四方程度の裸地で落ち葉等に覆われていない場所を選定することが望ましい。発生源の特定している場合は、気象データ等を基にした大気拡散シミュレーションモデルを利用し、発生源からの影響を最も受けると予想される場所を求め、その地点を中心にして採取地点を決める。

試料採取方法：原則として5地点混合方式による。深度は基本的に地表面から5cmまでの部分を採取。農用地など人為的な攪拌がある場所は地表面から30cmまでの柱状試料を採取する。

分析試料の調製：風乾後、2mmの篩いを通過させる。

分析方法：試料10～50gを溶媒抽出、各種クリーンアップ、高分解能ガスクロマトグラフ質量分析法(選択イオン検出法)による。分析感度は2, 3, 7, 8-TCDDで0.2pg以下。

平成10年11月、環境庁から「土壤中のダイオキシン類に関する検討会(第一次報告)中間とりまとめ」⁴⁾が出された。この中で、平成10年10月までに公表された、主として自治体や施設組合等が実施した土壤中のダイオキシン類の調査事例を紹介している。これらは、都道府県や政令市からのアンケート調査結果等をまとめたものであり、廃棄物焼却施設周辺では、焼却施設内の冷却水槽脇の土壌で異常に高濃度のダイオキシン類が検出された例もある。それ以外の約300地点については0.001～550pg-TEQ/g、また、農地を含む一般環境的230地点では0.12～370pg-TEQ/gであった。

なお、平成10年度から環境庁では「ダイオキシン対策に対する5カ年計画」に基づく汚染実態把握のため、大気、降下物、底質、水質、土壌、植物(松の針葉)及び動物(ドバト)について全国総合モニタリング調査を実施することになっている。その実施にあたり、試料採取、分析、精度管理等の技術的事項を検討するために試行的なパイロット調査が埼玉県内5地域で行われ、土壌では0.70～140pg-TEQ/gの結果が得られている。汚染源として、異性体パターンからいずれも燃焼由来の寄与が大きいとされた。今後、環境庁のモニタリング調査及び農水省で実施予定の農地土壌調査等によって、さらに詳細な汚染状況が明らかになるものと期待される。

脇本による松山平野での農耕地(水田、畑)、非農耕地(神社等)、底質(河口、沿岸地域)及び山間地の土壌中におけるダイオキシン類の調査結果を表3に示す²⁾。調査地点

表3 松山平野の各種土壌中(表層～5cm)のダイオキシン類濃度(pg/g)
(脇本：1998)

採取土壌	分析点数	PCDDs	PCDFs	TEQ
農耕地土壌(水田・畑)	13	22000～170000	330～22000	4.5～226
非農耕地土壌(神社等)	4	820～13000	70～740	13.2～55.8
都市土壌(公園)	7	550～2900	25～360	1.5～9.4
山間地土壌(森林)	13	100～7100	22～400	0.6～8.3

の中で、農耕地土壌の汚染状況の高いことが分かる。この汚染の由来として、燃烧系のダイオキシン類が近辺の焼却施設から排出され農耕地土壌に直接落下したり、植物表面に付着・蓄積した草・木が土壌中に堆積した、そして過去に土壌処理した塩素系農薬の不純物として含有していたダイオキシン類の長期残留が推測される。農耕地でのダイオキシン類の異性体パターンの経年変化についてみると、農薬由来の1,3,6,8-TCDD、1,3,7,9-TCDD及びOCDDの比率が当該農薬の使用中止に伴い低下しているのに対し、大気経由のダイオキシン類の割合が高まってきている。

さらに、水田土壌中でのダイオキシン類の垂直分布を求めるために、稲の刈り取り後の水田土壌を表層から深度50cmまで調査されている²⁾。その結果、濃度勾配は表層で最も高く、下層に向かって漸減し、25cm以下で検出限界であった。この25cmまでの検出は鋤床までの上下攪乱に伴うダイオキシン類の移動によるもので、鋤床以下の下層への浸透はないことを示している。このように、土壌中での移動は物理的なものであり、人工的な作業がなければ表層土壌にのみ存在することになる。なお、農薬等の有機化学物質の場合から類推すると、ダイオキシン類も土壌中の有機物含量が高い土壌ほど結合が強固であるといえる。

b) 土壌汚染に関するリスク評価と農作物等への影響

次に、土壌を汚染したダイオキシン類による健康や作物栽培・畜産物等への影響が問題になる。土壌中ダイオキシン類の人体への主な暴露経路として、土壌の直接的な経口摂取と皮膚接触、農畜産物に移行した食品としての経口摂取に分けられる。この他に、土壌から飛散・揮散した大気中ダイオキシン類の吸入や、地下水や表流水としての飲料水からの摂取も考えられる。

環境庁ダイオキシンリスク評価検討会ではダイオキシン類の健康リスク評価指針値の設定に当たり、一般的生活環境からの暴露評価を行い、その中で土壌からの摂取量を都市域で0.084pg-TEQ/kg/day、バックグラウンド地域で0.008pg-TEQ/kg/dayと推定している⁵⁾。さらに、環境庁「土壌中のダイオキシン類に関する検討会(第一次報告)中間取りまとめ」において、土壌からの暴露経路を、土壌の接食(消化管を經由)、土壌及び巻き上げられた土壌粒子の皮膚接触、大気中に浮遊する微細な土壌粒子の吸入摂取(肺を經由)、土壌から蒸散した蒸気の吸入摂取とし、それぞれの経路からの暴露量を推定した。そして、「居住地等、一般の人が日常生活を行っている場所で、対策をとるべきダイオキシン類の土壌中濃度(暫定ガイドライン値)を1000pg-TEQ/g」と提案した⁴⁾。また、この値を超えた場合に、掘削、封じ込め、汚染土壌中ダイオキシン類の分解処理、覆土、植栽工、アスファルト等の舗装工等の対策手法も提示されている。なお、農用地土壌については、オランダでは10pg-TEQ/g以上で酪農に不適當、ドイツでは40pg-TEQ/g以上で農用地としての利用制限等、土壌汚染に関する各種の基準が設定されている。我が国ではダイオキシン類の農作物や畜産物への移行程度に関する科学的知見が十分でないとの理由から、農用地土壌のガイドライン値の設定を見送ったが、現在検討中である。

土壌中のダイオキシン類は水難溶性であるため、作物移行性は小さいとされている。農

作物の汚染状況として、ホウレンソウ等の葉菜類で高い傾向があるが、概してその値は小さい。主な汚染経路は、土壌からの根を經由した吸収よりも、排ガスや浮遊粒子の接触による大気経由の表面付着が考えられている。なお、ズッキーニで根からの吸収が、ニンジンで土壌中のダイオキシン類が揮散して葉に取り込まれることが明らかにされており、今後、巻き上げられた土壌粒子からの移行等も含め、作物吸収メカニズムの解明が必要である。また、畜産物については、土壌-牧草等飼料-家畜の系の中でダイオキシン類がどのように移動するか、ほとんど明らかになっていない。脂溶性のダイオキシン類が家畜の脂肪分に蓄積したり、ミルクの汚染も想定される。以上のような農畜産物の安全性の確保を図る上からも、高感度・高精度の超微量分析技術によるダイオキシン類の汚染実態の解明と農林水産物への影響評価に関する研究の蓄積が緊要となっている。

3. 農薬の土壌残留

農薬は粉剤、粒剤、水和剤等の製剤形態で作物体、土壌表面、土壌中、田面水等に使用される。これらの使用農薬中のかなりの高い割合が土壌に落下し、その後、土壌粒子への吸着、土壌水による地下浸透、表流水による流亡があり、この間に農薬が代謝・分解を受けたり、さらに土壌粒子と強固に結合することがある。我が国では、農薬は厳しい登録制度のもとに、新規登録農薬には各種の毒性や環境影響試験等の実施が義務づけられている。現在使用されている農薬数は約520化合物である。

長期残留性が理由となって1971年に使用が禁止されたDDT、BHCに代表される有機塩素系農薬は、現在でも土壌や底質あるいは生物体から検出される(表4)⁶⁾。これらの農薬の95%消失期間は、前者で4~30年、後者で3~10年とされている。我が国では過去の農薬であるが、難分解性であること、脂溶性が高く生物濃縮しやすい特性を具備していたこと、さらにインドや東南アジアでは現在でも使用され地球規模の汚染の拡散が続いていること等の要因から、「農薬」に対するマイナスイメージを払拭できない状況にある。この有機塩素系農薬に纏わる苦い経験をもとに新規農薬の創製が行われ、国内での登録農薬には長期間残留するものはない。

表4 河川土壌中における有機塩素系農薬の検出 (ppb: dry) (神林: 1992)

	α -BHC	β -BHC	デェトリン	<i>p,p'</i> -DDE	<i>p,p'</i> -DDD	DDT
Yu 川(1)底質	—	—	—	0.08	0.10	—
河川内土壌	—	0.05	—	0.25	0.13	0.37
河川外土壌	0.12	0.09	—	3.50	0.33	2.15
Yu 川(2)底質	0.29	0.22	—	1.40	0.57	0.71
河川内土壌	0.12	0.08	—	1.40	0.92	3.00
河川外土壌	—	—	—	0.78	0.11	1.70
Ka 川(1)底質	—	—	—	0.15	0.09	0.08
河川内土壌	—	—	—	0.32	0.69	6.46
河川外土壌	0.11	0.13	—	2.06	0.90	1.27
Ka 川(2)底質	—	0.11	0.53	1.78	1.18	1.71
河川内土壌	0.16	0.07	0.25	1.74	0.54	2.80
河川外土壌	—	0.05	0.09	0.43	0.13	0.63

(1) 土壤残留性に関する規制

土壤残留性に係わる農薬登録要件は、農薬取締法に基づく「農薬の土壤残留試験実施に関する指針」による試験の結果、「土壤中の半減期が1年以内」とされている。これは、土壤中の農薬及びその農薬に由来する活性代謝物が栽培作物に対する薬害の原因になるおそれがないように設定されたものである。試験は農薬の使用法に合わせて、圃場試験として土壤特性の異なる2箇所の畑地あるいは水田で実施する。また、容器内試験では、鉍質土壤と腐植質火山灰土壤のそれぞれ特性の異なる2種類以上の畑地土壤あるいは水田土壤を使用する。容器内試験は、農薬処理後、試験期間を通じて畑地土壤では最大容水量の50～60%、水田土壤では水深1cm以上の湛水状態で、25～30の暗い湿潤条件において実施する。また、分析期間は、土壤中の残留量が添加時濃度の20%程度までに減少する期間、または2分の1に減少後さらに6ヶ月継続した期間とする。このような容器内試験の結果をまとめると、長期間残留する農薬は少なく(表5)⁷⁾、半数が半減期10日以内、約80%が1ヶ月以内となっている。

さらに、環境基本法の中で、人の健康の保護と生活環境保全を目的に土壤の汚染に関する環境基準が有機燐(パラチオン、メチルパラチオン、メチルジメトン、EPN)、チウラム、シマジン、チオベンカルブの4項目について設定され、汚染状況によってその土壤を各種の封じ込め方法により対策を講じることになっている。

表5 農薬の土壤中における半減期(日)
(金沢：1992)

農薬名	畑土壤		水田土壤	
	鉍質	火山灰	鉍質	火山灰
ダイアジン	7-14	7-14	3-7	3-7
ジメト	30-60	30-60	14-30	7-30
フェニトチオン	12-29	13-16	7-14	7-14
マラソン	0-1	0-1	0-2	0-2
加ナリル	14-21	14-21	14-21	14-21
BPMC	7-14	7-14	56-80	59-114
加ナツブ	0-3	0-3	0-3	0-3
アリミ	0-16	1-3	1-3	3-5
トリフルリン	30-50	30-50	10-15	10-15
TPN	3-7	3-7	0-1	0-1

(2) 土壤残留の実態

土壤に落下した農薬は、その直後に蒸散作用によって土壤表面から大気へ拡散する。ついで、水系への流亡や土壤表面での光分解、さらに土壤水を媒体として土壤中へ浸透拡散したり土壤粒子に吸着される。なお、農薬は土壤の比較的表層で吸着し保持される。ここまでは使用後数時間から数日間での急激な減少といえる。次の段階は、初期と比較して緩慢に進行する分解過程であり加水分解、土壤微生物による生物分解を受ける。

農薬の土壤残留は、農薬のもつ物理化学的特性(化学構造、水溶解性、土壤吸着性など)、土壤条件(有機物含量、土壤pH、水分含量、土壤微生物活性など)のほかにも、気候や

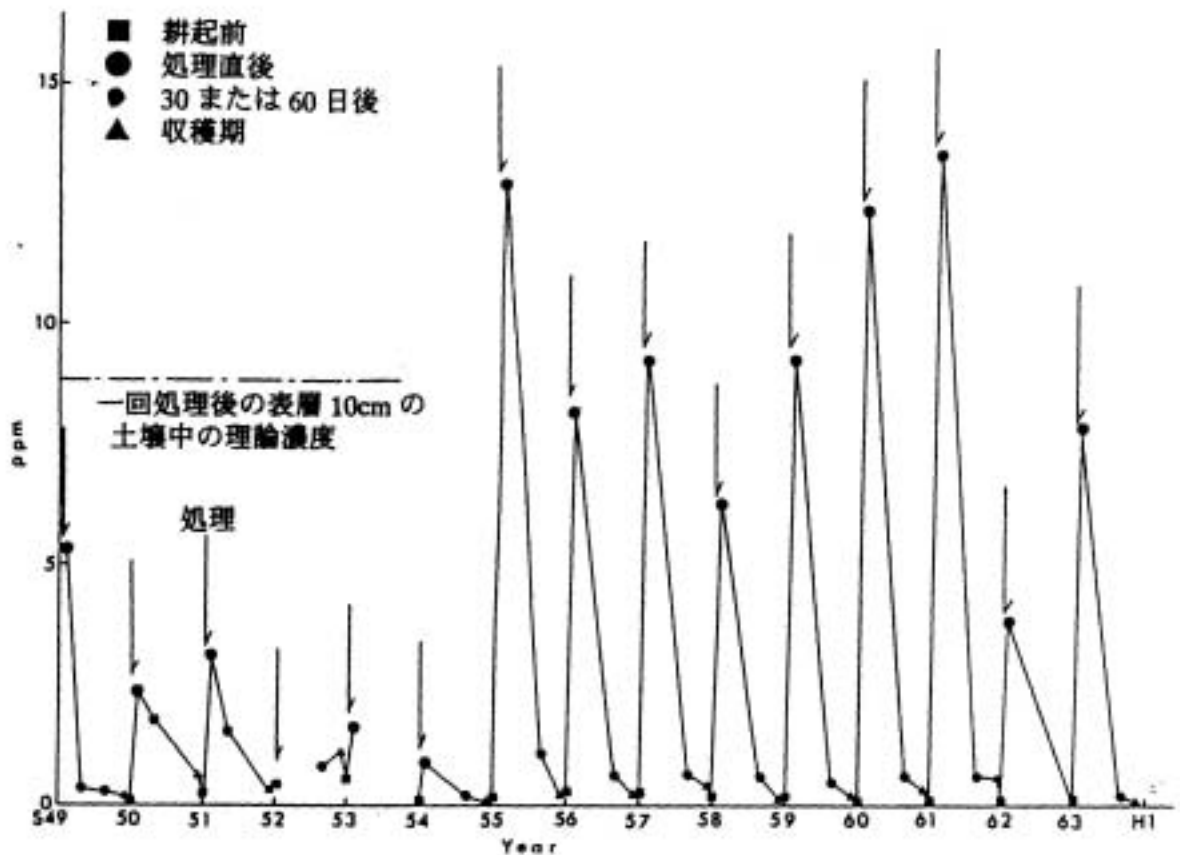


図2 除草剤CNPの水田土壌中の残留量の推移（財）日本植物調節剤研究協会：1990

農薬の処理方法等によっても大きく異なる。農薬の化学構造からみると次のような特徴がある。有機塩素系化合物は難分解性で、パラコートやジクワットのような第4級アンモニウム塩の2価陽イオンは粘土粒子に強力に結合して長期間残留すること、有機リン系化合物や茎葉散布殺菌剤では消失が速やかであるのに対し、土壌処理除草剤では分解が遅いという傾向がある。また、土壌環境条件としては、分解微生物の活性が最高に発揮される環境として、酸化あるいは嫌気的かが大きな要因となる。さらに、土壌微生物は有機物含量の高い土壌ほど生育が活発になることから、そのような土壌中では消失速度が速くなるのが一般的である。

農薬を永年使用した場合(10年以上の連続使用)、水田土壌中の残留量の消長が調査されている。図2は除草剤CNPの場合を示したものであるが、他の供試農薬でも同様の傾向が認められる(パラコートを除く)。すなわち、処理直後に処理量に相当する理論値近くの最高値を示し、その後、指数関数的に減少して翌年の耕起前には前年のレベルまで低下するパターンであり、農薬の長期連用による蓄積はなかった⁸⁾。なお、化学構造の同じかあるいは類似する農薬を連用した土壌では、使用前歴のない土壌での分解に要する時間と比較して分解時間が極端に短縮されることがある。このことは、土壌中に農薬分解菌が集積して、分解活性が高まったこと(enhancement)を示しており、チオカーバメート、カーバメート、フェノキシ系化合物で広く見られる現象である。このような事例は、圃場における農薬効果の低下に繋がるものであり、新たに分解菌の活性を抑制するような化学物質の開発も試みられている。

(3)農薬の土壌残留問題に関する今後の研究の取り組み

農薬は、健康や環境への安全性を確保するために、市場流通している化学合成物質の中で最も厳しい試験が義務づけられている。特に、毒性に関連するものとしては、ラットあるいはマウスを供試生物として、急性、慢性、発ガン性、繁殖毒性等18項目の試験が行われている。そして、一日当たりの摂取許容量(ADI: acceptable daily intake)が算出され、これを基に残留農薬基準や農薬使用基準が設定されている。最近問題になっている内分泌かく乱作用(環境ホルモン)に関連する試験としては、繁殖試験が相当する。この試験は、生殖細胞の障害、変異誘発、奇形発現、妊娠母体の障害、新生仔発育障害、保育の障害等、生殖細胞の形成から次世代への影響まで広く生殖過程全般を検索する試験である。しかし、これまで実施されてきた繁殖試験では、内分泌かく乱作用という超微量での毒性影響という観点で十分でなかったとの反省があり、現在試験の見直しが検討されている。このことは、従来の試験結果から設定された残留基準や使用基準の是非にも繋がる。環境庁「環境ホルモン戦略計画SPEED'98」⁹⁾では、内分泌かく乱作用が疑われる化学物質として67化合物(群)をリストアップし、その中に40化合物(現在の登録農薬20化合物)の農薬が含まれている。土壌に使用する除草剤もリストアップされており、これらに内分泌かく乱作用があるとすれば、これまで以上に微量レベルでの土壌中における動態の解析が必要になる。この場合、農薬の土壌残留量の把握と、同時に、土壌中での分解経路、分解代謝物の構造等についての研究が重要である。

一方、農薬の生物影響については、現在、水生生物への影響として魚(コイ)と甲殻類(ミジンコ)を必須条件とし、さらに必要に応じてミツバチ及びカイコに対する影響試験を実施することになっている。生態系を構成するわずかな生物のみを対象にしているのあって、生態影響を評価しているとはいえない。このため、環境庁では「21世紀における我が国の農薬生態影響評価の方向について-中間報告」¹¹⁾をとりまとめ、評価対象の範囲を広げるべきとの見解を提示した。土壌環境で関係する部分として、窒素無機化試験や炭素無機化試験等による土壌微生物毒性試験、ミミズに対する繁殖毒性、濃縮性、急性毒性試験等が提案されている。これらの生態系に与える影響の評価には、各種の生物に対する毒性検定と、土壌中での農薬の暴露量や暴露経路の把握が必要になってくる。

4. おわりに

環境中における有機化学物質の汚染実態調査の多くは、化学物質が最終的に水系に集まること、水生生物ほどその影響の発現が明確に症状として捉えられることから、河川水や底質で実施されてきている。そのため、土壌残留性を解析できるほど十分な情報があるものは、長期間安定な有機塩素系の農薬やダイオキシン類等に限定されている。内分泌かく乱作用の疑われる有機化学物質については、その毒性の発現機構、用量-反応性との関係を解明するとともに、土壌環境中の生物に及ぼす暴露量を推定することが求められる。

過去に、土壌粒子に結合して不活性化すると考えられていた除草剤パラコートによる作物薬害が報告された。このことは、土壌中に存在する化学物質が、土壌生物や作物栽培を通じたヒトへの健康に影響を及ぼす可能性があることを示唆している。一方、土壌に化学

物質が残留していても、その土壌中の有機物含量や存在形態等によって、生物への作用性は異なる。土壌と有機化学物質との関係を質的・量的レベルで解析しておくことが重要であろう。

<参考文献>

- (1) Ozaio, C. E. *et al.*: *Chemosphere* 25, 1469 ~ 1474 (1992)
- (2) 脇本忠明：第23回日本環境化学会講演会予稿集，15 ~ 19 (1998)
- (3) 環境庁：ダイオキシン類に係わる土壌調査暫定マニュアル，pp. 57 (1998)
- (4) 環境庁：土壌中のダイオキシン類に関する検討会(第一次報告)中間取りまとめ，pp. 59 (1998)
- (5) 環境庁：ダイオキシンリスク評価検討会報告書，pp. 182 (1997)
- (6) 神林純二ら：京都府衛生公害研究所年報，37，88 ~ 94 (1992)
- (7) 金沢純：農薬の環境科学(合同出版)，pp. 310 (1992)
- (8) (財)日本植物調節剤研究協会：植調，24(11)，388 ~ 402 (1990)
- (9) 環境庁：外因性内分泌撹乱化学物質問題への環境庁の対応方針について- 環境ホルモン戦略計画SPEED '98-，pp. 24 (1998)

有機化学物質による汚染土壌の修復について

農業環境技術研究所

宮下 清貴

・環境修復

化学物質による環境汚染は、環境問題の中でも最大の課題の一つである。PCBやDDTは生態系で生物濃縮を重ね、一部の水産生物に大きな影響を及ぼしている。トリクロロエチレンやテトラクロロエチレンによる地下水汚染、軽重油や石油等の油類、PCBを初めとした工業に由来する種々の合成化学物質による土壌汚染は、先進工業国共通の問題である。不適切な使用による農薬の環境汚染も、一部の開発途上国を中心に深刻な問題となっている。また、ダイオキシンを初めとした一連の外因性内分泌かく乱物質(環境ホルモン)は、化学物質が従来の毒性とは異なる、全く新しい形で生物の生存を脅かしかねないという事実を明らかにした。

地球上の生物圏では、有機物は分解され元素は循環している。生物の生存環境としての生物圏が安定的に維持されるためには、合成化学物質は分解され元素に戻る必要がある。分解しにくい有機化学物質で汚染した環境、高濃度に汚染したために分解しない環境では、汚染有機化学物質を人為的に分解させ、環境をもとの姿に戻してやる必要がある。これがレメディエーション(remediation、環境修復)である。米国や一部のヨーロッパ諸国では環境修復技術の開発が盛んで、実用化例も多い。

1. 環境修復に対する各国の温度差

環境の時代といわれる21世紀を前に、環境産業は急成長が予測され、企業の環境に対する関心は高い。しかし、環境修復技術といっても、日本では一般に耳にすることはまれである。一般に、先進国でも国によって取り組みの温度差はかなり大きい。こうした格差は、環境問題に対する日本の取り組みの遅れをそのまま反映していると言えるが、その背景には以下のような点が考えられる。

日本では土地に対する私有の意識が強く、逆に公共的性格に対する認識は薄い。また、情報公開が進んでおらず、そのため汚染の実態もなかなか明らかにならない。“汚染”というレッテルを恐れ公表せずに環境修復を行っている例もあると考えられる。

日本の自然条件からくる、土壌や水に対する意識の違いも大きい。日本は狭い国土だが土壌は山に豊富にあり、都市では建築残土の捨て場に困っている。雨が多いため、汚染物質も洗われて川に出て、その川もすぐに海に達する。それに対し、例えばヨーロッパでも環境に対する意識が量も高いオランダは、人間の力で干拓により国土を作り出し、街の石畳の石も国外に頼らざるをえず、水は上流のスイスからドイツを経由してはるばると流れてくる。米国は広い国土を持っているが、小雨地帯が多く、内陸から海まではとてつもなく遠い。五大湖がいくら閉鎖系でも、汚染物質は流れ出すことはない。こう

した国々と日本とでは、土壌や水に対する感覚は自ずと異なる。しかしこうした背景は、日本には環境汚染が少ないことを決して意味するものではない。

2. 代表的な汚染物質

汚染が問題となっており、環境修復の対象として考えられている代表的な汚染化学物質には、以下のようなものがある。

- ・ PCB, ダイオキシン類。PCBは人間が合成した化合物であるのに対し、ダイオキシンは意図して作られるものではない。しかし、カネミ油症事件に見られるようにPCBはダイオキシンを含むことが多い。また、PCBの中でもコプラナ-PCBとよばれる一群のPCBは、ダイオキシン同様、強い毒性を持つ。
- ・ 石油類。タンカー事故による海洋汚染は有名だが、陸上でも石油類による汚染は多い。中でも多環芳香族化合物は分解しにくい。
- ・ トリクロロエチレン、テトラクロロエチレン。溶剤として広く使われており、地下水汚染は広範に広まっている。
- ・ 農薬。限度を無視して使われたところや、ダイオキシン等の不純物を含む農薬を使用した国などの汚染は深刻である。
- ・ メチルブチルエーテル(MTBE)。ガソリンの添加剤として米国で使われた。汚染したために地下水が使えなくなった地域がカリフォルニア州では広がっている。
- ・ TNT, ニトロ芳香族化合物。爆発物由来で、軍事基地での汚染が米国では問題となっている。米国では軍事基地や関係施設の汚染が環境修復技術の開発の大きな原動力の一つとなっているように見受けられる。

3. 環境修復技術

米国では汚染土壌の修復を義務づけるスーパーファンド法が1980年に制定され、それ以来汚染土壌の処理技術が開発されてきた。初期には単に汚染土壌を掘り出して他の場所に移動、隔離させたり、上に覆いをかぶせて遮断する方法がとられた。いわば臭いモノにふたをする方法であったが、その後修復すべきサイト、土壌が増えるにつれ、より完全な浄化方法で、コスト的にも安い方法(革新的技術)を開発する努力が続けられている。

米国環境保護庁(EPA)は、以下の技術を革新的技術としてあげている。

- ・ 土壌からの蒸気抽出(減圧抽出)(Soil Vapor Extraction)：土壌に抽出用の井戸を掘り、減圧抽出により汚染している揮発物質を回収する。汚染物質は回収後、施設で処理される。この方法は、汚染土壌を掘り起こす必要がない。
- ・ 土壌への空気の注入散布(Air Sparging)：土壌の汚染部位の下部に空気を注入し、できた泡により汚染物を捉え、可溶化して地上まで移動させる。そこで回収し(Soil Vapor Extraction System)、処理する。
- ・ バイオレメディエーション(Bioremediation)：微生物により汚染物質を無害な物質にまで分解する。

- ・熱処理・熱による分離(Thermal Desorption)：比較的低温に土壌を加熱し、沸点の低い汚染物質を気化し、回収して処理する。
- ・土壌洗浄(Soil Washing)：掘り出した汚染土壌を水等で洗浄し、汚染物質を除去する。
- ・化学的脱ハロゲン処理(Cheical Dehalogenation)：ハロゲン(塩素、臭素)を含む汚染物質を化学的に脱ハロゲン処理し、より毒性の低い物質に変換する。
- ・溶剤抽出(Solvent Extraction)：石油類の汚染土壌に適用される。汚染物質を溶剤で抽出、分離し、その後処理すべき汚染土壌の容積を減らす。
- ・原位置土壌フラッシング(In Situ Soil Flushing)：下層の汚染土壌に溶液を注入して洗浄し、汚染物質を抽出可能な部位まで移動させる。

以下土壌の環境修復(Soil remediation)技術のうち、最初に物理的、化学的方法について、後半で生物を使った環境修復(バイオレメディエーション)について紹介する。

・物理的・化学的処理技術

化学的脱ハロゲン処理

PCBやダイオキシンのようなハロゲン化芳香族化合物の処理法。汚染土壌を化学薬品とともに加熱混合し、脱ハロゲン化して毒性の低い物質に変換する。このうち、グリコール酸脱ハロゲン化(Glycolate Dehalogenation)といわれる方法では、汚染土壌をAPEG(A：アルカリ金属水酸化物 KOH, NaOH, PEG：ポリエチレングリコール)とよばれる試薬で加熱する。ポリエチレングリコール酸カリウムが最も一般的に用いられる。加熱によりアルカリ金属水酸化物はハロゲンと反応し、毒性のない塩になる。そして、PEGがPCB中の塩素のあった部位に結合し、その結果毒性のより弱い化合物となる。この方法ではまず汚染土壌を掘り出し、残渣等の粗大混入物を取り除く。掘り出した土壌をAPEG溶液とリアクターの中で混和し、4時間加熱反応させる。加熱中に発生した蒸気は集められ、コンデンサで水とガス状汚染物質に分解する。処理後の土壌-APEG混合物は分離装置に送られ、APEG試薬は分離されて再利用される。土壌の方は塩(毒性はない)、部分的に脱ハロゲンされたより毒性の弱い化合物を含む。この土壌は洗浄工程に送られ、水を加えて洗浄する。その後脱水装置に送られ、水と分離される。分離した水からは汚染物が除去される。土壌は汚染物濃度を測定し、基準値に達していない場合は再度処理されたり、安全な埋め立てで処理される。土壌がクリーンな場合は、もとのサイトに戻される。

原位置土壌フラッシング(In Situ Soil Flushing)

この方法は、洗浄溶液を現場の土壌中に注入して汚染物質を洗い流す方法であり、シルトや粘土含量の低い土壌に対してより有効である。土壌を掘り起こす必要はなく、洗浄溶液の注入用及び抽出用の井戸を掘削する。土壌フラッシングでは土壌はその場で洗浄し、洗浄液を回収して処理されるのに対し、土壌洗浄(Soil Washing)では汚染土壌を掘り出し、地表で装置を使って処理する。フラッシングに用いるのは、水か、水に酸(低pH)、塩基(高pH)、界面活性剤などを加えたものである。酸は重金属、

塩基はフェノール，界面活性剤は油の除去に有効である。

土壌洗浄(Soil Washing)

液体(水，時には化学物質が付加される)を用い，土壌を物理的に洗浄する方法。有害の汚染物質を除去し，濃縮する。有害な汚染物質はシルトや粘土に吸着し，シルトや粘土は団粒などの高次構造を作っている。土壌洗浄は土壌構造を破壊し，シルトや粘土から汚染物質を遊離させる。洗浄終了後，砂などの汚染されていない画分(容量的には大きい)はそのまま他の用途に利用できる。まだ汚染が残っているシルトや粘土の画分(容量は少ない)は，さらにバイオレメディエーションなどで処理される。その場合も，汚染土壌の容量は激減しているため，コストは安い。色々なサイトに適用可能である。

土壌蒸気抽出(Soil Vapor Extratction)

SVEと呼ばれているこの方法は，スーパーファンド法に基づき修復が行われているサイトで最も良く利用されているという。方法は比較的簡単で，蒸気抽出(vapor extraction)という名の通り，土壌から汚染物質を気体で抽出する。従って，この方法は，トリクロロエチレン，BTEX(ベンゼン，トルエン，エチルベンゼン，キシレン)等の気化しやすい物質の除去に用いられる。即ち，揮発性有機物質(VOCs)である。地下の減圧井戸を通して，汚染物質は蒸気や気体として地上に引っ張り上げられる。減圧(真空)井戸とともに，空気注入用の井戸が掘られることが多い。これにより土壌中の空気の流れが増し，汚染物質の除去を早めることができる。微生物分解が可能な汚染物質に対しては，空気を注入することにより，バイオレメディエーションを促進させることにもなる。

溶剤抽出(Solvent Extratction)

溶剤を用い，有害な有機化学物質を分離する方法。この反応は，有害物質を破壊(分解)するものではないが，汚染物質は濃縮される結果，リサイクルや他の方法による処理が容易になる。土壌を抽出装置で処理する結果，3つの相(溶剤，固体，それに水)に分けられる。複合汚染の場合，汚染物質の種類によりどの相に入ってくるかが異なる。例えばPCBは溶剤に抽出されるのに対し，重金属は水相や固相に残る。それぞれの相は個別に処理される。

PCB，揮発性有機物，ハロゲン化溶剤，石油類等の汚染除去に使われる。溶剤としては，液体二酸化炭素，プロパン，ブタン，トリエチルアミン，アセトン，メタノール，ヘキサン，ジメチルエーテル等が使われる。

蒸気注入と電気処理(加熱)

汚染物質は，土壌中で土壌粒子に吸着している場合が多い。この方法は，汚染サイトの外周部に蒸気を注入し，土壌に吸着している揮発性物質を揮発させ，中央に設置した減圧抽出井戸に送り込む。透過性の悪い，粘土片や微細な土砂の層や，沈殿物に対しては，電氣的に加熱し，汚染物質を気化させ，蒸気を注入した層に送り込む。こうして汚染物質を蒸気とともに，抜き取り用の井戸へ物理的に移動させ，急速に除去する

この方法には以下の利点がある。揮発性，非揮発性物質ともに，効率的に除去できる，地下水位より上層，下層とも処理可能である。プロセスの制御が容易でリスクが少ない。比較的安価である(フルスケールの操業の牧舎・立方ヤード(約0.76m³)yd当たり\$35という試算がある)，処理時間が短いため，土壌が短時間で再利用できるようになる，といった点があげられる。

この方法の特徴は熱処理であり，加熱による効果は以下のものがある。15 から100 に加熱すると，ほとんどの化学物質で揮発性は10-20倍増加する。その結果，平衡は気相に大きく偏り，移動しやすくなる。混合した2種類の液体の沸点はそれぞれの沸点よりも常に低いため，分離相の汚染物質が優先的に沸騰する。土壌粒子への吸着が大幅に減少する(Kdで5-500倍)。液相，気相とも，分散係数が増加する(20-100%)。化学物質の溶解度が増加する結果，ポンプアップによる除去が加速される(15 から100 に温度が上昇すると溶解度が50-100%増加する)。粘性の高い液体(原油，クレオソートコールタール等)の粘性が大幅に減少する。

トリクロロエチレンは，以下のように容易に分解される。



．バイオレメディエーション

バイオレメディエーションは自然界に元々存在する現象を利用している点において，他の環境修復手法と大きく異なる。即ち，自然界に存在する微生物(細菌，酵母，糸状菌)を使い，汚染物質を分解して無毒あるいはより毒性の低い物質に変換するのがバイオレメディエーションである。バイオレメディエーションが進行するためには，分解微生物は活性包帯になくてはならない。バイオレメディエーション技術は，汚染物質を最大限に分解するために，分解菌にとって最適の条件を作り出し，菌の生育と個体群数の増加を助ける。具体的なバイオレメディエーション技術はいくつかの要因で決まってくる。即ち存在する微生物のタイプ，汚染サイトの状態，汚染化学物質の質と量である。異なる微生物は異なる物質を分解し，異なった条件下で生存する。土着の微生物とは汚染サイトにすでに存在している微生物であり，これらの微生物の増殖を助けるために，適正な土壌温度，酸素，養分を供給することが必要である。

もし，目的の汚染物質を分解する菌がそのサイトにいない場合には，他の場所で分離した，効果が確認されている分解菌を外から添加する(Bio-augmentation)。その場合も土壌条件を，添加した微生物にとって最適になるようにすることが必要である。

1. 微生物の有機化学物質分解機構

ここでは，農薬の分解を例に見てみることにする。原油，軽重油，ガソリン等のオイル，TNT火薬などのニトロ芳香族化合物，PCB，塩化フェノール，塩化脂肪族化合物等々，汚染が問題となっているその他の有機化学物質の微生物分解も，その機構は，農薬分解と基本的には共通している点が多い。

施用された農薬は，環境中で微生物により分解される。農薬は，構造的に多様な化合物である。第二次世界大戦中，DDT(1,1,1-trichloro-bis-(4-chlorophenyl)ethane(殺虫剤)と，2,4-D(2,4-dichlorophenoxyacetic acid)(除草剤)が使われ，その後，有機リンやカーバメイト系殺虫剤，トリアジンや置換尿素除草剤，さらにピレスロイド殺虫剤やスルフォニルウレア除草剤が出回るようになった。非選択性で環境中に長時間残存し，高濃度での使用が必要な農薬から，より少ない散布回数で効果があり，標的生物以外の他の生物に対する害の少ない農薬へと移行している。DDTやディルドリンなど，環境中に長期間残存する農薬は，世界の市場からはほとんど姿を消したのちも，水に不溶性で土壌に

吸着するため微生物による分解を受けにくく、高度に塩素置換されているため、酵素反応に対しても抵抗性である。生態系の生物濃縮により、食物連鎖の高位の生物に害を及ぼすことがある。

分解微生物は真性細菌、古細菌、真核微生物のいずれにも存在するし、生理的にも好気性、嫌気性(発酵性、メタン生成、硫酸還元)、化学合成独立栄養、光合成といった広い範囲の微生物にわたっている。単純な化学物質は1つの微生物だけで完全分解されることもあるが、複雑な物質は複数の微生物で段階的に分解され、完全分解される。好氣的分解と嫌氣的分解が連続的に起こり、その結果分解が加速されることがある。

土壌は不均一なため、分解微生物も不均一に存在している。土壌中の細菌のほとんどは土壌粒子表面の薄い水の点の中に存在しており、土壌中の条件が不均一で急速に変化する結果、土壌中の分解菌の分布や分解活性も不均一になる。より大きなスケールで土壌中の分解を見ると、乾燥条件、気温等が大きく影響してくる。

有機化学物質の微生物分解には、酸化反応、還元反応、加水分解反応など、様々な生物反応が関与している。

a)酸化反応

酸化反応の一つである水酸化反応は、水酸基が標的の化学物質に挿入される反応で、水酸基の酸素は酸素ガス(O₂)に由来する。この反応は、モノオキシゲナーゼ、ジオキシゲナーゼ、ラッカーゼにより触媒される。酸素は呼吸の最終電子受容体であるばかりでなく、反応を構成する要素であるため、この反応は好氣的条件下で起こる。反応の結果、標的の化学物質は水酸基やカルボキシル基を持ち、もとの化合物よりも極性が増して水溶性になる。その結果、より生分解を受けやすく、また、腐植に吸着して不動化されやすくもなる。水酸化反応は、脂肪族、芳香族化合物の好氣的分解の最初の反応としてよく起こる。除草剤メトラクロール(metolachlor)のアルキル基を水酸化する放線菌、殺虫剤カルボフラン(carbofuran)のベンゼン核を攻撃して5-ヒドロキシカルボフランに変換する *Rhodococcus* 株、PCPを変換してテトラクロロヒドラキノン(tetrachloro-*para*-hydroquinone)に変換する *Flavobacterium* 株等が研究されている。木材腐朽菌にはこの反応を触媒するものが多く、*Phanerochaete chrysosporium* は2,4-D, 2,4,5-Tをはじめ、多くの化合物を水酸化する。水酸化反応は、芳香族化合物の好氣的分解では必須の反応である。

多くの農薬は、アルキル基が窒素や酸素原子を介して残りの分子に結合している構造をとっている。これらの化合物の分解では、酸化的にアルキル基を取り除く反応で分解が開始されることが多い。脱アルキル化反応はモノオキシゲナーゼやジオキシゲナーゼで触媒され、酸素とNADPHを必要とする。除草剤トリアジン(*s*-triazine)の分解では、脱アルキル化が最初に起きる。除草剤2,4-Dの分解では、 α -ケトグルタル酸依存のジオキシゲナーゼによるアルキルエーテル基の除去が最初の反応である。メトラクロールの分解では、メトキシ基の水酸化の後に脱メチル化が起きる。

炭素の二重結合に酸素原子を挿入する反応でエポキシ化合物が生成すると、もとの化合物よりも危険性が増す。ヘプタクロール(heptachlor)は、*Rhizopus*, *Fusarium*, *Bacillus*, *Streptomyces*等の微生物により、ヘプタクロールエポキシドに変換される。イオウ酸化反応は、二価のイオウ原子をスルフォキサイド(sulfoxide)や、スルホン(sulfone)に酸化する反応である。多くの農薬がR-S-R'の構造をして

おり、こうした化合物の分解ではイオウ酸化が分解反応で起こる。この反応は土壤中で化学的にも起こると考えられている。

b)還元反応

嫌氣的条件下では、電子を化学物質に付加する反応が起きる。芳香族化合物の嫌氣的分解では、二重結合を飽和させる反応が重要である。パラチオンの分解では、ニトロ基はアミノ基に変換される。還元的脱ハロゲン反応はハロゲン化合物の変換において重要である。DDT、ディルドリン、ヘプタクロール、リンデン(lindane)、メトキシクロール(methoxychlor)等の農薬が、嫌氣的条件下で脱ハロゲンを受ける。世界的に汚染が問題になっているPCB、PCP、PCE(tetrachloroethylene)なども同様である。しかし、脱ハロゲン反応に關与する嫌氣性細菌に関しては、ほとんどわかっていない。

c)加水分解

加水分解反応も分解において重要であるが、この場合の付加されるOH基はO₂ではなく水に由来する。電子欠乏原子や、求核反応の標的となる原子を化学結合に含む分子は、土壤微生物により加水分解を受けやすい。パラチオンやカルボフランのような有機リンやメチルカーバメイト系殺虫剤、リヌロン(linuron)のようなフェニルウレア系除草剤はその例である。カルボフラン(carbofuran)を分解するメタン生成細菌は、最初にカーバメイト結合を加水分解する。

d)コメタボリズムによる有機化学物質の分解

分解酵素の基質特異性が広いために、本来の基質を分解するときに汚染物質を同時に分解するのがコメタボリズムである。この場合、汚染物質を分解するためには本来の基質が同時に存在することが必要である、分解微生物は汚染物質を基質として利用することはない、の2つの点で、微生物が標的化合物をエネルギー源として利用する完全分解(異化代謝)とは異なる。

コメタボリズムで分解される汚染物質の代表は、PCBとトリクロロエチレン(TCE)である。PCB分解菌はピフェニル分解菌であり、PCBはピフェニルを分解する際のコメタボリズムとして分解される。従って、PCBを分解させるためにはピフェニルを同時に加える必要がある。ピフェニル分解菌によりPCBはクロロ安息香にまで分解され、その後はクロロ安息香酸分解菌により完全分解される。クロロ安息香酸分解は異化代謝である。TCEはメタン酸化菌、トルエン分解菌、フェノール分解菌、アンモニア酸化細菌により、これらの物質に対するオキシゲナーゼの作用で分解されることがわかっている。この場合も、TCEでは分解酵素の生産は誘導されないし、分解菌のTCEでの生育も不可能である。分解を起こすためには、メタン、トルエン、アンモニア等をTCEの汚染現場で添加することが必要である。農薬の中にもコメタボリズムで分解されるものが少なくない。このように、コメタボリズムによる分解では、本来の基質の添加が必事であり、また、本来の基質を添加した場合でも、本来の基質とTCEの間で酵素オキシゲナーゼをめぐって競合が起こる。こうした点はコメタボリズムによる分解の弱点であり、克服するための努力が続けられている。

2. 微生物の分解能は酵素の基質特異性の広さと微生物の遺伝的柔軟性による

PCB等の多環芳香族塩素化合物は、それぞれの分解菌によりクロロ安息香酸(CBA)にまで分解され、ついでクロロ安息香酸分解菌により完全分解される。安息香酸(BA)を資化できる土壤細菌は多

いが、それらの細菌のジオキシゲナーゼは基質特異性が狭く、塩素置換した異性体のうち、通常は3-CBAのみを変換できる。我々が土壌から分離した*Burkholderia andropogonis* NK8は、3-CBAとともに、4-CBAも分解することができた。NK8株の安息香酸ジオキシゲナーゼ遺伝子の構造を解析し、既知の遺伝子のそれと比較した結果、互いに高い相同性(約60%)を示すジオキシゲナーゼが、異なる基質特異性を示すこと、また、一部の遺伝子は特定のクロロ安息香酸を分解するために配列、構成とも変化(分化)している姿が明らかとなった。

古くから使われている農薬である2,4-Dの分解では、 β -ケトグルタルサン依存のジオキシゲナーゼによりアルキルエーテル基が除去され、3,5-ジクロロカテコールが生成する反応が知られている。最もよく研究されている分解菌は*Alcaligenes eutrophus* JMP134(プラスミドpJP4)であるが、それ以外にも世界各地から分解菌(purple bacterialに属する)が分離され、部分配列の比較から遺伝子の系統関係が推測されている。我々が解析した*Variovorax paradoxus* TVI株は、特異な遺伝子構成を示しており、分解遺伝子群は一つのセットとして菌の間を移動しているのではなく、分解菌が必要な分解遺伝子を個々バラバラに獲得していることを示している。

分解菌の分解能獲得については、以下のようにまとめられるであろう。

- ・様々な有機化学物質に対する分解菌が分離されているが、分解遺伝子は限られた祖先(の遺伝子)から派生してきている。
- ・分解菌は分解に必要な遺伝子群を複数のソースから寄せ集め、分解能を獲得している。これは分解遺伝子のリクルートと呼ばれる。この過程には、微生物間の遺伝子の伝達と、伝達された後の遺伝子の再編成という、ゲノムの柔軟性が関与している。
- ・微生物が人工の化学物質を分解する能力は、分解酵素の基質特異性の広さに大きく依存している。
- ・複雑な難分解性化合物に対する微生物の分解能は十分ではない。

土壌微生物は短期間のうちに新しい代謝能を獲得するという"すばらしい能力"をもっているが、このことは、"土壌中で微生物が化学物質の影書を受けている" ということの裏返しでもある。

3. バイオレメディエーション技術

汚染のサイトに分解菌が存在する。あるいは分解菌を外から接種する、これだけでは汚染環境の修復はできない。(存在する)分解微生物を活性化し、分解能を発現させるために微生物の栄養源を加えたり、土木的な処理をくわえるのが、バイオレメディエーションである。この点は一般に誤解されがちである。

バイオレメディエーションは、in situとex situの2つに大きく分けられる。in situ バイオレメディエーションは汚染土壌や地下水をその場(原位置)で修復する技術であり、ex situ バイオレメディエーションは汚染土壌を掘り出して処理する。

a) 原位置処理法(In Situ Bioremediation)

汚染土壌を掘り出す必要がないため、ex-situ remediationに比べてコストは安く、汚染物質の拡散も少ない。一度に大量の土壌を処理することが可能である。しかし、ex-situ remediationに比べると処理に時間がかかる。透水性の良い(圧密されていない)土壌に対して有効である。

好気性の原位置処理法では、酸素を供給することが重要である。酸素の供給方法には、地下水面上の土壌にポンプで空気を送り込むbioventingと、過酸化水素水の形で送り込む方法がある。粘土や層位が重なった土壌では、酸素が均一に行き渡らないため、処理がうまく働かない。原位置処理法では、分解しにくい汚染物質の場合、目的の値に達するまでに、数年を要することがある。

Bioventingでは、空気の注入井戸を通して空気を送り込む。地形に応じて、井戸の数、打ち込む場所等が決まってくる。窒素やリン等の微生物の栄養物も同時に注入井戸から供給される。過酸化水素を注入する方法は、化学物質(過酸化水素)を土壌に添加することになるため、地下水がすでに汚染された地域でのみ行われる。汚染している箇所が浅い場合にはパイプやスプリンクラーが、深い場合には注入井戸が使われる。

b) Ex Situ Bioremediation

この方法は原位置処理法に比べると短時間で処理でき、広い範囲の汚染物質や土壌タイプに適応できる。しかし、バイオレメディエーション処理の前後に汚染土壌を掘り出す必要がある。Ex situ bioremediationにはスラリーフェーズバイオレメディエーションとソリッドフェーズバイオレメディエーションがある。

スラリーフェーズバイオレメディエーションでは、汚染土壌はバイオリクター(タンク)の中で、水とその他の添加物とともに混合され、土壌中の分解菌が汚染物質と接触を保ち続けるように処理される。養分と酸素が供給され、分解菌が機能するのに最適な条件が保たれる。処理の終了後、水が取り除かれる。取り除いた水に汚染物質が含まれる場合には、処理される。スラリーフェーズバイオレメディエーションは他の処理法に比べて短時間で済み、とりわけ汚染している粘土層の処理に有効である。

ソリッドフェーズバイオレメディエーションは、汚染土壌を地上部に設けた処理エリアでおこなう。汚染物質がエリア外に漏れないように、排水を集めるシステムが必要である。分解を促進するために、湿度、温度、養分、酸素等が管理される。このシステムは運転や維持が比較的容易だが、広いスペースを必要とし、スラリーフェーズ処理よりも時間がかかる。ソリッドフェーズ処理にはランドファーミング、バイオパイル、それにコンポスティングがある。

ランドファーミングでは、汚染土壌を敷物の上に広げる。これは、滲出液や液体の汚染物を集めるためである。土壌は定期的に攪拌(耕起)され空気が送り込まれる。水分や養分も制御される。養分、酸素、温度が適切に制御されなければ、処理の時間は長くなる。この方法では、汚染物質の揮散も起こる。このため、閉鎖した施設で行うことで、揮散を最小限に引き止めることができる。

土壌、バイオパイルは、汚染土壌を空気のパイプ等の上に、数メートルの高さに積み上げる(パイル)。パイプから真空ポンプで引くことでパイルの中の通気が行われる。水分や養分は制御される。揮発性の汚染物質はパイプで空気とともに引かれるため、制御が容易である。

コンポスティングはワラ、牧草、トウモロコシの茎等と混ぜ、孔隙を増すことで空気と水分を微生物にとって好適に保つようにする。static pile composting はコンポストをパイルに積み上げ、減圧か加圧し

たパイプで通気する。mechanically agitated in-vessel compostingは、コンポストが容器の中に入れられ、そこで機械的に混和、通気される。windrow compostingでは、コンポストはwindrowと呼ばれる長いパイルに盛られ、定期的にトラクターなどで攪拌される。

c) バイオレメディエーションの長所と短所

長所

- ・多くの場合in situで行えるため、土壌を掘り起こす等の手間が省ける。
- ・もともと微生物の分解能(異化代謝能)を利用するため、多くの場合汚染物質を完全分解できる(中間産物が生じない)。
- ・汚染物質を低濃度まで減少させることが可能である。
- ・処理速度(分解速度)が比較的速い。
- ・処理(栄養物の注入)停止後も効果が持続する。
- ・コスト的に有利である。

短所

- ・微生物の栄養源、酸素が汚染箇所に行き渡ることが必要であり、現場の条件(水の流れ、土壌条件等)がそれに適していることが前提条件となる。
- ・微生物にとって有害なほど汚染が高濃度のサイトには適用できない。
- ・複数の物質による複合汚染の場合には困難なことがある。
- ・分解が中途半端だと有害な中間産物が集積することがある。
- ・微生物の栄養源として新たな化学物質を環境に注入することになり、そのこと自体に対する論議がある。

バイオレメディエーションは元々自然界に存在する生物反応を利用するということからくる。「環境に優しい」技術であり、そのメリットは大きい。しかし、他の物理的・化学的処理技術と一律背反ではなく、それぞれが長所と短所を持っている。今後もより高効率で安全で、コスト的にも有利な技術の開発が続けられていくであろう。