日本食品のフッ素ならびに1, 2の関連物質に かんする研究 (第5報)

Studies on Fluorine and Other Related Components of Japanese Foods (Part 5)

味噌を中心とした高塩食品のフッ素および食塩含有量と
その胃ガン死亡率との地理的相関関係

Fluorine and salt contents of "Miso" and other foods rich in salt, and their
geographical correlation with mortality from gastric cancer

(昭和40年6月16日受理)

岡村 保 松 久次雄
(Tamotsu Okamura) (Tsugio Matsuhisa)

The contents of fluorine and salt were determined on some foods rich in salt. The samples of "Miso" contained fluorine from 4.0 (Kagoshima) to 17.5 ppm (Niigata), and the salt content varied from 8.36 (Kagoshima) to 17.70% (Ishikawa).

The fluorine content of "Miso" and pickled vegetables correlated with their salt content. Excluding the salt factor, there was geographical positive net correlation between the fluorine content of "Miso" from 28 prefectures and the corrected death rate from gastric cancer in 1960. On the other hand, no partial correlation was existed between the salt content and the corrected death rate.

緒 言

味噌、漬物、佃煮、塩魚などの高塩食品は古来日本人の米食にとって欠かせない食品とされており、現在でも依然としてその食習慣に占める比重は大きい。近時わが国の胃ガン死亡率が高率なことが問題とされるにいたり平山氏は味噌の食塩濃度¹⁾、野瀬氏は飲料水などのNaCl量²⁾がそれぞれ胃ガン死亡率と地理的順相関を有することを指摘した。

一方著者ら³⁾は、さきに昭和35年38都府県産検査標準水稲梗玄米 279 点のフッ素含有量と同年度胃ガン訂正死亡率との地理的な相関関係をしらべ、両者間に高度の順相関関係のあるのを認めた。

そこで本報においては、味噌をはじめとする高塩食品

のフッ素および食塩含有量をしらべ、味噌と胃ガン死亡率との地理的関係を検討したので報告する。

実 験 方 法

フッ素：前処理——試料の灰化はA・O・A・C法により、分離はWillard, Winter法⁴⁾によった。定量法——ジルコニウム・エリオクロムシアニンR法によった⁵⁾。

食 塩：Mohr法⁶⁾によった。

なお試料は、昭和35～38年にわたり市販品(1, 2の自家製品を含む)を集めたものである。

結 果

(1) 味噌のフッ素および食塩含有量

28県産味噌84点のフッ素および食塩含有量は第1表に

栄 養 と 食 糧

しめすとおりであり、フッ素は20.0ppm(山形県産)～3.3 ppm (鹿児島県産), 食塩は17.90%(石川県産)～8.23%(鹿児島県産)の範囲をしめた

第1表 各地産味噌のフッ素および食塩含有量(対生体)

県 名	フッ素含有量	食塩含有量	県 名	フッ素含有量	食塩含有量
	ppm	%		ppm	%
北海道	10.5	14.30	富 山	11.2	11.36
	8.9	11.03		13.4	17.09
	8.2	12.23		13.7	17.61
青 森	7.7	12.04		13.4	17.08
	13.0	14.25	石 川	13.6	17.50
	11.5	12.98		14.2	17.90
岩 手	9.6	12.01	福 井	13.0	12.60
	9.7	12.00		12.9	12.92
宮 城	15.0	15.94		12.8	12.49
	14.0	11.65	奈 良	14.0	13.90
	14.7	13.38		13.0	14.06
	14.6	13.20	和歌山	15.5	12.74
山 形	14.5	14.73		15.6	12.68
	17.5	13.25	滋 賀	12.5	12.03
	20.0	16.30		12.5	11.07
福 島	16.0	13.27	兵 庫	6.3	9.62
	16.5	12.62		8.8	8.99
	16.2	13.52		8.6	8.80
	15.8	11.95		11.1	11.51
新 潟	19.3	14.96	島 根	10.9	13.91
	15.7	12.66		10.8	13.96
栃 木	10.6	13.26		10.4	13.97
	14.3	13.81		10.7	13.96
千 葉	13.8	12.22	岡 山	15.2	13.00
	14.0	13.81		13.0	12.60
長 野	15.5	12.42		13.5	12.44
	16.3	12.51	広 島	10.5	10.50
	14.6	11.74		10.2	10.45
	17.2	13.00		10.2	10.46
	14.4	11.43	香 川	18.2	16.33
山 梨	12.3	12.64		15.4	13.41
	12.4	12.83		16.6	14.00
	12.2	12.26		17.0	15.74
静 岡	13.0	11.20	徳 島	12.3	13.00
	12.9	11.29		12.2	13.41
	12.8	11.17		12.2	13.25
愛 知	9.5	10.35	長 崎	12.3	11.55
	13.2	13.44		11.0	9.37
	5.3	9.68		12.1	11.72
	10.0	10.77	鹿児島	3.5	8.55
三 重	10.5	10.54		5.3	8.23
	10.7	10.59		3.3	8.30

また第1表より県ごとの平均値をもとめ第2表にしめすと、フッ素は17.5 ppm(新潟)～4.0 ppm(鹿児島)食塩は17.70%(石川)～8.36%(鹿児島)の範囲にあった。

第2表 味噌のフッ素および食塩含有量県別平均値と胃ガン死亡率

県 名	フッ素含有量	食塩含有量	昭和35年胃ガン訂正死亡率(10万対)	
			男	女
	ppm	%		
北海道	9.2	12.52	56.2	33.8
青 森	10.7	13.09	51.8	32.9
岩 手	9.7	12.01	36.6	26.3
宮 城	14.6	13.54	61.9	32.9
山 形	17.3	14.76	76.4	39.1
福 島	16.1	12.84	61.1	35.8
新 潟	17.5	13.81	66.1	45.2
栃 木	12.5	13.22	72.4	40.2
千 葉	13.9	13.01	65.2	36.6
長 野	15.6	12.22	61.8	34.3
山 梨	12.3	12.56	50.6	30.5
静 岡	12.9	11.22	42.4	27.0
愛 知	9.5	11.06	55.6	37.9
三 重	10.8	10.83	55.5	33.3
富 山	13.5	17.26	64.1	40.3
石 川	13.9	17.70	61.6	39.9
福 井	12.9	12.67	50.9	27.7
奈 良	13.5	13.98	78.1	40.1
和 歌 山	15.5	12.71	60.9	38.4
滋 賀	12.5	11.55	51.3	35.8
兵 庫	8.7	9.73	56.1	32.6
島 根	10.7	13.95	50.8	34.6
岡 山	13.9	12.68	48.8	29.2
広 島	10.3	10.47	55.3	31.8
香 川	16.8	14.87	58.3	40.2
徳 島	12.2	13.22	47.3	35.3
長 崎	11.8	10.88	46.3	27.4
鹿 児 島	4.0	8.36	30.9	20.9

(2) 漬物のフッ素および食塩含有量

第3表にしめすようにフッ素含有量は試料数25点について27.52 ppm(かぶ菜類味噌漬)～3.64ppm(山海漬)食塩含有量は20.05%(かぶ菜類味噌漬)～4.22%(わさび漬)の範囲にあった。また第4表に漬物の種類別のフッ素および食塩含有量平均値をしめすと、両成分とも味噌漬が19.02 ppm, 16.56%と高値を与えた。沢あんとは菜類塩漬とは F/NaCl 比が他のものより大きく、いずれも2.09をしめし、わさび漬の F/NaCl 比0.96,

第3表 漬物のフッ素および食塩含有量（対生体）

種 類 別	フッ素含有量	食塩含有量	種 類 別	フッ素含有量	食塩含有量
	ppm	%		ppm	%
沢 あ ん { 1	12.54	6.02	同 上	15.23	13.07
{ 2	11.76	5.81	福 神 漬 { 1	13.67	15.26
{ 3	13.00	6.55	{ 2	15.22	15.33
{ 4	12.82	5.54	なす朝鮮漬	8.13	12.91
{ 5	10.33	4.88	なすからし漬 { 1	7.83	6.48
糠味噌漬 { 大 根	19.21	17.52	{ 2	9.54	7.50
{ かぶ菜	27.52	20.05	もろみ漬	12.72	11.08
{ 菊ごぼう	12.21	13.07	山海漬	3.64	6.30
{ きゅうり1	14.33	16.23	わさび漬	4.05	4.22
{ きゅうり2	13.66	15.67	ピーマン漬	7.69	11.30
{ なす1	27.02	16.55	塩漬白菜	8.91	4.23
{ なす2	19.20	16.85	塩漬たか菜	12.94	6.21
醤油漬 大 根	11.71	12.55			

第4表 漬物の種類別フッ素・食塩含有量

種 類 別	試 料 数	フッ素含有量	食 塩 含 有 量	F/NaCl
		ppm	%	
た く あ ん	5	12.09	5.76	2.09
糠 味 噌 漬	7	19.02	16.56	1.14
醬 油 漬	2	13.47	12.81	1.05
福 神 漬	2	14.45	15.30	0.94
な す か ら し 漬	2	8.69	6.99	1.24
わ さ び 漬	1	4.05	4.22	0.96
山 海 漬	1	3.64	6.30	0.58
菜 類 塩 漬	2	10.93	5.22	2.09

山海漬の0.58などくらべ、著しい差異があった。含有フッ素量の起源構成がことなるためではないかとおもわれる。

(3) 佃煮その他のフッ素および食塩含有量

第5表にしめすように44点の試料のフッ素含有量は、41.49 ppm（小豆島産塩吹コンブ）～2.38 ppm（辛子コンブ）の範囲にあり、食塩含有量は19.10%（アミ）～4.15%（ごんべえ煮・倉敷産）の範囲にあった。

(4) 塩魚のフッ素および食塩含有量

第6表にしめすように塩魚14点のフッ素含有量は、24.37ppm（いごちり）～6.99 ppm（サンマ開き）、食塩含有量は14.92%（塩イカ）～5.69%（さくら干し）の範囲にあった。

(5) 各種食品のフッ素含有量と食塩含有量の相関関係

(1)～(4)に得た結果よりフッ素含有量と食塩含有量の相関関係を検討してみると、第7表においてしめすように各県産味噌の平均フッ素含有量と食塩含有量の相関係数は+0.6445、漬物では+0.8827 でいずれも0.1%基準

で有意であった。他試料では有意性を認めえなかったが、これは各試料ごとに原材料が全くことなり、試料数も少なかったからであるとおもわれる。ただ以上の結果から食塩中の不純物としてのフッ素が、高塩食品のフッ素量にたいし大きな位置を占めていることがわかる。

(6) 味噌のフッ素および食塩含有量の胃ガン死亡率との地理的相関

味噌のフッ素および食塩含有量の県別平均値を胃ガン死亡率と比較するため、(1)に得た結果および第2表に併記した昭和35年（国勢調査年）胃ガン訂正死亡率⁶⁾とから偏相関係数および重相関係数を算出し第7表にしめした。それによれば食塩の影響をのぞくフッ素と昭和35年胃ガン訂正死亡率との偏相関係数は、男+0.4903（1%）、女+0.4176（5%）となった。一方、フッ素の影響をのぞく食塩と胃ガン死亡率との偏相関係数は、男+0.2491、女+0.3601でいずれも5%基準で相関が認められなかった。さらにフッ素および食塩の相乗作用を検討する目的から、フッ素と食塩の胃ガン死亡率との重相関

栄 養 と 食 糧

第5表 佃煮その他のフッ素および食塩含有量 (対生体)

品 名	フッ素含有量	食塩含有量	品 名	フッ素含有量	食塩含有量
	ppm	%		ppm	%
角 切 昆 布	23.95	16.16	し じ み 2	38.10	9.29
特 上 塩 昆 布	15.12	15.36	か つ お 角 煮 1	11.70	7.94
特 塩 昆 布	20.19	16.70	2	21.88	12.41
上 塩 昆 布	14.68	11.99	し ら す 1	7.14	6.95
塩 吹 昆 布 1	12.37	18.48	2	2.38	6.01
塩 吹 昆 布 2	41.49	4.40	あ み	28.57	19.10
塩 昆 布 1	34.04	13.58	松 味 楽	23.81	7.38
2	3.46	11.06	味 楽	37.50	6.88
3	9.17	10.50	ご ん べ え 煮	12.77	4.15
4	18.75	9.79	し ら す 煮	15.96	4.65
5	18.04	12.95	昆 布 巻	10.64	6.17
辛 子 昆 布	2.38	10.92	え び す め	9.53	11.35
しいたけ 昆 布	40.63	9.06	き ゃ ら ぶ き 1	5.32	10.29
か ご め の り	11.38	11.80	2	5.32	9.50
こ も ち い さ ざ	20.41	7.58	葉 さ ん し ょ	13.09	15.96
し ぐ れ 1	16.88	10.89	焼 ま つ た け	10.64	5.57
2	11.70	8.23	に し き 木	18.75	9.15
3	11.90	6.48	葉 と う が ら し	37.50	10.57
あ さ り 1	16.30	9.55	し そ ま き	4.26	6.10
2	21.88	10.43	は ぜ つ く だ に	10.00	9.72
3	11.54	9.30	の り つ く だ に	4.76	9.93
し じ み 1	13.95	9.61	い か 佃 煮	5.95	4.57

第6表 塩魚のフッ素および食塩含有量

食 品 名	フッ素含有量(ppm)		食塩含有量 (%)
	対 生 体	対 乾 体	
塩 鮭	16.39	36.80	6.07
塩 鯖	11.31	37.30	6.86
も ろ み 鮎	10.35	31.68	6.81
塩 い か	16.24	42.53	14.92
鰯 糠 漬	17.31	35.91	12.04
さんま 開 き	6.99	13.59	7.59
ふ ぐ 干 物	18.42	32.39	14.86
か ま す 開 き	11.67	23.27	7.51
鰯 丸 干	13.42	21.45	10.17
い ろ ち 丸 干	9.75	18.28	5.00
と び う お	7.68	15.23	8.84
ち り め ん じゃ こ	20.65	38.17	9.39
い ご ち り	24.37	37.69	7.89
さ く ら 干	11.05	15.00	5.69

係数を求めたところ、男+0.6805(0.1%)、女+0.7082(0.1%)となった。

以上の結果から、従来指摘された味噌の食塩濃度と胃

第7表 味噌および漬物類の各種相関関係

味噌

(1)食塩の影響を除いたフッ素含有量と昭和35年胃ガン訂正死亡率との偏相関関係

男子 $r_{DmF.S} = +0.4903$ (1%)

女子 $r_{DfF.S} = +0.4176$ (5%)

(2)フッ素の影響を除いた食塩含有量と昭和35年胃ガン訂正死亡率との偏相関関係

男子 $r_{DmF.S} = +0.2491$

女子 $r_{DmF.S} = +0.3601$ } 5%基準で相関無し

(3)昭和35年胃ガン訂正死亡率のフッ素および食塩含有量との重相関関係

男子 $r_{Dm.FS} = +0.6805$ (0.1%)

女子 $r_{Dm.FS} = +0.7082$ (0.1%)

(4)単相関

	フッ素 (F)	食塩 (S)
昭和35年 { 男子胃ガン訂正死亡率 (Dm)	+0.6578(0.1%)	+0.5574(1%)
昭和35年 { 女子胃ガン訂正死亡率 (Df)	+0.6539(0.1%)	+0.6297(0.1%)

(5)フッ素含有量と食塩含有量との単相関

$r = +0.6445$ (0.1%)

漬物

(1)フッ素含有量と食塩含有量との単相関

$r = +0.8827$ (0.1%)

() 内は有意水準

ガン死亡率との相関関係には、フッ素の影響が多分にあるものとおもわれ、ガンの疫学的研究にフッ素をとりあげる必要を一層痛感するに至った。

要 約

ジルコニウム・エリオクロムシアニン R 法およびモール法により、各種高塩食品のフッ素および食塩含有量をしらべたところ、味噌、漬物類で両成分間に有意順相関が成立した。

また、28 県産味噌のフッ素および食塩含有量を地理的に比較したところ、昭和 35 年胃ガン訂正死亡率と、

- 1) フッ素含有量との間に食塩含有量の影響をのぞいて男+0.4903 (1%), 女+0.4176 (5%) の有意偏相関関係を認め、
- 2) 食塩含有量との間にはフッ素含有量の影響をのぞいて男+0.2491, 女+0.3601 でいずれも 5% 基準で

は偏相関関係を認めることができなかった。

終わりにあたり、本研究に協力を惜しまれなかった相木みち、丹羽妙子両女史に深く感謝する。

また本報告の概要は、昭和 38 年 4 月第 17 回日本栄養・食糧学会総会、および昭和 40 年 5 月日本農芸化学会中部支部第 38 回例会にて報告した。

文 献

- 1) 平山 雄：厚生指標, 10, 4, 22 (1963)
- 2) 野瀬善勝, 北川良雄：日本公衛誌, 12, 359 (1965)
- 3) 岡村 保, 松久次雄：日作紀, 32, 132~144 (1963)
- 4) 舟阪 渡編：弗素化学, p. 122 & 132 (1963)
- 5) 永原太郎, 岩尾裕之：食品分析法, p. 21 (1961)
- 6) 菅沼達治：厚生指標, 10, 4, 92 (1963)

(名城大学農学部)

尿中の L チロシン O-サルフェイトの検出

L チロシンの O-サルフェイトエステルは多くの哺乳動物のフィブリノーゲンの成分である。テクニコン社アミノ酸自動分析計を用い、正常なうさぎ尿の酸性成分について、Dowex 50 によるクロマトグラフィーをおこなったところ、合成 L チロシン O-サルフェイトと同一溶出位置にニンヒドリン陽性物質の存在を認めた。クロマトグラフィーをおこなう前に酸分解した試料にはこの物質は存在せず、チロシンの増加がみられた。アルカリスルファターゼを用いた酵素分解でも同じ結果がえられた。

これらのことから、この物質は L チロシン O-サルフェイトであると結論された。(原文は要旨)

Detection and Determination of Urinary L-Tyrosine O-Sulphate with the Amino Acid Autoanalyzer.

by John, R. A., Rose, F. A., Wusteman, F. S. and Dodgson, K. S. : *Biochem. J.*, 94, p. 37 (1965)

(剣持)