

厚生労働科学研究費補助（食品の安全高度化推進研究事業）

分担研究報告書

カビ毒同時試験法開発と分布調査研究

分担研究者 小西良子 国立医薬品食品衛生研究所 衛生微生物部第4室 室長

研究協力者 田中宏輝 国立医薬品食品衛生研究所 衛生微生物部第4室

研究要旨 食品中のカビ毒汚染はヒトや産業動物に健康被害を起こすことが知られている。近年分析法の発達により、単一の食品に複数のカビ毒が汚染していることが報告されるようになり、複合汚染による健康への影響も国際機関の毒性評価において問題になりつつある。しかし、現在のところ複数のカビ毒の分析の方法はほとんど開発されていない。本研究では、穀物に多く汚染事例のあるフザリウム属マイコトキシン7種類を1種類の前処理で一斉分析できる方法を確立した。

A. 研究目的

Fusarium 属菌が産生する主要なマイコトキシンの一種であるトリコテセンマイコトキシンは、炭素 15 個を基本骨格とする 3 環状のセスキテルペノイドの一種であり、C-12、13 位のエポキシ環はトリコテセンの毒性発現に必須の部分構造である。トリコテセンは化学構造の面から 8 位カルボニル基を欠くグループを type A、これを持つ type B、12、13 位の他に 7、8 位にエポキシ基を持つ type C、4、5 位のマクロライド環を有する type D に分類される。このような母核修飾の多様性はトリコテセン

の毒性（生物活性）の強さやその選択性に大きく影響を与える。

食品汚染については、type B のデオキシニバレノール (DON)、ニバレノール (NIV) 及びそのアセチル体の報告が多く、type A の T-2 トキシン (T2)、HT-2 トキシン (HT2) の汚染報告もある。また、複数のマイコトキシンによる汚染もしばしば報告され、ヒト、家畜への健康被害が懸念されている。したがって、暴露評価及び複合汚染実態を把握するための同時分析法の開発が必要となる。そこで本研究では、DON、NIV、

フザレノン X (FX)、3-アセチル
デオキシニバレノール (3ADON)、
T2 及び HT2 の 6 種類のトリコテ
センマイコトキシンとそれらとの
複合汚染の報告のあるゼアラ
レノン (ZEA) を加えた 7 種類の
マイコトキシンについて多機能
固相抽出カラムを用いた同時精
製法及び LCMS を用いた同時分析
法の検討を目的とした。

B. 研究方法

1. 試薬および機器

小麦玄麦は 2003 に収穫されたもの
で、7 種のマイコトキシンが検出限界
以下であることが確かめられたもの
を使用した。7 種のマイコトキシン標準
品はシグマ社製を用いた。前処理とし
て使用した多機能固相抽出カラム
は、Multi Sep #226 Romer 社製を
用いた。LC/MS 分析に用いた試薬
はすべて HPLC グレードを使用した。

LCMS 機器として

LC : Shimadzu LC-2010C_{HT}

MS : Shimadzu LCMS-2010A

を用いた。

2. LCMS 条件の検討

7 種のマイコトキシンの標準品を用い
て、LCMS での定量分析に適したイオ

ン化条件の検討を行った。

イオン化条件としては次の 3 条件を
比較、検討した。

(1) エレクトロスプレーイオン化 (ESI) 法

- a) プローブ電圧 : 4.5 V
- b) プローブ温度 : 0 °C
- c) ネブライザーガス : 1.5 L/min
- d) 乾燥ガス : 0.1 MPa
- e) CDL 電圧 : 5 V
- f) CDL 温度 : 250 °C
- g) ブロックヒーター温度 : 200 °C
- h) Q-Array DC : 40 V
- i) Q-Array RF : 150 V

(2) 大気圧化学イオン化 (APCI) 法

- a) プローブ電圧 : 4.5 V
- b) プローブ温度 : 400 °C
- c) ネブライザーガス : 2.5 L/min
- d) 乾燥ガス : 0.02 MPa
- e) CDL 電圧 : 5 V
- f) CDL 温度 : 250 °C
- g) ブロックヒーター温度 : 200 °C
- h) Q-Array DC : 40 V
- i) Q-Array RF : 150 V

(3) 大気圧光イオン化 (APPI) 法

- a) プローブ電圧 : 0 V
- b) プローブ温度 : 200 °C
- c) ネブライザーガス : 2.5 L/min
- d) 乾燥ガス : 0 MPa
- e) CDL 電圧 : 5 V

- f) CDL 温度 : 150 °C
- g) ブロックヒーター温度 : 150 °C
- h) Q-Array DC : 5 V
- i) Q-Array RF : 150 V
- j) ドーパント : 10 µl/min (アセトンを使用)

3. HPLC の条件

上記に述べたイオン化の 3 条件とも以下の条件で行った。

カラム : Shimadzu Shim-Pack VP-ODS
(150 mm×2 mm)

移動相 : A ; メタノール

B ; 5 mM 酢酸アンモニウム

10 % A/B - (5 min) - 10 % A/B -

(15 min) - 100 % A/B - (10 min) -

100 % A/B - (30 min) - 10 % A/B

流速 : 0.1 ml/min

カラムオープン温度 : 40 °C

注入量 : 10µl

3. 多機能固相抽出カラムを用いた同時精製法の検討

7 種のマイコトキシンの標準品および小麦粉末に標準溶液を添加した試料を用いて、多機能固相抽出カラムによる精製効率の検討を行った。

まず、マトリックスのない状態での多機能固相抽出カラムにおける 7 種のマイコトキシンの溶出パターンを検討するために、窒素気流で

濃縮乾固した 7 種のマイコトキシン標準品にアセトニトリル-水 (85:15) 40 ml を加え、30 分間振とう抽出した。振とう抽出後、抽出液を遠心処理し、上清を多機能固相抽出カラムに負荷した。カラムから流出してくる溶液を 1 ml ずつフラクションに分け 9 ml まで分取し、各フラクションを窒素気流で濃縮乾固した。乾固後、各フラクションを 5 mM 酢酸アンモニウム 1 ml で溶解し、LCMS 測定を行った。

つぎにマトリックス存在下での 7 種のマイコトキシンの溶出パターンを検討するために、粉碎した非汚染小麦粉末試料 10.0 g に 1 µg/ml 濃度の 7 種のマイコトキシン混合標準溶液を 1 ml 添加し 1 時間放置した。その後アセトニトリル-水 (85:15) 40 ml を加え、30 分間振とう抽出し、以後の操作方法は 7 種のマイコトキシン標準品のみを精製した上述の方法と同様に行った。

なお LCMS 測定は、B の 1.項において最適化されたイオン化条件及び HPLC 条件により測定を行った。

C. 研究結果および考察

1. LCMS 条件の検討

(1) ESI 法

フルスキャン分析の結果より、NIV 371(-)、DON 355(-)、FX 413(-)、3ADON 397(-)、HT2 483(-)、T2 484(+)、ZEA 317(-)をモニタリングイオンとすることとした。

検量線は7種のトキシシンいずれでも5 ng/ml以上の濃度で直線性(相関係数 0.99以上)を示し、定量限界(S/N比 10)及び検出限界(S/N比 3)はそれぞれNIV 0.79 ng/ml、0.24 ng/ml、DON 2.84 ng/ml、0.85 ng/ml、FX 2.55 ng/ml、0.77 ng/ml、3ADON 0.32 ng/ml、0.10 ng/ml、HT2 2.16 ng/ml、1.35 ng/ml、T2 4.50 ng/ml、0.65 ng/ml、ZEA 0.56 ng/ml、0.17 ng/mlであった(表1)。

(2) APCI 法

フルスキャン分析の結果より、NIV 371(-)、DON 355(-)、FX 413(-)、3ADON 339(+)、HT2 483(-)、T2 484(+)、ZEA 317(-)をモニタリングイオンとすることとした。

検量線は7種のトキシシンいずれでも3 ng/ml以上の濃度で直線性(相関係数 0.99以上)を示し、定量限界及び検出限界はそれぞれNIV 0.84 ng/ml、0.25 ng/ml、

DON 1.50 ng/ml、0.45 ng/ml、FX 2.11 ng/ml、0.63 ng/ml、3ADON 2.78 ng/ml、0.83 ng/ml、HT2 2.29 ng/ml、0.50 ng/ml、T2 1.67 ng/ml、0.68 ng/ml、ZEA 1.43 ng/ml、0.43 ng/mlであった(表1)。

(3) APPI 法

フルスキャン分析の結果より、NIV 371(-)、DON 355(-)、FX 413(-)、3ADON 397(-)、HT2 483(-)、T2 484(+)、ZEA 317(-)をモニタリングイオンとすることとした。

検量線は7種のトキシシンいずれでも1 ng/ml以上の濃度で直線性(相関係数 0.99以上)を示し(図1-7)、定量限界及び検出限界はそれぞれNIV 0.63 ng/ml、0.18 ng/ml、DON 0.83 ng/ml、0.25 ng/ml、FX 2.58 ng/ml、0.77 ng/ml、3ADON 0.70 ng/ml、0.21 ng/ml、HT2 9.71 ng/ml、2.91 ng/ml、T2 1.45 ng/ml、0.43 ng/ml、ZEA 0.46 ng/ml、0.13 ng/mlであった(表1)。

以上の結果から、トキシシンにより最適な感度を得られるイオン化法は異なる事がわかった。しかし、比較的汚染報告の多いNIV、DON、T-2、ZEAではAPPI法での検出限界がESI法、APCI法よりも感度が良好と考え、本研究では、

APPI 法で測定することとした。

2. 多機能固相抽出カラムを用いた同時精製法の検討

7種のマイコトキシン標準溶液のみをカラムに負荷した結果、NIV以外の6種のトキシンはカラムからの溶出が4 ml以降で回収率が80%以上に達し、満足できる値が得られたが、NIVはカラムからの溶出が7 ml以降で回収率が80%に達し、他のトキシシンより遅れて溶出してくることがわかった。

次に、7種のマイコトキシン添加小麦試料抽出溶液をカラムに負荷し、試料マトリックス非存在下の標準溶液で定量を行った結果、値のばらつきが大きくトキシシンによっては140%を超える値を示した(図8)。そこで本研究で用いた小麦試料をトキシシンを添加せずに抽出、精製し、7種のマイコトキシン混合標準品を加えて作成したマトリックス混合標準溶液を用いて、定量を行ったところ、カラムからの溶出が4 ml以降において7種のトキシシンで80%以上の妥当な回収率が得られた。また標準溶液のみを負荷した際に見られたNIVの溶出の遅れも添加小麦

試料抽出溶液では軽減された(図9)。この結果から、試料マトリックスがトキシシンの溶出に影響することが考えられる。

トータルイオンクロマトグラムを見てみると、カラムからの溶出が1 mlの分画では、NIVのピークがほとんど観察できないが(図10)、4 mlの分画では観察できることがわかる(図11)。また9 mlの分画になるとベースラインの乱れが大きくなり、夾雑物の影響が大きくなったことが示された(図12)。さらに、各トキシシンのクロマトグラムを見てみると、4 mlの分画ではいずれのトキシシンも夾雑物の影響はほとんど見られないが(図13)、9 mlの分画では、夾雑物の影響が特にFX、3ADON、HT2で見られることがわかる(図14)。このことから、カラムからの溶出が遅くなるほど夾雑物の影響を受けやすいことが考えられる。

D. 結論

7種類のマイコトキシンについて多機能固相抽出カラムを用いた同時精製法及びLCMSを用いた同時分析法の検討を行った結果、

LCMS の測定条件の検討においては 3 種のイオン化法のいずれにおいても 7 種全てのトキシンが測定可能であることが示された。しかし、各々のトキシンの検出感度はイオン化法により差異が認められ、比較的汚染報告の多い NIV、DON、T2 及び ZEA では、APPI 法における感度が良好であった。多機能固相抽出カラムを用いた同時精製法の検討では、NIV の溶出が他のトキシンに比べやや遅かったが、カラムからの溶出が 4 ml 以降で 7 種のトキシンのいずれでも回収率は 80 % 以上であり、同時精製に適用可能であった。

また、試料マトリックスを混合していない標準溶液で定量した場合よりも、試料マトリックス混合標準溶液で定量した場合の方が、より安定した値が得られることが明らかになった。

以上の結果から、本研究で用いた 7 種のトキシンにおいて、多機能固相抽出カラム MultiSep #226 で精製し、LCMS 測定を行う方法の適用が可能であることが示された。

E. 研究発表

1. 論文発表

1) Suigta-Konishi, Y. and Kumagai, S., Toxicity of mycotoxins related with head blight diseases in wheat and establishment of provisional standard for tolerable level of DON in wheat. *Mycotoxins*, 55, 49-53. (2005)

2) Poapolathep A, Sugita-Konishi Y, Phitsanu T, Doi K, Kumagai S. Placental and milk transmission of trichothecene mycotoxins, nivalenol and fusarenon-X, in mice. *Toxicon*. 44:111-113. (2004)

3) 小西良子 パツリンの試験法 食品衛生研究 54 P11-16 (2004)

4) 小西 良子、高鳥 浩介、田中 敏嗣、杉浦義紹、中島 正博、田中 健治、熊谷 進 市販ELISAキットによる玄麦中デオキシニバレノールの迅速簡易スクリーニング法の評価、食品衛生学会誌 45, 156-160 (2004)

2. 学会発表

1) 田中宏輝、小西良子、高鳥浩介、田中敏嗣、杉浦義紹「LCMS によるトリコテセンマイコトキシン同時分析法の検討」

日本食品衛生学会第 88 回学術講演会(2004)

表 1 7種のマイコトキシンの各イオン化法における定量限界及び検出限界
(上段：検出限界、下段：定量限界)

	APPI	APCI	ESI
NIV	0.18	0.25	0.24
	0.63	0.84	0.79
DON	0.25	0.45	0.85
	0.83	1.50	2.84
FX	0.77	0.63	0.77
	2.58	2.11	2.55
3ADON	0.21	0.83	0.10
	0.70	2.78	0.32
HT-2	2.91	0.50	1.35
	9.71	2.29	2.16
T-2	0.43	0.68	0.65
	1.45	1.67	4.50
ZEA	0.13	0.43	0.17
	0.46	1.43	0.56

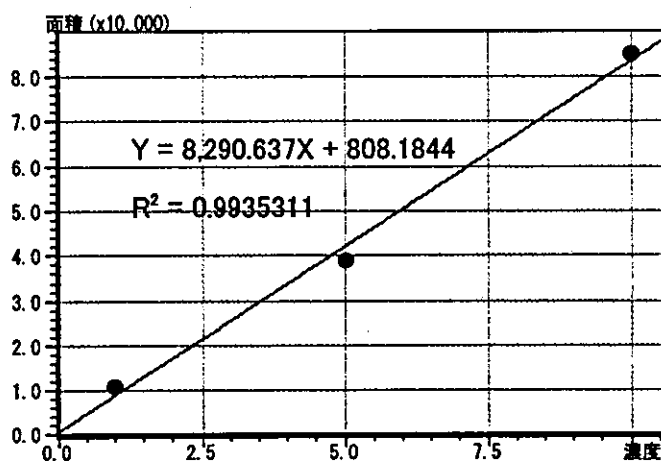


図 1 NIV 検量線 (APPI 法)

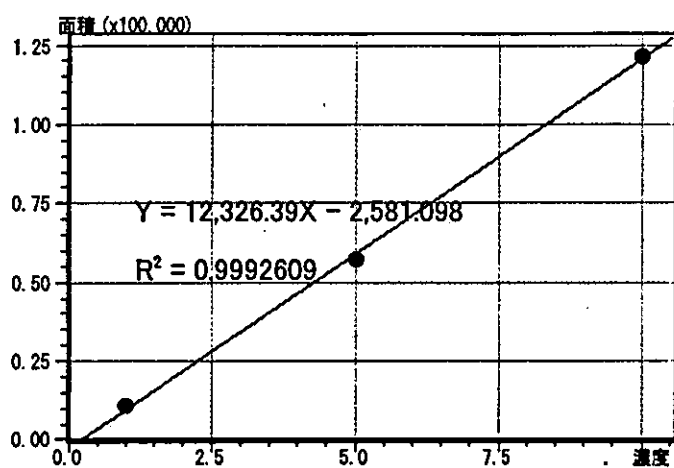


図 2 DON 検量線 (APPI 法)

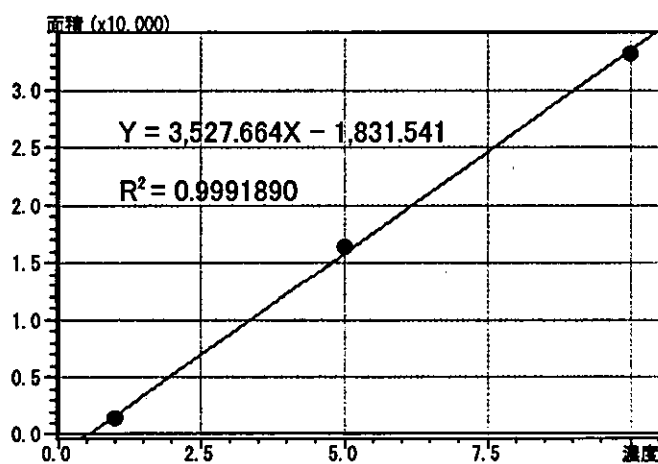


図 3 FX 検量線 (APPI 法)

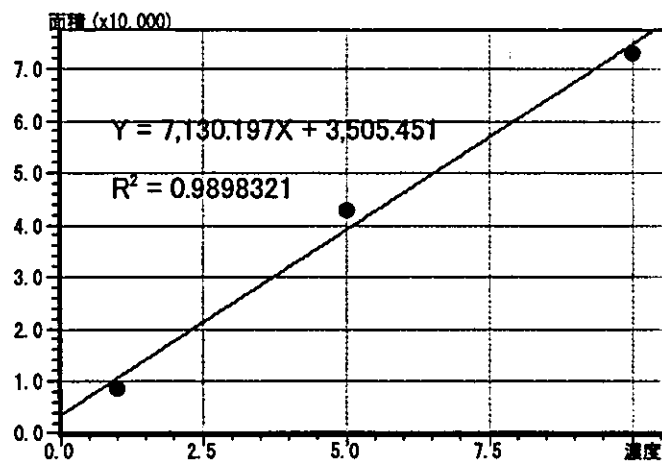


図 4 3ADON 検量線 (APPI 法)

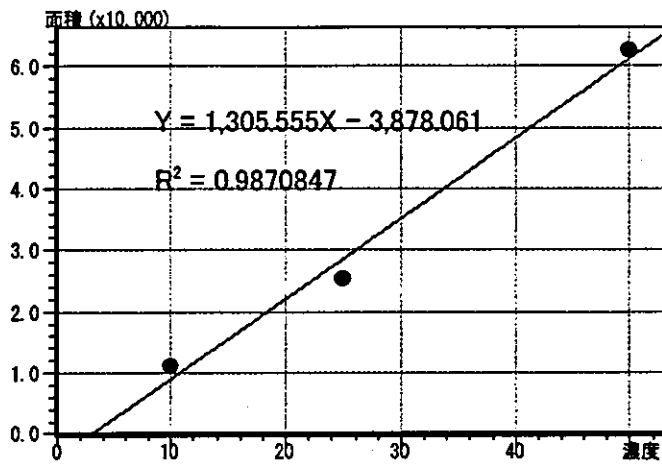


図 5 HT2 検量線 (APPI 法)

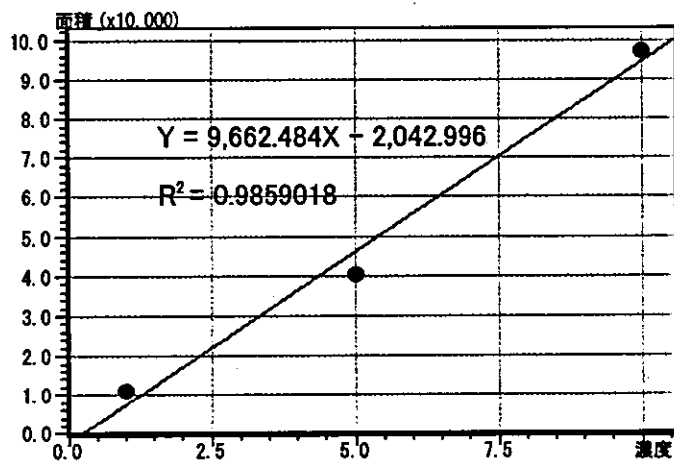


図 6 T2 検量線 (APPI 法)

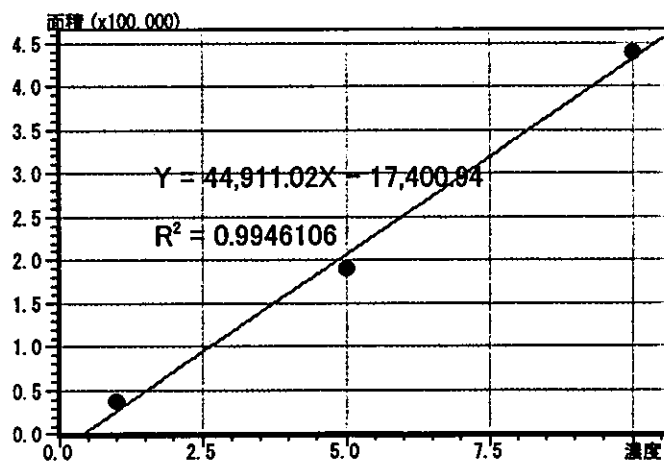


図 7 ZEA 検量線 (APPI 法)

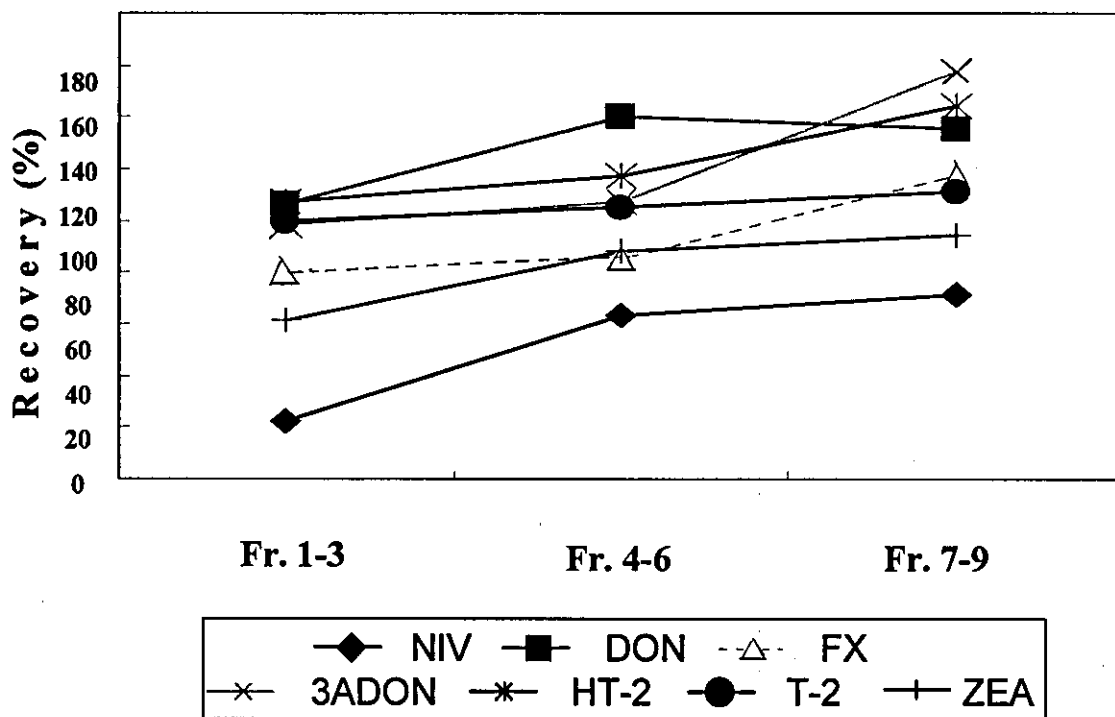


図 8 7種のマイコトキシン添加小麦抽出溶液をカラムに負荷した際の回収率
(試料マトリックスを混合していない標準溶液で定量)

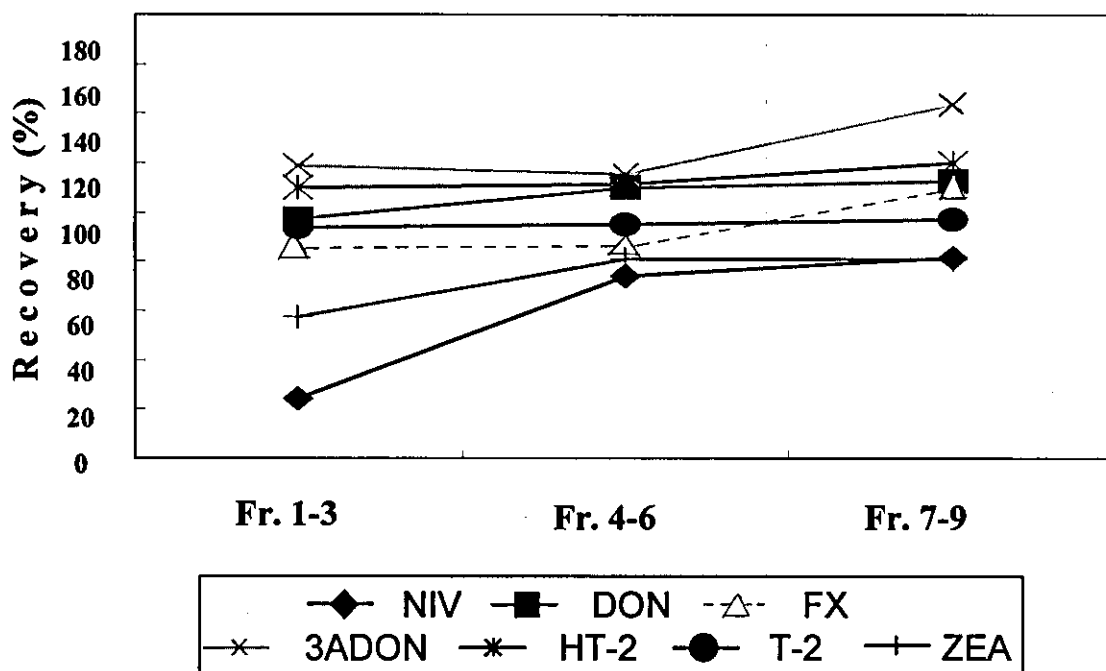


図 9 7種のマイコトキシン添加小麦抽出溶液をカラムに負荷した際の回収率
(試料マトリックス混合標準溶液で定量)

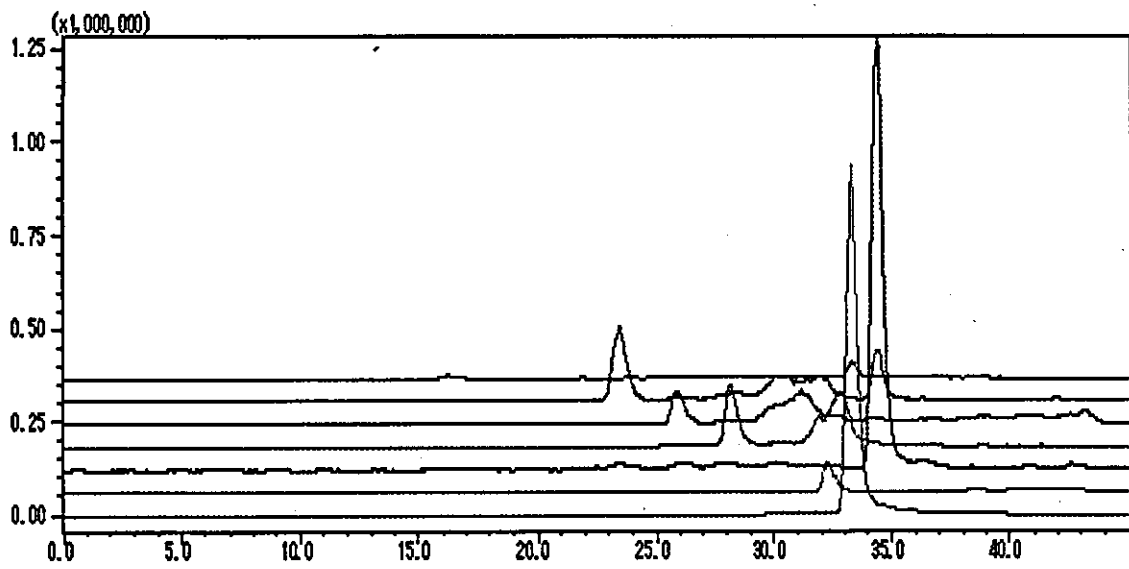


図 10 7種のマイコトキシンのトータルイオンクロマトグラム (0-1 ml 分画)

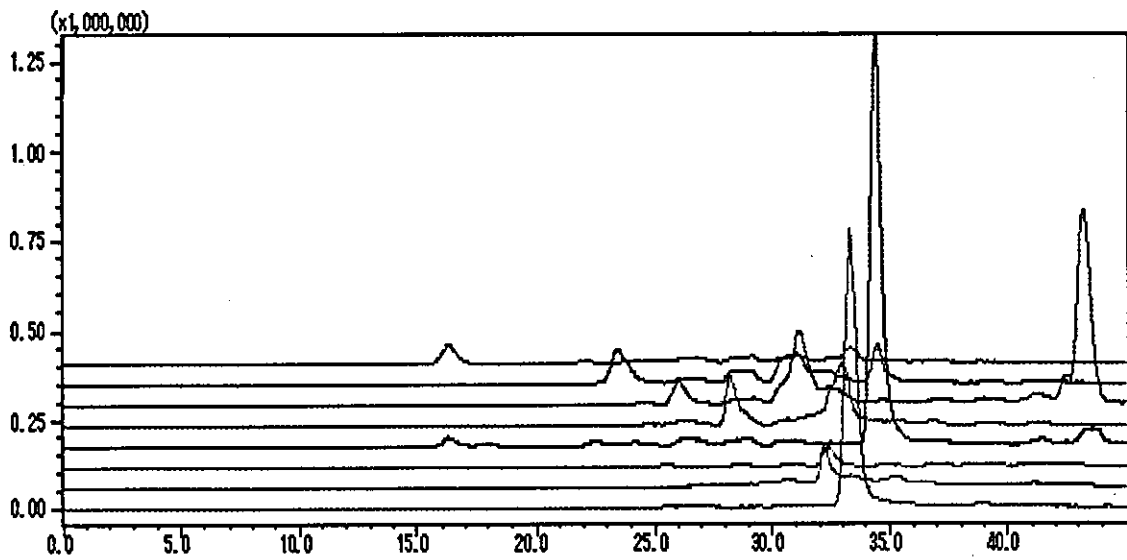


図 11 7種のマイコトキシンのトータルイオンクロマトグラム (3-4 ml 分画)

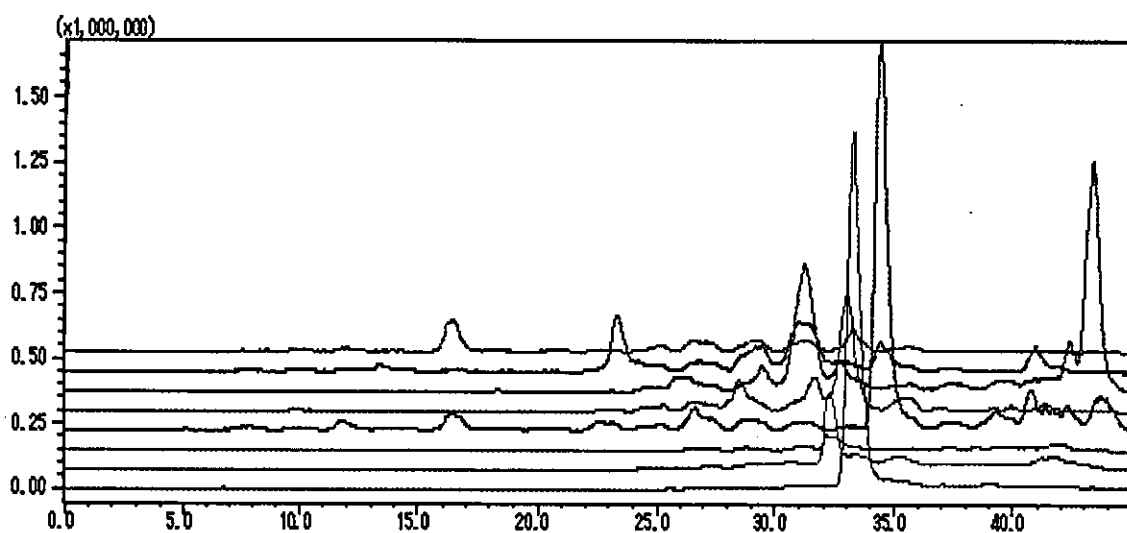


図 12 7種のマイコトキシンのトータルイオンクロマトグラム (8-9 ml 分画)

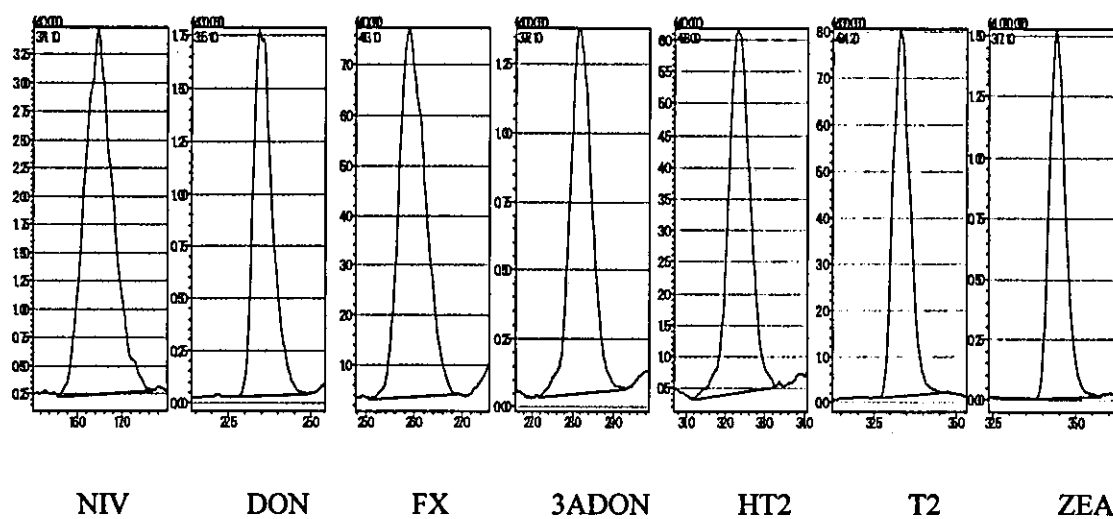
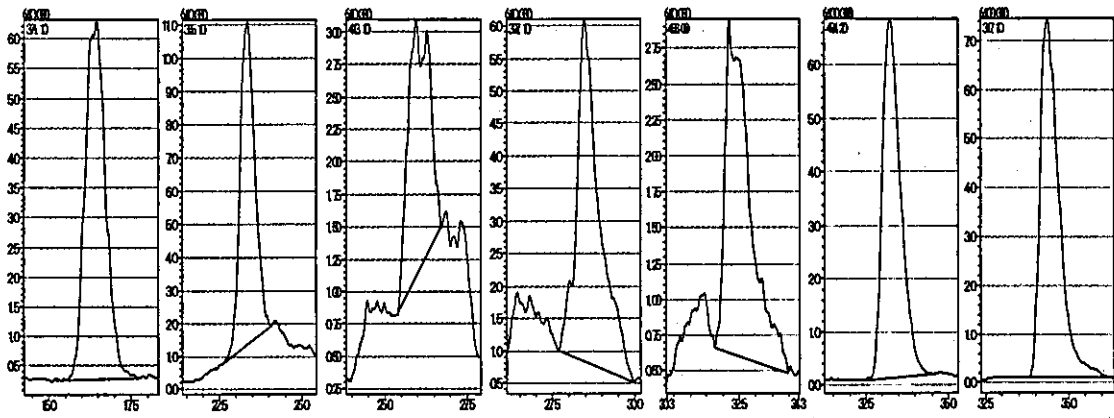


図 13 7種のマイコトキシンのクロマトグラム (3-4 ml 分画)



NIV DON FX 3ADON HT2 T2 ZEA

図 14 7種のマイコトキシンのクロマトグラム (8-9 ml 分画)

分 担 研 究 報 告

食品中の放射性核種の摂取量調査・評価研究

杉山 英男

厚生労働科学研究費補助金（食品の安全性高度化推進研究事業）
平成 16 年度分担研究報告書

食品中の放射性核種の摂取量調査・評価研究

分担研究者 杉山英男（国立保健医療科学院生活環境部室長）

協力研究者 寺田 宙（国立保健医療科学院）

飯島育代（神奈川県衛生研究所）

磯村公郎（兵庫県立健康環境科学研究所センター）

研究要旨

国内の流通食品に含まれる放射性核種の量と、その摂取量を明らかにするために、マーケットバスケット方式による放射性核種摂取量調査を実施した。全国 4 地域（北海道、関東 I、東海、南九州）で採取した全 14 食品群に区分される各食品を通常の調理法に従ってトータルダイエツト試料を調製し、 γ 線放出核種（人工放射性核種の放射性セシウムおよび天然放射性核種の ^{40}K や ^{214}Bi など）、 ^{90}Sr 、ウランの測定、分析を行った。同様な方法で国内 5 地域（北陸、関東 I、近畿 I、中国、四国）で実施した（平成 15 年度）トータルダイエツトスタディの結果を踏まえて、総括的に、その濃度実態の把握ならびに 1 日あたりの核種摂取量と被ばく線量を推定、評価した。その結果、これらの放射性核種濃度ならびに、その摂取量、それにとまう被ばく線量は大きなものではなく、食品中の放射能に対する安全・安心に対する一つの基礎的な資料が得られた。

A. 研究目的

食品中の有害物質の量とその分布状況を明らかにして食品の安全性を確保することは、食品衛生における基本課題である。本研究では、日常的に摂取される食品量に基づくトータルダイエツト試料について、 γ 線放出核種、放射性 Sr およびウランを対象として、その濃度実態を調べて、日本人固有の食事摂取形態による放射性核種の曝露（摂取量）に関する

評価研究を実施する。

B. 研究方法

日本国内 4 地域（札幌市、千葉市、名古屋市、那覇市）において飲料水を含む全 14 群に区分した食品を流通市場で購入し、炊く、ゆでる、炒める、煮る、焼く等の調理を行い、日本人の日常食を再現したトータルダイエツト試料を調製した。調製試料は凍結乾燥あるいは乾熱乾燥した

後に、450°Cで約 24 時間灰化処理した。その後、人工ならびに天然の γ 線放出核種 (^{137}Cs や ^{40}K 、ウラン系列、トリウム系列) は全 14 食品群について各群個別にプラスチック製容器 (容量 100mL) に封入後、シリコーンシーラントを充填させて密閉し 2 週間程度放置後、 γ 線スペクトロメトリーを行った。 β 線放出核種の ^{90}Sr およびウランは飲料水を除いた全 13 食品群を調理、調製した混合試料について、同様に乾燥、灰化処理した後に、それぞれ放射化学分析法および ICP-質量分析法により分析した。これらの結果より、食品中の放射性核種の濃度実態を明らかにし、食品からの 1 日摂取量 (調理後) について推計評価した。

本研究では、以下の測定、分析法を用いた。

1. γ 線スペクトロメトリー

「ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー」(文部科学省放射能測定法シリーズ 7、平成 4 年改訂) に準じた。操作法の概略は以下のとおりである。

試料を検出器エンドキャップに載せ、80000~300000 秒間測定した。バックグラウンドは検出器に何も載せず、適時、200000~300000 秒間測定して求めた。

測定スペクトル中から適当なピーク 3 本以上を選択し、これらを用いて γ 線エネルギーとピーク位置の関係を表すエネルギー校正曲線を作成し、計算で分析目的核種のピーク領域を求めた。分析目的核種のピーク領域内の計数値を用いてピーク面積を計算し、他核種からの妨害が認められたときは補正した。ピーク面積を、ピーク効率と分析目的核種の γ 線放出比で除し、試料調製

日に減衰補正して測定試料あたりの放射能を求めた後、測定供試量で除して分析結果とした。

ピーク効率の測定試料形状依存性は 5 種類の混合核種線源を用いて、それぞれ測定して求めた。

2. 放射性ストロンチウム分析

「放射性ストロンチウム分析法」(文部科学省放射能測定法シリーズ 2、平成 15 年改訂) に準じて行った。操作の概略は以下のとおりである。

2-1. 化学分離

分析試料から生 2kg 相当の灰を分取し、担体 (Sr^{2+}) の一定量を添加した後、王水および硝酸を加え加熱分解した。塩酸を加えて加熱抽出した後、残留物をろ別し、ろ液から炭酸塩、次いでシュウ酸塩沈殿として Sr 等を分離した。シュウ酸塩沈殿を 600°C に加熱後、塩酸で溶解し、イオン交換法で Ca 等を除去した。

溶出液を蒸発乾固し乾固物を水に溶解後、 ^{90}Y を除去 (スカベンジング) し、2 週間放置して、新たに生成した ^{90}Y を水酸化第二鉄沈殿に共沈させ (ミルクキング)、分離型フィルターを用いてマウントし、測定試料とした。なお、回収率補正のための安定 Sr の定量は、Y を内標準とした ICP 発光分光分析法により行った。

2-2. 測定

測定試料を低バックグラウンド β 線測定装置 (LBC) で 3600 秒測定した。測定試料の正味計数率を求め、計数効率、化学回収率等の補正を行い試料の放射能濃度を算出し、分析結果は減衰補正基準日に減衰補正した。

3. ICP 質量分析法

3-1. 試料分解および測定試料調製

灰化済み分析試料から、灰 0.5g を正確にはかり取り、 HNO_3 、 H_2O_2 を加えてホットプレート上で加熱分解後、乾固した。乾固物を 1M HNO_3 で溶解し、メンブランフィルターを用いて吸引ろ過した後、 H_2O で 100mL に定容し、試料溶液とした。試料溶液から適量を分取し、内部標準として Bi を 10ng/mL となるように加えて ICP-MS 測定試料とした。

3-2. 測定

測定試料をプラズマ中に噴霧し、 ^{238}U および ^{209}Bi のイオン強度を測定して、それらのイオン強度比を求めた。測定回数は 5 回とし、平均値とその標準偏差 (1σ) を求め、各試料溶液の濃度を計算した。

C. 研究結果と考察

1. 機関間相互比較分析

γ 線スペクトロメトリによる機関間相互比較分析の結果を表 1-1～表 1-3 に示す。

分析に参加した 4 機関のうち、分析機関と表記した機関は文部科学省が全国の衛生研究所等に委託している環境放射能水準調査において、クロスチェックの実施、評価統括を行っている。他の調査研究機関は分担研究者および協力研究者の所属を示している。

汚泥焼却灰 (表 1-1) では、5 つの天然放射性核種を対象とした。その結果、5 核種ともに 0.01 Bq/kg 濃度レベルでその値は良好な一致を示した。食品試料としては、平成 15 年度に実施したトータルダイエツトスタディ (TDS) から 2 種類を選んで測定を行った (表 1-2、表 1-3)。対象核種は汚泥焼却灰の 5 核種のほかに ^{40}K と ^{137}Cs を加えた。

その結果、両試料ともに比較的濃度の高

い ^{40}K では 4 機関ともに良い一致をみた。

^{137}Cs は肉類・卵類 (表 1-3) では良好な結果であった。一方、その他野菜・キノコ・海藻類 (表 1-2) では低い値であった。ここでは、1 機関においては不検出であり、また他の 2 機関の結果も少々計数誤差が大きく (一般的な考え方として、分析結果が計数誤差の 3 倍以下の場合には不検出として処理する)、各機関での分析結果に“ゆらぎ”がみられた。2 種類の食品中の 5 つの天然放射性核種は、 ^{212}Pb 、 ^{214}Pb 、 ^{214}Bi などの一部、値の一致をみない結果があったが、これらの同一試料について他機関では不検出の結果もあることから、あるいは放射能強度の絶対的な小ささが一つの要因にあることが推察された。

γ 線スペクトロメトリでは、とくに放射能強度の小さい試料の場合に、各 Ge 半導体検出器に固有の相対効率や計測時間などが結果に影響を与えることから、これらの要因も今回の結果にも微妙な影響を与えた可能性が考慮された。しかしながら、これら一部の結果を除けば、全体的には、放射能濃度が低い試料の分析結果としては比較的良い一致を示したと判断される。

2. γ 線放出核種の放射能濃度

本スタディでは、人工放射性核種のほかに、近年、食品中の濃度実態の把握が求められている天然 γ 線放射性核種も対象 (代表的な ^{214}Pb 、 ^{214}Bi 、 ^{228}Ac 、 ^{212}Pb 、 ^{208}Tl) とした。

人工の γ 線放出核種として検出・定量されたのは ^{137}Cs のみである。しかも、その放射能濃度 (調理後重量ベース) は 4 地域ともに 0.1 Bq/kg 以下の低いレベルであり、

多くの食品群では ^{137}Cs は検出下限値以下であった。4地域における ^{137}Cs の最小値は札幌市の食品群I(米・米加工品類)の0.0048 Bq/kgであり、その最大値は名古屋市食品群X(魚介類)の0.0768 Bq/kgであった。平成15年度スタディにおいても同様な結果であり、魚介類の1食品で0.145 Bq/kgを示したが、この食品を除くすべてが0.1 Bq/kgを下回る濃度であった。なお、食品群別には魚介類、乳類、肉類・卵類が他の食品群に比べて高い濃度を示す傾向がみられた。同じく人工放射性核種の ^{134}Cs 濃度はいずれの食品も検出下限値を下回る結果であった。

天然放射性核種の ^{40}K は食品のメジャー元素であり、Kの同位体の中では約0.012%存在している。このため、本年度4地域ならびに平成15年度の5地域の食品群のうち、一部の油脂類を除く他のすべての食品から検出、定量された。天然 γ 線放射性核種の中でも代表的な ^{214}Pb 、 ^{214}Bi 、 ^{228}Ac 、 ^{212}Pb 、 ^{208}Tl は大多数の食品群では検出限界以下であった。

3. ^{90}Sr およびウラン(^{238}U)の放射能濃度

各食品群混合試料中の ^{90}Sr および ^{238}U の放射能濃度(調理後重量ベース)とウラン含有量を表11および表12に示す。4地域の ^{90}Sr 濃度は0.013~0.028 Bq/kgであった。ちなみに、平成15年度の5地域における結果は0.016~0.031 Bq/kgであった。これより、調理済み食品中の ^{90}Sr 濃度は地域間における差異は小さいことが示された。

4地域における ^{238}U 濃度は0.0040~0.014 Bq/kgで、平成15年度の5地域における結果は0.0039~0.018 Bq/kgであり、

地域別区分による濃度差は ^{90}Sr よりも大きいことが分かった。

4. 放射性核種の摂取量

4-1. γ 線放出核種

国内の4地域を対象として、平成16年度に実施したトータルダイエツトスタディ(TDS)による放射能濃度(表2,3,4,5-2)をもとに推計した放射性核種の日摂取量を示す(表2,3,4,5-1)。また、同様な方法で、国内5地域で実施した平成15年度の結果を参考として示す(表6,7,8,9,10-1、表6,7,8,9,10-2)。それぞれ、8核種(^{137}Cs 、 ^{134}Cs 、 ^{40}K 、 ^{214}Pb 、 ^{214}Bi 、 ^{228}Ac 、 ^{212}Pb 、 ^{208}Tl)について、食品群別の日摂取量を求め、全14食品群の摂取量を積算して合計値(mBq/day)とした。核種あるいは食品群において放射能濃度が定量に及ばない試料も多い。ここでは、これらのいわゆる“不検出”試料の放射能強度はゼロとせず、その検出下限値を摂取量とするように考慮した。従って、合計値の算出にあたっては、定量値の得られた数値のみを積算したものを最小値とし、この値に検出下限値より求めた摂取量を足し合わせた数値を最大値として評価した。この考え方による摂取量の評価では、最大値については過大評価の傾向となることを認識する必要がある。

これより、日摂取量の合計値は、表中では、最小値(定量可能データのみ由来する算出値)<T(合計値)<最大値(最小値に検出下限値データ由来する数値を加えた算出値)で示した。

放射性核種ごとの日摂取量は、人工放射性核種の ^{137}Cs では、4地域の最小値の中では名古屋市が一番高く42.14 mBq/day、

最大値では那覇市が高く64.63 mBq/dayであった。4地域全体としては22.77 mBq/day～64.63 mBq/dayの範囲であった。ちなみに、平成15年度の5地域のスタディでは、12.48 mBq/day～76.58 mBq/dayの結果が得られており、今回とほぼ同程度の摂取量であることが評価された。食品群別には、今回ならびに平成15年度ともに、魚介類、乳類、肉類・卵類、穀類・種実類・芋類、その他野菜きのこ・海藻類からの寄与が大きい傾向がみられた。

また、平成16年度の対象地域である札幌市と千葉市の飲料水から ^{137}Cs が検出、定量され、それぞれ一日摂取量としては、2.8 mBq/dayならびに0.2 mBq/dayと評価された。

なお、チェルノブイリ原子力発電所事故に由来する人工放射性核種の ^{134}Cs はいずれの地域の食品からも検出・定量はされなかった。

天然放射性核種の ^{40}K は、一部の油脂類で検出下限値を下回ったが、その他の食品では検出、定量された。その一日摂取量は食品群別には地域間で差がみられるものの、4地域における全14食品群の合計値は62096～82730 mBq/day、5地域では57309～98364 mBq/dayでとくに顕著な地域差があるとは言い難く比較的同程度のレベルであった。

^{214}Pb 、 ^{214}Bi は ^{238}U を、また、 ^{228}Ac 、 ^{212}Pb 、 ^{208}Tl は ^{232}Th を起源とする、それぞれウラン系列およびトリウム系列を構成する天然放射性核種である。近年、これらの天然由来の放射性核種濃度を把握し、線量への寄与を評価することが求められている。今回のスタディでは、これら5核種ともに放射能

レベルは低く、その多くは検出下限値を下回る結果であった。このため、とくに地域別、食品群別にその摂取量の分布を評価することは困難であった。同様な結果は平成15年度のスタディからも得られた。その中で、地域別には千葉市の食品群Ⅷ（その他野菜・きのこ・海藻類）では5核種とも定量結果を得たのが特長的であった。また、平成15年度においても横浜市の食品群Ⅷでも同様な結果が得られている。今回、千葉市の試料用の食品素材（Ⅷ群）の組成を他の3地域と比べてみると、海藻類の量が若干多いことが分かるものの、その要因についてはさらに検討が必要である。

4-2. ^{90}Sr およびウラン (^{238}U)

飲料水を除いた全13食品群を混合して調製した試料の ^{90}Sr および ^{238}U の分析結果より推計した、それぞれの一日摂取量を表11に、また、同様の方法で得た平成15年度スタディの結果を参考として表12に示す。

^{90}Sr の一日摂取量は、4地域では20.8 mBq/day～45.0 mBq/dayと推定された。平成15年度の5地域では26.7 mBq/day～53.6 mBq/dayであった。これら9地域における摂取量の平均値は 38.46 ± 8.52 mBq/dayと算出され、地域別の摂取量には平均値に対して約20%のバラツキがみられた。

^{238}U の一日摂取量は、4地域では6.4 mBq/day～23.2 mBq/dayと推定された。平成15年度の5地域では5.9 mBq/day～31.1 mBq/dayであった。これら9地域における摂取量の平均値は 13.29 ± 6.63 mBq/dayと算出された。 ^{238}U の一日摂取量には、最小値に対して最大値は5倍以上の差があり、平

均値に対しては 50%ほどの地域間誤差がみられた。 ^{238}U は他の食品に比べて海藻類などで高い濃度を示すことが知られており、今後は、各食品群の素材構成を検証するとともに、各食品群について ICP-MS による ^{238}U の分析を行い、これら地域による摂取量の差について検討を加える予定である。

5. 被ばく線量推定評価

食品の摂取にともなう放射性核種による被ばく線量 (Sv) 評価の基本的な考え方は、食品の摂取に起因する各放射性核種の摂取量 (Bq) と実効線量換算係数 (mSv/Bq) に依存することである。

以下に、一般的な算出式の例を示す。

$$A_{m,i} = C_{m,i} \cdot M_m \cdot f_{m,m} \cdot f_{d,m} \cdot t_m$$

ここで、

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

$C_{m,i}$: サンプルング時における評価対象食品 m 中核種 i 濃度 (Bq/kg)

t_m : 食品 m の摂取期間 (d)

M_m : 食品 m の一日あたりの摂取量 (kg/d)

$f_{m,m}$: 食品 m の市場希釈係数 (-)

$f_{d,m}$: 食品 m の調理による除染係数 (-)

この計算式において、食品試料のサンプルング時から測定時の間の物理的減衰が無視できる、すなわち物理的半減期の長い核種の場合、核種 i の摂取量 (Bq) は以下の式で与えることができる。

食品の摂取による内部被ばく線量 H (mSv) は、以下の式で与えられる。

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

ここで、

H : 本事故に起因する実効線量 (mSv)

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

本研究では、上記の算出式をもとにして各放射性核種の被ばく線量を算定評価した。なお、線量換算係数は国際放射線委員会の ICRP PUBLICATION 72 の中から成人に対する数値を適用した。

その結果、それぞれの放射性核種の摂取にともなう成人の年実効線量は、 γ 線放出核種では、 ^{137}Cs (線量換算係数 1.3×10^{-5} mSv/Bq) の場合、今年度の4地域では $0.11 \mu\text{Sv} \sim 0.31 \mu\text{Sv}$ と算出された。さらに、平成15年度の5地域の結果は、 $0.06 \mu\text{Sv} \sim 0.37 \mu\text{Sv}$ と試算された。同様な方法により、 ^{40}K (線量換算係数 6.2×10^{-6} mSv/Bq) による被ばく線量は $130 \mu\text{Sv} \sim 223 \mu\text{Sv}$ と推定された。天然放射性核種の ^{214}Pb (線量換算係数 1.4×10^{-7} mSv/Bq)、 ^{214}Bi (線量換算係数 1.1×10^{-7} mSv/Bq)、 ^{228}Ac (線量換算係数 4.3×10^{-7} mSv/Bq)、 ^{212}Pb (線量換算係数 6.0×10^{-6} mSv/Bq) はカッコ内に示した線量換算係数を用いて年実効線量の試算を行った。これらの核種は検出下限値以下の食品群が多く、ここでは評価法の一つとして一日摂取量の合計値から最小値と最大値を選んだ。また、定量が可能であった食品群の中で最大の一日摂取量からも線量の推定を行った。その結果を各放射性核種ごとに示すと、 ^{214}Pb では最小値～最大値は $0.0003 \mu\text{Sv} \sim 0.0082 \mu\text{Sv}$ 、定量済みの最大値では $0.0014 \mu\text{Sv}$ と算出された。以下、それぞれ同様に表すと、 ^{214}Bi では $0.0003 \mu\text{Sv} \sim 0.0073 \mu\text{Sv}$ 、 $0.0013 \mu\text{Sv}$ 、 ^{228}Ac