

Fig. 1 メチル水銀標準溶液の検量線 (一例)

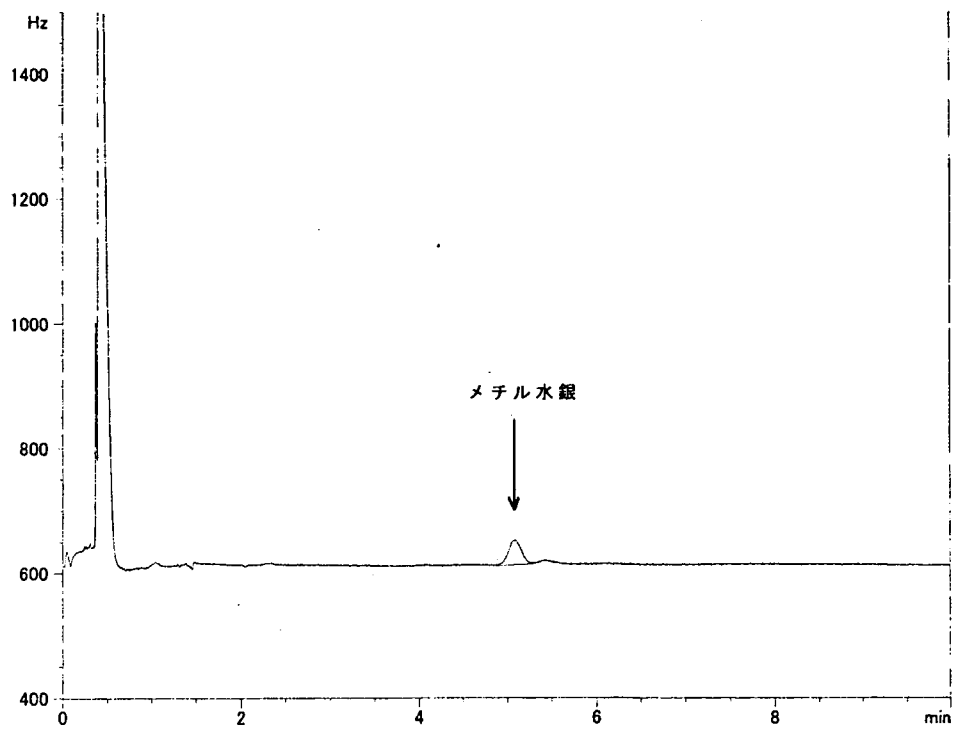


Fig. 2 メチル水銀標準溶液のクロマトグラム(0.0025  $\mu\text{g Hg/ml}$ )

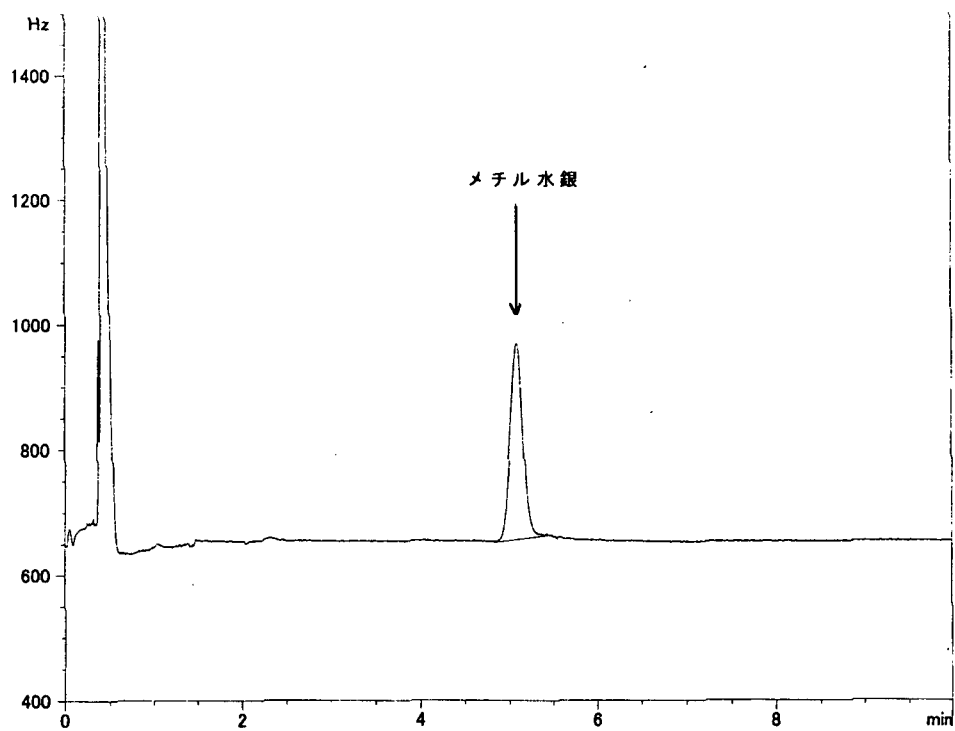


Fig. 3 メチル水銀標準溶液のクロマトグラム(0.02  $\mu\text{g Hg/ml}$ )

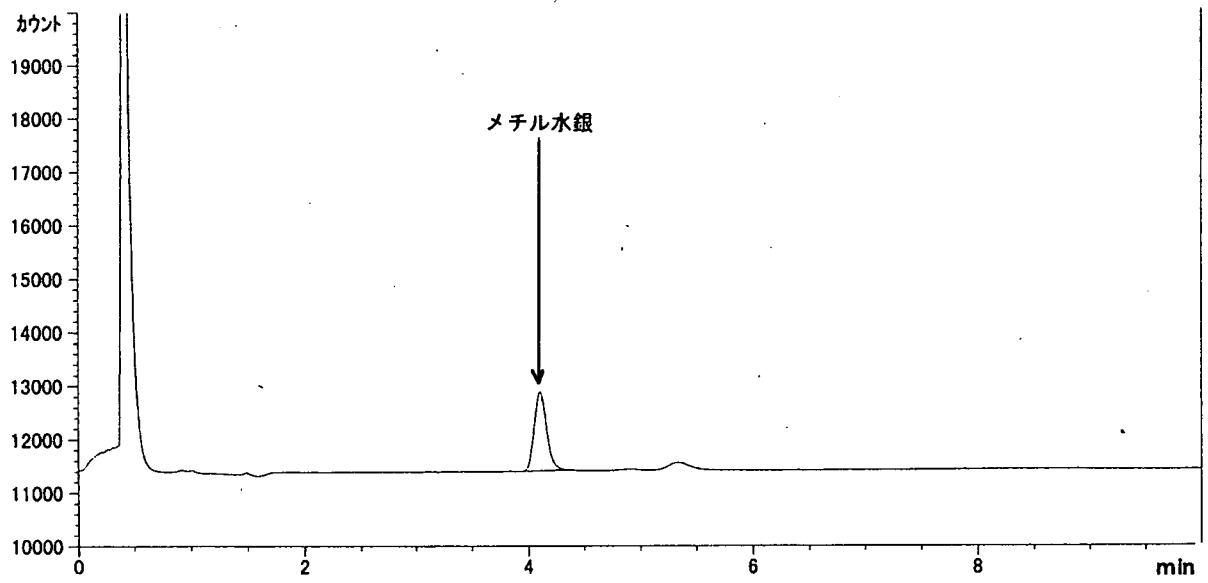


Fig. 4 模擬試料 1(キンメダイ)のクロマトグラムの一例

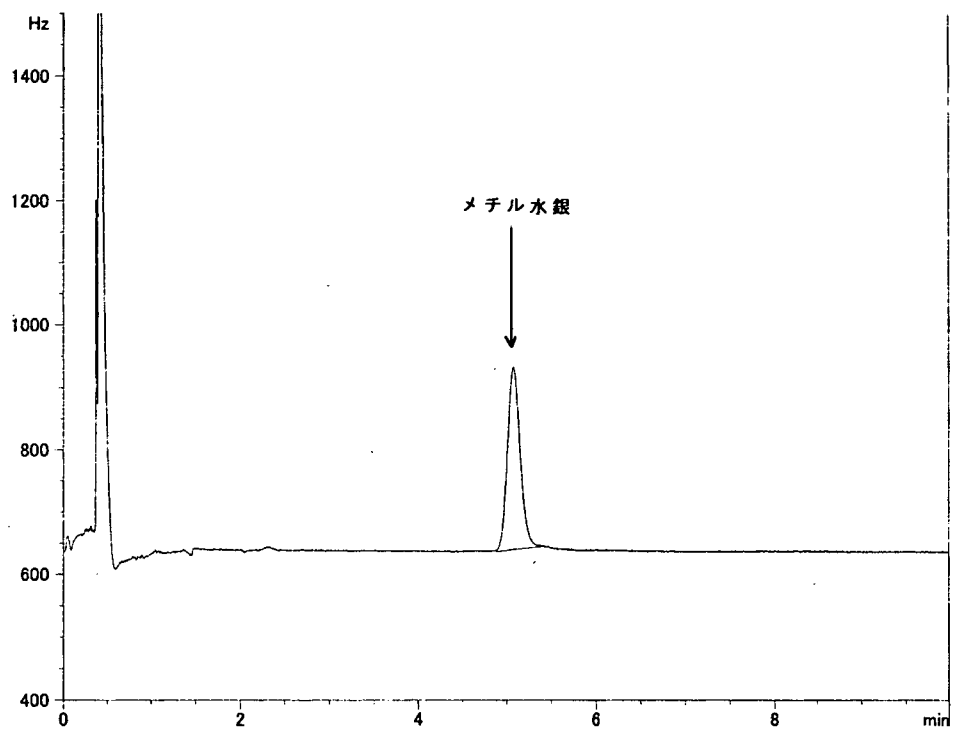


Fig.5 メチル水銀のクロマトグラム(模擬試料2、5倍希釈)

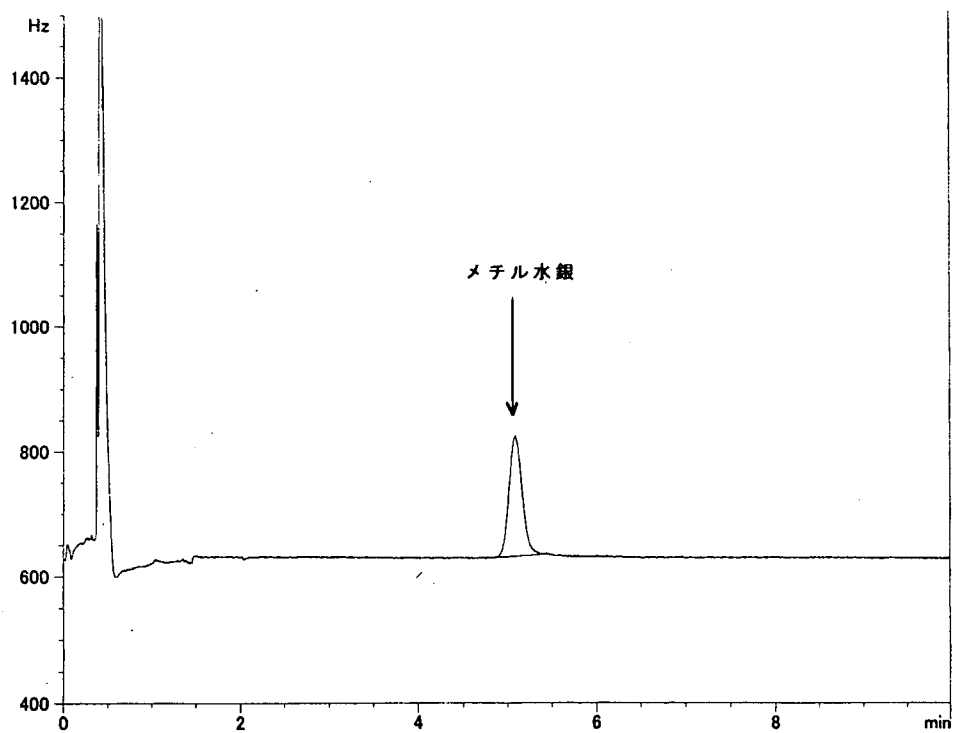


Fig.6 メチル水銀のクロマトグラム(模擬試料3、10倍希釈)

Table 1-1 模擬試料 1 (キンメダイ) の均一性試験結果

検体 No.	メチル水銀 ( $\mu\text{g/g}$ )	総水銀 ( $\mu\text{g/g}$ )	総水銀に対する メチルHgの比率(%)
2	—*	2.39	—
6	2.25	2.29	98
10	—*	2.35	—
12	2.21	2.48	89
19	—*	2.50	—
23	2.19	2.49	88
25	2.35	2.38	99
32	—*	2.32	—
36	2.34	2.48	94
43	—*	2.25	—
平均	2.27	2.39	94
S. D.	0.074	0.09	5
RSD(%)	3.2	3.8	5.4

\* : 分析実施せず

Table 1-2 模擬試料 1 (キンメダイ) の安定性試験結果

検体 No.	メチル水銀 ( $\mu\text{g/g}$ )	総水銀 ( $\mu\text{g/g}$ )	総水銀に対する メチルHgの比率(%)
4	2.20	2.32	95
15	2.07	2.39	87
27	2.16	2.56	84
33	2.07	2.37	87
49	2.32	2.58	90
平均	2.16	2.44	89
S. D.	0.10	0.12	4
RSD(%)	4.8	4.8	5

Table 2 模擬試料 2 と模擬試料 3 の分析値

試料	メチル水銀 ( $\mu\text{g/g}$ )	総水銀 ( $\mu\text{g/g}$ )
模擬試料2 (認証値)	2.79 (2.83 $\pm$ 0.15)	2.81 (2.85 $\pm$ 0.16)
模擬試料3 (認証値)	4.17 (4.47 $\pm$ 0.32)	4.44 (4.64 $\pm$ 0.26)

Data are means of the values obtained in the duplicate analyses.

Table 3-1 模擬試料 1 のメチル水銀の共同試験における実測値

機関	メチル水銀 (μg/g)		平均 (μg/g)
	1	2	
1	0.939	1.109	1.02
2	1.334	1.329	1.33
3	1.550	1.590	1.57
4	2.167	2.204	2.19
5	2.298	2.381	2.34
6	1.923	1.831	1.88
7	2.342	2.476	2.41
8	2.272	2.266	2.27
9	1.311	1.300	1.31
10	2.020	1.960	1.99

Table 3-2 模擬試料 1 の総水銀の共同試験における実測値

機関	総水銀 (μg/g)		平均 (μg/g)
	1	2	
1	2.120	1.708	1.91
2	1.520	1.574	1.55
3	2.710	2.540	2.63
4	2.482	2.419	2.45
5	2.478	2.515	2.50
6	2.161	2.185	2.17
7	2.015	2.067	2.04
8	2.410	2.620	2.52
9	2.959	3.018	2.99
10	2.080	2.080	2.08

Table 4-1 模擬試料2のメチル水銀の共同試験における実測値

	メチル水銀 実測値 (μg/g)					平均 (μg/g)	S.D.	RSD (%)
	1	2	3	4	5			
1	1.704	2.229	2.214	2.737	2.327	2.24	0.37	16.4
2	1.170	1.148	1.120	1.130	1.129	1.14	0.02	1.8
3	2.100	1.960	1.930	1.850	2.060	1.98	0.10	5.1
4	1.993	2.182	2.211	2.086	2.183	2.13	0.09	4.3
5	2.267	2.387	2.223	2.033	2.061	2.19	0.15	6.7
6	2.016	1.885	2.093	2.104	1.994	2.02	0.09	4.4
7	2.543	2.579	2.553	2.539	2.519	2.55	0.02	0.9
8	2.668	2.892	2.769	2.665	2.669	2.73	0.10	3.6
9	2.519	2.643	2.628	2.767	2.696	2.65	0.09	3.4
10	2.130	2.200	2.180	2.230	2.190	2.19	0.04	1.7

Table 4-2 模擬試料2の総水銀の共同試験における実測値

	総水銀 実測値 (μg/g)					平均 (μg/g)	S.D.	RSD (%)
	1	2	3	4	5			
1	2.792	2.808	2.720	2.728	2.744	2.76	0.04	1.4
2	2.840	2.939	2.900	2.831	2.945	2.89	0.05	1.9
3	3.110	2.990	3.030	2.900	2.800	2.97	0.12	4.0
4	2.763	2.773	2.758	2.791	2.747	2.77	0.02	0.6
5	2.429	2.429	2.425	2.558	2.487	2.47	0.06	2.3
6	2.780	2.782	2.776	2.810	2.752	2.78	0.02	0.7
7	2.618	2.589	2.711	2.439	2.623	2.60	0.10	3.8
8	2.363	2.896	2.832	2.987	2.774	2.77	0.24	8.7
9	3.473	3.426	3.433	3.460	3.464	3.45	0.02	0.6
10	2.390	2.240	2.290	2.390	2.290	2.32	0.07	2.9

Table 4-3 模擬試料2のメチル水銀および総水銀の8機関による共同試験の分散分析結果

	濃度 (μg/g)	平均値 (μg/g)	バイアス (%)	併行精度		室間精度		Horwitz RSD <sub>R</sub> 予測 (%)	HORRAT (RSD <sub>R</sub> / 予測RSD <sub>R</sub> )
				SD <sub>r</sub> (μg/g)	RSD <sub>r</sub> (%)	SD <sub>R</sub> (μg/g)	RSD <sub>R</sub> (%)		
メチル水銀	2.83	2.1	-25.3	0.16	7.3	0.48	22.7	13.7	1.7
総水銀	2.85	2.8	-0.6	0.06	2.3	0.30	10.6	13.7	0.8

\* 検量線の指定範囲は0~0.020 μg/mLであったのだが、機関8では0~0.125 μg/mL、機関10では0~0.1 μg/mLの濃度範囲で検量線を作成していたため、分散分析結果はこれら2機関を除いた計8機関で行った。



Table 5-1 模擬試料3のメチル水銀の共同試験における実測値

	メチル水銀 実測値 (μg/g)					平均 (μg/g)	S.D.	RSD (%)
	1	2	3	4	5			
1	3.437	3.277	3.804	3.273	3.671	3.49	0.24	6.8
2	1.732	1.745	1.738	1.697	1.727	1.73	0.02	1.1
3	3.130	3.230	3.200	3.160	3.420	3.23	0.11	3.5
4	3.416	3.211	3.195	3.332	3.602	3.35	0.17	5.0
5	4.206	3.714	4.276	4.211	4.232	4.13	0.23	5.6
6	3.327	3.120	3.211	3.241	3.207	3.22	0.07	2.3
7	3.788	3.646	3.709	3.860	3.964	3.79	0.12	3.3
8	4.517	4.348	4.563	4.497	4.844	4.55	0.18	4.0
9	3.882	4.446	4.352	4.371	4.221	4.25	0.22	5.3
10	3.730	3.650	3.740	3.720	3.620	3.69	0.05	1.5

Table 5-2 模擬試料3の総水銀の共同試験における実測値

	総水銀 実測値 (μg/g)					平均 (μg/g)	S.D.	RSD (%)
	1	2	3	4	5			
1	4.120	4.360	4.360	4.320	4.280	4.29	0.10	2.3
2	5.288	5.085	5.051	5.000	5.348	5.15	0.15	3.0
3	4.810	5.130	4.940	5.120	4.940	4.99	0.14	2.7
4	4.330	4.642	4.480	4.459	4.427	4.47	0.11	2.5
5	4.427	4.592	4.543	4.384	4.503	4.49	0.08	1.9
6	4.262	4.254	4.232	4.281	4.289	4.26	0.02	0.5
7	4.386	4.377	4.454	4.308	4.360	4.38	0.05	1.2
8	3.809	4.792	4.419	4.552	4.528	4.42	0.37	8.3
9	5.476	5.473	5.478	5.428	5.445	5.46	0.02	0.4
10	4.000	3.820	4.060	3.770	3.870	3.90	0.12	3.1

Table 5-3 模擬試料3のメチル水銀および総水銀の8機関による共同試験の分散分析結果

	濃度 (μg/g)	平均値 (μg/g)	バイアス (%)	併行精度		室間精度		Horwitz RSD <sub>R</sub> 予測 (%)	HORRAT (RSD <sub>R</sub> / 予測RSD <sub>R</sub> )
				SD <sub>r</sub> (μg/g)	RSD <sub>r</sub> (%)	SD <sub>R</sub> (μg/g)	RSD <sub>R</sub> (%)		
メチル水銀	4.47	3.4	-23.9	0.17	4.9	0.80	23.4	12.8	1.8
総水銀	4.64	4.7	1.0	0.10	2.1	0.46	9.8	12.7	0.8

\* 検量線の指定範囲は0~0.020 μg/mLであったのだが、機関8では0~0.125 μg/mL、機関10では0~0.1 μg/mLの濃度範囲で検量線を作成していたため、分散分析結果はこれら2機関を除いた計8機関で行った。

# 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（食品の安心・安全確保推進研究事業）  
平成 19 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

国内に流通する食品を調理した後に含まれる放射性核種の量、ならびに、その摂取量および暴露量（被ばく線量）を明らかにすることを目的とした。その方法は、マーケットバスケット方式により購入した食品を全 14 食品群（飲料水のみ水道水採水）に区分し、調理後食品の核種分析あるいは測定するトータルダイエットスタディ（TDS）とした。本研究の初年度にあたる平成 19 年度の調査・評価方法は、基本的には本補助金による前 3 年度の摂取量調査・評価研究（TDS）に準じた。対象地域は全国 3 ブロック（関東 I；横浜市、北陸；新潟市、四国；高知市）、対象放射性核種は $\gamma$ 線放出核種（人工放射性核種の放射性セシウム（Cs）および天然放射性核種の $^{40}\text{K}$ やウラン系列、トリウム系列核種のビスマス（ $^{214}\text{Bi}$ ）、鉛（ $^{212}\text{Pb}$ ）など）、 $\beta$ 線放出の人工放射性核種ストロンチウム（ $^{90}\text{Sr}$ ）および天然放射性核種のポロニウム（ $^{210}\text{Po}$ ）とした。 $^{210}\text{Po}$ は微量で毒性の高いこと、食品素材からの被ばく寄与が高いことが認識されてきたことからその評価が求められる。

各食品群試料あるいは食品群混合試料中の対象核種の放射能濃度を明らかにした後、これらの濃度を基本としてその 1 日摂取量と暴露量（年実効線量）を算出推定、評価した。その結果、 $^{210}\text{Po}$ を除く他の放射性核種濃度、1 日摂取量および年実効線量は小さいこと、 $^{210}\text{Po}$ による被ばく寄与は大きく国連科学委員会報告（UNSCEAR 2000）の数値を上回ること、地域間では 3 ブロックで線量に大きな差があること、食品の中では魚介類に由来する比率の高いことなどが明らかとなった。これらの成果は放射線緊急時等を含めた食品中の放射能に対する安心・安全確保推進、健康危機管理対応における一つの基礎資料となる。

## 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、さらに、公衆による摂取量と暴露量を評価することは食品の安心・安全確保推進に資する上で重要な課題の一つである。

本研究では、①日本国内に流通、市販される各種の食品を対象として、日常的に摂取される国内各地域の平均的な消費量データに基づきトータルダイエット試料を調理、調製する。その後、②調製試料中の放射性核種の測定、分析を行う。対象放射性核種は $\gamma$ 線放出核種(人工および天然)、 $\beta$ 線放出核種(人工のストロンチウム( $^{90}\text{Sr}$ ))ならびに $\alpha$ 線放出核種(天然のポロニウム( $^{210}\text{Po}$ ))とする。③これらの実測データをもとに、各種食品区分(全14食品群)における放射性核種濃度と国内地域分布を明らかにする。さらに、④これらの放射能濃度をもとに日本人固有の食事摂取状況におけるこれら放射性核種の摂取量ならびに暴露(被ばく線量)に関する評価を行う。以上のことを目的としてトータルダイエットスタディ(以下、TDSと表記する)を実施する。

## B. 研究方法

本研究方法は、基本的には平成16年度から平成18年度までの前3年度に実施したTDSに準ずる。しかしながら、本研究では前3年度とは異なり、食品群改訂にともなう食品区分の見直しならびに対象核種として

はウラン( $^{238}\text{U}$ )に替わりポロニウム( $^{210}\text{Po}$ )をあらたに加えた。

方法の概要は次のとおりである。

### 1. 試料調製

日本国内から3ブロック(関東I;横浜市、北陸;新潟市、四国;高知市)を選択し、全14群に区分した食品(飲料水を含む)を流通市場でマーケットバスケット方式により購入した(飲料水のみ採水)。一例として、横浜市で購入した食品分類を示す(表1)。飲料水を除く購入食品(全13食品群)は各食品群ごとに、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ット試料を調製した。この調理にあたっては他の食品群の添加、混入は禁じた。

調製試料は凍結乾燥あるいは乾熱乾燥し、 $\gamma$ 線放出核種および $^{90}\text{Sr}$ 用試料は450°Cで約24時間灰化处理した。

①人工ならびに天然の $\gamma$ 線放出核種( $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{40}\text{K}$ 、ウラン系列、トリウム系列)の測定用としては、各食品群個別にプラスチック製容器(容量100mL)に灰試料を封入し、シリコーンシーラントを充填させて密閉し2週間程度放置した。なお、その物性の上から減容が困難な油脂類(食品群IV)は調製試料の状態でマリネリ容器(容量1L)に封入し測定用試料とした。飲料水は加熱濃縮し、灰化後に食品試料と同様にプラスチック製容器に充填した。

② $^{90}\text{Sr}$ の分析用試料としては、飲

料水を除く全 13 食品群を各々調理、調製した後に摂取量比に準じて混合した。これら混合試料は $\gamma$ 線放出核種測定用試料と同様な方法で乾燥、灰化处理して分析用試料とした。

③ $^{210}\text{Po}$ の分析用試料としては、調理、調製試料を生のままか、あるいは凍結乾燥品とした。

## 2. 測定法、分析法

### 2-1. $\gamma$ 線スペクトロメトリー

測定用試料は検出器エンドキャップに載せ 80000~300000 秒間計測した。バックグラウンド値は検出器に何も載せない空の状態です時 200000~300000 秒間計測して求めた。測定にあたり、事前にエネルギー校正曲線およびピーク効率を混合核種基準線源（日本アイソトープ協会頒布）を用いて作成した。エネルギー校正曲線、ピーク効率および定量には $\gamma$ 線核種解析用ソフトを使用した。

定量法の概略は次のとおりである。測定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する。ここで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測定目的核種の $\gamma$ 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定量結果とした。

以上、「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)参照。

### 2-2. 放射性ストロンチウム ( $^{90}\text{Sr}$ ) の分析

放射化学分離-低バックグラウンド $\beta$ 線測定装置により分析した。

#### 2-2-1. 化学分離

分析用試料から生 2kg 相当の灰試料を分取、担体 ( $\text{Sr}^{2+}$ ) 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ストロンチウム等を分離した。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、 $^{90}\text{Y}$  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  $^{90}\text{Y}$  を水酸化鉄 (III) 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て測定用試料とした。

#### 2-2-2. 測定

測定用試料は低バックグラウンド $\beta$ 線測定装置 (LBC) で 3,600 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。

以上、「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)参照。

### 2-3. $\alpha$ 線スペクトロメトリーによるポロニウム ( $^{210}\text{Po}$ ) の分析

ポロニウム ( $^{210}\text{Po}$ ) の公的分析法

(文部科学省放射能測定法シリーズなど)は未だ示されていない。ここでは、以下の分析法を適用した。

### 2-3-1. 測定用試料の調製

#### ①全 14 食品群の混合試料

分析用試料から生 30g を分取し、 $^{209}\text{Po}$  回収率補正用トレーサを添加し、硝酸を加え加熱分解した。加熱分解後、溶液を濃縮し、ろ過した。ろ液を Sir-Spec カラムに通し、ポロニウムを吸着させた。

塩酸 (1+2)、塩酸 (2+1) および硝酸 (3+4) で順次洗浄後、硝酸 (3+4) で溶離し、蒸発濃縮した。溶離液に塩酸を加え、再び加熱濃縮後、塩酸 (1+23) を加え、加熱溶解した。試料溶液にアスコルビン酸を加え、85℃に調節した電解装置でポロニウムをステンレス板上に電着して測定試料とした。

#### ②各食品群別の試料 (全 14 食品群)

分析用試料から生 30g あるいは生 30g 相当の凍結乾燥品を分取し、 $^{208}\text{Po}$  回収率補正用トレーサを添加し、約 80℃で加温しながら硝酸および過酸化水素水を加え、試料を十分に湿式灰化させた。この際、ブランク試料も調製した。

湿式灰化後、乾固直前まで濃縮し、濃塩酸 20mL を加え乾固直前まで濃縮させた。その後、さらに濃塩酸 10mL を加え乾固直前まで濃縮させた。0.5M 塩酸 50mL を加え、ホットプレート上で約 80℃で加温させた。残渣の認められる溶液試料についてはろ紙 (5C) でろ過した後、ろ

液とともに銀板およびアスコルビン酸を入れた。銀板の片面には予めテフロンテープを貼り付けた。このポリビンを 80℃の湯浴に約 6 時間浸し銀板上にポロニウムを析出させた。銀板を取り出し、蒸留水およびエタノールで洗浄、乾燥して測定試料とした。

### 2-3-2. 測定

#### ①全 14 食品群の混合試料

測定試料をシリコン半導体検出器 (CANBERRA 社製 PD450-17-100AM) で原則として 80,000 秒間以上測定した。測定試料の正味計数を求め、回収率補正用トレーサ  $^{209}\text{Po}$  の計数率との比較、分析供試量等から  $^{210}\text{Po}$  の放射能濃度を算出し、分析結果は分離日 ( $^{210}\text{Po}$  を除いた日) に減衰補正した。

#### ②各食品群別の試料 (全 14 食品群)

測定器はシリコン (表面障壁型) 半導体検出器 (EG&G ORTEC 社製) を備えている OCTÈTE Plus™ (EG&G ORTEC 社製) を用いた。検出器 1 と 2 は Model No. BR-SNA-600-100 (600mm<sup>2</sup>)、検出器 3-8 は BR-SNA-450-100 (400mm<sup>2</sup>) である。測定試料をこの検出器で 200,000 秒測定した。測定試料の正味計数を求め、回収率補正用トレーサ  $^{208}\text{Po}$  の計数率との比較、分析供試量等から  $^{210}\text{Po}$  の放射能濃度を算出した。

## C. 研究結果と考察

### 1. 食品中の放射性核種の濃度

### 1-1. $\gamma$ 線放出核種の放射能濃度

本 TDS では、 $^{137}\text{Cs}$  などの人工放射性核種や  $^{40}\text{K}$  に加えて、近年、食品中の濃度実態の把握が求められている天然の  $\gamma$ 線放射性核種（代表的な  $^{214}\text{Pb}$ 、 $^{214}\text{Bi}$ 、 $^{228}\text{Ac}$ 、 $^{212}\text{Pb}$ 、 $^{208}\text{Tl}$  などのウラン系列、トリウム系列核種）を対象とした。

本 TDS における  $\gamma$ 線放出核種の放射能濃度（調理後重量ベース）を食品群別に示す（表 2-1、表 3-1、表 4-1）。

今回の 3 ブロックにおける結果では、人工の  $\gamma$ 線放出核種として検出・定量されたのは  $^{137}\text{Cs}$  のみである。その放射能濃度は 3 地域ともに 0.1 Bq/kg 以下であり、多くの食品群では  $^{137}\text{Cs}$  は検出下限値以下であった。全食品群中の  $^{137}\text{Cs}$  濃度は、最小値が新潟市の米類（食品群 I）の 0.005 Bq/kg、最大値は横浜市の魚介類（食品群 X）の 0.093 Bq/kg であった。食品群別濃度は 3 ブロックで X 群の魚介類が最大値を示した（新潟市；0.090、高知市；0.078 Bq/kg）。魚介類が全食品群の中でも高濃度を示す傾向は全 3 年度の TDS においても認められた。他に、全 13 食品群の中では肉類・卵類、乳類、その他野菜・きのこ・海草類、野菜類、豆類、小麦・いも・種実類から 0.016～0.069 Bq/kg の  $^{137}\text{Cs}$  が定量された。

チェルノブイリ原子力発電所事故（1986 年）の後、厚生労働省が継続実施しているヨーロッパ産輸入食品

の放射能検査における放射性 Cs の暫定限度は 370 Bq/kg（ $^{137}\text{Cs}$  と  $^{134}\text{Cs}$  の合計値）である。本 TDS では、国内流通食品中の  $^{137}\text{Cs}$  濃度レベルはいずれも低いことが認められた。また、チェルノブイリ原子力発電所事故により放出された人工放射性核種の  $^{134}\text{Cs}$  は全 14 食品群で検出されなかった。

天然放射性核種の  $^{40}\text{K}$  は食品の必須および多量元素である K の同位体の一つとして約 0.012% 存在する。従って、3 ブロックにおいて、一部の油脂類（食品群 IV）では検出下限値以下（ $<0.812$ ）～0.9 Bq/kg であったが、すべての食品群から  $^{40}\text{K}$  が定量された。その濃度は全 13 食品群では 5.7～136.3 Bq/kg で、多くが 10 Bq/kg 以上のレベルであった。食品群別にはその他野菜・きのこ・海草類（食品群 VIII）、野菜類（食品群 VII）、豆類（食品群 V）の濃度が高く、低濃度は嗜好飲料類（食品群 IX）、次いで米類（食品群 I）であった。飲料水は極めて低い濃度 0.015～0.050 Bq/kg であった。

天然  $\gamma$ 線放射性核種の  $^{214}\text{Pb}$ 、 $^{214}\text{Bi}$ 、 $^{228}\text{Ac}$ 、 $^{212}\text{Pb}$ 、 $^{208}\text{Tl}$  濃度は 3 ブロック、各食品群ともに低濃度あるいは検出下限値以下にあり、食品中の存在量は小さいことが認められた。核種別では  $^{208}\text{Tl}$  が 3 ブロックともに検出が困難であった。 $^{214}\text{Pb}$  は小麦・いも・種実類（食品群 II）、砂糖・甘味料・菓子類（食品群 III）、油脂類（食品群 IV）などで 0.02～0.26 Bq/kg、

$^{228}\text{Ac}$  は小麦・いも・種実類（食品群Ⅱ）、砂糖・甘味料・菓子類（食品群Ⅲ）から 0.08～0.10 Bq/kg が検出された。

#### 1-2. $^{90}\text{Sr}$ の放射能濃度

$^{90}\text{Sr}$  の放射能濃度は飲料水（食品群 XⅣ）を除く全 13 食品群を食品群ごとに調理し、摂取量比に準じて均一混合した調製試料を分析して求めた。

$^{90}\text{Sr}$  濃度は横浜市と新潟市の試料では検出下限値未満、高知市では 0.03 Bq/kg（調理後重量ベース）であった。参考までに、全 3 年度（平成 16～18 年度）における TDS の結果は、国内 12 ブロックでの  $^{90}\text{Sr}$  濃度は 13～29 mBq/kg の範囲で平均値 ± 標準偏差は  $23 \pm 5.6$  mBq/kg（C.V.=24.3%）で、日本国内各地域で購入した食品の  $^{90}\text{Sr}$  濃度は地域間による差は比較的小さいことが認められている。

#### 1-3. $^{210}\text{Po}$ の放射能濃度

$^{210}\text{Po}$  放射能濃度は、横浜市については全 14 食品群それぞれを調理、調製した個別試料を分析した。また、新潟市と高知市は  $^{90}\text{Sr}$  と同様に飲料水（食品群 XⅣ）を除く全 13 食品群を調理、調製した混合試料中の  $^{210}\text{Po}$  を分析した。

それぞれの  $^{210}\text{Po}$  放射能濃度（調理後重量ベース）を示す（表 5）。

3 ブロックにおける全 14 食品群総計の  $^{210}\text{Po}$  放射能濃度は、横浜市、新潟市、高知市の順に、2.05、0.35、0.92 Bq/kg であった。 $^{210}\text{Po}$  放射能

濃度は各ブロックにより大きな差のあることが認められた。

食品群別の  $^{210}\text{Po}$  放射能濃度（横浜市）は、3 食品群で検出されたが他の 10 食品群では検出限界値未満であった。 $^{210}\text{Po}$  が定量された食品群は魚介類、乳類、調味料・香辛料類で、それぞれの濃度は 1.6、0.022、0.20 mBq/kg であった。これより食品群別には魚介類の  $^{210}\text{Po}$  濃度が極めて高いことが明らかとなった。これまでも、食品中の  $^{210}\text{Po}$  濃度は魚介類で高濃度を示すとの報告はあるが、いずれも食品素材そのものの分析値であった。本 TDS は調理後の調製試料を対象としていることからあらたな知見が得られた。

## 2. 放射性核種の 1 日摂取量

放射性核種の 1 日摂取量は測定あるいは分析した放射能濃度の結果と成人による消費量データをもとに求めた。

### 2-1. $\gamma$ 線放出核種の 1 日摂取量

$\gamma$  線放出核種の摂取量評価は、今回測定した 8 種類の核種（ $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{40}\text{K}$ 、 $^{214}\text{Pb}$ 、 $^{214}\text{Bi}$ 、 $^{228}\text{Ac}$ 、 $^{212}\text{Pb}$ 、 $^{208}\text{Tl}$ ）を対象とした。1 日摂取量（mBq/day）は個別の食品群ごとに求めた後、全 14 食品群の摂取量を積算した合計値とした。その結果を表に示す（表 2-2、表 3-2、表 4-2）。

今回の TDS では合計値（表中には T で表記）は以下の方法に準じて求めた。すなわち、本 TDS では対象とする各放射性核種や各食品群におけ



る放射能濃度が検出下限値を下回る結果がみられることから、その評価にあたっては、いわゆる“不検出”試料の摂取量はゼロとせずその検出下限値を摂取量と見なすよう考慮した。具体的には、合計値(T)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、この積算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することを意味する(表中では最小値<T<最大値で表記)。ここで、この考え方による摂取量評価では最大値については過大評価となることの認識が必要となる。

今回、3地域における人工放射性核種の<sup>137</sup>Csの最小値は横浜市、新潟市、高知市の順に下回った(27.6、15.6、10.2 mBq/day)。最大値は横浜市、高知市、新潟市の順であった(<72.4、<51.8、<35.4 mBq/day)。前3年度のTDSの結果では、国内12ブロックでの最小値は32.3 mBq/day(東京都渋谷区)~14.5 mBq/day(福岡市)、最大値は<64.6 mBq/day(那覇市)~<35.2 mBq/day(金沢市)であった。これより、<sup>137</sup>Csの1日摂取量は日本国内各地域において大きな差はないと評価される。食品群別には魚介類(食品群X)、肉類・卵類(食品群XI)、その他野菜・きのこ・海藻類(食品群VIII)からの摂取量が多い。

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<sup>134</sup>Csは本TDSにおける国内3地域の食品からは検出されておらず、その

1日摂取量は評価に及ばない。

天然放射性核種<sup>40</sup>Kの1日摂取量の合計値は3ブロックにおいて78650~94205(<94213) mBq/dayであった。食品群別には3ブロックいずれも、その他野菜・きのこ・海藻類(食品群VIII)がとくに高い摂取量で18349~29068 mBq/day、次いで小麦・いも・種実類(食品群II)、野菜類(食品群VII)、魚介類(食品群X)、肉類・卵類(食品群XI)などであった。油脂類(食品群IV)からは小さい摂取量であった。

天然放射性核種では、<sup>214</sup>Pb、<sup>214</sup>Biは<sup>238</sup>Uを、また、<sup>228</sup>Ac、<sup>212</sup>Pb、<sup>208</sup>Tlは<sup>232</sup>Thを起源としてウラン系列ならびにトリウム系列を構成している。近年、これら天然由来の放射性核種濃度の実態を把握し、その摂取量と被ばく線量寄与の評価が求められることから本TDSにおいても対象核種としている。今回、各核種ならびに各食品中の放射能濃度は検出限界値未満あるいは低い定量値であることから、TDSによる1日摂取量の結果は総体的に小さい値であった。<sup>214</sup>Pbは合計値の最小値としては0~45.4 mBq/day、同じく最大値は<77.8~<139.9 mBq/day、同様に<sup>214</sup>Biは最小値0~91.5 mBq/day、最大値<71.0~<163.0 mBq/day、<sup>212</sup>Pbは最小値5.9~9.3 mBq/day、最大値<61.8~<125.5 mBq/dayであった。<sup>208</sup>Tlは3地域において全14食品群からの検出はなく、その1日摂取量は評価に及ばない。

## 2-2. $^{90}\text{Sr}$ の 1 日摂取量

$^{90}\text{Sr}$  の 1 日摂取量は、全 14 食品群の中から飲料水(食品群 X IV)を除いた全 13 食品群を個別に調理、調製した後の均一混合試料の  $^{90}\text{Sr}$  分析結果をもとにして算出した。

3 ブロックにおいて  $^{90}\text{Sr}$  が定量されたのは高知市のみであったことから、高知市における  $^{90}\text{Sr}$  の 1 日摂取量を評価した。その値は 60 mBq/day であった。

前 3 年度における TDS による国内 12 ブロックでの  $^{90}\text{Sr}$  の 1 日摂取量は 20.8~60.0 mBq/day の範囲で平均値 ± 標準偏差は  $39.7 \pm 10.7$  mBq/day (C. V. = 27.0%) であった。本 TDS による高知市の値は過去のデータの上限值に相当する結果であることが示された。

## 2-3. $^{210}\text{Po}$ の 1 日摂取量

$^{210}\text{Po}$  の 1 日摂取量は、横浜市については全 14 食品群それぞれを調理、調製した個別試料、また、新潟市と高知市は飲料水(食品群 X IV)を除く全 13 食品群を調理、調製した個別試料の  $^{210}\text{Po}$  分析値をもとに算出した。その結果を表と図に示す(表 5、図 2)。

3 ブロックにおける  $^{210}\text{Po}$  1 日摂取量の総計は 192 (<242) ~ 1841 mBq/day の範囲であった。ブロックごとには横浜市が 192 (<242)、新潟市が 694、高知市が 1841 mBq/day であった。 $^{210}\text{Po}$  の 1 日摂取量評価は本年度から実施を開始したが 3 地域における値には大きな差があることが

分かった。

横浜市を対象として全 14 の個別の食品群について 1 日摂取量を求めた。このうち  $^{210}\text{Po}$  が定量されたその他野菜・きのこ・海草類、嗜好飲料類、魚介類、肉類・卵類、調味料・香辛料類の 5 食品群の摂取量は、それぞれ 37.5、3.8、130.0、2.2、18.7 mBq/day であった。この結果、 $^{210}\text{Po}$  の 1 日摂取量を食品群別に評価すると 70%近くが魚介類、20%がその他野菜・きのこ・海草類に由来することが明らかとなった。近年、食品の中でも魚類の  $^{210}\text{Po}$  放射能濃度が高いとの報告がみられるが、これらは食品素材におけるデータであり、本 TDS では調理後における新知見が得られた。

## 3. 被ばく線量推定評価

### 3-1. 線量評価方法

食品の摂取にともなう放射性核種による暴露量(被ばく線量(Sv))算出の基本は、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。

本研究では前 3 年度(平成 16~19 年度)の TDS と同様な方法で線量を算定、評価した。

本 TDS で用いた算出式の例は以下のとおりである。

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

ここで、

$A_{m,i}$ : 食品  $m$  の摂取に起因する放射

性核種  $i$  の摂取量 (Bq)

$C_{m,i}$ : 採取時における評価対象食品  $m$  中放射性核種  $i$  濃度 (Bq/kg)

$t_m$ : 食品  $m$  の摂取期間 (d)

$M_m$ : 食品  $m$  の 1 日あたりの摂取量 (kg/d)

$f_{mm}$ : 食品  $m$  の市場希釈係数 (-)

$f_{dm}$ : 食品  $m$  の調理による除染係数 (-)

この計算式において、本 TDS で対象とする放射性核種は  $^{210}\text{Po}$  (半減期; 138.4 日) を除き物理的半減期が極めて長いために食品試料の採取時から測定時の間の物理的減衰は考慮を要しない。一方、 $^{210}\text{Po}$  は流通、保存、摂食までに時間を要する場合はその物理的半減期による減衰補正が求められることに留意する。従って、本 TDS においては、食品の  $^{210}\text{Po}$  分析終了時点における濃度をもとにして線量算出をすることとした。すなわち、本 TDS で対象とする放射性核種の場合、放射性核種  $i$  の摂取量 (Bq) は以下の式で求めることができる。

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、

$H$ : 食品摂取に起因する実効線量 (mSv)

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

ここでは、上記の算出式を用い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 (ICRP Publication 72) の成人に対する数値を適用した。

### 3-2. $\gamma$ 線放出核種による被ばく線量評価

食品中の放射能濃度と消費量データをもとに求めた 1 日摂取量に線量換算係数を適用して算出した摂取にともなう成人の年実効線量を表に示す (表 2-3、表 3-3、表 4-3)。ここでは、さきの 1 日摂取量と同様な考え方から検出下限値も考慮した。このため、合計値は、最小値  $<T$  最大値として表記した。

$\gamma$  線放出核種のうち、 $^{137}\text{Cs}$  の被ばく線量 (線量換算係数は  $1.3 \times 10^{-5}$  mSv/Bq) は、最小値は 3 ブロック順に横浜市で 0.131、新潟市で 0.074、高知市で  $0.049 \mu\text{Sv/year} \cdot \text{person}$  と評価された。また、最大値は横浜市で  $<0.343$ 、新潟市で  $<0.168$ 、高知市で  $<0.246 \mu\text{Sv/year} \cdot \text{person}$  であった。 $<0.167 \sim <0.249 \mu\text{Sv/year}$  と算出された。前 3 年度における TDS による国内 12 ブロックでの  $^{137}\text{Cs}$  年実効線量は  $0.069 \sim <0.31 \mu\text{Sv/year} \cdot \text{person}$  であり、3 ブロックでの結果はこれらの数値に準じている。

$^{40}\text{K}$  (線量換算係数は  $6.2 \times 10^{-6}$  mSv/Bq) は、横浜市で 204.72、新潟市で 213.2、高知市で  $178.0 \mu\text{Sv/year} \cdot \text{person}$  と算出された。前 3 年度における TDS による国内 12 ブロックでの  $^{40}\text{K}$  年実効線量は  $130 \sim <204 \mu\text{Sv/year} \cdot \text{person}$  であり、3 ブロックでの結果はこれら数値の上

限に位置した。

天然放射性核種の  $^{214}\text{Pb}$  (線量換算係数は  $1.4 \times 10^{-7}$  mSv/Bq)、 $^{214}\text{Bi}$  (線量換算係数は  $1.1 \times 10^{-7}$  mSv/Bq)、 $^{228}\text{Ac}$  (線量換算係数は  $4.3 \times 10^{-7}$  mSv/Bq)、 $^{212}\text{Pb}$  (線量換算係数は  $6.0 \times 10^{-6}$  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を算出した。さきの放射能濃度の項で示したとおり、これら放射性核種の各食品群濃度はその多くが検出下限値未満であった。したがって、本 TDS では評価の一方法として、1 日摂取量合計値の中から最小値と最大値を用いて年実効線量を試算した。以下に、その各放射性核種別に結果を示す。例えば、 $^{214}\text{Pb}$  の線量を最小値～最大値で示すと  $0 \sim < 0.002 \mu\text{ Sv/year} \cdot \text{person}$  となる。前 3 年度における TDS による国内 12 ブロックでの  $^{214}\text{Pb}$  年実効線量は  $0.0001 \sim < 0.008 \mu\text{ Sv/year} \cdot \text{person}$  の結果が得られている。同様に表すと、 $^{214}\text{Bi}$  は  $0 \sim < 0.007 \mu\text{ Sv/year} \cdot \text{person}$ 、前 3 年度は  $0 \sim < 0.007 \mu\text{ Sv/year} \cdot \text{person}$  であった。 $^{228}\text{Ac}$  は  $0 \sim < 0.051 \mu\text{ Sv/year} \cdot \text{person}$ 、前 3 年度は  $0.001 \sim < 0.058 \mu\text{ Sv/year} \cdot \text{person}$ 、 $^{212}\text{Pb}$  は  $0.016 \sim < 0.279 \mu\text{ Sv/year} \cdot \text{person}$ 、前 3 年度は  $0 \sim < 0.193 \mu\text{ Sv/year} \cdot \text{person}$  と算出された。なお、 $^{208}\text{Tl}$  は本 TDS で引用する ICRP Publication に線量換算係数 (ICRP Publication 72) の記載がないために線量の算出は行わなかった。

本研究と前 3 年度の TDS の結果よ

り、 $\gamma$  線放出核種の中では食品摂取に伴う放射性核種の被ばく寄与は  $^{40}\text{K}$  が一番大きいこと、食品別にはその他野菜・きのこ・海草類 (食品群 VIII) で高いこと、また、その年実効線量は  $^{137}\text{Cs}$  と同様に日本国内各地域において大きな差はないことが明らかとなった (図 2)。

### 3-3. $^{90}\text{Sr}$ による被ばく線量評価

$^{90}\text{Sr}$  摂取にともなう成人の年実効線量は放射能濃度と消費量データをもとに求めた 1 日摂取量と線量換算係数 (線量換算係数は  $2.8 \times 10^{-5}$  mSv/Bq) を適用して算出した。

3 ブロックにおいて  $^{90}\text{Sr}$  が定量されたのは高知市のみであったことから、高知市における  $^{90}\text{Sr}$  による年実効線量を評価した。その値は  $0.68 \mu\text{ Sv/year} \cdot \text{person}$  であった。この数値は前 3 年度の TDS による国内 12 ブロックでの  $^{90}\text{Sr}$  による年実効線量は  $0.21 \sim 0.61 \mu\text{ Sv/year}$  の範囲で平均値  $\pm$  標準偏差は  $0.41 \pm 0.11 \mu\text{ Sv/year}$  (C. V. = 26.8%) と同程度であった。なお、これらの算定値は国連科学委員会 2000 年報告 (UNSCEAR 2000) の  $0.56 \mu\text{ Sv/year} \cdot \text{person}$  と比較的良い一致を示した。

### 3-4. $^{210}\text{Po}$ による被ばく線量評価

$^{210}\text{Po}$  (線量換算係数は  $1.2 \times 10^{-6}$  mSv/Bq) による成人の年実効線量を算出した。

3 ブロックにおける  $^{210}\text{Po}$  の年実効線量は  $84 \sim 806 \mu\text{ Sv/year} \cdot \text{person}$  の範囲 (横浜市: 84、新潟市: 304、高知市:  $806 \mu\text{ Sv/year} \cdot$