

塩の摂取源としてハウレンソウが重要である可能性が高い。

硝酸塩の経口摂取量について、ポーランド、フランス、デンマークの調査結果が報告されている。ポーランドの摂取量は家計支出と食品中の硝酸塩濃度の文献値から計算されており、ADIの58%である132-190 mg/man/dayであった。主要摂取源は日本の結果と同じく野菜であり、89%の硝酸塩が野菜から摂取されている²³⁾。フランスの調査は食品中の硝酸塩濃度13,657データと消費調査データから得られている。成人の硝酸塩摂取量はADIの40%、子供は51-54%であった²⁴⁾。デンマークで推定された硝酸塩摂取量は、野菜中の硝酸塩濃度調査結果²⁰⁾と消費調査データに基づいており、野菜からの摂取は平均40 mg/man/day、総摂取量は61 mg/man/dayと推定されている。

日本での調査結果としては、昨年の厚生労働科学研究においてトータルダイエツト試料から推定された4.0 mg/kg bw/day(200 mg/man/day)、及び陰膳方式により推定された2.87 mg/kg bw/day(191 mg/man/day)²⁵⁾が報告されているが、いずれもヨーロッパにおける報告よりもかなり高値である。

E. 結論

硝酸塩濃度が高いと予想される大根、レタス、ハウレンソウ中の硝酸塩濃度の周年変動を調査したところ、大根とレタスでは冬季に硝酸塩濃度が高く、ハウレンソウでは逆に夏季に硝酸塩濃度が上昇することが明らかとなった。また、これら3種の野菜中、ハウレンソウは特に硝酸塩濃度が高く、ヨーロッパにおける基準を大きく上回る試料が多数あった。

文献調査の結果から、ヨーロッパではレタスとハウレンソウ中の硝酸塩濃度を比較すると、レタスの方がやや高く、日本での順序と

は異なっている。また、ヨーロッパで実施された硝酸塩摂取量調査では、一日摂取量はADIよりもかなり低い。一方、日本の調査結果はADIを越えた硝酸塩が摂取されていることを示している。

国民栄養調査によれば、ハウレンソウの一日摂取量は19.8 gである。今回の調査で得られたハウレンソウ中の硝酸塩濃度の平均値は3,872 mg/kgであり、この値からハウレンソウから摂取される硝酸塩の量は77 mg(1.54 mg/kg bw/day)と推定される。TDSにより推定された一日の総摂取量は200 mgであり、ハウレンソウからの摂取が1/3以上を占めていることになる。またこの摂取量は、JECFAにより設定されたADI 3.7 mg/kg bw/dayの40%以上である。ハウレンソウの栽培方法等の変更によって、硝酸塩濃度を低下させレタス程度の2,000 mg/kgとできれば、ハウレンソウからの硝酸一日摂取量は40 mg(0.8 mg/kg bw/day)となり、現在の摂取量推定値の4 mg/kg bw/dayが3.3 mg/kg bw/dayまで減少し、ADI以下となることが期待される。

文献

- 1) 藤沼賢司, 井部明広, 田端節子, 橋本秀樹, 斎藤和夫, 中里光男, 石川ふさ子, 守安貴子, 嶋村保洋, 菊地洋子, 小川仁志, 牛山博文, 横山敬子, 安田和男; 野菜類等の硝酸根, 亜硝酸根の含有量調査, 東京都健康安全研究センター研究年報, 58, 2007
- 2) 藤原隆広, 熊倉裕史, 大田智美, 吉田祐子, 亀野貞; 市販ハウレンソウのL-アスコルビン酸および硝酸塩含量の周年変動, 園学研, 4, 347-352, 2005
- 3) Nitrate (JECFA Food Additives Series 50): 02-28-08,

<http://www.inchem.org/documents/jecfa/jecmon/o/v50je06.htm>

- 4) S.K.Gupta, R.C.Gupta, A.K.Seth, A.B.Gupta, M.Tech, K.J.Bassin, D.K.Gupta, S.Sharma; Epidemiological evaluation of recurrent stomatitis, nitrates in drinking water and cytochrome b5 reductase activity, *Am.J.Gastroenterol.*, 94, 1808-1812, 1999
- 5) H.Suzuki, K.Iijima, A.Moriya, V.Fyfe, K.E.L.McColl; Luminal nitrosation potential following nitrate ingestion is maximal at the GO junction, *Gut*, 50 (Suppl.11),A37, 2002
- 6) K.Iijima, E.Henry, A.Moriya, A.Wirz, A.W.Kelman, K.E.L.McColl; Dietary nitrate generates potentially mutagenic concentrations of nitric oxide at the gastroesophageal junction, *Gastroenterology*, 2002
- 7) C.Krul, M.Zeilmaker, R.Schothorst, M.Kotterman, D. van Doorn, R.Havenaar, Intragastric formation of N-nitrosodimethylamine under realistic, human physiological conditions studied with a dynamic in vitro gastrointestinal model. , Ph.D.Thesis, University of Utrecht
- 8) M.M.Morales Suarez Varela, A.Llopis-Gonzalez, M.L.Tejerizo-Perez; Impact of nitrates in drinking water on cancer mortality in Valencia, Spain.*Eur.J.Epidemiol.*, 11,15-21, 1995
- 9) C.Y.Yang, H.F.Chiu, J.F.Chiu, M.F.Cheng, W.Y.Kao; Gastric cancer mortality and drinking water qualities in Taiwan, *Arch.Environ. Contami.Toxicol.*,33,336-340,1997
- 10) J.H.Barrett, R.C.Parslow, P.A.McKinney, G.R.Law, D.Forman; Nitrate in drinking water and the incidence of gastric, esophageal, and brain cancer in Yorkshire, England.*Cancer Cause Control*, 9,153-159, 1998
- 11) J.A. van Leeuwen, D.Waltner-Toews, T. Abernathy, B.Smit, M.Shoukri; Association between stomach cancer incidence and drinking water contamination with atrazine and nitrate in Ontario (Canada) agroecosystems, 1987-1991, *Int.J.Epidemiol.*, 28, 836-840, 1999
- 12) A.J.M. van Loon, A.A.M.Botterweck, R.A. Goldbohm, H.A.M.Brants, J.D. van Klaveren, P.A. van den Brandt; Intake of nitrate and nitrite and the risk of gastric cancer: A prospective cohort study, *Br.J.Cancer*, 78, 126-139,1998
- 13) P.J.Weyer, J.R.Cerhan, B.C.Kross, G.R. Hallberg, J.Kantamnenum G.Breuer, M.P.Jones, W.Zheng, C.F.Lynch; Municipal drinking water nitrate level and cancer risk in older women: The Iowa women's health study, *Epidemiology*, 11, 327-338
- 14) P.A.McKinney, R.Parslow, H.J.Bodansky; Nitrate exposure and childhood diabetes, *J.R.Soc.Chem.*, 237, 327-339, 1999
- 15) J.M.S. van Maanen, H.J.Albering, T.M.C.M. de Kok, S.G.J. van Brenda, D.M.J.Curfs, I.T.M. Vermeer, A.W.Ambergen, B.H.R. Wofenbuttel, J.C.S.Kleinjans, H.M.Reeser; Does the risk of childhood diabetes mellitus require revision of the guideline values for nitrate in drinking Water? *Environ.Health Perspectives*, 108,457-461, 2000
- 16) S.K.Gupta, R.C.Gupta, A.K.Seth, A.B.Gupta, K.J.Bassin, A.Gupta; Methaemoglobinaemia in areas with high nitrate concentration in drinking water, *Natl. Med.J.India*, 13, 58-61, 2000
- 17) F.M.E.Suvanto, M.L.Pohjola; Nitrates in drinking water and methemoglobin in blood,

Kemia-Kemi, 22, 400-401, 1995

- 18) E.Hegesh, J.Shiloah; Blood nitrates and infantile methemoglobinemia, Clin.Chem.Acta, 125, 107-115, 1982
- 19) L.Merion, P.O.Darnerud, U.Edberg, P.Aman, M.D.Castillo; Levels of nitrate in Swedish lettuce and spinach over the past 10 years, Food Addit.Contam., 23, 1283-1289, 2006
- 20) A.Petersen, S.Stoltze; Nitrate and nitrite in vegetables on the Danish market: content and intake, Food Addit.Contam., 16, 291-299, 1999
- 21) G.Ysart, R.Clifford, N.Harrison; Monitoring for nitrate in UK-grown lettuce and spinach, Food Addit.Contam., 16, 301-306, 1999
- 22) S.Y.Chung, J.S.Kim, M.K.Hong, J.O.Lee, C.M.Kim, I.S.Song; Survey of nitrate and nitrite contents of vegetables grown in Korea, Food Addit.Contam., 20, 621-628, 2003
- 23) A.Wawrzyniak, J.Hamulka, M.Pajak; Evaluation of nitrates and nitrites food intake in Polish households in years 1996-2005, Rosz Panstw Zakl Hig., 59, 9-18, 2008
- 24) C.Menard, F.Heraud, J.L.Volater, J.C.Lebanc; Assessment of dietary exposure of nitrate and nitrite in France, Food Addit. Contam., 25, 971-988, 2008
- 25) 村田美穂子, 石永正隆; 陰膳方式による成人男性の硝酸及び亜硝酸の一日摂取量, 食衛誌, 42, 215-219, 2001

F. 研究発表

1. 論文発表

- 1) 松田りえ子, 渡邊敬浩, 五十嵐敦子, 白政優子, 米谷民雄: トータルダイエツト試料の分析による硝酸塩の摂取量推定, 食品衛生学雑誌

2. 学会発表

- 1) 松田りえ子, 白政優子, 渡邊敬浩, 米谷民雄: トータルダイエツト試料分析による硝酸摂取量の推定, 日本食品化学学会第14回学術大会(2008.5)

Table 1 試料とした野菜の産地

	3月	5月	7月	9月	11月	1月
大根	茨城 神奈川 神奈川 神奈川 静岡	群馬 茨城 埼玉 東京都 千葉	北海道 青森 群馬 長野 山梨	北海道 北海道 青森 群馬 山梨	青森 埼玉 千葉 神奈川 山梨	群馬 埼玉 千葉 神奈川 京都
レタス	茨城 千葉 静岡 兵庫 香川	長野 群馬 茨城 千葉 兵庫	岩手 群馬 千葉 長野 香川	北海道 岩手 群馬 長野 静岡	栃木 茨城 長野 静岡 兵庫	茨城 千葉 静岡 兵庫 香川
ほうれん草	岩手 茨城 埼玉 東京 千葉	北海道 秋田 群馬 埼玉 千葉	北海道 秋田 栃木 千葉 岐阜	北海道 青森 群馬 栃木 岐阜	北海道 秋田 群馬 栃木 千葉	岩手 群馬 埼玉 茨城 千葉

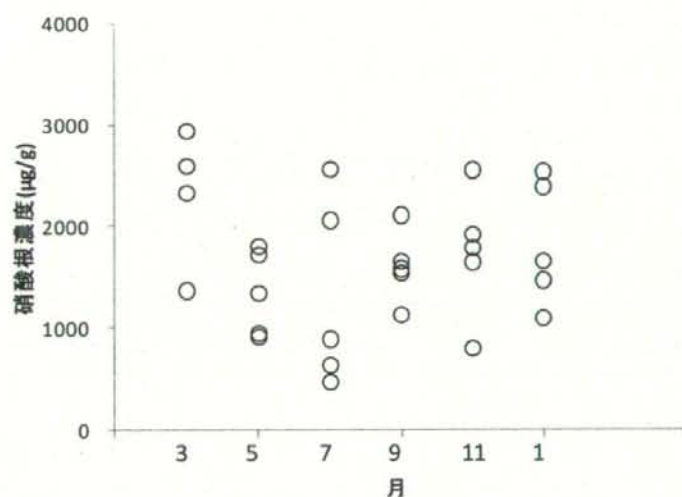


Fig.1 大根中の硝酸塩濃度周年変化

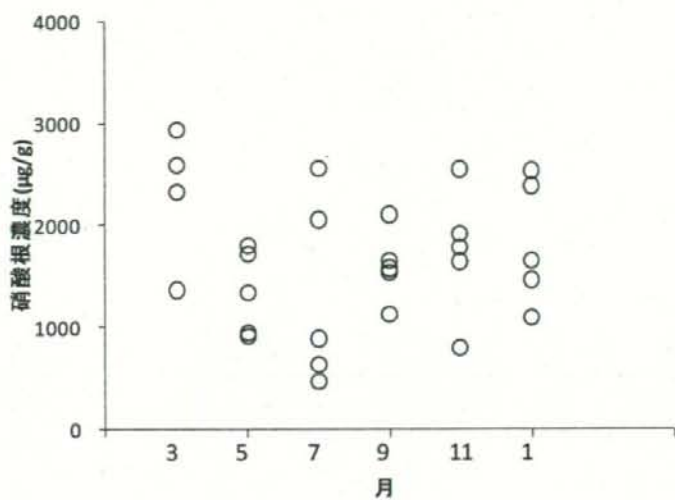


Fig.2 レタス中の硝酸塩濃度周年変化

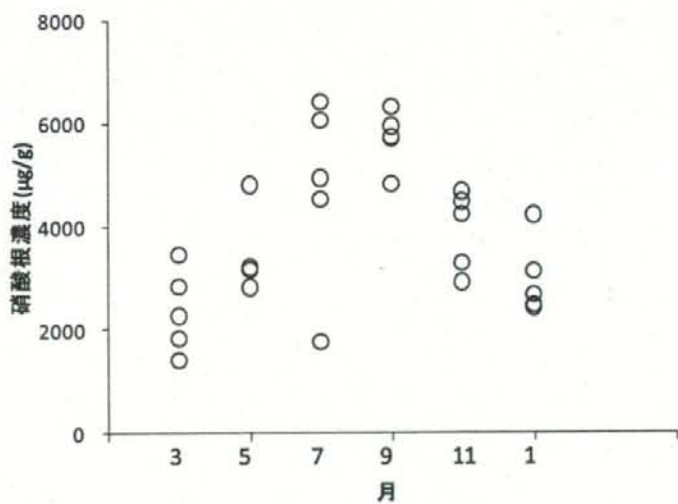


Fig.3 ホウレンソウ中の硝酸塩濃度周年変化

分 担 研 究 報 告

摂取量調査の信頼性向上に関する研究

松田りえ子

食品中の有害物質等の摂取量の調査及び評価に関する研究

研究分担報告書

摂取量調査の信頼性向上に関する研究

研究代表者 松田りえ子 国立医薬品食品衛生研究所食品部部長
研究分担者 松田りえ子 国立医薬品食品衛生研究所食品部部長

研究要旨

食事を介してのみ摂取されるトランス脂肪酸(TFA)を例として取り上げ、トータルダイエット試料(TDS)法で得られた摂取量推定値、及び内閣府食品安全委員会により実施された調査の結果として報告された、マーガリン等の個別食品摂取量からの推定値を比較した。さらに、一食として販売される、外食及び中食(one serving 試料)の分析から推定された TFA 摂取量と、TDS により推定された一日摂取量の比較を行った。食品安全委員会の調査の積み上げ方式と生産量からの推定方式による 2 種類の推定値は、同一の分析結果からの推定にも関わらず、2 倍の差があった。TDS 分析により推定した TFA 摂取量の平均は約 0.70 g/man/day で積み上げ方式から推定した値に近い結果となった。One serving 試料からの TFA 摂取量は分布が広く、高いものは一食で TDS から推定した一日摂取量を超え、また全てが TDS 結果から推定した一食分を越えていた。

研究協力者 渡邊敬浩 国立医薬品食品衛生研究所食品部

A. 研究目的

食事を介した汚染物質の摂取量調査では、トータルダイエット試料 (TDS)を用いた推定が広く実施されている。TDSによれば、対象とした集団における平均的な摂取量を精密に評価できるが、平均から外れた食品摂取を行うグループについての情報は得られないという欠点がある。平成 19 年には、汚染物質摂取量推定の信頼性の向上を目的として、陰膳法、行政検査による方法、香料分野で用いられている PCTT 法、モンテカルロ法等の摂取量調査方法についてその

特徴、国内外での実施状況を調査した。

本年度は、食事を介してのみ摂取されるトランス脂肪酸(TFA)を例として取り上げ、TDS 法で得られた摂取量推定値、及び内閣府食品安全委員会により実施された調査の結果として報告されたマーガリン等の個別食品摂取量からの推定値を比較した。さらに、実際に一食として販売されている弁当等の食品(one serving 試料)中の TFA を測定し、TDS からの推定値との比較を行った。

B. 研究方法

食品安全委員会により報告された TFA 摂取量として、ファクトシート¹⁾及び食品に含まれるトランス脂肪酸の評価基礎資料調査報告書²⁾に掲載されている値を採用した。TDS 試料ならびに one serving 試料からの摂取量は、国立衛生研究所食品部において、支出委任経費（食品等試験検査費）により実施された分析の結果から推定した。

以下に、TDS 試料及び one serving 試料の分析方法を示す。

試料

TDS 試料は、本研究班課題である「日常食の汚染物質摂取量及び汚染物モニタリング調査研究」において作成された試料の一部を使用した。14 の食品群のうち、TFA 濃度が高いと推定される 2 群(小麦製品)、3 群(甘味、菓子)、4 群(油)、11 群(肉)、12 群(乳)及び、TFA に関する報告事例の少ない 10 群(魚介)を対象とした。試料調製は、地方衛生研究所、大学及び国立衛研（計 11 カ所）において行い、全試料数は 66 となった。

One serving 試料は、我が国で一般的に流通している弁当等の食品のうち、TFA の摂取に大きく寄与すると考えられたファーストフードの「ハンバーガー」と「ピザ」を選択した。さらに、一般的な食生活の感覚に照らして分類した「洋食」、「中華」、「和食」に区分される弁当、飲食店で一食として販売される食品を加えた。区分ごとに 10 種を購入し、総試料数を 50 とした。試料の一覧を Table 1 に示す。

分析

脂肪を抽出した後、AOCS official methods Ce1b-89 に準じて、トリグリセライド分解

とメチルエステル化を行い、AOCS Ce1h-05 に規定された GC-FID 法により TFA を定量した。

粗脂肪抽出

TDS 試料は予め均一に混合されているので、その内の 7 g を採取した。One serving 試料は均一に混合した後に、7 g を採取した。米飯中には TFA が含まれないと予想されるため、取り除ける場合には除去した後に混合した。

分取した試料を凍結乾燥した後、水 10 mL を加えて膨潤させ、メタノール 50 mL で 1 時間振とう抽出し、さらにクロロホルム 100 mL を加えて 1 時間振とう抽出した後、ろ紙を用いてろ過した。残渣をメタノール：クロロホルム混液(1:2)で洗浄した液を、先のろ過液と合わせ、分液漏斗に入れ 0.88%塩化カリウム水溶液 93 mL を加えて軽く振とうした後、一晚静置した下層を無水硫酸ナトリウムで脱水し、40°C で溶媒を減圧留去して得られた残留物を粗脂肪とした。

脂肪酸のメチルエステル化

粗脂肪をクロロホルムで希釈して 250 mg/mL 濃度とし、この溶液 1 mL と内部標準である 2.5 mg/mL トリヘネイコサノイン・クロロホルム溶液 1 mL をよく混合した。窒素気流下でクロロホルムを除去し、0.5 mol/mL 水酸化ナトリウム・メタノール溶液 1.5 mL を加え、100°C で 9 分間加熱してトリグリセライドを分解した。ここに三フッ化ホウ素メタノール錯体・メタノール溶液 2 mL を加え、再度 100°C で 7 分間加熱し遊離脂肪酸をメチルエステル化した。放冷後、ヘキサン 3 mL を加えて振とうして得たヘキサン層に、飽和食塩水 5 mL

を加えて軽く振とうし、遠心分離して得たヘキサン層を試験溶液とした。

測定

キャピラリーカラムには SP-2560 (SPELCO 社製固層シリカカラム)を、キャリアーガスには窒素を用い、ヘッド圧 286 kPa, flow rate 1.0 mL/min, linear velocity 19 cm/s の条件で分析した。注入口及び検出器温度は 250°Cとし、カラムオープン温度を 180°Cの一定温度とした。検出器には水素イオン化検出器(FID)を用い、メイクアップガスには水素及び空気を使用した。

個々の脂肪酸メチルエステル量は、内標準として加えたヘネイコサン酸(C21:0)のピーク面積に対する比率及びFID感度を補正する理論的変換係数により定量した。個々の脂肪酸ピークは、各脂肪酸メチルエステル標品とのリテンションタイム比較により同定した。しかし、トランス脂肪酸については全ての標品が入手できず、また完全分離もできなかったため、炭素数 18 の TFA を二重結合の数により、C18:1, C18:2, C18:3 にグルーピングし、個々のグループにアサインされたリテンションタイムの範囲の全てのピークを合算して定量した。

各試料毎に、総脂肪量、総飽和脂肪酸量、送付飽和脂肪酸量、総 TFA 量を求め、TDS 試料については群毎の TFA 一日摂取量 (mg/man/day)を、one serving 試料は一食からの TFA 摂取量(mg)を求めた。

C. 研究結果

平成 18 年に、内閣府食品安全委員会は「食品に含まれるトランス脂肪酸の評価基礎資料調査」を実施した。この調査では、国内に流通している食品から、TFA を含有

すると予想される 19 種を選び、総数 386 検体を購入し、TFA 濃度を測定している。対象となった食品は、パン類、菓子パン類、即席中華麺、油揚げ、牛肉、肉類(内臓)、牛乳、チーズ、発酵乳・乳酸菌飲料、その他の乳製品、バター、マーガリン、植物性油脂、動物性油脂、その他の油脂、ケーキ・ペストリー、ビスケット、その他の菓子、マヨネーズであった。

これらの食品中の TFA 濃度及び国民健康・栄養調査に基づいた該当する食品の摂取量から、一日摂取量が推定された(積み上げ方式)。また、食用加工油脂生産統計によるマーガリン・ショートニング生産量と TFA 濃度から、TFA 供給量を推定し人口で割った値を TFA 摂取量とした推定も行っている(生産量からの推計方式)。積み上げ方式からの TFA 摂取量は 0.70 g/man/day、生産量から推定した摂取量は 1.31 g/man/day であり、2 つの推定値は 2 倍近く異なっている。

一方、11 地域で作成した TDS 試料分析により推定した TFA 摂取量は 0.39-1.54 g/man/day の範囲にあり、平均は約 0.71 g/man/day で食品安全委員会の積み上げ方式から推定した値、0.70 g/man/day に近い結果となった(Table 2)。One serving 試料から摂取される TFA 量の分布は広く、1 食当たり 0.11-2.12 g の範囲にあり、平均は 0.64 g であった(Table 4)。

D. 考察

食品安全委員会及び国立医薬品食品衛生研究所食品部において、各種方式により推定された TFA 摂取量を Table 3 に示す。食品安全委員会の調査により得られた 2 種類

の推定値は、同一の分析結果からの推定にも関わらず、0.70 g/man/day と 1.31 g/man/day と 2 倍の差があった。これに対して、積み上げ方式では外食で摂取される水素添加油脂量が完全に反映されていない、積み上げの対象とすべき食品が漏れている、等の原因から過小に評価される可能性があるとしている。一方、生産量からの推定方式では、水素添加油脂の生産量に一定の損耗率(0.654)を掛けて推定しているが、この値が適切であるかの判断は困難であり、過大に見積もられる可能性があるとしている。

食品安全委員会の調査で選択された食品は、TDS における食品分類の 2 群、3 群、4 群、11 群、12 群に含まれるため、TDS 方式での摂取量推定に魚介類の群が含まれている点を除いて、ほぼ一致している。TDS 方式により推定した TFA 摂取量は 0.71 g/man/day で、食品安全委員会の積み上げ方式の結果、0.70 g/man/day とほぼ等しい。しかし、TDS は 11 カ所で作成されており、それぞれの試料作成者が独自に食品を選択しているため、広範囲の食品が含まれており、推定された摂取量は 0.39-1.54 g/man/day の広い範囲となった。

Fig.1 に TDS 方式により推定された各地域での TFA 摂取量と食品群毎の寄与割合を示した。平均すると、TFA 摂取量は乳・乳製品が含まれる 12 群から 44%を摂取しており、次いで油脂の群 (4 群) から 20%、魚の群 (10 群) から 14%、肉の群 (11 群) から 10%を摂取しており、パン・菓子の群 (2 群及び 3 群) からの摂取割合は 11%と比較的少ない結果であった。しかし、個々の TDS 試料についてみると、摂取割合は地域ごとの変動がかなり大きく、11 地域全体

としては摂取への寄与の少ない 2 群から多くを摂取している場合、あるいは魚と肉の群の寄与割合が逆転している場合もあった。

食品安全委員会により報告された積み上げ方式の調査結果では、油脂から 31%、パン・菓子類から 26%、乳・乳製品から 23%、肉類から 12%を摂取していると推定されており、これと TDS 方式による推定結果を比較すると、TDS では最も寄与が大きかった乳製品からの寄与が 3 番目であること、TDS では 4 番目であったパン・菓子類からの寄与が 2 番目であること等、寄与の大きさ及び順位に差が見られた。特に TDS 方式による推定では、3 群にあたる菓子類からの TFA 摂取量は 0.026 g に過ぎないが、食品安全委員会の推定ではケーキ・ペストリーから 0.052 g、ビスケットから 0.032 g、その他の菓子から 0.026 g を摂取しているとされており、その差が大きい。食品安全委員会の調査では、ケーキ・ペストリー類の試料として、シュークリーム・スポンジケーキ・イーストドーナツの各 4 試料を測定し、TFA 濃度の平均値から摂取量を推定している。一方、TDS 方式ではケーキ・ペストリー分類に含まれる食品としてアップルパイ等を選ぶことも想定され、このような選択をした場合には TFA を高濃度含むと考えられるパイ皮の比率が下がり、結果として TFA 摂取量が低く見積もられる可能性がある。

また、Fig.1 に示すように 2 地域(F と H) の TDS 試料では 12 群からの摂取量が非常に大きく、全体の 50%を越えている。そこで原材料表を確認したところ、この 2 地域で 12 群の試料作成に使用した食品中に、植物性脂肪から製造されたコーヒークリーム

が含まれていた。この特定の製品は TFA 含量が特に高いことが事前から明らかとなっており、この事がこれら 2 地域の 12 群の摂取量を大きくしている。これらの地域を除いて、摂取量への寄与を再計算すると、乳・乳製品から 32%、油脂の群から 26%、肉の群から 13%、パン・菓子の群から 15% となり、食品安全委員会の結果とやや近くなったが、依然として寄与の順序に差がみられる。

上に示した TFA 含量の高い特定の製品を使用した試料を除いた場合、TDS 方式から推定される TFA 摂取量は 0.39 - 0.83 g/man/day、平均は約 0.58 g/man/day となった。食品安全委員会が分析した試料には、その他の乳製品として植物油脂クリーミング食品及びコーヒードライ状クリーミング 4 試料が含まれており、それらの TFA 濃度は 2g/100g 以上で高い値となっている。しかし、その他の練乳・アイスクリーム等の試料数が 20 あるため、平均濃度への寄与が少なく、その他の乳製品からの摂取量は 0.04 g/man/day、乳類全体からの摂取量は 0.25g/man/day にとどまったと考えられる。植物性脂肪を原材料とするクリームは、国民健康・栄養調査ではその他の乳製品に分類され、これには 20 種類以上の乳製品が含まれるが、TDS 試料を提供した機関の多くがこの食品を試料調製に含めた結果、その寄与が大きくなったと考えられる。このように、摂取量調査対象を極端に高い濃度で含有する特定の食品がある場合には、個別食品の摂取量に基づく推定方式では、試料とする食品の選択が結果に大きな変動を与える要因となる可能性がある。

食品安全委員会の考察にもあるように、

積み上げ方式では、外食で摂取される水素添加油脂量が完全に反映されていない可能性がある。また、TDS 試料の調製においては、食品分類の群として油の群が設定してあるため、他の群に分類される食品の調理には油で揚げる方法は含めていない。このため、高温調理過程で生成される TFA の量は推定に含められていない。One serving 試料は、そのまま食することのできる完全に調理済みの食品試料であり、調理過程で生成する TFA が含まれていると考えられる。従って、one serving 試料からの TFA 摂取量推定値は、TDS で過小評価となる要因の程度を見積もるデータとなると期待される。

Table 4 及び Fig.2 に one serving 試料の区分毎に、TFA 摂取量を示した。結果の項でも述べたように、one serving 試料一食からの TFA 摂取量は 0.11 - 2.12 g であり、広い範囲に分布しているが、試料区分毎に明らかな違いが見られる。ファーストフードとして選んだハンバーガーとピザからの TFA 摂取量はいずれからも大きく、特にピザからの摂取量は全ての試料において、積み上げ方式あるいは TDS 方式から推定された TFA 一日摂取量の平均値である 0.7 g あるいは 0.58 g を超えている。和食及び中華弁当類一食からの TFA 摂取量は平均 0.29 g (0.11 - 0.63 g) であり、TDS 方式で推定した一日摂取量(0.58 g/man/day)の 50%程度であった。選択した試料には、揚げたあるいは炒めた副食が多く含まれていた。TDS 試料の調製過程にはこのような調理を含めていない事が原因となり、one serving 試料からの推定値が TDS から推定した一食分(一日摂取量の 1/3)よりやや高くなった可能性がある。洋食の弁当からの TFA 摂取量の範

困は広く、最小(若鶏の唐揚げ弁当)は0.14 gで中華・和食と同程度であったが、最高(エビグラタン)は1.86 gでピザ等よりも高い結果となった。

One serving 試料からのTFA摂取量の分布は広く、TDSから推定した一日摂取量0.7gをあるいは0.55g一食で越えてしまう試料もあった。One servingに類する食事の摂取量は、国民健康・栄養調査特別集計結果からは不明であるが、2007年の総務省家計支出調査によれば、弁当の100世帯当たりの購入頻度は2147であり、1世帯が年間21回弁当を購入すると考えられる。同様に、和食・中華・洋食・ハンバーガー・主食的外食に分類される外食の頻度は年間53回である。これを合計すると年間74回、1日当たり0.2食の外食あるいは弁当を摂取することになる。今回調査したone serving試料に含まれるTFA量は平均0.64g(0.11-2.12g)であった。この1/5の0.13gが外食によるTFA摂取への寄与と推定される。

E. 結論

異なる方式によって推定されたTFA摂取量を比較し、それらに差が認められた場合には原因を考察した。個別食品摂取量から推定する方式では、試料に含める食品の種類により推定結果に大きな差が現れる可能性が考えられた。また、一種の陰膳方式であるone serving試料から得られたTFA摂取量は、個別食品からの推定値に比較して大きな値となった。食品の摂取形態が多様化していることを考慮すると、調理によりその濃度が大きく変動する可能性のある物質の摂取量調査では、TDS方式では正しい推定ができない場合があることから、その

補正方法を検討する必要があると考えられる。

F. 参考文献

- 1) <http://www.fsc.go.jp/sonota/54kai-fact-sheets-trans.pdf>
- 2) <http://www.fsc.go.jp/senmon/kagaku-busshitu/k-dai4/kagaku4-toujitusiryoyou.pdf>

G. 研究発表

1. 論文発表

特になし

2. 学会発表

- 1) トータルダイエット試料の分析によるトランス脂肪酸摂取量の推定, 渡邊敬浩, 松田りえ子, 米谷民雄, 第95回日本食品衛生学会学術講演会(平成20年5月15-16日)
- 2) 日常食からのトランス脂肪酸摂取量の推定, 渡邊敬浩, 高附 巧, 樽見和枝, 松田りえ子, 第45回全国衛生化学技術協議会年会(平成20年11月13-14日)

Table 1 One serving 試料内容

分類	製品名	1食分重量 (g)
ハンバーガー	バリューセット てりやきバーガー	297
	バリューセット えびフィレオ	285
	バリューセット フィレオフィッシュ	269
	シュリンプサンドセット	280
	フィッシュサンドセット	274
	てりやきバーガーポテトセット	260
	テリヤキチキンバーガーポテトセット	248
	ポロニアソーセージのデニッシュセット	103
	クロワッサンドセット	108
	バリューセット チキンフィレオ	280
ピザ	マヨじゃがピザ	358
	トロピカルピザ	335
	マルゲリータピザ	288
	シーフードミルフィーユピザ	354
	アイダホスペシャル	364
	シーフードミックス	373
	ツナマイルド	336
	ハワイアンデライト	286
	マルゲリータ	179
	スタッフス	280
洋食	とろっとたまごのカルボナーラ	441
	チーズインハンバーグ弁当	162
	若鶏の唐揚げ弁当	164
	えびグラタン サラダ付き	371
	カツカレー サラダ付き	444
	イタリアンハンバーグ	299
	温泉卵のカルボナーラ	331
	えびとペンネマカロニグラタン	353
	ローズカツカレー弁当	359
	鶏の唐揚げ弁当	310
中華	「名物」芝海老のチリソース煮	396
	麻婆豆腐	380
	金時イモ入り黒豚酢豚	331
	特選弁当 エビチリ+チンジャオロース	375
	上海弁当 麻婆なす豆腐弁当	413
	上海弁当 黒酢酢豚弁当	343
	五目炒飯	301
	五目あんかけ焼そば	517
	揚州チャーハン(五目チャーハン)	467
	上海焼そば(五目あんかけやきそば)	536
和食	紅鮭弁当	158
	のり弁当(白身魚フライ)	114
	とんかつ弁当	183
	豚焼肉定食	242
	おろし焼しゃけ	247
	アジフライ定食	255
	天井	385
	シヨジャン豚焼肉弁当	202
	薩摩黒豚カツテンメンジャンソース	220
	海老天丼弁当	457

Table 2 トータルダイエツト試料分析から推定した脂肪酸の一日摂取量

	1日摂取量(g)			
	総脂肪	総飽和脂肪酸	総不飽和脂肪酸	総トランス脂肪酸
A	19.46	7.14	12.33	0.53
B	28.37	10.56	17.81	0.83
C	24.54	9.79	14.75	0.46
D	23.02	8.52	14.49	0.62
E	26.30	9.70	16.60	0.56
F	20.00	7.35	12.64	1.08
G	20.15	7.28	12.87	0.67
H	32.83	11.96	20.87	1.54
I	18.06	6.67	11.40	0.39
J	17.46	6.85	10.61	0.51
K	19.42	6.60	12.82	0.53
平均	22.69	8.40	14.29	0.71
最大	32.83	11.96	20.87	1.54
最小	17.46	6.60	10.61	0.39

Table 3 各種方式によるトランス脂肪酸摂取量推定値

	一日摂取量 (g/man/day)			一食あたり摂取量(g)
	食品安全委員会推定値		トータルダイエツト試料* による推定値	One serving試料 による推定値
	積み上げ方式	生産量に基づく方式		
平均値	0.70	1.31	0.71 (0.58)	0.64
最小値	-	-	0.39 (0.39)	0.11
最大値	-	-	1.54 (0.83)	2.12

*()内は F 及び H のデータを除いた集計値

Table 4 One serving 試料からたトランス脂肪酸摂取量

	トランス脂肪酸一食あたり摂取量(g)		
	平均	最小	最大
ハンバーガー	0.72	0.36	1.16
ピザ	1.11	0.82	2.12
洋食	0.82	0.14	1.86
中華	0.27	0.11	0.56
和食	0.31	0.17	0.63

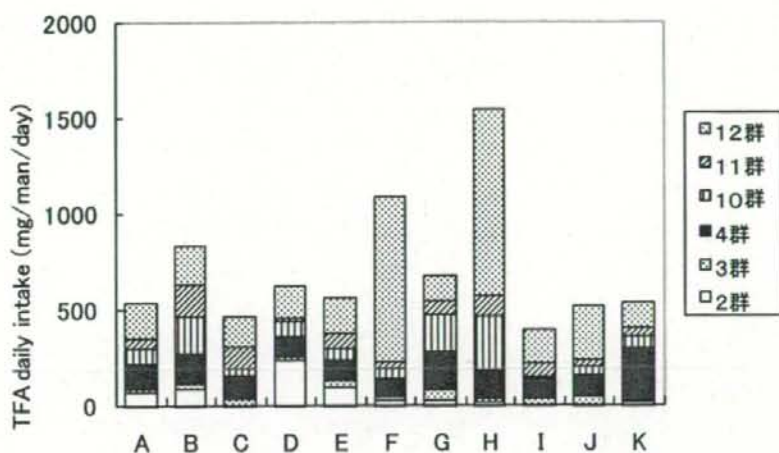


Fig.1 トータルダイエツト調査(TDS)試料各群からのトランス脂肪酸一日摂取量

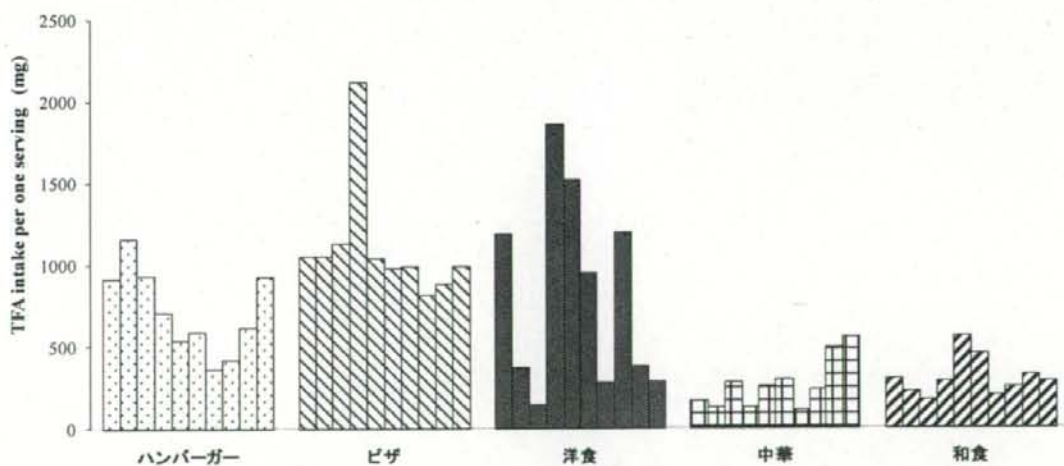


Fig.2 One serving 試料からのトランス脂肪酸摂取量

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 20 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）
小谷野道子（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）

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、調理後食品を核種分析あるいは測定するトータルダイエツトスタディ（TDS）とした。本研究 2 年度目にあたる平成 20 年度の調査・評価方法は基本的には本補助金による前年度の調査・評価研究に準じた。対象地域は全国 4 ブロック（北海道；札幌市、東北；仙台市、近畿 I；大阪市、北九州；福岡市）、対象放射性核種は γ 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}K やウラン系列、トリウム系列核種のビスマス（ ^{214}Bi ）、鉛（ ^{214}Pb ）など）および天然放射性核種のポロニウム（ ^{210}Po ）とした。とくに、 ^{210}Po は微量で放射線毒性が強く、2006 年にロンドンで起きた元ロシア連邦保安庁情報部員の不審死との関連が示唆されたことや食品からの被ばく寄与が高いことからその再評価が求められている。

調理調製した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求めた後、これらの濃度と各ブロックにおける代表的な食品消費量データをもとにして 1 日摂取量（Bq/日）を、国際放射線防護委員会（ICRP）の線量換算係数を適用して成人の暴露量（預託実効線量；mSv）を算出、評価した。その結果、食品に由来する預託実効線量は ^{40}K と ^{210}Po が大きく、 ^{210}Po の線量寄与は 4 ブロックともに国連科学委員会報告（UNSCEAR 2000）の世界平均値を上回ることが明らかとなった。これら研究成果は放射線緊急時などを含めた食品中の放射能に対する安心・安全確保推進対策における基礎資料となる。

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。

本年度の本研究では、①日本国内に流通し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調理済み試料を調製する。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 γ 線放出核種（人工および天然）ならびに α 線放出核種のポロニウム(^{210}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検討する。さらに、④これらの放射能濃度をもとに放射性核種の1日摂取量ならびに暴露量（実効線量）に関する評価を行う。以上のことを目的とした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、前年度に実施したTDSに基本的に準ずる。

方法の概要は次のとおりである。

1. 試料調製

日本国内の4ブロック（北海道；札幌市、東北；仙台市、近畿I；大阪市、北九州；福岡市）を選択し、全14群に区分した食品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（飲料水のみ水道水を採水）。一例として、4都市で購入した食品分類を示す（表1~4）。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や混入は禁じた。

^{210}Po 分析用試料は調製試料を生々の状態で用いた。

① γ 線放出核種用調製試料（対象核種： ^{137}Cs 、 ^{134}Cs 、 ^{40}K 、ウラン系列、トリウム系列）は凍結乾燥あるいは乾熱乾燥した後、 450°C で24時間灰化处理した。その後、全13食品群個別（油脂類を除く）にプラスチック製容器（容量100mL）に灰試料を封入しシリコンのシーリング剤を充填させて密閉し2週間程度放置した。油脂類（食品群IV）はその物性上、減容が困難なため調理調製試料の状態マリネリ容器（容量1L）に封入し測定用試料とした。飲料水（食品群XIV）は加熱濃縮、蒸発乾固し、残留物を食品試料と同様にプラスチック製容器に充填した。

② ^{210}Po の分析試料としては、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. γ 線スペクトロメトリーによる γ 線放出核種の定量

測定用灰試料はGe半導体検出器（CANBERRA社製、EURYSIS社製、OXFORD社製、）のエンドキャップに

載せ 80,000~300,000 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に適時 200,000~300,000 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 γ 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 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. α 線スペクトロメトリーによる ^{210}Po の分析

^{210}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。本研究では、以下の分析法を適用した。

2-2-1. 化学分離

混合試料(全13食品群)

調製試料(飲料水を除く)から15~30g生重量を分取し、 ^{209}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。ろ液を加熱濃縮した後、 HCl (1+2)を加え加熱した。放冷後、残留物をろ別し、ろ液をSr-Spec™カラムに通しPoを吸着させた。

HCl (1+2)、 HCl (2+1)および HNO_3 (3+4)で順次洗浄後、 HNO_3 (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、 HCl (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Poをステンレス板上に電着して測定試料とした。

2-2-2. 測定

混合試料(全13食品群)

測定試料をSi半導体検出器(ORTEC社製)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}Po の計数率との比較、分析供試量等から ^{210}Po (半減期:138.4日)の放射能濃度を算出し、分析結果は試料調製日に減衰補正した。

C. 研究結果と考察

1. 食品中の放射性核種濃度

1-1. γ 線放出核種の放射能濃度

本研究では、前年度と同様に、 ^{137}Cs などの人工放射性核種に加えて、近年、食品中の濃度実態の把握が求められている天然 γ 線放射性核種(代表的な ^{40}K ならびに ^{214}Pb 、 ^{214}Bi 、 ^{228}Ac 、 ^{212}Pb 、 ^{208}Tl のウラン系列、トリウム系列核種)を対象とした。

γ 線放出核種の全14食品群の放

射能濃度（調理後重量ベース）を表に示す（表 5-1、表 6-1、表 7-1、表 8-1）。

今年度、4ブロックにおいて人工 γ 線放出核種として定量されたのは ^{137}Cs のみである。その放射能濃度は4市ともに0.1 Bq/kg以下であった。多くの食品群では ^{137}Cs は検出下限値以下であった。前年度と同様な結果であった。全食品群中の ^{137}Cs 濃度は、定量された試料の中では最小値が大阪市の米・米加工品類（食品群I）の0.006 Bq/kg、最大値は福岡市の魚類（食品群X）の0.071 Bq/kgであった。食品群別 ^{137}Cs 濃度の最大値は3ブロックでX群の魚類（札幌市；0.068、仙台市；0.050、福岡市；0.071 Bq/kg）、1ブロックでXI群の肉類・卵類（大阪市；0.083 Bq/kg）であった。魚類が全食品群の中でも高濃度を示す傾向は前年度も認められた。その他に、穀類・種実類・芋類、砂糖類・菓子類、豆類、肉類・卵類、乳類、その他野菜・きのこ・海藻類、乳類などの一部から0.007~0.034 Bq/kgの ^{137}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、厚生労働省が継続監視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}Cs と ^{134}Cs の合計値）である。本研究では、前年度と同様に国内流通食品中の ^{137}Cs 濃度レベルは低いことが認められた。さらに、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}Cs はいずれの都市、食品群から検出されていない。

天然放射性核種の ^{40}K は食品の必須元素であり、多量元素でもあるKの同位体の一つとして0.012%存在する。このことより、 ^{40}K は一部の油脂類（食品群IV）を除いて、すべての食品群から定量された。その濃度は13食品群では0.6~103.5 Bq/kgで、その多くは10 Bq/kg以上のレベルであった。食品群別の濃度は緑黄色野菜（食品群VII）、その他野菜・きのこ・海藻類（食品群VIII）、魚類（食品群X）、肉類・卵類（食品群XI）、豆類（食品群V）で高く、嗜好飲料類（食品群IX）や米・米加工品類（食品群I）で低い値であった。飲料水の ^{40}K 濃度は低く、0.017~0.087 Bq/kgであった。いずれも前年度と同様な傾向であった。

天然 γ 線放射性核種の ^{214}Pb 、 ^{214}Bi 、 ^{228}Ac 、 ^{212}Pb 、 ^{208}Tl 濃度は4ブロック、各食品群ともに多くが検出下限値以下にあり検出された食品の濃度も低いことが認められた。前年度と同様な結果であった。核種別では ^{208}Tl が4ブロックともに不検出であった。 ^{214}Pb は0.01~0.81 Bq/kg、 ^{214}Bi は0.03~0.60 Bq/kgが検出されたが、4ブロックともに検出された食品はみられなかった。 ^{228}Ac は多くの食品で検出下限値以下であった。前年度と同様な傾向であった。

1-2. α 線放出核種（ ^{210}Po ）の放射能濃度