

Csなどの γ 線放出核種， β 線放出の人工放射性核種ストロンチウム (^{90}Sr)，さらに天然由来の ^{210}Po とした。 ^{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。食品（調理済み）からの1日摂取量と被ばく線量は測定，分析により得られた各放射性核種の放射能濃度をもとに算出し，推定評価した。

具体的な方法を以下に示す。

2-1. 試料

試料購入・調製：平成19-21年の3年間，日本国内全8地域10都市（北海道：札幌市，東北：仙台市，関東I：東京都，横浜市，北陸：新潟市，金沢市，近畿I：大阪市，中国：広島市，四国；高知市，北九州：福岡市）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マーケットバスケット方式により購入した。購入食品は食品群ごとに炊く，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ツト試料を調製した。なお，調理にあたっては他の食品群の添加，混入は禁じた。

γ 線放出核種用試料：人工ならびに天然の γ 線放出核種 (^{137}Cs ， ^{134}Cs ， ^{40}K ，ウラン系列，トリウム系列)の測定のために各食品群個別にプラスチック製容器（容量100 mL）に封入し，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，その物性上減容が困難な油脂類（食品群IV）は調製試料の状態マリネリ容器（容量1 L）に封入し測定用試料とした。

^{90}Sr 分析用試料：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 γ 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。

^{210}Po 用試料：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。横浜市（平成19年度），札幌市，大阪市，福岡市（平成20年度），東京都（平成21年度）については各食品群別の調製試料も分析対象とした。

2-2. 測定法，分析法

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。測定法の概略は以下のとおりである。

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ずに適時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，定量は 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。

放射性ストロンチウム (^{90}Sr)の分析：放射化学分離-低バックグラウンド β 線測定装置により分析した。

1. 化学分離：分析用試料から生2 kg相当の

灰試料を分取，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}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 を水酸化鉄（Ⅲ）沈殿に共沈させ（ミルクング），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. 測定：測定用試料は低バックグラウンドβ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。

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。

1. 化学分離：調製試料から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-SpecTM カラムに通しPoを吸着させた。HCl（1+2），HCl（2+1）およびHNO₃（3+4）で順次洗浄後，HNO₃（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°C 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. 測定：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率を求め，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 ^{210}Pb を分離した日に減衰補正した。

2-3. 線量評価方法

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。

本研究では平成16-18年度のTDSと同様な方法で線量算定した。

本TDSで用いた一般的な算出式の例は以下のとおりである。

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

$A_{m,i}$ ：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 の濃度（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）， $f_{m,m}$ ：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，本研究で対象とする放射性核種は ^{210}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調製時から測定時の間の物理的減衰は考慮を要しない。

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)

本 TDS 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 (ICRP Publication 72) の成人に対する数値を適用した。

C. 研究結果

3 年間における対象地域は日本国内の 8 地域 10 都市であった。分析対象放射性核種は γ 線放出核種、 ^{90}Sr , ^{210}Po とした。各放射能濃度 (調理後重量ベース) の実態を明らかにし、その濃度をもとにして食品からの 1 日摂取量ならびに被ばく線量について算定評価した。

3-1. 放射性核種濃度

γ 線放出核種の放射能濃度

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、定量された食品群中の放射能濃度はいずれも低いレベル (0.1 Bq/kg 生以下; 調理後の状態) 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。食品群別では魚介類が比較的高い濃度を示した。他の食品群では肉類・卵類、乳類から ^{137}Cs が定量される傾向が認められた。ちなみに、厚生労働省が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 である。過去 3 年間の TDS の結果は、この数値との比較の上からも過去

の大気圏内核爆発実験やチェルノブイリ原子力発電所事故等に由来する ^{137}Cs の国内流通食品中の濃度レベルは低いことを示した。

平成 19-21 年度で本 TDS における国内 10 都市の食品から定量された ^{137}Cs 濃度を年度順に最小値～最大値で示すと、0.005 Bq/kg (新潟市米類)～0.093 Bq/kg (横浜市魚介類), 0.006 Bq/kg (大阪市米・米加工品類)～0.071 Bq/kg (福岡市魚介類), 0.005 Bq/kg (高知市米・米加工品類)～0.093 Bq/kg (金沢市魚介類)であった。定量が可能であった食品群の中では全般的に食品群 X (魚介類), 食品群 X I (肉類・卵類), 食品群 X III (その他野菜・きのこ・海藻類)などで比較的高い濃度、食品群 I (米・米加工品類)で低い濃度を示す傾向が認められた。また、飲料水からは検出が困難であった。なお、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 はいずれの都市の全 14 食品群で検出されなかった。

天然放射性核種の ^{40}K は食品の多量元素である K の同位体の一つとして約 0.012% 存在している。このため、全 10 都市において一部の油脂類を除いた食品群から ^{40}K が検出、定量された。飲料水を除く ^{40}K 濃度は大多数の食品では数 10 Bq/kg 程度 (0.25～136.3 Bq/kg) 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 X I), 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。飲料水は 0.1 Bq/kg 以下の極めて低い濃度であった。

近年、その濃度実態の把握が求められている一部の天然 γ 線放射性核種 (ウラン系列、

トリウム系列の ^{214}Pb , ^{214}Bi , ^{228}Ac , ^{212}Pb , ^{208}Tl は大多数の食品群で検出下限値以下であり全 10 都市ともに食品中の存在量の小さいことが明らかとなった。核種別にはとくに ^{208}Tl の検出が困難であった。一方, ^{214}Pb は穀類・種実類・芋類 (食品群Ⅱ), 砂糖類・菓子類 (食品群Ⅲ), 油脂類 (食品群Ⅳ) などで $0.01\sim 0.81\text{ Bq/kg}$, ^{228}Ac は食品群Ⅱ, Ⅲなどで $0.0006\sim 0.10\text{ Bq/kg}$ が検出された。

^{90}Sr の放射能濃度

^{90}Sr の放射能濃度は飲料水 (食品群Ⅳ) 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}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, 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}Sr 濃度は $13\sim 29\text{ mBq/kg}$ の範囲で平均値±標準偏差は $23\pm 5.6\text{ mBq/kg}$ (C.V.=24.3%)で, 高知市の結果は比較的高い値であるといえる。

^{210}Po の放射能濃度

飲料水 (食品群Ⅳ) を除いた全 13 食品群を個別群に調理した後に, 各群の消費量比に従って混合した調製試料の ^{210}Po 分析を行った。また, 一部の都市については全 14 食品群を分析対象とした。

混合試料中の ^{210}Po 濃度は $0.17\sim 0.92\text{ Bq/kg}$ の範囲にあり, 平成 19 年度の高知市が特に高い濃度 (0.92 Bq/kg) を示した。食品群別では魚類が突出して高く, 次いで調味料・香辛料類, 緑黄色野菜等が高かった。一方, 米・米加工品類, 油脂類, 果実類, 飲料水では検出下限値以下の都市もあった。

食品中の ^{210}Po 濃度の報告はいくつか見られるが, いずれも食品素材そのものの分析値であり, 本研究では, 実際の摂取形態に近い調理後の調製試料の濃度を求めていることが特徴である。

3-2. 放射性核種 1 日摂取量

γ 線放出核種の 1 日摂取量

γ 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}Cs , ^{134}Cs , ^{40}K , ^{214}Pb , ^{214}Bi , ^{228}Ac , ^{212}Pb , ^{208}Tl) を対象として, それぞれ個別の食品群ごとに 1 日摂取量を求めた後, 全 14 食品群の摂取量を積算した合計値を 1 日摂取量 (mBq/d) とした。

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。したがって, 1 日摂取量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) の意味するところは, 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して評価した (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。

人工放射性核種 ^{137}Cs の 1 日摂取量は, 平成 19, 20, 21 年度 3 年間におけるそれぞれ年度順の最小値は 10.2 mBq/d (高知市), 4.7 mBq/d (仙台市), 13.6 mBq/d (広島市) で, 同様に最大値は $< 72.4\text{ mBq/d}$ (横浜市), $< 57.1\text{ mBq/d}$ (仙台市), $< 58.4\text{ mBq/d}$ (広島市) であった。この結果より, ^{137}Cs の 1 日摂取量は日本国内各地域において大きな差のないこと

が評価される。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¹³⁴Csは本TDS（平成19-21年度）における国内全8地域10都市の食品からは検出されていない。従って、その1日摂取量は評価に値しない。

天然放射性核種⁴⁰Kの1日摂取量の合計値は平成19, 20, 21年度のTDSにおいて、それぞれ年度順に78,650～<94,213 mBq/d, 68,489～81,391 mBq/d, 71,760～<84,813 mBq/dの結果が得られた。これより、全食品群に由来する⁴⁰Kの1日摂取量は極めて多く、¹³⁷Csと同様に日本国内10都市において比較的同程度であることが明らかとなった。

その他の天然放射性核種の平成19-21年度における1日摂取量は、²¹⁴Pbは合計値の最小値としては12.0～84.7 mBq/d, 最大値は<60.6～<142.7 mBq/d, 同様に²¹⁴Biは最小値2.7～81.8 mBq/d, 最大値<48.5～<189.4 mBq/d, ²¹²Pbは最小値0.0～31.1 mBq/d, 最大値<56.3～<98.5 mBq/dであった。²²⁸Acと²⁰⁸Tlは10都市において全14食品群から検出されることはまれであった。平成19, 20, 21年度3年間のTDS結果、これら5核種ともに検出下限値を下回る食品群が多数であった。したがって、都市別あるいは食品群別にその摂取量の分布を評価には至っていない。

⁹⁰Srの1日摂取量

⁹⁰Srの1日摂取量は、全14食品群の中から飲料水(食品群XIV)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⁹⁰Sr分析結果をもとにして算出した。

分析対象とした平成19年度の3都市(横浜市、新潟市、高知市)において⁹⁰Sr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⁹⁰Srの1日摂取量を評価した。その値は60 mBq/dであった。

平成16-18年度におけるTDSによる国内12ブロックでの⁹⁰Srの1日摂取量は20.8～60.0 mBq/dの範囲で平均値±標準偏差は39.7±10.7 mBq/d (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。

²¹⁰Poの1日摂取量

²¹⁰Poの1日摂取量は、全14食品群の中から飲料水(食品群XIV)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²¹⁰Po分析結果をもとにして算出した。

本TDSで対象都市とした8都市(横浜市、新潟市、高知市、札幌市、仙台市、大阪市、福岡市、東京都)では、成人による²¹⁰Poの1日摂取量は344～1841 (平均値±σ: 649±496) mBq/dの範囲内であった。高知市が高い値を示したものの、他の都市では大きなバラツキは認められなかった。

個別の食品群について分析した横浜市、札幌市、大阪市、福岡市、東京都の結果では、²¹⁰Poの1日摂取量は食品群別では魚介類の寄与が著しく大きく、次いで嗜好飲料類嗜好飲料類の寄与が比較的大きい傾向が認められた。

3-3. 被ばく線量評価

γ線放出核種による被ばく線量評価

成人に対する被ばく線量(預託実効線量)は食品中の放射能濃度と消費量データをもとに求めた1日摂取量ならびに線量換算係数を適用して算出した。預託実効線量は前述の1日摂取量と同様に定量値をもとにした最小値と検出下限値を考慮した最大値を考慮した。

γ線放出核種のうち、¹³⁷Csの被ばく線量

(線量換算係数は 1.3×10^{-5} mSv/Bq) は、最小値は $0.022 \sim 0.143 \mu\text{Sv}$ 、最大値は $<0.168 \sim <0.343 \mu\text{Sv}$ と算出された。本 TDS の平成 19, 20, 21 年度の結果はそれぞれ年度順に、最小値 $0.049 \sim$ 最大値 $<0.343 \mu\text{Sv}$ 、最小値 $0.022 \sim$ 最大値 $0.271 \mu\text{Sv}$ 、最小値 $0.065 \sim$ 最大値 $<0.277 \mu\text{Sv}$ であった。同様に、 ^{40}K (線量換算係数は 6.2×10^{-6} mSv/Bq) は平成 19, 20, 21 年度の順に、それぞれ最小値 $178 \sim$ 最大値 $213.2 \mu\text{Sv}$ 、最小値 $155.0 \sim$ 最大値 $<184.2 \mu\text{Sv}$ 、最小値 $162.4 \sim$ 最大値 $192.0 \mu\text{Sv}$ であった。 ^{40}K の食品群別の年実効線量への寄与は食品群 I (米・米加工品類)、食品群 IV (油脂類)、食品群 III (砂糖類・菓子類)、食品群 X III (その他食品) で小さいことが分かった。天然放射性核種の ^{214}Pb (線量換算係数は 1.4×10^{-7} mSv/Bq)、 ^{214}Bi (線量換算係数は 1.1×10^{-7} mSv/Bq)、 ^{228}Ac (線量換算係数は 4.3×10^{-7} mSv/Bq)、 ^{212}Pb (線量換算係数は 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を算出した。さきに示したとおり、これら放射性核種の各食品群はその多くが検出下限値以下であった。したがって、本 TDS における評価の一方法として 1 日摂取量で求めた合計値の中からいわゆる最小値と最大値をもとに線量算出を行った。以下、その結果を各放射性核種別にそれぞれ平成 19, 20, 21 年度の順に最小値～最大値で示す。 ^{214}Pb は平成 19, 20, 21 年度の順に、 $0 \sim <0.008 \mu\text{Sv}$ 、 $0 \sim <0.002 \mu\text{Sv}$ 、 $0.004 \sim <0.007 \mu\text{Sv}$ の結果が得られた。以下、他の核種について同様に表すと、 ^{214}Bi はそれぞれ $0 \sim <0.007 \mu\text{Sv}$ 、 $0 \sim <0.007 \mu\text{Sv}$ 、 $0.002 \sim <0.008 \mu\text{Sv}$ であった。 ^{228}Ac はそれぞれ $0 \sim <0.051 \mu\text{Sv}$ 、 $0 \sim <0.051 \mu\text{Sv}$ 、 $0.002 \sim <0.040 \mu\text{Sv}$ 、 ^{212}Pb は 0.016

$\sim <0.279 \mu\text{Sv}$ 、 $0.016 \sim <0.279 \mu\text{Sv}$ 、 $0.030 \sim <0.202 \mu\text{Sv}$ と算出された。なお、 ^{208}Tl は本 TDS で引用する ICRP Publication に線量換算係数の記載がないために線量評価は省いた。

以上、 γ 線放出核種による被ばく線量評価の結果より、食品摂取に伴う放射性核種の被ばく寄与は ^{40}K が一番大きいこと、また ^{137}Cs と同様に日本国内全 12 地域において大きな差はないことが明らかとなった。

^{90}Sr による被ばく線量評価

^{90}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 2.8×10^{-5} mSv/Bq) を適用して算出した。

対象とした 3 都市において ^{90}Sr が定量されたのは高知市 (平成 19 年度) のみであったことから、高知市における ^{90}Sr による預託実効線量を評価した。その値は $0.68 \mu\text{Sv}$ であった。平成 16, 17, 18 年度の TDS による国内 12 ブロックでの ^{90}Sr による預託実効線量は $0.21 \sim 0.61 \mu\text{Sv}$ の範囲で、本 TDS による高知市の値は過去のデータの上限值に相当し、国連科学委員会 2000 年報告 (UNSCEAR 2000) の年実効線量 $0.56 \mu\text{Sv/year} \cdot \text{person}$ をやや上回るものであった。

^{210}Po による被ばく線量評価

^{210}Po (線量換算係数: 1.2×10^{-3} mSv/Bq) による成人の預託実効線量を算出した。

平成 19, 20, 21 年度 3 年間における本 TDS による国内 8 都市における ^{210}Po の預託実効線量 (μSv) はそれぞれ年度順に横浜市: 304, 新潟市: 162, 高知市: 806 (平成 19 年度), 札幌市: 166, 仙台市: 253, 大阪市: 195, 福岡市: 151 (平成 20 年度), 東京都: 236 (平成 21 年度) であった。高知市が $806 \mu\text{Sv}$ と高

い値を示したものの、日本国内各市における
預託実効線量のバラツキは小さいと評価され
る。食品群別では例えば東京都における²¹⁰Po
の預託実効線量では全体の85%以上が魚介類
に起因し、札幌市、横浜市、大阪市、福岡市
でも同様に魚介類由来の線量が極めて高い傾
向が認められた。

線量評価総括

本TDSで用いた預託実効線量(μ Sv)の評
価法は、原子力関連施設等周辺の環境放射能
モニタリングで一般的に用いられている比較
的簡便な方法を適用したものである。今回の
線量評価は定量が不可能であった核種も検出
下限値をデータとして採用したケースもあり、
一部で過大な評価が与えられていることに留
意を要する。食品中の²¹⁰Po放射能濃度デー
タは日本国内のみならず国際的にも少なく、
²¹⁰Poの暴露量を評価した研究は限られる。さ
らに、国連科学委員会報告2000(UNSCA
EA 2000)には日本に関する²¹⁰Poの飲食物中
の濃度は収載されていない。また、2006年11
月にイギリスで発生した元ロシア連邦保安庁
情報部員の将校の不審死では²¹⁰Poが被害者
の尿より検出されたことから暗殺死の可能性
が指摘されており、食品への混入テロなど健
康危機管理対応の上からも食品に由来する
²¹⁰Poの暴露量を評価する必要性が求められる
状況にある。平成19、20、21年度における
本研究の実施により、日本国内各都市におけ
る食品摂取に由来する²¹⁰Poの成人の実効線
量の実態が明らかとなりつつある。本研究結
果によれば、日本国内8市における²¹⁰Poと
⁴⁰Kの預託実効線量の合計値は0.46 mSvと評
価された。この線量は全世界平均の年実効線
量0.29 mSv/yearを上回るが、典型的な範囲の

0.2-0.8 mSv/year(UNSCEAR 2000)に相当す
る値と評価される。今回、²¹⁰Poの平均値は
0.28 \pm 0.22 mSvはUNSCEAR 2000のウランお
よびトリウム系列の全世界平均値0.12
mSv/yearを大きく上回る。一方、日本国内8
市の⁴⁰Kによる線量の平均値は0.18 \pm 0.02 mSv
は全世界平均値0.17 mSv/year(UNSCEAR
2000)と同程度であることから、日本成人の
食品摂取被ばくの特徴は諸外国に比べて
²¹⁰Poの寄与が大きいものと評価される。過去
のいくつかの研究例は食品素材に関する分析
データをもとにした暴露量評価である。一方、
本研究では、食品素材を調理した後の日常食
に近い試料をもとにして²¹⁰Poおよび⁴⁰K放射
能濃度を求めたことから、実際の摂食状態に
もとづく暴露量評価結果が得られた。また、
日本国内では魚介類に由来する²¹⁰Poの1日
摂取量、預託実効線量の大きいことが示され
たことは魚類を好んで食する日本人固有の食
事摂取状況が反映された結果と考える。

D. まとめ

食品中の放射性核種の摂取量調査研究(ト
ータルダイエツトスタディ;TDS)は平成19、
20、21年度に日本国内全8地域10都市(北
海道:札幌市、東北:仙台市、関東I:東京
都、横浜市、北陸:新潟市、金沢市、近畿I:
大阪市、中国:広島市、四国;高知市、北九
州:福岡市)で実施した。その結果、対象と
した放射性核種の中では自然放射性核種であ
る⁴⁰Kと²¹⁰Poの1日摂取量が大きく、成人
の被ばく線量(預託実効線量)への寄与も大
きいことが明らかになった。わが国では、食
品中の有害物質の中でも放射性核種の摂取量
とその暴露評価に関する知見は限られている。

したがって、平成 16-18 年度、さらに今回平成 19-21 年度と引き続き TDS を実施したことにより、過去の大気圏内核爆発実験やチェルノブイリ原子力発電所事故等に由来する人工放射性核種（放射性 Cs および ^{90}Sr ）をはじめとして、天然の γ 線放出核種や α 線放出核種である ^{210}Po 等、多種にわたる放射性核種について 1 日摂取量ならびに被ばく線量に関して一定の科学的評価が可能となった。このことは放射線緊急時等を含めた食品の安全・安心確保、健康危機管理などの政策的対応に対して一つの基礎資料としての活用が見込まれる。

謝辞：本研究を実施するにあたり放射性核種の分析にご協力をいただいた（財）日本分析センターに謝意を表します。

E. 研究発表

1. 論文発表

1. Sugiyama H., Takahashi M.N., Terada H., Kuwahara C., Maeda C., Anzai Y., Kato F. (2008) Accumulation and localization of cesium in edible mushroom (*Pleurotus ostreatus*) mycelia. *J. Agric. Food Chem.* **56**, 9641-9646.
2. Iijima I., Takagi H., Tomura K., Watanuki T., Sugiyama H. (2009) Evaluation of cesium-137 (^{137}Cs) and elements intake from daily diets in residents of Kanagawa prefecture, Japan. *J. Health Sci.* **55**, 192-205.
3. Sugiyama H., Terada H., Isomura K., Iijima I., Kobayashi J., Kitamura K. : Internal exposure to ^{210}Po and ^{40}K from ingestion of cooked daily foodstuffs for adults in Japanese cities. *J. Toxicol. Sci.* 2009; **34**:4: 417-425.

2. 学会発表

1. 杉山英男, 寺田宙, 高橋光子, 飯島育代, 磯村公郎. トータルダイエットスタディによる放射性. 第 44 回アイソトプ・放射線研究発表会; 2007; 東京. 同要旨集. p.144.
2. Sugiyama H., Terada H., Takahashi M.N., Iijima I., Isomura K., Hirata A., Sakurai K., Miyata M., Goto S.. Concentrations of Cs-137 in Imported Foodstuffs and Daily Intakes of Radionuclides for People, in Japan. 52nd Annual Meeting of the Health Physics Society; 2007; Portland. P.15.
3. Sugiyama H. Takahashi M.N., Terada H., Maeda C., Kato F.. Substrate-to-mushroom transfer of ^{137}Cs and K in some forests in Japan and accumulation of Cs in mycelia of an edible mushroom. International Symposium on Metallomics 2007; 2007; Nagoya. p.171.
4. 杉山英男, 寺田宙, 磯村公郎, 飯島育代. トータルダイエットスタディによる放射性核種の摂取量評価. 第 67 回日本公衆衛生学会総会; 2008; 福岡. 同抄録集. p.621.
5. 杉山英男, 寺田宙, 磯村公郎, 飯島育代. 食品に由来するポロニウム (^{210}Po) の暴露量. 第 45 回全国衛生化学技術協議会年会; 2008; 佐賀. 同講演集. p.109-110.
6. Sugiyama H., Terada H., Takahashi M., Iijima I., Isomura K. Intakes of radionuclides from foods in total diet study and concentrations of ^{137}Cs in imported foods in Japan. Seventh International Conference on Nuclear and Radiochemistry; 2008; Budapest. p.142.
7. 寺田宙, 杉山英男, 小谷野道子, 飯島育代, 三宅定明, 磯村公郎. 食品に由来する NORM の摂取量評価. 第 46 回全国衛生化学技術協議会; 2009; 盛岡. 同講演集. p. 178-179.

Table 1 污染物摄入量年次推移

LQ=各機関独自， 単位：μg/man/day

YEAR	MEAN												MEDIAN (ND=0)												ADI (FAO/WHO) μg/50kg mg/kg
	2005		2006		2007		2008		2009		2005		2006		2007		2008		2009						
	ND=0	ND=1/2LQ	ND=0	ND=1/2LQ	ND=0	ND=1/2LQ	ND=0	ND=1/2LQ	ND=0	ND=1/2LQ	9	10	9	10	9	10	9	10	9	10					
機関数	9		10		10		10		9		9		9		9		9		9						
α-HCH	0.006	0.166	0.022	0.190	0.011	0.343	0.012	0.164	0.003	0.169	0.000	0.013	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000					
β-HCH	0.019	0.177	0.029	0.197	0.019	0.349	0.024	0.174	0.013	0.177	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000					
γ-HCH	0.007	0.168	0.013	0.183	0.004	0.336	0.005	0.157	0.000	0.167	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.008					
δ-HCH	0.000	0.161	0.000	0.172	0.000	0.333	0.000	0.153	0.000	0.213	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000					
total-HCH	0.032	0.185	0.064	0.231	0.034	0.364	0.041	0.188	0.016	0.216	0.000	0.018	0.000	0.013	0.000	0.013	0.000	0.000	0.000	0.0125					
p,p-DDT	0.063	0.234	0.077	0.257	0.071	0.425	0.070	0.231	0.095	0.272	0.064	0.067	0.043	0.074	0.072	0.072	0.072	0.072	0.072	0.072					
p,p-DDE	0.128	0.291	0.179	0.349	0.171	0.507	0.151	0.303	0.185	0.354	0.148	0.191	0.194	0.144	0.210	0.144	0.144	0.210	0.210	0.210					
p,p-DDD	0.022	0.197	0.046	0.229	0.053	0.409	0.052	0.223	0.055	0.238	0.014	0.031	0.054	0.057	0.058	0.054	0.057	0.058	0.058	0.058					
o,p-DDT	0.010	0.185	0.025	0.303	0.018	0.467	0.014	0.277	0.024	0.207	0.014	0.000	0.004	0.007	0.016	0.004	0.007	0.016	0.016	0.016					
total-DDT	0.223	0.362	0.330	0.490	0.314	0.656	0.283	0.442	0.364	0.564	0.266	0.314	0.277	0.269	0.394	0.266	0.269	0.394	0.394	0.394					
Dieldrin	0.053	0.333	0.053	0.334	0.037	0.399	0.060	0.238	0.012	0.245	0.000	0.014	0.000	0.004	0.000	0.000	0.004	0.000	0.000	0.0001					
Hep. Epoxide	0.046	0.199	0.068	0.236	0.024	0.353	0.029	0.180	0.031	0.207	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.0001					
HCB	0.021	0.224	0.033	0.240	0.011	0.383	0.015	0.208	0.009	0.221	0.000	0.017	0.005	0.008	0.000	0.005	0.008	0.000	0.000	0.0006					
PCB	0.998	2.033	0.529	1.595	0.480	1.488	0.517	1.493	0.472	1.404	0.572	0.429	0.416	0.435	0.469	0.416	0.435	0.469	0.469	0.005					
Malathion	0.000	1.812	0.019	2.958	0.069	3.445	0.045	1.696	0.062	1.776	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.02					
MEP	0.000	1.821	0.011	2.903	0.000	3.562	0.008	1.848	0.000	1.908	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.005					
Diazinon	0.000	1.694	0.000	1.951	0.333	3.560	0.000	1.672	0.000	1.719	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.002					
P b	20.8	26.2	21.1	28.9	32.0	39.7	18.2	30.6	12.3	25.3	17.1	16.6	22.1	15.8	7.1	15.8	22.1	179	0.025	0.025					
C d	22.3	22.7	18.9	20.0	21.1	22.1	22.9	23.4	23.5	25.1	19.3	20.2	21.7	22.8	18.5	22.8	21.7	50	0.001	0.001					
H g	9.5	10.7	7.5	9.5	7.3	8.9	8.5	10.5	8.0	9.9	8.8	7.2	7.7	8.5	8.1	7.7	8.5								
A s	178	184	183	188	145	150	183	186	188	194	157	223	108	214	216	108	214								
C u	1223	1226	1270	1272	1135	1139	1214	1217	1028	1031	1140	1306	1139	1202	1105	1139	1202								
M n	3769	3771	3760	3761	3395	3396	3570	3571	3383	3384	3732	3374	3410	3398	3611	3410	3398								
Z n	8884	8884	8731	8737	8425	8434	7983	7992	8269	8280	8735	8625	8404	7864	8604	8404	7864								

Table 2 汚染物モニタリングにおける汚染物の検出状況

全データ

		総数	検出数	検出率(%)
2009年	検査数	642,686	4,886	0.8
	試料数	9,633	2,431	25.2
2008年	検査数	594,089	5,448	0.9
	試料数	9,282	2,775	29.9
2007年	検査数	503,127	5,226	1.0
	試料数	9,235	2,736	29.6
2006年	検査数	382,746	4,882	1.3
	試料数	9,296	2,535	27.3

農薬・動物用医薬品データ

		総数	検出数	検出率(%)
2009年	検査数	634,725	2,593	0.4
	試料数	7,270	1,237	17.0
2008年	検査数	586,327	2,995	0.5
	試料数	6,835	1,371	20.1
2007年	検査数	495,317	2,788	0.6
	試料数	6,880	1,336	19.4
2006年	検査数	375,403	2,299	0.6
	試料数	7,083	1,199	16.9

研究成果の刊行に関する一覧表

研究成果の刊行に関する一覧表

雑誌

発表者氏名	論文タイトル名	発表誌名	巻号	ページ	出版年
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	50	29-33	2009
Sugiyama H., Takahasi MN, Terada H., Kuwahara C., Maeda C., Anzai Y., Kato F.	Accumulation and localization of cesium in edible mushroom (<i>Pleurotus ostreatus</i>) mycelia.	<i>J. Agric. Food Chem.</i>	56	9641-9646	2008
Iijima I., Takagi H., Tomura K., Watanuki T., Sugiyama H.	Evaluation of cesium-137 (¹³⁷ Cs) and elements intake from daily diets in residents of Kanagawa prefecture, Japan.	<i>J. Health Sci.</i>	55	192-205	2009
Sugiyama H., Terada H., Isomura K., Iijima I., Kobayashi J., Kitamura K.	Internal exposure to ²¹⁰ Po and ⁴⁰ K from ingestion of cooked daily foodstuffs for adults in Japanese cities	<i>J. Toxicol. Sci.</i>	34	417-425	2009

書籍

トータルダイエツト試料を用いた食品汚染物の1日摂取量調査 1977~2007年度
国立医薬品食品衛生研究所食品部編

研究成果の刊行物・別刷

調査・資料

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

(2008年6月30日受理)

松田りえ子* 渡邊敬浩 五十嵐敦子 白政優子 米谷民雄

Estimation of the Daily Intake of Nitrate Based on Analysis of Total Diet Samples

Rieko MATSUDA*, Takahiro WATANABE, Atsuko IKARASHI,
Yuko SHIRAMASA and Tamio MAITANINational Institute of Health Sciences: 1-18-1 Kamiyoga, Setagaya-ku,
Tokyo 158-8501, Japan; * Corresponding author

The concentrations of nitrates in total diet samples prepared at 11 places were determined according to the market basket method, and the daily intake of nitrates was estimated based on the analysis results. The mean estimated daily intake of nitrates was 200 mg/man/day (4.0 mg/kg/day) and exceeded the ADI (3.7 mg/kg/day) set by the JECFA by 8%. The principal sources of the nitrates were colored vegetables (7th food group) and other vegetables, seaweeds and mushrooms (8th food group), and the intake from these food groups accounted for more than 80% of the total intake. The reported concentrations of nitrates in individual foods and the estimated daily intake of these foods indicate that the intake of nitrates from spinach accounts for 38% of the ADI, that from Chinese cabbage for 10%, and that from Japanese radish for 20%.

(Received June 30, 2008)

Key words: 硝酸塩 nitrate; 一日摂取量 daily intake; トータルダイエツト試料 total diet sample

緒言

硝酸塩は植物中に普遍的に含まれる成分であるとともに、発酵調製・発色の目的で食品添加物としても使用されている。硝酸塩自体の毒性は特に高いわけではないが、生体内で亜硝酸塩に変化すると、メトヘモグロビン血症を引き起こすなどの作用があることが知られている^{1),2)}。さらに、亜硝酸塩はメチルグアニンなどと反応し、発がん性の高いニトロソアミンを生じることも指摘されている^{3),4)}。これらのことから、欧州連合(EU)は、収穫時期や冷凍であるか否かによって変わるが、レタスとホウレンソウに関する硝酸塩の最大基準値を2,000~4,500 mg/kgと設定している。また、FAO/WHO合同食品添加物専門家会議(FAO/WHO Joint Expert Committee on Food Additives; JECFA)は硝酸塩の一日許容摂取量(ADI)として3.7 mg/kg bw/dayを定めている。

わが国における食品中の硝酸塩に関する調査としては、辻ら⁵⁾による199種類の生鮮食品および加工食品の実態調査がある。また、昭和51~60年にわたって実施された、「日本人の食品添加物一日摂取量実態調査研究」⁶⁾の一環として、硝酸塩の摂取量が調査されており、さらに平成11年には「食品添加物一日摂取量総点検調査」⁷⁾にお

いて硝酸塩摂取量が評価されている。これらの調査の目的は、主として添加物として使用されている硝酸塩の摂取量調査であるが、天然由来の硝酸塩と区別できないことから、総摂取量を把握するために個別の生鮮食品についても調査を行っている。しかし、これらの生鮮食品については調理加工などの処理を行っていない。そこでより実際の喫食内容を反映し、総摂取量に対して寄与率の高い食品群を推定するための調査が必要であると考え、平成15年には、国内3か所で作製したトータルダイエツト試料(TD試料)を用いて、硝酸塩の摂取量調査を行った*1。この調査結果から得られた硝酸塩総摂取量は184~227 mg/man/day、体重当たりでは3.7~4.5 mg/kg bw/dayであり、JECFAの定めたADIを超えていた。

上記調査では分析に供された試料検体数が少なかったこと、さらに調査後、国民健康・栄養調査*2の方式が変更され、対象となる食品などが増加したことから、本研究では国立医薬品食品衛生研究所、全国9か所の衛生研究所および大学1か所で調製した計11セット(総試料検体数143)のTD試料中の硝酸塩濃度を測定し、現時点での硝酸塩摂取量の実態把握を試みた。

* 連絡先
国立医薬品食品衛生研究所: 〒158-8501 東京都世田谷区
上用賀1-18-1

*1 平成15年度食品等試験検査費報告書「食品中の汚染物質等の一日摂取量調査の実施」

*2 <http://www.mhlw.go.jp/bunya/kenkou/eiyou.html>

実験方法

1. 試料調製

国内11か所（北海道，新潟，千葉，東京，神奈川，愛知，滋賀，大阪，香川，大分，沖縄）においてTD試料を調製した。

TD試料調製に含める食品の量は，平成13年から15年度の国民健康・栄養調査の結果を地域別に集計して求めた摂取量の平均値に従った。国民健康・栄養調査では食品は17の群に分類されているが，本研究では国立医薬品食品衛生研究所において実施されている汚染物摂取量調査で使用されている13群の分類（飲料水を除く）に従って試料を調製した。すべての食品を13の群に分類し，各食品群に含まれる食品を小売店等で購入し，一般的に生食されるものはそのまま，調理後喫食される食品は簡単な調理を行った後，決定した重量に従って秤量し，必要であれば加水して十分に混合し，試料とした。

2. 硝酸塩分析

試料5gを量り，0.5 mol/L水酸化ナトリウム溶液16

mL，80℃の水30 mL，9%酢酸亜鉛溶液16 mLを加えて，攪拌しながら80℃で20分間加温後，室温まで冷却し水を加えて100 mLに定容した。2,000 rpmで遠心分離した上清を，シリンジフィルター（孔径0.45 μm）でろ過し，高速液体クロマトグラフ（HPLC）で分析した。1群試料は遠心分離により澄明な上清が得られなかったため，エタノールで2倍に希釈し沈殿を凝集させた後に遠心分離した。

HPLC条件は下記のとおりである。

カラム：Shodex Asahipak NH2P-50 4E，4.6 mm × 254 cm + 4.6 mm × 1 cm（ガードカラム）

カラム温度：50℃

移動相：0.1 mol/L過塩素酸ナトリウムを含む10 mmol/Lリン酸塩緩衝液

流量：1.0 mL/min

測定波長：210 nm

Table 1. Repeatability and reproducibility of analysis of spiked samples

Food group No. 5		Days									
		1st					2nd				
		1st	2nd	3rd	4th	5th	1st	2nd	3rd	4th	5th
		Low level spiked samples ^{a)}					High level spiked samples ^{b)}				
Concentration ^{c)} (μg/g)	Portion 1	1.538	1.554	1.540	1.578	1.605	4.998	4.992	4.945	5.129	5.112
	Portion 2	1.524	1.549	1.529	1.623	1.553	5.012	4.979	4.919	5.036	5.093
Recovery ^{d)} (μg/g)	Portion 1	1.190	1.206	1.192	1.230	1.257	4.650	4.644	4.597	4.781	4.764
	Portion 2	1.176	1.201	1.181	1.275	1.205	4.664	4.631	4.571	4.688	4.745

Food group No. 12		Days									
		1st					2nd				
		1st	2nd	3rd	4th	5th	1st	2nd	3rd	4th	5th
		Low level spiked samples ^{a)}					High level spiked samples ^{b)}				
Concentration ^{c)} (μg/g)	Portion 1	1.471	1.416	1.456	1.520	1.485	5.062	4.866	4.940	4.960	4.948
	Portion 2	1.492	1.406	1.453	1.493	1.456	4.938	4.812	4.979	5.052	5.052
Recovery ^{d)} (μg/g)	Portion 1	1.123	1.068	1.108	1.172	1.137	4.714	4.518	4.592	4.612	4.600
	Portion 2	1.144	1.058	1.105	1.145	1.108	4.590	4.464	4.631	4.704	4.704

^{a)} Low-level spiked samples contain 1.25 μg/g of nitrate.

^{b)} High-level spiked samples contain 5.0 μg/g of nitrate.

^{c)} To calculate the concentration, the measured values in the analytical blank was subtracted from the result for each spiked sample.

^{d)} To calculate the recovery, the mean of the measured values obtained by analysis of 5 non-spiked samples was subtracted from the result for each spiked sample.

Table 2. Recovery, repeatability and reproducibility of the method for food samples

Food groups	Spiked concentration (μg/g)	Mean of the analytical results (μg/g)	Recovery rate (%)	Repeatability		Reproducibility within laboratory	
				SD	RSD (%)	SD	RSD (%)
No. 5	1.25	1.21	96.9	0.023	1.87	0.034	2.79
	5	4.67	93.5	0.032	0.69	0.074	1.58
No. 12	1.25	1.12	89.4	0.015	1.30	0.037	3.31
	5	4.61	92.3	0.062	1.35	0.083	1.81

RSD: Relative standard deviation

Table 3. Nitrate concentrations in the total diet samples prepared at 11 laboratories located in different regions of Japan

Food group No.	Food group	Representative food	Sample weight (g)	No. of foods included	Codes for each laboratory where the samples were prepared											Average
					A	B	C	D	E	F	G	H	I	J	K	
					Concentration of nitrate in total-diet samples belonging to each food group ($\mu\text{g/g}$)											
1	Rice	Rice, rice noodle	354.9	4	1.9	0.5	2.5	5.6	1.6	3.6	9.1	3.3	2.0	3.3	1.4	3.2
2	Cereals, potatoes and nuts	Flour, bread, sweet potato, nuts	169.8	20	6.9	2.3	2.5	11.3	9.7	30.0	49.9	68.9	10.7	38.2	43.1	24.9
3	Sugar and confectionery	Sugar, cookies, rice cracker	33.4	12	25.1	24.8	43.9	28.6	27.9	21.1	9.6	28.0	20.3	5.1	24.1	23.5
4	Fat and oils	Margarine, vegetable oils, animal oils	10.7	5	ND	1.7	0.2	0.3	0.1	0.3	0.1	0.5	0.2	0.8	0.4	0.5
5	Pulses and its processed	Soy, tofu, miso	58.5	8	0.7	1.3	1.0	3.4	5.1	3.8	8.8	1.5	2.6	5.7	3.7	3.4
6	Fruits	Apple, orange, melon, strawberry	119.7	12	9.5	19.4	31.3	23.9	13.2	19.3	12.0	36.2	38.2	25.9	25.2	23.1
7	Colored vegetables	Carrot, spinach, tomato, pumpkin	96.9	8	791.5	640.3	702.6	928.6	776.4	575.0	782.1	552.5	321.7	595.8	938.7	691.4
8	Vegetables, seaweeds and mushrooms	Radish, cabbage, hijiki, shimezi	205.6	16	537.6	457.1	253.9	837.8	567.6	697.4	403.4	821.7	836.2	659.2	396.7	588.1
9	Preference beverages	Carbonated drink, beer, Japanese sake	562.2	12	0.7	5.9	3.1	10.2	8.1	2.6	8.0	14.6	11.0	9.1	12.1	7.8
10	Fish and seafoods	Salmon, tuna, shrimp, dried fish	87.5	28	ND	0.2	0.5	2.8	2.0	2.3	4.1	0.5	0.9	4.1	1.1	1.9
11	Meat and eggs	Beef, chicken, egg, sausage	113.7	20	ND	3.5	6.3	5.0	2.3	2.7	5.0	5.1	3.3	5.1	4.6	4.3
12	Milk and milk products	Milk, cheese	147.5	12	3.0	3.2	4.3	3.3	2.5	3.2	5.3	3.8	2.4	5.5	5.2	3.8
13	Spices	Soy sauce, salt, pepper	90.3	19	9.8	33.9	17.7	7.3	6.3	15.8	14.1	9.6	15.0	7.5	34.6	15.6

Table 4. Estimated daily intake of nitrates

Food groups No.	Food group	Codes for each laboratory where the samples were prepared										
		A	B	C	D	E	F	G	H	I	J	K
Estimated daily intake of nitrate (mg/man/day)												
1	Rice	1.2	0.4	1.4	3.2	1.0	1.9	4.4	1.1	1.1	1.9	0.7
2	Cereals, potatoes and nuts	1.7	1.1	0.7	3.3	2.6	7.8	18.7	12.4	3.4	8.3	16.9
3	Sugar and confectionery	1.4	1.5	1.3	2.1	1.3	1.0	0.5	1.5	1.1	0.2	1.2
4	Fat and oils	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
5	Pulses and its processed products	0.0	0.1	0.1	0.3	0.3	0.2	0.5	0.1	0.2	0.4	0.2
6	Fruits	1.0	2.1	3.7	2.9	1.4	2.2	1.5	4.5	4.8	3.1	3.0
7	Colored vegetables	65.7	54.5	71.4	76.5	65.8	44.6	77.5	55.2	28.6	55.5	79.5
8	Vegetables, seaweeds and mushrooms	112.2	116.2	56.0	143.9	112.1	127.1	84.4	165.1	161.3	142.8	84.9
9	Preference beverages	0.4	3.4	1.8	6.3	4.9	1.5	4.3	7.9	6.0	4.8	6.2
10	Fish and seafoods	0.0	0.0	0.1	0.2	0.3	0.3	0.4	0.1	0.1	0.2	0.1
11	Meat and eggs	0.0	0.5	0.9	0.5	0.3	0.3	0.5	0.5	0.3	0.5	0.6
12	Milk and milk products	0.4	0.5	0.6	0.5	0.4	0.5	0.7	0.5	0.3	0.7	0.8
13	Spices	0.9	2.9	1.8	0.7	0.7	1.3	1.3	1.2	1.4	0.7	3.0
Sum of the estimated nitrate daily intake		184.9	183.2	139.8	240.5	191.1	188.6	194.8	250.1	208.6	219.0	197.1

結 果

1. 分析方法の妥当性評価

分析に先立ち、分析方法の妥当性の検証を行った。検証は、平成 19 年 11 月に通知された食品中に残留する農薬等に関する試験法の妥当性評価ガイドライン（食安発第 1115001 号）に準じた方法で実施した。

添加回収試験の対象食品群として、比較的硝酸塩濃度の低い 5 群（豆類）と 12 群（乳類）を選択した。添加濃度を 1.25 $\mu\text{g/g}$ 、5 $\mu\text{g/g}$ の 2 レベルとし、蒸留水を用いた操作ブランク 1 検体、5 群および 12 群の無添加試料を各 1 検体、高レベル添加試料ならびに低レベル添加試料それぞれ 2 検体を併行して 1 日に分析し、これを 5 日間繰り返した。試料量は共通して 5 g とした。分析結果を Table 1 に、回収率、一元配置の分散分析により得られた分散に基づき算出した併行精度、室内精度を Table 2 に示した。いずれの食品群においても、回収率は 80% 以上、室内精度は相対標準偏差 (RSD) として 5% 以下であり、本試験法実施の妥当性が確認された。

2. 硝酸塩濃度および摂取量

Table 3 に 11 セットの TD 試料中の硝酸塩濃度を食品群ごとに示すとともに、各食品群の一日摂取重量と試料調製に使用した食品の数を示した。11 か所の結果を平均すると、有色野菜の群（7 群）の濃度が約 700 $\mu\text{g/g}$ で最も高く、その他の野菜の群（8 群）がそれに続き、この 2 つの食品群中の硝酸塩濃度は他の群の 20 倍以上であった。7 群と 8 群の濃度の大小関係は試料セットにより異なり、全 11 試料セット中 4 つのセットでは 8 群の濃度が 7 群よりも高い結果となった。

雑穀（2 群）、菓子（3 群）、果実（6 群）の群の硝酸塩濃度は平均 20 $\mu\text{g/g}$ 程度であった。これ以外の米（1 群）、油脂（4 群）、豆類（5 群）、魚介（10 群）、肉・卵（11 群）、乳製品（12 群）の試料中の硝酸塩濃度は低く、10 $\mu\text{g/g}$ を超える試料は見られなかった。いずれの食品

群でも、硝酸塩濃度は大きな変動幅を示し、試料調製に用いた個別食品中の硝酸塩濃度が広い範囲に分布していることが考えられる。特に雑穀（2 群）は濃度の範囲が大きく 2.3~68.9 $\mu\text{g/g}$ で、最大値と最小値の比は約 30 であった。

Table 4 には各試料検体中の硝酸塩濃度とその重量から計算した、一日当たりの硝酸塩摂取量を示す。食品群ごとの濃度から予測されたように、有色野菜の群（7 群）およびその他の野菜の群（8 群）からの摂取が全体の 80% 以上を占め、他の食品群からの摂取は全体としてわずかであった。硝酸塩濃度の平均値は有色野菜の群（7 群）のほうが高かったが、摂取量はその他の野菜の群（8 群）のほうが高く、この関係が逆転しているのは 1 機関のみであった。

推定された硝酸塩総摂取量は 140~250 mg/man/day の範囲にあり、平均は 200 mg/man/day であった。

考 察

TD 試料 11 セットの分析値に基づき推定した硝酸塩の摂取量は平均 200 mg/man/day であり、体重当たりとすると 4 mg/kg bw/day であった。この値は JECFA が定めた硝酸塩の 1 日許容摂取量 (ADI) 3.7 mg/kg bw/day を 8% 程度超えている。使用した 11 試料において、JECFA の ADI を超える摂取量推定値 (185 mg/man/day) を与えたものは 8 試料であった。

昭和 51 年~60 年に実施された「日本人の食品添加物 1 日摂取量実態調査研究」⁹⁾ では、加工食品由来の硝酸塩摂取量は 35.5 mg/man/day (0.71 mg/kg bw/day) であり、果実・野菜・海藻を原材料とする加工食品からの摂取が主であり、全体の 70% を占めると報告されている。この傾向は、今回の調査結果と同じであった。同時に報告された生鮮食品からの摂取量は 224.1 mg/man/day (4.5 mg/kg bw/day) で、加工食品に由来する摂取量の 6 倍

であり、両者を合わせた摂取量は 260 mg/man/day (5.2 mg/kg bw/day) であり、本研究で推定された摂取量よりも高い結果であった。同様に、平成 10~11 年の「食品添加物一日摂取量総点検調査」⁷⁾ では 190 mg/man/day (3.8 mg/kg bw/day)、平成 15 年の TD 試料 3 種による調査では 184~227 mg/man/day (3.7~4.5 mg/kg bw/day) であった。今回の調査結果の平均である 200 mg/man/day の推定摂取量は、平成 10~11 年および 15 年の調査とほぼ同程度である。これらの結果から、日本人の硝酸塩摂取量は、JECFA の設定した ADI をやや超えた水準で変わらず推移していることが示された。いずれの摂取量調査においても、硝酸塩の大部分が果実・野菜・海草の群から摂取されていた。

辻らの報告⁵⁾ によれば、ハウレンソウ (3,560 $\mu\text{g/g}$)、ターサイ (5,670 $\mu\text{g/g}$)、チンゲンサイ (3,150 $\mu\text{g/g}$)、しゅんぎく (4,410 $\mu\text{g/g}$)、サラダ菜 (5,360 $\mu\text{g/g}$)、サニーレタス (1,230 $\mu\text{g/g}$)、白菜 (1,040 $\mu\text{g/g}$)、大根 (1,060 $\mu\text{g/g}$) に高濃度の硝酸塩が含まれている。前の 4 種類は 7 群に、残りは 8 群に含まれる野菜である。今回の調査結果では、7 群の硝酸塩濃度はおよそ 700 $\mu\text{g/g}$ 、8 群は 600 $\mu\text{g/g}$ で個々の野菜の分析により得られた濃度に比べ低濃度であった。

今回使用した国民健康・栄養調査結果では、ハウレンソウの 1 日当たりの摂取量は全国平均で 19.8 g であった。辻らが報告⁵⁾ したハウレンソウ中の硝酸塩濃度 3,560 $\mu\text{g/g}$ から、ハウレンソウに由来する硝酸塩摂取量を計算すると 70 mg/man/day (1.4 mg/kg bw/day) であり、ADI の 38% に相当する。同様に白菜および大根からの摂取量を求めると、それぞれ 0.4 mg/kg bw/day および 0.8 mg/kg bw/day となり、これら 3 種の野菜で ADI のほぼ 70% にあたる 2.6 mg/kg bw/day を摂取していると推定される。このほかに、葉菜漬物、沢庵も 18 g 程度摂取されている。漬物類にも原料である白菜、大根と同程度の硝酸塩が含まれているため、これらを含めた 8 群から

の摂取量が多くなったと考えられる。

結 論

11 か所で調製したマーケットバスケット方式によるトータルダイエツト試料を分析し、硝酸塩の摂取量を推定した。分析方法の妥当性を回収率および室内精度により確認した。推定された摂取量は 4.0 mg/kg bw/day であり、JECFA の定めた ADI 3.7 mg/kg bw/day を 8% 超過していた。硝酸塩の主要な摂取源は、7 群 (有色野菜) および 8 群 (その他の野菜、漬物、海藻) であり、これらの群からの摂取量が総摂取量の 80% 以上を占めていた。

文 献

- 1) Mensinga, T. T., Speoijers, G. J., Meulenbelt, J. Health implication of exposure to environmental nitrogenous compound. *Toxicol. Rev.*, **22**, 41-51 (2003).
- 2) Maric, P., Ali, S. S., Heron, L. G., Rosenfeld, D., Greenwood, M. Methaemoglobinaemia following ingestion of a commonly available food additive. *Med. J. Aust.*, **188**, 156-158 (2008).
- 3) Lijinsky, W. *N*-Nitroso compounds in the diet. *Mutat. Res.*, **443**, 129-138 (1999).
- 4) Sugimura, T. Nutrition and dietary carcinogens. *Carcinogenesis*, **21**, 387-395 (2000).
- 5) Tsuji, S., Kohsaka, M., Morita, Y., Shibata, T., Kaneta, N., Wakabayashi, K., Uchibori-Hase, S., Ide, S., Fujiwara, K., Suzuki, H., Ito, Y. Naturally occurring of nitrite and nitrate existing in various raw and processed foods. *Shokuhin Eiseigaku Zasshi (J. Food Hyg. Soc. Japan)*, **34**, 294-302 (1993).
- 6) 伊藤蒼志男編, 「日本人の食品添加物 1 日摂取量実態調査研究—食品中の食品添加物残存量測定による調査研究のまとめ—」, 厚生省生活衛生局食品化学課 (1987).
- 7) 食品添加物研究会編, 「あなたが食べている食品添加物, 食品添加物一日摂取量の実態と傾向 総合版」(2001).

Accumulation and Localization of Cesium in Edible Mushroom (*Pleurotus ostreatus*) Mycelia

HIDEO SUGIYAMA,^{*,†} MITSUKO N. TAKAHASHI,[†] HIROSHI TERADA,[†]
CHIKAKO KUWAHARA,[‡] CHIKA MAEDA,[§] YOJIRO ANZAI,[§] AND FUMIO KATO[§]

Department of Environmental Health, National Institute of Public Health, 2-3-6 minami Wako-shi, Saitama 351-0197, Japan, Chemistry Division, Kanagawa Prefectural Institute of Public Health, Chigasaki-shi, Kanagawa 253-0087, Japan, and Department of Microbiology, School of Pharmaceutical Sciences, Toho University, Funabashi-shi, Chiba 274-8510, Japan

The characteristics of Cs accumulation and localization in edible mushrooms were examined using the mycelia of *Pleurotus ostreatus*-Y1. Scanning electron microscope images revealed the existence of white spots, and energy dispersive X-ray microanalyzer analysis indicated the presence of larger amounts of Cs and P in these spots in mycelia cultured on medium containing 25 mM CsCl. The ¹³⁷Cs activities in the mycelia were approximately 4–6 times higher than those in water used for ¹³⁷Cs elution. Higher Cs concentrations in the sediment fraction including vacuolar pellets were obtained compared to the upper fractions. It was observed that yellowish spots caused by the fluorescence of 4',6-diamidino-2-phenylindole (DAPI)-stained polyphosphate were localized in the mycelia. The higher fluorescence intensity of the yellowish-grained spots was measured in comparison with other regions in the mycelium. These results suggested that Cs in the mycelia was trapped by polyphosphate in vacuoles or other organelles.

KEYWORDS: Accumulation; localization; cesium; potassium; mushroom; mycelium; *Pleurotus ostreatus*

INTRODUCTION

After the Chernobyl accident in 1986, it was reported that wild mushrooms in European countries contained high levels of ¹³⁷Cs (1–4). In addition, wild mushrooms with higher ¹³⁷Cs contents (less than detectable-1070 Bq kg⁻¹ fresh wt., <0.4–1260 Bq kg⁻¹ fresh wt., and not detectable-570 Bq kg⁻¹ fresh wt.) were found in Japan (5–9). Recent reports showed that the levels of ¹³⁷Cs in wild mushrooms were still high in Europe (10, 11). For example, the highest activity concentrations of ¹³⁷Cs were 2263 Bq kg⁻¹ (dry wt.) in *Xerocomus badius* from the Czech Republic, 966 Bq kg⁻¹ (dry wt.) in *Suillus luteus* from Slovakia, and 401 Bq kg⁻¹ (dry wt.) in a mushroom from Turkey, and it is internationally recognized that mushrooms are capable of accumulating ¹³⁷Cs from the environment. In Japan, radioactivity monitoring (permissible limit of 370 Bq kg⁻¹ for ¹³⁷Cs + ¹³⁴Cs) of mushrooms imported from European countries has been undertaken by the Ministry of Health, Labor and Welfare since the Chernobyl accident.

However, an explanation of why there is a high concentration and accumulation of ¹³⁷Cs in mushrooms has not been established. Therefore, investigations have been carried out on soil-mushroom or mushroom mycelia systems (12–15). The present

studies have focused on the cultivation of the edible, saprophytic mushroom *Pleurotus ostreatus* to investigate its accumulation of ¹³⁷Cs and stable Cs. *P. ostreatus* is a very popular, edible mushroom in Japan, and its cultivation is relatively easy. The ease of cultivation of *P. ostreatus* enables the establishment of experimental conditions for ¹³⁷Cs or stable Cs tracing and allow its use as an effective tool to study the translocation characteristics and mechanisms of accumulation of Cs. Previously, the following findings using the *P. ostreatus*-Y1 strain were obtained; high ¹³⁷Cs contents were detected not only in mycorrhizal mushrooms in the field but also in the fruiting body of saprophytic mushrooms depending on the concentration of Cs in the culture medium (9, 16); Cs⁺ and analogous alkali metals such as K⁺ and Rb⁺ were competitively taken-up by mushroom mycelia (17); and NMR measurement of the mushroom fruiting body and mycelia revealed the existence of Cs in ionized as well as other forms (9, 18).

In the present study, further experiments were conducted using the *P. ostreatus*-Y1 strain involving observations using a scanning electron microscope (SEM)–energy dispersive X-ray microanalyzer (EDX) and elemental analysis, elution of ¹³⁷Cs from mycelia, fractionation of Cs contents in mycelium cells by density-gradient centrifugation, and fluorescence microscopy of polyphosphate in mycelia using DAPI staining to investigate the characteristics of Cs accumulation and localization in mushroom mycelia.

* Corresponding author. Phone: +81 48 458 6263. Fax: +81 48 458 6270. E-mail: sugiyama@niph.go.jp.

[†] National Institute of Public Health.

[‡] Kanagawa Prefectural Institute of Public Health.

[§] Toho University.

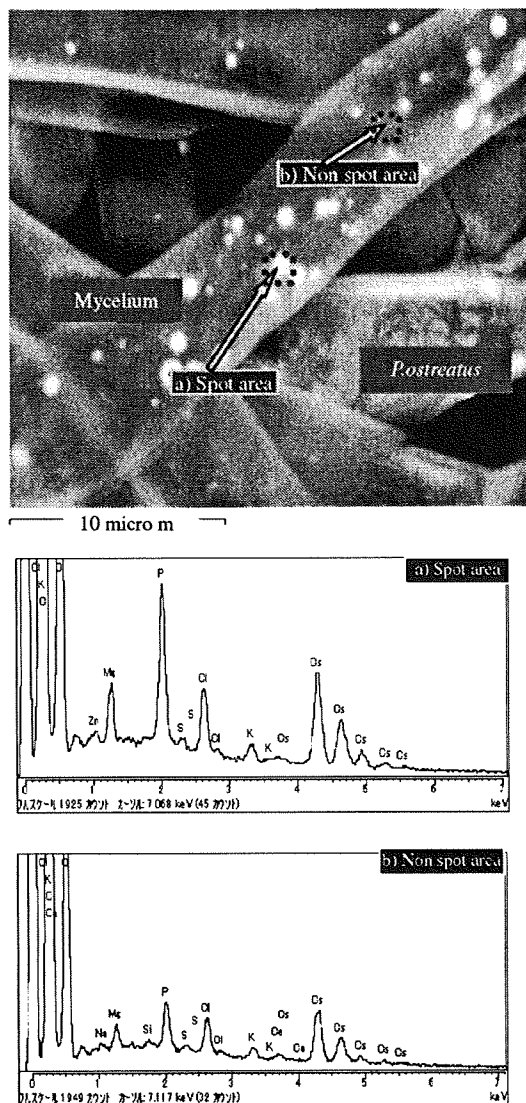


Figure 1. Image and spectra of *P. ostreatus*-Y1 mycelia using a scanning electron microscope (SEM) and energy dispersive X-ray microanalyzer (EDX). The rectangles with dotted lines indicate the scanning areas with a spot (a) and without a spot (b) for the spectra of the spot area and nonspot area.

MATERIALS AND METHODS

This study used the *P. ostreatus*-Y1 strain, a popular, edible, saprophytic mushroom in Japan.

SEM-EDX Observation of *P. ostreatus* Mycelia. *P. ostreatus* mycelia were cultivated at 27 °C for seven days on the upper side of a membrane filter (Millipore, pore size: 0.45 μm) placed on yeast extract–malt extract agar medium (0.4% yeast extract (Difco), 1% malt extract (Difco), and 0.4% glucose (Wako), pH 7.2) containing 25 mM CsCl (Wako) in a petri plate. Parts of mycelia on the filter were smeared onto double-sided carbon tape (Shinto Paint, 8W mm for Al specimen mounting; Hisco, 15q × 6H mm for SEM without vapor deposition). Observation of images and element identification in *P. ostreatus* mycelia samples were performed by SEM-EDX (Hitachi S-3000N) in low vacuum mode (50 Pa) at 15 kV. Identification and semiquantitative analysis of elements were carried out using the spectra and peak heights of the spectra using EDX-Analysis Manager (Horiba).

Uptake of ¹³⁷Cs into *P. ostreatus* Mycelia and Elution. *P. ostreatus* mycelia were incubated by shaking in liquid medium (0.4% yeast extract, 1% malt extract, and 0.4% glucose, pH 7.2) containing 4.4 kBq ¹³⁷Cs (The Japan Radioisotope Association, ¹³⁷CsCl standard solution 56-CS005; ¹³⁷Cs 370 kBq kg⁻¹) and 5 mM CsCl using 6 baffle

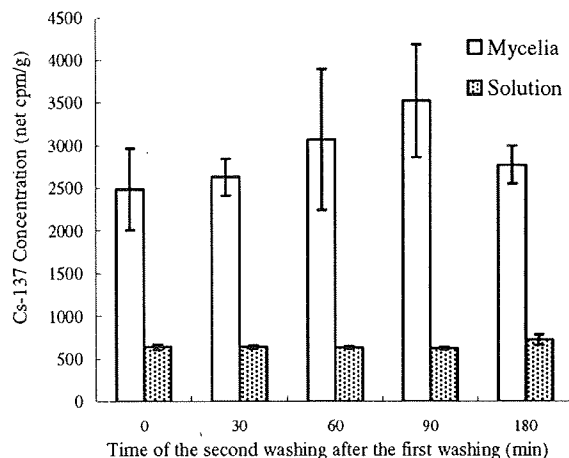


Figure 2. Concentrations of ¹³⁷Cs in *P. ostreatus*-Y1 mycelia and solutions after washing with distilled water. *P. ostreatus*-Y1 mycelia were cultured in YM liquid medium containing 4.4 kBq of ¹³⁷CsCl and 5 mM CsCl. The ¹³⁷Cs concentrations of the samples were determined by comparing with a ¹³⁷CsCl standard solution with an auto gamma-ray counter. Error bars indicate the mean value ± standard deviation of three replicates.

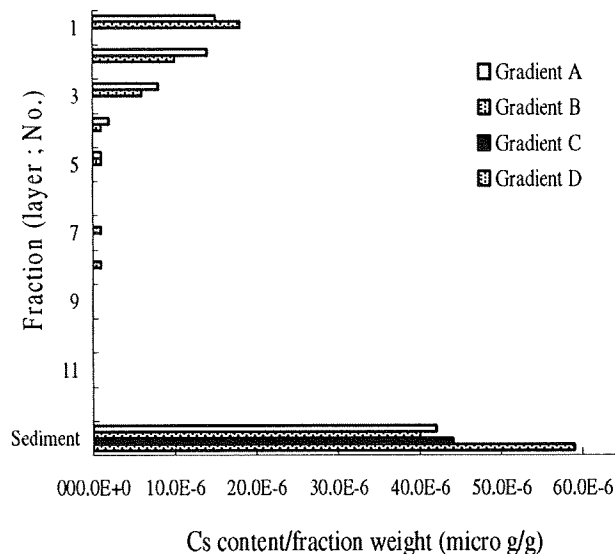


Figure 3. Distribution of Cs in each fraction of *P. ostreatus*-Y1 mycelia cultured on YM agar with 15 mM CsCl following density-gradient centrifugation.

flasks at 27 °C for seven days. After incubation, the culture fluids were centrifuged at 500 rpm for 10 min (15 °C). Each pelleted mycelia sample was combined in a centrifuge tube, and the mycelia were suspended in 35 mL of distilled water. Approximately 5 g of mycelia was shaken in distilled water (35 mL) for the first wash using a test tube mixer (Vortex) for 1 min. For ¹³⁷Cs elution experiments, a total of 15 2-mL aliquots of the mycelia suspension were collected. At time points of 0, 30, 60, 90, and 180 min after the start of ¹³⁷Cs elution, the samples were centrifuged (3000 rpm, 10 min) in triplicate for each time point to isolate mycelia from the mycelia-washing solution. Approximately 0.3–0.4 g of fresh mycelia and 2 mL of wash solution were obtained per sample. ¹³⁷Cs activities in the mycelia (sediment before and after washing), solutions for elution (supernatant before and after washing), and ¹³⁷CsCl standard solution in 0.5 mL tubes were measured with an auto well γ-ray counter (Aloka; Auto Well Gamma System ARC-380CL) for 10 min. The ¹³⁷Cs contents (cpm g⁻¹) of the samples were determined on the basis of ¹³⁷CsCl standard solution activities and the weight of samples. Loss of ¹³⁷Cs from the mycelia during the first wash was about 47%.