

the  $^{210}\text{Po}$  exposure level, separate samples of each of the 13 food categories in Yokohama were prepared. All of these samples were tested without further processing after they were initially cooked. For the evaluation of exposure to gamma-emitting nuclides, those individually cooked samples of each of the 13 food categories were freeze-dried or heat-dried, followed by 24-hr ashing at  $450^\circ\text{C}$ , to yield test samples. Drinking water (100 l) was evaporated to dryness for test samples.

#### Radioanalytical procedure of $^{210}\text{Po}$

Mixed samples were analyzed to evaluate the amount of  $^{210}\text{Po}$  ingested in all foodstuffs. The  $^{210}\text{Po}$  were analyzed by using Sr-Spec<sup>TM</sup> (Eichrom Technologies, Lisle, IL, USA) resin column with an alpha spectrometry (Miura *et al.*, 2003). From the sample for analysis, 30 g (wet weight) was taken and spiked with  $^{209}\text{Po}$  tracer for the correction of the chemical yield. The mixture was digested with conc.  $\text{HNO}_3$ , concentrated followed by degradation. After degradation, the solution was concentrated and filtrated. The filtrate was concentrated by heating, digested with 4 M HCl, and then heated. After cooling, the residue was filtrated, and the filtrate was passed through Sr-Spec<sup>TM</sup> was followed by eluting with 6 M  $\text{HNO}_3$ , and the eluate was concentrated by evaporation. The concentrated eluate was digested with 0.5 M HCl and dissolved by heating. The thus prepared test solution was combined with ascorbic acid, and Po was electrodeposited on a stainless steel disk. The stainless steel disk was washed with distilled water and ethanol and dried to yield samples for measurement. The samples were subjected to measurement for 80,000-160,000 s with an alpha spectrometry system equipped with the Si detector (Canberra, Meriden, CT, USA). Fig. 1 shows the alpha spectrum isolated from a mixed food sample. On the basis of the net reading from each sample, the counts of tracer  $^{209}\text{Po}$  for the yield correction and the amount of sample subjected to analysis, the  $^{210}\text{Po}$  radioactivity level was calculated. The results of analysis were corrected for decay time according to the date of sample preparation. The average chemical recovery of  $^{209}\text{Po}$  in this method was found to be 74%. When this analytical method was applied to the reference sample-sediment (IAEA-368), the  $^{210}\text{Po}$  analytical value of  $24 \pm 1.6$  Bq/kg was identical to the reference value (23.2 Bq/kg).

Individual food category samples were analyzed to evaluate the amount of  $^{210}\text{Po}$  intake derived from each food category. The radioanalytical procedure was without an electrodepositing technique (Tolmachyov, 2001). From each food category, 30 g of cooked sample was taken (freeze-dried samples equivalent to 30 g of cooked sam-

ples for fish/shellfish, meats and eggs) and spiked with  $^{208}\text{Po}$  tracer for the yield correction. The samples were digested with conc.  $\text{HNO}_3$  and  $\text{H}_2\text{O}_2$ . The sample solutions were concentrated to a level close to drying, and then decomposed with 10 ml of conc. HCl. It was then concentrated to a level close to drying. The sample solutions were subsequently decomposed with 50 ml of 0.5 M HCl and heated. If a residue was formed, the solutions were filtrated. A silver disk with a Teflon tape attached to one side and ascorbic acid were added to the filtrate in a plastic bottle, followed by Po sedimentation on the silver disk. The silver disks were washed with distilled water and ethanol, followed by drying to yield samples for measurement. The samples were subjected to measurement for 200,000 s with an alpha spectrometry system equipped with the Si detector (EG&G Ortec, Oak Ridge, TN, USA). On the basis of the net reading from each sample, the counts of tracer  $^{208}\text{Po}$  for yield correction, and the amount of sample subjected to the analysis, the level of  $^{210}\text{Po}$  radioactivity in the prepared sample was calculated. The results of analysis were corrected for decay time according to the date of sample preparation. The average chemical recovery of  $^{208}\text{Po}$  in this method was found to be 72%.

#### Measurement of gamma-emitting nuclides

Individual food category samples were subjected to measurement to evaluate the amount of  $^{40}\text{K}$  and other gamma-emitting nuclides ingested in each food category. Ash samples from each food category were placed individually into cylindrical plastic containers (100-ml capacity) and sealed with a silicone sealing. The containers filled with samples were left to stand for about 2 weeks, to yield samples for measurement. Because fats and oils are difficult to ash, they were placed into Marinelli containers (1-L capacity) to yield samples for measurement. Each sample was subjected to determination for 80,000-300,000 s with a gamma spectrometry system equipped with the high-purity Ge detector (Canberra, Eurysis, or Oxford). The nuclides measured were natural radionuclides ( $^{40}\text{K}$ ,  $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Bi}$ ,  $^{212}\text{Pb}$ ,  $^{228}\text{Ac}$  and  $^{208}\text{Tl}$ ) and artificial radionuclides ( $^{137}\text{Cs}$ ). The reliability of data yielded from this gamma spectrometry was certified in a previous report (Sugiyama *et al.*, 2007).

## RESULTS

The amount of daily intake of  $^{210}\text{Po}$  from ingestion of the foods for adults in 7 major cities of Japan was investigated. Daily  $^{210}\text{Po}$  intake was calculated from the analytical data on each mixed sample of 13 food categories

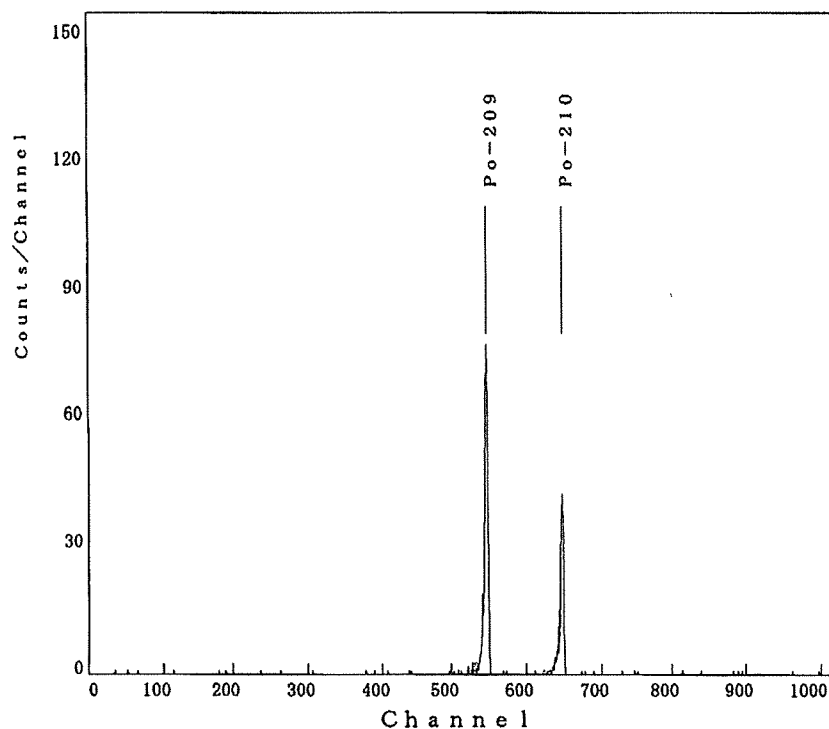


Fig. 1. Alpha spectrum of polonium separated from a mixed food sample. 5.305 MeV for  $^{210}\text{Po}$  (half life; 138.4d), 4.877 MeV for  $^{209}\text{Po}$  (half life: 102y).

excluding drinking water and data on food consumption in each city. Table 1 shows the results in the present study and data reported in the literature. The amount of daily  $^{210}\text{Po}$  intake by adults in the 7 cities ranged from 0.34 to 1.84 (mean  $\pm$   $\sigma$ :  $0.66 \pm 0.53$ ) Bq/d. Levels showed an ascending order of 0.34 in Fukuoka, 0.37 in Yokohama, 0.38 in Sapporo, 0.45 in Osaka, 0.58 in Sendai, 0.69 in Niigata, and 1.84 in Kochi. It was thus largest in Kochi.

The amount of daily intake of each of the 13 food categories excluding drinking water for  $^{210}\text{Po}$  was investigated in Yokohama. The amount of  $^{210}\text{Po}$  intake in each of the 13 food categories was calculated on the basis of analytical data and data on food consumption in Yokohama.  $^{210}\text{Po}$  was determined for 5 food categories (other vegetables, mushrooms, and seaweeds; beverages; fish and shellfish; meat and poultry, eggs; and seasoning and spices). The detection limit of  $^{210}\text{Po}$  for each food categories was 0.05, 0.04, 0.04, 0.03, 0.04, 0.03, 0.04, 0.07, 0.006, 1.4, 0.04, 0.02, 0.06, and 0.002 mBq/g in order according to the category. The intake of  $^{210}\text{Po}$  in these five food categories was 37.5, 3.8, 130.0, 2.2 and 18.7 mBq/d, respectively. When the percentage of each food category among

the total daily  $^{210}\text{Po}$  intake was evaluated, as illustrated in Fig. 2, it was shown that about 70% of the total  $^{210}\text{Po}$  was derived from fish and shellfish and 20% from other vegetables, mushrooms, and seaweeds.

The amount of daily intake of gamma-emitting radionuclides was calculated on the basis of data from the measurement of individual samples of 14 food categories as well as data on food consumption. K is generally abundant in food. The percentage occupied by the natural radionuclide  $^{40}\text{K}$ , one of the isotopes of K, is 0.0117%. It is known that foods contain high levels of  $^{40}\text{K}$  radioactivity. In the present study,  $^{40}\text{K}$  in all food categories excluding some fats and oils was determined. Table 1 shows the total daily intake of  $^{40}\text{K}$  in 14 food categories for adults in 7 cities. The total intake of  $^{40}\text{K}$  in 14 food categories for adults in 7 major cities of Japan (Bq/d) was 68.5 in Fukuoka, 78.2 in Sendai, 78.7 in Kochi, 79.4 in Osaka, 81.4 in Sapporo, 90.5 in Yokohama, and 94.2 in Niigata. It averaged 81.5 Bq/d. When analyzed for each food category, the amount of  $^{40}\text{K}$  intake in each of the 7 cities was particularly large from other vegetables, mushrooms and seaweeds (Category VIII), at 8.8-29.1 Bq/d. After

Internal exposure to  $^{210}\text{Po}$  and  $^{40}\text{K}$  for adults**Table 1.** Comparison of daily intake and effective dose of  $^{210}\text{Po}$  and  $^{40}\text{K}$  from foods with literature values

Sample	$^{210}\text{Po}$ intake (Bq/d)	$^{210}\text{Po}$ effective dose (mSv)	$^{40}\text{K}$ intake (Bq/d)	$^{40}\text{K}$ effective dose (mSv)	Region	Reference
Daily diet	0.38	0.17	81.4	0.18	Sapporo, Japan	Present study
	0.58	0.25	78.2	0.18	Sendai, Japan	Present study
	0.69	0.30	94.2	0.21	Niigata, Japan	Present study
	0.37	0.16	90.5	0.20	Yokohama, Japan	Present study
	0.45	0.19	79.4	0.18	Osaka, Japan	Present study
	1.84	0.81	78.7	0.18	Kochi, Japan	Present study
	0.34	0.15	68.5	0.16	Fukuoka, Japan	Present study
	0.11, 0.22	0.06, 0.11	-	-	India	Avadhani <i>et al.</i> (2001)
	0.08, 0.19	-	-	-	India	Narayana <i>et al.</i> (1995)
	0.05-0.06	-	-	-	USA	Holtzman <i>et al.</i> (1980)
Foodstuff	1.67 (610 Bq/y)	0.73	-	-	Japan	Ota <i>et al.</i> (2009)
	-	-	39.4	0.10	Korea	Choi <i>et al.</i> (2008)
Seafood	0.48-0.69	-	-	-	Japan	Yamamoto <i>et al.</i> (1994)
	1.20	-	-	-	Portugal	Carvalho <i>et al.</i> (1995)
Diet	0.14 (52 Bq/y)	-	-	-	International	Aarkrog <i>et al.</i> (1997)
	0.05-0.36 (18-130 Bq/y)	0.022-0.16	-	0.17	International	UNSCEAR (2000)
	0.60 (220 Bq/y)	0.27	-	-	Japan	UNSCEAR (2000)

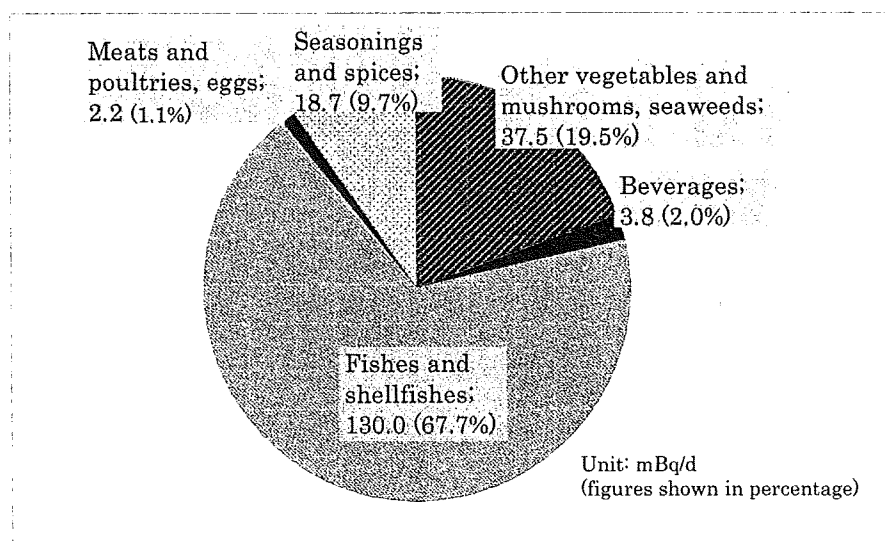
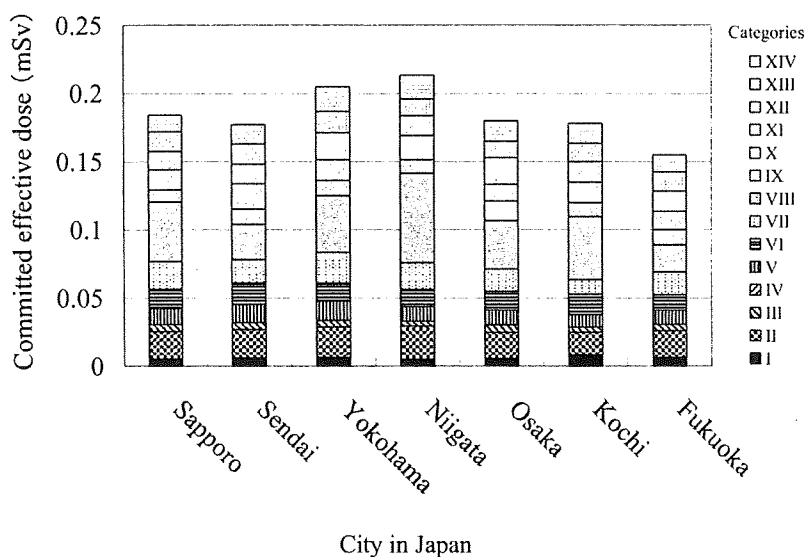


Fig. 2. Daily intakes of  $^{210}\text{Po}$  from fourteen food categories for adults in Yokohama city, Japan.

this category, the amount was large from grains/potatoes/seeds, green/yellow vegetables, meat/poultry/eggs and fish/shellfish. The levels of nuclides belonging to the uranium and thorium series ( $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Bi}$ ,  $^{212}\text{Pb}$ ,  $^{228}\text{Ac}$ , and  $^{208}\text{Tl}$ ) were less than the detectable limit or very low. The amount of these nuclides ingested daily was very small, with the maximum being:  $^{214}\text{Pb} < 0.14$  Bq/d,  $^{214}\text{Bi} < 0.16$  Bq/d,  $^{228}\text{Ac} < 0.32$  Bq/d and  $^{212}\text{Pb} < 0.13$  Bq/d.  $^{208}\text{Tl}$  was not detected in any food tested.  $^{137}\text{Cs}$  (an artificial radionuclide originating from past atmospheric nuclear weapon tests and the accident at the Chernobyl nuclear power plant) was found to have been ingested with fish/shellfish, meat/poultry/eggs, and other vegetables/mushrooms/seaweeds, with the maximum amount daily intake being 0.03 Bq/d (Osaka).

The committed effective dose of  $^{210}\text{Po}$  and  $^{40}\text{K}$  from ingestion of foods for adults was calculated from the amounts of daily  $^{210}\text{Po}$  and  $^{40}\text{K}$  intake. In the present study, a relatively simple method, usually used for environmental radioactivity monitoring around atomic power facilities, was employed for dose evaluation. The method used for calculation was described elsewhere (Sugiyama *et al.*, 2007). The dose conversion coefficients for adult persons ( $^{210}\text{Po}$ :  $1.2 \times 10^{-6}$  Sv/Bq,  $^{40}\text{K}$ :  $6.2 \times 10^{-9}$  Sv/Bq) were obtained from ICRP Publication 72 (ICRP, 1996). The results are shown in Table 1. The committed effective dose (mSv) of  $^{210}\text{Po}$  for adults in the 7 cities was as follows (in ascending order): 0.15 in Fukuoka, 0.16 in Yokohama, 0.17 in Sapporo, 0.19 in Osaka, 0.25 in Send-

ai, 0.30 in Niigata, and 0.81 in Kochi. The mean  $\pm \sigma$  of the 7 cities was  $0.29 \pm 0.24$  mSv. Thus, the committed effective dose in adults was higher in Kochi than the other 6 cities. When the committed effective dose from individual food categories in Yokohama was calculated, it was high in the descending order of fish/shellfish, other vegetables/mushrooms/seaweeds, seasoning/spices, beverages and meat/poultry/eggs, similar to the order of the amount of daily  $^{210}\text{Po}$  intake in this city. The committed effective dose (mSv) of  $^{40}\text{K}$  was as follows (in ascending order): 0.16 in Fukuoka, 0.18 in Sapporo, 0.18 in Sendai, 0.18 in Osaka, 0.18 in Kochi, 0.20 in Yokohama, and 0.21 in Niigata. The mean  $\pm \sigma$  for the 7 cities was  $0.18 \pm 0.02$  mSv. Thus, this amount differed little among the 7 cities. Fig. 3 shows the contribution of 14 food categories for the committed effective dose to the daily intake of  $^{40}\text{K}$  for adults of 7 cities in Japan. As shown in Fig. 3, although, the values of the committed effective dose excluding those of other vegetables/mushrooms/seaweeds (Category VIII) among 7 cities were relatively similar levels (0.13-0.16 mSv), but it was found that the contributions of the  $^{40}\text{K}$  dose of Category VIII to those doses showed a very high rate (14.7-44.6%). As described in the evaluation of the amount of daily intake, the level of radioactivity of other natural radionuclides ( $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Bi}$ ,  $^{212}\text{Pb}$ ,  $^{228}\text{Ac}$ , and  $^{208}\text{Tl}$ ) excluding  $^{40}\text{K}$  was low in each food category, and the committed effective dose was also low, with the maximum effective dose ( $\mu\text{Sv}$ ) being:  $^{214}\text{Pb} < 0.002$ ,  $^{214}\text{Bi} < 0.007$ ,  $^{212}\text{Pb} < 0.279$ , and  $^{228}\text{Ac} < 0.051$ . Dose calculation

Internal exposure to  $^{210}\text{Po}$  and  $^{40}\text{K}$  for adults

**Fig. 3.** Contribution of fourteen food categories for committed effective doses to intakes of  $^{40}\text{K}$  for adults of seven cities in Japan. I: Rice; II: Grains, potatoes, seeds and nuts; III: Sugar and preserves, sweets; IV: Fats and oils, V: Legumes; VI: Fruits; VII: Green, yellow vegetables; VIII: Other vegetables, mushrooms, seaweeds; IX: Beverages; X: Fish and shellfish; XI: Meat and poultry, eggs; XII: Milk and dairy products; XIII: Seasoning and spices; XIV: Drinking water.

for  $^{208}\text{Tl}$  was not undertaken because  $^{208}\text{Tl}$  was not detected in any food tested. In the present study, the contribution of natural radionuclides excluding  $^{210}\text{Po}$  and  $^{40}\text{K}$  to the human exposure level was shown to be very small.

### DISCUSSION

At present, data on the  $^{210}\text{Po}$  radioactivity level in foods are scant in both Japan and other countries. Only a limited number of reports are available on evaluation of the  $^{210}\text{Po}$  exposure level. UNSCEAR 2000 contains reference data on  $^{210}\text{Po}$  levels contained in foods (15-2,000 mBq/kg). According to that report, the  $^{210}\text{Po}$  level is the highest in fish products and the level is below 100 mBq/kg in leafy vegetables, grains, meats, root vegetables/fruits, and dairy products. Examples of reports showing high  $^{210}\text{Po}$  levels in marine products are cited below. *Cerastoderma glaucum* and *Tapes Philippinarum*, which are seafoods collected in Venice, Italy, had  $^{210}\text{Po}$  levels of 51.6-108 Bq/kg and 37.3-72.0 Bq/kg fresh weight, respectively (Jia *et al.*, 2001). Crops harvested in Syria had  $^{210}\text{Po}$  levels < 0.1-15 Bq/kg dry weight, with the highest level recorded in parsley (Othman and Yassine, 1995), clearly lower than the levels of the above-mentioned marine products. According to a study in Goa, India, the  $^{210}\text{Po}$  level was higher for fishes and prawn, at 1.60-9.65 Bq/kg wet, as compared to

vegetables and rice (0.05-0.26 Bq/kg wet) (Avadhani *et al.*, 2001). In the same study, the level in leafy vegetables was higher than that in other vegetables. Representative data from Japan pertain to the analysis of  $^{210}\text{Po}$  in fish and shellfish collected in the north-east region of Japan (Yamamoto *et al.*, 1994). In that study, the  $^{210}\text{Po}$  level was 0.6-26.0 Bq/kg wet in fishes and 0.5-220 Bq/kg wet in molluscs, echinoderms and chordatas. Among others, the internal organs of shellfish had high levels of  $^{210}\text{Po}$ , and the level tended to be higher in fish such as *Pneumato-phous japonicus*, *Thunnus thynnus*, *Sardinops melanostictus*, and *Hippoglossoides dubius* (14.4-25.8 Bq/kg wet). The level in algae was not very high (2.8-4.3 Bq/kg wet). Recently, new data were reported on  $^{210}\text{Po}$  contained in foodstuffs distributed in Japan. According to that report, the  $^{210}\text{Po}$  level was high in fish and shellfish (0.02-120 Bq/kg fresh weight), and it was particularly high in dried sardines (Ota *et al.*, 2009). In the present study,  $^{210}\text{Po}$  in each food category was analyzed using samples from Yokohama, revealing that the  $^{210}\text{Po}$  level was highest in fish/shellfish (1.60 Bq/kg), followed by seasoning/spices (0.20 Bq/kg) and other vegetables/mushrooms/seaweeds (0.19 Bq/kg). In Osaka, the  $^{210}\text{Po}$  level was 5.40 Bq/kg in fish/shellfish and 0.12 Bq/kg in other vegetables/mushrooms/seaweeds. These results indicate that the  $^{210}\text{Po}$  level in fish/shellfish is higher than that in other foodstuffs in

Japan, similar to the findings reported from overseas. The amount of annual  $^{210}\text{Po}$  intake (UNSCEAR, 2000) is larger in Japan (220 Bq/y, equivalent to 0.6 Bq/d) than in any other country (22 in USA, 18 in Argentina, 68-130 in China, 40 in Italy, 44 in Poland, 40-55 in Russia, and 28-44 Bq/y in the UK). In the present study, the amount of daily  $^{210}\text{Po}$  intake was 0.34-1.84 Bq/d (mean: 0.66), approximately equal to the amount reported by UNSCEAR 2000. On evaluation of the amount of daily  $^{210}\text{Po}$  intake from each of 13 food categories in Yokohama, the contribution was the greatest from fish/shellfish (68% of the total intake). This percentage is much higher than that reported for seafood in Ireland (45%) yielded by a similar evaluation of the contribution of each food category (RPII: 2008). Yamamoto reported that the amount of  $^{210}\text{Po}$  ingested in fish/shellfish caught in the north-east region of Japan was 0.48-0.69 Bq/d, indicating high levels of exposure to  $^{210}\text{Po}$  from them. The large amount of daily  $^{210}\text{Po}$  intake by Japanese people seems to reflect their dietary habits, characterized by a larger consumption of fish/shellfish, which tend to contain high  $^{210}\text{Po}$  levels, as compared to people in Western countries.

The survey results on  $^{40}\text{K}$  levels in foods are presented. According to the above-mentioned study in Syria, the  $^{40}\text{K}$  level in agricultural products was 128-1,800 Bq/kg dry weight, with the highest level recorded in marrow (*Cucurbita pepo*) (Othman and Yassine, 1995). In a survey of natural radionuclide levels in 5 kinds of fish/shellfish caught in the north-east region of Japan, the levels of  $^{40}\text{K}$  were 61.9-119 Bq/kg wet (Yamamoto *et al.*, 1994). Thus, these two studies yielded similar results, as already pointed out above. A study on natural radionuclides conducted in Korea in 1998-2000 and 2005 involved the detailed analysis of daily  $^{40}\text{K}$  intake. In that study, representative Korean foodstuffs were divided into 8 categories, and the total amount of daily  $^{40}\text{K}$  intake was calculated on the basis of the results from the analysis of individual food categories and the amount of food consumed. The amount of daily  $^{40}\text{K}$  intake was 39.41 Bq/d, accounting for an overwhelming majority of the total daily intake per day (39.46 Bq/d). The contribution to daily  $^{40}\text{K}$  intake was highest with rice (5.72 Bq/d) among all foodstuffs analyzed. The amount of daily  $^{40}\text{K}$  intake in Korea was smaller than that in other countries or shown in the ICRP report (ICRP, 1975; Choi *et al.*, 2008). In that survey,  $^{210}\text{Po}$  was not evaluated.

In the present study, the level of  $^{40}\text{K}$  intake by Japanese adults was 68.5-94.2 (mean: 81.5) Bq/d, which was much larger than the levels in Korea. The amount of  $^{40}\text{K}$  intake was particularly large from other vegetables/mushrooms/seaweeds (Category VIII; 8.8-29.1 Bq/d), followed

by grains/potatoes/seeds/nuts, and green/yellow vegetables, differing from the tendency seen in Korea. The total of committed effective dose of  $^{210}\text{Po}$  and  $^{40}\text{K}$  in 7 cities of Japan was 0.47 mSv. This dose is higher than the global average of effective dose (0.29 mSv/y), but is within the typical range (0.2-0.8 mSv/y; UNSCEAR, 2000). The mean for  $^{210}\text{Po}$  was 0.29 mSv, which was much higher than the global average for the uranium and thorium series (0.12 mSv/y). The mean dose of  $^{40}\text{K}$  in the 7 Japanese cities was 0.18 mSv, which was comparable to the global average (0.17 mSv/y; UNSCEAR, 2000). We therefore say that the large contribution of  $^{210}\text{Po}$  is a characteristic of the dietary exposure for adult Japanese. In a similar way, a recent report showed that the effective dose of 8 nuclides ( $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{210}\text{Po}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{239+240}\text{Pu}$ ) derived from the diet among adult Japanese was higher than the value shown in UNSCEAR 2000, and that  $^{210}\text{Po}$  contained in marine products made a large contribution (Ota *et al.*, 2009). A study conducted in Goa on vegetarian and non-vegetarian meal is noteworthy. For the vegetarian meal, the  $^{210}\text{Po}$  level was 0.08 Bq/kg wet and the committed effective dose was 49.1  $\mu\text{Sv/y}$ , while the non-vegetarian meal had a  $^{210}\text{Po}$  level of 0.18 Bq/kg wet and a committed effective dose of 94.6  $\mu\text{Sv/y}$  (Avadhani *et al.*, 2001). In the above-mentioned study in Korea, the total annual internal dose from ingestion of food samples was 110  $\mu\text{Sv/y}$ , of which 101  $\mu\text{Sv/y}$  came from  $^{40}\text{K}$ . This value was lower than that in Japan.

These results indicate that differences in dietary habits affect the exposure level to two major natural radionuclides ( $^{210}\text{Po}$  and  $^{40}\text{K}$ ). Some of the previous reports involved evaluation of the exposure level on the basis of the analysis of foodstuffs, on the other hand, in the present study,  $^{210}\text{Po}$  and  $^{40}\text{K}$  radioactivity levels were determined from dietary food samples (prepared by cooking foodstuffs), thus yielding data on exposure levels close to the levels prevailing under practical settings. The findings of a large amount of daily  $^{210}\text{Po}$  intake and high committed effective dose can be viewed as reflecting dietary habits unique to Japanese people, who prefer fish and shellfish. To make the relationship between the kind of food and level of  $^{210}\text{Po}$  intake or exposure level more clear, it would be desirable to conduct this kind of analysis for each food category involving more survey areas in Japan.

## ACKNOWLEDGMENTS

This study was supported by a Grand-in-Aid for Scientific Research from the Ministry of Health, Labor and Welfare, Japan. We thank the Japan Food Research Laboratories Foundation and the Kyushu Environmental Eval-

Internal exposure to  $^{210}\text{Po}$  and  $^{40}\text{K}$  for adults

uation Association Foundation for their supports of the current study.

## REFERENCES

- Aarkrog, A., Baxter, M.S., Bettencourt, A.O., Bojanowski, R., Bologa, A., Charmasson, S., Cunha, I., Delfanti, R., Duran, E., Holm, E., Jeffree, R., Livingston, H.D., Mahapanyawong, S., Nies, H., Osvath, I., Pingyu, Li., Povinec, P.P., Sanchez, A., Smith, J.N. and Swift, D. (1997): A comparison of doses from  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{210}\text{Po}$  in marine food: a major international study. *J. Environ. Radioact.*, **34**, 69-90.
- Avadhani, D.N., Mahesh, H.M., Karunakara, N., Narayana, Y., Somashekarappa, H.M. and Siddappa, K. (2001): Dietary intake of  $^{210}\text{Po}$  and  $^{210}\text{Pb}$  in the environment of Goa of south-west coast of India. *Health Phys.*, **81**, 438-445.
- Carvalho, F.P. (1995):  $^{210}\text{Po}$  and  $^{210}\text{Pb}$  intake by the Portuguese population: The contribution of seafood in the dietary intake of  $^{210}\text{Po}$  and  $^{210}\text{Pb}$ . *Health Phys.*, **69**, 469-480.
- Choi, M.S., Lin, X.J., Lee, S.A., Kim, W., Kang, H.D., Doh, S.H., Kim, D.S. and Lee, D.M. (2008): Daily intakes of naturally occurring radioisotopes in typical Korean foods. *J. Environ. Radioact.*, **99**, 1319-1323.
- Holtzman, R.B. (1980): Normal dietary levels of  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Ra}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  and  $^{210}\text{Po}$  for man. In: Gesell, T. F.; Lowder, W. M., eds., pp.755-781. *Natural radiation environment III*. Oak Ridge, TN: Technical Information Center, U.S. Department of Energy.
- International Commission on Radiological Protection. (1975): Report of the task group on reference man. ICRP publication 23. Pergamon Press, Oxford.
- International Commission on Radiological Protection (1996): Age-dependent doses to members of the public from intake of radionuclides: part 5 compilation of ingestion and inhalation dose coefficients. ICRP publication 72. Pergamon Press, Oxford.
- Jia, G., Belli, M., Blasi, M., Marchetti, A., Rosamilia, S. and Sansone, U. (2001): Determination of  $^{210}\text{Pb}$  and  $^{210}\text{Po}$  in mineral and biological environmental samples. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **247**, 491-499.
- Kametani, K., Ikebuchi, H., Matsumura, T. and Kawakami, H. (1981):  $^{226}\text{Ra}$  and  $^{210}\text{Pb}$  concentrations in foodstuffs. *Radioisotopes*, **30**, 681-683.
- Ministry of Health, Labor and Welfare (2003; 2004; 2005): The national health and nutrition survey in Japan, 2003; 2004; 2005. Daiichi Shuppan, Tokyo. (in Japanese)
- Miura, T., Nakayama, K. and Kirita, H. (2003): Determination of  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{210}\text{Po}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{230}\text{Th}$ ,  $^{228}\text{Th}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  and  $^{234}\text{U}$  with alpha ray spectrometry in manganese nodule standard rock sample JMn-1. *Bunseki Kagaku*, **52**, 951-954.
- Narayana, Y., Radhakrishna, A.P., Somashekarappa, H.M., Karunakara, N., Balakrishna, K.M. and Siddappa, K. (1995): Internal exposure to the population of coastal Karnataka of south India from dietary intake. *Radiation Protect. Dosim.*, **62**, 131-138.
- Ota, T., Sanada, T., Kashiwara, Y., Morimoto, T. and Sato, K. (2009): Evaluation for committed effective dose due to dietary foods by the intake for Japanese adults. *Jpn. J. Health Phys.*, **44**, 80-88.
- Othman, I. and Yassine, T. (1995): Natural radioactivity in the Syrian environment. *Sci. Total Environ.*, **170**, 119-124.
- Rencová, J., Svoboda, V., Holusa, R., Volf, V., Jones, M.M. and Singh, P.K. (1997): Reduction of subacute lethal radiotoxicity of polonium-210 in rats by chelating agents. *Int. J. Radiat. Biol.*, **72**, 341-348.
- RPII (2008): Radiation doses received by the Irish population. Radiological Protection Institute of Ireland.
- Scott, B.R. (2007): Health risk evaluations for ingestion exposure of humans to polonium-210. *Dose-Response.*, **5**, 94-122.
- Shiraishi, K. and Yamamoto, M. (1995): Dietary  $^{232}\text{Th}$  and  $^{238}\text{U}$  intake for Japanese as obtained in a market basket study and contribution of imported foods to internal doses. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **196**, 89-96.
- Shiraishi, K., Tagami, K., Muramatsu, Y. and Yamamoto, M. (2000): Contributions of 18 food categories to intakes of  $^{232}\text{Th}$  and  $^{238}\text{U}$  in Japan. *Health Phys.*, **78**, 28-36.
- Stather, J.W. (2007): The polonium-210 poisoning in London. *J. Radiol. Prot.*, **27**, 1-3.
- Sugiyama, H., Terada, H., Takahashi, M., Iijima, I. and Isomura, K. (2007): Contents and daily intake of gamma-ray emitting nuclides,  $^{90}\text{Sr}$ , and  $^{238}\text{U}$  using market-basket studies in Japan. *J. Health Sci.*, **53**, 107-118.
- Tolmachev, S.Y. (2001): The behavior of Po-210 in coastal seawater and maritime aerosols at Kyushu Island, Japan. PhD dissertation. Faculty of Sciences, Kyushu University, Fukuoka, Japan.
- United Nations Scientific Committee on the Effect of Atomic Radiation (2000): Sources, effects of ionizing radiation. UNSCEAR 2000 report to the general assembly, with scientific annexes. United Nations, New York.
- Yamamoto, M., Abe, T., Kuwabara, J., Komura, K., Ueno, K. and Takizawa, Y. (1994): Polonium-210 and lead-210 in marine organisms: intake levels for Japanese. *J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles*, **178**, 81-90.

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



## 目次

### まえがき

TDSによる摂取量調査の概要	1
試料調製方法	1
食品摂取量の経年変化	7
分析対象汚染物及び分析方法	8
調査結果	15
ヘキサクロロシクロヘキサン(HCH)の摂取量	15
DDTの摂取量	19
ディルドリンの摂取量	20
ヘプタクロルエポキシサイド(HCE)の摂取量	20
ヘキサクロロベンゼン(HCB)の摂取量	20
PCBの摂取量	21
有機リン系農薬の摂取量	21
金属類の摂取量	22
日本人の食品汚染物1日摂取量と1日摂取許容量(ADI)との比較	32
その他の汚染物の摂取量調査結果	34
硝酸塩	34
アルミニウム	35
セレン及びクロム	35
ダイオキシン	36
参照文献	38

## まえがき

1977年、WHOによるGlobal Environmental Monitoring System (GEMS)の一環として、全国レベルのトータルダイエツト試料に基づく食品汚染物の摂取量調査が開始された。本調査は国立医薬品食品衛生研究所（開始当時は国立衛生試験所）が厚生労働省医薬食品局食品安全部（開始当時は厚生省生活衛生局）の支援を受け、地方衛生研究所及び大学を含む、のべ19機関の協力を仰いで実施してきた。国立医薬品食品衛生研究所は試料作成のための国民栄養調査結果集計を各協力機関に示し、これに基づいて協力機関が各地方で個々にトータルダイエツト試料の作製及び分析を実施した。国立医薬品食品衛生研究所は各機関から報告された結果を集計した。

本調査開始時の1977～1981年の結果を、内山が<sup>1)</sup>環境化学物質による魚介類汚染と安全性評価に関する報告の中で、日本人の日常食からの汚染物摂取量の表としてまとめて記載している。斎藤<sup>2)</sup>は環境汚染物質摂取量推計とその評価に関する報告の中で、1979～1986年までの結果を汚染物質摂取年次推移の表として記載している。さらに1985～1992年までの結果は、総合食品安全辞典中の食品経由の汚染物1日摂取量調査の項中の汚染物摂取量食品群別比較表<sup>3)</sup>としてまとめられている。6種の残留農薬の摂取量データの一部は、豊田により食品衛生研究誌上に発表されている<sup>4)</sup>。総合食品安全辞典<sup>3)</sup>中の内容も含めた1986～1997年までの12年間の結果は、五十嵐らにより報告されている<sup>5)</sup>。2000年には、豊田により1977～1999年のデータをまとめた冊子<sup>6)</sup>が作製された。

本汚染物摂取量調査で使用するトータルダイエツト試料は、国民健康・栄養調査の結果に基づいて作製されている。2000年に発行された五訂日本食品標準成分表の食品分類等の変更を受け、2001年から国民健康・栄養調査の方式も一部変更された。このため、トータルダイエツト試料調製方法を2004年以降変更した。

今回、調査を開始した1977年から2007年までのデータをまとめると共に、試料調製方法変更の影響、国立医薬品食品衛生研究所食品部で実施した、他の汚染物摂取量調査の結果等をまとめて報告する。

# トータルダイエツトスタヂイによる摂取量調査の概要

## 試料調製方法

トータルダイエツトスタヂイ(TDS)の目的は、喫食を通じて摂取される汚染化学物質の量の推定である。従って、本調査において分析する試料(トータルダイエツト試料：TD 試料)は、我が国の代表的な食事内容を反映していなければならない。このため、我が国の喫食の情報に基づき、摂取する食品の種類及びその量を勘案したモデル献立を作成することからTD 試料の調製は始まる。本項では、モデル献立作成の根拠とその実際、さらに分析試料に必要な要件である混合・均質化操作と試料の保存について、具体例を示しながら詳述する。

## 食品分類と摂取量

TD 試料を調製するためのモデル献立は、我が国の代表的な食事内容を反映したものとして計画するため、厚生労働省が毎年、約 5000 世帯(15,000 人)を対象に実施する国民健康・栄養調査の結果に基づいている。国民健康・栄養調査では、ある特定の日に喫食した食品すべてを個人毎に記録する。この結果を集計する際に、食品を穀類、いも類、豆類、野菜類、果実類、魚介類、肉類といったように、計 17 の大分類に区分し、さらにその下位には、33 の中分類、98 の小分類を設けて、それぞれの喫食量の平均値やパーセンタイル値を求めている。小分類の中には、なじみの深い個々の食品名が連ねられている。一例を挙げると、玄米、精白米、玄米全かゆ、玄米おもゆ、精白米全かゆ等 30 の個別食品は、1 番目の大分類として区分される穀類群の内、米・加工品の中分類に続く米小分類に連なる食品として分類されている。米以外にも、穀類群の下位には、米加工品、小麦粉類、パン類、うどん・中華めん類、そば・加工品といった様に、食品の性質や摂取の目的にあわせて詳細に区分された小分類が設定され、あまたの食品が分類されている。その全部を示すことは本書の目的ではないことから、詳しくは、国民健康・栄養調査食品群別表を参考されたい。本食品分類の内容は、我が国の食生活の変遷を反映し過去に見直されてきているが、我々が実施している TDS においては、調査の継続性を維持する目的から、昭和 52 年の調査開始当時より、上述の 17 の大分類を 14 に再編した上で、モデル献立の計画に利用している。なお、中分類以下の下位分類に関しては、国民健康・栄養調査における分類を遵守している。平成 13 年に行われた国民健康・栄養調査食品群の見直しにあわせて変更も含め、我々の利用している 14 の大分類を Fig.1 に示す。また大分類毎に含まれる小分類と、そこに区分される個別食品の例を Table 1 に示す。Fig.1 に併せて示された平成 12 年と 13 年の食品群別摂取量の間には差異が認められるが、これは、国民健康・栄養調査の方式が大きく変更され、それまで乾燥重量として報告、集計されていた食品についても、調理後重量とするよう変更が加えられたためである。

モデル献立の計画において食品分類と同様に重要な要素が食品摂取量である。食品摂取量は調査地域により異なるため、より精密な TDS を実施するためには、地域ごとの摂取量を知らなければならない。そこで本研究では、北海道から南九州まで、全国を 12 のブロックに区分し、国民健康・栄養調査結果の食品小分類ごとの特別集計を依頼し、食品摂取量の地域特性を明らかにして利用している。

Table 1 TDS 調査で用いている食品分類

大分類(群)	小分類	個別食品
I	米	玄米めし、半つき米めし、七分つき米めし、精白米めし、はいが精米めし、陸稲玄米めし、陸稲半つき米めし、陸稲七分つき米めし、陸稲精白米めし
	米加工品	アルファ化米、きりたんぼ、上新粉、ビーフン、米こうじ、もち、赤飯、あくまき、白玉粉、道明寺粉
II	小麦粉類	薄力粉、中力粉、強力粉、全粒強力粉、ホットケーキミックス粉、天ぷら粉
	パン類 (菓子パンを除く)	食パン、コッペパン、乾パン、フランスパン、ライ麦パン、ぶどうパン、ロールパン、クロワッサン、イングリッシュマフィン、ナン
	菓子パン類	あんパン、クリームパン、ジャムパン、チョココロネ
	うどん、中華めん類	うどん、そうめん・ひやむぎ、中華めん、沖縄そば
	即席中華めん	インスタントラーメン、中華カップめん、焼きそばカップめん、和風カップめん
	パスタ	マカロニ・スパゲッティ
	その他の小麦加工品	生麩、親世ふ、小町ふ、板ふ、車ふ、竹輪ふ、小麦胚芽、餃子の皮、しゅうまいの皮、ピザクラスト、生パン粉、半生パン粉、乾燥パン粉
	そば・加工品	そば粉(全粒粉、ひきぐるみ)、内層粉そば粉、中層粉そば粉、表層粉そば粉、そば米、生そば、ゆでそば、干しそば、ゆで干しそば
	とうもろこし・加工品	とうもろこし(玄穀)、フライ味付けジャイアントコーン、ポップコーン、コーンフレーク
	その他の穀類	アマランサス、あわ、あわもち、オートミール、七分つき押麦、押麦、米粒麦、乾大麦めん、ゆで大麦めん、麦こがし、きび・もちきび、はとむぎ、ひえ、もろこし(精白粒)、全粒粉ライ麦粉、ライ麦粉
	さつまいも・加工品	さつまいも、蒸し・ふかしさつまいも、さつまいも(焼きいも)、干しいも
	じゃがいも・加工品	じゃがいも、じゃがいも(蒸し・ふかし)、乾燥マッシュポテト
	その他のいも・加工品	きくいも、こんにやく精粉、板こんにやく、生いもこんにやく、しらたき、さといも、さといも、みずいも、みずいも、やつがしら、やつがしら、いちよういも、ながいも、ながいも、やまといも、じねんじょ、だいじょ
	でんぷん・加工品	タピオカ粉、くず粉、米でん粉、小麦でん粉、さつまいもでん粉、かたくり粉、コンスターチ、くずきり、タピオカパール、緑豆はるさめ、はるさめ
種実類	アーモンド、あさ、えごま、カシューナッツ、かぼちの種、かやの実、ぎんなん、くり、甘ぐり(焼きぐり)、くるみ、けしの実、ココナッツパウダー、ごま、しいの実、ピスタチオ、ひまわりの種、ペカン、マカダミアナッツ、まつの実、らっかせい、バターピーナッツ、ピーナッツバター	
III	砂糖・甘味料類	黒砂糖、和三盆糖、上白糖、三温糖、グラニュー糖、白ざら(上ざら)糖、中ざら(黄ざら)糖、角砂糖、氷砂糖、コーヒースーガー、パウダーシュガー、水あめ、はちみつ、メープルシロップ
	和菓子類	甘納豆、あん入り生八つ橋、今川焼、ういろう、うぐいすもち、かしわもち、カステラ、かのこ、かるかん、きび団子、ぎゅうひ、きりざんしょ、きんぎょ糖、きんつば、草もち、くし団子、げっぺい、桜もち、大福もち、タルト、ちまき、ちやつう、どら焼き、ねりきり、カステラまんじゅう、くずざくら、くりまんじゅう、とうまんじゅう、蒸しまんじゅう、あんまん、もなか、ゆべし、練りようかん、水ようかん、蒸しようかん、あめ玉、芋かりんとう、おこし、おのろけ豆、黒かりんとう、白かりんとう、こかぼう、炭酸せんべい、かわらせんべい、巻きせんべい、ごま入り南部せんべい、しおがま、中華風クッキー、ひなあられ、揚げせんべい、甘辛せんべい、あられ、塩せんべい、衛生ボーロ、そばボーロ、松風、三島豆、八つ橋、らくがん、麦らくがん、もろこしらくがん、小麦粉あられ
	ケーキ・ペストリー類	シュークリーム(エクレア)、スポンジケーキ、ショートケーキ、デニッシュペストリー、イーストドーナツ、ケーキドーナツ、パイ皮、アップルパイ、バターケーキ、ホットケーキ、カスタードクリーム入りワッフル、ジャム入りワッフル
	ビスケット類	ウェハース、オイルスプレークラッカー、ソーダクラッカー、サブレ、パフパイ、ハードビスケット、ソフトビスケット、プレッツェル、ロシアケーキ
	キャンデー類	キャラメル、錠菓・果汁系、ゼリーキャンデー、ゼリービーンズ、チャイナマーブル、ドロップ、パタースコッチ、ブリットル・いり落花生入り、マシュマロ
その他の菓子類	プリン・カスタードプディング、オレンジゼリー、コーヒゼリー、ミルクゼリー、ワインゼリー、パバロア、コーンスナック、ポテトチップス、成形ポテトチップス、カバリングチョコレート、ホワイトチョコレート、ミルクチョコレート、マロングラッセ、板ガム、糖衣ガム、風船ガム	
IV	バター	有塩バター、無塩バター、発酵バター
	マーガリン	ソフトタイプマーガリン、ファットブレッドマーガリン
	植物性油脂	オリーブ油、ごま油、米ぬか油、サフラワー油、大豆油、調合油、とうもろこし油、なたね油、ひまわり油、綿実油、落花生油
	動物性油脂	牛脂、ラード
	その他の油脂	パーム油、パーム核油、やし油、ショートニング
V	大豆(全粒)・加工品	大豆、ゆで大豆、大豆(水煮缶)、きな粉、ぶどう豆(煮豆)
	豆腐	木綿豆腐、絹ごし豆腐、ソフト豆腐、充てん豆腐、沖繩豆腐、ゆし豆腐、焼き豆腐、凍り豆腐、豆腐よう、蒸し豆腐竹輪、焼き豆腐竹輪
	油揚げ類	生揚げ、油揚げ、がんもどき
	納豆	糸引き納豆、挽きわり納豆、五斗納豆、寺納豆(塩辛納豆、浜納豆)
	その他の大豆加工品	おから、豆乳、調製豆乳、豆乳飲料、麦芽コーヒー、生湯葉、干し湯葉、金山寺みそ、ひしおみそ
	その他の豆・加工品	乾燥あずき、ゆであずき、ゆであずき缶詰、こしあん、さらしあん、つぶしあん、乾燥いんげんまめ、ゆでいんげんまめ、うずら豆(煮豆)、いんげんまめこしあん、豆きんとん、乾燥えんどう、ゆでえんどう、グリーンピース(揚げ豆)、塩豆、うぐいす豆、乾燥ささげ、ゆでささげ、乾燥ソラマメ、フライビーンズ(揚げそらまめ)、おたふく豆、ふき豆、乾燥たけあずき、乾燥ひよこまめ、ゆでひよこまめ、フライ味付けひよこまめ、乾燥べにばないんげん、ゆでべにばないんげん、乾燥らいまめ、乾燥りょうとう、ゆでりょうとう、乾燥レンズ豆

大分類(群)	小分類	個別食品
VI	いちご	いちご
	柑橘類	いよかん、みかん、みかん缶詰(果肉)、ネーブル、パレンシアオレンジ、スイーティー、きんかん、グレープフルーツ、さんぼうかん、すだち(皮)、タンゴール、タンゼロ、なつみかん、はつさく、ひゅうがなつ、ぶんたん、ぶんたんざぼん漬、ぼんかん、ゆず(皮)、レモン全果
	バナナ	バナナ、乾燥バナナ
	りんご	りんご、リンゴ缶詰
	その他の生果	あけび、アセロラ、アテモヤ、アボカド、あんず、干しあんず、あんず缶詰、いちじく、干しいちじく、いちじく缶詰、うめ、柿、干し柿、かりん、キウイフルーツ、キウノ、グアバ、グズベリー、ぐみ、ココナッツミルク、スターフルーツ、さくらんぼ、アメリカンチェリー、さくらんぼ缶詰、さくら、すいか、すもも、生ブルー、ドライブルー、チェリモヤ、ドリアン、なし、なし缶詰、西洋なし、西洋なし缶詰、干しなつめ、干しなつめやし、パインアップル、パインアップル缶詰、パインアップル砂糖漬、ハスカップ、パパイア、ピタヤ、びわ、びわ缶詰、ぶどう、干しぶどう、ぶどう缶詰、ブルーベリー、ホワイトサボテ、まくわうり、マルメロ、マンゴー、マンゴスチン、メロン、もも、もも缶詰果肉、ネクタリン、やまもも、ライチー、ラズベリー、乾燥りゅうがん
	ジャム	あんずジャム、イチゴジャム、マーマレード、ぶどうジャム、ブルーベリージャム、りんごジャム
	果汁・果汁飲料	アセロラ果汁入り飲料、梅果汁入り飲料、ストレートみかんジュース(天然果汁)、濃縮還元みかんジュース、果粒入りみかんジュース、みかん果汁入り飲料、みかん缶詰(液汁)、ストレートオレンジジュース(天然果汁)、濃縮還元オレンジジュース、オレンジ果汁入り飲料、かぼす果汁、グアバ果汁入り飲料、グレープフルーツストレートジュース(天然果汁)、グレープフルーツ濃縮還元ジュース、グレープフルーツ果汁入り飲料、シクワシャー果汁、シクワシャー果汁入り飲料、すだち果汁、だいたい果汁、パインアップルストレートジュース(天然果汁)、パインアップル濃縮還元ジュース、パインアップル果汁入り飲料、パッションフルーツ果汁、ぶどうストレートジュース(天然果汁)、ぶどう濃縮還元ジュース、ぶどう果汁入り飲料、もも果汁入り飲料(ネクター)、もも缶詰果汁、ゆず果汁、ライム果汁、りんごストレートジュース(天然果汁)、りんご濃縮還元ジュース、りんご果汁入り飲料、レモン果汁
VII	トマト	トマト、ミニトマト、ホールトマト缶詰
	にんじん	葉にんじん、にんじん、ミニキャロット
	ほうれん草	ほうれん草
	ピーマン	青ピーマン、赤ピーマン、黄ピーマン
	その他の緑黄色野菜	あさつき、あしたば、アスパラガス、サヤインゲン、エンダイブ、トウモロコシ、さやえんどう、おおさかしろな、おかひじき、オクラ、かぶ菜、日本かぼちゃ、西洋かぼちゃ、そうめんかぼちゃ、からしな、ぎょうじやんにんにく、きょうな、キンサイ、ししとうがらし、しそ菜、しその実、じゅうろくささげ、しゅんぎく、じゅんさい水煮びん詰、すくきな、せり、タアサイ、かいわれだいこん、葉だいこん、だいこん葉、つまみな、たいさい、たかな、たらぬめ、チンゲンサイ、つくし、つるな、つるむらさき、葉とうがらし、葉とうがらし、乾燥とうがらし、ゆでとうがらし、長崎はくさい、なすな、なばな、にら、花にら、黄にら、茎にんにく、根深ねぎ、葉ねぎ、こねぎ、野沢菜、のびる、パクチョイ、パジル、パセリ、ひのな、広島菜、ふだんそう、フロコリー、みずかけな、みつば、芽キャベツ、芽たて、モロヘイヤ、ようさい、よめな、よもぎ、リーキ、サラダ菜、リーフレタス、サニーレタス、ロケットサラダ、わけぎ
	野菜ジュース	トマトジュース、トマトミックスジュース、にんじんジュース
VIII	キャベツ	キャベツ、グリーンボール、レッドキャベツ
	きゅうり	きゅうり
	大根	大根、切り干し大根
	たまねぎ	たまねぎ、赤たまねぎ
	はくさい	はくさい
	その他の淡色野菜	アーティチョーク、うど、山うど、枝豆、スナップえんどう、グリーンピース、かぶ、かぶ・皮むき、カリフラワー、かんぴょう、菊、きのり、くわい、コールラビ、ごぼう、しかくまめ、葉しょうが、しょうが、しろうり、ずいき、すくきな根、ズッキーニ、セロリー、ぜんまい、干しぜんまい、そらまめ、たけのこ、チコリー、つわぶき、とうがん、スイートコーン、クリームコーン缶、ホールカーネルコーン缶詰、ヤングコーン、トレビス、なす、べいなす、にがうり、にんにく、はつか大根、はやとり、ビート、ふき、ふきのとう、ふじまめ、へちま、ホーセラディッシュ、まこも、みょうが、みょうがたけ、むかご、アルファルファもやし、大豆もやし、ブラックマツペもやし、緑豆もやし、ゆり根、エンチャロット、ルバーブ、レタス、コスレタス、れんこん、生わかび、わらび
	葉類漬物	おおさかしろな・塩漬、かぶ菜・塩漬、かぶ菜・ぬかみそ漬、からしな・塩漬、さんとうさい・塩漬、たいさい・塩漬、高菜漬、野沢菜・塩漬、野沢菜(調味漬)、白菜塩漬、キムチ、ひのな・甘酢漬、広島菜・塩漬、みずかけな漬
	たくあん・その他の漬物	かぶ・塩漬、かぶ・ぬかみそ漬、きゅうり・塩漬、きゅうり・しょうゆ漬、きゅうり・ぬかみそ漬、ピクルス、ザーサイ、しょうが・酢漬、しろうり・塩漬、しろうり・奈良漬、すくき漬、だいこん・ぬかみそ漬、干しだいこん・たくあん漬、守口漬、だいこん・べつたら漬、だいこん・みそ漬、福神漬、塩抜き塩蔵・しなちく、なす・塩漬、なす・ぬかみそ漬、なす・こうじ漬、なす・からし漬、なす・しば漬、はやとり・塩漬、やまごぼう・みそ漬、生らっきょう、らっきょう甘酢漬、わさび漬、梅漬(塩漬)、梅干し、梅干し(調味漬)、梅びしお、オリーブピクルスグリーン、オリーブピクルスライフ、オリーブピクルススタッフ
	きのこ類	えのきたけ、えのきたけ味付け瓶詰、乾燥黒きくらげ、乾燥白きくらげ、黒あわびたけ、生しいたけ、乾しいたけ、はたけしめじ、ぶなしめじ、本しめじ、たもぎたけ、なめこ、なめこ水煮缶詰、めりすぎたけ、うすひらたけ、エリンギ、ひらたけ、まいたけ、乾燥まいたけ、マッシュルーム、マッシュルーム水煮缶詰、まつたけ、松茸水煮缶詰、やなぎまつたけ
	海草類	干しあおさ、青のり、のり(干しあまのり)、焼きのり、味付けのり、蒸し干しあらめ、すき干し岩のり、干しえごのり、おきうと、オゴノリ(塩蔵塩抜き)、干しかわのり、うみぶどう、らうすこんぶ、干しかごめ昆布、長こんぶ、松前こんぶ、まこんぶ、日高こんぶ、利尻こんぶ、刻みこんぶ、削り昆布、塩昆布、昆布つくだ煮、すいぜんじのり(干し水戻し)、干してんぐさ、ところてん、干し寒天、寒天(ゼリー状)、赤とさか(塩蔵塩抜き)、青とさか(塩蔵塩抜き)、干しひじき、干しひとえぐさ、のりつくだ煮、ふのり、干しまつも、むかでのり(塩蔵塩抜き)、沖縄もずく(塩蔵塩抜き)、生わかめ(原藻)、わかめ(乾燥)、わかめ(乾燥水戻し)、板わかめ、わかめ(干し乾燥水戻し)、カットわかめ、生わかめ、茎わかめ(塩蔵塩抜き)、生めかぶわかめ

大分類(群)	小分類	個別食品
IX	日本酒	清酒、純米酒、本醸造種、吟醸酒、純米吟醸酒、白酒
	ビール	淡色ビール、黒ビール、スタウトビール、発泡酒
	洋酒・その他	白ワイン、赤ワイン、ロゼワイン、紹興酒、しょうちゅう、ウイスキー、ブランデー、ウォッカ、ジン、ラム、マオタイ酒、梅酒、合成清酒、薬味酒、キュラソー、スイートワイン、ペパーミント、ベルモット
	茶	玉露、抹茶、せん茶、かまいり茶、番茶、ほうじ茶、玄米茶、ウーロン茶、紅茶
	コーヒー・ココア	コーヒー、インスタントコーヒー、コーヒー飲料、ピュアココア、ミルクココア
	その他の嗜好飲料	甘酒、昆布茶、炭酸飲料果実色(無果汁)、コーラ、サイダー、麦茶
X	あじ、いわし類	まあじ、大西洋あじ、むろあじ、うるめいわし、かたくちいわし、まいわし、まさば、大西洋さば、さば(しめさば)、さんま、しまあじ、にしん
	さけ、ます	からふとます、ぎんざけ、さくらます、しろさけ、大西洋さけ、にじます、べにざけ、ますのすけ
	たい、かれい類	あこうだい、あまだい、いしだい、いとよりだい、いとよくだい(すり身)、いぼだい、おひょう、まがれい、まこがれい、子持ちがれい、ぎんだら、きんめだい、きだい、くろだい、ちだい、まだい、すけとうだら、すけとうだら・すり身、たら(すきみたら)、まだら、しらこ、ひらめ、みなみたら
	まぐろ、かじき類	くろかじき、まかじき、めかじき、かつお、そうだかつお、きはだまぐろ、くろまぐろ・赤身、くろまぐろ・脂身、びんなが、みなみまぐろ・赤身、みなみまぐろ・脂身、めじまぐろ、めばちまぐろ
	その他の生魚	あいなめ、あなご、あなご(蒸し)、あまご、あゆ、あゆ内臓、アラスカめぬけ、あんこう、あんこう(きも・肝・内臓)、いかなご、いさぎ、いわな、うぐい、うなぎ、うなぎ(きも・肝・内臓)、うまづらはぎ、えい、えそ、おいかわ、おおさが、おこぜ、かさご、かじか、かます、かわはぎ、かんばら、きす、きちし、きびなご、キングクリップ、ぐち(いしもち)、こい、鯉内臓、こち、めごち、このしろ、あぶらつづめ、よしきりざめ、ふかひれ、さより、さわら、しいら、したひらめ、しらうお、シルバー、すすき、たかさご、たかべ、たちうお、ちか、テラピア、どじょう、とびうお、なます、にぎす、はぜ、はたはた、はまふえふき、はも、バラクーeta、ひらまさ、とらふぐ、まふぐ、ふな、ぶり、はまち、ほうぼう、ホキ、ほっけ、ぼら、ほんもろこ、マジェランあいなめ、まながつお、むつ、めじな、めばる、メルルーサ、やつめうなぎ、やまめ、わかさぎ
	貝類	あかがい、あざまき、あさり、あわび、いかい、ムール貝、いたやがい、かき、さざえ、しじみ、貝柱たいらがい、たにし、つぶ、とごぶし、とりがいかい、ばいがい、ばかがい、はまぐり、ちようせんはまぐり、ほたてがい、ほたて貝柱、ほっきがい、みるがい、水煮、うこ
	いか、たこ類	あかいか、けんさきいか、こういか、するめいか、ほたるいか、やりのいか、いいだこ、まだこ、なまこ、ほや
	えび、かに類	あまえび、いせえび、くるまえび、素干しえび(ゆで)、大正えび、しばえび、ブラックタイガー、がざみ、毛がに、ずわいがに、たらばがに、おきあみ、ゆでしゃこ
	魚介(塩蔵、生干し、乾物)	まあじ(開き干し)、むろあじ(開き干し)、むろあじ(くさや)、うるか、いかなご(煮干し)、まいわし(塩いわし)、まいわし(生干し)、まいわし(丸干し)、しらす干し、しらす干し(ちりめん)、たたみいわし、かたくちいわし(みりん干し)、まいわし(みりん干し)、うまづらはぎ(味付け開き干し)、かつお(なまり節)、かつお節、かつお削り節、かつお(削り節つくだ煮)、かつお(塩辛・内臓、酒盗)、干しかれし、きびなご(調味干し)、キャビア、このしろ(甘酢漬)、塩ます、新巻きさけ、塩ざけ、いくら、すじこ、めふん、べにざけ(くん製)、さば節、塩さば、さば(開き干し)、さんま(開き干し)、さんま(みりん干し)、ししゃも(生干し)、たらこ、辛子めんたいこ、塩たら、たら(干しだら)、たら(でんぶ)、身欠きにしん、にしん(開き干し)、にしん(くん製)、かすのこ、はたはた(生干し)、ほっけ(塩ほっけ)、ほっけ(開き干し)、からすみ、やつめうなぎ(干し)、あわび(干し)、あわび(塩辛)、ほたて貝柱(干し貝柱)、さくらえび(煮干し)、さくらえび(干しえび)、かに(がん漬)、ほたるいか(くん製)、するめ、いか(さきいか)、いか(くん製)、いか塩辛(赤作り)、あみ(塩辛)、うに(粒うに)、うに(練りうに)、塩蔵塩抜きくらげ、なまこ(このわた)、ほや(塩辛)
	魚介(缶詰)	いわし水煮缶詰、いわし味付け缶詰、いわしトマト缶詰、いわし油漬缶詰、いわしかば焼き缶詰、かつお味付け缶詰、からふとます水煮缶詰、しのさけ水煮缶詰、さば水煮缶詰、さばみそ煮缶詰、さば味付け缶詰、さんま味付け缶詰、さんまかば焼き缶詰、まぐろ水煮缶詰、まぐろ味付け缶詰、まぐろ油漬缶詰、あさり水煮缶詰、あさり味付け缶詰、あわび水煮缶詰、エスカルゴ水煮缶詰、かきくん製油漬缶詰、トップシェル味付け缶詰、ほたて貝柱水煮缶詰、もがい味付け缶詰、ずわいがに水煮缶詰、たらばがに水煮缶詰、いか味付け缶詰
	魚介(佃煮)	いかなご(つくだ煮)、いかなご(あめ煮)、かたくちいわし(田作り)、かじか(つくだ煮)、かつお(角煮)、はぜ(つくだ煮)、はぜ(甘露煮)、わかさぎ(つくだ煮)、わかさぎ(あめ煮)、あさり(つくだ煮)、はまぐり(つくだ煮)、えび(つくだ煮)、ほたるいか(つくだ煮)、いか(きりいかあめ煮)、いか(いかあられ)、つくだ煮あみ
	魚介(練り製品)	かに風味かまぼこ、昆布巻きかまぼこ、す巻きかまぼこ、蒸しかまぼこ、焼き抜きかまぼこ、焼き竹輪、だて巻き、つみれ、なると、はんぺん、さつま揚げ
	魚肉ハム、ソーセージ	魚肉ハム、魚肉ソーセージ
	XI	牛肉
豚肉		豚肉、豚舌、豚足ゆで、豚軟骨ゆで
ハム、ソーセージ類		骨付きハム、ボンレスハム、ロースハム、ショルダーハム、ブレスハム、チョップハム、促成生ハム、長期熟成生ハム、ベーコン、ロースベーコン、ショルダーベーコン、ウインナーソーセージ、セミドライソーセージ、ドライソーセージ、フランクフルトソーセージ、ポリアソーセージ、リオナーソーセージ、レバーソーセージ、混合ソーセージ、生ソーセージ、焼き豚
その他の畜肉		いのしし、いのぶた、うさぎ赤肉、馬肉、しか肉、マトンロース、マトンもも、ラムかた(子羊)、ラムロース(子羊)、やぎ赤肉
鶏肉		鶏肉、鶏かわ、鶏軟骨、焼き鳥缶詰
その他の鳥肉		あいがも、あひる、うずら、かも皮なし、きじ皮なし、しちめんちよう皮なし、すずめ、はと皮なし、ほろほろちよう皮なし
肉類(内臓)		牛心臓、牛肝臓、牛じん臓、牛第一胃、牛第二胃、牛第三胃、牛第四胃、牛小腸、牛大腸、牛直腸、牛子宮、豚心臓、豚肝臓、豚じん臓、豚胃ゆで、豚小腸(ゆで)、豚大腸(ゆで)、豚子宮、レバーペースト、スモークレバー、鶏心臓、トリオ肝臓、鶏腸胃、フォアグラゆで
鯨肉		くじら肉、くじらうねす、くじら本皮、さらしくじら
その他の肉・加工品		いなごつくだ煮、かえる、すっぽん、はちの子缶詰
卵類		うこっけい卵、うずら卵、うずら卵水煮缶詰、鶏卵、ゆで卵、ボーチエッグ、鶏卵水煮缶詰、加糖全卵、乾燥全卵、卵黄、ゆで卵黄、加糖卵黄、乾燥卵黄、卵白、ゆで卵白、乾燥卵白、たまご豆腐、厚焼きたまご、だし巻きたまご、ピータン

大分類(群)	小分類	個別食品
X II	牛乳	生乳、普通牛乳、濃厚加工乳、低脂肪加工乳、脱脂乳液状乳
	チーズ	エダムチーズ、エメンタルチーズ、カテージチーズ、カマンベールチーズ、クリームチーズ、ゴーダチーズ、チェダーチーズ、粉チーズ、ブルーチーズ、プロセスチーズ、チーズスプレッド
	発酵乳・乳酸菌飲料	プレーンヨーグルト、加糖ヨーグルト、ヨーグルトドリンク、乳酸菌飲料・乳製品、非乳製品乳酸菌飲料
	その他の乳製品	コーヒー乳飲料、フルーツ乳飲料、全粉乳、脱脂粉乳、調製粉乳、無糖練乳、加糖練乳、クリーム(乳脂肪)、クリーム(乳脂肪・植物性脂肪)、クリーム(植物性脂肪)、ホイップクリーム(乳脂肪)、ホイップクリーム(乳脂肪・植物性脂肪)、ホイップクリーム(植物性脂肪)、コーヒーホワイトナー・液状、コーヒーホワイトナー・粉末状、アイスクリーム、アイスマルク、ラクトアイス、ソフトクリーム、シャーベット、チーズホエーパウダー
	その他の乳類	母乳、やぎ乳
X III	ソース	ウスターソース、中濃ソース、濃厚(トンカツ)ソース
	しょうゆ	濃い口しょうゆ、うす口しょうゆ、たまりしょうゆ、さいしこみしょうゆ、しろしょうゆ
	塩	食塩、並塩、精製塩
	マヨネーズ	マヨネーズ(全卵)、卵黄マヨネーズ
	味噌	甘みそ、淡色辛みそ、赤色辛みそ、豆みそ、粉末淡色辛みそ、ペースタイプ即席みそ
	その他の調味料	本みりん、本直しみりん、トウバンジャン、チリペッパーソース、ラー油、穀物酢、米酢、ワインビネガー、りんご果実酢、かつおだし、こんぶだし、かつお昆布だし、しいたけだし、煮干しだし、鳥がらだし、中華だし、洋風だし、固形コンソメ、顆粒風味調味料、ストレートめんつゆ、三倍濃厚めんつゆ、オイスターソース(かき油)、マーボー豆腐の素、ミートソース、トマトピューレー、トマトペースト、トマトケチャップ、トマトソース、チリソース、ノンオイル和風ドレッシング、フレンチドレッシング、サウザンアイランドドレッシング、カレールウ、ハヤシルウ、酒かす、みりん風調味料
	香辛料・その他	ゼラチン、オールスパイス、オニオンパウダー、粉からし、練りからし、マスタード、カレー粉、クローブ、黒こしょう、白こしょう、さんしょう、シナモン、粉しょうが、おろししょうが、セージ、タイム、チリパウダー、とうがらし、ナツメグ、ガーリックパウダー、おろしにんにく、粉末バジル、乾燥パセリ、パプリカ、からし粉入り粉わさび、練りわさび、圧搾パン酵母、乾燥パン酵母、ベーキングパウダー
X IV	飲料水	水道水、ミネラルウォーター

旧食品群	重量(g) 平成12年度	新食品群	重量(g) 平成13年度
I 米、米加工品	160.5	I 米、米加工品	356.4
II 穀類、いも類、種子類	163.1	II 穀類、いも類、種子類	173.1
III 砂糖・菓子類	31.6	III 砂糖・菓子類	34.0
IV 油脂類	16.4	IV 油脂類	11.3
V 豆・豆加工品	70.3	V 豆・豆加工品	57.3
VI 果実類	117.4	VI 果実類	132.0
VII 有色野菜	95.9	VII 有色野菜	99.3
VIII その他野菜・海草・きのこ類	199.6	VIII その他野菜・海草・きのこ類	208.7
IX 調味・嗜好飲料	182.4	IX 嗜好飲料	509.3
X 魚介類	92.0	X 魚介類	94.0
X I 肉・卵類	117.9	X I 肉・卵類	113.0
X II 乳・乳製品	127.6	X II 乳・乳製品	170.1
X III その他の食品	5.4	X III 調味料・その他	83.6
X IV 水	600.0	X IV 水	600.0

ジャム  
 マヨネーズ  
 味噌  
 調味料

Fig. 1 TDS 試料調製のための食品分類と変更点

## モデル献立の計画

実際にモデル献立を計画する際には、14群のそれぞれを代表するTD試料の調製を目的とし、Table 1に示した小分類に示されている個別食品から、どの食品を選択するかを決める。また、調査地域及び小分類の摂取量を勘案して、各個別食品をどのくらいの重量割合で混合させるかを決める。多数の個別食品が小分類に区分されている場合には、選択する個別食品の品目数は計画者の判断に任される。より多数を選択すれば、食品摂取の多様性が反映される。一方、1日当たりの食品の摂取量は決まっているので、多数の品目を選択すると1個別食品あたりの分別重量が減少し、秤量誤差を生じる原因となる。そのため、試料の混合、均質化操作に使用する器具及び機器の性能も含めて勘案し、数日分の摂取量となるよう係数を乗じた上で、分別重量を決める。その際、摂取量の多い食品は、数種類を採取する等、代表的な試料となるように考慮する。

Table 2 試料調製計画の一例

群	小分類	個別食品*	一日摂取量 (g)	分別 (g)	調理法
II	小麦粉類	ホットケーキミックス粉	3.0	9.0	未調理
	パン類 (菓子パンを除く)	食パン	31.1	46.7	未調理
		クロワッサン		46.7	未調理
	菓子パン類	チョココロネ	5.4	16.2	未調理
	うどん・中華めん類	うどん(ゆで麺)	40.5	60.8	未調理
		そうめん		60.8	ゆでる
	即席中華めん	中華カップめん	3.7	11.1	もどす
	パスタ	パスタ	10.9	32.7	ゆでる
	その他の小麦加工 品	乾燥パン粉	5.8	17.4	未調理
	そば・加工品	生そば	9.4	28.2	ゆでる
	とうもろこし・加工品	コーンフレーク	0.7	2.1	未調理
	その他の穀類	アマランサス	1.8	5.4	ゆでる
	さつまいも・加工品	干しいも	6.1	18.3	未調理
	じゃがいも・加工 品	じゃがいも	29.2	43.8	スチーム
		乾燥マッシュポテト		43.8	もどす
その他のいも・加工 品	しらたき	24.8	24.8	ゆでる	
	長いも		24.8	おろす	
	さといも		24.8	スチーム	
でんぷん・加工品	緑豆はるさめ	1.2	3.6	もどす	
種実類	カシューナッツ	1.8	5.4	未調理	
合計(3日分)			175.4	526.2	

\* 国民健康・栄養調査別表より



Table 2 に、試料調製の一例として、東京において計画された II 群(穀類, いも類, 種子類) 試料に含まれる個別食品と調製方法を示した。以下に、調製法を簡単に説明する。まず、国民健康・栄養調査食品群別表に従い、小分類ごとに混合する個別食品を選択した。その後、秤量誤差を小さくする目的から、1 個別食品当たりの混合(分別)重量が数グラム以上になるように、II 群試料全体を 3 日分の摂取量に相当する試料として調製することにした。その上で、計画に基づく重量分の個別食品を分別し、必要に応じて調理加工した。例えば、Table 1 に示すように、パン類(菓子パンを除く)の小分類には、多様なパンが個別食品として挙げられているが、その中から 2 種類(食パンとクロワッサン)を選択した。パン類(菓子パンを除く)の 1 日摂取量は 31.1 g であるので、日数分の係数 3 を乗じ、さらに個別食品数の 2 で割った値である 46.7g を食パンとクロワッサンそれぞれから分別した。TD 試料調製では、通常の摂食形態を反映させるため、生食しない食品には調理を行う。ここに示した II 群中では、麺類やパスタは「ゆでる」、マッシュポテトや春雨のような乾物は「もどす」という調理を行っている。しかし、調味料や油脂類は独立した群として分類されているため、これらを加えて煮るような調理は採用できないため、調理方法はかなり制限される。

#### TD 試料の混合及び保存

TD 試料は、各種汚染物の摂取量評価のための分析用試料として使用される。推定される摂取量の信頼性を保つために、サンプリングの誤差が生じないように十分に均質になるまで混合し、また安定に保存しなければならない。しかし、試料には多数の個別食品を含むため、食品群によっては特に調製に工夫を要する場合がある。例えば、Table 2 の II 群の例では、15 の小分類に含まれる 20 の個別食品を混合している。個々の食品の採取量が異なっている上、それぞれの水分量、堅さ、粘性に違いがあるので、これらを一度に混合し、均質な試料とすることは難しい。カシューナッツなどは、量が少なく堅いために初めから多量の試料に混ぜてしまうと破碎が困難となるので、あらかじめ粉碎して粉末とした後に混合した。また、混合する過程で粘性を帯び、いわば団子状となるような試料については、ペースト状になるまで水道水を加水した(加水量及び加水後の試料重量を計測し、モデル献立との比較から分析値への影響を評価できるようにした)。試料の最終重量が 1 kg 程度となることから、十分な混合力が得られる機器として業務用のフードミキサーを使用した。混合後の試料は、数百グラムを単位として密閉性の高いポリスチレン性ビニールバックに小分けし、分析に供するまで $-20^{\circ}\text{C}$ で凍結保存した。

#### 食品摂取量の経年変化

Fig.2 に 1979 年と 2000 年の食品の摂取量を地域別に示す。20 年の間に、食品の総摂取量はあまり変化しておらず、北海道・東北地方が西日本に比較してやや総摂取量が多いという傾向も変わっていない。しかし、食品群別の摂取量をみると、大きな変動があり食生活の変化が伺われる。Fig.3 は食品群別の摂取量の変化を 5 年ごとに示している。最も大きく変化しているのは主食である米の群で、1980 年から 2000 年までの 20 年間で 30%程度減少している。果実の摂取量も同程度の減少が見られる。逆に増加したのは、緑黄色野菜、嗜好品、乳製品

であり、全体として米主体の食事から洋風の食生活に変化すると共に、多くの嗜好品を摂取するようになったことが分かる。Fig.3 中の 2004 年の食品摂取量は、前述の国民健康・栄養調査方式が変わった後に集計されたものである。米の群の重量が大きく増加しているのは、基本的に調理後の重量を計測する方式に変更されたことにより、米ではなく炊飯後のご飯の重量として計量されたためである。お茶、コーヒーのような嗜好品も呑む状態の重量となったため、増加が著しい。図中ではその他となっている 13 群は、調味料の群に変更され、元々は他の群に含まれていたマヨネーズ・味噌・醤油等が加わったため重量が多くなっている (Fig.1 参照)。

### 分析対象汚染物及び分析方法

本 TDS 調査で分析対象とした汚染物は、有機塩素系農薬のヘキサクロロシクロヘキサン類 ( $\alpha$ -HCH,  $\beta$ -HCH,  $\gamma$ -HCH,  $\delta$ -HCH), DDT 類 (p,p'-DDT, p,p'-DDE, p,p'-DDD, o,p'-DDT), ディルドリン, ヘプタクロルエポキシド (HCE), ヘキサクロロベンゼン (HCB), 有機リン系農薬のダイアジノン, フェニトロチオン(MEP), マラチオン, 重金属等の鉛, カドミウム, 総水銀, 総ヒ素, 銅, マンガン, 亜鉛, その他の汚染物の PCB, 計 22 種類である。他の分析対象は、それぞれの協力機関により任意に定められた。また、分析法についても、協力機関で実施している方法とし、統一していない。このため、調査期間中にも各機関が採用した分析法及び LOQ はかなり変化している。幾つかの汚染物について分析法及び LOQ の経年変化を示す。

Fig.4 は HCH 及び DDT のような有機塩素系農薬の分析に採用された方法の変化を示している。年によって協力機関数が変わっているため、全体に対する割合として表示した。調査開始の当初は、全ての機関が ECD を検出器とするガスクロマトグラフィ(GC-ECD)により分析していたが、1990 年頃から質量分析計を検出器とするガスクロマトグラフィ(GC-MS)を採用する機関の割合が増加してきている。

Fig.5 には各協力機関から報告された LOQ の経年変化を示した。食品群により LOQ は異なり、例えば飲料水の群の LOQ は他の群の 1/10 程度まで低くなる。しかし、それ以上に機関間での LOQ の差は大きく、2 オーダー程度異なっていることが分かる。また、2004 年以降は、最も小さい LOQ が 0.01ppb となり、それ以前に比べ 1 オーダー上昇している。また、分析機関間の LOQ の範囲は狭くなっている。

Fig.6 は PCB の LOQ の経年変化を示している。PCB の分析は調査期間を通じて GC-ECD で行われており、有機塩素系農薬と異なり LOQ の変化はほとんど見られない。

Fig.7 及び Fig.8 には、有機リン系農薬の分析法及びその一例としてマラチオンの LOQ の経年変化を示した。有機リン系農薬の分析には、主として FPD を検出器とするガスクロマトグラフィ (GC-FPD)が使用されていたが、有機塩素系農薬と同様に 1995 年頃から GC-MS を用いる機関が増加し、2007 年には 50%の機関が GC-MS を採用している。機関間で LOQ はかなり異なっているが、その範囲は徐々に狭まっており、塩素系農薬と同様に LOQ の最小値が大きくなっている。

鉛及びカドミウム分析法の変化を Fig.9 に、それぞれの LOQ の変化を Fig.10 及び Fig.11 に示す。調査開始時は金属の分析はフレイム原子吸光で行われていたが、徐々にフレイムレス原子吸光法が採用され、最近では ICP-MS も使用されている。鉛の LOQ の最低値は調査開始と比較して 1~2 オーダー小さくなっており、非常に高感度の分析を実施している機関がある一方、高い LOQ の分析を行っている機関もあり、機関間での LOQ の範囲は広がってきている。カドミウムの LOQ は鉛と比較すると余り変化していないが、低い LOQ の機関が徐々に増加している。

総水銀分析法の変化を Fig.12 に、LOQ の変化を Fig.13 に示す。原子吸光法と水銀分析計に加えて、還元気化法を採用する機関が増加し、現在では 70%の機関がこの還元気化法を採用している。水銀分析の LOQ には大きな経年変化はみられず、0.0001~0.1 ppm の間にある。

総ヒ素分析法の変化を Fig.14 に、LOQ の変化を Fig.15 に示す。1995 年頃までは比色法（Gutzeit 法あるいは DDTC-銀法）が 50%を占めていたが、1995 年以降は水素化物発生法の採用が増え、最近では ICP-MS 法も使用されている。原子吸光法を含めて 90%が機器分析法による分析となり、比色法を実施している機関は 10%となった。総ヒ素の LOQ の範囲は、初期には 2 オーダー程度であったが、分析法の多様化を反映してか非常に低い LOQ で分析する機関も見られ、機関及び試料間での LOQ の範囲が広がっている。

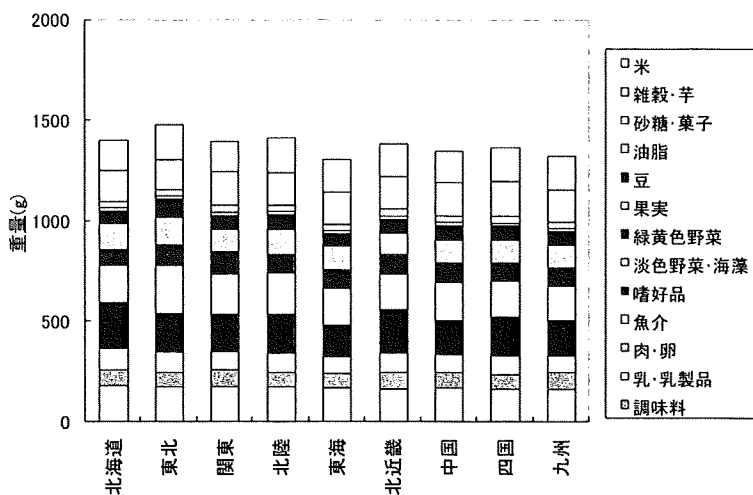
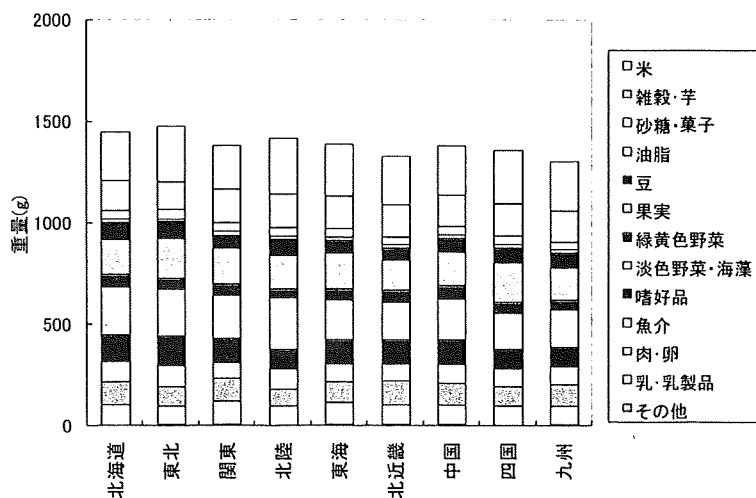


Fig.2 1979年及び2000年の食品の摂取量 (上: 1979年, 下: 2000年)

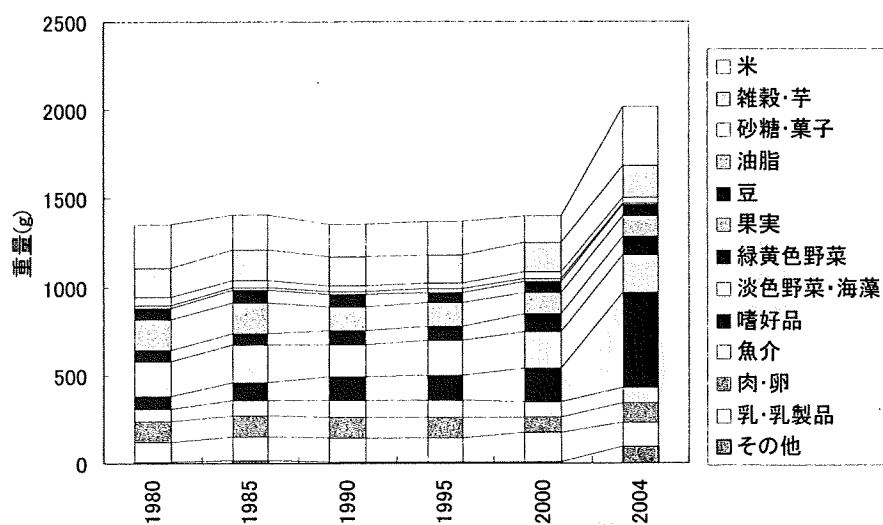


Fig.3 群別食品摂取量の経年変化