

表6 平成23年度トータルダイエット(1~14群)からのダイオキシン類1日摂取量(ND=L0D/2)

(pgTEQ/day)

食品群	北海道地区			東北地区			関東地区						中部地区			関西地区		
							I			II								
1群(米、米加工品)	10.72			10.72			10.72			10.72			10.72			10.72		
2群(米以外の穀類、種実類、いも類)	6.46			6.46			6.46			6.46			6.46			6.46		
3群(砂糖類、菓子類)	1.09			1.09			1.09			1.09			1.09			1.09		
4群(油脂類)	1.35			1.35			1.35			1.35			1.35			1.35		
5群(豆・豆加工品)	1.59			1.59			1.59			1.59			1.59			1.59		
6群(果実、果汁)	3.05			3.05			3.05			3.05			3.05			3.05		
7群(緑黄色野菜)	2.70			2.70			2.70			2.70			2.70			2.70		
8群(他の野菜類、キノコ類、海藻類)	5.29			5.29			5.29			5.29			5.29			5.29		
9群(酒類、嗜好飲料)	16.16			16.16			16.16			16.16			16.16			16.16		
	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3
10群(魚介類)	20.28	28.10	36.00	29.30	34.98	46.55	18.67	33.39	40.17	25.18	27.55	38.90	26.67	26.79	27.18	22.34	30.70	67.70
11群(肉類・卵類)	3.53	3.45	3.87	3.23	3.68	4.00	3.66	4.09	8.47	4.30	4.80	5.52	3.93	3.95	6.22	2.84	7.12	10.27
12群(乳・乳製品)	3.04	3.05	3.05	3.20	3.20	3.22	3.52	3.53	3.55	3.52	3.53	3.58	3.26	3.26	3.27	3.13	3.13	3.14
13群(調味料)	2.66			2.66			2.66			2.66			2.66			2.66		
14群(飲料水)	0.07			0.07			0.07			0.07			0.07			0.07		
総摂取量(pgTEQ/day)	77.98	85.73	94.05	86.85	92.99	104.89	76.98	92.14	103.32	84.13	87.00	99.13	84.99	85.14	87.81	79.44	92.09	132.24
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	1.56	1.71	1.88	1.74	1.86	2.10	1.54	1.84	2.07	1.68	1.74	1.98	1.70	1.70	1.76	1.59	1.84	2.64

食品群	中国・四国地区			九州地区			平均摂取量	標準偏差	比率(%)
1群(米、米加工品)	10.72			10.72			10.72	0.00	11.72
2群(米以外の穀類、種実類、いも類)	6.46			6.46			6.46	0.00	7.06
3群(砂糖類、菓子類)	1.09			1.09			1.09	0.00	1.19
4群(油脂類)	1.35			1.35			1.35	0.00	1.47
5群(豆・豆加工品)	1.59			1.59			1.59	0.00	1.74
6群(果実、果汁)	3.05			3.05			3.05	0.00	3.34
7群(緑黄色野菜)	2.70			2.70			2.70	0.00	2.96
8群(他の野菜類、キノコ類、海藻類)	5.29			5.29			5.29	0.00	5.79
9群(酒類、嗜好飲料)	16.16			16.16			16.16	0.00	17.68
	#1	#2	#3	#1	#2	#3			
10群(魚介類)	26.08	33.85	46.55	18.95	20.69	50.62	32.38	11.60	35.42
11群(肉類・卵類)	3.92	4.65	4.59	3.78	3.72	5.55	4.71	1.75	5.16
12群(乳・乳製品)	2.90	2.91	2.91	2.99	3.00	3.05	3.21	0.22	3.51
13群(調味料)	2.66			2.66			2.66	0.00	2.91
14群(飲料水)	0.07			0.07			0.07	0.00	0.07
総摂取量(pgTEQ/day)	84.03	92.54	105.18	76.86	78.54	110.34	91.43	12.84	100.00
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	1.68	1.85	2.10	1.54	1.57	2.21	1.83	0.26	

* 一部の地域(北海道及び東北地区、中国・四国及び九州地区)の食品群1~9、13及び14群は共通試料を使用した。

* *食品群10~12におけるダイオキシン類(PCDDs+PCDFs+Co-PCBs)摂取量(ND=0)の最小値の組み合わせを#1、中央値の組み合わせを#2、最大値の組み合わせを#3とした。

表 7 機関別ダイオキシン類1日摂取量の経年推移(平成10~23年度)¹⁾

地区	PCDDs+PCDFs+Co-PCBs (pgTEQ/kgbw/day) ND=0														
	H10年度	H11年度	H12年度	H13年度	H14年度	H15年度	H16年度	H17年度	H18年度	H19年度	H20年度	H21年度	H22年度	H23年度	
北海道地区	A	2.43	1.10	0.72	0.57	0.74	0.71	0.41	0.59	0.33	0.92	1.05	0.37	0.43	0.39
	B					0.80	0.92	0.85	1.54	0.39	1.28	1.22	0.92	0.52	0.55
東北地区	A	1.10	1.27	0.95	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	B	-	1.40	1.63	1.68	0.97	0.60	0.41	0.53	0.46	0.40	0.13	0.57	0.54	0.59
関東地区	A	1.84	3.33	1.10	0.88	1.26	0.67	1.42	0.47	0.51	0.68	0.48	0.28	0.90	0.39
	B					1.75	1.13	2.46	1.38	1.57	0.68	0.85	1.33	0.94	0.98
中部地区	A					2.30	2.55	1.64	1.11	1.28	1.12	1.70	0.69	1.61	0.95
	B	1.84	1.43	1.51	1.70	1.17	0.75	-	-	-	-	-	-	-	-
関西地区	A					2.02	0.86	-	-	-	-	-	-	-	-
	B					2.99	2.31	-	-	-	-	-	-	-	-
中国四国地区	A	1.76	1.46	1.28	1.21	0.76	0.86	0.88	0.59	0.68	0.70	0.61	0.68	0.63	0.53
	B					0.95	0.92	1.46	1.11	0.87	0.85	0.78	1.06	1.04	0.60
九州地区	A					1.26	1.74	2.04	1.74	1.22	2.51	1.10	1.39	1.46	0.85
	B	-	1.35	1.23	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
平均	A	1.70	1.37	1.24	1.44	1.18	1.15	0.61	0.59	0.58	0.68	0.60	0.70	-	-
	B					1.43	1.30	0.76	0.68	0.76	0.76	0.96	0.77	-	-
九州地区	A					1.63	1.55	1.57	1.22	0.87	1.19	1.11	0.91	-	-
	B	1.75	2.08	1.50	1.32	0.52	0.49	0.52	0.40	0.40	0.35	0.63	0.36	0.47	0.52
九州地区	A					0.57	0.96	0.58	0.50	0.62	0.45	0.69	0.44	0.55	0.52
	B					1.11	1.26	1.73	1.37	1.01	1.48	1.69	0.96	0.78	0.59
九州地区	A	-	5.93	1.73	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	B	2.29	1.55	1.22	1.12	0.83	0.67	1.14	0.58	0.86	0.64	0.57	0.63	0.48	0.44
九州地区	A					1.18	0.98	1.62	0.70	1.32	0.82	0.61	0.97	0.56	0.71
	B					2.36	1.38	1.95	1.23	1.54	1.08	1.16	1.14	0.74	1.54
九州地区	A	-	1.60	1.74	1.72	1.18	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	B					1.53	-	-	-	-	-	-	-	-	-
九州地区	A					1.72	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	B					-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
九州地区	A	-	3.06	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	B	-	-	0.85	0.76	0.69	0.53	-	-	-	-	-	-	-	-
九州地区	A					0.81	1.06	-	-	-	-	-	-	-	-
	B					1.03	1.35	-	-	-	-	-	-	-	-
九州地区	A	1.07	1.26	1.23	1.36	0.63	0.90	1.06	1.01	0.82	0.67	0.61	0.59	0.48	0.50
	B					1.32	1.31	1.20	1.34	0.92	0.90	0.64	0.81	0.69	0.67
九州地区	A					1.81	1.76	1.48	1.47	1.64	1.17	1.11	1.49	0.73	0.94
	B	1.75	1.57	1.31	2.89	0.47	0.73	0.52	0.56	0.54	0.37	0.54	0.57	0.70	0.36
九州地区	A					1.00	0.90	0.84	0.91	0.56	1.03	0.60	1.08	0.90	0.40
	B	-	1.04	0.72	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
九州地区	A					1.55	1.55	1.07	1.24	1.38	1.56	1.37	1.45	1.44	1.06
	B	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
平均		1.75	1.92	1.25	1.39	1.27	1.13	1.21	1.02	0.90	0.93	0.92	0.84	0.81	0.68

1) 平成10~12年度の摂取量は、平成12年度厚生科学研究費補助金研究事業「ダイオキシン類の食品経由総摂取量調査研究報告書」から、平成13~15年度の摂取量は、平成15年度厚生労働科学研究費補助金研究事業「ダイオキシンの汚染実態把握及び摂取低減化に関する研究報告書」から、平成16~18年度の摂取量は、平成18年度厚生労働科学研究費補助金研究事業「ダイオキシン類による食品汚染実態の把握に関する研究報告書」から引用した。平成19~21年度の摂取量は、平成21年度厚生労働科学研究費補助金研究事業「ダイオキシン類等の有害化学物質による食品汚染実態の把握に関する研究」から引用した。平成22年度の摂取量は、平成22年度厚生労働科学研究費補助金研究事業「食品を介したダイオキシン類等有害物質摂取量の評価とその手法開発に関する研究」から引用した。全て2005 TEFを使用して算出した摂取量である。

食品を介したダイオキシン類等有害物質摂取量の評価と
その手法開発に関する研究

分担研究報告書

食品からの塩素化ダイオキシン類の摂取量推定に関する研究
塩素化ダイオキシン類の個別食品汚染調査

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
研究分担者 堤 智昭 国立医薬品食品衛生研究所食品部

研究要旨

魚介類(30 試料)及び魚肝臓加工品(4 試料)、魚成分由来の健康食品(6 試料)、並びに畜肉類を含む弁当試料(30 試料)について、PCDDs 7 種、PCDFs 10 種及び Co-PCBs 12 種の計 29 種のダイオキシン類濃度を調査した。魚介類 30 試料(イクラ、タラコ、アサリ、ウニ、エビ及びカキについて各 5 試料)を調査した結果、ダイオキシン類濃度は 0.0032~0.49 pg TEQ/g(中央値 0.11 pg TEQ/g)の範囲内であった。魚肝臓加工品 4 試料(タラ肝臓加工品 1 試料、アンコウ肝臓加工品 3 試料)を調査した結果、ダイオキシン類濃度は 8.3~54 pg TEQ/g(中央値 8.6 pg TEQ/g)の範囲内であった。魚肝臓加工品のダイオキシン類濃度は概して高く、最も高濃度であった試料はタラ肝臓加工品(54 pg TEQ/g)であった。健康食品 6 試料(八つ目鰻加工食品 1 試料、鱈精製魚油加工食品 1 試料、鯨エキス含有食品 1 試料、鮫肝油加工食品 3 試料)を調査した結果、ダイオキシン類濃度は 0.16~67 pg TEQ/g(中央値 2.2 pg TEQ/g)の範囲内であった。鮫肝油を使用した健康食品の 1 試料で高いダイオキシン類(67 pg TEQ/g)が検出された。

次に、畜肉類を使用した弁当として、牛肉を使用した弁当(12 試料)、豚肉を使用した弁当(9 試料)、及び鶏肉を使用した弁当(9 試料)のダイオキシン類濃度を調査した。牛肉を使用した弁当で 0.0011~0.19 pg TEQ/g(中央値 0.029 pg TEQ/g)、豚肉を使用した弁当で 0~0.0012 pg TEQ/g(中央値 0.00042 pg TEQ/g)、鶏肉を使用した弁当で 0.00014~0.038 pg TEQ/g(中央値 0.0032 pg TEQ/g)のダイオキシン類が検出された。弁当 1 食を食した場合のダイオキシン類摂取量を算出した結果、最も高かった焼き肉弁当(牛肉)でも 17 pg TEQ/食であり、耐用一日摂取量(TDI)の 10%以下であった。

また、現在までに蓄積された魚介類のダイオキシン類汚染データを使用して、モンテカルロ法により一般的な国民における魚介類からのダイオキシン類摂取量を推定した。その結果、一日摂取量の平均値は 1.3 pg TEQ/kg/日、中央値は 0.36 pg TEQ/kg/日であった。また、90%タイル値は 2.9 pg TEQ/kg/日と推定された。

研究協力者

(財)日本食品分析センター

中村宗知、柳俊彦、飯塚誠一郎

国立医薬品食品衛生研究所

松田りえ子、高附 巧

A. 研究目的

トータルダイエット試料によるダイオキシン類の摂取量推定結果では、ダイオキシン類摂取量の約 99%が魚介類、肉・卵類、乳製品類に由来している。そこで、これら摂取への寄与が大きい食品のダイオキシン類汚染実態を把握し、個人別暴露量を正確に評価するためのデータ蓄積を目的に、今年度は魚介類、魚肝臓加工品及び魚成分由来の健康食品のダイオキシン類汚染調査を実施した。また、一食の形態で提供される弁当については、ダイオキシン類汚染調査が不足している。昨年度は魚介類を使用した市販の弁当からのダイオキシン類摂取量を推定した¹⁾。本年度は、畜肉類を使用した市販の弁当についてダイオキシン類を分析し、それらからのダイオキシン類摂取量を推定した。

また、現在までに蓄積された魚介類のダイオキシン類汚染データを使用して、モンテカルロ法により一般的な国民における魚介類からのダイオキシン類摂取量を推定した。

B. 研究方法

1. 試料

個別食品として魚介類 30 試料は東京都内のスーパーマーケットなどで購入した。魚肝臓加工食品 4 試料及び健康食品 6 試料は東京都内のスーパーマーケット及びインターネットを介して購入した。また、弁当試料 30 試料は東京都内のスーパーマーケットなどで購入した。弁当試料の詳細については表1に示した。なお、弁当については、飯を除いた具材を均一化し、ダイオキシン類分析の試料とした。

2. 分析項目及び検出限界

ダイオキシン類

WHO が毒性等価係数(TEF)を定めた下記
の PCDDs 7 種、PCDFs 10 種及び Co-PCBs
12 種の計 29 種を分析対象とした。

()内の数字は検出限界(pg/g)を示す。但し、健康食品は分析に使用する試料量を少なくしたため検出下限が異なる(4,5 塩素化 PCDD/Fs: 0.05、6,7 塩素化 PCDD/Fs: 0.1、8 塩素化 PCDD/Fs: 0.2、ノンオルト PCBs: 0.5、モノオルト PCBs: 5)。

PCDDs

- 2,3,7,8-TCDD, 1,2,3,7,8-PeCDD (0.01)
- 1,2,3,4,7,8-HxCDD, 1,2,3,6,7,8-HxCDD, 1,2,3,7,8,9-HxCDD, 1,2,3,4,6,7,8-HpCDD (0.02)
- 1,2,3,4,6,7,8,9-OCDD (0.05)

PCDFs

- 2,3,7,8-TCDF, 1,2,3,7,8-PeCDF, 2,3,4,7,8-PeCDF (0.01)
- 1,2,3,4,7,8-HxCDF, 1,2,3,6,7,8-HxCDF, 1,2,3,7,8,9-HxCDF, 2,3,4,6,7,8-HxCDF, 1,2,3,4,6,7,8-HpCDF, 1,2,3,4,7,8,9-HpCDF (0.02)
- 1,2,3,4,6,7,8,9-OCDF (0.05)

Co-PCBs

- 3,3',4,4'-TCB(#77), 3,4,4',5-TCB(#81), 3,3',4,4',5-PeCB(#126), 3,3',4,4',5,5'-HxCB(#169) (0.1)
- 2,3,3',4,4'-PeCB(#105), 2,3,4,4',5-PeCB(#114), 2,3',4,4',5-PeCB(#118), 2',3,4,4',5-PeCB(#123), 2,3,3',4,4',5-HxCB(#156), 2,3,3',4,4',5'-HxCB (#157), 2,3',4,4',5,5'-HxCB(#167), 2,3,3',4,4',5,5'-HpCB(#189) (1)

3. 分析方法

ダイオキシン類の分析は、「食品中のダイオキシン類の測定方法暫定ガイドライン」(厚生労働省、平成 20 年 2 月)に従った。

4. 分析結果の表記

測定結果は湿重量あたりの毒性等量(pg TEQ/g)で示した。ダイオキシン類の毒性等量の計算には、TEF (WHO 2005)を用いた。検

出限界以下の異性体濃度はゼロとして計算した。

5. モンテカルロ・シミュレーション法によるダイオキシン類摂取量の推定

魚介類の摂取量は、平成15-19年度国民健康・栄養調査結果の魚介類を13区分(アジ・イワシ、サケ・マス、タイ・カレイ、マグロ・カジキ、その他の生魚、イカ・タコ、エビ・カニ、貝類、魚介乾物、魚介缶詰、魚介佃煮、魚介練り製品、魚肉ハム・ソーセージ)して集計した。データ数が多いため、特に分布をあてはめず実際の分布を使用した。魚介類中のダイオキシン類濃度は厚生労働科学研究(平成10~22年度)の調査結果(約650試料)を用いた。TEFはWHO2005年の値を用い、検出限界以下となった異性体濃度はゼロとして計算した。13区分に分類したダイオキシン類濃度に対数正規分布をあてはめた。各分布に従う乱数を発生させ、区分毎にダイオキシン類摂取量を求め、それらの総和を魚介類からのダイオキシン類摂取量とした。シミュレーションの試行回数は20,000回とした。

C. 研究結果及び考察

1. 個別食品のダイオキシン類汚染調査結果

魚介類(6種、30試料)、魚肝臓加工品(4試料)及び魚成分由来の健康食品(6試料)のダイオキシン類分析結果を表2に示した。また、ダイオキシン類濃度を食品毎にまとめた結果を表3に示した。魚介類中のダイオキシン類濃度はイクラが0.11~0.26 pg TEQ/g(中央値0.18 pg TEQ/g)、タラコが0.026~0.16 pg TEQ/g(中央値0.075 pg TEQ/g)、アサリが0.0032~0.093 pg TEQ/g(中央値0.065 pg TEQ/g)、ウニが0.073~0.29 pg TEQ/g(中央値0.18 pg TEQ/g)、エビが0.010~0.35 pg TEQ/g(中央値0.027 pg TEQ/g)、及びカキが0.037~0.49 pg TEQ/g(中央値0.29 pg

TEQ/g)であった。また、魚肝臓加工品中のダイオキシン類濃度は8.3~54 pg TEQ/g(中央値8.6 pg TEQ/g)であった。魚肝臓加工品のダイオキシン類濃度は魚介類と比較すると概して高く、特にタラ肝臓(燻製)では高濃度のダイオキシン類が検出された。タラやアンコウの肝臓は脂肪含量が高いため、ダイオキシン類濃度も高くなったと考えられる。過去の厚生労働科学研究の調査結果²⁾でも、アンコウの肝臓で高濃度のダイオキシン類(13及び27 pg TEQ/g)が検出されている。

魚成分由来の健康食品のダイオキシン類濃度は0.16~67 pg TEQ/g(中央値2.2 pg TEQ/g)であった。鮫肝油を使用した1製品で高濃度のダイオキシン類が認められた。同種の鮫肝油を使用した製品でもダイオキシン類濃度は大きく異なっており、製品に使用されている魚の産地や魚油の精製工程などが関与している可能性が考えられた。

表4に健康食品からのダイオキシン類摂取量を算出した。各製品の摂取量は添付書に記載されている最大の摂取量を使用した。最も高濃度のダイオキシン類が検出された鮫肝油製品からの摂取量は129 pg TEQ/日と算出され、体重50 kgと仮定した耐用一日摂取量(TDI)である200 pg TEQ/日の約64%に相当した。本年度のトータルダイエツト調査による国民平均のダイオキシン類摂取量は33.9 pg TEQ/日であることから、他の一般的な食品からのダイオキシン類摂取量を考慮した場合でも、TDIを超えることはない。しかし、ダイオキシン類摂取を大幅に上昇させる危険性があることから、本製品の使用には注意を払う必要があると考えられる。また、本製品の異なるロットでも同じように高濃度のダイオキシン類が検出されるか追跡調査の必要があると考えられる。その他の5製品からのダイオキシン類摂取量は10 pg TEQ/日以下であり、TDIに占める摂取量の割合は10%以下であった。

2. 畜肉類を使用した弁当のダイオキシン類汚

染調査結果

畜肉類を使用した弁当 30 試料のダイオキシン類分析結果を表 5 に示した。弁当試料のダイオキシン類濃度は 0~0.19 pg TEQ/g(中央値 0.0034 pg TEQ/g)であった。最もダイオキシン類濃度が高かったのは焼き肉弁当(試料番号 3)であった。昨年度に実施した魚介類を含む弁当(30 試料)のダイオキシン類濃度は 0.0073~3.3 pg TEQ/g(中央値 0.28 pg TEQ/g)であり¹⁾、畜肉類を使用した弁当のダイオキシン類濃度は比較的lowかった。なお、試料番号 12 のビーフステーキ弁当及び試料番号 29 のチキンカツ弁当の 2 試料については、1,2,3,7,8-PeCDD が妨害成分により測定できなかったため、測定結果を参考値とした。

弁当1食を食した場合(飯は除く)に摂取するダイオキシン類は、焼き肉弁当(試料番号 3)が最も高く 17 pg TEQ/食であった。これは TDI の 8.5%に相当した。仮に調査した弁当を 1 日 3 回食しても、TDI の 25%程度のダイオキシン類摂取量であった。その他の多くの弁当では、1 食あたりのダイオキシン類摂取量は TDI の 5%以下であった。

弁当に使用されている肉の種類毎に分類し、ダイオキシン類濃度をまとめた(表 6)。牛肉を使用した弁当のダイオキシン類濃度は 0.0011~0.19 pg TEQ/g(中央値 0.029 pg TEQ/g)であり、12 試料中 9 試料で 0.01 pg TEQ/g を超えていた。他の畜肉類を使用した弁当のダイオキシン類濃度(豚肉:0~0.0012 pg TEQ/g、鶏肉:0.00014~0.038 pg TEQ/g)と比較するとやや高い傾向が認められた。弁当には種々の食材が含まれるため明確な原因は不明であるが、各種畜肉類中のダイオキシン類が家畜の飼料由来とすると、飼料の違いがダイオキシン類濃度に影響した可能性が考えられた。しかし、ダイオキシン類濃度が一般的に高いと考えられる飼料(動物性油脂、魚粉及び魚油等)は BSE の感染防止の観点から牛飼料への使用が禁止されている。一方、こ

れらの飼料は豚や鶏には使用できるため、牛肉でダイオキシン類濃度が高かった原因が飼料に含まれるダイオキシン類濃度の違いに起因するとは考えにくい。各畜肉類の出荷までの生育期間に注目すると、一般的に牛は 30 ヶ月齢頃、豚は大型種で 6 ヶ月齢頃、鶏はブロイラーで 7~8 週齢、地鶏で 110~150 日齢とされていることから、生育期間の違いがダイオキシン類汚染濃度に反映していると考えられた。

3. モンテカルロ・シミュレーション法による魚介類からのダイオキシン類摂取量の推定

モンテカルロ法により、一般的な国民の魚介類からのダイオキシン類摂取量を推定した結果、一日摂取量の平均値は 1.3 pg TEQ/kg/日、中央値は 0.36 pg TEQ/kg/日であった(体重 50 kg と仮定)(図 1)。また、90%及び 95%タイル値は 2.9 及び 4.9 pg TEQ/kg/日と推定された。魚介類のダイオキシン類濃度データへの分布の適合が良くない場合があるため信頼性は高くないが、95%タイル値は耐用一日摂取量(TDI)である 4 pg TEQ/kg/日をやや超える値であった。

ダイオキシン類摂取量の平均値は、平成 23 年度のトータルダイエツト調査の魚介類からのダイオキシン類摂取量(全国平均値 0.63 pg TEQ/kg/日)³⁾と比較すると約 2 倍高かった。この理由として、平成 10-22 年度の魚介類のダイオキシン類汚染データを使用しているため、現在よりもダイオキシン類濃度の高いデータが含まれている事が考えられる。過去のトータルダイエツト調査によると、平成 10 及び 11 年度のダイオキシン類摂取量は現在の 2 倍以上であった³⁾。従って、過去の魚介類のダイオキシン類濃度が現在よりも高かった可能性は否定できない。

また、魚介類 13 区分からのダイオキシン類摂取量の平均値を図 2 に示した。平均値における寄与率は、“その他の生魚”が最も高く 28%であり、次いで“魚介(塩蔵、生干し、乾

物)”が20%、“アジ・イワシ類”が18%、“マグロ・カジキ類”が15%であった。“その他の鮮魚”には、ダイオキシン類濃度が高い報告が多いブリを含むため、寄与率が高くなったと考えられる。軟体類や甲殻類及び魚介の練り製品などでは、一般に脂肪含量が低いいためダイオキシン類濃度も低く、摂取量に対する寄与率は低い。

D. 結論

1. 魚介類 30 試料(イクラ、タラコ、アサリ、ウニ、エビ及びカキについて各 5 試料)を調査した結果、ダイオキシン類濃度は 0.0032~0.49 pg TEQ/g(中央値 0.11 pg TEQ/g)の範囲内であった。魚肝臓加工品 4 試料(タラ肝臓加工品 1 試料、アンコウ肝臓加工品 3 試料)を調査した結果、ダイオキシン類濃度は 8.3~54 pg TEQ/g(中央値 8.6 pg TEQ/g)の範囲内であった。魚肝臓加工品のダイオキシン類汚染濃度は概して高く、最も高濃度であった試料はタラ肝臓加工品(54 pg TEQ/g)であった。魚成分由来の健康食品 6 試料を調査した結果、ダイオキシン類濃度は 0.16~67 pg TEQ/g(中央値 2.2 pg TEQ/g)の範囲内であった。鮫肝油を使用した健康食品の 1 試料で高いダイオキシン類(67 pg TEQ/g)が検出された。
2. 弁当のダイオキシン類調査の結果、牛肉を使用した弁当で 0.0011~0.19 pg TEQ/g(中央値 0.029 pg TEQ/g)、豚肉を使用した弁当で 0~0.0012 pg TEQ/g(中央値 0.00042 pg TEQ/g)、鶏肉を使用した弁当で 0.00014~0.038 pg TEQ/g(中央値 0.0032 pg TEQ/g)のダイオキシン類が検出された。弁当 1 食を食した場合のダイオキシン類摂取量を算出した結果、最も高かった焼き肉弁当(牛肉)でも 17 pg TEQ/食であり、TDI の 10%以下であった。
3. 魚介類のダイオキシン類汚染データを使用して、モンテカルロ法により一般的な国民における魚介類からのダイオキシン類摂取量を推定した。その結果、一日摂取量の平均値は

1.3 pg TEQ/体重/日、中央値は 0.36 pg TEQ/体重/日であった(体重 50 kg と仮定)。また、90%タイル値は 2.9 pg TEQ/体重/日と推定された。

E. 参考文献

- 1) 平成 22 年度厚生労働科学研究補助金研究報告書「食品を介したダイオキシン類等有害化学物質摂取量の評価とその手法開発に関する研究」(分担報告書 塩素化ダイオキシンの個別食品汚染調査)
- 2) 平成 18 年度厚生科学研究費補助金研究報告書「ダイオキシン類による食品汚染実態の把握に関する研究」(分担報告書 個別食品のダイオキシン類汚染実態調査)
- 3) 平成 23 年度厚生労働科学研究補助金研究報告書「食品を介したダイオキシン類等有害化学物質摂取量の評価とその手法開発に関する研究」(分担報告書 塩素化ダイオキシン類のトータルダイエツト調査)

F. 研究業績

1. 論文発表
なし

2. 学会発表

- 1) 堤 智昭, 石井 利華, 菊地 博之, 高附 巧, 松田 りえ子:魚介類及びそれらを使用した弁当からのダイオキシン類摂取量, 第 102 回日本食品衛生学会学術講演会 (2011.9).

表1 畜肉類を含む弁当試料の詳細

試料 番号	肉の 種類	弁当名	食材						具材合計 重量	飯重量	
			畜肉類		畜肉類以外の動物性食品		その他(海藻・植物性食品等) ¹⁾				
			種類	重量	種類	重量	種類	重量			
1	牛肉	焼き肉弁当	牛肉 82.1g	82.1 g	エビフライ 17.2 g	17.2 g	キャベツ 32.3 g、きゅうりの漬物 5.1g	37.4 g	136.7 g	243 g	
2		焼き肉弁当	牛カルビ(玉葱8.8g含む) 147.6 g	147.6 g			芽にんにく4.2g、しょうが5.0g	8.2 g	155.8 g	261 g	
3		焼き肉弁当	牛カルビ(胡麻含む) 83.5g	83.5 g			しょうが6.3	6.3 g	89.8 g	304 g	
4		牛丼	牛肉(玉葱25.4g含む) 84.5g	84.5 g				0.0 g	84.5 g	301 g	
5		牛丼	牛肉69.6g	69.6 g			玉葱13.8g	13.8 g	83.4 g	263 g	
6		牛丼	牛肉(玉葱9.1g、こんにやく5.2g含む) 65.1g	65.1 g	玉子(炒り) 14.5g	14.5 g	漬物10.0g	10.0 g	89.6 g	228 g	
7		ハンバーグ弁当	ハンバーグ101.1g	101.1 g			キャベツ22.7、パプリカ2.3、レタス1.5	26.5 g	127.6 g	184 g	
8		ハンバーグ弁当	ハンバーグ61.1g	61.1 g	玉子(焼き) 42.0g	42.0 g	大根おろし19.0g、ブロッコリー6.3g、グリル野菜21.3g等	53.2 g	156.3 g	199 g	
9		ハンバーグ弁当	ハンバーグ154.5g	154.5 g			大根おろし23.6g、きんぴらごぼう21.1g、ペンネサラダ23.8g等	90.1 g	244.6 g	175 g	
10		ビーフステーキ弁当	ステーキ72.4g	72.4 g			野菜の素揚げ(ズッキーニ、パプリカ、ナス)18.5g、クレソン1.0g	19.5 g	91.9 g	228 g	
11		ビーフステーキ弁当	牛肉74.4g	74.4 g			炒めもやし44.0g	44.0 g	118.4 g	278 g	
12		ビーフステーキ弁当	ステーキ73.5g	73.5 g			いんげん5.7g、コーン炒め13.0g、フライドポテト20.7g	39.4 g	112.9 g	248 g	
13	豚肉	とんかつ弁当	とんかつ100.0 g	100.0 g			キャベツ25.6 g、漬物(きゅうり) 4.3g	29.9 g	129.9 g	245 g	
14		とんかつ弁当	とんかつ162.5g	162.5 g			ひじきの煮物7.3g、菜花漬け11.8g、ポテトサラダ11.4g等	38.0 g	200.5 g	218 g	
15		とんかつ弁当	とんかつ(カツ煮)161.4g	161.4 g	卵(とじ) 18.0g	18.0 g	玉葱2.0g	2.0 g	181.4 g	214 g	
16		ショウガ焼き弁当	豚肉生姜焼き83.6g	83.6 g			ポテトサラダ10.8g、ひじきの煮物4.0g、スパゲティ37.3g、野菜のマリネ23.6g	75.7 g	159.3 g	210 g	
17		ショウガ焼き弁当	豚肉生姜焼き107.8g(玉葱14.8g含む)	107.8 g			生野菜(キャベツ、人参、コーン、レタス、キュウリ)87.6g	87.6 g	195.4 g	254 g	
18		ショウガ焼き弁当	豚肉生姜焼き(マヨネーズ含む)64.7g	64.7 g			紅しょうが3.6g、玉ねぎ55.5g	59.1 g	123.8 g	306 g	
19		焼き肉弁当	豚焼肉74.6g	74.6 g			葱薄切り4.4g、大根おろし17.2g	21.6 g	96.2 g	254 g	
20		焼き肉弁当	豚ロース77.5g	77.5 g			キャベツ22.7g、パプリカ2.3g、レタス1.5g	26.5 g	104.0 g	185 g	
21		焼き肉弁当	豚肉56.0g	56.0 g			ネギ17.4g、きゅうりの漬物3.6g	21.0 g	77.0 g	233 g	
22		鶏肉	唐揚げ弁当	鶏唐揚げ181.2g	181.2 g	玉子(焼き) 12.4g	12.4 g	スパゲティ6.3g、ポテトサラダ6.1g、高菜漬け2.1g	14.5 g	208.1 g	245 g
23			唐揚げ弁当	鶏唐揚げ116.6g	116.6 g			ポテトサラダ16.0g、スパゲティ15.5g	31.5 g	148.1 g	210 g
24			唐揚げ弁当	鶏唐揚げ145.4g	145.4 g			野菜の素揚げ(ズッキーニ、パプリカ、ナス)15.6g	15.6 g	161.0 g	231 g
25	親子丼		鶏肉47.4g	47.4 g	玉子 68.2g	68.2 g	ミツバ2.2g	2.2 g	117.8 g	224 g	
26	親子丼		鶏肉88.5g	88.5 g	玉子(玉葱含む) 92.1g	92.1 g	タクワン9.9g、ミツバ0.3g	10.2 g	190.8 g	231 g	
27	親子丼		鶏肉79.9g	79.9 g	玉子(玉葱含む) 44.0g	44.0 g	紅ショウガ3.6g	3.6 g	127.5 g	288 g	
28	チキンカツ弁当		竜田揚148.3g	148.3 g			野菜揚げ煮46.2g、スパゲティ10.1g、キャベツ10.0g	66.3 g	214.6 g	209 g	
29	チキンカツ弁当		チキン南蛮136.0g	136.0 g			ポテトサラダ33.4g、野菜(水菜、にんじん)65.6g、ふくしん漬け7.9g	106.9 g	242.9 g	206 g	
30	チキンカツ弁当		チキンカツ159.1g	159.1 g			大根おろし26.3g、きんぴらごぼう21.5g、ひじきの煮物13.6g等	73.4 g	232.5 g	214 g	

1) その他の食材については重量の多かった食材のみ示した。

表2 個別食品中のダイオキシン類濃度測定結果

食 品			ダイオキシン類濃度 (pgTEQ/g)		
			PCDD/Fs	Co-PCBs	Total
魚介類	イクラ 1	輸入 天然	0.016	0.091	0.11
	イクラ 2	国産 天然	0.066	0.17	0.24
	イクラ 3	国産 天然	0.033	0.12	0.15
	イクラ 4	輸入 天然	0.067	0.20	0.26
	イクラ 5	国産 天然	0.044	0.14	0.18
	タラコ 1	輸入 天然	0.018	0.14	0.16
	タラコ 2	国産 天然	0.0079	0.067	0.075
	タラコ 3	輸入 天然	0.014	0.091	0.10
	タラコ 4	輸入 天然	0.0040	0.022	0.026
	タラコ 5	国産 天然	0.0056	0.054	0.059
	アサリ 1	輸入 天然	0.044	0.031	0.075
	アサリ 2	国産 天然	0.044	0.021	0.065
	アサリ 3	国産 天然	0.060	0.033	0.093
	アサリ 4	国産 天然	0.045	0.021	0.065
	アサリ 5	国産 天然	0.0027	0.00050	0.0032
	ウニ 1	輸入 天然	0.18	0.11	0.29
	ウニ 2	国産 天然	0.11	0.068	0.18
	ウニ 3	輸入 天然	0.021	0.052	0.073
	ウニ 4	輸入 天然	0.13	0.082	0.21
	ウニ 5	輸入 天然	0.047	0.065	0.11
	エビ 1	輸入 養殖	0.0065	0.021	0.027
	エビ 2	輸入 養殖	0.010	0	0.010
	エビ 3	国産 天然	0.29	0.056	0.35
	エビ 4	国産 天然	0.060	0.066	0.13
	エビ 5	輸入 養殖	0.000018	0.010	0.011
	カキ 1	国産 養殖	0.22	0.27	0.49
	カキ 2	国産 養殖	0.14	0.15	0.29
	カキ 3	国産 養殖	0.20	0.11	0.31
	カキ 4	輸入 養殖	0.065	0.088	0.15
	カキ 5	国産 養殖	0.016	0.021	0.037
魚肝臓 加工品	タラ肝臓(燻製)	輸入	12	41	54
	アンコウ肝臓	輸入	3.3	5.0	8.3
	アンコウ肝臓(水煮)	輸入	3.4	5.3	8.7
	アンコウ肝臓(酒蒸し)	国産	3.1	5.4	8.5
健康食品	健康食品 1	八ッ目鰻加工食品	0.011	0.15	0.16
	健康食品 2	鱈精製魚油加工食品	0.023	1.8	1.9
	健康食品 3	鯨エキス含有食品	0.43	4.3	4.8
	健康食品 4	鮫肝油加工食品	0	0.28	0.28
	健康食品 5	鮫肝油加工食品	0.50	2.0	2.5
	健康食品 6	鮫肝油加工食品	14	53	67

表3 個別食品中のダイオキシン類濃度の概要

食品	試料数	ダイオキシン類濃度 (pg TEQ/g)			
		平均値	中央値	最大値	最小値
イクラ	5	0.19	0.18	0.26	0.11
タラコ	5	0.084	0.075	0.16	0.026
アサリ	5	0.060	0.065	0.093	0.0032
ウニ	5	0.17	0.18	0.29	0.073
エビ	5	0.11	0.027	0.35	0.010
カキ	5	0.26	0.29	0.49	0.037
魚肝臓加工品	4	20	8.6	54	8.3
健康食品	6	13	2.2	67	0.16

表4 魚成分由来の健康食品からのダイオキシン類摂取量

食品	ダイオキシン類摂取量 ¹⁾ (pg TEQ/日)	TDIに占める割合 ²⁾ (%)
ハツ目鰻加工食品	0.24	0.12
鱈精製魚油加工食品	2.7	1.4
鯨エキス含有食品	8.0	4.0
鮫肝油加工食品	0.45	0.23
鮫肝油加工食品	6.5	3.2
鮫肝油加工食品	129	64

1) 各製品に記載されている一日摂取量の最大値に基づき算出

2) 体重50 kgと仮定した場合のTDI(200 pg TEQ/日)に対する割合

表5 畜肉類を含む弁当試料のダイオキシン類濃度と摂取量

試料 番号	肉の 種類	種類	ダイオキシン類濃度 (pg TEQ/g)			1食あたりのダイオ キシン類摂取量 ¹⁾ (pg TEQ/食)	TDIに対する 割合 ²⁾ (%)
			PCDD/Fs	Co-PCBs	Total		
1	牛肉	焼き肉弁当	0.037	0.00025	0.037	5.1	2.6
2		焼き肉弁当	0.0064	0.011	0.017	2.6	1.3
3		焼き肉弁当	0.19	0.00037	0.19	17	8.5
4		牛丼	0.053	0.012	0.065	5.5	2.7
5		牛丼	0.039	0.028	0.067	5.6	2.8
6		牛丼	0.11	0.024	0.14	12	6.1
7		ハンバーグ弁当	0.0093	0.00011	0.0094	1.2	0.60
8		ハンバーグ弁当	0.0052	0.015	0.020	3.2	1.6
9		ハンバーグ弁当	0.014	0.00020	0.014	3.4	1.7
10		ビーフステーキ弁当	0.094	0.047	0.14	13	6.5
11		ビーフステーキ弁当	0.00082	0.00032	0.0011	0.14	0.068
12		ビーフステーキ弁当 ³⁾	(0.0036)	(0)	(0.0036)	(0.41)	(0.20)
13	豚肉	とんかつ弁当	0.00084	0.00011	0.0010	0.12	0.062
14		とんかつ弁当	0.00037	0.000046	0.00042	0.084	0.042
15		とんかつ弁当	0.00061	0.00060	0.0012	0.22	0.11
16		ショウガ焼き弁当	0.000039	0.000034	0.000073	0.012	0.0058
17		ショウガ焼き弁当	0	0.000028	0.000028	0.0055	0.0028
18		ショウガ焼き弁当	0.0005	0.000062	0.00056	0.070	0.035
19		焼き肉弁当	0	0	0	0	-
20		焼き肉弁当	0.00013	0	0.00013	0.013	0.0066
21		焼き肉弁当	0.00078	0.00038	0.0012	0.089	0.045
22		唐揚げ弁当	0.0026	0.00054	0.0032	0.66	0.33
23	鶏肉	唐揚げ弁当	0.014	0.000080	0.014	2.1	1.1
24		唐揚げ弁当	0.0022	0.000086	0.0023	0.37	0.18
25		親子丼	0.0014	0.00035	0.0017	0.20	0.10
26		親子丼	0.010	0.00025	0.011	2.0	1.0
27		親子丼	0.021	0.017	0.038	4.9	2.4
28		チキンカツ弁当	0.0024	0.00029	0.0027	0.57	0.28
29		チキンカツ弁当 ³⁾	(0.000096)	(0.000043)	(0.00014)	(0.034)	(0.017)
30		チキンカツ弁当	0.0085	0.000076	0.0085	2.0	1.0

1) 飯を除いた具材合計重量より算出した摂取量

2) 体重50 kgと仮定した場合のTDI(200 pg TEQ/日)に対する割合

3) 1,2,3,7,8-PeCDDが妨害成分により測定できなかったため、参考値とした。

表6 弁当試料のダイオキシン類濃度の概要

肉の種類	試料数	ダイオキシン類濃度 (pg TEQ/g)			
		平均値	中央値	最大値	最小値
牛肉	12	0.058	0.029	0.19	0.0011
豚肉	9	0.00050	0.00042	0.0012	0
鶏肉	9	0.0091	0.0032	0.038	0.00014
全体	30	0.026	0.0034	0.19	0

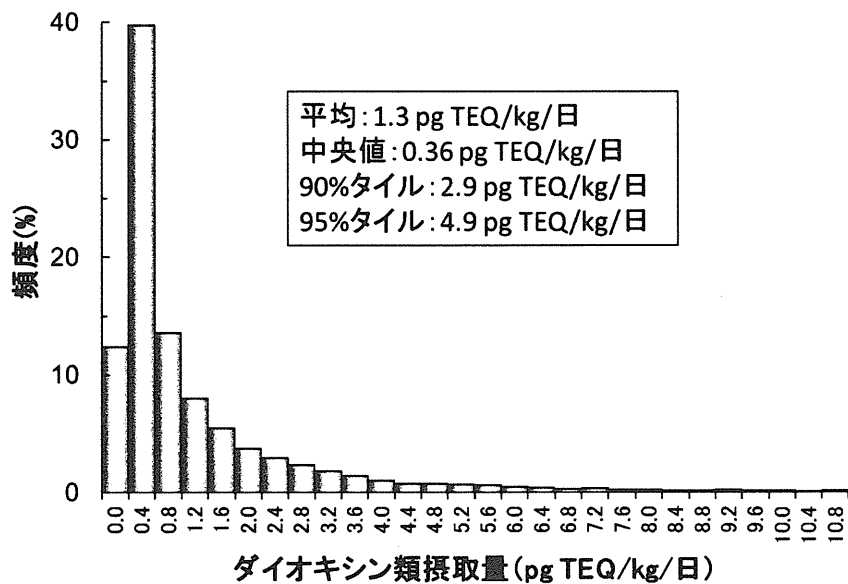


図1 魚介類からのダイオキシン類摂取量分布

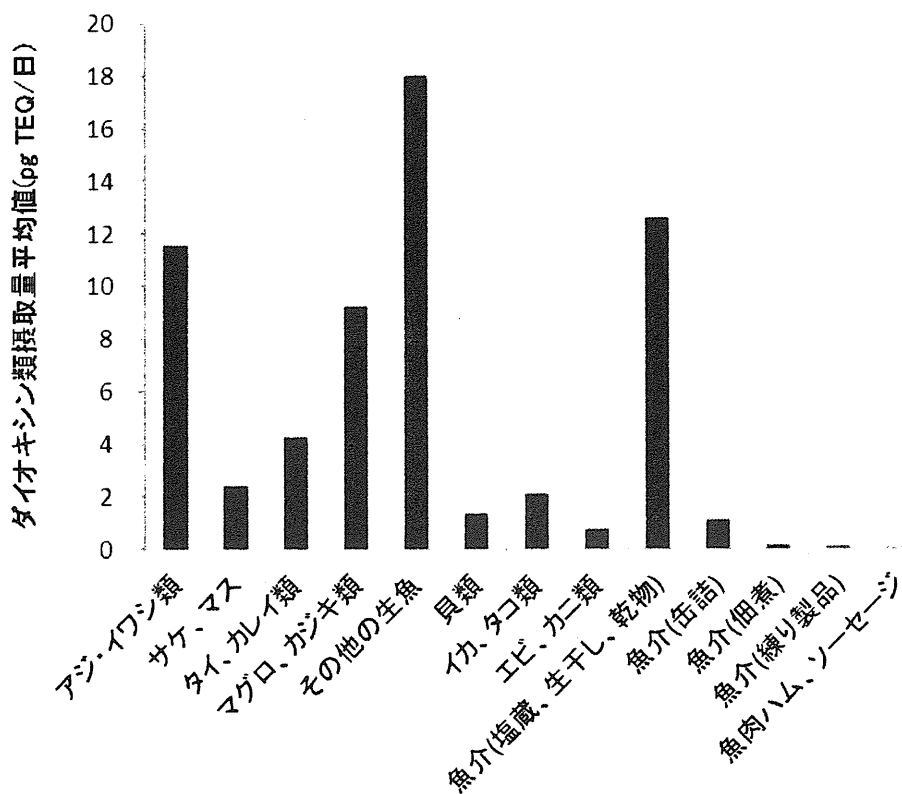


図2 魚介類 13 区分からのダイオキシン類摂取量

分 担 研 究 報 告

食品由来の放射性核種の暴露評価研究

杉山英男

厚生労働科学研究費補助金（食品の安全確保推進研究事業）

平成 23 年度 分担研究報告書

食品由来の放射性核種の暴露評価研究

研究分担者 杉山英男（帝京平成大学健康メディカル学部教授）

研究協力者 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）

三宅定明（埼玉県衛生研究所）

研究要旨

国内に流通する食品に含まれる放射性核種の量、ならびに、その摂取量と暴露量（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、全 14 食品群に分類した食品をマーケットバスケット方式によりスーパーマーケット等で購入（飲料水群のみ水道水採水）、調理した各食品群を核種分析・測定するトータルダイエツトスタディ（TDS）とした。

平成 23 年度は、東日本大震災（平成 23 年 3 月 11 日）に伴い発生した東京電力福島第一原子力発電所事故（以下、福島原発事故と表記）後の食品に含まれる人工放射性核種の放射性セシウム（ ^{137}Cs および ^{134}Cs ）と天然放射性核種の ^{40}K やウラン系列、トリウム系列の γ 核種（ビスマス（ ^{214}Bi ）、鉛（ ^{212}Pb ）など）、 α 核種のポロニウム（ ^{210}Po ）を分析・測定して成人の摂取量と被ばく線量を評価した。対象都市は福島市、仙台市、東京都（豊島区）とし、平成 23 年 10、11 月に調査を行った。今回の TDS は前年度までの本補助金事業の調査・評価研究に準じた。食品試料中の核種濃度（Bq/kg）をもとに、1 日摂取量は代表的な食品消費量データ、また、成人の被ばく線量は ICRP の線量係数を適用して算出、評価した。

その結果、放射性セシウムは福島市、仙台市、東京都の順に、1 日摂取量（Bq/日）は 2.92、2.17、0.67、預託実効線量（ μSv ）は 16.7、12.4、3.8 であった。事故以前の本研究班の結果（福島市は未調査）は、 ^{137}Cs （ ^{134}Cs は不検出）の預託実効線量（ μSv ）は仙台市 0.14（2005 年）、東京都 0.14（2009 年）であった。今回の研究結果は、事故以前と比較して仙台市で 90 倍、東京都で 30 倍ほど高い被ばく線量と評価される。暴露量に寄与する食品群の種類は、福島市では米・米加工品類と果実類がどちらも 30% を超え、

乳類を加えると全体の80%程度、仙台市と東京都ではどちらも乳類が全体の70%近くを占めた。なお、食品群別の放射性セシウム濃度は、福島市では果実類>乳類>米・米加工品類、仙台市では乳類>魚類>米・米加工品類、東京都では乳類>魚類>調味料・香辛料類の順であった。放射性セシウム濃度（以下、Bq/kg表示）の結果は、果実類は福島市（7.6）がきわめて高い値（仙台市0.09、東京都0.12）、米・米加工品類も福島市（2.6）が高い値（仙台市0.48、東京都0.14）、仙台市の魚類（4.0）が他2都市より4倍程度高い値であった。乳類は3都市共通して他食品群より高い濃度であったが、仙台市（11.8）は福島市・東京都の3倍以上の値であった。

天然放射性核種の ^{40}K と ^{210}Po はともに食品摂取に由来する被ばく線量の増加に寄与する。本研究班のこれまでの結果（福島市は未調査）では、 ^{40}K による17都市における成人の預託実効線量（mSv）は0.14-0.21（平均値：0.18±0.02）で都市間により大きな差はみられていない。今回、 ^{40}K による被ばく線量は福島市では0.20、仙台市では0.18、東京都では0.18と評価され、事故以前の国内各都市の平均値レベルにあることが示された。

同様に、福島原発事故以前の ^{210}Po の食品に由来する成人の預託実効線量（mSv）は0.034-0.81（平均値：0.22±0.21）で国内10都市間で差がみられた（本研究班結果）。今回、福島市、仙台市、東京都における ^{210}Po による被ばく線量は、それぞれ、0.16、0.30、0.19と算出され、事故以前の平均値レベルにある。今回の研究でも、福島市では77%、仙台市では94%、東京都では87%が魚類からの暴露寄与であるとの結果が得られた。この傾向は従来の研究結果と同じである。なお、天然放射性核種のウラン系列およびトリウム系列の γ 核種は多くが不検出であった。

福島原発事故発生後に実施した本年度のTDS研究結果を総括する。

・食品に由来する放射性セシウム（ ^{137}Cs と ^{134}Cs ）の成人の預託実効線量は12.4（仙台市）、16.7（福島市）、3.8（東京都） μSv で、事故以前と比較して仙台市で90倍、東京都で30倍ほど高い。

・実効線量への食品群の寄与は、福島市では米・米加工品類と果実類がともに30%を超え、乳類を加えると全体の80%程度、仙台市と東京都ではどちらも乳類が全体の70%近くを占めた。

・天然放射性核種の ^{40}K と ^{210}Po による成人の預託実効線量はどちらも過去の国内都市の結果と同レベルであった。

・放射性セシウムの暴露評価より福島原発事故の影響がみられるが、その線量は国民の被ばく線量の年間1 mSvを大きく下回り、かつ、天然放射性核種（ ^{40}K と ^{210}Po ）の被ばく線量の5%程度と評価される。

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

本研究では、①日本国内に流通し市販される各種の食品を購入して、国内各地域において、日常的に摂取される代表的な消費量データを基にした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。対象放射性核種は放射性セシウムやカリウム (^{40}K)、ウラン系列、トリウム系列などの γ 線放出核種 (人工および天然) ならびに α 線放出天然核種のポロニウム (^{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を明らかにし、これら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ツトスタディ (以下、TDS と表記する) を実施する。

今年度は、東日本大震災 (平成 23 年 3 月 11 日発生) に伴う東京電力福島第一原子力発電所事故 (以下、福島原発事故と表記) 後の食品からの放射性核種の暴露量の実態を調べて、天然に存在している ^{40}K や ^{210}Po との対比の上から評価を試みた。

B. 研究方法

研究方法は、前年度までに実施し

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

対象地域は福島市、仙台市、東京都 (豊島区) の 3 都市とした。それぞれの都市における成人の食品消費量を考慮して全 14 群に区分した各種の食品を大型スーパーマーケットなどの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)。表 1 に食品分類を示す。これら食品の購入にあたっては、地元産品を優先して選択すること、また、プライベート商品は選択しないことを前提とした。

購入後、飲料水を除いた食品 (全 13 食品群) 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試料を調製した。この調理にあたっては他群の食品の添加や混入は禁じた (参考資料の表を参照)。

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)

上記の調理・調製試料は凍結乾燥あるいは乾熱乾燥した。その後、 450°C で 24 時間灰化处理した。全 12 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、ウラン系列とトリウム系列の目的核種を平衡状態とした。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 (生

状態)でマリネリ容器(容量1L)に封入し測定用試料とした。飲料水(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。

②²¹⁰Poの分析試料

調理調製試料を生のままか、あるいは凍結乾燥品として用いた。

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。これらのエネルギー校正、効率校正作成および定量には 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)を参照。

2-2. α 線スペクトロメトリーによる²¹⁰Poの分析

²¹⁰Poの公的分析法(文部科学省放射能測定法シリーズ等)は未だ示されておらず、本研究では、以下の分析法を用いた。

2-2-1. 化学分離

調製試料から15~30g(生重量)を分取し、²⁰⁹Po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。その後、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。

試料溶液はアスコルビン酸を加えた後に、85℃に調節した電解装置により円型ステンレス板上にPoを電着させて α 線の測定試料とした。

2-2-2. 測定

混合試料(全13食品群)

測定試料(円型ステンレス板)をチャンバー内に挿入固定し、真空下でSi半導体検出器(ORTEC社製)により80,000秒間以上計測した。測定試料の正味計数を求め、回収率補正用トレーサ²⁰⁹Poの計数率との比較、分析供試量等から²¹⁰Po(半減期:138.4日)の放射能濃度を算出した。

分析結果は系列核種の ^{210}Pb を分離した日に減衰補正した。

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、人工放射性核種の放射性セシウム (^{137}Cs と ^{134}Cs) と食品中の濃度実態を明らかにしてきている天然 γ 線放射性核種 (^{40}K ならびに ^{214}Pb 、 ^{214}Bi 、 ^{228}Ac 、 ^{212}Pb 、 ^{208}Tl のウラン系列やトリウム系列核種) を対象とした。

福島市、仙台市、東京都(豊島区)の3都市において平成23年10、11月に購入した全14食品群の γ 線放出核種の放射能濃度(調理後重量ベース)を表に示す(表1-1、表2-1、表3-1)。

① 放射性セシウム (^{137}Cs と ^{134}Cs)

本年度のTDSでは、油脂類など一部の食品群を除いて、3都市の多くの食品から放射性セシウム (^{137}Cs と ^{134}Cs) が検出、定量された。その放射能濃度 (Bq/kg) は、 ^{137}Cs (半減期30.2年) は福島市が0.02-4.13、仙台市が0.02-6.44、また、 ^{134}Cs (半減期2.06年) は福島市が0.01-3.46、東京都が0.02-2.07、仙台市が0.05-5.38、東京都が0.01-1.71であった。

本研究班によるTDSならびに47都道府県による環境放射能水準調査(文部科学省委託)では、近年、食品から検出、定量される γ 線放出人

工核種は ^{137}Cs のみであり、その放射能濃度は0.1 Bq/kgを下回る数値であった。今年度のTDSでは、放射性セシウムの濃度レベルは急増加しており、過去の大気圏内核爆発実験の影響調査では検出されることのなかった ^{134}Cs が ^{137}Cs との比率で概ね40-45%の濃度で検出されていることから、福島原発事故により放出された放射性セシウムの食品への影響がうかがえる。ちなみに、チェルノブイリ原子力発電所事故による ^{137}Cs と ^{134}Cs の放出比は2:1とされる。

3都市における食品群中の放射性セシウム (^{137}Cs と ^{134}Cs) 濃度を食品群別に整理すると以下のとおりとなる。食品群名の次に()付きで濃度 (Bq/kg) を示す。

福島市では、果実類(7.59) > 乳類(3.51) > 米・米加工品類(2.61) > その他野菜きのこ・海藻類(1.29) > 1 Bq/kgを上回り、次いで、穀類・種実類・芋類(0.66) > 緑黄色野菜類(0.57) > 魚類(0.51)となる。果実類の濃度の高さが目立つ。仙台市では、乳類(11.82) > 魚類(3.99) が1 Bq/kgを上回る。次いで、米・米加工品類(0.47) > 緑黄色野菜類(0.36) > 穀類・種実類・芋類(0.31)である。乳類と魚類が高い。東京都では、乳類(3.78) > 魚類(0.51) > 調味料・香辛料類(0.25) > 豆類(0.23)の順で、米・米加工品類は0.14であった。(0.31)である。

乳類は3都市いずれにおいても高い放射性セシウム濃度を示すことが

特徴的であるが、他の食品群にはとくに共通する傾向はみられていない。

② カリウム (^{40}K)

多量元素であるカリウムは食品や人の必須元素であるが、天然放射性核種の ^{40}K (半減期 12.48 億年) はその同位体の一つとして地球上に 0.012% 存在する。したがって、食品に含まれる ^{40}K は公衆への内部被ばくに大きく寄与する。

今回の TDS では、昨年度の結果と同様に、油脂類 (食品群 IV) を除いて、すべての食品群から ^{40}K が検出、定量された。その ^{40}K 濃度 (Bq/kg) は飲料水では低い (0.012-0.053) が、検出された全 12 食品群では福島市で 8.6 (嗜好飲料類) -95.6 (魚類)、仙台市で 7.8 (嗜好飲料類) -82.0 (調味料・香辛料類)、東京都で 5.4 (米・米加工品類) -102.6 (緑黄色野菜類) であった。その多くの食品群は 30-100 の濃度にあり、そのレベルは 3 都市間ならびにこれまでの TDS の結果と大きな差はみられない。

食品群別の濃度傾向は、従来の結果と同じく、緑黄色野菜、調味料・香辛料類、豆類、魚類、肉類・卵類では比較的高く、嗜好飲料類や米・米加工品類で低い値を示した。

③ ウラン系列、トリウム系列の γ 線放射性核種

天然放射性核種の ^{214}Pb 、 ^{214}Bi 、 ^{228}Ac 、 ^{212}Pb 、 ^{208}Tl の放射能濃度は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は多くが 0.1 Bq/kg を下回る値であった。

前年度の結果と同様の傾向であった。

1-2. α 線放出核種 (^{210}Po) の放射能濃度

本 TDS では、その分析操作の煩雑性と計測時間を考慮して、全 14 食品群のうち、これまでの研究結果に基づき、 ^{210}Po 濃度の高い傾向のあるその他野菜きのこ・海藻類 (食品群 VIII)、嗜好飲料類 (食品群 IX)、魚類 (食品群 X)、調味料・香辛料類 (食品群 X III) は単独群試料とし、濃度の低い他の食品群については食品群 I-II、食品群 III-VII および食品群 X I-X II の 3 試料群に統合した。これらの混合試料はそれぞれの 1 日の摂取量に応じた重量比により調製した。各食品試料の ^{210}Po 放射能濃度 (Bq/kg, 調理後重量ベース) を示す (表 4)。食品群別の濃度は魚類が突出して高く、福島市では 3.1、仙台市では 6.9、東京都では 4.0 であった。次いで、調味料・香辛料類 (食品群 X III)、その他野菜きのこ・海藻類 (食品群 VIII) の濃度の順となるが、これらの ^{210}Po 濃度は、それぞれの食品群で 0.067-0.091、0.036-0.087 の値であり、魚類の 1/100 程度にすぎない。食品中の ^{210}Po 濃度に関する報告はいくつか見られるが、これらの数値は食品素材そのものの分析値である。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からより食生活に準じた値に近い評価といえる。

2. 放射性核種の 1 日摂取量