

201327048A

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

国内における食品を介した種々の放射性物質による暴露量の評価

H24－食品－指定－004（復興）

平成25年度 総括・分担研究報告書

研究代表者

国立保健医療科学院

寺田 宙

研究分担者

神奈川県衛生研究所

飯島 育代

埼玉県衛生研究所

三宅 定明

公益財団法人日本分析センター

太田 智子

国立保健医療科学院

山口 一郎

帝京大学医学部

児玉 浩子

松本大学人間健康学部

杉山 英男

平成26（2014）年3月

目 次

総括・分担研究報告

研究要旨	-----	1
A. 研究目的	-----	3
B. 研究方法	-----	3
C. 研究結果	-----	7
D. 考察	-----	12
E. 結論	-----	16
参考文献	-----	16
別添資料	-----	19

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 25 年度総括研究報告書

国内における食品を介した種々の放射性物質による暴露量の評価

研究代表者	寺田 宙	（国立保健医療科学院）
研究分担者	飯島育代	（神奈川県衛生研究所）
研究分担者	三宅定明	（埼玉県衛生研究所）
研究分担者	太田智子	（公益財団法人日本分析センター）
研究分担者	山口一郎	（国立保健医療科学院）
研究分担者	児玉浩子	（帝京大学医学部）
研究分担者	杉山英男	（松本大学人間健康学部）

研究要旨

東京電力(株)福島第一原子力発電所（以下、「福島原発」という）事故後、多くの都市を対象とした放射性物質の暴露量調査を実施することが求められているため、平成 24 年度から陰膳方式による食品中の放射性物質のトータルダイエツトスタディ（TDS）を実施している。

本研究の 2 年目にあたる平成 25 年度は、平成 24 年度に引き続き陰膳試料中の放射性セシウムとカリウム 40 を分析するとともに、一部の試料についてはプルトニウムと自然放射性物質であるポロニウム 210 の分析も行った。対象地域は平成 24 年度と同様、福島県内の 6 都市（相馬市、南相馬市、福島市、郡山市、伊達市、会津若松市）と、北海道、岩手県、宮城県、茨城県、埼玉県、東京都、神奈川県、大阪府、高知県の計 15 地域とし、平成 25 年 9 月から 11 月にかけて調査を実施した。研究協力者には 2 日分の食事を提供していただくとともに、食事の献立等を調査票に記入していただいた。陰膳試料中の放射性物質濃度(Bq/kg)を基に 1 日摂取量を算出し、さらに ICRP の線量係数を用いて被ばく線量を推計した。この他、地方自治体等が実施している食品中の放射性物質の検査ならびに平成 22 年国民健康・栄養調査の結果を基に食事に由来する実効線量の推計を試みた。

調査対象とした 15 の地域ではいずれも陰膳試料から原発事故で特徴的なセシウム 134 が検出され、福島原発事故の影響が認められた。全 80 試料中、放射性セシウム濃度（セシウム 134 と セシウム 137 の合計値）が最も高かったのは伊達市（幼児）の 11.3 Bq/kg で、平成 24 年度の結果と比較すると高めの値を示したものの、現在の一般食品に対する放射性物質の基準値（100 Bq/kg）の約 9 分の 1 であった。当該試料を 1

年間摂取し続けた場合の預託実効線量は $73.7 \mu\text{Sv}$ で、現行の食品の基準値を設定する上で基となった年間線量の上限値 1 mSv の約 14 分の 1、自然放射性物質のカリウム 40 による預託実効線量 ($467 \mu\text{Sv}$) との比較では約 6 分の 1 と推計された。また、食品中の放射性物質に係る基準値で規制対象となっているプルトニウムについては分析を行った全 29 試料から検出されず、福島原発事故前の水準にあることが示された。一方、自然放射性物質であるポロニウム 210 による預託実効線量はカリウム 40 とほぼ同レベルで、福島原発事故由来の放射性物質の被ばくへの寄与は自然放射性物質よりも小さく、その寄与は大きく見積もっても 13 分の 1 程度であることが明らかとなった。

地方自治体等が実施している食品中の放射性物質の検査ならびに平成 22 年国民健康・栄養調査の結果を基に推計した福島原発事故発生直後から平成 25 年 12 月までの積算実効線量 (mSv) は 50 パーセンタイル値が 0.14、99 パーセンタイル値が 0.36、99.9 パーセンタイル値が 0.49 で、現行の食品の基準値を設定する上で基となった年間線量の上限値が 1 mSv であることを考慮すると十分に小さな値である。

以上の結果から、食事による福島原発事故由来の放射性物質の暴露量は幼児を含めて十分に小さいレベルにあることが明らかになった。しかしながら、事故前と比較すると放射性 Cs による預託実効線量は依然として高く、平成 25 年度は 24 年度よりも高めの放射性 Cs 濃度を示す試料が一部で確認されたことから、食の安心・安全の確保のため、引き続き本研究を実施していく。

研究分担者（所属機関、職名）

飯島育代（神奈川県衛生研究所 主任専門員）

三宅定明（埼玉県衛生研究所 主任研究員）

太田智子（公益財団法人日本分析センター 上級技術員）

山口一郎（国立保健医療科学院 上席主任研究官）

児玉浩子（帝京大学医学部 客員教授）

杉山英男（松本大学人間健康学部 教授）

A. 研究目的

平成 23 年 3 月 11 日に発生した東日本大震災に伴う東京電力(株)福島第一原子力発電所(以下、「福島原発」という)事故から 3 年以上が経過した。事故後、自治体等によって実施された食品中の放射性物質の検査件数は平成 26 年 3 月現在で 75 万件以上に上る。現行の食品中の放射性物質に係る基準値が施行された平成 24 年 4 月以降の検査結果に限ると、基準値を超過したのは魚介類、キノコ類等、一部の食品に限られ、全体の 0.6%程度である。また、これら基準値を超過した食品については出荷制限等の措置が取られ、市場に出回ることはない。しかしながら、国民の放射性物質に対する関心は依然として高く、食品に由来する放射性物質の暴露量の評価が求められている。

このため、本研究では食品中の放

射性物質の濃度実態を把握し、食の安心・安全の確保のための基礎資料とすることを目的として、陰膳方式による食品中の放射性物質のトータルダイエットスタディ(TDS)を行っている。

本研究の 2 年目にあたる平成 25 年度は、平成 24 年度に引き続き陰膳試料中の放射性セシウム(Cs)とカリウム 40(^{40}K)を分析するとともに、一部の試料についてはプルトニウム(Pu)とポロニウム 210 (^{210}Po)の分析も行った。Pu は食品中の放射性物質に係る基準値において規制対象とされた放射性物質であるが、その福島原発事故後の食品中の濃度実態については未だ十分な知見が集積されているとは言えない。また、 ^{210}Po については自然放射性物質で、特に魚介類中の濃度が高いことが知られており、諸外国と比較して魚介類の摂取量の多い日本においては被ばくへの寄与という観点で重要な放射性物質である。

さらに、厚生労働省から公表されている食品中の放射性物質の検査結果[1]を基に被ばく線量の推計を試みた。

B. 研究方法

1. 対象集団と試料

1-1 対象地域

対象地域については平成 24 年度と同様、以下の 10 都道府県とした。北海道、岩手県、宮城県、福島県、

茨城県、埼玉県、東京都、神奈川県、大阪府、高知県

このうち、福島県については浜通り、中通り、会津の3地域に分類することができ、浜通りでは相馬市と南相馬市の2都市、中通りでは福島市、郡山市、伊達市の3都市、会津については会津若松市の1都市を調査対象とした。

1-2 対象集団

本研究では対象集団を成人（20歳以上）と幼児（3-6歳）とした。幼児については1歳児の方が5歳児よりも放射性Csの線量係数が大きい[2]、摂食量を勘案すると放射性Csによる預託実効線量については5歳児が1歳児を上回ると考えられること、また、1歳児の食事（2日分）では分析を行う上で十分な量の陰膳試料を得ることが出来ないため、1-3歳児ではなく3-6歳児を研究対象とした。

成人については福島県内の6都市（相馬市、南相馬市、福島市、郡山市、伊達市、会津若松市）と、福島県以外の9都道府県の計15地域を対象とした。関係自治体の食品衛生主管課、保健所等を介してそれぞれの地域から3名を選定し、研究協力者とした（図1）。

幼児については前述の15地域のうち、岩手県、神奈川県、高知県の3県を除いた12地域において関係自治体の他、小児科医等を介して研究協力者を選定した（図1）。

研究協力者（幼児の場合には保護

者）には2日分の食事を提供していただくとともに、食品の摂取状況について別紙2、3の調査票に記入していただいた。なお、平成24年度は研究協力者から連続した2日分の陰膳試料を提供していただいたが、採取日が土日に偏り、それに付随して陰膳試料中の食品群も偏るきらいがあったため、平成25年度については試料採取日を1週間のうちのいずれかの2日とし、うち1日は平日とするものとした。

1-3 試料の採取方法

試料は平成25年9月から11月にかけて採取し、研究協力者には別紙1の手順に従って食事試料を提供していただいた。

研究協力者が調査日に限って普段と異なる食生活を送ると調査結果が偏るので、これを避けるために、試料採取日は冠婚葬祭、祝日、その他の特別な献立の日を除き、ごく普通の日とした。

この他、試料採取にあたっての注意事項は文部科学省の放射能測定法シリーズ No. 16「環境試料採取法」に準じた。

例えば、魚介類であれば、

- ・メザシやシシャモのように骨ごと食べる魚はそのままとし、骨、皮等を食べなかった魚はその部分を取り除く
- ・シジミ、アサリ、エビ、カニ等は殻を取って身だけを入れる

とし、極力、実際に口にした食事に近い状態とした。

2 食品の摂取状況に関する調査

陰膳試料中の放射性物質の分析の結果、高めの値が検出された場合にその原因を推定する目的で、調査票（別紙 2、3）により研究協力者の食品の摂取状況を調べた。

厚生労働省から公表されている検査結果によると、平成 26 年 3 月現在で高い放射性 Cs 濃度を示しているのはキノコ類、魚介類、野生鳥獣肉等、一部の食品群に限られている。このため、調査票では各食事の献立とともに、食事中にこれら放射性 Cs 濃度の高い食品群が含まれているかどうかを記入していただいた。

また、ホールボディカウンター等の検査では自家栽培の野菜を食べた方から比較的高めの放射性 Cs が検出されているため[3]、自家栽培の野菜の摂取状況についても調査票で確認した。

幼児についてはこの他、年齢、体重についても尋ねた（別紙 3）

3 分析方法

3-1 試料調製

研究協力者から提供していただいた 2 日分の食事を試料とし、試料は大型のブレンダーを用いて混合・均一化した。

3-2 γ 線放出核種の分析

γ 線放出核種であるセシウム 134 (^{134}Cs)、セシウム 137 (^{137}Cs)、カリウム 40 (^{40}K) については混合・均一化後の試料を乾燥後、450°C で 24

時間灰化处理し、灰化物を分析用試料として γ 線スペクトロメトリーにより定量した。 γ 線スペクトロメトリーは「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）に準じて以下のとおり行った。

分析用試料をプラスチック製容器（U8 容器）に封入してゲルマニウム半導体検出器（CANBERRA 社製、OXFORD 社製、PGT 社製）のエンドキャップに載せ 80,000 秒以上測定した。バックグラウンド値は検出器に空の U8 容器を載せた状態で適時 200,000~300,000 秒間計測して求めた。測定に先立ち、9 核種混合の放射能標準ガンマ体積線源（日本アイソトープ協会頒布）を用いてエネルギー校正曲線およびピーク効率曲線を作成した。エネルギー校正、効率校正および定量には 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。分析対象とする放射性物質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。ここで他の放射性物質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分析対象とする放射性物質の γ 線放出比で除し、試料採取終了日における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。

3-3 プルトニウムの分析

Pu (^{239}Pu および ^{240}Pu) の分析は

放射能測定法シリーズ No. 12「プルトニウム分析法」に準じた。すなわち、混合・均一化後の試料を灰化し、得られた灰に回収率補正用のトレーサーとして ^{242}Pu を添加し、硝酸を加えて加熱分解した。陰イオン交換樹脂カラム法で分離・精製した Pu をステンレス鋼板上に電着し、測定試料とした。測定はシリコン半導体検出器 (ORTEC 社製) により行った。なお、 ^{239}Pu と ^{240}Pu から放出される α 線はお互いのエネルギーが近く、 α 線スペクトロメータでは弁別できない。このため、Pu の値は ^{239}Pu と ^{240}Pu の合計値として評価した。

3-4 ポロニウム 210 の分析

現在のところ、 ^{210}Po の分析に関する公定法は定められていないため、本研究では Miura らの方法 [4] に従って以下のとおり ^{210}Po を分析した。

混合・均一化後の試料 (生) に銅、鉛と回収率補正用として ^{209}Po を添加し、硝酸・過酸化水素水による湿式分解後、チオアセトアミドにより硫化物沈殿を生成させた。沈殿物を溶解し、Sr レジンカラムに供与後、 ^{210}Po を溶出させた。溶出後、 ^{210}Po を 0.25A で 150 分、ステンレス鋼板上に電着させ、鋼板上の ^{210}Po をシリコン半導体検出器 (ORTEC 社製) により測定した。

4 食品中の放射性物質の検査結果を用いた線量の推計

平成 25 年 12 月までに厚生労働省から公表された食品中の放射性物質の検査結果 (N=676, 684) と、平成

22 年国民健康・栄養調査における食品群別摂取量の調査結果を無作為に組み合わせて福島原発事故の直後から平成 25 年 12 月までの食品に由来する放射性 Cs の預託実効線量の積算値を推計した。

また、平成 25 年度の TDS の結果との比較のため、平成 25 年 9、10 月公表分のデータを利用し、当該期間における食品の摂取による預託実効線量についても推計を行った。

線量推計は以下の前提条件の下、行った。

- ・ 食品の分類：国民健康・栄養調査の 99 食品小分類を利用
- ・ 検出限界値未満 (ND) の扱い：検査結果が ND の場合、食品中の放射性物質濃度は検出限界値 (DL) 相当とし、DL が不明な場合はそれぞれの放射性物質濃度を 10 Bq/kg とした。月別で ND が 6 割以上の食品分類では DL の半分、8 割以上では 1/4 とした。
- ・ 福島原発事故後初期の 2 か月間は 4 日毎、以降は一月毎にサンプリング
- ・ 精米により玄米中の放射性 Cs 濃度が 1/4 に減少
- ・ 飲料水としてのお茶の放射性 Cs 濃度は茶葉中の濃度の 1/50

(倫理面への配慮)

本調査研究は厚生労働省・文部科学省の「疫学研究の倫理指針」にもとづき、国立保健医療科学院倫理委

員会の承認を経て実施した。

倫理指針に則り、調査開始に先立って本研究の目的・意義・方法・侵襲度・予測される危険性などについて研究協力者に説明し十分な理解を得た。研究への参加により協力者が不利益を被ることがないように配慮した。また、いつでも自由意志で参加の同意の撤回ができ、途中で参加を中止しても、本人に何ら不利な取り扱いを受けないことを保障した。この様な内容について十分に説明を行い、納得承諾頂いたのち調査を実施した。

個人情報については国立保健医療科学院個人情報管理規程に則って個人情報の漏洩がないように努めた。すなわち、調査票（無記名）と試料を保存する容器には予め ID を割り振って連結可能匿名化し、個人情報が漏洩することのないよう留意した。測定結果は連結可能匿名化をはかりその後のデータの解析に付した。分析結果は個人が特定できないような形で公表される予定である。

C. 研究結果

平成 25 年度は福島県内の 6 都市（相馬市、南相馬市、福島市、郡山市、伊達市、会津若松市）と、福島県以外の 9 都道府県の計 15 地域から 80 の陰膳試料を得た。このうち 45 試料が成人用、35 試料が幼児用である。以下に今回分析対象とした γ 線放出核種（放射性 Cs、 ^{40}K ）、Pu、 ^{210}Po それぞれについて、陰膳試料中の濃

度、1 日摂取量、預託実効線量の結果を示す。

1 陰膳試料中の γ 線放出核種

1-1 γ 線放出核種の濃度

全 80 試料の γ 線放出核種濃度を表 1、2、ならびに地域・年齢別の γ 線放出核種濃度の平均値を図 2、3 に示す。また、参考までに平成 24 年度の陰膳試料中の γ 線放出核種濃度を表 3、4 に示した。なお、濃度は生重量ベースの数値で示した。また、放射性 Cs 濃度（ ^{134}Cs 濃度と ^{137}Cs 濃度の合計値）については、 ^{134}Cs または ^{137}Cs が検出限界値以下の場合にはそれぞれの濃度を 0 とせず、試料中に検出限界値の 2 分の 1 相当が存在するものとして算出した。

人工放射性物質である放射性 Cs は 80 試料中 75 試料で検出され、残りの 5 試料については ^{134}Cs と ^{137}Cs いずれも検出限界値を下回った（表 1、2）。平成 25 年度の放射性 Cs 濃度の最大値は 11.3 Bq/kg（伊達市（幼児））で平成 24 年度の最大値 1.44 Bq/kg（表 3、4）と比較すると高めの値を示したが、現行の一般食品に対する放射性物質の基準値（100 Bq/kg）と比較すると約 9 分の 1 の値であった。全試料の平均値についても平成 24 年度の 0.148 Bq/kg に対し平成 25 年度が 0.268 Bq/kg と上回ったが、当該試料を除いた場合の平均値は 0.128 Bq/kg で、全体的にみると放射性 Cs 濃度については平成 24 年度とほぼ同じレベルにあるといえる。

地域・年齢別の平均値も同様で、平成 25 年度の伊達市(幼児)が 3.90 Bq/kg と突出して高い値を示したが、上述の試料を除いた伊達市(幼児)の放射性 Cs 濃度は平均で 0.208 Bq/kg であり、他の地域と同じレベルであった(図 2)。なお、平成 24 年度における陰膳試料中の放射性 Cs 濃度の地域・年齢別の平均値は東京都(幼児)が最大(0.604 Bq/kg)であったが、平成 24 年度に試料を提供していただいた 3 世帯のうち、2 世帯については 25 年度も引き続き本研究にご協力いただいた。当該世帯から得た陰膳試料中の放射性 Cs 濃度はそれぞれ 0.066 Bq/kg、0.061 Bq/kg と平均よりも低い値であった。

自然放射性物質である ^{40}K は全ての陰膳試料から検出された。平成 25 年度における ^{40}K 濃度の個別の最大値は茨城県(成人)の 42.6 Bq/kg、最小値は北海道(成人)の 13.2 Bq/kg であった(表 1、2)。地域・年齢別の平均は大阪府(成人)の 34.5 Bq/kg が最大、北海道(成人)の 20.8 Bq/kg が最小であった。また、平成 24 年度との比較では地域間のバラつきが小さくなったことが認められた(図 3)。

1-2 γ 線放出核種の 1 日摂取量

陰膳試料の濃度を基に γ 線放出核種の 1 日摂取量を算出した。具体的には試料中の γ 線放出核種濃度(Bq/kg)に 2 日分の摂食量(kg)を乗じ、2 で除した値を 1 日摂取量とした。地域・年代別の 1 日摂取量を表 5、6、その平均値を図 4、5 に示

す。また、参考までに平成 24 年度の地域・年代別の 1 日摂取量を表 7、8 に示した。なお、 ^{134}Cs または ^{137}Cs の濃度が検出限界値を下回った場合は摂取量を 0 とせず、試料中に検出限界値の 2 分の 1 に相当する放射性 Cs が存在するものとして摂取量を算出した。

平成 25 年度における放射性 Cs の 1 日摂取量は、成人では 2.20 Bq/人・日(南相馬市)が最大、0.022 Bq/人・日(北海道)が最小、幼児では 19.0 Bq/人・日(伊達市)が最大、0.020 Bq/人・日(北海道)が最小であった。(表 5、6)。地域・年齢別の平均における最大値、最小値はそれぞれ成人で 1.23 Bq/人・日(南相馬市)、0.058 Bq/人・日(北海道)、幼児については 6.59 Bq/人・日(伊達市)、0.031 Bq/人・日(北海道)で、放射性 Cs 濃度と同様の結果が得られた(図 4)。個別の結果における最大値 19.0 Bq/人・日を除いた伊達市(幼児)の放射性 Cs の 1 日摂取量は 0.391 Bq/人・日で他の地域と同じレベルであった。

^{40}K の 1 日摂取量については成人では大阪府の 105 Bq/人・日が最大、北海道の 17.1 Bq/人・日が最小、幼児では茨城県の 68.2 Bq/人・日が最大、大阪府の 11.3 Bq/人・日が最小であった(表 5、6)。地域・年齢別の平均では成人の最大値は大阪府の 76.9 Bq/人・日、最小値は北海道の 27.2 Bq/人・日、幼児ではそれぞれ 51.6 Bq/人・日(伊達市)、23.5 Bq/

人・日（南相馬市）であった（図 5）。

1-3 γ 線放出核種による内部被ばく線量の評価

食品中の放射性物質の摂取にともなう内部被ばく線量は放射性物質の摂取量(Bq)と実効線量係数(Sv/Bq)により求めることができ、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(Sv)

$A_{m,i}$: 食品 m の摂取に起因する放射性物質 i の摂取量(Bq)

K_i : 放射性物質 i の経口摂取による実効線量への換算係数(Sv/Bq)

である。

1-2 で得られた γ 線放出核種の 1 日摂取量の値を基に上記の計算式を用いて、陰膳試料を 1 年間摂取し続けた場合の預託実効線量を算定評価した。なお、実効線量への換算係数については国際放射線防護委員会(ICRP)の値を適用した。具体的には、成人については ICRP Publ. 72 における「成人」に対する線量係数、幼児については「5 歳児」に対する線量係数を用いて線量を算出した。

個別の預託実効線量を表 9、10、地域・年代別の平均値を図 6 に示すとともに、表 11、12 に平成 24 年度の結果を示した。なお、放射性物質の 1 日摂取量と同様に、陰膳試料中の放射性 Cs の濃度が検出限界値を下回った場合は預託実効線量を 0 と

せず、試料中に検出限界値の 2 分の 1 に相当する放射性 Cs が存在するものとして線量を求めた。

放射性 Cs による預託実効線量が個別で最も大きかったのは伊達市(幼児)で $73.7 \mu\text{Sv}$ 、小さかったのは大阪府(幼児)の $0.080 \mu\text{Sv}$ であった(表 9、10)。現在の食品中の放射性物質に対する基準値は食品摂取に由来する年間線量が 1 mSv を超えないように設定されている。平成 25 年度の放射性 Cs による預託実効線量の最大値は平成 24 年度における最大値 $7.46 \mu\text{Sv}$ (表 11、12)との比較では高い値を示したものの、年間線量の上限値の約 14 分の 1 で十分に小さい値であることが示された。

地域・年齢別の平均値は伊達市(幼児)の $25.6 \mu\text{Sv}$ が最大、大阪府(幼児)の $0.12 \mu\text{Sv}$ が最小であった(図 6)。放射性 Cs 濃度や 1 日摂取量と同様、個別の結果における最大値 $73.7 \mu\text{Sv}$ を除いた伊達市(幼児)の放射性 Cs による預託実効線量は $1.52 \mu\text{Sv}$ で他の地域と同じレベルであった。なお、 ^{134}Cs と ^{137}Cs の線量係数(Sv/Bq)は以下のとおりで、成人と比較すると 5 歳児の線量係数は小さい。

・ ^{134}Cs

成人： 1.9×10^{-8} 5 歳児： 1.3×10^{-8}

・ ^{137}Cs

成人： 1.3×10^{-8} 5 歳児： 9.6×10^{-9}

また、食品の摂取量についても幼児の方が成人より少ないことから、平成 25 年度の同一地域における放

放射性 Cs の預託実効線量は伊達市を除き、幼児の方が成人よりも小さい傾向が認められた。

自然放射性物質の ^{40}K による預託実効線量については、個別の最大値は茨城県（幼児）の $523 \mu\text{Sv}$ 、最小値は北海道（成人）の $39 \mu\text{Sv}$ であった（表 9、10）。

また、図 7、8 に放射性 Cs と ^{40}K による預託実効線量の合計値を地域・年齢別の平均値として示した。平成 25 年度の ^{40}K による預託実効線量の地域・年齢別の平均値は伊達市（幼児）の $395 \mu\text{Sv}$ が最大、北海道（成人）の $61 \mu\text{Sv}$ が最小で、図から明らかなように放射性 Cs の線量への寄与は小さく、放射性 Cs による預託実効線量が最も大きかった伊達市（幼児）でも、その線量は ^{40}K の 6%程度であった。なお、 ^{40}K の線量係数 (Sv/Bq) は 5 歳児の方が成人よりも大きい（成人： 6.2×10^{-9} 、5 歳児： 2.1×10^{-8} ）。このため、 ^{40}K による預託実効線量は、幼児の方が ^{40}K の 1 日摂取量が少ないにもかかわらず成人よりも大きい値を示し、放射性 Cs と ^{40}K による預託実効線量の合計値についても幼児が成人を上回った。

2 陰膳試料中のプルトニウム

本研究で対象とした 15 地域（福島県内の 6 都市と 9 都道府県）のうち、平成 23 年度のマーケットバスケット（MB）方式による TDS [5]でも対象地域とした福島市、宮城県、東京都ならびに平成 24 年度の TDS で陰膳試料中の放射性 Cs 濃度が比較的高

かった相馬市、岩手県、さらに対照地域としての高知県について陰膳試料中の Pu (^{239}Pu 、 ^{240}Pu) を分析した。

分析対象とした全 29 試料から Pu は検出されず、検出限界値相当（約 0.0005 Bq/kg ）の Pu が陰膳試料に存在すると仮定して Pu による預託実効線量を算出したところ、成人は $0.12 \mu\text{Sv}$ 、幼児については $0.082 \mu\text{Sv}$ が最大であった（表 13）。上記の推計は過大な評価であるが、成人の最大値でも食品に由来する年間線量の上限値 1 mSv の約 8000 分の 1 で、十分に小さい値であった。

3 陰膳試料中のポロニウム 210

Pu と同様、岩手県、宮城県、相馬市、福島市、東京都、高知県の試料を対象に自然放射性物質である ^{210}Po の分析を行った。平成 25 年度における ^{210}Po の陰膳試料中の濃度ならびに 1 日摂取量、預託実効線量を表 14、また、平成 24 年度の結果を表 15 に示した。

^{210}Po はいずれの試料からも検出され、 ^{210}Po 濃度の最大値は 0.355 Bq/kg （宮城県幼児）、最小値は 0.077 Bq/kg （福島市成人）であった。 ^{210}Po による預託実効線量は宮城県幼児の $845 \mu\text{Sv}$ が最大、宮城県成人の $40 \mu\text{Sv}$ が最小であり、試料間で大きな差がみられた。

また、放射性 Cs、 ^{40}K 、 ^{210}Po それぞれの預託実効線量を地域・年齢別の平均値として図 9 に示した。図から明らかなように、預託実効線量については自然放射性物質である ^{40}K 、

^{210}Po の寄与が大きく、放射性 Cs の寄与は最大でも 1.3%であった。3核種による預託実効線量の合計値は東京都幼児（平成 25 年度）の $681 \mu\text{Sv}$ が最大、福島市成人（平成 24 年度）の $146 \mu\text{Sv}$ が最小であった。

^{40}K と同様、 ^{210}Po の線量係数 (Sv/Bq) については 5 歳児の方が成人よりも大きい（成人： 1.2×10^{-6} 、5 歳児： 4.4×10^{-6} ）。このため、 ^{210}Po の 1 日摂取量は幼児が成人よりも少ないが、預託実効線量については幼児の方が大きな値を示し、3 核種による預託実効線量の合計値についても幼児が成人を上回った。

なお、平成 25 年度の放射性 Cs による預託実効線量の地域・年齢別の平均値は上述のとおり、伊達市（幼児）の $25.6 \mu\text{Sv}$ が最大である。伊達市については ^{210}Po の分析の対象としなかったが、幼児における 3 核種の預託実効線量の合計値の最小値が $296 \mu\text{Sv}$ （平成 24 年度福島市幼児）であることから、放射性 Cs の預託実効線量への寄与は大きく見積もっても 13 分の 1 程度である。また、Pu による預託実効線量の最大値が $0.8 \mu\text{Sv}$ であることから、人工放射性物質の線量への寄与も同程度と評価できる。

4 食品中の放射性物質の検査結果を用いた線量の推計

ここでは平成 25 年 12 月までに厚生労働省から公表された食品中の放射性物質の検査結果 ($N=676, 684$) と、平成 22 年国民健康・栄養調査におけ

る食品群別摂取量の調査結果を利用して求めた食品由来の放射性 Cs による預託実効線量の推計結果を示す。

4-1 福島原発事故直後から平成 25 年 12 月までの預託実効線量の積算値

成人の放射性 Cs による預託実効線量について、福島原発事故が発生した平成 23 年 3 月から平成 25 年 12 月までの積算値を表 16 に示した。

現行の食品中の放射性物質に関する基準値が適用される 2012 年 4 月 1 日までは暫定規制値を超える食品は摂取されず、それ以降は基準値を超える食品は摂取されないと仮定して算定した場合の推計値は 50 パーセンタイル値で 0.14 mSv 、99.9 パーセンタイル値で 0.49 mSv であった。なお、推計に当たっては基準値適用に係る経過措置も考慮した。

また、同じ条件下で福島県産の食品のみを摂取し続けた場合の積算値を求めたところ、50 パーセンタイル値で 0.19 mSv 、99.9 パーセンタイル値で 0.65 mSv と先の結果よりも大きな値を示したが、1 年間の食品摂取による線量に換算すると 99.9 パーセンタイル値でも 0.23 mSv で、食品由来の年間線量の上限値である 1 mSv を大きく下回った。

4-2 平成 25 年 9、10 月の食品摂取による預託実効線量

平成 25 年 9、10 月における厚生労働省の公表結果を基に当該期間の食品摂取による預託実効線量を推計し、結果を表 17 に示した。推計は 4-1 と同様、2012 年 4 月 1 日までは暫定

規制値を超える食品は摂取されず、それ以降は基準値を超える食品は摂取されないと仮定して行った。

成人の放射性 Cs による預託実効線量を福島県産の食品のみを摂取し続けるとして算出したところ(以下、福島県と表記)、50 パーセンタイル値で $6 \mu\text{Sv}$ 、99.99 パーセンタイル値で $23 \mu\text{Sv}$ 、福島県産以外の食品のみを摂取すると仮定した場合(以下、福島県以外)は 50 パーセンタイル値で $3.6 \mu\text{Sv}$ 、99.99 パーセンタイル値で $20 \mu\text{Sv}$ であり、福島県と福島県以外で大きな差は認められなかった。また、福島県の 99.99 パーセンタイル値である $23 \mu\text{Sv}$ は食品の年間摂取による預託実効線量に換算すると $137 \mu\text{Sv}$ で、食品摂取による年間線量の上限值である 1mSv の約 7 分の 1 であった。

幼児の放射性 Cs による預託実効線量については福島県の 50 パーセンタイル値が $2.3 \mu\text{Sv}$ 、99.99 パーセンタイル値が $7.8 \mu\text{Sv}$ に対し、福島県以外では 50 パーセンタイル値が $1.7 \mu\text{Sv}$ 、99.99 パーセンタイル値が $7.5 \mu\text{Sv}$ で、成人と同様、福島県と福島県以外で大きな差は認められなかった。また、福島県の 99.99 パーセンタイル値である $7.8 \mu\text{Sv}$ は食品の年間摂取による預託実効線量に換算すると $47 \mu\text{Sv}$ で、食品摂取による年間線量の上限值の約 21 分の 1 と十分小さい値であった。

D. 考察

1 陰膳試料中の γ 線放出核種

放射性 Cs のうち、福島原発事故前にも大気圏内核実験の影響が認められていた ^{137}Cs と異なり、 ^{134}Cs は原子力発電所事故に特有の放射性物質である。1986 年に発生したチェルノブイリ原子力発電所事故後には国内の農産物でも ^{134}Cs が検出されたが、 ^{134}Cs の物理学的半減期は 2.06 年で ^{137}Cs の 30.1 年と比較すると短く、福島原発事故の直前に環境試料で ^{134}Cs が検出されることはなかった。本研究では対照地域として設定した北海道、大阪府、高知県においても陰膳試料から ^{134}Cs が検出されており、程度の差はあれ福島原発事故の影響が認められた。

・平成 23 年度の MB 方式による TDS 結果との比較

本研究に先立ち、杉山らは福島原発事故後の平成 23 年 10、11 月にマーケットバスケット (MB) 方式による TDS を実施した [5]。表 18 に γ 線放出核種による預託実効線量について平成 23 年度の TDS の結果と本研究における結果との比較を示した。放射性 Cs による預託実効線量 (μSv) は福島市で平成 23 年度が 16.8 なのに対し、平成 24 年度は 1.9、平成 25 年度は 0.43 と大きく減少した。仙台市と東京都についても平成 23 年度から平成 25 年度にかけて放射性 Cs による預託実効線量の大きな減少が認められた。

平成 23 年度の TDS における放射性 Cs 由来の預託実効線量を食品群別

にみると、仙台市、東京都では乳類の寄与が大きかった（図 10）。福島市では米・米加工品類の寄与が特に大きく、以下、果実類、乳類の順であった。

図 11 に示すとおり、原乳中の放射性 Cs 濃度は MB 方式による TDS を実施した平成 23 年 10 月から本研究を実施した平成 25 年 11 月にかけて大きく減少しており、程度や傾向の違いはあるものの、米・米加工品類や果実類についても同様である[7]。本研究は陰膳方式による TDS であるため、個々の食品群の寄与については明らかとなっていないが、以上の点を考慮すると、預託実効線量の減少はこれらの食品群の放射性 Cs 濃度の減少によるものと推察された。

自然放射性物質である ^{40}K は必須元素である K の放射性同位体で、食品中には一定の濃度で存在しており、 ^{40}K による預託実効線量については都市間あるいは年度間で大きな差はないと考えられる。しかしながら、平成 23 年度の TDS では仙台市、福島市、東京都の 3 都市における預託実効線量 (μSv) はそれぞれ 182、199、177 とほぼ一致したものの、平成 24、25 年度については都市間の差が認められた。平成 24 年度は研究協力者に陰膳試料を連続した 2 日に採取していただいております、試料採取日が土日に集中したため、食事についてはパン、麺類等の摂取が多く、野菜類の摂取が極端に少ない例が見受けられた。このため、平成 25 年度は試料

採取日を 1 週間のうちのいずれかの 2 日とし、うち 1 日は平日とするものとしたところ、図 3 のとおり、陰膳試料中の ^{40}K 濃度については平成 24 年度と比較して地域間のバラつきが小さくなった。一方、 ^{40}K による預託実効線量については、研究協力者の 1 日当たりの摂取量は 753g から 2325g までと大きな差があること、また、食品群毎の摂取状況の違いもあることからバラつきが認められた（図 7、8）。

・福島原発事故前の MB 方式による TDS 結果との比較

図 12 に杉山らが福島原発事故前に成人を対象として実施した MB 方式による TDS の結果を示した（平成 19～22 年度厚生労働省科学研究費補助金食品の安心・安全確保推進研究事業）。平成 19～22 年度の放射性 Cs による預託実効線量は最大値が $0.24 \mu\text{Sv}$ 、最小値が $0.11 \mu\text{Sv}$ であった。前述のとおり、平成 24、25 年度における成人の放射性 Cs による預託実効線量は平成 23 年度と比較して大きな減少が認められているが、その地域別平均の最大値は $6.70 \mu\text{Sv}$ （平成 25 年度南相馬市）で、福島原発事故前と比較すると依然として高い水準にあるといえる。

・福島原発事故前の陰膳方式による TDS 結果との比較

ここでは放射性 Cs の 1 日摂取量について環境放射線データベース[6]に掲載されている日常食の結果（1963～2008 年度）と本研究におけ

る結果を比較した。

図 13 に示すとおり、大気圏内で核実験が行われていた 1960 年代は ^{137}Cs の 1 日摂取量が多く、最大で 4.4 Bq/人・日であった。また、2001～2008 年度の結果に限ると、 ^{137}Cs の 1 日摂取量の最大値は 0.56 Bq/人・日であった。本研究における放射性 Cs の 1 日摂取量の最大値 19.0 Bq/人・日は 1960 年代の最大値を上回るが、一方、平成 25 年度に 2001～2008 年度の最大値を上回ったのは 80 件中 6 件のみであり(表 5、6)、一部を除いて放射性 Cs の 1 日摂取量は福島原発事故前の範囲内にあることが確認された。

・放射性 Cs 濃度の最大値について

上述のとおり、平成 25 年度の陰膳試料における放射性 Cs 濃度の最大値は 11.3 Bq/kg (伊達市 (幼児)) で、平成 24 年度の 1.44 Bq/kg と比較すると高めの値を示した。

当該研究協力者に記入していた調査票 (別紙 3) によれば 2 日間の献立は以下のとおりであった。

・1 日目

朝食：ご飯、味付海苔、すじこ、卵焼き、さんまの煮つけ、きのことなすの炒め煮

昼食：コロッケパン、牛乳、みかん

おやつ：玉こんにゃく、お茶

夕食：うどん入りいも煮汁、おにぎり、ウーロン茶

・2 日目

朝食：トースト (バター)、牛乳、柿

昼食：ミートソーススパゲティ、チキンナゲット、サラダ (ブロッコリー)、コンソメスープ、桃の缶詰

おやつ：スイートポテト、茶まんじゅう、牛乳

夕食：ご飯、まぐろの刺身、焼き魚 (鯛)、いか・大根・さといもの煮物、マカロニサラダ、まつたけの茶碗蒸し、ラフランス、みかん

また、調査票の「家庭菜園でとれた野菜を食べていますか」という問いに対し、「食べている」との回答であったため、研究協力者に確認したところ、福島原発事故の前から自家栽培の野菜を摂取しているが、事故後は野生きのこ、山菜等、放射性 Cs 濃度が高いものは避けているとのことであった。

当該試料を 1 年間摂取し続けた場合の放射性 Cs による預託実効線量は 73.7 μSv で食品摂取による年間線量の上限値 1 mSv を十分に下回るものの、表 17 で示した厚生労働省の公表結果を用いた線量推計における福島県の 5 歳児の 99.99 パーセンタイル値 (年間換算で 47 μSv) を上回る。上記の食事の状況と、流通食品のみを摂取している場合に預託実効線量が 99.99 パーセンタイル値を超えることは考えづらいことを勘案すると、当該試料中の放射性 Cs 濃度が高くなったのは自家栽培の野菜、米等が原因ではないかと推察された。また、陰膳方式による TDS は MB 方式と比較すると、地域、年齢に加え個

人の嗜好等を反映しやすい点が特徴であり、本結果はその特徴が表れたものといえる。

なお、調査票の「現在、食品を買う時に放射性物質のことを気にしていますか？」という問いに対し、「あまり気にならない」または「全く気にならない」との回答された方は先の伊達市（幼児）の試料を提供していただいた方を含め 41.0%であった（平成 24 年度は同種の問いに対し、「特に気にしていない」との回答が 40.0%）。これらの方の陰膳試料中の放射性 Cs による預託実効線量は平均で $4.1 \mu\text{Sv}$ で、「とても気にする」あるいは「少し気にする」と回答された方の平均値 $0.70 \mu\text{Sv}$ を上回ったが、先の伊達市（幼児）の結果を除くと平均値は $1.2 \mu\text{Sv}$ となり、大きな差は認められなかった。

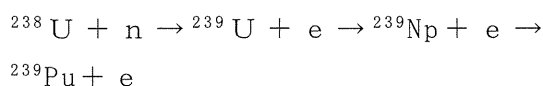
・食品中の放射性物質の検査結果を用いた線量の推計

平成 25 年 9、10 月における厚生労働省の公表結果を基に算出した、当該期間の食品摂取による成人の預託実効線量は福島県以外で 50 パーセントイル値が $3.6 \mu\text{Sv}$ 、99.99 パーセントイル値が $20 \mu\text{Sv}$ であった（表 17）。50 パーセントイル値を食品の年間摂取による預託実効線量に換算すると $22 \mu\text{Sv}$ で、平成 25 年度 TDS の成人の放射性 Cs による預託実効線量の個別の最大値 $11.9 \mu\text{Sv}$ （南相馬市）を大きく上回った。その原因としては自治体等による食品中放射性物質の検査と本研究におけ

る陰膳調査双方のサンプリングバイアスの他、両者の分析精度の違いが考えられる。すなわち、自治体等の検査が高々数時間の測定で行われているのに対し、本研究では試料を灰化した上で 80,000 秒（約 1 日）測定している。このため、放射性 Cs の検出限界値については自治体等の検査では低くても 1 Bq/kg 程度なのに対し、本研究は 0.05 Bq/kg 程度と $1/20$ である。厚生労働省の公表結果を利用した線量推計では検出限界値未満の場合、検出限界値相当（約 1 Bq/kg ）の放射性 Cs が存在するものとして算出しているため、推計値が大きくなったものと考えられる。

2 陰膳試料中のプルトニウム

Pu は原子炉内で以下のような反応を経て生成される。



ウランと同様、Pu は α 線放出核種であるが、その物理学的半減期は 24110 年（ ${}^{239}\text{Pu}$ ）で、 ${}^{238}\text{U}$ の約 45 億年や ${}^{235}\text{U}$ の約 7 億年と比較して極めて短く、単位重量当たりの放射能の強さを示す比放射能については Pu の方が遥かに大きい。このため、Pu は放射性毒性が強く、原発事故時に憂慮すべき放射性物質の 1 つである。福島原発事故前の国内における食品中の Pu の実態については環境放射能水準調査（現在の実施主体は原子力規制庁）で調査されており、その

結果は環境放射線データベース[6]に掲載されている。環境放射線データベースによれば、食品中のPu濃度は放射性Csと比較すると低く、最大値は0.266 Bq/kg(さざえ)で、全6217件中0.1 Bq/kgを上回ったのは49件であった。原子力発電所等周辺環境放射線モニタリングでやや高めの値が得られており、Pu濃度が0.1 Bq/kgを上回ったのはいずれも原子力発電所等周辺環境放射線モニタリングの結果である。それ以外の調査におけるPuの検出件数は78件(全1476件)で、最大値は0.029 Bq/kg(あおのり)であった。食品群別では貝類と藻類等の水産物のPu濃度が高い傾向にあった。

原子力安全・保安院は福島原発事故によるPuの放出量を ^{238}Pu : 1.9×10^{10} Bq、 ^{239}Pu : 3.2×10^9 Bq、 ^{240}Pu : 3.2×10^9 Bq、 ^{241}Pu : 1.2×10^{12} Bqと推計しているが[8]、表13のとおり分析対象とした全ての陰膳試料からPuは検出されておらず、その影響は認められなかった。

3 陰膳試料中のポロニウム 210

図14に平成23年度に実施したMB方式によるTDSでの食品群別の ^{210}Po による預託実効線量を示した。食品群別で線量への寄与が最も大きいのはX群の魚介類で、仙台市、福島市、東京都における魚介類の寄与率はそれぞれ93.5%、77.3%、86.5%であった。本研究で ^{210}Po 濃度に0.077~0.355 Bq/kgと試料間のバラつきが認められたのは魚介類の摂取量の違

いによるものと推察され、個人の嗜好を反映したものと考えられる。

E. 結論

平成25年度のTDSでは24年度と比較して一部、放射性Cs濃度が高い試料が確認されたが、当該試料中の放射性Cs濃度は11.3 Bq/kgで現行の一般食品に対する放射性物質の基準値(100 Bq/kg)と比較すると約9分の1、当該試料を1年間摂取し続けた場合の預託実効線量は73.7 μ Svで食品摂取による年間線量の上限値1 mSvの約14分の1と、十分に小さい値であった。

また、Puについては分析を行った全29試料から検出されず、福島原発事故前の水準にあることが示され、全体としては幼児を含め食事による福島原発事故由来の放射性物質の暴露量は十分に小さいレベルにあると評価できるが、放射性Csによる預託実効線量は事故前と比較すると依然として高く、一部で放射性Cs濃度が高めの試料が認められたことから、引き続き本TDSを実施していく。

参考文献

- [1] 厚生労働省. 東日本大震災関連情報「食品中の放射性物質への対応」. Available; http://www.mhlw.go.jp/shinsai_jouhou/shokuhin.html
- [2] INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIOLOGICAL PROTECTION, Age

Dependent Doses to Members of the Public from Intake of Radionuclides, Publication 56, Pergamon Press, Oxford, Annals of the ICRP Vol.20 No.2 (1989).

[3] Hayano, Ryugo S., Masaharu Tsubokura, Makoto Miyazaki, Hideo Satou, Katsumi Sato, Shin Masaki, Yu Sakuma. Internal radiocesium contamination of adults and children in Fukushima 7 to 20 months after the Fukushima NPP accident as measured by extensive whole-body-counter surveys. Proc. Jpn. Acad., Ser. B 89. 2013; 157-163.

[4] T. Miura, K. Hayano, K. Nakayama. Determination of ^{210}Pb and ^{210}Po in Environmental Samples by Alpha Ray Spectrometry Using an Extraction Chromatographic Resin. Anal. Sci. 1999; 15: p23-28.

[5] 杉山英男、寺田宙、小谷野道子、飯島育代、三宅定明. 分担研究報告：食品中の放射性核種の摂取量調査・評価研究. In: 厚生労働省科学研究費補助金食品の安心・安全確保推進研究事業「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」(主任研究者：松田りえ子.〈課題番号：H22-食品-一般-017〉) 平成23年度分担研究報告書;2012. p. 1-40.

[6] 原子力規制庁. “環境放射線データベース”.
<http://search.kankyo-hoshano.go.jp/>

[p/servlet/search.top](http://search.kankyo-hoshano.go.jp/servlet/search.top), (参照 2014-03-24).

[7] 国立保健医療科学院. 食品中の放射性物質検査データ.
Available;

<http://www.radioactivity-db.info>

[8] 原子力安全・保安院. 東京電力株式会社福島第一原子力発電所の事故に係る1号機、2号機及び3号機の炉心の状態に関する評価について.

Available;

<http://www.meti.go.jp/press/2011/06/20110606008/20110606008-1.pdf>

F. 健康危険情報

陰膳試料中の放射性 Cs 濃度は最大でも 11.3 Bq/kg と、一般食品に対する基準値である 100 Bq/kg の約 1/9 であった。また、食品中の放射性 Cs に由来する預託実効線量についても最大値は 73.7 μSv と、基準値を設定する上で基になった年間線量の上限值である 1 mSv の約 14 分の 1 で、健康危険情報に該当するものはなかった。

G. 研究発表

1. 論文発表

なし

2. 学会発表

寺田宙、飯島育代、林孝子、三宅定明、樺田尚樹、山口一郎、松本晶、児玉浩子、杉山英男. 国内における食品を介した放射性物質による暴露量の評価. 第 50 回全国衛生化学技術協議会; 2013; 富山. 同講演集.

P136-137

飯島育代、杉山英男、三宅定明、酒井康宏、児玉浩子、山口一郎、小谷野道子、松本晶、櫻田尚樹、寺田宙. 国内各地における食事からの放射性物質の摂取量～東京電力福島第一原子力発電所事故前後の推移～. 第106回日本食品衛生学会学術講演会; 2013; 宜野湾. 同講演要旨集.

P185

山口一郎、寺田宙、杉山英男、飯島育代、酒井康宏、三宅定明、児玉浩子、櫻田尚樹. 食品中の放射性セシウムに由来した線量評価 -陰膳調査と食品モニタリング調査の比較-. 日

本放射線安全管理学会第12回学術大会; 2013; 札幌. 同講演予稿集. P91

Ichiro Yamaguchi, Hiroshi Terada, Ikuyo Iijima, Sadaaki Miyake, Hiroko

Kodama, Hideo Sugiyama.

Radioactivity Ingestion Dose Estimation Following the

Fukushima Nuclear Disaster in

Japan; 2013.11.18-22; Tokyo. J.

Trace Elem. Med. Biol. 2013;

27S1(suppl): p.28.