

201522085A

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

震災に起因する食品中の放射性物質ならびに  
有害化学物質の実態に関する研究

平成27年度 総括・分担研究報告書

研究代表者

国立医薬品食品衛生研究所

蜂須賀暁子

研究分担者

国立医薬品食品衛生研究所

松田りえ子

国立医薬品食品衛生研究所

鍋師 裕美

国立医薬品食品衛生研究所

曾我 慶介

国立医薬品食品衛生研究所

畝山智香子

## 目 次

### I. 総括研究報告

震災に起因する食品中の放射性物質ならびに有害化学物質の  
実態に関する研究

蜂須賀暁子・・・1

### II. 分担研究報告

1. 食品中の放射性物質の検査に係る信頼性評価手法の検討

曾我 慶介・・・17

2. 食品中放射性物質の調理及び加工による影響の検討

鍋師 裕美・・・39

3. 震災・津波による食品の化学物質汚染実態の調査

植草 義徳・・・59

4. 震災によるリスクコントロールが必要となる化学物質の選定

畝山智香子・・・95

5. 食品中放射性物質濃度データ解析による効率的検査計画の検討

松田りえ子・・・137

### III. 研究成果の刊行に関する一覧表

・・・151



# I. 総括研究報告

震災に起因する食品中の放射性物質ならびに  
有害化学物質の実態に関する研究

蜂須賀 暁子

## 平成27年度厚生労働科学研究補助金 食品の安全確保推進研究事業

### 震災に起因する食品中の放射性物質ならびに有害化学物質の実態に関する研究 総括研究報告書

研究代表者	蜂須賀 暁子	国立医薬品食品衛生研究所生化学部第一室長
研究分担者	曾我 慶介	国立医薬品食品衛生研究所生化学部研究員
研究分担者	鍋師 裕美	国立医薬品食品衛生研究所食品部主任研究官
研究分担者	植草 義徳	国立医薬品食品衛生研究所食品部研究員
研究分担者	畝山 智香子	国立医薬品食品衛生研究所安全情報部第一室長
研究分担者	松田 りえ子	国立医薬品食品衛生研究所食品部主任研究官

#### 研究要旨

平成 23 年 3 月の大震災と津波により、沿岸の多くの工場から多量の化学物質が環境に放出され、さらに東京電力福島第一発電所事故により、放射性物質も環境に放出された。これらの化学物質は食品中に移行し、食品衛生上の大きな問題となっている。食品中の放射性物質については事故直後から暫定規制値が設定され、関係自治体がモニタリング検査を実施し、平成 24 年からは新たな基準値による規制が施行されている。このような規制により安全な食品の流通を保証することは、風評被害を防止し、被災地域における農漁業の復興につながるため、信頼できる検査体制の充実が重要である。一方、震災により放出された放射性物質以外の化学物質の食品への影響はほとんど検討されていない。本研究では、食品中の放射性物質検査の信頼性を保証し、食品の安全安心に資するために、また、震災による放射性物質以外の化学物質の影響を評価するために、以下の研究を実施した。

放射能測定における信頼性に関わる要因及びその影響を明らかにし、分析結果の信頼性評価法の確立に資するため、本年度は、測定値の偏りを生じさせる因子として、試料と検出器の幾何学的位置関係であるジオメトリーを取り上げ、測定試料の空隙率及び部位を変化させ、それらが、測定結果に及ぼす影響を検討した。その結果、測定容器内の計数効率が高い部位に空隙がある場合は、測定結果は小さくなり放射能濃度は低く算出され、逆に計数効率が低い部位に空隙がある場合は、高く算出されることを示した。また、試料量を規定量以上に充填した場合は、算出される重量あたりの放射能濃度が一般に減少することを示した。放射能検査においても他の検査と同様に、全操作の不確かさ及び偏りを生じさせる要因を推定し、各操作及び各要因の最終結果に与える影響の大きさを理解し、評価していることが、分析値の品質を保証する上で重要と考えられる。

放射性物質を含む食品の調理加工による放射性物質総量や濃度の変化に関する情報の収集を目的に、各種食品（大豆、タケノコ、ウメ、ウナギ）を用いて調理加工前後の食品中の放射性セシウム濃度の分析を行った。その結果、大豆の加工では、豆乳、おから、豆腐、湯葉における放射性セシウムの除去率はそれぞれ 36、70、87、83%であった。これらの放射性セシウム濃度比は、大豆に対してはすべて 1.0 を下回っていた。一方、豆乳を原材料としてみると湯葉における濃度比は 1.7 となり、豆乳の放射性セシウム濃度を上回った。タケノコのあく抜きでは、約 80%の放射性セシウムが除去された。

ウメの砂糖漬けでは、浸漬後 30 日程度でウメとシロップ中の放射性セシウム濃度が平衡に達し、それ以降の経時変化はほとんどなかった。ウナギの蒲焼きでは、放射性セシウムの除去効果は認められなかった。本研究の結果、加工の途中でおからと豆乳に放射性セシウムが分配される豆腐や湯葉、液体中での浸漬の工程を経るタケノコのあく抜きやウメの砂糖漬けでは、比較的高効率に放射性セシウムが除去されることが示された。また、豆乳に対する湯葉のように加工後、原材料の放射性セシウム濃度より高濃度になる食品があることには注意が必要である。

津波による、放射性物質以外の新たな食品汚染の発生の有無を明らかにすることを目的に、各種有害化学物質の実態を調査した。本年度は、津波被災地域（3 地域）および津波非被災地域（1 地域）からアイナメおよびカレイ・ヒラメを購入し、計 80 食品のポリ塩化ビフェニル類（PCBs）濃度実態を調査した。高分解能 GC・MS による PCBs 全 209 異性体分析の結果、総 PCBs 濃度は全ての試料において暫定的規制値（遠洋沖合魚介類：0.5 ppm）を下回り、高濃度汚染試料は認められなかった。一部の津波被災地域の間で総 PCBs 濃度に差が認められたが、津波非被災地域間の濃度差と比較するとその差は小さいことから、憂慮すべき必要はないと考えられた。総 PCBs 濃度に対する各同族体の割合の解析では、ほとんどの試料において 4~7 塩素化 PCBs の構成割合が大きく、カネクロール（KC）由来の PCBs 同族体割合を反映した環境中の魚の同族体割合と類似していた。同族体割合が異なる試料も一部で認められ、異性体ごとの割合や主成分分析を用いた詳細な解析により、アゾ顔料の副生 PCB による汚染が疑われた。しかしながら、これが津波の影響によるものであるかを判断するには至らなかった。

リスクコントロールが必要となる因子探索では、東日本大震災により環境中に放出された化学物質や放射性物質による日本人の健康リスクについて検討してきた。当研究班およびその他の機関により行われた調査により、震災による環境中化学物質の濃度変化は、過去の自然の変動や地理的変動の中に埋もれて明確に区別できないもので、健康に意味のある影響を与えるようなものとは考えられないことが示されている。また食品中や環境中の放射性物質濃度も、一部避難地域等を除けば健康に影響するレベルではないことが明らかにされてきた。その一方で、震災をきっかけにした個人の行動変化のほう健康リスク変動への寄与率が高そうであることが 1 年目の研究成果で示唆された。特に放射性物質を避ける、あるいは放射性物質による害を減らそうとしてみる他の要因によるリスクを大きくする事例が確認された。このような現象は風評被害の原因ともなり被災地の困難を増やすだけでなく、適切なリスク管理が行われないという意味で食の安全を脅かすものである。そこで引き続きこの研究班により得られた食品中の放射性物質に関するデータを提示し、消費者が適切なリスク管理を行うために必要な情報はどのようなものかを探るための調査を実施した。震災から時間が経過し流通食品から放射性物質が検出されることがほぼ無くなり話題になることも減っていて、そのため放射性物質に関する関心も薄れ、誤解が定着し正確な理解は進んでいないことが示唆された。

平成 27 年度に厚生労働省ホームページに公表された、食品中の放射性セシウム濃度データ 66,663 件を集計し、放射性セシウム検出率、基準値超過率、濃度の統計量を求めた。産地、食品カテゴリ別の集計も行った。基準値を超える食品の割合は 0.44%であった。流通する食品の基準値超過率は 0.15%で非常に低かったが、非流通食品では 0.63%であり、また非常に高濃度の試料も見られた。このことから、流通前の検査によ

り、高濃度の放射性セシウムを含む食品が、効果的に流通から排除されていると考えられた。山菜、きのこ、淡水魚、野生鳥獣肉は、検出率が5%を超える食品カテゴリであり、山林にその起源をもつことが特徴である。これらの食品が生育する山林では、事故により広がった放射性セシウムがそのまま存在する状態が継続していると考えられる。現在有効に機能している、基準値を超える食品を流通させないための監視においては、山菜、きのこ、淡水魚、野生鳥獣肉のような食品中の放射性セシウムの検査を維持していくことが重要と考えられる。

## A. 研究目的

東京電力福島第一原子力発電所の事故により、食品の放射性物質による汚染が危惧されたため、平成23年3月食品衛生法第6条による暫定規制値が設定された。続いて、平成24年4月には第11条に移り、全ての食品に放射性セシウムの基準値が設定された。このような規制により安全な食品の流通を保証するためには、信頼性が高い検査体制の構築・維持が重要である。一方、震災により放出された放射性物質以外の化学物質による食品への影響についての研究はほとんどなされていない。

このような状況をふまえ、(1)放射性物質の検査に係る信頼性評価手法の検討、(2)食品中放射性物質の調理及び加工による影響の検討、(3)震災・津波による食品の化学物質汚染実態の調査、(4)震災によるリスクコントロールが必要となる化学物質の選定、(5)食品中放射性物質濃度データ解析による効率的検査計画の検討、の5つの研究を実施する。なお、流通食品中の放射性物質濃度の調査及びサンプリング法の検討の2課題は、予定した成果を達成したため、平成26年度に終了した。

(1)では、放射能測定における信頼性に関わる要因及びその影響を明らかにする

ことにより、分析結果の信頼性評価法の確立に資する。(2)では、調理及び加工による放射性物質の濃度変化を明らかにし、基準値超過の可能性を検討することにより、安全対策に資する。(3)では、震災・津波により海洋に流出した可能性の高い有害化学物質(PCB、重金属等)の食品中濃度の実態を明らかにする。それらの濃度に上昇が認められた場合には、異性体存在比や含有金属種のパターンを解析し、健康危害リスクをより適正に評価の上、追加的規制の必要性を検討する。(4)では、震災前後で環境あるいは食品中濃度が変化している化学物質を探索し、今後のリスクコントロールの必要性を判断する基礎データとする。

(5)では、国により収集された放射性物質モニタリングデータを解析し、放射性セシウム濃度の経時的変動、食品間での濃度差等を見出すことにより、今後の放射性物質モニタリングを効率的に進める方法を検討する。

これらの研究成果は、リスクコントロールの考え方に立った、震災起因の環境中に放出された放射性物質ならびに化学物質の適切な規制に供される。食品検査が適正に実施されることにより、流通食品の安全性が確保される。そして、安全な食品の提供

だけではなく、食品のリスクについて正確な情報提供をも併せて行っていくことが、消費者の適切な食品のリスク管理には必要である。消費者の適切な判断が、食品のリスクを低減すると同時に食品の風評被害を防止することにもなり、そのことが被災地域の再建にもつながるものと期待される。

以下、研究課題毎に実験方法、結果及び考察を示す。

### (1) 食品中の放射性物質の検査に係る信頼性保証手法の検討

#### B. 方法

試料：玄米 300g に、Cs-137 標準溶液 1.75 kBq を添加し汚染玄米試料を作成した。

測定：ゲルマニウム半導体検出器付  $\gamma$  線スペクトロメータ (Ge 検出器) 及びピーク解析プログラム (ガンマエクスプローラー) により、測定容器は U-8 容器、200ml 円筒容器、1 L マリネリのをを用いて測定した。NaI(Tl) シンチレーションスペクトロメータ (NaI 検出器) では、測定容器に 20 mL 低カリウムガラスバイアルを用いた。

測定容器への充填では、規定量の 50%~120% の容量で水平に充填したほか、直径 7mm のビーズを用いて測定容器の任意の場所に空隙を作成した。

放射能測定では、各測定容器の規定量における計数効率と測定試料の計数効率との違いが、算出される放射能濃度の偏りとなり、その比率は最終報告値である放射能濃度にも保持されることから、規定量における計数率を基準とし、充填の違い等による計数率の相対的な変化を求めた。

## C. 結果・考察

### 1. 試料の均質性

作成した汚染玄米試料を Ge 検出器による 3 種の測定容器で測定したところ、計数誤差は 0.74-1.1%、測定誤差は 0.42% - 1.0% であったことから、用いた測定系での精度は約 1% と考えられた。

### 2. Ge 検出器

#### 2.1 試料量—90ml U-8 容器

測定容器ごとに試料量及び試料形状の計数値に対する影響を調べた。

90mL U-8 容器は、ほぼ円筒形であり、試料の高さとその体積はほぼ比例する。試料量を規定量 90 mL (玄米 81 g) の 60% から 100% に試料高さにより変化させると、試料量の増加に伴い、正味計数値も増加するが、原点を通る比例関係ではなく、試料量の増加に伴い増加率は鈍くなる。このことは、試料重量あたりの正味計数値で比較すると、試料量の増加に伴い減少していることが明らかであった。その変化率を、試料量が規定量のときを 1 とした相対値で比較すると、規定量より少ない場合は大きくなり、80% で 1.17、60% で 1.30 であった。このことは、規定量より試料量が少ない場合は、計数効率が増加していることを示している。仮に、規定量の計数効率を用いて、放射能濃度を算出した場合には、この比率に従って測定算出濃度値が変化し、80% で 17%、60% で 30% 増加する。

#### 2.2 試料量—200mL 円筒容器

180mL 円筒容器も、U-8 容器と同じくほぼ円筒形であり、試料量が増えた場合の結果も同様で、規定量より試料量が少ない場合は計数効率が上昇し、規定量より試料量が多い場合は計数効率が低下した。

### 2.3 試料量－1Lマリネリ容器

前述の2容器と異なり1Lマリネリ容器はGe半導体検出器を取り囲む複雑な形状である。基本的には、前2容器と同様、規定量より試料量が少ない場合は計数効率が上昇し、規定量より試料量が多い場合は計数効率が低下したが、前述の2容器と比べると、変化の形状は複雑であり、また変化の割合も少なかった。

### 2.4 空隙

上記3種の測定容器において、規定量に対し、任意の位置にビーズを用いて空隙を数%作成し放射能を測定した。規定量充填のときの重量あたりの計数値を1として比較すると、U-8及び200mL容器では、上部に空隙がある場合は、相対値は大きくなり、逆に底部に空隙がある場合は小さくなり、変化率は空隙率に依存して大きくなる傾向が見られた。1Lマリネリでは、検出器真上の部分に空隙を作成した場合は、重量あたりの相対計数値は低くなり、上部に空隙を作成した場合は、高くなったが、それらの変化率は、円筒容器に比べて大きくなく、空隙率との相関も顕著ではなかった。

### 2.5 計数効率の試料位置による差異(計数効率の等高線)

空隙も含めた試料形状による計数効率の差は、検出器に対する試料の位置により生じ、この幾何学的な条件は放射線測定においてジオメトリーと呼ばれる。試料位置は、基本的には検出器に近い位置は立体角が大きくなるため計数効率が高く、遠い位置は立体角が小さくなるため計数効率が低くなる。

計数効率( $\epsilon$ )は、測定ピークエネルギーとこの位置を変数に持ち、検出器の周りに

計数効率の等高線が形成される。検出器や遮蔽体の構造及び素材の均質性等が関与するため、この等高線は機器毎に異なり、同じ機器でも方向によっても異なる。

計数効率の低いところの試料密度が下がったり空隙となった場合は、規定量での計数効率に比較して、重量あたりの計数効率が大きくなり、結果として放射能濃度が大きく計算される。逆に、計数効率の高いところが空隙となる場合は、規定量での計数効率に比較して、重量あたりの計数効率が小さくなり、結果として放射能濃度は小さく算出される。また、規定量より多く充填された場合は、検出器より遠い計数効率の低い部分が増えるため、規定量での計数効率に比較して、重量あたりの計数効率が小さくなり、結果として放射能濃度は小さく算出される。

### 3. NaI 検出器：20mLバイアル容器

NaI検出器においても、基本的にGe検出器と同様に、試料形状により計数効率に変動した。

### 4. 食品検査に及ぼす影響

放射能測定は、ジオメトリーと称される試料の形状等が関与する特殊な測定系であり、標準体積線源との形状、密度等の差が、測定値の偏りを生じさせる。一般の化学分析にならい、測定値は重量補正されることから、試料は多めに取るほうが精度が良くなると類推し、放射能測定において測定容器に規定量より多く充填した場合は、今回調べた機器では計数効率の低下を招き、結果的に重量あたりの放射能濃度は低く算出され、過小評価することになり、消費者危険率を増大させることとなる。逆に、規定量に達していなかった場合は、放射能濃度



は高く算出され、過大評価されることになり、生産者危険率が増加する。また、測定容器内の均質性が保たれていない場合、特に、測定容器内の計数効率の高い場所あるいは低い場所に空隙があった場合は、測定値に偏りを生じさせることになる。この試料の不均質性は、充填の仕方だけでなく、試料そのものの不均質性の影響も受けるため、注意が必要である。

## (2) 食品中放射性物質の調理及び加工による影響の検討

### B. 実験

#### 1. 試料中の放射性セシウム濃度の測定

本検討に用いた食品試料は、調理の前後にゲルマニウム半導体検出器付きガンマ線スペクトロメーターを用いて測定した。

#### 2. 食品試料の調理

##### 2-1.大豆の加工(豆乳・おから・豆腐・湯葉への加工)

大豆から豆乳およびおからを調製し、それぞれへの放射性セシウムの移行割合などを確認した後、豆乳を2分し、豆腐および湯葉に加工した。豆腐および湯葉については、調理前の大豆に対する放射性セシウムの移行割合等に加え、豆乳に対する移行率割合等も同時に検討した。

##### 2-2.タケノコのおく抜き

タケノコのおく抜きは、外皮をつけた丸のまま実施されることが一般的であるが、本検討では、外皮を除き、縦に4分割し、そのうちの1つの放射性セシウム濃度を測定した。残りの3つについては、それぞれ別々におく抜きの調理を実施し、調理前に測定した4分割のうちの1つのタケノコに

対する放射性セシウムの除去率等のデータを得た。あく抜きは、米ぬかを用いた方法と重曹を用いた方法で検討した。

##### 2-3.ウメの砂糖漬

ウメは冷凍保存品の小梅を用いて検討した。放射性セシウム濃度を測定した後のウメに同量の砂糖(氷砂糖または上白糖)を加えて、4℃で保存し、経時的(6-120日後)にウメとシロップ中の放射性セシウム濃度を測定した。

##### 2-4.ウナギの蒲焼き

ウナギは、腹開きにして頭、内蔵、骨を除き、放射性セシウム濃度を測定した。測定後のウナギを蒲焼き調理後、再度、放射性セシウム濃度を測定した

#### 3. 各食品試料の調理による重量変化、放射性セシウム濃度変化、残存割合などの算出

各食品試料を用いた調理加工の前後の重量、放射性セシウム濃度から、残存割合、重量比、濃度比、除去率を算出した。

### C. 結果・考察

#### 1. 大豆の加工(豆乳・おから・豆腐・湯葉への加工)

豆乳およびおからの洗浄後大豆に対する重量比は4.2および1.6であった。豆乳中の放射性セシウムの残存割合は0.64、おから中の残存割合は0.30となった。この結果から、大豆から豆乳とおからを調製した場合、大豆中の放射性セシウムは豆乳に64%、おからに30%の割合で分配されることが明らかとなった。また、洗浄後大豆に対する豆乳およびおからの濃度比は、0.15および0.19であった。

豆腐の洗浄後大豆との重量比は1.07と

なった。豆腐中の洗浄後大豆に対する濃度比は 0.12、残存割合は 0.13 となった。すなわち、放射性セシウムの除去率は 87%であった。一方、豆乳に対する濃度比は 0.83、残存割合は 0.21 となり、放射性セシウムの除去率は 79%となった。豆腐から出た水分の放射性セシウム濃度は豆腐中の濃度とほぼ同等であり、豆腐から出た水分への放射性セシウムの移行割合は、洗浄後大豆に対して 0.36、豆乳に対しては 0.57 であった。

湯葉の洗浄後大豆との重量比は 0.64 であった。湯葉中の洗浄後大豆に対する濃度比は 0.26、残存割合は 0.17 となった。洗浄後大豆に対する除去率は 83%となり、豆腐と同程度であった。一方、豆乳に対する濃度比は 1.7、残存割合は 0.27、除去率は 73%となった。湯葉作製後に残存した豆乳中の放射性セシウム濃度は、湯葉よりもやや高い濃度となった。大豆を原材料として見た場合には、途中の過程で多くの加水があるため、含まれる放射性セシウムは希釈され、濃度は原材料よりも低くなるものの、豆乳を原材料として見た場合においては、加熱により水分が蒸発していくため、放射性セシウムは濃縮され、加工後の湯葉中の放射性セシウム濃度が豆乳中よりも 2 倍程度高くなるという結果となった。これは、放射性セシウムの基準値に適合した豆乳を原材料として用いた場合においても、加工品として出来上がった湯葉では、基準値を上回る可能性があることを示しており、使用する豆乳の放射性セシウム濃度に注意が必要であると考えられた。

## 2. タケノコのおく抜き

米ぬかを用いておく抜きを行なった場合、重量比は 1.02 とほとんど変化がなかつ

た。一方で、放射性セシウムの残存割合は 0.19、除去率は 81%となり、米ぬかを用いたおく抜きを実施することによってタケノコに含まれる放射性セシウムの 80%以上を除去することができた。

重曹を用いておく抜きを行なった場合では、重量比は 1.02 となり、米ぬかを用いたおく抜きと同様に調理前後でほとんど変化がなかった。一方で、放射性セシウムの残存割合は 0.22、除去率は 78%となり、重曹を用いたおく抜きでも、米ぬかでのおく抜き同様、タケノコに含まれる放射性セシウムの約 80%を除去できることが明らかとなった。

昨年度に報告したワラビやゼンマイでのおく抜き検討では小麦粉と重曹の方法を比較すると、顕著に重曹を用いる方が放射性セシウムの除去率が高いことが示されたが、今回は、でんぷんを利用した米ぬかでも重曹でもほとんど同程度の除去率であった。この違いは、今回の検討では、添加剤以外の条件を同一にしたこと、特にゆで汁中への放置時間がどちらの条件も長かったことによるものと考えられた。

## 3. ウメの砂糖漬

ウメの氷砂糖漬けでは、漬け込み 6 日後までに 35%程度の放射性セシウムがウメから除去されるものの、それ以降の除去率はわずかなものであることが明らかとなった。漬け込みからおよそ 1 ヶ月程度で、ウメとシロップ中の放射性セシウム濃度が同程度の濃度となるため、それ以降はシロップへの移行がほとんど起こらなかったものと考えられた。上白糖における検討でも、氷砂糖と同じような結果が得られた。

## 4. ウナギの蒲焼き

ウナギを蒲焼きにした際の重量比は 0.59 となり、放射性セシウム濃度は、調理後に増加し、濃度比は 1.68 となった。ウナギを焼く過程で水分の蒸発や脂の溶出が起こるため、その分の重量が減少し、それに伴い、ウナギ中の放射性セシウム濃度が濃縮されたと考えられた。関東風のウナギの蒲焼きは、白焼きの後、蒸しの工程が入るため、今回の結果とは異なる可能性もある。

### (3) 震災・津波による食品の化学物質汚染実態の調査

#### B. 方法

食品と分析用試料：日本地理学会が作成した津波被災マップを参考に、津波被災地域（青森、岩手、宮城）を実態調査の対象地域として選択した。また、比較対照となる津波非被災地として、山形を選択した。

これまでの実態調査結果との統合を考え、食品種としては、アイナメおよびカレイ・ヒラメの 2 種を選択し、各地域で 10 食品ずつ計 80 食品を買い上げた。各食品は 2015 年 7 月から 12 月にかけて購入した。PCBs 分析法：分析法には、2014 年の調査同様、高分解能 GC-MS により 209 種の PCBs 異性体を分別定量する方法を用いた。

#### C. 結果・考察

##### 1. 総 PCBs 濃度

食品群別に着目した場合、平均値および中央値は、アイナメで 10 ng/g および 3.7 ng/g、カレイ・ヒラメで 1.7 ng/g および 1.2 ng/g であった。本年度の結果と同様に、2012 年度および 2014 年度においても、アイナメの総 PCBs 濃度はカレイ・ヒラメの総 PCBs 濃度よりも高い傾向を示した。

PCBs は極性が低いことから魚個体内では脂肪組織に比較的高濃度で分布していることが考えられる。総 PCBs 濃度は魚中の脂質割合に依存しており、脂質割合が比較的大きいアイナメで総 PCBs 濃度がやや高い傾向を示したのではないかと考察した。

本年度に得られたアイナメおよびカレイ・ヒラメの総 PCBs 濃度の地域による違いを詳細に解析するために、ノンパラメトリック法による検定を実施した。その結果、アイナメでは地域 A と地域 C の間（津波被災地域の間）で有意な差が認められた ( $p = 0.02$ ) が、この地域間の差が津波被災の影響によるものであると断定することはできなかった。カレイ・ヒラメでは地域 A と地域 Y の間（津波被災地と津波非被災地の間）においても有意な差が認められ ( $p = 0.04$ )、地域 A のアイナメの PCBs 濃度がやや高かった。一方で、2014 年度の津波非被災地（地域 K）で得られたカレイ・ヒラメの総 PCBs 濃度と比較した場合、本年度の A 地域のカレイ・ヒラメの総 PCBs 濃度は顕著に低い結果となった。このことから、津波非被災地域間においても、水域の環境によって魚の総 PCBs 濃度に違いがみられることが明らかとなった。

本年度の総 PCBs 濃度を 2012 年度および 2014 年度の結果を比較した。津波被災地におけるアイナメおよびカレイ・ヒラメの総 PCBs 濃度はいずれの年度も同程度であり、また津波非被災地域である地域 Y の総 PCBs 濃度とも同程度であった。一方で、2014 年度の地域 K における総 PCBs 濃度は、いずれの食品群においても高濃度側に分布していた。

##### 2. 各同族体濃度とその割合

総 PCBs 濃度に対する各同族体濃度の割合を調べると、ほとんどの試料において 4 塩素化～7 塩素化 PCBs の構成割合が大きかった。また同族体割合は、多くのアイナメおよびカレイ・ヒラメで同様のパターンを示した。従って、PCBs の汚染源は両者ともに由来が類似していると考えられた。しかしながら、同族体割合が異なる試料も確認された。日本近海の魚類に含まれる PCBs の汚染源は、KC-300、KC-400、KC-500、および KC-600 であると報告されており、今年度の調査で明らかとなった同族体割合のほとんどは、文献等で報告されている環境中の魚の同族体割合と類似していた。

### 3. 主な PCBs 異性体濃度とその割合

諸外国を中心に指標異性体による PCBs 分析も実施されており、存在量が比較的多い 6 あるいは 7 異性体については多くの国で測定対象とされている。本年度の調査において、それら 6 異性体濃度が最も高かった試料は、総 PCBs 濃度が最大値 235 ng/g を示した試料であり、その濃度は 74 ng/g であった。総 PCBs 濃度に対する 6 異性体濃度の割合は全 80 試料で 23～40% (平均 33%)、7 異性体濃度の割合は 25～48% (平均 40%) であった。

### 4. 主成分分析 (同族体割合)

本年度 (全 80 試料)、2012 年度 (全 101 試料) および 2014 年度 (全 80 試料) に実施した調査で得られた同族体割合に、KC 製品や報告値も加えて主成分分析を行った。

得られた第 1 成分および第 2 成分の寄与率はそれぞれ 39% および 21% であり、この 2 つの成分の累積寄与率は 60% であった。両成分を用いた主成分得点プロットから、

ほとんどの試料は大きな集団を形成しており、これら試料の同族体割合は類似しているといえる。各 KC 溶液は、試料が形成している集団とは異なる位置にプロットされたが、KC-500 はこの集団にやや近接していた。

一部の試料は、集団から離れてプロットされており、KC-300 や KC-400 に近いものでは、これら低塩素化 PCBs を多く含む汚染源の影響を受けた可能性が考えられた。一方で、食品種や漁獲地域の違いを区別することはできなかった。

### 5. 主成分分析 (異性体割合)

同族体割合に続き、PCBs 全 209 異性体分析値のうち主要と考えられる 19 種を用いた主成分分析を行った。

得られた第 1 成分および第 2 成分の寄与率はそれぞれ 36% および 15% であった。抽出した 4 成分を用いた主成分得点プロットは、同族体割合を用いた主成分分析と同様、ほとんどの試料は KC-500 と KC-600 の近くで大きな集団を形成したが、一部の試料は集団から離れた位置にプロットされ、KC-300 や KC-400、あるいは KC-500 に近いものなどが確認された。アゾ顔料中の副生 PCB 異性体を多く含む試料 1 点は、第 1 成分と第 5 成分との主成分得点プロットで集団から大きく離れた位置にプロットされた。

今回の主成分分析では、主要な異性体を用いることで、情報を有効に代表させながら簡略化を図ったが、特徴的な他の異性体や PCBs を含む他の製品や海水、底質の異性体割合データなどを加えることで、さらに有効な情報が得られると期待される。また、同族体割合を用いた場合に比べ、異性

体割合を利用した場合は起源を推定することが比較的容易であり、同族体割合だけでは埋もれている情報を浮き彫りにすることができる強力な手法になり得る可能性が高い。以上のことから、総 PCBs 濃度だけでなく PCBs 全 209 異性体濃度までも明らかにできる高分解能 GC-MS を用いた本分析法は、今後の PCBs 分析において重要な位置づけにあるといえる。

#### (4) 震災によるリスクコントロールが必要となる化学物質の選定

##### B. 方法

食品中化学物質の安全性に関する一般的な情報提供の前後で、食品の安全性に関して不安があるかどうかを尋ねるアンケートを実施した。ベースラインの食品に関する不安の程度と、情報提供後の不安感の変化を数値化して評価することを試みた。

##### C. 結果・考察

###### ・食品の安全性について

今回は初めて高校生を対象に含めたが、特に高校生だからという理由で大学生と大きく違うというようなことはなかった。自分で食事を準備することがない高校生の食品安全についての意見は、自分で興味があって独自に情報収集したりした結果というよりは家族や学校、普段よく見るメディアなどの周囲の意見に影響されていることが多いと考えられる。普通の大学教養課程では食品安全について系統的に学ぶ機会はないと考えられるので大学生になっても情報源は同様であろう。今回の調査では、D 大学食産業学部の学生が他の大学の学生より食品についての一般的な信頼感が高いよう

だった。これが大学の専攻によるのか地域的なものなのかはわからない。健康維持のための禁煙、運動、体重維持、減塩については E 大学の意識が高く、専門教育の成果だと思われる。

各項目についてはこれまでの調査同様、健康食品への警戒感があまりなく、「健康」を謳っているのだから何となく安全だと思っていて、講義の前後で最も大きく印象が変わるものであった。他にアクリルアミドはあまり認識されていないこと、塩の摂り過ぎと飲酒についても知識として知ってはいたけれどもその大きさまでは認識していないようであった。食品添加物、残留農薬、輸入食品については危険性を過大に評価していると思われる。

食品中の放射能汚染については、食品添加物や残留農薬よりやや不安感が大きいようだった。講義の前後で放射性物質への不安感が若干低減しても、食品中の放射能基準値については現行基準を支持する意向にあまり変化はなかった。

###### ・放射線に関する理解

放射線の知識についての設問では、これまで同様、あまり興味が無く理解もすんではない様子であった。内部被曝のほうが外部被曝より害が大きいという思いこみは強い。天然放射線や、天然に食品に含まれるカリウムによる被曝と事故による放射性セシウムによる被曝の大きさについては何度も繰り返し大きさを説明する必要がある。

###### ・経年変化

複数年で同じ学年で調査を行っている二校について過去の調査結果と比較してみた。震災前のデータがないので震災による変化についてはわからないが食品安全への



不安感については年度による変化は見られなかった。他の個別項目についても、特に明確な傾向が見られなかったので食品中の放射能レベルについての設問の結果のみ示した。D大は設問の全体に渡ってC大より許容度が高く、あまり不安でないと回答する傾向があり、それがそのまま続いているようであるが、C大は現行基準はそのままでもいいと考えるようになってきた可能性がある。

#### ・その他

調査対象が学生のみになったのは食品中の放射能についての一般の人の関心が低下してきていることも一因である。自由記述からもその時期に話題になった食品偽装などに関心がうつつている様子がみられる。放射線への関心が薄れるとともに、一度作った基準値は変える必要はないと思われるのであろう。

### (5) 食品中放射性物質濃度データ解析による効率的検査計画の検討

#### B. 方法

厚生労働省ホームページに公表された、平成 27 年 4 月から平成 28 年 3 月までの、食品中の放射性セシウムの検査データを、産地、食品カテゴリ別に、放射性セシウムの検出率、濃度等を集計した。

集計は、公表されたデータから、屠畜場における牛肉の検査データと思われるデータを除いたものを対象とした。

#### C. 結果・考察

平成 27 年度の 66,663 であり、その内 44,560 が流通前の段階で収集された食品(非流通品)、22,103 が流通段階で採取さ

れた食品(流通品)であった。試料全体に対する流通品の割合は 33%であった。

検査機関ごとに検出下限は異なっているため、セシウム濃度が 25 Bq/kg 以上の試料数を検出数、全体に対する割合を検出率として計算すると、非流通品の検出率は 3.6%、流通品の検出率は 0.37%で、流通品の検出率は非流通品の 10 分の 1 程度であった。

基準値を超過した試料数は 291、非流通品では 0.63%、流通品では 0.05%であった。検出率、基準値超過率共に、流通品が非流通品を大きく下回っており、非流通品の検査によって放射性セシウム濃度の高い食品の流通が防止されたと考えられる。

試料産地別では、試料数が最も多いのは福島県(22,004)であった。その他の試料数の多い地域は、宮城県(7,916)、茨城県(4,301)、栃木県(4,120)、岩手県(3,762)、等で、福島県近隣の県の産品が多く検査された。産地が特定されない試料も 7,829 あり、このうち 7,319 が流通品であった。

基準値超過率の高い試料の産地は、山梨県(2.4%)、群馬県(2.3%)、宮城県(1.2%)、長野県(1.2%)、栃木県(0.7%)、であった。静岡県・新潟県より西の県では基準値超過する試料はなかった。流通品において基準値超過試料があった県は、岩手県、栃木県、群馬県であった。検査試料数の最も多い福島県の非流通品の基準値超過率は 0.3%であったが、流通品に基準値超過はなく、非流通品の管理が適切に行われていると考えられる。

非流通品で検出率が高い食品カテゴリは、野生鳥獣肉(49.7%)、農産物(3.6%)、水産物(2.3%)であった。流通品において検出

率の高い食品カテゴリは野生鳥獣肉(25.0%、4 試料中 1 試料から検出)で、その他のカテゴリの検出率は 1%未満であった。

農産物の小分類では、試料数は根菜、山菜以外の野菜がもっとも多く、ついできのこ、果実が多かった。検出率は山菜が 9.9%でもっとも高く、次いできのこの検出率が 7.8%、根菜が 3.1%であった。根菜・山菜以外の野菜の検出率は 0.07%であった。果実からの検出率は 2.8%あり、山菜、きのこ、根菜に次いで高い検出率であった。

水産物の小分類では、試料数は海水魚がもっとも多く、ついで魚以外の魚介類、淡水魚の順であった。一方、検出率は淡水魚が 12.8%でもっとも高く、海水魚が 0.66%で、魚以外の魚介類の検出率は 0.06%であった。基準値を超過した試料数は 14 すべて淡水魚であった。

畜産物の小分類では、試料数は肉がもっとも多く、ついで卵、ハチミツの順であった。肉と卵には放射性セシウムが検出された試料はなく、ハチミツの 2 試料のみから検出された。

一方、山林で捕獲された野生のイノシシやシカのような野生鳥獣の肉試料は 764 試料(前年度 1,403 試料)が検査され、検出率は 49%(前年度 58%)、基準値超過率は 22%(前年度 25%)であった。検出率、基準値超過率ともに通常の肉と比較して高いだけでなく、全カテゴリ中最も高い結果であった。野生鳥獣肉の流通品は 4 試料しかなかったが、その内の 1 試料が基準値を超過した。非流通品には 1,000 Bq/kg 以上の試料が 10 あり、最高は 9,800 Bq/kg のイノシシ肉であった。

乳児用食品は 50 Bq/kg の基準値が適用

される。乳児用食品の試料数は 615 あり、検出試料数は 0 であった。

天然山菜、天然きのこ、淡水魚、野生鳥獣肉は、山林にその起源をもつ天然品であり、これらの食品では、事故により広がった放射性セシウムがそのまま存在する状態が継続していると考えられる。これらの食品における検出率及び基準値超過率は、他の食品カテゴリよりも高かった。この傾向は、平成 23 年度～26 年度のデータでも明らかであった。環境中の放射性セシウムの食品への影響と、基準値を超える食品の監視のためには、淡水魚、天然きのこ、山菜、野生鳥獣肉のような食品の測定を継続していくことが重要と考えられる。しかし、これらの食品の検査数は必ずしも大きくなく、放射性セシウム検査が効率的に行われているとは考えられない。

基準値を超える試料の流通を防ぐためには、放射性セシウム濃度の高くなりやすい、きのこ、天然山菜、野生鳥獣肉のような、いまだ検出率が高い食品カテゴリの食品を重点的に検査することが重要と考えられる。

#### D. 結論

##### (1) 食品中の放射性物質の検査に係る信頼性保証手法の検討

法に基づいて行われる検査は、基本的にその結果によって何らかの行政措置が伴うものであるため、検査の分析値には一定の品質が要求される。分析値の品質保証において一般にパラメータとして用いられる不確かさについて、平成 25 年度は計数の統計による誤差を中心に、平成 26 年度は測定操作全体について検討した。その結果、

試料の計数値及びピーク計数効率に起因する不確かさの寄与が大きいことが予想された。平成 27 年度は、測定値の偏りを生じさせる因子として、試料と検出器の幾何学的位置関係であるジオメトリーを取り上げた。ジオメトリーは、計数の統計による誤差と同様に放射能測定に特有の因子である。放射性セシウムの汚染試料を用いて、空隙率や空隙部位を変えて測定試料を充填し、それらが測定結果に及ぼす影響を検討した。その結果、測定容器内の計数効率が高い部位に空隙がある場合は、測定結果は小さくなり、放射能濃度は低く算出され、逆に計数効率が低い部位に空隙がある場合は、高く算出されることを示した。また、一般的な機器分析と同様に、放射能濃度においても測定値は試料重量で除され補正されることを期待して、ジオメトリーを無視して試料量を規定量以上に充填した場合は、算出される重量あたりの放射能濃度が減少することを示した。

放射能検査は、一般化学分析と原理が異なるため分析上、特有の要因が存在するが、その性質が異なるだけであり、基本的な分析値の品質保証の考え方は同じである。放射能検査においても他の検査と同様に、全操作の不確かさ及び偏りを生じさせる要因を推定し、各操作及び各要因の最終結果に与える影響の大きさを理解し、評価していることが、分析値の品質を保証する上で重要と考えられる。

## (2) 食品中放射性物質の調理及び加工による影響の検討

本検討の結果、大豆の加工では、大豆の水戻しや豆乳調製の際の加水などによって、

加工前の乾燥大豆中の放射性セシウム濃度より加工後の豆乳やおから、豆腐、湯葉などの放射性セシウム濃度が高くなることはなかった。また、大豆から豆乳とおからを調製した場合、大豆中の放射性セシウムは豆乳に約 65%、おからに約 30%の割合で分配されることが明らかとなった。一方で、豆乳を加工前の原材料とすると、湯葉中の放射性セシウム濃度は豆乳中の放射性セシウム濃度よりも高くなることが判明した。これは、基準値を満たした豆乳を使用した場合においても、加工後の食品で基準値違反が発生する可能性を示唆しており、湯葉への加工の際には、豆乳中の放射性セシウム濃度に注意が必要である。

タケノコのおく抜きでは、重曹と米ぬかの添加物の違いによる差は認められなかったが、20 分間の加熱の後、ゆで汁中に 20 時間程度放置したことにより、タケノコ中の 80%の放射性セシウムが除去された。昨年度報告したワラビやゼンマイなどの山菜と同様、タケノコにおいても適切な前処理は、不味成分の除去にも、放射性セシウムの除去にも有用な工程であると考えられた。

ウメの砂糖漬けでは、ウメからシロップ中に 30~35%の放射性セシウムが移行することが明らかとなった。今回我々の検討では果汁の少ない小梅を用いたため、ウメの脱水が少なく、放射性セシウムのシロップへの移行も少なかったものと考えられた。ウメの砂糖漬けでは、ウメの脱水が多い場合には、ウメは摂取されず、主にシロップの方が利用されると考えられるが、ウメに水分が残っている状態ではウメも摂取される場合も多いと考えられる。ウメおよびシロップの両方を利用する場合、放射性セシ

ウムの除去という観点では、その効果は高くないと考えられた。

ウナギの蒲焼きについては、焼きの調理であることから、これまでの検討で明らかとしてきたように、放射性セシウムの除去にはほとんど効果がないことが明らかとなった。

### (3) 震災・津波による食品の化学物質汚染実態の調査

本年度は、津波被災地域（3 地域）および津波非被災地域（1 地域）からアイナメおよびカレイ・ヒラメを購入し、計 80 食品のポリ塩化ビフェニル類（PCBs）濃度実態を調査した。高分解能 GC-MS による PCBs 全 209 異性体分析の結果、総 PCBs 濃度は全ての試料において暫定的規制値（遠洋沖合魚介類：0.5 ppm）を下回っており、PCBs で高濃度に汚染された試料は認められなかった。一部の津波被災地域の間で総 PCBs 濃度に差が認められたが、本年度および 2014 年度に調査した津波非被災地域間の総 PCBs 濃度の差と比較するとその差は小さいことから、憂慮すべき必要はないと考えられた。総 PCBs 濃度に対する各同族体の割合を算出して解析したところ、ほとんどの試料において 4~7 塩素化 PCBs の構成割合が大きく、カネクロール（KC）由来の PCBs 同族体割合を反映した環境中の魚の同族体割合と類似していた。同族体割合が異なる試料も一部で認められ、異性体ごとの割合や主成分分析を用いた詳細な解析により、アゾ顔料の副生 PCB による汚染が疑われた。しかしながら、これらが津波の影響によるものであるかを判断するには至らなかった。津波非被災地域に

おいても、地域によって魚の PCBs 濃度に差が認められたことから、他の津波非被災地域の実態も把握し、これまでの結果と併せてより詳細に解析することが重要であると考えられる。

### (4) 震災によるリスクコントロールが必要となる化学物質の選定

前年からその傾向が見られていたが、放射性物質についての食品安全上の不安感は、これまで食品のリスクとみなされてきた残留農薬や食品添加物や BSE などと同じような程度と種類のものになっているようである。つまり放射性物質も残留農薬も食品添加物も BSE の原因となるプリオンも、理解は進んでいないが、食品中になくの方が良いと思っていて、基準値があるのであればそれを変える必要性は感じていない。またバランスの良い食生活や運動、喫煙、アルコールなどについての知識はあるが、そのメリットやデメリットについて、定量的には把握していない。これは普通の学校のカリキュラムでは食品安全について学ぶ機会がないので当然ではある。一方放射線教育の充実が推進されるなかで放射線に関する基礎的知識がそれほど身に付いているわけでもないことが伺える。生きるために必須の食についての基本的理解がないまま食品中の放射線基準について考えるのは無理がある。原子力発電所事故と関連するからというだけでは関心を持たせ続けるのは難しい時期になったことは、逆に言えば冷静になって落ち着いて食品をめぐる多様なリスクについてきちんと考える環境ができたということでもある。より広範な、長期的な食の安全のための情報提供を継続する方

法を探る必要性がある。

#### (5) 食品中放射性物質濃度データ解析による効率的検査計画の検討

効率的検査計画の検討のため、厚生労働省ホームページに公表された、食品中の放射性セシウム濃度データ 66,663 件を集計し、放射性セシウム検出率、基準値超過率、濃度の統計量を求めた。産地、食品カテゴリ別の集計も行った。基準値を超える食品の割合は 0.44%であった。流通する食品の基準値超過率は 0.15%で非常に低かったが、非流通食品では 0.63%であり、また非常に高濃度の試料も見られた。このことから、流通前の検査により、高濃度の放射性セシウムを含む食品が、効果的に流通から排除されていると考えられた。

山菜、きのこ、淡水魚、野生鳥獣肉は、検出率が 5%を超える食品カテゴリであり、山林にその起源をもつことが特徴である。これらの食品が生育する山林では、事故により広がった放射性セシウムがそのまま存在する状態が継続していると考えられる。現在有効に機能している、基準値を超える食品を流通させないための監視に加えて、山菜、きのこ、淡水魚、野生鳥獣肉のような食品中の放射性セシウムの検査を維持していくことが重要と考えられる。

#### E. 健康危険情報

なし

#### F. 研究発表

##### 1. 論文発表

- 1) Nabeshi H., Tsutsumi T., Uekusa Y., Matsuda R., Akiyama H., Teshima R.,

Hachisuka A.: Effects of Cooking Process on the Changes of Concentration and Total Amount of Radioactive Cesium in Beef, Wild Plants and Fruits., *Radioisotopes*. 65(2), 45-58 (2016)

- 2) 鍋師裕美: 調理加工による食品中の放射性セシウム量の低減効果について, *ILSI JAPAN*, 125, 4-12 (2016)
- 3) 畝山智香子、登田美桜: 世界各国のトランス脂肪酸のリスク評価について, *食品衛生研究*, 65(11), 15-25 (2015)
- 4) 蜂須賀暁子: 放射能分析における計数の統計的不確かさについて, *食品衛生学雑誌*, 67(2), J25-29 (2016)
- 5) Uekusa, Y., Takatsuki, S., Tsutsumi, T., Akiyama, H., Matsuda, R., Teshima, R., Hachisuka, A., Watanabe, T. Determination of polychlorinated biphenyls in marine fish obtained from tsunami-stricken areas of Japan. 投稿中.

##### 2. 学会発表

- 1) 鍋師裕美、堤 智昭、植草義徳、松田りえ子、蜂須賀暁子、手島玲子、穠山 浩: 牛肉・山菜類・果実類中の放射性セシウムの調理影響に関する検討. 第 52 回全国衛生化学技術協議会年会, 静岡. (2015.12)
- 2) Uekusa, Y., Takatsuki, S., Tsutsumi, T., Matsuda, R., Akiyama, H., Hachisuka, A., Teshima, R., and Watanabe, T. "Follow-up investigation of polychlorinated biphenyl concentrations in fish from tsunami-stricken areas of



Japan”, 35th International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (Dioxin 2015), São Paulo, Brasil, (2015.8).

- 3) 蜂須賀暁子: 食品及び空気中の放射性物質の測定法, フォーラム 2015 : 衛生薬学・環境トキシコロジー (2015.9)

### 3. その他

講演

- 1) 蜂須賀暁子: 食品及び環境試料中の放射性物質の分析法, 第14回表示・起源分析技術研究懇談会講演会 (2016.1)

## G. 知的財産権の出願・登録状況

### 1. 特許取得

なし

### 2. 実用新案登録

なし

### 3. その他

なし

## Ⅱ. 分 担 研 究 報 告

食品中の放射性物質の検査に係る信頼性評価手法の検討

曾我 慶介