

厚生労働行政推進調査事業費補助金
(食品の安全確保推進研究事業)

水産物食品中の放射性物質濃度等に関する研究

分担研究報告

分担研究者 青野 辰雄 (量子科学技術研究開発機構)

研究代表者 明石 真言 (東京医療保健大学)

研究要旨

平成 23 年 3 月に発生した東日本大震災に起因する東京電力福島第一原子力発電所(福島原発)事故によって大量の放射性物質が施設外の環境へ放出されたことにより、食品の摂取による内部被ばくが懸念された。このため、厚生労働省は、平成 24 年 4 月以降は、食品の摂取による介入線量レベルを年間 1 mSv とし、新たな基準値を適用した。新たな基準は、放射性セシウム(Cs)濃度について基準値を設定し、ストロンチウム-90 (^{90}Sr)、ルテニウム-106 (^{106}Ru) 及びプルトニウム-238 (^{238}Pu)、プルトニウム-239 (^{239}Pu)、プルトニウム-240 (^{240}Pu)及びプルトニウム-241 (^{241}Pu)については、放射性 Cs との濃度比を推定することにより、その線量への寄与を考慮している。その寄与率は、環境モニタリングや環境移行パラメータにより推定されており、また放射性 Cs 以外の ^{90}Sr などに対する内部被ばくの不安は依然として大きいことから、食品中の放射性核種濃度を測定することにより、安全が担保されていることを検証することが必要不可欠である。今年度は福島県水産海洋研究センターと相馬双葉漁業協同組合の協力を得て、福島沖で採取され、県内に流通する魚類 3 種を入手し、個体ごとに部位別の分別を行い、試料減容のために乾燥と灰化を行い、測定試料の作成を行った。魚類 3 種の可食部位中のセシウム-134 (^{134}Cs)濃度は検出下限値以下で、セシウム-137 (^{137}Cs)濃度は、福島県が実施しているモニタリングの検出下限値の 1 Bq/kg-生重量よりも十分に低い濃度であった。個体間による大きな濃度のばらつきも認められなかった。魚類を採取した海域の海水中の放射性 Cs を測定した結果、 ^{134}Cs 濃度は検出下限値以下で、 ^{137}Cs 濃度も福島原発事故以前に近い濃度(1-7 mBq/L) であった。この結果を用いて、すでに報告されている海水と魚類の濃縮比(CR)から魚類中の推定した ^{137}Cs 濃度範囲は、0.5-0.9 Bq/kg-生重量で、概ね一致しており、魚類中の ^{137}Cs 濃度範囲は生息環境の海水中濃度を反映していることが明らかとなった。

A. 研究目的

新たな基準は、放射性セシウム(Cs)濃度について基準値を設定し、ストロンチウム-90 (^{90}Sr)、ルテニウム-106 (^{106}Ru) 及びプルトニウム-238 (^{238}Pu)、プルトニウム-239 (^{239}Pu)、プルトニウム-240 (^{240}Pu)及びプルトニウム-241 (^{241}Pu)については、放射性Csとの濃度比を推定することにより、その線量への寄与を考慮している。そこで、本研究は食品中の放射性物質の基準値を策定する際に推定された放射性Csの線量への寄与率について、その妥当性を確認するために実施するものである。福島沖の海産物の放射性物質濃度のモニタリングでは、95%以上の水産物で放射性Cs濃度が検出下限値(約10Bq/kg-生重量)以下となっている^{1,2)}。今年度は福島第一原発事故から約11年が経過した福島県沖で漁獲された食品として流通する魚類について、部位毎の放射性核種の濃度比を明らかにすることを目的に、「水産物食品中の放射性物質濃度等に関する研究」を実施した。これまで、魚類中の可食部中の ^{90}Sr やPu同位体の濃度に関して調査を行ってきた。しかし、 ^{90}Sr やPu同位体の測定を行うためには、灰試料重量として約20-40gが必要で、個体毎の定量はできない。そこで、魚種毎の部位ごとに定量が可能となる試料の収集も行った。

B. 研究方法

1. 水産物中の放射性物質の濃度測定

1.1. 調査協力と水産物試料入手

福島県水産海洋研究センターと相馬双葉漁業協同組合の協力を得て、情報収集²⁾を行い、令和3年10月6日~29日に福島相双海域で採取し、市場に流通する魚介類3種(マダイ、スズキ及びイシガレイ)を本研究の対象とした。魚種、体長や重量などの試料に関する情報を表1に示す。調査を行った3種では、同種間で個体ごとの体長や重量に大きな差がでないように試料を選別した。また、海水中の放射性Cs濃

度についても調査するために、採水を行なった。

1.2. γ 核種の濃度の測定

魚類は、個体毎のばらつきを確認するために、体液等のドリップによる損失が少ないように速やかに、体長や重量等の計量を行い、可食部、内臓部、アラ部(可食部と内臓部以外)に分別処理を行った。110度で恒量になるまで乾燥し、450度で灰化を行なった。この灰試料をU8容器またはチューブに詰めて、Canberra社製低バックグラウンドGe半導体検出器(GX2019)等を用いて、24時間以上の γ 核種の測定を行った。Ge半導体検出器は、日本アイソトープ協会製の標準体積線源(5~50mm、9.5~95g、アルミナ)を用いて効率曲線を作成したものを用いた。 ^{134}Cs (604.7keV及び796keVの加重平均値)、 ^{137}Cs (661.7keV)及びカリウム-40(^{40}K)(1460keV)の定量結果を記録した。 ^{134}Cs は複数のエネルギーで検出されるために、これまでガンマ線放出率が最も高い604.7keV(97.62%)の定量結果を用いてきた。しかし、796keVのガンマ線放出率(85.5%)も他のガンマ線エネルギーより高いことから、この2つのエネルギーで検出された定量結果を加重平均したものが望ましいため³⁾、従来と同様に、この計算方法を用いた。なお ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 及び ^{40}K 以外の γ 核種は計測されなかった。試料重量が少ない場合は検出下限値が高くなるが、 ^{134}Cs 及び ^{137}Cs の検出下限値は、概ね10mBq/kg-生重量であった。海水試料は孔径0.45 μm のフィルターを用いてろ過を行い、溶存態放射性Csはリンモリブデン酸アンモニウム(AMP)法⁴⁾を用いて処理を行い、ゲルマニウム半導体検出器で測定を行った。検出下限値は、概ね1mBq/Lであった。

C. 研究結果

1. 水産物及び海水中の放射性物質の濃度測定

令和3年10月に入手した水産物中の放射性

Cs 及び ^{40}K 濃度測定の結果を表 2 と表 3 に示した。各部位の平均値は、検出された値と部位の重量を用いて加重平均したものであり、魚類全身(1 個体)の濃度も同様に計算をして求めた。マダイ、スズキ及びイシガレイから ^{134}Cs は検出されなかった。マダラ、スズキ及びイシガレイの可食部の ^{137}Cs 濃度平均(濃度範囲)は、それぞれ 0.44 Bq/kg-生重量(0.24-0.67 Bq/kg-生重量)、0.74 Bq/kg-生重量(0.56-0.95 Bq/kg-生重量) 及び 0.39 Bq/kg-生重量(0.22-0.63 Bq/kg-生重量) で、またマダイ、スズキ及びイシガレイの可食部の ^{40}K 濃度平均(濃度範囲)は、それぞれ 148 Bq/kg-生重量(141-159 Bq/kg-生重量)、121 Bq/kg-生重量(113-125 Bq/kg-生重量) 及び 140 Bq/kg-生重量(130-149 Bq/kg-生重量)であった。これらの値は、海洋環境における放射能調査及び総合評価事業で令和 3 年 9 月と令和 4 年 1 月に福島沖で採取された魚類の濃度と近似していた⁵⁾。

魚類が生息する海水中の放射性 Cs 濃度の結果を表 4 に示した。海水中の ^{134}Cs 濃度は検出下限値以下であった。 ^{137}Cs 濃度は、1-7 mBq/L であった。福島第一原発近傍から、または河川水の流入による影響と考えられる。

D. 考察

1. 福島沖海産生物中の放射性核種濃度について

令和 3 年 10 月に福島相双海域で採取したマダイ、スズキ、及びイシガレイから ^{134}Cs は検出されなかった。福島原発事故時に環境へ放出された ^{134}Cs と ^{137}Cs の放射能比は概ね 1:1 であったことが報告されている⁹⁾が、 ^{134}Cs と ^{137}Cs の物理学的半減期はそれぞれ約 2 年と 30 年であり、福島原発事故から約 11 年を経過した令和 4 年 1 月の時点では、計算上の ^{134}Cs / ^{137}Cs 放射能比は約 0.06 となる。試料中の放射性 Cs 濃度は低いことが予想されたため、検出下限値を下げるために、可食部、内臓部やアラ部の試料を灰

にすることで重量を約数%まで減容した。このいわゆる濃縮した試料中から検出された ^{137}Cs 濃度に、 ^{134}Cs / ^{137}Cs 放射能比を用いて計算した ^{134}Cs の推定濃度は検出下限値に相当した。つまり、今回得られた ^{137}Cs 濃度(数十 mBq/kg-生重量)の傾向が続く場合、さらに試料の前処理や濃縮操作を行わない限り ^{134}Cs を正確に検出することは難しいことが考えられる。

魚の部位ごとの重量と ^{137}Cs 濃度の比較を行った。個体重量に対する部位ごとの重量割合は、キアンコウを除き可食部が 40-50%、アラ部が 30-40%で、内臓部が 10-30%であった。魚全体に対する部位ごとの ^{137}Cs 存在量比は、可食部が 50-60%、アラ部が 20-30%で、内臓部が 15-25%であった。つまりアラ部は主として骨などの硬組織が含まれているために魚全体に占める重量の割合は約 50%であるが、体液など水分量が他の 2 つの組織に比べて低いために、アラ部中の ^{137}Cs 濃度が低いことが考えられる。魚全身中の ^{137}Cs 濃度は、可食部中の濃度に比べて 20-30%ほど低い値であった。これらの傾向は ^{40}K の場合も同じで、部位中 Cs および K 濃度は体液等に影響していることが考えられる。

魚類を採取した海域に近い沿岸における海水中の放射性 Cs 濃度は、 ^{134}Cs 濃度は検出下限値以下、 ^{137}Cs 濃度は 1-7 mBq/L であった。海産魚類の Cs の濃縮比(CR)⁹⁾を用いて、海水中の ^{137}Cs 濃度から魚類中の ^{137}Cs 濃度を推定すると、0.5-0.9 Bq/Kg-生重量と推定される。今回、分析した魚類中の ^{137}Cs 濃度範囲以下であり、概ね魚類中の放射性 Cs 濃度は環境水濃度を反映していたことが考えられる。

E. 結論

福島相双海域で採取し、市場流通する魚介類中の部位別の放射性 Cs と ^{40}K を定量した結果、魚類可食部で ^{134}Cs は検出下限値以下で、 ^{137}Cs 濃度範囲は検出下限値以下から 1.0 Bq/kg-生重量であった。魚

介類が生息する福島沿岸における海水中の放射性Csから海洋生物への濃縮比を用いて魚類中の放射性Cs濃度の推定を行ったところ、¹³⁷Cs濃度は環境水を反映していることが確認された。

全確保推進研究事業)食品中の放射性物質濃度の基準値に対する影響と評価手法に関する研究、平成27-29年度 総合研究報告書、明石 真言(量子科学技術研究開発機構)、2018.

引用文献

引用文献

- 1) 福島県: 海産魚介類に関する出荷制限等の措置一欄
<https://www.pref.fukushima.lg.jp/site/portal/ps-suisanka-monita-top.html>(2022年3月アクセス)
- 2) 魚介類の放射線モニタリング検査に関する結果:
<https://www.pref.fukushima.lg.jp/site/portal/monitoring.html>(2022年3月アクセス)
- 3) 米沢 伸四郎 他:Ge 検出器-γ線スペクトロメトリによる玄米認証標準物質中¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs及び⁴⁰Kの分析-第1部 放射能濃度の定量-. 分析化学 65, 645-655, 2016.
- 4) Aoyama, M. and Hirose, K. (2008) Radioact. in the Environ. 11, 137-162.
- 5) 公益財団法人海洋生物環境研究所、令和3年度原子力施設等防災対策等委託費(海洋環境における放射能調査及び総合評価)事業 調査報告書、令和4年3月.
- 6) 小森 昌史 他:¹³⁴Cs/¹³⁷Cs 放射能比を指標とした福島第一原子力発電所事故に由来する放射性核種の放出原子炉別汚染評価、BUNSEKI KAGAKU 62, 475-483, 2013.
- 7) 立田 穰、海産生物への放射性セシウム移行に関するモデル解析について、Isotope News No.719, 32-36, 2014.
- 8) IAEA, Technical Reports Series No.422: Sediment Distribution Coefficients and Concentration Factors for Biota in the Marine Environment, p.36, 2004
- 9) 厚生労働行政推進調査事業費補助金(食品の安

F. 健康危険情報

なし

G.研究業績

1. Tatsuo Aono (2021) Impact on marine products (The QST webinar series on radiation emergency medicine 2021: Follow-up seminoir (2), リモート講演.

H. 知的財産権の出願・登録状況

なし

表1 福島相双海域で採取した魚介類のリスト

魚種	番号	全長	体長	個体		部位別生重量	
				生重量	可食部	アラ部	内臓部
				cm	cm	kg	kg
マダイ	採取日 令和3年10月6日						
	RSB-1	46.0	42.0	1.19	0.51	0.61	0.07
	RSB-2	49.0	45.0	1.19	0.52	0.58	0.09
	RSB-3	48.0	44.0	1.49	0.63	0.73	0.13
	RSB-4	46.0	42.0	1.15	0.49	0.60	0.07
	RSB-5	47.0	42.5	1.39	0.61	0.68	0.10
スズキ	採取日 令和3年10月6日						
	SB-1	56.5	48.0	1.56	0.68	0.71	0.16
	SB-2	51.0	44.0	1.33	0.59	0.63	0.11
	SB-3	52.0	45.0	1.44	0.69	0.66	0.09
	SB-4	44.5	39.0	1.53	0.76	0.62	0.15
	SB-5	49.0	41.5	1.16	0.52	0.52	0.12
イシガレイ	採取日 令和3年10月29日						
	SF-1	43.0	37.0	1.47	0.84	0.50	0.13
	SF-2	36.0	30.0	1.00	0.52	0.38	0.11
	SF-3	37.0	32.0	1.48	0.60	0.73	0.15
	SF-4	40.5	35.5	1.57	0.88	0.51	0.18
	SF-5	42.5	37.5	1.26	0.65	0.49	0.12

表2 福島相双海域で採取した魚介類中のCs-137濃度

魚種	番号	全身 ¹⁾		可食部		アラ部		内臓部	
		Bq/kg-生重量	err	Bq/kg-生重量	err	Bq/kg-生重量	err	Bq/kg-生重量	err
マダイ	RSB-1	0.24	± 0.02	0.31	± 0.02	0.17	± 0.01	0.39	± 0.04
	RSB-2	0.20	± 0.05	0.24	± 0.03	0.16	± 0.02	0.29	± 0.37
	RSB-3	0.27	± 0.02	0.33	± 0.02	0.21	± 0.02	0.37	± 0.03
	RSB-4	0.51	± 0.03	0.67	± 0.04	0.38	± 0.02	0.50	± 0.07
	RSB-5	0.45	± 0.03	0.64	± 0.03	0.30	± 0.02	0.35	± 0.05
	平均値 ²⁾	0.33	± 0.03	0.44	± 0.03	0.24	± 0.02	0.37	± 0.11
スズキ	SB-1	0.39	± 0.02	0.56	± 0.03	0.27	± 0.02	0.20	± 0.02
	SB-2	0.64	± 0.03	0.89	± 0.04	0.47	± 0.03	0.30	± 0.04
	SB-3	0.48	± 0.02	0.65	± 0.02	0.33	± 0.01	0.29	± 0.03
	SB-4	0.73	± 0.02	0.95	± 0.02	0.52	± 0.02	0.42	± 0.02
	SB-5	0.43	± 0.03	0.62	± 0.04	0.28	± 0.02	0.21	± 0.04
	平均値 ²⁾	0.52	± 0.02	0.74	± 0.03	0.35	± 0.02	0.28	± 0.03
イシガレイ	SF-1	0.19	± 0.01	0.22	± 0.01	0.12	± 0.02	0.19	± 0.02
	SF-2	0.23	± 0.02	0.29	± 0.02	0.16	± 0.01	0.17	± 0.02
	SF-3	0.32	± 0.02	0.43	± 0.03	0.23	± 0.01	0.32	± 0.03
	SF-4	0.49	± 0.02	0.63	± 0.02	0.34	± 0.01	0.17	± 0.02
	SF-5	0.26	± 0.01	0.34	± 0.01	0.16	± 0.01	0.17	± 0.03
	平均値 ²⁾	0.30	± 0.02	0.39	± 0.02	0.21	± 0.01	0.21	± 0.02

1) 全身中のCs-137濃度は、可食部、アラ部および内臓部中のCs-137合計量と個別重量から計算した。

2) 平均値は、全身中のCs-137濃度と個体重量のから加重平均により計算した。

表3 福島相双海域で採取した魚介類中の⁴⁰K濃度

魚種	番号	全身 ¹⁾		可食部		アラ部		内臓部	
		Bq/kg-生重量	err	Bq/kg-生重量	err	Bq/kg-生重量	err	Bq/kg-生重量	err
マダイ	RSB-1	110.5	± 0.9	148.9	± 1.2	81.2	± 0.6	83.7	± 1.4
	RSB-2	118.8	± 1.3	158.5	± 1.7	88.6	± 0.9	82.4	± 2.2
	RSB-3	107.4	± 1.2	145.4	± 1.4	78.9	± 1.0	82.9	± 1.1
	RSB-4	110.8	± 1.2	141.7	± 1.5	86.5	± 0.8	104.4	± 1.6
	RSB-5	114.4	± 1.2	145.0	± 1.5	91.2	± 0.8	87.2	± 1.9
	平均値 ²⁾	112.2	± 1.2	147.8	± 1.5	85.1	± 0.8	87.1	± 1.6
スズキ	SB-1	88.2	± 1.0	116.9	± 1.2	70.5	± 0.9	44.9	± 0.7
	SB-2	103.4	± 1.2	113.2	± 1.3	66.0	± 1.2	51.9	± 1.2
	SB-3	96.1	± 0.8	124.3	± 1.0	72.9	± 0.6	53.1	± 1.0
	SB-4	99.9	± 0.9	125.1	± 1.0	72.4	± 0.7	84.0	± 0.9
	SB-5	87.7	± 1.2	121.7	± 1.5	65.1	± 0.8	36.8	± 1.0
	平均値 ²⁾	100.0	± 1.0	120.5	± 1.2	69.6	± 0.9	55.0	± 0.9
イシガレイ	SF-1	126.9	± 1.0	149.4	± 1.0	96.4	± 0.9	96.6	± 1.1
	SF-2	117.0	± 1.0	139.8	± 1.2	90.5	± 0.7	98.2	± 1.0
	SF-3	94.6	± 0.7	130.1	± 0.7	68.2	± 0.5	81.4	± 1.2
	SF-4	121.2	± 0.9	149.0	± 1.0	93.3	± 0.6	62.3	± 0.8
	SF-5	121.7	± 0.8	149.4	± 0.8	88.3	± 0.6	107.9	± 1.2
	平均値 ²⁾	116.1	± 0.8	140.1	± 1.1	81.0	± 0.7	74.1	± 1.0

1) 全身中の⁴⁰K濃度は、可食部、アラ部および内臓部中の⁴⁰K合計量と個別重量から計算をした。

2) 平均値は、全身または各部中の⁴⁰K濃度と個別重量から加重平均により計算をした。

表4 福島沿岸における海水中の放射性Cs濃度

試料番号	採取点	位置 北緯	東経	採取日時	Cs-134 ¹⁾	Cs-137	mBq/L
1	NO-1 水深 5m	37° 30'	141° 30'	令和3年10月20日	検出下限値以下	1.14 ±	0.09
2	NO-1 水深 50m	37° 30'	141° 30'	令和3年10月20日	検出下限値以下	1.13 ±	0.09
3	NO-1 水深 126m	37° 30'	141° 30'	令和3年10月20日	検出下限値以下	1.50 ±	0.11
4	福島原発近傍沖	37° 26'	141° 03'	令和3年5月7日	検出下限値以下	4.87 ±	0.35
5	福島原発近傍沖	37° 26'	141° 03'	令和3年6月9日	検出下限値以下	2.93 ±	0.28
6	福島原発近傍沖	37° 26'	141° 03'	令和3年9月15日	検出下限値以下	2.50 ±	0.36
7	福島原発近傍沖	37° 26'	141° 03'	令和3年10月28日	検出下限値以下	6.91 ±	0.40
8	いわき市四倉沖	37° 03'	141° 01'	令和3年4月12日	検出下限値以下	2.06 ±	0.24
9	いわき市四倉沖	37° 03'	141° 01'	令和3年5月7日	検出下限値以下	2.97 ±	0.27
10	いわき市四倉沖	37° 03'	141° 01'	令和3年6月7日	検出下限値以下	2.56 ±	0.28
11	いわき市四倉沖	37° 03'	141° 01'	令和3年7月2日	検出下限値以下	2.99 ±	0.35
12	いわき市四倉沖	37° 03'	141° 01'	令和3年8月20日	検出下限値以下	2.38 ±	0.32
13	いわき市四倉沖	37° 03'	141° 01'	令和3年9月3日	検出下限値以下	1.72 ±	0.29
14	いわき市四倉沖	37° 03'	141° 01'	令和3年10月8日	検出下限値以下	6.68 ±	0.39
15	いわき市四倉沖	37° 03'	141° 01'	令和3年11月5日	検出下限値以下	3.59 ±	0.37
16	いわき市四倉沖	37° 03'	141° 01'	令和3年12月2日	検出下限値以下	2.31 ±	0.37

1) ¹³⁴Csの検出下限値は、1.5-1.9 mBq/Lである。