調査・資料

名古屋市におけるトータルダイエツト試料の分析による
放射性セシウム摂取量の推定

(平成24年11月28日受理)

宮崎 仁志* 加藤 陽康 加藤友香里 土山 智之 寺田 久屋

Estimation of the Intake of Radioactive Cesium Based on
Analysis of Total Diet Samples in Nagoya

Hitoshi MIYAZAKI*, Haruyasu KATO, Yukari KATO, Tomoyuki TSUCHIYAMA and Hisaya TERADA

Nagoya City Public Health Research Institute: 1-11 Hagiyama-cho,
Mizuho-ku, Nagoya 467-8615, Japan;

* Corresponding author

Food samples were purchased in Nagoya based on daily intake in the Tokai region, and prepared as total diet samples according to the market basket method. The contents of radioactive cesium (Cs) were determined by using a γ -ray spectrometer with a germanium semiconductor detector, and a committed effective dose was estimated. Radioactive Cs was not detected in samples collected in 2006 before the Fukushima nuclear plant accident. Radioactive Cs was detected in samples prepared in August, 2011, five months after the accident. The sources were sugar and confectioneries (3rd food group), other vegetables, seaweeds and mushrooms (8th food group) and fishes, shellfishes and processed seafoods (10th food group). Only Cs-137 was detected in samples prepared in August, 2012, one year and five months after the accident. The sources were the 8th and the 10th food groups. The estimated committed effective dose for radioactive Cs was 0.0015 mSv in 2011 and 0.00016 mSv in 2012.

(Received November 28, 2012)

Key words: 放射性セシウム radioactive cesium; マーケットバスケット方式 market basket method; ガンマ線スペクトロメトリー γ -ray spectrometry; ゲルマニウム半導体検出器 germanium semiconductor detector; 預託実効線量 committed effective dose

緒言

当市では、1986年4月に発生したチェルノブイリ原子力発電所事故による放射能汚染輸入食品対策として、食品中の放射性物質検査を1989年から開始した。当所には高純度ゲルマニウム (Ge) 半導体検出器を接続したガンマ線スペクトロメータが設置され、2011年度までの23年間に1,151検体の検査を行った。いずれも輸入食品の放射能暫定限度値である370 Bq/kg以下であった。

2011年3月11日に発生した東日本大震災は、東京電力福島第一原子力発電所事故（以下、福島原発事故）による放射性物質の拡散という深刻な事態を引き起こした。当所では同年3月30日から福島原発事故対応の食品の放射性物質検査を開始し、2012年10月末までに300検体の検査を行った。これまでに暫定規制値および2012年4月から

施行された新基準値を超えるものは発見されていない。

国や全国の自治体においても食品の放射性物質検査が行われ、その結果については厚生労働省ホームページ^{*1}等で公表されている。これらの多くは個別品目についての検査結果であるため、日常の食事からの放射性物質摂取量を評価することも意義があると思われる。マーケットバスケット (MB) 方式^{*2, *3}や陰膳法^{1), *4}による摂取量調査結果が報告されているが、名古屋市を含む東海地域において福島原発事故後に日常食からの放射性物質摂取量の調査を

*1 http://www.mhlw.go.jp/seisakunitsuite/bunya/kenkou_iryuu/shokuhin/houshasei/index.html

*2 蜂須賀暁子。"食品中の放射性物質の摂取量調査", 平成24年度厚生労働科学研究 (食品の安全確保推進研究) シンポジウム「食品の安全を考える」講演要旨集, 2012, p. 25-31.

*3 杉山英男, 寺田 宙, 小谷野道子, 飯島育代, 三宅定明。"食品由来の放射性核種の暴露評価研究", 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, 2012, p. 69-108.

*4 <http://www.jccu.coop/topics/radiation/intakeresult.html>

* fdeiken@sa.starcat.ne.jp

名古屋市衛生研究所: 〒467-8615 名古屋市瑞穂区萩山町1-11

行った報告はまだ見られない。

今回われわれは、東海地域の一日摂取量に基づいて市内で食品を購入し、調製したMB方式によるトータルダイエット (TD) 試料について、放射性Cs濃度を測定して福島原発事故前後における放射性Csの一日摂取量ならびに被ばく線量 (預託実効線量) の評価を行ったので報告する。

実験方法

1. 試料

厚生労働科学研究「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」において調製し、 -30°C で冷凍保存したものを用いた。調製方法は以下のとおりである。

2006年、2011年および2012年の8月に、名古屋市内のスーパーマーケットで食品を購入した。購入にあたり使用した東海地域の摂取量データは、2006年は平成13 (2001)・平成14 (2002) 年度国民栄養調査結果および平成15 (2003) 年度国民健康・栄養調査結果の平均値、2011年は平成19 (2007) 年度の、2012年は平成20 (2008) 年度の国民健康・栄養調査結果である。飲料水を除く食品 (全13群) を食品群ごとに、焼く・ゆでる等の調理を行った後、必要に応じて蒸留水を加え、均一に混合した。14群 (飲料水) は水道水を使用した。なお、2006年の4群 (油脂類) および14群、2011年の14群については保存試料がなく、測定できなかった。

2. 試薬等

機器校正用の核種標準線源は、公益社団法人日本アイソトープ協会製の放射能標準ガンマ体積線源 (アルミナ) MX033MR-0.7Lマリネリタイプを用いた。測定容器は、0.7Lのアクリル製マリネリ容器 (スギヤマゲン(株)製 MAX-Y07) に専用の使い捨て内袋 (スギヤマゲン(株)製マリネリパウチ MAX-07) を挿入して用いた。

3. 機器

高純度Ge半導体検出器 (ORTEC社製 GEM-25185-P, 相対効率: 25.1%, コバルト-60 (^{60}Co) の半値幅分解能: 1.66 keV) 付きガンマ線スペクトロメータ (No.1) および高純度Ge半導体検出器 (ORTEC社製 GEM20-70, 相対効率: 21.6%, ^{60}Co の半値幅分解能: 1.89 keV) 付きガンマ線スペクトロメータ (No. 2) を使用した。いずれも多重波高分析器 (SEIKO EG&G社製 MCA7600) およびガンマ線スペクトル分析ソフトウェア (SEIKO EG&G社製「ガンマスタジオ」および「環境ガンマ線核種分析」) が付属する。

4. 測定方法

バックグラウンド補正は、各ガンマ線スペクトロメータの遮へい体内に試料を入れない状態で300,000秒測定して作成したバックグラウンドファイルを使用した。

各食品群の試料をマリネリ容器に充てんした。容量が0.7 Lに満たない場合は、蒸留水を加えて混合し、均一化

した。4群 (油脂類) には蒸留水に代えてエタノール:1-ブタノール (6:4) 混液を用いた。試料を充填した容器をチャック付ポリ袋に入れ、ガンマ線スペクトロメータ No. 1を用いた場合は160,000秒、No. 2を用いた場合は240,000秒測定した。試料量が0.7 Lに足りず、測定時に蒸留水等を加えた試料は検出限界値が高くなることが想定されたため、適宜測定時間を延長した。スペクトルファイルを得た後、試料中の放射性物質 (^{134}Cs , ^{137}Cs およびカリウム-40 (^{40}K)) 濃度を求めた。定量には、 ^{134}Cs は604.7 keV, ^{137}Cs は661.6 keV, ^{40}K は1,460.7 keVの γ 線を用いた。ピーク面積の計算はコベル法により行った。試料材質は水に設定し、自己吸収補正を行った。 ^{134}Cs にはサム効果補正を行った。減衰補正計算に用いる試料採取年月日は、各年の食材購入日から任意の1日を選定し、時間は12:00:00とした。放射性物質の一日摂取量は、放射性物質濃度 (Bq/kg) に一日摂取量 (g/日) を乗じ、TD試料の調製および測定試料容量の調整に使用した蒸留水等による重量増加を加味して計算した。1年当たりの預託実効線量 (mSv) は、放射性物質の一日摂取量 (Bq/日) に各放射性核種の成人一経口摂取における実効線量係数 (Sv/Bq), 365 (日) および 10^{-3} を乗じて算出した。実効線量係数はICRP (International Commission on Radiological Protection: 国際放射線防護委員会) の数値 (^{134}Cs : 1.9×10^{-8} , ^{137}Cs : 1.3×10^{-8} , ^{40}K : 6.2×10^{-9}) を使用した²⁾。放射能測定値が不検出 (検出限界以下) となった食品群は預託実効線量の計算から除外した。

結果および考察

1. 各食品群の放射性物質濃度

各食品群の試料調製に使用した食品数、一日摂取量、TD調製試料の最終重量 (一日量) および放射性物質測定に使用した試料重量をTable 1に、放射性物質濃度をTable 2に示した。放射性物質濃度が不検出 (検出限界以下) となった試料は、検出限界値を「<」を付けて示した。

本調査では、放射性Csの検出限界を0.1 Bq/kgとすることを目標にして測定条件を設定した。その結果、試料約700 g (0.7 Lマリネリ容器使用)、160,000秒 (検出器No. 1) あるいは240,000秒 (検出器No. 2) の測定時間における検出限界値は、2012年調製試料の全14群の平均で、 ^{134}Cs および ^{137}Cs が0.092 Bq/kg, ^{40}K が1.6 Bq/kgであった。本調査では福島原発事故前後の放射性Csによる被ばく線量を評価するため、試料購入時への減衰補正を行った。解析ソフトウェアは減衰補正を検出限界値の計算にも適用するため、試料購入から時間の経過した試料ほど検出限界値が大きくなる傾向があった。半減期2.06年^{*6}の ^{134}Cs で顕著であり、平均値で2011年が0.11 Bq/kg, 2006年が0.70 Bq/kgであった。

^{*6} 核種の半減期は、解析に使用した「ガンマ線スペクトル分析ソフトウェア」で設定された数値である。

Table 1. Number of food items, daily intake amount and sample weight in each food group

Food group No.	Food group	2006					2011					2012				
		No. of foods included	Daily intake amount ^{a)} (g)	Prepared sample weight (g)	Determined sample weight (g)	No. of foods included	Daily intake amount ^{b)} (g)	Prepared sample weight (g)	Determined sample weight (g)	No. of foods included	Daily intake amount ^{c)} (g)	Prepared sample weight (g)	Determined sample weight (g)	No. of foods included	Daily intake amount ^{c)} (g)	Determined sample weight (g)
1	Rice and processed products	4	347.1	527.1	419.7 (+261.9) ^{d)}	4	324.5	464.5	225.2 (+458.2)	4	344.4	484.4	427.3	4	344.4	427.3
2	Cereals, potatoes and nuts	19	171.5	263.0	408.9 (+248.4)	19	164.5	258.8	679.3	19	165.2	264.2	529.1 (+126.0)	19	165.2	529.1 (+126.0)
3	Sugar and confectioneries	15	34.5	46.2	542.1 (+158.4)	15	36.2	47.1	443.8 (+228.6)	15	31.0	41.9	190.3 (+459.0)	15	31.0	190.3 (+459.0)
4	Oils and fats	5	10.8	10.8	ND	6	10.0	10.0	212.0 (+313.9)	5	9.4	9.4	562.2	5	9.4	562.2
5	Pulses and processed products	11	55.9	60.2	511.3 (+134.0)	11	57.0	67.1	651.4	11	57.6	65.5	688.3	11	57.6	688.3
6	Fruits	12	120.0	120.0	420.4 (+247.7)	12	105.8	105.8	580.4 (+61.8)	12	110.0	110.0	635.8 (+16.3)	12	110.0	635.8 (+16.3)
7	Colored vegetables	9	89.7	80.2	470.9 (+169.9)	9	97.4	92.4	594.3 (+67.1)	9	93.3	85.0	666.4	9	93.3	666.4
8	Other vegetables, seaweeds and mushrooms	16	196.8	188.8	408.9 (+178.2)	16	200.3	188.5	331.2 (+316.1)	16	195.1	178.9	653.0	16	195.1	653.0
9	Preference beverages	12	554.7	554.7	456.7 (+156.0)	15	659.7	659.7	637.1	15	579.0	579.0	623.4	15	579.0	623.4
10	Fishes, shellfishes and processed seafoods	42	84.4	113.4	688.2 (+3.1)	42	76.8	99.8	615.7 (+70.3)	42	72.9	92.0	664.7	42	72.9	664.7
11	Meat and eggs	22	114.9	134.9	593.3 (+56.1)	18	114.3	128.0	579.9 (+76.3)	24	113.3	126.5	650.5	24	113.3	650.5
12	Milk and dairy products	12	156.7	156.7	284.0 (+355.7)	12	123.8	123.8	629.7 (+20.2)	12	102.6	102.6	628.0	12	102.6	628.0
13	Seasoning	15	84.5	84.5	650.5 (+53.3)	15	97.3	97.3	604.3 (+102.8)	15	95.4	95.4	730.2	15	95.4	730.2
14	Water	1	250.0	250.0	ND	1	250.0	250.0	ND	1	250.0	250.0	647.8	1	250.0	647.8

ND: Not determined

The "daily intake amount" data were based on the results for the Tokai region in the consumption data of the National Health and Nutrition Survey. Surveys were carried out in 2001–2003^{a)}, 2007^{b)}, 2008^{c)}.

Purchase date: 14–28 Aug. 2006, 22 Aug.–1 Sep. 2011, 20–28 Aug. 2012

^{d)} (+) : Weight of added distilled water for adjusting the sample volume

Table 2. Contents of radioactive cesium and K-40 in various total diet samples

Food group No.	2006			2011			2012		
	Cs-134 (Bq/kg)	Cs-137 (Bq/kg)	K-40 (Bq/kg)	Cs-134 (Bq/kg)	Cs-137 (Bq/kg)	K-40 (Bq/kg)	Cs-134 (Bq/kg)	Cs-137 (Bq/kg)	K-40 (Bq/kg)
1	<0.683	<0.104	3.34	<0.0785	<0.0549	1.96	<0.146	<0.151	5.09
2	<0.737	<0.108	22.4	<0.128	<0.0983	27.0	<0.0917	<0.101	24.2
3	<0.573	<0.0806	33.0	0.177	0.309	27.6	<0.0631	<0.0580	10.9
4	ND	ND	ND	<0.0941	<0.0697	<1.21	<0.0809	<0.0752	1.67
5	<0.791	<0.124	71.6	<0.124	<0.0837	73.1	<0.0925	<0.102	68.0
6	<0.640	<0.0847	34.0	<0.108	<0.0819	47.4	<0.0975	<0.103	57.6
7	<0.768	<0.118	59.3	<0.113	<0.0802	78.4	<0.103	<0.104	82.3
8	<0.653	<0.0916	47.6	0.166	0.170	33.1	<0.0874	0.136	61.4
9	<0.765	<0.122	5.81	<0.133	<0.102	8.43	<0.0780	<0.0734	8.69
10	<0.652	<0.0919	54.4	0.410	0.504	57.0	<0.0866	0.105	52.2
11	<0.667	<0.0924	52.4	<0.130	<0.101	52.9	<0.0854	<0.0790	50.6
12	<0.713	<0.113	19.7	<0.111	<0.0800	46.9	<0.0981	<0.103	47.0
13	<0.703	<0.113	80.6	<0.124	<0.0950	57.2	<0.0834	<0.0744	74.6
14	ND	ND	ND	ND	ND	ND	<0.0900	<0.0989	<2.25

ND: Not determined

Determination date: 26 Jul.–5 Nov. 2012

Base dates of calculation for decay compensation: 15 Aug. 2006 at 12:00:00, 22 Aug. 2011 at 12:00:00, 20 Aug. 2012 at 12:00:00

福島原発事故以前の2006年に調製した試料では、放射性Csは不検出であった。

事故から5か月後の2011年8月に調製した試料では、3群（砂糖、菓子類）、8群（その他野菜、海藻、きのこ類）および10群（魚介類）から¹³⁴Csおよび¹³⁷Csが検出された。半減期の短い¹³⁴Csが検出されたことから福島原発事故の影響が示唆された。8群および10群には、各地の放射性物質検査で検出例が報告されている*1きのこ類や魚が含まれるため、これらの食品に由来する可能性が考えられる。前述したとおり、14群（水道水）は保存試料がなく測定できなかった。2011年の名古屋市の水道水（蛇口水）について、愛知県が環境放射能調査（文部科学省委託事業）の一環としてGe半導体検出器による核種分析を行っている*7。2011（平成23）年3月18日から12月27日の毎日、2Lを採取して測定を行い、すべて不検出（検出下限値：約0.1 Bq/L）と報告している。このことから、2011年8月の水道水では、本調査の測定方法によっても不検出であった可能性が高いと考えられる。

事故から1年5か月後の2012年8月に調製した試料では8群および10群から¹³⁷Csのみが検出され、2011年より低い傾向であった。¹³⁴Csは不検出であった。事故から1年5か月が経過し、半減期2.06年の¹³⁴Csは事故当初の62%程度に減少していることが推測される。¹³⁷Csが検出された食品群が3から2となり濃度も低い傾向にあることや、¹³⁴Csが不検出であったことの要因として、食品の汚染範囲の縮小および減衰による汚染程度の低下が推察された。

2. 名古屋市における放射性物質の摂取量

¹³⁴Cs、¹³⁷Csおよび⁴⁰Kの一日摂取量および預託実効線量をTable 3に示した。放射性Csの預託実効線量は、2011年が0.0015 mSv、2012年が0.00016 mSvであった。⁴⁰Kの預託実効線量は0.16～0.18 mSvであり、年間で差は見られなかった。

杉山らはTD試料の分析により放射性核種の摂取量と被ばく線量を調査し、2004年および2010年の名古屋市における¹³⁷Csの預託実効線量を、それぞれ0.00020 mSvおよび0.00010 mSv（¹³⁴Csの寄与はなし）、⁴⁰Kは両年ともに0.17 mSvと評価している*3。杉山らはこれらの数値に関して、検出限界値および食品群別の濃度について言及していない。測定には灰化試料を用い、測定時間は80,000～300,000秒としている。そのため検出感度が高くなり、低いレベルの預託実効線量を評価できたものと思われる。杉山らの数値、すなわち2010年の0.00010 mSvを基に本調査の結果と比較すると、2011年が15倍、2012年は1.6倍であった。事故後の放射性Csの預託実効線量が、名古屋市においても大きく上昇していたことが明らかとなった。

蜂須賀は2011年に東京都、宮城県および福島県の3か所でMB方式による摂取量調査の結果を報告している*2。試料量約2 kg（2 Lマリネリ容器を使用）、24時間の測定により、検出限界は放射性Csが0.05 Bq/kg程度、⁴⁰Kが0.5 Bq/kg程度であったとしている。放射性Csの預託実効線量は、東京都で0.0024 mSv、宮城県で0.018 mSv、福島県で0.019 mSvであった。⁴⁰Kは0.18～0.20 mSvであり、地域間で差はなかったとしている。本調査による2011年の名古屋市における放射性Csの預託実効線量は、福島県、宮城県および東京都より小さかった。これは、地理的な要因、すなわち福島第一原発からの距離の差が影響していることが一因と考えられる。

*7 <http://www.pref.aichi.jp/cmsfiles/contents/0000006/6579/h23.pdf>

Table 3. Daily intakes of radioactive cesium and K-40 in various total diet samples and committed effective dose

Food group No.	2006			2011			2012		
	Cs-134 (Bq/day)	Cs-137 (Bq/day)	K-40 (Bq/day)	Cs-134 (Bq/day)	Cs-137 (Bq/day)	K-40 (Bq/day)	Cs-134 (Bq/day)	Cs-137 (Bq/day)	K-40 (Bq/day)
1	—	—	2.85	—	—	2.76	—	—	2.47
2	—	—	9.48	—	—	7.00	—	—	7.92
3	—	—	1.97	0.0127	0.0221	1.97	—	—	1.56
4	ND	ND	ND	—	—	—	—	—	0.0157
5	—	—	5.44	—	—	4.91	—	—	4.45
6	—	—	6.49	—	—	5.55	—	—	6.50
7	—	—	6.47	—	—	8.06	—	—	7.00
8	—	—	12.4	0.0610	0.0625	12.2	—	0.0243	11.0
9	—	—	4.33	—	—	5.56	—	—	5.03
10	—	—	6.19	0.0456	0.0561	6.33	—	0.00962	4.80
11	—	—	7.74	—	—	7.66	—	—	6.40
12	—	—	6.96	—	—	5.99	—	—	4.82
13	—	—	7.37	—	—	6.51	—	—	7.11
14	ND	ND	ND	ND	ND	ND	—	—	—
Total daily intake ^{a)} (Bq/day)	—	—	78	0.12	0.14	74	—	0.034	69
Committed effective dose ^{b)} (mSv)	—	—	0.18	0.00083	0.00067	0.17	—	0.00016	0.16

ND: Not determined

^{a)} Total daily intakes are the sum of daily intakes in all food groups.Daily intake (Bq/day) = radioactive nuclide content (Bq/kg) $\times 10^{-3} \times$ prepared sample weight (g) $\times$ determined sample weight (+ water) (g) / determined sample weight (− water) (g)^{b)} Committed effective dose (mSv) = total daily intake (Bq/day) $\times 365$ (day) $\times$ effective dose coefficient (Sv/Bq) $\times 10^{-3}$

本調査により、福島原発事故の影響が名古屋市内を流通する食品にも及んでいたことが明らかになった。一方では、2011年から2012年の1年間で減少傾向にあることが示唆された。品目別の放射性物質濃度と同様に日常の食事からの被ばくに関する消費者の関心も高く、今後も調査を継続していく必要があると思われる。

文 献

- 1) Wada, I. Correspondence to radioactivity issues of food retailers and distributors, mainly about Japanese consumers' co-operative union. Shokuhin Eiseigaku Zasshi (Food Hyg. Saf. Sci.), **53**, J380–J384 (2012).
- 2) International Commission on Radiological Protection. ICRP Publication 72, "Age-dependent Doses to the Members of the Public from Intake of Radionuclides: Part 5 Compilation of Ingestion and Inhalation Coefficients". Ann. ICRP, **26**(1), (1995).