

2015年に採取して干した野生キノコの放射性セシウム (Cs) の溶出速度

山口 敏朗*, 新井 宏受, 大沼 透, 荒井 宏, 田久 創大, 松山 哲生, 石井 慶造

東北大学大学院工学研究科 (〒 980-8579 宮城県仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6-01-2)

Radioactive Cesium Elution Speed in Dried Wild Mushrooms Collected in 2015

Toshiro YAMAGUCHI*, Hirotosugu ARAI, Tohru OHNUMA, Hiromu ARAI,
Sodai TAKYU, Tetsuo MATSUYAMA, and Keizo ISHII

Department of Quantum Science and Energy Engineering Tohoku University
(6-6-01-2 Aramaki, Aza-Aoba, Aoba-ku, Sendai, Miyagi 980-8579, Japan)

Summary

Dried wild mushrooms (12 species, 13 samples) collected in Nagano, Fukushima, and Miyagi Prefectures, Japan, in 2015 were immersed in water for 1,440 min. The elution rate of radioactive cesium (Cs) was calculated based on its radioactivity, which was measured with a high-purity germanium semiconductor detector (GX2018; CANBERRA Industries, Meriden, CT, USA) before and after immersion for each mushroom. Immersion fluid was sampled after 10, 30, 60, 180, 360, and 1,440 min of immersion and dried on aluminum foil. Then, imaging plates (BAS-III, Fujifilm, Tokyo, Japan) exposed to the dried immersion fluid were measured with a Bio-imaging Analyzer System-1800 II (Fujifilm). The 50% elution time of each wild mushroom was calculated based on the photo stimulated luminescence density of the autoradiographs. The radioactive Cs elution rate was > 80% for 11 samples (84% of total) comprising 11 mushroom species. Moreover, the 50% elution time was < 30 min for 9 samples (69% of total) comprising 9 species. This shows that the radioactive Cs elution rate and elution speed were not constant among mushroom species. Based on these results, immersing the mushrooms, which were dried, in water for at least 120 min is an effective method for removing radioactive Cs from wild mushrooms.

Key Words: Elution speed, Radioactive cesium, Water, Wild mushroom

1. はじめに

2011年3月11日の東日本大震災に続発した津波で福島第一原子力発電所が被災し、野生キノコの生産地として知られている東北および関東・甲信越地方の山間部を漏洩した放射性同位元素が汚染した。その後、野生キノコから放射性セシウム (Cs) が検出され、2012年4月に食品の放射性Csの規制値が100 Bq/kgとされたことで、複数の地域で野生キノコの出荷規制が継続している。1986年4月に起きたチェルノブイリ原子力発電所事故では、旧ソビエト連邦およびヨーロッパ諸国が漏洩した放射性Csで汚染し、汚染地域で採取した野生キノコの放射性Cs汚染が報告された¹⁾。そして、本邦では、チェルノブイリ原子力発電所事故に係る食品の放射能濃度の暫定限度を

370 Bq/kgに設定し、食品の輸入を規制していた。しかしながら、汚染地域を含むヨーロッパ諸国では、野生キノコを食用にする習慣が有り、事故後の時間経過と共に野生キノコの摂取がはじまったと報告されている¹⁾。本邦においても、マツタケを含む野生キノコの嗜好性は高く、採取した個人が放射性Csの汚染に気付かないで食して内部被曝することが危惧されている。野生キノコは、収穫時期が短いにもかかわらず、劣化が速い為に加工して保存食とされることが多い。保存方法には、甘み成分が増加することが知られている天日干しがある。これまで、干しシイタケに含まれていた放射性Csの戻し水への溶出に関する報告はあるが、干した野生キノコからの放射性Csの溶出は明らかにされていない。そこで、干した野生キノコの放射性Cs

*Corresponding author: E-mail: toshiro.yamaguchi@qse.tohoku.ac.jp

の水への溶出をオートラジオグラフ(ARG)法で測定し、溶出速度を求めた。

2. 方法

(1) 材料

2015年5月から9月までに長野県、福島県および宮城県で採取した13サンプルを被検試料とした(表1)。なお、各被検キノコを採取した季節、採取環境、子実体の傘の表、裏および柄の色と形状および孔管の形状から、ヌメリイグチ(*Suillus luteus* (L.:Fr.) S. F. Gray)、イタチタケ(*Psathyrella candolleana*)、クギタケ(*Chroogomphus rutilus*)、ショウゲンジ(*Cortinarius caperatus*)、タマゴタケ(*Amanita caesareoides*)、シロナムツムタケ(*Pholiota lenta*)、マダラフウセンタケ(*Cortinarius scaurus* (Fr.:Fr.) Fr. var. *scaurus*)、ハタケシメジ(*Lyophyllum decastes*)、ハナホウキタケ(*Ramaria formosa*)、ミネシメジ(*Tricholoma saponaceum* (Fr.) Kummer)、ウラベニホテイシメジ(*Entoloma sarcopum*)およびドクベニタケ(*Russula emetica* (Schaeff.:Fr.) Gray)の12種と推定した。

(2) 試料の調整

各被検キノコを風乾して室温で保管し、試験実施の前日に60°Cのオーブンで12時間乾燥した。子実体の形状を残したままU-8容器に入れてゲルマニウム(Ge)半導体検出器(GX2018型、CANBERRA、USA)を用い、0.02から2.75 MeVの範囲で3,600秒間測定した。得られたγ線スペクトルから¹³⁴Csおよび¹³⁷Csを同定してそれぞれの比放射能を得た(表1)。測定後、各被検キノコを50 mLの純水に浸漬して室温に

静置した。10、30、60、180、360および1,440分後に浸漬液を1 mLずつ採取して0.45 μm孔径のフィルター(マイレクスLH、ミリポアマイレクス、US)を通して測定試料とした。

(3) 放射性Csの溶出率

浸漬1,440分後に各被検キノコの質量から浸漬前の質量を除いて、各被検キノコが吸収した浸漬液の質量を求めた。60°Cのオーブンで12時間乾燥した被検キノコをGe半導体検出器で0.02から2.75 MeVの測定範囲で3,600秒間測定し、得られたγ線スペクトルから¹³⁴Csおよび¹³⁷Csを同定して定量した。さらに、浸漬液の¹³⁴Csおよび¹³⁷Csの比放射能を同様に測定し、被検キノコが吸収していた浸漬液の放射能を除いて浸漬後の被検キノコに残存した放射能を求めた。各被検キノコに残存した放射能を浸漬前の放射性Csの放射能から除いて、浸漬前の放射能に対する割合を放射性Csの溶出率とした。

(4) 放射性Csの溶出速度

各浸漬ろ液500 μLをアルミホイル上で乾燥させイメージングプレート(IP; BAS-III、富士フイルム、東京)に2~3日間露光し、BAS-1800-II(富士フイルム、東京)で100 μmの分解能で読み取ってARGを作製した。各ろ液がIPを感光した部位のARGに2.0×2.0 cmの関心領域(region of interest; ROI)を設定し、放射能を示す輝尽性蛍光量(photo stimulated luminescence density; PSL)を測定した。1,440分後のPSLに対する百分率を求め、Excel 2013で近似式を作製した。被検キノコの放射性Csの溶出速度は、得られた近似式でPSLの百分率が50になる浸漬時間を溶出率で補正して50%溶出時間とした。

表1 被検キノコ

種	採取日	採取場所	食用	¹³⁴ Cs (Bq/kg)	¹³⁷ Cs (Bq/kg)
ヌメリイグチ(5月28日)	2015年5月28日	宮城県	可	916.4 ± 773.7	2906.1 ± 398.6
イタチタケ	2015年8月30日	長野県	可	6493.4 ± 1197.6	38041.3 ± 1946.1
クギタケ	2015年8月30日	長野県	可	49761.6 ± 2416.5	261452.4 ± 10491.4
ショウゲンジ	2015年8月30日	長野県	可	740.2 ± 656.4	6427.1 ± 508.0
タマゴタケ	2015年8月30日	長野県	可	2672.4 ± 567.8	128554.3 ± 726.2
シロナムツムタケ	2015年8月30日	長野県	可	3302 ± 426.5	15661.6 ± 767.2
マダラフウセンタケ	2015年9月1日	福島県	不明	19895.6 ± 972.4	113111.7 ± 4516.4
ハタケシメジ	2015年9月13日	長野県	可	3567.4 ± 598.5	21816.2 ± 1070.2
ハナホウキタケ	2015年9月13日	長野県	否	816.5 ± 658.6	4826.5 ± 406.2
ヌメリイグチ(9月13日)	2015年9月13日	長野県	可	1527.5 ± 379.4	6011.9 ± 382.2
ミネシメジ	2015年9月13日	長野県	否	3089.8 ± 1007.6	18613.6 ± 1114.2
ウラベニホテイシメジ	2015年9月13日	長野県	可	2638.9 ± 604.0	15746.4 ± 844.6
ドクベニタケ	2015年9月13日	長野県	否	4094.7 ± 673.1	18482.8 ± 972.1

表2 被検キノコの放射性Csの溶出率

	浸漬前 (Bq)			浸漬後 (Bq)			溶出率 (%)
	¹³⁴ Cs	¹³⁷ Cs	放射性Cs	¹³⁴ Cs	¹³⁷ Cs	放射性Cs	
ヌメリイグチ (5月28日)	0.46	1.45	1.91	<0.01	<0.01	<0.01	>99.5
イタチタケ	2.34	13.69	16.03	0.06	1.16	1.22	92.4
クギタケ	22.89	120.27	143.16	1.58	11.59	13.17	90.8
ショウゲンジ	0.44	3.79	4.23	0.37	1.64	2.01	52.4
タマゴタケ	1.95	9.38	11.33	0.15	0.59	0.75	93.4
シロナムツムタケ	3.53	16.76	20.29	0.68	3.24	3.91	80.7
マダラフウセンタケ	24.27	138	162.27	0.14	1.33	1.47	99.1
ハタケシメジ	2.68	16.36	19.04	0.05	0.16	0.21	98.9
ハナホウキタケ	0.85	5.02	5.87	<0.01	0.24	0.24	95.9
ヌメリイグチ (9月13日)	1.65	6.49	8.14	0.24	2.2	2.44	70
ミネシメジ	1.24	7.45	8.68	<0.01	0.27	0.27	96.9
ウラベニホテイシメジ	1.82	10.87	12.69	0.04	1.03	1.07	91.6
ドクベニタケ	2.62	11.83	14.45	0.08	0.15	0.23	98.4

3. 結果と考察

(1) 放射性Csの溶出率

浸漬後の各被検キノコに残存した¹³⁴Csおよび¹³⁷Csの放射能の溶出率は、52.4%以上だった(表2)。これまでに干しシイタケの戻し水への放射性Csの溶出率が約50%だったことが報告されている²⁾。このことから、1,440分後の各被検キノコの放射性Csの溶出率は、妥当と考えられた。また、被検キノコに含まれていた放射性Csが水に溶出することが示唆された。一方、ショウゲンジの溶出率は、他の被検キノコに比較して低かった。これまでにキノコが、Kを含む元素のイオン勾配によって水分および養分を細胞間で流転させることが知られている。そして、過剰のKイオンは、リン酸化合物となって電価を消失し、イオン勾配に寄与しなくなる³⁾。また、真菌細胞内でCsイオンがKイオンと同様にリン酸化合物となることが報告されてい

る^{1,4)}。このことから、ショウゲンジの放射性Csの溶出率が低かった理由として、放射性Csがリン酸化合物として蓄積していたことが考えられた。また、溶出率は、ヌメリイグチ(5月28日)が99.5%以上でヌメリイグチ(9月13日)が70.0%と同一種のキノコで異なった。ヌメリイグチの子実体は、採取後に老菌化が進み自己融解することが知られている。この原因として、自己融解が速やかに進行する種類のキノコは、採取時のキノコの成熟度および採取して乾燥するまでの老菌化が放射性Cs溶出に影響することが推察された。

(2) 放射性Csの溶出速度

各被検キノコの浸漬ろ液の乾固部位に一致したARGが得られた(図1)。また、ヌメリイグチ(5月28日)およびハナホウキタケの浸漬ろ液のγ線スペクトルで0.662 MeVのγ線を検出し

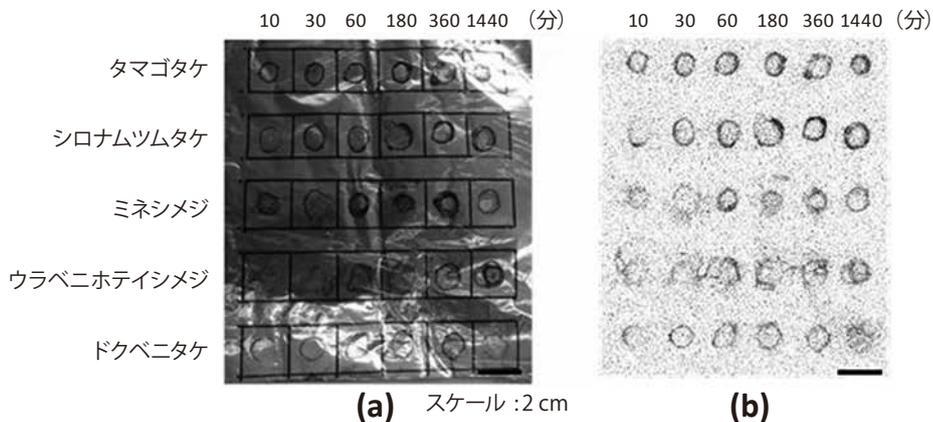


図1 乾固した浸漬ろ液像(a)およびオートラジオグラフ(ARG)像(b)

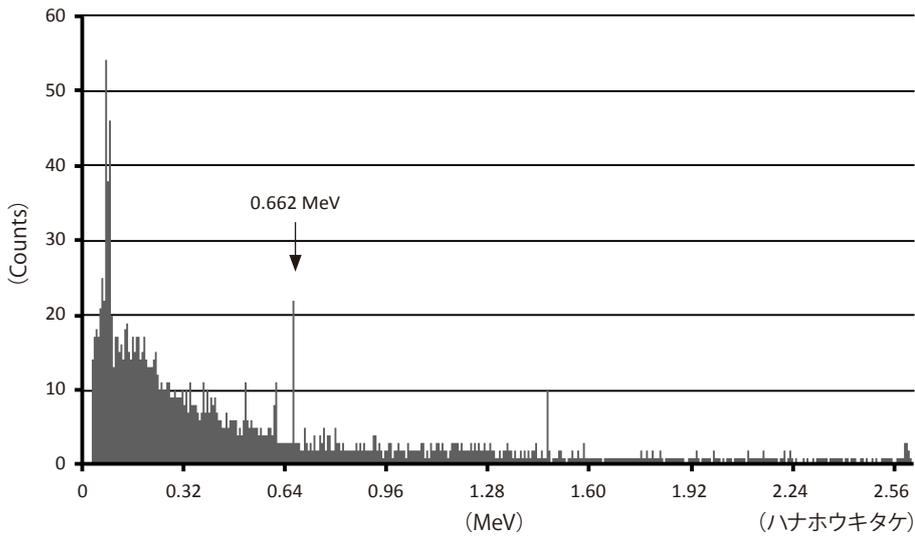


図2 ハナホウキタケの浸漬液のγ線スペクトル

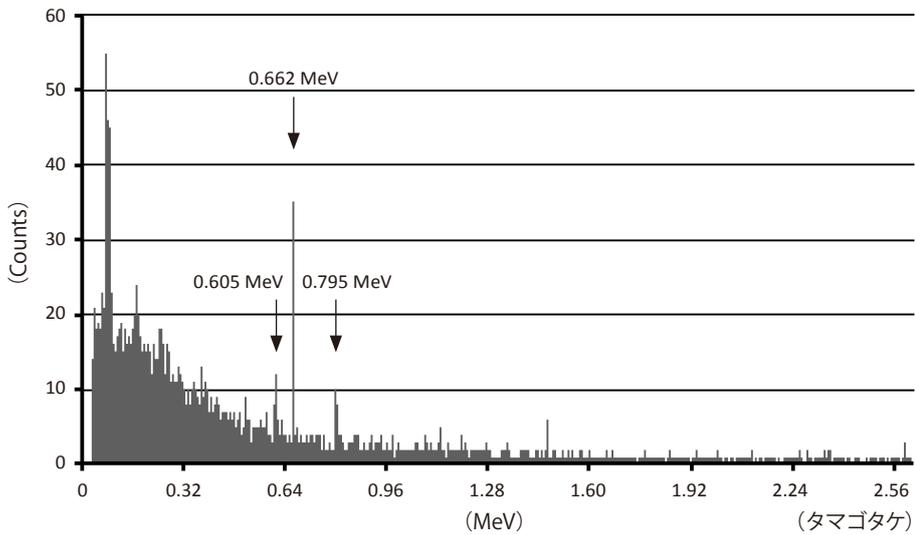


図3 タマゴタケの浸漬液のγ線スペクトル

て¹³⁷Csを同定した(図2 and data not shown)。また、イタチタケ、クギタケ、ショウゲンジ、タマゴタケ、シロナムツムタケ、マダラフウセンタケ、ハタケシメジ、ヌメリイグチ(9月13日)、ミネシメジ、ウラベニホテイシメジおよびドクベニタケの浸漬液のγ線スペクトルで0.605、0.662および0.795 MeVのγ線を検出し¹³⁴Csおよび¹³⁷Csを同定した(図3 and data not shown)。¹³⁴Cs(0.658 MeV, 70.2%; 0.415 MeV, 2.5%; 0.089 MeV, 27.3%) および¹³⁷Cs(0.512 MeV, 94.6%; 1.174 MeV, 5.4%)のβ線は、IPを感光する⁵⁻⁹⁾。このことから、ARGは、各浸漬液に溶出した放射性Csを画像化したと考えられた。各被検キノコのPSLを表3に示した。イタチタケ、シロナムツムタケおよびミネシメジの浸漬液のPSLは、60分後まで増加

した。また、ヌメリイグチ(5月28日)、ショウゲンジ、およびハタケシメジの浸漬液のPSLは、180分後まで増加した。さらに、シロナムツムタケ、ハナホウキタケおよびドクベニタケの浸漬液のPSLは、360分後まで増加した。クギタケ、ショウゲンジ、タマゴタケおよびヌメリイグチ(9月13日)の浸漬液のPSLは、1,440分後まで増加した。これらのことから、被検キノコの放射性Csの溶出は、浸漬直後から開始されて浸漬時間に比例して増加することが示唆された。浸漬液のPSLの近似式および50%溶出時間を表4に示した。50%溶出時間が30分未満の被検キノコは、ヌメリイグチ(5月28日)、イタチタケ、ショウゲンジ、シロナムツムタケ、ハタケシメジ、ハナホウキタケ、ミネシメジ、ウラベニホテイシメジおよびドクベニタケだった。

表3 被検キノコの photo stimulated luminescence density (PSL)

浸漬時間 (分)	10	30	60	180	360	1440
ヌメリイグチ (5月28日)	46.30	47.99	82.15	111.05	77.29	108.63
イタチタケ	388.53	451.17	485.38	470.52	450.86	549.61
クギタケ	610.70	1167.58	1764.09	3444.53	4031.60	4363.06
ショウゲンジ	34.17	64.92	69.08	81.54	81.94	92.29
タマゴタケ	148.43	171.99	204.58	219.28	239.09	387.69
シロナムツムタケ	231.83	279.29	391.45	362.09	357.49	296.02
マダラフウセンタケ	366.97	396.53	2819.33	5469.81	6089.88	5806.00
ハタケシメジ	359.86	508.56	743.61	944.09	914.71	932.81
ハナホウキタケ	151.79	167.14	195.27	185.50	293.82	205.28
ヌメリイグチ (9月13日)	55.89	97.57	188.55	274.17	269.79	388.76
ミネシメジ	173.72	246.26	345.14	428.93	424.00	468.46
ウラベニホテイシメジ	159.21	234.57	277.11	262.33	255.45	173.17
ドクベニタケ	200.52	246.47	287.57	296.77	298.04	269.12

表4 被検キノコの近似式および50%溶出時間

	近似式	50% 溶出時間 (分)
ヌメリイグチ (5月28日)	$y = 11.845 \times \ln(x) + 17.062$	16.2
イタチタケ	$y = 4.4457 \times \ln(x) + 63.932$	1.1
クギタケ	$y = 19.661 \times \ln(x) - 33.348$	76.9
ショウゲンジ	$y = 11.483 \times \ln(x) + 22.688$	20.6
タマゴタケ	$y = 11.195 \times \ln(x) + 6.4205$	52.5
シロナムツムタケ	$y = 4.7198 \times \ln(x) + 85.854$	<1.0
マダラフウセンタケ	$y = 23.506 \times \ln(x) - 50.145$	71.5
ハタケシメジ	$y = 13.432 \times \ln(x) + 15.662$	13
ハナホウキタケ	$y = 8.4533 \times \ln(x) + 57.671$	<1.0
ヌメリイグチ (9月13日)	$y = 17.466 \times \ln(x) - 27.292$	119.3
ミネシメジ	$y = 13.173 \times \ln(x) + 12.428$	17.9
ウラベニホテイシメジ	$y = -12.588 \times \ln(x) + 125.16$	<1.0
ドクベニタケ	$y = 5.3305 \times \ln(x) + 73.986$	<1.0

y: PSLの百分率 x: 浸漬時間(分)

また、全ての被検キノコで50%溶出時間が120分未満だった。これまでに干しシイタケに含まれた放射性Csの戻し水への30分間の溶出率が約50%だったことが報告されている¹⁾。このことから、被検キノコの溶出速度は、妥当と考えられた。これらのことから、放射性Csの汚染の可能性がある野生キノコを食に供する際、天日干し後に120分以上水戻しすることは、放射性Csの摂取を抑制する方法として有効と考えられた。

参 考 文 献

- 1) 村松 康行, 吉田 聡: キノコと放射性セシウム. RADIO-ISOTOPES, **46**, 450-463 (1997).
- 2) 鍋師 裕美, 堤 智昭, 蜂須賀 暁子, 松田 りえ子: 乾しいたけの水戻しおよび牛肉の加熱調理による放射性セシウム量の変化. 食衛誌, **54**, 65-70 (2013).
- 3) D. H. ジェニングス, G. リゼック: 広瀬 大, 大園 享司 (訳): 「菌類の生物学-生活様式を理解する」, pp. 11-21, 京都大学学術出版会, 京都 (2011).
- 4) C. Kuwahara, A. Fukumoto, M. Nishina, H. Sugiyama, Y. Anzai, F. Kato: Characteristics of cesium accumulation in the filamentous soil bacterium streptomyces sp. K202. *J. Environ. Radioact.*, **102**, 138-144 (2011).
- 5) L. Hammarström: Autoradiography and histochemistry

- of mineralized tissues by means of the Ullberg freeze-sectioning technique. *Ups. J. Med. Sci.*, **91**, 239-243 (1986).
- 6) T. Yamaguchi, K. Sawano, K. Furuhashi, C. Mori, K. Yamada: An autoradiogram of skeletal muscle from a pig raised on a farm within 20 km of the Fukushima Daiichi nuclear power plant. *J. Vet. Med. Sci.*, **75**, 93-94 (2013).
- 7) T. Yamaguchi, C. J. Chen, M. Sasaki, K. Furuhashi, K. Yamada: History of internal radiation exposure in a wild masked palm civet (*Paguma larvata*) at Fukushima assessed by autoradiography of vibrissae. *Bull. Vet. Inst. Pulawy*, **57**, 433-435 (2013).
- 8) 箕輪 はるか: 松竹梅の放射線を見る～イメージングプレートを使った解析～. *放射化学*, **27**, 45-52 (2013).
- 9) 山口 敏朗, 石井 慶造, 荒井 宏, 大沼 透, 松山 成男, 寺川 貴樹, 新井 宏受: 居住制限区域で原木栽培したシイタケ *Lentinula edodes* の子実体および胞子紋のオートラジオグラフ. *日本きのこ学会誌*, **23**, 125-129 (2015).
- 2016年5月20日受付
2016年7月14日受理

和 文 要 約

2015年に長野県、福島県および宮城県で採取して干した野生キノコ(12種、13 サンプル)を水に1,440分間浸漬した。浸漬前後の被検キノコの放射性セシウム(Cs)を高純度ゲルマニウム半導体検出器(GX2018型、CANBERRA Industries、Meriden, CT, USA)で測定して放射性Csの溶出率を算出した。また、各被検キノコの浸漬液を10、30、60、180、360および1,440分後に採取し、アルミホイル上で蒸発乾固してイメージングプレート(BAS-III、富士フイルム、東京、日本)に露光した。イメージングプレートをバイオイメージングアナライザーシステム(BAS-1800 II、富士フイルム)で読み取り、得られたオートラジオグラフに関心領域を設定し、放射能強度を示す輝尽性蛍光量を測定して50%溶出時間を算出した。被検キノコの11種、11 サンプル(84%)で放射性Csの溶出率が80%以上だった。また、被検キノコの9種、9 サンプル(69%)で50%溶出時間が30分未満だった。このことから、キノコの放射性Csの溶出率および溶出速度が一定でないことが示された。そして、汚染の可能性のある野生キノコを食する際、干して120分以上水に戻すことは、放射性Csの摂取を抑制する方法として有効と考えられた。

