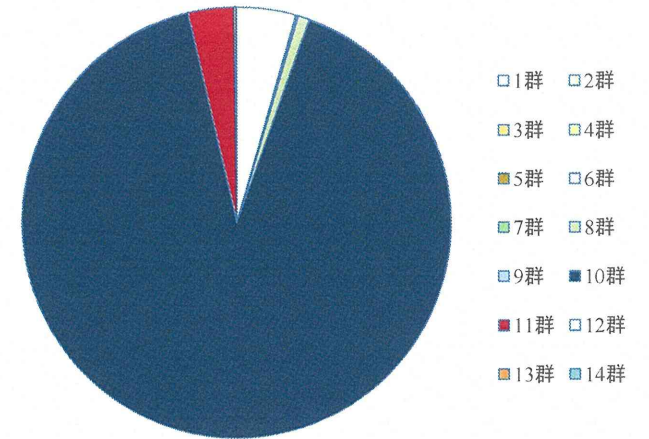


total Hg

2013年

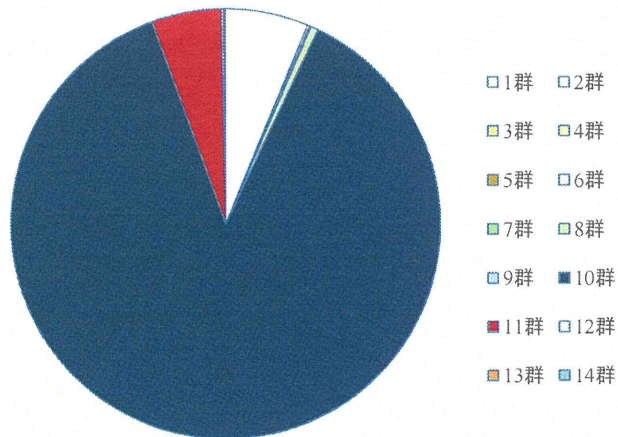
2014年

total Hg



2015年

total Hg



2013-15年平均

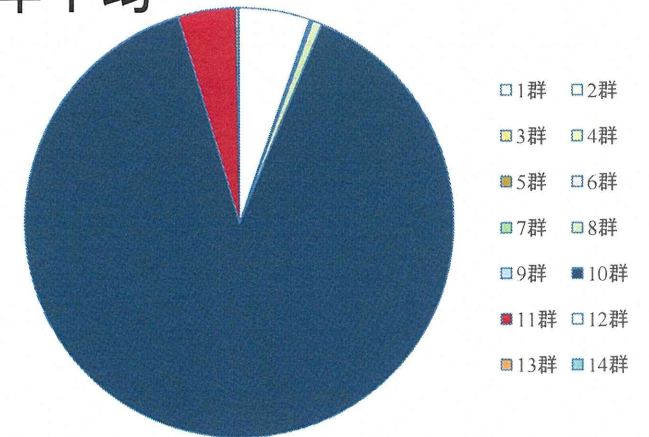
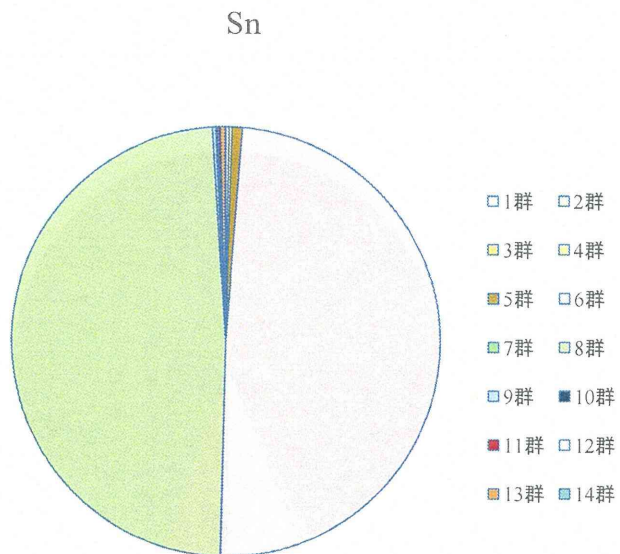


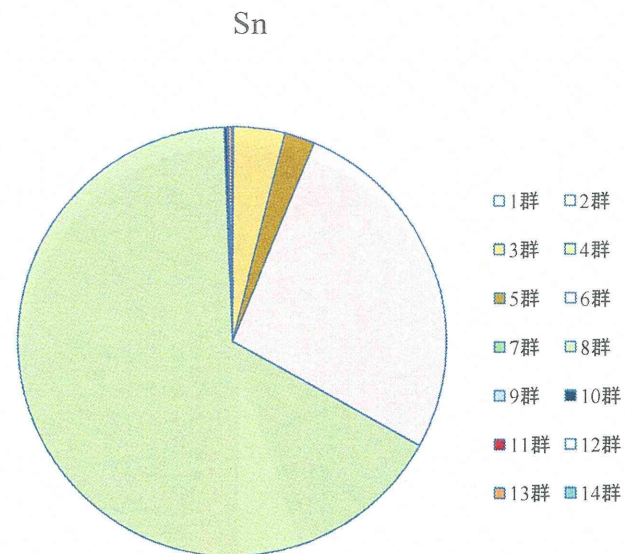
図 1-12 各元素の総摂取量に対する各群摂取量の寄与率 (総水銀)

Sn

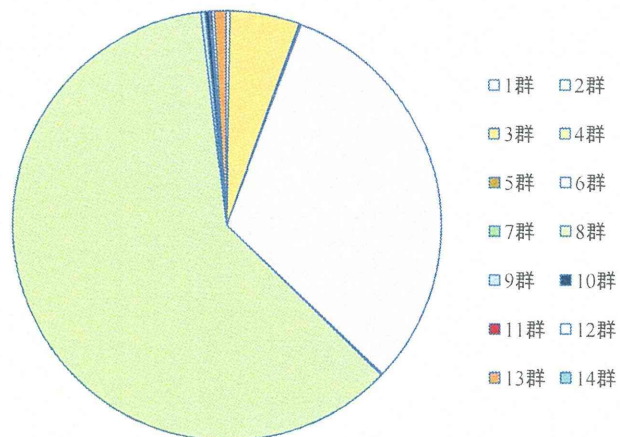
2013年



2014年



2015年



2013-15年平均

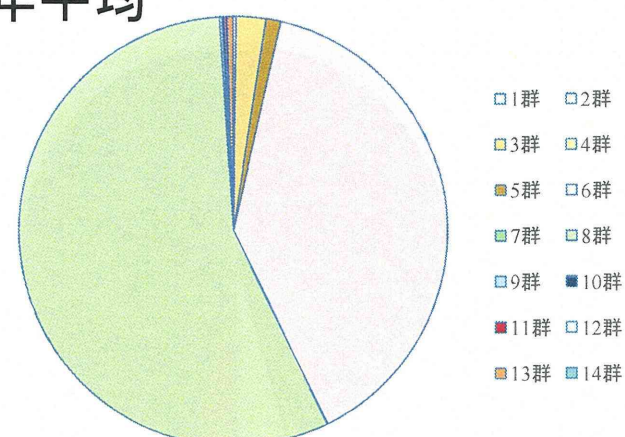
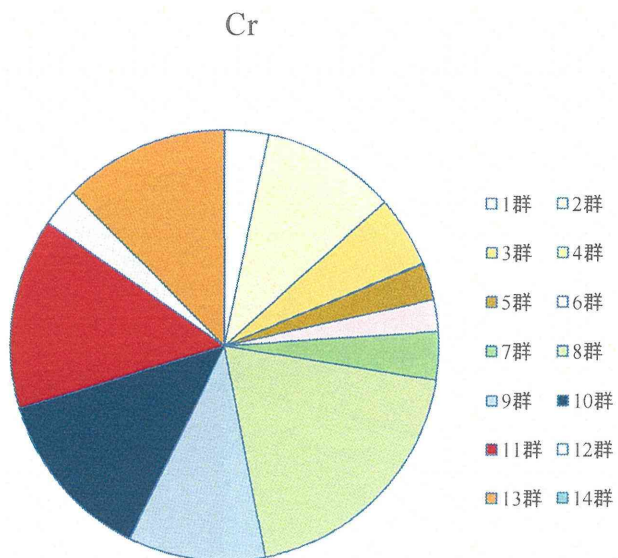


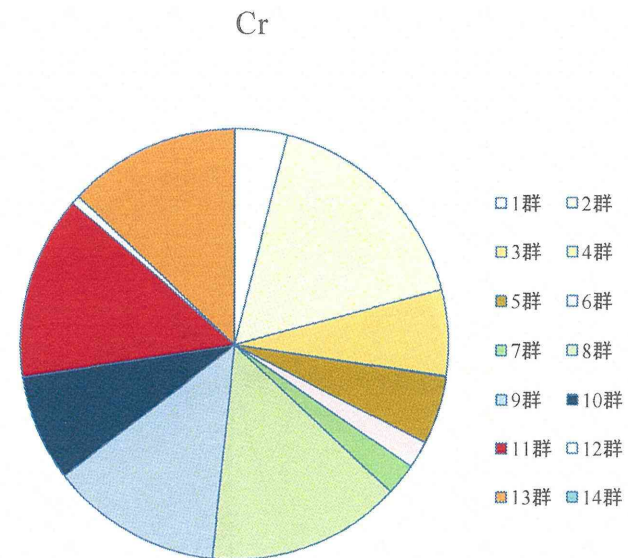
図 1-13 各元素の総摂取量に対する各群摂取量の寄与率 (スズ)

Cr

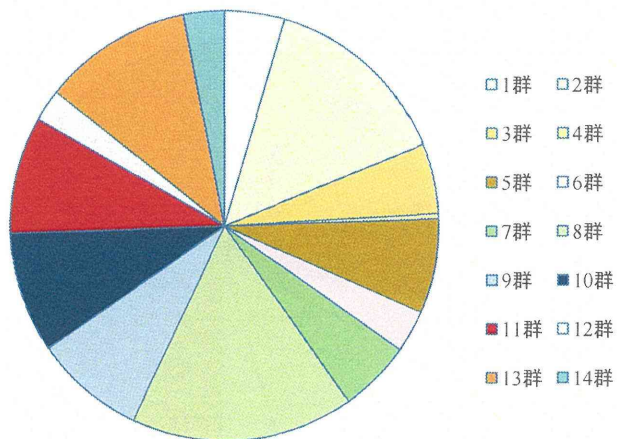
2013年



2014年



2015年



2013-15年平均

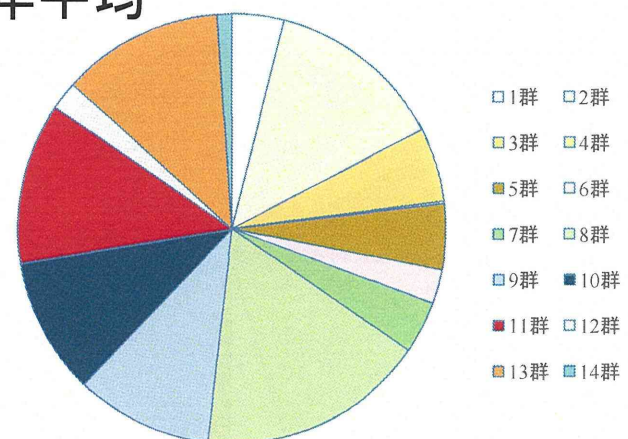
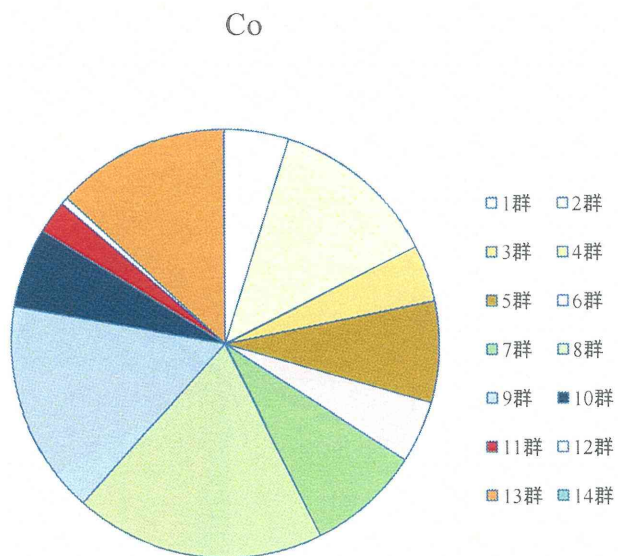


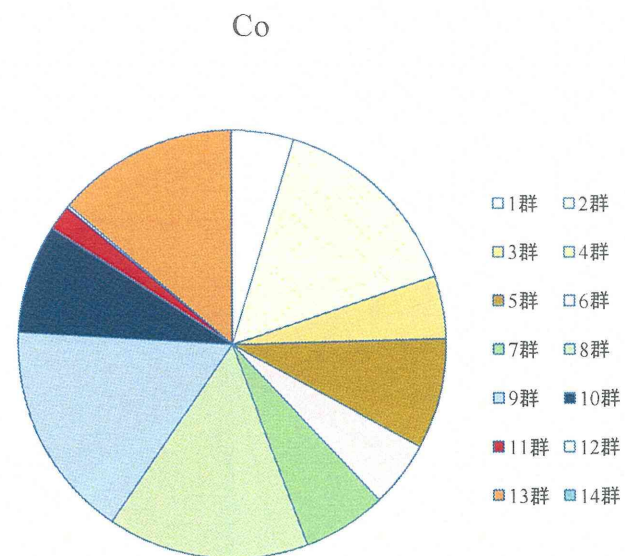
図 1-14 各元素の総摂取量に対する各群摂取量の寄与率 (クロム)

Co

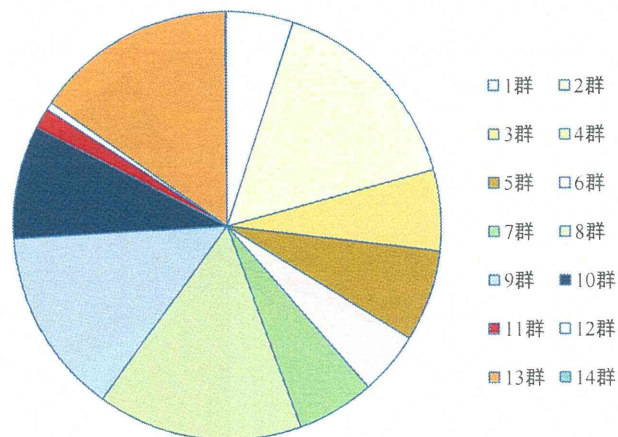
2013年



2014年



2015年



2013-15年平均

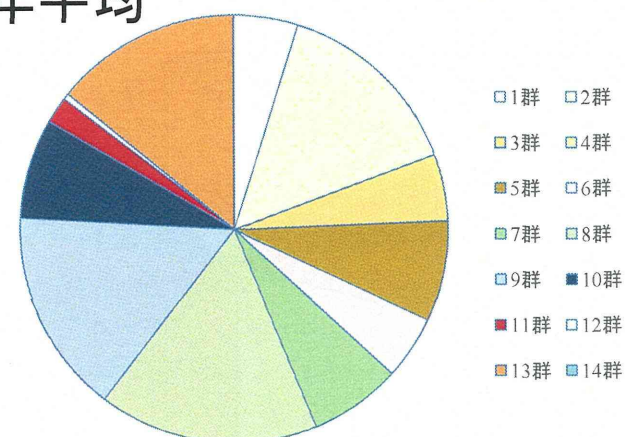
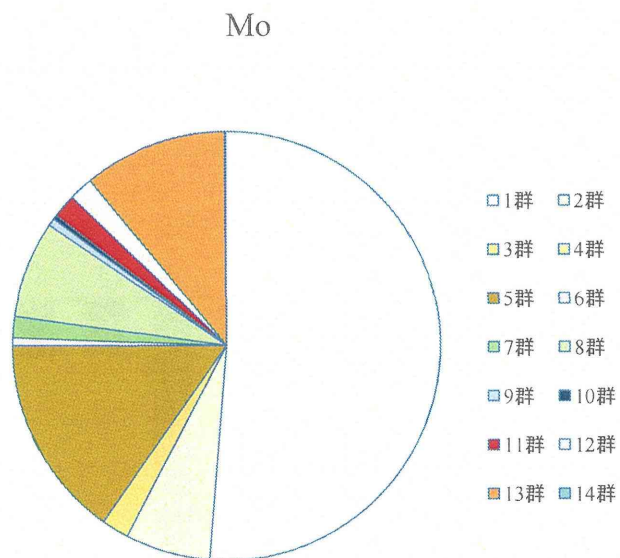


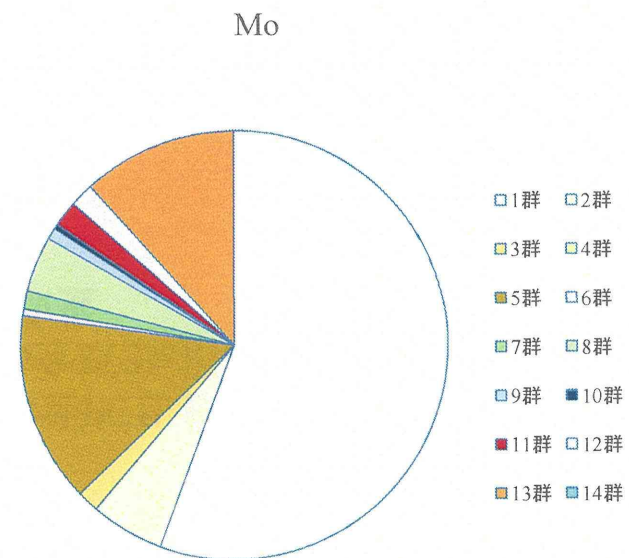
図 1-15 各元素の総摂取量に対する各群摂取量の寄与率 (コバルト)

Mo

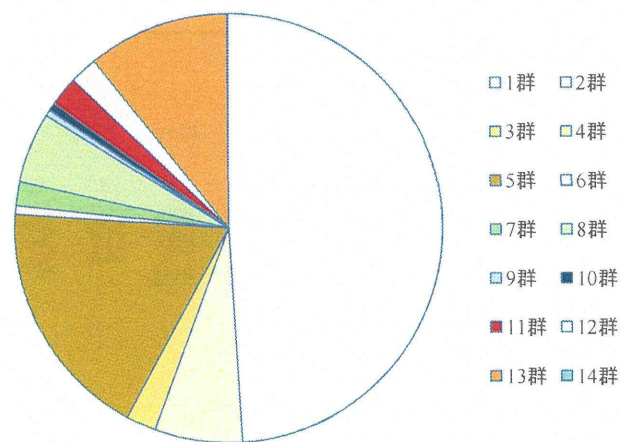
2013年



2014年



2015年



2013-15年平均

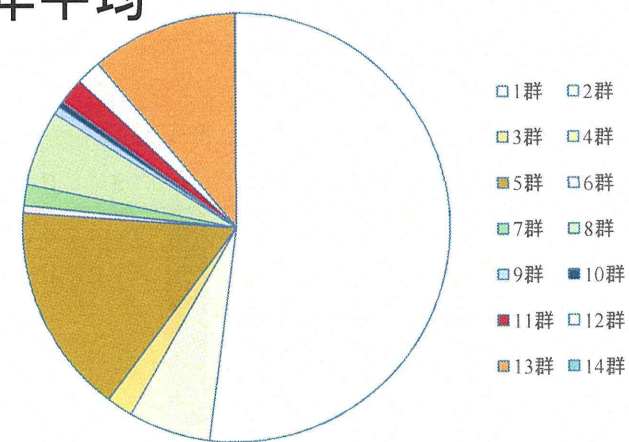
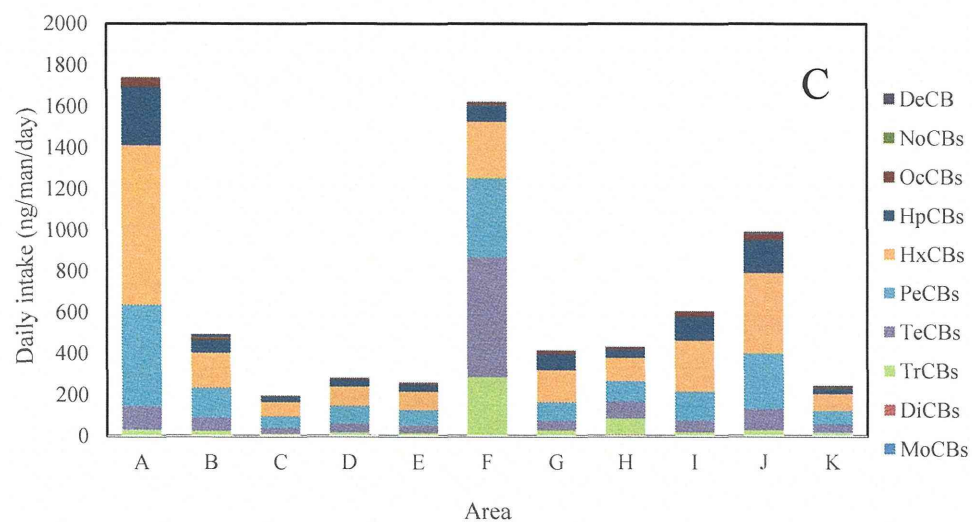
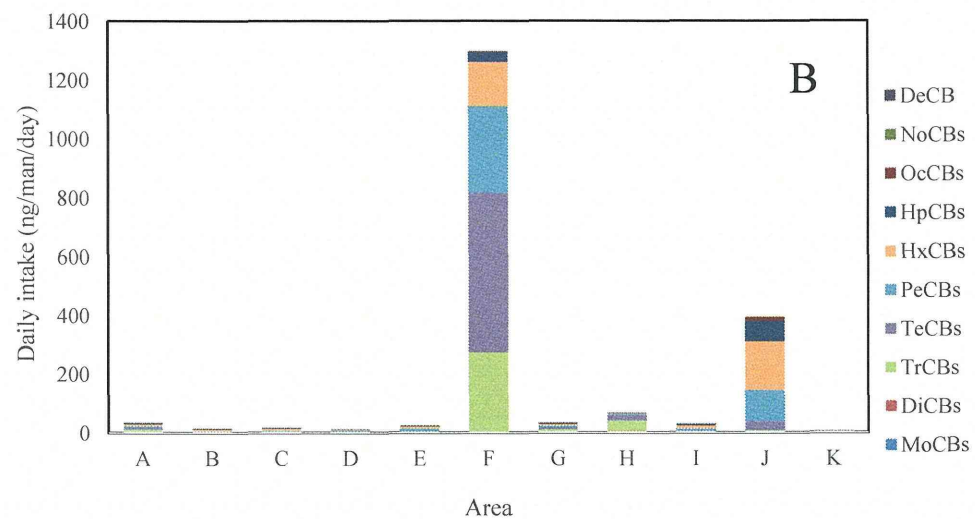
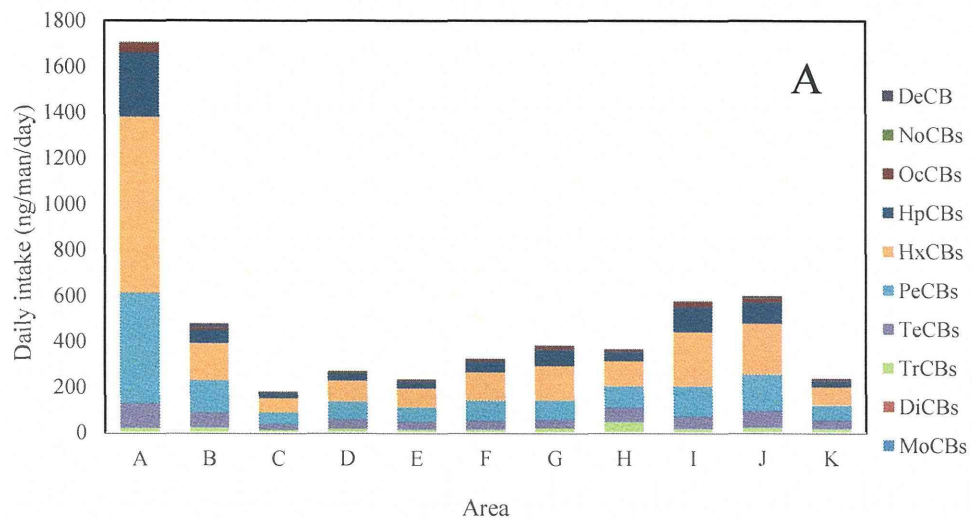


図 1-16 各元素の総摂取量に対する各群摂取量の寄与率 (モリブデン)



A: 10群からの全PCBs摂取量
 B: 11群からの全PCBs摂取量
 C: 総PCBs摂取量

図2 地域別 PCBs 摂取量

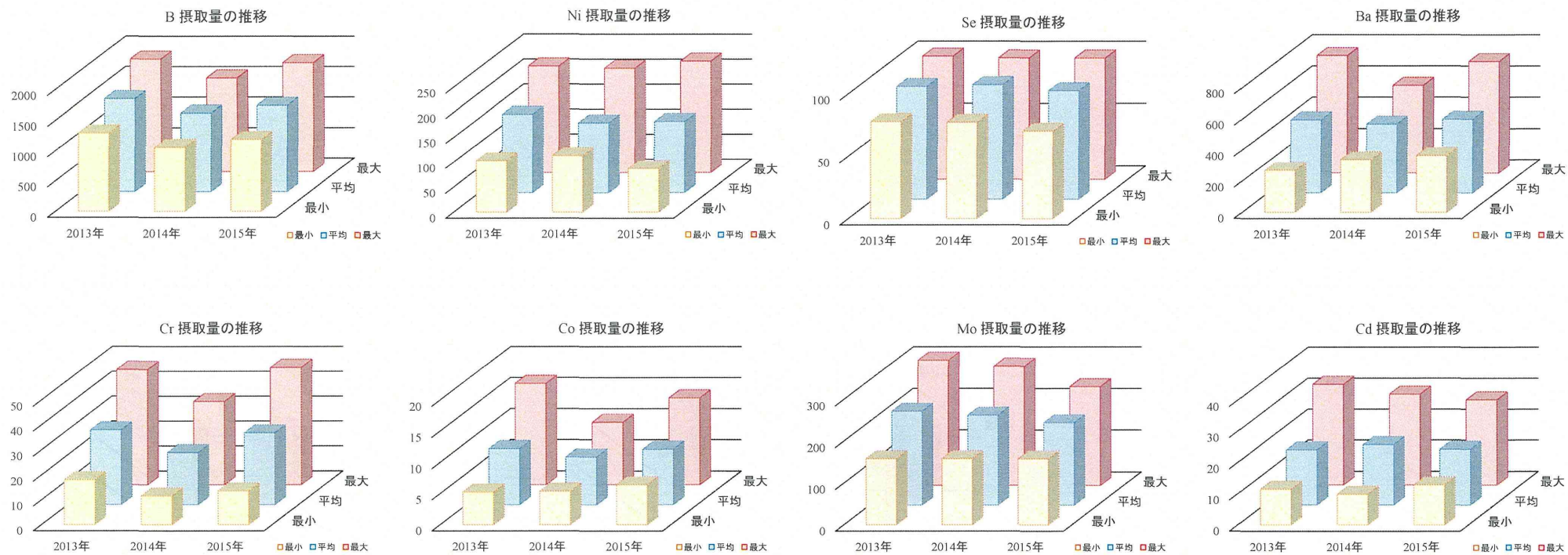


図 3-1 元素類摂取量の推移(2013-2015)―摂取量変動の小さな元素； ホウ素、ニッケル、セレン、バリウム、クロム、コバルト、モリブデン、カドミウム

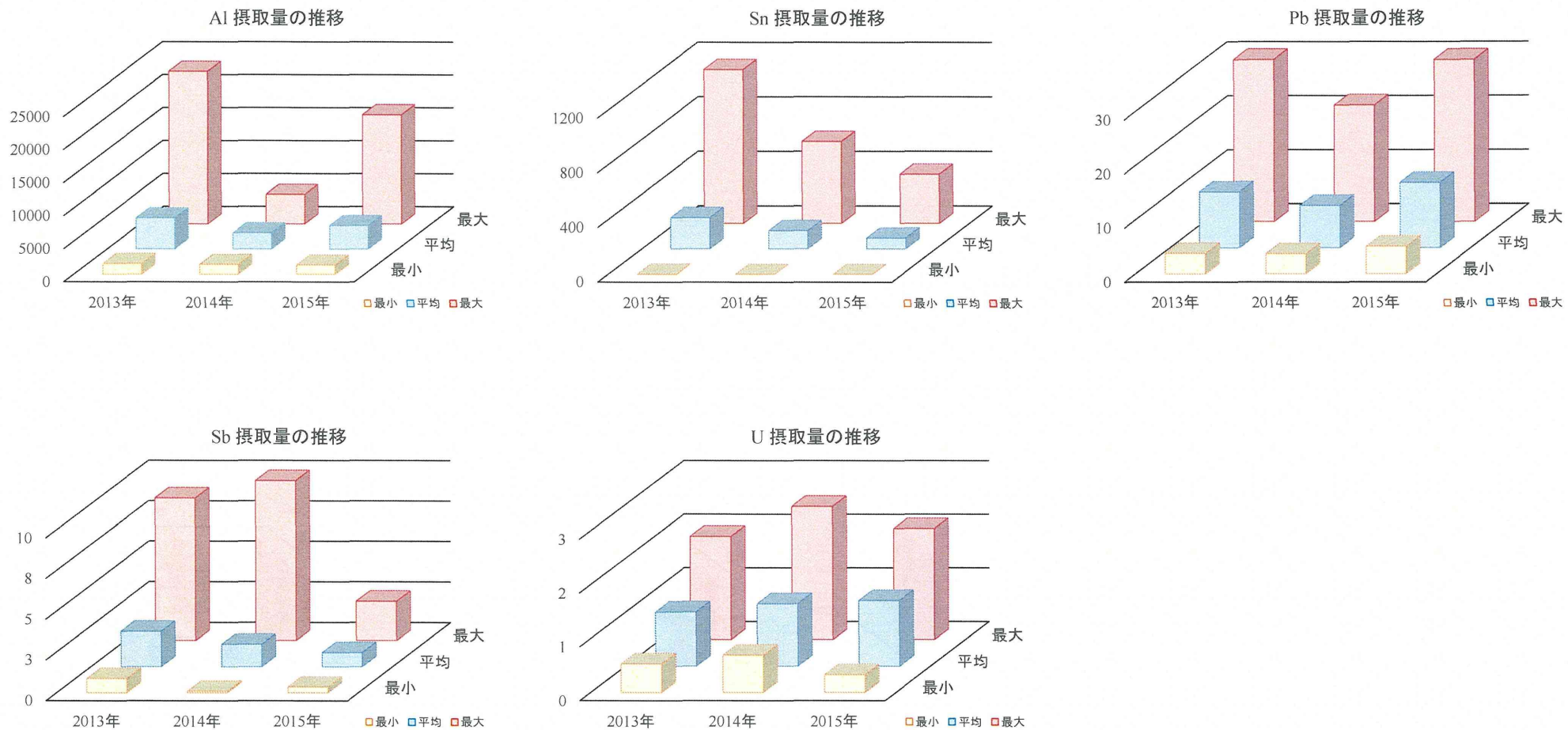


図 3-2 元素類摂取量の推移(2013-2015)ー摂取量変動の大きな元素； アルミニウム、スズ、鉛、アンチモン、ウラン

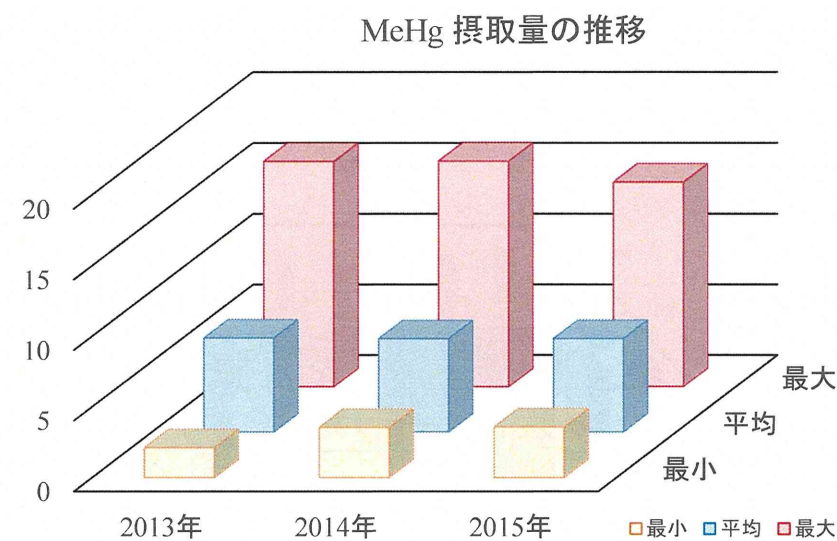
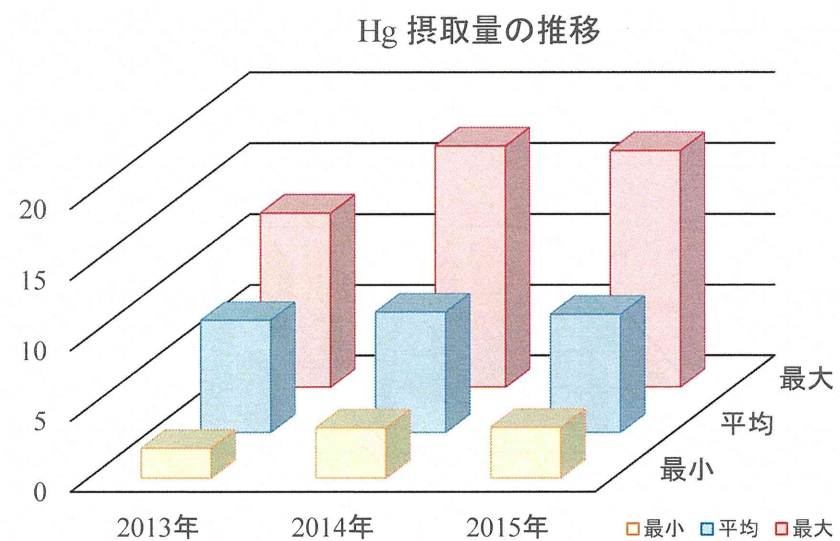
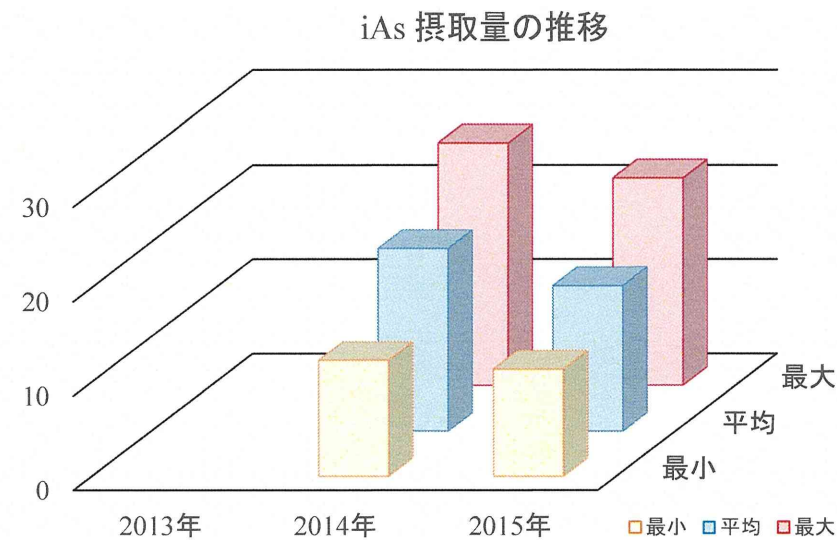
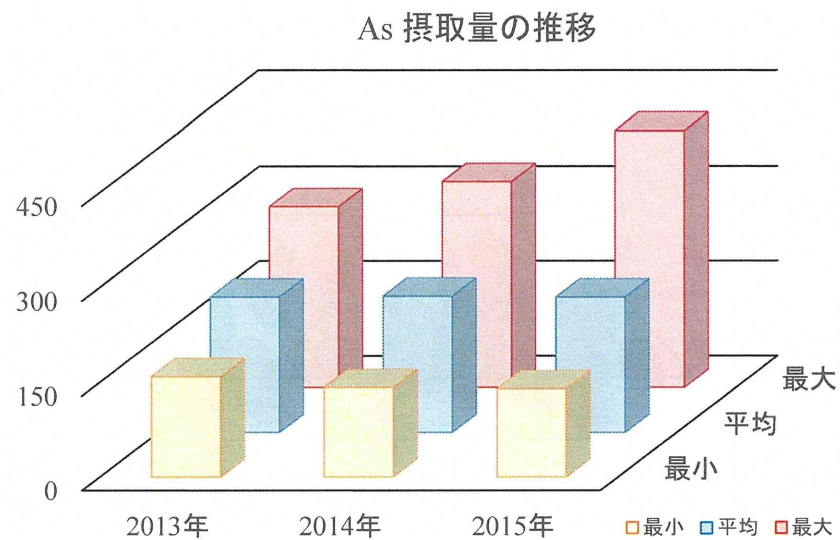


図 3-3 元素類摂取量の推移(2013-2015)ー総ヒ素、無機ヒ素、総水銀、メチル水銀

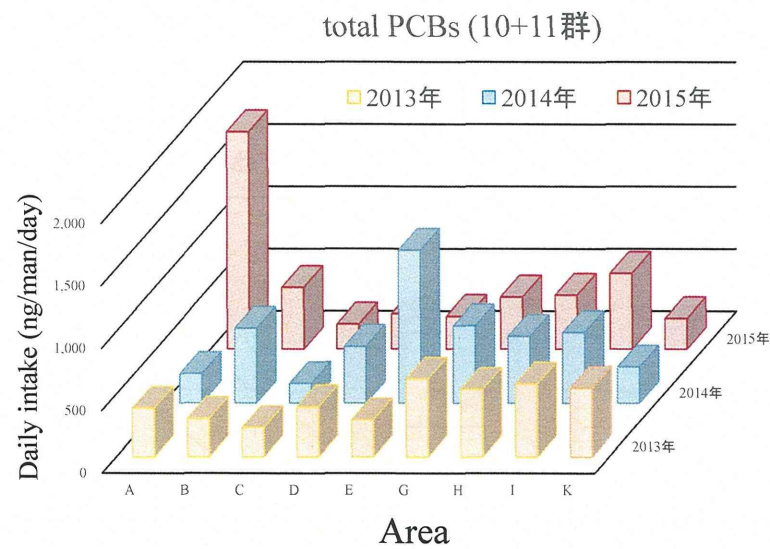
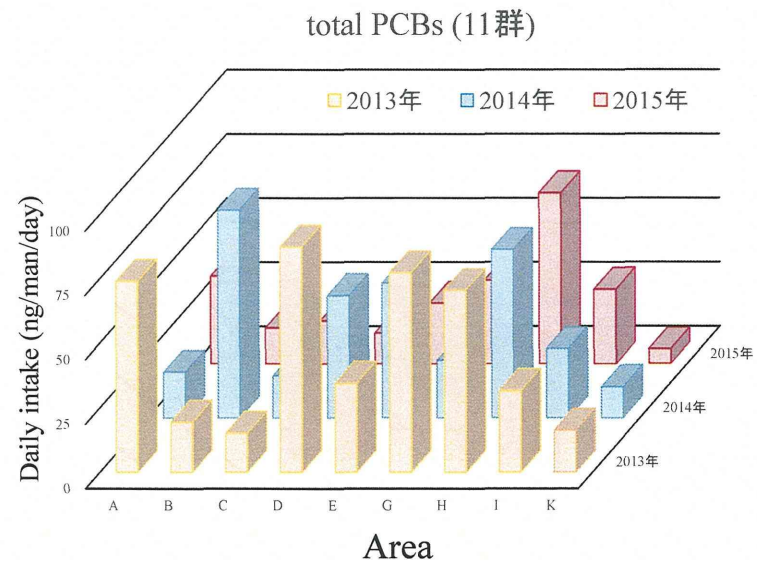
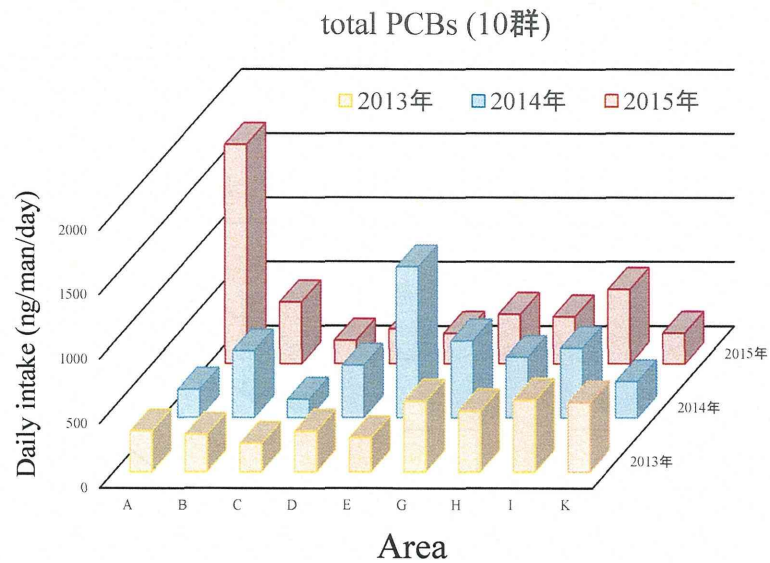


図4 総 PCBs 摂取量のばらつき(2013-2015)

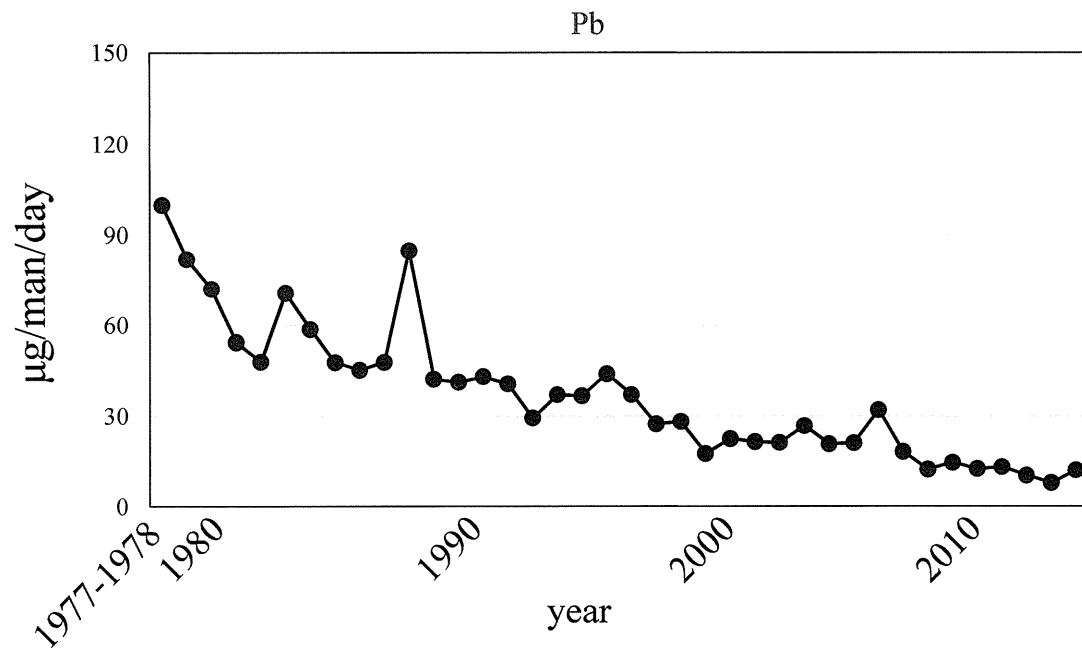


図 5 鉛摂取量の経年変化 (1977-2015)

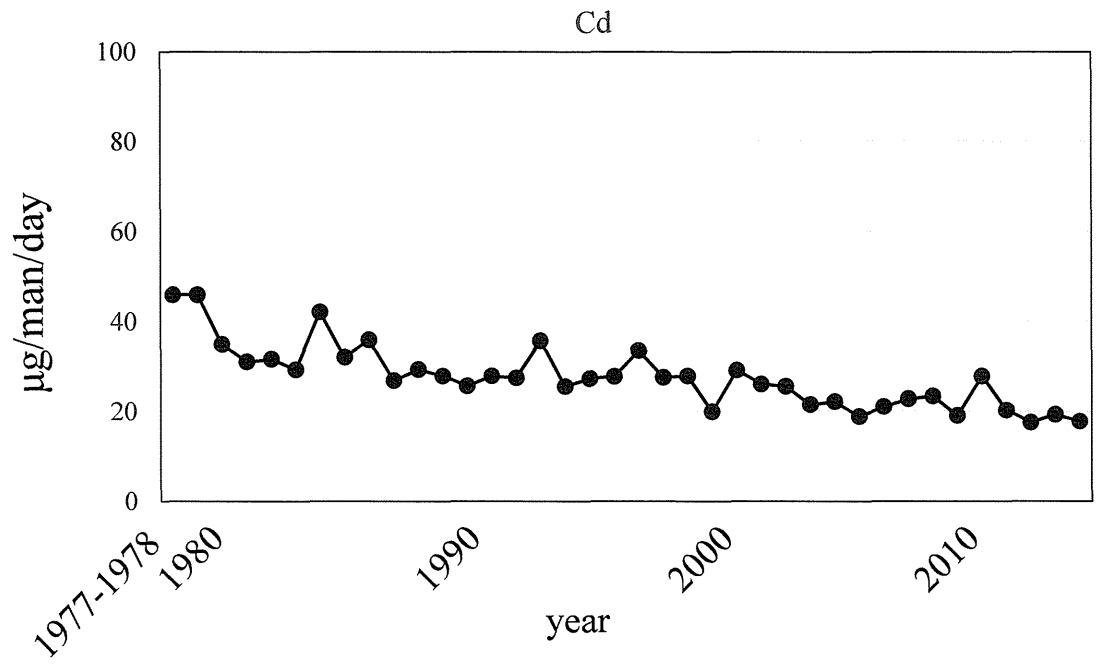


図 6 カドミウム摂取量の経年変化 (1977-2015)

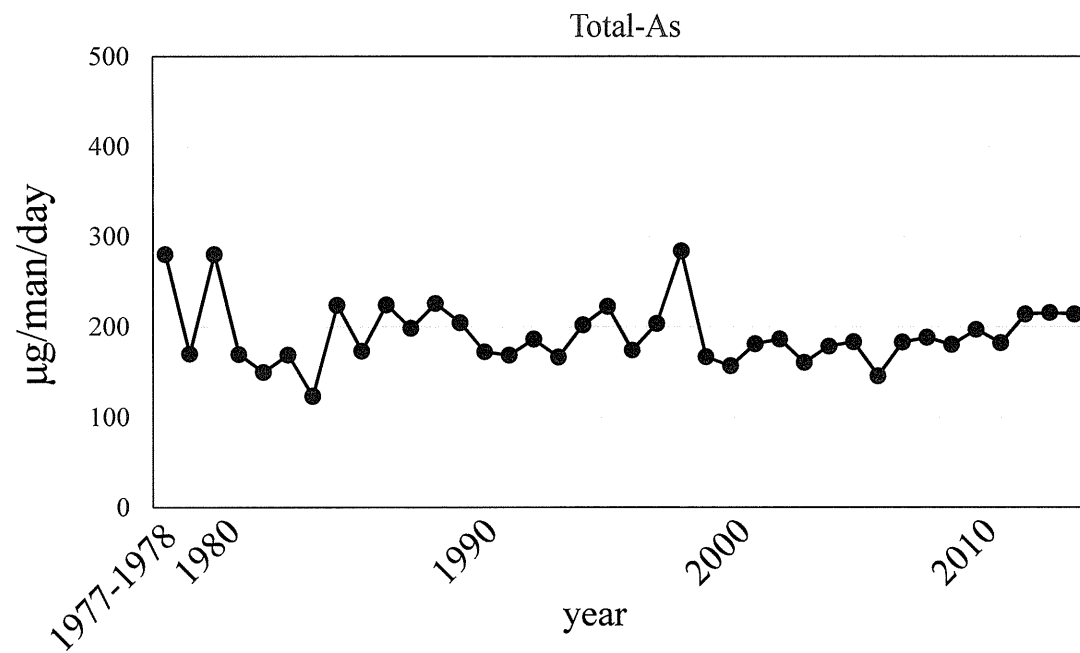


図7 総ヒ素摂取量の経年変化 (1977-2015)

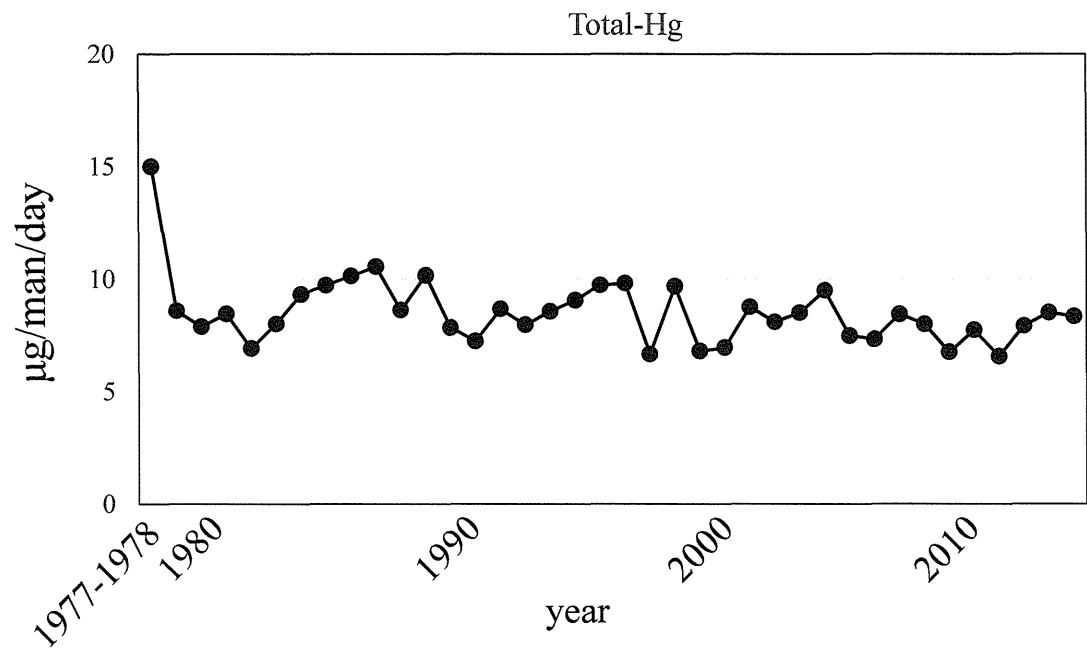


図 8 総水銀摂取量の経年変化 (1977-2015)

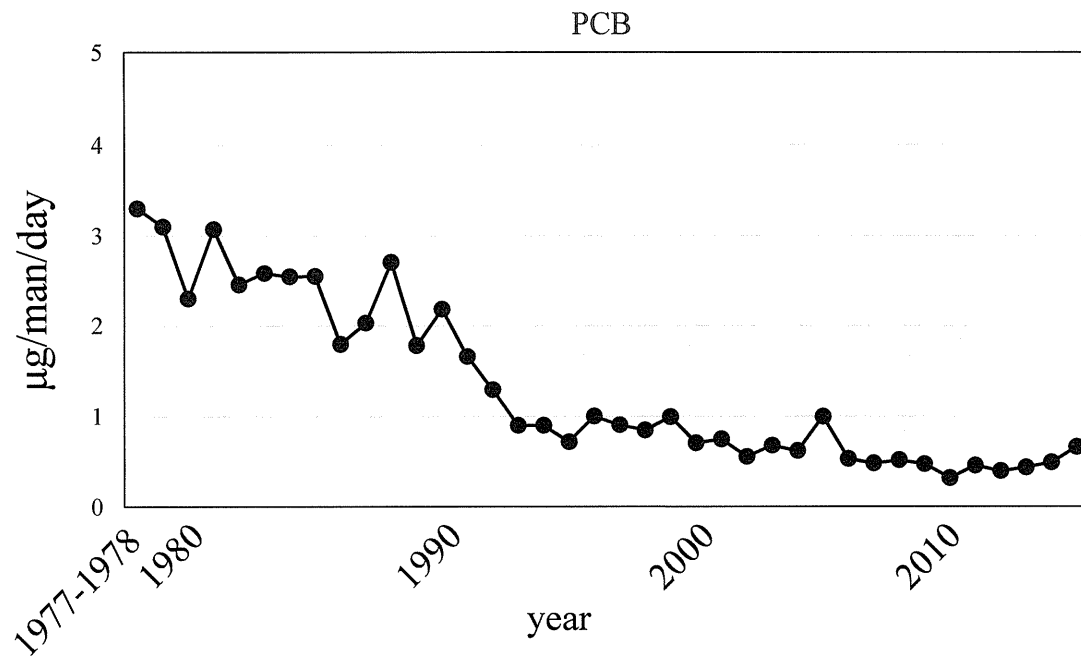


図9 総 PCBs 摂取量の経年変化 (1977-2015)

各種有害物質の適時及び継続的な摂取量推定研究・研究報告書
有害物質摂取量推定の部-メチル水銀摂取量の確率論的推定

研究要旨

鮮魚 210 試料を 5 つの魚グループに分け、それぞれのメチル水銀濃度を測定した結果と、国民健康・栄養調査のそれぞれの魚グループの摂取量分布を用いて、モンテカルロシミュレーションにより魚からのメチル水銀摂取量を推定した。メチル水銀の分析には性能を明らかにした分析法を用いた。シミュレーションは前提となる分布に従った各グループの魚のメチル水銀濃度と摂取量をランダムに発生して掛け合わせ、5 つのグループの総和をメチル水銀摂取量とした。メチル水銀摂取量の平均値は 5.83 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、中央値は 1.78 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ と推定された。90%tile 値は 15.04 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ と推定され、メチル水銀の TDI から計算した一日摂取量 11.43 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ を上回った。また、特定の一日に TDI を超える確率は 14%程度であった。

研究協力者 松田りえ子、林智子

A. 研究目的

メチル水銀等の有機水銀は、無機水銀よりもその毒性が強く、食品衛生法により総水銀 0.4 mg/kg、メチル水銀 0.3 mg/kg (水銀として)を暫定的規制値とすることが示されている。食品を介したメチル水銀の摂取量は、「有害物質摂取量推定の部-元素類及び PCBs 摂取量の推定-」の部において、マーケットバスケット(MB)方式のトータルダイエツト(TD)試料の分析結果に基づいて 6.61 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ と推定されている。この推定に基づく、メチル水銀の対 TDI 比は 58%となり、健康影響の観点からも監視の継続が必要と考えられる物質の一つである。

「有害物質摂取量推定の部-元素類及び

PCBs 摂取量の推定-」の部において、メチル水銀摂取量の推定方法には、食品の濃度実態データを使用した確率論的な手法が有効と考察されている。この考察は、メチル水銀の大部分が魚介類の群(10 群)から摂取されているという、TD 試料による摂取量推定の結果を根拠としている。

確率論的な手法を用いて摂取量分布を推定するためには、食品に含まれるメチル水銀濃度の正しい分布が必要となる。TD 試料によるメチル水銀摂取量推定の結果は、メチル水銀の大部分が魚介類から摂取されることを示しているため、魚介類のみのメチル水銀濃度からでも、おおむね正しい推定値が得られると期待される。この前提に基づいて、まず魚介類

210 試料を分析し、メチル水銀濃度を明らかにした。得られた濃度データと、魚介類の摂取量分布データを用い、モンテカルロシミュレーションにより、メチル水銀の一日摂取量分布の推定を試みた。

B. 方法

試料 東京都内及び神奈川県内の小売店で販売されていた産地の異なる鮮魚 210 試料を購入した。可食部(内臓を除く)を試料とした。

メチル水銀分析法 渡邊ら¹⁾の方法に従い、試料からメチル水銀を抽出しフェニル誘導体化した後に GC-MS で測定し定量した。認証標準試料ならびに鮮魚を基材とする添加試料(添加濃度 0.3 mg/kg)を用いた計画的な実験により、分析法の性能を明らかにした。分析者 3 名が性能を評価した結果、真度は 85~98%、室内精度(RSD%) は 1.6~8.1%と推定された。

確率論的摂取量推定 メチル水銀濃度を測定した 210 試料の魚類を、国民健康・栄養調査の食品小分類に従って、あじ・いわし類(あじ、いわし、さば、さんま)、さけ・ます類(さけ、にじます)、たい・かれい類(かれい、たい、たら)、まぐろ・かじき類(めかじき、くろまぐろ、めばちまぐろ、きはだまぐろ、びんながまぐろ、かつお)、その他の生魚類(いなだ、かんぱち、さわら、ぶり)の 5 つのグループに分類した。5 つの分類におけるメチル水銀濃度分布を Fig.1 に示す。まぐろ・かじき類には、メ

チル水銀濃度が 1.0 mg/kg を超える試料がみられたが、他の魚グループのメチル水銀濃度は 1.0 mg/kg 以下であった。さけ・ますのグループのメチル水銀濃度は特に低かった。

それぞれの魚グループの濃度分布に対数正規分布を適合し、シミュレーションに用いる濃度の分布とした。Table 1 にそれぞれのグループの対数平均と対数標準偏差を示す。対数平均はまぐろ・かじきが最も大きく、さけ・ますが最も小さかった。対数標準偏差が対数平均よりも大きく、環境に広く存在する汚染物質の典型的な分布を示した。

魚類摂取量の分布は国民健康・栄養調査のデータ(28,706 件)を使用した。Fig.2 には各グループを摂取した人数の分布を示す。調査対象全体の 66%(その他の生魚)~85%(まぐろ・かじき類)は、調査の当日に各グループの魚類を摂取していないため、Fig.2 からは除いた。また 20 g 以下の摂取量の人数も全体の 10~25%であり、全体としては左側に偏った分布となった。一方、200 g 以上を摂取した人の割合は 0.1%以下であった。このような形状の分布に、通常の連続分布をあてはめることは困難であるため、分布のあてはめを行わず、度数分布化してシミュレーションには使用した。

モンテカルロシミュレーションは Oracle 社製 Crystal ball を用いて行った。一回の試行において、魚のグループごとにメチル

水銀濃度と対応する摂取量それぞれ 1 個を分布に従って発生させ、両者の積を一日摂取量とし、これを 5 グループ分足し合わせて、全摂取量とした。試行回数は 20000 回とした。

C. 結果

Fig.3 にモンテカルロシミュレーションにより得られたメチル水銀摂取量の分布を示す。メチル水銀濃度、魚摂取量共に、右下がりの分布であることから、メチル水銀摂取量分布も同じような右下がりの分布となった。また、感度はまぐろ・かじき類の摂取量が 33.2%で最大となった。まぐろ・かじき類は、他の魚のグループと比較してメチル水銀濃度分布が高濃度範囲を含んでいるためと考えられる。次いで、感度が高かったのはその他の魚の摂取量であった。

Table 2 にモンテカルロシミュレーションにより得られた、メチル水銀摂取量分布の統計量を示す。メチル水銀摂取量の平均値は 5.83 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ となった。この値は、TD 試料の分析結果に基づく摂取量推定値である 6.61 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ の 88%であり、やや低い推定となった。本研究で試行したモンテカルロシミュレーションには、①鮮魚のみの濃度分布と摂取量を用い加工品を含めなかったこと、②魚以外の魚介類また、肉類からの寄与分が含まれていないことが、やや過小な推定につながった可能性がある。中央値は 1.78 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ で平均値

よりもかなり低い値となった。分布の形状からも、平均値に比べ中央値が低くなることは確認できる。90%tile 値は 15.04 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ と推定され、メチル水銀の TDI から計算した一日摂取量 11.43 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ を上回った。また、特定の日には TDI を超える確率は 14%程度であった。

モンテカルロシミュレーションで示された、95%tile 値あるいは TDI を超える割合は、ある一日の事象である。しかし、Fig.2 の右側に現れる魚多食者が、日常的に多くの魚を食べているとすれば、平均的な量と頻度で魚を食べる集団に比べ、TDI を超えてメチル水銀を摂取する可能性は大きくなる。実際に、魚多食者によるメチル水銀の摂取量をシミュレーションにより推定するためには、複数日にわたる食品摂取の調査等、食品摂取の傾向が明らかとなるような調査データが必要である。

D. 参考文献

- 1) Watanabe T, et al, Food Hyg. Saf. Sci., 56, 69-76 (2015)

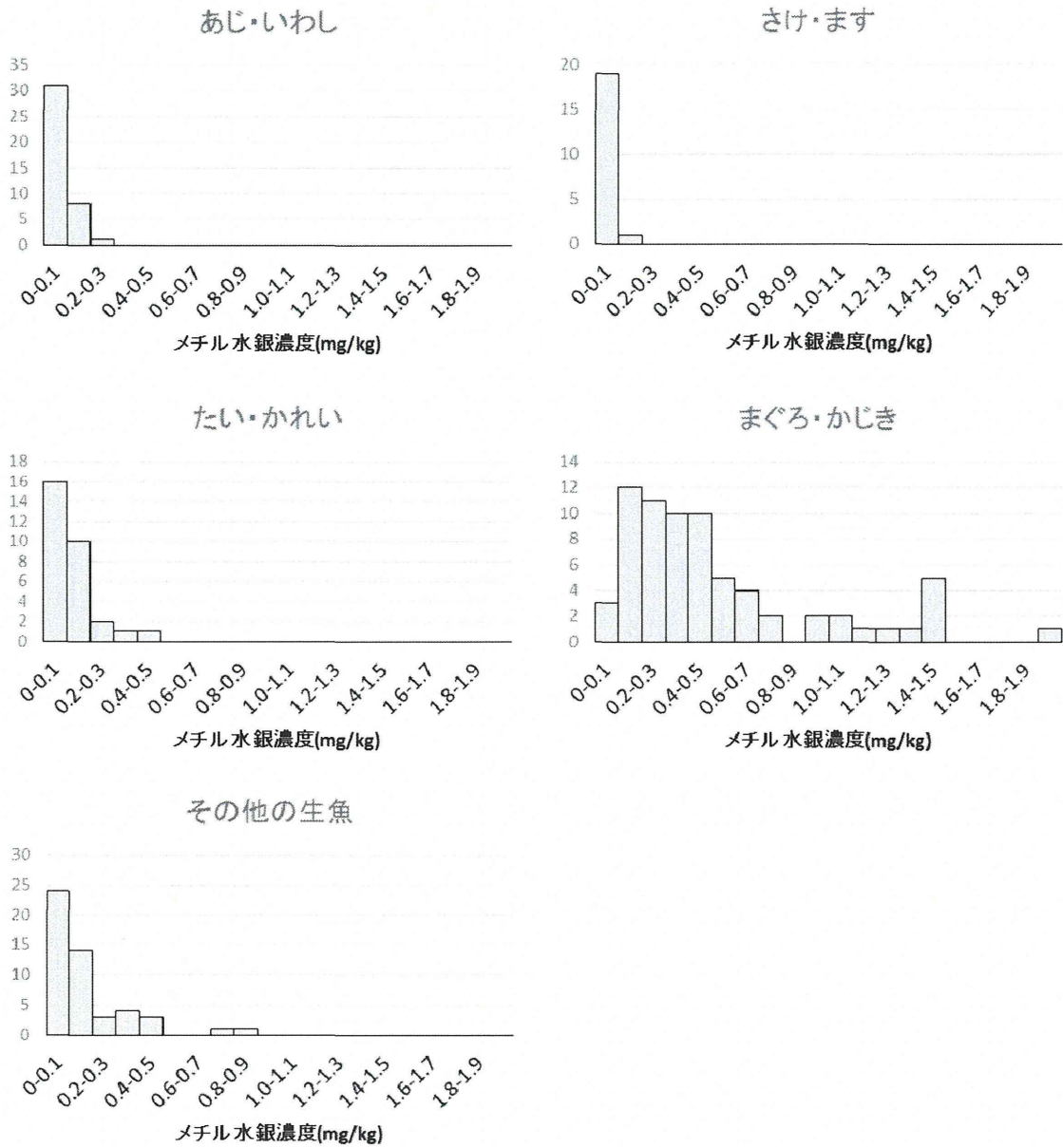


Fig.1 魚試料のメチル水銀濃度分布

Table 1 メチル水銀濃度分布のパラメータ

	あじ・いわし	さけ・ます	たい・かれい	まぐろ・かじき	その他の生魚
対数平均	0.07	0.03	0.12	0.54	0.18
対数標準偏差	0.07	0.05	0.13	0.53	0.28

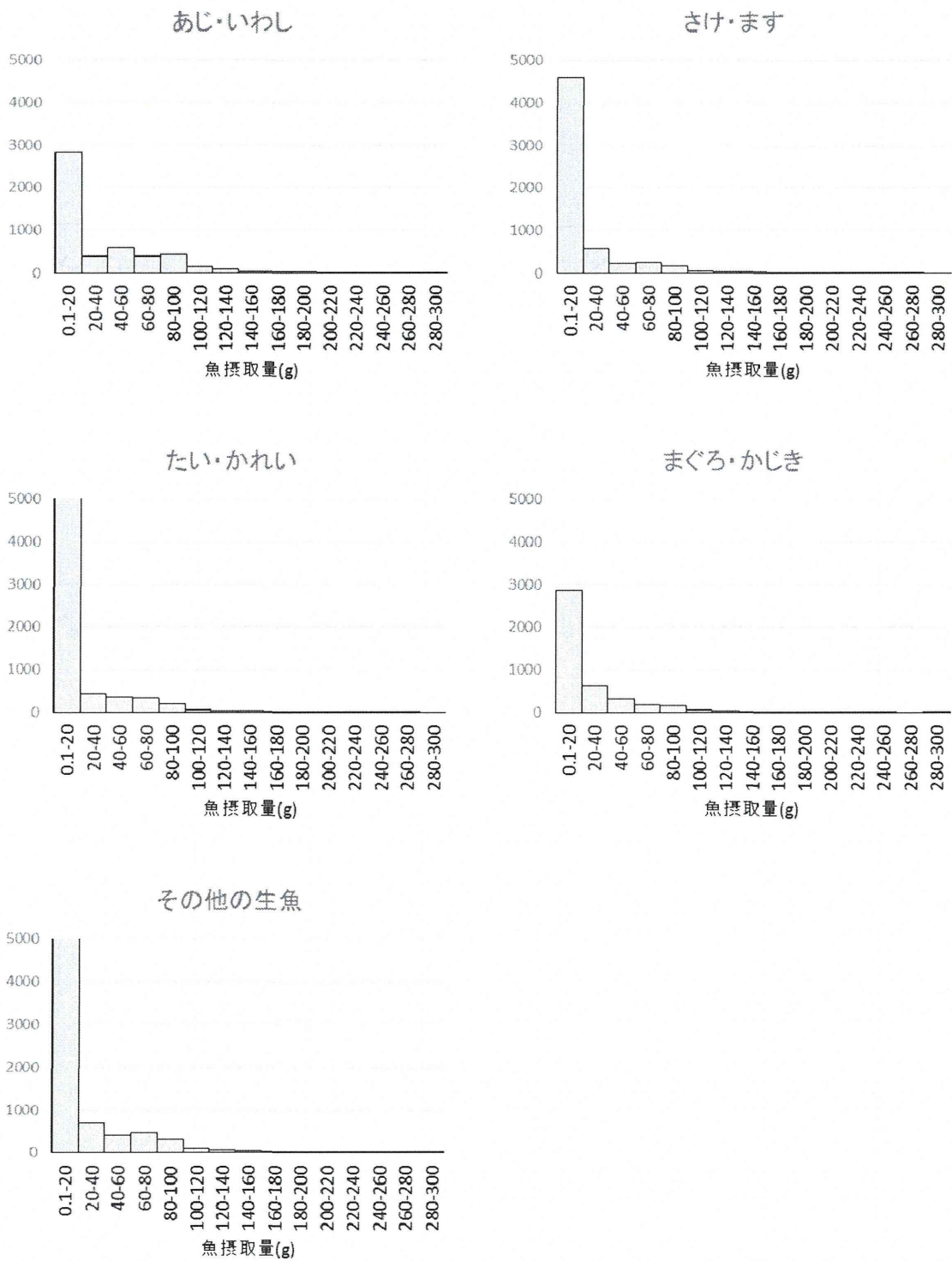


Fig.2 魚摂食者数分布