

201522007B

厚生労働科学研究補助金  
食品の安全確保推進研究事業

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

平成 25 年度～平成 27 年度 総合研究報告書

研究代表者

国立医薬品食品衛生研究所食品部

渡邊敬浩

研究分担者

国立医薬品食品衛生研究所食品部

堤 智昭

国立医薬品食品衛生研究所食品部

片岡洋平

国立医薬品食品衛生研究所食品部

松田りえ子

松山大学薬学部

天倉吉章

国立医薬品食品衛生研究所安全情報部

畝山智香子

平成 28 年(2016 年) 5 月

## 目 次

### 1. 総合研究報告書

- 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  
研究代表者 渡邊敬浩.....1

#### I. 有害物質の摂取量推定研究

- I-1. 元素類及び PCBs 摂取量の推定.....9  
I-2. メチル水銀摂取量の確率論的推定.....23  
渡邊敬浩  
I-3. 塩素化ダイオキシン類の摂取量推定及び個別食品濃度の実態調査.....26  
堤 智昭  
I-4. ハロゲン系難燃剤、水酸化 PCBs の摂取量推定及び実態調査.....31  
I-5. 多環報告族炭化水素類(PAHs)濃度への加工影響の検討及び個別食品濃度の実態調査.....36  
I-6. 摂取量の推定に用いる分析値の品質保証に関する研究.....41  
I-7. 摂取量推定値の分布に基づく推定手法の評価.....44  
渡邊敬浩

#### II. 摂取量の精密化研究

- II-1. リスクを考慮した精密摂取量推定手法の開発.....48  
松田りえ子  
II-2. 有害物質摂取量推定に不可欠な分析法の開発.....53  
片岡洋平

#### III. 摂取量を推定すべき新規有害物質の選定研究

- III-1. ダイオキシン様活性を有する新規有害物質に関する研究.....60  
天倉吉章  
III-2. 国際動向を踏まえた摂取量推定すべき有害物質の探索に関する研究.....63  
畝山智香子

2. 研究成果の刊行に関する一覧表.....76

### 3. 研究成果の刊行物・別刷

# 1. 総合研究報告書

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

渡邊敬浩

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  
総合研究報告書

研究代表者	渡邊敬浩	国立医薬品食品衛生研究所食品部
研究分担者	堤 智昭	国立医薬品食品衛生研究所食品部
研究分担者	片岡洋平	国立医薬品食品衛生研究所食品部
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
研究分担者	天倉吉章	松山大学薬学部
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

研究概要

有害物質の摂取量推定値は、ヒトの健康リスク管理のための基礎データであり、適切な施策には、高い信頼性と精密さが要求される。リスク管理の施策策定には、懸念される有害物質の摂取量推定値が適時に必要となる。同時に、リスクの高い有害物質の摂取量を継続的に監視し、施策効果を検証する必要がある。本研究では、様々な有害物質の信頼できる摂取量を適時にまた必要に応じて継続的に推定することを目的に、有害物質の摂取量推定、摂取量の精密化、摂取量を推定すべき新規有害物質の選定の3つに大別できる研究を実施した。

I. 有害物質の摂取量推定研究

I-1. 元素類及び PCBs 摂取量の推定

全国約 10 地域の地方衛生研究所等においてマーケットバスケット(MB)方式により調製したトータルダイエット(TD)試料の分析を通じ、健康リスクが懸念される蓋然性の高い有害物質である鉛、カドミウム、ヒ素、水銀を含む計 17 種の元素類(ホウ素;B、アルミニウム;Al、ニッケル;Ni、セレン;Se、カドミウム;Cd、アンチモン;Sb、バリウム;Ba、鉛;Pb、ウラン;U、総ヒ素;total As、無機ヒ素;iAs、総水銀;Hg、メチル水銀;MeHg、スズ;Sn、クロム;Cr、コバルト;Co、モリブデン;Mo)及び、PCBs の全国・全年齢層平均摂取量(全国摂取量 ave.)を推定した。H25 年度～H27 年度の各年度に推定された各種元素類及び PCBs の全国摂取量 ave.を以下に示した。なお、無機ヒ素摂取量は、分析法の開発を待ち H26 年度と H27 年度に推定した。

H25 年度に推定された摂取量 ; B:1523.8 µg/man/day、Al:4687 µg/man/day、Ni:156.8

μg/man/day、Se:90.2 μg/man/day、Cd:17.6 μg/man/day、Sb: 2.2 μg/man/day、Ba:468.4 μg/man/day、Pb:10.4 μg/man/day、U:1.0 μg/man/day、totalAs:213.9 μg/man/day、Sn:228.9 μg/man/day、Cr:30.2 μg/man/day、Co:9.0 μg/man/day、Mo:225.3 μg/man/day、Hg:7.9 μg/man/day、MeHg:6.7 μg/man/day、PCBs:436 ng/man/day。

H26 年度に推定された摂取量；B:1292 μg/man/day、Al:2453 μg/man/day、Ni:140 μg/man/day、Se:91.6 μg/man/day、Cd:19.3 μg/man/day、Sb:1.38 μg/man/day、Ba:442 μg/man/day、Pb:7.82 μg/man/day、U:1.16 μg/man/day、totalAs:215 μg/man/day、iAs:19.3 ng/man/day、Sn:133 μg/man/day、Cr:20.9 μg/man/day、Co:7.67 μg/man/day、Mo:216 μg/man/day、Hg:8.53 μg/man/day、MeHg:6.52 ng/man/day、PCBs:488 ng/man/day。

H27 年度に推定された摂取量；B:1417 μg/man/day、Al:3580 μg/man/day、Ni:143 μg/man/day、Se:86.9 μg/man/day、Cd:17.8 μg/man/day、Sb:0.872 μg/man/day、Ba:473 μg/man/day、Pb:12.1 μg/man/day、U:1.22 μg/man/day、totalAs:214 μg/man/day、iAs:15.4 ng/man/day、Sn:80.3 μg/man/day、Cr:28.8 μg/man/day、Co:8.90 μg/man/day、Mo:197 μg/man/day、Hg:8.37 μg/man/day、MeHg:6.61 ng/man/day、PCBs:663 ng/man/day。

上記元素類の摂取量を3年間分まとめて解析した結果、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、カドミウムの摂取量は年間の変動が小さく、3年間分の平均値がより頑健な全国摂取量ave.の推定値であると考えられた。以下に上記元素類の全国摂取量ave.の3年間分の平均値を示した。B:1407 μg/man/day、Ni:146 μg/man/day、Se:90 μg/man/day、Ba:461 μg/man/day、Cr:26 μg/man/day、Co: 8.5 μg/man/day、Mo:212 μg/man/day、Cd:18 μg/man/day。

本班松田分担研究課題において、H25年度～H27年度の3年間に特定の1地域で調製された幼児(1～3歳児)用TD試料(TD<sub>inf</sub>)の分析を通じ、各種元素類及びPCBsの幼児摂取量(摂取量<sub>inf</sub>)を推定した。各種有害物質ごとに、推定した摂取量<sub>inf</sub>と別途推定した同一地域の全年齢層摂取量(摂取量<sub>gen</sub>)の比率を求めた結果、107～228%となり、幼児における体重当たりの有害物質摂取量が全年齢層平均に比べおしなべて高いことが明らかとなった。

## I-2. メチル水銀摂取量の確率論的推定

本班片岡等分担研究課題において開発した方法を用いて、H26年度～H27年度の2年間に鮮魚 210 試料を分析し、得られたメチル水銀濃度と国民健康・栄養調査結果を解析して得た魚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。その結果、魚からのメチル水銀摂取量の平均値は 5.83 μg/man/day、中央値は 1.78 μg/man/day と推定された。90%tile 値は 15.04 μg/man/day と推定され、メチル水銀の耐容一日摂取量(TDI)から計算した一日摂取量 11.43 μg/man/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。

### I-3. 塩素化ダイオキシン類(DNXs)の摂取量推定及び個別食品濃度の実態調査

国民平均の DNXs 摂取量を推定するため、全国 7 地区 8 機関で調製した TD 試料を用いた摂取量調査を毎年度、実施した。平成 25 年度～27 年度の平均一日摂取量は 0.59～0.69 pgTEQ/kg bw/day であった。日本の DNXs の TDI に占める割合は 15～17%であった。DNXs 摂取量に占める割合が高い食品群は、10 群(魚介類)と 11 群(肉類・卵類)であり、これら 2 つの群で全体のほとんどを占めた。特に 10 群からの摂取量は大きく、全体の 9 割程度を占めた。

DNXs 摂取量の推定に資するデータの取得を目的に、個別食品中の DNXs 濃度についても調査した。魚介類(加工品含む)、肉・卵類について、21 種 158 試料の DNXs 濃度を調査した結果、中央値が最も高かったのはカニ味噌(8.9 pgTEQ/g)であり、サバなまり節(1.3 pgTEQ/g)、マグロ(1.2 pgTEQ/g)の順に続いた。魚油を使用した健康食品(11 製品)を調査した結果、一部の製品で高い濃度の DNXs(69 pgTEQ/g)が検出された。本製品を摂取した場合、DNXs 摂取量が大幅に上昇することになるため注意が必要と考えられた。調製粉乳(26 試料)並びに市販ベビーフード(42 試料)の DNXs 濃度は他の食品と比較して低く(0.05 pgTEQ/g 未満)、乳幼児の TDI に占める割合は最大でも 15%程度と推定された。

モンテカルロシミュレーションにより推定した魚介類からの DNXs 摂取量の平均値は、全年齢層(1 歳以上)が 1.2 pgTEQ/kg bw/day、幼児 1(1-3 歳)が 1.9 pgTEQ/kg bw/day、幼児 2(4-6 歳)が 1.5 pgTEQ/kg bw/day、学童(7-12 歳)が 1.4 pgTEQ/kg bw/day、中学・高校生(13-18 歳)が 0.92 pgTEQ/kg bw/day、成人(19-64 歳)が 0.89 pgTEQ/kg bw/day、高齢者(65 歳以上)が 1.2 pgTEQ/kg bw/day であった。平均値は幼児 1 が最も大きく、年齢の上昇と共に低下して中学・高校生及び成人で最も小さくなり、高齢者でやや増加した。また、ダイオキシン類摂取量の 90%tile 値及び 95%tile 値についても平均値と同様に、幼児 1 が最も大きく、年齢の上昇と共に低下して中学・高校生及び成人で最も小さくなり、高齢者でやや増加した。

### I-4. ハロゲン系難燃剤、水酸化 PCBs の摂取量推定及び実態調査

H25 年度には、摂取量推定の実施の判断に必要な有害物質濃度の実態調査として、毒性や国際的な規制等の動向から優先度が高いと判断した臭素系難燃剤(ヘキサブロモシクロドデカン; HBCD)、塩素系難燃剤(デクロランプラス; DP)を対象に個別食品濃度の実態を調査した。H26 年度と H27 年度には、低濃度ながらも含有実態が明らかとなった HBCD 及び DP の摂取量を推定した。塩素系難燃剤については、分析法を改良することで、DP を含む 7 種の化合物(デクロラン類)の分析を可能にした。

ハロゲン系難燃剤の他、水酸化 PCBs について、H25 年度～H27 年度の 3 年間に分析法の開発改良並びに、魚類 40 試料を対象とした濃度実態の調査を実施した。

#### **I-5. 多環報告族炭化水素類(PAHs)濃度への加工影響の検討及び個別食品濃度の実態調査**

多環芳香族炭化水素類(PAHs)には Benzo[a]pyrene (BAP)をはじめとする発がん性が懸念される物質が含まれている。本研究では、食品中の PAHs 16 種を対象とする GC-MS/MS 法を検討したうえで、以下、3 つの研究を実施した。

燻製食品や加熱調理食品中の PAHs 16 種濃度の実態調査；燻製及び加熱調理された食品(16 種 195 試料)の PAHs 濃度を調査した。概して、燻製食品は加熱調理された食品よりも PAHs 濃度が高く、燻製食品の中でも特に鰹削り節、ダシパック及び顆粒・粉末調味料の PAHs 濃度が高かった。さらに、PAHs 濃度が高かった鰹削り節やダシパックから浸出液(ダシ)への PAHs の移行率を調査した結果、ダシへの PAHs の移行率は最大でも 3%であり、ダシには PAHs は殆ど移行しないことが分かった。

燻製調理や加熱調理が食品の PAHs 濃度に与える影響；熱燻と温燻の 2 種類の燻製調理について検討した結果、熱燻した食品の PAHs 濃度は、温燻より高くなるが多かった。また、熱燻では、燻製チップにサクラを使用すると、ヒッコリーよりも PAHs 濃度が高い傾向があった。次に、種々の加熱調理方法が食品の PAHs 濃度に与える影響を調査した結果、サンマ、鶏モモ肉及び、鶏皮肉については、ガスグリルと炭火焼きで調理した場合、PAHs 濃度が顕著に高くなった。これらの加熱調理では炎が発生し、炎と食品が接触したことから PAHs 濃度が大きく上昇したものと考えられた。

陰膳方式による日常の食事からの PAHs 摂取量の推定；陰膳試料 20 日分(計 60 試料)の PAHs を分析し、食事からの PAHs 一日摂取量を推定した。BAP、PAHs 4 種合計及び PAHs 16 種合計の一日摂取量の平均値は、それぞれ 39、470 及び 741 ng/man/day であった。陰膳試料の分析から推定された最大の一日本摂取量を用いて暴露マージン(MOE)を計算すると、BAP に対して約 79,000、PAHs 4 種合計に対して約 20,000 となり、10,000 を大きく上回っていたことからリスク管理の優先度は低いと考えられた。

#### **I-6. 摂取量の推定に用いる分析値の品質保証に関する研究**

より精確で信頼できる摂取量を推定するためには、その計算に用いられる分析値の品質が、一定の水準を満たしていることが保証されなければならない。本研究では、摂取量推定に用いる分析値の品質保証に必要な、分析法の性能評価手法の開発を目的とし、MB 方式による TD 試料を模した性能評価用試料(SEMP)を開発した。また、摂取量推定を目的とする分析法の一例として多元素一斉分析法を取りあげ、本法を用いて SEMP を分析した。その結果から、食品に本来含まれている元素が異なる濃度で含まれていたものの、SEMP

の均質性が非常に高いことが示された。さらに、SEMPの分析結果及び、推定すべき摂取量の大きさを踏まえ濃度を決定し調製した添加試料の計画的な分析の結果から、多元素一斉分析法の真度と精度を推定した。その結果、一部の元素と試料の組合せを除き、真度は90～110%、併行精度は15%未満と推定された。

#### I-7. 摂取量推定値の分布に基づく推定手法の評価

H25年度～H27年度の3年間に、全国の10ないし11機関で毎年作製されたTD試料の分析結果に基づき推定した各種有害物質の摂取量推定値を解析し、全国摂取量ave.の推定値の分布範囲や、その有害物質による違いを評価した。

## II. 摂取量の精密化研究

### II-1. リスクを考慮した精密摂取量推定手法の開発

幼児や高齢者といった、特定の集団における各種有害物質の摂取量を推定する基礎情報として、年代別の食品摂取量パターンを比較した。その結果、体重1kg当たりの食品一日摂取量は、1～3歳の幼児で最も大きく、成長と共に小さくなることが明らかとなった。この結果から、1～3歳の幼児における有害物質の体重当たり一日摂取量も、全年齢層平均よりも大きいと予想された。この予想に基づき、1～3歳の幼児の有害物質一日摂取量を推定するために、幼児の平均的食事を模したTD試料(TD<sub>inf</sub>)を、平成25年度からH27年度までの3年間に3セット調製した。TD<sub>inf</sub>の調製では、全年齢層平均食品摂取量に基づいたTD試料(TD<sub>ave</sub>)と可能な限り同一の食品を使用した。これら2つのTD試料の分析を通じて推定された元素類、PCBs、DXNsの体重当たり一日摂取量を比較したところ、幼児の体重当たり一日摂取量は全年齢層平均の体重当たり一日摂取量よりも大きくなり、両者の比は体重当たり食品一日摂取量の比(1.77)と近い値となる場合が多かった。そこで、TD<sub>ave</sub>により推定した全年齢層平均の体重当たり一日摂取量から、幼児の体重当たり一日摂取量を推定する方法を検討した。その結果、大部分の元素ではTD<sub>ave</sub>から推定した体重当たり一日摂取量に、幼児と全年齢層平均の体重当たりの食品一日摂取量の比を乗じることにより、幼児の一日摂取量を推定することが可能であったが、Al、Sn、Sb等は正しく推定できない場合があった。Hg、PCBs、DXNsでは魚介類の体重当たり一日摂取量の比を乗じて、幼児の体重当たり一日摂取量の推定が可能であった。この方法を用いることにより、過去の摂取量データから、有害物質の摂取量を遡って推定することが可能となった。

### II-2. 有害物質摂取量推定に不可欠な分析法の開発

異なる修飾基が結合することで異なる化学形態をもつ元素類が存在する。これら元素の毒性が、化学形態によって異なる場合がある。水銀の化学形態の1つであるメチル水銀



は、無機の水銀に比べ毒性が高い。また、様々な化学形態をもつヒ素化合物のうち、無機ヒ素の毒性が高い。本研究では、メチル水銀と無機ヒ素の摂取量推定に不可欠な分析法の開発を目的に、技術的な困難さや適用すべき試料を考慮して段階を踏みながら、以下、4つの研究を実施した。なお、開発した分析法を用いた TD 試料分析の結果に基づき、メチル水銀及び無機ヒ素の摂取量が推定された。

暫定的規制値への適合判定を目的としたメチル水銀分析法の開発；フェニル誘導体化 GC-MS 法を改良し、その性能を評価した。推定された真度と精度がガイドライン(食安発第 0926001 号)の目標値を満たしたことにより、暫定的規制値への適合を判定するための分析法としての妥当性を確認した。

摂取量推定に使用可能なメチル水銀分析法の開発；改良 GC-MS 法を基本とし、測定機器の GC-MS/MS への変更等を検討することで、TD 試料中のメチル水銀の分析が可能な GC-MS/MS 法を開発した。魚介類(10 群)と肉類(11 群)の SEMP を用いた添加試料を計画的に分析し、開発した GC-MS/MS 法の真度と精度を推定した。

摂取量推定に使用可能なヒ素の化学形態別分析法の開発；希硝酸を用いて TD 試料からヒ素化合物を抽出する方法と逆相イオンペアクロマトグラフィー分離したヒ素化合物を ICP-MS により検出する測定法とを組み合わせ、ヒ素の形態別分析法(HPLC-ICP-MS 法)を開発した。開発した HPLC-ICP-MS 法の性能を評価した結果、有機ヒ素化合物については、標準物質がない未知のヒ素化合物に由来すると考えられる信号が多数検出されたため、正確な定量が困難または、不可能であった。無機ヒ素については、As(III)と As(V)の変換が動的に起こり、それぞれの価数の無機ヒ素を個別に定量することは困難であった。しかし、As(III)と As(V)の量の和を真値とし、これと As(III)と As(V)の分析値の和との比較によって推定した真度は 91~108%であったことから、HPLC-ICP-MS 法は As(III)と As(V)の量の和を無機ヒ素量として定量可能な分析法であると考えられた。その他、測定系に LC-MS/MS を用いた分析法の開発や、LC-QTOF/MS による有機ヒ素のイオン形態の確認について検討した。

精米及び玄米を分析対象とした無機ヒ素分析法の開発；無機ヒ素の主要摂取源となる食品がコメであることが明らかになったことを踏まえ、より精密な摂取量推定に使用可能な分析法への改良を目的に、試料を精米及び玄米に限り、HPLC-ICP-MS 法の分析条件等を検討した。改良した分析法の性能を認証標準試料あるいは添加試料の分析値に基づき評価した結果、As(III)と As(V)の変換を抑制することはできなかったが、As(III)と As(V)の量の和を真値として推定した真度は 99~102%、併行精度(RSD%)は 1.0~2.6%であった。

### III. 摂取量を推定すべき新規有害物質の選定研究

#### III-1. ダイオキシン様活性を有する新規有害物質に関する研究

食品中の DXNs 簡易測定生物検定法〔アリル炭化水素レセプター(AhR)が DXNs 等の環境汚染物質をリガンドとするメカニズムを利用したバイオアッセイ〕の他有害物質への評価応用のための基礎検討を行った。H25 年度には、PAHs や農薬等(76 種)を対象に AhR 活性化(DXNs 様活性)を評価し、PAHs の多くが顕著な DXNs 様活性を示すことを確認した。PAHs 誘導体については、環の数が多くなれば活性が強くなる傾向が認められた。ハロゲン化体は、塩素の数が多くなるほど活性が弱まった。農薬ではインドール骨格を有する carbendazim、thiabendazole の 2 種の化合物に強い活性が認められた。アミノ酸及びその代謝物についても同様、インドール化合物 tryptamine に活性が認められた。また、PAHs に DXNs 様活性が確認されたことから、PAHs 検出の報告がある食品の抽出物を調製し DXNs 様活性を測定した。H26 年度には、検討に用いた評価法(ケイラックスアッセイ)の妥当性を確認した。他のアッセイ(ヒト由来組換え細胞によるレポータージーンアッセイ及び酵母を用いたアッセイ)により得たデータをケイラックスアッセイのデータと比較したところ、検出感度の違いが認められたものの、活性の有無についてはほぼ同等の傾向が確認された。H27 年度には、PAHs 検出の報告がある食品(紅茶、ウイスキー、かつお節)の DXNs 様活性画分から、紅茶由来の活性物質として epigallocatechin gallate を見いだした。ウイスキー、かつお節由来活性画分について分離精製を試みたが、芳香族を持たない化合物の関与が推測され、いずれも PAHs 以外の関与が示唆された。一方で、自然毒の原因物質数種の DXNs 様活性を評価し、イヌサフランに含まれるコルヒチンの活性をはじめ明らかにした。

#### III-2. 国際動向を踏まえた摂取量推定すべき有害物質の探索に関する研究

食品にはしばしば、環境や食品そのものに由来する有害物質が含まれるが、その実態やリスクの大きさについては情報が圧倒的に不足している。国民の健康保護のためには、食品の安全性確保は重要課題であるが、有害物質のリスクを評価するには摂取量の推定が必須である。食品に含まれる無数の化合物について、全ての摂取量を推定するのは不可能なので、優先順位をつける必要がある。そこで国際的に問題となる可能性の高そうな物質を、文献情報と世界の食品安全担当機関の評価書などをもとに検討した。H25 年度と H26 年度には、リスクの大きさの指標として MOE を検討している学術文献や評価書を検索して数値を抽出し、MOE の大きさで分類した物質のリストを作成した。H27 年度には、本班の渡邊等の研究課題において得られた日本人の元素類の推定摂取量推定値と、H25 年度～H26 年度にかけて集めた各種物質の毒性評価情報を利用して MOE を試

算した。試算結果は諸外国の規制機関や文献で報告されている海外での値とそれほど極端な違いはなく、国際的に重要とみなされている食品中の有害物質は日本においてもリスク管理が必要であることが示唆された。

## 本研究班の目的と特徴

有害物質の摂取量推定値は、ヒトの健康リスク管理のための基礎データである。リスク管理のための限りあるリソースを有効に配分するためには、摂取量推定値に基づき各種有害物質による健康リスクを評価し、優先度を検討する必要がある。施策に直結する科学的根拠であることから、摂取量推定値には高い信頼性と精密さが要求される。また、国民の健康リスクが増加することなく、より低減する方向で管理されている状態を施策の実施により速やかに達成するためには、摂取量を適時に推定する必要がある。さらに、リスク管理措置後には、その効果を検証するために、リスクが無視できるほど低減されることがない限り継続的に摂取量を推定し監視することも必要となる。

本研究班では、各種有害物質の摂取量を適時また必要に応じて継続的に推定し、厚生労働省における有害物質による健康リスク管理の科学的根拠として提供することを第一の目的とした。この目的を達成するために、有害物質の摂取量推定、摂取量の精密化、摂取量を推定すべき新規有害物質の選定の 3 つに大別できる研究を、必要に応じて有機的に連携させながら実施したことが本研究の特徴である。H25 年度～H27 年度の 3 年間の研究を取りまとめ、次ページ以降に研究課題別に概要を示した。

# I. 有害物質の摂取量推定研究

I-1. 元素類及び PCBs 摂取量の推定

I-2. メチル水銀摂取量の確率論的推定

渡邊敬浩

I-3. 塩素化ダイオキシン類の摂取量推定及び個別食品濃度の実態調査

堤 智昭

I-4. ハロゲン系難燃剤、水酸化 PCBs の摂取量推定及び実態調査

I-5. 多環報告族炭化水素類(PAHs)濃度への加工影響の検討及び個別食品濃度の実態調査

I-6. 摂取量の推定に用いる分析値の品質保証に関する研究

I-7. 摂取量推定値の分布に基づく推定手法の評価

渡邊敬浩

## I. 有害物質の摂取量推定研究

### I-1. 元素類及び PCBs 摂取量の推定

#### A. 研究目的

本研究では、有害物質の適時及び継続的な摂取量推定を目的とした。有害物質には、過去の研究成果や耐用一日摂取量(TDI)が設定されていることを指標に、鉛、カドミウム、ヒ素(総ヒ素並びに無機ヒ素)、水銀(総水銀並びにメチル水銀)を含む計 17 種の元素類及び PCBs を選定した。

鉛、カドミウム、ヒ素、水銀を含む元素類及び PCBs の摂取量を、マーケットバスケット(MB)方式によるトータルダイエツト(TD)研究の一環として、H25 年度～H27 年度の 3 年間、継続して推定した。なお、無機ヒ素の摂取量は、本班片岡分担課題における分析法の開発を待ち、H26 年度と H27 年度に推定した。本 TD 研究には、地方自治体所管の衛生研究所等に毎年ご協力をいただいた。本研究では、上記有害物質の全国・全年齢層における平均摂取量(全国摂取量 ave.)の他、本班松田分担課題において調製された幼児用 TD 試料(TD<sub>inf</sub>)の分析を通じ、各種有害物質の幼児における摂取量(摂取量 inf.)も推定した。

#### B. 研究方法

##### 1. TD 試料の調製

日本人が日常的に飲食する食事(日常食)からの各種有害物質摂取量を推定するため、日常食のモデルとなる TD 試料を MB 方式

により調製した。試料に含める食品数を多くすることと、地域による食品摂取パターンの違いを考慮し、TD 試料の調製は、3 年間を通して、全国の 10 ないし 11 地域の衛生研究所等で行った。TD 試料の調製に必要な、該当する各地域における個々の食品の摂取量は、統計法に基づく申請手続きを経て入手した平成 20 年度～22 年度の 3 年間分の国民健康・栄養調査の結果を集計し求めた。この集計では、年齢を要素としなかったため、該当する地域における各食品の全年齢層平均摂取量が集計結果である。各地域の担当者は、小売店から食品を購入し、茹でる、焼く等の一般的な調理加工を行ってから、該当する地域における 1 日当たりの摂取量と割合に従って秤量し、混合・均質化することで試料を調製した。

TD 試料は、混合・均質化の際に組み合わせる食品の種類に応じて、下記 14 群に分割して調製した。1 群:米及びその加工品、2 群:雑穀・芋、3 群:砂糖・菓子類、4 群:油脂類、5 群:豆・豆加工品、6:果実類、7 群:有色野菜、8 群:その他の野菜・海草類、9 群:嗜好飲料、10 群:魚介類、11 群:肉・卵、12 群:乳・乳製品、13 群:調味料、14 群:飲料水。

各地域で調製された TD 試料は、変質等による分析結果への影響に配慮し、不活性容器に入れ冷凍状態を保ちつつ、国立医薬品食品衛生研究所に収集された。全ての分

析は、国立医薬品食品衛生研究所で実施した。

TD<sub>inf</sub>の調製については、本総合報告書中、松田分担研究の報告を参照のこと。

本研究を実施した、H25年度～H27年度の3年間に蓄積されたデータをまとめて解析し、各種有害物質摂取量推定値の推移や変動を明らかにし、原因等について考察した。

## 2. 元素類の一斉分析

### 2-1. 試薬・試液

分析に使用した主たる試薬を以下に示す。

- ・水：メルク社製装置(Milli Q Element A10)により製造した超純水。(比抵抗 > 18.2MΩ・cm、TOC < 3 ppb)
- ・硝酸：硝酸 1.42 Ultrapur-100 (関東化学株式会社)
- ・過酸化水素水：Ultrapure (関東化学株式会社)
- ・各種元素標準原液 (ウランを除く)：Trace CERT ICP用 (シグマアルドリッチ社製)
- ・ウラン標準原液：XSTC-289 (西進商事)
- ・混合内部標準溶液：ベリリウム(Be)、ガリウム(Ga)、イットリウム(Y)、インジウム(In)、タリウム(Tl)の濃度がそれぞれ 50 mg/L、20 mg/L、2 mg/L、10 mg/L、0.5 mg/L になるように各元素の標準原液から適量を分取し、硝酸 14 mL を加えた後、水で 100 mL に定容した。

### 2-2. 機器

- ・マイクロ波分解装置：ETHOS-One 及び ETHOS-TC (マイルストーンゼネラル社製)
- ・ICP-MS：ICP-MS iCAPQ (サーモフィッシャーサイエンティフィック社製)

## 2-3. 分析法

### 測定溶液の調製

各分析用試料から 0.5 g をマイクロ波分解装置用容器に量りとった。硝酸 7 mL 及び過酸化水素水 1 mL を加え、分解した。分解後の溶液に、混合内部標準溶液 0.5 mL を添加後、水で 50 mL に定容した。定容後の溶液を測定溶液として ICP-MS により測定した。

### 試料の分解条件

マイクロ波分解装置による分解は、以下の条件で行った。

70°C; 2 分間 → 50°C; 3 分間 → 200°C; 18 分間 (50°C から 200°C までの温度変化に要する時間)。200°C に到達した後、同温度でさらに 28 分間分解させた。

### 測定条件

ICP-MS による測定は、以下の条件で行った。なお、各測定パラメータは、標準試薬を用いた機器のキャリブレーション結果に基づき設定した。

- ・スプレーチャンバー：(ペルチェ冷却ジャケット付)サイクロン型
- ・コリジョンガス：ヘリウム(99.9999%)
- ・測定モード：KED(Kinetic Energy Discrimination:運動エネルギー弁別)モード

- ・元素あたりの測定時間：1 秒  
(積分時間(s)：0.1、チャンネル数：1、スペース(u)：0.1、掃引数(回)：10)
- ・繰り返し測定回数：3

### 分析対象元素の測定質量数

分析対象とした 14 種の元素と測定質量数は以下の通りである。(括弧内の数字が測定質量数)

ホウ素:B(11)、アルミニウム:Al(27)、クロム:Cr(52)、コバルト:Co(59)、ニッケル:Ni(60)、ヒ素:As(75)、セレン:Se(78)、モリブデン:Mo(95)、カドミウム:Cd(111)、スズ:Sn(118)、アンチモン:Sb(121)、バリウム:Ba(137)、鉛:Pb(208)、ウラン:U(238)。

### 内部標準元素の測定質量数

内部標準とした元素と測定質量数は以下の通りである。(括弧内の数字が測定質量数)

Be(9)、Ga(71)、Y(89)、In(115)、Tl(205)。

## 2-4. 検出下限及び定量下限

試料を含めず全分析操作を実施する操作ブランク実験を、試料の分解に使用するすべての容器(計 54)を用いて行い、得られた定量値から標準偏差( $\sigma$ )を推定し、その 3 倍の値( $3\sigma$ )を検出下限(LOD)、10 倍の値( $10\sigma$ )を定量下限(LOQ)として推定した。LOD を下回った値は ND とした。

## 3. メチル水銀分析

### 3-1. 試薬・試液

メチル水銀の分析に使用した主たる試薬を以下に示す。

- ・塩化メチル水銀：ジーエルサイエンス
- ・アセトン及びトルエン：残留農薬・PCB 分析用(関東化学株式会社製)
- ・臭化カリウム：特級(和光純薬工業株式会社)
- ・硫酸銅(II)：鹿特級(関東化学株式会社)
- ・L-システイン塩酸塩一水和物：特級(和光純薬工業株式会社)
- ・テトラフェニルホウ酸ナトリウム：和光純薬工業株式会社
- ・ポリエチレングリコール 200：一級(和光純薬工業株式会社)
- ・1 mol/L 臭化カリウム溶液：臭化カリウム 119.0 g を水に溶解し、1 L とした。
- ・硫酸銅(II)飽和 4 mol/L 硫酸：水 600 mL に硫酸 200 mL を加え、放冷後、水を加えて 900 mL にした後、無水硫酸銅(II)を飽和するまで溶解させた。
- ・1%L-システイン溶液：L-システイン塩酸塩一水和物 10.0 g、酢酸ナトリウム三水和物 8.0 g、無水硫酸ナトリウム 125.0 g を水に溶解し、1 L とした。
- ・0.2 mol/L りん酸緩衝液(pH 7.0)：りん酸二水素ナトリウム二水和物 31.2 g を水に溶解して 1 L とし、これを第一液とした。りん酸水素二ナトリウム十二水和物 71.6 g を水に溶解して 1 L とし、これを第二液とした。第一液 380mL と第二液 610mL を混合し、必要に応じて、第一液を用いて pH を 7.0 に調整した。

### 3-2. 機器

・GC-MS/MS : TSQ Quantum XLS (サーモフィッシャーサイエンティフィック社製)

### 3-3. 分析法

#### 測定溶液の調製

各分析用試料から 10.0 g を量りとり、アセトン 100 mL を加え 30 秒間振とうした。アセトンを除去後、トルエン 100 mL を加え 30 秒間振とうした。遠心後、トルエンを除去し、1 mol/L 臭化カリウム溶液 40 mL、硫酸銅(II)飽和 4 mol/L 硫酸 40 mL 及びトルエン 80 mL を加え、30 分間激しく振とうした。遠心後、トルエン層を採取した。水層にトルエン 50 mL を加え 10 分間振とう後、同様に操作して得られたトルエン層を合わせた。

1% L-システイン溶液 50 mL を加え 5 分間振とうし、静置後、水層を採取した。6 mol/L 塩酸 30 mL、トルエン 30 mL を加え 5 分間振とう後、トルエン層を採取した。水層にトルエン 30 mL を加え 5 分間振とうし、トルエン層を合わせ、正確に 100 mL とした。トルエン溶液 4 mL に 0.2 mol/L リン酸緩衝液 (pH 7.0) 5 mL、1% テトラフェニルホウ酸ナトリウム溶液 1 mL を加え、室温に 10 分間静置後、遠心した。トルエン層を脱水後、1 mL を採取し、1.5 mg/mL PEG200 0.5 mL を正確に加え混合したものを測定溶液とした。

#### 測定条件

GC-MS/MS による測定は、以下の条件で行った。

- ・カラム: InertCap 5MS/NP (内径 0.25 mm、長さ 30 m、膜厚 0.25  $\mu$ m)
- ・オープン温度: 70  $^{\circ}$ C (1 min)  $\rightarrow$  10  $^{\circ}$ C /min  $\rightarrow$  160  $^{\circ}$ C (0 min)  $\rightarrow$  20  $^{\circ}$ C /min  $\rightarrow$  280  $^{\circ}$ C (5 min)
- ・注入口温度: 250  $^{\circ}$ C
- ・トランスファライン温度: 280  $^{\circ}$ C
- ・イオン源温度: 280  $^{\circ}$ C
- ・溶媒待ち時間: 6 分
- ・注入量: 1  $\mu$ L
- ・キャリアガス(He)流量: 1.0 mL/min
- ・イオン化法: EI
- ・分析モード: SRM
- ・モニターイオン: m/z 294  $\rightarrow$  m/z 279 (コリジョンエネルギー: 5 V)

### 4. 総水銀分析

#### 4-1. 試薬・試液

総水銀分析に使用した主たる試薬を以下に示す。

- ・L-システイン塩酸塩一水和物: L-システイン塩酸塩一水和物(特級)(和光純薬社)
- ・水: メルク社製装置(Milli Q Element A10)により製造した超純水(比抵抗 > 18.2 M $\Omega$  · cm、TOC < 3 ppb)
- ・硝酸: 硝酸 1.42 Ultrapur-100 (関東化学株式会社)
- ・添加剤 B: 活性アルミナ(日本インスツルメンツ社)
- ・添加剤 M: 炭酸ナトリウムと水酸化ナトリウムを体積比 1:1 で混合したもの(日本インスツルメンツ社)



・標準原液：ICP-MS 用 1000 mg/L 水銀標準原液(シグマアルドリッチ社)

・0.001% L-システイン溶液：L-システイン塩酸塩一水和物 14.5 mg を量りとり、水 900 mL、硝酸 2 mL を加え溶解後、水で 1000 mL に定容した。

・添加用標準溶液：標準原液を 0.001% L-システイン溶液で希釈し、100 ng/mL 並びに 2 ng/mL の溶液を調製した。

#### 4-2. 機器

・総水銀計：マーキュリー/MA-2000 (日本インスツルメンツ社)

・セラミック製サンプルボート(日本インスツルメンツ社)

#### 4-3. 測定条件

加熱モード：装置にあらかじめプログラムされている加熱モードのうち、標準溶液及び 14 群試料の測定には MODE 1、14 群以外の試料の測定には MODE 3 を選択した。  
測定モード：装置にあらかじめプログラムされている測定モードのうち、標準溶液及び水銀濃度が 0.01 mg/kg 未満の試料の測定には LOW モード、水銀濃度が 0.01 mg/kg 以上の試料の測定には HIGH モードを用いた。

#### 4-4. 分析前の準備

・添加剤 B 及び添加剤 M：使用する直前に 750°C で 5 時間加熱した。

・サンプルボート：5M 硝酸溶液に 12 時間以上浸け置きした後、水でよくすすぎ、使用

する直前に 750°C で 5 時間加熱した。冷却後、総水銀計により 800°C で 4 分間再加熱した。

#### 4-5. 分析法

##### 測定試料の調製

標準溶液は、100 µL をサンプルボートに直接量り取り、測定試料とした。

食品試料は、100 mg をサンプルボートの底面に配した添加剤 M の上に配し、さらに添加剤 M、添加剤 B、添加剤 M の順に重層して測定試料とした。サンプルボートの底面から添加剤 M、添加剤 B、添加剤 M の順に重層して空試料とした。

##### 検量線の作成

標準原液を適宜量りとり、0.001% L-システイン溶液で希釈し、検量線用標準溶液とした。各検量線用標準溶液を総水銀計で測定し、得られた吸光度の水銀量に対する一次回帰式を最小二乗法により求め、検量線とした。各検量線用標準溶液中の水銀量は 0.1、0.25、0.5、0.75、1 ng (LOW モード時)、または 1、5、10、15、20 ng (HIGH モード時) とした。

##### 測定及び総水銀濃度の算出

各測定試料を総水銀計にセットし、測定値(吸光度)を得た。次いで、作成した検量線の各パラメータを用いて下式に従い、試料の総水銀濃度を逆推定した。

測定試料の総水銀濃度(mg/kg)

$$= \{(\text{Signalanalyte} - \text{intercept}) / \text{slope}\} / 100$$

Signalanalyte: 測定値

Intercept: 検量線の切片

Slope: 検量線の傾き

試料の総水銀濃度(mg/kg)

$$= (\text{測定試料の総水銀濃度}) - (\text{空試料の総水銀濃度})$$

なお、空試料の総水銀濃度は、空試料を 5 併行分析し得た濃度の平均値として 1 日ごとに求めた。

#### 4-6. 総水銀分析法の LOD 及び LOQ

空試料の分析を 32 回実施し、得られた総水銀濃度の標準偏差( $\sigma$ )を推定し、その 3 倍の値( $3\sigma$ )を LOD、10 倍の値( $10\sigma$ )を LOQ として推定した。

#### 4-7. SEMP を用いた性能評価

実際に食品試料に含まれている総水銀を分析する際の分析法の性能を評価するために、H25 年度の本研究において開発した SEMP(Sample for evaluation of methods performance)を利用し総水銀を添加した試料を調製の上、5 併行分析した結果から併行精度と真度を推定した。

事前の分析結果から、SEMP 10 群(魚試料)には比較的高い濃度で総水銀が含まれていることが明らかであったため、当該 SEMP への添加濃度は 0.1 mg/kg とした。SEMP 10 群を除くその他の SEMP(1~9 群及び、11~14 群)への添加濃度は 0.002 mg/kg とした。

## 5. 異性体別 PCBs 分析

### 5-1. 試薬・試液

異性体別 PCBs の分析に使用した主たる試薬を以下に示す。

・検量線用 PCB 標準液: TPCB-CSL-A、CS1-A、CS2-A、CS3-A、CS4-A、CS5-A(関東化学株式会社)

・クリーンアップスパイク標準液: TPCB-CL-A100(関東化学株式会社)

・シリンジスパイク標準液: TPCB-SY-A100(関東化学株式会社)

・209 異性体確認用標準液: M-1668A-1-0.01X、2-0.01X、3-0.01X、4-0.01X、5-0.01X(和光純薬工業株式会社)等容量混合したもの

・高分解能質量数補正用試薬: パーフルオロケロセン(PFK: L16596)(日本電子株式会社)

・アセトン、エタノール、ジクロロメタン、ヘキサン、ノナン: ダイオキシン類分析用(関東化学株式会社製)

・ヘキサン洗浄水: 残留農薬試験用(関東化学株式会社製)

・塩化ナトリウム: 残留農薬試験・PCB 試験用(関東化学株式会社製)

・無水硫酸ナトリウム: PCB 試験用(関東化学株式会社製)

・水酸化カリウム: 特級(関東化学株式会社製)

・アルミナ(関東化学株式会社製): ダイオキシン類分析用(関東化学株式会社製)

・多層シリカゲルカラム: 内径 15 mm、長

さ 30 cm のカラムに無水硫酸ナトリウム 2 g、シリカゲル 0.9 g、44%硫酸シリカゲル 3 g、シリカゲル 0.9 g、及び無水硫酸ナトリウム 2 g が順次充填されたもの(ジーエルサイエンス株式会社製)

・アルミナカラム : 内径 15 mm、長さ 30 mm のカラムに無水硫酸ナトリウム 2 g、アルミナ 15 g、無水硫酸ナトリウム 2 g を順次充填し作製した。

・GC キャピラリーカラム : HT8-PCB(内径 0.25 mm x 60 m)(関東化学株式会社製)

## 5-2. 機器

・GC : HP 6890 Series GC System Plus (Hewlett Packard 社製)

・MS : JMS-700 (日本電子株式会社製)

## 5-3. 分析法

### 測定溶液の調製

均質化した試料 20.0 g をビーカーに量りとり、クリーンアップスパイク 100  $\mu$ L を加えた後、1 mol/L 水酸化カリウム・エタノール溶液を 100 mL 加え室温で 16 時間、スターラーで攪拌した。このアルカリ分解液を分液ロートに移した後、水 100 mL、ヘキサン 100 mL を加え 10 分間振とう抽出した。静置後、ヘキサン層を分取し、水層にヘキサン 70 mL を加え同様の操作を 2 回行った。ヘキサン抽出液を合わせ、2%塩化ナトリウム溶液 100 mL を加えて緩やかに揺り動かし、静置後、水層を除き同様の操作を繰り返した。ヘキサン層の入った分液ロートに濃

硫酸を適量加え、緩やかに振とうし、静置後、硫酸層を除去した。この操作を硫酸層の着色が薄くなるまで繰り返した。ヘキサン層をヘキサン洗浄水 10 mL で 2 回洗浄し、無水硫酸ナトリウムで脱水後、溶媒を減圧留去し約 2 mL のヘキサンに溶解した。この溶液を、ヘキサン 120 mL で洗浄した後の多層シリカゲルカラムに負荷し、ヘキサン 50 mL で溶出した。溶出液は溶媒を減圧留去し、約 2 mL のヘキサンに溶解した。この溶液を、ヘキサンで湿式充填したアルミナカラム負荷し、ヘキサン 100 mL で洗浄後、20%(v/v)ジクロロメタン含有ヘキサン 100 mL で溶出した。溶媒を窒素気流下でほぼ完全に留去後、シリンジスパイク 100  $\mu$ L を加え、GC-MS 測定溶液とした。

### 測定条件

GC-MS による測定は、以下の条件で行った。

- ・注入方式 : スプリットレス
- ・注入口温度 : 280°C
- ・注入量 : 2.0  $\mu$ L
- ・昇温条件 : 100°C(1 分保持)-20°C/分-180°C-2°C/分-260°C-5°C/分-300°C(4 分保持)
- ・MS 導入部温度 : 280°C
- ・イオン源温度 : 280°C
- ・イオン化法 : EI ポジティブ
- ・イオン化電圧 : 38 eV
- ・イオン化電流 : 600  $\mu$ A
- ・加速電圧 : ~10.0 kV
- ・分解能 : 10,000 以上

## 分析対象

PCBs 全 209 異性体を分析対象とした。

### 5-4. 検出下限及び定量下限

最低濃度の検量線作成用標準液(TPCB-CSL-A)をノナンで 5 倍に希釈した溶液を GC-MS により測定し、その結果から、S/N=3 に相当する濃度を LOD、S/N=10 に相当する濃度を LOQ とした。

## 6. 摂取量の推定及び解析

TD 試料における各種有害物質の濃度に、食品摂取量を乗じて有害物質摂取量を推定した。分析結果が ND の場合には濃度は 0 として扱った。

当研究課題を実施した 3 年間に蓄積されたデータをまとめて解析し、各種有害物質摂取量推定値の推移や変動を明らかにし、原因等について考察した。

## C.D. 結果及び考察

### 1. 各種元素類の摂取量推定

H25 年度～H27 年度の 3 年間に推定された、各種元素類の全国・全年齢層平均摂取量(全国摂取量 ave.)を、推定年度ごとに以下に示した。

H25 年度に推定された摂取量 ; B:1523.8  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Al:4687  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Ni:156.8  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Se:90.2  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Cd:17.6  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Sb:2.2  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Ba:468.4  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Pb:10.4  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、U:1.0  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、totalAs:213.9  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、

Sn:228.9  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Cr:30.2  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Co:9.0  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Mo:225.3  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Hg:7.9  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、MeHg:6.7  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 。

H26 年度に推定された摂取量 ; B:1292  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Al:2453  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Ni:140  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Se:91.6  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Cd:19.3  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Sb:1.38  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Ba:442  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Pb:7.82  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、U:1.16  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、totalAs:215  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、iAs:19.3  $\text{ng}/\text{man}/\text{day}$ 、Sn:133  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Cr:20.9  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Co:7.67  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Mo:216  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Hg:8.53  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、MeHg:6.52  $\text{ng}/\text{man}/\text{day}$ 。

H27 年度に推定された摂取量 ; B:1417  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Al:3580  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Ni:143  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Se:86.9  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Cd:17.8  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Sb:0.872  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Ba:473  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Pb:12.1  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、U:1.22  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、totalAs:214  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、iAs:15.4  $\text{ng}/\text{man}/\text{day}$ 、Sn:80.3  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Cr:28.8  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Co:8.90  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Mo:197  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、Hg:8.37  $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、MeHg:6.61  $\text{ng}/\text{man}/\text{day}$ 。

### 2. 各種元素類の摂取量に寄与する食品群

全国摂取量 ave.に対する食品群別摂取量の寄与率を検討した結果、総摂取量に対する食品群別摂取量の寄与のパターン及び寄与率は、元素によって大きく異なることが明らかとなった。また、H25 年度～H27 年度の結果を年間で比較した結果からは、各食品群の寄与が必ずしも一定ではなく、変