

令和 2 年度厚生労働行政推進

調査事業費補助金 食品の安全確保推進研究事業

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

研究分担報告書

食品の有害元素の摂取量推定に関する研究

研究分担者

国立医薬品食品衛生研究所食品部 鈴木美成

研究要旨

本研究では、2020 年に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、ヒ素 (総ヒ素および無機ヒ素(iAs)を含むヒ素化学種)、カドミウム、水銀 [総水銀及びメチル水銀 (Me-Hg)], 鉛を含む 33 元素および 5 化学種の全国・全年齢層における平均摂取量 (推定 1 日摂取量) を推定した。その結果、各元素類の推定 1 日摂取量は、B: 1458 $\mu\text{g person}^{-1} \text{day}^{-1}$, Al: 1845 $\mu\text{g person}^{-1} \text{day}^{-1}$, Cr: 25.6 $\mu\text{g person}^{-1} \text{day}^{-1}$, Mn: 4162 $\mu\text{g person}^{-1} \text{day}^{-1}$, Co: 10.5 $\mu\text{g person}^{-1} \text{day}^{-1}$, Ni: 175 $\mu\text{g person}^{-1} \text{day}^{-1}$, As: 291 $\mu\text{g person}^{-1} \text{day}^{-1}$, iAs: 19.4 $\mu\text{g person}^{-1} \text{day}^{-1}$, Se: 109 $\mu\text{g person}^{-1} \text{day}^{-1}$, Mo: 207 $\mu\text{g person}^{-1} \text{day}^{-1}$, Cd: 17.7 $\mu\text{g person}^{-1} \text{day}^{-1}$, Sn: 408 $\mu\text{g person}^{-1} \text{day}^{-1}$, Sb: 0.31 $\mu\text{g person}^{-1} \text{day}^{-1}$, Ba: 420 $\mu\text{g person}^{-1} \text{day}^{-1}$, Hg: 6.05 $\mu\text{g person}^{-1} \text{day}^{-1}$, Me-Hg: 4.29 $\mu\text{g person}^{-1} \text{day}^{-1}$, Pb: 11.8 $\mu\text{g person}^{-1} \text{day}^{-1}$, U: 1.49 $\mu\text{g person}^{-1} \text{day}^{-1}$ であった。

各元素類の摂取量及び、各元素類の摂取に寄与する食品群の変化について解析した。また、耐用摂取量等の Health Based Guideline Value (HBGV) が設定されている元素類については、必要に応じて一日当たりの値に換算した後、推定 1 日摂取量が占める割合 (対 HBGV 比) を求めた。その結果、対 HBGV 比は iAs の 120%を筆頭に、Ni, Mo が 70%以上、Se, Ba が 30%以上、Cd, Me-Hg が 20%以上となった。さらに、鉛、カドミウム、総ヒ素、総水銀については、1977 年以後に推定された摂取量の経年変化の情報を更新した。また、Pb の摂取量評価においては、ベイズ法を併用した二次元モンテカルロシミュレーションによる確率論的摂取量評価についても検討を試みた。

研究協力者

北海道立衛生研究所

青柳直樹

新潟県保健環境科学研究所

雅楽川憲子

横浜市衛生研究所
名古屋市衛生研究所
滋賀県衛生科学センター
香川県環境保健研究センター
福岡県保健環境研究所
沖縄県衛生環境研究所

櫻井 有里子、越智直樹、五十嵐悠
宮崎仁志
小林博美
安永恵
新谷依子、飛石和大、堀就英
當間一晃、仲眞弘樹、古謝 あゆ子

1. 研究目的

有害物質の摂取量推定値は、健康リスクの管理を目的とする規格値策定等の行政施策の検討、及び行政施策の効果検証するための重要な科学的根拠となる。

これまでの研究班においては、健康リスクの大きさや懸念の蓋然性を指標に、摂取量評価の対象となる有害物質が選定されてきた。一方で、最近の研究動向としては、ノンターゲット分析(元素分析の研究分野においてメタロミクスといったオミクス研究)に代表される網羅的分析が発展してきている。機器分析の発展に伴いより低濃度の物質を測定することが容易になってきたこと、様々な物質が産業利用されるようになったことが、網羅的分析の必要性が高まってきた背景にある。

元素分析の分野においても、全ての元素は普遍的に含まれているという拡張元素普存説が提唱され、この考えを実証する研究成果が発表されてきている。つまり、食品を介した元素類の摂取は避けることのできないリスクであり、人為的に合成した化学物質とは異なる点となる。

誘導結合プラズマ質量分析(ICP-

MS)法は、高いイオン化効率・広いダイナミックレンジ・多元素分析の適用性といった理由から、様々な試料中で30元素以上の網羅的分析の結果が報告されている。そこで本研究では、有害物質としてヒ素(総ヒ素(As)並びに無機ヒ素(iAs)を含無ヒ素化合物)、カドミウム(Cd)、水銀[総水銀(Hg)およびメチル水銀(Me-Hg)]、鉛(Pb)だけでなく、ICP-MS特性を活かした網羅的分析を行った。

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スタディー(TDS)を方法として、日常的な食事を通じた国民平均の一日摂取量を推定した。

本TDSに用いた試料(TD試料)は、全国10地域の地方衛生研究所等により調製された。TD試料中の各種元素類の分析は国立医薬品食品衛生研究所において実施した。

地方自治体所管の衛生研究所等に毎年ご協力を受けながら、重金属・有害元素の摂取量評価を継続している。本報告書では、上記元素類の全国・全年齢層における平均摂取量の推定を目的に、2020年に実施したTDSの成果を報告する。さらに、1977年以後に継続して推定しているAs, Cd, Hg, および

Pb の摂取量については、情報を更新し報告する。

2. 研究方法

2.1. TD 試料の調製

日本人の日常的な食事(日常食)からの各元素類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。

2014 年から 2016 年に行われた国民健康・栄養調査のデータを解析し、該当地域における 1 日当たりの消費量の平均値を算出した。

TD 試料の調製は、全国 10 地域の地方衛生研究所等で 2020 年 5 月から 10 月までの間に行った。小売店から食品を購入し、茹でる、焼く等の一般的な調理を行ってから、該当地域における 1 日当たりの消費量に従って秤量し、混合・均質化することで試料を調製した。分析に必要な均質性を確保する目的から、調製時に試料に加水される場合があるが、その量は、元素濃度を算出する過程において考慮した。

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・海藻類、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。

2.2 試薬

超純水は Milli Q Element A10 (メルク社製) により製造したもの (比抵抗 > 18.2 M Ω ·cm、TOC < 3 ppb) を使用した。硝酸 (1.42 Ultrapur-100)、過酸化水素水 (Ultrapure)、アセトン (残留農薬・PCB 分析用)、トルエン (残留農薬・PCB 分析用)、臭化カリウム (鹿特級)、硫酸銅(II) (鹿特級)、ひ素標準液 (As 100)、および 25%アンモニア水 (有害金属測定用) は関東化学株式会社から購入したものを使用した。L-システイン塩酸塩一水和物 (特級)、テトラフェニルホウ酸ナトリウム、ポリエチレングリコール 200 (一級)、25%テトラメチルアンモニウムヒドロキシド (TMAH; 精密分析用)、1-ブタンスルホン酸ナトリウム、マロン酸 (特級)、メタノール (液体クロマトグラフィー用)、メチルオレンジ (特級) は和光純薬正のものを使用した。

多元素混合標準溶液として SPEX 社製の XSTC-622 と XSTC-1 を用い、一部の元素標準溶液にはシグマアルドリッチ社製 (1000 mg/L 水銀標準原液, Be, Ga, Y, In 標準溶液, Trace CERT)、あるいは関東化学製 (Nd, Sm, Gd 標準溶液) のものを用いた。

水銀分析には ICP-MS 用 1000 mg/L 水銀標準原液 (シグマアルドリッチ社)、L-システイン (ナカライテスク)、添加剤 B: 活性アルミナ (日本インスツルメンツ社) を用いた。

その他、ヒ素の化学形態別分析には、
 ひ酸 [As(V)] 水溶液(NMIJ CRM 7912-a)
 を、メチル水銀の分析には塩化メチル水
 銀 (ジーエルサイエンス) を用いた。

2.3 分析機器

元素分析には ICP-MS (iCAPQ, サーマフ
 イッシャーサイエンティフィック社製)
 を用いた。ICP-MS 分析の前処理に使用す
 るマイクロ波分解装置は、ETHOS-One 及
 び ETHOS-TC (ともにマイルストーンゼ
 ネラル社製)を用いた。ヒ素の化学形態別
 分析には、HPLC (Prominence, 島津製
 作所社製)と ICP-MS (iCAPRQ, サーマフ
 イッシャーサイエンティフィック社製)を
 接続したハイフネーションシステムを採
 用した。T-Hg の分析には総水銀計 (MA-
 3000, 日本インスツルメンツ社)を用い
 た。Me-Hg の分析には GC-MS/MS (TSQ
 Quantum XLS, サーマフイッシャーサイ
 エンティフィック社製) を用いた。

2.4 ICP-MS による元素分析

多元素分析は、分析用試料 0.50 g を石
 英製分解容器に量りとり、硝酸 5 mL 及
 び過酸化水素水 2 mL を加えた。水 5 mL
 及び過酸化水素水 2 mL を加えた TFM 製
 分解容器に前述の石英製分解容器を入れ、
 マイクロ波分解装置により分解した。マ
 イクロ波分解は次の条件で行った。70°C:
 2 分間→50°C: 3 分間→8.3°C/分: 18 分間
 →200°C: 10 分間。

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。

ただし、14 郡の試料に対しては、試料
 40 mL に対し硝酸 5 mL, 過酸化水素 2 mL
 を添加し、50 mL に定容したものを ICP-
 MS 用の分析試料とした。ICP-MS の装置
 条件は Table 1 に示すとおりである。

また、希土類元素によるヒ素へのスペ
 クトル干渉は、以下で示した数値補正法
 を用いた補正を行った。

$$\begin{aligned} I_c^{75\text{As}} &= I_m^{75\text{As}} - \alpha I_m^{150\text{Nd}} - \beta I_m^{150\text{Sm}} \\ &= I_m^{75\text{As}} - \frac{5.6}{17.2} \alpha I_c^{146\text{Nd}} - \frac{7.38}{15} \beta I_c^{147\text{Sm}} \end{aligned}$$

ここで、 I_c^X と I_m^X はそれぞれ $m/z=X$ におけ
 る信号強度の補正值および測定値を、 α
 と β はそれぞれ Nd と Sm の 2 価イオン
 生成率を示す。ただし、 ^{146}Nd と ^{147}Sm の
 信号強度は、Ba の酸化物 ($^{130}\text{Ba}^{16}\text{O}$) 及び
 水酸化物 ($^{130}\text{Ba}^{16}\text{OH}$) の干渉を受けるた
 め、下記の補正を行った上で上記の式に
 当てはめた。

$$\begin{aligned} I_c^{146\text{Nd}} &= I_m^{146\text{Nd}} - \gamma I_m^{130\text{Ba}} \\ &= I_m^{146\text{Nd}} - \gamma \frac{0.11}{11.2} I_m^{137\text{Ba}} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} I_c^{147\text{Sm}} &= I_m^{147\text{Sm}} - \varepsilon I_m^{130\text{Ba}} \\ &= I_m^{147\text{Sm}} - \varepsilon \frac{0.11}{11.2} I_m^{137\text{Ba}} \end{aligned}$$

ここで、 γ と ε はそれぞれ Ba の酸化物
 と水酸化物の生成率を示す。これらの生
 成率は単一元素標準溶液を分析するこ
 とで算出した。

2.5 ヒ素の化学形態別分析

試料 2.0 g を量り取り、0.3 mol/L 硝酸
 溶液 5 mL を加え、100°C で 2 時間静置
 した。なお、30 分おきによく振り混ぜた。

2600×g で 10 分間遠心分離後、水層を 20 mL メスフラスコに移した。残渣に水 5.0 mL を加え、手でよく振とうした後、同様に遠心分離後、水層を上記のメスフラスコに合わせた。同様の操作を計 2 回行った。メスフラスコにメチルオレンジ溶液を 100 μL 加え、5%アンモニア水で約 pH 2.7 (溶液の色が薄い赤色～オレンジ) に調整した後、20 mL に定容した。この溶液を孔径 0.45 μm の PTFE フィルターでろ過したものを、測定溶液とした。

測定試料 10 μL を HPLC カラムに抽入し、Table 2 に示した条件にてヒ素の化学種別分析を行った。定量対象とした As 化学種は、無機ヒ素 [iAs (As(III)と As(V)の合計)], モノメチルアルソン酸 (MMAs), ジメチルアルシン酸 (DMAs), およびアルセノベタイン (AsB) とした。得られた As ピーク面積値の濃度に対する一次回帰式を最小二乗法により求め、検量線を作成した。内部標準として移動相に添加した Te の信号を解析し、Te の信号強度の変動が認められた場合には、As/Te 比を用いて同様に定量を行った。

2.6 総水銀の分析

総水銀 (Hg) は総水銀計を用いて Table 3 の条件で測定した。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低濃度用の吸光セル、水銀濃度が 0.01 mg/kg 以上の試料の測定には高濃度用の吸光セルを用いた。

サンプルポートは、5 mol/L 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℃で 3 時間加

熱した。冷却後、総水銀計により 850℃で 4 分間再加熱したものを使用した。添加剤 B は使用する直前に 750℃で 5 時間加熱したものを、4 群の T-Hg 測定の際に添加した。標準原液を適宜量りとり、0.01% L-システイン溶液で希釈し、検量線用標準溶液とした。

2.7 メチル水銀の分析

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 分間振とう後回収する操作を二度繰り返し、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 りん酸緩衝液(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、室温で 10 分間振とう後、遠心した。トルエン層を脱水後、1 mL を採取し、1.5 mg/mL PEG200 を 0.5 mL 正確に加え混合したものを測定溶液とした。測定溶液は Table 4 に示した装置条件で分析した。

2.8. 統計解析

空試験を3回以上行い、空試験の信号強度の標準偏差を10倍した値を検量線の傾きで除した値を定量下限値 (LOQ) とした。HPLC-ICP-MSによるヒ素化合物の分析においては、空試験のピーク範囲における信号を積分した値を利用し、信号強度が低い場合にはポアソン分布に近似していると仮定して、標準偏差はピーク面積値の2乗根を用いた。

LOQ未満の結果を含むデータの取扱いに関しては、古典的には0, 1/2LOQ, LOQ等を代入する方法が用いられてきた。しかしながら、最近の研究・ガイドラインでは、代入法の適用範囲は限定されて来ており、その使用も推奨されなくなってきている。代入法以外の平均値推定法として、R (3.4.0)とRのパッケージrstan (2.16.2)を用いた。

一方で、これまでと同様の手法で推定値を比較することも求められる。そこで、本研究では代入法に代わる解析法についても本研究への適用可能性を調査するとともに、不検出となったデータは0と1/2LOQの代入法両方で算出することを基本とした。

元素類摂取量は、TD試料中化学物質濃度に食品消費量を乗じて推定した。この推定値は地域別の全年齢層平均摂取量 (地域別摂取量) に相当する。地域別摂取量を平均した値を全国・全年齢層平均摂取量 (推定1日摂取量) とした。

各種元素類摂取量推定値や摂取量に寄与する食品群の変動を明らかにし、原因等について考察した。

C. D. 結果及び考察

1. 各元素類の全国・全年齢層平均摂取量の推定 (2020年)

2020年に調製した全14群のTD試料の分析を通じ、各元素類の摂取量を推定した。一斉分析法の対象となる33元素 (B, Al, Ti, V, Cr, Mn, Co, Ni, Cu, Ge, As, Se, Mo, Cd, Sn, Sb, Ba, La, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu, Hg, Pb, U) について10地域の平均値として算出した推定1日摂取量を、Table 5に示す。また、ヒ素の化学種別の推定1日摂取量の平均値はTable 6に示す。Table 7には、地域ブロックごとの10群の11群のHg摂取量, MeHg摂取量, MeHg割合を示す。また、全元素の摂取量分布をFig. 1に示す。

Fig. 1より、V, Cr, Ge, Sn, 希土類元素, Pb以外の元素では地域ブロック間の変動は小さかった。Geと希土類元素は定量値が低かったことから、測定精度を踏まえると妥当な変動幅であるといえる。

一方で、Snは四分位範囲が広く、他の元素のパターンとは大きく異なった。これまでの調査においては、Al, Sn, Sb, Pb, Uの摂取量に地域間の変動が大きいたことが報告されている。Snの変動が高くなる要因として、これまでの報告書では、食品の原料となる農産品における濃度が高いことではなく、調理・保存・輸送の過程で使用される容器からの移行である可能性が高いとされている。Fig. 2Aには、Snの摂取量を缶詰食品を使用したかどうかによる摂取量を比較した。

ここでは、缶詰食品が利用されていた、5群(豆類), 6群(果実), 7群(緑黄色野菜), 8群(淡色野菜・きのこ類・海藻類)に関して比較した。サンプル数が少ないため、統計的検定は行わなかったが、缶詰食品を使用したほうが、Sn 摂取量が高くなる傾向があった。しかしながら、8群で缶詰食品の利用よりも、水煮タケノコが含まれているかどうかの影響が大きいと判断できた (Fig. 2B)。これまでの研究においても水煮タケノコがTD 試料中のSn 濃度を増加した可能性が指摘されている。タケノコの水煮には、保存中のチロシンの発生を抑制するためにクエン酸やアスコルビン酸を添加してpHを1~3に調整する方法がしばしば取られる。容器からの溶出が影響を与えたと考えられた。

4. 食品群ごとの寄与率

各元素およびヒ素化学種の食品群ごとの平均寄与率を Fig. 3 および Fig. 4 に示す。多くの元素において、これまでの調査と同様の傾向を示した。毒性の高い、As, Cd, Hg, Pb についてその傾向を以下にまとめた。

As の摂取量における寄与率は、これまでの報告と同様に、10群で59.2%、次いで8群で32.4%と大きかった。10群の魚介類においては、ヒ素は毒性の低いAsBとして存在していた (Table 6)。

一方で、iAsはコメや海藻の中でもヒジキには無機ヒ素が多く含まれており、そのリスクが懸念されている。2020年の調査においても、1群の寄与率は76.6%、8群の寄与率は8.7%であった。

Cd の摂取量における寄与率は、これまでの報告と同様に、1群で32.6%、次いで8群の18.0%と大きかった。

Hg の摂取量における寄与率は、これまでの報告と同様に、10群の魚介類で多く88.4%であった。10群では78.0%が毒性の高いメチル水銀として存在していた。Pb の摂取量における寄与率は、1群で27.8%、2群で23.1%であった。

昨年度および今年度の調査から追加した元素であるTi, Ge, Rb, Sr, Zr, Cs, 希土類元素, W について、その特徴を以下にまとめる。Tiは10群の魚介類の寄与率が30.2%と高かった。Geは9群の嗜好飲料からの寄与が28.5%と最も高かった。これはPETの合成触媒としてGeが使用されているためと考えられた。同じく触媒に利用されているSbの寄与も9群で高かった結果(36.1%)は、上記の推測と矛盾していない。

Rbは11群(19.8%)の寄与が最も高かったが、他の食品群でも7.1~12.4%の寄与が観測された。Srは8群からの寄与が46.3%と最も高かった。Csは11群(16.8%), 9群(14.6%), 10群(11.5%)で高かった。本研究で測定しているのは安定同位体のSrとCsであるが、放射性同位体のSrとCsの参考にはなると考えられる。Zr(27.0%) およびW(43.4%)は9群での寄与が最も高かった。希土類元素は、元素によって多少異なるが、概ね8群で23.9~60.4%と最も寄与率が高く、ついで10群の魚介類で7.2~17.0%と高かった。

4. Health-Based Guideline Value との

比較

各元素の Health-Based Guideline Value (HBGV) を種々の公的機関のデータベースから参照し、推定した 1 日摂取量と比較を行った (Table 8)。

対 HBGV 比が最も高かったのは iAs であり、最大で 120%であった。ここで、iAs の HBGV については、US EPA (アメリカ合衆国環境保護庁) が 1999 年に評価した経口暴露による心臓血管、皮膚障害の RfD と、ATSDR (米国健康福祉省の毒性物質疾病登録機関) が行った 2007 年に評価した、非発がん毒性として皮膚病変の NOAEL を記載した。一方で、JECFA (FAO/WHO 合同食品添加物専門家会議) が行った 2010 年の評価結果概要では、第 33 回(1988 年)で設定した PTWI (15 $\mu\text{g}/\text{kg bw}$) を適切でないとして下げている。また、現在食品安全委員会では国内の曝露実態及び食事由来のヒ素曝露を明らかにした上で曝露量を評価する必要があるとしている。地域ごとの値を比較すると、対 HBGV 比は 0.79–1.64 であり対 HBGV 比が 1 を超えた地域もあった。以上の点からも、iAs の対 HBGV 比については、リスクが高い可能性があるものの正確な評価については今後のリスク評価結果を待つ必要があるだろう。

2 番目に対 HBGV 比が最も高かったのは Ni であり、その値は 80%であった。Ni の推定 1 日摂取量における各食品群からの寄与率は、5 群 (23.5%) で最も高く、次いで 1 群 (20.4%) で高かった。

3 番目に対 HBGV 比が最も高かったのは Mo であり、その値は 76%であっ

た。Mo も iAs も推定 1 日摂取量における各食品群からの寄与率は、1 群で最も高いことから、コメの喫食量については低値が望ましいのかもしれない。

毒性の高い元素である、Cd, MeHg, Pb に関しては、Cd と MeHg の対 HBGV 比は 27–38%の範囲であり、今後とも食品を介した摂取量の変動に注視する必要があるだろう。一方で、Pb に関しては BMDL との比較であることから、曝露マージン (MOE) を算出した。外れ値の影響が大きかったため中央値を用いたところ、MOE は 4.5–13.6 となった。MOE が 1 であっても十分に健康リスクは低いと考えられていること、次節の経年変動の解析結果と合わせると、今後ともリスクは減少すると考えられる。

5. 経年変動

1977 年より継続的に行ってきた As, Cd, Hg, Pb の推定 1 日摂取量の経年変動を Fig. 5 に示す。2018 年以前の調査結果は、厚生労働科学研究費補助事業の研究報告書より引用した。

2013 年以前の調査では ND となったデータに 0 と 1/2LOQ (あるいは 1/2LOD) を代入した平均値が報告されていた。一方で、2013–2018 年の報告では ND となったデータには 0 を代入した値のみが報告されている。そのため、経年変動の解析においては、ND=0 を代入した値を用いた。ここでは、トレンドに関して変化点も踏まえて解析するために、prophet (ver. 1.0) パッケージを用いた解析を行った。なお、摂取量は正の実数であると考えられるため、対数変換

した値を解析に用いた。

As の推定 1 日摂取量は、調査開始以降減少傾向にあったが、2007 年以降増加傾向に転じていた。国民健康・栄養調査のデータベースと比較すると As の寄与率が高い 10 群の喫食量は減少していて、8 群に含まれる海藻類の喫食量はほぼ一定の量を示している。これらのことから、食品中の As 濃度が増加している可能性がある。曝露量だけでなく、食品中濃度および変動を与える要因について注視する必要があるだろう。

毒性の高い iAs については、2014 年からのデータしか無く中長期での変動傾向を判断するのは難しいが、2014 年度以降における変動をふまえてその傾向を判断すると、ほぼ一定の濃度で推移しているといえた (Fig. 6)。時系列解析を行うだけの十分なデータ数をそろえるためにも、継続的な調査が必要だろう。

Cd は 1977 年の調査開始以来摂取量は減少してきており、2013 年以降は摂取量のバラツキが小さくなってきた。1977 年の摂取量と比較すると半分以下まで減少している。

コメ中 Cd の基準値は、1970 年以降 1.0 mg/kg 未満とされていた。また、その当時は Cd 濃度 0.4 mg/kg を超えるコメが生産される地域は、何らかのカドミウムによる環境汚染があると考えられていた。このような背景を受け、2010 年 4 月に食品衛生法に基づくコメのカドミウムの規格基準を「玄米及び精米で 0.4 mg/kg 以下」に改正し、2011 年 2 月末日に施行した。2012 年以前は、不規則に摂取量が高くなる年が 5~10 年に 1

度の頻度で観測されていたが、施工後の 2012 年以降は摂取量の変動が抑えられている。この結果は、何らかの要因で環境中の Cd 濃度が増加しコメに移行するといった突発的な汚染を、食品衛生法の改正によりコントロールできていることを示唆するものと考えられた。

Hg の推定 1 日摂取量は 1977-1978 年の調査を除くと 5~12 $\mu\text{g person}^{-1}\text{day}^{-1}$ の間を推移していたが、時系列解析の結果少しずつ減少している傾向にあることが示された。とくに、2016 年以降は、Hg の摂取量が 7 $\mu\text{g person}^{-1}\text{day}^{-1}$ を下回っていた。2020 年における Hg の推定一日摂取量は 1977 年の半分以下であった。

厚生労働省は 2010 年に妊婦への魚介類の摂取と水銀に関する注意事項及び Q&A を更新し、特に水銀含有量の高い魚介類を偏って多量に食べることに警鐘を鳴らした。2010 年以降の国民健康・栄養調査の各食品小分類のデータのみが、TD 試料の調製に反映させてるのは、2016 年以降の調査であることを踏まえると、各機関におけるリスクコミュニケーションが上手くいって高濃度 Hg の喫食機会が低減されていることを示唆しているものと考えられた。

Pb はこれまで様々な目的で使用されてきて、日本においても 1960 年代までは鉛化合物を添加した有鉛ガソリンを使用していた。また工場等からの排気ガスに鉛が含まれていたことから、大気中の鉛濃度が高い状態であったと報告されている。

Pb の推定 1 日摂取量は 1977 年の調

査以降継続して減少傾向にある。Pb の推定 1 日摂取量における 1977~1982 年における急激な減少には 1975 年の有鉛ガソリンの使用禁止が寄与しており、1996 年以降の緩やかな減少は焼却施設に設置されている排ガス除去装置の改善による廃棄物処理施設からの環境への排出量が減少したことが要因であると考えられる。これらの要因により、2020 年の推定 1 日摂取量は 1977 年の 10%以下まで減少していた。

6. 確率論的摂取量推定

媒体中濃度 (以後、食品中濃度) と媒体摂取量 (以後、喫食量) をそれぞれ確率密度分布として扱うことによる確率論的摂取量評価は、摂取量を分布として評価できる。そのため、確率論的摂取量評価は不確かさ評価・任意のパーセンタイル値が推定できる等の利点がある。乱数を生成することで数値シミュレーションを行うモンテカルロシミュレーション (MCS) は、確率論的摂取量推定において有用な計算方法である。しかしながら、MCS に用いるパラメーターをどのように設定するかの問題が生じる。とくにサンプルサイズが十分でない場合、分布の歪みが大きい場合、食品中濃度に定量下限値未満の観測値を含む場合には、推定されたパラメーター自体に不確かさを伴う。パラメーター推定の不確かさも含めて評価するには、パラメーター自身も分布を持つ (あるいは複数のパラメーターを検討する) ように 2 次元に拡張する必要がある。これまでの研究において、食品中濃度に不検出デー

タが含まれている場合における確率分布の推定に、ベイズ推定が有用であることが示唆されている。このことから、不確か性を考慮しつつ食品中濃度の確率密度分布のパラメーターを推定するには、ベイズ推定法は適していると考えられる。

以上のことから、複数地域あるいは複数年にわたる MB 方式による TDS の分析結果に確率論的手法を適用することで、通常の MB 方式では算出できない各種パーセンタイル値や基準値を超過する確率等が計算できることが期待される。本研究では確率論的推計を行うために、MB 方式で得られたコンポジット試料の濃度データおよび国民健康・栄養調査の喫食量データにベイズ推定を適用した。さらに、推定したパラメーターからさらに乱数を生成することで、二次元 MCS (2D-MCS) を行うことで、パラメーター推定に伴う不確か性も加味した精緻な曝露量の推定を試みた。

ここでは、Pb 曝露量を対象として確率論的摂取量評価を試みた。喫食量には 2014-2016 年の国民健康・栄養調査のデータを用い、食品中 Pb 濃度のデータには 2019 年及び 2020 年に行った本研究のデータを用いた。

本研究では、確率的プログラミング言語 Stan を用いてベイズ推定を行うことで、確率密度分布のパラメーター推定を行った。食品中 Pb 濃度は正の実数であると考えられるため、対数正規分布・ガンマ分布・ワイブル分布を仮定した統計モデルを検討した。対数正規分布・ガンマ分布・ワイブル分布の確率密度関数は

それぞれ以下の式で示される。

対数正規分布:

$$f(Y|\mu, \sigma) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma}} \frac{1}{Y} \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{\log Y - \mu}{\sigma}\right)^2\right]$$

ガンマ分布:

$$f(Y|\alpha, \beta) = \frac{\beta^\alpha}{\Gamma(\alpha)} Y^{\alpha-1} e^{-\beta Y}$$

ワイブル分布:

$$f(Y|m, \eta) = \frac{m}{\eta} \left(\frac{Y}{\eta}\right)^{m-1} \exp\left[-\left(\frac{Y}{\eta}\right)^m\right]$$

一方で喫食量は非負値の実数であると考えられる。また、国民健康栄養調査のデータを解析したところ、全ての食品群において 0 を含むデータが確認された。以上のことから、非負値の確率密度分布として、Tweedie 分布、ゼロ過剰対数正規 (ZILN) 分布およびゼロ過剰ガンマ (ZIG) 分布を検討した。

不検出例を含むデータの場合には、不検出例に確率密度関数 $f(Y|\theta)$ に代わって下限値 (L) - 上限値 (U) 間の累積確率関数 $F(L, U|\theta)$ を用いることで、以下のように尤度を算出できる。

$$L(Y|\theta) = \prod_{i=1}^{N_{\text{obs}}} f(Y_i|\theta) \times \prod_{j=1}^{N_{\text{cen}}} F(L_j, U_j|\theta)$$

ここで、 N_{obs} は定量できたサンプルサイズを、 N_{cen} は定量下限値未満のサンプルサイズを示す。

BE 法で得られる事後予測分布 $f_{\text{post}}(\theta|Y)$ は、ベイズの定理を用いて以

下のようにあらわすことができる。

$$f_{\text{post}}(\theta|Y) = \frac{L(Y|\theta)f_{\text{pri}}(\theta)}{f_{\text{obs}}(Y)},$$

ここで、 $f_{\text{pri}}(\theta)$ は事前分布を、 $f_{\text{obs}}(Y)$ は観測値 Y の確率密度分布を示す。観測値 Y は観測後には変化しないため、定数とみなせるので、

$$f_{\text{post}}(\theta|Y) \propto L(Y|\theta)f_{\text{pri}}(\theta)$$

と簡略化することができる。つまり、ベイズ推定は尤度を事前知識に基づいて重み付したものであると解釈できる。

一般的に MLE 法は、サンプルサイズが小さい場合 (例えば 50 未満) には、使用を勧められていない。原因の一つとして、少ないサンプルサイズでは標本の偏りによる影響が大きいことが挙げられる。BE 法は、少ないサンプルサイズの場合に生じる標本の偏りを補正するために、事前分布を利用して MLE 法を補正しているとも解釈できる。

喫食量に関するベイズ推定においては、サンプルサイズが十分なため、無情報事前分布として $(-\infty, \infty)$ の一様分布を用いた。食品中 Pb 濃度のベイズ推定においては、形状パラメーターの事前分布には、以下の確率密度関数であらわされるコーシー分布を用いた。

$$f(Y|y_0, \gamma) = \frac{1}{\pi} \frac{\gamma}{(Y - y_0)^2 + \gamma^2}$$

対数正規分布を仮定した場合には $(y_0, \gamma) = (3, 1)$ を使い、ガンマ分布及びワイブル分布には $(y_0, \gamma) = (1, 1)$ をコーシー分布のパラメーターに用いた。

パラメーターから変換した理論平均値の事前分布には、不検出例に定量下限

値の半値を代入して求めた平均値 $\hat{\mu}^{RL/2}$ を用いて、 $N(\hat{\mu}^{RL/2}, \hat{\mu}^{RL/2})$ の正規分布を採用した。

各食品群の喫食量の確率密度分布は、6つの食品群で Tweedie 分布が、5つの食品群で ZIG 分布が、2つの食品群で ZILN 分布が最も適していると判断できた (Table 9)。これまでの確率論的摂取量推定において、喫食量分布がゼロ過剰となる確率密度分布はほとんど利用されてこなかったが、生成した乱数のヒストグラムは国民健康・栄養調査のデータとよく似た形状を示していた。この結果は、喫食量に関する確率密度分布が適切に推定できたことを示している。

TD 試料中の Pb 濃度の確率密度分布は、7つの食品群で対数正規分布が、5つの食品群でガンマ分布が、2つの食品群でワイブル分布が最も適していると判断できた (Table 10)。事後予測分布の平均値として算出した形状パラメータは次の通りであった; $e^{\sigma} : 3.1 \pm 0.9$, $\alpha : 0.81 \pm 0.94$, $m : 0.80 \pm 0.60$ 。これらの値は設定した事前分布との乖離は小さく、適切に事前分布を設定できたと判断できた。

不検出例の割合が大きかった食品群ほど、Pb 濃度の推定理論平均値および推定理論標準偏差の RSD が大きくなる傾向にあった (Fig. 8)。この結果からも、不検出となった場合には推定の不確かさを考慮すべきであることが示唆された。

各食品群および Pb 摂取量のパーセンタイル値等を Table 11 に、そのヒストグラムを Fig. 9 に示す。1日推定摂取量

の平均値は $11.3 \pm 3.6 \mu\text{g person}^{-1} \text{ day}^{-1}$ と推定された。ND に 0 あるいは LOQ の半値を代入して算出した 1日推定摂取量は、10.9 および $12.5 \mu\text{g person}^{-1} \text{ day}^{-1}$ であり、2D-MCS で推定した平均値の $\pm 1\sigma$ 内であった。2D-MCS を用いて推定した Pb 摂取量の 50, 75, 90, 95, および 99 パーセンタイル値は、それぞれ 7.44, 11.9, 19.9, 29.3, $71.0 \mu\text{g person}^{-1} \text{ day}^{-1}$ であった。

Pb 摂取量への各食品群の寄与率は、すべての食品群において平均値よりも標準偏差の方が大きかった。この結果より、Pb 摂取量に寄与する食品群 (および特定の食品) を特定するのは困難であると推察された。

E. 結論

全国 10 地域より MB 方式により TD 試料を調製し、食品を介した重金属・有害元素の摂取量評価を行った。HBGV と比較したところ、対 HBGV 比が最も高かったのは iAs であり、最大で 120% であった。次いで、NI は 80%、Mo は 76%、Cd と MeHg は 27-38% の範囲であり、高い比率を示した。一方で、Sb および U の対 HBGV 比は 6% 以下であった。

これまでの調査と比較し経年変動を解析したところ、Cd, Hg, Pb は減少傾向にあり、これまでの政策との関連が示唆された。一方で、As については近年上昇傾向に転じていたが、iAs についてはほぼ一定の値を示していた。iAs は対 HBGV 比も高いことから、継続調査の必要性が改めて示された。

ベイズ法を併用した 2D-MCS による

Pb の確率論的摂取量評価について検討を試みた。Pb 摂取量の 50, 75, 90, 95, および 99 パーセンタイル値は、それぞれ 7.44, 11.9, 19.9, 29.3, 71.0 $\mu\text{g person}^{-1} \text{day}^{-1}$ であった。MB 方式の TD 試料においても 2D-MCS を用いた確率論的摂取量の推定は有用であると考えられた。

F. 研究発表

1. 論文発表

Suzuki Y, Tanaka N, Akiyama H. 2020. Attempt of Bayesian Estimation from Left-censored Data Using the Markov Chain Monte Carlo Method: Exploring Cr(VI) Concentrations in Mineral Water Products. *Food Safety*. **8**(4):67-89.

2. 学会発表

鈴木美成, 近藤 翠, 谷 泉美, 穉山浩, トータルダイエットスタディーを用いた有害元素・重金属の摂取量評価-2019年の調査結果-, 第 57 回 全国衛生科学技術協議会年会 (2020.11).

Table 1 ICP-MS の分析条件

項目	設定
RF power	1550 W
冷却ガス流量	14.0 L/min
ネブライザーガス流量	1.065 L/min
補助ガス流量	0.8 L/min
ネブライザー	PFA 同軸型
スプレーチャンバー	サイクロン型
サンプリング深さ	5.00 mm
セルガス流量	He: 4.2 mL/min (Se 以外), H ₂ : 4.0 mL/min (Se)
積分時間	0.1 s
掃引数	10 回
繰り返し回数	3 回
内部標準	Be (m/z=11–27), Y (m/z=47–95, ただし, As と Se には Te を内部標準とした), In (m/z=111–175), Tl (m/z=208–238)
測定質量電荷比	¹¹ B, ²⁷ Al, ⁴⁷ Ti, ⁵¹ V, ⁵² Cr, ⁵⁵ Mn, ⁵⁷ Fe, ⁵⁹ Co, ⁶⁰ Ni, ⁶⁵ Cu, ⁶⁶ Zn, ⁷³ Ge, ⁷⁵ As, ⁷⁸ Se, ⁸⁵ Rb, ⁸⁸ Sr, ⁹⁵ Mo, ¹¹¹ Cd, ¹¹⁸ Sn, ¹²¹ Sb, ¹³³ Cs, ¹³⁷ Ba, ¹³⁹ La, ¹⁴⁰ Ce, ¹⁴¹ Pr, ¹⁴⁶ Nd, ¹⁴⁷ Sm, ¹⁵³ Eu, ¹⁵⁷ Gd, ¹⁵⁹ Tb, ¹⁶³ Dy, ¹⁶⁵ Ho, ¹⁶⁶ Er, ¹⁶⁹ Tm, ¹⁷² Yb, ¹⁷⁵ Lu, ¹⁸² W, ²⁰⁸ Pb, ²³⁸ U

Table 2 HPLC-ICP-MS の分析条件

項目	設定
HPLC	
カラム	L-column2 (内径 4.6 mm, 長さ 25 cm, 粒子径 3 μm)
カラム温度	25°C
移動相	0.05 (v/v%) メタノール、12 mM 1-ブタンスルホン酸ナトリウム、4 mM マロン酸、1 mM TMAH 溶液、10 ng/g Te (pH 2.7)
グラジエント条件	Isocratic
流速	0.75 mL/min
注入量	10 μL
オートサンプラー温度	4 °C
ICP-MS	
RF power	1550 W
冷却ガス流量	14.0 L/min
ネブライザーガス流量	1.12 L/min
補助ガス流量	0.8 L/min
ネブライザー	PFA 同軸型
スプレーチャンバー	サイクロン型
セルガス流量	He: 4.85 mL/min
積分時間	0.05 s
掃引数	1 回
繰り返し回数	1 回
測定質量電荷比	⁷⁵ As, ¹²⁵ Te

Table 3 水銀分析計の加熱条件

	加熱モード		
	乾燥	分解 1	分解 2
ページ	-	-	850°C, 4 min
標準溶液	150°C, 1 min		800°C, 2 min
TD 試料	150°C, 1 min	250°C, 10 min	800°C, 2 min

Table 4 GC-MS の分析条件

項目	設定
カラム	InertCap 5MS/NP (内径 0.25 mm、長さ 30 m、膜厚 0.25 μm)
オープン温度	70°C (1 min) → 10°C/min (9 min) → 160°C (0 min) → 20°C/min (4 min) → 280°C (5 min)
注入口温度	250°C
トランスファライン温度	280°C
イオン源温度	280°C
注入量	1 μL
キャリアガス流量:	He 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 → m/z=279 (コリジョンエネルギー: 5 V)

Table 5 2020 年に実施したマーケットバスケット研究により推定した元素類の一日摂取量の平均値 ($\mu\text{g person}^{-1} \text{ day}^{-1}$)

食品群	B		Al		Ti		V		Cr		Mn	
	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ
1 群	62.8	62.8	0	78.4	6.24	6.99	0.48	0.51	3.99	5.75	1166	1166
2 群	102	102	148	154	9.46	9.62	1.03	1.03	3.04	3.19	498	498
3 群	25.6	25.6	18.8	21.9	1.62	1.62	0.24	0.24	1.28	1.30	92.0	92.0
4 群	0.45	0.45	0.15	0.44	0.03	0.12	0.002	0.002	0.01	0.01	0.08	0.08
5 群	250	250	70.2	70.2	5.45	5.45	0.46	0.46	2.27	2.27	558	558
6 群	199	200	9.72	11.0	0	0.98	0.08	0.08	0.68	0.69	217	217
7 群	138	138	95.0	95.0	5.40	5.40	0.23	0.24	0.87	0.91	217	217
8 群	280	280	323	328	11.9	11.9	28.9	28.9	4.16	4.20	364	364
9 群	140	140	561	561	8.50	11.5	1.95	2.06	1.55	2.59	523	523
10 群	35.7	35.7	317	317	32.1	32.1	1.64	1.64	1.77	1.77	64.1	64.1
11 群	11.5	11.5	81.8	81.9	4.53	4.53	0.02	0.08	1.88	2.03	28.7	28.7
12 群	25.8	25.8	14.9	15.9	3.44	3.44	0	0.08	0.59	0.92	3.94	3.94
13 群	178	178	197	197	12.7	12.7	2.10	2.10	3.48	3.48	430	430
14 群	8.68	8.68	5.65	5.65	0.002	0.005	0.41	0.41	0.02	0.02	0.06	0.06
合計	1458	1458	1845	1937	101	106	37.5	37.8	25.6	29.1	4162	4162

Table 5 つづき

食品群	Fe		Co		Ni		Cu		Zn		Ge	
	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ
1群	188	188	0.51	0.51	36.1	36.1	386	386	2443	2443	0.32	0.32
2群	1103	1103	1.97	1.97	19.5	19.5	199	199	749	749	0.05	0.06
3群	274	274	0.50	0.50	5.24	5.24	41.4	41.4	184	184	0.01	0.01
4群	0.44	0.47	0.0002	0.0006	0.02	0.03	0.26	0.26	0.94	0.95	0	0.001
5群	2352	2352	0.99	0.99	41.6	41.6	176	176	904	904	0.05	0.05
6群	193	193	0.37	0.37	5.63	5.63	68.8	68.8	89.7	89.7	0.01	0.02
7群	381	381	0.61	0.61	5.07	5.07	62.0	62.0	298	298	0.15	0.15
8群	1131	1131	1.08	1.08	12.8	12.8	135	135	556	556	0.09	0.09
9群	231	233	1.84	1.84	18.9	19.8	53.0	53.0	158	158	0.32	0.35
10群	753	753	0.99	0.99	3.14	3.14	103	103	928	928	0.08	0.08
11群	1553	1553	0.20	0.20	2.34	3.04	87.6	87.6	2896	2896	0.04	0.04
12群	56.5	56.5	0.07	0.07	0	0.87	8.51	8.51	602	602	0	0.01
13群	830	830	1.35	1.35	24.1	24.1	81.5	81.5	418	418	0.04	0.04
14群	1.02	1.02	0.005	0.005	0.20	0.20	3.74	3.74	3.45	3.45	0.005	0.005
合計	9046	9048	10.5	10.5	175	177	1406	1406	10229	10229	1.17	1.21

Table 5 つづき

食品群	As		Se		Rb		Sr		Zr		Mo	
	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ
1群	16.3	16.3	4.73	4.73	153	153	22.8	22.8	0	0.26	101	101
2群	1.23	1.23	17.2	17.2	161	161	149	149	0.26	0.38	11.9	11.9
3群	0.32	0.32	1.81	1.81	53.9	53.9	22.1	22.1	0.81	0.82	3.66	3.66
4群	0.004	0.005	0.13	0.13	0.52	0.52	0.23	0.23	0.0005	0.002	0.03	0.03
5群	0.22	0.22	2.99	2.99	128	128	109	109	0.23	0.23	39.7	39.7
6群	0.07	0.08	0.20	0.32	150	150	59.7	59.7	0.01	0.03	1.40	1.40
7群	0.04	0.07	0.13	0.33	149	149	79.2	79.2	0	0.35	4.21	4.21
8群	94.4	94.4	1.63	1.63	229	229	912	912	0.70	1.29	14.2	14.2
9群	0	0.25	0	1.64	265	265	47.8	47.8	0	2.37	0.44	1.08
10群	172	172	37.1	37.1	43.2	43.2	313	313	0.07	0.25	1.06	1.06
11群	0.87	0.87	33.0	33.0	424	424	26.7	26.7	0.66	0.89	5.99	5.99
12群	0	0.05	4.18	4.18	259	259	52.3	52.3	0.64	0.77	5.22	5.22
13群	4.86	4.86	6.31	6.31	128	128	164	164	0	0.34	18.5	18.5
14群	0.08	0.08	0.02	0.02	0.65	0.65	12.8	12.8	0	0.002	0.11	0.11
合計	291	291	109	111	2145	2145	1971	1971	3.39	7.99	207	208

Table 5 つづき

食品群	Cd		Sn		Sb		Cs		Ba		La	
	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ
1群	5.76	5.76	0.38	0.53	0.01	0.05	0.56	0.56	11.3	11.6	0.06	0.09
2群	2.49	2.49	0.68	0.69	0.05	0.06	0.59	0.59	99.7	99.7	0.19	0.19
3群	0.50	0.50	3.08	3.08	0.02	0.02	0.17	0.17	13.8	13.8	0.02	0.02
4群	0	0.001	0.005	0.008	0	0.001	0.002	0.002	0.19	0.19	0.0003	0.001
5群	1.01	1.01	0.31	0.32	0.01	0.02	0.27	0.27	58.0	58.0	0.13	0.13
6群	0.06	0.06	74.4	74.4	0.01	0.02	0.74	0.74	27.5	27.5	0.15	0.15
7群	1.50	1.50	0.13	0.15	0	0.05	0.43	0.43	37.5	37.5	0.13	0.13
8群	3.18	3.18	327	327	0	0.10	0.67	0.67	69.0	69.0	0.46	0.46
9群	0.08	0.11	0.25	0.46	0	0.33	1.21	1.21	17.0	17.0	0.03	0.09
10群	2.27	2.27	0.55	0.55	0.10	0.10	0.95	0.95	9.19	9.19	0.28	0.28
11群	0.03	0.03	1.05	1.07	0.05	0.06	1.39	1.39	14.9	14.9	0	0.01
12群	0	0.01	0	0.04	0.01	0.03	0.72	0.72	9.18	9.18	0	0.01
13群	0.77	0.77	0.45	0.45	0.01	0.05	0.36	0.36	51.2	51.2	0.10	0.10
14群	0.001	0.001	0.006	0.006	0.03	0.03	0.21	0.21	1.83	1.83	0.0002	0.0003
合計	17.7	17.7	408	409	0.309	0.91	8.26	8.27	420	421	1.53	1.65

Table 5 つづき

食品群	Ce		Pr		Nd		Sm		Eu		Gd	
	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ
1群	0	0.15	0	0.009	0	0.013	0	0.003	0	0.001	0	0.005
2群	0.15	0.19	0.032	0.032	0.127	0.127	0.026	0.026	0.005	0.005	0.030	0.030
3群	0.01	0.02	0.003	0.003	0.012	0.012	0.002	0.002	0.0005	0.0005	0.003	0.003
4群	0	0.01	0	0.0002	0.0002	0.0004	0.0000	0.0001	0	0.0000	0.0001	0.0001
5群	0.08	0.10	0.023	0.023	0.086	0.086	0.018	0.018	0.004	0.004	0.025	0.025
6群	0	0.08	0.016	0.016	0.055	0.055	0.009	0.009	0.002	0.002	0.009	0.009
7群	0.09	0.10	0.019	0.019	0.071	0.071	0.013	0.013	0.003	0.003	0.013	0.013
8群	0.45	0.45	0.113	0.113	0.491	0.491	0.149	0.149	0.042	0.042	0.238	0.238
9群	0.06	0.29	0.005	0.018	0.039	0.060	0.014	0.015	0.001	0.004	0.013	0.015
10群	0.32	0.32	0.045	0.045	0.180	0.180	0.037	0.037	0.008	0.008	0.044	0.044
11群	0.004	0.01	0	0.003	0	0.005	0	0.001	0	0.001	0	0.001
12群	0.004	0.01	0	0.003	0.001	0.006	0	0.001	0	0.001	0	0.001
13群	0.17	0.18	0.024	0.024	0.100	0.100	0.023	0.023	0.005	0.005	0.024	0.024
14群	0.0001	0.0003	0.0000	0.0001	0.0003	0.0003	0.0001	0.0001	0.000	0.0000	0.0003	0.0003
合計	1.33	1.90	0.280	0.307	1.16	1.21	0.290	0.297	0.071	0.078	0.399	0.409

Table 5 つづき

食品群	Tb		Dy		Ho		Er		Tm		Yb	
	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ
1群	0.0000	0.004	0.000	0.008	0.000	0.007	0.000	0.004	0.000	0.001	0.000	0.006
2群	0.002	0.004	0.026	0.026	0.001	0.005	0.017	0.017	0.002	0.002	0.011	0.012
3群	0.0001	0.0004	0.003	0.003	0.0000	0.0006	0.002	0.002	0.0002	0.0002	0.002	0.002
4群	0.0000	0.0001	0.0000	0.0002	0.0000	0.0001	0.0000	0.0001	0.0000	0.0000	0.0000	0.0001
5群	0.004	0.004	0.023	0.023	0.005	0.005	0.016	0.016	0.002	0.002	0.012	0.012
6群	0.0002	0.0011	0.007	0.007	0.000	0.002	0.005	0.005	0.0004	0.0005	0.003	0.003
7群	0.001	0.002	0.010	0.010	0.001	0.002	0.006	0.006	0.0007	0.0007	0.004	0.004
8群	0.037	0.037	0.224	0.224	0.045	0.045	0.122	0.122	0.016	0.016	0.103	0.103
9群	0.000	0.005	0.005	0.015	0.000	0.012	0.009	0.011	0.002	0.002	0.008	0.012
10群	0.006	0.006	0.033	0.033	0.007	0.007	0.020	0.020	0.003	0.003	0.015	0.015
11群	0.000	0.001	0.000	0.002	0.000	0.002	0.001	0.001	0.0001	0.0002	0.001	0.001
12群	0.000	0.001	0.000	0.002	0.000	0.002	0.002	0.002	0.0001	0.0002	0.001	0.001
13群	0.003	0.003	0.019	0.019	0.003	0.004	0.010	0.010	0.001	0.001	0.008	0.008
14群	0.0000	0.0000	0.0002	0.0002	0.0000	0.0001	0.0003	0.0003	0.0001	0.0001	0.001	0.001
合計	0.054	0.069	0.350	0.371	0.062	0.093	0.208	0.214	0.028	0.029	0.167	0.179

Table 5 つづき

食品群	Lu		W		Hg		Pb		U	
	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ
1 群	0.000	0.001	0.097	0.348	0.398	0.398	3.90	4.01	0.000	0.008
2 群	0.002	0.002	0.000	0.148	0.012	0.013	3.33	3.33	0.084	0.084
3 群	0.0002	0.0002	0.188	0.192	0.011	0.011	0.321	0.321	0.004	0.004
4 群	0.0000	0.0000	0.000	0.010	0.000	0.0002	0.007	0.015	0.0000	0.0002
5 群	0.002	0.002	0.000	0.061	0.006	0.006	0.226	0.232	0.043	0.043
6 群	0.0003	0.0006	0.000	0.098	0.009	0.009	0.302	0.353	0.002	0.003
7 群	0.0006	0.0006	0.000	0.124	0.010	0.010	0.217	0.328	0.017	0.017
8 群	0.017	0.017	0.000	0.254	0.062	0.062	1.18	1.22	1.06	1.06
9 群	0.002	0.002	0.504	1.25	0.000	0.015	0.000	1.26	0.013	0.019
10 群	0.002	0.002	0.00	0.04	5.37	5.37	1.24	1.33	0.214	0.214
11 群	0.0001	0.0002	0.091	0.150	0.132	0.132	0.649	0.882	0.014	0.015
12 群	0.0002	0.0003	0.000	0.074	0.000	0.003	0.160	0.452	0.010	0.011
13 群	0.001	0.001	0.000	0.121	0.038	0.038	0.540	0.576	0.029	0.029
14 群	0.0001	0.0001	0.018	0.019	0.000	0.006	0.105	0.105	0.001	0.001
合計	0.026	0.029	0.898	2.90	6.05	6.07	11.8	13.9	1.49	1.51

Table 6 2020 年に実施したマーケットバスケット研究により推定したヒ素化学種の日摂取量の平均値 ($\mu\text{g person}^{-1} \text{ day}^{-1}$)

食品群	iAs		MMAs		DMAs		AsB	
	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ	ND=0	ND=0.5LOQ
1 群	14.9	14.9	0.000	0.040	3.76	3.76	0.000	0.034
2 群	0.664	0.672	0.018	0.031	0.080	0.089	0.000	0.013
3 群	0.148	0.154	0.002	0.006	0.036	0.039	0.012	0.015
4 群	0.000	0.003	0.000	0.001	0.000	0.001	0.000	0.001
5 群	0.212	0.217	0.000	0.005	0.000	0.006	0.000	0.022
6 群	0.066	0.090	0.005	0.014	0.019	0.024	0.032	0.036
7 群	0.071	0.089	0.016	0.022	0.010	0.017	0.000	0.014
8 群	1.70	1.70	0.541	0.549	2.390	2.390	0.448	0.459
9 群	0.388	0.494	0.044	0.095	0.018	0.091	0.022	0.144
10 群	0.285	0.293	0.297	0.299	0.706	0.708	83.6	83.6
11 群	0.077	0.092	0.000	0.012	0.000	0.011	0.352	0.354
12 群	0.040	0.056	0.000	0.012	0.026	0.040	0.044	0.055
13 群	0.735	0.735	0.000	0.008	0.303	0.303	1.93	1.93
14 群	0.107	0.110	0.036	0.040	0.002	0.007	0.011	0.012
合計	19.4	19.6	0.961	1.13	7.36	7.49	86.4	86.7

Table 7 各地域ブロックにおける水銀の形態別推定一日摂取量 ($\mu\text{g person}^{-1} \text{ day}^{-1}$)

食品群 地域ブロック	T-Hg		Me-Hg			Me-Hg の割合 (%)	
	10 群	11 群	10 群	11 群	10+11 群	10 群	11 群
A	3.56	0.083	2.96	0.088	3.04	83.0	107.0
B	5.44	0.236	4.04	0.212	4.25	74.2	89.7
C	7.05	0.123	6.27	0.114	6.38	89.0	93.0
D	7.23	0.144	6.30	0.068	6.37	87.2	47.0
E	5.73	0.335	4.56	0.233	4.80	79.6	69.7
F	5.04	0.080	4.40	0.045	4.45	87.3	56.0
G	4.45	0.066	3.36	0.057	3.41	75.4	85.4
H	6.25	0.115	2.99	0.112	3.10	47.9	97.4
I	4.75	0.089	3.62	0.057	3.67	76.2	63.9
J	4.19	0.054	3.37	0.022	3.39	80.3	41.2
平均値	5.37	0.132	4.19	0.101	4.29	78.0	76.1

Table 8 2020 年に実施したマーケットバスケット研究により推定した 1 日摂取量の平均値の対 Health-Based Guideline Value 比

元素	HBGV ^a ($\mu\text{g kg}^{-1} \text{day}^{-1}$)	出典および参照値	推定摂取量 ^b ($\mu\text{g kg}^{-1} \text{day}^{-1}$)	対 HBGV 比
B	96–200	US EPA (2004), RfD (Oral): 200 $\mu\text{g/kg bw/day}$ (発達) 食品安全委員会 (2012), TDI (Oral): 96 $\mu\text{g/kg bw/day}$	27	0.14–0.28
Al	143–300	UE EFSA (2008), TWI (Oral): 1000 $\mu\text{g/kg bw/week}$ 食品安全委員会 (2017), TWI (Oral): 2100 $\mu\text{g/kg bw/week}$	35	0.12–0.24
Ni	4.0	食品安全委員会 (2012), TDI (Oral): 4.0 $\mu\text{g/kg bw/day}$ (皮膚炎)	3.2	0.8
iAs	0.3	US EPA (1999), RfD (Oral): 0.3 $\mu\text{g/kg bw/day}$ (心臓血管, 皮膚) US ATSDR, (2007), NOAEL: 0.3 $\mu\text{g/kg bw/day}$ (ヒト, 非発がん毒性として皮膚病変)	0.36	1.2
Se	4.0–5.0	US EPA (1991), RfD (Oral): 5.0 $\mu\text{g/kg bw/day}$ (神経系, 血液系, 皮膚) 食品安全委員会 (2012), TDI (Oral): 4.0 $\mu\text{g/kg bw/day}$	2.0	0.4–0.5
Mo	5.0	US EPA (1992), RfD (Oral): 5.0 $\mu\text{g/kg bw/day}$ (膀胱)	3.8	0.76
Cd	0.83–1.0	食品安全委員会 (2008), TWI (Oral): 7.0 $\mu\text{g/kg bw/week}$ WHO/JECFA (2013), PTMI: 25 $\mu\text{g/kg bw/month}$	0.32	0.32–0.38
Sb	0.4	US EPA (1987), RfD (Oral): 0.4 $\mu\text{g/kg bw/day}$ (血液系, Other)	0.016	0.04
Ba	20	食品安全委員会 (2012), TDI (Oral): 20 $\mu\text{g/kg bw/day}$ (高血圧, 心臓病, 腎臓病)	7.7	0.38
Hg	0.57	WHO/JECFA (2011), PTWI: 4 $\mu\text{g/kg bw/week}$	0.11	0.19
MeHg	0.22–0.29	WHO/JECFA (2007), PTWI 1.6 $\mu\text{g/kg bw/week}$ 食品安全委員会 (2005), TWI (Oral): 2.0 $\mu\text{g/kg bw/week}$	0.078 ^c	0.27–0.35
Pb	0.50–1.50	EFSA Contam (2010), BMDL ₀₁ ($\mu\text{g/kg bw/day}$): 0.50 (発達神経毒性); 1.50 (血圧); 0.63 (腎臓病)	0.11 ^d	0.073–0.22 (MOE ^e : 4.5–13.6)
U	0.6–3.0	US EPA (1989), RfD (Oral): 3.0 $\mu\text{g/kg bw/day}$ (膀胱, その他) EFSA Contam (2009), TDI (暫定): 0.6 $\mu\text{g/kg bw/day}$	0.027	0.009–0.045

a: Health-based guideline value, b: ND=0.5LOQ を代入し、体重を 55 kg として算出した, c: 10 群と 11 群のみの総和から算出した, d: 中央値, e: 曝露マージン

Table 9 喫食量に関する確率密度分布のパラメーターに関するベイズ推定の結果

Food Group	Distribution	Parameter 1 ^a	Parameter 2 ^b	Parameter 3 ^c	Estimated theoretical mean
1	ZIG	0.965 ± 0.001	3.51 ± 0.02	0.0106 ± 0.0001	320.7 ± 0.9
2	Tweedie	1.521 ± 0.004	164.0 ± 0.6	6.6 ± 0.1	164.0 ± 0.6
3	ZILN	0.863 ± 0.002	16.0 ± 0.1	4.31 ± 0.02	40.0 ± 0.5
4	Tweedie	1.408 ± 0.003	10.47 ± 0.04	3.02 ± 0.02	10.5 ± 0.04
5	ZIG	0.753 ± 0.002	1.21 ± 0.01	0.0150 ± 0.0001	60.9 ± 0.4
6	ZIG	0.644 ± 0.002	1.31 ± 0.01	0.0082 ± 0.0001	102.4 ± 0.7
7	ZIG	0.940 ± 0.001	1.27 ± 0.01	0.0121 ± 0.0001	98.7 ± 0.5
8	Tweedie	1.518 ± 0.006	202.9 ± 0.7	5.1 ± 0.2	202.9 ± 0.7
9	Tweedie	1.553 ± 0.003	635 ± 3	12.9 ± 0.2	635 ± 3
10	Tweedie	1.475 ± 0.003	68.7 ± 0.3	10.2 ± 0.1	68.7 ± 0.4
11	ZIG	0.940 ± 0.001	1.270 ± 0.008	0.0121 ± 0.0001	98.7 ± 0.5
12	Tweedie	1.539 ± 0.002	128.3 ± 0.8	15.1 ± 0.1	128.3 ± 0.8
13	ZILN	0.9989 ± 0.0002	63.0 ± 0.3	2.295 ± 0.006	88.8 ± 0.4

a: パラメーター1は頻度パラメーターで、Tweedie分布の θ 、ZILN分布とZIG分布の p を示す。

b: パラメーター2は位置あるいは割合パラメーターで、Tweedie分布の μ 、ZILN分布の e^μ 、ZIG分布の β を示す。

c: パラメーター3は形状パラメーターで、Tweedie分布の ϕ 、ZILNの e^σ 、ZIG分布の α を示す。

Table 10 Pb 濃度に関する確率密度分布のパラメーターに関するベイズ推定の結果

Food Group	Distribution	Parameter 1 ^a	Parameter 2 ^b	Estimated theoretical mean	Estimated theoretical SD ^c
1	Weibull	2.57 ± 1.54	0.379 ± 0.068	10.6 ± 5.2	42.8 ± 32.3
2	Lognormal	4.38 ± 1.24	3.59 ± 0.67	10.1 ± 4.0	22.7 ± 18.0
3	Lognormal	4.25 ± 1.03	3.11 ± 0.51	8.21 ± 2.63	14.2 ± 8.8
4	Gamma	0.107 ± 0.144	0.075 ± 0.084	1.10 ± 0.65	6.90 ± 9.09
5	Lognormal	3.90 ± 0.78	2.63 ± 0.42	6.30 ± 1.66	8.25 ± 4.23
6	Gamma	0.152 ± 0.080	0.474 ± 0.200	3.46 ± 1.14	5.42 ± 2.39
7	Lognormal	2.74 ± 0.45	2.03 ± 0.35	3.55 ± 0.71	2.98 ± 1.49
8	Lognormal	5.55 ± 0.88	1.98 ± 0.30	7.07 ± 1.47	5.64 ± 2.74
9	Weibull	0.836 ± 0.276	1.23 ± 0.46	0.843 ± 0.276	0.836 ± 0.777
10	Lognormal	8.68 ± 2.02	2.99 ± 0.53	16.0 ± 4.8	26.0 ± 15.3
11	Lognormal	2.86 ± 1.02	4.71 ± 1.23	9.68 ± 4.70	38.0 ± 44.7
12	Gamma	0.167 ± 0.150	0.250 ± 0.200	1.95 ± 1.04	4.95 ± 3.97
13	Gamma	0.473 ± 0.172	2.42 ± 0.82	5.22 ± 0.81	3.50 ± 0.82
14	Gamma	2.26 ± 0.81	0.849 ± 0.228	0.399 ± 0.10	0.447 ± 0.143

a: パラメーター1 は位置あるいは割合パラメーターで、ワイブル分布の η 、対数正規分布の e^μ 、ガンマ分布の β を示す。

b: パラメーター2 は形状パラメーターで、Weibull の m 、対数正規分布の e^σ 、ガンマ分布の α を示す。

c: standard deviation

Table 11 バイズ法と二次元モンテカル口法を併用して推定した食品を介した Pb 摂取量推定値 ($\mu\text{g person}^{-1} \text{ day}^{-1}$)

Food Group	Mean ^a	Standard deviation ^b	50 th percentile	75 th percentile	90 th percentile	95 th percentile	99 th percentile	Contribution ratio (%)
1	3.41 ± 3.04	10.6 ± 14.3	0.21	1.54	6.54	14.2	53.5	15.1 ± 23.2
2	1.66 ± 1.02	3.56 ± 4.40	0.51	1.45	3.63	6.28	17.9	14.5 ± 18.0
3	0.35 ± 1.06	1.19 ± 7.28	0.05	0.18	0.61	1.24	4.60	3.3 ± 8.1
4	0.01 ± 0.02	0.05 ± 0.12	3×10^{-9}	2×10^{-4}	9×10^{-3}	0.03	0.22	0.2 ± 1.3
5	0.38 ± 0.16	0.76 ± 0.56	0.11	0.39	0.94	1.57	3.89	4.7 ± 8.5
6	0.35 ± 0.22	0.93 ± 0.85	0.01	0.23	0.92	1.72	4.90	3.9 ± 9.1
7	0.35 ± 0.11	0.49 ± 0.29	0.19	0.43	0.83	1.22	2.51	4.9 ± 7.0
8	1.44 ± 0.40	1.55 ± 0.91	0.94	1.79	3.10	4.29	8.16	17.7 ± 15.9
9	0.54 ± 0.23	0.78 ± 0.65	0.24	0.65	1.34	1.97	3.95	6.9 ± 9.7
10	1.09 ± 0.53	2.23 ± 1.90	0.32	1.05	2.61	4.38	11.65	10.1 ± 15.3
11	0.94 ± 0.88	2.65 ± 4.88	0.17	0.61	1.84	3.58	12.12	7.9 ± 13.7
12	0.25 ± 0.22	0.82 ± 0.95	1×10^{-3}	0.07	0.47	1.10	4.22	2.5 ± 7.6
13	0.46 ± 0.12	0.59 ± 0.26	0.26	0.55	1.05	1.52	3.07	6.3 ± 8.1
14	0.10 ± 0.03	0.11 ± 0.04	0.06	0.13	0.24	0.32	0.55	1.5 ± 2.2
Total	11.3 ± 3.6	14.0 ± 16.0	7.44	11.9	19.9	29.3	71.0	-

a: 二次元モンテカル口法でシミュレーションした 50×2000 個の乱数を用いた 2000 個の平均値の平均値±標準偏差

b: 二次元モンテカル口法でシミュレーションした 50×2000 個の乱数を用いた 2000 個の標準偏差の平均値±標準偏差

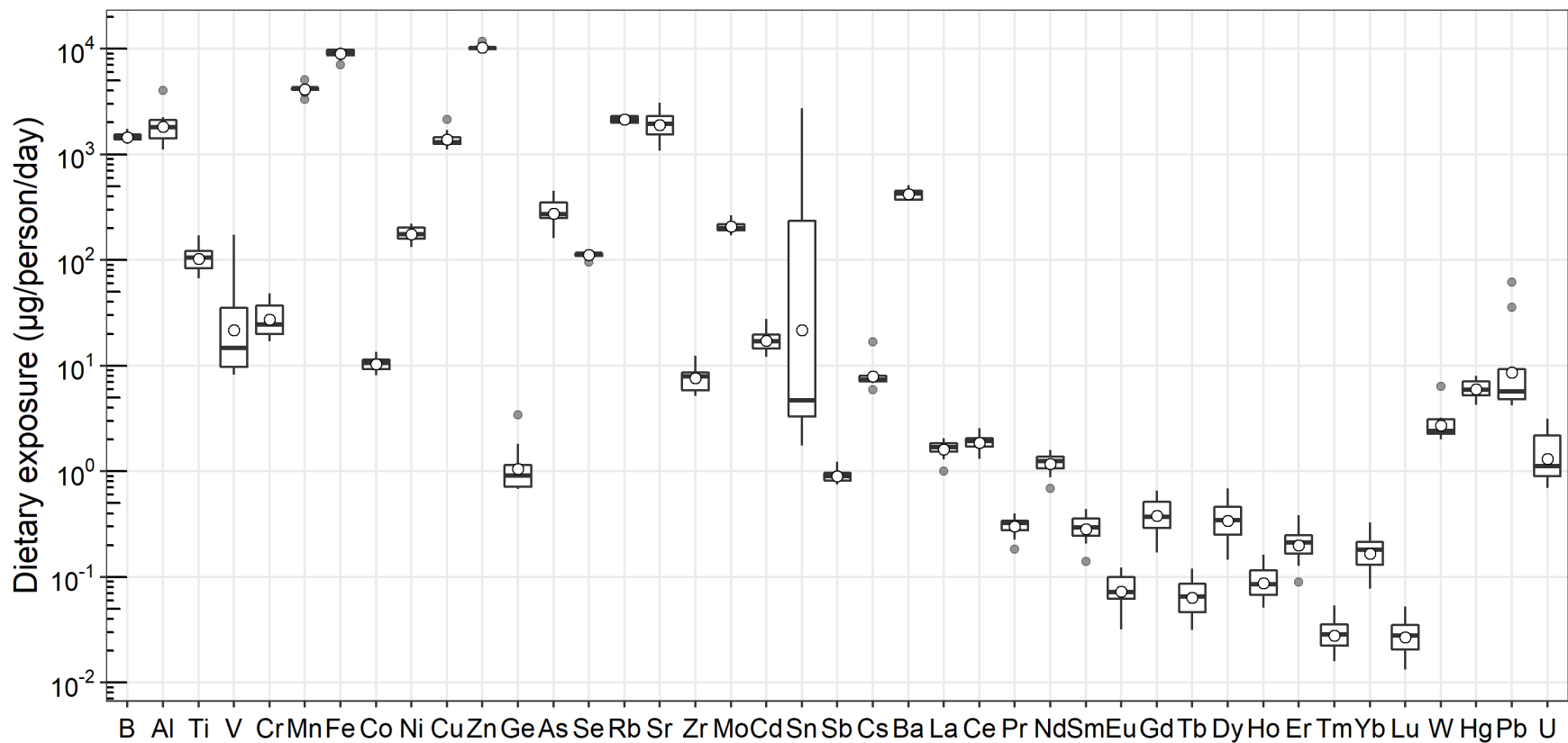
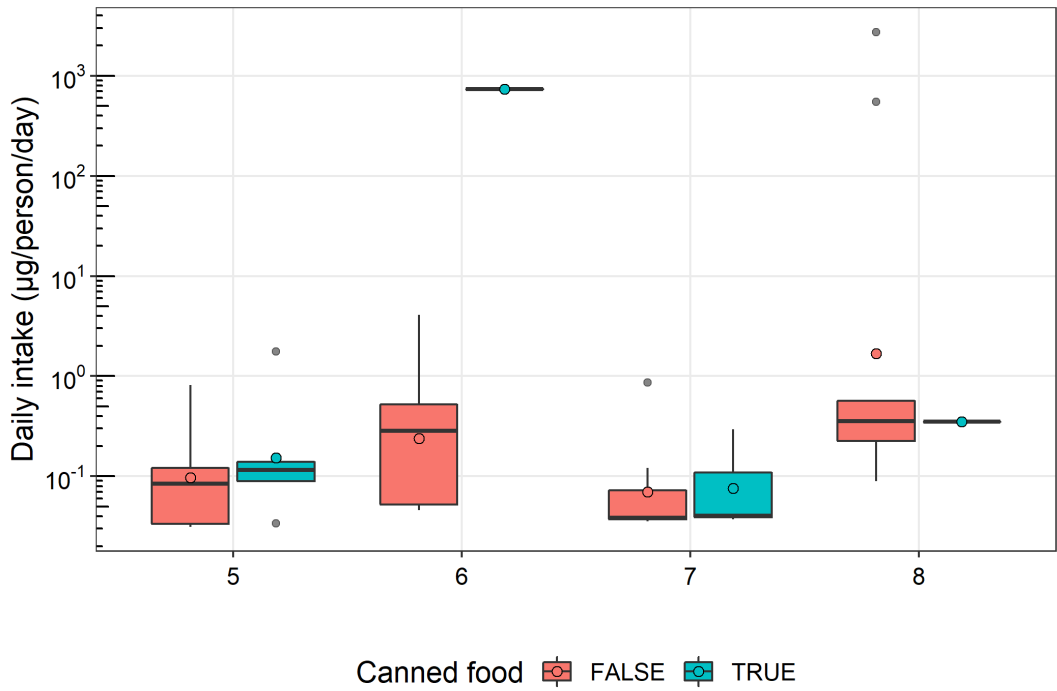


Fig. 1 2020 年に 10 地域の TD 試料から推定した元素類の推定 1 日摂取量

白丸: 平均値; 横線: 中央値; 箱: 四分位範囲; ひげ: 中央値±1.5×四分位範囲/2 内の最大/最小値 ; 灰色丸: 外れ値

(A)



(B)

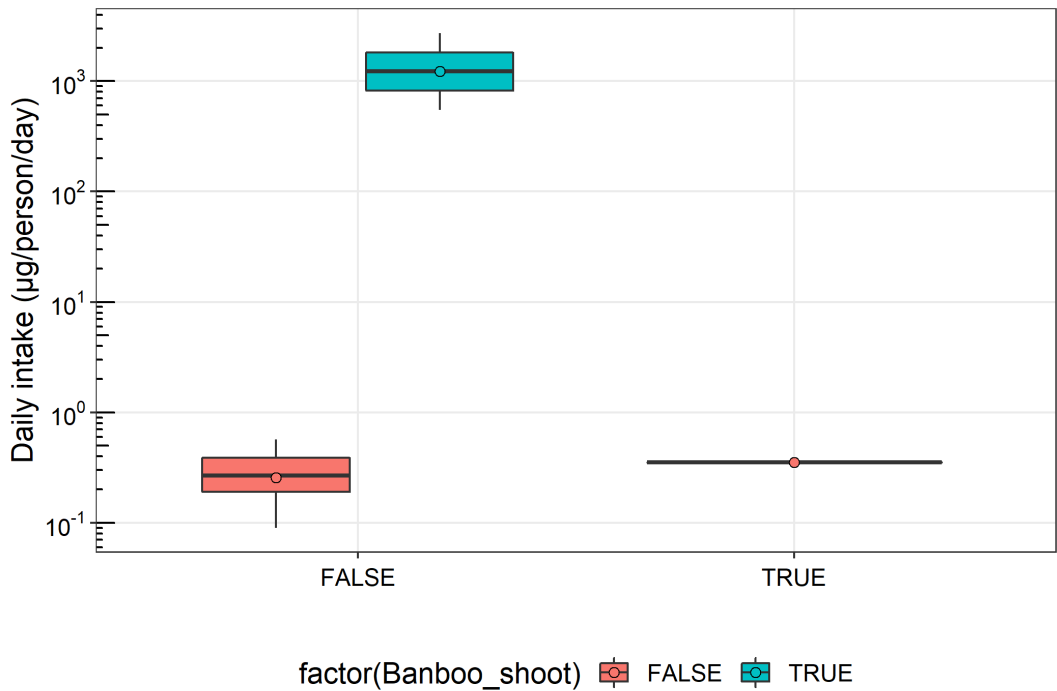


Fig. 2 各食品群中 Sn 濃度の各要因間比較. (A) 缶詰食品を使用したかどうか. (B) 8 群において缶詰食品およびタケノコの水煮を使用したかどうか

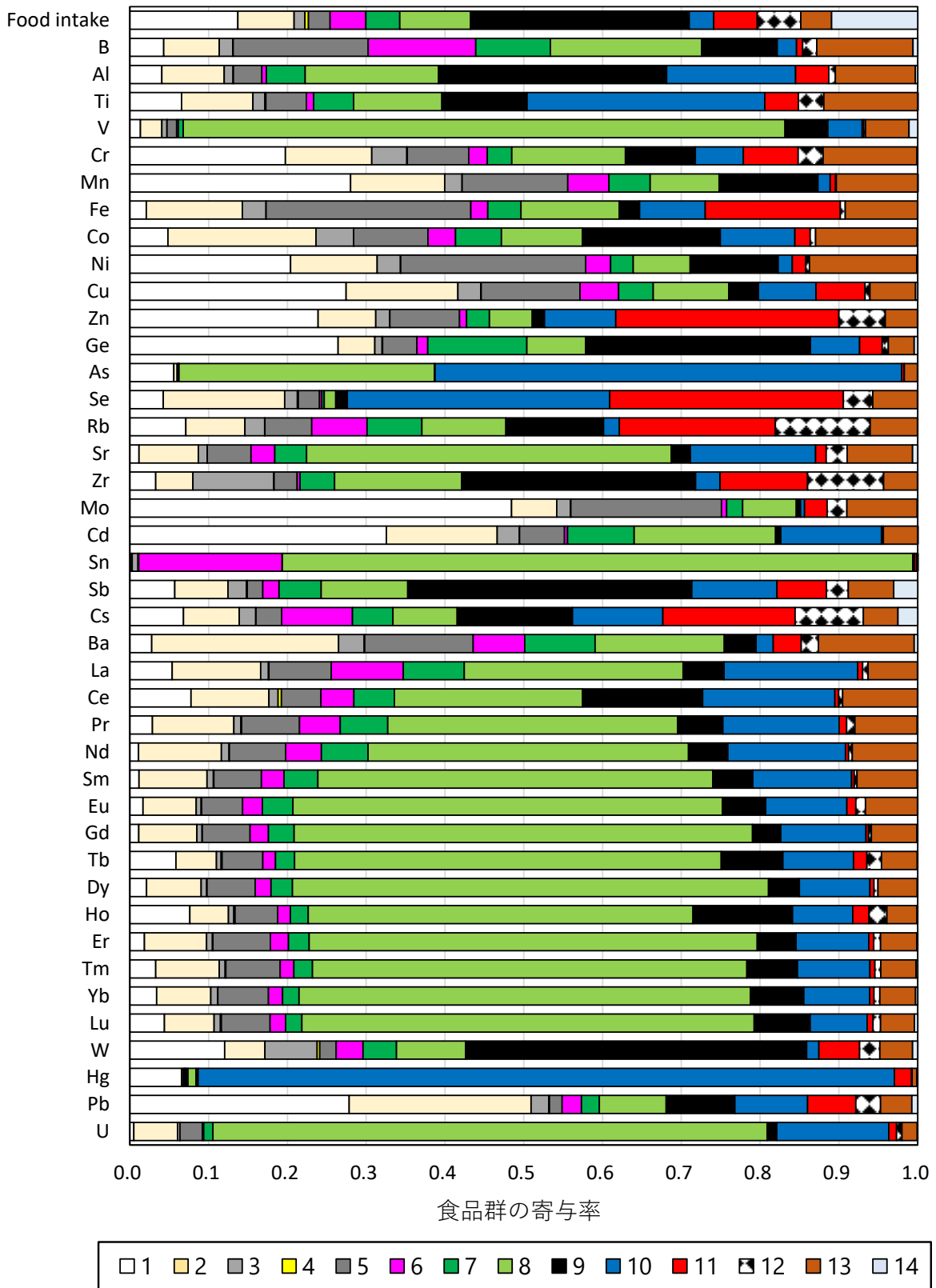


Fig. 3 2020年TDSにおける重金属・有害元素の摂取量における食品群の寄与率

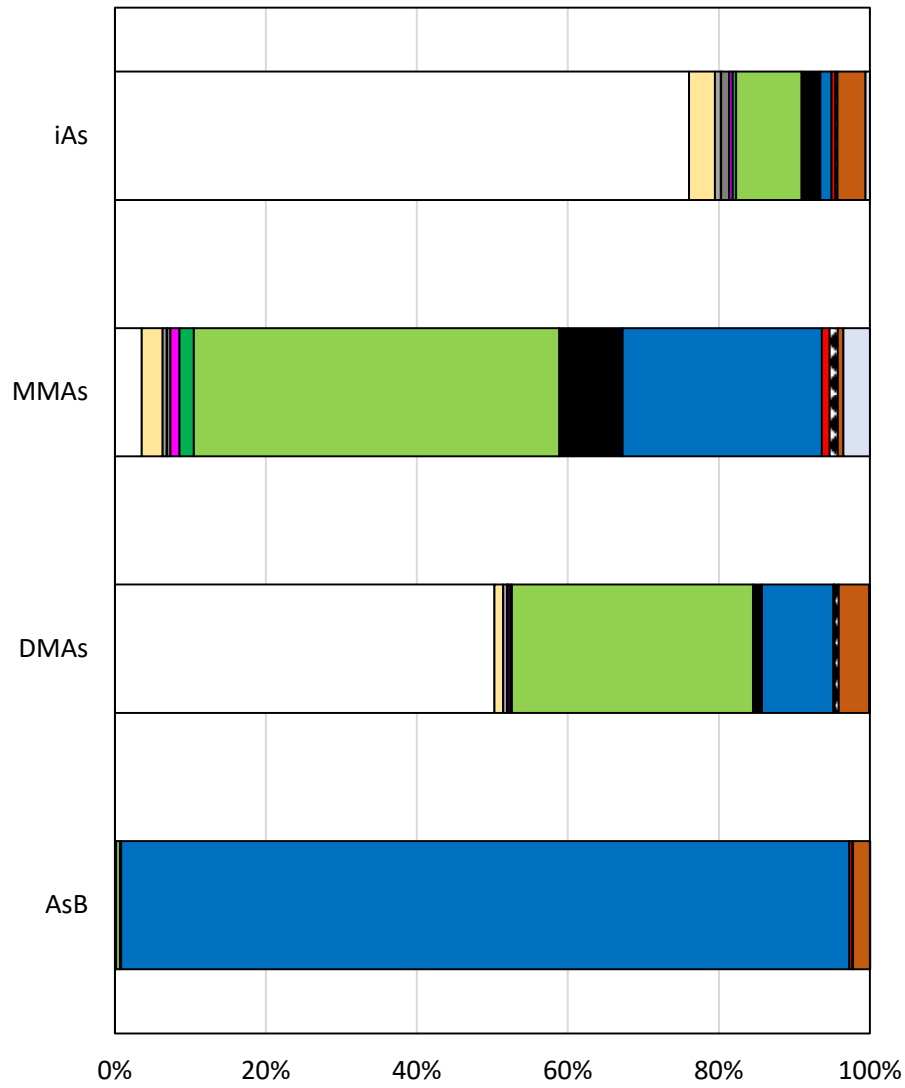


Fig. 4 As 化学種の摂取量における各食品群の寄与率

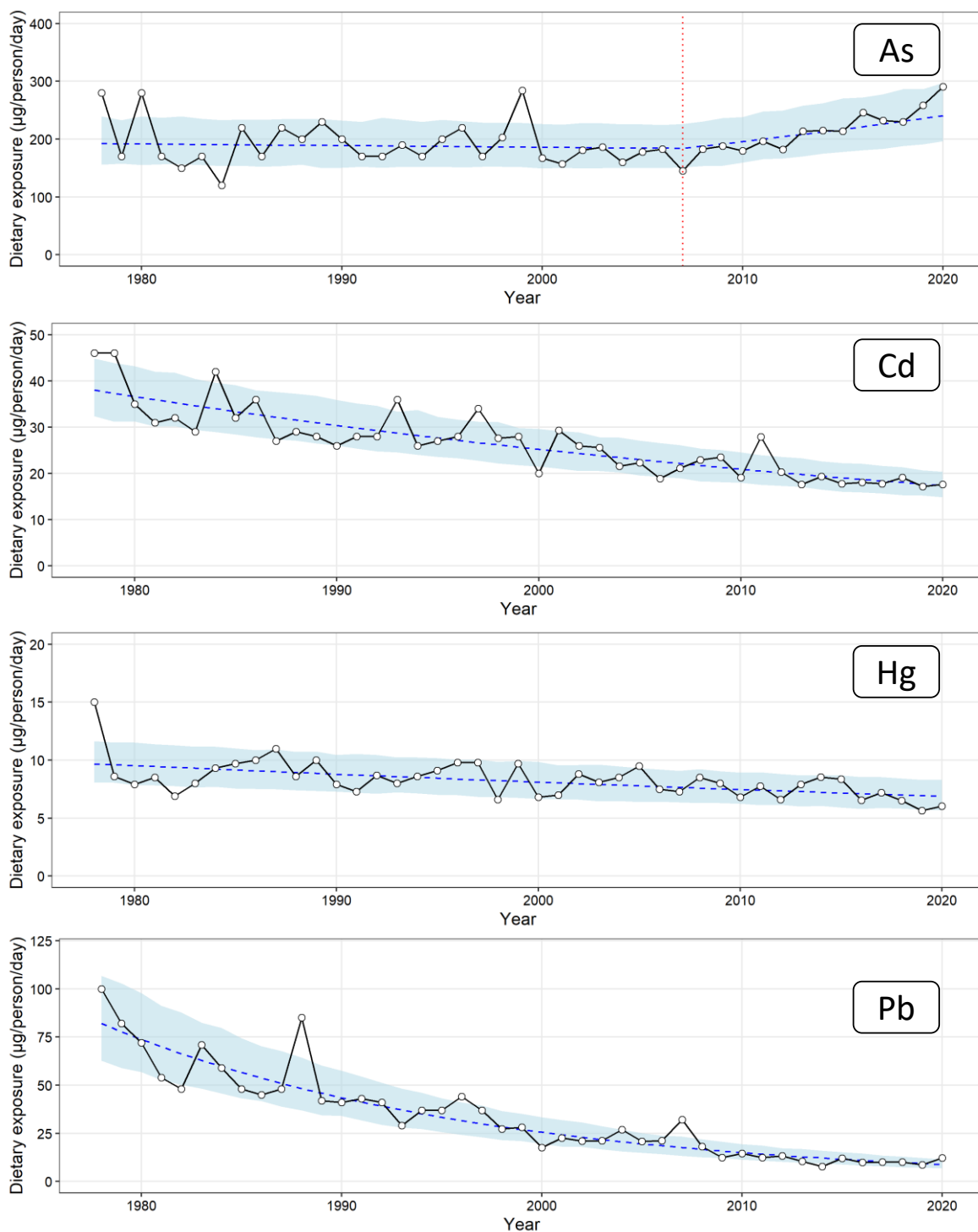


Fig. 5 As, Cd, Hg, Pb の推定 1 日摂取量の経年変動. 1978 年のデータは 1977-1978 年に行ったデータ. ND となったデータには 0 を代入し平均値を算出した. 青破線はトレンドを, 水色のエリアはトレンドの 80% 予測区間を, 赤点線は変化点を示す.

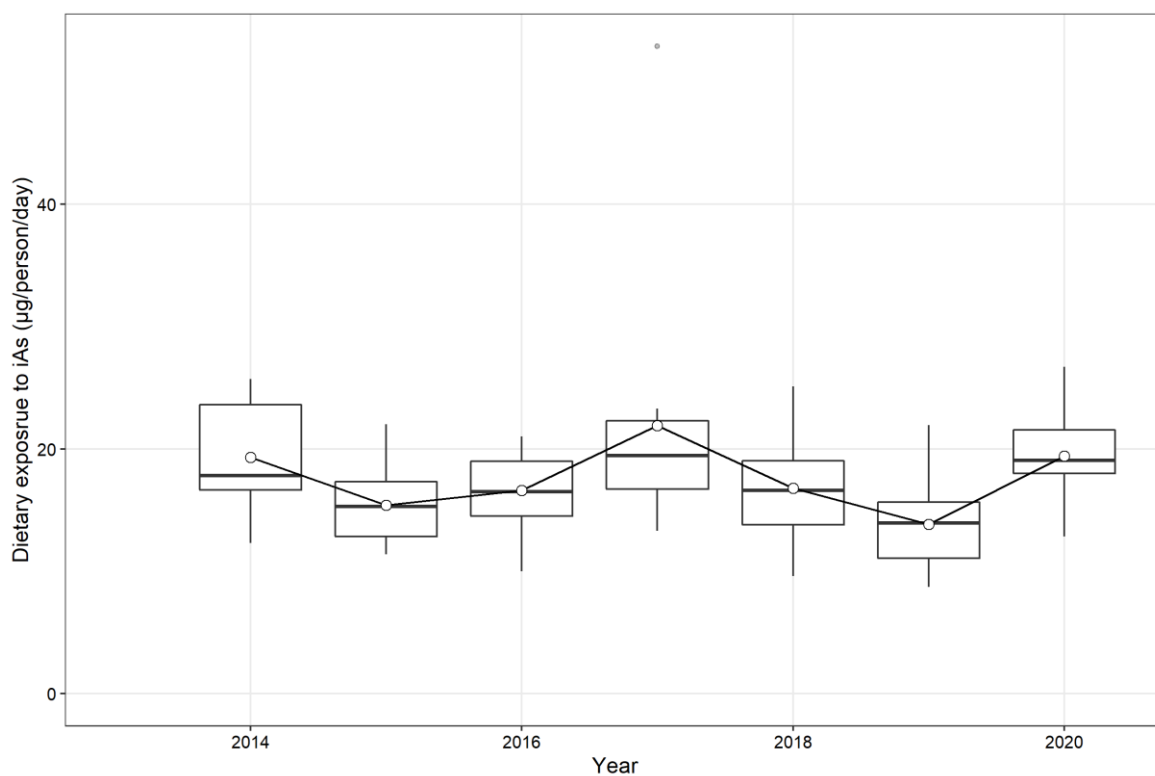


Fig. 6 iAs の摂取量の経年変動

ND となったデータには 0 を代入し算出した。白丸: 平均値; 横線: 中央値; 箱: 四分位範囲; ひげ: 中央値 $\pm 1.5 \times$ 四分位範囲/2 内の最大/最小値 ; 灰色丸: 外れ値

```

1. data {
2.   int<lower=1> N;
3.   vector<lower=0>[N] Y_L;
4.   vector<lower=0>[N] Y_U;
5.   int<lower=1> N_new;
6. }
7.
8. transformed data {
9.   real<lower=0> mu_int;
10.
11.   mu_int = (mean(Y_L) + mean(Y_U))/2;
12. }
13.
14. parameters {
15.   real<lower=0> gm;
16.   real<lower=1> gsd;
17. }
18.
19. transformed parameters {
20.   real<lower=0> y_expect;
21.
22.   y_expect = exp(log(gm) + 0.5*(log(gsd))^2);
23. }
24.
25. model {
26.   // prior distribution
27.   gsd ~ cauchy(3,1);
28.   target += normal_lpdf(y_expect | mu_int, mu_int);
29.
30.   for (i in 1:N) {
31.     if (Y_L[i]==Y_U[i]) {
32.       target += lognormal_lpdf(Y_U[i] | log(gm), log(gsd));
33.     } else {
34.       if (Y_L[i]==0) {
35.         target += lognormal_lcdf(Y_U[i] | log(gm), log(gsd));
36.       } else {
37.         target += log( exp(lognormal_lcdf(Y_U[i] | log(gm), log(gsd))) -
38. exp(lognormal_lcdf(Y_L[i] | log(gm), log(gsd)))));
39.       }
40.     }
41.   }
42.
43. generated quantities {
44.   real log_lik[N];
45.   real<lower=0> Y_new[N_new];
46.
47.   for (i in 1:N) {
48.     if (Y_L[i]==Y_U[i]) {
49.       log_lik[i] = lognormal_lpdf(Y_U[i] | log(gm), log(gsd));
50.     } else {
51.       if (Y_L[i]==0) {
52.         log_lik[i] = lognormal_lcdf(Y_U[i] | log(gm), log(gsd));
53.       } else {
54.         log_lik[i] = log(exp(lognormal_lcdf(Y_U[i] | log(gm), log(gsd))) -
55. exp(lognormal_lcdf(Y_L[i] | log(gm), log(gsd)))));
56.       }
57.     }
58.     for (i in 1:N_new) Y_new[i] = lognormal_rng(log(gm), log(gsd));
59.   }
60. }

```

Fig. 7 対数正規分布を仮定した ND を含むデータに対するベイズ推定に用いた Stan コード

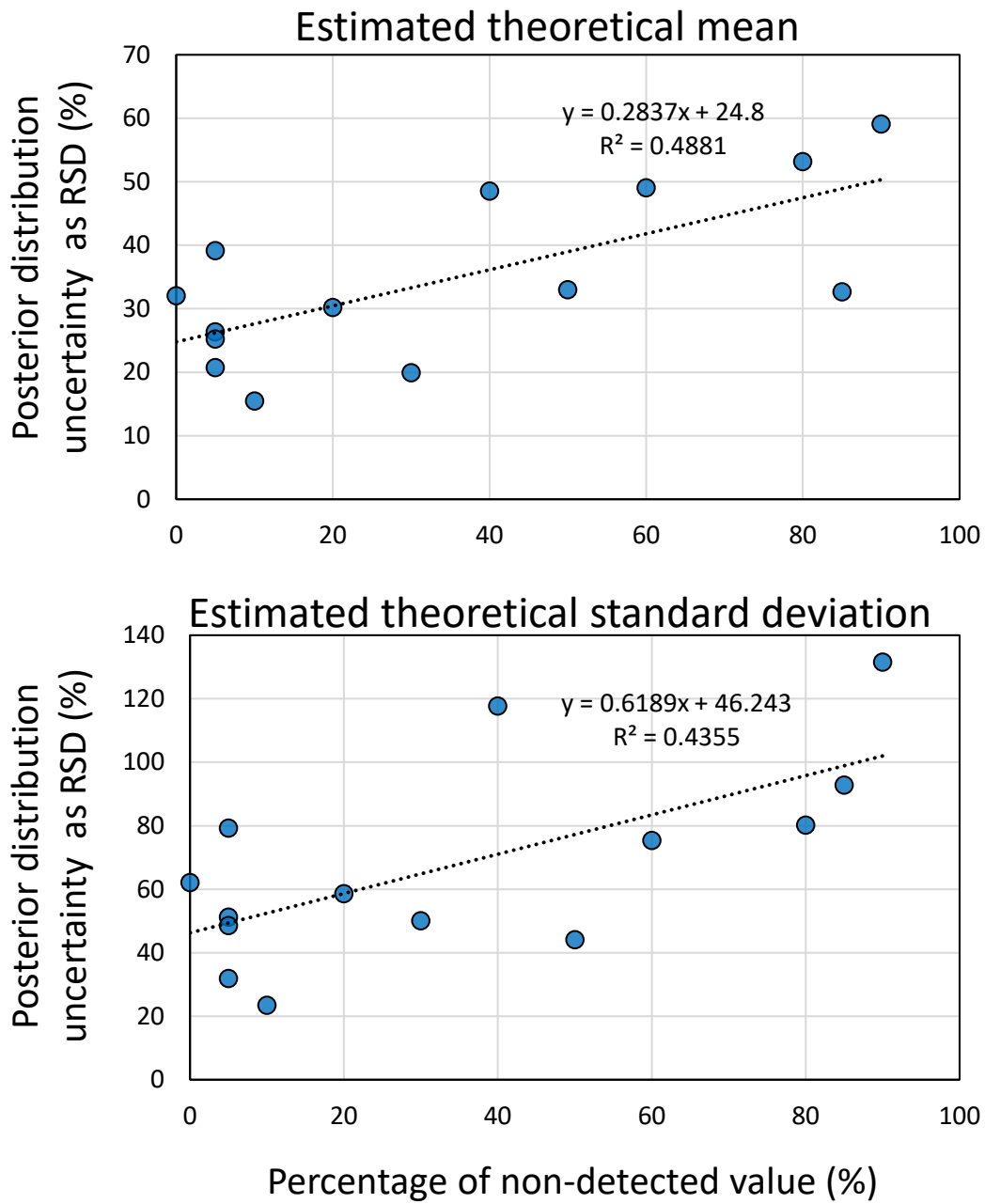


Fig. 8 Pb 濃度のベイズ推定結果における不検出割合が理論平均値と理論標準偏差の不確かさに与える影響

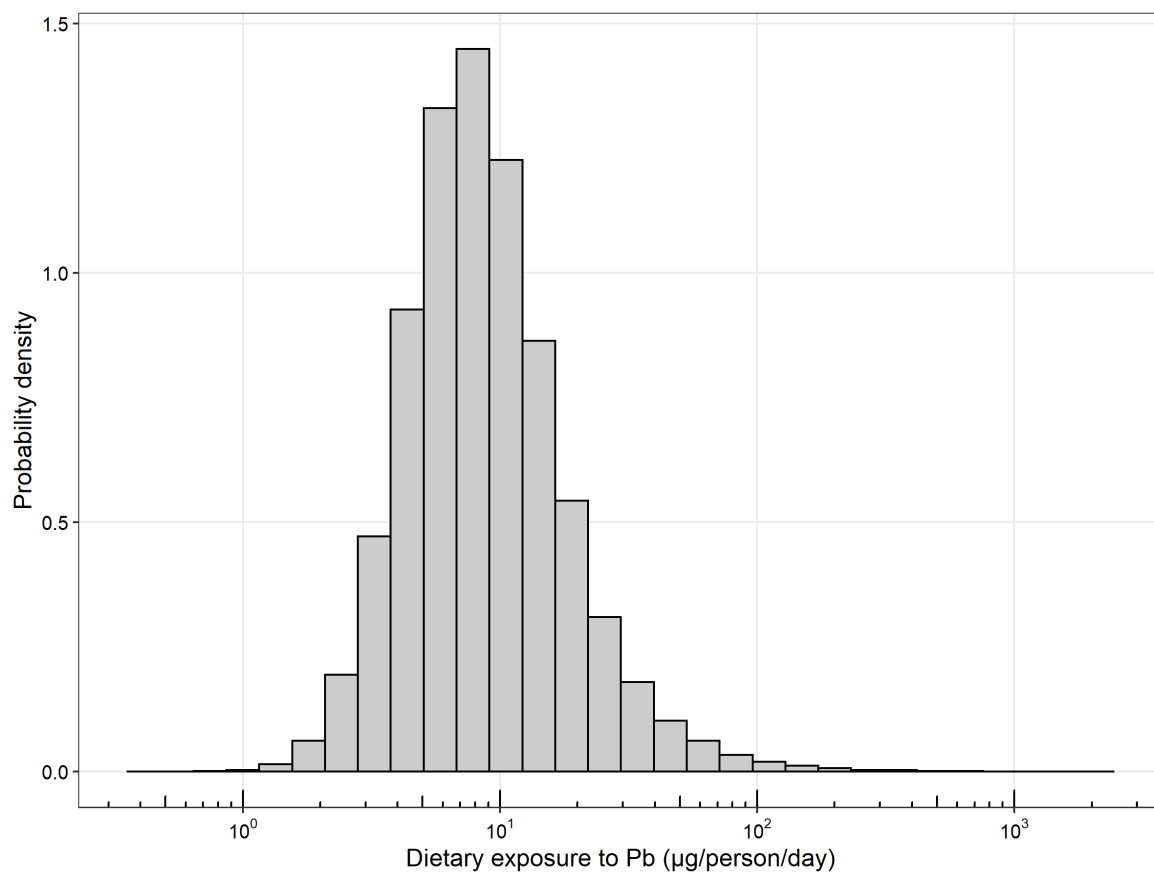


Fig. 9 ベイズ法を適用した二次元モンテカルロシミュレーションによる Pb の推定 1 日摂取量の分布