

Ⅱ. 分担研究報告書

(2) 食品の有害元素の摂取量推定に関する研究

研究分担者 鈴木 美成

令和 3 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 その手法開発のための研究

分担研究報告書

(2) 食品の有害元素の摂取量推定に関する研究

研究分担者 鈴木美成 国立医薬品食品衛生研究所食品部

研究要旨

本研究では、2021 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 41 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: 1715 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, Al: 2498 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, V: 27.5 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, Cr: 101 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, Mn: 4637 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, Co: 12.3 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, Ni: 197 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, As: 322 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, iAs: 22.8 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, Se: 123 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, Mo: 236 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, Cd: 16.7 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, Sn: 328 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, Sb: 1.90 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, Ba: 427 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, Hg: 8.21 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, Me-Hg: 7.02 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, Pb: 5.60 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, U: 1.29 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$ 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 日摂取量と HBGV の比 (ハザード比、HQ) を求めた。その結果、HQ は iAs の 1.36 を筆頭に、Ni, Mo が 0.80 以上、Se, Ba, Me-Hg が 0.39-0.59、B, Cd が 0.16-0.36 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、金属ナノ粒子の摂取量評価として、Ag ナノ粒子の摂取量推定を行った。健康リスクの高いと考えられる As, iAs, Cd, Hg, 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。また、年代別の摂取量推定も行った。

研究協力者

北海道立衛生研究所

新潟県保健環境科学研究所

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

青柳直樹

雅楽川憲子

櫻井有里子、越智直樹、五十嵐悠

宮崎仁志

三田村徳子

安永恵

新谷依子、飛石和太、堀就英

大城聡子、當間一晃、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、元素類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、2021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2021年5月から10月までの間に調製された。小売店から食品を購入し、該当地域における1日当たりの消費量に従って秤量し、茹でる、焼く等の一般的な調理を行ってから、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。14群の喫食量は250g/dayとした。

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 MΩ・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)、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-ブタンシ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)は和光純薬製のものを使用した。

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。

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。

人口唾液には、和光純薬社製のαアミラーゼ (生化学用)、ムチン (ブタ胃由来)、尿酸 (99%)、塩化ナトリウム (残留農薬・PCB 試験用)、チオシアン酸ナトリウム (試薬特級)、リン酸二水素カリウム (試薬特級)、炭酸水素ナトリウム (食品添加物)、塩化カリウム (試薬特級)、塩化カルシウム二水和物 (試薬特級)、硫酸ナトリウム (残留農薬・PCB 試験用)、関東化学社製の尿素 (特級)を用いた。

ナノ粒子測定には Tween-20 (分子生物学用、関東化学)、パンクレアチン (ブタ膵臓由来、シグマアルドリッチ)、リパーゼ (ブタ膵臓由来、シグマアルドリッチ)、NaH₂PO₄ (特級、和光純薬)、水酸化ナトリウム (特級、和光純薬)、銀ナノ粒子 (粒径 60 nm、シグマアルドリッチ)、二酸化ケイ素 (粒径 500nm、シグマアルドリッチ)を用いた。

2.3 分析機器

元素分析には ICP-MS (iCAPQ, サーマフィ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。ヒ素および水銀の

化学形態別分析には、HPLC (Prominence, 島津製作所社製)と ICP-MS (iCAPRQ, サーマフィ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。

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 群の試料に対しては、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 の条件で測定を行った。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°C で 3 時間加熱した。冷却後、総水銀計により 850°C 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°C 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

試料 2.0 g を量り取り、10% TMAH 溶液 5 mL を加え、80°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、上澄みを 20 mL メスフラスコに移した。塩酸を用

いて pH 2.3 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。

1 群の場合には、試料 2.0 g に対して人口唾液 (1.667 mg/mL NaCl, 0.5 mg/mL NaSCN, 1.833 mg/mL Na_2SO_4 , 0.5 mg/mL NaHCO_3 , 1.5 mg/mL KCl, 2.0 mg/mL KH_2PO_4 , $\text{CaCl}_2\cdot\text{H}_2\text{O}$, 0.833 mg/mL α -アミラーゼ, 0.333 mg/mL 尿酸, 0.033 mg/mL 尿素, 2.5 mg/mL ムチン) を 3 mL 添加し、37°C で 15 分静置した後、25% TMAH を 2 mL 添加し 80°C で 2 時間静置した。以降の操作は、上記と同様に行った。

測定溶液は Table 4 に示した装置条件で分析した。分析の妥当性は、認証標準物質 (Sword fish, NMIJ CRM 7403-a; Tuna, ERM-CE 464; Cod, NMIJ CRM 7402-a) を用いて確認し、いずれの認証物質の分析結果も不確かさの範囲内で認証値と良い一致を示した (Table 5)。また、1 群については添加回収試験 ($n = 3$) を行い、良好な回収率 ($96.6 \pm 1.0\%$) を得た。

2.7 銀ナノ粒子の分析

試料 0.5 g を量り取り、酵素溶液 (3.0 mg/L パンクレアチン, 3.0 g/L リパーゼ, 0.2 mol/L NaH_2PO_4 , 0.2 mol/L NaOH, pH=7.4) 7 mL を添加し超音波バスにて 10 分間処理を行い、ヒートブロック状で 37°C 60 分加熱した。室温に戻した後、遠心分離 ($2600\times g$, 30 分間) で得られた上清を 100 mL メスフラスコに移し、1% Tween-20 で定容した。溶存性の Ag を除くために、定容した溶液 1 mL を 50-kDa

のカットオフ値の限外濾過フィルターを用いて銀ナノ粒子 (Ag-NP) 画分を分離した。回収した Ag-NP 画分は 50 mL メスフラスコに移し、1% Tween-20 で定容し、測定溶液とした。

適宜 1% Tween-20 で希釈した後、単一粒子(single particle, sp)-ICP-MS 法を用いて、Ag-NP の粒子数濃度、粒子質量濃度、単一粒子質量分布を測定した。sp-ICP-MS 測定においては、信号の取り込み時間を 0.5 ms とし、1~5 分間の時間分解分析を行った。sp-ICP-MS での試料輸送効率、粒径 60 nm の銀ナノ粒子を用いて測定日ごとに算出した値を用いた。また、同様の方法で二酸化ケイ素ナノ粒子 (SiO_2 -NP) も測定を行った。

2.9. 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、LOQ未満となったデータは0 (ND=0) と 1/2LOQ (ND=0.5LOQ) 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。

モンテカルロシミュレーションの際には、14 群の体重当たり喫食量には 250/55 g/kg/day の定数を用いた。

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

2021 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 41 元素 (B, Al, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Ge, As, Se, Rb, Sr, Zr, Mo, Cd, Sn, Sb, Cs, Ba, La, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu, W, Hg, Pb, U) について 10 地域の平均値として算出した推定一日摂取量を Table 6 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 7 に示す。Table 8 には、地域ブロックごとの 1 群、10 群、および 11 群の

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くかったことから、測定精度を踏まえると妥当な変動幅であるといえた。

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。缶詰食品が利用されていた、5 群, 6 群, 7 群, 8 群に関して比較した。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。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

各元素の食品群ごとの平均寄与率を Fig. 2 および Fig. 3 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 52.5%、次いで 8 群で 35.1%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 7)。

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 56.0%、8 群の寄与率は 28.4%であった (Fig. 3)。

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 30.3%、次いで 8 群の 21.3%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 90.0%であった。10 群では 88.6%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、8 群で 22.6%、1 群で 13.3%であった。

2019 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 20.0%と高かった。Ge は 9 群の嗜好飲料からの寄与が 23.0%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 (23.7%)は、上記の推測と矛盾していない。Rb は 11 群 (24.1%) の寄与

が最も高かったが、他の食品群でも 5~12%の寄与が観測された。Sr は 8 群からの寄与が 45.2%と最も高かった。Cs は 11 群 (20.6%), 10 群 (14.1%), 9 群 (13.0%)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 (57.6%) および W (31.5%) 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 26~53%と最も寄与率が高く、ついで 10 群の魚介類で 8~24%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 日摂取量と比較からハザード比 (HQ) を算出した (Table 9)。

HQ が最も高かったのは iAs であり、最大で 136%であった。ここで、iAs の HGBV 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 と比較した。一方で、JECFA (FAO/WHO 合同食品添加物専門家会議) は BMDL_{0.5}として 3.0 μg/kg/day を導出した。BMDL との比較は曝露マージン (MOE) として評価したところ、MOE は 7.3 となった。不確実係数としては、個人差として 10、摂取量推定の不確実性

として 4 を用いたところ、推定した MOE は不確実係数積よりも小さい値となった。

地域ごとの値を比較すると、HQ は 89–450%であり HQ が 100%を超えた地域もあった。現在のところ、食品安全委員会では HBGV を設定するためには、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摂取量を評価する必要があるとしている。以上の点からも、iAs の HQ 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 HQ が最も高かったのは Ni であり、その値は 90%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 (21.3%) で最も高く、次いで 1 群 (19.6%) で高かった。

3 番目に HQ が最も高かったのは Mo であり、その値は 86%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 (52.6%) 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 と MeHg の HQ は 30–59%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 と比較するため、MOE による検討を行ったところ、MOE は 5–15 の範囲内であった。MOE が 1 でも健康リスクはほとんどないと考えられていることから、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た。

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. 4 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。摂取量だけでなく、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. 5)。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た。

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 年を除くと 5~12 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$ 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。2021 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れているのは、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、2021 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な摂取量評価は、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実性を伴う。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、不確実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 方式で作製さ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実性も加味した精緻な摂取量の推定を試みた。

ここでは、毒性の高い As, iAs, Cd, Hg および Pb の摂取量を対象として確率論的摂取量評価を試みた。体重当たりの喫食量には 2014-2016 年の国民健康・栄養調査のデータを用い、食品中 As, iAs, Cd, Hg および Pb の濃度データには 2019-2021 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。食品中の化学物質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:

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

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。

一般的に最尤推定 (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。食品中元素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 $\hat{\mu}^{\text{RL}/2}$ を用いて、 $N(\hat{\mu}^{\text{RL}/2}, \hat{\mu}^{\text{RL}/2})$ の正規分布を採用した。対数正規分布を仮定した Stan コードの例を Fig. 6 に示す。

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 10)。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。

As, iAs, Cd, Hg, および Pb の各食品群および総暴露量のパーセントイル値等

を Table 11~15 に、そのヒストグラムを Fig. 7 に示す。2D-MCS を用いて推定した摂取量の 5, 25, 50, 75, 95 パーセントイル値は、それぞれ As (1.05, 2.60, 4.66, 7.77, 15.0 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$)、iAs (0.129, 0.238, 0.346, 0.495, 0.810 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$)、Cd (0.158, 0.242, 0.320, 0.422, 0.641 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$)、Hg (0.009, 0.032, 0.087, 0.175, 0.377 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$)、Pb (0.051, 0.087, 0.128, 0.197, 0.447 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$) であった。

摂取量への不確かさに影響する因子を把握するため、感度解析を行った。14 食品群の金属濃度と喫食量は互いに独立な変数だと考えられるため、食事性摂取量 (EDE) の合成不確かさ $u_c(\text{EDE})$ は以下の式で計算できる。

$$\{u_c(\text{EDE})\}^2 = \sum_{i=1}^{14} [\{R_i u(C_i)\}^2 + \{C_i u(R_i)\}^2]$$

ここで、 R_i は食品群 i の喫食量、 C_i は食品群 i の元素濃度、 $u(x)$ は変数 x の不確かさを示す。不確かさの値には標準偏差を用いた。

上記の式を用いて感度解析を行ったところ、As の EDE への不確かさには 8 群の濃度 (56.2%)、10 群の喫食量 (20.7%)、10 群の濃度 (17.1%) が、iAs は 8 群の濃度 (48.7%)、1 群の喫食量 (34.0%)、1 群の濃度 (11.6%) が、Cd は 1 群の濃度 (49.5%)、10 群の濃度 (11.7%)、8 群の濃度 (9.93%) が、Hg は 10 群の喫食量 (53.8%)、10 群の濃度 (45.3%) が、Pb は 1 群の濃度 (67.1%)、11 群の濃度 (10.7%) が寄与していた。Hg 以外の元素は濃度の不確かさの合計が 50%以上であったことから、MB 方式の TD 試料を用いた推定であっ

ても、濃度の不確かさは喫食量の不確かさ以上に EDE の不確かさに寄与していることが示された。

2D-MCS を用いることによる利点があるかどうかを検討するため、1D-MCS との比較を行った。その際には、不検出値に 1/2LOQ を代入して、幾何平均値と幾何標準偏差を求め、対数正規分布を仮定する方法 [1D-MSC (SMB)] と、ベイズ推定の事後平均値を用いる方法 [1D-MCS (BE)] の両方について検討した (Fig. 8)。比較を行ったいずれの元素においても、2D-MCS を用いると 90% 区間を広く推定する結果となった。また、1D-MCS と比較すると、5% タイル値にはそれほど大きな差が認められないのに対して、95% タイル値が大きな推定結果となる傾向があった。この結果は、2D-MCS を用いることで、より安全側に立った摂取量分布の推定結果を得られる可能性を示すものと考えられた。

7. 年代別摂取量の推定

国民健康栄養調査のデータを解析し、年代別 (A: 1-5, B: 6-11, C: 12-19, D: 20-59, E: ≥ 60 歳) の体重当たり喫食量の平均値を算出した。各食品群について、食品小分類の構成に顕著な差が認めなければ、現在の TD 試料は全年代に共通の食品小分類組成に基づき調製されたとみなせる。そこで、各食品群について、年代間に食品小分類の組成に差異があるかどうか、 χ^2 検定を用いて検討した。多重検定による第一種の過誤の増大を調整するために、 $0.05/13=0.0038$ を有意水準としたところ、9 群 ($p =$

2.2×10^{-16}) と 12 群 ($p = 3.8 \times 10^{-6}$) で食品小分類の組成に年代間で有意な差が認められた。他の食品群では食品分類の構成に有意な差異はないと判断できた。これらのデータを基に、2019-2021 年に行った本調査の結果を用いて年代別の iAs, Cd, MeHg, Pb の摂取量を推定した (Fig. 9)。iAs, Cd, および Pb については、9 群と 12 群由来の摂取量を除いた推定も行った。食品小分類の構成に年代間の差異が認められた 9 群と 12 群に関しては、データを除くことによる影響は小さかった。

iAs に関しては、19 歳以下のグループでは平均摂取量が EPA の RfD である $0.3 \mu\text{g}/\text{kg}\text{-bw}/\text{day}$ を超過していた。また、20 歳以上のグループでも平均摂取量は RfD と同程度であった。現在、食品安全委員会では iAs に関する HBGV を設定するに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摂取量を評価する必要があるとしている。年代別の iAs 摂取量の推定結果は、年齢が低いグループが EPA の RfD を超過していたことから、iAs 濃度の高い食品の喫食 (玄米やヒジキ) を避けるような提言が必要かもしれない。

Cd は 5 歳以下のグループにおいて一部の地域で食品安全委員会の TWI ($7.0 \mu\text{g}/\text{kg}\text{-bw}/\text{week}$) および JECFA の PTMI ($25 \mu\text{g}/\text{kg}\text{-bw}/\text{month}$) を超過する事例が認められた。しかしながら、平均摂取量はいずれの年代においても HBGV を下回っていた。

MeHg は iAs や Cd と比較すると、年代間の差異が小さかった。また、20-59

歳にくらべて 60 歳以上における MeHg の摂取量が大きかった。60 歳以上の 10 群の体重当たり喫食量は、20-59 歳の約 1.5 倍ほどであることが要因と考えられた。

Pb は一部の地域で EFSA の BMDL ($0.50\text{--}1.50 \mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$) を超過していたが、中央値および幾何平均値はいずれの年代でも下回っていた。

8. 金属ナノ粒子の摂取量推定

2020 年に調製された東京および大阪の TD 試料について Ag-NP 分析を行ったところ、全ての食品群から Ag-NP が検出された。代表的な sp-ICP-MS 解析の結果を Fig. 10 に示す。最低の粒子濃度は 14 群の $1.0 \times 10^2 \text{ particle}/\text{g}$ であり、最大は 3 群の $25.6 \times 10^6 \text{ particle}/\text{g}$ であった (Table 16)。14 群、10 群においては、Total Ag に対する Ag-NP の割合は 0.1~100% であり、ほとんどの Ag は非粒子状として存在していた。一方で、1, 2, 8, 11 群では 24~75% の Ag が NP として存在していた。5, 7, 12 群では 80% 以上の Ag が Ag-NP として存在していた。今回前処理に用いた方法はタンパク質や脂質の分解を目的とした方法であったにもかかわらず、7 群の植物が主体の食品においても Total Ag に対する Ag-NP の割合が 90% 以上となったことから、次の 2 つの可能性が考えられた。1 つ目は、本研究で用いた前処理方法を他の食品群に適用しても、ある程度妥当な結果が得られた可能性である。2 つ目の可能性は、検出された Ag-NP は細胞内に取り込まれたものでなく、コンタミネーシ

オンにより付着した可能性である。

特に 2 つ目の可能性については、抗菌剤として使用されている Ag-NP が試料の調製過程で混入した可能性が考えられた。抗菌剤として使用されている Ag-NP はシリカゲルやゼオライトの表面に担持されているものが使用されるとのことから、二酸化ケイ素ナノ粒子 (SiO₂-NP) についても sp-ICP-MS 分析を行った (Table 17)。また、抗菌スポンジ、抗菌マスク、あるいは菓子類の装飾に用いられるアラザンといったコンタミネーションの原因の可能性のある製品についても、1% Tween-20 溶液中に浸し 1 時間の超音波処理を行い、溶出された Ag-NP および SiO₂-NP について解析を行った。TD 試料中の Ag-NP の粒径、SiO₂-NP の粒径、粒子濃度比 (Ag-NP/SiO₂-NP) を污染源候補のデータと比較した (Fig. 11)。ほとんどの TD 試料の粒子濃度比は、抗菌スポンジの粒子濃度比の 1/3~3 倍の範囲内 (0.55~4.96) に収まっていた。他の污染源候補と比較すると、抗菌スポンジの粒子濃度比は、多くの TD 試料と似た値を示した。この抗菌スポンジは、試料を調製した機関で使用していたことから、Ag-NP の污染源の可能性があるだろう。しかしながら、TD 試料中 Ag-NP の平均粒径は、抗菌スポンジよりも小さかったことから、容器や機材に残存していた Ag-NP が一部溶解して粒径が小さくなった NP による汚染と考えられた。

食事を介した Total Ag および Ag-NP の曝露は、1.91~4.87 および 1.78~1.79 µg/person/day と推定された。また、

粒子数としては $1.4 \times 10^{10} \sim 1.5 \times 10^{10}$ p article/person/day と推察された。Hadrup と Lam [2014, DOI: 10.1016/j.yrtph.2013.11.002] は、Ag-NP の TDI を 2.5 µg/kg-bw/day と導出した。この値と比較すると、Ag-NP の HQ は 1.3% と推定された。現在得られたデータから判断すると、健康リスクは小さいと推定された。

E. 結論

全国 10 地域より MB 方式により TD 試料を調製し、食品を介した元素類の摂取量評価を行った。HBGV と比較したところ、HQ が最も高かったのは iAs (1.36) であった。次いで、Ni (0.9)、Mo (0.86)、Cd と MeHg は 0.30~0.59 の範囲であり高い比率を示した。一方で、Pb の MOE (5~15) は不確実係数積 (1) よりも大きく健康リスクは小さいと考えられた。

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 による確率論的摂取量評価について検討を試みた。1D-MCS と比較すると、2D-MCS は 95% タイル値が大きな推定結果となる傾向があった。この結果は、2D-MCS を用いることで、より安全側に立った摂取量分布の推定結果を得られる可能性を示すものと考えられた。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。

年代別の摂取量を推定したところ、評価を行ったいずれの金属においても 1-5 歳の摂取量が最も高い結果となった。とくに、iAs は EPA の RfD を超過していたことから、iAs の摂取量を低減させるための取組が必要であると考えられた。

ナノ粒子として、Ag-NP の摂取量評価を行ったところ、1.8 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$ と推定された。この値は、Hadrup と Lam (2014)が導出した TDI の 1.3%であり、健康リスクは小さいと推定された。

F. 研究発表

1. 論文発表

Suzuki, Y, Kondo, M, Harimoto, M, Kitayama, I, Akiyama, H. 2022. Dietary exposure to arsenic species in Japan in 2019 using a total diet study based on composite sample with market basket approach at the national level. J Food Compost Anal. 104384, DOI: 10.1016/j.jfca.2022.104384.

2. 学会発表

鈴木美成, 近藤 翠, 北山育子, 穉山 浩, トータルダイエットスタディーによる食品を介したヒ素化学種の曝露量評価, 第 29 回環境化学討論会 (2021.6).

鈴木美成, 近藤 翠, 北山育子, 穉山 浩, 堤智昭, 二次元モンテカルロシミュレーションによる食事性鉛曝露量分布の推定: トータルダイエット試料への適用の試み, 日本食品衛生学会第 117 回学術講演会 (2021.10).

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 ヒ素化学種分析の HPLC-ICP-MS 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 μ m)
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 μ L
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 水銀化学種分析の HPLC-ICP-MS 分析条件

項目	設定
HPLC	
カラム	CAPCELL Pak ADME (内径 4.6 mm, 長さ 25 cm, 粒子径 3 μm)
カラム温度	25°C
移動相	5% (v/v) メタノール、0.5 g/L L-システイン、1 ng/g TI (pH 2.3)
グラジエント条件	Isocratic
流速	0.75 mL/min
注入量	10 (10 群), 100 (1 群および 11 群) 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	0.10 s
掃引数	1 回
繰り返し回数	1 回
測定質量電荷比	²⁰¹ Hg, ²⁰⁵ Tl

Table 5 認証標準物質 (NMIJ CRM 7402-a, ERM-CE 464, and NMIJ CRM 7403-a) 中のメチル水銀分析結果 (n=3)

Sample	認証値 ($\mu\text{g/g as Hg}$)	分析値 ^a ($\mu\text{g/g as Hg}$)
Sword fish, NMIJ CRM 7403-a	5.00 ± 0.22	4.90 ± 0.03
Tuna, ERM-CE 464	5.12 ± 0.09^b	5.24 ± 0.06
Cod, NMIJ CRM 7402-a	0.58 ± 0.02	0.59 ± 0.01

a: 分析値は平均値 \pm 標準偏差を示す。

b: 認証値はメチル水銀の濃度として付されていたため、水銀濃度に換算した。

Table 6 2021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 (µg/person/day)

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	71.7	71.7	0.00	63.2	1.00	2.19	0.35	0.38	7.68	14.3	1259	1259
2群	117	117	348	348	11.1	11.1	1.01	1.01	2.65	4.88	608	608
3群	31.2	31.2	46.3	46.9	3.55	3.55	0.29	0.29	2.53	2.57	128	128
4群	0.33	0.33	0.00	2.19	0.00	0.05	0.00	0.00	0.19	0.31	0.16	0.16
5群	244	244	79.3	79.3	4.50	4.50	0.31	0.31	2.04	2.08	487	487
6群	189	189	15.1	27.5	0.66	1.60	0.02	0.11	1.49	1.90	308	308
7群	189	189	95.9	98.1	4.53	4.53	0.26	0.27	3.11	4.20	245	245
8群	368	368	365	365	12.6	12.6	20.4	20.4	14.2	15.7	517	517
9群	176	176	583	583	5.07	7.61	2.16	2.23	12.6	21.9	559	559
10群	50.5	50.5	403	403	15.5	15.5	1.08	1.08	2.39	3.42	76.8	76.8
11群	21.8	21.8	137	146	6.80	6.80	0.12	0.13	4.99	8.17	49.5	49.5
12群	36.6	36.6	29.6	48.3	3.05	3.05	0.01	0.05	0.00	4.03	16.2	16.2
13群	205	205	280	280	4.20	4.30	0.84	0.84	16.4	17.3	382	382
14群	14.5	14.5	7.49	7.64	0.01	0.01	0.38	0.38	0.02	0.02	0.06	0.06
合計	1715	1715	2390	2498	72.6	77.4	27.3	27.5	70.2	101	4637	4637

Table 6 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	130	244	0.70	0.70	36.4	38.6	393	393	2796	2796	0.30	0.30
2群	1237	1237	2.34	2.34	11.6	11.6	116	116	871	871	0.09	0.09
3群	450	450	0.62	0.62	5.59	5.59	39.7	39.7	248	248	0.03	0.03
4群	4.48	4.53	0.00	0.00	0.08	0.13	0.04	0.05	2.72	2.76	0.00	0.00
5群	1033	1033	1.10	1.10	42.0	42.0	166	166	879	879	0.07	0.07
6群	180	187	0.27	0.42	2.59	4.43	55.2	64.0	98	98	0.01	0.04
7群	476	476	0.95	0.94	6.42	6.47	64.9	64.9	328	328	0.05	0.05
8群	1479	1479	1.36	1.36	16.6	16.6	138	138	729	729	0.18	0.18
9群	474	605	1.48	1.51	25.8	25.8	78.0	78.0	186	186	0.37	0.37
10群	1008	1025	1.42	1.42	3.45	4.45	114	114	1124	1124	0.12	0.12
11群	2973	2973	0.34	0.34	7.51	7.59	136	136	4246	4246	0.23	0.23
12群	134	162	0.06	0.10	2.54	2.80	14.4	15.4	773	773	0.03	0.04
13群	943	943	1.44	1.44	30.8	30.8	71.4	71.4	510	510	0.09	0.09
14群	1.39	1.39	0.00	0.00	0.11	0.11	1.96	1.97	2.24	2.24	0.01	0.01
合計	10523	10819	12.1	12.3	191	197	1388	1398	12791	12791	1.57	1.62

Table 6 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	20.8	20.8	3.40	3.40	164	164	21.7	21.7	0.00	0.28	124	124
2群	1.05	1.11	17.9	17.9	153	153	151	151	0.00	0.22	14.7	14.7
3群	0.49	0.49	1.48	1.48	58.9	58.9	27.0	27.0	0.07	0.09	3.87	3.87
4群	0.00	0.01	0.13	0.13	0.48	0.48	0.3	0.3	0.00	0.01	0.04	0.04
5群	0.41	0.41	2.72	2.72	118	118	110	110	0.10	0.12	34.6	34.6
6群	0.24	0.26	0.23	0.28	164	164	57.5	57.5	0.00	0.07	2.15	2.15
7群	0.10	0.15	0.47	0.47	162	162	83.6	83.6	0.00	2.82	4.84	4.84
8群	113	113	1.82	1.82	284	284	894	894	0.00	5.77	14.5	14.5
9群	0.10	0.56	0.80	1.34	241	241	45.2	45.2	0.00	18.2	0.00	1.98
10群	169	169	41.4	41.4	57.3	57.3	293	293	0.32	0.34	1.85	1.85
11群	6.08	6.08	40.2	40.2	579	579	37.7	37.7	2.20	2.21	8.18	8.18
12群	0.08	0.15	4.92	4.92	282	282	60.5	60.5	1.15	1.16	5.79	5.79
13群	9.91	9.91	6.66	6.66	140	140	183	183	0.26	0.26	19.5	19.5
14群	0.13	0.13	0.02	0.02	0.77	0.77	13.3	13.3	0.00	0.01	0.11	0.11
合計	322	322	122	123	2406	2406	1978	1978	4.11	31.6	234	236

Table 6 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	5.06	5.06	0.13	0.21	0.12	0.27	0.13	0.20	7.23	8.22	0.00	0.01
2群	2.38	2.38	0.49	0.53	0.02	0.10	0.46	0.46	92.6	92.6	0.20	0.20
3群	0.46	0.46	2.56	2.56	0.02	0.03	0.15	0.15	12.8	12.8	0.02	0.02
4群	0.00	0.00	0.02	0.02	0.00	0.00	0.00	0.00	0.24	0.25	0.00	0.00
5群	0.85	0.85	1.61	1.65	0.05	0.05	0.26	0.26	52.8	52.8	0.08	0.08
6群	0.06	0.06	73.3	73.3	0.01	0.03	0.65	0.65	24.4	24.4	0.16	0.16
7群	1.35	1.35	5.57	5.69	0.00	0.08	0.36	0.36	53.1	53.1	0.17	0.17
8群	3.55	3.55	242	242	0.04	0.18	0.67	0.67	69.2	69.2	0.53	0.53
9群	0.04	0.18	0.00	0.96	0.00	0.52	1.08	1.08	17.5	17.5	0.00	0.08
10群	1.97	1.97	0.35	0.35	0.08	0.09	1.17	1.17	11.5	11.5	0.32	0.32
11群	0.04	0.05	0.00	0.24	0.00	0.15	1.71	1.71	21.9	21.9	0.01	0.01
12群	0.00	0.03	0.07	0.27	0.00	0.14	0.71	0.71	10.5	10.5	0.01	0.01
13群	0.73	0.73	0.25	0.33	0.17	0.24	0.46	0.46	50.9	50.9	0.12	0.12
14群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.03	0.03	0.40	0.40	1.95	1.95	0.00	0.00
合計	16.5	16.7	326	328	0.54	1.90	8.20	8.27	426	427	1.62	1.71

Table 6 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	0.02	0.03	0.00	0.00	0.00	0.01	0.001	0.003	0.000	0.001	0.001	0.003
2群	0.16	0.16	0.03	0.03	0.11	0.11	0.020	0.020	0.005	0.005	0.027	0.027
3群	0.03	0.03	0.00	0.00	0.01	0.01	0.003	0.003	0.001	0.001	0.003	0.003
4群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
5群	0.08	0.08	0.01	0.01	0.05	0.05	0.011	0.011	0.002	0.002	0.014	0.014
6群	0.06	0.06	0.01	0.01	0.05	0.05	0.007	0.007	0.001	0.001	0.008	0.008
7群	0.14	0.14	0.02	0.02	0.07	0.07	0.013	0.013	0.002	0.002	0.017	0.017
8群	0.48	0.48	0.09	0.09	0.38	0.38	0.101	0.101	0.025	0.025	0.186	0.186
9群	0.03	0.14	0.00	0.01	0.02	0.04	0.010	0.011	0.001	0.002	0.012	0.015
10群	0.46	0.46	0.05	0.05	0.23	0.23	0.048	0.048	0.006	0.006	0.059	0.059
11群	0.02	0.02	0.00	0.00	0.00	0.01	0.002	0.002	0.000	0.000	0.002	0.003
12群	0.01	0.01	0.00	0.00	0.00	0.01	0.001	0.002	0.000	0.000	0.001	0.002
13群	0.23	0.23	0.03	0.03	0.10	0.10	0.021	0.021	0.004	0.004	0.026	0.026
14群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
合計	1.72	1.85	0.25	0.27	1.05	1.08	0.239	0.244	0.048	0.049	0.357	0.364

Table 6 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	0.000	0.000	0.001	0.002	0.000	0.000	0.001	0.001	0.000	0.000	0.001	0.001
2群	0.004	0.004	0.025	0.025	0.005	0.005	0.015	0.015	0.002	0.002	0.011	0.011
3群	0.000	0.000	0.002	0.002	0.001	0.001	0.002	0.002	0.000	0.000	0.001	0.001
4群	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
5群	0.002	0.002	0.013	0.013	0.003	0.003	0.008	0.008	0.001	0.001	0.006	0.006
6群	0.001	0.001	0.005	0.005	0.001	0.001	0.004	0.004	0.000	0.000	0.002	0.002
7群	0.002	0.002	0.009	0.009	0.002	0.002	0.005	0.005	0.001	0.001	0.003	0.003
8群	0.022	0.022	0.132	0.132	0.027	0.027	0.071	0.071	0.009	0.009	0.057	0.057
9群	0.003	0.003	0.008	0.009	0.002	0.002	0.009	0.009	0.001	0.001	0.007	0.008
10群	0.006	0.006	0.030	0.030	0.006	0.006	0.015	0.015	0.002	0.002	0.011	0.011
11群	0.000	0.000	0.001	0.002	0.000	0.000	0.002	0.002	0.000	0.000	0.001	0.002
12群	0.000	0.000	0.001	0.001	0.000	0.000	0.002	0.002	0.000	0.000	0.001	0.001
13群	0.003	0.003	0.016	0.016	0.003	0.003	0.009	0.009	0.001	0.001	0.007	0.007
14群	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
合計	0.043	0.044	0.243	0.246	0.051	0.051	0.142	0.143	0.018	0.019	0.108	0.110

Table 6 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	0.000	0.00	1.57	0.43	0.43	0.50	0.75	0.00	0.02
2 群	0.002	0.002	0.04	0.16	0.01	0.01	0.40	0.44	0.08	0.08
3 群	0.000	0.000	0.24	0.24	0.01	0.01	0.13	0.14	0.01	0.01
4 群	0.000	0.000	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00
5 群	0.001	0.001	0.00	0.06	0.00	0.00	0.26	0.26	0.03	0.03
6 群	0.000	0.000	0.68	0.72	0.00	0.00	0.20	0.21	0.00	0.00
7 群	0.001	0.001	0.04	0.12	0.01	0.01	0.44	0.45	0.01	0.01
8 群	0.009	0.009	0.00	0.17	0.07	0.07	1.27	1.27	0.80	0.80
9 群	0.001	0.001	0.43	0.84	0.00	0.01	0.18	0.49	0.01	0.02
10 群	0.001	0.001	0.00	0.31	7.39	7.39	0.65	0.62	0.21	0.21
11 群	0.000	0.000	0.00	0.11	0.25	0.25	0.13	0.19	0.05	0.05
12 群	0.000	0.000	0.47	0.52	0.00	0.00	0.16	0.21	0.02	0.02
13 群	0.001	0.001	0.11	0.16	0.02	0.02	0.52	0.52	0.04	0.04
14 群	0.000	0.000	0.02	0.02	0.00	0.01	0.05	0.05	0.00	0.00
合計	0.017	0.018	2.01	5.00	8.19	8.21	4.88	5.60	1.26	1.29

Table 7 2021 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 (µg/person/day)

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	12.7	12.7	0.05	0.05	3.37	3.37	0.01	0.03
2 群	0.77	0.77	0.00	0.02	0.05	0.05	0.00	0.02
3 群	0.19	0.19	0.00	0.00	0.06	0.06	0.01	0.01
4 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
5 群	0.10	0.11	0.00	0.01	0.02	0.02	0.00	0.01
6 群	0.23	0.24	0.00	0.01	0.00	0.01	0.00	0.01
7 群	0.09	0.10	0.00	0.01	0.00	0.01	0.00	0.01
8 群	6.46	6.47	0.03	0.04	2.96	2.96	0.31	0.31
9 群	0.23	0.35	0.00	0.06	0.02	0.06	0.07	0.12
10 群	0.42	0.43	0.63	0.63	1.33	1.33	78.8	78.8
11 群	0.08	0.10	0.01	0.02	0.07	0.07	0.21	0.22
12 群	0.18	0.20	0.00	0.01	0.00	0.01	0.00	0.01
13 群	0.90	0.90	0.04	0.04	0.20	0.20	2.14	2.14
14 群	0.15	0.16	0.00	0.00	0.01	0.01	0.00	0.00
合計	22.6	22.8	0.76	0.89	8.08	8.17	81.6	81.7

Table 8 各地域ブロックにおける水銀の形態別推定一日摂取量 (µg/person/day)

食品群 地域ブロック	Me-Hg				Me-Hg の割合 (%)		
	1 群	10 群	11 群	1+10+11 群	1 群	10 群	11 群
A	0.281	3.66	0.055	4.00	69.9	82.1	85.4
B	0.144	5.19	0.326	5.66	78.9	84.2	68.3
C	0.173	5.72	0.035	5.93	96.1	87.7	89.9
D	0.235	12.2	0.111	12.59	74.3	92.9	77.0
E	0.202	6.66	0.388	7.25	59.5	84.5	73.9
F	0.302	5.14	0.274	5.71	66.4	96.2	72.1
G	0.338	5.86	0.042	6.25	72.0	95.9	68.5
H	0.403	5.72	0.065	6.19	68.2	75.2	66.4
I	0.469	4.83	0.060	5.36	67.2	93.2	58.2
J	0.170	10.7	0.359	11.28	27.3	94.1	61.5
平均値	0.272	6.58	0.171	7.02	68.0	88.6	72.1

Table 9 2021 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 日摂取量の平均値と健康リスク評価

元素	HBGV ^a ($\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$)	出典および参照値	推定摂取量 ^b ($\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$)	ハザード比 (HQ)	曝露マージン (MOE)
B	96–200	US EPA (2004), RfD (Oral): 200 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ (発達) 食品安全委員会 (2012), TDI (Oral): 96 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$	31.2	0.16–0.33	–
Al	143–300	UE EFSA (2008), TWI (Oral): 1000 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{week}$ 食品安全委員会 (2017), TWI (Oral): 2100 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{week}$	45.4	0.15–0.32	–
Ni	4.0	食品安全委員会 (2012), TDI (Oral): 4.0 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ (皮膚炎)	3.6	0.9	–
iAs	0.3	US EPA (1999), RfD (Oral): 0.3 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ (心臓血管, 皮膚) US ATSDR, (2007), NOAEL: 0.3 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ (ヒト, 非発がん毒性として皮膚病変) JECFA (2011), BMDL _{0.5} : 3.0 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ (ヒト肺癌)	0.41	1.36	7.3
Se	4.0–5.0	US EPA (1991), RfD (Oral): 5.0 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ (神経系, 血液系, 皮膚) 食品安全委員会 (2012), TDI (Oral): 4.0 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$	2.23	0.45–0.56	–
Mo	5.0	US EPA (1992), RfD (Oral): 5.0 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ (膀胱)	4.30	0.86	–
Cd	0.83–1.0	食品安全委員会 (2008), TWI (Oral): 7.0 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{week}$ WHO/JECFA (2013), PTMI: 25 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{month}$	0.30	0.30–0.36	–
Sb	0.4	US EPA (1987), RfD (Oral): 0.4 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ (血液系, Other)	0.03	0.075	–
Ba	20	食品安全委員会 (2012), TDI (Oral): 20 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ (高血圧, 心臓病, 腎臓病)	7.77	0.39	–
Hg	0.57	WHO/JECFA (2011), PTWI: 4 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{week}$	0.15	0.26	–
MeHg ^c	0.22–0.29	WHO/JECFA (2007), PTWI 1.6 $\mu\text{g}/\text{kg}$ bw/week 食品安全委員会 (2005), TWI (Oral): 2.0 $\mu\text{g}/\text{kg}$ bw/week	0.13	0.44–0.59	–
Pb	0.5–1.5	EFSA (2010), BMDL ₀₁ : 0.50 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ (発達神経毒性), BMDL ₀₁ : 1.50 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ (血圧への影響), BMDL ₁₀ : 0.63 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ (慢性腎臓病)	0.10	–	5–15
U	0.6–3.0	US EPA (1989), RfD (Oral): 3.0 $\mu\text{g}/\text{kg}$ bw/day (膀胱, その他) EFSA Contam (2009), TDI (暫定): 0.6 $\mu\text{g}/\text{kg}$ bw/day	0.02	0.007–0.03	–

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: 1 群、10 群、および 11 群のみの総和から算出した。

Table 10 体重当たりの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	Estimated theoretical SD ^d
1	ZIG	0.965 ± 0.001	3.13 ± 0.03	0.488 ± 0.005	6.19 ± 0.02	3.75 ± 0.02
2	Tweedie	3.26 ± 0.02	1.059 ± 0.008	1.553 ± 0.005	3.26 ± 0.02	2.58 ± 0.01
3	ZILN	0.869 ± 0.002	0.321 ± 0.003	4.55 ± 0.03	0.88 ± 0.01	2.84 ± 0.07
4	Tweedie	0.901 ± 0.002	1.49 ± 0.01	6.63 ± 0.06	0.203 ± 0.001	0.187 ± 0.001
5	ZIG	0.759 ± 0.003	1.19 ± 0.01	0.750 ± 0.008	1.204 ± 0.009	1.44 ± 0.01
6	ZIG	0.659 ± 0.003	1.19 ± 0.01	0.356 ± 0.004	2.20 ± 0.02	2.94 ± 0.02
7	ZIG	0.940 ± 0.001	1.19 ± 0.01	0.574 ± 0.006	1.95 ± 0.01	1.91 ± 0.01
8	Tweedie	0.9937 ± 0.0005	2.14 ± 0.02	0.534 ± 0.005	3.98 ± 0.02	2.75 ± 0.02
9	Tweedie	11.54 ± 0.06	2.14 ± 0.02	1.527 ± 0.003	11.54 ± 0.06	9.46 ± 0.06
10	Tweedie	1.309 ± 0.009	1.26 ± 0.01	1.476 ± 0.003	1.309 ± 0.009	1.369 ± 0.009
11	ZIG	0.963 ± 0.001	2.08 ± 0.02	0.815 ± 0.008	2.46 ± 0.01	1.80 ± 0.01
12	Tweedie	0.746 ± 0.003	0.799 ± 0.007	0.196 ± 0.002	3.04 ± 0.03	4.32 ± 0.04
13	ZILN	0.9990 ± 0.0002	1.204 ± 0.006	2.299 ± 0.008	1.70 ± 0.01	1.70 ± 0.02

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。

d: standard deviation

Table 11 バイズ法と二次元モンテカルロ法を併用して推定した食品を介した As 摂取量推定値 (µg/kg/day)

Food Group	Mean	Standard deviation	5 th percentile	25 th percentile	50 th percentile	75 th percentile	95 th percentile	Contribution ratio (%)
1	0.34	0.23	0.05	0.17	0.29	0.45	0.78	10.0±11.2
2	0.02	0.03	0.00	0.01	0.01	0.03	0.08	0.8±1.5
3	0.01	0.05	0.00	0.00	0.00	0.01	0.04	0.3±1.4
4	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.0±0.0
5	0.01	0.01	0.00	0.00	0.00	0.01	0.03	0.2±0.6
6	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.02	0.1±0.5
7	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	0.1±0.2
8	2.33	4.14	0.15	0.54	1.22	2.67	8.00	38.8±27.2
9	0.01	0.01	0.00	0.00	0.00	0.01	0.02	0.2±0.5
10	3.04	3.50	0.00	0.45	2.00	4.38	9.89	44.0±31.0
11	0.05	0.12	0.00	0.01	0.02	0.05	0.18	1.4±3.5
12	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.0±0.0
13	0.14	0.28	0.01	0.03	0.07	0.15	0.51	4.0±6.9
14	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	0.1±0.2
Total	5.96	5.44	1.05	2.60	4.66	7.77	15.03	-

Table 12 ベイズ法と二次元モンテカルロ法を併用して推定した食品を介した iAs 摂取量推定値 ($\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$)

Food Group	Mean	Standard deviation	5 th percentile	25 th percentile	50 th percentile	75 th percentile	95 th percentile	Contribution ratio (%)
1	0.242	0.180	0.030	0.115	0.203	0.326	0.586	58.4 \pm 22.7
2	0.015	0.021	0.000	0.004	0.009	0.019	0.049	4.9 \pm 6.4
3	0.005	0.025	0.000	0.000	0.001	0.003	0.019	1.4 \pm 4.2
4	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.03 \pm 0.05
5	0.002	0.003	0.000	0.000	0.001	0.003	0.007	0.7 \pm 1.3
6	0.004	0.008	0.000	0.000	0.001	0.004	0.016	1.2 \pm 2.7
7	0.002	0.003	0.000	0.000	0.001	0.003	0.008	0.8 \pm 1.3
8	0.053	0.134	0.002	0.007	0.019	0.050	0.196	12.0 \pm 15.1
9	0.008	0.011	0.000	0.002	0.005	0.011	0.027	2.8 \pm 3.9
10	0.041	0.073	0.000	0.004	0.018	0.048	0.156	10.6 \pm 13.7
11	0.002	0.002	0.000	0.001	0.001	0.002	0.005	0.6 \pm 0.8
12	0.003	0.008	0.000	0.000	0.001	0.003	0.012	0.9 \pm 2.3
13	0.016	0.018	0.002	0.006	0.010	0.019	0.046	5.1 \pm 6.0
14	0.002	0.004	0.000	0.000	0.001	0.002	0.007	0.7 \pm 1.5
Total	0.394	0.239	0.129	0.238	0.346	0.495	0.810	–

Table 13 ベイズ法と二次元モンテカルロ法を併用して推定した食品を介した Cd 摂取量推定値 (μg/kg/day)

Food Group	Mean	Standard deviation	5 th percentile	25 th percentile	50 th percentile	75 th percentile	95 th percentile	Contribution ratio (%)
1	0.113	0.109	0.012	0.045	0.083	0.145	0.312	30.2 ± 18.3
2	0.048	0.040	0.002	0.019	0.039	0.068	0.124	14.7 ± 11.6
3	0.014	0.050	0.000	0.001	0.003	0.011	0.057	3.7 ± 7.6
4	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.00 ± 0.01
5	0.019	0.024	0.000	0.001	0.010	0.026	0.066	5.7 ± 7.3
6	0.001	0.003	0.000	0.000	0.000	0.002	0.006	0.5 ± 0.9
7	0.028	0.034	0.000	0.006	0.016	0.036	0.093	8.3 ± 9.2
8	0.069	0.059	0.010	0.029	0.053	0.090	0.182	20.3 ± 14.0
9	0.002	0.009	0.000	0.000	0.001	0.002	0.008	0.7 ± 1.8
10	0.041	0.073	0.000	0.004	0.018	0.048	0.156	10.6 ± 13.1
11	0.001	0.002	0.000	0.000	0.001	0.002	0.004	0.4 ± 0.8
12	0.000	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001	0.1 ± 0.2
13	0.015	0.016	0.002	0.005	0.010	0.018	0.042	4.7 ± 4.9
14	0.000	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001	0.1 ± 0.2
Total	0.351	0.164	0.158	0.242	0.320	0.422	0.641	-

Table 14 ベイズ法と二次元モンテカルロ法を併用して推定した食品を介した Hg 摂取量推定値 (μg/kg/day)

Food Group	Mean	Standard deviation	5 th percentile	25 th percentile	50 th percentile	75 th percentile	95 th percentile	Contribution ratio (%)
1	0.008	0.007	0.001	0.003	0.006	0.010	0.020	16.4 ± 20.8
2	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001	0.6 ± 1.4
3	0.000	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001	0.6 ± 2.5
4	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.01 ± 0.06
5	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.2 ± 0.7
6	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001	0.4 ± 1.2
7	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001	0.7 ± 1.6
8	0.001	0.001	0.000	0.001	0.001	0.002	0.004	3.6 ± 6.4
9	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.3 ± 1.1
10	0.111	0.129	0.000	0.016	0.072	0.160	0.362	67.2 ± 35.3
11	0.004	0.007	0.000	0.001	0.002	0.005	0.014	8.2 ± 13.4
12	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.1 ± 0.4
13	0.001	0.001	0.000	0.000	0.000	0.001	0.002	1.4 ± 3.7
14	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.1 ± 0.4
Total	0.126	0.129	0.009	0.032	0.087	0.175	0.377	-

Table 15 ベイズ法と二次元モンテカルロ法を併用して推定した食品を介した Pb 摂取量推定値 ($\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$)

Food Group	Mean	Standard deviation	5 th percentile	25 th percentile	50 th percentile	75 th percentile	95 th percentile	Contribution ratio (%)
1	0.049	0.305	0.000	0.000	0.002	0.019	0.193	12.8 \pm 21.5
2	0.023	0.065	0.000	0.002	0.007	0.021	0.089	12.5 \pm 16.3
3	0.006	0.061	0.000	0.000	0.001	0.003	0.022	3.4 \pm 8.3
4	0.000	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001	0.15 \pm 0.58
5	0.006	0.012	0.000	0.000	0.002	0.007	0.026	4.8 \pm 8.0
6	0.007	0.041	0.000	0.000	0.001	0.005	0.030	4.4 \pm 9.3
7	0.008	0.015	0.000	0.001	0.004	0.009	0.030	6.0 \pm 8.8
8	0.027	0.033	0.003	0.008	0.017	0.033	0.082	18.8 \pm 16.5
9	0.009	0.013	0.000	0.001	0.005	0.012	0.032	7.0 \pm 9.1
10	0.018	0.040	0.000	0.001	0.006	0.018	0.069	10.7 \pm 14.7
11	0.016	0.095	0.000	0.001	0.003	0.010	0.059	7.8 \pm 13.4
12	0.005	0.023	0.000	0.000	0.000	0.002	0.025	3.0 \pm 8.5
13	0.009	0.013	0.001	0.002	0.005	0.011	0.031	7.2 \pm 8.8
14	0.002	0.003	0.000	0.000	0.001	0.002	0.006	1.4 \pm 2.6
Total	0.185	0.340	0.051	0.087	0.128	0.197	0.447	-

Table 16 東京および大阪の TD 試料中に含まれる銀ナノ粒子濃度および摂取量

Food Group	濃度			割合 ^a (%)	粒径		摂取量		
	Total-Ag (ng/g)	Ag-NP (ng/g)	Ag-NP (particle/g)	Ag-NP/Total-Ag	平均 (nm)	最大値 (nm)	Total-Ag ^b (μg/人/day)	Ag-NP (μg/人/day)	Ag-NP (particle/人/day)
1	0.51 – 0.68	0.31 – 0.38	$(1.8 - 2.2) \times 10^6$	45 – 75	31.5 – 32.1	142 – 145	0.15 – 0.22	0.10 – 0.11	$(5.8 - 6.4) \times 10^8$
2	1.24 – 1.51	0.30 – 1.02	$(2.1 - 7.9) \times 10^6$	24 – 67	28.6 – 29.7	118 – 124	0.20 – 0.24	0.05 – 0.16	$(3.4 - 12.6) \times 10^8$
3	1.53 – 9.27	0.26 – 10.4	$(1.8 - 25.6) \times 10^6$	17 – 100	29.5 – 42.0	93.5 – 283	0.05 – 0.25	0.01 – 0.28	$(0.6 - 6.8) \times 10^8$
4	<0.40 – 0.70	0.32 – 0.45	$(1.6 - 3.1) \times 10^6$	65 – 100	29.8 – 33.2	100 – 234	0.00 – 0.01	0.00 – 0.00	$(0.2 - 0.3) \times 10^8$
5	<0.40 – 0.42	0.36 – 0.43	$(1.4 - 4.4) \times 10^6$	84 – 100	26.2 – 35.9	110 – 225	0.01 – 0.03	0.02 – 0.02	$(2.4 - 9.5) \times 10^8$
6	<0.40	0.50 – 0.55	$(3.4 - 4.3) \times 10^6$	100	27.7 – 31.0	159 – 266	0.02 – 0.02	0.05 – 0.06	$(3.8 - 4.2) \times 10^8$
7	0.76 – 0.98	0.67 – 0.94	$(3.9 - 6.1) \times 10^6$	94 – 96	30.4 – 31.6	193 – 283	0.07 – 0.09	0.06 – 0.09	$(3.8 - 5.7) \times 10^8$
8	1.91 – 2.40	0.81 – 1.07	$(6.5 - 13.1) \times 10^6$	34 – 56	24.6 – 28.4	73 – 154	0.43 – 0.46	0.16 – 0.24	$(12.4 - 29.1) \times 10^8$
9	<0.40 – 0.47	0.74 – 1.42	$(5.4 - 12.6) \times 10^6$	100	27.4 – 29.2	136 – 209	0.13 – 0.32	0.37 – 0.95	$(26.9 - 84.6) \times 10^8$
10	5.35 – 42.0	1.04 – 1.70	$(8.0 - 21.5) \times 10^6$	4 – 20	24.3 – 28.7	257 – 279	0.34 – 3.37	0.07 – 0.14	$(5.1 - 17.3) \times 10^8$
11	0.92 – 0.93	0.46 – 0.55	$(3.0 - 4.1) \times 10^6$	50 – 60	29.1 – 30.6	197 – 198	0.11 – 0.12	0.06 – 0.07	$(3.8 - 4.8) \times 10^8$
12	<0.40	1.10 – 1.79	$(12.2 - 22.7) \times 10^6$	86 – 100	24.3 – 25.4	257 – 257	0.02 – 0.03	0.14 – 0.22	$(15.4 - 27.5) \times 10^8$
13	0.50 – 0.56	0.56 – 1.05	$(2.9 - 8.8) \times 10^6$	48 – 100	27.9 – 32.8	155 – 330	0.05 – 0.05	0.05 – 0.09	$(2.7 - 7.9) \times 10^8$
14	$(3.6 - 8.6) \times 10^{-3}$	$(1.0 - 1.2) \times 10^{-5}$	$(1.0 - 1.7) \times 10^2$	0.1 – 0.3	21.9 – 27.3	24.6 – 39.0	0.00 – 0.00	0.00 – 0.00	$(2.6 - 4.4) \times 10^4$
Total							1.91 – 4.87	1.78 – 1.79	$(1.4 - 1.5) \times 10^{10}$

a Ag-NP の質量濃度が Total Ag 濃度を超過した場合は割合を 100%とした。

b 不検出値には LOQ の半値を代入して摂取量を算出した。

Table 17 東京および大阪のTD 試料中に含まれる二酸化ケイ素ナノ粒子濃度および摂取量

Food Group	濃度		粒径 (nm)		摂取量	
	(ng/g)	(particle/g)	平均	最大値	($\mu\text{g}/\text{人}/\text{day}$)	(particle/人/day)
1	138 – 291	$(3.3 – 5.1) \times 10^6$	311 – 345	940 – 1283	39.5 – 93.5	$(9.5 – 16.5) \times 10^8$
2	132 – 573	$(2.5 – 12.8) \times 10^6$	319 – 336	946 – 1768	21.6 – 91.8	$(4.1 – 20.4) \times 10^8$
3	430 – 525	$(10.1 – 10.3) \times 10^6$	311 – 335	908 – 1353	11.5 – 18.1	$(2.8 – 3.5) \times 10^8$
4	154 – 279	$(1.5 – 3.7) \times 10^6$	378 – 418	641 – 1699	1.7 – 2.6	$(0.2 – 0.3) \times 10^8$
5	199 – 309	$(3.9 – 6.5) \times 10^6$	326 – 334	955 – 1717	11.0 – 20.9	$(2.1 – 4.4) \times 10^8$
6	129 – 270	$(2.4 – 5.2) \times 10^6$	334 – 338	922 – 1300	12.5 – 30.0	$(2.4 – 5.8) \times 10^8$
7	81.0 – 136	$(1.3 – 2.9) \times 10^6$	323 – 355	894 – 1288	7.5 – 13.3	$(1.2 – 2.9) \times 10^8$
8	119 – 220	$(1.7 – 4.6) \times 10^6$	327 – 369	948 – 1470	22.8 – 48.9	$(3.3 – 10.1) \times 10^8$
9	90.2 – 118	$(1.6 – 2.9) \times 10^6$	308 – 348	722 – 924	58.9 – 60.4	$(10.4 – 14.6) \times 10^8$
10	271 – 286	$(5.1 – 6.3) \times 10^6$	320 – 338	820 – 1097	17.3 – 23.0	$(3.3 – 5.1) \times 10^8$
11	66.8 – 83.8	$(1.3 – 1.6) \times 10^6$	333 – 335	876 – 1021	8.5 – 9.9	$(1.7 – 1.9) \times 10^8$
12	62.0 – 128	$(1.2 – 2.6) \times 10^6$	329 – 337	901 – 985	7.8 – 15.6	$(1.5 – 3.2) \times 10^8$
13	301 – 496	$(7.6 – 11.6) \times 10^6$	306 – 314	658 – 931	27.1 – 46.9	$(6.8 – 11.0) \times 10^8$
14	0.065 – 0.118	$(1.4 – 2.4) \times 10^3$	324 – 327	571 – 1580	0.02 – 0.03	$(3.5 – 6.1) \times 10^5$
Total					310 – 412	$(56.9 – 92.0) \times 10^8$

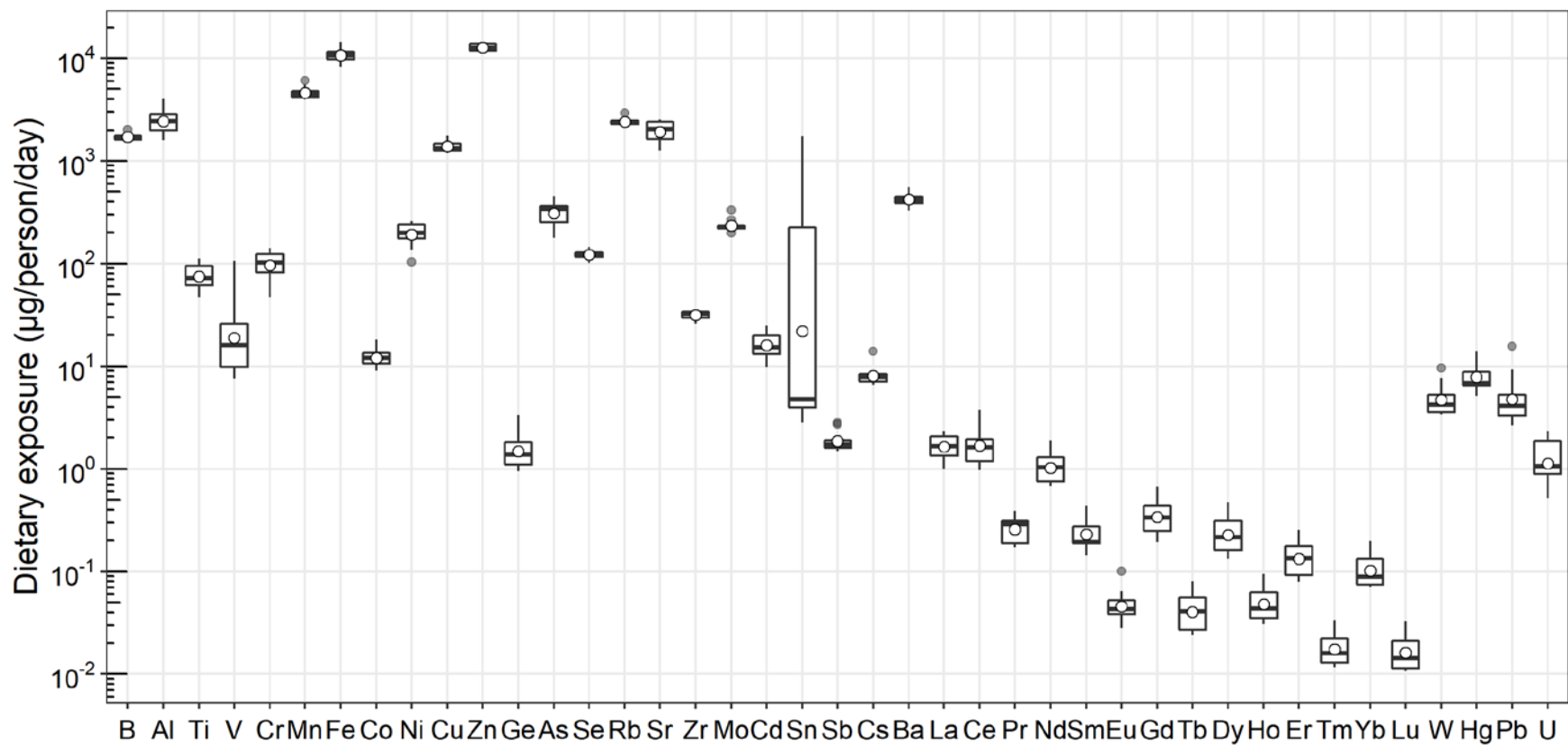


Fig. 1 2021年に10地域のTD試料から推定した元素類の推定1日摂取量

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

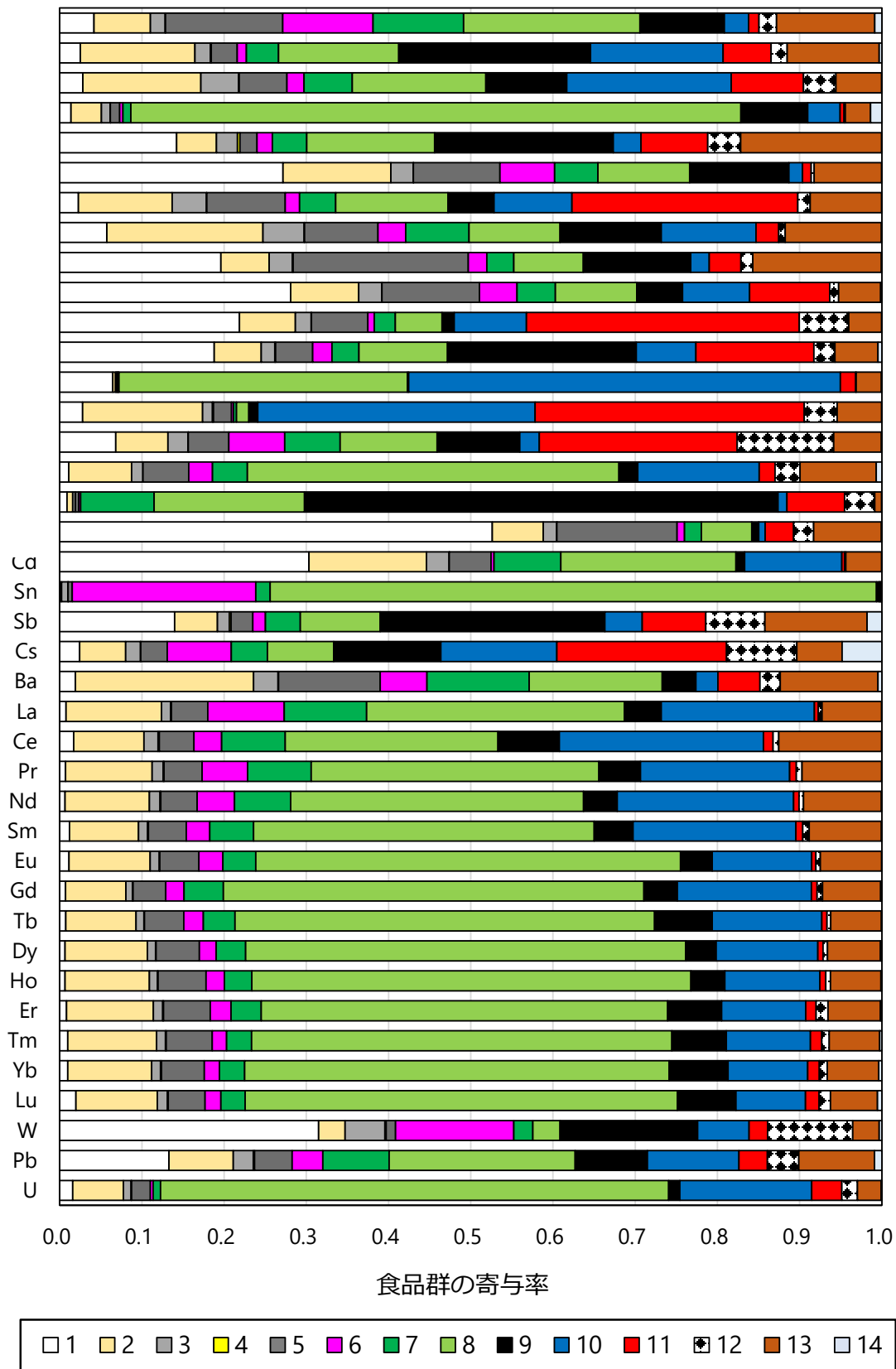


Fig. 2 2021年 TDS における有害類の摂取量における食品群の寄与率

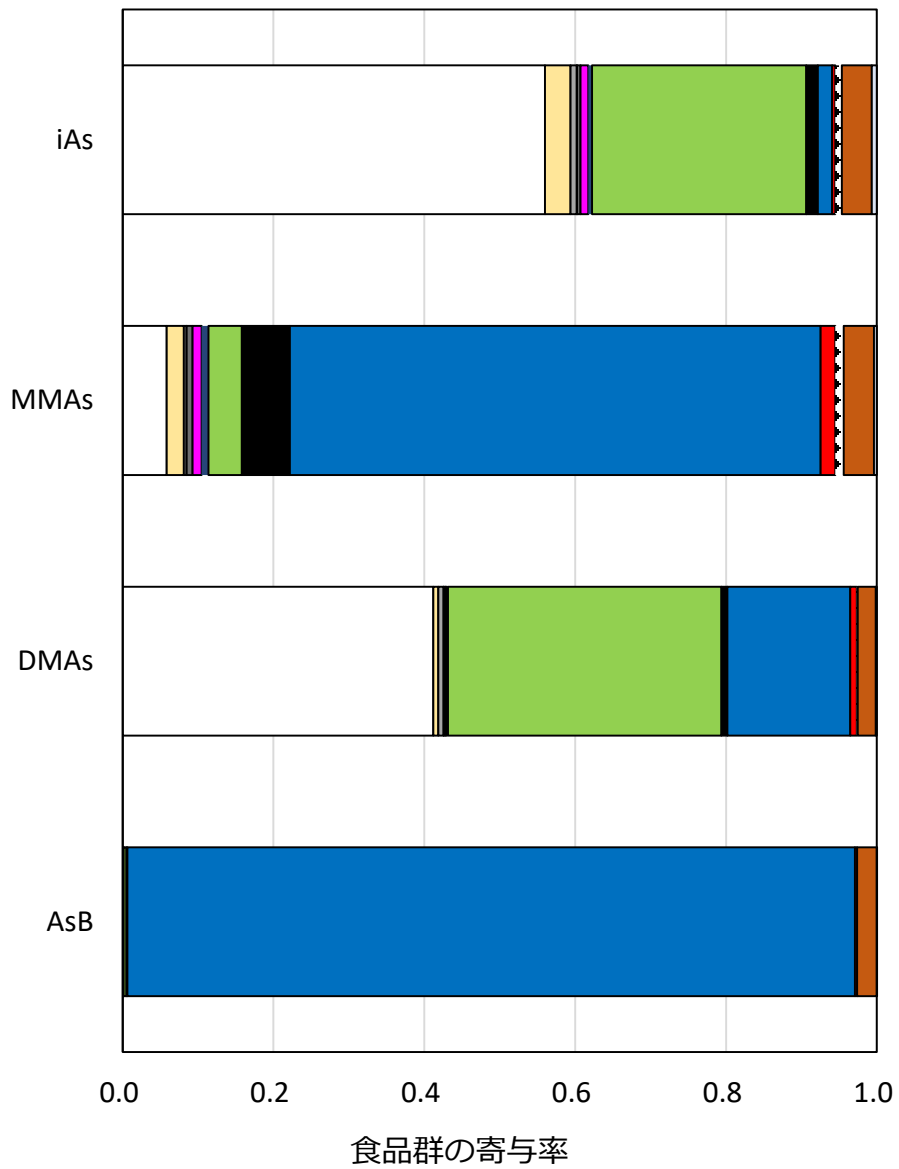


Fig. 3 As 化学種の摂取量における各食品群の寄与率

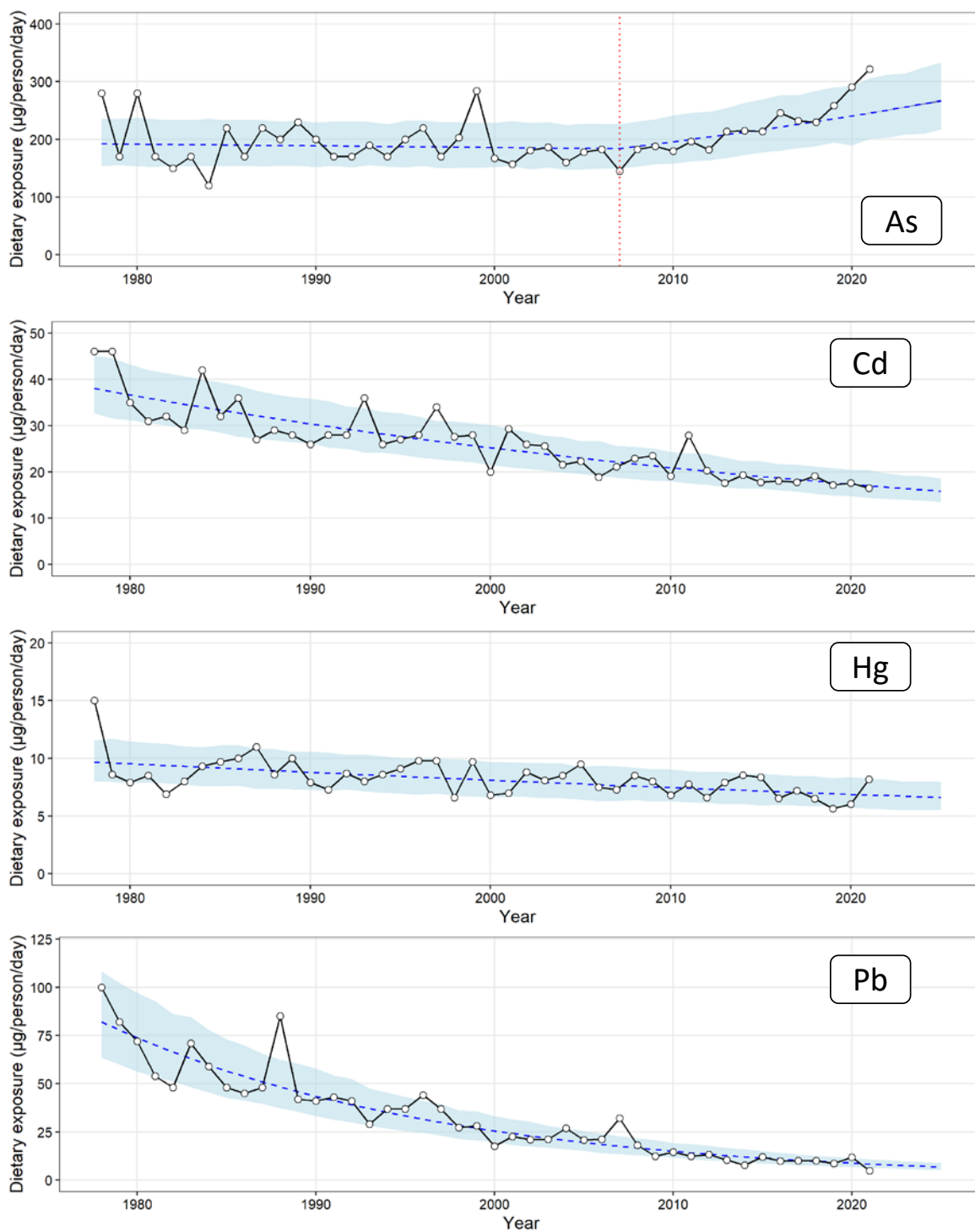


Fig. 4 As, Cd, Hg, Pb の推定 1 日摂取量の経年変動

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。

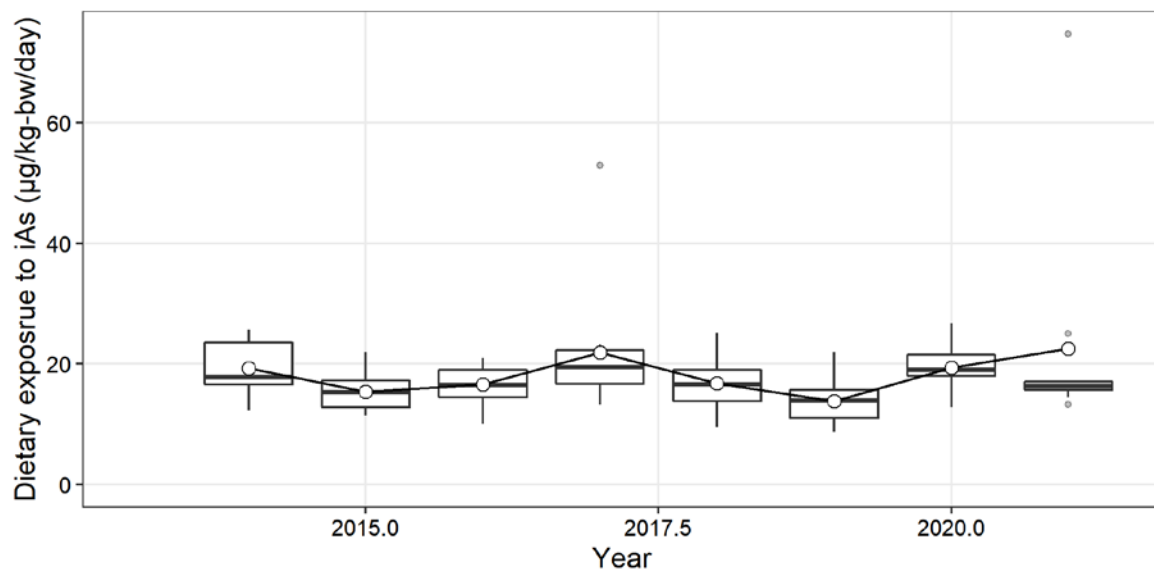


Fig. 5 iAs の摂取量の経年変動

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))) - exp(lognormal_lcdf(Y_L[i] | log(gm),
38. 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))) - exp(lognormal_lcdf(Y_L[i] | log(gm),
55. log(gsd))));
56.       }
57.     }
58.     for (i in 1:N_new) Y_new[i] = lognormal_rng(log(gm), log(gsd));
59.   }
60. }

```

Fig. 6 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

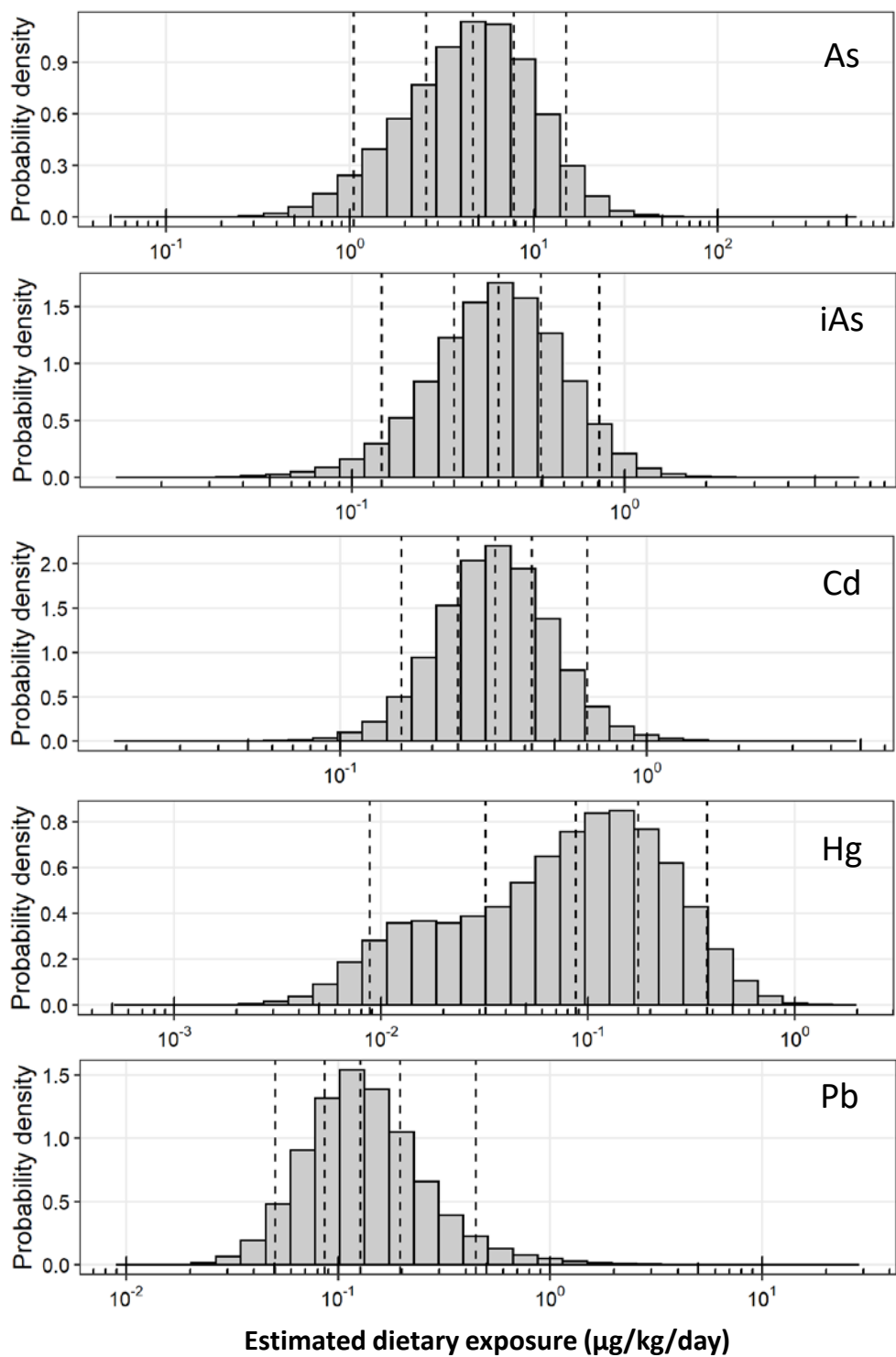


Fig. 7 バイズ法を適用した二次元モンテカルロシミュレーションによる As, iAs, Cd, Hg, および Pb の推定 1 日摂取量の分布
破線は左から 5, 25, 50, 75, 95%タイル値を示す。

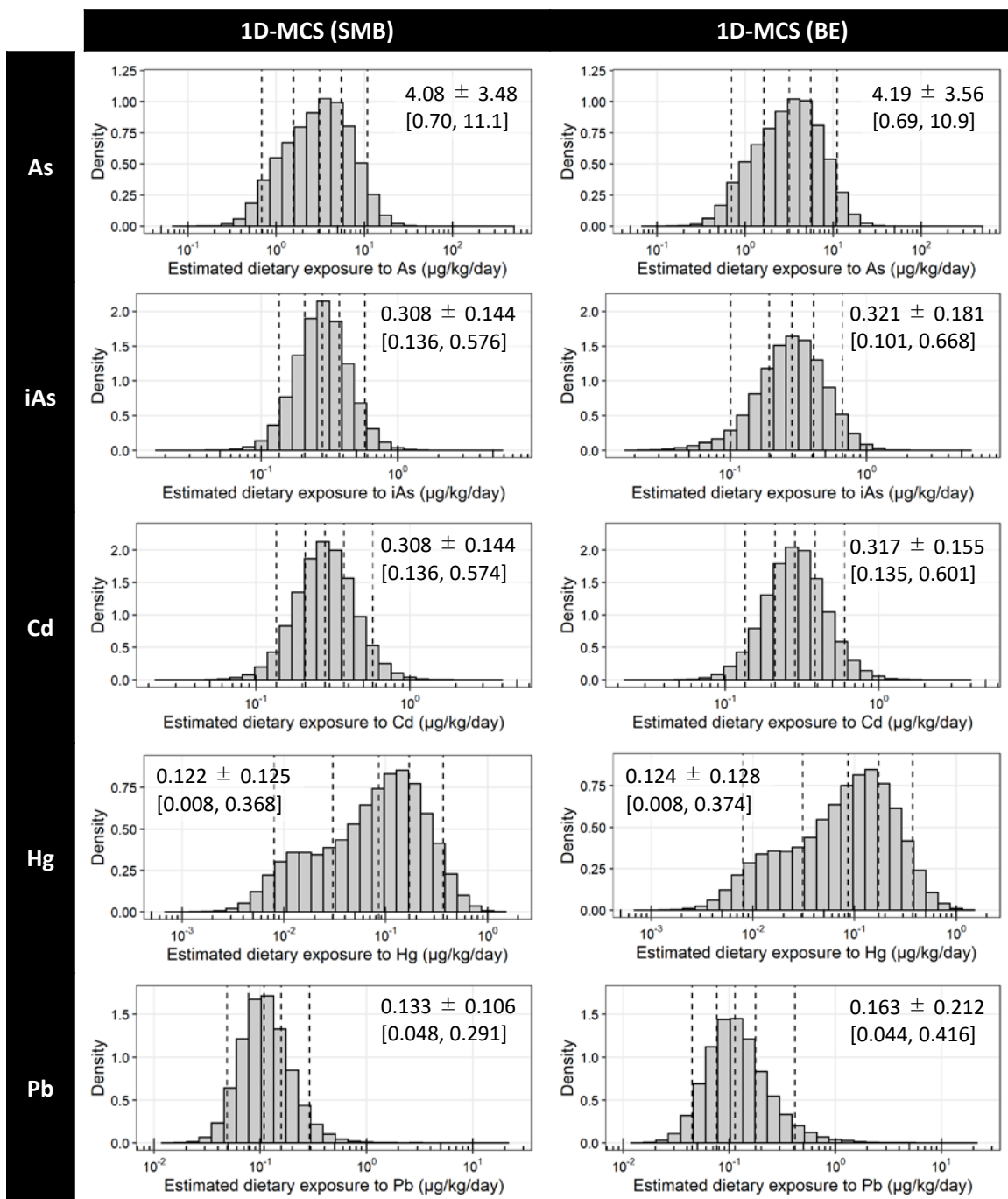


Fig. 8 一次元モンテカルロシミュレーションによるAs, iAs, Cd, Hg および Pb の推定 1 日摂取量分布

破線は左から 5, 25, 50, 75, 95% タイル値を示し、パネル内内の数値は平均値 ± 標準偏差 [90% 範囲] を示す。SMB: Substitute medium bound, BE: Bayesian estimation.

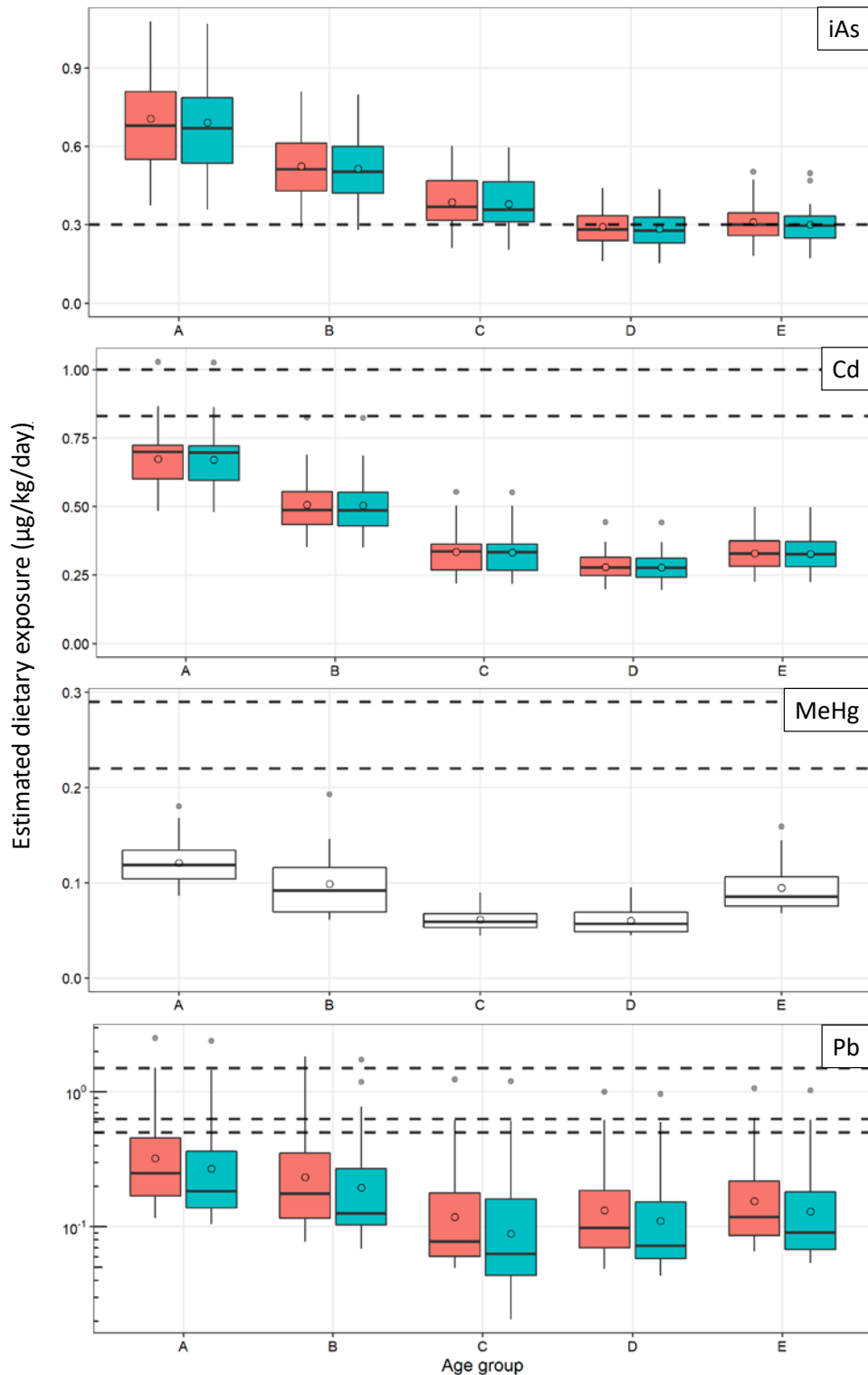


Fig. 9 年代別の iAs, Cd, MeHg および Pb の推定摂取量
 赤は 14 食品群全ての合計値で、緑は 9 群と 12 群を除いた合計値を示す。MeHg は 10 群と 11 群の合計値を示す。

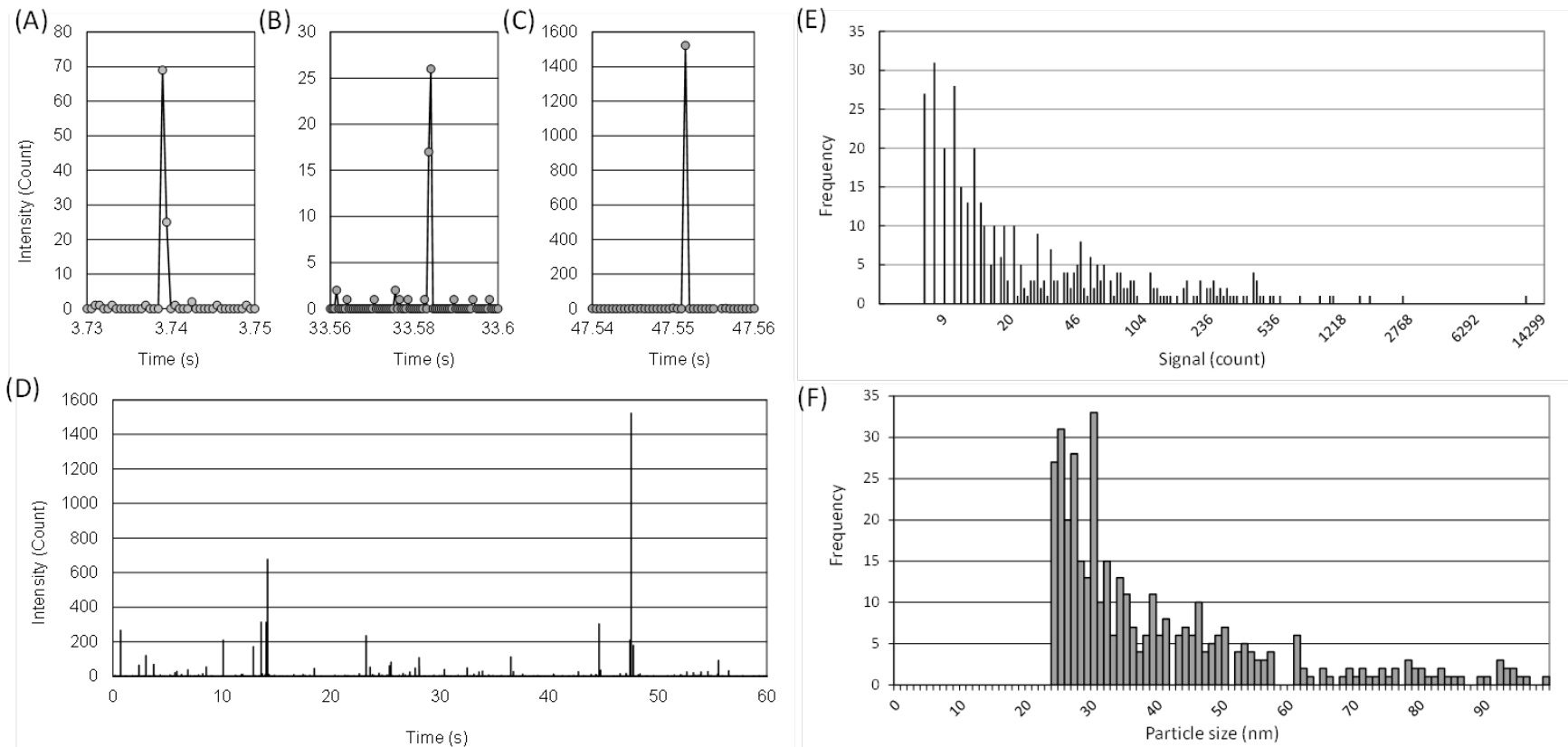


Fig. 10 sp-ICP-MS 法による銀ナノ粒子の解析例.

パネル A~C はパネル D の該当部分を拡大した図、パネル D は sp-ICP-MS 法で得られた time scan データ、パネル E は検出されたピークの信号強度のヒストグラム、パネル F は信号強度を粒径に換算して得られた Ag-NP の粒径分布を示す。

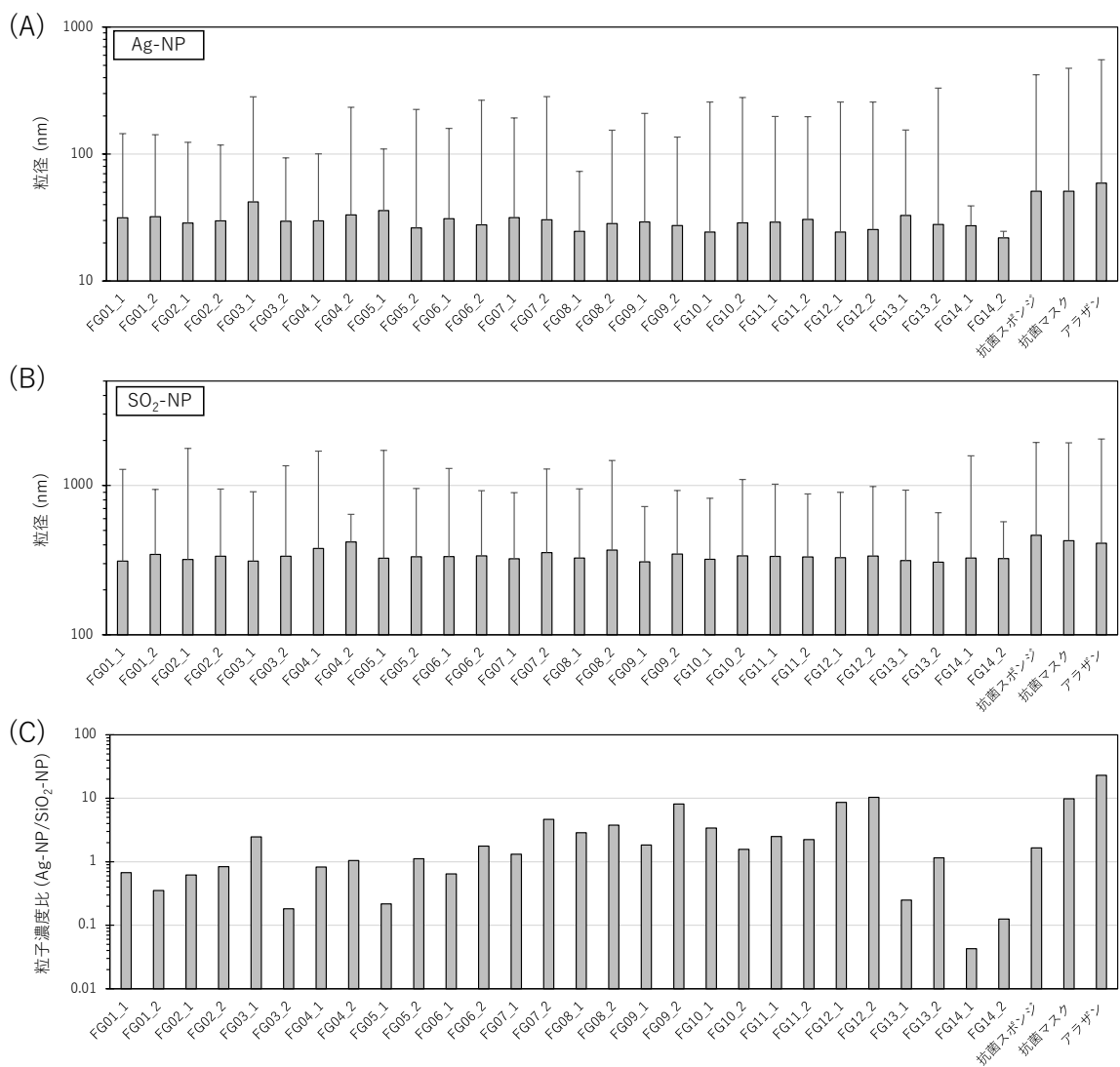


Fig. 11 TD 試料および汚染源候補に含まれる Ag-NP および SiO₂-NP の特徴の比較
 (A) Ag-NP の粒径、(B) SiO₂-NP の粒径、(C) 粒子濃度比 (Ag-NP/SiO₂-NP)
 パネル A と B の棒は平均値を、エラーバーは最大値を示す。