

Ⅱ. 分担研究報告書

(2) 食品に含まれる有害元素等の摂取量推定及び汚染実態の 把握に関する研究

研究分担者 鈴木美成

令和 4 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) 食品に含まれる有害元素等の摂取量推定及び汚染実態の把握に関する研究

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、2022 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 (推定一日摂取量) を推定した。その結果、各元素類の推定一日摂取量は、B: 1478 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, Al: 2812 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, V: 16.7 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, Cr: 70.9 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, Mn: 4905 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, Co: 11.2 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, Ni: 174 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, As: 254 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, iAs: 17.0 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, Se: 116 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, Mo: 221 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, Cd: 16.1 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, Sn: 6.18 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, Sb: 1.52 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, Ba: 433 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, Hg: 6.81 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, Me-Hg: 5.64 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, Pb: 4.78 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, U: 1.19 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$ 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、推定一日摂取量と HBGV の比 (ハザード比、HQ) を求めた。その結果、HQ は iAs (1.03–1.48)、Ni (0.16–1.13)、Cd (0.29–0.82)、Mo (0.80)、Mn (0.64)、Me-Hg (0.35–0.55)、Ba (0.04–0.39)、B (0.16–0.33)、Al (0.15–0.32) の順に高かった。さらに、Pb、Cd、As、Hg 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うとともに、全食品群の総和としての粒径分布について解析を行った。また、健康リスクの高い iAs についてより詳細な検討を行えるよう、米を対象とした iAs の簡易分析法についての検討も行った。

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

和歌山県環境衛生研究センター

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

国立医薬品食品衛生研究所食品部

青柳直樹、市橋大山

吉崎 麻友子

堀里実、高橋京子、森田昌弘

宮崎仁志、高木恭子

新宅沙織

安永 恵、荻田 幸

古谷貴志、吉富秀亮、堀就英

仲真 弘樹、大城聡子

高橋未来

A. 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、有害物質として知られるヒ素[総ヒ素(As)並びに無機ヒ素(iAs)を含むヒ素化合物]、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の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、2022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。

B. 研究方法

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。

2017年から2019年に行われた国民健康・栄養調査のデータを解析し、該当地域における各食品群の一日当たりの喫食量の平均値を算出した(Table 1)。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。有効なサンプルサイズは19753であり、各食品群の喫食量が地域ブロック間で差があるとはいえなかった($p=0.922$, χ^2 -test)。なお、集計および解析は独自に行ったものであり、公表数と一致しない場合がある。

TD試料の調製は、全国10地域の地方衛生研究所等で2022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、該当地域における一日当たりの喫

食量に従って秤量し、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。また、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. 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)、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-ブタンサ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、亜ひ酸 [As(III); 原子吸光分析用, 関東化学製]、ひ酸 [As(V); NMIJ CRM 7912-a]、モノメチルアルソン酸 (MMAs; Tri Chemical Laboratories Inc.)、ジメチルアルシン酸 (DMAs; NMIJ CRM 7913-a, AIST NMIJ)、アルセノベタイン (AsB; NMIJ CRM 7901-a, AIST NMIJ) を、メチル水銀の分析には塩化メチル水銀 (ジールサイエンス) 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)、 NaH_2PO_4 (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)を用い

た。

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。

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。分解容器を開封し希釈する作業は HEPA フィルター搭載のクリーンブース [集塵効率 (0.3 μm 粒子): 99.97%以上] 内で行った。

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。

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 2 に示すとおりである。なお、ICP-MS 測定に係る非金属性の容器・器具は約 3 mol/L の硝酸に 3 日以上浸漬させた後、超純水でよく濯ぎ、HEPA フィルター搭載のクリーンブース [集塵効率 (0.3 μm 粒子) : 99.97%以上] 内で乾燥させたものを用いた。

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。

$$I_c^{75\text{As}} = I_m^{75\text{As}} - \alpha I_m^{150\text{Nd}} - \beta I_m^{150\text{Sm}}$$

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

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。

$$I_c^{146\text{Nd}} = I_m^{146\text{Nd}} - \gamma I_m^{130\text{Ba}}$$

$$= I_m^{146\text{Nd}} - \gamma \frac{0.11}{11.2} I_m^{137\text{Ba}}$$

$$I_c^{147\text{Sm}} = I_m^{147\text{Sm}} - \varepsilon I_m^{130\text{Ba}}$$

$$= I_m^{147\text{Sm}} - \varepsilon \frac{0.11}{11.2} I_m^{137\text{Ba}}$$

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。

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。2600g 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 3 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]、MMAs、DMAs、および 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。

6. 総水銀の分析

総水銀 (Hg) は総水銀計を用いて Table 4 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。

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 Na₂SO₄、0.5 mg/mL NaHCO₃、1.5 mg/mL KCl、2.0 mg/mL KH₂PO₄、CaCl₂·H₂O、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 5 に示した装置条件で分析した。

8. 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 NaH₂PO₄、0.2 mol/L NaOH、pH=7.4) 7.5 mL を添加し超音波バスにて 10 分間処理を行い、ヒートブロック上で 37°C 60 分加熱した。室温に戻した後、遠心分離 (2600g、30 分間) で得られた上清を 100 mL メスフラスコに移した。残渣に酵素溶液 7.5 mL を加え同様に加熱・遠心分離を行い得られた上清を上記のメスフラスコに合わせた後、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 10 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。spICP-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。spICP-MS での試料輸送効率は、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。粒径は密度 (10.49 g/cm³) と対象元素の質量分率 (1.00) から、真球であると仮定して算出した。

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、ピーク面積値の2乗根を標準偏差の推定値として用いた。

LOQ未満の結果を含むデータの取扱いに関しては、LOQ未満となったデータは0 (ND=0) と1/2LOQ (ND=0.5LOQ) を代入する方法の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喫食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(推定一日摂取量)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

2022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一日摂取量の平均値はTable 7に示す。Table 8には、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。

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。とくにSnについては、缶詰食品の利用やタケノコが含まれているかで摂取量が大きく変動していたが、本年度の調査においては他の変動の大きい元素と同程度の変動に抑えられていた。

2. 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。ここでは、NDとなった測定結果には便宜的にLOQの半値を代入して算出した。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50.8%、次いで8群で40.0%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)。8群では、AsBよりも遅い保持時間に大きなAsの信号が検出され、アルセノシユガーであると考えられた。

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。2022年

の調査においても、1 群の寄与率は 70.0%、8 群の寄与率は 14.1%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 34.1%、次いで 8 群の 20.5%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 90.5%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 (Table 8)。

Pb の摂取量における寄与率は、8 群で最も高く 23.9%、次いで 9 群で 18.6%であり、As・Cd・Hg と比較すると特定の食品群からの寄与率が低かった。9 群では ND となった試料も多かったが、喫食量が大きいためこのような結果になったと考えられた。また、8 群の寄与率の標準偏差は 15.1 であり、寄与率が高い食品群を特定することは出来なかった。

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 1 群の寄与率が 24.7%と高かった。Ge は 1 群からの寄与が 25.6%と最も高かった。Rb (26.7%) および Cs (26.2%) は 11 群の寄与が最も高かった。Sr は 8 群からの寄与が 41.6%と最も高かった。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 (22.6%) は 12 群の寄与が最も高かった。W (21.7%) 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、8 群で 29.2 – 53.1%と最も寄与率が高く、ついで 10 群 (9.1

– 14.9%) と 2 群 (9.8 – 12.2%) で高い傾向にあった。概して 8 群では重希土で、10 群では軽希土で寄与率が高くなる傾向にあった。

3. 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、推定した一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 1.03–1.48 であった。ここで、iAs の HGBV については、アメリカ合衆国環境保護庁 (US EPA) 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、EFSA が 2005 年に評価した暫定耐用週刊摂取量 (TWI) と比較した。一方で、FAO/WHO 合同食品添加物専門家会議 (JECFA) 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 9.7 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 (UFs) よりも小さい値となった。EPA が導出した皮膚がんに対する Oral Slope Factor (1.5 per mg/kg-day)をもちいて、日本人の推定発がんリスクを求めたところ 0.47×10^{-3} であった。一般的に許容される発がんリスクの 10^{-5} と比較すると 47 倍高い値であった。国立がん研究センターが公開しているがん統計 (https://ganjoho.jp/reg_stat/index.html)

によると、2019年における皮膚がんの罹患率は20.0/10万と報告されている。皮膚がんの原因には様々な要因が考えられているが、最も大きい要因は紫外線による影響とされている。これらの点を踏まえると、推定されたiAs曝露による発がんリスクは、過大な見積もりとなっている可能性がある。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。また、ヒ素の毒性を修飾する因子として、代謝酵素活性や栄養状態の影響なども示唆されている。以上の点からも、iAsの食事性曝露による健康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、iAs摂取量だけでなく栄養状態と代謝酵素に係る遺伝的変異を踏まえた疫学調査が必要と考えられる。

2番目にHQが最も高かったのはNiであり、その値は0.16-1.13であった。Niの推定一日摂取量における各食品群からの寄与率は、5群(34.5%)で最も高く、次いで1群(15.8%)で高かった。EPAが1991年に導出したRfDは、食品安全委員会が2012年に導出したTDIやEFSAが2015年に導出したTDIよりも5倍以上高い値となっており、このようなHQが広い結果となった。

3番目にHQが最も高かったのはCdであり、その値は0.29-0.82であった。EFSAが2011年に導出したTWIは、食品安全委員会が2008年に導出したTWIやWHO/JECFAが2013年に導出したPTMIよりも保守的な値となっており、

このようなHQが広い結果となった。

毒性の高い元素であるMeHgのHQは0.35-0.55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と考えられた。

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。ただし、本研究で推定した摂取量は成人も含めたものであるため、幼児に特有の影響である発達神経毒性についての解析は、摂取カロリーを基に0.688倍(1-6歳:1047kcal、1歳以上:1522kcal)し、1-6歳の摂取量を推定して算出した。その結果、MOEは8.4-17.3の範囲内であった。EFSAの評価書では、鉛曝露の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。これらのことから、平均的な摂取量としての健康リスクは小さいと考えられた。一方で、確率論的な摂取量評価を行った場合は、幼児の発達神経毒性に対するMOEがUFs未満になる割合が14%程度存在することが明らかとなっており、無視できる割合では無いと考えられる。確率論的なアプローチを用いた摂取量分布が必要であると考えられた。

4. 微量ミネラルの摂取量

本研究で測定している一部の元素は、必須な微量ミネラルでもある。そこで、日本人の食事摂取基準(2020年版)との比較を行った(Table 10)。比較を行った元素の推定摂取量は、推定平均必要量あるいは推奨量を超えており、耐用上限値未満であった。この結果は、平均的には無機栄養は過不足なく摂取されている

ると考えられた。しかしながら、推定摂取量と推定平均必要量と近いあるいは推奨量に満たない元素として Fe および Zn が挙げられた。これらの元素については、寄与率の大きい食品群 (11 群) の喫食量が少ない場合は必要量に満たない可能性がある。性別ごとの摂取量や摂取量分布の評価が今後必要だと考えられた。

5. 経年変動

1977 年より継続的に行ってきた As, Cd, Hg, Pb の推定一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 の推定一日摂取量は、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る、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 の推定一日摂取量は 1977–1978

年を除くと 5~12 µg/person/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。2022 年における Hg の推定一日摂取量は 1977 - 1978 年の半分以下であった。国民健康・栄養調査の結果より、魚介類の喫食量は 1997 年以降年々減少し、2019 年の魚介類の喫食量は 1997 年の 0.65 倍であった。Hg の推定一日摂取量の 2019 年/1997 年比は 0.57 であり、喫食量の変化よりもわずかに減少率が大きかった。これらの結果から、ほとんどは魚介類の喫食量の減少が寄与しているものの、他の要因もあると考えられた。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。2011 年から 2019 年にかけてまぐろ、かじき類 (4.5 → 3.8 g/day) およびたい、かれい類 (5.8 → 4.5 g/day) の喫食量が減少しているのに対して、さけ・ますの喫食量は増加 (3.9 → 5.4 g/day) していた。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た高濃度 Hg の喫食機会が低減されていることが、喫食量よりも Hg の減少率がわずかに大きいことの要因になった可能性が考えられた。

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 の推定一日摂取量は 1977 年の調査以降継続して減少傾向にある。Pb の推定一日摂取量における 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、2022 年の推定一日摂取量はこれまでの調査における最小値を更新し、1977 年の 5%以下まで減少していた。

6. 金属ナノ粒子の摂取量推定

昨年度に調査した 2020 年の東京と大阪の TD 試料にくわえて、2019 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。また、2019 年の東京の TD 試料に対して添加回収試験を行った。平均粒径への影響は認められなかったものの、1 群では質量濃度粒子数濃度が 70%未満となった。その他の群では 70%以上の回収率を示した。食品群によっては、他の酵素 (例えば、アミラーゼあるいはセルラーゼ) が適している可能性が考えられた。

食事を介した Total Ag および Ag-NP の曝露は、2.8 および 0.97 µg/person/day と推定された (Table 11)。また、粒子数としては 0.80×10^{10} particle/person/day と推察された。Hadrup と Lam (2

014, DOI: 10.1016/j.yrtph.2013.11.002)

は、Ag-NP の TDI を 2.5 $\mu\text{g}/\text{kg}\text{-bw}/\text{day}$ と導出した。この値と比較すると、Ag-NP の HQ は 0.007 と推定された。現在得られたデータから判断すると、食事由来の Ag-NP による健康リスクは小さいと推定された。ただし、Hadrup と Lam (2014) が導出した TDI は粒径 42 nm の Ag-NP を経口投与した結果より導出したものである。

各食品群における Ag-NP の粒径分布は分析結果から得ることが出来るが、全食品群の合計としては単純に平均するだけで得ることは出来ない、そこで食品群の合計における粒径分布を次のように求めた。粒径分布の密度関数 $f_T(\phi)$ は次の式で表すことが出来る。

$$f_T(\phi) = \frac{\sum_{i=1}^{14} C_i R_i}{\sum C_i R_i} f_i^K(\phi),$$

ここで、 ϕ は粒径 (nm)、 i は食品群のインデックス、 C_i は食品群 i の数濃度濃度 (particle/g)、 R_i は食品群 i の食品喫食量 (g/day)、 $f_i^K(\phi)$ は食品群 i における粒径分布のカーネル密度を示す。算出した粒径分布を Fig. 6 に示す。このデータから平均粒径を算出したところ、本調査によって推定された食品由来の Ag-NP の平均粒径は 27.5 nm であった。この結果より、Hadrup と Lam (2014) が導出した TDI の根拠となった投与試験に用いられた Ag-NP の粒径と食事由来の Ag-NP の粒径とは異なっているため、比較する TDI として適切でない可能性がある。一般的に、粒径が小さいほどナノマテリアルの毒性は高くなる傾向にあるため、適切な粒径を用いて導出された T

DI と比較する必要がある。

Ag による抗菌効果を期待して、様々な製品に Ag-NP が使用されている。とくに新型コロナウイルスの感染拡大以降は、抗菌製品の使用量が増大したと推測される。そこで、新型コロナウイルスの感染拡大が生じた前後の Ag-NP の摂取量について比較を行った (Fig. 7)。その結果、2019 年と比較して 2020 年で Ag-NP の摂取量が粒子数及び粒子質量どちらにおいても増加していた。

Ag-NP の曝露源を解析するため、各食品群の粒径分布を様々な抗菌製品から抽出した Ag-NP の粒径分布と比較した。TD 試料においては、概して 2019 年の方が 2020 年の粒径分布よりも平均粒径が大きい傾向にあった。また、2019 年の TD 試料の粒径分布は、抗菌製品由来の Ag-NP の粒径分布と良く重複していた。これらの結果より、2019 年の TD 試料では製造過程などで使用された抗菌製品由来の Ag-NP が直接混入した可能性が考えられた。一方で、2020 年の TD 試料では、抗菌製品由来の Ag-NP の粒径分布よりも小さい粒径分布となっているものが散見された。この結果は、一度環境中に放出され、粒子の一部が溶解して粒径が小さくなったものが、食品に含有したことを示唆していると考えられた。

7. 詳細な無機ヒ素の曝露量推定に向けた簡易分析法の開発

iAs を簡易に分析する方法として、固相抽出を用いた方法に着目し文献検索した結果、Huang *et al.* (2015, DOI:

10.1039/c5ay01434d) の方法を参考に検討を行った。

Huang *et al.* (2015) が用いた固相抽出カラム (Cleanert PS 固相カラム, 60 mg, 3 mL, Bonna-Agela Technologies) にくわえて、同等の固相抽出カラム (Supelclean™ENVI™-Chrom P SPE チューブ, 250 mg, volume 3 mL, Supelco; Bond Elut ENV ストレートカートリッジ, 100 mg, 3 mL, Agilent) について比較検討を行った。その際の抽出条件等は、Huang *et al.* (2015) の方法に従った。比較の結果、Supelclean ENVI が iAs の回収率が高く、DMAs との分別性能が良かったことから、最も適していると判断した。Supelclean ENVI を用いて各種ヒ素化合物の溶出挙動を評価した後、溶出液に含まれる HCl 濃度と信号強度の変化を評価し、チオ尿素の反応時間の最適化を行い、Fig. 9 の手順を確立した。

この分析法を白米粉の認証物質である NMIJ CRM 7503-b (産業技術総合研究所, 計量標準総合センター) に適用したところ、 138 ± 5 ng/g ($n = 3$) であり、 1σ 以内で認証値 (153 ± 10 ng/g) の不確かさ範囲内にあったことから、簡易法として妥当であると結論できた。

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 は iAs (1.03–1.48)、Ni (0.16–1.13)、Cd (0.29–0.82)、Mo (0.80)、Mn (0.64)、Me-Hg (0.35–0.55)、Ba (0.04–0.39)、B (0.16–0.33)、Al (0.15–0.32) の順

で高い値を示した。一方で、Pb の MOE (8.4–17.3) 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ものの、幼児への発達神経毒性に関する健康リスクを評価するには確率論的なアプローチを用いた摂取量分布が必要であると考えられた。

必須元素である微量ミネラルの推定摂取量は、推定平均必要量あるいは推奨量を超過しており、耐用上限値未満であった。しかしながら、推定摂取量と推定平均必要量と近いあるいは推奨量に満たない元素として Fe および Zn が挙げられた。これらの元素については、喫食量が少ない場合は必要量に満たない可能性がある。性別ごとの摂取量や摂取量分布の評価が今後必要だと考えられた。

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。

ナノ粒子として、Ag-NP の摂取量評価を行ったところ、 0.97 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$ と推定された。この値は、Hadrup と Lam (2014) が導出した TDI の 0.7% であり、健康リスクは小さいと推定された。しかしながら、Ag-NP の粒径に関する齟齬があるため、ハザードの特性評価結果が更新された場合には再度リスク評価を行う必要がある。

米試料を対象とした、無機ヒ素の簡易分析法を確立できた。

F. 研究発表

1. 論文発表

鈴木美成, 近藤翠, 北山育子, 穠山浩, 堤 智昭, 二次元モンテカルロシミュレーションを用いた食事性鉛曝露量分布の推定: トータルダイエツト試料への適用の試み. 食品衛生学雑誌, 64(1), 1-12 (2023).

鈴木美成, 食品を介した有害元素の摂取量推定. FFI ジャーナル, 228(1), 025-034 (2023).

2. 学会発表

鈴木美成, トータルダイエツト試料を用いた化学物質の曝露量推定とリスク評価, 第 49 回日本毒性学会学術年会 (2022.7).

Yoshinari Suzuki, Ikuko Kitayama, Masae Harimoto, Midori Kondo, Hiroshi Akiyama, Tomoaki Tsutsumi, Dietary exposure to trace elements in Japan in 2019-2021 with time trends since 1977, The 8th International Symposium on Metallomics (2022.7).

Yoshinari Suzuki, Masae Harimoto, Hiroshi Akiyama, Tomoaki Tsutsumi, Estimation of dietary exposure to Ag-nanoparticles using a total diet study, The 12th Global Summit on Regulatory Science (2022.10).

鈴木 美成, 高橋 未来, 近藤 翠, 張本 雅恵, 穠山 浩, 堤 智昭, 食品に含まれる銀ナノ粒子の実態と曝露量推定, 日本薬学会第 143 年会 (2023.3).

Table 1 2017-2019 年 国民健康・栄養調査 食品摂取量地域別集計結果 (平均値, 単位: g)

食品群	小分類	北海道	東北	関東Ⅰ	関東Ⅱ	北陸	東海	近畿Ⅰ	近畿Ⅱ	中国	四国	北九州	南九州	
1 群	米	290.9	331.1	281.9	307.8	331.5	301.3	287.6	311.1	307.8	314.9	312.2	316.0	
	米加工品	4.2	2.8	4.1	3.7	5.0	4.1	4.3	4.3	3.7	4.1	3.9	3.4	
	小麦粉類	3.3	2.8	3.6	3.8	2.9	3.6	4.9	3.6	4.2	5.2	4.2	4.0	
	パン類(菓子パンを除く)	34.7	21.4	36.5	30.0	29.2	36.5	43.7	41.5	37.1	34.3	33.1	28.9	
	菓子パン類	4.1	5.5	3.9	4.6	4.3	4.1	5.4	6.1	5.0	5.7	6.4	4.9	
	うどん、中華めん類	34.8	41.7	36.5	38.5	33.5	32.9	38.9	40.9	39.1	42.5	30.1	26.2	
	即席中華めん	6.2	5.6	4.7	4.7	3.4	4.0	4.0	3.2	4.4	4.2	6.8	3.2	
	パスタ	11.1	10.1	13.1	8.9	8.1	12.1	8.0	4.8	9.8	8.2	7.8	13.0	
	その他の小麦加工品	3.5	5.6	7.0	6.5	4.3	6.0	5.1	5.2	5.5	5.6	5.4	4.1	
	2 群	そば・加工品	12.6	5.2	8.3	7.5	5.3	4.8	4.6	3.1	3.1	5.3	2.5	3.9
		とうもろこし・加工品	1.1	0.58	1.6	1.2	0.82	1.1	1.0	0.89	1.3	0.89	0.99	0.42
		その他の穀類	3.6	2.2	3.0	3.1	1.7	3.3	3.0	1.9	1.8	2.5	4.0	4.2
さつまいも・加工品		3.7	6.2	7.1	7.2	7.4	7.6	5.5	5.8	10.0	10.7	8.2	5.7	
じゃがいも・加工品)		28.0	23.0	25.2	21.9	29.1	22.3	25.7	30.3	25.2	25.7	21.0	20.2	
その他のいも・加工品		11.8	22.4	13.4	17.8	27.6	19.8	15.3	17.6	16.9	16.6	16.5	18.5	
でんぷん・加工品		1.6	2.3	2.2	1.7	3.5	2.4	4.2	2.7	2.4	3.1	2.5	2.4	
種実類	2.1	1.9	3.0	2.4	2.1	2.9	2.3	3.1	2.5	2.5	2.0	2.5		
3 群	砂糖・甘味料類	6.2	5.3	6.2	6.0	6.0	7.1	6.6	7.0	7.2	7.6	6.6	7.3	
	和菓子類	9.3	10.5	11.4	8.7	11.3	11.0	10.3	10.2	11.0	12.2	9.3	9.1	
	ケーキ・ペストリー類	6.1	5.4	6.4	4.7	4.5	7.4	7.4	8.8	5.5	6.4	6.1	2.9	
	ビスケット類	1.6	1.5	1.8	1.7	2.2	2.0	1.8	1.8	1.8	2.2	1.9	2.0	
	キャンデー類	0.25	0.23	0.51	0.31	0.29	0.34	0.55	0.21	0.50	0.51	0.69	0.31	
	その他の菓子類	7.4	6.0	8.5	7.3	7.1	7.9	7.2	8.0	6.1	6.7	6.4	5.8	
4 郡	バター	1.4	0.67	1.3	0.80	0.77	1.1	1.3	1.2	0.95	0.92	0.79	0.84	
	マーガリン	0.68	0.80	1.1	1.1	0.84	1.1	1.3	1.1	1.3	1.3	0.96	0.74	
	植物性油脂	8.2	8.2	9.4	9.8	8.8	8.5	8.5	8.3	8.5	8.6	8.6	9.9	
	動物性油脂	0.20	0.12	0.22	0.25	0.07	0.21	0.15	0.22	0.12	0.17	0.15	0.12	
	その他の油脂)	0.01	0.02	0.02	0.02	0.00	0.03	0.04	0.03	0.02	0.00	0.02	0.02	
5 群	大豆(全粒)・加工品	1.3	1.1	1.7	1.5	2.1	2.2	1.5	1.8	1.8	2.1	1.5	2.3	
	豆腐	32.4	40.9	33.1	32.5	34.0	32.3	33.5	33.8	32.6	45.1	32.5	42.2	
	油揚げ類	4.3	5.8	6.0	6.0	9.8	7.4	8.7	9.2	6.6	8.9	7.5	7.2	
	納豆	11.7	13.9	10.4	12.2	9.2	7.3	6.5	6.3	6.6	5.1	8.3	10.7	
	その他の大豆加工品	8.6	7.7	9.2	7.9	5.8	8.6	8.7	6.2	6.8	6.5	9.6	8.9	
	その他の豆・加工品	0.70	0.60	1.5	1.6	1.6	1.2	1.3	0.94	1.6	2.0	0.95	2.3	
6 群	いちご	0.61	0.16	0.21	0.21	0.02	0.15	0.10	0.07	0.15	0.06	0.10	0.12	
	柑橘類	17.3	14.1	19.5	17.4	19.2	19.1	19.1	26.9	23.6	33.0	23.8	27.9	
	バナナ	16.6	11.7	16.5	13.5	12.2	17.3	18.1	16.1	16.0	14.9	16.2	13.2	
	りんご	20.7	31.3	20.0	26.8	16.4	17.2	15.7	12.5	15.5	19.3	11.4	13.8	
	その他の生果	35.2	34.7	33.0	35.4	55.6	32.3	31.0	31.5	35.1	32.4	24.8	27.3	
	ジャム	1.4	1.1	1.5	1.4	0.92	1.5	1.3	1.8	1.4	1.2	0.81	0.69	
	果汁・果汁飲料	8.0	8.3	12.3	10.3	8.0	8.1	9.3	14.2	7.0	9.2	8.5	9.5	

Table 1 つづき

食品群	小分類	北海道	東北	関東Ⅰ	関東Ⅱ	北陸	東海	近畿Ⅰ	近畿Ⅱ	中国	四国	北九州	南九州
7 群	トマト	18.7	12.7	21.4	17.2	15.5	17.4	15.7	14.1	11.5	16.0	14.2	17.3
	にんじん	18.0	20.7	19.9	20.1	22.3	19.4	19.6	18.4	20.7	18.9	18.4	19.7
	ほうれん草)	6.8	13.9	9.0	8.9	9.9	7.8	8.1	9.6	12.2	11.8	8.8	6.5
	ピーマン	5.4	4.0	4.8	4.2	4.3	3.7	3.9	2.6	6.2	3.7	5.2	5.2
	その他の緑黄色野菜	25.8	36.3	32.3	32.4	36.7	28.1	32.5	31.0	35.7	37.8	30.1	36.7
	野菜ジュース	12.1	10.0	16.6	12.0	9.7	12.6	13.6	13.2	12.8	10.4	10.6	11.9
8 群	キャベツ	30.2	31.7	30.7	32.6	31.9	28.5	27.1	25.8	27.8	32.5	28.7	36.4
	きゅうり	8.1	7.0	10.0	9.0	8.7	7.8	7.4	6.4	7.8	9.6	8.6	12.5
	大根	25.0	34.8	24.1	30.8	44.8	26.0	26.2	27.9	27.8	26.0	23.2	26.8
	たまねぎ	35.8	29.4	33.4	31.2	32.1	33.6	35.1	34.8	39.0	34.8	37.3	30.6
	はくさい	18.8	23.7	19.8	20.8	24.2	20.3	23.5	25.4	25.1	30.8	24.3	24.0
	その他の淡色野菜	45.2	51.5	50.5	46.9	53.1	42.5	37.5	33.5	39.4	38.3	41.3	47.3
	葉類漬け物	2.2	3.6	3.0	3.8	2.8	2.3	2.3	3.5	2.7	2.0	2.5	1.8
	たくあん・その他の漬け物	6.1	6.9	7.3	5.9	6.6	5.2	4.1	5.0	4.3	4.4	3.6	4.1
	きのこ類	13.2	19.6	15.2	16.3	16.3	16.1	15.1	14.6	17.1	17.2	16.0	22.0
	海草類	6.8	9.7	10.4	9.8	9.4	9.6	8.4	7.8	9.6	9.5	8.5	9.9
9 群	日本酒	9.5	11.4	7.6	9.5	12.3	7.5	6.2	8.0	9.0	4.7	6.9	3.2
	ビール	63.1	59.6	60.1	54.7	71.6	51.7	75.1	55.7	54.7	50.9	58.8	65.4
	洋酒・その他	33.3	35.3	38.4	37.4	34.2	28.2	29.6	26.2	30.3	27.3	34.5	50.2
	茶	177.8	167.7	254.5	253.8	197.8	300.5	221.8	224.3	211.7	280.0	258.8	306.7
	コーヒー・ココア	140.2	132.7	133.9	134.4	137.9	138.6	150.4	147.6	163.3	146.2	134.3	123.4
	その他の嗜好飲料	102.4	84.5	128.5	123.5	114.2	155.8	181.5	104.9	179.1	136.4	172.2	107.3
10 群	あじ、いわし類	6.8	9.4	7.8	5.5	8.3	8.0	9.0	12.9	9.1	8.5	12.0	12.6
	さけ、ます	6.7	8.7	5.2	4.2	6.3	4.2	4.7	4.7	3.4	3.2	3.8	4.5
	たい、かれい類	5.3	4.1	3.8	2.5	5.8	3.8	5.5	6.2	4.5	5.8	4.7	4.0
	まぐろ、かじき類	3.2	4.3	5.4	4.3	1.4	4.5	2.3	1.9	1.6	3.2	1.5	2.5
	その他の生魚	5.0	6.6	5.0	3.5	9.4	6.6	7.6	7.3	9.0	11.6	7.0	9.3
	貝類	2.9	3.0	3.2	2.1	2.9	2.3	2.2	3.0	1.3	0.60	1.2	1.9
	いか、たこ類	1.8	3.7	2.7	3.6	3.5	2.6	3.1	2.6	3.8	2.5	2.8	2.2
	えび、かに類	1.9	2.9	3.4	2.9	5.3	3.9	4.2	4.5	4.6	3.6	3.2	3.1
	魚介(塩蔵、生干し、乾物)	20.8	18.3	15.8	18.5	13.9	11.1	12.4	15.9	13.2	10.4	10.3	13.3
	魚介(缶詰)	5.1	4.2	3.1	4.4	3.7	3.0	3.0	2.1	2.2	1.9	2.7	5.5
	魚介(佃煮)	0.26	0.27	0.20	0.18	0.08	0.16	0.22	0.22	0.10	0.16	0.12	0.12
	魚介(練り製品)	6.5	8.3	7.0	7.8	12.2	8.9	11.3	9.4	9.5	8.8	7.8	7.6
	魚肉ハム、ソーセージ	1.32	1.09	0.62	0.32	0.77	0.83	0.48	0.15	1.13	0.23	1.03	1.06
11 群	牛肉	9.4	11.6	14.3	9.7	6.7	15.7	21.7	21.5	17.4	21.6	15.2	11.9
	豚肉	45.0	42.4	44.1	44.9	37.8	40.1	38.2	33.9	35.9	30.9	37.5	41.7
	ハム、ソーセージ類	15.3	12.6	13.6	14.2	13.2	14.1	12.5	13.9	11.2	11.7	12.3	13.0
	その他の畜肉	2.66	0.00	0.30	0.34	0.10	0.36	0.36	0.00	0.72	0.21	0.03	0.32
	鶏肉	24.2	23.1	31.0	30.2	30.1	30.5	34.1	38.0	32.9	28.8	37.5	37.8
	その他の鳥肉)	0.03	0.07	0.04	0.00	0.00	0.04	0.16	0.19	0.15	0.11	0.00	0.33

Table 1 つづき

食品群	小分類	北海道	東北	関東Ⅰ	関東Ⅱ	北陸	東海	近畿Ⅰ	近畿Ⅱ	中国	四国	北九州	南九州
11 群	肉類(内臓)	0.40	1.4	1.3	1.1	1.1	2.4	1.6	0.80	1.2	0.78	2.4	1.8
	鯨肉	0.00	0.16	0.00	0.00	0.02	0.04	0.08	0.13	0.12	0.00	0.06	0.00
	その他の肉・加工品)	0.00	0.07	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
	卵類	41.4	39.0	36.3	35.0	38.4	39.9	44.0	41.9	42.3	42.3	40.7	42.6
12 群	牛乳	85.5	73.6	85.8	84.6	74.9	83.6	82.3	81.5	81.5	81.3	78.0	80.2
	チーズ	4.2	2.2	4.8	3.4	3.2	4.0	3.6	3.2	3.0	2.4	3.1	3.2
	発酵乳・乳酸菌飲料	36.2	36.0	41.9	37.2	31.5	41.8	36.2	36.2	37.6	38.3	29.2	34.6
	その他の乳製品	9.0	8.6	8.9	9.4	7.1	8.8	8.2	11.0	7.8	8.4	8.8	7.2
	その他の乳類	0.00	0.00	0.15	0.00	0.00	0.00	0.06	0.00	0.87	1.28	0.00	0.12
13 群	ソース	1.2	1.5	1.9	1.6	1.7	2.0	2.3	1.5	2.0	2.0	1.8	1.3
	しょうゆ	10.5	10.7	11.3	12.1	12.5	11.8	11.7	13.0	12.9	12.9	12.3	13.6
	塩	1.2	1.2	1.3	1.3	1.3	1.2	1.2	1.2	1.2	1.1	1.1	1.3
	マヨネーズ	3.4	3.8	3.3	3.2	4.4	3.1	3.5	3.5	3.1	2.9	3.2	3.3
	味噌	10.7	13.6	10.0	9.8	11.6	10.2	8.9	8.1	8.7	8.4	9.4	12.2
	その他の調味料	41.9	42.3	45.1	35.5	42.9	41.8	40.5	46.1	42.2	36.0	37.2	40.4
	香辛料・その他	0.35	0.28	0.50	0.58	0.35	0.44	0.36	0.36	0.36	0.26	0.31	0.38

Table 2 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, ⁹⁰ Zr, 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 3 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 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 4 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 5 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 6 2022 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	53.2	53.2	31.0	63.5	52.3	54.2	0.59	0.66	22.0	22.6	1106	1106
2 群	96.1	96.1	323	323	27.9	30.5	0.92	0.92	4.67	5.58	607	607
3 群	27.7	27.7	48.2	48.2	4.62	4.73	0.30	0.30	2.38	2.64	91.0	91.0
4 群	0.00	0.15	3.65	4.12	0.09	0.37	0.00	0.00	0.00	0.24	0.09	0.10
5 群	254	254	60.5	60.5	10.9	10.9	0.32	0.32	1.95	1.98	635	635
6 群	148	148	24.4	32.7	3.96	4.62	0.09	0.10	1.34	1.57	273	273
7 群	156	156	126	126	6.26	6.26	0.29	0.29	3.14	3.27	227	227
8 群	347	347	586	586	19.1	19.1	7.64	7.64	7.09	7.24	963	963
9 群	158	158	704	704	4.13	8.58	2.81	2.89	6.89	8.37	537	537
10 群	42.1	42.1	400	400	28.2	28.2	1.58	1.58	3.20	3.20	56.1	56.1
11 群	14.7	14.7	221	221	16.4	16.4	0.20	0.20	5.43	5.57	40.1	40.1
12 群	27.4	27.4	19.8	29.7	7.08	7.08	0.00	0.08	1.64	1.86	5.03	5.03
13 群	141	141	207	207	9.80	9.80	1.27	1.27	6.69	6.69	364	364
14 群	12.1	12.1	6.20	6.22	0.00	0.10	0.43	0.43	0.00	0.02	0.07	0.07
合計	1478	1478	2761	2812	191	201	16.4	16.7	66.4	70.9	4905	4905

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	328	354	0.55	0.55	27.6	27.6	279	279	2280	2280	0.31	0.31
2群	1149	1149	2.05	2.05	20.7	20.7	176	176	832	832	0.10	0.10
3群	350	350	0.46	0.46	5.35	5.35	31.6	31.6	186	186	0.02	0.02
4群	0.00	1.67	0.00	0.00	0.00	0.08	0.08	0.09	1.90	1.92	0.00	0.00
5群	1681	1681	1.23	1.23	60.1	60.1	179	179	848	848	0.08	0.08
6群	167	167	0.36	0.36	4.44	4.44	53.4	53.4	90.3	90.3	0.02	0.02
7群	437	437	0.67	0.67	5.14	5.14	56.8	56.8	334	334	0.04	0.04
8群	1513	1513	2.05	2.05	13.6	13.6	125	125	627	627	0.19	0.19
9群	161	322	1.43	1.43	11.6	11.6	18.2	24.9	76.5	113	0.04	0.06
10群	830	830	0.94	0.94	1.97	2.03	61.9	61.9	882	882	0.17	0.17
11群	2648	2648	0.31	0.31	1.41	1.98	110	110	4041	4041	0.14	0.14
12群	8.34	46.6	0.00	0.06	0.00	0.27	8.33	8.33	713	713	0.01	0.01
13群	767	767	1.14	1.14	21.2	21.2	48.2	48.2	368	368	0.05	0.05
14群	0.48	2.22	0.00	0.00	0.22	0.24	1.83	1.83	1.65	1.71	0.01	0.01
合計	10040	10268	11.2	11.2	173	174	1150	1156	11282	11318	1.18	1.21

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	15.3	15.3	5.60	5.60	179	179	26.8	26.8	0.00	0.28	108	108
2群	1.86	1.86	15.2	15.2	167	167	150	150	0.29	0.35	14.8	14.8
3群	0.23	0.23	1.49	1.49	65.4	65.4	32.7	32.7	0.09	0.09	4.15	4.15
4群	0.00	0.00	0.10	0.10	0.65	0.65	0.22	0.24	0.00	0.01	0.04	0.04
5群	0.38	0.38	2.57	2.57	136	136	119	119	0.08	0.09	42.8	42.8
6群	0.12	0.13	0.38	0.38	160	160	51.6	51.6	0.22	0.24	1.50	1.50
7群	0.18	0.18	0.31	0.40	183	183	91.8	91.8	0.09	0.11	4.39	4.39
8群	107	107	1.20	1.25	264	264	913	913	0.98	0.98	12.4	12.4
9群	0.33	0.47	0.00	1.39	253	253	49.2	49.2	0.12	0.32	0.95	1.23
10群	125	125	37.9	37.9	50.8	50.8	402	402	0.28	0.30	0.71	0.71
11群	0.60	0.60	39.7	39.7	682	682	38.8	38.8	1.63	1.65	7.43	7.43
12群	0.01	0.07	4.52	4.52	290	290	62.5	62.5	1.65	1.65	5.51	5.51
13群	2.60	2.60	5.33	5.33	126	126	149	149	0.21	0.22	17.5	17.5
14群	0.12	0.12	0.04	0.04	0.67	0.67	15.0	15.0	0.00	0.00	0.12	0.12
合計	254	254	114	116	2557	2557	2102	2102	5.64	6.30	221	221

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	5.60	5.60	0.00	0.31	0.09	0.41	0.33	0.33	8.48	8.61	0.00	0.01
2群	2.46	2.46	0.40	0.47	0.05	0.21	0.37	0.37	88.2	88.2	0.19	0.19
3群	0.37	0.37	0.07	0.08	0.00	0.02	0.19	0.19	13.9	13.9	0.02	0.02
4群	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00	0.01	0.00	0.00	0.14	0.31	0.00	0.00
5群	0.92	0.92	0.59	0.60	0.07	0.09	0.28	0.28	56.8	56.8	0.08	0.08
6群	0.08	0.08	1.10	1.12	0.03	0.06	0.59	0.59	25.8	25.8	0.09	0.09
7群	1.44	1.44	0.00	0.16	0.02	0.03	0.31	0.31	49.9	49.9	0.15	0.15
8群	3.30	3.30	0.00	0.34	0.02	0.05	0.76	0.76	74.6	74.6	0.80	0.80
9群	0.04	0.12	0.00	1.03	0.11	0.18	1.00	1.00	17.0	17.4	0.04	0.06
10群	1.13	1.13	0.41	0.41	0.11	0.12	1.07	1.07	9.33	9.33	0.23	0.23
11群	0.06	0.06	0.83	0.90	0.07	0.11	2.24	2.24	29.6	29.6	0.01	0.01
12群	0.00	0.02	0.20	0.39	0.13	0.13	0.82	0.82	10.6	10.6	0.00	0.01
13群	0.58	0.58	0.33	0.35	0.05	0.06	0.38	0.38	46.4	46.4	0.12	0.12
14群	0.00	0.00	0.01	0.01	0.03	0.03	0.26	0.26	1.89	1.89	0.00	0.00
合計	16.0	16.1	3.94	6.18	0.77	1.52	8.61	8.61	433	433	1.74	1.77

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	0.04	0.00	0.00	0.00	0.02	0.00	0.00	0.000	0.001	0.00	0.00
2 群	0.20	0.20	0.03	0.03	0.13	0.13	0.02	0.02	0.005	0.005	0.03	0.03
3 群	0.04	0.04	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	0.001	0.001	0.00	0.00
4 群	0.01	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.000	0.000	0.00	0.00
5 群	0.08	0.08	0.01	0.01	0.05	0.05	0.01	0.01	0.002	0.002	0.01	0.01
6 群	0.08	0.09	0.01	0.01	0.04	0.04	0.01	0.01	0.001	0.001	0.01	0.01
7 群	0.09	0.09	0.02	0.02	0.07	0.07	0.01	0.01	0.002	0.002	0.01	0.01
8 群	0.78	0.78	0.16	0.16	0.71	0.71	0.20	0.20	0.052	0.052	0.29	0.29
9 群	0.05	0.13	0.01	0.01	0.05	0.05	0.01	0.01	0.002	0.002	0.01	0.01
10 群	0.37	0.37	0.05	0.05	0.18	0.18	0.04	0.04	0.007	0.007	0.04	0.04
11 群	0.00	0.04	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	0.000	0.000	0.00	0.00
12 群	0.00	0.02	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.000	0.000	0.00	0.00
13 群	0.22	0.22	0.03	0.03	0.10	0.10	0.02	0.02	0.004	0.004	0.02	0.02
14 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.000	0.000	0.00	0.00
合計	1.94	2.10	0.33	0.33	1.33	1.37	0.32	0.33	0.076	0.077	0.42	0.43

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	0.00	0.00	0.000	0.000	0.00	0.00	0.000	0.000	0.00	0.00
2 群	0.005	0.005	0.03	0.03	0.006	0.006	0.02	0.02	0.002	0.002	0.01	0.01
3 群	0.001	0.001	0.00	0.00	0.001	0.001	0.00	0.00	0.000	0.000	0.00	0.00
4 群	0.000	0.000	0.00	0.00	0.000	0.000	0.00	0.00	0.000	0.000	0.00	0.00
5 群	0.002	0.002	0.01	0.01	0.003	0.003	0.01	0.01	0.001	0.001	0.01	0.01
6 群	0.001	0.001	0.01	0.01	0.001	0.001	0.00	0.00	0.000	0.000	0.00	0.00
7 群	0.001	0.002	0.01	0.01	0.002	0.002	0.00	0.00	0.001	0.001	0.00	0.00
8 群	0.044	0.044	0.27	0.27	0.054	0.054	0.15	0.15	0.019	0.019	0.12	0.12
9 群	0.000	0.003	0.01	0.01	0.002	0.002	0.01	0.01	0.001	0.001	0.01	0.01
10 群	0.006	0.006	0.04	0.04	0.007	0.007	0.02	0.02	0.002	0.002	0.01	0.01
11 群	0.000	0.000	0.00	0.00	0.000	0.000	0.00	0.00	0.000	0.000	0.00	0.00
12 群	0.000	0.001	0.00	0.00	0.000	0.000	0.00	0.00	0.000	0.000	0.00	0.00
13 群	0.002	0.002	0.01	0.01	0.003	0.003	0.01	0.01	0.001	0.001	0.01	0.01
14 群	0.000	0.000	0.00	0.00	0.000	0.000	0.00	0.00	0.000	0.000	0.00	0.00
合計	0.062	0.066	0.39	0.39	0.078	0.079	0.22	0.22	0.028	0.028	0.18	0.18

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	0.75	0.75	0.31	0.31	0.05	0.27	0.00	0.00
2 群	0.001	0.001	0.29	0.29	0.01	0.01	0.32	0.34	0.06	0.06
3 群	0.000	0.000	0.13	0.14	0.01	0.01	0.02	0.04	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	0.07	0.07	0.00	0.00	0.22	0.22	0.03	0.03
6 群	0.000	0.000	0.03	0.04	0.00	0.00	0.21	0.21	0.00	0.00
7 群	0.000	0.001	0.00	0.06	0.01	0.01	0.28	0.29	0.02	0.02
8 群	0.019	0.019	0.06	0.18	0.05	0.05	1.14	1.14	0.75	0.75
9 群	0.001	0.001	0.42	0.78	0.00	0.01	1.01	1.19	0.01	0.02
10 群	0.002	0.002	0.05	0.05	6.25	6.25	0.44	0.44	0.20	0.20
11 群	0.000	0.000	0.04	0.07	0.12	0.12	0.17	0.20	0.05	0.05
12 群	0.000	0.000	0.17	0.18	0.00	0.00	0.05	0.10	0.02	0.02
13 群	0.001	0.001	0.13	0.13	0.01	0.01	0.24	0.24	0.02	0.02
14 群	0.000	0.000	0.02	0.02	0.00	0.01	0.07	0.07	0.00	0.00
合計	0.026	0.028	2.18	2.79	6.79	6.81	4.22	4.78	1.18	1.19

Table 7 2022 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 as As)

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	11.7	11.7	0.03	0.04	2.48	2.48	0.00	0.02
2 群	1.05	1.07	0.00	0.01	0.04	0.05	0.01	0.02
3 群	0.15	0.15	0.00	0.00	0.02	0.02	0.01	0.01
4 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
5 群	0.13	0.13	0.00	0.00	0.02	0.02	0.00	0.01
6 群	0.04	0.04	0.00	0.00	0.01	0.01	0.00	0.00
7 群	0.14	0.14	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
8 群	2.68	2.68	0.12	0.12	3.12	3.12	0.24	0.24
9 群	0.17	0.21	0.00	0.01	0.00	0.01	0.02	0.03
10 群	0.29	0.30	0.40	0.40	0.85	0.85	63.3	63.3
11 群	0.03	0.05	0.00	0.01	0.10	0.10	0.25	0.25
12 群	0.00	0.04	0.01	0.01	0.00	0.01	0.00	0.01
13 群	0.39	0.39	0.00	0.00	0.12	0.12	1.28	1.28
14 群	0.06	0.06	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
合計	16.8	17.0	0.56	0.62	6.75	6.79	65.1	65.2

Table 8 メチル水銀の推定一日摂取量と総水銀に対するメチル水銀の割合*

食品群	Me-Hg ($\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$ as Hg)	Me-Hg の割合 (%)
1 群	0.22 ± 0.10	70.0 ± 15.1
10 群	5.32 ± 2.07	88.6 ± 9.0
11 群	0.11 ± 0.09	88.5 ± 9.8
1+10+11 群	5.64 ± 2.06	-

* 調査した全ての試料から Me-Hg は検出された。

Table 9 2022 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一日摂取量の平均値と健康リスク評価

元素	HBGV ^a (µg/kg/day)	出典および参照値	推定摂取量 ^b (µg/kg/day)	ハザード比 (HQ)	曝露マージン (MOE)
B	96–200	US EPA (2004), RfD (Oral): 200 µg/kg/day (発達) 食品安全委員会 (2012), TDI (Oral): 96 µg/kg/day	26.9	0.16–0.33	–
Al	143–300	EFSA (2008), TWI (Oral): 1000 µg/kg/week 食品安全委員会 (2017), TWI (Oral): 2100 µg/kg/week	51.1	0.15–0.32	–
V	9	US EPA (1988), RfD (Oral): 9 µg/kg/day (5 価、毛髪中システインの減少)	0.30	0.03	–
Mn	140	US EPA (1995), RfD (Oral): 140 µg/kg/day (中枢神経系への影響)	89.2	0.64	–
Ni	2.8 – 20	US EPA (1991), RfD (Oral): 20 µg/kg/day (体重および組織重量の減少) 食品安全委員会 (2012), TDI (Oral): 4.0 µg/kg/day (皮膚炎) EFSA (2015) TDI (Oral): 2.8 µg/kg/day	3.2	0.16–1.13	–
iAs	0.21 – 0.30 (3.0)	US EPA (1991), RfD (Oral): 0.3 µg/kg/day (心臓血管, 皮膚) US EPA (1995), Oral Slope Factor: 1.5 per mg/kg-day (皮膚がん) EFSA (2005), TWI(暫定): 1.5 µg/kg/week JECFA (2011), BMDL _{0.5} : 3.0 µg/kg/day (ヒト肺癌)	0.31	1.03 – 1.48	9.7 [UFs ^c =40]
Se	4.0 – 5.0	US EPA (1991), RfD (Oral): 5.0 µg/kg/day (神経系, 血液系, 皮膚) 食品安全委員会 (2012), TDI (Oral): 4.0 µg/kg/day	2.11	0.42–0.53	–
Mo	5.0	US EPA (1992), RfD (Oral): 5.0 µg/kg/day (膀胱)	4.02	0.80	–
Cd	0.36 – 1.0	US EPA (1988), RfD (Oral): 1.0 µg/kg/day (食品)、1.0 µg/kg/day (水) (顕著なタンパク尿) 食品安全委員会 (2008), TWI (Oral): 7.0 µg/kg/week EFSA (2011), TWI (Oral): 2.5 µg/kg/week WHO/JECFA (2013), PTMI: 25 µg/kg/month	0.29	0.29–0.82	–

a: Health-based guideline value, ()内の値は BMDL を示す。

b: ND=0.5LOQ を代入し、体重を 55 kg として算出した。

c: 安全係数積

d: 1 群、10 群、および 11 群のみの総和から算出した。

e: 幼児 (1-6 歳) の推定摂取量。摂取カロリーを基に 0.688 倍した。体重は 15 kg として算出した。

Table 9 つづき

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)
Sn	2000	WHO/JECFA (1988), PTWI: 14000 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{week}$	6.18	6×10^{-5}	—
Sb	0.4 – 6	US EPA (1987), RfD (Oral): 0.4 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ (血液系, Other) EFSA (2004) TDI (Oral): 6 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ (3 価)	0.028	0.005–0.069	—
Ba	20 – 200	US EPA (2005), RfD (Oral): 200 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ (腎毒性) 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)	7.9	0.04–0.39	—
Hg	0.57	WHO/JECFA (2011), PTWI: 4 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{week}$ EFSA (2012), TWI (Oral): 1.3 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{week}$	0.12	0.26	—
MeHg	0.19 – 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	0.10 ^d	0.35–0.55	—
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)	0.087 (0.060) ^e	—	8.4–17.3 [UFs ^c =1]
U	0.2–3.0	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 食品安全委員会 (2012) TDI: 0.2 $\mu\text{g}/\text{kg}$ bw/day	0.02	0.007–0.10	—

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: UF_s 安全係数積

d: 1 群、10 群、および 11 群のみの総和から算出した。

e: 幼児 (1-6 歳) の推定摂取量。摂取カロリーを基に 0.688 倍した。

Table 10 微量ミネラルの推定摂取量と日本人の食事摂取基準 (2020 年版)^aとの比較

元素	推定摂取量 ($\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$)	推定平均必要量 ^b ($\mu\text{g}/\text{day}$)	推奨量 ^b ($\mu\text{g}/\text{day}$)	耐用上限値 ^b ($\mu\text{g}/\text{day}$)
Cr	70.9	-	10 ^c (18 歳以上)	500 (18 歳以上)
Mn	4910	-	1500 – 4000 ^c	11000 (18 歳以上)
Fe	10300	3000 – 8000	4500 – 12000	20000–50000
Cu	1160	200 – 700	300 – 900	7000 (18 歳以上)
Zn	11300	2000 – 10000	3000 – 12000	30000 – 45000 (18 歳以上)
Se	116	10 – 30	10 – 35	100 – 450
Mo	221	10 – 25	10 – 30	500 – 600 (18 歳以上)

a: 「日本人の食事摂取基準 (2020 年版)」策定検討会報告書より引用

b: 性別および年齢等により必要量は異なり、1 歳以上を対象としてその範囲を記載している。妊婦および授乳婦に対する付加量は含まない。

c: 目安量

Table 11 2019-2020 年の東京および大阪の TD 試料中に含まれる銀ナノ粒子の平均摂取量

Food Group	粒径		摂取量 ^a		
	平均 (nm)	最大値 (nm)	Total-Ag ^b (ng/person/day)	Ag-NP (ng/person/day)	Ag-NP (particle/人/day)
1	30.1	102	179	64	3.9 × 10 ⁸
2	28.8	111	155	66	4.6 × 10 ⁸
3	37.6	145	82	54	1.9 × 10 ⁸
4	30.3	119	5	3	0.2 × 10 ⁸
5	30.4	133	25	27	1.3 × 10 ⁸
6	28.9	139	20	42	2.8 × 10 ⁸
7	28.9	196	68	44	2.6 × 10 ⁸
8	26.2	110	296	127	12.1 × 10 ⁸
9	27.4	190	253	452	29.5 × 10 ⁸
10	25.3	217	1550	65	6.2 × 10 ⁸
11	31.5	160	83	76	3.6 × 10 ⁸
12	24.4	198	33	98	10.9 × 10 ⁸
13	29.1	253	45	52	3.0 × 10 ⁸
14	28.2	39.8	5	0.01	3.8 × 10 ⁴
Total	27.5 ^c	-	2800	971	80.7 × 10 ⁹

a 粒径 100 nm 未満の粒子を用いて算出した。

b 不検出値には LOQ の半値を代入して摂取量を算出した。

c 各食品群の Ag-NP 摂取量 (particle/人/day) で重み付けした値の平均値。

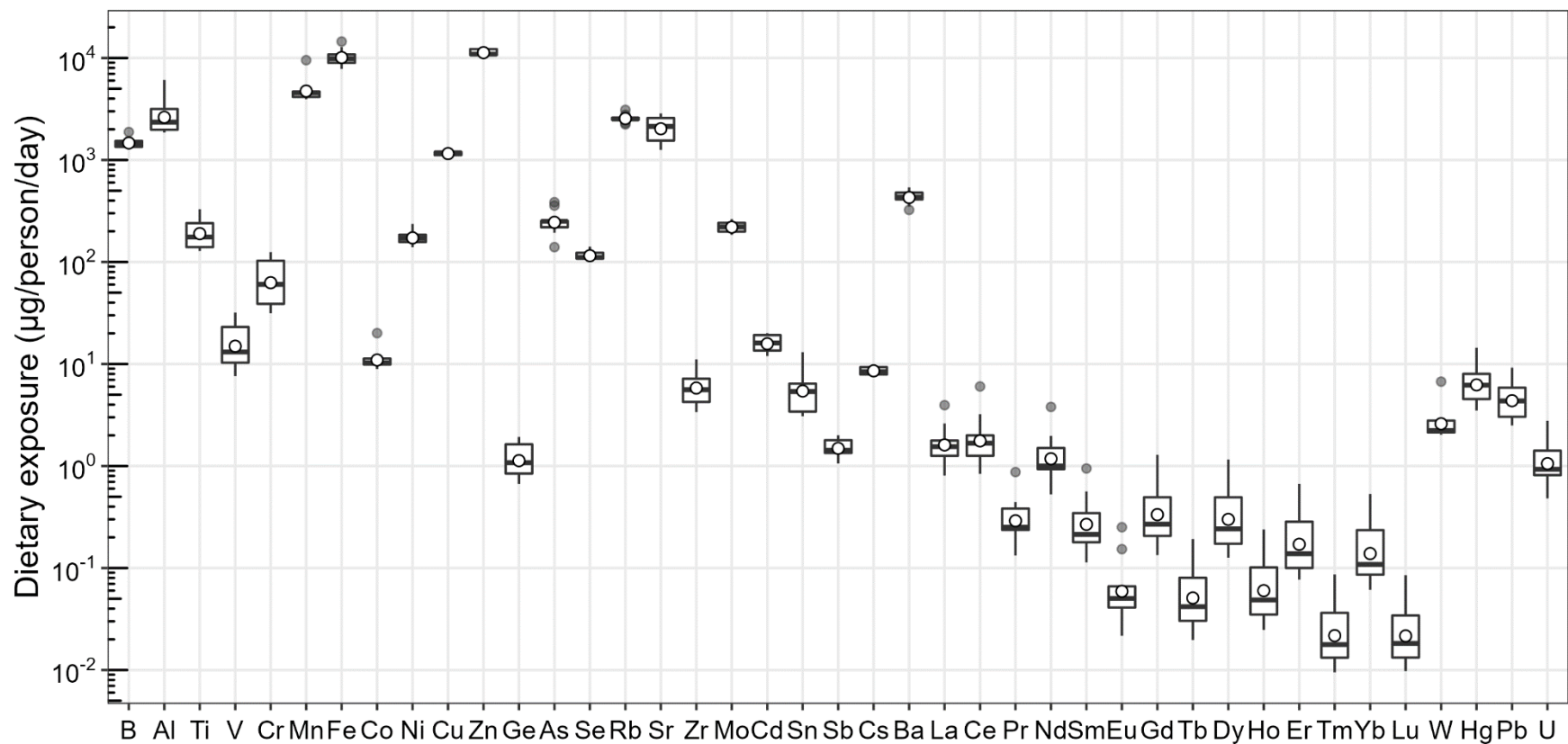


Fig. 1 2022年に10地域のTD試料から推定した元素類の推定一日摂取量

NDとなった測定結果にはLOQの半値を代入した。白丸: 平均値; 横線: 中央値; 箱: 四分位範囲; ひげ: [第1四分位点-1.5×四分位, 第3四分位点+1.5×四分位]範囲内の最大/最小値; 灰色丸: 外れ値

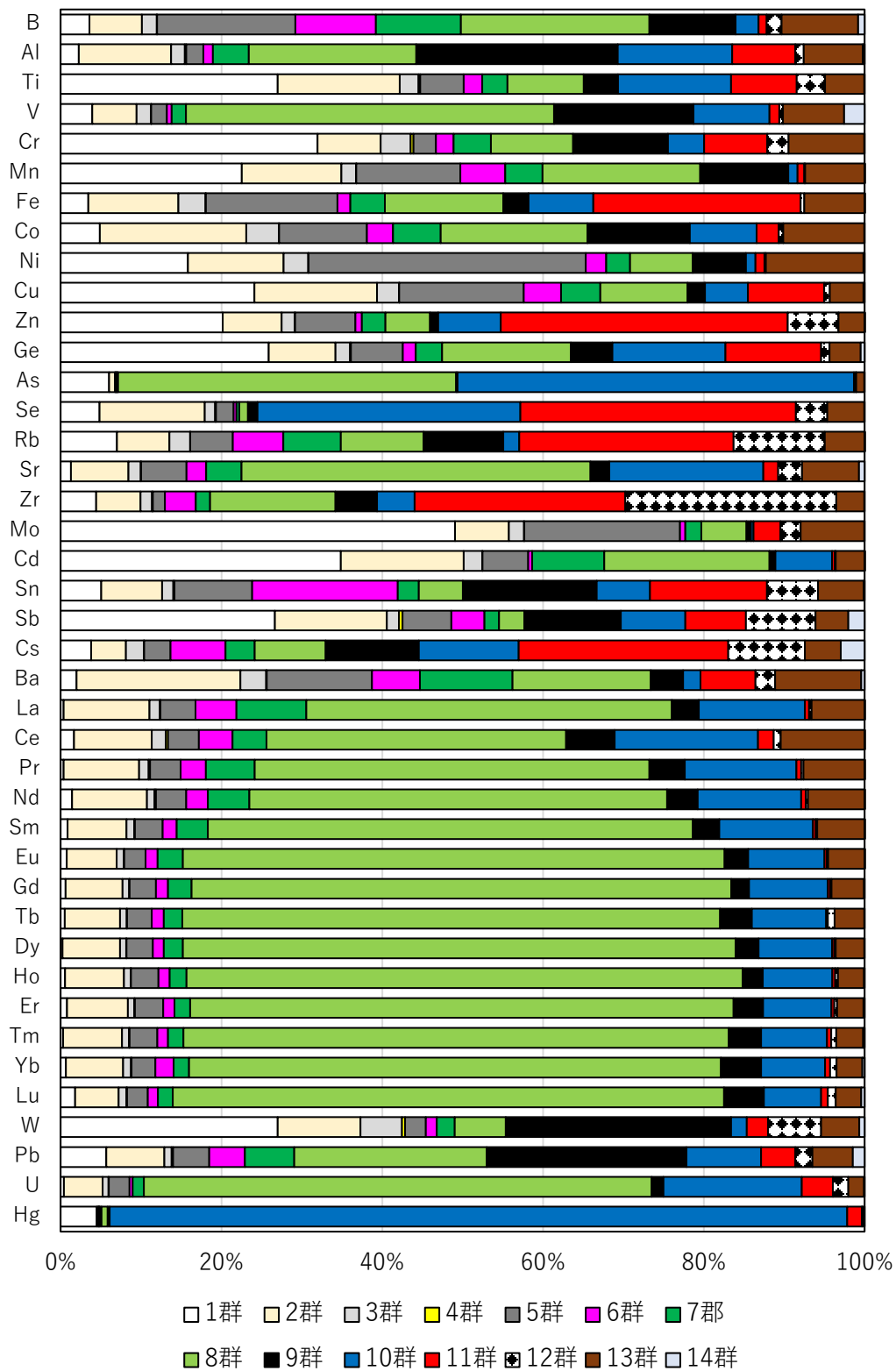
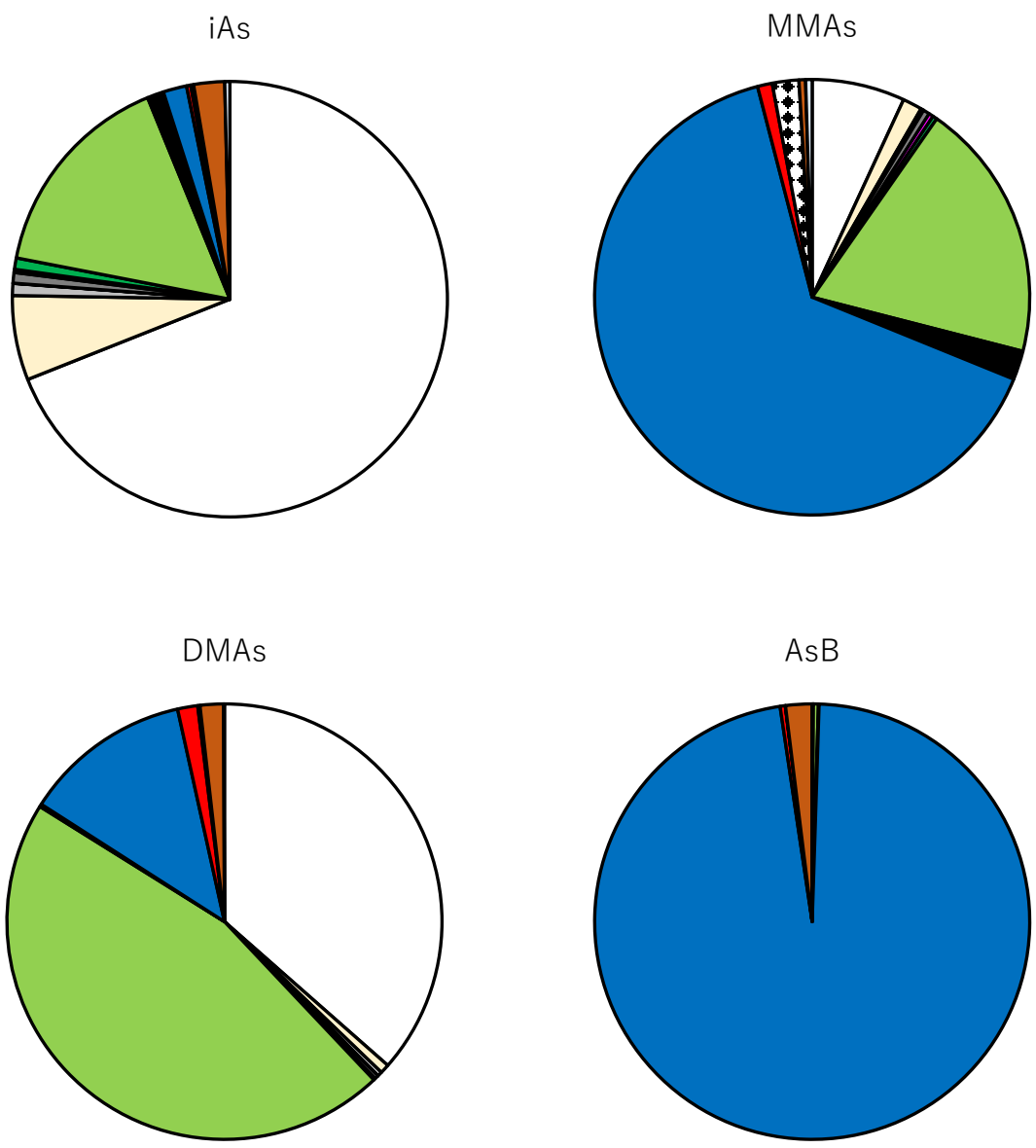


Fig. 2 2022 年に行った TDS における有害元素摂取量の各食品群の平均寄与率 ND となった測定結果には LOQ の半値を代入した。



- 1群 □ 2群 □ 3群 □ 4群 □ 5群 □ 6群 □ 7群
- 8群 ■ 9群 ■ 10群 ■ 11群 ■ 12群 ■ 13群 □ 14群

Fig. 3 As 化学種の摂取量における各食品群の寄与率
 ND となった測定結果には LOQ の半値を代入した。

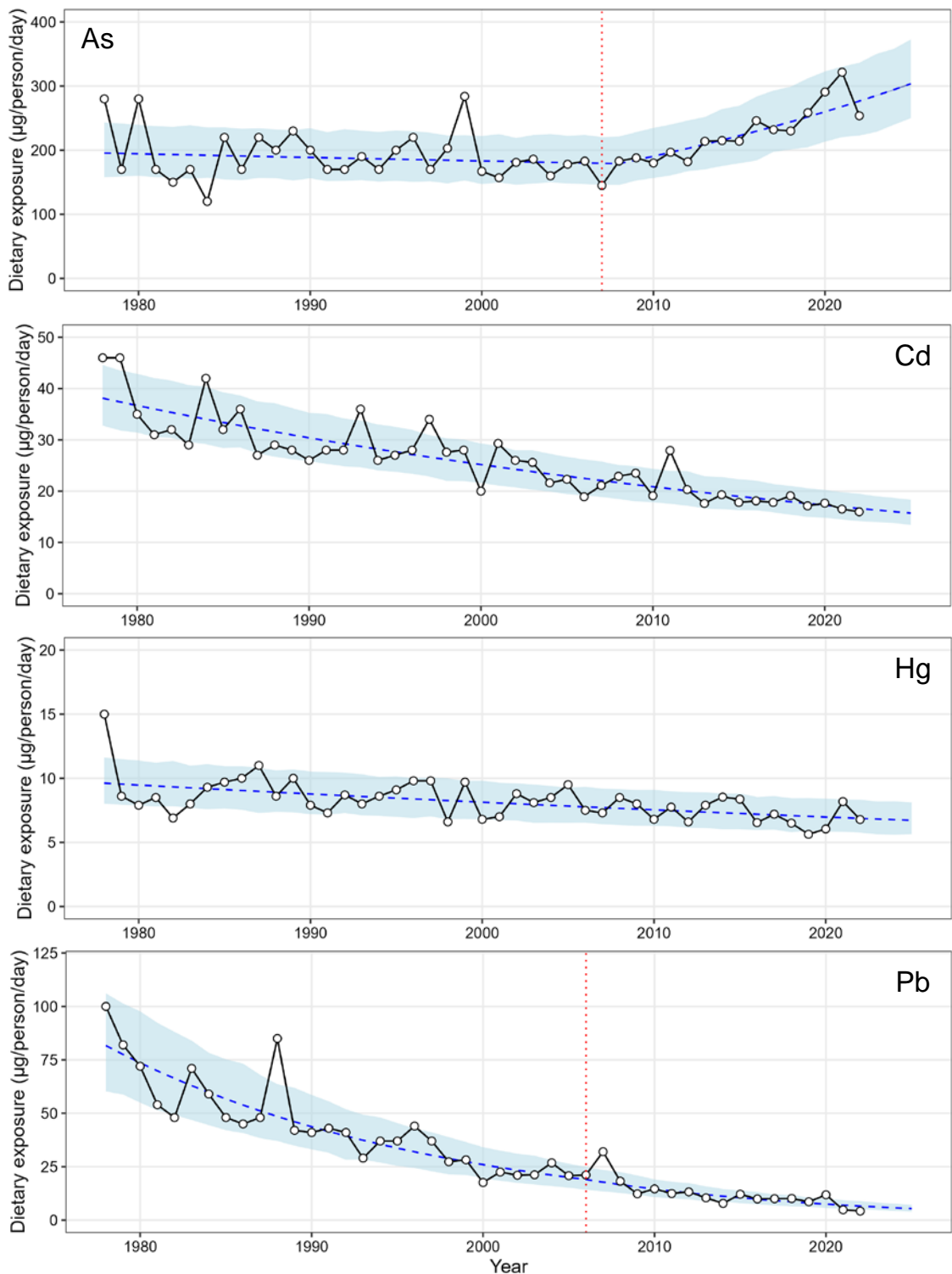


Fig. 4 As, Cd, Hg, Pb の推定一日摂取量の経年変動

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。

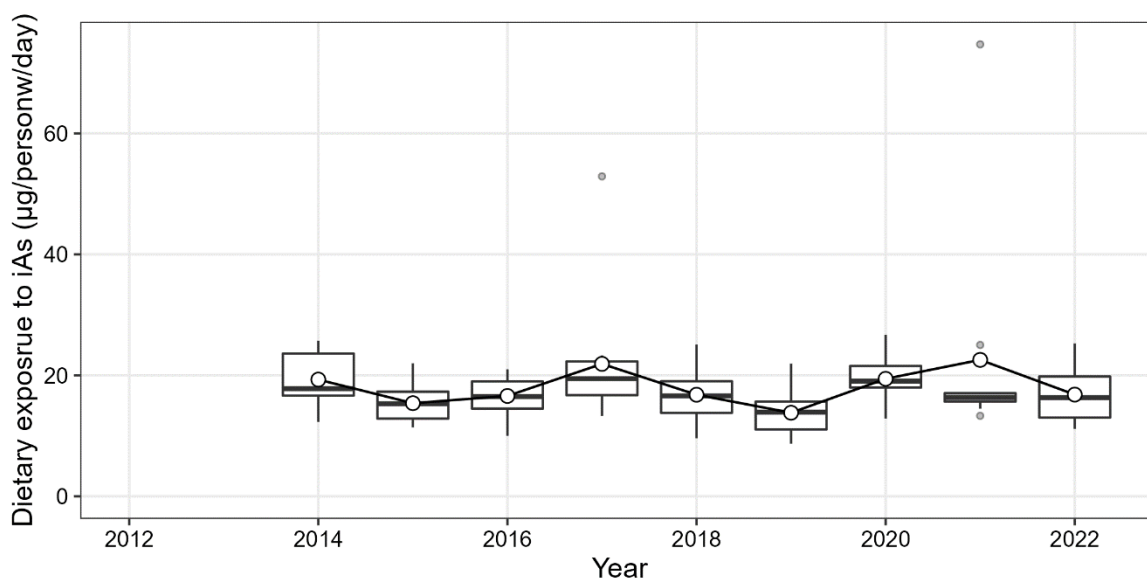


Fig. 5 iAs の摂取量の経年変動

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: [第 1 四分位点-1.5×四分位, 第 3 四分位点+1.5×四分位]範囲内の最大/最小値 ; 灰色丸: 外れ値

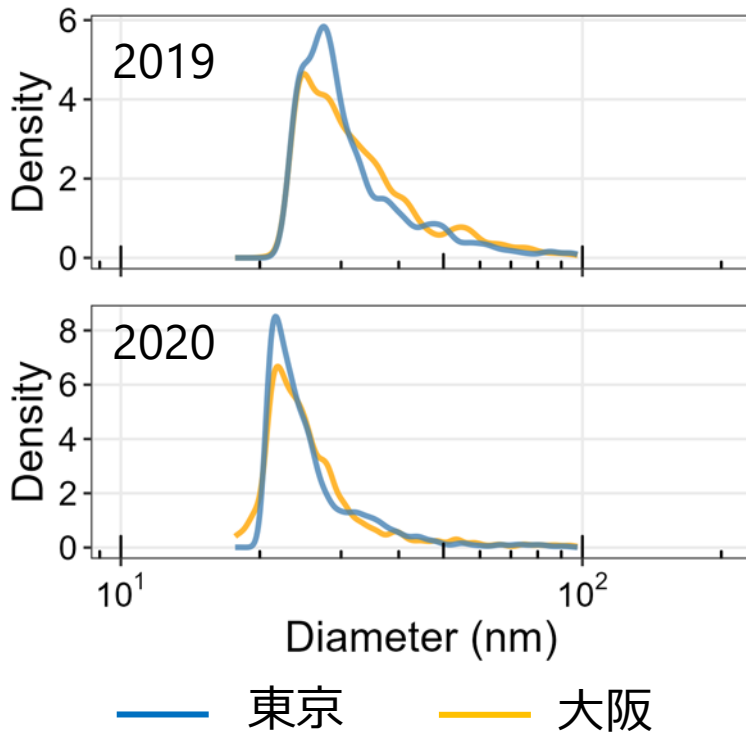


Fig. 6 全食品群合計の Ag-NP 粒径分布

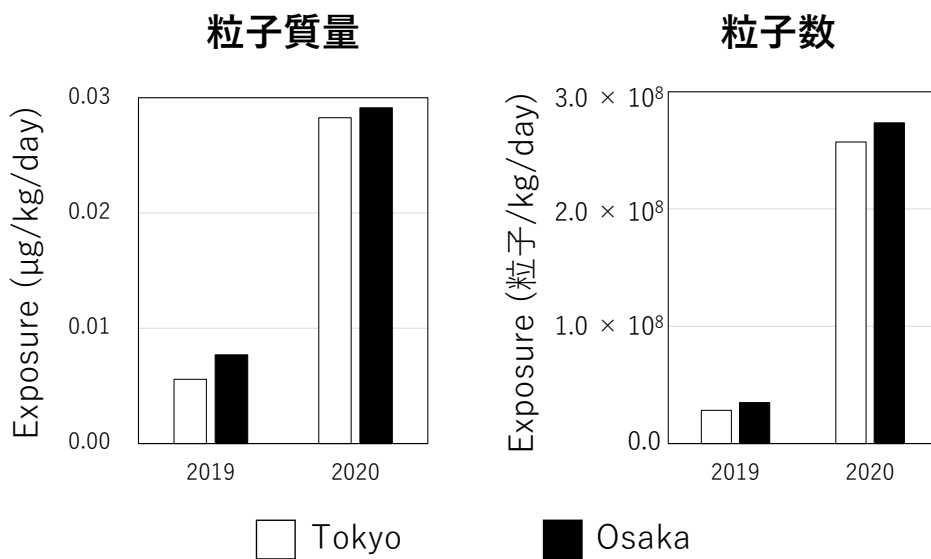


Fig. 7 新型コロナウイルス感染拡大前後の Ag-NP の摂取量変化
粒径 100 nm 未満の粒子を用いて算出

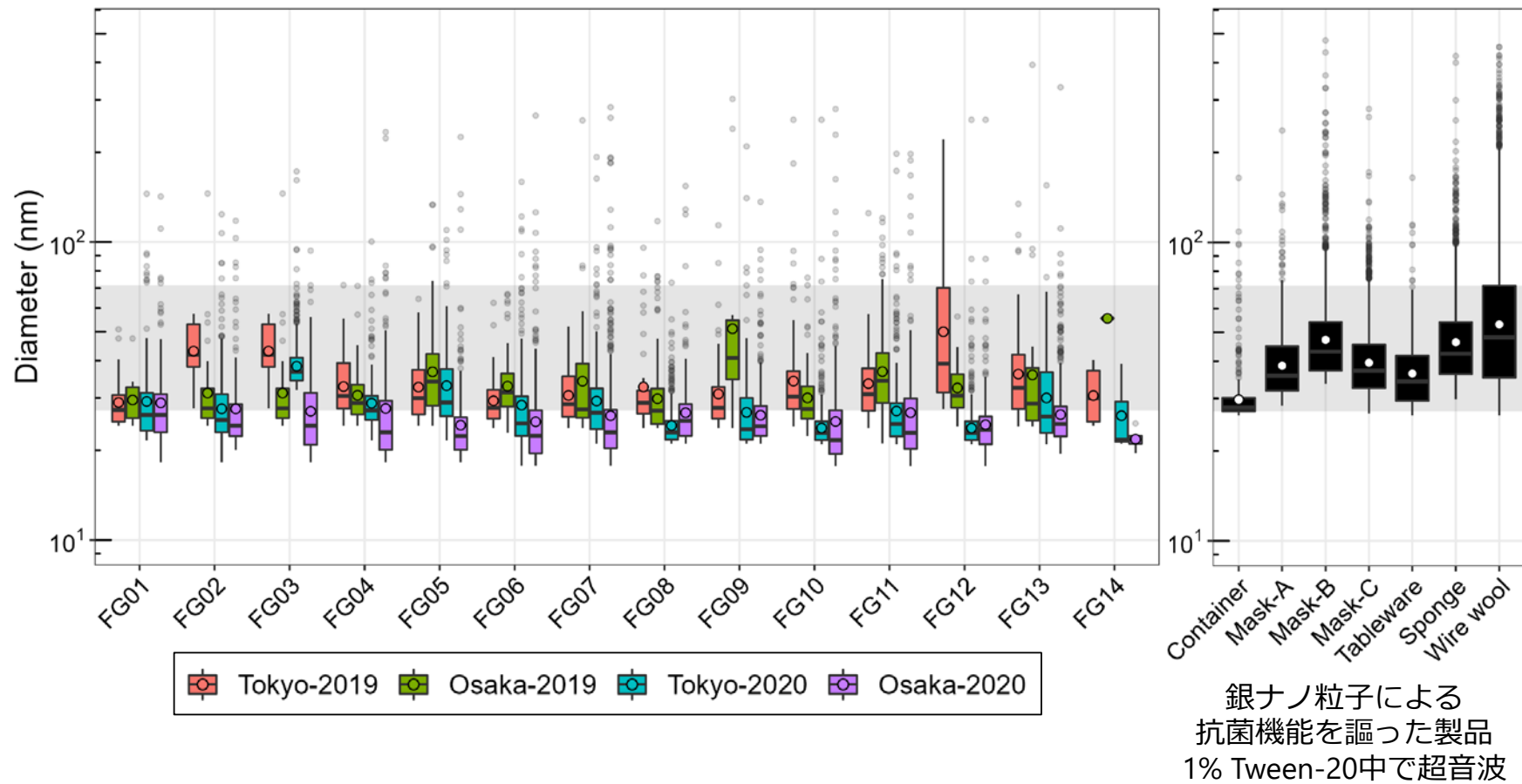


Fig. 8 2019-2020年の東京と大阪におけるTD試料に含まれるAg-NPと抗菌製品に含有しているAg-NPの粒径分布の比較
 灰色のエリアは抗菌製品由来のAg-NPの四分位範囲の最小値 - 最大値の範囲を示す。

秤量

↓ 試料 : 1.0 g (乾燥重量あたり)

抽出

- ↓ 分析用試料 1.0 g を量りとり、10 mL ガラス製ネジ口試験管に入れる
- ↓ 0.3 mol/L HNO₃ を 2 mL 添加し、ボルテックスミキサーで攪拌する
- ↓ 試験管を 100°C で 2 時間加熱後 (30 分毎にボルテックスミキサーで攪拌)、室温で放冷
- ↓ 超純水 5 mL を加え、ボルテックスミキサーで攪拌した後、遠心分離 (3500 rpm, 10 min) で得られた上清を 20 mL メスフラスコに分取。この操作を計 3 回行う
- ↓ 超純水で 20mL に定容
- ↓ 定容後の溶液 2 mL に対し、濃塩酸 15.3 mL を添加し、0.2% (w/v) となるようチオ尿素を添加、攪拌後 20 分静置 (①)

固相抽出

- ↓ Supelclean™ENVI™-Chrom P SPE チューブ (250 mg, volume 3 mL, Supelco) をメタノール 3 mL、超純水 3 mL、10 mol/L HCl 2 mL でコンディショニング (流速: ca. 0.6 mL/min)
- ↓ ①を全量負荷 (流速: ca. 0.6 mL/min)
- ↓ 10 mol/L HCl 2 mL で洗浄 (流速: ca. 0.6 mL/min)
- ↓ 乾燥 (10 min)
- ↓ 超純水 2 mL で溶出 (流速: ca. 0.6 mL/min)
- ↓ 内標準物質として In を添加し、超純水で 20 mL に定容

ICP-MS

- As(III)標準溶液をもちいて、0.7% (v/v) HCl, 0.3 mol/L HNO₃を含む検量線溶液を 10 点 (0.025 – 5.0 ng/mL) 作成
- KED モードで定量分析

Fig. 9 無機ヒ素の簡易分析法のフロー