

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 6 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、2024 年にマーケットバスケット方式により調製したトータルダイエツト (TD) 試料の分析を通じ、ヒ素 [総ヒ素及び無機ヒ素 (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 42 元素及び 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、不検出値に定量下限値の半値を代入して算出した各元素類の推定一日摂取量は、B: 1217 $\mu\text{g/person/day}$ 、Al: 2613 $\mu\text{g/person/day}$ 、V: 12.0 $\mu\text{g/person/day}$ 、Cr: 61.2 $\mu\text{g/person/day}$ 、Mn: 3800 $\mu\text{g/person/day}$ 、Co: 9.52 $\mu\text{g/person/day}$ 、Ni: 154 $\mu\text{g/person/day}$ 、As: 219 $\mu\text{g/person/day}$ 、iAs: 21.2 $\mu\text{g/person/day}$ 、Se: 90.6 $\mu\text{g/person/day}$ 、Mo: 220 $\mu\text{g/person/day}$ 、Cd: 13.4 $\mu\text{g/person/day}$ 、Sn: 339 $\mu\text{g/person/day}$ 、Sb: 1.23 $\mu\text{g/person/day}$ 、Ba: 410 $\mu\text{g/person/day}$ 、Hg: 5.04 $\mu\text{g/person/day}$ 、Me-Hg: 3.69 $\mu\text{g/person/day}$ 、Tl: 1.61 $\mu\text{g/person/day}$ 、Pb: 3.96 $\mu\text{g/person/day}$ 、U: 1.11 $\mu\text{g/person/day}$ 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 (1.28 – 1.80)、Ni (0.14 – 1.00)、Mo (0.80)、Cd (0.24 – 0.68)、Mn (0.49)、Ba (0.04 – 0.37)、Me-Hg (0.24 – 0.36)、Al (0.16 – 0.33)、B (0.11 – 0.23) の順で高い値を示した。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、健康リスクの高い iAs については地域別・年齢層別の摂取量を、幼児の Pb については確率論的な摂取量推定も検討した。また、推定一日摂取量を算出する際の、各種重み付け方法について比較した。

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、吉田 優也
五井 千尋
石井敬子、前川ゆずは、森田昌弘
野口昭一郎、高木恭子、宮崎仁志
新宅 沙織
安永 恵、櫻井 麻里南
中村 麻子、新谷 依子、堀 就英
仲眞 弘樹
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) 及びメチル水銀 (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方式によるトータルダイエツト (TD) 試料の分析により、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。本研究に用いた 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、元素類の摂取量推定を継続している。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、2024 年に実施した TD 研究の成果を報告する。さらに、

1977年以後に継続して推定しているAs、Cd、Hg、及び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

2017年から2019年に行われた国民健康・栄養調査のデータ22,742件(2017年: 8027件、2018年: 7895件、2019年: 6820件)のうち、喫食量のデータがあった19,753件をTD試料作製のために解析した。各地域ブロック(北海道: 北海道、東北: 青森県、岩手県、秋田県、宮城県、山形県、福島県、関東 I: 埼玉県、千葉県、東京都、神奈川県、関東 II: 茨城県、栃木県、群馬県、山梨県、長野県、北陸: 新潟県、富山県、石川県、福井県、東海: 岐阜県、愛知県、三重県、静岡県、近畿 I: 京都府、大阪府、兵庫県、近畿 II: 奈良県、和歌山県、滋賀県、中国: 鳥取県、島根県、岡山県、広島県、山口県、四国: 徳島県、香川県、愛媛県、高知県、北九州: 福岡県、佐賀県、長崎県、大分県、南九州: 熊本県、宮崎県、鹿児島県、沖縄県)における各食品小分類の一日当たりの喫食量の算術平均値を算出した(Table 1)。なお、集計及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。

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試料をマーケットバスケット方式により調製した。混合・均質化の際に組み合わせる食品の小分類に応じて、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。また、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)。

全国10地域におけるTD試料の調製は、地方衛生研究所等で2023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TD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250 g/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、プラスチック製バック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。全ての化学分析は、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: $>18.2 \text{ M}\Omega \cdot \text{cm}$ 、TOC: $<3 \text{ ppb}$)を使用した。硝酸(1.42 Ultrapur-100)、過酸化水素水(Ultrapure)、ひ素標準液(As 100)、及び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-ブタンスルホン酸ナトリウム、マロン酸(特級)、メタノール(液

体クロマトグラフィー用)、メチルオレンジ (特級) は富士フィルム和光純薬社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 Be, Ga, Y, In, Tl, Bi 標準溶液、Trace CERT)、あるいは関東化学社製 (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製)、L-システイン (ナカライテスク社製)、添加剤 B (日本インスツルメンツ社製) 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、関東化学社製]、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 (ジーエルサイエンス社製) を用いた。

人工唾液には、富士フィルム和光純薬社製の 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。

3. 分析機器

元素分析には ICP-MS (iCAPQ、サーモフ

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。ヒ素及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、サーモ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操作は 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。

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 カラムに注入し、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、及び 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。全てのヒ素化学種濃度はヒ素としての濃度で示した。

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。

サンプルボートは、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、100 mg/L L-システイン溶液で希釈し、検量線用標準溶液とした。100 mg/L L-システイン溶液は、L-システイン 100 mg を量り採り、超純水 800 mL 及び硝酸 2 mL を加え溶解後、超純水で 1000 mL に定容して調製した。

7. メチル水銀の分析

試料 2.0 g を量り取り、10% (v/v) TMAH 溶液 5 mL を加え、80°C で 2 時間加熱した。なお、30 分おきによく振り混ぜた。2600g で 10 分間遠心分離後、上澄みを 20 mL メスフラスコに移した。残渣に超純水 5.0 mL を加え手で良く振とうした後、遠心分離で得た上澄みを上記のメスフラスコに合わせた。この操作を計 2 回行った。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% (v/v) 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、水銀としての濃度で示した。

8. 体重当たり喫食量の解析

体重当たり喫食量の解析には 2017 年から 2019 年に行われた国民健康・栄養調査のデータを用いた。喫食量のデータがあった国民健康・栄養調査のデータ 19,753 件のうち、体重のデータと紐づけられたものは 15,809 件であり、喫食量の算出方法が摂取量推定に与える影響の解析に用いた。さらに、15,809 件の内、1 - 6 歳のデータ 801 件は、確率論的摂取量推定に用いた。

国民健康・栄養調査の標本が、国民全体の年齢構成及び人口分布とどれほど一致しているのか検討するために、e-Stat (<https://www.e-stat.go.jp>) で公開されている人口推計の「第9表 都道府県 年齢(5歳階級)、男女別人口(各年 10月1日現在)」の総人口(補間補正人口)について、2017年から2019年の平均値を算出し比較した。なお、集計及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。

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分析においては、検量線最下点のピーク範囲における空試験の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(単位:カウント)の2乗根を標準偏差としてLOQを算出した。

LOQ未満の結果を含むデータの取扱い

に関しては、LB法(LOQ未満となったデータに0を代入する)とMB法(LOQ未満となったデータにLOQの半値を代入する)の両方で算出することを基本とした。

元素類の摂取量は、食品群毎にTD試料中元素濃度に食品喫食量を乗じたものの総和として推定した。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。

確率論的摂取量推定として、幼児(1 - 6歳)を対象とした鉛の摂取量分布を推定した。濃度データには2022 - 2024年に行った本研究班の成果を、体重当たり喫食量には2017年から2019年に行われた国民健康・栄養調査のデータの内1 - 6歳の801件を用いた。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。一方で、体重当たりの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)分布及びゼロ過剰ガンマ(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(LB) - 上限値(UB)間の累積

分布関数 $F(\text{LB}, \text{UB}|\theta)$ を用いることで、尤度関数を以下のように表すことができる。

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

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 法で得られる事後分布 $f_{\text{post}}(\theta|Y)$ は、ベイズの定理を用いて以下のように表すことができる。

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

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けしたものであると解釈できる。

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 $U(-\infty, \infty)$ の一様分布を用いた。濃度のベイズ推定においては、理論平均値と理論標準偏差の事前分布には、鈴木ら (DOI: 10.3358/shokueishi.64.1) が報告した各食品群における Pb 濃度の理論平均値と理論標準偏差の事後分布の平均値 ($\hat{\mu}_{\text{rep}}$) と標準偏差 ($\hat{\sigma}_{\text{rep}}$) を、以下の確率密度関数であらわされるコーシー分布のパラメーター [$(y_0, \gamma) = (\hat{\mu}_{\text{rep}}, \hat{\sigma}_{\text{rep}})$] に用いた。

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

さらに、モデル選択における不確実性を考慮するため、Bayesian model averaging (BMA) を導入した。BMA の方法はいくつもあり、周辺尤度を基に算出する方法が理論的に最も正確であるが、計算コストが高くモンテカルロシミュレーション (MCS) に適用することを考えると実用的ではない。一方で、広く使えるベイズ情報量基準 (WBIC) は、パラメーター推定とは別に温度 $= \log(N)$ での事後分布を計算する必要があるものの、周辺尤度の近似として有効であることが知られている。そこで、本研究では、WBIC を用いて、モデル k の重み付け係数 w_k を次のように算出した。

$$w_k = \frac{\exp(-\text{WBIC}_k)}{\sum_i \exp(-\text{WBIC}_i)}$$

ここで、 WBIC_k はモデル k の WBIC を示し、温度 $= \log(N)$ でベイズ推定を行って得られた対数事後尤度の平均値に -1 を乗じて算出した。

算出した w_k に従って、仮定した 3 つの分布から確率的に分布を選択し、最終的にベイズ推定により事後分布として 2000 個のパラメーターセットを得た。その後、得られたパラメーターセット毎に 100 個の乱数を生成することで、計 20 万個の乱数を得た。

以上の解析は、R (4.4.2) と R のパッケージ cmdstanr (ver. 0.8.1.9000) を用いた。

C. 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

2024 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 42 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、Tl、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、及び 11 群の Me-Hg 摂取量、Me-Hg 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。

2. 食品群ごとの寄与率

各元素及びヒ素化学種の食品群ごとの平均寄与率を Fig. 2 及び 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 56.8%、次いで 8 群で 32.2%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、アルセノシュガーであると考えら

れた。

一方で、コメや海藻の中でもヒジキには iAs が多く含まれており、そのリスクが懸念されている。2024 年の調査においても、1 群の寄与率は 68.2%、8 群の寄与率は 8.78%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 34.2%、次いで 8 群の 16.5%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 90.0%であった。10 群では 74.4%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、9 群で最も高く 22.5%、次いで 8 群で 18.2%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 群及び 9 群の寄与率の標準偏差はそれぞれ 7.81 及び 6.32 であり、寄与率の変動が大きく、寄与率の高い食品群を特定することは困難であると判断された。

2024 年度の調査から追加した元素である Tl は 8 群の寄与率が 40.1%と最も高く、次いで 7 群で 18.0%であった。

3. Health-based guidance value との比較

各元素の Health-based guidance 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、1.28 - 1.80 であった。ここで、iAs の HGBV に

については、アメリカ合衆国環境保護庁 (US EPA) が 1999 年に評価した経口ばく露による心臓血管、皮膚障害の RfD と、EFSA が 2005 年に評価した暫定耐用週間摂取量 (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 との比較はばく露マージン (MOE) として評価したところ、MOE は 7.8 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) を用いて、日本人の推定過剰発がんリスクを求めたところ 5.8×10^{-4} であった。この値は過剰発がんリスクの実質安全量である 10^{-5} と比較すると 58 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、年間の皮膚がんの罹患率は 18.9/10 万、死亡率は 1.5/10 万と報告されている。寿命を 80 年とすると、iAs 摂取による過剰発がんリスクは $0.72 \times 10^{-5} \text{year}^{-1}$ と推定され、皮膚がんの罹患率の 3.8% が iAs 摂取による影響と試算された。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、国内のばく露実態及び食事由来のヒ素摂取量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 の食事性ばく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 0.14 – 1.00 であった。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 Mo であり、その値は 0.80 であった。US EPA が 1992 年に導出した RfD (5.0 µg/kg/day) は、尿酸値の上昇をエンドポイントとして横断的疫学研究から導出された値である。疫学調査の対象となった地域は、土壌と植物の Mo 含有量が高く、Cu の含有量が低いことという理由から選択された。Mo と Cu は拮抗作用があることが報告されており、日本人の平均的な Cu 摂取量からすると、安全側のリスク評価となっている可能性が示唆された。

毒性の高い元素である Cd 及び Me-Hg の HQ はそれぞれ、0.24 – 0.68 及び 0.24 – 0.36 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: 1047 kcal、1 歳以上: 1522 kcal) し、1 – 6 歳の摂取量を推定して算出した。その結果、MOE は 2.8 – 20.8 の範囲内であった。

EFSA の評価書では、鉛摂取の 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。

今年度から追加した TI に関しては、US EPA により導出された HBGV は candidate RfD であったことから、MOE による検討を行った。POD として、毛包萎縮の NOAEL (40 $\mu\text{g/kg/day}$) および臨床所見の BMDL₁₀ (10 $\mu\text{g/kg/day}$) を用いたところ、MOE は 341 – 1363 と推定された。UFs は 3000 とされたことから、MOE は UFs よりも小さく、健康リスクが懸念された。ただし、UFs が大きいことを考慮する必要がある。

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、Mn 及び 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の喫食量が少ない場合は推奨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、食品中濃度及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、ほぼ一定の摂取量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揃えるためにも、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

のばらつき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 Cd 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 Cd 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、施行後の 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。2024 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、魚介類の喫食量の減少が主な要因であると考えられたものの、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) 及びたい、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て高濃度 Hg を含有する魚種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、2024 年の推定一日摂取量は、1977 年の 5% 以下まで減少していた。

6. 米由来の無機ヒ素の地域ブロック別・年齢層別摂取量推定

令和 4 年の各都道府県における水陸稲

の収穫量（主食用）を基に、50 検体分を案分し各都道府県産の精白米試料を購入した。50 検体に含まれなかった都道府県産の精白米試料を 1 試料ずつ追加し、計 63 の精白米試料を収集した。

炊飯は、小栗ら (DOI: 10.1265/jjh.69.177) の方法を参考にし、精白米 180 g をポリプロピレン製ボールに取り、超純水 500 mL を入れて 5 回研いだ後に排水することを 3 回繰り返した。研いだ米は炊飯器に移して、炊飯器の指示に従い炊飯した。その際は、超純水を用いた。炊きあがっためしを、フードプロセッサー (MK-K48P-W, パナソニック) を用いて均質化したものを試料とした。均質化の際に加水は行わなかった。

iAs の簡易分析法として、Huang *et al.* (DOI: 10.1039/c5ay01434d) の報告を参考に R5 年度に開発した簡易分析法 (Fig. 6) を用いてめし中の iAs 濃度の実態評価し、摂取シナリオとしては、米の生産量が消費量を上回っている地域ブロックではその地域ブロックで生産された米を消費し、米の生産量が消費量を下回っている地域ブロックでは不足する分を全国から補って消費すると仮定して、地域ブロック別の摂取量推定を試みた。

都道府県 i における平均濃度 C_i (ng/g) を算出した後、都道府県 i における米生産量 P_i (kg/year) を用いて、地域ブロック j における生産量で重み付けした濃度 wC_j (ng/g) を次のように算出した。

$${}^wC_j = \frac{\sum_{i \in j} P_i C_i}{\sum_{i \in j} P_i}$$

全国平均濃度 (C_{all}) は、 wC_j を全国に拡大し生産量で重み付けしたものとして算

出し、 C_{all} は 38.9 ng/g であった。

都道府県 i における米自給率 S_i は、都道府県 i における米の消費量 (kg/人、 R_i) 及び都道府県 i の人口 (人、 p_i) を用いて次のように算出した。

$$S_i = \frac{P_i}{R_i p_i}$$

次に、地域ブロック j における米自給率 S_j を次のように算出した。

$$S_j = \frac{\sum_{i \in j} S_i p_i}{\sum_{i \in j} p_i}$$

ここで、人口のデータには、2023 年 10 月 1 日における都道府県、男女別人口及び人口性比－総人口、日本人人口を、米生産量には、令和 5 年における水陸稲計・陸稲 (全国農業地域別・都道府県別)、収穫量 (主食用) を、米の消費量には令和 4 年度食料需給表 (確定値) を用いた。

以上の結果を用いて算出された S_j の値によって、生産量と自給率で重み付けした地域ブロック j における摂取量推定に用いる濃度 EC_j を次のように算出した。

$$\begin{cases} \text{if } S_j \geq 1, & {}^EC_j = {}^wC_j \\ \text{if } S_j < 1, & {}^EC_j = S_j {}^wC_j + (1 - S_j) C_{all} \end{cases}$$

C_i の最大値と最小値の比は 19.1 と差が大きかったが、収穫量で補正した wC_j の最大値と最小値の比は 2.1 に、地域ブロック別摂取量推定に用いた EC_j の最大値と最小値の比は 2.0 と平準化された。

体重当たりの喫食量は、2017 年から 2019 年に行われた国民健康・栄養調査のデータを用いて、各地域ブロックの喫食量を年代別に算出し、米および米加工品の体重当たり喫食量の平均値を算出した。年代別および地域ブロック別に推定した摂

摂取量を Fig. 7 に示す。推定摂取量が最も低かったのは地域ブロック 1 における 60–79 歳の $0.13 \mu\text{g/kg/day}$ であり、最も高かったのは地域ブロック 3 における 1–6 歳の $0.63 \mu\text{g/kg/day}$ であった。最大と最小の比は年代によって 1.83 (20–59 歳) – 2.14 (7–19 歳) と幅が認められた。

米・米加工品からの iAs 摂取量への寄与は約 70%と推定されている。この寄与率と US EPA が導出した RfD ($0.3 \mu\text{g/kg/day}$) より、米由来の摂取量が $0.21 \mu\text{g/kg/day}$ 以下であることが望ましいと考えられる。しかしながら、70%の地域ブロック/年齢群でこの値を超過していた。

7. 幼児を対象とした鉛の確率論的摂取量評価

ここでは、健康リスクの高い幼児を対象として確率論的な摂取量推定を行った。対象とした有害元素は、幼児に特有の健康影響（発達神経毒性）が認められる Pb とした。

体重当たり喫食量分布の推定結果を Table 11 に示す。全ての食品群において、いずれかの確率密度分布の重み付けが 0.999 より大きい結果となり、実質的に最適な確率密度分布を選択することと同じ結果となった。各食品群の喫食量の確率密度分布は、8 つの食品群で Tweedie 分布が、4 つの食品群で ZIG 分布が、1 つの食品群で ZILN 分布が最も適していると判断できた。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。

各食品群の Pb 濃度分布の推定結果を Table 12 に示す。いくつかの食品群において、いずれかの確率密度分布の重み付けが 0.999 より大きい結果となったが、1 群、4 群、9 群では 2 つ以上の確率密度分布で重み付け係数が 0.01 よりも大きくなった。体重当たり喫食量と異なり、サンプルサイズや不検出数により、モデル選択においても不確さが大きくなったと推察された。

幼児を対象とした Pb の摂取量分布の推定結果を Table 13 及び Fig. 8A に示す。一日推定摂取量の平均値は $0.181 \pm 0.044 \mu\text{g/kg/day}$ と推定された。2024 年の TD 研究における、ND に 0 あるいは LOQ を代入し、摂取カロリーで補正した推定摂取量は、0.149 及び $0.214 \mu\text{g/kg/day}$ であり、2D-MCS で推定した平均値はこれらの範囲内であった。2D-MCS を用いて推定した Pb 摂取量の 5、25、50、75、及び 95 パーセンタイル値は、それぞれ 0.076、0.115、0.154、0.209、 $0.346 \mu\text{g/kg/day}$ であった。

2D-MCS を用いて推定された MOE の平均値は 2.71 ± 0.34 であった (Fig. 8 B)。2024 年の TD 研究において、ND に 0 あるいは LOQ を代入し、摂取カロリーで補正して推定した MOE は、3.3 及び 2.3 であり、2D-MCS による推定した平均値はこれらの範囲内であった。また、2D-MCS を用いて推定した平均 MOE の 5 及び 95 パーセンタイル値は、それぞれ 2.18、及び 3.20 であった。また、平均 MOE が UF_s である 1 を下回る確率は 0.3%と推定された。

寄与率の平均値が最も高かったのは 8

群 ($19.9 \pm 3.4\%$) であり、ついで 9 群 ($12.6 \pm 3.2\%$) の順であった。

8. 喫食量及び摂取量の算出方法が摂取量推定に与える影響

本研究では、「7. 幼児を対象とした鉛の確率論的摂取評価」を除いて、地域別の摂取量を $\mu\text{g/person/day}$ の単位で算出した後に平均値を算出し、平均体重で除した値をHBGV等と比較を行った。この計算方法の代わりに、体重当たり喫食量を用いる方法もある。一般的に、体重当たりの喫食量は低年齢層で大きな値となるため、平均体重で除した場合は低年齢層においては過小評価となる可能性がある。

全国民の平均的な摂取量を求めるという目的からすると、国民健康・栄養調査の標本の年齢・地域構成が、国民の年齢・地域構成と齟齬が無ければ、年齢層や地域によって体重当たりの喫食量が異なる点は問題とならない。しかしながら、人口推計の結果と国民健康・栄養調査の標本を比較したところ、国民健康・栄養調査の標本は、20 – 34 歳の割合が少なく、65 – 79 歳の割合が多いことが昨年度の検討により、明らかとなった。また、40 代に対する 1 – 14 歳の割合が 0.94 と人口推計の値 (0.82) よりも多かった。また、人口推計と比較すると、国民健康・栄養調査の標本は、神奈川県、埼玉県、愛知県、岐阜県、大阪府、兵庫県の比重が大きかった。そのため、上記の都道府県が含まれる、関東I、東海、近畿Iの地域ブロックで摂取量が大きかった場合には、全国の平均値としては過大評価となる可能性がある。

以上、国民健康・栄養調査の標本が必

ずしも年齢構成と人口分布を反映しているとは言えない点を踏まえると、全国民を対象とした平均的な摂取量を精緻に推定するには、年齢構成や地域ブロック別人口による重み付けを行う必要があると考えられた。そこで、体重当たり喫食量 r (g/kg/day) について、算出方法の違いの影響を検討するために、以下の 2 種類の重み付け法について検討した。なお、ここでは地域ブロック別に算出した。

1 つ目の重み付けの方法として、年齢構成による重み付けをした、地域ブロック j における食品群 i の体重当たり喫食量 $w^1R_{i,j}$ を次のように算出した (重み付け法 a)。

$$w^1R_{i,j} = \sum_{k=1}^K w_{j,k} r_{i,j,k},$$

ここで、 $w_{j,k}$ は地域ブロック j における年齢層 k の重み付け係数を、 $r_{i,j,k}$ は地域 j における年齢層 k の食品群 i の体重当たり食品消費量 (g/kg/day) を示す。なお、都道府県別の人口推計は 5 歳階級毎の値が提供されているのみである。そこで、2017 – 2019 年における人口推計の平均値を用い、各階級の値を 5 等分し各年齢の人口推計として算出し、 $w_{j,k}$ を算出した (Table 14)。

2 つ目の重み付け法として、多くのHBGVが「毎day一生涯にわたって摂取しても健康に悪影響がないと判断される量」であることを考慮して、各年齢層でのばく露期間を考慮した体重当たり喫食量 $w^2R_{i,j}$ を次のように算出した (重み付け法 b)。

$$w^2R_{i,j} = \frac{\sum_{k=1}^K d_k r_{i,j,k}}{D},$$

ここで、 D は生涯のばく露期間を示し 1 – 80 歳の 79 年とした。 d_k は年齢層 k におけるばく露期間 (年) を示し、 d_1 : 6、 d_2 : 13、 d_3 : 40、 d_4 : 20、 d_5 : 0 とした。この重み付け法では、 d_i/D が重み付け係数に相当する。

繰返しになるが、これまで全国平均としての推定摂取量の算出する際には、下記の通り、 M 地域ブロックの平均値を算出する方法が用いられてきた (方法 1)。

$${}^{M1}E_{\text{all}} = \frac{1}{M} \sum_{j=1}^M E_j,$$

この方法は、地域ブロックの人口を考慮していない点が問題となる可能性がある。そこで、以下で示した式のように、各地域ブロックの摂取量を人口で重み付けする方法が考えられる (方法 2)。

$${}^{M2}E_{\text{all}} = \sum_{j=1}^M W_j E_j,$$

ここで、 W_j は地域ブロック j における人口による重み付け係数を示し、各地域ブロックで次の値を用いた; A: 0.052, B: 0.052, C: 0.219, D: 0.145, E: 0.149, F: 0.037, G: 0.168, H: 0.037, I: 0.084, J: 0.059。

ただし、この算出方法では、人口が多い地域ブロックで偶発的に摂取量が高く推定された場合に、その影響が全国平均に強く反映される可能性がある。そこで、このような影響を軽減するために、体重当たり喫食量及び化学物質濃度の全国平均値を用いる方法も考えられる (方法 3)。

$${}^{M3}E_{\text{all}} = \sum_{i=1}^N \bar{R}_i \bar{C}_i,$$

ここで、 \bar{R}_i は食品群 i の全国平均として

の消費量 (g/kg) を、 \bar{C}_i は食品群 i の全国平均としての濃度 ($\mu\text{g/g}$) を示し、それぞれ次のように算出した。

$$\bar{R}_i = \sum_{j=1}^M W_j R_{i,j}, \bar{C}_i = \frac{1}{M} \sum_{j=1}^M C_{i,j}$$

ここで、 $R_{i,j}$ には ${}^{w1}R_{i,j}$ または ${}^{w2}R_{i,j}$ を用いた。

${}^{M3}E_{\text{all}}$ と同様に、 ${}^{M1}E_{\text{all}}$ 及び ${}^{M2}E_{\text{all}}$ についても、体重当たり喫食量に ${}^{w1}R_{i,j}$ または ${}^{w2}R_{i,j}$ を用いた摂取量を算出した。したがって、重み付けのない推定摂取量 (${}^{w0}E_{\text{all}}$) を合わせて、計 7 通りの算出方法を比較した。

2024 年に実施した TD 試料を用いた iAs, Cd, Hg, 及び Pb の推定摂取量について、算出方法による違いを比較した結果を Fig. 9 に示す。喫食量に関する重み付け法において、 ${}^{w0}E_{\text{all}}$ に対する比を比較したところ、重み付け法 b (0.94 – 1.29) よりも、重み付け法 a (1.01 – 1.09) を用いた方が、 ${}^{w0}E_{\text{all}}$ と近い推定値となる傾向があった。重み付け法 a では、年齢層別の人口推計の値が必要となり、国民健康・栄養調査の集計を行う度に算出し直す必要がある。また、公開されている 5 歳階級での年齢別人口推計データを用いる際に、1 歳階級での補正人口をどのように算出するかという問題が生じる。重み付け法 b は、重み付け法 a のような問題は生じないが、生涯ばく露期間の設定について議論が必要であろう。重み付け法 a と b では、摂取量評価の目的が異なるため、本研究班における摂取量評価の目的について整理する必要があると考えられた。

摂取量の全国平均値に関する計算方

法として、 w^0E_{all} に対する比を比較したところ、方法 3 (1.01 – 1.11)、方法 2 (0.95 – 1.27)、方法 1 (0.94 – 1.29) の順に w^0E_{all} と近い推定値となる傾向にあった。方法 1 と喫食量の重み付けを併用する方法は、喫食量に対してのみ人口構成の問題を考慮し、摂取量の代表値を算出する際には無視する一貫性を欠いた算出法であり、結論を歪める可能性がある。重み付け法 b と方法 2 を用いた Pb の推定摂取量 (算出法 b2) は、検討した方法の中で最大の推定摂取量を示したことから、人口が多い地域で偶発的に摂取量が高く推定された場合に、その影響が全国平均に強く反映される可能性を否定できない。方法 3 は、全体的にはこれまでの算出法である重み付けなしとの齟齬が小さかったが、重み付け法 b と方法 3 を用いた iAs の推定摂取量 (算出法 b3) は検討した方法の中で最大の推定摂取量を示した。以上の結果から、方法 3 が必ずしもこれまでの推定結果との齟齬が小さくなるとは結論できなかった。

D. 結論

全国 10 地域よりマーケットバスケット方式により TD 試料を調製し、食品を介した元素類の摂取量推定を行った。HBGV と比較したところ、HQ は iAs (1.28 – 1.80)、Ni (0.14 – 1.00)、Mo (0.80)、Cd (0.24 – 0.68)、Mn (0.49)、Me-Hg (0.24 – 0.36)、Ba (0.04 – 0.37)、Al (0.16 – 0.33)、B (0.11 – 0.23) の順で高い値を示した。一方で、Pb の MOE (2.8 – 20.8) は UFs (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。そこで、幼児 (1 – 6 歳) の体重当たり喫食量のデータを用いて確率論的な摂取量推定を行ったところ、発達神経毒性に対する平均 MOE が UFs である 1 を下回る確率は 0.3%と推定された。

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えており、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、Mn 及び 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の喫食量が少ない場合は推奨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。

地域ブロック別の iAs 摂取量を年代別に推定したところ、最大と最小の比は年代によって 1.82 (20-59 歳) – 2.14 (7-19 歳) と地域ブロックによって摂取量の推定値に差が認められた。

全国の平均摂取量を算出するための方法について比較したところ、現行の方法とは喫食量に 0.94 – 1.29 倍の違いが生じた。喫食量算出における重み付け法 a と b では、摂取量評価の目的が異なるため、本研究班における目的について整理する必

要があると考えられた。

E. 研究発表

1. 論文発表

なし

2. 学会発表

Tomoaki Tsutsumi, Yoshinari Suzuki:
Total diet studies on food contaminants in Japan: current findings with time trends, International Conference on Food Safety and 39th KoSFoS Annual Meeting, (2024.11).

鈴木美成, 張本雅恵, 北山育子, 高橋未来, 堤智昭: トータルダイエツト試料を用いた有害元素のばく露量推定, 第61回全国衛生科学技術協議会年会 (2024.11).

鈴木美成: レギュラトリーサイエンスと食品安全に貢献する有害元素分析, プラズマ分光分析研究会 第124回講演会 (2025.3).

Table 1 2017-2019 年 国民健康・栄養調査 喫食量の地域別集計結果 (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
2 群	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
	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 ($m/z=111-175$)、Bi ($m/z=182-238$)
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、 ²⁰⁵ Tl、 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 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 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 Tl (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 群及び 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 2023 年に実施したトータルダイエツ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	
	LB 法	MB 法	LB 法	MB 法	LB 法	MB 法	LB 法	MB 法	LB 法	MB 法	LB 法	MB 法
1 群	82.3	82.3	23.1	54.0	1.55	5.41	0.56	0.56	6.34	7.48	1082	1082
2 群	68.8	68.8	260	260	7.83	8.73	0.83	0.83	4.03	4.22	517	517
3 群	26.0	26.0	55.3	55.3	3.04	3.04	0.24	0.24	2.37	2.41	83.7	83.7
4 群	0.00	0.42	0.00	1.92	0.02	0.05	0.00	0.00	0.00	0.09	0.06	0.07
5 群	242	242	96.3	96.3	5.40	5.40	0.23	0.23	1.17	1.32	501	501
6 群	184	184	54.2	58.9	1.30	1.40	0.05	0.06	0.81	1.39	203	203
7 群	96.3	96.3	126	127	5.40	5.49	0.27	0.27	1.86	1.99	183	183
8 群	196	196	286	286	6.74	7.14	3.56*	3.56*	5.08	5.54	396	396
9 群	161	161	704	704	3.95	10.8	2.04	2.04	23.5	23.9	468	468
10 群	30.7	30.7	427	427	20.8	20.8	1.50	1.50	2.40	2.43	39.3	39.3
11 群	20.1	20.1	143	144	7.95	7.95	0.13	0.13	2.33	2.55	33.4	33.4
12 群	29.1	29.1	10.0	22.8	3.66	3.87	0.11	0.11	1.04	1.29	4.09	4.09
13 群	75.4	75.4	367	367	7.22	7.22	0.71	0.71	6.55	6.55	289	289
14 群	4.55	4.55	7.05	7.09	0.00	0.04	0.37	0.37	0.02	0.02	0.09	0.09
合計	1217	1217	2560	2613	74.8	87.3	12.0*	12.0*	57.5	61.2	3800	3800

LB 法: 不検出となった値に 0 を代入して算出した。

MB 法: 不検出となった値に LOQ の半値を代入して算出した。

*中央値

Table 6 つづき

食品群	Fe		Co		Ni		Cu		Zn		Ge	
	LB 法	MB 法	LB 法	MB 法	LB 法	MB 法	LB 法	MB 法	LB 法	MB 法	LB 法	MB 法
1 群	207	207	0.69	0.78	34.9	34.9	336	336	2136	2136	0.31	0.31
2 群	1075	1075	1.92	1.92	13.9	13.9	190	190	671	671	0.01	0.08
3 群	271	271	0.54	0.54	5.39	5.45	37.3	37.3	157	157	0.01	0.02
4 群	0.00	1.17	0.00	0.01	0.00	0.17	0.05	0.08	0.00	2.94	0.00	0.00
5 群	1057	1057	1.00	1.00	36.3	36.3	149	149	585	585	0.05	0.05
6 群	154	154	0.34	0.34	3.95	4.38	61.0	61.0	96.3	96.3	0.00	0.03
7 群	373	373	0.65	0.65	5.54	5.54	59.0	59.0	258	258	0.05	0.05
8 群	803	803	1.19	1.19	14.4	14.4	92.8	92.8	480	480	0.15	0.15
9 群	497	529	1.22	1.22	15.2	16.3	35.2	35.2	17.3	95.7	0.00	0.21
10 群	656	656	0.71	0.71	2.06	2.11	81.7	81.7	747	747	0.07	0.07
11 群	1759	1759	0.16	0.20	0.92	1.46	83.7	83.7	3041	3041	0.04	0.04
12 群	53.7	55.9	0.03	0.06	0.36	1.10	8.58	8.58	564	564	0.00	0.05
13 群	650	650	0.89	0.89	17.4	17.4	56.8	56.8	316	316	0.02	0.04
14 群	1.04	1.35	0.00	0.00	0.13	0.14	1.33	1.33	0.64	1.00	0.01	0.01
合計	7558	7593	9.34	9.52	150	154	1193	1194	9070	9152	0.73	1.12

LB 法: 不検出となった値に 0 を代入して算出した。

MB 法: 不検出となった値に LOQ の半値を代入して算出した。

Table 6 つづき

食品群	As		Se		Rb		Sr		Zr		Mo	
	LB 法	MB 法	LB 法	MB 法	LB 法	MB 法	LB 法	MB 法	LB 法	MB 法	LB 法	MB 法
1 群	15.3	15.3	3.86	3.86	184	184	26.2	26.2	0.00	0.10	108	108
2 群	1.15	1.18	13.5	13.5	169	169	124	124	0.37	0.38	13.7	13.7
3 群	0.26	0.26	1.38	1.38	54.0	54.0	26.2	26.2	0.10	0.10	3.43	3.43
4 群	0.00	0.01	0.06	0.06	0.57	0.57	0.22	0.22	0.00	0.01	0.04	0.04
5 群	0.27	0.27	1.98	1.98	118	118	98.2	98.2	0.04	0.06	38.8	38.8
6 群	0.05	0.09	0.07	0.19	132	132	55.6	55.6	0.02	0.07	1.42	1.42
7 群	0.06	0.09	0.11	0.17	153	153	77.4	77.4	0.11	0.12	4.65	4.65
8 群	80.4	80.4	0.66	0.68	242	242	675	675	0.25	0.26	19.8	19.8
9 群	0.19	0.62	0.75	1.25	211	211	67.0	67.0	0.55	0.71	1.45	1.49
10 群	118	118	32.4	32.4	36.6	36.6	279	279	0.21	0.22	0.92	0.92
11 群	0.49	0.49	27.4	27.4	471	471	30.8	30.8	0.49	0.49	5.62	5.62
12 群	0.00	0.10	3.56	3.56	234	234	54.6	54.6	1.74	1.75	4.92	4.92
13 群	2.39	2.39	4.17	4.17	95.3	95.3	128	128	0.23	0.23	16.8	16.8
14 群	0.12	0.12	0.03	0.03	0.68	0.68	12.4	12.4	0.01	0.01	0.10	0.10
合計	218	219	89.9	90.6	2102	2102	1655	1655	4.11	4.50	220	220

LB 法: 不検出となった値に 0 を代入して算出した。

MB 法: 不検出となった値に LOQ の半値を代入して算出した。

Table 6 つづき

食品群	Cd		Sn		Sb		Cs		Ba		La	
	LB 法	MB 法	LB 法	MB 法	LB 法	MB 法	LB 法	MB 法	LB 法	MB 法	LB 法	MB 法
1 群	4.66	4.66	0.15	0.23	0.17	0.22	0.46	0.46	17.9	17.9	0.00	0.01
2 群	2.09	2.09	0.50	0.50	0.11	0.14	0.51	0.51	90.6	90.6	0.20	0.20
3 群	0.39	0.39	0.28	0.28	0.01	0.04	0.16	0.16	13.8	13.8	0.03	0.03
4 群	0.00	0.00	0.03	0.03	0.00	0.01	0.00	0.00	0.15	0.22	0.00	0.00
5 群	0.91	0.91	0.11	0.12	0.00	0.05	0.28	0.28	50.2	50.2	0.08	0.08
6 群	0.06	0.06	199	199	0.06	0.13	0.74	0.74	28.3	28.3	0.12	0.12
7 群	1.02	1.02	3.91	3.92	0.02	0.03	0.28	0.28	43.0	43.0	0.18	0.18
8 群	2.13	2.13	133	133	0.07	0.09	0.59	0.59	67.3	67.3	0.73	0.73
9 群	0.09	0.10	0.46	0.56	0.13	0.20	1.00	1.00	19.6	20.0	0.10	0.11
10 群	1.45	1.45	0.44	0.44	0.10	0.10	0.86	0.86	8.22	8.22	0.20	0.20
11 群	0.06	0.06	0.94	0.97	0.04	0.05	1.57	1.57	13.8	13.8	0.02	0.02
12 群	0.00	0.01	0.00	0.04	0.06	0.08	0.79	0.79	11.5	11.5	0.02	0.02
13 群	0.54	0.54	0.26	0.26	0.07	0.07	0.27	0.27	43.7	43.7	0.09	0.09
14 群	0.00	0.00	0.00	0.00	0.03	0.03	0.31	0.31	1.95	1.95	0.00	0.00
合計	13.4	13.4	339	339	0.86	1.23	7.83	7.83	410	410	1.76	1.77

LB 法: 不検出となった値に 0 を代入して算出した。

MB 法: 不検出となった値に LOQ の半値を代入して算出した。

Table 6 つづき

食品群	Ce		Pr		Nd		Sm		Eu		Gd	
	LB 法	MB 法	LB 法	MB 法	LB 法	MB 法	LB 法	MB 法	LB 法	MB 法	LB 法	MB 法
1 群	0.00	0.13	0.00	0.00	0.00	0.03	0.00	0.00	0.000	0.001	0.00	0.00
2 群	0.20	0.20	0.03	0.03	0.12	0.12	0.03	0.03	0.009	0.009	0.03	0.03
3 群	0.05	0.05	0.01	0.01	0.02	0.02	0.00	0.00	0.001	0.001	0.00	0.00
4 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
5 群	0.09	0.09	0.01	0.01	0.06	0.06	0.01	0.01	0.005	0.005	0.02	0.02
6 群	0.04	0.04	0.01	0.01	0.04	0.04	0.01	0.01	0.002	0.002	0.01	0.01
7 群	0.08	0.09	0.02	0.02	0.08	0.08	0.01	0.01	0.006	0.006	0.02	0.02
8 群	0.60	0.61	0.10	0.10	0.40	0.40	0.10	0.10	0.028	0.028	0.13	0.13
9 群	0.15	0.16	0.02	0.02	0.07	0.08	0.01	0.02	0.004	0.004	0.02	0.02
10 群	0.22	0.22	0.04	0.04	0.15	0.15	0.03	0.03	0.008	0.008	0.04	0.04
11 群	0.00	0.05	0.00	0.00	0.01	0.02	0.00	0.00	0.001	0.001	0.00	0.00
12 群	0.01	0.01	0.00	0.00	0.01	0.01	0.00	0.00	0.001	0.001	0.00	0.00
13 群	0.18	0.18	0.02	0.02	0.08	0.08	0.02	0.02	0.005	0.005	0.01	0.01
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	1.63	1.85	0.27	0.27	1.05	1.10	0.23	0.24	0.071	0.072	0.28	0.28

LB 法: 不検出となった値に 0 を代入して算出した。

MB 法: 不検出となった値に LOQ の半値を代入して算出した。

Table 6 つづき

食品群	Tb		Dy		Ho		Er		Tm		Yb	
	LB 法	MB 法	LB 法	MB 法	LB 法	MB 法	LB 法	MB 法	LB 法	MB 法	LB 法	MB 法
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	0.02	0.02	0.004	0.004	0.01	0.01	0.001	0.001	0.01	0.01
6 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
7 群	0.002	0.002	0.01	0.01	0.002	0.002	0.01	0.01	0.001	0.001	0.00	0.00
8 群	0.021	0.021	0.12	0.12	0.024	0.024	0.07	0.07	0.008	0.008	0.05	0.05
9 群	0.003	0.003	0.02	0.02	0.005	0.005	0.02	0.02	0.002	0.002	0.02	0.02
10 群	0.005	0.005	0.03	0.03	0.007	0.007	0.02	0.02	0.002	0.002	0.01	0.01
11 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
12 群	0.001	0.001	0.00	0.00	0.001	0.001	0.00	0.00	0.001	0.001	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	0.044	0.044	0.26	0.27	0.054	0.055	0.15	0.15	0.020	0.021	0.12	0.12

LB 法: 不検出となった値に 0 を代入して算出した。

MB 法: 不検出となった値に LOQ の半値を代入して算出した。

Table 6 つづき

食品群	Lu		W		Hg		Tl		Pb		U	
	LB 法	MB 法	LB 法	MB 法	LB 法	MB 法	LB 法	MB 法	LB 法	MB 法	LB 法	MB 法
1 群	0.000	0.000	0.17	0.18	0.36	0.36	0.00	0.01	0.32	0.36	0.00	0.00
2 群	0.002	0.002	0.21	0.21	0.01	0.01	0.17	0.17	0.17	0.27	0.05	0.05
3 群	0.000	0.000	0.30	0.30	0.01	0.01	0.04	0.04	0.06	0.08	0.01	0.01
4 群	0.000	0.000	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	0.02	0.00	0.00
5 群	0.001	0.001	0.05	0.05	0.01	0.01	0.02	0.02	0.11	0.14	0.03	0.03
6 群	0.000	0.000	0.02	0.03	0.01	0.01	0.05	0.05	0.11	0.18	0.00	0.00
7 群	0.001	0.001	0.00	0.19	0.01	0.01	0.29	0.29	0.26	0.27	0.02	0.02
8 群	0.008	0.008	0.00	0.39	0.05	0.05	0.66	0.66	0.73	0.73	0.66	0.66
9 群	0.002	0.002	0.89	1.08	0.00	0.01	0.05	0.06	0.67	0.92	0.03	0.03
10 群	0.002	0.002	0.00	0.14	4.40	4.40	0.04	0.04	0.44	0.44	0.20	0.20
11 群	0.000	0.000	0.00	0.27	0.15	0.15	0.22	0.22	0.08	0.13	0.05	0.05
12 群	0.001	0.001	0.00	0.07	0.00	0.00	0.03	0.03	0.00	0.11	0.02	0.02
13 群	0.001	0.001	0.19	0.21	0.02	0.02	0.03	0.03	0.27	0.27	0.03	0.03
14 群	0.000	0.000	0.01	0.01	0.00	0.01	0.00	0.00	0.04	0.04	0.00	0.00
合計	0.019	0.019	1.85	3.13	5.03	5.04	1.60	1.61	3.26	3.96	1.10	1.11

LB 法: 不検出となった値に 0 を代入して算出した。

MB 法: 不検出となった値に LOQ の半値を代入して算出した。

Table 7 2024 年に実施したトータルダイエツ研究により推定したヒ素化学種の一ツ摂取量の平均値 (μg/person/day as As)

食品群	iAs		MMAs		DMAs		AsB	
	LB 法	MB 法	LB 法	MB 法	LB 法	MB 法	LB 法	MB 法
1 群	13.7	14.4	0.00	0.14	3.53	3.53	0.00	0.19
2 群	0.55	0.84	0.00	0.14	0.00	0.14	0.00	0.14
3 群	0.23	0.30	0.00	0.02	0.06	0.07	0.00	0.02
4 群	0.00	0.02	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
5 群	0.07	0.20	0.00	0.02	0.00	0.02	0.00	0.02
6 群	0.06	0.23	0.00	0.03	0.00	0.03	0.00	0.03
7 群	0.02	0.21	0.00	0.03	0.00	0.03	0.00	0.03
8 群	1.77	2.01	0.13	0.19	2.27	2.27	0.17	0.24
9 群	0.00	1.17	0.00	0.17	0.00	0.18	0.00	0.14
10 群	0.50	0.66	0.52	0.52	1.06	1.06	76.6	76.6
11 群	0.06	0.23	0.02	0.05	0.02	0.07	0.24	0.25
12 群	0.00	0.23	0.00	0.04	0.00	0.04	0.00	0.03
13 群	0.37	0.52	0.00	0.03	0.11	0.11	0.90	0.90
14 群	0.04	0.14	0.00	0.02	0.00	0.02	0.00	0.02
合計	17.4	21.2	0.67	1.39	7.05	7.57	77.9	78.7

LB 法: 不検出となった値に 0 を代入して算出した。

MB 法: 不検出となった値に LOQ の半値を代入して算出した。

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	0.31	86.2
10 群	3.27	74.4
11 群	0.11	76.7
1+10+11 群	3.69	—

* 調査した全ての試料から Me-Hg は検出された。

Table 9 2024 年に実施したトータルダイエツ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)	POD ^b (μg/kg/day)	出典及び参照値	推定摂取量 ^c (μg/kg/day)	ハザード比 (HQ)	ばく露マージン (MOE)
B	96 – 200		US EPA (2004)、RfD: 200 μg/kg/day (発達) 食品安全委員会 (2012)、TDI: 96 μg/kg/day	22.1	0.11 – 0.23	–
Al	143 – 300		EFSA (2008)、TWI: 1000 μg/kg/week 食品安全委員会 (2017)、TWI: 2100 μg/kg/week	47.5	0.16 – 0.33	–
V	9		US EPA (1988)、RfD: 9 μg/kg/day (5 価、毛髪中システインの減少)	0.22 ^d	0.02	–
Mn	140		US EPA (1995)、RfD: 140 μg/kg/day (中枢神経系への影響)	69.1	0.49	–
Ni	2.8 – 20		US EPA (1991)、RfD: 20 μg/kg/day (体重及び組織重量の減少) 食品安全委員会 (2012)、TDI: 4.0 μg/kg/day (皮膚炎) EFSA (2015) TDI: 2.8 μg/kg/day	2.79	0.14 – 1.00	–
iAs	0.21 – 0.30	3.0	US EPA (1991)、RfD: 0.3 μg/kg/day (心臓血管、皮膚) EFSA (2005)、TWI (暫定): 1.5 μg/kg/week JECFA (2011)、BMDL _{0.5} : 3.0 μg/kg/day (ヒト肺癌)	0.39	1.28 – 1.80	7.8 [UFs ^e =40]
MMAs	–	9700	EFSA CONTAM (2024)、RP: 9700 μg/kg/day	0.025	–	3.8 × 10 ⁵ [UFs ^e =500]
DMAs	10.9	600	US ATSDR (2007)、MRL: 20 μg/kg/day (DMAs として) EFSA CONTAM (2024)、RP: 600 μg/kg/day (As として)	0.14	0.013	4359 [UFs ^e =10000]
Se	4.0 – 5.0		US EPA (1991)、RfD: 5.0 μg/kg/day (神経系、血液系、皮膚) 食品安全委員会 (2012)、TDI: 4.0 μg/kg/day	1.65	0.33 – 0.41	–
Mo	5.0		US EPA (1992)、RfD: 5.0 μg/kg/day (尿酸値の上昇)	4.00	0.80	–
Cd	0.36 – 1.0		US EPA (1988)、RfD: 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: 2.5 μg/kg/week WHO/JECFA (2013)、PTMI: 25 μg/kg/month	0.24	0.24 – 0.68	–

a: Health-based guidance value、b: Point of departure、c: ND=0.5LOQ を代入し、体重を 55 kg として算出した、d: 中央値、e: 安全係数積、f: 総水銀からメチル水銀の摂取量を差し引いて算出した、g: 1 群、10 群、及び 11 群のみの総和から算出した、h: 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 (µg/kg/day)	POD ^b (µg/kg/day)	出典及び参照値	推定摂取量 ^c (µg/kg/day)	ハザード比 (HQ)	ばく露マージン (MOE)
Sn	2000		WHO/JECFA (1988)、PTWI: 14000 µg/kg/week	6.17	3.1×10^{-3}	—
Sb	0.4 – 6		US EPA (1987)、RfD : 0.4 µg/kg/day (血液系、Other) EFSA (2004) TDI: 6 µg/kg/day (3 価)	0.022	0.004 – 0.056	—
Ba	20 – 200		US EPA (2005)、RfD: 200 µg/kg/day (腎毒性) 食品安全委員会 (2012)、TDI: 20 µg/kg/day (高血圧、心臓病、腎臓病)	7.46	0.04 – 0.37	—
iHg	0.57		WHO/JECFA (2011)、PTWI: 4 µg/kg/week	0.024 ^f	0.043	—
Me-Hg	0.19 – 0.29		EFSA (2012)、TWI : 1.3 µg/kg/week WHO/JECFA (2007)、PTWI: 1.6 µg/kg/week 食品安全委員会 (2005)、TWI (Oral): 2.0 µg/kg/week	0.067 ^g	0.24 – 0.36	—
Tl	—	10 – 40	US EPA (2009)、BMDL ₁₀ : 10 µg/kg/day (臨床所見)、40 µg/kg/day (毛包委縮)	0.029	—	341 – 1363 [UFs ^c =3000]
Pb	—	0.5 – 1.5	EFSA (2010)、BMDL ₀₁ : 0.50 µg/kg/day (発達神経毒性)、BMDL ₀₁ : 1.50 µg/kg/day (血圧への影響)、BMDL ₁₀ : 0.63 µg/kg/day (慢性腎臓病)	0.072 (0.182) ^h	—	2.8 – 20.8 [UFs ^c = 1]
U	0.2 – 3.0		US EPA (1989)、RfD (Oral): 3.0 µg/kg/day (膀胱、その他) EFSA Contam (2009)、TDI (暫定): 0.6 µg/kg/day 食品安全委員会 (2012) TDI: 0.2 µg/kg/day	0.02	0.01 – 0.10	—

a: Health-based guidance value、b: Point of departure、c: ND=0.5LOQを代入し、体重を55 kgとして算出した、d: 中央値、e: 安全係数積、f: 総水銀からメチル水銀の摂取量を差し引いて算出した、g: 1群、10群、及び11群のみの総和から算出した、h: 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 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 (μg/person/day)	推定平均必要量 ^b (μg/day)	推奨量 ^b (μg/day)	耐用上限値 ^b (μg/day)
Cr	61.2	—	10 ^c (18 歳以上)	500 (18 歳以上)
Mn	3800	—	1500 – 4000 ^c	11000 (18 歳以上)
Fe	7593	3000 – 8000	4500 – 12000	20000 – 50000
Cu	1194	200 – 700	300 – 900	7000 (18 歳以上)
Zn	9152	2000 – 10000	3000 – 12000	30000 – 45000 (18 歳以上)
Se	90.6	10 – 30	10 – 35	100 – 450
Mo	220	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: 性別及び年齢等により必要量、推奨量及び耐用上限値は異なり、1 歳以上を対象としてその範囲を記載している。妊婦及び授乳婦に対する付加量は含まない。

c: 目安量

Table 11 幼児 (1 – 6 歳) の体重当たり喫食量 (g/kg) 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	Weight			Estimated mean	Estimated SD ^a
	Tweedie 分布	ZILN 分布	ZIG 分布		
1	1.000	0.000	0.000	13.13 ± 0.23	8.80 ± 0.52
2	1.000	0.000	0.000	7.01 ± 0.18	5.22 ± 0.27
3	0.000	0.000	1.000	1.972 ± 0.077	2.25 ± 0.10
4	0.000	0.000	1.000	0.412 ± 0.013	0.368 ± 0.013
5	0.000	0.000	1.000	2.19 ± 0.10	2.71 ± 0.12
6	1.000	0.000	0.000	6.34 ± 0.23	11.93 ± 0.57
7	0.000	0.000	1.000	3.76 ± 0.13	3.55 ± 0.14
8	1.000	0.000	0.000	6.51 ± 0.16	4.73 ± 0.22
9	1.000	0.000	0.000	15.93 ± 0.60	33.0 ± 1.7
10	1.000	0.000	0.000	1.938 ± 0.081	3.43 ± 0.19
11	1.000	0.000	0.000	5.29 ± 0.13	3.70 ± 0.17
12	1.000	0.000	0.000	13.52 ± 0.46	22.8 ± 1.1
13	0.000	1.000	0.000	2.447 ± 0.080	2.40 ± 0.14

a: standard deviation

Table 12 Pb 濃度 (ng/g) 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	Weight			Estimated mean	Estimated SD ^a
	対数正規分布	ガンマ分布	ワイブル分布		
1	0.000	0.856	0.143	1.00 ± 0.15	0.65 ± 0.17
2	0.000	1.000	0.000	2.37 ± 0.17	0.86 ± 0.15
3	0.999	0.000	0.000	3.25 ± 0.58	3.93 ± 1.51
4	0.962	0.000	0.038	0.464 ± 0.178	2.31 ± 3.34
5	1.000	0.000	0.000	4.17 ± 0.94	5.16 ± 2.40
6	0.996	0.002	0.002	2.27 ± 0.57	3.76 ± 2.04
7	0.999	0.001	0.000	3.18 ± 0.41	2.96 ± 0.74
8	1.000	0.000	0.000	5.44 ± 0.66	4.25 ± 1.03
9	0.927	0.015	0.058	1.41 ± 0.26	1.60 ± 0.56
10	1.000	0.000	0.000	6.91 ± 1.12	5.14 ± 1.87
11	0.991	0.000	0.009	1.86 ± 0.84	14.3 ± 14.2
12	0.997	0.000	0.003	0.756 ± 0.427	8.21 ± 12.35
13	1.000	0.000	0.000	4.37 ± 0.48	3.18 ± 0.67
14	0.999	0.001	0.001	0.315 ± 0.051	0.457 ± 0.127

a: standard deviation

Table 13 二次元モンテカルロシミュレーションを用いた幼児 (1 – 6 歳) の推定 Pb 摂取量 ($\mu\text{g/kg/day}$) 分布

Food group	Mean ^a	Standard deviation ^a	5 th percentile	25 th percentile	50 th percentile	75 th percentile	95 th percentile	Mean contribution ratio (%) ^a
1	0.013 \pm 0.002	0.011 \pm 0.003	0.002	0.005	0.010	0.017	0.035	7.37 \pm 1.43
2	0.017 \pm 0.002	0.014 \pm 0.002	0.002	0.007	0.013	0.023	0.042	9.38 \pm 1.39
3	0.006 \pm 0.002	0.013 \pm 0.008	0.000	0.001	0.002	0.007	0.025	3.60 \pm 1.09
4	0.000 \pm 0.000	0.000 \pm 0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001	0.11 \pm 0.08
5	0.009 \pm 0.003	0.019 \pm 0.012	0.000	0.000	0.003	0.010	0.037	5.13 \pm 1.70
6	0.014 \pm 0.005	0.032 \pm 0.027	0.000	0.001	0.004	0.014	0.057	7.95 \pm 2.82
7	0.012 \pm 0.003	0.018 \pm 0.007	0.000	0.002	0.006	0.014	0.042	6.73 \pm 1.49
8	0.035 \pm 0.006	0.040 \pm 0.013	0.003	0.011	0.023	0.045	0.107	19.85 \pm 3.35
9	0.023 \pm 0.006	0.042 \pm 0.022	0.000	0.002	0.009	0.025	0.087	12.57 \pm 3.23
10	0.014 \pm 0.003	0.022 \pm 0.009	0.000	0.000	0.006	0.017	0.052	7.56 \pm 1.84
11	0.010 \pm 0.016	0.043 \pm 0.151	0.000	0.000	0.001	0.005	0.034	5.44 \pm 4.57
12	0.011 \pm 0.039	0.056 \pm 0.370	0.000	0.000	0.001	0.004	0.033	5.41 \pm 5.56
13	0.011 \pm 0.002	0.014 \pm 0.006	0.001	0.003	0.006	0.013	0.034	6.04 \pm 1.22
14	0.005 \pm 0.001	0.007 \pm 0.003	0.001	0.001	0.003	0.006	0.016	2.85 \pm 0.66
Total	0.181 \pm 0.044	0.137 \pm 0.392	0.076	0.115	0.154	0.209	0.346	—

a: 二次元モンテカルロシミュレーションに用いた 2000 個のパラメーターセットにおける推定の不確かさ

Table 14 地域ブロック別の体重当たり喫食量 (g/kg/day) を補正する重み付け係数

Area block	1 – 6 years old	7 – 19 years old	20 – 59 years old	60 – 79 years old	≥80 years old
A	0.0416	0.1057	0.4712	0.2824	0.0991
B	0.0363	0.0986	0.4220	0.3114	0.1317
C	0.0421	0.1104	0.4470	0.2859	0.1145
D	0.0421	0.1104	0.4470	0.2859	0.1145
E	0.0435	0.1129	0.4408	0.2837	0.1191
F	0.0455	0.1170	0.4817	0.2724	0.0834
G	0.0439	0.1126	0.4605	0.2796	0.1034
H	0.0451	0.1183	0.4774	0.2693	0.0899
I	0.0473	0.1151	0.5145	0.2532	0.0699
J	0.0462	0.1141	0.5081	0.2564	0.0751

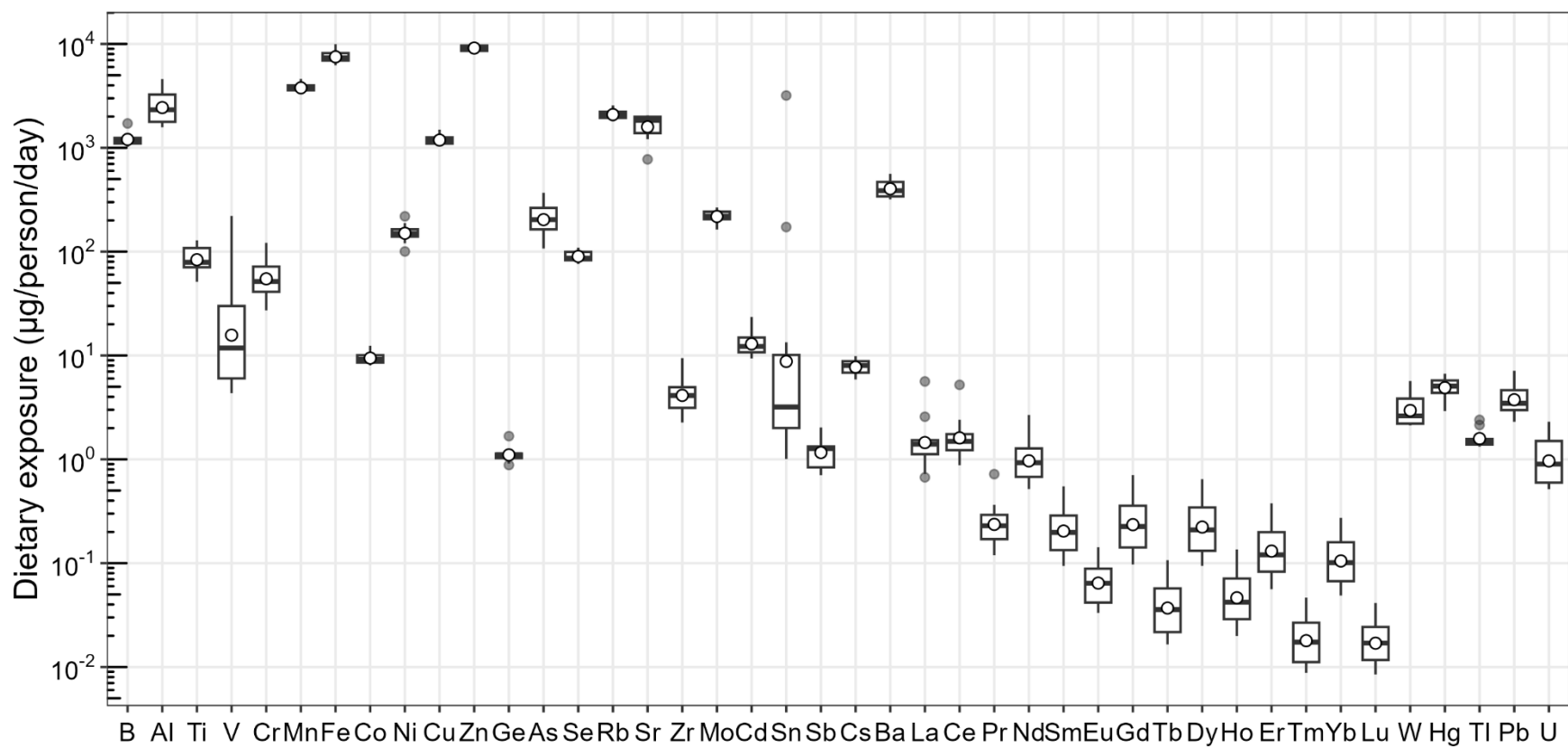


Fig. 1 2024 年に 10 地域の TD 試料から推定した元素類の推定一日摂取量

ND となった測定結果には LOQ の半値を代入した。白丸：幾何平均値；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

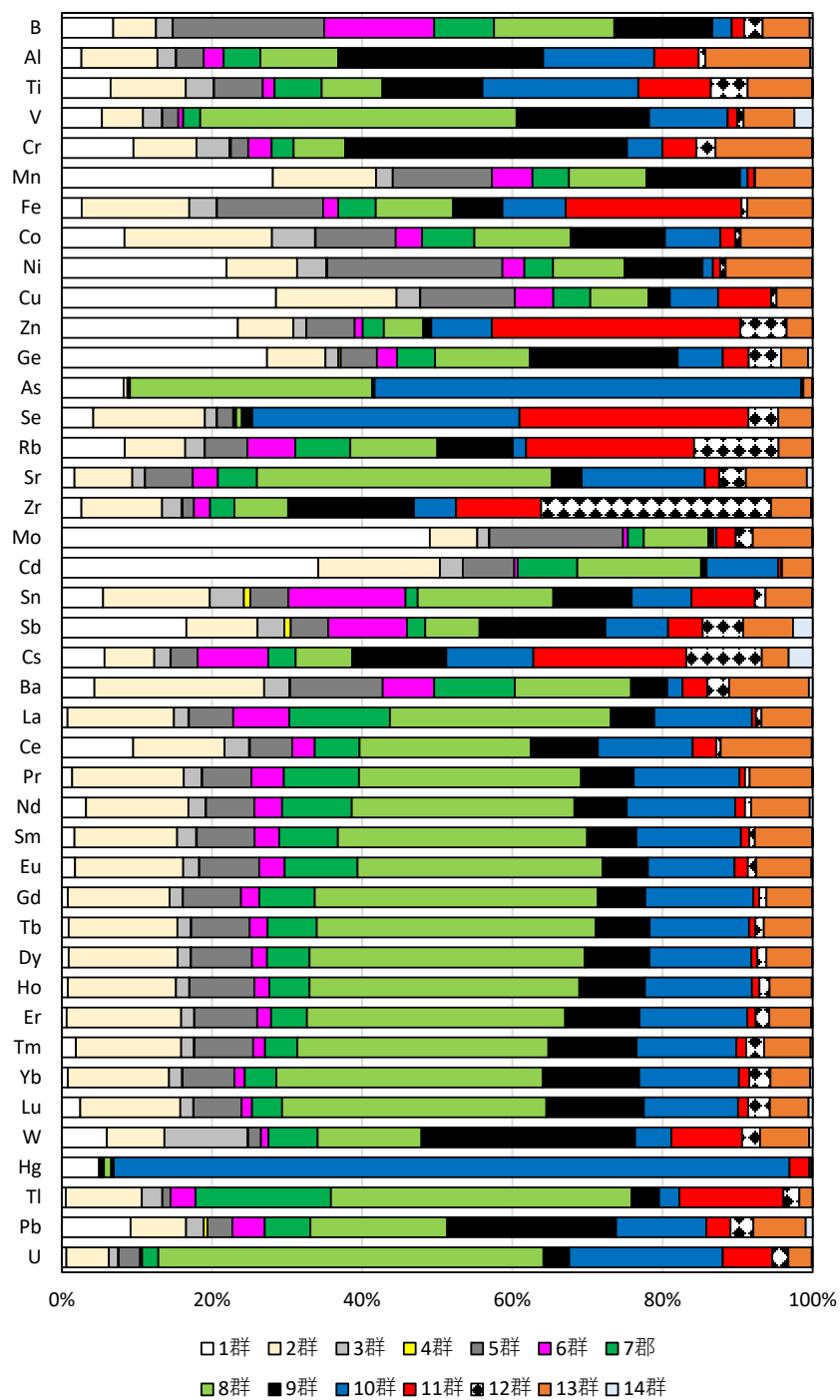


Fig. 2 2024 年に行った TD 研究における有害元素摂取量の各食品群の平均寄与率
 ND となった測定結果には LOQ の半値を代入して算出した。

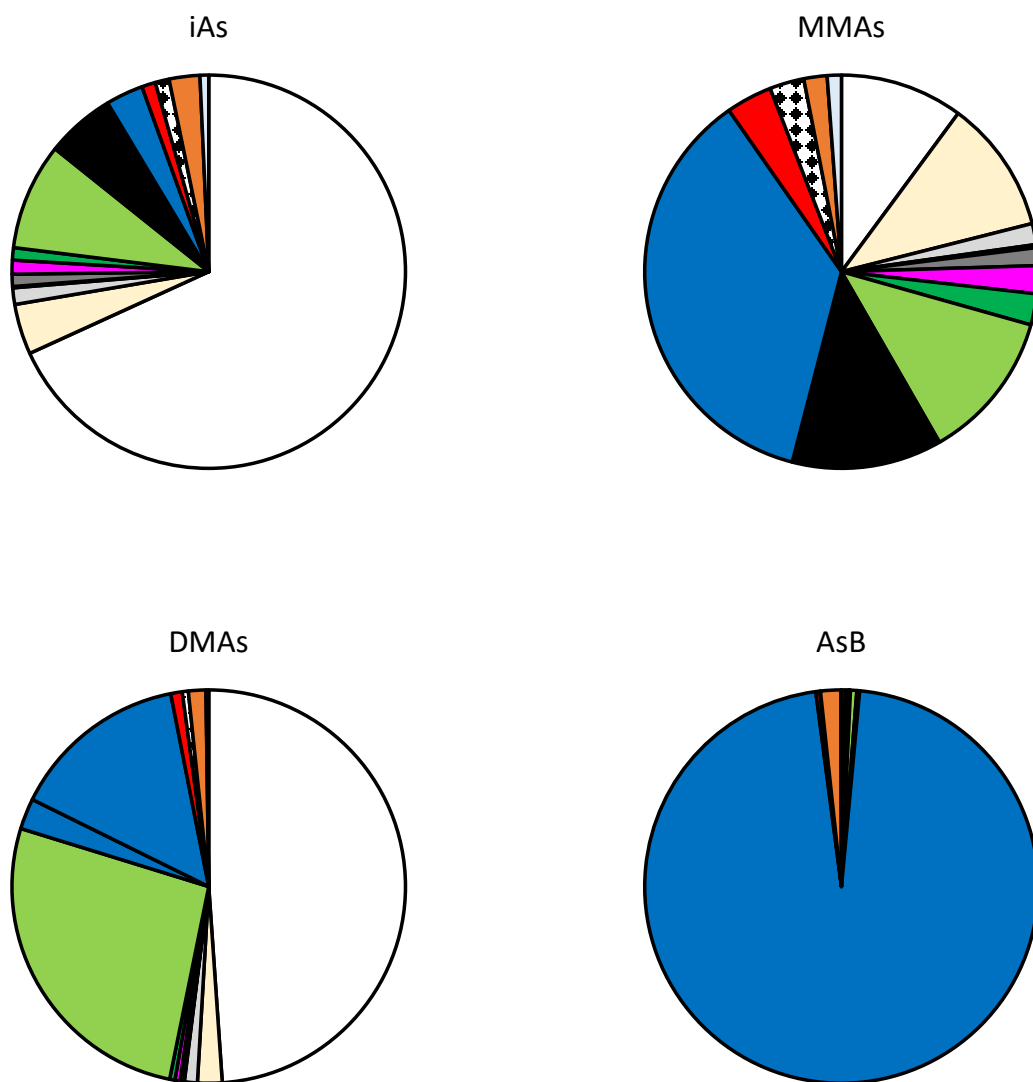


Fig. 3 2024 年に行った TD 研究における As 化学種の摂取量における各食品群の寄与率
ND となった測定結果には LOQ の半値を代入した。

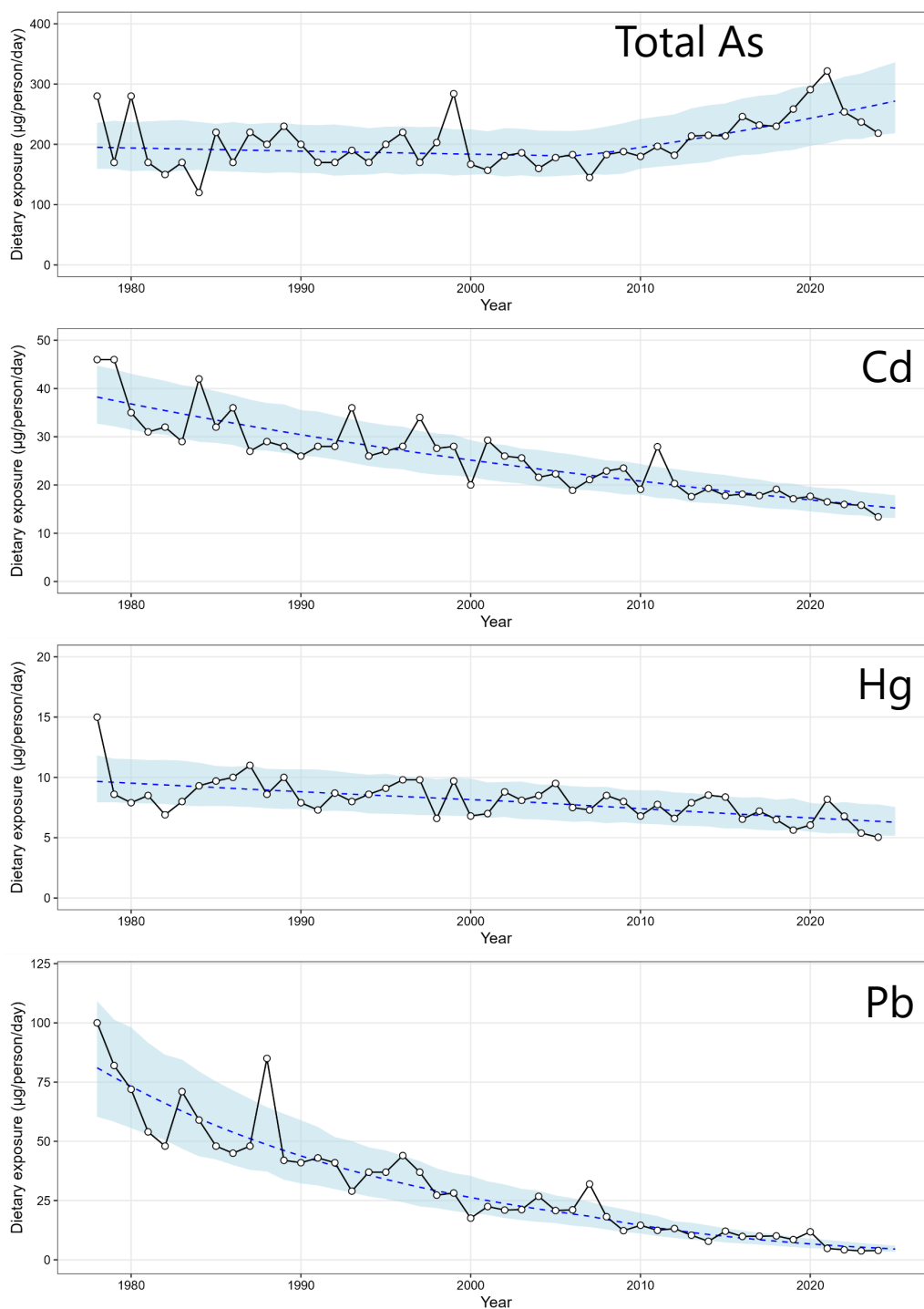


Fig. 4 As、Cd、Hg、Pb の推定一日摂取量の経年変動

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% 予測区間を示す。

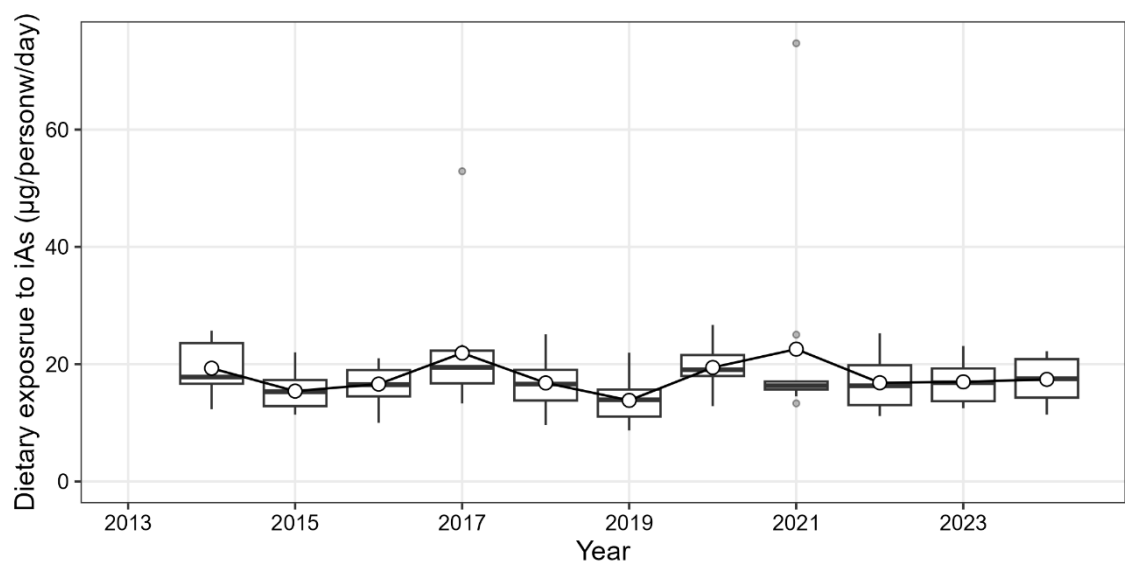


Fig. 5 iAs 摂取量の経年変動

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-1.5×四分位範囲、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

秤量

↓ 試料: 1.0 g

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 20 mL 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

- ↓ SupelcleanTMENVITTM-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. 6 無機ヒ素の簡易分析法のフロー

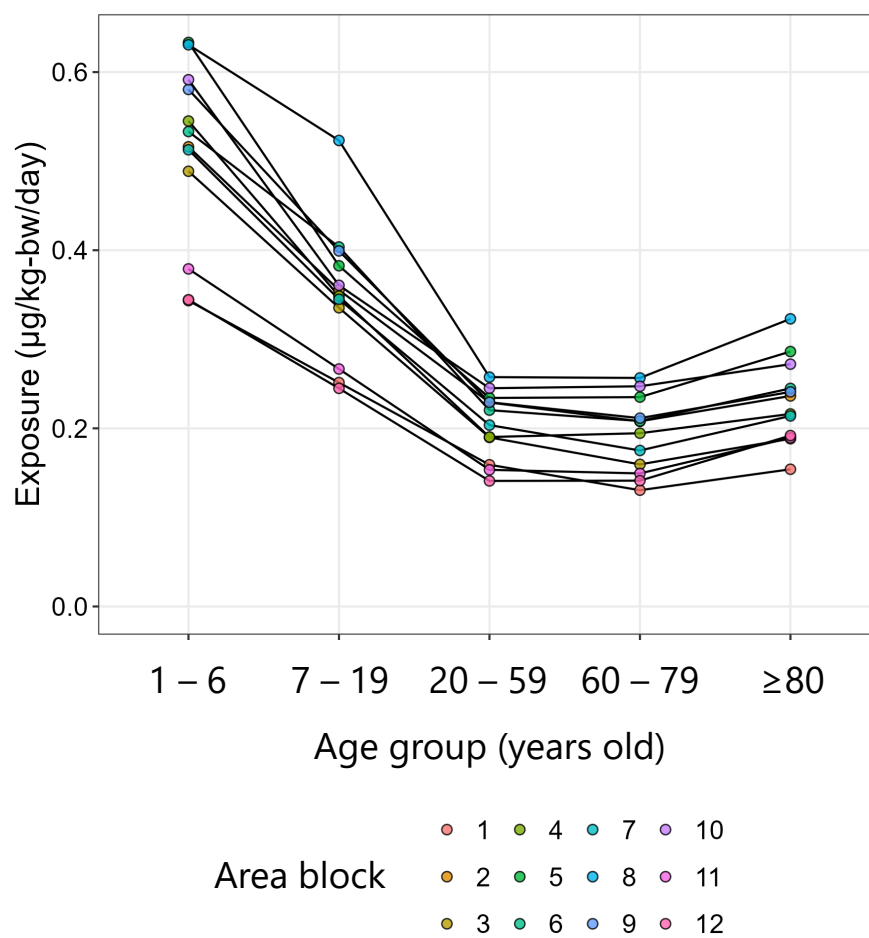


Fig. 7 地域ブロック別年齢層別の米由来 iAs の推定摂取量

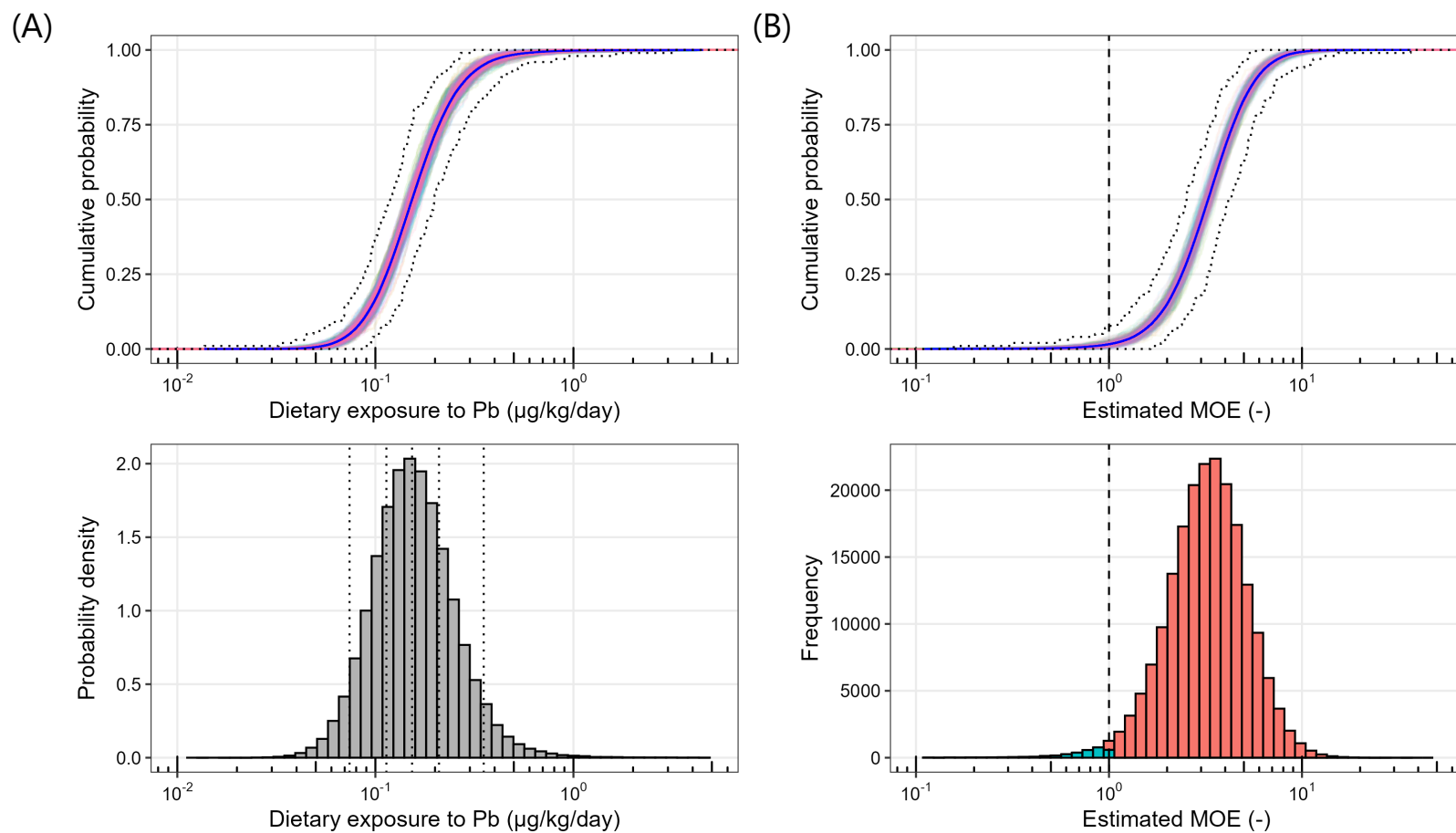
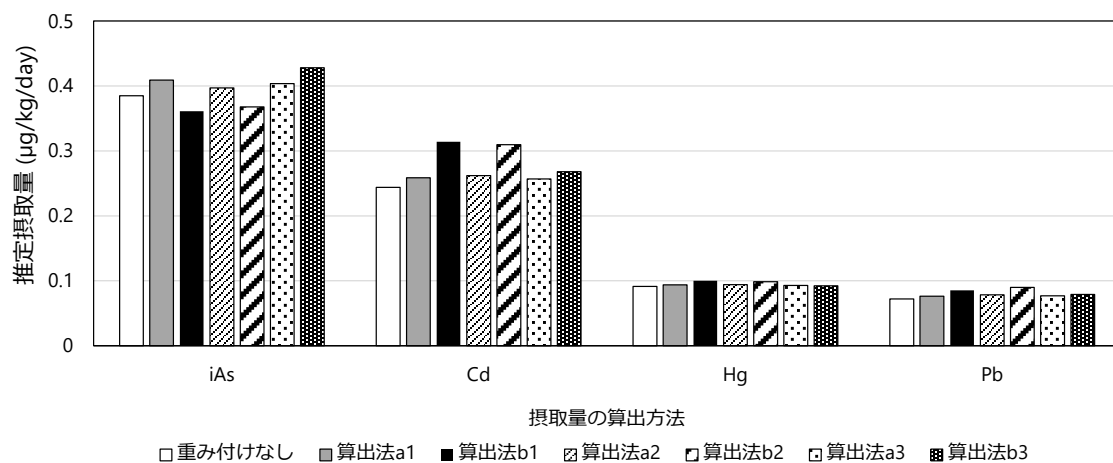


Fig. 8 幼児（1－6歳）に対する鉛の摂取量分布（A）及びばく露マージン分布（B）。上段は経験的累積分布関数（eCDF）を下段はヒストグラムを示す。上段の青線はアンサンブルシミュレーションから取得された eCDF を、他の色の線は 2000 個のパラメーターから取得された eCDF を、点線の領域はアンサンブル eCDF の最も広い範囲である確率ボックスを示す。



摂取量の算出方法	喫食量	濃度	代表値の算出方法
重み付けなし	重み付けなし: 各地域における喫食量の平均値	各地域の濃度	単純平均/平均体重
算出法a1	重み付けa: 年齢構成で重み付けした各地域の体重当たり喫食量	各地域の濃度	方法1: 単純平均
算出法b1	重み付けb: ばく露期間で重み付けした各地域の体重当たり喫食量	各地域の濃度	方法1: 単純平均
算出法a2	重み付けa: 年齢構成で重み付けした各地域の体重当たり喫食量	各地域の濃度	方法2: 人口重み付け平均
算出法b2	重み付けb: ばく露期間で重み付けした各地域の体重当たり喫食量	各地域の濃度	方法2: 人口重み付け平均
算出法a3	重み付けa: 年齢構成で重み付けした体重当たり喫食量を人口で重み付けした平均値	平均濃度	方法3: $\Sigma(\text{平均} \times \text{平均})$
算出法a3	重み付けb: ばく露期間で重み付けした体重当たり喫食量を人口で重み付けした平均値	平均濃度	方法3: $\Sigma(\text{平均} \times \text{平均})$

Fig. 9 有害元素の推定摂取量における算出方法による推定値の差異