

# 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

- (1) 食品に含まれる残留性有機汚染物質等の摂取量推定及び汚染実態の把握に関する研究  
(1-1) トータルダイエツト試料の分析による塩素化ダイオキシン類摂取量推定

研究分担者 堤 智昭 国立医薬品食品衛生研究所食品部

### 研究要旨

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)試料を用いて、ダイオキシン類(PCDD/PCDFs及びCo-PCBs)の国民平均一日摂取量を推定した。国民健康・栄養調査による地域別の国民平均食品摂取量に基づいて食品を購入し、飲料水を含め14群から成るTD試料を全国7地区8機関で調製した。過去の調査からダイオキシン類摂取量に占める割合の高い食品群である10群(魚介類)及び11群(肉・卵類)については、各機関がそれぞれ各3セットの試料を調製し、その他の食品群は各1セットの試料を調製した。10及び11群については試料毎にダイオキシン類を分析し、その他の群は全地区の試料を混合して分析し、ダイオキシン類の一日摂取量を推定した。その結果、体重(50 kgと仮定)あたりのダイオキシン類の全国平均摂取量は0.42(範囲:0.13~0.96) pg TEQ/kg bw/dayと推定された。10群(魚介類)からのダイオキシン類摂取量が全体の9割近くを占めていた。摂取量推定値の平均は、日本の耐容一日摂取量(4 pg TEQ/kg bw/day)の約10%であった。摂取量推定値の最大は0.96 pg TEQ/kg bw/dayであり、平均値の約2.3倍となり、耐容一日摂取量の24%程度に相当した。また、同一機関であっても推定されるダイオキシン類摂取量に1.2~3.8倍の開きがあり、10群及び11群に含まれている食品のダイオキシン類濃度が摂取量に大きな影響を与えていた。

### 研究協力者

国立医薬品食品衛生研究所

高附 巧、張 天齊、足立利華、鍋師裕美

推定するため、本年度も昨年度に引き続き全国7地区8機関において日本人の平均的な食品摂取に従ったTD試料を調製し、試料中のダイオキシン類を分析し、一日摂取量を推定した。

### A. 研究目的

トータルダイエツト(TD)試料を用いたダイオキシン類の摂取量調査は、平成9年から厚生科学研究(現在は厚生労働科学研究)費補助金により、毎年実施されており、国民のダイオキシン類摂取量とその経年推移に関する知見が得られている。最新の国民平均のダイオキシン類摂取量を

### B. 研究方法

#### 1. 試料

国民平均のダイオキシン類摂取量を推定するためのTD試料は、全国7地区の8機関で調製した。厚生労働省が実施した平成29年(2017年)~令和元年(2019年)の国民健康・栄養調査

の地域別食品摂取量(1歳以上)を項目ごとに平均し、各食品の地域別摂取量とした。食品は14群に大別して試料を調製した。各機関はそれぞれ約120品目の食品を購入し、地域別食品摂取量に基づいて、それらの食品を計量し、食品によっては調理した後、食品群ごとに混合均一化したものを試料とした。作製したTD試料は、分析に供すまで-20℃で保存した。

14食品群の内訳は、次のとおりである。

- 1群: 米、米加工品
- 2群: 米以外の穀類、種実類、いも類
- 3群: 砂糖類、菓子類
- 4群: 油脂類
- 5群: 豆類、豆加工品
- 6群: 果実、果汁
- 7群: 緑黄色野菜
- 8群: 他の野菜類、キノコ類、海草類
- 9群: 酒類、嗜好飲料
- 10群: 魚介類
- 11群: 肉類、卵類
- 12群: 乳、乳製品
- 13群: 調味料
- 14群: 飲料水

1～9群、及び12～14群は、各機関で1セットの試料を調製した。10及び11群はダイオキシン類の主要な摂取源であるため、8機関が各群3セットずつ調製した。これら3セットの試料調製では、魚種、産地、メーカー等が異なる食品を含めた。各機関で3セットずつ調製した10及び11群の試料はそれぞれの試料を分析に供した。一方、1～9群及び12～14群は、各機関の食品摂取量に応じた割合で混合した共通試料とし、分析に供した。

## 2. 分析対象項目及び目標とした検出下限値

分析対象項目は、WHOが毒性係数(TEF)を定めたPCDDs 7種、PCDFs 10種及びCo-PCBs 12種の計29種とした。ダイオキシン類各異性体

の目標とした検出下限値(LOD)は以下のとおりである。

	検出下限値		
	1-3,5-13群	4群	14群
<b>PCDDs</b>	(pg/g)	(pg/g)	(pg/L)
2,3,7,8-TCDD	0.01	0.05	0.1
1,2,3,7,8-PeCDD	0.01	0.05	0.1
1,2,3,4,7,8-HxCDD	0.02	0.1	0.2
1,2,3,6,7,8-HxCDD	0.02	0.1	0.2
1,2,3,7,8,9-HxCDD	0.02	0.1	0.2
1,2,3,4,6,7,8-HpCDD	0.02	0.1	0.2
1,2,3,4,6,7,8,9-OCDD	0.05	0.2	0.5
<b>PCDFs</b>			
2,3,7,8-TCDF	0.01	0.05	0.1
1,2,3,7,8-PeCDF	0.01	0.05	0.1
2,3,4,7,8-PeCDF	0.01	0.05	0.1
1,2,3,4,7,8-HxCDF	0.02	0.1	0.2
1,2,3,6,7,8-HxCDF	0.02	0.1	0.2
1,2,3,7,8,9-HxCDF	0.02	0.1	0.2
2,3,4,6,7,8-HxCDF	0.02	0.1	0.2
1,2,3,4,6,7,8-HpCDF	0.02	0.1	0.2
1,2,3,4,7,8,9-HpCDF	0.02	0.1	0.2
1,2,3,4,6,7,8,9-OCDF	0.05	0.2	0.5
<b>Co-PCBs</b>			
3,3',4,4'-TCB(#77)	0.1	0.5	1
3,4,4',5-TCB(#81)	0.1	0.5	1
3,3',4,4',5-PeCB(#126)	0.1	0.5	1
3,3',4,4',5,5'-HxCB(#169)	0.1	0.5	1
2,3,3',4,4'-PeCB(#105)	1	5	10
2,3,4,4',5-PeCB(#114)	1	5	10
2,3',4,4',5-PeCB(#118)	1	5	10
2',3,4,4',5-PeCB(#123)	1	5	10
2,3,3',4,4',5-HxCB(#156)	1	5	10
2,3,3',4,4',5'-HxCB(#157)	1	5	10
2,3',4,4',5,5'-HxCB(#167)	1	5	10
2,3,3',4,4',5,5'-HpCB(#189)	1	5	10

## 3. 分析方法

ダイオキシン類の分析法は、「食品中のダイオキシン類測定方法ガイドライン」(以下、ガイドライ

ン)<sup>1)</sup>に準じた

### 3-1. 試験溶液の調製

#### 3-1-1. 3群, 4群, 9~13群

均一化した試料 50 g(4群は 10 g)をビーカーに量りとり、クリーンアップスパイク(<sup>13</sup>C 標識した PCDD/PCDFs 各 40 pg(OCDD/OCDF は 80 pg)、ノンオルト PCBs 各 100 pg、モノオルト PCBs 各 2.5 ng)を加えた後、2 mol/L 水酸化カリウム水溶液を 200 mL 加え室温で約 16 時間放置した。このアルカリ分解液を分液ロートに移した後、メタノール 150 mL、ヘキサン 100 mL を加え 10 分間振とう抽出した。静置後、ヘキサン層を分取し、水層にヘキサン 70 mL を加え同様の操作を 2 回行った。ヘキサン層を合わせ、2%塩化ナトリウム溶液 150 mL を加えて緩やかに揺り動かし、静置後、水層を除き同様の操作を繰り返した。ヘキサン層の入った分液ロートに濃硫酸を適量加え、緩やかに振とうし、静置後、硫酸層を除去した。この操作を硫酸層の着色が薄くなるまで繰り返した。ヘキサン層をヘキサン洗浄水 10 mL で 2 回洗浄し、無水硫酸ナトリウムで脱水後、溶媒を留去し約 2 mL のヘキサンに溶解した。多層シリカゲルカラムをヘキサン 200 mL で洗浄した後、試験溶液を注入し、ヘキサン 200 mL で溶出した。溶出液は溶媒を留去し、約 2 mL のヘキサンに溶解した。ヘキサンで湿式充填したアルミナカラムに試験溶液を注入し、ヘキサン 150 mL で洗浄後、2%(v/v)ジクロロメタン含有ヘキサン 200 mL でモノオルト PCBs 分画を溶出した。次いで、60%(v/v)ジクロロメタン含有ヘキサン 200 mL で PCDD/PCDFs 及びノンオルト PCBs 分画を溶出した。モノオルト PCBs 分画は溶媒を留去し、シリジンスパイク 500 μL(<sup>13</sup>C 標識体 2.5 ng)を添加し高分解能 GC/MS に供した。PCDD/PCDFs 及びノンオルト PCBs 分画は溶媒を留去した後、活性炭分散シリカゲルリバーカラムに注入し、10 分程度放置した。25%(v/v)ジクロロメタン含有ヘキサン 80 mL でカラムを洗浄後、カラムを反転させ、トルエン 80 mL で PCDD/PCDFs 及びノンオ

ルト PCBs 分画を溶出した。溶媒を留去後、シリジンスパイク 20 μL(PCDD/PCDFs 用 <sup>13</sup>C 標識体 40 pg、ノンオルト PCB 用 <sup>13</sup>C 標識体 100 pg)を添加し高分解能 GC/MS に供した。

#### 3-1-2. 1群, 2群, 5~8群

均一化した試料 50 g をナスフラスコに量りとり、クリーンアップスパイク(<sup>13</sup>C 標識した PCDD/PCDFs 各 40 pg(OCDD/OCDF は 80 pg)、ノンオルト PCBs 各 100 pg、モノオルト PCBs 各 2.5 ng)を加えた後、アセトン 150 mL、ヘキサン 150 mL を加え 1 時間振とう抽出をした。抽出溶液を吸引ろ過し、残渣にアセトン 50 mL、ヘキサン 50 mL を加え 15 分間振とうし、同様の操作を行なった。抽出液を分液ロートに合わせ、2%塩化ナトリウム溶液 150 mL を加えて緩やかに揺り動かし、静置後、水層を除き同様の操作を繰り返した。ヘキサン層の入った分液ロートに濃硫酸を適量加え、緩やかに振とうし、静置後、硫酸層を除去した。この操作を硫酸層の着色が薄くなるまで繰り返した。ヘキサン層をヘキサン洗浄水 10 mL で 2 回洗浄し、無水硫酸ナトリウムで脱水後、溶媒を留去し約 2 mL のヘキサンに溶解した。この溶液を 3-1-1 で記述したように多層シリカゲルカラム、アルミナカラム、及び活性炭分散シリカゲルリバーカラムにより精製後、シリジンスパイクを添加し高分解能 GC/MS に供した。

#### 3-1-3. 14群

試料 5 L を 1.25 L ずつ分液ロートに量りとり、各分液ロートにジクロロメタン 150 mL を加え 15 分間振とう抽出をした。ジクロロメタン層を分取し、水層にジクロロメタン 150 mL を加え同様の操作を行った。ジクロロメタン層を合わせ、クリーンアップスパイク(<sup>13</sup>C 標識した PCDD/PCDFs 各 40 pg(OCDD/OCDF は 80 pg)、ノンオルト PCBs 各 100 pg、モノオルト PCBs 各 2.5 ng)を加えた後、無水硫酸ナトリウムで脱水した。その後、溶媒を留去し、200 mL のヘキサンに溶解し分液ロートに移した。ヘキサン溶液の入った分液ロート

に濃硫酸を適量加え、緩やかに振とうし、静置後、硫酸層を除去した。この操作を硫酸層の着色が薄くなるまで繰り返した。ヘキサン層をヘキサン洗浄水 10 mL で 2 回洗浄し、無水硫酸ナトリウムで脱水後、溶媒を留去し約 2 mL のヘキサンに溶解した。この溶液を 3-1-1 で記述したように多層シリカゲルカラム、アルミナカラム、及び活性炭分散シリカゲルリバーカラムにより精製後、シリンジスパイクを添加し高分解能 GC/MS に供した。

### 3-2. 高分解能 GC/MS 測定

高分解能 GC/MS: 7890B (Agilent Technologies) /MStation JMS-800D UltraFOCUS 日本電子(株) 社製

#### 1) GC 条件

① 2,3,7,8 - TCDD、1,2,3,7,8 - PeCDD、1,2,3,7,8 - PeCDF、1,2,3,4,7,8 - HxCDF、1,2,3,6,7,8-HxCDF

カラム:DB-5ms (内径 0.32 mm×60 m、膜厚 0.25 μm)

注入方式:スプリットレス

注入口温度:250°C

注入量:1.5 μL

昇温条件:130°C(2分保持)-30°C/分-200°C-5°C/分-220°C(16分保持)-6°C/分-300°C(10分保持)

キャリアーガス:ヘリウム (流速:1.8 mL/分)

②1,2,3,4,7,8-HxCDD、1,2,3,6,7,8-HxCDD、1,2,3,7,8,9-HxCDD、1,2,3,4,6,7,8-HpCDD、OCDD、2,3,7,8-TCDF、2,3,4,7,8-PeCDF、1,2,3,7,8,9-HxCDF、2,3,4,6,7,8-HxCDF、1,2,3,4,6,7,8-HpCDF、1,2,3,4,7,8,9-HpCDF、OCDF

カラム:DB-17(内径 0.25 mm×60 m、膜厚 0.25 μm)

注入方式:スプリットレス

注入口温度:250°C

注入量:2.0 μL

昇温条件:130°C(2分保持)-30°C/分-200°C-3

°C/分-280°C(30分保持)

キャリアーガス:ヘリウム (流速:1.5 mL/分)

#### ③Co-PCBs

カラム:HT8(内径 0.22 mm×50 m、膜厚 0.25 μm)

注入方式:スプリットレス

注入口温度:260°C

注入量:1.5 μL

昇温条件:130°C(1分保持)-15°C/分-220°C(5分保持)-2°C/分-300°C(1分保持)

キャリアーガス:ヘリウム (流速:1.2 mL/分)

#### 2) MS 条件

MS 導入部温度:280°C

イオン源温度:280°C

イオン化法:EI ポジティブ

イオン化電圧:38 eV

イオン化電流:600 μA

加速電圧:~10.0 kV

分解能:10,000 以上

モニターイオン:ガイドライン<sup>1)</sup>に準じた。

### 4. 分析結果の表記

調査結果は、一日摂取量を体重あたりの毒性等量(pg TEQ/kg bw/day)で示した。TEQ の算出には 2005 年に定められた TEF を使用し、分析値が LOD 未満の異性体濃度をゼロとして計算(以下、ND=0 と略す)した。Global Environment Monitoring System(GEMS)では、分析値が LOD 未満となった場合は ND=LOD/2 として摂取量を推定する方法も示されているが、これは ND となった試料が全分析試料の 60%以下であることが適用の条件になっている。過去の報告書<sup>2)</sup>で示したとおり、10 群と 11 群以外では異性体の検出率は極めて低くなる。このようなことから、ND=LOD/2 により推定したダイオキシン類摂取量の信頼性は低く、摂取量を著しく過大評価する可能性が高いため、ND=0 として摂取量を推定した結果のみを示した。

## C. 研究結果及び考察

7地区の8機関において調製したTD試料を分析し、ダイオキシン類摂取量及び各群からの摂取割合を算出した。表1～3には、ND=0の場合のPCDD/PCDFs、Co-PCBs及び両者を合計したダイオキシン類の一日摂取量を示した。また、10及び11群は機関毎に3試料からの分析値が得られるので、表1～3では10及び11群の各群からのダイオキシン類摂取量の最小値の組み合わせを#1、中央値の組み合わせを#2、最大値の組み合わせを#3と示した。従って、PCDD/PCDFs及びCo-PCBs摂取量の最小値、中央値、最大値と#1、#2、#3とは必ずしも一致しない。

### 1. PCDD/PCDFs 摂取量

PCDD/PCDFsの一日摂取量は、平均7.46(範囲:1.43～30.90)pg TEQ/person/dayと推定された。これを、日本人の平均体重を50kgとして、体重(kg)あたりの一日摂取量に換算すると、平均0.15(範囲:0.03～0.62)pg TEQ/kg bw/dayとなった(表1)。昨年度は平均0.14(範囲:0.05～0.33)pg TEQ/kg bw/dayであり<sup>3)</sup>、今年度と昨年度の平均値はほぼ同じ値であった。最大の摂取量となったTD試料は、東北地区で作製した11群試料(#3)であった。PCDD/PCDFs摂取量(全国平均値)に占める割合が高い食品群は、10群(魚介類)60.5%、11群(肉・卵類)35.7%であり、これら2群で全体の96.2%と大部分を占めた。

### 2. Co-PCBs 摂取量

Co-PCBsの一日摂取量は、平均13.30(範囲:4.93～20.83)pg TEQ/person/dayと推定された。体重あたりの摂取量は平均0.27(範囲:0.10～0.42)pg TEQ/kg bw/dayであった(表2)。昨年度は平均0.30(範囲:0.08～0.86)pg TEQ/kg bw/dayであり<sup>3)</sup>、今年度の平均値は若干低い値であった。また、最大の摂取量となったTD試料は、中国・四国地区で作製した10群試料(#3)であった。Co-PCBs摂取量(全国平均値)に占める

割合が高い食品群は、10群(魚介類)98.7%、11群(肉・卵類)1.2%であり、これら2群で全体の99.9%と大部分を占めた。

### 3. ダイオキシン類摂取量

PCDD/PCDFsとCo-PCBsを合わせたダイオキシン類の一日摂取量は、平均20.76(範囲6.58～47.77)pg TEQ/person/dayと推定された。体重あたりの摂取量は平均0.42(範囲:0.13～0.96)pg TEQ/kg bw/dayであった(表3)。平均値は日本のダイオキシン類のTDI(4pg TEQ/kg bw/day)の約10%であり、最大値はTDIの24%程度に相当した。昨年度は平均0.44(範囲:0.15～1.19)pg TEQ/kg bw/dayであり<sup>3)</sup>、今年度の平均値は昨年度の平均値を僅かであるが下回った。

ダイオキシン類摂取量に対する寄与率が高い食品群は、10群(魚介類)85.0%、11群(肉・卵類)13.6%であり、これら2つの食品群で全体の98.6%を占めた。この傾向は昨年度の調査と同様の傾向であった。また、ダイオキシン類摂取量に占めるCo-PCBsの割合は、64%であった。一昨年度及び昨年度における割合は共に67%及び69%であり、ほぼ7割を推移している。

本研究では、ダイオキシン類摂取量に占める割合が大きい10群及び11群の試料を各機関で各3セット調製し、ダイオキシン類摂取量の最小値、中央値及び最大値を求めている。今年度は、同一機関であっても、推定されるダイオキシン類摂取量の最小値と最大値には1.2～3.8倍の開きがあった。昨年度は同一機関における最小値と最大値の開きは1.6～8.2倍であり<sup>3)</sup>、今年度の最小値と最大値の開きは昨年度と比べ小さかった。3セットの試料は、同一機関(地域)において、種類、産地、メーカー等が異なる食品を使用して調製していることから、10群及び11群に含まれる食品のダイオキシン類濃度は広い範囲に分布していることが推察された。1セットのTD試料に含めることが可能な食品の数は限られているため、本研究のように10群や11群の試料数を多くして広範囲な食品を含めることが、信頼性

の高いダイオキシン類摂取量の平均値の推定には有用であると考えられる。

#### 4. ダイオキシン類摂取量の経年変化

平成 10(1998)年度以降の調査で得られたダイオキシン類摂取量(全国平均値)の経年変化を図 1 に示した。全食品群からの合計値の他、ダイオキシン類摂取量に大きな割合を占めた 10 群と 11 群からの摂取量についてもあわせて示した。昨年度までの摂取量は、令和 3 年度厚生労働行政推進調査事業費補助金研究報告書<sup>3)</sup>から引用した。ダイオキシン類摂取量の合計値は、1998 年度以降、若干の増減はあるものの緩やかな減少傾向を示している。本年度(2022 年度)の全国平均値は 0.42 pg TEQ/kg bw/day であり、1998 年度以降の調査結果の中で 2 番目に低い値であった。また、調査開始時の 1998 年度の摂取量は 1.75 pg TEQ/kg bw/day であり、これと比較すると本年度の平均値は 24%程度であった。同様に、10 群からの摂取量も、調査期間内で緩やかな減少を示していた。一方、11 群からの摂取量は、2006 年度までに大きく減少し、その後は低い値でほぼ一定となっていた。このように、ダイオキシン類摂取量の減少には、2006 年度までは 10 群と 11 群からの摂取量の減少が寄与していたが、2006 年度以降は、主として 10 群からの摂取量の減少が寄与していた。

日本では Co-PCBs を含む PCB 製品の使用が 1972 年に禁止されている。また、PCDD/PCDFs を不純物として含むことが知られている農薬(クロロントロフェン及びペンタクロロフェノール)の農薬登録が 1970 年代に失効している。さらには、1999 年に制定されたダイオキシン類対策特別措置法により、焼却施設等からのダイオキシン類の排出が大幅に抑制されている。ダイオキシン類摂取量の低下についてはこれらの行政施策の効果が窺われた。また、10 群の食品摂取量は近年ゆるやかな減少を示しており、今年度の 10 群の食品摂取量は 1998 年と比較して約 65%に減少していた。食生活の多様化に伴う

魚介類摂取量の減少も部分的にダイオキシン類摂取量の減少に寄与していると考えられた。

#### 5. 国内外のダイオキシン類摂取量調査との比較

過去 10 年間に実施された日本と主な諸外国の TD 調査の結果を表 4 に示した。日本国内では本調査の他に、東京都が実施しているダイオキシン類摂取量調査の報告がある。東京都の令和 2 年度(2020 年度)のダイオキシン類摂取量は 0.40 pg TEQ/kg bw/day と報告<sup>4)</sup>されており、本調査結果と近い値であった。ダイオキシン類摂取量の推定には、分析法の LOD、LOD の取り扱い、また対象とした年齢層などの違いが影響するため、各国のダイオキシン類摂取量を単純に比較することは難しい。これらの点に留意する必要があるが、本調査のダイオキシン類摂取量は諸外国で報告<sup>5-11)</sup>されているダイオキシン類摂取量と比較し、特に高いことはなかった。

#### D. 結論

全国 7 地区 8 機関で調製した TD 試料の分析結果より、ダイオキシン類の国民平均一日摂取量は 0.42 pg TEQ/kg bw/day と推定された。行政施策の効果等によりダイオキシン類の摂取量は徐々に減少しており、1998 年の摂取量と比較すると 24%程度に減少している。現在の摂取量の平均値は TDI の 10%程度であり、TDI を十分に下回っている状態である。しかし、ダイオキシン類は有害物質の中では TDI 等の健康影響に基づく指標値に占める割合が比較的高い方である。また、ダイオキシン類は環境残留性や生物難分解が極めて高いことを考えると、長期的なリスク管理が望ましい。今後もダイオキシン類摂取量調査を継続し、ダイオキシン類摂取量の動向を調査していく必要がある。

#### E. 参考文献

1) 食品中のダイオキシン類の測定方法暫定ガ

- イドライン、食安監発第 0228003(平成 20 年 2 月 28 日)
- 2) 平成 28 年度厚生労働行政推進調査事業費補助金研究報告書「食品を介したダイオキシン類等有害物質摂取量の評価とその手法開発に関する研究」分担研究報告書(食品の塩素化ダイオキシン類、PCB 等の摂取量推定及び汚染実態の把握に関する研究)
  - 3) 令和 3 年度厚生労働行政推進調査事業費補助金研究報告書「食品を介したダイオキシン類等有害物質摂取量の評価とその手法開発のための研究」分担研究報告書(食品の塩素化ダイオキシン類、PCB、難燃剤等の摂取量推定及び汚染実態の把握に関する研究)
  - 4) 東京都福祉保健局健康安全部環境保健衛生課, 令和 2 年度 食事由来の化学物質等摂取量推計調査, [https://www.fukushihoken.metro.tokyo.lg.jp/kankyo/kankyo\\_eisei/kagakutaisaku/shokuhin/kekka.files/2shokuji.pdf](https://www.fukushihoken.metro.tokyo.lg.jp/kankyo/kankyo_eisei/kagakutaisaku/shokuhin/kekka.files/2shokuji.pdf)
  - 5) Barone G, Storelli A, Busco A, Mallamaci R, Storelli MM: Polychlorinated dioxins, furans (PCDD/Fs) and dioxin-like polychlorinated biphenyls (dl-PCBs) in food from Italy: Estimates of dietary intake and assessment. *J Food Sci.* 2021;86:4741-4753.
  - 6) Windal I, Vandevijvere S, Maleki M, Gosciny S, Vinkx C, Focant J, Eppe G, Hanot V, Van Loco J: Dietary intake of PCDD/Fs and dioxin-like PCBs of the Belgian population. *Chemosphere*, 2010;79:334-340.
  - 7) Perelló G, Gómez-Catalán J, Castell V, Llobet JM, Domingo JL: Assessment of the temporal trend of the dietary exposure to PCDD/Fs and PCBs in Catalonia, over Spain: Health risks. *Food Chem. Toxicol.*, 2012;50:399-408.
  - 8) Wong WWK, Yip YC, Choi KK, Ho YY, Xiao Y: Dietary exposure to dioxins and dioxin-like PCBs of Hong Kong adults: results of the first Hong Kong Total Diet Study. *Food Additives & Contaminants: Part A*, 2013;30:2152-2158.
  - 9) Zhang L, Yin S, Wang X, Li J, Zhao Y, Li X, Shen H, Wu Y: Assessment of dietary intake of polychlorinated dibenzo-*p*-dioxins and dibenzofurans and dioxin-like polychlorinated biphenyls from the Chinese Total Diet Study in 2011. *Chemosphere*, 2015;137:178-184.
  - 10) Bramwell L, Mortimer D, Rose M, Fernandes A, Harrad S, Pless-Mulloli T: UK dietary exposure to PCDD/Fs, PCBs, PBDD/Fs, PBBs and PBDEs: comparison of results from 24-h duplicate diets and total diet studies. *Food Additives & Contaminants: Part A*, 2017: 34:65-77.
  - 11) Food Standards Australia New Zealand. (2020) The 26<sup>th</sup> Australian total diet study. <https://www.foodstandards.gov.au/publications/Documents/26th%20ATDS%20report.pdf>

## F.研究業績

### 1. 論文発表

- 1) 堤 智昭:食品からの残留性有機汚染物質(ダイオキシン類およびポリ塩化ビフェニル)の摂取量の推定(総説). *FOODS & FOOD INGREDIENTS JOURNAL OF JAPAN*, 2023;228:3-12.

### 2. 学会発表

- 1) 高附 巧、張 天齊、前田朋美、足立利華、河野洋一、小杉正樹、柳 俊彦、鍋師裕美、堤 智昭:トータルダイエツト試料によるダイオキシン類の摂取量推定(令和 3 年度), 第 59 回全国衛生化学技術協議会年会 (2022.10).

**【謝辞】**

TD 試料の調製にご協力いただいた研究機関  
の諸氏に感謝いたします。



表1 令和4年度トータルダイエツト試料(1~14群)からのダイオキシン(PCDDs+PCDFs)1日摂取量(ND=0)

(pgTEQ/day)

食品群	北海道地区			東北地区			関東地区						中部地区			関西地区		
							I			II								
1群(米、米加工品)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
2群(米以外の穀類、種実類、いも類)	0.02			0.02			0.02			0.02			0.02			0.02		
3群(砂糖類、菓子類)	0.03			0.03			0.03			0.03			0.03			0.03		
4群(油脂類)	0.01			0.01			0.01			0.01			0.01			0.01		
5群(豆・豆加工品)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
6群(果実、果汁)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
7群(緑黄色野菜)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
8群(他の野菜類、キノコ類、海藻類)	0.14			0.14			0.14			0.14			0.14			0.14		
9群(酒類、嗜好飲料)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3
10群(魚介類)	2.99	5.67	6.80	3.15	3.25	8.38	4.12	3.91	4.33	3.60	3.06	6.66	1.32	1.11	6.66	6.90	7.05	5.57
11群(肉類・卵類)	0.05	0.13	0.19	13.66	16.36	22.23	0.00	0.59	2.32	0.10	0.23	1.06	0.04	0.04	0.05	0.04	1.23	1.89
12群(乳・乳製品)	0.03			0.03			0.03			0.03			0.03			0.03		
13群(調味料)	0.04			0.04			0.04			0.04			0.04			0.04		
14群(飲料水)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
総摂取量(pgTEQ/day)	3.33	6.08	7.27	17.10	19.89	30.90	4.40	4.78	6.93	3.98	3.58	8.00	1.65	1.43	6.99	7.23	8.57	7.74
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.07	0.12	0.15	0.34	0.40	0.62	0.09	0.10	0.14	0.08	0.07	0.16	0.03	0.03	0.14	0.14	0.17	0.15

食品群	中国・四国地区			九州地区			平均摂取量	標準偏差	比率(%)
1群(米、米加工品)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
2群(米以外の穀類、種実類、いも類)	0.02			0.02			0.02	0.00	0.29
3群(砂糖類、菓子類)	0.03			0.03			0.03	0.00	0.39
4群(油脂類)	0.01			0.01			0.01	0.00	0.13
5群(豆・豆加工品)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.03
6群(果実、果汁)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
7群(緑黄色野菜)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
8群(他の野菜類、キノコ類、海藻類)	0.14			0.14			0.14	0.00	1.92
9群(酒類、嗜好飲料)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
	#1	#2	#3	#1	#2	#3			
10群(魚介類)	3.01	4.65	4.80	2.60	3.27	5.44	4.51	1.91	60.51
11群(肉類・卵類)	0.01	0.00	0.08	0.17	0.45	2.96	2.66	5.90	35.69
12群(乳・乳製品)	0.03			0.03			0.03	0.00	0.44
13群(調味料)	0.04			0.04			0.04	0.00	0.59
14群(飲料水)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
総摂取量(pgTEQ/day)	3.30	4.94	5.16	3.05	4.01	8.68	7.46	6.57	100.00
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.07	0.10	0.10	0.06	0.08	0.17	0.15	0.13	

\* 一部の地域(北海道及び東北地区、中国・四国及び九州地区)の食品群1~9、12~14群は共通試料を使用した。

\*\* 食品群10及び11におけるダイオキシン類(PCDDs+PCDFs+Co-PCBs)摂取量(ND=0)の最小値の組み合わせを#1、中央値の組み合わせを#2、最大値の組み合わせを#3とした。

表2 令和4年度トータルダイエツ試料(1~14群)からのCo-PCBs類1日摂取量(ND=0)

(pgTEQ/day)

食品群	北海道地区			東北地区			関東地区						中部地区			関西地区		
							I			II								
1群(米、米加工品)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
2群(米以外の穀類、種実類、いも類)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
3群(砂糖類、菓子類)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
4群(油脂類)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
5群(豆・豆加工品)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
6群(果実、果汁)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
7群(緑黄色野菜)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
8群(他の野菜類、キノコ類、海草類)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
9群(酒類、嗜好飲料)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3
10群(魚介類)	11.67	14.45	18.72	8.68	9.65	16.83	11.36	13.09	13.89	9.47	10.34	17.06	4.91	7.05	18.05	16.47	18.87	20.61
11群(肉類・卵類)	0.02	0.02	0.07	0.04	1.63	0.04	0.01	1.62	0.04	0.01	0.02	0.03	0.01	0.02	0.01	0.03	0.02	0.05
12群(乳・乳製品)	0.01			0.01			0.01			0.01			0.01			0.01		
13群(調味料)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
14群(飲料水)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
総摂取量(pgTEQ/day)	11.70	14.48	18.80	8.74	11.28	16.88	11.37	14.72	13.94	9.50	10.37	17.09	4.93	7.08	18.08	16.51	18.90	20.67
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.23	0.29	0.38	0.17	0.23	0.34	0.23	0.29	0.28	0.19	0.21	0.34	0.10	0.14	0.36	0.33	0.38	0.41

食品群	中国・四国地区			九州地区			平均摂取量	標準偏差	比率(%)
1群(米、米加工品)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
2群(米以外の穀類、種実類、いも類)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
3群(砂糖類、菓子類)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.02
4群(油脂類)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
5群(豆・豆加工品)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
6群(果実、果汁)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
7群(緑黄色野菜)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
8群(他の野菜類、キノコ類、海草類)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
9群(酒類、嗜好飲料)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
	#1	#2	#3	#1	#2	#3			
10群(魚介類)	7.04	15.79	20.80	6.76	10.42	13.19	13.13	4.67	98.74
11群(肉類・卵類)	0.02	0.03	0.02	0.02	0.05	0.01	0.16	0.45	1.20
12群(乳・乳製品)	0.01			0.01			0.01	0.00	0.04
13群(調味料)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
14群(飲料水)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
総摂取量(pgTEQ/day)	7.07	15.83	20.83	6.79	10.48	13.21	13.30	4.64	100.00
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.14	0.32	0.42	0.14	0.21	0.26	0.27	0.09	

\* 一部の地域(北海道及び東北地区、中国・四国及び九州地区)の食品群1~9、12~14群は共通試料を使用した。

\*\* 食品群10及び11におけるダイオキシン類(PCDDs+PCDFs+Co-PCBs)摂取量(ND=0)の最小値の組み合わせを#1、中央値の組み合わせを#2、最大値の組み合わせを#3とした。

表3 令和4年度トータルダイエツト試料(1~14群)からのダイオキシン類1日摂取量(ND=0)

(pgTEQ/day)

食品群	北海道地区			東北地区			関東地区						中部地区			関西地区		
							I			II								
1群(米、米加工品)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
2群(米以外の穀類、種実類、いも類)	0.02			0.02			0.02			0.02			0.02			0.02		
3群(砂糖類、菓子類)	0.03			0.03			0.03			0.03			0.03			0.03		
4群(油脂類)	0.01			0.01			0.01			0.01			0.01			0.01		
5群(豆・豆加工品)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
6群(果実、果汁)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
7群(緑黄色野菜)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
8群(他の野菜類、キノコ類、海藻類)	0.14			0.14			0.14			0.14			0.14			0.14		
9群(酒類、嗜好飲料)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3	#1	#2	#3
10群(魚介類)	14.67	20.13	25.52	11.83	12.90	25.21	15.47	16.99	18.22	13.07	13.40	23.72	6.23	8.16	24.72	23.38	25.93	26.18
11群(肉類・卵類)	0.07	0.14	0.26	13.71	17.98	22.27	0.01	2.22	2.35	0.11	0.25	1.08	0.06	0.06	0.06	0.08	1.25	1.94
12群(乳・乳製品)	0.04			0.04			0.04			0.04			0.04			0.04		
13群(調味料)	0.04			0.04			0.04			0.04			0.04			0.04		
14群(飲料水)	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
総摂取量(pgTEQ/day)	15.03	20.56	26.07	25.83	31.17	47.77	15.78	19.50	20.87	13.47	13.94	25.09	6.58	8.51	25.07	23.74	27.47	28.41
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.30	0.41	0.52	0.52	0.62	0.96	0.32	0.39	0.42	0.27	0.28	0.50	0.13	0.17	0.50	0.47	0.55	0.57

食品群	中国・四国地区			九州地区			平均摂取量	標準偏差	比率(%)
1群(米、米加工品)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
2群(米以外の穀類、種実類、いも類)	0.02			0.02			0.02	0.00	0.11
3群(砂糖類、菓子類)	0.03			0.03			0.03	0.00	0.15
4群(油脂類)	0.01			0.01			0.01	0.00	0.05
5群(豆・豆加工品)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.01
6群(果実、果汁)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
7群(緑黄色野菜)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
8群(他の野菜類、キノコ類、海藻類)	0.14			0.14			0.14	0.00	0.69
9群(酒類、嗜好飲料)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
	#1	#2	#3	#1	#2	#3			
10群(魚介類)	10.06	20.44	25.60	9.36	13.69	18.62	17.65	6.36	85.00
11群(肉類・卵類)	0.03	0.03	0.10	0.19	0.50	2.97	2.82	6.05	13.59
12群(乳・乳製品)	0.04			0.04			0.04	0.00	0.18
13群(調味料)	0.04			0.04			0.04	0.00	0.21
14群(飲料水)	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
総摂取量(pgTEQ/day)	10.38	20.77	25.99	9.85	14.49	21.88	20.76	8.96	100.00
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.21	0.42	0.52	0.20	0.29	0.44	0.42	0.18	

\* 一部の地域(北海道及び東北地区、中国・四国及び九州地区)の食品群1~9、12~14群は共通試料を使用した。

\*\* 食品群10及び11におけるダイオキシン類(PCDDs+PCDFs+Co-PCBs)摂取量(ND=0)の最小値の組み合わせを#1、中央値の組み合わせを#2、最大値の組み合わせを#3とした。

表 4 日本と主な諸外国の TD 調査によるダイオキシン類摂取量推定値

国	調査時期	ダイオキシン類摂取量 pg TEQ/kg bw/day	対象とした 年齢層	検出下限値 の取り扱い*	参考文献
日本(全国)	2021年度(令和3年度)	0.42	1歳以上	ND=0	本研究
日本(東京都)	2020年度(令和2年度)	0.40	1歳以上	ND=0	4)
イタリア	2019年度	0.35(男)、0.38(女)**	18-64.9歳	ND=0	5)
ベルギー	2008年	0.61	15歳以上	ND=LOD/2	6)
スペイン	2008年	0.60	成人	ND=LOD/2	7)
中国	2010-2011年	0.73 ***	20-84歳	ND=LOD/2	8)
	2011年	0.59	18-45歳	ND=0	9)
イギリス	2011-2012年	0.52	19歳以上	ND=LOD	10)
オーストラリア	2017-2018年	0.21	2歳以上	ND=0	11)

\* 検出下限値未満のダイオキシン類をゼロとして計算した場合はND=0、検出下限値の1/2を当てはめた場合はND=LOD/2、検出下限値を当てはめた場合はND=LODと示した。

\*\* 原著では一週間あたりのDXNs摂取量が示されていたため、7日で除した値を一日摂取量として示した。

\*\*\* 原著では一ヶ月あたりのDXNs摂取量が示されていたため、30日で除した値を一日摂取量として示した。

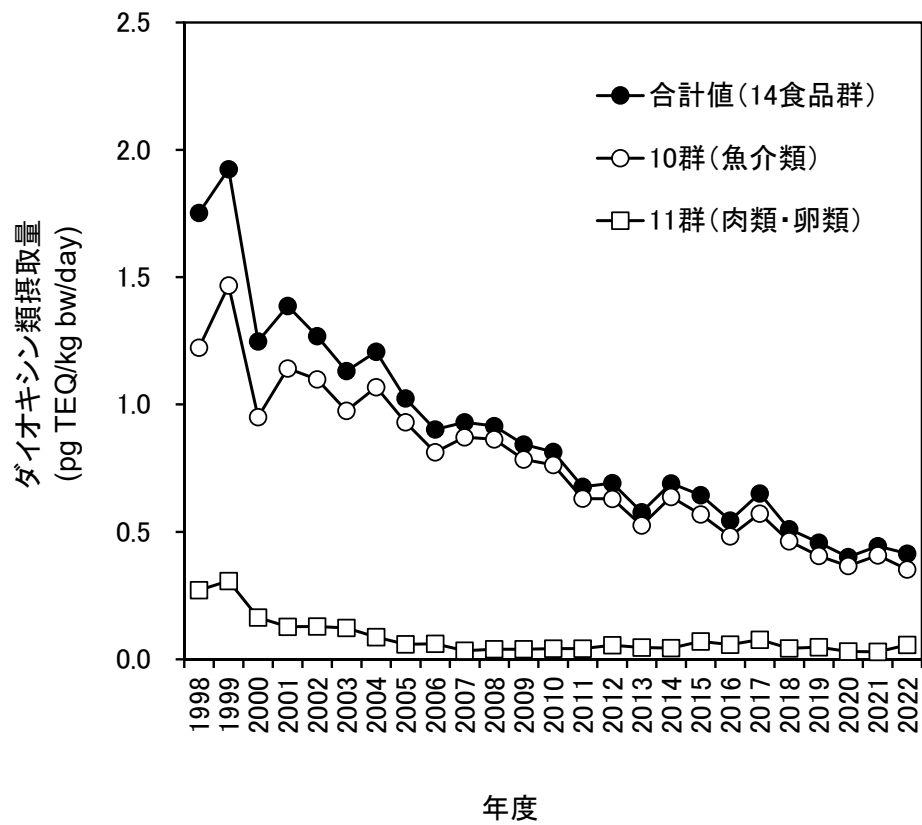


図1 ダイオキシン類摂取量（全国平均値）の経年変化