令和５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)トータルダイエッ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ット（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0.40（範囲：0.12～0.79） 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割程度を占めていた。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0.79 pg TEQ/kg bw/dayであり、平均値の約2倍となり、耐容一日摂取量の20%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1.2～3.1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 天斉、足立利華、鍋師裕美

A. 研究目的

トータルダイエット(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。

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
PCDDs	(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
PCDFs			
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
Co-PCBs			
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)[1)]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(^{13}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、シリンジスパイク 500 μL(^{13}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スカラムに注入し、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、シリンジスパイク 20 μL(PCDD/PCDFs 用 ^{13}C 標識体 40 pg、ノンオルト PCB 用 ^{13}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(^{13}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 50mL 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ス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。

3-1-3. 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(^{13}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ス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℃

注入量:1.5 μL

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

注入量:2.0 μL

昇温条件:130℃(2 分保持)-30℃/分-200℃-3℃/分- 280℃(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℃

注入量:1.5 μL

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

イオン源温度:280℃

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[1)]に準じた。

4. ダイオキシン類摂取量の推定

TD 試料におけるダイオキシン類の毒性等量(TEQ)濃度に、各食品群の食品摂取量を乗じてダイオキシン類の一日摂取量を推定した。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[2)]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 6.57(範囲:1.05～12.00) pg TEQ/person/day と推定された。これを、日本人の平均体重を 50 kg として、体重(kg)あたりの一日摂取量に換算すると、平均 0.13(範囲:0.02～0.24) pg TEQ/kg bw/day となった(表 1)。昨年度は平均 0.15(範囲:0.03～0.62) pg TEQ/kg bw/day であり [3]、今年度の平均値は若干低い値であった。最大の摂取量となった TD 試料は、北海道地区で作製した 10 群試料(#2)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)76.0%、11 群(肉・卵類)20.9%であり、これら 2 群で全体の 96.9%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 13.59(範囲:4.75～29.59) 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:0.10～0.59) pg TEQ/kg bw/day であった(表 2)。昨年度は平均 0.27(範囲:0.10～0.42) pg TEQ/kg bw/day であり [3]、今年度と昨年度の平均値はほぼ同じ値であった。また、最大の摂取量となった TD 試料は、北海道地区で作製した 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) 97.4%、11 群(肉・卵類) 2.3%であり、これら 2 群で全体の 99.7%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 20.15(範囲 5.80～39.74) pg TEQ/person/day と推定された。体重あたりの摂取量は平均 0.40(範囲:0.12～0.79) 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(4 pg TEQ/kg bw/day)の約 10%であり、最大値は TDI の 20%程度に相当した。昨年度は平均 0.42(範囲:0.13～0.96) pg TEQ/kg bw/day であり [3]、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) 90.4%、11 群(肉・卵類) 8.4%であり、これら 2 つの食品群で全体の 98.8%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、67%であった。一昨年度及び昨年度における割合は共に 69%及び 64%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 1.2～3.1 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 1.2～3.8 倍であり [3]、今年度の最小値と最大値の開きは昨年度と比べやや小さかった。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 4 年度厚生労働行政推進調査事業費補助金研究報告書[3]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(2023 年度)の全国平均値は 0.40 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 23%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(クロロニ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 群の食品消費量は近年ゆるやかな減少を示しており、今年度の 10 群の食品消費量は 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 15 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 4 年度(2022 年度)のダイオキシン類摂取量は 0.44 pg TEQ/kg bw/day と報告[4]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[5-11]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 0.40 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 23%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 4 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）
4) 東京都福祉保健局健康安全部環境保健衛生課，令和 4 年度 食事由来の化学物質等摂取量推計調査，https://www.hokeniryo.metro.tokyo.lg.jp/kankyo/kankyo_eisei/senmoniinkai/kankyousenmoniinkai/r5_kagakubunkakai.files/02_r5siryou1.pdf.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, Goscinny 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) Lacomba I, Socas-Hernández C, López A, Pardo O, Yusà V, Isabel Beser Y, Marín S, Villalba P, Coscollà C: Levels, patterns and risk assessment of PCDD/Fs and dl-PCBs through dietary exposure in the Valencian Region (Spain). Food Research International, 2024:176: 113839.
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 26th 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

なし

2. 学会発表

なし

【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5年度トータルダイエット試料（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）	0.02			0.02			0.02			0.02			0.02			0.02		
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）	0.02			0.02			0.02			0.02			0.02			0.02		
8群（他の野菜類、キノコ類、海草類）	0.04			0.04			0.04			0.04			0.04			0.04		
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）	9.95	10.44	9.38	3.99	4.63	5.46	2.58	3.33	7.10	4.80	4.50	4.89	0.84	0.99	3.25	2.42	7.75	6.42
11群（肉類・卵類）	0.05	0.12	0.55	2.36	3.48	3.26	0.05	0.14	2.21	0.06	0.07	0.29	0.01	0.06	0.19	0.65	3.41	5.05
12群（乳・乳製品）	0.03			0.03			0.03			0.03			0.03			0.03		
13群（調味料）	0.03			0.03			0.03			0.03			0.03			0.03		
14群（飲料水）	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
総摂取量(pgTEQ/day)	10.21	10.76	10.15	6.55	8.31	8.93	2.84	3.68	9.51	5.07	4.77	5.39	1.05	1.25	3.64	3.27	11.37	11.68
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.20	0.22	0.20	0.13	0.17	0.18	0.06	0.07	0.19	0.10	0.10	0.11	0.02	0.02	0.07	0.07	0.23	0.23

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	0.30
3群（砂糖類、菓子類）	0.03			0.03			0.03	0.00	0.42
4群（油脂類）	0.02			0.02			0.02	0.00	0.37
5群（豆・豆加工品）	0.00			0.00			0.00	0.00	0.05
6群（果実、果汁）	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
7群（緑黄色野菜）	0.02			0.02			0.02	0.00	0.36
8群（他の野菜類、キノコ類、海草類）	0.04			0.04			0.04	0.00	0.66
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）	3.12	3.47	4.71	3.98	7.03	4.80	4.99	2.57	76.02
11群（肉類・卵類）	0.01	0.08	0.13	0.63	4.77	5.25	1.37	1.83	20.85
12群（乳・乳製品）	0.03			0.03			0.03	0.00	0.50
13群（調味料）	0.03			0.03			0.03	0.00	0.48
14群（飲料水）	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
総摂取量(pgTEQ/day)	3.34	3.76	5.04	4.82	12.00	10.26	6.57	3.52	100.00
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.07	0.08	0.10	0.10	0.24	0.21	0.13	0.07	

＊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5年度トータルダイエット試料（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 I			関東地区 II			中部地区			関西地区		
1群（米、米加工品）	0.03			0.03			0.03			0.03			0.03			0.03		
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）	17.49	20.86	29.54	12.84	15.69	16.88	7.95	8.71	13.51	10.23	13.72	13.43	4.68	5.00	12.39	5.77	12.04	16.59
11群（肉類・卵類）	0.04	0.01	0.01	0.03	0.03	1.59	0.03	0.02	0.03	0.01	0.02	0.01	0.03	0.01	0.01	0.04	0.03	0.03
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)	17.57	20.92	29.59	12.91	15.76	18.50	8.02	8.77	13.58	10.27	13.78	13.48	4.75	5.05	12.45	5.84	12.11	16.66
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.35	0.42	0.59	0.26	0.32	0.37	0.16	0.18	0.27	0.21	0.28	0.27	0.10	0.10	0.25	0.12	0.24	0.33

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）	0.03			0.00			0.03	0.01	0.20
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）	8.69	13.19	16.71	9.47	14.63	17.54	13.23	5.50	97.39
11群（肉類・卵類）	0.01	0.04	0.01	1.97	1.99	1.54	0.32	0.67	2.32
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)	8.74	13.27	16.76	11.48	16.66	19.12	13.59	5.60	100.00
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.17	0.27	0.34	0.23	0.33	0.38	0.27	0.11	

＊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5年度トータルダイエット試料（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）	0.03			0.03			0.03			0.03			0.03			0.03		
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）	0.02			0.02			0.02			0.02			0.02			0.02		
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）	0.02			0.02			0.02			0.02			0.02			0.02		
８群（他の野菜類、キノコ類、海草類）	0.04			0.04			0.04			0.04			0.04			0.04		
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）	27.44	31.30	38.92	16.82	20.32	22.34	10.53	12.04	20.61	15.03	18.22	18.33	5.53	5.98	15.64	8.18	19.79	23.01
１１群（肉類・卵類）	0.09	0.13	0.57	2.39	3.51	4.84	0.08	0.17	2.24	0.07	0.09	0.31	0.03	0.07	0.20	0.69	3.45	5.08
１２群（乳・乳製品）	0.04			0.04			0.04			0.04			0.04			0.04		
１３群（調味料）	0.03			0.03			0.03			0.03			0.03			0.03		
１４群（飲料水）	0.00			0.00			0.00			0.00			0.00			0.00		
総摂取量(pgTEQ/day)	27.77	31.68	39.74	19.46	24.07	27.43	10.86	12.45	23.09	15.34	18.55	18.88	5.80	6.29	16.09	9.12	23.48	28.34
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.56	0.63	0.79	0.39	0.48	0.55	0.22	0.25	0.46	0.31	0.37	0.38	0.12	0.13	0.32	0.18	0.47	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）	0.03			0.03			0.03	0.00	0.15
２群（米以外の穀類、種実類、いも類）	0.02			0.02			0.02	0.00	0.10
３群（砂糖類、菓子類）	0.03			0.03			0.03	0.00	0.15
４群（油脂類）	0.02			0.02			0.02	0.00	0.12
５群（豆・豆加工品）	0.00			0.00			0.00	0.00	0.02
６群（果実、果汁）	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
７群（緑黄色野菜）	0.02			0.02			0.02	0.00	0.12
８群（他の野菜類、キノコ類、海草類）	0.04			0.04			0.04	0.00	0.22
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）	11.81	16.66	21.41	13.45	21.66	22.34	18.22	7.72	90.42
１１群（肉類・卵類）	0.03	0.12	0.14	2.60	6.76	6.80	1.68	2.24	8.36
１２群（乳・乳製品）	0.04			0.04			0.04	0.00	0.19
１３群（調味料）	0.03			0.03			0.03	0.00	0.15
１４群（飲料水）	0.00			0.00			0.00	0.00	0.00
総摂取量(pgTEQ/day)	12.08	17.03	21.80	16.29	28.67	29.38	20.15	8.57	100.00
摂取量(pgTEQ/kg bw/day)	0.24	0.34	0.44	0.33	0.57	0.59	0.40	0.17	

＊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）	2023年度（令和5年度）	0.40	1歳以上	ND=0	本研究
日本（東京都）	2022年度（令和4年度）	0.44	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	2010-2011年	0.24 **	6-15歳	ND=0	7)
		0.16 **	>15歳	ND=0	
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（定量）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（定量）下限値の1/2を当てはめた場合はND=LOD/2、検出（定量）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。

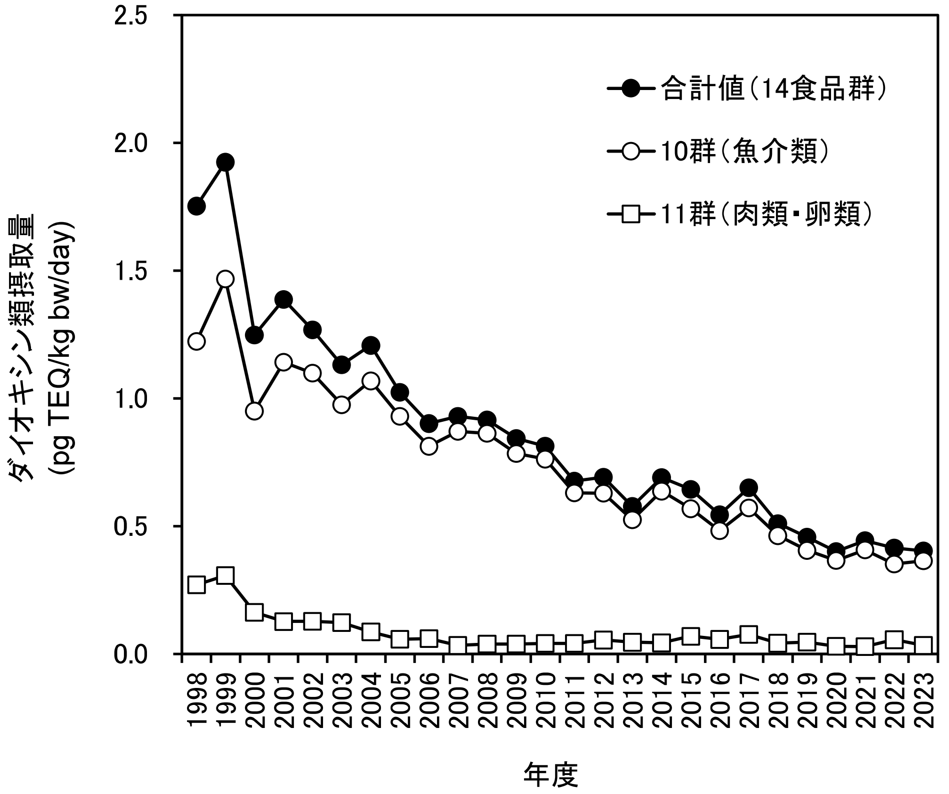

図 1 ダイオキシン類摂取量（全国平均値）の経年変化