

2003/2/11

厚生労働科学研究費補助金

食品安全確保研究事業

食品中臭素化ダイオキシン及びその関連化合物質の
汚染実態の解明に関する研究

平成15年度 総括・分担研究報告書

主任研究者

福岡県保健環境研究所 中川 礼子

分担研究者

福岡県保健環境研究所 芦塚 由紀

平成16（2004）年 3月

目 次

I. 総括研究報告

食品中臭素化ダイキシン及びその関連化合物質の汚染実態の解明に
関する研究

----- 2

中川礼子

II. 分担研究報告

食品中臭素化ダイキシン及びその関連化合物質汚染調査に
関する研究

----- 10

中川礼子

臭素化ダイキシン及びその関連化合物の分析法の開発に関する研究

----- 52

芦塚由紀

総括研究報告書

食品中臭素化ダイオキシン及びその関連化合物質の
汚染実態の解明に関する研究

主任研究者 中川礼子

(福岡県保健環境研究所)

厚生科学研究費補助金（食品安全確保研究事業）

総括研究報告書

食品中臭素化ダイオキシン及びその関連化合物質の汚染実態の解明に関する研究
(平成15年度)

主任研究者 中川礼子 福岡県保健環境研究所 生活化学課長

研究要旨 平成13、14年に引き続き、食品中臭素化ダイオキシン及びその関連化合物質の汚染実態を明らかにする目的として、次の研究を実施した。

(1)食品中臭素化ダイオキシン及びその関連化合物質汚染調査
(2)臭素化ダイオキシン及びその関連化合物質の分析法の開発

(1)では、1) 個別試料として生鮮魚介類9種類10試料、魚介・海草加工食品として10試料について分析を実施した。その結果、キハダマグロ、マスに1,2,3,4,6,7,8-HpBDFを、また、モノプロモポリクロロダイオキシン類(MoBPCDD/Fs)では、イシダイ及びアラカブから3-Br-2,7,8-CDFを検出、それらのTEQ濃度は0.0004~0.003pgTEQ/gであった。PBDEについては、総濃度が11.6pg/g(キハダマグロ)~1254pg/g(ブリ)であった。魚介・海草加工食品10種10試料の調査では、PBDDs/PBDFs, MoBPCDD/Fsは検出されず、PBDEが、総濃度では3.7pg/g(鯛のスボ巻き)~562.4pg/g(ニボシ)検出された。また、(2)5名の陰膳試料、トータルダイエツト食品群では、第1、2、3、4、5、6、7、8、9、及び13群について汚染調査を実施した。これらを基に、1日摂取量の毒性評価を実施した。その結果、「臭素化ダイオキシン類+臭素化ジフェニルエーテル+塩素系ダイオキシン類」の現段階での1日摂取量は、陰膳法では、1.24pgTEQ/kg/日(ND=0)、1.59pgTEQ/kg/日(ND=検出限界値の1/2)、トータルダイエツト法では、1.61pgTEQ/kg/日(ND=0)と推定され、我国のTDI(4pgTEQ/kg/日)はもとより、EUやJECFAから提唱されている耐容量を下回ることが明らかとなった。

(2)では、1) HpBDF, OBDD, MoBPCDD/Fs, DeBDEを測定項目に含めた同時測定法の確立と、本法による信頼性確保を実証するための添加回収実験、2) 臭素化ダイオキシン類の高分解能GC/MS測定における高感度化に関する検討、3) 臭素化ジフェニルエーテル類のGC/MS測定における大量注入法導入についての検討を行った。その結果、1)の実試料を用いたn=5の添加回収試験ではPBDD/DFs, MoBPCDDs, PBDEs, DeBDEの回収率及びRSDは良好であった。この時のGC/MS分析はPBDD/Fs及びMoBrPCDDsの異性体の同時測定が可能で、良好な分離及び感度を得られた。2)では活性化処理法の異なる3種類のカラムを検討した結果、1つのカラムにおいてピーク強度の安定性、S/N比が優れていることが示された。3)ではピーク分離は良好だったが通常注入以上の感度を得られず、今後さらに改良が必要であると考えられた。

分担研究者

芦塚由紀

(福岡県保健環境研究所 主任技師)

研究協力者

堀 就英

(福岡県保健環境研究所 研究員)

飛石和大

(福岡県保健環境研究所 主任技師)

飯田隆雄

(福岡県保健環境研究所 保健科学部長)

A. 研究目的

臭素化ダイオキシンは臭素系難燃剤の合成過程や、臭素系難燃剤を含むプラスチック剤等の燃焼によって人工的に生成する。環境における臭素化ダイオキシンの生成率は塩素化ダイオキシンよりも低いと報告されているが、毒性は塩素系ダイオキシンとほぼ同じとされている。環境省の調査¹⁾では、大気、降下ばいじん、底質、野生生物(イノシシ、ドバト、アナグマ)、水生生物(ムラサキガイ、コイ)などから、TeBDD/F、PeBDF、HxBDF、2-Br-3,7,8-TrCDD/F、1-Br-2,3,6,7,8,9-HxCDD、1-Br-2,3,4,6,7,8,9-HpCDDなど数種(いずれも2,3,7,8-体)が検出されているが、その検出頻度、濃度は塩素系に比べて極めて低い結果となっている。しかし、一方で最近、ヒトの脂肪組織²⁾にこれら臭素化ダイオキシンやその供給源と考えられる臭素化ジフェニルエーテルを検出した報告がなされているため、ヒトの場合の主たる汚染経路と考えられる食品におけるこれら化学物質の汚染実態を早急に明らかにする必要が生じている。我々は平成13及び14年度において、1. 本研究で確立した「凍結乾燥+高速溶媒抽出」を用いる分析法により、実試料100g採取した時の分析感度は、S/N比>3で、4及び5臭素化体の2,3,7,8-TeBDD/F、1,2,3,7,8-PeBDD、2,3,4,7,8-PeBDF及び

1,2,3,7,8-PeBDFが0.01pg/g、6臭素化体の1,2,3,4,7,8-HxBDD、1,2,3,6,7,8-HxBDD、1,2,3,7,8,9-HxBDD、及び1,2,3,4,7,8-HxBDFが0.05pg/gであり、現在実施されている塩素化ダイオキシン分析に要求されるのとはほぼ同等の感度が得られた。

2. 平成13、14年に実施した調査では、臭素化ダイオキシンはすべての個別食品、陰膳試料及びトータルダイエツト食品群試料(第10、11、12群)で不検出であった。一方、臭素化ジフェニルエーテルでは#47、#49、#100、#99、#153、#154等数種の異性体をこれらの試料から検出した。中でも、#47は独占的高濃度に検出された。

3. 1名3日分の陰膳試料の分析結果と毒性に関する文献値から、1日摂取量の毒性評価を試みた。その結果は現在設定されている耐容1日摂取量(4pgTEQ/g)を大きく下回る数値であった。

第3年度である平成15年度は、(1)食品を介したヒトへの曝露量を推定し、食品による健康被害を回避する資料を提供するために、確立した微量分析法によって、個別生鮮食品、加工食品、トータルダイエツト食品群、陰膳試料など幅広い食品試料について調査を実施した。また、(2)臭素化ダイオキシン及びその関連化合物質の分析法の開発を継続して検討した。

B. 研究方法

分担研究1

個別試料として生鮮魚介類9種類10試料、魚介・海草加工食品として10試料、5名の陰膳試料、トータルダイエツト食品群では、第1、2、3、4、5、6、7、8、9、及び13群について汚染調査を実施した。これらの結果を基に1日摂取量の毒性評価を実施した。

分担研究2

HpBDF、DBDD、MoBPCDD/Fs、DeBDEを測定項目に含めた同時測定法の確立と、本法による信頼性確保を実証するための添加回収実験、高感度分析のためのカラムの選択に関する検討、また、平成 13、14 年から検討している大量注入法は、今回は臭素化ジフェニルエーテルの分離、感度について検討した。

(倫理面への配慮)

本研究を実施する実験室及び測定室は、ISO14001 の認証を受けており、研究者自身の安全は勿論、研究所周辺への汚染防止などに十分な配慮をしているため、倫理上の問題はないと考えられる。

C. 結果と考察

分担研究 1

1 生鮮魚介食品における PBDD/Fs、MoBPCDD/Fs 及び PBDEs 濃度

分析対象となった生鮮魚介食品は、9 種 10 試料であった。今回 PBDDs/PBDFs に初めて検出例を得、キハダマグロ、マスに 1,2,3,4,6,7,8-HpBDF を各 0.05pg/g 検出した。また、MoBPCDD/Fs では、インダイ、アラカブから、3-Br-2,7,8-CDF を、それぞれ 0.02、0.03pg/g 検出した。その他の生鮮魚介は PBDD/Fs、MoBPCDD/Fs は不検出であった。「PBDD/Fs+MoBPCDD/Fs」の検出濃度は、塩素化ダイオキシンの 2,3,7,8-TCDD 毒性等価係数 TEF を暫定的に用いて計算した³⁾場合 0.0005~0.003 pgTEQ/g と低かった。これは、平成 14 年度調査⁴⁾(厚生労働省科学研究費補助金食品安全確保事業佐々木主任研究者)結果の生鮮魚類に見られる塩素系ダイオキシン類平均濃度(平均 1.862pgTEQ/g)に比べても低く、食品として問題になるような値ではないと考えられた。

一方、関連化合物としての PBDE については、測定した生鮮食品 9 種 10 試料す

べてから数種の異性体が検出された。また、総濃度では最大はブリで、1254pg/g、最小はキハダマグロの 11.6pg/g であった。特に、#47 がブリ、マス、タイ、アラカブ、インダイ及びヤリイカの 7 試料から、100pg/g を超える濃度で検出された。次に高いものとして、#99、#100、#154 があり、特にブリ、マスの大型魚にこれらの異性体が極めて高い濃度で検出された。他は、平成 14 年度の結果と同様に、生鮮魚では、一般的に #47 が独占的に高い濃度で検出される傾向があった。一方、Chen らの報告⁵⁾した CEH (primary chick embryo hepatocyte) TCDD 相対 EROD 活性誘導能を TCDD 毒性等価係数 TEF の代わりに用いて、PBDEs の TEQ 濃度を算出した。結果は 0.0004pgTEQ/g(カキ-K)~ 0.0854pgTEQ/g(ブリ)で、平均値は 0.0165pgTEQ/g であった。今回の生鮮魚介類の総臭素化物(PBDD/Fs+MoBPCDD/Fs+PBDEs)の TEQ 濃度も 0.0004pgTEQ/g(カキ-K)~ 0.0854pgTEQ/g(ブリ)で、平均値は 0.0171pgTEQ/g であった。この値は塩素系ダイオキシン類平均濃度(平均 1.862pgTEQ/g)に比べて約 1/100 と低かった。

2 魚介・海草加工食品における PBDD/Fs、MoBPCDD/Fs 及び PBDEs 濃度

分析対象となった魚介・海草加工食品は、10 種 10 試料であった。PBDD/Fs、MoBPCDD/Fs は今回のいずれの加工食品からも検出されなかった。一方、関連化合物としての PBDE については、測定した加工食品 10 試料すべてから数種の異性体が検出された。総濃度では最大はニボシで、562.4pg/g、最小は鯛のスボ巻きの 3.7pg/g であった。検出された PBDE は 4 臭素化体では 2,2',4,4'-TeBDE(#47)、2,2',4,5'-TeBDE(#49)、2,3',4,4'-TeBDE(#66)、

5 臭素化体では 2,2',4,4',6-PeBDE(#100)、6 臭素化体では 2,2',4,4',5,6'-HxBDE(#154)が高頻度に検出され、特に、#47が開きアジ、ウナギの蒲焼き、ニボシ、の3試料から、100pg/gを超える濃度で検出された。これら3食品からは、#49、#100、#154が次に高い濃度で検出された。その他の加工食品のPBDEは、比較的低濃度であった。特記事項として、ニボシのPBDE異性体分布が他の開きアジやウナギの蒲焼きの分布と異なり、#47に比べて#209、#49、#154、#99、の濃度が相対的に高かったことが挙げられる。#209の検出は最近の難燃剤としての使用傾向⁹⁾を反映した興味ある知見であるとともに、乾燥処理過程に起因する異性体分布の変化が示唆された。

生鮮食品の場合と同様にPBDEsのTEQ濃度を算出すると、0.0000pgTEQ/g(乾燥コンブ)~0.0217pgTEQ/g(ニボシ)で、平均値は魚介加工品で0.0078pgTEQ/g、海草加工品で0.0002pgTEQ/gであった。今回、加工食品ではPBDD/Fs+MoBPCDD/Fsが不検出であったことから、総臭素化物(PBDD/Fs+MoBPCDD/Fs+PBDEs)のTEQ濃度も上記のPBDEsのTEQ濃度と同じ値である。魚介加工品の最高TEQ濃度0.0217pgTEQ/g(ニボシ)は、平成14年度調査⁶⁾(厚生労働省科学研究)の塩素系ダイオキシン類の1.252~4.657pgTEQ/gに比べると約1/200~1/60であり、これらの結果からも、生鮮魚介類食品と同様、加工食品においても、臭素化ダイオキシン関連化合物のダイオキシン類全体のリスクへの寄与は今のところ低いと考えられた。

3 陰膳試料におけるPBDD/Fs、及びPBDEs濃度

陰膳試料では5名の陰膳試料について分析を実施した。結果はいずれの試料もPBDDs/PBDFs不検出であった。一方、

関連化合物としてのPBDEについては、いずれの陰膳試料からも数種の異性体が検出された。この時の検出限界値は0.1pg/gであった。平成14年度に測定した1名の陰膳試料の結果(3日間の平均値)を加え、計6名の結果について解析すると、各人の食事試料のPBDE総濃度は3.4~37.4pg/gであった。試料平均では、#47、#99及び#100が、それぞれ39.3%、16.7%、11.3%、と大きかった。その他、#49、#154、#153、#183、#66が10%未満の寄与率で順次検出された。日本人の場合は、後述のトータルダイエット食品群試料の調査結果から示されるように、陰膳試料中の魚介類が主として寄与していると思われた。

4 トータルダイエット食品群試料におけるPBDDs/PBDFs及びPBDEs濃度

ヒトへの曝露推定法として、陰膳法の外に、統計に基づいたトータルダイエットスタディ(TDS)法がある。TDS法ではヒトが摂取する食品を14群に分けており、各群の食品構成(重量割合)は毎年国民栄養統計により更新されている。本研究では、平成14年に、魚介類(10群)、肉・卵類(11群)及び乳・乳製品類(12群)について食品構成を変えて2種類調製し、計6試料の調査を実施した。今年度は残りの第1~13群までの各1試料計10試料の調査を実施した。結果はいずれの食品群もPBDDs/PBDFsは不検出であった。

一方、関連化合物としてのPBDEは、再測定の結果、前回不検出であった12群から、6.19、10.86pg/g(平均8.52pg/g)検出された。今回の試料では、第4群(油脂類)に122.0ng/g、第3群(砂糖、菓子)に5.26pg/g、第5群(豆・豆加工品)に4.10pg/g新たに検出された。その他として第1(米・米加工品)、第2(その他の穀物・芋・種実)、第6群(果実)、第7群(有

色野菜)、第8群(野菜・海草)第9群(調味・嗜好飲料)、第13群(その他の食品)は、2.0pg/g未満の低汚染であった。検出されたPBDE濃度に各群の食品摂取量を乗じて算出されたPBDEの1日摂取量は114.2ng/日で、群別では第10群からの摂取が103.2ng/日(90.3%)と圧倒的に高く、次に第11群の7.0ng/日(6.1%)、第12群の1.0ng/日(0.9%)、第4群の1.85ng/日(1.6%)であった。これによって、第10、11、12群からの摂取が、総PBDE摂取量の97.3%を占めることがわかった。異性体では、10、11及び12群とも群では#47、#99、#100の寄与が大きかった。

5 食を介したPBDDs/PBDFs及びPBDEsによるヒトへの曝露量評価

今回の陰膳試料の結果について以下の手法で暫定的な評価を試みた。すなわち、今回用いるTEFはPBDDs/PBDFsについては塩素系ダイオキシン類に準じた。

また、PBDEsではPBDE#77に0.0032、#100に0.00024、#119に0.00035、#126に0.0024、#153に0.000048の係数(ChenらによるTCDD相対EROD活性誘導能)を用いた。今回のボランティア(女性5名・男性1名)の「PBDD/Fs + PBDEs」1日摂取量は毒性評価で換算すると、ND=0とした場合は0.0055~0.244 pgTEQ/kg/日(0.065pgTEQ/kg/日)、ND=検出限界値の1/2とした場合は、0.179~0.492pg-TEQ/kg/日(平均0.305pgTEQ/kg/日)となった。この値に我々が実施した陰膳試料中の塩素系ダイオキシン類の平均摂取量⁹⁾(ND=0の場合は1.17pgTEQ/kg/日、ND=検出限界値の1/2とした場合は平均1.28pgTEQ/kg/日)を加えると、PBDEを含めたダイオキシン類平均総摂取量は1.24pgTEQ/kg/日(ND=0)、1.59pgTEQ/kg/日(ND=検出限界値の1/2)となった。一方、トータルダイエツト食品

群での結果を用いた摂取量の推定は摂取量の過大評価を避けるため、ND=0の場合にのみ、摂取量を推定した。その結果、「PBDD/Fs + PBDEs」総摂取量は0.119pgTEQ/kg/日であり、平成14年度調査⁹⁾(厚生労働省科学研究費補助金食品安全確保事業佐々木主任研究者)で得られた塩素系ダイオキシン類の摂取量(1.49pgTEQ/kg/日、ND=0)を加えた値(1.61pgTEQ/kg/日)に対して、低い値であることが明らかになった。この1.61pgTEQ/kg/日は、JECFA(FAO/WHO食品添加物合同専門家委員会)が2001年に提案したPTMI(暫定耐容1月摂取量)⁹⁾70pgWHO-TEQ/kgbw/month、あるいは、EUが同年5月に提案しているTWI(耐容1週摂取量⁹⁾14pg-TEQ/kgbw/weekよりも低かった。

分担研究2

1 モノ臭素ポリ塩素化ダイオキシン類、HpBDF、OBDDの測定条件を検討した結果、これまで4~6臭素化ダイオキシン類の測定で用いてきた同じカラム及び測定条件で良好な分離が得られた。また、これらすべての臭素系ダイオキシン類(4~8臭素化ダイオキシン類、モノ臭素ポリ塩素化ダイオキシン類)の測定が1回の注入で可能であることがわかった。

2 本法による実試料(煮干し)を用いた、臭素系ダイオキシン類と臭素化ジフェニルエーテル類の同時分析による添加回収試験では、50~80%の良好な回収率が得られた。また、臭素化ジフェニルエーテルの定量値については、3~7臭素化体でRSDが10%以内10臭素化体で11.8%という、ばらつきの少ない結果であった。今回の分析工程で精度のよい分析が可能であると考えられる。

3 臭素化ダイオキシン類のGC/MS測定における高感度化に関する研究では、3種類のG

C用カラムの安定性および感度について検証を行った結果、1つのカラムにおいて臭素化ダイオキシン類測定に対する安定性及び感度、ピーク形状が優れていることがわかった。

4 臭素化ジフェニルエーテルのGC/MS測定における大量注入法の検討では、ピークの良い分離は得られたものの、感度を向上させることは達成できなかった。プレカラム、分析カラム等のシステムの改良が今後の課題である。

D. 結論

今回の結果から、臭素化ダイオキシン及びその関連化合物（特に臭素化ジフェニルエーテル）のヒトへの食を介した曝露は塩素系ダイオキシン類に比べると、低いことがわかった。しかしながら、過去に使用された臭素系難燃剤を含むプラスチック廃棄物が増加することは必至であり、今後も臭素化ダイオキシン類摂取量の推移は、今回個別食品で採用した、ヘptaフロモジベンゾフラン、オクタプロモダイオキシン、モノブromポリクロロダイオキシンの他にも、可能なかぎり測定項目を広げ、注意深く観察する必要がある。また、平均的な摂取量を把握するためには、食品試料数を増やして調査する必要があるが、その際にも、本研究で得られた分析法のノウハウが大きく役立つことは明らかである。そして、結果として、本化合物の食品を介したヒトへの健康被害の未然防止に貢献できるのではないかと期待される。

E. 健康危険情報

特になし

G. 研究発表

1. 論文発表

なし

2. 学会・協議会発表

・中川礼子、芦塚由紀、飛石和大、堀就英、飯田隆雄：食品中の臭素化ダイオキシン及びその関連化合物の分析、第29回九州衛生環境技術協議会 pp48-49, 2003.

・芦塚由紀、中川礼子、堀就英、飛石和大、飯田隆雄：食品中の臭素化ダイオキシン及びその関連化合物の分析（第2報）、第40回全国衛生化学技術協議会年会 pp42-43, 2003.

・芦塚由紀、中川礼子、飛石和大、堀就英、飯田隆雄：食品における臭素化ダイオキシン及び臭素化ジフェニルエーテルの汚染実態、環境ホルモン学会、第6回研究発表会、pp437, 2003.

文献

- 1) 「平成14年度臭素系ダイオキシン類に関する調査」 環境省 2003.
- 2) Choi J.-W., Fujimaki S., Kitamura K., Hashimoto S., Ito H., Suzuki N., Sakai S. and Morita M.: Polybrominated dibenzo-*p*-dioxins, dibenzofurans, and diphenyl ethers in Japanese human adipose tissue. *Environ. Sci. Technol.*, 37, 817-821, 2003.
- 3) WHO: Polybrominated-*p*-dioxins and dibenzofurans, Environmental Health Criteria No.205, 1998.
- 4) 平成14年度厚生労働科学研究補助金研究報告書「ダイオキシンの汚染実態把握及び摂取低減化に関する研究」
- 5) Chen G., Konstantinov A.D., Chittim B. G., Joice E.M., Bols N.C. and Bunce N.J.: Synthesis of Polybrominated diphenyl ethers and their capacity to induce CYP1A by the Ah receptor mediated pathway. *Environ. Sci. Technol.*, 35, 3749-3756, 2001.
- 6) 太田壮一：有機臭素化合物の環境影響、廃棄物学会誌, 12, 363-375, 2001.
- 7) 堀就英、芦塚由紀、飛石和大、中川

礼子、飯田隆雄：陰膳方式による食事経由のダイオキシン類摂取量調査、福岡県保健環境研究所年報,29,91-96,2002.

8) <http://www.who.int/pcs/jecfa/Summry57.pdf>.

9) <http://www.mvo.nl/voedselveiligheid/download/Codexnotitie-dioxine.pdf>

分担研究報告書

食品中臭素化ダイオキシン及びその関連化合物質の
汚染調査に関する研究

分担研究者 中川礼子

(福岡県保健環境研究所)

厚生科学研究費補助金（生活安全総合研究事業）

分担研究報告書

食品中臭素化ダイオキシン及びその関連化合物質の汚染実態の解明に関する研究
分担研究課題 食品中臭素化ダイオキシン及びその関連化合物質汚染調査に関する研究

主任研究者 中川礼子 福岡県保健環境研究所

研究要旨 食物連鎖を通じた臭素化ダイオキシン類による人体へのリスク把握のために食品中の残留実態を明らかにすることが急務となっている。15年度の食品の臭素化ダイオキシン及びその関連化合物質汚染調査では（1）個別試料として生鮮魚介9種類10試料、魚介加工食品として10試料について実施した。その結果、キハダマグロ、マスに1,2,3,4,6,7,8-HpBDFを検出した。また、モノプロモポリクロロダイオキシン類（MoBPCDD/Fs）では、イシダイ及びアラカブから3-Br-2,7,8-CDFを検出、それらのTEQ濃度は0.0004~0.003pgTEQ/gであった。PBDEについては、総濃度が11.6pg/g（キハダマグロ）～1254pg/g（ブリ）であった。魚介・海草加工食品10種10試料の調査では、PBDDs/PBDFs, MoBPCDD/Fsは検出されず、PBDEが、総濃度では3.7pg/g（鯛のスボ巻き）～562.4pg/g（ニボシ）検出された。また、（2）5名の2日分の陰膳試料を集め、それぞれの2日分を混合し、5名分計5試料として汚染調査を実施した。トータルダイエット食品群では、第1、2、3、4、5、6、7、8、9、及び13群について汚染調査を実施した。前年度の第10、11、12群の調査結果も併せ、これらを基に、1日摂取量の毒性評価を実施した。その結果、「臭素化ダイオキシン類+臭素化ジフェニルエーテル+塩素系ダイオキシン類」の現段階での1日摂取量は、陰膳法では、1.24pgTEQ/kg/日（ND=0）、1.59pgTEQ/kg/日（ND=検出限界値の1/2）、トータルダイエット法では、1.61pgTEQ/kg/日（ND=0）と推定され、我国のTDI（4pgTEQ/kg/日）はもとより、EUやJECFAから提唱されている耐容量を下回ることが明らかとなった。

分担研究者

中川礼子

（福岡県保健環境研究所 生活化学課長）

研究協力者

芦塚由紀

（福岡県保健環境研究所 主任技師）

堀 就英

（福岡県保健環境研究所 研究員）

飛石和大

（福岡県保健環境研究所 主任技師）

飯田隆雄

（福岡県保健環境研究所 保健科学部長）

A. 研究目的

臭素化ダイオキシンは臭素系難燃剤の合成過程や、臭素系難燃剤を含むプラスチック剤等の燃焼によって人工的に生成する。環境における臭素化ダイオキシンの生成率

は塩素化ダイオキシンよりも低いと報告されているが、毒性は塩素系ダイオキシンとほぼ同じとされている。環境省の調査¹⁾では、大気、降下ばいじん、底質、野生生物（イノシシ、ドバト、アナグマ）、水生生物（ムラサキガイ、コイ）などから、TeBDD/F、PeBDF、HxBDF、2-Br-3,7,8-TrCDD/F、1-Br-2,3,6,7,8,9-HxCDD、1-Br-2,3,4,6,7,8,9-HpCDD など数種（いずれも2,3,7,8-体）が検出されているが、その検出頻度、濃度は塩素系に比べて極めて低い結果となっている。しかし、一方で最近、ヒトの脂肪組織²⁾にこれら臭素化ダイオキシンやその供給源と考えられる臭素化ジフェニルエーテルを検出した報告がなされているため、ヒトの場合の主たる汚染経路と考えられる食品におけるこれら化学物質の汚染実態を早急に明らかにする必要が生じている。我々は平成13及び14年度において、1. 本研究で確立した「凍結乾燥+高速溶媒抽出」を用いる分析法により、実試料100g採取した時の分析感度は、S/N比 $\times 3$ で、4及び5臭素化体の2,3,7,8-TeBDD/F、1,2,3,7,8-PeBDD、2,3,4,7,8-PeBDF及び1,2,3,7,8-PeBDFが0.01pg/g、6臭素化体の1,2,3,4,7,8-HxBDD、1,2,3,6,7,8-HxBDD、1,2,3,7,8,9-HxBDD、及び1,2,3,4,7,8-HxBDFが0.05pg/gであり、現在実施されている塩素化ダイオキシン分析に要求されるのとはほぼ同等の感度が得られた。

2. 平成13、14年に実施した調査では、臭素化ダイオキシンはすべての個別食品、陰膳試料及びトータルダイエツト食品群試料（第10、11、12群）で不検出であった。一方、臭素化ジフェニルエーテルでは#47、#49、#100、#99、#153、#154等数種の異性体を検出した。中でも、#47は独占的高濃度に検出された。

3. 1名3日分の陰膳試料の分析結果と毒性に関する文献値から、1日摂取量の毒性

評価を試みた。その結果は現在設定されている耐容1日摂取量（4pgTEQ/g）を大きく下回る数値であった。

第3年度である平成15年度は、計画に掲げたように、食品を介したヒトへの曝露量を推定し、食品による健康被害を回避する資料を提供するために、確立した微量分析法によって、個別生鮮食品、加工食品、トータルダイエツト食品群、陰膳試料など幅広い食品試料について調査を実施した。

B. 研究方法

1. 実験材料

1-1 個別食品の調製

生鮮魚介としてタイ、イシダイ、スズキ、アラカブ、マグロ、ヤリイカ、ブリ、マス、カキ（2試料）の9種10試料、魚介・海草加工食品として、ウナギの蒲焼き、塩さんま、アジの開き、鯛のスボ巻き、乾燥コンブ、海苔（乾燥）、乾燥ワカメ、ヒジキ、魚肉ソーセージ、ニボシの10種各1試料、計10試料を分析対象として用いた（表1）。タイ、イシダイ、スズキ、アラカブは北九州市沿岸で採取されたものであり、他は福岡近郊のスーパーで購入した。試料は皮を除く可食部をそれぞれフードプロセッサーで均一化し、分析に供するまで、 -20°C で保存した。

1-2 陰膳試料の調製

平成15年5-6月に5名の協力者より集めた1日分の食事を半固形と液状に分け、半固形物は採取後すぐにフードプロセッサーで均一化した。これを2日分採取した。半固形及び液状試料とも、分析に供するまで、 -20°C で保存した。その内訳は表2に示したとおりである。

1-3 トータルダイエツト試料の調製

国民栄養調査統計及び県が実施した栄養調査結果をもとに、福岡県（北九州ブロック）のトータルダイエツト食の第1~13群

(第10群魚介類、第11群(肉・卵類)及び第12群(乳類)は平成14年度に測定済み)を、各々1試料ずつ調製した。その調製内容については表3-1～3-2に示した。調製した均一化試料は分析に供するまで、-20℃で保存した。

2 カラムクロマトグラフィー

2-1 シリカゲルカラムクロマトグラフィー
: 130℃、3時間活性化したシリカゲル(メルク社製) 2gを、内径15mm、長さ400mmのカラムに乾式充填し、さらに無水硫酸ナトリウムを10mm積層した。これにヘキサン100mLを流下しコンディショニングした。

2-2 フロリジルカラムクロマトグラフィー
: 130℃、3時間活性化したフロリジルに1%のヘキサン洗浄水を加えてコンディショニングした。この5gを内径15mmのカラムに乾式充填し、さらに無水硫酸ナトリウム10mmを積層した。これにヘキサン100mLを流下しコンディショニングした。

2-3 活性炭カラムクロマトグラフィー
: 内径8mmのカラムに無水硫酸ナトリウム2g、活性炭(トルエンで30時間還流洗浄したナカライテスク社製活性炭を無水硫酸ナトリウムに対して0.1%になるように混合したもの) 2g、さらに無水硫酸ナトリウム2gを積層した。

3 臭素化ダイオキシン及び臭素化ジフェニルエーテル標準品及び標準溶の調製

ポリブロモダイオキシン類(TeBDD/F~HxBDD/F)の17標準品(うち¹³Cラベルは6品)、モノブロモポリクロロダイオキシン類の7標準品(MoBTriCDD/F, MoBTeCDD/F, MoBPeCDD, MoBHxCDD, MoBTeCDD-¹³C)を和光純薬(株)から購入し、それぞれの標準原液100ng/mL溶液

(6臭素化は200ng/mL)を調製した。クリーンアップスパイク溶液として、¹³Cラベル化臭素化ダイオキシン類5ng/mLノナン溶液を作成した(表4)。

臭素化ジフェニルエーテル標準品は関東化学(株)よりWellington Laboratories社製シリンジスパイクとして¹³C₁₂-22'344'6-HexabromoMBDE-139-ISを、また、クリーンアップスパイクとして8種混合の標準液(MBDE-MXC)を購入し、各々5ng/mLノナン溶液を作成した。なお、検量線用標準液はWellington Laboratories社のご厚意ある提供を受けた。さらに、クリーンアップスパイクとして、¹³C₁₂-decabromo MBDE-209-ISをWellington Laboratories社から購入した(表5)。

4. 機器及び装置

4-1 PBDDs及びPBDFsの測定

測定機器

高分解質量分析計(HRMS): Micromass社製 Autospec ULTIMA、分解能: 10000
イオン源温度: 270℃

高分解ガスクロマトグラフ(HRGC)ガスクロマトグラフ: Hewlett Packard社製 HP6890

カラム: J&W社製 DB-5 0.25mmi.d. x 30m、膜厚 0.1µm

注入方法: スプリットレス

注入口温度: 240℃

昇温条件: 130℃ ~ 20℃/min ~ 240℃ ~ 5℃/min ~ 320℃ (7.5min)

4-2 試料の凍結乾燥 VIRTIS社製凍結乾燥機 AD 2.0 ES-BC

4-3 高速溶媒抽出

機器: DIONEX社製 ASE-300

抽出セル: 99mL 抽出物捕集バイアル: 200mL容量

抽出条件: オープン温度 100℃

抽出圧力: 1500psi

オープン昇温時間: 7分 設定温圧保持時

間：10分

フラッシュ容積：セル容量の40%

ガスパージ時間：120秒

静置サイクル数：2回

ハイドロマトリックス：使用する前にアセトン/ヘキサン(2:1)で予め洗浄。

表1-1 平成15年度分析対象個別食品(生鮮魚介試料)

試料名	産地・採取期等	重量(長さ)
タイ	北九州 H15・7月	551.4g(33cm)
イシダイ	北九州 H15・7月	557.6g(15~18cm 8尾)
スズキ	北九州 H15・7月	226.5g(27cm)
アラカブ	北九州 H15・7月	260g(15~17cm 4尾)
キハダマグロ	台湾 H16・2月	271g(切り身)
ヤリイカ	長崎県 H16・2月	160g/尾(17-20cm)
ブリ	長崎県 H16・2月	160g(切り身)
マス	ノルウェー H16・2月	263.4g(切り身)
カキ-I	福岡県糸島 H13・11月	5kg(殻付き)
カキ-K	福岡県行橋(豊前海) H13・11月	5kg(殻付き)

表1-2 平成15年度分析対象個別食品(魚介・海草加工食品試料)

試料名	産地・採取期等	重量(長さ)
ウナギの蒲焼き	鹿児島県 H16・2月	約200g/尾(33cm)
塩さんま	北海道 H16・2月	約170g/尾(30cm)
開きアジ	熊本県八代市 H16・2月	90-110g/尾(22-25cm)
鯛のスボ巻き	長崎県 H16・2月	140g x 3コ
乾燥コンブ	三陸 H16・2月	100g 包装
海苔(乾燥)	不明 H16・2月	全型10枚包装
乾ワカメ	鳴門 H16・2月	20g(5g x 4袋)包装
ヒジキ	不明 H16・2月	30g 包装
魚肉ソーセージ	五島 H16・2月	95g x 4本 包装
ニボシ	愛媛県 H15・1月	200g 包装

表2 陰膳試料の食材内容

表2-1 A 女 体重50kg

	1日目	2日目	合計
	総重量 2844.3g 半固形 1720.6g 液状 1123.7g	総重量 2401.1g 半固形 1465.6g 液状 935.5g	総重量 5245.4g 半固形 3186.2g 液状 2059.2g
朝食	食パン、スクランブルエッグ、レタス、ウィンナー、お茶、牛乳	食パン(マーガリン)、トマト、目玉焼き、ヨーグルト(フルーティー) お茶	
昼食	チンカツ、ご飯、トマト、ブロッコリー、コーンチャップル、お茶	ご飯、鰹の味噌漬け、ピーマンと昆布の和え物、エビの包みあげ、シューマイ、コーン、お茶	
夕食	ご飯、もずく、冷や奴ブリの照り焼き、いかのお刺身、大根、舞茸ともやしの炒め物、ウーロン茶、はちみつ黒酢	ポテトサラダ、クラマヨネーズ、ハンバーグ、コンソープ、ご飯、ウーロン茶、牛乳	
その他	はちみつヨーグルト、チョコレート		

表2-2 B 男 体重52kg

	1日目	2日目	合計
	総重量 3151.4g 半固形 1592.3g 液状 1559.1g	総重量 3150.5g 半固形 1744.5g 液状 1406.0g	総重量 1650.3g 半固形 1098.7g 液状 551.6g
朝食	玄米ミルク牛乳かけ、ヨーグルト、バナナ、お茶、ジュア	玄米ミルク牛乳かけ、ヨーグルト、バナナ、お茶、ジュア	
昼食	白ご飯、ハーブチキン、大根サラダ、切り干し大根、マーボー豆腐、玉子の皿巻揚、いわし団子煮、お茶	白ご飯、揚げサンマ、煮物(ゴボウ、ニンジン、トリ)、春雨の酢の物、マカロニサラダ、牛肉炒め煮、緑茶、麦茶	
夕食	アンチョビのトマトソーススパゲッティ、ブロッコリーとかぼちゃのサラダ、豆腐のバター焼き、ヨーグルト、キウイ、プーアル茶、豆乳	親子丼、山芋とオクラの酢の物、モズクスープ、キーウィ、ヨーグルト、サンピン茶、牛乳	
その他			

表 2-3 C 女 体重 49kg

	1日目	2日目	合計 (2日間)
	総重量 2331.5g 半固形 1377.1g 液状 954.4g	総重量 1915.1g 半固形 1305.3g 液状 609.8g	総重量 4246.6g 半固形 2682.4g 液状 1564.2g
朝食	食パンサンド (ラムヨーネス) ゆでたまご、かき揚げのスープ、お茶、紅茶 (砂糖含)	食パン、納豆、目玉焼き1コ、ミックスベジタブル (ニンジン・コーン・インゲン・玉葱) ラム ヨーグルト (ハナナ・ブルー) お茶、紅茶 (砂糖含)	
昼食	白ごはん、卵焼き2ヶ、しゅうまい2ヶ、フロッピー、ウインナー、なすチキンのみそあえ、さんまの蒲焼き、お茶	白ごはん、うめぼし、さんまの蒲焼き、とりの唐揚げ1コ、卵焼き、ウインナー、レソンのほさみ揚げ (カ、E)、牛肉やさいいため (牛肉、玉葱、ピーマン) カフェラ (ブルー) お茶	
夕食	白ごはん、煮物 (こんにゃく、もやし、まいたけ、鶏肉、そらまめ)、かつおのたたき、レタス、ルッコラ、お茶	白ごはん、肉だんご、煮込みハンバーグ (牛豚挽肉、玉葱、食パン、牛乳、ケチャップ、ソース、塩コショウ、卵) ポテトサラダ (ラム、ジャガイロ、ニンジン、きゅうり、ヨーネス) キャベツのコンソメスープ、ハンバーグ、焼き豚、ポテトサラダ、キャベツ、わかめみそ汁、ご飯、お茶	
その他	紅茶 (砂糖含) 抹茶のロールケーキ	デラウェア いちご (佐賀)	

表 2-4 D 女 体重 51kg

	1日目	2日目	合計 (2日間)
	総重量 1656.1g 半固形 1201.0g 液状 455.1g	総重量 3128.0g 半固形 2142.5g 液状 985.5g	総重量 4784.1g 半固形 3343.5g 液状 1440.6g
朝食	パン、めだまやき、きゅうり、ヨーグルトイチゴジャムかけ、カフェオレ、お茶	白飯、吸物、目玉焼き、玉ねぎ炒め1ヶ、ポテトサラダ、ソーセージ、アボカド、塩鯖、鯛の塩辛、焼き海苔、たくあん2切、お茶、牛乳	
昼食	ご飯、みそ汁、白飯、キノコ、トマト1切、レタスキャベツ、さんま塩焼1切、焼きそば、ごぼうサラダ、レソ 1切、コーヒー、お茶	ちゃんぽん、ヨーグルト、お茶	
夕食	白飯、みそ汁 (とうふ・大根)、さけのクリームソース煮 (しめじ・じゃがいも)、竹の子の煮物 (竹の子、牛肉)	ハンバーグ、焼き豚、ポテトサラダ、キャベツ、わかめみそ汁、ご飯、お茶	
その他		塩せんべい2枚、クッキー1枚ポテトチップ	

表 2-5 E 女 体重 45kg

	1 日目	2 日目	合計 (2 日間)
	総重量 1848.3g 半固形 1153.7g 液状 694.6g	総重量 2184.1g 半固形 1222.6g 液状 961.5g	総重量 4032.4g 半固形 2376.3g 液状 1656.1g
朝食	カステラ、パン(菓子パン)、プリン、コーヒー	ロールパン、チーズ、コーヒー	
昼食	おライス(ごはん、玉子、玉葱、ハートン、キャップ) お茶	ごはん、梅干し・高菜漬、塩サバ、ミートボール、ゆで玉子(半分) 煮物(レコン、ニンジン、しいたけ) あげちくわ、レコンのきんぴら(レコン、ニンジン)、お茶	
夕食	ごはん、さわら塩焼、煮物(ごぼう、こんにゃく、肉、きぬさや)、サラダ(きゅうり、レタス、くんせいハートン) みそ汁(とうふ、わかめ、あげ)と ころ天(ポン酢) お茶	ごはん、スパゲッティサラダ(スパゲッティめん、玉子、きゅうり、レタス、ハム) 和風ハンバーグ(挽肉、玉葱、えのき草、大根おろし、ポン酢) ぎょうざスープ(中華だし、餃子、レタス) 冷や奴(豆腐、すりごま、小ネギ、しょうゆ) お茶	
その他	クッキー、フルーツミックスジュース	パイ(くりあずき)	

表 3-1 トータルダイエット・マーケットバスケット方式・第 1~6 群試料調製 (n=1)

1 米類		1日摂取量	秤取量	調理	調理後	最終分析	調理法
No.	食品名	(g/day)	(g)		重量(g)	試料重量(g)	
1-1	精白米	40.3	160.1	炊く	713.1		水で5回洗い、水400gを加えて10分程浸した後、19分たく
1-2		40.3			80.1		
1-3		40.3			80.1		
1-4		40.3			80.1		
2	もち		2.4	煮る	104.8		100gの沸騰水中で1分間加熱したものを丸ごと加える
合計		2日分	162.5		817.9	917.9	+水100g 調理後1日重量459.0g

2 米以外の穀類		1日摂取量	秤取量	調理	調理後	最終分析	調理法
No.	食品名	(g/day)	(g)		重量(g)	試料重量(g)	
3	大麦(強化押し麦)		0.3	煮る	2.0		10倍量(9g)を水100mlで4分間たく。調理後重量の1/10を採取
4	小麦粉(薄力粉)		8.9	焼く	65.0		
5	食パン		29.4		88.2		水50mlでこね、フライパンで3分間焼く
6	あんパン	1	9.3		14.0		
	クリームパン	1			14.0		
7	うどん(ゆで)		35.0	煮る	122.7		600mlの湯で1分ゆで、湯をきる、湯は捨てる
8	パルコ-スパゲティ(乾)		6.6	煮る	42.2		500mlの湯で5分ゆで、湯をきる、湯は捨てる
9	即席中華めん(油揚げ)		4.1		12.3		
10	スイートコーン		2.1		6.3		
11	ごま	3	1.5		3.4		
	落花生	1			1.1		
12	さつまいも(生)		10.0	蒸す	32.5		皮をむき、輪切りし、7分蒸す
13	男爵いも(生)		25.4	煮る	78.3		皮をむき、輪切りし、500mlの湯で8分煮る。煮汁は捨てる
14	農芋(生)		18.5	煮る	57.4		皮をむき、輪切りし、500mlの湯で9分煮る。煮汁は捨てる
15	こんにゃく		13.9	煮る	39.0		1Lの湯で5分ゆでる。ゆで汁は捨てる
合計		3日分	165.0		578.3	678.3	+水100g 調理後1日重量228.1g

3 砂糖・菓子類		1日摂取量	秤取量	調理	調理後	最終分析	調理法	
No.	食品名	(g/day)	(g)		重量(g)	試料重量(g)		
16	白砂糖		8.1		162.0		細かく砕き、20gの湯を加えて湯煎にかけながらとろく。	
17	イチゴジャム		1.2		24.0			
18	ドロップ		0.5	溶かす	23.5			
19	揚げせんべい		1.7		34.0			
20	ショートケーキ		2.1		42.0			
21	ビスケット		3.6		72.0			
22	チョコレート	0.763	14.7		127.0			
	大福もち	1.003			167.0			
合計		20日分	31.9		651.5	731.5		+水80g 調理後1日重量36.6g

4 油脂類		1日摂取量	秤取量	調理	調理後	最終分析	調理法
No.	食品名	(g/day)	(g)		重量(g)	試料重量(g)	
23	バター		0.6		21.0		湯せん
24	マーガリン		1.1		38.5		
25	植物油		8.8		308.0		
26	ラード		0.2		7.0		
27	マヨネーズ(全卵型)		4.5		157.5		
合計		35日分	15.2		532.0	532.0	+水0g 調理後1日重量15.2g

5 豆類		1日摂取量	秤取量	調理	調理後	最終分析	調理法
No.	食品名	(g/day)	(g)		重量(g)	試料重量(g)	
28	甘みそ	5.2	13.2		34.8		
	浅色きみそ	5.0			33.5		
	赤みそ	3.8			24.1		
29	とうふ普通		33.4		233.8		1Lの湯で1分半ゆで、湯をきる、湯は捨てる
30	あがらあげ		7.6	煮る	114.2		
31	(糸引)納豆		8.3		58.1		
32	うずら豆煮豆		2.0		14.0		
合計		7日分	64.5		512.5	562.5	

6 果実類		1日摂取量	秤取量	調理	調理後	最終分析	調理法
No.	食品名	(g/day)	(g)		重量(g)	試料重量(g)	
33	温州みかん(生)	6.93	35.9		130.1		皮、種を除く
	オレンジ(バレンシア)	1.72			32.3		
	グレープフルーツ	2.42			45.5		
	レモン	0.40			7.5		
34	りんご		20.1		120.6		皮をむき、芯を除く
35	バナナ		10.2		61.2		
36	いちご		0.1		0.6		へたを取り除く
37	かき	0.188	37.4		16.0		皮をむき、種を除く
	キウイフルーツ	1.901			161.9		
	パイナップル	0.395			33.6		
	なし	0.151			12.9		
38	みかん(天然果汁)		10.2		61.2		皮を除く
合計		6日分	113.9		683.4	783.4	

表3-2 トータルダイエツト・マーケットバスケット方式・第7~13群試料調製 (n=1)

7 緑黄色野菜		1日摂取量	秤取量	調理	調理後	最終分析	調理法
No.	食品名	(g/day)	(g)		重量(g)	試料重量(g)	
39	にんじん	20.1	140.7	煮る	132.9		水洗し、皮のまま乱切りし、500mlの湯で10分ゆでる。ゆで汁は捨てる。
40	ほうれん草	15.1	105.7	煮る	106.4		へたを除き水洗し、1Lの湯で2分ゆでる。ゆで汁は捨てる。
41	ピーマン	4.3	30.1	焼く	28.1		水洗し、葉柄、種を除き切る。重げがつく程度に4分間程焼く。
42	トマト	20.7	144.9	-	144.9		水洗しへたを除く。
43	かぼちゃ	5.298	28.1	煮る	33.4		水洗して種を除き、500mlの沸騰水で6分間煮る。
	レタス	5.958	40.6	-	40.6		水洗して可食部を試料とする。
	ブロッコリー	6.479	44.2	煮る	50.2		水洗し、500mlの湯で、2分ゆでる。ゆで汁は捨てる。
	にら	2.509	17.1	煮る	14.7		水洗し、500mlの湯で、2分ゆでる。ゆで汁は捨てる。
	しゅんぎく	2.232	15.2	煮る	11.7		水洗して、500mlの沸騰水で2分間煮る。ゆで汁は捨てる。
	ねぎ(青)	3.365	23.0	煮る	26.3		根を除き水洗し、沸騰水500mlで2分間煮る。
	いんげんまめ(さやいんげん)	1.943	13.3	煮る	12.6		へた(すじ)を除き水洗し、沸騰水300mlで2分間煮る。ゆで汁は捨てる。
	チンゲンサイ	1.049	7.2	煮る	6.5		水洗して、500mlの沸騰水で2分間煮る。ゆで汁は捨てる。
合計		7日分	88.3		608.3	758.3	+水150g 調理後1日重量106.3g

8 その他の野菜		1日摂取量	秤取量	調理	調理後	最終分析	調理法
No.	食品名	(g/day)	(g)		重量(g)	試料重量(g)	
44	大根	23.6	88.8	-	88.8		水洗して皮をむき、おろす。
45	たまねぎ	29.7	89.1	煮る	90.2		皮をむき、水洗して薄く切り、沸騰水500mlで3分間煮る。
46	キャベツ	21.5	64.5	-	64.5		水洗して可食部を試料とする。
47	きゅうり	10.6	31.8	-	31.8		水洗し、可食部を試料とする。
48	はくさい	24.1	72.3	煮る	71.3		500mlの湯で2分間煮る。煮汁は捨てる。
49	なす	3.585	30.2	煮る	22.8		縦切りにして300mlの湯で2分煮る。煮汁は捨てる。
	ごぼう	5.485	30.6	煮る	30.1		水洗し皮をむき、沸騰水500mlで5分間煮る。
	もやし	2.369	13.3	煮る	12.3		300mlの湯で2分煮る。煮汁は捨てる。
	ねぎ(横断)	4.736	28.6	煮る	32.9		根を除き水洗し、沸騰水500mlで2分間煮る。
50	はくさい(塩漬)	6.4	19.2	-	19.2		
51	大根(たくあん漬)	9.6	28.8	-	28.8		
52	しいたけ	11.3	33.9	煮る	34.4		500mlの湯で3分間煮る。
53	わかめ・生	5.7	17.1	煮る	26.7		水で洗い、500mlの湯で2分間煮る。
合計		3日分	178.7		553.8	703.8	+水150g 調理後1日重量234.6g

9 調味嗜好飲料		1日摂取量	秤取量	調理	調理後	最終分析	調理法
No.	食品名	(g/day)	(g)		重量(g)	試料重量(g)	
54	しょうゆ(濃)	19.0	76.0	-	76.0		
55	ウスターソース	5.3	21.2	-	21.2		
56	食塩	1.2	4.8	-	4.8		
57	みりん	2.729	8.7	-	16.4		
	めんつゆ	0.407	2.4	-	2.4		
	焼き肉のたれ	1.916	11.5	-	11.5		
	黒味噌調味料	0.737	4.4	-	4.4		
58	日本酒	9.6	38.4	-	38.4		
59	ビール	65.6	262.4	-	262.4		
60	焼酎	18.1	64.4	-	64.4		
61	コーヒードリンク(缶詰)	14.755	46.7	-	118.4		
	炭酸飲料(コーラ)	5.885	47.2	-	47.2		
	スポーツドリンク	2.637	21.2	-	21.2		
合計		4日分	172.2		688.8	688.8	+水0g 調理後1日重量172.2g

13 その他の食品		1日摂取量	秤取量	調理	調理後	最終分析	調理法
No.	食品名	(g/day)	(g)		重量(g)	試料重量(g)	
85	カレールー	2.05	5.6	溶かす	492.6		450mlの湯に溶かす。
	クリームスープ類(粉)	0.458	9.5	溶かす	109.5		100mlの湯に溶かす。
	食酢	2.667	55.4	-	55.4		
	ハヤシルー(粉)	0.212	4.4	溶かす	104.4		100mlの湯に溶かす。
合計		20日分	5.6		761.9	761.9	+水0g 調理後1日重量38.1g