

有機フッ素化合物について、試料バンクを活用した長期傾向の把握とそれを支持する曝露調査、環境調査、そして処理技術について開発、調査を行い、試料バンクによる効果的な行動を取りうることを実証する。

難分解性有機フッ素化合物は、すべての水素原子がフッ素原子に置換した炭素鎖（ペルフルオロアルキル）を持つ化学物質であり、ペルフルオロアルキル鎖は環境中、生体内で分解不可能であり、その多くは最終的にカルボン酸、スルホン酸となり、安定化し、残留すると予測されている。多くのペルフルオロアルキル化合物の出発物質であり、また最終的に残留する物質として注目されるペルフルオロオクタンスルホン酸(PFOS)とペルフルオロオクタン酸(PFOA)を対象とした。

PFOS、PFOAによる地球規模での海生哺乳類、鳥類の汚染が報告されており、またPFOSおよびPFOAは産業疫学の結果、膀胱癌、前立腺癌による死亡率の増加が示唆されている。日本においてはPFOS、PFOAは2002年に化審法指定化学物質と指定されている。

これらの難分解性有機フッ素化合物について曝露調査、環境調査を行うため、化学分析法を開発する。血清試料、水試料、粉塵試料、食事試料についてそれぞれ検討する。

開発された分析法を用いて、試料バンクにある1977年以來の血清試料を分析し、長期曝露傾向を明らかにする。また血清中有機フッ素化合物濃度に影響を与える要因について、地理的特性、性別、喫煙、年齢などの利用可能なデータから検討を行う。

有機フッ素化合物による環境汚染とヒト曝露との関連を調査するため、日本全国の

河川表層水、沿岸域表層水についてサンプリングを行い、汚染の様態や程度を把握し、特に曝露調査との関連で飲料水について東北、近畿地方で調査を行う。また大気粉塵についても国内数カ所でサンプリングを行い、飲料水などの曝露量との比較を行う。

また野生生物などへの有機フッ素化合物の蓄積について、メカニズムは明らかにはなっておらず、蓄積性、食物連鎖の影響について検討するため河川表層水の分析と平行して、野生生物における生物濃縮を調査し、またモニタリング指標生物としての妥当性を検討する。

有機フッ素化合物による汚染に対して適切な除去技術を検討することで曝露や汚染の軽減を図り、また産業上代替が困難な場合への対策を検討する。特にPFOS・PFOAの基本的吸着特性を明らかにし、装置化のための手法を導くことを目的とした。

B. 研究方法

水試料からの抽出及び濃縮は、固相カートリッジを用いた。大気粉塵試料は、ハイボリュームエアサンプラーでろ紙に捕集した上で、高速溶媒抽出装置により抽出した。食事試料は、高速溶媒抽出装置により抽出を行った。血清試料では対イオン添加有機溶媒抽出を行った。抽出液は、高速液体クロマトグラフィ質量分析装置で分析された。

河川表層水は全国79箇所から横断的に採集された。また淀川水系、神崎川水系について系統的に表層水を採集した。京都、大阪、兵庫、岩手、宮城、秋田における飲料水を採集した。

他機関にて保存されている血清試料（秋田県横手市における1990年代の試料、宮城県大和町における1977年の試料）を連結不

可能匿名化して取得した。また現在の20代から50代の男女について、京都市、秋田県横手市、宮城県大和町にて、ヒト血清試料を取得した。

河川生態系において食物連鎖の最も上位に位置するミシシippアカミミガメとクサガメを神崎川水系にて捕獲、採血した。また高度汚染地点での有機フッ素化合物の肝臓毒性を調査するために、ミシシippアカミミガメの肝臓組織をHE染色して、観察した。

吸着特性把握実験では、吸着対象物質の濃度測定方法の検討を吸光度、蛍光度、TOCで行った。吸着実験は吸着剤として活性炭を用いて回分条件で行い、条件吸着特性の概略から、最大吸着量や吸着速度などの各種パラメータを求める。

C. 研究結果

LC/MS分析ではPFOS及びPFOAは、ピークが重なり合うことなく完全に分離し、検量線の作成濃度はいずれの化合物も0.1 $\mu\text{g/L}$ 以上の濃度で作成可能であった。定量下限値はPFOS及びPFOAとも0.1 $\mu\text{g/L}$ 濃度とした。環境水中PFOS及びPFOAは、固相カートリッジにより1,000倍の濃縮を実現し、他の妨害化合物の影響も小さく、安定的に分析することができた。大気浮遊粉塵分析ではPFOS類はガス状で存在するのはなく、粉塵に吸着した形態で飛散していると推定された。高速溶媒抽出装置を用いて、良好な回収率であり、PFOS及びPFOAとも0.1 pg/m^3 の低濃度までの測定が可能であった。ヒト血清や野生生物の臓器試料は、既存の方法に従い、イオンペア試薬を用いてPFOS類の溶媒抽出を行い、精度が高く、この方法を採用し、血液中濃度は、

PFOS及びPFOAとも0.2 $\mu\text{g/g}$ の低濃度までの測定が可能であり、現代人の血液モニタリング分析法として適用性は高いと考えられる。食事試料では、同一の食事サンプルでも、抽出率は一定せず、絶対検量線法で定量することは不可能であった

日本人血清中濃度の測定では、今回採集した試料を分析した結果、いずれも定量限界以上であり、現時点で十分なものであった。この25年間における変化は宮城県大和町の女性について調査され、この25年間でPFOS、PFOAそれぞれ3倍、14倍に有意に増加していた。またこの11年間における変化は秋田県横手市の男女で調査され、PFOSについて有意な増加はなく、一方PFOAについては有意な増加がみられた。年齢、喫煙による差は見られなかった。性別による影響はPFOA・PFOSともに男女の間で有意な差が見られた。地域間での違いはPFOA・PFOSいずれも有意差が見られた。また居住歴による影響について、近畿地方での居住歴が6ヶ月以上2年未満と2年以上の間でPFOAについて有意差が見られた。

現時点でのPFOA・PFOSによる国内の表層水の汚染について近畿でPFOS、PFOAによる水系の汚染が生じていた。淀川と神崎川などの系統的調査は汚染源について、PFOA・PFOSは下水処理場を通して放出されていると考えられ、近畿ではPFOSについて空港施設、PFOAについて安威川流域下水処理場周辺に高汚染源があると考えられた。飲料水では、東北地方ではPFOA・PFOSいずれも1 ng/L 以下であったが、近畿地方ではPFOAはいずれも東北地方より有意に高い濃度を示し、PFOSについては京都市、大阪市で他の地域より有意に高かった。

野生生物での調査では、クサガメが 25 匹、ミシシippアカミミガメが 30 匹の合計 55 匹を捕獲し、分析を行った。血中濃度と河川水濃度の関係は比例関係があり、しかし PFOA の生物濃縮係数は低く、PFOS に関しては、 10^3 以上であり極めて高かった。またクサガメの方がミシシippアカミミガメより両物質の血清中濃度が有意に高かった。

吸着実験では、精製水に溶かした PFOS、PFOA について、吸光度計、蛍光度計では、実質的に測定不可能であったが、TOC 測定により TOC 2~20 mg/L で定量が概ね可能であることが分かった。吸着バッチ実験では、粒状活性炭を粒径、試験物質初期濃度、活性炭投入量およびサンプリング時間を変えて実施した。PFOS、PFOA は振とう開始後 6 以内に 90% 以上が活性炭に吸着し、吸着率、吸着速度とも速かった。PFOS、PFOA 濃度が上昇すると、活性炭 1g あたりの吸着量も増加する傾向を示した。吸着回分実験から理論展開を行い、吸着処理装置設計のためのパラメータの推定が可能であることが導かれた。

D. 考察

いくつかの有機フッ素化合物についての報告における分析法は LC/MS/MS が採用されているが、本法で使用した LC/MS はそれに比べ定性能力に欠けるという欠点があるが、LC/MS は安価でランニングコストも低く、かつ装置をコントロールし易いという長所があるために、ルーチン分析における汎用機器であるといえる。今回の同時分析法の条件を決定で、将来さまざまな分析試料をモニタリングする上で、ルーチン分析法としての利用価値が大きいと判断され

る。環境水を分析したこれまでの報告は、検出限界が高く、汚染が少ない地域で適用しにくかった。固相カートリッジで濃縮操作を行う場合、PFOS 及び PFOA は 0.1ng/L まで測定可能であり、本法を適用して全国 79 ヶ所の河川水、6 ヶ所の沿岸海水の調査を行ったが、すべての環境水から PFOS 及び PFOA を検出した。一部の水道水で、PFOS が定量下限値 (0.1 μ g/L) 以下のものが数ヶ所あったが、大部分の水道水から PFOS を測定値として検出し、環境水モニタリングにおける本法の有効性を立証した。大気中の有機フッ素化合物について、これまで GC/MS で分析した報告があるが、PFOS、PFOA 自体を分析した報告はなく、濃度極端に低いことが予想された。大気粉塵などに吸着した PFOS 類の抽出に、高速溶媒抽出装置は有効であり、比較的汚染が少ないと考えられる岩手県で採取した大気浮遊粉塵を測定し、8 検体のすべての大気浮遊粉塵から PFOS 類を検出した。食事試料では、水溶性と脂溶性の組成からなることが分析を極端に困難でイオンペア試薬を添加しての溶媒抽出法では、溶媒が懸濁して水相と分離できず、利用できなかった。高速溶媒抽出でも測定値のバラツキが大きく、今後は、内標準利用を考慮しながら分析法開発を行う必要がある。また、HPLC-MS-MS での PFOS・PFOA の定量を検討し、より低濃度で信頼性における測定法の開発を行いたいと考えている。

日本における水系の PFOS・PFOA による汚染は都市部で高くなるが、近畿では特に PFOA による汚染が広がっていた。汚染源について、PFOA・PFOS は下水処理場を通して放出されていると考えられる。飲料水中の

PFOA・PFOS濃度とその原水の取水地付近の濃度の関係から、現行の浄水過程により除去されないことを示す。これは多摩川でのPFOSについての調査と同様の結果となった。

性別と居住地域がPFOS・PFOAの血清中濃度に最も影響力を持った要因であり、他方年齢はあまり影響力を持っていないと考えられる。短期の近畿居住者であっても、秋田や宮城の居住者より高かったことは、近畿における水系汚染との関係を示唆するものである。米国住民の血中全有機フッ素化合物濃度が30年間で変化がなかったと考えられていたが、日本の東北地方においてはPFOS・PFOA濃度がこれまでの25年にわたって増加しており、傾向を正しく把握するためにも個別にPFOS、PFOAを定量的に同時的に測定することが必要である。近畿居住者のPFOA・PFOSの血清中レベルは米国でのレベルに近かったが、現時点で東北地方は比較的汚染が少ないと考えられる。PFOS曝露は、秋田におけるデータに基づけば90年代中ごろに、定常期に達したと考えられるが、それと対照的に、PFOA曝露は秋田と宮城で増加していた。日本ではPFOA製造が多いこととPFOA曝露の増加傾向は関連づけられるかもしれない。今後さらに詳細な曝露評価が必要である。

野生生物への有機フッ素化合物の蓄積について、PFOSは魚類と同様にカメにも生体濃縮すると考えられたが、構造的に類似した化学物質であるにもかかわらず、今回の調査では、PFOSとPFOAは濃縮傾向に大きな差が見られた。PFOSとPFOAの差を識別する結合タンパク質、あるいは排泄の差があることが考えられ、今後も検討が必要である。血中PFOS・PFOA濃度の

カメの種類によって異なることは食性の違いが関係したものと考えられた。またPFOAの河川水濃度が他地域の河川と比較して高濃度の河川に生息するカメを対象としたが、汚染の進んでいない地域で検討が必要である。

PFOS・PFOAの処理方法として吸着に着目し、基本的吸着特性を検討し、活性炭によるPFOS・PFOAが短時間・高効率で吸着されることを見出し、実処理設計へ適用するための理論展開を行った。しかし非常に高濃度のPFOS・PFOAを対象としているため、今後は低濃度のPFOS・PFOAを対象とした実験を行う必要がある。そして、有機物などの共存物添加時の吸着特性の検討、ろ過装置による連続実験等から、PFOS・PFOAの効率的な処理方法の開発を行う予定である。

IV. 結論

1. 大よそ、2万の血清検体、400検体の母乳サンプル、3000の食事試料からなるバンクが構築された。

2. 新規のバンクへの蓄積において母乳試料は極めて得にくいことが明らかとなった。

3. サンプルバンクの有用性の検証プロジェクトで示されたように、汚染物質への曝露モニタリングを経年的に行うことは汚染を早期に知るために極めて有用であることが示された。さらに、経年変化を追うことにより時間の長さ×曝露の強度という横断研究では得られない情報が得られることが実証された。

4. 国内研究者へのアンケートで極めて強い利用の要望のあることが判明した。

5. 今後倫理および運営に対して国際動

向を見ながら整備してゆく必要があることが確認された

V. 健康危険情報

なし

VI. 研究発表

1. 論文発表

「遺伝情報管理システム」井上悠輔・小泉昭夫（『分子予防環境医学』。分子予防環境医学研究会編、本の泉社、674-686頁。2004年）

2. 学会発表

VII. 知的財産の出願・登録状況(予定を含む)

1. 特許の取得

なし

2. 実用新案登録

なし

3. その他

なし

厚生労働科学研究費補助金（化学物質リスク研究事業）
分担研究報告書

過去に採取されたサンプルの整備に関する研究
－全国縦断サンプルの整備

分担研究者 渡辺孝男 宮城教育大学教授

研究要旨：POPのリスク評価に向けてのヒト暴露長期モニタリングのための試料バンク創設のために過去の血液、食事検体について収集を行った。検体は1975年～1982年、1991年～1995年の2次におよぶ全国規模で収集し、凍結保存の成人男女の血清、全血、食事等である。本年度は1975～82年の検体を中心に試料バンクに登録・収納した。同時に個別基礎データを整理し、電子媒体に保存した。本検体に関する既報論文リストおよび分析結果の整理を行った。

A. 研究目的

POPのリスク評価に向け、ヒト暴露の長期モニタリングのための試料バンク創設のために研究分担者らが1975年以降これまでに収集し、保存している血液(血清、全血)、食事等の生体および生物試料を整理する。各検体について実施された各種検査項目の測定成績を中心に付帯情報を整理し、その上で試料バンクのためのサンプルとして登録、収納する。

B. 研究方法

研究分担者の渡辺が管理している凍結および乾燥保存中の1970年代から1990年代にかけて実施された全国規模調査による地域住民の個人別の食事、血液(血清、全血)、尿等の生体・生物試料を対象

とし、検体の保存状況の確認と試料バンク用にコード化による整理を行う。また、各検体についての各種情報を整理し、電子情報として検体毎の照合が可能な形式を作成する。なお、検体の情報管理には倫理面からの対応を十分に図る。なお、調査は「健康と食生活調査に関する調査」として、陰膳実測法による食事調査と肘静脈血による一般血液・生化学検査、尿検査、血圧測定、身体計測等の内容からなる。調査対象者には事前に趣旨説明会を開催し、協力に同意された方をお願いをしている。調査終了後に報告会を開催し、個人別に検査結果を返している。従って、検体情報のうち個人名は削除し、コードを付す。個人情報として、1) 居住地、2) 調査時期、3) 姓、4)

年齢、5)喫煙、6)飲酒、7)身長、8)体重、9)体脂肪(皮下脂肪厚等)、10)一般血液検査成績、11)血清生化学検査成績、12)食事調査成績(食事量、献立内容、栄養摂取量等)について入力する。

本検体を用いてこれまでに発表された各種研究論文についても付帯情報として整理し、各データを個人情報としての入力を検討する。

食事、血清、全血、尿等の生体・生物試料は整理・確認後に-20℃で凍結保存し、試料バンクに収納する。

C. 研究結果

これまでに保存されている各種検体は陰膳実測法による収集された個人別の食事検体とその血液検体(血清、全血)である。各種検体は1975年10月から1982年7月までの第一次全国調査、1991年12月から1995年2月までの第二次全国調査により収集されたものである。それぞれの調査対象者は男女合計で第一次が約2400名、第二次が約500名からなるっている。本年度では第一次調査の検体を中心に確認と整理を行った。

1. 血清、全血について：全国調査が実施された対象50地区について確認を済ませ、冬季および季節変動のため引き続き観察をした夏季の血液について試料バンクのサンプルとして準備し、収納をしている。同時に対象者の性、年齢、喫煙、飲酒データおよび血液検査各種データを整理した。
2. 食事検体について：食事検体も

全国調査が実施された対象50地区について確認を済ませ、血液検体同様に冬季および季節変動のため引き続き観察をした夏季検体についても試料バンクのサンプルとして準備し、収納をしている。食事検体については性、年齢、身長、体重等の個人情報と同時にそれぞれ献立内容や栄養摂取量のデータも入力した。また、これまでに分析測定されている各種元素摂取量についても同様入力している。食事検体は冬季が全体で約1100検体、夏季が240検体である。

3. 文献整理について：二次にわたる本全国調査の結果は逐次研究論文として1982年以降発表されており、これらの文献を研究成果として整理した。

4. 1991年以降の検体について：追跡調査となる1991年以降の第二次調査および1998年から2004年2月までに調査した地域住民および大学生、幼稚園児の食事および血液、尿検体についても引き続き整理を行い、試料バンクのサンプルとすべく準備を継続している。

D. 考察

POPsのリスク評価に向け、ヒト暴露の長期モニタリングのための試料バンクの基礎になる過去に収集し、研究分担者の渡辺が管理している凍結保存中の1975年～1982年の全国地域住民の個人別の血清、全血、食事検体について、検体の保存状況の確認と試料バンク用にコード化する等の倫理的な

配慮を加えた整理を行った上で試料バンクに収納している。各検体については 1) 居住地、2) 調査時期、3) 姓、4) 年齢、5) 喫煙、6) 飲酒、7) 身長、8) 体重、9) 体脂肪（皮下脂肪厚等）、10) 一般血液検査成績、11) 血清生化学検査成績、12) 食事調査成績（食事量、献立内容、栄養摂取量等）の情報を入力している。従って、試料バンクの公開に当っては研究目的とも照合し、自由度の高い利用が保障されたと考えられる。また、本検体を用いてこれまでに発表された各種研究論文についても付帯情報として整理し、データベース一部となることを期待している。

引き続き、1975年～1982年の追跡調査として実施している1991年～1995年の検体を整理し、試料バンクのサンプルとすることにより長期間にわたるPOPsのリスク評価に向けたヒト暴露の長期モニタリングを実現することが可能となる。

E. 結論

所期の全体計画に沿って1975年～1982年の全国地域住民の個人別の血清、全血、食事検体について、検体の保存状況の確認をし、研究目的に適う検体を選定し、試料バンクの試料として収納すると共に必要な検体情報を収載した。また、他地域の調査状況との照合と比較によりさらに精査をして将来のための試料バンクとして機能

性の高い試料の収集を進めていくことが求められる。

F. 健康危険情報

なし

G. 研究発表

1. 論文発表

- ① E. S. Kim, J. S. Kim, M. H. Yim, Y. Jenong, Y. S. Ko, T. Watanabe, H. Nakatsuka, S. Nakatsuka, N. Matsuda-Inoguchi, S. Shimbo, and M. Ikeda. Dietary taurine intake and serum taurine levels of women on Jeju Island. *Advances in Experimental Med. & Biology* 526:277-283(2003)、
- ② E. S. Kim, Y. S. Ko, J. Kim, N. Matsuda-Inoguchi, H. Nakatsuka, T. Watanabe, S. Shimbo, and M. Ikeda. Food composition table-based estimation of energy and major nutrient intake in comparison with chemical analysis: a validation study in Korea. *Tohoku J. Exp. Med.*, 200:7-15(2003)、
- ③ K. Ogawa, Y. Tsubono, Y. Nishino, Y. Watanabe, T. Ohkubo, T. Watanabe, N. Nakatsuka, N. Takahashi, M. Kawamura, I. Tsuji and S. Hisamichi. Validation of a food-frequency questionnaire for cohort studies in rural Japan. *Public Health Nutrition* 6(2):14-157(2003)、
- ④ N. Matsuda-Inoguchi, S. Shimbo, H. Nakatsuka, T. Watanabe, K.

Higashikawa and M. Ikeda. Effects of revision of Japanese food composition tables on estimation of nutrient intakes, with references to age-dependent difference, J. Public Health Nutrition(in press)

2.学会発表

①新保信一郎、渡辺 孝男、中塚 晴夫、松田尚子、池田 正之、日本人の食事からのスズ摂取量、日本衛生学雑誌 58 (1) : 131 (2003)、②渡辺孝男、中塚 晴夫、幼児の栄養-塩素摂取量と尿中排泄量、日本衛生学雑誌 58 (1) : 150 (2003)、③松田尚子、新保慎一郎、中塚 晴夫、渡辺孝男、池田 正之、食品成分表改訂に伴う栄養摂取量の変化-年齢階層による比較、日本衛生学雑誌 58 (1) : 141 (2003)、④渡辺 孝男、中塚 晴夫、新保 慎一郎、池田 正之、陰膳実測法による小児のカドミウム摂取量、日本衛生学雑誌 59 (1) : (2004)

H. 知的財産の出願・登録状況
特になし。

採取サンプルの統合バンク化に関する研究

分担研究者 吉永侃夫 京都大学大学院・助教授

研究要旨 当研究班が設立しようとしている生体試料バンクは4つの異なる時期に、異なる地域で収集された生体試料を基礎にして創設された。それらは①1970年代後半から行われた全国縦断型の食事と血液による調査(全国縦断サンプル)②と京大医・環境衛生が独自集めたサンプルのグループ(京大サンプル)、③京都で採集された血清サンプル(京都サンプル)、それに、④本研究開始を契機に日本全国からの収集しつつある(研究班サンプル)である。本研究ではバンク創設のために収集されたサンプル群の属性、品質管理、採集方法、保存方法に等について検討した。

A. 研究目的

当研究班が設立しようとしている生体試料バンクは①1970年代後半から行われた型の食事と血液に加えて尿による調査(全国縦断サンプル)、②京大医・環境衛生分野が POPs研究のために独自集めたサンプルのグループ(京大サンプル)、③京都で採血された血清群(京都サンプル)、それに④本研究開始を契機に日本全国から収集された新規の試料(研究班サンプル)から構成される。これらのサンプル群は集められた目的、方法、時期が異なっている。これら4つのサンプル群を統合して新たに生体試料バンクの形に整備して機能させることが主目的である。整備する項目は大別して i). サンプル自身を研究目的の使用に叶う様な形態で、長期保存を可能にすること。 ii). 目的のサンプルが最小限の労力で取り出せるためのインフラ整備である。 i)に対応するサンプル群が試料バンクの支柱であるがこれらを支えるインフラの整備も不可欠であり車の両輪を

成すものである。後者のインフラはソフトとハードに分類できる。個々のサンプルの有効かつ正確な保存に係る管理、目的サンプルの抽出、またサンプルの属性検索等はパソコンで行われる(ソフトインフラの一部)。バンクの創設にはサンプル管理、ソフトインフラの整備の他にハード面での設定・整備が必須である。具体的には①サンプルの汚染防止と品質管理を少なくし、②長期保存に耐えられるシステム、③保存温度等の保存環境。

以上の方式に従って整備した総サンプル数、各サンプル群での数、男女それぞれの数、採集年度、年齢分布あるいは採集地域分布等の集計結果を表示する。血液サンプル側から見た同一人物の食事サンプルが利用可能な数も表示した。

B. 研究方法

ア) 個々の過去のサンプルに対する処置

①-③群のサンプルは当バンクに移転される前

にはそれぞれの管理者の考え方によって保管されていたために当バンクの趣旨に合致する方式に置き換える必要があった。

I) 全国縦断サンプルは1978年ごろから1997年頃に日本縦断型で各地で陰膳方式で食事サンプルと採血を、によって集めたサンプル群である。このサンプル群は一地域にて1980年を中心に行った一次調査と1995年を中心にした二次調査から得られた3336検体の血液と陰膳方式による2433検体の食事から成り立っている。これらのサンプル群は同一提供者から得られた標品が約40%含まれていることが特徴である。これらはデータベース上で身体属性、栄養属性、生化学的属性、金属無機塩類属性を共有している。このほかこのサンプル群には一部には血清化したものあり使い分けが可能であるほか尿検査のデータが利用可能である。

これらのサンプル群の内、血液・血清サンプルは市中の冷凍倉庫に保管されていて保管状態の良くないものが散見された。今後30年の保管を想定して、全サンプルを統一規格の身部がポリプロピレン製、蓋が軟質ポリエチレン製のアセトン洗浄をした容器に移し変えた。移し変え操作はアセトン洗浄を施した一体型のピペットを使い、最小量の蒸留水を用いて新しい容器に洗い込んだ。これらの処置に伴う希釈・容量の変化はデータベースに記録した。移し変え作業に使用した容器、ピペット、蒸留水の商品名、ロットを記録し、一部を保存した。ラベルは採集年月日、採集地域、通し番号をレーザープリンターで紙に打ち出し裏面にゴム系のスプレー糊をかけてたうえで規定のサイズに切り取って、容器に貼り付けその上をメンディングテープで覆った。処理したサンプルは採集年度と地域毎に分類してラベルをつけて所

定のポリプロピレン製のコンテナに収容した。

食事試料は容量200mlのポリプロピレン容器または容量500mlのポリスチレン製の容器に入っていたのでそのままサンプルの採集年度、地域、通し番号を確認して所定のコンテナに収容した。

II) 京大サンプルは1977年からはじまる。血清が主のサンプル群で親子で構成されたサンプルを含む特徴がある。その他、学齢期の若年の割合が高いサンプル群である。さらに総括研究者がPOPs研究を目的として集めたサンプルが含まれ、当バンクの先駆的なサンプル群として位置付けられている。採集された母乳サンプルはガラス製のビンに収容されていたので当バンク指定(後述)ポリプロピレン製の50mlの遠心管に移した。初期の血清サンプルは血液冷凍保存用のポリプロピレン容器に入っているので所定のコンテナに入れて保存した。サンプル数は血清3093検体、母乳171検体、食事70検体から構成されている。

III) 京都サンプルは1983年から2000年にかけて京都で収集したものである。サンプル数としては13242検体で最も多い。サンプル容器は身がポリスチレン製で蓋が軟質ポリエチレン製である。ラベルはこのサンプル群の1からの通し番号のみで表示されており72本入りラックに収容されている。データベースは血清番号を軸に採血年月日と性別、年齢で構成されている。残存量はほぼ1.0mlである。

IV) 研究班サンプルは本研究開始にともなって日本全国からの新規の試料である。これらのサンプルは後述の容器、保存の規格が成立後のために統一されており問題はないと考える。

V) サンプルのラベリング

過去のサンプル群からサンプルのラベルは標品の冷凍保存-融解の繰り返しから容器に直接マジックインキ等で書いたものははがれてしまうことを体験した。そこで水分でも滲まないレーザープリンターで紙の印字してそれをゴム系のスプレー糊をかけて容器に貼り付けその上を耐久性があるとされているメンディングテープで覆った。

本生体試料バンクは4つのサンプル群を統合して一元管理を行おうとしている。B(全血)、S(血清)、M(母乳)、F(食事)-収集者-通し番号の統一したラベルを張った。

1) 新規サンプルの採集

血清・母乳の採集の対象は年齢・性別が偏らないように留意し、倫理委員会から承認を得たフォーマットに従い同意を得たうえで採血・採乳した。但し、その時に使った採集用具は複数個ブランクとして保存した。採集したサンプルは京大に送付するまで採集機関で凍結保存した。母乳は初乳を提供していただくことは不可能に近く、採乳時期、採乳方法は指定していない。食事サンプルは指定しない限り購入法で収集した。この場合年齢、性別、朝・昼・夜食を想定した上で食品店、スーパーマーケット、コンビニエンスストアで食品を購入し、それを持ち帰った。それらの食品名、献立、材料の種類と重量を指定したデータファイルに入力したのち飲料食品と一緒に原料品が判別できないまでブレンドし、総重量・総容積をデータファイルに記録して冷凍して保存した。

ウ) ハードインフラの整備

1) 容器に係るもの

本研究で扱うサンプルの測定対象は POPs および金属等、長期間の保存で変化しない化学

物質である。従って本バンクのサンプルを保存する容器は先ずこれらの化学物質で汚染されていないこと、容器からの湧出がないことが前提である。しかし、現在予測出来ない化学物質も研究対象となりうるので、現在考え得るうえで比較的問題の少ないポリプロピレン、ポリエチレン系の容器を採用した。(ガラス製品は有機物の湧出がなく安定であるが凍結融解に耐える物理的強度、機械的強度に不安がある) 未知の汚染・湧出に対しては空容器を同一条件で保管し必要な時にブランクとして測定することにした。全国の収集分担者が何処でも入手できることを基準にして、血清用には 2-ml 液体チッソ下の保存が可能なファルコンクライオジェニックバイアルを、母乳にはファルコン 50-ml の遠心管を指定した。食事サンプルは NIKKO 製(J-ボトル)の 1-L のポリプロピレン製の広口ビンですべてのサンプルを収納するサンコーの 24-L のコンテナに効率良く収まることから採用した。

II) 保存環境

本バンクの測定対象物である POPs および金属類は保存環境によって破壊が起こる可能性は低いですが全血、血清、母乳それに食事サンプルは常温では腐敗、変性がおこるので-20℃で冷凍保存にした。本事業開始以前に収集されたサンプルが 24-L コンテナで89個に、新規のサンプルを収納したコンテナが60個以上有り市販の最大のフリーザーでも12個しか収納出来ないのも市内の冷凍倉庫に保存することにした。冷凍倉庫内は冷却のための風が強く埃っぽいので一つ一つのコンテナをポリエチレンの袋に入れて荷作り用の帯紐で縛ってある。全国の各サンプル収集分担者からのサンプルは食料サンプルは直接冷凍倉庫に、血清と母乳は一旦、当研究班の所

属する京都大学大学院・環境衛生学分野に送付され、状態を確認後冷凍倉庫に送付している。将来保管中のサンプルを研究者に提供する場合は該当サンプルの入ったコンテナをデータベースを基に選定して京大に運び、そこからサンプルを抽出して研究者に送ることになる。

エ) 本生体試料バンクのメリット

全国縦断サンプルでは同一人物から提供された血液サンプル、食事サンプルあるいは血清サンプル数が多く含まれており、さらに尿サンプルの測定値についてもデータベース上でリンクすることによって現在ではすでに測定することが不可能になっている過去の種々のデータにアクセスできる。(分担研究報告「ソフトインフラの整備」参照)。今後本バンクで種々の物質が測定されるだろうが、これらの測定値はデータベースに記録され、2度同一物質測定が無駄と、その他の物質予定者の参考になるだろう。

C. 研究結果

ア) ハードインフラの整備

研究方法の所で述べたサンプル自身の整備とハードインフラの整備は予定通り終了することができた。

イ) 本バンク試料の収集

本生体試料バンクのために収集されたサンプルは4群に別れている。その数的概要を表 1. にまとめた。

研究班サンプルは現在進行中であるため平成16年3月31日現在の数値を表示した。血清を含む血液サンプルが最も多く中でも京都サン

プルが半数以上を占めた。母乳サンプルは血液、食事に比べてはるかに少ない。

表. 1 生体試料バンクのサンプル数

| | 血液 | 母乳 | 食事 |
|--------|-------|-----|------|
| 日本縦断-S | 3336 | 0 | 2433 |
| 京大-S | 3093 | 171 | 70 |
| 京都-S | 13424 | 0 | 0 |
| 研究班-S | 2315 | 396 | 957 |
| 合計 | 22168 | 567 | 3460 |

ウ) 本バンク試料の属性概要

1) 全国縦断サンプル

本サンプルの特徴は血液と食事サンプルの多くが同一人物からの提供を受けた点に特徴がある。表2の上段には血液提供者の年齢分布、平均血液量、食事サンプルとのリンク数が男女別に示されている。女性が男性の2.3倍多く、年齢は40-50代が中心で山型の分布している。表2の下段には採血年度別、サンプル量、食事とのリンクの分布が示されており1980年中心の一次調査の検体数が多く二次調査の検体は多くない。食事とのリンクは資料データが有効な約40%である。表3上段には食事サンプルの提供者の年齢分布、平均食事残量、血液サンプルとのリンク数が男女別に示されており、強いリンクによって年齢構成、採集年度は血液サンプルと似ている。

2) 京大サンプル

本サンプルは京大の環境衛生が収集したサンプル群で1989年～1996年を中心に収集された血清が主である(表4下)。当地域における学校保健で採集された10才前後の若年者の血清も多く含まれているため年齢分布(表4上)は2相性となっている。また親子対のなっ

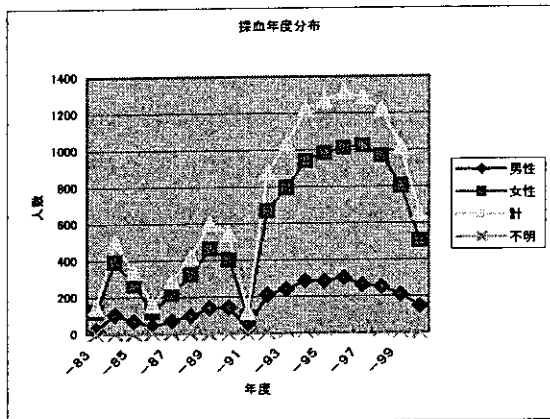
たサンプルが存在するのも特徴である。本サンプルには 1987 年の母乳と最近採乳された母乳が含まれている。

3) 京都サンプル

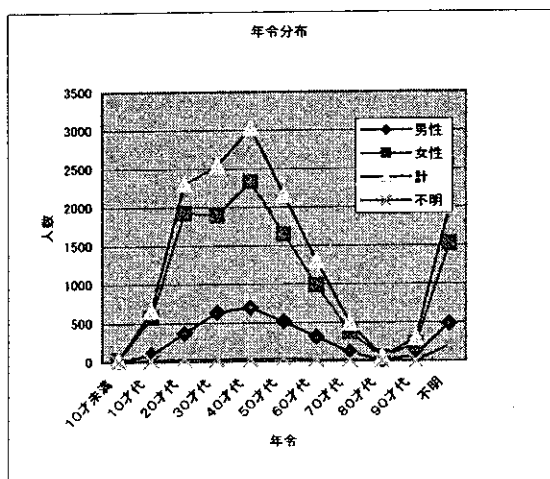
本サンプル群は京都で採血された13,000余の血清から構成されており採集年度(図1)と年齢分布(図2)に示した。

採血年度は3つの山に分離している。また年齢分布は50代をピークに全年令に分布している。男女比は採集年度、年齢分布でほぼ一定しており約1:4で女性が多い。

(図1)採血年度分布



(図2)年齢分布



4) 平成15年度の研究班サンプル

本研究における初年度の試料収集の結果を表5に示す。収集は全国はほぼ均等に分布した10名の分担者と4名の班友さらに2名の協力者で行った。収集対象は男女1:1、年齢分布は偏らないことを目標とした。職場健診等の場合は男女、年齢が偏らないように補正しながら行ったところもある。

表5 平成15年度検体収集実績

| | 血清 | 母乳 | 食事 |
|-----|------|------|-----|
| 目的数 | 1950 | 1600 | 950 |
| 実績 | 2315 | 396 | 957 |

収集の実績は表からも判るように血清では予定を19%上まわった。食事も予定通りであった。しかし母乳に関しては1/4でいずれの収集者も苦労が多かった。まだ母乳を生体試料として認知されていないと思われる。これらのサンプルの属性はまだ収集継続中でデータファイルがそろっていないので最終結果は出せないが血液サンプルについて手許の集計では男女ほぼ1:1で年齢は40才代を中心に山型の分布している。

表5には本バンクに収容されているサンプルの分布を上下に年代を、左右に地域を軸B:全血液、S:血清、M:母乳、F食事の検体数でプロットをおこなった。図から本バンクの標品は年代、地域全体に分布しており、過去20数年、全国の地域をカバーしているといえる。

D. 考察

ラベルは耐久性のあるカーボン素材とするレーザープリンターで印字したものをゴム系の糊で容器に貼り付けたうえメンディングテープで覆った方法をとったが30年の保証はなく今後続く課題である。容器も現在安定とされているポリプロピレン、ポリエチレン系をつかったが、これらから将来問題になる添加物が見つかる

かもしれない。これに対してブランクで保存している容器を用いた測定である程度補正が可能と思われる。食事の採集方法を購入法にしたがこれには使用材料を明示しカロリー計算ができているものが利用出来るからである。陰膳方式の利点も理解できるが、提供者が得られない欠点がある。

E. 結論

サンプル自身の分類、選別性、保管性の整備によって必要なサンプルが取り扱える状態になった。ハードインフラも整備が終了し、ソフトインフラも整備途中の段階ではあるが必要な処理が可能となった。従ってバンクとしての機能は 整いつつあり、現状で運用が可能となった。

F. 健康危険情報

なし

G. 研究発表

学会発表

- 1) Inoue K, Harada K, Yoshinaga T, Koizumi A. Establishment of the public sample bank to monitor a long-term trend of human exposure to persistent organic pollutants (Pops), Annual meeting of Society of Toxicology at Baltimore, 3/22-26/2004
- 2) Harada K, Inoue K, Yoshinaga T, Koizumi A. A long-term trend of serum levels of perfluorooctane sulfonate (PFOS) and perfluorooctanoate (PFOA) in Japanese. Annual meeting of Society of Toxicology at Baltimore, 3/22-26/2004
- 3) Saito N, Harada K, Inoue K, Yoshinaga

T, Koizumi A. Perfluorooctanoate and perfluorooctane sulfonate concentrations in surface waters in Japan. Annual meeting of Society of Toxicology at Baltimore, 3/22-26/2004

H. 知的財産権の出願・登録状況

なし

| 年齢分布 | 検体数 | | 不明 | | 平均量(g) | | 食事とリンクした検体数 | | |
|------|-------|-----|-------|-----|--------|-----|-------------|-----|-------|
| | 男 | 女 | 男 | 女 | 男 | 女 | 合計 | 男 | 女 |
| 10s | 2 | 0 | 2 | 0 | 3.4 | 0 | 1 | 0 | 1 |
| 20s | 172 | 47 | 125 | 125 | 5.0 | 5.8 | 88 | 14 | 74 |
| 30s | 420 | 118 | 302 | 302 | 5.4 | 5.6 | 223 | 53 | 170 |
| 40s | 769 | 217 | 552 | 552 | 5.3 | 5.5 | 417 | 92 | 325 |
| 50s | 794 | 250 | 544 | 544 | 5.4 | 5.8 | 402 | 105 | 297 |
| 60s | 329 | 117 | 212 | 212 | 5.1 | 5.7 | 165 | 40 | 125 |
| 70s | 50 | 19 | 31 | 31 | 5.1 | 5.4 | 18 | 2 | 16 |
| 80s | 6 | 3 | 3 | 3 | 5.7 | 4.8 | 2 | 2 | 0 |
| 合計 | 3,336 | 771 | 1,770 | 795 | 5.4 | 5.7 | 1,316 | 308 | 1,008 |

| 年度 | 検体数 | | U | | 平均量(g) | | 食事とリンクした検体数 | |
|------|-------|-----|-------|-----|--------|-------|-------------|-------|
| | 男 | 女 | 男 | 女 | 合計 | 男 | 女 | |
| 1978 | 215 | 8 | 11 | 196 | 5.6 | 14 | 6 | 8 |
| 1979 | 755 | 181 | 233 | 341 | 5.7 | 194 | 92 | 102 |
| 1980 | 913 | 295 | 483 | 135 | 5.9 | 295 | 114 | 181 |
| 1981 | 810 | 253 | 451 | 106 | 5.5 | 262 | 62 | 200 |
| 1982 | 90 | 0 | 88 | 2 | 5.3 | 16 | 0 | 16 |
| 1994 | 159 | 7 | 137 | 15 | 4.8 | 144 | 7 | 137 |
| 1995 | 180 | 26 | 154 | 0 | 4.4 | 178 | 26 | 152 |
| 1996 | 74 | 1 | 73 | 0 | 3.0 | 73 | 1 | 72 |
| 1997 | 140 | 0 | 140 | 0 | 3.1 | 140 | 0 | 140 |
| 合計 | 3,336 | 771 | 1,770 | 795 | 5.4 | 1,316 | 308 | 1,008 |

表 2 全国縦断サンプル 血液サンプルの年齢分布と採血年度分布

| 年齢分布 | 検体数 | | | | 平均量(g) | | | |
|-------|-------|-----|-------|-----|--------|-----|-----|-----|
| | 合計 | 男 | 女 | 不明 | 合計 | 男 | 女 | 不明 |
| 10s | 7 | 0 | 7 | | 200 | 0 | 200 | |
| 20s | 115 | 17 | 98 | | 234 | 200 | 240 | |
| 30s | 251 | 60 | 191 | | 220 | 203 | 226 | |
| 40s | 473 | 94 | 379 | | 207 | 208 | 207 | |
| 50s | 548 | 126 | 422 | | 201 | 210 | 199 | |
| 60s | 243 | 54 | 189 | | 204 | 212 | 202 | |
| 70s | 30 | 5 | 25 | | 200 | 200 | 200 | |
| total | 2,433 | 356 | 1,311 | 766 | 202 | 208 | 209 | 174 |

| 年度 | 合計 | 男 | 女 | 不明 |
|------|-------|-----|-------|-----|
| 1977 | 78 | 15 | 9 | 54 |
| 1978 | 55 | 0 | 0 | 55 |
| 1979 | 362 | 139 | 96 | 127 |
| 1980 | 341 | 91 | 181 | 69 |
| 1981 | 403 | 62 | 235 | 106 |
| 1989 | 259 | 0 | 0 | 259 |
| 1991 | 145 | 15 | 38 | 92 |
| 1992 | 110 | 29 | 80 | 1 |
| 1993 | 128 | 2 | 126 | 0 |
| 1994 | 132 | 0 | 130 | 2 |
| 1995 | 173 | 2 | 170 | 1 |
| 1996 | 76 | 1 | 75 | 0 |
| 1997 | 144 | 0 | 144 | 0 |
| 1999 | 27 | 0 | 27 | 0 |
| 合計 | 2,433 | 356 | 1,311 | 766 |

表 3 全国縦断サンプル 食事サンプルの年齢分布と採集年度分布

| 年齢 | 検体数 | | | | 血清量 | 合計 | 男 | 女 |
|-----|-------|-------|-------|-----|------|----|----|----|
| | 合計 | 男 | 女 | 不明 | | | | |
| <10 | 475 | 222 | 253 | 0 | 1.0 | 0 | 0 | 0 |
| 10s | 954 | 452 | 502 | 0 | 1.0 | 0 | 0 | 0 |
| 20s | 189 | 62 | 127 | 0 | 2.0 | 10 | 5 | 5 |
| 30s | 336 | 73 | 263 | 0 | 2.0 | 0 | 0 | 0 |
| 40s | 595 | 252 | 343 | 0 | 2.0 | 0 | 0 | 0 |
| 50s | 399 | 275 | 124 | 0 | 3.0 | 0 | 0 | 0 |
| 60s | 42 | 23 | 19 | 0 | 3.0 | 7 | 4 | 3 |
| 70s | 4 | 1 | 3 | 0 | 2.0 | 3 | 1 | 2 |
| 不明 | 291 | 18 | 12 | 261 | 1.0 | 0 | 0 | 0 |
| 合計 | 3,285 | 1,378 | 1,646 | 261 | 17.0 | 20 | 10 | 10 |

| 年度 | 検体数 | | | | 食事サンプルとリンク | | |
|------|-----|-----|-----|----|------------|----|----|
| | 合計 | 男 | 女 | 不明 | 合計 | 男 | 女 |
| 1977 | 54 | 0 | 54 | 0 | 0 | 0 | 0 |
| 1989 | 508 | 349 | 80 | 79 | 0 | 0 | 0 |
| 1990 | 139 | 17 | 24 | 98 | 0 | 0 | 0 |
| 1991 | 359 | 80 | 203 | 76 | 0 | 0 | 0 |
| 1992 | 568 | 205 | 359 | 4 | 0 | 0 | 0 |
| 1993 | 236 | 70 | 165 | 1 | 0 | 0 | 0 |
| 1994 | 563 | 232 | 329 | 2 | 0 | 0 | 0 |
| 1995 | 344 | 171 | 172 | 1 | 0 | 0 | 0 |
| 1996 | 180 | 95 | 85 | 0 | 0 | 0 | 0 |
| 1997 | 11 | 11 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 |
| 2002 | 55 | 29 | 26 | 0 | 0 | 0 | 0 |
| 2003 | 248 | 110 | 138 | 0 | 0 | 0 | 0 |
| 2004 | 20 | 10 | 10 | 0 | 20 | 10 | 10 |

表 4 京大サンプル 血清サンプルの年齢分布と採血年度分布

| Year | 種類 | 北海道 | 青森 | 秋田 | 宮城 | 岩手 | 新潟 | 福島 | 石川 | 富山 | 長野 | 埼玉 | 茨城 | 栃木 | 群馬 | 東京 | 神奈川 | 静岡 | 愛知 | 岐阜 | |
|-------|----|-----|-----|------|------|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|----|----|-----|-----|-----|----|-----|------|-----|
| 1977 | F | | | | 78 | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | S | | | | 54 | | | | | | | | | | | | | | | | |
| 1978 | F | 13 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | B | 80 | | | 37 | | | | | | | | | | | | | | | | |
| 1979 | F | | | | 65 | | 46 | 21 | 20 | 18 | | 31 | | | | | | | | 39 | |
| | B | 18 | | | 57 | | 45 | 43 | 34 | 46 | | 153 | | | | | | | | 70 | |
| 1980 | F | 79 | 16 | | 77 | | | | 22 | | 21 | | | | | 22 | | | | | |
| | B | 196 | 31 | | 251 | | | | 42 | | 44 | | | | | 63 | | | | | |
| 1981 | F | 19 | | | 140 | | | | | | | | | | | 20 | | | | 24 | |
| | B | 42 | | | 126 | | | | | | | | | | | 47 | | | | 25 | |
| 1982 | F | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | B | | | | 90 | | | | | | | | | | | | | | | | |
| 1983 | S | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | M | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| 1984 | S | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | M | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| 1985 | S | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | M | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| 1986 | S | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | M | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| 1987 | S | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | M | | | 90 | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| 1988 | S | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | M | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| 1989 | F | | | | | 196 | | | | | | | | | | | | | | | |
| | S | | | 508 | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| 1990 | S | | | 41 | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | M | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| 1991 | F | | | | 39 | 92 | | | | | | | | | | | | | | | |
| | S | 6 | 1 | 349 | | | | | | | | | | 2 | | | | | | | |
| 1992 | F | 38 | | | 25 | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | S | 14 | 2 | 545 | 1 | | | | | | | | | 6 | | | | | | | |
| 1993 | F | | | | | | 22 | | | | | | | | | 46 | | | | | |
| | S | | | 236 | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| 1994 | F | | | | | | | 30 | | 25 | | | | | | | | | | | |
| | B | | | | | | | 31 | | 45 | | | | | | | | | | | |
| | S | | | 563 | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| 1995 | F | 20 | | | | | | | 25 | | | | | | 26 | | | | | 23 | |
| | B | 19 | | | | | | | 46 | | | | | | 26 | | | | | | |
| | S | | | 344 | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| 1996 | F | | | | | | | | 31 | | | | | | | | | | | | |
| | B | | | | | | | | 30 | | | | | | | | | | | | |
| | S | | | 180 | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| 1997 | F | | 30 | | 49 | | | | | | 40 | | | | | | | | | | |
| | B | | 30 | | 47 | | | | | | 38 | | | | | | | | | | |
| | S | | | 11 | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| 1998 | B | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | S | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| 1999 | F | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | S | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| 2000 | S | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | M | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| 2001 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| 2002 | S | | | 3 | | | | | 1 | | | | 1 | | 3 | 4 | 1 | 1 | 2 | | |
| | M | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| 2003 | F | | | 12 | 12 | | | | | | | | | | | | | | | | 52 |
| | S | | | 160 | 88 | | | | | | | | | | | | | | | | 333 |
| | M | 20 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| 2004 | F | | | 150 | 96 | | | | | | | | | | | 150 | | | | | 47 |
| | S | | | 36 | 32 | | | | 1 | | | | | | | | | | | 1 | 800 |
| | M | 20 | | 25 | 70 | | | | | | | | | | | | | | | | 69 |
| total | | 584 | 110 | 3253 | 1434 | 288 | 113 | 125 | 252 | 134 | 143 | 184 | 1 | 8 | 207 | 249 | 1 | 1 | 135 | 1301 | |
| | 種類 | 北海道 | 青森 | 秋田 | 宮城 | 岩手 | 新潟 | 福島 | 石川 | 富山 | 長野 | 埼玉 | 茨城 | 栃木 | 群馬 | 東京 | 神奈川 | 静岡 | 愛知 | 岐阜 | |

表 6 年代-地域分布

| 福井 | 三重 | 京都 | 滋賀 | 大阪 | 奈良 | 兵庫 | 和歌山 | 広島 | 島根 | 山口 | 徳島 | 香川 | 愛媛 | 高知 | 福岡 | 宮崎 | 鹿児島 | 沖縄 |
|-----|----|-------|----|----|----|-----|-----|----|----|-----|----|-----|----|-----|----|----|-----|-----|
| | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | | | | | | | | | | | | 42 | | | | | | |
| | | | | | | | | | | | 98 | | | | | | | |
| | | | | | | | 34 | | | 62 | | | | | 26 | | | |
| | | | | | | | 168 | | | 74 | | | | | 46 | | | |
| | | 2 | | | | | 20 | | | | | | | | | | 57 | 25 |
| | | | | | | | | 51 | 38 | | | 28 | | | | | 133 | 36 |
| | | | | | | | | | | | | 15 | 20 | 22 | | | 45 | 98 |
| | | | | | | | | | | | | 29 | 28 | 48 | | | 115 | 350 |
| | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | | 148 | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | | 507 | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | | 340 | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | | 161 | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | | 293 | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | | 426 | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | 63 | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | | 603 | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | | 545 | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | | | | | | | | | | 14 | | | | | | | | |
| | | 120 | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | | | | | | | | | | | | | | | | | | 47 |
| | | 887 | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | | 25 | | | | | | | | | | | | 17 | 18 | | | |
| | | 1058 | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | | | 25 | | | | 28 | | | | | | | | | | 24 | |
| | | | 25 | | | | | 35 | | | | | | | | | 23 | |
| | | 1241 | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | | | | | | | | | | | | | | | | | 56 | 23 |
| | | | | | | | | | | | | | | | | | 57 | 32 |
| | | 1299 | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | | 19 | | | | | | | | | | | 26 | | | | | |
| | | 19 | | | | | | | | | | | 25 | | | | | |
| | | 1357 | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | | 25 | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | | 25 | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | | 1319 | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | | 1253 | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | | 27 | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | | 1023 | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | | 662 | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | 1 | 11 | 2 | 11 | 3 | 7 | | 1 | 2 | | 1 | | | | | | | |
| | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | | 16 | | | | | | | | | | | | 69 | | | | 42 |
| | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | | | | | | 20 | | | | | | | | | | | | |
| 100 | | 58 | | 2 | | 100 | 100 | | | | | | | 51 | | | | 42 |
| 111 | 2 | 20 | | 2 | | 77 | 13 | | | 200 | | | | 214 | | | 1 | 51 |
| 31 | | 62 | | | | 44 | 11 | | | 5 | | | | 36 | | | | 13 |
| 242 | 66 | 13551 | 52 | 15 | 3 | 248 | 374 | 1 | 88 | 393 | 1 | 212 | 99 | 457 | 90 | 0 | 511 | 759 |
| 福井 | 三重 | 京都 | 滋賀 | 大阪 | 奈良 | 兵庫 | 和歌山 | 広島 | 島根 | 山口 | 徳島 | 香川 | 愛媛 | 高知 | 福岡 | 宮崎 | 鹿児島 | 沖縄 |

表 6 年代-地域分布

厚生労働科学研究費補助金（化学物質リスク研究事業）
研究報告書

新たなサンプルの採取に関する研究
－宮城県での採取

分担研究者 中塚晴夫 宮城大学教授

研究要旨：

POPs のリスク評価に向けてのヒト暴露長期モニタリングのための試料バンク創設のため宮城県における成人男女の血清 120 検体、母乳 100 検体および食事 96 検体の収集を行い、試料バンクに登録・収納した。

A. 研究目的

POPs のリスク評価に向け、ヒト暴露の長期モニタリングのための試料バンク創設を行う。試料バンクのためのサンプルとして血清、食事、母乳について 2003 年度現在の宮城県における成人男女を対象とした各試料の収集を実施し、目標の実現と付随する課題について検討する。

B. 研究方法

宮城県における血清、食事、母乳の検体の収集に当って、研究目的にかなう検体をどのような方法で実現できるか、とくに血清および母乳の収集について、倫理面および必要な情報の取得の可否、地域の代表性を念頭に関係機関を探し、協力を得て実施する方法を用いた。検体の保存容器は指定・統一されたものを準備・使用する。食事検体については成人男女が外食を利用して一日 3 食の食事献立とする全体計画に従っ

た統一的方法を用いた。本研究では分担研究者の渡辺孝男宮城教育大学教授の全面的な協力を得て実施した。食事者として宮城教育大学の男女学生各 2 名の 4 名に協力を依頼し、食事検体の収集は各自が外食により連続する 4 日間を一日 3 食の食事、すなわち、朝食、昼食、夕食を摂取することを前提にして任意に献立を考え、コンビニエンスストア等を利用して購入・準備することとした。そこで、毎日各自が仙台市内の店舗を中心にお弁当類を探し、購入・収集する方法を用いた。調査は休日を含む連続する 4 日間で実施することとした。第 1 回目の調査は 2 月 14,15,16,17 日の 4 日間、引き続き第 2 回目の調査を 3 月 13,14,15,16 日の 4 日間で実施した。各食事検体は献立票に料理名を記録し、食物・食材毎に仕分けしたものを電子天秤で秤量し、重量を記録した。秤量後、食事別にミキサー（東芝クッキングカッター、CQM-62）で粉碎・ホモジ