

表 2-3-2 受診者区分<未認定>との関連性が症状等の3つの組み合わせ
 せて高い10項目(3対1)

項目	性別	年齢	PeCDF	追跡班	受診者区分	関連性	LR	95%CI
1) 32478 PeCDF<50未満>	性別<女>	年齢無<有>	0.0850	0.2474	0.0482	0.7418	2.9832	1.5813
2) 32478 PeCDF<50未満>	年齢無<有>	性別無<有>	0.1132	0.2474	0.0692	0.8111	2.4700	1.4608
3) 32478 PeCDF<50未満>	性別<女>	年齢無<有>	0.0231	0.2474	0.0231	1.0000	4.0424	3.0331
4) 32478 PeCDF<50未満>	年齢無<有>	性別<女>	0.0210	0.2474	0.0210	1.0000	4.0424	4.7878
5) 32478 PeCDF<50未満>	性別<女>	年齢無<有>	0.0210	0.2474	0.0210	1.0000	4.0424	4.7878
6) 32478 PeCDF<50未満>	年齢無<有>	性別<女>	0.0231	0.2474	0.0231	1.0000	4.0424	4.7878
7) 32478 PeCDF<50未満>	性別<女>	年齢無<有>	0.0231	0.2474	0.0231	1.0000	4.0424	4.7878
8) 32478 PeCDF<50未満>	年齢無<有>	性別<女>	0.0231	0.2474	0.0231	1.0000	4.0424	4.7878
9) 32478 PeCDF<50未満>	性別<女>	年齢無<有>	0.0231	0.2474	0.0231	1.0000	4.0424	4.7878
10) 32478 PeCDF<50未満>	年齢無<有>	性別<女>	0.0231	0.2474	0.0231	1.0000	4.0424	4.7878

表 3-1-1 2,3,4,7,8-PeCDF 濃度<50 以上>との関連性が症状等の3つ
 の組み合わせで高い10項目(除 PCB、追跡班、受診者区分) (3対1)

項目	性別	年齢	PeCDF	追跡班	受診者区分	関連性	LR	95%CI
1) 32478 PeCDF<50未満>	性別<女>	年齢無<有>	0.2117	0.4654	0.1630	0.7228	1.8520	3.8932
2) 32478 PeCDF<50未満>	年齢無<有>	性別<女>	0.2138	0.4654	0.1530	0.7137	1.9378	3.8045
3) 32478 PeCDF<50未満>	性別<女>	年齢無<有>	0.2180	0.4654	0.1591	0.7115	1.9288	3.8415
4) 32478 PeCDF<50未満>	年齢無<有>	性別<女>	0.2137	0.4654	0.1685	0.7068	1.7118	3.4913
5) 32478 PeCDF<50未満>	性別<女>	年齢無<有>	0.2138	0.4654	0.1685	0.7068	1.7118	3.4913
6) 32478 PeCDF<50未満>	年齢無<有>	性別<女>	0.2000	0.4654	0.1781	0.6874	1.4555	3.0911
7) 32478 PeCDF<50未満>	性別<女>	年齢無<有>	0.2000	0.4654	0.1781	0.6874	1.4555	3.0911
8) 32478 PeCDF<50未満>	年齢無<有>	性別<女>	0.1892	0.4654	0.1606	0.7041	1.3324	2.6419
9) 32478 PeCDF<50未満>	性別<女>	年齢無<有>	0.1892	0.4654	0.1606	0.7041	1.3324	2.6419
10) 32478 PeCDF<50未満>	年齢無<有>	性別<女>	0.2108	0.4654	0.1572	0.6818	1.4650	3.0318

表 3-1-2 2,3,4,7,8-PeCDF 濃度<50 未満>との関連性が症状等の3つ
 の組み合わせで高い10項目(除 PCB、追跡班、受診者区分) (3対1)

項目	性別	年齢	PeCDF	追跡班	受診者区分	関連性	LR	95%CI
1) 32478 PeCDF<50未満>	性別<女>	年齢無<有>	0.0787	0.3548	0.1234	0.8231	1.2239	1.7398
2) 32478 PeCDF<50未満>	年齢無<有>	性別<女>	0.0812	0.3548	0.0879	0.8061	1.7005	2.5883
3) 32478 PeCDF<50未満>	性別<女>	年齢無<有>	0.0587	0.3548	0.0545	0.9758	1.3200	2.0283
4) 32478 PeCDF<50未満>	年齢無<有>	性別<女>	0.0560	0.3548	0.0547	0.9532	1.0888	1.8172
5) 32478 PeCDF<50未満>	性別<女>	年齢無<有>	0.0559	0.3548	0.0548	0.8800	1.0335	1.7148
6) 32478 PeCDF<50未満>	年齢無<有>	性別<女>	0.0608	0.3548	0.0545	0.8848	1.0771	2.1003
7) 32478 PeCDF<50未満>	性別<女>	年齢無<有>	0.0608	0.3548	0.0545	0.8848	1.0771	2.1003
8) 32478 PeCDF<50未満>	年齢無<有>	性別<女>	0.1048	0.3548	0.0830	0.8000	1.0962	2.6419
9) 32478 PeCDF<50未満>	性別<女>	年齢無<有>	0.1048	0.3548	0.0830	0.8000	1.0962	2.6419
10) 32478 PeCDF<50未満>	年齢無<有>	性別<女>	0.0418	0.3548	0.0388	0.8500	1.7271	2.5018

表 3-2-1 PCB パターン<A>との関連性が症状等の3つの組み合わせ
 で高い10項目(除 PeCDF、追跡班、受診者認定区分) (3対1)

項目	性別	年齢	PeCDF	追跡班	受診者認定区分	関連性	LR	95%CI
1) 32478 PeCDF<50未満>	性別<女>	年齢無<有>	0.0270	0.3354	0.2033	0.8134	1.844	4.3888
2) 32478 PeCDF<50未満>	年齢無<有>	性別<女>	0.0481	0.3354	0.0839	0.8050	1.3744	3.7344
3) 32478 PeCDF<50未満>	性別<女>	年齢無<有>	0.0812	0.3354	0.1624	0.9539	1.3705	3.7344
4) 32478 PeCDF<50未満>	年齢無<有>	性別<女>	0.1132	0.3354	0.0881	0.7738	1.2188	3.7372
5) 32478 PeCDF<50未満>	性別<女>	年齢無<有>	0.2118	0.3354	0.0922	0.7589	2.2410	4.8119
6) 32478 PeCDF<50未満>	年齢無<有>	性別<女>	0.2008	0.3354	0.1888	0.8601	2.0670	4.2845
7) 32478 PeCDF<50未満>	性別<女>	年齢無<有>	0.1488	0.3354	0.1027	0.8601	2.0670	4.2845
8) 32478 PeCDF<50未満>	年齢無<有>	性別<女>	0.1429	0.3354	0.0985	0.8812	2.2608	3.1908
9) 32478 PeCDF<50未満>	性別<女>	年齢無<有>	0.2180	0.3354	0.1542	0.8154	1.8248	4.1203
10) 32478 PeCDF<50未満>	年齢無<有>	性別<女>	0.2138	0.3354	0.1331	0.8178	1.6414	3.1078

表 3-2-2 PCB パターンとの関連性が症状等の3つの組み合わせ
 で高い10項目(除 PeCDF、追跡班、受診者認定区分) (3対1)

項目	性別	年齢	PeCDF	追跡班	受診者認定区分	関連性	LR	95%CI
1) 32478 PeCDF<50未満>	性別<女>	年齢無<有>	0.0273	0.2377	0.2042	0.9231	3.8687	8.1789
2) 32478 PeCDF<50未満>	年齢無<有>	性別<女>	0.0273	0.2377	0.2042	0.9231	3.8687	8.1789
3) 32478 PeCDF<50未満>	性別<女>	年齢無<有>	0.0442	0.2377	0.2042	0.7381	3.1783	5.8422
4) 32478 PeCDF<50未満>	年齢無<有>	性別<女>	0.0210	0.2377	0.2042	1.0000	4.2973	5.8422
5) 32478 PeCDF<50未満>	性別<女>	年齢無<有>	0.0210	0.2377	0.2042	1.0000	4.2973	5.8422
6) 32478 PeCDF<50未満>	年齢無<有>	性別<女>	0.0210	0.2377	0.2042	1.0000	4.2973	5.8422
7) 32478 PeCDF<50未満>	性別<女>	年齢無<有>	0.0210	0.2377	0.2042	1.0000	4.2973	5.8422
8) 32478 PeCDF<50未満>	年齢無<有>	性別<女>	0.0210	0.2377	0.2042	1.0000	4.2973	5.8422
9) 32478 PeCDF<50未満>	性別<女>	年齢無<有>	0.0210	0.2377	0.2042	1.0000	4.2973	5.8422
10) 32478 PeCDF<50未満>	年齢無<有>	性別<女>	0.0210	0.2377	0.2042	1.0000	4.2973	5.8422

表 3-2-2 PCB パターン<BC>との関連性が症状等の3つの組み合わせ
 せて高い10項目(除 PeCDF、追跡班、受診者認定区分) (3対1)

項目	性別	年齢	PeCDF	追跡班	受診者認定区分	関連性	LR	95%CI
1) 32478 PeCDF<50未満>	性別<女>	年齢無<有>	0.0231	0.0680	0.0198	0.7273	6.4612	7.2422
2) 32478 PeCDF<50未満>	年齢無<有>	性別<女>	0.0273	0.0680	0.0198	0.5000	6.8060	8.7889
3) 32478 PeCDF<50未満>	性別<女>	年齢無<有>	0.0440	0.0680	0.0198	0.8154	7.1566	12.1188
4) 32478 PeCDF<50未満>	年齢無<有>	性別<女>	0.0440	0.0680	0.0210	0.4782	5.5401	8.1112
5) 32478 PeCDF<50未満>	性別<女>	年齢無<有>	0.0440	0.0680	0.0210	0.4782	5.5401	8.1112
6) 32478 PeCDF<50未満>	年齢無<有>	性別<女>	0.0210	0.0680	0.0198	0.4782	5.5401	8.1112
7) 32478 PeCDF<50未満>	性別<女>	年齢無<有>	0.0210	0.0680	0.0198	0.4782	5.5401	8.1112
8) 32478 PeCDF<50未満>	年齢無<有>	性別<女>	0.0147	0.0680	0.0108	0.7142	8.3101	9.8729
9) 32478 PeCDF<50未満>	性別<女>	年齢無<有>	0.0147	0.0680	0.0108	0.7142	8.3101	9.8729
10) 32478 PeCDF<50未満>	年齢無<有>	性別<女>	0.0235	0.0680	0.0148	0.5000	9.3171	13.8272

表 3-2-4 PCB パターン<C>との関連性が症状等の3つの組み合わせ
 高い10項目(除 PeCDF、追跡班、受診者認定区分) (3対1)

項目	性別	年齢	PeCDF	追跡班	受診者認定区分	関連性	LR	95%CI
1) 32478 PeCDF<50未満>	性別<女>	年齢無<有>	0.0188	0.2138	0.0188	1.0000	4.8783	4.8172
2) 32478 PeCDF<50未満>	年齢無<有>	性別<女>	0.0624	0.2138	0.0326	0.8400	2.8979	4.8140
3) 32478 PeCDF<50未満>	性別<女>	年齢無<有>	0.0147	0.2138	0.0147	1.0000	4.8783	4.8172
4) 32478 PeCDF<50未満>	年齢無<有>	性別<女>	0.0147	0.2138	0.0147	1.0000	4.8783	4.8172
5) 32478 PeCDF<50未満>	性別<女>	年齢無<有>	0.0205	0.2138	0.0205	0.8400	2.8979	4.8140
6) 32478 PeCDF<50未満>	年齢無<有>	性別<女>	0.0205	0.2138	0.0205	0.8400	2.8979	4.8140
7) 32478 PeCDF<50未満>	性別<女>	年齢無<有>	0.0205	0.2138	0.0205	0.8400	2.8979	4.8140
8) 32478 PeCDF<50未満>	年齢無<有>	性別<女>	0.0205	0.2138	0.0205	0.8400	2.8979	4.8140
9) 32478 PeCDF<50未満>	性別<女>	年齢無<有>	0.0205	0.2138	0.0205	0.8400	2.8979	4.8140
10) 32478 PeCDF<50未満>	年齢無<有>	性別<女>	0.0205	0.2138	0.0205	0.8400	2.8979	4.8140

分担研究報告書

油症患者のダイオキシン類血中濃度と健康状態との関連

分担研究者 徳永章二 九州大学・大学院医学研究院・予防医学分野 助手

研究要旨 油症認定患者 297 名の血中 2,3,4,7,8-Penta-chlorinated dibenzofuran (PeCDF) レベルと血清脂質濃度及び皮膚科・眼科症状との関連を調べた。血中 2,3,4,7,8-PeCDF レベルの増加と血清 HDL コレステロール濃度の減少、中性脂肪濃度の増加は統計学的に有意な関連を示した。血中 2,3,4,7,8-PeCDF レベルと最近の化膿傾向、最近の粉瘤再発傾向、黒色面皰、座瘡様皮疹、癬痕化は統計学的に正の有意な関連を示した。これらの関連は、血中 PeCDF などの油症原因物質が、現在でも油症患者の健康状態に影響を与えていることを示唆する。

A. 研究目的

近年、油症研究班の班員らの努力により 5g という少量の血液からダイオキシン類濃度を測定する事が可能となり、多数の油症患者について血中ダイオキシン類濃度のデータが蓄積されてきた。本研究は、これらのデータと全国油症検診のデータを結合させ、油症患者のダイオキシン類濃血中濃度と生化学検査値及び症状との関連を統計学的解析により探る。

B. 研究方法

解析対象者は 2001 年度、'02 年度の全国油症患者追跡検診受診者のうち、血中ダイオキシン類の測定を希望した油症認定患者を対象とした。該当者は'01 年度 78 名、'02 年度 279 名、両年度で 297 名 (60 名は 2 回受診) で、男性 144 名、女性 153 名、受診時の平均年齢は 65 歳 ('01 年度) 及び 64 歳 ('02 年度) で、30~88 歳 (受診時) の範囲であった。

2,3,4,7,8-Penta-chlorinated dibenzofuran (PeCDF) の測定は Iida らの方法によった¹⁾。これらは福岡県保健環境研究所で測定され、同研究所でデータベース化されたものである。血清脂質の解析では同一の検診機関で測定された福岡班と長崎班、そして広島班の 3 班を対象とした。皮膚科・眼科症状の解析では班を限定しなかった。

皮膚科・眼科症状については、性、年齢、肥満度、飲酒・喫煙習慣、血中総 PCB レベルを、総コレステロール、HDL コレステロール、中性脂肪ではそれらに加えて研究班 (福岡+長崎/広島) を統計学的に調整し、共分散分析または多重ロジスティック回帰により血中 2,3,4,7,8-PeCDF レベルとの関連を調べた。一部の対象者は複数回受診したため、回帰解析に当たっては測定値の個人内の関連を考慮した robust な分散推定 (Huber/White/sandwich 法) を採用した²⁻⁴⁾。

血中 2,3,4,7,8-PeCDF レベルの測定値は分布に偏りがあったため、対数変換を行って統計処理を行った。対数変換は解釈の容易さから、常用対数（10 を底とする対数）による変換を採用した。測定値が検出限界未満の場合、検出限界値の 1/2 の値を仮定して解析した。

統計学的検定の有意水準は 0.05 に設定し両側検定を行った。統計解析には統計パッケージソフトの Stata Ver. 8.2 を用いた⁴⁾。

（倫理面への配慮）

血中ダイオキシン類の測定は、本人が希望した者のみを対象とした。生化学調査や健康診断の結果は氏名が特定できない形でデータベース化された。コンピューター内の情報保護には厳重な配慮がなされた。本研究の発表に当たっては統計的に処理された結果のみを示し、内容に個人を特定できる情報が存在しない。

C. 研究結果

【1】患者の PCDF 濃度

表 1 に 2,3,4,7,8-PeCDF などダイオキシン類の各異性体測定値（血中脂肪濃度）の幾何平均値を示した。認定患者の血中 2,3,4,7,8-PeCDF レベルは 2002 年度で幾何平均値 80.6pg/g（脂肪）、最小-最大が 3.1 - 1890 pg/g（脂肪）であった。これは Masuda らによる一般住民のダイオキシン類調査⁵⁾ のデータ（2,3,4,7,8-PeCDF レベルの幾何平均値 7.52 pg/g（脂肪）、最小-最大が 2.2 - 26.0 pg/g（脂肪））に比べると、幾何平均値で約 10 倍、最大値で 70 倍程

度と高い。

【2】要約統計量と有症率

血清脂質濃度の要約統計量、皮膚科・眼科症状の有症率を表 2 に示す。総コレステロール濃度平均値(mg/dL)、HDL コレステロール濃度平均値(mg/dL)は、それぞれ男性 202 と 55, 女性 220 と 61 でどちらも女性の方が高かった。中性脂肪濃度幾何平均値は男性の方が高かった。

皮膚科症状の大部分と眼科症状の眼脂過多の有症率は男女ともに 10%以上であったが男性の色素沈着、女性の座瘡様皮疹、そして、男女の眼脂過多以外の眼科症状は 10%未満で、特に男性の眼瞼浮腫、女性の眼瞼に関わる諸症状の有症率は 2%以下と低かった。

【3】血中 2,3,4,7,8-PCDF レベルと血清脂質濃度、皮膚科・眼科症状との関連

表 3 に血中 2,3,4,7,8-PCDF レベルと血清脂質濃度の関連を示す。血中 2,3,4,7,8-PCDF レベルの増加と HDL コレステロール濃度の減少、中性脂肪濃度の増加は統計学的に有意な関連を示した。総コレステロール濃度との関連は統計学的に有意でなかった。

表 4 に血中 2,3,4,7,8-PCDF レベルと皮膚科・眼科症状との関連を示す。血中 2,3,4,7,8-PCDF レベルの増加と最近の化膿傾向、最近の粉瘤再発傾向、黒色面皰（いずれかの部位）、座瘡様皮疹、癬痕化（いずれかの部位）は統計学的に有意な正の関連を示した。色素沈着（いずれかの部位）、爪変形、そして眼科症状（眼脂過多、眼瞼浮腫、眼瞼結膜色素沈着、眼

眼瞼板嚢胞形成、眼瞼板チーズ様分泌物圧出)は統計学的に有意な関連が見いだされなかった。

D. 考察

今回解析されたデータは油症が発生して30年以上経過して得られたものであるが、血中 2,3,4,7,8-PeCDF レベルは中性脂肪、及び、HDL コレステロールの血清濃度と関連していた。また、皮膚科症状のうち5症状で正の関連が見られた。

油症患者において血中 PCB レベルが中性脂肪レベルなど内科的症状の異常と関連している事は、従来から何回も報告されてきた⁶⁾。しかし、Hirota らは、油症患者における血中 PCB レベルと中性脂肪レベルの正の関連について、血中 PCB 濃度は油症の重篤さを示す代理の指標と解釈すべきではないかと指摘している⁷⁾。すなわち、中性脂肪レベルの異常の大部分は PCB 以外の主要な油症原因物質によって引き起こされていても、その油症原因物質の体内レベルは血中 PCB レベルと関連しているため、現在の血中 PCB レベルと中性脂肪レベルの間に見かけ上の関連が生じたかもしれない。

今回の解析で血中 PCB レベルを統計学的に調整しても血中 2,3,4,7,8-PeCDF レベルと血清中性脂肪濃度に関連が見られた。これまで見られた血中 PCB レベルと中性脂肪濃度の関連は、血中 2,3,4,7,8-PeCDF レベルと中性脂肪濃度の関連の反映であった事が示唆される。血中 2,3,4,7,8-PeCDF レベルが血清 HDL コレス

テロール濃度と負の関連を示したことと考え合わせると、血中 2,3,4,7,8-PeCDF が現在でも内科的症状に影響を与えている可能性がある。

油症患者における血中 2,3,4,7,8-PeCDF 濃度と症状の関連について、これまで心・肺・腎臓関連の症状について報告がなされているが、統計学的に有意な関連を示した症状は見つかっていない⁸⁾。

皮膚科症状の一部は血中 2,3,4,7,8-PeCDF 濃度と統計学的に有意な関連を示した。ただし、それらが現在の 2,3,4,7,8-PeCDF レベルと直接関連しているかは検討の余地がある。例えば「癬痕化」の PeCDF レベルとの関連は過去において高い血中 2,3,4,7,8-PeCDF レベルが長期に残存する症状を引き起こしたためかもしれない。すなわち、「後遺症」となった症状と現在でも体内に残存する PeCDF レベルのため、見かけ上の関連が見られているのかもしれない。

そのような限界はあるものの、今回の結果は、体内のダイオキシン類が油症患者の健康に現在でも継続して影響を及ぼしている可能性を示唆している。今後も油症患者の健康状態とダイオキシン類濃度を注意深く観察する必要がある。

E. 参考文献

- 1) Iida T, Todaka T. Measurement of dioxins in human blood: improvement of analytical method. *Industrial Health*. 2003;41:197-204.

- 2) Williams RL. A note on robust variance estimation for cluster-correlated data. *Biometrics*. 2000;56:645-646.
- 3) Rogers WH. Regression standard errors in clustered samples. *Stata Technical Bulletin*. 1993;13:19-23.
- 4) StataCorp. *Stata Statistical Software: Release 8.0*. College Station, Texas:Stata Press;2003.
- 5) Masuda Y, Haraguchi K, Kono S, Tsuji H, Pöpke O. Concentrations of dioxins and related compounds in the blood of Fukuoka residents. *Chemosphere*. 2005;58:329-344.
- 6) 増田義人, 原口浩一, 黒木広明. 油症患者における PCBs, PCDFs の 30 年間の変遷と症状. *福岡医誌*. 2001;92:149-157.
- 7) Hirota Y, Kataoka K, Tokunaga S, Hirohata T, Shinohara S, Tokiwa H. Association between blood polychlorinated biphenyl concentration and serum triglyceride level in chronic "Yusho" (polychlorinated biphenyl poisoning) patients. *Int Arch Occup Environ Health*. 1993;65:221-225.
- 8) Nakanishi Y, Tokunaga S, Takayama K, Kuwano K on behalf of the Study Group for Yusho. Cardiac, pulmonary and renal function in Yusho patients. *J Dermatol Sci*. (in press)

表1. ダイオキシン類の血中濃度 (pg/g 脂肪)

異性体	2001年度受診の認定患者 (N=78)				2002年度受診の認定患者 (N=279)				
	DL ^a	n ^b	幾何平均 ^c	最小 ^c	最大	n ^b	幾何平均 ^c	最小 ^c	最大
2,3,7,8-TCDD	1	56	1.43	0.5	4.1	230	1.43	0.5	4.4
1,2,3,7,8-PeCDD	1	78	17.5	3.3	53.5	279	9.71	1.5	46.8
1,2,3,4,7,8-HxCDD	2	34	1.80	1.0	7.7	197	2.36	1.0	10.8
1,2,3,6,7,8-HxCDD	2	78	44.1	4.4	230	279	40.8	6.0	291
1,2,3,7,8,9-HxCDD	2	70	3.92	1.0	11.0	250	4.11	1.0	41.0
1,2,3,4,6,7,8-HpCDD	2	78	21.6	5.4	144	279	51.2	10.8	556
OCDD	4	78	514	137	6226	279	739	172	9159
2,3,7,8-TCDF	1	41	1.12	0.5	14.4	189	1.12	0.5	6.3
1,2,3,7,8-PeCDF	1	32	0.84	0.5	4.2	95	0.75	0.5	6.3
2,3,4,7,8-PeCDF	1	78	105.9	6.7	1771	279	80.6	3.1	1890
1,2,3,4,7,8-HxCDF	2	78	30.6	2.0	632	273	20.3	1.0	770
1,2,3,6,7,8-HxCDF	2	77	16.8	1.0	176	278	12.7	1.0	210
2,3,4,6,7,8-HxCDF	2	28	1.45	1.0	6.4	67	1.27	1.0	10.3
1,2,3,7,8,9-HxCDF	2	3	1.03	1.0	2.3	2	1.01	1.0	5.8
1,2,3,4,6,7,8-HpCDF	2	65	3.21	1.0	10.8	186	2.31	1.0	39.8
1,2,3,4,7,8,9-HpCDF	2	0	-	-	-	2	1.01	1.0	3.5
OCDF	4	0	-	-	-	1	2.01	2.0	9.1
3,4,4',5'-TCB(#81)	10	2	5.18	5.0	20.6	14	5.27	5.0	41.0
3,3',4,4'-TCB(#77)	10	27	6.88	5.0	28.5	154	9.17	5.0	46.1
3,3',4,4',5'-PeCB(#126)	10	78	70.0	17.8	320	277	83.4	5.0	561
3,3',4,4',5,5'-HxCB(#169)	10	78	158	31.0	964	279	153	12.7	1131

a 検出限界. b 検出限界以上の検体数. c 検出限界未満の値は検出限界値の 1/2 に置き換えた.

表 2. 血清脂質濃度及び皮膚科・眼科症状 (2回受診時は1回目の値)

血清脂質 [平均(SD)]	男 (N=120)	女 (N=126)
総コレステロール (mg/dL)	202 (36)	220 (34)
HDL コレステロール (mg/dL)	55 (14)	61 (15)
中性脂肪 (mg/dL) *	124 (44-414)	102 (42-243)

* Geometric mean (95% central range)

皮膚科症状 (%)	男 (N=140)	女 (N=145)
最近の化膿傾向	26	19
最近の粉瘤再発傾向	26	25
黒色面皰	25	14
座瘡様皮疹	16	9
瘢痕化	21	14
色素沈着	6	10
爪変形	10	10

眼科症状 (%)	男 (N=140)	女 (N=145)
眼脂過多	26	24
眼瞼浮腫	2	2
眼瞼結膜色素沈着	6	2
眼瞼板嚢胞形成	9	1
眼瞼板チーズ様分泌物圧出	4	2

表3. 血中2,3,4,7,8-PeCDFレベル10倍増加に伴う血清脂質各濃度の変化

	変化量	(95% CI)
総コレステロール (mg/dL)	1.0	(-9.0~11.0)
HDL コレステロール (mg/dL)	-5.8	(-9.7~-1.9)
中性脂肪 (増加%)	20.1	(5.8~36.3)

表4. 血中2,3,4,7,8-PeCDFレベル10倍増加に伴う皮膚科・眼科症状のオッズ比

皮膚科症状	OR	(95% CI)
最近の化膿傾向	1.87	(1.01~3.46)
最近の粉瘤再発傾向	2.65	(1.38~5.08)
黒色面皰	1.94	(1.00~3.75)
座瘡様皮疹	2.72	(1.27~5.81)
癬痕化	2.34	(1.17~4.65)
色素沈着	0.70	(0.25~1.99)
爪変形	0.99	(0.45~2.20)
眼科症状		
眼脂過多	0.90	(0.52~1.56)
眼瞼浮腫	0.64	(0.20~2.01)
眼瞼結膜色素沈着	0.93	(0.33~2.64)
眼瞼板嚢胞形成	1.02	(0.35~2.95)
眼瞼板チーズ様分泌物圧出	1.04	(0.12~8.72)

分担研究報告書

熱媒体の人体影響とその治療法等に関する研究 —油症一斉検診の全国集計結果及び油症患者データベースの構築—

分担研究者	片岡 恭一郎	福岡県保健環境研究所	管理部情報管理課	課長
研究協力者	小野塚 大介	福岡県保健環境研究所	管理部情報管理課	技師
研究協力者	高尾 佳子	福岡県保健環境研究所	管理部情報管理課	技師
研究協力者	高山 浩樹	福岡県保健環境研究所	管理部情報管理課	

研究要旨 当研究班では、検診受診者の検診電子データの維持管理及び「全国油症検診集計結果」報告書作成を継続的に実施している。2004年度のデータベースには1986年度から2003年度検診までの検診受診者1077人が登録された。2002年度の全国油症検診集計結果、内科の自覚所見の多くが約60%の有所見率を示した。一方、皮膚科、眼科、歯科等の油症特有の臨床所見は大部分が2%~10%程度であった。

A. 研究目的

1985年度に全国油症治療研究班長（当時倉恒匡徳中村学園大学長）の命により、全国統一検診票が作成されたことに伴い、患者集団の健康度を把握するとともに、患者個人の健康管理に資するために、それまで各検診実施担当県のみファイルされていた検診票を1986年度の統一検診票からは当研究班において、コンピュータを用いて一元管理することになった。

当研究班では、患者の検診磁気データの維持管理及び各年度の検診データをもとにした「全国油症検診集計結果」報告書作成を継続して行うとともに患者集団の臨床所見や血液データの変化を明らかにすることを目的としている。

今年度は(1)2003年度全国油症一斉検診データの確定化、(2)2002年度全国油症検診集計結果の報告、(3)油症患者追跡検診データベースの構築を行った。

B. 研究方法

(1)2003年度全国油症一斉検診データの確定化

全国11の追跡班が毎年度実施する油症一斉検診の検診票は福岡県の油症追跡班事務局を経て当所に検診票の写しと磁気テープが届けられる。今年度は2003年度の検診票の写しと磁気テープデータとの照合を行い、確定データとして保存した。また、登録されたデータに対しても、認定、未認定のチェック等を実施した。

(2)2002年度全国油症検診集計結果の報告

前年度に確定されたデータを基に、内科28、皮膚科21、眼科5、歯科21血液・尿・生化学検査39項目についてNECの汎用コンピュータを用いて検診データの集計を行った。

(3)油症患者追跡検診データベースの構築

データベースの機能追加を検討した。

(倫理面への配慮)

この研究においては直接的な倫理面の配慮の必要性はないと考えられるが、個人情報保護については配慮している。すなわち、検診票類、磁気テープはキャビネットに保管し施錠するなど、個人情報漏洩しないように配慮している。

当該データの使用に当たっては主任研究者の同意を得るようにしている。また、当所の職員は地方自治体の職員であり、地方公務員法第34条により守秘義務がかけられている。

C. 研究結果及び考察

(1) 2003年度全国油症一斉検診データの確定化

表1に2003年度の追跡班・認定区分別の受診者数を示す。2003年度の受診者は359人で前年度の393人に比べ34人減少した。その内訳は認定群、未認定群ともそれぞれ17人の減少だった。2001年度から血液中ダイオキシン類の測定が開始され、2002年度は受診者が2001年度に比べ3.4倍増加したが、2003年度はそのような傾向は認められなかった。

追跡班別では福岡県の受診者が最も多く137人(前年度-5人)、次いで長崎県の111人(前年度-15人)、広島県の57人(前年度-1人)だった。関東以北及び大阪府では前年度の受診者がそれぞれ19人及び21人だったが、2003年度は11人及び19人と減少した。

表2に年齢階級・認定区分別の受診者数を示す。認定群では70歳代が111人と最も多く、認定群全体の39.1%を占めている。次いで60歳代72人の25.4%だった。未認定群では60歳代の17人、50歳代の16人がそれぞれ未認定群全体の

22.7%、21.3%を占めている。また、未認定群では認定群よりも若年層の受診者が多い傾向にあり、中毒物質を直接摂食する可能性の低い1968年2月7日以降の出生者(35歳以下)で、検診を受診した者は認定群で2人、未認定群で18人だった。

これら359人の入力データと検診票とのチェック後、エラー等の修正作業を経てデータベースに追加登録した。2003年度の新規登録者は前年度の80人から34人に減少した。追跡班別の内訳は関東以北4人、大阪府2人、広島県1人、高知県1人、福岡県21人、長崎県5人だった。したがって、前年度検診までの登録者1043人に2003年度新規登録者34人を加えた1077人の検診データがデータベースに登録された。

また、表3に示すように2003年度の検診受診者のうちダイオキシン類(Lipid base)の測定を希望した343人についてデータを追加した。

2003年度確定版油症患者データベースのCD-ROMを11追跡班に配布した。

(2) 2002年度全国油症検診集計結果

2002年度の検診受診者は認定患者300人、未認定患者93人の計393人だった。年齢の内訳は70歳代が最も多く118人(全体の30%)、次いで60歳代の107人(27%)、50歳代の71人(18%)の順であった。

図1から図3に2002年度(認定群300人)と前年度(認定群235人)の検診受診者の科別有所見率を示す。内科所見では関節痛、しびれ感、全身倦怠感の訴えが多く約60%を示した。一方、他覚所見の有所見率は肝胆脾エコーの40%を除くといずれも20%弱だった。皮膚科所見では顔

面の黒色面皰や癬痕化の所見では10%程度であったが、そのほかの皮膚所見では10%未満であった。眼科所見では眼脂過多の訴えが28%と多いほかは5%以下の所見だった。歯科所見の色素沈着所見では歯肉の有所見が15%程度、頬粘膜が9%程度であり、口腔所見の訴えは認められなかった。

いずれの所見でも受診者の加齢に伴う自覚所見が多く見られており、油症特有の臨床所見は少なかった。

図4及び図5に検診年度別受診者（認定群）の血液中PCB濃度の幾何平均値及び血液中PCQ濃度の幾何平均値を示す。血液中PCB濃度は近年、男は3ppb前後、女は2～2.5ppbで推移していたが、2002年度は男が1.9ppb、女が2.4ppbで減少傾向を示している。

血液中PCQ濃度は近年、男女とも0.2ppb～0.4ppbの範囲内で推移している。

詳細な臨床所見及び生化学検査等の結果については2004年度全国油症治療研究班会議において資料として配付した。

(3) 油症患者追跡検診データベースの構築

今年度実施したデータベースの構築については以下の通りである。

- ・ 検診受診者の地理的分布把握のために詳細住所を入力した。また、婦人科票をデータベース化するための入力フォーマットについて検討した。

表1 2003年度検診受診者数，追跡班・認定区分別

追跡班	認定			未認定			総数		
	2003年度	前年度	差	2003年度	前年度	差	2003年度	前年度	差
	a	b	a-b	a	b	a-b	a	b	a-b
千葉県	2	2	-	2	1	1	4	3	1
関東以北	6	8	-2	5	11	-6	11	19	-8
愛知県	1	2	-1	-	-	-	1	2	-1
大阪府	16	18	-2	3	3	-	19	21	-2
島根県	3	4	-1	-	-	-	3	4	-1
広島県	44	43	1	13	15	-2	57	58	-1
山口県	3	4	-1	-	1	-1	3	5	-2
高知県	8	8	-	1	1	-	9	9	-
福岡県	113	118	-5	24	24	-	137	142	-5
長崎県	83	89	-6	28	37	-9	111	126	-15
鹿児島県	4	4	-	-	-	-	4	4	-
総数	283	300	-17	76	93	-17	359	393	-34

表2 2003年度検診受診者数，年齢階級・認定区分別

年齢階級	認定		未認定		総数	
	人	%	人	%	人	%
0～9歳	-	0.0	1	1.3	1	0.3
10～19歳	-	0.0	7	9.3	7	1.9
20～29歳	-	0.0	3	4.0	3	0.8
30～39歳	9	3.2	9	12.0	18	5.0
40～49歳	21	7.4	9	12.0	30	8.4
50～59歳	46	16.2	16	21.3	62	17.3
60～69歳	72	25.4	17	22.7	89	24.8
70～79歳	111	39.1	11	14.7	122	34.0
80～89歳	25	8.8	2	2.7	27	7.5
総数	284	100.0	75	100.0	359	100.0

表3 2003年度ダイオキシン類測定者数，追跡班・認定区分別

追跡班	認定		未認定		総数	
	2003年度	前年度	2003年度	前年度	2003年度	前年度
千葉県	2	2	-	1	2	3
関東以北	6	8	6	11	12	19
愛知県	1	2	-	-	1	2
大阪府	16	18	3	3	19	21
島根県	3	4	-	-	3	4
広島県	44	42	13	15	57	57
山口県	3	4	-	1	3	5
高知県	8	8	1	1	9	9
福岡県	110	112	24	24	134	136
長崎県	74	78	27	36	101	114
鹿児島県	2	1	-	-	2	1
総数	269	279	74	92	343	371

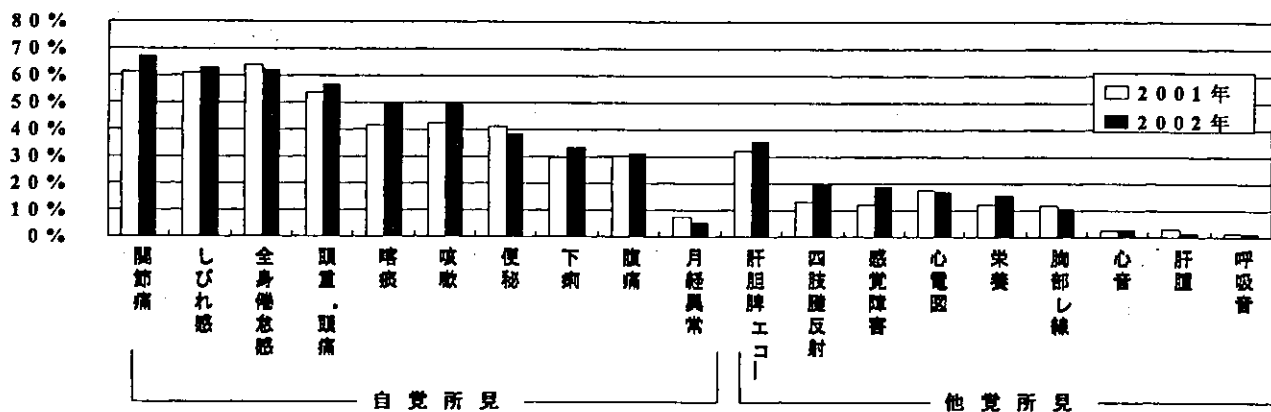


図1 検診年度別受診者（認定群）の有所見率<内科検診>

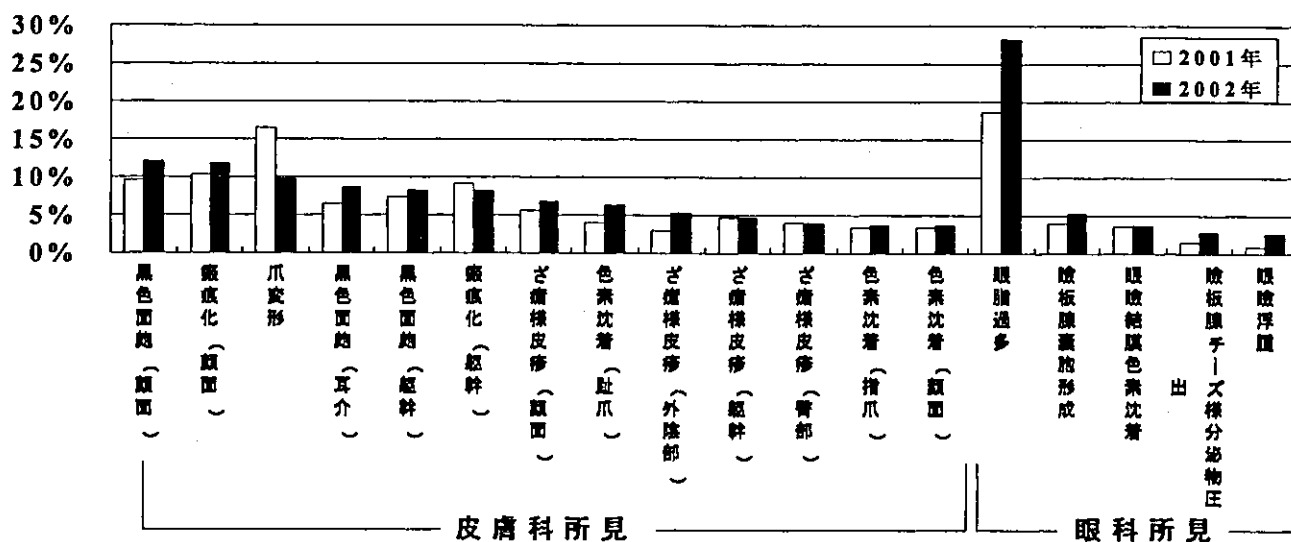


図2 検診年度別受診者（認定群）の有所見率<皮膚科・眼科検診>

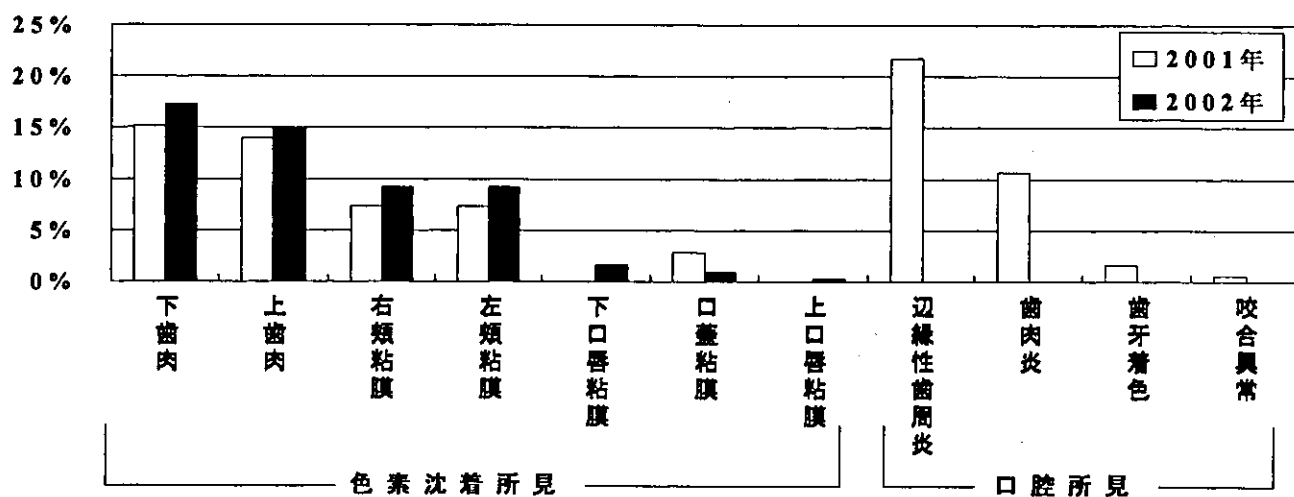


図3 検診年度別受診者（認定群）の有所見率<歯科検診>

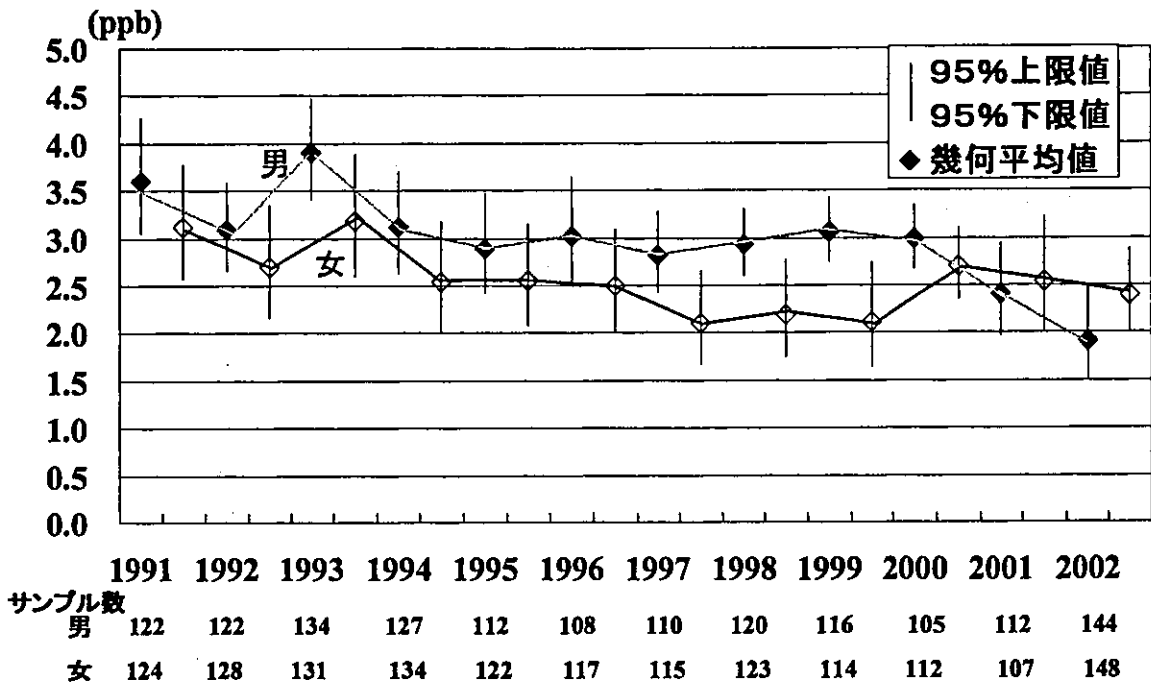


図4 検診年度別受診者（認定群）の血中PCB濃度

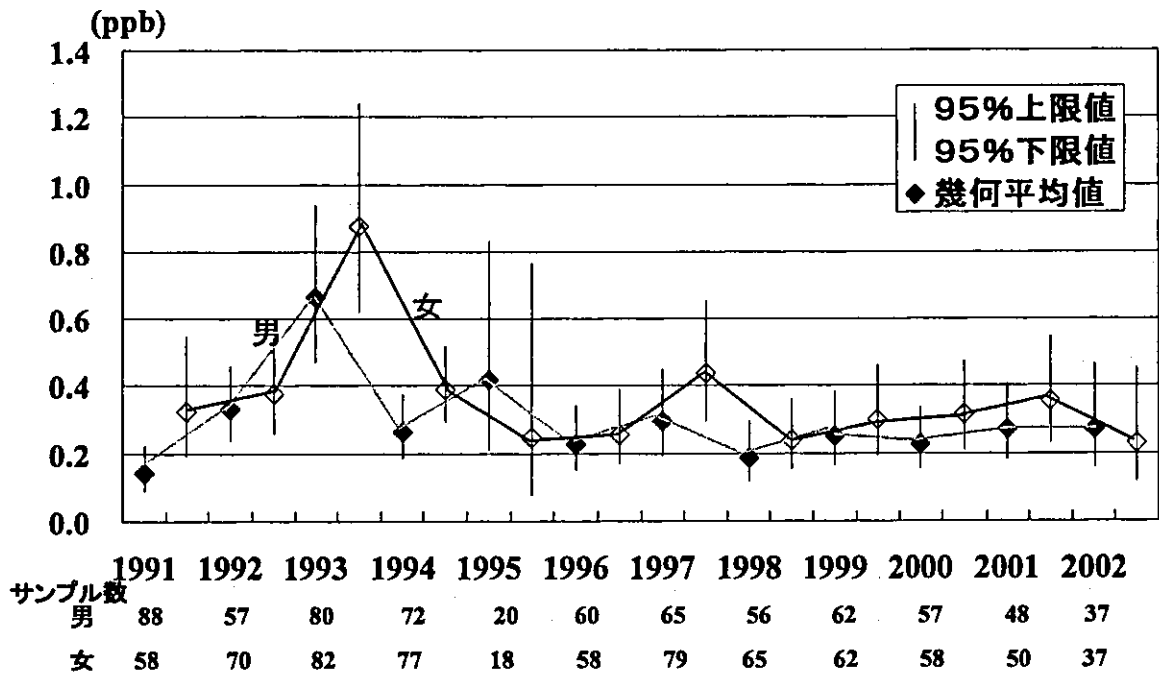


図5 検診年度別受診者（認定群）の血中PCQ濃度

分担研究報告書

油症患者および健常人体内の PCDF 類実態調査

分担研究者	飯田隆雄	福岡県保健環境研究所	保健科学部長
研究協力者	中川礼子	福岡県保健環境研究所	生活化学課長
	片岡恭一郎		情報管理課長
	松枝隆彦		専門研究員
	平川博仙		専門研究員
	堀 就英		研究員
	飛石和大		主任技師
	芦塚由紀		主任技師
	小野塚大介		主任技師
	戸高 尊	厚生労働省	リサーチレジデント

研究要旨 血中ダイオキシン分析のため最新の技術と機器を導入して、血液 5g からダイオキシン類濃度を正確に測定できる分析法を確立した。この方法を用いて、油症患者血中ダイオキシン類全国調査（平成 14 年度 371 件および 15 年度 343 件）を行った。内部精度管理としてダイオキシン分析の 1 ロット（22 件）につきコントロール血清とブランク試験各 1 件を行った。さらに、外部精度管理として、5 件の同一血液について外部 2 分析機関とクロスチェックを行った。平成 16 年度全国調査（320 件）および対照群 128 名の検体を測定中である。

A. 研究目的

油症は 1968 年に起こったダイオキシン類による日本で唯一の食中毒事件である。事件発生当時、約 14,000 人が被害を届け出た。一方、1984 年までに 1860 人が油症患者として認定され、そのうち 1,500 人程度が生存されており福岡県をはじめ関東以西の各都府県に居住している。治療と追跡調査のため全国で油症一斉検診が毎年行われ、400 人近くの患者が受診している。油症の治療及び研究には患者体内に残留する油症

の主要な原因毒物である PCDF をはじめとするダイオキシン類を正確に把握し追跡調査することが重要である。既に血中ダイオキシン類濃度が体内残留量を反映することは明らかにされている。また、油症診断基準に患者血中 PCDFs 濃度を取り入れて見直すという国の方針に対応するためヒト血中に極微量存在するダイオキシン類の迅速・精密分析法の開発と実施体制の構築が必要となった。これまで、その正確な測定にはかなり多量の血液試料（50-100ml）

が必要であった。事件以来 35 年を経過しほとんどの患者は高齢化しており、このような多量の血液を採取することは高齢の患者にとって大きな負担である。われわれはほとんどの患者から採血可能な 5-10ml の血液からダイオキシン類を正確に測定するため、抽出、クリーンアップ、高感度測定の一連の分析システムを構築した。

B. 研究方法

1. 超高感度迅速分析法の確立と分析体制の構築

少量の血液試料から正確なダイオキシン類測定が出来る超高感度分析法確立と分析体制を構築するため、抽出、精製、及び検出測定の分析操作全般にわたって最新の機器と技術を導入し、さらに、様々な工夫を行った。一方、試料の少量化に伴って、分析操作中に混入してくる妨害物質が相対的に大きなブランク値を与え、定量限界値が高くなる。このブランク値を最小限に抑えるため様々な実験環境整備を行った。さらに、ブランク補正をするため分析 22 件につき操作ブランク試験 1 件の分析を行った。

2. 精度管理・クロスチェック

血中ダイオキシン濃度を油症診断基準として使用するためには測定データの正確さを保証するため、精度管理を行なった。

2. 1 外部精度管理として血液 5 件について外部 2 分析機関とクロスチェックを行った。

2. 2 厚生労働科学研究班の血中ダイ

オキシン類クロスチェックに参加した。

2. 3 内部精度管理として分析 22 件につきコントロール血清 1 件の分析を行った。

3. 分析の迅速化

患者血中ダイオキシン類全国調査に対応するため、抽出、濃縮、器具洗浄等に自動化機器を導入し、また、操作の省略を行なった。

4. 血中ダイオキシン類調査

平成 13 年度は福岡県の油症検診受診者 81 名について血中ダイオキシン類を追跡調査した。更に、全国の油症患者血中ダイオキシン類追跡調査に対応するため分析方法の改良と分析体制の一層の整備を行い、平成 14 年度 371 名、平成 15 年度 343 名の油症検診受診者について血中ダイオキシン類調査を実施した。

C. 結果及び考察

1. 超高感度迅速分析法の確立と分析体制の構築

血中ダイオキシン類の検出感度を高感度化するため、血液から抽出精製された最終検液の大部分を GC/MS に注入する SGE 社の SCLV injection system を用いた。SCLV 注入装置はプレカラムと分析カラムからなり、プレカラムで溶媒及びマトリックス成分の大部分を目的成分から分離して GC/MS の系外に排出し、目的成分を冷却された分析カラムの先端にトラップし、その後、昇温することにより分析カラムに導入する。そのため、分析カラムと MS への負荷が非常に小さくなる。分析カラムは

内径 0.15mm、長さ 30m というカラム内径が小さく、膜厚が薄く、比較的短いカラムを使用することができるので、極めてシャープなピークと良好な分離及び低いノイズレベルを実現できる。その結果、10fg で S/N=20 から 30 の測定が可能である。SCLV 注入装置の使用によって血液 5g 中のダイオキシン類を検出できる感度が得られるようになった。

一方、高感度分析に伴って、ブランクが大きな問題となってくる。定量精度を保つためには、ブランク値は定量下限値の 1/10 以下にすることが望ましい。厚生労働省血中ダイオキシン類暫定分析法（暫定分析法）の定量下限値に準拠すると、血液 5g 中の 4-5CDD/DF、6-7CDD/DF、OCDD/DF および Co-PCB の定量下限値の絶対量は 15fg、30fg、60fg および 150fg となる。研究方法の項で述べたように可能な限りのブランクの低減化対策を行ったとき、10 回連続のブランク試験結果（平均値）と暫定分析法の定量下限値との比較を図 1 に示す。図 1 から分かるように、PCB#169 での 1.6% から OCDD での 152% と大きく変動した。OCDD はヒト血中濃度が高いのでブランク値はさほど問題にならない。多くは 30% 以下であったが、1, 2, 3, 7, 8-PeCDD (50%)、1, 2, 3, 4, 6, 7, 8-HpCDD (52%)、2, 3, 7, 8-TCDF (75%)、1, 2, 3, 7, 8-PeCDF (77%)、2, 3, 4, 7, 8-PeCDF (63%)、PCB#77 (48%) はブランク値が定量下限値の 50% 以上となっており、分析ロットごとにブランク試験を行い、ブランク補正

を行った。ブランクの低減化についてはなお検討が必要である。

2. 精度管理・クロスチェック

2. 1 外部精度管理：図 2 及び 3 に血液試料 5 検体についての実験室内および実験室間再現性試験結果を示す。これらの図から分かるように TEQ 値では、実験室内および実験室間とも比較的良い一致が見られた。

2. 2 厚生労働科学研究班クロスチェック：血清を対象にした精度管理では脂質量が他の分析機関と比べて 1/2 程度と低い値であった。これは ASE 抽出に起因すると考えられるがその理由は不明である。血清の場合、脂質含量の測定は他の方法で別途行わなければならない。血清重量あたりの値は他機関とほぼ良好な一致を見た。

2. 3 コントロール血清の分析

同一ロットの分析に対してコントロール血清（コンセーラ L）5g を分析した。表 1 に 10 回のコントロール分析における内標準物質の添加回収率を示す。この表から回収率は 58% から 116% で「暫定分析法」が望ましい回収率としている「50% から 120%」の範囲内であった。また、表 2 にコントロール分析におけるダイオキシン類実測値を示す。変動係数は 10% 以下の良好な結果であった。

3. 分析操作の迅速化

ダイオキシン類の高感度分析法の開発により血液試料量を 5g に少量化することが可能になったため、検体処理の機械化・自動化機器の導入、操作の簡略化、カラム等の小型化が実現され、著しい省力効果が得られた。まず、血

液試料を凍結乾燥した後に ASE 抽出することによって、抽出液を分液ロート中で水洗し、無水硫酸ナトリウムで乾燥する一連の洗浄脱水操作を省略することができた。硝酸銀シリカゲルカラムと活性炭カラムを直結することによって、硝酸銀カラムからの溶出液を濃縮し、活性炭カラムに移すという 2 段階の操作を 1 つのカラム操作に省略することができた。抽出液の少量化により精製操作中の溶媒濃縮操作はすべて多検体溶媒濃縮装置を使用することが可能になった。この装置は 12 件体を同時に一定量まで自動的に濃縮することができるので、省力化と迅速化が同時に実現できた。さらに、少量の溶媒を残して濃縮を止めることができるので、濃縮操作中のダイオキシン類の損失を防ぎ、高い回収率を保つことができた。血液試料の少量化、操作の機械化に伴って、抽出及びクリーンアップに使用する試薬や溶媒の量も削減できた。これらの機械化と省力効果により 1 日に 5 件程度の分析ができるようになった。さらに、使用ガラス器具を洗剤で洗浄後、ダイオキシンフリーオーブンで加熱処理することにより、バックグラウンドの汚染が確実に低減し、器具洗浄が簡略化された。

4. 血中ダイオキシン類の分析

表 3 に平成 13 年から 15 年までに実施した油症患者血中ダイオキシン類濃度の追跡調査結果を示す。また参考として、福岡県で実施した一般人の血中ダイオキシン類濃度も示した。この表から分かるように油症患者では一般人

と比べて、2,3,4,7,8-PeCDF、1,2,3,4,7,8-HxCDF および 1,2,3,6,7,8-HxCDF の 3 つの PCDF 同族体が特に高い。また、2,3,4,7,8-PeCDF の最大値は 3 年間を通して同一の患者であるが、1,771、1,890 及び 1,953 pg/g lipid と、ほぼ、一定の値であった。

D. まとめ

血液 5 g からダイオキシン類を迅速かつ正確に測定できる分析方法を確立した^{1,2)}。これは大量の再現性の高いデータを必要とするヒト汚染実態調査である油症のデータベース構築に対応したものである。また、血中ダイオキシン濃度を加えた改訂油症診断基準による未認定者の診断にも対応するものである。

本分析法を用いて、平成 13 年度に福岡県の油症患者 78 名の血中ダイオキシン類分析を試験的に行った。この分析法を更に改良して迅速化し、平成 14 年度 (371 名)、15 年度 (343 名) の油症検診受診者の血中ダイオキシン類調査を全国的に実施した^{3,4)}。対照群との厳密な比較を行なうため、患者の年齢に一致させた 60-70 代の一般人 128 名の調査を行なっている。また、16 年の油症検診受診者 (320 名) は分析実施中である。

E. 参考文献

1. T. Todaka, H. Hirakawa, K. Tobiishi, T. Iida: New protocol for dioxin analysis of blood. Fukuoka Acta. Med. 2003, 94, 148-157.

2. T. Iida, T. Todaka: Measurement of dioxin in human blood: Improvement of analytical method. *Industrial Health* 2003, 41, 197-204.

3. 飯田隆雄, 戸高 尊, 平川博仙, 飛石和大, 松枝隆彦, 堀 就英, 中川礼子: 油症患者血中ダイオキシン類レベルの追跡調査 (2001年). *福岡学雑誌*. 2003, 94, 148-157.

4. T. Iida, H. Hirakawa, T. Hori, T. Matsueda, K. Tobiishi, R. Nakagawa,

T. Todaka: Follow-up survey of Dioxins and Related Chemicals in the Blood of Yusho Patients in 2002. 24th International Symposium on Halogenated Environmental Organic Pollutants and POPs (Dioxin 2004). September 6-10, 2004, Berlin Germany

表1 コントロール血清中PCDDs、PCDFs及びノンオルソコプラナーPCB分析値の再現性

Congeners	濃度 (pg/g lipid)									
	Week									
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
2,3,7,8-TCDD	1.9	2.0	1.7	1.6	2.0	1.9	1.7	1.9	1.8	1.9
1,2,3,7,8-PeCDD	5.8	6.2	6.7	6.8	6.1	6.4	7.1	7.4	7.3	6.7
1,2,3,4,7,8-HxCDD	7.9	7.9	7.3	7.1	8.1	6.9	8.3	8.0	7.6	6.5
1,2,3,6,7,8-HxCDD	58.4	51.9	57.6	57.9	60.9	57.5	59.5	56.2	54.1	57.0
1,2,3,7,8,9-HxCDD	10.9	9.4	9.1	8.9	10.1	8.5	9.8	9.4	8.8	9.4
1,2,3,4,6,7,8-HeCDD	152.0	151.3	144.5	155.6	142.9	142.7	136.8	132.8	124.2	134.7
OCDD	1804.8	1783.8	1817.8	1785.1	1761.9	1804.8	1852.9	1843.5	1640.5	1887.6
2,3,7,8-TCDF	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	1.2	ND
1,2,3,7,8-PeCDF	1.1	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
2,3,4,7,8-PeCDF	6.0	6.1	5.6	5.1	7.1	6.1	6.1	6.6	5.7	6.2
1,2,3,4,7,8-HxCDF	7.5	7.1	7.2	7.0	7.7	6.4	7.9	7.3	7.7	7.6
1,2,3,6,7,8-HxCDF	7.5	6.6	7.4	7.9	7.7	7.2	7.9	8.2	7.5	7.5
2,3,4,6,7,8-HxCDF	2.0	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	2.8
1,2,3,7,8,9-HxCDF	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
1,2,3,4,6,7,8-HeCDF	15.7	16.7	16.6	17.0	18.0	18.3	18.0	15.5	17.7	18.6
1,2,3,4,7,8,9-HeCDF	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
OCDF	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
3,4,4',5'-TCB(81)	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
3,3',4,4'-TCB(77)	54.4	44.9	44.8	46.6	46.1	46.9	47.4	45.5	45.0	47.4
3,3',4,4',5'-PeCB(126)	28.5	24.9	23.9	25.9	25.9	25.4	23.9	23.4	25.6	23.4
3,3',4,4',5,5'-HxCB(169)	23.6	22.4	22.5	23.5	22.9	22.4	24.5	20.2	23.3	22.8
Total PCDD	2041.7	2012.6	2044.6	2023.1	2028.6	2076.1	2059.3	1844.4	2103.9	2061.9
Total PCDF	44.3	42.5	42.8	43.0	43.7	46.2	46.1	43.0	46.8	47.4
Total PCDD/PCDF	2086.0	2055.1	2087.4	2066.1	2072.3	2122.3	2105.3	1887.4	2150.7	2109.3
Total co-planar PCB	111.5	97.3	96.2	101.1	99.9	99.7	100.9	94.1	98.9	98.6
Total	2197.5	2152.3	2183.6	2167.2	2172.2	2222.1	2206.2	1981.6	2249.6	2207.9
Total PCDDs-TEQ	17.1	16.8	17.4	17.6	17.1	18.1	18.2	17.6	17.5	16.3
Total PCDFs-TEQ	5.1	4.9	4.7	4.5	4.9	5.1	5.3	4.9	5.3	5.3
Total PCDDs/PCDFs-TEQ	22.2	21.7	22.1	22.1	22.0	23.2	23.5	22.5	22.7	21.6
Total coplanar PCBs-TEQ	3.1	2.7	2.6	2.8	2.8	2.8	2.6	2.5	2.8	2.6
Total TEQ	25.3	24.4	24.7	24.9	24.9	26.0	26.2	25.1	25.5	24.2
Lipid (%)	0.27	0.28	0.28	0.27	0.27	0.26	0.26	0.29	0.27	0.27

CB: chlorinated biphenyl; CDD: chlorinated dibenzo-p-dioxins; CDF: chlorinated dibenzofurans; Hx: hexa; He: hepta; ND: less than the determination limit; OCDD: octachlorodibenzo-p-dioxin; OCDF: octachlorodibenzofurans; PCB: polychlorinated biphenyl; PCDD: polychlorinated dibenzo-p-dioxin; PCDF: polychlorinated dibenzofuran; Pe: penta; TCB: tetrachlorobiphenyl; TCDD: tetrachlorodibenzo-p-dioxin; TCDF: tetrachlorodibenzofuran; TEQ: toxic equivalent quantity.