

るが、3地域21人および1地域21人の限定されたデータである。我々は、昨年この生体試料バンクの全国8地域の過去の試料を用いて1980年代から1990年代半ばまでのヒトの血清中と食事中PBDEsの時間的、空間的曝露状況を明らかにした<sup>(3)</sup>。

今回、全国横断的に13地域105検体の母乳を用いて、日本全国の母乳中のポリ臭素化ジフェニルエーテル(PBDEs)の現在の蓄積状況を明らかにする。

## B. 研究方法

### B-1 測定検体

厚生労働省化学物質リスク研究事業の日本各地の11人の分担研究者および班友(北海道:河野誠、宮城:上原茂樹、兵庫:清水卓)によって収集された2004年の母乳検体(a)、京都大学で独自に収集した母乳検体(b)、および昨年度当事業研究においてPBDEsの血中濃度の経年変化が著しかった島根県の研究協力者により収集された母乳検体(c)を用いた。(a)は北海道44検体、秋田県131検体、宮城県101検体、東京都50検体、岐阜県25検体、福井県64検体、兵庫県24検体、和歌山県191検体、山口県17検体、高知県155検体、沖縄県50検体のうち、各地域5検体を無作為に選んだ。(b)は京都市内の研究協力病院の母乳外来において、直接面接しながら食生活の聞きとり調査をして収集した136検体から無作為に抽出した30検体であり、(c)は島根県の研究協力保健師に

より収集された27検体から無作為に抽出した20検体である。計105検体、各3mlをポリプロピレン製マイクロピペットチップを用いてポリプロピレン容器に入れ保存し、低温条件下で搬送し測定機関に手渡した(容器・器具はすべてアセトン(液体クロマトグラフ用)で洗浄して用いた)。

### B-2 測定機関

検体の測定は、分担研究者である摂南大学薬学部 太田助教授に依頼した。測定方法の詳細については、太田助教授の分担研究報告書に詳細に述べられているので、ここでは割愛する。

### B-3 測定物質

PBDEsの異性体として、TriBDE#28、TetraBDE#47、PentaBDE#99、PentaBDE#100、HexaBDE#153、HexaBDE#154を測定した。検出できなかった試料に関しては検出限界の1/2の値を用いて解析を行なった。

### B-4 ヒト曝露状況の分析

日本全国13地域105検体の異性体の濃度の和( $\Sigma$ PBDE)を求めGeometric mean(GM)、Geometric standard deviation(GSD)を求めた。各国の報告<sup>(4-7)</sup>との比較を行った。地域別に、GM(GSD)、median、Quartile25、Quartile75を求め、GMの全国比較を行った。105検体の個人レベルにおいては年齢との相関、職業との関連を分析した。さらに、京都試料30検体については、太田らの報告<sup>(2)</sup>にある食生活(摂取する魚の種類)と $\Sigma$ PBDEとの関連を分析した。

### B-5 研究倫理

この研究は、京都大学大学院医学研究科・医学部医の倫理委員会の承認を得て実施した。また、研究期間中、当リスク事業の一環として行った生体バンク試料に関する倫理ワークショップにおいても、国民に正確なデータを提供することが研究倫理において最も肝要なことであるとのコンセンサスを得た。検体は連結不可能匿名化されており、居住地、年齢が記入されている。職業記入に関しては、任意とした。

## C. 研究結果

### C-1 $\Sigma$ PBDE

105 検体の  $\Sigma$ PBDE の度数分布は対数正規分布を示した (Figure 1)。105 検体の濃度の範囲は 0.11-22.79 ng/g lipid であり、Geometric mean は 1.36 ng/g lipid (median 1.28 ng/g lipid)、GSD 2.95 であった。

### C-2 世界比較

Figure 2 に各国の報告<sup>(4-7)</sup>にある  $\Sigma$ PBDE の平均値の比較を示す (幾何平均で比較できるデータがなかったので算術平均のデータを比較した)。USA (2002 年) は 47 検体の平均値 (29.20 ng/g lipid)、Canada (2001 年) は 20 検体の平均値 (22.20 ng/g lipid)、United Kingdom (2001-2003 年) は 54 検体の平均値 (8.90 ng/g lipid)、Sweden (1999 年) は 124 検体の平均値 (2.98 ng/g lipid)、Finland (1996 年) は 11 検体の平均値 (1.49 ng/g lipid) である。本研究の日本の 105 検体の平均値 (2.56 ng/g lipid) は

Sweden に匹敵する。

### C-3 全国比較

Table 1、Figure 3 に全国 13 地域間の比較 (Geometric mean) を示す。13 地域間の差は明らかではないが (ANOVA  $p=0.058$ )、北海道・秋田県・岐阜県 (GM (GSD) 3.26 (1.55))、宮城県・沖縄県・山口県 (GM (GSD) 1.81 (1.70))、東京都・京都府・和歌山県 (GM (GSD) 1.33 (1.61))、福井県・兵庫県・島根県・高知県 (GM (GSD) 0.84 (1.42)) の 4 グループ間に差が見られた (ANOVA  $p=0.000$ )。

### C-4 個人差

Figure 4 に示すように個人差を認めた。個人の地域、年齢、職業、 $\Sigma$ PBDE およびその異性体の値を Table 2 に示した。個人の年齢と  $\Sigma$ PBDE との相関は認めなかった ( $p>0.05$ )。職業の記入のあった ( $n=94$  90%) 人のうち、主婦群 ( $n=23$  GM (GSD) 2.13 (1.95))、事務職群 ( $n=39$  GM (GSD) 1.08 (1.42))、看護師群 ( $n=25$  GM (GSD) 1.01 (1.49)) の 3 つの群間に有意差を認めた (ANOVA  $p=0.02$ )。主婦群で最も高かった。

### C-5 異性体

Figure 5 に異性体 (#47、#99、#100、#153、#154) の割合の世界比較を示す。全ての国で Tetra#47 の割合が最も高かったが、5 カ国での異性体の割合に差を認めた (ANOVA  $p=0.02$ )。また日本の異性体の割合はカナダの割合と有意差があった (ANOVA  $p<0.05$ )。

Figure 6 に日本の 13 地域の異性体の GM (GSD) の比較を示す。多くの地域で

はTetraBDE#47が総濃度の上昇に寄与しているが、山口ではPentaBDE#100が最も高かった。

#### C-6 食習慣との関係

京都の30検体で太田らの調査<sup>(2)</sup>で $\Sigma$ PBDEが高値であった魚(アジ、サバ、サケ)をよく摂取する人(n=21 GM(GSD) 1.37 (1.55))とそうでない人(n=9 GM(GSD) 1.23 (2.06))の間に有意差を認めなかった(ANOVA  $p=0.80$ )。

#### D. 考察

難燃剤として種々の家庭内製品に使用されているPBDEsは、生体内に蓄積しやすい<sup>(8)</sup>。哺乳類の研究において胎盤や母乳を通して次世代に伝播され<sup>(9)</sup>甲状腺などの内分泌系の障害や発達神経毒性<sup>(10)</sup>が報告されていることから、ヒト母乳中の濃度は注目されてきた。しかし、血液や尿などの生体試料と異なり、母乳は、妊娠可能な年代にある女性のしかも出産後の一時期だけしか協力を得ることができず、また乳児に与えた後の余った分をいただくため、収集が非常に困難である。そのため、母乳に関する報告は、多くなく、これまでのわが国での曝露量の参考になる報告は阿久津ら<sup>(1)</sup>の3地域21検体と太田ら<sup>(2)</sup>の1地域21人の報

告だけである。

今回、我々は京都大学大学院医学研究科生体試料バンクの16年度に収集された母乳を用いて、日本で初めて全国の母乳中のPBDEsの曝露状況を明らかにした。異性体のTriBDE#28、TeBDE#47、PeBDE#99、PeBDE#100、HxBDE#153、HxBDE#154を測定し、 $\Sigma$ PBDEを世界のレベルや地域間で比較した。これら6異性体だけでは十分でなくまだ使用されているDecaBDE#209なども測定しなければならないが、世界比較はこれら6異性体のうちのいくつかで行われているため、今回はこの6異性体を測定した。全体の平均値をUSAやCanadaと比較するとまだ日本は低いレベルにあるが、阿久津らの報告<sup>(1)</sup>の1999年の3地域(大阪、神奈川、岡山)14人の母乳中の平均値(GM(GSD) 1.25 (1.74) (1検体は非常なはずれ値 291 ng/g lipidのため除いた)、太田らの報告<sup>(2)</sup>の2002年の1地域12人の濃度の平均値(GM(GSD) 1.12 (1.53))からみると、地域の違いはあるものの上昇してきていると考えられる。また、我々の生体試料バンクの試験運用として使用いただいた産業技術総合研究所の東海らの報告(p81-89)を見れば、母乳中のPBDEsの経年的上昇が明らかである。

Figure1 Frequency of  $\Sigma$ PBDE of 105 breast milk samples in Japan in 2004

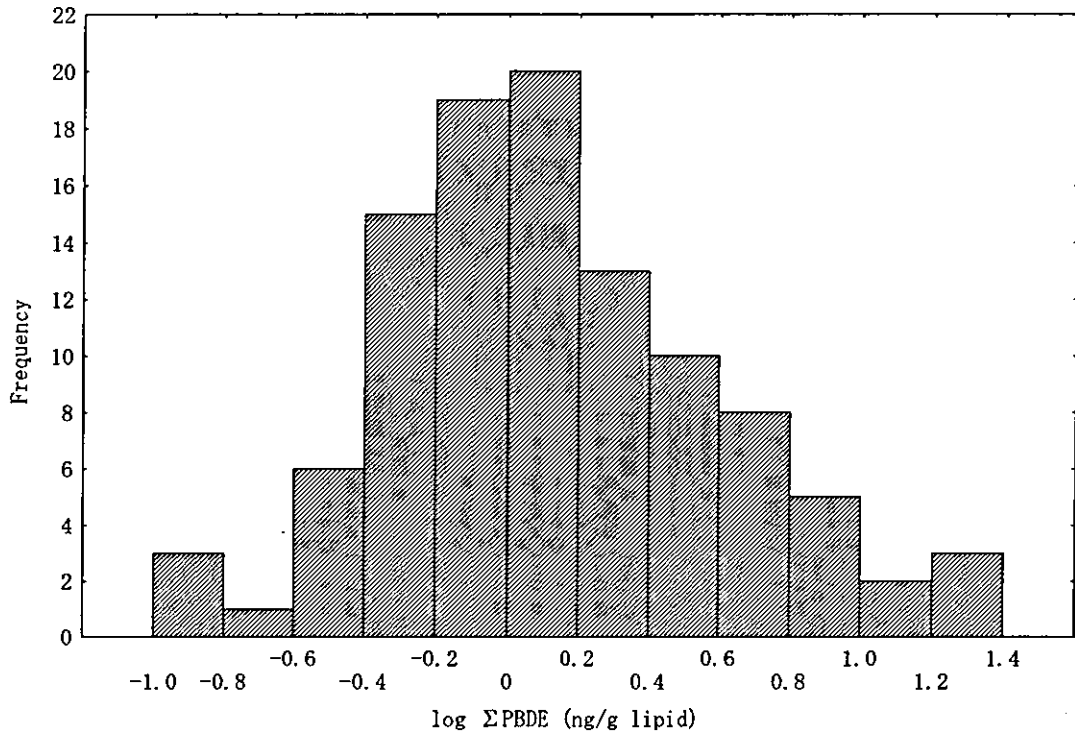


Figure2 Comparison of  $\Sigma$ PBDE in breast milk samples from different countries (Arithmetic mean ng/g lipid)

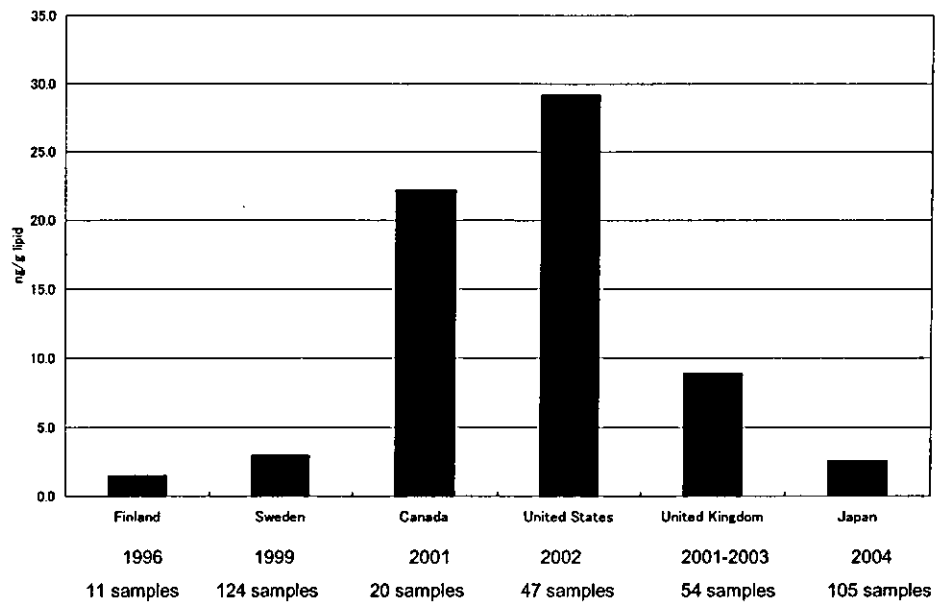


Table 1. PBDEs in Breast milk in 13 regions in Japan in 2004

District	Age mean $\pm$ SD years old	TriBDE #28 GM (GSD) ng/g lipid	TetraBDE #47 GM (GSD) ng/g lipid	PentaBDE #99 GM (GSD) ng/g lipid	PentaBDE #100 GM (GSD) ng/g lipid	HexaBDE #153 GM (GSD) ng/g lipid	HexaBDE #154 GM (GSD) ng/g lipid	Total GM (GSD) ng/g lipid	Total mean $\pm$ SD ng/g lipid	Q25 ng/g lipid	median ng/g lipid	Q75 ng/g lipid
Hokkaido	24.0 $\pm$ 4.7	0.1 (1.97)	1.35 (1.76)	0.09 (7.97)	0.27 (13.47)	0.13 (6.78)	0.03 (4.87)	2.70 (1.71)	3.01 $\pm$ 1.50	1.91	2.74	4.23
Akita	28.8 $\pm$ 7.8	0.02 (6.67)	2.05 (1.89)	1.80 (2.27)	0.02 (17.77)	0.06 (12.20)	0.03 (10.74)	4.50 (2.18)	5.61 $\pm$ 3.81	2.48	5.45	7.45
Miyagi	34.8 $\pm$ 4.2	0.01 (15.26)	1.37 (4.37)	0.05 (20.09)	nd	0.04 (7.60)	0.01 (3.43)	1.79 (4.33)	5.36 $\pm$ 9.75	0.99	1.12	1.35
Tokyo	34.0 $\pm$ 4.7	0.00 (4.03)	0.61 (1.51)	0.40 (2.97)	nd	0.24 (2.49)	0.01 (5.60)	1.35 (2.14)	1.73 $\pm$ 1.42	0.70	1.59	1.60
Gifu	28.8 $\pm$ 6.5	0.05 (1.98)	1.97 (3.32)	0.12 (40.75)	0.01 (6.49)	0.05 (24.92)	0.03 (12.93)	2.86 (4.75)	6.29 $\pm$ 7.09	1.13	2.25	11.68
Fukui	30.0 $\pm$ 4.7	0.02 (6.21)	0.72 (2.29)	0.04 (11.90)	0.01 (3.27)	0.02 (8.82)	nd	1.06 (2.31)	1.32 $\pm$ 0.85	1.12	1.18	1.42
Kyoto	31.6 $\pm$ 4.9	0.02 (5.71)	0.73 (2.69)	0.02 (12.56)	0.01 (12.94)	0.02 (9.12)	0.01 (4.52)	1.33 (2.93)	2.40 $\pm$ 3.71	0.62	1.36	2.62
Hyogo	28.4 $\pm$ 5.7	0.00 (5.70)	0.54 (1.98)	nd	0.03 (11.07)	0.02 (19.20)	0.01 (5.26)	1.03 (2.68)	1.63 $\pm$ 2.00	0.65	0.89	1.06
Wakayama	31.0 $\pm$ 6.6	0.01 (9.38)	0.57 (3.55)	0.09 (26.30)	0.01 (12.32)	0.23 (2.67)	0.01 (7.41)	1.35 (3.80)	2.75 $\pm$ 3.77	0.42	1.70	1.92
Shimane	30.7 $\pm$ 4.5	0.00 (6.20)	0.37 (2.45)	0.06 (11.11)	0.01 (7.65)	0.10 (5.90)	0.01 (5.13)	0.85 (2.48)	1.32 $\pm$ 1.58	0.47	0.68	1.39
Yamaguchi	28.0 $\pm$ 6.3	0.00 (5.16)	0.09 (15.74)	nd	0.19 (46.10)	0.01 (6.63)	nd	1.75 (2.85)	2.66 $\pm$ 2.64	0.70	1.77	3.30
Kouchi	26.0 $\pm$ 3.2	0.01 (5.98)	0.32 (2.03)	0.02 (12.18)	0.02 (10.93)	0.02 (5.35)	nd	0.52 (2.56)	0.67 $\pm$ 0.43	0.45	0.74	0.77
Okinawa	26.8 $\pm$ 8.2	0.02 (6.69)	0.98 (2.17)	0.59 (3.15)	nd	0.07 (14.53)	0.07 (5.02)	1.91 (2.74)	3.05 $\pm$ 3.69	1.21	1.22	2.58
average	30.1 $\pm$ 5.6	0.01 (6.92)	0.65 (3.39)	0.06 (14.13)	0.02 (12.30)	0.05 (8.71)	0.01 (5.50)	1.36 (2.95)	2.56 $\pm$ 3.78			

GM: Geometric mean  
 GSD: Geometric standard deviation  
 Q25: Quartile25  
 Q75: Quartile75

Figure3 Comparison of Geometric mean of  $\Sigma$ PBDE in 13 regions in Japan in 2004

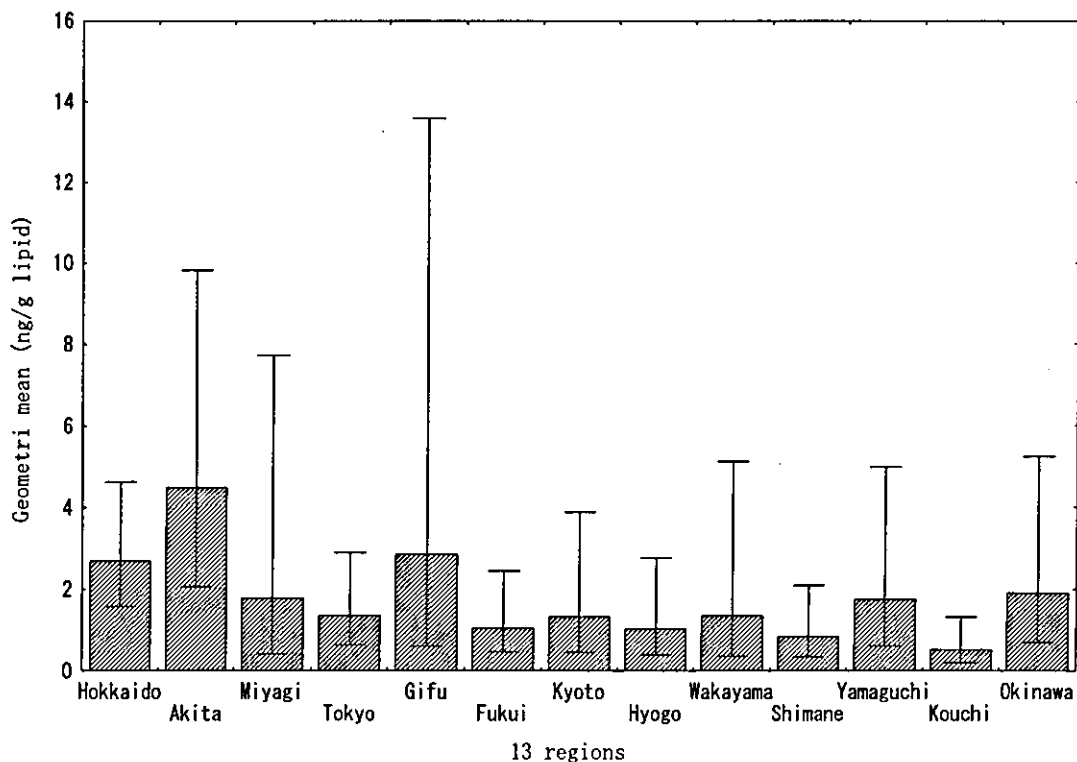


Figure 4

ΣPBDE in Brest milk Samples in 2004 in Japan

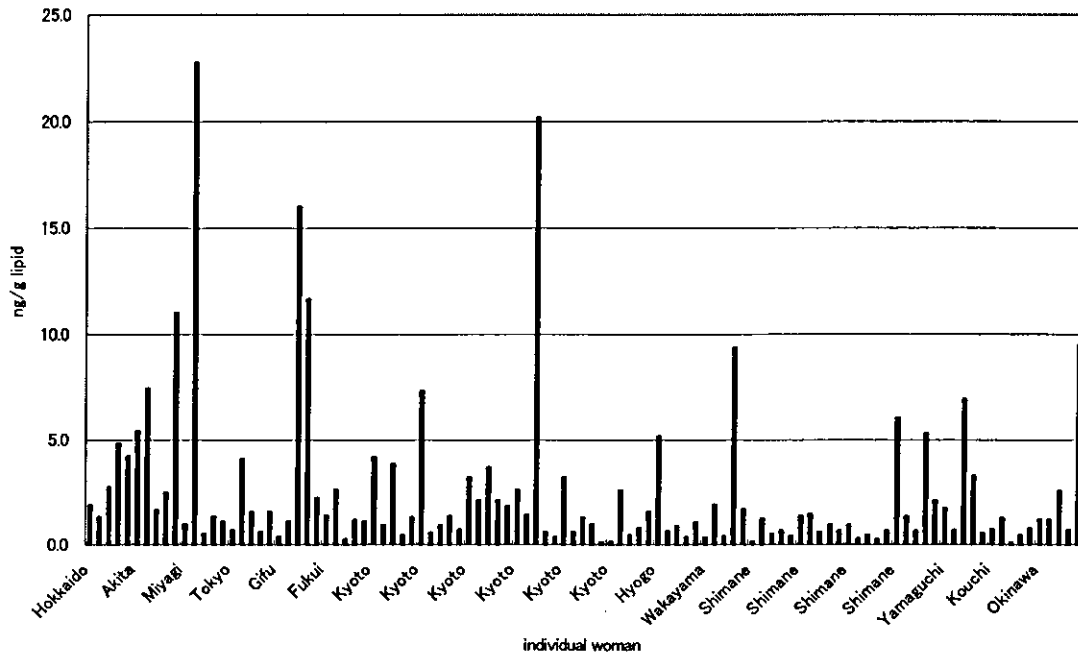


Figure 5

Congener Distributions in breast milk Samples in different countries

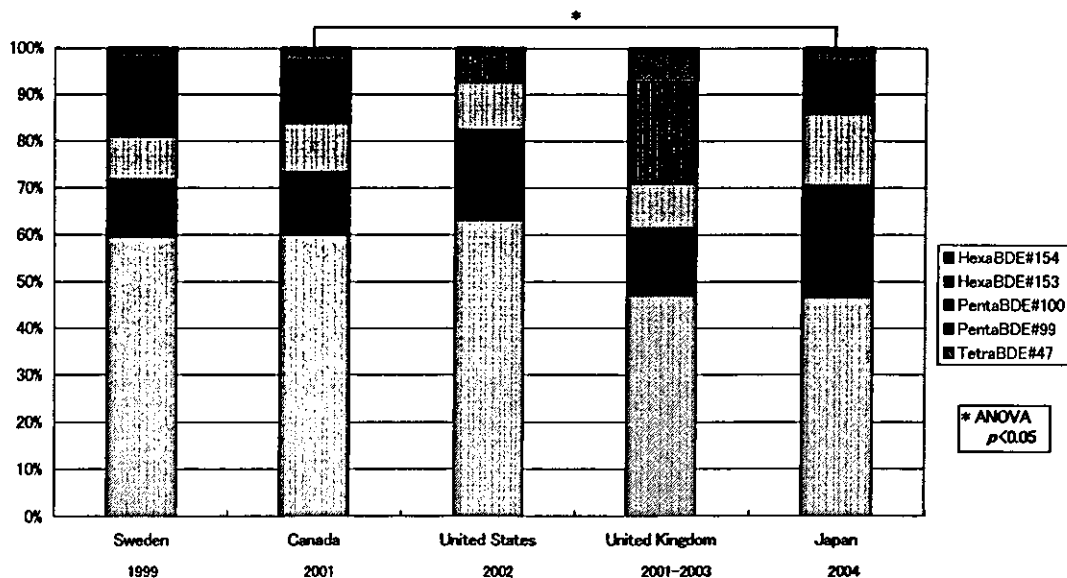


Figure6 Congener pattern of PBDEs in 13 regions in Japan

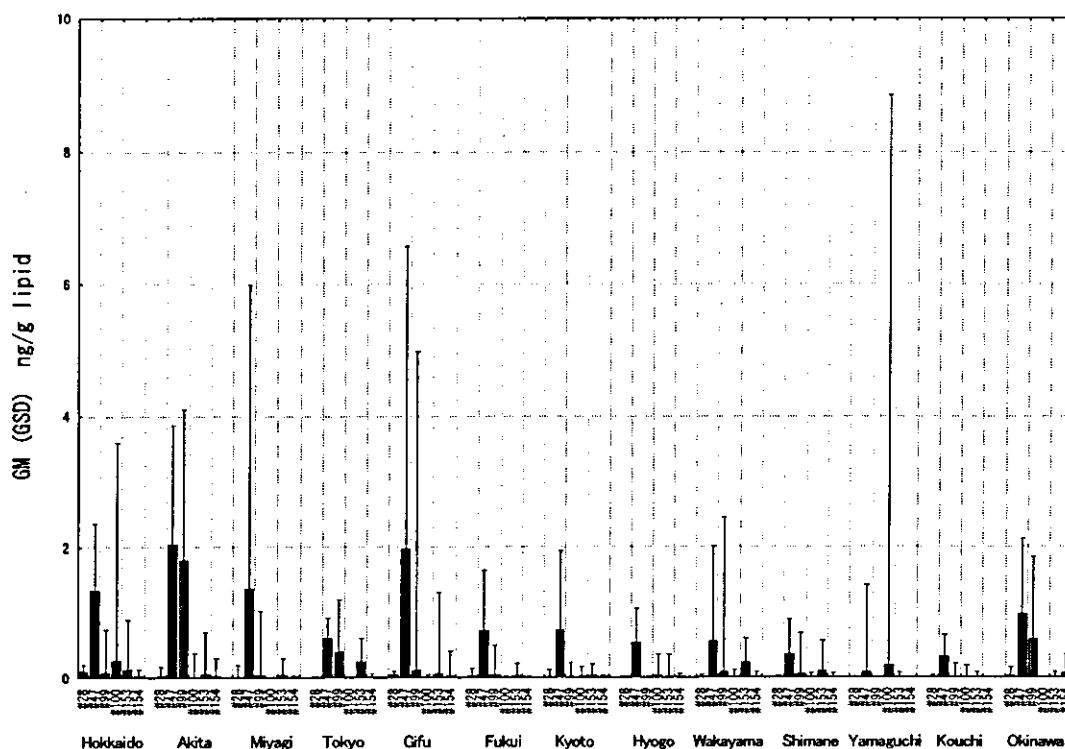


Table 2. PBDEs in Breast milk in individual woman (ng/g lipid)

Number	District	Age	Occupation	TriBDE #28	TetraBDE #47	PentaBDE #99	PentaBDE #100	HexaBDE #153	HexaBDE #154	Total PBDEs
1	Hokkaido	18	Housewife	0.074	0.883	0.134	0.449	0.290	0.081	1.910
2	Hokkaido	21	Housewife	0.060	0.637	0.078	0.395	0.118	0.044	1.333
3	Hokkaido	24	Housewife	0.051	1.643	0.428	0.003	0.470	0.148	2.742
4	Hokkaido	27	Housewife	0.152	2.346	0.518	1.347	0.486	0.005	4.854
5	Hokkaido	30	unknown	0.252	2.057	0.003	1.906	0.005	0.005	4.229
6	Akita	21	unknown	0.001	1.938	1.748	1.750	0.005	0.005	5.447
7	Akita	24	unknown	0.107	3.353	3.045	0.003	0.683	0.260	7.451
8	Akita	25	unknown	0.031	0.962	0.618	0.003	0.045	0.005	1.664
9	Akita	35	Housewife	0.029	1.295	1.145	0.003	0.005	0.005	2.482
10	Akita	39	Housewife	0.098	4.419	5.070	0.092	0.797	0.534	11.010
11	Miyagi	30	Office worker	0.001	0.781	0.003	n.d.	0.200	0.005	0.990
12	Miyagi	32	Housewife	0.706	18.067	4.005	n.d.	0.005	0.005	22.788
13	Miyagi	34	Office worker	0.001	0.440	0.084	n.d.	0.005	0.005	0.534
14	Miyagi	38	Housewife	0.018	0.743	0.115	n.d.	0.393	0.079	1.347
15	Miyagi	40	Housewife	0.028	1.041	0.003	n.d.	0.043	0.005	1.118
16	Tokyo	28	Housewife	0.023	0.410	0.162	n.d.	0.098	0.005	0.898
17	Tokyo	31	Office worker	0.001	0.871	2.284	n.d.	0.726	0.238	4.118
18	Tokyo	34	Housewife	0.001	0.728	0.432	n.d.	0.420	0.005	1.586
19	Tokyo	37	Office worker	0.001	0.371	0.157	n.d.	0.091	0.005	0.625
20	Tokyo	40	Veterinary	0.001	0.858	0.427	n.d.	0.312	0.005	1.601
21	Gifu	21	Housewife	0.022	0.365	0.003	0.003	0.005	0.005	0.403
22	Gifu	25	Housewife	0.034	1.077	0.003	0.003	0.005	0.005	1.127
23	Gifu	28	Housewife	0.139	6.425	6.865	0.196	1.561	0.826	16.012
24	Gifu	32	Housewife	0.052	5.798	3.505	0.003	2.006	0.320	11.684
25	Gifu	38	Housewife	0.058	2.052	0.126	0.003	0.005	0.005	2.247
26	Fukui	24	Office worker	0.048	0.718	0.604	0.042	0.005	n.d.	1.416
27	Fukui	27	Operative	0.039	2.577	0.003	0.003	0.005	n.d.	2.627
28	Fukui	30	Office worker	0.001	0.256	0.003	0.003	0.005	n.d.	0.268
29	Fukui	33	Office worker	0.116	0.588	0.154	0.003	0.320	n.d.	1.180
30	Fukui	36	Office worker	0.028	0.708	0.162	0.003	0.218	n.d.	1.120
31	Kyoto	24	Office worker	0.019	0.264	0.656	3.200	0.054	0.005	4.198
32	Kyoto	24	Office worker	0.027	0.902	0.003	0.003	0.005	0.005	0.945
33	Kyoto	24	Office worker	0.180	2.199	0.734	0.003	0.444	0.301	3.861
34	Kyoto	25	Office worker	0.016	0.345	0.085	0.003	0.005	0.005	0.459
35	Kyoto	25	Office worker	0.001	0.395	0.592	0.003	0.321	0.005	1.317

36	Kyoto	26	Nurse	0.060	0.503	1.238	5.308	0.224	0.005	7.337	
37	Kyoto	26	Office worker	0.049	0.521	0.003	0.003	0.005	0.005	0.586	
38	Kyoto	27	Office worker	0.020	0.896	0.003	0.003	0.005	0.005	0.932	
39	Kyoto	28	Office worker	0.001	0.362	0.003	0.987	0.005	0.005	1.364	
40	Kyoto	29	Office worker	0.028	0.678	0.003	0.003	0.005	0.005	0.722	
41	Kyoto	30	Office worker	0.027	0.408	0.372	2.424	0.005	0.005	3.241	
42	Kyoto	31	Office worker	0.163	1.803	0.162	0.003	0.005	0.005	2.141	
43	Kyoto	31	Office worker	0.204	2.030	0.337	0.034	0.810	0.284	3.700	
44	Kyoto	31	Office worker	0.088	0.969	0.003	0.003	1.074	0.005	2.143	
45	Kyoto	32	Office worker	0.061	0.996	0.065	0.056	0.668	0.005	1.852	
46	Kyoto	33	Office worker	0.043	1.859	0.003	0.049	0.496	0.169	2.620	
47	Kyoto	33	Office worker	0.022	1.406	0.003	0.003	0.005	0.005	1.445	
48	Kyoto	33	Photographer	0.396	8.116	6.540	0.003	3.907	1.235	20.195	
49	Kyoto	34	Researcher	0.035	0.563	0.003	0.003	0.005	0.005	0.613	
50	Kyoto	34	Office worker	0.001	0.357	0.003	0.003	0.005	0.005	0.374	
51	Kyoto	34	Researcher	0.001	0.889	0.003	2.338	0.005	0.005	3.241	
52	Kyoto	34	Office worker	0.024	0.580	0.003	0.003	0.005	0.005	0.620	
53	Kyoto	35	unknown	0.057	1.233	0.003	0.003	0.005	0.005	1.306	
54	Kyoto	35	Office worker	0.055	0.900	0.003	0.003	0.005	0.005	0.971	
55	Kyoto	36	Office worker	0.015	0.058	0.003	0.003	0.048	0.005	0.132	
56	Kyoto	36	Office worker	0.019	0.072	0.003	0.003	0.055	0.005	0.156	
57	Kyoto	37	Office worker	0.070	2.251	0.235	0.029	0.005	0.005	2.595	
58	Kyoto	39	Office worker	0.001	0.445	0.003	0.003	0.005	0.005	0.462	
59	Kyoto	39	Office worker	0.001	0.770	0.003	0.003	0.005	0.005	0.787	
60	Kyoto	42	Researcher	0.038	1.519	0.003	0.003	0.005	0.005	1.571	
61	Hyogo	22	Housewife	0.030	1.243	n.d.	0.003	3.704	0.205	5.185	
62	Hyogo	24	Office worker	0.001	0.633	n.d.	0.003	0.005	0.005	0.647	
63	Hyogo	28	Office worker	0.001	0.783	n.d.	0.097	0.005	0.005	0.891	
64	Hyogo	32	Housewife	0.018	0.290	n.d.	0.055	0.005	0.005	0.373	
65	Hyogo	36	Housewife	0.001	0.248	n.d.	0.805	0.005	0.005	1.063	
66	Wakayama	22	Housewife	0.001	0.169	0.003	0.003	0.173	0.005	0.354	
67	Wakayama	27	Housewife	0.001	0.968	0.491	0.003	0.452	0.005	1.919	
68	Wakayama	32	Housewife	0.001	0.242	0.003	0.003	0.161	0.005	0.415	
69	Wakayama	36	Housewife	0.091	3.960	4.099	0.003	0.780	0.441	9.373	
70	Wakayama	38	Nurse	0.036	0.382	0.393	0.823	0.062	0.005	1.701	
71	Shimane	23	Nurse	0.001	0.061	0.003	0.003	0.086	0.005	0.159	
72	Shimane	25	Nurse	0.017	0.562	0.349	0.096	0.215	0.005	1.245	
73	Shimane	27	Nurse	0.033	0.400	0.003	0.003	0.058	0.005	0.499	
74	Shimane	27	Nurse	0.001	0.220	0.305	0.003	0.131	0.005	0.665	
75	Shimane	27	Nurse	0.001	0.155	0.092	0.003	0.182	0.005	0.438	
76	Shimane	27	Nurse	0.016	0.696	0.661	0.003	0.005	0.005	1.386	
77	Shimane	28	Nurse	0.001	0.740	0.343	0.369	0.005	0.005	1.463	
78	Shimane	29	Nurse	0.001	0.279	0.229	0.003	0.098	0.005	0.615	
79	Shimane	29	Nurse	0.061	0.773	0.059	0.003	0.055	0.005	0.957	
80	Shimane	29	Nurse	0.001	0.543	0.003	0.003	0.005	0.104	0.660	
81	Shimane	30	Nurse	0.020	0.256	0.168	0.003	0.403	0.099	0.949	
82	Shimane	31	Nurse	0.001	0.217	0.003	0.003	0.079	0.005	0.308	
83	Shimane	32	Nurse	0.001	0.186	0.003	0.003	0.276	0.005	0.474	
84	Shimane	33	Nurse	0.001	0.124	0.003	0.003	0.057	0.076	0.264	
85	Shimane	34	Nurse	0.001	0.221	0.003	0.003	0.434	0.005	0.667	
86	Shimane	34	Nurse	0.073	2.344	1.876	0.513	0.996	0.260	6.062	
87	Shimane	35	Nurse	0.001	0.383	0.327	0.375	0.278	0.005	1.369	
88	Shimane	36	Nurse	0.041	0.444	0.179	0.003	0.005	0.005	0.677	
89	Shimane	39	Nurse	0.061	2.248	1.846	0.244	0.693	0.230	5.321	
90	Shimane	39	Nurse	0.023	0.261	0.259	0.003	1.324	0.274	2.144	
91	Yamaguchi	20	Nurse	0.001	0.051	n.d.	1.708	0.005	n.d.	1.765	
92	Yamaguchi	24	Office worker	0.017	0.676	n.d.	0.003	0.005	n.d.	0.701	
93	Yamaguchi	28	unknown	0.001	0.001	n.d.	6.946	0.005	n.d.	6.953	
94	Yamaguchi	32	unknown	0.001	0.860	n.d.	2.435	0.005	n.d.	3.301	
95	Yamaguchi	36	Nurse	0.023	0.202	n.d.	0.003	0.343	n.d.	0.572	
96	Kouchi	22	unknown	0.024	0.358	0.003	0.234	0.123	n.d.	0.742	
97	Kouchi	24	unknown	0.001	0.652	0.529	0.003	0.092	n.d.	1.277	
98	Kouchi	26	unknown	0.001	0.098	0.003	0.003	0.005	n.d.	0.110	
99	Kouchi	28	unknown	0.038	0.401	0.003	0.003	0.005	n.d.	0.450	
100	Kouchi	30	unknown	0.017	0.383	0.131	0.239	0.005	n.d.	0.774	
101	Okinawa	18	Office worker	0.027	0.669	0.362	n.d.	0.069	0.093	1.220	
102	Okinawa	21	Office worker	0.035	0.621	0.441	n.d.	0.005	0.103	1.205	
103	Okinawa	26	Nurse	0.046	1.134	0.833	n.d.	0.467	0.095	2.575	
104	Okinawa	30	Office worker	0.001	0.536	0.157	n.d.	0.005	0.005	0.705	
105	Okinawa	39	Office worker	0.168	3.576	3.403	n.d.	1.968	0.410	9.523	
average $\pm$ SD				30.1 $\pm$ 5.6	0.046 $\pm$ 0.088	1.228 $\pm$ 2.111	0.637 $\pm$ 1.334	0.397 $\pm$ 1.084	0.299 $\pm$ 0.626	0.080 $\pm$ 0.184	2.558 $\pm$ 3.777
range				18-42	0.001-0.706	0.001-18.067	n.d.-6.865	n.d.-6.946	0.005-3.907	n.d.-1.235	0.110-22.788



日本全国 13 地域を 4 グループに分けた場合の GM (Figure 3) が、北海道、秋田県、岐阜県で高値であったが、原因は不明である。これらの地域での母乳提供者の職業はほとんどが主婦であり、職業的曝露は考えにくい。雪が多く締め切った室内での家具や電化製品からの曝露があるのかもしれない。上記、東海らの報告で 1980 年代、90 年代の秋田県の母乳中の PBDEs を測定しているが、これらの年代でも高値に出る人がおり、何らかの地域的要因か、あるいは個人的要因が曝露あるいは体内動態と関係していると思われる。

母乳中の PBDEs の異性体として TetraBDE#47 が多かったが、これは DecaBDE まで測定した東海らの報告でも同様であった。山口県において PentaBDE#100 が高値であることに関しては、今後推移を観察したい。

京都試料に関しては、魚の種類と母乳中の PBDEs の濃度に有意差を認めなかった。今後個人差の原因の究明には、家庭内の家具、電化製品等の調査なども必要だろう。

#### E. 結論

日本全国 105 検体のヒト母乳中の  $\Sigma$  PBDEs の GM (GSD) は、1.36 (2.95) ng/g lipid (median 1.28 ng/g lipid) であった。過去の報告と比較して上昇を続けていると考えられる。母乳中の  $\Sigma$  PBDE の GM に地域差があり、特に北海道、秋田県、岐阜県で高値であった。

今後さらに全国的に推移を観察していく必要がある。

#### F. 健康危険情報 なし

#### G. 研究発表

##### 1. 論文発表 なし

##### 2. 学会発表・その他 なし

#### H. 知的財産権の出願・登録状況

##### 1. 特許取得 なし

##### 2. 実用新案登録 なし

##### 3. その他 なし

#### I. 文献

(1) K Akutsu, M Kitagawa, H Nakazawa, T Makino, K Iwazaki, H Oda and S Hori. Time-trend (1973–2000) of polybrominated diphenyl ethers in Japanese mother's milk. *Chemosphere* 53 (2003) 645-654.

(2) S Ohta, D Ishizuka, H Nishimura, T Nakao, O Aozasa, Y Shimidzu, F Ochiai, T Kida, M Nishi, H Miyata. Comparison of polybrominated

- diphenyl ethers in fish, vegetables, and meats and levels in human milk of nursing woman in Japan. *Chemosphere* 46 (2002) 689-696.
- (3) A Koizumi, T Yoshinaga, K Harada, K Inoue, A Morikawa, J Muroi, S Inoue, B Eslami, S Fujii, Y Fujimine, N Hachiya, S Koda, Y Kusaka, K Murata, H Nakatsuka, K Omae, N Saito, S Shimbo, K Takenaka, T Takeshita, H Todoriki, Y Wada, T Watanabe and M Ikeda. Assessment of human exposure to polychlorinated biphenyls and polybrominated diphenyl ethers in Japan using archived samples from the early 1980s and mid-1990s. *Environmental Research* In Press.
- (4) Hites RA. Polybrominated diphenyl ethers in the environment and in people: a meta-analysis of concentrations. *Environ Sci Technol.* 2004 Feb 15;38(4):945-56.
- (5) D M Guvenius, A Aronsson, G Ekman-Ordeberg, A Bergman, K Norén. Human Prenatal and Postnatal Exposure to Polybrominated Diphenyl Ethers, Polychlorinated Biphenyls, Polychlorobiphenyls, and Pentachlorophenol. *Environmental Health Perspectives*, Jul2003, Vol. 111 Issue 9, p1235-1242.
- (6) A Schechter, M Pavuk, O Papke, J J Ryan, L Birnbaum, R Rosen. Polybrominated Diphenyl Ethers (PBDEs) in U.S. Mothers' Milk. *Environmental Health Perspectives*, Nov2003, Vol. 111 Issue 14, p1723-1730.
- (7) O I Kalantzi, F L Martin, G O Thomas, R E Alcock, H R Tang, S C Drury, P L Carmichael, J K Nicholson, K C Jones. Different Levels of Polybrominated Diphenyl Ethers (PBDEs) and Chlorinated Compounds in Breast Milk from Two U.K. Regions. *Environmental Health Perspectives*, Vol. 112 Issue 10, (2004) 1085-1091
- (8) R C. Hale, Mark J. L Guardia, E Harvey, T. M Mainor. Potential role of .re retardant-treated polyurethane foam as a source of brominated diphenyl ethers to the US environment. *Chemosphere* 46 (2002) 729-735.
- (9) J She, M Petreas, J Winkler, P Visita, M McKinney, D Kopec. PBDEs in the San Francisco Bay Area: measurements in harbor seal blubber and human breast adipose tissue. *Chemosphere* 46 (2002) 697-707.
- (10) Meerts I Ionka A.T.M, Letchere R J, Hoving S, Marsh G, Bergman A, Lemmen J G, van der Burg B, Brouwer A. In vitro estrgenicity of polybrominated diphenyl ethers, hydroxylated PBDEs, and polybrominated bisphenol A compounds. *Environmental Health*



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

少量試料を用いたヒト血液試料および食事試料中の残留性有機汚染物質としてのポリ塩素化ビフェニル（PCBs）の分析法の開発

分担研究者 藤峰 慶徳 大塚製薬㈱大塚ライフサイエンス事業部室長  
分担協力者 平井 哲也 大塚製薬㈱大塚ライフサイエンス事業部

研究要旨

我々が既に開発した生体試料中の PCBs 異性体分析法を基に、昨年度、分析試料を少量化し主要な PCBs 異性体のみを簡便かつ迅速に測定する分析方法を開発した。

今年度はこの開発した分析試料少量化法にてバンク試料（血液・食事）中の PCBs 主要異性体濃度を迅速高感度に分析した。

A. 研究目的

我々は血液・母乳中ダイオキシン類測定において ISO17025 を取得しており、これまで生体試料に焦点を置いた微量成分分析を実施してきた。この結果として、15 g の血液や人体組織等の生体試料を用いた HRGC/HRMS によるポリ塩素化ビフェニル（PCBs）の各異性体濃度を正確に測定する測定系を開発している<sup>1)</sup>。この測定系では、PCBs に存在する 209 種のそれぞれの異性体を区別して定量する事が可能であり、PCBs による人体汚染の解明に極めて重要な情報を与える反面、貴重な生体試料を多量に必要とすることから、PCBs による人体汚染の疫学調査等のマス・スクリーニングに使用することは困難である。我々が協力する試料バンクでは、血液および食事試料におけ

る採取や保管の問題より、各試料の取扱量は数 g 程度と考えられ、さらにその試料量において分析を実施するために消費が許容される試料量は 1 g 程度と想定される。このような背景より、既に我々が開発している生体試料中 PCBs 測定系を基礎として、試料バンクへの応用を目的に分析対象試料の少量化の検討を行いヒトに主要な異性体濃度を迅速簡易に分析する方法を昨年度開発した<sup>2)</sup>。今年度はこの方法を用いて食事 80 試料、血清 90 試料の分析を行った。

B. 研究方法

B-1. 材料

B-1.1. 試料

血液試料：試料バンクより提供された血清試料を用いた。

食事試料：試料バンクより提出された食事試料を用いた。

#### B-1.2. 試薬

PCBsの検量線作成にはCIL (Cambridge Isotope Laboratories) 社製 EPA Method 1668 A PCB Calibration Solutions CS0.2 - CS4 を用いて作成した。クリーンアップスパイク溶液には $^{13}\text{C}_{12}$ 標識 PCBs (4-7 塩素化体 PCBs ; 16 種類) (CIL 社製) を用いた。シリンジスパイクには $^{13}\text{C}_{12}$ 標識 PCBs (4-6 塩素化体 PCBs ; 3 種類) (CIL 社製) を用いた。

ヘキサン等の各種有機溶媒は和光純薬工業(株)社製のダイオキシン類分析用を用いた。なお、n-ヘキサンをヘキサンと表記する。

全操作ブランクおよびアルカリ分解用水溶液の作製に用いたヘキサン洗浄水はミリポア社製グラジェントより得た超純水にヘキサンを加え 60 分間激しく振とうした後、これを一夜放置して得た。

アルカリ分解用の水酸化カリウム水溶液はMerck社製の水酸化カリウムをヘキサン洗浄水に溶解して作製した。

多層カラムシリカゲルカラムクロマトグラフィーに用いる各種充填剤はシリカゲル類を和光純薬工業(株)社製のダイオキシン類分析用を用い、無水硫酸ナトリウムは関東化学社製残留農薬試験・PCB 試験用を用いた。

#### B-2. 方法

##### B.2.1. 血液試料

###### B.2.1.1. アルカリ分解

試料を解凍後、ガラス製メスピペットを用い正確に試料量を測定し、ガラス製遠沈管へ分注した。これに分析対象物質に対応する内部標準溶液をマイクロシリンジにて正確に添加し、続いて 2 M-KOH を 1 mL 加え共詮により密閉して、2 時間振とう器にて振とうすることによりアルカリ分解を行った。

###### B.2.1.2 抽出および分取

アルカリ分解後の溶液にエタノール/ヘキサン洗浄水 (1/2) 溶液 1.5 mL とヘキサン 1 mL を加え、共詮により密閉して、30 分間振とう器にて振とうした。振とう後、2000 r. p. m. にて 3 分間遠心分離を行い、有機層を分離した。分離した有機層はパスツールピペットを用いて別の遠沈管へ分取した。残渣にはヘキサン 1 mL を加え、共詮により密閉して、30 分間振とう抽出を行い、振とう後、2000 r. p. m. にて 3 分間遠心分離によりヘキサン層を分離した。得られたヘキサン層はパスツールピペットにて分取して先の有機層と合わせた。この抽出および分取過程をさらにもう一度繰り返し、合計 3 回の抽出を実施した。

###### B.2.1.3. 洗浄

得られたヘキサン相にヘキサン洗浄水 1 mL を加え、2 分間振とう器にて振とうすることにより洗浄を行った。次に 2000 r. p. m. にて 3 分間遠心分離を行い、分離後、下部の水層をパスツールピペットにて分取し、除去した。

この洗浄過程を合計 3 回行った後、ヘキサン相に無水硫酸ナトリウムを加え、5 分間放置して脱水した。

#### B. 2. 2. 多層カラムクロマトグラフィーによる精製

精製に用いる多層カラムクロマト管を次の手順にて作成した。内径約 15 mm、長さ約 300 mm のガラス製カラムクロマト管にシリカゲル 0.9 g、2%水酸化カリウムシリカゲル 3.0 g、シリカゲル 0.9 g、44%硫酸シリカゲル 4.5 g、22%硫酸シリカゲル 6.0 g、シリカゲル 0.9 g、10%硝酸銀-シリカゲル 3.0 g を順次ヘキサンで充填し、その上部に無水硫酸ナトリウム 1.5 g を積層した。これにヘキサン 100 mL を流速 2.5 mL/min で流し、充填物を洗浄した。洗浄後のカラムクロマト管に先の脱水済みのヘキサン溶液をパスツールピペットにてアプライした。なお、ヘキサン溶液の入っていた容器はおよそ 2 mL のヘキサンで 2 回洗い出し、これを先のヘキサン溶液同様にクロマト管へアプライした。ジクロロメタン/ヘキサン (1/9) 100 mL を流速 2.5 mL/min で流しこの溶出成分をナスフラスコにて捕集し PCBs 測定溶液とした。

カラムクロマトグラフィーによる溶出液は減圧ロータリーエバポレーターで溶媒を除去し、これを測定用のバイアルへ移し測定対象物質に対応したシリンジスパイクを加え窒素気流下にて濃縮した。測定用最終検液はノナン溶液として、およそ 20  $\mu$ L とした。

#### B. 2. 2. 食事試料

##### B. 2. 2. 1. 試料の前処理および抽出

試料解凍後、予備洗浄をしたガラス製の遠沈管へ試料を移し重量を秤量した後、内部標準物質を加え、既報の陰膳食事中ダイオキシン類分析の前処理法<sup>3)</sup>を参考としアルカリ分解と抽出操作を行った。

##### B. 2. 2. 2. アルカリ分解、抽出および分取

試料秤量後内部標準を添加した試料に 2 M-KOH を 1 mL 加え共詮により密閉して、2 時間振とう器にて振とうすることによりアルカリ分解を行った。アルカリ分解後の溶液にエタノール/ヘキサン洗浄水 (1/2) 溶液 1.5 mL とヘキサン 1 mL を加え、共詮により密閉して、30 分間振とう器にて振とうした。振とう後、2000 r. p. m. にて 3 分間遠心分離を行い、有機層を分離した。分離した有機層はパスツールピペットを用いて別の遠沈管へ分取した。残渣にはヘキサン 1 mL を加え、共詮により密閉して、30 分間振とう抽出を行い、振とう後、2000 r. p. m. にて 3 分間遠心分離によりヘキサン層を分離した。得られたヘキサン層はパスツールピペットにて分取して先の有機層と合わせた。この抽出および分取過程をさらにもう一度繰り返し、合計 3 回の抽出を実施した。

##### B. 2. 2. 3. 洗浄

得られたヘキサン相にヘキサン洗浄

水 1 mL を加え、2 分間振とう器にて振とうすることにより洗浄を行った。次に 2000 r.p.m. にて 3 分間遠心分離を行い、分離後、下部の水層をパスツールピペットにて分取し、除去した。この洗浄過程を合計 3 回行った後、ヘキサン相に無水硫酸ナトリウムを加え、5 分間放置して脱水した。

### B. 2. 3. 多層カラムクロマトグラフィーによる精製

精製に用いる多層カラムクロマト管を次の手順にて作成した。内径約 15 mm、長さ約 300 mm のガラス製カラムクロマト管にシリカゲル 0.9 g、2% 水酸化カリウムシリカゲル 3.0 g、シリカゲル 0.9 g、44% 硫酸シリカゲル 4.5 g、22% 硫酸シリカゲル 6.0 g、シリカゲル 0.9 g、10% 硝酸銀-シリカゲル 3.0 g を順次ヘキサンで充填し、その上部に無水硫酸ナトリウム 1.5 g を積層した。これにヘキサン 200 mL を流速 2.5 mL/min で流し、充填物を洗浄した。洗浄後のカラムクロマト管に先のヘキサン溶液をパスツールピペットにてアプライした。なお、ヘキサン溶液の入っていた容器はおよそ 2 mL のヘキサンで 2 回洗い出し、これを先のヘキサン溶液同様にクロマト管へアプライした。試料のアプライが終わった後、ジクロロメタン/ヘキサン (1/9) 100 mL を流速 2.5 mL/min で流しこの溶出成分をナスフラスコにて捕集し PCBs 測定溶液とした。カラムクロマトグラフィーによる溶出液は減圧ロータリーエバポレータ

ーで溶媒を除去し、これを測定用のバイアルへ移し測定対象物質に対応したシリンジスパイクを加え窒素気流下にて濃縮した。測定用最終検液はノナン溶液として、およそ 20  $\mu$ L とした。

### B-3. GC/MS 測定条件

#### B-3. 1. PCBs 測定

##### B-3. 1. 1. 測定機器

ガスクロマトグラフ: HP6890 (Hewlett Packard)、オートインジェクター付き。  
質量分析計: Autospec-Ultima (Micromass)

##### B-3. 1. 1. 操作条件

ガスクロマトグラフ

カラム: HT-8PCB キャピラリーカラム、長さ 60 m、内径 0.25 mm (関東化学)

カラム温度: 120°C 20°C/分で 180°C まで昇温, 2°C/分で 270°C まで昇温, 50°C/分で 310°C (6 分間保持)

キャリアーガス: He 1.0 mL/分

注入量: 1  $\mu$ L

注入口温度: 290°C

注入方法: スプリットレス (60 秒)

インターフェイス温度: 290°C

質量分析

加速電圧: 8 kV

分解能: 11000

イオン化電圧: 40 eV

トラップ電流: 600  $\mu$ A

マルチプライヤー電圧: 400 V

イオン源温度: 290°C

## C. 研究結果

### C-1. 装置の定量下限

検量線作成に使用する標準溶液の最低濃度溶液を用い、これを複数回繰り返し測定を行うことによってその標準偏差の3倍を検出下限とした。得られた検出下限値より、試料における理論検出下限値を以下のような過程に基づき算出した。分析対象の試料を血液脂肪 5 mg もしくは食事 0.5 g として、これを前処理した後におよそ 0.02 mL まで濃縮し、このうち 1  $\mu$ L を装置に注入する。したがって、試料の 1/20 を装置に注入することとなり、上記の検出下限値のおよそ 20 倍以上を理論的な試料における検出下限値とした。得られた PCBs の装置の検出下限値・試料における検出下限値を表 1 に示す。これらの検出下限値は各試料において十分な感度を有していることが確認できる。よって、本方法が、バンクされ、僅かな試料量しかない生体および食事試料に関して、対象とする化学物質を正確に測定し定量することが可能であることを確認した。

### C-2. 測定結果

実検体における PCBs の測定結果を表 2, 3 に示す。なお、用いた測定方法は同位体希釈法のため、定量を対象とする物質およびその異性体の  $^{13}\text{C}$ -安定同位体を内部標準物質として分析試料に添加し、この添加した安定同位体が定量を対象とする物質に対して物理的かつ化学的にほぼ同様の挙動を

示すことから、添加した  $^{13}\text{C}$ -安定同位体濃度を基準（内部標準）として定量を対象とする物質の濃度を定量する。さらに、本方法では添加した  $^{13}\text{C}$ -安定同位体の内部標準に対して、それらとは異なる  $^{13}\text{C}$ -安定同位体をシリンジスパイクとして、測定直前の最終濃縮段階にて添加し、このシリンジスパイク濃度を基準として内部標準濃度を比較して、作業工程において精度劣化等の有無を回収率として確認している。この回収率においては 50% から 120% の結果が得られている（平均 90.2 から 106.1% 標準偏差 3.8 から 10.0）。

## D. 考察

一般的に微量の試料を用いかつ、多段階過程を経た分析を行う場合には作業上の精度的な劣化に起因した回収率の低下が想定できる。今回の回収率の結果は上記理由を考慮しても良好な結果であると判断でき、試料処理過程を含めた総ての作業において本分析法の精度の高さ、ならびに定量値の信頼性の高さが示唆される。さらに、ブランク値における全操作ブランクと容器ブランクの評価では、これらの値がほぼ同等とみなされ、さらに、分析対象物質の定量値より明らかに低いことから、試料における定量値から全操作ブランク値を減算して、実際の定量結果とした。すなわち、実試料濃度は全操作ブランク値を減じて算出した濃度である。

## E. 結論



試料バンクへの貢献として、分析過程に要求される条件は少量試料において正確に測定を行うことであり、我々はこの目的達成のため、少量の血液および食事試料において PCBs の特徴的な異性体濃度を迅速高感度に測定する方法を開発した。

今年度はこの方法を用いて血清 1ml と食事 0.5g から抽出精製を行い、血清 90 試料、食事 80 試料の分析を行った。全ての試料において良好な結果が得られた。

F. 健康危険情報  
なし

G. 研究発表  
1. 論文発表  
なし

2. 学会発表・その他  
なし

H. 知的財産権の出願・登録状況  
(予定を含む)

1. 特許取得  
なし

2. 実用新案登録  
なし

3. その他  
なし

I. 文献

1. T. Hirai, Y. Fujimine:  
Organohalogen Compounds 2003,  
63, 417-420.
2. T. Hirai, Y. Fujimine A. Koizumi:  
PCB Workshop 2004, POSTER14.  
63, 417-420.
3. T. Hori, Y. Ashizuka, K. Tobiishi,  
R. Nakagawa, T. IIDA : Fukuoka  
Institute  
of health and environmental  
sciences 2002,  
29, 91-96

表1 検出下限値

		装置の検出下限値	試料における検出下限値
食事		(pg)	(pg/g食事) <sup>1)</sup>
2,3',4,4',5-PentaCB	#118	0.006	0.24
2,3,3',4,4',5-PentaCB	#156	0.009	0.36
血液		(pg)	(ng/g-lipid) <sup>2)</sup>
2,3',4,4',5-PentaCB	#118	0.006	0.024
2,3,3',4,4',5-PentaCB	#156	0.009	0.036

1)分析食事量0.5gとして計算。

2)分析血液脂肪量5mgとして計算。

表2-1 PCB測定結果(食事サンプル)

Congeners	(BZ#)	TEF	Sample No.												
			TKY基準*	AKT-01	AKT-02	AKT-03	AKT-04	AKT-05	AKT-06	AKT-07	AKT-08	AKT-09	AKT-10	MYG-01	MYG-02
2,4,4',5-TetraCB	#74	***	0.0	6.4	6.4	0.2	0.5	0.1	2.3	0.4	0.9	1.2	0.1	0.4	1.4
2,3',4,4',5-PentaCB	#118	0.0001	0.0	4.7	32.3	0.9	1.8	1.3	9.4	2.4	2.9	4.5	0.3	1.2	4.4
2,2',4,4',5-PentaCB	#99	***	0.3	3.7	18.3	0.6	1.0	1.0	5.3	1.4	2.2	2.9	0.5	0.8	3.3
2,2',3,4,4',5-HexaCB	#138	***	0.4	4.1	37.8	1.8	2.1	2.2	10.3	2.5	3.7	3.9	1.0	2.0	4.2
2,2',3,4',5,5'-HexaCB	#146	***	0.0	0.7	12.0	0.4	0.4	0.2	2.3	0.7	1.0	0.9	0.3	0.3	0.7
2,2',4,4',5,5'-HexaCB	#153	***	0.3	6.4	63.7	2.8	3.3	3.6	15.2	5.3	7.1	7.1	1.4	3.2	7.1
2,3,3',4',5,6-, 2,3',4',5',6-HexaCB	#163,164	***	0.1	1.6	16.5	0.5	0.6	0.5	3.1	0.9	0.9	1.0	0.3	0.5	1.3
2,3,3',4,4',5-HexaCB	#156	0.0005	0.0	0.6	3.2	0.4	0.3	0.5	1.1	0.4	0.5	0.5	0.2	0.4	0.0
2,2',3,3',4,4',5-HeptaCB	#170	***	0.0	1.0	5.3	0.8	0.7	0.7	1.7	0.5	0.5	0.8	0.0	0.6	1.1
2,2',3,4,4',5,5'-HeptaCB	#180	***	0.0	3.0	21.3	1.4	1.6	1.4	4.4	1.3	2.0	1.8	0.5	1.3	2.0
2,2',3,4,4',5,6-, 2,2',3,4',5,5',6-HeptaCB	#182,187	***	0.2	1.8	20.6	0.4	0.5	0.8	4.1	1.2	2.1	1.6	0.1	1.1	1.7
分析食事量(g)			0.5168	0.4905	0.5056	0.5162	0.5143	0.5459	0.5182	0.5016	0.5326	0.5238	0.5409	0.5445	0.5513

表2-2 PCB測定結果(食事サンプル)

Congeners	(BZ#)	TEF	Sample No.												
			MYG-03	MYG-04	MYG-05	MYG-06	MYG-07	MYG-08	MYG-09	MYG-10	TKO-01	TKO-02	TKO-03	TKO-04	TKO-05
2,4,4',5-TetraCB	#74	***	2.0	0.7	0.9	1.1	2.0	1.9	1.3	1.8	1.5	2.9	1.0	1.3	0.8
2,3',4,4',5-PentaCB	#118	0.0001	6.0	1.9	2.4	1.8	5.6	9.6	2.5	2.6	6.5	5.7	3.2	3.4	2.7
2,2',4,4',5-PentaCB	#99	***	4.0	1.4	2.2	1.6	3.5	4.5	2.3	2.0	3.0	4.5	2.1	2.2	1.8
2,2',3,4,4',5-HexaCB	#138	***	6.7	3.0	3.6	2.0	5.1	12.9	2.6	2.0	5.5	4.2	3.2	3.4	2.3
2,2',3,4',5,5'-HexaCB	#146	***	1.4	0.4	0.8	0.4	0.9	2.9	0.5	0.5	0.8	1.0	0.7	0.9	0.6
2,2',4,4',5,5'-HexaCB	#153	***	10.7	4.0	5.8	3.3	8.1	20.8	4.4	3.2	6.9	7.1	5.5	5.9	4.1
2,3,3',4',5,6-, 2,3',4',5',6-HexaCB	#163,164	***	2.5	1.2	1.2	0.8	1.6	6.0	1.0	0.9	2.0	1.6	1.1	1.2	0.8
2,3,3',4,4',5-HexaCB	#156	0.0005	0.7	0.4	0.5	0.3	0.7	2.1	0.5	0.4	1.1	0.4	0.6	0.6	0.4
2,2',3,3',4,4',5-HeptaCB	#170	***	0.8	0.0	1.1	0.6	1.0	3.2	0.7	0.5	1.5	0.7	0.8	0.8	0.6
2,2',3,4,4',5,5'-HeptaCB	#180	***	2.4	1.8	2.2	1.8	2.7	15.0	1.9	0.8	3.8	1.4	2.4	2.0	1.2
2,2',3,4,4',5,6-, 2,2',3,4',5,5',6-HeptaCB	#182,187	***	2.6	1.7	1.9	1.0	2.1	9.5	1.3	0.8	2.6	2.0	2.2	2.1	1.3
分析食事量(g)			0.5313	0.5287	0.5298	0.5128	0.4948	0.5046	0.4966	0.5013	0.4875	0.5086	0.5110	0.5016	0.5141

表2-3 PCB測定結果(食事サンプル)

Congeners	(BZ#)	TEF	Sample No.												
			TKO-06	TKO-07	TKO-08	TKO-09	TKO-10	TKY-01	TKY-02	TKY-03	TKY-04	TKY-05	TKY-06	TKY-07	TKY-08
2,4,4',5-TetraCB	#74	***	1.1	1.8	1.2	0.4	7.1	2.0	1.2	0.8	5.5	11.0	0.3	0.4	0.4
2,3,4,4',5-PentaCB	#118	0.0001	2.7	4.7	3.5	1.9	32.5	6.6	2.1	1.8	23.3	58.0	1.0	1.0	1.7
2,2',4,4',5-PentaCB	#99	***	2.3	3.3	2.9	1.0	29.0	5.0	2.1	1.3	12.7	26.6	0.8	0.9	0.9
2,2',3,4,4',5-HexaCB	#138	***	3.1	5.0	3.3	0.7	38.7	7.5	2.2	1.2	27.4	62.3	0.9	1.1	1.7
2,2',3,4',5,5'-HexaCB	#146	***	0.9	1.3	0.8	0.1	16.1	2.2	0.6	0.4	8.1	15.4	0.2	0.2	0.6
2,2',4,4',5,5'-HexaCB	#153	***	5.3	8.4	5.9	1.4	74.7	13.2	4.3	2.4	47.3	99.1	1.6	2.1	3.8
2,3,3',4',5,6-, 2,3,3',4',5',6-HexaCB	#163,164	***	1.4	1.7	0.9	0.0	21.9	3.1	0.6	0.3	13.2	23.1	0.1	0.1	0.7
2,3,3',4,4',5-HexaCB	#156	0.0005	0.9	0.7	0.5	0.0	3.8	0.8	0.4	0.0	2.2	6.0	0.0	0.0	0.4
2,2',3,3',4,4',5-HepaCB	#170	***	0.9	1.1	0.8	0.0	8.9	1.8	0.5	0.4	3.9	11.4	0.4	0.5	0.6
2,2',3,4,4',5,5'-HepaCB	#180	***	1.8	3.0	1.9	0.3	26.9	5.3	1.3	1.0	11.5	40.6	0.5	0.6	1.7
2,2',3,4,4',5,6-, 2,2',3,4',5,5',6-HepaCB	#182,187	***	2.0	3.2	2.0	0.5	47.1	4.2	1.2	0.8	17.4	43.7	0.5	0.7	1.4
分析食重量(g)			0.5179	0.4994	0.4825	0.4994	0.5070	0.5109	0.4831	0.5211	0.5164	0.5160	0.5026	0.4973	0.5133

表2-4 PCB測定結果(食事サンプル)

Congeners	(BZ#)	TEF	Sample No.												
			TKY-09	TKY-10	HYG-01	HYG-02	HYG-03	HYG-04	HYG-05	HYG-06	HYG-07	HYG-08	HYG-09	HYG-10	WKY-01
2,4,4',5-TetraCB	#74	***	1.1	0.6	4.1	1.1	1.7	3.6	4.6	6.5	2.5	0.5	1.3	1.5	7.4
2,3,4,4',5-PentaCB	#118	0.0001	4.7	2.0	13.5	7.3	4.2	8.8	20.3	26.4	7.3	1.5	3.3	8.6	25.6
2,2',4,4',5-PentaCB	#99	***	3.9	1.8	6.8	1.4	2.8	5.3	10.3	16.2	5.0	1.5	2.3	5.9	15.4
2,2',3,4,4',5-HexaCB	#138	***	5.8	2.3	12.2	2.2	4.5	8.1	36.2	26.6	6.7	2.3	2.9	11.2	24.8
2,2',3,4',5,5'-HexaCB	#146	***	2.0	0.6	3.7	0.8	1.5	2.5	0.0	9.2	1.7	1.1	1.0	3.8	8.4
2,2',4,4',5,5'-HexaCB	#153	***	11.0	4.2	18.4	3.4	7.2	12.8	38.0	47.1	10.1	3.8	5.0	17.4	45.5
2,3,3',4',5,6-, 2,3,3',4',5',6-HexaCB	#163,164	***	2.6	0.5	5.4	0.6	1.6	2.8	9.8	12.2	1.8	0.6	1.0	5.9	11.6
2,3,3',4,4',5-HexaCB	#156	0.0005	0.8	0.5	2.8	0.4	0.7	0.9	0.0	3.3	0.7	0.4	0.5	1.5	2.6
2,2',3,3',4,4',5-HepaCB	#170	***	1.7	0.6	2.4	0.6	0.9	1.3	0.0	5.3	1.0	0.7	0.5	3.1	3.9
2,2',3,4,4',5,5'-HepaCB	#180	***	4.8	1.0	5.8	1.3	2.8	3.6	11.2	16.2	2.7	1.5	1.4	8.7	12.8
2,2',3,4,4',5,6-, 2,2',3,4',5,5',6-HepaCB	#182,187	***	4.8	1.4	6.5	1.3	3.6	5.9	9.5	23.3	3.6	1.8	1.8	16.0	16.8
分析食重量(g)			0.5068	0.5089	0.4974	0.5080	0.5115	0.5031	0.4969	0.5124	0.5130	0.5083	0.5198	0.5076	0.5094

表2-5 PCB測定結果(食事サンプル)

Congeners	(BZ#)	TEF	Sample No.												
			WKY-02	WKY-03	WKY-04	WKY-05	WKY-06	WKY-07	WKY-08	WKY-09	WKY-10	KCH-01	KCH-02	KCH-03	KCH-04
2,4,4',5-TetraCB	#74	***	1.0	2.4	0.3	0.1	1.5	1.9	0.2	0.3	5.5	1.6	2.5	6.9	5.9
2,3,4,4',5-PentaCB	#118	0.0001	3.4	7.7	2.4	0.3	10.6	6.6	1.1	0.9	28.8	4.6	10.8	24.2	24.5
2,2',4,4',5-PentaCB	#99	***	1.7	6.3	1.5	0.0	4.6	3.6	0.7	0.7	13.7	3.4	12.0	13.6	18.3
2,2',3,4,4',5-HexaCB	#138	***	2.7	10.1	2.3	0.6	11.6	7.2	1.4	1.1	24.1	5.9	15.3	26.6	28.5
2,2',3,4',5,5'-HexaCB	#146	***	0.8	2.4	0.7	0.4	3.2	2.1	0.6	0.6	5.8	1.9	9.4	9.1	12.2
2,2',4,4',5,5'-HexaCB	#153	***	4.0	19.5	3.4	0.3	17.5	10.8	2.0	1.8	34.6	11.6	51.2	46.1	52.4
2,3,3',4',5,6-, 2,3,3',4',5',6-HexaCB	#163,164	***	0.7	2.3	0.7	0.1	3.5	2.9	0.3	0.5	8.4	2.0	10.9	12.8	13.7
2,3,3',4,4',5-HexaCB	#156	0.0005	0.5	0.8	0.5	0.0	1.8	1.0	0.3	0.0	2.7	0.7	1.6	2.6	3.2
2,2',3,3',4,4',5-HepaCB	#170	***	0.7	1.4	0.7	0.0	3.0	1.3	0.5	0.5	3.4	1.4	5.1	4.4	7.1
2,2',3,4,4',5,5'-HepaCB	#180	***	1.5	4.1	1.8	0.4	8.7	3.2	1.0	1.0	10.2	4.3	15.9	13.3	21.1
2,2',3,4,4',5,6-, 2,2',3,4',5,5',6-HepaCB	#182,187	***	2.1	8.3	2.3	0.8	5.1	3.2	0.7	0.7	8.3	4.2	26.5	17.4	24.6
分析食重量(g)			0.5017	0.5136	0.4977	0.4930	0.4871	0.4962	0.5147	0.5132	0.5154	0.5024	0.4968	0.5006	0.4924

表2-6 PCB測定結果(食事サンプル)

Congeners	(BZ#)	TEF	Sample No.												
			KCH-05	KCH-06	KCH-07	KCH-08	KCH-09	KCH-10	OKN-01	OKN-02	OKN-03	OKN-04	OKN-05	OKN-06	OKN-07
2,4,4',5-TetraCB	#74	***	17.9	1.0	0.7	8.1	8.7	0.4	1.3	1.1	0.4	0.9	1.4	0.9	0.8
2,3,4,4',5-PentaCB	#118	0.0001	25.6	4.9	2.7	41.6	41.3	4.3	1.6	0.5	0.6	1.9	4.2	2.2	1.9
2,2',4,4',5-PentaCB	#99	***	54.6	2.5	1.3	22.6	22.1	2.5	1.4	0.7	0.9	1.4	2.7	2.3	1.5
2,2',3,4,4',5-HexaCB	#138	***	67.5	5.9	2.8	51.9	47.7	5.9	1.5	0.6	0.8	2.3	11.7	3.0	1.6
2,2',3,4',5,5'-HexaCB	#146	***	28.9	2.2	1.0	18.8	16.2	1.8	0.4	0.0	0.2	0.5	2.0	0.6	0.5
2,2',4,4',5,5'-HexaCB	#153	***	140.2	8.1	4.5	95.8	82.6	9.4	2.6	1.3	0.9	3.6	15.2	5.1	2.8
2,3,3',4',5,6-, 2,3,3',4',5',6-HexaCB	#163,164	***	34.9	2.7	0.8	28.9	23.0	2.2	0.7	0.4	0.4	1.0	4.6	1.2	0.7
2,3,3',4,4',5-HexaCB	#156	0.0005	7.5	0.7	0.4	4.6	4.2	1.1	0.0	0.0	0.0	0.0	1.7	0.6	0.3
2,2',3,3',4,4',5-HepaCB	#170	***	10.6	1.4	0.7	8.0	9.1	2.3	0.6	0.0	0.0	0.6	4.1	0.7	0.5
2,2',3,4,4',5,5'-HepaCB	#180	***	33.4	3.2	1.8	24.3	26.3	6.3	1.7	0.6	0.7	2.0	8.6	2.0	1.4
2,2',3,4,4',5,6-, 2,2',3,4',5,5',6-HepaCB	#182,187	***	49.7	2.9	1.1	34.0	32.1	4.3	0.7	0.1	0.3	1.6	4.3	1.6	0.9
分析食重量(g)			0.4952	0.5152	0.4867	0.4922	0.5037	0.5025	0.4820	0.5187	0.4940	0.4975	0.4946	0.4816	0.5088

表2-7 PCB測定結果(食事サンプル)

Congeners	(BZ#)	TEF	Sample No.		
			OKN-08	OKN-09	OKN-10
2,4,4',5-TetraCB	#74	***	0.9	0.9	1.3
2,3,4,4',5-PentaCB	#118	0.0001	2.8	2.0	2.7
2,2',4,4',5-PentaCB	#99	***	1.7	1.7	1.9
2,2',3,4,4',5-HexaCB	#138	***	2.6	2.0	3.2
2,2',3,4',5,5'-HexaCB	#146	***	0.1	0.4	0.6
2,2',4,4',5,5'-HexaCB	#153	***	3.9	3.1	5.2
2,3,3',4',5,6-, 2,3,3',4',5',6-HexaCB	#163,164	***	0.5	0.8	1.1
2,3,3',4,4',5-HexaCB	#156	0.0005	0.4	0.3	0.5
2,2',3,3',4,4',5-HepaCB	#170	***	0.6	0.5	0.6
2,2',3,4,4',5,5'-HepaCB	#180	***	2.4	2.0	2.3
2,2',3,4,4',5,6-, 2,2',3,4',5,5',6-HepaCB	#182,187	***	0.5	1.4	1.5
分析食重量(g)			0.4871	0.4931	0.4974

表3-1 PCB測定結果(血液サンプル)

Congeners	(BZ#)	TEF	Sample No.												
			A01	A02	A03	A04	A05	A06	A07	A08	A09	A10	F01	F02	F03
2,4,4',5-TetraCB	#74	***	1.3	3.4	4.1	4.8	5.9	6.5	4.9	5.0	8.5	7.5	1.3	11.5	9.4
2,3,4,4',5-PentaCB	#118	0.0001	3.0	8.6	10.1	10.3	7.0	14.0	11.0	15.6	11.4	7.8	3.5	14.1	8.7
2,2',4,4',5-PentaCB	#99	***	1.5	3.5	4.3	3.5	4.6	5.2	5.3	6.9	4.7	4.9	2.1	5.8	4.0
2,2',3,4,4',5-HexaCB	#138	***	3.8	11.1	13.8	12.1	13.0	14.9	15.0	19.4	18.6	15.2	5.9	23.0	21.4
2,2',3,4',5,5'-HexaCB	#146	***	0.8	3.4	3.6	4.6	3.8	6.0	4.2	5.7	7.0	5.1	1.8	7.4	10.7
2,2',4,4',5,5'-HexaCB	#153	***	7.4	22.8	29.0	27.9	24.4	35.6	27.8	39.7	45.1	32.8	12.6	47.9	65.2
2,3,3',4',5,6-, 2,3,3',4',5',6-HexaCB	#163,164	***	1.5	4.5	5.9	7.0	6.0	8.6	6.2	7.9	12.5	8.4	2.6	12.3	19.3
2,3,3',4,4',5-HexaCB	#156	0.0005	0.8	2.1	3.5	3.6	3.1	4.2	3.0	3.1	3.4	4.2	1.3	7.0	12.3
2,2',3,3',4,4',5-HeptaCB	#170	***	0.9	2.6	4.6	5.3	3.7	5.8	4.7	5.0	10.1	5.3	2.2	8.3	13.3
2,2',3,4,4',5,5'-HeptaCB	#180	***	3.3	10.7	17.1	20.2	13.2	21.2	16.2	20.3	34.8	19.2	9.2	31.4	54.0
2,2',3,4,4',5,6-, 2,2',3,4',5,6'-HeptaCB	#182,187	***	1.5	4.4	7.2	8.7	6.5	10.8	8.0	9.8	13.5	8.3	4.2	12.6	17.4
分析血液脂肪量(mg)			4.9	5.3	6.8	6.1	4.9	5.0	6.0	4.7	6.7	5.2	4.8	4.0	5.3

表3-2 PCB測定結果(血液サンプル)

Congeners	(BZ#)	TEF	Sample No.												
			F04	F05	F06	F07	F08	F09	F10	G01	G02	G03	G04	G05	G06
2,4,4',5-TetraCB	#74	***	3.5	3.9	13.5	4.1	12.2	7.8	1.8	12.4	2.5	2.5	3.1	2.2	1.6
2,3,4,4',5-PentaCB	#118	0.0001	6.8	7.7	17.9	6.7	15.8	10.7	2.8	20.7	5.4	4.4	7.1	5.0	2.9
2,2',4,4',5-PentaCB	#99	***	2.9	3.7	9.7	2.9	6.8	5.7	1.2	11.7	1.8	2.9	2.4	2.5	1.1
2,2',3,4,4',5-HexaCB	#138	***	8.2	9.7	41.6	9.9	19.1	20.3	4.1	35.0	5.5	9.8	6.2	7.8	3.5
2,2',3,4',5,5'-HexaCB	#146	***	2.1	2.8	14.0	3.5	6.1	6.7	1.2	9.2	1.9	3.1	1.7	2.3	1.0
2,2',4,4',5,5'-HexaCB	#153	***	17.3	20.9	88.2	24.1	43.3	46.9	10.3	74.1	12.4	20.2	12.6	17.5	8.1
2,3,3',4',5,6-, 2,3,3',4',5',6-HexaCB	#163,164	***	3.8	4.7	26.1	5.5	11.0	11.9	1.8	16.2	3.4	4.5	3.0	3.9	2.0
2,3,3',4,4',5-HexaCB	#156	0.0005	1.8	1.9	18.6	2.9	8.8	8.1	1.5	6.7	1.7	3.1	1.2	1.8	1.1
2,2',3,3',4,4',5-HeptaCB	#170	***	2.5	2.6	16.9	4.0	6.4	9.0	2.0	9.7	2.6	3.1	1.9	2.6	1.4
2,2',3,4,4',5,5'-HeptaCB	#180	***	9.3	10.6	55.0	18.8	23.3	34.8	8.1	39.7	10.5	11.4	7.2	10.8	5.5
2,2',3,4,4',5,6-, 2,2',3,4',5,6'-HeptaCB	#182,187	***	4.1	5.7	25.1	7.7	11.4	15.0	2.8	21.4	4.5	6.3	3.4	5.3	2.1
分析血液脂肪量(mg)			4.0	4.4	4.8	8.6	5.8	4.9	6.0	5.1	5.7	6.3	4.5	5.8	4.4

表3-3 PCB測定結果(血液サンプル)

Congeners	(BZ#)	TEF	Sample No.												
			G07	G08	G09	G10	H01	H02	H03	H04	H05	H06	H07	H08	H09
2,4,4',5-TetraCB	#74	***	2.9	3.2	1.7	2.6	8.5	10.0	4.0	3.1	6.9	4.1	2.1	6.4	4.4
2,3,4,4',5-PentaCB	#118	0.0001	6.1	5.7	4.0	6.0	12.3	15.8	9.4	4.4	11.2	5.8	5.7	7.8	8.1
2,2',4,4',5-PentaCB	#99	***	2.0	2.1	1.5	2.0	6.7	6.0	5.7	2.3	4.5	3.4	3.2	4.7	4.4
2,2',3,4,4',5-HexaCB	#138	***	6.8	7.8	5.4	5.9	19.8	16.3	12.1	5.1	12.1	11.0	7.8	12.1	9.8
2,2',3,4',5,5'-HexaCB	#146	***	2.3	2.6	1.4	2.3	5.7	6.8	3.8	1.3	4.0	3.8	2.7	2.9	3.0
2,2',4,4',5,5'-HexaCB	#153	***	15.7	17.2	13.3	15.1	47.5	43.8	28.1	9.8	29.3	29.0	18.7	23.0	21.6
2,3,3',4',5,6-, 2,3,3',4',5',6-HexaCB	#163,164	***	4.1	4.2	2.8	3.7	9.6	10.9	5.8	2.0	6.9	6.9	4.1	4.1	4.7
2,3,3',4,4',5-HexaCB	#156	0.0005	2.0	2.3	1.5	1.8	3.8	5.0	2.0	1.0	4.3	4.3	1.5	2.8	2.0
2,2',3,3',4,4',5-HeptaCB	#170	***	3.2	3.3	2.4	2.8	5.0	6.2	2.9	1.3	5.6	5.5	2.8	2.9	2.6
2,2',3,4,4',5,5'-HeptaCB	#180	***	11.7	13.9	10.3	10.4	21.5	25.4	11.6	4.5	20.1	20.0	11.9	10.8	9.5
2,2',3,4,4',5,6-, 2,2',3,4',5,6'-HeptaCB	#182,187	***	5.2	5.1	3.8	5.0	12.2	10.1	8.7	2.5	8.9	8.9	7.2	4.3	6.1
分析血液脂肪量(mg)			5.6	4.5	4.5	7.4	5.1	5.2	4.9	5.2	4.4	4.8	5.4	4.7	5.5

表3-4 PCB測定結果(血液サンプル)

Congeners	(BZ#)	TEF	Sample No.												
			H10	K01	K02	K03	K04	K05	K06	K07	K08	K09	K10	M01	M02
2,4,4',5-TetraCB	#74	***	10.2	3.0	4.5	4.2	6.1	8.2	6.3	6.6	9.9	8.4	24.1	2.5	2.0
2,3,4,4',5-PentaCB	#118	0.0001	14.7	5.8	7.9	5.4	15.9	17.3	13.0	16.4	15.4	20.6	36.0	2.3	4.7
2,2',4,4',5-PentaCB	#99	***	7.4	2.5	3.9	2.8	9.4	6.0	8.6	12.7	9.8	7.9	14.9	1.0	1.6
2,2',3,4,4',5-HexaCB	#138	***	18.5	6.1	11.4	10.8	21.6	21.1	24.3	31.4	26.6	22.7	42.1	2.5	5.2
2,2',3,4',5,5'-HexaCB	#146	***	8.1	3.9	4.5	4.5	7.6	9.8	11.3	13.1	8.5	9.9	16.3	0.6	1.2
2,2',4,4',5,5'-HexaCB	#153	***	51.8	24.4	30.8	28.1	56.2	58.7	64.1	84.9	56.6	56.7	101.7	5.4	10.0
2,3,3',4',5,6-, 2,3,3',4',5',6-HexaCB	#163,164	***	12.1	5.9	7.4	7.8	11.8	14.6	13.6	17.4	13.0	13.7	24.4	1.0	1.8
2,3,3',4,4',5-HexaCB	#156	0.0005	5.7	2.8	3.0	3.2	4.1	6.3	5.4	6.8	5.6	5.8	10.2	0.3	0.7
2,2',3,3',4,4',5-HeptaCB	#170	***	7.9	3.4	4.4	5.0	7.0	10.3	8.4	12.0	9.0	9.0	15.7	0.7	1.0
2,2',3,4,4',5,5'-HeptaCB	#180	***	31.2	22.2	18.6	19.8	27.5	43.9	37.5	49.4	34.4	35.2	62.4	3.2	4.7
2,2',3,4,4',5,6-, 2,2',3,4',5,6'-HeptaCB	#182,187	***	16.2	10.4	9.5	10.1	21.0	21.3	27.0	32.3	19.7	22.6	37.2	1.6	1.8
分析血液脂肪量(mg)			4.9	5.7	4.5	4.2	4.6	6.1	5.7	4.7	4.2	5.2	4.9	5.0	5.0