

C. 結果及び考察

1. 臭素化ダイオキシン類(PBDD/DFs)、臭素化ジフェニルエーテル(PBDEs)、臭素化ビフェニル(PBBs)及びコプラナー塩素・臭素化ビフェニル(PXBs)の分析

1-1 高分解能ガスクロマトグラフ/高分解能質量分析計(HRGC/HRMS)における測定条件の検討

これまでHRGC/HRMS測定で、臭素系化合物の種類によって異なるGCカラムを用いてきた。しかしながら、HRGC/HRMSにおけるカラム交換は非常に煩雑で時間がかかる。そこで、カラム交換の手間を省いて効率よく測定を行うために、現在行っている全ての臭素系化合物の分析を1種類のカラムで高感度に測定できないかを検討した。GCカラムとして5%フェニルメチルポリシロキサン系のDB-5、ENV-5MS、SLB-5MS、VF-5MSを検討した。

図3-5にPBBsをそれぞれ3種類のカラム(DB-5、ENV-5MS、SLB-5MS)で測定した際のクロマトグラムを示す。PBBsはいずれのカラムにおいても感度は良好であった。しかし、DB-5では4臭素化体の#80のピークに5臭素化体の#103の分解物と考えられるピークが重なった。図6-8にPBDD/DFsを測定した際のクロマトグラムを示す。PBDD/DFsはDB-5で測定した際に感度が良好であり、特に高臭素化体が高感度であった。SLB-5MSで測定した際は、開封直後では感度及び分離が良好であったが、徐々に高臭素化ダイオキシン(7,8臭素化体)のピーク強度が弱くなった。ENV-5MS、VF-5MSも8臭素化体のピーク強度が弱かった。図9-11にPBDEsを測定した際のクロマトグラムを示す。

PBDEsはいずれのカラムにおいても異性体分離は良好であった。10臭素化体の感度はDB-5とSLB-5MSで測定した場合が良好であった。SLB-5MSではTBBPA(エチル化体)についても良好な感度が得られた(図12)。

以上の結果より、今回検討したカラムでは、すべての臭素系化合物を1種類のカラムで分析することはできないと考えられた。そこでPBDEs、PBBs、TBBPA(エチル化体)はSLB-5MSで、PBDD/DFsはDB-5で測定することにした。今後、5%フェニルメチルポリシロキサン系以外のカラムについて同様の検討を行いたいと考えている。

1-2 高臭素化体のHRGC/HRMS測定における高感度化の検討

臭素系化合物では高臭素化体ほどHRGC/HRMSにおける感度が悪い。高感度化が課題である。特に8臭素化ダイオキシンや10臭素化ジフェニルエーテルの感度は低臭素化体の100分の1から10分の1と極めて悪い。そこで、今回は分析カラムのMS側を液化炭酸で一時的に冷却することによって、感度を向上させることを試みた。図13にコールドトラップした場合としない場合のDeBDEのクロマトグラムを示す。DeBDEの保持時間直前に分析カラムのMS側の部分を一時的に冷却することによって、ピーク強度で1.3倍、S/N比で3倍の向上が見られた。また、ピーク形状についてもシャープな形状が得られるようになった。今後、他の異性体や試料において検討していきたい。

1-3 PBBs 及び PXBs のカラムクロマトグラフィにおける分画試験

食品試料における PBBs 及び PXBs の前処理法を検討するため、シリカゲルカラム、フロリジルカラム、活性炭カラムにおける PBBs 及び PXBs の分画試験を行った。結果を表 11 及び 12 に示す。シリカゲルカラムでは PBBs 及び PXBs の全ての異性体で、回収率は 75%以上であり、良好であった。フロリジルカラムでは PBBs 全ての異性体が 80%以上第 1 画分に溶出していたが、活性炭カラムでは 3, 3', 4, 4'-TeBB、3, 3', 4, 4', 5, 5'-HxBB が第 2 画分に溶出していた。PXBs についてもフロリジルカラムで第 1 画分に 75%以上溶出されていた。これらの結果より PBBs 及び PXBs はフロリジルカラムで PBDEs と同様に第 1 画分（ヘキサン画分）に溶出すると考えられたため、実試料の分析を行う際、PBDEs と同じ方法で前処理を行い、測定溶液を調製することにした。

1-4 実試料の分析

個別食品として分析した 5 種類の魚介類の脂肪含量を表 13 に示す。今回購入した 5 種類の魚介類はすべて天然魚であるが、脂肪含量はタイの 0.42%からサバの 12.2%まで広範囲のものであった。

PBDD/DFs の結果を表 14 に示す。PBDD/DFs の分析では、アナゴから 2, 3, 7, 8-TeBDD と 2, 3, 7, 8-TeBDF が微量に検出され、暫定的に塩素化ダイオキシン類の毒性等価係数 (TEF) を用いて計算した TEQ 濃度は 0.015 pgTEQ/g であった。国産のアナゴにおける塩素化ダイオキシ

ン類の報告値（コプラナーPCB は除く）⁵⁾ は約 0.5 pgTEQ/g であることから、それと比較すると、今回の臭素化ダイオキシン類の検出値は非常に低いレベルであった。その他の 4 種類の試料からはいずれの異性体も検出されなかった。

PBDEs の結果を表 15 に示す。PBDEs の分析では、すべてのサンプルから、#49、#47、#100、#99、#154、#153、#209 などの異性体が検出された。平成 16 年の調査結果で、魚介類中 PBDEs 濃度は脂肪含量との相関がみられたが⁶⁾、今回分析した 5 件についても、脂肪含量の高い魚ほど PBDEs 濃度が高い傾向が見られた。また、検出された PBDEs 異性体比を図 14 に示すが、サバ、アジ、アナゴについては 4 臭素化体の #47 の割合が最も高く、キスとタイについては #47 と 10 臭素化体の割合が高かった。この魚種による異性体比の違いについても前回の結果と同様であった。

PBBs 及び PXBs の結果を表 16 に示す。タイ以外の 4 種類の魚から 4、5、6 臭素化体の異性体が検出された。4 種類の魚に共通して高い割合で検出されたのは、2, 2', 5, 5'-TeBB (#52) と 2, 2', 4, 4', 6, 6'-HxBB (#155) であった（図 15）。一方、PXBs は今回の試料からは検出されなかった。

PBBs のこれまで得られている知見として、最近の国内の報告で^{1), 2)}、6 臭素化体を主成分とする市販の難燃剤に最も高い割合で含まれる異性体である 2, 2', 4, 4', 5, 5'-HxBB (#153) が焼却灰や廃棄物、生物試料（肝臓や卵）から主要な異性体として検出されている。今回検出された #155 は、ヨーロッパの報告で、

タラやサバなどの魚介類から高く検出されている例があるが⁷⁾、これは高臭素化体を主成分とした難燃剤の成分が脱臭素化されたものではないかと推察されている。PBBsについては、国内の環境試料や食品、人体試料の調査例はまだ少ないため、汚染源や人体影響についてまだ明らかではない部分が多い。今後、さらに多くの魚介類試料や、その他の食品試料についての調査を行うことによって、汚染実態や汚染源などについての重要な知見を得ることができると考えられる。

2 三地域で採取された魚介食品中のヘキサプロモシクロドデカン汚染実態調査

三地域からの魚介食品でのHBCD汚染調査結果を表17に示した。三地域とは、すなわち、比較的非工業地域としての九州、瀬戸内という半閉鎖水域かつ工業地域としての中国・四国、大消費都市及び工場地域としての中部である。ΣHBCDsの中央値は、九州(0.04 ng/g ww, 1.1 ng/g lw) < 中国・四国(0.08 ng/g ww, 7.0 ng/g lw) < 中部(1.2 ng/g ww, 100 ng/g lw)の順に汚染が高くなり、湿重量比で中部/九州では30倍、中部/中国・四国では15倍の汚染レベルの差が、脂肪重量比で中部/九州では91倍、中部/中国・四国では14倍という差があった。各地域で、九州では1例、中国・四国では2例、中部では8例が1ng/g wwを越えていた。また、そのうちの数例は点汚染源の影響ではないかと思われるような、中央値から外れた汚染濃度を示す試料(中国・四国のマカリなど)があった。今回の試料は魚

種を限定した調査ではなく、摂取する頻度の高い魚種を10~13と広く選択している。一般的に、中央値はおおよそその地域の魚介一般の濃度に近いと考えられる。以上の結果から、海産食品のHBCD汚染が地域によっては、進んでいることが示唆されたため、再度、加工食品1件及び養殖魚介6件を除いた天然生育の魚介類32種38件に限定して比較した(図16)。また、同時に、既に得られているΣPBDEs汚染濃度とも比較した。この場合、ΣHBCDsの中央値は、九州(0.04 ng/g ww, 1.4 ng/g lw) < 中国・四国(0.06 ng/g ww, 11 ng/g lw) < 中部(2.9 ng/g ww, 150 ng/g lw)の順に高くなった。図16に示すように、中央値で中部/九州では73倍、中部/中国・四国では48倍の汚染レベルの差が、脂肪ベースでは中部/九州では107倍、中部/中国・四国では14倍という差があった。一方、ΣPBDEsの中央値は、九州(0.10 ng/g ww) ≦ 又は ≧ 中国・四国(0.11 ng/g ww) < 中部(0.33 ng/g ww)で、3地域間では、中央値で中部/九州では3.3倍、中部/中国・四国では3倍の汚染レベルの差に留まった。これらの結果から、魚介類食品において、ΣPBDEsや我々がすでに報告したTBBPA汚染濃度⁶⁾に比べると、中部のΣHBCDsは、他地域と比べて一段と汚染濃度が大きくなっていることが示唆される。今後はPBDE汚染とともにHBCD汚染の推移についても継続的に注視する必要があると考えられる。

D 結論

1 HRGC/HRMSの条件検討の結果、PBDEs、PBBs、PXBs及びTBBPAについては1種類

のカラム (SLB-5MS) で測定が可能であった。また、高臭素化体における高感度化の検討では、カラムの MS 側を一時的に冷却することによって、DeBDE の高感度検出ができた。魚試料の汚染調査では、アナゴから 4 臭素化ダイオキシンが微量に検出されたが、その他の魚からは PBDD/DFs は検出されなかった。PBDEs ではすべての魚から #49、#47、#100、#99、#154、#153、#209 などの異性体が検出され、PBBs では 4 種類の魚から 4-6 臭素化体の異性体が検出された。PXBs は今回の魚試料からはいずれの異性体も検出されなかった。

2 日本の 3 つの地域 (九州、中国・四国、中部) から集めた魚介食品 45 試料について HBCDs を分析した。ΣHBCDs の中央値は、九州 (0.04 ng/g ww, 1.1 ng/g lw) < 中国・四国 (0.08 ng/g ww, 7.0 ng/g lw) < 中部 (1.2 ng/g ww, 100 ng/g lw) の順に汚染が高くなり、この結果からも、海産食品の HBCD 汚染が地域によっては、進んでいることが示唆された。今後は PBDE 汚染とともに HBCD 汚染の推移についても継続的に注視する必要があると考えられる。

E 参考文献

- 1) Watanabe, K., Senthilkumar, K., Masunaga, S., Takasuga, T., Iseki, N., Morita, M. : Brominated organic contaminants in the liver and egg of the common cormorants (*Phalacrocorax carbo*) from Japan. Environ. Sci. Technol., 38, 4071-4077, 2004.
- 2) Ishikawa, Y., Nose, K., Suzuki, G., Takigami, H., Noma, Y., Sakai, S. : Quantitative analysis of polybrominated biphenyls (PBBs) in Japanese waste samples. Organohalogen Compounds, 68, 1776-1779, 2006.
- 3) Ohta, S., Tokusawa, H., Magota, H., Nakao, T., Aozasa, O., Miyata, H., Ochiai, T., Shimizu, Y. : Contamination levels of polychlorinated / brominated coplanar biphenyls (Co-PXBs) in the market foods and mother's milk of Japan. Organohalogen Compounds, 69, 2018-2021, 2007.
- 4) Murata, S., Nakagawa, R., Ashizuka, Y., Hori, T., Yasutake, D., Tobiishi, K., Sasaki, K. : Brominated flame retardants (HBCD, TBBPA and ΣPBDEs) in market basket food samples of northern Kyushu district in Japan. Organohalogen Compounds, 69, 1985-1988, 2007.
- 5) 厚生労働科学研究「ダイオキシン類による食品汚染実態の把握に関する研究」平成 16 年度 研究報告書
- 6) Ashizuka, Y., Nakagawa, R., Hori, T., Yasutake, D., Tobiishi, K., Sasaki, K. : Determination of brominated flame retardants and brominated dioxins in fish collected from three regions of Japan. Mol. Nutr. Food Res., 52, 273-283, 2008.
- 7) von der Recke, R., Vetter, W. :

GC/ECNI-MSMS residue pattern of hexabrominated biphenyls in marine mammals and fish. *Organohalogen Compounds*, 69, 449-452, 2007.

F 研究発表

1 論文発表

・Ashizuka, Y., Nakagawa, R., Hori, T., Yasutake, D., Tobiishi, K., Sasaki, K.: Determination of brominated flame retardants and brominated dioxins in fish collected from three regions of Japan. *Mol. Nutr. Food Res.*, 52, 273-283, 2008.

・Murata, S., Nakagawa, R., Ashizuka, Y., Hori, T., Yasutake, D., Tobiishi, K., Sasaki, K.: Brominated flame retardants (HBCD, TBBPA and Σ PBDEs) in market basket food samples of northern Kyushu district in Japan. *Organohalogen Compounds*, 69, 1985-1988, 2007.

・Ashizuka, Y., Nakagawa, R., Murata, S., Yasutake, D., Hori, T., Horie, M., Nishioka, C., Takahashi, T., Tamura, I., Teshirogi, T., Sasaki, K.: Daily intake of brominated dioxins and

polybrominated diphenyl ethers estimated by market basket study. *Organohalogen Compounds*, 69, 2769-2772, 2007.

2 学会・協議会発表

・村田さつき, 芦塚由紀, 中川礼子, 堀就英, 佐々木久美子: 食品中の臭素系難燃剤の分析. 第44回全国衛生化学技術協議会年会 (2007.11).

・芦塚由紀, 中川礼子, 村田さつき, 堀就英, 安武大輔, 堀江正一, 西岡千鶴, 高橋哲夫, 田村征男, 手代木年彦, 佐々木久美子: マーケットバスケット方式による臭素化ダイオキシン及び臭素化ジフェニルエーテルの摂取量調査. 第16回環境化学討論会 (2007.6).

・村田さつき, 芦塚由紀, 中川礼子, 堀就英, 佐々木久美子: 食品の有機臭素系化合物分析とその汚染濃度. 第16回環境化学討論会 (2007.6).

File:8EA375 81-739 Acq:12-JUL-2007 11:02:36 GC FI+ Voltage SIR Autospec-UltimaZ
 Sample#1 File Text:R=10000 SLB-5ms-PBB 420V IuL Inj Text:PBS 50pg Exp:SLB-5MS-PBB
 389.8077

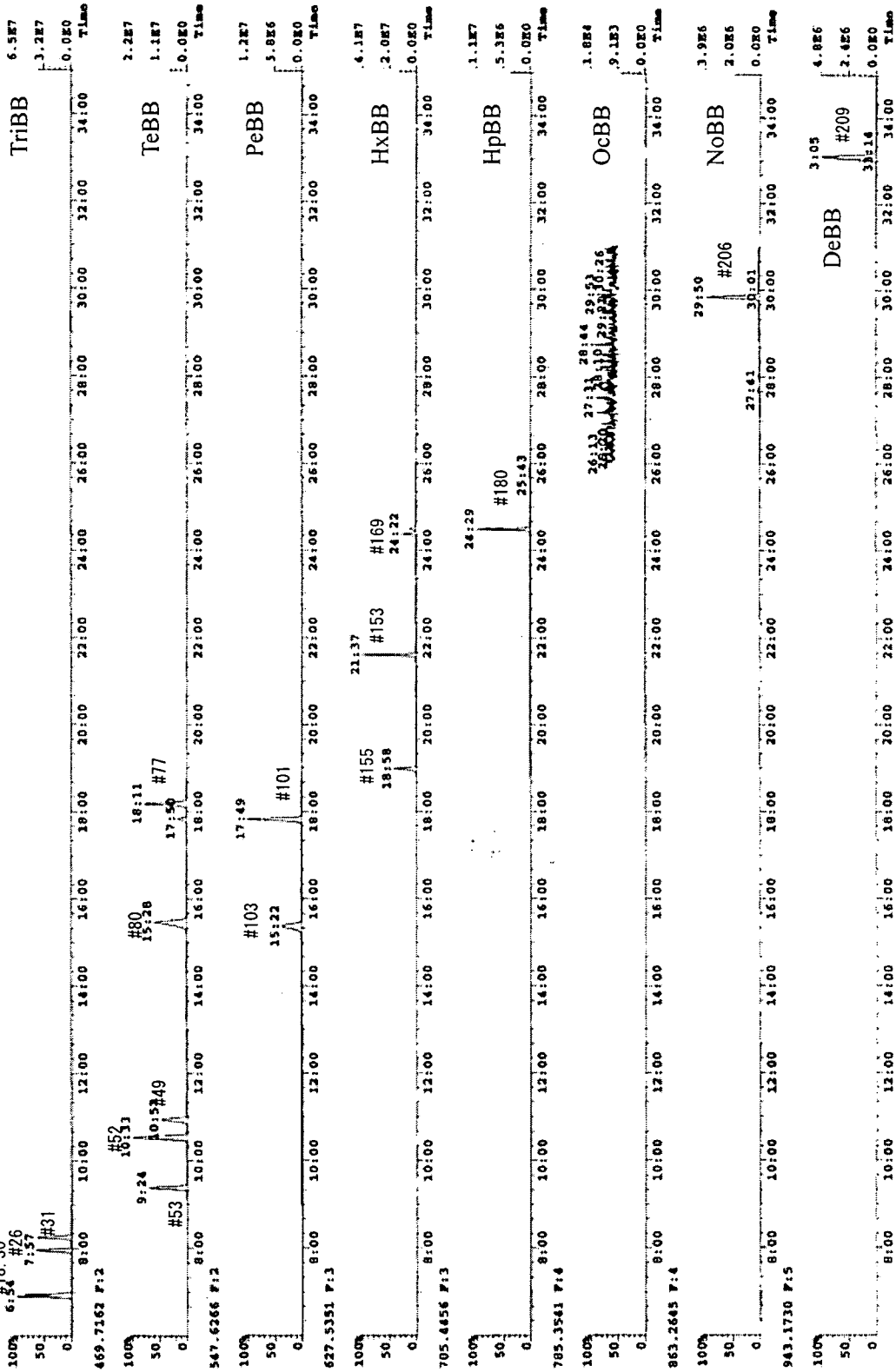


図 3 PBBs のクロマトグラム (GC カラム : DB-5, 30 m × 0.25 mm, 0.1 μm)

File: SZA372 #1-1222 Acq10-JUL-2007 13:49:42 GC EL+ Voltage 5kV Autospic-Ultimate
 Sample#1 File Text: N-10000 SIB-Sms-PBB #20V InL InJ Text: PBB 300g Exp: ENV-5MS-PBB
 389.8077

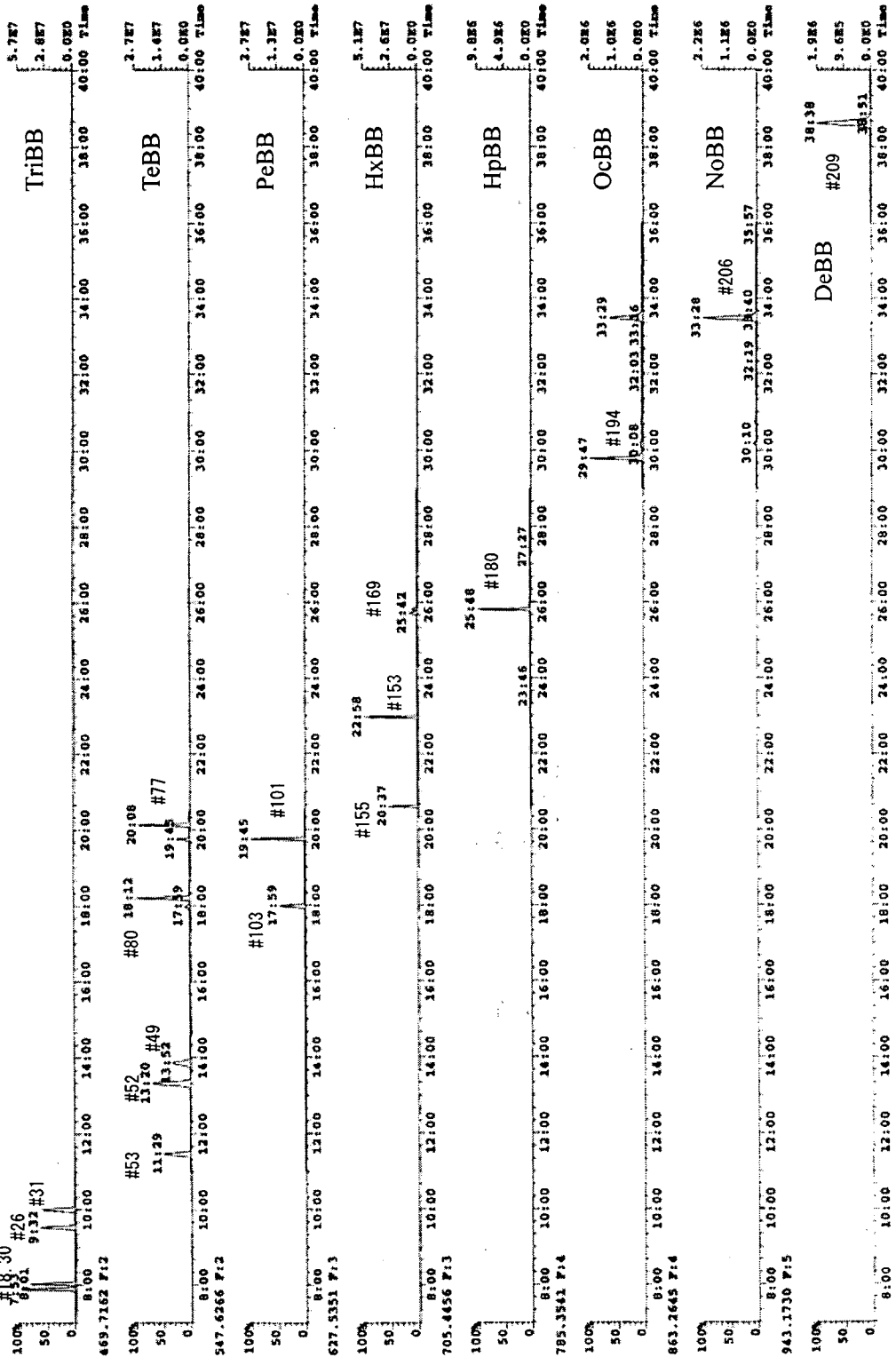


図 4 PBBs のクロマトグラム (GC カラム : ENV-5MS, 30 m × 0.25 mm, 0.1 μm)

File:SRM376 #1-740 Acq:13-JUL-2007 10:23:56 GC RI+ Voltage 81K Autospec-Ultima2
 Sample1 File Text:R=10000 SLB-5MS-PBB 420V InL InJ Text:PBB 50pp
 389.8077 Exp:SLB-5MS-PBB

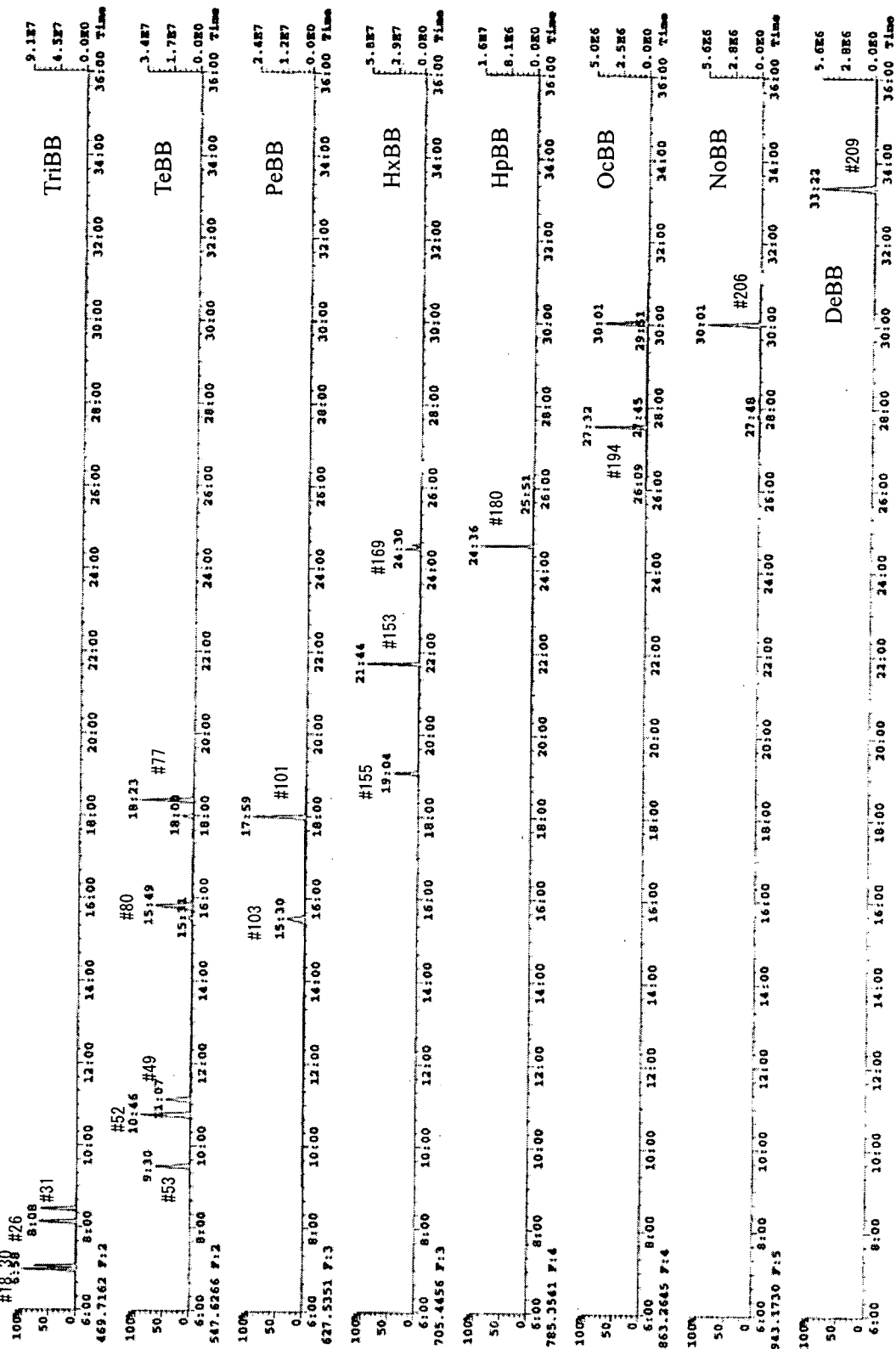


図5 PBBsのクロマトグラム (GCカラム: SLB-5MS, 30 m x 0.25 mm, 0.1 μm)

File:SEA373_81-251 Acq:12-JUL-2007 09:04:26 GC FI+ Voltage: SFR Autospec-UltraMax
 Sample1 File Text:R=10000 BFX3-BR 420V InJ Text:FBDD/DF 10pp Exp:BFX3-BR2
 495.6904 F:2

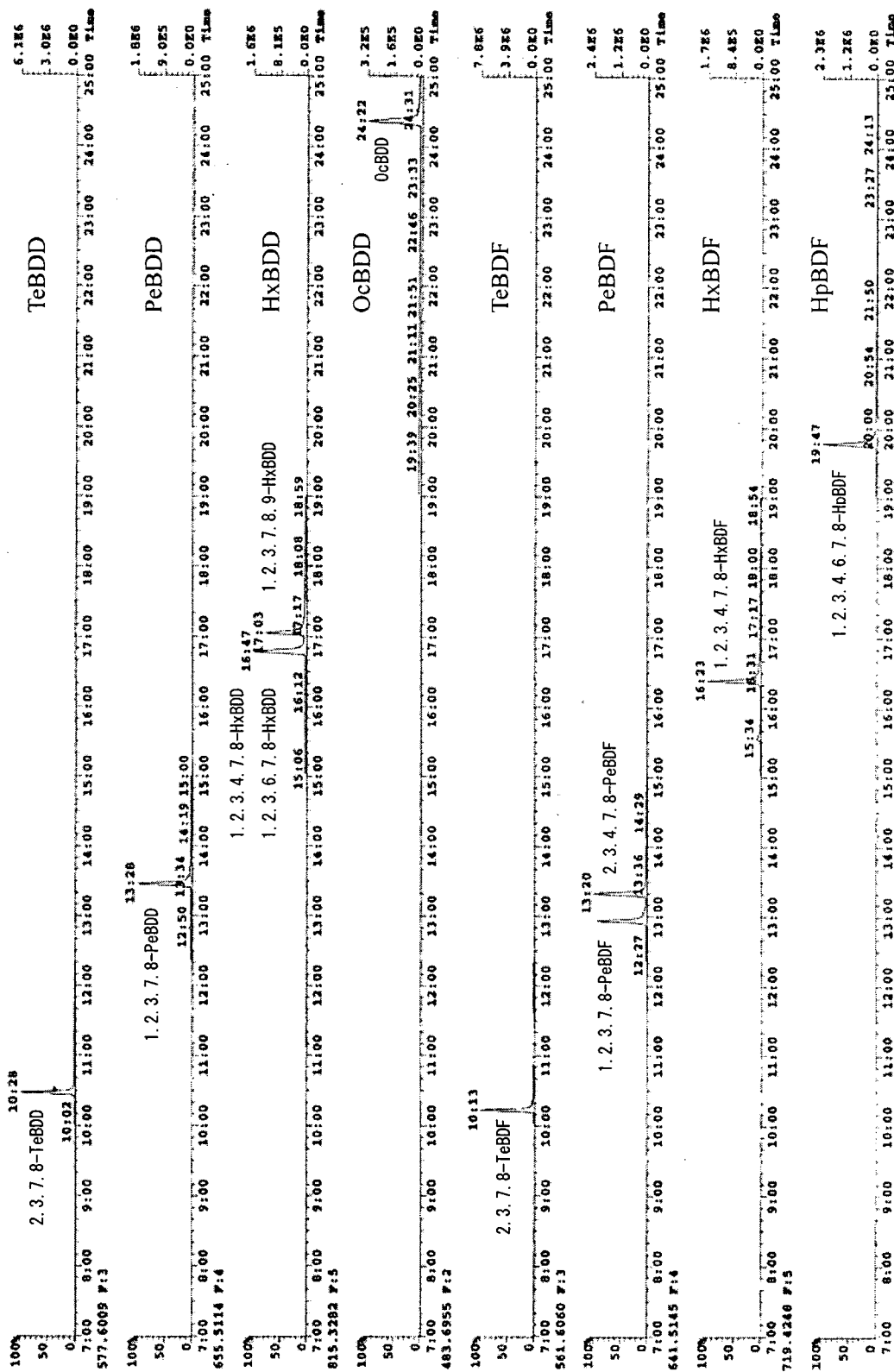


図 6 PBDD/DFs のクロマトグラム (GC カラム : DB-5, 30 m × 0.25 mm, 0.1 μm)

File:SEA369 81-323 Acq:10-JUL-2007 09:39:54 GC E1c Voltage SIR Autospec-DilLineAR Exp:ENV-5MS-PRND
 Sample#1 File Text:R=10000 BPIX=BR 450V IOL Inj Text:PBDD/DF 10Pq
 499.6904 P:2

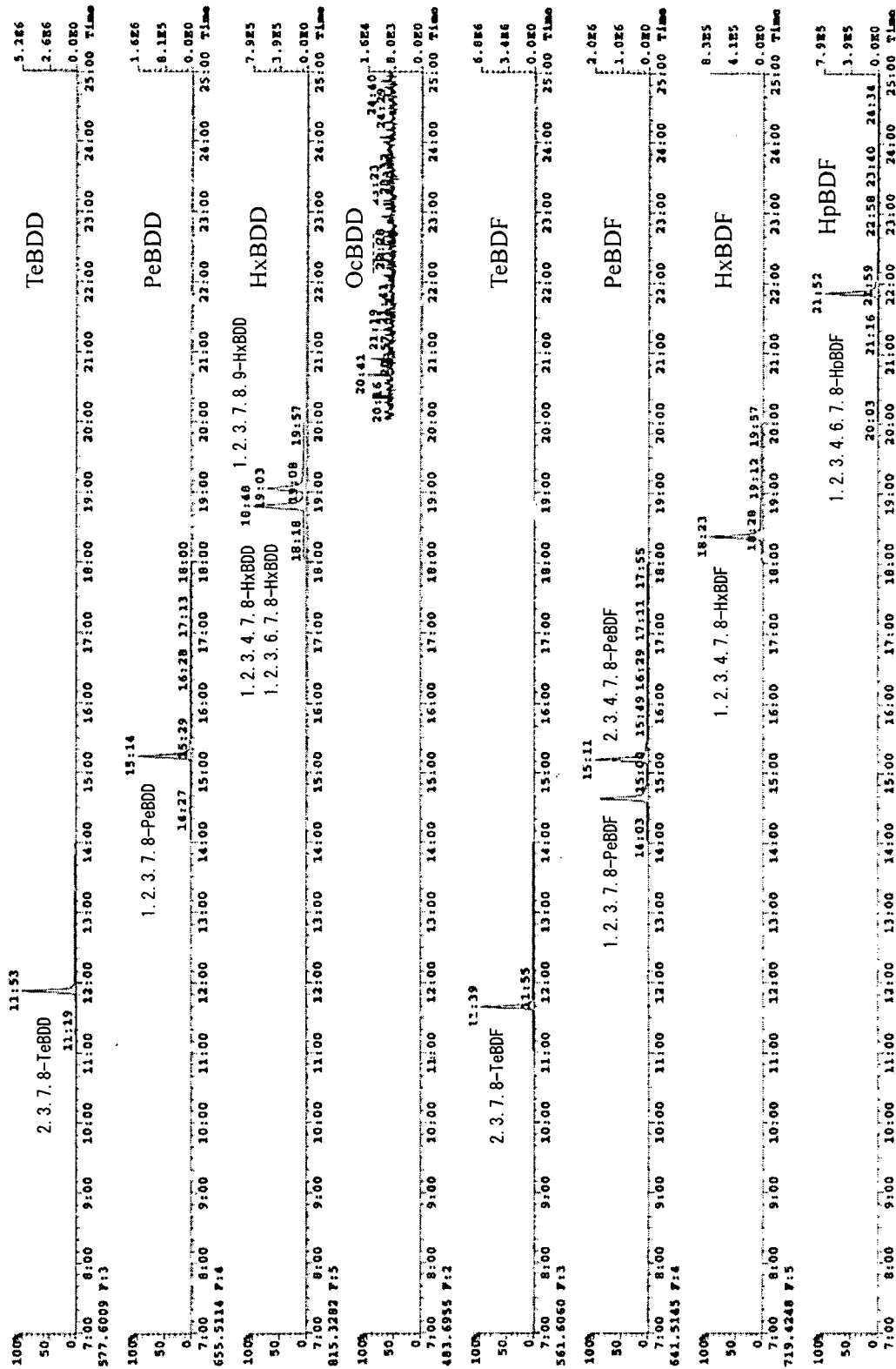


図 7 PBDD/DFs のクロマトグラム (GC カラム : ENV-5MS, 30 m × 0.25 mm, 0.1 μm)

File:SEA378 01-251 Acq:13-JUL-2007 11:52:56 GC EI+ Voltage:519 Antospec-Ultimate
 Sample#1 File Text:R=10000 RPX5-BR 420V IOL Inj Text:PRND/DP 10DP EXP:RPX5-BR2
 499.6304 P:2

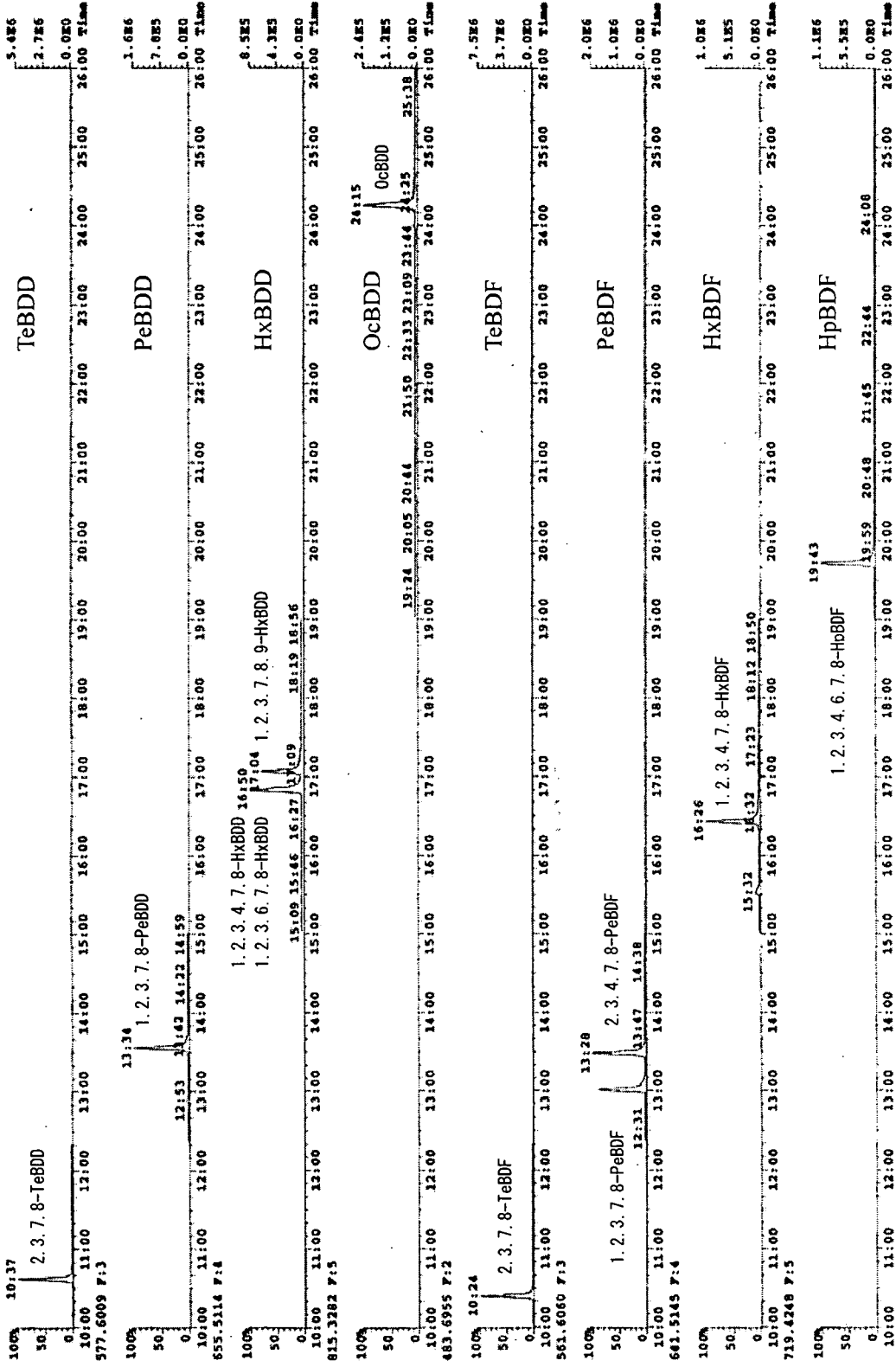


図 8 PBDD/DFs のクロマトグラム (GC カラム : SLB-5MS, 30 m × 0.25 mm, 0.1 μm)

File:SEA374 81-493 Acq:12-JUL-2007 10:17:54 GC ET. Voltage SIR Autospec-Uptime# Exp:SLB-5MS-PRDE
 Sample#1 File Text:R-10000 SLB-5MS-PRDE 420V IOL Inj Text:PRDE 20Py
 695_8027 #17 #28

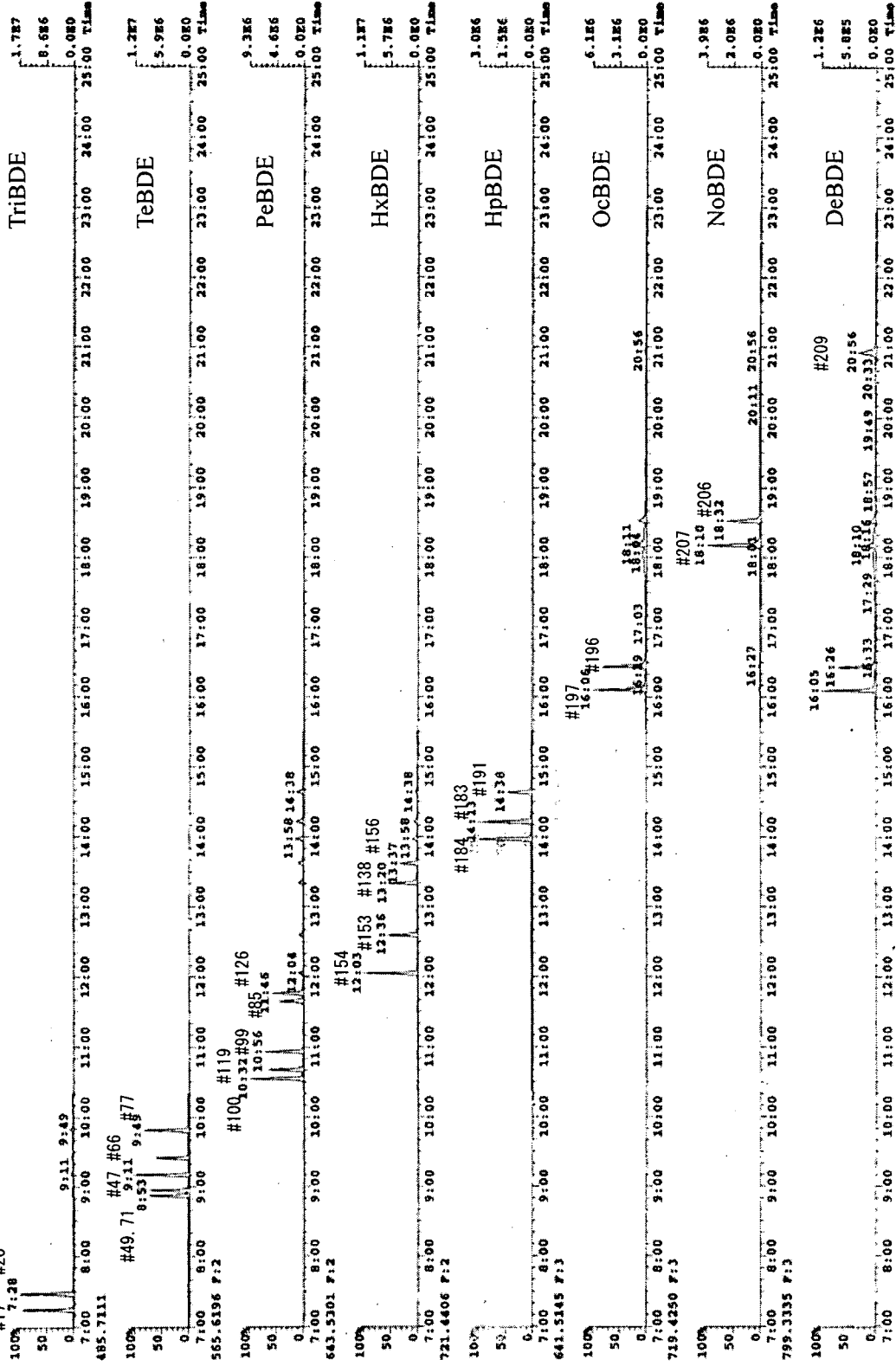


図9 PBDEsのクロマトグラム (GCカラム: DB-5, 30 m × 0.25 mm, 0.1 μm)

File: S23266 #1-569 ACQ: 9-JUL-2007 14:04:54 GC EL+ Voltage SW Autospec-Ultimate
 Sample#1 File Test: R=10000 ENV-5MS 420V IOL Inj Test: PRZE 20pp Exp: ENV-5MS-PRZE
 405-8027

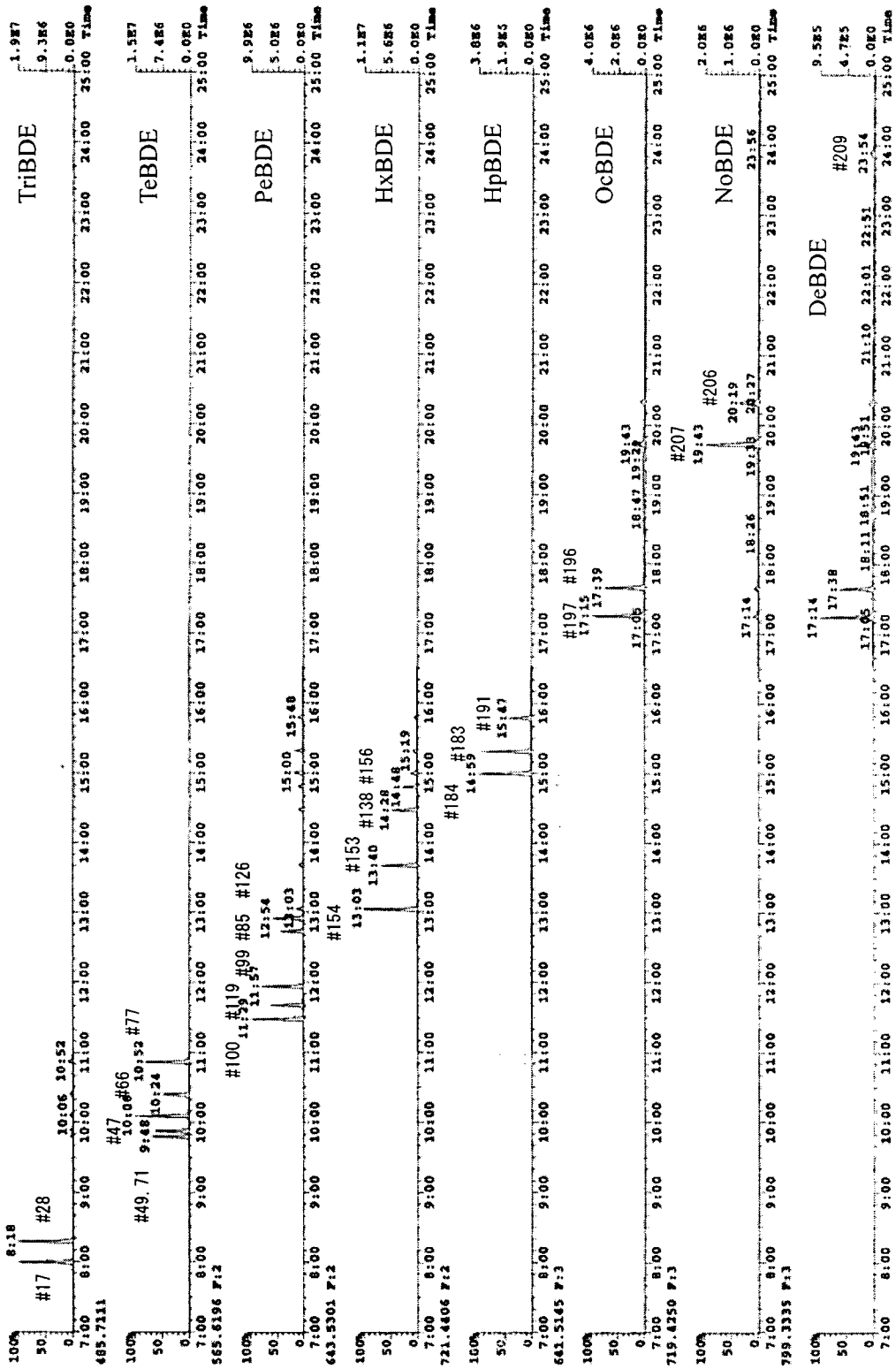
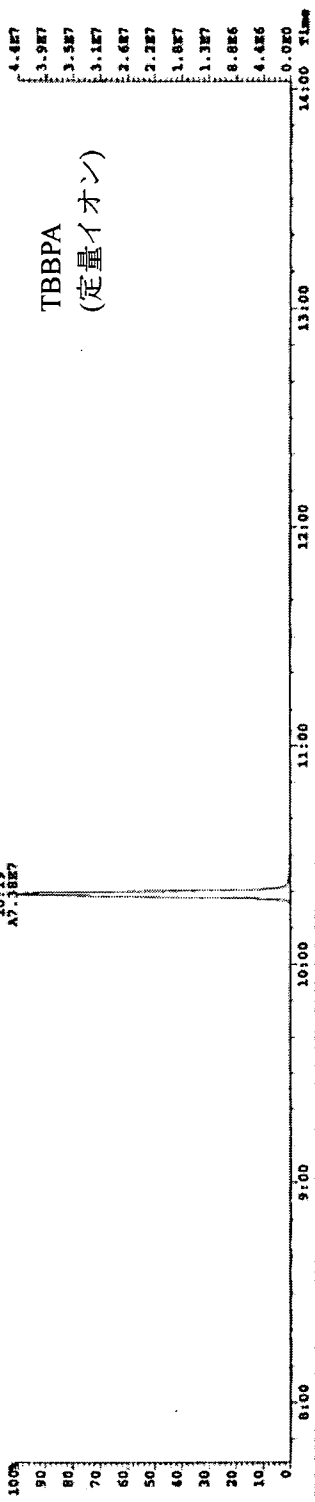
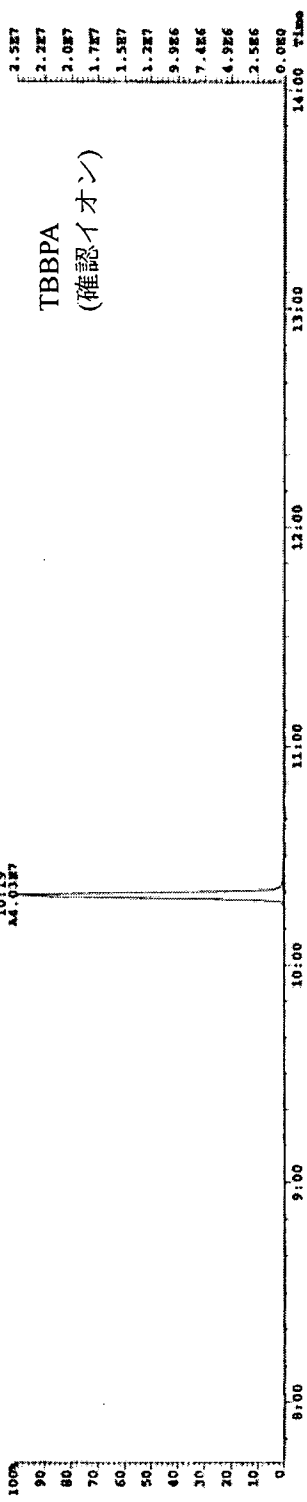


図 10 PBDEs のクロマトグラム (GC カラム: ENV-5MS, 30 m × 0.25 mm, 0.1 μm)

File:SEA351 01-1319 Acq:131-MAY-2007 11:03:38 GC FI+ Voltage HIR Autospec-Ultimate
 Sample1 File Text:10000 TBBPA 420V 2ul Inj Tent:TBBPA 50pg EXP:DS5-TBBPA
 526.7286 SMO(1,3) SSUB(128,15,-3.0) PWD(3,3,3,0.10%,6220.0,0.00%,F,F)
 10:19
 A7.38E7



536.7609 SMO(1,3) SSUB(128,15,-3.0) PWD(3,3,3,0.10%,3068.0,0.00%,F,F)
 10:19
 A4.03E7



540.7699 SMO(1,3) SSUB(128,15,-3.0) PWD(3,3,3,0.10%,3668.0,0.00%,F,F)
 10:19
 A5.99E7

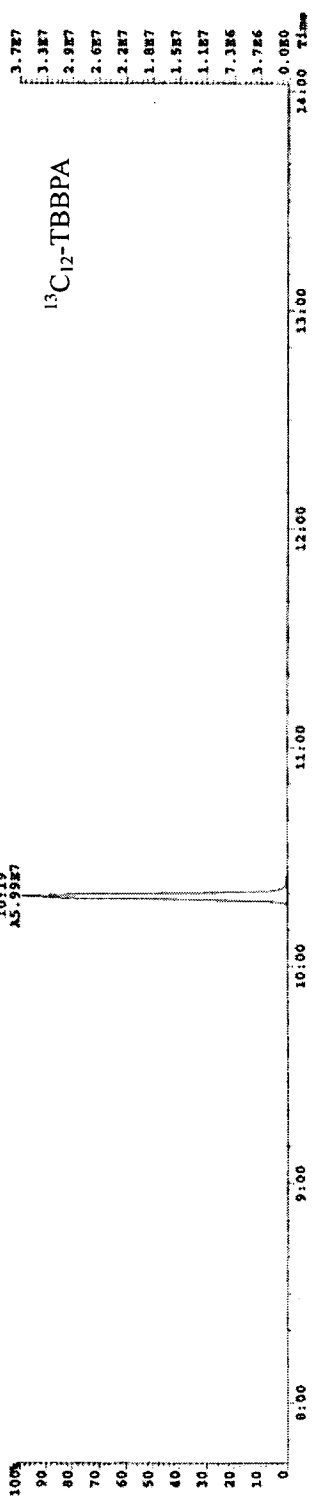


図 12 TBBPA (エチル化体) のクロマトグラム (GC カラム : SLB-5MS, 30 m x 0.25 mm, 0.1 μm)

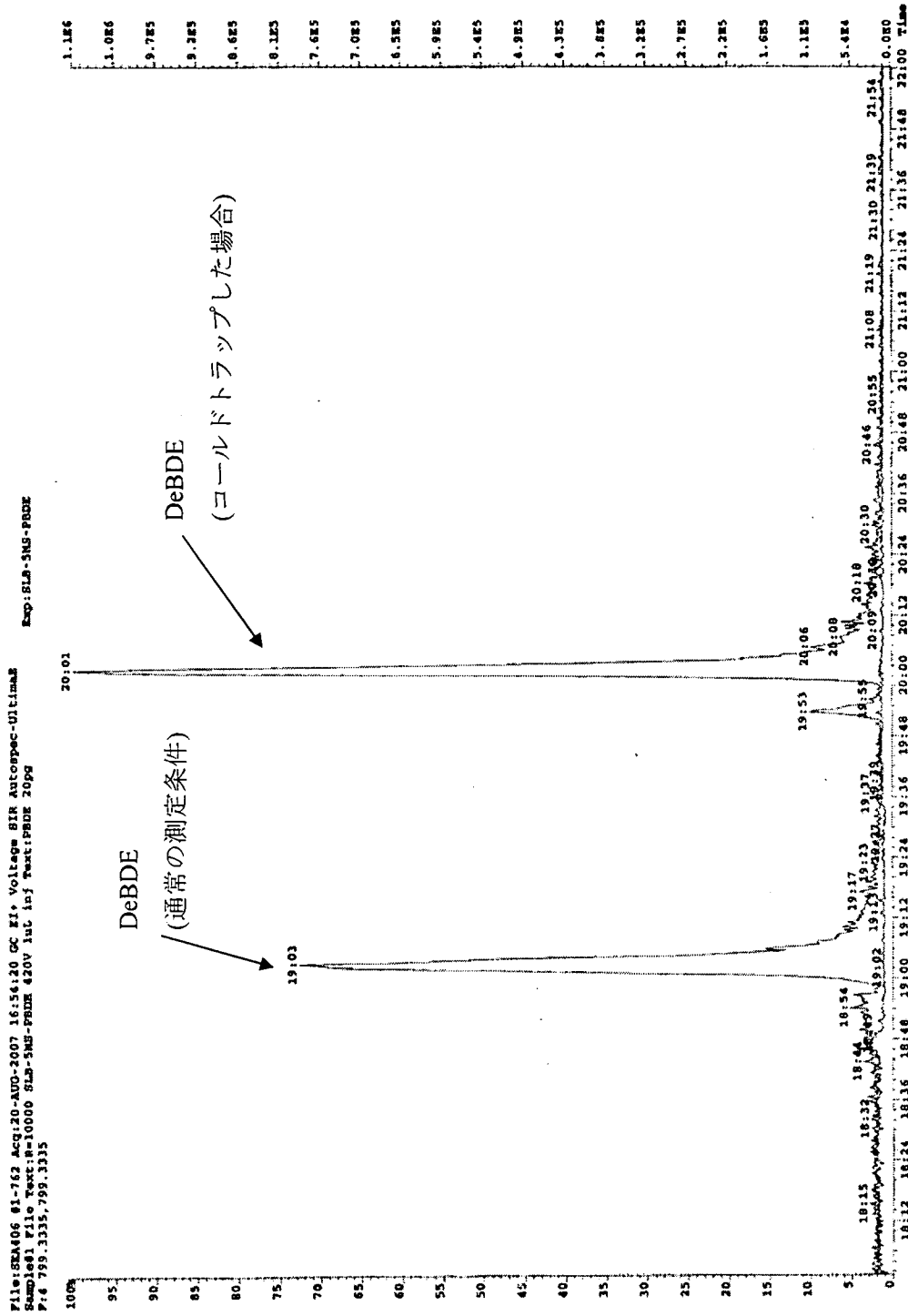


図 13 通常の測定とコールドトラップした場合の DeBDE のクロマトグラム (100 pg 注入)

表 11 カラムクロマトグラフィーにおける PBBs の回収率 (%)

	シリカゲルカラム	フロリジルカラム		活性炭カラムカラム	
		第 1 画分	第 2 画分	第 1 画分	第 2 画分
2,2',5-TriBB (#18)	75.2	82.1	0.05	66.7	0.3
2,4,6-TriBB (#30)	78.2	84.3	0.04	71.5	0.4
2,3',5-TriBB (#26)	87.9	92.6	0.08	84.8	1.1
2,4',5-TriBB (#31)	87.8	92.4	0.09	85.4	1.2
2,2',5,6'-TeBB (#53)	91.9	95.5	—	92.1	—
2,2',5,5'-TeBB (#52)	94.8	97.5	—	92.6	—
2,2',4,5'-TeBB (#49)	95.6	96.1	—	95.0	—
3,3',5,5'-TeBB (#80)	101.0	102.5	—	78.9	18.6
3,3',4,4'-TeBB (#77)	106.7	88.2	—	—	105.2
2,2',4,5',6'-PeBB (#103)	86.0	88.5	—	93.7	0.4
2,2',4,5,5'-PeBB (#101)	90.6	88.9	—	97.2	—
2,2',4,4',6,6'-HxBB (#155)	96.9	96.3	0.06	98.9	—
2,2',4,4',5,5'-HxBB (#153)	99.8	99.7	—	98.4	—
3,3',4,4',5,5'-HxBB (#169)	112.0	91.5	19.2	—	98.9
2,2',3,4,4',5,5'-HpBB (#180)	100.9	100.7	—	97.3	—
2,2',3,3',4,4',5,5'-OcBB (#194)	93.9	102.4	—	105.1	—
2,2',3,3',4,4',5,5',6-NoBB (#206)	124.9	106.9	—	125.7	—
DeBB (#209)	97.7	103.8	—	103.6	—

表 12 カラムクロマトグラフィーにおける PXBs の回収率 (%)

	シリカゲルカラム	フロリジルカラム	
		第 1 画分	第 2 画分
4'-Br-2,3',4,5'-TeCB	92.7	95.2	0.2
4'-Br-2,3,3',4'-TeCB	94.3	96.5	0.1
4'-Br-3,3',4,5'-TeCB	96.0	89.8	7.5
4'-Br-2,3,3',4,5'-PeCB	94.1	97.4	0.0
4'-Br-3,3',4,5,5'-PeCB	92.6	75.0	19.0
3',4',5'-Br-3,4'-DiCB	94.1	87.7	7.4

表 13 調査した魚介類の脂肪含量 (%)

	アナゴ	アジ	キス	サバ	タイ
脂肪含量 (%)	9.88	4.88	0.60	12.2	0.42

表 14 魚介類中の PBDD/DFs 濃度 (pg/g ww)

	検出下限値	アナゴ	アジ	キス	サバ	タイ
2,3,7,8-TeBDD	0.01	0.01	ND	ND	ND	ND
1,2,3,7,8-PeBDD	0.01	ND	ND	ND	ND	ND
1,2,3,4,7,8/1,2,3,6,7,8-HxBDD	0.05	ND	ND	ND	ND	ND
1,2,3,7,8,9-HxBDD	0.05	ND	ND	ND	ND	ND
OcBDD	1	ND	ND	ND	ND	ND
2,3,7,8-TeBDF	0.01	0.05	ND	ND	ND	ND
1,2,3,7,8-PeBDF	0.01	ND	ND	ND	ND	ND
2,3,4,7,8-PeBDF	0.01	ND	ND	ND	ND	ND
1,2,3,4,7,8-HxBDF	0.05	ND	ND	ND	ND	ND
1,2,3,4,6,7,8-HpBDF	0.1	ND	ND	ND	ND	ND
Total PBDD/DFs		0.06	ND	ND	ND	ND
3-Br-2,7,8-CDF	0.01	ND	ND	ND	ND	ND
2-Br-3,7,8-CDD	0.01	ND	ND	ND	ND	ND
1-Br-2,3,7,8-CDF	0.01	ND	ND	ND	ND	ND
1-Br-2,3,7,8-CDD	0.01	ND	ND	ND	ND	ND
2-Br-3,6,7,8,9-CDD	0.05	ND	ND	ND	ND	ND
1-Br-2,3,6,7,8,9-CDD	0.05	ND	ND	ND	ND	ND
1-Br-2,3,4,6,7,8,9-CDD	0.05	ND	ND	ND	ND	ND
Total MoBrPCDD/DFs		ND	ND	ND	ND	ND
PBDD/DFs+MoBrPCDD/DFs		0.06	ND	ND	ND	ND
Total TEQ* pgTEQ/g		0.015	0	0	0	0

*暫定的に塩素化ダイオキシンの毒性等価係数(TEF)を用いて計算した。

表 15 魚介類中の PBDEs 濃度 (pg/g ww)

	検出下限値	アナゴ	アジ	キス	サバ	タイ
2,2',4'-TriBDE (#17)	0.1	0.34	0.90	0.24	2.14	ND
2,4,4'-TriBDE (#28)	0.1	20.9	9.36	2.64	20.9	0.72
2,2',4,5'-TeBDE (#49)	0.1	41.4	60.3	8.10	86.6	0.24
2,3',4',6'-TeBDE (#71)	0.1	ND	ND	ND	ND	ND
2,2',4,4'-TeBDE (#47)	0.1	166	124	31.4	189	5.97
2,3',4,4'-TeBDE (#66)	0.1	3.47	2.30	1.13	25.3	0.50
3,3',4,4'-TeBDE (#77)	0.1	0.37	ND	ND	1.88	0.11
2,2',4,4',6'-PeBDE (#100)	0.1	24.0	33.1	4.73	53.3	0.98
2,3',4,4',6'-PeBDE (#119)	0.1	5.43	7.19	1.05	24.6	0.11
2,2',4,4',5'-PeBDE (#99)	0.1	13.7	0.31	0.49	49.7	0.41
2,2',3,4,4'-PeBDE (#85)	0.1	2.18	1.94	0.50	4.35	0.17
2,2',4,4',5,6'-HxBDE (#154)	0.1	48.1	50.2	7.99	119	2.29
2,2',4,4',5,5'-HxBDE (#153)	0.1	25.3	1.12	1.64	28.2	0.19
2,2',3,4,4',5'-HxBDE (#138)	0.1	ND	ND	ND	ND	ND
2,3,3',4,4',5'-HxBDE (#156)	0.1	ND	ND	ND	ND	ND
2,2',3,4,4',6,6'-HpBDE (#184)	0.1	0.45	ND	ND	1.62	ND
2,2',3,4,4',5',6'-HpBDE (#183)	0.1	1.30	0.52	0.15	1.40	ND
2,3,3',4,4',5',6'-HpBDE (#191)	0.1	ND	ND	ND	ND	ND
2,2',3,3',4,4',6,6'-OcBDE (#197)	0.2	0.47	0.25	ND	0.54	ND
2,2',3,3',4,4',5,6'-OcBDE (#196)	0.2	ND	ND	ND	ND	ND
2,2',3,3',4,4',5,6,6'-NoBDE (#207)	0.5	1.35	1.11	0.72	ND	ND
2,2',3,3',4,4',5,5',6'-NoBDE (#206)	0.5	1.32	1.29	0.86	ND	ND
DeBDE (#209)	1	49.8	40.2	33.8	8.43	5.92
Total PBDEs		406	334	95.4	617	17.6

表 16 魚介類中の PBBs 及び PXBs 濃度 (pg/g ww)

		検出下限値	アナゴ	アジ	キス	サバ	タイ	
P B B	2,2',5'-TriBB (#18)	0.1	ND	ND	ND	ND	ND	
	2,4,6'-TriBB (#30)	0.1	ND	ND	ND	ND	ND	
	2,3',5'-TriBB(#26)	0.1	ND	ND	ND	ND	ND	
	2,4',5'-TriBB (#31)	0.1	ND	ND	ND	ND	ND	
	2,2',5,6'-TeBB (#53)	0.1	ND	ND	ND	ND	ND	
	2,2',5,5'-TeBB (#52)	0.1	0.820	0.285	0.185	0.544	ND	
	2,2',4,5'-TeBB (#49)	0.1	0.168	0.467	ND	0.462	ND	
	3,3',5,5'-TeBB (#80)	0.1	ND	ND	ND	ND	ND	
	3,3',4,4'-TeBB (#77)	0.1	ND	ND	ND	ND	ND	
	2,2',4,5',6'-PeBB (#103)	0.1	ND	ND	ND	ND	ND	
	2,2',4,5,5'-PeBB (#101)	0.1	ND	0.138	ND	ND	ND	
	2,2',4,4',6,6'-HxBB (#155)	0.1	0.454	0.542	0.114	0.491	ND	
	2,2',4,4',5,5'-HxBB (#153)	0.1	0.392	ND	ND	0.478	ND	
	3,3',4,4',5,5'-HxBB (#169)	0.1	ND	ND	ND	ND	ND	
	2,2',3,4,4',5,5'-HpBB (#180)	0.2	ND	ND	ND	ND	ND	
	2,2',3,3',4,4',5,5'-OcBB (#194)	0.2	ND	ND	ND	ND	ND	
	2,2',3,3',4,4',5,5',6'-NoBB (#206)	0.2	ND	ND	ND	ND	ND	
	DeBB (#209)	0.5	ND	ND	ND	ND	ND	
	Total PBBs			1.834	1.432	0.299	1.975	ND
	P X B	4'-Br-2,3',4,5'-TeCB	0.05	ND	ND	ND	ND	ND
4'-Br-2,3,3',4'-TeCB		0.05	ND	ND	ND	ND	ND	
4'-Br-3,3',4,5'-TeCB		0.05	ND	ND	ND	ND	ND	
4'-Br-2,3,3',4,5'-PeCB		0.05	ND	ND	ND	ND	ND	
4'-Br-3,3',4,5,5'-PeCB		0.05	ND	ND	ND	ND	ND	
3',4',5'-Br-3,4'-DiCB		0.05	ND	ND	ND	ND	ND	
Total PXBs				ND	ND	ND	ND	ND

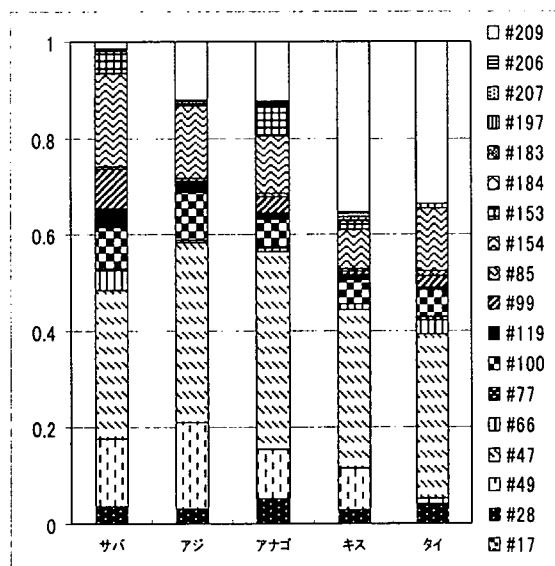


図 14 魚介類中 PBDEs の異性体比

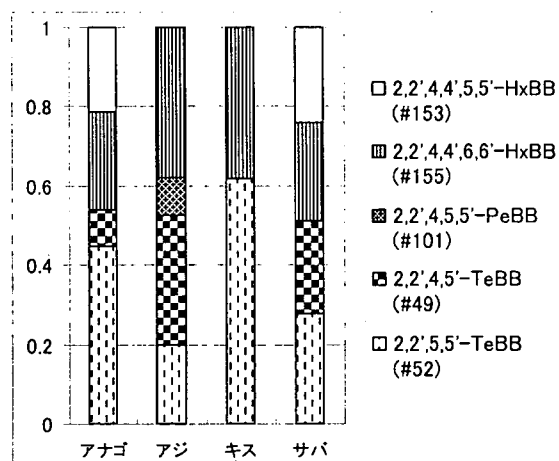


図 15 魚介類中 PBBs の異性体比

表17 魚介類食品中ヘキサブロモシクロデカン (HBCDs) 等総括表

購入場所	No.	魚名	天然・養殖の別	脂肪含量 (%)	α-HBCD	β-HBCD	γ-HBCD	ΣHBCD	ΣHBCD	ΣPBDE*	ΣPBDE*
					ng/g ww	ng/g ww	ng/g ww	ng/g ww	ng/g lw	ng/g ww	ng/g lw
九州	1	マアジ	天然	5.67	0.17	ND	ND	0.17	3.0	0.28	4.9
	2	アナゴ	天然	7.52	0.09	ND	ND	0.09	1.1	0.11	1.5
	3	アラカブ	天然	0.37	ND	ND	ND	0.00	0.00	0.05	12
	4	ヤリイカ	天然	0.38	ND	ND	ND	0.00	0.00	0.17	44
	5	コバイワシ	天然	0.74	0.05	ND	ND	0.05	6.7	0.13	18
	6	エビ足赤	天然	0.19	ND	ND	ND	0.00	0.00	0.01	2.8
	7	カマス	天然	9.88	0.73	ND	0.27	1.01	10	0.70	7.1
	8	キビナゴ	天然	1.82	0.11	ND	0.02	0.13	7.2	0.09	5.0
	9	クツゾコ	天然	1.42	0.04	ND	ND	0.04	2.6	0.08	5.3
	10	マサバ	天然	20.4	0.17	ND	0.18	0.35	1.7	0.30	1.5
	11	タイ	天然	1.01	ND	ND	ND	0.00	0.00	0.05	5.0
	12	タチウオ	天然	0.33	0.13	ND	ND	0.13	40	0.11	33
	13	ツケアミ	加工食品	1.02	ND	ND	ND	0.00	0.00	0.05	4.9
	14	ヒラメ	天然	0.30	ND	ND	ND	0.00	0.00	0.04	13
	15	モチ魚	天然	3.93	ND	ND	ND	0.00	0.00	0.06	1.7
		中央値		1.02	0.04	0.00	0.00	0.04	1.1	0.09	5.0
		最大値		20.4	0.73	0.00	0.27	1.0	40	0.70	44
		最小値		0.19	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	1.5
中国・四国	1	地アジ	天然	2.28	0.25	ND	ND	0.25	11	0.12	5.1
	2	アナゴ	天然	12.7	5.8	ND	3.2	9.0	71	0.31	2.5
	3	エビ	天然	0.49	ND	ND	ND	0.00	0.00	0.01	1.9
	4	カキ	養殖	2.26	0.14	ND	0.02	0.16	7.0	0.05	2.2
	5	カレイ	天然	0.35	ND	ND	ND	0.00	0.00	0.03	9.3
	6	ゲタ	天然	0.35	0.04	0.01	0.01	0.06	18	0.02	4.8
	7	サゴシ	天然	1.91	0.16	ND	0.33	0.49	26	0.41	21
	8	サヨリ	天然	0.92	0.22	ND	0.05	0.27	29	0.11	12
	9	マダイ	天然	1.10	ND	ND	ND	0.00	0.00	0.05	4.5
	10	マダイ	養殖	7.11	0.22	ND	ND	0.22	3.1	0.30	4.3
	11	イイダコ	天然	0.26	ND	ND	ND	0.00	0.00	0.02	6.2
	12	ハモ	天然	3.40	0.05	ND	ND	0.05	1.5	0.31	9.2
	13	マグロ	天然	0.51	ND	ND	ND	0.00	0.00	0.04	8.6
	14	ママカリ	天然	4.53	18	2.4	57	77	1700	0.53	12
	15	メバル	天然	0.50	0.05	ND	0.03	0.08	16	0.12	24
		中央値		1.10	0.05	0.00	0.00	0.08	7.0	0.11	6.2
		最大値		12.7	18	2.4	57	77	1700	0.53	24
		最小値		0.26	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	1.9
中部	1	アジ	天然	4.72	3.8	ND	1.1	4.9	100	0.66	14
	2	スルメイカ	天然	1.19	0.07	ND	0.08	0.15	12	0.06	5.5
	3	カマス	天然	4.50	3.8	ND	1.4	5.3	120	0.53	12
	4	キス	天然	0.46	0.23	ND	0.09	0.32	70	0.03	5.8
	5	サゴシ	天然	1.30	0.74	ND	1.8	2.5	190	0.41	32
	6	サバ	天然	13.7	14	ND	7.1	21	150	1.8	13
	7	サワラ	天然	11.3	5.8	0.24	18	24	210	2.9	26
	8	スズキ	天然	0.72	8.0	0.35	15	23	3300	0.33	46
	9	セイゴ	天然	0.98	1.9	ND	0.98	2.9	300	0.18	18
	10	タイ	養殖	8.12	0.31	0.02	ND	0.33	4	0.68	8.4
	11	タイ	養殖	9.36	0.71	ND	ND	0.71	8	0.42	4.5
	12	タイ	養殖	4.10	0.26	0.01	0.08	0.35	9	0.19	4.6
	13	タコ	天然	0.35	0.49	0.09	0.62	1.2	350	0.02	4.8
	14	ブリ	養殖	17.3	0.33	ND	ND	0.33	2	2.8	16
	15	ボラ	天然	1.69	0.28	ND	0.13	0.41	24	0.25	15
		中央値		4.10	0.71	0.09	0.62	1.2	100	0.41	13
		最大値		17.3	14	0.35	18	24	3300	2.9	46
		最小値		0.35	0.07	0.00	0.00	0.15	1.9	0.02	4.5

*:平成16年度報告書より

統計量(中央値、最小値、合計)はND=0として計算