

がなく、また検出されても定量限界(0.5 ng/ml)付近と極微量であった。

C.4 次世代影響の検討

血中 PFOS 及び PFOA 濃度と妊娠期間(図 3)、及び新生児の発育(図 4)との関連性について調査したところ、新生児の発育とは関連性は得られなかったものの、妊娠回数の増加に伴って、母体血中 PFOS 及び PFOA 濃度が減少していく傾向が見られた。

D. 結論

本分析法では、前処理法にオンライン固相抽出法を用いることで、除タンパクのみという簡便な操作で PFCs の高感度・高精度な分析が可能となった。本分析法を母体血 447 検体に応用したところ、PFOS は全ての検体から、PFOA は 93.1%の検体から検出された。このことから、PFOS 及び PFOA に広く暴露している危険性が示唆された。さらに、妊娠回数の増加に伴い、母体血中 PFOS 濃度及び PFOA 濃度が減少していく傾向が確認された。今後、次世代影響や妊娠期疾患との関連性を見ていくために、疾病診断の精度や妊娠回数、年齢などを考慮し、統計解析を行う必要がある。

E. 参考文献

- 1) K. Kannan, S. Corsolini, J. Falandysz, G. Oehme, S. Focardi, J. P. Giesy: *Environ. Sci. Technol.*, 36, 3210 (2002) .
- 2) J. R. Thibodeaux, R. G. Hanson, J. M. Rogers, B. E. Grey, B. D. Barbee, J. H. Richards, J. L. Butenhoff, L. A. Stevenson, C. Lau: *Toxicol. Sci.*, 74, 369 (2003) .
- 3) A. K. Sohlenius, K. Andersson, J. DePierre: *J. Biochem.*, 285, 779 (1992) .
- 4) K. Inoue, F. Okada, R. Ito, S. Kato, S.

Sasaki, S. Nakajima, A. Uno, Y. Saijo, F. Sata, Y. Yoshimura, R. Kishi, H. Nakazawa: *Environ. Health Perspect.*, 112, 1204 (2004)

F. 発表

① 学会発表

- 1) The Society of Environmental Toxicology and Chemistry (SETAC North America 26th Annual Meeting) (America 2005, November) 「Measurement of perfluorooctane sulfonate and related perfluorinated compounds in human maternal and cord blood samples」 Hiroyuki Nakazawa, Migaku Kawaguchi, Hisao Nakata, Tsunenobu Katumata, Ayako Nakata, Fumio Okada, Koichi Inoue, Rie Ito, Koichi Saito, Yasuaki Saijo, Fumihiro Sata, Reiko Kishi.
- 2) 25th International Symposium on Halogenated Environmental Organic Pollutants and Persistent Organic Pollutants (POPs)-Dioxin 2005 (Canada 2005, August) 「Development of and analytical method of perfluorochemicals in human plasma and blood by liquid chromatography-tandem mass spectrometry coupled with solid-phase extraction using a column-switching technique」 Hisao Nakata, Ayako Nakata, Migaku Kawaguchi, Yusuke Iwasaki, Rie Ito, Koichi Saito, Hiroyuki Nakazawa.
- 3) Fluoros (Canada 2005, August) 「Blood levels of perfluorooctane sulfonate (PFOS) and its dietary and non-dietary determinants in middle-aged Japanese men from 10 regions

- nationwide」 Migaku Kawaguchi, Hisao Nakata, Fumio Okada, Koichi Ioue, Rie Ito, Koichi Saito, T. Hanaoka, S. Tsugane, Hiroyuki Nakazawa.
- 4) Fluoros (Canada 2005, August)
「 Determination of perfluorooctanesulfonic acid in human serum and semen samples by liquid chromatography-electrospray mass spectrometry」 Hisao Nakata, Migaku Kawaguchi, Terukaki Iwamoto, Koichi Inoue, Shiari Nozawa, Miki Yoshiike, Fumio Okada, Yusuke Iwasaki, Rie Ito, Koichi Saito, Hiroyuki Nakazawa.
- 5) 第66回分析化学討論会（北海道：2005年5月）
「カラムスイッチング - LC/MS/MS を用いた血液試料中有機フッ素系化合物の一斉分析法の構築」 仲田尚生, 中田彩子, 岡田文雄, 伊藤里恵, 井之上浩一, 斉藤貢一, 中澤裕之
- ② 発表論文
- 1) 仲田尚生, 中田彩子, 岡田文雄, 伊藤里恵, 井之上浩一, 斉藤貢一, 中澤裕之： オンライン固相抽出 - 高速液体クロマトグラフィー/タンデム質量分析計を用いるヒト血しょう中有機フッ素系化合物の一斉分析法の開発 *分析化学*, 54, 877-884 (2005)
- 2) INOUE K., OKADA F., ITO R., KAWAGUCHI M., OKANOUCI N. AND NAKAZAWA H.: Determination of perfluorooctane sulfonate, perfluorooctanoate and perfluorooctane sulfonylamide in human plasma by column-switching liquid chromatography - electrospray mass spectrometry coupled with solid phase extraction. *J. Chromatogr. B*, 810, 49-56 (2004)
- 3) INOUE K., OKADA F., ITO R., KATO S., SASAKI S., NAKAJIMA S., UNO A., SAIJO Y., SATA F., YOSHIMURA Y., KISHI R. AND NAKAZAWA H.: Perfluorooctane Sulfonate (PFOS) and Related Perfluorinated Compounds in Human Maternal and Cord Blood Samples: Assessment of PFOS Exposure in Susceptible Population during Pregnancy. *Environ. Health Perspect.*, 112, 1204-1207 (2004)

表 1 ヒト血漿試料における添加回収試験結果

測定対象物質	添加濃度 (ng/ml)	平均回収率 (%)	RSD (%)
PFOS	5	99.3	3.0
	50	97.5	6.3
PFOSA	1	98.3	4.2
	10	105	4.2
PFOA	1	100	8.9
	10	97.3	4.8
PFNA	1	96.7	8.4
	10	94.7	3.1
PFDA	1	93.3	8.7
	10	103	4.7

(n=6)

表 2 各機関の PFOS 及び PFOA 濃度の測定結果

A: 標準品測定結果

Lab. code	PFOS (ng/ml)	PFOA (ng/ml)	Lab. code	PFOS (ng/ml)	PFOA (ng/ml)
1	32.7	9.0	21	24.0	5.0
2	28.4	8.2	22	34.7	12.7
3	65.0	6.4	23	31.5	7.5
5	59.1	8.3	24	28.0	7
6	16.0	6.5	25	32.9	7.9
7	29.8	7.7	26	49.7	40.8
8	23.0	12.1	27	29.9	6.5
9	6.2	12.7	28	29.0	9.0
10	49.8	9.7	29	22.0	9.2
11	29.4	4.1	30	-	10
12	31.2	8.4	31	23.8	7.3
13	-	12.5	32	-	12.3
15	35.0	7.2	33	-	9.0
16	30.8	7.4	35	26.7	7.7
17	24.4	7.4	36	24.0	4
19	36.0	46	38	28.7	20.1
20	21.5	7.1			

B: 血漿試料測定結果

Lab. code	PFOS (ng/ml)	PFOA (ng/ml)
2	34.9	2.1
3	31.0	1.2
5	21.9	1.5
10	7.1	0.5
12	31	2.0
16	19.9	1.5
17	25.3	2.0
22	22.2	3.6
23	31.0	2.4
24	22.0	1.4
25	24.8	2.0
29	11.0	2.0
30	-	5.2
31 ^a	18.8	1.9
31 ^b	19.9	1.8
32	-	2.8
34	22.7	2.2
35	22.7	1.8

C: 全血試料測定結果

Lab. code	PFOS (ng/ml)	PFOA (ng/ml)
2	9.1	2.2
5	9.3	1.7
12	10.6	2.1
16	7.3	1.6
17	10.0	1.8
22	11.8	4.1
23	24.0	1.4
24	10.0	2.0
29	1.8	1.4
30	-	3.6
32	-	2.6

^aLab 31 method denoted "off"

^bLab 31 method denoted "on"

表3 母体血 (n=447) の測定結果

測定対象物質	検出範囲 (ng/ml)	検出率 (%)
PFOS	1.3~16.2	100
PFOSA	N.D.~0.9	4.8
PFOA	N.D.~5.3	93.1
PFNA	N.D.~1.6	43.9
PFDA	N.D.~2.1	11.8

(N.D. < 0.5 ng/ml, n = 447)

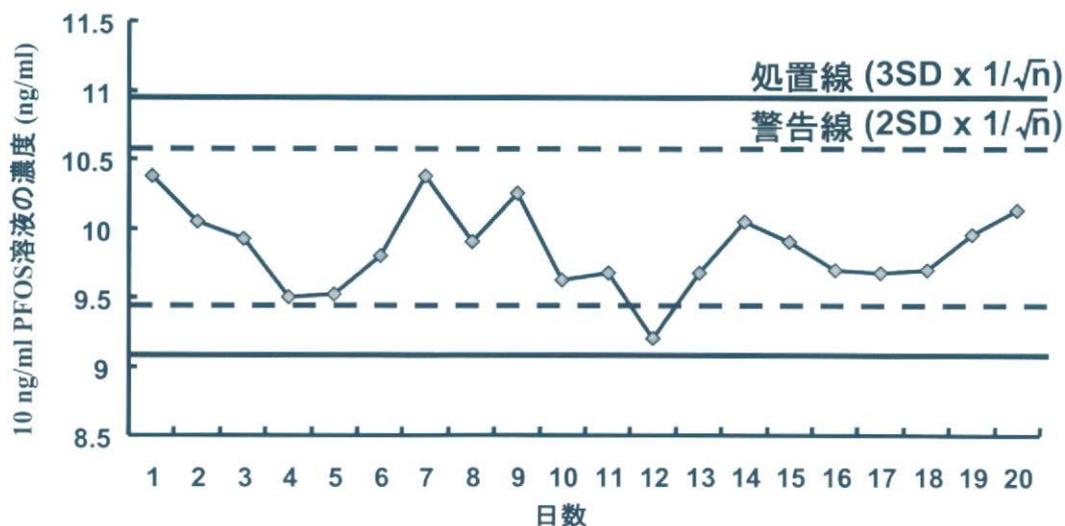
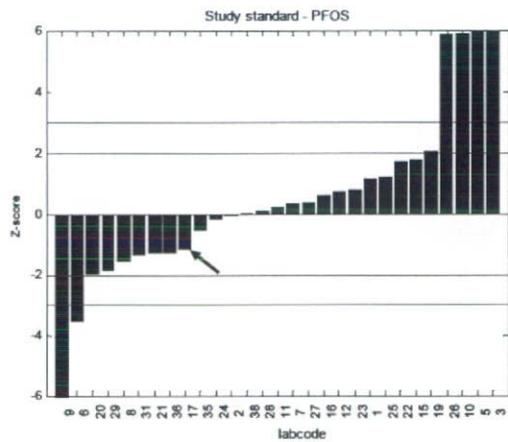
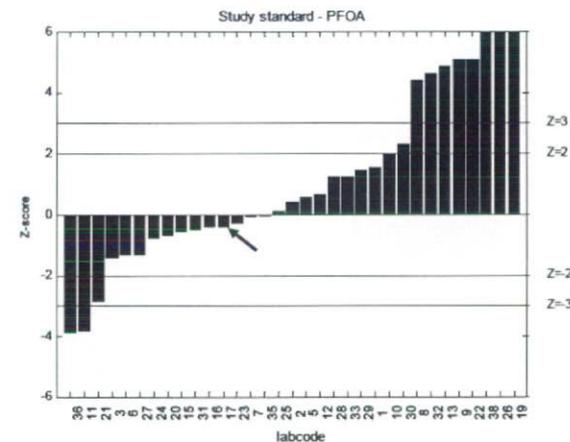


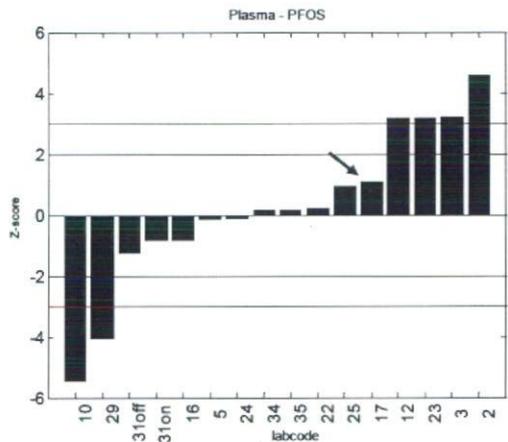
図1 PFOS 標準溶液(10 ng/ml)の日差変動



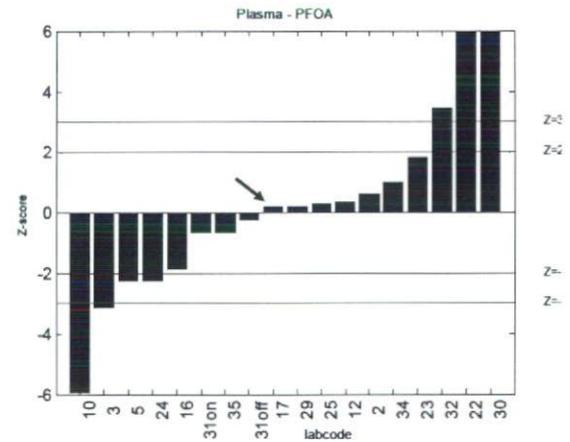
Z-Score plot of PFOS in standard solution



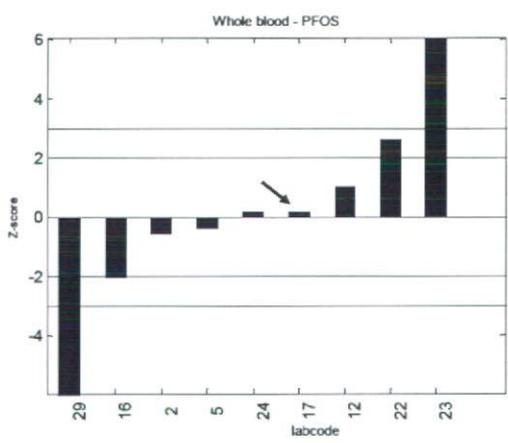
Z-Score plot of PFOA in standard solution



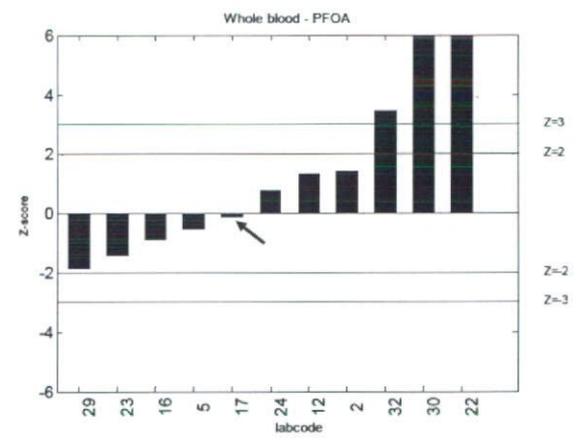
Z-Score plot of PFOS in human plasma



Z-Score plot of PFOA in human plasma



Z-Score plot of PFOS in human whole blood



Z-Score plot of PFOA in human whole blood

図2 標準品中及び生体試料中 PFOS,PFOA の Z-スコアプロット

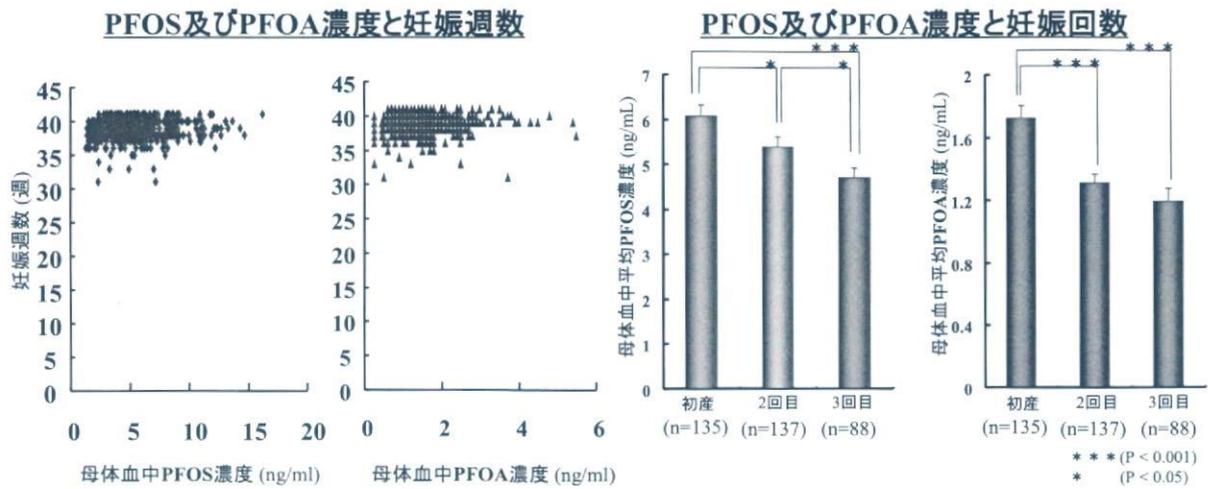


図3 母体血中PFOS及びPFOA濃度と妊娠期間との関連性

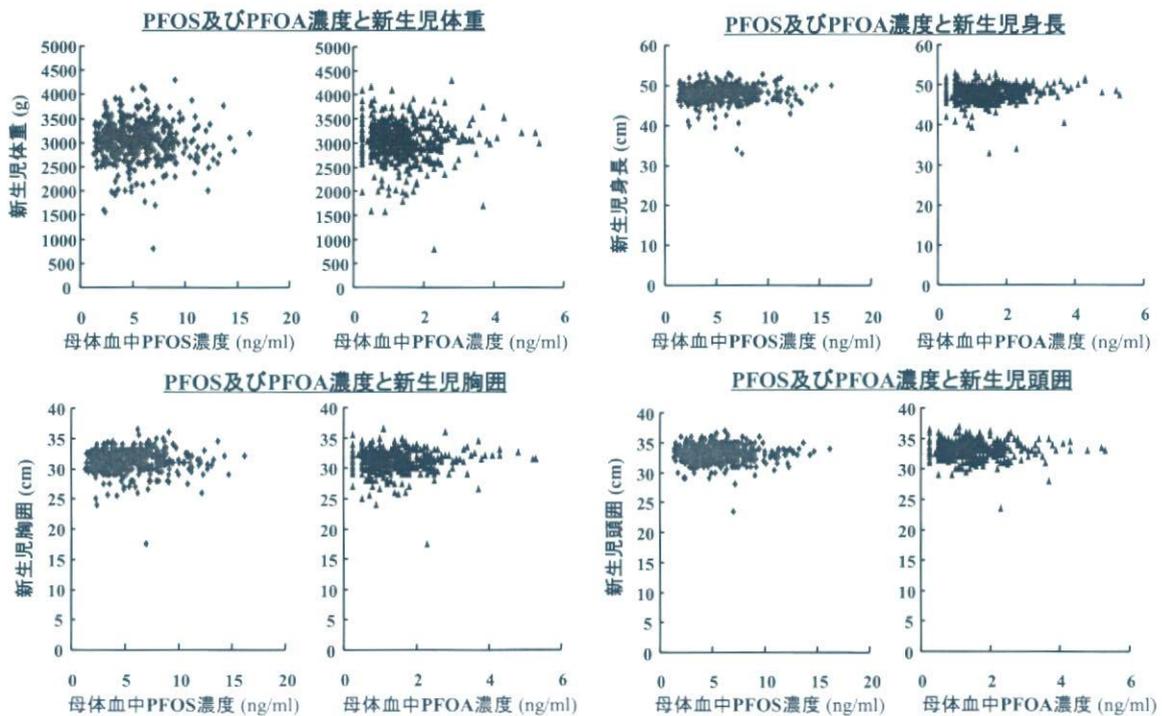


図4 母体血中PFOS及びPFOA濃度と新生児発育との関連性

高速液体クロマトグラフィー/タンデム質量分析計を用いた ヒト母乳中有機フッ素系化合物の分析

分担研究者 中澤 裕之 星薬科大学 薬品分析化学教室 教授

研究要旨

パーフルオロ化合物(PFCs)は、繊維類の撥水剤、消火剤及び界面活性剤等の日常生活用品に幅広く用いられており、生態系や生活環境中に汚染が広がっている。PFCsは難分解性・蓄積性であり、ヒト血液からも高頻度に検出される。また、動物実験において甲状腺ホルモンかく乱作用や催奇形性などが報告されており、臍帯血を介した胎児移行性についても明らかとなっている。更に、最近ではPFCsの母乳移行性についても示唆され、子どもに及ぼす影響が危惧されている。そこで本研究では高感度・選択性を有する高速液体クロマトグラフィー/タンデム質量分析法(LC/MS/MS)を用いてヒト母乳中PFCsの分析を行い、母乳栄養による乳児のPFCs暴露評価を行った。分析法に関しては、測定機器として高感度・選択性を有するLC/MS/MSを採用し、前処理法として固相抽出法を用いて試料の精製・濃縮を行った。本法を用いて検量線を作成したところ、0.2～20 ng/mlの範囲で良好な直線性が得られた。ヒト母乳試料を用いた添加回収試験においては、平均回収率93.4%以上(RSD<10.3, n=6)と良好な結果が得られた。本分析法を用いて母乳試料40検体を分析したところ、すべての検体からPFOSが検出され、他のPFCsについても高頻度で検出された。

【研究協力者】

斉藤 貢一

星薬科大学 薬品分析化学教室 助教授

伊藤 里恵

星薬科大学 薬品分析化学教室 助手

岩崎 雄介

星薬科大学 薬品分析化学教室 助手

A. 研究目的

パーフルオロオクタンスルホン酸(PFOS)及びパーフルオロオクタン酸(PFOA)に代表されるパーフルオロ化合物(PFCs)は、1950年代に製造が開始され、主に表面改質を目的として繊維類の撥水剤、界面活性剤などに幅広く用いられてきた。これらPFCsは難分解性・蓄積性¹⁾であり、1970年代には世界中の環境水や野生動物などの生態系を汚染しているとの報告がなされた。同様に、生活環境中にも汚染が広がっており、ヒト血液中からも非常に高頻度に検

出されることが知られている。毒性としては、動物実験において催奇形性、ペルオキシソーム増殖作用²⁾、甲状腺ホルモンへの影響³⁾などが報告されている。又、最近の報告においては、PFOSおよびPFOAが血液胎盤関門を通過して胎児へ移行する可能性が示唆され、次世代への影響について懸念されている⁴⁾。また、PFCsは母乳移行性についても危惧されており、母乳を介した乳児のPFCs暴露評価が必要とされている。そこで本研究では、高感度・選択性を有する高速液体クロマトグラフィー/タンデム質量分析法(LC/MS/MS)を用いてヒト母乳中PFCsを分析し、母乳栄養による乳児のPFCs暴露評価を行った。

B. 研究方法

B.1 試薬

PFHxS(Perfluorohexane sulfonate):
和光純薬工業社製

PFOS(Perfluorooctane sulfonate):

和光純薬工業社製

PFOA(Perfluorooctanoic acid):Fluka 社製

PFNA(Perfluorononanoic acid):Fluka 社製

¹³C₄-PFOS: WELLINGTON 社製

¹³C₂-PFOA: Perkin Elmer 社製

精製水: Millipore 社製 EDS Polisher 付き

Milli-Q gradient A10 で精製

メタノール: 和光純薬工業社製

HPLC 用及び残留農薬用 300

アセトニトリル: 和光純薬工業社製

HPLC 用

アセトン: 和光純薬工業社製

残留農薬用 300

酢酸アンモニウム: 和光純薬工業社製

特級

ギ酸:和光純薬工業社製 特級

酢酸:和光純薬工業社製 特級

25 %アンモニア水: 和光純薬工業製 特級

B. 2 試料前処理法

母乳は血液と比較してPFCsの濃度レベルが低いこと、また脂質などの夾雑物質を多く含むことから、試料を濃縮・精製する必要がある。そこで本研究では、測定試料の濃縮・精製を同時に行うことが出来る固相抽出法を採用した。固相抽出カートリッジとしては Waters 社製 Oasis WAX(3 cc, 60 mg)を用いて測定を行った。

母乳試料の調製法

-20℃で凍結保存してある母乳試料を常温で解凍し、十分に攪拌した後ホールピペットで正確に 5 ml 量り取り、ポリプロピレン製遠心管(IWAKI 社製, 50 ml)に移す。そこに 0.1 M ギ酸溶液を 15 ml 加え、内標準物質 20 µl を添加して攪拌し、15 分間超音波抽出を行う。次に遠心分離(6000 rpm, 10 分)を行い、固相抽出へと導入した。固相抽出カートリッジである Oasis WAX は、メタノール 4 ml、水 4 ml でコンデ

ィショニングを行い、試料溶液を負荷した後、pH4.7 の酢酸緩衝液 4ml、60%メタノール溶液 4ml、メタノール 4 ml で洗浄した。その後カートリッジを乾燥させ、3%アンモニア/アセトン溶液 3 ml で溶出を行った。溶出液は窒素気流下で完全乾固させ、水/アセトニトリル (50/50、v/v)100 µl で再溶解することで 50 倍に濃縮し、LC/MS/MS へと導入した。

標準試料の調製法

各標準品をメタノールに溶解させ、1.0 mg/ml の溶液を調製し、0.2-100 ng/ml の範囲で標準溶液を水/メタノール(50/50、v/v)で適宜希釈して測定用試料を調製した。

B. 3 測定条件

MS/MS 装置: Waters 社製 Quattro micro

LC 装置: Waters 社製アライアンス

HPLC2795 システム

LC 条件

- ・ 分析用カラム: Waters 社製 XBrige(2.1x50 mm、2.5 µm)
- ・ 移動相: アセトニトリル+1.0 mM 酢酸アンモニウム溶液(10:90→70:30 v/v、0-12 分)
- ・ 流速: 0.2 ml/min
- ・ カラム温度: 40℃
- ・ 注入量: 20 µl

MS 条件

- ・ イオン化法: Electrospray(ESI)
Negative
- ・ Drying gas: N₂(50 L/min、350℃)
- ・ Nebulizer gas: N₂(35 psi)
- ・ キャピラリー電圧: 0.6 kV
- ・ モニタリングイオン(m/z):
399→80(PFH_xS)、499→80(PFOS)、413→169(PFOA)、469→169(PFNA)、503→80(¹³C₄-PFOS)、415→169(¹³C₂-PFOA)
(倫理面への配慮)

北海道大学の基準に従ってインフォームド
コンセントを文書で得られた。検体分析時など
における個人情報に関しては、ファイルをパス
ワードによりロックするなど厳重に取り扱っ
た。

C. 研究結果および考察

C.1 分析法バリデーション

本分析法の定量限界は、それぞれ
PFHxS:0.004 ng/ml、PFOS:0.004 ng/ml、
PFOA:0.1 ng/ml、PFNA:0.008 ng/mlであつた。
また、検量線を作成したところ、0.2-20 ng/ml
の範囲で良好な直線性(相関係数:r=0.999)が得
られた。母乳試料を用いた添加回収試験(n=6)
においても、平均回収率 94.3%以上と良好な結
果を得ることができ、RSD についても約 10%
以下と精度良い結果を得られた(表 1)。

表 1 ヒト母乳試料における添加回収試験

測定対象物質	添加濃度 (ng/ml)	平均回収率 (%)	RSD (%)
PFHxS	0.2	113.8	8.8
	1	105.6	7.2
PFOS	0.2	94.3	4.8
	1	97.1	5.7
PFOA	0.2	104.8	10.0
	1	96.8	5.8
PFNA	0.2	104.8	10.3
	1	97.6	7.6

(n=6)

C.2 母乳試料の測定結果

本分析法を用いて北海道在住妊婦ボランテ
ィア 41 名の母乳を測定した。その結果を表 2
に示す。血液中の結果と同様に、すべての検体
から PFOS が検出された。PFOA については、
他の測定対象物質と比較しても検出率が低か
ったが、これは PFOA が測定環境からのコンタ
ミネーションの影響を受けることから、定量限
界を 0.1 ng/ml と高く設定したためと思われる。

PFOA の最大値としては、PFOS よりも高い濃
度で検出された。

また、PFHxS、PFNA については、PFOS、PFOA
と比較すると微量レベルであつた。

表 2 ヒト母乳試料の測定結果

測定対象物質	検出率 (%)	最大値 (ng/ml)	最小値 (ng/ml)
PFHxS	55	0.011	N.D.
PFOS	100	0.181	0.024
PFOA	38	0.339	N.D.
PFNA	85	0.094	N.D.

(n=41)

C.3 血液及び母乳中 PFOS 濃度の相関性

同一人物から採取した母乳及び血液中 PFOS
濃度の関連性について調査したところ、
r=0.74(n=41)という相関性が得られ、母体血の
濃度依存的に母乳中濃度が高くなるという傾
向が見られた。

D. 結論

本研究では、前処理に固相抽出法を用いて母
乳試料のクリーンアップおよび濃縮を行った
ことにより、血液中と比較してより高感度な
PFCs 分析を行うことが可能となった。また、
本分析法を母乳試料 41 検体の測定へと応用し
たところ、すべての検体から PFOS が検出され、
血液および母乳中の PFOS 濃度については相
関性が示唆された。

E. 研究発表

1. 学会発表

第 50 回日本薬学会関東支部大会
(仙台：2006 年 11 月)

「LC/MS/MS を用いたヒト母乳中パーフル
オロ化合物の高感度分析法の構築」

F. 参考文献

- 1) K.Kannan, S.Corsolini, J.Falandysz,
G.Oehme, S.Focardi, J.P.Giesy:
Environ.Sci. Technol.,36,3210 (2002)
- 2) A.K.Sohlenius, K.Anderson,
J.DePierre:*J.Biochem.*,285,779(1992)
- 3) J.R.Thibodeaux, R.G.Hanson,
J.M.Rogers, B.E.Grey, B.D.Barbee,
J.H.Richards, J.L.Butenhoff,
L.A.Stevenson, C.Lau : *Toxicol Sci.*,
74,369 (2003)
- 4) K.Inoue, F.Okada, R.ITO, S.Kato,
S.Sasaki, S.Nakajima, A.Uno,
Y.Saijo, F.Sata, Y.Yoshimura,
R.Kishi, H.Nakazawa : *Environ.*
Health Perspect., 112, 1204 (2004)

ヒト母体血中有機フッ素系化合物の分析および PFCs 移行性に関する研究

主任研究者 水上 尚典 北海道大学大学院医学研究科生殖・発達医学講座

分担研究者 中澤 裕之 星薬科大学 薬品分析化学教室

研究要旨

パーフルオロオクタンスルホネート (PFOS) やパーフルオロオクタン酸 (PFOA) に代表されるパーフルオロ化合物 (PFCs) は、繊維類の撥水剤、界面活性剤等として、我々の生活環境中で広く用いられている。しかしその一方で、PFCs は野生動物などの生態系を広く汚染しており、ヒト血液中からも高頻度に検出されることから、ヒト暴露に関する研究が求められている。近年の研究では、PFCs が母体から臍帯血および母乳を介して子どもに移行すると懸念されており、子どもに対する生体影響を危惧する声が高まっている。そこで本研究では、高速液体クロマトグラフィー/タンデム質量分析法(LC/MS/MS)を用いてヒト血液中 PFCs の高感度分析法を構築し、ヒト母体血(n=447)の分析を行った。また、母体血と同一個人から採取した臍帯血、母乳についても分析を行い、母体血から臍帯血および母乳中への PFCs 移行性について評価した。

【研究協力者】

斉藤貢一、伊藤里恵、岩崎雄介、

中田彩子、手塚浩子

星薬科大学 薬品分析化学教室

A. 研究目的

パーフルオロオクタンスルホネート (PFOS) やパーフルオロオクタン酸 (PFOA) に代表されるパーフルオロ化合物 (PFCs) は、繊維類の撥水剤、界面活性剤、消火剤および消泡剤等として、我々の生活環境中で広く用いられている。しかしその一方で、PFCs は野生動物などの生態系を広く汚染しており、ヒト血液中からも高頻度に検出されることが明らかとなってきた。PFCs は血清アルブミンと結合して血液中に蓄積し、PFOS のヒトにおける血中半減期は 8.7 年と報告されていることから、ヒト暴露評価に関する研究が求められている。また、動物実験においては、発がん性の他に、甲状腺ホルモンへの影響や催奇形性など、特に次世代に関わる毒性が示唆されている。さらに、近年の研究では、PFCs が母体から臍帯血および母乳

を介して子どもに移行すると懸念されており、子どもに対する生体影響を危惧する声が高まっている。そこで本研究では、PFCs の母体におけるバイオモニタリングおよび次世代影響の検討を目的に、高速液体クロマトグラフィー/タンデム質量分析法(LC/MS/MS)を用いてヒト血液および母乳中 PFCs の高感度分析法を構築した。次に、本分析法を用いて、ヒト母体血(n=447)を分析し、母体の PFCs 暴露量モニタリングを実施した。さらに、同一個人から採取した臍帯血(n=41)、母乳(n=41)についても分析することで、母体血から臍帯血および母乳への PFCs の移行性評価を行った。

B. 研究方法

B.1 オンライン固相抽出-LC/MS/MS 法による血液試料の測定概要

測定装置としては、高感度・高選択性を有する LC/MS/MS を採用した。また、オンライン固相抽出法を用いることにより、簡便かつ迅速な試料前処理が可能となった。前処理手順としては、まず-80℃で凍結保存した血液試料を室

温で解凍し、ピペッターで100 μ Lを量り取る。次に内標準物質を含有したアセトニトリルで除タンパクを行い、遠心分離後の上清をフィルターでろ過し、LC/MS/MSによる測定に供した。

B.2 固相抽出-LC/MS/MS 法によるヒト母乳中 PFCs の測定概要

母乳は血液と比較して PFCs 濃度が極微量であり、脂溶性の夾雑物質を多く含むため、試料前処理に固相抽出法を採用することとし、Oasis WAX カートリッジを検討した。試料量は 5 mL とし、ギ酸で除タンパクした後に固相抽出による精製を行い、50 倍に濃縮して LC/MS/MS で測定した。

(倫理面への配慮)

北海道大学医学部研究科医の倫理委員会における承認のうえで実施した。インフォームドコンセントは「疫学研究に関する倫理指針」に基づいて行った。対象者のプライバシーの保持に留意し、検体分析時などにおける個人情報に関しては、ファイルをパスワードによりロックするなど厳重に取り扱った。

C. 結果

C.1 オンライン固相抽出-LC/MS/MS 法によるヒト血液中 PFCs の高感度分析法の構築および精度管理

本法による定量限界は、全ての測定対象物質において 0.5 ng/mL と高感度な分析が可能であった。血漿試料を用いた添加回収試験(n=6)においても、平均回収率 93.3% と良好な結果が得られた。また、分析法の安定性および精確性を確保するため、内部および外部精度管理を実施している。内部精度管理は、PFCs の標準溶液による Shewhart 管理図を用いた。外部精度管理としては、2005 年 8 月にカナダ・トロントで開催された PFCs 国際精度管理プロジェクトに参画した。その結果、いずれにおいても良好

な結果が得られたことから、本法の高い安定性および正確性が確認された。

C.2 ヒト母体血中 PFCs の測定結果

本研究で構築したオンライン固相抽出-LC/MS/MS 法により、北海道に居住する妊婦ボランティア 447 名の母体血を測定した。その結果、PFOS は全ての検体から検出され、その濃度範囲は 1.3～16.2 ng/mL であった。また、PFOA についても 93.1% の検体から N.D.～5.3 ng/mL の濃度範囲で検出された。また、妊娠回数の増加に伴って、血中 PFOS および PFOA 濃度が減少していく傾向がみられた。このことより、母体は PFCs に暴露されており、臍帯および母乳を介した子どもへの PFCs 暴露が示唆される。

C.3 臍帯血、母乳中の PFCs の測定結果 および子どもへの移行性評価

ヒト母体血から高頻度に PFCs が検出されたことから、同一個人から採取した臍帯血(n=41)および母乳(n=41)についても測定を行った。その結果、臍帯血においては全ての検体から PFOS および PFOA が検出され、母体血中の濃度と有意な相関性が見られた(PFOS; $r=0.83$ 、PFOA; $r=0.87$)。また、母体血と同一個人から採取した母乳試料については、固相抽出法-LC/MS/MS 法を用いて測定を行った。その結果、PFOS および PFOA は全ての検体から検出され、その平均値はそれぞれ 71.0 pg/mL、74.6 ng/mL であった。また、臍帯血と同様に、母乳においても、母体血中の濃度と有意な相関性がみられた。このことから、PFCs は、ヒト母体血から臍帯血および母乳中に移行し、子どもに暴露していることが示唆された。

D. 考察

本研究では、生体暴露評価に応用できる迅速かつ高感度・高精度な分析法を構築し、ヒト母

体血(n=447)の分析に適用した。その結果、全ての検体から PFOS が検出されたことから、母体は PFCs に広く暴露していると考えられ、子どもの PFCs 暴露評価の重要性が示唆された。そこで、PFCs の移行性が示唆されている臍帯血および母乳中についても分析を行ったところ、それらすべての検体から PFOS および PFOA が検出された。臍帯血の分析結果は、PFCs が母体血から胎盤を介して臍帯血に移行すると示唆しており、子どもは胎児期から PFCs に暴露していると考えられる。また、母乳中の PFCs 濃度は臍帯血と比較してごく微量であったが、母乳は授乳期に母体から大量に分泌され、乳児が毎日摂取するものであることから、母乳栄養を介した乳児の PFCs 暴露量の推定を行うことが重要である。

F. 研究発表

1. 論文発表

- 1) 仲田尚生、中田彩子、岡田文雄、伊藤里恵、井之上浩一、斉藤貢一、中澤裕之：「オンライン固相抽出 - LC/MS/MS を用いたヒト血漿中有機フッ素系化合物の一斉分析法の開発」*分析化学*, 54, 877-884 (2005)
- 2) 中澤裕之、伊藤里恵、岩崎雄介、中田彩子、斉藤貢一：「内分泌かく乱化学物質とリスク評価への応用」*分析化学*, 56, 1005-1018 (2007)

2. 学会発表

- 1) 中田彩子、勝又常信、岩崎雄介、伊藤里恵、斉藤貢一、岸 玲子、和泉俊一郎、牧野恒久、中澤裕之：「母乳栄養によるパーフルオロ化合物の乳幼児への暴露」第127年会日本薬学会(2007) 富山
- 2) 中田彩子、岩崎雄介、伊藤里恵、斉藤貢一、岸 玲子、和泉俊一郎、牧野恒久、中澤裕之：「LC/MS/MSを用いた牛乳および母乳中に残留する有機フッ素系化合物の分析」第93回食品衛生学会 学術講演会 (2007) 東京
- 3) 中田彩子、岩崎雄介、伊藤里恵、斉藤貢一、岸 玲子、和泉俊一郎、牧野恒久、中澤裕之：「LC/MS/MSを用いたヒト母乳試料中有機フッ素系化合物の分析」第68回分析討論会 (2007) 栃木
- 4) Nakata A., Katsumata T., Iwasaki Y., Ito R., Saito K., Izumi S., Makino T., Kishi R., Nakazawa H.: 「Measurement of perfluorinated compounds in human milk and house dust」27 th International Symposium on Halogenated Environmental Organic Pollutants and Persistent Organic Pollutants (POPs)-Dioxin 2007 (2007)

妊婦の血液及び母乳中のダイオキシン類、PCB類濃度 (2002-2004年採取検体を対象として)

分担研究者 飯田 隆雄 福岡県保健環境研究所

分担研究者 梶原 淳睦 福岡県保健環境研究所

研究要旨

血液及び母乳中のダイオキシン類分析のため最新の技術と機器を導入し、血液 5g、母乳 2g からダイオキシン類及び PCB 類濃度を正確に測定した。母体血（2002年 99名、2003年 100名、2004年 70名、2005年 100名）と母乳（2004年 60名分）を採取し、血液及び母乳中のダイオキシン類濃度（PCDDs 7種、PCDFs 10種、ノンオルソ-PCB 4種、モノオルソ-PCB 8種 合計 29種）および PCB 類（70種）濃度を異性体別に測定した。その結果、母体血中ダイオキシン類平均濃度は 18.1 pg TEQ/g lipid、総 PCB 類濃度は 438.1 pg/g であり、母乳中ダイオキシン類平均濃度は 13.7 pg TEQ/g lipid、総 PCB 類濃度は 4,084.9 pg/g であった。母体中のダイオキシン類濃度は出産によって低下し、加齢によって増加すると推察された。母体血から母乳へのダイオキシン類及び PCB 類の移行は塩素数の多いものほど移行しにくい傾向があった。

【研究協力者】

吉村健清、中川礼子、平川博仙、
堀 就英、芦塚由紀、村田さつき、
松枝隆彦、飛石和大、安武大輔

福岡県保健環境研究所

戸高 尊

九大医学部 学術研究員

井上 英

厚生労働省 リサーチレジデント

PCB類の一部は母乳に移行し、授乳により乳児が摂取することからその影響に関心が持たれている。しかし、ダイオキシン、PCB類の人体汚染濃度の調査は困難である。すなわち、個々の妊婦からダイオキシン汚染状況を調査するために血液、母乳、臍帯血等の試料を多数に、しかもダイオキシン類を正確に測定するために大量に採取・収集することは、大きな困難を伴う。さらにダイオキシン類測定は多額の費用と長時間を要する。最近、我々は少量のヒト血液や母乳試料等から正確で迅速にダイオキシン、PCB類を同一試料から測定できる一斉分析法を確立した。本分析法の開発によって1,000例、10,000例という大きな集団を対象としたヒト汚染状況調査が可能となった。

本研究では先天異常の疫学研究の基礎資料を得ることを目的に、妊婦血液及び母乳中のダイオキシン類濃度（PCDDs 7種、PCDFs 10種、ノンオルソ-PCB 4種、モノオルソ-PCB 8種 合計 29種）及び PCB 類（70異性体）を精密に測定し、母体に蓄積されているダイオキシン類及

A. 研究目的

ダイオキシン類および PCB 類は内分泌かく乱物質（EDC）として知られており、環境汚染物質として広く分布し、食物連鎖を介してヒト体内に蓄積されている。母体に取り込まれ、蓄積したダイオキシン、PCB類が母体内で胎児におよぼす影響が危惧されている。胎児は EDC の影響を最も鋭敏に受けると考えられる。妊婦体内に蓄積されたダイオキシン、PCB類量と児の先天異常との関係を明らかにすることはきわめて重要である。また、蓄積されたダイオキシン、

び PCB 類濃度の把握と母体から母乳への移行について解析した。

B. 研究方法

母体血（2002年99名、2003年100名、2004年70名、2005年100名）と母乳（2004年60名分）を検査対象とした。

採取した妊婦母体血中ダイオキシン類及び PCB 類を、超高感度精密分析法で測定した。すなわち、血液 5g または母乳 2g を秤取後凍結乾燥し、ダイオキシン類及び PCB 類の内標準を添加し、高速溶媒抽出器で脂質を抽出した。これをヘキサンに再溶解後、硫酸処理し、硝酸銀シリカゲルカラムおよび活性炭カラムを直結して精製し、ダイオキシン類と PCB 等に分離した。ダイオキシン画分は濃縮して溶媒除去大量試料注入装置を装着した高分解能ガスクロマトグラフ・高分解能マススペクトロメーター（HRGC/HRMS）で PCDDs7 種、PCDFs10 種、ノンオルソ-PCB 4 種の合計 21 種を測定した。PCB 類は PCB 画分を GPC 精製した後、高分解能ガスクロマトグラフ・高分解能マススペクトロメーター（HRGC/HRMS）でモノオルソ-PCB 8 種を含む PCB 類 66 種を測定した。

（倫理面への配慮）

ダイオキシン、PCB 類の測定は、本人の同意が得られた者のみを対象とした。研究成果の発表に際しては統計的に処理された結果のみを使い、個人を特定できるような情報は存在しない。

C. 研究結果

本年度は 2005 年に収集された妊婦血液 100 名分のダイオキシン類濃度（PCDDs7 種、PCDFs10 種、ノンオルソ-PCB 4 種 合計 21 種）及び 2002-2004 年に採取した母体血（269 名分）と母乳（60 名分）の PCB 類（70 異性体）を精密に

測定した。この結果、前年度までの測定結果と合わせて 2002-2004 年に採取した母体血（269 名分）と母乳（60 名分）のダイオキシン類（29 種）及び PCB 類（70 種）濃度の詳細な異性体別濃度を明らかにした。

表 1、2 に 2002-2004 年に採取した母体血（269 名分）のダイオキシン類（29 種）の分析結果と PCB 類（70 種）の分析結果を、表 3、4 に母乳（60 名分）のダイオキシン類（29 種）と PCB 類（70 種）の分析結果を示した。また、表 5 に 2005 年に収集された妊婦血液 100 名分のダイオキシン類（21 種）の分析結果を示した。2005 年の妊婦血液 100 名分の PCB 類は現在分析中である。

妊婦 269 名の内訳は初産婦 132 名、経産婦 137 名であった。全体平均年齢は 30.9 歳で初産婦の平均年齢は 29.3 歳、経産婦では 32.4 歳であり、血中脂質含量は全体平均 0.37% であった。血中ダイオキシン類濃度を TEQ 値で見ると、PCDDs、PCDFs、ノンオルソ-PCBs、モノオルソ-PCBs および Total TEQ 平均値は、それぞれ、7.4、3.9、4.3、2.4 および 18.1 pg TEQ/g lipid であった。血中総 PCB 類濃度は 438.1 pg/g であった。

母乳を採取した母親 60 名の内訳は初産婦 30 名、経産婦 30 名であり、平均年齢は 30.1 歳と 32.2 歳、全体では 31.2 歳であった。母乳の平均脂質含量は 3.97% であった。母乳中ダイオキシン類濃度を TEQ 値で見ると、PCDDs、PCDFs、ノンオルソ-PCBs、モノオルソ-PCBs および Total TEQ 平均値は、それぞれ、4.6、2.9、3.8、2.5 および 13.7pg TEQ/g lipid であった。母乳中の総 PCB 類濃度は 4,084.9 pg/g であった。また、血中及び母乳中のダイオキシン類濃度にしめる PCDDs、PCDFs およびノンオルソ-PCBs の割合は初産婦と経産婦でほとんど同じであった。

D. 考察

図1に血中の平均ダイオキシン類濃度（TEQ pg/g lipid 表示）の初産婦と経産婦毎の年齢別比較を示す。この図から分かるように、血中ダイオキシン類濃度はすべての年齢で初産婦の方が経産婦より高く、年齢の高い方がダイオキシン類濃度も高かった。また、血中のダイオキシン類濃度にしめる PCDDs、PCDFs およびノンオルソ PCBs の割合は初産婦と経産婦あるいは年齢別群の間でもほとんど同じであった。このことから出産に伴い母体中に蓄積されていたダイオキシン類が排出または胎児へ移行し減少する一方で加齢に伴いダイオキシン類は体内に蓄積されると考えられる。また、ダイオキシン類の排出または蓄積の比率は PCDDs、PCDFs およびノンオルソ-PCBs のそれぞれで大きな差はないと考えられた。出産により Total-TEQ は 25-34 % 低下すると示唆された。一方、モノオルソ-PCB を含む血中 PCB 類の濃度は加齢による濃度の上昇は見られるが、初産婦と経産婦での濃度差はほとんどなかった。

母乳中のダイオキシン類及び PCB 類濃度も血中ダイオキシン類及び PCB 類濃度とほぼ同様の傾向を示し、ダイオキシン類濃度は出産により減少し、加齢により上昇した。PCB 類濃度は加齢により上昇するが、出産による減少はほとんど見られなかった。ダイオキシン類と PCB 類の食品や環境中での濃度の違い、物性の違いにより生体内での挙動に違いがあると考えられる。

母乳中ダイオキシン類及び PCB 類濃度と同一人の出産前に採取した血中ダイオキシン類及び PCB 類濃度の関係を図2、3に示した。血液 - 母乳のダイオキシン類及び PCB 類濃度の関係は相関係数が 0.88 と 0.94 でよい相関が見られた。濃度は母乳の方がダイオキシン類で約 30% 低く、総 PCB 類濃度で約 25% 低かった。個々の異性体毎の濃度も概ね母乳の方が低い

値を示した。さらに、図4、5に示すようにオクタノール/水分配係数（ K_{ow} ）の大きい高塩素化体の異性体の方が濃度の低下率が大きい傾向が示唆された。しかし、PCB類では低塩素化体の異性体では母乳により高濃度で分泌されるものもあった。乳腺で血液から母乳が作られる際に、高塩素化体のものは分子サイズが大きく膜透過しにくいのではないかと推察された。

E. 結論

先天異常の疫学研究の基礎資料を得ることを目的に、妊婦血液及び母乳中のダイオキシン類濃度（29種）及び PCB 類（70種）を精密に測定し、母体に蓄積されているダイオキシン類及び PCB 類濃度の把握と母体から母乳への移行について解析した。その結果、血中ダイオキシン類濃度は PCDDs、PCDFs、ノンオルソ-PCBs、モノオルソ-PCBs および Total TEQ の平均値がそれぞれ、6.3、3.2、3.8、2.4 および 18.1 pg TEQ/g lipid であり、母乳中ダイオキシン類濃度は 4.6、2.9、3.8、2.5 および 13.7 pg TEQ/g lipid であった。血中総 PCB 類濃度は 438.1 ppb であり、母乳中総 PCB 類濃度は 4,084.9 ppb であった。

血中及び母乳中のダイオキシン類濃度は出産で低下し、加齢と共に増加する傾向にあるが、総 PCB 類濃度は加齢とともに増加するが出産による影響は小さいと推察された。また、血液から母乳へのダイオキシン類および PCB 類の移行は塩素数の多い異性体のほうが移行しにくい傾向にあった。

F. 健康危険情報

なし。

G. 研究発表

1. 論文発表

1. Kajiwara J., Todaka T., Hirakawa H., Hori T., Iida T., Washino N., Konishi K., Matuzawa S., Ban S., Sata F., Kishi R. and Yoshimura T. Dioxin and related chemicals concentration in human milk. *Organohalogen Compounds*. 2006; 68:1608-1610.

2. 学会発表

1. Kajiwara J., Todaka T., Hirakawa H., Hori T., Iida T., Washino N., Konishi K., Matuzawa S., Ban S., Sata F., Kishi R. and Yoshimura T. Dioxin and related chemicals concentration in human milk. 26th International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants, Oslo, Norway, (2006, August)
2. 梶原淳睦、戸高 尊、平川博仙、堀 就英、井上 英、加藤静恵、佐々木成子、中島そのみ、西條泰明、佐田文宏、岸 玲子：「ヒト母乳中ダイオキシン類の分析」、日本食品衛生学会、春日井市、2006年10月26-27日
3. 井上 英、堀 就英、戸高 尊、平川博仙、梶原淳睦、加藤静恵、佐々木成子、中島そのみ、西條泰明、佐田文宏、岸 玲子：「母乳中のポリ塩化ビフェニル(PCB)異性体分析」、日本食品衛生学会、春日井市、2006年10月26-27日
4. 平川博仙、戸高 尊、井上 英、堀 就英、梶原淳睦、加藤静恵、佐々木成子、中島そのみ、西條泰明、佐田文宏、岸 玲子、飯田隆雄：「ヒト母体血中のダイオキシン類濃度」、日本内分泌攪乱化学物質学会、東京都、2006年11月10-11日

H. 知的所有権取得

1. 特許取得

なし

2. 実用新案登録

なし

3. その他

なし

平成17～19年度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

表 1 妊婦血液中ダイオキシン類測定結果(2002-2004年)

【Lipid Base】	(pg/g lipid)											
	全妊婦 (n=269)				初産婦 (n=132)				経産婦 (n=137)			
	平均値	標準偏差	最小値	最大値	平均値	標準偏差	最小値	最大値	平均値	標準偏差	最小値	最大値
2,3,7,8-TCDD	1.0	0.6	ND	3.4	1.2	0.7	ND	3.4	0.9	0.5	ND	3.4
1,2,3,7,8-PeCDD	4.2	1.8	ND	11.9	4.7	1.9	ND	11.9	3.7	1.6	ND	7.9
1,2,3,4,7,8-HxCDD	1.7	1.2	ND	13.6	1.8	1.1	ND	5.8	1.5	1.3	ND	13.6
1,2,3,6,7,8-HxCDD	14.6	6.9	2.4	43.6	16.3	7.4	4.3	43.6	12.9	6.0	2.4	41.8
1,2,3,7,8,9-HxCDD	2.2	1.4	ND	9.0	2.5	1.5	ND	9.0	2.0	1.1	ND	5.7
1,2,3,4,6,7,8-HpCDD	26.8	12.0	9.2	85.4	27.5	12.5	9.2	71.4	26.2	11.5	11.8	85.4
OCDD	482.9	206.3	162.8	1491.5	486.9	229.1	162.8	1491.5	479.1	182.5	231.9	1353.3
2,3,7,8-TCDF	0.7	0.5	ND	3.8	0.7	0.5	ND	3.8	0.8	0.4	ND	2.5
1,2,3,7,8-PeCDF	0.6	0.3	ND	2.6	0.6	0.3	ND	2.6	0.5	0.2	ND	2.2
2,3,4,7,8-PeCDF	6.1	2.8	ND	19.9	6.7	3.1	ND	19.9	5.4	2.4	ND	13.9
1,2,3,4,7,8-HxCDF	2.5	1.4	ND	12.5	2.7	1.4	ND	7.7	2.2	1.4	ND	12.5
1,2,3,6,7,8-HxCDF	2.8	1.5	ND	10.1	3.2	1.7	ND	10.1	2.4	1.2	ND	6.8
2,3,4,6,7,8-HxCDF	1.1	0.4	ND	3.9	1.1	0.5	ND	3.9	1.1	0.2	ND	2.4
1,2,3,7,8,9-HxCDF	ND	—	ND	ND	ND	—	ND	ND	ND	—	ND	ND
1,2,3,4,6,7,8-HpCDF	3.6	10.6	ND	162.5	3.3	3.0	ND	19.5	3.9	14.6	ND	162.5
1,2,3,4,7,8,9-HpCDF	ND	—	ND	ND	ND	—	ND	ND	ND	—	ND	ND
OCDF	2.2	2.0	ND	31.0	2.1	0.8	ND	11.4	2.3	2.7	ND	31.0
344'5-TCB(#81)	5.0	0.3	ND	10.1	5.0	0.4	ND	10.1	ND	—	ND	ND
33'44'-TCB(#77)	14.5	28.7	ND	474.8	16.4	40.7	ND	474.8	12.8	5.0	ND	27.3
33'44'5-PenCB(#126)	40.3	23.8	ND	157.2	43.4	26.9	ND	157.2	37.3	20.1	ND	110.5
33'44'55'-HxCB(#169)	28.6	14.1	ND	85.9	30.9	14.8	ND	85.9	26.4	13.1	ND	76.4
2'344'5-PenCB(#123)	126.0	73.7	ND	458.6	137.7	82.5	25.5	458.6	114.8	62.4	ND	308.2
23'44'5-PenCB(#118)	6612.7	3619.3	1293.2	20284.4	7097.2	3900.0	2025.6	20284.4	6146.0	3273.3	1293.2	15627.3
2344'5-PenCB(#114)	397.6	227.6	79.1	1695.2	434.9	245.7	108.7	1695.2	361.7	203.3	79.1	1121.0
233'44'-PenCB(#105)	1635.4	897.4	256.1	5420.8	1765.1	977.6	461.4	5420.8	1510.4	796.5	256.1	3806.0
23'44'55'-HxCB(#167)	802.0	424.8	158.6	2364.6	846.3	447.8	274.3	2364.6	759.2	398.5	158.6	1959.2
233'44'5-HxCB(#159)	2146.3	1129.9	441.5	6427.8	2237.9	1125.4	573.7	6427.8	2058.2	1131.4	441.5	6026.4
233'44'5'-HxCB(#157)	533.9	278.9	85.1	1782.7	566.9	282.9	118.5	1782.7	502.0	272.3	85.1	1438.1
233'44'55'-HpCB(#189)	253.6	132.2	ND	806.8	248.5	119.4	ND	625.8	258.5	143.7	49.7	806.8
Total PCDDs	533.5	222.5	191.0	1602.4	540.1	249.2	191.0	1602.4	527.1	194.0	273.8	1426.2
Total PCDFs	21.6	13.8	ND	192.4	22.4	8.6	ND	52.9	20.8	17.5	10.4	192.4
Total non-ortho PCBs	88.5	47.7	27.4	553.6	96.3	58.5	28.3	553.6	80.9	32.7	27.4	197.0
Total mono-ortho PCBs	12539.7	6397.8	2832.8	36382.2	13421.4	6934.1	3995.5	36382.2	11690.2	5732.8	2832.8	28072.0
◆【WHO-98】◆												
PCDDs-TEQ	7.4	3.1	1.6	20.7	8.1	3.5	2.2	20.7	6.7	2.6	1.6	13.8
PCDFs-TEQ	3.9	1.7	0.7	11.8	4.3	1.9	0.7	11.8	3.5	1.4	1.2	9.3
Non-ortho PCBs-TEQ	4.3	2.5	0.6	16.3	4.7	2.8	0.6	16.3	4.0	2.1	0.6	11.8
Mono-ortho PCBs-TEQ	2.4	1.2	0.6	7.2	2.6	1.3	0.7	7.2	2.3	1.1	0.6	5.9
Total TEQ	18.1	7.7	4.0	51.2	19.7	8.4	5.5	51.2	16.5	6.5	4.0	33.3
年齢	30.9	4.89	18	47	29.3	4.85	18	40	32.4	4.43	20	47
脂肪含量 (%)	0.37	0.08	0.19	0.72	0.37	0.08	0.22	0.72	0.36	0.07	0.19	0.62
Total-TEQ rate												
PCDDs	41.1%				41.4%				40.7%			
PCDFs	21.7%				21.8%				21.6%			
Non-ortho PCBs	23.9%				23.8%				24.0%			
Mono-ortho PCBs	13.3%				13.0%				13.7%			
Total-TEQ	100.0%				100.0%				100.0%			

平成17～19年度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

表 2 妊婦血液中PCB類測定結果(2002-2004年)

congeners	平均値	存在比	標準偏差	最小値	(pg/g)
					最大値
245-TrCB(#29)	0.04	0.0%	0.07	ND	0.42
244'-TrCB(#28)	4.43	1.0%	2.40	ND	17.51
344'-TrCB(#37)	1.55	0.4%	5.28	ND	59.58
22' 55' -TeCB(#52)	2.61	0.6%	2.08	ND	12.89
22' 45' -TeCB(#49)	0.82	0.2%	0.50	ND	3.26
22' 44' -TeCB(#47)	1.42	0.3%	0.94	ND	5.61
22' 35' -TeCB(#44)	1.17	0.3%	0.71	ND	5.10
23' 4' 6'-TeCB(#71)	0.36	0.1%	0.33	ND	2.37
234' 5'-TeCB(#63)	0.20	0.0%	0.14	ND	1.24
244' 5'-TeCB(#74)	12.25	2.8%	7.09	2.39	46.79
23' 4' 5'-TeCB(#70)	0.58	0.1%	0.44	ND	4.24
23' 44' -TeCB(#66)	2.61	0.6%	1.57	0.22	7.99
233' 4' -/2344' TeCBs(#56/60)	1.05	0.2%	0.63	ND	3.44
33' 44' -TCB(#77)	0.05	0.0%	28.72	ND	3.43
344' 5'-TCB(#81)	0.02	0.0%	0.31	ND	0.07
22' 35' 6'-PeCB(#95)	1.59	0.4%	0.91	ND	6.11
22' 355' -PeCB(#92)	1.19	0.3%	0.91	ND	6.39
22' 455' -PeCB(#101)	2.81	0.6%	1.81	0.10	14.61
22' 44' 5'-PeCB(#99)	15.40	3.5%	8.45	2.73	47.42
234' 56'-PeCB(#117)	1.14	0.3%	0.72	ND	5.39
22' 345' -PeCB(#87)	1.15	0.3%	0.70	ND	7.68
22' 344' -PeCB(#85)	0.42	0.1%	0.34	ND	4.02
233' 4' 6'-PeCB(#110)	0.74	0.2%	0.63	ND	5.65
233' 4' 5'-PeCB(#107)	1.26	0.3%	0.92	0.14	6.22
2' 344' 5'-PeCB(#123)	0.41	0.1%	0.28	ND	2.43
23' 44' 5'-PeCB(#118)	20.09	4.6%	12.62	2.39	71.51
2344' 5'-PeCB(#114)	1.31	0.3%	0.85	0.21	4.61
233' 44' -PeCB(#105)	4.82	1.1%	3.13	0.41	16.65
33' 44' 5'-PenCB(#126)	0.15	0.0%	23.82	ND	1.14
22' 355' 6'-HxCB(#151)	1.63	0.4%	1.31	ND	12.25
22' 33' 56' -HxCB(#135)	0.66	0.2%	0.46	ND	3.18
22' 34' 56'-HxCB(#147)	0.50	0.1%	0.35	ND	2.74
22' 344' 6'-HxCB(#139)	0.96	0.2%	0.75	ND	5.53
22' 33' 56'-HxCB(#134)	0.04	0.0%	0.05	ND	0.42
233' 55' 6'-HxCB(#165)	4.19	1.0%	6.72	ND	31.32
22' 34' 55' -HxCB(#146)	8.33	1.9%	9.33	ND	64.16
22' 33' 46' -HxCB(#132)	0.38	0.1%	0.33	ND	1.94
22' 44' 55' -HxCB(#153)	86.74	19.8%	50.11	12.10	365.28
22' 3455' -HxCB(#141)	0.44	0.1%	0.39	ND	2.53
22' 344' 5'-HxCB(#137)	2.98	0.7%	1.54	0.61	10.47
22' 33' 45' -HxCB(#130)	18.95	4.3%	39.11	ND	365.28
233' 4' 5' 6'-HxCB(#164)	18.29	4.2%	11.59	2.86	86.87
22' 344' 5' -HxCB(#138)	48.07	11.0%	27.37	7.30	209.84
22' 33' 44' -HxCB(#128)	1.55	0.4%	1.41	0.08	17.68
23' 44' 55' -HxCB(#167)	2.65	0.6%	1.58	0.30	11.13
233' 44' 5'-HxCB(#156)	6.87	1.6%	4.06	1.09	25.90
233' 44' 5' -HxCB(#157)	1.59	0.4%	0.92	0.22	5.87
33' 44' 55' -HxCB(#169)	0.10	0.0%	14.15	ND	0.62
22' 33' 566' -HpCB(#179)	0.30	0.1%	0.27	ND	2.44
22' 33' 55' 6'-HpCB(#178)	5.74	1.3%	4.20	0.77	26.45
22' 344' 56'-HpCB(#182)	25.92	5.9%	19.59	3.02	136.70
22' 344' 5' 6'-HpCB(#183)	6.97	1.6%	5.12	0.68	41.57
22' 344' 56'-HpCB(#181)	0.10	0.0%	0.09	ND	0.61
22' 33' 4' 56'-HpCB(#177)	6.30	1.4%	4.59	0.59	33.45
22' 33' 455' -HpCB(#172)	3.19	0.7%	2.28	ND	14.39
22' 344' 55' -HpCB(#180)	59.98	13.7%	41.98	8.19	278.45
233' 44' 5' 6'-HpCB(#191)	0.71	0.2%	0.48	ND	2.83
22' 33' 44' 5'-HpCB(#170)	20.88	4.8%	14.13	3.10	90.85
233' 44' 55' -HpCB(#189)	0.86	0.2%	0.53	ND	3.80
22' 33' 55' 66' -OxCB(#202)	1.91	0.4%	1.32	0.26	8.50
22' 33' 45' 66' -OxCB(#200)	0.39	0.1%	0.30	ND	2.16
22' 33' 45***-OxCB(#201/198)	8.08	1.8%	5.40	0.92	43.24
22' 344' 55' 6'-OxCB(#203)	6.79	1.6%	4.35	ND	30.58
22' 33' 44' 56'-OxCB(#195)	1.62	0.4%	0.98	0.11	6.51
22' 33' 44' 55' -OxCB(#194)	6.75	1.5%	4.12	0.86	28.90
233' 44' 55' 6'-OxCB(#205)	0.31	0.1%	0.18	ND	1.08
22' 33' 455' 66' -NoCB(#208)	0.78	0.2%	0.55	0.05	4.27
22' 33' 44' 566' -NoCB(#207)	0.39	0.1%	0.22	ND	1.41
22' 33' 44' 55' 6'-NoCB(#206)	2.09	0.5%	1.27	0.18	9.28
22' 33' 44' 55' 66' -DeCB(#209)	1.76	0.4%	1.11	0.11	13.49
Total TrCBs	6.02	1.4%	5.73	ND	65.50
Total TeCBs	23.15	5.3%	10.42	2.76	96.43
Total PeCBs	52.50	12.0%	28.14	5.98	170.61
Total HxCBs	204.93	46.8%	120.35	27.65	1172.09
Total HpCBs	130.72	29.8%	91.56	16.97	621.64
Total OcCBs	25.86	5.9%	16.23	2.99	119.28
Total NoCBs	3.26	0.7%	1.98	0.29	14.29
DeCB	1.76	0.4%	1.11	0.11	13.49
Total PCBs	438.09	100.0%	248.58	71.31	2039.20