

Table 4											
Comparison of dietary intake of n-PFCA with reported data											
Sampling site	Year	Study type		Dietary intake (ng day <sup>-1</sup> )							reference
				n-PFOA (C8)	n-PFNA (C9)	n-PFDA (C10)	n-PFUnDA (C11)	n-PFDoDA (C12)	n-PFTrDA (C13)	n-PFTeDA (C14)	
Japan											
Overall Japan	1990s	daily duplicate diet	Mean	22.8	<8.9	<4.4	12.8	<4.4	11.1	<4.4	This study
	2009	daily duplicate diet	Mean	18.0	7.9	3.9	18.4	<3.6	16.0	<3.6	This study
Hokkaido	1992, 1995	daily duplicate diet	Mean	<22.5	<9.0	<4.5	15.3	<4.5	15.7	<4.5	This study
	2009	daily duplicate diet	Mean	<19.0	8.6	3.9	22.3	6.0	18.4	4.0	This study
Kyoto	1996, 1997	daily duplicate diet	Mean	24.3	<7.0	<3.5	9.1	<3.5	6.2	<3.5	This study
	2009	daily duplicate diet	Mean	24.0	<6.3	<3.2	11.4	<3.2	12.5	<3.2	This study
Okinawa	1992, 1995	daily duplicate diet	Mean	<26.1	<10.5	<5.2	13.5	<5.2	10.6	<5.2	This study
	2009	daily duplicate diet	Mean	<18.5	9.0	4.8	20.6	5.7	16.5	3.8	This study
Osaka	2004	daily duplicate diet	Mean	68.5	-	-	-	-	-	-	Karman et al., 2009
Miyagi	2004	daily duplicate diet	Mean	48.6	-	-	-	-	-	-	Karman et al., 2009
Korea											
Seoul	1994	daily duplicate diet	Mean	<17.8	<7.1	<3.6	8.5	<3.6	10.5	<3.6	This study
	2007	daily duplicate diet	Mean	<20.6	<8.2	9.4	63.4	17.4	54.1	9.4	This study
China											
Beijing	1993	daily duplicate diet	Mean	<22.5	<9.0	9.0	9.7	7.3	12.6	<4.5	This study
	2009	daily duplicate diet	Mean	<30.5	<12.2	13.1	11.0	8.0	13.0	9.0	This study
Norway	2008-2009	estimated intakes	Mean	31	9.5	13	6.7	6.7	-	-	Haug et al., 2010
a Calculated using a body weight of 70kg											

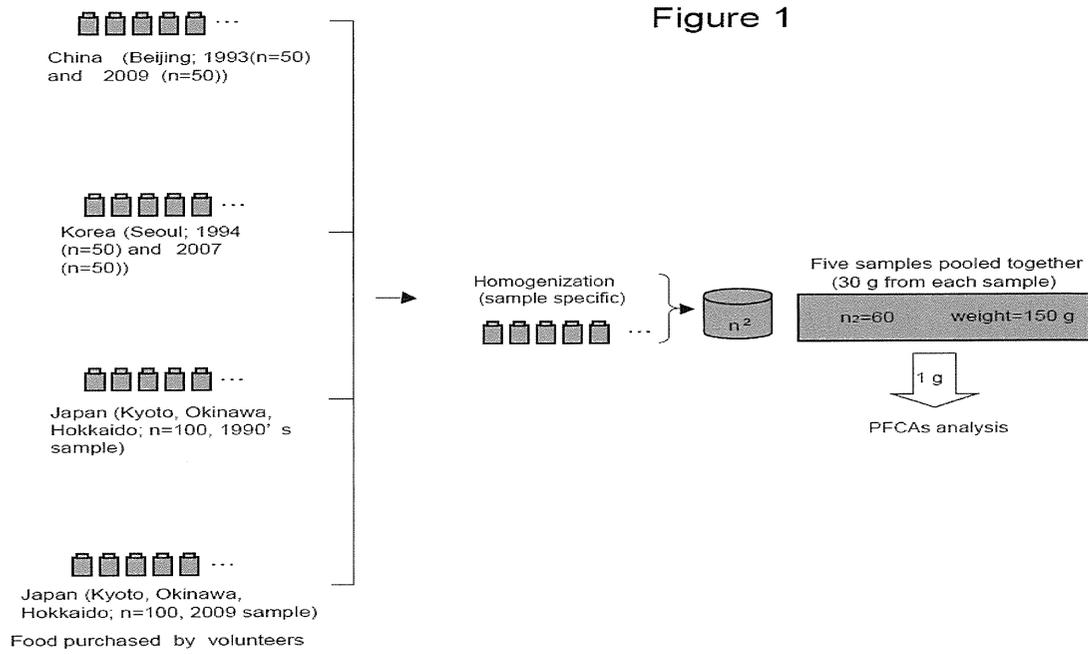


Fig.1 サンプルの処理

厚生労働科学研究費補助金（食品の安全確保推進研究事業）  
分担研究報告書

汚染が懸念される物質のモニタリングー日本の母乳試料：  
日本人の化学物質曝露実態ー臭素系汚染物質

分担研究者 原口浩一 第一薬科大学・教授  
研究協力者 藤井由希子 京都大学大学院医学研究科環境衛生学・大学院生

研究要旨

本研究の目的は母子への健康影響の懸念を持ちながら、現在までデータが不足している日本人の母乳中に存在する臭素系汚染物質（人工由来：PBDE と HeBB (TeBB)、天然由来：MeO-PBDE と bipyrrole）の濃度を明らかにすることである。日本の最北地域（北海道）と最南西地域（沖縄）の母乳サンプルを使用し、これらの臭素系汚染物質の地域差について検討を行なった。なお HeBB, MeO-PBDE、bipyrrole の母乳中からの検出事例は無く、今回が最初の報告となる。

母乳中のPBDEs (BDE-47 and BDE-153) の濃度は沖縄サンプルで高い一方、HeBBの濃度は北海道で有意に高かった。この結果、PBDEsとHeBBは異なった曝露経路を持つことが示唆された。2種のMeO-PBDEs (2'-MeO-BDE68 と 2,2'-diMeO-BB80) は沖縄のサンプルで高濃度であった。2種のbipyrroles (DBP-Br<sub>4</sub>Cl<sub>2</sub>とMBP-Cl<sub>7</sub>) にも地域差が見られ、発生源は日本近海の異なった生態系に由来すると考えられた。臭素系汚染物質の暴露経路と健康影響を明らかにするためには、これらの汚染物質の地域間の傾向の違いについてさらなる検討が求められる。

A. 研究目的

Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs)、hexabromocyclododecane, hexabromobenzene (HeBB)などの臭素化難燃剤 (brominated flame retardants: BFRs) は海洋生物圏を通じ拡散している。それらの化合物は内分泌かく乱作用や神経毒性を持ち、胎盤や母乳を通じ胎児（乳児）への移行が報告されている(Kawashiro et al., 2008, Costa and Giordano, 2007)。日本においてPBDEs

は消費材（家電製品・建築資材・布地等）に用いられてきたが(Ueno et al., 2004), 1990年代からpenta-, および octa-PBDE 製品の自主規制により近年の使用量は頭打ちになっている(Ueno et al., 2010)。PBDEsの残留濃度は日本近海の魚類 (Ueno et al., 2004)、ヒト母乳 (Eslami et al., 2006; Haraguchi et al., 2009c) ・血液 (Kawashiro et al., 2008) において報告されている。日本におけるPBDEのヒ

トへの曝露は着実に減少傾向にあるが、現在のBFRの使用状況は地域ごと、国ごとで異なっているのが現状である (Watanabe and Sakai, 2003)。またPBDEと同様に、HeBB は紙類・プラスチック・電気製品の難燃剤として現在でも年350トン (1994 – 2001年) 使用されている (Watanabe and Sakai, 2003)。先行研究において、日本人の脂肪組織中HeBB濃度は報告されているが (Yamaguchi et al., 1988)、母乳中 HeBBのデータはまだない。

一方、天然由来の残留性臭素化合物として日本近海の海洋生態系からメトキシ化PBDEs (MeO-PBDEs) とハロゲン化bipyrrolesが検出されている (Haraguchi et al., 2009; Marsh et al., 2005)。これらはPOPsと同様に食物連鎖により濃縮しやすいことが知られている (Haraguchi et al., 2010; Vetter et al., 2009)。2種のbipyrroles はPBDEsと類似した物理化学的特性を持ち (Hackenberg et al., 2003; Tittlemier, 2004; Vetter, 2004)、北太平洋・オセアニアの魚類・海鳥・海洋哺乳類から検出されている (Gribble, 1999; Tittlemier et al., 2002, 2004; Vetter et al., 2001, 2009)。これらは *in vitro*試験においてダイオキシン様の効果も報告され、bipyrrolesの母子への健康影響も懸念される (Tittlemier et al., 2003)。しかしながら日本人母乳中の残留状況についてのデータは現在まで非常に少ない。

本研究の目的は、母子の健康影響への懸念を持ちながら、現在までデータが不足している日本人の母乳中に存在する臭素化汚染物質 (人工由来: PBDE類とHeBB、天然由来: MeO-PBDE類とbipyrrole類) の濃度を明らかにすることである。今回、日本の最北地域 (北海道) と最南西地域 (沖

縄) の母乳サンプルを使用し、残留する臭素系汚染物質の濃度について地域差を検討した (Fig. 1)。

## B. 研究方法

### 1) サンプル収集

本研究では京都大学生体試料バンク (Koizumi et al., 2005; Koizumi et al., 2009) に保存されている 2005年から2006年にかけて北海道、沖縄の協力者から提供を受けた各20の母乳サンプルを使用した (Table 1)。

### 2) 化学物質

二つの純正品 (4'-methoxy-3',5',2,4,6-pentachlorodiphenyl ether (4'-MeO-BDE121, 内標準として使用) と 2,2'-dimethoxy-3,3',4,4'-tetrabromobiphenyl (2,2'-diMeO-BB80) はDr. G. Marsh (ストックホルム大学) から提供された。BDE-28, BDE-47, BDE-99, BDE-100, BDE-153, BDE-154, hexabromobenzene (HeBB), 1,2,4,5-tetrabromobenzene (TeBB), 2'-hydroxy-2,3',4,5'-tetrabromodiphenyl ether (2'-MeO-BDE68) および 6-methoxy-2,2',4,4'-tetrabromobiphenyl ether (6-MeO-BDE47) の各純正品は Cambridge Isotope Laboratories (Andover, MA, USA) より購入した。Bipyrroles (1,1'-dimethyl-3,3',4,4'-tetrabromo-5,5'-dichloro-2,2'-bipyrrole (DBP-Br<sub>4</sub>Cl<sub>2</sub>) と 2,3,3',4,4',5,5'-heptachloro-1'-methyl-1,2'-bipyrrole (MBP-Cl<sub>7</sub>) の標準品はそれぞれ Gribble et al. (1999) および Wu et al. (2000) の方法で合成した。ガスクロマトグラフィーによる純度はいずれも99%以上であることを確認し、回収率試験および検量線作成に用いた。分析に使用した有機溶剤は

関東化学(株)(東京)より購入した。シリカゲル(Wako gel S-1)は和光純薬(大阪)より購入し、使用前に130℃で3時間乾燥させた。今回、分析対象とした天然由来臭素化合物の構造式をFig. 2に示す。

### 3) 精製法

母乳中臭素系汚染物質の分析は、脂肪抽出、ゲル浸透クロマトグラフィー(gel permeation chromatography: GPC)、シリカゲルカラムによる精製、負イオン-化学イオン化GC-MS(GC-NCI-MS)の手順で行なった。具体的には5 mLの母乳に4'-MeO-BDE121(0.2 ng)を添加し、シュウ酸カリウム、エタノール、ジエチルエーテルを加え、n-ヘキサンにより脂肪を抽出した。エバポレーターで溶媒を留去し、脂質重量を測定した。脂質50-300 mgをジクロロメタンとn-ヘキサン(1:1, v/v)に溶かし、GPCカラム(Bio-Beads S-X3, 35 g of gel material; Bio-Rad Laboratories, USA)により脂質除去を行なった。流速4 mL/minで、最初の90-mL分を除いた後の80-mL溶出分を回収した。微量に残る脂質を除去するために、シリカゲルカラム(0.2 g, Wako gel S-1)に付し、ジクロロメタン:n-ヘキサン(12:88, v/v, 15mL)で溶出した。溶出液は200 µLにまで濃縮し、GC-MSにて分析を行なった。

### 4) 分析機器と定量

対象物質(13種)の測定にはGC-MS(Agilent 9573i-MSD 5973i, 6890N-GC)を使用した。GC/MSの設定条件と検出イオンをTable 2に示す。試薬ガスとしてメタンを用いる負イオン-化学イオン化モードでクロマトグラムのシグナルを内標準(4'-MeO-BDE121)と

比較して定量した。MBP-Cl<sub>7</sub>はm/z 386で、その他の臭素化合物はBrイオン(m/z 79および81)で検出した。

### 5) 品質管理と品質保証

ブランク試験は10サンプル毎に行なった。牛乳に標準物質を添加して、回収率を求めた。GC/MS-selected ion monitoring (SIM)による回収率は各成分とも84-91%の範囲にあり、相対標準偏差(RSD, relative standard deviation)は10%以下であった(n=5)。定量限界値(limits of quantification, LOQs)はシグナルノイズ比=5で算出した場合、0.01~0.2 ng/g lipidであった(Table 3)。分析値がLOQ以下であった場合、LOQの半分の値を計算に用いた。キャリブレーションは各物質0.1~5.0 ng/mLの範囲で良好な直線性を示した(>0.99)。精度担保のためにStandard Reference Material (cod liver oil, SRM1588b, NIST) (Stapleton et al., 2007)の分析を行い、RSD<11%(n=5)と良好な結果を得た。

### 6) 統計解析

統計解析はSPSS software version 18.0 for Windows 2007 (SPSS Inc., Chicago, IL, USA)を用いた。地域差の検定はOne-way analysis of varianceを用いた。母体の年齢と臭素化合物の濃度間の相関にはPearson's correlation coefficientを用いた。P値0.05以下を統計的に有意と見なした。

## C. 研究結果

北海道と沖縄の母乳から6種のPBDEs、HeBBおよびTeBBを検出した。それらの濃度をTable 3に示す。PBDEsの主成分はBDE-47とBDE-153で、総濃度は<0.2~69 ng/g lipid(中央値1.5 ng/g lipid)の範囲であり、沖

縄のサンプルで高い頻度で検出された。しかしながら北海道の母乳1検体から高濃度のBDE-47 (46 ng/g lipid) およびBDE-153 (4.0 ng/g lipid) が検出された。HeBBとTeBBはそれぞれ <math><0.05 \sim 2.5</math> (平均値 0.53) ng/g lipid、0.76 から 6.6 (平均値, 2.6) ng/g lipidであった。TeBBの濃度に地域差は見られなかったが、HeBB濃度は北海道のサンプルで有意に高かった( $p<0.01$ )。

本研究では、母乳中に天然由来臭素系汚染物質としてMeO-BDEsとハロゲン化bipyrroleを検出した (Fig. 2)。沖縄のサンプルで、MeO-BDEsのうち、2'-MeO-BDE68と2,2'-diMeO-BB80は沖縄サンプルで有意に高かった(それぞれ0.39と0.20 ng/g lipid)。MBP-Cl<sub>7</sub>とDBP-Br<sub>4</sub>Cl<sub>2</sub>の濃度はそれぞれ<math><0.01 \sim 0.94</math> ng/g lipidと<math><0.01</math> から 2.7 ng/g lipidであり、地域差は見られなかった。

北海道と沖縄のサンプル(各20)について化合物濃度間の相関係数をTable 4に示す。北海道では、BDE-47とBDE-153では正の相関( $r=0.927$ ,  $p<0.01$ )が見られたが、沖縄では見られなかった。同様にHeBBとTeBBについても北海道で相関性が見られたが( $r=0.628$ ,  $p<0.01$ )、沖縄では見られなかった。一方、2'-MeO-BDE68と2,2'-diMeO-BB80では、沖縄で正の相関( $r=0.522$ ,  $p<0.05$ )が見られたが、北海道では見られなかった。DBP-Br<sub>4</sub>Cl<sub>2</sub>とMBP-Cl<sub>7</sub>は両地域で相関性は見られなかったが、2'-MeO-BDE68 ( $r=0.478$ ,  $p<0.05$ )と2,2'-diMeO-BB80 ( $r=0.767$ ,  $p<0.01$ )の間に高い相関が見られた。両地域とも検出した母乳中臭素化合物の濃度と年齢との間に相関性は見られなかった。

#### D. 考察

##### 1) PBDEs

本研究で母乳中PBDEsの濃度は先行研究と同様の値を示した (Haraguchi et al., 2009; Kawashiro et al., 2008; Thomsen et al., 2010)。最近の日本でのPBDEの大規模調査 (Eslami et al., 2006)で地域差が見られたように、本研究でも母乳中PBDE類の濃度は南北で地域差があることを示した。このようなPBDE濃度の変動は食文化が一つの要因であると考えられる。しかしながら、北海道のサンプルが比較的低いPBDEs濃度(中央値: 1.0 ng/g lipid)を示すなかで、1サンプルだけ69 ng/g lipidという高濃度のPBDEsが検出されたことは注目に値する。このことは、ヒトのPBDEs曝露は食習慣よりもハウズダストや電気製品の廃棄処理等の職業的曝露が原因であることを示唆している (Fromme et al., 2009; Thomsen et al., 2010)。マグロを生物指標とした研究では高濃度のPBDEsが沖縄や台湾近海から検出されている (Ueno et al., 2004)。PBDEsの組成はBDE-47>BDE-153> BDE-100の順であったが、沖縄ではこれらの濃度に相関性はなく、BDE-47とBDE-153は異なった曝露源を持つことが示唆される。母乳中のBDE-47のBDE-153に対する濃度比は沖縄(1.6)よりも北海道(5.0)の方が高かった (Table 3)。この結果は低臭素化体 (BDE-28 および BDE-47)の比率が緯度が上がると増加することを示唆する。この傾向は北太平洋の寒冷な地域ほど魚類から検出される低塩素化PBDEsの割合が高いという結果と一致する (Ueno et al., 2004)。

##### 2) HeBB とその脱臭素化体 (TeBB)

日本では HeBB はBFRとして毎年350トン (1994 - 2001年) (Watanabe

and Sakai, 2003)が使用されてきたが、近年の使用状況およびヒト汚染状況のデータは不足している。本研究では母乳中にHeBBとその脱塩素化されたTeBBが比較的高濃度で検出された。この結果はHeBBが日本において広く拡散し、ヒトへの曝露が続いていることを示している。HeBBは北海道のサンプルで有意に高かったが、TeBBについて地域差は見られなかった (Table 3)。HeBBはTeBBやBED-47との間に相関は見られなかったが、BDE-153と間に正の相関が見られた (Table 4)。このことは、HeBBがBDE-153と曝露経路が類似することを示唆している。TeBBはMiyazakiら (1986)によって初めて母乳から検出されたが、HeBBは確認されなかった。TeBBを含む農業・工業製品についてのデータはなく、TeBBの発生源はHeBBとは異なることも考えられる。1988年の調査で、ヒト脂肪組織中にHeBBとTeBBが同レベル(2.1–4.1 ng/g wet)で検出された (Yamaguchi et al., 1988)。ラットを用いた動物実験で、TeBBはHeBBの代謝物(脱臭素化物)であることが示されている。HeBBはTeBBと北海道において正の相関が見られたが、沖縄では見られなかった。この結果はHeBBの別の曝露要因の存在を示唆している。

### 3) MeO-PBDEs

本研究で検出された3種のMeO-PBDEs (2'-MeO-BDE68、6-MeO-BDE47および2,2'-diMeO-BB80)は天然物由来であることが知られている。2'-MeO-BDE68と2,2'-diMeO-BB80の濃度はわずかにBDE-47より低かった。2'-MeO-BDE68のBDE-47に対する濃度比は沖縄のサンプルで高かった(沖縄:0.40、北海道:0.06) (Table 3)。

2'-MeO-BDE68の濃度はBFRsとの間に相関性は見られないことから (Table 4)、BFRsとは異なる曝露経路を持つことが示唆される。最近の研究で、2'-MeO-BDE68は沖縄近海のクジラの脂肪、サメの肝臓や魚類(ハタ・マグロ等)にMeO-PBDEの蓄積が確認されている (Haraguchi et al., 2009; Hisamichi et al., 2007; Marsh et al., 2005)。このことを考慮すると、母乳中のMeO-PBDEsの由来はそれらを多く含む海産物であると考えられる。また地域差は特定の地域のMeO-PBDEsの生産量の違いによるものと考えられる。たとえば、MeO-PBDEsは熱帯地域の海岸に生育する特定の海藻に偏在している (Haraguchi et al., 2010)。MeO-PBDEsおよびOH-PBDEs(水酸化PBDE)はイタリアやニカラグアの母乳でも検出されている (Lacoste et al., 2008; Athanasiadou et al., 2009)。しかしその成分組成は本研究の結果とは少し異なる。MeO-PBDEsの毒性は不明であるが、OH-PBDEsは内分泌かく乱作用があることが知られている (Kawashiro et al., 2008)。Wanら (2010)は、海洋哺乳類や魚類の肝臓で検出されるOH-PBDEsは、PBDEsの水酸化代謝物ではなく、天然MeO-PBDEsが脱メチル化されたものと報告している。このため、ヒトが摂取したMeO-PBDEsはヒト体内でさらに活性の強いOH-PBDEsに変化する可能性がある。母乳中の2,2'-diMeO-BB80は2'-MeO-BDE68と正の相関を示すため、同じ曝露経路を持つことが示唆される。2,2'-diMeO-BB80はクジラやサメにも蓄積が確認された (Haraguchi et al., 2009a, 2009b; Marsh et al., 2005)。その由来は海洋バクテリアの生産する2,2'-diOH-BB80と考えられる (Isnansetyo and Kamei, 2003)。

#### 4) ハロゲン化bipyrrole

母乳中に検出された2種類のハロゲン化bipyrrole類(DBP-Br<sub>4</sub>Cl<sub>2</sub>とMBP-Cl<sub>7</sub>)の濃度は、2'-MeO-BDE68と同レベルであった。DBP-Br<sub>4</sub>Cl<sub>2</sub>は北海道のサンプルに高濃度で見られた。知床半島に座礁したシャチ体内から高濃度のDBP-Br<sub>4</sub>Cl<sub>2</sub>が検出されているため、その由来は北太平洋の高緯度地域の生態系(食物網)であると考えられる。しかしながらDBP-Br<sub>4</sub>Cl<sub>2</sub>は沖縄近海のイタチザメ(Haraguchi et al., 2009a)、日本の市場に出回るクジラ(Haraguchi et al., 2009b)、カナダの魚類(Tittlemier et al., 2004b)でも検出されているため、太平洋に広く分布していると予想される。沖縄の母乳ではDBP-Br<sub>4</sub>Cl<sub>2</sub>は2'-MeO-BDE68および2,2'-diMeO-BB80と有意な相関を示したが、MBP-Cl<sub>7</sub>との間に相関性は見られなかった。この結果は曝露経路の違いを示唆している。2種のbipyrrolesは物理化学的特性がBDE-47や2'-MeO-BDE68と類似しており(Hackenberg et al., 2003; Tittlemier et al., 2004a)、環境中でも同様の蓄積特性を示すと考えられる。これらの毒性データは少ないが、DBP-Br<sub>4</sub>Cl<sub>2</sub>による肝酵素誘導能(Tittlemier et al., 2003)やMBP-Cl<sub>7</sub>による中程度の生物活性(Vetter et al., 2004)が報告されているのみである。

#### 5) 乳児の推定一日摂取量

臭素化合物の乳児の推定一日摂取量(Estimation of daily intake:EDI)は、乳児の平均母乳摂取量(Oostdam et al.1999)をもとに計算した。その結果をTable 3に示す。PBDEsのEDIはPenBDEsのNOAEL(No Observed Adverse Effect Level, 0.4 mg/kg body

weight/day)(Viberg et al.2004)の100分の1以下であった。このことからPBDEsの母乳を通じた乳児の健康影響のリスクは少ないと思われる。しかしながら乳児の発達段階では成人とは異なった感受性を持つため注意が必要である(Sly et al. 2008)。さらにHeBBやMeO-PBDEs、ハロゲン化bipyrrolesの毒性はいまだ多くが不明確であるため、今後さらなる研究が求められる。

#### E. 結論

本研究では日本人の母乳から人工臭素系汚染物質(PBDEsとHeBB)と天然由来の臭素系化合物(MeO-PBDEsとbipyrroles)を検出した。PBDEs(BDE-47andBDE-153)の濃度は沖縄のサンプルで高い一方、HeBBは北海道で有意に高かった。このことはPBDEsとHeBBは異なった曝露経路を持つことを示唆している。2種のMeO-PBDEs(2'-MeO-BDE68と2,2'-diMeO-BB80)および2種のbipyrroles(DBP-Br<sub>4</sub>Cl<sub>2</sub>とMBP-Cl<sub>7</sub>)についても地域差がみられ、この違いは日本の南北海域で異なった発生源をもつためと考えられる。臭素系汚染物質の曝露経路と健康影響を明らかにするためには、これらの汚染物質の地域差と発生源についてさらなる検討が求められる。

#### F. 健康危険情報

なし

#### G. 研究発表

##### 1. 論文発表

Fujii Y, Ito Y, Harada KH, Hitomi T, Koizumi A, Haraguchi K. 2012. Regional variation and possible sources of brominated contaminants in breast milk from Japan Environ. Poll 162, 269-274

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

Athanasiadou, M., Cuadra, S.N., Marsh, G., Bergman, A., Jakobsson, K., 2008.

Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) and bioaccumulative hydroxylated PBDE metabolites in young humans from Managua, Nicaragua. *Environmental Health Perspectives* 116, 400-408.

Costa, L.G., Giordano, G., 2007.

Developmental neurotoxicity of polybrominated diphenyl ether (PBDE) flame retardants. *Neurotoxicology* 28, 1047-1067.

Eslami, B., Koizumi, A., Ohta, S., Inoue, K., Aozasa, O., Harada, K., Yoshinaga, T., Date, C., Fujii, S., Fujimine, Y., Hachiya, N., Hirose, I., Koda, S., Kusaka, Y., Murata, K., Nakatsuka, H., Omae, K., Saito, N., Shimbo, S., Takenaka, K., Takeshita, T., Todoriki, H., Wada, Y., Watanabe, T., Ikeda, M., 2006. Large-scale evaluation of the current level of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in breast milk from 13 regions of Japan. *Chemosphere* 63, 554-561.

Fromme, H., Korner, W., Shahin, N., Wanner, A., Albrecht, M., Boehmer, S., Parlar, H., Mayer, R., Liebl, B., Bolte, G., 2009. Human exposure to polybrominated

diphenyl ethers (PBDE), as evidenced by data from a duplicate diet study, indoor air, house dust, and biomonitoring in Germany. *Environment International* 35, 1125-1135.

Gribble, G., Blank, D., Jasinski, J., 1999.

Synthesis and identification of two halogenated bipyrrroles present in seabird eggs. *Chemical Communications*, 2195-2196.

Hackenberg, R., Schütz, A., Ballschmiter, K.,

2003. High-resolution gas chromatography retention data as basis for the estimation of KOW values using PCB congeners as secondary standards. *Environmental Science & Technology* 37, 2274-2279.

Haraguchi, K., Hisamichi, Y., Endo, T., 2006.

Bioaccumulation of naturally occurring mixed halogenated dimethylbipyrrroles in whale and dolphin products on the Japanese market. *Archives of Environmental Contamination and Toxicology* 51, 135-141.

Haraguchi, K., Hisamichi, Y., Endo, T.,

2009a. Accumulation and mother-to-calf transfer of anthropogenic and natural organohalogenes in killer whales (*Orcinus orca*) stranded on the Pacific coast of Japan. *Science of The Total Environment* 407, 2853-2859.

Haraguchi, K., Hisamichi, Y., Kotaki, Y.,

Kato, Y., Endo, T., 2009b. Halogenated Bipyrrroles and Methoxylated Tetrabromodiphenyl Ethers in Tiger Shark (*Galeocerdo cuvier*) from the Southern Coast of Japan. *Environmental Science & Technology* 43, 2288-2294.

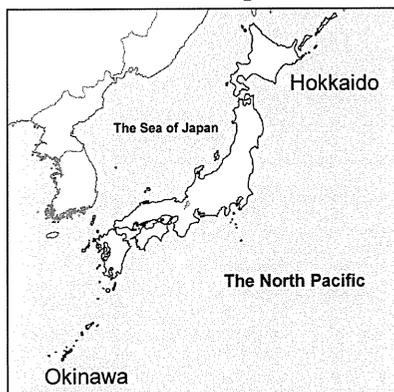
Haraguchi, K., Koizumi, A., Inoue, K.,

Harada, K., Hitomi, T., Minata, M., Tanabe, M., Kato, Y., Nishimura, E., Yamamoto, Y., Watanabe, T., Takenaka, K., Uehara, S., Yang, H., Kim, M., Moon, C., Kim, H.,

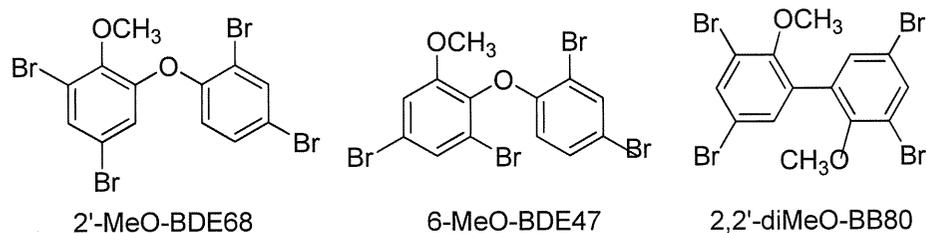
- Wang, P., Liu, A., Hung, N., 2009c. Levels and regional trends of persistent organochlorines and polybrominated diphenyl ethers in Asian breast milk demonstrate POPs signatures unique to individual countries. *Environment International* 35, 1072-1079.
- Haraguchi, K., Kotaki, Y., Relox, J., Romero, M., Terada, R., 2010. Monitoring of Naturally Produced Brominated Phenoxyphenols and Phenoxyanisoles in Aquatic Plants from the Philippines. *Journal of Agricultural and Food Chemistry* 58, 12385-12391.
- Hisamichi Y., Endo T., Nishimura E., Haraguchi K., 2007 Natural and anthropogenic POPs in bluefin tuna from the Japanese market. *Organohalogen Compounds* 69, 1709-1712.
- Isnansetyo, A., Kamei, Y., 2003. *Pseudoalteromonas phenolica* sp nov., a novel marine bacterium that produces phenolic anti-methicillin-resistant *Staphylococcus aureus* substances. *International Journal of Systematic and Evolutionary Microbiology* 53, 583-588.
- Kawashiro, Y., Fukata, H., Inoue, M., Kubonoya, K., Jotaki, T., Takigami, H., Sakai, S., Mori, C., 2008. Perinatal Exposure to Brominated Flame Retardants and Polychlorinated Biphenyls in Japan. *Endocrine Journal* 55, 1071-1084.
- Koizumi, A., Harada, K.H., Inoue, K., Hitomi, T., Yang, H.R., Moon, C.S., Wang, P., Hung, N.N., Watanabe, T., Shimbo, S., Ikeda, M., 2009. Past, present, and future of environmental specimen banks. *Environmental Health and Preventive Medicine* 14, 307-318.
- Koizumi, A., Yoshinaga, T., Harada, K., Inoue, K., Morikawa, A., Muroi, J., Inoue, S., Eslami, B., Fujii, S., Fujimine, Y., Hachiya, N., Koda, S., Kusaka, Y., Murata, K., Nakatsuka, H., Omae, K., Saito, N., Shimbo, S., Takenaka, K., Takeshita, T., Todoriki, H., Wada, Y., Watanabe, T., Ikeda, M., 2005. 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* 99, 31-39.
- Lacorte, S., Ikonomou, M., 2009. Occurrence and congener specific profiles of polybrominated diphenyl ethers and their hydroxylated and methoxylated derivatives in breast milk from Catalonia. *Chemosphere* 74, 412-420.
- Marsh, G., Athanasiadou, M., Athanassiadis, I., Bergman, A., Endo, T., Haraguchi, K., 2005. Identification, quantification, and synthesis of a novel dimethoxylated polybrominated biphenyl in marine mammals caught off the coast of Japan. *Environmental Science & Technology* 39, 8684-8690.
- Miyazaki, T., Yamagishi, T., Matsumoto, M., 1986. Identification of 1,2,4,5-tetrabromobenzene and mirex in human milk by gas chromatography/mass spectrometry. *Journal of the Food Hygienic Society of Japan* 27, 267-271.
- Sly, P.D., Flack, F., 2008. Susceptibility of children to environmental pollutants. *Annals of the New York Academy of Sciences* 1140, 163-183.
- Stapleton, H., Keller, J., Schantz, M., Kucklick, J., Leigh, S., Wise, S., 2007. Determination of polybrominated diphenyl ethers in environmental standard reference materials. *Analytical and Bioanalytical Chemistry* 387, 2365-2379.

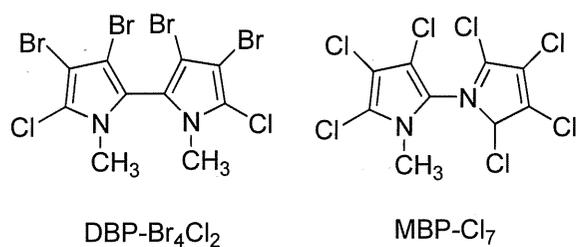
- Thomsen, C., Stigum, H., Froshaug, M., Broadwell, S., Becher, G., Eggesbo, M., 2010. Determinants of brominated flame retardants in breast milk from a large scale Norwegian study. *Environment International* 36, 68-74.
- Tittlemier, S., Borrell, A., Duffe, J., Duignan, P., Fair, P., Hall, A., Hoekstra, P., Kovacs, K., Krahn, M., Lebeuf, M., Lydersen, C., Muir, D., O'Hara, T., Olsson, M., Pranschke, J., Ross, P., Siebert, U., Stern, G., Tanabe, S., Norstrom, R., 2002. Global distribution of halogenated dimethyl bipyrroles in marine mammal blubber. *Archives of Environmental Contamination and Toxicology* 43, 244-255.
- Tittlemier, S., Kennedy, S., Hahn, M., Reddy, C., Norstrom, R., 2003. Naturally produced halogenated dimethyl bipyrroles bind to the aryl hydrocarbon receptor and induce cytochrome P4501A and porphyrin accumulation in chicken embryo hepatocytes. *Environmental Toxicology and Chemistry* 22, 1622-1631.
- Tittlemier, S., Braekevelt, E., Halldorson, T., Christopher, C., Norstrom, R., 2004a. Vapour pressures, aqueous solubilities, Henry's Law constants, and octanol/water partition coefficients of a series of mixed halogenated dimethyl bipyrroles. *Chemosphere* 57, 1373-1381.
- Tittlemier, S., 2004b. Dietary exposure to a group of naturally produced organohalogens (halogenated dimethyl bipyrroles) via consumption of fish and seafood. *Journal of Agricultural and Food Chemistry* 52, 2010-2015.
- Ueno, D., Isobe, T., Ramu, K., Tanabe, S., Alaei, M., Marvin, C., Inoue, K., Someya, T., Miyajima, T., Kodama, H., Nakata, H., 2010. Spatial distribution of hexabromocyclododecanes (HBCDs), polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) and organochlorines in bivalves from Japanese coastal waters. *Chemosphere* 78, 1213-1219.
- Ueno, D., Kajiwara, N., Tanaka, H., Subramanian, A., Fillmann, G., Lam, P., Zheng, G., Muchitar, M., Razak, H., Prudente, M., Chung, K., Tanabe, S., 2004. Global pollution monitoring of polybrominated diphenyl ethers using skipjack tuna as a bioindicator. *Environmental Science & Technology* 38, 2312-2316.
- Van Oostdam, J., Gilman, A., Dewailly, E., Usher, P., Wheatley, B., Kuhnlein, H., Neve, S., Walker, J., Tracy, B., Feeley, M., Jerome, V., Kwavnick, B., 1999. Human health implications of environmental contaminants in Arctic Canada: a review. *Science of The Total Environment* 230, 1-82.
- Vetter, W., Alder, L., Kallenborn, R., Schlabach, M., 2000. Determination of Q1, an unknown organochlorine contaminant, in human milk, Antarctic air, and further environmental samples. *Environmental Pollution* 110, 401-409.
- Vetter, W., Haase-Aschoff, P., Rosenfelder, N., Komarova, T., Mueller, J., 2009. Determination of Halogenated Natural Products in Passive Samplers Deployed along the Great Barrier Reef, Queensland/Australia. *Environmental Science & Technology* 43, 6131-6137.
- Vetter, W., Hahn, M.E., Tomy, G., Ruppe, S., Vatter, S., Chahbane, N., Lenoir, D., Schramm, K.W., Scherer, G., 2004. Biological Activity and Physicochemical Parameters of Marine Halogenated Natural Products 2,3,3',4,4',5,5'-Heptachloro-1'-Methyl-1,2'-Bipyrrole and 2,4,6-Tribromoanisole.

- Archives of Environmental Contamination and Toxicology 48, 1-9.
- Vetter, W., Scholz, E., Gaus, C., Muller, J., Haynes, D., 2001. Anthropogenic and natural organohalogen compounds in blubber of dolphins and dugongs (Dugong dugon) from northeastern Australia. Archives of Environmental Contamination and Toxicology 41, 221-231.
- Viberg, H., Fredriksson, A., Eriksson, P., 2004. Investigations of strain and/or gender differences in developmental neurotoxic effects of polybrominated diphenyl ethers in mice. Toxicological Sciences 81, 344-353.
- Wan, Y., Wiseman, S., Chang, H., Zhang, X., Jones, P., Hecker, M., Kannan, K., Tanabe, S., Hu, J., Lam, M., Giesy, J., 2009. Origin of Hydroxylated Brominated Diphenyl Ethers: Natural Compounds or Man-Made Flame Retardants? Environmental Science & Technology 43, 7536-7542.
- Watanabe, I., Sakai, S., 2003. Environmental release and behavior of brominated flame retardants. Environment International 29, 665-682.
- Wu, J., Vetter, W., Gribble, G.W., Schneekloth, J.J.S., Blank, D.H., Görts, H., 2002. Structure and Synthesis of the Natural Heptachloro-1'-methyl-1,2'-bipyrrole (Q1). Angewandte Chemie International Edition 41, 1740-1743.
- Yamaguchi, Y., Kawano, M., Tatsukawa, R., Moriwaki, S., 1988. Hexabromobenzene and its debrominated compounds in human adipose tissues of Japan. Chemosphere 17, 703-7.



**Fig. 1.** Sampling sites of breast milk in Japan (Hokkaido and Okinawa Prefecture)





**Fig. 2.** Structures of naturally produced brominated contaminants.  
 2'-MeO-BDE68: 4,6-dibromo-2-(2',4'-dibromo)phenoxyanisole;  
 6-MeO-BDE47: 3,5-dibromo-2-(2',4'-dibromo)phenoxyanisole;  
 2,2'-diMeO-BB80: 2,2'-dimethoxy-3,3',5,5'-tetrabromobiphenyl;  
 DBP-Br<sub>4</sub>Cl<sub>2</sub>: 1,1'-dimethyl-2,2'-bipyrrrole;  
 MBP-Cl<sub>7</sub>: 2,3,3',4,4',5,5'-heptachloro-1'-methyl-1,2'-bipyrrrole.

**Table 1** Information regarding the participants and lipid contents of milk samples from Hokkaido and Okinawa.

region	Location		year	n	mean age	lipid (%)
	Latitude	Longitude				
Hokkaido	42-90°N	140-99°E	2005	20	30.5	2.30
Okinawa	26-20°N	127-69°E	2005-2006	20	30.3	2.63
All				40	30.4	2.45

**Table 2** GC/MS conditions for analysis of brominated compounds in human breast milk.

Carrier gas	helium (head pressure of 3 psi)
Injection mode	splitless
Column	HP-5MS (30% dimethylpolysiloxane, 30 m × 0.25 mm i.d. and 0.25 μm film thickness, J&W Scientific, CA, USA)
Oven.	70 °C (1.5 min), then 20 °C/min to 230 °C (0.5 min), and then 4 °C/min to 280 °C (5 min)
Temperature	injector (250 °C), transfer line (280 °C), and ion source (230 °C for EI, 150 °C for ECNI)
Ionization mode	ECNI (electron capture negative ionization)
Reagent gas	Methane
Target ions , (confirmed ions), <i>m/z</i>	79 (81) for brominated contaminants 386 (388) for MBP-Cl <sub>7</sub>

**Table 3** Concentrations of polybrominated diphenyl ethers and related compounds in breast milk collected from Okinawa and Hokkaido.

	Okinawa n=20				Hokkaido n=20				Overall		LOQ (ng/g lipid)
	Freq (n>LOQ)	Mean	Median	Range	Freq (n>LOQ)	Mean	Median	Range	Mean	Median	
<b>Concentration (ng/g lipid)</b>											
<i>BFRs</i>											
BDE-28	16	0.12	0.12	<0.06-0.38	6	0.16	0.030	<0.06-1.9	0.14	0.040	0.06
BDE-47	20	0.97	0.87	0.10-2.2	16	2.7	0.40	<0.08-46	1.9	0.56	0.08
BDE-99	14	0.20	0.16	<0.1-0.48	4	0.62	0.050	<0.1-10	0.41	0.050	0.1
BDE-100	11	0.16	0.080	<0.1-0.56	4	0.41	0.050	<0.1-6.7	0.29	0.050	0.1
BDE-153	20	0.60	0.56	<0.2-1.6	10	0.54	0.19	<0.2-4.0	0.57	0.48	0.2
BDE-154	14	0.19	0.16	<0.2-0.41	3	0.13	0.10	<0.2-0.57	0.16	0.10	0.2
ΣPBDE	20	2.1	2.1	0.55-5.1	16	4.3	1.0	<0.2-69	3.4	1.5	-
TeBB	20	2.4	2.0	0.83-6.0	20	2.6	2.6	0.76-6.6	2.5	2.1	0.01
HeBB	19	0.19	0.20	<0.05-0.46	20	0.86**	0.71	0.20-2.5	0.53	0.32	0.05
<i>natural products</i>											
2'-MeO-BDE68	18	0.39*	0.28	<0.06-1.6	12	0.17	0.070	<0.06-0.69	0.28	0.14	0.06
6-MeO-BDE47	8	0.050*	0.030	<0.05-0.13	0	<0.05	<0.05	<0.05	0.040	0.030	0.05
2,2'-diMeO-BB80	17	0.20**	0.22	<0.04-0.45	7	0.040	0.020	<0.04-0.12	0.12	0.070	0.04
MBP-Cl <sub>7</sub>	19	0.19	0.11	<0.01-0.94	17	0.090	0.070	<0.01-0.43	0.14	0.080	0.01
DBP-Br <sub>4</sub> Cl <sub>2</sub>	17	0.23	0.20	<0.04-0.62	18	0.45	0.28	<0.04-2.7	0.34	0.25	0.04
<b>Ratio</b>											
BDE-47/BDE-153		1.6	1.6			5.0	2.1		3.3	1.2	
TeBB/HeBB		12	9.8			3.1	3.7		4.7	6.6	
2'-MeO-BDE68/BDE-47		0.40	0.32			0.06	0.18		0.15	0.25	

All data were calculated by assuming that values below the LOD were equal to one-half of the LOD. \*p<0.05, \*\*p<0.01.

a n > MDL

**Table 4** Pearson correlation coefficients between the levels of the major brominated contaminants in breast milk from Okinawa (n=20) and Hokkaido (n=20).

	BDE-47	BDE-153	TeBB	HeBB	2'-MeO-BDE68	2,2'-diMeO-BB80	MBP-Cl <sub>7</sub>
<i>Okinawa</i>							
BDE-153	0.348						
TeBB	-0.202	0.107					
HeBB	0.364	0.775**	0.053				
2'-MeO-BDE68	0.070	-0.189	-0.199	-0.078			
2,2'-diMeO-BB80	0.299	-0.188	-0.104	0.074	0.522*		
MBP-Cl <sub>7</sub>	0.432	0.540*	-0.168	0.490*	0.029	0.021	
DBP-Br <sub>4</sub> Cl <sub>2</sub>	0.284	-0.059	-0.137	0.158	0.478*	0.767**	0.279
<i>Hokkaido</i>							
BDE-153	0.927**						
TeBB	-0.214	-0.088					
HeBB	-0.117	-0.031	0.628**				
2'-MeO-BDE68	0.054	0.197	-0.077	0.069			
2,2'-diMeO-BB80	0.004	0.071	0.049	-0.273	0.221		
MBP-Cl <sub>7</sub>	0.268	0.298	0.054	0.069	0.183	-0.090	
DBP-Br <sub>4</sub> Cl <sub>2</sub>	-0.064	-0.108	0.301	-0.024	0.408	0.480*	0.129

\*p<0.05, \*\*p<0.01.

厚生労働科学研究費補助金（食品の安全確保推進研究事業）  
分担研究報告書

汚染が懸念される短鎖塩素化パラフィンの日中韓母乳試料モニタリング

研究代表者 小泉 昭夫 京都大学医学研究科  
研究分担者 原田 浩二 京都大学医学研究科  
研究分担者 高菅 卓三 島津テクノロジー

研究要旨

昨年度の調査において、残留性有機汚染物質の新たな候補とされる短鎖塩素化パラフィンが食事に含まれることを示した。特に中国では油脂中に含まれると考えられる短鎖塩素化パラフィンが、食事試料で過去15年で100倍近く増加しており、急速な汚染が進んでいる可能性が示唆された。食事からの曝露により、母乳に短鎖塩素化パラフィンが移行するかについて本研究では検討した。京都大学生体試料バンク保存試料を用いて、5人の母乳試料を等量混合調製して1試料とし、日中韓の京都 2007-2009; 仙台2007-2009; 韓国（ソウル2007-2010; プサン 2008-2009）中国（2007-2009）延べ385人分の計77試料を調査した。

開発されたHRGC/ECNI/HRMS高感度分析では3カ国で検出可能なレベルで短鎖塩素化パラフィンが確認された。日本では44検体中6検体、韓国で16検体中2検体、中国では17検体すべてで検出された。脂肪重量当たりの濃度では中国では中央値37600pg/g-lipidで、最大値は66000pg/g-lipidであった。日本では最大でも17500pg/g-lipidであり、中央値は検出限界以下（600 pg/g-lipid以下）であった。韓国では最大値3400pg/g-lipidで中央値は検出限界以下（600 pg/g-lipid以下）であった。

食事同様に中国では日本に比較して高い短鎖塩素化パラフィン濃度であり、今後継続モニタリングおよび汚染源調査が必要である。

A. 研究目的

我が国における食物自給率は極めて低く、食糧の多くを中国や韓国に依存している。しかし、中国では多数の零細業者が生産を担っており、食品衛生当局の監督が行き届いていない状況が懸念されている。使用済み食用油の再利用がなされているという中国国内での報道もあり（Serchina news “「下水油」の名で国民関心—中国政府が「生ごみ再生の食用油」厳禁“、

2010/03/19）、実際に中国当局の摘発が行われている（Serchina news警察が「新型地溝油」摘発、非力な食品生産監督部門＝中国2012/04/04）。昨年度の調査で食事中短鎖塩素化パラフィンが中国で高濃度に検出され、また食用油脂から特に高い値が認められた。このように食品が汚染されていることから、ヒトへの曝露が実際に生じていることが考えられる。そこで本年度は母乳試料中の短鎖塩素化パ

ラフィンを、京都大学生体試料バンクの2007年から2009年の韓国、中国、日本の母乳試料中を用いて調査した。

## B. 研究方法

研究実施計画書は京都大学医の倫理委員会で承認されている。また海外共同研究機関でも承認を得た。採取前に書面によるインフォームドコンセントを研究参加者から得た。

京都大学生体試料バンクの凍結保存されている母乳試料を用いた。5人の母乳試料を等量混合調製して1試料とし、日中韓の京都 2007-2009; 仙台 2007-2009; ソウル 2007-2010; プサン 2008-2009; 北京 2007-2009 の延べ385人分の計77試料を調査した。プール試料は分析まで-30℃でガラスの瓶に保存した。

母乳試料を5nLを分取し、1:1 (vol / vol) アセトン/ヘキサン100mLを加えて、10分間分液漏斗で振盪し抽出した。抽出液を濾過し、残留物をさらに10分間1:1 アセトン/ヘキサン100mLで再び抽出した。抽出液を合わせ、10分間ヘキサン洗浄蒸留水500mlで振盪し、水溶成分を除去した。洗浄した水層をヘキサン50mlで2回抽出した。有機層を合わせ、ヘキサン洗浄蒸留水100mlで再び洗浄した。有機画分を無水硫酸ナトリウムで乾燥し、ロータリーエバポレーターを用いて約20 mLに濃縮させた。粗抽出液をメスフラスコを用いて20 mLに希釈した。粗抽出液の2 mLを取り、脂肪含有量を電子天秤で計量した。粗抽出液2mLをホールピペットを用いて分取し、8g活性化フロリジルカラム (Florisil PR、和光純薬製) に滴下し、SCCPsを1:4ジクロロメタン/ヘキサン90 mLで溶出した。溶出液をデカン0.05 mLに濃縮して<sup>13</sup>C<sub>12</sub>標識CB-111

を添加し、HRGC / ECNI / HRMS分析に供した。

## ・測定

HRGC / ECNI / HRMS は、Hewlett-Packard 6890、サーモフィッシャーMAT 95 XLを用いた。キャピラリーカラムはDB-5MSを用いて、15m×内径0.25 mm、膜厚0.1 μmで異性体が同時に溶出する条件とした。[M-Cl]のフラグメントを定量イオンとして用いた。検量線は同族体組成を決定した異性体混合標準液を用いて作成した。

## C. 研究結果

385試料は、3カ国5つの調査地から採取した(表1)。参加者の平均(±SD)年齢は北京で有意に低く(P < 0.05、TukeyのHSD-Kramerのテスト)、出産は全て初産であった。

3カ国で検出限界以上の短鎖塩素化パラフィンが確認された(表2)。日本では44検体中6検体、韓国で16検体中2検体、中国では17検体すべてで検出された。脂肪重量当たりの全SCCPs濃度では中国では中央値37600pg/g-lipidで、最大値は66000pg/g-lipidであった。日本では最大でも17500pg/g-lipidであり、中央値は検出限界以下(600 pg/g-lipid以下)であった。韓国では最大値3400pg/g-lipidで中央値は検出限界以下(600 pg/g-lipid以下)であった。中国での濃度は有意に他の2カ国より高かった(P < 0.05、ノンパラメトリックSteel-Dwass test)。

検出される同族体の頻度では、日中韓ともに、塩素化数7のポリ塩素化ウンデカンが検出されている(表2)。日本では塩素化数8、9のポリ塩素化

ドデカンがもっともよく検出された。中国では塩素化数7、8のポリ塩素化トリデカンが全ての試料で検出される一方、炭素鎖が短くなるに従い、検出される頻度および塩素化数が低下した。

#### D. 考察

北京では昨年度の食餌試料中SCCPsにつづき、母乳試料中でも日本、韓国に比べて高い濃度で検出された。中国は世界で最大のSCCPs生産国と見なされ(Yuan et al., 2009)、SCCPs生産により北京の母乳からSCCPsが検出されるようになったと示唆される。

様々なSCCPの同族体が含まれていたが、取り分け、7塩素体から9塩素化体のドデカン、トリデカンが主要な同族体であった。この組成は、低塩素化体も含まれていた食餌試料中の同族体組成とは異なっていた。韓国では母乳中に7塩素化ウンデカンのみが検出され、昨年度の食事中SCCPsでは8塩素化ウンデカンが検出されている。日本では食事試料中では高塩素化ドデカンが見られており、母乳試料中の組成に近かった。

同族体は、物理化学的性質を共有しているが、体内での動態の違いについては情報が少ない。しかしながら塩素含有度と鎖長のパターンは東アジア諸国でSCCPsの曝露源を識別することができるかもしれない。さらなるモニタリングにより同族体パターンの比較することが必要と考えられる。

日本、韓国、中国からの5つ地域を選んだが必ずしもこれらの国々の平均的曝露を示す者ではない。中国における母乳中SCCPsの増加はさらに原因の調査が必要である。

#### E. 結論

バンク試料を用いて日中韓の母乳試料中の短鎖塩素化パラフィンの汚染レベルを調査した結果、北京試料で有意に高い濃度が確認された。今後の日本を含む東アジアでの汚染動向を把握するために、食事試料を含めて母乳試料について、POPs 候補物質の継続モニタリング調査を行う必要がある。

#### F. 健康危険情報

なし

#### G. 研究発表

##### 1. 論文発表

Harada KH, Takasuga T, Hitomi T, Wang PY, Matsukami H, Koizumi A. Dietary exposure to short-chain chlorinated paraffins has increased in Beijing, China. *Environ Sci Technol*. Accepted 20 Jul, 45(16):7019-7027, 2011 doi: 10.1021/es200576d

##### 2. 学会発表・その他

原田浩二、高菅卓三、人見敏明、王培玉、小泉昭夫. 日中韓の食事試料中の短鎖塩素化パラフィンとその汚染源の探索. 第51回 近畿産業衛生学会 2011年11月5日 奈良県立文化会館

#### 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  
 Yuan B, Wang Y, Fu J, Jiang G. 2009, organohalogen Compounds, 71,3106-3109  
 Serchina news “「下水油」の名で国民関心—中国政府が「生ごみ再生の食用油」厳禁“, 2010/03/19  
[http://news.searchina.ne.jp/disp.cgi?y=2010&d=0319&f=national\\_0319\\_](http://news.searchina.ne.jp/disp.cgi?y=2010&d=0319&f=national_0319_)

031.shtml  
 Serchina news警察が「新型地溝油」摘発、非力な食品生産監督部門＝中国  
 2012/04/04  
[http://news.searchina.ne.jp/disp.cgi?y=2012&d=0404&f=national\\_0404\\_022.shtml](http://news.searchina.ne.jp/disp.cgi?y=2012&d=0404&f=national_0404_022.shtml)

表1. 研究参加者の年齢、身長、体重、BMI、産児数の概要

Area	Year	n	Age (yr)	HSD test <sup>a</sup>	Height (cm)	Weight (kg)	BMI	Parity
Beijing	2007-2009	85	26.8±2.0	A	163.1±1.7	68.1±5.1	25.4±1.6	1
Seoul&Busan	2007-2010	80	31.3±3.5	B	162.7±2.4	57.3±6.5	21.0±1.5	1.5±0.3
Kyoto&Sendai	2007-2009	220	32.4±4.2	B	158.7±2.4	54.1±3.4	21.0±2.4	1.4±0.3

BMI: body mass index

Data are presented as the mean ± standard deviation.

a Means with different letters differ significantly (p<0.05, Tukey–Kramer HSD test). For example, the letters A and B indicate that the corresponding values differ significantly at