

## 分担研究報告書

福岡県久山町に在住する地域住民 495 名の血液中ダイオキシン類および  
ポリ塩化ビフェニール濃度

研究分担者	戸高 尊	公益財団法人北九州生活科学センター	室長
研究協力者	広瀬勇氣	公益財団法人北九州生活科学センター	検査員
	上原口奈美	公益財団法人北九州生活科学センター	検査員
	福島 直	公益財団法人北九州生活科学センター	理事
	今地政美	公益財団法人北九州生活科学センター	理事長

**研究要旨** 福岡県久山町に在住する地域住民 495 名の血液中ダイオキシン類およびポリ塩化ビフェニール濃度の測定を行った。血液中ダイオキシン類およびポリ塩化ビフェニールの平均濃度は、それぞれ 24 pg TEQ/g lipid および 214 pg/g lipid であった。今回得られた 495 名中、60 歳以上の 314 名（平均年齢 69 歳）の平均濃度を、平成 16 年度に行った那珂川町在住 127 名（平均年齢 68 歳）の測定値と比較した結果、ダイオキシン類濃度で 20% およびポリ塩化ビフェニール濃度で 40% 低い濃度であった。

### A . 研究目的

油症はポリ塩化ジベンゾダイオキシン (PCDD)、ポリ塩化ジベンゾフラン (PCDF)、ポリ塩化ビフェニール (PCB) およびポリ塩化クアテルフェニル (PCQ) が混入したカネミオイルを摂取して発症した複合中毒である。油症の発生から 45 年以上経過しているが、いまでも何人かの患者が、ダイオキシン類特有の症状に悩まされている。これら患者の血液中 PCDD, PCDF, PCB および PCQ 濃度は健常人に比べて高濃度である<sup>1,2)</sup>。

毎年行われる全国一斉検診において、油症認定者と未認定者を油症診断基準により明確に識別する際、対照となる一般健常人の血液中 PCDD, PCDF および PCB 濃度が重要です。平成 16 年に福岡県那珂川町在住の健常人で 60 歳以上の高齢者 127 名を対象とし、血液中 PCDD, PCDF および PCB の異性体分析を行った。それから 10

年以上経過し、これらの濃度は、近年日本で行なわれたダイオキシン類のモニタリング調査結果と比較して高い濃度を示していた。今回、福岡県久山町に在住する地域住民 495 名について、ダイオキシン類による人体への影響を明らかにする目的で、血液中 PCDD, PCDF および PCB 濃度の測定を行った。

### B . 研究方法

#### 1. 対象者

平成 27 年 6 月 26 日から 8 月 29 日に福岡県久山町で実施された生活習慣病健診を受診した地域住民を対象とし、最終的に 495 名に対して、血液中 PCDD, PCDF および PCB 分析のための採血を行った。採血は真空採血管を用いて血液 30 ml を採取し、測定に供するまで冷蔵保存した。受診時 495 名の平均年齢は 62 歳（34-92 歳）であった。

## 2. 血液中 PCDD, PCDF および PCB 濃度の測定

血液中 PCDD, PCDF および PCB の抽出・精製は、以前報告した方法に準じて行った<sup>1,2)</sup>。ダイオキシン類の測定は大量注入装置を装備したガスクロマトグラフ/高分解能質量分析装置を用いて行い、PCB の測定はガスクロマトグラフ/高分解能質量分析装置を用いて行った<sup>1,2)</sup>。

データの解析に関して、Toxic Equivalent (TEQ) 濃度の算出は毒性等価係数 (Toxic Equivalency Factor: WHO-05) を用いて計算した。定量下限値は厚生労働省の血液中ダイオキシン類測定暫定マニュアルに準拠し、平均濃度算出時、定量下限値以下の異性体は定量下限値の 1/2 の濃度として算出した。

### (倫理面への配慮)

福岡県久山町在住 495 名の血液中 PCDD, PCDF および PCB 濃度について、この試験計画は九州大学倫理委員会により承認を得て行われた。また研究対象者から書面にて研究参加への同意を取得した上で実施された。研究者は、対象者の個人情報漏洩を防ぐ上で細心の注意を払い、その管理に責任を負う。

## C . 研究結果

### 1. 操作ブランク値

今回実施した 495 名の血液中ダイオキシン類分析は、1 回に行う検体数を 22 検体とし、23 回行った。分析結果の信頼性を確保するために血液 22 検体につき操作ブランク試験 1 件、内部精度管理として市販のコントロール血清 1 件を含む合計 24 検体で実施した。

血液試料からダイオキシン類を抽出・精製する場合の注意点として、環境中に存在する高濃度のダイオキシン類からの汚染を守ることが重要であります。公益

財団法人北九州生活科学センターでは、生体試料からダイオキシン類の抽出・精製を行う実験室内のダイオキシン類濃度を可能な限りゼロにするための空調システムを装備したクリーンルーム実験室を構築しました。今回行った 23 回試験時の操作ブランク値について、TriCB-77 以外のブランク値は観察されませんでした。TriCB-77 のブランク値も定量下限値の 1/10 以下なので、測定値に影響を及ぼすことは無いと言えます。

### 2. コントロール血清の分析

当センターでは、毎年国内で生体試料中ダイオキシン類の分析を行う機関との外部精度管理試験に参加し、血液中ダイオキシン類やポリ塩化ビフェニールの分析値について、信頼性の確保に努めています。今回行った 23 回の試験で、各コントロール血清の Total-TEQ および Total PCB 濃度値から算出した CV 値は、それぞれ 3.1 および 5.8% で、ともに 10% 以下でありました。さらに、油症の主要原因物質である 2,3,4,7,8-pentaCDF 濃度の CV 値も 8.2% で、10% 以下でありました。また、それ以外の各異性体についても全体的にバラツキは少なく、各試験時における血液中 PCDD, PCDF, および PCB 濃度の分析値に関しては、信頼性の高い結果が得られていると考えられます。

### 3. 血液保存時の安定性

今回の健診は平成 27 年 10 月 26 日から 11 月 29 日の 35 日間間に、14 回に分けて行われた。採血された血液試料は、毎回直ちに当センターに搬送され、採血管中の血液をガラス管に移した後、測定に供するまで 4 で冷蔵保存した。1 回目の血液試料 (サンプル No.1 から 22) からのダイオキシン類の抽出・精製を平成 27 年 12 月 10 日に行い、最終の血液試料 (サンプル No.480 から 495) の抽出・精

製を平成 28 年 8 月 3 日に行いました。平成 28 年 8 月 17 日に血液試料（サンプル No.1 から 22）の抽出・精製を再度行い、約 8 ヶ月間血液を冷蔵保存した状態における血液中 PCDD, PCDF, および PCB の測定値について検討を行った。再度測定した 22 検体のダイオキシン類およびポリ塩化ビフェニール濃度を、最初に行った 22 検体の分析値と比較した結果、すべての検体で、誤差範囲が 10%以内であり、ほぼ同じ測定値を示した。さらに、2,3,4,7,8-pentaCDF についても同様の結果が得られ、血液検体の冷蔵保存期間中における PCDD, PCDF, および PCB の分析値は安定であることが示された。

#### 4. 久山町在住 495 名の PCDD, PCDF, および PCB 濃度

表 1-2 に久山町在住一般健常人 495 名の血液中ダイオキシン類およびポリ塩化ビフェニール濃度を示した。495 名の血液中ダイオキシン類濃度の平均濃度は 24 pg TEQ/g lipid で、濃度範囲は 3.8 から 85 pg TEQ/g lipid の値を示した。ポリ塩化ビフェニール濃度に関しては、平均濃度は 214 pg/g lipid、濃度範囲は 11 から 934 pg/g lipid であった。

#### D . 考察

平成 16 年度に那珂川町在住の 60 歳以上の高齢者 127 名（平均年齢 68 歳）を対象とし、血液中ダイオキシン類およびポリ塩化ビフェニールの異性体分析を行った。127 名の血液中ダイオキシン類およびポリ塩化ビフェニール濃度は、それぞれ 37 pg TEQ/g lipid および 385 pg/g lipid であった<sup>2)</sup>。これらの結果を今回得られた久山町の結果と比較した。

今回調査に参加した 495 名の中に 60 歳以上の高齢者が 314 名（平均年齢 69 歳）受診していた。314 名の血液中ダイオキシン類およびポリ塩化ビフェニールの平

均濃度は、それぞれ 29 pg TEQ/g lipid および 268 pg/g lipid の値を示した。これらの結果は、ダイオキシン類濃度で 20% およびポリ塩化ビフェニール濃度で 40%、那珂川町の結果と比較して低い濃度であった。また、今回得られた血液中 2,3,4,7,8-pentaCDF 濃度の平均値は 12 pg/g lipid で、那珂川町の結果より約 10% 程度低い値を示した。以上得られた結果から、福岡県に住む健常人のダイオキシン類およびポリ塩化ビフェニールの体内曝露量は、平成 16 年から平成 27 年の期間に減少している可能性が考えられます。

平成 23 年から平成 26 年の期間に、環境省は 334 名を対象に、ダイオキシン類の曝露量モニタリング調査を実施した。334 名の平均年齢は 50 歳（26-77）で、血液中ダイオキシン類濃度は 12 pg TEQ/g lipid、濃度範囲は 0.40 から 56 pg TEQ/g lipid と報告している<sup>3)</sup>。

今回受診した 495 名中、60 歳以下の年齢の方が 194 名で、このグループの平均年齢は 51 歳であった。血液中ダイオキシン類濃度は 16 pg TEQ/g lipid、濃度範囲は 3.8 から 40 pg TEQ/g lipid の値を示した。比較するグループ間の平均年齢はほぼ同じですが、対象者の住んでいる地域、年齢分布や人数が異なるため、単純に比較することは難しいですが、今回得られた結果は、環境省の調査結果よりやや高い値が得られています。

#### E . 結論

久山町在住一般健常人 495 名の血液中ダイオキシン類およびポリ塩化ビフェニール濃度を測定した。今回得られた 495 名中、60 歳以上の 314 名（平均年齢 69.3 歳）の平均濃度を平成 16 年度的那珂川町在住 127 名の測定値と比較した結果、ダイオキシン類およびポリ塩化ビフェニール濃度で、それぞれ 20 および 40% 低い

濃度であった。したがって、福岡県に住む健常人のダイオキシン類の体内曝露量は、平成 16 年から平成 27 年の期間に減少している可能性が考えられます。

#### F . 参考文献

- 1) Todaka T, *et al.* Concentrations of polychlorinated dibenzo-*p*-dioxins, polychlorinated dibenzofurans, and non-*ortho* and mono-*ortho* polychlorinated biphenyls in blood of Yusho patients. *Chemosphere* 2007; 66: 1983-1989.
- 2) Todaka T, *et al.* Concentrations of polychlorinated biphenyls in blood of Yusho patients over 35 years after the incident. *Chemosphere* 2009; 74: 902-909.
- 3) Official statement by the Ministry of the Environment, Government of Japan. The exposure to chemical compounds in the Japanese people. [http://env.go.jp/chemi/dioxin/pamph/cd/2016ja\\_full.pdf](http://env.go.jp/chemi/dioxin/pamph/cd/2016ja_full.pdf).

#### G . 研究発表

##### 1 . 論文発表

- 1) Todaka T, Honda A, Imaji M, Takao Y, Mitoma C, Furue M. Effect of colestimide on the concentrations of polychlorinated dibenzo-*p*-dioxins, polychlorinated dibenzofurans, and polychlorinated biphenyls in blood of Yusho patients. *Environmental Health*, doi: 10, 1186/s12940-016-0150-z.

##### 2 . 学会発表

- 1) 広瀬勇気, 戸高尊, 本多彰紀, 福島

直, 今地政美, 梶原淳睦, 平川博仙, 高尾佳子, 三苫千景, 古江増隆: 油症患者の血液中ダイオキシン類およびポリ塩化ビフェニール濃度に及ぼすコレステミドの影響、第 25 回環境化学討論会(新潟) 2016 年 6 月 8-10 日。

#### 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

