

## 2. 調査方法

### 2.1 地域設定、対象者、試料採取

#### 2.1.1 調査対象地域

平成14年～22年度にかけて行われた「ダイオキシン類をはじめとする化学物質の人への蓄積量調査」の調査地域のうち、3地域を選定して調査を行った。

3地域は以下のとおりである。

- ・北海道東北ブロック ・都市地域（平成16年度調査実施）
- ・北海道東北ブロック ・漁村地域（平成16年度調査実施）
- ・東海北陸近畿ブロック・漁村地域（平成14年度調査実施）

#### 2.1.2 調査対象者の条件

原則として、以下の条件を満たす地域住民を対象とした。

- ・年齢40歳以上60歳未満
- ・対象地域内に10年以上居住していること。
- ・対象地域を離れることが少ないこと。
- ・健康状況により血液採取に支障をきたさないこと 等

なお、条件を満たす地域住民のうち、過去調査「ダイオキシン類をはじめとする化学物質の人への蓄積量調査」の参加者に対しては、優先的に調査参加を呼び掛けた。

#### 2.1.3 対象者数・平均年齢

対象者数を表2.1.1に示す。対象者数は84人、平均年齢は49.3歳であった。

表 2.1.1 対象者数

| 地域分類        | 対象者数（人） |    |    | 平均年齢（歳） |      |      |
|-------------|---------|----|----|---------|------|------|
|             | 計       | 男性 | 女性 | 計       | 男性   | 女性   |
| 北海道東北・都市地域  | 31      | 8  | 23 | 48.9    | 47.5 | 49.4 |
| 北海道東北・漁村地域  | 25      | 16 | 9  | 48.6    | 47.3 | 50.9 |
| 東海北陸近畿・漁村地域 | 28      | 11 | 17 | 50.2    | 53.5 | 48.1 |
| 総計          | 84      | 35 | 49 | 49.3    | 49.3 | 49.2 |

#### 2.1.4 説明会・試料採取

対象地域ごとに公民館等の会場に対象者に集まっていただき、調査内容の説明会を開催した。

地域ワーキンググループの座長より調査内容の説明がなされ、同意書を受領した。その後、採血や尿試料の受け取りを行った。試料の採取方法について、表 2.1.2に示す。

表 2.1.2 試料採取方法

| 媒体 | 採取方法  |
|----|---|
| 血液 | 医師の立会いの下、看護師・臨床検査技師等の有資格者により、採血した（59mL）。  |
| 尿  | 早朝尿<br>容器を事前にお渡しし、採血日の起床してから最初の尿を採尿いただいた。   |
|    | 24時間蓄尿<br>容器を事前にお渡しし、食事調査期間中の特定日に、起床してから二回目の尿～翌日の起床してから最初の尿までを採尿いただいた。  |
| 食事 | 採血からあまり日が経たない3日間について、対象者が摂取した食事（朝食、昼食、夕食、間食）をすべて一食分多く用意していただき、こちらが用意した容器に保管いただいた。食事を回収する際には、各食材の計量や食事内容の聞き取りも行った。 |

#### 2.1.5 説明会・食事採取時期

説明会・食事採取時期を表 2.1.3に示す。

表 2.1.3 採血・食事採取日程

| 地域分類        | 説明会・採血・採尿（早朝尿）・アンケート調査 | 食事採取          | 採尿（24時間蓄尿）    |
|-------------|------------------------|---------------|---------------|
| 北海道東北・都市地域  | H25. 1. 27             | H25. 1. 28-30 | H25. 1. 29-30 |
| 北海道東北・漁村地域  | H25. 1. 28             | H25. 2. 4- 6  | H25. 2. 5- 6  |
| 東海北陸近畿・漁村地域 | H25. 1. 20             | H25. 1. 21-23 | H25. 1. 22-23 |

## 2.2 化学物質の分析

### 2.2.1 対象化学物質と検体数

本調査の対象化学物質と検体数を表 2.2.1に示す。

血液、尿、食事の3媒体について、ダイオキシン類をはじめ重金属や放射性物質等の化学物質を対象とした。

表 2.2.1 対象化学物質と媒体

| 分類         | 化学物質名             | 血液 | 尿   |        | 食事 |
|------------|-------------------|----|-----|--------|----|
|            |                   |    | 早朝尿 | 24時間蓄尿 |    |
| ダイオキシン類    | 塩素系ダイオキシン類        | 84 |     |        | 15 |
|            | 臭素系ダイオキシン類        | 84 |     |        |    |
| 重金属        | 総水銀               | 84 |     |        | 15 |
|            | メチル水銀             |    |     |        | 15 |
|            | 鉛                 | 84 |     |        | 15 |
|            | カドミウム             | 84 | 84  | 15     | 15 |
|            | ヒ素                | 84 | 84  | 15     | 15 |
|            | 銅                 | 84 |     |        | 15 |
|            | セレン               | 84 |     |        | 15 |
|            | 亜鉛                | 84 |     |        | 15 |
| 放射性物質      | セシウム 134、セシウム 137 | 84 | 84  | 15     | 15 |
|            | カリウム 40           | 84 | 84  | 15     | 15 |
|            | ヨウ素 131           | 84 | 84  | 15     | 15 |
| 農薬・農薬系代謝物類 | 有機リン化合物代謝物        |    | 30  | 15     |    |
|            | ピレスロイド系農薬代謝物      |    | 30  | 15     |    |
|            | カーバメート系農薬代謝物      |    | 30  | 15     |    |
|            | アセフェート            |    | 30  | 15     |    |
|            | メタミドホス            |    | 30  | 15     |    |
|            | ネオニコチノイド系農薬代謝物    |    | 30  | 15     |    |
|            | フェントロチオン代謝物       |    | 30  | 15     |    |
|            | パラチオン代謝物          |    | 30  | 15     |    |
|            | トリクロサン            |    | 30  | 15     |    |
|            | ディート              |    | 30  | 15     |    |
|            | パラベン類             |    | 30  | 15     |    |
| その他        | 水酸化 PCB           | 15 |     |        |    |
|            | フタル酸エステル類         |    | 84  | 15     |    |
|            | ビスフェノール A         |    | 84  | 15     |    |
|            | ヨウ素               |    | 30  | 15     |    |
|            | 過塩素酸              |    | 30  | 15     |    |
|            | PAH 代謝物類          |    | 30  | 15     |    |
|            | コチニン              |    | 30  | 15     |    |
|            | カフェイン             |    | 30  | 15     |    |
|            | ベンゾフェノン 3         |    | 30  | 15     |    |
|            | 植物エストロゲン類         |    | 30  | 15     |    |

## 2.2.2 分析方法

化学物質の分析方法の概要と検出下限値を表 2.2.2～表 2.2.5に示す。

表 2.2.2 血液試料の分析法概要

| 分類      | 化学物質名      | 分析法概要                                | 化学物質の細目と検出下限値   |   |
|---------|------------|--------------------------------------|---|---|
| ダイオキシン類 | 塩素系ダイオキシン類 | 溶媒抽出-GC/HRMS<br>同位体希釈法               | TeCDD、TeCDF<br>PeCDD、PeCDF<br>HxCDD、HxCDF<br>HpCDD、HpCDF<br>OCDD、OCDF<br>Co-PCB | 1 pg/g-fat<br>1 pg/g-fat<br>2 pg/g-fat<br>2 pg/g-fat<br>4 pg/g-fat<br>10 pg/g-fat |
|         | 臭素系ダイオキシン類 | 溶媒抽出-GC/HRMS<br>同位体希釈法               | TeBDD、TeBDF<br>PeBDD、PeBDF<br>HxBDD、HxBDF<br>HpBDD、HpBDF<br>OBDD、OBDF           | 1 pg/g-fat<br>2 pg/g-fat<br>2 pg/g-fat<br>4 pg/g-fat<br>10 pg/g-fat               |
| 重金属類    | 総水銀        | 冷原子吸光光度法                             | —   | 0.064 ng/mL   |
|         | 鉛          | ICP-MS 法                             | —   | 0.8 ng/mL   |
|         | カドミウム      | ICP-MS 法                             | —   | 0.08 ng/mL  |
|         | ヒ素         | ICP-MS 法                             | —   | 0.07 ng/mL  |
|         | 銅          | ICP-MS 法                             | —   | 3 ng/mL   |
|         | セレン        | ICP-MS 法                             | —   | 0.5 ng/mL   |
|         | 亜鉛         | ICP-MS 法                             | —   | 0.1 ng/mL   |
| 放射性物質   | セシウム       | Ge 半導体検出器- $\gamma$<br>線スペクトロメリー     | セシウム 134<br>セシウム 137  | 2 Bq/kg<br>2 Bq/kg  |
|         | カリウム 40    | Ge 半導体検出器- $\gamma$<br>線スペクトロメリー     | カリウム 40   | 10 Bq/kg  |
|         | ヨウ素        | Ge 半導体検出器- $\gamma$<br>線スペクトロメリー     | ヨウ素 131   | 2 Bq/kg   |
| その他     | 水酸化 PCB    | 溶媒抽出 TMS 誘導体<br>化-GC/HRMS 同位体<br>希釈法 | 5Cl-HO-PCBs<br>6Cl-HO-PCBs<br>7Cl-HO-PCBs                                       | 0.5pg/g-fat   |

表 2.2.3 尿試料の分析法概要（1）

| 分類            | 化学物質名     | 分析法概要                            | 化学物質の細目と検出下限値        |                    |
|---------------|-----------|----------------------------------|----------------------|--------------------|
| 重金属           | カドミウム     | ICP-MS 法                         | —                    | 0.12 ng/mL         |
|               | 形態別ヒ素     | LC-ICP-MS 法                      | 5 価ヒ素                | 0.3 ng/mL          |
|               |           |                                  | 3 価ヒ素                | 0.5 ng/mL          |
|               |           |                                  | MMA (モノメチルアルソン酸)     | 0.2 ng/mL          |
|               |           |                                  | DMA (ジメチルアルソン酸)      | 0.8 ng/mL          |
| AB (アルセノヘタイン) | 0.7 ng/mL |                                  |                      |                    |
| 放射性物質         | セシウム      | Ge 半導体検出器- $\gamma$<br>線スペクトロメリー | セシウム 134<br>セシウム 137 | 1 Bq/kg<br>1 Bq/kg |
|               | カリウム 40   | Ge 半導体検出器- $\gamma$<br>線スペクトロメリー | カリウム 40              | 10 Bq/kg           |
|               | ヨウ素       | Ge 半導体検出器- $\gamma$<br>線スペクトロメリー | ヨウ素 131              | 2 Bq/kg            |

表 2.2.4 尿試料の分析法概要 (2)

| 分類        | 化学物質名          | 分析法概要           | 化学物質の細目と検出下限値   |
|-----------|----------------|-----------------|---|
| 農薬・農薬系代謝物 | 有機リン化合物代謝物     | 固相抽出-LC/MS/MS 法 | DMP<br>DEP<br>DMTP<br>DETP<br>0.58 ng/mL<br>1.2 ng/mL<br>2.0 ng/mL<br>0.49 ng/mL  |
|           | ピレスロイド系農薬代謝物   | 固相抽出-LC/MS/MS 法 | PBA<br>DCCA<br>0.12 ng/mL<br>0.56 ng/mL   |
|           | カーバメート系農薬代謝物   | 固相抽出-LC/MS/MS 法 | エチレンチオ尿素<br>0.28 ng/mL  |
|           | アセフェート         | 固相抽出-LC/MS/MS 法 | アセフェート<br>0.062ng/mL  |
|           | メタミドホス         | 固相抽出-LC/MS/MS 法 | メタミドホス<br>0.073ng/mL  |
|           | ネオニコチノイド系農薬代謝物 | 固相抽出-LC/MS/MS 法 | 6-クロロニコチン酸<br>0.068ng/mL  |
|           | フェントロチオン代謝物    | LC/MS/MS 法      | 3-メチル-4-ニトロフェノール<br>0.11ng/mL   |
|           | パラチオン代謝物       | LC/MS/MS 法      | p-ニトロフェノール<br>0.11ng/mL   |
|           | トリクロサン         | 固相抽出-LC/MS/MS 法 | トリクロサン<br>0.06 ng/mL  |
|           | ディート           | LC/MS/MS 法      | ディート<br>0.067ng/mL  |
| その他       | パラベン類          | 固相抽出-LC/MS/MS 法 | メチルパラベン<br>エチルパラベン<br>プロピルパラベン<br>ブチルパラベン<br>ベンジルパラベン<br>0.8ng/mL<br>0.6ng/mL<br>0.4ng/mL<br>0.5ng/mL<br>0.7ng/mL   |
|           | フタル酸モノエステル類    | 固相抽出-LC/MS/MS 法 | MBP<br>MEHP<br>MBzP<br>MEOHP<br>MEHHP<br>0.080 ng/mL<br>0.078 ng/mL<br>0.095 ng/mL<br>0.095 ng/mL<br>0.095 ng/mL  |
|           | ビスフェノール A      | 固相抽出-LC/MS/MS 法 | BPA<br>0.11 ng/mL   |
|           | ヨウ素            | ICP-MS 法        | ヨウ素<br>0.2ng/mL   |
|           | 過塩素酸           | LC/MS/MS 法      | 過塩素酸<br>0.93ng/mL   |
|           | PAH 代謝物類       | 固相抽出-LC/MS/MS 法 | 1-ヒドロキシピレン<br>1&9-ヒドロキシフェナントレン<br>2-ヒドロキシフェナントレン<br>3-ヒドロキシフェナントレン<br>4-ヒドロキシフェナントレン<br>0.020ng/mL<br>0.0063ng/mL<br>0.020ng/mL<br>0.026ng/mL<br>0.026ng/mL |
|           | コチニン           | LC/MS/MS 法      | コチニン<br>0.045ng/mL  |
|           | カフェイン          | LC/MS/MS 法      | カフェイン<br>0.066ng/mL   |
|           | ベンゾフェノン 3      | 固相抽出-LC/MS/MS 法 | BP-3<br>0.9ng/mL  |
|           | 植物エストロゲン類      | 固相抽出-LC/MS/MS 法 | ゲニステイン<br>ダイゼイン<br>エクオール<br>2ng/mL<br>0.7ng/mL<br>2ng/mL  |

表 2.2.5 食事試料の分析法概要

| 分類      | 化学物質名      | 分析法概要                             | 化学物質の細目と検出下限値   |   |
|---------|------------|-----------------------------------|---|---|
| ダイオキシン類 | 塩素系ダイオキシン類 | 凍結乾燥-溶媒抽出-<br>GC/HRMS 法           | TeCDD、TeCDF<br>PeCDD、PeCDF<br>HxCDD、HxCDF<br>HpCDD、HpCDF<br>OCDD、OCDF<br>Co-PCB | 0.0003 pg/g<br>0.0006 pg/g<br>0.001 pg/g<br>0.0003 pg/g<br>0.001 pg/g<br>0.002 pg/g |
| 重金属     | 総水銀        | 凍結乾燥-酸分解-冷原<br>子吸光光度法             | —   | 0.5 ng/g  |
|         | メチル水銀      | 試料混合-凍結乾燥-ジ<br>チゾン抽出-<br>GC/ECD 法 | —   | 0.5 ng/g  |
|         | 鉛          | 酸分解-ICP-MS 法                      | —   | 0.40 ng/g   |
|         | カドミウム      | 酸分解-ICP-MS 法                      | —   | 0.033 ng/g  |
|         | ヒ素         | 酸分解-ICP-MS 法                      | —   | 0.40 ng/g   |
|         | 銅          | 酸分解-ICP-MS 法                      | —   |   |
|         | セレン        | 酸分解-ICP-MS 法                      | —   |   |
| 放射性物質   | セシウム       | Ge 半導体検出器-γ線<br>スペクトロメリー          | セシウム 134<br>セシウム 137  | 1 Bq/kg<br>1 Bq/kg  |
|         | カリウム 40    | Ge 半導体検出器-γ線<br>スペクトロメリー          | カリウム 40   | 8 Bq/kg   |
|         | ヨウ素        | Ge 半導体検出器-γ線<br>スペクトロメリー          | ヨウ素 131   | 0.8 Bq/kg   |

### 2.2.3 塩素系ダイオキシン類のTEF及び検出下限値未満の値の取り扱い

塩素系ダイオキシン類に関する毒性等価係数は表 2.2.6に示すとおり、WHO-TEF2006を用いた。

また、ある異性体の実測濃度が「検出下限値未満 (N.D.)」であった場合、実測濃度を「0」として計算した。

表 2.2.6 塩素系ダイオキシン類に関する毒性等価係数 (TEF) 一覧

| 化合物の名称等 |                     | WHO-TEF2006                 |         |
|---------|---------------------|-----------------------------|---------|
| PCDDs   | 2,3,7,8-TeCDD       | 1                           |         |
|         | 1,2,3,7,8-PeCDD     | 1                           |         |
|         | 1,2,3,4,7,8-HxCDD   | 0.1                         |         |
|         | 1,2,3,6,7,8-HxCDD   | 0.1                         |         |
|         | 1,2,3,7,8,9-HxCDD   | 0.1                         |         |
|         | 1,2,3,4,6,7,8-HpCDD | 0.01                        |         |
|         | OCDD                | 0.0003                      |         |
| PCDFs   | 2,3,7,8-TeCDF       | 0.1                         |         |
|         | 1,2,3,7,8-PeCDF     | 0.03                        |         |
|         | 2,3,4,7,8-PeCDF     | 0.3                         |         |
|         | 1,2,3,4,7,8-HxCDF   | 0.1                         |         |
|         | 1,2,3,6,7,8-HxCDF   | 0.1                         |         |
|         | 1,2,3,7,8,9-HxCDF   | 0.1                         |         |
|         | 2,3,4,6,7,8-HxCDF   | 0.1                         |         |
|         | 1,2,3,4,6,7,8-HpCDF | 0.01                        |         |
|         | 1,2,3,4,7,8,9-HpCDF | 0.01                        |         |
| OCDF    | 0.0003              |                             |         |
| Co-PCBs | non-ortho           | 3,3',4,4'-TeCB(# 77)        | 0.0001  |
|         |                     | 3,4,4',5'-TeCB(# 81)        | 0.0003  |
|         |                     | 3,3',4,4',5'-PeCB(#126)     | 0.1     |
|         |                     | 3,3',4,4',5,5'-HxCB(#169)   | 0.03    |
|         |                     | 2,3,3',4,4'-PeCB(#105)      | 0.00003 |
|         | mono-ortho          | 2,3,4,4',5'-PeCB(#114)      | 0.00003 |
|         |                     | 2,3',4,4',5'-PeCB(#118)     | 0.00003 |
|         |                     | 2',3,4,4',5'-PeCB(#123)     | 0.00003 |
|         |                     | 2,3,3',4,4',5'-HxCB(#156)   | 0.00003 |
|         |                     | 2,3,3',4,4',5'-HxCB(#157)   | 0.00003 |
|         |                     | 2,3',4,4',5,5'-HxCB(#167)   | 0.00003 |
|         |                     | 2,3,3',4,4',5,5'-HpCB(#189) | 0.00003 |