

表1 モニターイオン

物質名	略称	定量イオン	参照イオン
フタル酸ジ-n-ブチル	DBP	149	205, 223
フタル酸ブチルベンジル	BBP	149	91, 206
フタル酸ジ-2-エチルヘキシル	DEHP	149	167, 279
フタル酸ジイソオクチル	DiOP	149	279
フタル酸ジイソノニル	DiNP	149	293
フタル酸ジ-n-ブチル-d ₄	DBP-d ₄	153	227, 209
フタル酸ブチルベンジル-d ₄	BBP-d ₄	153	91, 210
フタル酸ジ-2-エチルヘキシル-d ₄	DEHP-d ₄	153	171, 283
フタル酸ジオクチル-d ₄	DOP-d ₄	153	283
フタル酸ジノニル-d ₄	DNP-d ₄	153	297

表2 血清試料

試料ID	採取量(g)												平均	SD	RSD	脂肪含量 (%)	
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12				1-12計	
YE100204001	0.503	0.507	0.501	0.491	0.498	0.497	0.501	0.503	0.500	0.502	0.500	0.499	0.500	0.004	0.8	6.002	0.57
YE100204005	0.501	0.520	0.491	0.492	0.496	0.494	0.509	0.499	0.497	0.502	0.506	0.501	0.501	0.008	1.6	6.008	0.44
YE100204006	0.500	0.498	0.501	0.502	0.497	0.501	0.501	0.498	0.504	0.498	0.515	0.495	0.501	0.005	1.0	6.010	0.62
YE100204011	0.501	0.518	0.493	0.490	0.497	0.501	0.500	0.508	0.495	0.508	0.491	0.501	0.500	0.008	1.6	6.003	0.61
YE100205001	0.502	0.498	0.501	0.506	0.491	0.499	0.508	0.525	0.480	0.556	0.479	0.478	0.502	0.022	4.3	6.023	0.54
YE100205002	0.505	0.497	0.501	0.499	0.498	0.498	0.501	0.501	0.500	0.505	0.494	0.503	0.500	0.003	0.6	6.002	0.59
YE100205011	0.503	0.498	0.500	0.500	0.502	0.498	0.500	0.499	0.504	0.502	0.497	0.509	0.501	0.003	0.7	6.012	0.55
YE100205014	0.500	0.498	0.500	0.505	0.499	0.497	0.502	0.506	0.496	0.501	0.494	0.507	0.500	0.004	0.8	6.005	0.59
YE100206001	0.505	0.496	0.495	0.504	0.502	0.503	0.498	0.499	0.499	0.502	0.501	0.495	0.500	0.003	0.7	5.999	0.45
YE100206006	0.503	0.501	0.498	0.496	0.505	0.552	0.458	0.506	0.487	0.502	0.503	0.499	0.501	0.021	4.1	6.010	0.49

表 3 測定対象物質およびモニターイオン

物質名	IUPAC No.	略号	定量イオン	参照イオン
2,4,6-三臭化ジフェニルエーテル	30	TrBDE-30	407.80	405.80
2,4',6'-三臭化ジフェニルエーテル	32	TrBDE-32	407.80	405.80
2,2',4'-三臭化ジフェニルエーテル	17	TrBDE-17	407.80	405.80
2,3',4'-三臭化ジフェニルエーテル	25	TrBDE-25	407.80	405.80
2,4,4'-三臭化ジフェニルエーテル	28	TrBDE-28	407.80	405.80
2',3,4'-三臭化ジフェニルエーテル	33	TrBDE-33	407.80	405.80
3,3',4'-三臭化ジフェニルエーテル	35	TrBDE-35	407.80	405.80
3,4,4'-三臭化ジフェニルエーテル	37	TrBDE-37	407.80	405.80
2,4,4',6'-四臭化ジフェニルエーテル	75	TeBDE-75	485.71	483.71
2,2',4,5'-四臭化ジフェニルエーテル	49	TeBDE-49	485.71	483.71
2,3',4',6'-四臭化ジフェニルエーテル	71	TeBDE-71	485.71	483.71
2,2',4,4'-四臭化ジフェニルエーテル	47	TeBDE-47	485.71	483.71
2,3',4,4'-四臭化ジフェニルエーテル	66	TeBDE-66	485.71	483.71
3,3',4,4'-四臭化ジフェニルエーテル	77	TeBDE-77	485.71	483.71
2,2',4,4',6'-五臭化ジフェニルエーテル	100	PeBDE-100	563.62	565.62
2,3',4,4',6'-五臭化ジフェニルエーテル	119	PeBDE-119	563.62	565.62
2,2',4,4',5'-五臭化ジフェニルエーテル	99	PeBDE-99	563.62	565.62
2,3,4,5,6'-五臭化ジフェニルエーテル	116	PeBDE-116	563.62	565.62
2,3',4,4',5'-五臭化ジフェニルエーテル	118	PeBDE-118	563.62	565.62
2,2',3,4,4'-五臭化ジフェニルエーテル	85	PeBDE-85	563.62	565.62
3,3',4,4',5'-五臭化ジフェニルエーテル	126	PeBDE-126	563.62	565.62
2,2',4,4',6,6'-六臭化ジフェニルエーテル	155	HxBDE-155	643.53	641.53
2,2',4,4',5,6'-六臭化ジフェニルエーテル	154	HxBDE-154	643.53	641.53
2,2',4,4',5,5'-六臭化ジフェニルエーテル	153	HxBDE-153	643.53	641.53
2,2',3,4,4',5'-六臭化ジフェニルエーテル	138	HxBDE-138	643.53	641.53
2,3,4,4',5,6'-六臭化ジフェニルエーテル	166	HxBDE-166	643.53	641.53
2,2',3,4,4',5',6'-七臭化ジフェニルエーテル	183	HpBDE-183	721.44	723.44
2,2',3,4,4',5,6'-七臭化ジフェニルエーテル	181	HpBDE-181	721.44	723.44
2,3,3',4,4',5,6'-七臭化ジフェニルエーテル	190	HpBDE-190	721.44	723.44
¹³ C-2,4,4'-三臭化ジフェニルエーテル (CS)	28	TrBDE-28	419.84	417.84
¹³ C-2,2',4,4'-四臭化ジフェニルエーテル (CS)	47	TeBDE-47	495.75	497.75
¹³ C-2,2',4,4',5'-五臭化ジフェニルエーテル (CS)	99	PeBDE-99	575.66	577.66
¹³ C-3,3',4,4',5'-五臭化ジフェニルエーテル (SS)	126	PeBDE-126	575.66	577.66
¹³ C-2,2',4,4',5,6'-六臭化ジフェニルエーテル (CS)	154	HxBDE-154	653.57	655.57
¹³ C-2,2',4,4',5,5'-六臭化ジフェニルエーテル (CS)	153	HxBDE-153	653.57	655.57
¹³ C-2,2',3,4,4',5,6'-七臭化ジフェニルエーテル (CS)	183	HpBDE-183	733.48	735.48

CS: クリーンアップスパイク, SS: シリンジスパイク

表 4 検出下限値 (LOD) および定量下限値 (LOQ)

異性体	血清あたり濃度 (pg/g)	
	LOD	LOQ
TrBDE-30	0.02	0.07
TrBDE-32	0.02	0.07
TrBDE-17	0.06	0.2
TrBDE-25	0.03	0.1
TrBDE-28/33	0.2	0.8
TrBDE-35	0.05	0.2
TrBDE-37	0.04	0.1
TeBDE-75	0.1	0.3
TeBDE-49	0.1	0.4
TeBDE-71	0.08	0.3
TeBDE-47	0.4	1
TeBDE-66	0.2	0.6
TeBDE-77	0.05	0.2
PeBDE-100	0.07	0.2
PeBDE-119	0.07	0.2
PeBDE-99	0.1	0.3
PeBDE-116	0.05	0.2
PeBDE-118	0.04	0.1
PeBDE-85	0.1	0.4
PeBDE-126	0.1	0.3
HxBDE-155	0.1	0.3
HxBDE-154	0.08	0.3
HxBDE-153	0.1	0.3
HxBDE-138	0.1	0.4
HxBDE-166	0.1	0.4
HpBDE-183	0.5	2
HpBDE-181	0.2	0.7
HpBDE-190	0.2	0.6

表 5 有機フッ素化合物測定対象者 49 名の身体所見、精液所見、血清ホルモン値

項目	平均値	標準偏差	最小値	中央値	最大値
年齢 (歳)	20.3	1.4	18	20	24
身長 (cm)	171.2	6.0	158	170	190
体重 (kg)	68.5	21.9	49	63	180
左精巣容量 (ml)	20.5	3.5	14	20	28
右精巣容量 (ml)	20.9	3.3	14	20	28
禁欲期間 (時間)	73.7	24.5	39	62	168
精液量 (ml)	3.0	1.0	1.5	2.8	5.9
精子濃度 ($\times 10^6/\text{ml}$)	68.1	47.8	2.1	54.9	200.3
総精子数 ($\times 10^6$)	209.1	162.0	8.4	163.4	646.0
精子運動率 (%)	59.6	15.1	9	60	84
FSH (IU/l)	3.2	1.4	1.1	3.0	7.6
LH (IU/l)	3.1	1.2	1.1	3.0	6.8
Testosterone (nmol/l)	26	6	12	26	37
Estradiol (pmol/l)	60	31	22	51	172
SHBG (nmol/l)	28	11	9	27	58
Inhibin B (pg/ml)	204	56	85	203	370

表 6 血清中および精漿中の PFOS 濃度と各種パラメータ
(身体所見、精液所見、血清ホルモン値)との関連

項目	血清中 PFOS 濃度		精漿中 PFOS 濃度	
	相関係数	P 値	相関係数	P 値
年齢	0.20	0.17	0.16	0.27
身長	-0.12	0.43	-0.19	0.90
体重	-0.17	0.24	0.15	0.31
左精巣容量	-0.13	0.38	-0.06	0.70
右精巣容量	-0.09	0.54	-0.08	0.58
精液量	0.61	0.67	-0.11	0.46
精子濃度	0.21	0.15	0.28	0.06
総精子数	0.17	0.26	0.16	0.27
精子運動率	0.37	0.80	-0.14	0.34
FSH	-0.08	0.61	-0.17	0.26
LH	-0.15	0.31	-0.01	0.95
Testosterone	-0.03	0.79	0.02	0.87
Estradiol	0.03	0.82	0.32	0.03
SHBG	0.15	0.29	-0.38	0.80
Inhibin B	0.14	0.34	0.04	0.79

表7 血清中フタル酸エステル類分析のための予備検討結果

試験内容	試料	例数	DEHP	DBP	BBP	DiOP	DiNP
ブランク試験	ヘキサン洗浄 蒸留水	3	5.0±0.9	4.0±0.9	<3.0	<20.0	<20.0
トラベルブ ランク測定	フタル酸エステ ル類測定用水 (和光純薬製)	3	6.8±3.7	5.8±1.1	<3.0	<20.0	<20.0
実試料の予備 測定	血清	3	5.5±3.1	4.2±0.6	<3.0	<20.0	<20.0

平均値±標準偏差 (n=3)

表8 血清中の MEHP 及び DEHP の分析結果 (n=45).

Compounds	検出濃度範囲 (ppb) [#]	中央値 (ppb) [#]	検出率 (%)
MEHP	1.2 ~ 3.5	1.9	100 (45/45)
DEHP ^{##}	<LOQ ^{\$} ~ 11.3	<LOQ ^{\$}	33.3 (15/45)

#: 測定値は、操作ブランク値 (平均値 MEHP, 0.29 ppb; DEHP; 3.7 ppb) を含む。

##: LOQ を超えた上位 15 試料の検出濃度範囲は、6.0~11.3 ppb であり、その中央値は、7.1 ppb であった。

\$: LOQ; MEHP, 0.2 ppb; DEHP, 6.0 ppb.

表9 血清中のフタル酸エステル類の分析結果

化合物	検出濃度範囲 (ppb)	中央値 (ppb) [#]	検出率 (%)
DEHP ^{\$}	<LOQ-76.1	<LOQ	18 (8/45)
DBP [*]	<LOQ-48.9	<LOQ	16 (7/45)
BBP	<LOQ	—	—
DiOP	<LOQ	—	—
DiNP	<LOQ	—	—

[#]測定値は、操作ブランク値 (DEHP, 4.3 ppb; DBP, 3.6 ppb) を含む。

^{\$}LOQを超えた上位8試料の検出濃度範囲は10.3-76.1 ppbであり、その中央値は13.4 ppbであった。

^{*}LOQを超えた上位7試料の検出濃度範囲は11.5-48.9 ppbであり、その中央値は25.2 ppbであった。