

母乳中の残留性有機汚染物質 (POPs) 汚染調査 (第 19 報)

—POPs 簡易測定法の開発とモニタリング調査の最終報告—

小西良昌* 柿本健作* 阿久津和彦* 尾花裕孝*

1972 年度より継続している大阪府内在住授乳婦の母乳中の残留性有機汚染物質 (POPs) 調査を実施した。PCBs や DDT 等の有機塩素系化合物による母乳汚染は 70 年代半ばの最も高濃度時に比べて、2008 年度現在約 1/8~1/70 にまで低下し、その低レベル域で今世紀以降平衡状態にあり、危険水域を大きく下回っている。PCBs の減少速度は化合物の中で最も遅く、残留性が高い。これら食物連鎖、特に魚介類摂取由来による曝露が起因である POPs に対し、白アリ駆除剤クロルデン (CHL) や 2,3,3,3,2',3',3',3'-Octachlorodipropyl ether (S-421)、臭素系難燃剤 Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) は毎年数名の高濃度曝露された母乳があり、室内からの直接・間接的な汚染が推測された。37 年間継続されてきた当調査は種々の理由により、2008 年度で幕を閉じた。

キーワード : 母乳、残留性有機汚染物質、PCBs、クロルデン、環境汚染

key words : human milk, persistent organic pollutants (POPs), PCBs, chlordane, environmental contamination

大阪府では、国の補助金を得て 1972 年度より、大阪府健康福祉部保健医療室地域保健福祉室健康づくり課を実施主体として府保健所、保健センター、大阪市、堺市、東大阪市の協力のもと、「大阪府母乳栄養推進事業」を現在に至るまで行ってきた。大阪府内在住、出産後 1 ヶ月から 3 ヶ月の授乳婦を対象に、母乳中の残留性有機汚染物質 (POPs) モニタリング継続調査を行い^{1,2,3)}、年に一度、大阪府健康福祉部保健医療室地域保健福祉室健康づくり課の主権により、「大阪府母乳栄養推進事業検討委員会」を開催し、事業結果に基づいて、母乳哺育の安全性の確認等、総合的な判断を下し

てきた。結果、母乳哺育による乳児への危険性等報告事例は一度も無く、母乳栄養の優秀性を考慮したリスク評価から、母乳育児を推進して差し支えないという委員会の結論に至ってきた。

しかしながら、白アリ駆除剤として使用されてきたクロルデン (CHL) については、依然比較的高濃度の母乳が存在した。また、別の調査研究により床下等に散布した CHL が、台所に保管している精米に吸着するという結果を得た^{4,5,6)}。

近年の食生活の変化、特に動物性脂肪摂取の増加や、スクワレン等新たな脂質類摂取は、母乳中の脂肪組成に大きく影響を与えていると思われる。その影響から、母乳中 POPs 分析で行ってきた従来の抽出・精製法⁷⁾では、脂肪酸由来と思われる夾雑物の影響により、POPs 濃度を正確に測定することが困難になってきた。また、従来の精製法は非常に煩雑かつ、微量分析の処理法としては不十分で、正確な分析値を得るに厳しい。そこで、ゲル浸透クロマトグラフィー (GPC) と硫酸シリカゲルカラムによる精製法を検討した。非常に簡易であり、かつ GC/MS クロマト上の夾雑物も非常に少ない。前報⁷⁾以降、2004~2008 年度の調査結果も併

* 大阪府立公衆衛生研究所 衛生化学部 食品化学課

Surveillance of Persistent Organic Pollutants in Human Breast Milk (19 th report) - Development of POPs simplified assay and the final report of monitoring study -

by Yoshimasa KONISHI, Kensaku KAKIMOTO, Kazuhiko AKUTSU and Hirota OBANA

せて報告する。37年間継続されてきた当調査は、残念ながら諸事情により、今年度で幕を閉じる。

なお、本調査は大阪府立公衆衛生研究所の倫理審査委員会の承認を受けている。

調査方法

1. 試料

大阪府内の保健所・保健センターを通じて、府内在住の出産後1ヶ月～3ヶ月の授乳婦（初産者のみ）より提供を受けた母乳について分析を行った。試料数は2005年57例、2006年58例、2007年58例、2008年57例（いずれも11～12月）であった。分析化合物はPCBs、Hexachlorobenzene (HCB)、 β -HCH、DDT関連物質として *p,p'*-DDE、*p,p'*-DDD、*p,p'*-DDT、*o,p'*-DDT の4種、Heptachlor epoxide (HCE)、CHL 関連物質として Oxychlorane (Oxy)、*trans*-Nonachlor (*t*-Nona)、*cis*-Nonachlor (*c*-Nona) の3化合物とした。2006年度からは有機リン系殺虫剤の共力剤として使用されている2,3,3,3,2',3',3',3'-Octachlorodipropyl ether (S-421) を、2007年度からは臭素系難燃剤 Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) を分析対象に加えた。なお、PBDEs は主要な4種異性体 (#47, #99, #100, #153) の合計値を PBDEs 濃度とした。

2. 分析方法

母乳は搬入後、全量にシュウ酸カリウム1gと母乳と等量のエタノールを加えて脂肪球を破壊した後、母乳の半量のジエチルエーテルとヘキサン100mLを加えて振とうし、乳脂肪を抽出した。ヘキサン層を脱水・濃縮し、得られた濃縮液を窒素気流下で恒量になるまで、さらに濃縮して脂肪重量(%)を求めた。

POPs分析(PCBsを除く)には乳脂肪各0.5gを、内部標準物質にはラベル化した¹³C δ -HCHを使用した。

乳脂肪をGPC移動相溶液2.5mLに溶解し、そのうちの2mLをGPCに負荷した。得られた溶液を減圧濃縮し44%硫酸シリカゲル1gに負荷、ヘキサン10mLにより溶出した。その溶出液を濃縮して1.0mLに定容し、GC/MS用試験溶液(PCBsを除く)とした。以下に条件を示す。

① GPC条件カラム：Shodex EV-G+EV-2000 AC(40°C)

移動相：アセトン/シクロヘキサン(3:7) 5 mL/min

② GC/MS条件 日本電子製 GCmate (分解能3,000)、注入口温度：250°C、注入法：スプリットレス、2 μ L、カラム：Rtx-1MS (15m \times 0.25mm ϕ 、膜厚0.1 μ m)、昇温条件：100°C (2min)-10°C/min-310°C (3min)、キャリアーガス：He (1mL/min)、イオン源温度：280°C、トランスファーライン温度：310°C、イオン化エネルギー：35eV、モニターイオン(m/z)：HCH (218.9, 220.9), HCB (283.8, 285.8), HCE (352.8, 354.8), Oxy (386.8, 388.8), *t*-Nona (408.8, 406.8), *c*-Nona (408.8, 406.8), *p,p'*-DDE (246.0, 248.0), *p,p'*-DDD (235.0, 237.0), *p,p'*-DDT (235.0, 237.0), *o,p'*-DDT (235.0, 237.0), TeBDE(#47) (485.7, 483.7), PeBDE(#99,#100) (563.6, 565.6), HxBDE(#153) (643.5, 641.5), S-421 (129.9, 131.9), ¹³C δ -HCH (224.9, 226.9)。検出下限値は、各0.1 ng/gとした。

PCBs分析は、従来法⁷⁾に酸分解を加え、さらに精製を強化した。乳脂肪0.2gを共栓遠沈管に秤量し、2N水酸化カリウム/エタノール溶液で一夜室温アルカリ分解、ヘキサン抽出後、水洗・濃縮した溶液をフロリジル(1g)に負荷し、約8mLのヘキサンで溶出した。正確に0.5mLに濃縮後、硫酸約0.5mLで酸分解を行った。水洗したヘキサン溶液に少量の無水硫酸ナトリウムを加え、PCBs用試験溶液とした。定量は、パックドカラム(2%OV-1)付ECD-GC(島津製GC-14BP)を用い、KC-500を標準品として、パターン法により総PCBs量を測定した。検出下限値は、10 ng/gとした。

結果および考察

2005年度までは、アセトニトリル抽出分配とフロリジル湿式カラム、GPCによる精製を行ってきたが、低濃度のPOPsを測定するには、クロマトグラム上に多くの夾雑ピークが残り、不十分であった。そこで新たな精製法として、硫酸シリカゲルカラムによる精製を試みた。硫酸シリカゲルを使用すれば、脱脂肪はGPCのみで十分であり、煩雑な分析工程が省略でき、迅速かつ、正確なクロマトグラムを得ることが出来た。図1にGPCの溶出パターンを示した。また、既報⁷⁾では分離不可能であったDDT関連物質(*o,p'*-DDT, *p,p'*-DDD)も検出可能となった。*p,p'*-DDDは*p,p'*-DDE

同様、DDT の代謝物で強い毒性を有する。DDT には *p,p'* 体 *o,p'* 体の核スピニ異性体が存在するが、*o,p'*-DDT が外因性エストロゲン作用を有するのに対して、*p,p'*-DDT には無いと報告されている⁸⁾。このように DDT 類の詳細な分析が可能となったが、精製に硫酸シリカゲルカラムを使用した場合、Heptachlor epoxide (HCE) と Dieldrin は酸に弱く分解するので、定量不可能になった。

PCBs や DDT による人体汚染が問題となった 1970-80 年代、POPs 曝露による慢性毒性評価は、発ガン性の有無が大きなウェイトを占めた。1990 年代になって、環境中に放出されたこれら化学物質が、広範な野生生物の生態系、特に内分泌系に対して影響を与え、人体にも影響を及ぼしている可能性が報告された⁹⁾。俗に「環境ホルモン」と呼ばれるこれらの作用は、今まで発ガン性があると思われていた濃度よりも遥かに微量で毒性を発現する可能性がある。従って、以前よりも更に低濃度レベルの正確な定量が要求される。分析機器の進歩・発展により、これら化学汚染物質の低濃度レベルの分析が可能になったが、それに伴い、より十分な試料精製が必要となっており、今回開発した処理法は、広範囲に応用できる可能性がある。

前報以降、2005 年度から 2008 年度までの 4 年間の母乳中 POPs 濃度 (乳脂肪中) の基礎統計量を表 1 に、1972 年度からの年推移を表 2 および図 2 に示した。POPs の汚染レベルは、今世紀に入っては全体的にはほぼ平衡状態に達しているが、化合物により乳脂肪中の減少度は異なり、PCBs > DDT > β -HCH の順で残留性が高いことがわかった。これら化合物は、主に魚介類

に明らかにされている。残留性の高い PCBs についての異性体別分析等の詳細は別途報告しているので、そちらを参照して頂きたい^{10,11,12)}。

測定した化合物中、CHL のみは他の POPs と異なり、100% 母乳哺育を行った場合、1 日摂取許容量 (ADI、0.5 μ g/kg/day) を超える高濃度汚染された母乳が今なお、毎年約 10%~20% 検出されている。CHL は 1986 年第 1 種特定化学物質に指定されたので、使用禁止となってから既に 20 年以上経過している。にもかかわらず、未だに CHL による母乳汚染問題は解消されていない。CHL は内分泌かく乱作用を有しており¹³⁾、また乳児は CHL に対する感受性が高いため、出来るだけ汚染を防ぐ必要がある。そのためには、モニタリングはもちろん、散布家屋の換気の徹底を呼びかける等、よりいっそうの行政対策が必要と思われる。

2006 年度より分析項目に加えた S-421 および 2008 年度測定した臭素系難燃剤 PBDEs には、CHL 同様、大きな個人差が認められた。CHL を含め、これら化学物質に共通する点は、他の POPs が食物連鎖 (主に魚介類) を介して人体曝露するのに対し、それ以外の経路、即ち室内環境による直接、あるいは間接的に人体曝露することである^{13,14)}。これらの事実は、POPs による人体曝露の中心が、食物連鎖から室内環境による曝露に移行しつつあり、多種多様な生活環境が母乳 POPs 汚染に影響を及ぼしていることを示唆する。

日本の POPs 研究の先駆者である立川涼氏は、著書¹⁵⁾の中で「環境調査は、調査時の汚染の状況をつかむことはできる。しかし、過去の汚染状況を明らかにすることはむずかしい。標本としての生物や土壌試料で、一応の復元が可能な場合もあるが、それはむしろきわめて幸運な場合に限られる。(中略)過去の汚染の歴史を復元するために、組織的に環境や生物試料を保存しておくことも重要である。(中略)要は、問題が生じたときに、過去が復元可能な試料を準備しておけば良い。」と述べている。1996 年、焼却場におけるダイオキシン類汚染が社会的に大きな問題となった。当研究所では、幸いにも母乳汚染調査で使用された乳脂肪の残りを冷凍保存していたため、著者らは 1973-1996 年の乳脂肪を用いて、乳脂肪中のダイオキシン類測定を行った。これにより過去の汚染状況を把握し、母乳中のダイオ

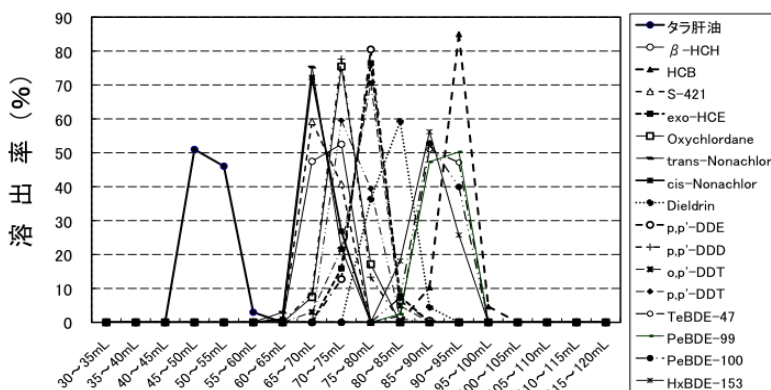


図 1. 残留性有機汚染物質のGPC溶出パターン

摂取を経た食物連鎖により、人体に蓄積することが既

表 1. 乳脂肪中POPs濃度 (2005~2008年度) の基礎統計量表

2005 年度	年齢 (years)	Fat (%)	β -HCH (ng/g)	p,p' -DDE (ng/g)	p,p' -DDD (ng/g)	p,p' -DDT (ng/g)	o,p' -DDT (ng/g)	T-DDT (ng/g)	PCB (ng/g)	HCB (ng/g)	Dieldrin (ng/g)	HCE (ng/g)	Oxy (ng/g)	t -Nona (ng/g)	c -Nona (ng/g)	T-CHL (ng/g)	S-421 (ng/g)	PBDE (ng/g)
平均値	29.0	4.02	85.5	193.1	-	8.94	-	202.0	141.8	7.23	3.59	2.35	16.5	50.1	7.6	74.2	-	-
標準偏差	5.1	1.32	70.7	118.1	-	6.84	-	124.9	57.5	3.33	4.01	2.45	8.6	40.8	7.7	53.9	-	-
幾何平均値	28.6	3.79	66.2	167.5	-	6.80	-	174.3	130.5	5.73	1.42	1.09	14.5	39.5	5.4	60.7	-	-
中央値	29	3.85	61.3	170.6	-	6.92	-	177.6	138.6	7.27	3.69	1.47	14.0	35.9	5.2	57.3	-	-
最大値	40	7.35	328.8	733.1	-	38.56	-	771.6	330.3	16.96	19.38	11.18	43.6	193.3	45.1	282.9	-	-
最小値	20	1.25	21.1	43.0	-	ND	-	44.0	43.4	ND	ND	ND	4.2	10.9	ND	16.4	-	-
2006 年度	年齢 (years)	Fat (%)	β -HCH (ng/g)	p,p' -DDE (ng/g)	p,p' -DDD (ng/g)	p,p' -DDT (ng/g)	o,p' -DDT (ng/g)	T-DDT (ng/g)	PCB (ng/g)	HCB (ng/g)	Dieldrin (ng/g)	HCE (ng/g)	Oxy (ng/g)	t -Nona (ng/g)	c -Nona (ng/g)	T-CHL (ng/g)	S-421 (ng/g)	PBDE (ng/g)
平均値	29.1	4.01	82.7	220.8	1.37	7.84	1.15	231.2	97.4	12.8	-	-	15.8	40.5	5.3	61.6	10.3	-
標準偏差	4.3	1.10	63.6	112.5	0.68	4.00	0.52	114.3	48.9	4.9	-	-	12.4	34.9	3.6	50.2	31.8	-
幾何平均値	28.8	3.85	66.2	196.1	1.20	6.94	1.04	206.4	87.9	11.9	-	-	12.9	32.1	4.5	49.9	3.9	-
中央値	29	3.88	67.6	196.5	1.37	7.13	1.07	207.6	83.0	11.9	-	-	11.8	28.9	4.5	44.5	3.1	-
最大値	38	6.43	351.6	609.1	3.55	20.74	2.77	621.4	325.4	31.8	-	-	75.6	207.4	22.2	305.3	230.6	-
最小値	19	1.53	15.7	63.6	0.36	2.52	0.31	67.4	27.8	3.5	-	-	3.4	7.1	1.2	11.7	0.7	-
2007 年度	年齢 (years)	Fat (%)	β -HCH (ng/g)	p,p' -DDE (ng/g)	p,p' -DDD (ng/g)	p,p' -DDT (ng/g)	o,p' -DDT (ng/g)	T-DDT (ng/g)	PCB (ng/g)	HCB (ng/g)	Dieldrin (ng/g)	HCE (ng/g)	Oxy (ng/g)	t -Nona (ng/g)	c -Nona (ng/g)	T-CHL (ng/g)	S-421 (ng/g)	PBDE (ng/g)
平均値	29.9	4.00	105.4	266.9	0.70	11.75	1.47	280.8	207.5	17.4	-	-	22.3	68.8	10.9	102.0	10.0	1.06
標準偏差	4.9	1.33	111.8	189.5	0.46	6.67	0.75	193.2	85.7	7.1	-	-	15.6	78.9	9.7	98.3	22.0	0.72
幾何平均値	29.5	3.77	72.8	226.3	0.58	10.41	1.29	239.9	191.0	16.1	-	-	18.4	42.8	7.3	71.4	4.6	0.93
中央値	30	3.95	63.8	227.7	0.58	10.41	1.36	237.6	191.3	16.3	-	-	20.0	44.0	7.3	76.7	3.2	0.87
最大値	40	7.15	595.9	1333.4	2.69	39.08	3.61	1353.3	473.8	44.7	-	-	99.2	432.3	41.2	524.7	144.2	4.83
最小値	18	1.10	16.2	71.0	0.12	4.36	0.30	77.2	75.3	6.1	-	-	4.1	2.2	0.5	7.1	1.4	0.41
2008 年度	年齢 (years)	Fat (%)	β -HCH (ng/g)	p,p' -DDE (ng/g)	p,p' -DDD (ng/g)	p,p' -DDT (ng/g)	o,p' -DDT (ng/g)	T-DDT (ng/g)	PCB (ng/g)	HCB (ng/g)	Dieldrin (ng/g)	HCE (ng/g)	Oxy (ng/g)	t -Nona (ng/g)	c -Nona (ng/g)	T-CHL (ng/g)	S-421 (ng/g)	PBDE (ng/g)
平均値	29.3	3.90	98.4	271.2	1.28	14.36	1.81	288.6	193.1	20.2	-	-	26.7	68.3	8.6	103.6	12.4	1.59
標準偏差	4.9	1.10	84.3	134.4	0.86	8.51	1.10	139.7	70.0	9.2	-	-	18.3	56.9	5.9	79.4	29.7	2.16
幾何平均値	28.9	3.75	79.4	242.2	0.99	12.07	1.45	258.4	181.6	18.1	-	-	21.3	49.0	6.7	77.9	6.1	1.29
中央値	28	3.69	72.2	250.9	1.07	12.73	1.58	272.2	177.1	19.5	-	-	20.1	44.1	7.5	75.0	5.2	1.25
最大値	41	6.38	568.4	753.3	4.25	40.34	4.46	771.9	405.1	43.2	-	-	73.3	204.9	25.3	284.5	216.6	17.03
最小値	20	2.19	19.8	82.4	0.14	2.57	0.18	86.5	75.7	6.4	-	-	3.6	10.5	1.5	15.6	1.1	0.63

キシシン類が1970年代をピークに経年的に減衰していることを明らかにした^{16,17)}。この調査結果は、大阪府および国のダイオキシン類排出規制対策に大きく貢献した。

また、欧米で1990年代、母乳が高濃度曝露されることがわかり、問題となった臭素系難燃剤 PBDEsにも素早く対応、経年推移を明らかにした^{18,19)}。同様に、PBDEsの代替品である Hexabromocyclododecane (HBCDs)についても経年推移を報告、母乳の安全性を確認した²⁰⁾。これら人体試料を30年以上過去にさかのぼって、経年変化を明確にした調査研究は世界にも例が無く、これら成果は長年の地道な調査研究の賜と言える。

表2. 初産婦の乳脂肪中POPs濃度平均値の年推移

年度 (year)	年齢 (years)	N(PCB) (サンプル)	PCB (ng/g)	N(OCC) (サンプル)	β-HCH (ng/g)	T-DDT (ng/g)	T-CHL (ng/g)	HCB (ng/g)	HCE (ng/g)	Diel (ng/g)	S-421 (ng/g)	PBDEs (ng/g)
1972	25	62	1300	12	5430	2220	—	—	—	—	—	—
1973	25	67	1310	22	3520	2990	—	—	—	93	—	—
1974	25	59	1510	12	6810	3650	—	—	—	90	—	—
1975	25	62	1260	11	4900	2660	—	—	—	62	—	—
1976	26	42	1110	11	4070	4000	—	—	—	75	—	—
1977	26	54	1240	11	2600	2100	—	—	—	47	—	—
1978	26	49	1210	9	3210	2240	—	—	—	74	—	—
1979	26	46	1100	10	2730	2300	—	—	—	33	—	—
1980	26	58	1050	39	2570	2170	—	64	—	33	—	—
1981	27	51	1040	29	2680	2340	—	79	—	30	—	—
1982	26	41	900	25	2240	2620	—	77	—	28	—	—
1983	26	54	1130	0	—	—	—	—	—	—	—	—
1984	26	50	880	0	—	—	—	—	—	—	—	—
1985	27	51	740	0	1270	119	—	—	—	—	—	—
1986	27	53	734	53	1090	120	119	44.8	34.6	—	—	—
1987	27	55	619	55	1138	101	120	45.7	24.8	—	—	—
1988	26	55	538	55	951	88.6	101	35.4	18.7	—	—	—
1989	27	55	524	55	639	68.2	89	28.4	12.4	—	—	—
1990	26	58	429	58	698	69.1	68	23.3	13.4	—	—	—
1991	27	60	367	60	528	61.9	69	29.3	9.4	—	—	—
1992	27	60	343	60	644	96.3	62	18.0	10.4	—	—	—
1993	27	58	284	58	459	88.2	96	20.2	12.6	—	—	—
1994	26	61	301	61	374	72.9	88	19.4	11.8	—	—	—
1995	27	59	312	59	283	65.8	73	17.1	14.6	—	—	—
1996	27	57	340	57	318	70.0	66	14.3	7.9	—	—	—
1997	28	47	260	47	288	84.6	70	13.6	8.3	—	—	—
1998	27	49	200	49	240	75.6	85	13.6	7.5	—	—	—
1999	28	53	263	53	226	68.9	76	13.8	8.1	—	—	—
2000	29	56	203	56	204	51.7	69	12.0	4.3	—	—	—
2001	28	57	178	57	188	54.1	52	10.4	4.4	—	—	—
2002	28	54	169	54	122	59.0	54	7.8	6.0	—	—	—
2003	29	55	151	55	179	54.1	59	9.4	5.1	—	—	—
2004	28	57	132	57	202	74.2	54	7.1	4.9	2.51	—	—
2005	29	57	142	57	85.5	202	74	7.2	2.3	3.59	—	—
2006	29	58	97	58	82.7	231	62	12.8	—	—	10.3	—
2007	30	58	208	58	105.4	281	102	17.4	—	—	10.0	1.06
2008	29	56	193	56	98.4	289	104	20.2	—	—	12.4	1.59

N(PCB):PCBの分析試料数
N(OCC):PCB以外の化合物の分析試料数

科学の発展に伴い、分析機器は飛躍的に進歩し、以前では同定・定量出来なかった低濃度測定が可能となった。また、今までは毒性が無いと思われていた化合物や、内分泌かく乱作用のように新たな毒性が疑われた場合、現在の試料を集め、現状を把握することは出来るが、過去を検証することは出来ない。過去を知ることが、現状との比較はもちろん、未来の予測に繋がる。著者らが明らかにした母乳乳脂肪を用いたダイオキシン類、PBDEs および HBCDs の研究成果は、まさにこれに当てはまる。母乳中 POPs の経年推移を調査するような研究は、地味ですぐに結果は出ない。ま

た、フィールドの確保も困難で、大阪府だからこそ成し得た研究成果とも言える。

このような長期間にわたるモニタリング調査は、著者ら研究員だけの力では成し得ない事業であり、特に行政の協力があったらこそその成果である。しかしながら、国の補助金が無くなり、「母乳栄養推進事業」の実施が困難となり、本調査研究もひとまず終了することとなった。非常に残念である。「継続は力」である。地道な疫学調査は、時として大きな成果を得る。近年は短期間で研究成果を求める傾向にあるが、本調査研究のように、長い展望を見据えた地道な調査研究の重要性を認識し、行政としての積極的な取り組みが求められるよう。

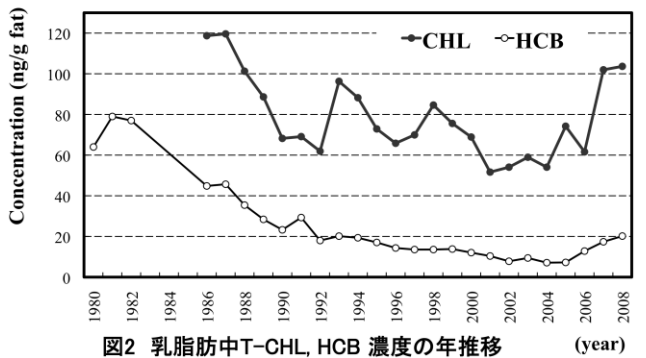
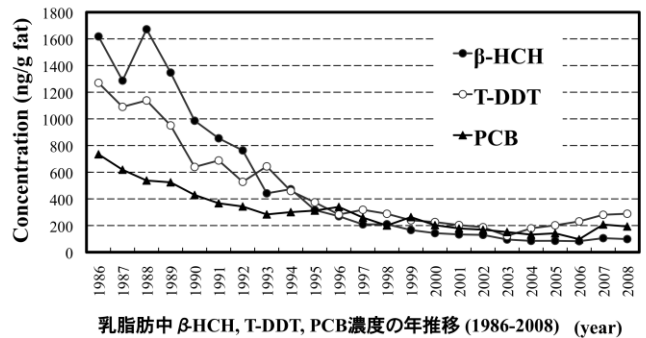
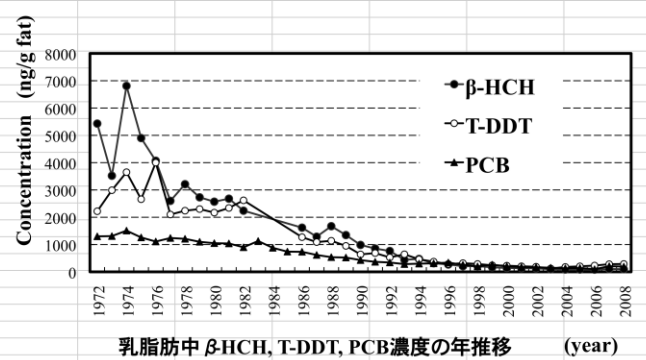


図2 乳脂肪中T-CHL, HCB 濃度の年推移 (year)

謝 辞

長期間にわたり当調査研究にたずさわって支援して頂いた多くの方々、および諸先輩に深謝する。

文 献

- 1) 小西良昌, 田中之雄, 西宗高弘: 母乳の有機塩素系化合物汚染調査 (第 16 報), 大阪府立公衛研所報, 食品衛生編, 第 25 号, 15~20 (1994)
- 2) 小西良昌, 桑原克義, 田中之雄, 堀伸二郎: 母乳の有機塩素系化合物汚染調査 (第 17 報), 大阪府立公衛研所, 研究報告, 第 36 号, 87~92 (1998)
- 3) Konishi Y, Kuwabara K, Hori S : Continuous surveillance of organochlorine compounds in mothers milk from 1972 to 1998 in Osaka, Japan, *Arch. Environ. Contam. Toxicol.*, **40**, 571-578 (2001)
- 4) 小西良昌, 薬師寺積, 田口修三, 西宗高弘, 田中涼一: 白アリ防除家屋における食餌性クロルデン量の増加, 食衛誌, **31**, 238~243 (1990)
- 5) 薬師寺積, 小西良昌, 田口修三, 西宗高弘, 田中涼一: 白アリ防除家屋における空气中クロルデン量のコメへの吸着, 食衛誌, **32**, 78~85 (1991)
- 6) 小西良昌, 薬師寺積, 田口修三, 西宗高弘, 田中涼一: 白アリ防除家屋における食餌性クロルデン量の増加, 食衛誌, **31**, 238~243 (1990)4)
- 7) 小西良昌, 阿久津 和彦, 田中之雄: 母乳中有機塩素系化合物汚染調査 (第 18 報) -POPs 測定における精製法の検討-, 大阪府立公衛研所, 研究報告, 第 44 号, 40~45 (2006)
- 8) 松井三郎, 田辺信介, 森 千里, 井口泰泉, 吉原進一, 有園幸司, 森澤真輔: 環境ホルモンの代謝とホルモン用作用の変化, 有機塩素系殺虫剤 DDT の代謝変換とホルモン様作用の変動, 環境ホルモンの最前線, 有斐閣選書, p.143-145 (2002)
- 9) Sedaka M : Ministry of Health and Welfare, Japan, Report on public welfare scientific research by the Healthy Earth Research Program Promotion (1996)
- 10) Konishi Y, Kuwabara K, Hori S : Continuous monitoring of PCB isomers in human breast milk from 1973 to 2000 in Osaka, JAPAN, *Organohalogen Compounds*, **63**, 441-444 (2003)
- 11) Konishi Y, Nakano T, Masho R, Tohyama C : Surveillance of PCB congener and isomeric patterns in human breast milk from 1973 to 2000 in Osaka, Japan, *PCB Workshop 2004*, Illinois, USA, (2004)
- 12) Konishi Y, Kitagawa M, Akutsu K, Tanaka Y : Surveillance of PCB congeneric patterns in human breast milk from 1973 to 2004 in Osaka, Japan, *Environ. Health Prev. Med.*, **11**, 38-44 (2006)
- 13) 植村振作: 床下の毒物シロアリ防除剤, p.124, 三省堂, 東京 (1999)
- 14) 松島裕子, 内田雄幸, 斉藤 実, 川崎 靖, 伊佐間和郎, 鹿庭正昭, 井上 達, 菅野 純: 家庭用の蚊取線香、電気蚊取等に広く使用されているピレスロイド系殺虫剤の共力剤である 2,3,3,3,2',3',3',3'-Octachlorodipropyl ether (S-421) のラットを用いた 28 日間反復強制経口投与毒性試験, 国立衛生研究所, 研究報告, 第 121 号, 40~47 (2003)
- 15) 立川 涼: PCB について, 食品衛生研究, **22**, 15-21 (1972)
- 16) Hori S, Konishi Y, Kuwabara K : Decrease of PCDDs, PCDFs and co-PCBs levels in human milk from Osaka (1973-1996), *Organohalogen Compounds*, **44**, 141-144.(1999)
- 17) 小西良昌, 田中之雄, 堀 伸二郎, 多田 裕: ダイオキシン類による母乳汚染の経年推移, -「ダイオキシン類対策特別措置法」の効果-, 環境化学, **16**, 667-689 (2006)
- 18) Akutsu K, Obana H, Okihashi M, Kitagawa, Nakazawa H, Matsuki Y, Makino T, Oda H, Hori S : GC/MS analysis of polybrominated diphenyl ethers in fish collected from the Inland Sea of Seto, Japan. *Chemosphere*, **44**, 1325-1333 (2001)
- 19) 阿久津 和彦, 堀伸二郎: 難燃剤ポリ臭素化ジフェニルエーテル (PBDEs) による食品・母乳汚染. 食衛誌, **45**, 175-183 (2004)
- 20) Kakimoto K, Konishi Y, Akutsu K : Time trend of hexabromocyclododecane in the breast milk of Japanese women, *Chemosphere*, **71**, 1110-1114 (2008)