

2014-2016年度油症検診における血液中ポリ塩化クア テルフェニルの分析

小木曾, 俊孝
福岡県保健環境研究所

安武, 大輔
福岡県保健環境研究所

佐藤, 環
福岡県保健環境研究所

高橋, 浩司
福岡県保健環境研究所

他

<https://doi.org/10.15017/1810706>

出版情報 : 福岡醫學雑誌. 108 (3), pp.94-101, 2017-03-25. 福岡医学会
バージョン :
権利関係 :

2014-2016 年度油症検診における血液中 ポリ塩化クアテルフェニルの分析

¹⁾福岡県保健環境研究所

²⁾九州大学大学院医学研究院 皮膚科学分野

³⁾九州大学病院 油症ダイオキシン研究診療センター

小木曾俊孝¹⁾, 安武大輔¹⁾, 佐藤 環¹⁾, 高橋浩司¹⁾, 堀 就英¹⁾,
梶原淳睦¹⁾, 香月 進¹⁾, 三苫千景²⁾, 古江増隆²⁾³⁾

Analysis of Polychlorinated Quaterphenyl in Yusho Diagnosis from 2014 to 2016

Toshitaka KOGISO¹⁾, Daisuke YASUTAKE¹⁾, Tamaki SATOH¹⁾, Koji TAKAHASHI¹⁾,
Tsuchihide HORI¹⁾, Jumboku KAJIWARA¹⁾, Susumu KATSUKI¹⁾,
Chikage MITOMA²⁾ and Masutaka FURUE²⁾³⁾

¹⁾*Fukuoka Institute of Health and Environmental Sciences, 39, Mukaizano,
Dazaifu-shi, Fukuoka 818-0135*

²⁾*Department of Dermatology, Graduate school of medical Science, Kyushu University
Maidashi 3-1-1, Higashi-ku, Fukuoka 812-8582*

³⁾*Research and Clinical center for Yusho and Dioxin, Kyushu University Hospital
Maidashi 3-1-1, Higashi-ku, Fukuoka 812-8582*

Abstract

Concentration of polychlorinated quaterphenyl (PCQ) in blood is an important chemical diagnostic standard in Yusho. In this study, we examined improvement of analytical method, and blood analysis was performed using this method. New method made it possible to analyze more quickly than our usual method. During the period of 2014 to 2016, a total of 143 bloods PCQ were analyzed. As a result, PCQ was detected from a total of 19 persons, and the range of PCQ concentrations were 0.02-6.15 ppb. From the time course of the PCQ concentration determined in blood of Yusho patients, PCQ is found not to be eliminated than PCB. The concentration of PCQ is an important knowledge for diagnosis of Yusho-disease and it is thought that it's necessary to continuously analyze in the future.

Key words : Yusho, PCQ, Blood

はじめに

ポリ塩化クアテルフェニル (PCQ) は油症患者が摂取したライスオイル中に高濃度に検出される化合物であり, ポリ塩化ビフェニル (PCB) が加熱媒体として使用される間に生成したと考えられ

ている¹⁾. PCQ は魚からごく微量検出されることが報告されているが, 健常者の血液ではほとんど検出されていない (平均で 0.02 ppb 未満)²⁾. 一方で, 油症患者の血液では明らかに高濃度の PCQ が検出されている³⁾. これらの知見から, 1981 年に血液中 PCQ 濃度が油症診断基準に追加

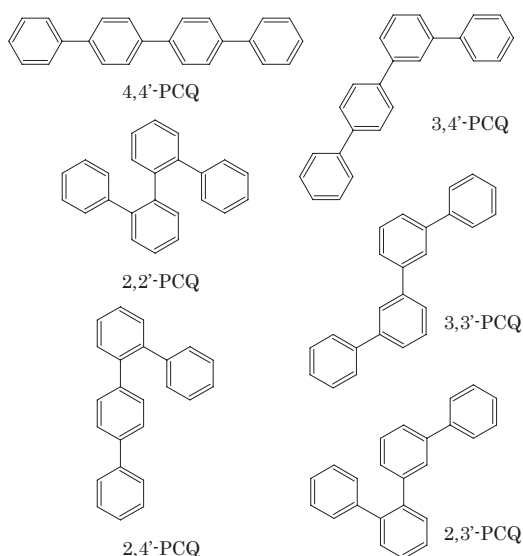


Fig. 1 Six basic skeletons of PCQ

された。PCQ は、血液中濃度が 0.1 ppb 以上の場合は「異常に高い濃度」、0.03-0.09 ppb が「境界領域濃度」、0.02 ppb 以下が「通常見られる濃度」とそれぞれ区分されている。

PCQ は PCB が二量体化した構造をしており、結合部位の違いにより 6 種類の基本骨格がある (Fig. 1)。さらに、置換する塩素の数や位置の違いにより数十万という異性体が存在することが知られており、個別に定量することは不可能である。PCQ の分析法は前田らにより PCQ を完全塩素化し骨格の異なる 6 種類のオクタデカクロロクアテルフェニル (ODCQ) として電子捕獲型検出器付きガスクロマトグラフ (ECD/GC) で定量する方法が確立されている⁴⁾。また、飯田らはキャピラリーカラムを用いた高感度分析法を開発し⁵⁾、芦塚らは使用する血液の少量化と検査の迅速化を報告している⁶⁾。当所ではこれらの報告を参考に PCQ の分析を行っているが、実験操作が長く、使用する器具の洗浄など操作以外の工程にも時間を要し、改良の余地があった。

今回著者らは、検査法の改良と、2014-2016 年に行われた油症一斉検診における PCQ の分析結果について報告する。

実験方法

1. 試料

2014-2016 年に行われた油症一斉検診における、PCQ の測定対象者 87 名 (延べ 143 名) の血液に

ついて測定を実施した。

2. 試薬・器具

ヘキサン、エタノール、ジエチルエーテル、ジクロロメタン、無水硫酸ナトリウムは関東化学製の残留農薬試験・PCB 試験用を用いた。蒸留水 (ヘキサン洗浄品) は関東化学製の残留農薬試験用を用いた。水酸化カリウム、酒石酸ナトリウム二水和物、炭酸水素ナトリウムは和光純薬製の特級を用いた。クロロホルムは和光純薬製の残留農薬・PCB 分析用、硫酸は同社製の有害金属分析用、20%塩酸は同社製の精密分析用を用いた。発煙硫酸 25% (液状) はキシダ化学製の特級を用いた。ノナンは CALEDON 製の Distilled in Grass グレードを用いた。五塩化アンチモンはアルドリッチ製の PCB 分析用を用いた。フロリジルは和光純薬製のカラムクロマトグラフィー用であり、5%ジエチルエーテル/ヘキサンを加え超音波で 20 分間洗浄し、130℃で 3 時間活性化したものを用いた。活性アルミナ 90 (中性) は MERCK 製であり、130℃で 3 時間活性化後、精製水を 2% 加えよく混合したものを用いた。

ガラス器具や試薬は可能な限りダイオキシンプリーオープン (アルプ製, KKD-45F 型) で 450℃、4 時間の条件で加熱処理したものを用いた。血液試料のアルカリ分解にはアドバンテック製の定温乾燥機 (DRN420DB 型) を用いた。

3. 使用機器及び測定条件

使用機器及び測定条件を Table 1 に示した。

4. 分析法

均一化した血液試料約 2 g を 10 mL の共栓丸底試験管に秤量した。1.5 N の水酸化カリウム/エタノール溶液 3.5 mL を加えよく混合した後、30℃に設定したオープンに入れ、終夜でアルカリ分解した。次に、ヘキサン 2 mL を加え振とう抽出し、3,000 rpm で 1 分間遠心分離した。ヘキサン層を別の 10 mL 共栓スピッツ管に移し、残渣に再度ヘキサン 2 mL を加え振とう抽出、遠心分離しヘキサン層を回収した。この抽出を合計 3 回行った。集めたヘキサン層に蒸留水 2 mL を加え攪拌洗浄し、3,000 rpm で 1 分間遠心分離した。ヘキサン層は無水硫酸ナトリウム (1.5 g) を充填

Table 1 Measurement conditions of ECD/GC

Instrument	Agilent 7890B (63Ni-ECD)
Capillary column	Quadrex 007-65HT 0.25 mm I.D. × 25 m, Film thickness 0.1 μm
Column temp.	80 °C (5min) -30 °C/min-320 °C
Inlet temp.	300 °C
Detector temp.	350 °C
Carrier gas	Helium, 16 psi
Make up gas	Nitrogen
Injection volume	4 μL

したパスツールピペットに通して脱水し、ヘキサン 1 mL で 2 回洗い込んだ。ヘキサン溶液は窒素気流下乾固し、ヘキサン 1 mL で再溶解した。続いて、活性化したフロリジル (0.5 g)、無水硫酸ナトリウム (0.2 g) を積層したパスツールピペットに負荷し、5% ジエチルエーテル/ヘキサン 1 mL で 3 回洗い込んだ後、さらに 4 mL で溶出した。溶出液を窒素気流下乾固し、ヘキサン 2 mL に溶解させた。次に濃硫酸で 10% に希釈した発煙硫酸を 1 mL 加え、よく攪拌し、3,000 rpm で 1 分間遠心分離した。発煙硫酸層を取り除き、同様の工程を発煙硫酸層が透明になるまで 3 回程度繰り返した。ヘキサン層をガラス製の反応管に移し、ヘキサン 0.5 mL で 3 回洗い込んだ。硫酸処理したヘキサン層を窒素気流下乾固し、減圧下終夜で乾燥した。次に、五塩化アンチモンを 0.5 mL 加え、封管した後、200 °C で 3 時間加熱し完全塩素化した。室温まで冷却した後、開管し水浴で冷却しながら、クロロホルム 2 mL を加えてよく攪拌した。さらに、冷却下 20% 塩酸 0.5 mL を加え攪拌し、さらに 20% 塩酸 2 mL を加えてよく攪拌した。3,000 rpm で 1 分間遠心分離し、塩酸層を取り除き、同様に 20% 塩酸 2 mL で 2 回洗浄した。同様の操作で、蒸留水 2 mL、5% 酒石酸水溶液 2 mL、5% 炭酸水素ナトリウム 2 mL、蒸留水 2 mL の順で各 1 回ずつ洗浄した。得られたクロロホルム層は無水硫酸ナトリウム (1.5 g) を充填したパスツールピペットに通して脱水し、ヘキサン 1 mL で 2 回洗い込んだ後、さらにヘキサン 4 mL で溶出した。溶出液を窒素気流下乾固し、ヘキサン 1 mL に溶解させた。この溶液を活性化したアルミナ (0.25 g)、無水硫酸ナトリウム (0.2 g) を積層したパスツールピペットに負荷し、2% ジク

ロロメタン/ヘキサン 1 mL で 2 回洗い込んだ後、4 mL で溶出した。溶出液は 10 mL の先細スピッツ管にとり、窒素気流下乾固した。ノナン 0.2 mL を加えて攪拌し、最終検液とした (Fig. 2)。

実験結果及び考察

1. 分析法の改良、添加回収試験及び定量下限値

分析法は芦塚らの報告をもとにさらなる簡便化を試みた。簡便化を行う上ではまず、アルカリ分解に着目した。これまで用いてきたアルカリ分解は血液試料に高濃度塩基を加え加熱還流する手法であるが、冷却管を用いるため一度に処理できる件数が限られること、また、加熱中に突沸が起りやすいなどの課題があった。これに対して、堀らは血液中 PCB の分析におけるアルカリ分解の温度を検討し、30 °C で分解を行う低温アルカリ分解法を報告している⁷⁾。そこで、PCQ の分析においても低温アルカリ分解法が適応可能と考えた。30 °C、終夜でアルカリ分解を行った結果、ECD/GC のクロマトグラムにアルカリ分解温度の違いによる変化は見られず、低温アルカリ分解法が適応可能であることが確認でき、これまでの倍以上の検体を同時に処理することが可能となった。使用する器具や無水硫酸ナトリウムはダイオキシンフリーオープンを用いて加熱処理することにより器具の準備にかかる時間を大幅に短縮することができた。また、これまで最終検液はヘキサン溶液としてきたが、溶媒の揮発による濃縮が懸念されるため、1日に測定する件数を制限してきた。そこで、最終検液を高沸点のノナン溶液へと変更し、長時間の連続分析が可能か検討した。その結果、溶媒の違いによる定量値の違いは見られ

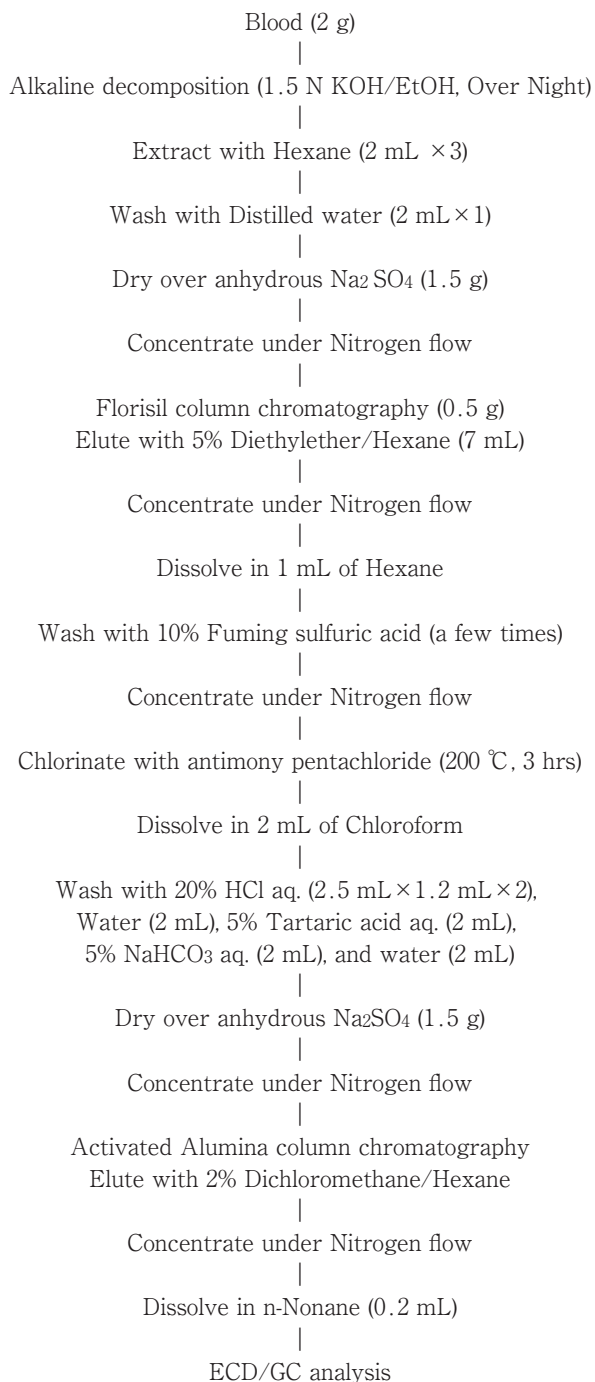


Fig. 2 Analysis procedure of PCQ

ず、長時間の連続分析でも溶媒の揮発による濃縮は見られなかった。これらの改良を行うことで、検査の全体的な効率を向上させることができた。

次に、分析法の精度を確認するため、PCQ が検出されていない保存血液 (< 0.02 ppb) を用いて添加回収試験を行った。添加回収試験では被験者によって血液の成分組成が異なることを考慮して、3名の血液に対し、血液中濃度が 0.02 ng/g とな

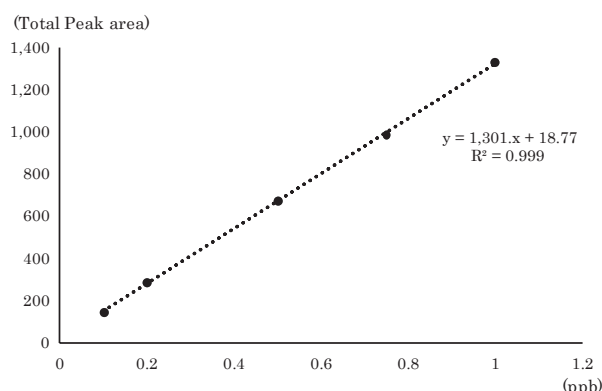
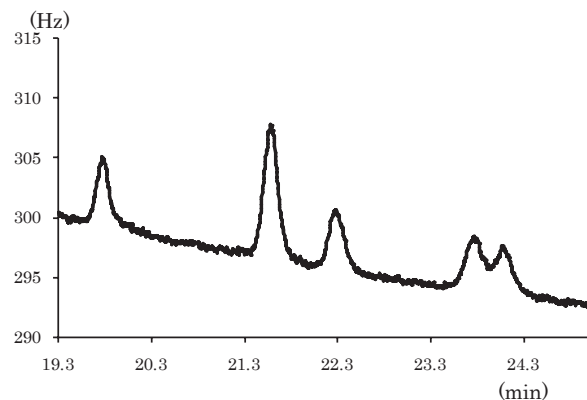


Fig. 3 ECD/GC chromatogram of PCQ standard of quantitation lower limit (0.2 ppb) and calibration curve (0.1–1.0 ppb, 5 points).

るように PCQ 標準溶液を添加し試験を実施した。その結果、回収率は平均 110.8% (100.1–127.2%) で、良好な結果が得られた。

油症検診における PCQ 測定においては少なくとも 0.2 ppb (血液中濃度換算で 0.02 ppb) を定量できる精度が必要となる。そこで、定量下限値付近の標準溶液を繰り返し測定し、推定検出限界値を見積もった。その結果、99%信頼区間として算出した推定検出限界値は 0.026 ppb (血液中濃度換算で 0.0026 ppb) であり、油症検診に求められる定量下限値は十分に満たしていると考えられた。また、ECD/GC で測定した 0.2 ppb 標準溶液 (血液中濃度換算で 0.02 ppb) のシグナルは十分な感度 (S/N 比 > 10) が得られており、検量線は 0.1–1.0 ppb の範囲で良好な直線性を示した (Fig. 3)。

2. PCQ 測定結果

2014–2016 年度に実施された油症一斉検診では 87 名 (延べ 143 名) の PCQ 分析を実施した。そ

の中で PCQ が検出されたのは 11 名（認定患者 1 名，未認定者 10 名）であり，血液中の濃度範囲は認定患者で 5.49-6.15 ppb，未認定者で 0.02-0.07 ppb であった。

次に，受診者の血液中 PCQ 濃度を PCB パターン別に解析を行った。PCB パターンは 4 つに分類されており，A パターンは油症に典型的，C パターンは一般人と同様であり，B パターンは A パターンと C パターンの中間，BC パターンは B パターンと C パターンの中間（一般人との区別が困難）とされている。各年度における PCB パターン及び PCQ 濃度のまとめを Table 2 に示した。A パターンの受診者は 1 名（延べ 3 回測定）でポジティブコントロールとして毎年測定を行っている認定患者であり，血液中 PCQ 濃度は平均 5.78 ppb (5.49-6.15 ppb) と極めて高濃度であった。B パターンや BC パターンの受診者は 12 名（延べ 18 回測定）で，うち 2 名（延べ 4 回測定）から PCQ が検出された。血液中濃度は全て同じで 0.02 ppb であった。C パターンの受診者は 74 名（延べ 122 回測定）で，うち 8 名（延べ 12 回測定）から PCQ が検出された。血液中濃度は平均 0.03 ppb (0.02-0.07 ppb) であった。

これらの結果から，典型的な油症患者では今もなお高い PCQ 濃度が検出されることが示された。一方で，PCB が B パターンのような一般人とは異なるパターンを示す場合でも PCQ が検出されないまたは，検出されても低濃度である事例がほとんどであった。また，PCB が C パターンであるにも関わらず，PCQ 濃度が 0.07 ppb と比較的高い濃度で検出される事例も見られた。

3. PCQ の構造異性体割合の違い

ECD/GC で PCQ を測定すると 5 本のピークに分離されて検出される (Fig. 4)。これら 5 本のピーク面積の比率は，原因ライスオイルから抽出した PCQ スタンダードと血液から抽出したものとで異なることが測定上の知見として得られている。すなわち，PCQ スタンダードのピーク面積比率はおよそ，2,2'-PCQ : 2,3'-PCQ : 2,4'-PCQ : 3,3'-PCQ : 3,4'-PCQ = 1 : 2 : 1 : 1 : 1 であるのに対して，血液中 PCQ ではおよそ 1 : 2 : 1 : 1 : 2 となっており，3,4'-PCQ の比率が相対的に高く，この傾向は PCQ が検出された全ての血液で認め

られた。このように比率が異なる要因を考察するうえで，竹中らは 6 種類全ての骨格の PCQ をラットに経口投与し，その薬物動態について報告している⁸⁾。その中で，それぞれの PCQ に対する，血中濃度-時間曲線下面積 (AUC) と平均滞留時間 (MRT) は Table 3 に示す結果であり，骨格の違いにより薬物動態が大きく異なる知見を得ている。

また，Mochiike らは油症原因ライスオイルの分析を行い，6 種類の骨格の異なる PCQ の異性体割合が，2,2'-PCQ : 2,3'-PCQ + 2,4'-PCQ : 4,4'-PCQ : 3,3'-PCQ : 3,4'-PCQ = 9.2 : 57.8 : 0.6 : 16.2 : 16.2 であり，4,4'-PCQ の比率が低いことを報告している⁹⁾。

これらの報告から，3,4'-PCQ は原因油中に比較的多く含まれ，他の構造異性体と比較し体内に吸収されやすく，血液中に長く留まる性質を持っていると考えられた。このため，血液中では 3,4'-PCQ の割合が多く，油症原因ライスオイルを摂取し，体内に PCQ が取り込まれた所見として特徴的なものだと考えられた。一方で，4,4'-PCQ は AUC, MRT 共に最も値の高い構造異性体であったが，原因ライスオイル中の含有量が低いため，検出されにくいと考えられた。

4. PCB 濃度と PCQ 濃度の推移

ポジティブコントロールとして毎年測定を行っている油症認定患者 (1 名) の PCB 及び PCQ 濃度の経年推移を Fig. 5 に示した。PCB 濃度は各年に多少の増減があるが全体的に減少傾向を示し，当初の 40 年間で約 80% の減少が見られた。しかし直近 10 年間ではほぼ一定であり，減少傾向は見られなかった。PCQ 濃度については当初の 30 年間で約 30% の減少が見られたが，PCB と比較し減少速度がかなり遅いことが明らかとなった。また，直近 20 年間ではほとんど減少傾向が見られなかった。

油症原因ライスオイルには PCB よりも PCQ の方が 0.89-3.46 倍多く含有しており，油症患者は PCQ を多く摂取していたことが分かっている³⁾。一方で，油症検診の結果から血液中では多くの場合 PCB 濃度の方が PCQ 濃度よりも数十倍高濃度であることが分かっている。また，マウスに PCB や PCQ を経口投与した実験では吸収

Table 2 Relationship between PCB pattern and PCQ concentration.

PCQ Conc. (ppb)	PCB Pattern											
	2014				2015				2016			
	A	B	BC	C	A	B	BC	C	A	B	BC	C
0.1 <	1				1				1			
0.02-0.1		1		3		2		3		1		6
ND (0.02 <)		2	2	50		3	1	34		1	5	26

Table 3 AUC and MRT parameter of PCQ congeners⁸⁾.

	AUC ($\mu\text{g} \cdot \text{hr}/\text{mL}$)	MRT (hr)
4,4'-PCQ	1.24	1,760
3,4'-PCQ	0.111	159
3,3'-PCQ	0.015	84.7
2,4'-PCQ	0.022	52.8
2,3'-PCQ	0.007	92.9
2,2'-PCQ	0.041	64.0

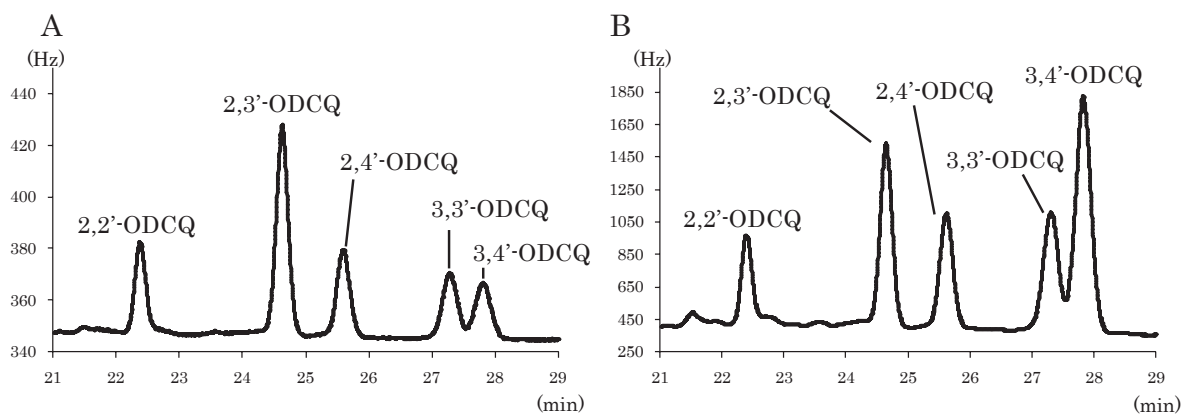
**Fig. 4** ECD/GC chromatograms of PCQ standard (A) and PCQ in blood (B).**Fig. 5** Time course of PCB and PCQ concentration in positive control blood.

Table 4 Time course of concentration ratio of PCB and PCQ in patient.

Year	PCB Conc. (ppb)	PCQ Conc. (ppb)	PCB : PCQ Ratio
1985	26	8.3	100 : 32
1986	25	8.1	100 : 32
1987	31	8.5	100 : 27
1988	32	9.4	100 : 29
1991	17.5	7.4	100 : 43
1992	19.3	7.7	100 : 40
1993	25.9	7.3	100 : 28
1994	24	7.2	100 : 30
1996	13.5	6.4	100 : 47
1997	9.0	9.0	100 : 100
1999	13.3	5.7	100 : 43
2000	13.8	5.3	100 : 38
2001	11.4	5.1	100 : 45
2004	5.8	4.2	100 : 72
2011	6.9	3.9	100 : 57
2013	7.9	5.4	100 : 68
2014	5.8	5.7	100 : 99
2015	5.9	5.5	100 : 93
2016	6.0	6.2	100 : 102

Conc. : concentration

Table 5 Concentration ratio of PCB and PCQ in ten of Yusho-suspected persons.

	Age	PCB Pattern	PCB Conc. (ppb)	PCQ Conc. (ppb)	PCB : PCQ Ratio
A	46	C	0.31	0.02	100 : 6.5
B	55	C	0.25	0.07	100 : 28
C	57	B	0.46	0.02	100 : 4.4
D	57	C	1.2	0.05	100 : 4.2
E	59	C	1.0	0.05	100 : 4.8
F	62	C	0.65	0.02	100 : 3.1
G	71	C	0.88	0.03	100 : 3.4
H	73	C	1.0	0.02	100 : 2.0
I	76	C	0.54	0.03	100 : 5.5
J	89	B	2.4	0.02	100 : 0.85

Conc. : concentration

率はPCBの方が高く、PCQは6日間で96.7%が排出されたことが報告されている¹⁰⁾。これらの結果を総合的に考えると、PCQは経口摂取してもほとんどが吸収されず体外へ排出されるが、一度吸収されると排出が困難な化合物と考えられた。

次に、この油症認定患者のPCBとPCQの濃度比についてまとめた結果をTable 4に示した。樫本らは油症原因ライスオイル暴露後11年が経過した油症認定患者の血液中PCB:PCQ比は平均100:34であり、健常者では平均100:<1であったことを報告している³⁾。本研究で測定した暴露

後約17年経過時の油症認定患者のPCB:PCQ比は100:32であり、報告値と同様であった。また、濃度比の経年変化を見ると両者の比率は徐々に近づき、現在ではほぼ1:1になっていることが分かった。このことは、Fig. 5の考察と同様に両化合物の排出速度の違いによるものと考えられる。

また、2014-2016年度の油症検診でPCQが検出された受診者のPCB:PCQ比をまとめた結果をTable 5に示した。PCB:PCQ比は平均100:6.3であり、油症認定患者と比較すると割合が低いが、健常者とは異なる比率であった。受診者の

1 名 (Table 5 の B) は PCB パターンが C パターンで, PCB : PCQ 比は 100 : 28 と PCQ の割合が高い事例であった。一方で, J のように PCB パターンが B パターンで PCB : PCQ 比が 100 : 0.85 と低い事例も見られた。PCB は高齢になるほど濃度が高くなる年齢との相関が報告されているが¹¹⁾, PCQ については年齢との相関があるとは考えられなかった。PCB : PCQ 比についても年齢との相関は確認できず, さらなる調査が必要であると考えられた。

総 括

PCQ 分析法の改良では, 低温アルカリ分解法を新たに用い, 器具の加熱処理など分析法全体を見直すことで迅速化を行うことができた。

2014-2016 年度に実施された油症一斉検診受診者 87 名 (延べ 143 名) の PCQ 検査を実施した結果, 11 名 (延べ 19 名) から PCQ が検出された。PCB パターンが B パターンや BC パターンのように一般人とは異なるパターンが見られる場合でも, 0.1 ppb を超える高い濃度は検出されなかった。

典型的な油症認定患者の PCQ 濃度経年変化を見ると, 若干の減少傾向が見られるものの, 油症発生後まもなく 50 年が経過するという今日でも高濃度に残留していることが分かった。このことから, 血液中 PCQ 濃度は PCB や PCDF 濃度と同様に油症診断を確実なものとする化学的知見として重要な役割を有すると考えられた。

様々な臨床的知見と PCQ などの化学的知見を長期的かつ総合的に解析することは, 油症認定患者ならびに検診受診者の健康状態を把握し, 症状緩和のための知見となり得るため, 今後も継続的に調査を行っていくことが重要であると思われる。

謝 辞

本研究は, 厚生労働科学研究費補助金に負うものである。ここに記して謝意を表します。

参 考 文 献

- 1) 飯田隆雄, 深町和美, 高橋克巳, 増田義人: 油症原因油および油症患者血液中の PCB, PCQ および PCT, 福岡医誌 70 : 126-131, 1985.
- 2) 飯田隆雄, 竹中重幸, 中川礼子, 深町和美, 高橋克巳, 旭正一: 正常者の血液中ポリ塩化クアテルフェニル濃度, 福岡医誌 78 : 305-308, 1987.
- 3) 榎本隆: 油症と環境汚染における Polychlorinated Quaterphenyl (PCQ) の挙動, ファルマシア 17 : 512-517, 1981.
- 4) 前田浩一郎, 榎本隆: 大阪府立公衆衛生研究所報告 食品衛生編, 9, 89, 1978.
- 5) 飯田隆雄, 深町和美, 竹中重幸, 中川礼子, 高橋克巳: ポリ塩化クアテルフェニルのキャピラリーガスクロマトグラフィーによる定量, 分析化学 37 : 230-235, 1988.
- 6) 芦塚由紀, 中川礼子, 平川博仙, 堀就英, 飯田隆雄: 油症検診における血液中ポリ塩化クアテルフェニルの分析, 福岡医誌 96 : 227-231, 2005.
- 7) 堀就英, 山本貴光, 石黒靖尚, 飯田隆雄, 梶原淳睦, 平田輝昭, 内博史, 古江増隆: 血液中 PCB 異性体分離分析におけるアルカリ分解温度の検討, 福岡医誌 104 : 152-160, 2013.
- 8) Takenaka S, Takahashi K and Masuda Y : Pharmacokinetics of polychlorinated quaterphenyl congeners in rats after an oral dose, Chemosphere 15 : 739-745, 1986.
- 9) Mochiike A, Sakamoto I and Hoshita N : Synthesis of Octadecachloroquaterphenyls and ratio of six types of polychlorinated quaterphenyl isomers in the blood of "Yusho" patients, Chem. Pharm. Bull. 31 : 3994-4000, 1983.
- 10) 堀伸二郎, 榎本隆, 国田信治: ラットにおける PCQ (Polychlorinated Quaterphenyl) の生体内分布および排せつ, 食衛誌 21 : 294-300, 1980.
- 11) 堀就英, 安武大輔, 芦塚由紀, 高橋浩司, 梶原淳睦, 平田輝昭, 内博史, 古江増隆: 福岡県油症検診 (2007-2010 年度) 受診者における血液中 PCB 濃度と傾向, 福岡医誌 102 : 134-139, 2011.

(Received for publication March 10, 2017)