

【調査研究】

環境中超微量有害化学物質の分析，検索技術の開発に関する研究

—大容量固相抽出法を用いた水質中ポリ臭素化ジフェニルエーテル分析法—

Studies on Analytical Conditions of Polybromodiphenylether (PBDEs) in Water Samples with GC / HR-MS

杉山広和，劔持堅志，浦山豊弘，藤原博一，鷹野 洋（水質第二科）

要 旨

水質試料中のポリ臭素化ジフェニルエーテル (PBDEs) の分析法を検討した。分析法は水質試料から大容量固相ディスクで PBDEs を抽出し，トルエン・ソックスレー抽出，フロリジルカラムクロマトグラフィーによるクリーンアップ，高分解能 GC/MS-SIM を用いて測定する方法とし，その基礎的な検討を行った。

[キーワード：ポリ臭素化ジフェニルエーテル，PBDEs，大容量固相ディスク，高分解能 GC/MS-SIM]

1. はじめに

ポリ臭素化ジフェニルエーテル (PBDEs) 及びポリ臭素化ビフェニル (PBBs) 類は，従来毒性が低いとされ，またその優れた難燃性から，家電製品等のプラスチックカバーや電子回路基板等の難燃剤として広く使用されてきた¹⁾。近年，湖沼及び海域の底質や魚類における急激な蓄積が取りあげられている^{2)~4)}。著者らは，有害性の高い環境汚染物質としてハロゲンを含む一連の類似化合物 (ポリ臭素化ビフェニル (PBBs)，ポリ塩化ビフェニル (PCBs)，ポリ塩化ナフタレン (PCNs) 及びポリ塩化ターフェニル (PCTs)) の高分解能 GC/MS を用いた分析法^{5)~14)} を確立してきた。前回の報告¹⁵⁾では PBDEs のうち 5 臭素化物について底質及び生物試料の分析法を報告したが，今回は PBDEs 1-10 臭素化物について水質試料の分析法を開発したので報告する。

2. 実験方法

2.1 分析試料

倉敷市玉島沖の海水及び総社市清音の高梁川河川水を用いた。

2.2 試薬

ネイティブーポリプロモジフェニルエーテル：(CIL 社製又は AccuStandard 社製)
 2-MonoBDE (#1)，3-MonoBDE (#2)，
 4-MonoBDE (#3)，2,4'-DiBDE (#8)，

2,6-DiBDE (#10)，3,4'-DiBDE (#13)，
 4,4'-DiBDE (#15)，2,2',4-TriBDE (#17)，
 2,3',4-TriBDE (#25)，2,4,4'-TriBDE (#28)，
 3,3',4-TriBDE (#35)，3,4,4'-TriBDE (#37)，
 2,2',4,4'-TetraBDE (#47)，
 2,2',4,5'-TetraBDE (#49)，
 2,3',4,4'-TetraBDE (#66)，
 2,2',3,4,4'-PentaBDE (#85)，
 2,2',3',4,6-PentaBDE (#98)，
 2,2',4,4',5-PentaBDE (#99)，
 2,2',4,4',6-PentaBDE (#100)，
 2,2',4,5,6'-PentaBDE (#102)，
 2,3',4,4',5-PentaBDE (#118)，
 2,3',4,5',6-PentaBDE (#121)，
 2,2',4,4',5,5'-HexaBDE (#153)，
 2,2',4,4',5,6'-HexaBDE (#154)，
 2,2',3,4,4',5',6-HeptaBDE (#183)，
 2,2',3,4,4',5,5',6-OctaBDE (#203)，
 2,2',3,4,4',5,6,6'-OctaBDE (#204)，
 2,2',3,3',4,4',5,5',6-NonaBDE (#206)，
 DecaBDE (#209)

クリーンアップスパイク (CS) 用 C-13 標識化合物：(CIL 社製)
 4-MonoBDE (#3)，4,4'-DiBDE (#15)，
 2,4,4'-TriBDE (#28)，
 2,2',4,4'-TetraBDE (#47)，

2,2',4,4',5-PentaBDE(#99),
 2,2',4,4',6-PentaBDE(#100),
 2,3',4,4',5-PentaBDE(#118),
 2,2',4,4',5,5'-HexaBDE(#153),
 2,2',3,4,4',5',6-HeptaBDE(#183),
 DecaBDE(#209)

シリンジスパイク(SS)用C-13標識化合物:(CIL社製)

3,3',4,4',5-PentaBDE(#126)

固相抽出ディスク:エムボアディスク C18FF, 90mmφ(3M社製)

ガラス繊維ろ紙:GB-140, 90mmφ,(ADVANTEC社製)

フロリジル:フロリジールPR(和光純薬製)

シリカゲルカートリッジカラム:Supelclean LC-Si 6mL Glass Tube, 1g(SUPELCO製)

GPCカラム:CLNpak PAE-2000 AC(昭和電工製)

GPC用プレカラム:PAE-G AC(昭和電工)

GPC用ラインフィルター:テフロン製ラインフィルター(ジーエルサイエンス)

その他試薬は,残留農薬分析用または特級試薬を用

いた。

2.3 測定方法

使用機器:高分解能GC/MS 6890(Agilent社製)/JMS-700D(日本電子製)

使用GCカラム:ENV-5MS膜厚0.1μm,長さ15m,内径0.25mm(関東化学製)

GCカラム昇温条件:110℃(2分)-15℃/分-200℃-5℃/分-300℃-1℃/分-310℃(10分)

注入法:スプリットレス法 注入口温度:270℃ 流量:1.2mL/min(ヘリウム:定流量) パージ開始時間:1.5分 注入量:1μL

インタフェース部:ダイレクトカップリング(280℃)

イオン化条件:イオン化電圧:45eV(EI) イオン化電流:700μA イオン源温度:270℃

加速電圧:10kV イオンマルチプライヤ電圧:1.2kV

測定法:SIM法(分解能10,000)

[モニターイオンm/z]表1のとおり

2.4 分析方法

図1に示す分析方法について検討した。

その詳細を次に示した。

表1 臭素化ジフェニルエーテル類の精密質量と強度比

		強度 (%)	精密質量	
			Native	¹³ C-labeled
モノプロモ体	M	100	247.9837	260.0240
	M+2	98	249.9817	262.0220
ジプロモ体	M	51	325.8942	337.9345
	M+2	100	327.8922	339.9325
トリプロモ体	M+2	100	405.8027	417.8430
	M+4	98	407.8007	419.8410
テトラプロモ体	M+4	68	483.7132	495.7535
	M+6	100	485.7112	497.7515
ペンタプロモ体	M+4	100	563.6217	575.6620
	M+6	98	565.6197	577.6600
ヘキサプロモ体	M+4	77	641.5322	653.5725
	M+6	100	643.5302	655.5705
ヘプタプロモ体	M+6	100	721.4407	733.4810
	M+8	98	723.4386	735.4789
オクタプロモ体	M+6	82	799.3512	811.3915
	M+8	100	801.3491	813.3894
ノナプロモ体 -2Br	M+6	100	719.4250	731.4653
	M+8	98	721.4230	733.4633
デカプロモ体 -2Br	M+6	82	797.3355	809.3758
	M+8	100	799.3335	811.3738

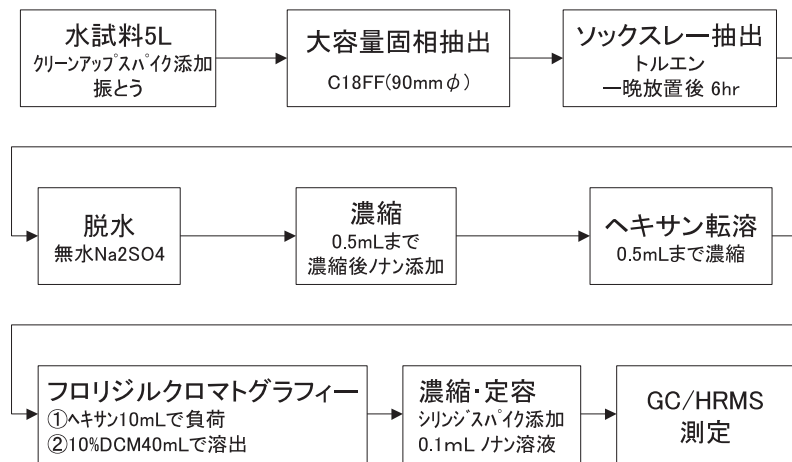


図1 分析操作フローチャート

2. 4. 1 試料の前処理

試料水 5 L を 3 回に分け、2 L 分液ロートに採取し、クリーンアップスパイクを添加し、10 分間振とうした。固相ディスク抽出装置に、予めトルエン・ソックスレー抽出洗浄済みの固相ディスク (C18-FF, 90 mmφ) を装着し、メタノールを滴下してディスク表面を湿らせた後、その上にガラス繊維ろ紙 (GB-140) を重ねて再びメタノールを滴下して表面を湿らせ、ガラスファンネルをセットした。ディスクをトルエン、アセトン、メタノール各 50 mL で洗浄した後、精製水 50 mL で 2 回洗浄した。分液ロート中の試料水をガラスファンネルに移し、毎分約 100 mL の通水速度で固相抽出した。使用した 2 L 分液ロートに水試料を再び分取し、クリーンアップスパイク 10 μL を添加、振とうし、1 枚のディスクに対し同様に全部で 3 回の固相抽出操作をくりかえした (総通水量 5 L)。通水終了後、ガラスファンネルと固相ディスクを精製水 20 mL で 2 回洗浄して通水した。常圧からの強い吸引を数回繰り返して、ガラス繊維ろ紙及び固相ディスクから水分を除去した。固相ディスク及びガラス繊維ろ紙をソックスレー抽出装置に装着し、トルエン約 150 ml を加え、一晩放置後、6 時間ソックスレー抽出を行った。抽出終了後、冷却管部及び抽出部を少量のトルエンで数回洗浄し、洗浄液は抽出液に合わせた。

転倒して水分を十分取り除いた試料容器と使用した 2 L 分液ロートとガラスファンネルはトルエンで洗浄し、洗液は先のソックスレー抽出液と合わせ、無水硫酸ナトリウムで脱水し、300 ml ナス型フラスコに移した。この液をロータリーエバポレータで 0.5 mL まで

減圧濃縮し、ノナン 0.2 mL とヘキサン 10 mL を添加した。再度 0.5 mL まで減圧濃縮し、ヘキサン 10 mL を添加して 0.5 mL まで減圧濃縮する操作 (ヘキサン転溶) をさらに 2 回繰り返して、試料抽出液を得た。

2. 4. 2 クリーンアップ操作

試料抽出液をフロリジルカラムクロマトグラフィー (下記①) により処理した。得られた処理液をロータリーエバポレータを用いて約 0.2 mL まで濃縮し、シリンジスパイク (SS) 用 C-13 標識化合物標準液を加えた後、窒素ガスを吹き付けて 0.1 mL まで濃縮し、測定用バイアル瓶にパスツールピペットを用いて移し、測定に供した。

また、夾雑物が多い試料の場合にはフロリジルカラムクロマトグラフィーだけでは処理が不十分であることが考えられるので、フロリジルカラムクロマトグラフィーに先立って硫酸洗浄 (②) 又は GPC 処理 (③) が必要になることを考慮し、これらについての添加回収実験も行った。

各クリーンアップ操作の詳細を下記に示した。

① フロリジルカラムクロマトグラフィー

クロマト管の下部を閉じ、予めヘキサンを貯めておき、これに 130℃、約 18 時間以上活性化したフロリジル 5 g を計り取って加え、カラム上部にガラス栓をし、全体を転倒する操作を繰り返して、充填物を均一にした。静置後、液面をカラムベッドまで下げ、カラム内壁に付着したフロリジルをヘキサンで流し下げ、その上に無水硫酸ナトリウムを 1 cm の高さに積層し、ヘキサンでカラムを洗浄した。カラムに 100 mL ナスフラスコをセットした後、ヘキサン 10 mL を用いて試料

液をカラムに負荷し、液面をカラムベッドまで下げたから、10%ジクロロメタン/ヘキサン溶液40mLでPBDEを溶出した。

② 硫酸洗浄

試料抽出液を、ヘキサン100mLを用いて250mL分液ロートに移し、濃硫酸10mLを加え、振とうした。分液により硫酸層を除去した後、更に濃硫酸5mLを加え振とう洗浄する操作を4回繰り返した。有機層（試料液）を、予め5%塩化ナトリウム溶液30mLを加えた250mL分液ロートに移し、穏やかに振とうして水洗した。水層を捨て、有機層を5%塩化ナトリウム水溶液20mLを用いて再度振とう水洗した。得られたヘキサン試料液は、200mLトールビーカーに移して無水硫酸ナトリウムを用いて脱水した。脱水した液はナスフラスコに移し、ロータリーエバポレータで減圧濃縮した。

③ GPC 処理

試料液（ヘキサン溶液約0.5mL）をアセトンで2mLにメスアップした後、GPC装置に注入した。分取開始前及び分取終了の度に、テトラヒドロフラン（THF）/トルエン（1：1）2mLをGPC装置に注入し、GPCカラムを洗浄した。分取した試料液を、ロータリーエバポレータを用いて減圧濃縮した。これにヘキサン5mLを添加して0.5mLまで減圧濃縮する操作を2回くりかえし、アセトンを除去した。

GPC装置として、市販の高速液体クロマトグラフ（HPLC）を利用した。操作条件は、下記のとおりとした。

移動相及び流速：シクロヘキサン/アセトン（5：

95）4 mL/min

カラム温度：40℃

注入量：2 mL（サンプルループ容量：2 mL）

サイクルタイム：30min（洗浄時間を含めると1時間）

検出器：紫外線吸収検出器（UV：330nm）

3. 結果及び考察

3. 1 固相抽出法の検討

固相材としてC18-FF、C18及びXCについて抽出率の検討を行ったが、C18及びXCは通液速度が遅く、また、表2に示すように回収率も大差なかったこ

とから、ダイオキシン分析で多用されているC18-FFを固相材として採用したが、試料量を10Lとした場合には、回収率が低下したことから、試料量を5Lとした。

固相材からの抽出方法は、当初、メタノール、アセトン及びトルエンによる直接抽出法を検討したが、メタノール、アセトン等の極性溶媒を抽出溶媒とした場合には、試料由来や固相材からの夾雑物質の影響が大きくなるため、クリーンアップ効果が不足してGCカラムの劣化に至った（表2脚注）ことから、マイルドな抽出が期待できるトルエンを用いたソックスレー抽出法を採用した。

なお、固相材自体からもGCカラムを劣化させる成分が溶出したことから、固相材は使用前にトルエンを用いてソックスレー洗浄する必要がある。

表2 固相剤による抽出率の比較

抽出率%	固相材		
	C18-FF	XC	C18
#1-M1BDE	62	56	59
#2-M1BDE	62	53	56
#3-M1BDE	63	66	56
#10-D2BDE	76	66	69
#8-D2BDE	79	76	73
#13-D2BDE	92	76	80
#15-D2BDE	76	84	81
#17-T3BDE	85	89	96
#25-T3BDE	80	87	93
#28-T3BDE	99	91	97
#35-T3BDE	86	82	96
#37-T3BDE	82	86	89
#49-T4BDE	81	69	66
#47-T4BDE	88	115	126
#66-T4BDE	68	71	102
#121-P5BDE	71	120	63
#102-P5BDE	84	70	99
#100-P5BDE	92	82	85
#98-P5BDE	66	82	90
#99-P5BDE	86	90	85
#118-P5BDE	84	69	89
#85-P5BDE	86	102	86
#154-H6BDE	70	73	87
#153-H6BDE	65	74	74
#183-H7BDE	53	69	74
#204-O8BDE	-	-	-
#203-O8BDE	-	-	-
#206-N9BDE	-	-	-
#209-D10BDE	-	-	-

注)「-」はアセトン等により固相材から溶出した妨害成分のため、GCカラムが劣化・測定不能となり、欠測扱としたデータである。

3. 2 クリーンアップ法の検討

3. 2. 1 フロリジルカラムによる溶離分画

当初、シリカゲルカートリッジカラムの使用を検討したが、固相材から溶出する成分に対するクリーンアップ効果が不十分であり、GCカラムの劣化に至ったことから、オープンカラムの使用を検討した。結果を表3に示した。PBDEは第5画分までに溶出することがわかったので、試料をヘキサン10mLで負荷し、10%ジクロロメタン/ヘキサン溶液40mLで溶離することとした。

3. 2. 2 硫酸洗浄の検討

硫酸洗浄は、83~114%の良好な回収率を示した。夾雑成分の多い試料には効果的であったが、今回分析を行った環境試料には適用しなかった。

3. 2. 3 GPCクロマトグラフィーの検討

GPCにおける分離状況を図2に示した。異性体全

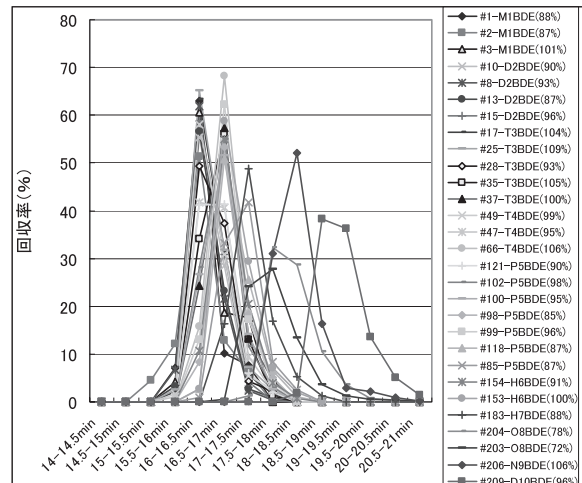


図2 GPC処理における分離状況

体で、溶出時間は15~21分、回収率は72~109%であった。夾雑物が多い試料の分析においては、GPC処理はフロリジルカラム処理で除去できない鉱物油等の除去に有効であったが、GPC処理を省略しても分析上問題は無かった。

3. 3 添加回収率

精製水における添加回収率を表4に示した。相対回収率は71~123%、絶対回収率は30~72%であった。低臭素及び高臭素の異性体で絶対回収率が低下する傾向が見られたが、本分析操作はクリーンアップスパイクを用いた同位体希釈法を採用していることから、問題ないレベルと考えられた。

海水及び河川水における添加回収率を表5に示した。精製水での回収率に比較してやや高い回収率が得られた。これは環境試料に含まれる有機物の影響と考えられた。

3. 4 分解性

水中における分解性の検討結果を表6に示した。デカブプロモ体では光分解が示唆されたことから、長時間試料液を取り扱う分析用ガラス器具は、褐色のものを用いた。

3. 5 検出下限値 (MDL) 及び定量下限値 (MQL)

環境省環境保健部環境安全課編「モニタリング調査マニュアル」に従い、精製水における添加回収実験から算出した結果を表7に示した。

3. 6 環境試料の分析

確立した分析法を用いて分析した環境試料のクロマトグラムを図3-1~図3-5に示したが、これらの

表3 フロリジルカラムによる溶離分画

フロリジル5g (10mmφ) 添加回収率%	ヘキサ ン 10mL	10%ジクロロメタン/ヘキサン溶液				
		0-10mL	10-20mL	20-30mL	30-40mL	40-50mL
#1-M1BDE	0	0	18	87	10	0
#2-M1BDE	0	0	98	0	0	0
#3-M1BDE	0	0	90	4	0	0
#10-D2BDE	0	0	71	35	0	0
#8-D2BDE	0	0	90	18	0	0
#13-D2BDE	0	6	100	0	0	0
#15-D2BDE	0	3	107	0	0	0
#17-T3BDE	0	3	65	28	0	0
#25-T3BDE	0	0	93	44	0	0
#28-T3BDE	0	2	85	1	0	0
#35-T3BDE	0	7	89	0	0	0
#37-T3BDE	0	4	81	0	0	0
#49-T4BDE	0	3	92	0	0	0
#47-T4BDE	0	2	97	0	0	0
#66-T4BDE	0	4	82	0	0	0
#121-P5BDE	0	46	54	0	0	0
#102-P5BDE	0	2	104	2	0	0
#100-P5BDE	0	7	97	0	0	0
#98-P5BDE	0	15	95	0	0	0
#99-P5BDE	0	7	93	0	0	0
#118-P5BDE	0	7	91	0	0	0
#85-P5BDE	0	1	96	2	0	0
#154-H6BDE	0	13	83	0	0	0
#153-H6BDE	0	14	83	0	0	0
#183-H7BDE	0	11	95	0	0	0
#204-O8BDE	0	42	47	0	0	0
#203-O8BDE	0	9	97	0	0	0
#206-N9BDE	0	6	92	0	0	0
#209-D10BDE	0	39	57	0	0	0

表4 精製水における添加回収率

精製水 5 L	回収率 (%) n=7		異性体添加量 ng/ 精製水5L	
	CS に対する 相対回収率	SS による 絶対回収率	Native	CS
#1-M1BDE	93	33	2.4	
#2-M1BDE	101	35	2.4	
#3-M1BDE	106	36	2.4	2
#10-D2BDE	81	41	0.24	
#8-D2BDE	97	51	0.24	
#13-D2BDE	97	53	0.24	
#15-D2BDE	97	53	0.24	2
#17-T3BDE	96	57	0.24	
#25-T3BDE	99	61	0.24	
#28-T3BDE	97	60	0.24	2
#35-T3BDE	97	61	0.24	
#37-T3BDE	115	62	0.24	
#49-T4BDE	91	57	0.3	
#47-T4BDE	123	68	0.3	2
#66-T4BDE	99	59	0.3	
#121-P5BDE	92	59	0.45	
#102-P5BDE	101	61	0.45	
#100-P5BDE	99	60	0.45	3
#98-P5BDE	98	60	0.45	
#99-P5BDE	100	65	0.45	3
#118-P5BDE	97	72	0.45	3
#85-P5BDE	90	65	0.45	
#154-H6BDE	95	56	1.2	
#153-H6BDE	86	54	1.2	4
#183-H7BDE	83	38	1.2	5
#204-O8BDE	71	32	9	
#203-O8BDE	79	30	9	
#206-N9BDE	80	31	15	
#209-D10BDE	101	41	27	250

実験条件：精製水 5 L, C18FF (90mmφ) による固相抽出固相, ソックスレー抽出, フロリジルカラム, 最終濃縮量 100μL に対し, SS (#126-PeBDE13C12) を 2 ng 添加

環境水中の PBDEs 濃度は, 全て検出下限値以下であった。

4. まとめ

水質試料中のポリ臭素化ジフェニルエーテル (PBDEs, 1~10臭素化体) 分析法の基礎的検討を行い, 次に示す結果を得た。

- 1) 本分析法における検出下限値 (MDL) は供試量 5 L の場合, 0.02 (ジ・トリブロモ体) ~ 2 (デカブロモ体) ng/L 程度であった。

表5 海水, 河川水における添加回収率

絶対回収率 %	海水 (n=4) 5 L	河川水 (n=4) 5 L	異性体添加量 ng	
			Native/ 試料 5 L	CS
#1-M1BDE	53	67	2.4	
#2-M1BDE	54	70	2.4	
#3-M1BDE	61	69	2.4	2
#10-D2BDE	59	76	0.24	
#8-D2BDE	75	80	0.24	
#13-D2BDE	80	86	0.24	
#15-D2BDE	81	86	0.24	2
#17-T3BDE	81	87	0.24	
#25-T3BDE	88	87	0.24	
#28-T3BDE	90	95	0.24	2
#35-T3BDE	96	90	0.24	
#37-T3BDE	97	90	0.24	
#49-T4BDE	86	75	0.3	
#47-T4BDE	88	75	0.3	2
#66-T4BDE	93	76	0.3	
#121-P5BDE	69	54	0.45	
#102-P5BDE	79	65	0.45	
#100-P5BDE	79	65	0.45	3
#98-P5BDE	75	63	0.45	
#99-P5BDE	76	65	0.45	3
#118-P5BDE	74	57	0.45	3
#85-P5BDE	74	49	0.45	
#154-H6BDE	53	55	1.2	
#153-H6BDE	62	53	1.2	4
#183-H7BDE	57	45	1.2	5
#204-O8BDE	50	39	9	
#203-O8BDE	49	36	9	
#206-N9BDE	70	37	15	
#209-D10BDE	73	54	27	250

実験条件：精製水 5 L, C18FF (90mmφ) による固相抽出固相, ソックスレー抽出, フロリジルカラム, CS は SS として使用

- 2) 今回行った環境水試料の分析操作においては, 硫酸洗浄や GPC 処理は必要なく, フロリジルカラムクロマトグラフィーのみで十分クリーンアップできた。
- 3) 海水及び河川水からは PBDEs は検出されなかった。

なお, 本研究は環境省委託平成16年度化学物質分析法開発調査 (環境安全課) の一環として実施した。

表6 分解性試験結果

回収率% n=2	明所, 5日間			暗所, 5日間			明所, 1時間		
	pH 5	pH 7	pH 9	pH 5	pH 7	pH 9	pH 5	pH 7	pH 9
# 1-M 1 BDE	84	79	89	78	81	88	85	78	83
# 2-M 1 BDE	97	96	97	91	83	91	90	74	90
# 3-M 1 BDE	93	96	93	90	88	102	92	81	90
# 10-D 2 BDE	86	87	81	85	78	79	74	76	72
# 8-D 2 BDE	107	112	110	109	117	108	102	107	102
# 13-D 2 BDE	107	111	112	115	113	111	100	107	103
# 15-D 2 BDE	95	100	100	102	102	108	97	98	97
# 17-T 3 BDE	104	100	96	105	110	101	100	110	104
# 25-T 3 BDE	100	100	104	105	103	101	104	108	100
# 28-T 3 BDE	112	114	114	103	115	103	96	111	108
# 35-T 3 BDE	89	87	96	97	88	87	98	97	104
# 37-T 3 BDE	100	93	99	92	101	93	103	103	98
# 49-T 4 BDE	98	102	99	106	111	116	106	105	102
# 47-T 4 BDE	101	97	99	100	101	104	99	99	96
# 66-T 4 BDE	110	104	108	116	107	108	109	107	104
# 121-P 5 BDE	103	116	99	103	112	107	104	101	107
# 102-P 5 BDE	98	108	98	110	105	105	109	96	104
# 100-P 5 BDE	96	112	102	106	92	97	95	96	100
# 98-P 5 BDE	97	110	102	103	104	101	104	96	106
# 99-P 5 BDE	102	118	107	113	102	114	117	105	113
# 118-P 5 BDE	97	101	97	94	111	91	94	91	97
# 85-P 5 BDE	87	103	91	82	93	91	82	83	73
# 154-H 6 BDE	116	113	120	93	101	87	107	94	94
# 153-H 6 BDE	107	106	108	91	99	97	95	104	94
# 183-H 7 BDE	100	106	108	101	101	97	112	100	102
# 204-O 8 BDE	74	67	71	95	91	83	88	88	77
# 203-O 8 BDE	131	109	109	98	83	81	90	84	87
# 206-N 9 BDE	75	63	77	77	68	70	77	83	69
# 209-D10BDE	29	25	36	60	60	46	80	67	62

表7 PBDEの検出下限値(MDL)と定量下限値(MQL)

異性体	MDL (ng/L)	MQL (ng/L)	異性体	MDL (ng/L)	MQL (ng/L)
# 1-M 1 BDE	0.073	0.22	# 121-P 5 BDE	0.027	0.082
# 2-M 1 BDE	0.095	0.29	# 102-P 5 BDE	0.046	0.14
# 3-M 1 BDE	0.078	0.23	# 100-P 5 BDE	0.024	0.07
# 10-D 2 BDE	0.017	0.052	# 98-P 5 BDE	0.054	0.16
# 8-D 2 BDE	0.018	0.054	# 99-P 5 BDE	0.034	0.10
# 13-D 2 BDE	0.020	0.061	# 118-P 5 BDE	0.037	0.11
# 15-D 2 BDE	0.017	0.050	# 85-P 5 BDE	0.072	0.22
# 17-T 3 BDE	0.015	0.045	# 154-H 6 BDE	0.089	0.27
# 25-T 3 BDE	0.011	0.032	# 153-H 6 BDE	0.062	0.19
# 28-T 3 BDE	0.026	0.078	# 183-H 7 BDE	0.036	0.11
# 35-T 3 BDE	0.016	0.048	# 204-O 8 BDE	0.86	2.6
# 37-T 3 BDE	0.018	0.055	# 203-O 8 BDE	0.83	2.5
# 49-T 4 BDE	0.033	0.10	# 206-N 9 BDE	0.70	2.1
# 47-T 4 BDE	0.028	0.085	# 209-D10BDE	1.3	3.9
# 66-T 4 BDE	0.047	0.14			

文 献

1) 崔 宰源, 森田昌敏: 臭素化難燃剤による環境汚染: 近年の傾向, 環境化学, 11, 773-783, 2001
 2) Zhu, L. Y., Hites, R. A. : Brominated Flame Retardants in Sediment Cores from Lakes Michigan and Erie, Environ.Sci.Technol., 39, 3488-3494, 2005

3) Song, W., Li, A., Ford, J. C., Sturchio, N. C., Rockne, K. J., Buckley, D. R., Mills, W. J. : Polybrominated Diphenyl Ethers in the Sediments of the Great Lakes, Environ. Sci. Technol., 39, 3474-3479, 2005
 4) Mai, B., Chen, S., Luo, X., Chen, L., Yang, Q., Sheng, G., Peng, P., Fu, J., Zeng, E. Y. : Distribution of

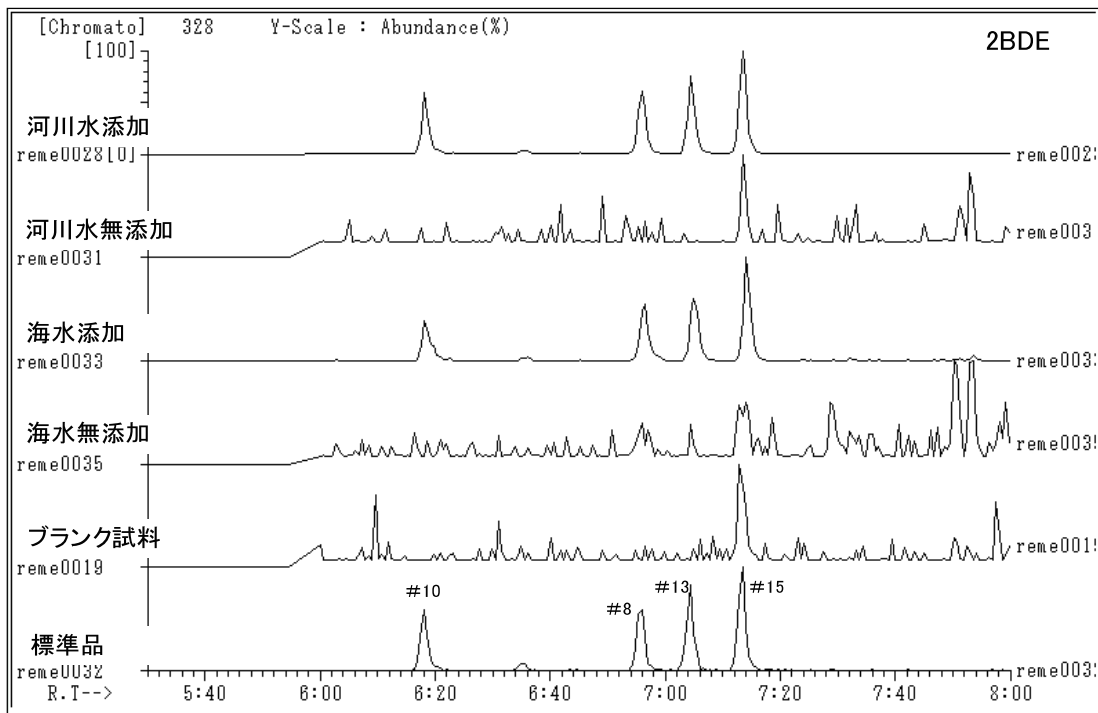
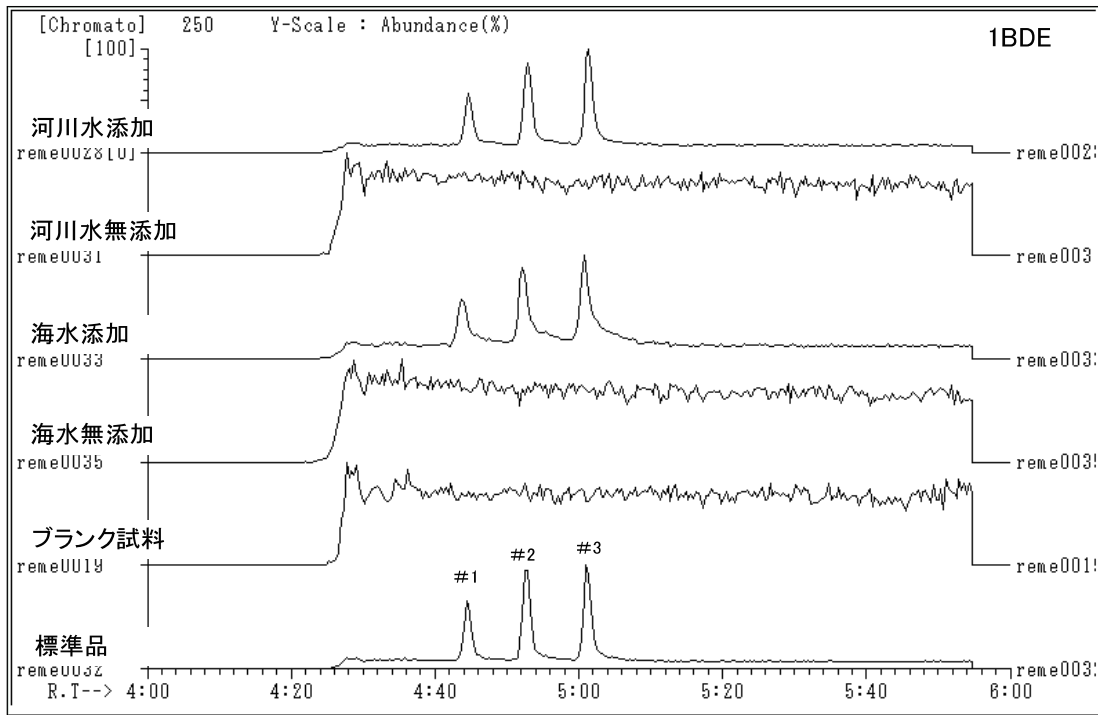


図3-1 環境試料のクロマトグラム (モノプロモ体, ジプロモ体)

Polybrominated Diphenyl Ethers in Sediments of the Peal River Delta and Adjacent South China Sea, 39, 3521-3527, 2005

- 5) 吉岡敏行, 西島倫子, 剣持堅志: GPC法を用いたポリ塩化ビフェニル (PCBs) 及びポリ塩化ナフタレン (PCNs) の迅速分析, 岡山県環境保健

センター年報25, 15-21, 2001

- 6) 剣持堅志, 吉岡敏行, 西島倫子: GC-HRMSを用いた環境試料 (水質, 底質及び生物) 中のポリ塩化ナフタレン類 (PCNs) の分析法, 第10回環境科学討論会要旨集, 26-27, 2001

- 7) 吉岡敏行, 西島倫子, 林隆義, 剣持堅志: ポリ塩

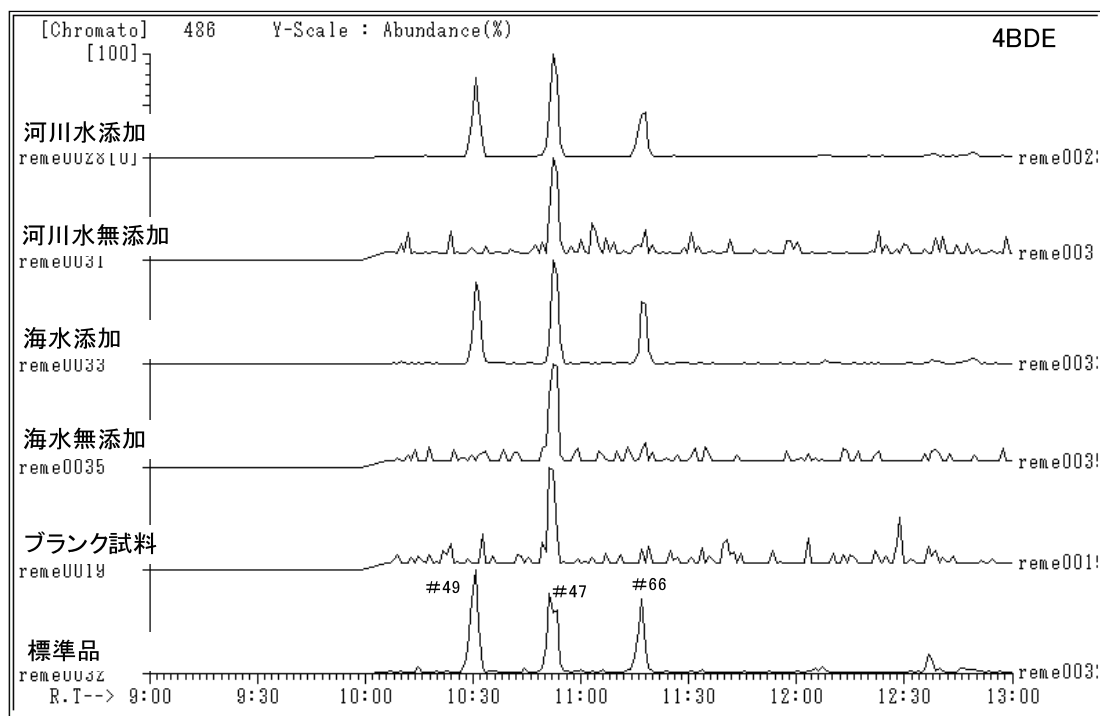
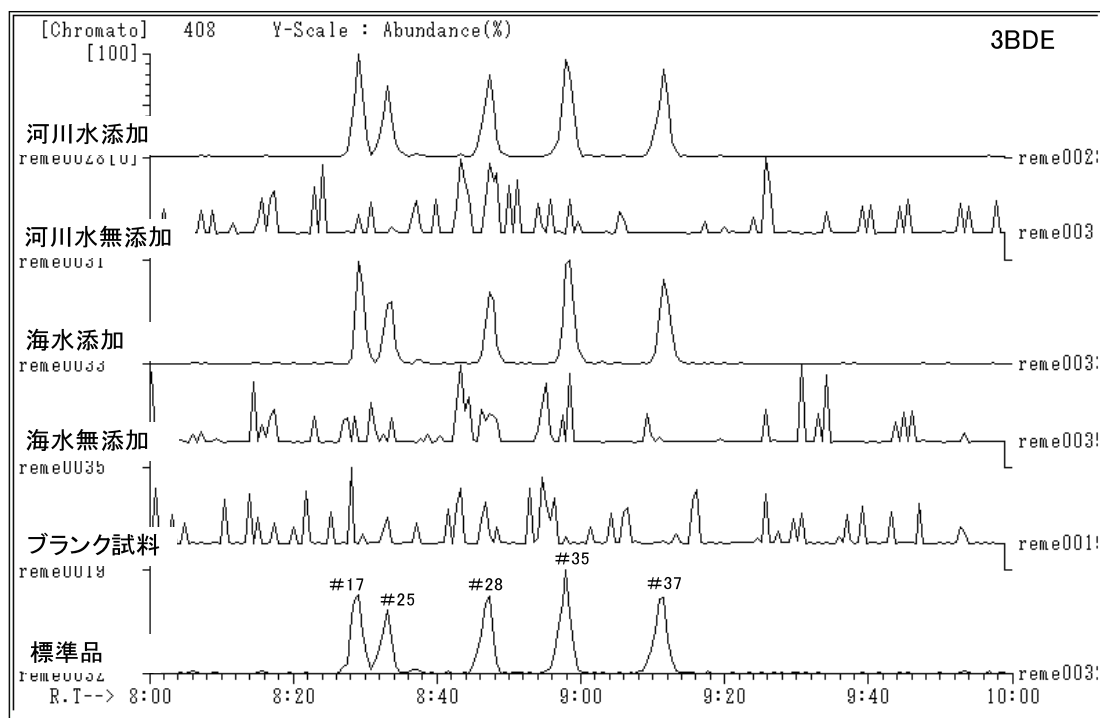


図3-2 環境試料のクロマトグラム (トリブロモ体, テトラブロモ体)

化ビフェニル (PCBs) 及びポリ塩化ナフタレン (PCNs) の同時分析法と環境中濃度, 岡山県環境保健センター年報26, 16-20, 2002

- 8) 剣持堅志, 武志保, 難波順子, 吉岡敏行, 西島倫子, 今中雅章: ポリ塩化ビフェニル類 (PCBs) 全異性体及びポリ塩化ナフタレン類 (PCNs) の

同時分析法確立のための基礎的検討, 岡山県環境保健センター年報26, 72-81, 2002

- 9) 剣持堅志, 吉岡敏行, 西島倫子, 難波順子, 武志保: GPC (Gel Permeation Chromatography) の微量化学物質 (PCBs, PCNs 等) 分析への応用, 第11回環境科学討論会要旨集, 164-165, 2002

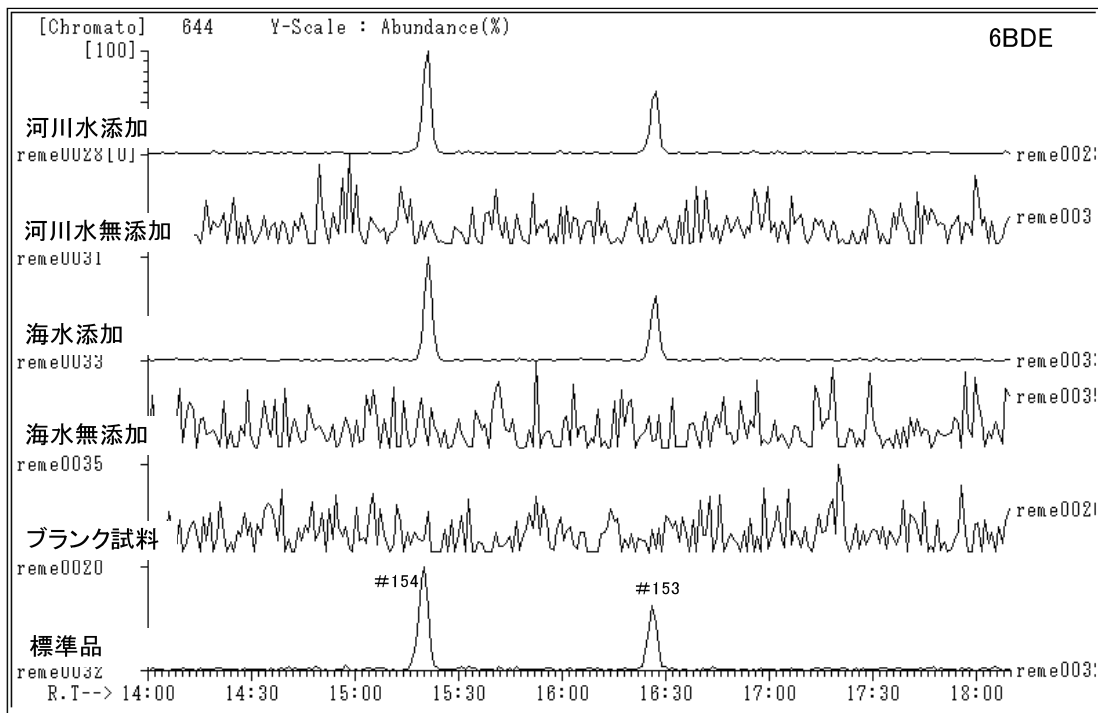
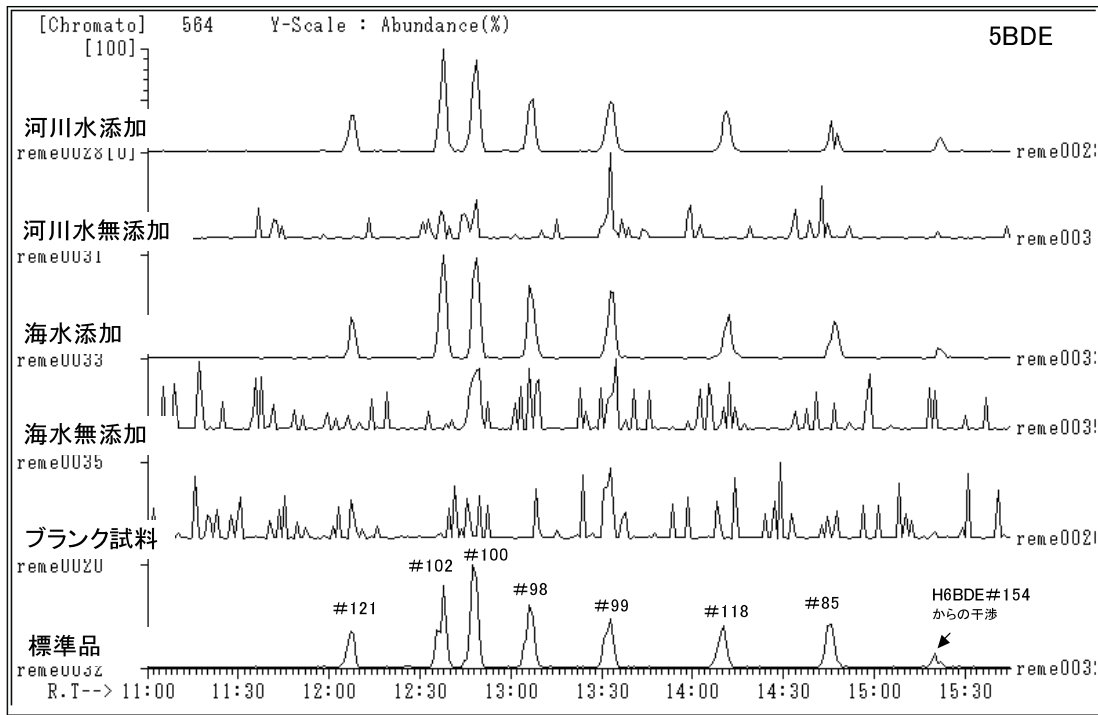


図3-3 環境試料のクロマトグラム (ペンタプロモ体, ヘキサプロモ体)

- 10) 平成13年度化学物質分析法開発調査報告書（ポリ塩化ターフェニル；岡山県環境保健センター），83-112，2002
- 11) 平成14年度化学物質分析法開発調査報告書（ポリ塩化ナフタレン及びポリ塩化ビフェニルの同時分析法；岡山県環境保健センター），48-171，2003

- 12) 平成14年度化学物質分析法開発調査報告書（ヘキサブロモビフェニル；岡山県環境保健センター），202-224，2003
- 13) 平成15年度化学物質分析法開発調査報告書（ペンタブロモジフェニルエーテル；岡山県環境保健センター），153-178，2004

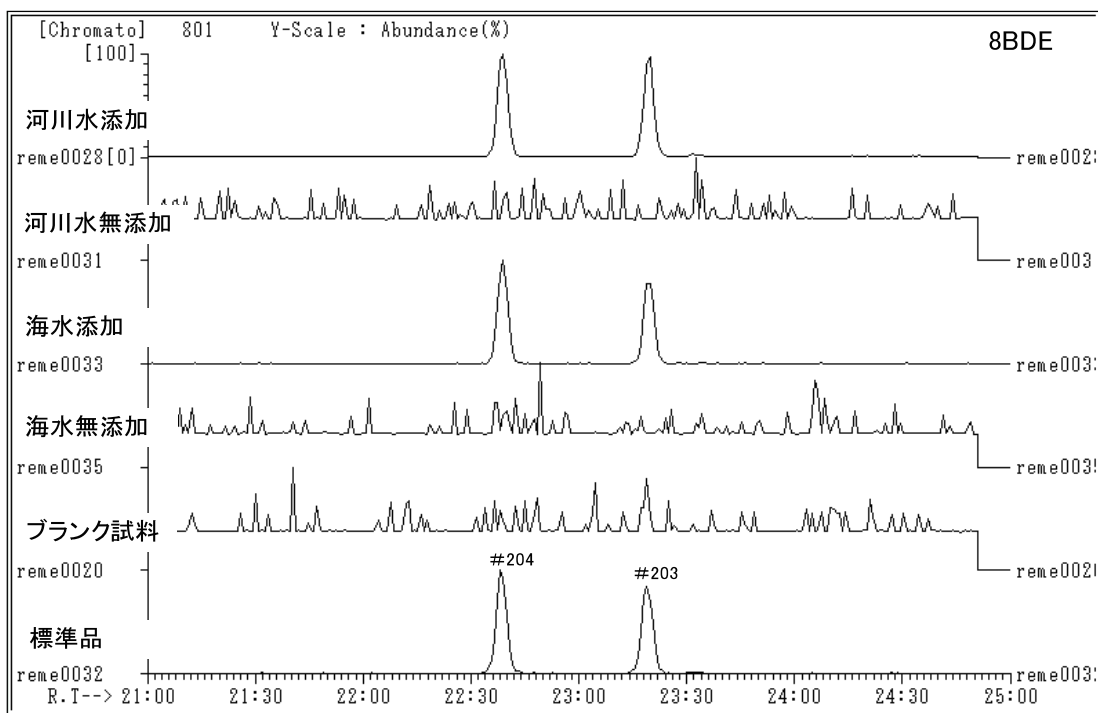
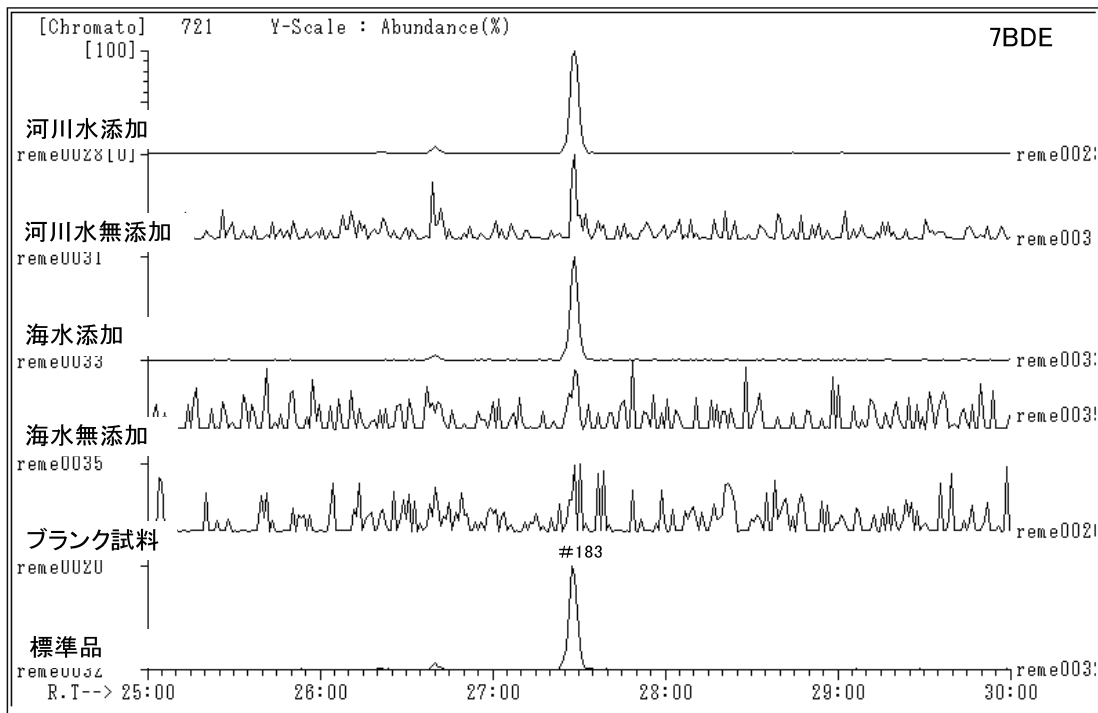


図3-4 環境試料のクロマトグラム（ヘプタブロモ体，オクタブロモ体）

14) 吉岡敏行, 林隆義, 山辺真一, 斎藤直己, 劔持堅志, 武志保, 難波順子, 今中雅章: ポリ臭化ビフェニル, ポリ塩化ビフェニル, ポリ塩化ナフタレン及びポリ塩化ターフェニル同時分析のための基礎的検討, 岡山県環境保健センター年報27, 23-29, 2003

15) 杉山広和, 劔持堅志, 吉岡敏行, 浦山豊弘, 藤原博一, 林隆義: ポリ臭素化ジフェニルエーテル, ポリ塩化ビフェニル, ポリ塩化ナフタレン, ポリ塩化ターフェニル及びポリ臭化ビフェニル同時分析のための基礎的検討, 岡山県環境保健センター年報28, 23-31, 2004

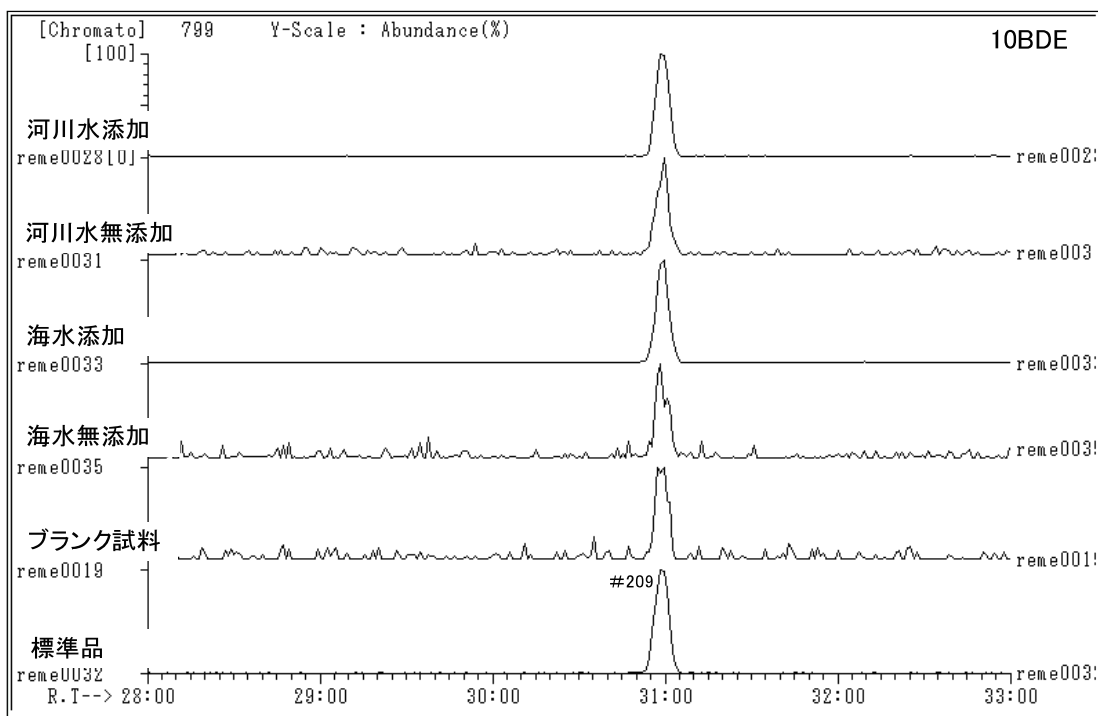
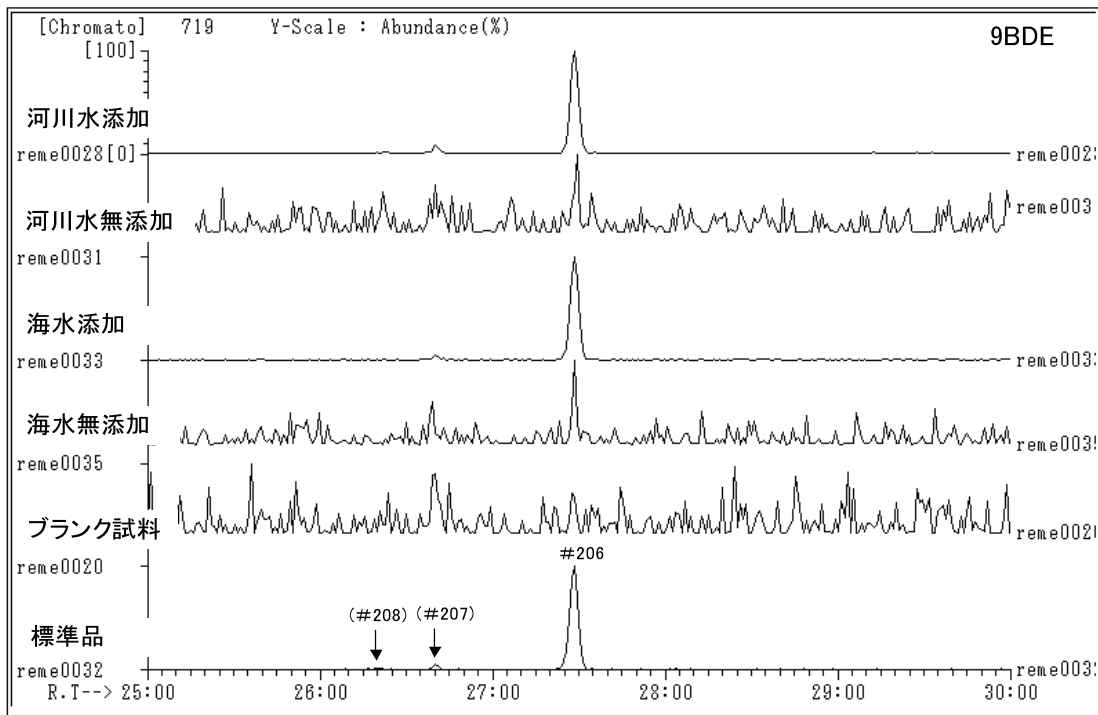


図3-5 環境試料のクロマトグラム (ノナブプロモ体, デカブプロモ体)