

行政院國家科學委員會專題研究計畫 成果報告

我國多溴二苯醚環境荷爾蒙之公共衛生及管理策略研究--
我國多溴二苯醚環境荷爾蒙之環境流佈及暴露研究(II)

研究成果報告(完整版)

計畫類別：整合型

計畫編號：NSC 97-2621-M-040-001-

執行期間：97年08月01日至98年07月31日

執行單位：中山醫學大學職業安全衛生學系暨碩士班

計畫主持人：毛義方

報告附件：出席國際會議研究心得報告及發表論文

處理方式：本計畫涉及專利或其他智慧財產權，2年後可公開查詢

中華民國 98年11月06日

行政院國家科學委員會專題研究計畫成果報告

我國多溴二苯醚環境荷爾蒙之公共衛生及管理策略研究

我國多溴二苯醚環境荷爾蒙之環境流佈及暴露研究(Ⅱ)

計畫編號：

執行期限：97 年 8 月 1 日至 98 年 7 月 31 日

主持人：毛義方 中山醫學大學職業安全衛生學系暨碩士班

共同主持人：

計畫參與人員：楊凱淇 國立陽明大學環境與職業衛生研究所

中文摘要

多溴二苯醚為最常被使用的溴化阻燃劑，廣泛使用於電子產品、家用產品、塑膠、紡織品及建材物料等，因其於環境中不易被降解，且結構式近似動物體上的甲狀腺素，具環境荷爾蒙效應，會干擾體內荷爾蒙作用，對神經行為產生毒性及致癌性，已引起廣泛注意。PBDEs經排放或逸散至環境中，會經由生命週期及生物傳遞而蓄積於食物鏈中，一旦於人體中累積，將造成人體之健康影響。

本研究分析台灣民眾日常生活中經常食用之食物中 PBDEs 濃度。共分析 8 種常見的同源物，包括 BDE-28、BDE-47、BDE-99、BDE-100、BDE-153、BDE-154、BDE-183 和 BDE-209。

本研究以國人經常食用之食物為研究對象，各分析7種食物，包括虱目魚、鮭魚、雞肉、牛肉、豬肉、米及牛奶，每樣食物取3個樣本，共採集63個樣本（7種食物×3個樣本×3區）。依樣本乾重計，所有食物樣本中之

Σ PBDEs濃度以豬肉為最高，濃度為 2.264 ± 6.056 ng/g dry weight，其次是虱目魚及雞肉，濃度分別為 1.494 ± 3.743 ng/g dry weight及 0.985 ± 2.745 ng/g dry weight；依樣本單位脂肪計，雞肉之 Σ PBDEs含量最高，濃度為 15.406 ± 42.753 ng/g lipid，其次是豬肉及虱目魚，濃度分別為 13.950 ± 37.927 ng/g lipid 及 7.759 ± 18.507 ng/g lipid。而米在我們的研究中沒有任何濃度被檢出。

關鍵詞：多溴二苯醚、食物

Abstract

Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) have been widely used as brominated flame retardants (BFRs) for various electronic manufactures, plastics, textiles and construction material. PBDEs are important global pollutant for environmental hormone effect and bioaccumulation effect in biota. The

structural formulas of PBDEs are like the structural of thyroxine, and PBDEs could disrupt thyroid gland function, neurobehavior effect and carcinogen.

Polybrominated diphenyl ethers contaminate biota by food chain and bioaccumulate in human.

This study established a stable analytical method of PBDEs for foodstuffs. Analytes included BDE-28, BDE-47, BDE-99, BDE-100, BDE-153, BDE-154, BDE-183 and BDE-209.

This study determined 7 kinds of commonly consumed foodstuffs in Taiwan, include milkfish, salmon, chicken, beef, pork, rice and milk. For dry weight, the pig samples had the highest Σ PBDEs levels (1.494 ± 3.743 ng/g dry weight), and then are milkfish and chicken samples (1.494 ± 3.743 ng/g dry weight and 0.985 ± 2.745 ng/g dry weight); for lipid, the chicken samples had the highest Σ PBDEs levels (15.406 ± 42.753 ng/g lipid), and then are pig and milkfish samples (13.950 ± 37.927 ng/g lipid and 7.759 ± 18.507 ng/g lipid). Rice, which levels of Σ PBDEs were all n.d. in our study.

Keywords: polybrominated diphenyl ethers, foodstuffs

壹、前言

多溴二苯醚 (polybrominated diphenyl ethers, PBDEs) 為包含一系列含鹵二苯醚類的結構物，依溴原子數的不同，總共有209種同源物。PBDEs常以混合物的形式添加到物質中做為阻燃劑，廣泛使用於塑膠、泡沫、紡

織品、家具、建材、汽車零件或電子產品中，其中又以五溴、八溴及十溴最常被使用。由於他是一種混合物，而不是以共價鍵的形式添加於物品中 (Pijnenburg et al., 1995)，因此PBDEs被釋放到環境中的速度會比較慢 (Hooper and McDonald, 2000)。

由於PBDEs之高脂溶性及抗退化性，因此常持久地存在於環境中，容易在食物鏈中造成生物放大性。職業相關的研究發表指出，PBDEs在人體內的半衰期長達數星期甚至數個月 (Sjodin et al., 1999; Thuresson et al., 2006)，尤其是低溴的物質，可能具有更長的半衰期 (Bureau and Broman, 1998; Geyer et al., 2004)。因此，在2005年聯合國環境規劃署將PBDEs列入斯德哥爾摩公約中持久性有機汙染物 (persistent organic pollutants, POPs) 的清單。歐盟電子及電機設備有害物質限制使用指令 (restriction of the use of hazardous substances in electrical and electronic equipment, RoHS) 規定2006年7月起禁止使用多溴二苯醚阻燃劑。而我國環保署亦將五溴和八溴二苯醚列為第一類毒性化學物質，十溴二苯醚列為第四類毒性化學物質，但仍可做為阻燃劑和教育研究之用。

PBDEs 於生物體中主要作用器官為肝臟、腎臟和甲狀腺 (Breslin et al., 1989; Eriksson et al., 1998; Hallgren et al., 1998; Norris et al., 1975; Viberget et al., 2000)。由化學結構式發現，PBDEs 之化學結構與甲狀腺荷爾蒙之T4 和T3 相似；Eriksson et al.(1998)之研究發現，PBDEs 會干擾生物體之甲狀腺分泌，並影響神經行為發育；齧齒動物暴露到PBDEs 後，其血清中total 和free 甲狀腺素濃度顯著降低 (Fowles et al., 1994; Zhou et al., 2001; Zhou et al., 2002; Hallgren et al., 2001; Hallgren et al., 2002)。於神經行為方面，新生小鼠暴露

PBDEs 後，會導致學習和運動障礙（Eriksson et al., 1998；Eriksson et al., 1999；Viberg et al., 2000；Viberg et al., 2001）。

在北美大湖區底泥沉積物（Song et al., 2005）和生物體內（Norstrom et al., 2002）PBDEs含量在研究結果顯示有持續上升的趨勢。人類主要是透過飲食這個途徑暴露，特別是食入動物性脂肪；已經有報告指出大量的多溴二苯醚同分異構物存在於食品中（Schecter et al., 2006），其他來源包含吸入（Wilford et al., 2004）及藉由粉塵攝入（Wilford et al., 2005）可用來做為背景值。另外，職業暴露對於某些族群個體來說也是一個重要的暴露途徑（Sjodin et al., 1999）。

由於PBDEs在日常生活中的使用率甚高，常被添加於塑膠材料製品中，國人可能藉由飲食而暴露，且對人體具有影響荷爾蒙及健康之作用，對我國公共衛生上之影響甚巨。因此，本研究為分析台灣各區國人暴露PBDEs之情況，以作為我國相關單位管理PBDEs之基本資料及健康風險評估之參考。

貳、研究目的

本研究目的在分析台灣民眾日常生活中經常食用之食物中 PBDEs 濃度，以便了解國人可能藉由食物攝取而暴露 PBDEs 之情形。

參、研究方法

一、食物樣本

本研究以國人經常食用之食物為研究對象，於研究對象調查區之超級市場或一般市場購買，採購時以隨機採樣方式進行，預計各分析7種食物，包括虱目魚、鮭魚、雞肉、牛肉、豬肉、米及牛奶，每樣食物取3個樣本，共採集63個樣本（7種食物×3個樣本×3區）。

二、材料

(一) 試藥

1. PBDE congeners of primary interest：
BDE-CSM，contained
2,4,4'-tribromodiphenyl ether (BDE-28)、
2,2',4,4'-tetrabromodiphenyl ether (BDE-47)、
2,2',4,4',5-pentabromodiphenyl ether (BDE-99)、
2,2',4,4',6-pentabromodiphenyl ether (BDE-100)、
2,2',4,4',5,5'-hexabromodiphenyl ether (BDE-153)、
2,2',4,4',5,6'-hexabromodiphenyl ether (BDE-154)、
2,2',3,4,4',5',6-heptabromodiphenyl ether (BDE-183)、
decabromodiphenyl ether (BDE-209)，
20 µg/mL in isoctane，excluded
BDE-209 was 200 µg/mL in isoctane，
AccuStandard，USA。
2. PBDE in proposedMethod 1614：
BDE-EPA-SET，contained BDE-28、
BDE-47、BDE-99、BDE-100、BDE-153、
BDE-154、BDE-183、BDE-209，50 µg/mL
in isoctane，AccuStandard，USA。
3. Silica gel：grade 923，100-200 mesh，
Sigma-Aldrich，USA。
4. MN-aluminum oxide, acidic：Brockmann
activity 1, 70-230meash, Macherey-Nagel
GmbH，Germany。
5. Glass wool：silane treated，Supelco，
USA。
6. Sulfuric acid：97%，GR 級，Merck
Germany。
7. n-hexane、acetone、dichloromethane：
LC級，Merck，Germany。

8. N2：純度99.99%，勝益氣體有限公司，
Taiwan。

(二) 儀器

以氣相層析質譜儀(GC/MS)分析8種PBDE congeners，Thermo Fisher Scientific，Waltham，MA，USA。
1. Autosampler : AI-3000，Thermo，USA。
2. GC : Trace GC Ultra II，Thermo，USA。
3. MS : DSQ，Thermo，USA。
4. Software : Xcalibur 2.0.7，Thermo，USA。
5. Column : J&WDB-5HT 5%-phenyl-methyl-polysiloxane capillary column，15 m×0.25 mm ID×0.1 μm，Agilent，Wilmington，DE，USA。

三、分析方法

(一) 食物樣本前處理

參考環檢所NIEAM802.00B之方法，酌加修改。將食物樣本，不含牛奶，置於-80°C冰箱中至少24小時，隔日進行冷凍乾燥程序，以去除水分；而牛奶樣本於前處理前先置於微波爐加熱，微波條件為720W、2450MHz、4分鐘2次。秤取15g均質化之乾燥樣本，加入200 mL之丙酮/正己烷(2:1)以動力攪拌方式攪拌8分鐘進行萃取，過濾收集；或60mL加熱過後冷卻之牛奶樣本，加入上述相同溶劑，以分液漏斗進行液-液萃取2分鐘，收集上層液。接著將萃取液置於約60°C水浴槽減壓濃縮至乾。利用重力法測定脂肪含量。接著將油脂部分以酸性矽膠去除，即加入100 mL正己烷將樣本溶出，接著緩慢加入30 g之酸性矽膠（矽膠/硫酸=60/40），持續攪拌10min後收集正己烷濾出液，接著再加入30 mL正己烷，充分攪拌過濾，將濾出液收集並以減壓濃縮裝置濃縮至乾，再加入15 mL正己烷溶出。再利用酸性矽膠管柱淨化，即取10 mL拋棄式移液管，於底部先裝填約1cm的玻璃棉，再裝

填6 g之酸性矽膠，以10 mL正己烷預洗後，將除脂後濃縮液注入酸性矽膠管後並收集，再以15 mL正己烷流洗淨化管，將所有洗液以減壓濃縮裝置濃縮至乾，再加入15 mL正己烷溶出。最後以酸性氧化鋁管柱淨化，即取10 mL拋棄式移液管，於底部先裝填約1cm的玻璃棉，再裝填約6 g酸性氧化鋁，以10 mL正己烷預洗後，將酸性矽膠管淨化後的樣本注入，再以15 mL正己烷流洗淨化管，接著以40 mL之二氯甲烷/正己烷(50/50, v/v)沖提並收集，再以減壓濃縮裝置濃縮至約1 mL，移至微量樣本瓶，以氮氣濃縮至乾，再以100 μL二氯甲烷溶出，即可上機分析。

(二) 氣相層析質譜儀(GC/MS)設定參數

1. Column : J&WDB-5HT capillary column，15 m×0.25 mm ID×0.1 μm
2. Injection volume : 1 μL
3. Splitless mode
4. Carrier gas : He 99.999%
5. Carrier gas volume : 1.0 mL/min
6. Temperature program : started at 120°C，hold for 1min，increased at 25°C/min to 330°C，hold for 10min
7. Ion source: 280°C
8. Transfer line: 310°C
9. Ionization : electron impact (EI)
10. Selected ionmonitoring (SIM)mode
11. Mass : BDE-28 : m/z 406,408、BDE-47 : m/z 484,486、BDE-100, 99 : m/z 564,566、BDE-154, 153 : m/z 642,644、BDE-183 : m/z 721,723、BDE-209 : m/z 957,959

(三) 分析方法之品保品管

1. 空白樣本分析(blank analysis)

每批實驗樣本中會包含一個空白樣本，避免背景污染。樣本分析之結果均扣除

該次之空白樣本，以得實際之濃度值。

2. 添加分析(spike analysis)

分別添加100 μL 之0.02 $\mu\text{g}/\text{mL}$ 、0.20 $\mu\text{g}/\text{mL}$ 及0.50 $\mu\text{g}/\text{mL}$ 之PBDEs標準溶液於食物樣本中，進行與食物樣本之相同萃取步驟後，接著利用GC/MS進行分析，以此評估食物樣本前處理及測定方法之回收率。

3. 精確度(precision)

配製PBDEs 標準溶液，以GC/MS進行分析，計算其變異係數(coefficient of variation, CV)。

4. 方法偵測極限(method detection limit, MDL)

分別添加10 μL 0.50 $\mu\text{g}/\text{mL}$ 之PBDEs標準溶液於3個食物樣本中，以GC/MS進行分析，求取其平均值和標準差，以此標準差之3倍數值除以3個樣本之平均值後，再乘以所添加之濃度，即可得方法偵測極限。而BDE-209以換算添加濃度為200 $\mu\text{g}/\text{mL}$ 進行估算。

肆 結果

一、分析方法之品保品管

本研究分析食物中之PBDEs 濃度，包括8種PBDEs同源物，即BDE-28、BDE-47、BDE-99、BDE-100、BDE-153、BDE-154、BDE-183 及BDE-209。分析方法之品保品管，如表1所示，BDE-28、BDE-47、BDE-99、BDE-100、BDE-153、BDE-154、BDE-183 之檢量線濃度範圍為10-2000 ng/L，BDE-209 則為100-20000 ng/L；其滯留時間分別為4.82、5.65、6.25、6.42、6.89、7.11、7.77 及10.30min；相關係數皆在0.994 以上。而PBDEs標準品之層析圖譜，如圖1所示。

於食物樣本分析時，同時進行標準添加分析，即食物樣本添加PBDEs標準溶液，其回收率分別為 $87.19 \pm 25.42\%$ 、 $96.69 \pm 19.71\%$ 、

$96.79 \pm 23.13\%$ 、 $93.59 \pm 19.92\%$ 、 $83.71 \pm 18.71\%$ 、 $82.47 \pm 14.95\%$ 、 $106.31 \pm 28.28\%$ 及 $130.91 \pm 27.86\%$ 。變異係數(CV)分別為7.93%、6.11%、0.88%、9.78%、7.10%、10.52%、10.95%及13.39%。食物樣本之方法偵測極限，不含牛奶，分別為0.056、0.080、0.015、0.060、0.026、0.068、0.014 及1.020 ng/g dry weight；另外牛奶樣本之方法偵測極限則為0.009、0.013、0.003、0.010、0.004、0.011、0.002 及0.170 ng/mL。如表1所示。

二、食物樣本中 PBDEs 之濃度

本研究選擇台灣一般民眾日常生活中經常食用之食物為研究對象，包括虱目魚、鮭魚、雞肉、牛肉、豬肉、米及牛奶，共計63個樣本，其分析結果如表2、3、4所示。如表2所示，以樣本乾重計，所有食物樣本中之 Σ PBDEs 濃度以豬肉為最高，濃度為 2.264 ± 6.056 ng/g dry weight，其次是虱目魚及雞肉，濃度分別為 1.494 ± 3.743 ng/g dry weight 及 0.985 ± 2.745 ng/g dry weight。以樣本單位脂肪計，如表3所示，雞肉之 Σ PBDEs 含量最高，濃度為 15.406 ± 42.753 ng/g lipid，其次是豬肉及虱目魚，濃度分別為 13.950 ± 37.927 ng/g lipid 及 7.759 ± 18.507 ng/g lipid。如表4所示，以樣本濕重計，豬肉之 Σ PBDEs 濃度最高，平均濃度為 0.679 ± 2.049 ng/g wet weight，其次是虱目魚及雞肉，平均濃度分別為 0.477 ± 3.365 ng/g wet weight 及 0.246 ± 1.013 ng/g wet weight。

如表2所示，從個別PBDE congeners 方面的結果來看，BDE-28 僅在鮭魚及雞肉中被檢出，檢出率分別為66.67%及11.11%；BDE-47 僅在米及牛奶未測出，其中以鮭魚之平均濃度最高，為 2.945 ± 3.325 ng/g dry weight，其次是虱目魚，平均濃度為 0.895 ± 1.293 ng/g dry weight，兩者之檢出率

皆為 100%；BDE-99 在虱目魚、鮭魚、牛肉及豬肉中被檢出，其中以虱目魚之檢出率最高，為 88.89%，平均濃度 0.041 ± 0.122 ng/g dry weight，其次為鮭魚，檢出率為 66.67%，平均濃度 0.269 ± 0.584 ng/g dry weight；BDE-100 在虱目魚、鮭魚及豬肉中可檢出，豬肉之檢出率最高，為 66.66%，平均濃度 0.725 ± 1.506 ng/g dry weight，其次是鮭魚，檢出率為 55.55%，平均濃度 0.085 ± 0.208 ng/g dry weight；BDE-153 在虱目魚、鮭魚及牛肉中被檢出，其中以虱目魚之檢出率最高，為 66.67%，平均濃度 10.727 ± 29.235 ng/g dry weight；BDE-154 僅在虱目魚及鮭魚中測出，檢出率分別為 22.22% 及 11.11%，平均濃度分別為 0.087 ± 0.255 ng/g dry weight 及 0.013 ± 0.039 ng/g dry weight；BDE-183 僅在虱目魚及牛肉中檢出，檢出率分別為 11.11% 及 22.22%，平均濃度分別為 0.0002 ± 0.0002 ng/g dry weight 及 0.056 ± 0.017 ng/g dry weight；BDE-209 在雞肉、牛肉、豬肉及牛奶中檢出，其中以牛奶之檢出率最高，為 77.77%，平均濃度 0.127 ± 0.359 ng/mL。

依食物種類與各地區 Σ PBDEs (依樣本乾重計) 之結果交叉觀察，如表 2 所示。就虱目魚而言，中部總含量最高，平均濃度為 3.849 ± 10.383 ng/g dry weight；鮭魚方面，南部總含量最高，平均濃度 0.447 ± 1.164 ng/g dry weight；雞肉方面，北部總含量最高，平均濃度 1.965 ± 5.557 ng/g dry weight；牛肉則以中部總含量最高，平均濃度 0.897 ± 2.289 ng/g dry weight；豬肉部分南部總含量最高，平均濃度 3.162 ± 8.157 ng/g dry weight；米在各地區測出的值皆低於最低偵測極限；牛奶方面總中部含量最高，平均濃度 0.850 ± 2.403 ng/mL。

依食物種類與各地區個別 PBDE congeners (依樣本乾重計) 之結果交叉觀

察，如表 2 所示。在虱目魚方面，北部測出 BDE-47 的平均濃度最高，為 0.024 ± 0.274 ng/g dry weight，中部及南部則是以 BDE-153 為最高，平均濃度分別為中部 29.523 ± 767.000 ng/g dry weight，南部 2.656 ± 29.813 ng/g dry weight；在鮭魚方面，北部、中部及南部測出平均濃度最高者皆為 BDE-47，分別為北部 0.330 ± 1.584 ng/g dry weight、中部 3.322 ± 16.422 ng/g dry weight 及南部 5.184 ± 75.038 ng/g dry weight；在雞肉方面，北部、中部及南部測出平均濃度最高者皆為 BDE-209，分別為北部 15.719 ± 252.195 ng/g dry weight、中部 2.044 ± 28.338 ng/g dry weight 及南部 5.570 ± 143.822 ng/g dry weight；在牛肉方面，北部僅測出含有 BDE-99，平均濃度為 0.0005 ± 0 ng/g dry weight，中部最高為 BDE-209 ng/g dry weight，平均濃度為 6.547 ± 58.292 ng/g dry weight，南部僅測出含有 BDE-153，平均濃度為 4.070 ± 105.716 ng/g dry weight；豬肉方面，北部、中部及南部測出平均濃度最高者皆為 BDE-209，分別為北部 22.830 ± 250.136 ng/g dry weight、中部 5.593 ± 144.424 ng/g dry weight 及南部 23.291 ± 436.187 ng/g dry weight；米方面全部皆低於偵測極限；牛奶方面，北部、中部及南部測出平均濃度最高者皆為 BDE-209，分別為北部 4.254 ± 34.724 ng/mL、中部 6.796 ± 23.465 ng/mL 及南部 1.140 ± 29.478 ng/mL。

依食物種類與個別 PBDE congeners (以樣本乾重計) 之結果來觀察，如表 2 所示。在虱目魚方面，測出 BDE-153 平均濃度最高，為 10.727 ± 29.235 ng/g dry weight；鮭魚則是 BDE-47 最高，平均濃度為 2.945 ± 3.325 ng/g dry weight；雞肉、牛肉、豬肉及牛奶皆是 BDE-209 最高，平均濃度分別為雞肉 7.778 ± 11.504 ng/g dry weight、牛肉

2.182 ± 3.807 ng/g dry weight、豬肉
 17.238 ± 19.504 ng/g dry weight 及牛奶
 0.127 ± 0.359 ng/g dry weight；米則低於最低偵測極限。

依食物種類與個別 PBDE congeners(以樣本單位脂肪計)之結果來觀察，如表 3 所示。在虱目魚方面，測出 BDE-153 平均濃度最高，為 53.334 ± 129.490 ng/g lipid；鮭魚則是 BDE-47 最高，平均濃度為 13.638 ± 12.324 ng/g lipid；雞肉、牛肉、豬肉及牛奶皆是 BDE-209 最高，平均濃度分別為雞肉 121.201 ± 136.211 ng/g lipid、牛肉 12.766 ± 22.081 ng/g lipid、豬肉 107.775 ± 131.293 ng/g lipid 及牛奶 1.890 ± 1.346 ng/g lipid；米則低於最低偵測極限。

依食物種類與個別 PBDE congeners(以樣本濕重計)之結果來觀察，如表 4 所示。在虱目魚方面，測出 BDE-153 平均濃度最高，為 3.423 ± 9.330 ng/g wet weight；鮭魚則是 BDE-47 最高，平均濃度為 1.027 ± 1.160 ng/g wet weight；雞肉、牛肉、豬肉及牛奶皆是 BDE-209 最高，平均濃度分別為雞肉 1.944 ± 2.876 ng/g wet weight、牛肉 0.655 ± 1.142 ng/g wet weight、豬肉 5.171 ± 5.851 ng/g wet weight 及牛奶 0.127 ± 0.359 ng/g wet weight；米則低於最低偵測極限。

伍 討論

本研究針對本國國人經常食用之食物進行分析，就 7 種食物中 Σ PBDEs 濃度而言發現，BDE-47、BDE-99 在食物中的檢出率為最高，此與 Bureau 和 Broman (1998) 及 Geyer et al. (2004) 針對食物中 PBDEs 總含量檢測之研究結果相近，他們的研究均指出低溴數的 PBDE congeners 具有比較長的半衰

期，也容易被生物所吸收。

而在虱目魚及鮭魚中，PBDE 的 8 種 congeners 被檢出的機率最高，在 Bureau et al. (1999) 的研究中指出，PBDE congeners 具有生物放大性，主要蓄積在動物脂肪中，尤其是在魚類體內，我們的研究結果跟這點相符。本研究分析結果與彭瑞華 (2002) 針對台灣高屏溪中魚肉樣本中 7 種 PBDE congeners (不含 BDE-209) 之分析結果相似，以 4 溴總量為最高。Peng et al. (2007) 分析台灣河川和海灣中之魚類樣本中 Σ PBDEs 濃度範圍為 $2.85\text{--}12.43$ ng/g lipid，本研究結果虱目魚平均濃度為 7.759 ± 18.507 ng/g lipid，而鮭魚平均濃度則較低，為 1.885 ± 4.761 ng/g lipid。

將本研究之分析結果與 Ohta et al. (2002) 針對日本大阪地區市場中魚類樣本之調查，其 5 種魚類和 1 種貝類中可食用部分之 Σ PBDEs 濃度範圍為 $0.021\text{--}1.650$ ng/g fresh weight，而其中 BDE-47 為最顯著的 congener，本研究中鮭魚之結果與其相符，平均濃度為 1.027 ± 1.160 ng/g wet weight；另外其針對雞肉、牛肉及豬肉之分析，其 PBDEs 濃度分別為 0.006 、 0.016 及 0.064 ng/g fresh weight，以豬肉濃度最高，本研究之結果與其相符，亦是豬肉最高，平均濃度為 0.679 ± 2.049 ng/g wet weight。

陸、結論

本研究分析台灣民眾日常生活中經常食用之食物中 PBDEs 濃度，以便了解國人可能藉由食物攝取而暴露 PBDEs 之情形。共分析 8 種常見的同源物，包括 BDE-28、BDE-47、BDE-99、BDE-100、BDE-153、BDE-154、BDE-183 和 BDE-209。

本研究以國人經常食用之食物為研究對象，各分析 7 種食物，包括虱目魚、鮭魚、雞

肉、牛肉、豬肉、米及牛奶，每樣食物取3個樣本，共採集63個樣本（7種食物×3個樣本×3區）。依樣本乾重計，所有食物樣本中之ΣPBDEs濃度以豬肉為最高，濃度為 2.264 ± 6.056 ng/g dry weight，其次是虱目魚及雞肉，濃度分別為 1.494 ± 3.743 ng/g dry weight及 0.985 ± 2.745 ng/g dry weight；依樣本單位脂肪計，雞肉之ΣPBDEs含量最高，濃度為 15.406 ± 42.753 ng/g lipid，其次是豬肉及虱目魚，濃度分別為 13.950 ± 37.927 ng/g lipid及 7.759 ± 18.507 ng/g lipid。而米在我們的研究中沒有任何濃度被檢出

柒、參考文獻

- Breslin W.J., Kirk H.D., Zimmer M.A., 1989, "Teratogenic evaluation of a polybromodiphenyl oxide mixture in New Zealand white rabbits following oral exposure", Fundamental and Applied Toxicology, 12, 151-157.
- Bureau, S., Broman, D., 1998. Uptake of PBDEs in pike (*Esox lucius*) from food. Organohalogen Compd. 35, 39–42.
- Eriksson P., Jakobsson E., Fredriksson A., 1998, "Developmental neurotoxicity of brominated flame-retardants, polybrominated diphenyl ethers and tetrabromo-bis-phenol A", Organohalogen Compounds, 35, 375-377.
- Eriksson P., Viberg H., Jakobsson E., Orn U., Fredriksson A., 1999, "PBDE, 2,2,4,4,5-pentabromodiphenyl ether, causes permanent neurotoxic effects during a defined period of neonatal brain development", Organohalogen Compounds, 40, 33-335.
- Fowles J.R., Fairbrother A., Baecher-Steppan L., Kerkvliet N.I., 1994, "Immunologic and endocrine effects of the flame-retardant pentabromodiphenyl ether (DE-71) in C57BL/6J mice", Toxicology, 86, 49-61.
- Geyer, H.J., Schramm, K., Darnerud, P.O., Aune, M., Feicht, E.A., Fried, K.W., Henkelmann, G., Lenoir, D., Schmid, P., McDonald, T.A., 2004. Terminal elimination half-lives of the brominated flame retardants TBBPA, HBCD, and lower brominated PBDEs in humans. Organohalogen Compd. 66, 3867–3871.
- Hallgren S., Darnerud P.O., 1998, "Effects of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs), polychlorinated biphenyls (PCBs) and chlorinated paraffins (CPs) on thyroid hormone levels and enzyme activities in rats", Organohalogen Compounds, 35, 391-394.
- Hallgren S., Sinjari T., Hakansson H., Darnerud P.O., 2001, "Effects of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) and polychlorinated biphenyls (PCBs) on thyroid hormone and vitaminA levels in rats and mice", Archives of Toxicology, 75, 200-208.
- Hallgren S., Darnerud P.O., 2002, "Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs), polychlorinated biphenyls (PCBs) and chlorinated paraffins (CPs) in rats-testing interactions and mechanisms for thyroid hormone effects", Toxicology, 177, 227-243.
- Hooper, K., McDonald, T.A., 2000. The PBDEs: an emerging environmental challenge and another reason for

- breast-milk monitoring programs. Environ. Health Perspect. 108 (5), 387–392.
- Norstrom, R.J., Simon, M., Moisey, J., Wakeford, B., Weseloh, D.V., 2002. Geographical distribution (2000) and temporal trends (1981–2000) of brominated diphenyl ethers in Great Lakes herring gull eggs. Environ. Sci. Technol. 36 (22), 4783–4789.
- Norris J.M., Kociba R.J., Schwetz B.A., Rose J.Q., Humiston C.G., Jewett G.L., Gehring P.J., Mailhes J.B., 1975, “Toxicology of octabromobiphenyl and decabromodiphenyl oxide”, Environmental Health Perspectives, 11, 153-161.
- Ohta S., Ishizuka D., Nishimura H., Nakao T., Aozasa O., Shimidzu Y., Ochiai F., Kida T., Nishi M., Miyata H., 2002, “Comparison of polybrominated diphenyl ethers in fish, vegetables, and meats and levels in human milk of nursing women in Japan”, Chemosphere, 46, 689-696.
- Peng J.H., Huang C.W., Weng Y.M., Yak H.K., 2007, “Determination of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in fish samples from rivers and estuaries in Taiwan”, Chemosphere, 66, 1990-1997.
- Pijnenburg, A.M., Everts, J.W., de Boer, J., Boon, J.P., 1995. Polybrominated biphenyl and diphenylether flame retardants: analysis, toxicity, and environmental occurrence. Rev. Environ. Contam. Toxicol. 141, 1–26.
- Schecter, A., Papke, O., Harris, T.R., Tung, K.C., Musumba, A., Olson, J., Birnbaum, L., 2006. Polybrominated diphenyl ether (PBDE) levels in an expanded market basket survey of U.S. food and estimated PBDE dietary intake by age and sex. Environ. Health Perspect. 114 (10), 1515–1520.
- Sjodin, A., Hagmar, L., Wehler, E., Diab, K., Jakobsson, E., Bergman, A., 1999. Flame retardant exposure: Polybrominated diphenyl ethers in blood from Swedish workers. Environ. Health Perspect. 107 (8), 643–648.
- Song, W., Ford, J.C., Li, A., Sturchio, N.C., Rockne, K.J., Buckley, D.R., Mills, W.J., 2005. Polybrominated diphenyl ethers in the sediments of the Great Lakes. 3. Lakes Ontario and Erie. Environ. Sci. Technol. 39 (15), 5600–5605.
- Viberg H., Fredriksson A., Jakobsson E., 2000, “Developmental neurotoxic effects of 2,2',4,4',5-pentabromodiphenyl ether (PBDE 99) in the neonatal mouse”, Toxicologist, 54, 1360.
- Viberg H., Fredriksson A., Jakobsson E., Öhrn U., Eriksson P., 2001, “Brominated flame-retardant: uptake, retention and developmental neurotoxic effects of decabromo-diphenyl ether (PBDE 209) in the neonatal mouse”, Toxicologist, 61, 1034.
- Wilford, B.H., Harner, T., Zhu, J., Shoeib, M., Jones, K.C., 2004. Passive sampling survey of polybrominated diphenyl ether flame retardants in indoor and outdoor air in Ottawa, Canada: Implications for sources and exposure.

- Environ. Sci. Technol. 38 (20),
5312–5318.
- Wilford, B.H., Shoeib, M., Harner,T., Zhu, J.,
Jones, K.C., 2005. Polybrominated
diphenyl ethers in indoor dust in Ottawa,
Canada: implications for sources and
exposure. Environ. Sci. Technol. 39
(18), 7027–7035.
- Zhou T., TaylorM.M., DeVitoM.J., Crofton
K.M., 2002, “Developmental exposure
to brominated diphenyl ethers results in
thyroid hormone disruption”,
Toxicological Sciences, 66, 105-116.
- 彭瑞華，2002，“環境基質中溴化戴奧辛及多
溴聯苯醚之高解析度氣象層析質譜分
析”，中原大學化學系研究所，碩士論文。

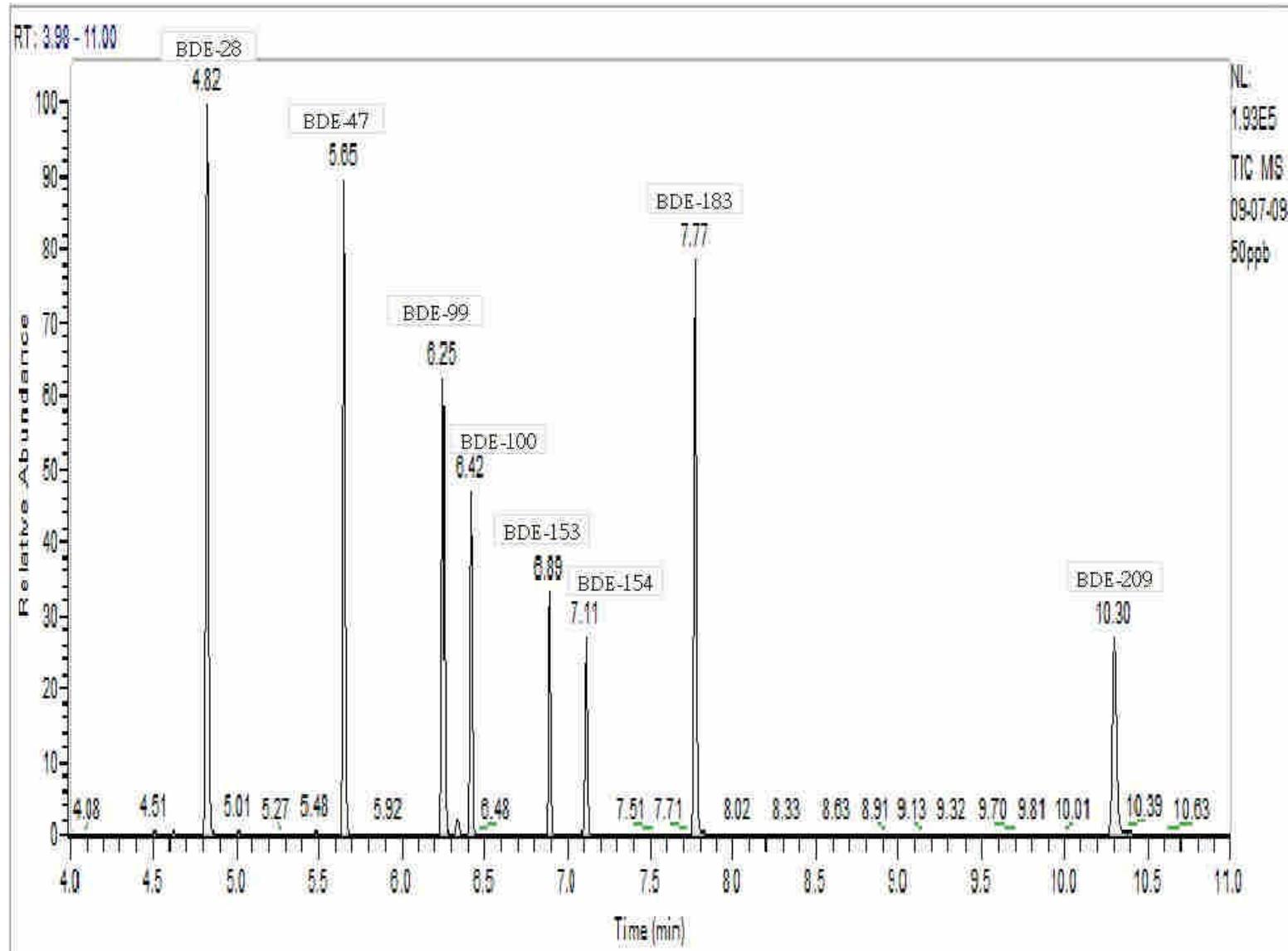


圖1 PBDEs含8種congeners之標準品—50 ng/mL之GC/MS層析圖譜

表1 PBDEs分析方法之品保品管

	BDE-28	BDE-47	BDE-99	BDE-100	BDE-153	BDE-154	BDE-183	BDE-209
Calibration standard (ng/mL)								
Retention time(mins)	4.82	5.65	6.25	6.42	6.89	7.11	7.77	10.3
R	0.998	0.999	0.999	0.998	0.998	0.998	0.999	0.994
Recovery (%)	87.19±25.42	96.69±19.71	96.79±23.13	93.59±19.92	83.71±18.71	82.47±14.95	106.31±28.28	130.91±27.86
CV (%)	7.930	6.110	0.880	9.780	7.100	10.520	10.950	13.390
MDL* (ng/g dry weight)	0.056	0.080	0.015	0.060	0.026	0.068	0.014	1.020
MDL for milk (ng/mL)	0.009	0.013	0.003	0.010	0.004	0.011	0.002	0.170

*: Milk samples excluded

表2 食物樣本中PBDEs之濃度（以樣本乾重計；Unit : ng/g dry weight）

	Σ PBDEs	BDE-28	BDE-47	BDE-99	BDE-100	BDE-153	BDE-154	BDE-183	BDE-209
Milkfish(N=9)									
Mean±sd	1.494±3.743		0.895±1.293	0.041±0.122	0.206±0.614	10.727±29.235	0.087±0.255	0.0002±0.0002	
Detection rate(%)		0	100	88.89	22.22	66.67	22.22	11.11	0
北部(n=3)	0.004±0.008		0.024±0.274	0.0005±0	n.d.	0.001±0.009	0.002±0	0.0005±0	
中部(n=3)	3.849±10.383		1.264±28.802	0.0005±0	0.002±0	29.523±767.000	n.d.	n.d.	
南部(n=3)	0.631±0.947		1.397±16.946	0.123±3.173	0.616±15.955	2.656±29.813	0.257±6.630	n.d.	
Salmon(N=9)									
Mean±sd	0.418±1.025	0.002±0.002	2.945±3.325	0.269±0.584	0.085±0.208	0.031±0.092	0.013±0.039		
Detection rate(%)		66.67	100	66.67	55.55	11.11	11.11	0	0
北部(n=3)	0.041±0.117	n.d.	0.330±1.584	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.		
中部(n=3)	0.447±1.164	0.002±0	3.322±16.422	0.204±3.526	0.044±1.100	n.d.	n.d.		
南部(n=3)	0.767±1.796	0.003±0.034	5.184±75.038	0.604±15.196	0.210±5.415	0.093±2.387	0.040±0.086		
Chicken(N=9)									
Mean±sd	0.985±2.745	0.104±0.310	0.001±0.001						7.778±11.504
Detection rate(%)		11.11	11.11	0	0	0	0	0	66.67
北部(n=3)	1.965±5.557	n.d.	n.d.						15.719±252.195
中部(n=3)	0.295±0.715	0.312±8.052	0.003±0						2.044±28.338
南部(n=3)	0.696±1.969	n.d.	n.d.						5.570±143.822
Beef(N=9)									
Mean±sd	0.469±0.834		0.001±0.001	0.154±0.385		1.357±4.069		0.056±0.017	2.182±3.807
Detection rate(%)		0	33.33	44.44	0	11.11	0	22.22	33.33
北部(n=3)	0.00006±0.0001		n.d.	0.0005±0		n.d.		n.d.	n.d.
中部(n=3)	0.897±2.289		0.003±0	0.461±9.243		n.d.		0.167±2.440	6.547±58.292
南部(n=3)	0.509±1.439		n.d.	n.d.		4.070±105.716		n.d.	n.d.

(續)表2 食物樣本中PBDEs之濃度 (以樣本乾重計 ; Unit : ng/g dry weight)

	Σ PBDEs	BDE-28	BDE-47	BDE-99	BDE-100	BDE-153	BDE-154	BDE-183	BDE-209
Pork(N=9)									
Mean \pm sd	2.264 \pm 6.056		0.148 \pm 0.210	0.0003 \pm 0.0003	0.725 \pm 1.506				17.238 \pm 19.504
Detection rate(%)		0	44.44	11.11	66.66	0	0	0	66.66
北部(n=3)	2.882 \pm 8.060		0.049 \pm 1.204	n.d.	0.179 \pm 2.430				22.830 \pm 250.136
中部(n=3)	0.748 \pm 1.960		0.167 \pm 4.280	0.0005 \pm 0	0.220 \pm 5.658				5.593 \pm 144.424
南部(n=3)	3.162 \pm 8.157		0.228 \pm 3.333	0.0005 \pm 0	1.775 \pm 38.015				23.291 \pm 436.187
Rice(N=9)									
Mean \pm sd	0								
Detection rate(%)		0	0	0	0	0	0	0	0
北部(n=3)									
中部(n=3)									
南部(n=3)									
Milk*(N=9)									
Mean \pm sd	0.127 \pm 0.359								0.127 \pm 0.359
Detection rate(%)		0	0	0	0	0	0	0	77.77
北部(n=3)	0.532 \pm 1.504								4.254 \pm 34.724
中部(n=3)	0.850 \pm 2.403								6.796 \pm 23.465
南部(n=3)	0.143 \pm 0.403								1.140 \pm 29.478

*: Matrix is liquid (unit: ng/mL)

Calculated assuming that non-detected congener concentrations are equal to half of the limit of detection

BDE-28: n.d.<0.056 ng/g ; BDE-47: n.d.<0.080 ng/g ; BDE-99: n.d.<0.015 ng/g ; BDE-100: n.d.<0.060 ng/g ; BDE-153: n.d.<0.026 ng/g ;

BDE-154: n.d.<0.068 ng/g ; BDE-183: n.d.<0.014ng/g ; BDE-209: n.d.<1.020ng/g

表3 食物樣本中PBDEs之濃度（以樣本單位脂肪計；Unit : ng/g lipid）

	Σ PBDE	BDE-28	BDE-47	BDE-99	BDE-100	BDE-153	BDE-154	BDE-183	BDE-209
	N	Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd
Milkfish	9	7.759±18.507	n.d.	5.395±6.638	0.234±0.691	2.186±6.538	53.334±129.490	0.918±2.719	0.001±0.003
Selmon	9	1.885±4.761	0.008±0.008	13.638±12.324	1.006±1.859	0.291±0.654	0.096±0.286	0.042±0.120	n.d.
Chicken	9	15.406±42.753	2.043±6.040	0.007±0.020	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	121.201±136.211
Beef	9	2.637±4.778	n.d.	0.005±0.008	0.821±1.915	n.d.	7.191±21.568	n.d.	0.316±0.685
Pork	9	13.950±37.927	n.d.	0.617±0.752	0.001±0.001	3.209±6.301	n.d.	n.d.	107.775±131.293
Rice	9	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.
Milk	9	0.236±0.668	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	1.890±1.346

Calculated assuming that non-detected congener concentrations are equal to half of the limit of detection

Calculated by concentration on dry weight base in individual foodstuff divided by liquid weight

n.d.: same as表2

表4 食物樣本中PBDEs之濃度（以樣本濕重計；Unit：ng/g wet weight）

	Σ PBDE	BDE-28	BDE-47	BDE-99	BDE-100	BDE-153	BDE-154	BDE-183	BDE-209
	N	Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd
Milkfish	9	0.477±3.365	n.d.	0.286±0.413	0.013±0.039	0.066±0.196	3.423±9.330	0.028±0.082	0.00005±0.00007
Selmon	9	0.146±0.400	0.001±0.001	1.027±1.160	0.094±0.204	0.030±0.772	0.011±0.032	0.005±0.013	n.d.
Chicken	9	0.246±1.013	0.026±0.078	0.0002±0.0003	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	1.944±2.876
Beef	9	0.141±0.537	n.d.	0.0003±0.0004	0.046±0.115	n.d.	0.407±1.221	n.d.	0.017±0.035
Pork	9	0.679±2.049	n.d.	0.044±0.060	0.0001±0.00007	0.217±0.452	n.d.	n.d.	5.171±5.851
Rice	9	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.
Milk*	9	0.127±0.359	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	0.127±0.359

Calculated assuming that non-detected congener concentrations are equal to half of the limit of detection

Calculated by concentration on dry weight base in individual foodstuff multiplied water content

*: Matrix is liquid (unit: ng/mL)

n.d.: same as 表2

97 年度國科會出國參加國際學術研討會報告

報告者:中山醫學大學

職業安全衛生系所

教授:毛義方

報告日期:98 年 8 月 7 號

1. 參加會議名稱:

第 42 屆美國流行病學研究學會研討會

42nd Annual Meeting of the Society for Epidemiologic Research
(簡稱 SER)

2. 開會日期:Tuesday ,June 23 ,2009~June 26.2009

3. 地點:Anaheim ,California ,U.S.A

4. 開會年度主題目:Epidemiologists as vectors for transmitting health 流行病學家是傳遞健康媒介者

5. 大會活動主要內容

(1) 全國流行病學博士論文發表會(受邀者),時間 1 天

(2) 教育活動:論文摘要撰寫技巧包括 寫作,文獻回顧及研究結果轉換化成健
康訊息。

(3) 大會主要演講內容

A. Birth defect

B. female cancer

C. Genetics

D. Health service

E. Pediatrics

F. Pharmacoepidmiology

G. Pregnancy

H. reproductive

I. disease screening

J. Substance abuse

K. Women`s health

6. 報告者參加論文摘要如下

看 p390(proceeding)

本文主要是探討日前很受重視的環境荷爾蒙壬基酚(Nonyl-phenol)
清潔劑及乳化劑(塑膠材料添加劑)在成人體內之劑量及每日飲食之攝取量,發
現台灣成人之攝取量是紐西蘭的 5 倍,德國之 3 倍,同時都市人攝取量比鄉下人
顯著的多。結論在生活上使用的塑膠及清潔劑經過食物鏈進入人體,造成國人
攝取量較多(可能原因為台灣為塑膠王國,使用太多塑膠造成環境污染而進入
食物鏈)

本人之此一系列研究結果已被我國環保署採納,將(Nonyl-phenol)列為 98 年度毒性化學物質管制第四類化學品。

7. 開會心得

本次研討會為第 42 屆,是具有歷史的一個研討會,參加人數近 1000 人,報告論文近 500 篇,參加人員來自世界各國,此次開會地點選在加州的迪斯耐樂園附近,天氣良好,時間在六月底(大部分美國及各國大學課程學期已結束),因此學者在較沒有工作壓力下,來參與此次 conference,感覺頗為順暢。

由於流行病學研究蓬勃發展是近 20 年來的事,從傳染病 → 慢性病 → 職業病 → 環境病 → 營養與新陳代謝疾病 → 藥物濫用疾病 → 社會及生活造行為造成之疾病之探討,在醫學上及公共衛生上已經是一門重要的科學,尤其近 10 年來對於慢性疾病的預防,提供很多民眾在日常生活上衛生習慣及健康促進,行為節制方面之方法及措施,對於延長人類壽命及生活品質有顯著的貢獻。

由今年之討論主題內容可以了解美國重視的健康問題在嬰兒小孩及婦女之健康保護,健康服務及藥物使用(濫用)方面,慢性病也是主題之一。

8. 討論重點一.

*當今糖尿病發生率愈來愈高,但藥物在此面的進展則不大,因此預防或延遲糖尿病的發生,則成為重要的議題,從流行病學的角度,如何從生活上預防糖尿病則成為重要的探討目標,在此研討會上,較有新發現的相關論文摘要如下

(1) 糖尿病之發生與午覺與晚上睡覺有關

*午覺超過一小時以上者,患病風險上升(有顯著統計意義 P 小於 0.0001)

*晚上睡覺少於 7 小時者及大於 9 小時者之患糖尿病風險上升(P 小於 0.0001)

(2) 適當的飲酒及喝咖啡可以降低第二型糖尿病之風險但其 mechanism 則不清

楚。其 OR 值為 0.8~0.85,且具統計上之意義。

由此兩個研究發現,睡眠之長短,適中亦會影響糖尿病的發生。

9. 討論重點二.

通常流行病學報告主要是告訴學者,環境汙染會影響不良健康效應發生,只要有人發表 1.2 篇,其他類似的論文則馬上會刊出很多相關的正向結果,但此次研討會則有幾篇報導出負向的結果或不相關的結果,或在此現實環境中不會造成民眾健康危害的結果,本人認為像這類方式的研究能被研究出來,對現在的流行病學有很大的助益;如此作法,會將人類遭受環境汙染物之影響,將不會一味地禁止使用,而做較客觀的評估,究竟禁止一化學物,勢必使用另一種化學物,至於新的化學物毒性往往比先前的化學物毒性更不清楚,因此環境汙染物對人體健康影響,必須做較深入之研究,包括暴露劑量,暴露時間長短,易感染族群都必須做較詳細描述,並去除其他的干擾因素,才能做較合理的健康風險評估。本次研討會就有三篇負向的報告,第一篇是有關 Perfluorinated acids (PFAS) 對甲狀腺之影響,由於過去

均報導此物質對甲狀腺具有毒性,但此成分廣泛的存在人類的血液中,因此許多人建議要禁用(PFAS),此次的研究結果則提出在一般正常生活的暴露下,其人體的體內劑量遠不足以影響人類 Thyroid hormone 之 homeostasis

另一篇有關 PFAS 之研究,認為懷孕婦女之 PFAS 之暴露並不會影響胎兒的生長。

另一篇有關 DDT 暴露對小孩影響之研究,結論與過去的研究有不同的結果,

其結論結果認為懷孕婦女 DDT 的暴露並不會影響生產出來的小孩之高度及 BMI

此外環境化合物污染人類危害研究,目前均走向母親懷孕時暴露是否會影響下一代胎兒或嬰兒的健康之趨勢,此方面之研究愈來愈多,即胎兒時期污染物之暴露會決定小孩子將來的一生 cancer 的發生率可能率。此世紀大家較關心的環境賀爾蒙(endocrine disrupting chemicals ,EDCS) 將不斷的受到大家的重視,這些 EDCS 是否會影響到人類的生存,人類的生育能力,是此世紀的疾病主題之一。

10 .討論重點三

砷對皮膚損傷之影響

砷的研究很多,造成的 cancer 也多,本次研討會有一篇報導,飲用水砷含量即使在自來水的水質標準以下,還是會產生較高比率的 Skin lesion 水中砷濃度愈高 Skin lesion 之 RR 值具有 dose-response 之關係

10 討論重點四.

柴油車排出物質與肺癌發生率

柴油車引擎(engine)排出物質比一般汽油車排出物之汙染量至少 20 倍以上,本次從流行病學研究,發生在職業暴露的工人會產生較高的肺癌發生率(OR 為 1.5~2.0 , P 小於 0.05)

本次研討會參加人數達千人,註冊費用每人 400 美元,在大都市的飯店舉行,大會除提供主要的報告場所, poster 之設備外,及簡單的餐飲外,並完全不提供午餐(午,晚餐均自理),提供的大會名冊也極簡單,但每篇報告的摘要則均有,一切以演講及 poster 為主討論,其他活動不多。