

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--
總計畫暨子計畫一：我國多溴二苯醚環境荷爾蒙之環境流
佈及暴露研究(I)
研究成果報告(完整版)

計畫類別：整合型
計畫編號：NSC 96-2621-Z-040-001-
執行期間：96年08月01日至97年07月31日
執行單位：中山醫學大學職業安全衛生學系(所)

計畫主持人：毛義方
共同主持人：宋鴻樟
計畫參與人員：博士班研究生-兼任助理人員：呂育諭

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：本計畫可公開查詢

中華民國 97 年 10 月 30 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(I)

計畫編號：NSC 96-2621-Z-040-001-

執行期限：96年8月1日至97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：宋鴻樟 中國醫藥大學 環境醫學研究所

計畫參與人員：呂育諭 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 (polybrominated diphenyl ethers, PBDEs) 為最常被使用的溴化阻燃劑 (brominated flame retardants, BFRs)，廣泛使用於電器及電子產品、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。因此本研究之目的在建立食物中 PBDEs 之分析方法，並分析國人經常食用之食物，以便未來了解國人可能的暴露情形。

本研究建立一套穩定的食物中 PBDEs 分析方法，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，利用酸性矽膠和酸性氧化鋁固相萃取管進行萃取，並以 GC/MS 分析，其平均回收率為 110.02%，精確度(CV 值)為 8.33%。各同源物之方法偵測極限分別為 0.056、0.080、0.060、0.015、0.068、0.026、0.014 與 1.020 ng/g dry weight。而本研究分析台灣一般民眾日常生活中經常食用之食物，包括鮭魚、虱目魚、吳郭魚、牛肉、豬肉、雞肉和牛奶等 7 種，

共計 42 個樣本；於食物樣本中 Σ PBDEs 濃度範圍為 0.276~11.076 ng/g dry weight，其中以 BDE-209 所佔比例最高，其次為四溴和五溴；所有食物樣本中，以豬肉之 Σ PBDEs 濃度最高，為 4.722 ± 3.251 ng/g dry weight，而濃度最低者為雞肉，其濃度為 0.768 ± 0.047 ng/g dry weight。

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 electronics and 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 aimed to establish analytical method of PBDEs for foodstuffs and determine PBDEs levels in commonly consumed foodstuffs in Taiwan.

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 used acidic silica gel and acidic aluminum oxide solid phase extraction in that order to pre-treat samples and analyzed to identify PBDEs by GC/MS. Recovery of PBDEs in foodstuffs was 110.02% and precision (CV) was 8.33%. The MDL were 0.056, 0.080, 0.060, 0.015, 0.068, 0.026, 0.014 and 1.020 ng/g dry weight, respectively. This study determined 7 kinds of commonly consumed foodstuffs in Taiwan. The Σ PBDEs range of foodstuff samples were 0.276~11.076 ng/g dry weight. The major proportion of PBDEs was BDE-209 and the next were tetra-brominate and penta-brominate diphenyl ethers. The pig samples had the highest Σ PBDEs levels (4.722±3.251 ng/g dry weight) and levels of Σ PBDEs were lowest in chicken, 0.768±0.047 ng/g dry weight.

Keywords: polybrominated diphenyl ethers, foodstuffs

壹、前言

多溴二苯醚 (polybrominated diphenyl ethers, PBDEs) 為最常被使用的溴化阻燃劑 (brominated flame retardants, BFRs), 廣泛使用於電器及電子產品、家用產品、塑膠、紡織品及建材物料等。依溴原子數目不同, PBDEs 共有 209 個同源物 (congeners), 其中以五溴 (penta-BDEs)、八溴 (octa-BDEs) 及十溴二苯醚 (deca-BDEs) 最常被使用。

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; Viberg 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); 小鼠於產後 3、10 或 19 天後暴露於劑量 8mg/kg bw 之 2,2',4,4',5-pentaBDE 後, 會產生學習和記憶能力減弱 (Eriksson et al., 1999; Viberg et al., 2000), 且 PBDEs 暴露 3 天和 10 天後, 可藉由其自主行為的改變而明顯發現腦部發展障礙, 推測可能因其膽鹼系統 (cholinergic system) 受到 PBDEs 之影響所致。

由於 PBDEs 具有高親脂性和高生物累積效應之特性, 且會影響生物體之行為、發育等, 因此, 於 2005 年聯合國環境規劃署依據「斯德哥爾摩公約」之精神, 便將 PBDEs 列為持久性有機污染物 (persistent organic pollutants, POPs) 之一。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。

由 Domingo et al. (2006) 針對西班牙當地市場販售之海水魚產研究發現, 海水魚產中總 PBDEs 濃度範圍為 5.9-2324ng/kg wet weight, 其中以鮭魚濃度最高, 平均值為 2015ng/kg wet weight。Ohta et al. (2002) 針對日本大阪地區 (Osaka prefecture) 市場中 5 種魚類和 1 種貝類樣本進行分析發現, 總 PBDEs 濃度範圍為 21-1650pg/g fresh weight, 其中以 2,2',4,4'-TeBDE 為最顯著的

congener。陳重羽(2005)針對台灣河川中之吳郭魚樣本分析結果相似，其濃度範圍為1.280~6.725 ng/g dry weight；而在個別PBDE congeners 中，均以BDE-209為主要同源物。田倩蓉(2007)針對台灣河川中魚體樣本中PBDEs分析結果發現，亦均以十溴總量為最高，四溴及五溴總量次之。Peng et al.(2007)針對台灣河川和海灣中之魚類樣本進行PBDEs含量分析發現，總PBDEs濃度範圍為2.85-1243ng/g lipid。

由於PBDEs常添加於日常生活中的各種塑化材質物品上，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，本研究將建立食物中之PBDEs分析方法，並分析其濃度以作為我國相關單位管理PBDEs之基本資料。

貳、研究目的

本研究目的在建立各種食物之PBDEs分析方法，並分析台灣一般民眾日常生活中經常食用之食物中之PBDEs濃度，以便未來了解國人的可能的暴露情形。

參、研究方法

一、研究樣本

本研究選擇台灣一般民眾日常生活中經常食用之食物，包括鮭魚、虱目魚、吳郭魚、牛肉、豬肉、雞肉和牛奶，共計7種，每種食物各分析6個樣本，共計42個樣本。

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 isooctane, excluded BDE-209 was 200 µg/mL in isooctane, AccuStandard, USA。

2. PBDE in proposed Method 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 isooctane, AccuStandard, USA。

3. Silica gel : grade 923, 100-200 mesh, Sigma-Aldrich, USA。

4. MN-aluminum oxide, acidic : Brockmann activity 1, 70-230 mesh, Macherey-Nagel GmbH, Germany。

5. Glass wool : silane treated, Supelco, USA。

6. Sulfuric acid : 97%, GR級, Merck, Germany。

7. n-hexane、acetone、methylene chloride : 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&W DB-5HT 5%-phenyl-methylpolysiloxane 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 NIEA M802.00B 之方法，酌加修改。先將食物樣本，不含牛奶，先置於 -80 °C 冰箱中，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 720 W、2450 MHz、4 分鐘 2 次。秤取 10 g 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，加入上述相同萃取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 水浴槽下減壓濃縮至乾。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 10 min 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 1 cm 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 1 cm 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，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 μ L 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&W DB-5HT capillary column ,
15 m \times 0.25 mm ID \times 0.1 μ m
2. Injection volumn : 1 μ L

3. Splitless mode
4. Carrier gas : He 99.999%
5. Carrier gas volumn : 1.0mL/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 ion monitoring (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) 分析方法的品保品管

1. 空白樣本分析(blank analysis)

每次實驗時均同時進行空白樣本分析，以避免背景污染。每批樣本分析結果均扣除該次之空白樣本，以得實際之濃度值。

2. 添加標準品分析(spike analysis)

分別添加 10 μ L 和 40 μ L 0.50 μ g/mL 之 PBDEs 標準溶液和 40 μ L 0.50 μ g/mL 之 PBDEs 標準溶液於食物樣本中，經相同之食物樣本萃取步驟後，以 100 μ L 二氯甲烷溶出待測物，利用 GC/MS 進行分析，換算添加濃度分別為 50、200 和 2000 μ g/mL，以此評估食物樣本 PBDEs 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，以計算其變異係數(coefficient of variation, CV)。

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

分別添加 10 μ L 0.50 μ g/mL 之 PBDEs 標準溶液於食物樣本中，換算添加濃度為 50 μ g/mL，配置 3 個，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 µg/mL 進行估算。

肆、結果

一、分析方法的品保品管

本研究分析食物中之 PBDEs 濃度，包括 8 種 congeners，即 BDE-28、BDE-47、BDE-99、BDE-100、BDE-153、BDE-154、BDE-183 和 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 5.37、6.21、6.18、6.98、7.46、7.68、8.35 和 11.51 min；相關係數皆在 0.999 以上。而 PBDEs 標準品層析圖譜，如圖 1 所示。

於食物樣本分析時，進行標準添加分析，如表 1、圖 2、3 所示，即食物樣本添加 PBDEs 標準溶液，其回收率分別為 111.09±21.95%、109.07±23.57%、102.75±28.22%、117.72±37.07%、104.34±25.65%、108.09±24.85%、107.94±31.49% 與 130.91±27.86%。精確度(CV)分別為 7.93%、6.11%、9.78%、0.88%、10.52%、7.10%、10.95% 與 13.39%。食物樣本之方法偵測極限，不含牛奶，分別為 0.056、0.080、0.060、0.015、0.068、0.026、0.014 與 1.020 ng/g dry weight；牛奶樣本之方法偵測極限則為 0.009、0.013、0.010、0.003、0.011、0.004、0.002 與 0.170 ng/mL。

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，包括鮭魚、虱目魚、吳郭魚、牛肉、豬肉、雞肉和牛奶，共計 42 個樣本，其分析結果如表 2、3 和 4 所示。

以樣本乾重而言，如表 2 所示，所有食物樣本中，以豬肉之 ΣPBDEs 濃度最高，為 4.722±3.251 ng/g dry weight，其次虱目魚和鮭魚，其濃度分別為 3.910±3.697 和 2.967±4.161 ng/g dry weight。若以樣本單位

脂質而言，如表 3 所示，則以虱目魚之 ΣPBDEs 濃度最高，為 40.897±43.712 ng/g lipid，其次為豬肉和牛奶，分別為 26.621±15.608 和 21.769±28.821 ng/g lipid。而牛奶樣本中，均以全脂牛奶中之 ΣPBDEs 濃度高於低脂牛奶，以液體體積估算結果為 1.330±1.861 vs. 0.636±0.052 ng/mL，而以脂質估算結果為 29.748±43.227 vs. 13.790±4.134 ng/g lipid。

就個別 PBDE congeners 而言，BDE-28 和 BDE-154 於所有食物樣本中均未檢出；BDE-47 於虱目魚的檢出率為 100%，平均濃度為 0.482±0.396 ng/g dry weight，其次為鮭魚和牛奶，檢出率均為 50%；BDE-100 亦僅有虱目魚、鮭魚和牛奶有檢出，其中亦以虱目魚之檢出率最高，為 83.3%，平均濃度為 0.128±0.078 ng/g dry weight；BDE-99 於各種樣本均可測得，其中虱目魚、吳郭魚、豬肉和雞肉之檢出率均為 100%，平均濃度亦以虱目魚最高，為 0.075±0.039 ng/g dry weight；BDE-153 僅有牛奶有測得，檢出率為 33.3%，平均濃度為 0.008±0.012 ng/mL；BDE-183 僅牛肉樣本未檢出，其平均濃度以雞肉最高，為 0.042±0.022 ng/g dry weight；而 BDE-209 僅雞肉樣本未測得，平均濃度以豬肉最高，為 5.403±2.687 ng/g dry weight，檢出率為 100.0%，其次為虱目魚和鮭魚，平均濃度分別為 3.133±3.326 和 2.676±4.091 ng/g dry weight。另於牛奶樣本中，除 BDE-100 外，其餘 BDE-47、BDE-99、BDE-153、BDE-183 和 BDE-209 均以全脂牛奶中之濃度較低脂牛奶高。

另就單位脂質中之個別 PBDE congeners 而言，均已 BDE-209 之濃度最高。

伍、討論

一、分析方法的品保品管

本研究食物樣本分析方法為參考環檢所 NIEA M802.00B 之方法並酌加修改。

於前處理步驟中，使用丙酮/正己烷

(2:1) 進行萃取，牛奶樣本以分液漏斗萃取 2 分鐘，其餘樣本以動力攪拌方式萃取 8 分鐘，可大為縮短萃取時間及溶劑的使用，且並不改變樣本回收效率，於 8 種 PBDEs congeners 之平均回收率為 $110.02 \pm 27.90\%$ ，符合公告方法之品管規範。另以 GC/MS 取代昂貴的 HRGC/HRMS 進行分析，可節省分析成本，適合進行食物樣本之分析。

二、食物樣本中 PBDEs 之濃度

本研究針對 2 種淡水魚，虱目魚和吳郭魚，進行分析發現，其 Σ PBDEs 濃度分別為 3.910 ± 3.697 和 1.801 ± 1.805 ng/g dry weight，與陳重羽 (2005) 針對台灣河川中之吳郭魚樣本分析結果相似，其濃度範圍為 1.280~6.725 ng/g dry weight；而在個別 PBDE congeners 中，均以 BDE-209 為主要同源物。本研究結果亦與田倩蓉 (2007) 針對台灣河川中魚體樣本中 PBDEs 分析結果類似，即均以十溴總量為最高，四溴及五溴總量次之。本研究分析結果亦相似於彭瑞華 (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，其 Σ PBDEs 濃度範圍為 4.57~25.0 ng/g lipid，以 4 溴總量為最高。而 Peng et al.(2007) 分析台灣河川和海灣中之魚類樣本中總 PBDEs 濃度範圍為 2.85-1243 ng/g lipid，較本研究結果高。

本研究之食物樣本濕基中， Σ PBDEs 濃度範圍為 0.058~6.801 ng/g wet weight，與 Domingo et al.(2006) 針對西班牙當地市場販售之海水魚產之研究結果相似，其海水魚產中總 PBDEs 濃度範圍為 0.006~2.324 ng/g wet weight；亦與 Voorspoels et al.(2007) 針對比利時市售魚類製品中之新鮮鮭魚切片分析結果一致，其總 PBDEs 濃度為 2.360 ng/g wet weight，然而其肉類製品之總 PBDEs 濃度為 0.07 ng/g wet weight，較本研究之結果低，牛肉、豬肉和雞肉平均濃度為 1.094 ± 1.619 ng/g wet weight。本研究之分析結果亦接近 Ohta et al.(2002) 針對日本大阪地區 (Osaka

prefecture) 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總 PBDEs 濃度範圍為 0.021-1.650 ng/g fresh weight，而其以 BDE-47 為最顯著的 congener；然而本研究結果略高於其針對豬肉、牛肉和雞肉之分析，其 PBDEs 濃度分別為 0.064、0.016 和 0.006 ng/g fresh weight，而亦以豬肉濃度最高。

陸、結論

本研究建立一套穩定的食物中 PBDEs 分析方法，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，利用酸性矽膠和酸性氧化鋁固相萃取管進行萃取，並以 GC/MS 分析，其平均回收率為 110.02%，除 BDE-154、BDE-183 和 BDE-209 外，精確性均小於 10%，平均 CV 值為 8.33%。

本研究分析台灣一般民眾日常生活中經常食用之食物，包括鮭魚、虱目魚、吳郭魚、牛肉、豬肉、雞肉和牛奶等 7 種，共計 42 個樣本；於食物樣本中 Σ PBDEs 濃度範圍為 0.276~11.076 ng/g dry weight，其中以 BDE-209 所佔比例最高，其次為 4 溴和 5 溴；所有食物樣本中，以豬肉之 Σ PBDEs 濃度最高，為 4.722 ± 3.251 ng/g dry weight，而濃度最低者為雞肉，其濃度為 0.768 ± 0.047 ng/g dry weight。

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.
- Domingo J.L., Bocio A., Falco G, Llobett J.M., 2006, "Exposure to PBDEs and PCDEs associated with the consumption of edible marine species", *Environmental Science*

- and Technology, 40, 4394-4399.
- 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.
- 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 vitamin A 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.
- 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.
- 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.
- Voorspoels S., Covaci A., Neels H., Schepens P., 2007, "Dietary PBDE intake: A market-basket study in Belgium", *Environment International*, 33, 93-97.
- Zhou T., Ross D.G., DeVito M.J., Crofton K.M., 2001, "Effects of short-term in vivo exposure to polybrominated diphenyl ethers on thyroid hormones and hepatic enzyme activities in weanling rats", *Toxicological Sciences*, 61, 76-82.

Zhou T., Taylor M.M., DeVito M.J., Crofton K.M., 2002, "Developmental exposure to brominated diphenyl ethers results in thyroid hormone disruption", *Toxicological Sciences*, 66, 105-116.

田倩蓉, 2007, "毒性化學物質環境流布背景調查計畫", 行政院環保署, EPA-96-J104-02-207。

陳重羽, 2005, "台灣地區主要河川中多溴聯苯醚污染分布研究", 成功大學環境醫學研究所, 碩士論文。

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。

表 1 PBDEs 分析方法之品保品管

	BDE-28	BDE-47	BDE-100	BDE-99	BDE-154	BDE-153	BDE-183	BDE-209
Calibration standard (ng/mL)	10-2000	10-2000	10-2000	10-2000	10-2000	10-2000	10-2000	100-20000
Retention time	5.37	6.21	6.81	6.98	7.46	7.68	8.35	11.51
R	0.99995	0.99986	0.99996	0.99997	0.99992	0.99994	0.99997	0.99968
Recovery (%)	111.09±21.95	109.07±23.57	102.75±28.22	117.72±37.07	104.34±25.65	108.09±24.85	107.94±31.49	130.91±27.86
CV (%)	7.93	6.11	9.78	0.88	10.52	7.10	10.95	13.39
MDL* (ng/g dry weight)	0.056	0.080	0.060	0.015	0.068	0.026	0.014	1.020
MDL for milk (ng/mL)	0.009	0.013	0.010	0.003	0.011	0.004	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

	ΣPBDEs	BDE-28	BDE-47	BDE-100	BDE-99	BDE-154	BDE-153	BDE-183	BDE-209
Salmon (N=6)									
Detection rate		0.0%	50.0%	50.0%	50.0%	0.0%	0.0%	50.0%	33.3%
Mean±sd	2.967±4.161		0.103±0.083	0.056±0.030	0.034±0.032			0.023±0.018	2.676±4.091
Milkfish (N=6)									
detection rate		0.0%	100.0%	83.3%	100.0%	0.0%	0.0%	50.0%	50.0%
mean±sd	3.910±3.697		0.482±0.396	0.128±0.078	0.075±0.039			0.018±0.013	3.133±3.326
Tilapia (N=6)									
Detection rate		0.0%	0.0%	0.0%	100.0%	0.0%	0.0%	50.0%	66.7%
Mean±sd	1.801±1.085				0.021±0.004			0.015±0.010	1.621±1.082
Beef (N=6)									
Detection rate		0.0%	0.0%	0.0%	50.0%	0.0%	0.0%	0.0%	16.7%
Mean±sd	0.809±0.329				0.014±0.007				0.643±0.326
Pig (N=6)									
Detection rate		0.0%	0.0%	0.0%	100.0%	0.0%	0.0%	50.0%	100.0%
Mean±sd	4.722±3.251				0.057±0.021			0.018±0.013	5.403±2.687
Chicken (N=6)									
Detection rate		0.0%	0.0%	0.0%	100.0%	0.0%	0.0%	83.3%	0.0%
Mean±sd	0.768±0.047				0.072±0.032			0.042±0.022	
Milk* (N=6)									
Detection rate		0.0%	50.0%	50.0%	83.3%	0.0%	33.3%	33.3%	16.7%
Mean±sd	0.770±1.327		0.020±0.019	0.023±0.024	0.024±0.022		0.008±0.012	0.003±0.003	0.630±1.335
Whole milk* (N=3)									
Detection rate		0.0%	66.7%	66.7%	66.7%	0.0%	33.3%	33.3%	33.3%
Mean±sd	1.330±1.861		0.031±0.022	0.022±0.015	0.025±0.031		0.012±0.017	0.003±0.004	1.175±1.887
Low-fat milk* (N=3)									
Detection rate		0.0%	33.3%	33.3%	100.0%	0.0%	33.3%	33.3%	0.0%
Mean±sd	0.636±0.052		0.009±0.005	0.025±0.034	0.023±0.015		0.005±0.005	0.002±0.002	

*: 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-100: n.d.<0.060 ng/g, BDE-99: n.d.<0.015 ng/g, BDE-154: n.d.<0.068 ng/g, BDE-153: n.d.<0.026 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(以樣本單位脂質計)

Unit: ng/g lipid

	N	ΣPBDEs	BDE-28	BDE-47	BDE-100	BDE-99	BDE-154	BDE-153	BDE-183	BDE-209
		Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd
salmon	6	17.67±24.547	n.d.	0.608±0.413	0.376±0.256	0.195±0.166	n.d.	n.d.	0.140±0.101	15.866±24.250
milkfish	6	40.897±43.712	n.d.	5.268±5.276	1.221±0.959	0.707±0.337	n.d.	n.d.	0.223±0.205	31.697±38.042
tilapia	6	17.119±14.373	n.d.	n.d.	n.d.	0.185±0.088	n.d.	n.d.	0.127±0.087	15.536±13.991
beef	6	2.601±1.437	n.d.	n.d.	n.d.	0.043±0.023	n.d.	n.d.	n.d.	2.085±1.374
pig	6	26.621±15.608	n.d.	n.d.	n.d.	0.329±0.106	n.d.	n.d.	0.100±0.067	30.405±10.819
chicken	6	5.4546±2.360	n.d.	n.d.	n.d.	0.521±0.344	n.d.	n.d.	0.298±0.262	n.d.
milk	6	21.769±28.821	n.d.	0.760±0.386	1.272±1.895	1.249±1.136	n.d.	0.320±0.311	0.122±0.111	17.481±29.807
whole milk	3	29.748±43.227	n.d.	0.706±0.461	0.527±0.357	0.552±0.652	n.d.	0.258±0.359	0.070±0.077	27.393±43.829
low-fat milk	3	13.790±4.134	n.d.	0.814±0.389	2.017±2.681	1.945±1.161	n.d.	0.382±0.320	0.173±0.129	n.d.

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

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

n.d.: same as Table 2

表 4 食物樣本中 PBDEs 之濃度(以樣本濕重計)

Unit: ng/g wet eight

	N	ΣPBDEs	BDE-28	BDE-47	BDE-100	BDE-99	BDE-154	BDE-153	BDE-183	BDE-209
		Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd
Salmon	6	1.790±2.572	n.d.	0.063±0.051	0.035±0.018	0.021±0.020	n.d.	n.d.	0.014±0.011	1.652±2.572
Milkfish	6	2.169±2.097	n.d.	0.272±0.224	0.072±0.044	0.042±0.022	n.d.	n.d.	0.010±0.007	1.767±1.876
Tilapia	6	0.949±0.610	n.d.	n.d.	n.d.	0.011±0.002	n.d.	n.d.	0.009±0.006	0.907±0.606
Beef	6	0.414±0.197	n.d.	n.d.	n.d.	0.008±0.004	n.d.	n.d.	n.d.	0.394±0.200
Pig	6	2.769±1.941	n.d.	n.d.	n.d.	0.034±0.012	n.d.	n.d.	0.011±0.008	3.230±1.607
Chicken	6	0.098±0.039	n.d.	n.d.	n.d.	0.046±0.021	n.d.	n.d.	0.027±0.014	n.d.
Milk*	6	0.770±1.327	n.d.	0.020±0.019	0.023±0.024	0.024±0.022	n.d.	0.008±0.012	0.003±0.003	0.630±1.335
Whole milk*	3	1.330±1.861	n.d.	0.031±0.022	0.022±0.015	0.025±0.031	n.d.	0.012±0.017	0.003±0.004	1.175±1.887
Low-fat milk*	3	0.636±0.052	n.d.	0.009±0.005	0.025±0.034	0.023±0.015	n.d.	0.005±0.005	0.002±0.002	n.d.

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

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

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

n.d.: same as Table 2

RT: 5.13 - 11.86

NL:
6.42E4
TIC MS
20081021-
50ppb-2

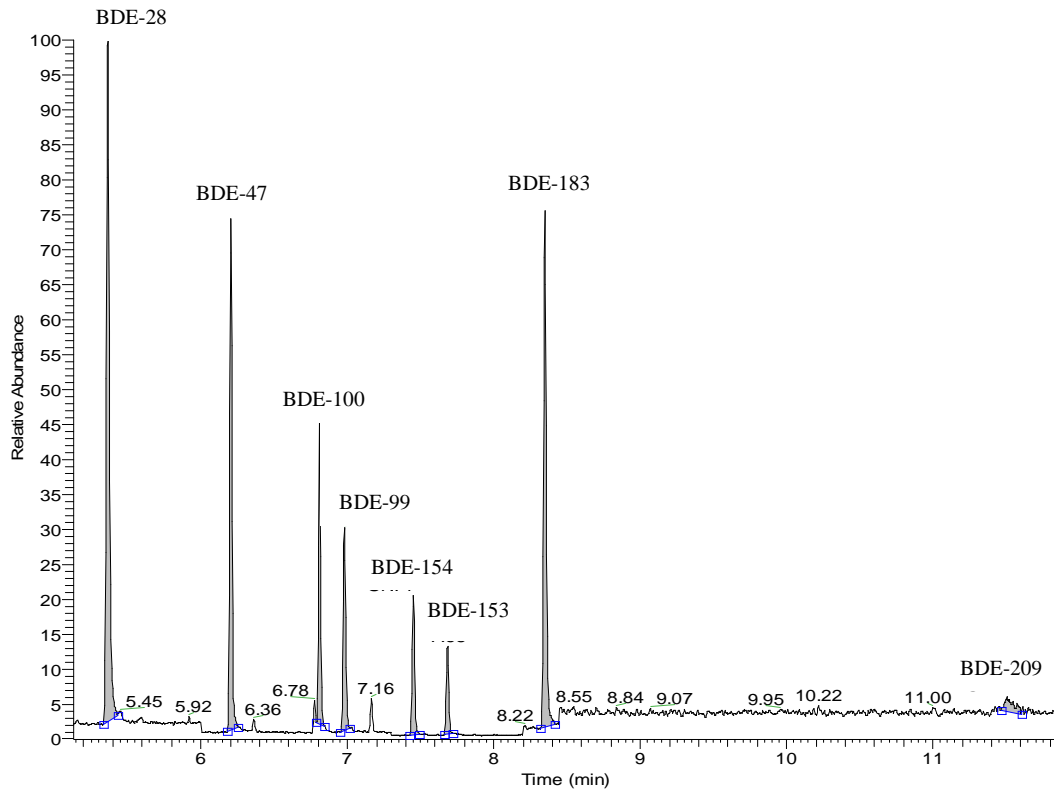


圖 1 50ng/mL 之 PBDEs 標準品層析圖譜

RT: 5.25 - 12.10

NL:
2.91E4
TIC MS
20081015-
p68

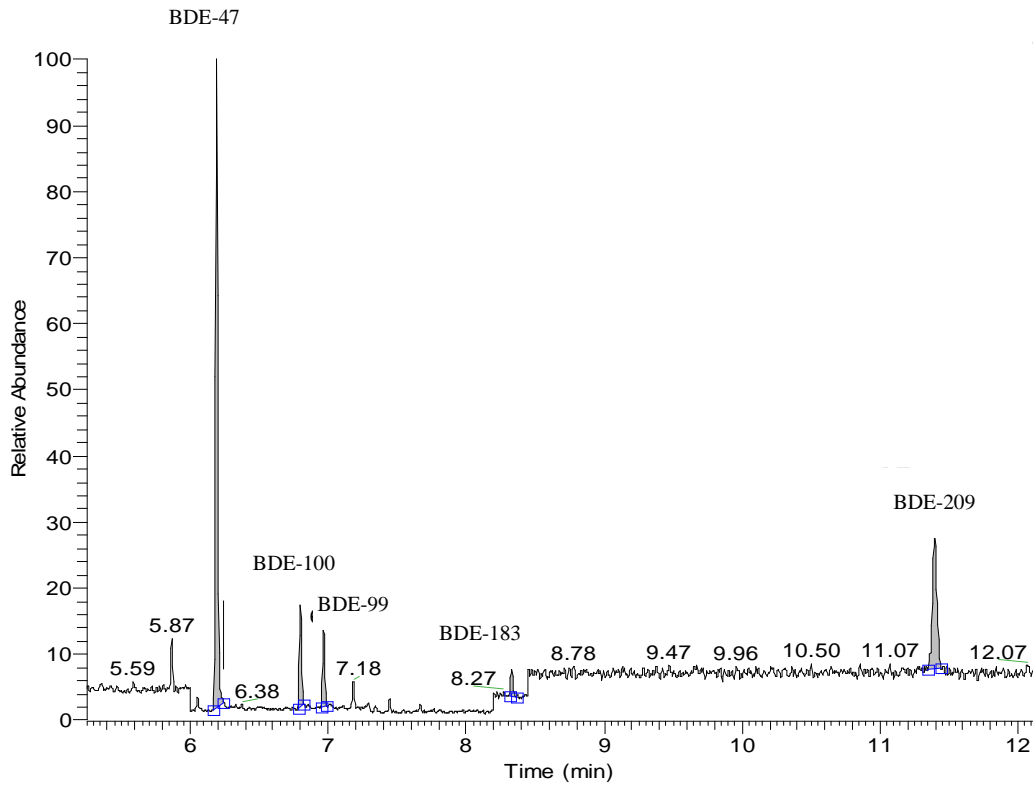


圖 2 食物樣本(milkfish sample)層析圖譜

RT: 5.15 - 11.80

NL:
3.09E5
TIC MS
20081014-
p48

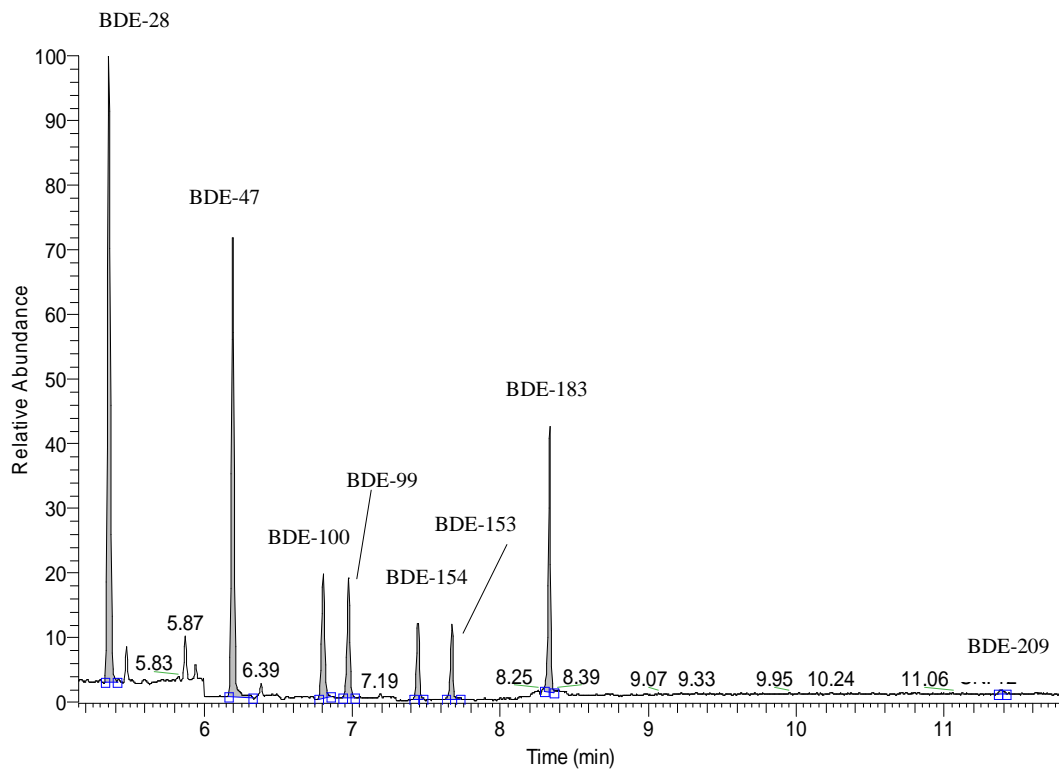


圖 3 添加 200ng/mL PBDEs 標準品之食物樣本(milk sample)層析圖譜

出席國際學術會議心得報告

計畫編號	NSC 96-2621-Z-040-001-
計畫名稱	我國多溴二苯醚環境荷爾蒙之環境流佈及暴露研究(I)
出國人員姓名	毛義方
服務機關及職稱	中山醫學大學 職業安全衛生學系暨碩士班 教授
會議時間地點	2008年6月24~27日 美國芝加哥(Chicago, Illinois)
會議名稱	第41屆流行病學研究國際研討會 41st Annual Meeting of the Society for Epidemiologic Research, U.S.A. (SER, 41st)
發表論文題目	The legionella pneumophila in environment of hospitals and susceptible inpatients

一、參加會議經過

1. 本次參加大會發表的流行病學研究主題包羅萬象，共有 18 主題，報告之題目高達 570 篇左右，與會人數達到一千人。研討會每年之參加人數眾多，但我國能參加的人數並不多，因為要參與報告的題目太多，以致於題目必須經較嚴格的審查通過才能發表，台灣參加的單位只有中山醫學大學及高雄醫學大學而已。
2. 本人(毛義方)在本次大會發表的題目為：The legionella pneumophila in environment of hospitals and susceptible inpatients，摘要如下：

THE LEGIONELLA PNEUMOPHILA IN ENVIRONMENT OF HOSPITALS AND SUSCEPTIBLE INPATIENTS.

*I F Mao, L L Huang, C T Huang, M L Chen (Chung Shan Medical University, Taichung, Taiwan)

Legionnaires' disease (LD) is an environmental disease. The aim of this study was to detect the sources and distributions of Legionella pneumophila (*L. pneumophila*, Lp) in hospital and assess the infectious risk for susceptible inpatients. In total, 180 water samples from 30 hospitals' cooling towers were analyzed to determine whether Lp was present by buffered charcoal yeast extract (BCYE) and BCYE with dyes, glycine, vancomycin, and polymyxin (DGVP) agar in 6 hospitals. Another 584 air environmental samples from respiratory care wards (RCWs) and intensive care units (ICUs) were also examined. This also determined the serum single indirect fluorescence antibody titer of 325 inpatients and cultured Lp from sputum specimens, the latex agglutination and direct immunofluorescent antibody tests were performed to identify the Lp serogroups. The results demonstrated that 30.0% of cooling towers were contaminated by Lp, the Lp-1 serogroup was the most virulent and dominant strain. And found Lp-1 was detected in 2.7% (3/112) of air samples, and Lp-1, Lp-6 were detected in 6.3% (15/240) of tap water samples. Four of 325 inpatients were infected with

Lp, two of whom had nosocomial infection in the RCWs. We recommend that hospitals perform periodic environmental surveys, and regularly clean water towers using an effective disinfection method. Environmental surveillance of special medical units in hospitals should be given attention.

二、與會心得

1. 由於是流行病學研討會，報告的題目內容及研究對象完全是以人為對象，但人是活動的生物，生命週期又長，對於產生疾病的致病因子探討，有相當的難度，因此對於疾病的研究方向，均從多方面來切入，包括基因、孩童生活、社會生活形態、工作暴露、營養狀態、運動、生活習慣以及年齡、種族、教育、性別、污染環境因子等因素有關。所以會中無動物實驗及純環境或化學、物理、生物之題目。
2. 本次研討會之主題以 cancer 的發表題目為最大宗，其次為 cardiovascular disease，再其次為 infectious disease 及 diabetics。由這些發表的題目多寡可以知道目前歐美各國重視的醫療或衛生問題是哪些？
3. 上台報告的研究者，是以博士班學生佔了一半，其他教師報告也不少，碩士生則較少。
4. 本研討會對於致病因子之探討，已不再重視 gene、遺傳之部分，而代之興起的研究為 social behavior 及 culture 之影響研究，如此可視為在目前防止疾病發生、增進人類壽命的另一條途徑。
5. 尤其在 cardiovascular disease 及 diabetics 之治療及預防，藥物治療都已算後半段的措施，前置措施則為生活環境及個人衛生行為的規範，以及健康促進。另外對於早發的此兩種疾病，應是目前醫學研究上之重點，如何保護過早發生的慢性病，而尋求一套好的預防程序 preventive steps of procedure (prevention SOP)。
6. 對於環境造成之疾病問題：

過去對於水污染及空氣污染造成的問題，研究似已告一段落，而且都以大規模(幾十萬人之研究)為主，大都會成劑量—生理(疾病)反應之關係(dose-response relationship)，而最近較受重視的研究則為單一化學物質對人體健康的影響，而已 reproduction 為主，尤其以微量污染化學物質為主，也可以解讀為近代 GC/MS、GC/MS/MS、HPLC/MS/MS 及其他精密測定儀器之發明，可以早期在人類的血液、尿或胎兒(胎盤)的血中，去了解人類的暴露狀況，即所謂 biomarker 之早期發現的研究。
7. 比較我國與美國之國際研討會，似乎美國研討會之進行方式主要是學術發表為主要，沒有政治人物致詞，費用來自參加人員的報名費，沒有豪華的大聚餐，沒有彩色的手冊印發，開會手冊頁數亦不多，值得借鏡。