

財団法人 日中医学協会

2011 年共同研究等助成金報告書ー調査・共同研究ー

2012年3月17日

財団法人 日中医学協会 御中

貴財団により助成金を受領し実施した調査・共同研究について報告いたします。

添付資料:研究報告書

受領者:

香山不二姑

所属機関名:自治医科大学

所属部署名:医学部薬理学講座環境毒性学部門 職名:教授

所 在 地:栃木県下野市薬師寺3311-1

雷

話: 0285-58-7336

内線: 3/37

1. 受領金額: 900,000 円

2. 研究テーマ

食品中有機塩素農薬、ダイオキシン類、重金属曝露の疫学調査

3. 研究組織

日本側研究者氏名:香山不二雄

職名: 教授

所属機関:自治医科大学

部署名:医学部薬理学講座環境毒性学部門

中国側研究者名:孫 素菊

職名: 助教授

所属機関:河北医科大学

部署名:医学部公衆衛生学院

4. 当該研究における発表論文等

Kayama F, Sun SJ, Nakamura M, Nakata T, Liu DW. Levels of dioxins, organochlorines, and heavy metals in fish and rice in China.

2012 年 8 月 26~31 日 DIOXIN2012 (オーストラリア ケアンズ) にて発表予定

5	ᆄ	里	$\boldsymbol{\sigma}$	概	亜
J .	パん	ᆽ	\mathbf{v}_{J}	าเม	ᅑ

中国の河北省石家荘と天津市にて、米21検体および、魚27検体を採集した。

米中のカドミウム濃度、総ヒ素濃度、鉛濃度、クロム濃度を測定した。魚中の

ダイオキシン類および有機塩素系農薬の濃度を測定した。米中カドミウム濃度、

ヒ素濃度は数検体が、中国の最大許容濃度を越えていた。

ダイオキシン類濃度は、低い傾向を示したが、石家荘で購入した淡水魚中の

ダイオキシン濃度が海産魚のそれらより高い傾向を示し、湖沼の汚染があるこ

とが示唆された。

6. 本研究における中国人共同研究者の役割及び業績

河北省石家荘と天津市米検体および魚検体の収集と、来日時に日本国内の

(株)日吉にて、米中重金属濃度を測定した。データの整理を行った。今回の

データはまだ、論文となっていないが、業績は、一連の関連のある 論文は、

Sun SJ, Kayama F, Zhao JH, Ge J, Yang YX, Fukatsu H, Iida T, Terada M, Liu DW. Longitudinal increases in PCDD/F and dl-PCB concentrations in human milk in northern China. Chemosphere. 2011 Oct;85(3):448-53.

-日中医学協会助成事業-

食品中有機塩素農薬、ダイオキシン類、重金属曝露の疫学調査

日本側研究者氏名:香山不二雄

所属機関:自治医科大学 中国側研究者名:孫 素菊 所属機関:河北医科大学

【要旨】

中国の河北省石家荘と天津市にて、米 21 検体、魚 27 検体を採集し、米中カドミウム濃度、総ヒ素濃度、鉛濃度、クロム濃度を ICP-MS にて測定し、魚中有機塩素系農薬を GC/MS/MS にて、ダイオキシン濃度をケイラックス(CALUX)法にて測定した。 米 21 検体のカドミウム、総ヒ素、鉛、クロム濃度を測定した。コーデックスのカドミウム濃度の最大値を 2 検体が、中国の食品中汚染物質許容濃度を 3 検体が超えていた。総ヒ素濃度は 6 検体が超えていた。鉛濃度は 1 検体が許容濃度と同じ濃度であった。中国の米中重金属濃度は、カドミウム、総ヒ素に関して、地域によってはかなり深刻な汚染状況にある可能性がある。

有機塩素系農薬濃度は、検出される魚は少なかった。しかし、DDT代謝物/DDTが4以下の検体があり、最近のDDT使用の可能性が示唆された。

魚中ダイオキシン濃度は日本の海産魚の値に比べれば、低いレベルであるが、石家荘産の淡水魚のダイオキシン濃度が高く、内陸部の湖沼での養魚場のダイオキシン汚染または養殖用餌のダイオキシン濃度が高い可能性があり、今後とも調査を続ける必要がある。これまでの母乳調査で石家荘での経時的なダイオキシン濃度の上昇があることから、さらに、詳細な調査が必要である。

【緒言】

難分解性有機汚染物質(persistent organic pollutants; POPs)である有機塩素系農薬およびダイオキシンは、環境中に放出されるとなかなか分解されず、食物連鎖を通じて魚介類に蓄積され、食品から徐々に体内に蓄積される。ダイオキシンは脂肪性が高く、脂肪分の多い魚、肉、乳製品、卵などに蓄積されやすい。人の脂肪組織に溜まった POPs が母乳中に多く排出されるので、母乳中 POPs が高濃度となる。授乳期間中(1年間)に、母体に蓄積されたダイオキシンの約 60%が児の方に移行してしまうとも推定されている。

これまで、中国の母乳中ダイオキシン濃度および有機塩素系農薬(参考文献 1, 2, 3)、臭素系難燃物質等(参考文献 4)の調査を行ってきた。その結果、他の先進国はダイオキシン濃度が低下しているにもかかわらず、河北省石家荘にて経時的に採取した母乳中ダイオキシン濃度は上昇していることが明らかにしてきた(参考文献 5)。

ダイオキシン類や有機塩素系農薬は蓄積性が高く、重金属汚染物質の母親から 胎盤を介して胎児に移行し、胎児の発育に影響を与え、次世代に亘って影響する可 能性が考えられている。

ダイオキシン類の発生源は、日本ではほとんど対策済であるが、中国は大気汚染、廃棄物焼却、化学工場、製鉄などからまだ発生しており、大気中粒子に付着し最終的に土壌や水を汚染する。さらにプランクトンや魚に食物連鎖も通して取り込まれていくことで、生物にも蓄積されていくと考えられている。日本では負荷量の60%が近海魚介類の摂取によるが、中国での曝露に関しては判っていない。それは、中国食品中のPOPs 濃度および重金属濃度の知見が不足しているためである。そのため、中国にて採取した米、魚、肉類の重金属濃度、有機塩素系農薬濃度、ダイオキシン類濃度を測定して、中国食品の汚染レベルを調べると共に、摂取量から求められる曝露量から健康リスクを考察する必要がある。

【目的】

中国における重金属および難分解性有機汚染物質(POPs)の環境汚染に関してこれまで、河北医科大学と自治医科大学とは「日中母乳にダイオキシン、有機塩素農薬に係るリスク評価」について研究してきた。今回、中国の南部地域の米中重金属汚染と河北省石家荘および天津市にて魚を、石家荘で肉類を購入し、POPs として有機塩素系農薬およびダイオキシン濃度を測定し、健康リスクに関して調査する。

【方法】

1. 食品収集(米、魚、肉類)

白米サンプルは、南部中国各地から 21 サンプルを収集した。河北省にて魚サンプル 23 品目(河北省石家荘市 1 3 品目、天津市 1 0 品目)それぞれ 3 検体を購入し、同 重量を採取しプールサンプルとして混和して 1 検体とした。養殖場所は、鮒、紅焼魚(魚即)、鯉、鯰が石家荘近郊、草魚は黄河流域、ローチ(天津市)、鯉(天津市)、 草魚(天津市)、ナマズ(天津市)、ハス(天津市)海水魚の採取場所は、鱈、鯛、 平目、アイナメ、太刀魚、(浙江省舟山市)ボラ(山東省青島市)、鯖(江蘇省常州市、天津市)、太刀魚(天津市)、平目(天津市)、ハス(鯉科の肉食魚、天津市)、マナガツオ(江蘇省常州市)である。

肉類は石家荘市で購入し、魚と同様に3検体をプールして1検体とした。羊肉(内モンゴル自治区産)、鳥肉、豚肉、牛肉は石家荘周辺産であった。

2. 米中重金属測定

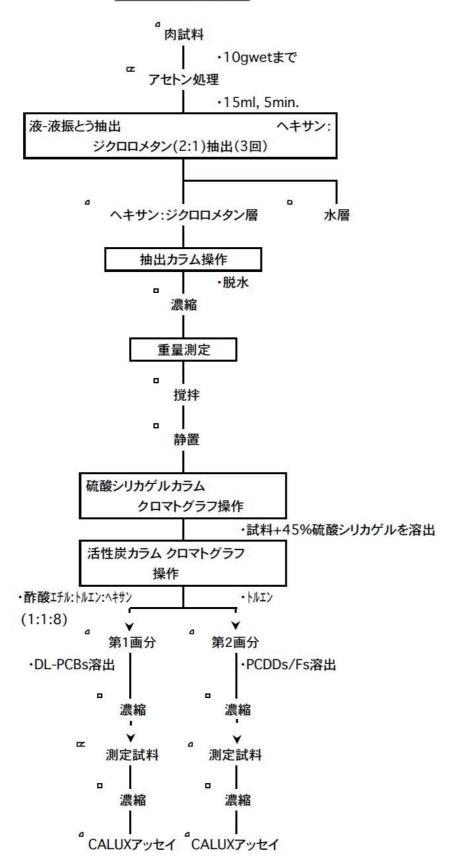
米サンプルは、(株) 日吉にて粉砕の後に、約1グラムを正確に測り、硝酸にてマクロウェイブ抽出した後に、ろ紙で濾過した後に、ICP/MS により、カドミウム、総ヒ素、鉛、クロム濃度を測定した。

3. 魚および肉中の有機塩素系農薬測定

それぞれの魚および肉はそれぞれの地域で3個体を1検体にプール試料とした。 試料はホモジネートし、アセトン処理およびヘキサン抽出し、フロリジルミニカラムクロマトグラフィーにて抽出し、濃縮してヘキサン1 ml に溶解して、GC/MS/MSにより測定した。て、サンプルを当教室に運び、食品中汚染物質を測定する必要がある。 α -ヘキサクロルヘキサン(α -HCH)、 β -HCH、 γ -HCH、 δ -HCH、HCB、ヘプタクロール (Heptachlor)、ヘプタコロール・エポキサイド (Heptachlor-epoxide)、オキシ・クロルデン (Oxy-Chlorden)、アルドリン (Aldrin)、ディルドリン (Dieldrin)、エンドリン (Endrin)、トランス・クロルデン (trans-Chlorden)、cis-Chlorden、trans-Nonachlor、cis-Nonachlor、2,4'-DDE、4,4'-DDE、2,4'-DDD、2,4'-DDT、4,4'-DDD、4,4'-DDT を測定した。

4. 魚および肉中ダイオキシン類測定

分析フロー(肉)

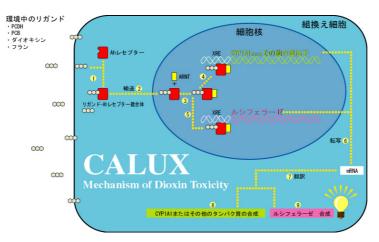


試料を前処理として、硫酸シリカゲルカラム及び活性炭カラムを使用し、測定に、ダイオキシン類応答性組換え細胞 H1L6.1c2 を用いたレポータージーンアッセイを利用してダイオキシン類の毒性等量を測定する方法(ダイオキシン類応答性組換え細胞 H1L6.1c2 は、ホタルルシフェラーゼ遺伝子の上流域に 4 個のダイオキシン応答配列 DRE を含むシトクロム P450(CYP1A1)プロモーターを持つプラスミドpGudLuc6.1 を、マウス肝ガン細胞 Hepa1c1c7 に導入した細胞)用いて、細胞の蛍光を測り、2,4,7,8-TCDD に対する検量線から検体中の濃度を計算した。(生物検定法として、環境省の公定法および U.S. EPA の公定法)

「ケイラックス®アッセイ」環境省平成17年告示第92号第1の1

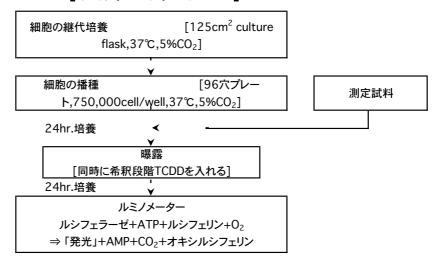
[ケイラックスH1L6.1c2細胞 原理図]

前処理に、硫酸シリカゲルカラム及び活性炭カラムを使用し、測定に、ダイオキシン類応答性組換え細胞H1L6.1c2 を用いたレポータージーンアッセイを利用してダイオキシン類の毒性等量を測定する方法(ダイオキシン類応答性組換え細胞H1L6.1c2は、ホタルルシフェラーゼ遺伝子の上流域に4個のダイオキシン応答配列DREを含むシトクロム P450(CYP1A1)プロモーターを持つプラスミドpGudLuc6.1を、マウス肝ガン細胞Hepa1c1c7に導入した細胞)

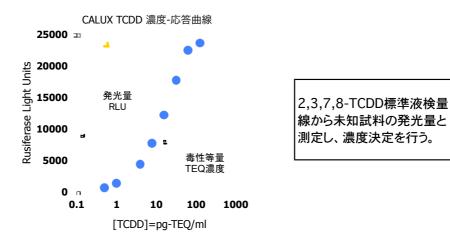


- ①AhRに結合、②核内への移行、③Arntとの結合、④、⑤DNA上のダイオキシン特異的応答領域への結合
- ⑥転写によるmRNAの誘導、⑦翻訳による各種蛋白質の生合成
- ®7-ethoxyresorufin (CYP1A1) ⇒ resorufin
- ⑨ルシフェラーゼ+ATP+ルシフェリン+O $_2$ \Rightarrow 「発光」+AMP+CO $_2$ +オキシルシフェリン CALUX [発光光度計1

[ケイラックスアッセイフロー]



[ケイラックスにおけるTCDDの濃度-反応曲線]



【結果】

1. 米中重金属(カドミウム、ヒ素、鉛、クロム)を 21 検体について測定した。カドミウムの中央値 0.06 mg/kg、幾何平均 0.06 mg/kg、であった。しかし、検体 No. 4 は、0.55 mg/kg、検体 No. 5 は 1.59 mg/kg であり、コーデックスの最大値 0.4 mg/kg、中国の食品中汚染物質基準値を定めた文書 GB2762-2005 の米中カドミウム濃度の基準値 0.2 mg/kg を超えていた。 21 検体中、0.2 mg/kg を超えていた米サンプルは 3 検体であった。

米中ヒ素濃度は、中央値 0.13mg/kg、幾何平均 0.13mg/kg であった。 21 検体中、6 検体が中国の基準値 0.15mg/kg を超えていた。

米中鉛濃度は、中央値 0.09 mg/kg、幾何平均 0.09 mg/kg であった。検体 No. 20 のみが、中国の基準値、0.2 mg/kg と同じであり、それ以外は低かった。

米中クロム濃度は、中央値 0.10mg/kg、幾何平均 0.14mg/kg であり、すべての検体が中国の基準値 1.0mg/kg より大幅に低かった。

2. 魚中有機塩素系農薬

魚中有機塩素系農薬は HCH, HCB, Heptachlor, Aldrin, Dieldrin, Endrin, chlorden,DDT およびそれらの代謝物質が検出された。4,4'-DDE のみが 59.3%の検体で検出されたが、検体の 70%以上が検出下限以下であった。最も高い総 DDT 濃度は、石家荘で購入した浙江省舟山市産のアイナメが高かった。 2番目に DDT 濃度が高かったのは、太刀魚 Opsariichthys bidens であった。石家荘および天津市で購入した海産魚の総 DDT 濃度が高かった。

図3に示す DDT 代謝物/DDT の比率(DDE+DDD/DDT)が低い検体が存在し、 最近の DDT の使用を疑わせる結果である。DDT 代謝物/DDT が4以下の検体は、 浙江省舟山市産のアイナメ、太刀魚、河北省滄州市産の鯖、天津産の鯖およびアイナメ、太刀魚であった。

海産魚でヘキサクロルヘキサン HCH が検出されたのはボラのみであった。淡水魚で HCH が、鮒、鯉、ローチ、草魚、ナマズなどえ検出された。

食品中ダイオキシン濃度

魚中ダイオキシン濃度は、石家荘では淡水魚の方が、海産魚より高い傾向があることが明らかとなった。しかし、天津市で購入した淡水魚および海産魚はダイオキシン濃度が低い傾向があった。

肉中のダイオキシン濃度は低く、牛肉のみに検出下限を少し超える値が検出された。

【結論】

米21 検体のカドミウム、総ヒ素、鉛、クロム濃度を測定した。コーデックスのカドミウム濃度の最大値を2 検体が、中国の食品中汚染物質許容濃度を3 検体が超えていた。総ヒ素濃度は6 検体が超えていた。鉛濃度は1 検体が許容濃度と同じ濃度であった。中国の米中重金属濃度は、カドミウム、総ヒ素に関して、地域によってはかなり深刻な汚染状況にある可能性がある。

有機塩素系農薬濃度は、検出される魚は少なかった。しかし、DDT代謝物/DDTが4以下の検体があり、最近のDDT使用の可能性が示唆された。

魚中ダイオキシン濃度は日本の海産魚の値に比べれば、低いレベルであるが、石家荘産の淡水魚のダイオキシン濃度が高く、内陸部の湖沼での養魚場のダイオキシン汚染または養殖用餌のダイオキシン濃度が高い可能性があり、今後とも調査を続ける必要がある。これまでの母乳調査で石家荘での経時的なダイオキシン濃度の上昇があることから、さらに、詳細な調査が必要である。

Table 1. The concentration of metal heavy in rice by ICP/MS(mg/kg)

Sample No.	Cd	As	Pb	Cr	
1	0.06	0.15	0.05	0.10	
2	0.01	0.10	0.05	0.10	
3	0.04	0.09	0.05	0.64	
4	0.55	0.07	0.06	0.08	
5	1.59	0.10	0.16	0.09	
6	0.09	0.15	0.06	0.19	
7	0.17	0.18	0.07	0.10	
8	0.01	0.10	0.09	0.04	
9	0.15	0.35	0.09	0.08	
10	0.05	0.27	0.07	0.30	
11	0.07	0.12	0.06	0.20	
12	0.02	0.10	0.10	0.10	
13	0.05	0.13	0.07	0.12	
14	0.08	0.12	0.09	0.04	
15	0.09	0.13	0.08	0.13	
16	0.02	0.18	0.10	0.10	
17	0.11	0.16	0.15	0.33	
18	0.01	0.07	0.15	0.74	
19	0.05	0.13	0.16	0.06	
20	0.29	0.15	0.18	0.04	
21	0.03	0.18	0.20	0.96	
ML	0.2(0.4*)	0.15	0.2	1.0	

ML: maximum levels of contaminants in foods of China

^{*: 0.4} mg/kg is maximum levels of cadmium in rice of CODEX

Table 2. The concentration of Organic Chlorinated Pesticides in fish in Shijiazhuang and Tianjin (ng/g) (pool sample)

į											
Fish	Production place	р-нсн	о-нсн	НСВ	2,4'-DDE	2,4'-DDE 4,4'-DDE	2,4'-DDD	4,4'-DDD	2,4'-DDT	4,4'-DDT	ZDDI
Freshwater fish											
crucian	Shijiazhuang	2.19	ND	N	ND	1.49	ND	ND		ND	
carp	Shijiazhuang	1.07	ND	ND	1.37	6.85	ND	4.14		ND	
big head carp	Shijiazhuang	N	ND	N	ND	3.04	ND	ND	ND	N	3.04
tilapia	Shijiazhuang	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND		ND	
catfish	Shijiazhuang	ND	ND	2.12	ND	1.12	ND	ND		ND	
grass carp	Yellow river	ND	ND	N	ND	ND	ND	ND		ND	
Sea fish											
Cod	Zhoushan ,Zhejiang Province	ND	ND	N	ND	ND	ND	ND		ND	
sea bream	Zhoushan ,Zhejiang Province	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND		ND	
5 slivery pomfret	Zhoushan ,Zhejiang Province	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND		ND	
yellow croaker	Zhoushan ,Zhejiang Province	ND	ND	1.00	ND	19.22	4.50	38.78		34.29	
hairtail	Zhoushan ,Zhejiang Province	ND	ND	ND	ND	3.23	ND	ND		5.25	
mullet	Qingdao, Shandong	1.24	ND	ND	ND	3.28	ND	1.20		ND	
mackerel	Changzhou, Hebei Province	ND	ND	1.99	ND	13.60	ND	6.95		19.68	42.58
Freshwater fish											
loach	Tianjin	13.61		3.84	ND	26.52	ND	2.71		1.72	(. ,
carp	Tianjin	ND	ND	N	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
Grass Carp	Tianjin	1.18	ND	N	ND	ND	ND	ND		ND	
Catfish	Tianjin	2.63	ND	1.15	ND	ND	ND	ND		ND	
crucian	Tianjin	ND	ND	ND	ND	1.58	ND	ND		ND	

	_
•	7
	ď
	9
E	a

Sea fish											
Mackerel Fish	Tianjin	ND	ND	ND	ND	2.65	ND	2.24	ND	1.40	6.29
Hairtail	Tianjin	ND	ND	ND	ND	1.50	ND	ND	ND	ND	1.50
Yellow croaker Tianjin	Tianjin	ND	ND	ND	ND	8.28	ND	3.15	1.47	7.03	19.93
Opsariichthys bidens Tianjin	<i>lens</i> Tianjin	ND	ND	ND	1.67	30.07	2.60	11.31	5.44	20.53	71.62
Flatfish	Tianjin	ND	ND	ND	ND	1.61	ND	ND	ND	ND	1.61
Meat											
mutton	Neimeng Province	ND	ND	1.04	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
chicken	Shijaizhuang	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
pork	Shijaizhuang	ND	ND	1.10	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
beef	Shijaizhuang	ND	ND	3.54	ND	2.05	ND	ND	ND	ND	2.05
Detectable rate (%)	(%)	22.2	3.7	29.6	7.4	59.3	7.4	22.2	29.6	25.9	
06											

ND: Not detected, pooled samples of 3 individual fish were measured by GC/MS/MS.

r	
	١
Ξ	
of DDE+DDD/DDT	1
`_	
$\boldsymbol{\mathcal{L}}$	١
Ξ	
-	١
·	۰
+	-
Œ	1
Ξ	
	1
-	۰
-	
4	
	2
	_
9	2
. =	2
÷	
ati	
rativ	
ratio	
e ratio	
he rativ	
The ratio	
The ratios	
The ratio	
Table 3-a The ration	

Table 3-a The	Table 3-a The Fattos of DDE DDD/DD1							
Fish	Production place	2,4'-DDE	4,4'-DDE	4,4'-DDE 2,4'-DDD 4,4'-DDD 2,4'-DDT	4,4'-DDD	2,4'-DDT	4,4'-DDT	DDE+DDD/DDT
Freshwater fish								
crucian	Shijiazhuang	ND	1.49	ND	ND		ND	
carp	Shijiazhuang	1.37	6.85	ND	4.14		ND	
big head carp	Shijiazhuang	ND	3.04	ND	ND		ND	
tilapia	Shijiazhuang	ND	ND	ND	ND		ND	
catfish	Shijiazhuang	ND	1.12	ND	ND	ND	ND	
grass carp	Yellow River	ND	ND	ND	ND		ND	
Sea fish								
Cod	Zhoushan ,Zhejiang Province	ND	ND	ND	ND		ND	
sea bream	Zhoushan ,Zhejiang Province	ND	ND	ND	ND		ND	
slivery pomfret	Zhoushan ,Zhejiang Province	ND	ND	ND	ND	ND	ND	
22 yellow croaker	Zhoushan ,Zhejiang Province	ND	19.22	4.50	38.78		34.29	1.51
hairtail	Zhoushan ,Zhejiang Province	ND	3.23	ND	ND		5.25	0.61
mullet	Qingdao, Shandong	ND	3.28	ND	1.20		ND	
mackerel	Changzhou, Hebei Province	ND	13.60	ND	6.95		19.68	0.93

Q
3-
ن
Ž
ূল

	Freshwater fish								
	loach	Tianjin	ND	26.52	ND	2.71	ND	1.72	17.00
	carp	Tianjin	ND	ND	ND	ND	ND	ND	
	Grass Carp	Tianjin	ND	ND	ND	ND	ND	ND	
	Catfish	Tianjin	ND	ND	ND	ND	ND	ND	
	crucian	Tianjin	ND	1.58	ND	ND	ND	ND	
	Sea fish								
	Mackerel	Tianjin	ND	2.65	ND	2.24	ND	1.40	3.49
	hairtail	Tianjin	ND	1.50	ND	ND	ND	ND	
	yellow croaker	Tianjin	ND	8.28	ND	3.15	1.47	7.03	1.34
	Opsariichthys bidens Tianjin	lens Tianjin	1.67	30.07	2.60	11.31	5.44	20.53	1.63
_	flatfish	Tianjin	ND	1.61	ND	ND	ND	ND	
28-	- 82 - Meat								
-	mutton	Neimeng Province	ND	ND	ND	ND	ND	ND	
	chicken	Shijaizhuang	ND	ND	ND	ND	ND	ND	
	pork	Shijaizhuang	ND	ND	ND	ND	ND	ND	
	beef	Shijaizhuang	ND	2.05	ND	ND	ND	ND	
	Detectable rate (%)	(%)	7.4	59.3	7.4	22.2	29.6	25.9	

ND: Not Detect

【関連文献】

- 1. Sun SJ, Zhao JH, Koga M, Ma YX, Liu DW, Nakamura M, Liu HJ, Horiguchi H, Clark GC, Kayama F. Persistent Organic Pollutants in Human Milk in Women from Urban and Rural Areas in Northern China. Environ Res. 2005 Nov;99(3):285-93.
- 2. Sun SJ, Zhao JH, Liu HJ, Liu DW, Ma YX, Li L, Horiguchi H, Uno H, Iida T, Koga, Yasuhiro M, Kiyonari, Nakamura M, Sasaki S, Fukatu H, Clark GC, Kayama F

Dioxin concentration in human milk in Hebei Province in China and Tokyo, Japan: potential dietary risk factors and determination of possible sources Chemosphere 62: 1879-1888, 2006

- 3. Leng JH, Kayama F, Wang PY, Nakamura M, Nakata T, Wang Y. Levels of persistent organic pollutants in human milk in two Chinese coastal cities, Tianjin and Yantai: Influence of fish consumption. Chemosphere. 2009 May;75(5):634-9.
- 4. Sun SJ, Zhao J, Leng JH, Wang P, Wang Y, Fukatsu H, Liu D, Liu X, Kayama F.

Levels of dioxins and polybrominated diphenyl ethers in human milk from three regions of northern China and potential dietary risk factors. Chemosphere. 2010 Aug;80(10):1151-9.

5. Sun SJ, Kayama F, Zhao JH, Ge J, Yang YX, Fukatsu H, Iida T, Terada M, Liu DW.

Longitudinal increases in PCDD/F and dl-PCB concentrations in human milk in northern China. Chemosphere. 2011 Oct;85(3):448-53. Epub 2011 Sep 3.