

ketone は、10%メタノール/ジクロロメタン溶出 8ml 中に溶出され (Fraction-B)、且つ、SIM 測定で妨害となる共存物質も十分に除去された。

Fraction-B に分画された PCB 水酸化体や TBBP-A などのフェノール性化合物の測定には誘導體化が必要であったため、簡便なメチル化を採用し、反応試薬には従来から広く用いられているジアゾメタンを用いた。反応条件は、室温下 3 時間で十分であった。

(3) 添加回収実験

生体試料として牛や豚の臓器 (脂肪、心臓、腎臓、肝臓) を用いて、ASE 抽出、GPC クリーンアップ及び SPE 分画、更にメチル化操作まで含めたすべての工程 (図 1) を介した添加回収実験を行ったところ、分析対象とした 59 種類の環境汚染化学物質はほぼ良好に回収された (表 1)。

(4) 前処理の自動化

本研究で ASE による脂質抽出に関しては、MTBE を用いた液液分配操作以外は自動化が行えた。また、GPC クリーンアップでは、オートサンプラーとフラクションコレクターをセットし、パーソナルコンピューターによって制御するシステムを適用することで、GPC による自動クリーンアップが可能となった。更に SPE 分画操作では、操作の自動化を考慮して SPE の自動処理システム (Rapid Trace) を用いた。各工程ともほぼ完全な自動化が達成できたことから、本分析方法では夜間での自動処理によって前処理時間を実質的に短縮することができるだけでなく、精度管理への貢献も期待される。

C.D.-2 母乳中に残留するヘキサクロロベンゼンとダイオキシン類との総合的毒性評価

母乳中ダイオキシン分析の前処理過程における HCB 及び主な有機塩素系農薬の分画挙動を調べた。その結果、HCB はダイオキシン前処理過程において、硫酸処理によって

分解・除去されず、シリカゲルカラムクロマトグラフィーではダイオキシン類のフラクションに溶出され、アルミナと活性炭カラムクロマトグラフィーではいずれも非プラナー PCB 画分に溶出されることがわかった。その他の有機塩素系農薬の分画挙動については、図 2 のフローチャート上に示した。

カラムクロマトグラフィーにおける一連の分画操作に加えて、母乳からの脂肪抽出や硫酸分解処理操作を通した HCB の添加回収試験を行った。添加回収試験においては、ヒト母乳に代わる疑似試料として牛乳を用いて HCB を添加 (10ppb) し、図 2 のフローに従って分析を行ったところ、その回収率は平均で 68.1% (n=4) であり、十分な実用性が示された。参考データとして本分析操作において測定可能なヘプタクロルエポキシド、 β -HCH、及び総 DDEs (o,p-DDE、p,p'-DDE) の添加回収率も表 2 に示した。これらにおいても 60~104% 程度の良好な回収率が得られた。なお、 β -HCH の回収率はシリカ及び活性炭シリカゲルカラムからの合計値である。

次に、確立した本分析法を用いて、母乳中ダイオキシン分析の前処理過程において上記の分画を行い、ダイオキシン類の測定に加えて、非プラナー PCB 画分に溶出された HCB の測定を行ったところ、全ての検体 (n=100) から HCB が検出され (4.1~91.8 ng/g fat)、平均値は 33.9 ng/g fat であった (表 3)。

最近の研究では、HCB の Ah レセプターへの結合力から、HCB の毒性をダイオキシンの毒性評価で使われる毒性等価係数 (TEF) で表した場合、0.0001 に相当するといわれている。この数値を今回の実験結果に照らし合わせると、母乳中 HCB の毒性等量 (TEQ) は 0.41~9.2pg TEQ/g fat (平均値: 3.4 pg TEQ/g fat, n=100) となった。これらの結果を既に測定したダイオキシン類の TEQ (I-TEF を用いて計算) と合わせると、

およそ 16%(平均値)の増加となることがわかった(表 4)。なお毒性等量の計算に際して、モノオルト PCBs の TEQ (Total TEQ(WHO・TEF)の約 20%) を推測して、WHO・TEF(1998)を用いた場合、HCB による TEQ の増加は 10%程度となった。これらの結果から、母乳中に残留するダイオキシン類の毒性を評価する場合には、ダイオキシンと同様に母乳を普遍的に汚染している HCB の毒性を無視できないことが確認された。また、今回の測定結果が示すように、母乳はダイオキシン類や HCB 以外にもヘプタクロルエポキシサイド、 β -HCH、DDEs などの有機塩素系農薬によっても高濃度に汚染されていた。このことは従来から多くの研究者によって報告されてきた。現在のところダイオキシン類似毒性が確認されているのは HCB だけであるが、今後 HCB の他にも同様にダイオキシン類似毒性を有する環境汚染化学物質が見いだされる可能性も否定できないことから、本分析法のように、貴重な生体試料を用いてできるだけ多くの有害化学物質を測定する試みは重要であると考えられる。

C.D.・3 異なった毒性等価係数による母乳中ダイオキシン類の毒性等量評価の検討

母乳中ダイオキシン分析に際して、PCB の分画を行い、公定法では求められていないジオルト PCBs の測定も行って、各 TEF による TEQ の違いを検討した。その結果、各 TEQ の間には、それぞれ極めて良好な相関性があることが確認された(図 3)。何れの組み合わせの場合においても回帰直線はほぼ原点を通過する一次直線が得られたことから、得られた回帰直線の傾きの値を以て、各 TEQ 間の補正ファクターと見なすことが十分に可能と推察された。それぞれの補正ファクターを表 5 に示した。これらの結果から、過去の文献上のデータにおいて、測定対象のダイオキシン異性体が異なっていた場合においても、最新の TEQ に補正して比較検討す

ることが可能となった。また、過去の文献データにおいては、モノオルト PCB やジオルト PCB が測定されていない場合もあるが、表 2 の補正ファクターを用いることにより、たとえ実際に測定していなかった場合においても推定値として算出することが可能と思われる。

C.D.・4 ベビーフード中に残留するダイオキシン類の調査と乳幼児への曝露評価の検討

ベビーフードを、菓子、野菜、フルーツ、魚、肉、及び乳製品の 6 種類に大まかに分類し、それぞれに該当する食品を購入して分析した。一般成人のトータルダイエットスタディでは、13 群の食品に分類されているが、通常市販されているベビーフードでは、調理済みで一食分としてビン詰めされている形態が多く、しかも各食品の種類ごとに明確に分かれてはいないので、大まかな分類として上記の 6 種類とした。なお、摂取量の計算に際して簡便化を図るために、一回の食事に一ビンを食べるものとし、1 日 3 回主食のビン詰めを食べ、更に副食(おやつ)として菓子を食するものと設定した。なお、今回選んだ副食はビスケットであり、製造会社や育児経験者からの聞き込み調査により、1 日の副食の食事を 20g とした。

また、菓子を除いた 5 つの食品群を均等に摂取するものと仮定して、ダイオキシン類の 1 日摂取量は、(これら 5 つの食品群からの総摂取量 \times 3/5 + 1 群(菓子)からの摂取量)として算出した。体重当たりの摂取量算出に際しては、まず、調査対象としたベビーフードの適用月齢が 5~10 ヶ月(平均 7.5 ヶ月)であったこと、また、「平成 12 年 乳幼児身体発育調査報告書」(平成 13 年 10 月、厚生労働省雇用均等・児童家庭局母子保健課)によるデータから、7.5 ヶ月の乳幼児の体重がおおよそ 8kg であったことから、これを基準として適用した。

その結果、体重当たりの1日摂取量は、0.061 pg TEQ/kgbw /day (ND=0で算出)、及び1.2 pg TEQ/kgbw /day (ND=定量下限値×1/2で算出)となった。

今回の調査では、体重当たりの1日摂取量が1.2 pg TEQ/kgbw /day (ND=定量下限値×1/2で算出)であったが、この値は我が国がダイオキシン摂取量に対して定めた耐容1日摂取量 (TDI : Tolerable Daily Intake) の4pgと照らし合わせた場合、十分に下回っており、また、厚生労働省がこれまでに行ってきた一般成人を対象としたトータルダイエットスタディによる食品からのダイオキシン類1日摂取量調査 (平成9年度から13年度) の値 (1.45~2.41pg TEQ/kgbw /day) よりも下回っていることから、市販ベビーフードからのダイオキシン摂取量は直ちに問題になる量ではないと考える。

なお、参考データとして、平成13年度に購入したベビーフードについても、本研究で提案した6つの食品群に分類して、それぞれダイオキシン類摂取量の評価を行った。その結果、食品群ごとに比較すると、いずれもかなり濃度差があるものの、総摂取量としての1日摂取量及び体重当たりの1日摂取量は、0.079 pg TEQ/kgbw /day (ND=0で算出)、及び1.3 pg TEQ/kgbw /day (ND=定量下限値×1/2で算出)となり、今回 (平成15年度調査) の評価 (表6) とほぼ同等の結果となった (表7)。これらの結果から、本研究で提案したベビーフードの食品群分類方法及び総摂取量算出方法が妥当であると考えられる。また、我が国においてダイオキシン汚染が問題となってから、様々な対策が講じられてきており、母乳中濃度や食品中のダイオキシン濃度は減少傾向にあることがこれまでの多くの研究で示されている。今回分析した市販ベビーフードにおいても、ダイオキシン削減の効果が食材において現れてきたものと思われる。

C.D.・5 ダイオキシン類のGC/MS測定における大量注入法の導入

GC/MS測定における最適な大量注入法を選択するために、従来までに報告されている主な方式として、Programmed Temperature Vaporizing (PTV) 注入法、プレカラム注入法 (Solvent Cut Large Volume Injection System : SCLV 注入法) PTV 注入法ではインサート内に充填剤を使用するものが多く、この充填剤に目的成分が残ることがあり、また加熱脱着した時に目的成分が熱分解する恐れがある。SCLV 注入法では、キャリアガス切り替えのための複数のバルブや試料濃縮のためのコールドトラップが必要とされ、これらの制御も複雑となる。また、アットカラム注入法では注入温度とカラムオープン温度との微妙な温度制御を必要とする。全般的にこれらの注入法では溶媒と測定対象成分との沸点差を必要とすることから、トルエンやデカンなどの高沸点溶媒の使用が困難である。更に、インサート管の容量が小さいため、一回の注入量に制限があり、少ない試料を何回も注入するマルチインジェクションや注入速度を調節して (溶媒を除去しながら) 連続して注入するスピードコントロールインジェクションが必要とされること、また、従来のスプリットレス注入法よりも注入口が汚れ易いといった問題点がある。

最近、新たな大量注入法として LaviStoma 大量注入法が開発された。この LaviStoma 大量注入法は、胃袋型の大容量を有するインサート (図4) を用いるもので、プレカラム法のような複雑な配管システムを必要とせず、また、アットカラム法のように注入温度とカラムオープン温度との微妙な温度制御を必要とせずに、トルエンなどの高沸点溶媒が使用可能であり、更に注入量も数十~100 µL 程度まで注入可能であったことから、本研究においてはこの方式を採用することにした。実際に装置を導入して、ダイオキシン

分析における最適条件の検討を行った。LaviStoma での測定に際しては、図 4 に示した試料注入時の初期温度と第 2 ステージのスプリットモードでの濃縮時間がこのシステムにおける最も重要なパラメーターであった。その結果、初期温度 120℃、スプリット時間 6 秒の条件下で、良好なデータが安定して得られた。更に、このトルエン溶液中にはシリンジスパイクのデカン溶液が 5%程存在していたが、LaviStoma においては、第 2 ステージのスプリットモード (図 4) において、トルエンと共にデカンもほとんど残らずに濃縮乾固できることが確認された。

更に、実用性を確認するために、母乳 (17 検体) と血液 (4 検体) 中ダイオキシン測定に際して、同一試料について、従来のスプリットレス注入法で測定して得られた値と大量注入法で得られた値との相関性を比較検討した。母乳および血液中ダイオキシン類の分析方法は、前項で述べた方法に準じて行った。従来法 (スプリットレス法) によるデータを取得に際しては、その 1 μ L をスプリットレス注入をした。大量注入に際しては、残余試料を改めてトルエンで 1mL (試料が血液の場合には 200 μ L) 程度に希釈して、その 20 μ L を注入した。

その結果、図 5 に示したように、PCDD/Fs およびノンオルト Co-PCBs の何れにおいても、LaviStoma 大量注入法と従来法との間に良好な相関が得られ、十分に実用性があることがわかった。この装置を使用することにより、従来から分析操作上の問題点として指摘されていた、GC/MS に注入する最終液量を極微量に濃縮する操作を省くことができることから、前処理操作が大幅に軽減され、分析操作の迅速化されると共に、窒素パージに際しての実験者への曝露が低減され、更に測定データの精度向上も期待される。

E. 結論

E. 結論

E-1. 生体試料中 POPs 関連物質のモニタリング法の確立と精度評価に関する研究

生体への残留が危惧されている PCB や臭素系難燃剤および有機塩素系農薬などの 59 種類環境汚染化学物質を分析するために、主に前処理方法に関する検討を行った。その結果、自動化システムを組み込むことが可能な高速溶媒抽出法 (ASE) による生体試料からの至適脂質抽出条件として、ジクロロメタン/アセトン (1:1) が最も脂質抽出に適した溶媒系であることがわかった。得られた脂質のクリーンアップ法としては、ゲルろ過クロマトグラフィー (GPC) として、GPC カラムに Bio-Beads S-X3 を、移動相にジクロロメタン/ヘキサン (1:1) を用いることで分析対象化学物質を損なうことなく、共存物質を除くことができた。更に、自動化された固相抽出カートリッジ (SPE) 処理装置を用いることで、低極性物質群と高極性物質群とに分画することができ、添加回収実験では 59 種類の環境汚染化学物質はほぼ良好に回収された。

本分析方法では、前処理操作に自動化システムを組み込むことが可能となった。これによって省力化と前処理時間の迅速化が図られるだけでなく、分析担当者の技量に起因する測定値のバラツキ問題を改善することができるなど、精度管理への貢献も期待される。

E-2. 母乳中に残留するヘキサクロロベンゼンとダイオキシン類との総合的毒性評価

母乳に残留する HCB とダイオキシン類の系統分析法の検討および HCB を加味した総合的毒性評価について検討を行った。その結果、ダイオキシン分析に付随して派生するフラクションを用いて、HCB、ヘプタクロルエポキサイド、 β -HCH、DDEs の分析が可能となった。これにより、貴重な生体試料である母乳の有効利用が図られると共に、過去にダイオキシン分析に際して派生したフラクションを保存してあれば HCB の測定が可能となった。

実際に、母乳 100 検体について HCB の測定を行ったところ全ての検体から HCB が検出された。既報の研究データによる HCB の TEF を当てはめてダイオキシンと合わせた毒性を再評価したところ、HCB は総合毒性を 16% (I-TEF で算出)、または 10%(WHO-TEF 1998 で算出)増加させることがわかった。

E-3 異なった毒性等価係数による母乳中ダイオキシン類の毒性等量評価の検討

母乳中ダイオキシン類の TEQ 評価における TEF の違いによる TEQ への影響について検討を行った。その結果、ダイオキシン異性体の種類と毒性係数が異なる三種類の TEF (I-TEF、WHO-TEF1993 及び WHO-TEF1998) によって得られた母乳中の各 TEQ の間には良好な相関性があり、得られた相互補正ファクターにより、過去の文献値を現在の値と比較する際には、今回の研究成果は有用に活用されるものと思われる。

E-4 ベビーフード中に残留するダイオキシン類の調査と乳幼児への曝露評価の検討

市販ベビーフード中のダイオキシン類の分析と乳幼児におけるその摂取量について検討した。その結果、成人のトータルダイエツト方式に準じて、本研究ではベビーフードを 6 つの食品群に分類し、更に、1 日の摂取量算出に際して独自の算出方法を考案した。すなわち、1 日に食事を 3 回と副食でおやつを食べると仮定し、更に、野菜、フルーツ、魚、肉、及び乳製品の 5 つの食品群を平均的に食べるものとして、これらの総摂取量に 3/5 を乗じたものに、副食(菓子)からの摂取量を加えるものとした。ダイオキシン分析結果をこの評価方法に適用したところ、乳幼児(月齢 7.5 ヶ月、体重 8kg)の体重当たりの 1 日摂取量は、我が国で定めた TDI(4 pg TEQ/kgbw /day)を大きく下回り、また、成人を対象としてこれまでに厚生労働省が行

ってきたトータルダイエツト方式による食品からのダイオキシン類摂取量をも下回った。これらの結果から、本研究で提案した食品群分類法及び総摂取量の算出法が妥当であることが確認された。

E-5 ダイオキシン類の GC/MS 測定における大量注入法の導入

母乳と血液中ダイオキシンの GC/MS 測定に際して、大量注入法の導入を検討したところ、十分に実用性が確認された。この装置を使用することにより、GC/MS に注入する最終液量を窒素ページにより極微量に濃縮する操作を省くことができることから、前処理操作が迅速化されると共に、更に測定データの精度向上も期待される。

F. 健康危険情報
なし

G. 研究発表

1. 論文発表

1) Koichi Saito, Mikiko Takekuma, Masahiko Ogawa, Susumu Kobayashi, Yukio Sugawara, Msahiro Ishizuka, Hiroyuki Nakazawa and Yasuhiko Matsuki, Enzyme-linked immunosorbent assay toxicity evaluation method for dioxins in human milk, Bull. Environ. Contam. Toxicol., 70, 636-643 (2003).

2) Koichi Saito, Mikiko Takekuma, Masahiko Ogawa, Susumu Kobayashi, Yukio Sugawara, Msahiro Ishizuka, Hiroyuki Nakazawa and Yasuhiko Matsuki, Extraction and cleanup methods of dioxins in house dust from two cities in Japan using ASE and a disposable multi-layer silica-gel cartridge, Chemosphere, 53, 137-142 (2003).

3) Mikiko Takekuma, Koichi Saito, Masahiko Ogawa, Ryuji Matumoto and Susumu Kobayashi, Levels of PCDDs, PCDFs and Co-PCBs in human milk in Saitama, Japan, and epidemiological research, *Chemosphere*, 54, 127-135 (2004).

4) Koichi Saito, Masakazu Ogawa, Mikiko Takekuma, Atsuko Ohmura, Migaku Kawaguchi, Rie Ito, Koichi Inoue, Yasuhiko Matsuki, and Hioryuki Nakazawa: Systematic analysis and the overall toxicity evaluation of dioxins and hexachlorobenzene in human milk. *Organohalogen Compounds*, 66, 38-41 (2004)

5) Koichi Saito, Andreas Sjodin, Courtney D. Sandau, Mark D. Davis, Hiroyuki Nakazawa, Yasuhiko Matsuki, and Donald G. Patterson, Jr.: Development of a Accelerated Solvent Extraction and Gel Permeation Chromatography Analytical Method for Measuring Persistent Organohalogen Compounds in Adipose and Organ Tissue Analysis. *Chemosphere*, 57, 373-381 (2004)

6) Koichi Saito, Masahiro Ishizuka, Yukio Sugawara, Hioryuki Nakazawa and Yasuhiko Matsuki: Cleanup Method Using Disposable Tandem Cartridge System for the Determination of Dioxins in Human Milk by Enzyme-Linked Immunosorbent Assay. *Bull Environ Contam Toxicol.*, 73, 17-23 (2004)

2. 学会発表

1) 齊藤貢一, 石塚昌宏, 菅原幸雄, 小川政彦, 竹熊美貴子, 浦辺研一, 中澤裕

之, 松木容彦, 母乳中ダイオキシンの酵素免疫測定法の開発, 日本薬学会第123年会, 長崎.

2) 齊藤貢一, 小川政彦, 竹熊美貴子, 大村厚子, 中澤裕之, 松木容彦, 母乳中ダイオキシンのヘキサクロルベンゼンの系統分析及び総合的毒性評価, 日本薬学会第124年会, 大阪.

3) 齊藤貢一, 大村厚子, 竹熊美貴子, 伊藤里恵, 井之上浩一, 松木容彦, 中澤裕之, ベビーフード中ダイオキシン類の分析および摂取量評価, 環境ホルモン学会2004, 名古屋.

4) Koichi Saito, Masakazu Ogawa, Mikiko Takekuma, Atsuko Ohmura, Migaku Kawaguchi, Rie Ito, Koichi Inoue, Yasuhiko Matsuki, and Hioryuki Nakazawa: Systematic analysis and the overall toxicity evaluation of dioxins and hexachlorobenzene in human milk. 24th International Symposium on Halogenated Environmental Organic Pollutants & POPs, Berlin, Germany (2004)

H. 知的所有権の取得状況

- | | |
|-----------|----|
| 1. 特許取得 | なし |
| 2. 実用新案登録 | なし |
| 2. その他 | なし |

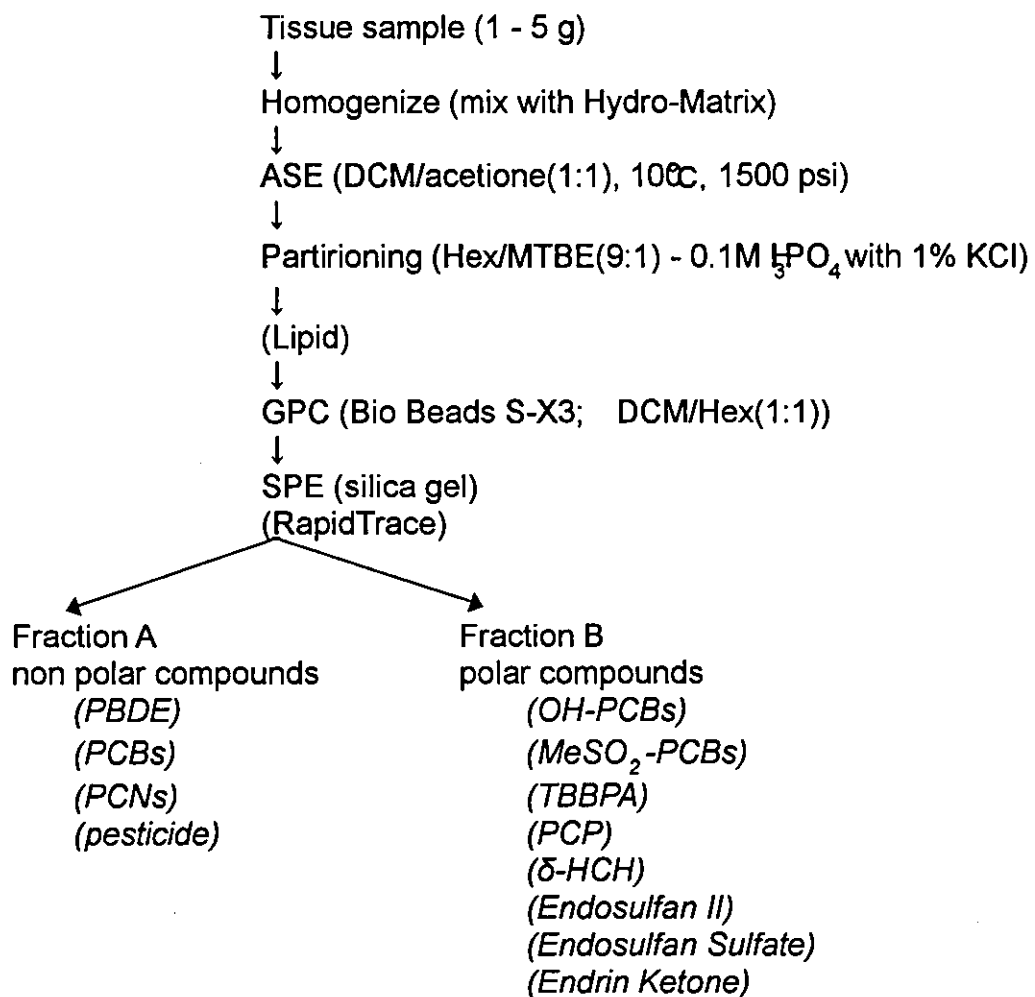


図 1. 前処理操作フローチャート

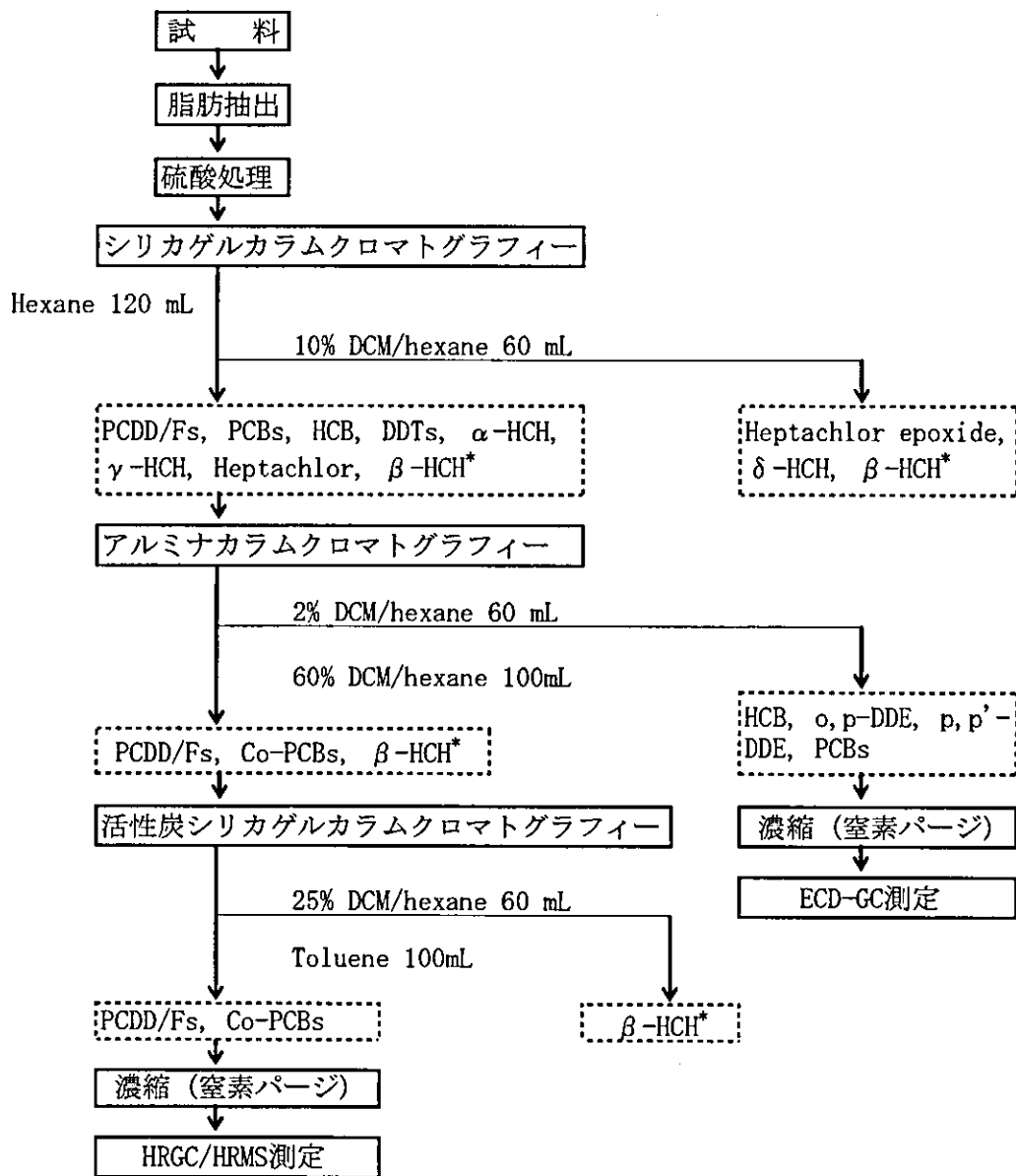


図2. 母乳中ダイオキシン類及びヘキサクロロベンゼン等，有機塩素系農薬の系統分析法

(*: β-HCHはシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより2つの画分に溶出される)

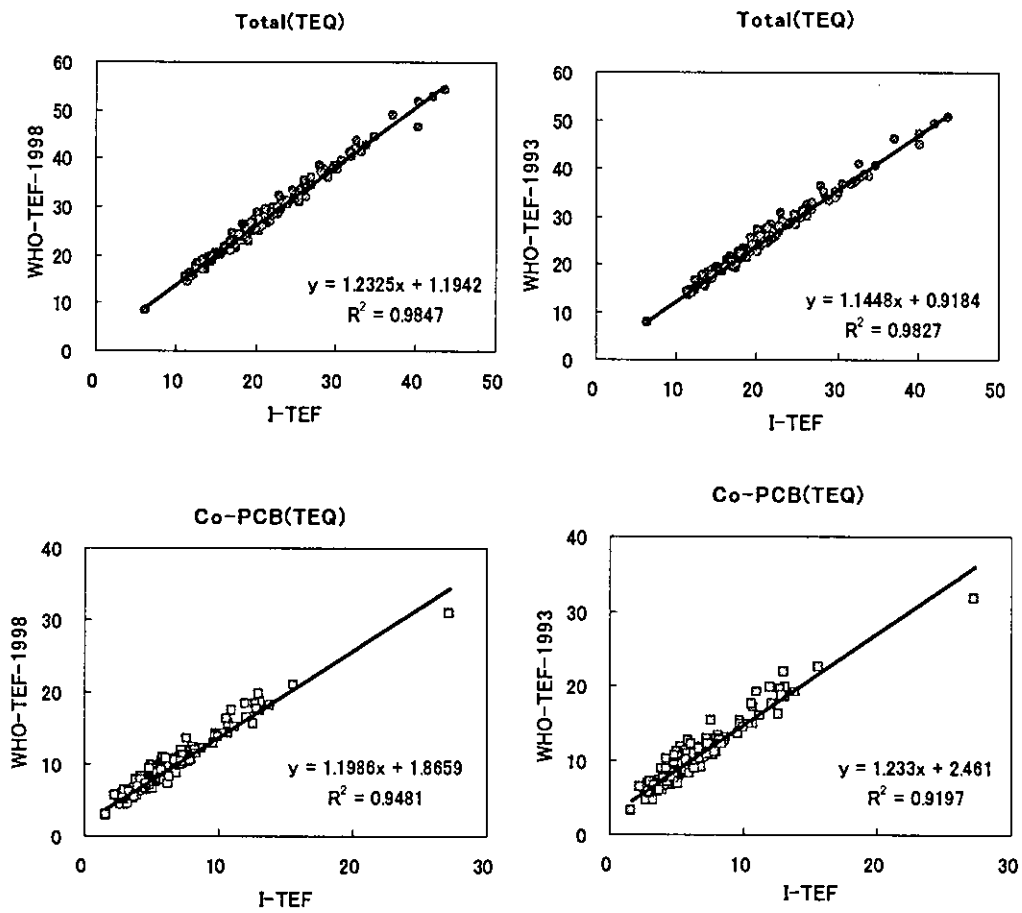


図3. 各TEFによって得られたTEQ(母乳中ダイオキシン類)間の相関性

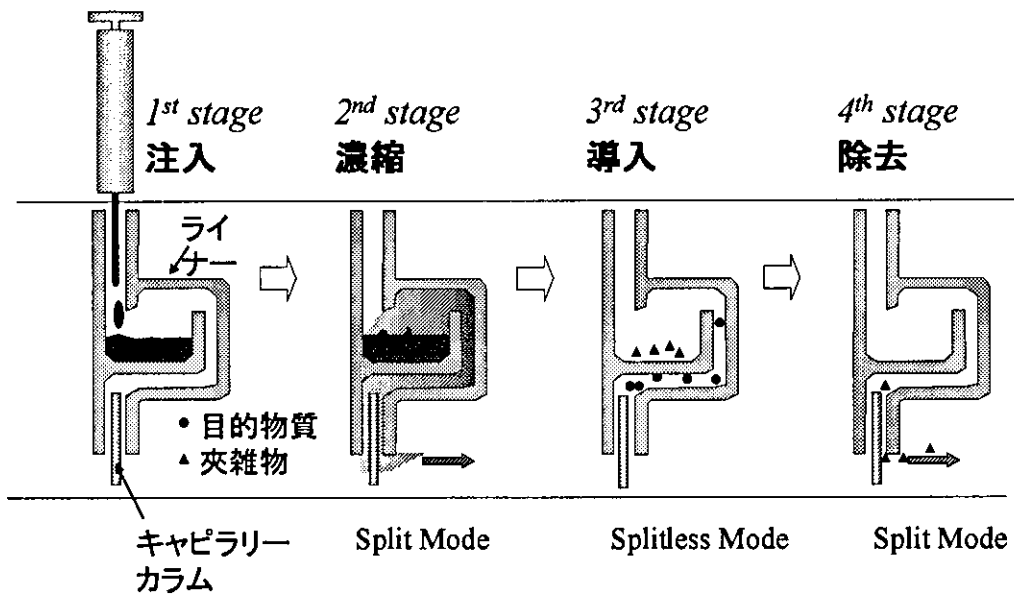


図4. 大量注入法 (LaviStoma) の原理

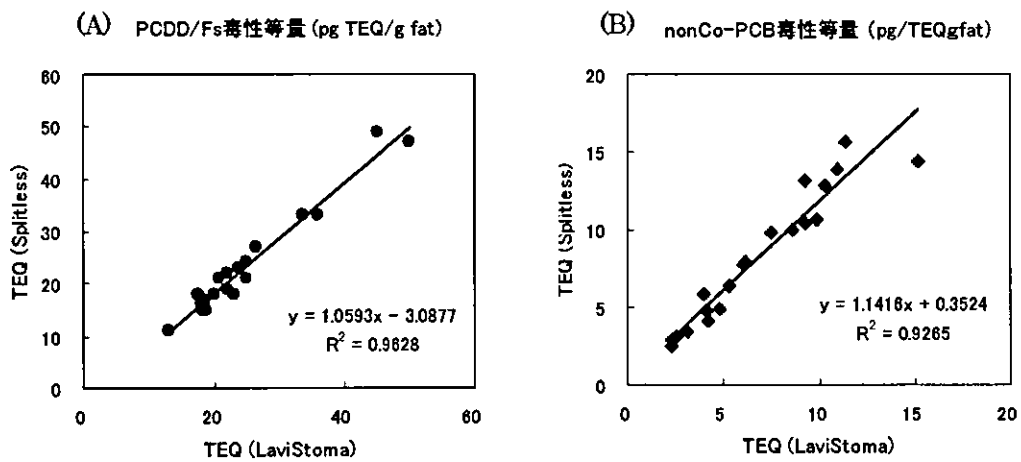


図5. 大量注入法 (LaviStoma) と従来法 (スプリットレス) による測定データの比較;

(A) 母乳及び血液中 PCDD/Fs (TEQ), (B) ノンオルト Co-PCBs (TEQ)

表1. 生体組織からの回収率

	Spiked Fraction	脂肪 (牛)		心臓 (豚)		腎臓 (豚)		肝臓 (豚)	
		5 ng/g		1ng/g		1ng/g		1ng/g	
		Mean (%)	(Std) (n=3)	Mean (%)	(Std) (n=3)	Mean (%)	(Std) (n=3)	Mean (%)	(Std) (n=3)
脂質含量 (%)		86.5	(1.4)	3.88	(0.16)	6.05	(0.14)	5.23	(0.06)
tri- to heptaBDE	A	86.3 - 115		80.1 - 113		68.2 - 95.3		70.1 - 92.4	
		(2.0 - 9.3)		(7.6 - 14)		(1.0 - 8.3)		(4.5 - 10)	
TBBP-A	B	41.2	(14)	21.6	(7.0)	78.6	(15)	34.8	(14)
penta- to decaCB	A	80.9 - 98.5		74.1 - 86.7		62.0 - 70.7		65.5 - 79.8	
		(1.0 - 14)		(9.1 - 21)		(4.3 - 6.1)		(7.8 - 17)	
OH-PCBs	B	58.3 - 65.6		47.4 - 57.3		57.5 - 68.8		36.2 - 43.7	
		(4.9 - 5.7)		(8.2 - 9.1)		(3.7 - 7.9)		(5.1 - 8.7)	
MeSO ₂ -PCBs	B	64.2 - 75.8		87.0 - 119		73.5 - 98.8		73.7 - 82.9	
		(6.7 - 7.5)		(11 - 16)		(14 - 16)		(16 - 20)	
PCN	A	96.1 - 118		87.3 - 102		75.3 - 87.7		76.9 - 94.9	
		(0.1 - 5.5)		(11 - 13)		(6.2 - 8.8)		(9.5 - 12)	
有機塩素系農薬									
Pentachlorobenzene	A	40.9	(0.8)	50.8	(12)	48.8	(9.5)	24.3	(5.2)
Hexachlorobenzene	A	79.2	(3.0)	64.5	(16)	56.3	(14)	46.4	(8.3)
α-HCH	A	68.0	(2.2)	66.5	(13)	54.7	(9.4)	50.7	(9.9)
β-HCH	A	80.1	(4.9)	75.9	(14)	68.5	(3.3)	66.8	(17)
γ-HCH	A	88.7	(16)	88.4	(16)	72.6	(11)	63.4	(14)
δ-HCH	B	73.8	(8.0)	71.4	(18)	59.4	(5.6)	60.9	(8.4)
Heprachlor	A	79.4	(16.1)	74.2	(15)	60.2	(9.6)	46.4	(11)
Heprachlor epoxide	A	80.7	(6.2)	66.4	(9.6)	53.6	(4.8)	53.8	(8.9)
α-Chlordane	A	82.8	(2.6)	77.5	(10)	64.9	(6.3)	65.7	(10)
γ-Chlordane	A	81.7	(2.8)	81.3	(11)	68.6	(6.4)	65.4	(9.6)
4,4'-DDE	A	85.5	(2.1)	68.1	(9.5)	58.5	(4.9)	63.0	(10)
Aldrin	A	111	(20)	110	(20)	90.0	(11)	84.3	(13)
Dieldrin	A	64.6	(5.9)	43.7	(4.8)	37.9	(2.6)	36.3	(5.1)
Endrin	A	52.5	(2.6)	45.4	(5.9)	37.6	(3.5)	37.6	(6.3)
Endrin aldehyde	A	47.9	(2.3)	45.2	(6.1)	39.1	(3.3)	37.1	(5.5)
Endrin ketone	B	72.7	(6.4)	122	(38)	77.3	(n=1)	88.5	(14)
Endosulfan I	A	82.7	(3.6)	78.0	(10)	65.0	(7.1)	65.0	(10)
Endosulfan II	B	79.5	(2.9)	88.5	(14)	73.3	(6.6)	79.2	(8.4)
Endosulfan sulfate	B	70.1	(6.6)	83.3	(13)	67.8	(5.5)	65.8	(11)
Octachlorostyrene	A	94.5	(7.0)	90.4	(14)	75.3	(9.2)	76.5	(11)
Pentachlorophenol	B	94.0	(11)	92.6	(23)	82.2	(12)	106.2	(11)

表2. HCB等, 有機塩素系農薬の回収率

有機塩素系農薬	添加量 (ng/g)	回収率 (%)*	SD
HCB	10	68.1	7.9
Heptachlor epoxide	10	60.3	7.8
β -HCH**	10	70.5	8.8
Total DDE***	10	104.8	12.1

添加試料にはヒト母乳の代用として牛乳を使用

*: 平均値 (n=4)

** : β -HCHの回収率はシリカ及び活性炭シリカゲルカラムからの合計値

*** : o, p-DDE & p, p'-DDE

表3. 母乳中に残留するHCB等, 有機塩素系農薬濃度

	濃度* (ng/g fat)	Min	Max	SD
HCB	33.9	4.1	91.8	16.2
Heptachlor epoxide	7.4	1.4	22.1	4.0
β -HCH**	62.7	8.1	610.3	80.8
Total DDEs***	289.5	15.8	1000.1	176.6
脂肪含有率 (%)	3.7%	0.9%	10.5%	1.6

*: 100検体の平均値

** : β -HCHの回収率はシリカ及び活性炭シリカゲルカラムからの合計値

*** : o, p-DDE & p, p'-DDE

表4. HCBを加えた場合の母乳中ダイオキシン毒性 (TEQ) の増加率

	毒性等量 (pg TEQ/g fat)*	増加率**
HCB	3.4	
Dioxins (I-TEF)	21.8	
Dioxins (WHO-TEF 1998)***	35.2	
HCB + Dioxins (I-TEF)	25.1	116%
HCB + Dioxins (WHO-TEF 1998)	38.6	110%

* : 母乳100検体の平均値

** : 各母乳 (n=100) の増加率の平均値

*** : モノオルトPCBsの寄与率をTotal TEQの20%と推定して算出

表5. 各種のTEFを用いた場合のTEQ補正ファクター*

	I-TEF	WHO-TEF 1993	WHO-TEF 1998
PCDD/Fs (TEQ)	1	1	1.19
Co-PCBs (TEQ)	1	1.23	1.20
Total TEQ	1	1.14	1.23

*: I-TEFによって得られたTEQを1とした補正值

表6. 幼児によるベビーフード中ダイオキシン類の1日摂取量 (平成15年度調査)

食品群	分類	品名 (重量)	適用月齢	(ND = 0で算出)		(ND=定値下限値×1/2 で算出)	
				1日摂取量 (pg TEQ /day)	体重当たりの摂取量** (pg TEQ /kgbw /day)	1日摂取量 (pg TEQ /day)	体重当たりの摂取量** (pg TEQ /kgbw /day)
1群	菓子類	たまごビスケット (20g)	9ヶ月	0.025	0.0032	0.56	0.070
2群	野菜	野菜ささみうどん (130g)	10ヶ月	0.059	0.0073	3.5	0.44
3群	フルーツ	フルーツヨーグルト (70g)	5ヶ月	0.012	0.0015	1.8	0.23
4群	魚	白身魚のドリア (130g)	7ヶ月	0.028	0.0035	3.5	0.44
5群	肉	野菜とレバーのうま煮 (130g)	9ヶ月	0.056	0.0070	3.5	0.44
6群	乳製品	チーズビスケット (70g)	5ヶ月	0.62	0.077	2.3	0.28
総摂取量*				0.49	0.061	9.4	1.2

*: 総摂取量 = (1群の摂取量) + 3/5 (2群~6群の摂取量の総和)

** : 適用月齢の平均値 (7.5ヶ月) における幼児の体重を8kgとして算出

表7. 幼児によるベビーフード中ダイオキシン類の1日摂取量 (平成13年度調査)

食品群	分類	品名 (重量)	適用月齢	(ND = 0で算出)		(ND=定値下限値×1/2 で算出)	
				1日摂取量 (pg TEQ /day)	体重当たりの摂取量** (pg TEQ /kgbw /day)	1日摂取量 (pg TEQ /day)	体重当たりの摂取量** (pg TEQ /kgbw /day)
1群	菓子類	どうぶつのビスケット (20g)	7ヶ月	0.490	0.061	0.88	0.11
2群	野菜	ほうれん草 (113g)	5ヶ月	0.076	0.0095	3.1	0.39
3群	フルーツ	りんご (71g)	6ヶ月	0.00043	0.000054	1.9	0.24
4群	魚	白身魚のドリア (130g)	7ヶ月	0.035	0.0044	3.5	0.44
5群	肉	牛煮込みうどん (128g)	8ヶ月	0.0030	0.00038	3.5	0.43
6群	乳製品	チーズグラタン (130g)	10ヶ月	0.12	0.015	3.6	0.45
総摂取量*				0.63	0.079	10.3	1.3

*: 総摂取量 = (1群の摂取量) + 3/5 (2群~6群の摂取量の総和)

** : 適用月齢の平均値 (7.2ヶ月) における幼児の体重を8kgとして算出

厚生労働科学研究費補助金（食品の安全性高度化推進研究事業）

資料2

「ダイオキシン類等の化学物質の食品及び生体試料検査における
信頼性確保と生体曝露モニタリング法の確立に関する研究」

血液および母乳試料中のダイオキシン測定マニュアルの実試料への適用性
ならびに生体曝露に関する研究、および臭素化ダイオキシン測定法の確立、
測定操作マニュアル作成に関する研究

（平成14～16年度）

分担研究者 織田 肇

資料2

厚生労働科学研究費補助金（食品の安全性高度化推進研究事業）

ダイオキシン類等の化学物質の食品及び生体試料検査における信頼性確保と
生体曝露モニタリング法の確立に関する研究（その2）

分担研究総合報告書（平成14～16年度）

—血液および母乳試料中のダイオキシン測定マニュアルの実試料への適用性
ならびに生体曝露に関する研究、および臭素化ダイオキシン測定法の確立、
測定操作マニュアル作成に関する研究—

主任研究者	柳澤 健一郎	(財)食品薬品安全センター 特別参事
分担研究者	織田 肇	大阪府立公衆衛生研究所 所長
協力研究者	森田 昌敏	独立行政法人 国立環境研究所
	飯田 隆雄	福岡県保健環境研究所
	太田 壮一	摂南大学薬学部
	高菅 卓三	(株)島津テクノリサーチ
	野村 孝一	(財)日本食品分析センター
	藤峰 慶徳	(株)大塚製薬
	宮崎 徹	(株)ニッテクリサーチ
	堀 伸二郎	大阪府立公衆衛生研究所
	田中 之雄	大阪府立公衆衛生研究所
	渡辺 功	大阪府立公衆衛生研究所
	熊谷 信二	大阪府立公衆衛生研究所

研究要旨

母乳中ダイオキシン類および血液中ダイオキシン類の測定に関してはそれぞれ「母乳中のダイオキシン類測定暫定マニュアル」および「血液中のダイオキシン類測定暫定マニュアル」が公表されている。これらのマニュアルに関する問題点を協力研究機関とともに洗い出し、修正マニュアルを作成した。母乳のマニュアルに関する主な修正点は次のようである。①目標定量下限値は、ダイオキシンおよびジベンゾフランは現行のままで良いが、ノンオルトPCBは10 pg/g fatに、モノオルトPCBは50 pg/g fatに変更する。②カラムクロマトグラフィーは一般的な組み合わせを示すが、その他でも精度が保証できれば良い。③質量分析計の感度は、20～50fgの2,3,7,8-TeCDDでS/N比が5以上であることが望ましい。血液のマニュアルに関する主な修正点は次のようである。①脂質抽出法については、全血の場合は、暫定マニュアルのままとするが、血清および血漿の場合は、試料量を全血の半分とする。②目標定量下限値は、母乳の場合と同様とする。③質量分析計の感度は、母乳の場合と同様とする。

次いで、修正マニュアルの適切性を検討するため、粉乳（模擬母乳）および血清の同一試料を協力研究機関で修正マニュアルに従って測定し結果の比較を行った。その結果、粉乳中および血清中ダイオキシン類濃度は、一部の物質で機関間の変動係数が30%を超えて

いたが、毒性等量の変動係数は20%以下であり、修正マニュアルでほぼ正確な測定ができることがわかった。

上記の血液の測定マニュアルでは、血液試料を50ml使用することとなっているが、より少量でも測定できる方法として福岡県保健環境研究所（飯田ら）の少量法および国立環境研究所の少量法がある。これらの方法と従来法を比較し、その適切性を検討した。その結果、福岡県保健環境研究所の少量法ではHpCDDおよびOCDDを除いて従来法とほぼ同じであった。ただし、脂質濃度が従来法と比較し約1/2となった。国立環境研究所の少量法ではすべての物質で従来法とほぼ同じであった。以上、これら2つの方法が有用であることが確認された。

また、血清の前処理をディスク型固相（C18）抽出法により簡便化することを検討した。その結果、ディスク型固相抽出法は液々抽出法およびカートリッジ型固相抽出法とほぼ同一の結果が得られた。この方法はダイオキシン類濃度を脂肪重量あたりで算出できない点が欠点であるが、従来法と比べ処理時間が大幅に短縮できるため、危急を要する人体ダイオキシン類汚染スクリーニングのための有効な迅速前処理法として期待できる。

一方、母乳中の臭素化ダイオキシン類の測定法については、「母乳中の臭素化ダイオキシンの分析法（案）」が公表されているが、このマニュアルに関する問題点を協力研究機関とともに洗い出し、大幅に修正を加えて「母乳中の臭素化ダイオキシン類測定マニュアル（案）」を作成した。さらに、その適切性の検討を行うため、牛乳脂肪に一定量の臭素化ダイオキシン類を添加した試料および無添加試料を精度管理試料とし、協力研究機関で測定した。測定の結果、添加脂肪試料の各研究機関の平均値は、各化合物とも添加値とよく一致しており、各化合物の機関間変動係数も、2化合物は20%を若干超えたものの、他の10化合物については変動係数20%以内と良好な結果を示した。また、回収率も良好で大半の報告値が50～120%の範囲内であった。さらに、目標とする定量下限値についても、添加および無添加脂肪試料分析により、達成可能な値を得ることができた。これにより、「母乳中の臭素化ダイオキシン類測定マニュアル（案）」の適切性を確認することができた。

また、現在の母乳の臭素化ダイオキシン類による汚染実態の概要を把握するため、若干例の母乳について、臭素化ダイオキシン類濃度を測定した。その結果、母乳中の臭素化ダイオキシン類の濃度は非常に低く、毒性等量相当値で、塩素化ダイオキシン類のおよそ1/10～1/100であると考えられた。しかし、臭素化ダイオキシン類は発生源、環境挙動や人体への移行等不明な点が多く、国レベルでの母乳中の臭素化ダイオキシン類の実態調査が望まれる。

A. 研究目的

母乳中ダイオキシン類および血液中ダイオキシン類の測定に関してはそれぞれ「母乳中のダイオキシン類測定暫定マニユア

ル」および「血液中のダイオキシン類測定暫定マニュアル」が公表されている。これらのマニュアルに関する問題点を協力研究機関とともに洗い出して修正マニュアルを

作成するとともに、粉乳（模擬母乳）および血清の同一試料を協力研究機関で修正マニュアルに従って測定し、その適切性を検討して、より精度の高い測定マニュアルを完成させる。

上記の血液の測定マニュアルでは、血液試料を 50ml 使用することとなっているが、より少量でも測定できる方法を開発する。また、血液の前処理にディスク型固相抽出法を用いて簡易化を試みる。

一方、母乳中の臭素化ダイオキシン類の測定法については、「母乳中の臭素化ダイオキシンの分析法(案)」が公表されているが、このマニュアルに関する問題点を協力研究機関とともに洗い出して修正マニュアルを作成するとともに、牛乳脂肪に一定量の臭素化ダイオキシン類を添加した試料および無添加試料を協力研究機関で測定し、その適切性を検討して、より精度の高い測定マニュアルを完成させる。

B. 研究方法

B-1. 母乳中塩素化ダイオキシン類測定マニュアルの検討

日常的にダイオキシン類分析を行っている研究機関の経験を基に、「母乳中のダイオキシン類測定暫定マニュアル」の修正を行う。さらに、ダイオキシン類濃度の保証値を有する粉乳（牛乳を乾燥し粉末状にしたもの、European Commission 製 BCRRM534）中のダイオキシン類濃度を修正マニュアルに従って測定し、マニュアルの適切性を検討した。

B-2. 血液中塩素化ダイオキシン類測定マニュアルの検討

日常的にダイオキシン類分析を行っている研究機関の経験を基に、「血液中のダイオキシン類測定暫定マニュアル」の修正を行う。さらに、同一ロットの血清試料（日水

製薬製 L-コンセーラ II）中のダイオキシン類濃度を修正マニュアルに従い測定し、マニュアルの適切性を検討した。

B-3. 血液試料の少量化に関する検討

上記の粉乳および血清を、福岡県保健環境研究所（飯田ら）が開発した少量法により測定し、結果の比較検討を行った。また、上記の血清を国立環境研究所が開発した少量法により測定し、結果の比較検討を行った。

B-4. 血液試料の前処理の簡易化に関する検討

血清試料の前処理の簡便さと大幅な時間短縮を目指して、ディスク型固相（C18）抽出法により血清中ダイオキシン類分析を行い、液々抽出法およびカートリッジ型固相抽出法との比較検討を行った。

B-5. 母乳中臭素化ダイオキシン類測定マニュアルの検討

1) 精度管理

「母乳中の臭素化ダイオキシンの分析法(案)」を基本に、最新の技術的知見を取り入れ、より信頼性の高い高感度の測定マニュアル(案)の策定を行った。このマニュアル(案)の適切性を検討するため、牛乳脂肪に一定量の臭素化ダイオキシン類を添加した試料および無添加試料を用い、協力研究機関で測定した。また、操作ブランクについても同時に検討した。精度管理結果について、無添加脂肪試料の報告値、添加脂肪試料の報告値および添加値との比較、報告値の機関間変動、回収率、検量線濃度および直線性、検出下限等の解析を行い、測定マニュアル(案)の適切性を検証した。また、各協力研究機関で使用した標準物質、内標準物質、前処理法条件、測定装置条件等についても情報の提供を得た。

2) 臭素化ダイオキシン類測定マニュアル(案)の見直し

精度管理解析結果および協力研究機関より提供された標準物質、内標準物質、前処理法条件、測定装置条件等の情報を基に、測定マニュアル(案)を再度見直し、必要な追加・修正を加えた。

B-6. 母乳中臭素化ダイオキシン類濃度の実態調査

母乳の臭素化ダイオキシン類による汚染実態の概要を把握するため、若干例の母乳について、臭素化ダイオキシン類濃度を測定した。またヒトへの暴露評価のため、母乳中の塩素化ダイオキシン類も合わせて測定した。さらに、粉ミルクや市販乳についてもこれらのダイオキシン類を測定した。

C. 研究結果

C-1. 母乳中塩素化ダイオキシン類測定マニュアルについて(別添1参照)

1) 測定マニュアルの修正について

a) 目標定量下限値

ダイオキシンとジベンゾフランについては、暫定マニュアルの通りでよい。Co-PCBについては、暫定マニュアルでは10 pg/g fatとなっているが、ブランク値(特にモノオルト(#118))を考慮すると、少し高い目に設定する方がよい。したがって、TeCDD, PeCDD, TeCDF および PeCDF は1 pg/g fat, HxCDD, HpCDD, HxCDF および HpCDF は2 pg/g fat, OCDD および OCDF は5 pg/g fat とする。また、ノンオルト PCB は10 pg/g fat, モノオルト PCB は50 pg/g fat とする。

b) クリーンアップ

クリーンアップには、硫酸処理、シリカゲルカラムクロマトグラフィー、硝酸銀カラムクロマトグラフィー、多層カラムクロマトグラフィー、アルミナカラムクロマト

グラフィー、活性炭シリカゲルカラムクロマトグラフィーなどがあり、これらの中から選択して、組み合わせて行う。マニュアルでは、一般的な組み合わせを記載するが、他の組み合わせでも測定できるのであれば問題ない。マニュアルに定められた精度が保証できれば、どのようなクリーンアップ法でも良い。

c) PCBの分取について

PCBはカラムクロマトグラフィーにより、ノンオルト PCB (+ダイオキシンおよびジベンゾフラン) フラクションとモノオルト PCB フラクションに分かれるが、最終的にGC-MSで測定する場合、2つのフラクションを合わせて測定しても、あるいは別々に測定しても感度はほぼ同等である。ただし、ノンオルト PCB とモノオルト PCB の濃度は大きな差があるため、濃度が低いノンオルト PCB のピークの判定が困難になり、間違ったピークをとる可能性がある。したがって、マニュアルでは、別々の測定を基本とする。

d) 質量分析計

暫定マニュアルでは、質量分析計の感度は、10fgの2,3,7,8-TeCDDでS/N比が5以上であることが望ましいと規定されている。可能なケースもあるが、困難なケースもあり、20~50fgの2,3,7,8-TeCDDでS/N比が5以上であることが望ましいとすることが適切である。

2) 精度管理結果

a) 脂肪濃度について

粉乳中脂肪濃度を表1に示す。7機関の平均値は240mg/牛乳粉末1gであり、変動係数は20%であった。F機関においては154mg/牛乳粉末1gと低い値を示したが、その原因は採取試料量が他に比べて少ないことによると思われる。

b) ダイオキシン類濃度について

①測定値と保証値の比較

粉乳中ダイオキシン類濃度の各研究機関の平均値と試料の保証値を表2に示す。ダイオキシン(PCDDs)およびジベンゾフラン(PCDFs)の保証値と7機関の平均値を比較すると、全ての物質で保証値よりも低い値が得られ、PCDDsで保証値の82~94%、PCDFsで53~94%であった。保証値の53%であった物質は1,2,3,7,8-PeCDFであり、この物質を除くと保証値の75~94%であった。

②試料中濃度の研究機関間の変動

保証値が無い物質も含めて全ての物質(PCDDs, PCDFs, Co-PCBs)について、7機関での機関間の変動を検討した。変動係数が30%を越えた物質は、OCDD、1,2,3,4,7,8,9-HpCDF、OCDF、3,4,4',5'-TeCB(#81)、3,3',4,4'-TeCB(#77)、3,3',4,4',5,5'-HxCB(#169)、2',3,4,4',5'-PeCB(#123)、2,3,3',4,4'-PeCB(#105)、2,3',4,4',5,5'-HxCB(#167)、2,3,3',4,4',5'-HxCB(#157)、2,3,3',4,4',5,5'-HpCB(#189)であった。特に、30%以上の変動係数が多く見られたCo-PCBsについては、G機関のブランク値が高く(表3)、ブランク値を引いた値で再計算すると、殆どの物質で30%以下になった。また、毒性等量(TEQ)の変動係数はPCDDs/PCDFsおよびCo-PCBsともに20%以下であった。

③試料中濃度の研究機関内の変動

各研究機関内での同一試料の3回測定における変動係数は、全機関において、全物質で変動係数が20%以下であった。

④回収率について

内部標準物質の回収率を表4に示す。回収率は35~134%であり、一部で測定マニュアルで望ましいとする範囲(50~120%)を超えていた。ただし、再測定の必要のない範囲(25~150%)には入っていた。

C-2. 血液中塩素化ダイオキシン類測定マニュアルについて(別添2参照)

1) 測定マニュアルの修正について

a) 目標定量下限値

目標定量下限値については、母乳の場合と同じである。すなわち、ダイオキシンとジベンゾフランについては、暫定マニュアルの通りでよい。Co-PCBについては、暫定マニュアルでは10 pg/g fatとなっているが、ブランク値(特にモノオルト(#118))を考慮すると、高い目に設定する方がよい。したがって、TeCDD, PeCDD, TeCDF,およびPeCDFは1 pg/g fat、HxCDD, HpCDD, HxCDF および HpCDF は2 pg/g fat、OCDD および OCDF は5 pg/g fatとする。また、ノンオルトPCBは10 pg/g fat、モノオルトPCBは50 pg/g fatとする。

b) 濃度表示について

血中ダイオキシン類濃度は、血液1g中のダイオキシン類量で表す場合と、脂質1g中のダイオキシン類量で表す場合がある。同一の血液でも脂質量は抽出法によって異なるため、脂質1g当たりのダイオキシン類量で表すと、抽出法の違いによる影響を受ける。この点からは、脂質抽出法の影響を受けないように、血液1g当たりのダイオキシン類量で示した方がよい。一方、血液1g当たりで表すと、高脂血症の場合、脂質が多いので見かけ上ダイオキシン類濃度が高くなる。この点からは、脂質量で標準化できるように、脂質1g当たりのダイオキシン類量で表した方がよい。また、体内負荷量を考える場合には、脂質1g当たりで表した方がよい。このように、それぞれ長所と短所があるが、マニュアルでは暫定通り、脂質1g当たりのダイオキシン類量で表すこととする。

c) 全血、血清および血漿について

暫定マニュアルでは、全血の測定が基本となっているが、その他に血清および血漿の測定もある。前処理は、全血よりも血清あるいは血漿の方が容易であり、この点で

は血清あるいは血漿の測定を基本とした方が良いとする考え方もある。しかし、採血時に溶血した場合、血清で測るためには、再度採血する必要がある。また、血球にもダイオキシン類が含まれているので、全血を使用して測定する方が効率が良い。さらには、暫定マニュアル制定後、全血で測定したデータが多数あることを考慮すれば、全血を基本にし、血清および血漿もマニュアルに含めることが適切である。

d) 脂質抽出について

暫定マニュアルでは、脂質抽出法として Patterson 法を記載している。しかし、Patterson 法でも、硫安、エタノール、ヘキサンなどの抽出試薬の量により抽出される脂質量が異なる。したがって、もっとも抽出率の高い試薬量を選択すべきと考えられる。ところが、抽出率が高いとしても、実際に抽出されたものが本当に脂質かどうかという点は検討されていない。しかも、抽出した時に、脂質が変成しているため、抽出したものが本当に脂質かどうかを確かめることが現時点ではできない。以上の点を考慮し、脂質抽出法に関しては統一した方法を決めることとする。

結論的には、全血については、暫定マニュアルを変更しない。その理由としては、①暫定マニュアルに示された抽出試薬量の割合は多少変動しても、抽出率の違いはそれほど大きくないこと、②既に、この方法によるデータが多数あり、今後のデータとの比較を考えると変更は望ましくないことがあげられる。

血清および血漿については、暫定マニュアルでは「血清、血漿も同様に行うことができる」と記載されているだけであり、表現があいまいで、試料量が明確でない。この点を明確にするため、試料量を全血の半分とするよう明記する。その理由としては、①全血と同量の血清を用いて暫定マニユ

アルに従って抽出を行った場合、抽出試薬量の多少の変動により抽出率が大きく変動すること、②全血の半分の血清を用いて抽出を行った場合、抽出試薬量の多少の変動による抽出率の変動は小さいこと、③全血中の液体部分は約 50%であり、液液抽出という観点で考えれば、抽出試薬の量を同じとすれば、血清の量を全血の量の半分にすれば、両者は同等になることがあげられる。

抽出の回数については、暫定マニュアルでは3回目と定めている。しかし、3回目に抽出される量は全体の 5%以下である。したがって、脂質抽出の3回目は省略可能であり、この点をマニュアルに記載する。

e) クリーンアップについて

クリーンアップについては、母乳の場合と同様である。すなわち、硫酸処理、シリカゲルカラムクロマトグラフィー、硝酸銀カラムクロマトグラフィー、多層カラムクロマトグラフィー、アルミナカラムクロマトグラフィー、活性炭シリカゲルカラムクロマトグラフィーなどがあり、これらの中から選択して、組み合わせて行う。マニュアルでは、一般的な組み合わせを記載するが、他の組み合わせでも測定できるのであれば問題ない。マニュアルに定められた精度が保証できれば、どのようなクリーンアップ法でも良い。

f) PCB 分取について

PCB 分取については、母乳の場合と同様である。すなわち、PCB はカラムクロマトグラフィーにより、ノンオルト PCB (+ダイオキシンおよびジベンゾフラン) フラクションとモノオルト PCB フラクションに分かれるが、最終的に GC-MS で測定する場合、2つのフラクションを合わせて測定しても、あるいは別々に測定しても感度はほぼ同等である。ただし、ノンオルト PCB とモノオルト PCB の濃度は大きな差があるため、濃度が低いノンオルト PCB のピ