熊　本　県
保健環境科学研究所報

平成31年度（2019年度）

Annual Report
of
Kumamoto Prefectural Institute
of Public-Health and Environmental Science

No.49　　2019

熊本県保健環境科学研究所

はじめに

熊本市のほぼ中心部に位置し 10 分も歩けば繁華街まで行けるという旧研究所の立地環境とは対照的に、周囲には田園地帯が広がる現在の場所へ当研究所が新築移転してから、早いもので四半世紀が経過しました。

自然に恵まれ閑静な環境の中での業務は、時に心に安らぎを与えてくれるものがあります。静かな環境に囲まれたこの地では、毎年、春になると鶯の鳴き声がどこからともなく聞こえ、敷地内に咲き誇る桜花が心を和ませてくれるとともに新たな気持ちで新年度を迎えさせてくれます。

ただ、本年はそのような気持ちの余裕もなく、昨年 12 月に中国武漢に端を発して全世界に拡大した新型コロナウイルス感染症への対応に職員一丸となりあたってきたところです。現在、新型コロナウイルス感染症に対する治療薬やワクチンの開発が進められていますが、未だウイルスとの戦いの終結時期は不透明です。そのような中、当研究所は県民の安心安全を確保するため、引き続き他機関等とも連携・協力しながら検査体制の充実・強化に取り組んで参ります。

さて、当研究所は、地域保健、公衆衛生、環境保全に関する科学的・技術的中核として、専門的な技術や知識を駆使し、県民の健康及び地域の環境を守るための調査研究に取り組んでいます。

この所報には、SFE 抽出液の精製・濃縮を省略することで、より多くの農薬成分分析を可能にした GC/MS/MS による農産物中の残留農薬一斉分析法の開発、県内の微小粒子状物質（$PM_{2.5}$）測定局配置の適正化を行うために全国に先駆けて実施した空間濃度予測手法（Regression Kriging 法）による $PM_{2.5}$ の空間濃度分布の推定、本県独自の水環境評価法により長年調査し蓄積されたデータの群集生物学的手法を用いた解析結果から見えてきた課題など、令和元年度にまとめられた調査研究の成果を収載しています。関係者の皆様には、是非とも御高覧いただき、忌憚のない御意見を頂戴いただければ幸いです。

最後に、平成 28 年熊本地震発生から既に 4 年が経過し、住まいの再建、阿蘇へのアクセスルート回復等の創造的復興が進む中、7 月 4 日に県南地域を中心に発生した甚大な豪雨災害により 65 名の方々の尊い命が失われ、自然の猛威を改めて思い知らされました。被災された方々に御見舞い申し上げますとともに、亡くなられた方々の御冥福をお祈りいたします。

令和 2 年 12 月

熊本県保健環境科学研究所
所長　西村　浩一

目　次

１　運　営

1・1 沿革・組織機構…… 1
1・2 職員の構成…… 2
1・3 職員一覧表…… 2
1・4 施設及び主要備品…… 3
1・5 学会・研修等…… 5
1・6 調査研究に対する外部評価…… 7

２　業　務　実　績

2・1 微生物科学部…… 8
2・2 生活化学部……10
2・3 大気科学部……13
2・4 水質科学部……16

３　調査研究

3・1　報文

1) SFE-GC/MS/MS による農産物中農薬の一斉分析法に関する研究……19
2) LC-MS/MS による食肉中抗菌性物質の同定 ……36
3) Regression Kriging 法を用いた九州地域の $PM_{2.5}$ の空間濃度分布推定……42
4) 群集生物学的手法を用いた水生生物調査結果の解析 ……47
5) GC/MS による魚体エラ中の迅速な農薬一斉分析法の開発 ……55

3・2　資料

1) 感染症発生動向調査に伴う病原体検査（2019 年度）……64
2) 日本脳炎調査（2019 年度）……68
3) 可搬型蛍光顕微鏡を用いた解体現場におけるアスベスト調査 ……70
4) 熊本県内における放射能調査（2019 年度）……74
5) 熊本県の酸性雨長期モニタリング調査結果（2019 年度）……78
6) 菊池市の地下水水質について　- 菊池市硝酸性窒素概況調査結果より - ……83
7) 熊本県内河川の水生生物を用いた環境評価（2019 年度）……90

3・3　誌上発表論文抄録……94

3・4　学会・研究会発表抄録

1) 所外における学会・研究会……98
2) 所内研究発表会…… 102

Annual Report of Kumamoto Prefectural Institute of Public-Health and Environmental Science
No.49 2019
Contents (Research)

Regular Articles

1) Development on Simultaneous Determination of Pesticides in foods by SFE-GC/MS/MS
Junji TOMINAGA[*1], Daisuke HONDA[*2], Rise MATSUMOTO[*3], Yuko NAKAHARA[*4], Masahide KOBAYASHI, Naho YAMAGUCHI, Takeshi NISHINA[*2] and Hironobu FUKUSHIMA
*1 Agricultural Technology Division
*2 Public Sanitation and Pharmaceutical Divisio
*3 Yatsushiro Area Promotion bureau, Southern Kumamoto Administrative Headquaters
*4 Kikuchi Area Promotion bureau, Northern Kumamoto Administrative Headquaters

2) Identification of antibiotics in meets by LC-MS/MS
Naho YAMAGUCHI, Masahide KOBAYASHI, Takeshi NISHINA[*] and Hironobu FUKUSHIMA
* Public Sanitation and Pharmaceutical Division

3) Predicting the spatial distribution of $PM_{2.5}$ in Kyushu area by Regression Kriging
Daisuke KOHARA, Shoei FURUSAWA[*1], Satoshi TOYONAGA[*2], Shin ARAKI[*3], Yusuke YAMAMOTO[*4], Yoshitomo YAMASAKI and Hiromichi YANO[*5]
*1 Hitoyoshi Area Promotion bureau, Northern Kumamoto Administrative Headquaters
*2 Aso Area Promotion bureau, Northern Kumamoto Administrative Headquaters
*3 Osaka University, Osaka
*4 Environmental Education and Intelligence Center
*5 Environmental Conservation Division

4) Analyses of Environmental Assessment by Aquatic Indicator Organism in Rivers by Community biology Methods
Daichi UCHIDA[*]
* Kikuchi Area Promotion Bureau, Northern Kumamoto Administrative Headquaters

5) Development of Rapid and Simultaneous Analysis for Pesticides and Insecticides from Gills by GC/MS
Hiroaki ISHIHARA, Kouki SAITOU, Kohei MIYAZAKI, Daichi UCHIDA[*], Haruka NISHIJIMA, Chihiro TAKE, Seiki KINO
* Kikuchi Area Promotion Bureau, Northern Kumamoto Administrative Headquaters

Reports

1) Epidemiological Surveillance of Infection Diseases in Kumamoto Prefecture (2019)
Rika MAEDA, Mami SATO, Shouichirou GEJIMA, Takaaki HIRANO, Takashi SAKAI[*] and Shunsuke YAHIRO
* Public Sanitation and Pharmaceutical Division

2) Surveillance of Japanese Encephalitis Virus Infection in Kumamoto Prefecture (2019)

Shouichirou GEJIMA, Seiya HARADA, Takashi SAKAI[*1] and Kazutoshi MATSUMOTO[*2]

*1 Public Sanitation and Pharmaceutical Division

*2 Meat Inspection Office

3) Predicting the spatial distribution of PM2.5 in Kyushu area by Regression Kriging

Daisuke KOHARA, Shoei FURUSAWA[*1], Satoshi TOYONAGA[*2], Shin ARAKI[*3], Yusuke YAMAMOTO[*4], Yoshitomo YAMASAKI and Hiromichi YANO[*5]

*1 Hitoyoshi Area Promotion bureau, Northern Kumamoto Administrative Headquaters

*2 Aso Area Promotion bureau, Northern Kumamoto Administrative Headquaters

*3 Osaka University, Osaka

*4 Environmental Education and Intelligence Center

*5 Environmental Conservation Division

4) Radioactivity Survey Data in Kumamoto Prefecture (2019)

Hiromichi KITAOKA, Kazunori UENO, Yusuke YAMAMOTO[*], Daisuke KOHARA and Yoshitomo YAMASAKI

* Environmental Education and Intelligence Center

5) Long-Term Monitoring of Acid Deposition in Kumamoto Prefecture (2018)
- Samples Collected as Uto City -

Kazunori UENO and Daisuke KOHARA

6) Grandwater quality in Kikuchi-city area
- From ths results of the Preliminary Investigation of Groundwater Contaninated with Nitrate Nitrogen in Kikuchi-City(2019) -

Seiki KINO, Toshitaka MAEDA[*1,] Yuko NAKAHARA[*2], and Chihiro TAKE

[*1] Environmental Conservation Division

[*2] Kikuchi Area Promotion Bureau, Northern Kumamoto Administrative Headquaters

7) Environmental Assessment by Aquatic Indicator Organism In Rivers In Kumamoto Prefecture（2019）

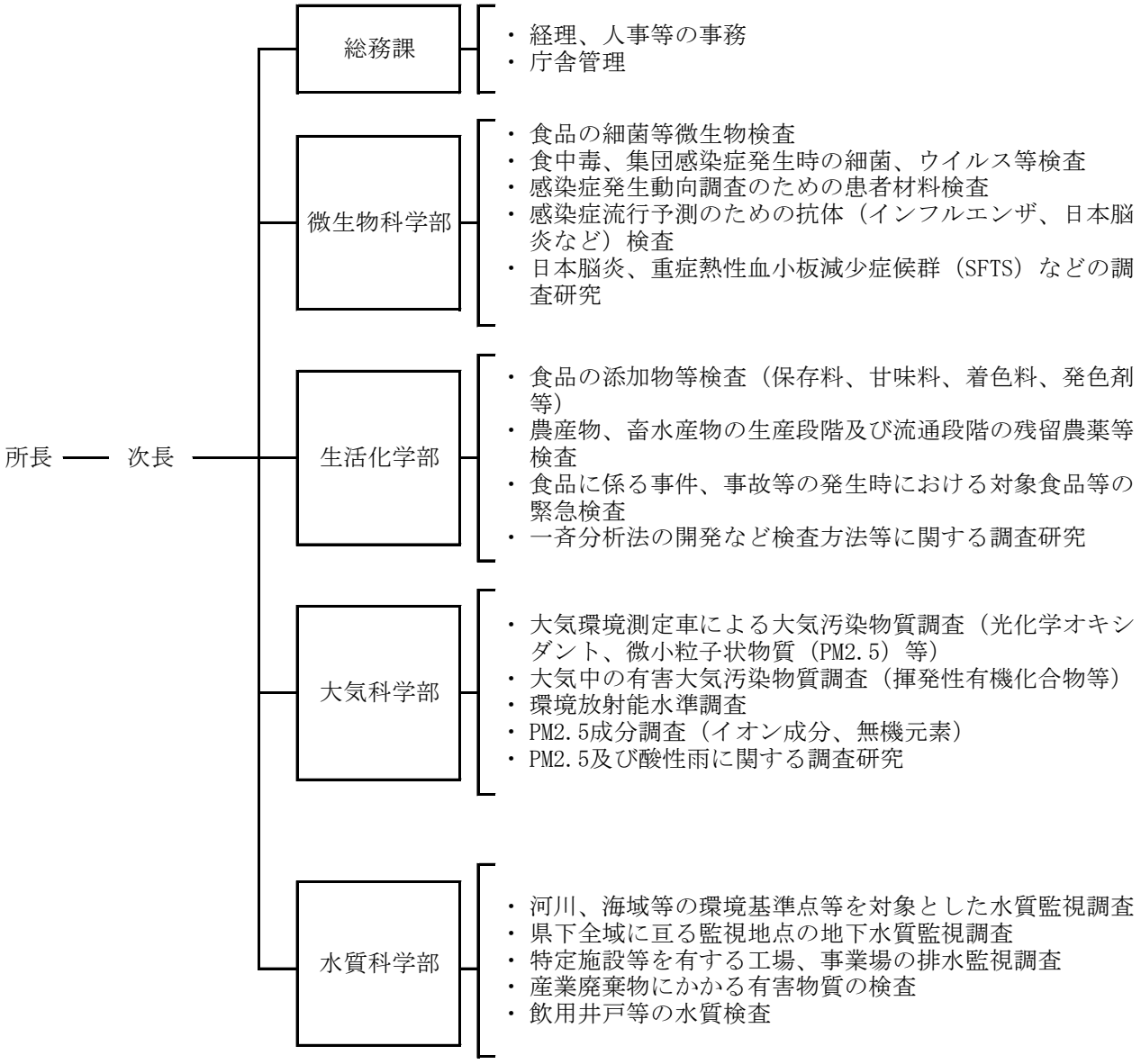
Daichi UCHIDA[*], Haruka NISHIJIMA, Chihiro TAKE, Kouki SAITOU, Hiroaki ISHIHARA, Tomoyuki SANADA, Seiki KINO

[*] Kikuchi Area Promotion Bureau, Northern Kumamoto Administrative Headquaters

１　運　　営

１・１　沿革・組織機構

昭和23年	12月	厚生省3局長通達に基づき、細菌検査所と衛生試験所を統合し、熊本市に「熊本県衛生研究所」として発足
26年	10月	熊本県衛生研究所条例（現熊本県保健環境科学研究所条例）公布
45年	7月	熊本県衛生研究所に公害部を増設
46年	9月	「熊本県衛生公害研究所」と改称（生物科学部、理化学部、公害部）
52年	4月	公害部の組織改編（生物科学部、理化学部、大気部、水質部）
平成 7年	4月	宇土市に新築移転、「熊本県保健環境科学研究所」と改称（微生物科学部、生活化学部、大気科学部、水質科学部、地下水科学室（水質科学部部内室））
21年	4月	地下水科学室を廃止し、水質科学部に統合（微生物科学部、生活化学部、大気科学部、水質科学部）



１・２　職員の構成

（令和２年５月１日現在）

組織	職員数									合計
	事務系	技術系							技能吏員	
		医師	獣医師	薬剤師	理工系技師	農学系技師	検査技師	小計		
所長				1				1		1
次長	1							0		1
総務課	2							0		2
微生物科学部			2	5				7		7
生活化学部			1	4		1		6		6
大気科学部				2	3			5		5
水質科学部				3	4			7		7
合計	3	0	3	15	7	1	0	26	0	29

１・３　職員一覧表

（令和２年５月１日現在）

職		氏名
所長		西村　浩一
次長		古閑　健市
総務課	総務課長(兼務)	古閑　健市
	主幹	寺尾　利道
	主任主事	西本　幸恵
微生物科学部	研究主幹 (微生物科学部長)	八尋　俊輔
	研究主幹	平野　孝昭
	研究参事	森　美聡
	研究主任	小原　敦美
	〃	槐島　翔一郎
	研究員	佐藤　磨美
	〃	前田　莉花
生活化学部	生活化学部長	福島　宏暢
	研究主任	宇梶　徳史
	研究員	山口　奈穂
	〃	小林　将英
	〃	眞田　知征
	〃	八木　一真
大気科学部	研究主幹 (大気科学部長)	山崎　文雅
	研究参事	北岡　宏道
	研究主任	澤田　愛
	〃	小原　大翼
	〃	角田　朋生
水質科学部	水質科学部長	木野　世紀
	研究参事	齊藤　弘毅
	研究主任	石原　宏明
	〃	西島　遥
	〃	宮﨑　康平
	研究員	武　千尋
	〃	小原　彬生

１・４　施設及び主要備品

１・４・１　施設

（単位 ㎡）

敷　　地		22,998.78
庁舎概要		
本館	鉄筋コンクリート造 3 階建（平成 7 年 2 月 20 日）	5,436.08
1F	総務課　微生物科学部　テレメーター室	1,880.82
2F	生活化学部　大気科学部　会議室　講堂	1,735.38
3F	水質科学部　図書室　教養室	1,735.38
RF		84.50
排水処理室	鉄筋コンクリート造	9.90
車庫	鉄骨造	113.14
動物舎	鉄筋コンクリート造	158.40
危険物等倉庫	鉄筋コンクリート造・一部鉄骨造	50.00
	計	5,767.52

施設の建物別面積　　（単位 ㎡）

区分		面積	備考	
管理部門		109.20		
研修部門		230.50	図書室	61.0
			会議室　講堂	149.2
			教養室	20.3
技術部門		4,316.96		
倉庫		326.64		
ボイラー・機械室等		316.80		
その他・共通部門		135.98		
小計		5,436.08		
その他	排水処理室	9.90		
	車庫	113.14		
	動物舎	158.40		
	危険物等倉庫	50.00		
計		5,767.52		

１・４・２　主要備品

（注：300 万円以上の機器を掲載、令和 2 年 4 月 1 日現在）

品　　名	規　　格	購入年月
大気環境測定車(みどりⅣ世)	日野　BJG-XKU414M	H 21.　3
自動電気泳動装置	島津 電気泳動装置MCE-202MultiNA	H 29.　2
自動核酸抽出装置	QIAcube connect	R　2.　3
DNAシークエンサー	Applied Biosystems社 3500GeneticAnalyzer	H 23.　7
DNAシークエンサー	iSeq 100	R　2.　3
煙道排ガス試料採取装置	マルニサイエンス　M2-700DS	H 26.　3
気象観測装置	小笠原計器製作所	H 26.　2
ガスクロマトグラフ	横河　HP6890	H　9.　8
ガスクロマトグラフ	横河　HP6890	H 10.　9
ガスクロマトグラフ	島津　GC-2010	H 13.　3
ガスクロマトグラフ	島津　GC-2010A	H 13.　3
ガスクロマトグラフ	島津　GCMS QP-2010	H 16.　10
ガスクロマトグラフ質量分析計(Q)	Agilent　5973inert　MSD	H 16.　3
ガスクロマトグラフ質量分析計(Q)	島津　GCMS-TQ8040	H 27.　3
ガスクロマトグラフ	Agilent　GC7890A	H 22.　3
ガスクロマトグラフ	島津　GC-2010 Plus	H 26.　9
ガスクロマトグラフ質量分析装置	島津　GCMS-TQ8040	H 27.　3
液体クロマトグラフ	島津　LC-10AD	H　5.　7
液体クロマトグラフ	島津　SPD-M10A	H　7.　3
液体クロマトグラフ	島津　LC10A	H　7.　8
液体クロマトグラフ	島津　PROMINENCE	H 17.　9
液体クロマトグラフ	島津　LCMS-8030、Nexera	H 23.　5
イオンクロマトグラフ	ダイオネクス　ICS-1600	H 25.　1
イオンクロマトグラフ	ダイオネクス　ICS-2100	H 23.　5
イオンクロマトグラフ	サーモフィッシャー・サイエンティフィック　Integrion RFIC	R　2.　3
クロマトグラフ関連機器	GLサイエンス　AQUALoaderⅢ、G-PrepELUTE8060	H 23.　5
マイクロ波試料分解装置	パーキンエルマー　Multiwave3000	H 24.　12
マイクロウエーブ試料前処理装置	マイルストーンゼネラル　ETHOS TC	H 14.　9
マイクロウエーブ試料前処理装置	アントンパール社製 Multiwave PRO 60Hz	H 29.　12
リアルタイムPCR装置	ロシュ・ダイアグノスティクス　LightCycler DX400	H 16.　9
リアルタイムPCR装置	ロシュ・ダイアグノスティクス　LightCycler 480System Ⅱ	H 23.　7
気中水銀分析装置	日本インスツルメンツ　WA-5A	H 26.　3
オートアナライザー	ビーエルテック　SWAAT　5CH型	H 18.　12
オートアナライザー	ビーエルテック　SWAAT28 2ch+UV	H 29.　10
電気泳動装置	大塚電子　CAPI-3200	H　9.　3
電気泳動装置	日本バイオイメージ　Gel Print 2000i	H 10.　1
原子吸光光度計	日本ジャーレルアッシュ　AA-890	H　8.　10
分光光度計	モレキュラデバイス　M-VMAX	H　5.　8
分光光度計	島津　AA-6800	H 17.　10
分光光度計	TOMY　Q5000	H 24.　10
ＩＣＰ質量分析装置	Agilent　7900	H 28.　12
蛍光顕微鏡	ニコン　VFD-TR	S 58.　11
安全キャビネット	日立冷熱　SCV1303ECⅡB	S 63.　3
遠心分離機	ベックマン　オプティマ　L-70	H　4.　7
$PM_{2.5}$成分分析用サンプラ	ムラタ計測器サービス　MCAS-SJA	H 25.　7
超臨界流体抽出装置	島津　Nexera UCオンラインSFEシステム	H 29.　2
原子吸光分光光度計	パーキンエルマー社　PinAAcle 900Z	H 30.　12
ガスクロマトグラフ（ＥＣＤ）	島津　GC-2010 Plus	H 29.　1
ガスクロマトグラフ（ＦＩＤ）	島津　GC-2010 Plus	H 29.　1
恒温恒湿器	恒温恒湿チャンバー及び質量測定システム	H 31.　3
放射能検能装置	日立アロカメディカル（株）NaI（Tl）シンチレーションスペクトロメータ	H 24.　3

１・５　学会・研修等

１・５・1　出席した主要な学会・研究会等

年　月	名　　称	場　　所	氏　　名
元年6月	Ⅱ型共同研究「光化学オキシダントおよびPM2.5汚染の地域的・気象的要因の解明」キックオフ会合	茨城県	小原（大）、山本
	Ⅱ型共同研究「災害時等の緊急調査を想定したＧＣ／ＭＳによる化学物質の網羅的簡易迅速測定法の開発」キックオフ会議	茨城県	石原
6月	ダニと疾患のインターフェイスに関するセミナー　SADI天草大会２０１９＊	熊本県	酒井
7月	Ⅱ型共同研究「ＷＥＴ手法を用いた水環境調査のケーススタディー」ミーティング	山形県	内田
7月	衛生微生物技術協議会40回研究会	熊本市	樋口、古閑、松本 ほか
7月	ヘリウムガス供給問題へのGC/GC-MSソリューションセミナー	福岡県	小原（大）
9月	第60回大気環境学会年会＊	東京都	小原（大）
10月	第８回オートアナライザー・メンテナンスセミナー	東京都	眞田
10月	令和元年度地域保健総合推進事業地域レファレンスセンター連絡会議	福岡県	松本
10月	第45回九州衛生環境技術協議会＊	長崎県	酒井、槻島、山口、小原（大）、内田、石原
11月	第40回食品微生物学会学術総会	東京都	原田
11月	令和元年度地方衛生研究所地域専門家会議（九州ブロック）	福岡県	小林
11月	Ⅱ型共同研究「災害時等の緊急調査を想定したＧＣ／ＭＳによる化学物質の網羅的簡易迅速測定法の開発」解析ソフトフェアトレーニング	神奈川県	石原
12月	全国衛生化学技術協議会＊	広島県	冨永、本田、松本、古閑
12月	Ⅱ型共同研究「ＷＥＴ手法を用いた水環境調査のケーススタディー」ミーティング	熊本県	内田　ほか
２年2月	九州ブロック模擬訓練事業結果検討会	沖縄県	小林

＊職員が発表した学会等

１・５・２　出席した技術研修等

年　月	名　　称	場　　所	氏　　名
元年6月	令和元年度病原体等の包装・運搬講習会	福岡県	槻島、八木
5月	2019年度抗酸菌検査個別研修	東京都	槻島
5月	第79回分析化学討論会	福岡県	小原（大）
5月	ゲルマニウム半導体検出器による測定法（第1回）研修	千葉県	山本
6月	食品衛生検査施設信頼性確保部門責任者等研修会	東京都	小林
6月	令和元年度特定機器分析研修Ⅰ（ICP-MS）（第2回）	埼玉県	西島
7月	ＶＯＣｓ分析研修（第1回）	埼玉県	齊藤
7月	令和元年度特定機器分析研修Ⅰ（ICP-MS）（第2回）	埼玉県	山本
7月	令和元年度アスベスト分析研修（第1回）	埼玉県	小原（大）
9月	薬剤耐性菌の検査に関する研修・基本コース	東京都	原田、八木
9月	令和元年度飲料水検査技術研修会	千葉県	眞田
10月	令和元年度全国食品監視員研修会	東京都	小原
11月	水質分析研修	埼玉県	齊藤
12月	令和元年度地方衛生研究所HIV検査技術研修会	東京都	槻島
12月	微小粒子状物質の測定精度に関する説明会	大阪府	小原（大）
２年1月	化学物質環境実態調査環境科学セミナー	東京都	山本、武
1月	指定薬物分析研修会議	東京都	山口
1月	BSL3実験室における検体の取り扱い研修	宮崎県	槻島
1月	平成元年度西第2回 第2種放射線取扱者主任者講習会	京都府	小原（大）
1月	令和元年度希少感染症診断技術研修会	東京都	松本、八尋

１・５・３　所で行った発表・研修

年　月	研修名又は対象者等	人　員	期　間	研修内容等
元年7月	熊本大学薬学部早期体験学習	25	1日	業務体験発表及び施設見学等
7月	宇土高校SSH未来体験学習	24	1日	研究発表及び施設見学等
8月	山口大学共同獣医学部公衆衛生学実習	3	1日	微生物科学部検査実習、生活化学部施設見学
8、9月	熊本県獣医師インターンシップ研修	8	3日	施設見学等
２年2月	研究発表会	約80	1日	研究成果発表等
3月	九州看護福祉大学看護学科施設見学	17	1日	施設見学等

１・６　調査研究に対する外部評価

当所で実施する調査研究について、県民ニーズに合致した効率的・効果的な業務の遂行とその透明性の確保を図るため、研究計画や成果に関する外部評価委員会による評価を行った。

１　開催日
　令和元年１１月１日
２　委員
　学識経験者等５名
３　評価対象
　成果評価（調査研究の目的の達成度、行政施策への寄与度等を評価）・・・なし
　中間評価（調査研究の進捗状況、継続の妥当性等を評価）　　・・・なし
　計画評価（計画段階で調査研究の目的、内容の妥当性等を評価）　・・・１件
４　評価方法
　項目別評価、総合評価とも次の５段階で評価する。
　　５：非常に高く評価できる。
　　４：高く評価できる。
　　３：評価できる。
　　２：あまり評価できない。
　　１：評価できない。

５　評価結果

【1】計画評価

(1) 調査研究課題	
海洋動物の毒成分の分析に関する研究（Ｒ２～５）	
(2) 項目別評価	
①研究目的の適切性・妥当性	4
②研究体制、研究内容の適切性・妥当性	4
③衛生行政・環境行政施策への寄与度	4
④学術的意義又は技術開発への寄与度	4
⑤県民ニーズへの対応状況	4
(3) 総合評価	4
(4) 委員のコメント	
○フグや貝毒、シガテラ毒など、症例は少ないが重篤に至るという毒を、迅速に分析できるようにすることは県民の食の安全安心につながる大事な研究であり、新たな検査法が確立できれば非常に価値があるものとなる。 ○現在の公定法では検査にマウスを使用する必要があり、迅速性や動物愛護上の観点からも課題があるので、機器を主体とした分析方法が新たな公定法となることを目指して頑張ってほしい。将来、日本中あるいは世界中で、マウスを使用しなくても、すぐに分析できるようになることを期待する。 ○これまで原因究明が難しかった海洋動物の毒が迅速に分析できるようになれば、保健所において説得力をもった食中毒防止の啓発が可能となる。 ○研究した成果を、いかにわかりやすく県民に提供していくかが大事であり課題だと思っており、そのためにも様々な主体と連携して研究を進めてもらいたい。	

２　業 務 実 績

２・１　微生物科学部

令和元年度は，行政依頼検査として感染症の検査，食中毒・有症苦情の原因微生物検査，食品の微生物規格基準検査，豚肉の残留抗生物質の検査，HIV の確認検査，つつが虫病・日本紅斑熱患者の血清学的検査，健康福祉部職員の B 型肝炎（HBs 抗原・抗体）検査等を行った。また，国庫委託事業として，感染症流行予測調査事業（日本脳炎の感染源調査），感染症発生動向調査事業等を行った。その他，これらの試験・検査業務に加え，さまざまな課題について調査研究を行った。

主な試験検査及び調査研究の概要は次のとおりである。なお，業務実績表を別表に示す。

２・１・１　試験検査

1）感染症検査

感染症発生届に基づき，保健所等から依頼された検体（細菌 410 検体，ウイルス・リケッチア 897 検体）について，検査を行った。検出された病原体は腸管出血性大腸菌，日本紅斑熱リケッチア，ツツガムシ病リケッチア，SFTSV，麻疹ウイルス，風疹ウイルス，デングウイルス，SARS-CoV-2 等であった。

2）食中毒・有症苦情検査

食中毒・有症苦情関連の 411 検体について，原因微生物の検索及び同定検査を行った。その結果，原因微生物としてノロウイルス，カンピロバクター等が検出された。

3）食品中の微生物検査

市販のからし蓮根 9 検体について，生菌数，大腸菌群数及びボツリヌス毒素の検査を行った。また，清涼飲料水等 21 検体の微生物規格検査，生カキ等 8 検体のノロウイルス等の検査を行った。その他 58 検体について，微生物規格検査等を行った。

4）食品中の残留抗生物質検査

ブタ肉 3 検体について，スピラマイシン残留の有無を検査した。

5）その他微生物検査

健康福祉部職員のうち希望のあった 104 名の血清について HBs 抗原及び HBs 抗体検査を行った。

6）感染症流行予測調査

日本脳炎の感染源調査を，7 月中旬～9 月中旬にかけて，生後 4～6 ケ月のブタ 135 頭について JEV に対する HI 抗体及び 2-ME 感受性抗体を測定した。詳しくは資料の項に掲載した。

7）感染症発生動向調査事業に伴う検査

平成 31 年 4 月から令和 2 年 3 月までに，検査定点医療機関等において採取された 432 検体について，A549，HEp2，RD-A，VeroE6，MDCK 細胞等による組織培養法，遺伝子学的検査法等を用いて病原体の検査を行った。詳しくは資料の項に掲載した。

２・１・２　調査研究

1）薬剤耐性菌に関する調査

平成 27～令和元年度間に糞便 1,434 検体中 338 検体（23.6%）から 353 株の薬剤耐性菌が分離された。内訳はペニシリナーゼ（PCase）産生菌が 30 株（8.5%），基質特異性拡張型 β-ラクタマーゼ（Extended-spectrum β-lactamase ; ESBL）産生菌が 309 株（87.5%），及び AmpC 型 β-ラクタマーゼ産生菌（AmpC）が 14 株（4.0%）であった。このうち 342 株（96.7%）は大腸菌であり，CTX-M 型の ESBL 産生大腸菌が 304 株（88.9%）を占めた。この中の 137 株（45.0%）は世界的に拡散しているパンデミック・クローン群の大腸菌 O25b-ST131 であり，このクローン群の拡大が本県の市中における薬剤耐性菌増加の一因であることが示唆された。

2）動物由来感染症に関する調査研究

熊本県動物愛護センターに保護されている個体のうち，譲渡対象のイヌ，地域猫及び有害鳥獣駆除等で狩猟されたイノシシ・シカについて，病原微生物の保有状況を調査した。

これまで 505 検体を検査した。内訳はイヌ 154 検体，ネコ 208 検体，イノシシ 89 検体，シカ 54 検体であった。各検体から寄生虫卵，病原性大腸菌，薬剤耐性菌等が分離された。病原性大腸菌のうち腸管出血性大腸菌が 1 検体，コリネバクテリウム・ウルセランスが 7 検体から分離された。

微生物科学部業務実績表

分　類	事　業　名	業　　務	令和元年度	
			件　数	延項目数
行政検査	(1) 感染症病原体検査	細菌	123	319
		ウイルス・リケッチア・その他	121	424
	(2) 食中毒・有症苦情検査	原因物質検査	520	1,941
	(3) 食品中の微生物検査	からし蓮根等	9	45
		清涼飲料水等	23	51
		生カキ・海水	11	16
		その他	74	228
		小　　計	881	3,024
	(4) 食品中の残留抗生物質検査		5	5
	(5) その他の微生物検査（B型肝炎検査等）		126	252
	合　　計		1012	3,281
国庫委託調査	(6) 感染症流行予測調査(感染源)		135	270
	(7) 感染症発生動向調査		390	3,965
	合　　計		510	4,205
調査研究	SFTS ウイルスの調査研究		295	295
	薬剤耐性細菌に係る調査研究		247	1252
	動物由来感染症に関する調査研究		276	1684
	その他		0	0
	合　　計		818	3,231
総　　計			2,340	13,741

２・２　生活化学部

令和元年度は，行政依頼検査として食品中の残留農薬検査，食品・食品添加物等の規格基準検査，畜水産食品中の動物用医薬品等残留検査及び家庭用品の有害物質含有検査のほか，熊本県食の安全安心推進条例に基づく県産農林水産物中の農薬・動物用医薬品等の出荷前残留検査を実施した。

その他，農林水産部からの依頼による松くい虫防除に使用する薬剤の残留調査を実施した。

主な試験検査及び調査研究の概要は次のとおりである。なお，業務実績表を別表に示す。

2・2・1　試験検査

1）食品・食品添加物等の規格基準検査

食品中の添加物検査として，保存料，甘味料，着色料等の検査を実施した結果，基準を超えるものはなかった。また，指定外添加物は検出されなかった。

食品成分規格検査では，清涼飲料水（ミネラルウォーター）等について実施したが，基準値を超えたものはなかった。

2）魚介類の水銀検査

県内で漁獲され，県内に流通している魚介類の総水銀検査は，平成13年度から八代保健所試験検査課で行い，当所では暫定的規制値を超える検体について有機水銀検査を実施することにしている。

令和元年度は該当する検査はなかった。

3）畜水産食品中の動物用医薬品等残留検査

生産段階で使用される動物用医薬品，飼料添加物等が，食肉・魚介類等の畜水産食品中に残留している実態を把握するため，食肉，養殖魚介類，山羊乳及び卵について，動物用医薬品の検査を実施した結果，基準値超過はなかった。

4）食品中の残留農薬検査

輸入食品を含む穀物，野菜，果実等の農作物について，残留農薬試験を実施した結果，基準値超過はなかった。

5）特定アレルギー物質検査

令和元年度は該当する検査はなかった。

6）家庭用品中有害物質含有検査

「有害物質を含有する家庭用品の規制に関する法律」に基づき，試買した繊維製品中のホルムアルデヒド，ディルドリン等について検査を実施することにしている。

令和元年度は該当する検査はなかった。

7）医薬品等に関する試験検査

令和元年度は該当する検査はなかった。

8)薬事に関する業務

GMP（医薬品及び医薬部外品の製造管理及び品質管理の基準）調査要領に基づき，組織や品質マニュアル等を整備し公的認定試験検査機関として，平成24年10月1日認定を受けた。

9）器具，容器包装の規格基準検査

食品の調理，製造加工，運搬及び保存等に用いられる器具及び容器包装については，食品衛生法によってその材質毎に規格基準が定められている。

令和元年度は該当する検査はなかった。

10）おもちゃの規格基準検査

おもちゃについては，食品衛生法によってその材質毎に規格基準が定められている。令和元年度は，着色料，重金属の試験を実施した結果，指定外着色料は不検出であり，重金属の限度値を超えるものもなかった。

11）食品苦情に伴う理化学的原因調査

クワズイモ（疑い）中毒に伴い，食品残品のシュウ酸カルシウムの検査を実施した。

12）松くい虫特別防除薬剤残留検査

球磨郡あさぎり町において，令和元年5月中旬から6月中旬に実施された松くい虫防除の影響調査のため，流域の河川水における使用薬剤の残留試験を実施した結果，基準値超過はなかった。

13）食品衛生検査施設における検査等の業務管理

（GLP：Good Laboratory Practice）

内部点検作業書（SOP：Standard Operating Procedure）に基づき，信頼性確保部門責任者による内部点検を実施している。

食品衛生外部精度管理調査に参加した。

調査項目は，食品添加物（ソルビン酸），残留農薬（アトラジン，クロルピリホス，チオベンカルブ），残留動物用医薬品（スルファジミジン）であり，結果は全て良好であった。

14）衛生検査施設における医薬品外部精度管理

今年度は，プロブコール錠について精度管理を実施した。

15）熊本県食の安全安心推進条例に基づく出荷前農林水産物中の残留農薬等検査

県産の主要な農林水産物について農薬，動物用医薬品等の出荷前における残留検査を実施した結果，食品衛生法の基準値を超えるものはなかった。

16）有症苦情に関する検査

令和元年度は該当する検査はなかった。

17）一般依頼試験

令和元年度は該当する検査はなかった。

2・2・2　調査研究

1）　SFE-GC/MS/MS による畜水産物中農薬の一斉分析法に関する研究

近年，柑橘類の皮等の農産物を家畜や養殖魚の飼料に添加して生育させることで，商品のブランド化を図る動きが広がっている。今後，その安全性を確認する目的で畜水産物中の農薬を分析する必要性が増すと考えられることから，SFE-GC/MS/MS を用いた一斉分析法を検討した。

2）　LC/MS/MS による畜水産物中の残留農薬一斉分析に関する研究

近年，柑橘類の皮等の農産物を家畜や養殖魚の飼料に添加して生育させることで，商品のブランド化を図る動きが広がっている。今後，その安全性を確認する目的で畜水産物中の農薬を分析する必要性が増すと考えられることから，LC/MS/MS を用いた一斉分析法を検討した。

3）　LC/MS/MS によるセレウリドの迅速分析法の開発

これまで，食中毒の原因となるセレウス菌が産生する毒素（セレウリド）の分析は１週間程度を要し，迅速性に欠けるという問題があった。本調査研究ではセレウリドによる食中毒の原因特定にかかる時間を半日程度に短縮するため，LC/MS/MS を用いた迅速分析法を検討した。

生活化学部業務実績表

分類	事業名	業務	令和元年度		平成30年度	
			検体数	延項目数	検体数	延項目数
行政検査	(1) 食品・添加物等の規格基準検査	(ｲ) 清涼飲料水成分規格	5	15	23	60
		(ﾛ) 人工甘味料	15	19	63	139
		(ﾊ) 合成着色料	2	24	41	732
		(ﾆ) 合成保存料	17	17	73	103
		(ﾎ) 発色剤 亜硝酸ﾅﾄﾘｳﾑ	2	2	2	2
		(ﾍ) 漂白剤 二酸化硫黄等	0	0	0	0
		(ﾄ) ﾌﾟﾛﾋﾟﾚﾝｸﾞﾘｺｰﾙ	3	3	2	2
		(ﾁ) 米（玄米）中のCd	0	0	3	3
		(ﾘ) 酸化防止剤	0	0	5	10
		(ﾇ) 防かび剤	0	0	4	14
		(ﾙ) メラミン	0	0	0	0
		小　計	44	80	216	1065
	(2) 魚介類の水銀検査		0	0	0	0
	(3) 畜水産食品中の動物用医薬品残留検査		18	2228	61	8755
	(4) 食品中の残留農薬検査	(ｲ) 野菜,果実,米穀,茶	16	6645	97	40519
		(ﾛ) 輸入･国産食肉	0	0	0	0
		(ﾊ) 牛乳	0	0	0	0
		小　計	16	6645	97	40519
	(5) 特定ｱﾚﾙｷﾞｰ物質検査		0	0	25	49
	(6) 家庭用品中有害物質含有 検査	(ｲ) 繊維製品	0	0	25	54
		(ﾛ) 家庭用洗浄剤等	0	0	0	0
		小　計	0	0	25	54
	(7) 医薬品等に関する試験検査	健康食品	0	0	0	0
	(8) 器具･容器包装規格基準検査	材質及び溶出試験	0	0	10	23
	(9) おもちゃの規格基準検査		5	13	5	17
	(10) 食品苦情に伴う理化学的原因調査		0	0	0	0
	(11) 松くい虫特別防除薬剤残留検査		16	16	16	16
	(12) GLPに関する精度管理試験	合成保存料,重金属, 残留農薬,合成抗菌剤	3	5	3	5
	(13) 熊本県食の安全安心推進条例に基づく出荷前農薬等検査	(ｲ) 野菜,果実,穀類,茶	37	8272	37	8325
		(ﾛ) 畜水産物	22	2229	35	4107
		小　計	59	10501	72	12432
	(14)有症苦情に関する検査		0	0	1	1
	合　計		161	19488	556	62990
一般依頼試験			0	0	0	0
総　計			161	19488	556	62990

２・３　大気科学部

令和元年度は，大気環境測定車による大気環境調査，有害大気汚染物質調査及びアスベスト環境調査等の行政検査を行った。また，国民，県民の関心が高い微小粒子状物質（$PM_{2.5}$）については成分調査を行った。その他，これらの試験検査に加え広域大気汚染に関する調査研究を行った。

試験検査の結果は，別途「大気・化学物質・騒音等環境調査報告書」，「環境白書」として公表される。

主な試験検査及び調査研究の概要は次のとおりである。なお，業務実績表を別表に示す。

2・3・1　試験検査

1）大気環境測定車による大気環境調査

県内に大気汚染常時監視測定局35局を配置し，大気汚染物質（二酸化いおう，二酸化窒素及び光化学オキシダント等）による汚染を常時監視している。この常時監視を補完するため，測定局のない地域に大気環境測定車を設置し本調査を行っている。

平成31年4月～令和2年3月熊本市南千反町において調査を行った。

2）酸性雨調査

県内では酸性雨による被害は顕在化していないが，東アジアの経済発展に伴い酸性物質排出量が増大し，酸性雨による環境への影響が大きな問題となったことから，酸性雨の実態を把握する本調査を昭和63年10月から行っている。

令和元年度は宇土市及び阿蘇市一の宮の2地点で1週間毎の降水を採取した。採取した検体についてpH，電気伝導率及びイオン成分を測定した。

3）微小粒子状物質（$PM_{2.5}$）成分調査

環境基準を超過している$PM_{2.5}$は多数の物質の混合物であり，その混合物の科学的情報が不明なことから平成25年7月に本調査を開始した。

令和元年度は宇土市及び熊本市南千反町に試料採取装置を設置し，全国一斉に，春季，夏季，秋季及び冬季に$PM_{2.5}$を採取した。そして，イオン成分及び無機元素を測定した。なお，炭素成分の分析は民間分析機関に委託した。

4）有害大気汚染物質調査

低濃度であっても長期的に暴露されると発がん性等の健康影響の可能性があるとされる「有害大気汚染物質」による汚染を把握するため，平成9年10月から本調査を行っている。

令和元年度は一般環境及び発生源周辺について，それぞれ玉名市，八代市の2地点で毎月1回年12回試料を採取し，重金属類，アルデヒド類及び揮発性有機化合物類（VOCs）等を測定した。なお，VOCs6項目の分析は民間分析機関に委託した。

5）アスベスト環境調査

アスベスト（特定粉じん）による環境汚染が懸念されることから，アスベストモニタリングマニュアル（第4.1版 平成29年7月　環境省）に基づき調査を行い，一般環境は総繊維数濃度を測定している。なお，必要に応じてアスベスト繊維の計測は民間分析機関に委託している。

一般環境調査は，山鹿市で2地点において調査を行った。

また，平成30年10月より，解体工事等における蛍光顕微鏡を用いたアスベスト漏えい監視調査を行っており，令和元年度は21件調査を行った。

6）九州新幹線鉄道騒音調査

九州新幹線鉄道の平成16年3月部分開業及び平成23年3月全線開業に伴い，沿線住民の生活環境を保全するため，調査を行っている。

令和元年度は7地点で騒音の調査を実施した。

7）環境放射能水準調査（原子力規制庁委託）

放射能の影響の正確な評価に資することを目的に，環境等試料の放射性核種分析調査，定時降水中の全ベータ放射能測定調査及びモニタリングポストによる空間放射線量率測定調査を平成元年度から行っている。

令和元年度に行った調査結果を3・2資料の項に掲載した。

8）化学物質環境実態調査（環境省委託）

平成元年度は化学物質環境実態調査のモニタリング調査について試料採取を行った。

2・3・2　調査研究

1）酸性雨全国調査

日本全域における酸性沈着による広域大気汚染実態を把握することを目的とした全国環境研協議会の共同調査に平成3年度から参加しており第6次調査を実施した。

2）Regression Kriging 法を用いた九州地域における $PM_{2.5}$ 濃度の空間分布推定について

空間統計手法を利用した簡易かつ実用的に県内全体の $PM_{2.5}$ 濃度を推定する方法について検討し，行政施策や県民の健康の保護と生活環境の保全に繋げることを目的としている。

令和元年度は，九州地域の大気汚染状況を把握するために，空間補間法である Regression Kriking 法を用いて九州地域の $PM_{2.5}$ の濃度を推定した。

3）大気環境測定車を用いた熊本市内の大気汚染状況調査

熊本市の水道町自排局は，全国的にも $PM_{2.5}$ の濃度が高い測定局の一つであるため，大気環境測定車を水道町自排局近傍の地点及び熊本市近傍の標高約 300m の地点に設置し，周辺の測定局との相違性を検討することで，熊本県都市域で発生する $PM_{2.5}$ の挙動を解析する。

平成31年4月～令和2年3月熊本市南千反町において調査を行った。また，$PM_{2.5}$ 成分調査も併せて行った。（試験検査 1）及び 3）に掲載）

4）光化学オキシダント及び PM2.5 汚染の地域的・気象的要因の解明（国立環境研究所と全国の地方環境研とのⅡ型共同研究）

光化学オキシダント（Ox）における環境基準達成率は，全国，県内ともに 0%（平成 28 年度時点）であり，さらに令和元年 5 月には光化学スモッグ注意報が県内で 10 年ぶりに発令された。

また，微小粒子状物質（$PM_{2.5}$）による大気汚染は，近年全国規模で改善傾向にあるが，依然として環境基準達率の低い地域がある。

このように，両物質による大気汚染は環境行政の課題となっているが，これらは高い地域依存性を持つと同時に，広域的な汚染の影響を受けることから，全国と地域の両方の視点から研究を進めることが重要である。

オキシダント＆二次生成粒子グループ（OxPM）及び $PM_{2.5}$ 高濃度気象解析グループ（PM 高濃度）に参画し，令和元年度は，Ox に関しては，県内の Ox 大気汚染状況の解析を行った。また，$PM_{2.5}$ に関しては，過去の高濃度事例について，高時間分解能の成分データと気象データの初期解析を行った。

5）熊本県の酸性雨長期モニタリング調査

本県における酸性雨の状況を把握するため平成元年度から継続して本調査を行っている。

酸性雨調査のデータを用いて湿性沈着量等の算出と解析を行った（3・2 資料の項に掲載）。

大気科学部業務実績表

分　類	事　業　名	業　務	令和元年度		平成30年度	
			件　数	延項目数	件　数	延項目数
行政検査	(1) 大気環境測定車による大気環境調査		314	4,292	289	2,747
	(2) 酸性雨調査		97	1,067	48	528
	(3) 微小粒子状物質($PM_{2.5}$)成分調査	(ｲ) イオン成分	112	896	60	480
		(ﾛ) 無機元素	60	780	60	780
		小　　計	172	1,676	120	1,260
	(4) 有害大気汚染物質調査	(ｲ) 重金属類	50	150	50	149
		(ﾛ) VOCs，アルデヒド類	103	202	100	250
		小　　計	153	352	150	374
	(5) アスベスト環境調査	(ｲ) 一般環境	6	6	6	6
		(ﾛ) 解体現場等	21	49	26	26
		小　　計	27	55	32	32
	(6) 九州新幹線鉄道騒音調査		7	7	8	8
	合　　計		770	7,449	639	4,668
国庫委託調査	(7) 環境放射能水準調査（原子力規制庁委託）	(ｲ) 空間放射線量率	2,196	2,196	2,202	2,202
		(ﾛ) 全ベータ放射能	92	92	102	102
		(ﾊ) 放射性核種分析	26	113	25	113
		小　　計	2,314	2,401	2,329	2,417
	(8) 化学物質環境実態調査（環境省委託）		6	12	6	12
	合　　計		2,320	2,413	2,335	2,429
総　　計			3,090	9,862	2,974	7,097

２・４　水質科学部

令和元年度は，「公共用水域及び地下水水質測定計画」に基づく公共用水域や地下水の水質調査，水生生物を指標とした川の水環境調査，水俣湾水域環境調査等を行った。

これらの結果は「水質調査報告書（公共用水域及び地下水）」「熊本県環境白書」等として公表される。

また，水質汚濁防止法に基づく特定事業場等排出水監視調査，熊本県地下水保全条例に基づく対象事業場の排出水及び地下水調査のほか，苦情や魚のへい死等水質事故発生時の環境調査，産業廃棄物最終処分場や不法投棄箇所周辺の地下水・河川水の調査を行った。この他，飲用井戸の水質検査等を行った。

主な試験検査及び調査研究の概要は次のとおりである。なお，業務実績表を別表に示す。

2・4・1　試験検査

1）公共用水域水質測定計画に係る調査

公共用水域監視調査として，河川水及び河川底質を対象とした調査を県内 53 河川 127 調査地点（国，県，市の合計）で行っている。うち熊本県分 37 河川 48 地点の河川水計 436 検体について，生活環境項目及び健康項目等として延べ 4,245 項目，河川底質については 3 検体延べ 21 項目の分析を行った。

また海域では 4 海域の健康項目について，海水 22 検体延べ 152 項目，底質 16 検体延べ 100 項目の分析を行った。

2）地下水質測定計画に係る調査

地域の全体的な地下水質の概況を把握するため，県内の全市町村を対象とした定点監視調査（T点），新規概況調査（G点）並びに汚染井戸周辺地区調査（M点）として計98検体延べ973項目の分析を行った。

また経年変化の状況を把握するため，荒尾地域硝酸性窒素削減計画に定められた指標井戸の地下水質動向調査（特定地点調査）では，36検体延べ108項目の分析を行った。

3）特定事業場等排水監視調査

水質汚濁防止法及び県生活環境の保全等に関する条例に係る特定事業場等を対象に，排出水について主要 6 工場 72 検体延べ 458 項目，一般工場 199 検体延べ 1,166 項目，また有害物質について 73 検体延べ 552 項目の分析を行った。

4）地下水保全条例に係る調査

熊本県地下水保全条例（平成 2 年 10 月）に係る対象事業場等の排出水及び地下水について，98 検体延べ 350 項目の分析を行った。

5）水俣湾水域環境調査

水俣湾における水質等の状況を把握することを目的として，海水 16 検体，地下水 4 検体，底質 3 検体について総水銀，濁度，塩化物イオン等延べ 27 項目の分析を行った。

6）産業廃棄物に係る調査

産業廃棄物不法投棄箇所周辺，廃棄物の処理及び清掃に関する法律施行前の自社処分場周辺及びその埋立地周辺における有害物質の監視調査，維持管理が不十分と懸念される最終処分場の監視調査など，43 検体延べ 446 項目の分析を行った。

7）荒尾浦川流域化学物質汚染対策調査

荒尾市浦川流域における化学物質汚染に係る調査として，ペンタクロロフェノール等について12検体延べ171項目の分析を行った。

8）飲用井戸等の行政検査

飲用井戸等衛生対策要領により飲用井戸等の衛生の確保を図るため，行政試験の一部項目（セレン，鉛，亜鉛，アルミニウム，鉄，マンガン，ひ素，ふっ素，ほう素等）について，30検体延べ360項目の分析を行った。

9）その他の行政検査

県内の地下水中硝酸性窒素の高い地域における汚染原因の解明や今後の対策の検討等に関する基礎資料の収集のため，計 109 検体延べ 545 項目の分析を行った。

10）研究所排出水等自主検査

当研究所の排出水は宇土市終末処理場で処理されているが，当該排出水の水質が下水道除害基準に適合しているか確認するための自主検査を年４回実施し，6 検体延べ 131 項目の分析を行った。

併せて，研究所敷地内の井戸水についても 3 検体延べ 48 項目の分析を行った。

11）環境測定分析統一精度管理調査

環境測定分析の精度の向上を図り，環境測定データの信頼性の確保に資することを目的に環境省が実施する標記調査に参加し，4検体延べ12項目の分析を行った。

その他，廃棄物資源循環学会や分析機器メーカーが主催する精度管理調査にも参加し，8検体延べ24項目の分析を行った。

12）苦情・水質事故に係る調査

排出水苦情及び公共用水域でのへい死魚事故等における重金属や農薬類の緊急調査のため，8 検体延べ 235 項目の分析を行った。

13）化学物質環境実態調査

環境省委託化学物質環境実態調査モニタリング調査として，緑川（平木橋）で試料水（1検体）を採取し，調査担当機関に送付した。その際，当研究所においても採取直後の水質について生活環境項目等延べ8項目の分析を行った。

14）調査研究に係る調査

魚体エラ中の迅速な農薬一斉分析法の開発や水生生物調査（2・4・2参照）等において，計90検体延べ1,089項目の分析を行った。

2・4・2　調査研究

1）魚体エラ中の迅速な農薬一切分析法の開発

県内各地で発生する魚のへい死事案について，農薬が原因の可能性がある場合，水質分析だけでは最終的な原因物質の特定が困難である。

そこでへい死した魚体の「えら」の部分を中心に原因物質が残留している可能性に着目し，魚体中の効率的な農薬分析手法の開発を行った（3・1報文の項に掲載）。

2）群集生物学的手法を用いた水生生物調査結果の解析

熊本県では平成2年度から環境基準点を含む県内河川35地点を対象として，水生生物調査を行ってきた。

今回，令和元年度までに得られたのべ 975 回の調査データについて群集類似度を用いた解析を行い，散布図を作成した。

その結果，過去約 30 年間の調査結果を視覚的に捉え，現行の評価方法では判らなかった同一地点における経年的又は一時的な生物相の変化を見出した（3・1 報文の項に掲載）。

水質科学部　業務実績表

分類	事業名	業務	令和元年度		平成30年度	
			件数	延項目数	件数	延項目数
行政検査	(1) 公共用水域監視調査	(ｲ) 河川調査（河川+河川底質）	442	4,266	438	4,074
		(ﾛ) 海域調査（海水+海域底質）	38	252	39	328
		(ﾊ) 委託クロス調査	4	12	4	12
		小　計	484	4,530	481	4,414
	(2) 地下水質測定計画に係る調査	(ｲ) 概況調査，特定地点調査	134	1,081	135	521
		(ﾛ) 委託クロス調査	21	56	21	55
		小　計	155	1,137	156	576
	(3) 特定事業場排水監視調査	(ｲ) 主要工場	72	458	72	582
		(ﾛ) 一般工場	199	1,166	195	966
		(ﾊ) 有害工場	73	552	67	310
		小　計	344	2,176	334	1,858
	(4) 地下水保全条例に係る調査	(ｲ) 井水	46	172	46	171
		(ﾛ) 排水	52	178	52	179
		小　計	98	350	98	350
	(5) 水生生物を指標とした川の水環境調査		11	11	0	0
	(6) 水俣湾水域環境調査		15	27	15	27
	(7) 産業廃棄物に係る調査		43	446	61	425
	(8) ゴルフ場で使用する農薬の分析		0	0	0	0
	(9) 荒尾浦川流域化学物質汚染対策調査		12	171	12	192
	(10) 飲用井戸等の行政検査		30	360	30	360
	(11) その他の行政検査		2	32	99	270
	(12) 研究所排水自主検査		9	179	5	148
	(13) 環境測定分析統一精度管理調査		11	36	2	11
	(14) 苦情・水質事故に関る分析		8	235	38	459
	(15) グリーン農業に係る地下水質調査		0	0	0	0
	(16) 調査研究等に係る分析		90	1,089	187	2,206
委託調査	(17) 化学物質環境実態調査		1	8	1	7
総計			1,313	10,787	1,519	11,303

３　調　査　研　究

３・１　報　文

１）SFE-GC/MS/MS による農産物中の残留農薬一斉分析法の開発

冨永純司[*1]　本田大輔[*2]　松本理世[*3]　中原優子[*4]
小林将英　山口奈穂　西名武士[*2]　福島宏暢

要旨

物質の選択性が高い GC/MS/MS を用いて，精製及び濃縮作業を省略し，SFE 抽出液をそのまま測定する SFE-GC/MS/MS 法による農産物中の残留農薬一斉分析法について検討した。その結果，抽出後に精製及び濃縮（玄米においては脱脂）を行った場合と比較して，簡易かつ迅速で，より多くの農薬を一斉に分析できる手法を確立した。本法は玄米を含む 4 農産物において，約 250 成分の農薬でその妥当性が示され，農産物中の残留農薬一斉分析法として有効な手法であると考えられた。

キーワード：SFE，GC/MS/MS，精製，濃縮，妥当性評価

はじめに

本県では，平成 12 年度（2000 年度）より超臨界流体抽出（SFE）及びガスクロマトグラフィー質量分析計（GC/MS）による農産物中の残留農薬の一斉分析法（SFE-GC/MS 法）を検討しており，これまでにイオンペア試薬や混合リン酸塩を用いることで，迅速かつ安価に多成分の農薬の抽出及び分析が可能であることを報告している[1-4]。また，平成 18 年度からポジティブリスト制の導入に伴い，液体クロマトグラフィータンデム型質量分析計（LC/MS/MS）と GC/MS の 2 系統で残留農薬を分析することになり，高極性農薬の分析は LC/MS/MS で行うこととした。そのため，中～低極性農薬を対象とした SFE-GC/MS 法の検討を行い，図 1 に示した抽出，精製及び濃縮方法を確立した。

SFE 装置を用いた抽出法は，厚生労働省通知の GC/MS による農薬等の一斉分析法における抽出法[5]と比較して，作業工程が容易で一度に多検体を処理できるため，作業効率が向上するうえ，有機溶媒をほとんど用いないため環境への負荷を抑えられる利点がある。また，抽出後の

図 1 SFE-GC/MS 法における抽出，精製及び濃縮手法

＊1 現農林水産部農業技術課　＊2 現健康福祉部健康局薬務衛生課　＊3 現県南広域本部保健福祉環境部
＊4 現県北広域本部保健福祉環境部

塩析及び脱水処理も省略できることから，分析作業が省力化される。現在，玄米，大豆，ホウレンソウ及びリンゴを用いて分析法の妥当性評価試験が実施され[4),6),7)]，いずれの農産物においても200以上の成分でその妥当性が確認されていることから，GC/MSを用いた残留農薬の一斉分析において，有効な抽出法であることが報告されている。ただし，抽出液をそのまま測定すると，夾雑物による測定妨害が起こる農薬があったため，それらを抑えるために，これまでは抽出液を精製かつ濃縮する必要があり，その過程で農薬によっては揮散・分解するといった問題点があった。

そこで今回，GC/MSよりも物質の選択性が高いガスクロマトグラフィータンデム型質量分析計（GC/MS/MS）を用いることで，精製および濃縮作業を省略し，SFE抽出液をそのまま測定することで，GC/MS法よりも簡易かつ迅速で，さらにこれまで揮散・分解していた農薬の分析も可能となると考えられる残留農薬の一斉分析法について検討した。また，確立した分析法について，4農産物を用いて，「食品中に残留する農薬等に関する試験法の妥当性評価ガイドライン」[8)]（以下，ガイドライン）に沿った妥当性評価試験を実施したので，その結果についても報告する。

調査方法

1 分析対象農薬

今回の分析対象農薬数は364農薬とした．検討に用いた農薬名およびそれらのプリカーサーイオン及びプロダクトイオンのm/zの値は，表1の通りである。

2 試薬等

2－1 標準品

標準品は，林純薬工業製，関東化学製，富士フイルム和光純薬工業製，Dr. Ehrenstorfer GmbH製及びsigma-aldrich製を用いた。

2－2 混合標準溶液

粉末の標準品はそれぞれ秤量し，アセトン等に溶解した(以下，個別標準溶液)。混合標準溶液は，各農薬の濃度が1μg/mLとなるように，個別標準溶液と市販の混合標準溶液を混合して作製した。なお，アセタミプリド，アセフェート及びメタミドホスは市販の混合標準溶液に5倍量含まれていることから，混合標準溶液での濃度は5μg/mLとなった。

2－3 その他の試薬

・アセトン（関東化学製，残留農薬分析用）
・1-ヘキサンスルホン酸ナトリウム
（1-HXS，富士フイルム和光純薬工業製）
・ケイソウ土（アジレントテクノロジー製）
・アセトニトリル
（富士フイルム和光純薬工業製，残留農薬分析用）
・n-ヘキサン（関東化学製，残留農薬分析用）

3 試料

玄米は市販のものをミルサーで粉砕して分析に用いた。また，キャベツ及びトマトは自家栽培のものを，温州ミカンは市販のものをフードプロセッサーで細断し，ホモジナイザーで均一化して分析に用いた。なお，キャベツは試料量の半量に当たる水を添加して細断した。

4 分析機器及び測定条件

4－1 SFE

抽出機器：Nexera UC（島津製作所製）
CO_2圧力：15MPa
抽出カートリッジ温度：40℃
抽出条件：スタティック4分ーダイナミック4分ースタティック2分ーダイナミック2分

抽出操作は既報を参考に行った．なお，SFE装置の変更によりSFEカートリッジの容量が減少したため，カートリッジに充填する試料等は，既報[4)]の約半量とした（試料：1.0g，1-HXS：0.25g，ケイソウ土：1.25g）。抽出物はHPLCカラム（Shim-pack VP-ODS (4.6mm×50mm，4.6μm　島津製作所)）に捕集し，抽出操作終了後，カラムにアセトンを2.9mL/分で4分間送液し，溶出液を試験管に回収した。回収した溶出液は10mLに定容し，うち1mLをバイアルに分取してアセトン0.1mLを加えて測定に供した。抽出フローを図2に示す。なお，精製を行わないことで作物由来の夾雑物による影響が想定されることから，検量線はマトリックスマッチ検量線とした。

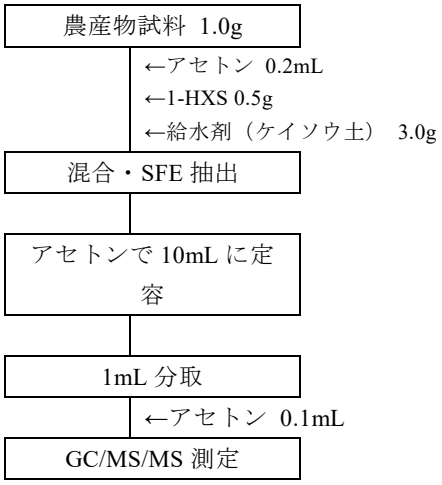


図2 SFE-GC/MS/MS法における抽出法

表 1 分析対象農薬（Q1，Q3，定量下限値，検量線の相関係数（R^2））

No.	農薬名	定量イオン			定性イオン			定量下限値	相関係数
		Q1	→	Q3	Q1	→	Q3	（μg/mL）	（R^2）
1	2,3,5-トリメタカルブ	136	→	121	136	→	77	0.5	0.999
2	2,4-ジクロロアニリン	161	→	90	161	→	63	0.5	0.999
3	2,6-ジクロロベンザミド	173	→	109	189	→	173	0.5	0.999
4	3,4,5-トリメタカルブ	136	→	121	136	→	77	0.5	0.999
5	BHC（α）	219	→	183	217	→	181	0.5	0.999
6	BHC（β）	219	→	183	217	→	181	0.5	0.999
7	BHC（γ）	219	→	183	217	→	181	0.5	0.999
8	BHC（δ）	219	→	183	217	→	181	0.5	0.999
9	DDD (4,4')	235	→	165	237	→	165	0.5	0.999
10	DDE (4,4')	246	→	176	248	→	176	0.5	0.999
11	DDT (2,4')	235	→	165	237	→	165	0.5	0.999
12	DDT (4,4')	235	→	165	237	→	165	0.5	0.999
13	EPN	169	→	77	157	→	110	0.5	0.999
14	EPTC	128	→	43	128	→	86	0.5	0.999
15	XMC	122	→	107	122	→	77	0.5	0.999
16	アクリナトリン	289	→	93	208	→	181	0.5	0.999
17	アザコナゾール	217	→	173	219	→	175	0.5	0.999
18	アジンホスエチル	160	→	77	160	→	132	0.5	0.999
19	アジンホスメチル	160	→	77	160	→	132	0.5	0.999
20	アセタミプリド	152	→	116	207	→	166	0.5	0.999
21	アセトクロール	223	→	132	223	→	147	0.5	0.999
22	アセフェート	136	→	94	136	→	42	0.5	0.999
23	アゾキシストロビン	344	→	329	344	→	156	0.5	0.999
24	アトラジン	215	→	58	215	→	200	0.5	0.999
25	アニロホス	226	→	157	226	→	184	0.5	0.999
26	アミトラズ	293	→	162	293	→	132	0.5	0.999
27	アミノカルブ	208	→	151	151	→	136	0.5	0.999
28	アメトリン	227	→	185	227	→	170	0.5	0.999
29	アラクロール	188	→	160	237	→	160	0.5	0.999
30	アルドリン	263	→	193	255	→	220	0.5	0.999
31	アレスリン Ⅰ	123	→	81	136	→	93	5	0.999
32	アレスリン Ⅱ	123	→	81	136	→	93	5	0.998
33	アレスリン Ⅲ	123	→	81	136	→	93	1	0.999
34	アレスリン Ⅳ	123	→	81	136	→	93	1	0.999
35	イサゾホス	257	→	162	257	→	119	0.5	0.999
36	イソカルボホス	289	→	136	230	→	212	5	0.998
37	イソキサチオン	177	→	130	313	→	130	0.5	0.999
38	イソキサチオンオキソン	161	→	105	161	→	77	5	0.998
39	イソフェンホス	213	→	121	213	→	185	0.5	0.999
40	イソフェンホスオキソン	229	→	201	229	→	121	0.5	0.999
41	イソプロカルブ	136	→	121	121	→	77	0.5	0.999
42	イソプロチオラン	290	→	118	290	→	204	0.5	0.999
43	イソプロパリン	280	→	238	238	→	118	0.5	0.999
44	イナベンフィド	214	→	179	320	→	214	1	0.996
45	イプロジオン	314	→	245	316	→	247	0.5	0.999
46	イプロジオン代謝物	329	→	142	331	→	142	5	0.995
47	イプロベンホス	204	→	91	204	→	122	0.5	0.999
48	イマザメタベンズメチルエステル Ⅰ	245	→	144	245	→	176	0.5	0.999
49	イマザメタベンズメチルエステル Ⅱ	245	→	144	245	→	176	1	0.994
50	イマザリル	215	→	173	217	→	175	5	0.999
51	イミベンコナゾール	253	→	82	255	→	82	0.5	0.999
52	イミベンコナゾール脱ベンジル体	235	→	166	270	→	235	0.5	0.999
53	インドキサカルブ	203	→	134	264	→	176	0.5	0.999
54	ウニコナゾール p	234	→	165	234	→	137	0.5	0.994
55	エスプロカルブ	222	→	91	222	→	162	0.5	0.999
56	エチオフェンカルブ	168	→	107	168	→	77	0.5	0.999
57	エチオン	231	→	129	231	→	175	0.5	0.999
58	エチクロゼート	238	→	165	240	→	167	0.5	0.999
59	エディフェンホス	310	→	109	310	→	173	0.5	0.999
60	エトキサゾール	300	→	270	300	→	285	–	–
61	エトフェンプロックス	163	→	107	163	→	135	0.5	0.999
62	エトフメセート	207	→	161	286	→	207	0.5	0.999
63	エトプロホス	158	→	97	158	→	114	0.5	0.999
64	エトベンザニド	179	→	149	179	→	59	0.5	0.999
65	エトリジアゾール	211	→	183	213	→	142	0.5	0.999
66	エトリムホス	292	→	181	292	→	153	0.5	0.999
67	エンドスルファン（α）	205	→	170	241	→	206	0.5	0.999
68	エンドスルファン（β）	205	→	170	241	→	206	0.5	0.999
69	エンドスルファンサルフェート	272	→	237	270	→	235	0.5	0.999
70	エンドリン	263	→	193	279	→	209	0.5	0.999
71	オキサジアゾン	175	→	112	258	→	175	0.5	0.999
72	オキサジキシル	163	→	132	163	→	117	0.5	0.999
73	オキサジクロメホン	187	→	159	189	→	161	0.5	0.999
74	オキシフルオルフェン	300	→	223	361	→	300	0.5	0.999
75	オルトフェニルフェノール	170	→	169	169	→	115	0.5	0.999
76	カズサホス	159	→	97	158	→	97	0.5	0.999
77	カフェンストロール	188	→	82	188	→	119	0.5	0.999
78	カプタホール	183	→	79	150	→	79	50	0.997
79	カルバリル	144	→	115	144	→	116	0.5	0.999
80	カルフェントラゾンエチル	340	→	312	330	→	310	0.5	0.999
81	カルプロパミド	139	→	103	139	→	77	0.5	0.999
82	カルベタミド	119	→	64	119	→	91	0.5	0.999
83	カルボキシン	235	→	143	143	→	87	0.5	0.999
84	カルボスルファン	160	→	57	160	→	62	5	0.998
85	カルボフラン	164	→	103	164	→	149	0.5	0.999
86	キシリルカルブ	122	→	107	122	→	77	0.5	0.999
87	キナルホス	146	→	118	146	→	91	0.5	0.999
88	キノキシフェン	307	→	237	307	→	272	0.5	0.999
89	キノクラミン	207	→	172	209	→	172	0.5	0.999
90	キノメチオナート	206	→	148	234	→	206	0.5	0.999
91	キャプタン	149	→	70	149	→	79	5	0.999
92	キントゼン	249	→	214	295	→	237	0.5	0.999
93	クミルロン	267	→	149	149	→	107	0.5	0.999
94	クレソキシムメチル	206	→	116	206	→	131	0.5	0.999
95	クロマゾン	125	→	89	204	→	107	0.5	0.999
96	クロメトキシニル	313	→	266	266	→	189	0.5	0.999
97	クロリダゾン	221	→	77	221	→	220	0.5	0.999
98	クロルタールジメチル	301	→	223	299	→	221	0.5	0.999
99	クロルピリホス	314	→	258	316	→	260	0.5	0.999
100	クロルピリホスメチル	286	→	93	288	→	93	0.5	0.999
101	クロルフェナピル	328	→	247	247	→	227	0.5	0.999
102	クロルフェンビンホス(α)(E)	267	→	159	323	→	267	5	0.998
103	クロルフェンビンホス(β)(Z)	267	→	159	323	→	267	0.5	0.999
104	クロルプロファム	213	→	127	213	→	171	0.5	0.999
105	クロロタロニル	264	→	168	266	→	170	–	–
106	クロロニトロフェン	317	→	287	319	→	289	0.5	0.999
107	クロロネブ	208	→	193	191	→	113	0.5	0.999
108	クロロベンジレート	251	→	139	253	→	141	0.5	0.999
109	サイネピリン 1	164	→	98	164	→	67	0.5	0.999
110	サイネピリン 2	164	→	98	164	→	67	0.5	0.999
111	シアナジン	225	→	189	198	→	91	0.5	0.999
112	シアノフェンホス	303	→	141	303	→	169	0.5	0.999
113	シアノホス	243	→	109	243	→	116	0.5	0.999
114	ジエトフェンカルブ	267	→	225	267	→	168	0.5	0.999
115	ジオキサカルブ	165	→	121	166	→	93	0.5	0.999
116	ジオキサベンゾホス	216	→	137	216	→	138	0.5	0.999
117	シクロエート	154	→	83	154	→	55	0.5	0.999
118	ジクロシメット Ⅰ	277	→	221	277	→	155	0.5	0.999
119	ジクロシメット Ⅱ	277	→	221	277	→	155	0.5	0.999
120	ジクロフェンチオン	279	→	223	279	→	205	0.5	0.999
121	ジクロフルアニド	226	→	123	224	→	123	0.5	0.999
122	ジクロベニル	171	→	100	173	→	100	0.5	0.999

表 1 分析対象農薬（Q1，Q3，定量下限値，検量線の相関係数（R^2））（続き）

No.	農薬名	定量イオン Q1	→	Q3	定性イオン Q1	→	Q3	定量下限値 (μg/mL)	相関係数 (R^2)
123	ジクロホップメチル	253	→	162	340	→	253	0.5	0.999
124	ジクロラン	206	→	176	208	→	178	0.5	0.999
125	ジクロルボス	185	→	93	187	→	93	0.5	0.999
126	ジコホール	139	→	111	251	→	139	-	-
127	ジスルホトン	186	→	97	274	→	88	0.5	0.999
128	ジチオピル	354	→	306	354	→	286	0.5	0.999
129	シハロトリン(γ)	197	→	161	197	→	141	0.5	0.998
130	シハロトリン(λ)	197	→	161	197	→	141	0.5	0.999
131	シハロホップブチル	256	→	120	357	→	256	0.5	0.999
132	ジフェナミド	167	→	165	167	→	152	1	0.998
133	ジフェニル	154	→	153	154	→	152	0.5	0.999
134	ジフェニルアミン	168	→	167	169	→	168	0.5	0.999
135	ジフェノコナゾール Ⅰ	323	→	265	325	→	267	0.5	0.999
136	ジフェノコナゾール Ⅱ	323	→	265	325	→	267	0.5	0.999
137	ジフェンゾコート	234	→	233	234	→	130	5	0.999
138	シフルトリン Ⅰ	163	→	127	226	→	206	0.5	0.999
139	シフルトリン Ⅱ	163	→	127	226	→	206	0.5	0.999
140	シフルトリン Ⅲ	163	→	127	226	→	206	0.5	0.999
141	シフルトリン Ⅳ	163	→	127	226	→	206	1	0.998
142	ジフルフェニカン	266	→	218	266	→	183	0.5	0.999
143	シフルメトフェン	173	→	145	173	→	95	0.5	0.999
144	シプロコナゾール Ⅰ	222	→	125	222	→	82	0.5	0.999
145	シプロコナゾール Ⅱ	222	→	125	222	→	82	0.5	0.999
146	シプロジニル	225	→	224	224	→	208	0.5	0.999
147	シペルメトリン Ⅰ	163	→	127	165	→	127	0.5	0.999
148	シペルメトリン Ⅱ	163	→	127	165	→	127	0.5	0.999
149	シペルメトリン Ⅲ	163	→	127	165	→	127	1	0.999
150	シペルメトリン Ⅳ	163	→	127	165	→	127	0.5	0.999
151	シマジン	186	→	91	201	→	173	0.5	0.999
152	ジメタメトリン	212	→	94	212	→	122	0.5	0.999
153	ジメチピン	124	→	76	118	→	58	0.5	0.999
154	ジメチルビンホス(E)	295	→	109	297	→	109	0.5	0.999
155	ジメチルビンホス(Z)	295	→	109	297	→	109	0.5	0.999
156	ジメテナミド	230	→	154	232	→	154	0.5	0.999
157	ジメトエート	125	→	47	125	→	79	0.5	0.999
158	ジメトモルフ (E)	301	→	165	387	→	301	0.5	0.999
159	ジメトモルフ (Z)	301	→	165	387	→	301	0.5	0.999
160	シメトリン	213	→	170	213	→	185	0.5	0.999
161	ジメピペレート	145	→	112	145	→	69	0.5	0.999
162	シラフルオフェン	179	→	151	286	→	258	0.5	0.999
163	シンメチリン	216	→	105	216	→	173	1	0.999
164	スウェップ	187	→	124	219	→	187	0.5	0.999
165	スルプロホス	322	→	156	322	→	139	0.5	0.999
166	セクブメトン	169	→	154	196	→	85	5	0.998
167	ターバシル	161	→	88	161	→	144	0.5	0.999
168	ダイアジノン	304	→	179	199	→	93	0.5	0.999
169	ダイムロン	119	→	91	107	→	106	-	-
170	チアベンダゾール	201	→	174	174	→	65	0.5	0.999
171	チアメトキサム	247	→	212	247	→	182	5	0.998
172	チオベンカルブ	257	→	100	257	→	72	0.5	0.999
173	チオメトン	88	→	60	246	→	88	0.5	0.999
174	チフルザミド	194	→	166	194	→	125	0.5	0.999
175	ディルドリン	263	→	193	277	→	241	0.5	0.999
176	テクナゼン	261	→	203	213	→	142	0.5	0.999
177	テクロフタラム	394	→	214	394	→	242	1	0.999
178	デスメトリン	213	→	171	198	→	108	0.5	0.999
179	テトラクロルビンホス	331	→	109	329	→	109	0.5	0.999
180	テトラコナゾール	336	→	218	336	→	204	0.5	0.999
181	テトラジホン	354	→	159	356	→	159	0.5	0.999
182	テトラメトリン Ⅰ	164	→	107	164	→	77	1	0.998
183	テトラメトリン Ⅱ	164	→	107	164	→	77	0.5	0.999
184	テニルクロール	288	→	141	288	→	174	0.5	0.999
185	テブコナゾール	250	→	125	250	→	153	0.5	0.999
186	テブフェンピラド	276	→	171	333	→	171	0.5	0.999
187	テフルトリン	177	→	127	177	→	137	0.5	0.999
188	デルタメトリン	255	→	174	253	→	172	0.5	0.999
189	テルブカルブ	220	→	205	205	→	57	0.5	0.999
190	テルブトリン	241	→	185	241	→	170	0.5	0.999
191	テルブホス	231	→	129	231	→	175	0.5	0.999
192	テルブメトン	169	→	154	225	→	169	1	0.999
193	トラルコキシジム	137	→	57	137	→	109	1	0.999
194	トリアジメノール Ⅰ	168	→	70	128	→	65	0.5	0.999
195	トリアジメノール Ⅱ	168	→	70	128	→	65	0.5	0.999
196	トリアジメホン	208	→	181	208	→	111	1	0.999
197	トリアゾホス	257	→	162	285	→	162	0.5	0.999
198	トリアレート	268	→	184	270	→	186	0.5	0.999
199	トリシクラゾール	189	→	162	189	→	161	0.5	0.999
200	トリブホス	202	→	113	169	→	113	0.5	0.999
201	トリフルミゾール	206	→	179	278	→	73	0.5	0.999
202	トリフルミゾール代謝物	167	→	104	201	→	136	0.5	0.999
203	トリフルラリン	306	→	264	306	→	206	0.5	0.999
204	トリフロキシストロビン	186	→	145	190	→	130	0.5	0.999
205	トルクロホスメチル	265	→	250	265	→	93	0.5	0.999
206	トルフェンピラド	383	→	171	383	→	145	0.5	0.999
207	ナプロアニリド	291	→	171	291	→	144	0.5	0.999
208	ナプロパミド	271	→	72	271	→	128	0.5	0.999
209	ニトラリン	316	→	274	316	→	216	0.5	0.999
210	ニトロタールイソプロピル	236	→	194	236	→	148	0.5	0.999
211	ノルフルラゾン	303	→	145	303	→	302	0.5	0.999
212	パクロブトラゾール	236	→	125	236	→	167	0.5	0.999
213	パミドチオン	145	→	87	145	→	112	1	0.999
214	パラチオン	291	→	109	291	→	81	0.5	0.999
215	パラチオンメチル	263	→	109	263	→	246	0.5	0.999
216	ハルフェンブロックス	265	→	117	263	→	117	0.5	0.999
217	ビテルタノール Ⅰ	170	→	115	170	→	141	0.5	0.999
218	ビテルタノール Ⅱ	170	→	115	170	→	141	5	0.999
219	ビフェナゼート	300	→	258	300	→	196	5	0.998
220	ビフェノックス	341	→	310	341	→	311	0.5	0.999
221	ビフェントリン	181	→	165	181	→	166	0.5	0.999
222	ピペロニルブトキシド	176	→	103	176	→	131	0.5	0.999
223	ピペロホス	320	→	122	140	→	98	0.5	0.999
224	ピラクロホス	360	→	97	194	→	138	0.5	0.999
225	ピラゾキシフェン	367	→	105	367	→	91	10	0.988
226	ピラゾホス	232	→	204	221	→	193	1	0.999
227	ピラフルフェンエチル	412	→	349	349	→	307	0.5	0.999
228	ピリダフェンチオン	340	→	199	340	→	109	0.5	0.999
229	ピリダベン	147	→	117	147	→	132	0.5	0.999
230	ピリフェノックス (E)	262	→	91	262	→	200	0.5	0.999
231	ピリフェノックス (Z)	262	→	91	262	→	200	0.5	0.999
232	ピリブチカルブ	165	→	108	165	→	93	0.5	0.999
233	ピリプロキシフェン	136	→	96	136	→	78	0.5	0.999
234	ピリミカーブ	238	→	166	166	→	96	0.5	0.999
235	ピリミジフェン	184	→	169	186	→	171	1	0.999
236	ピリミノバックメチル (E)	302	→	256	302	→	230	0.5	0.999
237	ピリミノバックメチル (Z)	302	→	256	302	→	230	0.5	0.999
238	ピリミホスメチル	290	→	125	305	→	180	0.5	0.999
239	ピリメタニル	199	→	198	198	→	118	0.5	0.999
240	ピロキロン	173	→	130	173	→	144	0.5	0.999
241	ビンクロゾリン	285	→	212	285	→	213	0.5	0.999
242	ファモキサドン	330	→	196	329	→	193	0.5	0.999
243	フィプロニル	367	→	213	369	→	215	0.5	0.999
244	フェナミホス	303	→	195	303	→	288	5	0.999

表 1 分析対象農薬（Q1，Q3，定量下限値，検量線の相関係数（R^2））（続き）

No.	農薬名	定量イオン			定性イオン			定量下限値	相関係数
		Q1	→	Q3	Q1	→	Q3	（μg/mL）	（R^2）
245	フェナリモル	219	→	107	251	→	139	0.5	0.999
246	フェニトロチオン	277	→	260	277	→	109	0.5	0.999
247	フェノキサニル	293	→	155	293	→	198	0.5	0.999
248	フェノキサプロップエチル	361	→	288	288	→	91	0.5	0.999
249	フェノチオカルブ	160	→	72	253	→	160	0.5	0.999
250	フェノトリン Ⅰ	183	→	153	183	→	168	5	0.997
251	フェノトリン Ⅱ	183	→	153	183	→	168	5	0.998
252	フェノブカルブ	150	→	121	121	→	77	0.5	0.999
253	フェンクロルホス	285	→	270	287	→	272	0.5	0.999
254	フェンスルホチオン	293	→	97	293	→	125	0.5	0.999
255	フェンチオン	278	→	109	278	→	169	0.5	0.999
256	フェントエート	274	→	121	274	→	125	0.5	0.999
257	フェンバレレート Ⅰ	167	→	125	225	→	119	0.5	0.999
258	フェンバレレート Ⅱ	167	→	125	225	→	119	0.5	0.999
259	フェンブコナゾール	198	→	129	198	→	102	0.5	0.999
260	フェンプロパトリン	265	→	210	265	→	89	0.5	0.999
261	フェンプロピモルフ	128	→	70	128	→	110	0.5	0.999
262	フェンヘキサミド	301	→	97	303	→	97	0.5	0.998
263	フサライド	243	→	215	241	→	213	0.5	0.999
264	ブタクロール	237	→	160	238	→	162	0.5	0.999
265	ブタミホス	286	→	202	286	→	185	0.5	0.999
266	ブチレート	156	→	57	146	→	90	0.5	0.999
267	ブピリメート	273	→	193	273	→	108	0.5	0.999
268	ブプロフェジン	172	→	57	175	→	132	0.5	0.999
269	フラチオカルブ	163	→	107	163	→	135	0.5	0.999
270	フラムプロップメチル	276	→	105	230	→	170	0.5	0.999
271	フラメトピル	291	→	157	298	→	176	0.5	0.999
272	フルアクリピリム	320	→	183	189	→	129	0.5	0.999
273	フルジオキソニル	248	→	127	248	→	154	0.5	0.999
274	フルシトリネート Ⅰ	199	→	107	157	→	107	0.5	0.999
275	フルシトリネート Ⅱ	199	→	107	157	→	107	0.5	0.999
276	フルシラゾール	233	→	165	233	→	152	0.5	0.999
277	フルトラニル	281	→	173	173	→	145	0.5	0.999
278	フルトリアホール	123	→	95	123	→	75	0.5	0.999
279	フルバリネート-tau-Ⅰ	250	→	55	250	→	200	0.5	0.999
280	フルバリネート-tau-Ⅱ	250	→	55	250	→	200	0.5	0.999
281	フルミオキサジン	287	→	259	354	→	312	0.5	0.999
282	フルミクロラックペンチル	423	→	318	423	→	308	1	0.998
283	プレチラクロール	262	→	202	238	→	162	0.5	0.999
284	プロクロラズ	180	→	138	310	→	70	0.5	0.999
285	プロシミドン	283	→	96	285	→	96	0.5	0.999
286	プロチオホス	267	→	239	309	→	239	0.5	0.999
287	プロパクロール	196	→	120	176	→	120	0.5	0.999
288	プロパニル	161	→	99	217	→	161	0.5	0.999
289	プロパホス	304	→	220	304	→	140	0.5	0.999
290	プロパモカルブ	188	→	58	58	→	58	50	0.996
291	プロパルギット	173	→	135	135	→	107	1	0.998
292	プロピコナゾール Ⅰ	259	→	69	259	→	173	1	0.999
293	プロピコナゾール Ⅱ	259	→	69	259	→	173	0.5	0.999
294	プロピザミド	173	→	145	173	→	109	0.5	0.999
295	プロファム	179	→	137	179	→	93	0.5	0.999
296	プロフェノホス	339	→	269	337	→	267	0.5	0.999
297	プロベナゾール	130	→	103	158	→	103	5	0.999
298	プロポキスル	110	→	64	152	→	110	0.5	0.999
299	ブロマシル	205	→	188	207	→	164	0.5	0.999
300	ブロメカルブ	150	→	135	135	→	115	0.5	0.999
301	ブロメトリン	241	→	184	226	→	184	0.5	0.999
302	ブロメトン	210	→	168	183	→	168	0.5	0.999
303	ブロモブチド	296	→	120	298	→	120	1	0.999
304	ブロモブチド脱ブロモ体	177	→	119	118	→	117	0.5	0.999
305	ブロモプロピレート	341	→	183	341	→	185	0.5	0.999
306	ブロモホス	331	→	316	329	→	314	0.5	0.999
307	ブロモホスエチル	359	→	303	357	→	301	0.5	0.999
308	ヘキサクロロベンゼン	284	→	214	284	→	249	0.5	0.999
309	ヘキサコナゾール	175	→	111	256	→	159	0.5	0.999
310	ヘキサジノン	171	→	71	171	→	85	0.5	0.999
311	ヘキシチアゾックス	184	→	149	227	→	149	1	0.998
312	ベナラキシル	266	→	148	206	→	132	0.5	0.999
313	ベノキサコール	259	→	120	261	→	120	0.5	0.999
314	ヘプタクロル	272	→	237	274	→	239	0.5	0.999
315	ヘプタクロル Epo(cis)	353	→	263	355	→	265	0.5	0.999
316	ペルメトリン（cis）	163	→	127	183	→	168	0.5	0.999
317	ペルメトリン（trans）	163	→	127	183	→	168	0.5	0.999
318	ペンコナゾール	248	→	157	250	→	157	0.5	0.999
319	ペンシクロン	180	→	125	182	→	127	0.5	0.999
320	ペンダイオカルブ	166	→	151	223	→	166	0.5	0.999
321	ペンディメタリン	252	→	162	252	→	191	0.5	0.999
322	ペンフラカルブ	190	→	144	190	→	74	5	0.997
323	ペンフルラリン	292	→	264	292	→	206	0.5	0.999
324	ペンフレセート	256	→	163	163	→	121	0.5	0.999
325	ホサロン	367	→	182	182	→	111	0.5	0.999
326	ボスカリド	140	→	112	342	→	140	0.5	0.999
327	ホスチアゼート Ⅰ	195	→	103	195	→	60	5	0.998
328	ホスチアゼート Ⅱ	195	→	103	195	→	60	5	0.998
329	ホスファミドン Ⅰ	264	→	127	264	→	193	5	0.999
330	ホスファミドン Ⅱ	264	→	127	264	→	193	1	0.999
331	ホスメット	160	→	77	160	→	133	0.5	0.999
332	ホノホス	246	→	109	246	→	137	0.5	0.999
333	ホルペット	260	→	130	262	→	130	1	0.999
334	ホレート	260	→	75	231	→	175	0.5	0.999
335	マラオキソン	127	→	99	268	→	127	0.5	0.999
336	マラチオン	173	→	99	173	→	127	0.5	0.999
337	ミクロブタニル	179	→	125	179	→	152	0.5	0.999
338	メタアルデヒド	89	→	45	87	→	43	0.5	0.999
339	メタクリホス	208	→	180	240	→	180	0.5	0.999
340	メタベンズチアズロン	164	→	136	164	→	135	0.5	0.999
341	メタミドホス	141	→	95	141	→	79	0.5	0.999
342	メタラキシル	234	→	146	249	→	190	0.5	0.999
343	メチオカルブ	153	→	109	168	→	153	0.5	0.999
344	メチダチオン	145	→	85	145	→	58	0.5	0.999
345	メチルダイムロン	107	→	106	119	→	91	5	0.999
346	メトキシクロール	227	→	169	227	→	141	0.5	0.999
347	メトプレン Ⅰ	153	→	111	191	→	135	50	0.919
348	メトプレン Ⅱ	153	→	111	191	→	135	1	0.998
349	メトプロトリン	256	→	212	256	→	170	0.5	0.999
350	メトミノストロビン（E）	196	→	77	191	→	160	0.5	0.999
351	メトミノストロビン（Z）	196	→	77	191	→	160	0.5	0.999
352	メトラクロール	238	→	162	238	→	133	0.5	0.999
353	メトリブジン	198	→	82	198	→	110	0.5	0.999
354	メトルカルブ	108	→	107	108	→	77	0.5	0.999
355	メパニピリム	223	→	222	222	→	221	0.5	0.999
356	メビンホス	192	→	127	193	→	127	0.5	0.999
357	メフェナセット	192	→	136	192	→	109	0.5	0.999
358	メプロニル	269	→	119	269	→	210	0.5	0.999
359	モノクロトホス	192	→	127	193	→	127	0.5	0.999
360	モリネート	187	→	126	126	→	55	0.5	0.999
361	リニュロン	248	→	61	250	→	61	0.5	0.999
362	レスメトリン Ⅰ	171	→	143	171	→	128	10	0.995
363	レスメトリン Ⅱ	171	→	143	171	→	128	5	0.998
364	レナシル	153	→	136	153	→	82	0.5	0.999

４－２ GC/MS/MS

測定機器：7010B（アジレントテクノロジー製）

カラム：VF-5ms　0.25mmφ×30m，膜厚 0.25μm

昇温条件：70℃(2分)－25℃/分－
150℃(0分)－3℃/分－
200℃(0分)－8℃/分－310℃(5分)

注入時圧力：35psi（1.5 分）

注入口温度：250℃

MS インターフェース温度：320℃

MS イオン化法：EI

MS 測定モード：SIM　注入量：3μL

５ 添加回収試験

添加回収試験は，試料 1g に 1μg/mL の混合標準液を 0.1mL 添加し（試料中濃度 0.1mg/kg），SFE で抽出後，GC/MS/MS で測定した。精製及び脱脂処理の検討の際は，SFE 抽出液を 10mL に定容し，5mL 分取したものを精製及び脱脂し，最終濃度を 0.01μg/mL になるようにアセトンに溶解した。

６ 玄米の脱脂処理

玄米の脱脂処理は，まず SFE 抽出液を濃縮後，残さにアセトニトリル飽和ヘキサン 5mL に溶解し，ヘキサン飽和アセトニトリル 10mL を加え振とうし，アセトニトリル層を回収した。次いで，残ったヘキサン層にヘキサン飽和アセトニトリルを 10mL 加え振とうし，アセトニトリル層を回収することを 2 回行った。回収したアセトニトリルは濃縮し，残さをアセトンに溶解して GC/MS/MS で測定した。

結果と考察

１ 定量範囲の確認

実験方法４ 分析機器及び測定条件で示した GC/MS/MS 測定条件における定量範囲を確認するために，混合標準液を 0.5，1，5，10，50，100ng/mL に調製し，各濃度 3 回測定して検量線を作製した。クロマトグラムの S/N 比が 10 以上となる定量値のうち最も低い定量値（定量下限値）及び得られた検量線の相関係数（R^2 値）を表 1 に示す。測定の結果，エトキサゾール，クロロタロニル，ジコホール及びダイムロンについては，100ng/mL でも良好なクロマトグラムが得られず測定できなかった。また，カプタホール，プロパモカルブ及びメトプレン I についても定量下限値が 50ng/mL で 2 点検量となったが，その他の成分については，概ね定量下限値が 0.5～5ng/mL となった。また相関についても，メトプレン I を除き，定量下限値から上限値までの相関係数（R^2 値）が 0.988～0.999 と良好な結果となったことから，この範囲での定量が可能であると考えられた。

２ SFE 抽出液の精製及び濃縮の検討

SFE 抽出液を精製及び濃縮をせずに GC/MS/MS で測定が可能かについて検討するために，試料にキャベツを用いて添加回収試験を実施した(n=3)。その結果，回収率が 70～120%になった成分は，精製及び濃縮を行った場合が 299 成分であったのに対し，精製及び濃縮を省略した場合は 320 成分で，回収率の改善がみられた。表 2 に精製及び濃縮を省略することにより回収率 50%未満から 70%以上まで改善した成分を示す。一方で，精製及び濃縮を省略することによって回収率が大きく低下した成分はなく，キャベツ由来の夾雑物によるピーク形状への影響も見られなかったことから，MS から MS/MS に分析機器を変更したことにより，成分の選択性が向上し，精製及び濃縮を省略しても十分な検査結果が得られると考えられた。

表 2 精製・濃縮の省略により回収率が改善した成分

農薬名	精製あり		精製なし	
	回収率 (%)	併行相対標準偏差 (RSDr%)	回収率 (%)	併行相対標準偏差 (RSDr%)
キノメチオナート	35.1	0.41	95.5	0.08
ジクロルボス	40.1	0.84	91.1	0.20
テクナゼン	47.8	0.73	70.2	0.85
ビフェナゼート	24.9	0.88	71.9	0.27
フェンヘキサミド	0.8	7.06	94.9	0.59
メタアルデヒド	16.2	4.71	80.4	0.11

３ Agilent JetClean システムによる測定結果の影響

今回，開発を目指している分析法は，SFE 抽出液を精製せずに GC/MS/MS で分析する手法であり，従来の SFE-GC/MS 法と比較して，作物由来の夾雑物が GC 部及び MS 部に導入され，それによって GC/MS/MS が汚染されることが考えられる。GC 部については，試料導入部の部品やカラムの交換により対応できるが，MS 部の汚染は，洗浄のために MS 内部の真空を落とす必要があり，メンテナンスに時間を要する。そこで，今回用いた GC/MS/MS では，MS のイオン導入部に水素ガスを流し，MS 部の洗浄を行うシステム（Agilent JetClean）が搭載されており，このシステムを用いることで，MS 部のメンテナンス回数を削減できることが

報告されている[9]。しかし，このシステムが今回の分析法に適応するかは不明であるため，その適応性について検討した。

100μg/mL の混合標準液を 10 回測定し，ピーク面積の平均値及び平均値に対する各回のピーク面積の割合を算出した。その結果，JetClean システムを用いずに測定した場合は，ピーク面積が 85%から 116%へ段階的に増加した(図 3)。このことから，測定を繰り返すことで MS が汚染されてくると，ピーク面積が増加すると考えられた。一方で，JetClean システムを用いた場合は，115%から 93%へ段階的に減少し，JetClean システムを用いることで，連続測定によるピーク面積のずれはやや少なくなったものの，依然としてずれてくることが示された。この原因は不明であるが，JetClean システムを用いることで MS の洗浄が行われると同時に，ピーク面積が，用いない場合の 40%程度に減少するため，測定回数が多くなるにつれ，その傾向が強く現れたと考えられた。そこで，ピーク面積が JetClean システムを用いない場合と同様となるように，検出器のゲイン係数を 1 から 3 に上げて測定した。その結果，クロマトグラムのバックグランドがやや高くなったものの，表 1 で示した定量下限値を引き上げる必要があった成分はなく，ピーク面積も 96%から 105%の範囲内で安定したため，本分析では，JetClean システムを用い，検出器のゲイン係数を 3 で測定することとした。

以上の結果から，目的とした SFE 抽出液を精製せずに GC/MS/MS で分析する手法（SFE-GC/MS/MS 法）が確立された。

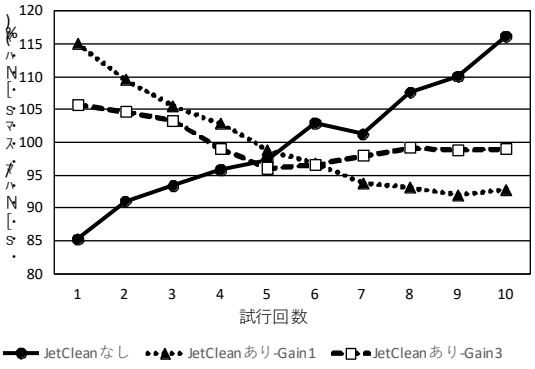


図 3 JetClean システムによるピーク面積の改善

4　玄米試料の SFE 抽出液に対する脱脂処理の検討

穀類等に多く含まれる脂肪や脂肪酸は，GC 測定に際して妨害成分となるため，脱脂処理を行い，妨害成分を除去後，測定することが一般的である。本県においても，玄米及び大豆を用いた GC/MS での測定の際は，脱脂処理を行い測定していた[6),7)]。しかし，今回 GC/MS/MS を用いることで選択性が向上したことから，穀類等の分析作業において脱脂処理を省略し，他の農産物と同様に SFE 抽出液をそのまま測定可能か検討した。玄米を用い，添加回収試験（n=3）を実施した結果，回収率が 70～120%となった成分数は，脱脂処理を行った場合が 313 成分であったのに対し，脱脂処理を省略した場合は 318 成分で，ほぼ同等の結果となった。表 3 に脱脂処理を省略することにより回収率の改善がみられた成分を示す。改善がみられた成分のうち，メタアルデヒドは SFE 抽出液の精製及び濃縮を行うことでも回収率が低下していたことから（表 2），脱脂処理にも含まれる濃縮の過程で消失したと考えられた。一方で，その他の成分については精製及び濃縮過程で消失は見られなかったことから，ヘキサン－アセトニトリル分配において，ヘキサン層へ溶解したと考えられた。脱脂処理を省略することによって，大幅に回収率が低下する成分は見られず，玄米由来の夾雑物によるピーク形状への影響もなかったことから，玄米試料を分析するにあたっては，脱脂処理を省略できると考えられた。

表 3 脱脂処理の省略により回収率が改善した成分

農薬名	脱脂処理あり		脱脂処理なし	
	回収率 (%)	併行相対標準偏差 (RSDr%)	回収率 (%)	併行相対標準偏差 (RSDr%)
2,4-ジクロロアニリン	47.2	25.32	114.8	2.26
BHC（δ）	58.4	16.19	79.3	13.62
EPTC	52.0	32.49	106.3	2.37
ジクロベニル	49.5	38.48	99.2	1.45
ジフェニル	48.2	38.07	104.4	1.06
フェンプロピモルフ	44.5	3.33	112.3	0.95
ブチレート	57.2	19.89	109.7	1.19
ヘキサクロロベンゼン	53.0	4.97	111.9	1.84
メタアルデヒド	12.2	75.64	74.2	5.01

5　妥当性評価

確立した SFE-GC/MS/MS 法の妥当性を評価するために，玄米，キャベツ，トマトおよび温州ミカンを用いて，ガイドラインに基づいた妥当性評価試験を実施した。分析者 3 名による 2 日間 2 併行の添加回収試験を行い，真度，併行精度及び室内精度を算出した。農

薬の添加濃度は，定められた残留農薬の一律基準値である 0.01mg/kg 及びその 10 倍量に当たる 0.1mg/kg の 2 濃度とした（アセタミプリド，アセフェート及びメタミドホスは 5 倍量とした）。

評価試験の結果を表 4 (0.01mg/kg) 及び表 5 (0.1mg/kg) に示す。ガイドラインの目標値を達成した成分数は，0.01mg/kg では，玄米で 252 成分(69%(全分析成分数に対する割合, 以下同様)), キャベツで 274 成分(75%)，トマトで 274 成分(75%)，温州ミカンで 256 成分(70%)となった。また，0.1mg/kg では，玄米で 304 成分(84%)，キャベツで 306 成分(84%)，トマトで 316 成分(87%)，温州ミカンで 316 成分(87%)となった。過去に本所で実施した SFE-GC/MS における妥当性評価試験では，0.01mg/kgでの目標達成成分数が，玄米で 238 成分(64%)，大豆で 272 成分(73%)，ホウレンソウで 272 成分(73%), リンゴで 214 成分(79%)であり[4),6),7)]，以前の分析法と比較しても同等以上の結果であった。特に玄米では，脱脂処理を省略したにもかかわらず目標値を達成した農薬数が増加していた。これは, MS から MS/MS になったことによって成分の選択性が向上しており，夾雑物が多い玄米ではその効果がよく表れたと考えられる。

目標値を達成できなかった農薬成分のうち，真度不良で達成できなかった成分は，0.01mg/kg では，玄米で 90 成分，キャベツで 82 成分，トマトで 84 成分，温州ミカンで 87 成分となった。また，真度は良好であるが精度が不良であった成分数は, 玄米で 23 成分，キャベツ及びトマトで 8 成分，温州ミカンで 21 成分となり，キャベツ及びトマトでは，目標値を達成できなかった原因の多くが真度不良である一方，玄米および温州ミカンでは精度不良で目標値を達成できなかった成分が多くなった。0.1mg/kg において真度不良となった成分数は, 玄米で 52 成分, キャベツで 48 成分，トマトで 47 成分，温州ミカンで 44 成分となった。また，真度が良好で精度が不良であった成分数は，玄米で 8 成分，キャベツで 10 成分，トマトで 1 成分，温州ミカンで 4 成分となり，0.01mg/kg と比較して，玄米および温州ミカンで精度不良の成分数が減少した。これは，低濃度ではクロマトグラムの感度が低く夾雑物の影響を受けやすいことから，MS/MS となって成分の選択性は向上したものの，玄米および温州ミカンでは夾雑物の影響を受け，低濃度での精度不良の成分が多くなったと考えらえる。

妥当性評価試験の結果，0.01mg/kg 及び 0.1mg/kg の両濃度で目標値を達成した成分数は, 玄米で 245 成分，キャベツで 270 成分，トマトで 270 成分，温州ミカンで 252 成分であり，従来の SFE-GC/MS 法と比較しても同等以上の結果であることから，本法は GC/MS/MS を用いた残留農薬の一斉分析法として有効な手法であることが示された。

ま と め

本県で開発した SFE-GC/MS 法による農産物中の残留農薬の一斉分析において，抽出液の精製・濃縮作業により測定できなかった成分を測定するため，MS よりも物質の選択性が高い MS/MS を用いて，精製・濃縮作業を省略した SFE-GC/MS/MS による農産物中の残留農薬一斉分析法について検討した。

その結果，精製・濃縮作業を省略することにより，分析作業が簡易かつ迅速になったうえに，これまで揮散等の理由により回収率が不足していた成分においても回収率の改善が確認できた。また，玄米試料においては，脱脂処理を省略しても従来と同等の結果が得られた。以上のことから，従来の SFE-GC/MS 法と比較して簡易かつ迅速な SFE-GC/MS/MS による残留農薬の一斉分析法が確立された。

確立した分析法は，玄米を含む 4 農産物による妥当性評価試験において，従来の SFE-GC/MS 法と同等以上の約 250 成分の農薬でその妥当性が示されたことから，農産物中の残留農薬の一斉分析法として有効な手法であると考えられた。

文 献

1) 飛野敏明, 松下豪, 木庭亮一, 西名武士, 杉村千佳夫 : 熊本県保健環境科学研究所報，31，44-49 （2001）
2) 西名武士，村川弘，福島孝兵，飛野敏明 : 熊本県保健環境科学研究所報，33，31-37 （2003）
3) 飛野敏明 : 日本農薬学会誌，32(3), 322-327 （2007）
4) 村川弘，吉田達雄，吉元秀和，飛野敏明 : 熊本県保健環境科学研究所報，37，29-35 （2007）
5) 食品に残留する農薬, 飼料添加物又は動物用医薬品の成分である物質の試験法　第 2 章　一斉試験法 GC/MS による農薬等の一斉試験法（農産物）（平成 17 年 1 月 24 日付け食安発第 0124001 号厚生労働省医薬食品局食品安全部長通知）
6) 村川弘，吉田達雄，濱田寛尚，吉元秀和，飛野敏明 : 熊本県保健環境科学研究所報，39，78-83 （2009）
7) 濱田寛尚，吉田達雄，飛野敏明，村川弘 : 熊本県保健環境科学研究所報，41，86-88 （2011）
8)「食品中に残留する農薬等に関する試験法の妥当性評価ガイドラインについて」（平成 19 年 11 月 15 日付け食安発第 1115001 号厚生労働省医薬食品局食品安

全部長通知）
9）アジレントテクノロジー株式会社　JetClean セルフクリーニングイオンソース技術資料：https://www.chem-agilent.com/pdf/low_5991-7254JAJP.pdf

表 4 妥当性評価試験（0.01mg/kg)

No.	化合物名	玄米				キャベツ				トマト				温州ミカン			
		真度	精度		判定	真度	精度		判定	真度	精度		判定	真度	精度		判定
			併行	室内			併行	室内			併行	室内			併行	室内	
		(%)	(RSDr%)			(%)	(RSDr%)			(%)	(RSDr%)			(%)	(RSDr%)		
1	2,3,5-トリメタカルブ	93.8	5.3	9.8	◎	104.5	4.4	7.5	◎	97.7	9.4	9.4	◎	91.4	5.7	8.4	◎
2	2,4-ジクロロアニリン	99.8	12.2	12.2	◎	61.7	11.2	13.3		102.0	9.4	10.5	◎	109.2	8.2	8.2	◎
3	2,6-ジクロロベンザミド	56.8	7.0	60.4		31.0	9.8	22.3		33.6	6.9	8.9		22.7	18.1	18.3	
4	3,4,5-トリメタカルブ	101.6	4.9	16.9	◎	110.4	4.3	6.0	◎	99.5	3.8	7.8	◎	108.1	5.5	5.5	◎
5	BHC（α)	92.6	11.6	11.6	◎	94.2	7.5	7.5	◎	99.4	6.9	9.7	◎	96.3	4.7	9.3	◎
6	BHC（β)	96.2	3.8	8.0	◎	111.1	4.1	6.1	◎	93.6	5.3	14.0	◎	106.4	2.7	2.9	◎
7	BHC（γ)	92.8	9.1	11.6	◎	99.2	5.8	5.8	◎	103.5	4.4	8.9	◎	99.1	7.1	7.1	◎
8	BHC（δ)					107.7	4.2	5.3	◎	97.5	4.2	9.7	◎	101.1	4.8	4.8	◎
9	DDD (4,4')	81.4	4.4	8.9	◎	104.1	4.7	5.4	◎	96.4	6.1	8.7	◎	93.7	5.1	5.1	◎
10	DDE (4,4')	87.7	6.8	10.3	◎	105.3	5.6	5.6	◎	98.5	6.5	14.4	◎	98.7	4.7	13.5	◎
11	DDT (2,4')	81.4	4.4	8.9	◎	104.1	4.7	5.4	◎	96.0	7.4	9.9	◎	93.7	5.1	5.1	◎
12	DDT (4,4')	92.2	9.3	9.3	◎	107.4	7.0	7.0	◎	95.1	6.3	9.9	◎	94.3	5.7	6.5	◎
13	EPN	98.8	17.2	17.2	◎	98.0	7.7	12.6	◎	93.5	10.5	18.2	◎	94.7	10.7	10.7	◎
14	EPTC	84.8	6.5	13.4	◎	19.0	62.3	70.1		78.1	17.4	21.4	◎	79.5	3.2	5.4	◎
15	XMC	93.6	5.8	20.2	◎	105.8	4.4	4.4	◎	108.2	3.5	5.6	◎	93.8	10.7	10.7	◎
16	アクリナトリン	105.6	89.2	89.2		122.6	8.0	22.5		110.5	9.4	10.2	◎	91.9	15.3	15.3	◎
17	アザコナゾール	78.2	10.7	10.7	◎	117.5	3.3	4.4	◎	111.3	5.3	8.1	◎	102.3	9.7	9.8	◎
18	アジンホスエチル	88.2	25.0	25.7													
19	アジンホスメチル	92.0	9.3	12.6	◎	104.1	10.1	11.3	◎								
20	アセタミプリド	50.1	43.6	59.7													
21	アセトクロール	61.5	38.1	39.7		109.9	8.6	21.5	◎	97.8	11.4	11.4	◎	104.3	11.6	11.6	◎
22	アセフェート	59.7	12.7	58.1													
23	アゾキシストロビン	75.6	24.1	43.2		113.2	10.8	25.5	◎					96.8	7.3	7.8	◎
24	アトラジン	104.6	9.0	13.3	◎	93.2	8.1	12.8	◎	83.9	8.4	12.7	◎	95.2	9.6	19.2	◎
25	アニロホス	86.6	13.5	13.5	◎	97.4	12.7	12.7	◎	72.0	33.0	50.0		91.6	7.5	11.2	◎
26	アミトラズ																
27	アミノカルブ	40.6	36.3	51.6		90.7	12.2	12.2	◎								
28	アメトリン	91.5	10.7	10.7	◎	110.3	6.2	11.3	◎					99.5	10.1	10.1	◎
29	アラクロール	91.6	8.9	8.9	◎	101.1	8.8	12.6	◎	99.4	11.2	11.2	◎	97.7	13.4	13.4	◎
30	アルドリン	98.2	10.0	17.4	◎	84.9	9.9	12.8	◎	85.3	14.4	14.4	◎	97.9	5.3	7.5	◎
31	アレスリン Ⅰ																
32	アレスリン Ⅱ																
33	アレスリン Ⅲ																
34	アレスリン Ⅳ																
35	イサゾホス	100.4	12.4	12.4	◎	85.9	10.1	15.7	◎	92.1	20.3	27.3	◎	102.3	10.7	11.8	◎
36	イソカルボホス																
37	イソキサチオン	83.0	21.0	22.1	◎	109.3	4.9	6.1	◎	107.4	8.4	11.7	◎	95.6	9.1	9.1	◎
38	イソキサチオンオキソン																
39	イソフェンホス	92.7	5.6	7.8	◎	99.9	6.3	15.9	◎	105.8	6.7	11.7	◎	106.9	9.9	9.9	◎
40	イソフェンホスオキソン	93.6	11.2	11.2	◎	113.0	5.0	7.3	◎	123.3	9.3	21.6		103.5	7.9	9.8	◎
41	イソプロカルブ	97.2	5.4	17.8	◎	103.1	3.9	4.6	◎	102.6	9.6	9.6	◎	99.7	6.1	6.1	◎
42	イソプロチオラン	101.3	19.9	62.1		128.8	13.8	19.9		101.6	11.8	15.0	◎	114.3	24.6	88.6	
43	イソプロパリン	82.0	12.3	12.3	◎	96.0	7.6	19.9	◎	94.4	7.8	7.8	◎	102.9	7.1	7.1	◎
44	イナベンフィド																
45	イプロジオン	62.9	38.4	59.5		92.8	22.4	24.6	◎	99.5	6.6	18.0	◎	72.3	43.3	43.3	
46	イプロジオン代謝物									109.3	10.5	12.8	◎	77.6	14.3	14.8	
47	イプロベンホス	102.4	8.0	13.8	◎	113.0	5.4	10.9	◎	101.4	12.4	12.4	◎	85.9	11.0	11.5	◎
48	イマザメタベンズメチルエステル Ⅰ					70.6	20.4	32.2									
49	イマザメタベンズメチルエステル Ⅱ																
50	イマザリル																
51	イミベンコナゾール	86.7	13.0	13.0	◎	98.1	10.3	17.5	◎	82.1	8.9	8.9	◎	43.5	29.2	29.6	
52	イミベンコナゾール脱ベンジル体	80.8	15.3	17.6	◎	72.8	14.1	16.5	◎	33.0	42.6	62.1		73.8	11.0	24.2	◎
53	インドキサカルブ	99.8	4.0	18.2	◎	116.0	3.7	4.2	◎	108.5	5.9	9.4	◎	101.8	6.0	6.5	◎
54	ウニコナゾール p					81.9	34.5	36.1		129.7	18.5	24.7		108.1	20.9	20.9	
55	エスプロカルブ	88.6	8.9	9.1	◎	94.9	6.6	6.6	◎	95.3	12.5	14.6	◎	97.3	4.7	9.1	◎
56	エチオフェンカルブ	37.4	32.6	36.2		87.4	7.0	7.0	◎	105.9	7.8	9.4	◎	97.1	4.8	14.0	◎
57	エチオン	93.0	12.6	15.8	◎	102.2	5.2	10.0	◎	95.2	3.4	13.6	◎	90.9	9.6	13.4	◎
58	エチクロゼート	78.3	13.6	13.6	◎	89.5	8.2	12.8	◎	88.3	9.6	15.6	◎	84.7	9.8	9.8	◎
59	エディフェンホス	82.8	15.1	15.1	◎	91.5	20.9	20.9	◎	85.9	13.6	13.7	◎	85.7	9.4	12.8	◎
60	エトキサゾール																
61	エトフェンプロックス	101.6	8.7	11.8	◎	103.6	5.6	6.5	◎	98.0	7.8	11.3	◎	98.3	7.0	7.0	◎
62	エトフメセート	84.1	6.2	7.0	◎	112.7	12.5	12.5	◎	99.4	12.9	12.9	◎	93.9	5.4	10.7	◎
63	エトプロホス	101.1	7.8	20.0	◎	107.0	3.6	8.9	◎	94.7	8.8	11.6	◎	93.6	5.1	11.3	◎
64	エトベンザニド	114.9	9.6	9.6	◎	111.6	6.1	7.9	◎	112.5	6.6	7.2	◎	106.4	11.1	11.1	◎
65	エトリジアゾール	77.7	9.5	9.9	◎	42.9	16.8	20.8		83.6	9.0	10.6	◎	85.8	4.5	6.7	◎
66	エトリムホス	91.4	12.8	15.4	◎	79.0	9.8	13.4	◎	104.4	10.8	11.9	◎	99.3	4.2	17.5	◎
67	エンドスルファン（α)	92.8	6.8	9.8	◎	100.2	6.8	7.7	◎	108.0	10.3	10.5	◎	100.3	7.8	13.4	◎
68	エンドスルファン（β)	94.3	8.6	13.4	◎	115.5	7.4	12.3	◎	101.4	9.9	9.9	◎	102.2	7.8	7.8	◎
69	エンドスルファンサルフェート	88.1	4.7	16.2	◎	109.4	5.9	8.1	◎	101.5	8.2	11.0	◎	90.6	6.1	6.3	◎
70	エンドリン	92.4	11.3	12.5	◎	103.4	4.2	9.8	◎	109.4	8.9	8.9	◎	109.5	6.4	6.4	◎
71	オキサジアゾン	82.5	5.7	11.8	◎	103.5	6.2	7.0	◎	96.5	7.9	11.6	◎	96.5	8.3	12.9	◎
72	オキサジキシル	65.9	16.2	20.1		59.3	11.7	18.2		68.0	10.8	16.3		48.2	28.6	38.2	
73	オキサジクロメホン	102.3	6.6	16.0	◎	117.5	6.8	7.7	◎	99.3	8.7	14.6	◎	89.6	11.3	14.2	◎
74	オキシフルオルフェン	107.1	29.1	29.1		101.0	6.5	13.0	◎	83.0	6.7	16.7	◎	104.0	7.2	7.2	◎
75	オルトフェニルフェノール	91.4	4.3	19.3	◎	93.6	6.1	11.1	◎	98.9	2.0	9.9	◎	101.6	7.4	7.4	◎
76	カズサホス	85.6	6.7	15.2	◎	106.4	2.8	9.9	◎	89.2	7.6	7.6	◎	92.5	3.5	7.2	◎
77	カフェンストロール	95.2	9.3	9.6		102.7	6.6	6.6	◎	125.8	10.6	23.0		86.7	8.7	17.0	◎
78	カプタホール																
79	カルバリル	88.1	8.2	8.8	◎					101.8	8.7	8.7	◎	98.7	6.2	9.9	◎
80	カルフェントラゾンエチル	84.4	12.5	15.4	◎	89.8	17.7	17.7	◎	95.0	8.3	20.8	◎	99.6	10.3	14.3	◎
81	カルプロパミド	93.2	7.0	7.6	◎	107.2	7.4	7.4	◎	101.1	8.3	12.4	◎	95.8	8.3	14.1	◎
82	カルベタミド	88.5	5.9	11.9	◎												
83	カルボキシン	41.9	23.0	25.5		82.2	17.7	22.5	◎	113.5	4.6	5.4	◎	101.6	11.1	11.8	◎
84	カルボスルファン																
85	カルボフラン	98.2	12.4	12.4	◎	116.7	5.4	10.1	◎	138.9	7.6	8.7		113.8	3.3	4.1	◎
86	キシリルカルブ	82.2	7.2	10.7	◎	108.4	3.3	4.1	◎	100.7	3.9	8.2	◎	89.6	3.9	5.6	◎
87	キナルホス	97.2	9.7	9.7	◎	102.5	4.5	12.2	◎	92.0	13.2	13.3	◎	98.6	13.3	13.3	◎
88	キノキシフェン	82.0	8.5	13.1	◎	109.3	7.4	8.6	◎	113.9	7.8	8.1	◎	94.5	14.0	14.0	◎
89	キノクラミン	72.1	6.8	11.0	◎	97.0	7.2	7.2	◎	93.9	6.0	6.6	◎	93.2	3.8	5.1	◎
90	キノメチオナート	74.0	6.2	6.4	◎	97.1	2.9	6.3	◎	98.9	5.3	5.6	◎	88.3	7.0	7.0	◎
91	キャプタン																
92	キントゼン	101.0	5.6	10.4	◎	73.5	2.6	3.3	◎	88.8	9.5	16.3	◎	100.0	7.4	12.6	◎
93	クミルロン					49.6	50.1	50.1									
94	クレソキシムメチル	86.2	10.7	13.0	◎	111.0	7.0	8.8	◎	78.8	10.3	10.3	◎	96.5	13.4	13.5	◎

表 4 妥当性評価試験（0.01mg/kg）（続き）

No.	化合物名	玄米				キャベツ				トマト				温州ミカン			
		真度	精度		判定	真度	精度		判定	真度	精度		判定	真度	精度		判定
			併行	室内			併行	室内			併行	室内			併行	室内	
		(%)	(RSDr%)			(%)	(RSDr%)			(%)	(RSDr%)			(%)	(RSDr%)		
95	クロマゾン	89.2	6.6	14.0	◎	104.9	5.6	5.6	◎	94.1	13.2	13.2	◎	99.2	4.2	4.5	◎
96	クロメトキシニル	99.8	11.5	11.5	◎	81.6	36.3	47.0		96.0	11.5	17.6	◎	88.1	19.1	19.1	◎
97	クロリダゾン																
98	クロルタールジメチル	95.7	8.1	8.2	◎	104.8	5.6	5.6	◎	101.3	5.5	7.4	◎	92.5	3.0	6.5	◎
99	クロルピリホス	86.4	11.5	11.5	◎	94.9	6.4	6.4	◎	93.9	8.9	8.9	◎	92.7	3.3	8.9	◎
100	クロルピリホスメチル	84.7	10.1	12.9	◎	96.0	4.0	6.5	◎	100.4	8.1	11.9	◎	85.7	4.2	9.0	◎
101	クロルフェナピル	168.5	45.7	53.9		79.7	27.0	34.9		95.9	9.8	23.6	◎	106.1	33.5	33.5	
102	クロルフェンビンホス（α(E)																
103	クロルフェンビンホス（β(Z)	115.0	10.2	10.2	◎	114.3	6.1	6.1	◎	110.6	5.0	9.0	◎	100.0	9.3	19.3	◎
104	クロルプロファム	103.2	11.2	11.2	◎	106.6	6.9	6.9	◎	103.7	14.4	14.4	◎	82.4	10.5	10.5	◎
105	クロロタロニル									77.6	13.8	25.7	◎				
106	クロロニトロフェン	94.8	14.4	14.4	◎	102.0	13.0	13.0	◎	109.6	11.2	11.2	◎	82.2	9.5	10.0	◎
107	クロロネブ	98.1	7.3	14.0	◎	76.0	4.7	10.3	◎	97.7	14.2	14.2	◎	99.7	6.7	8.6	◎
108	クロロベンジレート	79.7	8.5	8.5	◎	108.3	6.6	10.4	◎	93.1	3.6	14.9	◎	100.0	5.0	12.3	◎
109	サイネピリン 1	105.3	11.2	11.2	◎	111.6	5.6	6.2	◎	103.8	13.3	14.0	◎	91.3	7.9	8.3	◎
110	サイネピリン 2	97.8	5.6	13.6	◎	99.4	6.9	14.6	◎	98.9	8.8	13.4	◎	109.4	7.9	7.9	◎
111	シアナジン	69.4	22.1	44.0		106.2	7.9	8.0	◎	111.1	8.5	8.5	◎	101.3	7.9	12.3	◎
112	シアノフェンホス	74.8	25.9	30.4		112.1	4.8	9.0	◎	97.8	14.1	14.1	◎	71.7	45.8	58.1	
113	シアノホス	84.4	1.8	9.5	◎	101.4	3.6	4.5	◎	99.8	4.4	6.6	◎	104.7	3.7	6.5	◎
114	ジエトフェンカルブ	100.0	7.2	16.1	◎	94.1	18.5	26.1	◎	107.9	11.0	11.0	◎	110.0	13.4	19.4	◎
115	ジオキサカルブ	61.0	41.0	47.3		94.0	4.7	13.1	◎								
116	ジオキサベンゾホス	87.6	6.6	19.3	◎	93.4	5.2	7.0	◎	102.5	8.5	9.8	◎	97.1	6.1	6.1	◎
117	シクロエート	95.7	8.1	20.0	◎	79.3	10.9	10.9	◎	95.5	4.2	11.0	◎	99.8	5.9	6.9	◎
118	ジクロシメット Ⅰ	106.8	6.9	14.2	◎	109.9	7.9	10.2	◎	109.0	11.2	11.2	◎	94.6	16.9	16.9	◎
119	ジクロシメット Ⅱ	91.5	8.2	9.3	◎	107.0	15.4	15.4	◎	96.6	7.6	15.9	◎	95.3	18.2	18.2	◎
120	ジクロフェンチオン	89.7	4.8	13.4	◎	86.5	6.7	7.1	◎	99.0	4.3	10.2	◎	91.8	2.7	7.7	◎
121	ジクロフルアニド	68.3	21.7	34.6		111.7	4.6	18.5	◎	96.9	9.2	9.2	◎	78.0	5.8	64.1	
122	ジクロベニル	92.7	10.2	15.1	◎	47.8	18.9	36.4		90.4	8.5	14.0	◎	91.8	0.8	3.6	◎
123	ジクロホップメチル	87.9	10.0	14.4	◎	118.2	6.7	6.7	◎	103.6	7.5	14.4	◎	93.1	13.6	13.6	◎
124	ジクロラン	96.3	6.0	23.0	◎	97.6	11.0	11.0	◎	89.2	13.5	13.5	◎	104.7	9.4	9.4	◎
125	ジクロルボス	39.8	10.2	37.7		93.1	8.7	8.7	◎	105.1	9.2	9.2	◎	102.1	5.8	5.8	◎
126	ジコホール																
127	ジスルホトン	96.1	4.2	19.3	◎	53.1	7.4	12.8		96.8	12.1	12.1	◎	83.4	13.1	13.1	◎
128	ジチオピル	92.7	9.7	14.5	◎	92.1	9.0	11.0	◎	90.3	10.0	16.5	◎	104.6	7.4	14.8	◎
129	シハロトリン(γ)	116.5	32.1	32.9		44.1	169.8	169.8		91.8	10.7	17.3	◎	92.8	39.0	39.0	
130	シハロトリン(λ)	55.0	61.8	61.8		94.0	23.1	23.1	◎	99.4	10.8	15.3	◎	100.2	14.4	16.6	◎
131	シハロホップブチル	96.5	13.8	20.8	◎	86.6	11.1	20.3	◎	94.5	5.6	10.7	◎	109.8	5.0	20.0	◎
132	ジフェナミド																
133	ジフェニル	86.4	1.6	7.3	◎	31.4	28.5	32.7		64.2	20.6	30.1		69.5	5.5	17.8	
134	ジフェニルアミン	91.9	7.6	10.1	◎	52.6	8.7	12.0		95.6	7.1	8.9	◎	99.3	8.3	9.5	◎
135	ジフェノコナゾール Ⅰ	91.5	10.5	16.6	◎	109.5	4.4	9.5	◎	96.6	13.9	13.9	◎	100.0	15.7	22.1	◎
136	ジフェノコナゾール Ⅱ	102.3	13.5	13.5	◎	108.2	9.3	14.5	◎	108.2	8.3	10.6	◎	117.7	6.1	7.6	◎
137	ジフェンゾコート																
138	シフルトリン Ⅰ	94.7	9.8	9.8	◎	94.9	23.4	23.4	◎	100.8	7.7	14.3	◎	89.7	8.4	20.8	◎
139	シフルトリン Ⅱ	85.9	14.0	14.0	◎	93.1	9.7	11.3	◎	93.9	9.9	14.7	◎	75.4	18.1	18.1	◎
140	シフルトリン Ⅲ	96.1	10.7	23.4	◎	102.7	16.2	21.7	◎	94.4	10.1	20.3	◎	98.1	33.8	33.8	
141	シフルトリン Ⅳ	92.3	3.9	6.6	◎					103.2	13.7	13.7	◎	127.1	90.0	90.0	
142	シフルフェニカン	105.1	14.8	14.8	◎	94.8	15.9	15.9	◎	97.8	9.3	11.9	◎	88.1	16.4	19.2	◎
143	シフルメトフェン	79.5	4.8	7.9	◎	102.0	3.6	5.7	◎	90.8	6.3	11.0	◎	78.1	6.1	10.1	◎
144	シプロコナゾール Ⅰ	90.7	11.5	11.9	◎	111.5	6.7	6.7	◎	109.0	4.1	10.7	◎	102.6	5.9	8.8	◎
145	シプロコナゾール Ⅱ	88.6	10.6	19.8	◎	144.5	9.6	11.9		98.5	7.8	21.1	◎	98.4	9.3	13.9	◎
146	シプロジニル	90.5	9.6	13.0	◎	104.2	7.7	7.7	◎	104.9	9.0	9.0	◎	104.1	7.4	8.9	◎
147	シペルメトリン Ⅰ	93.2	6.9	13.5	◎	116.6	12.4	12.4	◎	103.6	7.3	12.1	◎	98.7	14.1	15.7	◎
148	シペルメトリン Ⅱ	99.5	10.5	19.4	◎	108.8	4.7	6.3	◎	100.6	16.3	19.7	◎	109.5	12.1	13.2	◎
149	シペルメトリン Ⅲ	92.8	11.2	17.7	◎	98.8	17.1	25.0	◎	88.3	9.4	19.4	◎	95.8	16.9	19.2	◎
150	シペルメトリン Ⅳ	100.0	12.7	12.7	◎	92.9	11.0	19.1	◎	97.4	6.9	20.3	◎	117.6	7.8	13.9	◎
151	シマジン	90.9	14.9	34.9		91.8	14.1	14.1	◎	94.3	19.5	19.5	◎	66.1	18.9	56.6	
152	ジメタメトリン	94.3	7.4	14.2	◎	99.6	8.4	11.5	◎	90.5	7.4	12.3	◎	101.9	12.5	12.5	◎
153	ジメチピン	51.1	32.8	62.0		100.7	12.3	12.3	◎	108.6	10.5	10.5	◎	103.4	16.5	20.6	◎
154	ジメチルビンホス (E)	81.6	8.9	11.1	◎	108.1	5.0	5.5	◎	97.7	11.0	11.0	◎	96.3	6.5	7.1	◎
155	ジメチルビンホス (Z)	96.5	5.2	21.6	◎	107.2	4.2	7.5	◎	107.0	8.4	8.4	◎	100.4	7.1	7.5	◎
156	ジメテナミド	90.1	9.8	13.8	◎	104.6	5.5	8.8	◎	102.8	10.4	13.3	◎	100.2	5.2	7.8	◎
157	ジメトエート	69.7	6.9	29.5		91.7	8.1	18.2	◎	80.4	8.0	8.5	◎	82.6	12.1	12.1	◎
158	ジメトモルフ (E)	85.7	4.3	10.2	◎	94.8	7.8	9.3	◎	100.8	10.9	16.7	◎	88.5	18.7	18.7	◎
159	ジメトモルフ (Z)	98.8	5.9	23.3	◎	100.5	12.9	13.4	◎	110.8	5.6	9.1	◎	87.3	14.9	14.9	◎
160	シメトリン					88.7	20.1	22.9	◎	111.7	19.8	19.8	◎	82.6	36.1	36.1	
161	ジメピペレート	85.0	12.4	12.4	◎	102.2	9.5	14.3	◎	99.7	16.4	16.4	◎	84.6	14.6	14.6	◎
162	シラフルオフェン	95.2	11.8	12.3	◎	79.8	8.5	14.0	◎	96.6	14.9	16.0	◎	91.4	15.4	15.6	◎
163	シンメチリン																
164	スゥエップ	89.8	6.2	16.8	◎	110.4	5.4	5.4	◎	96.8	6.3	9.2	◎	98.3	3.0	3.0	◎
165	スルプロホス	86.7	15.0	15.0	◎	79.9	16.4	16.4	◎	99.3	10.1	16.3	◎	101.3	11.6	12.7	◎
166	セクブメトン																
167	ターバシル	82.9	5.1	7.6	◎	94.8	9.5	12.3	◎	87.0	15.0	15.0	◎	92.0	5.6	26.6	◎
168	ダイアジノン	102.3	7.5	12.4	◎	105.9	9.1	14.8	◎	85.2	7.9	16.7	◎	60.4	21.7	50.1	
169	ダイムロン																
170	チアベンダゾール																
171	チアメトキサム																
172	チオベンカルブ	90.2	8.0	14.3	◎	109.1	17.0	17.0	◎	103.9	9.2	13.6	◎	95.2	13.7	17.3	◎
173	チオメトン	78.6	7.2	7.2	◎	54.2	8.9	26.1		96.2	8.3	11.3	◎	89.4	7.3	9.8	◎
174	チフルザミド	89.2	7.5	7.5	◎	103.9	16.3	16.3	◎	98.7	8.6	10.8	◎	95.0	12.5	12.5	◎
175	ディルドリン	98.3	10.2	10.2	◎	109.2	4.4	8.6	◎	99.7	6.1	9.7	◎	98.3	7.8	17.6	◎
176	テクナゼン	85.9	9.4	14.4	◎	69.9	10.5	10.5		89.7	9.1	10.6	◎	91.5	7.5	13.4	◎
177	テクロフタラム	37.9	17.2	24.0		79.4	6.3	35.5		53.8	14.3	33.8		75.3	10.8	14.1	◎
178	デスメトリン	93.9	10.5	14.9	◎	104.6	13.6	13.6	◎	87.8	9.9	19.6	◎	53.7	21.5	65.3	
179	テトラクロルビンホス	98.3	8.7	17.7	◎	99.0	9.0	10.4	◎	101.4	12.9	13.6	◎	106.0	18.7	18.7	◎
180	テトラコナゾール	89.3	12.8	13.6	◎	105.0	9.8	12.3	◎	114.6	6.7	6.7	◎	105.0	11.5	11.5	◎
181	テトラジホン	95.1	13.6	16.3	◎	99.8	19.7	19.7	◎	95.9	16.2	16.2	◎	116.2	8.7	10.5	◎
182	テトラメトリン Ⅰ													198.3	34.7	85.1	
183	テトラメトリン Ⅱ					109.7	10.8	29.1	◎					99.3	22.2	22.2	◎
184	テニルクロール	82.4	28.3	42.5		114.8	6.6	6.6	◎	92.2	8.7	17.5	◎	81.0	29.1	29.1	
185	テブコナゾール	108.1	11.9	11.9	◎	109.3	9.8	9.8	◎	108.5	8.9	10.4	◎	106.4	14.9	14.9	◎
186	テブフェンピラド	107.9	12.9	12.9	◎	106.7	12.6	12.6	◎	101.1	15.2	15.2	◎	98.2	10.6	17.5	◎
187	テフルトリン	95.4	4.2	20.1	◎	85.3	4.7	10.1	◎	97.7	6.3	12.4	◎	89.0	4.3	11.9	◎
188	デルタメトリン	110.3	28.6	28.6		112.5	12.5	16.1	◎	94.9	7.5	15.4	◎	85.8	10.1	11.0	◎

表 4 妥当性評価試験（0.01mg/kg)　（続き）

No.	化合物名	玄米				キャベツ				トマト				温州ミカン			
		真度	精度		判定	真度	精度		判定	真度	精度		判定	真度	精度		判定
			併行	室内			併行	室内			併行	室内			併行	室内	
		(%)	(RSDr%)			(%)	(RSDr%)			(%)	(RSDr%)			(%)	(RSDr%)		
189	テルブカルブ	93.8	10.9	10.9	◎	102.4	5.7	8.7	◎	108.7	13.4	13.4	◎	106.8	8.9	13.4	◎
190	テルブトリン	95.1	10.1	10.1	◎	96.5	19.5	19.5	◎	102.2	12.8	12.8	◎	107.0	7.7	18.7	◎
191	テルブホス	95.1	5.4	20.4	◎	72.7	9.3	9.3	◎	85.5	6.4	11.8	◎	98.1	10.0	10.3	◎
192	テルブメトン					115.7	23.1	23.9	◎								
193	トラルコキシジム																
194	トリアジメノール Ⅰ																
195	トリアジメノール Ⅱ																
196	トリアジメホン	96.0	31.0	31.0		108.7	5.0	11.9	◎					72.0	55.4	66.9	
197	トリアゾホス	93.1	15.1	15.1	◎	91.1	19.3	19.3	◎	79.7	14.6	14.6	◎	107.2	11.5	18.8	◎
198	トリアレート	95.6	9.2	9.2	◎	83.6	11.7	12.0	◎	99.4	7.9	11.2	◎	105.0	4.6	12.3	◎
199	トリシクラゾール	81.1	12.1	20.2													
200	トリブホス	101.5	13.2	19.2	◎	94.9	12.8	12.8	◎	92.7	22.5	30.8		99.3	17.1	25.4	◎
201	トリフルミゾール					93.3	11.0	15.1	◎								
202	トリフルミゾール代謝物	86.4	11.0	12.7	◎	103.6	6.2	7.7	◎	83.5	7.7	10.0	◎	26.4	23.9	73.2	
203	トリフルラリン	98.2	6.8	13.6	◎	80.3	5.8	9.3	◎	84.0	6.7	10.6	◎	88.5	6.8	18.3	◎
204	トリフロキシストロビン	100.7	10.5	12.1	◎	116.0	7.6	7.6	◎	89.9	16.1	16.1	◎	98.2	11.2	12.5	◎
205	トルクロホスメチル	80.9	10.5	10.5	◎	85.5	5.3	5.3	◎	99.0	4.8	11.6	◎	94.9	9.4	12.0	◎
206	トルフェンピラド	93.0	10.2	10.4	◎	95.4	7.6	16.2	◎	93.2	8.2	11.5	◎	103.7	11.7	15.9	◎
207	ナプロアニリド	81.2	16.4	16.4	◎	90.0	5.9	26.2	◎	97.5	10.3	17.8	◎	112.5	9.9	18.9	◎
208	ナプロパミド	93.3	14.9	15.2	◎	98.5	9.7	17.5	◎	88.2	13.0	15.6	◎	100.0	11.4	12.5	◎
209	ニトラリン	78.0	23.1	62.0		73.1	36.6	36.6		95.5	5.2	16.0	◎	114.4	16.0	17.7	◎
210	ニトロタールイソプロピル	87.3	14.3	14.3	◎	108.1	5.2	5.8	◎	91.3	13.9	13.9	◎	89.9	8.4	9.2	◎
211	ノルフルラゾン	75.1	8.2	9.1	◎	110.1	6.8	6.8	◎	94.0	14.5	14.5	◎	101.6	5.8	11.1	◎
212	パクロブトラゾール	85.4	11.6	13.3	◎	95.9	4.6	11.6	◎	110.1	10.1	10.1	◎	102.5	14.9	14.9	◎
213	パミドチオン																
214	パラチオン	84.2	11.4	12.8	◎	102.8	7.6	7.6	◎	93.8	7.9	17.5	◎	108.9	8.6	14.5	◎
215	パラチオンメチル	97.0	7.1	20.9	◎	103.0	5.6	10.2	◎	101.8	7.8	13.5	◎	103.8	6.1	10.6	◎
216	ハルフェンブロックス	92.3	10.2	19.5	◎	95.6	11.4	12.0	◎	103.1	1.7	5.8	◎	98.2	9.9	12.5	◎
217	ビテルタノール Ⅰ	88.7	9.9	10.8	◎	103.6	3.5	6.2	◎					104.7	11.8	12.8	◎
218	ビテルタノール Ⅱ																
219	ビフェナゼート																
220	ビフェノックス					69.4	40.6	49.4		86.0	39.1	44.2					
221	ビフェントリン	110.3	15.8	15.8	◎	114.9	2.7	11.8	◎	87.1	8.3	15.4	◎				
222	ピペロニルブトキシド	108.9	8.5	14.1	◎	102.0	9.8	13.5	◎	103.8	8.0	9.4	◎	100.6	9.5	23.8	◎
223	ピペロホス	127.3	19.2	29.1		87.6	21.8	21.8	◎	75.8	20.4	42.7		70.4	55.4	55.4	
224	ピラクロホス	96.1	13.3	13.3	◎	110.2	8.9	8.9	◎	109.9	14.8	14.8	◎	97.7	14.0	27.9	◎
225	ピラゾキシフェン																
226	ピラゾホス					102.3	5.8	15.3	◎	95.9	10.8	14.6	◎				
227	ピラフルフェンエチル	83.0	16.1	16.1	◎	99.9	17.5	17.5	◎	99.3	13.0	14.8	◎	97.5	17.2	17.2	◎
228	ピリダフェンチオン	87.5	11.4	11.4	◎	114.1	20.5	20.5	◎	100.3	12.0	12.0	◎	105.6	16.2	16.2	◎
229	ピリダベン	110.2	6.4	10.0	◎	112.6	4.6	4.6	◎	96.9	6.6	15.3	◎	94.4	9.4	12.6	◎
230	ピリフェノックス (E)	98.2	15.8	15.9	◎	97.2	20.4	20.4	◎	98.8	10.6	10.6	◎				
231	ピリフェノックス (Z)	101.2	10.9	13.7	◎	98.2	3.8	9.6	◎	106.6	10.4	10.4	◎	107.7	10.6	11.5	◎
232	ピリプチカルブ	82.3	9.0	9.1	◎	101.4	5.0	5.7	◎	95.5	9.9	12.9	◎	86.6	9.7	14.6	◎
233	ピリプロキシフェン	94.3	8.8	11.1	◎	111.0	5.8	5.8	◎	96.4	5.4	14.2	◎	94.9	13.5	23.6	◎
234	ピリミカーブ	87.1	8.7	15.8	◎	113.2	3.9	4.9	◎	97.8	14.8	17.7	◎	94.4	16.0	17.6	◎
235	ピリミジフェン	172.8	173.6	173.6		105.3	4.7	7.4	◎	104.0	5.3	8.5	◎	145.6	23.9	36.9	
236	ピリミノバックメチル (E)	81.3	20.8	20.8	◎	103.7	6.0	10.9	◎	89.0	8.0	16.4	◎	99.7	7.2	15.6	◎
237	ピリミノバックメチル (Z)	96.3	14.4	14.4	◎	104.0	5.1	6.8	◎	95.1	7.2	14.7	◎	110.5	14.4	14.4	◎
238	ピリミホスメチル	89.0	15.3	17.5	◎	100.4	7.9	9.7	◎	98.2	7.7	9.2	◎	86.7	7.7	10.7	◎
239	ピリメタニル	93.4	9.3	10.3	◎	107.5	6.7	6.7	◎	111.4	5.6	5.6	◎	94.5	3.8	5.3	◎
240	ピロキロン	81.7	9.7	12.0	◎	114.8	3.5	3.5	◎	106.9	2.4	4.8	◎	98.0	14.1	16.5	◎
241	ピンクロゾリン	102.1	13.2	13.4	◎	105.0	6.8	6.8	◎	106.7	6.0	8.8	◎	108.8	9.7	9.7	◎
242	ファモキサドン	84.7	10.9	32.7		116.7	14.2	14.2	◎	101.9	11.9	11.9	◎	103.9	10.8	20.1	◎
243	フィプロニル	81.6	11.5	11.5	◎	91.2	10.0	12.8	◎	83.7	7.5	7.5	◎	90.0	16.1	22.8	◎
244	フェナミホス																
245	フェナリモル	85.2	14.1	14.1	◎	111.6	4.4	7.4	◎	97.3	10.4	11.0	◎	113.3	4.9	6.7	◎
246	フェニトロチオン	83.2	16.7	16.7	◎	91.8	7.5	10.4	◎	100.5	10.3	14.5	◎	89.6	19.7	19.7	◎
247	フェノキサニル	76.4	16.7	32.8		116.8	17.2	22.2	◎	109.9	9.6	12.1	◎	122.0	14.2	17.4	
248	フェノキサプロップエチル	82.4	10.0	12.9	◎	95.9	7.3	12.0	◎	90.2	9.9	16.9	◎	80.5	5.8	13.0	◎
249	フェノチオカルブ	87.8	12.8	12.8	◎	96.8	10.6	11.8	◎	102.3	4.1	13.8	◎	94.3	5.6	8.0	◎
250	フェノトリン Ⅰ																
251	フェノトリン Ⅱ	91.7	10.1	12.3	◎												
252	フェノブカルブ	92.5	4.2	20.2	◎	100.7	3.1	6.9	◎	100.3	6.9	8.0	◎	100.1	5.2	5.2	◎
253	フェンクロルホス	96.9	7.0	15.4	◎	86.8	6.4	6.6	◎	94.5	4.5	13.5	◎	93.5	6.6	10.4	◎
254	フェンスルホチオン	89.5	13.5	14.1	◎	108.4	10.3	10.3	◎	94.4	9.2	9.3	◎	106.0	5.9	13.0	◎
255	フェンチオン	79.3	3.0	12.0	◎	84.1	7.8	8.4	◎	102.3	6.9	10.8	◎	100.5	4.6	6.5	◎
256	フェントエート	88.1	7.2	13.6	◎	115.2	2.7	3.8	◎	104.0	13.3	13.3	◎	84.4	12.7	12.7	◎
257	フェンバレレート Ⅰ	90.0	6.0	15.5	◎	96.1	5.7	7.1	◎	94.2	9.2	16.3	◎	88.4	8.8	9.3	◎
258	フェンバレレート Ⅱ	91.7	13.6	13.6	◎	106.0	3.3	3.9	◎	99.2	11.5	11.5	◎	92.0	12.6	12.6	◎
259	フェンブコナゾール	82.3	9.1	9.1	◎	104.7	6.3	9.6	◎	105.6	10.5	12.1	◎	103.5	7.4	10.1	◎
260	フェンプロパトリン	92.7	77.3	77.3		99.4	18.4	24.6	◎	91.8	11.2	11.2	◎	87.0	38.3	40.8	
261	フェンプロピモルフ	86.3	5.5	12.8	◎	94.3	6.4	7.5	◎	93.9	10.3	10.3	◎	48.0	19.3	29.8	
262	フェンヘキサミド	127.1	12.0	36.8		93.0	11.1	11.1	◎	94.2	13.6	15.0	◎	107.6	14.4	29.4	◎
263	フサライド	80.8	5.2	6.0	◎	105.0	6.8	6.8	◎	106.2	6.1	10.5	◎	100.6	4.5	5.4	◎
264	ブタクロール					103.2	8.3	9.6	◎	85.6	23.9	23.9	◎	122.1	15.6	34.5	
265	ブタミホス	98.8	12.6	12.6	◎	96.8	8.0	8.7	◎	93.1	11.0	14.6	◎	104.0	3.2	12.4	◎
266	ブチレート	93.7	11.0	11.0	◎	25.8	45.6	54.8		76.3	9.7	9.7	◎	77.7	6.4	6.4	◎
267	ブピリメート	91.8	14.5	14.5	◎	101.8	6.7	12.6	◎	90.7	12.5	16.0	◎	79.9	27.5	29.5	
268	ブプロフェジン					109.9	8.5	8.5	◎	80.5	29.6	40.3		88.6	16.7	28.1	◎
269	フラチオカルブ					93.3	7.6	20.3	◎	110.4	6.3	6.7	◎	79.8	9.9	12.4	◎
270	フラムプロップメチル	89.5	10.9	10.9	◎	95.0	6.8	11.2	◎	98.8	9.8	9.8	◎	102.5	5.8	16.9	◎
271	フラメトピル	81.6	15.3	15.3	◎	94.5	7.8	13.0	◎	100.2	13.6	15.1	◎	67.8	36.1	36.7	
272	フルアクリピリム	83.2	14.5	31.1		108.9	14.1	15.3	◎	109.5	42.3	74.2					
273	フルジオキソニル	77.1	7.8	7.8	◎	81.0	12.8	16.3	◎	91.4	11.7	13.9	◎	79.1	8.5	12.0	◎
274	フルシトリネート Ⅰ	102.0	9.3	10.9	◎	105.2	11.1	11.1	◎	91.4	8.8	13.0	◎	90.3	6.0	14.2	◎
275	フルシトリネート Ⅱ	91.7	5.8	17.1	◎	100.9	6.9	9.7	◎	107.4	7.0	9.3	◎	99.2	13.0	13.0	◎
276	フルシラゾール	89.9	6.9	11.5	◎	96.9	6.9	15.5	◎	101.2	8.1	11.9	◎	98.3	9.2	9.5	◎
277	フルトラニル	83.1	10.4	12.1	◎	104.5	8.2	10.3	◎	97.6	9.1	13.5	◎	96.1	7.7	13.3	◎
278	フルトリアホール					113.8	7.3	7.5	◎	133.6	49.7	52.2		90.9	7.6	18.3	◎
279	フルバリネート-tau-I	92.0	8.6	14.3	◎	95.4	7.3	8.9	◎	103.0	11.6	14.3	◎	89.2	10.5	14.8	◎
280	フルバリネート-tau-II	98.7	12.6	14.2	◎	102.4	6.6	14.5	◎	86.9	5.5	15.3	◎	91.6	12.3	13.6	◎
281	フルミオキサジン	99.8	13.1	13.1	◎	83.1	10.7	21.2		86.0	9.8	14.4	◎	104.1	7.7	20.9	◎
282	フルミクロラックペンチル																

表 4 妥当性評価試験（0.01mg/kg)　（続き）

No.	化合物名	玄米				キャベツ				トマト				温州ミカン			
		真度	精度		判定	真度	精度		判定	真度	精度		判定	真度	精度		判定
			併行	室内			併行	室内			併行	室内			併行	室内	
		(%)	(RSDr%)			(%)	(RSDr%)			(%)	(RSDr%)			(%)	(RSDr%)		
283	プレチラクロール	96.6	9.0	13.0	◎	115.3	3.9	4.1	◎	112.1	3.8	5.8	◎	85.6	9.5	15.0	◎
284	プロクロラズ	108.0	64.6	64.6		106.7	9.7	10.1	◎	100.6	11.1	17.2	◎	120.5	31.8	54.2	
285	プロシミドン	77.7	6.8	9.5	◎	100.3	4.4	16.0	◎	94.7	9.9	9.9	◎	102.3	5.0	13.5	◎
286	プロチオホス	87.1	13.8	13.8	◎	107.7	7.1	7.1	◎	91.2	5.6	8.9	◎	88.0	10.5	19.6	◎
287	プロパクロール	93.7	7.5	18.2	◎	104.1	7.5	9.5	◎	105.0	4.1	12.8	◎	102.5	5.7	7.7	◎
288	プロパニル	83.7	6.1	14.8	◎	102.7	7.5	10.9	◎	102.0	6.0	8.5	◎	99.8	3.1	3.2	◎
289	プロパホス	105.9	9.9	9.9	◎	96.6	12.5	18.6	◎	99.8	13.8	13.8	◎	106.2	10.6	12.3	◎
290	プロパモカルブ																
291	プロパルギット																
292	プロピコナゾール Ⅰ	105.8	12.2	12.2	◎					96.9	11.9	11.9	◎	101.2	13.2	16.0	◎
293	プロピコナゾール Ⅱ	97.9	15.0	18.3	◎	104.4	7.9	9.8	◎	89.0	4.5	18.0	◎	131.8	25.2	26.7	
294	プロピザミド	89.6	8.9	15.5	◎	104.0	3.3	9.8	◎	100.4	6.7	7.1	◎	90.2	4.5	6.7	◎
295	プロファム	86.9	7.3	15.7	◎	93.8	10.0	10.0	◎	108.4	7.1	7.2	◎	94.5	7.2	7.2	◎
296	プロフェノホス	92.2	11.2	17.3	◎	105.2	17.9	28.2	◎	115.0	23.1	33.2		98.9	14.2	14.7	◎
297	プロベナゾール																
298	プロポキスル	87.1	2.9	18.4	◎	108.5	4.8	5.5	◎	99.7	7.5	8.2	◎	97.7	3.8	3.8	◎
299	ブロマシル													71.8	11.6	21.3	◎
300	ブロメカルブ	87.4	4.0	9.8	◎	99.5	6.5	7.9	◎	106.3	10.1	10.1	◎	109.2	5.8	5.8	◎
301	ブロメトリン	89.0	13.2	17.3	◎	86.7	8.3	9.6	◎	94.1	10.1	14.2	◎	116.9	11.9	17.0	◎
302	ブロメトン	94.3	11.3	12.8	◎	89.9	9.0	9.0	◎	98.4	11.7	11.7	◎	107.7	6.7	7.9	◎
303	ブロモブチド	96.8	16.9	17.6	◎	95.9	6.1	11.6	◎	78.7	15.8	33.4		94.7	12.4	12.9	◎
304	ブロモブチド脱ブロモ体	89.8	4.6	17.6	◎	107.4	8.2	8.3	◎	95.2	5.9	16.7	◎	96.0	10.5	12.3	◎
305	ブロモプロピレート	91.3	19.0	19.0	◎	107.0	7.7	15.3	◎	97.4	8.6	20.8	◎	102.7	8.4	10.1	◎
306	ブロモホス	83.0	6.8	10.8	◎	96.3	3.4	8.3	◎	95.0	8.6	15.8	◎	88.0	6.6	13.7	◎
307	ブロモホスエチル	88.7	12.0	12.6	◎	91.8	10.0	10.0	◎	86.0	15.5	15.5	◎	96.9	10.1	10.1	◎
308	ヘキサクロロベンゼン	104.9	2.8	12.8	◎	78.1	7.3	7.3	◎	88.1	9.5	12.2	◎	89.6	4.1	4.1	◎
309	ヘキサコナゾール	88.7	11.6	11.6	◎	109.3	5.6	8.4	◎	111.7	9.3	9.3	◎	104.9	10.2	14.3	◎
310	ヘキサジノン	77.7	9.1	9.1	◎	57.3	10.6	20.0		58.0	14.0	18.9		56.2	25.5	25.5	
311	ヘキシチアゾックス	108.3	10.7	11.0		104.3	9.2	9.2	◎					100.6	40.8	40.8	
312	ベナラキシル	92.0	13.7	13.7	◎	86.6	10.5	15.4	◎	95.2	11.4	14.1	◎	101.1	15.1	16.4	◎
313	ペノキサコール	95.6	10.0	16.9	◎	102.2	8.7	9.0	◎	105.5	6.7	8.5	◎	96.3	3.4	9.3	◎
314	ヘプタクロル	89.2	8.9	14.2	◎	94.8	7.7	20.8	◎	84.1	8.3	13.7	◎	101.7	4.8	6.4	◎
315	ヘプタクロル Epo(cis)	94.7	13.3	13.7	◎	98.7	8.9	11.9	◎	99.3	12.1	12.9	◎	115.1	6.8	7.2	◎
316	ペルメトリン（cis）	96.3	8.9	11.2	◎	105.3	18.9	23.3	◎	89.1	12.0	12.0	◎	105.4	13.6	13.6	◎
317	ペルメトリン（trans）	101.3	9.1	12.6	◎	62.2	10.9	36.4		104.1	11.4	11.4	◎	105.0	10.7	22.5	◎
318	ペンコナゾール	88.2	7.2	14.0	◎	101.9	4.6	12.6	◎	106.5	9.5	9.5	◎	108.0	7.6	13.3	◎
319	ペンシクロン	72.9	2.8	4.8	◎	84.2	5.9	8.0	◎	80.2	8.7	9.9	◎	72.4	9.6	9.9	◎
320	ペンダイオカルブ	79.2	5.9	6.8	◎	113.0	3.2	4.2	◎	103.5	3.3	8.9	◎	93.8	9.7	10.9	◎
321	ペンディメタリン	105.2	8.8	11.5	◎	103.6	10.2	11.2	◎	102.0	12.1	12.1	◎	96.1	16.5	16.5	◎
322	ペンフラカルブ																
323	ペンフルラリン	113.6	9.7	9.7	◎	85.8	11.5	11.5	◎	87.4	9.0	16.1	◎	85.6	2.5	15.9	◎
324	ペンフレセート	89.5	14.7	17.1	◎	95.2	5.8	12.0	◎	108.7	7.7	8.3	◎	100.3	5.3	7.8	◎
325	ホサロン	102.3	26.1	26.1		118.2	22.6	22.6	◎	95.8	14.8	18.0	◎	88.1	14.8	14.8	◎
326	ボスカリド	96.9	7.9	19.5	◎	104.8	4.6	4.7	◎	93.0	8.4	9.4	◎	89.7	7.0	7.0	◎
327	ホスチアゼート Ⅰ																
328	ホスチアゼート Ⅱ																
329	ホスファミドン Ⅰ																
330	ホスファミドン Ⅱ					87.3	52.5	52.5		98.4	21.6	23.8	◎				
331	ホスメット	80.5	14.7	14.7	◎	106.9	7.1	7.7	◎	98.5	11.4	11.8	◎	88.4	7.1	12.7	◎
332	ホノホス	83.4	8.5	12.2	◎	83.9	7.5	8.7	◎	81.1	8.5	8.5	◎	84.7	7.1	13.6	◎
333	ホルペット	88.6	16.3	16.3	◎	83.6	9.0	14.4	◎	76.8	7.8	9.2	◎	68.4	10.6	22.2	
334	ホレート	94.7	11.4	13.7	◎	81.7	10.3	10.3	◎	52.1	31.1	67.3		95.3	13.5	14.3	◎
335	マラオキソン	97.9	6.9	18.2	◎	108.3	6.3	8.3	◎	108.1	8.4	9.8	◎	93.5	12.7	13.2	◎
336	マラチオン	87.1	10.3	10.3	◎	114.2	10.2	10.3	◎	103.0	6.3	12.3	◎	104.9	5.7	14.6	◎
337	ミクロブタニル	92.2	7.4	10.3	◎	111.7	4.9	4.9	◎	102.4	8.8	9.8	◎	105.3	9.9	9.9	◎
338	メタアルデヒド	44.2	34.6	58.4		85.3	17.0	17.0	◎	89.7	8.8	10.1	◎	79.0	8.1	9.7	◎
339	メタクリホス	114.8	3.9	4.4	◎	75.1	8.7	8.7	◎	87.4	14.8	14.8	◎	98.3	10.1	10.2	◎
340	メタベンズチアズロン	83.7	5.5	15.2	◎	108.0	3.1	10.2	◎	101.6	8.5	13.5	◎	105.6	10.2	10.2	◎
341	メタミドホス					19.2	3.2	30.0		7.9	13.3	26.1					
342	メタラキシル	104.4	17.9	26.5	◎	88.6	6.2	10.0	◎	101.8	7.7	16.1	◎	101.2	14.2	31.2	
343	メチオカルブ	94.0	5.8	18.0	◎	97.6	5.9	10.9	◎	108.5	8.9	11.6	◎	99.8	5.3	9.2	◎
344	メチダチオン	83.6	10.0	13.3	◎	100.6	5.2	5.2	◎	99.2	4.3	9.9	◎	88.1	11.7	11.7	◎
345	メチルダイムロン																
346	メトキシクロール	83.9	7.2	8.6	◎	113.9	3.8	3.8	◎	90.2	8.3	15.4	◎	111.9	5.1	18.4	◎
347	メトプレン Ⅰ																
348	メトプレン Ⅱ																
349	メトプロトリン	90.6	11.7	11.8	◎	83.2	20.1	24.0	◎	102.3	23.5	23.5	◎	88.6	44.5	44.5	
350	メトミノストロビン（E）	95.2	12.1	12.1	◎	97.4	8.5	13.1	◎	100.9	9.2	9.2	◎	90.0	17.5	19.7	◎
351	メトミノストロビン（Z）	99.8	7.1	10.6	◎	91.1	4.5	26.7	◎	98.9	10.9	12.5	◎	110.3	23.0	30.3	
352	メトラクロール	95.4	6.4	13.6	◎	113.0	3.3	4.9	◎	101.0	7.2	9.5	◎	97.1	3.3	12.5	◎
353	メトリブジン	81.3	8.9	12.7	◎	92.5	9.7	9.7	◎	94.1	5.8	13.3	◎	87.4	12.9	12.9	◎
354	メトルカルブ	90.9	5.2	21.2	◎	102.0	5.2	9.1	◎	93.4	11.4	11.4	◎	97.5	8.6	12.1	◎
355	メパニピリム					102.0	10.0	12.7	◎	90.9	6.9	13.0	◎	77.0	33.8	58.7	
356	メビンホス	53.9	9.2	45.5		99.9	7.2	9.2	◎	94.8	13.3	13.3	◎	96.5	10.1	10.1	◎
357	メフェナセット	84.5	14.7	14.7	◎	105.4	3.1	5.2	◎	92.6	10.5	10.5	◎	91.9	10.7	18.2	◎
358	メプロニル	92.5	10.2	11.2	◎	110.4	7.3	7.7	◎	103.4	8.4	8.9	◎	111.1	13.6	13.6	◎
359	モノクロトホス																
360	モリネート	97.5	7.5	20.6	◎	74.2	6.8	13.6	◎	102.1	7.7	12.9	◎	104.5	10.1	13.2	◎
361	リニュロン	114.1	11.9	21.3	◎	111.8	8.2	17.4	◎	102.9	11.4	13.3	◎	84.5	13.1	16.5	◎
362	レスメトリン Ⅰ																
363	レスメトリン Ⅱ																
364	レナシル	82.9	14.8	14.8	◎	60.9	6.1	7.6		54.6	7.3	15.6		57.8	13.1	13.1	
	目標達成成分数		252				274				274				256		

表 5 妥当性評価試験（0.1mg/kg）

No.	化合物名	玄米				キャベツ				トマト				温州ミカン			
		真度	精度		判定	真度	精度		判定	真度	精度		判定	真度	精度		判定
			併行	室内			併行	室内			併行	室内			併行	室内	
		(%)	(RSDr%)			(%)	(RSDr%)			(%)	(RSDr%)			(%)	(RSDr%)		
1	2,3,5-トリメタカルブ	86.1	6.9	7.0	◎	99.2	4.3	5.0	◎	102.6	2.2	2.8	◎	105.1	1.6	2.5	◎
2	2,4-ジクロロアニリン	86.7	9.6	17.7	◎	62.8	16.2	18.0		98.5	2.9	2.9	◎	115.4	2.0	2.0	◎
3	2,6-ジクロロベンザミド	39.9	15.2	15.9		27.4	9.1	9.1		29.9	4.8	4.8		26.8	3.7	5.6	
4	3,4,5-トリメタカルブ	85.5	6.2	6.2	◎	97.3	4.0	4.1	◎	102.4	1.9	1.9	◎	103.5	2.1	3.2	◎
5	BHC（α）	88.7	6.2	9.2	◎	87.3	6.8	9.9	◎	90.9	3.2	3.6	◎	99.4	1.7	3.3	◎
6	BHC（β）	95.9	2.9	5.3	◎	97.9	4.0	7.4	◎	87.4	6.1	6.1	◎	101.0	2.4	3.5	◎
7	BHC（γ）	89.2	2.9	10.6	◎	93.0	5.4	8.9	◎	95.5	3.4	3.9	◎	99.1	2.1	2.5	◎
8	BHC（δ）	52.8	22.2	27.3		87.6	2.1	6.2	◎	90.9	2.7	3.2	◎	86.7	3.6	5.4	◎
9	DDD (4,4')	110.2	3.6	3.6	◎	102.8	4.7	9.1	◎	95.5	3.6	3.6	◎	104.4	2.5	3.6	◎
10	DDE (4,4')	107.5	4.4	4.4	◎	105.3	5.6	10.7	◎	94.0	3.3	3.5	◎	100.8	3.7	3.9	◎
11	DDT (2,4')	110.2	3.6	3.6	◎	102.8	4.7	9.1	◎	95.5	3.6	3.6	◎	104.4	2.5	3.6	◎
12	DDT (4,4')	83.3	7.0	14.8	◎	84.1	9.8	20.0	◎	78.5	3.2	4.8	◎	101.9	4.2	4.2	◎
13	EPN	107.9	5.3	7.5	◎	98.9	8.0	8.0	◎	101.8	2.6	4.0	◎	105.1	3.6	5.5	◎
14	EPTC	95.0	4.8	12.2	◎	50.8	25.0	30.7		85.3	4.3	4.3	◎	96.1	4.6	6.6	◎
15	XMC	79.1	4.9	5.6	◎	98.5	5.0	5.7	◎	103.0	2.2	2.9	◎	105.8	1.4	3.5	◎
16	アクリナトリン	92.3	15.1	15.1		93.5	8.2	8.2	◎	95.7	5.4	6.8	◎	99.6	10.3	11.8	◎
17	アザコナゾール	85.0	8.1	8.1	◎	100.5	3.6	5.2	◎	99.0	1.6	3.4	◎	100.9	2.8	2.8	◎
18	アジンホスエチル	100.2	5.6	7.4	◎	97.5	6.3	9.7	◎	100.0	7.7	8.2	◎	102.9	3.9	4.8	◎
19	アジンホスメチル	88.1	6.2	6.3	◎	99.5	4.4	6.5	◎	98.0	5.0	6.7	◎	92.5	4.8	7.5	◎
20	アセタミプリド	34.3	10.9	17.3		7.7	20.6	29.1		8.3	14.8	15.8		3.3	17.3	26.4	
21	アセトクロール	100.3	9.2	9.5	◎	101.7	8.1	8.1	◎	106.1	4.7	6.0	◎	113.3	3.7	4.2	◎
22	アセフェート	33.6	24.6	28.3		4.4	11.0	11.0		3.1	30.5	30.5		4.0	11.7	29.9	
23	アゾキシストロビン	103.9	6.1	9.1	◎	97.7	6.7	11.7	◎	101.5	8.7	8.7	◎	98.9	4.3	7.8	◎
24	アトラジン	94.9	6.0	6.0	◎	106.9	4.7	5.5	◎	104.9	2.1	3.4	◎	106.1	3.1	5.7	◎
25	アニロホス	101.3	7.3	10.2	◎	100.0	2.4	7.9	◎	101.8	4.3	4.3	◎	101.5	4.8	5.1	◎
26	アミトラズ																
27	アミノカルブ	77.7	9.8	9.8	◎	72.4	7.8	7.8	◎	38.4	9.3	9.3		17.4	11.2	11.3	
29	アメトリン	99.0	8.1	12.6	◎	104.6	4.0	5.8	◎	105.2	4.5	4.5	◎	101.6	4.5	4.7	◎
30	アラクロール	103.5	6.2	6.5	◎	104.3	3.8	5.1	◎	106.4	3.1	3.5	◎	108.7	5.6	5.6	◎
31	アルドリン	102.5	5.1	5.1	◎	79.8	8.7	9.6	◎	84.6	5.6	5.6	◎	93.8	2.7	3.6	◎
32	アレスリン Ⅰ																
33	アレスリン Ⅱ																
34	アレスリン Ⅲ	86.1	7.5	7.5	◎	78.2	12.1	24.2		93.9	7.9	14.4	◎	94.6	3.9	12.7	◎
35	アレスリン Ⅳ					88.0	12.1	20.4		107.2	7.9	10.8	◎	101.5	7.3	8.8	◎
36	イサゾホス	89.1	8.7	12.8	◎	104.0	3.2	5.6	◎	105.2	5.8	6.6	◎	109.8	5.0	5.0	◎
37	イソカルボホス	88.2	12.7	21.7		100.4	11.1	11.1	◎	97.3	10.7	10.7	◎	99.5	12.6	14.8	◎
38	イソキサチオン	94.7	7.3	9.0	◎	96.2	7.6	13.3	◎	94.4	3.6	6.5	◎	105.7	5.8	9.0	◎
39	イソキサチオンオキソン					94.4	18.1	19.3		86.5	11.1	11.5	◎	106.2	7.6	9.0	◎
40	イソフェンホス	99.3	4.0	5.2	◎	103.9	6.3	10.1	◎	101.1	2.5	4.6	◎	104.2	2.6	2.6	◎
41	イソフェンホスオキソン	94.0	9.8	10.5	◎	103.2	4.3	5.7	◎	104.6	3.1	3.1	◎	100.7	2.9	3.7	◎
42	イソプロカルブ	86.2	5.8	10.0	◎	97.8	3.7	5.2	◎	101.0	2.1	2.1	◎	105.8	1.1	1.7	◎
43	イソプロチオラン	98.3	9.9	9.9	◎	99.1	6.7	7.4	◎	108.9	5.3	6.8	◎	106.5	4.9	8.9	◎
44	イソプロパリン	104.3	6.4	6.4	◎	96.4	6.7	8.8	◎	94.6	4.5	4.5	◎	104.1	5.1	5.1	◎
45	イナベンフィド																
46	イプロジオン	97.2	11.5	17.3	◎	97.8	8.8	11.7	◎	100.2	5.2	5.7	◎	98.6	5.2	13.4	◎
47	イプロジオン代謝物	98.5	10.7	19.5	◎	108.6	11.0	11.4	◎	90.6	7.5	9.9	◎	100.9	9.6	10.7	◎
48	イプロベンホス	97.5	5.3	6.3	◎	100.6	4.0	7.2	◎	105.3	4.3	4.3	◎	105.2	1.8	3.1	◎
49	イマザメタベンズメチルエステル Ⅰ	87.6	8.6	11.6	◎	83.7	5.0	13.2	◎	102.7	6.0	14.9	◎	66.2	11.5	13.5	
50	イマザメタベンズメチルエステル Ⅱ	89.9	13.2	13.2	◎	84.5	9.6	17.4	◎					55.9	5.7	48.0	
51	イマザリル																
52	イミベンコナゾール	103.7	3.5	9.9	◎	98.8	4.8	8.0	◎	64.9	8.9	21.2		34.2	69.6	69.6	
53	イミベンコナゾール脱ベンジル体	64.2	7.1	14.0		52.9	16.4	16.4		75.9	8.1	10.8	◎	70.9	12.4	15.2	◎
54	インドキサカルブ	101.6	3.8	3.8	◎	101.8	5.5	10.0	◎	97.4	1.8	3.4	◎	100.4	2.7	3.1	◎
55	ウニコナゾール p	83.3	10.1	10.1	◎	105.9	10.4	11.1	◎	100.5	4.6	6.6	◎	97.7	6.4	6.4	◎
56	エスプロカルブ	98.4	7.5	11.0	◎	101.7	4.1	4.5	◎	94.5	4.6	4.6	◎	102.0	2.1	2.4	◎
57	エチオフェンカルブ	49.4	30.5	30.5		92.1	5.5	7.6	◎	98.9	2.7	5.0	◎	100.9	3.3	3.6	◎
59	エチオン	104.5	4.9	5.2	◎	101.4	4.5	8.2	◎	100.3	2.8	4.4	◎	107.4	4.9	4.9	◎
60	エチクロゼート	81.6	8.4	8.4	◎	81.7	7.4	7.4	◎	92.1	4.5	7.6	◎	87.0	6.8	8.0	◎
61	エディフェンホス	91.0	7.4	9.8	◎	99.5	7.3	8.1	◎	103.4	4.3	4.3	◎	99.4	3.7	4.6	◎
62	エトキサゾール																
63	エトフェンプロックス	102.8	3.7	3.7	◎	99.9	4.7	7.0	◎	94.2	3.6	3.6	◎	99.2	3.0	3.9	◎
64	エトフメセート	98.5	4.5	6.4	◎	100.0	5.3	6.4	◎	104.7	4.1	4.1	◎	104.8	2.5	3.2	◎
65	エトプロホス	86.2	4.8	9.7	◎	98.5	3.6	5.0	◎	104.1	3.4	3.4	◎	108.7	2.5	3.6	◎
66	エトベンザニド	104.3	4.0	4.0	◎	99.7	5.6	7.2	◎	98.9	4.3	4.3	◎	102.6	6.9	6.9	◎
67	エトリジアゾール	87.5	9.1	9.1	◎	52.5	24.2	27.5		84.1	4.2	4.2	◎	92.9	2.6	4.8	◎
68	エトリムホス	99.6	6.0	16.0	◎	101.8	6.4	6.5	◎	103.0	6.5	6.5	◎	104.7	7.5	7.5	◎
69	エンドスルファン（α）	99.2	4.6	4.6	◎	97.8	5.5	7.2	◎	95.8	4.5	4.5	◎	102.8	2.4	2.4	◎
70	エンドスルファン（β）	101.8	3.9	7.1	◎	100.3	4.4	5.8	◎	98.3	4.7	4.7	◎	99.0	2.4	2.4	◎
71	エンドスルファンサルフェート	97.4	3.5	4.8	◎	96.6	4.6	5.8	◎	98.6	1.2	2.5	◎	99.2	4.1	4.1	◎
72	エンドリン	102.2	10.0	10.1	◎	100.5	4.1	7.3	◎	88.5	8.1	8.1	◎	93.9	6.6	6.6	◎
73	オキサジアゾン	103.5	5.5	5.5	◎	98.3	5.3	5.8	◎	99.1	1.3	1.8	◎	103.5	1.6	3.9	◎
74	オキサジキシル	75.7	9.8	9.8	◎	59.3	9.8	9.8		73.5	5.3	5.3	◎	63.6	6.1	6.7	
75	オキサジクロメホン	107.3	4.9	10.8	◎	94.7	8.5	8.5	◎	97.2	5.2	7.7	◎	107.3	5.8	6.4	◎
76	オキシフルオルフェン	104.7	7.3	9.8	◎	97.0	4.9	9.3	◎	102.9	7.7	8.5	◎	96.5	11.7	11.7	◎
77	オルトフェニルフェノール	79.2	7.8	8.5	◎	88.8	5.0	6.5	◎	102.9	1.9	2.2	◎	105.5	2.1	4.1	◎
78	カズサホス	91.5	7.2	14.7	◎	96.8	4.7	6.1	◎	102.2	3.0	3.0	◎	104.5	2.0	2.5	◎
79	カフェンストロール	91.9	9.0	16.7	◎	94.0	5.2	7.6	◎	112.3	4.1	4.8	◎	101.9	5.9	10.5	◎
80	カプタホール									44.5	23.8	34.6		31.8	30.3	33.0	
81	カルバリル	76.7	6.8	7.0	◎	99.4	3.7	5.4	◎	100.8	2.2	2.7	◎	102.0	1.7	3.1	◎
83	カルフェントラゾンエチル	106.8	8.9	10.3	◎	96.2	4.1	7.7	◎	104.3	2.3	5.1	◎	105.8	5.6	5.6	◎
84	カルプロパミド	96.9	7.4	9.9	◎	95.7	5.1	5.9	◎	85.2	7.0	10.7	◎	104.1	3.3	11.1	◎
85	カルベタミド	72.4	3.3	3.3	◎	29.3	12.0	12.0		29.1	13.4	13.4		22.4	8.0	12.4	
86	カルボキシン	48.4	29.5	29.5		80.6	10.3	11.4	◎	103.5	5.6	7.7	◎	99.4	4.9	6.5	◎
87	カルボスルファン					27.6	64.4	80.4									
88	カルボフラン	80.8	7.0	7.0	◎	110.6	6.5	6.6	◎	148.5	4.4	4.9		131.5	2.3	11.1	
90	キシリルカルブ	75.6	7.5	7.5	◎	99.6	4.5	5.5	◎	101.6	3.0	3.3	◎	106.9	2.7	3.7	◎
91	キナルホス	100.1	4.7	4.7	◎	100.0	3.9	6.5	◎	98.1	2.4	3.7	◎	101.6	3.1	3.2	◎
92	キノキシフェン	107.7	4.2	4.2	◎	101.9	4.1	6.5	◎	98.5	2.2	2.8	◎	99.0	4.2	5.1	◎
93	キノクラミン	65.0	9.7	16.1		99.3	4.8	5.3	◎	102.0	2.8	3.2	◎	98.5	1.4	2.9	◎
94	キノメチオナート	84.1	5.8	5.8	◎	85.1	8.3	9.9	◎	104.4	3.0	3.0	◎	103.1	3.4	3.4	◎
95	キャプタン	32.5	26.3	26.3		50.3	21.4	28.0		51.6	19.0	24.5		44.5	37.6	38.1	
97	キントゼン	97.3	4.5	8.2	◎	81.4	7.6	10.4	◎	88.6	4.9	5.0	◎	99.6	2.8	3.0	◎
98	クミルロン	96.4	9.3	23.1		106.7	10.4	11.7	◎	124.3	12.3	25.1		105.6	7.3	9.1	◎
99	クレソキシムメチル	105.5	4.5	8.4	◎	100.7	3.5	9.7	◎	103.4	5.0	5.2	◎	103.1	3.5	6.4	◎

表 5 妥当性評価試験（0.1mg/kg）（続き）

No.	化合物名	玄米				キャベツ				トマト				温州ミカン			
		真度	精度		判定	真度	精度		判定	真度	精度		判定	真度	精度		判定
			併行	室内			併行	室内			併行	室内			併行	室内	
		(%)	(RSDr%)			(%)	(RSDr%)			(%)	(RSDr%)			(%)	(RSDr%)		
100	クロマゾン	90.9	7.5	13.0	◎	101.3	4.7	5.6	◎	105.5	2.7	3.2	◎	110.3	1.5	2.2	◎
101	クロメトキシニル	115.4	5.8	8.3	◎	98.9	4.6	10.2	◎	96.3	6.8	7.0	◎	106.1	7.6	11.4	◎
102	クロリダゾン	10.8	22.8	30.8													
103	クロルタールジメチル	99.6	4.5	9.6	◎	97.4	3.9	4.7	◎	100.4	1.1	2.1	◎	104.5	2.3	2.3	◎
104	クロルピリホス	110.3	5.8	6.5	◎	100.2	4.0	4.3	◎	102.9	3.1	5.7	◎	107.4	2.3	3.8	◎
105	クロルピリホスメチル	100.0	3.7	7.5	◎	97.0	4.5	5.0	◎	101.6	2.8	3.6	◎	104.7	2.2	2.2	◎
106	クロルフェナピル	101.8	9.4	9.4	◎	98.8	8.1	8.1	◎	92.6	6.1	7.3	◎	104.7	9.4	9.4	◎
107	クロルフェンビンホス（α）(E)	91.5	12.7	14.8	◎	96.7	2.9	10.6	◎	96.7	12.6	12.6	◎	100.9	4.5	7.2	◎
108	クロルフェンビンホス（β）(Z)	92.4	5.8	6.6	◎	99.4	4.7	5.6	◎	101.2	3.2	4.3	◎	101.3	4.8	5.1	◎
109	クロルプロファム	88.6	6.8	11.8	◎	96.0	3.4	4.2	◎	99.0	2.1	2.7	◎	105.0	4.6	6.5	◎
110	クロロタロニル									37.9	20.1	32.0					
111	クロロニトロフェン	105.4	5.7	7.2	◎	99.3	6.2	8.8	◎	98.1	4.4	6.2	◎	103.6	5.5	5.5	◎
112	クロロネブ	89.6	5.8	10.0	◎	77.4	10.0	12.2	◎	97.5	3.4	3.6	◎	100.9	2.7	2.9	◎
113	クロロベンジレート	102.7	5.1	6.9	◎	103.4	5.3	6.2	◎	97.5	2.1	2.1	◎	101.3	1.4	2.8	◎
114	サイネピリン 1	96.2	6.1	6.1	◎	100.1	3.8	4.5	◎	96.1	3.0	6.7	◎	94.9	4.3	4.6	◎
115	サイネピリン 2	100.7	4.4	5.6	◎	97.6	4.9	6.1	◎	93.3	3.4	4.2	◎	98.8	3.4	5.6	◎
116	シアナジン	85.8	9.0	18.4	◎	96.9	5.3	8.9	◎	107.2	7.3	7.3	◎	91.5	7.8	8.7	◎
117	シアノフェンホス	108.8	7.4	7.4	◎	107.3	4.4	6.0	◎	108.7	4.9	5.8	◎	116.2	4.0	4.3	◎
118	シアノホス	91.5	6.9	12.3	◎	101.6	4.5	6.0	◎	104.5	1.9	2.6	◎	106.9	2.2	2.3	◎
119	ジエトフェンカルブ	93.0	5.8	8.1	◎	97.9	5.1	6.8	◎	100.5	4.9	4.9	◎	102.8	5.9	5.9	◎
120	ジオキサカルブ	59.7	13.5	21.3		81.5	3.6	4.9	◎	14.7	139.3	139.3					
122	ジオキサベンゾホス	84.5	5.8	13.3	◎	95.2	4.7	6.1	◎	101.6	2.5	2.5	◎	106.5	1.5	2.4	◎
123	シクロエート	94.1	3.8	14.7	◎	87.6	7.2	9.3	◎	96.3	2.1	2.2	◎	102.6	1.8	2.2	◎
124	ジクロシメット Ⅰ	97.0	5.9	6.3	◎	103.5	5.6	5.6	◎	102.7	5.8	5.8	◎	100.7	4.6	5.2	◎
125	ジクロシメット Ⅱ	95.6	5.0	5.0	◎	98.1	5.1	6.2	◎	94.6	4.2	4.6	◎	101.7	5.1	5.1	◎
126	ジクロフェンチオン	99.3	5.9	16.2	◎	96.6	4.5	5.4	◎	94.7	2.4	4.0	◎	102.9	2.2	2.9	◎
127	ジクロフルアニド	49.4	12.7	13.2		23.1	46.0	58.9		74.5	10.4	10.5	◎	48.5	26.8	33.5	
128	ジクロベニル	84.2	5.5	10.2	◎	49.5	23.0	27.0		90.7	3.9	3.9	◎	97.0	4.7	6.0	◎
129	ジクロホップメチル	93.9	5.7	9.1	◎	96.4	6.2	6.2	◎	100.5	3.8	3.8	◎	103.5	3.0	5.0	◎
130	ジクロラン	80.5	7.2	8.2	◎	98.2	5.9	6.5	◎	102.0	2.3	2.4	◎	101.8	1.9	2.7	◎
131	ジクロルボス	8.8	10.2	34.8		91.9	6.6	7.6	◎	95.2	3.1	3.4	◎	101.7	2.0	2.9	◎
132	ジコホール									31.4	4.4	54.6					
134	ジスルホトン	84.5	4.9	9.8	◎	71.1	6.9	11.1	◎	92.1	5.5	7.0	◎	105.2	1.6	3.4	◎
135	ジチオピル	99.4	6.3	8.2	◎	96.9	4.1	5.3	◎	93.8	2.6	3.1	◎	97.6	2.8	2.8	◎
136	シハロトリン（γ）	109.2	7.9	7.9	◎	98.5	11.0	11.0	◎	100.1	12.3	12.3	◎	103.8	7.4	10.5	◎
137	シハロトリン（λ）	108.2	11.4	13.5	◎	99.8	6.8	8.1	◎	99.2	5.4	5.8	◎	98.5	7.7	11.6	◎
138	シハロホップブチル	98.4	8.2	8.2	◎	97.1	4.9	6.9	◎	99.1	3.0	3.0	◎	100.6	6.0	6.0	◎
139	ジフェナミド	94.0	12.9	13.2	◎	102.6	7.0	8.9	◎	101.0	5.8	7.5	◎	105.7	4.6	5.9	◎
140	ジフェニル	88.7	5.0	11.8	◎	40.0	33.9	39.5		62.6	10.2	10.2		77.0	5.9	9.6	◎
141	ジフェニルアミン	81.3	5.7	7.0	◎	52.9	11.2	17.1		93.3	2.1	3.3	◎	100.6	1.8	2.5	◎
142	ジフェノコナゾール Ⅰ	101.2	6.0	8.5	◎	100.8	8.1	8.4	◎	97.7	3.4	5.1	◎	100.4	5.5	5.5	◎
143	ジフェノコナゾール Ⅱ	98.9	5.4	5.8	◎	103.3	5.9	7.5	◎	98.5	4.0	5.0	◎	103.1	2.4	3.9	◎
144	ジフェンゾコート																
145	シフルトリン Ⅰ	105.9	6.9	7.8	◎	102.5	6.6	7.8	◎	94.6	5.0	6.1	◎	101.4	5.4	5.5	◎
146	シフルトリン Ⅱ	103.4	4.6	4.6	◎	99.3	5.2	7.3	◎	95.0	2.0	6.3	◎	102.3	4.1	6.1	◎
147	シフルトリン Ⅲ	104.2	7.2	13.4	◎	100.1	4.4	7.7	◎	95.1	5.3	6.5	◎	105.7	8.8	12.5	◎
148	シフルトリン Ⅳ	111.5	8.3	8.3	◎	103.3	12.2	29.1		93.2	4.0	6.5	◎	102.8	7.5	10.1	◎
149	ジフルフェニカン	101.8	6.7	6.7	◎	96.0	5.6	7.5	◎	102.2	3.4	4.0	◎	100.9	6.5	6.5	◎
150	シフルメトフェン	73.4	6.2	6.2	◎	76.3	4.1	8.0	◎	85.5	1.8	4.5	◎	75.5	4.1	4.1	◎
151	シプロコナゾール Ⅰ	88.9	7.6	8.6	◎	106.0	5.4	7.2	◎	103.6	3.3	5.7	◎	100.1	2.4	4.4	◎
152	シプロコナゾール Ⅱ	91.6	3.5	7.6	◎	105.6	6.5	7.5	◎	99.3	4.0	4.8	◎	102.6	3.8	5.5	◎
153	シプロジニル	96.0	4.9	4.9	◎	97.7	5.6	6.2	◎	99.4	2.1	3.0	◎	99.7	1.9	3.2	◎
154	シペルメトリン Ⅰ	96.5	5.3	6.6	◎	99.8	7.6	10.4	◎	100.1	7.0	7.0	◎	101.6	7.5	10.5	◎
155	シペルメトリン Ⅱ	107.2	6.9	6.9	◎	96.0	6.7	6.7	◎	99.6	5.8	5.8	◎	96.2	7.8	8.0	◎
156	シペルメトリン Ⅲ	101.6	3.6	9.9	◎	99.8	9.2	9.2	◎	105.2	4.9	6.4	◎	112.9	6.0	6.8	◎
157	シペルメトリン Ⅳ	100.9	7.2	11.6	◎	94.7	20.5	20.5		99.9	5.7	6.3	◎	102.6	8.7	8.7	◎
158	シマジン	86.4	6.8	10.9	◎	104.2	5.5	7.5	◎	106.0	4.7	5.8	◎	100.7	5.9	5.9	◎
159	ジメタメトリン	100.6	5.1	6.9	◎	106.5	5.9	8.3	◎	104.6	2.7	2.9	◎	105.2	3.6	4.4	◎
160	ジメチピン	53.0	20.0	20.4		100.1	4.8	5.8	◎	102.5	4.4	4.4	◎	104.0	3.3	4.4	◎
161	ジメチルビンホス (E)	92.5	7.0	7.0	◎	98.9	4.3	5.2	◎	102.3	1.6	1.6	◎	103.7	1.0	1.3	◎
162	ジメチルビンホス (Z)	91.1	5.6	5.6	◎	100.7	4.1	6.6	◎	103.2	2.3	2.6	◎	102.4	1.6	3.4	◎
163	ジメテナミド	95.9	4.3	4.3	◎	102.8	4.9	8.0	◎	102.1	2.6	2.7	◎	102.9	1.8	2.8	◎
164	ジメトエート	53.0	18.0	19.3		86.3	6.1	7.7	◎	88.3	3.2	4.7	◎	83.3	2.9	3.8	◎
165	ジメトモルフ (E)	98.3	6.8	12.1	◎	96.9	7.6	11.0	◎	111.0	2.3	7.0	◎	93.2	5.3	11.7	◎
166	ジメトモルフ (Z)	93.2	5.4	7.6	◎	96.2	3.6	6.2	◎	101.6	5.8	6.6	◎	92.7	5.4	6.9	◎
167	シメトリン	93.4	4.2	6.3	◎	104.2	4.4	6.3	◎	105.3	4.7	4.7	◎	75.6	4.6	7.3	◎
168	ジメピペレート	98.9	4.0	7.0	◎	106.1	5.5	7.7	◎	103.3	2.3	2.5	◎	103.4	4.6	6.0	◎
169	シラフルオフェン	108.6	5.0	5.7	◎	102.5	3.9	7.4	◎	103.9	5.2	5.2	◎	109.3	4.6	4.7	◎
170	シンメチリン	95.4	10.3	12.5	◎	111.7	2.8	7.4	◎	92.9	11.1	11.3	◎	99.2	9.7	9.7	◎
171	スゥエップ	93.8	3.8	6.5	◎	107.0	4.3	9.6	◎	102.7	2.0	2.8	◎	103.8	2.7	2.9	◎
172	スルプロホス	99.1	6.7	7.3	◎	74.3	8.0	15.6	◎	97.7	6.2	6.2	◎	102.3	5.8	5.8	◎
173	セクブメトン	88.4	6.1	14.4	◎	101.8	7.1	13.0	◎	96.1	8.2	11.4	◎	89.8	13.0	13.0	◎
174	ターバシル	80.9	8.6	8.6	◎	92.2	8.7	8.7	◎	95.5	3.2	3.7	◎	95.6	4.5	4.9	◎
175	ダイアジノン	97.5	7.8	11.5	◎	100.9	5.6	6.6	◎	105.3	8.2	8.2	◎	105.3	6.3	6.3	◎
176	ダイムロン																
177	チアベンダゾール	19.0	24.1	24.6		6.5	28.8	30.1		5.8	11.9	24.5		1.6	82.6	82.6	
178	チアメトキサム	15.5	47.8	47.8													
179	チオベンカルブ	102.9	6.5	6.7	◎	101.1	5.2	8.9	◎	95.5	4.2	6.8	◎	103.1	4.5	7.7	◎
180	チオメトン	81.7	7.3	8.8	◎	70.4	8.2	12.3	◎	95.0	4.3	4.3	◎	105.5	1.7	2.6	◎
181	チフルザミド	102.0	7.3	7.3	◎	96.6	4.9	5.7	◎	98.1	2.4	6.0	◎	106.1	3.6	3.8	◎
182	ディルドリン	96.1	5.4	5.4	◎	97.1	5.1	7.7	◎	96.0	6.3	7.0	◎	100.0	4.7	9.1	◎
183	テクナゼン	95.8	6.8	10.2	◎	68.6	11.6	13.9		84.8	4.2	4.3	◎	97.6	2.6	3.2	◎
184	テクロフタラム	53.5	4.9	5.5		42.1	8.4	9.0		49.8	3.9	5.2		76.2	2.4	5.9	◎
185	デスメトリン	95.8	3.5	9.2	◎	102.4	4.6	6.1	◎	100.0	5.4	5.4	◎	79.6	7.0	8.1	◎
186	テトラクロルビンホス	93.2	7.3	7.8	◎	99.9	4.9	8.4	◎	101.1	3.7	4.5	◎	100.4	3.2	3.5	◎
187	テトラコナゾール	95.0	5.5	6.4	◎	98.4	8.0	8.0	◎	98.9	4.1	5.0	◎	103.6	4.1	4.1	◎
188	テトラジホン	106.8	3.4	6.2	◎	101.2	6.8	7.0	◎	97.9	2.0	3.4	◎	102.8	7.1	7.1	◎
189	テトラメトリン Ⅰ	92.2	5.9	9.7	◎	106.8	12.8	18.2	◎	97.1	7.8	9.2	◎	103.7	10.0	13.1	◎
190	テトラメトリン Ⅱ	99.8	6.1	7.6	◎	100.4	4.0	9.1	◎	110.5	5.9	7.9	◎	100.9	6.2	6.2	◎
191	テニルクロール	102.7	9.3	9.3	◎	99.6	6.1	7.7	◎	104.7	5.5	12.3	◎	111.0	4.7	5.7	◎
192	テブコナゾール	93.6	6.2	9.1	◎	104.7	6.3	9.3	◎	110.4	3.8	4.7	◎	103.4	6.4	6.4	◎
193	テブフェンピラド	96.3	8.3	8.3	◎	101.1	6.5	9.2	◎	98.0	4.9	5.6	◎	100.9	6.1	6.3	◎
194	テフルトリン	95.2	5.1	9.4	◎	83.6	6.1	6.6	◎	88.9	2.3	3.1	◎	96.6	3.4	3.8	◎
195	デルタメトリン	107.2	10.4	10.4	◎	96.2	8.3	10.3	◎	94.0	4.4	5.9	◎	100.4	5.4	8.2	◎

表 5 妥当性評価試験（0.1mg/kg）（続き）

No.	化合物名	玄米				キャベツ				トマト				温州ミカン			
		真度	精度		判定	真度	精度		判定	真度	精度		判定	真度	精度		判定
			併行	室内			併行	室内			併行	室内			併行	室内	
		(%)	(RSDr%)			(%)	(RSDr%)			(%)	(RSDr%)			(%)	(RSDr%)		
196	テルブカルブ	100.4	6.3	7.1	◎	99.9	5.1	5.5	◎	98.6	4.5	4.8	◎	105.8	2.8	3.1	◎
197	テルブトリン	100.0	9.7	11.7	◎	110.4	4.7	7.4	◎	103.5	3.8	4.2	◎	103.9	5.0	5.0	◎
198	テルブホス	96.5	4.9	13.0	◎	87.0	5.8	8.2	◎	94.8	4.8	5.1	◎	104.3	2.7	3.0	◎
199	テルブメトン	96.1	10.1	10.1	◎	109.7	2.6	6.0	◎	97.7	9.5	9.5	◎	90.4	8.7	11.0	◎
200	トラルコキシジム	82.4	8.9	8.9	◎	144.3	32.2	32.2		210.5	22.6	27.8		203.9	24.3	24.3	
201	トリアジメノール Ⅰ	87.7	6.9	14.8	◎	97.9	7.5	16.7	◎	91.6	7.6	16.8	◎	105.3	7.5	7.9	◎
202	トリアジメノール Ⅱ	98.6	12.1	12.1	◎	88.1	17.3	19.3		95.4	5.8	8.5	◎	109.3	7.5	7.5	◎
203	トリアジメホン	97.7	8.7	8.7	◎	97.6	3.5	5.7	◎	104.7	6.7	6.7	◎	101.4	10.8	10.8	◎
204	トリアゾホス	98.4	6.5	6.5	◎	105.6	5.6	8.0	◎	108.3	2.7	6.6	◎	107.1	6.0	8.0	◎
205	トリアレート	97.4	7.9	13.1	◎	93.0	4.2	5.5	◎	90.0	2.6	2.7	◎	101.4	1.8	2.0	◎
206	トリシクラゾール	44.8	27.3	30.4		12.3	16.4	16.4		16.0	22.0	23.8		10.8	7.0	7.0	
207	トリブホス	96.7	6.2	11.9	◎	100.9	9.6	9.6	◎	96.5	10.0	10.0	◎	104.5	4.5	5.3	◎
208	トリフルミゾール	93.5	4.9	6.5	◎	100.3	5.2	6.2	◎	94.1	5.1	7.9	◎	84.4	7.9	9.4	◎
209	トリフルミゾール代謝物	85.5	3.6	7.3	◎	99.0	6.5	6.7	◎	90.7	5.4	5.9	◎	40.9	11.0	13.3	
210	トリフルラリン	100.6	8.0	9.2	◎	77.7	6.0	8.7	◎	83.3	5.6	6.1	◎	102.0	5.2	5.2	◎
211	トリフロキシストロビン	100.8	6.7	6.7	◎	98.7	2.6	6.8	◎	95.0	8.0	8.0	◎	100.8	2.1	3.5	◎
212	トルクロホスメチル	98.0	4.3	11.0	◎	102.7	2.4	5.3	◎	97.4	3.0	3.5	◎	105.0	2.3	2.5	◎
213	トルフェンピラド	99.8	8.4	8.4	◎	100.7	7.7	9.9	◎	98.7	6.8	6.8	◎	102.9	8.8	8.8	◎
214	ナプロアニリド	95.6	5.2	8.5	◎	97.8	5.3	5.4	◎	96.2	7.6	7.6	◎	98.1	5.9	6.7	◎
215	ナプロパミド	99.6	8.4	9.9	◎	104.9	3.9	10.0	◎	103.8	3.9	6.2	◎	103.8	6.9	9.2	◎
216	ニトラリン	99.4	10.1	10.1	◎	95.3	18.8	18.8		102.6	4.3	8.6	◎	107.5	8.9	8.9	◎
217	ニトロタールイソプロピル	100.5	6.5	6.5	◎	97.1	5.3	5.7	◎	97.5	3.2	3.9	◎	101.3	2.4	2.7	◎
218	ノルフルラゾン	85.5	7.2	7.2	◎	93.3	4.8	6.5	◎	97.6	2.2	4.2	◎	94.2	3.6	5.8	◎
219	パクロブトラゾール	94.1	6.7	7.5	◎	100.0	4.1	7.5	◎	102.9	3.7	4.8	◎	100.9	6.9	6.9	◎
220	パミドチオン	29.9	28.7	36.9		17.8	23.1	37.0									
221	パラチオン	109.0	6.3	7.0	◎	100.6	3.8	8.6	◎	102.1	2.1	3.3	◎	97.7	4.0	6.1	◎
222	パラチオンメチル	91.8	5.4	8.2	◎	99.6	4.5	6.4	◎	101.5	2.4	2.6	◎	105.5	3.1	3.1	◎
223	ハルフェンプロックス	102.4	4.7	9.1	◎	94.0	5.1	6.0	◎	91.5	1.7	4.7	◎	95.4	4.4	6.4	◎
224	ビテルタノール Ⅰ	79.0	10.5	10.5	◎	94.2	5.1	6.3	◎	96.9	1.9	2.5	◎	99.8	3.9	3.9	◎
225	ビテルタノール Ⅱ	78.6	45.8	45.8		82.1	13.6	16.2	◎	108.9	20.2	20.2		100.8	13.8	13.8	◎
226	ビフェナゼート	57.4	21.0	34.8		65.3	13.9	17.6		56.5	13.4	36.4		109.2	16.2	20.7	
227	ビフェノックス	103.2	7.0	14.7	◎	90.4	7.6	7.6	◎	101.0	7.5	9.2	◎	100.8	10.1	17.9	◎
228	ビフェントリン	101.8	7.0	7.0	◎	100.3	2.7	7.6	◎	91.5	3.9	4.4	◎	94.1	3.6	9.3	◎
229	ピペロニルブトキシド	98.9	9.6	9.6	◎	98.9	7.1	8.2	◎	97.4	5.2	6.7	◎	96.3	5.8	8.2	◎
230	ピペロホス	105.7	11.3	11.3	◎	97.0	9.5	10.6	◎	104.8	9.4	10.1	◎	104.0	6.6	6.6	◎
231	ピラクロホス	102.7	5.3	8.5	◎	101.6	4.9	7.0	◎	101.4	4.8	5.6	◎	98.2	3.2	4.6	◎
232	ピラゾキシフェン	113.0	40.5	40.5		130.6	30.7	35.1									
233	ピラゾホス	98.4	11.3	13.2	◎	98.3	5.3	8.2	◎	102.5	10.4	10.4	◎	104.7	6.5	6.5	◎
234	ピラフルフェンエチル	104.0	6.3	8.3	◎	94.2	4.3	8.7	◎	106.2	7.0	7.4	◎	105.8	6.1	6.1	◎
235	ピリダフェンチオン	92.2	8.8	12.8	◎	97.0	9.4	9.4	◎	97.2	6.9	6.9	◎	99.8	7.1	7.1	◎
236	ピリダベン	103.2	3.6	7.9	◎	99.4	5.3	6.9	◎	103.1	3.1	3.1	◎	103.3	2.0	2.9	◎
237	ピリフェノックス (E)	100.6	6.6	7.3	◎	101.7	6.2	6.2	◎	102.6	3.6	4.0	◎	104.3	7.6	7.7	◎
238	ピリフェノックス (Z)	93.3	7.2	8.7	◎	100.7	4.6	9.0	◎	101.3	3.0	6.8	◎	104.1	4.1	4.1	◎
239	ピリプチカルブ	100.6	3.0	7.5	◎	97.5	3.4	7.1	◎	98.7	2.2	3.4	◎	104.8	2.9	3.4	◎
240	ピリプロキシフェン	101.8	5.1	5.1	◎	101.3	4.9	7.2	◎	98.6	2.2	2.9	◎	101.4	4.4	6.1	◎
241	ピリミカーブ	86.5	7.5	7.5	◎	106.1	2.5	6.7	◎	105.6	4.3	4.3	◎	106.0	5.2	5.6	◎
242	ピリミジフェン	104.3	7.5	11.2	◎	98.1	5.9	11.2	◎	100.1	5.6	6.4	◎	104.8	6.3	6.3	◎
243	ピリミノバックメチル (E)	102.4	8.2	9.4	◎	101.2	6.1	10.3	◎	101.1	4.4	5.3	◎	107.8	2.9	4.0	◎
244	ピリミノバックメチル (Z)	104.6	7.8	10.4	◎	106.2	5.8	6.5	◎	105.6	2.5	2.8	◎	107.1	4.8	6.4	◎
245	ピリミホスメチル	101.7	5.0	5.0	◎	100.6	5.2	7.3	◎	104.9	3.0	5.3	◎	107.7	2.6	2.8	◎
246	ピリメタニル	93.8	3.0	3.0	◎	98.2	2.6	3.6	◎	97.0	1.8	2.6	◎	101.7	2.2	2.3	◎
247	ピロキロン	74.7	10.0	10.0	◎	98.8	3.5	5.7	◎	99.7	2.6	3.5	◎	102.5	2.5	4.6	◎
248	ピンクロゾリン	94.3	6.7	6.7	◎	99.8	3.7	4.5	◎	99.6	4.1	4.2	◎	102.5	4.2	4.2	◎
249	ファモキサドン	98.4	11.3	11.3	◎	100.9	4.0	6.8	◎	95.3	6.0	6.0	◎	99.2	6.6	7.4	◎
250	フィプロニル	106.9	7.1	9.1	◎	99.1	6.1	7.1	◎	101.3	5.6	5.6	◎	101.3	4.6	4.8	◎
251	フェナミホス	98.2	15.9	16.1		93.1	16.7	16.7		103.5	8.5	9.3	◎	96.0	9.5	12.1	◎
252	フェナリモル	103.9	5.8	5.8	◎	98.3	3.2	9.2	◎	99.9	4.7	4.8	◎	108.2	3.3	3.8	◎
253	フェニトロチオン	99.1	5.1	8.1	◎	100.9	4.7	7.4	◎	100.6	5.1	5.1	◎	106.4	3.8	8.4	◎
254	フェノキサニル	104.1	6.5	6.5	◎	100.5	4.3	4.3	◎	101.0	4.2	7.2	◎	94.8	7.0	12.7	◎
255	フェノキサプロップエチル	104.3	6.4	7.0	◎	98.2	5.1	10.2	◎	87.4	3.6	8.2	◎	77.5	18.5	18.5	
256	フェノチオカルブ	93.6	7.4	7.4	◎	102.8	4.9	5.6	◎	99.7	2.2	3.5	◎	104.0	4.1	4.2	◎
257	フェノトリン Ⅰ					106.8	11.4	11.4									
258	フェノトリン Ⅱ	102.7	9.6	9.6	◎	93.2	8.2	9.9	◎	94.7	13.0	13.0	◎	95.7	10.8	12.9	◎
259	フェノブカルブ	91.0	7.1	7.9	◎	99.0	3.9	5.0	◎	101.3	1.6	2.9	◎	104.2	2.3	2.4	◎
260	フェンクロルホス	97.7	5.8	13.1	◎	98.4	3.9	6.2	◎	96.4	2.9	3.3	◎	101.5	2.3	2.3	◎
261	フェンスルホチオン	81.7	9.5	9.5	◎	101.6	3.5	8.0	◎	101.2	2.7	2.9	◎	100.4	8.9	8.9	◎
262	フェンチオン	93.5	7.8	7.8	◎	89.5	5.0	6.2	◎	96.4	3.0	3.0	◎	101.9	1.5	2.2	◎
263	フェントエート	99.1	6.9	6.9	◎	101.3	3.4	6.0	◎	102.0	1.8	3.1	◎	104.5	4.2	4.2	◎
264	フェンバレレート Ⅰ	101.8	4.2	4.2	◎	97.4	4.5	5.0	◎	95.0	1.7	3.4	◎	101.1	2.3	3.6	◎
265	フェンバレレート Ⅱ	110.8	5.1	5.1	◎	101.5	4.6	6.5	◎	100.2	6.0	8.4	◎	104.7	3.4	4.3	◎
266	フェンブコナゾール	95.8	2.8	3.4	◎	100.1	4.7	7.4	◎	98.9	1.5	2.2	◎	101.8	3.5	4.2	◎
267	フェンブロパトリン	106.4	10.0	11.6	◎	98.0	7.7	8.1	◎	104.4	3.3	4.8	◎	101.3	8.4	8.4	◎
268	フェンブロピモルフ	101.6	4.1	4.2	◎	106.8	3.6	4.3	◎	103.2	3.2	3.2	◎	65.9	13.4	13.7	
269	フェンヘキサミド	95.9	8.6	16.8	◎	83.1	13.4	15.8	◎	107.1	6.5	6.5	◎	100.6	11.1	11.1	◎
270	フサライド	78.2	4.9	4.9	◎	96.7	4.2	5.0	◎	99.0	2.6	2.6	◎	98.9	1.0	1.9	◎
271	ブタクロール	108.3	11.3	11.3	◎	100.4	5.5	8.6	◎	105.9	9.5	9.5	◎	105.8	3.8	9.3	◎
272	ブタミホス	102.7	4.2	4.5	◎	103.2	4.0	8.9	◎	94.9	4.6	4.6	◎	103.8	3.2	4.3	◎
273	ブチレート	96.2	6.5	11.3	◎	57.8	21.1	25.6		82.1	4.6	4.6	◎	93.7	3.8	5.0	◎
274	ブピリメート	96.7	12.7	12.7	◎	93.6	8.3	9.2	◎	109.2	7.4	7.4	◎	105.2	6.5	11.1	◎
275	ブプロフェジン	98.7	6.7	11.6	◎	105.9	6.4	9.6	◎	99.0	6.6	8.4	◎	103.0	7.3	7.3	◎
276	フラチオカルブ	96.6	3.7	4.2	◎	96.5	6.1	7.0	◎	102.4	1.7	2.9	◎	104.2	3.0	3.8	◎
277	フラムプロップメチル	101.0	6.4	6.4	◎	98.1	5.7	5.7	◎	98.8	2.9	3.6	◎	102.7	4.4	5.5	◎
278	フラメトピル	92.2	12.6	12.6	◎	100.9	7.1	7.6	◎	103.2	5.4	6.3	◎	111.1	9.1	9.1	◎
279	フルアクリピリム	102.7	11.9	11.9	◎	106.6	6.7	8.3	◎	112.7	6.8	7.9	◎	103.1	5.4	7.8	◎
280	フルジオキソニル	80.5	4.5	4.9	◎	71.8	12.1	12.1	◎	78.0	3.8	8.2	◎	76.7	6.2	8.4	◎
281	フルシトリネート Ⅰ	102.4	4.4	4.4	◎	97.2	4.3	5.3	◎	93.8	3.4	3.4	◎	98.9	4.2	4.2	◎
282	フルシトリネート Ⅱ	105.2	5.9	5.9	◎	100.2	3.0	4.8	◎	93.2	3.8	3.8	◎	98.5	4.8	4.8	◎
283	フルシラゾール	94.7	5.9	9.2	◎	102.2	4.1	6.4	◎	93.3	2.8	3.7	◎	97.2	4.9	6.1	◎
284	フルトラニル	96.6	7.0	7.0	◎	100.2	6.0	7.3	◎	101.0	2.7	2.7	◎	101.3	3.4	5.2	◎
285	フルトリアホール					108.2	2.8	5.7	◎	105.7	13.8	13.8	◎	103.1	4.9	5.3	◎
286	フルバリネート-tau-I	101.9	7.2	7.2	◎	99.1	5.4	7.7	◎	93.7	5.7	5.7	◎	99.9	5.1	5.5	◎
287	フルバリネート-tau-II	101.6	5.0	5.0	◎	98.1	5.8	5.9	◎	93.6	4.7	6.2	◎	96.8	5.9	5.9	◎
288	フルミオキサジン	92.8	7.5	10.5	◎	97.5	8.1	11.4	◎	101.0	6.8	6.8	◎	103.5	5.6	5.6	◎
289	フルミクロラックペンチル	107.5	12.0	12.0	◎	92.9	6.9	10.8	◎	91.4	14.4	14.4	◎	101.8	12.8	12.8	◎

表 5 妥当性評価試験（0.1mg/kg）（続き）

No.	化合物名	玄米				キャベツ				トマト				温州ミカン			
		真度	精度		判定	真度	精度		判定	真度	精度		判定	真度	精度		判定
			併行	室内			併行	室内			併行	室内			併行	室内	
		(%)	(RSDr%)			(%)	(RSDr%)			(%)	(RSDr%)			(%)	(RSDr%)		
290	プレチラクロール	98.3	14.4	14.4	◎	102.6	7.3	10.1	◎	97.4	4.1	6.9	◎	104.8	7.2	9.1	◎
291	プロクロラズ	96.1	6.4	14.3	◎	95.7	7.2	7.6	◎	100.0	11.9	11.9	◎	98.2	4.4	8.6	◎
292	プロシミドン	104.5	5.3	5.3	◎	100.5	5.2	5.4	◎	101.1	1.7	3.1	◎	103.7	3.1	3.1	◎
293	プロチオホス	111.5	5.5	5.5	◎	104.0	4.5	6.4	◎	97.9	1.9	2.6	◎	106.9	5.5	6.3	◎
294	プロパクロール	83.0	5.2	7.8	◎	98.4	4.1	4.3	◎	101.7	2.6	3.4	◎	102.5	2.6	2.6	◎
295	プロパニル	80.2	4.5	4.7	◎	99.2	3.3	4.9	◎	96.8	1.6	3.0	◎	98.7	1.9	2.2	◎
296	プロパホス	89.6	5.2	8.1	◎	90.7	7.6	8.1	◎	99.3	5.7	5.7	◎	95.4	3.4	5.8	◎
297	プロパモカルブ																
298	プロパルギット	104.0	12.5	14.3	◎	100.3	10.3	10.3	◎	94.5	13.8	13.8	◎	102.1	15.6	15.6	
299	プロピコナゾール Ⅰ	97.5	5.9	5.9	◎	96.6	8.1	10.7	◎	98.7	11.0	11.0	◎	101.3	12.3	12.3	◎
300	プロピコナゾール Ⅱ	98.4	9.4	9.9	◎	99.8	4.5	8.2	◎	103.8	7.2	7.2	◎	89.2	5.0	5.0	◎
301	プロピザミド	98.0	4.7	5.1	◎	100.8	4.1	4.7	◎	100.7	2.0	2.5	◎	103.4	2.3	2.4	◎
302	プロファム	85.2	6.8	11.0	◎	91.3	5.2	6.4	◎	99.6	2.4	3.1	◎	101.6	1.3	2.4	◎
303	プロフェノホス	88.6	9.3	10.2	◎	102.9	6.6	13.0	◎	102.7	9.1	9.1	◎	101.5	9.4	10.8	◎
304	プロベナゾール	38.4	162.2	162.2		99.0	7.6	7.7	◎					85.9	7.1	10.3	◎
305	プロポキスル	78.8	8.7	8.7	◎	99.7	4.2	4.8	◎	103.1	1.9	2.3	◎	106.2	1.2	1.6	◎
306	ブロマシル					62.1	6.2	6.3		67.5	14.8	14.8		66.5	7.1	10.0	
307	ブロメカルブ	93.1	6.7	7.0	◎	100.3	4.4	5.5	◎	100.8	2.7	2.9	◎	104.8	1.7	2.6	◎
309	ブロメトリン	97.4	8.3	11.9	◎	104.4	5.6	5.6	◎	108.5	2.8	5.5	◎	105.9	5.1	5.1	◎
310	ブロメトン	95.3	7.7	7.7	◎	107.0	2.9	5.0	◎	103.5	4.0	4.0	◎	97.3	2.2	4.9	◎
311	ブロモブチド	97.4	10.2	14.0	◎	100.1	7.7	8.4	◎	103.1	3.7	6.8	◎	105.4	6.2	7.7	◎
312	ブロモブチド脱ブロモ体	98.9	9.2	9.2	◎	101.0	5.2	6.7	◎	111.7	4.9	5.5	◎	110.1	4.5	4.5	◎
313	ブロモプロピレート	102.0	4.7	7.0	◎	102.0	3.9	6.9	◎	99.6	5.9	5.9	◎	100.6	5.3	5.3	◎
314	ブロモホス	107.9	6.5	6.5	◎	101.4	5.5	6.6	◎	99.4	3.4	5.3	◎	105.3	2.0	2.1	◎
315	ブロモホスエチル	112.6	3.7	3.9	◎	101.1	4.8	5.7	◎	94.7	1.9	3.4	◎	102.4	3.7	4.7	◎
316	ヘキサクロロベンゼン	99.8	3.3	3.5	◎	70.1	12.8	17.2	◎	81.7	6.1	6.1	◎	97.1	2.1	2.9	◎
317	ヘキサコナゾール	95.9	6.4	7.0	◎	102.8	4.1	10.0	◎	106.7	3.8	4.6	◎	110.3	6.4	6.4	◎
318	ヘキサジノン	73.7	6.6	6.6	◎	57.0	8.2	9.7		59.1	5.0	10.4		56.2	9.8	9.8	
319	ヘキシチアゾックス	94.2	12.2	22.2		100.3	5.6	6.8	◎	107.1	7.3	14.1	◎	95.1	14.8	14.8	◎
320	ベナラキシル	102.1	8.7	10.8	◎	104.9	4.0	4.9	◎	103.9	4.7	5.3	◎	102.7	4.4	5.5	◎
321	ペノキサコール	88.2	5.2	8.8	◎	96.2	4.6	7.4	◎	101.3	2.3	2.3	◎	102.8	1.8	2.5	◎
322	ヘプタクロル	93.7	6.7	9.8	◎	78.4	5.6	6.3	◎	81.2	5.5	5.5	◎	97.1	2.0	4.0	◎
323	ヘプタクロル Epo(cis)	95.3	8.4	9.3	◎	94.3	3.2	5.5	◎	89.0	5.1	7.2	◎	100.8	1.8	2.4	◎
324	ペルメトリン（cis）	100.6	4.2	4.7	◎	102.3	4.5	5.2	◎	98.7	3.7	4.9	◎	99.8	7.3	7.6	◎
325	ペルメトリン（trans）	107.7	7.6	9.0	◎	100.3	7.4	12.0	◎	99.5	4.0	5.4	◎	104.8	6.7	7.6	◎
326	ペンコナゾール	94.4	4.7	5.0	◎	101.9	4.9	5.3	◎	98.5	3.0	3.0	◎	96.6	3.8	4.5	◎
327	ペンシクロン	54.2	7.3	44.6		87.1	4.1	5.9	◎	80.0	3.2	4.3	◎	88.7	1.7	3.6	◎
328	ペンダイオカルブ	73.8	5.3	5.3	◎	98.9	4.4	5.4	◎	102.1	2.0	2.8	◎	104.7	1.8	3.0	◎
330	ペンディメタリン	105.8	5.4	9.3	◎	96.4	2.2	6.3	◎	95.7	5.1	5.1	◎	105.7	4.6	4.6	◎
331	ペンフラカルブ	98.1	18.6	18.6		33.1	67.4	67.4									
332	ペンフルラリン	93.2	6.7	11.7	◎	78.8	7.2	8.8	◎	82.1	5.9	5.9	◎	100.0	3.1	3.8	◎
333	ペンフレセート	93.8	6.9	6.9	◎	100.6	4.1	4.1	◎	99.7	3.4	3.5	◎	104.5	1.7	1.9	◎
334	ホサロン	98.4	7.7	7.7	◎	100.7	5.1	8.0	◎	103.8	9.1	9.1	◎	98.6	6.6	6.6	◎
335	ボスカリド	95.8	3.1	5.5	◎	95.5	4.7	7.2	◎	100.0	2.0	4.1	◎	101.6	1.6	1.9	◎
336	ホスチアゼート Ⅰ	87.9	12.6	14.6	◎	103.9	9.0	10.2	◎	111.9	5.9	6.5	◎	99.6	11.7	12.2	◎
337	ホスチアゼート Ⅱ	90.9	10.8	15.1	◎	97.6	11.7	14.3	◎	103.1	4.9	5.4	◎	99.4	13.6	13.6	◎
338	ホスファミドン Ⅰ	61.9	8.7	26.3		97.7	10.5	11.7	◎	110.9	7.5	9.3	◎	107.2	9.3	11.0	◎
339	ホスファミドン Ⅱ	70.5	12.5	16.1	◎	105.3	4.9	6.5	◎	97.1	3.8	6.1	◎	105.4	8.3	9.1	◎
340	ホスメット	91.4	4.3	4.4	◎	97.8	4.5	6.6	◎	102.0	3.2	3.2	◎	101.2	1.9	2.8	◎
341	ホノホス	103.1	5.4	12.3	◎	95.5	5.1	6.3	◎	106.2	2.4	2.5	◎	113.9	2.2	3.0	◎
342	ホルペット	49.0	6.4	19.1		45.3	20.3	35.4		57.5	12.3	12.3		74.2	14.1	14.1	◎
344	ホレート	96.7	8.5	10.9	◎	80.2	9.3	9.3	◎	96.5	4.2	8.0	◎	106.2	4.3	4.4	◎
345	マラオキソン	65.0	7.1	14.5		96.5	3.7	6.4	◎	100.9	2.8	3.0	◎	103.3	3.5	3.5	◎
346	マラチオン	101.1	4.6	5.2	◎	103.7	4.8	7.1	◎	104.3	3.5	3.5	◎	110.4	2.2	3.5	◎
347	ミクロブタニル	94.0	3.3	6.5	◎	101.2	3.2	5.2	◎	103.7	2.4	3.0	◎	101.7	2.7	2.9	◎
348	メタアルデヒド	73.5	7.1	8.8	◎	100.7	6.5	8.2	◎	85.7	6.4	6.7	◎	77.3	17.3	17.3	
349	メタクリホス	85.4	3.9	8.0	◎	89.5	6.8	7.7	◎	102.7	4.6	4.6	◎	105.9	2.0	2.9	◎
350	メタベンズチアズロン	61.6	4.7	22.2		90.6	8.0	8.4	◎	96.4	5.3	7.5	◎	103.9	5.3	6.9	◎
351	メタミドホス					5.3	17.4	17.4		4.4	4.5	7.5		4.2	7.4	15.7	
352	メタラキシル	87.2	9.5	10.3	◎	98.9	6.7	9.5	◎	102.6	5.6	5.6	◎	104.4	4.4	4.6	◎
353	メチオカルブ	85.2	4.3	5.7	◎	97.7	3.4	3.8	◎	100.2	2.8	3.9	◎	102.1	1.8	2.2	◎
355	メチダチオン	95.6	4.4	5.4	◎	102.8	3.8	5.1	◎	103.0	3.0	4.5	◎	106.6	3.6	3.6	◎
356	メチルダイムロン					91.2	23.7	33.8						110.1	5.4	9.1	◎
357	メトキシクロール	89.9	5.3	13.2	◎	83.5	6.1	16.5	◎	84.9	4.2	4.9	◎	101.1	3.0	3.0	◎
358	メトプレン Ⅰ																
359	メトプレン Ⅱ	115.0	5.7	5.9	◎	96.5	5.6	6.2	◎	93.3	11.4	12.5	◎	102.4	9.5	9.5	◎
360	メトプロトリン	91.2	5.8	12.1	◎	106.3	5.0	8.2	◎	100.7	6.1	7.4	◎	89.6	7.8	7.8	◎
361	メトミノストロビン（E）	93.7	10.8	11.2	◎	99.5	6.6	14.8	◎	108.0	5.9	5.9	◎	108.6	3.2	5.1	◎
362	メトミノストロビン（Z）	86.5	4.1	6.0	◎	103.3	6.8	6.8	◎	99.8	6.2	6.2	◎	102.4	3.7	3.7	◎
363	メトラクロール	102.5	6.4	6.4	◎	103.1	4.3	6.5	◎	99.0	4.3	4.3	◎	103.3	1.3	3.0	◎
364	メトリブジン	83.3	8.5	8.5	◎	102.3	4.1	5.3	◎	96.4	3.4	3.4	◎	100.2	5.9	5.9	◎
365	メトルカルブ	75.9	6.9	9.0	◎	96.8	4.4	6.1	◎	104.6	3.0	4.3	◎	103.9	2.8	3.3	◎
366	メパニピリム	104.3	4.5	7.4	◎	104.9	5.0	7.0	◎	104.9	5.6	5.6	◎	106.4	6.0	6.9	◎
367	メビンホス	40.8	19.4	19.4		101.2	5.1	8.0	◎	103.4	3.5	3.5	◎	106.4	2.1	2.2	◎
368	メフェナセット	93.4	4.4	5.6	◎	101.6	4.9	8.9	◎	102.1	2.0	5.1	◎	108.5	3.0	4.0	◎
369	メプロニル	95.9	6.2	6.2	◎	100.2	5.0	5.0	◎	100.8	4.1	4.1	◎	102.3	7.6	7.6	◎
370	モノクロトホス	38.9	33.7	36.1		10.5	24.2	24.2		10.3	17.9	28.1		8.3	29.2	34.1	
371	モリネート	89.0	4.6	7.7	◎	86.9	7.2	8.1	◎	97.9	2.8	3.0	◎	104.3	3.2	4.4	◎
372	リニュロン	100.8	9.9	17.0	◎	103.1	3.2	5.4	◎	108.2	2.6	5.2	◎	106.9	5.8	6.5	◎
373	レスメトリン Ⅰ													135.6	46.7	49.8	
374	レスメトリン Ⅱ													97.8	11.3	11.3	◎
375	レナシル	82.0	4.3	8.0	◎	48.4	10.4	10.4		53.0	3.6	7.1		47.8	8.2	8.2	
	目標達成成分数		304				306				316				316		

２）LC-MS/MS による食肉中抗菌性物質の同定

山口奈穂　小林将英　西名武士*　福島宏暢

要旨

食肉衛生検査所で実施した分別推定法等の微生物学的検査の結果，抗菌性物質の残留が認められた食肉の検体について，当所において LC-MS/MS による動物用医薬品の一斉分析法で分析し，残留する抗菌性物質の同定及び定量を行った。その結果，一斉分析法でセファゾリンやマルボフロキサシン等の抗菌性物質を検出し，同定した。また，医薬品の残留が疑われた検体に対し，新たに個別の分析法を構築し，ミノサイクリン又はロキシスロマイシンを検出した。

キーワード：LC-MS/MS，**抗菌性物質**，**分別推定法**，**一斉分析法**

はじめに

食肉に抗菌性物質の残留が疑われる場合，熊本県では食肉衛生検査所にて，残留抗菌性物質モニタリング検査が実施されている。すなわち，微生物学的手法で腎臓や筋肉抽出液の抗菌活性を検査し，陽性の場合は，「畜水産食品中の残留抗生物質の分別推定法（改定）」（以下，「分別推定法」という。）[1,2] にて残留する抗菌性物質の系統推定を行う [3]。分別推定法で食肉が抗菌活性を有することは判明するが，残留する抗菌性物質の系統推定ができないなど，さらなる調査が必要な際に，食肉衛生検査所からの依頼で，当所の LC-MS/MS による動物用医薬品の一斉分析法 [4]（以下「一斉分析法」という。）を用いて抗菌性物質の同定検査を実施している。

LC-MS/MS は，多種類の抗菌性物質を高感度に検出し，その高い選択性から，標準品のクロマトグラムと比較することで定性が可能である。当所では，独自に開発した一斉分析法により畜水産物の収去検査等を実施している。しかし，日常の検査において，動物用医薬品が残留した試料は得難く，これまで一斉分析法の評価は妥当性評価ガイドラインに準拠した添加回収試験 [5] でのみ行ってきた。一方で，分別推定法で抗菌活性が認められた検体は，抗菌性物質の残留が明らかな陽性試料であり，かつ，獣医師や畜主への聞き取り調査から，使用された薬剤が判明するケースも多い。このため，一斉分析法での検出結果と聞き取り調査結果を照合し，一斉分析法の有用性の評価を行った。

2017 年度から 2019 年度に行った 10 件の同定検査のうち，一斉分析法で同定に成功した事例及び医薬品を検出した事例について報告する。

実験方法

１　検体

分別推定法において何らかの抗菌活性が認められた検体。聞き取り調査や薬剤の使用履歴（以下，「使用履歴等」という。）から，使用された抗菌性物質が予め分かったものもあった。分別推定法の結果と併せて表 3 に示す。

２　一斉分析項目

・抗菌性物質（69 項目）　表 1 のとおり
・その他動物用医薬品（81 項目）

３　試薬

３－１　標準品

関東化学製，林純薬工業製，肥飼料検査所製，富士フイルム和光純薬製，Dr.Ehrenstorfer GmbH 製及び Riedel-de Haen 製を用いた。

＊現健康福祉部健康局薬務衛生課

表１　一斉分析において測定する抗菌性物質

系統：測定項目
サルファ剤：スルファエトキシピリダジン，スルファキノキサリン，スルファクロルピリダジン，スルファジアジン，スルファジミジン，スルファジメトキシン，スルファセタミド，スルファチアゾール，スルファドキシン，スルファトロキサゾール，スルファピリジン，スルファブロモメタジンナトリウム，スルファベンズアミド，スルファメトキサゾール，スルファメトキシピリダジン，スルファメラジン，スルファモノメトキシン，スルフィソゾール，スルファニトラン
抗原虫剤：アンプロリウム，エトパベート，クロピドール，ジアベリジン，ジニトルミド，デコキネート，ナイカルバジン，ピリメタミン，ロベニジン
β-ラクタム系：アンピシリン，オキサシリン，クロキサシリン，セファゾリン，セフロキシム，ナフシリン，フェノキシメチルペニシリン，ベンジルペニシリン
ニューキノロン系：エンロフロキサシン，オフロキサシン，オルビフロキサシン，サラフロキサイン，ジフロキサシン，ダノフロキサシン，ノルフロキサシン，マルボフロキサシン
マクロライド系：エリスロマイシン，オレアンドマイシン，ジョサマイシン，スピラマイシン，タイロシン，チアムリン，チルミコシン
オールドキノロン系：オキソリニック酸，ナリジクス酸，フルメキン，ミロキサシン
テトラサイクリン系：オキシテトラサイクリン，クロルテトラサイクリン，テトラサイクリン
ポリエーテル系：サリノマイシン，モネンシン，ラサロシド
フェニコール系：チアンフェニコール，フロルフェニコール
リンコマイシン系：ピルリマイシン，リンコマイシン
葉酸拮抗剤：オルメトプリム，トリメトプリム
アンサマイシン系：リファキシミン
ペプタイド系：ノボビオシン

３－２　その他試薬

アセトニトリル（以下,「ACN」という，HPLC 用），イソプロパノール（HPLC 用），ギ酸（LC/MS 用），酢酸アンモニウム，メタノール（以下,「MeOH」という，HPLC 用），リン酸二ナトリウム，エチレンジアミン四酢酸二ナトリウム（以下,「EDTA」という。），クエン酸：富士フイルム和光純薬製

アセトン（残留農薬試験・PCB 試験用）：関東化学製

ろ過フィルター（0.2μm・25N），ポリプロピレン製バイアル：GL Sceiences 社製

EDTA 含有クエン酸緩衝液：クエン酸 21.0g を水に溶かして 1,000mL とした（第 1 液）。リン酸二ナトリウム 71.6g を水に溶かして 1,000mL とした（第 2 液）。EDTA1.86g に第 1 液 307mL と第 2 液 193mL を混和したものを加え，溶かした。

0.2%ギ酸含有 ACN：ACN1,000mL にギ酸 2mL を加えた。

４　一斉分析法の試験溶液調製方法[4)]

検体をフードプロセッサーで細切均一化した後，その 5.00g を量り採り，0.2%ギ酸含有 ACN15mL を加え，ホモジナイズ（2,000rpm，1 分）した後，遠心分離した（3,000rpm，5 分）。上清をガラスロート（11G2）でろ過し，50mL メスフラスコに移した。残渣に 0.2%ギ酸含有 ACN10mL を加え，振とう（10 分）し，遠心分離（3,000rpm，5 分）した。上清をガラスロート（11G2）でろ過し，上記の 50mL メスフラスコに移した。残渣に EDTA 含有クエン酸緩衝液 15mL を加え，振とう（10 分）し，遠心分離（3,000rpm，5 分）した。上清をガラスロート（11G2）でろ過し，上記の 50mL メスフラスコに移し，水で正確に 50mL としたものを抽出液とした。抽出液 2.5mL を採り，水及び MeOH（1：9）混液 0.25mL を加え，混和した後，フィルターろ過したものを試験溶液とした。

５　検量線の作成

抗菌性物質が残留していないことを確認した試料から調製した試験溶液に，各標準溶液を添加したマトリクス添加標準液で検量線を作成した。

６　測定条件

６－１装置

MS/MS 部	Triple Quad 5500（AB SCIEX 製）
LC 部	Nexera X2（島津製作所製）
分析カラム	メタルフリーPEEK カラム InertSustain® C18（2.1×150mm, 3μm）（GL Sceiences 社製）

６－２測定条件

イオン化法	ESI
分析モード	sMRM（ポジティブネガティブ同時取り込み）1 項目につき定量イオンと定性イオンを測定
カラムオーブン	40℃
移動相	A 液（0.1%ギ酸，0.25mM 酢酸アンモニウム含有水），B 液（0.1%ギ酸，0.25mM 酢酸アンモニウム含有 MeOH）

グラジエント条件　表 2 のとおり
流量　0.4mL/min
注入量　5μL

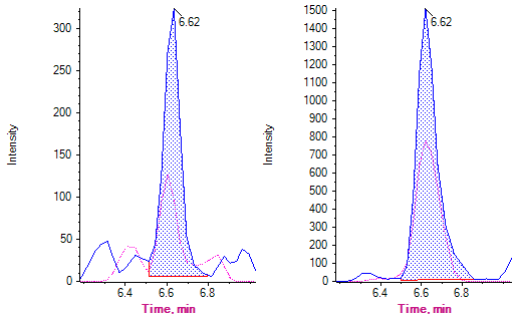
表２　グラジエント条件

時間（分）	A（%）	B（%）
0	100	0
0.5	80	20
19.9	10	90
20	2	98
25	2	98
25.1	100	0
30	100	0

結果及び考察

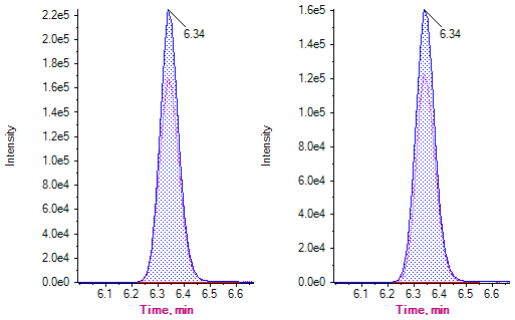
１　一斉分析法による同定

すべての検体についてはじめに一斉分析法で検査した。その結果を表 3 に示す。ピークを検出した場合，標準品とピーク形状，保持時間及び定量イオンと定性イオンのピーク強度比を比較した。検体 A 及び B からはセファゾリンを，検体 C からはオルビフロキサシンを検出した。これらの抗菌性物質は使用が確認されたものであった。標準品のクロマトグラムと比較し，ピーク形状，保持時間及びピーク強度比が類似していたため，それぞれの抗菌性物質が残留していると判断した。検体 A のクロマトグラムを図 1 に，検体 C のクロマトグラムを図 2 に示す。



検体 A　　セファゾリン標準品

図１　検体 A 及びセファゾリン標準品のクロマトグラム



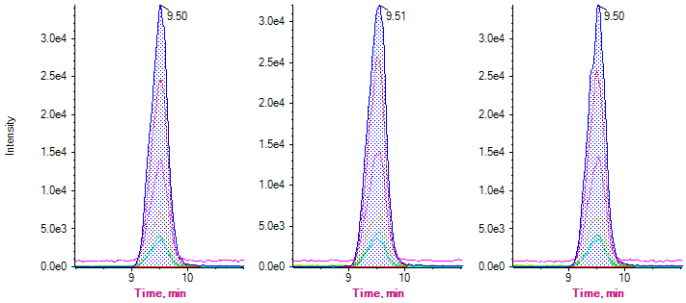
検体 C　　オルビフロキサシン標準品

図２　検体 C 及びオルビフロキサシン標準品のクロマトグラム

表３　検体情報と一斉分析法結果

検体	検体情報			一斉分析法結果	
	部位	使用履歴等	分別推定法結果	検出項目	検出値(μg/g)
A	牛筋肉	セファゾリン フロルフェニコール	推定不能	セファゾリン	0.0010
B	牛筋肉	セファゾリン	推定不能	セファゾリン	0.69
C	牛筋肉	オルビフロキサシン	推定不能	オルビフロキサシン	7.3
D	牛筋肉	セファゾリン アンピシリン	推定不能	マルボフロキサシン	0.51
E	牛筋肉	なし	推定不能	マルボフロキサシン	0.18
F	牛筋肉	なし	テトラサイクリン系	マルボフロキサシン	1.8
G	豚筋肉	エンラマイシン	推定不能	エンロフロキサシン	0.78
H	牛筋肉	ミノサイクリン	テトラサイクリン系	ND	
I	牛筋肉	ロキシスロマイシン	推定不能	ND	
J	牛筋肉	ミノサイクリン	テトラサイクリン系	ND	

検体 D，E，F 及び G は，使用が確認されていない抗菌性物質を検出した。検体 E は，使用履歴等で事前に分かっている項目はなかったが，一斉分析法でマルボフロキサシンを検出した。マトリクス由来の妨害ピークではないか確認するため，モニターするイオンの数を 2 つから 6 つに増やし，アイソクラティック条件で，マトリクス添加標準液，試料溶液及びこの 2 液を等量混合した溶液のクロマトグラムを比較した（図 3）。保持時間とピーク強度比はほぼ等しく（表 4），混合液のピーク形状は良好であったので，マルボフロキサシンのピークであると判断した。検体 D，F 及び G についても同様に一斉分析法から LC 条件等を一部変更した方法で確認試験を実施し，検体 D 及び F はマルボフロキサシン，検体 G はエンロフロキサシンが残留していると判断した。検体 D，E，F 及び G は，当所から結果を発出後に，家畜保健衛生所の調査で，検出した抗菌性物質の使用が判明し，同定結果は正しかったことが証明されている。



マルボフロキサシン標準品　　検体 E　　混合液

図 3　検体 E の確認試験

表 4　マルボフロキサシンピーク強度比

モニターイオン (m/z)	ピーク強度比 (%)		
	標準液	検体 E	混合液
363.2＞ 72.1	100	100	100
＞345.3	38.9	42.0	40.2
＞320.1	71.5	80.3	75.0
＞ 70.1	20.9	20.3	18.8
＞205.0	11.7	12.9	12.1
＞122.1	9.9	10.7	10.7

一斉分析法はこれまで，妥当性評価試験で行う添加回収試験で，試験法の評価を行ったのみであった。しかし，一連の陽性試料の検査により，試料中から抽出し，LC-MS/MS で測定できていたことが立証された。特に，ニューキノロン系抗菌性物質（以下，「ニューキノロン剤」という。）を検出した事例が多くあった。一般的に畜産物からのニューキノロン剤の抽出には，ACN や ACN 及び 0.2%メタリン酸溶液（2 : 3）混液が用いられ [6,7]，抽出溶媒の ACN へのギ酸添加や，抽出回数の増加で抽出効率が向上することが知られている [8,9]。一斉分析法は 0.2%ギ酸含有 ACN で 2 回ホモジナイズ抽出を行うため，この操作でニューキノロン剤を効率よく抽出できたことが推測された。

分別推定法の結果に注目すると，同じニューキノロン剤が残留していても推定結果が，推定不能やテトラサイクリン系を示すなど，結果にばらつきがあったことが分かった。分別推定法で推定できるものは，マクロライド系，テトラサイクリン系，ペニシリン系及びアミノグリコシド系の 4 系統 [2] であり，ニューキノロン剤やサルファ剤など，推定できない抗菌性物質が残留している場合，高濃度に残留していたとしても，推定できなかったり，誤った結果につながったりしていたことが考えられた。

2　ミノサイクリン及びロキシスロマイシン分析法の検討

検体 H，I 及び J は，一斉分析法で検査において何も検出しなかった。使用履歴等から，検体 H 及び J はミノサイクリン，検体 I はロキシスロマイシンの使用が予め分かっており，分別推定法では，検体 H 及び J がテトラサイクリン系と推定され，検体 I は推定不能という結果であった（表 3）。

ミノサイクリン及びロキシスロマイシンの公定法はないため，分析法を作成した。各標準品の MeOH 溶液をインフュージョンで MS 部へ導入し，イオン化条件を設定した。どちらもポジティブモードでプリカーサーイオンを検出し，プロダクトイオンのうち，感度及び選択性が高いイオンを 5 つずつ選定した。条件を表 5 に示す。

抽出法は，テトラサイクリン系及びマクロライド系で実績のある一斉分析法で行い，同時に添加回収試験（n=1）を実施した。検体 H 及び J はミノサイクリン，検体 I はロキシスロマイシンを検出した（表 6）。検体 H のクロマトグラムを図 4 に，検体 I のクロマトグラムを図 5 に示す。妨害ピークは認められず，良好なピーク形状であった。また，検体のクロマトグラムと標

準品のクロマトグラムと比較して，ピーク形状，保持時間及びピーク強度比はほぼ等しかった。検量線は，マトリクス添加検量線を採用し，ミノサイクリンが 0.5～10ng/mL の範囲で，ロキシスロマイシンが 0.01～10ng/mL の範囲で直線性を示し，いずれも相関係数は 0.99 以上であった（図 6 及び図 7）。添加回収試験は検体中濃度が 10ng/g となるように添加し，分析した結果，回収率は 91.8～102.1%と良好であった。

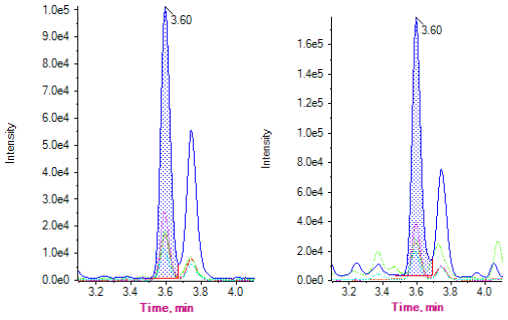
ミノサイクリン及びロキシスロマイシンは一般的に人体用の医薬品として使われる薬剤であり，食品中への残留は認められていないが，検出値は一律基準以上の比較的高値を示した。この検出結果を受けて，抗菌性物質の適正使用の指導が強化されており，当所の分析が食の安全を守る一助となった。

表５　ミノサイクリン及びロキシスロマイシンの MS/MS 最適化条件

化合物名	Q1(m/z)	Q3(m/z)	DP(V)	CE(V)
ミノサイクリン	458.1	441.2	96	27
$C_{23}H_{27}N_3O_7$		283.1		61
		187.0		79
		130.2		115
		215.0		61
ロキシスロマイシン	837.4	158.1	16	45
		441.2		33
$C_{41}H_{76}N_2O_{15}$		83.0		115
		72.0		123
		116.0		89

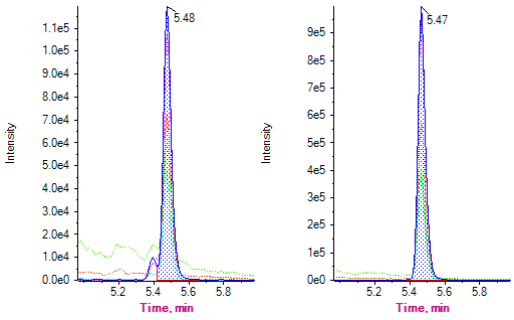
表６　検体 H，I，J の検出結果

検体	検出項目	検出値 (μg/g)	回収率 (%)
H	ミノサイクリン	0.058	96.0
I	ロキシスロマイシン	0.013	91.8
J	ミノサイクリン	1.4	102.1



検体 H　　ミノサイクリン標準品

図４　検体 H 及びミノサイクリン標準品のクロマトグラム



検体 I　　ロキシスロマイシン標準品

図５　検体 I のクロマトグラム

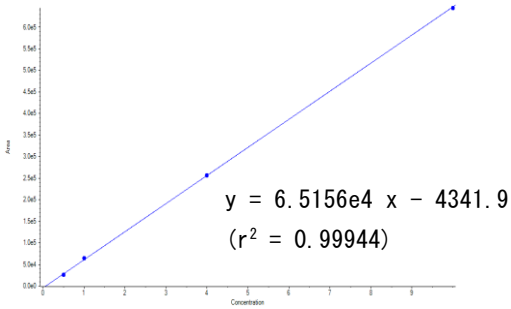


図６　ミノサイクリンの検量線

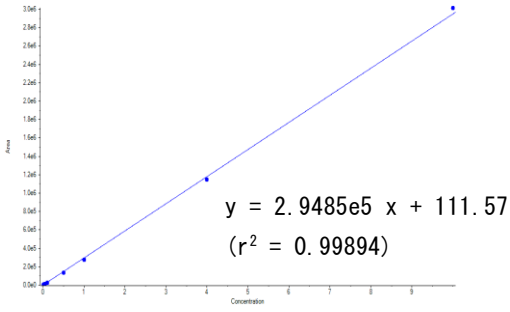


図７　ロキシスロマイシンの検量線

まとめ

分別推定法で抗菌活性が認められた検体を LC-MS/MS による動物用医薬品の一斉分析法で分析し，残留する抗菌性物質の同定を行った。その結果，一斉分析法の結果が正しかったことが使用履歴等から判明し，一斉分析法の有用性の確認ができた。

また，ミノサイクリン及びロキシスロマイシンについて MS/MS 測定条件及び抽出法の検討を行い，分析法を新たに構築した。

分別推定法だけでは推定不能や，推定を誤る事例があることから，LC-MS/MS 等を用いた高感度かつ網羅的な理化学的試験による分析と組み合わせた確認が重要と考えられた。

文献

1)「平成 6 年度畜水産食品の残留有害物質モニタリング検査の実施について」厚生省生活衛生局乳肉衛生課長通知：平成 6 年 7 月 1 日付け衛乳第 107 号.

2) 食品衛生検査指針　動物用医薬品・飼料添加物編 2003，厚生労働省監修

3) 平成 30 年度版 熊本県食肉衛生検査所事業概要（平成 29 年度実績）

4) 松本理世，飛野敏明，西名武士：熊本県保健環境科学研究所報，**44**，28-37 （2014）.

5)「食品中に残留する農薬等に関する試験法の妥当性ガイドラインの一部改正について」厚生労働省医薬食品局食品安全部長通知：平成 22 年 12 月 24 日付け食安発 1224 第 1 号.

6) HPLC による動物用医薬品等の一斉試験法 I（畜水産物）

7) エンロフロキサシン，オキソリニック酸，オフロキサシン，オルビフロキサシン，サラフロキサシン，ジフロキサシン，ダノフロキサシン，ナリジクス酸，ノルフロキサシン及びフルメキン試験法（畜水産物）

8) 西村一彦，山口博美，橋本論：北海道立衛生研究所報，**63**，57-63 （2013）

9) 畑野和広：食品衛生学雑誌，**45(5)**，239-244 （2004）

３）Regression Kriging 法を用いた九州地域の $PM_{2.5}$ の空間濃度分布推定

小原大翼　古澤尚英*1　豊永悟史*2　荒木真*3　山本裕典*4　山崎文雅　矢野弘道*5

要　旨

九州地域で 2014 年度から 2017 年度に観測された $PM_{2.5}$ 日平均値に空間濃度分布予測手法である Regression Kriging 法（以下，「RK 法」）を適用した。一般的に用いられる交差検証法を用いて予測精度を評価した結果，構築した RK 法の予測精度は良好であることが示された。

キーワード：$PM_{2.5}$，Regression Kriging 法，空間濃度分布推定，予測精度評価

はじめに

大気汚染物質の常時監視は，大気汚染防止法に基づいて全国の自治体が実施している。微小粒子状物質（$PM_{2.5}$）については 2009 年 9 月に環境基準が制定され，2010 年度以降に全国的な監視体制の整備が進められた結果，2017 年度時点では 800 以上の測定局が配置されている[1)]。これは，$PM_{2.5}$ の社会問題化への対応として進められた側面もあり，実際に熊本県では，国が示す事務の処理基準に基づく必要局数よりも 5 局多い 19 の一般大気環境測定局を配備し監視を行っている。

一方，$PM_{2.5}$ 濃度は近年減少傾向にあり，全国の一般大気環境測定局の環境基準達成率は，16%（2013 年度）から 90%（2017 年度）と大きく改善している[1),2)]。熊本県内でも 9%（2013 年度）から 72%（2017 年度）と改善している[3),4)]。このような大気汚染状況の変化を鑑みれば，測定局の配置の適正化について検討を行うことが今後の課題になると考えられる。

このためには，大気汚染物質の空間濃度分布を適切に把握することが必要である。大気汚染物質の空間濃度分布予測手法の中で近年用いられている RK 法は，Land Use Regression（以下，「LUR」）法と呼ばれる線形回帰モデルと観測値間の残差に空間補間法である Ordinary Kriging（以下，「OK」）法を適用するものである[5)]。RK 法は，原理的に観測データが限られる場合も高精度での予測が可能であり，数㎞以下の空間解像度を得ることができる。また，RK 法と LUR 法の予測値を比較した研究では，前者の予測精度が良好であると報告されている[6~8)]。RK 法の予測は説明変数の選択などの経験則的な要素が含まれるため，予測する領域に応じた条件の設定が重要となる。これまで日本国内では，全国スケールでの予測が行われた事例[9)]はあるものの，九州地域を対象とした事例は確認できない。

以上のことから，本研究では，$PM_{2.5}$ 日平均値を用いた RK 法により九州地域の空間濃度分布を予測し，その精度を検証した。予測精度の評価は，通常用いられる交差検証法を用いて行った。

方 法

1　空間濃度分布の予測方法

RK 法では，$PM_{2.5}$ 濃度は以下に示す 2 つの成分の和として表現される（式 1）。

$$C = C_1 + C_2 \quad \text{（式 1）}$$

式 1 において，C は，$PM_{2.5}$ 濃度の観測値，C_1 は，観測値において環境変数によって決定される決定論的成分，C_2 は決定論的成分では説明できない確率論的成分を示す。さらに，式 1 の決定論的成分 C_1 は，LUR 法によって以下のとおり表すことができる。

$$C_1 = \beta_1 x_1 + \beta_2 x_2 + \beta_3 x_3 + \beta_4 x_4 + \cdots + \beta_n x_n + \beta_0 \quad \text{（式 2）}$$

式 2 において，x は土地利用や気象条件などの各説明変数の値，β_1～β_n は各説明変数に対応した係数，β_0 は切片を示す。式 1 により，確率論的成分 C_2 は，C と C_1 の差（以下，「残差」）として算出される。

RK 法では，観測地点ごとに得られた残差に対して OK 法を適用し，その空間濃度分布を予測する。OK 法では，最初に全ての観測地点の残差の対からその非類似度 γ^* を求める。例えば，観測地点 i 及び j における γ^* は以

＊1 現球磨地域振興局保健福祉環境部　＊2 現阿蘇地域振興局保健福祉環境部　＊3 大阪大学工学研究科
＊4 現環境センター　＊5 現環境生活部環境局環境保全課

下のとおり表される [10]。

$$\gamma^* = \frac{(Zi - Zj)^2}{2} \quad (式\ 3)$$

ここで，Zi 及び Zj はそれぞれ観測地点 i 及び j の残差を示す。この計算を全ての観測地点のペアについて行い，全てのγ^*と観測地点間の相対距離 h との関係を示したものをバリオグラム雲という。次に，このバリオグラム雲に対して，相対距離 h に対して階級区分$\tilde{h}$ごとに細分化し，γ^*の平均値（標本バリオグラム）を求める [11]。

$$\gamma^*(\tilde{h}) = \frac{1}{2N_h}\sum_{k=1}^{N_h} \gamma^*{}_k(h) \quad (式4)$$

ここで，$\gamma^*(\tilde{h})$が階級区分$\tilde{h}$ごとの標本バリオグラム，N_hは相対距離が h となる組み合わせの個数，$\gamma^*k(h)$が相対距離 h に対するγ^*を示す。標本バリオグラムは，階級区部$\tilde{h}$ごとの平均化されたγにより表されるが，標本バリオグラムに対して最小二乗法により最も当てはまりが良いバリオグラムモデル [11] を選択したものを理論バリオグラムという。なお，標本バリオグラムは，理論バリオグラムの当てはめに用いる最大距離h_{max}（カットオフ）が規定されており [12]，理論バリオグラムには，バリオグラムが定常状態になる h，すなわち空間的自己相関がなくなる距離を示すレンジ（range）が規定されている [11]。この理論バリオグラムを用いることで，観測地点以外の地点における確率論的成分（C_2），すなわち残差を予測することができる。グリッドごとに求めた OK 法の出力値と，対応する LUR 法の出力値の和が RK 法の予測値となる。LUR 法で用いる説明変数は，2 節で示すとおりである。OK 法では，予備解析の結果に基づき，カットオフは 100km とし，バリオグラムモデルは，Exp（指数型），Mat（Matern 型），Sph（球形型）の 3 種類から最小二乗法により当てはまりの良いものを選択する形とした。本研究では，以上の操作を 1 日ごとに行い，対象期間の 4 年間で N=1,461 日分の予測値が得られた。

本研究のデータ整形及び解析は，統計解析環境 R ver 3.5.1[13] 及びそのパッケージである sp[14] ,[15]，gstat[16]，rgdal[17]，rgeos[18]，maptools[19]，MASS[20] を使用した。

2　Regression Kriging 法の使用データ

計算には，離島に位置する測定局（長崎県の壱岐測定局，対馬測定局及び五島測定局）を除いた九州地域と山口県の一部を含めた北緯 31.0°から 34.2°及び東経 128.0°から 132.4°の範囲（以下，「対象範囲」）に存在する測定局における観測データを使用した（図 1 ）。各年度の解析対象の測定局数は，2014 年度は 148 局，2015 年度は 149 局，2016 年度は 151 局，2017 年度は 140 局であり，図 1 は対象範囲及び 2017 年度の測定局の位置を示している。

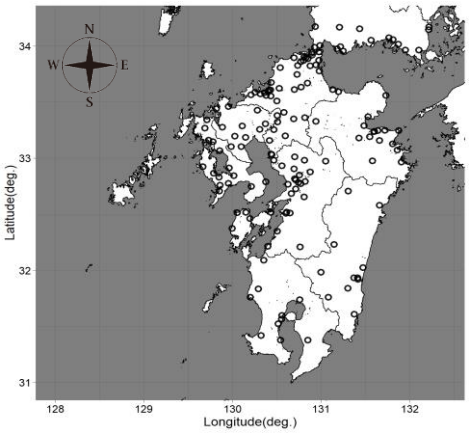


図 1　対象範囲及び測定局の位置

※)　図中〇は 2017 年度の測定局地点を示す。

表 1 に，本報で使用したデータを示す。本研究では，対象領域に 1×1 km のグリッドを作成し予測グリッドとしており，使用データは以降に述べる方法によって予測グリッドに合わせて整形を行った。$PM_{2.5}$ 濃度の観測データは，2014 年度から 2016 年度については，環境数値データベース [21] から 1 時間値（確定値）を入手した。2017 年度については，対象範囲に含まれる自治体（山口県，下関市，福岡県，福岡市，北九州市，佐賀県，長崎県，佐世保市，大分県，宮崎県，鹿児島県）から 1 時間値（速報値）の提供を受けた。入手した $PM_{2.5}$ 濃度の 1 時間値から，各測定局の日平均値を算出した [22]。このうち，日平均値が 200 μg/m^{3}以上または 0 μg/m^{3}以下となった日（N=296）は異常値として除外したものを解析に使用した。

気象データの作成には，Weather Research and Forecasting （WRF） model ver. 3.8.1[23] の前処理プログラムである WRF Preprocessing System（WPS）を利用した。位置情報の作成を行う geogrid では，Lambert 投影法による 1km×1km の水平解像度を設定した。土地利用には WRF に付随する United States Geological Survey （USGS） のデータを利用した。気象データの取り込みを行う ungrib では，気象データに National Centers for Environmental Prediction（NCEP）の水平解像度 1 度，6 時間ごとの客観解析データ（FNL）[24] と気象庁の数値予報 GPV メソ気象モデル（MSM）再解析データ [25] を利用した。このようにして作成した WRF の初期条件及び境界条件から，計算対象領域の緯度（Deg.），経度（Deg.），地上付近気温（℃），地上付近相対湿度（%），地上付近気圧（kPa）及び風速（m/s）を取り出して気象データとした。

人口データについては，e-Stat[26] における 2015 年の国

勢調査 3 次メッシュ（1km×1km）データから予測グリッドの周囲 1.5 km の平均値を算出し，予測に使用した。

道路延長データ及び標高データについては，国土数値情報 [27] における 2010 年の道路密度・道路延長メッシュ（1 km×1 km）データ及び 2009 年の標高・傾斜度 5 次メッシュ（250 m×250 m）データから予測グリッドの周囲 1.5 km の平均値を算出し，予測に使用した。

土地利用データについては，国土数値情報における 2016 年の土地利用細分メッシュ（100 m×100 m）データから予測グリッド内における土地利用区分の割合 (%) を算出し，さらに $PM_{2.5}$ に対して類似の影響を与える発生源として見なされる変数は合算した。結果として，6 種類の面積比（農用地，水域，建物用地，自然地，鉄道，道路）データを予測に使用した。

降水量データについては，過去の気象データ・ダウンロード [28] から，対象範囲内の AMeDAS で観測された日合計降水量を入手し，OK 法を用いて空間補間を行った。なお，OK 法では，3 種類のバリオグラムモデル（Exp, Mat, Sph）より最もフィッティングが良いモデルを自動選択し，カットオフ=300km に設定した。

LUR 法で使用する説明変数は，以上の入手データから，排出，輸送，変質，沈着といった大気汚染物質の濃度を決定する重要な要素との関連性を考慮して設定した（表２）。LUR 法の予測は，準備した説明変数から Backward stepwise 法により優位な変数が抽出され [29]，さらに予め設定した係数の方向と説明変数の係数の正負が一致したものが使用されるように設定した [30]。

表１　使用データ

種類	入手先	期間
$PM_{2.5}$ 質量濃度	国立環境研究所 環境数値データベース 時間値データ	2014-2017
気象	Weather Research and Forecasting model ver. 3.8.1 USGS, National Centers for Environmental Prediction FNL, 気象庁 MSM	2014-2017
人口	e-Stat（国勢調査3次メッシュ）	2015
道路延長	国土交通省 国土数値情報 道路密度・道路延長メッシュデータ	2010
標高	国土交通省 国土数値情報 標高・傾斜度5次メッシュデータ	2009
土地利用	国土交通省 国土数値情報 土地利用細分メッシュデータ	2016
降水量	気象庁HP 過去の気象データ・ダウンロード AMeDAS降水量	2014-2017

表２　使用した説明変数及び説明変数の係数の方向

分類	説明変数	係数の方向	単位
位置	緯度（Latitude）	±	degree
	経度（Longitude）	−	degree
排出	道路長	+	km/km^2
	人口	+	千人/km^2
	高度	−	m
	農用地（その他農用地，その他用地，ゴルフ）面積比	−	km^2/km^2(%)
	水域（河川，海水，海浜）面積比	−	km^2/km^2(%)
	建物用地 面積比	+	km^2/km^2(%)
	自然地（荒れ地，森林，田）面積比	−	km^2/km^2(%)
	鉄道 面積比	+	km^2/km^2(%)
	道路 面積比	+	km^2/km^2(%)
輸送	風速	±	m/sec
変質	湿度	±	None(%)
	気圧	+	kPa
沈着	降水量	−	mm/h

3　予測値の精度評価

予測値の精度評価は，多くの研究でモデルの評価に用いられている一個抜き交差検証法を使用した。この手法は，1 地点の観測データのみを除外したデータセットを用いて RK 法による予測値を求める操作を全地点について繰り返し，除外した地点の予測値と観測値を比較する手法である [15]。比較した結果は，決定係数（R^2）及び予測値と測定値の二乗平均誤差（RMSE）の 2 つの指標値によって評価した。これらは以下のように定義される。

$$R^2 = 1 - \frac{\sum_{l=1}^{n}(z_l - z_m)^2}{\sum_{l=1}^{n}(z_l - \hat{z_l})^2}$$

$$RMSE = \sqrt{\frac{1}{n}\sum(z_l - z_m)^2}$$

ここで，z_lは測定値，z_mは測定値に対応する予測値，$\hat{z_l}$は測定値の平均値，n はデータ数である。

4　結果と考察

図２に，$PM_{2.5}$ 日平均値と対応する交差検証法により算出された予測値の散布図を示し，図中には同法による指標値の結果を示した。カナダのモントリオールで観測された $PM_{2.5}$ の日平均値を用いた事例では，R^2:0.46-0.89,

RMSE：2.36-3.34 と報告されており [31]，本報の指標値（R^2：0.90，RMSE：2.49）はこれと同程度と良好な予測精度であった。このことから，RK 法は $PM_{2.5}$ 日平均値を使用した空間濃度分布予測手法として活用可能であることが示唆された。

今後，$PM_{2.5}$ 日平均値に加えて年平均値及び高濃度平均値（高濃度日（日平均値 35 μg/m³ を超える県内の測定局が存在する日）の年間の平均値）についても同法を適用し，予測精度を検証する予定である。

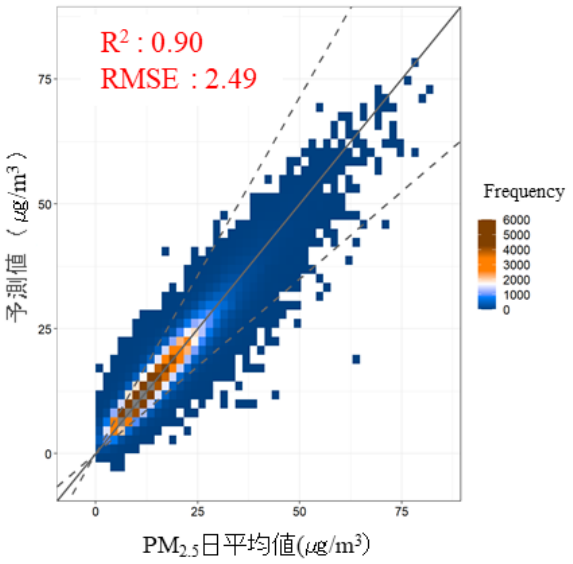


図２　$PM_{2.5}$ 日平均値と対応する交差検証法により算出された予測値の散布図

※）実線は 1:1 の関係を示し，点線は 0.7:1 及び 1:0.7 の関係を示す。

ま　と　め

九州地域を対象に 2014 年度から 2017 年度における $PM_{2.5}$ の空間濃度分布について，$PM_{2.5}$ 日平均値を用いた RK 法により予測した。

交差検証法を用いた精度評価結果では，指標値が先行研究と同程度となり，良好な予測精度を示すことが確認された。

謝　辞

本研究を行うにあたり，九州大学応用力学研究所教授の鵜野伊津志氏，熊本県立大学教授の張代洲氏，高崎経済大学教授の飯島明宏氏及び熊本地方気象台の西辻和也氏と篠崎覚氏には，本研究に関する有益な助言を多くいただきました。深く感謝いたします。また，福岡県環境保全課，佐賀県県民環境部環境課，長崎県環境部地域環境課，大分県生活環境部環境保全課，宮崎県環境森林部環境管理課，鹿児島県環境林務部環境保全課，山口県環境生活部環境政策課，北九州市環境局環境監視部環境監視課，福岡市環境局環境監理部環境保全課，下関市環境部環境政策課，佐世保市環境部環境保全課には，大気汚染常時監視データの提供をいただきました。深く感謝いたします。

文　献

1）環境省：平成 29 年度大気汚染の状況（有害大気汚染物質を除く）（2019），https://www.env.go.jp/air/ref_h29.pdf.

2）環境省：平成 25 年度大気汚染の状況（有害大気汚染物質を除く）（2015），https://www.env.go.jp/air/osen/jokyo_h25/Full.pdf.

3）熊本県：大気・化学物質・騒音等環境調査報告書（第 49 報：平成 25 年度版）（2014），https://www.pref.kumamoto.jp/kiji_6089.html.

4）熊本県：大気・化学物質・騒音等環境調査報告書（第 53 報：平成 29 年度版）（2018），https://www.pref.kumamoto.jp/kiji_25194.html.

5）荒木 真：大気環境モニタリングネットワークの最適配置に関する研究，大阪大学大学院工学研究科博士学位論文（2015）.

6）Beelen, R., Hoek, G., Pebesma, E., Vienneau, D., de Hoogh, K., Briggs, D. J.: Mapping of background air pollution at a fine spatial scale across the european union. Science of the Total Environment, 407（6）, 1852-1867（2009）.

7）Pearce, J. L., Rathbun, S. L., Aguilar-Villalobos, M., Naeher, L. P.: Characterizing the spatiotemporal variability of PM2.5 in Cusco, Peru using kriging with external drift, Atmospheric Environment, 43（12）, 2060-2069（2009）.

8）Mercer, L. D., Szpiro, A. A., Sheppard, L., Lindström, J., Adar, S. D., Allen, R. W., Avol, E. L., Oron, A. P., Laeson, T., Liu, L-J. S., Kaufman, J. D.: Comparing universal kriging and land-use regression for predicting concentrations of gaseous oxides of nitrogen（NOX）for the Multi-Ethnic Study of Atherosclerosis and Air Pollution（MESA Air）, Atmospheric Environment, 45（26）, 4412-4420（2011）.

9）Araki, S., Yamamoto, K., Kondo, A.: Application of regression kriging to air pollutant concentrations in Japan with high spatial resolution, Aerosol and Air Quality Research, 15, 234–241（2015）.

10）Araki, S., Sasaki, T., Ueda, S., Yamamoto, K., Tohno, S.: A study of the prediction method of the spatial distribution

of ozone by kriging in Otsu city and its surrounding area, Journal of Japan Society for Atmospheric Environment, 46, 241–250 （2011） [in Japanese].

11） 古谷 知之: R による空間データの統計分析, 朝倉書店 （2011）.

12） Kubota, T., Tarumi, T.: GoogleMaps を用いた地理統計データの可視化, Proceedings of the Institute of Statistical Mathematics, 55 （1）, 101-112 （2007） [in Japanese].

13） R Core Team: R: A Language and Environment for Statistical Computing. R Foundation for Statistical Computing, Vienna, Austraria, https://www.R-project.org （2018）.

14） Pebesma, E. J. and Bivand, R.S.: Classes and methods for spatial data in R, R News, 5 （2）, http://cran.r-project.org/doc/Rnews/ （2005）.

15） Bivand, R. S., Pebesma, E. J. and Gomez-Rubio, V.: Applied spatial data analysis with R, Springer, New York, http://www.asdar-book.org/ （2008）.

16） Pebesma, E.J.: Multivariable geostatistics in S: the gstat package, Computers & Geosciences, 30, 683-691（2004）.

17） Keitt, T. H., Bivand, R. S., Pebesma, E. J. and Rowlingson, B.: rgdal: Bindings for the Geospatial Data Abstraction Library, R package version 0.6-28, http//cran.r-project.org/package=rgdal（2010）.

18） Bivand, R. S., Rundel, C., Pebesma, E.J., Stuetz, R., Hufthammer, K. O., Giraudoux, P., Davis, M., Santilli, S.: rgeos: Interface to Geometry Engine - Open Source （'GEOS'）, https://CRAN.R-project.org/package=rgeos （2019）.

19） Lewin-Koh, N. J., Bivand, R. S., contributions by Pebesma, E. J., Archer, E., Baddeley, A., Bibiko, H., Dray, S., Forrest, D., Friendly, M., Giraudoux, P., Golicher, D., Gomez-Rubio, V., Hausmann, P., Jagger, T., Luque, S. P., MacQueen, D., Niccolai, A., Short, T. and Stabler, B.: maptools: Tools for reading and handling spatial objects, R package version 0.7-38, http://cran.r-project.org/package=maptools （2010）.

20） Venables, W. N., Ripley, B. D.: Modern Applied Statistics with S. Fourth Edition, Springer, ISBN 0-387-95457-0 （2002）.

21） 国立環境研究所: 環境数値データベース （2019）, https://www.nies.go.jp/igreen/.

22） 環境省: 環境大気常時監視マニュアル 第 6 版 （2010）, https://www.env.go.jp/air/osen/manual_6th/.

23） Skamarock, W. C., Klemp, J. B., Dudhia, J., Gill, D. D., Barker, D. M., Duda, M. G., Huang, X-Y., Wang, W., Powers, J. G.: A Description of the Advanced Research WRF Version 3, NCAR Tech. Note, NCAR/TN-475＋STR, 113 pp., National Center for Atmospheric Research, Boulder, Colorado, USA （2008）.

24） National Centers for Environmental Prediction（NCEP）: CISL Research Data Archive （2017）, http://rda.ucar.edu/datasets/ds083.2/.

25） 京都大学生存圏研究所: 生存圏データベース グローバル大気観測データ （2019）, http://database.rish.kyoto-u.ac.jp/arch/glob-atmos/.

26） 総務省統計局： e-Stat 国勢調査 3 次メッシュ（2018）, https://www.e-stat.go.jp/gis/statmap-search?page=1&type=2&aggregateUnitForBoundary=S.

27） 国土交通省: 国土数値情報 土地利用細分メッシュデータ（2018）, https://nlftp.mlit.go.jp/ksj/index.html.

28） 気象庁 : 過去の気象データ・ダウンロード （2018）, https://www.data.jma.go.jp/gmd/risk/obsdl/index.php.

29） Hengl, T.: A practical guide to geostatistical mapping of environmental variables （2007）.

30） Hoek, G.,Beelen, R., de Hoogh, K., Vienneau, D., Gulliver, J., Fischer, P., Briggs, D.: A review of land-use regression models to assess spatial variation of outdoor air pollution. Atmospheric Environment, 42 （33）, 7561-7578 （2008）.

31） Ramos, Y., St-Onge, B., Blanchet, J., Smargiassi, A.: Spatio-temporal models to estimate daily concentrations of fine particulate matter in Montreal: Kriging with external drift and inverse distance-weighted approaches, Journal of Exposure Science and Environmental Epidemiology, 26, 405-414 （2016）.

４）群集生物学的手法を用いた水生生物調査結果の解析

内田大智*

要旨

1990 年度から 2019 年度までに行った河川の水生生物調査の結果について，群集生物学的手法によって作成した散布図を用いて解析した。

その結果，散布図には生物評価値Ⅰ及びⅡのプロットが集中する範囲があり，生物評価値は生物相を一定程度表していることが示された。

また，現行の生物評価値の算出方法では，同一地点における経年的又は一時的な生物相の変化を表しきれていない課題があることが明らかとなった。

キーワード：水生生物，生物評価値，群集類似度（Horn Index），統計ソフト R

はじめに

河川における水生生物調査は，水環境の中長期的な状態を知るために有用な方法であり，また，高価な機材や高度な知識を必要としないことから環境教育の教材としても用いられている。

熊本県では，「みんなの川の環境調査」として学校，民間団体等が行う調査を支援するとともに，当所においても県内河川 35 地点の環境基準点等において調査を行っている。その結果は，毎年度県環境保全課によって公表される [1]とともに，谷口 [2]によって各調査地点における生物の出現状況の変遷が取りまとめられている。

今回，1990 年度から 2019 年度までの調査結果を群集生物学的手法を用いて生物相を解析することにより，その特徴を取りまとめるとともに，現行の評価値算出方法の課題を抽出した。

方法

1　水生生物調査

(1) 調査地点

環境基準点等の県内河川 35 地点（図 1）において 1990 年度から 2019 年度まで，のべ 975 地点で調査を実施した。

ただし，表 1 に示す 3 地点については，水深増等の理由により地点を変更している。

表 1　変更した調査地点

地点番号	地点名	変更年度	旧地点名
8	第二高田橋	2019	高田橋
15	小嵐山堰	2002	大正橋
27	立神峡	1993	島地

(2) 調査期間

各年度の秋季（9 月～11 月）に生物を採取した。

(3) 採取方法

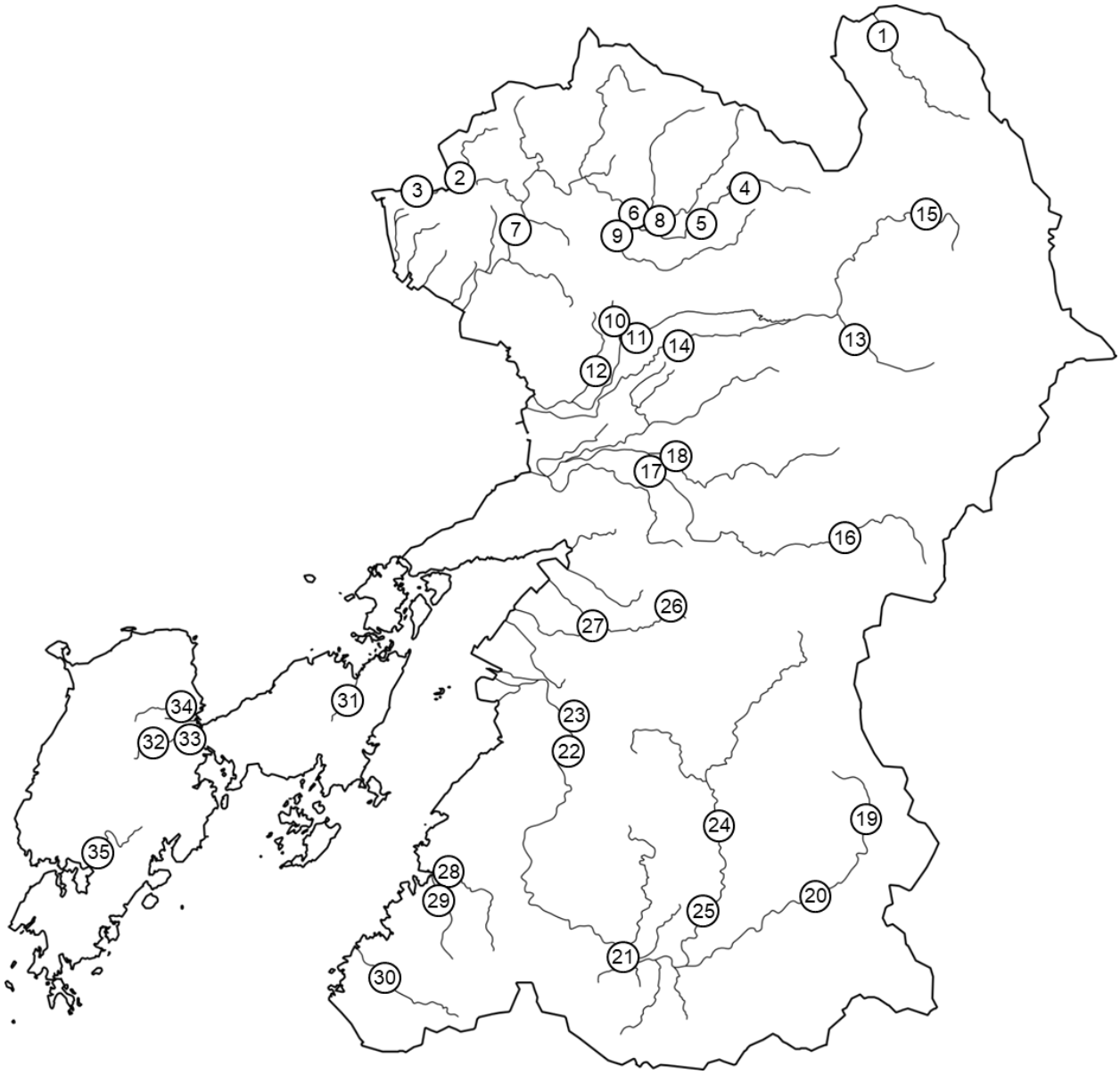
熊本県環境保全課「川の水環境・調査のてびき」[3]に基づき行った。水生生物の採取は，D 型フレームネット（網目：約 1.0 mm）を用いて，水深約 10～30 cm の瀬においてキック・スイープ法により行った。

採取した生物はエタノールにより固定し，持ち帰ったのちに同定，評価を行った。

(4) 生物評価

評価は熊本県独自の 25 種類の指標生物種 [4]の出現状況から水生生物による川の水環境評価値（以下「生物評価値」とする）を求める方法によった。この方法では 25 種の指標生物種をⅠ～Ⅴに区分し，それぞれの区分で出現した種数及び優占種（最も個

*現県北広域本部保健福祉環境部



1 杖立	（筑後川）	13 妙見橋	（白川）	25 川辺大橋	（川辺川）
2 杉本橋	（関川）	14 吉原橋	（白川）	26 白岩戸	（氷川）
3 助丸橋	（関川）	15 小嵐山堰	（黒川）	27 立神峡	（氷川）
4 念仏橋	（菊池川）	16 津留橋	（緑川）	28 栫橋	（佐敷川）
5 木庭橋	（菊池川）	17 乙女橋	（緑川）	29 広瀬橋	（湯浦川）
6 中富	（菊池川）	18 五庵橋	（御船川）	30 長野橋	（水俣川）
7 白石堰	（菊池川）	19 古屋敷	（球磨川）	31 倉江橋	（教良木川）
8 第二高田橋	（迫間川）	20 中鶴橋	（球磨川）	32 海老宇土橋	（亀川）
9 芦原	（合志川）	21 西瀬橋	（球磨川）	33 草積橋	（亀川）
10 堀川合流前	（坪井川）	22 坂本橋	（球磨川）	34 法泉寺橋	（広瀬川）
11 坪井川合流前	（堀川）	23 横石	（球磨川）	35 一町田橋	（一町田川）
12 山王橋	（井芹川）	24 藤田	（川辺川）		

図１　調査地点

体数が多い指標生物）から河川の状態をⅠ：快適な水環境，Ⅱ：親しめる水環境，Ⅲ：不快を感じない水環境，Ⅳ：多少不快な水環境，Ⅴ：不快な水環境の 5 段階に分類することができる。指標生物の同定は図説等[5~10]を参考とした。

2　解析

統計ソフト R（vegan package）[11]（以下「R」という）を用いてのべ 975 回のすべての調査結果に対して以下の(1)～(3)のとおり解析した。

(1) 類似度指標

下式により各調査結果間の類似度指標 Horn Index[12]を算出した。

$$C_\lambda = \frac{2\sum_{i=1}^{n} X_{ij}X_{ik}}{(\lambda_j + \lambda_k) N_j N_k}$$

$$\lambda_j = \sum_{i=1}^{n} \frac{X_{ij}^2}{N_j^2} \qquad \lambda_k = \sum_{i=1}^{n} \frac{X_{ik}^2}{N_k^2}$$

X_{ij}, X_{ik}：標本j,kのi番目の指標生物の個体数

N_j, N_k：標本j,kの指標生物の総個体数

(2) 多次元尺度構成法

(1)により得られた指標を多次元尺度構成法により 2 次元の座標として表した。

ただし，R によって自動的に算出された座標を一部改変し，すべてのプロットが第一象限に収まるように平行移動し用いている。

(3) 散布図の作成

生物評価値で色分けするなどして種々の散布図を作成した。

なお，この方法によって作成された散布図は，プロット間の距離にのみ意味があり，平行移動や回転移動を行っても同一のものとみなすことができる。

ただし，本文中においては便宜上 X 軸及び Y 軸を固定し，散布図の解釈をその方向によって示すことがある。

結果及び考察

1　生物評価値別散布図

生物評価値別に色分けした散布図を図 2 のとおり作成した。

生物評価値Ⅰ及びⅡのプロットは図中左上に分布しており，散布図は一定程度生物評価値を反映していることが示された。

一方で，生物評価値Ⅲのプロットは図中左上を含め全体に散布しており，生物評価値Ⅲが表す生物相の範囲が広いことが明らかとなった。

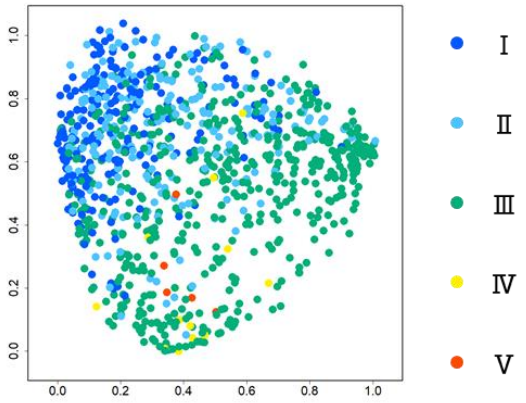


図 2　評価値別散布図

2　BOD 別散布図

環境基準点等で測定している生物化学的酸素要求量（BOD；75 %値[13]）によって色分けした散布図を図 3 のとおり作成した。調査地点には環境基準点や補助点以外の地点もあるため，それらについては表 2 のとおり近傍の地点の測定結果を用いた。

なお，測定結果がない又は未公表の年度については図中に灰色（N.T.）で示した。

表 2　BOD 測定地点

地点番号	地点名	BOD測定地点名
15	小嵐山堰	白川合流前
19	古屋敷	市房ダム
20	中鶴橋	多良木
27	立神峡	氷川橋
30	長野橋	鶴田橋

散布図には青（BOD 1 mg/L 以下：河川 AA 類型相当）及び水色（BOD 2 mg/L 以下：河川 A 類型相当）のプロットが多く，合計で全体の 90 %以上を占めている。また，そのプロットは散布図全体に散布している。

BOD 2 mg/L 以下のプロットはほとんどが図 2 では生物評価値Ⅰ～Ⅲとなっているが，図 2 と図 3 の散布図を比較しても生物評価値Ⅰのプロットで BOD 1 mg/L 以下のプロットが多い等の情報は読み取ることができない。

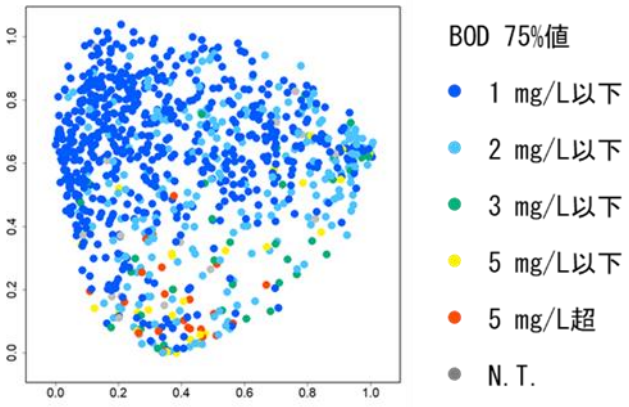


図 3　BOD 別散布図

ただし,BOD と生物評価値の関係を示した表3から,BOD の値が大きくなるにつれて生物評価値がⅠからⅤに向けて移行する傾向が確認でき，生物評価値は水質（BOD）の影響を受けていると考えられる。

また，図 2 で生物評価値Ⅴとなっているプロットは図 3 ではすべて BOD 5 mg/L 超となっており，この点からも生物評価値は水質（BOD）の関係があることが示される。

3　指標生物出現率別散布図

25 種の指標生物のそれぞれについて出現率（各指標生物の個体数 /　総個体数）によって色分けした散布図を作成した。

そのうち，出現率が高いプロットが比較的多い 5 種の指標生物(ヒラタカゲロウ類,タニガワカゲロウ類,コカゲロウ類，コガタシマトビケラ，ユスリカ類（白・緑））に関する散布図を図 4-1～4-5 に示す。

ヒラタカゲロウ類及びタニガワカゲロウ類は図中上側に出現率が高いプロットが存在し，また，コカゲロウ類は図中左側，コガタシマトビケラは図中右側，ユスリカ類（白・緑）は図中下側にそれぞれ出現率が高いプロットが存在している。

これらの 5 種の指標生物は表 4 に示すとおり，優占種となる回数が多く，出現回数も比較的多い。そのため，散布図を特徴づける指標生物種となっていると考えられる。

小田ら[4]によると,これらの5種の指標生物のうち,ヒラタカゲロウ類を除く 4 種は「水質に対して広範囲な生息域をもつが，とくに優占的に出現するか，出現頻度がとくに多くなるような，ある水質に対して比較的狭い適応性をもつ。」ことが指標生物としての選定基準とされており,図 4-1～図 4-5 及び表 4 のような結果となることを裏付けている。

また，ヒラタカゲロウ類及びタニガワカゲロウ類はいずれもヒラタカゲロウ科に属する生物（タニガワカゲロウ類はヒラタカゲロウ科の一属）で，その形態や摂食様式は似ている。本県では適用する水質が異なること，肉眼で見分けることが可能なことから別の指標生物種としているが，形態等の類似が生息する環境の類似，ひいては散布図上でのプロットの傾向が似ていることにつながっていると考えられる。

そこで，ヒラタカゲロウ類とタニガワカゲロウ類の合計（以下「ヒラタカゲロウ類等」とする）の出現率から作成した散布図を図 4-6 に示す。

図 4-6 では，図 4-1，図 4-2 と比較しても図中上側で出現率が高くなる傾向が強い。

また，コガタシマトビケラ / コカゲロウ類（X 軸方向）及びヒラタカゲロウ類等 / ユスリカ類（Y 軸方向）のそれぞれの出現率の比（図 4-7 及び 4-8）を作成すると，明確に区分されることが示された。このことは，これらの 4 種の指標生物のみを指標とした評価手法の開発につなげられる可能性を示している。

表 4　指標生物の出現回数と優占種となる回数

指標生物種	出現回数(回)	ランク	優占種回数(回)	ランク
ヒラタカゲロウ類	688	7	98	5
タニガワカゲロウ類	767	4	99	4
コカゲロウ類	926	1	228	2
コガタシマトビケラ	825	3	239	1
ユスリカ類(白・緑)	911	2	138	3

※　「ランク」は指標生物種の中で多い順に並べた場合の順位を示す。

表 3　BOD と生物評価値の関係

BOD	～1 mg/L		1～2 mg/L		2～3 mg/L		3～5 mg/L		5mg/L～		計
生物評価値	出現回数(回)	出現率(%)	出現回数(回)	出現率(%)	出現回数(回)	出現率(%)	出現回数(回)	出現率(%)	出現回数(回)	出現率(%)	
Ⅰ	212	92.6	17	7.4	0	0.0	0	0.0	0	0.0	229
Ⅱ	177	76.6	49	21.2	5	2.2	0	0.0	0	0.0	231
Ⅲ	260	52.4	169	34.1	32	6.5	23	4.6	12	2.4	496
Ⅳ	0	0.0	2	14.3	0	0.0	4	28.6	8	57.1	14
Ⅴ	0	0.0	0	0.0	0	0.0	0	0.0	5	100.0	5
計	649		237		37		27		25		975

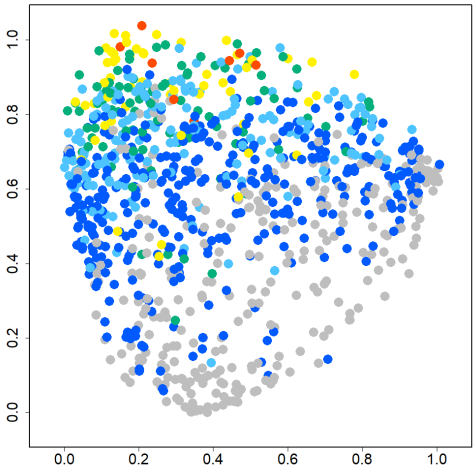


図 4-1　ヒラタカゲロウ類出現率

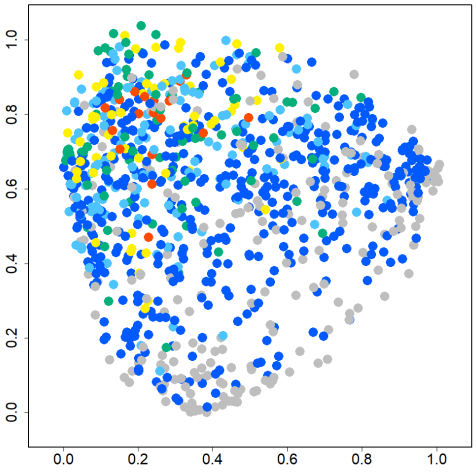


図 4-2　タニガワカゲロウ類出現率

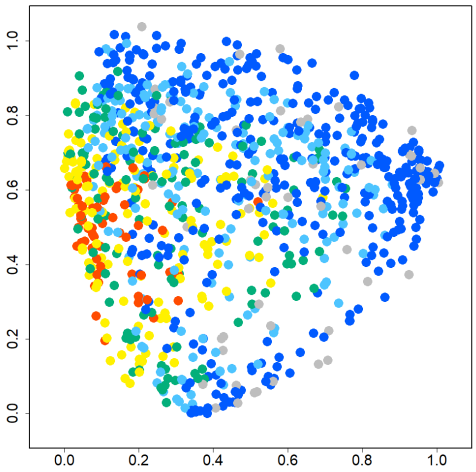


図 4-3　コカゲロウ類出現率

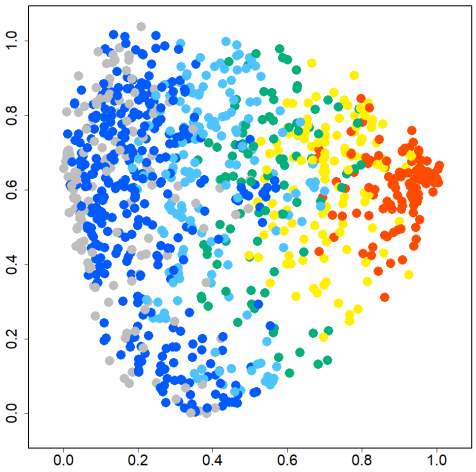


図 4-4　コガタシマトビケラ出現率

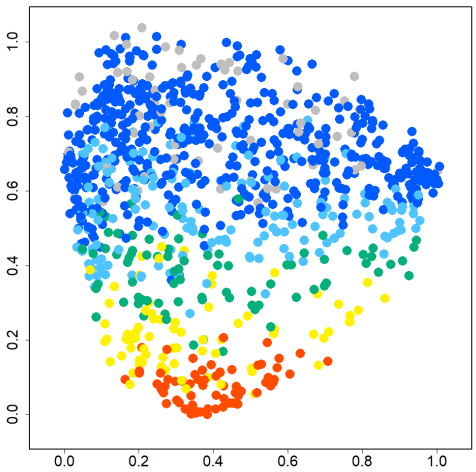


図 4-5　ユスリカ類（白・緑）出現率

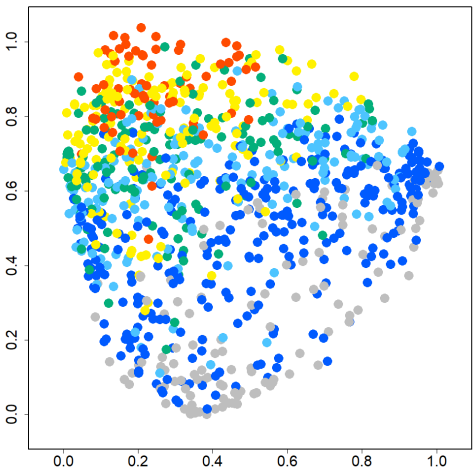


図 4-6　ヒラタカゲロウ類等出現率

出現率

0 %　0～10 %　10～20 %　20～30 %　30～50 %　50 %～

※ 図 4-1～4-6 共通

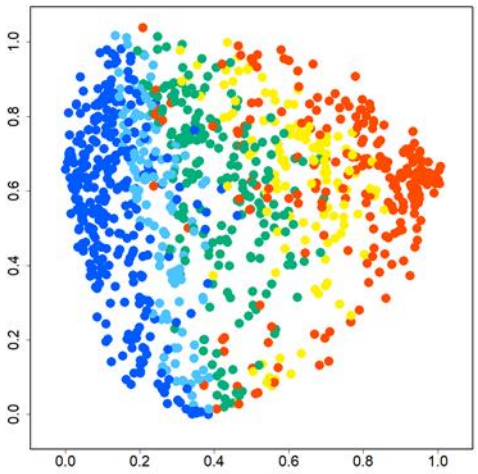


図 4-7　コガタシマトビケラ/
コカゲロウ類　出現比

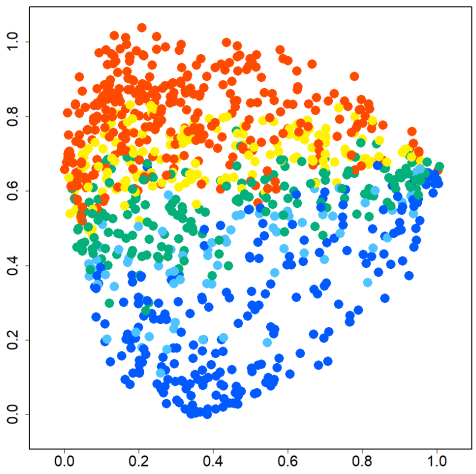


図 4-8　ヒラタカゲロウ類/
ユスリカ類　出現比

出現比（コガタシマトビケラ/コカゲロウ類　又は　ヒラタカゲロウ類等/ユスリカ類）

● ～0.2　● 0.2～0.5　● 0.5～2.0　● 2.0～5.0　● 5.0～

4　地点別散布図

地点別にプロットを強調し，生物評価値により形を，調査年度により色を分けた散布図を作成した。

そのうち，特徴的な傾向を示した地点から No.3 助丸橋，No.13 妙見橋，No. 19 古屋敷，No. 29 広瀬橋の散布図を図 5-1～5-4 に示す。

(1) 助丸橋

助丸橋では，生物評価値Ⅲのプロットが多い範囲（図中右）から生物評価値Ⅰ及びⅡが多い範囲（図中左）への経年的な変化が確認される。このことは，この地点での水環境が改善している傾向にあることを示している。

実際，出現している指標生物種を確認すると，Ⅴに区分される生物種は 2003 年度を最後に近年出現していない。また，2003 年度以前はⅠに区分される生物種が出現することはまれであったが，2010 年度以降はほとんどの年度で区分Ⅰの生物種が複数出現する（data not shown）など，水環境は改善していると考えられる。

ただし，生物評価値はほとんどの年度でⅢとなっており，助丸橋における水環境の改善は生物評価値には表れていない。

(2) 妙見橋

妙見橋では，助丸橋と同様に生物評価値Ⅲのプロットが多い範囲から生物評価値Ⅰ及びⅡが多い範囲への経年的な変化が確認され，生物評価値もⅢが多かったものがⅠが多くなっている。これは，水環境の改善が生物評価値に表れている例といえる。

(3) 古屋敷

古屋敷は球磨川の上流部で，そのプロットは生物評価値Ⅰが多い左上に集中している。

実際の生物評価値もすべての年度でⅠとなっており，良好な水環境を維持していることが分かる。

(4) 広瀬橋

広瀬橋では，おおむね散布図の中央から上に多くのプロットがあるものの，1993 年度のみ下側にプロットが外れている。

なお，指標生物の出現状況ではユスリカ類（白・緑）の出現割合が高くなっている。

近傍の観測地点（水俣及び田浦）における 1993 年度の降水量 [14]を確認すると，いずれにおいても 1990 年度から 2019 年度までの間（水生生物調査の期間）で最も降水量が多い。大雨等の場合，水生生物が減少することが知られており [15]，この結果，生物相が一時的に大きく変化したと推察される。

ただし，1993 年度の生物評価値は，他の多くの年度と同様にⅢとなっており，この生物相の変化は生物評価値には表れていない。

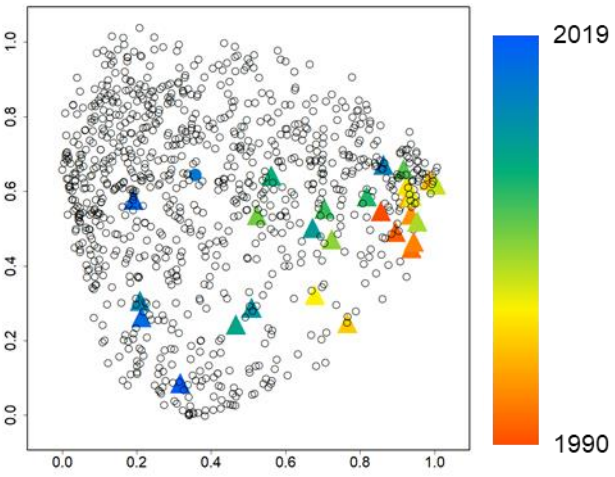


図 5-1　助丸橋

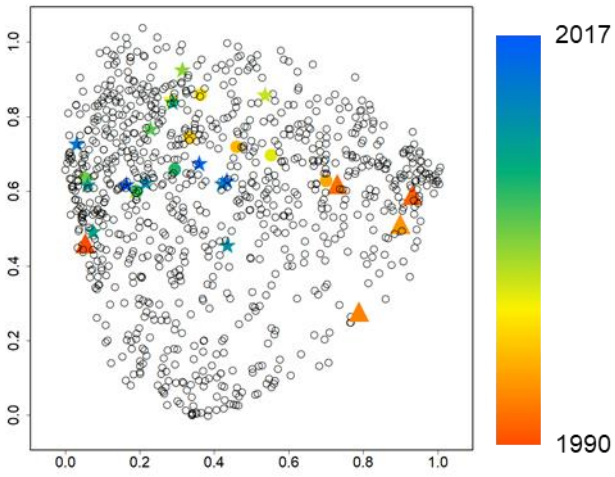


図 5-2　妙見橋

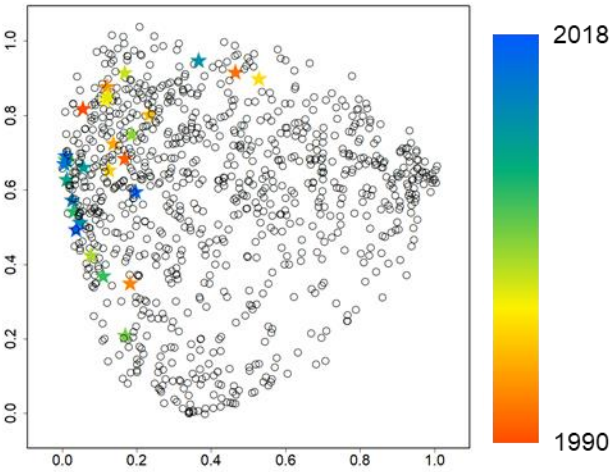


図 5-3　古屋敷

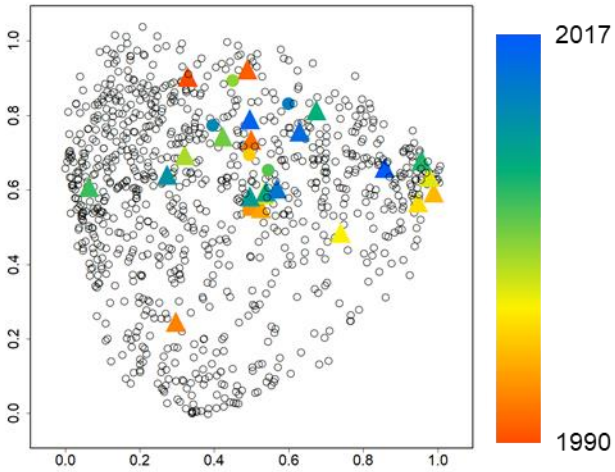


図 5-4　広瀬橋

生物評価値

Ⅰ：★　　Ⅱ：●　　Ⅲ：▲　　Ⅳ：■　　Ⅴ：▼

※ 図 5-1～5-4 共通

まとめ

1990 年度から 2019 年度までの水生生物調査結果を群集類似度（Horn Index）を用いて解析した結果，作成した散布図は生物評価値を一定程度表しており，水質（BOD）とも関係があると考えられた。

また，散布図はヒラタカゲロウ類等，コカゲロウ類，コガタシマトビケラ，ユスリカ類（白・緑）の出現率によって特徴づけられることが分かった。

一方で，地点別の散布図の解析結果から，現行の生物評価値の算出方法では，同一地点における長期的又は一時的な生物相の変化を表し切れていない課題があることが明らかとなった。

文　献

1) 熊本県環境保全課 HP：みんなの川の環境調査報告書 http://www.pref.kumamoto.jp/kiji_583.html（2020 年 6 月閲覧）
2) 谷口智則：熊本県保健環境科学研究所報，**44**，108（2014）.
3) 熊本県環境保全課 HP：みんなの川の環境調査「川の水環境調査のてびき」を掲載しています https://www.pref.kumamoto.jp/kiji_584.html（2020 年 6 月閲覧）
4) 小田泰史，杉村継治，久保　清：用水と廃水，**34**，112　（1992）.

5) 川合禎次編:“日本産水生昆虫検索図説”,(1985),(東海大学出版会).
6) 谷田一三編，丸山博紀，高井幹夫著:“原色川虫図鑑”,(2000),(全国農村教育協会).
7) 刈田　敏著:“水生昆虫ファイルⅠ”,(2002),(株式会社つり人社).
8) 刈田　敏著:“水生昆虫ファイルⅡ”,(2002),(株式会社つり人社).
9) 刈田　敏著:“水生昆虫ファイルⅢ”,(2002),(株式会社つり人社).
10) 椎野季雄著:“水産無脊椎動物学”,(1969),(培風館).
11) The Comprehensive R Archive Network https://cran.r-project.org/（2020 年 6 月閲覧）
12) H.S.Horn: *The American Naturalist*, 914, 419（1966).
13) 環境庁水質保全局水質規制課長：環水規第80-3号,(1999).
14) 気象庁HP：過去の気象データ検索 https://www.data.jma.go.jp/obd/stats/etrn/index（2020年6月閲覧）
15) 前田敏孝，渡邉和博：熊本県保健環境科学研究所報，46，44 (2016).

５）GC/MS による魚体エラ中の迅速な農薬一斉分析法の開発

石原宏明　齊藤弘毅　宮崎康平　内田大智*
西島遥　武千尋　木野世紀

要旨

魚へい死が発生した際に原因推定を行うため，魚体のエラを検体とした GC/MS による農薬一斉分析法の検討を行った。

添加回収試験を実施して精製方法を検討した結果，SAX/PSA ミニカラムを用いた精製方法は，146 農薬中 133 農薬において 50～120%の回収率が得られ，迅速な農薬一斉分析法に適していると考えられた。

キーワード：GC/MS，魚へい死，エラ，迅速一斉分析法

はじめに

河川で大量に魚がへい死したといった水質事故は全国各地で発生しており，本県でも例年15件程度発生しているが，原因不明のまま状況が改善するケースが多い。

原因不明となる要因としては，魚のへい死の通報を受けて保健所等の担当者が現地に向かったうえでの採水となるため，採水した河川水が魚のへい死した直後の水とは性質が大きく異なる可能性が考えられる。

魚のへい死原因の一つとして農薬の河川等への流入がある。へい死が発生した際，本県でも河川水の農薬分析を実施している。農薬は水中の生物だけでなく，人にも影響を与えるもので，環境基本法で人の健康の保護に関する環境基準が定められているものや要監視項目として位置づけられているものがあり，魚へい死の原因究明は重要である。

そこで，時間が経過した後にもその場に留まるへい死魚から農薬を検出できれば，へい死の原因推定及び改善指導等に繋がる可能性があることから，へい死魚を検体とした分析法に着目した。

現在，へい死魚を検体とした農薬分析の公定法は存在しないが，水産物の農薬分析法として，厚生労働省から「GC/MSによる農薬等の一斉試験法（畜水産物）」[1)]が示されている。本法は精製法としてゲル浸透クロマトグラフィー（GPC）を用いているが，試験溶液の調整に時間を要する操作であるため，より迅速に分析可能である「アセトニトリル/n-ヘキサン分配を用いた畜水産物中の農薬分析法」[2)]を参考に，魚体のエラを検体として用いたGC/MSによる農薬一斉分析法を検討したので報告する。

実験方法

1　試薬材料等

1.1　試料

魚体試料は，10 cm程度の試験検査用の真鯉（*Cyprinus carpio* Linnaeus）を使用し，3個体のエラ計約1 gを1検体とした。

1.2　標準品等

・農薬混合標準
農薬混合標準液Ⅰ，農薬混合標準液66，農薬混合標準液70，農薬混合標準液72
残留農薬試験用（関東化学）
・テブコナゾール標準品，チフルザミド標準品，ヘキサコナゾール標準物質
残留農薬試験用（富士フイルム和光純薬）
・プロジアミン標準品
残留農薬試験用（Dr. Ehrenstofer）
・トリフロキシストロビン
試験研究用（AccuStandard inc）
・農薬中間混合標準液
農薬類は上記標準品をアセトンに溶解し，それぞれの農薬濃度が 1 mg/L となるように調製した。ただし，混合標準（Ⅰ，66，70，72）に重複して含まれる農

*　現県北広域本部保健福祉環境部

薬は 2～4 ppm となる。

・内部標準混合標準原液3：水質試験用（関東化学）

・内部中間標準液

内部標準混合標準原液 3 をアセトンで 10 µg/mL として用いた。

1.3　その他の試薬等

・ヘキサン，アセトン，無水硫酸ナトリウム

残留農薬PCB試験用5000倍（関東化学）

・アセトニトリル，ジクロロメタン

残留農薬PCB試験用5000倍（富士フイルム和光純薬）

・オクタデシルシリル化シリカゲルミニカラム（C18）

InertSeP C18-C・1 g/6 mL（ジーエルサイエンス）

・トリメチルアミノプロピルシリル化シリカゲル/エチレンジアミン-N-プロピルシリル化シリカゲル積層ミニカラム（SAX/PSA）

InertSep SAX/PSA・500 mg/500 mg/6 mL（ジーエルサイエンス）

2　測定項目，装置及び測定条件

・測定項目

表 1 に測定項目及び測定イオンを示した。なお，環境基準及び要監視項目に設定されている農薬やゴルフ場農薬として指針値が定められている農薬など146項目を分析対象としている。

・GC/MS

島津製作所製 GCMS-TQ8040

・キャピラリカラム

RESTEK 製 Rtx-5MS

内径 0.25 mm 長さ 30 m 膜厚 0.25 µm

・注入方式	スプリットレス
・試料注入量	2 µL
・注入口温度	250℃
・インターフェース温度	250℃
・イオン源温度	230℃

・GC 昇温条件

50℃（2 分）－7℃/分－180℃－12℃/分－ 300℃（3 分）

・キャリアーガス	ヘリウム
・イオン化電圧	70 eV
・イオン化法	EI
・分析モード	SIM

3　試験溶液の調整

ポリプロピレン製のチューブに試料1 g及びアセトン/n-ヘキサン（1：2）20 mLを入れ，超音波抽出を10分間実施した。抽出作業後、遠心分離（4℃，3,000 rpm，10 min）を行い、上澄みを採取した。残渣にn-ヘキサンを20 mL添加し，同様に抽出操作を行い，先の液に合わせた。漏斗に無水硫酸ナトリウムを約30 g敷き，得られた抽出液を通水し脱水した後，ロータリーエバポレーターを使用し，5 mL程度に減圧濃縮した。

これをn-ヘキサンで20 mLに定容し，n-ヘキサン飽和アセトニトリル20 mLを加え，5分間振盪した後，静置した。アセトニトリル層を分取後，さらに残ったn-ヘキサン層にn-ヘキサン飽和アセトニトリル20 mLを加え同様に操作し，アセトニトリル層を合わせた（図1）。

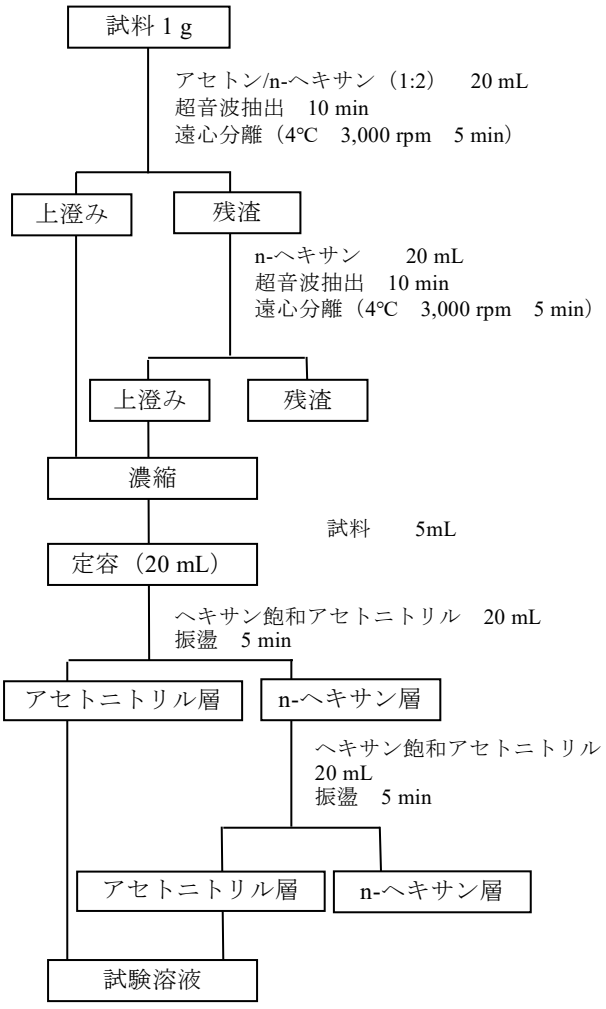


図1　抽出操作及びアセトニトリル/ヘキサン分配

4　添加回収試験

試料1 gに農薬中間混合標準液を100 µL添加し，30分放置後，抽出操作及び精製操作を行い，内標準法により定量した。

農薬の分析において，実際の濃度より大きく評価される正のマトリックス効果が起こる場合があり，今回の分析でも見られたため，感度変動の影響を小さくす

る目的で，検量線用標準溶液を試験溶液と交互に測定した[3]。

5　精製方法の検討

3の操作で得られた溶液を以下の3通りの方法で精製し，2で示した通りGC-MSへ試料を導入して分析を行い，回収率を比較した。

5.1　C18ミニカラムを用いた精製（C18精製のみ）

「3　試験溶液の調整」で得られた溶液を5 mL程度に減圧濃縮し残存しているn-ヘキサンを除去した後，あらかじめアセトニトリル5 mLでコンディショニングしたC18ミニカラムに全量負荷し，アセトニトリル5 mLで溶出した。溶出液を0.5 mL以下に減圧濃縮し，ジクロロメタンで1 mLに定容し，内部中間標準液を5 μLを添加した。

5.2　SAX/PSAミニカラムを用いた精製（SAX/PSA精製のみ）

「3　試験溶液の調整」で得られた溶液を減圧濃縮し，アセトン/n-ヘキサン（1：2）5 mLに溶解し，あらかじめ同液5 mLでコンディショニングしたSAX/PSAミニカラムに全量負荷し，同液5 mLで溶出した。溶出液を減圧濃縮し，ジクロロメタンで1 mLに定容し，内部中間標準液を5 μLを添加した。

5.3　C18及びSAX/PSAミニカラムを用いた精製（C18及びSAX/PSA精製）

「3　試験溶液の調整」で得られた溶液を5 mL程度に減圧濃縮し残存しているn-ヘキサンを除去した後，あらかじめアセトニトリル5 mLでコンディショニングしたC18に全量負荷し，アセトニトリル5 mLで溶出した。溶出液を減圧濃縮し，アセトン/n-ヘキサン（1：2）5 mLに溶解し，あらかじめ同液5 mLでコンディショニングしたSAX/PSAに全量負荷し，同液5 mLで溶出した。溶出液を減圧濃縮し，ジクロロメタンで1 mLに定容し，内部中間標準液を5 μLを添加した。

結果及び考察

各精製方法で添加回収試験を実施したそれぞれの回収率等の結果を表2及び3に，クロマトグラムを図2に示す。

C18精製のみ、SAX/PSA精製のみ並びにC18及びSAX/PSA精製の3つの精製法で添加回収試験を実施した結果，回収率が50～120%であったのは146農薬中それぞれ122農薬（84%），133農薬（91%）及び124農薬（85%）であった。

C18精製のみで行った分析法は，環境基準が定められているｼﾏｼﾞﾝ及びﾁｵﾍﾞﾝｶﾙﾌﾞの2農薬のうち，ｼﾏｼﾞﾝのピークが夾雑物のピークに重なり，検出されなかったが，SAX/PSA精製のみで行った分析法とC18及びSAX/PSA精製で行った分析法は，2農薬とも検出された。

また，要監視項目となっている11農薬は，3つの精製方法とも，2農薬（ｼﾞｸﾛﾙﾎﾞｽ，ｸﾛﾛﾀﾛﾆﾙ）の回収率が50%未満であった。

ｼﾞｸﾛﾙﾎﾞｽは水溶性が高いため，エラから抽出されず，残渣に残留した可能性が考えられた。また，ｸﾛﾛﾀﾛﾆﾙは分解しやすいことが報告されており，魚のエラに付着した後，分解した可能性が推察された[4]。

一般に，SAX/PSAカラムは，カルボン酸のような弱い陰イオン性物質の除去に使用される。本研究においても，SAX/PSAカラムによる精製で行った分析法では，4.5分から25分まで幅広く検出される脂肪酸などの夾雑物のピークが除去された。これにより，SAX/PSA精製のみ，C18及びSAX/PSA精製で分析した結果，ｼﾏｼﾞﾝ（保持時間：10.346 min）などの農薬5種（ｼﾏｼﾞﾝ，ﾍﾟﾝｼｸﾛﾝ，ｲﾏｻﾞﾒﾀﾍﾞﾝｽﾞﾒﾁﾙｴｽﾃﾙ，ﾌｪﾅﾐﾎｽ，ﾒﾁﾙﾀﾞｲﾑﾛﾝ）が検出可能となったと考えられる。

C18カラムは，脱脂用のカラムとして使用される。C18カラムによる精製で行った分析法では，52分付近に検出されるステロイド骨格を持つ化合物と推定されるピークが除去可能であることが確認された。しかし，分析対象とした農薬の定量に影響がなかったため，C18精製が省略可能であることが示唆された。

C18及びSAX/PSA精製で行った分析方法は，両カラム

表3　精製方法の違いによる回収率の変化

精製方法	回収率 50～120%		回収率 50%未満	
	農薬数	割合（%）	環境基準（2農薬）	要監視項目（11農薬）
C18精製	122	84	ｼﾏｼﾞﾝ	ｼﾞｸﾛﾙﾎﾞｽ・ｸﾛﾛﾀﾛﾆﾙ
SAX/PSA精製	133	91	なし	ｼﾞｸﾛﾙﾎﾞｽ・ｸﾛﾛﾀﾛﾆﾙ
C18及びSAX/PSA精製	124	85	なし	ｼﾞｸﾛﾙﾎﾞｽ・ｸﾛﾛﾀﾛﾆﾙ

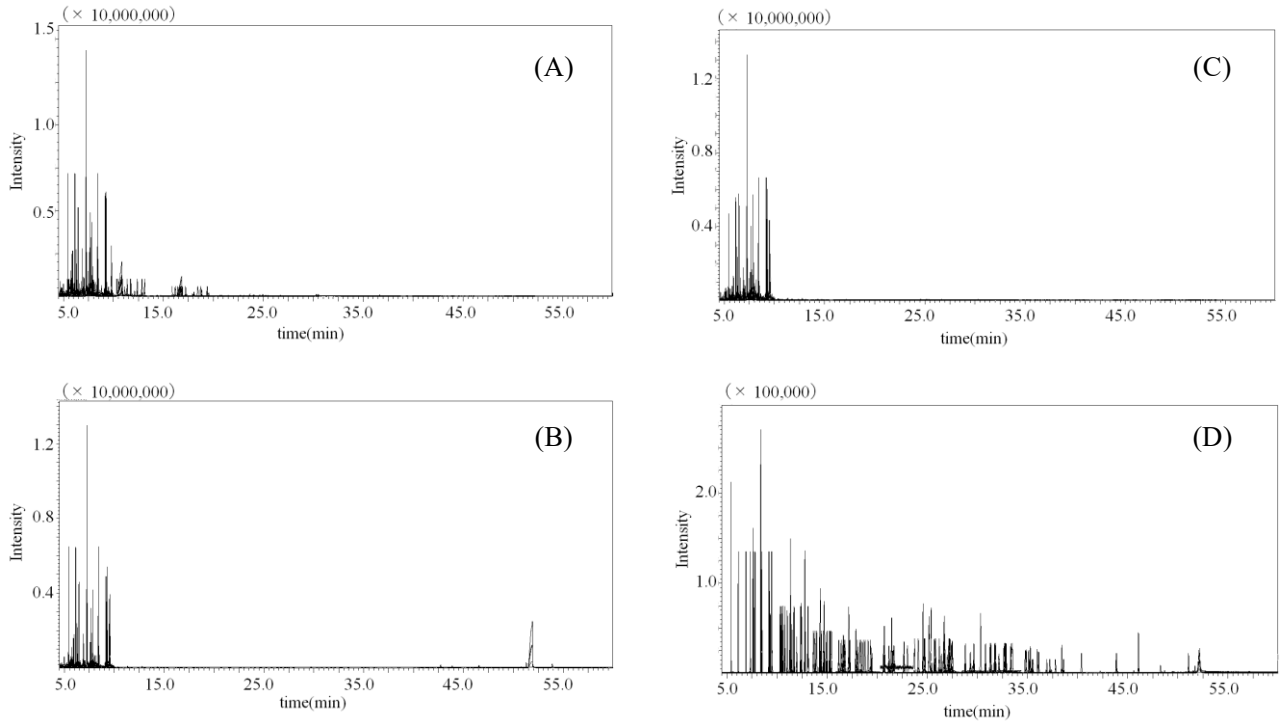


図2　各精製方法のクロマトグラム

（A）C18精製のみ，（B）SAX/PSA精製のみ，（C）C18及びSAX/PSA精製

（D）ジクロロメタンに5 μL農薬中間混合標準液を添加したもの

の効果により夾雑物によるピークが最も低減することができた。しかし，SAX/PSA精製のみに比べて，操作手順が増えることから回収率が低下したと考えられた。更に，2本のカラムを組み合わせることによって新たに回収可能となった農薬は存在しなかった。

これらのことから，SAX/PSA精製のみを行った分析法は，回収できた対象農薬が最も多く，C18精製を省略することで，前処理時間を短縮することができるため，今回の３つの精製方法の中で，迅速な農薬一斉分析法に最も適していると考えられた。

まとめ

河川の魚へい死の原因究明のため，へい死魚のエラを検体とした GC/MS による農薬一斉分析法の検討を行った。今回，添加回収試験を行った全146種の農薬のうち，回収率が 50～120%であった割合は，C18 精製のみの場合が 84%，SAX/PSA 精製のみの場合が 91%，C18 精製及び SAX/PSA 精製の場合が 85%であった。

SAX/PSA 精製のみを行った分析は，環境基準が定められている 2 農薬及びｼﾞｸﾛﾙﾎﾞｽ及びｸﾛﾛﾀﾛﾆﾙを除く要監視項目で 50～120%の回収率が得られ，回収できた対象農薬数が最も多かった。また，この分析は C18 精製を省略することで，前処理時間を短縮することができるため，今回の3つの精製方法の中で，迅速な農薬一斉分析法に最も適していると考えられた。

文献

1) 厚生労働省：通知法，GC/MS による農薬等の一斉試験法（畜水産物）
2) 吉崎麻友子，小林ゆかり，清水正法，丸山浩一：食品衛生学雑誌 **56(3)**，77-82（2015）．
3) 根本了，佐々木久美子，衛藤修一，斎藤勲，酒井洋，高橋哲夫，外海泰秀，永山敏廣，堀伸二郎，前川吉明，豊田正武：食品衛生学雑誌，**41（4）**，233-241（2000）．
4) 廣田敏郎，木下誠，廣中博見：福岡市保健環境研究所報，**27**，91-96（2001）．

表 1. GC/MS による農薬の保持時間及びモニターイオン

No.	農薬	保持時間(min)	定量イオン	確認イオン	
1	ｼﾞｸﾛﾙﾎﾞｽ	5.35	109	185	
2	ﾌｪﾉﾌﾞｶﾙﾌﾞ	8.299	121	150	
3	ﾍﾟﾝｼｸﾛﾝ	9.372	125	180	
4	ｼﾏｼﾞﾝ	10.346	201	186	
5	ﾌﾟﾛﾋﾟｻﾞﾐﾄﾞ	11.251	173	175	254
6	ﾀﾞｲｱｼﾞﾉﾝ	11.589	179	304	152
7	ｸﾛﾛﾀﾛﾆﾙ	12.322	266	264	
8	ｲﾌﾟﾛﾍﾞﾝﾎｽ	12.676	204	91	
9	ﾒﾀﾗｷｼﾙ	15.198	206	249	
10	ｼﾞﾁｵﾋﾟﾙ	16.055	354	306	
11	ﾌｪﾆﾄﾛﾁｵﾝ	16.296	277	260	
12	ﾌﾟﾛｼﾞｱﾐﾝ	16.58	321	333	
13	ﾁｵﾍﾞﾝｶﾙﾌﾞ	17.026	100	72	
14	ﾍﾟﾝﾃﾞｨﾒﾀﾘﾝ	20.533	252	281	
15	ﾌﾙﾄﾗﾆﾙ	25.117	173	281	
16	ｲｿﾌﾟﾛﾁｵﾗﾝ	25.295	189	118	162
17	ﾁﾌﾙｻﾞﾐﾄﾞ	27.182	194	166	
18	ｲｿｷｻﾁｵﾝ	27.407	177	105	
19	ﾒﾌﾟﾛﾆﾙ	30.218	269	119	
20	ｸﾛﾙﾆﾄﾛﾌｪﾝ	30.677	317	319	
21	ﾌﾟﾛﾋﾟｺﾅｿﾞｰﾙ	32.012	259	173	
22	ﾄﾘﾌﾛｷｼｽﾄﾛﾋﾞﾝ	32.534	116	131	
23	ﾃﾌﾞｺﾅｿﾞｰﾙ	32.654	250	125	
24	EPN	35.419	157	169	
25	ﾅﾌﾟﾛﾊﾟﾐﾄﾞ	24.452	72	128	
26	ﾍｷｻｺﾅｿﾞｰﾙ	24.571	214	286	
27	XMC	7.74	122	107	
28	ｱｻﾞｺﾅｿﾞｰﾙ	26.642	217	173	
29	ｱｾﾄｸﾛｰﾙ	14.144	223	146	
30	ｱﾄﾗｼﾞﾝ	10.523	215	200	
31	ｱﾆﾛﾎｽ	36.778	226	125	228
32	ｱﾒﾄﾘﾝ	14.864	227	212	
33	ｱﾗｸﾛｰﾙ	14.798	188	160	146
34	ｱﾚｽﾘﾝ	21.565	123	136	
35	ｲｻｿﾞﾎｽ	12.265	161	285	257
36	ｲｿｷｻﾁｵﾝｵｷｿﾝ	25.253	105	161	77 297
37	ｲｿﾌｪﾝﾎｽ	21.307	213	121	185
38	ｲｿﾌｪﾝﾎｽｵｷｿﾝ	16.08	229	201	314
39	ｲｿﾌﾟﾛｶﾙﾌﾞ	7.517	121	136	122
40	ｲﾌﾟﾛｼﾞｵﾝ	35.021	314	316	187
41	ｲﾏｻﾞﾒﾀﾍﾞﾝｽﾞﾒﾁﾙｴｽﾃﾙ	23.98	256	187	214
42	ｴｽﾌﾟﾛｶﾙﾌﾞ	16.491	91	222	162
43	ｴﾃﾞｨﾌｪﾝﾎｽ	31.136	109	173	310
44	ｴﾁｵﾝ	29.519	231	153	
45	ｴﾄﾌｪﾝﾌﾟﾛｯｸｽ	45.919	163	135	183
46	ｴﾄﾌﾒｾｰﾄ	16.528	286	161	207
47	ｴﾄﾘｼﾞｱｿﾞｰﾙ	6.817	211	183	213
48	硫酸ｴﾝﾄﾞｽﾙﾌｧﾝ	31.13	229	274	
49	ｵｷｻｼﾞｱｿﾞﾝ	26.298	175	258	302
50	ｵｷｻｼﾞｷｼﾙ	29.372	163	132	
51	ｵｷｼﾌﾙｵﾙﾌｪﾝ	26.927	300	302	331
52	ｶﾙﾌｪﾝﾄﾗｿﾞﾝｴﾁﾙ	31.605	340	312	330
53	ｶﾌｪﾝｽﾄﾛｰﾙ	43.723	100	167	188
54	ｶﾙﾎﾞﾌﾗﾝ	10.393	164	149	
55	ｷﾉｷｼﾌｪﾝ	31.209	237	307	
56	ｷﾉｸﾗﾐﾝ	16.654	172	TIC	
57	ｷｬﾌﾟﾀﾝ	21.04	79	149	117
58	ｷﾝﾄｾﾞﾝ	11.23	237	295	
59	ｸﾛﾏｿﾞﾝ	10.669	204	125	
60	ｸﾛﾀｰﾙｼﾞﾒﾁﾙ	18.291	301	332	

表１（続）

No.	農薬	保持時間(min)	定量イオン	確認イオン		
61	ｸﾛﾙﾋﾟﾘﾎｽ	17.91	197	199	314	
62	ｸﾛﾙﾋﾟﾘﾎｽﾒﾁﾙ	14.291	286	125		
63	ｸﾛﾛﾈﾌﾞ	7.258	206	191	193	
64	ｼｱﾉﾎｽ	11.142	243	109		
65	ｼﾞｸﾛﾎｯﾌﾟﾒﾁﾙ	33.196	340	253		
66	ｼﾞｸﾛﾍﾞﾆﾙ	6.055	171	173	100	
67	ｼﾞｸﾛﾗﾝ	10.211	206	176		
68	ｼﾞｽﾙﾎﾄﾝ	11.854	89	186	97	
69	ｼﾞﾌｪﾅﾐﾄﾞ	19.366	167	239		
70	ｼﾞﾒﾀﾒﾄﾘﾝ	20.617	212	240	255	
71	ｼﾞﾒﾄｴｰﾄ	10.206	87	93	125	
72	ｼﾒﾄﾘﾝ	14.539	213	170	155	
73	ｼﾞﾒﾋﾟﾍﾟﾚｰﾄ	21.311	119	91	145	
74	ﾀﾞｲｱｼﾞﾉﾝｵｷｿﾝ	10.944	137	273	288	
75	ﾃﾙﾌﾞｶﾙﾌﾞ	14.215	205	220	206	
76	ﾃｸﾅｾﾞﾝ	8.387	203	261		
77	ﾃﾄﾗｸﾛﾙﾋﾞﾝﾎｽ	19.234	329	331		
78	ﾃﾄﾗｼﾞﾎﾝ	37.081	356	159		
79	ﾃﾆﾙｸﾛｰﾙ	32.716	127	288	141	
80	ﾄﾘｱｼﾞﾒﾎﾝ	18.174	57	208		
81	ﾄﾘｱﾚｰﾄ	12.296	86	226	184	270
82	ﾄﾘﾌﾞﾎｽ	25.633	169	314		
83	ﾄﾘﾌﾙﾗﾘﾝ	9.108	306	264	290	
84	ﾄﾘｸﾛﾋﾟﾙ-2-ﾌﾞﾄｷｼｴﾁﾙｴｽﾃﾙ	27.045	85	182	210	
85	ﾄﾙｸﾛﾎｽﾒﾁﾙ	14.58	265	267	125	
86	ﾄﾙｸﾛﾎｽﾒﾁﾙｵｷｿﾝ	13.526	249	251	109	
87	ﾄﾙﾌｪﾝﾋﾟﾗﾄﾞ	51.59	348	197		
88	ﾆﾄﾛﾀｰﾙｲｿﾌﾟﾛﾋﾟﾙ	18.714	236	212	254	
89	ﾉﾙﾌﾙﾗｿﾞﾝ	31.678	303	145	173	
90	ﾋﾞﾌｪﾉｯｸｽ	35.329	341	310	343	
91	ﾋﾟﾍﾟﾛﾎｽ	35.829	122	140	320	
92	ﾋﾟﾗｿﾞﾎｽ	40.228	221	232		
93	ﾋﾟﾘﾀﾞﾌｪﾝﾁｵﾝ	35.177	340	199	125	
94	ﾋﾟﾘﾌﾞﾁｶﾙﾌﾞ	34.723	165	108	181	
95	ﾋﾟﾘﾌﾟﾛｷｼﾌｪﾝ	38.273	136	137	226	
96	ﾋﾟﾛｷﾛﾝ	11.376	130	173	144	
97	ﾋﾞﾝｸﾛｿﾞﾘﾝ	14.281	187	213	285	
98	ﾌｪﾅﾐﾎｽ	24.666	303	154	217	
99	ﾌｪﾆﾄﾛﾁｵﾝｵｷｿﾝ	13.683	244	261	109	
100	ﾌｪﾉﾁｵｶﾙﾌﾞ	23.167	72	160		
101	ﾌｪﾉﾄﾘﾝ	37.631	123	183		
102	ﾌｪﾝﾁｵﾝ	17.767	278	153	125	
103	ﾌｪﾝﾁｵﾝｽﾙﾎｷｼﾄﾞ	28.658	278	294	125	
104	ﾌｪﾝﾁｵﾝｽﾙﾎﾝ	29.179	310	231	125	
105	ﾌｪﾝﾁｵﾝｵｷｿﾝ	15.33	262	109	247	
106	ﾌｪﾝﾁｵﾝｵｷｿﾝｽﾙﾎｷｼﾄﾞ	26.078	262	247		
107	ﾌｪﾝﾁｵﾝｵｷｿﾝｽﾙﾎﾝ	26.547	294	215		
108	ﾌｪﾝﾄｴｰﾄ	21.544	274	93	125	
109	ﾌｪﾝﾌﾞｺﾅｿﾞｰﾙ	43.689	129	198		
110	ﾌｪﾝﾌﾟﾛﾋﾟﾓﾙﾌ	17.762	128	129	70	
111	ﾌｻﾗｲﾄﾞ	18.971	144	142		
112	ﾌﾞﾀﾐﾎｽ	24.601	286	258	200	
113	ﾌﾞﾋﾟﾘﾒｰﾄ	27.105	273	208	316	
114	ﾌﾞﾌﾟﾛﾌｪｼﾞﾝ	26.566	115	172	175	
115	ﾌﾗﾑﾌﾟﾛｯﾌﾟﾒﾁﾙ	26.583	276	105	77	
116	ﾌﾙｱｸﾘﾋﾟﾘﾑ	31.208	204	190	145	189
117	ﾌﾙﾄﾘｱﾎｰﾙ	23.900	219	201	164	
118	ﾌﾙﾐｵｷｻｼﾞﾝ	48.136	354	77	287	
119	ﾌﾙﾐｸﾛﾗｯｸﾍﾟﾝﾁﾙ	50.944	308	318		
120	ﾌﾟﾚﾁﾗｸﾛｰﾙ	25.711	176	238	262	

表１（続）

No.	農薬	保持時間(min)	定量イオン	確認イオン	
121	ﾌﾟﾛﾊﾟｸﾛｰﾙ	8.403	120	176	
122	ﾌﾟﾛﾊﾟﾆﾙ	13.708	161	163	217
123	ﾌﾟﾛﾊﾟﾙｷﾞｯﾄ	33.346	135	173	107
124	ﾌﾟﾛﾌｪﾉﾎｽ	25.313	339	337	139
125	ﾌﾞﾛﾓﾌﾞﾁﾄﾞ	13.84	119	232	
126	ﾌﾟﾛﾎﾟｷｽﾙ	8.335	110	152	
127	ﾌﾞﾛﾏｼﾙ	16.601	205	207	231
128	ﾌﾟﾛﾒﾄﾘﾝ	15.144	241	184	226
129	ﾌﾞﾛﾓﾌﾟﾛﾋﾟﾚｰﾄ	35.329	341	183	
130	ﾌﾞﾛﾓﾎｽﾒﾁﾙ	19.226	331	329	125
131	ﾍｷｻｼﾞﾉﾝ	32.617	171	252	128
132	ﾍﾞﾅﾗｷｼﾙ	31.109	148	206	
133	ﾍﾞﾉｷｻｺｰﾙ	12.972	120	259	
134	ﾍﾞﾝｽﾘﾄﾞ	32.534	131	77	141
135	ﾍﾞﾝﾌﾙﾗﾘﾝ	9.177	292	264	
136	ﾎｽﾌｧﾐﾄﾞﾝ	13.729	127	264	
137	ﾎｽﾒｯﾄ	35.022	160	161	133
138	ﾏﾗﾁｵﾝ	17.17	127	173	93
139	ﾒﾁﾀﾞﾁｵﾝ	22.537	145	85	302
140	ﾒﾁﾙﾀﾞｲﾑﾛﾝ	21.045	107	91	119
141	ﾒﾄｷｼｸﾛｰﾙ	35.964	227	228	274
142	E-ﾒﾄﾐﾉｽﾄﾛﾋﾞﾝ	25.617	191	196	238
143	Z-ﾒﾄﾐﾉｽﾄﾛﾋﾞﾝ	27.304	238	191	196
144	ﾒﾌｪﾅｾｯﾄ	38.44	192	120	
145	ﾓﾉｸﾛﾄﾎｽ	13.729	127	192	164
146	ﾓﾘﾈｰﾄ	7.585	126	188	98

表 2. 添加回収率の一覧

No.	農薬名	C18	SAX/PSA	C18 + SAX/PSA	No.	農薬名	C18	SAX/PSA	C18 + SAX/PSA
1	ｼﾞｸﾛﾙﾎﾞｽ	38.4	35.7	27.6	48	硫酸ｴﾝﾄﾞｽﾙﾌｧﾝ	96.5	85.3	90.2
2	ﾌｪﾉﾌﾞｶﾙﾌﾞ	90.6	89.8	92.9	49	ｵｷｻｼﾞｱｿﾞﾝ	86.9	83.5	92.3
3	ﾍﾟﾝｼｸﾛﾝ	ND	105.3	84.7	50	ｵｷｻｼﾞｷｼﾙ	76.9	74.4	55.1
4	ｼﾏｼﾞﾝ	ND	92.7	97.1	51	ｵｷｼﾌﾙｵﾙﾌｪﾝ	79.3	63.4	75.8
5	ﾌﾟﾛﾋﾟｻﾞﾐﾄﾞ	98.8	119.1	106.0	52	ｶﾙﾌｪﾝﾄﾗｿﾞﾝｴﾁﾙ	40.8	40.2	40.2
6	ﾀﾞｲｱｼﾞﾉﾝ	80.5	76.2	87.6	53	ｶﾌｪﾝｽﾄﾛｰﾙ	64.5	75.0	80.7
7	ｸﾛﾛﾀﾛﾆﾙ	ND	ND	ND	54	ｶﾙﾎﾞﾌﾗﾝ	96.5	89.3	93.9
8	ｲﾌﾟﾛﾍﾞﾝﾎｽ	94.0	87.5	98.5	55	ｷﾉｷｼﾌｪﾝ	76.6	71.4	79.6
9	ﾒﾀﾗｷｼﾙ	74.7	96.2	79.1	56	ｷﾉｸﾗﾐﾝ	ND	22.9	28.6
10	ｼﾞﾁｵﾋﾟﾙ	100.9	92.4	97.0	57	ｷｬﾌﾟﾀﾝ	ND	8.9	9.8
11	ﾌｪﾆﾄﾛﾁｵﾝ	101.4	81.8	88.8	58	ｷﾝﾄｾﾞﾝ	62.0	57.4	62.3
12	ﾌﾟﾛｼﾞｱﾐﾝ	104.1	80.3	87.6	59	ｸﾛﾏｿﾞﾝ	100.4	84.4	91.3
13	ﾁｵﾍﾞﾝｶﾙﾌﾞ	88.8	83.1	92.7	60	ｸﾛﾀｰﾙｼﾞﾒﾁﾙ	75.2	73.6	80.4
14	ﾍﾟﾝﾃﾞｨﾒﾀﾘﾝ	76.8	67.4	80.1	61	ｸﾛﾙﾋﾟﾘﾎｽ	74.8	71.2	83.2
15	ﾌﾙﾄﾗﾆﾙ	99.3	89.9	94.5	62	ｸﾛﾙﾋﾟﾘﾎｽﾒﾁﾙ	83.1	77.1	83.9
16	ｲｿﾌﾟﾛﾁｵﾗﾝ	88.0	81.8	88.2	63	ｸﾛﾛﾈﾌﾞ	ND	ND	ND
17	ﾁﾌﾙｻﾞﾐﾄﾞ	97.9	87.4	93.1	64	ｼｱﾉﾎｽ	88.6	79.6	89.1
18	ｲｿｷｻﾁｵﾝ	88.8	73.3	79.4	65	ｼﾞｸﾛﾎｯﾌﾟﾒﾁﾙ	14.0	18.0	21.1
19	ﾒﾌﾞﾛﾆﾙ	98.3	90.5	92.8	66	ｼﾞｸﾛﾍﾞﾆﾙ	64.5	63.2	44.9
20	ｸﾛﾙﾆﾄﾛﾌｪﾝ	92.7	72.7	80.8	67	ｼﾞｸﾛﾗﾝ	87.6	79.9	88.0
21	ﾌﾟﾛﾋﾟｺﾅｿﾞｰﾙ	30.6	90.1	28.8	68	ｼﾞｽﾙﾎﾄﾝ	93.7	78.6	77.2
22	ﾄﾘﾌﾛｷｼｽﾄﾛﾋﾞﾝ	99.6	85.1	94.0	69	ｼﾞﾌｪﾅﾐﾄﾞ	88.9	86.6	92.3
23	ﾃﾌﾞｺﾅｿﾞｰﾙ	9.2	83.6	ND	70	ｼﾞﾒﾀﾒﾄﾘﾝ	87.4	86.8	94.0
24	EPN	91.7	81.6	77.5	71	ｼﾞﾒﾄｴｰﾄ	ND	68.4	35.9
25	ﾅﾌﾟﾛﾊﾟﾐﾄﾞ	86.4	89.4	91.8	72	ｼﾒﾄﾘﾝ	94.3	91.8	98.3
26	ﾍｷｻｺﾅｿﾞｰﾙ	ND	75.8	ND	73	ｼﾞﾒﾋﾟﾍﾟﾚｰﾄ	72.5	69.9	78.4
27	XMC	87.5	88.6	93.2	74	ﾀﾞｲｱｼﾞﾉﾝｵｷｿﾝ	67.2	55.9	62.5
28	ｱｻﾞｺﾅｿﾞｰﾙ	ND	83.2	ND	75	ﾃﾙﾌﾞｶﾙﾌﾞ	92.3	92.9	98.2
29	ｱｾﾄｸﾛｰﾙ	78.9	83.5	89.1	76	ﾃｸﾅｾﾞﾝ	60.0	58.1	62.0
30	ｱﾄﾗｼﾞﾝ	74.3	89.9	92.4	77	ﾃﾄﾗｸﾛﾙﾋﾞﾝﾎｽ	80.2	72.4	80.8
31	ｱﾆﾛﾎｽ	116.0	102.5	107.3	78	ﾃﾄﾗｼﾞﾎﾝ	83.5	77.5	84.1
32	ｱﾒﾄﾘﾝ	96.4	95.7	103.6	79	ﾃﾆﾙｸﾛｰﾙ	65.1	71.7	64.4
33	ｱﾗｸﾛｰﾙ	85.6	86.1	86.8	80	ﾄﾘｱｼﾞﾒﾎﾝ	75.7	88.5	96.4
34	ｱﾚｽﾘﾝ	81.1	91.4	93.9	81	ﾄﾘｱﾚｰﾄ	54.9	55.5	67.5
35	ｲｻｿﾞﾎｽ	84.6	72.4	85.6	82	ﾄﾘﾌﾞﾎｽ	65.1	56.0	66.6
36	ｲｿｷｻﾁｵﾝｵｷｿﾝ	62.0	47.2	58.2	83	ﾄﾘﾌﾙﾗﾘﾝ	76.0	73.1	80.0
37	ｲｿﾌｪﾝﾎｽ	79.9	72.4	85.4	84	ﾄﾘｸﾛﾋﾟﾙ-2-ﾌﾞﾄｷｼｴﾁﾙｴｽﾃﾙ	65.7	73.3	102.4
38	ｲｿﾌｪﾝﾎｽｵｷｿﾝ	61.6	69.3	62.1	85	ﾄﾙｸﾛﾎｽﾒﾁﾙ	83.4	79.5	86.6
39	ｲｿﾌﾟﾛｶﾙﾌﾞ	95.3	92.6	92.7	86	ﾄﾙｸﾛﾎｽﾒﾁﾙｵｷｿﾝ	97.8	96.4	101.3
40	ｲﾌﾟﾛｼﾞｵﾝ	92.7	85.7	91.7	87	ﾄﾙﾌｪﾝﾋﾟﾗﾄﾞ	66.4	93.4	88.7
41	ｲﾏｻﾞﾒﾀﾍﾞﾝｽﾞﾒﾁﾙｴｽﾃﾙ	ND	64.4	56.1	88	ﾆﾄﾛﾀｰﾙｲｿﾌﾟﾛﾋﾟﾙ	82.4	66.4	77.4
42	ｴｽﾌﾟﾛｶﾙﾌﾞ	85.0	83.9	94.5	89	ﾉﾙﾌﾙﾗｿﾞﾝ	87.5	79.7	70.1
43	ｴﾃﾞｨﾌｪﾝﾎｽ	134.1	85.6	93.1	90	ﾋﾞﾌｪﾉｯｸｽ	89.3	87.7	93.7
44	ｴﾁｵﾝ	95.9	77.6	83.8	91	ﾋﾟﾍﾟﾛﾎｽ	95.6	80.9	88.0
45	ｴﾄﾌｪﾝﾌﾟﾛｯｸｽ	76.1	91.1	94.9	92	ﾋﾟﾗｿﾞﾎｽ	109.0	91.7	99.5
46	ｴﾄﾌﾒｾｰﾄ	112.1	97.6	103.6	93	ﾋﾟﾘﾀﾞﾌｪﾝﾁｵﾝ	97.7	84.2	89.2
47	ｴﾄﾘｼﾞｱｿﾞｰﾙ	53.9	51.2	45.7	94	ﾋﾟﾘﾌﾞﾁｶﾙﾌﾞ	92.1	89.3	96.8

表 2（続）

No.	農薬名	C18	SAX/PSA	C18 + SAX/PSA	No.	農薬名	C18	SAX/PSA	C18 + SAX/PSA
95	ﾋﾟﾘﾌﾟﾛｷｼﾌｪﾝ	86.2	83.9	92.9	128	ﾌﾟﾛﾒﾄﾘﾝ	84.1	92.9	100.2
96	ﾋﾟﾛｷﾛﾝ	85.1	89.8	89.9	129	ﾌﾞﾛﾓﾌﾟﾛﾋﾟﾚｰﾄ	88.6	86.3	92.8
97	ﾋﾞﾝｸﾛｿﾞﾘﾝ	87.2	83.9	84.4	130	ﾌﾞﾛﾓﾎｽﾒﾁﾙ	80.3	72.6	81.3
98	ﾌｪﾅﾐﾎｽ	ND	93.0	86.7	131	ﾍｷｻｼﾞﾉﾝ	74.0	75.8	57.1
99	ﾌｪﾆﾄﾛﾁｵﾝｵｷｿﾝ	68.6	66.6	72.7	132	ﾍﾞﾅﾗｷｼﾙ	91.0	91.8	96.2
100	ﾌｪﾉﾁｵｶﾙﾌﾞ	85.0	83.6	92.6	133	ﾍﾞﾉｷｻｺｰﾙ	56.2	55.5	63.2
101	ﾌｪﾉﾄﾘﾝ-2	79.6	78.1	86.7	134	ﾍﾟﾝｽﾘﾄﾞ	103.8	86.8	100.8
102	ﾌｪﾝﾁｵﾝ	82.8	70.5	80.3	135	ﾍﾞﾝﾌﾙﾗﾘﾝ	76.5	73.2	79.6
103	ﾌｪﾝﾁｵﾝｽﾙﾎｷｼﾄﾞ	101.2	96.4	57.9	136	ﾎｽﾌｧﾐﾄﾞﾝ	76.6	75.6	79.7
104	ﾌｪﾝﾁｵﾝｽﾙﾎﾝ	111.1	89.9	91.7	137	ﾎｽﾒｯﾄ	106.6	92.6	95.8
105	ﾌｪﾝﾁｵﾝｵｷｿﾝ	90.6	87.0	89.0	138	ﾏﾗﾁｵﾝ	78.2	72.3	86.5
106	ﾌｪﾝﾁｵﾝｵｷｿﾝｽﾙﾎｷｼﾄﾞ	ND	29.0	ND	139	ﾒﾁﾀﾞﾁｵﾝ	90.8	79.9	89.7
107	ﾌｪﾝﾁｵﾝｵｷｿﾝｽﾙﾎﾝ	53.0	61.1	18.0	140	ﾒﾁﾙﾀﾞｲﾑﾛﾝ	ND	80.7	100.7
108	ﾌｪﾝﾄｴｰﾄ	83.4	71.7	79.7	141	ﾒﾄｷｼｸﾛｰﾙ	89.0	79.5	86.0
109	ﾌｪﾝﾌﾞｺﾅｿﾞｰﾙ	88.8	86.8	57.0	142	E-ﾒﾄﾐﾉｽﾄﾛﾋﾞﾝ	98.3	85.5	88.4
110	ﾌｪﾝﾌﾞﾛﾋﾟﾓﾙﾌ	ND	25.7	ND	143	Z-ﾒﾄﾐﾉｽﾄﾛﾋﾞﾝ	100.6	90.0	91.4
111	ﾌｻﾗｲﾄﾞ	42.5	39.6	44.4	144	ﾒﾌｪﾅｾｯﾄ	101.6	95.0	102.1
112	ﾌﾞﾀﾐﾎｽ	95.2	73.0	78.2	145	ﾓﾉｸﾛﾄﾎｽ	75.7	75.9	79.6
113	ﾌﾞﾋﾟﾘﾒｰﾄ	100.5	95.5	100.7	146	ﾓﾘﾈｰﾄ	57.0	61.9	60.4
114	ﾌﾞﾌﾟﾛﾌｪｼﾞﾝ	94.8	89.2	94.2	134	ﾍﾟﾝｽﾘﾄﾞ	84.1	92.9	100.2
115	ﾌﾗﾑﾌﾟﾛｯﾌﾟﾒﾁﾙ	92.1	86.4	88.2	135	ﾍﾞﾝﾌﾙﾗﾘﾝ	88.6	86.3	92.8
116	ﾌﾙｱｸﾘﾋﾟﾘﾑ	96.0	91.0	72.7	136	ﾎｽﾌｧﾐﾄﾞﾝ	80.3	72.6	81.3
117	ﾌﾙﾄﾘｱﾎｰﾙ	98.5	54.4	ND	137	ﾎｽﾒｯﾄ	74.0	75.8	57.1
118	ﾌﾙﾐｵｷｻｼﾞﾝ	96.0	76.9	84.4	138	ﾏﾗﾁｵﾝ	91.0	91.8	96.2
119	ﾌﾙﾐｸﾛﾗｯｸﾍﾟﾝﾁﾙ	30.1	44.8	47.8	139	ﾒﾁﾀﾞﾁｵﾝ	56.2	55.5	63.2
120	ﾌﾟﾚﾁﾗｸﾛｰﾙ	80.2	76.2	82.2	140	ﾒﾁﾙﾀﾞｲﾑﾛﾝ	103.8	86.8	100.8
121	ﾌﾟﾛﾊﾟｸﾛｰﾙ	2.5	ND	ND	141	ﾒﾄｷｼｸﾛｰﾙ	76.5	73.2	79.6
122	ﾌﾟﾛﾊﾟﾆﾙ	97.3	92.0	96.2	142	E-ﾒﾄﾐﾉｽﾄﾛﾋﾞﾝ	76.6	75.6	79.7
123	ﾌﾟﾛﾊﾟﾙｷﾞｯﾄ	101.3	94.7	110.9	143	Z-ﾒﾄﾐﾉｽﾄﾛﾋﾞﾝ	106.6	92.6	95.8
124	ﾌﾟﾛﾌｪﾉﾎｽ	83.6	74.6	83.1	144	ﾒﾌｪﾅｾｯﾄ	78.2	72.3	86.5
125	ﾌﾞﾛﾓﾌﾞﾁﾄﾞ	94.9	97.6	102.3	145	ﾓﾉｸﾛﾄﾎｽ	90.8	79.9	89.7
126	ﾌﾟﾛﾎﾟｷｽﾙ	82.9	88.3	92.1	146	ﾓﾘﾈｰﾄ	ND	80.7	100.7
127	ﾌﾞﾛﾏｼﾙ	ND	79.7	ND					

３・２　資　料

１）感染症発生動向調査に伴う病原体検査（2019 年度）

前田莉花　佐藤磨美　槐島翔一郎　平野孝昭　酒井崇*　八尋俊輔

はじめに

熊本県感染症発生動向調査事業に基づき，2019 年度に検査依頼のあった検体について病原体検査を実施した結果を取りまとめたので報告する。

調査方法

1 検査材料

県内の病原体定点やその他の医療機関で採取された咽頭ぬぐい液（鼻咽腔ぬぐい液，鼻汁及びうがい液を含む），結膜ぬぐい液（眼脂を含む），便，髄液，尿並びに喀痰を検体とした。各種検体の受付数は表 1 に示した。搬入された検体は，検査に供するまで 4℃または-80℃で保存した。

2 検査方法

検査方法については，既報 [1),2)]及び病原体検出マニュアル [3)]に準じ，PCR 法，マイクロプレートによる細胞培養法で検査を実施した。分離ウイルスの同定は PCR 法，シークエンス法を用いた。

結果

2019 年度は，病原体定点である 7 医療機関から臨床検体 415 件，その他 17 医療機関から 92 件，合計 507 件の検査依頼があり，262 件から病原微生物が分離，あるいは遺伝子が検出された。疾患別病原体検出数を表 2 に示す。

1 呼吸器系ウイルス（インフルエンザ，その他呼吸器系ウイルス）

インフルエンザウイルスは，インフルエンザ，インフルエンザ様疾患，咽頭結膜熱と診断された患者検体のうち，21 検体から分離，あるいは遺伝子が検出された。内訳は，A H1pdm 型が 16 件，A H3 型が 4 件，B 型のみ同定が 1 件であった。

その他の呼吸器系ウイルスは，インフルエンザ，RS ウイルス感染症，上気道炎，下気道炎，咽頭結膜熱と診断された患者検体のうち，混合感染を含め 38 検体から分離，あるいは遺伝子が検出された。その内訳は，ヒトライノウイルスが 21 件，RS ウイルスが 9 件，ヒトコロナウイルス OC43 型が 5 件，NL63 型が 2 件，パラインフルエンザウイルス 3 型が 1 件，4 型が 3 件であった。

また，この項にこれまで挙げた疾患以外からも呼吸器系ウイルスが検出され，その内訳は，ヒトライノウイルスが 27 件，RS ウイルスが 6 件，パラインフルエンザウイルス 1 型が 1 件，2 型が 1 件，3 型が 1 件，ヒトメタニューモウイルスが 7 件，ヒトボカウイルスが 3 件であった。

2 エンテロウイルス

エンテロウイルスは，ヘルパンギーナ，手足口病，発疹症，無菌性髄膜炎，伝染性紅斑と診断された患者検体のうち，混合感染を含め 29 検体から分離，あるいは遺伝子が検出された。その内訳は，コクサッキーウイルス A 群 5 型が 1 件，6 型が 23 件，10 型が 3 件，B 群 5 型が 2 件，エンテロウイルス型別不明（NT）が 1 件であった。

また，この項にこれまで挙げた疾患以外からもエンテロウイルスが検出され，その内訳は，コクサッキーウイルス A 群 5 型が 1 件，B 群 3 型が 1 件，B 群 5 型が 1 件，エコー30 型が 6 件，型別不明（NT）が 1 件であった。

疾患別で，主なものとしてヘルパンギーナからコクサッキーウイルス A 群 5 型が 1 件，6 型が 4 件，B 群 5 型が 2 件，手足口病からコクサッキーウイルス A 群 6 型が 19 件，10 型が 2 件，エンテロウイルス型別不明（NT）が 1 件分離，あるいは遺伝子が検出された。

3 下痢症ウイルス（ノロ，その他下痢症系ウイルス）

感染性胃腸炎と診断された患者検体のうち，混合感染を含め 46 検体から分離，あるいは遺伝子が検出された。その内訳は，主なものとしてノロウイルス GⅠが 2 件，Ⅱが 26 件，アストロウイルスが 1 件，サポウイルスが 2 件，カンピロバクターが 1 件であった。

＊現健康福祉部健康局薬務衛生課

4 アデノウイルス

アデノウイルスは流行性角結膜炎，その他結膜炎等と診断された患者検体のうち，33 検体から分離，あるいは遺伝子が検出された。その内訳は，3 型が 6 件，4 型が 1 件，37 型が 5 件，53 型が 4 件，54 型が 8 件，64 型が 3 件，型別不明（NT）が 6 件であった。

また，呼吸器疾患，ヘルパンギーナ，発疹症，咽頭結膜熱及び感染性胃腸炎と診断された患者検体からもアデノウイルスが 10 件検出された。

5 その他の病原微生物

ヘルパンギーナ，手足口病，発疹症，感染性胃腸炎，その他ウイルス感染症と診断された患者検体から，パレコウイルスが 18 件検出された。

まとめ

2019 年度は，コクサッキーウイルス A 群 6 型が流行し，手足口病やヘルパンギーナ等から多数検出された。また，インフルエンザウイルスについては，A H1pdm 型が多数検出され，A H3 型が 4 件，B 型の検出は 1 件のみと昨年度とは異なる流行が見られた。今後も事業を継続し，経年的なデータを蓄積することが県民に向けた感染症の注意喚起につながると考えられる。

文献

1）西村浩一，松尾繁，田端康二，甲木和子：熊本県保健環境科学研究所報，**30**，49 （2000）.

2）松尾繁，田端康二，西村浩一，甲木和子 ：熊本県保健環境科学研究所報，**31**，71 （2001）.

3）病原体検出マニュアル（国立感染症研究所作成）www.nih.go.jp/niid/ja/labo-manual.html （2020 年 7 月閲覧）

表 1　検体受付数

病原体定点種別	検体数	検体種別						
		咽頭ぬぐい液	結膜ぬぐい液	便	髄液	尿	血液	その他
小児科	293	222	2	66		1	1	1
インフルエンザ	10	10						
眼科	92		92					
基幹	20	8		1		5	6	
その他	92	43		1		25	23	
合計	507	283	94	68		31	30	1

表2 疾患別ウイルス検出数[平成31年(2019年)4月1日～令和2年(2020年)3月31日]

疾患名		4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月	3月	計
インフルエンザ	検体受付数	3	0	0	0	0	0	0	4	11	3	1	0	22
	Influenza A(H1pdm09)								4	7	3	1		15
	Influenza A(H3)	3												3
	Influenza B(Victoria)									1				1
	陰性									3				3
インフルエンザ様疾患	検体受付数	1	0	0	0	0	0	0	0	0	1	1	0	3
	Influenza A(H1pdm09)										1			1
	Influenza A(H3)	1												1
	陰性											1		1
RSウイルス感染症	検体受付数	0	0	0	1	1	0	0	0	0	0	0	0	2
	Parainfluenza 3				1									1
	RSV					1								1
	陰性													0
上気道炎	検体受付数	15	6	3	0	3	6	5	3	13	6	15	0	75
	Coxsackie A5						1							1
	Coxsackie B3							1						1
	Coxsackie B5					1								1
	Human corona NL63		1											1
	Human corona OC43										2	3		5
	Human rhino	1	1	2			3	3		1		3		14
	Parainfluenza 4		1											1
	RSV	3		1					1	2				7
	Adeno NT+Human rhino	1												1
	Human corona NL63+Human rhino	1												1
	Parainfluenza 3+Human rhino		1											1
	Parainfluenza 4+Human rhino	1	1											2
	RSV+Human rhino						1							1
	陰性	8	1			2	1	1	2	10	4	9		38
下気道炎	検体受付数	1	0	0	0	0	1	1	0	1	0	0	0	4
	Human rhino							1						1
	陰性	1					1			1				3
百日咳	検体受付数	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	陰性													0
ヘルパンギーナ	検体受付数	4	4	10	6	5	7	2	0	6	3	2	0	49
	Coxsackie A6			1										1
	Coxsackie A10						1							1
	Coxsackie B5						1							1
	HHV-6			2	1									3
	Human rhino	2	4	1	1	1	2			1	1			13
	Parecho NT					1								1
	RSV			1	2		1			1				5
	Adeno 2+Herpesvirus NT									1				1
	Adeno 2+Human rhino									1				1
	Coxsackie A5+HHV-6						1							1
	Coxsackie A6+HHV-6			3										3
	Coxsackie B5+Parecho NT					1								1
	Human rhino+Human boca	1												1
	Parecho NT+Human rhino							1						1
	陰性	1		2	2	2	1	1		2	2	2		15
手足口病	検体受付数	1	4	27	12	3	3	0	0	0	0	1	0	51
	Coxsackie A6			7	5	1								13
	Coxsackie A10						1							1
	HHV-6			10	4									14
	HHV-7		2											2
	Human rhino	1		2		1						1		5
	Parecho NT		1				1							2
	Coxsackie A6+Cytomegalo				1									1
	Coxsackie A6+Epstein-Barr			1										1
	Coxsackie A6+HHV-6			3										3
	Coxsackie A6+Human boca		1											1
	Coxsackie A10+HHV-6+Parecho NT						1							1
	Entero NT+Human rhino			1										1
	Parecho NT+Human rhino					1								1
	陰性			3	2									5
発疹症	検体受付数	0	1	4	0	0	0	1	1	0	0	0	0	7
	Adeno 3							1						1
	HHV-6		1											1
	Human rhino								1					1
	Parecho NT			1										1
	陰性			3										3
突発性発疹	検体受付数	1	0	0	0	0	0	1	0	1	1	0	0	4
	Human rhino+Human boca	1												1
	Parainfluenza 2+Human rhino							1						1
	RSV+Human rhino									1				1
	陰性										1			1

表2 疾患別ウイルス検出数[平成31年(2019年)4月1日～令和2年(2020年)3月31日]

疾患名		4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月	3月	計
咽頭結膜熱	検体受付数	3	1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	4
	Adeno NT	1												1
	Human rhino	1												1
	陰性	1	1											2
伝染性紅斑	検体受付数	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	陰性													0
麻疹	検体受付数	6	0	0	3	9	3	0	0	0	3	0	0	24
	陰性	6			3	9	3				3			24
風疹	検体受付数	12	15	6	6	6	3	3	0	0	0	0	3	54
	Rubella	3		2				1						6
	Measles					3								3
	陰性	9	15	4	6	3	3	2					3	45
水痘	検体受付数	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	陰性													0
心筋炎	検体受付数	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	陰性													0
無菌性髄膜炎	検体受付数	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	陰性													0
細菌性髄膜炎	検体受付数	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	陰性													0
脳炎・脳症等	検体受付数	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	陰性													0
流行性耳下腺炎	検体受付数	4	1	0	2	0	0	1	0	1	1	1	0	11
	Herpesvirus NT										1			1
	HHV-6	1			2									3
	陰性	3	1					1		1		1		7
不明熱	検体受付数	1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	1
	陰性	1												1
感染性胃腸炎	検体受付数	5	5	6	3	6	4	0	2	18	6	10	0	65
	Adeno NT					1				1		1		3
	Astro NT	1												1
	C.jejuni									1				1
	Echo 30				3	3								6
	Entero NT						1							1
	Noro G1									1				1
	Noro G2	1	2	4						7	3	5		22
	Parecho NT					1				2		1		4
	Sapo NT										1			1
	Noro G1+Parecho NT										1			1
	Noro G2+Adeno NT									1				1
	Noro G2+Parecho NT									2				2
	Noro G2+Adeno NT+Parecho NT									1				1
	Sapo NT+Parecho NT									1				1
	陰性	3	3	2		1	3		2	1	1	3		19
流行性角結膜炎	検体受付数	1	3	2	2	1	1	7	5	2	2	2	0	28
	Adeno 3		1					2	1					4
	Adeno 37				1		1			1				3
	Adeno 53					1			1	1				3
	Adeno 54		1	2	1			2	2					8
	Adeno 64	1	1						1					3
	Adeno NT							1			2	2		5
	陰性							2						2
その他結膜炎等	検体受付数	8	9	10	3	3	9	2	6	7	3	6	0	66
	Adeno 3					1			1					2
	Adeno 4						1							1
	Adeno 37					1			1					2
	Adeno 53						1							1
	Adeno NT							1						1
	HSV 1				1									1
	陰性	8	9	10	2	1	7	1	4	7	3	6		58
その他	検体受付数	0	0	12	2	2	3	5	3	0	2	1	7	37
	Chikungunya												1	1
	Herpesvirus NT					1					1			2
	HHV-6			1		1			1		1			4
	Human metapneumo			4				3						7
	Parainfluenza 1			1										1
	Parainfluenza 3				1									1
	Parecho 3						1							1
	VZV						1		1					2
	陰性			6	1		1	2	1			1	6	18
検体受付総数		66	49	80	40	39	40	28	24	60	31	40	10	507
陽性		25	19	50	24	21	20	18	15	35	17	17	1	262
陰性		41	30	30	16	18	20	10	9	25	14	23	9	245

２）日本脳炎調査（2019 年度）

槻島翔一郎　原田誠也　酒井崇[*1]　松本一俊[*2]

はじめに

日本脳炎（以下「JE」という）は，JE ウイルス（以下「JEV」という）を保有している蚊（主にコガタアカイエカ）によって媒介される感染症で，典型的なヒトの臨床像は急性髄膜脳炎である。数十年前には全国で年間 1,000 人を超える患者が発生していた JE だが，ワクチンの普及により患者数は激減し，1992 年以降は一桁台が続いていた。2016 年は 25 年ぶりに 10 人を超える患者が報告された[1)]。JE は，発症すると致死率（20～40%程度）が高く，回復後も半数近くに後遺症がみられることから，ワクチンの積極的接種が推奨されている。

本県では例年，厚生労働省の感染症流行予測事業の一環として，JEV のヒトにおける感受性調査及び飼育ブタの感染源調査を行っていたが，2019 年度は飼育ブタの感染源調査を行った。

調査方法

１　ブタ血清の赤血球凝集抑制（HI）抗体及び 2-メルカプトエタノール（2ME）感受性抗体調査

2019 年 7 月 22 日から 2019 年 9 月 17 日の間に，県内の養豚場から熊本県畜産流通センター（菊池市七城町）に搬入された飼育ブタ（原則として飼育業者別に 5 検体ずつ）の放血血液を 1 週間毎に 15 検体計 135 検体採取した。採取した血液は血清を分離後，常法[2)]により HI 抗体価と新鮮感染の指標である 2ME 感受性抗体価を測定した。

２　ブタ血清中の JEV 遺伝子検出

HI 抗体価測定に用いたブタ血清から，Real time PCR 法[3)]で JEV 遺伝子を検出した。

結果及び考察

１　ブタ血清の赤血球凝集抑制（HI）抗体及び 2-メルカプトエタノール（2ME）感受性抗体調査

飼育地別のブタ血清中の HI 抗体保有状況を表 1 に示した。2019 年度に最も早く HI 抗体が確認されたのは，7 月 22 日の熊本市植木町で，その後 8 月半ばから HI 抗体陽性率は漸増し，9 月 17 日には 73%となった。

次に，HI 抗体価及び 2ME 感受性抗体保有数を表 2 に示した。2ME 感受性抗体は，7 月 22 日の熊本市植木町の検体（HI 抗体陽性）から初めて確認され，その後，8 月 19 日から 9 月 17 日まで継続的に確認された。

本県の発令基準に従い，7 月 25 日に JE 注意報が発令され，例年（2017 年：8 月 4 日，2018 年：8 月 15 日）に比べ早く，2ME 感受性抗体が継続して確認されたことから，県内で JEV が活動した時期は，2018 年より長期に渡った可能性がある。

２　ブタ血清中の JEV 遺伝子検出

JEV 遺伝子検出状況を表 1 に併記した。ブタ血清中の JEV 遺伝子は山鹿市鹿本町の 2 検体（8 月 13 日：1 検体，8 月 19 日：1 検体）と熊本市植木町の 1 検体（8 月 19 日：1 検体）から検出された。

まとめ

本県では，2018 年に続き 2019 年も JE 患者の届け出はなかったが，全国では 2019 年には京都府で 1 人，和歌山県で 4 人，広島県で 2 人，山口県で 1 人の JE 患者が報告[4)]されており，今後も調査を継続していく必要があると思われる。

文献

1) 多屋馨子：臨床と微生物，44，193，（2017）.
2) 厚生労働省：感染症流行予測調査事業検査術式（2002）.
3) 高崎智彦：厚生労働科学研究費補助金（新興・再興感染症研究事業）平成 20 年度分担研究報告書，81-84（2009）.
4) IDWR 感染症発生動向調査週報 2019 年第 52 週，（2019）.

[*1] 現健康福祉部健康局薬務衛生課　[*2] 現食肉衛生検査所

表 1 飼育地別ブタの HI 抗体保有状況及び JEV 遺伝子検出状況等

採血月日	熊本市	菊池市	山鹿市	大津町	その他	HI 抗体保有率
2019 年 7 月 22 日	1/15					7%
2019 年 7 月 29 日	1/10		0/5			7%
2019 年 8 月 5 日	1/5	0/5	0/5			7%
2019 年 8 月 13 日		0/5	0/5(1)	0/5		0%
2019 年 8 月 19 日	3/5(1)	0/5	0/5(1)			20%
2019 年 8 月 26 日	5/5	0/5	5/5			67%
2019 年 9 月 2 日		1/5	2/5		2/5	33%
2019 年 9 月 9 日	5/5	0/5	3/5			53%
2019 年 9 月 17 日	1/5	5/5	5/5			73%

HI 抗体陽性数/検査頭数　（　）内は JEV 遺伝子検出数

表 2 ブタの HI 抗体価及び 2ME 感受性抗体保有数

採取月日	検査頭数	HI 抗体価								2ME 感受性抗体陽性数
		<10	10	20	40	80	160	320	≧640	
2019 年 7 月 22 日	15	14							1	1
2019 年 7 月 29 日	15	14		1						0
2019 年 8 月 5 日	15	14							1	1
2019 年 8 月 13 日	15	15								0
2019 年 8 月 19 日	15	12				1	1		1	3
2019 年 8 月 26 日	15	5	3				2	4	1	4
2019 年 9 月 2 日	15	10			1	1	3			1
2019 年 9 月 9 日	15	7				5			3	3
2019 年 9 月 17 日	15	4			1		5	5		5

３）可搬型蛍光顕微鏡を用いた解体現場におけるアスベスト調査

山崎文雅　山本裕典*1　小原大翼　北岡宏道　松﨑達哉*2

はじめに

熊本県では，2016 年の熊本地震を受けて，発災当初より震災アスベスト対策に重点的に取り組んでいる。

その一環として広島大学の支援を受けて，解体現場での迅速分析が可能な可搬型蛍光顕微鏡(以下，「iFM」という。)を用いたアスベスト飛散状況の調査[1)]を実施してきた。

さらに 2018 年度からは，レベル 1，レベル 2 建材の除去作業（大気汚染防止法における特定粉じん排出等作業）におけるアスベスト飛散状況の監視にも本手法を活用し，より徹底したアスベスト飛散防止対策を図っている。

今回は，2018 年 10 月～2020 年 3 月にかけて本研究所で実施した，iFM による調査結果について報告する。

調査方法

1　iFM 法の概要

iFM 法はコンパクトな可搬型の蛍光顕微鏡を用いて，試料採取からアスベスト繊維の計数までを 1 時間以内に行うことが可能な手法であり，環境省のアスベストモニタリングマニュアル第 4.1 版[2)]でも紹介されている。その原理は，アスベストに特異的に結合するタンパク質を用いた蛍光染色により，アスベスト繊維を検出・計数するものである。iFM には iPad®が装備されており，計数をタブレットの画面で行うことができるほか，確認されたアスベスト繊維の画像をその都度保存することができる。また，試料捕集から分析まで全て現場で行えるよう工夫されており，特殊な設備を必要としない。

なお，iFM 法は従来の電子顕微鏡による計測と高い相関を示すことが広島大学において確認されている[3)]。

2　調査方法

調査は原則として，特定粉じん排出等作業（アスベストの除去作業）実施時に，解体現場における作業室と外界の境界である前室入口や集じん・排気装置排気口（以下「排気口」という。），敷地境界付近においてメンブランフィルターにより 1.5 L/min で 30 分間の試料捕集を行った。

前処理として，捕集したフィルターに数滴の蛍光バイオプローブを滴下し，その後緩衝液を同様に数滴滴下して余分な蛍光バイオプローブを除去し，iFM によりアスベスト繊維数を計測した。なお，調査箇所数は，調査現場毎に異なる。

その他の事項については，アスベストモニタリングマニュアル第 4.1 版及び iFM 法の取扱説明書に準拠した。

調査結果及び考察

1　解体工事等の iFM 調査結果

解体工事等の iFM 調査結果を表１に，解体工事等のアスベスト濃度を図１にそれぞれ示した。なお，No.1～4 は同一の現場であるが，特異的な事例であったことから図から除外した。ほとんどの測定場所でアスベスト濃度は 1 本/L を下回り，一般環境レベルと判断された。ただし，3 現場（No.1，2，15）については，前室入口や排気口において 1 本/L を上回っており，計測後の立ち入り調査において，アスベスト除去漏れや養生不備，作業場の負圧不備，集じん・排気装置の不備などが確認されたことから，その場で保健所職員等による速やかな改善指導が実施された。

図２に作業種別毎のアスベスト濃度の平均値を示した。すべての測定箇所において，解体作業の方が改造・補修作業に比べて高濃度となる傾向がみられ，特に排気口が高濃度であった。

図３に建材毎のアスベスト濃度の平均値を示した。ほとんどの事例は吹付け材だが，測定箇所の中では排気口が最も高かった。また，保温材の場合は，除去作業近傍において高濃度であったが，掻き落とし等以外の方法で除去されたものであった。

なお，吹付け石綿の敷地境界と，石綿含有仕上塗材の除去作業近傍及び敷地境界との間に有意な差はほとんど見られなかった。

図４にアスベスト使用面積毎のアスベスト濃度の平均値を示した。使用面積にかかわらず，排気口が高濃度である傾向が見られた。また，前室入口については，アスベスト使用面積が 50m^2 以上 100m^2 未満の現場における濃度が比較的高めだったものの，使用面積によって各測定箇所の濃度に大きな差は無かった。

*1 現環境生活部環境センター　*2 現環境生活部環境局環境保全課

まとめ

解体現場の作業種別毎，建材毎，アスベストの使用面積毎のアスベスト濃度の平均値は，いずれの場合も排気口が最も高い傾向が見られた。また，アスベストの使用面積にかかわらず測定場所毎の濃度が変わらなかったことから，集じん・排気装置を設置する場合は，排気口を中心に測定すべきと考えられる。

今後は，アスベストの使用面積や作業種類毎等で一定規模毎の要件を定めて効率的な監視体制を確立していく必要がある。

文献

1) 豊永悟史，西村智基，黒田章夫，村岡俊彦，山崎文雅：iPad 蛍光顕微鏡を用いた解体現場におけるアスベスト飛散状況調査，第 59 回大気環境学会 講演要旨集
2) 環境省　水・大気環境局　大気環境課：アスベストモニタリングマニュアル（第 4.1 版）
3) 黒田章夫，生物工学会誌，第 94 巻第 8 号，507－509（2016）

表１　解体工事等の iFM 調査結果

事例番号	採取日時	作業種別	特定建築材料の種類	使用面積（m^2）	測定地点（数字はアスベスト濃度（本/L））						備考
					敷地境界	前室入口	排気口	除去作業近傍	その他	その他場所	
1	2018/10/17	解体作業	吹付け石綿	2813	0.20	24	0.33	PI	PI	-	除去作業
2-1 2-2 2-3	2018/10/31	解体作業	吹付け石綿	2813	0.090	0.44	0.24 2.3 8.0	PI	0.10	GB前	除去作業 （GB法も一部含む）
3-1 3-2	2018/11/2	解体作業	吹付け石綿	2813	PI	0.71	0 0.044	PI	PI	-	除去作業
4-1 4-2	2018/11/9	解体作業	吹付け石綿	2813	0.044	0.71	0.044 0.26	PI	PI	-	除去作業
5-1 5-2	2018/11/14	改造・補修	吹付け石綿	855.6	PI	0.24	0.022 0.044	PI	PI	-	除去作業
6	2018/11/14	解体作業	石綿含有保温材	480	PI	NA	NA	PI	0.35	GB前	除去作業（GB法）
7	2018/11/21	改造・補修	吹付け石綿（塗材）	1169	PI	0.022　#１	NA	0.067	PI	-	除去作業　#2
8	2018/11/29	解体作業	吹付け石綿（塗材）	63	PI	NA	NA	0.089	0.022	作業入り口前	除去作業　#3
9	2019/1/30	改造・補修	吹付け石綿（塗材）	1710	PI	NA	NA	0.090	0.13	作業入り口前	除去作業　#2
10	2019/4/4	改造・補修	吹付け石綿	109.7	PI	PI	0.022	PI	PI	-	封じ込め作業
11	2019/4/15	解体作業	吹付け石綿	214.7	0.044	0.22	0.044	PI	PI	-	除去作業
12-1 12-2	2019/5/13	解体作業	吹付け石綿	980	PI	0	0.022 0.36	PI	PI	-	除去作業
13	2019/5/23	解体作業	石綿含有断熱材	478	0.22	0.35	0.78	PI	PI	-	除去作業
14	2019/5/30	解体作業	吹付け石綿（塗材）	1300	0.044	NA	NA	0.022	PI	-	除去作業　#3
15	2019/6/11	解体作業	吹付け石綿	50.6	PI	1.1	0.11	PI	PI	-	除去作業
16	2019/7/4	解体作業	吹付け石綿（塗材）	130	PI	NA	NA	0	PI	-	除去作業　#4
17	2019/7/26	解体作業	吹付け石綿	737.6	0.045	0.045	0.31	PI	PI	-	除去作業
18	2019/8/2	改造・補修	吹付け石綿	67	PI	0.13	0.089	PI	PI	-	除去作業
19-1 19-2	2019/9/2	解体作業	吹付け石綿	453.5	PI	0.022	0.40 0.26	PI	PI	-	除去作業
20-1 20-2	2019/9/13	解体作業	石綿含有保温材	700	PI	NA	NA	0.22 0.11	0.089	建物横	除去作業　#5
21-1 21-2	2019/9/25	改造・補修	吹付け石綿	186	PI	0.089	0.91 0.089	PI	PI	-	除去作業
22	2019/9/27	解体作業	吹付け石綿	83	PI	0.089	0.11	PI	PI	-	除去作業
23	2019/10/28	改造・補修	吹付け石綿	553	PI	0.089	0.044	PI	PI	-	除去作業
24	2019/11/29	解体作業	吹付け石綿（塗材）	467	0.089	NA	NA	0.13	PI	-	除去作業 #4
25	2019/12/19	改造・補修	吹付け石綿（塗材）	799	PI	NA	NA	0.022	PI	-	除去作業 #4
26	2020/1/8	解体作業	吹付け石綿（塗材）	78	PI	NA	NA	0.11	PI	-	除去作業　#2
27	2020/1/15	解体作業	吹付け石綿	51.6	0.044	0.11	0.044	PI	PI	-	除去作業
28	2020/2/20	解体作業	吹付け石綿（塗材）	2457	0.11	NA	NA	0.022	PI	-	除去作業 #4
29	2020/3/9	解体作業	吹付け石綿	92.17	PI	0.022	0.17	PI	PI	-	除去作業
30	2020/3/13	解体作業	吹付け石綿	930.6	0.11	0.15	0.82	PI	PI	-	除去作業
31	2020/3/24	改造・補修	吹付け石綿（塗材）	877	0.022	NA	NA	0.022	PI	-	除去作業　#2

※　PI：未調査，NA：該当なし，GB：グローブバッグ

#　1　負圧隔離を伴わない前室入口の測定結果

#　2　剥離剤併用手工具ケレン工法

#　3　粉じん抑制剤吹付けによる湿潤化，固化

#　4　剥離剤塗布による湿潤化，固化

#　5　大気汚染防止法施行規則別表第７における２の項の方法

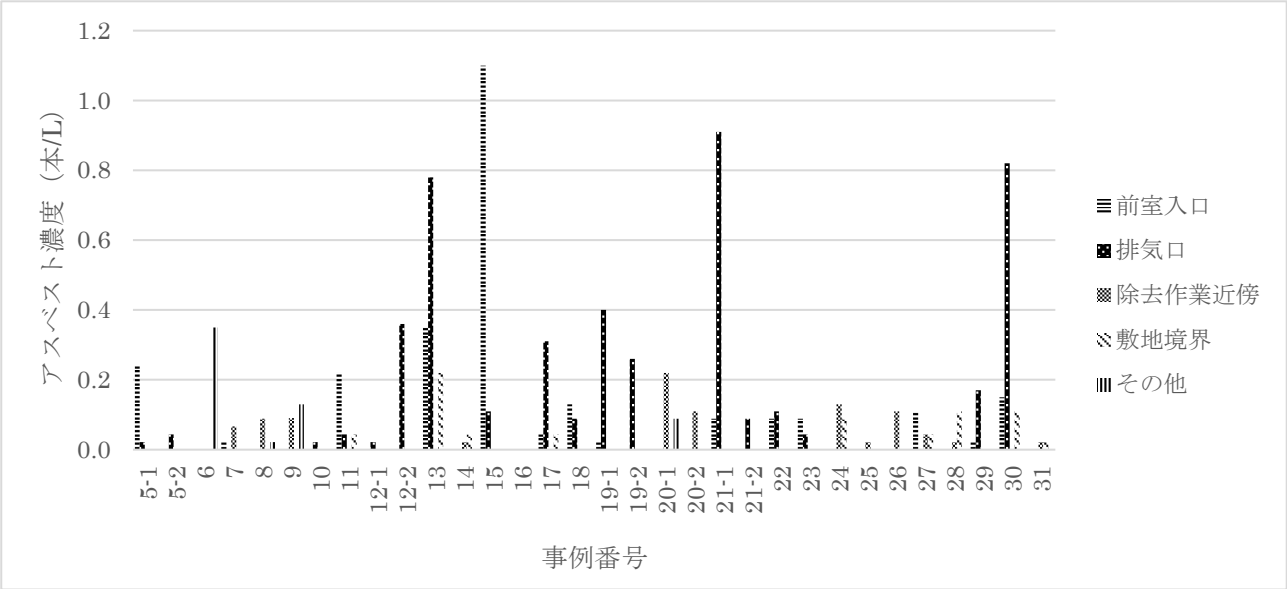


図１　解体事例毎のアスベスト濃度

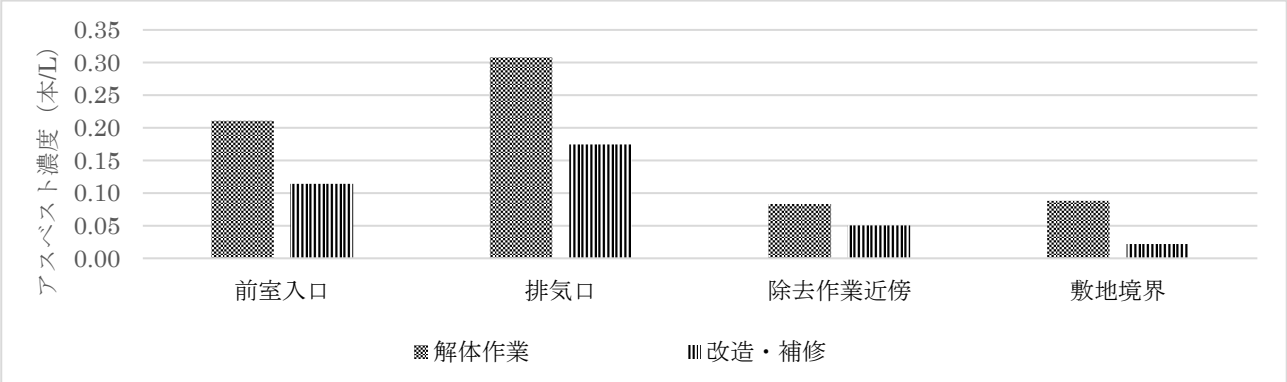


図２　作業種別毎のアスベスト濃度の平均値

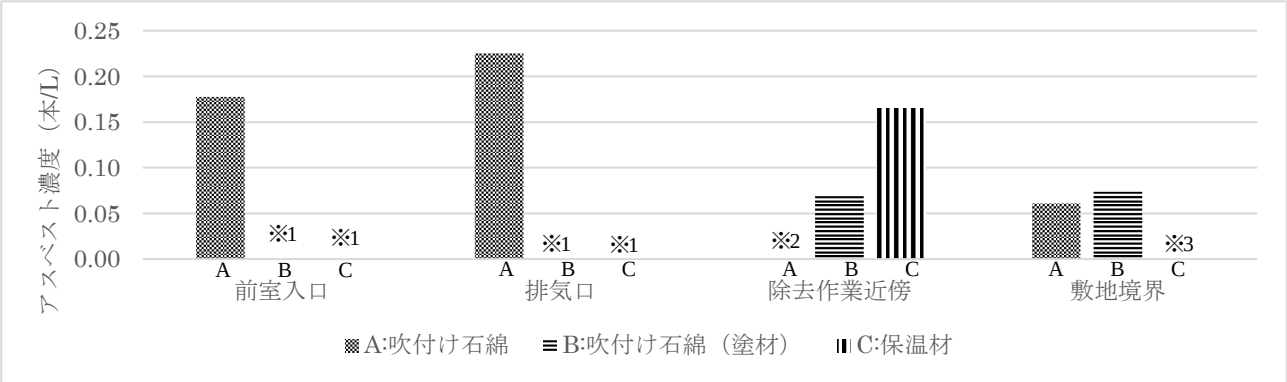


図３　建材毎のアスベスト濃度の平均値

※1：一般的な作業では当該施設を設置しない，※2：養生範囲が広く敷地境界とほぼ同義であるため未測定，

※3：養生範囲が狭く作業場所近傍で確認しているため未測定

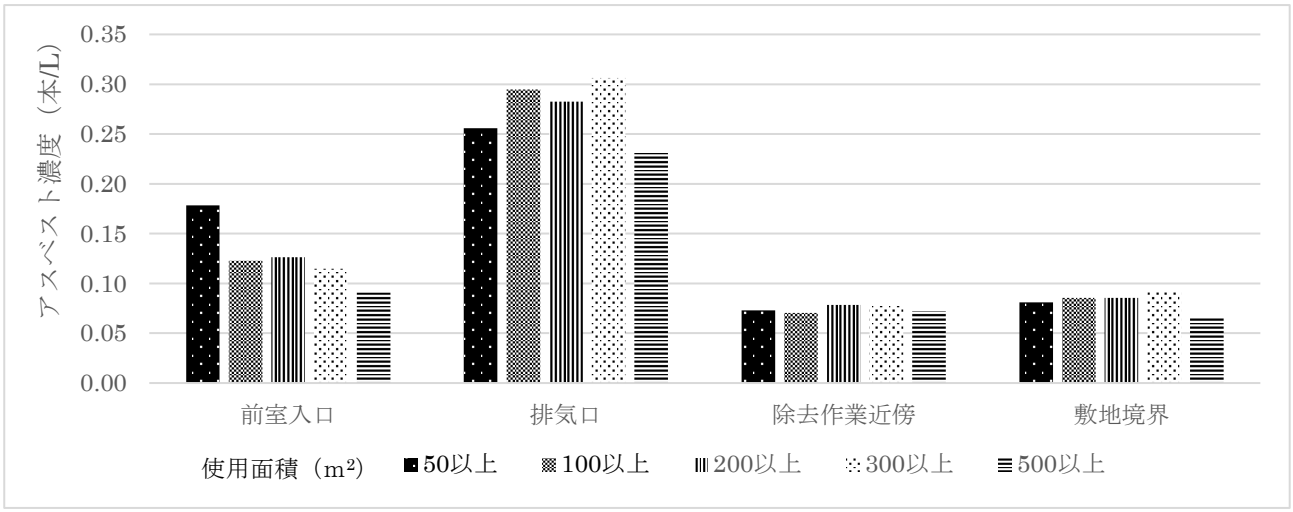


図４　アスベスト使用面積毎のアスベスト濃度の平均値

4）熊本県内における放射能調査（2019 年度）

北岡宏道　上野一憲　山本裕典*　小原大翼　山崎文雅

はじめに

熊本県では 1989 年 10 月科学技術庁（現原子力規制庁）の委託を受け，熊本市を拠点に環境放射能水準調査を開始し，1995 年度からは宇土市に拠点を移して調査を継続している。2012 年度にモニタリングポストを 1 地点から 6 地点に増設し，その測定結果（10 分間値）はインターネットを通じて公開されている [1]。

本報では 2019 年度の調査結果を報告する。

調査方法

1　調査地点

試料採取場所と測定場所を図 1 に示した。合志市，御船町及びあさぎり町は 1989 年度，宇土市は 1995 年度，熊本市，荒尾市，水俣市，天草市及び八代市は 2012 年度から調査を行っている。

2　測定方法

測定方法は「環境放射能水準調査委託実施計画書 平成 31 年度 原子力規制庁」，文部科学省放射能測定法シリーズ及び既報 [2] による。

3　測定項目及び試料名等

(1) 全ベータ放射能調査

定時降水：宇土市

(2) 空間放射線量率調査

モニタリングポストによる連続測定：宇土市，熊本市，荒尾市，水俣市，天草市，八代市

サーベイメータによる測定：宇土市

(3) ガンマ線放出核種分析調査

大気浮遊じん，月間降下物，蛇口水，土壌：宇土市

精米，大根，ホウレン草，原乳：合志市

荒茶：御船町，あさぎり町

4　測定装置

(1) 全ベータ放射能調査

ベータ線測定装置：アロカ JDC-3201B

日立 JDC-5200

(2) 空間放射線量率調査

モニタリングポスト：アロカ MAR-22

サーベイメータ：アロカ TCS-171

(3) ガンマ線放出核種分析調査

図 1　調査地点

ゲルマニウム半導体検出器：

キャンベラジャパン GC-3018 及び GC-3020

調査結果

(1) 全ベータ放射能調査

定時降水中の調査結果を表 1 に示した。測定した 92 検体から全ベータ放射能は検出されなかった。

(2) 空間放射線量率調査

県内 6 地点のモニタリングポスト連続測定において，1 時間値の集計結果を表 2 に示した。各地点の平均値等は過去の値と同程度であった。

宇土市(14.5m)の平均値はその他 5 地点と比べ低いが，これは宇土市の検出器の高さが地上 14.5m に対し，他 5 地点の検出器の高さが地上 1m であることから，土壌・地質等に由来する放射線量の影響を反映しているものと考えられる。

宇土市（14.5m）の比較として，近傍の地上 1m においてサーベイメータによる測定を毎月 1 回，年 12 回行った。測定値の最低値，最高値及び平均値はそれぞれ，37，49 及び 41nGy/h であった。この平均値は，宇土市

* 現熊本県環境センター

（14.5m）の 29nGy/h より高いが，その他 5 地点の 34～50nGy/h と同程度であった。

(3) ガンマ線放出核種分析調査 [3,4)]

ガンマ線放出核種分析調査結果を表 3 に示した。

人工放射性核種の ^{137}Cs は，土壌 0～5cm から 1.3 Bq/kg 乾土（45MBq/km^2），土壌 5～20cm から 2.0Bq/kg 乾土（270MBq/km^2），荒茶から 0.15 Bq/kg 乾物検出されたが，これらの値は過去と同程度であった。

なお，その他の人工放射性核種は試料から検出されなかった。

ま と め

2019 年度の熊本県における環境放射能水準調査の全ベータ放射能調査，空間放射線量率調査及びガンマ線放出核種分析調査の結果に異常は認められなかった。

謝　辞

本調査にあたり，試料提供に御協力いただきました熊本県農業研究センターの生産環境研究所，茶業研究所，球磨農業研究所及び畜産研究所の関係各位に謝意を表します。

文　献

1) 原子力規制委員会：放射線モニタリング情報
原子力規制庁：環境放射能データーベース

2) 上野一憲，塘岡　穣，久保　清：熊本県衛生公害研究所報，**20**，55（1990）.

3) 豊永悟史，上野一憲，北岡宏道：熊本県保健環境科学研究所報，**40**，66（2010）.

4) 村岡俊彦，豊永悟史，北岡宏道：熊本県保健環境科学研究所報，**41**，89（2011）

5) 北岡宏道，上野一憲，古澤尚英，宮本　俊：熊本県保健環境科学研究所報，**46**，71（2016）

表 1　定時降水中の全ベータ放射能調査結果

（調査地点：宇土市）

採取年月	降水量 (mm)	検体数	降下量	
			最低値　最高値 (Bq/L)	月間降下量 (MBq/km2)
2019年 4月	103.3	6	ND	ND
5月	53.4	6	ND	ND
6月	265.5	8	ND	ND
7月	425.9	10	ND	ND
8月	369.6	13	ND	ND
9月	121.0	7	ND	ND
10月	108.8	6	ND	ND
11月	83.6	6	ND	ND
12月	63.7	5	ND	ND
2020年 1月	74.7	5	ND	ND
2月	142.2	10	ND	ND
3月	118.5	10	ND	ND
年間値	1930.2	92	ND	ND
過去5年の年間値	2058.0	101	ND　4.2	ND ～ 15

ND： 計数値がその計数誤差の3倍以下

※ 降水量及び検体数について、年間値欄は各月の合計、過去5年の年間値欄は過去5年の平均値

表２　モニタリングポストによる空間放射線量率調査結果

(nGy/h)

調査地点（検出器の地上高）	宇土市（14.5m）			熊本市（1m）			荒尾市（1m）			水俣市（1m）			天草市（1m）			八代市（1m）		
	最低値	最高値	平均値	最低値	最高値	平均値	最低値	最高値	平均値	最低値	最高値	平均値	最低値	最高値	平均値	最低値	最高値	平均値
2019年 4月	26	51	28	33	60	35	32	58	34	40	71	43	48	79	50	48	71	50
5月	26	44	28	33	88	35	31	102	34	40	63	43	48	76	50	48	80	50
6月	26	56	29	32	82	36	31	65	34	40	88	44	47	79	51	48	85	51
7月	26	52	29	32	72	36	30	62	35	39	72	43	47	86	50	47	78	50
8月	26	44	28	32	51	35	31	62	34	39	100	43	46	80	50	47	87	50
9月	26	37	28	33	50	35	31	47	34	39	54	42	47	62	49	47	58	49
10月	26	40	28	33	51	35	31	55	34	40	66	44	48	66	50	47	66	50
11月	27	41	29	34	53	36	32	56	35	40	67	43	48	67	50	48	68	50
12月	27	54	29	33	65	36	32	53	35	40	74	43	48	78	50	48	73	51
2020年 1月	27	52	29	33	74	36	32	81	35	40	77	43	47	105	50	48	82	51
2月	27	66	29	33	85	36	31	62	35	41	76	44	47	76	50	47	81	51
3月	27	53	29	33	64	36	32	74	35	40	79	43	47	84	50	48	74	50
年間値	26	66	29	32	88	36	30	102	34	39	100	43	46	105	50	47	87	50
過去5年の年間値	24	74	28	32	133	37	31	118	34	37	125	43	42	123	50	47	115	52

※1時間値を集計

表３　ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線放出核種分析調査結果

試料名	調査地点	採取年月	検体数	^{137}Cs		^{134}Cs		^{131}I		^{40}K		単位
				2019年度	過去5年	2019年度	過去5年	2019年度	過去5年	2019年度	過去5年	
				最低値 最高値	最低値 最高値	最低値 最高値	最低値 最高値	最低値 最高値	最低値 最高値	最低値 最高値	最低値 最高値	
大気浮遊じん	宇土市	2019年4月～2020年3月	4	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.053 0.086	ND 0.12	mBq/m^3
月間降下物	宇土市	2019年4月～2020年3月	12	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND 1.5	ND 3.9	MBq/km^2
蛇口水	宇土市	2019年6月	1	ND	ND	ND	ND	ND	ND	140	90 130	mBq/L
土壌 0～5cm	宇土市	2019年10月	1	1.3	1.2 1.3	ND	ND	ND	ND	150	170 240	Bq/kg乾土
				45	43 49	ND	ND	ND	ND	5200	5800 8000	MBq/km^2
土壌 5～20cm	宇土市	2019年10月	1	2.0	1.2 1.8	ND	ND	ND	ND	160	160 260	Bq/kg乾土
				270	74 190	ND	ND	ND	ND	21000	17000 20000	MBq/km^2
精米	合志市	2019年9月	1	ND	ND	ND	ND	ND	ND	29	17 29	Bq/kg生
野菜 大根	合志市	2019年11月	1	ND	ND	ND	ND	－	－	74	75 82	Bq/kg生
野菜 ホウレン草	合志市	2019年11月	1	ND	ND	ND	ND	－	－	270	220 260	
荒茶	御船町 あさぎり町	2019年4月 2019年4月	2	ND 0.15	ND 0.27	ND	ND	－	－	450 530	520 700	Bq/kg乾物
原乳	合志市	2019年8月	1	ND	ND	ND	ND	ND	ND	51	47 51	Bq/L

ND：測定値がその検出限界値未満　　－：分析対象外核種等

※土壌の過去5年は調査地点を西原村から宇土市に変更した2016年度以降の値を集計

５）熊本県の酸性雨長期モニタリング調査結果（2019 年度）

-県内 2 地点における降水試料調査結果-

上野一憲　　小原大翼

はじめに

熊本県では，1988 年 10 月から県内における酸性雨の状況を把握するため，長期モニタリング調査 [1] を行っている。2004 年 4 月から採取装置をろ過式採取装置から湿性沈着と乾性沈着を分けて採取する降水時開放型採取装置に変更し [2]，2008 年からは，湿性沈着のみ調査を行っている。なお，乾性沈着（非降水時における降下物）の結果については，既報 [3] を参照されたい。

本報では新たに阿蘇一の宮が追加された 2019 年度の調査結果について報告する。

調査方法及び分析方法

1　調査地点及び降水採取方法

過去に実施した地点を含む酸性雨調査地点を図 1 に示した。

2019 年度は宇土（熊本県保健環境科学研究所）に加え，阿蘇一の宮（阿蘇地域振興局）で新たに調査を開始し，計 2 地点で実施した。降水採取は小笠原計器製降水採取器 US－300 型を用い，1 週間ごとに降水の回収を行った。

調査月の区切りと降水試料の回収日は，酸性雨全国調査実施要領 [4] の別表月割り表に従った。

2　分析方法

採取した降水試料について pH, EC 及びイオン成分を分析した。

pH 測定は東亜ディーケーケー製 HM-42X を用い，複合電極は GST-5841C を使用した。電気伝導度（以下「EC」

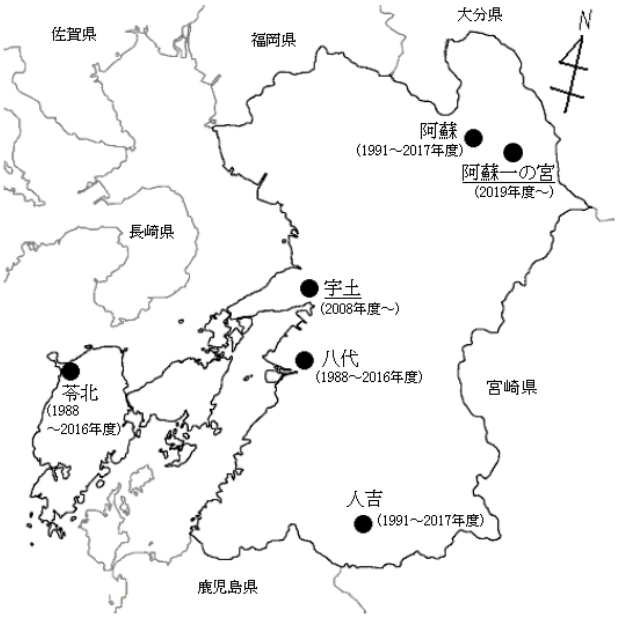


図１　調査地点

という。）測定には東亜ディーケーケー製 CM-42X を用い，電導度セルは CT-58101B を使用した。なお，pH 及び EC は恒温水槽を使用して 25℃で測定した。

イオン成分分析はダイオネクス製 ICS-1600 を用い，イオンクロマトグラフ法で行った。分析条件として，カチオンについてはカラムとして Dionex IonPacTM CS16，溶離液として 30mM メタンスルフォン酸溶液を用い，流速は 1.0mL/min に設定した。また，アニオンについてはカラムとして Dionex IonPacTM AS23，溶離液として 4.5mM Na_2CO_3，0.5mM $NaHCO_3$ 混合溶液を用い，流速 1.0mL/min

表１　イオン成分総括表[注 1)]

調査地点		pH	EC mS/m	SO_4^{2-} μmol/L	NO_3^- μmol/L	Cl^- μmol/L	NH_4^+ μmol/L	Na^+ μmol/L	K^+ μmol/L	Ca^{2+} μmol/L	Mg^{2+} μmol/L	H^+ μmol/L	年間降水量 mm
阿蘇一の宮	平均	4.10	4.48	24.8	9.1	89.2	15.9	10.7	1.7	11.7	4.54	79.3	
		-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	2236
n=49	最高	4.61	13.31	55.8	25.5	375.9	36.8	56.5	5.8	31.1	20.6	234.8	-
	最低	3.63	1.92	14.9	4.6	36.9	8.5	1.8	0.4	1.6	0.6	24.6	
宇土	平均	4.68	1.31	10.3	9.0	17.1	10.4	12.4	0.8	1.7	1.7	20.8	
		4.69	*1.35*	*12.4*	*10.0*	*14.8*	*10.8*	*10.9*	*0.7*	*2.2*	*1.6*	*20.4*	2148
n=48	最高	5.03	3.05	25.0	23.3	40.8	28.9	31.2	1.5	5.3	4.2	52.3	*1997*
	最低	4.28	0.62	4.3	4.9	6.7	4.8	5.3	0.5	0.7	0.8	9.3	

注1）n：検体数。平均は分析に供した雨水の降水量を基に加重平均により算出。表中の最高値及び最低値は、月平均（加重平均）値から抽出。
イタリック体：2018年度の成分加重平均濃度及び降水量。

表 2　月平均（加重平均）pH 及び EC と月別イオン成分沈着量

調査地点	月	試料数	降水量[1]	pH	導電率	SO_4^{2-}	nss-SO_4^{2-}	NO_3^-	Cl^-	nss-Cl^-	NH_4^+	Na^+	K^+	Ca^{2+}	nss-Ca^{2+}	Mg^{2+}	H^+	月間沈着量
			mm		mS/m	meq/m^2	meq/m^2	meq/m^2	meq/m^2	meq/m^2	meq/m^2	meq/m^2	meq/m^2	meq/m^2	meq/m^2	meq/m^2	meq/m^2	meq/m^2
阿蘇一の宮	4	3	76.5	4.15	4.33	4.3	4.2	1.9	5.1	4.2	2.8	0.8	0.1	1.3	1.2	0.5	5.4	22.3
	5	4	100.3	4.16	4.56	6.1	6.0	0.8	7.8	6.9	2.0	0.8	0.1	1.3	1.2	1.1	6.9	26.9
	6	4	139.3	4.15	4.69	8.0	7.9	1.6	10.9	9.6	2.9	1.2	0.2	1.8	1.7	1.6	9.9	38.0
	7	6	690.2	4.22	2.87	20.6	20.5	3.2	26.6	25.1	5.9	1.3	0.3	2.2	2.2	0.8	41.7	102.5
	8	4	403.0	4.61	1.92	15.1	14.7	3.9	14.9	10.8	5.6	3.4	0.6	9.2	9.0	2.7	9.9	65.3
	9	4	169.9	4.48	2.32	8.7	8.5	0.8	7.0	5.3	1.5	1.5	0.3	5.2	5.1	1.3	5.6	31.8
	10	4	76.5	4.19	3.82	3.4	3.3	0.8	5.6	4.4	2.0	1.0	0.1	1.3	1.2	0.9	4.9	20.0
	11	4	40.3	3.98	5.82	3.2	3.1	0.8	3.8	2.5	1.0	1.0	0.1	1.3	1.3	0.4	4.2	15.9
	12	4	129.9	4.03	5.89	14.5	14.3	1.9	15.3	12.9	2.8	2.1	0.5	8.0	7.9	1.5	12.0	58.7
	1	4	117.0	3.63	13.31	7.9	7.1	1.6	44.0	36.2	2.0	6.6	0.7	7.3	7.0	4.8	27.5	102.5
	2	4	179.6	3.71	10.05	10.3	9.9	1.5	43.5	40.2	4.0	2.8	0.6	9.4	9.3	3.4	34.8	110.3
	3	4	113.5	3.89	6.79	8.5	8.3	1.5	15.1	13.4	3.0	1.5	0.3	3.9	3.8	1.2	14.6	49.5
	合計[2]	49	2236.1	4.10	4.48	110.7	107.8	20.4	199.6	171.5	35.5	23.9	3.9	52.1	51.0	20.3	177.4	643.7
宇土	4	3	68.5	4.61	1.64	2.4	2.3	1.6	0.7	0.2	2.0	0.4	0.1	0.7	0.7	0.2	1.7	9.8
	5	4	135.0	4.71	1.69	3.7	3.3	1.7	4.6	0.4	1.8	3.6	0.1	0.7	0.5	0.9	2.6	19.8
	6	4	135.0	4.71	1.69	3.7	3.3	1.7	4.6	0.4	1.8	3.6	0.1	0.7	0.5	0.9	2.6	19.8
	7	6	794.1	5.03	0.62	6.8	6.3	3.9	5.3	0.4	4.7	4.2	0.4	1.1	0.9	1.3	7.4	35.1
	8	4	400.1	4.89	0.89	4.9	4.4	3.0	4.8	0.6	3.1	3.6	0.2	0.9	0.8	1.0	5.2	26.6
	9	4	135.9	4.78	1.17	2.7	2.5	0.8	2.5	0.3	1.5	1.8	0.1	0.5	0.4	0.5	2.3	12.7
	10	3	114.0	4.38	2.08	2.9	2.8	0.6	2.7	1.5	0.5	1.0	0.1	0.3	0.2	0.3	4.7	13.2
	11	4	46.7	4.29	3.05	2.3	2.2	1.0	1.9	0.2	0.8	1.5	0.1	0.4	0.3	0.4	2.4	10.8
	12	4	124.5	4.37	2.40	4.5	4.2	1.9	4.0	0.7	1.5	2.9	0.1	0.6	0.5	0.7	5.3	21.6
	1	4	87.5	4.39	2.33	3.7	3.4	1.0	2.7	0.3	1.1	2.0	0.1	0.6	0.5	0.5	3.6	15.2
	2	4	153.8	4.52	1.78	4.5	4.2	1.7	3.2	0.3	2.4	2.4	0.2	0.5	0.4	0.6	4.6	20.3
	3	4	101.5	4.28	2.81	5.0	4.8	1.9	2.4	0.6	2.5	1.5	0.2	0.7	0.6	0.5	5.3	19.9
	合計[2]	48	2296.5	4.68	1.31	47.1	43.7	20.7	39.3	5.8	23.8	28.5	1.8	7.8	6.5	7.9	47.7	224.8

1）オーバーフローした週の降水量は雨量計の降水量を用いて月間降水量を算出

2）pH及びECは加重平均値

に設定した。

調査結果及び考察

1　2018 年度[5] との比較

表 1 に 2019 年度の調査地点におけるイオン成分総括表を示した。年間降水量は回収時の捕集量から算出した。年間の平均 pH，平均 EC 及び平均イオン成分濃度は月毎の降水量との加重平均により算出した。

年間降水量について，宇土においては 2018 年度と比べ 300.0mm 増加した。7，8 月の大雨が年間降水量の増加に寄与した。

pH の年平均値について，宇土においては 2018 年度と比べ 0.01 低かった。一方，阿蘇一の宮における pH の年平均値は 4.10 で，本県が行った調査において最も低い値であった。

EC の年平均値について，宇土においては 2018 年度と比べ 0.04mS/m 低かった。一方，阿蘇一の宮における EC の年平均値は 4.48mS/m で，宇土の約 3 倍の値であった。

イオン成分について，主に海塩由来成分である Cl^-，Na^+ 及び Mg^{2+}と，K^+並びに H^+の宇土における年平均濃度は，2018 年度と比べ，それぞれ 2.3μmol/L，1.5μmol/L，0.1μmol/L ，0.1 μ mol/L, 0.4 μ mol/L 高かった。また，SO_4^{2-}，NO_3^-，NH_4^+，Ca^{2+}の年平均濃度は 2018 年度と比べ，それ

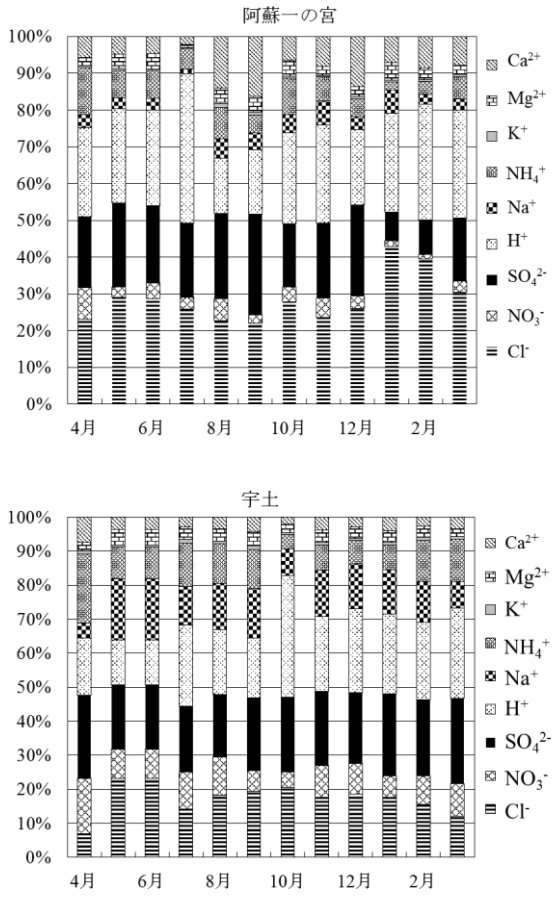


図 2　月別沈着量に対する各イオン成分沈着量の割合

表 3　イオン成分年間沈着量の推移

調査地点	年度	年間降水量 mm	pH	EC mS/m	SO_4^{2-} meq/m^2	NO_3^- meq/m^2	Cl^- meq/m^2	NH_4^+ meq/m^2	Na^+ meq/m^2	K^+ meq/m^2	Ca^{2+} meq/m^2	Mg^{2+} meq/m^2	H^+ meq/m^2	年間沈着量 meq/m^2
阿蘇	2008[注1)]	2424.6	4.50	1.50	74.8	23.5	37.3	37.0	20.8	4.3	13.3	6.6	73.6	291.3
	2009	2655.3	4.52	1.57	90.0	32.6	54.9	47.5	31.6	6.3	19.4	10.2	80.0	372.4
	2010	2190.9	4.61	1.91	80.0	33.4	60.3	49.4	32.9	4.0	21.5	9.5	50.0	341.0
	2011	2580.0	4.80	1.38	80.5	30.4	39.2	42.5	26.1	7.1	23.0	8.8	41.1	298.8
	2012[注2)]	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	2013	2455.9	4.54	2.26	99.5	44.1	87.9	67.1	48.3	8.9	28.9	15.5	69.9	470.2
	2014[注3)]	2339.9	4.27	3.38	110.5	28.4	123.5	43.3	29.5	4.2	35.8	15.8	124.9	515.8
	2015	2728.4	4.60	1.83	84.4	22.9	62.5	38.8	26.4	4.4	21.1	11.2	69.1	340.7
	2016	3802.1	4.61	1.56	116.0	40.5	59.0	61.2	33.3	3.4	14.8	9.5	94.2	431.9
	2017	2655.3	4.74	1.21	66.6	24.2	33.5	32.9	25.0	2.0	11.6	7.0	48.8	251.7
阿蘇一の宮	2019	2236.1	4.10	4.48	110.7	20.4	199.6	35.5	23.9	3.9	52.1	20.3	177.4	643.7
宇土	2008	2389.6	4.55	1.55	72.5	25.0	38.5	34.8	28.7	2.8	12.8	8.0	64.9	288.1
	2009[注4)]	1446.2	4.44	1.92	51.7	23.5	35.8	28.6	29.4	1.6	10.6	7.7	52.7	241.6
	2010	1744.1	4.69	1.57	50.9	22.1	31.2	32.0	24.7	1.6	11.3	6.6	35.7	215.9
	2011	2180.5	4.69	1.45	58.9	23.4	31.4	30.1	23.7	2.2	9.7	5.8	44.5	229.7
	2012	2106.8	4.71	1.56	59.9	22.6	43.5	33.7	35.8	2.6	10.8	8.7	41.5	259.2
	2013[注5)]	1968.3	4.69	1.49	50.8	21.8	31.3	27.2	25.6	1.7	10.3	6.7	36.5	211.9
	2014	1775.1	4.62	1.71	57.5	21.4	27.9	25.5	22.7	1.9	10.1	6.4	42.2	215.5
	2015	2415.5	4.86	1.18	47.4	18.8	41.3	23.8	36.7	2.2	9.5	9.5	33.7	222.8
	2016	2649.6	4.85	1.11	55.2	27.5	39.8	33.4	31.8	2.3	11.9	8.6	37.8	248.5
	2017	2203.3	4.75	1.22	47.8	20.3	38.7	20.8	30.9	1.9	8.5	7.8	38.8	215.4
	2018	1996.5	4.69	1.35	49.6	20.0	29.5	21.6	21.7	1.5	8.8	6.3	40.7	199.8
	2019	2296.5	4.68	1.31	47.1	20.7	39.3	23.8	28.5	1.8	7.8	7.9	47.7	224.8

注1）欠測月（9月，10月）を含む。　注2）2012年7月2日から2013年2月24日まで欠測。　注3）試料未回収週を含む。
注4）欠測月（2月，3月）を含む。　注5）2013年9月2日から2013年12月2日まで降水量のみ測定分，2014年1月24日から2月10日までの欠測を含む。

ぞれ 2.1μmol/L，1.0μmol/L，0.4μmol/L，0.5μmol/L 高かった。阿蘇一の宮は，SO_4^{2-}，Cl^-，Na^+，K^+，Mg^{2+}，H^+について，宇土と比べて最高と最低の値に大きな差が認められた。

2　経月変化

表 2 に 2019 年度の阿蘇一の宮及び宇土における月平均（加重平均）pH 及び EC と月別イオン成分沈着量を示した。月平均 pH 及び EC は月別降水量との加重平均により算出し，イオン成分沈着量は各イオン成分濃度に対し，分析に供した降水量を乗じて算出した。

月平均 pH では，阿蘇一の宮で 11 月以降 4 以下で推移した。特に 1 月が 3.63，次いで 2 月の 3.71，3 月の 3.89，11 月の 3.98 の順であった。一方，宇土では 11 月の 4.29 が最も低く，次いで 12 月の 4.37，10 月の 4.38，1 月の 4.39 の順であった。

月平均 EC では，阿蘇一の宮で月平均 pH と同様に 11 月以降 5mS/m 以上で推移した。特に 1 月と 2 月がそれぞれ 13.31mS/m，10.05mS/m で，10mS/m を超える値を示した。一方，宇土は阿蘇一の宮と比べて低く，0.62mS/m（7 月）～3.05mS/m（11 月）で推移しており，秋季から冬季にかけて高くなる傾向にあった。

月別イオン成分沈着量では，阿蘇一の宮で 7～8 月及び 12 月以降 SO_4^{2-}, Cl^-, Ca^{2+}, Mg^{2+}が高くなる傾向にあった。一方，宇土は 1 年を通して大きな変動は見られなかった。

図 2 に 2019 年度の月別沈着量に対する各イオン成分沈着量の占める割合を示した。阿蘇一の宮ではアニオン成分のうち Cl^-/SO_4^{2-}比で 8 月と 9 月を除いて 1 以上あり，特に 2 月が約 5.7 倍，3 月が約 4.2 倍と際立って Cl^-が多く含まれていた。降水の酸性化に対しては Cl^-の寄与が大きいことが考えられる。一方，宇土では Cl^-/SO_4^{2-}比が 0.28～1.2 倍で推移しており，全体では Cl^-と SO_4^{2-}が酸性化に寄与しているものと考えられた。

3　経年変化

2008 年度から 2019 年度までの平均 pH，EC 及びイオン成分年間沈着量の推移を表 3 に示した。なお，他の調査地点について調査開始（1989 年度）からのデータは既報 [6] を参照されたい。

阿蘇一の宮については 2019 年度から開始したため，比較のため 2017 年度まで調査していた阿蘇の結果を示した。この 3 地点の比較では，阿蘇一の宮での Cl^-，Ca^{2+}，Mg^{2+}，H^+の沈着量が際立って多かった。一方，宇土については多少の変動はあるもののほぼ同等の範囲内にあった。

4　低 pH（pH4 未満）の降水事例

表 4 に降水試料の pH が 4 未満の事例を示した。宇土において，降水の pH が 4 以下となるデータは少ない。しか

表 4　低 pH（pH4 未満）の降水事例

地点名	採取期間 月	週	開始日	終了日	降水量 mm	pH	EC mS/m	SO_4^{2-} μmol/L	nss-SO_4^{2-} μmol/L	NO_3^- μmol/L	Cl^- μmol/L	nss-Cl^- μmol/L	NH_4^+ μmol/L	Na^+ μmol/L	K^+ μmol/L	Ca^{2+} μmol/L	nss-Ca^{2+} μmol/L	Mg^{2+} μmol/L	H^+ μmol/L	特記事項
阿蘇一の宮	4	4	4/22	4/26	23.7	3.85	7.94	54.0	53.7	28.3	102.7	96.6	47.2	5.2	2.3	7.5	7.3	3.9	141.3	
	5	4	5/20	5/27	15.3	3.64	15.26	71.8	70.6	5.6	312.7	290.1	11.5	19.2	3.3	16.6	16.1	20.6	229.1	
	6	1	5/27	6/3	16.3	3.41	25.80	138.9	136.5	22.7	505.0	459.6	59.7	38.6	5.4	33.0	32.1	36.6	389.0	
	9	2	9/9	9/17	26.9	3.94	8.40	105.5	104.6	6.3	167.3	149.7	10.0	15.0	5.6	75.4	75.1	15.5	114.8	13日5時41分、阿蘇中岳噴火
	9	4	9/24	9/30	2.2	3.99	5.53	61.2	60.9	12.2	33.4	26.4	32.4	5.9	1.7	7.2	7.0	3.2	102.3	28日9時、阿蘇中岳噴火
	10	3	10/15	10/21	13.8	3.60	13.62	39.7	38.4	13.1	319.2	293.3	23.6	22.1	3.6	36.3	35.8	21.2	251.2	火山灰混入
	11	1	10/28	11/5	8.0	3.57	12.25	35.5	35.2	17.7	202.1	195.6	20.1	5.6	1.3	9.6	9.5	1.9	269.2	
	12	5	12/23	12/31	33.1	3.71	9.98	33.4	32.1	17.1	201.7	176.5	30.1	21.4	3.0	12.0	11.5	9.1	195.0	
	1	2	1/14	1/20	2.7	2.61	152.90	168.8	140.6	63.2	5131.3	4584.4	54.0	465.1	60.6	558.5	548.0	269.9	2454.7	火山灰混入
	1	3	1/20	1/27	69.9	3.57	13.70	30.0	29.2	9.9	338.7	323.1	17.2	13.3	5.2	20.4	20.1	16.2	269.2	
	2	2	2/10	2/17	70.1	3.40	20.10	30.3	29.5	3.8	530.0	514.3	15.6	13.4	5.3	47.0	46.7	19.9	398.1	
	3	4	3/23	3/30	63.6	3.68	10.49	52.1	51.4	14.0	202.0	189.0	26.9	11.0	3.5	21.7	21.4	6.7	208.9	火山灰少量混入
宇土	10	4	10/21	10/28	27.2	3.99	4.70	18.5	18.3	9.6	51.7	50.0	7.2	2.5	0.6	1.5	1.5	0.8	102.3	高濃度Fを検出(25.9μmol/L)
	11	1	10/28	11/5	7.5	3.96	4.90	43.4	43.2	10.8	22.5	20.4	7.1	3.0	0.5	1.9	1.8	0.9	109.6	
	1	2	1/14	1/20	1.2	3.90	8.40	71.6	66.9	116.2	100.7	75.2	98.8	77.0	3.9	23.4	21.6	11.2	125.9	

表5　阿蘇山の火山活動状況(2019年発表履歴)

噴火警報・予報及び噴火警戒レベルの状況	3月12日	火口周辺警報を発表し、噴火警戒レベルを１（活火山であることに留意）から２（火口周辺規制）に引上げ
	3月29日	噴火警戒レベルを２（火口周辺規制）から１（活火山であることに留意）に引下げ
	4月14日	火口周辺警報を発表し、噴火警戒レベルを１（活火山であることに留意）から２（火口周辺規制）に引上げ
活動状況	4月16日	中岳第一火口で噴火発生、噴煙が200m
	5月3日	噴煙が最高2000mまで上がる
	7月26日	噴火発生、噴煙が最高1600mまであがる
	7月28日	噴火発生、噴煙が200～1500mで推移。以降継続
	10月下旬	2019年の噴火活動開始後最も大きな状態となる
火山ガス（二酸化硫黄）の放出量	2月以降	概ね多い状態で経過
	3月中旬	一時的に多い状態
	4月～5月	一時的に多い状態
	7月26日	噴火後、一時的に多い状態
	9月中旬以降	次第に増大
	10月以降	非常に多い状態で経過

し，2019 年度は 10 月以降，pH4 未満の試料が 3 検体あった。一方，阿蘇一の宮においては，pH4 未満の降水試料が 12 検体あった。特に 1 月第 2 週（1/14～1/20）の試料は pH2.61 で，調査を開始後最も低い値であった。これは表 5[7]に示すように，2019 年 4 月に阿蘇山の火山活動が活発化したため，噴火レベルが 2 に引き上げられ，その後たびたび噴火を繰り返し，火山ガスの放出量が多い状態で経過したことが原因と考えられる。

降水の酸性化に寄与するアニオンは主に SO_4^{2-}，NO_3^-，Cl^-である。表 4 中では SO_4^{2-}と Cl^-が際立って高濃度であることに着目し，海塩由来成分を除いた非海塩性の nss-SO_4^{2-}と nss-Cl^-について H^+との相関性をグラフで示した(図 3)。この図から H^+と nss-Cl^-の相関性が高いことがわかる。なお，1 月第 2 週（1/14-1/20）のデータが突出して高かった

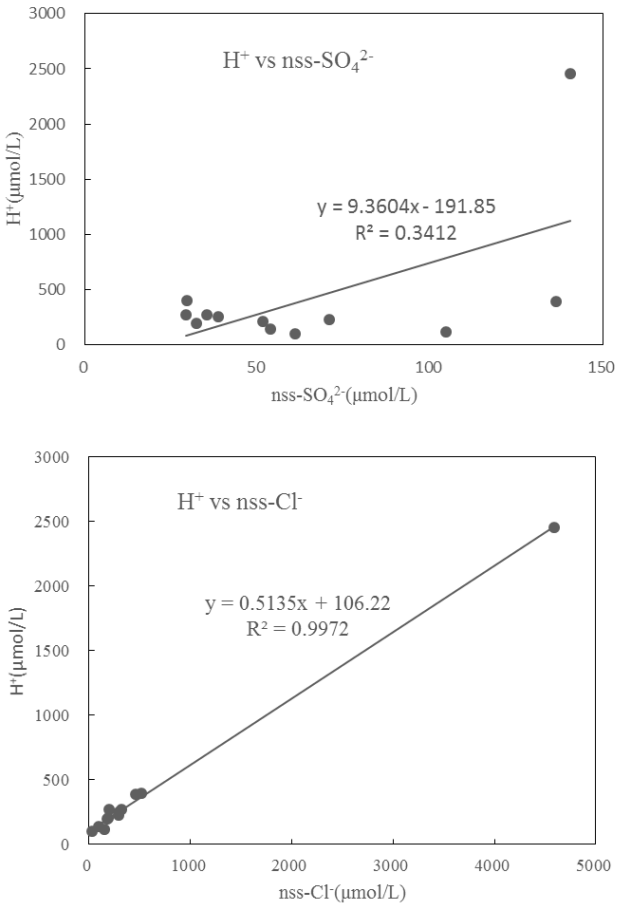


図３　阿蘇一の宮における低 pH 出現時の H^+対 nss-SO_4^{2-}及び nss-Cl^-

ため，この数値を除いて算出した R^2 も 0.8966 (R=0.9468) と高い相関性を示した。これまで阿蘇山の火山ガスによる降水の酸性化は主に SO_2 ガスに起因するとしてきた。しかし，今回の阿蘇一の宮では，降水中の Cl^-濃度が過去に行った阿蘇より際立って高い結果を得た。

阿蘇中岳との距離は，阿蘇一の宮（阿蘇地域振興局）が6.0km で，阿蘇（旧阿蘇保健所）の 10.7ｋｍの約 1/2 であることから，阿蘇一の宮が火山ガスの影響を受けやすいと考えられる。火山ガス中の HCl と SO_2 が降水に取り込まれる速度として，排出された HCl は直接取り込まれるのに対し，SO_2 は酸化の過程を経て H_2SO_4 のガス・エアロゾルに変換される過程 [8]が加わるためタイムラグが生じると考えられた。

岩崎ら [9]は国内各地の火山ガスの分析結果から求めた噴気孔温度の違いによる火山ガスの成分特徴を示した。それによると，高い温度（60-100℃）となると SO_2 の割合が増加し，さらに高温（100-800℃）となると HF や HCl も含まれるようになる。また，平林による桜島の火山ガスの報告例 [10] では，爆発回数の多い時期に Cl/S の値も大きくなると述べている。今年度の調査ではレベル 2 の活動状況にあり,中岳南側火口壁温度が約 500℃であったことから，Cl^-と SO_4^{2-}の成分比に影響したものと考えられた。

まとめ

宇土における年平均 pH は 4.7 前後で推移しており，特異な pH 低下はなかった。イオン成分の年間沈着量については前年度と同じレベルで推移していた。一方，阿蘇一の宮における年平均 pH は 4.10 と低い値であった。この降水の酸性化は阿蘇山がレベル 2 の活動期にあったこと及び阿蘇一の宮が阿蘇中岳との距離が近くなったことから，これまでの調査結果での SO_4^{2-}に加え HCl としての Cl^-の濃度が大きく酸性化に寄与したものと考えられた。今後も継続して調査を行うことにより，阿蘇山の火山活動による SO_4^{2-}と Cl^-の関係を検討していきたい。

文献

1) 今村　修，久保　清；熊本県衛生公害研究所報，19，53（1989）.
2) 緒方和博，矢野弘道，上野一憲，今村　修；熊本県保健環境科学研究所報，35，91(2005).
3) 松本依子，上野一憲，今村　修；全国環境研会誌，33(4)，219（2008）.
4) 全国環境研協議会・酸性雨広域大気汚染調査研究部会；酸性雨全国調査実施要領(平成 31 年度)，(2019).
5) 上野一憲，小原大翼；熊本県保健環境科学研究所報，48，62（2018）.
6) 宮本　俊，古澤尚英；熊本県保健環境科学研究所報，44，96（2014）.
7) 国土交通省気象庁ホームページ：月間火山概況・火山活動解説資料/火山活動解説資料（阿蘇山）. http://www.data.jma.go.jp/svd/vois/data/tokyo/STOCK/monthly_v-act_doc/monthly_vact_vol.php?id=503
8) 酸性雨問題周知啓発企画検討委員会編；環境保全活動のための酸性雨ハンドブック，p.21(1999）.
9) Iwasaki, I., Ozawa, T., Yoshida, M., Katsura, T., Iwasaki, B. and Kamada，M.: Differentiation of magumatic emanation, Bulletin of the Tokyo Insutitute of Tecnology，No.74, 1966, pp.1-57.
10) 平林順一；京大防災研究所年報,第 24 号 B-1（昭和 56.4），1-10.

６）菊池市の地下水水質について —平成 30 年度菊池市硝酸性窒素概況調査結果より—

木野世紀　武千尋　前田敏孝*1　中原優子*2

はじめに

熊本県は，県内各地において地下水の硝酸性窒素及び亜硝酸性窒素による汚染の概況調査[1)]を実施している。

汚染原因を特定し，適切な対策を講じるためには硝酸性窒素以外の水質項目等も検討する必要があることから，調査の際には他の主要イオン成分等の測定も併せて行い，水質特性等の把握に努めている。

今回は，平成 30 年度に菊池市で実施した調査（81 井戸）の結果とともに，水質形成要因等について若干の考察を試みたので，併せて報告する。

調査方法

調査地点を図 1、地点（井戸）情報を表 1 に示した。

本調査では平成 31 年 1 月 17 日から平成 31 年 2 月 25 日の間に 7 回に分けて採水した。

調査項目及び分析方法について pH，EC（導電率）は電極法，溶存成分のうち陽イオン（Na^+, NH_4^+, K^+, Ca^{2+}, Mg^{2+}）と陰イオン（Cl^-，NO_2^-，NO_3^-，SO_4^{2-}，HCO_3^-）のうち HCO_3^- を除く成分はイオンクロマトグラフ法，HCO_3^- は硫酸滴定法により求めた。

また金属成分（V，Rb）については，誘導結合プラズマ質量分析（ICP-MS）法で分析を行った。

なお，クラスター分析には，統計解析アドインソフト エクセル統計2012(株式会社社会情報サービス)を使用した。

結果及び考察

1　溶存成分等について

今回の水質分析結果を表 2－1，表 2－2 に示した。

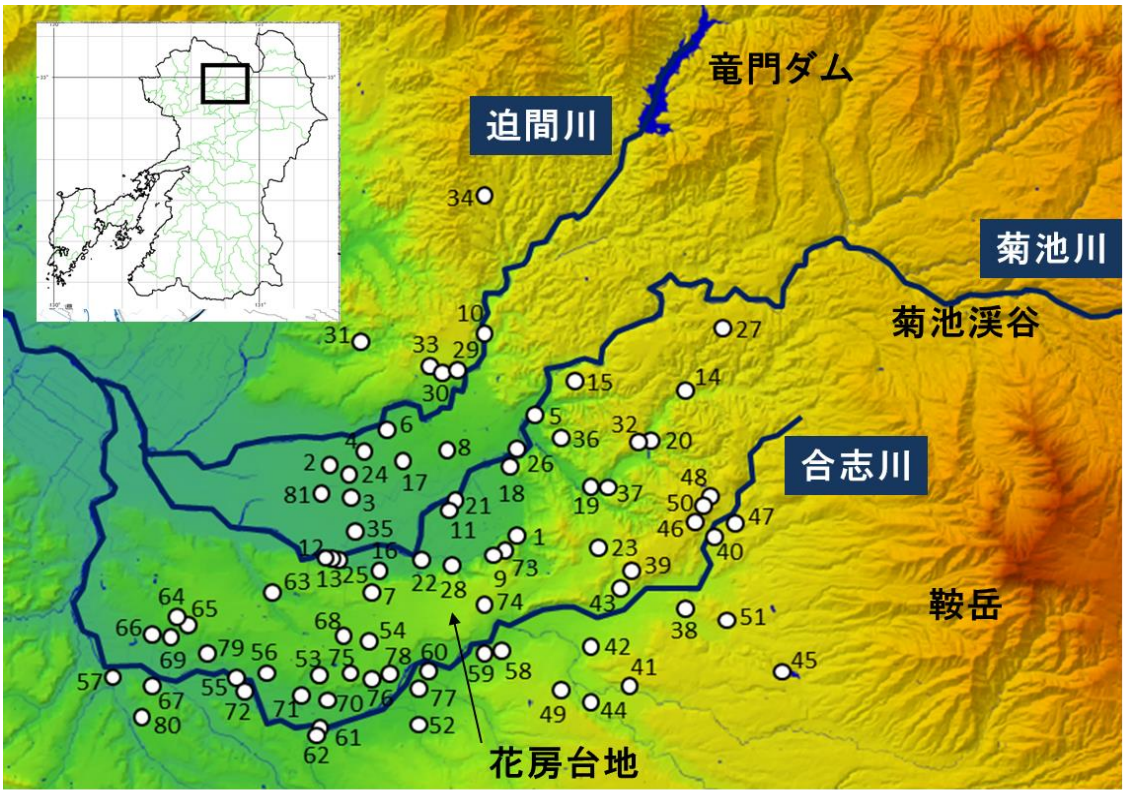


図１　調査井戸の位置（数字は井戸番号）
国土地理院地図（デジタル標高地形図 令和 2 年 9 月閲覧）を筆者が加工して作成

*1 現環境生活部環境局環境保全課　*2 現県北広域本部保健福祉環境部

表１　調査地点情報（井戸等所有者からの聞き取り等による。）

井戸番号 No.	所 在 地	井戸深度（m）	土地利用状況	井戸番号 No.	所 在 地	井戸深度（m）	土地利用状況	井戸番号 No.	所 在 地	井戸深度（m）	土地利用状況
1	菊池市森北	46	宅地	28	菊池市出田	不明	宅地	55	菊池市泗水町豊水	50	田
2	菊池市西寺	8	田	29	菊池市西迫間	不明	田	56	菊池市泗水町豊水	不明	宅地・山林
3	菊池市西寺	6	田	30	菊池市玉祥寺	80	宅地	57	菊池市泗水町南田島	40	宅地
4	菊池市野間口	30	田	31	菊池市木野	不明	宅地	58	菊池市泗水町住吉	45	畑
5	菊池市木庭	40	畑	32	菊池市下河原	55	宅地	59	菊池市泗水町住吉	60	宅地
6	菊池市野間口	不明	宅地	33	菊池市袈裟尾	不明	宅地	60	菊池市泗水町冨納	不明	宅地
7	菊池市広瀬	100	宅地	34	菊池市小木	45	畑	61	菊池市泗水町福本	60	宅地
8	菊池市大琳寺	不明	宅地	35	菊池市長田	不明	宅地	62	菊池市泗水町福本	不明	宅地
9	菊池市森北	不明	畑	36	菊池市藤田	55	宅地	63	菊池市泗水町亀尾	50	田
10	菊池市豊間	50	畑	37	菊池市下河原	不明	田	64	菊池市泗水町田島	55	畑
11	菊池市赤星	50	宅地	38	菊池市旭志小原	50	宅地	65	菊池市泗水町田島	60	畑
12	菊池市木柑子	10	宅地	39	菊池市旭志伊萩	80	山林	66	菊池市泗水町田島	50	畑
13	菊池市泗水町亀尾	100	畑	40	菊池市旭志弁利	45	宅地	67	菊池市泗水町南田島	不明	田
14	菊池市四町分	20	宅地	41	菊池市旭志尾足	260	畑	68	菊池市泗水町吉富	60	宅地
15	菊池市木庭	180	田	42	菊池市旭志川辺	130	畑	69	菊池市泗水町田島	55	畑
16	菊池市広瀬	不明	宅地	43	菊池市旭志伊萩	不明	宅地	70	菊池市泗水町吉富	不明	宅地
17	菊池市西寺	60	宅地	44	菊池市旭志川辺	120	畑	71	菊池市泗水町豊水	10	宅地
18	菊池市今	不明	宅地	45	菊池市旭志麓	13	畑	72	菊池市泗水町豊水	52	宅地
19	菊池市下河原	80	田	46	菊池市旭志弁利	101	宅地	73	菊池市森北	80	畑
20	菊池市下河原	70	山林	47	菊池市旭志弁利	30	田	74	菊池市泗水町住吉	70	畑
21	菊池市赤星	不明	宅地	48	菊池市旭志弁利	50	宅地	75	菊池市泗水町吉富	60	宅地
22	菊池市出田	不明	宅地	49	菊池市旭志川辺	150	畑	76	菊池市泗水町吉富	不明	宅地
23	菊池市下河原	不明	畑	50	菊池市旭志麓	67	宅地	77	菊池市泗水町永	50	畑
24	菊池市西寺	35	宅地	51	菊池市旭志麓	25	宅地	78	菊池市泗水町吉富	45	田
25	菊池市木柑子	76	畑	52	菊池市泗水町永	50	宅地	79	菊池市泗水町田島	60	畑
26	菊池市片角	40	宅地	53	菊池市泗水町吉富	70	宅地	80	菊池市泗水町南田島	30	畑
27	菊池市原	14	山林	54	菊池市泗水町吉富	60～70	宅地	81	菊池市西寺	40	宅地

表２－１　調査地点（井戸）の水質（溶存成分量・金属）結果　井戸番号 No.1～No.40

井戸番号 No.	pH	水温 ℃	EC （μS/cm）	Na^+ (mg/L)	NH_4^+ (mg/L)	K^+ (mg/L)	Mg^{2+} (mg/L)	Ca^{2+} (mg/L)	HCO_3^- (mg/L)	Cl^- (mg/L)	NO_2^- (mg/L)	NO_3^- (mg/L)	SO_4^{2-} (mg/L)	硝酸性窒素及び亜硝酸性窒素 (mg/L)	V （μg/L）	Rb （μg/L）
1	6.8	18.5	205	9.6	<0.1	7.0	6.4	16.9	55.2	5.0	<0.03	16.2	13.6	3.6	5.0	20.6
2	6.7	21.1	156	7.1	<0.1	3.3	3.9	14.4	37.9	4.7	<0.03	11.4	10.1	2.5	1.0	1.2
3	6.7	16.5	162	8.0	<0.1	4.0	4.4	13.0	35.7	4.8	<0.03	17.7	11.4	4.0	2.0	1.7
4	6.9	18.7	129	7.0	<0.1	2.6	3.0	11.2	35.7	4.8	<0.03	7.0	7.3	1.6	1.3	1.9
5	6.9	16.0	101	5.2	<0.1	3.2	2.9	7.6	32.4	2.4	<0.03	3.5	4.8	0.8	1.8	11.1
6	7.2	17.0	142	7.4	<0.1	4.0	4.2	11.3	49.5	4.3	<0.03	8.4	7.2	1.9	2.1	7.4
7	8.1	11.0	324	11.8	<0.1	5.3	11.7	29.3	101.7	10.7	<0.03	53.5	5.5	**12**	2.8	11.3
8	7.6	18.9	173	7.8	<0.1	4.4	4.4	16.9	70.3	3.9	<0.03	10.5	7.3	2.3	2.5	12.1
9	7.1	14.1	223	11.6	<0.1	7.8	7.4	17.0	47.6	8.6	<0.03	22.8	9.0	5.1	4.9	11.9
10	6.8	19.0	150	9.1	<0.1	6.0	4.1	10.6	44.3	3.7	<0.03	9.0	7.4	2.0	2.9	21.2
11	7.0	18.0	225	10.0	<0.1	6.3	7.2	20.2	70.7	6.3	<0.03	13.6	11.8	3.0	3.2	14.9
12	6.8	19.0	250	17.3	<0.1	10.6	6.1	17.1	62.7	8.6	<0.03	21.3	15.1	4.8	6.4	18.5
13	7.7	18.0	343	9.6	<0.1	5.4	11.6	32.2	72.4	10.5	<0.03	81.0	12.4	**18**	2.2	6.6
14	7.0	16.0	161	8.4	<0.1	12.1	4.0	9.3	47.0	4.4	<0.03	11.0	8.5	2.4	6.3	36.8
15	8.1	19.2	91	5.5	<0.1	3.3	2.8	6.0	43.6	2.0	<0.03	1.1	3.0	0.3	7.6	8.0
16	6.8	15.5	198	8.5	<0.1	7.1	5.4	17.7	53.9	6.2	<0.03	17.7	9.9	4.0	3.5	10.8
17	7.5	19.6	204	11.1	<0.1	8.6	4.9	18.3	86.6	5.5	<0.03	8.0	7.5	1.8	4.3	10.5
18	7.4	16.5	195	10.1	<0.1	5.3	6.5	15.0	67.7	6.0	<0.03	16.4	9.0	3.7	8.2	8.6
19	7.2	17.0	141	8.0	<0.1	4.6	4.0	11.2	59.8	3.1	<0.03	2.8	4.8	0.6	11.0	7.3
20	7.2	17.2	124	6.5	<0.1	4.4	3.5	9.5	47.9	2.9	<0.03	7.8	5.4	1.7	5.0	14.9
21	6.6	19.5	177	6.9	<0.1	4.2	5.0	16.3	35.7	5.7	<0.03	16.1	11.4	3.6	1.7	6.8
22	7.0	18.5	202	9.6	<0.1	8.3	6.3	15.5	60.1	6.2	<0.03	18.0	9.0	4.0	5.6	9.4
23	7.4	19.0	411	13.2	<0.1	8.4	16.7	39.0	159.1	11.5	<0.03	35.3	10.4	7.9	3.7	20.1
24	7.7	19.5	144	9.0	<0.1	5.5	3.8	10.1	56.5	5.0	<0.03	8.0	5.9	1.8	5.2	14.3
25	7.3	12.0	345	12.7	<0.1	6.7	11.8	32.9	112.8	9.1	<0.03	46.6	8.8	10	5.4	8.9
26	6.9	18.5	172	9.6	<0.1	6.7	4.5	13.0	51.3	4.4	<0.03	13.6	8.7	3.0	2.3	18.9
27	6.7	16.5	108	6.1	<0.1	2.8	2.7	9.3	35.0	1.8	<0.03	2.0	5.8	0.5	2.1	12.7
28	6.9	18.0	207	11.4	<0.1	9.3	5.8	14.5	38.0	6.9	<0.03	20.6	12.1	4.6	6.7	15.3
29	7.6	17.0	146	8.3	<0.1	5.3	4.6	10.8	60.1	3.8	<0.03	6.5	4.6	1.4	5.3	10.3
30	7.3	22.5	165	9.1	<0.1	4.2	5.5	13.4	57.6	3.4	<0.03	13.3	8.4	3.0	1.6	11.1
31	6.8	16.5	210	13.7	<0.1	8.1	5.4	14.0	46.5	6.9	<0.03	17.1	16.4	3.8	4.3	13.4
32	6.9	19.3	141	6.9	<0.1	4.6	4.0	11.3	45.3	3.1	<0.03	6.7	7.2	1.5	4.1	17.2
33	7.0	19.5	240	12.3	<0.1	6.8	7.3	18.9	69.0	6.3	<0.03	27.1	13.3	6.1	3.6	19.3
34	7.3	19.5	230	9.7	<0.1	1.2	5.4	27.2	95.5	7.1	<0.03	7.0	9.8	1.6	2.1	0.1
35	7.5	21.5	206	10.9	<0.1	7.1	6.4	16.3	87.2	5.6	<0.03	7.5	9.3	1.7	6.3	12.6
36	7.1	17.1	143	7.8	<0.1	4.5	4.0	11.0	52.0	3.2	<0.03	6.8	5.4	1.5	8.3	13.9
37	7.1	17.9	184	8.3	<0.1	6.2	5.2	15.7	58.9	6.1	<0.03	11.7	8.9	2.6	5.4	14.7
38	8.1	17.1	109	5.1	<0.1	2.1	2.9	9.1	35.8	4.1	<0.03	13.8	2.6	3.1	6.6	9.8
39	7.1	16.0	295	12.7	<0.1	6.5	10.7	23.2	75.8	12.2	<0.03	43.9	9.6	9.9	3.7	9.8
40	6.9	18.6	240	7.6	<0.1	3.7	8.5	22.7	52.4	7.5	<0.03	24.9	10.7	5.6	1.6	10.4

表２－２　調査地点（井戸）の水質（溶存成分量・金属）結果　井戸番号 No.41～No.81

井戸番号 No.	pH	水温 ℃	EC (μS/cm)	Na^+ (mg/L)	NH_4^+ (mg/L)	K^+ (mg/L)	Mg^{2+} (mg/L)	Ca^{2+} (mg/L)	HCO_3^- (mg/L)	Cl^- (mg/L)	NO_2^- (mg/L)	NO_3^- (mg/L)	SO_4^{2-} (mg/L)	硝酸性窒素及び亜硝酸性窒素 (mg/L)	V (μg/L)	Rb (μg/L)
41	8.1	18.5	91	5.9	<0.1	1.8	2.4	6.8	38.9	2.6	<0.03	3.0	2.5	0.7	10.6	7.1
42	8.2	20.5	142	19.3	<0.1	3.0	1.7	5.7	60.0	2.7	<0.03	1.2	13.8	0.3	14.4	11.3
43	7.6	15.0	112	6.4	<0.1	2.8	3.3	9.3	45.5	3.1	<0.03	4.4	4.0	1.0	7.9	10.9
44	7.4	18.5	153	6.6	<0.1	3.2	5.1	12.7	54.6	5.1	<0.03	13.5	4.8	3.0	5.8	11.9
45	8.2	16.0	82	4.6	<0.1	1.6	2.5	7.0	39.4	2.0	<0.03	0.8	2.8	0.2	6.0	6.9
46	7.3	16.0	525	13.8	<0.1	8.5	21.5	49.6	155.0	23.6	<0.03	87.5	5.5	**19**	1.4	33.2
47	7.0	18.5	294	7.9	<0.1	4.1	11.7	29.3	98.6	7.7	<0.03	25.7	8.9	5.8	1.0	13.0
48	7.6	16.1	427	11.9	<0.1	7.1	17.5	40.5	151.1	16.8	<0.03	59.9	0.8	**13**	1.7	23.0
49	7.3	15.6	169	7.4	<0.1	3.6	5.7	14.1	57.7	5.8	<0.03	15.2	6.2	3.4	6.2	13.1
50	7.8	14.6	158	5.5	<0.1	1.9	5.4	14.0	42.7	4.9	<0.03	32.0	1.7	7.2	5.3	7.3
51	7.9	16.5	92	4.5	<0.1	1.8	2.7	7.6	40.9	2.5	<0.03	4.9	2.4	1.1	5.9	7.5
52	7.3	18.5	277	11.1	<0.1	6.2	9.7	25.7	105.4	7.6	<0.03	12.9	14.6	2.9	4.2	21.0
53	7.2	18.4	305	12.5	<0.1	4.8	9.7	27.2	71.7	9.7	<0.03	50.7	17.9	**11**	2.9	7.0
54	7.5	19.5	205	8.0	<0.1	2.8	8.8	18.0	82.5	3.1	<0.03	14.4	8.7	3.2	1.2	11.0
55	6.9	25.0	351	17.4	<0.1	7.2	12.9	28.6	96.5	13.5	<0.03	25.1	21.6	5.6	3.5	5.9
56	7.3	15.7	76	5.1	<0.1	3.1	2.0	3.7	15.5	3.9	<0.03	9.6	4.1	2.1	2.8	7.9
57	7.0	21.5	338	23.8	<0.1	7.2	9.8	22.5	74.3	28.1	<0.03	11.4	30.2	2.5	6.2	15.1
58	7.2	13.0	314	11.1	<0.1	6.0	12.5	26.1	84.4	6.7	<0.03	46.3	19.4	10	2.7	8.8
59	7.3	18.0	215	9.8	<0.1	4.1	6.5	18.8	63.1	7.1	<0.03	27.3	8.0	6.1	5.5	14.5
60	6.8	16.0	634	18.9	<0.1	10.5	22.0	60.4	66.6	80.3	<0.03	27.1	82.7	6.1	2.3	19.9
61	6.8	19.2	372	14.6	<0.1	9.0	14.1	33.0	118.4	11.6	<0.03	36.6	2.5	8.2	1.7	32.0
62	7.2	19.0	261	12.3	<0.1	6.4	8.7	21.1	73.3	10.6	<0.03	33.3	10.4	7.5	4.3	9.9
63	7.4	16.8	328	13.0	<0.1	6.4	10.3	31.2	94.9	11.1	<0.03	42.4	17.1	9.5	12.9	17.3
64	6.3	24.5	395	13.3	<0.1	2.0	14.2	33.4	25.6	41.4	<0.03	83.4	1.1	**18**	0.2	0.1
65	6.7	23.7	342	15.0	<0.1	9.9	12.8	25.2	71.3	18.9	<0.03	44.7	9.7	10	2.5	5.4
66	7.0	19.0	370	13.5	<0.1	6.2	13.4	32.6	86.7	18.4	<0.03	44.1	22.5	9.9	1.6	15.8
67	7.0	25.0	368	13.3	<0.1	6.1	13.6	32.4	84.6	18.6	<0.03	44.6	22.8	10	1.5	15.8
68	8.0	18.5	189	7.2	<0.1	2.5	7.7	16.2	70.2	5.1	<0.03	17.6	7.8	3.9	1.6	9.5
69	6.7	22.0	271	14.3	<0.1	6.0	10.4	19.1	62.8	6.2	<0.03	30.3	15.8	6.8	3.0	3.0
70	6.7	18.3	206	9.2	<0.1	3.7	5.9	19.9	49.7	8.5	<0.03	12.8	10.7	2.9	1.8	9.6
71	6.6	20.3	252	10.6	<0.1	2.4	7.4	26.8	61.2	10.7	<0.03	11.4	15.1	2.5	1.3	7.8
72	7.4	19.0	286	12.3	<0.1	5.7	10.1	23.9	88.0	12.3	<0.03	31.8	9.5	7.2	3.5	12.6
73	7.0	16.5	345	12.2	<0.1	8.1	12.2	30.6	93.0	9.7	<0.03	46.2	15.3	10	2.2	10.5
74	7.3	16.5	482	16.6	<0.1	10.1	18.3	43.3	141.0	20.1	<0.03	67.3	14.5	**15**	2.8	19.4
75	7.5	17.0	395	12.2	<0.1	5.0	17.1	37.3	157.7	11.1	<0.03	30.1	15.6	6.8	2.1	9.6
76	7.3	17.2	542	14.9	<0.1	6.6	24.7	49.0	166.3	27.4	<0.03	77.7	5.0	**17**	2.0	15.7
77	6.2	18.5	197	9.0	<0.1	2.5	6.5	16.4	17.7	10.7	<0.03	14.9	22.1	3.3	0.8	7.6
78	7.6	17.5	326	12.4	<0.1	5.3	11.1	30.1	106.1	11.1	<0.03	42.1	11.1	9.5	2.1	10.8
79	7.1	25.0	293	13.0	<0.1	7.8	10.0	23.2	75.9	8.9	<0.03	27.1	26.4	6.1	3.3	10.1
80	7.0	22.0	349	11.9	<0.1	7.0	13.0	29.1	72.7	15.6	<0.03	51.3	24.6	**11**	1.9	8.9
81	7.3	19.3	169	9.9	<0.1	5.0	4.4	13.2	63.5	5.3	<0.03	8.8	8.0	2.0	4.2	7.8

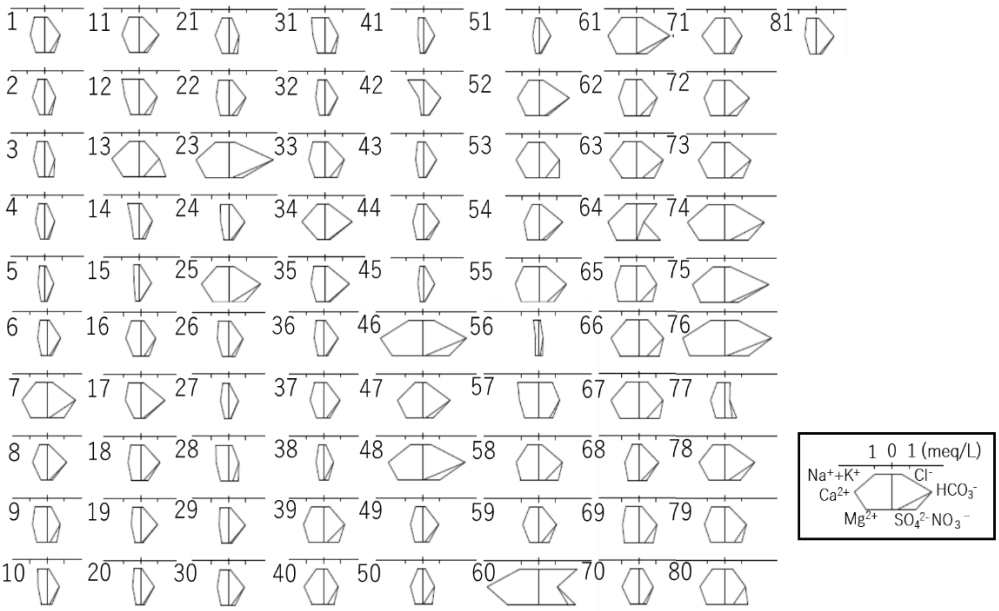


図２　各調査地点のヘキサダイアグラム

pH は 6.2（No.77）～8.2（No.45）の範囲にあり，菊池川沿いや合志川の下流側に 7 未満の弱酸性～中性の地点があり，その他は 7 以上の弱塩基性を示す地点が多かった。

EC は 76 μ S/cm（No.56）～634 μ S/cm（No.60）の範囲にあり，迫間川～菊池川沿いの低地，菊池川の上流側や合志川左岸の上流側で比較的低め，花房台地周辺～合志川沿いに高めの地点が多く分布した。

溶存成分について，水質の特徴を把握するため，ヘキサダイヤグラムを図 3 に示した。

溶存成分量は花房台地～合志川右岸にかけての地点で比較的多く，EC の傾向と概ね一致した。大半は Ca-HCO_3 を主成分とするアルカリ土類 - 炭酸塩型であった。しかし No.10,12,14,15,24,28,29,31,41,42,56,57 のように Na^+や K^+に比較的富むものや No.60,64,77 のように Cl^-や SO_4^{2-}に比較的富むものもあり，これらは主に北側山地との境界や花房台地周縁の地点で見られた。

次に，類似した水質の特徴を有する群で区分することを試みるため，NH_4^+と NO_2^-を除く 6 種の溶存成分を用いてウォード法によるクラスター分析を行った結果を図 3 に示した。

得られた樹形図の距離を 100 に定めると A～E の 5 つのグループに分けることが出来た。更に No.64 と No.60 を個別クラスターとして扱い，計 7 つのグループ（クラスター）とした。また，図 2 のヘキサダイヤグラムを改めて各グループ別に区分したものを図 3，更に各グループ（クラスター）の地図上の分布を図 4 に示した。

グループ A は 25 地点が分類された。EC は 76～240 μ S/cm であり，全 7 グループの中で最も溶存成分量が少ない。主に菊池川上流側や合志川上流側の左岸のほか，一部は迫間川や菊池川下流側の低地にも分布した。

グループ B は 26 地点が分類された。EC は 141～338 μ S/cm であり，グループ A に次いで溶存成分量が少ないグループであった。主に迫間川沿い，菊池川下流側沿いの低地のほか，花房台地の北東縁や南西縁（合志川右岸）の一部の地点も含まれた。

グループ C は 8 地点が分類された。EC は 146～351 μ S/cm であり，グループ A，グループ B に次いで溶存成分量が少ないグループであった。No.29 と No.47 がそれぞれ迫間川や合志川の上流側，No.54 が花房台地の中央部付近に存在し，他は各河川の下流側の低地に分布した。

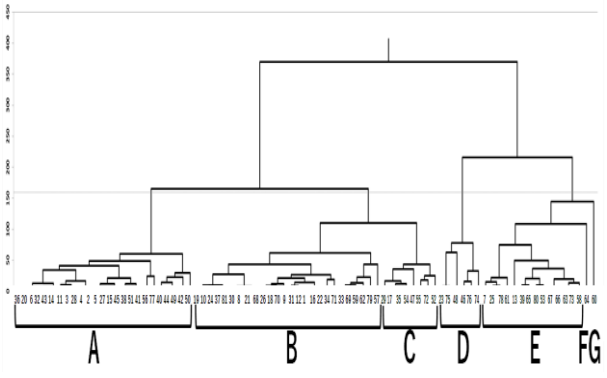


図３　クラスター分析結果

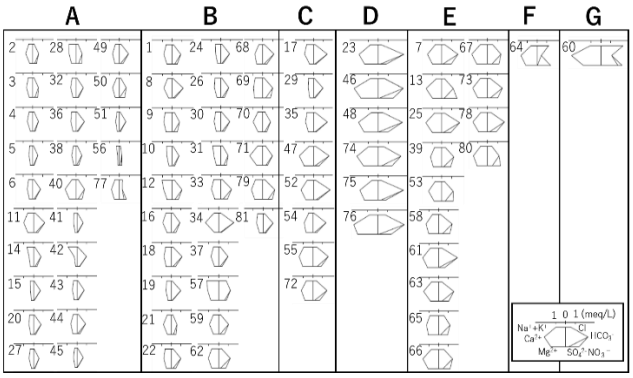


図４　図２のヘキサダイヤグラムをクラスター分析結果を基にグループ別に区分して並べ替えたもの。

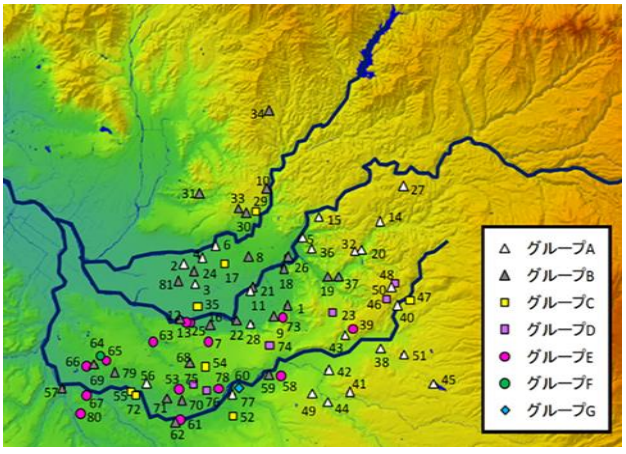


図５　各グループ（クラスター）の分布図

グループ D は 6 地点が分類された。EC は 395～542 μ S/cm であり，総じてこれまでの 3 グループより溶存成分量が多く，NO_3^-濃度が高いという特徴が見られた。主に花房台地南側，合志川右岸に分布した。

グループ E は 14 地点が分類された。EC は 295～372 μ S/cm であり，溶存成分量は全体的にグループ D

より若干少なかった。一方で NO_3^-濃度はグループ D と同様に高いという特徴があった。主に花房台地の周囲や合志川下流側の左岸に分布した。

グループ F は 1 地点のみ分類され，HCO_3^-が少ない一方で Cl^-や NO_3^-が多く，特に NO_3^-濃度は全体で 2 番目に高い値であった。花房台地西部に位置した。

グループ G も 1 地点のみ分類され，EC 並びに SO_4^{2-}が全地点中最大値を示した。合志川左岸に位置した。

以上のことから，対象地域における地下水流動や水質特性について以下のとおり推察した。

まずグループ A 及びグループ B の分布から，迫間川沿いの地下水は菊池川や合志川上流側の左岸のそれとは異なる由来を持つと考えられた。また，迫間川と菊池川に挟まれた低地にはグループ A～C に分類された地下水が混在することから迫間川や菊池川の上流域を起源とする地下水がこの地域に流入していることが示唆された。

一方，菊池川左岸～花房台地～合志川にかけては溶存成分量，特に NO_3^-濃度が高いグループ D～F に分類された地下水が見られた。NO_3^-は岩石等にほとんど含まれず人為由来であり，当該地域内に NO_3^-による汚染源が複数存在，あるいは特定の地点で生じた汚染が周辺に拡散している可能性が考えられる。

なお，「硝酸性窒素及び亜硝酸性窒素」が地下水の環境基準値（10 ㎎/L）を超過した地点は図 6 に示す 9 地点（No.7,13,46,48,53,64,74,76,80）であり，全てこの 3 グループ（No46,48,74,76 はグループ D，No.7,13,53,80 はグループ E, No.64 はグループ F)に含まれた。また比較的高め（7mg/L 以上 10 ㎎/L 未満）の地点も 13 地点あり，一部（うち 4 地点）を除きこの 3 グループに含まれた。

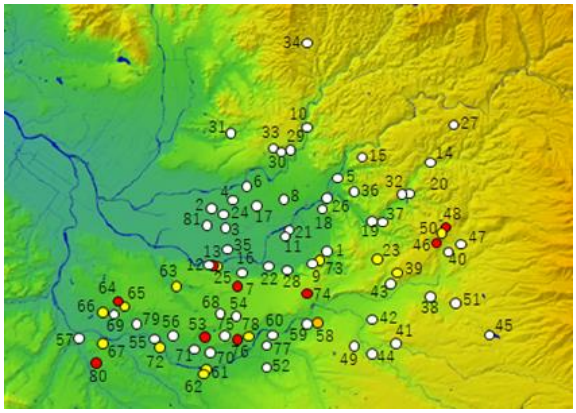


図６「硝酸性窒素および亜硝酸性窒素」濃度分布
（●：10 ㎎/L 以上　●：7 ㎎/L 以上 10 ㎎/L 未満）

２　金属成分（V, Rb）について

渡邉らは県南部地域（八代～人吉地域）の地下水中中の V（バナジウム）濃度及び Rb（ルビジウム）濃度について，安山岩の影響が考えられる地下水では V 濃度が 5.0μg/L 以上かつ Rb 濃度が 1.0μg/L～10μg/L であること，また流紋岩の影響が考えられる地下水では V 濃度は高くならないものの Rb 濃度が 10μg/L 以上と更に高くなることを報告した[2)]。

今回の調査地域の地質図を図 8 に示す。これまでの研究[3) ~8)]によれば，菊池市北部の迫間川上流域に白亜紀の菊池花崗岩や玉名花崗閃緑岩，東部の鞍岳に第四紀の先阿蘇火山岩類が分布する。更に，これらを覆うように阿蘇火砕流堆積物が台地や低地に分布する。 阿蘇火砕流堆積物は，古いものから順に Aso-1、Aso-2，Aso-3，Aso-4 火砕流堆積物と呼ばれ，菊池川源流域～菊池渓谷は概ね Aso-1 及び Aso-2 火砕流堆積物，菊池渓谷から菊池市街地に至る菊池川流域には主に Aso-3 火砕流堆積物が分布している。Aso-4 は主に合志川左岸に分布しているが，合志川上流の右岸や迫間川流域の一部でも見られる。花房台地ではこれらの地質の上に河川の侵食・堆積作用等による段丘堆積物が見られる。

岩石の種類について，先阿蘇火山岩類が安山岩溶岩及び火砕岩[8)]に対し，阿蘇火砕流堆積物は年代により異なるが珪長質岩（デイサイト，流紋岩）や安山岩が多いとされる[4) 9)]。

このように菊池地域も県南部地域同様，安山岩や流紋岩が広く分布する地域であることから，今回も V や Rb について測定した。結果を表 2 に示す。

V 濃度は 4.0±2.7μg/L（0.2μg/L（No.64）～14.4 μg/L（No.42））であった。図 6 に示すとおり主に菊池川沿いや合志川上流側の左岸の地点で V 濃度が 5.0μg/L 以上となった地点が多く分布した一方，迫間川沿いでは 1 地点（No.29）のみであった。

一方，Rb 濃度は 12.1±6.6μg/L（0.1μg/L（No.34）～36.8μg/L（No.14））であった。図 7 に示すとおり Rb 濃度が 10μg/L 以上の地点は今回調査範囲のほぼ全域に分布した。V の場合とは対照的に，迫間川沿いで No.10,29,30,31,33 のように Rb が 10μg/L 以上の地点が多く分布したのに対し，合志川上流側では No.38, 41,45,51 等 V 濃度が 5.0μg/L 以上であった地点では Rb 濃度が 10μg/L 未満であった。

菊池川流域には安山岩等を含むとされる阿蘇火砕流堆積物，合志川上流には安山岩等からなる先阿蘇火山岩類の鞍岳といった V の供給源が存在すると考えられるのに対し，迫間川上流域には V に富まない

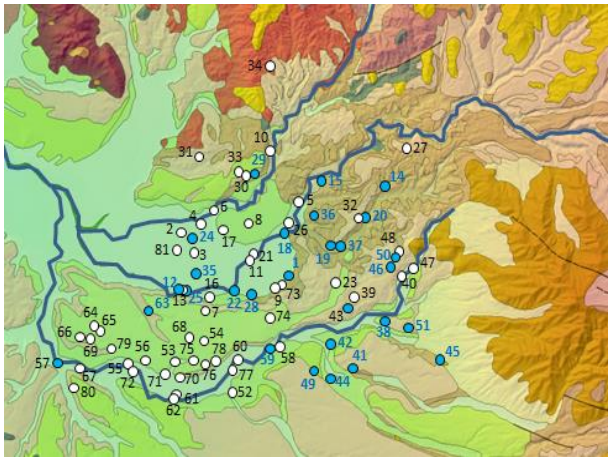


図 6 V 濃度が 5.0μg/L 以上の地点分布（青丸で示す）

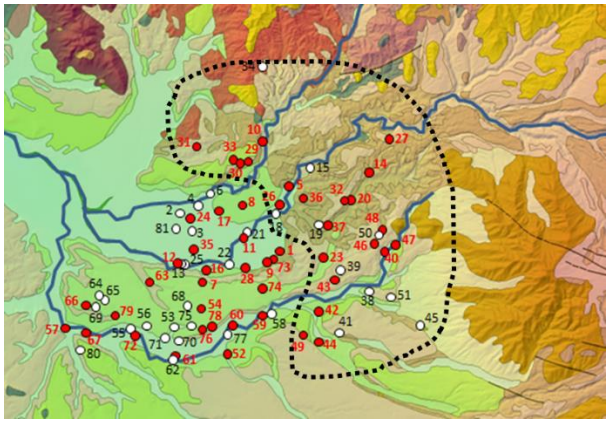


図 7 Rb 濃度が 10μg/L 以上の地点分布（赤丸で示す）

図8 調査対象地域の表層地質図

産総研地質調査総合センターウェブサイト [10]のシームレス地質図 V2 をもとに筆者が加筆修正。主な地質のみ明記。「○」は調査井戸。

花崗岩類 [11]が多く分布する。また合志川上流域は Rb に富まない安山岩が分布する一方，迫間川流域には Rb に富む花崗岩類 [12]が分布する。このため，V と Rb について高濃度地点の分布が異なった可能性がある。

なお，菊池川沿いや花房台地の東側（山地側）には V と Rb が共に高濃度である地点が多く分布した。これらの地域を覆う阿蘇火砕流堆積物が年代により流紋岩～安山岩であるため，地下水が双方の岩石からの影響を受けているものと考えられる。

一方，地球化学図によると花崗岩や流紋岩などの二酸化ケイ素の含有量が高い酸性岩においては K（カリウム）の濃度が高い [13]とされている。そこで，Rb 濃度が 10μg/L 以上であった地点について溶存成分の一つである K^+濃度との関係も調べた。

その結果，図 9 に示すとおりやや高い相関（R=0.586）があり，特に図 7 の点線で囲まれた上流側の 21 地点（No.5，10，14，20，23，26，27，29，30，31，32，33，36，37，40，42，43，44，46，47，48，49）に限ると更に高い相関（R=0.847）が認められた。

K^+の供給源は人為的（施肥等）なものもあり，この相関の差は岩石あるいは人為的という双方からの影響の程度の差を反映していると考えられる。

つまり，地下水の水質は山間部へ向かう程に地質（岩石）の影響を強く受けているものと思われる。

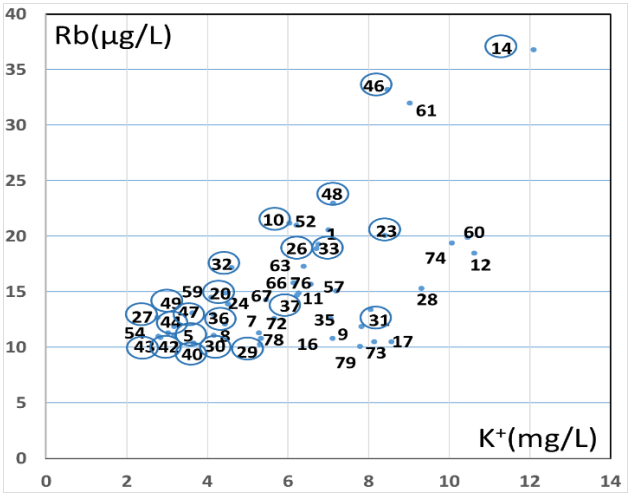


図９ K^+と Rb 濃度の関係
（Rb 濃度 10μg/L 以上の地点のみ表示）
数字は井戸番号
丸囲みは図 7 の点線に囲まれた 22 地点。

まとめ

菊池市地域の 81 井戸について，硝酸性窒素及び亜硝酸性窒素による汚染状況とともに，他の溶存成分等を

調査し，水質特性を把握した。

その結果，溶存成分の特徴から調査対象井戸が７つのグループに分類できること，うち人為的影響が考えられる NO_3^-濃度等の高い井戸が特定の３グループに含まれることを見出した。

更に，本地域が複数の異なる由来を持つ地下水から成る可能性や，地域の地質（岩石）も地下水の水質に影響を及ぼしている可能性も示唆された。

謝　辞

本調査の実施にあたり，調査対象井戸の所有者並びに所有者との連絡調整や採水等に協力いただきました菊池市役所環境課の関係者の皆様に深く感謝いたします。

参考文献

1）熊本県：“水質調査報告書（公共用水及び地下水）”，（平成 30 年度ほか）．

2）渡邉和博，前田敏孝，内田大智，石原宏明，小林亜由美，本田智宣：熊本県保健環境科学研究所報，**47**，63-72（2018）．

3）松本徭夫，松本幡郎編：“阿蘇火山”，p.248（1981），（東海大学出版会）．

4）小野晃司，渡辺一徳：“阿蘇火山地質図”，(1995)，（地質調査所）．

5）田中伸廣，平山利明：アーバンクボタ，no. 27，p.46-51（1988）．

6）横山勝三：“熊本市の地形.「新熊本市（通史編，第１巻，自然・原始・古代）」”，47-74（1998），(熊本市)．

7）渡辺一徳：“熊本市の地形.「新熊本市（通史編，第１巻，自然・原始・古代）」”，75-108（1998），(熊本市)．

8）星住英夫，尾崎正紀，宮崎一博，松浦浩久，利光誠一，宇都浩三，内海 茂，駒澤正夫，広島俊夫，須藤定久：“20 万分の１地質図幅「熊本」”，(2004)，（独立行政法人産業技術総合研究所 地質調査総合センター）．

9）星住英夫，宮縁育夫，宮城磯治：“阿蘇火砕流及び降下火砕物の層序”，日本火山学会講演予稿集，(2017)．

10）産業総合研究所地質調査総合センターウェブサイト https://gbank.gsj.jp/geonavi/geonavi.php 令和２年９月閲覧

11）Ando,A et.al., Geochem.J. **23**, 143-148(1989).

12）倉沢一：”地質ニュース 167 号”,33,（1967）。

13）今井登，寺島滋，太田充恒，御子柴（氏家）真澄，岡井貴司，立花好子，富樫茂子，松久幸敬，金井豊，上岡晃，谷口政碩：地質ニュース 604 号，30-36，(2004)．

7）熊本県内河川の水生生物を用いた環境評価（2019 年度）

内田大智*　西島遥　武千尋　齊藤弘毅
石原宏明　眞田知征　木野世紀

はじめに

河川における水生生物調査は，水環境の中長期的な状態を知るために有用な方法であり，また，高価な機材や高度な知識を必要としないことから環境教育の教材としても用いられている。

熊本県では，「みんなの川の環境調査」として学校，民間団体等が行う調査を支援する [1]とともに，当所においても 1990 年度から 2016 年度まで県内河川 35 地点の環境基準点等において調査を行ってきた。その結果は，毎年度環境保全課により公表される [2]とともに，谷口 [3]によって各調査地点における生物の出現状況の変遷が取りまとめられている。

今回，2019 年度に上記 35 地点のうち 11 地点で引き続き調査を実施したので，その結果を報告する。

なお，その他の 24 地点については，2017 年度及び 2018 年度に調査を行い，既報 [4]によりその調査結果を発表している。

調査方法

1 調査期間

2019 年 9 月 26 日（3 地点），10 月 11 日（3 地点），10 月 21 日（5 地点）

2 調査地点

環境基準点等 11 地点（図 1）で調査を実施した。

なお，従来高田橋として調査を行っていた地点は水深増に伴い調査不能となったため，約 600 m 上流の第二高田橋付近に調査地点を変更した。それに伴い，地

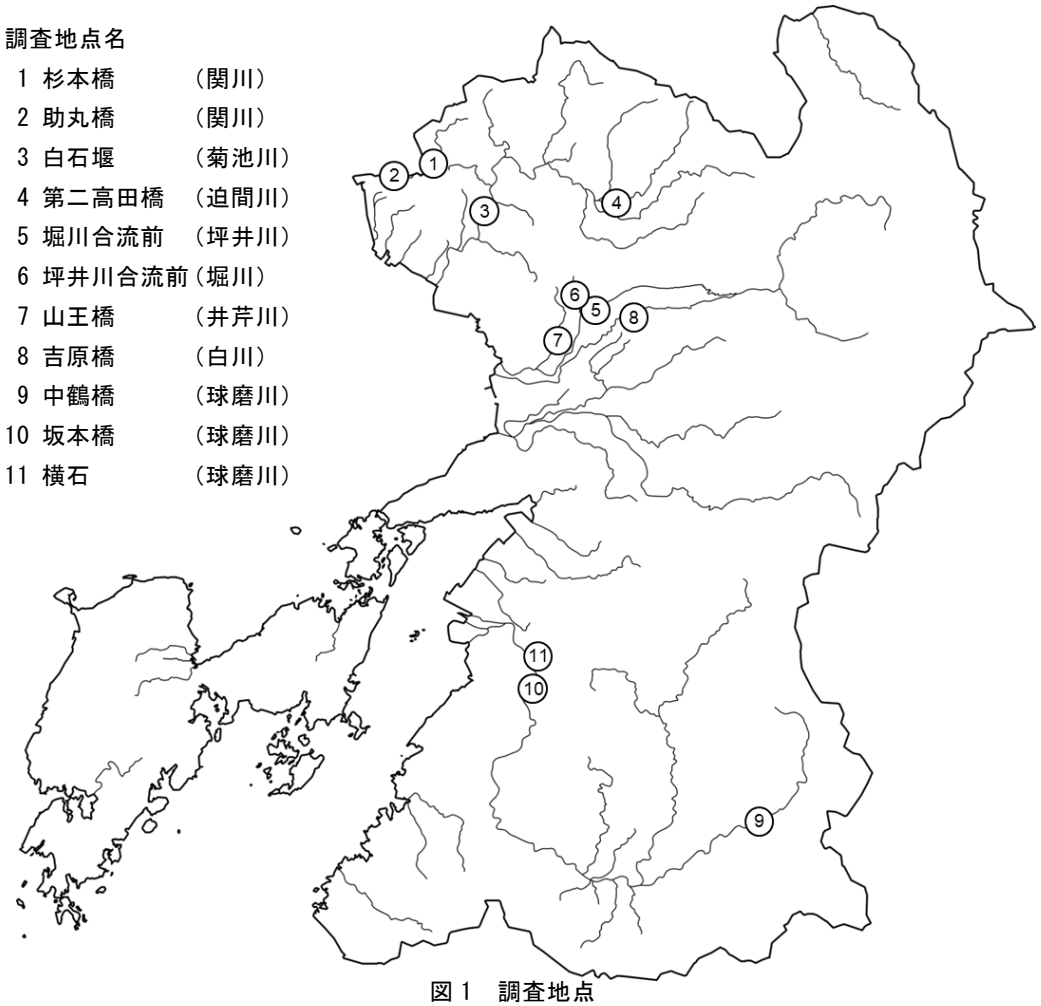


図 1　調査地点

*現県北広域本部保健福祉環境部

点名称も第二高田橋としている。

3 調査方法

熊本県環境保全課「川の水環境・調査のてびき」[5]に基づき行った。水生生物の採取は，D 型フレームネット（網目：約 1.0 mm）を用いて，水深約 10～30 cm の瀬においてキック・スイープ法により行った。

4 評価方法

評価は熊本県独自の 25 種類の指標生物種[6]の出現状況から水生生物による川の水環境評価値（以下「生物評価値」とする）を求める方法によった。この方法では河川の状態をⅠ：快適な水環境，Ⅱ：親しめる水環境，Ⅲ：不快を感じない水環境，Ⅳ：多少不快な水環境，Ⅴ：不快な水環境の 5 段階に分類することができる。指標生物の同定は図説等[7~12]を参考とした。

また，生物の多様性をみるために多様性指数を用いた評価も行った。多様性指数は Shannon の式により求めた。

$$H' = -\sum_{i=1}^{S} Pi\log_2 Pi$$

H’ ：多様性指数
S ：群集に含まれる種の数
P*i* ：種 *i* の個体数が全体に含まれる割合

この場合，多様性指数は値が大きいほど，生物が偏りなく存在し，多様性に富んでいると評価される。

調査結果及び考察

各地点における指標生物の出現数及び多様性指数を表 1 に示す。

また，各地点，各年度の生物評価値，確認された指標生物種数及び多様性指数をそれぞれ同一地点の過去 5 年間（2012 年度～2016 年度）の結果と比較（表 2）した。

なお，第二高田橋については，地点変更前の高田橋の調査結果と比較した。

1 生物評価値の変動

生物評価値は坂本橋を除く 10 地点では過去 5 年間の変動の範囲内だった。

一方，坂本橋では，過去 5 年間の調査では生物評価値Ⅱ又はⅢであったが，2019 年度はⅠとなっていた。これまでほとんど確認されたことのない携巣性トビケラ類やニッポンヨコエビが確認されるなどⅠに区分される生物が 5 種出現したことが要因と考えられる。

2 指標生物種数の変動

指標生物種数は，山王橋，中鶴橋，坂本橋，横石で過去 5 年間の最大値を上回っていた。

ただし，山王橋及び中鶴橋は，2019 年度の調査で確認された生物はいずれも過去 5 年間の調査で確認されている生物であり，生物相やその要因となっている水質に大きな変動があったわけではないと考えられる。

坂本橋については，先述のとおり携巣性トビケラ類及びニッポンヨコエビが確認されたことによって過去 5 年間の最大値を上回る種数が確認されたと考えられる。これらの指標生物はいずれも区分Ⅰに分類される生物であり，2019 年度の調査時は過去 5 年と比較して生物の生息状況から確認される水環境は良い状況にあったと考えられる。

また，横石では過去 5 年間の最大値 8 種を大きく上回る 13 種が確認された。ただし，生物評価値及び多様性指数は過去 5 年間の変動の範囲内だった。総個体数が多かった（1990 年度以降の調査で最大の 342 個体）ため，生息数が少ない指標生物を確認することができたことが要因の可能性が高い。

一方で，助丸橋では過去 5 年間の最小値を下回っていた。出現している生物種には大きな変化はなかったものの，今回の調査ではユスリカ類の個体数が非常に多くなっていた（総個体数の 65.2 %）。ユスリカ類が大量に発生することにより，他の生物種の生息環境や餌等に影響を与えた可能性もあり，今後も状況を注視する必要がある。

3 多様性指数の変動

多様性指数については，堀川合流前で過去 5 年間の最大値を上回っていた。ただし，その差はわずかで，大きな変動ではないと考えられる。

一方，助丸橋，第二高田橋，坪井川合流前では過去 5 年間の最小値を下回っていた。

助丸橋では先述のとおりユスリカ類の個体数が非常に多くなっており，これによって多様性指数が下がっていると考えられる。ユスリカ類の出現率（ユスリカ類の個体数 / 総個体数）は 62.3 %で，1990 年度の調査開始以来最も高かった。水環境の悪化を示している可能性もあり，今後も調査を継続するなどして状況を注視する必要がある。

また，第二高田橋でも同様に多数のユスリカ類が確認された。地点変更前の高田橋ではユスリカ類が優占種であったことはなく，地点変更によって生物相が異

なっている可能性がある。今後も第二高田橋での調査を継続することにより生物相の類似性の検証が可能となる。

一方，坪井川合流前ではコカゲロウ類の増加が要因となって多様性指数が低くなっている。コカゲロウ類が増加した要因は不明であるものの，過去 5 年間の調査でも同様にコカゲロウ類が多い年度（2012 年度及び 2013 年度）に多様性指数が低くなっている。コカゲロウ類が増加しやすい水環境になりやすい地点といえる。2017 年度及び 2018 年度の調査でもコカゲロウ類の増加に伴って多様性指数が低下している地点があり [4]，坪井川合流前においても同様の現象が起きていると考えられる。

まとめ

2019 年度に調査した河川の水生生物の生息状況は多少の変動はあったものの，例年と比較して異常な状況ではなかった。

ただし，過去の調査と比較して出現した指標生物種数や多様性指数が下がっている地点があり，特定の種の個体数が多くなることが要因と推察された。

今後も定期的な調査を実施することにより状況を注視する必要がある。

文　献

1) 熊本県環境保全課 HP :「平成 31 年(2019 年)度みんなの川の環境調査-川の生き物と水質を調べてみよう-」の参加団体を募集しています！！ https://www.pref.kumamoto.jp/kiji_11174.html（2020 年 6 月閲覧）
2) 熊本県環境保全課 HP : みんなの川の環境調査報告書 http://www.pref.kumamoto.jp/kiji_583.html（2020 年 6 月閲覧）
3) 谷口智則 : 熊本県保健環境科学研究所報，**44**，108（2014）.
4) 内田大智 : 熊本県保健環境科学研究所報，**48**，70（2018）.
5) 熊本県環境保全課 HP : みんなの川の環境調査「川の水環境調査のてびき」を掲載しています https://www.pref.kumamoto.jp/kiji_584.html（2020 年 6 月閲覧）
6) 小田泰史，杉村継治，久保　清 : 用水と廃水，**34**，112 （1992）.
7) 川合禎次編 :“日本産水生昆虫検索図説”,（1985），（東海大学出版会）.
8) 谷田一三編，丸山博紀，高井幹夫著 :“原色川虫図鑑”,（2000），（全国農村教育協会）.
9) 刈田　敏著 :“水生昆虫ファイルⅠ”,（2002），（株式会社つり人社）.
10) 刈田　敏著 :“水生昆虫ファイルⅡ”,（2002），（株式会社つり人社）.
11) 刈田　敏著 :“水生昆虫ファイルⅢ”,（2002），（株式会社つり人社）.
12) 椎野季雄著 :“水産無脊椎動物学”,（1969），（培風館）.

表 1 指標生物の出現状況

（単位：個体）

No.	区分	指標生物名	杉本橋	助丸橋	白石堰	第二高田橋	堀川合流前	坪井川合流前	山王橋	吉原橋	中鶴橋	坂本橋	横石
1		カワゲラ類	13	15		6					13	2	12
2		ナガレトビケラ類	1			7				9	2	1	1
3		ヒゲナガカワトビケラ類	2			3				1	10		
4	Ⅰ	チラカゲロウ									3		
5		携巣性トビケラ類	12	15	2	1	41		7			2	1
6		ニッポンヨコエビ・サワガニ										2	
7		ヒラタカゲロウ類				12	1			27	86	207	3
8		ウズムシ類（プラナリア）				1			5	3			2
9		ヘビトンボ類											
10	Ⅱ	マダラカゲロウ類	58	12	9	74			2	9	75	46	19
11		タニガワカゲロウ類	18	21	4	38		1	2	9	65	110	51
12		ブユ類・ガガンボ類	5	3	1	6	5	3	13	6	32		6
13		カワニナ											
14		ヒラタドロムシ類	8			4	2				6	2	3
15	Ⅲ	コカゲロウ類	44	36	7	162	32	188	327	255	289	67	59
16		コガタシマトビケラ	39	11	11	78	2	2	25	12	53	9	3
17		ユスリカ類（白・緑）	86	212	25	501	123	31	286	466	59	5	179
18		貝類							1			1	3
19	Ⅳ	サホコカゲロウ											
20		ミズムシ（等脚目）					7	1	281				
21		ヒル類						2	3				
22		サカマキガイ											
23	Ⅴ	イトミミズ類											
24		セスジユスリカ（赤）											
25		ホシチョウバエ											
		出現指標種数	11	8	7	13	8	7	11	10	12	12	13
		個体数	286	325	59	893	213	228	952	797	693	454	342
		生物評価値	Ⅲ	Ⅲ	Ⅲ	Ⅱ	Ⅲ	Ⅲ	Ⅲ	Ⅱ	Ⅱ	Ⅰ	Ⅲ
		多様性指数	2.77	1.82	2.28	2.03	1.78	0.89	1.96	1.55	2.67	2.11	2.17

表 2 2019 年度と 2012～2016 年度（最大値及び最小値）の調査結果との比較

地点名	杉本橋			助丸橋			白石堰			第二高田橋（高田橋）		
	2019	最小値	最大値	2019	最小値	最大値	2019	最小値	最大値	2019	最小値	最大値
生物評価値	Ⅲ	Ⅲ	Ⅲ	Ⅲ	Ⅲ	Ⅱ	Ⅲ	Ⅲ	Ⅱ	Ⅱ	Ⅲ	Ⅰ
指標生物種数	11	8	11	8	10	12	7	3	10	13	10	13
多様性指数	2.77	2.49	2.84	1.82	2.25	3.15	2.28	1.13	2.35	2.03	2.23	2.82

地点名	堀川合流前			坪井川合流前			山王橋			吉原橋		
	2019	最小値	最大値	2019	最小値	最大値	2019	最小値	最大値	2019	最小値	最大値
生物評価値	Ⅲ	Ⅲ	Ⅲ	Ⅲ	Ⅲ	Ⅲ	Ⅲ	Ⅲ	Ⅲ	Ⅱ	Ⅲ	Ⅱ
指標生物種数	8	6	8	7	5	10	11	7	10	10	7	11
多様性指数	1.78	1.15	1.77	0.89	1.00	2.79	1.96	0.88	2.81	1.55	1.43	2.08

地点名	中鶴橋			坂本橋			横石		
	2019	最小値	最大値	2019	最小値	最大値	2019	最小値	最大値
生物評価値	Ⅱ	Ⅲ	Ⅰ	Ⅰ	Ⅱ	Ⅲ	Ⅲ	Ⅲ	Ⅱ
指標生物種数	12	10	11	12	7	11	13	3	8
多様性指数	2.67	1.36	2.87	2.11	2.21	2.84	2.17	1.28	2.19

※　下線は 2012 年度から 2016 年度の最小値を下回ったもの又は最大値を上回ったもの

３・３　誌上発表論文抄録

Single-Tube Multiplex Polymerase Chain Reaction for the Detection of Genes Encoding *Enterobacteriaceae* Carbapenemase

Jpn J Infect Dis. 2020 Mar 24;73(2):166-172

Masanori Watahiki [*1] , Ryuji Kawahara[*2] , Masahiro Suzuki[*3*4] , Miyako Aoki [*3] , Kaoru Uchida[*1] , Yuko Matsumoto[*5] , Yuko Kumagai[*6] , Makiko Noda[*7] , Kanako Masuda[*8] , Chiemi Fukuda[*9] , Seiya Harada , Keiko Senba[*10] , Masato Suzuki[*11] , Mari Matsui[*11] , Satowa Suzuki[*11] , Keigo Shibayama[*12] , Hiroto Shinomiya[*10]

[*1] Department of Bacteriology, Toyama Institute of Health.

[*2] Division of Microbiology, Osaka Institute of Public Health.

[*3] Department of Microbiology and Medical Zoology, Aichi Prefectural Institute of Public Health.

[*4] Present Address: Department of Microbiology, School of Medicine, Fujita Health University.

[*5] Microbiological Testing and Research Division, Yokohama City Institute of Public Health.

[*6] Hygiene Division, Bacteriology Section, Akita Prefectural Research Center for Public Health and Environment.

[*7] Department of Infectious Diseases, Gifu Prefectural Research Institute for Health and Environmental Sciences.

[*8] Hiroshima Prefectural Technology Research Institute, Public Health and Environment Center.

[*9] Department of Microbiology, Kagawa Prefectural Research Institute for Environmental Sciences and Public Health.

[*10] Department of Microbiology, Ehime Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science.

[*11] Antimicrobial Resistance Research Center, National Institute of Infectious Diseases.

[*12] Department of Bacteriology II, National Institute of Infectious Diseases.

A multiplex PCR assay in a single tube was developed for the detection of the carbapenemase genes of Enterobacteriaceae. Primers were designed to amplify the following six carbapenemase genes: bla_{KPC}, bla_{IMP}, bla_{NDM}, bla_{VIM}, $bla_{OXA\text{-}48\text{-}like}$, and bla_{GES}. Of 70 bla_{IMP} variants, 67 subtypes were simulated to be PCR-positive based on in silico simulation and the primer-design strategy. After determining the optimal PCR conditions and performing in vitro assays, the performance of the PCR assay was evaluated using 51 and 91 clinical isolates with and without carbapenemase genes, respectively. In conclusion, the combination of multiplex PCR primers and QIAGEN Multiplex PCR Plus Kit was used to determine the best performance for the rapid and efficient screening of carbapenemase genes in Enterobacteriaceae. The assay had an overall sensitivity and specificity of 100%. This PCR assay compensates for the limitations of phenotypic testing, such as antimicrobial susceptibility testing and the modified carbapenem inactivation method, in clinical and public health settings.

Development of a Specific Cytolethal Distending Toxin (Cdt) Gene (Eacdt)-based PCR Assay for the Detection of Escherichia Albertii

Diagn Microbiol Infect Dis. 2019 Oct;95(2):119-124.

Atsushi Hinenoya[*1] , Hidetoshi Ichimura[*2] , Noritomo Yasuda[*3] , Seiya Harada , Kazuhiro Yamada[*4] , Masahiro Suzuki[*4] , Yoshio Iijima[*5] , Akira Nagita[*6] , M John Albert[*7] , Noritoshi

Hatanaka[*3] , Sharda Prasad Awasthi[*3] , Shinji Yamasaki[*8]

[*1] School of Life and Environmental Sciences, Osaka Prefecture University, 1-58, Rinku ourai-kita, Izumisano, Osaka 598-8531, Japan; Graduate School of Life and Environmental Sciences, Osaka Prefecture University, Osaka, Japan.

[*2] School of Life and Environmental Sciences, Osaka Prefecture University, 1-58, Rinku ourai-kita, Izumisano, Osaka 598-8531, Japan.

[*3] Graduate School of Life and Environmental Sciences, Osaka Prefecture University, Osaka, Japan.

[*4] Department of Microbiology and Medical Zoology, Aichi Prefectural Institute of Public Health, Aichi, Japan.

[*5] Department of Infectious Diseases, Kobe, Institute of Health, Hyogo, Japan.

[*6] Department of Pediatrics, Mizushima General Hospital, Okayama, Japan.

[*7] Department of Microbiology, Faculty of Medicine, Kuwait University, Jabriya, Kuwait.

[*8] School of Life and Environmental Sciences, Osaka Prefecture University, 1-58, Rinku ourai-kita, Izumisano, Osaka 598-8531, Japan; Graduate School of Life and Environmental Sciences, Osaka Prefecture University, Osaka, Japan. Electronic address: shinji@vet.osakafu-u.ac.jp.

Many Escherichia albertii isolates, an emerging pathogen of human and birds, might have been misidentified due to the difficulty of differentiating this bacterium from Escherichia coli and Shigella spp. by routine biochemical tests, resulting in underestimation of E. albertii infections. We have developed a polymerase chain reaction (PCR) assay that targets E. albertii cytolethal distending toxin (Eacdt) genes, which include the genes previously identified as Escherichia coli cdt-II. This assay could generate a single 449-bp PCR product in each of 67 confirmed E. albertii strains but failed to produce PCR product from any of the tested non-E. albertii enteric strains belonging to 37 different species, indicating 100% sensitivity and specificity of the PCR assay. The detection limit was 10 CFU per PCR tube and could detect 10^5 CFU E. albertii per gram of spiked healthy human stool. The Eacdt gene-based PCR could be useful for simple, rapid, and accurate detection and identification of E. albertii.

Nationwide Molecular Epidemiology of Measles Virus in Japan Between 2008 and 2017

Front Microbiol. 2019 Jul 4;10:1470.

Fumio Seki[*1] , Masahiro Miyoshi[*2] , Tatsuya Ikeda[*3] , Haruna Nishijima[*4] , Miwako Saikusa[*5] , Masae Itamochi[*6] , Hiroko Minagawa[*7] , Takako Kurata[*8] , Rei Ootomo[*9] , Jumboku Kajiwara[*10] , Takashi Kato[*11] , Katsuhiro Komase[*12] , Keiko Tanaka-Taya[*12] , Tomimasa Sunagawa[*12] , Kazunori Oishi[*12] , Nobuhiko Okabe[*13] , Hirokazu Kimura[*14] , Shigeru Suga[*15] , Kunihisa Kozawa[*16] , Noriyuki Otsuki[*1] , Yoshio Mori[*1] , Komei Shirabe[*17] , Makoto Takeda[*1] , Measles Virus Surveillance Group of Japan; Technical Support Team for Measles Control in Japan Collaborators

Rika Komagome, Asami Ohnishi, Hiroyuki Saito, Mie Sasaki, Kenichi Komabayashi, Atsuko Kanari, Tsutomu Tamura, Kazunari Yamamoto, Kanako Ishikawa, Fuminori Mizukoshi, Hiroyuki Tsukagoshi, Yasutaka Ogawa, Takashi Nakada, Ai Kasuga, Tomoko Ogawa, Hajime Yokoi, Rieko Suzuki, Hideaki Shimizu, Satoko Kanazawa, Masayuki Oonuma, Nagano Environ, Kanako Nishizawa, Yuichiro Okamura, Asaka Ikegaya, Takaharu Maehata, Toshihiko Furuta, Masaya Nakazawa, Yoshihiro Yasui, Shinichiro Shibata, Tsuyoshi Kuzuguchi, Yasunori Tanaka, Hajime Kusuhara, Kayo Aoki, Sachi Hirata, Akiko Nagasao, Daiki Kanbayashi, Atsushi Kaida, Tatsuya Miyoshi, Miki Ogi, Taku Uemura, Shinya Kawanishi, Masaki Hiragakiuchi, Machi Inada,

Takashi Nishiyama, Chika Tatsumi, Masako Hamano, Naoki Shigemoto, Fujii Yoshiki, Sachiko Murata, Yukari Terajima, Yumiko Kawakami, Yuki Ashizuka, Chinami Wasano, Misato Tachibana, Akiko Honda, Takashi Sakai, Kaori Nishizawa, Yu Matsuura, Mutsuyo Gokuden, Minori Oyama, Kenji Someya, Yuichiro Nakatsu, Maino Tahara, Kouji Sakai, Yukari Yamada, Kumi Ueno-Yamamoto, Yuki Tada, Tomoe Shimada, Kazuyo Yamashita, Hitomi Kinoshita, Takuri Takahashi, Kazutoshi Nakashima, Hajime Kamiya, Kiyosu Taniguchi, Yoshinori Yasui

[*1] Department of Virology 3, National Institute of Infectious Diseases, Tokyo, Japan.

[*2] Hokkaido Institute of Public Health, Sapporo, Japan.

[*3] Yamagata Prefectural Institute of Public Health, Yamagata, Japan.

[*4] Chiba Prefectural Institute of Public Health, Chiba, Japan.

[*5] Yokohama City Institute of Public Health, Yokohama, Japan.

[*6] Toyama Institute of Health, Imizu, Japan.

[*7] Aichi Prefectural Institute of Public Health, Nagoya, Japan.

[*8] Osaka Institute of Public Health, Osaka, Japan.

[*9] Tottori Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science, Tottori, Japan.

[*10] Fukuoka Institute of Health and Environmental Sciences, Dazaifu, Japan.

[*11] Okinawa Prefectural Institute of Health and Environment, Uruma, Japan.

[*12] Infectious Disease Surveillance Center, National Institute of Infectious Diseases, Tokyo, Japan.

[*13] Kawasaki City Institute for Public Health, Kawasaki, Japan.

[*14] Graduate School of Health Science, Gunma Paz University, Takasaki, Japan.

[*15] Department of Pediatrics, National Mie Hospital, Tsu, Japan.

[*16] Graduate School of Medicine, Yokohama City University, Yokohama, Japan.

[*17] Yamaguchi Prefectural Institute of Public Health and Environment, Yamaguchi, Japan.

Genotyping evidence that supports the interruption of endemic measles virus (MV) transmission is one of the essential criteria to be verified in achieving measles elimination. In Japan since 2014, MV genotype analyses have been performed for most of the measles cases in prefectural public health institutes nationwide. With this strong molecular epidemiological data, Japan was verified to have eliminated measles in March, 2015. However, even in the postelimination era, sporadic cases and small outbreaks of measles have been detected repeatedly in Japan. This study investigated the nationwide molecular epidemiology of MV between 2008 and 2017. The 891 strains in the total period between 2008 and 2017 belonged to seven genotypes (D5, D4, D9, H1, G3, B3, and D8) and 124 different MV sequence variants, based on the 450-nucleotide sequence region of the N gene (N450). The 311 MV strains in the postelimination era between 2015 and 2017 were classified into 1, 7, 8, and 32 different N450 sequence variants in D9, H1, B3, and D8 genotypes, respectively. Analysis of the detection period of the individual N450 sequence variants showed that the majority of MV strains were detected only for a short period. However, MV strains, MVs/Osaka.JPN/29.15/ [D8] and MVi/Hulu Langat.MYS/26.11/ [D8], which are named strains designated by World Health Organization (WHO), have been detected in many cases over 2 or 3 years between 2015 and 2017. The WHO-named strains have circulated worldwide, causing outbreaks in many countries. Epidemiological investigation revealed repeated importation of these WHO-named strains into Japan. To

demonstrate the elimination status (interruption of endemic transmission) in situations with repeated importation of the same strains is challenging. Nevertheless, the detailed sequence analysis of individual MV strains and chronological analysis of these strains provided sufficient evidence to show that Japan has still maintained its measles elimination status in 2017.

３・４　学会・研究会発表抄録

３・４・１　所外における学会・研究会

飼育ネコからの SFTS 感染事例

２０１９（令和元）年度獣医学術九州地区学会　令和元年（2019 年）11 月 8 日　佐賀県

松本一俊[*1]，大迫英夫[*1]，八尋俊輔，酒井崇[*2]

[*1] 現食肉衛生検査所 [*2] 現健康福祉部健康局薬務衛生課

2017 年 4 月に SFTS 発症ネコが和歌山県で世界で初めて確認され，ネコにおける SFTS の存在が知られるようになった。患者宅周辺にはイノシシが出没する環境で，当該ネコは屋内外を自由に行動できる状態だったため，周辺に生息するマダニからネコが感染した可能性が考えられた。イヌ・ネコ等が野外からマダニを持ち込む危険性もあるため，飼い主への適正飼育と SFTS に関する知識の啓発が重要である。SFTSV はマダニサイクルとマダニ・動物サイクルによって維持されていると考えられている。マダニ・動物サイクルで重要なのは野生動物であるが，SFTS 発症は確認されていない。SFTSV に感染した野生動物は SFTSV 保有マダニを拡散し，人の生活圏へ入り込むことでヒトへの曝露リスクが高まる可能性がある。

熊本県内の SFTSV 陽性マダニ採取地域と患者発生状況について

第２７回ダニと疾患のインターフェイスに関するセミナー　SADI 天草大会２０１９　令和元年（2019 年）5 月 31～6 月 2 日　熊本県

酒井崇[*]

[*] 現健康福祉部健康局薬務衛生課

ヒトとその愛玩動物であるネコから SFTSV が分離され，解析結果から発症したネコ由来のウイルスがヒトに感染した可能性が強く示唆された。

これまでの SFTSV 感染の予防策としては，ヒトが媒介動物であるマダニに咬まれないことが重要であったが，愛玩動物についても同様のマダニ対策が必要であることが分かった。

また，発症動物の体液等を介してヒトが感染することが示唆されたので，動物病院等の診療従事者への感染リスクについて啓発指導していく必要がある。

市中における薬剤耐性菌の糞便保菌状況調査

第４５回九州衛生環境技術協議会　令和元年（2019 年）10 月 3～4 日　長崎県

槐島翔一郎

近年，CTX-M 型の基質特異性拡張型βラクタマーゼ（Extended spectrum β-lactamase ; ESBL）産生菌が世界的に増加している。特に CTX-M-15 型の ESBL を産生し，系統発生群 B2，血清型 O25b:H4，Achtman らの MLST によるシーケンスタイプが 131（ST131）である特定クローンの大腸菌 ST131 が，国や地域を超えて急速に拡大し大きな社会問題となっている。この種の大腸菌は院内感染に加え，市中においても健常人に尿路感染症や肺炎等の腸管外感染症を引き起こすことがあり，かつ多くがセフェム系のみならずフルオロキノロン系やアミノグリコシド系にも耐性を示すことから抗菌薬の選択が難しく治療に長期

間を有する事例もある。

このような中，わが国では医療・介護領域での薬剤耐性菌調査はよく行われているが，市中における侵淫状況を調査した報告は少なく，熊本県のデータも見当たらない。そこで我々は市中における薬剤耐性菌の侵淫状況を把握するため，感染症発生動向調査や食中毒等で検査依頼のあった糞便検体を用い，2015年度から薬剤耐性菌の糞便保菌状況調査を行っているので報告する。

愛玩動物から分離されたSFTSVの遺伝子学的分析について

第４５回九州衛生環境技術協議会　令和元年（2019年）10月3～4日　長崎県

酒井崇*

* 現健康福祉部健康局薬務衛生課

近年，SFTSVのマダニからの感染経路以外に，ネコの咬傷やイヌとの濃厚接触によるヒトへのSFTSV感染路が明らかになってきている。これまでの症例から，ネコは他の動物と比較してSFTSVに対しての感受性が高く，また，感染発症率が高いと推察されている。また，熊本県内での患者14名（2019.6月現在）についても4名が亡くなるなど，ヒトのSFTSV感染症は死亡率が高い。

このような状況から熊本県でも県内の動物病院，保健所，動物愛護センターなどに協力していただき，愛玩動物の遺伝子検査や抗体検査を行った。死亡したネコ血清からSFTSVが分離されたことから愛玩動物からの飼い主への感染や，獣医師，動物看護士への感染の恐れがあり，マダニを介さなくてもヒトへの感染リスクがあることが示唆された。

LC/MS/MSによる高極性農薬の一斉分析法の開発

第56回全国衛生化学技術協議会年会　令和元年12月5~6日　広島県

日本農薬学会第45回大会　令和2年3月8~10日　大阪府　コロナ感染予防のため中止。講演要旨集の範囲でみなし開催

冨永純司*

* 現農林水産部生産経営局農業技術課

25成分の高極性農薬を対象に逆相カラムとイオン交換カラムの双方の性質を併せ持つマルチモードカラムを用いて，LC/MS/MSによる一斉分析法の検討を行った。また，本法について，「食品中に残留する農薬等に関する試験法の妥当性評価ガイドライン」に基づく妥当性評価試験を行ったところ，良好な結果が得られたことから，本法はLC/MS/MSによる高極性農薬の一斉分析において有効な手法であると考えられた。

有毒キノコに由来する毒成分の一斉分析法の開発

第56回全国衛生化学技術協議会年会　令和元年12月5~6日　広島県

本田大輔*

* 現健康福祉部健康局薬務衛生課

食中毒発生時に食品残品及び血清や尿からキノコ毒成分を迅速に検出することを目的にキノコ毒成分の一斉分析法の検討を行った。また，本分析法について「食品中に残留する農薬等に関する試験法の妥当性評価ガイドライン」に準拠した妥当性評価試験を行ったところ，良好な結果が得られた。また，本分析法は1検体当たりの前処理時間が30分程度，LC/MS/MSでの測定時間が20分程度と短時間で，かつ，操作も簡便であることから，突発的に生じる食中毒に対して，迅速に対応できる非常に有効な手

法であると考えられる。

病畜に使用された抗菌性物質の同定に関する事例報告

第 45 回九州衛生環境技術協議会　令和元年 10 月 3~4 日　長崎県

山口奈穂

病畜に抗菌性物質の残留が疑われ，さらに調査が必要な場合，食肉衛生検査所からの依頼で，当所のLC/MS/MSを用いた残留動物用医薬品の一斉分析法で抗菌性物質の同定検査を実施している。その結果，一斉分析法は，これまで添加回収試験による妥当性評価を行ったのみであったが，抗菌性物質が残留していることが明らかな検体から検出できたことで，一斉分析法の有用性の確認ができた。また，分別推定法だけでは推定不能や，推定を誤る事例があることから，LC/MS/MS等を用いた理化学的試験による高感度かつ網羅的な分析と合わせた確認が重要と考えられた。

Regression Kriging 法を用いた九州地域における $PM_{2.5}$ 濃度の空間分布推定

第 60 回大気環境学会　令和元年 9 月 18～20 日　東京都

小原大翼

$PM_{2.5}$ による大気汚染の状況を正確かつ効率的に監視していくためには，$PM_{2.5}$ 質量濃度の空間分布を把握し，適切な常時監視測定網を設定することが重要である。本研究では，九州地域の $PM_{2.5}$ 質量濃度の空間分布を推定するために，2013 年 4 月から 2015 年 3 月の大気汚染常時監視測定局で観測された日平均のデータに Regression Kriging 法を適用し，$PM_{2.5}$ 質量濃度の空間分布の推定に影響を与える主要な設定条件の検討及び予測精度評価を行った。結果として，Regression Kriging 法を用いることで九州域の空間濃度分布を精度よく再現することが可能であり，高精度の推定のための計算条件の最適化には，R^2 等の一般的な指標値に加えて，日単位の空間濃度分布の確認が有効であることが確認された。

可搬型蛍光顕微鏡を用いた解体現場におけるアスベスト調査事例について

第 45 回九州衛生環境技術協議会　令和元年 10 月 3～4 日　長崎県

小原大翼

本県では，解体現場での迅速分析が可能な可搬型蛍光顕微鏡（以下，「iFM」という。）を用いたアスベスト飛散状況の調査を実施しており，本協議会では 2018 年 10 月～2019 年 6 月にかけて本研究所で実施した，レベル 1 及びレベル 2 建材の除去作業（大気汚染防止法における特定粉じん排出等作業）延べ 15 現場における iFM 調査結果について報告した。結果として，全ての現場において敷地境界周辺への影響は確認されなかった。

五丁川における着色現象の原因の考察

第 45 回九州衛生環境技術協議会　令和元年 10 月 3～4 日　長崎県

石原宏明

熊本県宇城市の五丁川において河川が赤く着色する現象が発生したことから平成２９年１１月から平成３１年３月にかけて河川水の水質調査等を実施し，発生原因の調査を実施した。河川の表層に浮かんでいた赤色の膜状のものを位相差顕微鏡で観察した結果，着色現象の原因が鞭毛藻類のユーグレナと推定された。

また，他の河川に比べ，五丁川は全リン濃度が高く，川の流れが緩やかであることがこの現象の発生に寄与していると推察された。

熊本県内河川における類似度指標を用いた水生生物調査結果の解析

第 45 回九州衛生環境技術協議会　令和元年 10 月 3～4 日　長崎県

内田大智*

*現県北広域本部保健福祉環境部

平成２年度から平成３０年度にかけて県内の河川の環境基準点等３５地点を対象に，のべ９６４回の水生生物調査を実施し，これらの調査結果について群集類似度を用いて生物相を解析した。

解析の結果，Horn Index 及び Jaccard Index の散布図において，水生生物調査で得られた生物相と熊本県独自の生物評価値には一定の関係性があることが示された。

また，生物評価値の改善が各 Index の生物相にも反映された地点が確認された。

３・４・２　第 20 回熊本県保健環境科学研究所研究発表会（令和 2 年（2020 年）1 月 23 日）

ヒトとその愛玩動物から分離された SFTSV の遺伝子解析

酒井崇*

* 現健康福祉部健康局薬務衛生課

ヒト検体とその飼いネコから SFTSV が陽性となる事例が確認された。　これらの検体を用いてウイルス分離を試みたところ，各検体から SFTSV を分離することができた。これらのウイルスを遺伝子解析したところ，同じクラスターに分類され，極めて近縁であることが分かった。

これらのことにより，愛玩動物からヒトへの感染リスクがあることが示唆された。

有毒キノコに由来する毒成分の一斉分析法の開発

本田大輔*

* 現健康福祉部健康局薬務衛生課

食中毒発生時に食品残品及び血清や尿からキノコ毒成分を迅速に検出することを目的にキノコ毒成分の一斉分析法の検討を行った。また，本分析法について「食品中に残留する農薬等に関する試験法の妥当性評価ガイドライン」に準拠した妥当性評価試験を行ったところ，良好な結果が得られた。また，本分析法は１検体当たりの前処理時間が 30 分程度，LC/MS/MS での測定時間が 20 分程度と短時間で，かつ，操作も簡便であることから，突発的に生じる食中毒に対して，迅速に対応できる非常に有効な手法であると考えられる。

河川における変色現象について

石原宏明

熊本県宇城市の五丁川において河川が赤く着色する現象が発生したことから平成２９年１１月から平成３１年３月にかけて河川水の水質調査等を実施し，発生原因の調査を実施した。河川の表層に浮かんでいた赤色の膜状のものを位相差顕微鏡で観察した結果，着色現象の原因が鞭毛藻類のユーグレナと推定された。

また，他の河川に比べ，五丁川は全リン濃度が高く，川の流れが緩やかであることがこの現象の発生に寄与していると推察された。

県内河川における水生生物相の変遷

内田大智*1

*1現県北広域本部保健福祉環境部

平成２年度から平成３０年度にかけて県内の河川の環境基準点等３５地点を対象に，のべ９６４回の水生生物調査を実施し，これらの調査結果について群集類似度（Horn Index）を用いた散布図を作成し，その特徴を解析した。

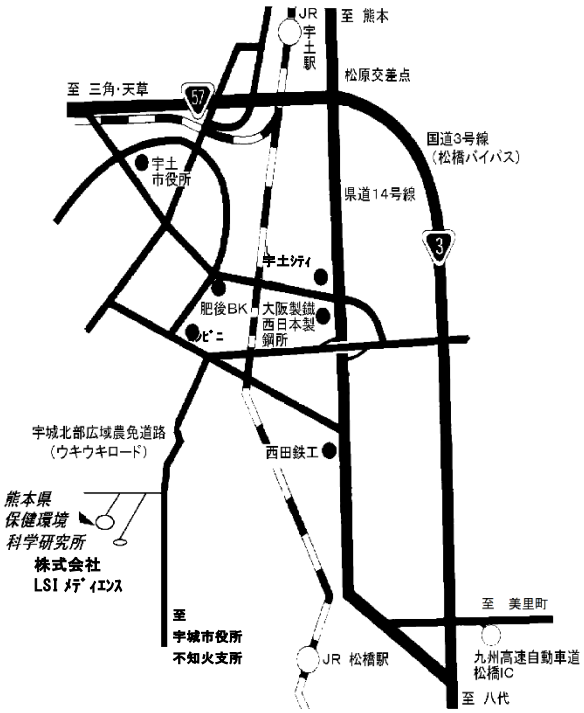
その結果，群集類似度を用いた解析により，指標生物による生物相を反映した散布図を得ることができ，過去約30年間の調査結果を視覚的に捉え，経年的または一時的な生物相の変化を示すことができた。

ダイヤルインシステムによる

各部室への直通電話のご案内

（市外局番　0964）

総務課（代）	23-5771
微生物科学部	23-5794
生活化学部	23-5795
大気科学部	23-5924
水質科学部	23-5936



平成 31 年度版　所報編集委員会
委員長　西 村　浩 一
副委員長　古 閑　健 市
委員　槐 島　翔 一 郎　宇 梶　徳 史
小 原　大 翼　石 原　宏 明

熊本県保健環境科学研究所報

平成 31 年度　第 49 号
2019

編集　熊本県保健環境科学研究所
〒869-0425
熊本県宇土市栗崎町 1240-1
ＴＥＬ　(0964) 23-5771　（代）
ＦＡＸ　(0964) 23-5260

熊本県保健環境科学研究所

〒 869-0425 熊本県宇土市栗崎町1240－1
TEL (0964)23－5771(代)　FAX (0964)23－5260

Kumamoto Prefectural Institute
of Public-Health and Environmental Science

1240-1 Kurisakim-machi, Uto City
Kumamoto 869-0425, Japan

発 行 者 ： 熊本県
所　　属 ： 保健環境科学研究所
発行年度 ： 令和2年度（2020年度）