

目 次

(報 文)

- 変異型の志賀毒素2型産生遺伝子 (*stx2*) を保有する腸管出血性大腸菌に関する研究
..... 北川恵美子ほか … (1 - 8)
- 廃棄物を有効活用した小規模排水の高度処理システムに関する研究について (第3報)
— 硝化反応, 脱窒反応および脱リン反応を用いた高度排水処理システム —
..... 小西 秀則ほか … (9 - 14)
- 河川における化学物質の動態把握と生物への移行性に関する研究 蔵本 和夫ほか … (15 - 23)

(資 料)

- 所内情報システムの再構築について
— 環境に配慮したサーバーシステムの導入 — 横山 暢 …… (24 - 29)
- 海水中の腸炎ビブリオ挙動調査結果について
— 平成20年度結果及び過去4年間のまとめ — 橋本喜代一ほか … (30 - 34)
- 石川県におけるインフルエンザ流行状況
— 2008/2009シーズン — 倉本 早苗ほか … (35 - 38)
- 石川県における胃腸炎事例からのウイルス検出状況と遺伝子解析結果
(平成20年度) 児玉 洋江ほか … (39 - 41)
- エゾボラモドキによるテトラミン食中毒事例について 竹田 正美ほか … (42 - 45)
- LC/MS (SIM) による農産物中残留農薬の同時分析法について 織田 敏郎ほか … (46 - 56)
- 平成20年度水道水等水質検査精度管理調査結果について
— 石川県年次報告 — 橋本 潤子ほか … (57 - 61)
- 大気環境監視システムの更新について 山田 肇ほか … (62 - 66)
- 大気中の石綿 (アスベスト) 迅速測定について 岡 秀雄ほか … (67 - 72)
- 大気中のチアクロプリドの分析方法 野口 邦雅ほか … (73 - 77)
- 石川県におけるフォールアウト調査 (平成20年度) 小浦 利弘ほか … (78 - 80)
- 石川県保健環境センター研究報告書投稿規定 (平成21年3月2日一部改訂) (81 - 82)
- 石川県保健環境センター研究報告書原稿執筆要領 (平成21年3月2日一部改訂) (83 - 84)

〔報 文〕

変異型の志賀毒素 2 型産生遺伝子 (*stx2*) を保有する 腸管出血性大腸菌に関する研究

石川県保健環境センター 健康・食品安全科学部 北川 恵美子・児玉 洋江・倉本 早苗
 石川県石川中央保健福祉センター 芹川 俊彦・橋本 喜代一・本庄 峰夫
 石川県立中央病院 山田 恵子
 新川 晶子

〔和文要旨〕

腸管出血性大腸菌 (EHEC) の産生する変異型毒素Stx2の実態を明らかにするために当センター保存のEHEC株について、変異型*stx2*遺伝子 (*stx2c* (*vha*, *vhb*), *stx2d*, *stx2e*, *stx2f*) を検索し、その分布状況を調べた。また、変異型毒素Stx2、変異型*stx2*遺伝子の検査法に関する差異を検討するために、検出された変異型*stx2*遺伝子保有株を用いて、検査機関等で用いられる可能性のある市販の試薬キットによる検査を実施し、比較検討した。その結果、当センター保存のEHEC株のうち、約2割が変異型*stx2*遺伝子保有株であり、これらの中には検査法によって、Stx2毒素または*stx2*遺伝子が陰性または判定保留を示すものがみられた。このことから、臨床から分離される可能性の高い変異型*stx2*遺伝子保有のEHECを見逃さないためには、Stx2毒素を免疫学的方法で検出する方法と*stx2*遺伝子を遺伝子学的方法で検出する方法の双方を用いる必要があると思われた。今後、著者らは、本研究で得られたことを検査機関等の検査担当者に周知していかなければいけないと考える。また、複数の方法を用いることが困難な検査機関等に対しては、当センターが検査支援を行うなど検査協力体制を確立する必要があると思われた。

キーワード：変異型毒素産生遺伝子、腸管出血性大腸菌、遺伝子学的方法、免疫学的方法

1 はじめに

腸管出血性大腸菌 (enterohemorrhagic *Escherichia coli*: EHEC) が産生する志賀毒素 (Stx 毒素) には、Stx1毒素とStx2毒素の2種類が存在し、特にStx2毒素にはアミノ酸配列の異なる多くの変異型毒素の存在が報告されている^{1) -4)} が、その実態は十分に解明されていない。

また、それらは、検査法によっては検出できない場合があるとされている⁵⁾。

当センターの倉本らも変異型Stx2毒素産生遺伝子 (*stx2*遺伝子) のひとつである*stx2d*遺伝子を保有するEHECの毒素型別試験を行ったところ、逆受身ラテックス凝集反応 (Reversed Passive Latex Agglutination: RPLA) では、Stx毒素1, 2共に陽性であったが、PCR

Study of Enterohemorrhagic *Escherichia coli* with Variants of Shiga Toxin2 Gene. by KITAGAWA Emiko, KODAMA Hiroe, KURAMOTO Sanae, SERIKAWA Toshihiko, HASHIMOTO Kiyokazu, HONZYO Mineo (Health and Food Safety Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science), YAMADA Keiko (Prefectural Ishikawa Chuo Health and Welfare Center), NIIKAWA Akiko (Ishikawa Prefectural Central Hospital)

Key words : Shiga toxin gene variants, Enterohemorrhagic *Escherichia coli*, Genetic method, Immunological method

(Polymerase Chain Reaction) 法では, *stx1* 遺伝子単独陽性となり, 検査法により *stx2* 遺伝子が検出できないことを2006年に報告した⁶⁾。

一方, 「感染症の予防及び感染症の患者に対する医療に関する法律⁷⁾」において, EHEC 感染症は3類感染症であり, Stx 毒素または *stx* 遺伝子の確認がその診断基準となっている。このことから, 検査方法によってEHECを見逃す可能性があるということは臨床のみならず公衆衛生上にも大きな問題である。

そこで, 今回, 著者らは変異型Stx2毒素の実態を明らかにするために, 当センター保存のEHEC株について, 現在, 知られている4種類の変異型 *stx2* 遺伝子 (*stx2c* (さらに *stx2vha*, *stx2vhb* に分類), *stx2d*, *stx2e*, *stx2f*) を検索し, 変異型 *stx2* 遺伝子保有株の分布状況を調べた。

また, 変異型毒素Stx2, 変異型 *stx2* 遺伝子の検査法に関する差異を検討するために, 上記の調査で検出された変異型 *stx2* 遺伝子保有株を用いて, 検査機関等で用いられる可能性のある市販されている試薬キットにおける, 免疫学的方法によるStx2毒素を検出する検査, 遺伝子学的方法による *stx2* 遺伝子を検出する検査を実施し, 比較検討したので, その結果について報告する。

2 材料と方法

2・1 対象菌株

(1) 保存菌株

1996年から2004年に石川県内で分離され, 当センターで保存しているEHEC 287株を使用した。菌株の内訳は, 患者由来136株 (O157: 97株, O26: 20株, O103: 6株, O121: 3株, O119: 2株, その他: 5株, O型別不能 (O untypable: OUT): 3株), 健康者由来107株 (O91: 47株, O157: 11株, O26: 8株, O103: 7株, O128: 7株, O144: 2株, O161: 2株, その他: 13株, OUT: 10株), 環境由来44株 (O157: 13株, O119: 10株, O26: 2株,

O28ac: 2株, O55: 1株, O112ac: 1株, その他: 3株, OUT: 12株) である。

(2) 分与菌株

Stx2毒素, *stx2* 遺伝子の各々の検査法の比較検討には, 他機関から分与を受けた *stx2e* 遺伝子保有株1株 (O74: 1株), *stx2f* 遺伝子保有株2株 (O63: 1株, O128: 1株) を加えて行った。

2・2 変異型 *stx2* 遺伝子の検索

(1) *stx2c* 遺伝子の検索

当センター保存株について, Tyler¹⁾ らの報告に従い, PCR-RFLP (Restriction Fragment Length Polymorphism) 法を用いて検索した。

供試菌株を100℃, 10分加熱後, 常法に従い, 試薬 (Applied Biosystems) と表1の *stx2c* 遺伝子および *stx2d* 遺伝子をターゲットにしたVT2v-1, VT2v-2プライマーを加え, 熱変性94℃ 1分, アニーリング55℃ 1分, 伸長72℃ 1分で30サイクル行った。ここで, 385bpにバンドがみられたものについて, 表1の *stx2* 遺伝子および *stx2c* 遺伝子をターゲットにしたVT2-c, VT2-dプライマーを用い, 上記同様PCRを行い, 285bpにバンドがみられた増幅産物を3種類の制限酵素, *Hae* III, *Rsa* I, *Nci* I (ニッポンジーン) で処理をし, 得られたバンドの組み合わせ (表2) により, *stx2vha* 遺伝子および *stx2vhb* 遺伝子に分類した。

(2) *stx2d* 遺伝子, *stx2e* 遺伝子, *stx2f* 遺伝子の検索

当センター保存株について, Friedrich⁸⁾ らの報告に従い, PCR法を用いて検索した。

(1) と同様, 熱抽出後, *stx2d* 遺伝子は表1のVT2-cm, VT2-fプライマーを用い, 94℃ 30秒, 55℃ 60秒, 72℃ 60秒で30サイクル, *stx2e* 遺伝子はFK1, FK2プライマーを用い, 94℃ 30秒, 55℃ 60秒, 72℃ 40秒で30サイクル, *stx2f* 遺伝子は128-1, 128-2プライマーを用い, 94℃ 30秒, 57℃ 60秒, 72℃ 60秒で30サイクル行った。さらに,

各々, 30サイクル増幅後, 72℃, 5分の最終伸長を行った。各々の増幅産物遺伝子の分子量については, 表1に示した。

2・3 Stx2毒素および *stx2* 遺伝子検査法の検討

(1) Stx2毒素検査
変異型Stx2毒素検査法に関する差異を検討するために, 上記2・2の検索において検出

表1 変異型毒素産生遺伝子プライマーのシーケンス

ターゲット	プライマー	シーケンス	産物分子量	参考文献
<i>stx2c</i>	VT2v-1	5'-CATTTCACAGTAAAAGTGCC-3'	385bp	1)
<i>stx2d</i>	VT2v-2	5'-GGGTGCCTCCCGGTGAGTTC-3'		
<i>stx2</i>	VT2-c	5'-AAGAAGATGTTTATGGCGGT-3'	285bp	1)
<i>stx2c</i>	VT2-d	5'-CACGAATCAGGTTATGCCTC-3'		
<i>stx2dB</i>	VT2-cm	5'-AAGAAGATATTTGTAGCGG-3'	256bp	8)
	VT2-f	5'-TAAACTGCACTTCAGCAAAT-3'		
<i>stx2eB</i>	FK1	5'-CCCGGATCCAAGAAGATGTTTATAG-3'	280bp	8)
	FK2	5'-CCCGAATTCTCAGTTAACTTCACC-3'		
<i>stx2fA</i>	128-1	5'-AGATTGGGCGTCATTCCTGGTTG-3'	428bp	8)
	128-2	5'-TACTTTAATGGCCGCCCTGTCTCC-3'		

表2 PCR-RFLP法による遺伝子パターン

制限酵素	遺伝子断片サイズ (bp)		
	<i>stx2</i>	<i>stx2vha</i>	<i>stx2vhb</i>
<i>Hae</i> III	285	161, 124	161, 124
<i>Rsa</i> I	216, 69	136, 69	216, 69
<i>Nci</i> I	285	285	159, 126

された変異型*stx2*遺伝子保有株と他機関から分与を受けた変異型*stx2*遺伝子保有株について、RPLA法およびイムノクロマトグラフィー法 (IC法) によりStx2毒素検査を実施し、比較検討を行った。RPLA法として、VTEC-RPLA「生研」(以下、VTEC-RPLA) (デンカ生研)、IC法として、デュオパス・ベロトキシン (以下、デュオパス) (極東製薬) およびラインジャッジ (ベクトン・ディッキンソン) を使用した。

VTEC-RPLAについては、被検菌株をBHI培地 (日水製薬) に接種し、37°C、16~20時間静置培養した。培地に増殖した十分な量の菌体を掻き取りポリミキシンB溶液に浮遊し37°Cで5~10分毎に振盪を加えながら30分反応後、遠心分離した上清を試料とし、メーカーの使用書に従い検査を行った。結果の判定は、メーカーの使用書どおり、凝集価が1:4以上の場合には陽性と判定し、凝集価が1:2の場合には判定保留、凝集価が1:2未満を陰性とした。

ラインジャッジについては、被検菌株をVTEC-RPLA同様に調整し試料とした。検査方法および判定方法は、メーカーの使用書に従った。

デュオパスについては、被検菌株をCAYE培地 (極東製薬) で37°C、24時間静置培養後、培養液360 μ Lをとり、ポリミキシンB溶液を40 μ L添加し37°Cで10分間反応させた溶液を試料とした。検査方法および判定方法は、メーカーの使用書に従った。

(2) *stx2*遺伝子検査

変異型*stx2*遺伝子検査法に関する差異を検討するために(1)と同様、変異型*stx2*遺伝子保有株について、PCR法とLAMP (Loop-mediated Isothermal Amplification) 法を比較検討した。PCR法として、EHEC VT2遺伝子検出用Primer Set EVS-1,-2 (TaKaRa) およびO-157 PCR Typing Set Plus (TaKaRa) を、LAMP法として、Loopampベロ毒素 (VT) タイピング試薬キット (栄研化学) を使用した。検査方法および判定方法は、各々、メーカーの使用書に従った。なお、LAMP法は、変異型*stx2*遺伝子保有株の一部の菌株について検査を行った。

3 結 果

3・1 変異型*stx2*遺伝子保有株の分布状況調査

当センター保存株から検出された4種類の変異型*stx2*遺伝子 (*stx2c*, *stx2d*, *stx2e*, *stx2f*) 保有株の分布状況を由来別に表3に示した。なお、*stx2c*遺伝子は、さらに*stx2vha*および*stx2vhb*に分類したので、以下、本文中および表中においては、*stx2vha*遺伝子は*stx2c (vha)*、*stx2vhb*遺伝子は*stx2c (vhb)*と表記した。

変異型*stx2*遺伝子保有株は、当センター保存の287株から、51株 (検出率17.8%) 検出された。

このうち、患者由来株については、*stx2c (vha)* 遺伝子保有株が17株、*stx2c (vhb)* 遺伝子保有株が1株検出された。*stx2c (vha)* 遺伝子保有株の血清型は全てO157であり、*stx2c (vhb)* 遺伝子保有株の血清型はOUTであった。

健常者由来株については、*stx2c (vha)* 遺伝子保有株が6株、*stx2d*遺伝子保有株が16株検出された。*stx2c (vha)* 遺伝子保有株の血清型は全てO157であり、*stx2d* 遺伝子保有株の血清型はO91が8株、O128が6株、O144、OUTが各々1株であった。

環境由来株については、*stx2c (vha)* 遺伝子保有株が8株、*stx2c (vhb)* 遺伝子保有株が3株検出された。*stx2c (vha)* 遺伝子保有株の血清型はO157が7株、O112acが1株であり、*stx2b (vhb)* 遺伝子保有株の血清型はO55が1株、OUTが2株であった。

なお、当センター保存の287株全ての菌株から*stx2e* 遺伝子および*stx2f*遺伝子保有株は検出されなかった。

3・2 Stx2毒素および*stx2*遺伝子検査法の検討

3・1の調査で検出された変異型*stx2*遺伝子保有株51株と他機関から分与を受けた変異型*stx2*遺伝子保有株3株、併せて54株についてStx2検査と*stx2*遺伝子検査を行った。その結果を*stx2c (vha,vhb)* 遺伝子保有株については、表4-1に、*stx2d* 遺伝子、*stx2e* 遺伝子、*stx2f* 遺伝子保有株については表4-2に示した。なお、表5に各検査法における検出率を示した。

(1) Stx2毒素検査法

RPLA法とIC法による3種類の試薬キットを用いてStx2毒素検査を実施した結果、定型の*stx2*遺伝子に加え、変異型の*stx2c (vha,vhb)* 遺伝子を保有する8株 (遺伝子型*stx2*+*stx2c (vha)*:5株、*stx1*+*stx2*+*stx2c (vhb)*:2株、*stx2*+*stx2c (vhb)*:1株) および定型の*stx2*遺伝子に加え、変異型の*stx2d* 遺伝子を保有する1株 (遺伝子型*stx2*+*stx2d*) については、全てのStx2毒素検査法で陽性を示した。

一方、定型の*stx2*遺伝子は保有せず、変異型*stx2c (vha)* 遺伝子を保有する27株のうち26株 (遺伝子型*stx1*+*stx2c*

表3 当センター保存EHEC株の変異型 *stx2* 遺伝子保有状況

由来	血清型	供試菌株	保有する変異型 <i>stx2</i> 遺伝子					計 (検出率)
			<i>stx2c</i> (<i>vha</i>)	<i>stx2c</i> (<i>vhb</i>)	<i>stx2d</i>	<i>stx2e</i>	<i>stx2f</i>	
患者	O157 : H7/HNM	97	17					17 (17.5%)
	O26 : H11/HNM	20						
	O103 : H2	6						
	O121 : H19/HAag	3						
	O119 : HNM	2						
	OUT : H18/H19/HNM	3			1			1 (33.3%)
	その他 ^{*1}	5						
	小計		136	17	1			18 (13.2%)
健常者	O91 : H14/H15/HNM	47			8			8 (17.0%)
	O157 : H7/HNM	11	6					6 (54.5%)
	O26 : H11	8						
	O103 : H2	7						
	O128 : H2/H21/H45/HUT	7			6			6 (85.7%)
	O144 : HNM	2			1			1 (50.0%)
	O161 : H2	2						
	その他 ^{*2}	13						
	OUT : H14/H50/HAag/HNM	10			1			1 (10.0%)
小計		107	6		16		22 (20.6%)	
環境	O157 : H7	13	7					7 (53.4%)
	O119 : HUT/HNM	10						
	O26 : H11	2						
	O28ac : HNM	2						
	O55 : HUT	1			1			1 (100.0%)
	O112ac : HUT	1	1					1 (100.0%)
	その他 ^{*3}	3						
	OUT : H2/H19/H21/HUT/HNM	12			2			2 (16.7%)
	小計		44	8		3		11 (25.0%)
計 (検出率)		287	31 (10.8%)	4 (1.4%)	16 (5.6%)		51 (17.8%)	

※1 : O1 : H20, O111 : HNM, O118 : H2, O168 : H19, O169 : H19

※2 : O8 : H5, O17 : HUT, O18 : HNM, O36 : H43, O55 : HNM, O63 : HNM, O74 : HUT, O84 : HNM, O119 : HNM, O146 : H21, O159 : H28, O160 : HNM, O167 : H19

※3 : O25 : H2, O103 : H2, O159 : H28

(*vha*) ; 12株, *stx2c* (*vha*) ; 14株) については, 陰性を示す株がデュオパス (表中 : B) で 6 株, ラインジャッジ (表中 : C) で 1 株みられ, VTEC-RPLA (表中 : A) では, 陰性を示す株はなかったが, 判定保留 (凝集価 1 : 2) を示す株が 3 株みられた。

定型の *stx2* 遺伝子は保有せず, *stx2d* 遺伝子を保有する 15 株 (遺伝子型 *stx1* + *stx2d* ; 13 株, *stx2d* ; 2 株) については, 陰性を示す株が, デュオパスで 12 株, ラインジャッジで 2 株みられ, VTEC-RPLA で, 判定保留を示す株が 2 株みられた。

定型の *stx2* 遺伝子は保有せず, *stx2e* 遺伝子を保有する 1 株 (遺伝子型 *stx2e*) については, デュオパスおよびラインジャッジで陰性を示した。

定型の *stx2* 遺伝子は保有せず, *stx2f* 遺伝子を保有する 2 株 (遺伝子型 *stx2f* ; 2 株) については, 陰性を示す株が, デュオパスで 2 株みられ, VTEC-RPLA で, 判定保留を示す株が 1 株みられた。

(2) *stx2* 遺伝子検査法

PCR法とLAMP法による3種類の試薬キットを用いて *stx2* 遺伝子検査を実施した結果, *stx2f* 遺伝子を保有する 2 株 (遺伝子型 *stx2f* ; 2 株) 以外の菌株については, 全ての *stx2* 遺伝子検査法で陽性を示した。しかし, *stx2f* 遺伝子を保有する 2 株については, O-157 PCR Typing Set Plus (表中 : E) では陽性となったが, EHEC VT2 遺伝子検出用 Primer Set EVS-1, -2 (表中 : D) および Loopamp ペロ毒素 (VT) タイピング試薬キット (表中 :

表4-1 Stx2毒素およびstx2遺伝子検査法の検討 (stx2c (vha,vhb) 遺伝子保有株)

stx1, 2 遺伝子型	免疫学的方法			遺伝子学的方法			血清型	由来
	RPLA法	IC法		PCR法		LAMP法		
	A	B	C	D	E	F		
stx2+ stx2c (vha)	+	+	+	+	+	+	O157	患者
	+	+	+	+	+	NT	O157	患者
	+	+	+	+	+	NT	O157	患者
	+	+	+	+	+	NT	O157	患者
	+	+	+	+	+	NT	O157	患者
stx1+ stx2+ stx2c (vhb)	+	+	+	+	+	+	O55	環境
	+	+	+	+	+	NT	OUT	環境
stx2+ stx2c (vhb)	+	+	+	+	+	NT	OUT	環境
stx1+ stx2c (vha)	*	-	+	+	+	+	O157	患者
	*	-	+	+	+	+	O112ac	環境
	+	-	+	+	+	+	O157	患者
	+	-	+	+	+	NT	O157	患者
	+	-	+	+	+	NT	O157	患者
	+	+	+	+	+	+	O157	患者
	+	+	+	+	+	+	O157	患者
	+	+	+	+	+	+	O157	健常者
	+	+	+	+	+	+	O157	患者
	+	+	+	+	+	NT	O157	患者
	+	+	+	+	+	NT	O157	患者
	+	+	+	+	+	NT	O157	健常者
	stx2c (vha)	*	-	-	+	+	+	O157
+		+	+	+	+	+	O157	患者
+		+	+	+	+	+	O157	環境
+		+	+	+	+	NT	O157	患者
+		+	+	+	+	NT	O157	患者
+		+	+	+	+	NT	O157	健常者
+		+	+	+	+	NT	O157	健常者
+		+	+	+	+	NT	O157	健常者
+		+	+	+	+	NT	O157	健常者
+		+	+	+	+	NT	O157	環境
+		+	+	+	+	NT	O157	環境
+		+	+	+	+	NT	O157	環境
+		+	+	+	+	NT	O157	環境
+		+	+	+	+	NT	O157	環境
stx2c (vhb)	+	+	+	+	+	+	OUT	患者

* : 判定保留

NT : 検査実施せず

A : VTEC-RPLA, B : デュオパス, C : ラインジャッジ, D : EHEC VT2遺伝子検出用Primer Set EVS-1,2

E : O-157 PCR Typing Set Plus, F : Loopampペロ毒素タイピング

F) では、陰性を示した。

4 考 察

(1) 変異型stx2遺伝子保有株の分布状況調査

今回、著者らは変異型Stx2毒素の実態を明らかにするために、当センター保存のEHEC株を用いて、変異型stx2遺伝子保有株の分布状況を調べた。その結果、保存

菌株から17.8%の割合で変異型stx2遺伝子保有株が検出された。そのうち、ヒト由来株から16.5%の割合で変異型stx2遺伝子保有株が検出されたことから、医療機関や検査機関等で分離されるEHECのうち、約2割が変異型stx2遺伝子保有株である可能性が示唆された。さらに、変異型stx2遺伝子保有株はヒト由来だけでなく、環境由来からも検出されたことから、変異型stx2遺伝子保有株

表4-2 Stx2毒素およびstx2遺伝子検査法の検討 (stx2d遺伝子, stx2e遺伝子, stx2f遺伝子保有株)

stx1,2 遺伝子型	免疫学的方法			遺伝子学的方法			血清型	由来
	RPLA法	IC法		PCR法		LAMP法		
		A	B	C	D	E		
<i>stx2+ stx2d</i>	+	+	+	+	+	+	O144	健常者
<i>stx1+ stx2d</i>	*	-	+	+	+	+	O128	健常者
	*	-	+	+	+	NT	O91	健常者
	+	-	+	+	+	+	O91	健常者
	+	-	+	+	+	+	O91	健常者
	+	-	+	+	+	+	OUT	健常者
	+	-	+	+	+	NT	O91	健常者
	+	-	+	+	+	NT	O91	健常者
	+	-	+	+	+	NT	O91	健常者
	+	-	+	+	+	NT	O91	健常者
	+	-	+	+	+	NT	O91	健常者
	+	+	+	+	+	+	O128	健常者
	+	+	+	+	+	+	O128	健常者
	+	+	+	+	+	NT	O128	健常者
<i>stx2d</i>	+	-	-	+	+	+	O128	健常者
	+	-	-	+	+	+	O128	健常者
<i>stx2e</i>	+	-	-	+	+	+	O74	分与株
<i>stx2f</i>	*	-	+	-	+	-	O128	分与株
	+	-	+	-	+	-	O63	分与株

* : 判定保留

NT : 検査実施せず

A : VTEC-RPLA, B : デュオパス, C : ラインジャッジ, D : EHEC VT2遺伝子検出用Primer Set EVS-1,2

E : O-157 PCR Typing Set Plus, F : Loopampペロ毒素タイピング

は広く分布していることが分かった。

また, *stx2c (vha)* 遺伝子保有株は, すべての由来から検出され, その血清型の多くはO157であったのに対し, *stx2d* 遺伝子保有株は, 健常者由来株から検出されたが, 患者および環境由来からは検出されず, その血清型の多くはO91, O128であった。このことから, 変異型*stx2*遺伝子の種類により, 検出される由来および血清型に偏りがみられることが分かった。

今回の調査において, 当センター菌株からは, *stx2e* 遺伝子保有株および*stx2f*遺伝子保有株は検出されなかった。*stx2e* 遺伝子は浮腫病の豚から, *stx2f*遺伝子は野生のハトの糞便から分離され, これらのヒトへの感染例は稀であると報告^{9) 10)} されているため, 検出されなかったと考えられた。しかし, 市中の検査において, 変異型Stx2毒素または変異型*stx2*遺伝子が検出できず, *stx2e* 遺伝子, *stx2f*遺伝子を保有するEHECが見逃されている可能性も否めない。特に, *stx2f*遺伝子保有のEHECについては, 重症小児下痢症の事例が報告^{11) 12)} されており, それらを見逃すことは臨床上公衆衛生上問題であるため, 今後, 留意する必要があると思われる。

(2) Stx2毒素および*stx2*遺伝子検査法の検討

EHECと同定するには, Stx毒素または*stx*遺伝子の検出が必要である。それには, EHECが産生するStx毒素蛋白を抗原として免疫学的方法で検出する方法とEHECが保有する*stx*遺伝子を遺伝子学的検査で検出する方法がある。今回, これらの方法による変異型Stx2毒素および変異型*stx2*遺伝子の検出の差異について, 市販の試薬キットを用いて検討した。

免疫学的方法として, RPLA法とIC法の3試薬キットについて検討した結果, 検査法, 保有する変異型*stx2*遺伝子の種類により, 検出率にバラツキがみられ, Stx2毒素検査の有用性として, RPLA法とIC法を比較することはできなかった。しかし, デュオパスは陰性と誤判定される株が多くみられたため, EHECの判定に用いるには注意が必要と思われる。なお, *stx1*遺伝子の保有の有無とStx2毒素の検出率には特に差が認められず, 関連性がないと思われる。

遺伝子学的検査として, PCR法とLAMP法の3試薬キットについて検討した結果, *stx2c (vha, vhb)*, *stx2d*, *stx2e* 遺伝子保有株についてはPCR法とLAMP法ともに全て陽性となり, 2法の間で, 特に大きな差はみられなかった。しかし, *stx2f*遺伝子保有株について

表5 Stx2毒素およびstx2遺伝子検査法における検出率 (%) (陽性数/被検菌数)

stx1, 2 遺伝子型	免疫学的方法			遺伝子学的方法		
	RPLA法	IC法		PCR法		LAMP法
	A	B	C	D	E	F
stx2+ stx2c (vha)	100 (5/5)	100 (5/5)	100 (5/5)	100 (5/5)	100 (5/5)	100 (1/1)
stx1+ stx2+ stx2c (vhb)	100 (2/2)	100 (2/2)	100 (2/2)	100 (2/2)	100 (2/2)	100 (1/1)
stx2+ stx2c (vhb)	100 (1/1)	100 (1/1)	100 (1/1)	100 (1/1)	100 (1/1)	NT
stx2+ stx2d	100 (1/1)	100 (1/1)	100 (1/1)	100 (1/1)	100 (1/1)	100 (1/1)
stx1+ stx2c (vha)	83 (10/12)	58 (7/12)	100 (12/12)	100 (12/12)	100 (12/12)	100 (7/7)
stx2c (vha)	93 (13/14)	93 (13/14)	93 (13/14)	100 (14/14)	100 (14/14)	100 (3/3)
stx2c (vhb)	100 (1/1)	100 (1/1)	100 (1/1)	100 (1/1)	100 (1/1)	100 (1/1)
stx1+ stx2d	85 (11/13)	23 (3/13)	100 (13/13)	100 (13/13)	100 (13/13)	100 (6/6)
stx2d	100 (2/2)	0 (0/2)	0 (0/2)	100 (2/2)	100 (2/2)	100 (2/2)
stx2e	100 (1/1)	0 (0/1)	0 (0/1)	100 (1/1)	100 (1/1)	100 (1/1)
stx2f	50 (1/2)	0 (0/2)	100 (2/2)	0 (0/2)	100 (2/2)	0 (0/2)

NT: 検査実施せず

A: VTEC-RPLA, B: デュオパス, C: ラインジャッジ, D: EHEC VT2遺伝子検出用Primer Set EVS-1, -2

E: O-157 PCR Typing Set Plus, F: Loopampペロ毒素タイピング

はLAMP法とPCR法のうち、TaKaRaが従来から販売しているEHEC VT 2 遺伝子検出用Primer Set EVS-1,-2では陰性となるのに対し、2008年9月に新しく販売されたO-157 PCR Typing Set Plusでは陽性と正しく判定することができた。このことは、新製品が近年発見されたstx2f遺伝子を検出できるようにプライマーの設計に改良がなされた結果である。このように、遺伝子学的検査は、免疫学的方法に比べて高感度であるが、新しい変異型stx2遺伝子が発見されるたびに、プライマーの設計に配慮し、改良していかなければ検出することができないという欠点が見られた。

一方、免疫学的方法のVTEC-RPLAおよびラインジャッジでは、従来のPCR法では検出できないstx2f遺伝子を保有するEHECが産生するStx2f毒素を検出できたことから、新たな変異型Stx2毒素の抗原性が定型のStx2毒素と大きな差がなければ免疫学的方法で検出することが可能であると思われる。さらに、VTEC-RPLAにおいては、陰性(凝集価1:2未満)となる菌株はみら

れず、全ての菌株で凝集価1:2以上の反応を示したことから、RPLA法は変異型stx2遺伝子保有株の存在を探知できる方法のひとつである可能性が示唆された。

以上のことから、変異型stx2遺伝子保有のEHECの同定を一つの方法で行うことは困難であることが分かった。変異型stx2遺伝子を保有するEHECを見逃さないためには、免疫学的方法、遺伝子学的方法の各々の特性を生かし、凝集価で判定するRPLA法と高感度な遺伝子学的方法の双方を用いて総合的に判断する必要があると思われる。

著者らは、これら本研究で得られた結果を検査機関等の検査担当者に周知していかなければいけないと考える。一方、検査機関等で複数の方法を用いることは困難な場合もあるであろう。今後、検査機関等でEHECの判定に迷った場合は当センターが本研究で得られた知見と技術を以て、検査支援していくことが必要であると思われる。また、当センターと検査機関等が検査協力することによって、新しく出現する変異型stx2遺伝子保有株の

動向に留意することができるとともに、引き続き変異型 *stx2* 遺伝子保有株の解明を行っていくことができると考える。

5 ま と め

- (1) EHEC分離株のうち、約2割が変異型 *stx2* 遺伝子保有株であり、由来に関わらず広く分布していることが分かった。
- (2) 保有する変異型 *stx2* 遺伝子の種類により、由来および血清型別に偏りがみられた。
- (3) 変異型 *stx2* 遺伝子を保有するEHECを見逃さないためには、免疫学的方法と遺伝子学的方法の特性を生かし、双方の方法を用いることが必要と思われた。
- (4) 本研究結果を検査機関へ周知し、複数の方法を用いることが困難な検査機関に対しては、今後、当センターがEHECの検査支援を行うなど検査協力体制を確立する必要があると思われた。

本研究を実施するにあたり、貴重なEHEC分離株を与していただきました千葉大学医学部附属病院検査部 村田正太先生、渡邊正治先生、福井県衛生環境研究センター細菌研究グループおよび富山県衛生研究所 細菌部の諸先生に深謝致します。

文 献

- 1) TYLER, Shaun D., JOHNSON, Wendy M., LIOR, Hermy and WANG, Gehua: Identification of verotoxin type 2 variant B subunit in genes *Escherichia coli* by the polymerase chain reaction and restriction fragment length polymorphism analysis, *Journal of Clinical Microbiology*, **29**, 1339–1343 (1991)
- 2) PIERARD, Denis, MUYLDERMANS, Gaetan, STEVENS, David and LAUWERS, Sabine : Identification of new verocytotoxin type 2 variant B-subunit genes in human and animal *Escherichia coli* isolates, *Journal of Clinical Microbiology*, **36**, 3317–3322 (1998)
- 3) WANG, Gehua, CLARK, Clifford G. and RODGERST, Frank G.: Detection in *Escherichia coli* of the genes encoding the major virulence factors, the genes defining the O157:H7 serotype and components of the type 2 shiga toxin family by multiplex PCR, *Journal of Clinical Microbiology*, **40**, 3613–3619 (2002)
- 4) 山崎伸二, 竹田美文: Vero毒素の構造と生物, *臨床と微生物*, **23**, 785 (1996)
- 5) 甲斐明美, 尾畑浩魅, 畠山 薫, 五十嵐英夫, 伊藤 武, 工藤泰雄: ラテックス凝集反応によるVero毒素産生性大腸菌の同定: 大腸菌ベロトキシン検出用試薬の評価, *感染症学雑誌*, **71**, 248–253 (1997)
- 6) 倉本早苗, 児玉洋江, 山田恵子, 戌亥一朗: 変異型毒素 *stx2d* 遺伝子を保有する志賀毒素産生性大腸菌分離例, *石川県保健環境センター研究報告書*, **43**, 55–58 (2006)
- 7) 厚生省保健医療局結核感染症課監修: 感染症の予防及び感染症の患者に対する医療に関する法律—法令・通知・関係資料— (1999)
- 8) FRIEDRICH, Alexander W., BIELASZEWSKA, Martina, ZHANG, Wen-Lan, PULZ, Matthias, KUCZIUS, Thorsten, AMMON, Andrea and KARCH, Helge : *Echerichia coli* harboring shiga toxin 2 gene variants: Frequency and Association with Clinical Symptoms, *The Journal of Infectious Diseases*, **185**, 74–84 (2002)
- 9) 目見田清, 菊地正健, 大澤哲也, 山崎 勝, 藤岡一彦, 田中 博, 山崎伸二, 竹田美文: 豚浮腫病由来大腸菌のVero毒素産生性, *日本獣医師会誌*, **44**, 1167–1171 (1991)
- 10) SCHMIDT, Herbert, SCHEEF, Jurgen, MORABITO, Stefano, CAPRIOLI, Alfredo, WIELER, Lothar H. and KARCH, Helge: A new shiga toxin 2 variant (Stx2f) from *Echerichia coli* isolated from pigeons, *Applied and Environmental Microbiology*, **66**, 1205–1208 (2000)
- 11) 山口仁孝, 山崎省吾, 野口英太郎: 小児下痢症患者より分離された志賀毒素産生性大腸菌O63の病原分子解析, *長崎県衛生公害研究所報*, **47** (2001)
- 12) 磯部順子, 木全恵子, 霧島正浩, 細呂木志保, 田中大祐, 刑部陽宅: 下痢患者からの *stx2f* 遺伝子保有志賀毒素産生性大腸菌O128: HNMの分離, *感染症学雑誌*, **78**, 1000–1005 (2004)

〔報 文〕

廃棄物を有効活用した小規模排水の高度処理システムに関する研究について (第3報)

— 硝化反応, 脱窒反応および脱リン反応を用いた高度排水処理システム —

石川県保健環境センター 環境科学部 小西 秀則・牧野 雅英・深山 敏明

〔和文要旨〕

昨今, 循環型社会の形成が推進されており, 廃棄物の再生利用が行われている。本県においては, カキ殻や廃材などの廃棄物がリサイクル可能な資源として多く排出されるため, これらを有効活用した高度排水処理システムを確立することは, 上記の観点からも重要である。本報では, 装置構造が簡単で合併処理浄化槽の後処理装置として, 窒素・リンを効率良く除去できる高度排水処理システムの確立を図ることを目的とした。その結果, カキ殻を用いた硝化反応および嫌気性微生物による脱窒反応により窒素成分を効率よく除去することができ, また, リンは脱窒反応槽の嫌気汚泥層に鉄材を投入することにより除去できることが分かった。さらに, 合併処理浄化槽放流水を用いて実用化に向けた検討を行ったところ良好な結果を得ることができた。

キーワード：カキ殻, 廃棄物, 硝化反応, 脱窒反応, 脱リン反応, 高度排水処理

1 はじめに

合併処理浄化槽などの小規模排水処理施設においては, 湖沼等の富栄養化の原因物質である窒素・リンを効率的に除去できる方法があっても, コストの安価な高度排水処理システムがいまだに確立されていないのが現状である。

また, 昨今, 循環型社会に向けた取り組みの中で廃棄物の再生利用も大きな課題となっている。本県においても, カキ殻や間伐材などが廃棄物として多く排出されるため, これらをリサイクル可能な資源として有効活用した高度排水処理システムの検討を行った。

著者らは第1報¹⁾にて, カキ殻が硝化反応に有効な担体であることを明らかにした。

さらに, 第2報²⁾では廃材を有機炭素源とし, 硫酸化脱窒細菌と硫酸塩還元細菌の間で行われる硫酸

化還元サイクルを利用した脱窒反応についての検討を行い, この微生物処理における硝酸性窒素の除去特性が高いことを明らかにした。

そこで, 本報ではカキ殻を用いた硝化反応と廃材を有機炭素源として硫酸化脱窒細菌などを集積させた脱窒反応を組み合わせることによる窒素除去を検討した。さらに, 小川ら³⁾は嫌気槽内に鉄材を浸漬させて鉄イオンを溶出させることにより, 容易にリンの除去が可能であると報告しており, ここでは鉄材として鉄くぎを用いてリンの除去を行い, より長期間安定的に窒素, リンの同時除去ができる高度排水処理システムについての検討を行った。

さらに, 本装置の実用化に向けた検討も行ったので報告する。

Research on Small-Scale Wastewater Treatment for Utilizing the Waste (3rd Report) .- Advanced Wastewater Treatment Utilizing Nitrification -Denitrogenation and Phosphorus Removal .- by KONISHI Hidenori, MAKINO Masahide and MIYAMA Toshiaki (Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Shell of Oyster, Waste, Nitrification- Denitrogenation Reaction, Phosphorus Removal Reaction, Wastewater Treatment

2 実験装置及び方法

2・1 実験装置の概略

本研究では、前2報^{1) 2)}と同様、硝化反応はカキ殻を用いた浸漬ろ床法⁴⁾により、また脱窒反応は廃材を有機炭素源とし、硫酸化脱窒細菌などによる嫌気性微生物処理^{5) 6)}を用いた連続処理を行った。図1に本報で用いた装置概略図Aを示す。

硝化反応槽として、内側に内径8cm、高さ30cm、容積1.2Lの硝化反応用の処理槽（アクリル樹脂製）にカキ殻を充填したものと、その外側に連続系で処理を行うための処理槽（アクリル樹脂製）内径14cm、高さ25cmを設けた。

硝化反応における、基質（人工排水）の供給速度（Q）を1.5L/day（外側の処理槽における平均滞留時間：1日）とした。なお、効率的に硝化反応を行わせるため、前報¹⁾と同様にカキ殻充填層内部を上部から下部へ液循環させ、カキ殻充填層に汚泥層を形成させた。またカキ殻充填層への液循環速度は30Q（45L/day）とした。

硝化反応処理水は処理水貯留槽を経て、脱窒反応槽へ定量ポンプで供給した。脱窒反応槽は内径10cm、高さ25cm、容積2Lの処理槽（アクリル樹脂製）であり、硝化反応処理水の供給速度は0.8L/day（平均滞留時間：2

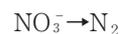
日）とした。なお、第2報により、脱窒反応槽の処理能力が処理開始から40～50日（約1か月半）で活性が低下する結果²⁾となっており、今回の実験では、チオ硫酸ナトリウムで硫酸塩還元細菌等を再活性化^{7) - 9)}した脱窒反応槽を用いた。

ここで、硝化反応槽および脱窒反応槽それぞれにおける無機性窒素成分の形態別変化を以下に示す。

[硝化反応槽]



[脱窒反応槽]



実験に用いた基質（人工排水）の組成を表1に示す。なお、硝化反応処理水、脱窒反応処理水のサンプリングは1週間に1回程度実施し、下記に示す水質項目を測定した。

- ①pH ②EC ③硝酸性窒素 (NO₃-N) ④亜硝酸性窒素 (NO₂-N) ⑤アンモニア性窒素 (NH₄-N)
- ⑥有機性窒素 (Or-N) ⑦全窒素 (T-N) ⑧全リン (T-P) ⑨リン酸性リン (PO₄-P) ⑩鉄

さらに、リンの除去効率についても検討するため、連続処理が安定した80日目あたりに鉄材100gを脱窒反応槽の嫌気汚泥層へ投入した。

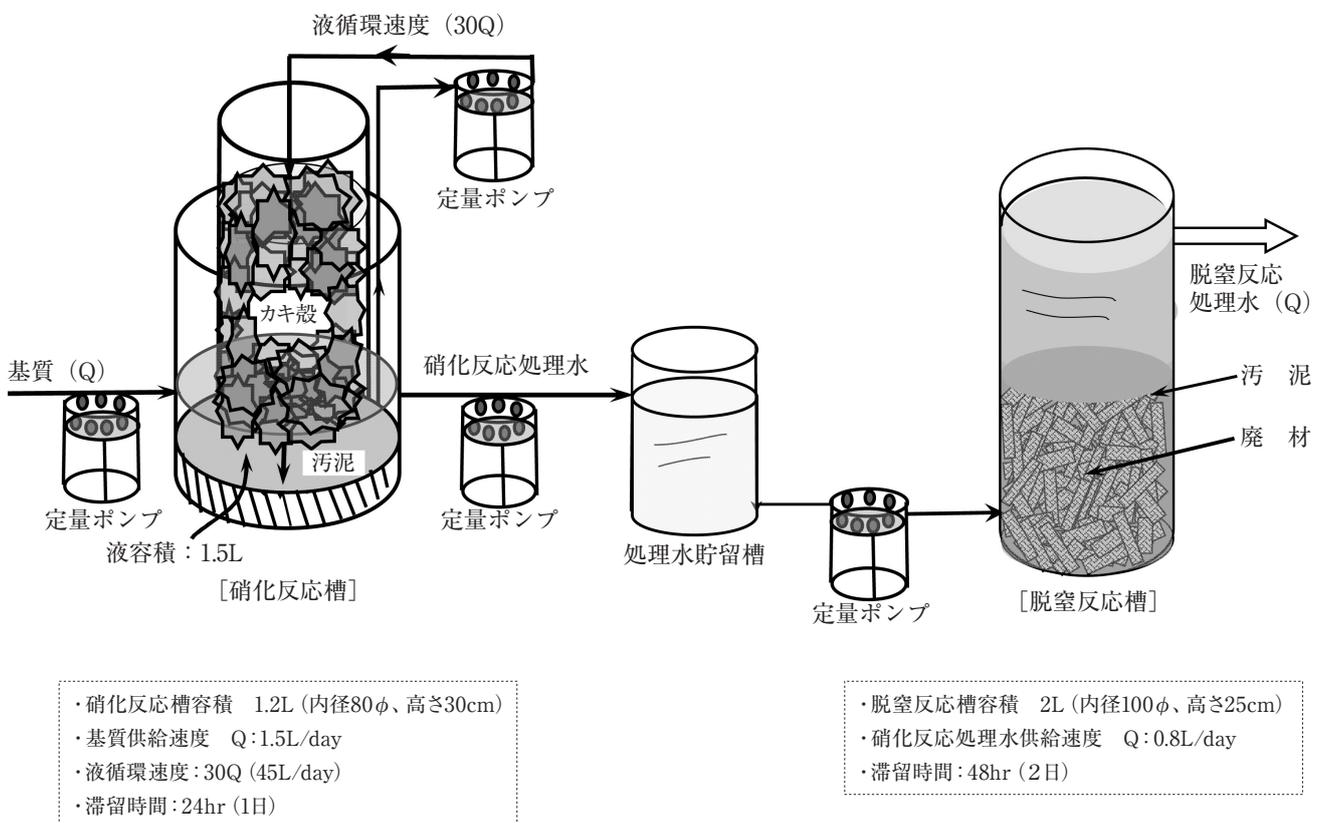


図1 装置概略図A

表1 基質(人工排水)の組成 (mg/L)

		基質濃度
KH ₂ PO ₄		6
NaNO ₃		15
NH ₄ Cl		30
K ₂ SO ₄		15
CaCl ₂		15
NaHCO ₃		36
ポリペプトン		15
(mg/L)		
全窒素 (T-N)		12.3
全リン (T-P)		1.5
アンモニア性窒素 (NH ₄ -N)		10.0
硝酸性窒素 (NO ₃ -N)		2.3

2・2 脱窒反応槽の再活性化方法

ここでは、長期間安定的に窒素を除去できる脱窒反応について検討した。硝酸性窒素の除去メカニズムを図2に示したが、硫酸塩還元細菌が廃材を炭素源として硫酸イオンを硫黄に還元する。さらに、硫黄酸化脱窒細菌は硫黄を電子供与体として、硝酸性窒素を窒素ガスに還元する。この硫黄酸化脱窒細菌と硫酸塩還元細菌が共存することにより、硫黄の酸化還元サイクルが形成され、硝酸性窒素が持続的に除去できる¹⁰⁾。このサイクルは、電

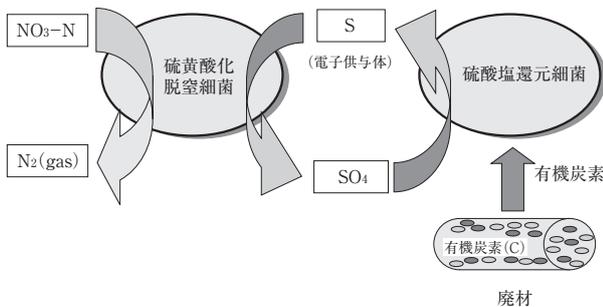


図2 硝酸性窒素の除去メカニズム

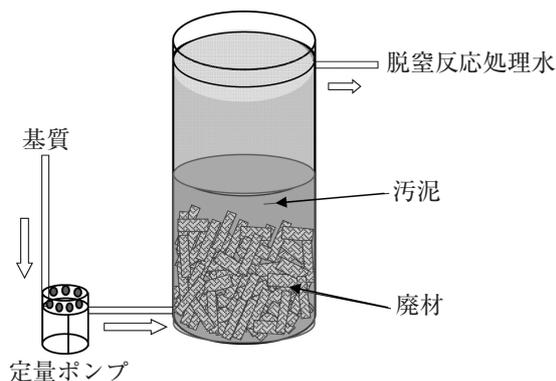


図3 脱窒反応槽概略図

子供与体である硫黄の酸化還元能力が減少してくると、この除去メカニズムが崩れて硝酸性窒素の除去率が減少してくると推察される。

そこで、電子供与体である硫黄の供給源として、反応性、安全性を考慮してチオ硫酸ナトリウムを用い、脱窒反応槽を再活性化させる実験を行った。

再活性化に用いた脱窒反応槽の概略図を図3に、また再活性化に用いた基質(人工排水)の組成を表2に示す。

3 結果と考察

3・1 脱窒反応槽の再活性化について

脱窒反応槽にチオ硫酸ナトリウムを用いて再活性化させた結果を図4に示す。図より、活性が低下した脱窒反応槽にチオ硫酸ナトリウムを供給することにより数日で活性を取り戻し、脱窒反応処理水の硝酸性窒素が検出されない結果となった。これは硫黄の酸化還元サイクルが正常な状態に回復したことを示している。

3・2 アンモニア性窒素の硝化について

硝化反応槽と活性化した脱窒反応槽を接続し連続処理を行った。図5に硝化反応処理水および脱窒反応処理水のアンモニア性窒素濃度(NH₄-N)の経日変化を示す。

硝化反応処理水のアンモニア性窒素濃度は処理開始から100日間程度は、硝化反応槽において硝化が十分かつ効率良く行われていた。

一方、脱窒反応処理水のアンモニア性窒素濃度は再活性化した脱窒反応槽を用いて行っているため、処理開始から最初の10日間程度は、基質(人工排水)に用いた塩化アンモニウムの影響により高い濃度であったが、それ以後は、硝化反応処理水の流入により0.1 mg/L以下となった。

なお、図5において、実線は供給した基質のアンモニア性窒素濃度を示しているが、硝化反応槽および脱窒反

表2 脱窒反応の再活性化に用いた基質(人工排水)の組成

		(mg/L)
		基質濃度
KH ₂ PO ₄		20
NH ₄ Cl		100
CaCl ₂		50
NaNO ₃		50
K ₂ SO ₄		50
NaHCO ₃		150
Na ₂ S ₂ O ₃		146
(mg/L)		
アンモニア性窒素 (NH ₄ -N)		26
硝酸性窒素 (NO ₃ -N)		8.2
硫酸イオン (SO ₄ ²⁻)		28

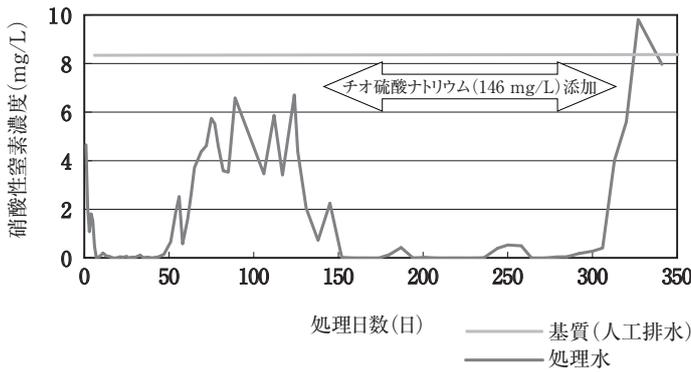


図4 チオ硫酸ナトリウム添加の効果

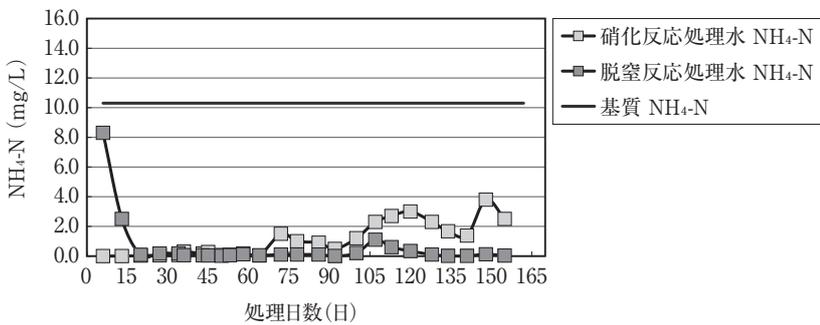


図5 処理水のNH₄-Nの経日変化

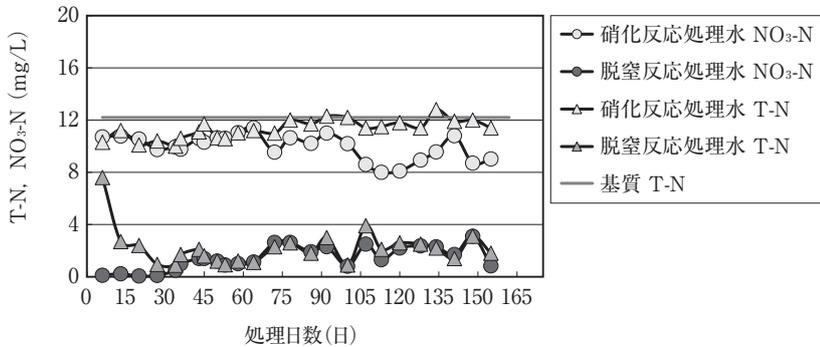


図6 T-N, NO₃-Nの経日変化

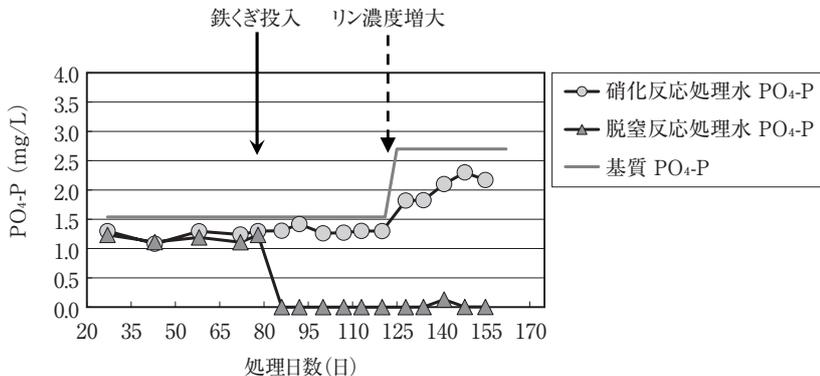


図7 PO₄-Pの経日変化

応槽を経ることにより、ほぼ100%除去されたことを示している。

3・3 脱窒反応槽における窒素の除去について

図6に硝化反応処理水および脱窒反応処理水の硝酸性窒素濃度 (NO₃-N) および全窒素濃度 (T-N) の経日変化を示す。

硝化反応槽では、基質 (人工排水) として用いたアンモニア性窒素の70~90%程度が硝酸性窒素になり、次の脱窒反応槽では硝酸性窒素の80~90%程度が除去できた。

以上の結果から、本研究で用いた硝化反応および脱窒反応を組み合わせた処理方式により、アンモニア性窒素および硝酸性窒素を効率良く除去できることが明らかとなった。

3・4 脱窒反応槽におけるリンの除去について

図7に硝化反応処理水および脱窒反応処理水のリン酸性リン濃度の経日変化を示す。

脱窒の連続処理が安定した80日目あたりに鉄材100g (ヘキサソ洗浄後油分等を除去したものを使用) を脱窒反応槽の嫌気汚泥層に投入したところ、脱窒反応処理水のリン酸性リン濃度は1.2mg/Lから急激に減少し、検出下限値 (0.003mg/L) 以下となった。これは、嫌気汚泥層に投入した鉄材から溶出した鉄がリンと結合してリン酸鉄化合物を形成したため考えられる³⁾。

処理開始から125日目に、リンの負荷変動による影響を見るため、供給した基質のリン酸性リン濃度を増加 (1.5mg/Lから2.7mg/L) させたが、脱窒反応処理水のリン酸性リン濃度は0.000~0.131mg/Lと僅かに増加が認められる程度であった。

以上の結果より、嫌気汚泥層に鉄材を投入することにより、脱窒反応処理水中のリン濃度を効率良く低減させることができることを確認した。

4 本装置の実用化へ向けた検討

ここでは、本装置の実用化に向けた検討を行った。なお、基質として、実排水の合併処理浄化槽放流水を用いた。

4・1 処理装置の概要

図8に装置概略図Bを示す。ここで用いた硝化反応槽は、これまでの装置をスケールアップしたものであり、内側の内径が10.5cm、高さ45cm、容量3.5L（アクリル樹脂製）にカキ殻を充填したものを、また外側には連続系で処理を行うための処理槽（アクリル樹脂製）内径18cm、高さ35cmを設けてある。

硝化反応は、合併処理浄化槽放流水の供給速度Qが3L/day（外側の処理槽における平均滞留時間：1日）で、また硝化反応槽への液循環は30Q（90L/day）で実施した。液循環は硝化反応槽の槽頂部にあるノズル（シャワータイプ）から定量ポンプを用いて供給した。なお、硝化反応処理水の硝酸性窒素濃度が20mg/L前後と高濃度であったため、ここでは脱窒反応槽を直列に2槽つないで行った。なお、脱窒反応槽は前記の手法で再活性化したものを用い、これまでと同様の硝化反応、脱窒反応による高度排水処理を行った。

4・2 処理効果の検討

硝化反応の立ち上げ時に反応がより促進するよう、合併処理浄化槽放流水に表1に示す基質（人工排水）を加え、アンモニア性窒素濃度が10~15mg/L程度に調整して馴養を行った。なお、アンモニア性窒素および硝酸性窒素濃度の経日変化の測定より、馴養状況の把握を行った。図9に示すように、処理開始後32日目あたりから硝

化反応処理水のアンモニア性窒素濃度の増加がみられた。この原因として、合併処理浄化槽放流水のアルカリ度が低い¹¹⁾（アルカリ度1.1~1.5 mg/L）ことによる硝化菌の活性低下が考えられたので、供給水の炭酸水素ナトリウム濃度を高くすると共に、灰化（500℃：2時間加熱）後細かくしたカキ殻70gをナイロンネットに充填したものの2個を外側の連続処理を行っている処理槽の底部に投入した。

この後、硝化反応が十分に進行しているのを確認（最初の硝化反応の立ち上げ時から45日後）してから、基質として合併処理浄化槽放流水のみを用いた連続処理を行った。なお、図9に合併処理浄化槽放流水および硝化反応処理水のアンモニア性窒素、硝酸性窒素および全窒素濃度の経日変化を示した。

また、脱窒反応処理水の硝酸性窒素、全窒素の測定結果を図10、図11に示したが、合併処理浄化槽放流水を用いた高度排水処理においても、ほぼ良好な結果を得ることができた。

5 ま と め

- (1) カキ殻を用いた硝化反応により、10mg/Lアンモニア性窒素のほぼ100%が硝酸性窒素に硝化され、その後の脱窒反応処理において、全窒素の70~90%が除去された。
- (2) 脱窒反応処理槽に鉄材を投入したところ、供給した基質のリン酸性リン濃度が1.5mg/Lではリン酸性リンは100%程度、リン酸性リン濃度が2.7mg/Lでは90%程度以上が除去された。
- (3) 本装置の実用化へ向けた検討として、実排水とし

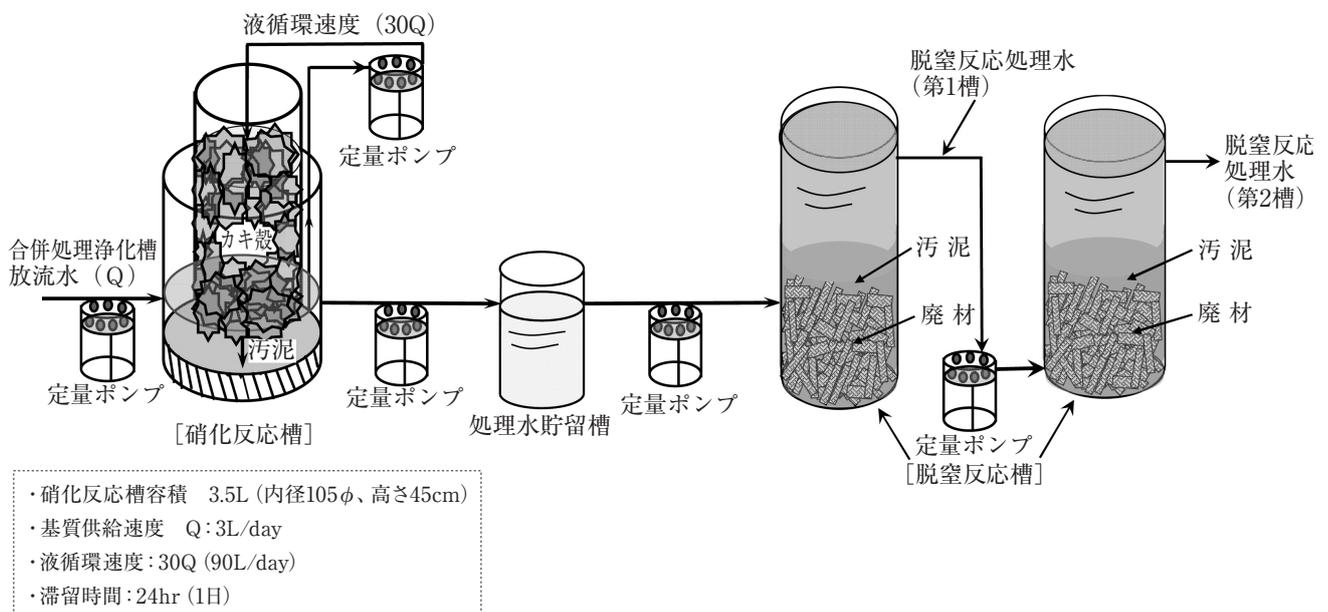


図8 装置概略図B

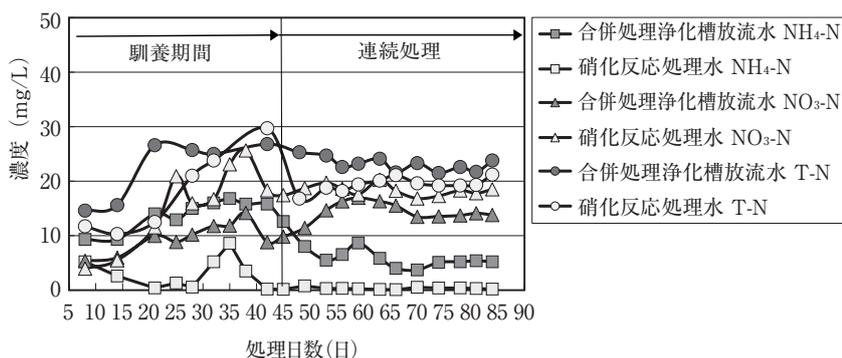


図9 硝化反応処理水の経日変化

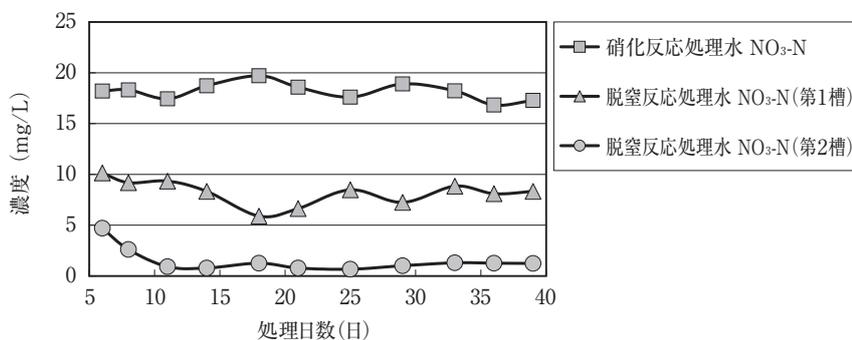


図10 処理水の経日変化 (NO₃-N)

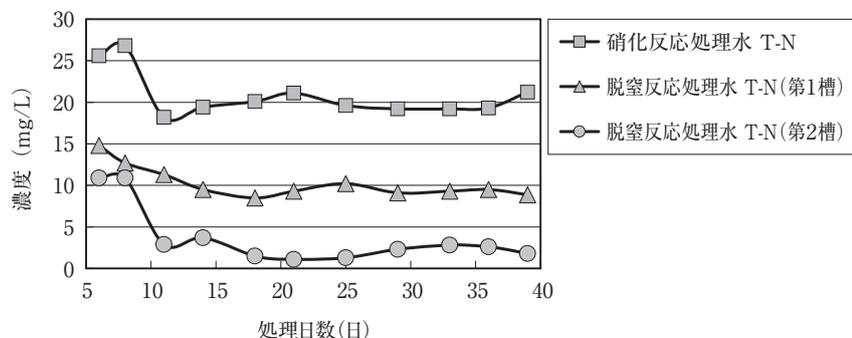


図11 処理水の経日変化 (T-N)

て合併処理浄化槽放流水を用いた検討を行った。硝化反応処理水の硝酸性窒素は20mg/L前後と高濃度であったので、脱窒反応槽を直列に2槽つないで実用化に向けた検討を行った。その結果、アンモニア性窒素、硝酸性窒素および全窒素濃度の除去率は90%以上であり、ほぼ良好な結果を得ることができた。

文 献

1) 小西秀則, 牧野雅英, 梶 哲夫, 山田 肇, 岡田真規子: 廃棄物を有効活用した小規模排水の高度処理

システムに関する研究について (第1報) -カキ殻を用いた硝化反応の有効性について-, 石川県保健環境センター研究報告書, **45**, 12-16 (2008)

2) 牧野雅英, 梶 哲夫, 山田 肇, 岡田真規子, 小西秀則: 廃棄物を有効活用した小規模排水の高度処理システムに関する研究について (第2報) -廃材を利用した嫌気性微生物処理による窒素除去-, 同上誌, **45**, 17-22 (2008)

3) 小川雄比古, 高橋直子, 大塚江理, 堀切保彦, 大野茂, 立本英機: 嫌気槽に鉄材を浸漬する簡易なリン除去, 水環境学会誌, **20**, 89-94 (1997)

4) 土屋隆夫: 総説 排水処理実務の手引き, 用水と排水, **11**, 10-19 (1980)

5) 山下恭広, 池本良子: 割り箸を有機炭素源とした脱窒処理における硫黄の酸化還元微生物の役割, 環境工学研究論文集, **42**, 581-590 (2005)

6) 池本良子, 小森友明, 井出康行, 金井一人: 硫酸塩還元・硫酸脱窒プロセスによる有機物窒素除去に関する基礎的研究, 環境技術, **27**, 432-439 (1998)

7) 橋本 奨, 古川憲治, 塩山昌彦: 硫黄補填好気-嫌気式活性汚泥法の脱窒・脱リン機能, 水質汚濁研究, **12**, 441-448 (1989)

8) 松井三郎, 立脇征弘: 硫黄脱窒菌, 環境技術, **18**, 41-45 (1989)

9) 三木 理, 加藤敏朗, 伊藤公夫: 硫黄酸化細菌の造粒化と高濃度硝酸性窒素含有廃水への基礎的適用検討, 水環境学会誌, **24**, 551-556 (2001)

10) 池本良子, 山下恭広, 山口達也: 間伐材充填生物ろ床による硫黄の酸化還元微生物を活用した窒素除去, 第38回日本水環境学会年会講演要旨集, 379 (2004)

11) 稲森悠平: 有用微生物を活用した小規模排水処理技術の開発と高度化に関する研究, 国立環境研究所ニュース, **12**, 4-6 (1994)

〔報 文〕

河川における化学物質の動態把握と生物への移行性に関する研究

蔵本 和夫・野口 邦雅・宮田 芳昭

石川県保健環境センター 環境科学部 塚林 裕・岡 秀雄・宮川 茂樹

四月朔日 富司子

〔和文要旨〕

環境省が毎年実施している化学物質環境実態調査で本県の調査地点である犀川河口部において、平成14年度、平成15年度にPCBが高濃度で検出されたことから、その汚染源を特定するための調査を実施した。この調査は平成18年度から3ヵ年計画で実施し、犀川及び支川のPCBに着目した水質・底質調査を実施した。その結果、得られたデータの異性体の濃度比を利用した濃度相関マトリックス手法を用いることにより各調査地点間及び調査媒体間の関係を明らかにし、汚染源の範囲の絞り込みを可能にした。また、植物に対する濃縮等移行性についても検討したが、生物濃縮はみられなかった。

キーワード：PCB、濃度相関マトリックス、異性体

1 はじめに

環境省が実施した平成14年度化学物質環境実態調査のモニタリング調査では、犀川河口部の水質でポリ塩化ビフェニル（以下「PCB」という。）濃度が全国で一番高い結果¹⁾となり、翌年度と同調査においても全国で二番目に高い結果²⁾となった。

石川県が実施している内分泌かく乱化学物質環境調査においてもPCB、ビスフェノールA（以下「BPA」という。）、ノニルフェノール（以下「NP」という。）が高い頻度で検出されている。

PCBは、すぐれた電気絶縁性と安定性から過去において広く使用されていた。しかし、1968年のカネミ油症事件で明らかになったように人体に対する有害性から1974年使用が禁止されている。

今回、PCBの河川における動態を把握するため、犀川本川及び支川で季節ごとに水質・底質調査を行い、その結果に対し、濃度相関マトリックスの手法を適用し、汚染源の推定を試みたので、その概要について報告する。

2 調査概要と試験方法

2・1 調査概要

(1) 犀川の概況

犀川は金沢市の南端に位置する奈良岳に源を発し全長34kmの二級河川で途中金沢市中心部を經由して同市西部の金石地区で日本海に注ぐ。環境省の調査において高濃度に検出された地点は、河口部から上流約1.5kmの地点である。本川河口部から1.5kmで安原川、3.8kmで十人川、3.9kmで伏見川が、本線に合流する。合流点はいずれも市街地を抜けた下流側に位置する。

(2) 調査地点

調査地点は図1に示す。本川、安原川は9地点、十人川は5地点、伏見川は2地点で採水、採泥及び植物採取を行った。

(3) 調査時期

安原川及び犀川本川下流部については平成18年度に、十人川、伏見川及び犀川本川上流部については平成19年度に調査を実施した。なお、平成20年度の十人川の調査

Studies on Behaviors of Polychlorinated Biphenyls (PCBs), Bis-phenol A (BPA) and Nonylphenol (NP) in River and their Transfer to Aquatic Plants. by KURAMOTO Kazuo, NOGUCHI Kunimasa, MIYATA Yoshiaki, TSUKABAYASHI Hiro, OKA Hideo, MIYAKAWA Sigeki and WATANUGI Fujiko (Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : PCB, Correlation Matrix, Isomer

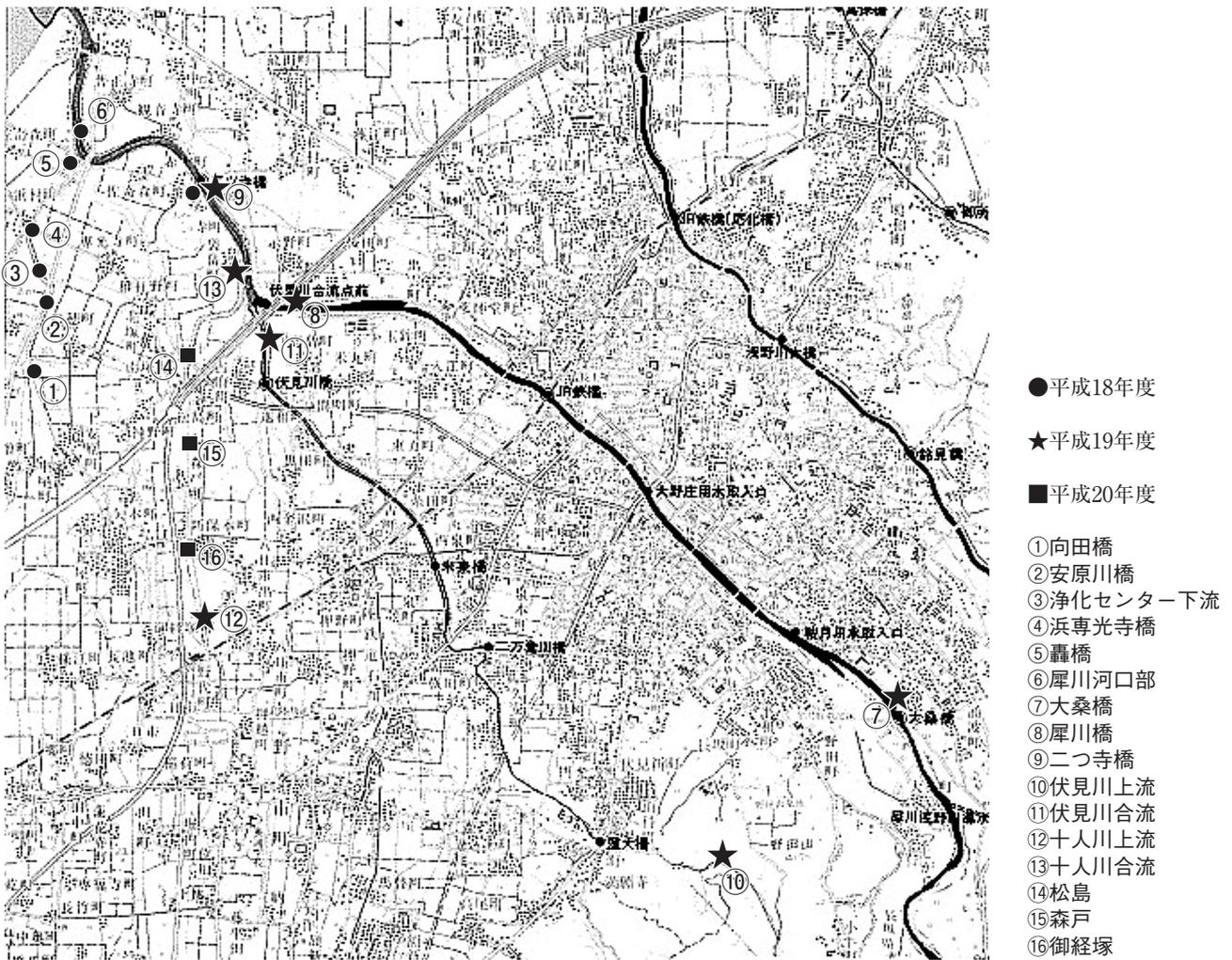


図1 調査地点

は、平成18年度、平成19年度の調査結果を踏まえて実施した。

2・2 試験方法

(1) BPA及びNP

「外因性内分泌攪乱化学物質調査暫定マニュアル（水質、底質、水生生物）」（平成10年10月環境庁水質保全局水質管理課）のエチル誘導体化法によった。

(2) PCB

河川水については、「工業用水・工場排水中のダイオキシン類の測定方法」（JIS K0312（2005））及び（1）に示したマニュアル、底質については「ダイオキシン類に係る底質調査マニュアル」（平成20年3月：環境省水・大気環境局水環境課）を参考にした。また、水生植物については前報³⁾により報告した方法で植物を裁断、トルエンソックスレー抽出、硫酸処理、DMSO分配処理、多層シリカゲルカラムクロマトで妨害物質を除去した後、高分解能GC/MSで測定した。

3 解析方法

犀川河口部と各調査地点のPCB異性体濃度比を用いて濃度相関マトリックスの手法による解析を試みた。この手法は流下途中での希釈や採取時期の相違を無視できるため、水質や大気環境調査で各調査地点間の類似性を検討する際によく用いられている。

今回は、全異性体を1塩素化物から10塩素化物の10種類に集計し、各調査地点の塩素化物間の濃度比をデータとして使用した。

試料採取地点 [A, B, C, D……] におけるPCB異性体 [M1CB, D2CB, T3CB, …… , D10CB] 濃度に対して、例えば地点Aについては、

$$\{A_i\} = \begin{pmatrix} (M1CB/M1CB)_A \\ (D2CB/M1CB)_A, (D2CB/D2CB)_A \\ (T3CB/M1CB)_A, (T3CB/D2CB)_A, (T3CB/T3CB)_A, \dots \\ \vdots \\ \vdots \end{pmatrix}$$

同様に地点B, C, D……についても作表し、次にAと

B二点間について求めた成分濃度比の比を求める。

$$\{Y_{ij}(AB)\} = \{A_{ij}\} / \{B_{ij}\}$$

$$= \begin{pmatrix} (M1CB/M1CB)_A \\ (M1CB/M1CB)_B \\ (D2CB/M1CB)_A (D2CB/D2CB)_A \\ (D2CB/M1CB)_B (D2CB/D2CB)_B \\ (T3CB/M1CB)_A (T3CB/D2CB)_A (T3CB/T3CB)_A \\ (T3CB/M1CB)_B (T3CB/D2CB)_B (T3CB/T3CB)_B \\ \vdots \\ \vdots \end{pmatrix}$$

相関性の有無を判定するために有意な相関があると考えられる範囲を判定基準Mによって決める。

$$1/M \leq Y_{ij}(kl) \leq M$$

マトリックスの対角成分を除いた残りの数値について上記範囲内にある数値の数を全体の数で除した数を相関数 (Z_{AB}) といい、それぞれの測定地点の組み合わせから求め「濃度相関マトリックス」を得る。地点A~Eとすると相関数は、

$$\{Z_{kl}\} = \begin{pmatrix} Z_{AA} \\ Z_{AB}, Z_{BB} \\ Z_{AC}, Z_{BC}, Z_{CC} \\ Z_{AD}, Z_{BD}, Z_{CD}, Z_{DD} \\ Z_{AE}, Z_{BE}, Z_{CE}, Z_{DE}, Z_{EE} \end{pmatrix}$$

一般にM=1.3もしくは1.5が使われる。

4 結果及び考察

4・1 各調査地点の濃度

表1-1に各地点の水質、表1-2に各地点の底質のPCB塩素化物別濃度を示す。地点別、調査時期別による濃度変化が大きいことが確認された。

図2にNP、BPA及び総PCBを表1-3にNP及びBPAの結果を示す。PCBと同様に地点別、調査時期別による変動が大きい。

表1-4に水生植物及び水質のNP、BPA及びPCB濃度を示す。安原川及び犀川の調査地点において河川敷に自生していたススキ及びヨシについて茎部分と穂部分に分けて濃度を測定したが、水質濃度と比べ生体濃縮がみられなかった。

4・2 濃度相関マトリックスによる解析結果

PCBには10個の塩素化物が存在し、汚染源が点であると仮定すると下流部に至ってもその濃度比はほぼ保たれていると考えられるので、木羽ら⁴⁾の方法を用いて、犀川本川と各合流地点における濃度相関マトリックスを作成した。その相関表を表2に示す。相関数の分布を図3に示したが、分布率10%において相関数が0.33程度となるよう相関性の有無の判定するための基準値Mは1.3とした。

水質と底質の間では高い相関性を示すものではなく、水

質間よりも底質間に高い相関性がみられた。

底質の犀川河口部と十人川合流部で高い相関がみられたので、平成19年度に採取した地点の間をほぼ等間隔(松島、森戸、御経塚)で20年度に採取した結果、松島と森戸は異性体組成比が同一であり、森戸と御経塚についてもほぼ同一であり、松島及び森戸では犀川河口部との組成比も近いことが推察された。

このことから、犀川河口部におけるPCBは十人川の御経塚と森戸の間のいずれかの地点から流出している可能性が推測された。

4・3 濃度比較における問題点

表1-1、表1-2に示したとおり、水質、底質とも採取時期の間隔がある場合、河川流量、流下途中における希釈、濃縮により濃度変化が生ずるため、濃度変化のみで地点間の類似性を判断することは困難である。

調査媒体として底質を選択した場合は地点間の濃度比を用いた解析結果、地点間の類似性を判定することが可能であったが、水質を選択した場合は判定が困難であった。

5 ま と め

- (1) 環境調査等で有害化学物質が検出された場合、周辺地区で汚染原因と考えられる発生源の確認や周辺地区の詳細な調査を行い汚染源を特定しようと試みているが、多くの場合因果関係を明らかにできないのが実情である。
- (2) 今回、異性体が存在する物質の場合には、その濃度比を用いて「濃度相関マトリックス」を作成し、調査地点間、採取媒体間の相関を比較することにより調査範囲及び採取媒体の絞り込みが可能となった。
- (3) なお、生物濃縮がみられれば化学物質をその環境から除去の可能性があるが、今回調査した化学物質については、生物濃縮が認められなかった。

文 献

- 1) 環境省総合環境政策局環境保健部環境安全課：「化学物質と環境」平成14年度(2002年度)測定結果一覧、<http://www.env.go.jp/chemi/kurohon/http2003/xls/3-1-100.xls>, 2009年9月10日
- 2) 環境省総合環境政策局環境保健部環境安全課：「化学物質と環境」平成15年度(2003年度)測定結果一覧、<http://www.env.go.jp/chemi/kurohon/http2004/xls/3-1-100.xls>, 2009年9月10日
- 3) 野口邦雅, 岡 秀雄, 清水隆二, 塚林 裕, 蔵本和夫：環境中のポリ塩化ビフェニル全異性体の分析方法, 石川県保健環境センター研究報告書, 45, 75-79 (2008)
- 4) 木羽敏泰, 松本 健：水汚染の機構と解析, 初版(日本地球化学会編), 53-72, 産業図書(1978)

表 1-1 異性体別PCB濃度 (水質)

(単位 : pg/L)

採取地点名	採取年月	1塩素化物	2塩素化物	3塩素化物	4塩素化物	5塩素化物	6塩素化物	7塩素化物	8塩素化物	9塩素化物	10塩素化物
向田橋	H18.8	4.2	62	39	93	160	150	60	16	3.8	2.1
	H18.11	5.2	32	33	45	37	25	13	3.5	<0.3	0.8
安原川橋	H18.8	2.1	20	19	44	59	57	31	9.5	1.3	1.0
	H18.11	4.5	20	31	39	28	20	10	2.4	<0.3	1.7
浄化センター下流	H18.8	2.6	23	26	59	89	120	83	23	3.2	1.3
	H18.11	4.9	16	17	34	32	29	18	5.0	0.7	0.5
浜専光寺橋	H18.8	1.5	17	17	38	42	36	16	4.9	1.8	0.5
	H18.11	2.1	16	32	43	31	23	11	2.3	0.5	0.6
轟橋	H18.8	4.4	29	31	49	57	50	26	5.8	1.3	0.9
	H18.11	1.3	9.9	15	36	26	21	11	2.9	<0.3	<0.2
二つ寺橋	H18.8	4.6	28	36	99	120	280	440	31	2.0	0.9
	H18.11	1.2	62	12	26	31	76	74	5.5	<0.3	0.4
犀川河口部	H18.8	3.1	39	43	87	81	110	140	9.5	1.5	0.5
	H18.11	2.3	74	35	110	87	130	110	11	0.7	0.4
伏見川上流	H19.5	2.6	34	170	280	60	20	3.6	0.3	<0.3	0.6
	H20.3	3.8	100	760	980	200	57	19	5.0	<0.3	1.1
伏見川合流	H19.5	3.4	110	110	68	36	20	8.2	<0.4	<0.3	1.0
	H20.3	2.9	80	220	180	67	32	6.1	<0.4	<0.3	0.4
十人川上流	H19.5	2.9	19	17	21	16	10	4.0	1.4	<0.3	0.6
	H20.3	3.2	45	38	33	28	25	12	<0.4	<0.3	1.2
十人川合流	H19.5	3.8	83	56	105	140	190	170	6.8	<0.3	1.4
	H20.3	2.8	39	40	51	53	110	100	2.6	<0.3	1.0
大桑橋	H19.5	2.5	13	15	31	19	11	5.0	1.6	<0.3	0.7
	H20.3	1.8	23	34	20	10	6.2	1.3	<0.4	<0.3	0.5
犀川橋	H19.5	2.9	53	31	85	360	1500	1100	37	<0.3	3.6
	H20.3	2.4	30	42	28	17	11	6.5	<0.4	<0.3	0.6
二つ寺橋	H19.5	1.6	110	70	75	130	340	290	9.7	<0.3	1.6
	H20.3	1.9	89	64	60	69	150	120	10	<0.3	0.8
松島	H21.3	3.3	34	29	31	19	17	7.6	<0.4	<0.3	<0.2
森戸	H21.3	2.9	30	20	21	17	15	8.3	<0.4	<0.3	<0.2
御経塚	H21.3	3.4	38	23	22	24	22	11	<0.4	<0.3	<0.2

表 1-2 異性体別PCB濃度 (底質)

(単位 : pg/g-Dry)

採取地点名	採取年月	1塩素化物	2塩素化物	3塩素化物	4塩素化物	5塩素化物	6塩素化物	7塩素化物	8塩素化物	9塩素化物	10塩素化物
向田橋	H18.8	5.5	57	240	370	290	240	140	32	3.3	1.0
	H18.11	4.1	36	130	260	410	390	160	29	3.2	1.2
安原川橋	H18.8	10	110	190	310	410	520	440	100	8.6	2.0
	H18.11	20	94	240	510	2900	2800	940	150	15	3.9
浄化センター下流	H18.8	12	61	220	330	350	270	140	37	4.5	1.9
	H18.11	5.7	43	130	180	230	200	110	30	4.2	1.4
浜専光寺橋	H18.8	14	77	250	250	270	250	150	38	4.2	1.8
	H18.11	10	64	140	200	260	180	91	23	5.4	2.0
轟橋	H18.8	14	88	210	370	560	740	690	190	20	5.6
	H18.11	5.2	39	130	210	300	240	120	27	3.7	2.0
二つ寺橋	H18.8	6.4	510	2600	5100	4600	2100	690	120	13	3.9
	H18.11	3.6	110	450	460	330	190	79	12	1.4	0.8
犀川河口部	H18.8	2.7	60	250	460	490	330	120	13	1.9	1.5
	H18.11	10	230	640	1300	1600	1000	490	40	8.2	6.2
伏見川上流	H19.5	1.7	48	450	940	270	91	23	6.7	1.7	1.9
	H20.3	1.2	30	310	610	180	63	16	3.9	1.1	0.7
伏見川合流	H19.5	1.4	67	290	310	190	90	21	4.4	1.0	0.5
	H20.3	1.4	50	270	570	290	93	15	3.4	0.7	0.6
十人川上流	H19.5	12	62	130	180	320	280	86	18	3.6	2.8
	H20.3	2.3	17	50	100	140	130	35	7.1	1.5	1.0
十人川合流	H19.5	1.4	32	110	210	240	150	56	5.8	1.1	0.7
	H20.3	1.5	12	70	190	160	100	37	5.0	1.5	1.3
大桑橋	H19.5	4.3	15	51	160	170	110	39	8.6	2.1	1.9
	H20.3	3.7	11	70	120	95	62	16	3.2	0.7	0.6
犀川橋	H19.5	0.9	5.4	27	130	170	160	61	8.0	1.3	0.5
	H20.3	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
二つ寺橋	H19.5	1.8	63	230	260	240	160	62	7.5	0.9	0.6
	H20.3	1.6	40	160	280	390	310	160	27	2.4	0.7
松島	H21.3	1.7	23	88	160	130	110	39	9.4	2.0	1.1
森戸	H21.3	1.6	21	66	120	130	110	38	8.2	2.0	0.9
御経塚	H21.3	3.0	19	58	98	120	92	26	5.4	1.5	0.9

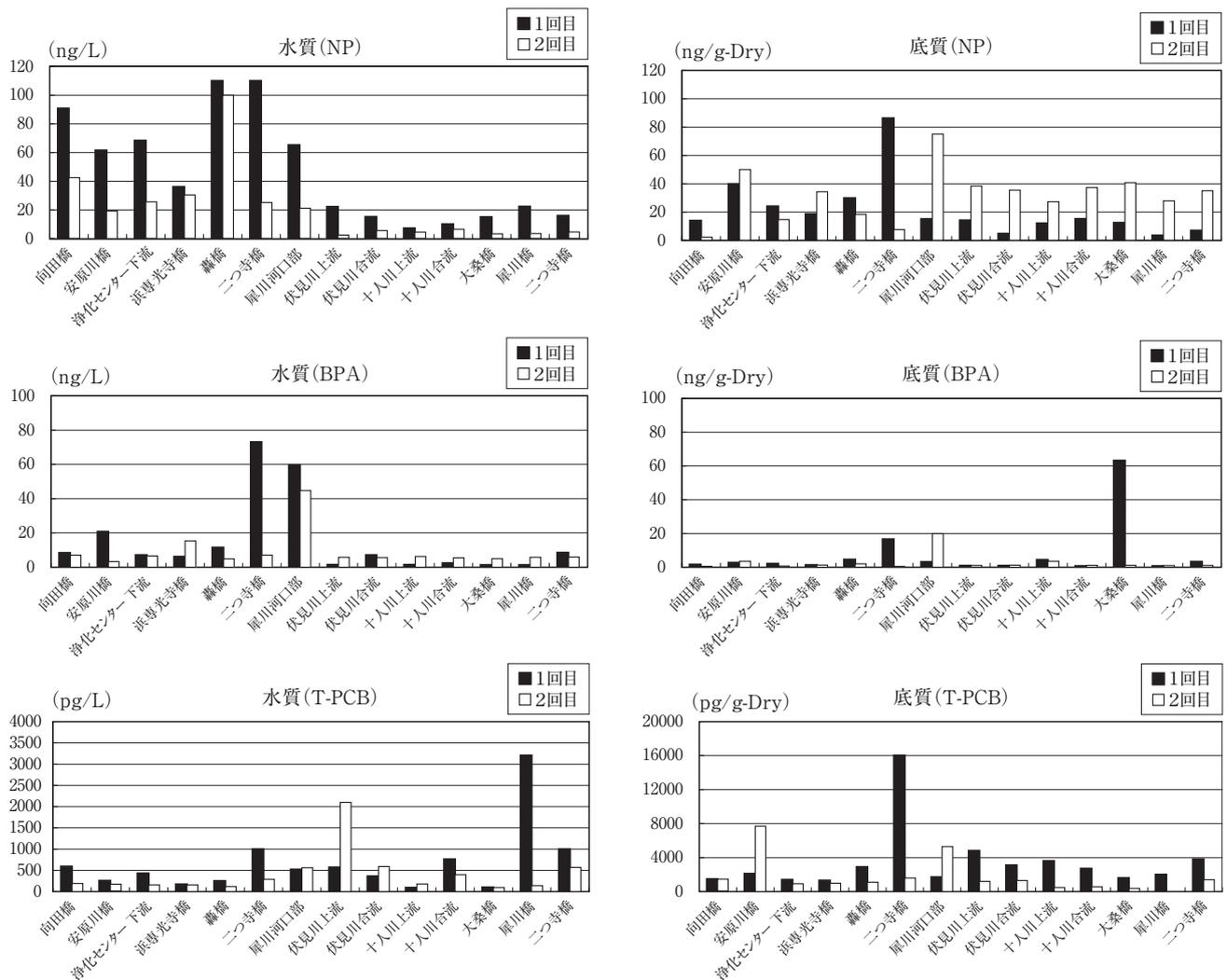


図2 各物質の採取回毎の濃度

表1-3 NP及びBPA濃度

採取地点名	採取年月	水質 (ng/L)		底質 (ng/g-Dry)	
		NP	BPA	NP	BPA
向田橋	H18.8	91	8.3	14	1.2
	H18.11	42	7.0	2.3	0.5
安原川橋	H18.8	62	21	40	2.7
	H18.11	20	3.2	50	3.5
浄化センター下流	H18.8	68	7.1	24	2.1
	H18.11	26	6.6	15	0.8
浜専光寺橋	H18.8	36	6.1	19	1.3
	H18.11	30	15	34	1.3
轟橋	H18.8	110	11	30	4.5
	H18.11	100	4.9	18	2.0
二つ寺橋	H18.8	110	73	86	17
	H18.11	25	7.1	7.7	0.4
犀川河口部	H18.8	65	60	15	3.1
	H18.11	21	45	75	20
伏見川上流	H19.5	22	1.5	14	0.9
	H20.3	2	5.9	38	1.0
伏見川合流	H19.5	15	7.1	4.8	0.9
	H20.3	5.6	5.6	35	1.2
十人川上流	H19.5	7.1	1.4	12	4.4
	H20.3	4.5	6.3	27	3.6
十人川合流	H19.5	10	2.3	15	0.6
	H20.3	6.5	5.4	37	1.1
大桑橋	H19.5	15	1.3	12	63
	H20.3	3.3	5.0	41	1.1
犀川橋	H19.5	22	1.3	3.5	0.6
	H20.3	3.5	5.7	28	0.9
二つ寺橋	H19.5	16	8.5	6.9	3.2
	H20.3	4.6	5.9	35	1.0
松島	H21.3	31	5.7	5.1	1.4
森戸	H21.3	50	5.4	4.7	1.6
御経塚	H21.3	31	5.9	7.7	2.6

表1-4 水生植物及び水質のNP、BPA及びPCB濃度

H18.11.採取

場所	部位	植物			水質		
		NP (ng/g-Dry)	BPA (ng/g-Dry)	PCB (pg/g-Dry)	NP (ng/L)	BPA (ng/L)	PCB (pg/L)
犀川河口	ススキ	10	1.4	930	21	45	560
	ススキ穂	95	11	1900			
二つ寺橋	ススキ	42	3.0	1400	25	7.1	290
	ススキ穂	41	8.5	1600			
向田橋	ススキ	3.3	2.3	340	42	7.0	190
	ススキ穂	11	4.5	1800			
安原川橋	ヨシ	15	3.1	2100	20	3.2	160
	ヨシ穂	67	4.9	3500			

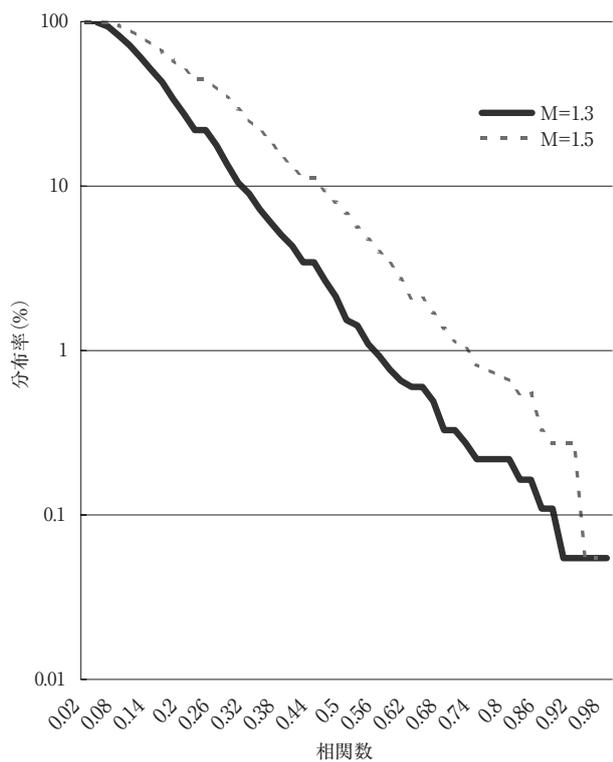


図3 相関数の分布

[資 料]

所内情報システムの再構築について

—環境に配慮したサーバーシステムの導入—

石川県保健環境センター 企画情報部 横山 暢

〔和文要旨〕

新システムでは、旧システムの14台のサーバー類を3台にダウンサイジングした。マイクロソフト社製のWINDOWSシステムでの新旧移行において、旧システムの大部分の機能を円滑に引き継ぐことができ、コストミニマムなプログラムの移植作業で新システムへの移行が完了して、2009年1月から本格的な運用を行った。ファイルサーバーは、二重化による電子文書類の安全確保、またセキュリティ確保のためのドメイン管理による方法を採用した。L2スイッチの導入により、既設LAN機材を有効に活用することが可能であった。新システムは、導入コストに加えて運用面でのコスト（電気料金及び二酸化炭素排出量）の削減が期待されている。

キーワード：ISO14001, PCサーバー, システム更新, 効率的なダウンサイジング

1 はじめに

石川県保健環境センター（以下、「センター」という。）では、2000年度からセンター内事務の効率化を目指して、各職員への一人一台パーソナルコンピューター（以下、「PC」という。）の配付とセンター内のLAN網の整備を行うとともに、ISO14001の認証取得¹⁾を契機に、環境活動にも適用できるコンピューターシステム（以下、「旧システム」という。）を構築した。この旧システムの構築及び運用実績等の成果は既報^{2)~8)}に詳述した。

2008年度に大幅なダウンサイジングと環境に配慮したコンピューターシステムに更新（以下、「新システム」という。）したので、その概要を報告する。

2 システム更新時の方法

2・1 更新時の課題

システム更新時の課題としては、システムのサーバー制御をWindows NT 4.0（以下、「NT」という。）からWindows Server 2003（以下、「Server2003」という。）に置き換えることによるものであり、ライセンス切れとなるグループウェア（iOffice V3, ネオジャパン社製）の

代替や旧システム用に開発したアプリケーションソフトウェアの移行等を検討する必要があった（表1）。

2・2 グループウェア

旧システムにおいてはグループウェアとしてiOffice V3を利用していましたが、将来の県グループウェア等への統合を前提に、Server2003対応製品へのバージョンアップとそのライセンス料について検討した結果、新システムでのServer2003対応製品へのバージョンアップを断念した。

以下に旧システムから引き継ぐグループウェアの機能と新システム上での代替措置を記した。

- (1) WEBメール機能
OUTLOOK EXPRESS
- (2) スケジュール管理
EXCELシートによるファイル共有
- (3) 出張伺い
紙文書による申請（申請様式をダウンロード）
- (4) 掲示板
ホームページ（所内ポータルサイト）へ統合
- (5) グループウェアポータルサイト
ホームページ（所内ポータルサイト）へ統合

The Reconstruction of the Office Intranet. - An Efficient Downsizing of the Server Computers to Environment-conscious Type. - by YOKOYAMA Mitsuru (Information Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : ISO14001, PC Servers, System Renewal , Energy Efficiency Downsizing

表1 センター内LAN網での機能比較

種類	区分	機能	旧システム	新システム
サービス	グループウェア	WEBメール機能	iOfficeV3の機能	OUTLOOK EXPRESS (県メールサーバー直接利用)
		スケジュール管理	iOfficeV3の機能	EXCELシートによるファイル共有
		出張伺い	iOfficeV3の機能	紙文書による申請
		掲示板	iOfficeV3の機能	簡易型のBBS
		グループウェアポータルサイト	iOfficeV3の機能	簡易型のWEB
		予定通知 (EMAIL)	iOfficeV3の機能	廃止
		電子会議室	iOfficeV3の機能	廃止
		電子回覧機能	iOfficeV3の機能	廃止
		iRキャビネット (FAX, PDF)	iOfficeV3の機能	廃止 (→コピー機からNASへ直接転送)
		管理者機能 (※カスタマイズ及び メンテナンス機能)	iOfficeV3の機能	廃止 (→管理者が対話形式で直接システムを編集)
アプリケーション		物品発注管理システム*	ASP, 職員独自開発	ASP, 左記を移植
		年休・時間外システム*	ASP, 職員独自開発	ASP, 左記を移植
		薬品管理システム** (毒劇物等管理システム)	委託開発	再委託再開発
ファイルサーバー	部単位のセンター内文書等管理	部単位のサーバーを設置 NT 8台	専用ファイルサーバー (NAS) による一元管理 1組 (2台) ※プライマリーNAS, セカンダリーNAS	
ドメイン管理	所内の利用ユーザー管理 (セキュリティ, アクセス制御)	マイクロソフト社製 Windows NT 4.0 SP6	マイクロソフト社製 Windows Server 2003	

* マイクロソフト社製 AccessMDB

** マイクロソフト社製 SQL Server (旧システム: 6.5, 新システム: 2005 standard) 及び帳票表示・印刷関連に ActiveX コンポーネント

その他予定通知等の機能は、廃止とした。

2・3 アプリケーション

旧システム用に開発したアプリケーションソフトウェアは以下の3本 (以下, 「3システム」という。) あり, これらすべてを新システムに移行することとした。

- (1) 物品発注管理システム
- (2) 年休・時間外システム
- (3) 毒劇物等管理システム

旧システム用に開発した3システムすべてが新システム上で正常に稼動することを確認した。

ただし, IISの設定及び付属するデータベース (DB) の設定, ネットワーク名等のLAN網に依存する設定並びに旧システム依存部分はあらかじめ書き直し部分を前もって準備し, 移行に係る操作はすべてServer2003上での対話処理 (GUI) により行うこととした。

2・4 ファイルサーバー

旧システムで各部に配置した8台のファイルサーバーを新システムでは専用のファイルサーバーであるNAS (1組 (2台), ネットワーク接続ストレージ, Network Attached Storage) に統合した。

今回採用したNASは, Server2003でのPC接続管理機能であるアクティブディレクトリー (AD) 対応とした。

ADとは, 接続するPCを制限し, グループ単位のセキュリティ・アクセス制御 (ドメイン管理) を提供するServer2003上のOS標準機能である。

2・5 ドメイン管理

PCにセキュリティ機能を持たせるドメイン管理は, Server2003で運用を行い, NAS (2台1組) をドメイン配下としてServer2003のアクセス制御を利用してファイル・フォルダーへのアクセス権限を持たせることとし, 共有文書等のファイル管理の安全性を高めることとした。

2・6 更新時の実施内容

(1) ファイルサーバー上の共有文書類・データを整理・縮減した。

重複ファイル・不要ファイル等を削除し, 容量を縮減した。

(2) ファイルサーバーをNASへ移行

NASへの過負荷状態を避けるよう, 順次計画的に各部・グループ単位で転送した。

(3) センター内メールサーバーの廃止

センター独自設置のメールサーバーとグループウェアが提供するWEBメール機能を廃止し、代わりに、県のメールサーバーを直接利用することとし、メールソフトは、OUTLOOK EXPRESSを活用することとした

(4) センター内プロクシーサーバーの廃止

ダウンサイジングを進める上でセンター独自設置のプロクシーサーバーを廃止し、PCから県のネットワークに直接接続する設定とした。

3 更新結果

3・1 システム構成

新旧両システムの構成比較を表2に示す。

旧システムでは14台あったサーバーが新システムでは3台に統合されており、特にファイルサーバーの2重化と、アプリケーションサーバーの集約一元化により、管理面でのサポートが容易になった。

3・2 サーバー

アプリケーションサーバーには、Intel社製のCPU (Xeon, プロセッサー45nm品) を採用したDell社製のサーバーを採用した。製品ライン(シリーズ)の選択には、電力効率を勘案し、低クロック品 (1.6GHz) のクアッドコアを、HDD (ハードディスク) は障害に強いと言われるRAID5構成とした。また、OSには、NTからの上位互換性のあるServer2003を選択した。

さらに、ファイルサーバーについては、BUFFALO社

表2 コンピューターシステムの新・旧比較

種類	区分	旧システム	新システム
システム	ハードウェア	サーバー 富士通社製 P III Xeon 1GHz x 2 RAID5 72GB 他 3台 (計4台)	サーバー Dell社製 1900シリーズ Xeon X3310 1.6GHz RAID5 500GB 1台
		プロクシーサーバー,メールサーバー P III 866MHz 各1台 (2台)	—
		ファイルサーバー 富士通社製 FMV P III 750MHz 8台	ファイルサーバー BUFFALO社製 NAS (専用機) 1組 (2台) TS-HTGL/R5 RAID1 1TB ファームウェア v1.33
		合計 14台 ※100Mbit対応機種	合計 3台 ※ギガビット対応機種
ソフトウェア (OS)		マイクロソフト社製 Windows NT 6 SP6 Workstation / Server	マイクロソフト社製 Windows Server 2003
IIS (OS付属)		IIS4 ASP バージョン4.0	IIS6 ASP バージョン6.0
	(インターネット インフォメーション サービス)		
拡張サービス		BASP21 DLL** ※IIS4拡張DLL メール送信モジュールのみ利用	BASP21 Pro** ※IIS6拡張DLL 同左
ネットワーク (所内網)		富士通社製 100/10Mbit HUB (複数機種・シリーズ) 他 CISCO, アライドテレシス社製など	同左
	(基幹HUB*)	—	BUFFALO社製 BS-G2024MR (ギガビット対応L2スイッチ) ファームウェア v4.0.1.3

※基幹HUB*は、ルータ直下にある根元のHUBであり、これを經由し、センター内LAN網に接続している。

※BASP21** : B21Soft社製 (DLL版はフリーウェア, Pro版は有償ソフトウェア)

DLL版 平成20年12月現在 公式HP (<http://www.hi-ho.ne.jp/babaq/basp21.html>)

Pro版 平成20年12月現在 公式HP (<http://www.b21soft.co.jp/basp21/>)

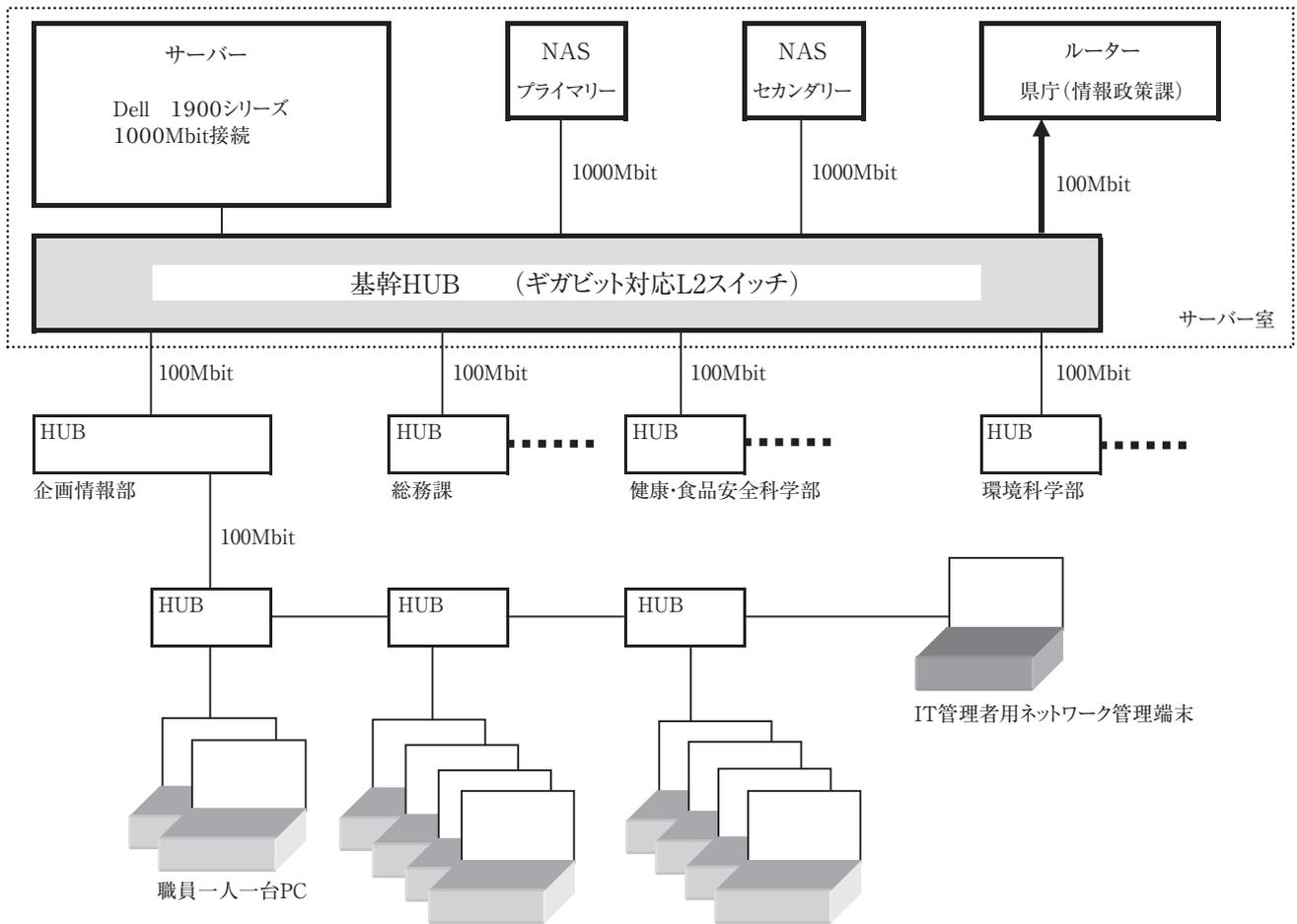


図1 センター内LAN網構成図 (概略)

製のNAS (TeraStation PRO) をRAID 1構成 (同一容量のハードディスク 2台で内容を2重化することで信頼性の高める技術) での2台一組として構築し、データのバックアップ体制をとった。

自動バックアップ機能により、定期的 (毎日 [増分バックアップ処理], 毎日曜日 [差分バックアップ処理]) にファイルをバックアップするとともに、ファイルサーバーを2重化することで、より安全性を高めた。

NASは通常のサーバーと比較して多機能ではないが、対話操作により、比較的熟練を要しない職員でも保守することが可能であった。

3・3 ネットワーク機器接続

サーバーは基幹HUBであるL2スイッチ (レイヤー2インテリジェントスイッチ) を経由して、既存のセンター内のLAN網 (以下、「LAN網」という。) に接続した (図1)。

L2スイッチ上で、QoSパケットスケジューラー (計画的な転送最小単位での帯域制御機構) を有効化し、ネットワーク品質の均一化を図った。

ネットワーク回線の優先順位決定を指定する方式には、LAN網において最も効果的にTCP及びUDP通信 (イ

ンターネットの通信標準方式) が行えるToS (Type of Service, QoS制御方法の1つの呼称) を採用した。

4 考 察

(1) 性能評価 (ベンチマーク) 結果

最も負荷のかかる物品発注管理システムの簡易集計機能についてのベンチマーク結果については、新システムが旧システムに比べ、

- ア 単純集計 … 2.3倍高速 (12秒で結果を表示)
- イ クロス集計 … 2.3倍高速 (18秒で結果を表示)
- ウ エクセルへのデータインポート … 6倍高速
- エ 単純な画面表示 … 6倍高速

となり、大幅な速度向上が認められた。

また、PCとサーバー間で数値による速度評価が可能になったことから、HUB単位での転送状態を把握でき、センター内LAN網本来の性能を十分に引き出すことができた。

(2) L2スイッチの導入

L2スイッチは、送受信パケット数 (トラフィック) の視覚化などサーバー管理者が容易に管理可能な点を重視して、比較的高価格ではあるが高機能であり、採用に至っ

表3 L2スイッチと既設HUBとの機能比較表

項目	比較 例示	LAN網内の既設HUB (通称：ダムハブ)	L2スイッチ BUFFALO社製 BS-G2024MR	備考
一般機能	LANインターフェース	100/10Mbit 最高100Mbit/secまで対応	1000/100/10Mbit対応 1000Mbit接続ポートは、 他の接続ポート（100Mbit） への転送で合計1000Mbit/ secまで対応（送受信共）	既存100MbitLAN網に接続可能
	操作インターフェース	なし（手動ディプスイッチによる手動設定）	IE6によるウェブインターフェース	ウェブによる容易なシステム管理が可能
	半二重・全二重接続 (100/10Mbit)	自動若しくは手動 自動の場合に意図しない半二重接続あり	自動若しくは手動（WEB設定） 1000Mbitは全二重のみ	半二重状態を容易には判別出来ない*
	パケット転送方式	ストア&フォワード（フロー制御）	ストア&フォワード若しくはQoS ポート単位でのQoS対応 高度な制御が可能（パケットの交通整理機能）	ToS（QoS）を選択 サーバー・NAS・ルーター優先設定
特殊機能	エラー検出	なし（エラーのあるパケットでもHUB間を流れる）	チェックサム確認後にL2スイッチ内で廃棄する エラーパケット数を送受信別で表示確認可能 自動的に該当ポートを一時的に切り離し可能	無駄なトラフィックの削減 問題のあるHUBの早期の特定可能 無限ループの防止
	ループ検出	なし	あり（最大9,216バイト）**	
	ジャンボフレーム	なし	あり（ポートへの入力側のみ）	送受信の高速化・効率化 特定の接続機器のみ接続可能
	MACアドレスフィルタリング	なし		
	ファームウェア更新機能	なし	あり	最新版を利用可能（不具合対処可能）
	設定値保存・更新機能	なし	あり	設定値保存可（更新前に戻すことが可能）
	SYSLOG機能	なし	あり	ログを採取することが可能
	NTPクライアント機能	なし	あり	サーバーとの時刻同期可能

※L2スイッチは法人向け製品であり、多機能ではあるが、家庭用のHUBと比較して高価である

* 利用者とサーバー間の速度を、トップページ表示に係る時間を測定する方法（ベンチマークテスト）で、所内にあるHUBの点検を行った。LAN管理上の問題点の1つにLAN網内のHUB（一部）の半二重接続による速度低下があった。ベンチマーク結果から該当するHUBを特定し、手動設定により全二重接続とし、接続PCとサーバー間の全てのHUBで100Mbit全二重通信による動作の確認を行った。

** 接続するServer2003及びNAS（1組）に接続するポートのみをジャンボフレーム有効として設定した。

た（表3）。

さらに、廃棄パケット及びエラーパケットの情報をインターネットエクスプローラー（IE6、ウェブブラウザ）により容易に得ることができ、LAN網を正常稼働させることに大きく貢献するとともに、ネット間のエラー情報を容易に得ることができるため、LAN網の健全性及び信頼性の確保が図られた。

（3）ダウンサイジング（効率的な集約化）消費電力の削減効果

旧システム（14台のサーバー）全体の消費電力（カタログ値から推定）1,000Whに対し、新システム（NASを含む3台のサーバー）では126Whと、約87%の消費電力

の削減が期待される。

（4）プログラム上位互換性の確保

旧システムでは、NT上のインターネットインフォメーションサービスで提供されたマイクロソフト社のアクティブサーバーページ（ASP）言語を採用していたため、新システムでのServer2003において、3システムはすべて、コンパイル及びコンバートなしに新システム上で稼働した。

プログラム上位互換性の確保は、システムの導入時において行った重要な選択のひとつであり、システム更新にあたり、Server2003を選択したことが人的コスト・導入コストの削減に繋がった。

5 ま と め

新システムへの移行は2009年1月までに円滑に進捗し、計画どおり運用稼働に至った。

- (1) 新システム構成の特徴は、3台のサーバーで運用が可能な点及び操作及び管理の集約によるシステム全体の簡略化が図られたことである。
- (2) ファイルサーバーのNASはRAID1構成での2台1組として確実なデータのバックアップ体制が図られた。また、NASはPC上のブラウザでの対話操作により、サーバー技術の熟練を要しない職員でも保守することができる。
- (3) アプリケーションサーバーのOSには、上位互換性があるServer2003を採用した。このプログラム上位互換性は、新システム構築に際して、人的コストと導入コストの削減が図られた。
- (4) 旧システム上の3システムはすべて新システム上でも正常に稼働した。
- (5) 旧システムのグループウェア機能のうち新システムでも必要とされた機能については、OUTLOOK EXPRESSと EXCELシートの利用及びホームページによる代替措置を図った。

文 献

- 1) 竹野裕治, 加藤充哉: 環境マネジメントシステム (ISO14001) の取組みと効果, 石川県保健環境センター研究報告書, **37**, 96-104 (2000)
- 2) 宮川茂樹: ISO14001の取組みを通して職員一丸で作り上げていく情報化, 月刊 LASDEC, (財) 地方自治情報センター, **32**, 28-33 (2002)
- 3) 横山 暢, 大西孝司, 宮川茂樹: 石川県保健環境センターにおける各職員による報告書記録システムのIT化について, 石川県保健環境センター研究報告書, **41**, 19-22 (2004)
- 4) 初瀬 裕, 瀬戸正行, 竹野裕治, 砺波和子, 塚林裕: 毒劇物等管理システムの構築について, 同上誌, **42**, 64-68 (2005)
- 5) 横山 暢: ISO14001に対応した電子物品発注管理システムの構築, 同上誌, **42**, 1-6 (2005)
- 6) 横山 暢: ISO14001に対応した電子物品発注管理システムの構築 (第2報), 同上誌, **43**, 1-6 (2006)
- 7) 横山 暢: 電子化による物品発注管理システムの運用状況, 同上誌, **43**, 43-46 (2006)
- 8) 横山 暢: ISO14001に対応した電子物品発注管理システムの構築 (第3報), 同上誌, **44**, 1-3 (2007)

〔資 料〕

海水中の腸炎ビブリオ挙動調査結果について

— 平成20年度結果及び過去4年間のまとめ —

石川県保健環境センター 健康・食品安全科学部 橋本喜代一・北川恵美子・本庄 峰夫
 石川県石川中央保健福祉センター 谷村 睦美・山田 恵子
 石川県能登中部保健福祉センター 久堂 妙子
 石川県能登北部保健福祉センター 山下千鶴子

〔和文要旨〕

腸炎ビブリオ食中毒の多発を受けて、原因となる腸炎ビブリオ（病原因子保有株）の海水中における分布状況と食中毒発生との関連性を明らかにし食中毒予防対策に資するため、海水中の腸炎ビブリオの挙動調査を行った。

平成17年度から20年度までの4年間、県内3カ所の採水地点で採水した海水の海水温、塩分濃度、腸炎ビブリオ菌数および腸炎ビブリオ病原因子の検出状況について調査を行った。海水温、塩分濃度、腸炎ビブリオ菌数については4年間あまり大きな変動もなく推移したが、腸炎ビブリオ病原因子の検出状況については、地点や年度で変動が見られた。しかし、調査期間中、腸炎ビブリオによる食中毒の発生がなかったことから、腸炎ビブリオ（病原因子保有株）と食中毒発生の関連性を明らかにすることはできなかった。なお、この調査結果を毎週県のホームページに掲載することにより、腸炎ビブリオによる食中毒発生に対する注意を県民に呼び掛けた。

キーワード：腸炎ビブリオ、耐熱性溶血毒（TDH）、耐熱性溶血毒類似毒（TRH）

1 はじめに

魚介類やその加工品を介して発生する腸炎ビブリオ食中毒は、海水温の上昇する夏季に多発している。本県では、平成16年の腸炎ビブリオ食中毒の多発を受けて、17年度から20年度までの4年間、保健福祉センター、保健環境センター、県薬事衛生課で役割を分担して海水中の腸炎ビブリオの挙動調査を行った。平成20年度の調査結果および過去4年間の結果のまとめについて報告する。

2 材料と方法

2・1 採水地点及び採水日

（1）採水地点

能登地区2地点（A地点：輪島市河原田川河口、B地点：七尾市鵜浦海岸）加賀地区1地点（C地点：白山市石立海岸）の計3地点を採水地点として定めた。

（2）採水日

7月第1週から10月第1週の毎週月曜日を採水日として定めた。

Survey Data of *Vibrio Parahaemolyticus* in Seawater. (2008, 2005–2008) by HASHIMOTO Kiyokazu, KITAGAWA Emiko, HONZYO Mineo (Health and Food Safety Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science), TANIMURA Mutsumi, YAMADA Keiko (Ishikawa Chuo Health and Welfare Center of Ishikawa Prefecture), KYUDOH Taeko (Noto Chubu Health and Welfare Center of Ishikawa Prefecture) and YAMASHITA Chizuko (Noto Hokubu Health and Welfare Center of Ishikawa Prefecture)

Key words : *Vibrio parahaemolyticus*, Thermostable direct hemolysin, TDH-Related hemolysin

2・2 保健福祉センター、保健環境センター、県薬事生課の役割

(1) 保健福祉センター

採水ならびに気温、海水温、塩分濃度の測定、および海水の濃縮と腸炎ビブリオの菌数測定を行った。

(2) 保健環境センター

保健福祉センターより送付された濃縮海水から腸炎ビブリオの病原因子である耐熱性溶血毒 (Thermostable Direct Hemolysin; TDH) と、易熱性の耐熱性溶血毒類似毒 (TDH-Related Hemolysin; TRH) の産生遺伝子の検出を行った。

(3) 県薬事衛生課

県のホームページ「食の安全・安心情報」中の「腸炎ビブリオによる食中毒を防止するために」に、腸炎ビブリオ挙動調査として毎週掲載し食中毒への注意喚起広報を行った。

2・3 検査方法

(1) 腸炎ビブリオの菌数測定方法

佐々木ら¹⁾の方法に準じて、海水10Lを孔径0.45 μ mのメンブランフィルターで吸引濾過し、フィルターを3% NaCl加リン酸緩衝液10mL中でストマッキングし、1,000倍濃縮後、2% NaCl加アルカリペプトン水3管法による最確数 (MPN) 法により測定した。

(2) 病原因子の検出方法

佐々木ら¹⁾の方法により行った。また、TDH産生遺伝子 (以下「*tdh*」という。) の検出には、丸山ら²⁾の報告したプライマーを、TRH産生遺伝子 (以下「*trh*」という。) の検出については西沢ら³⁾の報告したプライマーを用いた。なお、PCR等の条件はすでに石川県保健環境センター研究報告書^{4) 5)}で報告したとおりである。

3 結果および考察

3・1 平成20年度の調査結果

(1) 気温、海水温および塩分濃度

A, B, C地点の気温、海水温および塩分濃度を図1～3に示した。気温については3地点とも20℃～35℃前後で推移し、また海水温についても20℃～30℃で推移し、

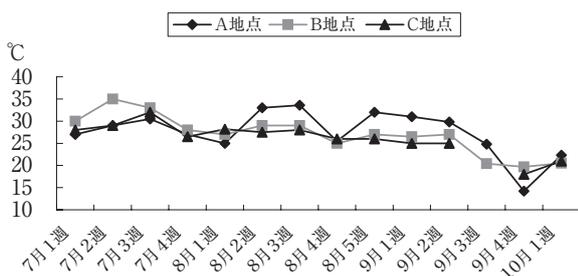


図1 気温 (平成20年度)

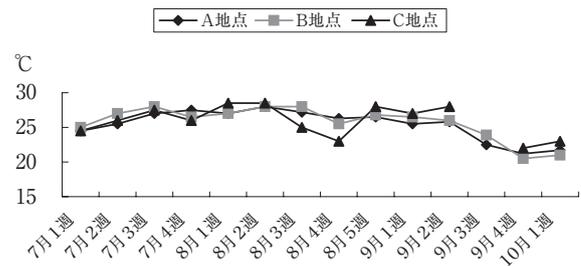


図2 海水温 (平成20年度)

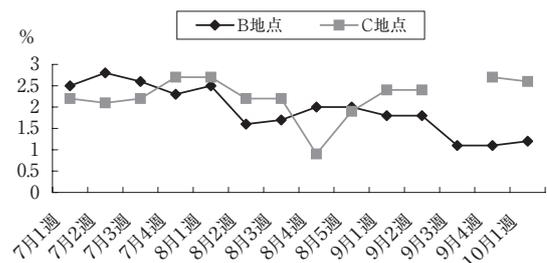


図3 塩分濃度 (平成20年度)

調査期間を通して3地点で差はみられなかった。塩分濃度については、A地点の塩分濃度測定機器が故障したため正確なデータが得られず、今年度の調査データから削除した。B地点の調査期間中の平均塩分濃度は1.9%で、C地点の平均塩分濃度は2.2%であった。なお、C地点の9月第3週は悪天候のため採水できず、図1～3の成績は欠如している。

(2) 腸炎ビブリオ菌数

腸炎ビブリオ菌数は、B地点、C地点では調査期間を通して $10^1 \sim 10^3$ MPN/Lの範囲で推移した。A地点では7月第2週に 10^4 MPN/Lと一時的であるが高値を示したが、その後 $10^2 \sim 10^3$ MPN/Lの範囲で推移し、B、C地点より全体に高い値を示した (図4)。なお、C地点の9月第3週は悪天候のため採水できず図4の成績は欠如している。

(3) *tdh*および*trh*の検出状況

各地点ごとの*tdh*および*trh*の検出状況を腸炎ビブリ

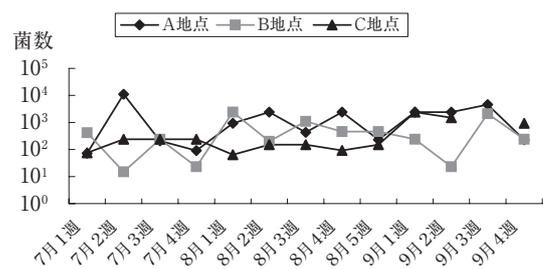


図4 腸炎ビブリオ菌数

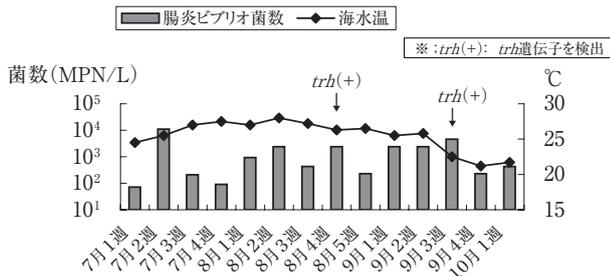


図5 A地点の海水中の腸炎ビブリオ菌数と海水温 (平成20年度)

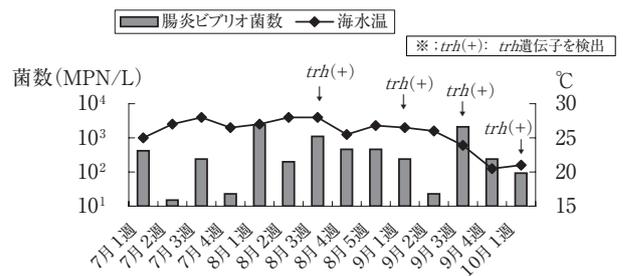


図6 B地点の海水中の腸炎ビブリオ菌数と海水温 (平成20年度)

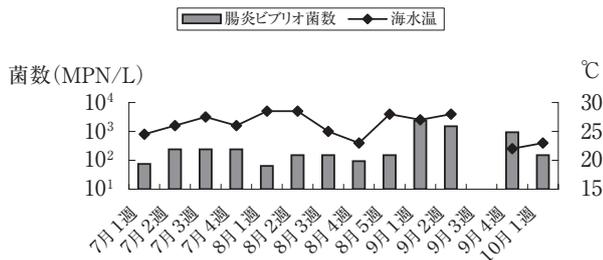


図7 C地点の海水中の腸炎ビブリオ菌数と海水温 (平成20年度)

菌数、海水温とともに図5～7で示した。調査期間中 *tdh* は3地点何れからも検出されなかったが、*trh* については、A地点で8月第4週と9月第3週の2回、(検出率14.2%；14回検査のうち2回検出)、B地点では8月第3週、9月第1週、9月第3週、10月第1週の計4回、(検出率28.6%；14回検査のうち4回検出) 検出された。また、C地点では、調査期間中全く検出されなかった。なお、C地点の9月第3週は悪天候のため採水できず図7の成績は欠如している。

3・2 平成17年度～20年度の調査結果

(1) 腸炎ビブリオ菌数

調査開始の平成17年度から20年度までの4年間の3地点における腸炎ビブリオの平均菌数を図8に示した。

各地点の平均菌数をみるとB地点、C地点では7月～10月を通して 10^3 MPN/L前後で推移し、A地点では8月

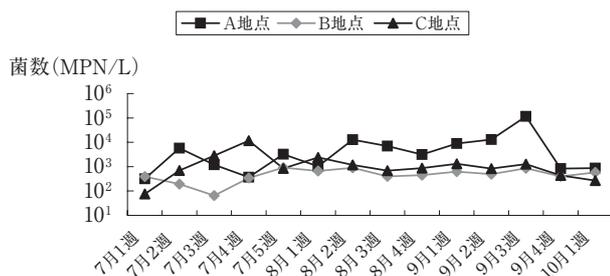


図8 平成17～20年度の3地点における腸炎ビブリオの平均菌数

第4週から9月第3週にかけて菌数が上昇し、9月第3週では120,000MPN/Lまで増加した。腸炎ビブリオは沿岸海域、特に汽水域に生息しており、A地点が河口で汽水域であるため、他の2地点に比べ高値を示したものと考えられる。

(2) *tdh* および *trh* の検出状況

4年間の *tdh* および *trh* の検出状況を表1、表2に示した。

tdh は平成18年度のA地点で検出率が最も高く35.7%(14回検査のうち5回検出)で、4年間の平均でも12.5%(56回検査のうち7回検出)と3地点中最も高かった。なお、B地点では4年間全く検出されなかった。

一方、*trh* の検出率は、特にB地点で高く50.0%(56回検査のうち28回検出)、またA地点では19.6%(56回検査のうち11回検出)、C地点では8.9%(56回検査のうち5回検出)であった。

3地点における4年間の総検査回数に対する *tdh* および *trh* の検出率をみると、*tdh* は6.5%、*trh* は26.2%であり、*trh* の検出率は *tdh* の検出率の約4倍であった。

腸炎ビブリオ食中毒の原因はほとんどがTDH産生菌であることから、*tdh* の検出率(TDH産生菌の検出率)と食中毒発生とは関連性があると考えられる。しかし、今回の調査結果では、*tdh* の検出率が高い地点や年度で食中毒が全く発生しなかったことから両者の関連性は認められなかった。なお、両者の関連性を明らかにするためには、調査の場所や回数を増やすとともに、海水のほか海泥や魚介類等を対象に詳細な検討が必要であると思われる。

また、*trh* の検出率は *tdh* と比べて、かなり高率であったが、すべての *trh* 保有株(TRH産生菌)が食中毒の起因为菌となりうるのか等まだ不明な点も多く、今後の課題である。

(3) 腸炎ビブリオ菌数と *tdh* および *trh* の検出状況

腸炎ビブリオ菌数と *tdh* および *trh* の検出状況の相関を表3に示したが、腸炎ビブリオ菌数と両遺伝子の検出回数についての関連性はみられなかった。また、腸炎ビ

表1 年度別・地点別 *tdh* 遺伝子の検出状況 (平成17年度~20年度)

年度	検査回数	A地点		B地点		C地点		計	
		検出回数	検出率	検出回数	検出率	検出回数	検出率	検出回数	検出率
17年度	14	1	7.1%	0	0%	2	12.5%	3	7.1%
18年度	14	5	35.7%	0	0%	2	14.3%	7	16.7%
19年度	14	1	7.1%	0	0%	0	0%	1	2.4%
20年度	14	0	0%	0	0%	0	0%	0	0%
計	56	7	12.5%	0	0%	4	7.1%	11	6.5%

表2 年度別・地点別 *trh* 遺伝子の検出状況 (平成17年度~20年度)

年度	検査回数	A地点		B地点		C地点		計	
		検出回数	検出率	検出回数	検出率	検出回数	検出率	検出回数	検出率
17年度	14	3	21.4%	9	64.3%	2	14.3%	14	33.3%
18年度	14	4	28.6%	6	42.9%	2	14.3%	12	28.6%
19年度	14	2	14.3%	9	64.3%	1	7.1%	12	28.6%
20年度	14	2	14.3%	4	28.6%	0	0%	6	14.3%
計	56	11	19.6%	28	50.0%	5	8.9%	44	26.2%

表3 腸炎ビブリオ菌数と病原遺伝子の検出率との相関 (平成17年度~20年度)

菌数 ※1		<i>tdh</i> ※2		<i>trh</i> ※3	
(MPN/L)	検出回数	検出回数	検出率	検出回数	検出率
10 ⁰ ~	21	3	14.3%	6	28.6%
10 ¹ ~	32	0	0%	12	37.5%
10 ² ~	58	2	3.4%	9	15.5%
10 ³ ~	46	4	8.7%	13	28.3%
10 ⁴ ~	10	2	20.0%	4	40.0%
10 ⁵ ~	1	0	0%	0	0%
計	168	11	6.5%	44	26.2%

※1：3地点における4年間の腸炎ビブリオ菌数の測定結果をまとめた。

※2：3地点における4年間の *tdh* 遺伝子の検出結果をまとめた。

※3：3地点における4年間の *trh* 遺伝子の検出結果をまとめた。

ブリオ菌数と海水温との関係についても相関はみられなかった。

なお、本調査結果から、海水中の *tdh* および *trh* 保有株の分布状況は、海域（沿岸海域、汽水域等）、季節および採水時の天候等によって大きく異なることが考えられ、今後も詳細な調査を実施する必要がある。

一方、近年全国的に腸炎ビブリオ食中毒が減少しているが、その理由として、海水中の病原因子保有株の分布状況による影響よりも、むしろ行政による魚市場の業者や調理人に対する「魚介類は滅菌水や真水でよく洗浄する」という衛生指導⁷⁾ が効果をあげているのかも分からない。因みに、石川県では平成16年に本食中毒が11件発生したが、以後は全く発生していない。

4 ま と め

(1) 平成20年度の調査結果では、腸炎ビブリオ菌数はA地点が他の2地点よりやや高い傾向を示した。また、腸炎ビブリオ病原因子である *tdh* については3地点いずれも検出されず、*trh* については、調査期間中A地点で2回、B地点で4回検出された。

(2) 過去4年間の腸炎ビブリオ菌数の平均値を地点別にみると、A地点が他の2地点

よりやや高い傾向を示した。腸炎ビブリオ病原因子である *tdh* の検出率はA地点で最も高く、次いでC地点であり、B地点では4年間全く検出されなかった。一方、*trh* の検出率は、B地点で最も高く、次いでA、C地点の順であった。4年間の総検査回数に対する *trh* および *tdh* の検出率は *trh* が *tdh* の約4倍であった。また、腸炎ビブリオ菌数と *tdh*、*trh* の検出状況には相関性はみられなかった。

調査期間中、腸炎ビブリオによる食中毒の発生がなかったため、*tdh* および *trh* の検出状況と食中毒発生との関連性を明らかにすることはできなかった。

(3) 本調査結果は、毎週県ホームページに掲載し、県民に対し食中毒への注意喚起の広報に活用した。

文 献

- 1) 佐々木寿子, 加藤美和子, 白幡祐子, 寺澤宏司, 不二崎順二: 食品および環境からのTDH, TRH産生腸炎ビブリオの分離および分離株の解析, 新潟県保健環境科学研究所年報, **19**, 63-69 (2004)
- 2) 丸山智子, 川瀬雅雄, 紫竹美和子, 大野祥子, 不二崎順二, 寺尾通徳: 海産魚介類における腸炎ビブリオの汚染状況と耐熱性溶血毒遺伝子検出用プライマーの検討, 同上誌, **15**, 78-82 (2000)
- 3) 西渕光昭, 竹田美文, 多田 淳, 大橋鉄雄, 西村直行, 尾崎博子, 福島 繁: PCRによる腸炎ビブリオの耐熱性溶血毒遺伝子および類似毒素遺伝子の検出法, 日本臨床1992年特別号, **50**, 348-352 (1992)
- 4) 山田恵子, 児玉洋江, 倉本早苗, 戌亥一朗, 谷村睦美, 北村孝子, 本庄峰夫, 廣坂ますみ, 高岡菊江, 橋本喜代一, 山下千鶴子, 久堂妙子: 海水中の腸炎ビブリオ挙動調査結果について (平成17年度), 石川県保健環境センター研究報告書, **43**, 121-124 (2006)
- 5) 新川晶子, 児玉洋江, 山田恵子, 高岡菊江, 芹川俊彦, 谷村睦美, 本庄峰夫, 久堂妙子, 廣坂ますみ, 山下千鶴子, 橋本喜代一: 海水中の腸炎ビブリオ挙動調査結果について (平成18年度), 同上誌, **44**, 75-78 (2007)
- 6) 本庄峰夫, 新川晶子, 児玉洋江, 芹川俊彦, 谷村睦美, 山田恵子, 久堂妙子, 廣坂ますみ, 山下千鶴子, 橋本喜代一: 海水中の腸炎ビブリオ挙動調査結果について (平成19年度), 同上誌, **45**, 92-95 (2008)
- 7) 食品衛生法 (昭和22年12月24日法律第233号) 第7条第1項及び第10条の規定に基き定められた食品, 添加物等の規格基準 (昭和34年12月28日厚生省告示第370号) - 第1食品-D各条-生食用鮮魚介類-2生食用鮮魚介類の加工基準及び3生食用鮮魚介類の保存基準

[資 料]

石川県におけるインフルエンザ流行状況

— 2008/2009シーズン —

石川県保健環境センター 健康・食品安全科学部 倉本 早苗・児玉 洋江・尾西 一

[和文要旨]

2008/09シーズンの石川県におけるインフルエンザの流行状況は、集団かぜ患者報告ならびに感染症発生動向調査のインフルエンザ患者報告において過去4シーズンにはみられない2峰性を示し、流行規模は、2004/05シーズンに次ぐ大きさであった。一方、インフルエンザ様患者150人から分離されたインフルエンザウイルスは133株で、その内訳はAソ連型が53.4%、A香港型が19.5%、B型が27.1%であった。また、次シーズンのワクチン株選定のためのデータを得ることを目的に分離株の抗原性状を調べた結果、Aソ連型については約3割がワクチン株に対して変異株であったが、A香港型は大半がワクチン株と類似株であった。B型は全株がワクチン株と比べ大きく変異しており、参照株とわずかに反応したが、その抗原性は参照株とも異なる株が大半を占めた。

キーワード：インフルエンザウイルス

1 はじめに

インフルエンザウイルスの分離および抗原解析は、以前は感染症流行予測調査事業の感染源調査として実施していたが、1981年の感染症発生動向調査事業の開始に伴い、以後これに基づき実施されることとなった。当センターでは、これらの事業に基づき石川県におけるインフルエンザウイルスの検査を実施してきた。なお、ウイルスの分離状況ならびに抗原解析等の検査結果は国に提供し、次シーズンのワクチン株選定の参考資料として活用されている。

本報では、2008/09（今シーズン）の当県におけるインフルエンザの流行状況と、分離ウイルスの抗原性状について報告する。なお、本報における集計は全て平成21年第24週（6月8日～14日）までとした。

2 材料と方法

2・1 患者発生状況

(1) 集団かぜ患者発生状況

県健康推進課が実施している、学校を対象とした「集

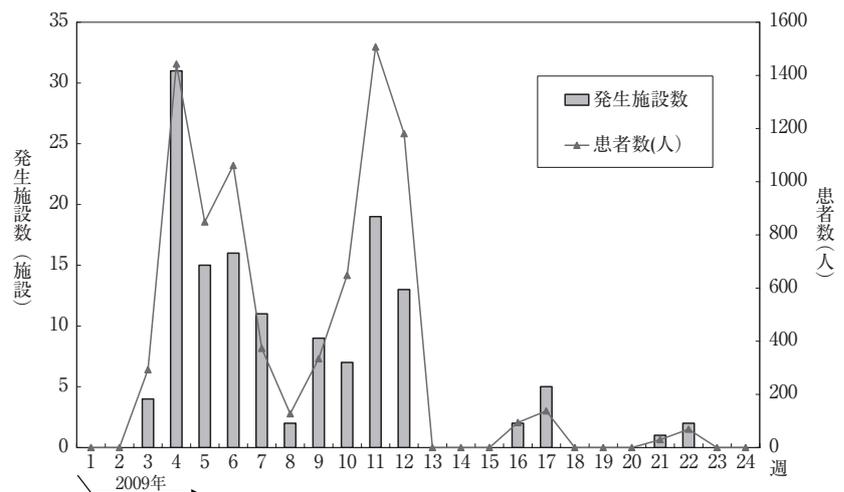


図1 集団かぜ発生状況 (週別)

Prevalence of Influenza during 2008–2009 in Ishikawa. by KURAMOTO Sanae, KODAMA Hiroe and ONISHI Hajime (Health and Food Safety Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Influenza Virus

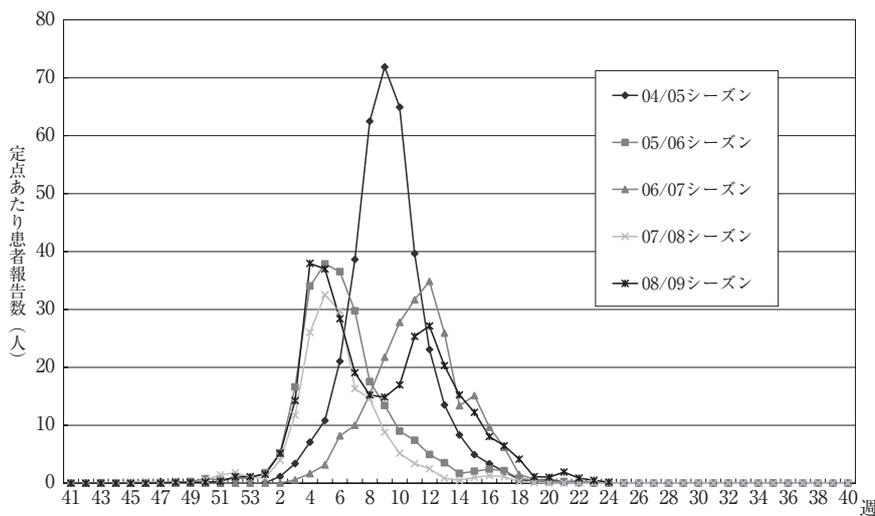


図2 感染症発生動向調査におけるインフルエンザ患者発生状況 (週別)

団かぜ発生状況報告」により把握した。

(2) インフルエンザ患者発生状況

感染症発生動向調査の、県内48定点医療機関(インフルエンザ定点19, 小児科定点29)における、インフルエンザ患者報告数で把握した。

2・2 ウイルス検査

(1) インフルエンザウイルス分離

患者の咽頭ぬぐい液または鼻汁を検体として、トリプシン添加MDCK細胞を用いて実施した。

(2) 分離ウイルスの型別とHA抗原性状

国立感染症研究所より分与された今シーズン抗原解析キットの感染フェレット抗血清と0.5%モルモット赤血球を用いて、赤血球凝集抑制(Hemagglutination inhibition: HI)試験により、型別および赤血球凝集素(Hemagglutinin: HA)の抗原性状を解析した。

なお、今シーズン抗原解析キットで使用されたウイルス株は、平成20年度ワクチン株ウイルスのA/Brisbane/59/2007(H1N1:Aソ連型), A/Uruguay/716/2007(H3N2:A香港型), B/Brisbane/3/2007(Victoria系統株)および参照株ウイルスB/Malaysia/2506/2004(山形系統株)の計4株であった。

3 結果と考察

3・1 患者発生状況

(1) 集団かぜ患者発生状況

「集団かぜ発生状況報告」によると、今シーズンの集団かぜは、平成21年第3週(1月13日)に河北郡の1施設(小学校)で初めて発生し、その後の発生状況は2峰性を示した(図1)。最初のピークは初発の翌週の第4週(1月19日~25日)で、31施設(患者数1,443人)の発生があり、以後減少し第8週(2月16日~22日)には

そのまま終息するかに思われた。しかし、その後再び増加に転じ、2度目のピークは第11週(3月9日~15日)で、第13週から15週(3月23日~4月12日)の春休み期間後、少数ながら断続的に発生し、第22週(5月25日~31日)の2施設における発生が本集計期間の最後であった。第24週までの今シーズンの発生は合計137施設、8,147人に達し、昨シーズン(2007/08)の129施設、9,021人に比べ患者数は若干少ない傾向にあった。

(2) インフルエンザ患者発生状況

感染症発生動向調査のインフル

エンザ患者報告は、平成20年第47週(11月16日~22日)にはじまり、定点あたり患者数が1.0人を超えたのは第52週(1.2人)であった。また、その後の患者報告数の状況は集団かぜの場合と同様に2峰性を示した(図2)。最初の患者報告数のピークは、平成21年第3週(1月12日~18日)であり、この週の定点あたり患者報告数は38.0人であった。その後第9週(2月23日~3月1日)には定点あたりの患者報告数は14.9人にまで減少したが、以後再び増加し2度目のピークは第12週(3月16日~22日)で定点あたり患者報告数は27.2人であった。その後、段階的に患者報告数は減少し、集計最終週の第24週(6月8日~14日)には定点あたり患者報告数は0.2人にまで減少した。ちなみに、4月後半からメキシコなどを中心にブタ由来のA/H1N1による新型インフルエンザの発生があり、5月16日(第20週)には国内1例目の患者が確認されたが、第21週(5月18日~24日)に微少な増加がみられたのは、新型インフルエンザ感染の不安から受診した患者によるものと思われた。

今シーズンの2峰性を示す流行は、過去4シーズンにはみられない珍しいものであった。また、流行の規模は、昨シーズンのピーク時における定点あたり患者報告数の32.5人とほぼ同程度であったが、今シーズンの累積患者報告数は15,178人であり、過去4シーズン(2004/05: 18,208人, 2005/06: 10,975人, 2006/07: 10,975人, 2007/08: 8,020人)と比較すると、大規模流行であった2004/05シーズンに次ぐ大きな規模であった¹⁾⁻⁴⁾。

3・2 ウイルス検査

(1) インフルエンザウイルス分離

感染症発生動向調査の病原体定点医療機関を受診したインフルエンザ様患者のうち、150人についてウイルス分離検査を実施した。その結果、133人からインフルエ

ンザウイルスを分離した (分離率 88.7%)。

(2) 分離ウイルス型別性状

分離したインフルエンザウイルス133株の内訳は、A型が97株 (72.9%)、B型が36株 (27.1%) であり、A型の亜型についてはAソ連型 (H1N1) が71株 (73.2%)、A香港型 (H3N2) が26株 (26.8%) であった。

今シーズンはA香港型が平成20年第52週 (12月25日) 採取の検体から先ず分離され、Aソ連型は2週間遅れて21年第2週 (1月6日) 採取の検体から初めて分離された (図3)。その後、A香港型とAソ連型は並行して分離されていたが、全体としては昨シーズン同様にAソ連型が優位を占めた¹⁾。なお、第21週以降再びA香港型が少数株分離されたのは、患者発生状況と同様に新型インフルエンザ発生の影響と考えられた。

一方、B型が初めて分離されたのは第3週 (1月14日) 採取の検体からであったが、その後分離は一旦途絶え、第10週 (3月2日～8日) 以降に増加傾向がみられた。また、例年B型はシーズン後半に流行するが、今シーズンはB型が本格的に分離され始めた時期と、患者発生報告における2度目の流行時期とが一致していることから、この2度目のピークはB型によるものであったと思われる。

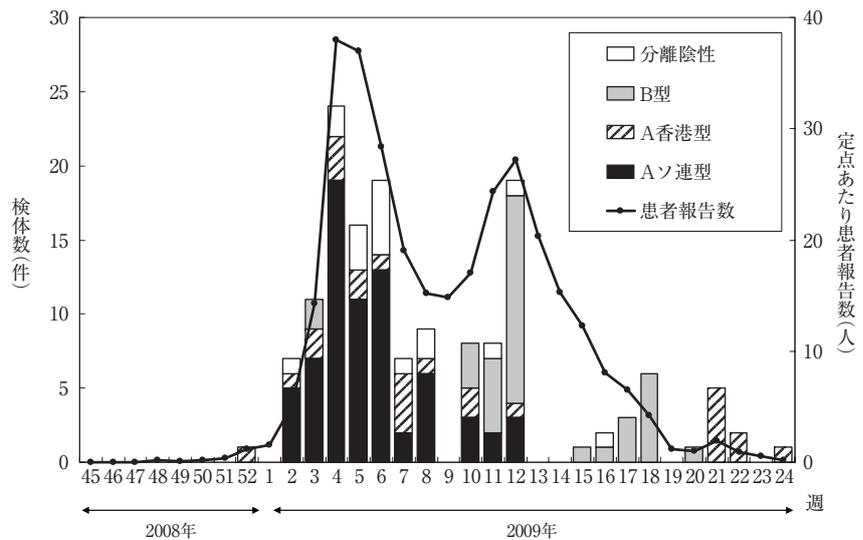
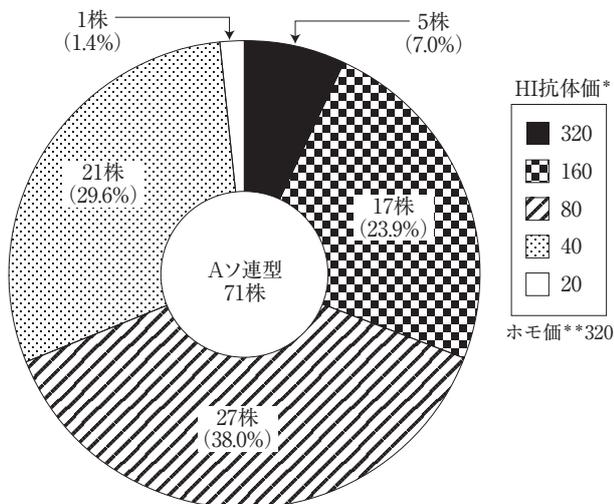


図3 インフルエンザウイルス分離検査結果 (検体採取週別)

(3) 分離ウイルスHA抗原性状

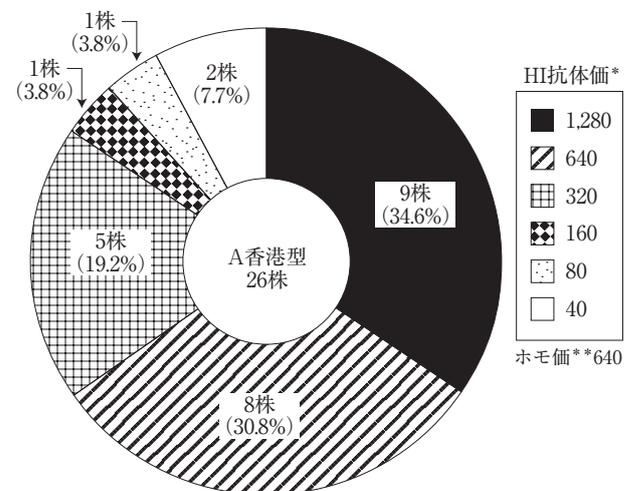
Aソ連型71株のHA抗原性状は、ワクチン株A/Brisbane/59/2007のホモのHI抗体価 (ホモ価) が320であったのに対し、HI抗体価20が1株 (1.4%)、40が21株 (29.6%)、80が27株 (38.0%)、160が17株 (23.9%)、320が5株 (7.0%) であり、ワクチン株のホモ価と8倍以上差がある変異株は22株 (31.0%) で昨シーズン (96.9%) と比較し少なかった¹⁾ (図4)。

A香港型26株のHA抗原性状は、ワクチン株A/Uruguay/716/2007のホモ価が640であったのに対し、HI抗体価40が2株 (7.7%)、80および160が各々1株 (3.8%)、320が5株 (19.2%)、640が8株 (30.8%)、1,280が9株 (34.6%) であり、ワクチン株のホモ価と8倍以上差があ



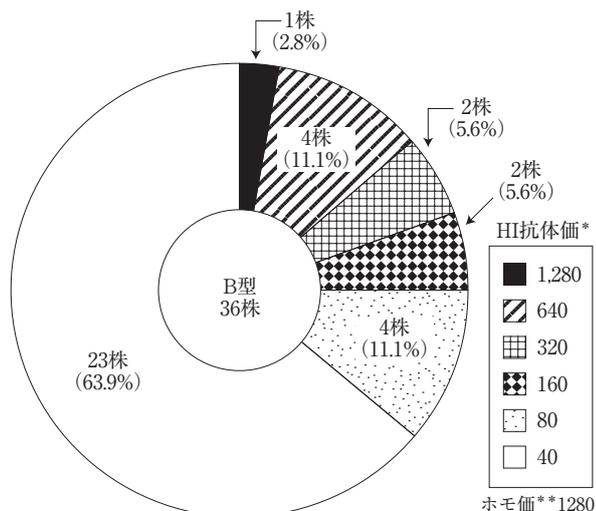
* : 分離株を抗原とした抗A/Brisbane/59/2007のHI抗体価
 ** : ワクチン株A/Brisbane/59/2007を抗原とした抗A/Brisbane/59/2007のHI抗体価

図4 Aソ連型分離株の抗原性状 (HI抗体価)



* : 分離株を抗原とした抗A/Uruguay/716/2007のHI抗体価
 ** : ワクチン株A/Uruguay/716/2007を抗原とした抗A/Uruguay/716/2007のHI抗体価

図5 A香港型分離株の抗原性状 (HI抗体価)



* : 分離株を抗原とした抗B/Malaysia/2506/2004のHI抗体価
 ** : 参照株B/Malaysia/2506/2004を抗原とした抗B/Malaysia/2506/2004のHI抗体価

図6 B型分離株の抗原性状 (HI抗体価)

る変異株は3株 (11.5%) と少なく、ほとんどはワクチン株と差のない株であった (図5)。

また、B型36株はすべてワクチン株B/Brisbane/3/2007 (Victoria系統株) とは反応せず参照株であるA/Malaysia/2506/2004と反応した。そのHA抗原性状は、参照株のホモ価が1,280であったのに対し、HI抗体価40が23株 (63.9%)、80が4株 (11.1%)、160および320が各々2株 (5.6%)、640が4株 (11.1%)、1,280が1株 (2.8%) であり、参照株のホモ価と8倍以上差がある変異株は29株 (80.6%) で大半を占めた (図6)。

当該シーズンのワクチン株と流行株の抗原性の差異がワクチンの効果に影響を及ぼすことが推測されることから、今シーズンB型が流行した一因として、流行株の抗原性がワクチン株と大きく異なったためと考えられる。なお、これらの結果は国に報告し全国の解析結果として集計され、ヒトの感受性調査結果とともに次シーズンのワクチン株選定の際の基礎資料として活用される。

4 ま と め

(1) 集団かぜ患者発生状況

2008/09シーズンの集団かぜは、137施設で発生し、患者数は8,147人で、昨シーズン (129施設, 9,021人) に比べ施設数はやや増加したが患者数は若干少なかった。

(2) インフルエンザ患者発生状況

今シーズンのインフルエンザ患者の発生状況は、過去4シーズンにみられない2峰性を示し、また感染症発生動向調査における累積患者報告数は15,178人で、2004/05シーズン (18,208人) に次ぐ大きな流行規模であった。

(3) 分離ウイルス型別性状

病原体定点医療機関より送付された150検体から分離されたインフルエンザウイルスは合計133株で、Aソ連型が71株 (53.4%)、A香港型が26株 (19.5%)、B型が36株 (27.1%) であった。

(4) 分離ウイルス抗原性状

分離されたインフルエンザウイルスは、Aソ連型はワクチン株のホモ価と8倍以上の差がある変異株が3割程度であったが、A香港型は大半 (88.5%) がワクチン株と抗原性に差がない株であった。また、B型は全株がワクチン株とは反応せず、その抗原性は参照株と8倍以上の差がある変異株が大半 (80.6%) を占めた。

文 献

- 1) 倉本早苗, 大矢英紀, 尾西 一: 石川県におけるインフルエンザ流行状況 (2007/2008シーズン), 石川県保健環境センター研究報告書, **45**, 53-55 (2008)
- 2) 倉本早苗, 黒崎直子, 大矢英紀, 尾西 一: 石川県におけるインフルエンザ流行状況 (2006/2007シーズン), 同上誌, **44**, 28-30 (2007)
- 3) 黒崎直子, 大矢英紀, 尾西 一: 石川県におけるインフルエンザ流行状況 (2005/2006シーズン), 同上誌, **43**, 65-67 (2006)
- 4) 黒崎直子, 大矢英紀, 尾西 一: 石川県におけるインフルエンザ流行状況 (2004/2005シーズン), 同上誌, **42**, 80-82 (2005)

〔資 料〕

石川県における胃腸炎事例からのウイルス検出状況と遺伝子解析結果 (平成20年度)

石川県保健環境センター 健康・食品安全科学部 児玉 洋江・倉本 早苗・尾西 一

〔和文要旨〕

平成20年度に当センターへ依頼のあった集団胃腸炎事例 (16事例, 113検体) および感染症発生動向調査における感染性胃腸炎患者のふん便 (16検体) について, 起因ウイルスの検査を実施した。集団胃腸炎14事例66検体からノロウイルス遺伝子を検出した。一方, 感染性胃腸炎患者のふん便からはノロウイルス遺伝子 (5検体), A群ロタウイルス (2検体), サボウイルス遺伝子 (2検体) を検出した。ノロウイルス遺伝子が検出された集団胃腸炎事例14事例について遺伝子解析を実施した結果, G II / 4 型 (8事例), G II / 2 型 (2事例), G II / 6 型 (2事例), G II / 3 型 (1事例) およびG II / 12 型 (1事例) であることがわかった。近年, 全国的に多発している集団胃腸炎の主流型であるG II / 4 型の遺伝子変異が, ノロウイルスの感染性や流行状況に影響を与える可能性が示唆されていることから, 今後も胃腸炎事例等から検出されるウイルスの動向を継続的に観察していく必要がある。

キーワード: ノロウイルス, G II / 4 型, 胃腸炎

1 はじめに

当センターでは, 金沢市を除く県内市町で発生した集団胃腸炎事例のうち, ウイルスが原因と推定された事例について, 保健福祉センターより原因ウイルス検索の依頼を受け検査を実施している。検査の結果, ノロウイルス遺伝子が検出された場合には, 詳細な遺伝子学的解析を行い, 検出株間における相同性の確認や流行との関係等について検討している。

ここでは, 平成20年度に当センターに依頼のあった集団胃腸炎事例におけるウイルス検査結果と検出したノロウイルス遺伝子の遺伝子学的解析結果, および感染症発生動向調査の病原体定点より提出された感染性胃腸炎患者のふん便について実施したウイルス検査結果について報告する。

2 材料と方法

2・1 材料

(1) 集団胃腸炎事例

平成20年度に当県で発生した集団胃腸炎事例のうち, 当センターに依頼のあった16事例の患者ふん便71検体, 調理従事者ふん便42検体の計113検体についてウイルス検査を実施した。

(2) 感染症発生動向調査における感染性胃腸炎患者ふん便のウイルス検査

平成20年度に金沢市内の病原体定点より提出のあったウイルス性の感染性胃腸炎が疑われた小児のふん便16検体についてウイルス検査を実施した。

2・2 検査対象ウイルス

感染性胃腸炎起因ウイルスであるノロウイルス, サボウイルス, ロタウイルス (A群, C群) およびアデノウイルスを検査対象ウイルスとした。

Detection and Analysis of Virus from Gastroenteritis in Ishikawa (2008) . by KODAMA Hiroe , KURAMOTO Sanae , ONISHI Hajime, (Health and Food Safety Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Norovirus, G II / 4, Gastroenteritis

2・3 検査方法

(1) ウイルス検査

ノロウイルスについては、Reverse Transcription Polymerase Chain Reaction（以下、RT-PCR）法またはLoop Mediated Isothermal Amplification（以下、LAMP）法（市販キット;栄研化学）により遺伝子の検出を実施した。RT-PCR法は厚生労働省通知¹⁾に従い、LAMP法は添付の解説書に従った。サポウイルスについては、RT-PCR法により遺伝子の検出を実施し、またA群ロタウイルスについては酵素免疫法、C群ロタウイルスについては逆受け身赤血球凝集反応（RPHA）によりウイルス検査を実施した。なお、これらの検査はウイルス性下痢症診断マニュアル²⁾に従った。アデノウイルスについては、Echavarriaら³⁾の方法に準じてPCR法により遺伝子の検出を実施した。

なお、遺伝子検査を目的としたふん便からの遺伝子抽出は、QIAamp Viral RNA Mini Kit（QIAGEN）により実施した。

(2) ノロウイルス遺伝子型の解析

RT-PCR法によりノロウイルス遺伝子が検出された事例を対象として、各事例につき2検体についてダイレクトシーケンスを行った。即ち、得られたPCR産物についてQIAquick PCR Purification kit（QIAGEN）による精製を行った後、BigDye Terminator v1.1 Cycle Sequence Kit（ABI）を用いてGeneAmp PCR System 9700によるサイクルシーケンス反応を行った。反応産

物をBigDye XTerminatorにより精製し、ABI PRISM 310 Genetic Analyzerで塩基配列を決定し、日本DNAデータバンク（DDBJ）のClustalWを用いて近接結合法により系統樹解析を実施した。

3 結 果

3・1 ウイルス検査

(1) 集団胃腸炎事例

平成20年度は16事例113検体（患者ふん便71検体、調理従事者ふん便42検体）についてウイルス検査依頼があり、このうち14事例からはノロウイルスGⅡ遺伝子を検出した（表1）。なお、その他の2事例からは対象としたいずれのウイルスも検出されなかった。

また、ノロウイルス遺伝子を検出した事例の発生時期は、平成20年4月、5月、10月、12月、21年2月および3月であり、12月が最も多く8事例の発生があった。

なお、ノロウイルス遺伝子を検出した検体は、患者ふん便61検体（85.9%）、調理従事者ふん便5検体（11.9%）の計66検体（58.4%）であった。

(2) 感染症発生動向調査における感染性胃腸炎患者ふん便のウイルス検査

検査を実施した16検体のうち、5検体（31.3%）からノロウイルス遺伝子（GⅠ型1検体、GⅡ型4検体）を検出した。その他、A群ロタウイルスおよびサポウイルスの遺伝子を各2検体（12.5%）から検出したが、7検体からはいずれのウイルスも検出されなかった（表2）。

3・2 ノロウイルス遺伝子型の解析

ノロウイルス遺伝子が検出された集団胃腸炎14事例について遺伝子型の解析を実施した結果、検出したノロウイルス遺伝子型は事例ごとに同一で、GⅡ/4型が8事例（57.1%）、GⅡ/2型およびGⅡ/6型が各2事例（14.3%）、その他GⅡ/3型、GⅡ/12型が各1事例（7.1%）であった（表1）。なお、同一遺伝子型を検出した事例間での疫学的な関連性は認められなかった。

4 考 察

石川県では、毎年冬期を中心にウイルス起因を疑う集団胃腸炎が多数発生し、原因としてノロウイルスが深く関与していることが明らかになっている⁴⁾。

表1 ノロウイルス遺伝子の検査結果（平成20年度）

事例 No.	発生年月	患者	調理従事者	計	遺伝子型
		陽性数/検体数	陽性数/検体数	陽性数/検体数	
1	平成20年 4月	5/6	0/4	5/10	GⅡ/2
2	5月	5/5	0/9	5/14	GⅡ/2
3	10月	0/1	—	0/1	
4	10月	3/3	—	3/3	GⅡ/6
5	12月	4/4	—	4/4	GⅡ/4
6	12月	8/11	0/4	8/15	GⅡ/4
7	12月	—	0/3	0/3	
8	12月	4/5	0/6	4/11	GⅡ/4
9	12月	9/9	1/3	10/12	GⅡ/4
10	12月	3/3	—	3/3	GⅡ/4
11	12月	3/3	0/5	3/8	GⅡ/4
12	12月	1/4	2/4	3/8	GⅡ/4
13	12月	5/5	2/2	7/7	GⅡ/4
14	平成21年 2月	4/5	—	4/5	GⅡ/12
15	2月	2/2	—	2/2	GⅡ/6
16	3月	5/5	0/2	5/7	GⅡ/3
計		61/71 (85.9%)	5/42 (11.9%)	66/113 (58.4%)	

表2 感染性胃腸炎患者ふん便のウイルス検査結果

	検体数	陽性数	検出ウイルス (検出数)
平成20年 5月	3	1	A群ロタウイルス (1)
9月	1	0	
10月	1	0	
11月	3	3	サポウイルス (2), ノロウイルスGⅡ (1)
12月	4	2	ノロウイルスGⅡ (1), ノロウイルスGI (1)
平成21年 1月	1	1	ノロウイルスGⅡ (1)
2月	2	2	ノロウイルスGⅡ (1), A群ロタウイルス (1)
3月	1	0	
計	16	9	

平成20年度に当センターへウイルス検査の依頼があった集団胃腸炎事例16事例のうち14事例からノロウイルス遺伝子が検出されており、感染症発生動向調査の病原体定点から提出された検体からも、11月から2月にかけてノロウイルス遺伝子が検出されている。

なお、近年全国的に多発している集団胃腸炎の主要な流行株であるノロウイルスのGⅡ/4型^{5) 6)}は、ノロウイルスが検出された集団胃腸炎14事例のうち8事例で検出された。

Okadaらは、GⅡ/4型の遺伝子変化がノロウイルスの伝播様式に影響を与える可能性について示唆しており⁷⁾、主要流行株の交代がみられた平成18年度には感染症発生動向調査における感染性胃腸炎の患者報告数が増加した⁸⁾。

当センターで実施する集団胃腸炎事例の原因ウイルス検査は、金沢市を除く市町で発生したウイルス性の感染性胃腸炎が疑われた事例のみを対象として実施していることから、県内全域のウイルスによる集団胃腸炎事例を反映しているとはいえない。しかし、今後も集団胃腸炎事例から検出されるGⅡ/4型の動向を継続的に観察し、発生状況の変化との関連性について検討することは重要であろう。

一方、感染症発生動向調査における感染性胃腸炎患者ふん便からは、ノロウイルスの他に、ロタウイルス (A群) およびサポウイルスも検出されており、小児の感染性胃腸炎には多様なウイルスが関与していることが推測された。感染性胃腸炎は、地域での流行疾患、あるいは食品媒介感染症の一部を捉えているものと考えられており、今後もその動向と原因ウイルスについて注意深く監視する必要があると考える。

また、当センターにて実施したウイルス検査において、いずれのウイルスも検出できなかった検体については、検査対照ウイルス以外のウイルスに起因する胃腸炎事例であった可能性も否定できないことから、今後さらに当センターにおける検査体制の充実を図っていく必要がある。

5 ま と め

(1) 平成20年度に当センターへウイルス検査依頼のあった集団胃腸炎16事例113検体について起因ウイルスの検索を行った結果、14事例66検体 (58.4%) からノロウイルスGⅡ遺伝子を検出したが、2事例からは起因ウイルスは検出されなかった。

(2) 感染症発生動向調査における感染性胃腸炎患者ふん便16検体についてウイルス検査を実施した結果、

5検体 (31.3%) からノロウイルス遺伝子を、各2検体 (12.5%) からA群ロタウイルスおよびサポウイルス遺伝子を検出したが、7検体からはいずれのウイルスも検出されなかった。

(3) GⅡ遺伝子を検出した14事例についてノロウイルス遺伝子型の解析を実施した結果、遺伝子型は事例ごとに同一で、GⅡ/4型が8事例 (57.1%)、GⅡ/2型およびGⅡ/6型が各2事例 (14.3%)、その他GⅡ/3型、GⅡ/12型が各1事例 (7.1%) であった。

文 献

- 1) 厚生労働省医薬局食品安全部監視安全課長通知：ノロウイルスの検出法について、平成15年11月5日付
- 2) 国立感染症研究所ウイルス第2部：ウイルス性下痢症診断マニュアル (第3版)、(2003)
- 3) Marcela Echavarría, Michael Forman, John Ticehurst, J. Stephen Dumler, Patricia Charache: PCR Method for Detection of Adenovirus in Urine of Healthy and Human Immunodeficiency Virus-Infected Individuals, *J. Clin. Microbiol.* **36** (11), 3323-3326 (1998)
- 4) 大矢英紀, 米澤由美子, 尾西 一: 感染性胃腸炎におけるウイルス検索, 石川県保健環境センター研究報告書, **38**, 81-83 (2001)
- 5) 野田衛: 集団感染症・食中毒 ノロウイルスはなぜ多発したのか?, *食と健康*, **604** (4), 6-17 (2007)
- 6) 病原微生物検出情報月報, ノロウイルス感染集団発生, **26** (12), 1-2 (2005)
- 7) Mineyuki Okada, Tomoko Ogawa, Ikuo Kaiho, Kunio Shinozaki: Genetic Analysis of Noroviruses in Chiba Prefecture, Japan, between 1999 and 2004, *J. Clin. Microbiol.* **43** (9), 4391-4401 (2005)
- 8) 大矢英紀, 黒崎直子, 尾西 一: 平成17年~18年度の石川県におけるノロウイルスの流行状況, 石川県保健環境センター研究報告書, **44**, 23-27 (2007)

〔資 料〕

エゾボラモドキによるテトラミン食中毒事例について

石川県保健環境センター 健康・食品安全科学部

竹田 正美・清水 隆二・芹川 俊彦
大西 道代

〔和文要旨〕

2008年11月13日、白山市内のスーパーで購入したツブ貝を自宅で調理して喫食した4名のうち3名がめまい、ふらつきなどの症状を呈した。症状と残品の貝の鑑定からエゾボラモドキによるテトラミン中毒と推定され、当センターで残品についてテトラミンの検査を実施した。

メタノール還流による抽出及び比色定量法により、残品のエゾボラモドキ4個について調べたところ、唾液腺には8.4～12.7mg/g、貝1個当たりでは16.9～39.2mgのテトラミンが含まれていた。患者は唾液腺を除去せずに一人4個の貝を喫食しており、症状などからテトラミンが原因の中毒と考えられた。

キーワード：テトラミン、エゾボラモドキ、比色定量法

1 はじめに

通常ツブ貝と称して販売されているエゾボラモドキやヒメエゾボラモドキなどのエゾバイ科巻貝は、唾液腺にテトラミンを含有し、これを喫食すると、食後30分ほどで、頭痛、めまい、視覚障害及び嘔吐等の中毒症状を起すことが知られている¹⁾。

北海道や東北地方などの産地では、この貝毒のことはよく知られており、唾液腺を除去して食べられている。しかし、近年食品の広域流通により、産地以外の地域でも食する機会が増え、テトラミンによる食中毒が増加している。厚生労働省の「年次別食中毒発生事例」²⁾によると2004～08年の5年間で27件のテトラミンによる食中毒が発生し、その内18件は産地以外で発生している。

県内においても、ツブ貝が原因と思われる食中毒が発生した。白山市内で、2008年11月13日にスーパーで購入した殻付きのツブ貝を調理して、夕食に家族4人で、一人4個ずつ喫食したところ、3名が1時間から1時間半後に、めまいふらつきなどの症状を示し医療機関を受診した。なお、他の1名は夕食後直ちに就寝したため症状があったかは不明であった。患者の症状と残品の貝の鑑

定からエゾボラモドキによるテトラミン中毒と推測された。このため、当センターにおいて、残品の貝の唾液腺についてテトラミンの定量を行った。

また、テトラミンは唾液腺に局在するといわれているが、可食部や内臓にもテトラミンが存在するという報告³⁾もあり、後日可食部（内臓と唾液腺を除いた主に筋肉）についても、テトラミンの定量を行ったので、併せて報告する。

2 材料と方法

2・1 試料

試料は、未調理で残っていた殻付きの貝4個を用いた。貝は、石川県水産総合センターによりエゾボラモドキと鑑定された。

貝を、唾液腺、可食部（内臓と唾液腺を除いた主に筋肉）に分け、それぞれ検査を行った。図1にエゾボラモドキからの唾液腺の除去方法を示す。

2・2 標準品・試薬

(1) 標準品

塩化テトラメチルアンモニウム（テトラミン塩化物）は和光純薬工業(株)特級試薬を用いた。

A Case of Tetramine Poisoning by Neptunea Intersculpta. by TAKEDA Masami, SHIMIZU Ryuji, SERIKAWA Toshihiko and OHNISHI Michiyo (Health and Food Safety Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Tetramethylammonium, Neptunea Intersculpta, Spectrophotometric Determination

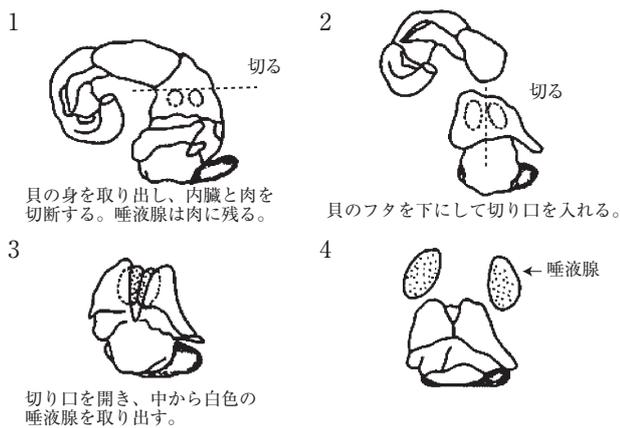


図1 唾液腺の除去方法

塩化テトラメチルアンモニウム約250mgを精密に量り、水で50mLとし、標準原液とした。これを水で適宜希釈し0~50 μ g/mLの検量線用テトラミン塩化物標準溶液とした。

(2) 試薬類

テトラプロモフェノールフタレインエチルエステルカリウム (以下「TBPE・K」という) は和光純薬工業(株) 一級試薬を用いた。

TBPE/1,2-ジクロロエタン溶液 (以下「TBPE/DCE」という) はTBPE・K7.0mgを正確に量り、水約190mLに溶解し、塩酸でpH3に調整後、水で200mLとした。TBPE・Kは水に溶け難くわずかに解け残ったが、これにDCE 200mLを加え、振とうしTBPEを完全にDCEに溶解し、静置後、DCE層を分取した。

その他の試薬は市販の特級品、水は蒸留水を用いた。

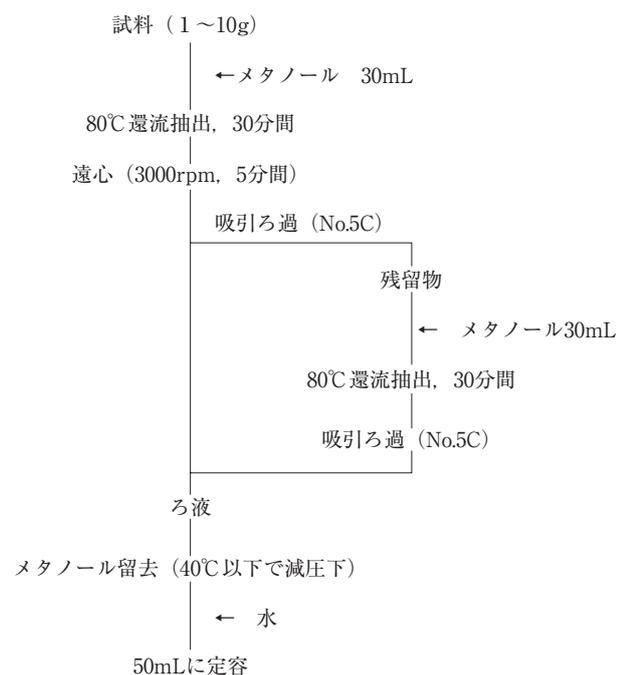


図2 試験溶液の調整

2・3 装置

分光光度計は、日立計測器サービス(株)U-1800を用いた。

2・4 試験溶液の調製

図2に試験溶液の調製⁴⁾のフローを示した。

細切したそれぞれの試料 (唾液腺 1g, 可食部10g) をナス型フラスコに取り、メタノール30mLを加え80°Cで30分間還流抽出した後、3000回転で5分間遠心分離し上澄みを分取した。さらに残留物にメタノール30mLを加え同様に還流抽出の操作を行い、ろ液を合わせ、40°C以下の減圧下でメタノールを留去した。残留物に水を加えて溶解し、50mLに定容して試験溶液とした。

2・5 定量

テトラミンの定量法には比色法⁴⁾⁵⁾、イオンクロマトグラフ法³⁾⁶⁾、動物試験法⁷⁾、示差屈折計を用いた高速液体クロマトグラフ法⁸⁾が報告されている。この中で、比較的操作が簡便で、特殊な機器、技術を要せず迅速に実施できるとされている比色法を用いて定量をおこなった。

図3に比色定量法⁴⁾のフローを示した。

試験溶液 1mLを正確に量り、1 mol/L水酸化ナトリウム 1mLを加え、水で25mLとし混和した。5分間静置後、分液ロートに移し、TBPE/DCE 30mLを加え5分間振とうし、15分間静置後、DCE層を分取した。30分間放置後、分光光度計で610nmの吸光度を測定した。

分取したDCE層を30分間放置する際、室温が低いとDCE層が懸濁することがあり、その場合は20~25°Cの水浴中に30分間放置後、吸光度を測定した。

テトラミン塩化物標準溶液についても同様に操作し、得られた検量線から試料溶液中のテトラミン塩化物濃度を求め、次式により試料中のテトラミン (フリー体) 含有量に換算した。

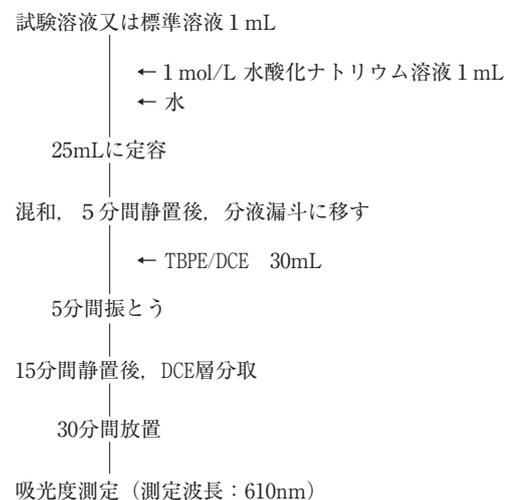


図3 比色定量法

$$\text{テトラミン (フリー体) 含有量 (mg/g)} = \frac{C \times V \times 0.6765}{W \times 1000}$$

C : 試料溶液中のテトラミン塩化物濃度 (μg/mL)
 V : 試料溶液の定容量 (mL)
 W : 試料の採取量 (g)
 0.6765 : テトラミン塩化物からテトラミン (フリー体) への換算係数

3 結果と考察

3・1 比色法によるテトラミンの定量範囲

テトラミン塩化物標準溶液 0 ~ 50 μg/mL について、比色法により吸光度を測定した結果を図 4 に示した。テトラミン塩化物標準溶液が 0 ~ 40 μg/mL の範囲では吸光度は直線性を示したが、50 μg/mL では吸光度が頭打ちとなった。

このため、テトラミン塩化物濃度が 0 ~ 40 μg/mL の範囲で検量線を作成し、この範囲になるよう試料溶液を水で希釈して測定することとした。

3・2 食中毒事例の貝中のテトラミン含有量

未調理で残っていた貝 4 個について、唾液腺、可食部 (内臓と唾液腺を除いた主に筋肉) に分け、それぞれテトラミンの定量を行った。その結果を表 1 に示した。

唾液腺で 8.4 ~ 12.7 mg/g、可食部で 0.04 ~ 0.14 mg/g のテトラミンが検出された。

文献³⁾と比較すると、エゾボラモドキの唾液腺中のテトラミン濃度は、同程度またはやや高めの値となったが、1 個体当たりのテトラミン含有量は同程度であった。

3・3 食中毒との関連性

今回検査を行ったエゾボラモドキ 1 個体当たりのテトラミン含有量は 16.9 ~ 39.2 mg であった。患者は唾液腺を除去せずに一人 4 個の貝を喫食しており、100 mg 程度のテトラミンを摂取したと考えられる。ヒトのテトラミン中毒量については報告により差はあるが 10 ~ 450 mg とされており^{1) 6)}、テトラミンの推定摂取量及びめまい、ふらつきなどの臨床症状から、本事例はテトラミンが原因と考えられた。

また、可食部にもテトラミンが貝 1 個当たり 2.7 ~ 7.4 mg 検出され、少量の喫食では問題はないが、多量の喫食には注意が必要であると考えられる。

石川県内でのテトラミンによる中毒事例は初めてで、テトラミンの検査実績はなかったが、文献収集を行っていたため迅速に検査対応することができた。健康危機管理の面か

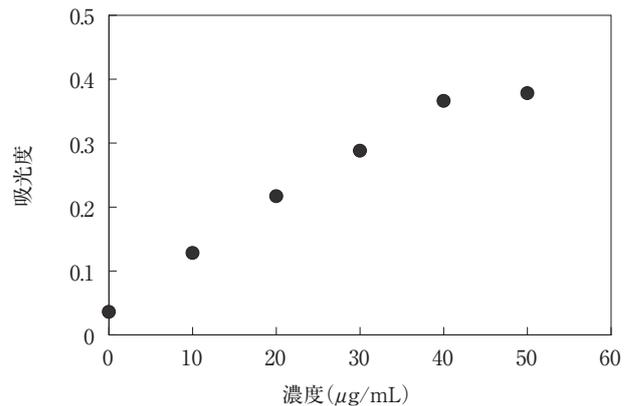


図 4 テトラミン塩化物検量線

ら、食中毒の原因となりえる自然毒等について普段から情報を収集しておくことが重要と考える。

また、患者はツブ貝を食べるときは唾液腺を除去する必要があることを知らなかった。このため、行政では、事件後、県民にテトラミンの食中毒やツブ貝の唾液腺の除去方法などの啓発を行うとともに、魚介類販売店等に対して、販売する際は、購入者に注意喚起をするように指導を行った。

4 まとめ

- (1) 貝の試料から、テトラミンをメタノールで還流抽出し、比色法により定量することができた。
- (2) 残品のエゾボラモドキについてテトラミンの含有量を調べたところ、1 個当たり 16.9 ~ 39.2 mg であった。患者は、唾液腺を除去せずに貝 4 個を喫食しており、臨床症状からもテトラミンが原因の食中毒と考えられた。

文 献

- 1) (財) 日本中毒情報センター：急性中毒処置の手引第 3 版、536 - 537、薬事時報社 (1999)
- 2) 厚生労働省：厚生労働省ホームページ、<http://>

表 1 残品のテトラミン定量結果

検体名	検査部位	重量(g)	テトラミン濃度 (mg/g)	1個当たりのテトラミン含有量(mg)
エゾボラモドキ1	唾液腺	2.9	8.6	28.7
	可食部分	62.4	0.06	
エゾボラモドキ2	唾液腺	2.5	12.7	39.2
	可食部分	53.2	0.14	
エゾボラモドキ3	唾液腺	1.6	8.4	16.9
	可食部分	43.1	0.08	
エゾボラモドキ4	唾液腺	2.2	12.3	29.7
	可食部分	66.4	0.04	

www.mhlw.go.jp (2009年7月24日)

- 3) 新藤哲也, 牛山博文, 観 公子, 齋藤 寛, 栞原康裕, 上原真一, 安田和男: エゾバイ科巻貝(軟体動物)の唾液腺, 可食部及び内臓中のテトラミン含有量, 食衛誌, **41**, 17-22 (2000)
- 4) 柳瀬杉夫: 平成18年全国自然毒中毒講演会・研修会抄録集, 69-72, 近畿地区自然毒中毒協議会 (2006)
- 5) 藤井令子, 森脇直子, 田中幸生, 小川時彦, 森 悦男, 齋藤充司: テトラブロモフェノールフタレインエチルエステルを用いた巻貝中テトラミンの比色定量法, 食衛誌, **33**, 237-240 (1992)
- 6) 新藤哲也, 牛山博文, 観 公子, 齋藤 寛, 栞原康裕, 上原真一, 安田和男: イオンクロマトグラフィーによる巻貝(軟体動物)中テトラミンの分析及び調理による消長, 食衛誌, **41**, 11-16 (2000)
- 7) KUNGSUWAN Attaya, NOGUCHI Tamao, KANO Seiko, HASHIMOTO Kanehisa: Assay method for Tetramine in Carnivorous Gastropods, 日本水産学会誌, **52**, 881-884 (1986)
- 8) 橋爪清松, 戸田千登世, 安井照代, 永納秀男: 高速液体クロマトグラフィーによるエゾボラモドキ中のテトラミンの定量, 衛生化学, **33**, 179-184 (1987)

〔資 料〕

LC/MS(SIM)による農産物中残留農薬の同時分析法について

石川県保健環境センター 健康・食品安全科学部 織田 敏郎・新家 薫子・相川 恵子
四尾 秋寿

〔和文要旨〕

国が通知した「LC/MSによる農薬等の一斉試験法Ⅰ及びⅡ（農産物）」を用いてアゾキシストロビン等76農薬88農薬成分の同時分析を検討した。添加回収試験に玄米，ばれいしょ，だいこん（根），こまつな，日本なし，オレンジの6農産物を用いた結果，Ⅰ法で60農薬中37農薬，Ⅱ法で16農薬中15農薬について満足な結果が得られた。また，マトリックス成分によるイオン化抑制が推察される場合は，可能な限り測定液を希釈して測定することが効果的であった。

キーワード：残留農薬，同時一斉分析法，LC/MS（SIM）

1 はじめに

食品中に残留する農薬の規制に関しては，平成18年5月のポジティブリスト制度の導入により，規制対象農薬が大幅に増加した。国はこれら多くの農薬を効率的に分析する必要から一斉試験法¹⁾（以下「通知法」という。）を提示した。しかし，この方法は試験対象とした多くの農薬が同時に分析できることを確認したのではなく，測定機器による検出感度の違い等が大きいことも指摘されている²⁾。

当センターでは，平成19年度に，残留農薬分析業務の更なる迅速化を図ることを目的に，アクリナトリン等148農薬181農薬成分を対象に，GC/MSによる同時分析（同時スクリーニング）の検討を行い，108農薬について測定可能であることを確認した³⁾。

平成20年度は，通知法のうち「LC/MSによる農薬等の一斉試験法Ⅰ（農産物）」（以下「Ⅰ法」という。）を用いて60農薬72農薬成分について，また，「LC/MSによる農薬等の一斉試験法Ⅱ（農産物）」（以下「Ⅱ法」という。）を用いて16農薬16農薬成分について，それぞれ，LC/MSによる同時分析（同時スクリーニング）の検討を行ったのでその結果を報告する。

2 材料と方法

2・1 検討対象農薬，農産物及び標準試薬

(1) 検討対象農薬

石川県の平成19年度農作物病害虫・雑草防除指針に掲載されている農薬及び農産物の主要輸入国（中国，米国，カナダ，オーストラリア）での使用量が多い農薬⁴⁾のうちから，通知法でLC/MSによる一斉試験法の対象農薬になっているもの，及びこれらの農薬規制の対象になる代謝物等76農薬（88農薬成分）を検討対象とした（表1参照）。

(2) 検討対象農産物

玄米，ばれいしょ，だいこん（根），こまつな，日本なし，オレンジの6種類の農産物を用いた。

(3) 試薬

各農薬の標準品は，関東化学(株)，林純薬工業(株)及び和光純薬工業(株)のものを用いた。

アセトン，アセトニトリル，塩化ナトリウム，n-ヘキサン，無水硫酸ナトリウム，トルエンは，残留農薬分析用試薬を，リン酸水素二カリウム，リン酸二水素カリウムは，試薬特級を用いた。また，メタノールは，精製操作には残留農薬分析用試薬を，LC/MS移動相にはLC/MS用試薬を用いた。

Simultaneous Determination of Pesticide Residues in Agricultural Products by LC/MS (SIM).
by ODA Toshiro, ARAIE Kaoru, AIKAWA Keiko and SHIO Akihisa (Health and Food Safety
Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Pesticide Residues, Simultaneous Determination, LC/MS (SIM)

表1-1 検討対象農薬成分の保持時間, モニターイオン及び定量限界の確認 (I法)

農薬名	農薬成分名	保持時間	ポジティブ測定			ネガティブ測定		
			モニターイオン		定量限界確認 (測定液として0.01µg/mL) (S/N比10未満: ×)	モニターイオン		定量限界確認 (測定液として0.01µg/mL) (S/N比10未満: ×)
			定量	定性		定量	定性	
アゾキシストロビン	アゾキシストロビン	18.55	404	405	○			
アニコホス	アニコホス	20.84	368	370	○			
アルジカルブ	アルジカルブ	13.03	116	117	○			
イソプロカルブ	イソプロカルブ	17.07	194	195	○			
イプロジオン	イプロジオン	20.33	330	332	- (注)			
	イプロジオン代謝物	21.93	330	332	○	328	330	○
イマザリル	イマザリル	20.95	297	299	○			
イミダクロプリド	イミダクロプリド	9.87	256	258	○	254	256	○
インダノファン	インダノファン	20.10	341	343	○			
インドキサカルブ	インドキサカルブ	21.71	528	530	○			
エチオフェンカルブ	エチオフェンカルブ	16.27	226	164	○			
オキサジクロメホン	オキサジクロメホン	22.27	376	378	○			
オキサミル	オキサミル	7.42	237	238	○			
オメトエート	オメトエート	4.77	214	215	○			
カルバリル	カルバリル	15.83	202	219	○			
カルプロバミド	カルプロバミド	20.88	334	336	○	332	334	○
カルボフラン	カルボフラン	15.09	222	223	○			
	30H-カルボフラン	10.81	255	238	○	179	296	○
クミルロン	クミルロン	19.52	303	305	○	361	363	○
クロチアニジン	クロチアニジン	9.98	250	252	○	248	250	○
クロフェンテジン	クロフェンテジン	21.57	303	305	○			
クロマフェノジド	クロマフェノジド	19.76	395	339	○	393	394	○
クロメプロップ	クロメプロップ	22.52	324	326	○	322	324	○
シアゾファミド	シアゾファミド	20.11	325	327	○	216	218	○
ジウロン	ジウロン	17.46	233	235	○	231	233	○
シクロプロトリン	シクロプロトリン	23.56	499	501	○			
ジノテフラン	ジノテフラン	5.63	203	204	○	201	202	○
ジフルベンズロン	ジフルベンズロン	20.33	311	313	○	309	311	○
シプロジニル	シプロジニル	21.07	226	227	○			
シメコナゾール	シメコナゾール	19.93	294	295	○	352	353	○
ジメトモルフ	ジメトモルフ (E)	18.76	388	390	○			
	ジメトモルフ (Z)	19.22	388	390	○			
シラフルオフェン	シラフルオフェン	27.68	287	288	○			
スピノサド	スピノシンA	25.03	732	733	○			
	スピノシンD	25.71	747	748	○			
ダイアレート	ダイアレート	22.06	270	272	×			
ダイムロン	ダイムロン	19.34	269	270	○	327	267	○
チアクロプリド	チアクロプリド	11.97	253	255	○	311	313	○
チアメトキサム	チアメトキサム	8.47	292	294	○	350	352	○
チオジカルブ及びメソミル	チオジカルブ	16.42	355	357	○			
	メソミル	8.14	163	106	○			
	メソミルオキシム	4.64	106	-	×			
テブフェノジド	テブフェノジド	20.42	297	353	○	351	352	○
テフルベンズロン	テフルベンズロン	22.72	381	383	○	379	381	○
ノバルロン	ノバルロン	21.99	493	495	○	491	493	○
ピリフタリド	ピリフタリド	18.32	319	320	○			
ピリミカルブ	ピリミカルブ	16.82	239	240	○			
フェノブカルブ	フェノブカルブ	18.51	208	209	○			
フェリムゾン	フェリムゾン (E)	18.89	255	256	○			
	フェリムゾン (Z)	19.05	255	256	○			
フェンピロキシメート	フェンピロキシメート (E)	23.82	422	423	○			
	フェンピロキシメート (Z)	22.86	422	423	○			
フラメトビル	フラメトビル	17.01	334	336	○	332	334	○
	フラメトビルヒドロキシ体	17.69	332	334	○	348	350	○
フルフェナセット	フルフェナセット	19.95	364	365	○			
フルフェノクスロン	フルフェノクスロン	23.27	489	491	○	487	489	○
フルリドン	フルリドン	18.25	330	331	○	388	389	○
ヘキサフルムロン	ヘキサフルムロン	21.89	461	463	○	459	461	○
ヘキシチアゾクス	ヘキシチアゾクス	23.04	353	355	○			
ベンシクロン	ベンシクロン	21.50	329	331	○	327	329	○
ベンゾフェナップ	ベンゾフェナップ	22.15	431	433	○	429	431	○
ベンダイオカルブ	ベンダイオカルブ	15.06	224	167	○			
ペントキサゾン	ペントキサゾン	22.34	371	373	○	352	354	○
ボスカリド	ボスカリド	18.93	343	345	○	341	343	○
メタベンズチアズロン	メタベンズチアズロン	17.04	222	223	○			
メチオカルブ	メチオカルブ	18.83	226	169	○			
	メチオカルブスルホキシド	9.61	185	186	×	183	168	×
	メチオカルブスルホン	10.47	218	201	○	199	200	○
メバニピリム	メバニピリム	19.95	224	225	○			
	メバニピリムプロパノール体	17.47	244	245	○			
リニユロン	リニユロン	18.62	249	251	○	247	249	○
ルフェヌロン	ルフェヌロン	22.74	511	513	○	509	511	○

注: イプロジオンは, 室温で混合標準溶液 (メタノール溶液) 中で分解した。

表 1-2 検討対象農薬成分の保持時間、モニターイオン及び定量限界の確認（Ⅱ法）

農薬名	農薬成分名	保持時間	ポジティブ測定			ネガティブ測定		
			モニターイオン		定量限界確認（測定液として0.01 μ g/mL） （S/N比10未満：×）	モニターイオン		定量限界確認（測定液として0.01 μ g/mL） （S/N比10未満：×）
			定量	定性		定量	定性	
MCPB	MCPB	17.00			×	227	229	○
アイオキシニル	アイオキシニル	13.03				370	371	○
アジムスルフロ	アジムスルフロ	10.01	425	447	○ (○)	423	424	○
イマズスルフロ	イマズスルフロ	11.30	413	415	○ (○)	411	413	○
エトキシスルフロ	エトキシスルフロ	14.78	399	400	○ (○)	397	398	○
クロルスルフロ	クロルスルフロ	10.40	358	360	○ (○)	356	358	○
4-クロロフェノキシ酢酸	4-クロロフェノキシ酢酸	10.15				185	187	○
シクロスルファミロン	シクロスルファミロン	17.20	422	423	○ (○)	420	421	○
ジクロメジン	ジクロメジン	20.24	255	247	○ (×)	253	255	×
ハロスルフロメチル	ハロスルフロメチル	13.21	435	437	○ (○)	433	435	○
フェンヘキサミド	フェンヘキサミド	19.73	302	304	○ (○)	300	302	○
フラザスルフロ	フラザスルフロ	11.17	408	409	○ (○)	406	407	○
プロモキシニル	プロモキシニル	10.53				276	274	○
ベンスルフロメチル	ベンスルフロメチル	16.16	411	412	○ (○)	409	410	○
ホメサフェン	ホメサフェン	17.93	456	458	○ (○)	437	439	○
メトスルフロメチル	メトスルフロメチル	9.58	382	383	○ (○)	380	381	○

注：ポジティブ測定の定量限界確認欄の() 書きは、測定液0.001 μ g/mLの結果である。

オクタデシルシリル化シリカゲルミニカラムは、Mega Bond Elut C18 6 mL (1 g) (VARIAN社製) を、グラファイトカーボン/アミノプロピルシリル化シリカゲル積層ミニカラムは、ENVI-Carb/LC-NH₂ 6 mL (500mg/500mg) (スペルコ社製) を、シリカゲルミニカラムは、Bond Elut-SI 3 mL (500mg) (VARIAN社製) を用いた。

2・2 標準溶液の調製

(1) 標準原液の調製

原則として、各農薬の標準品10.0mgをアセトニトリルに溶解し、50mLとした(200 μ g/mL)。

(2) マススペクトル確認用標準溶液

通知法に示された保持指標を参考に、保持時間が重ならないように、Ⅰ法では各農薬を7組のグループに、Ⅱ法では4組のグループに区分し、2・2 (1) の標準原液を用いて、農薬が10 μ g/mLになるアセトニトリル混合標準溶液を調製した。

また、通知法には分析対象化合物として記載されていないが今回検討対象に加えた、N-(3,5-ジクロロフェニル)-3-イソプロピル-2,4-ジオキソイミダゾリジン-1-カルボキサミド(イプロジオン代謝物)、3OH-カルボフラン、メソミルオキシム、フラメトピルヒドロキシ体、メチオカルブスルホキシド、メチオカルブスルホン、メパニピリムプロパノール体、イソプロカルブ、エチオフェンカルブ、ジノテフラン、オメトエートの11成分は、それぞれ10 μ g/mLのアセトニトリル溶液を用いた。

(3) 添加用標準溶液

2・2 (2) で調製した7組のマススペクトル確認用標準溶液及び単体調製の11成分のマススペクトル確認用標準溶液を各1 mLとり、アセトニトリルで20mLに希釈しⅠ法用の添加用標準溶液(0.5 μ g/mLアセトニトリル

溶液)とした。同様に4組のマススペクトル確認用標準溶液を各1 mLとり、アセトニトリルで20mLに希釈しⅡ法用の添加用標準溶液(0.5 μ g/mLアセトニトリル溶液)とした。

また、この標準溶液をメタノールに転溶し、適宜希釈して検量線用の混合標準溶液とした。

2・3 装置及び測定条件

(1) 高速液体クロマトグラフ (HPLC)

機器：Agilent 1100 (アジレント・テクノロジー(株))
カラム：XTerra MS C18 (ウォーターズ社製)、内径2.1mm、長さ150mm、粒子径3.5 μ m

移動相：A液 5 m mol/L 酢酸アンモニウム含有水

B液 5 m mol/L 酢酸アンモニウム含有メタノール

グラジエント条件：通知法のとおり

流速：0.2mL/min

カラム温度：40℃

注入量：3.0 μ L

(2) 質量分析計 (MS)

機器：Agilent 1100 MSD SL (アジレント・テクノロジー(株))

イオン化法：Electrospray (ESI) 法 Positive及びNegativeモード

ネブライザー：N₂ (35psi)

ドライガス：N₂ (10.0L/min, 350℃)

四重極温度：100℃

Vcap 電圧：+3000V, -3000V

定量測定：選択イオン検出 (SIM)

マススペクトル測定：SCAN (100~800amu)

フラグメンター電圧：100V

2・4 試験溶液の調製

Ⅰ法の試験溶液の調製は、前報³⁾のGC/MS同時分析

法と同様に抽出・精製を行った試験溶液（アセトン・ヘキサン溶液 2 mL（玄米の場合は 1 mL））から、0.5 mL を分取し窒素吹付後メタノール 2.5 mL に転溶した。

Ⅱ法の試験溶液の調整は、通知法どおりに行った。

2・5 添加回収試験

添加回収試験は、細切均一化した農産物を秤量し、2・2（3）で調製した添加用標準溶液（0.5 μg/mL アセトニトリル溶液）を 1 mL 又は 2 mL 添加（農産物中 0.05 ppm 相当）し、30 分間放置後、2・4 に従い試験溶液を調製し回収率を求めた。

2・6 マトリックス効果確認用試験溶液の調製

各農産物から得た試験溶液をそれぞれ 0.5 mL 分取し、窒素ガスを吹き付け、溶媒を除去した後、添加回収濃度（0.05 μg/mL）に相当する混合標準溶液 0.5 mL で再溶解し、マトリックス効果確認用試験溶液（以下「マトリックス試験溶液」という。）とした。

3 成績及び考察

3・1 モニターイオンの選択

マススペクトル確認用標準溶液から得られたマススペクトル及び保持時間から、定量イオン及び定性イオンとして各 1 イオンを選択した。（表 1 参照）

I 法では、ポジティブ測定で 72 農薬成分すべて、ネガティブ測定で 32 農薬成分のマススペクトルが確認できた。Ⅱ法では、ポジティブ測定で 13 農薬成分、ネガティブ測定で 16 農薬成分すべてのマススペクトルが確認できた。

3・2 定量限界の確認及び検量線

（1）定量限界の確認

検量線測定に用いた 0.01 μg/mL の混合標準溶液のデータを用いて、各農薬成分の定量イオンピークが S/N 比 10 以上で確認できたかどうかを表 1 に示した。

I 法のポジティブ測定では、ダイアレート、メソミルオキシム、メチオカルブスルホキシドの 3 農薬成分で、ネガティブ測定では、メチオカルブスルホキシドで、有効なピークが確認できなかった。また、イプロジオンが測定中に室温で分解することが確認された。

Ⅱ法のポジティブ測定では、MCPB で、ネガティブ測定では、ジクロメジンで、有効なピークが確認できなかった。

検討対象の 88 農薬成分中、ダイアレート、メソミルオキシム、メチオカルブスルホキシド及びイプロジオンの 4 農薬成分を除く 84 農薬成分で少なくとも両測定のうちいずれかで 0.01 μg/mL の有効ピークが確保できたことから、目標定量限界とした農産物中濃度 0.01 ppm を確保するために試験溶液の調製を 2・4 のとおりとした。

（2）検量線

0.005 μg/mL から 0.1 μg/mL の間の 5 点の混合標準溶液を用いて検量線を確認した。

I 法では、定量限界が確保できなかった 3 農薬成分と測定中に室温での分解が確認されたイプロジオンを除き、ポジティブ測定で 68 農薬成分、ネガティブ測定で 31 農薬成分の相関係数が 1.000 から 0.987 の範囲にあり、良好な直線性が確認できた。以上から、イプロジオン、ダイアレート、メソミルオキシム及びメチオカルブスルホキシドの 4 農薬成分を除く 68 農薬成分が、目標の定量限界（農産物中 0.01 ppm）での検出が可能と判断した。

Ⅱ法では、ポジティブ測定で 12 農薬成分、ネガティブ測定で 15 農薬成分の相関係数が 1.000 から 0.994 の範囲にあり、良好な直線性が確認できた。以上から、検討対象の 16 農薬成分すべてが目標の定量限界（農産物中 0.01 ppm）での検出が可能と判断した。

3・3 添加回収試験及びマトリックス効果の確認

（1）添加回収試験

添加回収試験は、各農産物について 1 日 2 回、2 日間の分析で行った。無添加の試料からピークが検出された場合は、その値を差し引いて回収率を求めた。なお、ベンゾフェナップはネガティブ測定では複数の農産物において、アゾキシストロピンはポジティブ測定ではオレンジにおいて妨害イオンが重なり定量できなかった。また、イマザリルはポジティブ測定ではオレンジから添加濃度の約 35 倍（約 1.8 ppm）検出され正確な回収率が測定できなかった。

結果は、表 2 のとおりである。なお、参考として目標の定量限界（農産物中 0.01 ppm）が確保できなかった 4 成分も一覧表に示した。

今回は同時スクリーニングを目的とすることから、マトリックス効果及びサンプル誤差等を加味し、評価ラインを回収率 70% 以上に、室内精度を 30% 未満とし、国が示した試験法の妥当性評価ガイドライン⁵⁾の目標値を拡大して評価した。6 農産物すべてにおいて適合したものは、I 法では、ポジティブ測定で 41 農薬成分、ネガティブ測定で 23 農薬成分であり、第Ⅱ法では、それぞれ 4 農薬成分、7 農薬成分であった。

（2）マトリックス効果の確認

混合標準溶液のピーク面積に対するマトリックス試験溶液のピーク面積を mat 比として算出し各農産物におけるマトリックス効果を確認した。（表 2 参照）

I 法では、ほとんどが、mat 比 1.0 付近にあり、試料農産物由来の顕著な影響は見られなかった。一方、Ⅱ法では mat 比が 1.0 から離れるものが多く、特にポジティブ測定で顕著であった。そこで、マトリックス比で回収率を補正したところ、12 農薬成分すべてで 70～120% の回収

表2-1 添加回収試験による室内精度，回収率，マトリックス比及びマトリックス補正回収率（I法）

農薬名	農薬成分名	玄米								ばれいしよ							
		ポジティブ測定				ネガティブ測定				ポジティブ測定				ネガティブ測定			
		室内精度 (RSD%)	回収率 (%)	mat比	mat 補正 回収率 (%)	室内精度 (RSD%)	回収率 (%)	mat比	mat 補正 回収率 (%)	室内精度 (RSD%)	回収率 (%)	mat比	mat 補正 回収率 (%)	室内精度 (RSD%)	回収率 (%)	mat比	mat 補正 回収率 (%)
アゾキシストロビン	アゾキシストロビン	4.0	96.4	1.02	94.6					3.0	92.6	0.99	93.5				
アニロホス	アニロホス	4.4	93.9	0.97	96.4					2.6	92.6	0.99	93.8				
アルジカルブ	アルジカルブ	4.1	89.7	1.01	88.8					8.2	63.5	1.00	63.7				
イソプロカルブ	イソプロカルブ	3.7	89.4	1.00	89.0					9.1	79.2	1.00	79.2				
イプロジオン	イプロジオン イプロジオン代謝物	-	-	-	-	9.2	117.6	1.26	93.3	-	-	-	-	15.4	115.7	1.32	87.5
イマザリル	イマザリル	7.5	95.0	1.02	92.9					4.4	88.1	0.99	88.8				
イミダクロプリド	イミダクロプリド	4.4	90.3	0.98	92.4	2.9	93.5	1.02	91.4	1.8	88.4	0.98	90.1	3.3	91.5	1.02	89.6
インダノファン	インダノファン	6.2	92.5	0.96	96.8					1.8	91.4	0.98	93.6				
インドキサカルブ	インドキサカルブ	7.1	96.9	0.99	97.9					3.7	91.9	0.99	92.6				
エチオフェンカルブ	エチオフェンカルブ	20.8	69.9	1.00	70.1					30.7	4.9	0.99	5.0				
オキサジクロメホン	オキサジクロメホン	4.8	93.5	0.99	94.3					3.4	92.0	0.98	93.6				
オキサミル	オキサミル	3.7	85.7	0.99	86.5					2.7	86.0	0.98	88.1				
オメトエート	オメトエート	4.3	56.1	0.98	57.1					1.2	56.4	0.96	58.8				
カルバリル	カルバリル	3.6	91.7	0.97	94.3					3.6	90.0	0.96	94.1				
カルプロバミド	カルプロバミド	4.4	100.4	1.06	94.9	8.2	97.8	1.07	91.8	4.1	93.6	1.00	93.4	2.9	95.3	1.07	88.8
カルボフラン	カルボフラン	3.6	93.4	1.00	93.8					2.9	89.3	0.98	90.8				
	3OH-カルボフラン	3.5	93.4	0.99	93.9	4.5	101.7	1.13	89.9	3.9	93.1	0.99	94.4	3.4	91.2	0.99	92.0
クミルロン	クミルロン	7.5	97.1	1.07	90.8	6.0	102.0	1.08	94.3	1.0	94.9	1.01	93.8	2.8	91.7	1.05	87.6
クロチアニジン	クロチアニジン	4.2	89.7	0.98	91.8	4.0	93.9	1.03	91.0	1.9	88.8	0.98	91.0	4.7	91.3	1.05	86.7
クロフェンテジン	クロフェンテジン	4.8	42.2	0.72	58.6					56.5	56.7	1.07	53.0				
クロマフェノジド	クロマフェノジド	4.1	92.2	0.97	94.6	4.4	91.9	0.97	94.8	3.6	93.0	0.98	94.6	4.5	95.9	1.04	92.3
クロメブロップ	クロメブロップ	4.4	94.3	1.01	93.8	4.5	94.0	1.06	88.7	5.0	94.7	1.00	95.2	6.5	92.1	1.07	86.0
シアゾファミド	シアゾファミド	8.4	92.3	0.95	96.8	8.0	96.2	1.01	95.7	2.0	92.5	0.97	95.5	1.1	92.9	1.03	90.5
ジウロン	ジウロン	3.6	93.7	1.00	93.7	4.5	95.5	1.04	91.7	3.4	92.4	1.01	91.3	4.6	92.8	1.06	87.9
シクロプロトリン	シクロプロトリン	2.2	97.6	0.84	116.2					1.8	95.0	0.81	116.7				
ジノテフラン	ジノテフラン	4.1	68.0	1.01	67.5	4.7	72.0	1.03	70.1	5.1	68.9	0.99	69.3	3.4	70.2	1.04	67.7
ジフルベンズロン	ジフルベンズロン	3.9	73.9	0.80	92.7	4.6	102.1	1.13	90.7	6.1	89.5	0.95	93.8	5.4	92.9	1.09	85.6
シプロジニル	シプロジニル	5.1	92.3	1.03	89.7					-	0.0	1.01	0.0				
シメコナゾール	シメコナゾール	3.7	92.8	0.97	95.2	4.4	96.1	1.05	91.7	3.2	95.9	0.98	98.1	5.5	89.4	1.06	84.6
ジメトモルフ	ジメトモルフ (E)	4.2	91.5	0.96	95.4					1.7	92.2	0.98	93.8				
	ジメトモルフ (Z)	4.4	93.0	0.98	95.3					1.5	93.8	0.99	94.6				
シラフルオフェン	シラフルオフェン	40.8	27.9	0.86	32.4					1.5	100.1	0.29	344.7				
スピノサド	スピノシンA	24.0	53.4	0.65	81.5					8.2	58.4	0.72	81.3				
	スピノシンD	15.5	81.1	0.90	90.5					7.9	78.1	0.86	90.6				
ダイアレート	ダイアレート	(9.3)	(72.4)	(0.79)	(92.2)					(20.9)	(41.4)	(1.06)	(39.0)				
ダイムロン	ダイムロン	10.2	100.4	1.06	95.1	4.8	97.1	1.06	91.9	2.0	91.2	0.98	93.0	4.2	92.1	1.06	87.1
チアクロプリド	チアクロプリド	4.5	92.2	0.99	93.3	4.6	95.4	1.03	92.4	1.9	90.6	0.99	91.7	5.2	92.0	1.06	86.9
チアマトキサム	チアマトキサム	3.5	87.4	1.00	87.5	4.5	89.2	1.03	86.8	2.6	87.5	0.99	88.4	4.8	85.4	1.01	84.4
チオジカルブ及びメソミル	チオジカルブ	14.3	1.1	0.95	1.2					2.4	89.4	0.95	93.9				
	メソミル	3.3	165.1	1.01	162.7					4.4	85.1	1.00	84.8				
	メソミルオキシム	(297.9)	(1.2)	(0.98)	(1.2)					(-)	(0.0)	(0.97)	(0.0)				
テブフェノジド	テブフェノジド	2.6	89.4	0.93	96.2	4.4	97.6	1.03	94.4	4.2	92.7	0.98	94.5	5.3	97.0	1.05	92.2
テフルベンズロン	テフルベンズロン	161.0	480.4	1.22	392.4	2.4	98.6	1.09	90.1	3.7	93.6	1.16	80.7	5.3	89.8	1.02	87.6
ノバルロン	ノバルロン	1.8	83.6	0.85	98.5	3.9	99.2	1.09	91.3	5.3	90.5	0.95	94.9	5.6	91.9	1.11	83.1
ピリフタリド	ピリフタリド	3.5	97.1	1.01	95.8					2.7	94.3	0.98	96.3				
ピリミカルブ	ピリミカルブ	4.1	93.7	1.02	92.3					3.1	86.9	0.99	87.9				
フェノブカルブ	フェノブカルブ	4.9	90.2	0.98	92.3					8.7	81.9	0.97	84.1				
フェリムゾン	フェリムゾン (E)	4.0	92.0	1.00	91.7					5.5	88.9	0.99	90.1				
	フェリムゾン (Z)	5.5	92.0	1.01	91.5					10.4	85.9	0.98	87.7				
フェンピロキシメート	フェンピロキシメート (E)	3.2	85.6	0.89	96.5					1.1	90.1	0.94	95.4				
	フェンピロキシメート (Z)	3.2	85.4	0.95	89.7					5.7	85.4	0.93	92.1				
フラマトビル	フラマトビル	6.8	93.6	0.99	94.5	4.7	94.8	1.05	90.5	3.5	92.2	0.99	93.5	3.4	93.6	1.04	90.3
	フラマトビルヒドロキシ体	11.5	12.6	1.17	10.8	4.5	17.2	1.31	13.1	64.8	6.2	1.16	5.3	105.8	4.6	1.37	3.4
フルフェナセット	フルフェナセット	4.9	93.0	0.98	95.4					2.4	93.2	0.97	95.9				
フルフェノクスロン	フルフェノクスロン	9.1	90.3	0.95	95.5	9.7	89.7	0.96	93.4	0.9	94.0	0.98	96.2	4.2	89.9	1.04	86.3
フルリドン	フルリドン	4.6	95.8	1.01	94.7	5.1	96.1	1.05	91.2	1.9	90.9	0.99	92.3	4.7	90.0	1.05	85.7
ヘキサフルムロン	ヘキサフルムロン	10.1	92.5	0.98	94.3	3.6	98.7	1.05	93.9	4.1	91.0	0.94	96.9	6.0	93.0	1.02	91.2
ヘキシチアゾクス	ヘキシチアゾクス	13.2	38.9	0.78	49.5					5.2	92.9	1.02	91.1				
ベンシクロン	ベンシクロン	3.9	91.8	0.98	93.5	5.9	98.9	1.10	89.9	2.5	91.9	0.97	94.3	4.3	92.3	1.06	87.1
ベンゾフェナップ	ベンゾフェナップ	5.9	94.1	0.96	98.4	-	-	-	-	4.5	90.1	0.94	95.6	5.4	112.2	1.33	84.4
ベンダイオカルブ	ベンダイオカルブ	4.3	91.3	0.95	96.0					5.6	88.9	0.92	96.1				
ペントキサゾン	ペントキサゾン	4.7	87.2	0.97	89.5	9.6	95.6	1.03	92.7	4.3	92.1	1.00	92.1	6.4	94.0	1.01	93.1
ボスカリド	ボスカリド	3.0	93.1	1.08	86.2	4.2	94.9	1.05	90.5	4.8	89.1	0.95	93.3	4.6	91.1	1.05	86.3
メタベンズチアズロン	メタベンズチアズロン	3.7	95.1	1.00	94.8					2.0	90.7	0.97	93.5				
	メチオカルブ	4.0	93.1	0.97	95.9					2.6	89.2	0.95	93.7				
メチオカルブ	メチオカルブスルホキシド	(177.1)	(3567.3)	(11.28)	(316.3)	(130.8)	(920.8)	(7.18)	(128.2)	(116.9)	(1868.4)	(12.57)	(148.7)	(86.6)	(530.3)	(7.47)	(71.0)
	メチオカルブスルホン	130.7	1146.2	3.32	345.6	73.5	299.2	1.94	154.5	107.0	980.8	3.30	297.2	74.3	288.3	1.96	146.8
メバニピリム	メバニピリム	2.6	92.7	0.97	95.4					61.8	4.2	0.97	4.3				
	メバニピリムプロパノール体	3.3	95.4	0.98	97.3					2.9	92.9	0.98	95.3				
リニユロン	リニユロン	3.2	96.3	1.05	91.4	4.1	95.0	1.04	91.7	5.2	92.5	0.97	95.6	5.9	92.1	1.07	85.9
ルフェスロン	ルフェスロン	2.4	94.4	0.99	95.5	3.9	96.3	1.07	90.0	4.3	92.2	1.03	89.6	5.6	89.7	1.02	88.1

注1：農薬名，農薬成分名の網掛けは，同時スクリーニングが可能と判断されたものである。
 注2：結果の（ ）書きは定量限界（農産物中0.01ppm）が確保できなかった成分を参考として示したものである。

表 2-2 添加回収試験による室内精度, 回収率, マトリックス比及びマトリックス補正回収率 (I 法)

農薬名	農薬成分名	だいこん								こまつな							
		ポジティブ測定				ネガティブ測定				ポジティブ測定				ネガティブ測定			
		室内精度 (RSD%)	回収率 (%)	mat比	mat補正回収率 (%)	室内精度 (RSD%)	回収率 (%)	mat比	mat補正回収率 (%)	室内精度 (RSD%)	回収率 (%)	mat比	mat補正回収率 (%)	室内精度 (RSD%)	回収率 (%)	mat比	mat補正回収率 (%)
アゾキシストロビン	アゾキシストロビン	2.6	93.7	0.99	95.1					4.8	94.7	1.03	91.8				
アニロホス	アニロホス	2.5	94.4	1.00	94.6					3.0	94.6	1.03	92.2				
アルジカルブ	アルジカルブ	2.4	87.2	0.93	93.9					5.2	92.7	1.01	91.4				
イソプロカルブ	イソプロカルブ	2.6	91.3	0.99	92.3					5.2	94.9	1.02	93.4				
イプロジオン	イプロジオン	-	-	-	-					-	-	-	-				
	イプロジオン代謝物	31.2	91.8	2.04	45.1	18.5	124.6	1.35	92.1	45.3	126.2	1.50	84.1	18.2	132.4	1.39	95.2
イマザリル	イマザリル	3.7	95.6	0.97	98.4					7.7	70.2	0.99	70.8				
イミダクロプリド	イミダクロプリド	10.1	79.4	0.86	91.9	7.1	88.9	0.91	97.3	6.3	91.2	1.01	90.4	4.4	91.0	1.00	91.0
インダノファン	インダノファン	6.2	76.1	0.96	79.0					4.7	90.2	0.98	91.6				
インドキサカルブ	インドキサカルブ	3.0	92.1	0.98	94.1					3.9	90.1	1.02	88.1				
エチオフェンカルブ	エチオフェンカルブ	3.6	87.7	0.97	90.5					16.1	58.4	1.01	57.7				
オキサジクロメホン	オキサジクロメホン	2.5	93.3	0.97	95.9					4.0	95.2	1.01	94.2				
オキサミル	オキサミル	2.9	85.9	0.98	87.6					5.1	86.7	1.00	86.8				
オメトエート	オメトエート	3.3	52.5	0.97	54.3					4.0	50.7	0.90	56.4				
カルバリル	カルバリル	2.9	91.9	0.95	96.4					3.5	92.7	0.99	93.4				
カルプロバミド	カルプロバミド	2.4	96.1	1.02	94.5	2.4	93.9	1.04	90.6	1.4	98.0	0.98	100.3	8.7	98.1	1.08	91.0
カルボフラン	カルボフラン	2.2	92.5	0.97	95.0					4.3	93.5	1.01	92.2				
	30H-カルボフラン	2.3	99.0	1.02	96.7	4.3	91.2	1.03	88.4	4.9	93.4	1.00	93.5	6.1	95.9	1.06	90.4
クミルロン	クミルロン	1.9	95.0	0.96	98.6	2.5	93.2	1.02	91.3	9.4	89.9	1.00	89.5	8.2	95.5	1.04	92.2
クロチアニジン	クロチアニジン	13.2	65.5	0.72	90.8	5.7	85.4	0.96	89.0	2.4	91.9	0.97	94.9	4.8	92.8	1.05	88.7
クロフェンテジン	クロフェンテジン	52.7	48.0	1.04	46.4					14.8	87.2	1.03	84.9				
クロマフェノジド	クロマフェノジド	2.9	94.4	1.00	94.8	3.0	93.9	1.02	92.4	6.3	95.2	1.05	91.0	7.4	98.6	1.07	92.5
クロメプロップ	クロメプロップ	8.0	89.4	0.97	92.1	3.3	93.4	1.11	83.8	4.7	90.7	0.99	91.5	4.1	97.4	1.11	87.4
シアゾファミド	シアゾファミド	5.7	87.3	0.96	91.3	6.2	88.0	1.03	85.2	2.5	94.4	1.01	93.7	4.1	93.2	1.02	91.0
ジウロン	ジウロン	2.4	92.2	0.97	94.6	2.8	92.5	1.03	89.7	2.9	96.8	1.06	91.6	6.1	95.6	1.05	91.1
シクロプロトリン	シクロプロトリン	5.5	91.5	0.67	136.3					4.3	86.8	0.69	126.7				
ジノテフラン	ジノテフラン	4.0	67.0	0.96	69.5	3.8	68.7	1.05	65.7	3.5	68.3	1.01	67.8	5.7	68.1	1.02	66.8
ジフルベンズロン	ジフルベンズロン	2.9	90.7	0.94	96.4	1.6	96.4	1.09	88.6	4.4	90.6	0.98	92.3	2.4	95.6	1.09	88.1
シプロジニル	シプロジニル	5.4	93.0	0.98	94.5					4.5	92.7	1.01	91.8				
シメコナゾール	シメコナゾール	1.2	93.1	1.00	93.1	2.3	93.8	1.05	89.2	6.7	94.1	1.08	87.5	7.5	94.6	1.07	88.7
ジメトモルブ	ジメトモルブ (E)	4.8	92.5	0.97	95.6					3.8	91.9	0.98	94.3				
	ジメトモルブ (Z)	0.9	94.4	0.99	95.7					4.2	92.9	0.99	94.1				
シラフルオフェン	シラフルオフェン	2.0	89.0	0.60	149.2					16.5	67.7	0.64	105.7				
スピノサド	スピノシン A	4.8	70.5	0.86	82.4					5.1	69.1	0.85	81.3				
	スピノシン D	7.2	105.6	1.20	87.8					5.3	101.3	1.10	92.0				
ダイアレート	ダイアレート	(45.3)	(51.7)	(0.94)	(55.2)					(5.6)	(98.7)	(1.45)	(68.0)				
ダイムロン	ダイムロン	2.1	94.4	0.97	97.5	2.1	94.1	1.03	90.9	3.3	94.0	1.00	94.1	7.0	94.9	1.05	90.1
チアクロプリド	チアクロプリド	2.7	87.4	0.92	94.5	2.7	92.7	1.02	90.9	3.4	93.5	1.02	91.3	5.4	95.0	1.06	90.0
チアマトキサム	チアマトキサム	2.6	84.2	0.96	87.7	6.1	90.8	1.02	89.1	2.8	87.1	1.01	86.2	6.7	112.6	1.29	87.4
チオジカルブ及びメソミル	チオジカルブ	41.2	4.7	0.20	23.4					4.0	81.7	0.90	90.5				
	メソミル	2.2	166.5	1.67	99.6					5.5	95.7	1.10	87.3				
	メソミルオキサシム	(76.9)	(31.5)	(0.92)	(34.4)					(29.7)	(30.0)	(0.94)	(31.9)				
テブフェノジド	テブフェノジド	3.1	93.1	0.98	94.9	2.7	94.0	1.03	91.4	3.3	102.0	1.06	96.0	5.3	98.7	1.07	92.0
テフルベンズロン	テフルベンズロン	10.2	90.3	1.12	80.8	4.5	92.8	1.07	87.0	7.7	86.9	1.06	82.0	2.2	93.0	1.07	86.6
ノバルロン	ノバルロン	8.4	82.4	0.97	84.5	18.7	109.6	1.05	104.1	2.9	82.1	0.96	86.0	4.4	108.9	1.14	95.4
ピリフタリド	ピリフタリド	2.0	95.4	0.96	99.2					3.8	96.2	1.01	95.1				
ピリミカルブ	ピリミカルブ	2.6	89.9	0.97	92.7					5.5	91.9	1.02	90.4				
フェノブカルブ	フェノブカルブ	3.8	87.2	0.94	92.4					7.0	95.1	1.01	93.9				
フェリムゾン	フェリムゾン (E)	24.9	85.8	0.97	88.9					3.9	94.0	1.02	91.7				
	フェリムゾン (Z)	2.4	96.2	0.98	97.9					4.3	94.8	1.01	93.7				
フェンピロキシメート	フェンピロキシメート (E)	7.3	103.3	0.92	112.4					8.1	84.2	0.86	98.2				
	フェンピロキシメート (Z)	8.7	75.2	1.02	73.4					7.6	90.1	0.98	92.0				
フラメトビル	フラメトビル	2.0	88.6	0.86	102.8	5.3	87.8	1.03	85.0	3.5	93.7	1.02	92.2	4.4	86.8	1.04	83.2
	フラメトビルヒドロキシ体	15.4	30.3	1.16	26.1	8.3	34.8	1.38	25.3	15.4	41.0	1.22	33.7	11.6	45.3	1.38	32.9
フルフェナセット	フルフェナセット	2.6	88.2	0.99	89.3					5.0	93.0	1.01	92.2				
フルフェノクスロン	フルフェノクスロン	5.9	88.8	0.97	91.6	4.1	94.5	1.08	87.6	2.7	86.0	0.92	93.4	1.6	90.7	0.99	91.8
フルリドン	フルリドン	2.2	93.5	0.98	95.7	1.9	94.8	1.10	86.4	5.0	95.5	1.03	92.9	3.9	92.2	1.06	86.8
ヘキサフルムロン	ヘキサフルムロン	6.1	95.8	0.97	98.6	2.9	97.7	1.05	92.7	8.5	90.7	0.96	94.9	5.0	100.3	1.07	93.7
ヘキシチアゾクス	ヘキシチアゾクス	7.3	89.6	0.90	99.5					5.4	87.0	0.83	104.3				
ベンシクロン	ベンシクロン	3.0	92.8	0.96	96.4	3.8	93.9	1.05	89.2	7.1	92.2	0.99	93.4	3.7	98.2	1.11	88.6
ベンゾフェナップ	ベンゾフェナップ	4.6	90.5	1.03	88.1	-	-	-	-	4.5	93.1	1.00	93.4	18.5	98.8	0.93	106.1
ベンダイオカルブ	ベンダイオカルブ	5.6	92.4	0.91	101.8					6.5	94.4	0.94	100.8				
ベントキサゾン	ベントキサゾン	3.5	94.6	0.81	117.2	2.5	89.1	1.01	87.9	6.2	85.6	0.74	115.1	5.5	95.0	1.71	55.5
ボスカリド	ボスカリド	2.5	87.9	0.94	93.2	3.1	92.8	1.05	88.6	4.6	89.1	0.99	90.3	4.2	96.5	1.06	90.8
メタベンズチアズロン	メタベンズチアズロン	3.8	89.8	0.96	93.2					3.4	94.5	1.02	92.7				
	メチオカルブ	2.5	92.3	0.94	98.1					5.0	95.6	0.99	96.1				
	メチオカルブスルホキシド	(70.1)	(396.4)	(17.40)	(22.8)	(66.2)	(357.5)	(9.85)	(36.3)	(96.8)	(909.6)	(17.78)	(51.2)	(73.7)	(410.6)	(10.00)	41.1
	メチオカルブスルホキシド	62.0	226.6	2.99	75.7	56.2	214.2	2.40	89.1	85.8	567.7	4.13	137.4	56.2	230.3	2.50	92.3
メバニピリム	メバニピリム	10.8	74.7	0.95	78.5					4.9	93.2	0.99	94.5				
	メバニピリムプロパノール体	2.9	93.3	0.96	96.8					5.3	94.0	0.99	94.9				
リニューロン	リニューロン	2.5	91.8	1.01	91.3	2.6	92.4	1.05	87.7	5.3	95.5	1.03	92.8	6.4	94.0	1.05	89.4
ルフェヌロン	ルフェヌロン	4.4	99.8	0.97	102.5	3.0	92.9	1.04	89.0	9.0	105.1	1.04	100.8	6.2	94.2	1.04	90.6

注1: 農薬名, 農薬成分名の網掛けは, 同時スクリーニングが可能と判断されたものである。
 注2: 結果の () 書きは定量限界 (農産物中0.01ppm) が確保できなかった成分を参考として示したものである。

表2-3 添加回収試験による室内精度, 回収率, マトリックス比及びマトリックス補正回収率 (I法)

農薬名	農薬成分名	日本なし								オレンジ							
		ポジティブ測定				ネガティブ測定				ポジティブ測定				ネガティブ測定			
		室内精度 (RSD%)	回収率 (%)	mat比	mat補正回収率 (%)	室内精度 (RSD%)	回収率 (%)	mat比	mat補正回収率 (%)	室内精度 (RSD%)	回収率 (%)	mat比	mat補正回収率 (%)	室内精度 (RSD%)	回収率 (%)	mat比	mat補正回収率 (%)
アゾキシストロビン	アゾキシストロビン	1.3	98.6	0.99	99.9					-	-	-	-				
アニロホス	アニロホス	1.5	99.3	0.98	101.4					7.1	70.6	0.81	87.6				
アルジカルブ	アルジカルブ	4.7	88.4	1.00	88.2					2.3	94.0	1.00	93.6				
イソプロカルブ	イソプロカルブ	1.2	98.4	0.99	99.1					3.4	94.8	1.01	94.2				
イプロジオン	イプロジオン イプロジオン代謝物	-	-	-	-	9.6	122.8	1.24	99.3	-	-	-	-	6.2	122.9	1.39	88.2
イマザリル	イマザリル	3.2	90.0	0.91	99.0					-	-	-	-				
イミダクロプリド	イミダクロプリド	2.3	92.7	0.97	95.5	3.2	96.1	1.05	91.6	3.9	94.1	1.01	93.6	1.6	96.1	1.03	93.0
インダノファン	インダノファン	2.4	95.2	0.98	97.6					3.0	88.1	0.95	93.1				
インドキサカルブ	インドキサカルブ	1.9	96.0	0.99	97.3					4.3	91.0	0.96	94.4				
エチオフェンカルブ	エチオフェンカルブ	4.7	26.4	0.98	26.8					1.7	84.1	1.00	84.4				
オキサジクロメホン	オキサジクロメホン	1.9	98.2	0.98	100.4					2.9	91.2	0.97	94.3				
オキサミル	オキサミル	1.7	89.9	0.99	91.2					3.0	87.2	0.99	88.0				
オメトエート	オメトエート	1.2	58.6	0.98	60.1					5.8	56.0	0.97	57.6				
カルバリル	カルバリル	1.4	96.8	0.97	99.7					3.1	95.9	1.00	95.8				
カルプロバミド	カルプロバミド	0.8	98.4	0.95	103.6	1.2	98.3	1.08	90.6	5.3	69.6	0.74	93.8	2.3	99.0	1.08	91.2
カルボフラン	カルボフラン	1.3	97.1	0.98	98.7					2.3	93.5	0.98	95.0				
	3OH-カルボフラン	1.7	96.8	0.98	98.7	2.9	96.3	1.03	93.2	4.2	93.3	0.98	95.2	2.1	91.7	1.03	89.1
クミルロン	クミルロン	1.6	99.5	0.99	100.9	2.4	96.6	1.05	91.8	15.1	29.2	0.33	87.8	5.7	67.9	0.74	91.8
クロチアニジン	クロチアニジン	1.3	93.7	0.97	96.6	2.4	95.2	1.05	90.4	6.9	82.6	0.89	92.8	2.6	94.3	1.05	89.7
クロフェンテジン	クロフェンテジン	20.4	70.1	0.94	74.4					8.0	54.5	0.67	81.8				
クロマフェノジド	クロマフェノジド	1.3	97.9	0.99	99.4	2.6	98.9	1.05	93.8	16.6	19.3	0.22	87.2	2.8	26.5	0.31	86.9
クロメプロップ	クロメプロップ	5.6	102.4	1.00	102.5	1.7	97.3	1.08	90.5	13.9	76.2	0.76	100.2	4.2	98.2	1.08	90.6
シアゾファミド	シアゾファミド	2.5	96.9	0.98	99.2	3.6	96.8	1.05	92.4	2.3	83.9	0.92	91.4	3.1	89.4	1.00	89.7
ジウロン	ジウロン	2.3	98.2	1.00	98.3	2.8	97.0	1.06	91.9	2.7	89.7	0.96	93.7	3.6	95.9	1.06	90.4
シクロプロトリン	シクロプロトリン	4.9	94.3	0.80	117.4					6.3	89.3	0.84	105.8				
ジノテフラン	ジノテフラン	1.0	73.1	0.99	73.8	4.3	72.3	1.06	68.5	4.9	70.5	0.99	71.2	1.6	70.9	1.04	68.4
ジフルベンズロン	ジフルベンズロン	1.6	93.8	1.00	93.6	2.5	97.5	1.06	91.6	5.4	69.6	0.73	95.9	5.4	82.4	0.86	95.5
シプロジニル	シプロジニル	4.7	98.1	0.98	99.7					5.7	78.3	0.87	90.4				
シメコナゾール	シメコナゾール	0.9	98.5	0.99	99.8	2.1	95.2	1.07	89.2	6.0	80.3	0.84	95.8	2.7	100.6	1.14	88.4
ジメトモルフ	ジメトモルフ (E)	1.6	97.4	0.98	99.4					7.0	62.9	0.70	90.0				
	ジメトモルフ (Z)	1.9	100.6	0.99	102.0					3.2	71.3	0.75	95.5				
シラフルオフェン	シラフルオフェン	7.2	76.0	0.85	89.2					2.2	73.8	1.09	67.5				
スピノサド	スピノシンA	16.8	58.8	0.68	86.5					9.7	54.6	0.70	77.6				
	スピノシンD	2.9	97.4	1.07	91.2					6.4	90.1	1.00	90.2				
ダイアレート	ダイアレート	(7.0)	(94.3)	(1.34)	(70.3)					(5.1)	(71.9)	(0.75)	(95.6)				
ダイムロン	ダイムロン	1.3	98.8	0.99	99.3	2.0	97.3	1.06	91.7	6.1	12.7	0.14	90.4	6.0	41.8	0.47	89.3
チアクロプリド	チアクロプリド	1.4	95.2	0.97	98.4	1.8	95.9	1.05	91.3	5.3	91.9	0.97	94.3	1.2	92.2	1.06	86.6
チアメトキサム	チアメトキサム	1.5	89.1	0.98	91.2	4.3	96.0	1.16	82.7	4.3	88.7	0.99	89.5	5.5	88.7	1.06	83.6
チオジカルブ及びメソミル	チオジカルブ	9.2	92.0	0.95	96.4					1.6	92.6	0.98	94.8				
	メソミル	1.0	94.8	1.02	93.0					2.6	91.5	1.02	89.3				
	メソミルオキシム	(27.2)	(33.5)	(1.04)	(32.1)					(28.9)	(53.3)	(1.01)	(52.6)				
テブフェノジド	テブフェノジド	1.1	98.0	1.00	97.6	1.8	99.2	1.05	94.5	10.5	47.2	0.53	88.6	4.8	60.1	0.65	92.4
テフルベンズロン	テフルベンズロン	2.3	99.6	1.19	83.8	1.5	99.1	1.03	96.2	10.7	90.8	0.77	117.4	5.0	99.9	1.03	96.9
ノバルロン	ノバルロン	3.3	91.6	1.00	91.6	6.0	103.2	1.10	93.5	8.4	70.9	0.73	97.2	8.0	105.5	1.15	91.6
ピリフタリド	ピリフタリド	1.4	100.8	0.99	101.9					2.9	85.7	0.78	109.6				
ピリミカルブ	ピリミカルブ	1.3	94.6	0.99	95.5					2.7	93.2	1.00	93.6				
フェノブカルブ	フェノブカルブ	4.0	97.3	0.99	98.5					2.6	68.1	0.73	93.4				
フェリムゾン	フェリムゾン (E)	2.5	91.5	0.98	93.1					0.9	87.3	0.95	91.6				
	フェリムゾン (Z)	4.3	95.3	0.99	96.0					2.4	86.0	0.94	91.6				
フェンピロキシメート	フェンピロキシメート (E)	1.6	96.1	0.96	100.5					7.0	83.6	0.88	94.9				
	フェンピロキシメート (Z)	1.4	93.5	0.95	98.0					3.6	84.4	0.90	93.8				
フラメトビル	フラメトビル	1.8	97.9	0.98	99.9	4.4	94.9	1.07	88.8	2.9	91.7	0.98	93.9	6.9	87.4	1.01	86.9
	フラメトビルヒドロキシ体	34.6	23.0	1.10	20.9	29.7	26.8	1.30	20.6	17.3	28.6	1.03	27.7	39.2	40.6	1.35	30.2
フルフェナセット	フルフェナセット	1.2	98.1	0.99	98.9					3.9	82.8	0.88	94.1				
フルフェノクスロン	フルフェノクスロン	1.9	103.2	1.03	100.4	2.3	99.7	1.07	93.1	5.8	88.8	0.96	92.9	2.4	95.9	1.03	93.1
フルリドン	フルリドン	1.4	98.6	0.99	99.8	1.7	95.0	1.06	89.3	4.2	87.0	0.77	112.8	4.7	96.2	0.99	96.9
ヘキサフルムロン	ヘキサフルムロン	3.8	97.1	1.04	93.5	1.8	101.3	1.03	98.4	14.1	112.9	1.22	92.4	4.2	101.3	1.04	97.2
ヘキシチアゾクス	ヘキシチアゾクス	15.6	87.7	0.70	124.6					8.6	73.9	0.75	98.2				
ベンシクロン	ベンシクロン	1.2	97.5	0.98	100.0	1.7	97.5	1.06	91.9	3.1	84.1	0.88	95.6	5.3	102.9	1.12	92.1
ベンゾフェナップ	ベンゾフェナップ	2.0	98.5	1.01	97.9	-	-	-	-	4.5	85.1	0.92	92.6	-	-	-	-
ベンダイオカルブ	ベンダイオカルブ	2.3	99.0	0.95	104.6					2.6	92.7	0.93	99.9				
ペントキサゾン	ペントキサゾン	6.9	98.1	0.79	124.9	3.6	95.2	1.03	92.1	7.6	86.5	0.72	120.7	1.4	95.3	1.02	93.1
ボスカリド	ボスカリド	2.4	92.7	0.95	97.6	2.6	96.2	1.07	90.2	5.4	97.0	1.01	96.3	3.2	97.8	1.09	89.6
メタベンズチアズロン	メタベンズチアズロン	1.1	98.4	0.99	99.0					4.4	85.2	0.90	94.1				
	メチオカルブ	1.7	98.1	0.96	102.5					2.7	86.5	0.89	96.7				
メチオカルブ	メチオカルブスルホキシド	(36.5)	(328.0)	(9.85)	(33.3)	(38.1)	(278.9)	(7.02)	(39.7)	(7.4)	(476.9)	(9.91)	(48.1)	(37.8)	(241.7)	(6.89)	(35.1)
	メチオカルブスルホン	29.7	266.1	2.94	90.5	21.9	185.1	1.89	97.8	4.5	337.2	2.88	117.1	19.9	175.1	1.87	93.7
メバニピリム	メバニピリム	1.9	99.7	1.00	99.8					3.4	72.1	0.76	94.4				
	メバニピリムプロパノール体	1.3	99.2	0.98	100.8					2.3	88.2	0.93	94.8				
リニユロン	リニユロン	1.8	97.7	0.99	99.1	1.5	96.3	1.07	90.1	6.4	45.3	0.46	97.9	5.1	77.4	0.86	90.4
ルフェヌロン	ルフェヌロン	5.4	96.3	0.97	99.6	0.4	100.5	1.05	95.9	1.4	95.5	0.97	98.5	4.4	96.5	1.02	94.4

注1：農薬名, 農薬成分名の網掛けは, 同時スクリーニングが可能と判断されたものである。
 注2：結果の() 書きは定量限界(農産物中0.01ppm)が確保できなかった成分を参考として示したものである。

表2-4 添加回収試験による室内精度, 回収率, マトリックス比及びマトリックス補正回収率 (Ⅱ法)

農薬名	農薬成分名	玄 米											
		ポジティブ測定								ネガティブ測定			
		10倍希釈測定											
室内精度 (RSD%)	回収率 (%)	mat比	mat補正回収率 (%)	室内精度 (RSD%)	回収率 (%)	mat比	mat補正回収率 (%)	室内精度 (RSD%)	回収率 (%)	mat比	mat補正回収率 (%)		
MCPB	MCPB	(-)	(0.0)	(0.00)	(0.0)					18.0	92.8	1.07	86.4
アイオキシニル	アイオキシニル									6.4	85.2	1.01	84.3
アジムスルフロ	アジムスルフロ	11.2	98.8	1.12	88.0	2.8	85.4	0.96	89.2	32.6	99.6	1.11	89.5
イマズスルフロ	イマズスルフロ	21.7	103.0	1.14	90.6	4.9	85.5	0.99	86.0	4.1	69.5	0.82	85.2
エトキシスルフロ	エトキシスルフロ	10.5	108.2	1.19	90.6	4.6	88.7	1.03	86.3	6.2	71.6	0.86	83.0
クロルスルフロ	クロルスルフロ	22.6	111.5	1.24	89.8	9.6	84.9	0.99	85.7	5.8	67.5	0.80	84.2
4-クロロフェノキシ酢酸	4-クロロフェノキシ酢酸									9.2	72.1	0.97	74.1
シクロスルフアロン	シクロスルフアロン	11.7	118.2	1.31	90.3	3.9	91.9	1.04	88.4	5.6	87.2	1.05	83.3
ジクロメジン	ジクロメジン	12.5	66.2	0.77	86.1	(6.0)	(84.6)	(1.16)	(73.0)	(9.2)	(94.0)	(1.24)	(75.7)
ハロスルフロメチル	ハロスルフロメチル	18.0	111.4	1.23	90.6	4.3	88.1	1.01	87.6	4.8	105.4	1.12	94.0
フェンヘキサミド	フェンヘキサミド	17.9	66.3	0.76	87.6	1.7	86.7	0.97	89.2	8.1	92.8	1.08	86.2
フラザスルフロ	フラザスルフロ	15.4	104.7	1.20	87.4	5.4	82.1	1.02	80.5	12.0	90.9	1.06	85.8
プロモキシニル	プロモキシニル									6.6	88.4	1.01	87.5
ベンスルフロメチル	ベンスルフロメチル	18.3	115.3	1.28	90.2	3.3	88.2	0.98	90.2	9.4	80.8	0.94	85.6
ホメサフェン	ホメサフェン	3.9	83.4	0.90	92.7	3.9	92.3	1.02	90.0	42.1	123.2	1.35	91.4
メトスルフロメチル	メトスルフロメチル	16.7	110.5	1.28	86.6	3.2	89.2	1.02	87.8	17.1	79.0	0.92	85.9

農薬名	農薬成分名	ばれいしょ											
		ポジティブ測定								ネガティブ測定			
		10倍希釈測定											
室内精度 (RSD%)	回収率 (%)	mat比	mat補正回収率 (%)	室内精度 (RSD%)	回収率 (%)	mat比	mat補正回収率 (%)	室内精度 (RSD%)	回収率 (%)	mat比	mat補正回収率 (%)		
MCPB	MCPB	(131.0)	(36.3)	(0.81)	(45.1)					3.5	93.2	1.18	79.2
アイオキシニル	アイオキシニル									1.8	82.1	1.03	79.4
アジムスルフロ	アジムスルフロ	7.1	109.1	1.25	87.1	1.1	90.8	1.02	88.7	22.4	124.1	1.54	80.3
イマズスルフロ	イマズスルフロ	19.2	111.1	1.37	80.9	6.1	94.5	1.08	87.1	14.7	52.2	0.59	88.7
エトキシスルフロ	エトキシスルフロ	11.8	120.3	1.38	87.1	0.8	91.2	1.05	87.0	34.0	66.7	0.74	90.0
クロルスルフロ	クロルスルフロ	13.8	107.3	1.35	79.4	2.1	89.4	1.12	80.1	14.6	72.9	0.85	85.6
4-クロロフェノキシ酢酸	4-クロロフェノキシ酢酸									18.7	78.9	0.90	87.6
シクロスルフアロン	シクロスルフアロン	20.4	117.6	1.37	85.8	1.0	127.6	1.47	86.7	24.3	92.6	1.14	81.3
ジクロメジン	ジクロメジン	27.4	35.2	0.50	70.9	(14.2)	(85.4)	(1.19)	(71.6)	(7.7)	(72.2)	(1.01)	(71.1)
ハロスルフロメチル	ハロスルフロメチル	10.5	112.9	1.30	86.8	3.6	92.0	1.05	87.8	3.5	102.7	1.16	88.7
フェンヘキサミド	フェンヘキサミド	37.6	44.4	0.51	86.6	11.1	62.0	0.73	85.3	7.1	76.9	0.98	78.8
フラザスルフロ	フラザスルフロ	15.4	140.5	1.72	81.7	4.9	96.8	1.13	86.0	52.9	47.5	0.97	49.2
プロモキシニル	プロモキシニル									1.8	84.9	1.03	82.0
ベンスルフロメチル	ベンスルフロメチル	11.1	141.7	1.67	85.1	2.7	91.7	1.03	88.7	12.5	58.7	0.84	69.7
ホメサフェン	ホメサフェン	18.6	48.1	0.59	81.6	5.9	91.1	1.06	86.0	29.8	138.5	1.62	85.2
メトスルフロメチル	メトスルフロメチル	9.1	145.3	1.73	84.1	2.0	90.1	1.03	87.4	14.6	80.3	1.03	77.8

注1：農薬名, 農薬成分名の網掛けは, 同時スクリーニングが可能と判断されたものである。

注2：結果の () 書きは定量限界 (農産物中0.01ppm) が確保できなかった成分を参考として示したものである。

率に収まることから, 検液中の共存物質の影響が予想された。これを軽減するために測定液を10倍希釈して測定したところ, 10倍希釈でも定量限界 (農産物中0.01ppm) に相当するピークが確認できた11農薬成分中10農薬成分で回収率が70%以上, 室内精度が30%未満の結果が得られた。

以上から, 代謝物や異性体から構成される農薬について, 回収率及び室内精度を最も低い成分の値を当てはめて, 農薬として回収率及び室内精度が充たされているかを検討したところ, I法では60農薬中37農薬が, II法では16農薬中15農薬が本試験法での同時スクリーニングが

可能と判断できた (表2の農薬名に網掛けで示す)。

3・4 妨害物質の除去に関する検討

I法のポジティブ測定 (SCAN測定) でオレンジの無添加試料に18.59分, 19.35分, 19.67分, 20.36分及び20.93分に大きなピークが見られ, これと重なる農薬成分に回収率の低いものがあったことから, これを10倍希釈して測定した。これらのピーク付近で回収率が低かった10農薬成分のうち7農薬成分で回収率の向上が確認できた。

これらのことから, 定量限界を念頭にできるだけ希釈して測定することが, 精度向上に有効と考えられた。

表 2-5 添加回収試験による室内精度，回収率，マトリックス比及びマトリックス補正回収率（Ⅱ法）

農薬名	農薬成分名	だいこん											
		ポジティブ測定								ネガティブ測定			
						10倍希釈測定							
		室内精度 (RSD%)	回収率 (%)	mat比	mat補正回収率 (%)	室内精度 (RSD%)	回収率 (%)	mat比	mat補正回収率 (%)	室内精度 (RSD%)	回収率 (%)	mat比	mat補正回収率 (%)
MCPB	MCPB	(122.8)	(9.8)	(0.00)	(-)					3.8	106.8	1.18	90.6
アイオキシニル	アイオキシニル									3.2	87.1	1.04	84.0
アジメスルフロン	アジメスルフロン	6.4	20.7	0.25	81.7	7.4	71.4	0.84	84.7	27.0	147.9	1.84	80.5
イマゾスルフロン	イマゾスルフロン	13.4	55.7	0.68	82.4	8.5	73.0	0.85	85.9	29.2	42.2	0.46	91.2
エトキシスルフロン	エトキシスルフロン	16.2	90.3	1.15	78.2	1.2	87.5	1.07	81.7	13.0	87.7	0.94	93.1
クロルスルフロン	クロルスルフロン	25.8	62.6	0.69	90.2	25.3	77.6	0.85	91.6	32.5	59.5	0.63	94.7
4-クロロフェノキシ酢酸	4-クロロフェノキシ酢酸									9.5	102.0	1.11	91.9
シクロスルフアムロン	シクロスルフアムロン	11.9	96.2	1.21	79.3	1.5	81.9	1.00	82.1	3.5	87.9	1.00	88.3
ジクロメジン	ジクロメジン	13.1	46.0	0.54	85.6	(4.8)	(63.9)	(0.91)	(70.6)	(6.4)	(90.0)	(1.14)	(78.7)
ハロスルフロンメチル	ハロスルフロンメチル	45.0	32.4	0.39	83.5	4.6	70.7	0.84	83.7	22.0	143.1	1.50	95.5
フェンヘキサミド	フェンヘキサミド	20.1	59.0	0.69	85.0	2.0	83.2	0.96	86.7	5.6	90.1	1.07	84.0
フラザスルフロン	フラザスルフロン	16.5	90.3	1.17	77.2	4.9	82.3	1.06	77.8	9.8	79.4	0.88	89.7
プロモキシニル	プロモキシニル									2.4	86.3	1.02	85.0
ベンスルフロンメチル	ベンスルフロンメチル	14.5	90.1	1.17	76.9	1.0	83.0	0.97	85.6	15.3	82.4	0.98	84.2
ホメサフェン	ホメサフェン	20.4	58.4	0.73	79.8	4.3	82.7	0.96	86.1	24.1	89.6	1.09	82.5
メトスルフロンメチル	メトスルフロンメチル	32.3	87.3	1.09	80.5	1.8	70.4	0.87	81.3	28.7	54.8	0.67	82.1

農薬名	農薬成分名	こまつな											
		ポジティブ測定								ネガティブ測定			
						10倍希釈測定							
		室内精度 (RSD%)	回収率 (%)	mat比	mat補正回収率 (%)	室内精度 (RSD%)	回収率 (%)	mat比	mat補正回収率 (%)	室内精度 (RSD%)	回収率 (%)	mat比	mat補正回収率 (%)
MCPB	MCPB	(111.5)	(104.0)	(0.44)	(234.8)					7.6	126.1	1.13	111.9
アイオキシニル	アイオキシニル									5.8	103.6	1.18	87.7
アジメスルフロン	アジメスルフロン	9.0	129.4	1.32	97.8	4.3	106.2	1.19	89.4	20.2	205.9	2.23	92.3
イマゾスルフロン	イマゾスルフロン	7.6	70.6	0.79	89.5	2.0	83.9	0.97	86.9	190.2	2.8	0.16	17.4
エトキシスルフロン	エトキシスルフロン	4.4	117.1	1.23	95.0	1.3	90.2	1.08	83.8	20.7	64.2	0.68	94.7
クロルスルフロン	クロルスルフロン	17.0	112.4	1.24	90.6	23.5	127.2	1.17	108.7	30.9	57.2	0.64	90.0
4-クロロフェノキシ酢酸	4-クロロフェノキシ酢酸									12.7	121.4	1.23	98.5
シクロスルフアムロン	シクロスルフアムロン	6.2	129.6	1.36	95.4	2.0	93.5	1.11	84.4	2.8	72.3	0.83	87.1
ジクロメジン	ジクロメジン	16.9	54.0	0.59	91.0	(5.0)	(88.6)	(1.08)	(82.4)	(7.9)	(108.8)	(1.29)	(84.1)
ハロスルフロンメチル	ハロスルフロンメチル	5.5	48.1	0.54	88.8	2.3	71.7	0.85	83.9	20.1	31.8	0.37	87.1
フェンヘキサミド	フェンヘキサミド	11.4	52.0	0.56	93.3	1.3	82.0	0.95	86.6	2.8	96.9	1.04	93.1
フラザスルフロン	フラザスルフロン	6.4	126.4	1.35	93.7	9.0	92.9	1.16	80.0	7.1	83.8	1.01	83.3
プロモキシニル	プロモキシニル									3.0	95.7	1.02	94.2
ベンスルフロンメチル	ベンスルフロンメチル	5.3	140.9	1.49	94.7	0.8	91.2	1.07	85.1	18.6	83.8	0.94	89.4
ホメサフェン	ホメサフェン	11.5	49.0	0.56	87.3	5.4	81.8	0.97	84.6	19.5	133.0	1.38	96.8
メトスルフロンメチル	メトスルフロンメチル	15.8	174.4	1.81	96.3	3.0	104.7	1.23	85.1	19.3	64.1	0.72	89.3

注1：農薬名，農薬成分名の網掛けは，同時スクリーニングが可能と判断されたものである。

注2：結果の（ ）書きは定量限界（農産物中0.01ppm）が確保できなかった成分を参考として示したものである。

表2-6 添加回収試験による室内精度, 回収率, マトリックス比及びマトリックス補正回収率 (Ⅱ法)

農薬名	農薬成分名	日本なし											
		ポジティブ測定								ネガティブ測定			
		10倍希釈測定				10倍希釈測定				10倍希釈測定			
室内精度 (RSD%)	回収率 (%)	mat比	mat補正回収率 (%)	室内精度 (RSD%)	回収率 (%)	mat比	mat補正回収率 (%)	室内精度 (RSD%)	回収率 (%)	mat比	mat補正回収率 (%)		
MCPB	MCPB	(14.2)	(109.3)	(1.11)	(98.6)					6.2	101.7	1.15	88.1
アイオキシニル	アイオキシニル									2.2	92.2	1.04	89.0
アジムスルフロ	アジムスルフロ	4.2	111.6	1.17	95.6	7.3	95.5	1.12	85.4	2.4	136.9	1.65	82.9
イマズスルフロ	イマズスルフロ	2.7	120.3	1.23	97.7	8.4	94.3	1.10	85.8	3.9	72.9	0.76	96.1
エトキシスルフロ	エトキシスルフロ	2.5	114.3	1.21	94.3	2.5	91.2	1.06	86.4	3.1	95.0	1.00	95.1
クロルスルフロ	クロルスルフロ	4.0	142.9	1.53	93.3	4.3	91.8	1.08	85.2	9.7	70.7	0.74	95.7
4-クロロフェノキシ酢酸	4-クロロフェノキシ酢酸									10.2	101.8	1.18	86.3
シクロスルファミロン	シクロスルファミロン	5.1	117.0	1.24	94.6	1.1	89.2	1.05	85.0	4.5	93.7	1.03	91.3
ジクロメジン	ジクロメジン	16.0	64.9	0.75	86.3	(6.6)	(90.2)	(1.19)	(76.0)	(9.2)	(86.1)	(1.03)	(83.6)
ハロスルフロメチル	ハロスルフロメチル	3.3	119.3	1.27	93.9	5.7	92.1	1.09	84.7	15.7	124.4	1.23	101.1
フェンヘキサミド	フェンヘキサミド	6.0	69.9	0.73	95.4	3.3	88.5	1.00	88.6	2.5	95.0	1.08	88.0
フラザスルフロ	フラザスルフロ	7.1	121.4	1.35	90.0	8.7	83.8	1.11	75.2	5.4	92.8	1.09	84.8
プロモキシニル	プロモキシニル									2.7	94.3	1.04	90.6
ベンスルフロメチル	ベンスルフロメチル	2.9	117.0	1.26	92.7	2.2	88.9	1.02	87.1	2.8	86.8	0.99	87.7
ホメサフェン	ホメサフェン	2.0	90.4	0.96	94.6	4.7	97.1	1.09	88.9	4.7	106.3	1.20	88.7
メトスルフロメチル	メトスルフロメチル	6.4	149.3	1.60	93.1	3.0	92.3	1.08	85.4	4.5	82.0	0.95	86.5

農薬名	農薬成分名	オレンジ											
		ポジティブ測定								ネガティブ測定			
		10倍希釈測定				10倍希釈測定				10倍希釈測定			
室内精度 (RSD%)	回収率 (%)	mat比	mat補正回収率 (%)	室内精度 (RSD%)	回収率 (%)	mat比	mat補正回収率 (%)	室内精度 (RSD%)	回収率 (%)	mat比	mat補正回収率 (%)		
MCPB	MCPB	(45.5)	(26.3)	(0.32)	(82.0)					2.4	99.6	1.07	92.8
アイオキシニル	アイオキシニル									4.9	80.1	0.92	86.7
アジムスルフロ	アジムスルフロ	4.8	103.3	1.08	95.8	0.7	130.1	1.64	79.2	5.9	125.3	1.29	97.3
イマズスルフロ	イマズスルフロ	0.9	45.6	0.51	90.1	1.0	102.4	1.24	82.7	41.4	15.9	0.21	74.5
エトキシスルフロ	エトキシスルフロ	2.4	94.3	1.04	90.5	2.3	98.6	1.22	81.1	14.2	54.3	0.64	85.0
クロルスルフロ	クロルスルフロ	6.9	121.5	1.30	93.6	1.4	189.1	2.27	83.3	18.2	44.5	0.55	80.8
4-クロロフェノキシ酢酸	4-クロロフェノキシ酢酸									17.0	127.9	1.02	125.1
シクロスルファミロン	シクロスルファミロン	3.5	70.3	0.79	88.8	1.4	105.0	1.32	79.6	3.8	72.4	0.81	89.5
ジクロメジン	ジクロメジン	4.9	30.0	0.37	81.7	(3.7)	(72.9)	(0.87)	(84.0)	(15.5)	(85.9)	(1.04)	(82.3)
ハロスルフロメチル	ハロスルフロメチル	1.9	80.6	0.87	92.6	2.6	115.6	1.38	83.5	6.9	50.8	0.62	81.8
フェンヘキサミド	フェンヘキサミド	3.3	25.7	0.29	90.2	3.9	60.0	0.70	86.0	5.8	73.4	0.80	91.3
フラザスルフロ	フラザスルフロ	2.1	100.4	1.10	91.1	7.8	110.1	1.48	74.4	9.7	116.4	1.33	87.5
プロモキシニル	プロモキシニル									6.8	75.7	0.87	87.3
ベンスルフロメチル	ベンスルフロメチル	2.1	108.9	1.22	89.4	2.9	116.4	1.43	81.5	11.0	64.7	0.79	82.2
ホメサフェン	ホメサフェン	18.4	25.6	0.22	114.6	9.6	82.9	0.98	84.5	5.0	112.1	1.26	89.0
メトスルフロメチル	メトスルフロメチル	4.4	134.8	1.45	93.2	2.3	181.8	2.22	81.7	26.5	60.1	0.67	90.2

注1：農薬名, 農薬成分名の網掛けは, 同時スクリーニングが可能と判断されたものである。
 注2：結果の()書きは定量限界(農産物中0.01ppm)が確保できなかった成分を参考として示したものである。

4 ま と め

- (1) アゾキシストロピン等76農薬88農薬成分を, LC/MS一斉試験法(Ⅰ法及びⅡ法)による同時分析(同時スクリーニング)の可能性を検討したところ, Ⅰ法では37農薬, Ⅱ法では15農薬が, 回収率70%以上, 室内精度30%未満の分析精度で可能であった。
- (2) オレンジの無添加試料で18.59分, 19.35分, 19.67分, 20.36分及び20.93分に大きなピークが見られ, これと重なる農薬成分に回収率の低いものがあったことから, 測定液を10倍希釈して測定したところ, 回収率

が低かった10成分のうち7成分で回収率の向上が確認できた。このことから, 定量限界を念頭にできるだけ希釈して測定することが, 精度向上に有効と考えられた。

文 献

- 1) 厚生労働省医薬食品局食品安全部長通知食安発第0124001号：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について, 平成17年1月24日
- 2) 厚生労働省医薬食品局食品安全部：平成18年度食品

安全行政講習会テキスト（平成18年5月）

- 3) 織田敏郎, 初瀬 裕, 吉村瑞江, 砺波和子: 残留農薬等ポジティブリスト制度に対応したGC/MS(SIM)による同時分析法について, 石川県保健環境センター研究報告書, **45**, 32-41 (2008)
- 4) 国立医薬品食品衛生研究所安全情報部, 輸出国における農薬等の使用状況等に関する調査 (平成17年度及び18年度), http://www.nihs.go.jp/hse/food-info/chemical/pest_imp-fd/index.html, 2008年9月4日
- 5) 厚生労働省医薬食品局食品安全部長通知食安発第1115001号: 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

〔資 料〕

平成20年度水道水等水質検査精度管理調査結果について

— 石川県年次報告 —

橋本 潤子・酒井 道則・岡田真規子

石川県保健環境センター 健康・食品安全科学部 山岸 喜信・橋本喜代一・北川恵美子

本庄 峰夫

〔和文要旨〕

県内の水質検査の技術水準の把握と向上を目的に昭和58年から水道水の精度管理を行っている。平成20年度は従属栄養細菌、鉄及びその化合物、マンガン及びその化合物を対象として実施した。配付試料は当センターが調製し、従属栄養細菌は100~1000CFU/mL以内のものを適正と判定、鉄及びその化合物とマンガン及びその化合物は機関内変動係数、設定濃度に対する割合、Grubbsの方法等により評価し、それぞれ概ね良好な結果が得られた。

キーワード：水道水、精度管理、従属栄養細菌、鉄、マンガン

1 はじめに

本県では、県内関係機関の水質検査に係る技術水準の把握と向上を目的として、昭和58年度から水道水の水質分析に関する精度管理を実施している。

第34回目の平成20年度は、従属栄養細菌、鉄及びその化合物（以下「鉄」という）、マンガン及びその化合物（以下「マンガン」という）を対象として精度管理調査を行ったので、その概要を報告する。

2 調査方法

2・1 対象機関

厚生労働大臣登録検査機関12機関、水道事業体4機関、公的機関1機関及び当センターの計18機関を対象とした。ただし、測定項目によっては不参加の機関もあった。

2・2 測定項目及び測定方法

今回の測定項目は、水道水質管理目標設定項目のひとつである従属栄養細菌及び水道水質基準項目である鉄及

びマンガンを対象とした。従属栄養細菌については、平成20年度に水道水質管理目標設定項目となり、また、鉄については平成19年3月から測定方法にICP-MS法が採用されたという理由から、マンガンについては鉄との混合試料として選んだものである。測定方法を表1に示す。従属栄養細菌については、「水質基準に関する省令の一部改正等について（平成15年10月10日付健発第1010004号、厚生労働省健康局水道課長通知）」による方法とし、鉄及びマンガンについては「水道水質基準項目に係る厚生労働大臣が定める方法（平成15年7月22日付厚生労働省告示第261号、平成19年3月30日付厚生労働省告示第74号での一部改正）」によるものとした。

2・3 配付試料及び結果報告

表2の内容で当センターが調製した試料を、従属栄養細菌測定用は滅菌ポリエチレンビンに、鉄及びマンガンはポリエチレンビンに混合試料として高濃度試料測定用・低濃度試料測定用と各々分取し、参加機関に直接配付した。鉄及びマンガンについては配付試料を10倍に希

Assessment of Precision in the Quality Control of Tap Water among Laboratories in 2008 -An Annual Report in Ishikawa Prefecture-. by HASHIMOTO Junko, SAKAI Michinori, OKADA Makiko, YAMAGISHI Yoshinobu, HASHIMOTO Kiyokazu, KITAGAWA Emiko and HONZYO Mineo (Health and Food Safety Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Tap water, Quality control, Heterotrophic bacteria, Iron, Manganese

表1 測定項目及び測定方法

測定項目	測定方法
従属栄養細菌	R2A寒天培地法：R2A寒天培地を用いて混積法で操作し、20℃で7日培養後、培地に集落を形成した全ての細菌を測定する。使用培地については保健環境センターで用意した。
鉄及びマンガン	誘導結合プラズマ質量分析法 ICP-MS法 誘導結合プラズマ発光分光分析 ICP-AES法 フレイムレス原子吸光光度法 AAS法

積して、測定は5回の繰り返し試験とし、5回の測定結果をすべて報告することとした。

3 解析方法

3・1 従属栄養細菌

従属栄養細菌が添加された試料-Aについては報告値が100~1000 CFU/mL以内のものを適正と判定した。

3・2 鉄及びマンガン

機関ごとに変動係数、設定濃度に対する測定値の割合を算出した。異常値については、Grubbsの方法で検定を行った。また、ISO/IEC43-1 (JISQ0043-1) 及び厚生労働省の「平成19年度水道水質検査の精度管理結果」を参考にZスコアを計算した。さらに、測定結果のばらつきを視覚的に捉えるため、箱ひげ図¹⁾を用いた評価も行った。これらの判定基準を以下に示す。

(1) 機関内変動係数²⁾

適正値は、10%以下とした。

(2) 設定濃度に対する割合²⁾

適正範囲は、90~110%とした。

(3) Grubbsの方法による異常値の判定

異常値は棄却限界5%とした。

表2 配付試料の内容

名称	分析項目	内容
試料-A	従属栄養細菌	トリプトソイブイオンで増菌後、菌数を測定し、滅菌リン酸緩衝生理食塩水で100~1000CFU/mLになるように適宜希釈したもの
試料-B	鉄及びマンガンの混合試料(高濃度)	超純水に鉄及びマンガン標準液(1000 mg/L)を添加してそれぞれ3 mg/L及び0.5 mg/Lになるように調製したもの
試料-C	鉄及びマンガンの混合試料(低濃度)	超純水に鉄及びマンガン標準液(1000 mg/L)を添加してそれぞれ0.3 mg/L及び0.05 mg/Lになるように調製したもの

(4) Zスコア

Zスコアの評価基準は、一般的には以下のとおりである。

$$|Z| \leq 2 \quad \text{満足}$$

$$2 < |Z| < 3 \quad \text{疑義あり}$$

$$3 \leq |Z| \quad \text{不満足}$$

(5) 箱ひげ図

箱ひげ図の評価は、ヒンジ幅の1.5倍のところまで上下に各ヒンジから「ひげ」を引き、それぞれの線の先端(ひげ端)を上内境界点、下内境界点とし、これらのひげ端より大きい、または小さいデータははずれ値とした。

なお、最大値が上内境界点より箱に近い場合は最大値を上内境界点とし、最小値の扱いも同様とした。

4 結果と考察

4・1 従属栄養細菌

各機関の測定結果を表3に示す。低温恒温器のない1機関と低温恒温器の温度設定が不良であった1機関を除いた15機関の7日間培養後の細菌数は240~590CFU/mLの範囲であり、平均値は322CFU/mLと良好な検査結果が得られた。

4・2 鉄及びマンガン(高濃度試料)

本年度の理化学試験は、試料B・Cを、それぞれ10倍

表3 従属栄養細菌の測定結果

No.	一般細菌数 (24時間) (CFU/mL)	従属栄養細菌数 (24時間) (CFU/mL)	従属栄養細菌数 (7日後) (CFU/mL)
1	0	0	330
2	0	0	255
3	0	0	260
4	0	0	590
5	0	0	290
6	0	0	280
7	0	0	320
8	0	0	300
9	0	0	240
10	検査しない	0	280
11	0	0	266
12	0	1	260
13	0	0	390
14	0	0	360
15	0	0	410
16	0	1	-
17	検査しない	0	-
平均	-	-	322
最小	-	-	240
最大	-	-	590

注：No16と17の機関は機器の不具合により培養後の測定はなし。
1 機関は不参加

表4 鉄 (高濃度試料) の測定結果

No.	測定方法	濃度 mg/L	機関内 変動係数 (%)	設定濃度に 対する割合 (%)	Zスコア
1	ICP-MS法	0.287	3.93	95.6	-2.97
2	ICP-MS法	0.300	1.20	100.0	0.27
3	AAS法	0.298	0.67	99.2	-0.28
4	AAS法	0.300	0.00	100.0	0.28
5	ICP-AES法	0.294	0.24	98.2	0.29
6	ICP-AES法	0.296	0.65	98.6	-0.79
7	ICP-AES法	0.298	1.89	99.3	-0.21
8	AAS法	0.302	3.48	100.7	0.82
9	ICP-AES法	0.299	5.12	99.8	0.13
10	ICP-AES法	0.292	1.98	97.4	-1.61
11	ICP-AES法	0.298	0.52	99.4	-0.13
12	ICP-MS法	0.307	1.68	102.4	2.08
13	AAS法	0.313	0.97	104.3	3.49
14	ICP-AES法	0.308	0.37	102.8	2.35
平均値		0.300	-	99.9	-
中央値		0.299	-	-	-
最小値		0.287	0.00	95.6	-2.97
最大値		0.313	5.12	104.3	3.49
標準偏差		0.0067	-	-	-
変動係数		2.25	-	-	-

注：15機関の参加だったが1機関は希釈ミスで解析から除外した。

表5 マンガン (高濃度試料) の測定結果

No.	測定方法	濃度 mg/L	機関内 変動係数 (%)	設定濃度に 対する割合 (%)	Zスコア
1	ICP-MS法	0.0518	3.62	103.5	1.28
2	ICP-MS法	0.0500	1.10	100.0	-0.03
3	ICP-MS法	0.0493	0.39	98.6	-0.54
4	ICP-MS法	0.0494	0.89	98.9	-0.45
5	ICP-MS法	0.0515	1.00	103.0	1.09
6	ICP-AES法	0.0501	0.48	100.3	0.07
7	ICP-MS法	0.0501	0.32	100.2	0.04
8	ICP-AES法	0.0494	0.75	98.8	-0.46
9	ICP-MS法	0.0484	2.13	96.7	-1.25
10	ICP-AES法	0.0479	1.80	95.8	-1.59
11	ICP-AES法	0.0501	0.78	100.2	0.03
12	ICP-MS法	0.0489	1.87	97.8	-0.85
13	AAS法	0.0540	3.29	108.0	2.96
14	ICP-AES法	0.0516	1.06	103.2	1.16
平均値		0.0502	-	100.4	-
中央値		0.0500	-	-	-
最小値		0.0479	0.32	95.8	-1.59
最大値		0.0540	3.62	108.0	2.96
標準偏差		0.0016	-	-	-
変動係数		3.18	-	-	-

注：15機関の参加だったが1機関は希釈ミスで解析から除外した。

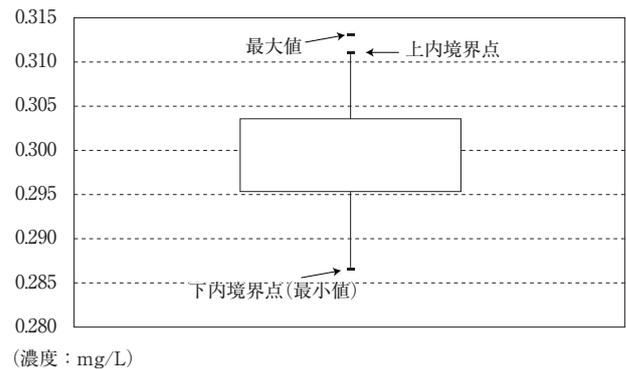


図1 箱ひげ図 鉄 (高濃度)

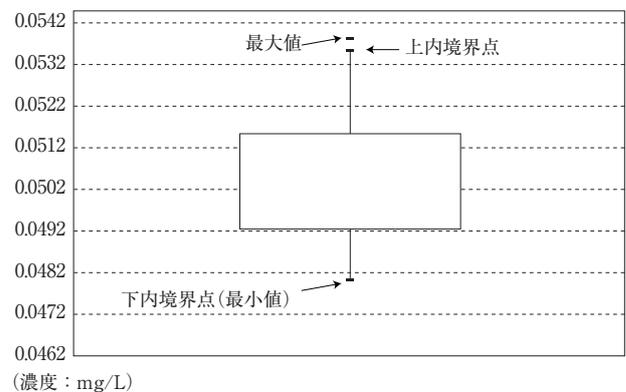


図2 箱ひげ図 マンガン (高濃度)

に希釈して測定し、報告することになっていたが、1機関は希釈を行わずに報告したため、Grubbsの棄却検定で棄却された。以下はこの機関を除いた14機関の結果を解析したものである。

(1) 鉄

鉄 (高濃度試料) の測定結果を表4に示す。

参加14機関の測定値は0.287~0.313 mg/Lの範囲にあり、平均値は0.300 mg/L、中央値は0.299 mg/Lであった。設定濃度に対する割合は95.6~104.3%であり、すべての機関で適正範囲内であった。機関内変動係数は0.00~5.12%であり全機関とも適正な範囲内であった。

Grubbsの検定で棄却された機関はなかったが、1機関についてはZスコアの絶対値が3を超え(正の側)、箱ひげ図を用いた検討(図1)においても上内境界点よりはずれた値となった。しかし、それ以外の機関はすべて良好な結果が得られた。

測定方法別による測定値はそれぞれの平均値がICP-MS法(3機関)0.298 mg/L、ICP-AES法(7機関)0.298 mg/L、AAS法(4機関)0.303 mg/Lと差はみられなかった。

(2) マンガン

マンガン (高濃度試料) の測定結果を表5に示す。

参加14機関の測定値は0.0479~0.0540 mg/Lの範囲に

表6 鉄（低濃度試料）の測定結果

No.	測定方法	濃度 mg/L	機関内 変動係数 (%)	設定濃度に 対する割合 (%)	Zスコア
1	ICP-MS法	0.019	1.17	61.7	-17.76
2	ICP-MS法	0.030	4.71	100.6	0.96
3	AAS法	0.027	2.00	91.3	-3.50
4	ICP-AES法	0.029	0.28	98.1	-0.26
5	ICP-AES法	0.030	2.13	100.1	0.71
6	ICP-AES法	0.030	1.22	99.3	0.32
7	AAS法	0.031	2.10	104.7	2.92
8	ICP-AES法	0.030	6.15	98.6	0.00
9	ICP-AES法	0.032	2.26	105.5	3.34
10	ICP-AES法	0.029	0.66	97.8	-0.39
11	ICP-MS法	0.030	1.53	101.3	1.32
12	AAS法	0.029	1.13	96.7	-0.90
13	ICP-AES法	0.029	5.16	98.0	-0.29
平均値		0.029	-	96.4	-
中央値		0.030	-	-	-
最小値		0.019	0.28	61.7	-17.76
最大値		0.032	6.15	105.5	3.34
標準偏差		0.0033	-	-	-
変動係数		11.42	-	-	-

注：14機関の参加だったが1機関は希釈ミスで解析から除外した。

表7 マンガン（低濃度試料）の測定結果

No.	測定方法	濃度 mg/L	機関内 変動係数 (%)	設定濃度に 対する割合 (%)	Zスコア
1	ICP-MS法	0.0044	1.91	87.6	-4.65
2	ICP-MS法	0.0051	2.14	102.4	0.90
3	ICP-MS法	0.0049	2.72	98.8	-0.45
4	ICP-MS法	0.0051	1.65	101.6	0.60
5	ICP-MS法	0.0052	0.86	104.4	1.65
6	ICP-AES法	0.0051	1.77	101.2	0.45
7	ICP-MS法	0.0050	0.00	100.0	0.00
8	ICP-AES法	0.0047	1.89	94.8	-1.95
9	ICP-MS法	0.0049	2.67	97.6	-0.90
10	ICP-AES法	0.0051	0.87	102.4	0.90
11	ICP-AES法	0.0050	1.10	99.2	-0.30
12	ICP-MS法	0.0049	2.35	97.2	-1.05
13	AAS法	0.0051	2.65	101.2	0.45
14	ICP-AES法	0.0050	0.00	100.0	0.00
平均値		0.0050	-	99.2	-
中央値		0.0050	-	-	-
最小値		0.0044	0.00	87.6	-4.65
最大値		0.0052	2.72	104.4	1.65
標準偏差		0.0002	-	-	-
変動係数		4.18	-	-	-

注：15機関の参加だったが1機関は希釈ミスで解析から除外した。

あり、平均値は0.0502 mg/L、中央値は0.0500 mg/Lであった。設定濃度に対する割合は95.8~108.0 %であり、すべ

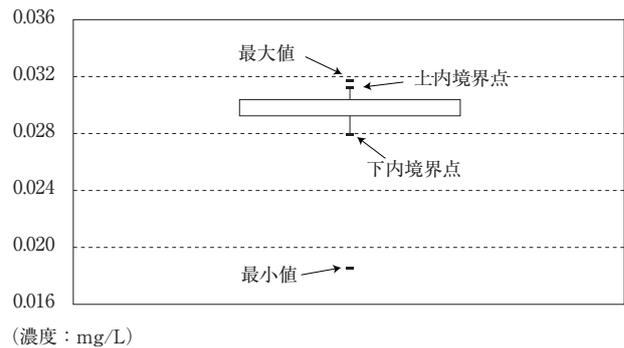


図3 箱ひげ図 鉄（低濃度）

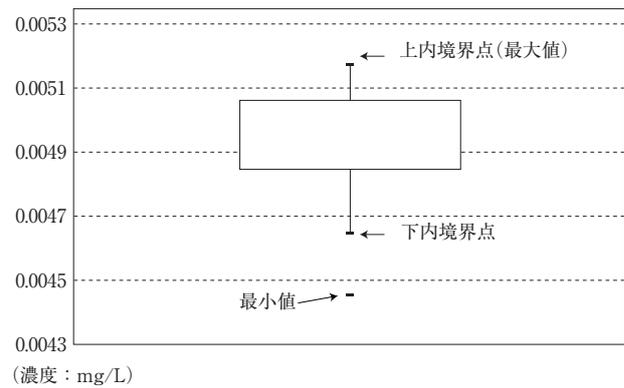


図4 箱ひげ図 マンガン（低濃度）

ての機関で適正範囲内であった。機関内変動係数は0.32~3.62 %であり全機関適正な範囲内であった。

Grubbsの検定で棄却された機関はなく、Zスコアの絶対値が3を超えた機関もなかった。箱ひげ図を用いた検討（図2）においては1機関の最大値が上内境界点よりはずれた値となったが、それ以外の機関は良好な結果が得られた。

4・3 鉄及びマンガン（低濃度試料）

(1) 鉄

鉄（低濃度試料）の測定結果を表6に示す。

参加13機関の測定値は0.019~0.032 mg/Lの範囲にあり、平均値は0.029 mg/L、中央値は0.030 mg/Lであった。設定濃度に対する割合は61.7~105.5 %で、1機関が設定範囲を下回ったが、他の機関はすべて良好な結果であった。機関内変動係数は0.28~6.15 %で全機関適正な範囲内であった。

Grubbsの検定で棄却された機関はなかったが、3機関についてはZスコアの絶対値が3を超え（正の側1、負の側2）、2機関は箱ひげ図を用いた検討（図3）においても上・下内境界点よりはずれた値となった。しかし、他の10機関は良好な結果であった。

測定方法別による測定値は、Zスコアの絶対値が大きく外れた1機関（ICP-MS法）を除いた平均値がそれぞれICP-MS法（2機関）0.030 mg/L、ICP-AES法（7機

関) 0.030 mg/L, AAS法 (3 機関) 0.029 mg/Lと差はみられなかった。

(2) マンガン

マンガン (低濃度試料) の測定結果を表7に示す。

参加14機関の測定値は0.0044~0.0052 mg/Lの範囲にあり, 平均値, 中央値はともに0.0050 mg/Lであった。設定濃度に対する割合は87.6~104.4 %で, 1 機関が適正範囲をはずれていたが, 機関内変動係数は0.00~2.72 %で全機関が適正な範囲にあった。

Grubbsの検定で棄却された機関はなかったが, 1 機関についてはZスコアの絶対値が3を超え (負の側), 箱ひげ図を用いた検討 (図4) においても下内境界点よりはずれた値となったが, 他の機関は概ね良好な結果であった。

4・4 その他

今回の調査では, 一部の機関において, 試料の希釈忘れや, 機器の調整不備による不適切な測定結果がみられた。日頃から各機関における標準作業書等の見直しや分析チェック体制等測定作業の基本部分の強化が望まれる。

5 ま と め

(1) 従属栄養細菌の測定結果について

低温恒温器のない機関と低温恒温器の温度設定が不良であった2 機関を除いた15機関からは良好な検査結果が

得られた。

(2) 鉄及びマンガンの高濃度試料測定結果について
機関内変動係数, 設定濃度に対する割合は, 鉄, マンガンともすべての機関で適正範囲内であり, 良好な結果が得られた。鉄においてZスコアの絶対値が3を超えた1 機関についても設定濃度に対する割合は104.3%と適正範囲内にあった。

鉄については, 測定法による測定値の差はみられなかった。

(3) 鉄及びマンガンの低濃度試料測定結果について
機関内変動係数はすべての機関で適正範囲内であった。設定濃度に対する割合は1 機関で鉄, マンガンとも適正範囲をはずれ, Zスコアについても3を大きく超えた。

また, 他の2 機関は鉄においてZスコアの絶対値が3を超えたが, 設定濃度に対する割合は適正範囲内であった。

なお, 鉄については, 測定法による測定値の差はみられなかった。

文 献

- 1) 菅 民郎: Excelで学ぶ統計解析入門第2版, オーム社 (2003)
- 2) 上水試験方法, 2001年版, 54-64, (社) 日本水道協会 (2001)

〔資 料〕

大気環境監視システムの更新について

石川県保健環境センター 環境科学部 山田 肇・中山 哲彦

〔和文要旨〕

石川県では平成21年1月に大気環境監視システムを更新した。今回の更新はPCサーバを利用することによる機器のダウンサイジングとインターネットによる情報提供の迅速化を目的として実施した。またテレメータ子局装置にIP (Internet Protocol) 機器を採用し、通信費用を増やさずに常時接続とデータ収集間隔の短縮を実現し、特に光化学オキシダント高濃度時の運用に非常に役立った。

キーワード：大気常時監視システム, 常時接続

1 はじめに

石川県の大気環境監視システムは、昭和49年2月に運用を開始し、昭和55年10月、昭和62年4月、平成4年10月、平成14年1月と更新を行ってきた^{1) 2)}。

前システムも更新から7年が経過し、記憶容量が限界に達したことやサーバ、OS、データベースの保守期間が終了したことに加え、測定結果の公表についてもインターネットによるすばやい情報提供が求められており、今回、システムの更新を行うこととした。以下その概要を報告する。

2 基本的な考え方

2・1 経緯

平成14年1月までのシステムはデータ収集を行うオンラインシステムと、年度集計、報告書作成及びデータ解析のほか、ばい煙発生施設の管理や統計解析等を行うオフラインシステムとの2系統であった。

しかし、平成14年1月の更新でデータ収集・修正、日報・月報、年度集計、環境省報告、県報告書作成支援をUNIXサーバ+パソコンで行うようになり、オフラインシステムを使ったデータ解析等もパソコンで行うことが多くなり、汎用機を使うことが減ってきていた。そこで、今回の更新にあたっては、近年急速に信頼性が向上し低価格化も進んできたMS-WindowsやUNIXベースのサー

バを採用し、機器のダウンサイジングとコストダウンを図ることとした。

また平成16年度からインターネットを利用して毎正時の大気データの速報値を公表してきたが、データ更新が20分後と遅かったことから、その改善を図ることとした。

2・2 プロポーザル方式の採用

更新にあたってはプロポーザル方式を採用することとし、まず稼働中のシステムの課題と対策を複数の事業者に提示し、提出された提案内容を審査した。その結果、複数の事業者から、当初県が予定していた既存のテレメータ子局装置（以下子局装置という。）(ISDN回線使用・独自のプロトコル)を使用しないで、直接LAN接続可能な子局装置と常時接続回線を用いる提案があった。最終的には、既存の子局装置の更新費用も含めたシステム全体のトータルコストを抑えることができるため、提案のあった子局装置を新たに採用することとした。また、常時接続回線としてはNTTフレッツ回線を採用することとした。但し、県出先機関敷地内にある七尾、松任、羽咋の3測定局への接続については既設の県IMS (Ishikawa Multimedia Super highway) 回線を使用することとした。

3 システム構成

3・1 サーバ

基本的なシステム構成を図1に示す。サーバは表1の

About Renewal of the Air Monitoring System. by YAMADA Hajime and NAKAYAMA Tetsuhiko (Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Air Monitoring System, Always-on connection

ように4台構成とし、各サーバごとに個別の無停電電源装置と繋げ、OSはWindows Server2003とした。データ管理サーバ及びデータ収集サーバは内部2重化サーバとし、時刻校正は県イントラネット内のNTP (Network Time Protocol) サーバを利用した。

データ収集サーバはNTTフレッツ回線及び県IMS回線を通じ、各測定局のデータ及び北陸電力七尾大田火力発電所の煙源局のデータを収集している。

データ管理サーバはデータベースソフトMicrosoft SQL Server2005で過去のデータも含めて測定データの蓄積・管理を行なっている。またデータは定期的にAIT (Advanced Intelligent Tape) によってバックアップされている。

通信サーバは、毎正時金沢市とのデータ交換、ホームページ更新及び担当者への警報メール送信のための通信制御を行っている。

ターミナルサーバは各端末にWindows Server2003のターミナルサービス機能によってデータ監視・集計機能を担っている。

3・2 子局装置

子局装置は直接LAN接続可能な機種(グリーンブルー(株)製 REC-1₂₁)を採用した。測定値は1時間値が直近180日間分、5分間値が直近2週間分、子局装置内に保存される。また測定値は測定項目(測定チャンネル)毎に前面液晶パネルに表示できる。

3・3 監視端末

監視端末用PCはターミナルサーバと接続しており、各測定局のデータ監視、各種集計に用いる。ターミナルサービス機能を利用したことでソフトの修正・改良等があった場合もターミナルサーバ内のソフトを更新するだけでよく、各端末での更新作業が不要となった。

3・4 通信回線

(1) データ収集回線

データ収集回線については、子局装置の変更によりADSL回線、光回線等で安価な常時接続が利用できるようになった。回線種別については費用の面からADSL、光、ISDNの順に優先した。また七尾、松任、羽咋の3測定局については出先機関庁舎から既設のLANケーブル

を延長し子局装置に接続した。NTT回線についてはフレッツグループベーシックメニューにより、IMS回線についてはIMS設置者側でIPアドレス及びMACアドレスによる接続監視及び経路制御により、大気環境監視システム以外の通信を遮断している。

(2) 監視端末用回線

監視端末用PCとの接続については、センター内は大気環境監視システム専用のLAN回線を、県庁環境政策課内の監視端末用PCについてはIMS回線を利用した。

(3) 金沢市大気汚染常時監視システム・七尾市大気環境監視システムデータ交換用回線

金沢市大気汚染常時監視システムとのデータ交換は従来からのNTT専用回線(3.4kH音声回線)を使用し、モデムを用いて1時間値を送受信している。七尾市大気環境監視システムとの間は測定局と同様にNTTフレッツ回線を採用した。

3・5 情報提供システム

近年、インターネットの普及により各自治体ホームページによる速報値公表が一般的になってきた。また、国においても「そらまめ君(環境省大気汚染物質広域監視システム)」を構築し、全国のデータを公表している。石川県でも平成16年から、ホームページで毎正時の大気データの速報値を公表している。今回の更新では、測定データの公表までのタイムラグを10分以内にすることを目標とし、同時に以前はなかった過去データ表示、地図上での表示、グラフ表示等を追加した。

3・6 通報システム

中央制御室及び職員室に警報灯を設置し、高濃度発生時及び機器故障時には警報灯が点灯しブザー音が鳴る機能を追加した。また夜間・休日等における対応のため、警報灯作動時には担当者あてに警報の内容をメールで送信するシステムを追加した。

4 結 果

4・1 サーバ、監視端末PC間の接続方式

監視端末用PCとサーバの接続については、Web方式も検討したが、端末がシステム管理用を含め5台と少数であることからターミナルサービス機能を利用することとした。これまでのクライアントサーバ方式では、クライアント側ソフトの改修を必要とする度にクライアント側でのソフトの入れ替えが必要であったが、新システムではサーバ側だけの改修で済み、作業も稼働中に行うことができるよう

表1 サーバ仕様

	CPU	メモリ	HDD容量	OS	消費電力
データ収集サーバ	Xeon 2.40GHz	2.0GB	73GB×2 146GB×2	Windows Server 2003	1,200W
データ管理サーバ	Xeon 2.40GHz	2.0GB	73GB×2 146GB×2	Windows Server 2003	1,200W
通信サーバ	Xeon 3.33GHz	2.0GB	36GB×2	Windows Server 2003	790W
ターミナルサーバ	Xeon 2.33GHz	2.5GB	73GB×2	Windows Server 2003	233W

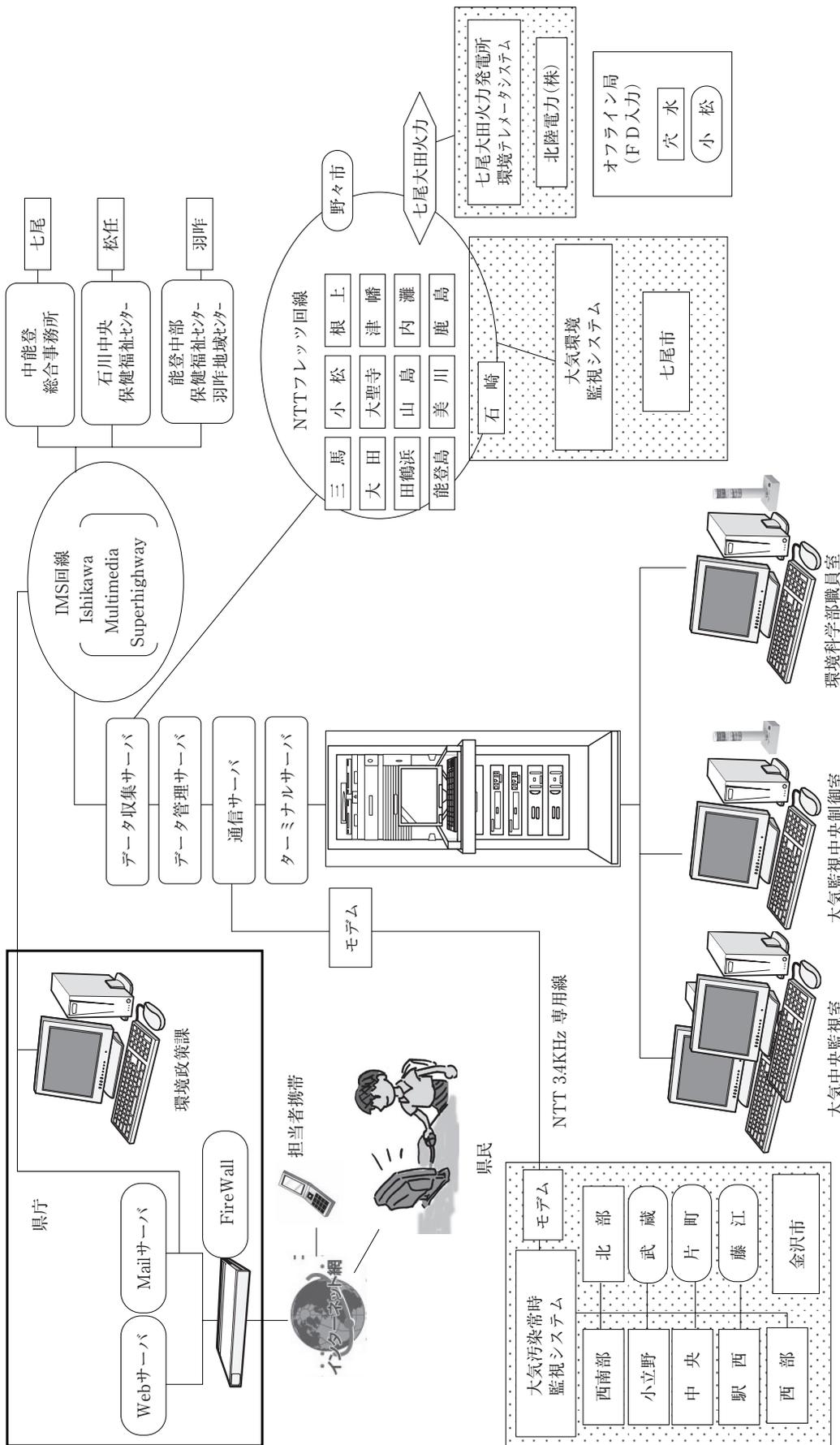


図1 石川県大気環境監視システム構成図

になった。

4・2 データ収集間隔の短縮

常時接続回線の利用により、データ収集間隔を1時間ごとに1回から5分間ごとに1回にすることが可能になった。また光化学オキシダントについては瞬時値も収集対象としたことにより、光化学オキシダント高濃度時に、次の正時のデータ予測に大いに役立った。

例えば1時間値が11時で90ppb、12時で110ppb、12時30分時点で60ppb(1時間値120ppb相当)であっても瞬時値が100ppbであればピークは過ぎており、以後は減少していくと予想ができた。

4・3 ダウンサイジングとコストダウン

ダウンサイジングについては、PCサーバを採用し無停電電源装置も含め、共通19インチラックサイズとした。これにより全てのサーバを同一ラック内に入れることができ、配線も短くでき保守性も向上した。

コストダウンについては、機器のリース料を大幅に削減でき、保守費用についても削減することができた。

4・4 情報提供システム

情報提供システムについては、各測定局のデータ収集後、金沢市とのデータ交換終了後にホームページの更新を行うようにし、目標であった10分以内の速報値公表が可能となった。

5 今後の課題とまとめ

(1) データ収集回線について

フレッツ回線のうちADSL回線を利用した測定局からデータ収集ができないことが現在もたびたび発生している。通常次回収集時(5分後)には通信が回復しているため、大きな障害はないが、局の停電やブレーカ断との区別がつかないため、深夜に警報メールが届くことも多い。対策として、正時以外は2回連続で通信不調があった場合に限り警報メールを送る等の変更が必要と考える。

IMS回線についてはセキュリティが高く安全な反面、MACアドレス未登録の機器では通信ができないため、機器故障が発生した場合、故障機器を代替するだけでは通信が回復せず、IMS回線管理部署での設定変更も必要であり、休日等でも他部局職員の手を煩わすこととなるなど運用上問題がある。

(2) 県・金沢市間の通信について

県と金沢市はNTT専用線でデータ交換を行っているが、これまでは同じ受託事業者だったため、通信が成立するよう調整し、問題は起きていなかったが、今回の更新では受託業者が異なったことから、金沢市のシステムとの間で模擬通信はできなかった。金沢市のシステムは稼働中であり、1時間に1回のデータ交換時しか通信内

容の確認ができず、また故障、調整、校正等のデータは市→県の方向では実際に発生しないと送られて来ないために時間がかかった。県のシステムでは問題が起きるたびに通信ログ等からプロトコルの修正やコードの修正を行って対処してきたが、市のシステムを変更できないため、市→県の方は完成したが、県→市については、しばしば受信ができないことがあった。両受託業者で調査したが、原因が不明瞭なため同一時間のデータを毎時4分と5分に二度送信することで対応した。将来的には回線の変更、プロトコルの見直しも含めて検討の必要があると考えている。

(3) 測定局等履歴管理

前システムでは測定局の属性、測定機の履歴等を含めてシステム内で管理していたが、新システムでは現時点での測定局の属性しか管理していない。各年の報告等には当該年の属性しか必要がないため出力等に問題はないが、長期のデータの分析には測定機の更新、移設等の履歴管理は必須であり、別途台帳等での整備が必要となった。

(4) まとめ

大気常時監視システムについては、環境省作成の常時監視マニュアルがあり、国への報告内容についても内容、形式が決まっている^{3) 4)}。また測定機からのデータ、状態信号等は子局装置への出力方法が定義されているため、事業者によらずほぼ同じと考えていたが、逆にそれ以外の印刷やファイル出力についてはかなり異なっていた。特に本県のように30年以上に渡って同一受託業者であった場合、前システムでできることは当たり前のように思い込んでしまっていた。今回のように受託業者が変更となるような場合には、より詳細な打合せが必要であると思われる。

また今回のシステム更新では無理であったが、測定機を直接管理し基本的な状態信号だけでなく、サンプリング流量・機器内部温度等より詳細に測定機の状態を監視できるよう子局装置を使用せず、サーバに接続できるように測定機のデジタル入出力仕様の規格化、IP化が強く望まれる。

文 献

- 1) 山原 敏, 前川龍介: 石川県環境監視制御システムにおけるソフトウェアの開発—ホストシステムのソフトウェア—, 石川県衛生公害研究所年報, **21**, 110-125 (1984)
- 2) 山原 敏, 東 浩一, 若林数夫, 桐元俊武, 泉善博, 湯浅道世: 石川県における七尾大気監視システム, 石川県保健環境センター年報, **30**, 176-193 (1993)
- 3) 環境省 水・大気環境局: 環境大気常時監視マニュアル

ル 第5版, (2007)
4) (社) 日本環境技術協会環境大気常時監視実務推進

マニュアル編集委員会編:環境大気常時監視実務推
進マニュアル (第2版), (2008)

[資 料]

大気中の石綿（アスベスト）迅速測定について

石川県保健環境センター 環境科学部 岡 秀雄・橋場 久雄・山田 肇
中山 哲彦

〔和文要旨〕

石綿飛散状況を迅速に把握するために各操作段階に要する時間の短縮について検討を行った。また、測定精度向上のため分散染色法の適用と簡易的なクロスチェックの実施を試みた。捕集時間を検討した結果、排気口直下において30分捕集で石綿の漏えいが監視できると考えられた。またフィルタの透明化はアセトン・トリアセチン法で50℃に加温することで20分で計数可能な状態になることが確認できた。分散染色法を適用した場合、石綿繊維を過少に見積もる恐れがあるものの、低温灰化の段階、浸液を滴下した段階で順次確認することで、より確実に石綿の判別を行うことができると考えられた。自作した共通標本で同一視野を確認することにより、誤認や見落としの共通認識を得ることが可能であった。

キーワード：石綿（アスベスト）、クリソタイル、位相差顕微鏡、分散染色

1 はじめに

平成17年（2005年）6月下旬に石綿（アスベスト）を使用していた事業所の労働災害事例が報告され、以後、次々に同様の事例が発表された。その一部には従業員だけでなく、事業所周辺の住民にも健康被害が発生していたことが明らかになり大きな社会問題となった。

石綿は断熱性、耐薬品性や耐摩耗性に優れることから主に建築材料として昭和30年頃から多量に使用されたが、暴露後15～40年の潜伏期間を経て、肺ガンや悪性中皮腫などの健康被害を引き起こすことが報告¹⁾されている。建築材料として使用された石綿は建築物の解体や改修に伴い飛散する恐れがあるとともに、建築物の解体に伴う石綿の排出量は今後増加していくと見込まれる²⁾ことから、周辺住民への暴露を防ぐには十分な飛散防止対策を講じる必要がある。

現在、当センターでは行政依頼試験としてアスベストモニタリングマニュアル³⁾（以下「マニュアル」という。）に基づき、石綿除去工事現場における一般大気への石綿の飛散状況調査を行っているが、除去工事自体は半日か

ら2日程度で終了する場合が多い。一方、マニュアルに基づく石綿の気中濃度測定は結果の判明まで約2日間を要しているため、除去工事により石綿が飛散していた場合でも既に工事が終了している可能性がある。そのため除去工事の開始後、できるだけ早期に石綿の飛散状況を把握し、適正な除去作業を実施することが周辺住民の健康を守るためにも重要である。

そこで石綿飛散状況を迅速に把握するため、マニュアルによる各操作段階に要する時間の短縮について検討を行った。また、マニュアルに基づく位相差顕微鏡による石綿計測では、白石綿（クリソタイル）と近い屈折率を持つ繊維状物質は区別できないため、石綿以外も計数してしまっている。安全側に見積もる意味ではやむを得ない面もあるが測定精度上は大きな問題である。そこで精度向上のために石綿を光学的に発色させて区別する分散染色法の適用を行った。さらに石綿濃度測定は顕微鏡を用いた目視による方法であるため、個々の計数者間での結果のバラツキを少なくすることが重要であることから、簡易的なクロスチェックを実施できる共通試料を作成し、石綿の判別・同定基準の統一を試みた。

Rapid Determination of Asbestos in Atmospheric Environment. by OKA Hideo, HASHIBA Hisao, YAMADA Hajime and NAKAYAMA Tetsuhiko (Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Asbestos, Crysotile, Phase Contrast Microscopy, Dispersion Staining

表1 アスベスト飛散状況調査に使用する主な器材

器材	メーカーおよび型番
捕集ポンプ	SIBATA LV-40BR
フィルタホルダ	カウル付きフィルタホルダ オープンフェイス型フィルタホルダ
フィルタ	MILLIPORE 0.8 μ m AAWP ϕ 47mm
位相差顕微鏡	OLYMPUS BX51N-DPH
対物レンズ	
位相差用 10倍	PlanN 10 \times /0.25 Ph1
位相差用 40倍	UPlanFLN 40 \times /0.75 Ph2
接眼レンズ	WHN 10 \times

2 方 法

当センターでは、通常の石綿飛散状況調査に表1の器材を使用しており、本研究においても同じ機材を用いた。なお、位相差顕微鏡は調整した後、計数前にJIS K3850 -1⁴⁾に記載のとおり検出限界試験用テストスライドのグループ5以上が観察できることを確認した。

マニュアルに基づく、当センターでの通常の測定手順は次の3段階である。

- ・ 試料採取：フィルタホルダにフィルタをセットし、捕集ポンプを用い10L/minの流量で除去工事現場の敷地境界において大気を4時間捕集する。
- ・ 透明化：捕集後のフィルタを試験室に持ち帰り、スライドガラスに載せ、アセトン蒸気を吹き付けてフィルタを透明化しトリアセチンを滴下した後カバーガラスをのせて固定化する。
- ・ 計数：透明化した翌日、調整した位相差顕微鏡で繊維状物質を計数する。定量下限値はJIS K3850-1に基づき算出する。

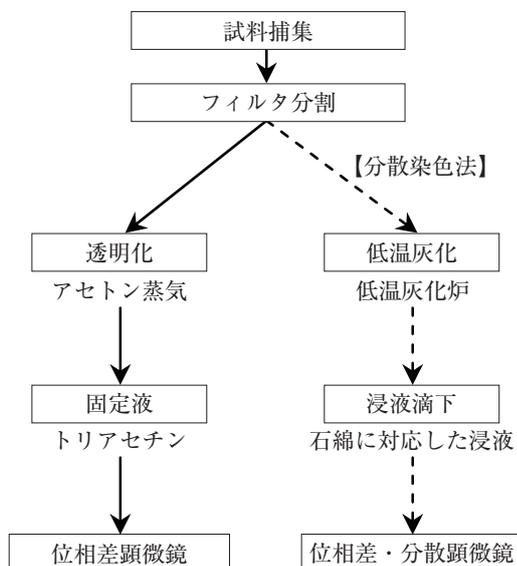


図1 石綿計数のフロー

なお、分散染色法は試料採取とアセトン蒸気の吹き付けまでは同じ操作であるが、その後フィルタ成分を除去するため低温灰化し、特定の屈折率を持つ浸液を滴下しカバーガラスをのせる。計数は分散対物レンズを装着した位相差顕微鏡で行う。石綿計数のフローを図1に示す。

2・1 石綿標準試料

石綿標準試料として(社)日本作業環境測定協会のクリソタイル標準試料(JAWE131)を用いた。JIS A1481⁵⁾を参考に、純水とともに共栓つき三角フラスコに入れ、超音波処理を行い分散させた。水溶液を攪拌しながら分取し、ろ過・自然乾燥したフィルタを透明化条件、分散染色、簡易クロスチェックに使用した。

2・2 試料採取条件の検討

マニュアルに規定されている解体工事等での捕集地点である敷地境界に加え、石綿の飛散状況を効率的に把握するため、除去作業区域内の空気を排出する負圧除じん装置の排気口直下でも捕集した。捕集時間はマニュアルにより4時間(排気口直下のみを捕集した場合は2時間)としたが、排気口直下では30分の採取も併せて行った。兵庫県での例⁶⁾と同様に、除去作業区域内での連続作業時間は通常30分程度であったためである。捕集流量は10L/minとし、30分の採取の場合は20L/minで採取した。

2・3 透明化条件の検討

透明化方法はフタル酸ジエチル/シユウ酸ジメチルによる方法とアセトン・トリアセチン法によった。また、透明化に要する時間を短縮するためアセトン・トリアセチン法についてはホットプレート上で加温する方法も行った。

2・4 分散染色法

低温灰化は(株)ジェイ・サイエンス・ラボ社製JPA300を用い、150Wで6時間行った。分散染色用浸液はMcCRONE社(Cargille社製)の屈折率($n_D^{25^\circ}$)1.550を使用した。分散対物レンズは位相差用対物レンズとは別に、10倍(PlanN 10 \times /0.25 DSPH1)と40倍(UPlanFLN 40 \times /0.75 DSPH2)を使用した。

2・5 簡易クロスチェック

同一視野を複数の計数者で確認することが可能な、図2に示すカバーガラスを用い、複数の計数者が観察した繊維状物質をそれぞれスケッチし比較することで、繊維の判断基準を統一し、見落としや過剰な計数を防止することで測定精度の向上を目指した。

3 結果と考察

3・1 採取条件について

石綿除去工事における飛散状況調査結果を表2に示す。除去工事A、Bは除去作業終了まで1.5~2日、除去工事Cは0.5日であり、いずれの除去工事も除去区域内で

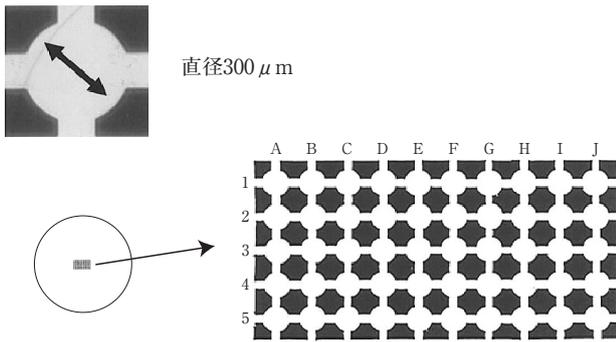


図2 50wellカバーガラス

表2 石綿除去工事における飛散状況調査結果

(単位: f/L)

除去工事	捕集場所	捕集時間	
		4時間	30分
A	排気口直下	1.7*	2.7
B	排気口直下	0.47*	1.5
C	排気口直下	0.47*	2.2
D	敷地境界	0.56	—
	排気口直下	< 0.30	< 1.3
E	敷地境界	0.90	—
	排気口直下	< 0.30	< 1.1

* 捕集時間は2時間。

の連続作業時間は概ね30分であった。

繊維数濃度は4時間捕集に比べ、30分捕集の結果が高かった。また、敷地境界と排気口直下では敷地境界が高い結果であった。4時間採取の場合は除去作業を行わない時間も含まため低い結果が得られたのではないかと考えられる。また、排気口からは除塵装置により清浄な空気が排出されており、周辺の一般環境を反映していると思われる敷地境界よりも、むしろ清浄であったのではないかと考えられる。

30分捕集による計数結果はマニュアルによる採取に比べ過大に評価しているとも言えるが、漏えいを見逃す恐

れは少ないと考えられる。

また、図3に示すように、20L/minで30分捕集した場合、10L/minで4時間捕集の場合に比べ視野が明瞭であり、繊維状物質を見分けやすかった。そのため30分捕集であっても、浮遊粒子の影響が大きくなりすぎない程度にフィルタ径を小さくすることで、検出下限を向上できる可能性があると思われる。

3・2 透明化条件について

フタル酸ジエチル/シユウ酸ジメチルによるフィルタの透明化は30分後には計数可能であった。しかし試薬の調製はフィルタを事前に溶解し、透明になるまでおよそ一晩静置する必要があるためやや煩雑である。

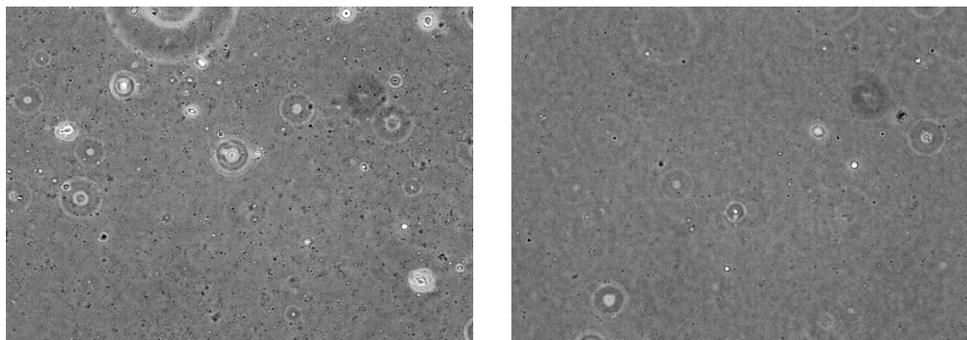
アセトン・トリアセチン法による透明化は室温で行った場合、20分後では計数できなかったが40分から1時間後には計数できる状態であった。透明化に要する時間のバラツキは室温によるものと推測される。マニュアルでは24時間後の計数が推奨されているが、今回は1時間後、16時間後と比べて明瞭さに違いはなかった。

透明化の促進を図るため、アセトン蒸気を吹き付け、トリアセチンを滴下しカバーガラスを載せたプレパラートの加温を行った。ホットプレートに110℃、80℃、50℃に設定し、プレパラートを加温したところ、110℃では気泡が発生し、検鏡に耐えうる状態ではなかった。80℃と50℃では20分で計数可能な状態になることが確認でき、その後室温で16時間静置して比較したが視野の明瞭さには変化がなかった。加温の容易性や取り扱い易さを考慮すると50℃での加温が適当であると考えられる。図4に室温静置と50℃加温による透明化処理20分後と16時間後の顕微鏡視野、および110℃加温によるプレパラートの状態を示す。

操作の簡便性を考慮し、また迅速に透明化を行うにはアセトン・トリアセチンを用い加温する方法が適していると考えられる。

3・3 分散染色

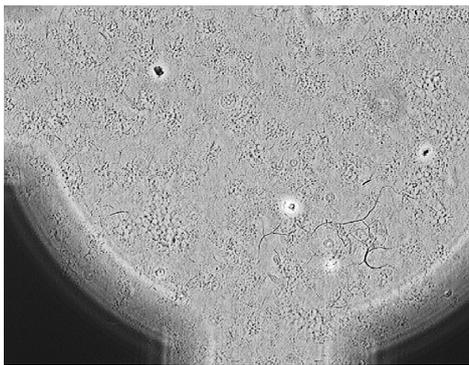
マニュアル法ではクリソタイルに近い屈折率を持つ繊維は全て計数されるため、結果が過大になってしまう可能性がある。分散染色法は、まず低温灰化によりフィルタの成分を除去してから特定の屈折率を持つ浸液を滴下し、アスベストの種類により特異的な分散色を観察し石綿繊維種類



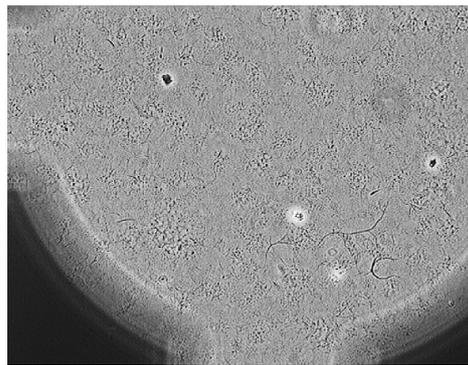
a) 10L/min, 4時間(2,400L)捕集のフィルタ

b) 20L/min, 30分間(600L)捕集のフィルタ

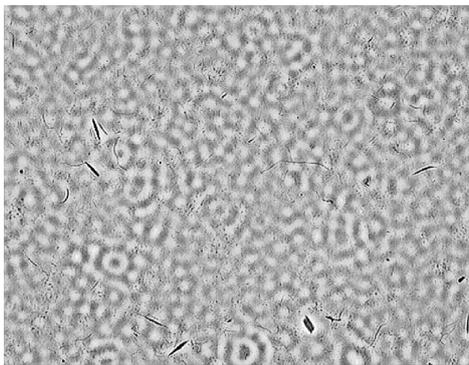
図3 採取時間による位相差顕微鏡視野の違い



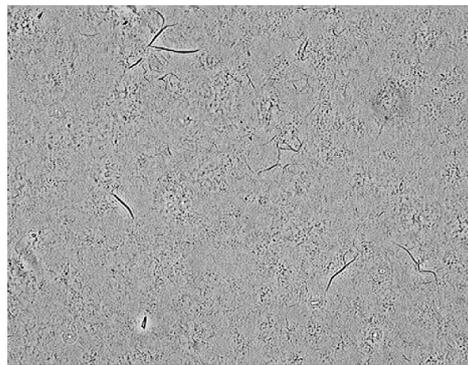
a) 50°C加温, 20分後



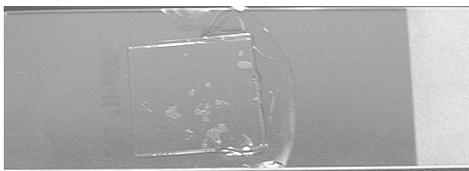
b) 50°C加温, 16時間後



c) 室温静置, 20分後

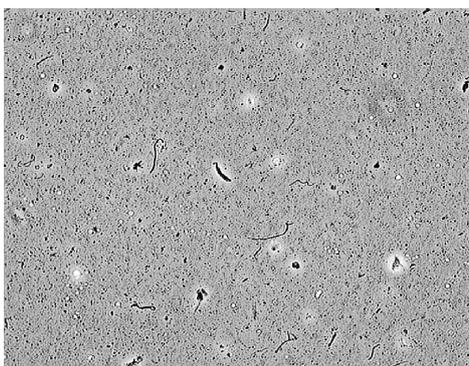


d) 室温静置, 16時間後

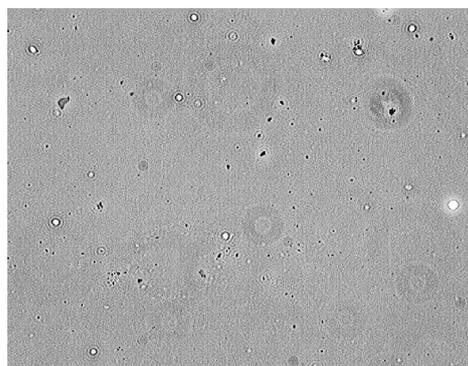


e) 110°C加温, 5分後

図4 アセトン・トリアセチン法による透明化の状況



a) アセトン・トリアセチン法(透明化)



b) 低温灰化

図5 捕集フィルタの透明化と低温灰化の比較

を特定することが可能である。

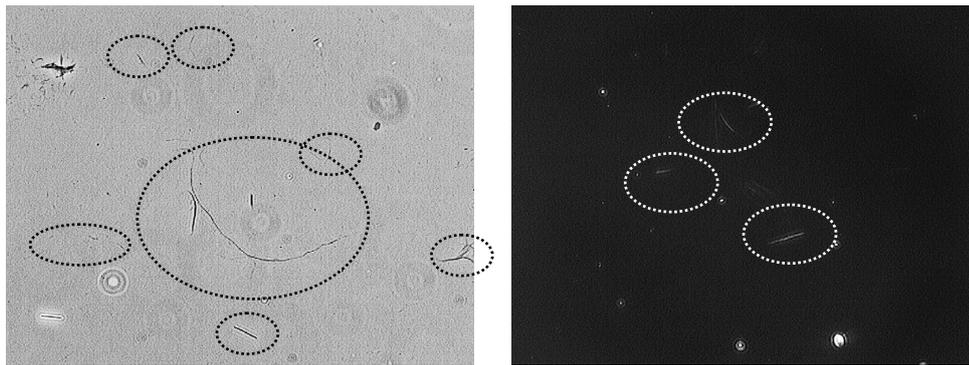
低温灰化によるフィルタの除去には6時間を要するため迅速さは望めないものの、分散染色の前処理というだけでなく、フィルタ成分と同時に有機物も除かれる利点がある。そこでまず低温灰化の効果を確認するため、実

際に大気を捕集したフィルタをアセトン・トリアセチン法で透明化した位相差顕微鏡視野と、低温灰化しただけで浸液を滴下せずにそのまま位相差顕微鏡で観察した視野を図5に示す。低温灰化により繊維状物質や粒子状物質が大きく減少しており、有機物が除去されていることが分かった。

次に石綿種別の判別を目的とし、石綿標準試料の位相差顕微鏡視野と浸液を滴下し分散対物レンズで観察した分散染色法の視野を図6に示す。ここでは低温灰化による繊維の損失を無視するため、位相差顕微鏡で観察する石綿標準試料も低温灰化を行った。分散染色法の視野ではクリソタイル繊維が青～赤紫の分散色を示しているが、位相差顕微鏡に較べ細い繊維が判別しづらい、あるいは判別できない。分散染色法では細い繊維は発色せず、位相差顕微鏡よりも検出限界の繊維が太いという報告⁷⁾があり、分散染色法の場合は過少に計数される恐れがある。

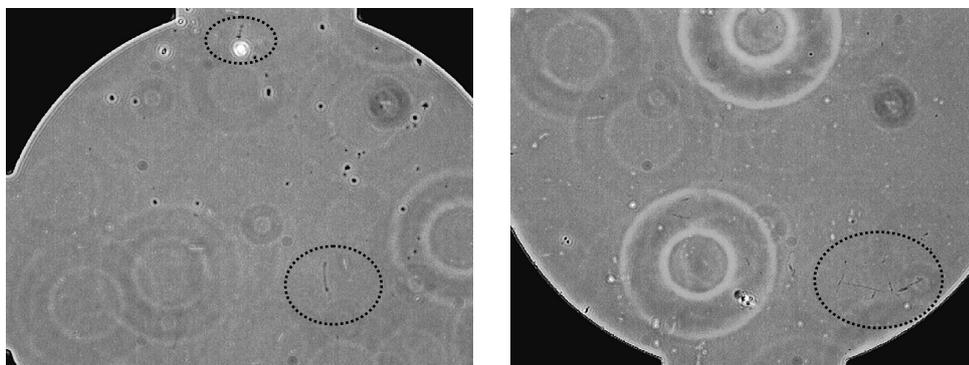
そこでマニュアル法で多くの石綿繊維が計

数された場合は確認として、浸液をすぐに使用せずに低温灰化により有機繊維を除去し位相差顕微鏡で計測し、繊維が確認される場合にはさらに石綿種類の判別を行うために浸液を滴下した分散染色法を行うという段階を踏むほうが適していると考えられる。



a) 低温灰化後, トリアセチン滴下し位相差顕微鏡 b) 低温灰化後, 浸液滴下し位相差・分散顕微鏡

図6 位相差顕微鏡と位相差分散顕微鏡視野の比較



a) 視野B1 b) 視野B2

*点線で囲んだ部分に繊維が見えるが, その他にも解像度の関係で写っていない繊維がある。

図7 簡易クロスチェックに用いた観察視野

表3 共通視野の計数結果

	(単位: 本)	
	視野B2	視野B1
計数者1	10	-
誤差 (誤認/見落し)	11 (1/10)	
計数者2	18	14
誤差 (誤認/見落し)	3 (1/2)	5 (4/1)
計数者3	18	12
誤差 (誤認/見落し)	15 (7/8)	5 (3/2)
Ref.	19	11

3・4 簡易クロスチェック

平成18~19年度に兵庫県立健康環境科学研究所が環境省環境技術開発等推進費研究開発の一環として, 標準スライドを用いた位相差顕微鏡でのアスベスト計測精度管理研究を実施した。全国の環境研究所に参加を呼びかけ, 当センターもこの精度管理に加わった。この精度管理はアメリカ国立労働安全衛生研究所 (National Institute of Occupational Safety and Health:NIOSH) の協力を得て, アメリカの技能試験に用いられているリロ

ケータブルスライドを使用したクロスチェックであり, 計数者による差が大きいと言われる位相差顕微鏡を用いた石綿計数の測定精度向上のために貴重な情報が提供されている⁸⁾。

リロケータブルスライドのように同一の視野を計数することは統一的な判断を促し, 精度の向上に寄与すると考えられるため, 図2のようなカバーガラスを用いクロスチェックの標本を独自に用意し, 当センターの複数計数者によるクロスチェックを行った。

リロケータブルスライドの視野直径が100 μmであるのに対し, 今回使用したカバーガラスの視野直径は300

μmと, マニュアルに沿ったサイズである。カバーガラスであるためズレが生じる恐れもあるが, 注意して取り扱えば複数の計数に耐えるものであった。

表3に当センター内での同一視野の計数結果を, 図7には観察視野を示す。なお, 各計数者はそれぞれ観察した繊維をスケッチし比較・確認を行った。計数者は初心者であるが, マニュアルに沿って計数のルール及び位相差顕微鏡の取り扱いを事前に説明した。観察視野はB2, B1の順に行った。

表3から, いずれの計数者もスライド上のキズ等を繊維と誤認するケースやクリソタイルの細かい繊維を見落とすケースが多いことが分かった。最終的な計数結果だけを見ては内容まで確認できないことから, 各計数者が誤認や見落としを確認し共通認識を得ることで今後, 個人間のバラツキを減らすことができると思われる。計数者2, 計数者3ともにB1での繊維の見落としは減少しており, 今回のクロスチェックだけでは結果が収束したとは言えないが今後, このような簡易的なクロスチェックを定期的に継続していくことで誤差が減っていくと考えている。

4 おわりに

石綿除去工事における飛散状況調査の際には、今回主に検討対象としたクリソタイルだけでなく、アモサイト等の角閃石系アスベストの漏えいも多くあるとの報告⁹⁾もあることから、対象繊維を広げた対応も必要である。

また、アスベストに特異的に結合するたんぱく質を蛍光でラベルし、蛍光顕微鏡で検出する¹⁰⁾など新技術が開発されており、今後は飛散調査の対象とすべき石綿種類の多様化に対応する必要もあることから、このような技術の導入も含めた計測技術の改善が必要であると思われる。

低温灰化の実施にあたり、ご協力いただいた株式会社環境公害研究センターの方々に深謝いたします。

文 献

- 1) World Health Organization: Asbestos and Other Natural Mineral Fibers, Environmental Health Criteria, **53**, 120-124 (1986)
- 2) (株) CRC 総合研究所: 平成7年度環境庁委託業務結果報告書「構築物の解体・撤去等に係わるアスベスト飛散防止対策について」(1996)
- 3) 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3版) (平成19年5月)
- 4) 日本工業標準調査会: 空気中の繊維状粒子測定方法 - 第1部 光学顕微鏡法及び走査電子顕微鏡法, JIS K3850-1 (2006)
- 5) 日本工業標準調査会: 建材製品中のアスベスト含有率測定方法, JIS A1481 (2008)
- 6) 小坂 浩, 岡田圭司, 吉村 陽, 坂本美徳: アスベスト除去工事における大気中へのアスベスト飛散監視調査, 第47回大気環境学会講演要旨集, 1 H1024 (2006)
- 7) 池澤正幸, 邑岡和昭: 位相差・分散顕微鏡による石綿分析の有効性 (白石綿の特性と採取条件を基にした解析), 高知県環境研究センター所報, **23**, 13-19 (2006)
- 8) 坂本美徳, 吉村 陽, 中坪良平, 藤原拓洋: 位相差顕微鏡法によるアスベスト計数クロスチェックについて, 第49回大気環境学会講演要旨集345 (2008)
- 9) 中坪良平, 吉村 陽, 坂本美徳, 藤原拓洋, 岡田圭司, 小坂 浩: アスベスト除去工事における大気中へのアスベスト飛散監視調査 - 第2報 -, 第48回大気環境学会講演要旨集, 654 (2007)
- 10) KURODA.Akio, NISHIMURA.Tomoki, ISHIDA.Takenori, HIROTA.Ryuichi and NOMURA Kazutaka : Detection of chrysotile asbestos by using a chrysotile-binding protein, Biotech. Bioeng., **99**, 285-289 (2008).

〔資 料〕

大気中のチアクロプリドの分析方法

野口 邦雅・宮田 芳昭・橋場 久雄
石川県保健環境センター 環境科学部
塚 林 裕・蔵本 和夫

〔和文要旨〕

近年、松くい虫の被害防除に使用される薬剤については、新たな成分の薬剤の開発が見られ、そのひとつにチアクロプリドを成分とする薬剤がある。大気中のチアクロプリドの分析方法については定められた方法がなく、また、分析の事例もみられない。これらのことから、今回、大気中のチアクロプリドの分析方法について検討した。なるべく簡易に分析が実施できるように考慮し、クリーンアップ操作の省略や、チアクロプリド及びチアクロプリドの代謝物であるアミド体を同時に分析できるように検討した。

キーワード：チアクロプリド、大気中濃度、松くい虫、殺虫剤

1 はじめに

近年、マツノマダラカミキリによって運ばれるマツノザイセンチュウによる松枯れの被害（いわゆる「松くい虫被害」）は減少傾向にあるものの、その被害は北海道及び青森県を除く45都府県に広がっており、現在も、全国的に伐倒駆除、薬剤散布、薬剤の樹幹注入などの防除対策が実施されている。特に薬剤散布は、各自治体が公共事業で実施しているだけでなく、個人でも広く行われている。本県においても、毎年、地上散布、空中散布が実施されており、近隣への影響を監視するため、保健環境センターでは散布された薬剤成分の大気中濃度を測定している。

薬剤散布には、これまで主にフェニトロチオンを成分

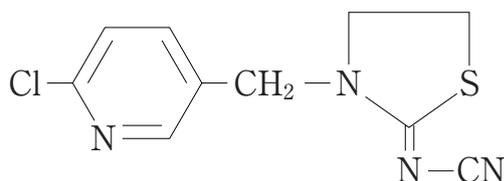


図1 チアクロプリドの化学構造

とする薬剤が使用されてきた。しかし、近年、新たな成分の薬剤が開発され、農薬取締法に基づく登録がなされており、そのひとつにチアクロプリドを成分とする薬剤がある。県内においても、薬剤散布にチアクロプリドを成分とする薬剤の使用事例が見られる。

表1 チアクロプリドの関連情報¹⁾

一般名	thiacloprid
種類名	チアクロプリド
分子式	C ₁₀ H ₉ ClN ₄ S
分子量	252.8
化学名	(Z)-3-(6-chloro-3-pyridylmethyl)-1,3-thiazolidin-2-ylidene cyanamide (IUPAC)
外観	黄色固体
蒸気圧	3×10 ⁻⁷ mPa (20℃)
溶解性	水0.185, アセトン64, アセトニトリル52, 酢酸エチル9.4 (g/L, 20℃)
安定性	pH4.0, 7.0, 9.0でいずれも500時間以上安定
分配係数	log Pow = 1.26 (20℃)
その他	ネオニコチニル系の浸透移行性殺虫剤。吸汁昆虫や咀嚼昆虫に作用。 温血動物に対する毒性が低い。ミツバチ、ハナバチに対して非毒性。

Analytical Method of Thiacloprid in Air Samples. by NOGUCHI Kunimasa, MIYATA Yoshiaki, HASHIBA Hisao, TSUKABAYASHI Hiro and KURAMOTO Kazuo (Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Thiacloprid, Air concentration, Pine weevil, Insecticide

チアクロプリドの構造を図1に、関連情報を表1に示す¹⁾。

チアクロプリドの分析方法については、農薬登録保留基準の適合を判断するため、農作物及び水質について定められているが、大気中については定められておらず、また、分析の事例もない。

これらのことから、今回、大気中のチアクロプリドの分析方法について、他の媒体の分析方法を参考に検討した。なお、妨害物質の影響が少ないと思われる大気中の測定であり、クリーンアップ操作は省略した。

2 試験方法

2・1 分析法概要

ローボリュウムエアサンプラーにより1L/minで大気を30分間又は1時間吸引し、固相吸着カートリッジに対象物質を捕集する。固相吸着カートリッジから酢酸エチル及びアセトンの混合溶液(9:1)20mLにより抽出し、ロータリーエバポレーターで濃縮、アセトニトリルに転溶し、水及びアセトニトリルの混合溶液(4:1)で1mLに定容する。高速液体クロマトグラフ/紫外線吸収検出器により測定し、絶対検量線法により定量する。

なお、チアクロプリドの代謝物3-(6-クロロ-3-ピリジルメチル)-1,3-チアゾリジン-2-イリデンアミノカルボキサミド(以下、「アミド体」という。)を同時に分析し、係数0.93を乗じてチアクロプリドの値に換算、チアクロプリドと和して濃度を算出する²⁾。

2・2 標準品、試薬等

(1) 標準品

チアクロプリド標準品及びアミド体標準品は和光純薬工業株式会社製の残留農薬試験用を使用した。

(2) 試薬

試薬の調製には、アセトニトリル、アセトン、酢酸エチル及びヘキサンは残留農薬試験用・PCB試験用を、水は超純水を使用した。

(3) 固相吸着カートリッジ

固相吸着カートリッジはWaters社製のSep-Pac Plus Silica(充填量690mg)を使用した。使用前にアセトン20mLで洗浄し、窒素を通気させ乾燥させたものを使用した。

(4) NH₂シリカゲルカラム

NH₂シリカゲルカラムはWaters社製のSep-Pac Classic Amino Plopyl(NH₂)(充填量360mg)を使用した。

2・3 試料捕集機器

試料捕集機器は東京ダイレック社製のガス吸着用サンプリング装置(GS-01APS)を使用した。

2・4 測定機器及び測定条件

高速液体クロマトグラフ/紫外線吸収検出器

- ・HPLC: LC-10AD (株式会社島津製作所製)
カラム: TSK-GEL ODS-80Tm (東ソー株式会社製)
(長さ15cm, 内径6mm, ステンレス製)
カラム温度条件: 40℃
カラム流量: 1.0mL/min
展開溶媒: 水及びアセトニトリルの混合溶液(4:1)
注入量: 40μL
- ・UV検出器: SPD-10A (株式会社島津製作所製)
検出波長: 240nm

2・5 試験方法

(1) 試料の採取

試料の採取は、チアクロプリドを成分とする薬剤を地上散布している現場で実施した。ローボリュウムエアサンプラーにより1L/minで大気を吸引し、固相吸着カートリッジに対象物質を捕集した。採取時間は「航空防除農薬に係る気中濃度評価値」³⁾を参考に、散布中又は散布直後のように大気中濃度が高い時間帯には1回当たり30分間採取し、それ以外は1回当たり1時間採取した。採取状況を表2に示す。

(2) 試料の前処理及び試料液の調製

固相吸着カートリッジを20mLガラス製シリンジに接続し、ヘキサン及び酢酸エチルの混合溶液(3:2)15mLを流し入れ、流出液を捨てる。次いで、酢酸エチル及びアセトンの混合溶液(9:1)20mLで展開し、流出液を50mLのナス型フラスコに取る。ロータリーエバポレーターで乾固直前まで濃縮し、アセトニトリル10mLを加える。再びロータリーエバポレーターで乾固直前まで濃縮し、これに水及びアセトニトリルの混合溶液(4:1)を加えて1mLとし試料検液とする。

なお、前述の操作でアミド体に妨害物質の影響が見られる場合、次の操作を行う。前述で調製した溶液1mLをロータリーエバポレーターでアセトニトリルを除去

表2 大気の採取状況

散布状況	試料No.	採取時間帯	採取時間 (min.)	採取量 (L)
散布前	1	14:00~15:00	60	74
散布中	2	18:30~19:00	30	36
	3	19:00~19:30	30	36
散布直後	4	21:00~21:30	30	36
	5	21:30~22:00	30	36
散布後	6	23:00~24:00	60	74
	7	1:00~2:00	60	73
	8	4:00~5:00	60	74
	9	7:00~8:00	60	75
	10	10:00~11:00	60	73
	11	14:00~15:00	60	75

し、酢酸エチル0.5mLを加え、良く振とうする。酢酸エチル層を0.4mL採取し、あらかじめヘキサン及び酢酸エチル混合溶液（7：3）5mLで洗浄したNH₂シリカゲルカラムに流し入れる。ヘキサン及び酢酸エチル混合溶液（7：3）15mLで展開し、流出液を捨てる。次いで、酢酸エチル及びアセトン混合溶液（7：3）20mLで展開し、溶出液を50mLのナス型フラスコに取る。ロータリーエバポレーターで乾固直前まで濃縮し、アセトニトリル10mLを加える。再びロータリーエバポレーターで乾固直前まで濃縮し、これに水及びアセトニトリルの混合溶液（4：1）を加えて0.8mLとし試料検液とする。

(3) 標準液の調製

チアクロプリド及びアミド体の500mg/Lアセトニトリル溶液をそれぞれ調製する。これらの溶液を混合して、水及びアセトニトリルの混合溶液（4：1）で希釈し、チアクロプリド及びアミド体混合標準溶液0.01, 0.05, 0.10, 0.25, 0.50mg/L(チアクロプリド及びアミド体の濃度を示す。各物質の濃度は同等。)を調製する。

(4) 検量線の作成

調製した標準溶液を高速液体クロマトグラフに注入し、縦軸にピーク面積、横軸に質量をとって検量線を作成する。

(5) 定量

調製した試料検液を高速液体クロマトグラフに注入し、検量線によりチアクロプリド及びアミド体の質量を求める。このチアクロプリドの質量の値とアミド体の質量の値に係数0.93を乗じてチアクロプリドの値に換算した

ものとを和し、これに基づき、大気中濃度を算出する。

(6) 添加回収試験

固相吸着カートリッジに少量の石英ウールを詰め、石英ウールにチアクロプリド及びアミド体混合標準溶液(0.50mg/L) 20μLを添加する。一般環境大気を1 L/minで30分間吸引する。以下、試料の前処理及び試料液の調製と同様の操作を行う。なお、添加に用いた石英ウールは入れた状態で抽出する⁴⁾。

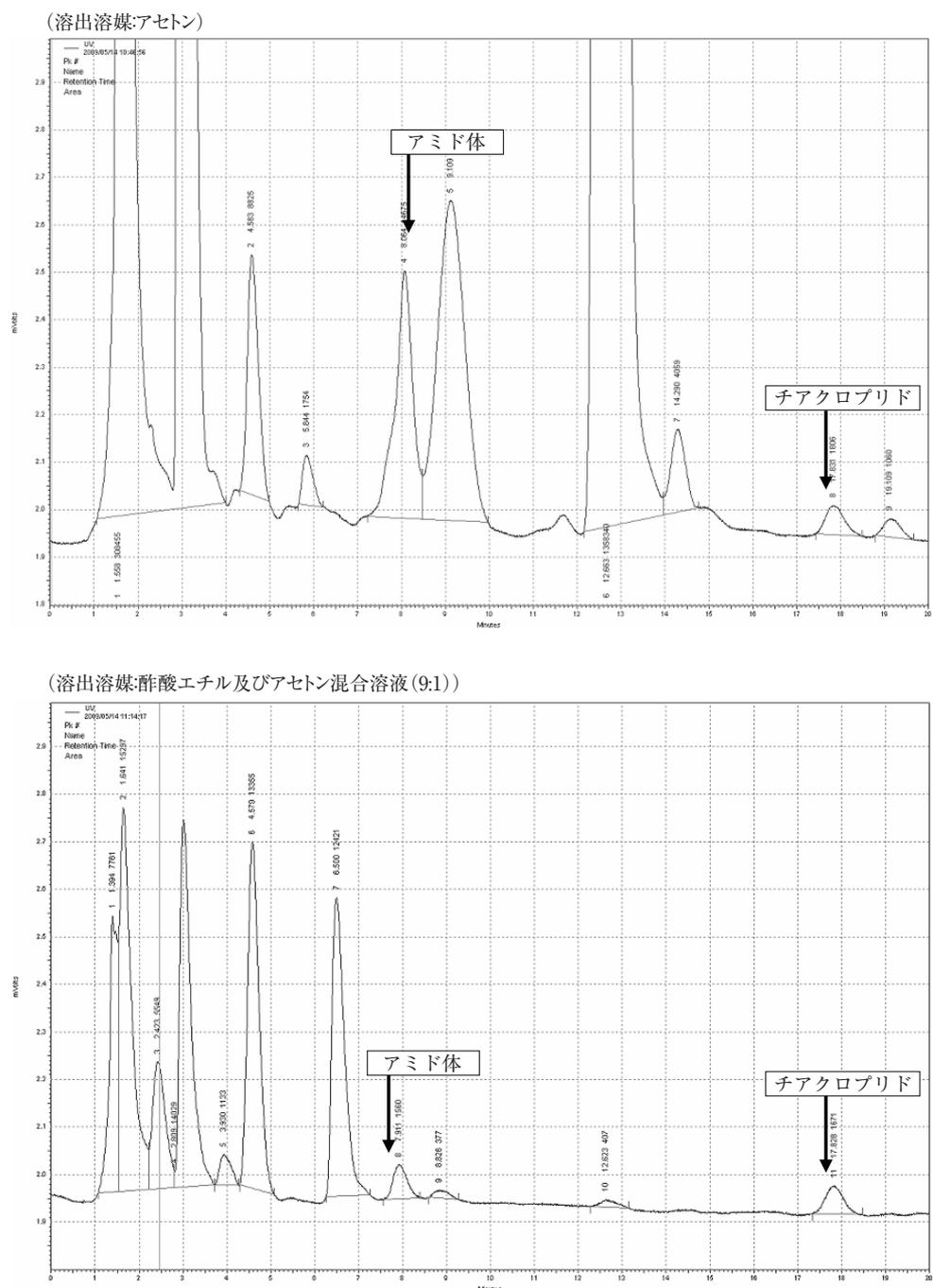


図2 溶出溶媒検討時のクロマトグラフ

3 結果と考察

3・1 抽出溶媒と展開溶媒の検討

固相吸着カートリッジは使用前にアセトン20mLで洗浄しているが、固相吸着カートリッジに含まれる妨害物質を完全に除去することはできなかつた。その他、アセトニトリル、酢酸エチルで洗浄を試みたが妨害物質を除去することはできなかつた。抽出溶媒にアセトンを使用すると、チアクロプリドは妨害物質の影響が見られないが、アミド体は妨害物質の影響が見られ、ピーク面積が大きく現れているのに対し、酢酸エチル及びアセトン混合溶液（9：1）20mLを使用した場合には、チアクロプリド及びアミド体とも妨害物質による影響が見られなかつた。（図2）

なお、今回、酢酸エチル及びアセトン混合溶液（9：1）20mLを使用してもアミド体に妨害物質の影響がある場合があった。固相吸着カートリッジのロットの違い、コンタミネーションなどの影響等が考えられるが、その場合はNH₂シリカゲルカラムによるクリーンアップを行い、アミド体とピークが重なって現れる妨害物質を除去した。

展開溶媒については水及びアセトニトリル混合溶液を使用した。アセトニトリルの割合が大きいほど、チアクロプリド及びアミド体の溶出時間が早くなる。アミド体には近接する妨害ピークが見られることから、アミド体の溶出時間を5分以上になるように水及びアセトニトリルの割合を4：1とした。ただし、すべての物質が溶出するのに約50分かかることから、グラジエント溶出法

により測定時間の短縮を図るのが望ましいと思われる。

3・2 装置検出下限値（IDL）及び装置定量下限値（IQL）

IDL及びIQLの算出は、化学物質環境実態調査実施の手引き（平成20年度版）⁴⁾を参考にした。チアクロプリド及びアミド体混合標準溶液0.01mg/Lを繰り返し7回分析機器に導入し、一連の分析値の標準偏差から求めた。

$$IDL = t(n - 1, 0.05) \times \sigma_{n-1, I} \times 2$$

$$IQL = 10 \times \sigma_{n-1, I}$$

t(n - 1, 0.05):危険率5%,自由度n - 1のt値(片側)

$\sigma_{n-1, I}$:IDL算出のための測定値の標準偏差

IDL及びIQLは表3のとおりである。

3・3 分析方法の検出下限値（MDL）及び定量下限値（MQL）

MDL及びMQLの算出は、化学物質環境実態調査実施の手引き（平成20年度版）⁴⁾を参考にした。試料採取から試料液調製までの一連の操作を繰り返し7回実施した試料液を分析機器に導入し、一連の分析値の標準偏差から求めた。

$$MDL = t(n - 1, 0.05) \times \sigma_{n-1, M} \times 2$$

$$MQL = 10 \times \sigma_{n-1, M}$$

t(n - 1, 0.05):危険率5%,自由度n - 1のt値(片側)

$\sigma_{n-1, M}$:MDL算出のための測定値の標準偏差

MDL及びMQLは表4のとおりである。

3・4 添加回収率

添加回収試験は7回実施した。チアクロプリドの添加回収率は71～106%で平均93%、アミド体は84～106%で平均95%であった（表5）。

表3 IDL及びIQLの算出

物質名	チアクロプリド	アミド体
試料量 (m ³)	30	30
最終液量 (mL)	1	1
注入液濃度 (μg/mL)	0.01	0.01
装置注入量 (μL)	40	40
結果1 (ng)	0.38	0.35
結果2 (ng)	0.39	0.37
結果3 (ng)	0.35	0.36
分析値 結果4 (ng)	0.41	0.40
結果5 (ng)	0.42	0.38
結果6 (ng)	0.41	0.40
結果7 (ng)	0.41	0.38
平均値	0.40	0.38
標準偏差	0.024	0.019
IDL (ng)	0.094	0.072
IDL試料換算値 (ng/m ³)	0.079	0.060
IQL (ng)	0.24	0.19
IQL試料換算値 (ng/m ³)	0.20	0.16

表4 MDL及びMQLの算出

物質名	チアクロプリド	アミド体
試料量 (m ³)	30	30
最終液量 (mL)	1	1
注入液濃度 (μg/mL)	0.01	0.01
装置注入量 (μL)	40	40
結果1 (ng)	0.57	0.54
結果2 (ng)	0.54	0.52
結果3 (ng)	0.54	0.51
分析値 結果4 (ng)	0.58	0.47
結果5 (ng)	0.57	0.51
結果6 (ng)	0.45	0.46
結果7 (ng)	0.47	0.48
平均値	0.53	0.50
標準偏差	0.050	0.028
MDL (ng)	0.193	0.111
MDL試料換算値 (ng/m ³)	0.161	0.092
MQL (ng)	0.50	0.28
MQL試料換算値 (ng/m ³)	0.41	0.24

表5 添加回収試験結果

	チアクロプリド		アミド体	
	測定値(μg)	回収率(%)	測定値(μg)	回収率(%)
結果1	0.010	103	0.011	106
結果2	0.010	95	0.010	102
結果3	0.0095	95	0.0099	99
結果4	0.011	106	0.0087	87
結果5	0.010	102	0.0098	98
結果6	0.0071	71	0.0084	84
結果7	0.0079	77	0.0090	90
平均		93		95

チアクロプリド及びアミド体とも添加量は0.01 μg

3・5 測定結果

今回採取した試料における大気中チアクロプリドの濃度は散布中、散布直後及び散布後(23:00~24:00)に0.17~0.39 ng/m^3 の値が見られ、それ以降は検出下限値(MDL)未満であった。また、アミド体はいずれも未検出であった(表6)。大気についてはアミド体の分析は

表6 測定結果

散布状況	試料No.	採取時間帯	濃度 (ng/m^3)		
			チアクロプリド	アミド体	合計値
散布前	1	14:00~15:00	nd	nd	0.054
散布中	2	18:30~19:00	0.26	nd	0.31
	3	19:00~19:30	0.39	nd	0.44
散布直後	4	21:00~21:30	0.37	nd	0.42
	5	21:30~22:00	0.37	nd	0.42
散布後	6	23:00~24:00	0.17	nd	0.22
	7	1:00~2:00	tr (0.13)	nd	0.054
	8	4:00~5:00	tr (0.11)	nd	0.054
	9	7:00~8:00	tr (0.11)	nd	0.054
	10	10:00~11:00	tr (0.14)	nd	0.054
	11	14:00~15:00	tr (0.12)	nd	0.054

「nd」はピークが検出されなかったことを示す。

「tr(数値)」は検出下限値未満の値を示す。

合計値を算出する場合、定量下限値未満は定量下限値の1/2とした。

必要に応じて行えばよいものと思われる。

4 まとめ

- (1) 大気中のチアクロプリドの分析について、固相吸着カートリッジに捕集し、溶媒で抽出するだけの簡易な操作方法を検討した。
- (2) チアクロプリド及びアミド体を同時に分析することができた。
- (3) 固相吸着カートリッジからの妨害物質が見られ、アセトンによる事前洗浄では取り除くことができなかった。
- (4) 溶出溶媒に酢酸エチル及びアセトン混合溶液(9:1)20mLを用いることにより妨害物質の影響を除くことができた。なお、前述の溶出溶媒を用いてもアミド体に対する妨害物質の影響が除けない場合は、 NH_2 シリカゲルカラムによるクリーンアップを行い妨害物質の影響を除いた。
- (5) 今回採取した試料における大気中チアクロプリドの濃度は nd ~0.36 ng/m^3 の範囲であり、アミド体はいずれも未検出であった。

文 献

- 1) 農薬残留分析方法研究班 [武田明治, 小田中芳次, 小松一裕, 前川吉明]: 最新農薬の残留分析法 [改訂版], 856-859, 中央法規出版(2006)
- 2) 農薬取締法第3条第1項第4号から第7号までに掲げる場合に該当するかどうかの基準を定める等の件第4号の環境大臣の定める基準 [平成五・四・二八 環告三五]
- 3) 環境庁水質保全局: 航空防除農薬に係る気中濃度評価値(平成9年12月)
- 4) 環境省総合環境政策局環境保健部環境安全課: 化学物質環境実態調査実施の手引き(平成20年度版)

〔資 料〕

石川県におけるフォールアウト調査（平成20年度）

石川県保健環境センター 環境科学部 小浦 利弘・吉本 高志・北野 肇一
柿本 均

〔和文要旨〕

フォールアウト調査は、昭和29年のビキニ環礁における核爆発実験を契機として、関係行政機関における放射性降下物の調査として開始されたものであるが、その後、チェルノブイリ原発事故などもあり、継続的な環境放射能調査の必要性から、全都道府県にて「環境放射能水準調査」として実施している。石川県におけるフォールアウト等による環境放射能の水準を把握するため、ゲルマニウム半導体検出器による核種分析を中心に放射能レベルを調査した結果、セシウム-137の年間降下量は0.092MBq/km²であった。また、空間線量率は、平年と同程度であった。

キーワード：フォールアウト、環境放射能

1 はじめに

フォールアウト調査は、昭和29年のビキニ環礁における核爆発実験を契機として、関係行政機関における放射性降下物の調査として開始されたものであるが、その後、チェルノブイリ原発事故などもあり、継続的な環境放射能調査の必要性から、全都道府県にて「環境放射能水準調査」として実施している。

石川県におけるフォールアウト等による環境放射能の水準を把握するため、ゲルマニウム半導体検出器による核種分析を中心に放射能レベルを調査した。ここでは平成20年度の文部科学省委託調査の結果を述べる。

2 調査方法

2・1 調査対象

調査対象は、定時（午前9時）採取の降水、大型水盤による降下物（1ヵ月毎）、陸水、土壌（0～5cm、5～20cm）、農畜産物（精米、大根、ホウレン草、牛乳）、海産生物（ワカメ、サザエ、フクラギ）、日常食、空間線量率である（調査地点については、測定結果の表を参照）。

2・2 測定方法

定時降水は全ベータ測定を、降下物、陸水、土壌、農畜産物、海産生物、日常食は核種分析を、空間線量率はサーベイメータ及びモニタリングポストによる測定を、それぞれ行った。

（1）全ベータ測定

文部科学省放射能測定法シリーズ「全ベータ放射能測定法」（昭和51年改訂）に基づきβ線自動測定装置JDC-3201（アロカ製）により行った。校正線源として科研製八酸化三ウラン（U₃O₈、500dps）を使用した。

（2）核種分析

文部科学省放射能測定法シリーズ「ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー」（平成4年改訂）に基づきゲルマニウム半導体検出器（CANBERRA製）及び波高分析器（SEIKO EG&G）により行った。

（3）サーベイメータによる空間線量率測定

TCS-166型シンチレーションサーベイメータ（アロカ製）を用い、DBM方式により測定した。

（4）モニタリングポストによる空間線量率測定

文部科学省放射能測定法シリーズ「連続モニタによる環境γ線測定法」（平成8年改訂）に基づきMAR-22（アロカ製）により行った。

Survey Data of Fall-out in Ishikawa Prefecture, April 2008 to March 2009. by KOURA Toshihiro, YOSHIMOTO Takashi, KITANO Keiichi and KAKIMOTO Hitoshi (Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Fall-out, Environmental radioactivity

3 調査結果

3・1 降水の全ベータ放射能

表1に定時降水中の全ベータ放射能測定結果を示す。年間降水量は2,080.0 mmであった。採取試料数は126検体であり、そのうち3検体で全ベータ放射能が検出された。月間降水量の最大は2月の100MBq/km²であった。

3・2 核種分析

表2に、環境試料中の放射能濃度測定結果を示す。

(1) 降下物

1ヵ月毎の降下量は、セシウム-137がN.D.~0.052MBq/km²であり、N.D.を除いた年間降下量は0.092MBq/km²であった。その他の人工放射性核種は検出されなかった。

(2) 核種分析試料 (降下物以外)

セシウム-137が土壌で28Bq/kg乾土(0~5cm)、24Bq/kg乾土(5~20cm)、大根で0.11Bq/kg生、日常食でN.D.~0.024Bq/(人・日)、フクラギで0.15Bq/kg生と検出された。その他の試料は検出限界未満であった。

(3) 牛乳中のヨウ素-131

表3に牛乳中のヨウ素-131濃度測定の結果を示す。牛乳中のヨウ素-131はいずれも検出されなかった。

3・3 空間線量率

表4に空間放射線線量率の測定結果を示す。サーベイメータによる空間線量率は90~100nGy/h(宇宙線寄与分の約30nGy/hを含む)の範囲にあった。モニタリングポストによる空間線量率は35~91nGy/hの範囲にあり、過去3年間の変動範囲(24~127nGy/h)と同程度であった。年平均値は50nGy/hであった。

表1 定時降水中の全ベータ放射能測定結果

採取場所：金沢市太陽が丘

採取年月	降水量 (mm)	検出数/測定数	放射能濃度 (Bq/L)	月間降下量 (MBq/km ²)
平成20年 4月	84.5	1 / 12	N.D.~2.1	1.1
5月	133.0	0 / 8	N.D.	N.D.
6月	133.0	0 / 7	N.D.	N.D.
7月	195.5	0 / 8	N.D.	N.D.
8月	196.5	0 / 10	N.D.	N.D.
9月	148.0	0 / 7	N.D.	N.D.
10月	134.5	0 / 9	N.D.	N.D.
11月	261.5	0 / 10	N.D.	N.D.
12月	275.5	0 / 13	N.D.	N.D.
平成21年 1月	215.0	0 / 14	N.D.	N.D.
2月	98.5	2 / 16	N.D.~4.7	100
3月	204.5	0 / 12	N.D.	N.D.
年間値	2,080.0	3 / 126	N.D.~4.7	N.D.~100
平成17~19年度の測定結果		11/392	N.D.~10	N.D.~82

N.D.: 検出されず (値が計数誤差の3倍を下回る場合)

表4 空間放射線線量率モニタリング結果

測定地点：金沢市太陽が丘

測定年月	モニタリングポスト (nGy/h)		サーベイメータ* ¹⁾ (nGy/h)
	測定結果	平均値	
平成20年 4月	48~64	50	94
5月	48~63	50	93
6月	45~71	50	90
7月	48~66	50	100
8月	48~72	50	90
9月	48~74	50	93
10月	48~62	50	93
11月	46~88	51	92
12月	40~81	50	94
平成21年 1月	35~91	48	92
2月	46~68	50	92
3月	46~77	49	96
年間値	35~91	50	90~100
平成17~19年度の測定結果	24~127	50	76~100

*¹⁾ 宇宙線寄与分30nGy/hを含む。

表 2 環境試料中の放射能濃度測定結果

試料名	採取場所	採取年月	検体数	Cs - 137		その他の検出された人工放射性核種	単位	
				測定結果	平成17～19年度の測定結果			
降下物	金沢市太陽が丘	毎月	12	N.D.～0.052	N.D.～0.23	なし	MBq/km ²	
陸水	上水 (蛇口水)	金沢市太陽が丘	H20.6	1	N.D.	N.D.	なし	mBq/L
土壌	0～5cm	金沢市末町	H20.8	1	28	26～31	なし	Bq/kg乾土
					930	380～1,200	なし	MBq/km ²
	5～20cm	金沢市末町	H20.8	1	24	22～27	なし	Bq/kg乾土
					2,200	2,800～3,100	なし	MBq/km ²
精米	河北郡内灘町向栗崎	H20.10	1	N.D.	N.D.	なし	Bq/kg精米	
野菜	大根	金沢市内	H20.10	1	0.11	N.D.～0.058	なし	Bq/kg生
	ホウレン草		H20.10	1	N.D.	N.D.	なし	
牛乳	羽咋郡宝達志水町坪山	H20.8	1	N.D.	N.D.	なし	Bq/L	
日常食	金沢市内	H20.7 H20.12	2	N.D.～0.024	N.D.～0.17	なし	Bq/(人・日)	
海産生物	ワカメ	加賀市橋立漁港	H20.4	1	N.D.	N.D.	なし	Bq/kg生
	サザエ		H20.7	1	N.D.	N.D.	なし	
	フクラギ		H20.10	1	0.15	0.10～0.16	なし	

N.D.：検出されず（値が計数誤差の3倍を下回る場合）

表 3 牛乳中 I-131 濃度測定結果

試料名	採取場所	採取年月	検体数	¹³¹ I		単位
				測定結果	平成17～19年度の測定結果	
牛乳	羽咋郡宝達志水町坪山	奇数月	6	N.D.	N.D.	Bq/L

N.D.：検出されず（値が計数誤差の3倍を下回る場合）

石川県保健環境センター研究報告書投稿規定

石川県保健環境センター（以下「センター」という。）研究報告書の投稿規定を次のとおり定める。

1 編 集

センター研究報告書の編集は、年報等編集委員会（以下「編集委員会」という。）が行う。

2 編集委員会構成

編集委員会は所長を委員長とし、技監、次長、部長、部総括グループリーダー及び総務課長を委員とする。委員長は、必要に応じ委員長代理を指名し、その職務を委任することができる。

3 投稿者の規定

投稿者は原則としてセンター職員とする。

4 報告書の内容

センター職員が行った調査研究で、印刷物として未発表のものとする。ただし、抄録についてはこの限りではない。

5 報告の種類

報告は、総説、報文、資料、短報及び抄録の5種類とする。投稿申込者は希望する投稿区分を示して申し込み、編集委員会が投稿区分を指定して投稿者に通知する。

1) 総 説

複数年にわたる連続した研究報告を総合的にまとめたもの、複数の部門で行われた研究報告を総合的にまとめたものまたはひとつの主題に関する内外の研究報告を総括的にまとめたもののいずれかで、形式は自由とし、和文要旨及び英文タイトルを付記する。

2) 報 文

新知見を含むまとまった研究報告で、形式はおおむね、はじめに、材料と方法、成績、考察、まとめ、謝辞、付記及び文献の順とし、和文要旨及び英文タイトルを付記する。

3) 資 料

既知の方法による調査、試験検査の結果又は統計等をまとめたもので、形式は報文に準じ、和文要旨及び英文タイトルを付記する。

4) 短 報

断片的な研究であっても、新しい事実で価値のあるデータを含む報告で、形式は報文に準ずるが見出しはつけない。和文要旨及び英文タイトルを付記する。

5) 抄 録

当該年度に他誌に掲載された論文の抄録で、表題名、著者名、所属名、掲載誌名、巻（号）、始ページ-終ページ、発行年及び紹介文の順に掲載する。

6 投 稿

本誌に原稿の投稿を希望する者は、その原稿を本投稿規定ならびに「研究報告書原稿執筆要領」に従って作成しなければならない。

投稿原稿の長さは、原則として表1に示すページ数（図、表などを含む刷り上がりページ数）以内とする。ただし、編集委員会が認めた場合は、この限りではない。

表1 原稿の最大ページ数

原稿の種類	総 説	報 文	資 料	短 報	抄 録
ページ数	12	8	6	3	1

7 原稿の提出及び審査

原稿は所属のグループリーダー（執筆者がグループリーダー以上の職位の者である場合は部長）の校閲を経て、編集委員会に提出する。

提出された原稿は、次項に定める複数の査読員によって審査され、その採否、掲載区分及び掲載順序は編集委員

会が決定する。

原稿の表現、用語等の統一化は編集委員会で行い、必要な場合には投稿者に内容の変更、表現の統一化のための作業あるいは内容の確認などを求めることがある。

8 査読員

原稿の査読員は、次に定める職員をもって充て、審査原稿の割当は、査読員の専門分野及び経験を考慮して編集委員会で決定する。

- 1) 編集委員のうち、技監、技術総括次長、技術職の部長及び部総括グループリーダー
- 2) センター職員の中から編集委員会が選任し、編集委員長が委嘱した職員若干名。

なお、本項に該当する査読員の任期は委嘱の日から当該年度の研究報告書発行の日までとし、再任を妨げない。

9 校 正

初校は著者校とし、誤植の訂正に止め、内容の変更をしてはならない。ただし、編集委員会が認めた場合はこの限りではない。

10 そ の 他

その他必要な事項は編集委員会で協議する。

この投稿規定は、昭和54年4月1日から適用する。

昭和57年4月1日一部改正
昭和62年7月1日一部改正
平成6年6月1日一部改正
平成10年7月2日一部改正
平成15年4月1日一部改正
平成16年4月1日一部改正
平成20年4月21日一部改正
平成21年3月2日一部改正

石川県保健環境センター研究報告書原稿執筆要領

研究報告書投稿規定第6項に基づく原稿執筆要領を、次のとおり定める。

〔はじめに〕

この「原稿執筆要領」は、報告の投稿に当たり原稿執筆の際に従うべき必要最小限の約束が記されている。これに従わない原稿は受理されない場合があるので注意すること。

投稿原稿として具備すべき条件として、正確かつ客観的であり、内容、記述が十分に推敲され、つじつまのあった読みやすく理解しやすい文章であることが求められる。原稿の審査は内容の妥当性、正確さ、学術的価値に重点が置かれるもので、理解しやすく読みやすい文章の推敲は、投稿者の執筆時及びグループリーダー校閲時に予め行っておくべき義務と考えられる。

〔原稿の執筆〕

原稿の執筆は、原則として編集委員会が指定した電子媒体上での執筆とし、具体的な方法は別途定める。

ただし、編集委員会が認めた場合は紙面による投稿も可能とする。この場合、原稿はA4判でワープロによる左横書き(25字×46行、左詰め、2ページで仕上がり1ページに相当)とする。

〔文 体〕

- 1 原稿は原則として新仮名遣い、新送り仮名、平仮名混じり国語文とし、簡潔で理解し易い表現にする。止むを得ぬ学術用語、地名、人名などのほかは常用漢字を用いる。
- 2 欧文はダブルスペースとする。

〔表題等〕

- 3 表題はなるべく短くまとめ、本文とは別の頁に書く。続報の場合は必ず副題を付ける。
- 4 表題又は副題の下に1行あけて所属名(部まで)と著者名を連記する。
- 5 総説、報文、資料には英文の表題、副題、著者名及び所属名を和文の下へ1行あけて記載する。
- 6 英文表題は、冠詞、前置詞、副詞、接続詞以外の単語の第1文字を大文字とする。
- 7 英文著者名及び所属名はイタリック体(斜体)とし、英文著者名は、ファミリーネームを先にすべて大文字で記載し、ファーストネームは頭文字のみを大文字とする。
- 8 総説、報文、資料、短報及び抄録には、報告の内容を的確に示す3～5語の和文または英文のキーワードを付記する。
- 9 総説、報文、資料及び短報には、和文要旨を付ける。要旨は表題、著者名の次に字数200～300字の範囲で記載し、本文を読まなくても内容の要点が理解できるように作成する。
- 10 報告の一部若しくは全部を学会等に発表した場合には、最下段に発表学会名、発表年月日及び開催地名を明記する。

〔本 文〕

- 11 本文は表題とは別の頁に新しく書き出す。
- 12 本文の構成はおおむね 1 はじめに、2 材料と方法、3 成績、4 考察、5 まとめ の順とし、1行あけて謝辞及び付記を記載する。文献は別の用紙に書き出す。ただし、総説の形式はこれらにとらわれず自由とする。
- 13 項目を細別するときの見出し符号は、次の順序で用いる。

1		1・1		(1)		ア		(ア)
2		1・2		(2)		イ		(イ)
3		1・3		(3)		ウ		(ウ)

ただし、考察とまとめはポイントシステムをとらず、(1)、(2)、(3)とする。

- 14 ポイントシステムとその見出しはゴシック体とする。短報は見出しを付けない。
- 15 文の書き出しは1字あける。行を改めるときも同じ。
- 16 句読点は「、」及び「。」、かっこは「()」を用いることとし、それぞれ1字に数える。ただし、句読点が行の頭に出る場合は、前の行の右欄外に書く。
- 17 数字は成語となっているもの以外はアラビア数字を用い、1こま2字とする。小数点、コンマ等の記号も数字に準じて記載する。
- 18 数量の単位は原則として国際単位系(SI単位)により、記号は国際的に慣用されているものを用いる。「リットル」は「L」(半角大文字)を用いる。特殊な記号は脚注に説明を加える。
- 19 物質名、術語等で慣用されているものはそれに従う。物質名には化学式を用いない。
- 20 生物名(和名)はカタカナ書きとし、その学名はイタリック体とする。
- 21 外国語の地名、人名は原則として欧語を用いる。

22 本文中の人名は姓のみとする。なお、人名が複数の場合は列記しないで、最初の人名のあとに「ら」を付け、年号は原則として省く。

23 用語を略記するときは、最初に必ず正式な名称を共に示す。

〔書体の指定〕

24 印刷時の書体を原稿中で指定するときは、ゴシック体は必要ある文字の下に~~~~線、イタリック体は_____線を、スモールキャピタル体は_____線をそれぞれ朱書する。

〔表と図〕

25 表と図は重複を避け、本文の論旨展開に必要な最小限なものに留める。これ以外の基礎資料となる表や図は、著者の責任において適当な媒体で保管することとし、研究報告には掲載又は添付をしない。

26 表や図は、それぞれ本文とは別の頁に書き、番号と表題を付ける。

27 番号と表題は、表では表の上部に、図では図の下部に表示し、説明、注釈は表や図の下部に記載する。

28 番号、表題、説明及び注釈は和文、欧文のいずれでもよいが、欧文の場合は本文での引用にも欧文の番号を用いる。

29 表や図に用いる文字は書体を指定することができる。

30 表や図の本文中への挿入位置は、原稿用紙の右欄外に「←表 1」, 「←図 1」のように朱書する。

31 表や図は原則として、その幅を刷り上がり 8 cm (半ページ幅) 又は 16.6 cm (全ページ幅) とするが、特に大きさを指定したいときは、表や図の原稿の右下に刷り上がりの大きさを朱書する。

32 表の周囲は枠で囲まないのを原則とし、縦、横の罫は差し支えない限り省く。

33 図・表及び写真は原則として白黒とする。

34 電子媒体による原稿とは別に、図はそのまま製版に使用できるもの 1 部を提出する。

〔引用文献〕

35 文献は本文の引用個所の右肩に 1), 2) 3), 4) - 6) のように記載し、本文とは別の頁に一括して引用番号順に 1 文献ごとに行を改めて記載する。

36 文献の略名は、邦文誌は日本自然科学学術雑誌総覧、欧文誌は、Chemical Abstract 及び Cumulative Indexed Medicus に従って記載する。上記に指示のないものは、原則として略名を用いない。

37 雑誌の場合は、著者名：論文表題、雑誌名、巻 (ゴシック体で記載) (号)、始ページ-終ページ (発行年) の順に記載する。

38 単行本の場合は、著者名：書名、版 (編者名)、始ページ-終ページ、発行所名 (発行年) の順に記載する。

39 著者名は姓名を記載する。欧文名はファミリーネームを先にすべて大文字で記載し、ファーストネームは頭文字のみを大文字とする。(例：PAULING, Linus C., DING Yunchung)

40 共著の場合は、原則として全員の姓名を記載する。

41 巻数は、ゴシック体にする。

通巻ページのあるものは、号を省略する。

ページは原則として通巻ページを記載する。

42 重版又は改訂版のない単行本は版の記載を省略する。単行本の全内容を総括的に引用した場合は、ページの記載を省略する。

43 インターネット・ホームページを引用する場合は、掲載者 (機関) 名、ホームページ名、ホームページアドレス、参照年 (西暦) 月日を記載する。

〔謝辞と付記〕

44 謝辞は本文の最後に 1 行の余白をあけて書き出す。見出しは付けない。

45 付記は謝辞に引続き行を改めて記載する。見出しは付けない。

〔原稿の査読及び修正〕

46 原稿の査読は、原則として電子媒体を用いて行う。ただし、査読員から申し出があった場合は紙面によりこれを行う。

47 複数の査読員からの査読意見は、編集委員会事務局がこれを一括して投稿者に通知する。

48 投稿者は、査読員から修正意見を受けた場合、その指示に従って修正した原稿または修正できない旨とその理由を付した意見書を編集委員会事務局へ提出しなければならない。

49 複数の査読員間で大きな意見の相違があった場合は、当該査読員間で意見を調整の上、執筆者に通知する。

50 前項において当該査読員間で合意が得られなかった場合、及び査読員と執筆者との間での見解の相違により修正に関する合意が得られなかった場合は、編集委員会においてこれを調整し、その取り扱いを決定する。