

3・2 資料

1) 感染症発生動向調査に伴う病原体検査(平成23年度)

清田 直子 西村 浩一*1 大迫 英夫 徳岡 英亮 古川 真斗 永村 哲也*2 原田 誠也

はじめに

熊本県結核・感染症発生動向調査事業実施要領及び熊本県感染症発生動向調査病原体検査実施要領等に基づき、平成23年度に検査依頼のあった検体について病原体検査を実施した結果を取りまとめたので報告する。

調査方法

1 検査材料

県内の病原体定点等で採取された咽頭ぬぐい液、便、結膜ぬぐい液、髄液、尿及び喀痰・気管吸引液等を検体とした。搬入された検体は、検査に供するまで-80で保存した。

2 検査方法

既報^{1),2)}に準じ、試験管又はマイクロプレートによる細胞培養法で検査を実施した。感染性胃腸炎等の検体については、主にPCR法により遺伝子検出を行った。分離ウイルスの同定は中和法を基本とし、必要に応じてPCR法やシークエンス法、赤血球凝集抑制(HI)法、蛍光抗体法等を用いた。

結果

平成23年度は、病原体定点である11医療機関から823検体、その他6医療機関から38検体、合計861検体の検査依頼があり、526検体から病原微生物が分離、あるいは検出された。

検体受付数、疾患別病原体検出数を、それぞれ表1、表2に示した。

1 呼吸器系ウイルス(エンテロ、アデノウイルス以外)

インフルエンザウイルスは、インフルエンザと診断された患者、また、上気道炎症状や脳症の見られた患者から採取した123検体から分離、あるいは遺伝子が検出された。内訳は、AH3型が103件、B型が21件(うち1件はAH3型とB型の混合感染)であった。AH1pdm09型及びAH1型(ソ連型)は検出されなかった。

その他の呼吸器系ウイルスは、主に上気道炎または下気道炎症状等が見られた患者検体から、ヒトライノウイルスが31件、RSウイルスが25件、パラインフルエンザウイルス1型が7件、パラインフルエンザウイルス2型が1件、パラインフルエンザウイルス3型が3件、パラインフルエンザウイルス4型が1件、ヒトメタニューモウイルスが11件、ヒトコロナウイルスOC43型が7件、ヒトコロナウイルス229E型が1件、ポカウイルスが7件検出された。

2 エンテロウイルス

エンテロウイルスは、主に手足口病、ヘルパンギーナ、発疹症、無菌性髄膜炎等と診断された患者から分離、あるいは遺伝子が検出された。平成23年は手足口病の大流行が起こったため、エンテロウイルスが多数検出された。内訳は、コクサッキーウイルスA群2型が1件、6型が32件、10型が4件、16型が55件、コクサッキーウイルスB群1型が8件、5型が2件、エコーウイルス3型が1件、7型が21件、9型が5件、33型が1件、エンテロウイルス71型が26件、ポリオウイルス1型が2件、2型が3件(うち2件はポリオ1型との混合感染)、型別不明が43件であった。

3 ノロウイルス、ロタウイルス、サボウイルス及びアストロウイルス

主に感染性胃腸炎と診断された患者検体から、ノロウイルスGIが1件、ノロウイルスGIIが28件、A群ロタウイルスが23検体、サボウイルスが11検体、アストロウイルスが5検体から検出された。

4 アデノウイルス

アデノウイルスは主に流行性角結膜炎や角結膜炎等と診断された患者検体から分離、あるいは遺伝子が検出された。内訳は、1型が1件、2型が2件、3型が2件、4型が1件、5型が3件、6型が1件、8型が1件、11型が1件、34型が1件、37型が1件、53型が3件、54型が5件、56型が9件、型別不明が17件であった。近年、新型のアデノウイルスとして52-56型が報告されているが、本県においても53型、54型、56型が多数検出された。

*1 現熊本県健康福祉部薬務衛生課

*2 現八代地域振興局保健福祉環境部

表 1 検体受付数

病原体定点種別	検体数	検体種別						
		咽頭ぬぐい液	便	結膜ぬぐい液	髄液	尿	喀痰・気管吸引液	その他
小児科	636	473	157	6				
インフルエンザ	17	17						
眼科	62			62				
基幹	108	51	5		43		6	3
その他	38	26	9		1	2		
合計	861	567	171	68	44	2	6	3

5 その他の病原微生物

流行性耳下腺炎もしくは無菌性髄膜炎と診断された検体からムンプスウイルスが 8 件，上気道炎症状や結膜炎症状等を呈した患者検体から単純ヘルペスウイルス 1 型が 7 件，型不明が 1 件，水痘や手足口病疑い等の検体より水痘・帯状疱疹ウイルスが 7 件，伝染性紅斑等と診断された検体からパルボウイルス B19 型が 4 件，脳症や発疹症と診断された検体からヒトヘルペスウイルス 6B 型が 3 件，7 型が 2 件，発疹症の患者検体から麻疹ウイルスが 1 件検出された。また、上気道炎

症状を呈した患者検体からマイコプラズマ・ニューモニエが 1 件検出され，ヘルパンギーナと診断された患者便から腸管凝集性大腸菌 O86:NM が 1 株，感染性胃腸炎検体からカンピロバクター・ジェジュニが 1 株分離された。

文献

- 1) 西村浩一，松尾繁，田端康二，甲木和子：熊本県保健環境科学研究所報，30，49（2000）。
- 2) 松尾繁，田端康二，西村浩一，甲木和子：熊本県保健環境科学研究所報，31，71（2001）。

表2 疾患別病原体検出数-1

疾患名	検出病原体*	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月	3月	計	
インフルエンザ	検体受付数	13	3	0	0	0	0	0	0	0	41	51	13	121	
	Influenza A(H3)	3									36	38	4	81	
	Influenza B	7									1	1	7	16	
	Influenza A(H3)+Influenza B	1												1	
	Influenza A(H3)+Human rhino										2	3	1	6	
	Influenza A(H3)+RS										1	2		3	
	Influenza A(H3)+Parainfluenza 1													1	
	Influenza A(H3)+Human metapneumo												1	1	
	Influenza A(H3)+Human corona OC43												2	2	
	Influenza A(H3)+Boca	1													1
	Influenza B+Parainfluenza 3		1												1
	Parainfluenza 1												1		1
	Human metapneumo			1											2
陰性		1	1								1	1	1	5	
インフルエンザ様疾患	検体受付数	0	0	0	0	0	0	0	0	0	1	5	0	6	
	Influenza A(H3)+Human rhino											1		1	
	Influenza A(H3)+Parainfluenza 1												1	1	
	Human corona OC43										1			1	
陰性												3		3	
RSウイルス感染症	検体受付数	0	0	0	0	0	1	2	0	1	0	1	0	5	
	RS						1	1					1	2	
	RS+Echo 7							1						1	
	Echo 7							1						1	
	陰性									1				1	
上気道炎	検体受付数	0	0	4	1	1	3	9	8	3	7	39	13	88	
	Influenza A(H3)											4		4	
	Influenza B												3	3	
	Human rhino			2	1			1					2	6	
	Coxsackie A2												1	1	
	Coxsackie B5									1				1	
	Echo 7						1	5	3					9	
	Echo 33						1							1	
	Echo 7+Human rhino								1					1	
	Entero NT							1	1					2	
	RS									1			9	10	
	RS+Coxsackie B1									1				1	
	RS+Human rhino												1	1	
	RS+Human boca												1	1	
	Parainfluenza 1												3	3	
	Parainfluenza 1+Human rhino												1	1	
	Parainfluenza 2+Human boca												1	1	
	Parainfluenza 4								1					1	
	Human metapneumo												2	3	5
	Human corona OC43													1	1
	Human corona OC43+Human boca												2		2
	Adeno 1							1							1
	Adeno 2+Human corona OC43											1			1
	Adeno 5+Human rhino											1			1
	Adeno NT			1											1
	HSV 1												3		3
	HSV NT												1		1
	<i>Mycoplasma pneumoniae</i>										1				1
	陰性				1		1		1	1	1	1	15	3	24
	下気道炎	検体受付数	5	1	0	0	0	2	1	2	0	0	3	5	19
RS							1		2				1	4	
Human rhino								1					1	3	
Parainfluenza 3+Human rhino			1											1	
Human metapneumo												2		2	
Human metapneumo+Human rhino													1	1	
Human corona 229E													1	1	
陰性	5												2	7	
急性灰白髄炎(ポリオ)	検体受付数	0	1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	1	
	Polio 1+2		1											1	

* 病原体名の略記 EAEC : 腸管凝集性大腸菌, HHV : Human herpes virus, HSV : Herpes simplex virus, RS : Respiratory syncytial virus, VZV : Varicella zoster virus

表2 疾患別病原体検出数-2

疾患名	検出病原体*	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月	3月	計
ヘルパンギーナ	検体受付数	2	1	14	7	4	11	4	4	1	0	1	0	49
	Coxsackie A6			5	2	1								8
	Coxsackie A10					2	1							3
	Coxsackie A16				1	1								3
	Coxsackie B1						2							2
	Echo 7						2							2
	Enterovirus 71			1										1
	Polio 2			1										1
	Enterovirus NT			1	3			3		1				8
	Enterovirus NT+Human bocavirus													1
	Adeno 5			1										1
	Human rhino								1					1
	Rota A+EAEC O86:NM	1												1
	陰性	1	1	5	1		5	1	3					17
手足口病	検体受付数	19	7	30	53	23	16	3	5	0	0	0	0	156
	Coxsackie A6		1	12	9	1								23
	Coxsackie A10					1								1
	Coxsackie A16			1	19	17	11	3	1					52
	Echo 7						1		1					2
	Enterovirus 71	19	1	5										25
	Enterovirus NT			3	15	2								20
	VZV			2	1									3
	Parvo B19					1								1
	陰性		5	7	9	1	4		3					29
発疹症	検体受付数	1	2	15	4	4	4	4	2	2	5	6	2	51
	Coxsackie A6			1										1
	Echo 9							2		1	2			5
	Enterovirus NT							1						1
	Measles					1								1
	HHV 6B+HHV 7										1			1
	VZV	1												1
	Human rhino								1					2
	Human boca												1	1
陰性		2	14	4	3	4	1	1	1	2	4	2	38	
突発性発疹	検体受付数	0	0	1	0	0	0	0	0	0	1	0	0	2
	Noro G2													1
	陰性			1										1
咽頭結膜熱	検体受付数	0	1	3	0	0	0	3	1	0	0	1	0	9
	Adeno 5							1						1
	Coxsackie B5								1					1
陰性		1	3				2				1		7	
伝染性紅斑	検体受付数	3	1	0	0	0	1	4	1	0	0	0	0	10
	Parvo B19	1					1		1					3
	陰性	2	1					4						7
麻疹	検体受付数	0	0	0	0	0	0	2	2	0	0	0	0	4
	陰性							2	2					4
水痘	検体受付数	0	0	0	0	0	0	0	0	2	0	0	0	2
	VZV									2				2
ヘルペス口内炎・歯肉炎	検体受付数	0	0	1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	1
	陰性			1										1
心筋炎	検体受付数	0	0	0	0	1	1	1	0	0	0	0	0	3
	Mumps					1								1
	陰性						1	1						2
無菌性髄膜炎	検体受付数	4	0	2	4	9	7	10	5	3	4	0	0	48
	Coxsackie B1					2		1	1	1				5
	Echo 7							3	1					4
	Enterovirus NT					1	4	3	1	1				10
	Mumps			2	2									4
	VZV										1			1
陰性	4			2	6	3	3	2	1	3			7	
細菌性髄膜炎	検体受付数	0	0	0	0	0	0	0	0	0	2	0	0	2
	HHV 6B+HHV 7										1			1
陰性											1			1

表2 疾患別病原体検出数-3

疾患名	検出病原体*	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月	3月	計
脳炎・脳症等	検体受付数	0	1	0	2	4	1	2	0	4	3	0	4	21
	Influenza A(H3)										1			1
	HHV 6B										1			1
	Human rhino												1	1
	Human rhino+Adeno NT												1	1
	陰性		1		2	4	1	2		4	1		2	17
熱性けいれん	検体受付数	0	0	0	1	0	0	0	0	0	0	0	0	1
	陰性				1									1
流行性耳下腺炎	検体受付数	0	1	1	1	1	1	1	2	1	2	2	0	13
	Mumps				1					1	1			3
	Mumps+HSV 1		1											1
	HSV 1					1								1
	Echo 7							1						1
	Enterovirus NT							1						1
	陰性			1					2		1	2		6
伝染性単核球症	検体受付数	0	0	0	0	0	0	1	0	0	0	0	0	1
	陰性							1						1
感染性胃腸炎	検体受付数	27	8	6	6	7	3	18	9	15	28	24	13	164
	Norovirus G2	4								2	11	4	2	23
	Norovirus G1+Norovirus G2		1											1
	Norovirus G2+Rota A										1			1
	Norovirus G2+Adenovirus NT											1		1
	Norovirus G2+Adenovirus NT										1			1
	Sapovirus NT	1								1	2	2	2	8
	Sapovirus NT+Rota A											1		1
	Sapovirus NT+Adenovirus NT									2				2
	Rota A	9	1	1	1						3	5		20
	Astrovirus NT											2	2	4
	Echo 3									1				1
	Poliovirus 1+2									1				1
	Adenovirus 2				1									1
	Adenovirus NT					1		2		1	1	3	2	10
	Human rhinovirus													1
	<i>Campylobacter jejuni</i>											1		1
陰性	13	6	5	4	6	3	16	7	9	8	6	4	87	
流行性角結膜炎	検体受付数	2	3	1	3	2	4	2	0	3	4	6	2	32
	Adenovirus 3	1			1									2
	Adenovirus 4											1		1
	Adenovirus 11											1		1
	Adenovirus 34									1				1
	Adenovirus 37							1						1
	Adenovirus 53	1									1	1		3
	Adenovirus 54									2	2		1	5
	Adenovirus 56		3			2	1	2				1	3	8
	陰性			1	2		2				1	3	1	10
急性出血性結膜炎	検体受付数	1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	1
	陰性	1												1
その他結膜炎等	検体受付数	0	3	2	2	2	2	2	2	1	5	4	6	31
	Adenovirus 8									1				1
	Adenovirus 56							1						1
	Adenovirus NT			1										1
	Adenovirus NT+HSV 1			1										1
	HSV 1										1			1
	陰性		3		2	2	1	2	2		4	4	6	26
その他	検体受付数	4	1	2	4	2	0	0	1	3	2	1	0	20
	RS											1		1
	RS+Human rhinovirus									1				1
	Parainfluenza 3+Human rhinovirus	1												1
	Human rhinovirus	1												1
	Adenovirus 6				1									1
	陰性	2	1	2	3	2			1	2	2			15
検体受付総数	81	34	82	88	60	57	69	44	39	105	144	58	861	
陽性	52	12	41	58	35	33	33	20	20	80	105	37	526	
陰性	29	22	41	30	25	24	36	24	19	25	39	21	335	

2) 日本脳炎調査 (2011 年度)

大迫 英夫 西村 浩一* 清田 直子 原田 誠也

はじめに

日本脳炎(以下「JE」という。)はJEウイルス(以下「JEV」という。)を保有する蚊(主にコガタアカイエカ)の刺咬によりヒトに感染して起こる急性髄膜脳炎である。1950-60年代は全国で年間1000人を超える患者が発生していたが、1970年代以降には患者数は激減し、1992年以降になるとさらに患者数は減少して一桁台で推移するようになってきた¹⁻³⁾。熊本県内でもここ10年の間では2006年を除くと多くても年間一人の患者発生に止まっている。

本研究所では厚生労働省の感染症流行予測事業の一環としてJEVのヒトにおける感受性調査と肥育ブタの感染源調査を実施している。さらに、夏季以外でのJEVの活動を調べるため、4~6月にも肥育ブタの感染源調査を実施し、それら感染源調査に用いたブタ血清中からのJEV遺伝子検出及びJEV分離を併せて実施した。そこで、これらの調査結果について報告する。

調査方法

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

2011年4月18日から2011年9月5日までの間に、県内の養豚場から熊本畜産流通センター(菊池市七城町)に搬入された315頭の肥育ブタ血液(原則として飼育業者別に5検体ずつ)を流行予測事業中の7月上旬~9月上旬の期間は1週間毎に20~35検体(流行予測事業対象感染源調査検体として20検体)を9回、それ以外の期間は一月につき50検体を目途に検体採取した。採取した血液は当研究所に持ち帰り血清を分離後、常法⁴⁾によりHI抗体価と新鮮感染の指標である2ME感受性抗体価を測定した。

2 ブタ血清中のJEV分離及び遺伝子検出

HI抗体価測定に用いたブタ血清100 μ lを単層培養したVero9013細胞に接種して3代まで継代培養し細胞変性効果(CPE)の出現を観察した。CPEが観

察された細胞上清からJEV RNAを抽出しReal time PCR法でJEV遺伝子を検出及び遺伝子型決定を行った⁵⁾。また、肥育ブタ中でのJEVの活動状況を把握するため420頭のブタ血清(HI検体325頭分、HI未実施95頭)からのJEV遺伝子検出をReal time PCR法で行った。

なお、ウイルス分離にはReal time PCR法でJEV遺伝子陽性であった検体のみを用いた。

3 ヒトの中和抗体調査

2011年8月から10月にかけて年齢群別に採取したヒト血清222検体について、ペルオキシダーゼ抗ペルオキシダーゼ(PAP)法^{6,7)}により中和抗体価を測定した。なお、中和抗体価測定用の抗原はBeijing1株を使用した。

結果

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

飼育地別のブタ血清中のHI抗体保有状況及びJEV遺伝子検出状況を表1に示した。本年度最も早くHI抗体が確認されたのは、4月の上天草市からのブタ(抗体価1:10)で、次が5月の山鹿市からのブタ(抗体価1:40)であったが、それ以降これら農場のブタからはHI抗体が1ヶ月以上確認されなかった。その後、8月8日からHI抗体陽性率は漸次増加し、8月22日には85%となった。

次に、HI抗体価及び2ME感受性抗体保有率を表2に示した。2ME抗体保有率は8月8日に67%を示し、その後減少し、8月29日には0%となったが、9月5日の採血分では100%となった。

2 ブタ血清中のJEV遺伝子検出及びJEV分離

JEV遺伝子は、HI抗体が検出され始める1週間前の8月1日の2頭から検出された。その後9月までに32検体11農場からJEV遺伝子が分離された。分離されたJEVの遺伝子型はすべてI型であった。

Vero9013細胞を用いウイルス分離を行った結果、

表 1 中の網掛けで示した植木町の 1 農場から 2 株、 2 農場から 3 株それぞれ JEV が分離された。
合志市の 1 農場から 4 株及びその他（七城町）の

表 1 飼育地別ブタの HI 抗体保有状況及び JEV 遺伝子検出状況

採血月	熊本市 植木町	山鹿市 鹿本町	上天草 市	合志市	菊池郡 大津町	その他	HI 抗体 保有率	2ME 感受 性抗体保 有率
2011 年 4 月	0/4	0/16	1/20		0/9		2%	0%
2011 年 5 月	0/5	1/13	0/15		0/14		2%	0%
2011 年 6 月	0/5	0/15	0/14		0/15		0%	0%
2011 年 7 月	0/15	0/15		0/15	0/5	0/10	0%	0%
2011 年 8 月 1 日	0/5 (1)	0/5 (1)				0/10	0%	0%
2011 年 8 月 8 日	2/5 (2)	4/5 (1)				1/10 (1)	35%	67%
2011 年 8 月 16 日		5/5 (1)		0/15 (1)		(2) ※	25%	20%
2011 年 8 月 22 日	5/5 (1)	10/10		2/5 (1)		(1) ※	85%	12%
2011 年 8 月 29 日	5/5	10/10 (1)	1/5 (1)				80%	0%
2011 年 9 月 5 日	0/5		0/5 (1)			6/10	30%	100%

HI 抗体陽性数/検査頭数 () 内は JEV 遺伝子検出数 : JEV が分離されたロット

※HI 抗体検査未実施

表 2 ブタの HI 抗体価及び 2ME 感受性抗体保有率

採取月日	検査 頭数									HI 抗 体保 有率	2ME 感受 性抗体保 有率
		<10	10	20	40	80	160	320	640<		
2011 年 4 月	49	48	1							2%	
2011 年 5 月	47	46			1					2%	
2011 年 6 月	49	49								0%	
2011 年 7 月	50									0%	
2011 年 8 月 1 日	20	20									
2011 年 8 月 8 日	20	13	1		1		3		2	35%	67%
2011 年 8 月 16 日	20	15				1	1	3		25%	20%
2011 年 8 月 22 日	20	3				2	6	8	1	85%	12%
2011 年 8 月 29 日	20	4				2	11	2	1	80%	0%
2011 年 9 月	20	14				2	2	2		30%	100%

表3 ヒトの中和抗体保有率

年齢区分 (歳)	検査数	中和抗体価								中和抗体保有率
		<10	10	20	40	80	160	320	≥640	
0-4	22	19			2	1				13%
5-9	22	13		2	2	1	2	2		40%
10-14	24	7	2		1	3	4	3	4	70%
15-19	22	5		2	4	1	7	1	2	77%
20-29	24	6		2	2	6	5	2	1	75%
30-39	24	7	7	1	2	3	3	1		70%
40-49	24	13	2	4	2	2	1			45%
50-59	27	17	2	6	1	1				37%
60≤	33	15	5	6	2	2	3			54%
計	222	102	18	23	18	20	25	9	7	54%

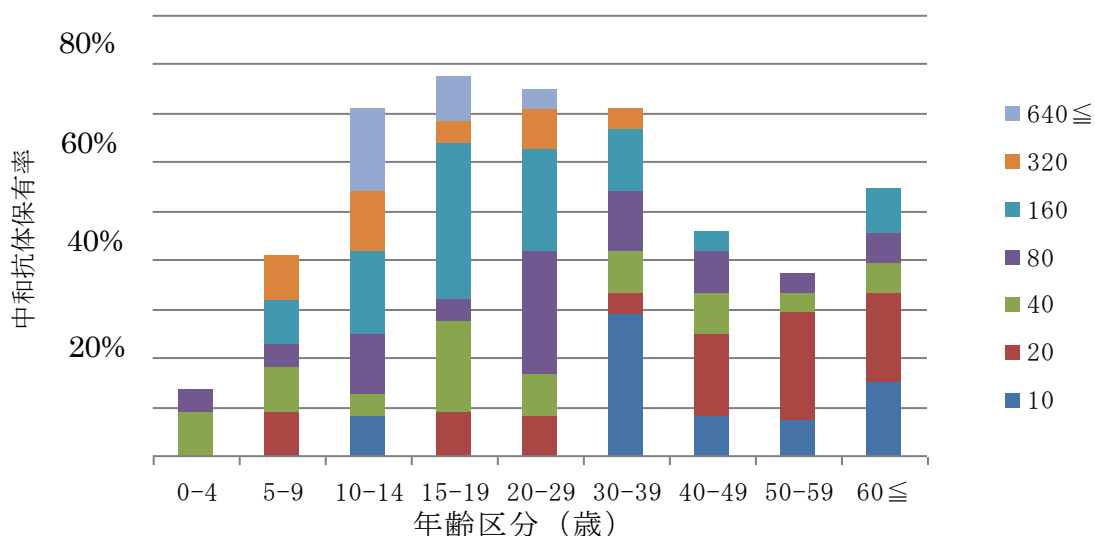


図1 ヒトの JEV 抗体保有状況

3 ヒトの中和抗体調査

ヒトは 10 倍以上の JEV 中和抗体価があれば自然感染を阻止できるといわれている。2011 年度に PAP 法で測定したヒトの年齢階級別中和抗体価を表 3 に、抗体保有状況を図 1 に示した。中和抗体保有率は年齢とともに増加し 20 歳代で最高の 75% となったが、それ以降は 50 歳代で 37% まで減少したものの、60 歳代以上では 54% に微増した。

考 察

JEV に対する HI 抗体が 4 月と 5 月に確認された豚の抗体価は 1:10 と 1:40 であった。その後これらの農場からこれ以降 8 月まで HI 抗体を保有するブタは確認されなかった。抗体価が低かったことと長期間にわたり HI 抗体を保有するブタが確認されなかったことから、この時検出された HI 抗体は母豚からの移行抗体であったのではないかと推察された。次に HI 抗体が確認されたのは 8 月 8 日であった。この時期には 2ME 感受性抗体及び JEV 遺伝子も同時に確認された。そのため、県内で実際に JEV が活動を開始したのはこの時期からであったと思われる。

また、2011 年度の 2ME 抗体保有期間を 2010 年度のそれと比較すると、2010 年度は 2ME 抗体保有期間が 7 月 16 日から 7 週も認めたが、2011 年度は 8 月 16 日~22 日までの 3 週であった。このことから、昨年度よりも、ウイルスの活動した時期が短期間であったのではないかと思われた。

一方、中和抗体検査では、0~4 歳の年齢階級の中和抗体保有率は 2006 年度には 64% であったが、2005 年 5 月からの JE 予防接種の積極的勧奨差し控え勧告後、2007 年度及び 2008 年度にはそれぞれ 4% 及び 9% と著しく減少した^{8,9)}が、2009 年から「乾燥細胞培養日本脳炎ワクチン」の接種が可能となり、また、2010 年 4 月から JE 予防接種（第 1 期）の積極的勧奨が再開され、2009 年度は 29%、2010 年度は 23% と中和抗体保有率は増加した^{10,11)}。しかし、2011 年度は 13% に減少した。このことは、2011 年度の 0~4 才児血清が平均的予防接種開始年齢前の 1 才児以下の血清を多く含んでいたことに起因すると思われた。

文 献

1) 国立感染症研究所感染症情報センター：病原微

- 生物検出情報, 30, 147-148 (2009) .
- 2) 国立感染症研究所感染症情報センター：病原微生物検出情報, 24, 149-150 (2003) .
- 3) 国立感染症研究所感染症情報センター：病原微生物検出情報, 20, 185-186 (1999) .
- 4) 厚生労働省：感染症流行予測調査事業検査術式 (2002) .
- 5) 高崎智彦：厚生労働科学研究費補助金（新興・再興感染症研究事業）平成 20 年度分担研究報告書, 81-84 (2009).
- 6) Y.Okuno, T.Fukunaga, M. Tadano, Y. Okamoto, T. Ohnishi and M. Takagi, Arch. Virol. 86, 129-135 (1985).
- 7) 国立感染症研究所：PAP 法を応用したフォーカス計数法による日本脳炎中和抗体価測定法〔第六版〕.
- 8) 原田誠也, 松尾繁, 中島龍一：熊本県保健環境科学研究所報, 37, 82 (2007).
- 9) 西村浩一, 原田誠也：熊本県保健環境科学研究所報, 38, 58 (2008).
- 10) 清田直子, 西村浩一, 原田誠也：熊本県保健環境科学研究所報, 39, 64 (2009)
- 11) 西村浩一, 清田直子, 原田誠也：熊本県保健環境科学研究所報, 40, 42 (2010)

3) LC/MS/MSを用いた食品中の残留農薬迅速分析法の検討 (第4報)

- 大豆試料を用いた妥当性評価試験 -

濱田寛尚 吉田達雄 飛野敏明 村川 弘

はじめに

食品中に残留する農薬等の検査については、厚生労働省が示している「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」¹⁾ (以下「ガイドライン」という。)により、使用する試験法の妥当性を確認することが求められている。当所で開発した35%含水アセトニトリル抽出と液体クロマトグラフ/タンデム型質量分析計を用いた食品中の残留農薬迅速分析法 (以下「溶媒抽出-LC/MS/MS法」という。)²⁾について、ガイドラインで示される妥当性評価試験に用いる代表的な食品のうち、玄米 (穀類)、ホウレンソウ (野菜) 及びリンゴ (果実) 試料を用いた妥当性評価試験を行い、その結果を報告した^{3),4)}。さらに今回、大豆試料による妥当性評価試験を実施したので、その結果を報告する。

実験

1 試薬

混合標準液：表1に示す各標準を秤量、メタノール又はアセトンに溶解し、1,000 mg/ あるいは100 mg/ を調製した。これらを混合し、メタノールで500 µg/ に調整した。検量線は、既報^{3),4)}のとおりマトリックス一致検量線を用いた。

2 装置及び分析条件

既報^{3),4)}のとおり。

3 試験方法

1) 試料

大豆をミルサーで粉碎・均質化して試料とした。

2) 添加回収試験

試料5gに混合標準液 (表1に示す330農薬成分) を40及び10 ng/g になるように添加し、溶媒抽出-LC/MS/MS法により、分析者3名でそれぞれ添加試料を1日2回、2日間分析した。

結果及び考察

今回実施した妥当性評価試験の結果を表1に示す。添加濃度40 ng/gでは、ガイドラインに示されている目標値

のうち、真度が適合した農薬成分数は40 ng/gでは291成分、10 ng/gでは249成分であった。そのうち、精度も適合であった農薬成分は、40 ng/gでは199成分、10 ng/gでは238成分であった。目標値に適合する農薬成分の真度の平均値は、両添加濃度とも86%程度であり、真度に大きな差がある適合成分はほとんどなかった。しかしながら、不適合農薬成分のうち、真度不適合の農薬成分数は、40 ng/gで41成分、10 ng/gで83成分であり、真度適合で精度不適合の農薬成分数は、40 ng/gで92成分、10 ng/gで9成分認められた。精度が不適合となった理由の一つとして、試料マトリックスのイオン化阻害による定量値のばらつき等が推測され、さらに、高濃度の添加量の場合はガイドラインで要求される精度の目標値が低いいため、両濃度における精度が同程度であっても高濃度の添加量の場合に不適合が多くなったと考えられた。

また、今回の妥当性評価試験では、既報^{3),4)}の玄米、ホウレンソウ及びリンゴ試料を用いたものと比較して、適合農薬成分数が少なかったものの、本法の食品中残留農薬迅速分析法としての一定の妥当性が確認できた。

最後に、今後の課題として、大豆試料や玄米試料のような、水分が少なく、脂肪含有量の大きい試料については、試料マトリックスを軽減するために抽出・精製法の検討が必要と考えられた。

参考資料

- 1) 厚生労働省：厚生労働省医薬食品局食品安全部長通知，食安発第1115001号，平成19年11月15日。
- 2) 西名武士，村川 弘，福島孝兵，飛野敏明：熊本県保健環境科学研究所報，35，51-56 (2005)。
- 3) 福島孝兵，増永ミキ，宮原喜子，飛野敏明：熊本県保健環境科学研究所報，37，36-47 (2007)。
- 4) 村川 弘，飛野敏明：熊本県保健環境科学研究所報，39，71-73 (2009)。

表1-1 妥当性評価試験結果

No.	農薬成分名	40ng/g		10ng/g		No.	農薬成分名	40ng/g		10ng/g	
		平均 回収率(%)	判定	平均 回収率(%)	判定			平均 回収率(%)	判定	平均 回収率(%)	判定
1	1-Naphthaleneacetic acid	85.00				84	Clopropr	72.79		72.33	
2	2,4-D	90.42		103.00		85	Chromafenozide	78.98		85.75	
3	4-CPA	97.08		70.25		86	Clomeprop	74.50			
4	DBEDC					87	Cloransulam-Methyl	92.65		92.00	
5	EPTC	88.35		88.08		88	Chloridazon	83.27		82.08	
6	MCPA Ethylester	115.40				89	Chlorimuron-Ethyl	76.02		86.75	
7	MCPA	91.58		94.33		90	Chlorsulfuron	84.94		72.58	
8	MCPB	75.71				91	Chlorbufam	82.96		56.42	
9	TCMTB	56.79		37.60		92	Chlorfluazuron	84.15		81.92	
10	Ioxynil	63.58		58.33		93	Chlormequat				
11	Azamethiphos	92.48		95.67		94	Chloroxuron	87.29		91.67	
12	Acifluorfen	83.60		60.75		95	Fenbutatin Oxide				
13	Acibenzolaric acid	80.19		72.83		96	Cyazofamid	87.94		87.83	
14	Acibenzolar-S-Methyl	93.06		86.00		97	Cyanazine	86.75		74.17	
15	Azimsulfuron	86.00		85.83		98	Diafenthion	56.77		58.33	
16	Asulam	89.31		90.25		99	Dioxathion				
17	Azinphos-Methyl	81.65		78.25		100	Cyclanilide	69.94		55.75	
18	Acequinocyl	46.56				101	Cycloate	80.29		72.67	
19	Acetamiprid	85.25		85.33		102	Cycloxydim1	69.33			
20	Acephate	100.58				103	Cycloxydim2	67.92		77.42	
21	Azoxystrobin	92.25		86.67		104	Diclosulam	85.31		81.58	
22	Anilazine	73.94				105	Dicrofluamide				
23	Anilofos	86.94		91.67		106	Cycloprothrin	97.60			
24	Abamectin B1a	104.54				107	Dichlorprop	90.48		87.00	
25	Alanycarb	87.40		85.08		108	Dichlorvos	86.65		98.50	
26	Aramite	90.46		90.58		109	Naled				
27	Ardicarb	91.67		113.67		110	Cinosulfuron	81.25		73.00	
28	Aldoxycarb	88.63		88.50		111	Dinotefuran	108.15		97.75	
29	Iodosulfuron-Methyl	88.35		97.25		112	Difenoconazole	74.19		87.00	
30	Isouron	97.27		98.42		113	Difenzoquat	83.44		92.25	
31	Isxadifen-Ethyl	90.08				114	Cyflufenamid	87.94		86.58	
32	Isxathion	85.10		79.83		115	Diflufenican				
33	Isxaflutole	88.10		89.08		116	Diflubenzuron	86.15		74.08	
34	Iprodione	99.81		109.42		117	Cyproconazol1	91.06		90.00	
35	Iprodion Metaborite					118	Cyproconazol2	88.08		91.67	
36	Iprovalicarb	80.10		85.42		119	Cyprodinil	74.06		83.33	
37	Imazaquin	84.29		69.42		120	Gibberellic acid	80.85			
38	Imazamethabenz Methyl ester	84.23		72.42		121	Simeconazole	88.73		88.75	
39	Imazamox	78.85		73.83		122	Dimethirimol	92.85		88.42	
40	Imazalil	96.77		110.00		123	Dimethoate	82.46		74.25	
41	Imidacropid	88.90		85.25		124	Dimethomorph1	83.65		91.17	
42	Imibenconazole	80.33		83.17		125	Dimethomorph2	74.42		88.83	
43	Imibenconazole-debenzyl	86.23		84.75		126	Cymoxanil	82.25		75.25	
44	Indoxacarb	75.71		78.92		127	Silafluofen	45.81		40.67	
45	Ethamsulfuron-Methyl	84.67		76.58		128	Spinocyn A	79.56		96.33	
46	Ethychlozate	79.71		90.67		129	Spinocyn D	102.92		100.75	
47	Ethoxysulfuron	81.06		83.83		130	Spiroxamine1	84.38		80.67	
48	Ethofenprox	73.88		71.25		131	Spiroxamine2	84.38		80.67	
49	Epoxiconazole	82.29		85.75		132	Spirodiclofen	75.58			
50	Emamectin Benzoate B1a	87.83		80.25		133	Sulfentrazone	80.46		65.75	
51	Emamectin Benzoate B1b	88.94		84.33		134	Sulfosulfuron	94.06			
52	Emamectin N-methylamino B1a	97.29		105.67		135	Sethoxydim	77.08		79.17	
53	Emamectin N-methylamino B1b	96.81				136	Zoxamide	89.17		80.17	
54	Emamectin Amino B1a	89.77		81.83		137	Terbacil	82.48		66.42	
55	Emamectin Amino B1b	93.38				138	Di-Allate	76.67		81.58	
56	Emamectin Formylamino B1a	83.56				139	Thiacroprid	88.56		93.00	
57	Emamectin Formylamino B1b					140	Tiadinil	83.23		89.83	
58	8,9-Z Emamectin B1a	90.52		84.50		141	Thiazopyr	90.71		89.83	
59	Oxadixyl	85.69		79.50		142	Thiabendazole	90.69		89.25	
60	Oxamyl	99.04		100.67		143	Thiamethoxam	83.75		80.42	
61	Oxycarboxin	85.90		83.50		144	Thidiazuron	93.13		90.00	
62	Oryzalin					145	Thifensulfuron-Methyl	81.54		71.00	
63	Cartap	88.02		96.42		146	Desmedipham	77.31		89.25	
64	Thiocyclam	56.35				147	Tetrachlorvinphos	82.98		89.75	
65	Nereistoxin	82.96		91.67		148	Tetraconazole	81.17		91.75	
66	Carbaryl	91.40		89.58		149	Tebuconazole	87.48		84.33	
67	Carbendazim	97.98		81.83		150	Tebuthiuron	85.50		77.83	
68	Thiofanate-Methyl	84.77		74.08		151	Tebufenoid	85.08		86.75	
69	Thiophanate	91.46		87.92		152	Tebuphenpyrad	86.46		83.00	
70	Carbofuran	98.75		103.33		153	Tepraloxym1	88.08		82.58	
71	Quizalofop-Ethyl	81.98		82.08		154	Tepraloxym2	73.56		75.75	
72	Quinoclamine	85.04				155	Teflubenzuron	84.63		81.08	
73	Chinomethionat	70.50		70.50		156	Demeton-S-Methyl	84.06		68.50	
74	Kresoxim-Methyl	84.08				157	Tralomethrin1				
75	Clethodim1	80.15		103.83		158	Tralomethrin2				
76	Clethodim2	72.33		78.08		159	Tralkoxydim1	85.63		92.08	
77	Cloquintocet-Mexyl	82.25		84.08		160	Tralkoxydim2	78.40		81.50	
78	Clodinafop Acid	93.85		109.17		161	Triadimenol	89.15		69.83	
79	Clodinafop-Propagyl	88.06		89.58		162	Triadimefon	92.73		89.67	
80	Clothianidin	80.06		88.92		163	Triasulfuron	82.77		69.58	
81	Clopyralid					164	Triclopyr	65.08			
82	Clofencet	86.02		103.17		165	Trichlorfon	79.58		86.83	
83	Clofentazine	76.65		67.50		166	Triticonazole	84.10		95.92	

* ガイドラインにおける真度及び精度の目標値を満たすものとした。

表1 - 2 妥当性評価試験結果

No.	農薬成分名	40ng/g		10ng/g		No.	農薬成分名	40ng/g		10ng/g	
		平均 回収率(%)	判定	平均 回収率(%)	判定			平均 回収率(%)	判定	平均 回収率(%)	判定
167	Tridemorph1					250	Hexaconazole	86.10		84.75	
168	Tridemorph2					251	Hexazinone	86.85		73.25	
169	Trinexapac					252	Hexaflumuron	82.58			
170	Triflusalufuron-Methyl	90.94		86.58		253	Hexythiazox	80.08		75.42	
171	Triflumizole	89.27		88.92		254	Penconazole	93.92		104.67	
172	Triflumuron	63.96		52.64		255	Pencycuro	77.83		82.00	
173	Trifloxysulfuron	83.96		73.50		256	Bensulfuron-Methyl	92.46		85.58	
174	Naptalam	87.06		100.25		257	Benzobicyclon	76.79		81.92	
175	Naproanilide	80.94		82.00		258	Benzofenap	86.96		79.50	
176	Nicosulfuron	80.69		66.92		259	Bendiocarb	86.71		74.00	
177	Nitenpyram	91.25				260	Boscalid	84.52		94.17	
178	Novaluron	88.33		83.50		261	Fosthiazate	85.81		73.75	
179	Norflurazon	82.25		88.25		262	Phosmet	77.48		84.42	
180	Paclobutorazol	80.27		95.00		263	Fomesafen	90.73		97.73	
181	Vamidithion	88.48		83.50		264	Foramsulfuron	88.98		98.75	
182	Vamidithion Sulfone	93.98		94.75		265	Forchlorfenuron	86.02		91.42	
183	Haloxypop	90.50		94.17		266	Myclobutanil	81.60		93.50	
184	Halosulfuron Methyl	82.40		90.17		267	Milbemectin A3				
185	Bioresmethrin	73.73		72.58		268	Milbemectin A4				
186	Picolinafen	82.17		82.08		269	Mecarbam	87.94		83.67	
187	Bitertanol	89.02		90.58		270	Mecoprop	86.90		90.30	
188	Hymexazol	91.67				271	Mesosulfuron-Methyl	82.71		72.00	
189	Pymetrozine	96.31		97.08		272	Thiodicarb	24.25			
190	Pyraclostrobin	78.67		88.58		273	Methomyl	126.81		142.33	
191	Pyrazosulfuron-Ethyl	76.83		86.92		274	Methomyl-Oxime	128.65		117.42	
192	Pyrazolynate	90.81		81.92		275	Metalddehyde	80.83		83.00	
193	Piridafenthion	78.27		86.42		276	Methabenzthiazuron	81.27		94.00	
194	Piridaben	76.15		73.92		277	Methamidophos1	87.35		88.75	
195	Pyriithiobac-Sodium	84.10		82.08		278	Methamidophos2	93.75			
196	Pyrifitalid	78.04		87.83		279	Metamitron	96.13			
197	Pirimicarb	85.58		76.67		280	Methiocarb	89.06		89.83	
198	Pirimethanil	87.50		87.42		281	Methoxyfenozide	79.23		87.92	
199	Pyrethrin1	84.40		83.67		282	Metosulam	84.48		68.92	
200	Pyrethrin2	101.10				283	Metsulfuron Methyl	82.96		70.08	
201	Pyroquilon	86.79		75.67		284	Mepanipyrim	85.52		83.92	
202	Fenamiphos	89.15		88.42		285	Mepiquat-Chloride	53.95		60.25	
203	Fenarimol	81.71		78.25		286	Mefenpyr-Diethyl	88.83		84.67	
204	Fenoxaprop-Ethyl					287	Monocrotophos	83.94		85.00	
205	Fenoxycarb	92.58		80.67		288	Monolinuron	89.69		95.42	
206	Fenobucarb	89.92		89.42		289	Lactofen	84.40		73.42	
207	Ferimzone	78.10		85.17		290	Linuron	87.25		86.83	
208	Fenamidone	96.65		87.92		291	Rimsulfuron	85.98		72.50	
209	Fenthion	82.10				292	Lufenuron	92.13		85.25	
210	Fenpyroximate	83.38		81.75		293	Benthiavalicarb-Isopropyl	89.77		95.00	
211	Fenbuconazole	79.42		79.83		294	Cyflumetofen	75.83		82.75	
212	Fenhexamide	81.25		87.08		295	Cyflumetofen Metabolite B1	85.00			
213	Fenmedipham	75.96		84.58		296	Flubendiamide				
214	Butafenacil	86.35		93.92		297	Fonicamid	94.44		88.58	
215	Buprofezin	77.85		82.75		298	Fronicamide Metabolite TFNA	87.19		90.36	
216	Oxpoconazole	96.15				299	Fronicamide Metabolite TFNG				
217	Flazasulfuron	93.96		91.92		300	Metoconazol (cis)	82.17		89.58	
218	Furathiocarb	85.40		69.92		301	Metoconazol (trans)	83.29		91.50	
219	Flamprop-Methyl	86.44		88.42		302	Cyhexatin				
220	Primisulfuron-Methyl	96.21		95.67		303	Isoprocarb	92.83		86.75	
221	Furilazole	99.73				304	Inabenfide	73.27		66.42	
222	Fluazinan	85.94		81.58		305	Imazosulfuron	79.13		86.83	
223	Fluazifop	96.35		101.75		306	Indanofan	80.52		78.67	
224	Fluometuron	94.50		92.83		307	Ethiofencarb	91.83		90.25	
225	Fluquinconazole	78.73		78.50		308	Etobenzanid	69.79		76.17	
226	Fludioxonil	71.17		64.58		309	Oxaziclomefone	83.08		86.25	
227	Flusirazole	84.63		92.17		310	Carpropamide	90.67		93.92	
228	Flusulfamide	84.88		76.33		311	Cumyluron	85.90		85.33	
229	Fluthiacet-Methyl	89.31		94.00		312	Diethofencarb	77.77		91.00	
230	Flufenacet	81.02		86.33		313	Cyclosulfamuron	90.40		86.00	
231	Flufenoxuron	87.94		81.92		314	Daimuron	92.33		89.50	
232	Flufenpyr-Ethyl	90.81		94.67		315	Teclotalam	76.58			
233	Flumetsulam	90.06		86.00		316	Trichlamide				
234	Fluridone	90.33		93.67		317	Tricyclazole	83.02		77.17	
235	Fluroxypyr	102.50				318	Pyridalyl	45.52			
236	Prochloraz	89.94		83.83		319	Pirifenox E	89.98		87.58	
237	Prosulfuron	94.35		102.58		320	Pirifenox Z	93.23		92.08	
238	Propaquizafop	88.38		87.42		321	Fentrazamide	86.00		86.25	
239	Propachlor	94.60		91.42		322	Butylate	74.90		81.58	
240	Propanil	73.00		76.22		323	Furametpyr	95.42		90.83	
241	Propamocarb	97.35		100.75		324	Prohydrojasmon	86.17			
242	Propiconazole	86.40		87.92		325	Pentoxazone	84.15		91.50	
243	Profenofos	78.85		88.08		326	Molinate	84.15		86.75	
244	Prohexadione-Calsium	85.50				327	Lenacil	79.63		86.08	
245	Propoxycarbazone	88.29		86.42		328	Spiromesifen	83.33		90.42	
246	Propoxur	92.71		94.50		329	Spiromesifen Metabolite	95.94		101.08	
247	Bromacil	85.58		89.25		330	Oryastrobin	87.44		89.17	
248	Bromoxynil	53.65				331	Oryastrobin 5Z	88.40		91.17	
249	Florasuram	86.27		75.42		332	Pyraclonil	95.27		92.75	

* ガイドラインにおける真度及び精度の目標値を満たすものとした。

4) 超臨界流体抽出及びGC/MS法による農産物中の残留農薬迅速分析法の検討(第6報) - 大豆試料を用いた妥当性評価試験 -

濱田寛尚 吉田達雄 飛野敏明 村川 弘

はじめに

食品中に残留する農薬等の検査については、厚生労働省が示している「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」¹⁾(以下「ガイドライン」という。)により、使用する試験法の妥当性を確認することが求められている。また、ガイドラインでは、妥当性評価試験に用いる代表的な食品の種類として、農産物では穀類、豆類、野菜、果実等8種類が示されており、当所において農産物中残留農薬迅速分析法として使用している超臨界流体抽出及びGC/MS法(以下「SFE-GC/MS法」という。)について、玄米(穀類)、ホウレンソウ(野菜)及びリンゴ(果実)を試料に用いて妥当性評価試験を実施した^{2),3)}。さらに今回、大豆(豆類)を用いて同様に妥当性評価試験を実施したので、その結果を報告する。

実験

1 試料

大豆はミルサーで粉碎・均質化したものを試料とした。

2 装置及び分析条件

1) SFE

既報^{2),3)}のとおり

2) GC/MS

GC: 7890A(Agilent), MS: 5975C(Agilent)

カラム: HP-5MS, 0.25 mm × 30m, 膜厚: 0.25 μm,
昇温条件: 80 (2分)-30 /分-180 (10分)-2 /分
-200 / (0分)-3 /分-280 (10分)

流量: 1m /min (定流量モード),

注入口温度: 250 , 注入量: 4 μ

注入方法: パルスドスプリットレス

MS イオン源温度: 230 , MS 四重極温度: 150 ,

3 添加回収試験

試料 2 g に農薬混合標準溶液(表1に示す 371 農薬成分)を10及び50 ng/g(メタミドホス, アセフェート及びアセタミプリドは50 ng/g 及び 250 ng/g)になるよう

に添加し、分析者3名で、SFE-GC/MS法により、それぞれ添加試料を1日2回、2日間分析した。なお、抽出液の脱脂操作等は前報³⁾のとおり実施した。

結果及び考察

今回の妥当性評価試験の結果を表1に示す。ガイドラインに示されている目標値のうち、真度が適合した農薬成分数は、添加濃度50 ng/gでは304成分、10 ng/gでは280成分であった。また、真度が不適合であった農薬成分数は、50 ng/gで67成分、10 ng/gで91成分であった。このように、真度不適合農薬成分数は添加濃度50 ng/gより10 ng/gに多く認められた。

また、前報³⁾の玄米試料を用いた妥当性評価試験では、高濃度の50 ng/gにおける真度が不適合となるが、低濃度の10 ng/gでは適合となる農薬成分が17成分認められたが、今回の大豆試料ではカルバリル1のみであった。

さらに、真度が適合で精度が不適合の農薬成分は、50 ng/gで3成分、10 ng/gで4成分であり、玄米試料の結果(50 ng/gで20成分、10 ng/gで8成分)より、ばらつきが小さいものであった。これは、両試料ともに脂肪等のマトリックスの影響が考えられるため、抽出に脱脂操作を加えているが、大豆試料に対しては、この脱脂操作がより効果的であったと考えられた。

今回の大豆試料を使用したSFE-GC/MS法の妥当性評価試験では、ガイドラインの目標値に適合した農薬成分数は、添加濃度50 ng/gで301成分、10 ng/gで272成分であり、本試験法は、農産物中残留農薬迅速分析法として、一定の妥当性が確認できた。

参考文献

- 1) 厚生労働省: 厚生労働省医薬食品局食品安全部長通知, 食安発第1115001号, 平成19年11月15日.
- 2) 村川 弘, 吉田達雄, 吉元秀和, 飛野敏明: 熊本県保健環境科学研究所報, 37, 29-35 (2007).
- 3) 村川 弘, 吉田達雄, 濱田寛尚, 吉元秀和, 飛野敏明: 熊本県保健環境科学研究所報, 39, 78-83 (2009).

表1-1 妥当性評価試験結果

No.	農薬成分名	50ng/g		10ng/g		No.	農薬成分名	50ng/g		10ng/g	
		平均回収率(%)	判定	平均回収率(%)	判定			平均回収率(%)	判定	平均回収率(%)	判定
1	2,3,5-トリメタカルブ	79.03		73.96		94	キノキサント	35.47		33.26	
2	2,4-ジクロロアセチル	57.70		57.59		95	キアブタン	61.69		65.49	
3	2,6-ジクロロヘンザミド	42.02		42.82		96	キントセン	72.22		74.75	
4	3,4,5-トリメタカルブ	69.38		65.80		97	クダロソ	66.72		61.43	
5	EPN	87.50		90.07		98	クダシキシムメチル	95.32		91.32	
6	EPTC	50.22		55.06		99	クダマソ	89.39		88.90	
7	MPMC	72.44		68.59		100	クダトキシニル	89.74		95.03	
8	o,p'-DDT	72.89		68.64		101	クダタソ	4.05			
9	p,p'-DDD	91.17		87.81		102	クダタルシメチル	89.81		86.12	
10	p,p'-DDE	72.38		74.70		103	クダニトロフェン	89.51		85.77	
11	p,p'-DDT	75.24		68.98		104	クダビリホス	86.40		86.92	
12	swep	84.74		78.85		105	クダビリホスメチル	87.99		86.30	
13	XMC	72.40		68.88		106	クダフェナニル	96.08		93.14	
14	-BHC	84.70		80.14		107	クダルブロアム	89.96		83.26	
15	-エンドスルファン	81.70		83.70		108	クダクロニル	32.68			
16	-クダルフェンピホス	92.22		92.50		109	クダネア	79.96		76.47	
17	-BHC	85.92		82.08		110	クダヘンソレート	93.00		89.62	
18	-エンドスルファン	87.26		68.45		111	サイネピリン1	90.50		80.42	
19	-クダルフェンピホス	90.94		87.03		112	サイネピリン2	87.13		86.15	
20	-BHC	84.74		79.34		113	サリチオン	86.13		83.33	
21	-BHC	76.17		60.87		114	シアナソ	92.18		81.19	
22	アクリナトリン1	102.38		98.71		115	シアノアソ	95.32		88.88	
23	アクリナトリン2	88.24		81.15		116	シアホス	89.50		86.79	
24	アサコナソール	94.04		93.70		117	シアフェンチクロン	86.22			
25	アソホスエチル	94.68		93.93		118	シエトフンカルブ	91.31		87.86	
26	アソホスメチル	89.17		84.60		119	シオキサカルブ1	88.64		83.49	
27	アセタミプリド					120	シオキサカルブ2	62.51		67.40	
28	アセトクロール	92.51		85.05		121	シクロエート	71.00		60.00	
29	アセフェート	53.11		34.91		122	シクロシメット1	89.65		88.87	
30	アソキリストロピソ	92.24		93.37		123	シクロシメット2	92.21		88.68	
31	アトラソ	90.66		86.59		124	シクロフェンチオン	87.02		85.29	
32	アニロホス	91.45		87.63		125	シクロフルアニート	71.12		68.83	
33	アミトラス	60.72		45.27		126	シクロヘニル	58.03		55.03	
34	アミカルブ	67.96		64.46		127	シクロホップメチル	94.35		87.41	
35	アメリソ	87.68		86.05		128	シクロラソ	77.01		75.56	
36	アラクロール	89.75		85.81		129	シクロホス	29.58		24.57	
37	アルドリソ	54.51		55.73		130	シコホール	53.94		51.55	
38	アレスリン1	90.66		90.21		131	シスルホソ	73.81		73.31	
39	アレスリン2	87.35		84.94		132	シチオピル	94.60		95.92	
40	イサホス	86.87		89.72		133	シハロトリン1	92.73		88.13	
41	イソカルホス	85.01		85.21		134	シハロトリン2	96.34		94.39	
42	イソキサチオン	94.56		90.93		135	シハロホップメチル	96.60		93.04	
43	イソキサチオンオキソソ	85.44		86.76		136	シフエニト	88.71		83.92	
44	イソフェンホス	90.86		90.19		137	シフエニル	50.38		48.84	
45	イソフェンホスオキソソ	88.04		80.62		138	シフェニルアミン	81.07		51.68	
46	イソロカルブ	79.79		77.74		139	シフエノナソール1	97.53		109.91	
47	イソロチオソ	95.36		89.14		140	シフエノナソール2	92.39		104.12	
48	イソロハリソ	77.33		85.23		141	シフェソソート				
49	イソヘンアト					142	シフルトリン1	93.52		96.15	
50	イソロソ	67.76		60.00		143	シフルトリン2	87.58		86.25	
51	イソロソ	54.20		49.80		144	シフルトリン3	92.31		90.98	
52	イソロソ	89.65		88.88		145	シフルトリン4	91.50		84.52	
53	イマサメタヘンソメチルエステル	97.92		95.73		146	シフルフェニカソ	97.09		94.28	
54	イマザリル	88.39		83.96		147	シフルヘンソ	79.38		81.60	
55	イマソナソール	48.27		61.82		148	シフルロナソール	93.82		94.28	
56	イマソナソール脱ヘンソル体	65.72		65.89		149	シフルニル	82.19		83.55	
57	イソキサカルブ	97.88		90.38		150	シフルメトリン1	91.87		95.11	
58	ウニコナソールP	92.59		91.64		151	シフルメトリン2	90.03		97.99	
59	エソロカルブ	84.46		79.29		152	シフルメトリン3	92.82		93.60	
60	エソオフェンカルブ	40.32		44.90		153	シフルメトリン4	82.36		79.98	
61	エチオン	96.19		94.33		154	シマソ	91.64		83.84	
62	エチクロエート	64.62		69.30		155	シメタトリン	89.16		85.56	
63	エチプロール	98.15		96.91		156	シメチン	84.18		79.18	
64	エチフェンホス	71.46		63.45		157	シメチルピホス	84.49		79.03	
65	エトキサソール	88.77		91.17		158	シメチナソ	91.51		89.35	
66	エトフェンロックス	81.68		82.80		159	シメエート	87.37		86.87	
67	エトメエート	91.74		95.43		160	シメトルフ1	83.99		82.00	
68	エトロホス	83.88		79.91		161	シメトルフ2	60.22		56.25	
69	エトソナソ	87.81		88.45		162	シメトリン	85.79		84.63	
70	エトソアソ	59.20		55.44		163	シメヘレート	86.22		87.28	
71	エトドホス	87.85		84.44		164	シラフルオフェン	82.39		81.27	
72	エンドスルファンソルフェート	89.23		80.57		165	シメチリソ	84.14		85.43	
73	エンドリソ	85.34		84.76		166	スルホロホス	88.68		89.20	
74	オキサソアソ	92.81		88.81		167	セクメソ	99.10		86.64	
75	オキサソキソ	88.22		82.53		168	ターハシル	79.57		82.56	
76	オキサソクロホソ	253.91		319.66		169	タイアソ	86.43		89.79	
77	オキサミル	59.79		41.53		170	タイロソ	66.27			
78	オキサフルオフェン	96.75		99.69		171	チアヘンソ	13.78		17.52	
79	オルトフェニルフェノール					172	チアトキサム	3.75			
80	カスサホス	84.66		81.08		173	チアヘンカルブ	83.42		85.65	
81	カフエントロール	75.40		68.51		174	チオメソ	72.70		72.96	
82	カブタホール					175	チフルサミド	95.39		95.68	
83	カルハリル1	68.35		86.97		176	チフルトリン	86.92		24.54	
84	カルハリル2	46.85		50.41		177	チクナソ	70.56		70.86	
85	カルフェントラソエチル	97.19		95.45		178	チクアラソ	16.83		19.79	
86	カルプロハミド	93.19		86.09		179	テメトリソ	87.01		88.45	
87	カルヘタミド					180	テトラクロルピホス	80.07		70.64	
88	カルホキソ	67.18		68.63		181	テトラコナソ	90.17		95.53	
89	カルホスルファン	85.77		85.78		182	テトラソ	89.76		87.71	
90	カルホソ	59.34		47.63		183	テトラメトリン1	93.47		86.85	
91	キサホス	88.28		88.60		184	テトラメトリン2	89.83		87.65	
92	キノキサチオン	85.89		83.33		185	テニルクロール	92.37		89.11	
93	キノラミン	69.55		98.63		186	テフコナソ	94.59		97.77	

*ガイドラインにおける真度及び精度の目標値を満たすものをとした。

表1-2 妥当性評価試験結果

No.	農薬成分名	50ng/g		10ng/g		No.	農薬成分名	50ng/g		10ng/g	
		平均回収率(%)	判定	平均回収率(%)	判定			平均回収率(%)	判定	平均回収率(%)	判定
187	デフベンピラト	89.34		87.06		280	フルシリネート1	95.94		95.69	
188	テフルドリソ	84.34		81.77		281	フルシリネート2	98.61		96.28	
189	テフルドリソ1	92.32		100.62		282	フルシラゾール	97.15		91.56	
190	テフルドリソ2	88.52				283	フルトラニル	95.72		90.95	
191	テフルカルブ	88.03		85.43		284	フルトリアホール	92.14		92.77	
192	テフルドリソ	90.51		87.68		285	フルハリネート1	79.10		89.29	
193	テフルホス	82.21		83.00		286	フルハリネート2	89.00		93.24	
194	テフルホス	89.19		85.75		287	フルミオキサジソ	96.07		99.67	
195	テフルホス	86.14		64.49		288	フルミクロラックヘンチル	89.64		90.35	
196	トリアジメノール1	81.49		94.23		289	フレチラコロール	91.64		95.41	
197	トリアジメノール2	71.06		29.98		290	フロキサソ	90.65		96.90	
198	トリアジメノール	91.31		88.73		291	フロシミン	94.06		86.64	
199	トリアジホス	95.70		91.12		292	フロチオホス	84.74		79.14	
200	トリアレート	72.16		71.70		293	フロハクロール	86.67		80.47	
201	トリアクソール	35.09		32.78		294	フロハニル	71.25		69.98	
202	トリアホス	79.42		77.13		295	フロハホス	79.88		81.17	
203	トリアルソール	88.02		96.94		296	フロハモカルブ	48.54		55.05	
204	トリアルソール代謝物	91.51		89.18		297	フロハルキッド1	102.94		111.57	
205	トリアルソール	81.85		85.93		298	フロハルキッド2	100.23		110.00	
206	トリアロキシストロビン	97.31		97.39		299	フロヒコナゾール1	100.34		103.87	
207	トリアロキシメチル	87.80		87.83		300	フロヒコナゾール2	96.70		98.60	
208	トリアフェニラト	77.52		87.25		301	フロヒサミド	89.80		89.32	
209	ナフロアミド	88.72		87.21		302	フロアラム	84.17		80.08	
210	ナフロアミド	94.92		89.10		303	フロアラム	81.45		75.55	
211	ニトリン	70.56		65.69		304	フロアネチゾール1	84.74		81.13	
212	ニトリンイソプロピル	75.70		84.06		305	フロアネチゾール2	71.34		71.64	
213	フルトラニル	82.64		83.76		306	フロホキスル	65.43		63.69	
214	フルトラニル	89.33		93.54		307	フロマシ	76.00		80.56	
215	フルトラニル	67.10		54.81		308	フロマシ	49.44			
216	フルトラニル	95.55		95.82		309	フロマシ	72.04		65.83	
217	フルトラニル	82.57		85.92		310	フロマシ	87.66		89.90	
218	フルトラニル	86.80		92.63		311	フロマシ	89.57		89.71	
219	フルトラニル	86.58		92.31		312	フロマシ	86.54		87.32	
220	フルトラニル	72.12		73.94		313	フロマシ	88.58		87.29	
221	フルトラニル	69.76		62.14		314	フロマシ	93.20		87.38	
222	フルトラニル	85.63		83.40		315	フロマシ	85.42		81.65	
223	フルトラニル	86.15		82.02		316	フロマシ	83.72		80.41	
224	フルトラニル	93.49		92.77		317	フルマシ	39.09		40.25	
225	フルトラニル	95.77		93.41		318	フルマシ	94.50		95.56	
226	フルトラニル	88.01		84.19		319	フルマシ	69.29		67.52	
227	フルトラニル	89.65		93.57		320	フルマシ	82.13		81.47	
228	フルトラニル	96.90		93.43		321	フルマシ	95.47		91.01	
229	フルトラニル	97.27		93.25		322	フルマシ	88.23		89.26	
230	フルトラニル	86.69		86.11		323	フルマシ	71.63		68.54	
231	フルトラニル	86.04		99.05		324	フルマシ	86.51		81.50	
232	フルトラニル	86.55		89.68		325	フルマシ	57.32			
233	フルトラニル	87.60		88.73		326	フルマシ	86.88		83.48	
234	フルトラニル	88.94		88.72		327	フルマシ	88.17		92.59	
235	フルトラニル	86.93		82.26		328	フルマシ	62.21		67.29	
236	フルトラニル	84.68		79.12		329	フルマシ	74.52		79.39	
237	フルトラニル	80.41		84.34		330	フルマシ	95.43		97.84	
238	フルトラニル	97.73		95.45		331	フルマシ	81.53		83.48	
239	フルトラニル	99.73		94.30		332	フルマシ	94.26		88.20	
240	フルトラニル	89.12		87.19		333	フルマシ	94.31		90.75	
241	フルトラニル	84.80		83.82		334	フルマシ	79.52		83.92	
242	フルトラニル	84.17		82.25		335	フルマシ	73.54		69.88	
243	フルトラニル	90.12		87.76		336	フルマシ	73.27		68.12	
244	フルトラニル	56.24		61.17		337	フルマシ	85.75		79.68	
245	フルトラニル	89.12		92.41		338	フルマシ	90.90		87.93	
246	フルトラニル	89.26		86.12		339	フルマシ	84.14		82.62	
247	フルトラニル	88.83		90.34		340	フルマシ	66.32		66.56	
248	フルトラニル	93.78		94.59		341	フルマシ	78.89		73.84	
249	フルトラニル	93.38		88.85		342	フルマシ	76.41		67.30	
250	フルトラニル	93.60		90.18		343	フルマシ	89.91		88.68	
251	フルトラニル	94.47		92.13		344	フルマシ	92.46		78.87	
252	フルトラニル	87.70		87.55		345	フルマシ	40.87		51.75	
253	フルトラニル	87.83		88.63		346	フルマシ	79.81		75.95	
254	フルトラニル	85.91		82.28		347	フルマシ	90.82		37.88	
255	フルトラニル	84.07		73.70		348	フルマシ	25.13		26.23	
256	フルトラニル	83.93		94.26		349	フルマシ	93.13		89.70	
257	フルトラニル	79.43		69.92		350	フルマシ	69.11		82.54	
258	フルトラニル	84.88		84.38		351	フルマシ	89.59		90.90	
259	フルトラニル	101.59		104.63		352	フルマシ	79.64		69.57	
260	フルトラニル	87.69		86.00		353	フルマシ	84.70		78.00	
261	フルトラニル	90.53		92.16		354	フルマシ	60.49		61.55	
262	フルトラニル	85.75		84.81		355	フルマシ	93.06		89.73	
263	フルトラニル	85.20		80.28		356	フルマシ	97.49		93.10	
264	フルトラニル	88.16		92.53		357	フルマシ	94.20		92.01	
265	フルトラニル	92.25		90.66		358	フルマシ	91.24		90.88	
266	フルトラニル	38.63		39.13		359	フルマシ	85.45		85.13	
267	フルトラニル	82.59		82.75		360	フルマシ	71.93		70.14	
268	フルトラニル	91.18		88.79		361	フルマシ	83.80		83.90	
269	フルトラニル	95.35		101.05		362	フルマシ	94.48		81.13	
270	フルトラニル	48.98		48.93		363	フルマシ	88.46		82.22	
271	フルトラニル	93.59		93.59		364	フルマシ	89.35		86.60	
272	フルトラニル	93.68		91.54		365	フルマシ	70.66		64.23	
273	フルトラニル	95.43		92.20		366	フルマシ	68.36		63.51	
274	フルトラニル	92.14		87.58		367	フルマシ	87.58		77.03	
275	フルトラニル	90.60		88.35		368	フルマシ	90.76		95.03	
276	フルトラニル	96.94		92.04		369	フルマシ	88.09		85.45	
277	フルトラニル	35.32		32.97		370	フルマシ	48.59		51.42	
278	フルトラニル					371	フルマシ				
279	フルトラニル										

*ガイドラインにおける真度及び精度の目標値を満たすものとした。