神奈川県
衛生研究所

CODEN:KEKHB 8
ISSN:0303-0350

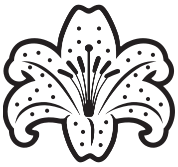
# 神奈川県衛生研究所研究報告

第44号（平成26年9月）

## 目　　次



神　奈　川　県　衛　生　研　究　所
〒253-0087　茅ヶ崎市下町屋１－３－１



県の花：山ゆり




**神奈川県衛生研究所研究報告第44号**

平成26年9月発行

編　集　神奈川県衛生研究所

発　行　〒253-0087　茅ヶ崎市下町屋1-3-1

TEL　0467-83-4400

印　刷　株式会社　シーケン

〒244-0842　横浜市栄区飯島町1439

TEL　045-893-5171㈹

神奈川県衛生研究所研究報告　No. 44 (2014)
Bull. Kanagawa Ins. of P.H.

原著

# 神奈川県における福島第一原子力発電所事故後の環境放射能レベルの推移

桑原千雅子，勝部貢治，飯島育代，佐藤　学，
林　孝子，酒井康宏*，上村　仁

# Change of environmental radioactivity in the Kanagawa Prefecture after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident

Chikako KUWAHARA, Kouji KATSUBE, Ikuyo IIJIMA, Manabu SATO,
Takako HAYASHI, Yasuhiro SAKAI and Hitoshi UEMURA

Synopsis

Chikako KUWAHARA, Kouji KATSUBE, Ikuyo IIJIMA, Manabu SATO, Takako HAYASHI, Yasuhiro SAKAI and Hitoshi UEMURA (Chemistry Division, Kanagawa Prefectural Institute of Public Health, 1-3-1 Shimomachiya, Chigasaki-shi, Kanagawa 253-0087, Japan). Change of environmental radioactivity in the Kanagawa Prefecture after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident

Kanagawa Prefecture has been monitoring environmental radioactivity since 1961. Results have indicated that radioactivity levels in environmental samples collected in the Kanagawa Prefecture increased following the nuclear weapons tests in the atmosphere in the 1960s and the Chernobyl NPP disaster in 1986.

Radiation dose rate and the concentration of radionuclides in environmental samples were further heightened after the Fukushima Dai-ichi NPP accident, which occurred on March 11, 2011. The radiation dose rate was detected as 0.18 and 0.15 $\mu$Gy/h at 13:00 on March 15 and at 8:00 on March 16, respectively. The dose rate then decreased rapidly in Chigasaki, Kanagawa Prefecture. However, the radiation dose rate again increased, reaching 0.11 $\mu$Gy/h on March 22, owing to rainfall on March 21. Artificial radionuclides such as $^{131}$I, $^{132}$I, $^{133}$I, $^{134}$Cs, $^{137}$Cs, and $^{99m}$Tc derived from the accident were detected in airborne particulates collected at 9:00 on March 15 and dry fallout on March 16 in Chigasaki, Kanagawa. The highest concentration of $^{131}$I and radioactive Cs in the airborne particles was recorded on March 16 and the concentrations then rapidly decreased. Only $^{134}$Cs and/or $^{137}$Cs were detected in the samples collected after August 2011.

The characteristic of environmental radioactivity in Kanagawa after the Fukushima Dai-ichi NPP accident was low amounts of $^{90}$Sr deposition and a large amount of $^{137}$Cs depositions in comparison to the results of the nuclear weapons tests and the Chernobyl accident.

Key Words : fallout, airborne particulate, Fukushima dai-ichi npp accident, radioactive cesium, radioactive iodine

## 緒言

神奈川県衛生研究所（以下，当所）では，1961年，米ソによる大気圏内核実験が再開されたことから，その影響を把握するため，同年より科学技術庁（現文部科学省）の委託を受け，放射能調査を開始した．当時，県内には４基の研究用原子炉が設置され，稼動していた．また放射性同位元素を使用する事業所や病院なども多いことから，これらの施設による環境放射能汚染が危惧され，1962年からは県独自の放射能調査も開始した．

これまでに1960年代からの大気圏内核実験，1986年

神奈川県衛生研究所　理化学部
〒253-0087　茅ヶ崎市下町屋1-3-1
chika_kuwahara.u79v@pref.kanagawa.jp
*現　地域調査部

チェルノブイリ原発事故等に対応し，神奈川県における放射能影響調査を実施してきた[1-4]．

2011年３月11日に発生した東日本大震災に伴う東京電力㈱福島第一原子力発電所（以下，福島第一原発）事故においても，当所では，翌12日から文部科学省よりモニタリング強化等の協力要請を受け，環境放射能調査を開始した．これらの調査結果からは，$^{131}$I, $^{134}$Cs, $^{137}$Csの他に，$^{132}$I,$^{133}$I,$^{129}$Te,$^{132}$Te,$^{99}$Mo,$^{99m}$Tc,$^{140}$La等，様々な人工放射性核種を確認することとなった[5-7]．

本報では，神奈川県における福島第一原発事故による影響を把握するために，空間放射線量率の測定結果と事故後３年間に実施した大気浮遊じんならびに定時・月間降下物のガンマ線放出核種分析結果についてまとめた．また，これまでの大気圏内核実験やチェルノブイリ原発事故における神奈川県への影響との違いについても検討したので報告する．

## 方　法

試料の採取,分析および測定は，文部科学省「環境放射能水準調査委託実施計画書」[8)]ならびに文部科学省放射能測定法シリーズ[9,10)]に準拠した．

**１．空間放射線量率**　当所（茅ヶ崎市下町屋）構内の地上4.9m高さに設置したモニタリングポストのNaIシンチレーション検出器（アロカMAR-22）により連続測定した．

**２．大気浮遊じん**　ハイボリウムエアサンプラー（柴田科学HV-1000F）を用い，2011年３月14日より12月28日までは毎日午前９時から24時間，流速1,050 l/minで，ろ紙（東洋濾紙㈱GB-100R）上にろ過捕集した．ろ紙を直径 47㎜ の円形に型抜きし，重ね合わせて試料とした．2012年１月からは週１回原則月曜日にろ紙（東洋濾紙㈱HE-40T）を設置し24時間，集じんした．また，３か月試料は，上記にて採取した試料を各月２～３試料選び，計７～８回分の打ち抜きろ紙をプラスチック容器（以下，U-8容器）に充填し試料とした．

**３．定時降下物**　緊急時モニタリングとして，ステンレス製雨水採取器（面積：490cm$^2$）に設置した容器を毎日９時に交換し，24時間の降下物を採取した．雨や霧，雪等で地表に降下したものを湿性降下物とし，湿性降下物がない場合は，採取器をイオン交換水で洗浄し，乾性降下物とした．降下物が80ml以下の時は全量をU-8容器に封入し試料とした．80ml以上のときは，混合し均一にした試料全容量を計り，そこから80mlを分取し供試量とした．

**４．月間降下物**　ステンレス製水盤（面積：0.5m$^2$）により湿性および乾性降下物を１か月間採取した．ろ紙（東洋濾紙㈱ No.2）を通し，残さをろ紙とともに450℃で灰化した．ろ液は穏やかに加熱濃縮し，灰化した残さと合わせてU-8容器に入れ赤外線ランプ下で乾燥させ，試料とした．

**５．測定方法**　各調整試料は，ゲルマニウム半導体検出器 (PGT社製 IGC40200,OXFORD社製CNVDS30-35195，CANBERRA社製GC3520）により，γ線核種分析を行った．測定時間は，福島第一原発事故後の緊急

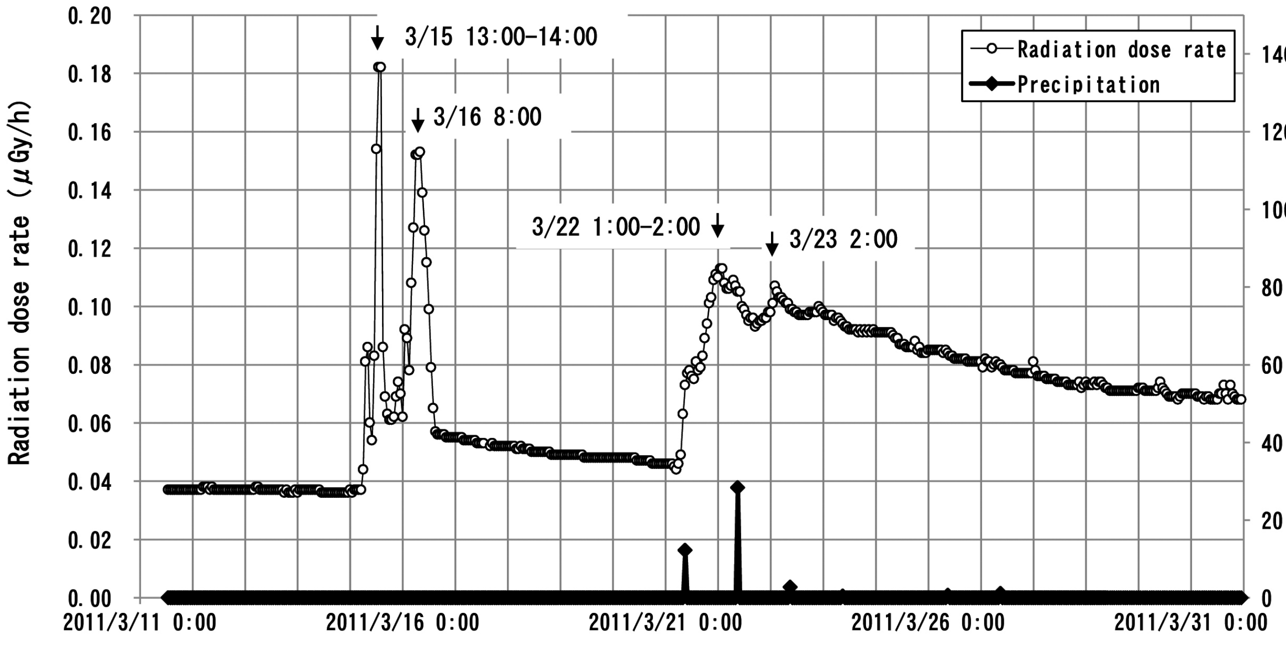



Fig. 1　Radiation dose rate detected at the Kanagawa Prefectural Institute of Public Health in Chigasaki, Kanagawa during the period of March 11-31, 2011.

時調査（2011年３月～12月の定時降下物及び大気浮遊じん）では15,000秒，月間降下物及び2012年以降の試料については60,000～100,000秒とした．

なお，1963年から1980年までの$^{137}$Csならびに全ての$^{90}$Srの定量は，当所で全ベータ放射能測定あるいは$\gamma$線核種分析後，公益財団法人日本分析センターに試料を送付し，同センターが実施した[11]．

## 結果および考察

**１．空間放射線量率**　2011年３月12日夕刻に受けた文部科学省からのモニタリング強化等の協力要請により，モニタリングポストによる空間放射線量率測定は24時間の監視強化体制となった．福島第一原発より南南西に約250km離れた神奈川県への事故の影響は，15日午前４時40分頃，川崎市浮島に設置したモニタリングポストで最初に検知された[12]．当所では，Fig.1に示すように同日午前５時30分頃より空間放射線量率が上昇し始め，13時から14時にかけて0.182$\mu$Gy/hに達し，これが最大のピークとなった．その後，急激に線量率は低下したが，21時から再び上昇し始め，16日８時の0.153$\mu$Gy/hが２番目のピークとなった．その後は穏やかに低下しつつあったが，21日午前からの降雨により線量率は再び上昇し，22日１時と２時に0.113$\mu$Gy/h，23日２時に0.107$\mu$Gy/hのピークを観測した．これ以降は，降雨の際に若干上昇したが，徐々に低下した．

**２．大気浮遊じん**　緊急時モニタリング開始当初の３月15日に採取した試料（捕集期間：2011年３月14日９時～３月15日９時の24時間）より，調査期間中最多の11種類の人工放射性核種（$^{131}$I,$^{132}$I,$^{133}$I, $^{134}$Cs,$^{136}$Cs,$^{137}$Cs,$^{129}$Te, $^{129m}$Te,$^{132}$Te,$^{99}$Mo, $^{99m}$Tc）を検出した[6]．この試料は，空間放射線量率の上昇時間から考えると実質的には15日午前５時30分から９時までの３時間半の間に集じんした放射性核種であると考えられ，$^{131}$I濃度は２番目に高い値であった（Fig.2）．放射能濃度の最大値は，３月16日に採取した試料（$^{131}$I 40Bq/m$^3$,$^{134}$Cs 11Bq/m$^3$,$^{137}$Cs 10Bq/m$^3$）であった．Fig.1の３月15－16日にかけての空間放射線量率の上昇は，Fig.2に示す同時期に採取した大気浮遊じん中の$^{131}$I,$^{134}$Cs,$^{137}$Cs等の濃度上昇とも一致し，これらの放射性核種を含むプルーム（雲）が福島第一原発から北風によって運ばれ，通過したことによるものと考えられた．また，通過後の空間放射線量率の急激な低下は，東京都立産業技術研究センターの大気浮遊じんの結果から推測すると大気中の放射能濃度の低下[13]と乾性沈着した半減期の短い$^{129}$Te,$^{132}$Te,$^{131}$I,$^{132}$I,$^{133}$I等が放射崩壊したことによるものと考えられた．また，当所の大気浮遊じんの結果（Fig.2）は，大原ら[14]が報告した筑波で測定された$^{131}$Iと$^{137}$Csの大気濃度の時間変化の結果と非常に近似していた．事故直後から４月上旬までの$^{134}$Cs, $^{137}$Cs濃度の時間変動は$^{131}$Iに比べて大きく，またその濃度レベルは$^{131}$Iに比べると低かった．４月中旬以降になると$^{131}$I, $^{134}$Cs, $^{137}$Csの３核種の時間変動や濃度レベルの差が認められなくなった．このような違いが生じる原因について，大原ら[14]は，福島第一原発内の放出

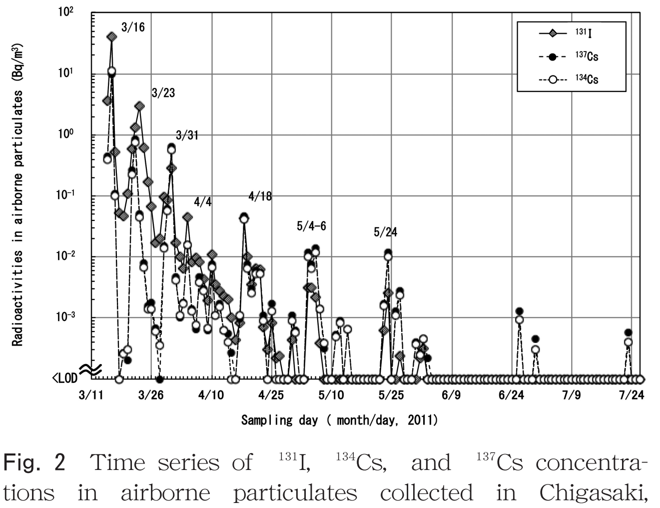



Fig. 2　Time series of $^{131}$I, $^{134}$Cs, and $^{137}$Cs concentrations in airborne particulates collected in Chigasaki, Kanagawa all through March 15 to July 26, 2011.

Table 1　$^{131}$I, $^{137}$Cs and $^{134}$Cs concentrations in airborne particulates and precipitation in Chigasaki, Kanagawa in 2011.

| Number | Sampling date | Precipitation mm | Most frequent wind direction* | $^{131}$I | $^{137}$Cs | $^{134}$Cs |
|---|---|---|---|---|---|---|
| | | | | mBq/m$^3$ | | |
| 11AP 0252 | 5/1 | 0.02 | SSW | <LOD | 0.63 | 0.58 |
| 11AP 0255 | 5/2 | 1.8 | SW | <LOD | <LOD | <LOD |
| 11AP 0259 | 5/3 | - | NNW | <LOD | <LOD | <LOD |
| 11AP 0262 | 5/4 | 0.6 | NNE | 3.1 | 12 | 10 |
| 11AP 0265 | 5/5 | - | SSW | 3.1 | 7.6 | 6.5 |
| 11AP 0268 | 5/6 | - | N | 2.2 | 14 | 12 |
| 11AP 0271 | 5/7 | 2.5 | NNE | 0.39 | 1.4 | 1.4 |
| 11AP 0274 | 5/8 | 0.4 | N | <LOD | 0.32 | 0.39 |
| 11AP 0277 | 5/9 | - | NNE | <LOD | <LOD | <LOD |
| 11AP 0287 | 5/10 | - | SSW | <LOD | <LOD | <LOD |
| 11AP 0291 | 5/11 | 43.4 | WSW | <LOD | 0.53 | 0.50 |
| 11AP 0305 | 5/12 | 47.0 | NE | <LOD | 0.89 | 0.82 |
| 11AP 0310 | 5/13 | 14.4 | N | <LOD | <LOD | <LOD |
| 11AP 0314 | 5/14 | - | SSE | <LOD | 0.66 | 0.65 |
| 11AP 0317 | 5/15 | - | SSW | <LOD | <LOD | <LOD |
| 11AP 0320 | 5/16 | - | SSW | <LOD | <LOD | <LOD |
| 11AP 0330 | 5/17 | - | SSW | <LOD | <LOD | <LOD |
| 11AP 0334 | 5/18 | 6.3 | SSW | <LOD | <LOD | <LOD |
| 11AP 0337 | 5/19 | - | SSW | <LOD | <LOD | <LOD |
| 11AP 0351 | 5/20 | - | S | <LOD | <LOD | <LOD |
| 11AP 0354 | 5/21 | - | SSW | <LOD | <LOD | <LOD |
| 11AP 0357 | 5/22 | - | SSW | <LOD | <LOD | <LOD |
| 11AP 0360 | 5/23 | 6.4 | SSW | 0.63 | 1.7 | 1.6 |
| 11AP 0373 | 5/24 | 9.8 | NNE | 2.6 | 12 | 9.9 |
| 11AP 0377 | 5/25 | 1.4 | NNE | <LOD | <LOD | <LOD |
| 11AP 0381 | 5/26 | - | S | <LOD | 1.3 | 1.1 |
| 11AP 0387 | 5/27 | 1.0 | N | 0.24 | 2.8 | 2.4 |
| 11AP 0390 | 5/28 | 17.3 | N | <LOD | <LOD | <LOD |
| 11AP 0393 | 5/29 | 31.4 | N | <LOD | <LOD | <LOD |
| 11AP 0396 | 5/30 | 44.8 | N | <LOD | <LOD | <LOD |
| 11AP 0404 | 5/31 | - | NNE | <LOD | 0.40 | 0.37 |

＊ Most frequent wind directions were recorded by the Automated Meteorological Data Acquisition System observed in Tujido, Kanagawa.

源の違いや$^{131}$Iと$^{137}$Csの物性/沈着過程の違いを反映している可能性が考えられるが，さらに検討すべき課題であると報告している．４月19日以降は，３核種以外の人工放射性核種は不検出となった[6]．さらに５月に入ると$^{131}$I，$^{134}$Cs，$^{137}$Csも不検出となる日が増えたが，Table1に示すとおり，雨の降り始めや北北東，北東からの風が多く観測された日にごく微量検出されていた．一方，雨が降り続いた日や南南西からの風が多く観測された日は不検出となる傾向が認められた．しかし，Fig.2に示すとおり，$^{131}$I は６月２日，$^{134}$Cs，$^{137}$Csは７月23日を最後に不検出となった．

また，事故より２か月以上が経過した５月24日に採取した試料より半減期8.04日の$^{131}$Iが若干高め（2.6 mBq/m$^3$）に検出された（Table1）．時間を置いて同試料をさらに３回測定したところ，Fig.3に示すように４回の実測値は，$^{131}$Iの減衰曲線に良く一致したため，核種同定ならびに定量結果に間違いがないことを確認した．当時，毎日の調査試料から人工放射性核種の不検出が続くようになっていたことから，事故は収束しつつあると考えていたが，この時点では放出が止まっていないことを確認した．

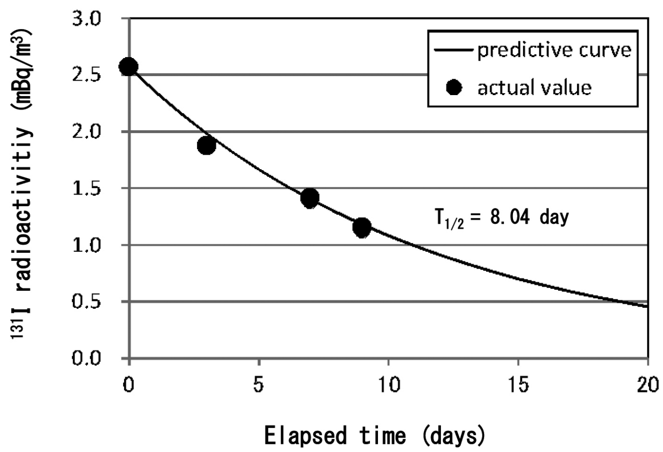



**Fig. 3**　Decay curve of $^{131}$I radioactivity in airborne particulates collected in Chigasaki, Kanagawa for the period of May 23-24, 2011.

**３．降下物**　定時降下物は，３月11日（金）９時から翌週14日（月）９時までと翌15日に採取した乾性降下物からは，放射性核種が検出されなかった．15日に採取した大気浮遊じんからは，事故由来の放射性核種が検出されていたことから，大気中には存在していたものの，この間における地表面への沈着は限定的だったと推測される．16日に採取した乾性降下物より初めて事故由来の人工放射性核種７種類（$^{131}$I,$^{132}$I,$^{133}$I,$^{132}$Te,$^{134}$Cs,$^{137}$Cs,$^{99m}$Tc）を検出した[5,6]．定時降下物の測定結果（Fig.4）は空間放射線量率の観測値（Fig.1）と相関があり，16

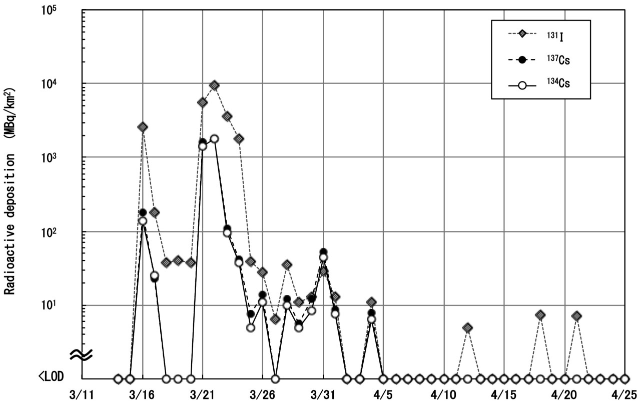



**Fig. 4**　Daily $^{131}$I, $^{134}$Cs, and $^{137}$Cs depositions in Chigasaki, Kanagawa during March 11-April 25, 2011.

日以降，放射能濃度は減少したが，21日早朝からの低気圧通過に伴う降雨により大気中の放射性核種が降下したため，21日から24日までに採取された定時降下物からは高い放射能濃度が検出された．最大値は22日に採取した試料で，$^{131}$I 9500 MBq/km$^2$，$^{134}$Cs 1800 MBq/km$^2$，$^{137}$Cs 1800 MBq/km$^2$となった．21日からの空間放射線量率の上昇は，大原らに[14]よると北風によって輸送された放射性プルームの通過と低気圧の通過に伴う雨の降り始めが重なったことに起因すると報告されている．このときの降雨が，神奈川県を含め，関東地方の多くの地域に大量の放射性核種を地表に降下させ，長期にわたる空間放射線量率の上昇を招き，また多くのホットスポットが出来た原因となったと推察される．その後，降下量は急激に減少し，$^{134}$Cs，$^{137}$Csが４月４日，$^{131}$Iは４月21日の検出を最後に，定時降下物中の放射性核種は，大気浮遊じんより３か月以上早く不検出となった．

４月22日以降，定時降下物からは不検出が続いていたが，現状の放射能レベルをより低濃度まで把握するため，2011年10月からは，原則１週間分の定時降下物全量を合わせて濃縮し，１試料として測定した．その結果

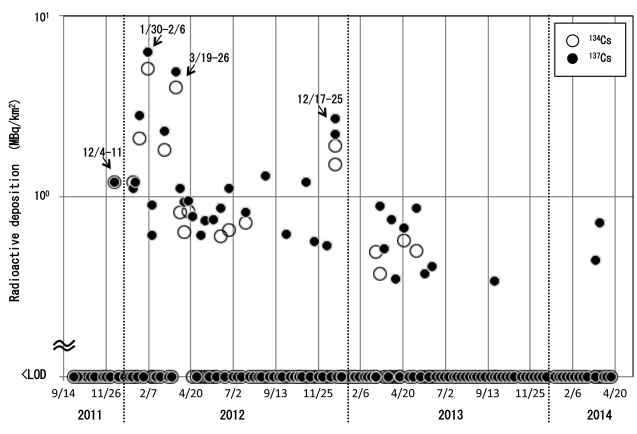



**Fig. 5**　Weekly $^{134}$Cs and $^{137}$Cs depositions in Chigasaki, Kanagawa throughout October 2011 to March 2014.

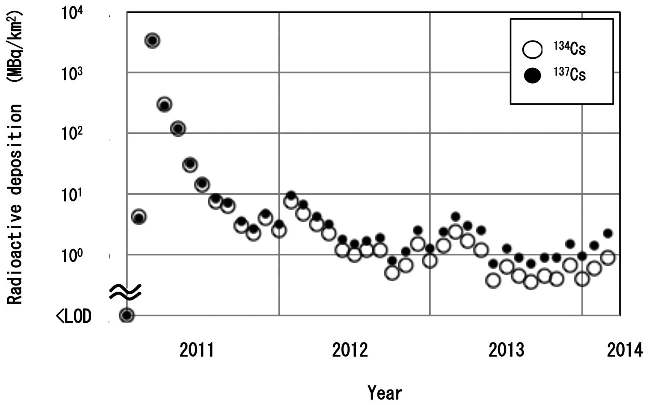



Fig. 6 Monthly $^{134}Cs$ and $^{137}Cs$ deposition in Chigasaki, from January 2011 to March 2014.

をFig.5に示す．調査開始当初は不検出が続いていたが，冬季から春季にかけて（2011年12月４－11日，2012年１月30日－２月６日，３月19－26日，12月17－25日）比較的高い$^{134}Cs$，$^{137}Cs$降下量が認められた．その後，夏季から秋季では降下量が減少あるいは不検出となり季節変動が認められた．この傾向は，2011年からの月間降下物における$^{134}Cs$，$^{137}Cs$降下量結果からも顕著に認められた（Fig.6）.2011，2012，2013年12月から翌年３月にかけては，2012，2013年６月から11月までに比べると上昇傾向が認められた．これは，冬季は大気が乾燥し，さらに風向きも大陸からの風に変わるため，一度地表に降下した放射性核種が再浮遊するため上昇したと考えられる．Fig.6中の冬季から春季における$^{134}Cs$，$^{137}Cs$の月間降下量を，神奈川県で初めて事故の影響が認められた日（2011年３月15日）に減衰補正すると，$^{134}Cs/^{137}Cs$の放射能比は約1.0となった．福島第一原発より大気中に放出された$^{134}Cs$と$^{137}Cs$量の試算値から算出される放射能比$^{134}Cs/^{137}Cs$は，ほぼ１という報告[15]と一致したことから，冬季から春季における$^{134}Cs$，$^{137}Cs$降下量の上昇は，福島第一原発事故時に降下した$^{134}Cs$，$^{137}Cs$が沈着した土壌粒子の再浮遊によると考えられる．

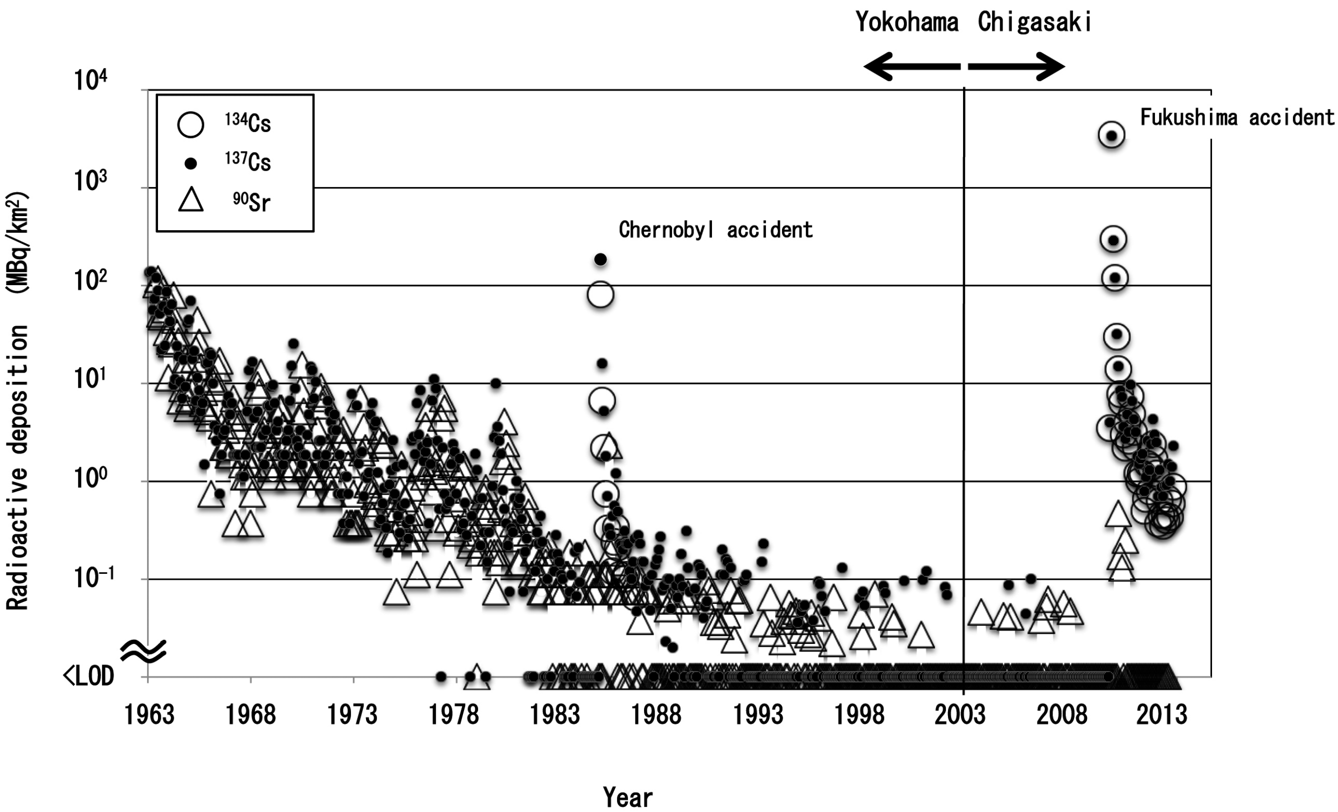



Fig. 7 Monthly $^{134}Cs$, $^{137}Cs$, and $^{90}Sr$ deposition at the Kanagawa Prefectural Institute of Public Health from May 1963 to March 2014. The results shown for $^{137}Cs$ during 1963 to 1974 and all $^{90}Sr$ data was analyzed and determined by the Japan Chemical Analysis Center[11] . The monthly deposition was collected in Yokohama until May 2003, and after which collections were performed in Chigasaki.

**４．1960年代からの月間降下量の推移**　1963年５月から2014年３月までの$^{134}$Cs，$^{137}$Cs，$^{90}$Srの月間降下量をFig.7に示す．観測当初は1963年６月の$^{137}$Cs降下量139 MBq/km$^{2}$が最も高かった．その後，大気圏内核実験の影響によるピークは認められるものの，経時的に減少傾向を示した．1980年を最後に大気圏内核実験が中止されたため，$^{137}$Cs降下量は急激に減少し，定量限界未満(<LOD：Limit of detection）～0.44 Bq/m$^{2}$で推移した．しかし，1986年４月のチェルノブイリ原発事故により，５月にそれまでの最大の降下量（$^{134}$Cs 81 MBq/km$^{2}$，$^{137}$Cs 185 MBq/km$^{2}$）となり，$^{134}$Cs，$^{137}$Csの他に事故由来の放射性核種が10核種（$^{136}$Cs,$^{141}$Ce,$^{144}$Ce,$^{103}$Ru,$^{106}$Ru,$^{95}$Zr,$^{95}$Nb,$^{125}$Sb,$^{129m}$Te,$^{110m}$Ag）検出された[16]．その後，急激に減少し，春季に微量$^{137}$Csが検出されることはあったが，2007年４月の$^{137}$Cs 0.1 MBq/km$^{2}$を最後に不検出となった．しかし，2011年３月の福島第一原発事故により，３月の試料が測定開始以来，最大の降下量（$^{131}$I 10000 MBq/km$^{2}$,$^{134}$Cs 3500 MBq/km$^{2}$,$^{137}$Cs 3400 MBq/km$^{2}$）を示した．チェルノブイリ原発事故同様，翌月の４月には降下量は急激に減少し，以後，徐々に減少したが，７月の試料から，事故後従前には検出されていなかった$^{141}$Ce，$^{144}$Ceが微量検出された[5,6]．両核種とも，事故当初より福島第一原発から大気中に放出された放射性核種として推計値が報告されている[15]が，両核種のγ線のエネルギーは$^{141}$Ce 145keV，$^{144}$Ce 134keVと低いことから，事故直後は，他の高濃度の放射性核種の影響で，両者のγ線のピークが検出できなかったものと思われた．時間の経過とともに，他の半減期の短い放射性核種の減衰等により試料中の全放射能濃度が低下し，ベースラインに埋もれていた両核種のピークが検知可能になったものと思われた．なお，核種同定は，ピークエネルギーの一致の他に，時間を置いて同試料を２回測定し，$^{141}$Ce,$^{144}$Ceの半減期，それぞれ32.508日，284.91日で減衰することによっても確認した．2011年８月以降は$^{134}$Cs，$^{137}$Cs以外の核種は不検出となった．$^{134}$Cs，$^{137}$Csは漸減傾向にあるが，冬季に若干上昇し，６月以降減少する傾向を繰り返しながら全体的に低下しつつあった．

$^{90}$Sr降下量は，大気圏内核実験の影響が強く認められる1960年代から1985年までは，$^{137}$Cs降下量と良く一致していたが，チェルノブイリ事故後は，降下量に差が見られるようになった．1996年以降は不検出が多くなり，2008年11月を最後に不検出となっていた（Fig.7）．しかし，福島第一原発事故後，2011年３月～５月と７月の月間降下物から微量（0.13－0.47MBq/km$^{2}$）検出され，それ以降は不検出であったことから先の期間に検出された$^{90}$Srは福島第一原発事故由来であると推定している．また，文部科学省は，2011年３月もしくは4月に秋田県，岩手県，茨城県，神奈川県，群馬県，埼玉県，東

Table 2　$^{90}$Sr, $^{137}$Cs, and $^{134}$Cs concentrations in addition to the $^{90}$Sr/$^{137}$Cs and $^{134}$Cs/$^{137}$Cs ratio in monthly deposition and airborne particulates at the Kanagawa Prefectural Institute of Public Health.

| Sample name | | Sampling period | $^{90}$Sr | $^{137}$Cs | $^{134}$Cs | $^{90}$Sr/$^{137}$Cs | $^{134}$Cs/$^{137}$Cs |
|---|---|---|---|---|---|---|---|
| | | | MBq/km$^{2}$ | | | | |
| Monthly deposition | Fukushima Daiichi NPP accident | 2011/3 | 0.47 | 3400 | 3500 | 1/7200 | 1/0.97 |
| | | 2011/4 | 0.17 | 290 | 300 | 1/1700 | 1/0.97 |
| | | 2011/5 | 0.13 | 120 | 120 | 1/920 | 1/1 |
| | | 2011/6 | <LOD | 32 | 30 | － | 1/1.1 |
| | | 2011/7 | 0.25 | 15 | 14 | 1/60 | 1/1.1 |
| | Atmospheric nuclear test* | 1963/5-12 | 11-120 | 22-140 | － | 1/1.9 - 1/1.1 | － |
| | Chernobyl accident* | 1986/5-12 | 0.074-2.3 | 0.33-185 | <LOD-81 | 1/83 - 1/3.8 | 1/3.7-1/2.1 |
| **Sample name** | | **Sampling period** | **mBq/m$^{3}$** | | | **$^{90}$Sr/$^{137}$Cs** | **$^{134}$Cs/$^{137}$Cs** |
| Airborne particulate | Fukushima Daiichi NPP accident | 2011/4-6 | 0.0081 | 6.6 | 6.5 | 1/810 | 1/1.0 |
| | | 2011/7-9 | 0.0019 | 0.068 | 0.060 | 1/36 | 1/1.1 |

*The results for $^{137}$Cs throughout 1963 to 1974 and all $^{90}$Sr was analyzed and determined by the Japan Chemical Analysis Center[11]. Monthly deposition was collected in Yokohama until May 2003, thereafter collected in Chigasaki. The radionuclide concentrations were decay-corrected to the date on which the sample was collected.

京都，栃木県，千葉県，山形県で採取された月間降下物から，事故前の11年間に全国で観測された$^{90}$Srの最大値（0.30MBq/km$^2$）を超える値が検出されことと[11,17]，福島第一原発事故直後に$^{90}$Srが検出されたことから，先の試料には福島第一原発事故由来の$^{90}$Srが含まれている可能性が高いとしている．

**５．過去の調査結果との比較**　Table2に，福島第一原発事故と過去の原子力関連事故等において当所が採取した月間降下物と大気浮遊じん（３か月分）の$^{90}$Sr，$^{137}$Cs，$^{134}$Csの降下量と放射能濃度，および$^{90}$Srと$^{137}$Cs，$^{134}$Csと$^{137}$Csの放射能比を示した．

福島第一原発事故由来の$^{137}$Cs降下量は，大気圏内核実験（1963年）の25倍，チェルノブイリ原発事故の20倍であった．それに反し，$^{90}$Sr降下量は，大気圏内核実験（1963年）の1/250，チェルノブイリ原発事故の1/5と少なかった．福島第一原発から大気中に放出された$^{134}$Cs量は$^{137}$Cs量とほぼ同量であるのに対し，$^{90}$Sr量は$^{137}$Cs量の約1/110と試算されていて，$^{134}$Cs，$^{137}$Csに比較すると$^{90}$Srの放出量は少なかったことが分かっている[15)]．事故の影響が最も高かった３月の月間降下物の$^{134}$Cs/$^{137}$Csが1/0.97（Table2）と放出量からの試算値[15)]とよく一致しているのに対し，$^{90}$Sr/$^{137}$Csは1/7200と試算値よりさらに小さかった．この降下量の差は，$^{90}$Srは$^{137}$Csに比べ，揮散しにくい物性の違いにより遠方まで飛散しなかったものと考えられる．また，過去の大気圏内核実験やチェルノブイリ原発事故時の月間降下物で観測された$^{90}$Sr/$^{137}$Cs（1/83～1/1.1）に比較しても小さく，福島第一原発事故における放射能汚染では$^{137}$Csによる寄与割合が大きかったことが分かった．永岡ら[18)]の茨城県東海再処理施設周辺における福島第一原発事故後の調査結果からも$^{90}$Sr降下量は大気圏内核実験に比べると1/25と少なく，その影響は小さいと報告している．

福島第一原発事故後，多種類の放射性核種が大量に環境中に放出されたため，当初は全容が分からない中，神奈川県においても，γ線放出核種だけでは無く，β線放出核種の$^{90}$Srやα線放出核種のプルトニウムを測定して欲しいと多くの要望が寄せられた．現実的には，測定機器が無いこと，人員不足，α線，β線測定には長時間を要することなど様々な要因で実施は不可能だった．先の永岡ら[18)]は，$^{137}$Cs降下量が比較的高い降下物試料について行ったプルトニウム（$^{238}$Pu，$^{239,240}$Pu）測定結果からは福島第一原発事故の影響は認められず，数値は全国の過去の$^{239,240}$Pu降下量における範囲内で，その最大値と比較しても十分小さなものであったと報告している．

これらのことを踏まえ，今後も環境中のγ線放出核種，主に$^{134}$Cs，$^{137}$Cs濃度を監視していくことで，福島第一原発事故の影響を把握することは可能と考える．

## 要　約

神奈川県における環境放射能レベルを把握するために1961年から調査を開始した．これまでに1960年代からの大気圏内核実験やチェルノブイリ原発事故の際，県内で採取した環境試料より放射能濃度の上昇を確認した．2011年３月11日に発生した福島第一原子力発電所事故後，茅ヶ崎市の空間放射線量率と同地点で採取した環境試料中の放射能濃度が上昇した．空間放射線量率は，３月15日13時に0.18μGy/h，翌16日８時に0.15μGy/hまで上昇し，その後急激に低下した．しかし，21日からの降雨により，再び22日に0.11μGy/hまで上昇した．３月15日９時に採取した大気浮遊じんと16日に採取した乾性降下物から事故由来の$^{131}$I，$^{132}$I，$^{133}$I，$^{134}$Cs，$^{137}$Cs，$^{99m}$Tcなどの人工放射性核種を検出した．また，３月16日に採取した大気浮遊じんは，$^{131}$I と放射性Cs濃度が最も高かったが，それ以降は減少した．2011年８月以降の試料からは$^{134}$Cs，$^{137}$Cs以外の核種は不検出となった．

神奈川県における福島第一原発事故による特徴は，過去の大気圏内核実験やチェルノブイリ原発事故と比較すると$^{90}$Sr降下量が非常に少なく，$^{137}$Cs降下量が多かったことであった．

## 謝　辞

これまでに経験したことの無い，長期にわたる今回の緊急時放射能調査では，当所全職員の方々に様々な支援を頂き大変感謝いたします．また，事故直後の24時間態勢では，当所だけでの対応が困難な際，試料採取・調整にご協力頂きました神奈川県環境農政局環境科学センター研究員の皆様に深謝いたします．

（平成26年８月１日受理）

## 文　献

１）神奈川県衛生研究所：神奈川県における放射能調査・報告書－1961－～－1985－（1962～1986）

２）高城裕之，小山包博，大木りつ子，石井襄二：第15回中国核実験影響調査，神奈川衛研報告，**4**，69-74（1974）

３）飯島育代，高城裕之，小山包博：生活環境中の放射線および放射性物質の水準，1.食品中の放射性核種濃度，神奈川衛研報告，**21**，7-12（1991）

４）高城裕之，飯島育代，小山包博：生活環境中の放射線および放射性物質の水準，2.神奈川県における環境放射線（能），神奈川衛研報告，**22**，22-28（1992）

5）桑原千雅子，飯島育代，勝部貢治：神奈川県における放射能調査，第53回環境放射能調査研究成果論文抄録集（平成22年度），182-189（2011）
6）神奈川県衛生研究所：神奈川県における放射能調査・報告書－2011－（2012）
7）酒井 康宏，勝部 貢治，飯島 育代，林 孝子，桑原千雅子：神奈川県における放射能調査，環境放射能調査研究成果論文抄録集（平成23年度）153-157 (2013)
8）文部科学省科学技術・学術政策局原子力安全課防災環境対策室：環境放射能水準調査委託実施計画書(2011)
9）文部科学省: 放射能測定法シリーズ13「ゲルマニウム半導体検出器等を用いる機器分析のための試料の前処理法」(1982)
10) 文部科学省: 放射能測定法シリーズ7「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」(1992)
11) 原子力規制庁："環境放射線データベース" 〈http://search.kankyo-hoshano.go.jp/servlet/search.top〉(参照 2014-05-02)
12) 桑原千雅子，飯島育代，神奈川県県安全防災局：神奈川県における空間放射線量率レベルの推移，神奈川県公衆衛生学会誌，**58**, 70(2012)
13) 東京都立産業技術研究センター:東京電力福島第一原子力発電所事故に係る大気浮遊塵中放射性物質の調査報告，平成24年1月25日訂正 〈http://www.metro.tokyo.jp/INET/CHOUSA/2011/12/60lcq100.htm〉(参照 2014-06-22)
14) 大原利眞，森野悠，田中敦：福島第一原子力発電所から放出された放射性物質の大気中の挙動，保健医療科学，**60**(4)，292-299（2011）
15) 原子力安全・保安院：東京電力株式会社福島第一原子力発電所の事故に係る１号機，２号機及び３号機の炉心の状態に関する評価について，平成23年6月6日 〈http://www.meti.go.jp/press/2011/06/20110606008/20110606008-2.pdf〉（参照 2014-05-11） 〈http://www.meti.go.jp/press/2011/10/20111020001/20111020001.html〉（参照 2014-05-11）
16) 神奈川県衛生研究所：神奈川県における放射能調査・報告書－1986－（1987)
17) 文部科学省：都道府県別環境放射能水準調査（月間降下物）におけるストロンチウム90 の分析結果について，平成24年７月24日 〈http://www.meti.go.jp/press/2011/06/20110606008/20110606008-2.pdf〉（参照 2014-06-22)
18) 永岡美佳，藤田博喜，中野政尚，渡辺均，住谷秀一:東海再処理施設周辺における東電福島第一原発事故後の降下じん中放射性物質濃度調査結果，Jpn. J. Health Phys.，**48**(2), 104-113(2013)

短報

# LC-MS/MSを用いた畜水産物中の動物用医薬品一斉分析法の妥当性評価

甲斐茂美，小菅教仁，脇ますみ，岸　弘子

# Validation study of a LC-MS/MS method for simultaneous determination of veterinary drugs in livestock products and seafoods

Shigemi KAI, Norihito KOSUGE,
Masumi WAKI and Hiroko KISHI

## 緒　言

食品中に残留する農薬，飼料添加物及び動物用医薬品（以下，農薬等）に関する試験法は厚生省告示の「食品・添加物等の規格基準」（以下，告示）[1] 及び厚生労働省通知の「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」（以下，通知）[2] で定められている．これに関連して，平成22年12月に「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」が改正され（以下，ガイドライン）[3]，食品の規格基準への適否判定のために使用される試験法については，独自に開発した試験法のみならず告示・通知による試験法についても，ガイドラインに基づく妥当性評価の実施が求められることとなった．

そこで当所では，近年の検査状況等を考慮した上で，試験法の妥当性評価方法に関連する食品衛生試験検査業務管理規定等の所内文書を整備するとともに，農薬等試験法の妥当性評価を実施した．今回，LC-MS/MSを用いた畜水産物中の動物用医薬品一斉分析法の妥当性評価結果について報告する．

## 方　法

１．試料

妥当性評価に用いる食品の品目は，成分の特徴，抽出法の違い及び収去の頻度等を考慮し代表的な食品を選択し，神奈川県内で市販されていた畜水産物10品目（牛筋肉，豚筋肉，鶏筋肉，鶏卵，乳，エビ，サケ，ウナギ（白焼き），イカ，はちみつ）を用いた．

神奈川県衛生研究所　理化学部
〒253-0087　茅ヶ崎市下町屋1-3-1

２．試薬

分析対象薬剤は，表１に示した合成抗菌剤，抗生物質，寄生虫駆虫剤等68薬剤とした．これら薬剤の標準物質は和光純薬㈱，関東化学㈱及び林純薬㈱の残留農薬分析用標準品またはその同等品を用いた．標準物質をそれぞれアセトニトリルまたはメタノールに溶解して100 μg/mLの標準原液を調製した．各標準原液を混合しメタノールを用いて1 μg/mLとし混合標準原液を調製した．混合標準原液を40%アセトニトリル水溶液で適宜希釈し混合標準溶液を調製した．

アセトニトリルは和光純薬㈱の残留農薬試験用またはLC-MS用，n-ヘキサン，無水硫酸ナトリウムは和光純薬㈱の残留農薬試験用，ぎ酸は和光純薬㈱のLC-MS用，１－プロパノールは和光純薬㈱の特級を用いた．

３．装置及び分析条件

HPLC条件：

装置：Prominenceシリーズ（島津製作所製）
カラム：Mightysil RP-18GP（2.0mm i.d.×150mm, 3 μm，関東化学株式会社製）
カラム温度：40℃
流速：0.2mL/分
移動相：A；0.1％ぎ酸　B；アセトニトリル
　グラジェント条件；直線グラジェント
　A（95%）→20分→A（１%）（５分保持）
注入量：10 μL

MS/MS条件：

装置：3200Qtrap（エービー・サイエックス社製）
イオン化法：エレクトロスプレー(ESI)
イオンスプレー電圧：5000V，－4000V
イオンソース温度：600℃
ネブライザーガス圧：70psi
イオンスプレーガス圧：80psi

薬剤ごとのMRM測定における選択イオンは表１に示した．

４．試験溶液の調製

試験溶液の調製は，厚生労働省の示した通知試験法「HPLCによる動物用医薬品等の一斉試験法Ⅰ（畜水産物）」[2] に準じた．細切し均一に混和した試料5.00gを量り採り，アセトニトリル30mL，アセトニトリル飽和n-ヘキサン20mL及び無水硫酸ナトリウム10 gを加え，ホモジナイズした後毎分3,000回転で５分間遠心分離しアセトニトリル層を分取した．はちみつの場合は5.00gを量り採り，水3mLを加え軽く混和した後同様に操作した．残ったｎ-ヘキサン層及び残留物にアセトニトリル20 mLを加えてホモジナイズした後，毎分3,000回転で

## 表１ MRM測定の選択イオン，保持時間及び妥当性評価結果

| 分析対象薬剤 | MRM Trace ($m/z$) | 極性 | 保持時間 | 牛筋肉 | | | | 豚筋肉 | | | | 鶏筋肉 | | | | 鶏卵 | | | | 乳 | | | |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| | | | | 真度(%) 0.01ppm | 真度(%) 0.1ppm | S/N比 | 判定 | 真度(%) 0.01ppm | 真度(%) 0.1ppm | S/N比 | 判定 | 真度(%) 0.01ppm | 真度(%) 0.1ppm | S/N比 | 判定 | 真度(%) 0.01ppm | 真度(%) 0.1ppm | S/N比 | 判定 | 真度(%) 0.01ppm | 真度(%) 0.1ppm | S/N比 | 判定 |
| アンプロリウム | 243→150 | + | 1.76 | 109.0 | 110.4 | 231 | × | 72.5 | 77.4 | 237 | ○ | 76.1 | 45.7 | 248 | × | 68.6 | 90.2 | 913 | × | 58.8 | 93.8 | 393 | × |
| スルファグアニジン | 215→156 | + | 2.17 | 87.3 | 69.3 | 25 | × | 61.4 | 56.1 | 18 | × | 60.6 | 52.5 | 13 | × | 109.8 | 90.3 | 36 | × | 40.6 | 48.2 | 48 | × |
| オラキンドックス | 264→143 | + | 5.39 | 119.6 | 91.8 | 15 | × | 19.9 | 10.2 | 31 | × | 55.3 | 35.1 | 44 | × | 166.3 | 37.0 | 28 | × | 48.9 | 28.5 | 56 | × |
| 5-ヒドロキシチアベンダゾール | 218→191 | + | 5.70 | 76.7 | 83.3 | 833 | ○ | 77.4 | 89.0 | 1543 | ○ | 82.4 | 71.0 | 1113 | ○ | 99.0 | 102.2 | 1017 | ○ | 100.2 | 95.4 | 1270 | × |
| スルファセタミド | 215→156 | + | 5.93 | 101.8 | 94.4 | 41 | × | 89.0 | 94.6 | 51 | ○ | 82.4 | 79.1 | 39 | ○ | 78.1 | 73.3 | 58 | ○ | 72.0 | 80.6 | 60 | ○ |
| レバミゾール | 205→178 | + | 5.96 | 104.2 | 74.1 | 1783 | ○ | 85.4 | 88.4 | 3193 | ○ | 94.3 | 89.5 | 1620 | ○ | 75.3 | 87.1 | 1923 | ○ | 95.7 | 92.1 | 3400 | × |
| 5-プロピルスルホニル-1H-ベンズイミダゾール-2-アミン | 240→133 | + | 6.16 | 86.4 | 90.7 | 284 | × | 96.7 | 86.4 | 1243 | × | 86.7 | 81.3 | 1017 | × | 69.4 | 92.7 | 1023 | × | 94.3 | 89.5 | 1083 | × |
| リンコマイシン | 407→126 | + | 6.16 | 45.1 | 73.68 | 98 | × | 77.9 | 76.9 | 1320 | × | 64.8 | 56.8 | 1933 | × | 97.9 | 76.8 | 5200 | × | 48.2 | 78.4 | 5333 | × |
| ジアベリジン | 261→123 | + | 6.27 | 83.8 | 85.0 | 420 | ○ | 77.2 | 83.1 | 587 | ○ | 82.0 | 84.2 | 460 | × | 77.4 | 110.7 | 1130 | × | 91.3 | 107.6 | 700 | × |
| チアベンダゾール | 202→175 | + | 6.36 | 77.5 | 70.2 | 1957 | ○ | 104.2 | 91.4 | 3173 | ○ | 86.3 | 89.1 | 2207 | ○ | 89.2 | 89.3 | 2510 | × | 95.7 | 93.4 | 2433 | ○ |
| クロピドール | 192→101 | + | 6.43 | 86.6 | 82.2 | 116 | ○ | 86.8 | 80.5 | 264 | ○ | 95.3 | 80.7 | 328 | ○ | 91.1 | 92.4 | 423 | × | 74.7 | 90.6 | 257 | × |
| スルファジアジン | 251→156 | + | 6.51 | 97.1 | 91.0 | 213 | ○ | 82.3 | 94.4 | 390 | ○ | 108.3 | 89.8 | 297 | ○ | 82.7 | 89.1 | 357 | ○ | 92.9 | 81.4 | 427 | × |
| トリメトプリム | 291→123 | + | 6.64 | 104.5 | 78.7 | 403 | ○ | 92.8 | 75.2 | 633 | ○ | 80.6 | 93.6 | 710 | ○ | 112.5 | 92.1 | 727 | × | 89.1 | 84.8 | 467 | × |
| マルボフロキサシン | 363→72 | + | 6.65 | 113.7 | 82.2 | 55 | ○ | 117.2 | 86.6 | 155 | × | 98.0 | 62.3 | 33 | × | 37.7 | 64.6 | 143 | × | 42.1 | 121.4 | 186 | × |
| ノルフロキサシン | 320→276 | + | 6.84 | 70.3 | 55.3 | 65 | × | 61.7 | 73.4 | 130 | × | 27.2 | 64.2 | 152 | × | 55.1 | 47.5 | 107 | × | 90.0 | 78.2 | 67 | ○ |
| ピランテル | 207→150 | + | 6.85 | 84.6 | 100.3 | 580 | ○ | 113.8 | 99.6 | 803 | ○ | 72.3 | 91.3 | 773 | × | 93.0 | 83.9 | 447 | × | 61.8 | 82.4 | 533 | × |
| オフロキサシン | 362→318 | + | 6.87 | 107.5 | 92.8 | 130 | ○ | 103.8 | 95.4 | 172 | × | 100.1 | 72.9 | 87 | × | 104.8 | 77.8 | 269 | × | 117.1 | 89.9 | 154 | × |
| スルファチアゾール | 257→156 | + | 6.94 | 98.8 | 97.0 | 154 | ○ | 81.5 | 76.4 | 186 | ○ | 106.6 | 91.9 | 249 | × | 74.8 | 82.6 | 200 | ○ | 91.9 | 83.2 | 393 | × |
| シプロフロキサシン | 332→288 | + | 6.98 | 61.0 | 53.5 | 49 | × | 60.7 | 74.2 | 88 | × | 43.4 | 56.2 | 101 | × | 71.7 | 48.6 | 140 | × | 65.2 | 93.5 | 81 | × |
| オルメトプリム | 275→123 | + | 6.99 | 91.9 | 74.0 | 593 | ○ | 81.6 | 69.4 | 723 | × | 95.4 | 65.6 | 923 | × | 99.9 | 80.2 | 927 | ○ | 106.4 | 98.1 | 1707 | × |
| ダノフロキサシン | 358→82 | + | 7.17 | 142.6 | 91.1 | 77 | × | 92.0 | 88.0 | 81 | ○ | 99.8 | 97.0 | 118 | ○ | 218.5 | 152.6 | 88 | × | 140.4 | 89.0 | 88 | × |
| スルファピリジン | 250→156 | + | 7.19 | 90.5 | 81.3 | 166 | ○ | 87.3 | 107.8 | 189 | ○ | 108.6 | 98.0 | 293 | ○ | 78.2 | 90.0 | 367 | ○ | 90.6 | 76.0 | 457 | × |
| エンロフロキサシン | 360→316 | + | 7.36 | 91.9 | 72.0 | 149 | ○ | 119.6 | 97.4 | 224 | ○ | 80.0 | 102.6 | 301 | ○ | 99.0 | 82.6 | 271 | × | 112.6 | 96.4 | 740 | ○ |
| アザペロン | 328→123 | + | 7.43 | 94.4 | 91.2 | 947 | ○ | 96.7 | 86.8 | 1133 | ○ | 94.1 | 82.5 | 1257 | ○ | 83.8 | 80.1 | 2410 | ○ | 100.6 | 85.6 | 1143 | ○ |
| オルビフロキサシン | 396→352 | + | 7.51 | 74.4 | 77.8 | 297 | ○ | 87.4 | 84.9 | 287 | × | 84.6 | 81.0 | 301 | × | 79.5 | 86.3 | 970 | × | 117.1 | 100.5 | 980 | ○ |
| メシリナム | 326→167 | + | 7.55 | 1970.6 | 23.7 | 49 | × | 27.0 | 46.3 | 91 | × | 4954.3 | 335.6 | 112 | × | 3.0 | 0.0 | 73 | × | 2042.4 | 0.0 | 133 | × |
| スルファメラジン | 265→92 | + | 7.58 | 89.4 | 94.6 | 127 | ○ | 94.1 | 83.0 | 214 | ○ | 107.0 | 85.6 | 118 | × | 74.3 | 85.1 | 306 | ○ | 92.4 | 83.4 | 170 | ○ |
| サラフロキサシン | 386→299 | + | 7.85 | 87.8 | 75.6 | 168 | ○ | 76.9 | 82.5 | 288 | ○ | 65.0 | 70.5 | 251 | × | 89.0 | 65.6 | 168 | × | 96.3 | 89.2 | 257 | ○ |
| ジフロキサシン | 400→356 | + | 7.93 | 98.4 | 84.2 | 56 | ○ | 109.4 | 100.5 | 81 | ○ | 92.6 | 91.8 | 173 | ○ | 104.6 | 85.5 | 140 | × | 93.1 | 95.4 | 125 | ○ |
| モランテル | 221→123 | + | 7.94 | 94.2 | 93.5 | 320 | × | 93.0 | 92.4 | 430 | ○ | 89.4 | 95.9 | 278 | × | 88.3 | 84.3 | 280 | ○ | 88.6 | 92.4 | 460 | ○ |
| チアンフェニコール | 353→185 | − | 8.08 | 115.5 | 99.1 | 51 | ○ | 99.1 | 102.5 | 102 | ○ | 103.0 | 103.2 | 65 | ○ | 108.9 | 98.6 | 82 | ○ | 94.3 | 80.1 | 90 | ○ |
| スルファジミジン | 279→ 92 | + | 8.36 | 92.6 | 82.2 | 280 | ○ | 95.2 | 103.1 | 413 | ○ | 82.5 | 86.7 | 547 | ○ | 77.2 | 85.2 | 747 | ○ | 73.8 | 88.9 | 790 | × |
| スルファメトキシピリダジン | 281→156 | + | 8.45 | 102.2 | 82.6 | 513 | × | 71.4 | 99.0 | 737 | ○ | 101.6 | 78.7 | 1143 | ○ | 72.2 | 83.7 | 537 | ○ | 52.5 | 93.8 | 793 | × |
| ピリメタミン | 249→177 | + | 8.77 | 85.7 | 80.3 | 367 | ○ | 82.4 | 79.3 | 480 | ○ | 83.8 | 75.8 | 440 | × | 95.6 | 107.3 | 630 | ○ | 114.4 | 104.2 | 783 | × |
| チルミコシン | 435→174 | + | 8.89 | 95.2 | 75.3 | 123 | × | 57.4 | 90.7 | 118 | × | 7.8 | 69.9 | 331 | × | 125.7 | 84.5 | 583 | × | 45.5 | 98.4 | 106 | × |
| アクロミド | 201→138 | + | 8.95 | 83.7 | 103.8 | 45 | × | 99.0 | 90.5 | 100 | ○ | 97.1 | 98.6 | 101 | ○ | 88.2 | 102.4 | 130 | × | 82.2 | 91.9 | 67 | ○ |
| スルファモノメトキシン | 281→156 | + | 9.12 | 102.6 | 87.0 | 221 | ○ | 96.7 | 101.1 | 253 | ○ | 86.2 | 112.1 | 410 | ○ | 93.4 | 82.3 | 620 | ○ | 72.2 | 79.8 | 271 | ○ |
| オキシベンダゾール | 250→176 | + | 9.20 | 40.0 | 34.1 | 1073 | × | 99.3 | 67.6 | 1110 | × | 67.6 | 75.4 | 2580 | × | 130.6 | 84.6 | 1130 | × | 65.0 | 89.4 | 1160 | × |
| クロルヘキシジン | 505→170 | + | 9.41 | 20.4 | 3.0 | 48 | × | 75.0 | 10.2 | 41 | × | 87.1 | 12.3 | 25 | × | 50.0 | 7.7 | 25 | × | 9.8 | 26.9 | 49 | × |
| スルファクロルピリダジン | 285→156 | + | 9.46 | 90.8 | 87.2 | 308 | ○ | 87.5 | 83.9 | 290 | ○ | 87.8 | 98.1 | 314 | ○ | 79.6 | 76.1 | 259 | ○ | 40.9 | 91.6 | 460 | × |
| スルファドキシン | 311→156 | + | 9.89 | 94.3 | 86.2 | 780 | ○ | 82.6 | 90.0 | 773 | ○ | 91.0 | 103.1 | 753 | ○ | 74.6 | 81.5 | 1353 | ○ | 59.5 | 94.1 | 1007 | × |
| スルファメトキサゾール | 254→156 | + | 9.94 | 98.5 | 92.3 | 197 | ○ | 89.6 | 90.7 | 228 | ○ | 92.3 | 103.2 | 363 | ○ | 77.2 | 87.7 | 293 | ○ | 85.4 | 84.2 | 262 | ○ |
| エリスロマイシン | 734→158 | + | 10.00 | 83.7 | 73.2 | 597 | ○ | 86.2 | 74.2 | 1060 | ○ | 73.3 | 78.0 | 1493 | ○ | 73.3 | 74.4 | 1283 | × | 70.2 | 82.9 | 1330 | ○ |
| 2-アセチルアミノ-5-ニトロチアゾール | 186→139 | − | 10.10 | 93.4 | 88.2 | 1157 | ○ | 95.2 | 82.3 | 1007 | ○ | 97.4 | 94.8 | 857 | ○ | 97.8 | 105.0 | 487 | ○ | 84.2 | 74.1 | 533 | ○ |
| フロルフェニコール | 356→185 | − | 10.10 | 107.6 | 99.2 | 417 | ○ | 105.9 | 92.2 | 677 | ○ | 109.5 | 102.1 | 493 | ○ | 105.9 | 110.8 | 510 | ○ | 111.4 | 97.4 | 547 | ○ |
| タイロシン | 917→174 | + | 10.40 | 54.4 | 82.1 | 88 | × | 39.5 | 73.0 | 82 | × | 75.1 | 60.9 | 223 | × | 82.9 | 72.6 | 137 | ○ | 2.1 | 55.6 | 75 | × |
| オキソリニック酸 | 262→160 | + | 10.50 | 86.3 | 79.0 | 47 | ○ | 106.7 | 100.0 | 29 | ○ | 105.0 | 98.0 | 39 | ○ | 176.6 | 134.7 | 24 | × | 107.4 | 101.6 | 25 | ○ |
| ミロキサシン | 264→215 | + | 10.50 | 16.6 | 9.2 | 214 | × | 11.9 | 6.0 | 292 | × | 18.6 | 11.6 | 236 | × | 5.5 | 19.4 | 282 | × | 3090.4 | 232.8 | 261 | × |
| チアムリン | 494→192 | + | 10.80 | 94.6 | 94.6 | 2687 | ○ | 91.9 | 80.6 | 3257 | ○ | 103.1 | 86.5 | 1827 | × | 85.5 | 75.6 | 1813 | ○ | 109.8 | 100.5 | 2893 | ○ |
| エトパベート | 236→192 | − | 11.00 | 88.5 | 89.4 | 30 | ○ | 99.8 | 93.2 | 41 | ○ | 107.1 | 103.1 | 13 | ○ | 108.0 | 113.6 | 313 | ○ | 78.2 | 90.6 | 62 | ○ |
| スルファベンズアミド | 277→156 | + | 11.00 | 89.4 | 82.6 | 139 | × | 84.3 | 88.7 | 219 | ○ | 82.2 | 88.2 | 460 | × | 80.8 | 79.7 | 747 | ○ | 77.5 | 101.5 | 790 | × |
| スルファキノキサリン | 301→156 | + | 11.20 | 88.6 | 88.0 | 54 | ○ | 99.8 | 93.5 | 105 | ○ | 95.8 | 87.9 | 360 | ○ | 76.4 | 79.5 | 277 | ○ | 98.5 | 89.6 | 450 | × |
| スルファジメトキシン | 311→156 | + | 11.20 | 91.7 | 84.5 | 380 | ○ | 90.6 | 91.0 | 323 | ○ | 97.6 | 96.2 | 2110 | ○ | 75.9 | 78.0 | 1280 | ○ | 76.5 | 88.4 | 1047 | ○ |
| ジョサマイシン | 828→109 | + | 11.60 | 93.9 | 104.5 | 1183 | ○ | 75.9 | 81.4 | 1120 | ○ | 97.1 | 112.7 | 1843 | ○ | 77.4 | 106.3 | 1483 | ○ | 49.8 | 70.6 | 1280 | × |
| メベンダゾール | 296→264 | + | 11.60 | 57.5 | 50.6 | 1350 | × | 50.1 | 87.5 | 1447 | × | 93.2 | 71.6 | 1300 | × | 87.7 | 86.8 | 1537 | ○ | 92.6 | 89.5 | 1373 | ○ |
| ロベニジン | 334→155 | + | 11.90 | 0.0 | 25.4 | 153 | × | 0.0 | 24.9 | 171 | × | 31.4 | 32.7 | 773 | × | 0.0 | 19.1 | 763 | × | 14.5 | 32.1 | 527 | × |
| メチルプレドニゾロン | 375→339 | + | 12.20 | 91.0 | 91.1 | 17 | ○ | 82.4 | 81.9 | 11 | ○ | 92.3 | 92.2 | 45 | ○ | 89.0 | 86.0 | 70 | ○ | 85.8 | 95.5 | 53 | ○ |
| ナリジクス酸 | 233→187 | + | 12.40 | 80.6 | 74.5 | 224 | ○ | 97.1 | 96.2 | 206 | ○ | 88.8 | 87.6 | 314 | ○ | 103.6 | 90.5 | 287 | × | 92.6 | 119.0 | 129 | ○ |
| スルファニトラン | 336→134 | + | 12.60 | 96.2 | 88.5 | 21 | ○ | 116.2 | 109.5 | 11 | ○ | 80.8 | 97.5 | 83 | ○ | 101.0 | 87.6 | 102 | ○ | 84.7 | 91.8 | 100 | ○ |
| フルメキン | 262→202 | + | 12.70 | 89.8 | 119.9 | 274 | ○ | 98.5 | 107.1 | 265 | ○ | 92.6 | 112.1 | 387 | ○ | 52.6 | 65.3 | 193 | × | 99.0 | 102.4 | 333 | ○ |
| ニトロキシニル | 289→127 | − | 14.80 | 98.3 | 83.3 | 1327 | ○ | 88.8 | 81.2 | 1587 | ○ | 100.5 | 85.4 | 2140 | ○ | 96.0 | 82.3 | 1587 | ○ | 105.4 | 83.4 | 1603 | ○ |
| リファキシミン | 786→754 | + | 15.60 | 176.2 | 66.4 | 260 | × | 154.0 | 91.0 | 266 | × | 204.1 | 95.8 | 237 | × | 78.2 | 59.0 | 198 | × | 219.0 | 109.8 | 171 | × |
| ナイカルバジン | 301→137 | − | 15.70 | 78.2 | 74.5 | 4567 | ○ | 71.1 | 78.6 | 3967 | ○ | 77.5 | 83.8 | 4767 | ○ | 64.1 | 41.9 | 3833 | × | 61.8 | 89.2 | 3633 | × |
| ジクラズリル | 405→334 | − | 16.80 | 41.9 | 51.7 | 637 | × | 73.3 | 74.4 | 490 | ○ | 86.9 | 81.4 | 990 | ○ | 107.2 | 110.1 | 993 | ○ | 73.4 | 85.4 | 1113 | ○ |
| ジフルベンズロン | 311→141 | + | 16.90 | 75.6 | 71.4 | 35 | ○ | 41.4 | 61.0 | 27 | × | 75.2 | 66.9 | 182 | × | 51.1 | 55.5 | 247 | × | 78.3 | 79.1 | 323 | ○ |
| ノボビオシン | 611→205 | − | 17.30 | 54.0 | 59.4 | 600 | × | 61.0 | 64.4 | 803 | × | 70.6 | 76.4 | 1343 | ○ | 96.5 | 73.2 | 960 | ○ | 83.0 | 85.5 | 1160 | ○ |
| エプリノメクチンB1a | 914→186 | + | 21.00 | 85.0 | 85.4 | 770 | ○ | 98.0 | 96.7 | 957 | ○ | 101.3 | 92.0 | 1873 | ○ | 73.2 | 79.6 | 1473 | ○ | 96.6 | 96.6 | 2033 | ○ |
| クロサンテル | 660→127 | − | 25.30 | 0.0 | 5.5 | 2 | × | 0.0 | 10.8 | 2 | × | 0.0 | 14.9 | 2 | × | 28.9 | 60.0 | 268 | × | 0.0 | 25.2 | 314 | × |
| 適合項目数 | | | | | 43 | | | | 46 | | | | 37 | | | | 34 | | | | 31 | | |

（網掛け）併行精度または室内精度が目標値を満たさなかったもの
（下線）選択性が目標値を満たさなかったもの

# 表１ 続き

| 分析対象薬剤 | MRM Trace (m/z) | 極性 | 保持時間 | エビ | | | | サケ | | | | ウナギ(白焼き) | | | | イカ | | | | はちみつ | | | |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| | | | | 真度(%) | | S/N比 | 判定 | 真度(%) | | S/N比 | 判定 | 真度(%) | | S/N比 | 判定 | 真度(%) | | S/N比 | 判定 | 真度(%) | | S/N比 | 判定 |
| | | | | 0.01ppm | 0.1ppm | | | 0.01ppm | 0.1ppm | | | 0.01ppm | 0.1ppm | | | 0.01ppm | 0.1ppm | | | 0.01ppm | 0.1ppm | | |
| アンプロリウム | 243→150 | + | 1.76 | 111.7 | 96.5 | 41 | × | 109.0 | 110.4 | 86 | × | 68.8 | 64.9 | 324 | × | 55.1 | 77.8 | 99 | × | 0.0 | 0.0 | 397 | × |
| スルファグアニジン | 215→156 | + | 2.17 | 104.2 | 64.9 | 51 | × | 87.3 | 69.3 | 43 | × | 72.6 | 59.0 | 24 | × | 59.5 | 52.7 | 63 | × | 35.7 | 34.1 | 164 | × |
| オラキンドックス | 264→143 | + | 5.39 | 98.7 | 35.5 | 12 | × | 119.6 | 91.8 | 9 | × | 68.0 | 35.7 | 89 | × | 10.4 | 5.7 | 38 | × | 17.1 | 11.1 | 98 | × |
| 5-ヒドロキシチアベンダゾール | 218→191 | + | 5.70 | 73.4 | 89.2 | 1357 | ○ | 76.7 | 83.3 | 600 | ○ | 67.6 | 94.2 | 1063 | × | 89.9 | 87.3 | 407 | ○ | 73.7 | 59.4 | 727 | × |
| スルファセタミド | 215→156 | + | 5.93 | 89.8 | 83.8 | 21 | ○ | 91.8 | 89.3 | 26 | ○ | 91.2 | 79.5 | 48 | ○ | 94.8 | 80.9 | 51 | ○ | 48.7 | 52.9 | 47 | × |
| レバミゾール | 205→178 | + | 5.96 | 87.8 | 91.3 | 2463 | ○ | 104.2 | 74.1 | 1707 | ○ | 84.3 | 94.6 | 2837 | ○ | 76.2 | 77.8 | 533 | ○ | 88.9 | 90.3 | 1233 | ○ |
| 5-プロピルスルホニル-1H-ベンズイミダゾール-2-アミン | 240→133 | + | 6.16 | 90.2 | 108.5 | 870 | ○ | 86.4 | 90.7 | 700 | ○ | 88.2 | 91.8 | 1183 | ○ | 87.8 | 84.8 | 740 | ○ | 52.1 | 35.7 | 613 | × |
| リンコマイシン | 407→126 | + | 6.16 | 75.4 | 78.9 | 1713 | ○ | 74.3 | 85.0 | 1457 | ○ | 76.1 | 94.5 | 3467 | × | 79.5 | 74.4 | 188 | ○ | 2.7 | 3.4 | 6000 | × |
| ジアベリジン | 261→123 | + | 6.27 | 90.6 | 95.3 | 407 | ○ | 89.8 | 91.4 | 357 | ○ | 71.5 | 84.0 | 553 | ○ | 89.2 | 81.0 | 274 | ○ | 34.8 | 17.9 | 307 | × |
| チアベンダゾール | 202→175 | + | 6.36 | 80.2 | 117.3 | 1690 | ○ | 77.5 | 70.2 | 1210 | ○ | 96.2 | 92.4 | 1413 | ○ | 87.2 | 93.1 | 667 | ○ | 102.9 | 111.7 | 1590 | × |
| クロピドール | 192→101 | + | 6.43 | 86.7 | 78.1 | 129 | ○ | 86.6 | 82.2 | 98 | ○ | 85.2 | 96.4 | 273 | ○ | 101.1 | 88.1 | 142 | ○ | 92.1 | 111.6 | 283 | × |
| スルファジアジン | 251→156 | + | 6.51 | 86.2 | 90.0 | 244 | ○ | 97.1 | 91.0 | 113 | ○ | 75.7 | 98.2 | 65 | ○ | 87.9 | 84.0 | 260 | ○ | 47.2 | 49.0 | 407 | × |
| トリメトプリム | 291→123 | + | 6.64 | 81.7 | 89.4 | 393 | ○ | 104.5 | 78.7 | 243 | ○ | 72.2 | 91.8 | 367 | ○ | 94.4 | 91.0 | 333 | ○ | 38.7 | 42.2 | 152 | × |
| マルボフロキサシン | 363→72 | + | 6.65 | 81.0 | 76.3 | 83 | ○ | 97.6 | 89.8 | 111 | ○ | 125.2 | 87.8 | 51 | × | 72.1 | 89.3 | 36 | ○ | 44.0 | 53.9 | 199 | × |
| ノルフロキサシン | 320→276 | + | 6.84 | 118.1 | 55.7 | 70 | × | 70.3 | 55.3 | 45 | × | 91.8 | 71.3 | 69 | ○ | 60.8 | 69.6 | 50 | × | 11.5 | 19.6 | 72 | × |
| ピランテル | 207→150 | + | 6.85 | 90.4 | 85.8 | 553 | ○ | 84.6 | 100.3 | 430 | ○ | 108.5 | 102.1 | 873 | × | 87.8 | 74.8 | 417 | × | 88.0 | 80.9 | 483 | ○ |
| オフロキサシン | 362→318 | + | 6.87 | 129.3 | 89.0 | 142 | × | 107.5 | 92.8 | 76 | ○ | 95.4 | 95.8 | 214 | ○ | 100.5 | 89.6 | 255 | ○ | 58.6 | 54.8 | 131 | × |
| スルファチアゾール | 257→156 | + | 6.94 | 72.9 | 71.4 | 161 | ○ | 98.8 | 97.0 | 99 | ○ | 103.1 | 96.3 | 193 | ○ | 93.4 | 88.9 | 164 | ○ | 41.8 | 47.2 | 163 | × |
| シプロフロキサシン | 332→288 | + | 6.98 | 79.4 | 52.6 | 50 | × | 61.0 | 53.5 | 71 | × | 83.7 | 65.9 | 92 | × | 60.4 | 70.0 | 53 | × | 0.0 | 27.0 | 59 | × |
| オルメトプリム | 275→123 | + | 6.99 | 91.0 | 82.4 | 730 | ○ | 91.9 | 74.0 | 347 | ○ | 62.1 | 88.2 | 673 | × | 87.6 | 94.1 | 357 | × | 59.3 | 48.9 | 410 | × |
| ダノフロキサシン | 358→82 | + | 7.17 | 90.7 | 102.2 | 46 | ○ | 110.2 | 91.1 | 33 | ○ | 117.4 | 87.2 | 38 | × | 79.1 | 87.0 | 26 | ○ | 56.1 | 51.4 | 52 | × |
| スルファピリジン | 250→156 | + | 7.19 | 75.7 | 100.1 | 210 | ○ | 90.5 | 81.3 | 192 | ○ | 75.9 | 91.4 | 347 | ○ | 85.2 | 89.3 | 145 | ○ | 21.4 | 45.0 | 207 | × |
| エンロフロキサシン | 360→316 | + | 7.36 | 117.9 | 115.6 | 259 | ○ | 91.9 | 72.0 | 212 | ○ | 106.6 | 100.0 | 207 | ○ | 96.4 | 92.5 | 126 | ○ | 71.1 | 76.3 | 161 | × |
| アザペロン | 328→123 | + | 7.43 | 89.1 | 95.8 | 1287 | ○ | 94.2 | 95.2 | 617 | ○ | 93.9 | 96.3 | 840 | ○ | 80.7 | 83.2 | 397 | ○ | 13.7 | 52.4 | 700 | × |
| オルビフロキサシン | 396→352 | + | 7.51 | 77.9 | 79.8 | 370 | ○ | 74.4 | 77.8 | 233 | ○ | 79.0 | 90.1 | 360 | ○ | 79.5 | 94.0 | 173 | ○ | 87.7 | 90.5 | 270 | ○ |
| メシリナム | 326→167 | + | 7.55 | 0.0 | 0.0 | 1100 | × | 288.0 | 0.0 | 303 | × | 231.2 | 9.1 | 347 | × | 32.8 | 38.5 | 287 | × | 20.4 | 8.6 | 373 | × |
| スルファメラジン | 265→92 | + | 7.58 | 70.6 | 86.3 | 88 | ○ | 89.4 | 94.6 | 109 | ○ | 82.2 | 107.4 | 109 | ○ | 91.8 | 78.5 | 59 | ○ | 47.4 | 49.5 | 156 | × |
| サラフロキサシン | 386→299 | + | 7.85 | 91.4 | 77.9 | 205 | ○ | 87.8 | 72.4 | 198 | ○ | 79.5 | 73.9 | 144 | ○ | 80.7 | 85.1 | 117 | ○ | 67.3 | 72.9 | 201 | × |
| ジフロキサシン | 400→356 | + | 7.93 | 90.2 | 116.7 | 123 | ○ | 98.4 | 84.2 | 64 | ○ | 96.3 | 107.0 | 94 | ○ | 98.0 | 88.8 | 173 | ○ | 93.8 | 90.6 | 104 | × |
| モランテル | 221→123 | + | 7.94 | 90.7 | 88.1 | 427 | ○ | 94.2 | 93.5 | 327 | ○ | 94.9 | 95.8 | 503 | × | 84.4 | 92.1 | 148 | ○ | 90.0 | 117.4 | 467 | ○ |
| チアンフェニコール | 353→185 | − | 8.08 | 105.4 | 108.2 | 53 | ○ | 115.3 | 97.4 | 62 | ○ | 96.2 | 103.0 | 117 | ○ | 90.2 | 90.3 | 88 | ○ | 97.1 | 99.4 | 84 | ○ |
| スルファジミジン | 279→ 92 | + | 8.36 | 77.2 | 85.3 | 937 | ○ | 92.6 | 82.2 | 241 | ○ | 86.2 | 93.4 | 266 | ○ | 94.1 | 86.9 | 161 | ○ | 42.6 | 20.8 | 407 | × |
| スルファメトキシピリダジン | 281→156 | + | 8.45 | 73.8 | 91.9 | 463 | ○ | 102.2 | 82.6 | 256 | ○ | 56.0 | 94.9 | 400 | × | 95.6 | 83.3 | 240 | ○ | 35.7 | 47.4 | 740 | × |
| ピリメタミン | 249→177 | + | 8.77 | 82.6 | 84.1 | 543 | ○ | 59.1 | 54.8 | 271 | × | 59.4 | 82.2 | 30 | × | 60.0 | 73.9 | 231 | × | 72.0 | 75.5 | 299 | × |
| チルミコシン | 435→174 | + | 8.89 | 93.9 | 89.9 | 175 | ○ | 99.0 | 94.7 | 108 | ○ | 86.5 | 97.8 | 117 | × | 93.9 | 93.8 | 91 | × | 80.1 | 74.7 | 159 | × |
| アクロミド | 201→138 | + | 8.95 | 89.0 | 100.0 | 68 | ○ | 92.3 | 102.7 | 47 | ○ | 91.9 | 100.4 | 72 | ○ | 88.0 | 75.8 | 21 | × | 103.6 | 87.5 | 41 | ○ |
| スルファモノメトキシン | 281→156 | + | 9.12 | 86.2 | 87.5 | 497 | ○ | 102.6 | 87.0 | 147 | ○ | 73.8 | 98.2 | 182 | ○ | 87.5 | 89.4 | 159 | ○ | 45.0 | 58.0 | 285 | × |
| オキシベンダゾール | 250→176 | + | 9.20 | 78.3 | 83.0 | 1217 | ○ | 40.0 | 34.1 | 1230 | × | 99.3 | 86.2 | 142 | ○ | 82.2 | 82.2 | 730 | ○ | 93.2 | 101.1 | 433 | ○ |
| クロルヘキシジン | 505→170 | + | 9.41 | 26.6 | 3.4 | 24 | × | 0.0 | 0.2 | 5 | × | 92.5 | 9.7 | 13 | × | 1.1 | 7.5 | 30 | × | 44.9 | 17.4 | 19 | × |
| スルファクロルピリダジン | 285→156 | + | 9.46 | 72.0 | 81.4 | 94 | ○ | 90.8 | 87.2 | 133 | ○ | 83.6 | 79.2 | 193 | × | 83.0 | 85.9 | 210 | ○ | 41.4 | 53.5 | 284 | × |
| スルファドキシン | 311→156 | + | 9.89 | 72.6 | 89.4 | 563 | ○ | 94.3 | 86.2 | 580 | ○ | 82.6 | 89.2 | 643 | ○ | 94.1 | 94.8 | 370 | × | 35.4 | 40.7 | 943 | × |
| スルファメトキサゾール | 254→156 | + | 9.94 | 79.3 | 85.8 | 161 | ○ | 98.5 | 92.3 | 117 | ○ | 83.4 | 96.2 | 126 | ○ | 87.1 | 87.8 | 238 | ○ | 44.9 | 52.2 | 380 | × |
| エリスロマイシン | 734→158 | + | 10.00 | 82.7 | 82.1 | 797 | ○ | 85.5 | 87.5 | 580 | ○ | 103.7 | 86.7 | 1177 | ○ | 87.5 | 80.5 | 383 | ○ | 20.3 | 16.3 | 587 | × |
| 2-アセチルアミノ-5-ニトロチアゾール | 186→139 | − | 10.10 | 104.6 | 81.1 | 520 | ○ | 92.3 | 74.9 | 427 | ○ | 81.4 | 91.3 | 957 | ○ | 78.7 | 94.0 | 980 | × | 97.5 | 98.0 | 1173 | ○ |
| フロルフェニコール | 356→185 | − | 10.10 | 106.2 | 109.3 | 301 | ○ | 98.9 | 99.0 | 210 | ○ | 98.1 | 99.0 | 291 | ○ | 99.2 | 96.8 | 347 | ○ | 105.6 | 110.8 | 330 | ○ |
| タイロシン | 917→174 | + | 10.40 | 42.8 | 68.8 | 71 | × | 78.2 | 75.6 | 61 | ○ | 53.3 | 88.2 | 96 | × | 54.4 | 62.5 | 58 | × | 74.3 | 83.5 | 51 | ○ |
| オキソリニック酸 | 262→160 | + | 10.50 | 88.7 | 87.6 | 35 | ○ | 86.3 | 79.0 | 13 | ○ | 71.6 | 94.6 | 25 | ○ | 94.4 | 89.0 | 39 | ○ | 106.5 | 99.3 | 22 | × |
| ミロキサシン | 264→215 | + | 10.50 | 36.3 | 47.2 | 182 | × | 48.4 | 47.4 | 163 | × | 20.8 | 6.7 | 216 | × | 69.1 | 60.8 | 118 | × | 51.0 | 68.2 | 263 | × |
| チアムリン | 494→192 | + | 10.80 | 89.4 | 111.0 | 3533 | ○ | 100.1 | 93.6 | 1167 | ○ | 73.9 | 102.2 | 2797 | ○ | 93.6 | 80.7 | 2120 | ○ | 79.1 | 93.0 | 3063 | ○ |
| エトパベート | 236→192 | − | 11.00 | 94.3 | 95.5 | 16 | ○ | 105.6 | 91.4 | 7 | × | 91.5 | 99.3 | 249 | ○ | 72.6 | 97.8 | 199 | × | 96.0 | 96.3 | 151 | ○ |
| スルファベンズアミド | 277→156 | + | 11.00 | 75.0 | 85.4 | 547 | ○ | 89.4 | 82.6 | 205 | ○ | 57.7 | 83.5 | 209 | × | 91.8 | 81.6 | 483 | × | 49.0 | 44.8 | 490 | × |
| スルファキノキサリン | 301→156 | + | 11.20 | 96.3 | 85.9 | 169 | ○ | 88.6 | 88.0 | 116 | ○ | 64.1 | 83.9 | 164 | × | 87.4 | 92.0 | 271 | ○ | 38.8 | 46.5 | 166 | × |
| スルファジメトキシン | 311→156 | + | 11.20 | 76.6 | 87.2 | 780 | ○ | 91.7 | 84.5 | 322 | ○ | 80.6 | 93.1 | 550 | ○ | 86.5 | 85.2 | 483 | ○ | 44.6 | 56.1 | 823 | × |
| ジョサマイシン | 828→109 | + | 11.60 | 90.1 | 97.4 | 1153 | ○ | 87.5 | 97.0 | 490 | ○ | 72.1 | 86.0 | 2057 | ○ | 83.6 | 88.8 | 387 | ○ | 89.1 | 85.5 | 1333 | ○ |
| メベンダゾール | 296→264 | + | 11.60 | 86.4 | 86.5 | 427 | ○ | 57.5 | 50.6 | 620 | × | 97.4 | 91.0 | 1257 | ○ | 112.4 | 96.1 | 1100 | × | 91.8 | 107.2 | 1313 | ○ |
| ロベニジン | 334→155 | + | 11.90 | 11.7 | 5.9 | 520 | × | 21.2 | 8.4 | 97 | × | 41.3 | 34.8 | 280 | × | 21.0 | 26.1 | 343 | × | 72.3 | 90.5 | 443 | ○ |
| メチルプレドニゾロン | 375→339 | + | 12.20 | 90.2 | 92.6 | 70 | ○ | 87.1 | 83.9 | 2 | × | 77.9 | 62.8 | 15 | × | 94.3 | 95.6 | 44 | × | 96.0 | 105.8 | 8 | × |
| ナリジクス酸 | 233→187 | + | 12.40 | 92.1 | 92.6 | 216 | ○ | 80.6 | 74.5 | 79 | ○ | 88.8 | 95.7 | 183 | ○ | 121.5 | 88.2 | 147 | × | 92.6 | 101.5 | 200 | ○ |
| スルファニトラン | 336→134 | + | 12.60 | 83.5 | 95.8 | 59 | ○ | 96.2 | 88.5 | 3 | × | 88.6 | 96.2 | 52 | ○ | 92.1 | 90.5 | 89 | ○ | 89.9 | 106.2 | 46 | ○ |
| フルメキン | 262→202 | + | 12.70 | 85.4 | 94.8 | 277 | ○ | 96.9 | 106.5 | 166 | ○ | 101.0 | 98.6 | 350 | ○ | 98.4 | 89.4 | 327 | ○ | 93.4 | 100.5 | 353 | ○ |
| ニトロキシニル | 289→127 | − | 14.80 | 103.6 | 87.6 | 960 | ○ | 98.4 | 90.6 | 1110 | ○ | 87.6 | 74.6 | 1630 | ○ | 90.4 | 92.0 | 1560 | ○ | 95.2 | 100.1 | 1377 | ○ |
| リファキシミン | 786→754 | + | 15.60 | 83.9 | 84.1 | 234 | × | 74.4 | 77.2 | 225 | × | 164.2 | 87.6 | 231 | × | 117.4 | 95.6 | 113 | × | 95.0 | 97.6 | 167 | × |
| ナイカルバジン | 301→137 | − | 15.70 | 83.1 | 73.7 | 2557 | ○ | 4.2 | 35.8 | 2240 | × | 0.8 | 59.0 | 3800 | × | 53.5 | 57.0 | 5967 | × | 97.8 | 96.7 | 4833 | ○ |
| ジクラズリル | 405→334 | − | 16.80 | 70.6 | 70.8 | 593 | ○ | 2.1 | 26.1 | 587 | × | 30.7 | 57.6 | 1227 | × | 45.7 | 57.5 | 530 | × | 88.0 | 90.9 | 1160 | ○ |
| ジフルベンズロン | 311→141 | + | 16.90 | 40.4 | 53.6 | 126 | × | 39.3 | 27.7 | 19 | × | 61.4 | 55.7 | 156 | × | 69.0 | 60.6 | 222 | × | 85.4 | 90.9 | 239 | ○ |
| ノボビオシン | 611→205 | − | 17.30 | 72.5 | 71.8 | 530 | ○ | 40.2 | 27.4 | 307 | × | 31.4 | 47.6 | 693 | × | 57.5 | 60.3 | 640 | × | 86.8 | 78.6 | 1353 | ○ |
| エプリノメクチンB1a | 914→186 | + | 21.00 | 77.3 | 86.7 | 2320 | × | 58.8 | 55.1 | 1147 | × | 48.0 | 75.6 | 513 | × | 67.0 | 83.3 | 1340 | × | 80.6 | 87.9 | 1683 | ○ |
| クロサンテル | 660→127 | − | 25.30 | 0.0 | 18.3 | 2 | × | 0.0 | 0.0 | 1100 | × | 0.0 | 5.2 | 179 | × | 12.7 | 22.6 | 2 | × | 0.0 | 42.3 | 59 | × |
| **適合項目数** | | | | 53 | | | | 46 | | | | 38 | | | | 39 | | | | 24 | | | |

（網掛け）併行精度または室内精度が目標値を満たさなかったもの　（下線）選択性が目標値を満たさなかったもの

５分間遠心分離した．アセトニトリル層を合わせ，n-プロパノール10 mLを加えて，40℃以下で濃縮し溶媒を除去した．得られた残留物に40%アセトニトリル水溶液2.0mLを加えて溶かした．1mLを分取しアセトニトリル飽和n-ヘキサン0.5mLを積層して毎分13,000回転で５分間遠心分離し，アセトニトリル－水層を分取し試験溶液とした．

５．検量線の作成

定量に用いる検量線はマトリックス添加標準溶液を用いて作成した．畜水産物毎に，あらかじめ評価対象の薬剤を含まないことを確認した試料（以下，ブランク試料）を用いて「４.試験溶液の調製」に従い抽出操作を行い，溶媒除去後の残留物に40%アセトニトリル水溶液1.0mLを加えて溶かした．これにアセトニトリル飽和n-ヘキサン0.5mLを積層して毎分13,000回転で５分間遠心分離し，分取したアセトニトリル－水層をマトリックス溶液とした．これに混合標準溶液を（１：１）になるように加えマトリックス添加標準溶液とした．検量線は，添加濃度を100%としたときの50，75，100，125，150%の５濃度で作成した，相関係数0.99以上の直線検量線とした．

６．妥当性評価

畜水産物毎に，ブランク試料に評価する薬剤を添加し試験法に従って分析し，その結果から評価する性能パラメータを求め，それぞれの目標値に適合しているかどうか評価した．試料への薬剤の添加濃度は検体中濃度で0.1及び0.01ppmの２点とした．ガイドラインで示された性能パラメーター及びその目標値を表２に示した．

表２　妥当性評価の性能パラメーターおよび目標値

| 性能パラメーター | 目標値 |
|---|---|
| 1. 真度（試行回数 5回） | 70～120% |
| 2. 精度（自由度 4以上） | 添加濃度 0.01ppmのとき　併行精度 25%未満　室内精度 30%未満<br>添加濃度 0.1ppmのとき　併行精度 15%未満　室内精度 20%未満 |
| 3. 定量限界 | 定量限界濃度に相当するマトリックス標準溶液から得られるピークはS/N比≧10であること |
| 4. 選択性 | ① 定量限界≦基準値の1/3のとき　妨害ピークの許容範囲＜基準値濃度に相当するピークの1/10<br>② 定量限界＞基準値の1/3のとき　妨害ピークの許容範囲＜定量限界濃度に相当するピークの1/3<br>③ 基準値が「不検出」のとき　妨害ピークの許容範囲＜定量限界濃度に相当するピークの1/3 |

## 結果および考察

１．マトリックスの影響の評価

食品におけるLC-MS/MS の分析では，試料中のマトリックスが目的成分のイオン化に影響を与えることが懸念される．そこで試料中に含まれるマトリックスが測定に与える影響について評価した．

試料中濃度0.1及び0.01ppmに相当するマトリックス添加標準溶液及び混合標準溶液を用いて，マトリックス添加標準溶液の混合標準溶液に対するピーク面積の比（以下，マトリックスファクター；MF）を求め，結果を表３に示した．マトリックスの影響についての評価は，MF＜0.8の場合はイオン化抑制あり，MF＞1.2の場合はイオン化促進ありとした[4)]．保持時間の短いアンプロリウム，スルファグアニジンでは，強いイオン化抑制がみられた．一方，マルボフロキサシン，ノルフロキサシン，シプロフロキサシン，ダノフロキサシン等キノロン系薬剤で強いイオン化促進がみられた．いずれの品目でもマトリックスの影響を受ける薬剤があることから，定量値に影響を与えることが推測されたため，定量にはマトリックス添加標準溶液による検量線を用いることとした．

２．妥当性評価

評価した性能パラメーターのうち，真度試験結果及び定量限界濃度に相当するマトリックス添加標準溶液のピークの*S/N*比を表１に示した．また，併行精度または室内精度が目標値を満たさなかったものは，表１の該当する欄を塗りつぶして表示した．選択性については，目標値を満たさなかった場合は該当する欄に下線を付した．定量限界と基準値の関係から，表２に示した選択性の目標値（①～③）のうち，5-プロピルスルホニル-1H-ベンズイミダゾール-2-アミン（牛筋肉）は①，メチルプレドニゾロン（サケ）は②，リファキシミン（豚筋肉，鶏卵，乳，エビ，サケ，ウナギ白焼き，イカ，はちみつ）は③に該当し，それぞれの食品由来の妨害ピークが許容範囲を超えていた．真度，精度，選択性，定量限界の各性能パラメーターが全て目標値を満たした場合は，表１の判定欄に○を，目標を満たさなかった場合は×を記した．評価した動物用医薬品68項目中，各品目毎の適合項目数はエビが最多で53項目，はちみつが最少で24項目で

## 表 3 マトリックスの影響の評価

| 分析対象薬剤 | 保持時間 | マトリックス ファクター | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| | | 牛筋肉 | | 豚筋肉 | | 鶏筋肉 | | 鶏卵 | | 乳 | | エビ | | サケ | | ウナギ(白焼き) | | イカ | | はちみつ | |
| | | 0.01 | 0.1 | 0.01 | 0.1 | 0.01 | 0.1 | 0.01 | 0.1 | 0.01 | 0.1 | 0.01 | 0.1 | 0.01 | 0.1 | 0.01 | 0.1 | 0.01 | 0.1 | 0.01 | 0.1 |
| アンプロリウム | 1.76 | 0.04 | 0.08 | 0.04 | 0.07 | 0.06 | 0.08 | 0.27 | 0.36 | 0.05 | 0.10 | 0.02 | 0.02 | 0.03 | 0.03 | 0.04 | 0.10 | 0.00 | 0.01 | 0.21 | 0.40 |
| スルファグアニジン | 2.17 | 0.13 | 0.28 | 0.17 | 0.29 | 0.15 | 0.31 | 0.22 | 0.26 | 0.20 | 0.36 | 0.18 | 0.27 | 0.23 | 0.34 | 0.13 | 0.19 | 0.17 | 0.22 | 0.46 | 0.61 |
| オラキンドックス | 5.39 | 0.27 | 0.55 | 0.50 | 0.47 | 0.38 | 0.68 | 0.52 | 0.65 | 0.55 | 0.72 | 0.88 | 0.88 | 0.68 | 0.82 | 0.35 | 0.46 | 0.30 | 0.41 | 0.37 | 0.51 |
| 5-ヒドロキシチアベンダゾール | 5.70 | 0.85 | 0.59 | 0.93 | 0.85 | 1.08 | 0.93 | 1.81 | 1.18 | 1.73 | 1.04 | 1.02 | 0.75 | 0.91 | 0.58 | 0.88 | 0.79 | 1.11 | 1.01 | 0.62 | 0.89 |
| スルファセタミド | 5.93 | 0.72 | 0.56 | 0.88 | 0.88 | 0.88 | 0.71 | 0.94 | 0.94 | 1.07 | 1.09 | 0.55 | 0.60 | 0.56 | 0.65 | 0.65 | 0.68 | 0.59 | 0.68 | 0.69 | 0.82 |
| レバミゾール | 5.96 | 0.73 | 0.67 | 0.90 | 0.87 | 0.81 | 0.96 | 0.87 | 0.90 | 1.01 | 0.98 | 0.84 | 0.83 | 0.70 | 0.72 | 0.71 | 0.74 | 0.38 | 0.47 | 0.82 | 1.02 |
| 5-プロピルスルホニル-1H-ベンズイミダゾール-2-アミン | 6.16 | 2.28 | 0.89 | 0.96 | 0.81 | 1.44 | 0.93 | 1.06 | 1.04 | 0.86 | 1.06 | 0.92 | 0.90 | 0.84 | 0.87 | 0.96 | 0.94 | 0.82 | 0.80 | 1.06 | 1.08 |
| リンコマイシン | 6.16 | 1.95 | 1.03 | 1.21 | 1.12 | 1.27 | 1.01 | 1.02 | 1.24 | 1.17 | 1.58 | 0.99 | 0.98 | 0.95 | 0.91 | 1.16 | 0.94 | 1.43 | 0.98 | 2.01 | 1.49 |
| ジアベリジン | 6.27 | 0.45 | 0.75 | 0.75 | 1.30 | 0.65 | 0.77 | 0.95 | 0.86 | 0.71 | 0.80 | 0.66 | 0.68 | 0.54 | 0.63 | 0.52 | 0.78 | 0.38 | 0.63 | 1.15 | 1.08 |
| チアベンダゾール | 6.36 | 0.91 | 0.63 | 0.83 | 1.00 | 1.02 | 0.96 | 1.47 | 0.97 | 0.76 | 1.02 | 0.88 | 0.95 | 0.63 | 0.78 | 0.65 | 0.82 | 0.57 | 0.78 | 1.10 | 1.04 |
| クロピドール | 6.43 | 0.51 | 0.66 | 0.97 | 1.08 | 0.82 | 0.98 | 1.69 | 0.93 | 0.83 | 0.98 | 0.92 | 0.86 | 0.66 | 0.71 | 0.69 | 0.77 | 0.36 | 0.61 | 0.91 | 0.96 |
| スルファジアジン | 6.51 | 0.53 | 0.77 | 0.88 | 0.88 | 0.73 | 0.98 | 0.74 | 1.07 | 0.92 | 0.99 | 0.88 | 0.96 | 0.69 | 0.89 | 0.55 | 0.80 | 0.42 | 0.87 | 0.85 | 1.17 |
| トリメトプリム | 6.64 | 0.71 | 0.78 | 1.14 | 0.98 | 1.24 | 0.84 | 0.89 | 1.10 | 0.78 | 0.93 | 0.92 | 0.82 | 0.69 | 0.70 | 0.86 | 0.89 | 0.48 | 0.63 | 0.93 | 1.10 |
| マルボフロキサシン | 6.65 | 1.29 | 0.90 | 1.47 | 1.12 | 1.89 | 1.38 | 1.19 | 1.24 | 1.12 | 1.51 | 1.56 | 1.02 | 1.20 | 0.96 | 0.74 | 1.09 | 1.21 | 0.96 | 1.28 | 1.15 |
| ノルフロキサシン | 6.84 | 4.68 | 1.95 | 2.19 | 1.97 | 4.11 | 2.30 | 1.79 | 2.07 | 1.53 | 1.99 | 2.38 | 1.57 | 1.98 | 1.57 | 1.41 | 1.59 | 1.48 | 1.44 | 3.93 | 1.54 |
| ピランテル | 6.85 | 0.85 | 0.89 | 1.06 | 0.87 | 0.79 | 0.92 | 1.22 | 1.12 | 1.03 | 0.93 | 0.99 | 0.93 | 0.88 | 0.78 | 0.97 | 0.91 | 0.59 | 0.72 | 1.06 | 1.11 |
| オフロキサシン | 6.87 | 1.59 | 1.01 | 1.20 | 1.06 | 2.90 | 1.59 | 1.52 | 1.31 | 1.47 | 1.45 | 1.28 | 1.03 | 0.96 | 0.89 | 0.98 | 0.95 | 0.96 | 0.97 | 0.78 | 1.00 |
| スルファチアゾール | 6.94 | 0.80 | 0.95 | 1.07 | 0.99 | 1.10 | 0.97 | 1.07 | 1.01 | 1.12 | 1.11 | 1.03 | 1.03 | 0.86 | 1.08 | 0.67 | 0.79 | 0.54 | 0.79 | 0.75 | 1.06 |
| シプロフロキサシン | 6.98 | 3.80 | 1.73 | 2.15 | 1.70 | 5.59 | 1.67 | 1.61 | 1.87 | 1.37 | 1.12 | 1.89 | 1.51 | 1.62 | 1.63 | 1.41 | 1.57 | 0.98 | 1.26 | 2.81 | 2.00 |
| オルメトプリム | 6.99 | 1.64 | 0.96 | 1.14 | 0.98 | 1.51 | 1.13 | 1.05 | 1.47 | 0.88 | 1.13 | 0.84 | 0.95 | 0.67 | 0.85 | 0.80 | 1.01 | 0.43 | 0.69 | 1.02 | 1.50 |
| ダノフロキサシン | 7.17 | 3.69 | 2.16 | 2.00 | 2.11 | 7.55 | 3.12 | 1.53 | 1.92 | 2.11 | 2.06 | 7.95 | 2.04 | 4.61 | 2.02 | 1.78 | 1.23 | 0.99 | 1.00 | 3.01 | 1.22 |
| スルファピリジン | 7.19 | 0.99 | 1.03 | 0.93 | 1.11 | 1.26 | 1.18 | 1.14 | 1.12 | 0.84 | 1.02 | 1.20 | 1.12 | 1.05 | 1.11 | 0.55 | 0.77 | 0.67 | 0.87 | 0.82 | 1.08 |
| エンロフロキサシン | 7.36 | 1.37 | 1.19 | 1.16 | 1.14 | 1.81 | 1.35 | 1.09 | 1.35 | 1.47 | 1.37 | 1.39 | 1.11 | 1.24 | 1.06 | 1.15 | 0.98 | 0.99 | 1.10 | 1.51 | 1.16 |
| アザペロン | 7.43 | 0.72 | 0.94 | 1.02 | 1.26 | 0.75 | 0.95 | 1.06 | 1.01 | 0.85 | 1.11 | 0.81 | 0.92 | 0.68 | 0.82 | 0.67 | 1.06 | 0.28 | 0.59 | 0.76 | 1.33 |
| オルビフロキサシン | 7.51 | 1.36 | 0.80 | 1.34 | 1.14 | 1.25 | 0.99 | 1.43 | 1.38 | 1.09 | 1.18 | 0.85 | 0.98 | 0.81 | 0.82 | 1.02 | 0.83 | 0.88 | 0.85 | 1.05 | 1.01 |
| メシリナム | 7.55 | 0.78 | 1.16 | 1.23 | 1.35 | 1.02 | 1.12 | 0.85 | 0.89 | 1.43 | 1.20 | 1.01 | 1.11 | 0.89 | 0.89 | 1.21 | 1.01 | 0.81 | 1.05 | 0.98 | 1.06 |
| スルファメラジン | 7.58 | 0.66 | 0.95 | 0.86 | 0.94 | 0.97 | 1.09 | 1.01 | 0.92 | 0.86 | 1.14 | 1.29 | 1.07 | 0.92 | 0.99 | 0.59 | 0.77 | 0.61 | 0.76 | 0.58 | 0.80 |
| サラフロキサシン | 7.85 | 1.74 | 0.97 | 1.38 | 1.08 | 2.32 | 2.17 | 1.03 | 1.20 | 2.09 | 0.95 | 1.14 | 1.04 | 1.07 | 0.97 | 0.97 | 1.04 | 1.10 | 1.06 | 1.28 | 1.44 |
| ジフロキサシン | 7.93 | 1.32 | 1.02 | 0.96 | 1.21 | 1.59 | 1.08 | 1.54 | 1.15 | 0.87 | 1.30 | 1.08 | 0.90 | 0.90 | 0.93 | 0.88 | 0.93 | 0.93 | 0.96 | 1.72 | 1.12 |
| モランテル | 7.94 | 0.96 | 0.96 | 1.68 | 1.04 | 1.12 | 1.18 | 1.09 | 1.15 | 0.98 | 0.94 | 1.15 | 1.04 | 1.15 | 1.04 | 1.34 | 1.04 | 0.61 | 0.76 | 1.67 | 1.25 |
| チアンフェニコール | 8.08 | 1.15 | 0.93 | 0.89 | 0.97 | 0.99 | 1.01 | 0.86 | 0.84 | 0.72 | 0.71 | 0.91 | 0.86 | 0.97 | 0.85 | 0.76 | 0.78 | 0.88 | 0.95 | 0.78 | 0.74 |
| スルファジミジン | 8.36 | 0.71 | 0.93 | 0.92 | 1.06 | 1.09 | 1.18 | 1.01 | 1.43 | 1.27 | 1.03 | 1.48 | 1.18 | 1.11 | 1.01 | 0.62 | 0.84 | 0.59 | 0.76 | 0.72 | 1.10 |
| スルファメトキシピリダジン | 8.45 | 0.91 | 0.94 | 1.23 | 1.08 | 1.13 | 1.38 | 0.94 | 1.11 | 1.17 | 1.08 | 1.22 | 1.16 | 0.94 | 1.06 | 0.60 | 0.84 | 0.52 | 0.86 | 0.92 | 1.15 |
| ピリメタミン | 8.77 | 1.50 | 0.88 | 1.11 | 0.96 | 1.70 | 1.00 | 1.29 | 1.15 | 1.25 | 1.05 | 0.82 | 0.90 | 0.75 | 0.81 | 0.74 | 0.78 | 0.60 | 0.80 | 1.01 | 1.12 |
| チルミコシン | 8.89 | 0.96 | 1.38 | 1.29 | 1.21 | 1.56 | 0.96 | 5.10 | 1.09 | 1.31 | 1.38 | 3.78 | 1.10 | 2.99 | 0.99 | 2.36 | 1.20 | 1.06 | 1.19 | 3.58 | 1.52 |
| アクロミド | 8.95 | 0.69 | 0.76 | 0.92 | 0.74 | 0.77 | 0.93 | 0.93 | 0.90 | 0.73 | 0.81 | 0.93 | 0.88 | 0.58 | 0.60 | 0.69 | 0.64 | 0.80 | 0.85 | 0.58 | 0.56 |
| スルファモノメトキシン | 9.12 | 1.07 | 1.13 | 1.01 | 1.10 | 1.05 | 1.05 | 1.11 | 1.09 | 1.00 | 0.92 | 0.95 | 0.92 | 0.79 | 0.89 | 0.73 | 0.81 | 0.79 | 0.93 | 0.71 | 1.13 |
| オキシベンダゾール | 9.20 | 0.97 | 0.96 | 0.91 | 1.11 | 1.16 | 1.05 | 0.97 | 0.96 | 0.99 | 1.08 | 0.94 | 0.91 | 0.72 | 0.81 | 0.83 | 0.91 | 0.68 | 0.84 | 1.41 | 1.19 |
| クロルヘキシジン | 9.41 | 6.21 | 1.47 | 5.73 | 1.63 | 6.46 | 1.28 | 2.29 | 1.35 | 7.01 | 1.30 | 20.36 | 1.66 | 12.17 | 1.20 | 2.92 | 1.04 | 0.71 | 0.70 | 5.96 | 0.96 |
| スルファクロルピリダジン | 9.46 | 0.91 | 0.94 | 1.14 | 1.08 | 0.89 | 1.82 | 0.73 | 0.96 | 1.08 | 1.19 | 0.99 | 0.96 | 0.70 | 0.76 | 0.58 | 0.66 | 0.74 | 0.86 | 0.91 | 1.09 |
| スルファドキシン | 9.89 | 0.81 | 1.06 | 0.94 | 1.27 | 0.99 | 1.21 | 1.08 | 0.92 | 1.01 | 1.04 | 1.03 | 1.02 | 0.74 | 0.89 | 0.61 | 0.84 | 0.71 | 0.89 | 0.86 | 1.29 |
| スルファメトキサゾール | 9.94 | 0.90 | 0.83 | 0.83 | 0.90 | 1.14 | 1.04 | 1.02 | 1.05 | 0.99 | 0.97 | 0.83 | 0.86 | 0.68 | 0.76 | 0.73 | 0.72 | 0.72 | 0.94 | 0.91 | 0.95 |
| エリスロマイシン | 10.00 | 0.71 | 0.78 | 1.13 | 1.08 | 1.16 | 0.89 | 1.00 | 0.93 | 1.24 | 1.05 | 1.14 | 0.95 | 1.11 | 0.94 | 1.17 | 1.06 | 0.59 | 0.68 | 0.74 | 0.82 |
| 2-アセチルアミノ-5-ニトロチアゾール | 10.10 | 1.08 | 1.04 | 1.24 | 1.04 | 1.00 | 1.06 | 0.85 | 0.86 | 0.98 | 0.98 | 1.00 | 0.97 | 0.88 | 0.85 | 1.01 | 0.96 | 1.11 | 1.03 | 0.88 | 0.89 |
| フロルフェニコール | 10.10 | 1.42 | 1.16 | 1.53 | 1.13 | 1.08 | 1.10 | 1.07 | 0.99 | 1.11 | 1.00 | 1.12 | 1.04 | 1.27 | 1.00 | 1.24 | 1.02 | 1.11 | 0.96 | 1.03 | 1.00 |
| タイロシン | 10.40 | 0.88 | 1.22 | 1.58 | 1.25 | 1.39 | 1.10 | 1.25 | 1.00 | 1.40 | 1.24 | 1.37 | 1.18 | 1.65 | 1.26 | 1.32 | 1.24 | 0.63 | 0.60 | 1.00 | 1.02 |
| オキソリニック酸 | 10.50 | 0.97 | 0.88 | 1.01 | 1.16 | 1.24 | 1.18 | 0.93 | 1.12 | 0.95 | 1.05 | 0.91 | 1.00 | 0.62 | 0.67 | 1.01 | 0.80 | 0.74 | 0.83 | 0.84 | 0.93 |
| ミロキサシン | 10.50 | 1.33 | 1.11 | 1.19 | 1.13 | 1.10 | 1.16 | 0.82 | 1.18 | 1.10 | 1.08 | 1.02 | 1.04 | 0.95 | 1.02 | 1.03 | 0.94 | 0.78 | 0.90 | 1.14 | 1.19 |
| チアムリン | 10.80 | 1.25 | 0.88 | 1.09 | 1.04 | 1.79 | 1.21 | 1.03 | 0.97 | 0.69 | 0.83 | 1.07 | 1.00 | 0.69 | 0.76 | 0.93 | 0.86 | 0.75 | 0.75 | 0.76 | 1.19 |
| エトパベート | 11.00 | 0.77 | 0.79 | 0.89 | 0.77 | 0.95 | 0.97 | 0.95 | 0.91 | 0.99 | 0.96 | 0.97 | 0.91 | 0.48 | 0.46 | 0.81 | 0.76 | 0.99 | 0.91 | 0.48 | 0.49 |
| スルファベンズアミド | 11.00 | 0.96 | 0.89 | 0.87 | 0.97 | 0.99 | 1.04 | 1.14 | 1.06 | 0.99 | 1.03 | 0.92 | 0.91 | 0.48 | 0.60 | 0.64 | 0.75 | 0.76 | 0.97 | 1.09 | 1.22 |
| スルファキノキサリン | 11.20 | 1.76 | 1.13 | 1.39 | 1.14 | 1.43 | 1.22 | 1.47 | 1.19 | 0.93 | 0.95 | 0.85 | 1.17 | 1.22 | 1.57 | 0.97 | 0.93 | 0.80 | 0.88 | 1.68 | 1.57 |
| スルファジメトキシン | 11.20 | 0.82 | 1.02 | 0.93 | 1.04 | 0.90 | 1.01 | 1.31 | 1.16 | 1.01 | 1.01 | 1.03 | 0.98 | 0.80 | 0.87 | 0.76 | 0.80 | 0.68 | 0.83 | 0.73 | 0.94 |
| ジョサマイシン | 11.60 | 0.75 | 0.99 | 1.00 | 0.98 | 1.11 | 1.04 | 0.91 | 0.98 | 0.80 | 0.87 | 0.94 | 0.99 | 0.90 | 0.83 | 1.02 | 1.01 | 0.54 | 0.70 | 1.01 | 0.97 |
| メベンダゾール | 11.60 | 1.04 | 0.96 | 1.08 | 0.98 | 1.02 | 1.04 | 1.13 | 1.10 | 1.24 | 1.11 | 0.96 | 0.98 | 0.88 | 0.91 | 1.08 | 0.87 | 0.80 | 0.93 | 1.11 | 1.14 |
| ロベニジン | 11.90 | 0.98 | 1.01 | 0.91 | 1.02 | 1.24 | 1.14 | 0.94 | 1.05 | 0.85 | 1.01 | 1.01 | 1.05 | 0.65 | 0.80 | 0.69 | 0.84 | 0.67 | 0.87 | 1.04 | 1.15 |
| メチルプレドニゾロン | 12.20 | 1.09 | 0.97 | 1.17 | 0.95 | 1.09 | 1.03 | 1.17 | 0.92 | 0.99 | 1.00 | 1.01 | 1.01 | 1.02 | 0.83 | 0.91 | 0.91 | 0.87 | 0.92 | 0.91 | 0.96 |
| ナリジクス酸 | 12.40 | 1.29 | 1.02 | 1.10 | 0.96 | 1.08 | 1.11 | 1.26 | 1.23 | 0.75 | 0.87 | 0.99 | 0.97 | 0.88 | 0.82 | 1.00 | 0.87 | 0.79 | 0.83 | 1.17 | 1.05 |
| スルファニトラン | 12.60 | 1.06 | 0.76 | 0.72 | 0.62 | 1.33 | 1.01 | 0.82 | 0.65 | 1.04 | 0.94 | 0.92 | 0.96 | 0.54 | 0.55 | 0.87 | 0.81 | 0.91 | 1.04 | 0.84 | 1.09 |
| フルメキン | 12.70 | 1.58 | 1.13 | 1.21 | 1.14 | 1.30 | 1.18 | 1.67 | 1.61 | 0.92 | 0.99 | 1.01 | 1.03 | 1.01 | 0.98 | 1.20 | 0.93 | 0.93 | 0.92 | 1.30 | 1.30 |
| ニトロキシニル | 14.80 | 1.24 | 1.27 | 1.35 | 1.32 | 1.16 | 1.20 | 1.06 | 1.12 | 1.14 | 1.12 | 1.01 | 1.00 | 1.20 | 1.19 | 1.36 | 1.23 | 1.16 | 0.98 | 1.14 | 1.15 |
| リファキシミン | 15.60 | 1.76 | 1.53 | 2.00 | 1.54 | 1.58 | 1.40 | 1.38 | 1.17 | 1.36 | 1.20 | 1.61 | 1.13 | 1.58 | 1.20 | 2.07 | 1.43 | 1.67 | 0.92 | 1.81 | 1.43 |
| ナイカルバジン | 15.70 | 0.88 | 0.94 | 0.87 | 0.94 | 1.05 | 1.02 | 0.98 | 0.99 | 0.99 | 0.95 | 0.78 | 0.83 | 0.73 | 0.74 | 1.10 | 1.06 | 1.02 | 0.96 | 0.98 | 0.97 |
| ジクラズリル | 16.80 | 1.01 | 1.06 | 1.14 | 1.16 | 1.05 | 1.02 | 1.00 | 0.95 | 1.10 | 1.00 | 0.87 | 0.85 | 0.71 | 0.71 | 1.22 | 1.01 | 1.16 | 0.92 | 0.99 | 1.05 |
| ジフルベンズロン | 16.90 | 0.59 | 0.70 | 0.70 | 0.67 | 0.92 | 0.91 | 1.01 | 0.96 | 0.99 | 1.03 | 0.95 | 0.87 | 0.35 | 0.34 | 0.72 | 0.69 | 0.81 | 0.92 | 0.95 | 1.00 |
| ノボビオシン | 17.30 | 0.59 | 0.71 | 0.70 | 0.67 | 0.83 | 0.90 | 0.64 | 0.62 | 0.93 | 0.96 | 0.72 | 0.76 | 0.45 | 0.39 | 0.58 | 0.60 | 0.68 | 0.62 | 0.93 | 0.99 |
| エプリノメクチンB1a | 21.00 | 0.73 | 0.82 | 0.60 | 0.59 | 0.97 | 0.93 | 0.87 | 0.91 | 1.00 | 1.01 | 1.14 | 1.04 | 1.16 | 1.07 | 0.82 | 0.72 | 0.83 | 0.79 | 0.90 | 1.03 |
| クロサンテル | 25.30 | 1.01 | 1.47 | 1.54 | 1.25 | 0.87 | 1.76 | 0.79 | 0.85 | 1.12 | 0.98 | 367.12 | 1.06 | 887.00 | 5.21 | 0.48 | 1.43 | 1.49 | 1.13 | 0.76 | 0.81 |

マトリックスファクター(MF)＝マトリックス添加標準溶液のピーク面積値 / 溶媒標準溶液のピーク面積値　　MF＜0.8　MF>1.2

あった．はちみつ，乳，鶏卵等で適合項目数が少なかったことの要因としては，本試験法では食品由来の妨害物質のうち，糖分，タンパク質等の除去が不十分であること等が考えられた．今後食品のマトリックスに応じた精製方法の検討が必要であると思われる．

（平成26年８月１日受理）

## 参考文献


１）厚生省告示第370号：食品，添加物等の規格基準（昭和34年12月28日）

２）厚生労働省医薬食品局食品安全部長通知：食品中に残留する農薬，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（食安発第0124001号，平成17年１月24日）

３）厚生労働省医薬食品局食品安全部長通知：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の一部改正について（食安発1224第1号，平成22年12月24日）

４）Economou A., Botitsi H., Antoniou S. and Tsipi D.: Determination of multi-class pesticides in wines by solid-phase extraction and liquid chromatography-tandem mass spectrometry, J. Chromatogr. A., **1216**, 5856-5867 (2009)

短報

# ポリソルベート分析における飛行時間型高速液体クロマトグラフ質量分析計（LC/TOFMS）を用いた確認法の検討

関戸晴子，田中由紀子，清水　碧，岸　弘子

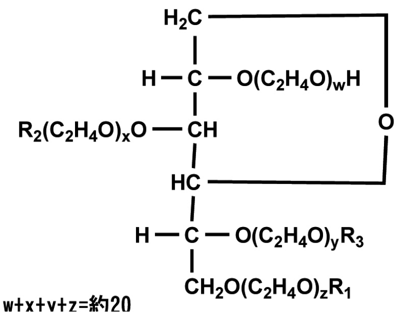
# Examination of the confirmatory method using Liquid Chromatography/Time of Flight Mass in polysorbates analysis

Haruko SEKIDO, Yukiko TANAKA, Midori SHIMIZU and Hiroko KISHI

## はじめに

ポリソルベート（PS）類は現在、米国、EUをはじめとする諸外国で，乳化，分散化，可溶化剤としてケーキミックス，サラダドレッシング，ショートニングオイル，チョコレート等に広く利用されている．我が国でも平成20年４月30日に食品添加物としてPS20，60，65，80が許可（指定）された．しかし，EUで許可されているPS40は許可されていない（指定外）．これまではPSが検出されれば，種類や検出量にかかわらず，全てが違反とされていたが，現在では検出された場合には，正確な定量値はもとより指定外のPSとの判別が不可欠となっている．（図１）

現在の通知法[1]は，抽出液の精製が煩雑であるうえに，確認試験法としてのLC/MS法は，PSが構成脂肪酸の種類および結合数が異なる分子種の混合物のため，同一成分を含むものがあり，混合標準液の使用が困難で６種類の標準液を各々測定しなければならないこと，１回の分析時間に40分程度を必要とすること等から，測定が長時間に及んでいる．また，その他の食品に分類される検体の基準値は0.02g/kg（通知法の定量限界）であることから，LC/MS法における検出下限も低く設定しなければならない．建部ら[2]の報告によると四重極型の質量分析装置（LC/MS）を用いた場合のスキャン測定は100 μg/mL，SIM測定は5～10 μg/mLまで測定可能であった．通知法における定量限界は，試料液を濃縮しない場合は10 μg/mLとなることから，定量限界付近のPSが検出された場合は，スキャン測定とSIM測定の両方を実施しなければ確認できない可能性があり，測定に際し長時間を要する．通知に記載されている条件は，選択するPS類のSIMターゲットイオンを，ポリオキシエチレン基が



w+x+v+z=約20

| PS類 | 構成脂肪酸 | 分子式 | 精密質量 |
|---|---|---|---|
| PS20 | $R_1$=ラウリン酸（$CH_3(CH_2)_{10}CO-$），$R_2=R_3=H$ | $C_{58}H_{114}O_{26}$ | 1226.7598 |
| PS40 | $R_1$=パルミチン酸（$CH_3(CH_2)_{14}CO-$），$R_2=R_3=H$ | $C_{62}H_{122}O_{26}$ | 1282.8224 |
| PS60 | $R_1$=ステアリン酸（$CH_3(CH_2)_{16}CO-$），$R_2=R_3=H$ | $C_{64}H_{126}O_{26}$ | 1310.8537 |
| | または$R_1$=パルミチン酸（$CH_3(CH_2)_{14}CO-$），$R_2=R_3=H$ | | |
| PS80 | $R_1$=オレイン酸（$CH_3(CH_2)_7CH=CH(CH_2)_7CO-$），$R_2=R_3=H$ | $C_{64}H_{124}O_{26}$ | 1308.8381 |
| PS65 | $R_1=R_2=R_3$ステアリン酸（$CH_3(CH_2)_{10}CO-$） | $C_{100}H_{194}O_{28}$ | 1843.3757 |
| | または$R_1=R_2=R_3$パルミチン酸（$CH_3(CH_2)_{10}CO-$） | | |
| PS85 | $R_1=R_2=R_3$オレイン酸（$CH_3(CH_2)_7CH=CH(CH_2)_7CO-$） | $C_{100}H_{188}O_{28}$ | 1837.3287 |

ただし、すべてのPSにおいて上記は主たる脂肪酸を示し、他の脂肪酸も含む

**図１**　ポリソルベート(PS)の構造

神奈川県衛生研究所　理化学部
〒253-0087　茅ヶ崎市下町屋1-3-1

20分子縮合したものに，ナトリウム１分子が付加したもの（ナトリウム（Na）付加イオン）としているが，これは感度の高いものではない．そのため当所では，感度を担保するため定量限界付近でPSが検出された検体の確認時には，試料液を濃縮するなどの操作を実施し，ターゲットとしているNa付加イオンを測定している．

そこで今回，LC/MS法における測定時間の短縮とPS類の検出感度の改善に向けて，分析カラムの検討およびナトリウム付加イオン以外のターゲットイオンの検索を実施し，１回の測定でスキャンを行った上で，高い分解能によりマススペクトルの確認ができるLC/TOFMSを用いた確認法を検討したところ，良好な結果が得られたので報告する．

## 方　法

１．試薬および試液

PS20,40,60,85：和光純薬工業㈱製（化学用），PS65：㈱ワコーケミカル製，PS80は日油㈱製を使用した．メタノールはLC/MS用，その他の試薬はすべて特級品を使用した．

２．標準溶液の調製

LC/MS用標準溶液：各PS50mgを精密に量り，メタノールに溶解して1.0mg/mLに調製した．更にメタノールで50μg/mL，10μg/mLに希釈した．

３．試料液の調製

通知法に準じた．すなわち試料を抽出溶媒で抽出し，アルミナカラム及びシリカゲルミニカラムでクリーンアップした後，試料液を作製した．LC/TOFMS測定には試料液を減圧濃縮しメタノールに溶解したものを用いた．

４．装置および測定条件

LC/TOFMS: Agilent社製　6230　Accurate-Mass　TOF　LC/MS　システム

＜LC条件＞

条件１（通知法：Na付加イオン測定）

カラム：YMC　Pack　C8　S-5（2.0×150mm　5μm　30nm）

移動相：0.1v/v%ギ酸溶液(A)，0.1v/v%ギ酸メタノール溶液(B),

グラジエント条件：A：B＝50:50(0min)→30:70(5min)→1:99(25～35min)のリニア溶出グラジエント，流速：0.2mL/min，カラム温度：40℃，注入量：5μL

条件２（Na付加イオン測定）

カラム：Shim-pack　XR-C8（2.0×75mm　2.2μm　12nm),

移動相：　0.1v/v%ギ酸溶液(A)，0.1v/v%ギ酸メタノール溶液(B)

A：B＝50:50(0min)→30:70(1.5min)→1:99(8.9～13.3min)のリニア溶出グラジエント，流速：0.45mL/min，カラム温度：40℃，注入量：5μL

条件３（アンモニウム（$NH_4$）付加イオン測定）

カラム：Shim-pack XR-C8(2.0×75mm 2.2μm 12nm),

移動相：　5mM酢酸アンモニウム溶液(A)，メタノール(B)

グラジエント条件，流速，カラム温度，注入量は条件２と同様

＜MS条件＞イオン化モード：ESI(＋)，VCap：3500V，Fragmentor：100V，Gas Temp：350℃，Gas Flow：10L/min，Nebulizer：50psi，SheathGas Temp：350℃，SheathGas Flow：7.5L/min

リファレンスマス：121.0509 (Purine) および922.0098 (HP-0921：アジレントテクノロジー社製)

スキャン範囲：m/z300-2,000

ターゲットイオン：表１参照（質量幅±0.01Da）

## 結果及び考察

１．通知法との比較

測定時間を短縮するため，まず分析カラムの変更を検討した．充填剤は通知法と同様のC8とし，高速分析用のカラムを選択した．ACQUITY　UPLC　BEH　C8(2.1×50mm　1.7μm　13nm)とShim-pack　XR-C8(2.0×75

表１　ターゲットイオン

| PS類 | | Na付加イオン | | $NH_4$付加イオン | |
|---|---|---|---|---|---|
| | | 分子式 | 精密質量 | 分子式 | 精密質量 |
| 指定 | 20 | $[C_{58}H_{114}O_{26}+Na]^+$ | 1249.7491 | $[C_{58}H_{114}O_{26}+NH_4]^+$ | 1244.7937 |
| | 60 | $[C_{64}H_{126}O_{26}+Na]^+$ | 1333.8430 | $[C_{64}H_{126}O_{26}+NH_4]^+$ | 1328.8910 |
| | 80 | $[C_{64}H_{124}O_{26}+Na]^+$ | 1331.8273 | $[C_{64}H_{124}O_{26}+NH_4]^+$ | 1326.8719 |
| | 65 | $[C_{100}H_{194}O_{28}+Na]^+$ | 1866.3649 | $[C_{100}H_{194}O_{28}+NH_4]^+$ | 1861.4095 |
| 指定外 | 40 | $[C_{62}H_{122}O_{26}+Na]^+$ | 1305.8117 | $[C_{62}H_{122}O_{26}+NH_4]^+$ | 1300.8563 |
| | 85 | $[C_{100}H_{188}O_{28}+Na]^+$ | 1860.3179 | $[C_{100}H_{188}O_{28}+NH_4]^+$ | 1855.3625 |

mm 2.2μm 12nm)を用いて検討したところ，ACQUITY UPLC BEH C8はPS65，85が検出できなかったため，Shim-pack XR-C8を採用することとした．

通知[1)]および建部らの方法[2)]に記載されているカラムYMC Pack C8 S-5を用いた方法（条件１）と，今回新たに選択したカラムShim-pack XR-C8を用いた方法（条件２）で測定した各標準液10μg/mLの保持時間と面積値を表２に示す．

表２　標準液10μg/mLにおける保持時間と面積値

| PS類 | | 条件1 | | 条件2 | | 条件3 | |
|---|---|---|---|---|---|---|---|
| | | YMC Pack C8 | | Shim-pack XR-C8 | | | |
| | | Na付加イオン | | Na付加イオン | | $NH_4$付加イオン | |
| | | 保持時間 | 面積値 | 保持時間 | 面積値 | 保持時間 | 面積値 |
| 指定 | 20 | 12.060 | 80631 | 3.691 | 258697 | 3.800 | 303307 |
| | 60 | 20.280 | 49215 | 6.132 | 210492 | 6.210 | 340491 |
| | 80 | 18.501 | 22735 | 5.689 | 106039 | 5.765 | 151340 |
| | 65 | 34.495 | 6038 | 13.231 | 7013 | 14.171 | 27867 |
| 指定外 | 40 | 17.698 | 171537 | 5.442 | 589460 | 5.527 | 967450 |
| | 85 | 32.990 | 17940 | 11.153 | 13464 | 11.647 | 47825 |

通知法では，１検体当たりの分析時間が40分程度かかっていたのに比べ，条件２では15分程度とかなりの時間を短縮することができた．また，PS６種類の分離も良く，ピークの面積値もPS65，85を除いた４種類は３～５倍増加した良好なクロマトグラムが得られた．

今回使用したShim-pack XR-C8は，PS６種類すべてを検出することができた．条件２の方法は，PS６種類が全て検出され，通知法とほぼ相違ない結果が得られたことから，測定時間の短縮には大変有用であると思われた．

２．ターゲットイオンの検討

通知法のSIMターゲットイオンは，ポリオキシエチレン基が20分子縮合したものに，ナトリウム１分子が付加した，Na付加イオンであるが，感度の高いものではないことから，移動相に酢酸アンモニウムを添加し，$NH_4$付加イオンをターゲットとした測定（条件３）を検討した．分析カラムは，条件２で使用したものを採用した．Fragmentor電圧等の条件は，Na付加および$NH_4$付加イオンとも標準液のピーク強度が最大となるように最適化を行った．各標準液10μg/mLの保持時間及びピーク面積値を表２に示す．

$NH_4$付加イオンは，条件２で検出されたNa付加イオンよりも1.5～３倍高感度に検出された．PS65，85においても面積値の増加が認められた．また，スペクトル上では１価の$NH_4$付加イオンのほかに２価の$NH_4$付加イオンも検出された．条件２よりもSN比は３倍に改善し，さらに高感度にPS６種類が検出されたことから，条件３を用いることにより，以前実施していた濃縮操作は必要ないことが示唆された．

市販品への適用にあたり，当所で以前PSが検出されたコチュジャン（PS80検出，PS80として0.25g/kg），カレースープ（PS60検出，PS80として0.22g/kg検出），およびパスタソースにPS６種類を0.1g/kg添加したものについて，条件２および３を用いて測定を実施した．どちらの条件でも，検出されたPSおよび添加したPSを確認することができた．カレースープについて，各PS類(20,40,60,80,65,85）のマスクロマトグラムを図２，４にマススペクトルを図３，５に示す．図２においては，PS60に相当するNa付加イオンのピーク以外にPS40とPS65に相当するNa付加イオンのピークが確認されている．これは，PS60はステアリン酸の他にパルミチン酸（PS40の構成脂肪酸）を構成脂肪酸としているため[1)2)]，PS40に相当するピークが確認されたものであり，試薬のPS60のマスクロマトグラムにも同様に確認された．PS65に相当するピークも，試薬のPS60から確認されていること，またPS60の試薬とよく似た検出パターンを示していることから，検出されたPSは、PS60であることが確認できた．図４においては、PS40およびPS65由来の$NH_4$付加イオンのピークは検出されなかったが，PS60の試薬からも同様に検出されず，検出パターンはよく似ていたことから，PS60であることが確認できた．

PS６種類を添加したパスタソースについては，$NH_4$付加イオン測定の方が，感度の良い良好な結果が得られた．感度改善が顕著に表れたPS65添加のパスタソースのマスクロマトグラムを図６，７に示す．

$NH_4$付加イオン測定はNa付加イオンよりも感度良く

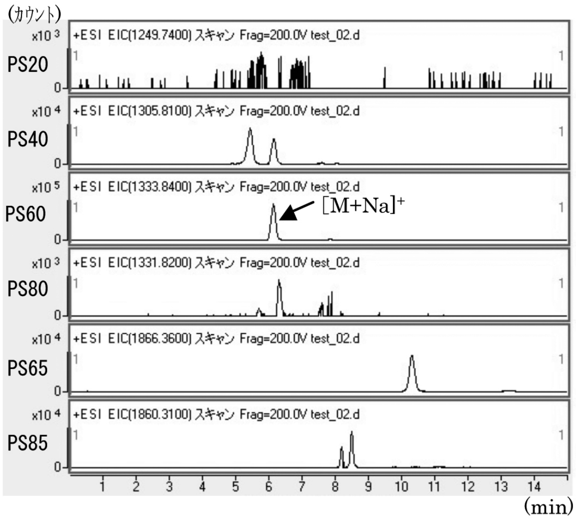



**図 2**　PS検出のカレースープにおける各PS類のマスクロマトグラム（Na付加イオン）

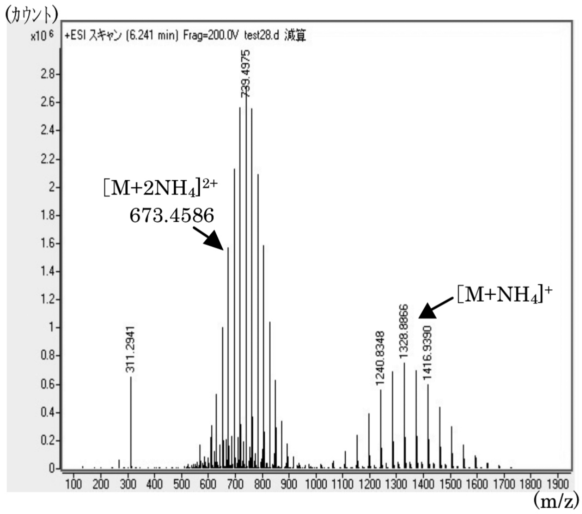



**図 5**　PS検出のカレースープで確認されたPS60のピークの保持時間におけるマススペクトル

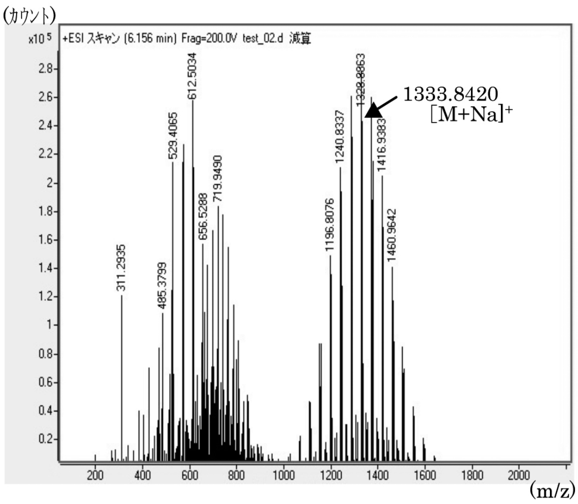



**図 3**　PS検出のカレースープで確認されたPS60のピークの保持時間におけるマススペクトル

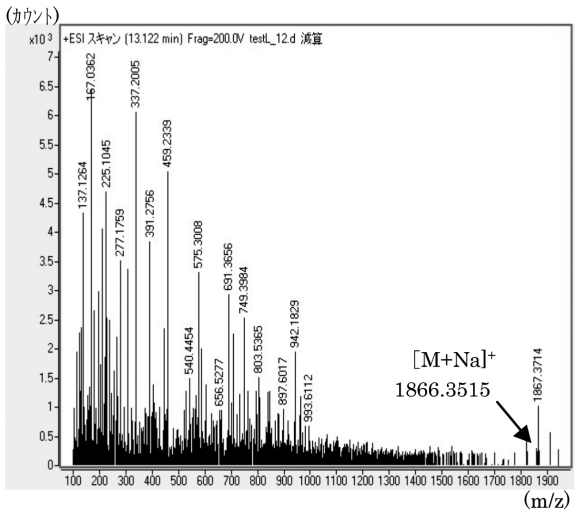



**図 6**　PS65添加パスタソースのマススペクトル（Na付加イオン）

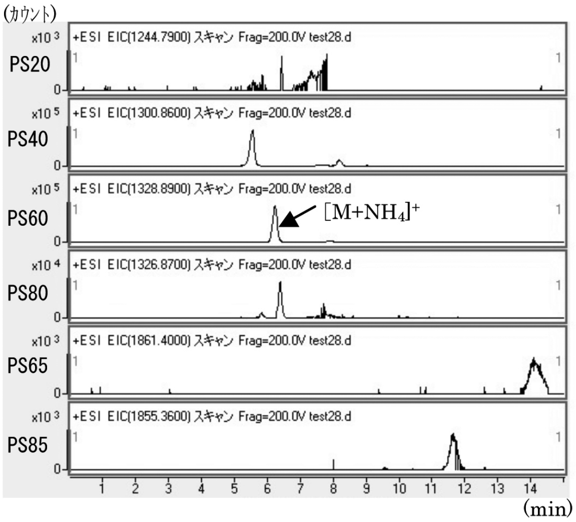



**図 4**　PS検出のカレースープにおける各PS類のマスクロマトグラム（$NH_4$付加イオン）

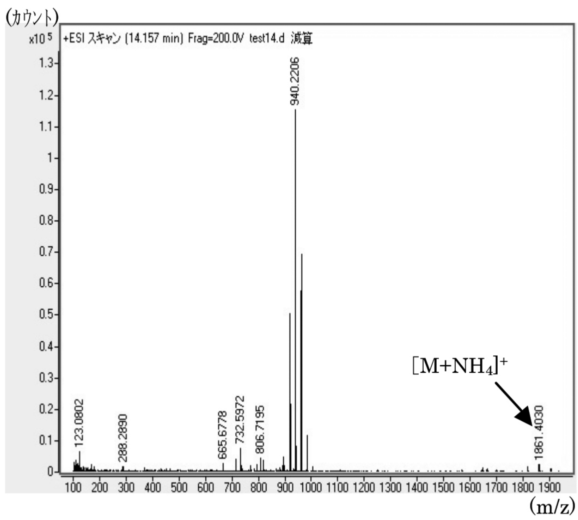



**図 7**　PS65添加パスタソースのマススペクトル（$NH_4$付加イオン）

確認できることから，定量限界付近の濃度の確認には，$NH_4$付加イオン測定の条件３が適していると思われた．

また，得られたマススペクトルから組成推定（相対質量誤差は±10ppmとした）を行ったところ，コチュジャンおよびカレースープについては，Na付加イオン，$NH_4$付加イオンともに組成式候補の上位３個以内にPS80およびPS60が提示された．パスタソースにPS６種類を0.1 g/kg添加したものについては，PS65を除いた５種類について上位３個以内に添加したPS類が提示された．PS65を添加したものについては，Na 付加イオンでは組成式候補は提示されず，$NH_4$付加イオンにおいて組成式候補の11個めに提示された．PS65標準液10μg/mLにおいて，得られたマススペクトルから組成推定を実施したところ，パスタソースに添加したものと同様の結果を示した．PS65は，他のPS類と比べ，標準液においても測定で得られた精密質量と理論上（計算上）の精密質量との差が大きく，Na 付加イオンでは±10ppmを超えていた．

以上の結果から PS類の確認は，PS類が混合物であり理論上（計算上）の成分がメインのピークではないこと等を考慮し，標準液との比較が必要不可欠であることが示唆された．

## まとめ

ポリソルベート類の確認試験法としてのLC/MS法における測定時間の短縮と検出感度の改善に向けて，分析カラムおよびターゲットイオンの検討を実施した．

装置にLC/TOFMSを用いることにより，１回のスキャン測定で，試料液を濃縮することなく，使用されている可能性のあるPS類のマススペクトルを確認することができた．また，得られたマススペクトルから組成式を推定し，PS類の標準液から得られたものと比較した結果，ほぼ一致し，ポリソルベート６種類の同定が可能であることが推測された．

カラムにShim-pack XR-C8(2.0×75mm 2.2μm 12nm)，移動相に5mM酢酸アンモニウム溶液-メタノールを用いて，$NH_4$付加イオンをターゲットイオンとしたところ，通知法よりも分析時間が短縮でき、且つ感度良くPS類を確認することが可能であった．

今回のLC/TOFMSを用いた確認法は，通知法と比べて測定時間が短縮され，検出感度も上昇し，組成推定も可能であったことから，日常の行政検査において，大変有用な確認法で適用可能であると思われた．

（平成26年８月１日受理）

## 文　献

１）厚生労働省医薬食品局食品安全部基準審査課長通知「食品中の食品添加物分析法」の改正について（食安基発第0430001号，平成20年４月30日）
２）建部千絵他：LC/MSによるポリソルベート類の分析，日本食品化学学会誌，**15**(3)，129-134 (2008)

神奈川県衛生研究所研究報告　No. 44 (2014)
Bull. Kanagawa Ins. of P.H.

短報

# 神奈川県における食品の放射能調査 (平成23年３月～平成25年度)

林　孝子，酒井康宏*，飯島育代，桑原千雅子

# Radioactivity Investigation in Foods in Kanagawa Prefecture (March 2011－March 2014)

Takako HAYASHI, Yasuhiro SAKAI, Ikuyo IIJIMA and Chikako KUWAHARA

## はじめに

平成23年３月11日に発生した東日本大震災により，東京電力福島第一原子力発電所（以下，福島原発）では原子炉事故が発生し，大量の放射性物質が環境中に放出された.

同年３月17日，厚生労働省は原子力安全委員会の示した食品中の放射性物質に関する指標値を暫定規制値として設定した[1)]．その後，食品の基準値の設定について見直しが行われ，食品の安全と安心をより一層確保する観点から，暫定規制値で許容していた年間線量の上限値を年間５ミリシーベルト（mSv）から1mSvに戻した．これに基づき食品衛生法が改正され，平成24年４月１日より放射性セシウムについて新たな基準値が設定された[2)]．暫定規制値および基準値を表１に示す.

神奈川県では福島原発事故直後より，緊急時対応として文部科学省の指示に基づく緊急時放射能モニタリングと共に県食品衛生課による収去検査，県環境農政局等からの行政依頼による食品の放射能調査を実施してきた．事故後から平成23年度は，県内で生産，採取された農産物，林産物，畜水産物，原乳等について放射能調査を行った．平成24年度以降は新たに県内の流通加工食品の放射能調査を加え神奈川県内における食品の放射能濃度の実態把握を行っている.

福島原発事故後から平成25年度までの約３年間にわたり当所で実施した食品および食品に関連する放射能調査の結果について報告する.

神奈川県衛生研究所　理化学部
〒253-0087　茅ヶ崎市下町屋1-3-1
*現　地域調査部

表１　食品衛生法に基づく食品中の放射性物質の基準値

(1)事故後～平成23年度

| 核種 | 暫定規制値(Bq/kg) | |
|---|---|---|
| 放射性セシウム (Cs134+Cs137) | 野菜類<br>穀類<br>肉・卵・魚・その他 | 500 |
| | 牛乳・乳製品<br>飲料水 | 200 |
| 放射性ヨウ素 (I-131) | 野菜類(根菜・芋類を除く)<br>魚介類 | 2000 |
| | 牛乳・乳製品<br>飲料水 | 300 |

(2)平成24年度～

| 核種 | 基準値(Bq/kg) | |
|---|---|---|
| 放射性セシウム (Cs134+Cs137) | 一般食品(乳製品を含む) | 100 |
| | 牛乳<br>乳児用食品 | 50 |
| | 飲料水 | 10 |
| 放射性ヨウ素 (I-131) | 規制対象外 | |

## 方　法

### １．試料

食品：県食品衛生課による収去検査，県環境農政局等からの行政依頼検査ならびに環境放射能水準調査（文部科学省平成23年度，24年度，原子力規制庁 平成25年度）に係る試料を対象とした.

農産物（野菜類，穀類，茶），林産物（タケノコ，シイタケ）および原乳は県内産を試料とし，畜水産物は県内産の魚介類，牛肉，豚肉及び県外産の牛肉を試料とした．流通加工食品は県内に流通する食品のうち，県内の製造施設で採取した食品および流通拠点において東日本17都県[注)]で製造加工された食品を採取し，試料とした.

その他試料：県環境農政局所管の県内産，県外産の飼料・肥料，きのこ原木・ほだ木，調理加熱用の薪を試料とした.

注）17都県…青森県，岩手県，宮城県，秋田県，山形県，福島県，茨城県，栃木県，群馬県，埼玉県，千葉県，東京都，神奈川県，新潟県，山梨県，長野県，静岡県

### ２．試料処理

事故後から平成23年度においては，文部科学省「緊急時におけるガンマ線スペクトロメトリーのための試料前処理法」[3)]，厚生労働省「緊急時における食品の放射能測定マニュアル」[4)] ならびに関連する事務連絡に準拠した.

平成24年度以降は厚生労働省通知「食品中の放射性物質の試験法について」[5)]，「食品中の放射性物質の試験法の取扱いについて」[6)]に従った.

また，飼料・肥料については農林水産省通知，きのこ原木・ほだ木，調理用薪については林野庁通知に準拠した．

3．測定装置

ゲルマニウム（以下，Ge）半導体検出器γ線スペクトロメータ[7)]

・PGT社製Ge半導体検出器IGC40200

・OXFORD社製Ge半導体検出器 CNVDS30-35195

・CANBERRA社製Ge半導体検出器 GC3520

4．測定時間

γ線スペクトロメトリーの測定時間は，各試料の検出限界値，測定試料量，測定容器を考慮し設定した．プラスチック製U-8容器（容積100mL）で2,000～24,000秒，マリネリ容器（容積2L）で1,000～20,000秒測定した．

表 2　神奈川県における食品等の放射能検査結果（原発事故後～平成23年度）

| 試料 | 種類 | 試料数 | 放射能濃度(Bq/kg)* | | 暫定規制値超過検体数 |
|---|---|---|---|---|---|
| | | | 放射性ヨウ素 | 放射性セシウム | |
| 野菜 | ホウレンソウ | 3 | <LOD - 1700 | 0.18 - 230 | |
| | コマツナ、ダイコン | 4 | <LOD | <LOD | |
| | タケノコ | 4 | <LOD | 12 - 29 | |
| | 生シイタケ | 20 | <LOD | <LOD - 150 | |
| | 乾シイタケ | 5 | <LOD | <LOD - 730 | 2 |
| 魚介類 | アサリ | 1 | 44 | <LOD | |
| | マアジ | 1 | ― | 0.87 | |
| | 淡水魚 | 12 | <LOD | <LOD - 200 | |
| 穀類 | コメ | 1 | ― | 0.14 | |
| 畜産物 | 牛肉 | 26 | ― | <LOD - 1400 | 3 |
| | 豚肉 | 12 | ― | <LOD | |
| 茶 | 茶葉 | 31 | ― | <LOD - 1300 | 11 |
| 原乳 | 原乳 | 77 | <LOD - 11 | <LOD - 3.7 | |
| | 総数 | 197 | | | 16 |
| 飼料 | 牧草 | 10 | <LOD（暫定許容値 70） | <LOD（暫定許容値 300） | |
| 肥料 | 堆肥・剪定枝チップ | 2 | ― | 340 、420（暫定許容値 400） | 1 |
| きのこ原木 | きのこ原木・ほだ木 | 3 | ― | 19 - 1400（当面の指標値 150） | 2 |

＊放射能濃度は有効数字2桁で記載

表 3　神奈川県における食品等の放射能検査結果（平成24年度）

| 試料 | 種類 | 試料数 | 放射能濃度(Bq/kg)* | 基準値超過検体数 |
|---|---|---|---|---|
| | | | 放射性セシウム | |
| 一般食品 | 流通加工食品 | 89 | <LOD | |
| | ホウレンソウ、ダイコン | 2 | <LOD | |
| | タケノコ | 5 | <LOD - 20 | |
| | 生シイタケ | 22 | <LOD - 140 | 1 |
| | 乾シイタケ | 15 | 4.4 - 61** | |
| | マアジ | 1 | 0.23 | |
| | コメ | 1 | <LOD | |
| 牛乳 | 原乳・牛乳 | 55 | <LOD - 0.28 | |
| 乳幼児食品 | 調製粉乳 | 1 | <LOD | |
| 飲料水 | ﾐﾈﾗﾙｳｫｰﾀｰ類・茶飲料 | 19 | <LOD - 3.4 | |
| | 総数 | 210 | | 1 |
| 飼料 | 牧草 | 2 | <LOD（暫定許容値100） | |
| 調理用薪 | 薪 | 2 | 13、27（指標値40） | |

*:放射能濃度は有効数字2桁で記載

**:検査結果は重量換算後の数値

表４　神奈川県における食品等の放射能検査結果（平成25年度）

| 試料 | 種類 | 試料数 | 放射能濃度(Bq/kg)*<br>放射性セシウム | 基準値超過検体数 |
|---|---|---|---|---|
| 一般食品 | 流通加工食品 | 107 | <LOD - 2.6 | |
| | ホウレンソウ、ダイコン | 2 | <LOD | |
| | タケノコ | 5 | <LOD - 16 | |
| | 生シイタケ | 12 | <LOD - 72 | |
| | マアジ | 1 | 0.44 | |
| | コメ | 1 | <LOD | |
| | 県外産牛肉 | 2 | 42、56 | |
| 牛乳 | 原乳・牛乳 | 55 | <LOD - 0.33 | |
| 乳幼児食品 | 調製粉乳 | 1 | <LOD | |
| 飲料水 | ﾐﾈﾗﾙｳｫｰﾀｰ類・茶飲料 | 17 | <LOD | |
| | 総数 | 203 | | 0 |

*:放射能濃度は有効数字2桁で記載

## 結果及び考察

事故後から平成25年度までに実施した食品等の調査結果を年度ごとに表２～表４に示す．対象核種は放射性ヨウ素（I-131）ならびに放射性セシウム（Cs-134，Cs-137）とした．なお，Cs-134とCs-137の合算値を放射性セシウムと表記した．

### １．農産物（野菜類，穀類）

緊急時に放射性ヨウ素による汚染が懸念される葉菜類に関して，事故発生から日が浅い３月21日にホウレンソウを検査した．放射性ヨウ素は最大で1700Bq/kg，放射性セシウムは230Bq/kg検出されたがいずれも暫定規制値（放射性ヨウ素：2000Bq/kg，放射性セシウム：500Bq/kg）は超えなかった．翌年１月に採取した試料では放射性セシウムは0.18Bq/kgと1/1000以下であった．また，事故から４か月後の７月～９月にコマツナを調査したが，放射性ヨウ素，放射性セシウム共に不検出であった．ホウレンソウは平成24年度，25年度で，またダイコンは平成23年度～25年度で放射性セシウムは不検出であった．

平成23年12月に調査した精白米から放射性セシウムが0.14Bq/kg検出されたが，それ以降は，放射性セシウムは検出されていない．

### ２．農産物（茶）

平成23年５月，他機関で検査した県内産茶葉の放射性セシウムが暫定規制値を超えたため，当所において県内各地の茶葉の調査を実施した．検査結果を図１に示す．生葉は19検体中５検体が暫定規制値を超え（放射性セシウム520～770Bq/kg），荒茶では10検体中６検体が暫定規制値を超えた（放射性セシウム540～1300Bq/kg）．荒茶は生葉を乾燥させたものであるため，放射性セシウムが濃縮され，生葉に比べ高い濃度になったと考えられた．暫定規制値を超えた10市町村については，国の出荷制限の指示に基づき，県から出荷の自粛が要請された．

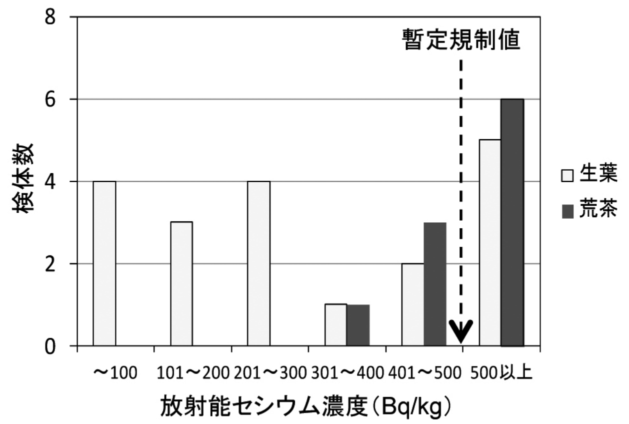



図１　茶葉の放射性セシウム分布　（平成23年度）

平成23年度は茶葉をそのまま（原材料）の状態で測定し検査結果としたが，茶は原材料の状態と飲用する状態では食品形態が大きく異なることから，平成24年４月１日施行の食品衛生法改正[2)]により，飲用に供する場合は原材料の状態ではなく，飲用の状態で飲料水の基準値（10Bq/kg）を適用することとなった．６月に県内流通加工食品として収去した茶葉を飲用の状態で測定した結果，放射性セシウムは3.4Bq/kgとなり，基準値以下となった．試料の調製は，厚生労働省通知の方法[5)]に従い茶葉を30倍量の熱水（90℃）で浸出した後，茶葉を濾過した浸出液を試験溶液とした．茶葉を原材料の状態で測定したところ，放射性セシウムは148Bq/kg検出された．計算上30倍希釈の理論値は4.93Bq/kgとなるが測定結果は3.35Bq/kgを示し，90℃の熱水で浸出されずに茶葉に残存する放射性セシウムがあったものと推察された．結果を図２に示す．

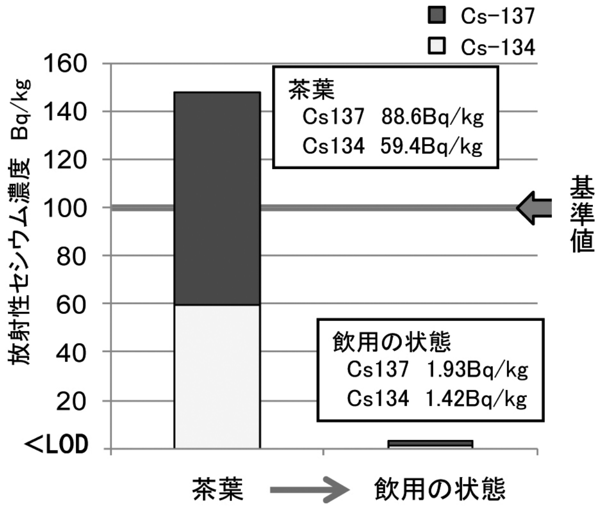



図２　茶の放射性セシウム濃度　（平成24年度）

３．林産物（タケノコ，シイタケ）

平成24年３月採取のタケノコから放射性セシウムが12～29Bq/kg検出された．平成25，26年も同レベルの放射性セシウムが検出されている．

シイタケについては，平成23年度は生シイタケ20検体の放射性セシウムは<LOD（検出限界値未満）～150 Bq/kg，乾シイタケ５検体の放射性セシウムは<LOD～730Bq/kgとなった．乾シイタケ２検体が暫定規制値を超え，県は２市に出荷自粛を要請した．平成24年度は生シイタケ22検体，乾シイタケ15検体を調査した．生シイタケ22検体は放射性セシウムが<LOD～140Bq/kgとなり，１検体が基準値を超えた．乾シイタケ15検体は平成23年度に暫定規制値を超えた２市の出荷自粛解除のため検査を実施した．食品衛生法改正（平成24年４月１日施行）により，乾シイタケは生シイタケに重量換算した後の数値を適用した[2)5)]．その結果，乾シイタケの放射性セシウムは4.4～61Bq/kgと基準値以下となり，出荷等の自粛は解除された．平成25年度は生シイタケ12検体を調査し，放射性セシウムは<LOD～72Bq/kgと全て基準値以下となった．

放射性セシウムを取込みやすいとされるキノコ類について，当所では平成６年から県内の生シイタケの放射能濃度を継続して調査している．図３に生シイタケ中の放射性セシウムの推移を示す．半減期が2.1年と短いCs-134は福島原発事故以前は不検出であったが，半減期が30年のCs-137は福島原発事故以前も検出されている．これは1945年～1980年までに実施された大気圏内核実験や1986年のチェルノブイリ原発事故による影響と考えられる．福島原発事故後の３年間で，放射性セシウム中のCs-134/Cs-137放射能比は約１から0.3に減少し，Cs-134の減衰に伴った推移となっている．また，低濃度の検体では，半減期の長いCs-137のみの検出となっている．福島原発事故後の生シイタケ中の放射性セシウムの濃度推移を図４に示す．今後検出レベルは更に低くなると考えられるが，シイタケについては福島原発事故前の影響も考慮し継続した調査が必要と考える．

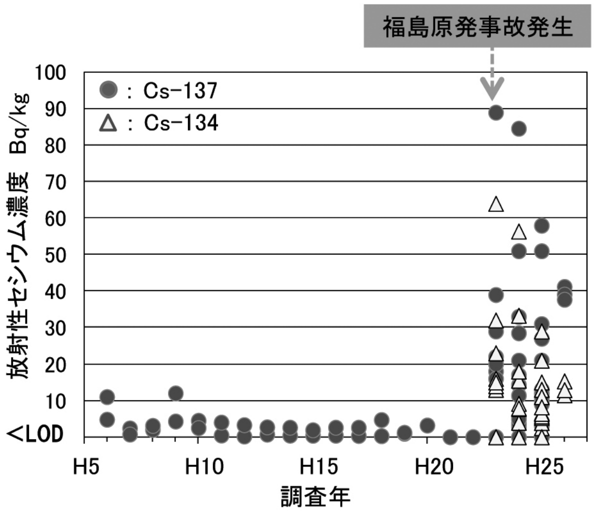



図３　生シイタケ中の放射性セシウム濃度の推移

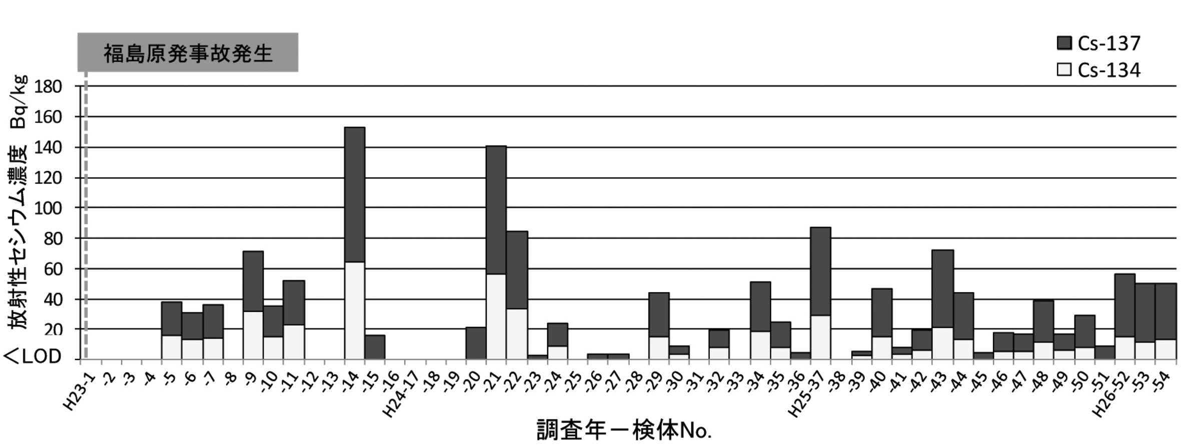



図４　生シイタケ中の放射性セシウム濃度の推移　（福島原発事故後）

**4．原乳・牛乳**

福島原発事故後の原乳，流通食品の牛乳の放射性物質濃度の推移を図５に示す．事故直後の３月，４月の検体からは，原発事故に由来する放射性ヨウ素が最大で11 Bq/kg検出されたが，その後短い時間で減衰した．これは放射性ヨウ素は半減期が８日と短く，環境中へ新たな人工放射性物質の大量放出がなかったためと考えられる．また，県外産の牛乳から放射性セシウムがわずかに検出されたが，基準値より大きく下回っていた．

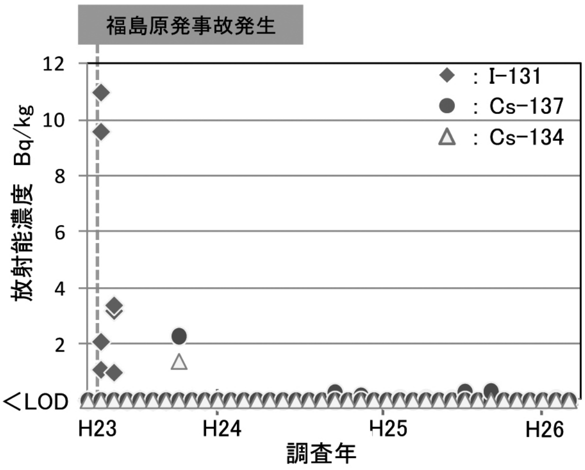



**図５**　原乳･牛乳中の放射性物質濃度の推移

**5．畜水産物**

平成23年度実施の魚介類の調査では，４月のアサリから放射性ヨウ素が検出，また淡水魚，マアジから放射性セシウムが検出されたがいずれも暫定規制値以下であった．

県内産の牛・豚肉については放射性セシウムは検出されなかったが，放射性物質に汚染された稲わらを給与された疑いのある県外産の牛肉22検体からは放射性セシウムが最大で1400Bq/kg検出され，福島県，岩手県産の計３検体の牛肉が暫定規制値を超過した（560～1400 Bq/kg）．また，平成25年８月には，食肉衛生検査所のスクリーニング検査で，放射性セシウムが25Bq/kgを超える県外産牛肉が２検体見つかり，当所において確認検査を実施した．放射性セシウムはそれぞれ42，56Bq/kg検出され，いずれも基準値は下回っていたが出荷等は自粛された．

**6．流通食品**

平成24年度は県内の製造食品30検体，県内産原乳40検体および17都県産流通食品80検体の計150検体について調査した（原乳は４．原乳・牛乳に前述）．静岡県産の茶より放射性セシウムが3.4Bq/kg検出されたが（２．農産物（茶）に前述），他は全て不検出であった．平成25年度は製造食品40検体，県内産原乳40検体および17都県産流通食品90検体の計170検体について調査した．放射性セシウムは県内産の茶飲料１検体（0.36Bq/kg），千葉県産ピーナッツ１検体（2.6Bq/kg）から検出されたがいずれも基準値は下回っていた．

**まとめ**

福島原発事故後から平成23年度は県内産農産物，林産物，畜水産物を中心に食品197検体の放射能検査を実施した．乾シイタケ２検体，県外産牛肉３検体，茶葉11検体の計16検体から暫定規制値を超える放射性セシウムが検出された（表２）．平成24年度は県内産の林産物，原乳，流通加工食品を中心に検査総数は210検体，うち基準値超過は生シイタケ１検体だった（表３）．平成25年度は検査総数203検体中基準値超過検体はなかった（表４）．

福島原発事故より３年が経過し，食品中の放射性物質は基準値を下回り，放射能レベルは低くなっている．今後も，食品の安全と安心につながる情報を提供できるように，県内食品の放射能濃度の実態把握のため長期にわたって調査を継続していく必要がある．

（平成26年８月１日受理）

**文　献**

１）厚生労働省医薬食品局食品安全部長通知：放射能汚染された食品の取り扱いについて，食安発0317第３号（平成23年３月17日）
２）厚生労働省医薬食品局食品安全部長通知：乳及び乳製品の成分規格等に関する省令の一部を改正する省令，乳及び乳製品の成分規格等に関する省令別表の二の（一）の（１）の規定に基づき厚生労働大臣が定める放射性物質を定める件及び食品，添加物等の規格基準の一部を改正する件について，食安発0315第１号（平成24年３月15日）
３）文部科学省：文科省放射能測定法シリーズ24 (1992)
４）厚生労働省医薬局食品保健部監視安全課：緊急時における食品の放射能測定マニュアル（2002)
５）厚生労働省医薬食品局食品安全部長通知：食品中の放射性物質の試験法について，食安発0315第４号（平成24年３月15日）
６）厚生労働省医薬食品局食品安全部基準審査課長通知：食品中の放射性物質の試験法について，食安基発0315第７号（平成24年３月15日）
７）神奈川県衛生研究所：神奈川県における放射能調査・報告書-2013-（2014)

資料

# 神奈川県における腸管出血性大腸菌の検出状況（平成25年度）

古川一郎，石原ともえ，渡辺祐子

# Occurrence of enterohemorrhagic *Escherichia coli* in Kanagawa Prefecture (April,2013-March,2014)

Ichiro FURUKAWA, Tomoe ISHIHARA and Yuko WATANABE

腸管出血性大腸菌（enterohemorrhagic *Escherichia coli*：以下，EHECと略す）感染症は平成11年４月に施行された「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」（平成10年10月２日法律第114号）で三類感染症に分類され，EHEC感染症の患者と診断した医師は，保健所長を経由して都道府県知事に届け出なければならない．さらに，分離された菌株はそれぞれの地方衛生研究所（以下，地研と略す）に提供されることになっている．地研は集められた菌株について生化学的性状，血清型，毒素型等を確認したのち，「病原性大腸菌O-157の検体提供依頼について」（平成８年６月19日付，衛食第160号）および「飲食店における腸管出血性大腸菌食中毒対策について」（平成19年５月14日付，食安監発第0514001）に基づき，国立感染症研究所（以下，感染研と略す）細菌第一部に菌株を送付している．感染研は，全国から送付された菌株について，パルスフィールド・ゲル電気泳動（以下，PFGEと略す）解析を用いた分子疫学的調査を実施し，全国レベルの大規模な集団発生や散発的集団発生を探知することにより感染の拡大防止に努めている．さらに，EHEC感染症については，溶血性尿毒症症候群発症者に限り，便からのベロ毒素の検出，血清中のO抗原凝集抗体あるいはベロ毒素抗体の検出によって診断された場合も届出の対象となっており[1]，当所においても血清についてEHEC加熱死菌により抗体の確認を行っている．本報では，平成25年４月から平成26年３月の間に横浜市，川崎市，横須賀市および相模原市を除く神奈川県内（以下，県域と略す）および藤沢市で分離され，当所に送付されたEHEC菌株についてPFGE解析および薬剤感受性試験を行うとともに，ヒト由来のO157については，マルチプレックスPCR法を用いたIS-printing system（以下，IS法と略す）による解析をあわせて実施したので，その結果を報告する．

平成25年度のEHEC菌株の受領状況とその内訳は，県域の医療機関や保健福祉事務所から当所に送付されたヒト由来28株，当所地域調査部において患者家族，集団事例関連の保菌者から分離された12株，食肉衛生検査所から送付されたウシ由来１株，藤沢市から送付されたヒト由来７株を含めた計48株であった（表１）．血清型およびVero毒素(VT)の違いによる内訳は，O157(VT1&2) 18株，O157(VT2) 17株，O157(VT1) ２株，O26(VT1) ４株，O103(VT1) 4株，O121(VT2) ２株，O111(VT1&2) １株であった．食肉衛生検査所分離株１

**表１**　搬入あるいは管轄施設別の菌株受領状況

| 施　設 | O 157 VT1&2 | O 157 VT1 | O 157 VT2 | O 26 VT1 | O 103 VT1 | O121 VT2 | O 111 VT1,2 | 菌株数 |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| 厚木保健福祉事務所 | 3 | | 6 | 1 | 1 | | | 11 |
| 秦野保健福祉事務所 | 4 | 1 | 1 | 2 | 1 | | 1 | 10 |
| 大和保健福祉事務所 | 4 | | 3 | | | | | 7 |
| 鎌倉保健福祉事務所 | | | 3 | | 1 | | | 4 |
| 平塚保健福祉事務所 | 1 | | 1 | 1 | | | | 3 |
| 小田原保健福祉事務所 | 2 | | | | | 1 | | 3 |
| 足柄上保健福祉事務所 | 1 | | | | | 1 | | 2 |
| 食肉衛生検査所 | | 1 | | | | | | 1 |
| 藤沢市保健所 | 3 | | 3 | | 1 | | | 7 |
| 計 | 18 | 2 | 17 | 4 | 4 | 2 | 1 | 48 |

神奈川県衛生研究所　微生物部
〒253-0087　茅ヶ崎市下町屋1-3-1

株を除くヒト由来47株における患者および保菌者の性別および年齢構成を比較した（表２）．年齢の範囲および人数は，男性が１～76歳で26名，女性が１～75歳で20名，年齢の平均は男性28.7歳に対し，女性は35.8歳であった．

PFGEには制限酵素として*Xba*Ⅰを使用し，6V/cm，パルスタイム2.2 - 54.2秒，12℃の条件で19時間電気泳動を行った．PFGEパターンの解析にはBioNumerics（Applied Maths社）を用い，Pearsonの相関係数で類似度を算出し，UPGMAによりクラスター解析を行った．

O157については，IS-printing system（TOYOBO）を用いて解析し，付属の説明書に従ってPCR法を実施した後，32箇所の遺伝子の有無により菌株の識別を試みた．

３つの家族内事例分離株を含むO157(VT1&2) 18菌株についてPFGEパターンをクラスター解析した結果（図１），事例１から分離された菌株No.3およびNo.4，事例２から分離された菌株No.9～No.12，さらに事例３から分離された菌株No.13およびNo.14は，それぞれ90%以上の高い類似度を示し，IS法のパターンは事例ごとに一致していた．さらに，菌株No.5は事例１から分離された上記２株とPFGEパターンの類似度が95%と高くIS法のパターンも一致したが，疫学的な関連は認められなかった．

１つの家族内事例および１つの同一施設内集団事例分離株を含むO157（VT2）17株のPFGEによる解析では（図２），家族内事例分離株である菌株No.30～No.32は，

**表２**　患者・保菌者の年齢構成および性別

| 年齢層 | 男性 | 女性 | 計 |
|---|---|---|---|
| 1 - 5 | 4 | 1 | 5 |
| 6-10 | 3 | 0 | 3 |
| 11-20 | 4 | 4 | 8 |
| 21-30 | 5 | 5 | 10 |
| 31-40 | 4 | 4 | 8 |
| 41-50 | 0 | 2 | 2 |
| 51-60 | 3 | 3 | 6 |
| 61-70 | 2 | 1 | 3 |
| >70 | 1 | 1 | 2 |
| 計 | 26 | 21 | 47 |

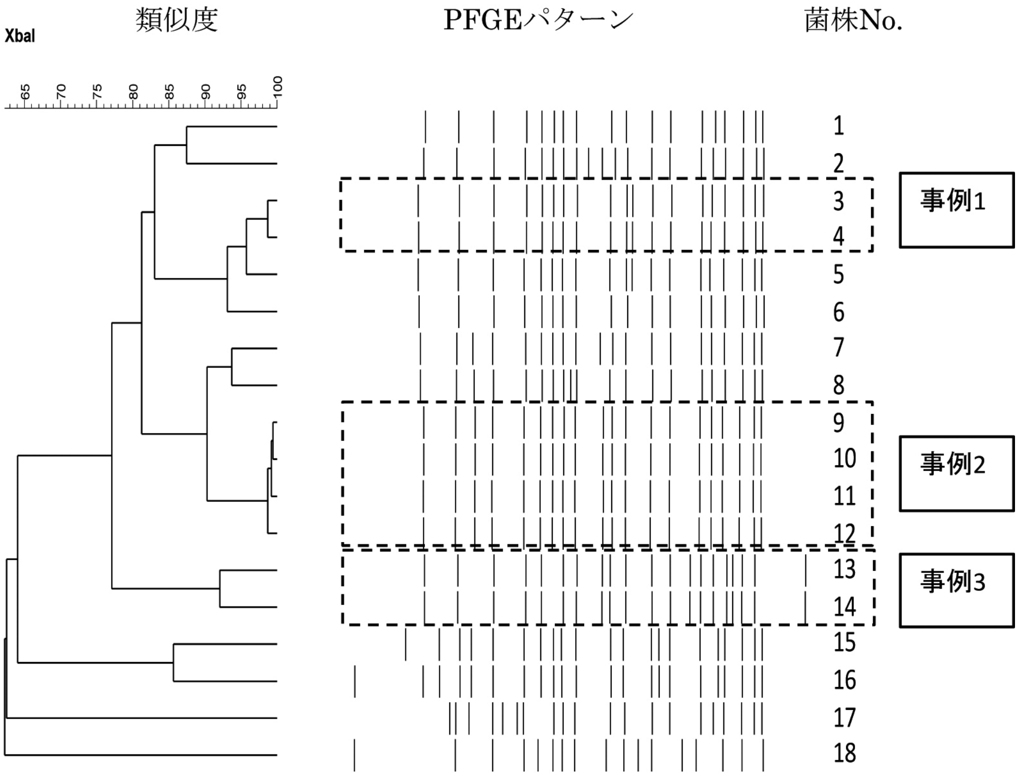



**図１**　EHEC O157（VT1&2）のデンドログラムおよびPFGEパターン

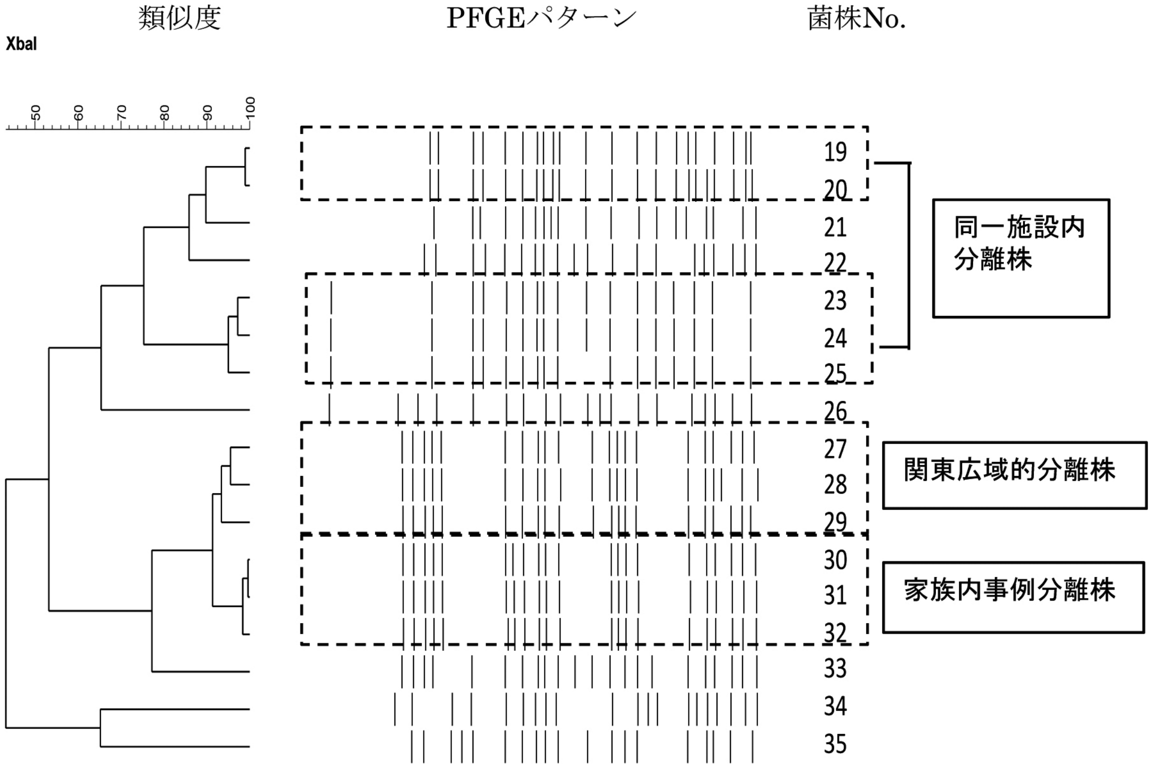



**図2**　EHEC O157（VT2）のデンドログラムおよびPFGEパターン

95%以上の類似度を示してほぼ一致し，IS法のパターンも一致していた．同一施設内集団事例株は，菌株No.19およびNo.20のクラスターと菌株No.23～No.25のクラスターに分かれ，これら二つのクラスター間の類似度は75%と低い値を示したが，IS法では菌株No.19のみがパターンが異なり，他の４菌株は同一パターンを示した．このことから，同一施設内で分離されたこれらの菌株は関連していると考えられた．菌株No.27～No.29については，関東地方において広域的に分離された菌株とPFGEパターンの類似度が高く，IS法の結果も一致したが，いずれの菌株も疫学的な関連は認められなかった．さらに，県域外の２つの集団事例との関連が疑われた菌株であるNo.33およびNo.35は，PFGEおよびIS法を用いた遺伝子解析ではいずれのパターンも県域外分離株と一致し，それぞれの事例における分離株の関連が遺伝子レベルで確認された．

食肉衛生検査所においてウシから分離されたO157（VT1）１株のPFGEおよびIS法の結果は，ヒト由来O157（VT1）１株のいずれとも異なっていた．

O26（VT1）４株，O103（VT1）４株およびO121（VT2）２株におけるPFGE解析では，高い類似度を示す菌株は認められず，すべて散発事例由来であることが確認された．

次に，これら48株について，アミノベンジルペニシリン(ABPC)，セフォタキシム(CTX)，クロラムフェニコール(CP)，ホスホマイシン(FOM)，ゲンタマイシン(GM)，カナマイシン(KM)，ナリジクス酸(NA)，シプロフロキサシン(CPFX)，ストレプトマイシン(SM)，スルファメトキサゾール・トリメトプリム合剤(ST)およびテトラサイクリン(TC)の11薬剤についてCLSI（米国臨床検査標準化協会）法[2]に準拠して薬剤感受性試験を実施した(表3)．その結果，CP，KM，SM，ST，TCの５剤耐性は１株，ABPC，SM，STの３剤耐性は６株，ABPC，SM，TCの３剤耐性は４株，ABPC，SMの２剤耐性は１株，SM，TCの２剤耐性は１株，TCの単剤耐性は１株認められ，48株中34株が供試した11薬剤に感受性であった．

**表3**　薬剤感受性試験結果（48株）

| | 耐性薬剤 | 菌株数 | 血清型（株数） |
|---|---|---|---|
| 5剤 | CP,KM,SM,ST,TC | 1 | O 111 VT1&2 (1) |
| 3剤 | ABPC,SM,ST | 6 | O 157 VT2 (6) |
| | ABPC,SM,TC | 4 | O 157 VT1&2 (4) |
| 2剤 | ABPC,SM | 1 | O 157 VT2 (1) |
| | SM,TC | 1 | O 157 VT2 (1) |
| 単剤 | TC | 1 | O 157 VT1&2 (1) |
| 感受性 | | 34 | |
| 計 | | 48 | |

今回，県域外の２つの集団事例に関連する患者が県域で報告され，分離菌株についてPFGEの遺伝子解析に基づく確定作業を行った結果，いずれの菌株も県域外分離株とPFGEパターンが一致し，それぞれの事例において関連していることが確認された．県域においてはEHEC O157(VT2)による同一施設内における集団感染事例が１例確認され，本事例の分離株の一部は，PFGE解析では異なるクラスターに分かれていたが，IS法ではパターンが一致した菌株も確認されたことから，これらの菌株は互いに関連があるものと思われ，感染経路の解明に向けた詳細な調査が必要と思われた．さらに、家族内の事例が複数確認されており，家庭環境における衛生対策など県民へのさらなる啓発が必要と考えられた。

EHECの散発および集団事例に対しては迅速に探知して拡大を防止しなければならない．PFGEを中心とした遺伝子解析は，菌株を識別し遺伝子レベルで共通の菌株を探知する有効な手段として今後も利用されると考える．

なお，この報告の一部は，厚生労働科学研究費補助金(広域における食品由来感染症を迅速に探知するために必要な情報に関する研究　新興･再興感染症研究事業)において実施した．

最後に，ご協力を頂きました各医療機関，医療検査機関，衛生研究所地域調査部および菌株搬入にご尽力いただきました各保健福祉事務所，食肉衛生検査所，県食品衛生課および健康危機管理課，藤沢市保健所の方々に深謝いたします．

(平成26年８月１日受理)

## 文　献

１）腸管出血性大腸菌感染症：病原微生物検出情報. 27, 149(2006)

２）Clinical and laboratory standards institute; methods for antimicrobial dilution and disk susceptibility testing of infrequently isolated or fastidious bacteria; approved guideline, CLSI document M45-A1, Wayne, Pa., (2007)

神奈川県衛生研究所研究報告　No. 44 (2014)
Bull. Kanagawa Ins. of P.H.

## 資料

# 感染性胃腸炎患者からの原因ウイルス検出状況（平成25年度）

鈴木理恵子，金城惠子，木村睦未，
近藤真規子，黒木俊郎

# Surveillance of viral gastroenteritis in Kanagawa Prefecture (April, 2013－March, 2014)

Rieko SUZUKI, Keiko KINJO, Mutsumi KIMURA,
Makiko KONDO and Toshiro KUROKI

我々は，感染症予測監視事業の一環として，感染性胃腸炎の原因ウイルスを把握する目的で，神奈川県域（川崎市，横浜市，横須賀市，相模原市および藤沢市を除く）の各小児科定点医療機関から得られた感染性胃腸炎患者の検体から原因ウイルスの検索を行っている．ウイルスを原因とする感染性胃腸炎は，例年冬期に多くの流行がみられ，冬期前半には乳幼児から成人に至るまで幅広い年齢層でノロウイルスによる胃腸炎，冬期後半を中心に乳幼児にみられるロタウイルスによる胃腸炎の流行が良く知られている．定点医療機関からの検体では，これらのウイルスの他にアデノウイルス，サポウイルス，アストロウイルス，C群ロタウイルスも検出されている．また，過去には冬期以外でも５月，６月，10月に神奈川県域の幼稚園や小学校および老人福祉施設でノロウイルス，A群ロタウイルス，サポウイルスおよびC群ロタウイルスによる感染性胃腸炎の集団発生があったことから，時期・年齢に関わらず複数のウイルスの検索を行っている．

平成25年４月から平成26年３月に感染性胃腸炎と診断された患者の便202検体について，ノロウイルス，A群ロタウイルス，アデノウイルス，サポウイルス，アストロウイルスおよびC群ロタウイルスの検索を行った．ウイルスの検出は，ノロウイルスには定量PCR，A群ロタウイルス，アデノウイルス，サポウイルス，アストロウイルスおよびC群ロタウイルスには RT-PCRによる遺伝子検出を行った．A群ロタウイルスおよびアデノウイルスについては，イムノクロマト法（ラピッドテスタロターアデノ（積水メディカル㈱））による抗原検出も併せて行った．また，検出された各種ウイルスの一部について，ダイレクトシークエンス法を用いて塩基配列を決定し，系統樹解析（NJ法）による型別を実施した．

表１に年齢別ウイルス検出状況を示した．202検体中111検体から原因ウイルスが検出され，その内訳は，ノロウイルス71株，A群ロタウイルス12株，アデノウイルス１株，サポウイルス25株およびアストロウイルス６株の計115株であった．

年齢別検体数の内訳は，６歳以下は131検体，７歳～12歳は20検体，13歳～22歳は７検体，23歳～64歳は40検体，65歳以上は４検体で，６歳以下からの検体が最も多く65％を占めた．陽性検体数は６歳以下で75検体，７歳～12歳は９検体，13歳～22歳は２検体，23歳～64歳は23検体，65歳以上は２検体の計111検体であった．検出されたウイルスは，６歳以下が５種類と最も多く，23歳～64歳では３種類，７歳～12歳，65歳以上では２

表１　年齢別ウイルス検出状況（平成25年4月～平成26年3月）

| | 検体数 | 陽性検体数 | 検出ウイルス数(%) | | | | | | 合計(%) |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| | | | ノロウイルス | A群ロタウイルス | アデノウイルス | サポウイルス | アストロウイルス | C群ロタウイルス | |
| 6歳以下 | 131 | 75 [1-4)] | 43 (54.4) | 12 (15.2) | 1 (1.3) | 19 (24.1) | 4 (5.1) | 0 | 79 (100.0) |
| 7歳～12歳 | 20 | 9 | 7 (77.8) | 0 | 0 | 2 (22.2) | 0 | 0 | 9 (100.0) |
| 13歳～22歳 | 7 | 2 | 2 (100.0) | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 2 (100.0) |
| 23歳～64歳 | 40 | 23 | 18 (78.3) | 0 | 0 | 3 (13.0) | 2 (8.7) | 0 | 23 (100.0) |
| 65歳以上 | 4 | 2 | 1 (50.0) | 0 | 0 | 1 (50.0) | 0 | 0 | 2 (100.0) |
| 合計 | 202 | 111 | 71 | 12 | 1 | 25 | 6 | 0 | 115 |

1：複数ウイルス検出（ノロウイルスGⅠ，サポウイルス）
2：複数ウイルス検出（ノロウイルスGⅡ，A群ロタウイルス）
3：複数ウイルス検出（ノロウイルスGⅡ，サポウイルス）
4：複数ウイルス検出（アデノウイルス，サポウイルス）

神奈川県衛生研究所　微生物部
〒253-0087　茅ヶ崎市下町屋1-3-1

種類，13歳～22歳では１種類であり，検出率の高い順にノロウイルス，サポウイルス，Ａ群ロタウイルス，アストロウイルス，アデノウイルスであった．ノロウイルスは全ての年齢層から，サポウイルスは13歳～22歳の年齢群を除く年齢層から検出されていた．また，複数ウイルスが検出された４検体はいずれも６歳以下からの検体で，検出ウイルスはノロウイルスgenogroup（以下，G）Ⅰとサポウイルス，ノロウイルスGⅡとＡ群ロタウイルス，ノロウイルスGⅡとサポウイルス，アデノウイルスとサポウイルスが各１例であった（表１）．

月別のウイルス検出状況を表２に示した．平成25年度は，115株のウイルスが検出され,この内79株（69％）が10月以降に検出され，８月，９月の夏期にはウイルスは検出されなかった．

ウイルスごとの検出状況をみると，ノロウイルスは本年度も例年の検出状況と同様の傾向を示し，８月から10月までは検出されず，11月からは平成26年３月まで継続的に検出され，冬期シーズンだけで年間検出数の80％を占めた．ノロウイルスは71検体中69検体がGⅡ，２検体がGⅠで，本年度はノロウイルスに汚染された貝類等に起因する食中毒事例に多いGⅠとGⅡの同時検出例はみられなかった．ノロウイルスGⅡのうち無作為に選んだ18株について遺伝子型別を実施した結果，GⅡ/４変異型が10株，GⅡ/6が６株，GⅡ/13が１株,GⅡ/14が１株であった．2012/2013シーズン（2012年９月から2013年８月）に出現したGⅡ/4変異型は，2012/2013シーズンも神奈川県を含む全国で引き続き流行したが，11月以降にはGⅡ/6が主流となった．

Ａ群ロタウイルスは，12株中９株が４月から５月に検出された．この流行は平成25年３月から続いており，冬期後半から春期に流行するＡ群ロタウイルスの流行傾向と一致していた．

サポウイルスは５月から８月，９月から平成26年１月に計25株検出された．遺伝子群別（genogruop：以下，G）を実施した結果，25株のうちGⅠが21株，GⅡが７株，GⅣが１株であり，GⅢおよびGⅤは検出されなかった．平成24年度に神奈川県域では初めて確認され，その動向が注目されたGⅣは，平成25年度は１株のみ検出であった．

図１にサポウイルスCapsid領域の系統樹を示した．サポウイルスの遺伝子群はGⅠからGⅤの５種類あり，GⅠおよびGⅡは１型から７型に分類される．系統樹解析の結果，平成25年度に検出されたGⅠ21株の遺伝子型は，GⅠ/1型が９株，GⅠ/2型が６株，GⅠ/3型が６株であり，３種類の遺伝子型が混在していた．GⅠの流行は平成23年度から３年間続いているが，遺伝子型はGⅠ/1型（平成23年度）からGⅠ/2型（平成24年度），平成25年度は前半にGⅠ/2型であったものの、後半にはGⅠ/1型へ変化していた．また，GⅡ３株の遺伝子型はGⅡ/3型２株，GⅡ/4型１株であった．

アデノウイルスは，５月に１株のみ検出され，下痢症の原因となる41型に型別された．

アストロウイルスは，５月に２株，平成26年２月に３株，３月に１株の計６株が検出され，遺伝子型は全て

**表２**　発病月別ウイルス検出状況

| 年　月 | 検出ウイルス数 | | | | | | | | | 合計 |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| | ノロウイルス | | A群ロタウイルス | アデノウイルス | サポウイルス | | | アストロウイルス | C群ロタウイルス | |
| | GⅠ[1] | GⅡ[2] | | | GⅠ[1] | GⅡ[2] | GⅣ[3] | | | |
| 平成25年　4月 | 0 | 0 | 7 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 7 |
| 5月 | 1[4] | 5 | 2 | 1[4] | 11[4] | 0 | 0 | 2 | 0 | 22 |
| 6月 | 0 | 1 | 0 | 0 | 0 | 2 | 0 | 0 | 0 | 3 |
| 7月 | 0 | 1[4] | 1[4] | 0 | 2 | 0 | 0 | 0 | 0 | 4 |
| 8月 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 |
| 9月 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 |
| 10月 | 0 | 0 | 0 | 0 | 1 | 0 | 1 | 0 | 0 | 2 |
| 11月 | 0 | 6 | 0 | 0 | 1 | 0 | 0 | 0 | 0 | 7 |
| 12月 | 0 | 18[4] | 0 | 0 | 0 | 1[4] | 0 | 0 | 0 | 19 |
| 平成26年　1月 | 0 | 13 | 0 | 0 | 6 | 0 | 0 | 0 | 0 | 19 |
| 2月 | 0 | 11 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 3 | 0 | 14 |
| 3月 | 1 | 14 | 2 | 0 | 0 | 0 | 0 | 1 | 0 | 18 |
| 小計 | 2 | 69 | | | 21 | 3 | 1 | | | |
| 合計 | 71 | | 11 | 1 | 25 | | | 6 | 0 | 115 |

１：genogroupⅠ
２：genogroupⅡ
３：genogroupⅣ
４：複数ウイルス検出例

１型であった.

平成22年度からサポウイルス，Ａ群ロタウイルス，アストロウイルスについてPCR法による型別を実施してきたが，PCR法では型別できない検体も多かったことから，平成23年度以降は，ダイレクトシークエンス法を用いて塩基配列を決定し，系統樹解析（NJ法）による型別を実施している．流行ウイルスの特徴を把握するためには，系統樹解析による型別が有効なことから，今後も継続して実施する必要がある．また，引き続き本調査を継続するにあたり，定点医療機関への検査結果の迅速な還元や病原微生物検出情報等により広く情報の提供に努めていきたい.

最後に，検体および患者情報の収集にご協力いただきました各小児科定点医療機関の先生方および本事業にご尽力いただきました県健康危機管理課の方々に深謝いたします.

（平成26年８月１日受理）

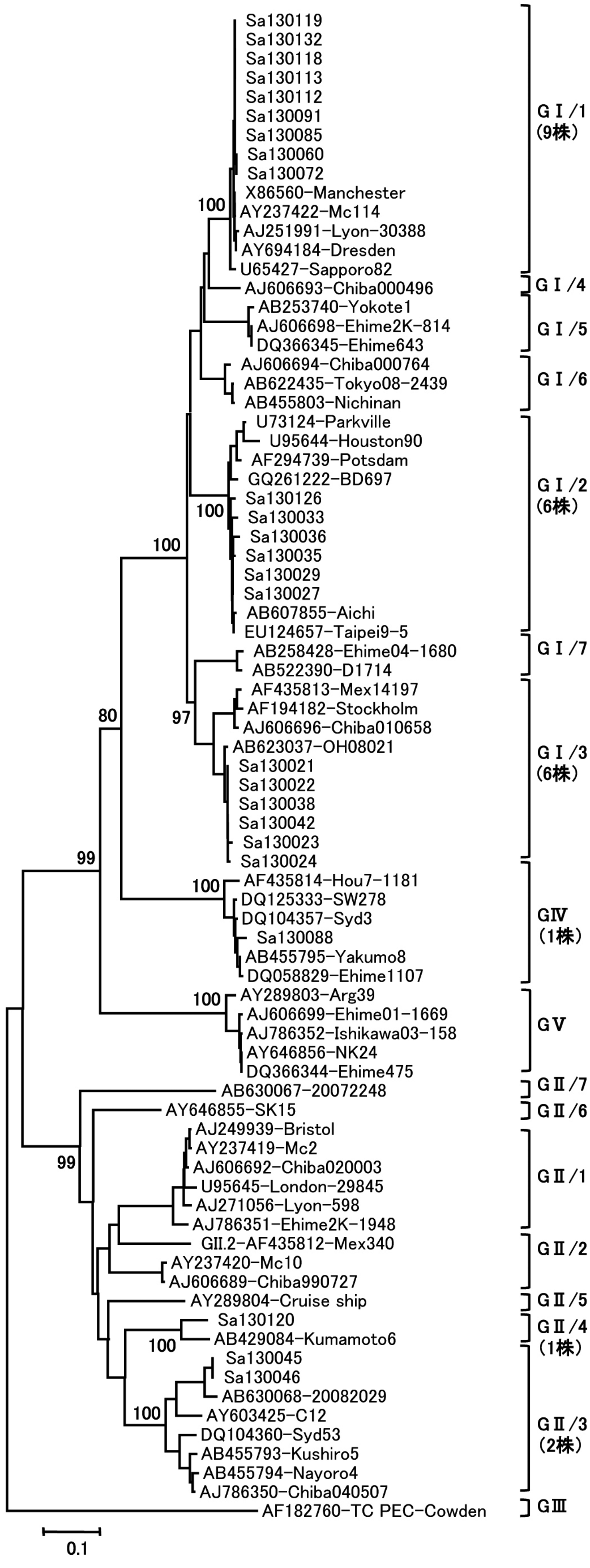



**図１**　サポウイルスのCapsid領域の系統樹(384bp)

## 資料

# 神奈川県域におけるインフルエンザの流行状況（2013/2014シーズン）

渡邉寿美，佐野貴子，伊達佳美，
近藤真規子，黒木俊郎

# Epidemic of influenza in Kanagawa Prefecture (2013/2014 season)

Sumi WATANABE, Takako SANO, Yoshimi DATE,
Makiko KONDO and Toshiro KUROKI

2012/2013シーズン（以下昨シーズン）の神奈川県域（横浜市，川崎市，相模原市および横須賀市を除く神奈川県内，以下県域）における季節性インフルエンザ（AH1pdm09，AH3，B）の動向は，AH3が主流行株で，Bとの混合流行であった．また，昨シーズン流行終盤の2013年３月に中国でインフルエンザA(H7N9)のヒトへの感染例が報告され，４月17日以降，患者発生地域からの帰国者については季節性インフルエンザの他に鳥インフルエンザのAH5とAH7も組み込んだ病原体検査対応を行っている．2013/2014シーズン（以下本シーズン）におけるインフルエンザウイルスの動向を報告する．

本シーズンの患者報告数は，2013年52週（12/23～29）に流行開始の目安となる定点あたり患者報告数1.0人を超えた後2014年２週（１/６～12）以降に急増し，３週（１/13～19）に注意報レベルの10.0人を，４週（１/20～26）に警報レベルの30.0人を超えた．患者発生のピークは５週の47.88人で，その後減少に転じた．７週（２/10～16）から９週（２/24～３/２）にかけては警報レベルで横ばい状態になったが，その後再び減少して17週（４/21～27）の患者報告数は1.28人となっており，流行は終息に向かっていると思われる．本シーズンのインフルエンザ患者報告数は，通常のシーズンと同様の傾向で推移した（図１）．

ウイルス調査は，2013年36週（９/２～８）～2014年17週の間にウイルスサーベイランス（県域の病原体定点調査）と院症例）および集団かぜ調査（県域保健所管内の初発事例）入院サーベイランス（県域のインフルエンザと診断された入で採取された検体を対象に行った．ウイルスサーベイランスの検体は426例，入院サーベイランスの検体は19例，集団かぜの検体は10集団47例，計492例であった．検査はリアルタイムRT-PCR法による遺伝子検出とMDCK細胞によるウイルス分離を行った（一部の検体についてはウイルス分離のみを実施した）．遺伝子検出はインフルエンザウイルスのHA遺伝子を対象とし，AH1pdm09，AH3，Bの型別を行った．また，ウイルス分離株は，国立感染症研究所から配付された標準抗血清とモルモット血球を用いた血球凝集抑制反応を

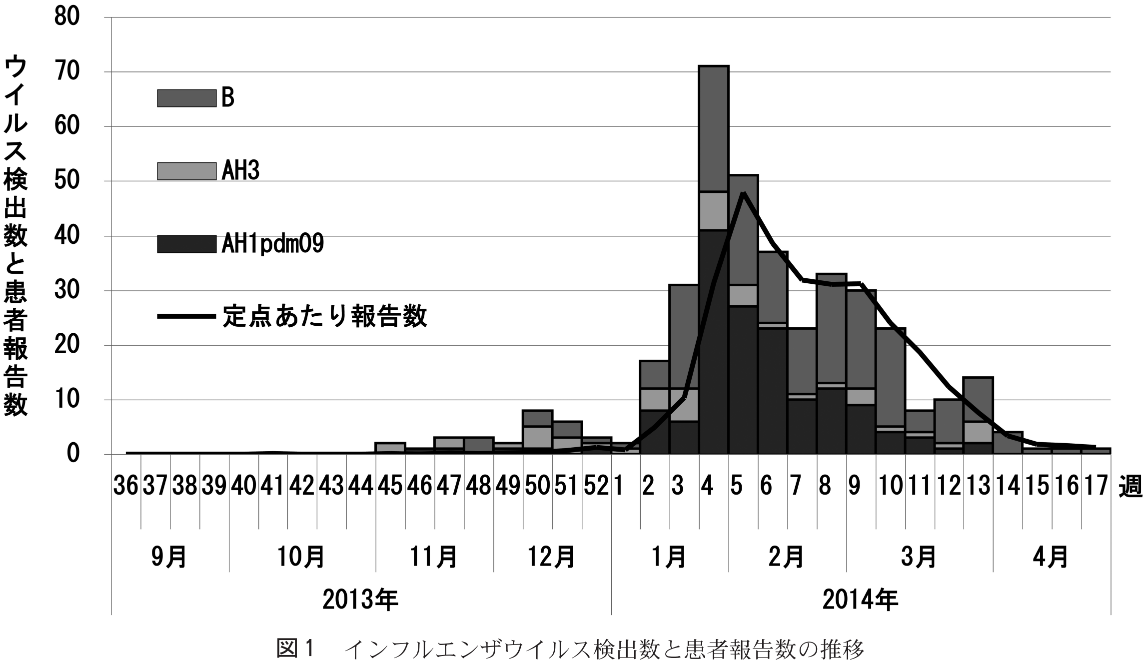



図１　インフルエンザウイルス検出数と患者報告数の推移

神奈川県衛生研究所　微生物部
〒253-0087　茅ヶ崎市下町屋1-3-1

実施し，AH1pdm09 ，AH3，Bビクトリア系統，B山形系統に型別した．さらに，一部のAH1pdm09分離株についてはNA遺伝子のオセルタミビル耐性マーカー（H275Y変異）を調査した．

インフルエンザウイルスの検出状況を見てみると，９月と10月は検体搬入が無く，11月に入って２例からAH3が検出された．その後は，散発的にAH1pdm09とBが検出されるようになり，本シーズンは，シーズン初めから混合流行の様相を呈していた．１月に入るとAH1pdm09の検出数が増加したが，３月以降はBの検出数がAH1pdm09を上回るようになった．また，学校等で発生した集団かぜ調査では，10集団中７集団からBが検出された．AH3は，シーズンを通して散発的に検出された（図１）．検出されたインフルエンザウイルスは385例で，その内訳は，AH1pdm09が151例（39%），AH3が48例（13%），Bが186例（48%）であった（図２）．

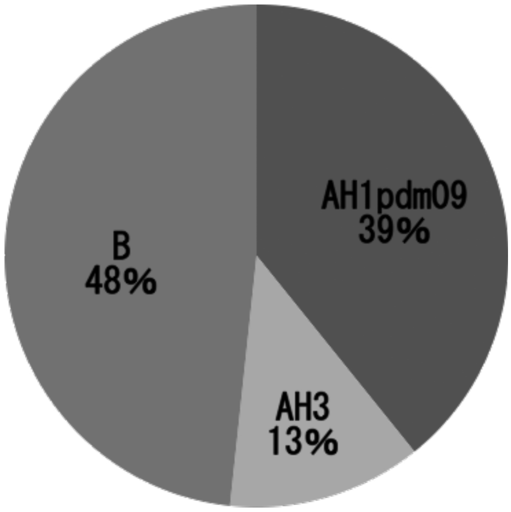
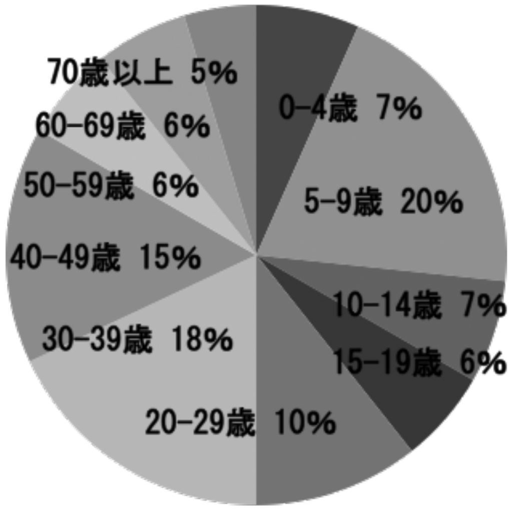
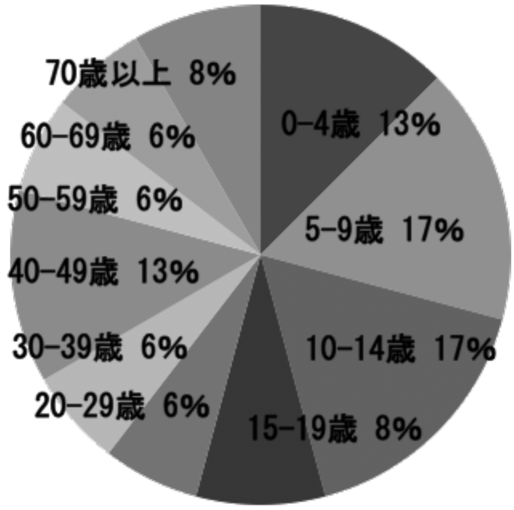



**図２**　インフルエンザウイルス検出割合

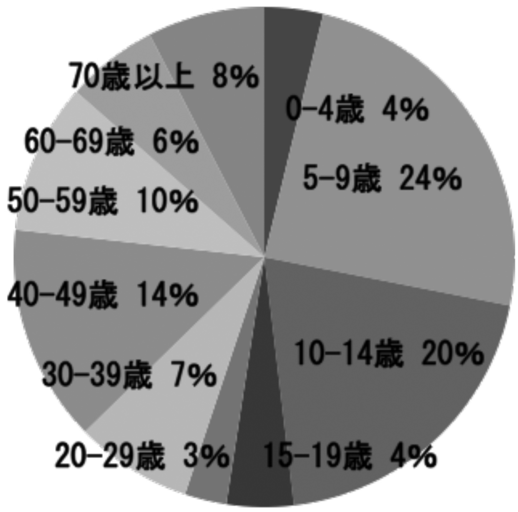
インフルエンザウイルス検出型別の年齢構成を図３に示した．AH1pdm09は５～９歳が最も多く20%，次いで30～39歳が18%，40～49歳が15%となっており，他の年齢群は５～10%であった（図３a）．AH3は５～９歳および10～14歳が17%，０～４歳および40～49歳が13%となっており，他の年齢群は６～８%であった（図３b）.Bは５～９歳が最も多く24%，次いで10～14歳が20%，40～49歳が14%，他の年齢群は３～10%であった（図３c）.どの型も５～９歳から最も多く検出されており，流行の中心は５～９歳であった．また，２シーズンぶりに流行がみられたAH1pdm09は，５～９歳とともに30～39歳，40～49歳が多く，成人でも流行していた．AH3とBは５～９歳に続いて10～14歳が多く，流行の中心は小児であった．




a. AH1pdm09




b. AH3




c. B

**図３**　インフルエンザウイルス検出型別の年齢構成

ウイルス分離数は，AH1pdm09が132株，AH3が35株，Bが110株，計277株であった．B分離株の内訳は，ビクトリア系統24株，山形系統86株となり，山形系統がBの主流行株であった．また，AH1pdm09分離株のうち93株についてNA遺伝子のオセルタミビル耐性マーカーを調査したところ，３株の耐性変異株を検出した．このうちの１株は集団かぜ検体からの分離株で，オセルタミビル治療開始後４日目の検体から分離されたことおよび同一集団の別患者からは感受性株が検出されていたことから，治療により耐性変異を獲得したものと考えられた．一方，他の２株は散発例で薬剤治療歴は無かった．このうち11月の分離株１例について国立感染症研究所でNA遺伝子の系統樹解析を行ったところ，同時期に札幌市や中国で検出された薬剤耐性変異株と同じグループに分類されることがわかった．

入院患者19症例の鼻咽頭拭い液についてインフルエンザウイルスの検出を行ったところ，AH1pdm09が６例，AH3が２例，Bが８例検出され，３例は不検出であった．ウイルス検出の傾向は，2014年５週まではAH1pdm09優位，７週以降はB優位となり，図１に示した全体のウイルス検出状況と概ね一致していた．また，インフルエンザウイルスが検出された16症例の臨床症状は全症例に発熱があり，体温の最高値は38.3～40.8℃であった．発熱以外の臨床症状は，多い順に肺炎等の下気道炎８例，嘔吐等の胃腸炎４例，上気道炎２例であった（表１）．

最後になりましたが，検体採取および患者情報の収集にご協力いただきました医療機関の先生方および検体搬送にご尽力いただきました県域保健所職員の皆様に深謝いたします．

（平成26年８月１日受理）

**表１**　入院サーベイランス症例からのインフルエンザウイルス検出状況

| 症例 | 検体採取 | 年齢 | 臨床症状 | インフルエンザウイルス検出状況 |
|---|---|---|---|---|
| 1 | 2週 | 74歳 | 発熱（最高40.3℃） | AH1pdm09 |
| 2 | 4週 | 8歳 | 発熱（最高38.6℃） | AH3 |
| 3 | 4週 | 1歳 | 発熱（最高39.6℃）、下気道炎（肺炎、気管支炎） | AH1pdm09 |
| 4 | 5週 | 1歳 | 発熱（最高38.6℃） | 不検出 |
| 5 | 5週 | 6歳 | 発熱（最高40.8℃）、下気道炎（肺炎） | AH1pdm09 |
| 6 | 5週 | 1歳 | 発熱（最高40.8℃）、下気道炎（肺炎） | AH1pdm09 |
| 7 | 5週 | 0歳 | 発熱（最高38.3℃）、上気道炎、下気道炎（気管支炎） | B |
| 8 | 6週 | 45歳 | 発熱（最高37.8℃）、呼吸困難 | 不検出 |
| 9 | 6週 | 6歳 | 発熱（最高40℃）、胃腸炎（嘔気、嘔吐） | AH1pdm09 |
| 10 | 6週 | 7歳 | 発熱（最高38.5℃）、胃腸炎（腹痛） | B |
| 11 | 7週 | 5歳 | 発熱（最高40℃）、下気道炎（肺炎） | B |
| 12 | 7週 | 9歳 | 発熱（最高40℃）、下気道炎（肺炎） | B |
| 13 | 10週 | 32歳 | 発熱（最高38.3℃）、下気道炎（肺炎） | AH1pdm09 |
| 14 | 10週 | 84歳 | 発熱（最高38.5℃）、上気道炎 | AH3 |
| 15 | 10週 | 3歳 | 発熱（最高40℃）、下気道炎（気管支炎）、胃腸炎（下痢） | B |
| 16 | 10週 | 8歳 | 発熱（最高40℃） | B |
| 17 | 11週 | 81歳 | 発熱（最高38.3℃）、胃腸炎（腹痛） | B |
| 18 | 12週 | 16歳 | 発熱（最高40.2℃）、失神 | 不検出 |
| 19 | 14週 | 75歳 | 発熱（最高40.6℃） | B |

資料

# 遺伝子組換え食品の分析結果（平成25年度）

大森清美，清水　碧，田中由紀子，岸　弘子

# Analytical results of genetically modified foods in Kanagawa Prefecture (2013)

Kiyomi OHMORI, Midori SHIMIZU, Yukiko TANAKA and Hiroko KISHI

遺伝子組換え（GM）作物は，2013年には27カ国で栽培され，その面積は1億7500万ヘクタールとなり，1996年の商業栽培開始以来増加の一途をたどっている．栽培面積の上位３カ国は，アメリカ，ブラジル，アルゼンチンであり，特にブラジルでは前年の10％増と高い増加率であった[1]．日本では現在も食品としての商業栽培は行われていないが，流通に関しては，2001年（平成13年）４月からGM作物含有食品への表示が義務づけられている．神奈川県では同年から，安全性未審査のGM作物について食品中への混入の有無を調べる検査を開始し，翌2002年からは安全性審査済みGM作物の表示の適正を確認する検査を併せて実施してきた．本報告では，平成25年度に実施した54検体の検査結果について報告する．なお，安全性未審査のGM作物検査は厚生労働省通知[2]，JAS分析試験ハンドブック[3]および大森らの改変法[4]に，安全性審査済みのGM作物検査は消費者庁通知[5]に従い実施した．表１に，検査を実施した品目および試験方法を示した．使用機器類は，既報のとおりである[6]．

安全性未審査の組換え遺伝子として，コメの63Bt，NNBtおよびCpTI，トウモロコシのCBH351について，食品中への混入の有無を検査した（表２）．No.１から10までのコメ加工品について，リアルタイムPCRの結果では，いずれのDNA試料液でもコメ内在性遺伝子のPLDは陽性，組換え遺伝子の63Bt，NNBtおよびCpTIは陰性であったことから，63Bt，NNBtおよびCpTIの判定は，10検体すべて不検出であった．トウモロコシ加工品については，コーンフレークとコーンスターチは，過去に実施した検査において通知法に記載されたJAS分析試験ハンドブック[3]のDNA抽出精製法で，トウモロコシ内在性遺伝子のZeinが３抽出全てで陰性すなわち検知不能の判定結果となる頻度が高かった．そこで，JAS分析試験ハンドブックを一部改変しZein遺伝子の陽性率を高めることで検知不能になり難くした方法（Kanagawa法）[4] を適用化し，標準作業書のDNA抽出精製法に採用している．このKanagawa法を用いて検体No.11のコーンフレーク，No.12および13のコーンスターチのDNA抽出精製を行った結果，DNA試料原液濃度は1.6～5.2ng/μLであり，通知法で定性目的としたPCRに供されるDNA試料液濃度の10ng/μLよりも低濃度であった．また，260nm/280nm吸光度比は，No.13のコーンスターチでは1.7～1.9とDNAが十分に精製されたことの指標とされる1.7以上であったが，No.11のコーンフレークおよびNo.12のコーンスターチのDNA試料原液は0.4～0.5および1.2～1.6であり1.7に満たなかった．これら10ng/μL未満のDNA試料原液ついて，通知法に従い３検体とも原液のままPCRに供しアガロースゲル電気泳動を実施した結果，トウモロコシ内在性遺伝子であるZein遺伝子は，それぞれ２回抽出分のDNA試料原液とも陽性であった．大森ら

表１　平成25年度　組換え遺伝子検査品目及び試験方法

| 原料 | 品目 | 検体数 | 試験 | 試験方法 | DNA抽出精製キット | 組換え遺伝子 | 内在性遺伝子 |
|---|---|---|---|---|---|---|---|
| コメ | 米粉 | 6 | 定性 | リアルタイムPCR法 | GM quicker 2（NIPPON GENE） | 63Bt/NNBt/CpTI | PLD |
| | ビーフン | 2 | | | Genomic-tip 100G（QIAGEN） | | |
| | ライスペーパー | 2 | | | | | |
| トウモロコシ | コーンフレーク | 1 | 定性 | PCRーアガロースゲル電気泳動法 | Genomic-tip 20G（QIAGEN） | CBH351 | Zein |
| | コーンスターチ | 2 | | | | | |
| | コーンスープ | 4 | | | | | |
| | トウモロコシ缶詰 | 5 | | | | | |
| 大豆 | 大豆穀粒 | 6 | 定量 | リアルタイムPCR法 | GM quicker（NIPPON GENE） | RRS/RRS2/LLS | Le1 |
| | 豆腐 | 14 | | | Genomic-tip 20G（QIAGEN） | | |
| | 厚揚げ | 12 | | | | | |
| 合計 | | 22 | 定性 | | | | |
| | | 32 | 定量 | | | | |

神奈川県衛生研究所　理化学部
〒253-0087　茅ヶ崎市下町屋1-3-1

の報告においても[4]Kanagawa法では，一般的にZein遺伝子の増幅が困難とされるコーンフレークやコーンスターチで高頻度にZein遺伝子の増幅バンドが検出されており，本検査結果でも，コーンフレークおよびコーンスターチのDNA抽出精製法としてKanagawa法が有用であることが確認された．組換え遺伝子CBH351の確認用配列については，12検体のいずれについても陰性であり，CBH351は不検出の判定となった．以上により，コメ加工品およびトウモロコシ加工品22検体の全てで安全性未審査の組換え遺伝子は不検出であった．

安全性審査済みのGM作物は，それを原料とした食品には「遺伝子組換え」の表示義務があり，分別生産流通管理（IPハンドリング）を実施していないGM作物不分別の作物を原料とする食品には「遺伝子組換え不分別」の表示義務がある．一方，IPハンドリングが添付されている非組換え作物およびそれを原料とした食品では，遺伝子組換えに関する表示の義務は無く，意図せざる混入として５％を上限として安全性審査済みのGM作物の混入が許可されている．それらの表示が適切に行われているか否かを確認するため，安全性審査済みのGM作物について定量試験を行っている．平成25年度は，大豆穀粒６検体，豆腐14検体および厚揚げ12検体について，Roundup Ready Soybean（RRS），平成24年11月16日付の通知法改正[5]で組換え体の検査項目として追加になった（RRS2）および（LLS）の定量試験を行った（表３）．なお，豆腐および厚揚げなどの大豆加工食品については，厚生労働省通知では定量試験の対象外であるが，加工食品へのGM作物の「非表示」混入に対する消費者の不安が大きいことから，神奈川県では，豆腐に類する比較的加工程度が低い加工食品については通知法に準じた定量試験を実施している．それにより，表示違反が疑われた場合には，原料の大豆穀粒について通知法の定量試験を実施し最終判定を行うこととしている．大豆穀粒，豆腐および厚揚げの計32検体の定量結果では，すべての検体で３遺伝子とも定量下限値（0.5%）[7]未満であり不検出であった．しかし，いずれの組換え遺伝子も定量下限値未満で微量検出され，大豆穀粒ではアメリカ産１検体でRRS，カナダ産１検体でRRSとRRS2，中国産１検体でLLSが認められた．豆腐では，14検体中13検体でRRS，12検体でRRS2，１検体でLLSが微量検出された．厚揚げでは，12検体中すべてでRRS，６検体でRRS2が微量検出され，豆腐および厚揚げでは，RRSだけでなくRRS2についても高頻度で微量混入していることが示唆された．平成24年度の豆腐および厚揚げのRRSの微量混入検出率は８割以上であったが[8]，平成25年度はさらに高く９割を超えた．平成18年度以降に高頻度で検出されているRRSの微量混入は，平成25年度も減少する兆しは認められなかった．新たに検査項目として追加されたRRS2についても，豆腐での微量混入検出率は８割を超え，厚揚げでも５割であった．それらの組換え遺伝子と比較するとLLSの微量検出率は低かったが，大豆穀粒および豆腐で１検体ずつの微量混入が認められた．

世界におけるGM作物の栽培は，品種および栽培面積とも拡大はとどまるところを知らない[1]．今後も非GM作物へのGM作物混入の可能性は高まることが危惧され

**表２**　平成25年度　組換え遺伝子定性試験結果

| No. | 品目 | 原料産地 | 組換え遺伝子 | 結果 | GMに関する表示 |
|---|---|---|---|---|---|
| 1 | 米粉(上新粉) | 日本 | 63Bt/NNBt/CpTI | 不検出 | 記載なし |
| 2 | 米粉(上新粉) | 日本 | 63Bt/NNBt/CpTI | 不検出 | 記載なし |
| 3 | 米粉(上新粉) | 日本 | 63Bt/NNBt/CpTI | 不検出 | 記載なし |
| 4 | 米粉(上新粉・白玉粉混合物) | 日本 | 63Bt/NNBt/CpTI | 不検出 | 記載なし |
| 5 | 米粉(白玉粉) | 日本 | 63Bt/NNBt/CpTI | 不検出 | 記載なし |
| 6 | 米粉(白玉粉) | 日本 | 63Bt/NNBt/CpTI | 不検出 | 記載なし |
| 7 | ビーフン | 台湾 | 63Bt/NNBt/CpTI | 不検出 | 記載なし |
| 8 | ビーフン | ベトナム | 63Bt/NNBt/CpTI | 不検出 | 記載なし |
| 9 | ライスペーパー | ベトナム | 63Bt/NNBt/CpTI | 不検出 | 記載なし |
| 10 | ライスペーパー | ベトナム | 63Bt/NNBt/CpTI | 不検出 | 記載なし |
| 11 | コーンフレーク | 記載なし | CBH351 | 不検出 | 遺伝子組換えでない |
| 12 | コーンスターチ | 記載なし | CBH351 | 不検出 | 遺伝子組換えでない |
| 13 | コーンスターチ | 記載なし | CBH351 | 不検出 | 遺伝子組換えでない |
| 14 | コーンスープ | アメリカ | CBH351 | 不検出 | 記載なし |
| 15 | コーンスープ | 記載なし | CBH351 | 不検出 | 遺伝子組換えでない |
| 16 | コーンスープ | 記載なし | CBH351 | 不検出 | 遺伝子組換えでない |
| 17 | コーンスープ | 記載なし | CBH351 | 不検出 | 遺伝子組換えでない |
| 18 | トウモロコシ缶詰 | アメリカ | CBH351 | 不検出 | 遺伝子組換えでない |
| 19 | トウモロコシ缶詰 | 記載なし | CBH351 | 不検出 | 遺伝子組換えでない |
| 20 | トウモロコシ缶詰 | 記載なし | CBH351 | 不検出 | 遺伝子組換えでない |
| 21 | トウモロコシ缶詰 | 記載なし | CBH351 | 不検出 | 遺伝子組換えでない |
| 22 | トウモロコシ缶詰 | 記載なし | CBH351 | 不検出 | 遺伝子組換えでない |

ることから，適切な表示と食品の安全性確保のため，引き続き GM作物の検査と監視を実施していく必要があるものと考える．

（平成26年８月１日受理）

表３　平成25年度　組換え遺伝子定量試験結果

| No. | 品目 | 原料産地 | 組換え遺伝子 | | | GMに関する表示 |
|---|---|---|---|---|---|---|
| | | | RRS | RRS2 | LLS | |
| 1 | 大豆穀粒 | アメリカ | *不検出 | 不検出 | 不検出 | IPハンドリングあり |
| 2 | 大豆穀粒 | アメリカ | 不検出 | 不検出 | 不検出 | IPハンドリングあり |
| 3 | 大豆穀粒 | カナダ | *不検出 | **不検出 | 不検出 | IPハンドリングあり |
| 4 | 大豆穀粒 | カナダ | 不検出 | 不検出 | 不検出 | IPハンドリングあり |
| 5 | 大豆穀粒 | カナダ | 不検出 | 不検出 | 不検出 | IPハンドリングあり |
| 6 | 大豆穀粒 | 中国 | 不検出 | 不検出 | **不検出 | IPハンドリングあり |
| 7 | 豆腐 | カナダ/アメリカ | *不検出 | **不検出 | 不検出 | 遺伝子組換えでない |
| 8 | 豆腐 | カナダ/アメリカ | *不検出 | **不検出 | 不検出 | 遺伝子組換えでない |
| 9 | 豆腐 | カナダ | *不検出 | **不検出 | 不検出 | 遺伝子組換えでない |
| 10 | 豆腐 | カナダ | *不検出 | **不検出 | 不検出 | 遺伝子組換えでない |
| 11 | 豆腐 | カナダ | *不検出 | 不検出 | 不検出 | 遺伝子組換えでない |
| 12 | 豆腐 | カナダ | 不検出 | 不検出 | 不検出 | 遺伝子組換えでない |
| 13 | 豆腐 | 記載なし | *不検出 | **不検出 | **不検出 | 遺伝子組換えでない |
| 14 | 豆腐 | 記載なし | *不検出 | **不検出 | 不検出 | 遺伝子組換えでない |
| 15 | 豆腐 | 記載なし | *不検出 | **不検出 | 不検出 | 遺伝子組換えでない |
| 16 | 豆腐 | 記載なし | *不検出 | **不検出 | 不検出 | 遺伝子組換えでない |
| 17 | 豆腐 | 記載なし | *不検出 | **不検出 | 不検出 | 遺伝子組換えでない |
| 18 | 豆腐 | 記載なし | *不検出 | **不検出 | 不検出 | 遺伝子組換えでない |
| 19 | 豆腐 | 記載なし | *不検出 | **不検出 | 不検出 | 遺伝子組換えでない |
| 20 | 豆腐 | 記載なし | *不検出 | **不検出 | 不検出 | 遺伝子組換えでない |
| 21 | 厚揚げ | カナダ/アメリカ | *不検出 | **不検出 | 不検出 | 遺伝子組換えでない |
| 22 | 厚揚げ | カナダ/アメリカ | *不検出 | **不検出 | 不検出 | 遺伝子組換えでない |
| 23 | 厚揚げ | カナダ/アメリカ | *不検出 | 不検出 | 不検出 | 遺伝子組換えでない |
| 24 | 厚揚げ | カナダ/アメリカ | *不検出 | 不検出 | 不検出 | 遺伝子組換えでない |
| 25 | 厚揚げ | 日本 | *不検出 | 不検出 | 不検出 | 遺伝子組換えでない |
| 26 | 厚揚げ | 記載なし | *不検出 | **不検出 | 不検出 | 遺伝子組換えでない |
| 27 | 厚揚げ | 記載なし | *不検出 | **不検出 | 不検出 | 遺伝子組換えでない |
| 28 | 厚揚げ | 記載なし | *不検出 | **不検出 | 不検出 | 遺伝子組換えでない |
| 29 | 厚揚げ | 記載なし | *不検出 | **不検出 | 不検出 | 記載なし |
| 30 | 厚揚げ | 記載なし | *不検出 | 不検出 | 不検出 | 遺伝子組換えでない |
| 31 | 厚揚げ | 記載なし | *不検出 | 不検出 | 不検出 | 遺伝子組換えでない |
| 32 | 厚揚げ | 記載なし | *不検出 | 不検出 | 不検出 | 遺伝子組換えでない |

＊　RRS定量下限値0.5％（参考文献 7）未満の微量検出
＊＊　RRS2およびLLS定量下限値0.5％（当所暫定値）未満の微量検出

## 参考文献


１）The International Service for the Acquisition of Agri-biotech Applications (ISAAA)：Brief 46 Global Status of Commercialized Biotech/GM Crops 2013 〈http://www.isaaa.org/resources/publications/briefs/46/〉

２）厚生労働省医薬食品局食品安全部長通知「安全性未審査の組換えDNA技術応用食品の検査方法について」(食安発1116 第4号，平成24年11月16日)

３）JAS分析試験ハンドブック「遺伝子組換え食品検査・分析マニュアル」(農林水産消費技術センター，平成14年６月)

４）大森清美ほか：トウモロコシ加工食品からのイオン交換樹脂タイプキットを用いたDNA抽出精製法の検討，食品衛生学雑誌，49，No.1，45-50 (2008)

５）消費者庁次長通知「安全性審査済みの組換えDNA技術応用食品の検査方法について」(消食表第201号，平成24年11月16日）(別添）安全性審査済みの組換えDNA技術応用食品の検査方法

６）大森清美，服部愛希，酒井康宏，関戸晴子，岸弘子：遺伝子組換え食品の分析結果（平成20年度)，神奈川県衛生研究所研究報告，39，37-40 (2009)

７）米谷民雄：遺伝子組換え体の検知に関する調査研究，厚生労働科学研究費補助金　バイオテクノロジー応用食品の安全性確保に関する研究　平成15年度総括・分担研究報告書 (H15－食品－003)，65-97 (2004)

８）大森清美，清水碧，田中由紀子，関戸晴子，岸弘子：遺伝子組換え食品の分析結果（平成24年度)，神奈川県衛生研究所研究報告，43，40-42 (2013)

# 他誌掲載論文抄録

（平成25年４月～平成26年３月）

### がん予防教育と神奈川県の取り組み

岡部英男（神奈川衛研），予防医学，55，23-33 (2013)

わが国は高齢化とともに長寿国となり，ここ数年間の厚生労働省「人口動態統計」によれば，２人に１人はがんになり，３人に１人はがんで亡くなり，世界一のがん大国である．わが国では1981（昭和56）年から，がんは死因のトップとなり，右肩上がりに増えている．現在，日本人は毎年およそ100万人が死亡しており，その中で，32万人くらい，つまり３人に１人はがんで亡くなっている．特に65歳以上では２人に１人はがんで亡くなっている．

県民をはじめ義務教育期間の小・中学校から高校・大学にいたるまで，各年代にあった『がん予防教育』は大事である．がん発生メカニズムと予防，がんと生活習慣病，がん検診と診断，がん治療，延命と緩和ケア，死生観と死生学について述べた．そして，国では2006（平成18）年に「がん対策基本法」，2007（平成19）年に「がん対策基本計画」を策定した．神奈川県では，2005（平成17）年に「がんへの挑戦・10か年戦略」を策定し，国の施策や「神奈川県保健医療計画」との整合を図り，「がん対策推進計画」を継続して行っている．新たな計画として2013（平成25）年度から2017（平成29）年度の５年間の計画について述べた．

### Emergence in Japan of an HIV-1 variant associated with transmission among Men Who Have Sex with Men (MSM) in China:first idicational dissemination of the Chinese MSM lineage
### （中国のMSM間における急速なHIV流行拡大が日本の流行に及ぼす影響）

近藤真規子，佐野貴子（神奈川衛研），Lemey Philippe (Rega Institute, Belgium)，井戸田一朗（しらかば診療所），吉村幸浩，相楽裕子，立川夏夫（横浜市民病院），山中晃（新宿東口クリニック），岩室紳也（厚木市立病院），俣野哲郎，武部豊（国立感染研），今井光信（田園調布学園大学），加藤真吾（慶應義塾大学），Journal of Virology, 87(10): 5351-61 (2013)

2004年～2011年の８年間に首都圏でHIV-1と診断された477名について遺伝子解析を行った結果，近年中国のMSM間で大流行しているCRF01_AEバリアント，CN. MSM.01-1が６例から検出された．これら６例は2010年～2011年にHIV-1感染と診断された日本男性で，感染経路の内訳はMSM３例，不明３例であった．BEASTプログラムによる解析の結果，中国バリアントの日本への侵入時期は2009年前後と推定された．

また，日本のMSM間では感染サブタイプはほとんどがサブタイプB（239/246）であるが，そのうちの３分の１は一つのクラスター（JP.MSM.B1）に属しており，このバリアントは欧米から1987年ごろ日本に播種したと推定された．興味深いことに中国遼寧省のMSMから分離された３株がJP.MSM.B1クラスター内にサブクラスターを形成しており，日本由来のサブタイプBが中国にも存在することが明らかとなった．このレポートは中国でのMSM間での流行が近隣国に影響を与え，東アジアにおけるMSM集団にCRF01_AEと日本由来サブタイプBの混合感染が起こっていることを示す最初の報告である．これらの知見はこれら地域での疫学的サーベイランスの強化，MSM間での効果的な対策を講ずることの重要性を示している．

### HIV-1 p24 抗原検出感度が向上した改良型HIV抗原抗体同時検出試薬の検討

佐野貴子，近藤真規子（神奈川衛研），吉村幸浩，立川夏夫（横浜市民病院），相楽裕子（横浜市民病院，東京都保健医療公社豊島病院），井戸田一朗（しらかば診療所），山中晃（新宿東口クリニック），須藤弘二，加藤真吾（慶応義塾大学），今井光信（田園調布学園大学），感染症学雑誌，87(4)，415-423 (2013)

ELISA 法を測定原理とし，抗HIV-1 抗体，抗HIV-2 抗体およびHIV-1 p24 抗原を同時検出可能なHIVスクリーニング検査試薬（ジェンスクリーンHIV Ag-Ab ULT，以下ジェンスクリーンULT と略）について，感度，特異性等の性能評価を行うとともに，感染初期検出感度およびHIV-1 p24 抗原検出感度について，他のHIV 抗原抗体同時検出試薬３法（アーキテクト・HIV Ag/Ab コンボアッセイ，バイダスアッセイキットHIV DUO II，ジェンスクリーンHIV Ag-Ab）との比較検討

を行った．HIV抗体陽性血漿200検体およびHIV陰性血漿1,000 検体を用いて検討した結果，ジェンスクリーンULTは感度，特異性ともに100％ であった．各HIVジェノタイプとの反応性はHIV-1グループMのサブタイプA，B，B′，C，D，F，G，B/D，CRF01_AE，グループO，HIV-2の検出が可能であった．感染初期セロコンバージョンパネル10セットを用いた感染初期検出感度の比較では，ジェンスクリーンULTはアーキテクトおよびバイダスDUOⅡとすべて同採血日の検体から検出され，旧試薬との比較では10パネル中５パネルにおいて１採血日（最小で３日，最大で５日）早く検出が可能であった．以上の結果から，ジェンスクリーンULTはHIVスクリーニング検査法として十分な感度，特異性を有するとともに，アーキテクトやバイダスDUOⅡと比較しても感染初期検出感度は同等であり，HIVスクリーニング検査試薬として有用であることが分かった．

**コミュニティセンター「かながわレインボーセンターSHIP」の夜間HIV/STIs 即日検査相談を受けたMSM（men who have sex with men）の特徴及び罹患率**

井戸田一朗（特定非営利活動法人SHIP，しらかば診療所），星野慎二（特定非営利活動法人SHIP），沢田貴志（港町診療所），佐野貴子（神奈川衛研），上田敦久（横浜市大付属病院），加藤真吾（慶応義塾大学），今井光信（田園調布学園大学），日本公衆衛生学雑誌，60(5)，253-261（2013）

かながわレインボーセンターSHIP が実施した，MSM向けのHIVおよびSTIs検査相談を受検したMSMの特徴と陽性率を明らかにし，そのHIV罹患率を推定することを目的とした．2008年１月から2011年12月の間に，当センターで実施した夜間無料匿名即日HIV/STIs 検査相談の受検者のべ585件（449人）に対し，585件の検査記録およびアンケートデータを分析した．HIV/STIs検査には，HIV抗体，TP抗体，HBs抗原の迅速検査試薬を用いた．複数回受検した82人のMSMを対象に，人年法によりHIV罹患率を算出した．その結果，検査相談を新規に受検したMSM は423人で，最多年齢層は25-29歳代で24.6%，神奈川県内居住者は78.5%，生涯で初めてHIV検査を受検した者は30.5%であり，過去６か月のアナルセックスにおけるコンドーム常用率は44.9%であった．検査結果が陽性であったのは，HIV13人（3.1%），梅毒TP抗体43人（10.2%），HBs抗原７人（1.7%）であった．新規に受検したMSMの中で，その後複数回にわたり受検したMSMは，再受検しなかったMSMと比較し，年齢層，居住地，HIV検査の受検経験有無，コンドーム常用率に有意差を認めなかった．複数回受検したMSMは82人であり，HIV罹患率は，1.00/100人年（95%信頼区間：0.00-5.58）であった。HIV陽性率は，従来の都市部におけるMSM向けのHIV/STIs検査イベントでの陽性率と同等で，保健所での陽性率に比べて高かった．HIV/STIs感染リスクの高いMSMを対象としたHIV検査機会を保健所以外に確保し継続することは，他の都市部においても有用であると考えられた．

**Characteristics of the tumor-promoting potential of airborne particulate and gaseous matter at ten sites in Japan**
**（日本の10地点における大気浮遊粉じん及びガス状物質の発がんプロモーション活性の特徴）**

大森清美（神奈川衛研），佐藤洋平（麻布大），中島大介，影山志保，白石不二夫（国立環境研），藤巻照久（神奈川衛研），後藤純雄（麻布大），Environmental Science Processes & Impacts, 15, 1031-1040 (2013)

我々は，2007年の夏と2008年の冬に日本国内10地点（札幌，仙台，前橋，筑波，新宿，相模原，静岡，東伯，北九州，鹿児島）において採取した大気浮遊粉じんとガス状物質について，Bhas42細胞形質転換試験を用いて発がんプロモーション活性の評価を行った．全地点のガス状物質は陰性であったが，大気浮遊粉じんの発がんプロモーションステージにおける形質転換活性は，地域によりいくつかのパターンに分類された．札幌では，夏よりも冬の大気浮遊粉じんが特に高い形質転換活性を示し，仙台から静岡の６地点の都会では，冬の大気浮遊粉じんの重量当たりの形質転換活性はほぼ同等であった．東伯，北九州，鹿児島の３地点では，冬の大気浮遊粉じんの形質転換活性は陰性であった．このように，大気浮遊粉じんに吸着した物質の形質転換活性は，冬に顕著な特徴を示した．我々はさらに，各試料に含まれる16種の多環芳香族炭化水素化合物の定量を行い，発がんプロモーション活性の強さとの相関を調べた．その結果，両者の明らかな相関は認められず，化合物の定量値から発がんプロモーション活性を予測することは困難であることが明らかになった．これらのデータから，環境試料の発がん活性の予測には，多環芳香族炭化水素化合物などの定量よりもバイオアッセイによる直接評価の方が有用であることが示唆された．

**Interlaboratory validation study of an event-specific Real time polymerase chain reaction detection method for genetically modified 55-1 papaya.**
**（遺伝子組換えパパイヤ55-1検出のためのイベント特異**

**的なリアルタイムPCR法の室間再現性の検討）**

野口秋雄，中村公亮，坂田こずえ，小林知子，穐山浩，近藤一成，手島玲子（国立衛研），大森清美（神奈川衛研），笠原正輝（消費安全技術センター），高畠令王奈，橘田和美（食総研），Journal of AOAC International, **96**(5), 1054-1058 (2013)

遺伝子組換え（GM）パパイヤの55-1は，パパイヤリングスポットウイルスに耐性であり，国際的に流通している品種である．その適性表示のためには，55-1の特異的な検出法が必須であることから，55-1検出のための組換え特異的なリアルタイムPCR法を開発した．この試験法をバリデートするために，55-1検出のための組換え特異的な定性リアルタイムPCR法について，室間再現性の検討を12機関の研究室で実施した．DNA抽出法とリアルタイムPCR法は，ブラインドサンプル（陽性６サンプルと陰性６サンプル）を対象に各機関で評価を行った．その結果，イオン交換カラムを用いてパパイヤから抽出された全てのDNAは高純度であり，リアルタイムPCRに適していた．GMパパイヤからは，パパイヤ内在性遺伝子のchymopapain（CHY）と組換え特異的遺伝子の55-1が検出され，非GMパパイヤからはCHYのみが検出された．CHY と55-1のCt値は高い併行精度（RSDr 0.6-0.8%）と室間再現精度（RSDR 2.2-3.6%）を示した．この研究の結果，55-1のリアルタイムPCR法は，55-1パパイヤの検知のための特異的で確度の高い定性試験法であることが明らかになった．

**Evaluation of real-time PCR detection methods for detecting rice products contaminated by rice genetically modified with a CpTI-KDEL-T-nos transgenic construct**

**（CpTI-KDEL-T-nos遺伝子を組み込んだ遺伝子組換えコメの混入を検知するためのリアルタイムPCR法の評価）**

中村公亮，穐山浩，河野徳昭，小林知子（国立衛研），吉松嘉代，真野潤一，橘田和美（食総研），大森清美（神奈川衛研），野口秋雄，近藤一成，手島玲子（国立衛研），Food Chemistry, **141**, 2618-2624 (2013)

ケフェングやケミングダオなどの遺伝子組換え（GM）コメが開発され，それらは未承認のコメとして多くの国でコメ加工品の中に検出されている．そのため，それらのGMコメを検出する試験法の開発が必須である．ササゲ（*Vigna unguiculata*）のトリプシンインヒビター遺伝子（CpTI）はケミングダオが混入したコメ加工品で検出されており，KEDELとT-nos遺伝子を含むCpTIが3′末端の配列にある．そしてその配列はケフェルでも同一であった．そこで，新たにCpTI-KDEL遺伝子と T-nos遺伝子を検出するリアルタイムPCR法を開発した．このコンストラクト特異的なリアルタイムPCR法を用いて，輸入のコメ加工品中のGMコメ混入について評価を行った結果，新たな方法は，従来法よりも高感度かつ特異的にGMコメを検出した．したがって，我々は，この新たな方法を，ケフェング等のGMコメがコメ加工品へ混入したことを検知するための有用なスクリーニング法として提案する．

**Identification and Detection of genetically modified Papaya resistant to Papaya ringspot virus strains in thailand**

**（タイ国におけるリングスポットウイルス耐性の遺伝子組換えパパイヤの同定と検出）**

中村公亮，近藤一成，小林知子，野口秋雄（国立衛研），大森清美（神奈川衛研），橘田和美（食総研），穐山浩，手島玲，西巻-最上知子（国立衛研），Biol. Pharm. Bull., **37**(1), 1-5 (2014)

多くのGMパパイヤ（*Carica papaya LINNAEUS*）が，パパイヤリングスポットウイルス(PRSV)感染の耐性を獲得するために開発されている．我々は，パパイヤ加工品から新規かつ未承認の遺伝子組換えパパイヤを検出し，タイ国のPRSV耐性のための遺伝子導入ベクターのコンストラクトを見出した．それによりPRSV-Thailand-resistant 遺伝子組換えパパイヤ検出のためのオリジナルかつ特異性の高いリアルタイムPCR法を開発した．

**Heat treatment of egg white controls allergic symptoms and induces oral tolerance to ovalbumin in a murine model of food allergy（卵白の熱処理は食物アレルギーモデルマウスのアレルギー症状を制御し、オボアルブミンに対する経口免疫寛容を誘導する）**

渡邊裕子（神奈川衛研），戸田雅子（Paul-Ehrlich-Institut），関戸晴子（神奈川衛研），Anne Wellner (Technische Universitaet Dresden)，藤井智之（東北大院農研科），Thomas Henle (Technische Universitaet Dresden)，八村敏志，足立（中嶋）はるよ（東大院農生科），Mol. Nutr. Food Res., **58**, 394-404 (2014)

食物アレルギー疾患では，加熱などによるアレルゲンの変性で症状を誘発しない場合が報告されている。そこで，我々は主要な卵アレルゲンである卵白アルブミン（OVA）に対する食物アレルギーモデルマウスを用い，熱処理を行った卵白に対する免疫応答およびアレルギー症状の誘発について解析を行った．OVA特異的T細胞受容体遺伝子トランスジェニックマウス（OVA23-3）に，

凍結卵白（P）および80℃15分，100℃５分，121℃40分処理した卵白を20%混合した餌を28日間投与し，腸管での食物アレルギー様症状を観察した．80℃15分処理では未変性卵白に比べアレルギー様症状は軽減し、寛容が誘導されたものの重篤なアレルギー様症状が残った．100℃５分処理ではタンパク質の凝集により消化吸収が遅くなり，アレルギー様症状を誘発せずにOVAに対する寛容が誘導された．121℃40分処理ではタンパク質の不溶化により消化吸収が低下し，アレルギー様症状は誘発されず，T細胞分化においてTh1への誘導が観察された．100℃５分処理の卵白ではアレルギー症状を誘発することなく，OVAに対する寛容が誘導された．

**魚介類加工食品に含まれるアレルギー物質（えび・かに）の検出**

渡邊裕子（神奈川衛研），濟田清隆（横浜市衛研），赤星千絵，大澤伸彦，橋口成喜（川崎市健康安全研），宮澤眞紀（神奈川衛研），食衛誌，55，41-54（2014）

捕食や混獲によると考えられる魚介類加工食品へのえび・かに混入の調査（2009～2012）を行った．アレルギー表示制度施行後の2010年～2012年の煮干や佃煮などの小魚を含む加工食品の甲殻類タンパク質の検出率は63％であった．また，甲殻類タンパク質が1μg/g以下であった加工食品の割合は，注意喚起表記ありが36％，なしが58％となり，約６割の表示が妥当であった．一方，甲殻類タンパク質量がアレルギー表示における基準値である10μg/gを超える加工食品の検出率は９％で，このうち約６割に注意喚起表記がなかった．えび・かにを含む加工食品のあきあみ検出用プライマーによる検出率は73％と高く，えびPCR法ではあきあみも実施する必要があると考えられた．かにPCR法では共にしゃこDNAも８％検出され，かにの混入を確認できなかった．

Bulletin of Kanagawa Prefectural Institute of Public Health（Bull. Kanagawa Ins. of P.H.）is an official periodical on reseach works at Kanagawa Prefectural Institute of Public Health and is publishued, as a rule, annually. All communications relating to the publication should be addressed to the Editorial Board.

Editorial Board
KANAGAWA PREFECTURAL INSTITUTE OF PUBLIC HEALTH
1 － 3 － 1 Shimomachiya, Chigasaki 253-0087
JAPAN

# Bulletin
# of
# Kanagawa Prefectural Institute of Public Health
# No.44（September, 2014）

## CONTENTS




**KANAGAWA PREFECTURAL INSTITUTE OF PUBLIC HEALTH**
1－3－1 Shimomachiya, Chigasaki 253-0087
**JAPAN**