資　料

Dispersive SPE を用いた加工食品中の残留農薬迅速一斉分析法の検討

○畠山えり子　阿久津千寿子　梶田弘子　菅原隆志
（岩手県環境保健研究センター）

１．はじめに

国内に流通していた輸入冷凍加工食品を食べた家族が有機リン中毒を発症し，一時期重体となる極めて重篤な健康危機事例が発生した．このことを契機として，消費者の加工食品の安全性についての不安が高まっている．厚生労働省は、今回の薬物中毒事案に対応して, 平成 20 年 3 月 7 日付けで「加工食品中の有機リン系農薬に係る試験法について」通知している．しかし，この方法は粉砕した試料を酢酸エチルで抽出する際，同時に硫酸ナトリウムを加えて脱水・抽出したのち，濃縮，溶媒に溶かして測定する方法で，精製は行われていないため，測定へのマトリックスの影響が懸念される．また，今後，有機リン系農薬以外にも多種の農薬による急性中毒の発生が想定されることから，加工食品に対応する農薬の検査体制の整備・拡大が求められている．そこで，食品を介した農薬による急性の健康被害発生対応を目的として，市販の Dispersive SPE を用いた GC/MS 及び LC/MS/MS 一斉分析法について検討を行なったので報告する．

２．実験方法

2.1 対象試料

冷凍食品（ギョウザ），レトルト食品（卵丼，リゾット），清涼飲料水（乳飲料，野菜ジュース）を用いた．

2.2 対象農薬

GC/MS；204 成分（代謝物・異性体を含む），LC/MS/MS；85 成分（代謝物・異性体を含む）を対象とした．

2.3 標準品および試薬等

GC/MS 用混合標準品：関東化学㈱製の残留農薬混合標準液 22，31，34，48 をアセトニトリルで希釈して用いた．

LC/MS/MS 用混合標準品；和光純薬工業㈱，林純薬工業㈱，関東化学㈱，Dr.Eherenstorfer 社製の残留農薬試験用農薬標準品を用いて調製した標準原液をアセトニトリルで希釈して用いた．

Dispersive SPE；SUPELCO 社製の Citrate Extraction Tube (55227-U)，PSA/C18 SPE Clean Up Tube (55229-U)，PSA/ENVI-Carb SPE Clean UP Tube (55233-U) を用いた．

有機溶媒等：有機溶媒は関東化学の残留農薬分析用，その他の試薬は特級を用いた．

2.4 装置及び測定条件

GC/MS；6890GC/5973MSD（Agilent 社製）

GC/MS 条件：カラム；DB-XLB（内径 0.25mm×30m，膜圧 0.1mm，Agilent 社製），ガス；He，オーブン温度；80℃（1min）→20℃/min→140 ℃ →4 ℃ /min→200 ℃ →8 ℃ /min→300℃(5min)，注入口温度；230℃，注入量；2μL，測定モード；SIM

LC/MS/MS：LC；Agilent 1100（Agilent 社製），MS；API4000（Applied Biosystems 社製）

LC 条件：カラム；Atlantis ™ d-C18 3μm 2.1×150mm（Waters 社製），移動相；A-0.05% formic cid + 10mM Ammonium Acetate，B-Methanol，グラジェント条件；ポジティブモード：0 分（A：B，80:20），2 分～8 分（10：90），8 分～20 分（10：90），20.01 分（80：20），20.01 分～30 分（80：20），ネガティブモード；0 分，（80：20），1 分～6 分（10：90），6 分～14 分（10：

90)，14.01 分（80：20)，14.01 分～22 分（80：20)，注入量：10μL

MS 条件：イオン化モード；ESI（＋）および（－)，測定モード:MRM, 温度: 600℃, イオンソース:Voltage 5500

2.5 試料の調製方法

2.5.1 GC/MS 法

図 1 に操作の概要を示した．均一化したサンプル 10g を 50mLPTFE 遠心管に採取した．これにアセトニトリル 10ml を加えよく振って混ぜたのち，Citrate Extraction Tube に詰めてある硫酸マグネシウムおよびクエン酸緩衝液を加えて，1 分間激しく振とうしたのち，3000rpm で 5 分間遠心分離した. その上清 5mL を脂質の多い食品では PSA/C18 SPE Clean UP Tube に，クロロフィルなどの色素系の多い食品では PSA/ENVI-Carb SPE Clean UP Tube に分注し，1 分間激しく振とう後，3000rpm で遠心分離して得られた上清を GC/MS 用試験溶液とした.

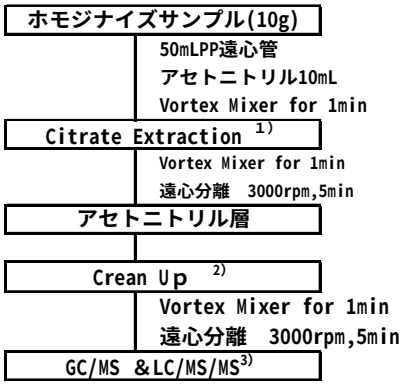


図-1 操作フロー

1) 55227-Uを使用
2) 油の多い食品は55229-U,色素を多く含む食品は55233-Uを使用
3) GC/MSはそのまま当倍で測定、LC/MS/MSは50%アセトニトリルで10倍に希釈して測定

2.5.2 LC/MS/MS 法

GC/MS 法により調製した試験溶液 200μL を試験管に採取し，アセトニトリル混液（1：1）で 2.0mL に定容した液を LC/MS/MS 用試験溶液とした.

2.6 定量及び添加回収試験

定量は，試料のブランク試験溶液に標準品を添加する方法で作成したマトリックス添加検量線を用いた. 添加回収試験は, 均一化した試料 5g に対し, 混合標準液濃度が 0.05μg/g 相当を添加し，n=3 で試験を行った.

３．結果及び考察

3.1 GC/MS 測定における溶媒の影響

GC/MS 測定の場合, 最終的にヘキサンやアセトンなどの非極性溶媒に転用したのち測定するため, 濃縮操作に時間がかかっている．そこで，検査の迅速化を図るため，抽出溶媒であるアセトニトリル溶液での測定における感度低下やピーク形状等に与える影響について確認した．その結果，ヘキサンやアセトンに比べて感度低下は認められたが, ほとんどの農薬は 0.05ppm レベルまで十分に検出可能であることが確認できた.

3.2 GC/MS 一斉試験法による添加回収試験

清涼飲料水として乳酸飲料および野菜ジュース, 冷凍食品としてギョウザ，レトルト食品として卵丼およびリゾットを対象に 204 成分（異性体を含む)の添加回収試験を行った結果を表-1 に示した. 回収率が 70～120%に入った成分数は卵丼が 187 成分と最も多く，乳酸飲料は 132 成分と最も少ない結果であった．このことは，水分が多い食品では抽出効率が低下していることが推定された.

表-1 GC/MSによる回収試験結果

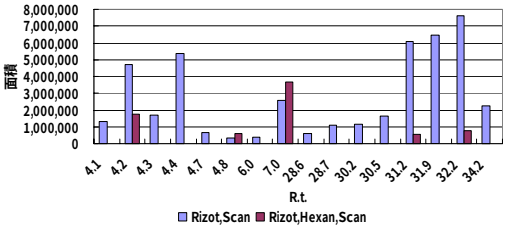
回収率の範囲	乳酸飲料	野菜ジュース	卵丼	リゾット	ギョウザ
50%以下	36	16	14	16	14
60～70%	34	18	3	2	6
70～120%	132	155	187	182	176
120～150%	2	7		3	6
>150%		8		1	2

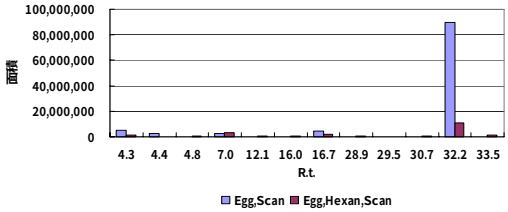
3.3 脂肪分除去方法の検討

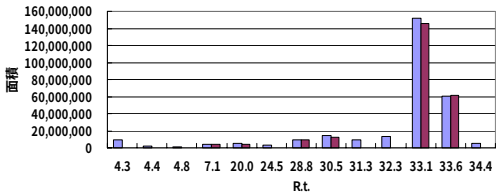
ギョウザや卵丼およびリゾットでは脂肪分が多いため，C18/PSA のみの精製ではマトリックスの影響により定量が困難な農薬があった．そこで，脱脂方法として，①抽出溶液にアセトニトリル飽和ヘキサン 2mL を加え, 振とうしたのち遠心分離により脂肪をヘキサン層に分配する方法，②抽出溶液にヘキサン 2mL を積層したのち遠心分離によりヘキサン層を除去分配する 2 つの方法を比較

した．その結果，双方とも，おおむね回収率は改善する傾向にあったが，①の方法による場合，回収率が低下する農薬も認められた．特に，極性の低い農薬で回収率が低下する現象が確認された．これらの農薬は，脂質と一緒にヘキサン層に移行していると考えられた．②の方法では，その傾向はあまり顕著ではなく，ほとんどの農薬は回収率が改善されていた．

油分を多く含有するリゾット，卵丼，ギョウザを対象に，C18/PSA による精製のみとヘキサン/アセトニトリル分配精製を加えた場合の GC/MS のトータルイオンクロマトグラムの面積で比較した結果を図２に示した．リゾットでは，ヘキサン/アセトニトリル分配による精製効果は顕著に認められ，卵丼においても，32 分近辺で，マトリックスによるピークが顕著に減少していることが観測された．しかし，ギョウザではヘキサン/アセトニトリル分配による精製効果はあまり顕著ではないという結果であった．







3.3 LC/MS/MS 一斉分析による添加回収試験

ギョウザ, 卵丼およびリゾットを対象に 85 成分（異性体を含む）の添加回収試験を行った結果を表-2 に示した．回収率が 70～120%に入った成分数は卵丼が 65 成分と最も多く，ギョウザは 37 成分と最も少なかった．また, 極性の高い農薬、PSA にトラップしやすい酸性農薬で回収率が低い傾向を示した．

表-2　LC/MS/MSによる回収試験結果

回収率の範囲	卵丼	リゾット	ギョウザ
50%以下	8	13	16
60～70%	11	11	32
70～120%	65	61	37
120～150%	1		
>150%			

4　まとめ

食品への農薬混入などによる健康被害が発生した場合の危機管理対応として，市販の Dispersive SPE を用いた加工食品中の GC/MS 及び LC/MS/MS 迅速分析法について検討し，次の知見が得られた．

① GC/MS 測定における試験溶液として, 抽出溶媒であるアセトニトリル溶液でも，ほとんどの農薬は 0.05ppm レベルまで十分に検出可能であることが確認できた．この結果，GC/MS 測定における溶媒転用のための濃縮操作を省略することが可能であった．

② 加工食品を対象とした添加回収試験の結果, 品目によって差は認められたが，6 から 9 割の農薬で回収率が 70~120%に入る良好な結果が得られた．

③ 油分を多く含む食品においては，アセトニトリ・ヘキサン分配操作を加えることにより，回収率が改善されることが解った．

本試験法は，粉砕した試料と抽出溶媒および秤量添付されている試薬を混合するだけで測定が可能であり，前処理に要する時間は 10 検体でも 1 時間程度であった．以上のことから，危機管理対応の試験法としては操作性・迅速性に優れ，有効に使用できると考えられる．

表３　GC/MS一斉分析による回収試験結果

No.	成分名	ENVI-Carb&PSA								C18&PSA					
		清涼飲料水		野菜ｼﾞｭｰｽ		卵丼		ﾘﾝｺﾞｯﾄ		C18&PSA-onry		ｷﾞｮｳｻﾞ ｱｾﾄﾆﾄﾘﾙ飽和ﾍｷｻﾝ分配		ﾍｷｻﾝ積層	
		回収率	Cv.	回収率	Cv.	回収率	Cv.	回収率	Cv.	回収率	Cv.	回収率	Cv.	回収率	Cv.
1	a－ＢＨＣ	94.3	8.1	87.3	0.6	87.3	5.4	106.7	5.9	93.7	2.3	70.5	7.2	79.3	5.0
2	b－ＢＨＣ	94.1	4.7	83.5	4.0	98.7	7.1	99.6	8.7	90.1	6.4	84.0	3.7	87.2	2.4
3	d－ＢＨＣ	95.9	3.9	99.2	8.5	77.6	3.2	106.6	12.1	116.5	10.9	90.9	2.7	75.7	5.1
4	γ－ＢＨＣ	89.5	2.2	90.7	6.1	100.0	14.8	99.6	6.8	102.0	2.7	71.3	9.5	80.2	1.8
5	ＥＰＴＣ	95.4	10.5	83.4	13.1	90.1	14.1	84.6	12.9	0.0	－	49.3	11.8	59.0	21.8
6	E-メトミノストロビン	98.2	1.5	96.8	3.8	97.1	7.1	96.0	3.6	97.5	11.1	81.8	6.1	84.4	2.0
7	Z-メトミノストロビン	94.7	7.7	115.5	5.0	96.9	6.2	97.0	12.3	123.1	34.9	90.9	8.6	94.9	5.9
8	p,p-ＤＤＤ	82.5	5.8	88.7	1.2	92.8	2.0	92.7	3.2	84.4	4.8	59.2	9.5	71.7	0.4
9	p,p-ＤＤＥ	84.9	5.7	93.4	2.0	84.2	0.7	84.9	1.7	70.3	3.0	23.0	9.6	53.2	1.0
10	ＴＣＭＴＢ	0.0	－	153.3	7.2	0.0	－	45.1	37.9	19.5	98.4	39.4	43.8	82.7	7.2
11	α-エンドスルファン	93.3	7.8	84.6	10.1	84.3	17.9	87.6	4.3	95.8	1.7	54.2	11.8	52.9	8.1
12	β-エンドスルファン	79.5	6.9	83.2	8.8	86.1	16.8	113.7	21.2	93.3	11.5	85.3	12.1	73.7	3.1
13	アクリナトリン	77.8	14.8	86.6	1.8	83.6	17.1	112.4	2.1	88.2	6.8	83.5	7.0	82.2	15.5
14	アジンホスメチル	0.0	－	102.0	55.9	90.6	13.9	112.0	19.2	79.4	26.2	90.6	18.7	93.9	6.5
15	アセトロール	94.8	8.4	93.7	8.5	106.3	9.0	96.8	2.6	120.2	5.4	70.6	8.0	82.9	6.1
16	アトラジン	87.1	4.5	87.4	2.4	90.2	6.0	96.3	4.2	88.0	4.6	87.9	8.0	85.8	3.7
17	アニロホス	95.8	10.6	88.2	3.6	95.3	3.1	98.8	11.5	84.3	16.0	88.2	8.6	93.0	2.7
18	アラクロール	86.4	5.4	95.1	4.7	94.8	2.6	99.9	6.0	104.7	13.2	63.9	9.5	83.6	5.7
19	イサゾホス	93.1	5.5	103.4	6.7	93.7	6.0	91.5	4.8	92.4	9.3	82.8	6.7	87.3	11.1
20	イソキサチオン	53.4	32.6	69.8	20.4	97.1	9.0	108.6	8.1	81.2	37.9	74.6	46.6	99.2	14.2
21	イソフェンホス	87.8	8.3	95.6	0.4	95.4	1.0	94.9	4.8	96.8	7.3	82.3	12.6	85.2	0.8
22	イソフェンホスオクソン	25.8	110.1	0.0		96.1	4.3	103.5	6.3	106.3	39.6	91.1	34.5	90.9	2.7
23	イソプロチオラン	97.7	3.3	88.4	8.5	100.1	2.1	104.6	10.0	106.5	9.8	83.9	8.9	93.8	3.8
24	イプロジオン	83.9	7.0	98.1	9.2	61.9	15.5	105.7	18.6	82.9	9.5	82.1	4.3	87.6	7.4
25	イプロベンホス	98.2	7.6	129.3	23.3	97.1	2.5	101.8	6.1	93.0	21.7	95.5	8.6	84.8	2.6
26	ウニコナゾール－P	111.8	12.9	135.3	27.3	94.8	0.9	96.5	11.3	79.1	7.4	86.7	7.6	89.0	3.4
27	エスプロカルブ	90.3	6.0	82.3	3.9	97.7	8.5	97.9	4.1	95.4	8.4	51.6	6.8	77.9	4.0
28	エタフルラリン	81.6	14.6	83.3	10.8	103.0	2.9	94.2	3.5	88.5	5.6	60.3	10.3	76.3	10.1
29	エチオン	85.9	2.0	83.8	1.4	95.0	6.3	91.8	6.0	90.7	18.7	66.1	14.8	72.4	1.3
30	エディフェンホス	100.2	8.1	85.1	14.6	94.7	10.7	102.9	10.7	76.0	25.2	87.8	17.5	89.9	0.7
31	エトキサゾール	70.1	7.8	74.9	8.5	99.6	2.3	94.0	13.6	95.8	6.9	58.6	5.0	67.4	17.6
32	エトフェンプロックス	57.6	7.4	58.3	5.3	92.3	3.1	96.2	10.3	85.3	7.4	40.8	8.5	66.2	4.1
33	エトフメセート	101.5	8.5	96.7	6.8	94.4	10.4	99.8	5.7	97.5	1.8	83.6	1.8	88.6	3.8
34	エトプロホス	89.7	23.7	151.5	13.1	98.5	5.5	100.4	5.1	139.3	13.7	83.1	4.4	80.9	1.4
35	エトリムホス	78.7	7.3	78.9	6.8	99.4	3.3	100.3	9.2	97.2	9.6	63.7	2.4	78.3	8.4
36	オキサジアゾン	89.7	3.0	90.2	9.9	85.8	14.0	89.5	7.9	92.3	2.6	67.1	5.6	79.4	2.3
37	オキシフルオフェン	74.7	16.3	72.6	10.1	89.0	6.8	98.4	6.0	86.0	10.1	75.9	7.8	85.3	0.6
38	カズサホス	93.0	8.4	103.0	1.3	97.6	12.4	115.4	8.8	106.4	6.6	64.9	4.2	74.5	18.3
39	カフェンストロール	0.0	－	54.5	102.2	0.0	－	155.4	33.1	90.0	21.0	99.7	30.7	62.4	46.4
40	カルフェントラゾルエチル	82.9	7.6	85.8	4.8	104.0	5.0	101.6	5.5	92.3	12.7	89.8	3.5	93.8	4.3
41	カルボキシン	116.0	11.5	156.9	4.4	86.8	4.7	110.3	7.2	86.2	4.8	68.7	11.6	75.3	10.5
42	キナルホス	56.0	8.1	68.7	9.7	94.3	3.4	91.0	2.0	89.7	8.2	77.8	18.5	84.1	3.3
43	キノキシフェン	35.1	14.8	48.2	7.0	88.2	2.9	86.9	6.9	77.1	4.5	46.5	1.9	67.3	1.4
44	クレソキシムメチル	83.6	5.3	88.3	4.0	97.4	2.0	96.6	8.6	97.3	6.6	80.4	4.9	89.3	3.0
45	クロタールジメチル	91.4	4.2	91.8	8.1	97.4	6.0	95.1	4.5	98.7	4.1	67.8	5.6	81.0	3.4
46	クロマゾン	106.2	4.6	99.3	12.8	0.0	－	0.0		115.5	7.3	77.9	10.1	85.2	0.9
47	クロルピリホスメチル	64.4	6.8	74.1	4.6	95.1	6.5	96.8	5.7	93.2	7.9	68.9	6.7	82.3	3.6
48	クロルフェナピル	66.6	16.0	81.8	7.2	95.0	14.1	88.6	18.4	111.7	15.5	76.7	7.9	82.2	10.3
49	クロルフェンビンホス１	0.0	－	130.9	36.6	113.1	9.3	84.2	26.2	24.5	18.6	136.8	22.5	94.0	4.3
50	クロルフェンビンホス２	61.5	34.4	111.4	6.1	92.2	3.5	99.6	3.3	104.4	27.2	91.6	11.7	83.4	4.1
51	クロルブファン	0.0	－	156.0	1.9	79.2	4.6	107.9	14.8	68.9	33.3	69.2	46.3	85.4	7.4
52	クロルベジレート	91.8	2.7	112.3	8.1	97.3	2.6	98.8	6.0	87.2	12.9	77.1	2.1	79.7	0.9
53	クロロピリホス	51.6	3.1	59.0	3.6	92.1	1.2	86.5	5.8	93.8	7.9	54.7	6.0	71.2	3.5
54	クロロプロファム	91.8	18.9	75.3	4.7	99.1	5.1	101.0	3.5	107.0	8.4	78.6	9.3	86.2	4.7
55	シアナジン	63.4	7.2	0.0	－	90.2	7.0	93.1	20.4	88.0	15.2	97.6	11.9	86.8	4.3
56	シアノホス	99.4	0.7	104.4	3.8	94.2	5.1	98.7	7.5	96.2	12.5	87.3	6.7	89.5	3.3
57	ジェトフェンカルブ	58.5	36.5	96.4	17.9	100.6	2.8	102.0	3.0	69.0	87.7	102.1	17.2	87.6	4.4
58	ジクロシメット１	84.1	14.0	89.9	10.4	93.2	9.1	97.2	2.9	109.3	3.6	88.2	12.1	100.1	6.7
59	ジクロシメット２	96.4	9.0	99.6	6.7	94.3	7.4	89.6	13.6	108.2	1.6	68.6	13.7	90.1	2.7
60	ジクロフェンチオン	69.2	0.8	76.0	2.0	94.7	2.9	97.9	6.3	99.0	4.9	50.5	3.8	69.3	1.5
61	ジクロホップメチル	85.2	9.4	86.3	9.0	93.9	7.2	94.5	8.4	93.2	5.7	65.2	7.5	75.3	2.0
62	ジクロラン	62.4	18.3	75.3	20.2	83.7	3.2	87.8	24.1	96.2	14.6	71.6	19.6	88.9	8.8
63	ジクロロベンゾフェン	66.6	16.2	79.0	3.3	85.7	2.3	97.6	5.2	92.7	4.2	40.2	12.2	68.0	5.5
64	シハロトリン１	70.2	11.4	95.2	4.4	82.6	8.9	113.5	11.7	85.0	7.8	74.5	11.4	82.1	4.0
65	シハロトリン２	58.1	26.2	73.6	18.7	89.0	8.4	54.3	22.6	94.1	12.1	72.9	22.8	91.2	8.5
66	シハロホップブチル	69.6	37.8	72.6	3.5	99.1	1.7	103.8	9.2	97.1	12.1	80.7	6.5	86.0	1.4
67	ジフェナミド	106.7	2.5	105.8	8.7	99.9	4.7	93.5	3.0	111.8	8.9	83.5	4.0	80.5	1.4
68	シフルトリン１	72.9	10.6	80.8	15.6	91.0	51.5	107.4	36.5	92.7	10.3	89.5	1.5	78.7	17.2
69	シフルトリン２	73.3	12.0	76.1	20.0	90.2	15.8	0.0	－	100.3	15.8	67.7	7.1	80.2	17.8
70	シフルトリン３	61.6	10.3	76.1	20.0	88.8	16.0	0.0	－	100.3	15.8	67.7	7.1	80.2	17.8
71	シフルトリン４	81.7	7.2	69.3	16.6	84.9	14.7	0.0	－	88.2	9.6	73.4	7.1	72.3	11.8
72	ジフルフェニカン	0.0	－	7.0	173.2	93.9	5.3	100.3	7.6	93.3	5.6	80.5	5.4	87.7	0.6
73	シプロコナゾール２	0.0	－	189.3	22.4	88.5	6.8	96.9	8.0	145.4	35.2	114.2	11.3	86.5	12.7
74	シプロコナゾール１	0.0	－	0.0	－	100.2	12.4	0.0	－	49.3	90.2	138.7	51.0	86.9	2.0
75	シペルメトリン４	43.5	4.3	130.1	1.7	0.0	－	0.0	－	87.2	10.0	83.6	7.4	74.1	6.8
76	シペルメトリン３	47.1	40.5	53.5	4.6	0.0	－	0.0	－	82.6	17.6	72.5	18.1	78.5	10.3
77	シペルメトリン２	50.6	26.1	116.6	12.8	0.0	－	0.0	－	107.6	3.6	70.6	1.7	73.4	5.3
78	シペルメトリン１	68.5	27.0	87.5	10.0	0.0	－	140.3	15.1	93.6	18.7	65.4	35.2	66.1	11.1
79	シマジン	66.5	1.8	103.6	12.6	88.0	2.4	96.4	5.6	112.5	6.1	108.3	16.6	89.2	5.6
80	ジメタメトリン	91.1	7.8	91.9	6.4	94.0	3.3	93.7	4.6	95.4	5.2	73.3	3.1	81.9	2.2
81	ジメチピン	94.5	13.8	96.2	26.9	78.0	31.8	79.1	86.6	103.7	5.4	90.5	3.2	76.5	15.9
82	ジメチルビンホス	72.6	6.4	116.0	26.1	88.7	10.4	97.9	8.6	11.8	173.2	102.6	27.4	90.5	1.6
83	ジメテナミド	87.2	3.3	97.7	2.5	94.4	6.1	99.7	5.7	107.7	7.7	74.7	0.6	81.8	0.2
84	ジメトエート	0.0	－	49.8	2.6	73.6	5.1	76.8	19.5	497.8	22.9	78.4	7.0	146.3	0.9
85	シメトリン	81.8	5.7	86.1	7.4	96.5	5.0	89.8	9.1	98.0	10.2	77.2	7.3	85.2	1.5
86	ジメピペレート	89.5	7.1	92.1	6.7	92.0	5.4	90.8	7.3	87.6	8.3	50.5	6.6	77.7	3.4
87	シラフルオフェン	45.8	7.7	51.1	2.5	83.8	4.8	85.1	6.1	75.9	9.1	26.7	1.6	65.5	0.9
88	スピロキサミン１	88.4	4.0	68.6	4.8	50.1	2.1	48.9	23.2	34.4	9.8	0.0	－	61.4	5.4
89	スピロキサミン２	82.1	14.2	82.1	17.7	50.4	6.6	47.4	7.3	109.2	4.6	0.0	－	46.6	22.8
90	スピロジクロフェン	88.1	6.1	82.5	4.9	0.0	－	41.9	37.9	83.1	10.4	60.6	24.8	78.4	5.2
91	ゾキサミド	96.3	16.6	104.2	3.5	0.0	－	122.2	52.0	146.8	4.3	93.5	19.8	85.3	10.2
92	ターバシル	76.8	13.7	98.8	8.0	98.3	4.6	89.3	4.8	72.4	15.6	61.4	23.9	94.4	3.0
93	ダイアジノン	89.4	6.5	89.7	6.0	98.4	10.2	99.7	4.8	99.5	4.7	68.5	7.1	76.0	3.5
94	チオベンカーブ	86.4	8.6	100.5	6.9	95.5	0.3	87.1	3.5	91.9	8.4	55.2	15.9	73.7	2.7
95	チフルザミド	83.7	3.6	93.2	3.4	100.1	3.2	101.7	10.0	95.0	4.5	90.3	8.2	89.2	2.0
96	テクナゼン	65.1	14.9	69.9	7.4	86.7	11.4	97.2	7.1	84.4	8.2	45.2	1.3	73.3	2.8
97	テトラクロルビンホス	108.5	1.7	89.6	17.9	88.8	12.1	101.3	9.0	22.6	173.2	102.4	20.8	91.2	1.6
98	テトラジホン	79.5	8.1	84.4	4.3	97.1	3.1	89.7	6.0	95.2	0.6	59.0	6.9	76.0	3.6
99	テニルクロール	71.9	7.0	90.8	2.9	98.3	7.7	100.6	6.1	94.0	9.0	87.4	12.2	87.9	2.4
100	テブコナゾール	0.0	－	0.0		97.9	2.4	106.9	10.5	46.6	14.6	104.7	10.0	91.7	3.5
101	テフルトリン	95.9	7.0	85.2	1.8	93.9	5.0	95.8	2.8	98.3	3.6	46.8	3.3	73.4	3.7
102	デルタメトリン	58.5	16.6	70.5	18.7	0.0	－	0.0	－	93.3	3.4	72.4	12.2	92.6	14.4

No.	成分名	ENVI-Carb&PSA								C18&PSA					
		清涼飲料水		野菜ｼﾞｭｰｽ		卵丼		ﾘｿﾞｯﾄ		C18&PSA-onry		ｷﾞｮｳｻﾞ ｱｾﾄﾆﾄﾘﾙ飽和ﾍｷｻﾝ分配		ﾍｷｻﾝ積層	
		回収率	Cv.	回収率	Cv.	回収率	Cv.	回収率	Cv.	回収率	Cv.	回収率	Cv.	回収率	Cv.
103	テルブトリン	84.5	6.5	88.9	6.1	96.0	5.2	98.7	7.2	94.4	5.9	72.9	3.9	80.8	4.4
104	テルブホス	90.5	10.8	89.9	4.9	91.6	4.9	94.7	3.8	94.8	6.9	63.4	6.8	75.8	6.8
105	トリアジメノール１	46.7	93.9	0.0		95.2	5.7	89.2	3.0	59.0	126.2	99.2	29.8	88.4	0.3
106	トリアジメノール２	76.5	87.4	31.8	87.1	96.3	13.1	102.0	8.0	41.8	89.9	138.3	12.8	87.8	3.2
107	トリアゾホス	93.0	7.4	64.0	15.3	85.6	3.1	98.4	3.1	71.8	8.6	78.3	8.8	96.4	3.0
108	トリアレート	85.4	6.0	87.0	4.3	86.7	6.6	88.4	6.0	90.0	4.2	33.9	4.0	64.7	3.5
109	トリブホス（ＤＥＦ）	101.6	12.9	104.5	2.3	87.7	4.0	85.6	5.1	82.1	13.3	35.2	8.4	71.6	5.6
110	トリフルラリン	87.3	4.3	90.4	6.8	97.0	4.3	93.6	1.7	93.6	4.9	61.4	1.0	78.0	2.7
111	トリフロキシストロビン	89.7	4.9	76.6	9.6	98.0	5.3	97.4	1.9	99.3	13.3	85.3	3.3	90.5	1.0
112	トルクルホスメチル	80.5	6.7	78.0	2.3	92.1	3.1	97.6	4.5	97.3	4.7	70.6	2.0	79.8	3.7
113	トルフェンピラド	69.2	4.4	54.3	15.4	0.0	－	0.0	－	0.0	－	61.5	12.7	96.5	5.2
114	ナプロパミド	79.4	9.7	90.6	1.1	100.3	1.1	96.9	4.6	105.2	9.7	97.4	2.9	83.6	8.3
115	ニトロタールイソプロピル	66.9	7.1	74.1	4.3	111.4	6.5	96.3	4.9	95.4	10.9	66.5	14.2	75.6	4.8
116	パクロブトラゾール	79.2	17.1	112.5	26.8	98.3	2.3	101.9	6.0	34.9	173.2	110.9	16.0	90.5	2.1
117	パラチオン	86.0	6.7	72.0	11.4	97.6	5.4	98.8	1.2	88.2	14.0	78.8	3.3	85.7	1.5
118	ハロフェンプロックス	60.4	14.0	64.6	5.8	81.6	4.7	90.4	4.8	80.9	11.2	35.3	7.8	65.1	0.9
119	ピコリナフェン	0.0	－	7.9	173.2	97.8	0.7	100.8	9.9	89.5	11.7	71.1	6.2	83.3	3.8
120	ビデルタノール１	0.0	－	106.7	87.3	109.9	2.8	98.2	9.0	81.4	15.0	97.1	18.9	91.0	2.0
121	ビデルタノール２	0.0	－	81.4	64.1	79.2	10.0	36.1	25.6	69.9	24.5	56.6	25.5	181.9	93.5
122	ビフェノックス	81.5	22.9	91.2	21.5	75.1	14.4	109.4	21.6	91.4	10.8	87.7	14.2	88.7	3.4
123	ビフェントリン	74.5	7.6	76.3	1.1	90.7	3.2	93.3	9.1	83.4	6.6	33.6	2.9	67.3	0.5
124	ピペロホス	110.6	15.1	78.4	9.0	102.8	3.4	96.9	8.3	81.5	18.7	75.0	7.8	82.3	1.2
125	ピラゾホス	9.9	173.2	36.0	25.7	98.1	6.6	94.8	10.9	83.7	9.6	89.0	13.1	84.3	13.2
126	ピラルフェンチオン	67.6	8.2	80.6	2.6	101.3	1.2	111.8	6.9	98.3	4.6	81.3	6.2	89.8	6.4
127	ピリダフェンチオン	111.1	11.6	121.2	14.0	97.5	6.8	95.3	9.8	82.1	26.4	90.4	9.1	94.5	1.9
128	ピリダベン	57.4	14.3	89.4	6.8	91.3	5.3	91.4	8.9	79.0	9.1	60.5	14.1	74.9	2.0
129	ピリフェノックス_E	103.9	34.1	189.9	15.5	93.1	2.8	89.9	2.7	135.4	77.6	103.8	3.5	81.3	0.3
130	ピリフェノックス_Z	97.8	16.5	150.0	11.9	93.3	1.1	86.8	6.9	98.4	25.1	78.1	11.7	79.9	1.8
131	ピリブチカルブ	83.5	11.4	87.3	0.4	99.6	2.6	92.7	6.6	83.8	8.3	60.3	3.1	71.6	5.0
132	ピリプロキシフェン	67.7	15.2	72.0	4.9	94.7	3.0	93.1	6.0	85.6	8.8	54.0	4.7	77.7	4.0
133	ピリミノバック－メチル(E)	79.7	7.5	80.3	2.0	95.8	0.4	106.0	7.6	89.0	7.9	84.8	4.6	94.0	1.6
134	ピリミノバック－メチル(Z)	89.0	6.0	81.9	0.7	101.4	1.4	101.6	7.7	96.5	6.0	82.6	5.8	93.2	2.5
135	ピリミホスメチル	86.0	6.8	79.1	3.0	94.8	6.3	94.5	4.9	95.6	6.5	74.1	2.8	80.2	4.1
136	ピリメタニル	48.6	12.2	59.3	10.2	90.5	3.7	94.0	4.6	91.3	11.8	64.8	16.3	80.9	4.4
137	ピロキロン	122.5	11.2	0.0		92.2	3.9	93.5	7.8	67.6	24.0	84.8	38.3	80.4	6.7
138	フィプロニル	93.3	6.9	94.6	0.3	100.8	0.7	100.5	9.4	100.5	11.8	90.6	2.8	93.4	1.5
139	フェナリモル	44.5	51.6	153.3	6.9	92.9	3.3	105.0	10.7	86.9	11.2	79.3	2.7	84.1	8.4
140	フェニトロチオン	83.4	7.9	80.0	7.0	94.4	7.2	100.4	7.8	99.1	12.6	91.0	11.2	90.8	5.5
141	フェノキサニル	94.0	11.5	83.5	12.3	86.8	18.2	118.4	16.7	95.1	5.6	92.8	3.6	88.9	4.5
142	フェノチオカルブ	104.4	17.7	133.9	7.6	88.9	5.0	85.5	10.0	101.2	22.0	49.6	17.6	95.0	18.6
143	フェノトリン1	75.9	9.5	56.7	14.0	0.0	－	97.2	6.3	90.2	4.0	38.9	4.8	40.4	6.3
144	フェノトリン2	80.2	6.7	81.7	6.4	90.4	5.5	95.4	3.1	81.7	11.4	40.1	11.3	73.0	4.1
145	フェンアミドン	83.9	1.4	77.9	9.9	100.7	3.1	104.4	12.6	92.5	11.0	82.9	3.2	92.0	1.7
146	フェンスルホチオン	60.7	24.3	96.5	40.3	104.5	12.6	102.7	3.4	98.3	18.6	88.4	24.0	99.7	7.4
147	フェンチオン	69.8	4.0	83.0	2.8	96.9	0.9	96.1	5.6	98.6	6.4	74.8	3.8	83.6	2.8
148	フェントレート	84.3	1.8	92.7	4.6	92.3	1.9	94.8	4.3	90.5	7.1	83.3	6.1	88.3	1.4
149	フェンバレレート1	92.5	12.0	68.5	15.9	88.1	30.5	73.0	89.3	84.5	16.7	68.0	31.0	92.6	10.1
150	フェンバレレート2	68.3	23.0	70.9	20.0	114.1	26.9	107.1	8.1	82.3	2.8	66.1	3.2	88.4	6.4
151	フェンプロパトリン	76.9	8.8	81.2	1.3	94.0	6.3	103.9	14.7	88.9	5.0	58.9	6.7	83.0	1.6
152	フェンプロピモルフ	87.9	2.1	86.4	7.5	83.5	4.6	82.1	5.7	89.8	4.3	0.0	－	64.5	1.9
153	フサライド	26.3	10.8	38.6	11.0	95.9	8.4	97.6	7.5	95.4	5.1	65.7	15.1	83.1	3.0
154	ブタクロール	88.7	10.1	81.9	6.1	95.2	2.3	98.1	9.6	101.4	17.1	61.0	4.3	80.5	2.2
155	ブタミホス	88.3	5.4	73.6	2.4	97.5	1.7	99.0	9.6	95.8	6.2	79.5	5.1	89.3	2.5
156	ブチレート	96.9	12.2	95.3	7.8	77.1	14.8	76.9	13.0	100.5	0.5	34.3	16.3	96.4	4.9
157	ブピリメート	83.6	6.4	82.8	7.6	96.0	2.1	95.2	5.2	94.2	12.6	78.9	2.2	84.1	1.0
158	ブプロフェジン	82.4	3.6	95.6	9.0	89.0	8.1	87.9	3.2	100.4	10.5	50.2	4.4	80.0	1.8
159	フラムフロップメチル	96.6	3.3	89.9	8.6	98.5	2.3	92.1	1.6	89.3	8.1	83.9	2.1	87.7	2.8
160	フルアクルピリム	93.2	6.1	82.7	7.9	97.6	1.5	91.9	6.2	79.9	9.2	89.4	12.9	89.3	4.7
161	フルキンコナゾール	89.5	7.4	71.2	2.0	96.7	9.2	106.1	7.4	92.8	5.5	83.2	2.8	89.5	7.7
162	フルジオキソニル	0.0	－	85.3	21.3	93.3	6.9	101.6	9.7	93.6	12.8	58.8	54.0	109.0	1.7
163	フルシトリネート1	49.9	16.7	87.4	3.6	90.2	18.1	113.9	11.5	85.2	9.5	90.0	17.5	92.0	3.2
164	フルシトリネート2	44.8	17.0	49.8	18.4	101.7	6.3	101.6	13.6	85.7	22.6	87.8	5.2	84.5	4.2
165	フルシラゾール	43.3	27.3	136.4	24.6	99.9	1.4	100.7	4.6	129.8	25.8	86.8	20.1	93.4	1.0
166	フルトラニル	61.2	21.0	106.5	4.3	95.9	2.0	97.5	3.2	93.2	11.6	84.7	11.2	89.6	2.4
167	フルバリネート1	45.9	16.9	92.3	12.7	0.0	－	134.5	14.5	89.0	5.5	83.4	11.4	74.0	22.7
168	フルバリネート2	47.7	15.7	73.4	13.1	0.0	－	60.8	28.7	86.9	9.4	144.3	5.6	80.7	20.4
169	フルミオキサジン	100.8	13.1	84.8	11.2	95.1	8.7	103.2	15.8	89.5	10.3	86.8	9.2	85.6	9.6
170	フルミクロラックペンチル	77.1	25.9	83.6	14.0	97.6	15.7	103.9	9.6	86.7	10.5	79.8	10.3	87.2	9.0
171	フルドリン	0.0	－	35.3	103.7	99.5	10.1	103.0	19.6	58.5	42.6	120.5	8.9	106.2	2.0
172	プレチラクロール	33.0	5.9	72.0	8.7	89.6	3.1	84.9	6.0	80.0	7.4	8.8	173.2	61.3	0.4
173	プロシミドン	82.1	2.6	101.2	2.4	103.7	2.2	102.3	3.7	101.1	5.6	80.7	6.1	83.2	3.6
174	プロチオホス	52.6	13.5	60.9	5.5	91.0	1.1	88.0	3.9	77.1	4.8	30.7	7.0	63.8	1.1
175	プロパクロール	91.0	10.7	96.5	1.0	92.8	5.5	99.0	4.7	118.4	6.5	82.9	9.3	90.9	5.7
176	プロパジン	86.7	1.8	100.5	7.6	95.3	5.4	91.8	4.5	102.9	11.6	83.2	5.1	83.1	6.6
177	プロパニル	65.0	29.5	91.1	7.7	88.2	6.2	109.6	4.5	154.4	10.4	66.1	8.4	86.7	8.3
178	プロピザミド	89.0	3.4	95.4	2.8	96.0	7.6	98.6	9.1	99.9	6.7	86.3	3.9	86.3	2.6
179	プロフェノホス	90.4	8.5	85.9	3.8	82.0	10.7	101.6	13.4	72.2	24.3	66.2	22.5	81.8	4.4
180	プロメトリン	96.7	2.1	83.8	3.9	96.7	4.0	98.5	7.8	96.3	4.6	75.6	8.7	79.8	4.6
181	プロモブチド	90.5	13.7	98.3	7.9	101.0	6.4	90.2	3.7	93.5	7.4	87.2	5.4	87.4	12.4
182	プロモプロピレート	100.0	5.2	99.9	5.3	92.8	2.6	92.6	8.5	77.5	13.8	68.4	5.6	81.2	1.7
183	プロモホスメチル	55.5	2.7	70.9	7.5	90.6	5.2	91.2	3.8	89.7	8.5	56.7	4.2	73.3	2.4
184	ヘキサコナゾール	0.0	－	88.1	59.7	85.0	3.2	99.8	14.8	101.5	23.3	122.0	86.7	82.3	5.7
185	ベナラキシル	90.4	2.7	89.7	8.3	101.9	3.3	93.9	6.7	94.5	9.8	81.1	3.8	87.9	2.0
186	ベノキサコール	100.6	5.6	97.0	3.6	93.2	6.5	98.4	3.0	100.6	5.6	91.3	9.1	87.9	0.6
187	ペルメトリン1	69.9	7.3	74.6	2.6	92.9	2.8	91.3	1.5	76.8	7.6	37.8	4.3	70.5	5.3
188	ペルメトリン2	65.5	10.8	73.0	3.2	86.2	2.9	92.1	7.4	79.8	12.0	48.2	4.1	75.0	1.2
189	ペンコナゾール	108.4	24.2	25.8	173.2	93.4	4.0	98.5	13.4	15.2	173.2	85.6	21.4	84.0	2.2
190	ペンディメタリン	60.2	4.8	70.8	3.8	95.9	1.1	88.9	4.7	87.3	5.9	51.2	5.7	71.8	3.3
191	ベンフルラリン	89.0	6.1	86.0	4.9	95.8	4.2	98.5	7.4	98.9	7.1	60.4	5.2	78.1	2.8
192	ベンフレセート	97.2	4.3	89.8	4.8	102.0	4.4	102.8	5.3	104.5	7.1	88.8	7.4	87.5	2.2
193	ホサロン	38.8	13.7	69.8	7.2	94.6	9.8	103.9	8.6	87.6	11.2	86.8	16.4	86.0	2.6
194	ホスファミド	0.0	－	41.4	28.8	89.3	18.1	102.6	11.7	50.5	76.2	98.1	24.0	90.4	1.9
195	ホレート	91.2	6.0	93.9	2.2	95.3	2.8	92.7	2.5	94.7	8.7	63.6	3.6	80.7	3.0
196	マラチオン	88.1	4.6	96.3	6.3	97.2	5.8	98.4	8.3	113.9	8.9	86.6	2.8	90.2	1.5
197	ミクロブタニル	123.3	13.4	117.9	37.5	93.1	2.9	97.8	8.4	98.8	19.7	88.8	10.7	89.2	2.2
198	メチダチオン	102.3	4.0	99.6	17.3	90.4	7.5	89.3	9.3	112.3	11.3	93.9	7.6	80.8	8.9
199	メトキシクロール	89.4	10.0	90.2	9.5	95.7	7.7	103.2	7.5	88.1	10.3	70.0	11.9	84.7	3.0
200	メビンホス	0.0	－	265.2	23.9	91.7	1.8	0.0		0.0	－	51.1	33.7	89.8	2.3
201	メフェナセット	11.0	173.2	61.8	10.8	95.1	4.7	104.4	11.1	83.9	14.8	88.0	23.0	87.3	1.6
202	メフェンピルジエチル	110.1	7.5	86.8	3.3	95.2	0.5	97.5	7.3	93.6	9.9	82.5	4.4	86.1	5.1
203	メプロニル	94.0	11.4	82.2	6.8	97.5	3.0	95.3	4.3	96.0	15.8	81.3	14.0	90.0	2.0
204	レナシル	0.0	－	12.1	173.2	74.1	7.3	105.3	15.1	0.0	－	149.4	13.1	93.7	3.1

平行試験数；n=3，添加濃度：0.05mg/kg

表4　LC/MS/MS一斉分析による添加回収試験結果

No.	農薬名	C18&PSA					
		卵丼		ﾘｿﾞｯﾄ		ｷﾞｮｳｻﾞ	
		回収率	Cv.	回収率	Cv.	回収率	Cv.
1	EPN	89.9	6.4	86.6	10.0	75.6	3.3
2	アジムスルフロン	49.3	4.3	62.3	3.7	61.7	8.1
3	アセタミプリド	78.5	26.1	84.9	23.6	52.9	9.1
4	アゾキシストロビン	86.2	4.3	89.3	8.3	85.5	3.6
5	アルジカルブ	83.5	37.1	93.8	44.9	53.9	8.1
6	イソキサチオン	86.2	4.4	90.2	8.7	72.5	3.6
7	イソプロカルブ	85.7	15.9	96.4	25.1	60.4	10.5
8	イソプロチオラン	80.8	7.4	100.7	16.0	80.3	5.9
9	イナベンフィド	88.7	2.9	76.1	5.0	74.2	9.2
10	イマザリル	70.3	6.9	76.1	7.6	65.1	2.7
11	イマゾスルフロン	51.0	6.2	43.7	3.7	50.2	12.3
12	イミダクロプリド	76.3	27.1	94.3	33.5	73.6	11.3
13	イミベンコナゾール	87.1	4.3	84.9	7.9	75.1	4.0
14	インダノファン	93.3	3.6	83.0	3.9	71.8	12.1
15	エトキシキン	93.8	10.0	95.3	12.6	58.5	5.4
16	エトベンザニド	89.4	6.5	84.1	3.9	74.5	3.9
17	オキサジキシル	74.6	8.3	104.5	42.8	54.3	10.1
18	オキサジクロメホン	82.2	4.3	87.9	4.6	81.8	3.3
19	カルバリル	85.5	9.9	98.2	31.9	62.1	9.1
20	カルベンダジム	85.1	29.2	74.0	24.6	51.9	1.3
21	チオファンートメチル	84.5	6.6	95.1	13.9	83.9	6.7
22	ベノミル	29.8	8.3	32.1	3.7	14.1	17.9
23	キザロホップエチル	93.8	7.0	86.9	7.8	75.1	1.6
24	キノメチオネート	5.9	0.2	18.9	5.6	2.8	3.7
25	クロルスルフロン	40.7	6.1	49.1	5.3	39.7	7.0
26	ジェトフェンカルブ	84.4	7.4	95.2	19.0	67.7	5.2
27	シクロスルファムロン	50.1	4.4	63.0	6.6	58.7	5.0
28	ジクロルボス	80.7	17.0	96.2	22.5	67.6	4.9
29	ジフェノコナゾール	85.5	5.5	82.7	5.7	81.0	4.4
30	ジフルベンズロン	79.0	3.6	93.4	12.8	76.3	0.6
31	シプロジニル	79.5	6.4	83.4	11.2	65.3	4.1
32	ジメトエート	82.3	31.7	100.6	38.6	55.6	9.8
33	スピノシンA	51.5	6.2	51.3	4.0	44.5	12.5
34	スピノシンD	46.1	9.4	55.0	2.6	41.3	14.3
35	セトキシジム	46.4	4.0	66.2	1.4	46.9	11.1
36	ダイムロン	84.2	6.0	95.5	14.7	76.1	4.6
37	チアベンダゾール	82.1	19.1	70.5	17.1	56.7	3.8
38	チオジカルブ	63.5	1.3	73.7	14.5	69.3	8.2
39	チアメトキサム	67.9	31.6	96.4	20.8	65.1	7.1
40	テトラコナゾール	93.1	6.7	92.9	10.2	84.4	3.9
41	テブコナゾール	86.7	7.8	86.3	11.1	79.9	1.7
42	テブフェノジド	77.1	6.4	122.5	18.9	0.0	0.0
43	テブフェンピラド	87.9	7.1	82.8	5.6	73.3	4.1
44	トリアジメホン	90.5	9.5	95.9	14.1	80.3	2.9
45	トリクロルホン	57.9	25.6	64.3	18.8	49.6	2.9
46	トリシクラゾール	82.1	21.3	75.7	19.0	56.9	4.3
47	トリフルミゾール	101.1	6.1	79.9	10.3	69.3	6.7
48	トリフルミゾールメタボライト	77.1	4.4	82.0	7.3	72.1	6.7
49	ニテンピラム	78.7	35.6	72.1	21.5	43.7	8.6
50	バミダチオン	75.1	23.6	86.7	24.4	63.2	9.6
51	ハロスルフロンエチル	64.9	6.0	76.7	9.0	71.1	8.9
52	ピメトロジン	60.8	11.0	49.3	17.5	29.3	2.5
53	ピラクロホス	82.7	3.1	84.6	3.1	72.2	6.4
54	ピラゾスルフロンエチル	60.9	4.9	76.7	8.5	65.7	7.7
55	ピリダフェンチオン	90.7	7.6	95.0	14.6	81.5	1.5
56	ピリブチカルブ	85.2	5.5	88.1	7.9	74.0	2.5
57	ピリミカルブ	84.9	11.9	91.9	16.9	66.9	5.6
58	ピリミジフェン	68.0	3.4	68.7	0.7	59.2	9.6
59	フェノブカルブ	63.7	10.7	84.9	25.1	36.7	15.9
60	フェリムゾン	79.3	8.1	85.5	12.8	75.6	1.7
61	フェンピロキシメート	77.3	4.9	77.3	3.9	72.5	5.3
62	フェンヘキサミド	41.7	5.0	63.7	4.0	49.3	6.7
63	フルフェノクスロン	89.5	6.2	91.3	8.6	77.7	2.9
64	プロクロラズ	69.6	3.8	81.5	18.2	81.4	7.1
65	プロパモカルブ	0.0	0.0	44.7	16.1	6.1	0.0
66	プロピコナゾール	81.1	3.7	82.9	3.5	72.7	6.8
67	プロペナゾール	0.0	0.0	30.6	17.2	16.9	2.1
68	プロポキスル	73.5	12.5	107.0	38.7	52.7	7.4
69	ヘキサコナゾール	80.8	4.5	80.0	5.3	69.1	9.3
70	ヘキシチアゾクス	87.2	8.1	86.1	7.0	65.9	3.6
71	ペンシクロン	85.7	5.7	89.3	7.3	75.1	5.1
72	ベンンスルフロンメチル	36.9	1.9	53.3	3.7	47.1	7.3
73	ベンダイオカルブ	0.0	0.0	120.1	59.9	0.0	0.0
74	ボスカリド	86.7	4.7	83.9	8.0	76.1	8.6
75	ホスチアゼート	73.3	5.9	100.4	29.1	70.7	11.7
76	メソミル	76.3	24.5	47.4	10.2	74.5	3.2
77	メタベンズチアズロン	81.1	8.7	84.7	11.8	69.7	5.7
78	メタラキシル	84.9	13.4	87.4	27.2	81.5	10.6
79	メチオカルブ	79.1	7.2	100.9	22.7	62.5	7.2
80	メチダチオン	92.8	7.0	81.7	38.4	59.7	15.2
81	メトスルフロンエチル	36.8	3.4	51.7	8.0	42.9	6.6
82	メトラクロール	90.1	10.8	93.5	17.0	75.2	1.2
83	モリネート	80.3	10.4	81.3	16.8	58.7	3.3
84	リニュロン	88.3	5.9	93.6	13.3	70.7	1.9
85	ベンフラカルブ	46.9	3.2	53.1	5.9	50.5	3.3

平行試験数；n＝3，添加濃度：0.05mg/kg

資　　料

感染症発生動向調査事業における病原体検出状況（平成 20 年度）

高橋 雅輝　高橋 知子　松舘 宏樹　藤井 伸一郎　岩渕 香織　蛇口　哲夫

平成 20 年度は、県内の病原体定点等から寄せられた 438 件について検査を実施した結果、180 の病原体（ウイルス 169 株、細菌 11 株）を検出した。

Ⅰ　はじめに

平成 14 年 2 月に岩手県結核・感染症発生動向調査事業の実施要領が改められ、29 医療機関が病原体定点として選定された。本報では、平成 20 年度の病原体検出結果を報告する。

Ⅱ　検査対象

5 類感染症（定点把握）の指定疾患に加え、対象外の上気道炎、下気道炎、不明熱、リンパ節炎、発疹症、その他の消化器疾患等も検査対象とした。検体は病原体定点等の 11 医療機関において採取した。表 1 に診断名別検査依頼件数を示した。

Ⅲ　検査方法

1．ウイルス検査

(1)ウイルス分離

RD-18S、HEp-2、VERO、CaCo-2、MDCK、L20B の 6 種類の培養細胞を併用してウイルス分離を行った。分離したウイルスの同定には中和試験、PCR、RT-PCR 及びダイレクトシークエンス法を併用した。MDCK 細胞はインフルエンザウイルスの分離に用い、赤血球凝集抑制試験により HA 亜型を決定した。L20B 細胞はポリオウイルスの分離に用いた。

(2)　（RT-）PCR 法及びリアルタイム PCR 法

糞便検体は、PCR 法または RT-PCR 法によるノロウイルス、サポウイルス、ロタウイルス、アデノウイルス等の検出を行った。同定はダイレクトシークエンス法を用いた。一部の糞便検体は、リアルタイム PCR 法によりノロウイルスの検出・同定を行った。また、エンテロウイルスの一部の株については、RT-PCR 法およびダイレクトシークエンス法を用いた。

(3)その他

必要に応じ市販キット（ELISA、RPHA、蛍光抗体法、イムノクロマトグラフィー等）を用い、ロタウイルス、アデノウイルス、単純ヘルペスウイルス等の検出を行った。

2．細菌検査

Ａ群溶血性レンサ球菌の分離には、SEB 培地で増菌後、羊血液寒天培地を用いた。分離菌株は、グラム染色、カタラーゼテスト、ラテックス凝集試験によるランスフィールドの血清群型別により同定した。

Ⅳ　検査結果

438 件について検査し、169 株の病原ウイルスと 11 株の病原細菌を検出した。月別病原体検出状況を表 2 に、診断名別病原体検出状況を表 3 に示す。以下に診断名別の検出状況の概要を述べる。

1.インフルエンザ

2007/2008 シーズンには、12 月下旬にＡソ連

型インフルエンザウイルスが検出され始め、3月まで検出された。また2月上旬及び3月上旬にB型インフルエンザウイルスが検出された。A香港型インフルエンザウイルスは 2 月上旬にのみ検出された（図1）。

2008/2009シーズンは、12月上旬にA型インフルエンザウイルスが検出され始め、やや遅れてA香港型インフルエンザウイルスが検出され始めた。次いで1月中旬からB型インフルエンザウイルスが検出され始め、62 株（Aソ連型 45株、A香港型 5株、B型 12株）が検出された。分離されたAソ連型インフルエンザウイルス 45株全株が、抗インフルエンザ薬であるオセルタミビルに対する耐性遺伝子を保有していた。B型インフルエンザウイルスはすべてビクトリア系統であった。

2.感染性胃腸炎

109検体の糞便を検査したところ、64株のウイルスが検出された。最も多く検出されたのはノロウイルスで、冬期（12～2 月）を中心に、42株（遺伝子型Ⅰ：1株、遺伝子型Ⅱ：41株）が検出された。

検出されたノロウイルスの一部について、詳細な遺伝子型を解析したところ、遺伝子型Ⅰ/4が1株、遺伝子型Ⅱ/4が8株、遺伝子型Ⅱ/3が4株、遺伝子型Ⅱ/2が1株であった。

そのほか、アデノウイルス1型が1株、A群コクサッキーウイルス4型が1株、6型が1株、アストロウイルス1型が1株、A群ロタウイルスが18株検出された。

3.流行性角結膜炎

121 検体の結膜ぬぐい液を検査したところ、アデノウイルス37型が7株、アデノウイルス3型が4株、アデノウイルス11型が1株、アデノウイルス（型別不能）が13株、単純ヘルペスウイルス1型が1株、不明ウイルスが1株検出された。

4．咽頭結膜熱

3検体の結膜ぬぐい液を検査したところ、アデノウイルス11型が1株検出された。

5．ヘルパンギーナ

3検体の咽頭ぬぐい液を検査したところ、単純ヘルペスウイルス1型が1株検出された。

6．手足口病

5検体の咽頭ぬぐい液を検査したところ、A群コクサッキーウイルス16型が1株、単純ヘルペスウイルス1株が検出された。

7．急性脳炎

5検体の髄液又は咽頭ぬぐい液を検査したところ、エコーウイルス30型が3株検出された。

8．A群溶血性レンサ球菌咽頭炎

19 検体の咽頭ぬぐい液を検査したところ、10 検体からA群溶血性レンサ球菌が分離された。

9．五類感染症指定疾患以外の疾患

急性咽頭炎患者の咽頭ぬぐい液3検体中1検体から、エコーウイルス5型が検出された。頚部リンパ節炎患者の咽頭ぬぐい液4検体中1検体から、アデノウイルス（型別不能）が検出された。肝炎・肝機能障害患者の糞便5検体中1検体から、サポウイルスが検出された。ヘルペス感染症患者の咽頭ぬぐい液6検体中1検体から、単純ヘルペス1型が検出された。腸重積症患者の糞便4検体中1検体から、アデノウイルス5型が検出された。肺炎患者の咽頭ぬぐい液1検体からA群溶血性レンサ球菌が分離された。その他の疾患では、糞便又は咽頭ぬぐい液又は髄液 16 検体中、1 検体からポリオウイルス 2型（ワクチン株）が1株、ノロウイルス遺伝子型Ⅱが1株、B群コクサッキーウイルス5型が1株それぞれ検出された。

Ⅴ　ま　と　め

1. 患者情報の収集解析によると、2008/2009シーズンの岩手県におけるインフルエンザの流行は比較的早く始まり、1月上旬、3月中旬及び 4 月下旬に 3 つのピークを形成した。12

月上旬にＡソ連型インフルエンザウイルスが検出され始め、１月上旬からＢ型インフルエンザウイルスが検出され始めたが、シーズン前半は主にＡ型インフルエンザウイルスによる流行と考えられ、シーズン後半は主にＢ型インフルエンザウイルスによる流行と考えられた（図1）。

2008/2009 シーズンに分離されたＡソ連型インフルエンザウイルスは、2007/2008 シーズンに分離された株とは異なり、すべてがオセルタミビル耐性株となっていた。耐性株は世界的にも高頻度に見つかっており、今後の動向に注意する必要がある。

2. 10 月から 3 月にかけてノロウイルスによる感染性胃腸炎の流行が確認され、県内ではノロウイルスによる急性胃腸炎の集団発生も頻発した。

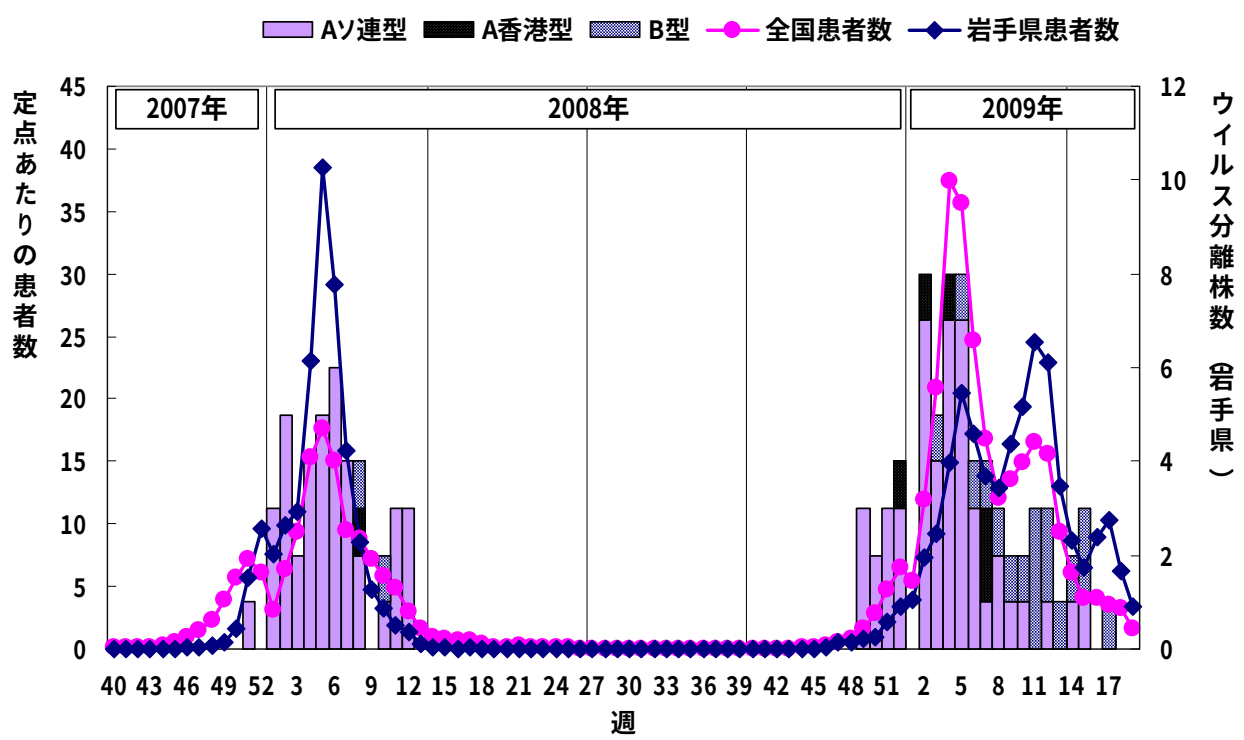


図 1. インフルエンザ患者発生状況とウイルス分離数（2007/2008,2008/2009シーズン）

表1　診断名別検査依頼件数（平成20年4月～平成21年3月）

	診　断　名	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月	3月	計
五類感染症指定疾患	インフルエンザ									12	30	16	12	70
	咽頭結膜熱		1			2								3
	A群溶血性レンサ球菌咽頭炎		13	4			1				2			20
	感染性胃腸炎		5	6	4	4	5	2	1	27	9	20	26	109
	水痘			1										1
	手足口病			1						2	1	1		5
	ヘルパンギーナ	1				1	1							3
	流行性耳下腺炎								1					1
	急性出血性結膜炎						1							1
	流行性角結膜炎	4	15	10	18	38	5	3	9	10	3	4	2	121
	無菌性髄膜炎							1		1				2
	急性脳炎			3	1						3			7
	麻しん		1											1
五類感染症指定疾患以外	上気道炎	1	2			1		2		1		2		9
	下気道炎		1				1							2
	ヘルペス感染症	1			1					1	2	2		7
	肝炎、肝機能障害	2					1		1			1		5
	その他の消化器疾患		2	1	1	2	1	2						9
	不明熱、発疹熱等	2			1	1	2		2			2		10
	川崎病					1					2			3
	血小板減少性紫斑病		1	1										2
	敗血症					1								1
	頚部リンパ節炎			2		1					1			4
	その他	2	2	2	2	2	1	3				1	1	16
	総　計	13	43	31	28	54	19	13	14	54	53	49	41	412

（注）検査件数には平成19年度の依頼のものを含むため、検査件数と検査依頼数は一致しない。

表2　月別病原体検出状況（平成20年度4月～平成21年3月）

検出病原体	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月	3月	計
Aソ連型インフルエンザウイルス									11	23	9	2	45
A香港型インフルエンザウイルス									1	2	2		5
B型インフルエンザウイルス										1	4	7	12
アデノウイルス　（型別不能）					14								14
アデノウイルス　1型												1	1
アデノウイルス　3型				1			1	1	1				4
アデノウイルス　5型		1											1
アデノウイルス　11型					2								2
アデノウイルス　37型		1		6									7
A群コクサッキーウイルス　4型						1							1
A群コクサッキーウイルス　6型				1									1
A群コクサッキーウイルス　16型									1				1
B群コクサッキーウイルス　5型					1								1
エコーウイルス　5型							1						1
エコーウイルス　30型										3			3
ポリオウイルス　2型			1										1
単純ヘルペスウイルス　1型	2			1							2		5
ノロウイルス　遺伝子型 Ⅰ											1	1	2
ノロウイルス　遺伝子型 Ⅱ	1	1	5						21	6	5	2	41
サポウイルス								1					1
A群ロタウイルス		2								2	2	12	18
アストロウイルス　1型												1	1
不明ウイルス					1								1
A群溶血性レンサ球菌		9	2										11
総　　計	3	14	8	9	18	1	2	2	35	37	25	26	180

表3　診断名別病原体検出状況（平成20年4月～平成21年3月）

診断名	（検体数）	検出病原体	検出数
インフルエンザ	（　70　）	Aソ連型インフルエンザウイルス	45
		A香港型インフルエンザウイルス	5
		B型インフルエンザウイルス	12
感染性胃腸炎	（　109　）	アデノウイルス 1型	1
		A群コクサッキーウイルス　4型	1
		A群コクサッキーウイルス　6型	1
		ノロウイルス　遺伝子型 I	1
		ノロウイルス　遺伝子型 II	41
		A群ロタウイルス	18
		アストロウイルス　1型	1
流行性角結膜炎	（　121　）	アデノウイルス 3型	4
		アデノウイルス 11型	1
		アデノウイルス 37型	7
		アデノウイルス（型別不能）	13
		不明ウイルス	1
		単純ヘルペスウイルス 1型	1
咽頭結膜熱	（　3　）	アデノウイルス 11型	1
ヘルパンギーナ	（　3　）	単純ヘルペスウイルス 1型	1
手足口病	（　5　）	A群コクサッキーウイルス　16型	1
		単純ヘルペスウイルス 1型	1
急性脳炎	（　5　）	エコーウイルス 30型	3
急性咽頭炎	（　3　）	エコーウイルス 5型	1
頚部リンパ節炎	（　4　）	アデノウイルス（型別不能）	1
肝炎、肝機能障害	（　5　）	サポウイルス	1
ヘルペス感染症	（　6　）	単純ヘルペスウイルス　1型	2
腸重積症	（　4　）	アデノウイルス 5型	1
A群溶血性レンサ球菌咽頭炎	（　19　）	A群溶血性レンサ球菌	10
肺炎	（　1　）	A群溶血性レンサ球菌	1
その他の疾患	（　16　）	ポリオウイルス 2型	1
		ノロウイルス　遺伝子型 II	1
		B群コクサッキーウイルス　5型	1
		総　計	180

資　料

ＱＦＴ検査の対応状況

岩渕香織　松舘宏樹　高橋雅輝　高橋知子　藤井伸一郎　蛇口哲夫

はじめに

当センターでは、結核の接触者健診における検査として、クオンティフェロン TB-2G（QFT）を保健所の依頼により実施している。今回、平成 20 年1月～12月までの検査状況についてまとめたので報告する。

対象と方法

平成 20 年 1 月から 12 月に、各保健所からの依頼により、当センターにおいて実施した QFT の結果について、毎月の依頼件数、各保健所の依頼件数、被験者の年齢分布等について集計した。

結　果

平成 20 年 1 月から 12 月の検体数は、927 例であり、検査結果は、陽性 52 例（5.6%）、判定保留 39 例（4.2%）、陰性 825 例（89.0%）および判定不可 11 例（1.2%）であった。月別の検体数は、8 月（166 例）、3 月（148 例）、2 月（102 例）の順に多かった。一回の依頼あたりの検体数は、1～52 例（中央値 5 例）であった。各保健所の依頼検体数は、県央 91 例（9.8%）、花巻 30 例（3.2%）、北上 98 例（10.6%）、奥州 28 例（3.0%）、一関 160 例（17.3%）、大船渡 30 例（3.2%）、釜石 180 例（19.4%）、宮古 161 例（17.4%）、久慈 90 例（9.7%）および二戸 59 例（6.4%）であった。

被験者の年齢層は、5 歳以下 8 例（0.9%）、6～11 歳 26 例（2.8%）、12～17 歳 21 例（2.3%）、18～50 歳 734 例（79.1%）、51～59 歳 76 例（8.2%）、60～69 歳 24 例（2.6%）、70 歳以上 34 例（3.7%）、不明 4 例（0.4%）であり、その陽性率は、それぞれ 0%、3.8%、0%、4.1%、13.2%、12.5%、23.5%および 0%であった。

陽性 52 例の年齢は、範囲が 6～96 歳、中央値が 47 歳であり、年齢層の内訳は、6 歳が 1 例、18～50 歳が 30 例、51～59 歳が 10 例、60 歳以上が 11 例であった。

陽性 52 例のうち、検査に用いられている結核菌特異蛋白である ESAT-6 および CFP-10 の両者に反応したのは 10 例、ESAT-6 のみに反応が 20 例、CFP-10 のみに反応が 22 例であった。

考　察

QFT は、ツベルクリン反応と異なり、BCG 接種の影響を受けずに、結核感染について判定できることが大きな長所となっており、当センターにおける検査件数も、開始以来増加している。

一方、QFT は、乳幼児や小児における検査特性のエビデンスがまだ集積していないこと、陽性であっても、最近の感染と過去の感染が区別できないなどのことから、年齢層に応じ、他の検査との併用、使い分けが推奨されている。当センターにおける検査でも、51 歳以上の陽性率は、18～50 歳に比べ高く、保健所における接触者健診の結果の判断が困難な場合が多いと考えられる。今後、QFT の結果および経過観察の相関等についても、関係者で広く情報を共有し、QFT の適用範囲の検討を進めていくことが重要と考えられる。

表1　QFTの被験者数と検査結果（各保健所別、平成20年1月～12月）

保健所	被験者数	検査結果				陽性率
		陽性	判定保留	陰性	判定不可	
県央	91	3	3	85	0	3.3
花巻	30	1	0	28	1	3.3
北上	98	6	2	90	0	6.1
奥州	28	0	0	28	0	0.0
一関	160	6	5	149	0	3.8
大船渡	30	0	3	27	0	0.0
釜石	180	23	20	132	5	12.8
宮古	161	5	3	149	4	3.1
久慈	90	3	3	84	0	3.3
二戸	59	5	0	53	1	8.5
合計	927	52	39	825	11	5.6

表2　QFTの被験者数と検査結果（年齢層別、平成20年1月～12月）

年齢層	被験者数	検査結果				陽性率	年齢層割合
		陽性	判定保留	陰性	判定不可		
0-5歳	8	0	0	8	0	0.0	0.9
6-11歳	26	1	0	25	0	3.8	2.8
12-17歳	21	0	0	21	0	0.0	2.3
18-50歳	734	30	26	671	7	4.1	79.2
51-59歳	76	10	4	61	1	13.2	8.2
60-69歳	24	3	6	15		12.5	2.6
70歳以上	34	8	3	20	3	23.5	3.7
不明	4	0	0	4	0	0.0	0.4
合計	927	52	39	825	11	5.6	100.0
（18-50歳再掲）							
18-19歳	14	0	0	14	0	0.0	1.5
20-29歳	226	8	8	207	3	3.5	24.4
30-39歳	251	9	10	230	2	3.6	27.1
40-49歳	225	11	8	205	1	4.9	24.3
50歳	18	2	0	15	1	11.1	1.9