

回収率が吸引型と比べて低かった。疎水性の高い物質が流路などに吸着するためと考えられる。

シリンジフィルターの検討では、素材の異なる3種(Millex LG, Nihon Waters, Millex GS, Nihon Waters および 13CP020AS, Advantec)を検討した。128種の農薬を添加した20%メタノール水溶液をフィルターでろ過して吸着の有無を調べた。その結果、Millex GSと13CP020ASにおいてlog Pow 4以上の物質の吸着が認められた。また、吸着の程度はメタノール濃度が高くなるに伴い低下したが、50%メタノール溶液でも一部が吸着した。以上から、固相抽出では吸引型の装置、シリンジフィルターにはMillex LGを使用することとした。

3.3 精製水を用いた添加回収試験結果

固相選択で選んだ2種の固相の組み合わせ(HLB + AC2 および PS2 + AC2)を用いて、添加回収試験を行った。添加した257種のモデル化合物の極性は、log Pow -2.20～ 8.53であり、添加濃度は0.05 および 0.2 µg/Lである。前処理は「3.4. 固相抽出」に従い、回収率は式(1)で求めた。

$$\text{回収率 (\%)} = 100 \times (A - B) / C \quad (1)$$

ここで、A = 検出濃度, µg/L; B = ブランク値, µg/L; C = 添加濃度, µg/L である。

結果を表8に示す。濃度0.2 µg/Lで50%以上の回収率が得られた物質は、HLB + AC2が245物質、PS2 + AC2が240物質であった。また、それらの平均回収率は、80.1%と79.4%であった。この結果から、開発スクリーニング法は広範なLOCsを定量的に分析できることが確認された。なお、回収率が低い物質は、水溶性が大きく固相に捕集されない物質、または疎水性が大きく分析操作中に器具などに

吸着し易い物質のいずれかであった。これらを精確に分析するには個別分析法を開発する必要がある。

検量線の最低濃度と分析操作から計算したモデル化合物の検出限界値は、0.004～0.40 (平均 0.039) µg/L であり、過半数の検出限界が目標とする0.01 µg/L以下であった。

3.4 下水道放流水を用いた添加回収試験結果

開発したスクリーニング分析法の実試料での分析性能を評価するため、多量の夾雑物を含み分析が比較的難しい下水処理場放流水を用いて添加回収試験を行った。北九州市内の5下水処理場の放流水に190種のモデル化合物を0.20 µg/Lになるよう添加し、「3.4. 固相抽出」に従って操作した。また、無添加試料も同様に処理して式(2)から回収率を求めた。

$$\text{回収率 (\%)} = 100 \times (A - B) / C \quad (2)$$

ここで、A = 添加試料の検出濃度, µg/L; B = 無添加試料の検出濃度, µg/L; C = 添加濃度, µg/L である。

結果を表8に示す。添加した190物質の内、25物質が無添加試料からも検出された。特に、sulpirideは添加濃度の約5倍0.79～1.24 µg/Lが無添加試料から検出され、100%を超える回収率の原因となっている。Sulpirideを除く、174物質(logPow -2.2～8.53)の回収率は50%以上であった。幾つかの物質の回収率が低かったものの、実環境試料においても開発スクリーニング法が対象LOCsを一斉に分析できることが確認された。

3.5 サロゲート物質とマトリックスの影響

サロゲート物質分析は、個々の試料の分析の妥当性を評価するのに有用な手法である。本研究でも表8に示すサロゲート物質を固相

抽出前に試料に添加して回収率を求めた。使用したサロゲート物質は、スクリーニング対象物質全体の物理化学的性質をカバーしているわけではないが、回収率から個々の試料の分析評価とマトリックスの影響が把握できる。

抽出固相として PS2 と AC2 を使用した時の精製水と下水処理場放流水の添加回収試験でのサロゲート物質の平均回収率および相対標準偏差は、それぞれ 72.5 と 60.9 %、21.1 と 16.2 %であった (表 8)。下水処理場放流水の回収率が精製水に比べて低い原因は、マトリックスの影響 (イオン化抑制¹⁰⁾) と思われる。マトリックスによるイオン化抑制は、LC/MS を用いた定量の課題の 1 つである。これを解決するには、試料精製によるマトリックス除去が有効であるが、広範な極性の LOCs を一斉分析するスクリーニング分析では、精製操作により対象物質が除去される可能性があるため精製を採用できない。また、重水素や¹³C ラベル化体を用いた同位体希釈法もマトリックスの影響補正に有効な手法であるが、全対象物質のラベル化体の入手が困難であり、分析が非常に高コストとなるため実用的ではない。

精製水と放流水の添加回収試験の結果を比較したところ、添加 190 物質の内、放流水の 72 物質の回収率が精製水に比べて 10%以上低かった。また、その 72 物質の内、42 物質の保持時間は 20 分未満であり、保持時間 20 分未満の物質の 66%を占めていた。一方、保持時間 20 分以上の 119 物質では、25 物質 (21%) のみが放流水において低回収率であった。また、6 種のラベル化物 (表 8) を精製水と放流水の最終試料液に添加してマトリックス効果を調べるが、モデル化合物と同様に放流水の保持時間 20 分未満の 5 物質の検出濃度が、精製水と比べて 10%以上低かった。これらの結果から、マトリックスの影響は保持時間 20 分以下で主に見られた。ただ、検出濃度の低下は平均 23%であり、精製操作を行

わないスクリーニング分析としては許容できるレベルと考えられる。

3.6 フラグメントイオンを用いた検出確認

本研究で使用した LC-TOF/MS は 10000 程度の質量分解能を有し、精密質量分析が可能である。そのため、ピーク保持時間情報と併せることで、同定の確実さは相当に高い。しかし、LC のピーク分離能と保持時間の再現性は、キャピラリーGC と比較して低く、また ESI で生成するイオンは通常分子量関連イオンのみであるため、高分解といえども誤同定が生じる可能性がある。実際に下水処理場流入水から除草剤の siduron が誤検出された。このことから、確実な同定には追加情報が必要である。本研究では昨年度、複数のフラグメンター電圧(100, 150, 200, 250 V)で生成するインソースフラグメントイオンを用いてより確実な同定ができることを示した。誤同定の Siduron の場合、定量用の測定 (フラグメンター電圧 100 V) で siduron が検出されたと思なされる試料を、複数のフラグメンター電圧を用いて再測定し、フラグメントイオンの有無を標準物質のフラグメントイオンと比較した。その結果、標準物質で得られたフラグメントイオン(図 9A)が試料(図 9B)からは見つからなかったため、siduron は誤検出であることが確認された。一方、血糖降下薬の metformin 場合は、標準品(図 10A)と同様のインソースフラグメントイオンが試料(図 10B)からも検出されたため、試料中に metformin が確実に存在することが確認された。

厚生労働省の残留農薬分析法 (135 農薬) が採用している LC-MS/MS-SRM のプロダクトイオンと本研究で得られたインソースフラグメントイオンを比べたところ、両者は一致していたことから、インソースフラグメントイオンはプロダクトイオンと同じであることが確認された。しかし、インソースフラグメントイオンのイオン強度は SRM のプロダクト

イオンと比較して小さいため、試料中の対象物質濃度が低い時はインソースフラグメントイオンが検出できない可能性がある。

3.7 下水処理場入流水と放流水への適用結果

開発スクリーニング法の有効性を確認するため、北九州市内の5カ所の下水処理場の放流水を分析した。下水処理場の水質を選んだのは、マトリックスが多く分析が難しいからである。検出物質と濃度を図11に示すが、1回以上検出された物質は29種であった。それらは全てインソースフラグメントイオンを生成するため、複数電圧で測定して検出を確認した。検出物質の多くは国内の下水処理場からの検出が報告されている¹⁷⁻¹⁹⁾。しかし、最高濃度で検出された血糖降下薬のmetforminに関しては、国内での報告はない。サロゲート物質の回収率は46~106% (平均67%)であり、精製水の添加回収実験の結果に比べて若干低かった。原因はマトリックスによるイオン化抑制の可能性がある。また、二重分析での2つの分析値の差は、平均値の0~62.6% (平均11.6%)であった。以上の結果から、分析の精確さおよび再現性は共に、スクリーニング分析としては十分な性能であることが確認された。さらに、300物質の測定から汚染の全体像が把握でき、また予期しないmetforminや農薬を検出できたことから、開発スクリーニング法の有効性が確認された。

D. 結論

1. 水道水の検査対象農薬のLC/MS/MS一斉分析法の検討

本研究では、対象農薬リスト掲載農薬類(120物質)、要検討農薬類(16物質)、その他農薬類(84物質)、除外農薬類(14物質)のうち、現在の標準検査法では、固相抽出による前処理後にGC/MSやLC/MSで分析している農薬および標準検査法のない農薬(合計140農薬)を対象に、前処理を行わずに

LC/MS/MSに直接注入して一斉分析できるかどうかを検討した。

アスコルビン酸ナトリウムおよびチオ硫酸ナトリウムいずれの脱塩素処理剤を用いて処理した水道水を試験した場合も、全体として良好な回収率および併行精度が得られ、目標値の各農薬の目標値の1/100超1/10以下の濃度では114~117物質が、目標値の1/100以下の濃度においても105物質が妥当性評価ガイドラインの真度(70~120%)および併行精度($\leq 25\%$ あるいは $\leq 30\%$)の目標を満たした。

ただし、一部の農薬については、脱塩素処理剤との反応によって分解あるいはイオン化阻害を受けたことが示唆されたことから、本法を用いて一斉分析を行う場合は、測定対象とする農薬によって脱塩素処理剤を使い分ける必要があると考えられる。

2. 質量分析計を用いたフローインジェクション分析法による水試料中の非イオン界面活性剤の同定手法の検討

今年度は、PRTR法の対象となっている界面活性剤の中で、26年度に検討した非イオン界面活性剤を除く、13物質についてFIA-MS法によりESIスペクトルを測定した。その結果、対象とした13種類全ての界面活性剤に特有のマススペクトルを得ることができた。それらの検出下限値はいずれも1mg/L程度で、その濃度レベルの汚染事故であれば、本分析法が適用可能である。しかし、水環境中の濃度レベルを測定するためには、濃縮法の検討が必要である。

3. LC-高分解能MSを用いたターゲットスクリーニング手法の検討

開発した固相抽出-LC-TOF/MSスクリーニング分析法を実試料に適用した結果、開発法がLOCsのスクリーニングに有効である事が確認された。開発法を用いることにより、短

時間, 低コスト, 省力に多数物質を分析でき, さらに有害な廃棄物量も減らすことが可能である。

本開発法は, 1) 環境水や水道水のスクリーニング分析, 2) 対象物質の標準試薬が入手できない時の分析, 3) 環境汚染事故や地震などの緊急時の安全性評価や原因物質の特定などに有効な手法である。また, 本法ではマススペクトルが得られるため, 測定データを用いて後日ノンターゲット分析やレトロスペクティブ分析を実施することも可能である。

E. 健康危機情報

なし

F. 研究発表

1. 論文発表

- 1) Combining Passive Sampling with a GC-MS-Database Screening Tool to Assess Trace Organic Contamination of Rivers: a Pilot Study in Melbourne, Australia, Graeme Allinson, Mayumi Allinson and Kiwao Kadokami, *Water Air Soil Pollut*, pp 226-230, 2015. DOI 10.1007/s11270-015-2423-5
- 2) Occurrence of 1153 organic micropollutants in the aquatic environment of Vietnam, H. T. C. Chau, K. Kadokami, H. T. Duong, L. Kong, T. T. Nguyen, T. Q. Nguyen and Y. Ito, *Environ Sci Pollut Res*, pp1-13, 2015. DOI 10.1007/s11356-015-5060-z
- 3) Groundwater screening for 940 organic micro-pollutants in Hanoi and Ho Chi Minh City, Vietnam, Hanh Thi Duong, Kiwao Kadokami, Hong Thi Cam Chau, Trung Quang Nguyen, Thao Thanh Nguyen, Lingxiao Kong, *Environ Sci Pollut Res*, 22 (24), 19835-19847, 2015. DOI 10.1007/s11356-015-5180-5.

2. 学会発表

- 1) 久保田領志, 小林憲弘, 五十嵐良明: 固相抽出-LC/MS によるハロアセトアミド類の分析法の開発及び水道水中の存在実態. 第 24 回環境化学討論会 (2015.6.24 北海道札幌市).
- 2) 小林憲弘, 久保田領志, 菱木麻佑, 小杉有希, 鈴木俊也, 五十嵐良明: LC/MS/MS を用いた水道水中ホルムアルデヒドとアセトアルデヒドの同時分析. 第 24 回環境化学討論会 (2015.6.24 北海道札幌市).
- 3) 小林憲弘, 久保田領志, 五十嵐良明: 水道水中の GC/MS 分析対象農薬の LC/MS/MS 一斉分析方法の検討. 環境科学学会 2015 年会 (2015.9.7 大阪府吹田市).
- 4) 小林憲弘, 久保田領志, 菱木麻佑, 小杉有希, 鈴木俊也, 五十嵐良明: LC/UV および LC/MS/MS による水道水中ホルムアルデヒドとアセトアルデヒドの同時分析法の検討. 日本水道協会 平成 27 年度全国会議 (水道研究発表会) (2015.10.21 埼玉県さいたま市).
- 5) 久保田領志, 小林憲弘, 五十嵐良明: 水道水中ハロアセトアミド類の分析法の開発およびその存在実態. 第 52 回全国衛生化学技術協議会年会 (2015.12.3 静岡県静岡市).
- 6) 小林憲弘, 久保田領志, 菱木麻佑, 小杉有希, 鈴木俊也, 五十嵐良明: HPLC/UV および LC/MS/MS による水道水中ホルムアルデヒドおよびアセトアルデヒドの同時分析. 第 52 回全国衛生化学技術協議会年会 (2015.12.3 静岡県静岡市).
- 7) 小林憲弘, 矢代和史, 久保田領志, 五十嵐良明: 塩素処理による水道水中プロチオホスの分解物の生成. 第 50 回日本水環境学会年会 (2016.3.18 徳島県徳島市).

- 8) 鈴木俊也, 小杉有希, FIA/MS による非イオン界面活性剤の同定手法, 第 52 回全国衛生化学技術協議会年会 (静岡市)
- 9) Grand Designs for Wastewater Recycling in Antarctica - Challenge of Micro-contaminant Assessment, Mayumi Allinson, Kiwao Kadokami, Daisuke Nakajima, Peter Scales, Graeme Allinson, Adrian Knight, Jianhua Zhang, Michael Packer, Kathy Northcott, Vincent Pettigrove, Stephen Gray, SETAC Europe 25th Annual Meeting, 2015. May 3-7, 2015, Barcelona, Spain. (2015.5.3-7, スペイン バルセロナ)
- 10) Screening analysis of 1170 organic micro-pollutants in sewage treatment plants in Kitakyushu, Japan, Kiwao Kadokami, Masashi Yanagida, Keita Mochinaga, 7th Symposium Chemistry and Environmental Protection-EnviroChem 2015, June 9-12, 2015, Palic, Serbia. (2015.6.9-12, セルビア パリック)
- 11) Screening of 1170 organic micro-pollutants in sewage treatment plants in Kitakyushu, Japan, Kiwao Kadokami, Masashi Yanagita, Keita Mochinaga, SETAC North America 36th Annual Meeting, November 1-5, 2015, Salt Lake City, UT, USA. (2015.11.1-5, 米国 ソルトレークシティ)
- 12) Comprehensive analytical method for polar-organic compounds in water samples by liquid chromatography time-of-flight mass spectrometry, H.T. Chau, K. Kadokami, SETAC North America 36th Annual Meeting, November 1-5, 2015, Salt Lake City, UT, USA. (2015.11.1-5, 米国 ソルトレークシティ)
- 13) Monitoring on 1300 organic micro-pollutants in surface waters from Tianjin and Jinan, Northern China, L. Kong, K. Kadokami, S. Wang, T. Duong, H.T. Chau, SETAC North America 36th Annual Meeting, November 1-5, 2015, Salt Lake City, UT, USA. (2015.11.1-5, 米国 ソルトレークシティ)
- 14) 北九州市内の下水処理場における 1170 種の微量有機汚染物質のスクリーニング分析 —化学物質排出源単位の推計—, 門上希和夫, 柳田真志, 持永啓汰, 第 24 回環境化学討論会 (2015.6.24-26, 札幌市)
- 15) Monitoring of 1300 organic micro-pollutants in surface waters from Tianjin, Northern China, Lingxiao Kong, Kiwao Kadokami, Shaopo Wang, Hanh Thi Duong, Hong Thi Cam Chau, 第 24 回環境化学討論会 (2015.6.24-26, 札幌市)
- 16) Screening and analysis of 940 organic micro-pollutants in groundwaters in Hanoi and Hochiminh City, Vietnam, Duong Thi Hanh, Kiwao Kadokami, Katayama Shinsuke, Trung Quang Nguyen, 第 24 回環境化学討論会 (2015.6.24-26, 札幌市)
- 17) Development of a comprehensive analytical method of polar organic pollutants in water samples by liquid chromatography time-of-flight mass spectrometry, Chau Thi Cam Hong, Kiwao Kadokami, 第 24 回環境化学討論会 (2015.6.24-26, 札幌市)
- 18) Assessment of Trace Organic Contaminants Removal by an Advanced Wastewater Treatment Plant for Antarctica, Mayumi Allinson, Graeme Allinson, Kiwao Kadokami, Daisuke Nakajima, Peter Scales, Adrian Knight, Jianhua Zhang, Michael Packer, Kathy Northcott, Stephen Gray, 第 24 回環境化学討論会 (2015.6.24-26, 札幌市)
- 19) 東日本大震災の被災地における化学物質環境実態追跡調査結果 (平成 23 ~ 25 年度調査総括: その 2), 高橋厚, 森大樹,

- 松村徹, 門上希和夫, 柴田康行, 第 24 回環境化学討論会 (2015.6.24-26, 札幌市)
- 20) 下水処理場における半揮発性化学物質の挙動, 加来菜美, 門上希和夫, 日本水環境学会九州支部発表会 (2015.2.27, 佐賀市)
- 21) 下水処理場における極性化学物質の挙動, 藤村健二, 佐野拓哉, 門上希和夫, 日本水環境学会九州支部発表会 (2015.2.27, 佐賀市)
- G. 知的財産権の出願・登録状況 (予定を含む)
1. 特許取得
なし
2. 実用新案特許
なし
3. その他
なし
- H. 参考文献
- 1) 厚生労働省 (2013) 農薬類の分類の見直しについて. 厚生労働省健康局水道課長通知. 平成 25 年 3 月 28 日付健水発 0328 第 4~7 号.
<http://www.mhlw.go.jp/topics/bukyoku/kenkou/suido/hourei/jimuren/dl/130328-3.pdf>
- 2) 小林憲弘, 久保田領志, 田原麻衣子, 杉本直樹, 塚本多矩, 五十嵐良明 (2014) 水道水中の農薬類の LC/MS/MS 一斉分析法の開発. 環境科学会誌, 27(1), 3-19.
- 3) 小林憲弘, 久保田領志, 高玲華, 安藤正典, 五十嵐良明 (2014) 液体クロマトグラフィータンデム質量分析 (LC/MS/MS) による水道水中農薬類の一斉分析法の妥当性評価. 水道協会雑誌, 83(4), 3-14 (2014)..
- 4) 厚生労働省 (2012) 水道水質検査方法の妥当性評価ガイドラインについて. 厚生労働省水道課長通知, 健水発 0906 第 1 号, 平成 24 年 9 月 6 日 (2012).
<http://www.mhlw.go.jp/topics/bukyoku/kenkou/suido/hourei/jimuren/dl/120906-1.pdf>
- 5) 真柄泰基ら, 平成 10 年度から 12 年度, 界面活性剤の水道水源水域及び利水過程における挙動と適正管理に関する研究.
- 6) 佐野守宏: ポリプロピレングリコールの掘削泥水添加剤への応用, 石油化学, 1997, 40(6), 534-538.
- 7) 日本石鹼洗剤工業会調査資料, 界面活性剤の環境モニタリングとリスク評価の最新結果 (2014)
http://jsda.org/w/02_anzen/3kankyo_15_2014.html
- 8) UNEP, UNEP News Release, February, 2006 (2006).
- 9) 有害化学物質一斉分析用ガスクロマトグラフィー/質量分析法データベースの開発, 門上希和夫, 棚田京子, 種田克行, 中川勝博, 分析化学, 53, pp581-588, 2004.
- 10) Novel gas chromatography-mass spectrometry database for automatic identification and quantification of micropollutants, Kiwao Kadokami, Kyoko Tanada, Katsuyuki Taneda, Katsyhiro Nakagawa, J. Chromatogr A, 1089 pp219-226, 2005.
- 11) 固相抽出法と GC-MS 自動同定定量データベース法による水試料中半揮発性化学物質の包括分析法の開発, 陣矢大助, 岩村幸美, 門上希和夫, 楠田哲也, 環境化学, Vol. 21, pp.35-48, 2011.
- 12) Comprehensive Analytical Method for Semi-volatile Organic Compounds in Water Samples by Combination of Disk-type Solid-phase Extraction and Gas

- Chromatography-Mass Spectrometry Database System, Daisuke Jinya, Tomomi Iwamura, and Kiwao Kadokami, *Anal. Sci.*, 29 (4), pp483-486, 2013.
- 13) Survey on 882 Organic Micro-Pollutants in Rivers throughout Japan by Automated Identification and Quantification System with a Gas Chromatography – Mass Spectrometry Database, Kiwao Kadokami, Daisuke Jinya, and Tomomi Iwamura, *J. Environ. Chem.*, 19, pp351-360, 2009.
- 14) Screening analysis of a thousand micro-pollutants in Vietnamese rivers, D. T. Hanh, K. Kadokami, N. Matsuura and N. Q. Trung, *Southeast Asian Water Environment* 5, pp195-202, 2013.
- 15) European Medicines Evaluation Agency. 2006. Guideline on the Environmental Risk Assessment of Medicinal Products for Human Use. EMEA CHMP/SWP/4447/00. Committee for Medicinal Products for Human Use (CHMP), London, England.
- 16) Minimization of ion suppression in LC-MS/MS analysis through the application of strong cation exchange solid-phase extraction (SCX-SPE), Jim X. et al., *J. Pharm. Biomed. Anal.*, 37, pp359-367, 2005.
- 17) 下水処理過程における医薬品類の存在実態と挙動, 成宮正倫, 奥田隆, 中田典秀ら, *環境工学研究論文集*, 第 46 巻, 2009.
- 18) 多摩川流域の下水処理場における医薬品の存在実態, 鈴木俊也, 小杉有希, 保坂三継, 矢口久美子, 小堀昭夫, 西村哲治, 中江大, *東京健安研七年報*, 61, pp333-339, 2010.
- 19) Pharmaceutical chemicals and endocrine disrupters in municipal wastewater in Tokyo and their removal during activated sludge treatment, Nakada N, Tanishima T, Shinohara H, Kiri K, Takada H, *Water Res.*, 40, pp3297-3303, 2006.

表 1. LC/MS/MS 一斉分析条件

項目	設定値
カラム	Shim-pack FC-ODS (2.0 mm I.D. ×150 mm, 粒径 3 μ m, 島津製作所)
移動相 A	5 mM 酢酸アンモニウム水溶液
移動相 B	5 mM 酢酸アンモニウムメタノール溶液
グラジエント条件	B5% (0 min) – B45% (4 min) – B75% (24–27 min) – B5% (27.1–40 min)
LC	
流速	0.20 mL/min
カラム温度	40°C
サンプルクーラー温度	5°C
注入量	100 μ L
イオン化法	ESI 法 (ポジティブイオンモード/ネガティブイオンモード)
プローブ電圧	+4.5 kV (ESI ポジティブ)/-3.5 kV (ESI ネガティブ)
ネブライザーガス流量	1.5 L/min
MS	
ドラインガス流量	10 L/min
脱溶媒部(DL)温度	250°C
ヒートブロック温度	400°C

表 2. 各農薬の分析条件

#	ID	農薬名	分子式	分子量	RT (min)	イオン 化	モニターイオン (m/z) [*]				目標値	添加濃度	
							定量イオン	確認イオン	1/100 ($\mu\text{g/L}$)	低	高		
1	対002	ダラボン (2,2-DPA)	$\text{C}_3\text{H}_4\text{Cl}_2\text{O}_2$	143.0	4.72	ESI-	141 > 35	143 > 99	0.8	0.3	3		
2	対003	2, 4-D (2, 4-PA)	$\text{C}_8\text{H}_6\text{Cl}_2\text{O}_3$	221.0	14.22	ESI-	219 > 125	219 > 161	0.3	0.3	3		
3	対004	EPN	$\text{C}_{14}\text{H}_{14}\text{NO}_4\text{PS}$	323.3	39.63	ESI+	324 > 296	324 > 157	0.04	0.03	0.3		
4		EPNオキソン	$\text{C}_{14}\text{H}_{14}\text{NO}_5\text{P}$	307.2	24.76	ESI+	308 > 280	308 > 94		0.03	0.3		
5	対006	アシュラム	$\text{C}_8\text{H}_{10}\text{N}_2\text{O}_4\text{S}$	230.2	2.75	ESI-	229 > 197	229 > 106	9	3	30		
6	対007	アセフェート	$\text{C}_4\text{H}_{10}\text{NO}_3\text{PS}$	183.2	5.42	ESI+	184 > 143	184 > 49	0.06	0.03	0.3		
7	対008	アトラジン	$\text{C}_8\text{H}_{14}\text{ClN}_5$	215.7	19.93	ESI+	216 > 174	216 > 96	0.1	0.1	1		
8	対009	アニロホス	$\text{C}_{13}\text{H}_{19}\text{ClNO}_3\text{PS}_2$	367.9	35.06	ESI+	368 > 199	368 > 125	0.03	0.03	0.3		
9	対011	アラクロール	$\text{C}_{14}\text{H}_{20}\text{ClNO}_2$	269.8	30.81	ESI+	270 > 238	270 > 162	0.3	0.3	3		
10	対012	イソキサチオン	$\text{C}_{13}\text{H}_{16}\text{NO}_4\text{PS}$	313.3	37.42	ESI+	314 > 105	314 > 97	0.08	0.03	0.3		
11		イソキサチオンオキソン	$\text{C}_{13}\text{H}_{16}\text{NO}_5\text{P}$	297.2	26.54	ESI+	298 > 242	298 > 270	0.08	0.03	0.3		
12	対013	イソフェンホス	$\text{C}_{15}\text{H}_{24}\text{NO}_4\text{PS}$	345.4	37.55	ESI+	368 > 267	368 > 326	0.01	0.01	0.1		
13		イソフェンホスオキソン	$\text{C}_{15}\text{H}_{24}\text{NO}_5\text{P}$	329.3	29.66	ESI+	330 > 201	330 > 229	0.01	0.01	0.1		
14	対014	イソプロカルブ(MIPC)	$\text{C}_{11}\text{H}_{15}\text{NO}_2$	193.3	20.07	ESI+	194 > 95	194 > 77	0.1	0.1	1		
15	対015	イソプロチオラン (IPT)	$\text{C}_{12}\text{H}_{18}\text{O}_4\text{S}_2$	290.4	27.64	ESI+	291 > 231	291 > 189	3	3	30		
16	対016	イプロベンホス (IBP)	$\text{C}_{13}\text{H}_{21}\text{O}_3\text{PS}$	288.3	33.71	ESI+	289 > 91	289 > 205	0.9	0.3	3		
17	対019	エスプロカルブ	$\text{C}_{15}\text{H}_{23}\text{NOS}$	265.4	42.72	ESI+	266 > 91	266 > 71	0.3	0.3	3		
18	対020	エディフェンホス(エジフェン ホス, EDDP)	$\text{C}_{14}\text{H}_{15}\text{O}_2\text{PS}_2$	310.4	34.60	ESI+	311 > 283	311 > 109	0.06	0.03	0.3		
19	対021	エトフェンブロックス	$\text{C}_{25}\text{H}_{28}\text{O}_3$	376.5	49.87	ESI+	394 > 177	394 > 359	0.8	0.3	3		
20	対022	エトリジアゾール(エクロメゾ ール)	$\text{C}_5\text{H}_5\text{Cl}_3\text{N}_2\text{OS}$	247.5	32.85	ESI+	247 > 219	247 > 183	0.04	0.03	0.3		
21	対023	エンドスルフアン(α -ベンゾエ ピン)	$\text{C}_9\text{H}_6\text{Cl}_6\text{O}_3\text{S}$	406.9	34.54	ESI-	419 > 287	419 > 359	0.1	0.1	1		
22		エンドスルフアン(β -ベンゾエ ピン)	$\text{C}_9\text{H}_6\text{Cl}_6\text{O}_3\text{S}$	406.9	37.22	ESI-	419 > 287	419 > 359		0.1	1		
23		エンドスルフエート(ベンゾエ ピンスルフエート)	$\text{C}_9\text{H}_6\text{Cl}_6\text{O}_4\text{S}$	422.9	36.05	ESI-	421 > 97	423 > 97	0.1	0.1	1		
24	対026	オリサストロピン	$\text{C}_{18}\text{H}_{25}\text{N}_5\text{O}_5$	391.4	28.22	ESI+	392 > 205	392 > 116	1	1	10		
25		(5Z)-オリサストロピン	$\text{C}_{18}\text{H}_{25}\text{N}_5\text{O}_5$	391.4	30.04	ESI+	392 > 205	392 > 116		1	10		
26	対027	カズサホス	$\text{C}_{10}\text{H}_{23}\text{PS}_2\text{O}_2$	270.4	38.53	ESI+	271 > 159	271 > 131	0.006	0	0.03		
27	対028	カフェンストロール	$\text{C}_{16}\text{H}_{22}\text{N}_4\text{O}_3\text{S}$	350.4	28.84	ESI+	351 > 100	351 > 72	0.08	0.03	0.3		
28	対030	カルババリル (NAC)	$\text{C}_{12}\text{H}_{11}\text{NO}_2$	201.2	17.01	ESI+	202 > 145	202 > 127	0.5	0.3	3		
29	対031	カルプロバミド	$\text{C}_{15}\text{H}_{18}\text{Cl}_3\text{NO}$	334.7	34.92	ESI+	334 > 139	336 > 139	0.4	0.3	3		
30	対032	カルボフラン	$\text{C}_{12}\text{H}_{15}\text{NO}_3$	221.3	15.69	ESI+	222 > 165	222 > 123	0.05	0.03	0.3		
31	対033	キノクラミン (ACN)	$\text{C}_{10}\text{H}_6\text{ClNO}_2$	207.6	14.31	ESI+	208 > 105	208 > 77	0.05	0.03	0.3		

32	対039 クロルニトロフェン(CNP)	$C_{12}H_6Cl_3NO_3$	318.6	36.62	ESI+	320 >	288	319 >	93	0.001	0	0.01
33	CNP-アミノ体	$C_{12}H_6Cl_3NO$	288.6	36.52	ESI+	288 >	93	290 >	93	0.001	0	0.01
34	対040 クロルピリホス	$C_9H_{11}Cl_3NO_3PS$	350.6	45.43	ESI+	350 >	198	352 >	200	0.03	0.03	0.3
35	クロルピリホスオキソン	$C_9H_{11}Cl_3NO_4P$	334.5	32.21	ESI+	334 >	278	336 >	280	0.03	0.03	0.3
36	対041 クロロタロニル (TPN)	$C_6Cl_4N_2$	265.9	27.90	ESI-	245 >	182	245 >	175	0.5	0.3	3
37	対043 シアノホス(CYAP)	$C_9H_{10}NO_3PS$	243.2	20.60	ESI-	228 >	118	228 >	90	0.03	0.03	0.3
38	対044 ジウロン (DCMU)	$C_9H_{10}Cl_2N_2O$	233.1	21.08	ESI+	233 >	72	233 >	46	0.2	0.1	1
39	対046 ジクロルボス (DDVP)	$C_4H_7Cl_2O_4P$	221.0	15.19	ESI+	221 >	109	223 >	109	0.08	0.03	0.3
40	対048 ジスルホトン(エチルチオメ ン)	$C_6H_{10}O_2PS_3$	274.4	37.92	ESI+	275 >	89	275 >	61	0.04	0.03	0.3
41	対051 ジチオピル	$C_{15}H_{16}F_5NO_2S_2$	401.4	41.17	ESI+	402 >	354	402 >	224	0.09	0.03	0.3
42	対053 シマジン (CAT)	$C_7H_{12}ClN_5$	201.7	15.51	ESI+	202 >	68	202 >	124	0.03	0.03	0.3
43	対054 ジメタメトリン	$C_{11}H_{21}N_5S$	255.4	33.45	ESI+	256 >	186	256 >	68	0.2	0.1	1
44	対055 ジメトエート	$C_5H_{12}NO_3PS_2$	229.3	10.74	ESI+	230 >	199	230 >	125	0.5	0.3	3
45	対056 シメトリン	$C_8H_{15}N_5S$	213.3	19.87	ESI+	214 >	68	214 >	124	0.3	0.3	3
46	対057 ジメピペレート	$C_{15}H_{21}NOS$	263.4	39.14	ESI+	286 >	168	146 >	69	0.03	0.03	0.3
47	対058 ダイアジノン	$C_{12}H_{21}N_2O_3PS$	304.4	35.70	ESI+	305 >	169	305 >	153	0.03	0.03	0.3
48	ダイアジノンオキソン	$C_{12}H_{21}N_2O_4P$	288.3	23.20	ESI+	289 >	153	289 >	84	0.03	0.03	0.3
49	対059 ダイムロン	$C_{17}H_{20}N_2O$	268.4	27.97	ESI+	269 >	151	269 >	91	8	3	30
50	対062 チウラム	$C_6H_{12}N_2S_4$	240.4	15.02	ESI+	241 >	88	241 >	120	0.2	0.1	1
51	対063 チオジカルブ	$C_{10}H_{18}N_4O_4S_3$	354.5	18.05	ESI+	355 >	88	377 >	64	0.8	0.3	3
52	対064 チオファネートメチル	$C_{12}H_{14}N_4O_4S_2$	342.4	15.16	ESI+	343 >	151	365 >	248	3	3	30
53	対065 チオベンカルブ	$C_{12}H_{16}ClNOS$	257.8	37.75	ESI+	258 >	125	258 >	89	0.2	0.1	1
54	対066 テルブカルブ (MBPMC)	$C_{17}H_{27}NO_2$	277.4	39.42	ESI+	295 >	222	295 >	109	0.2	0.1	1
55	対067 トリクロピル	$C_7H_4Cl_3NO_3$	256.5	15.64	ESI-	254 >	196	256 >	198	0.06	0.03	0.3
56	対068 トリクロルホン (DEP)	$C_4H_6Cl_3O_4P$	257.4	10.80	ESI+	257 >	109	259 >	109	0.05	0.03	0.3
57	対069 トリシクラゾール	$C_9H_7N_3S$	189.2	12.28	ESI+	190 >	163	190 >	136	1	1	10
58	対070 トリフルラリン	$C_{13}H_{16}F_3N_3O_4$	335.3	46.82	ESI+	336 >	236	336 >	252	0.6	0.3	3
59	対071 ナプロパミド	$C_{17}H_{21}NO_2$	271.4	30.92	ESI+	272 >	129	272 >	171	0.3	0.3	3
60	対073 ピペロホス	$C_{14}H_{28}NO_3PS_2$	353.5	39.29	ESI+	354 >	171	354 >	255	0.009	0	0.03
61	対075 ピラゾキシフェン	$C_{20}H_{16}Cl_2N_2O_3$	403.3	35.13	ESI+	403 >	91	405 >	91	0.04	0.03	0.3
62	対077 ピリダフェンチオン	$C_{14}H_{17}N_2O_4PS$	340.3	28.91	ESI+	341 >	189	341 >	205	0.02	0.01	0.1
63	対078 ピリブチカルブ	$C_{18}H_{22}N_2O_2S$	330.5	44.73	ESI+	331 >	181	331 >	108	0.2	0.1	1
64	対079 ピロキロン	$C_{11}H_{11}NO$	173.2	14.65	ESI+	174 >	132	174 >	117	0.5	0.3	3
65	対080 フィプロニル	$C_{12}H_4Cl_2F_6N_4OS$	437.2	33.76	ESI-	435 >	330	435 >	250	0.005	0	0.03
66	対081 フェニトロチオン (MEP)	$C_9H_{12}NO_5PS$	277.2	27.43	ESI+	278 >	125	278 >	246	0.1	0.1	1
67	MEPオキソン	$C_9H_{12}NO_6P$	261.2	16.28	ESI+	262 >	104	262 >	216		0.1	1
68	対082 フェノブカルブ (BPMC)	$C_{12}H_{17}NO_2$	207.3	24.56	ESI+	208 >	95	208 >	152	0.3	0.3	3
69	対084 フェンチオン (MPP)	$C_{10}H_{15}O_3PS_2$	278.3	35.14	ESI+	279 >	247	279 >	169	0.06	0.06	0.6
70	MPPオキソン	$C_{10}H_{15}O_4PS$	262.3	23.21	ESI+	263 >	231	263 >	216		0.03	0.3

71	MPPオキシンスルホキシド	C ₁₀ H ₁₅ O ₅ PS	278.3	10.72	ESI+	279 > 264	279 > 104	0.03	0.3
72	MPPオキシンスルホン	C ₁₀ H ₁₅ O ₆ PS	294.3	11.08	ESI+	312 > 295	312 > 217	0.03	0.3
73	MPPスルホキシド	C ₁₀ H ₁₅ O ₄ PS ₂	294.3	16.62	ESI+	295 > 280	295 > 109	0.03	0.3
74	MPPスルホン	C ₁₀ H ₁₅ O ₅ PS ₂	301.3	17.78	ESI+	328 > 311	328 > 125	0.03	0.3
75	対085 フェントエート (PAP)	C ₁₂ H ₁₇ O ₄ PS ₂	320.4	33.92	ESI+	321 > 247	321 > 275	0.07	0.03 0.3
76	対087 フサライド	C ₈ H ₂ Cl ₄ O ₂	271.9	29.67	ESI-	271 > 243	269 > 241	1	1 10
77	対088 ブタクロール	C ₁₇ H ₂₆ ClNO ₂	311.9	43.77	ESI+	312 > 238	312 > 57	0.3	0.3 3
78	対089 ブタミホス	C ₁₃ H ₂₁ N ₂ O ₄ PS	332.4	37.48	ESI+	333 > 96	333 > 180	0.2	0.1 1
79	ブタミホスオキソン	C ₁₃ H ₂₁ N ₂ O ₅ P	316.3	28.57	ESI+	317 > 244	317 > 216	0.1	1
80	対090 ププロフェジン	C ₁₆ H ₂₃ N ₃ OS	305.4	43.35	ESI+	306 > 201	306 > 57	0.2	0.1 1
81	対092 プレチラクロール	C ₁₇ H ₂₆ ClNO ₂	311.9	39.97	ESI+	312 > 252	312 > 147	0.5	0.3 3
82	対093 プロシミドン	C ₁₃ H ₁₁ Cl ₂ NO ₂	284.1	29.02	ESI-	314 > 282	316 > 284	0.9	0.3 3
83	対095 プロピコナゾール	C ₁₅ H ₁₇ Cl ₂ N ₃ O ₂	342.2	35.40	ESI+	342 > 159	342 > 69	0.5	0.3 3
84	対096 プロピザミド	C ₁₂ H ₁₁ Cl ₂ NO	256.1	27.25	ESI-	254 > 228	256 > 230	0.5	0.3 3
85	対097 プロベナゾール	C ₁₀ H ₉ NO ₃ S	223.3	10.45	ESI+	215 > 198	215 > 102	0.5	0.3 3
86	対098 ブロモブチド	C ₁₅ H ₂₂ BrNO	312.3	30.54	ESI+	312 > 194	314 > 196	1	1 10
87	対099 2-ベンズイミダゾールカルバ	C ₉ H ₉ N ₃ O ₂	191.2	11.77	ESI+	192 > 160	192 > 132	0.2	0.1 1
	ミン酸メチル (MBC)								
88	対100 ペンシクロン	C ₁₉ H ₂₁ ClN ₂ O	328.8	38.04	ESI+	329 > 125	329 > 218	1	1 10
89	対103 ベンタゾン	C ₁₀ H ₁₂ N ₂ O ₃ S	240.3	9.36	ESI-	239 > 132	239 > 197	2	1 10
90	対104 ペンディメタリン	C ₁₃ H ₁₉ N ₃ O ₄	281.3	45.77	ESI+	282 > 212	282 > 194	3	3 30
91	対105 ベンフラカルブ	C ₂₀ H ₃₀ N ₂ O ₅ S	410.5	41.83	ESI+	411 > 195	433 > 186	0.4	0.3 3
92	対106 ベンフルラリン(ベスロジン)	C ₁₃ H ₁₆ F ₃ N ₃ O ₄	335.3	46.30	ESI+	336 > 236	336 > 220	0.1	0.1 1
93	対107 ベンフレセート	C ₁₂ H ₁₆ O ₄ S	256.3	21.89	ESI+	274 > 18	274 > 163	0.7	0.3 3
94	対108 ホスチアゼート	C ₉ H ₁₈ NO ₃ PS ₂	283.3	18.33	ESI+	284 > 104	306 > 204	0.03	0.03 0.3
95	対109 マラチオン(マラソン)	C ₁₀ H ₁₉ O ₆ PS ₂	330.4	27.71	ESI+	348 > 331	348 > 99	7	3 30
96	マラオキソン	C ₁₀ H ₁₉ O ₇ PS	314.3	16.07	ESI+	315 > 99	315 > 127	3	30
97	対110 メコプロップ (MCPP)	C ₁₀ H ₁₁ ClO ₃	214.7	16.91	ESI-	213 > 141	213 > 35	0.5	0.3 3
98	対111 メソミル	C ₅ H ₁₀ N ₂ O ₂ S	162.2	8.17	ESI+	163 > 88	163 > 106	3	3 30
99	対113 メタラキシル	C ₁₅ H ₂₁ NO ₄	279.3	20.72	ESI+	280 > 220	280 > 192	0.6	0.3 3
100	対114 メチダチオン (DMTP)	C ₆ H ₁₁ N ₂ O ₄ PS ₃	302.3	22.13	ESI+	320 > 145	320 > 303	0.04	0.03 0.3
101	対115 メチルダイムロン	C ₁₇ H ₂₀ N ₂ O	268.4	29.28	ESI+	269 > 151	269 > 91	0.3	0.3 3
102	対118 メフェナセット	C ₁₆ H ₁₄ N ₂ O ₂ S	298.4	28.88	ESI+	299 > 148	299 > 120	0.2	0.1 1
103	対119 メプロニル	C ₁₇ H ₁₉ NO ₂	298.4	27.61	ESI+	270 > 119	270 > 228	1	1 10
104	対120 モリネート	C ₉ H ₁₇ NOS	187.3	27.58	ESI+	188 > 55	188 > 126	0.05	0.03 0.3
105	要03 エチプロール	C ₁₃ H ₉ Cl ₂ F ₃ N ₄ OS	397.2	26.58	ESI-	395 > 330	395 > 331	0.1	0.1 1
106	要06 テフリルトリオン	C ₂₀ H ₂₃ ClO ₇ S	442.9	11.12	ESI+	465 > 429	465 > 305	0.02	0.01 0.1
107	テフリルトリオン代謝物B		348.8	9.14	ESI+	366 > 349	366 > 85	0.02	0.01 0.1
108	要09 ピラクロホス	C ₁₄ H ₁₆ ClN ₂ O ₃ PS	360.8	37.28	ESI+	361 > 257	361 > 138	0.03	0.03 0.3
109	要13 ホサロン	C ₁₂ H ₁₅ ClNO ₄ PS ₂	367.8	37.33	ESI+	368 > 182	368 > 111	0.05	0.03 0.3

110	要16	メラクロール	C ₁₅ H ₂₂ ClNO ₂	283.8	31.22	ESI+	284 > 252	284 > 176	2	1	10
111	他11	ウニコナゾールP	C ₁₅ H ₁₈ ClN ₃ O	291.8	28.83	ESI+	292 > 70	292 > 125	0.4	0.3	3
112	他22	クロルピリホスメチル	C ₇ H ₇ Cl ₃ NO ₃ PS	322.5	39.03	ESI+	322 > 125	324 > 125	0.3	0.3	3
113	他24	ジクロフェンチオン(ECP)	C ₁₀ H ₁₃ Cl ₂ O ₃ PS	315.2	44.79	ESI+	315 > 259	317 > 261	0.1	0.1	1
114	他36	シベルメトリン	C ₂₂ H ₁₉ Cl ₂ NO ₃	416.3	48.15	ESI+	433 > 191	433 > 416	1	1	10
115	他38	ジメチルビンホス	C ₁₀ H ₁₀ Cl ₃ O ₄ P	331.5	27.80	ESI+	331 > 127	333 > 127	0.1	0.1	1
116	他40	シンメチリン	C ₁₈ H ₂₆ O ₂	274.4	42.78	ESI+	257 > 239	257 > 105	1	1	10
117	他53	トルフェンピラド	C ₂₁ H ₂₂ ClN ₃ O ₂	383.9	44.10	ESI+	384 > 197	384 > 154	0.1	0.1	1
118	他56	パクロプトラゾール	C ₁₅ H ₂₀ ClN ₃ O	293.8	27.33	ESI+	294 > 70	294 > 125	0.5	0.3	3
119	他64	フェノキサニル	C ₁₅ H ₁₈ Cl ₂ N ₂ O ₂	329.2	33.83	ESI+	329 > 302	329 > 86	0.2	0.1	1
120	他70	プロパホス	C ₁₃ H ₂₁ O ₄ PS	304.3	34.89	ESI+	305 > 221	305 > 141	0.01	0.01	0.1
121	他71	プロパルギット(BPPS)	C ₁₉ H ₂₆ O ₄ S	350.5	46.77	ESI+	368 > 231	368 > 175	0.2	0.1	1
122	他73	プロポキスル(PHC)	C ₁₁ H ₁₅ NO ₃	209.3	15.45	ESI+	210 > 111	210 > 93	2	1	10
123	他75	cis-ペルメトリン	C ₂₁ H ₂₀ Cl ₂ O ₃	391.3	48.93	ESI+	408 > 183	351 > 319	1	0.5	5
124	他75	trans-ペルメトリン	C ₂₁ H ₂₀ Cl ₂ O ₃	391.3	49.41	ESI+	408 > 183	351 > 319		0.5	5
125	他81	メタミドホス	C ₂ H ₈ NO ₂ PS	141.1	4.47	ESI+	142 > 94	142 > 125	0.02	0.01	0.1
126	除01	アゾキシストロピン	C ₂₂ H ₁₇ N ₃ O ₅	403.4	25.24	ESI+	404 > 372	404 > 344	5	3	30
127	除02	イブロジオン	C ₁₃ H ₁₃ Cl ₂ N ₃ O ₃	330.2	39.79	ESI-	328 > 141	330 > 141	3	2	20
128	除04	シデュロン	C ₁₄ H ₂₀ N ₂ O	232.3	25.42	ESI+	233 > 94	233 > 137	3	3	30
129	除05	テニルクロール	C ₁₆ H ₁₈ ClNO ₂ S	323.8	30.51	ESI+	324 > 127	324 > 59	2	1	10
130	除06	トルクロホスメチル	C ₉ H ₁₁ Cl ₂ O ₃ PS	301.1	37.66	ESI+	301 > 269	301 > 125	2	1	10
131		トルクロホスメチルオキシソ	C ₉ H ₁₁ Cl ₂ O ₄ P	285.1	25.27	ESI+	287 > 109	287 > 255		1	10
132	除07	ハロスルフロメチル	C ₁₃ H ₁₅ ClN ₆ O ₇ S	434.8	13.41	ESI+	435 > 182	457 > 178	3	3	30
133	除08	ビフェノックス	C ₁₄ H ₉ Cl ₂ NO ₅	342.1	38.60	ESI+	359 > 310	359 > 342	2	1	10
134	除09	ピリプロキシフェン	C ₂₀ H ₁₉ NO ₃	321.4	45.16	ESI+	322 > 96	322 > 78	3	3	30
135	除10	フラザスルフロ	C ₁₃ H ₁₂ F ₃ N ₅ O ₅ S	407.3	11.16	ESI+	408 > 182	452 > 200	0.3	0.3	3
136	除11	フルトラニル	C ₁₇ H ₁₆ F ₃ NO ₂	323.3	27.87	ESI+	324 > 262	324 > 242	2	1	10
137	除12	ベンスリド (SAP)	C ₁₄ H ₂₄ NO ₄ PS ₃	397.5	33.68	ESI+	398 > 158	398 > 314	1	1	10
138	除13	ベンスルフロメチル	C ₁₆ H ₁₈ N ₄ O ₇ S	410.4	17.82	ESI+	411 > 149	411 > 182	5	3	30
139	除14	ホセチル	C ₆ H ₁₈ AlO ₉ P ₃	354.1	2.81	ESI-	109 > 81	109 > 63	20	10	30
140		アミラズ代謝物(N-2,4-ジメチルフェニル-N'-メチルホルムアミジン)	C ₁₀ H ₁₄ N ₂	162.0	9.83	ESI+	163 > 107	163 > 106	0.06	0.03	0.3

※プリカーサイオン>フラグメントイオンの順に記載

表 3. 水道水添加回収試験結果のまとめ

	アスコルビン酸ナトリウム脱塩素処理		チオ硫酸ナトリウム脱塩素処理	
添加濃度	目標値の 1/100 超 1/10 以下	目標値の 1/100 以下	目標値の 1/100 超 1/10 以下	目標値の 1/100 以下
妥当性確保	117 物質 (下記以外の物質)	105 物質 (下記以外の物質)	114 物質 (下記以外の物質)	105 物質 (下記以外の物質)
妥当性確保 できず	8 物質 (アシュラム, エトフェンブロックス, α-ベンゾエピン, シペルメトリン, cis-ペルメトリン, trans-ペルメトリン, フラザスルフロン, ホセチル)	6 物質 (エトフェンブロックス, シペルメトリン, cis-ペルメトリン, フラザスルフロン, ベンスルフロンメチル, ホセチル)	9 物質 (アシュラム, α-ベンゾエピン, チオジカルブ, ベンフレセート, シペルメトリン, cis-ペルメトリン, trans-ペルメトリン, メタミドホス, ホセチル)	8 物質 (ダラボン, アシュラム, CYAP, チオジカルブ, シペルメトリン, cis-ペルメトリン, trans-ペルメトリン, ホセチル)
測定中に 感度低下	7 物質 (EDDP, NAC, チオファネートメチル, DEP, フサライド, プロベナゾール, アミトラズ代謝物)	7 物質 (EDDP, NAC, チオファネートメチル, DEP, フサライド, プロベナゾール, アミトラズ代謝物)	7 物質 (EDDP, チオファネートメチル, DEP, フサライド, プロベナゾール, ベンフラカルブ, アミトラズ代謝物)	7 物質 (EDDP, チオファネートメチル, DEP, フサライド, プロベナゾール, ベンフラカルブ, アミトラズ代謝物)
定量下限値 未満	8 物質 (エトリジアゾール, β-ベンゾエピン, CNP, CNP-アミノ体, DDVP, ジスルホトン, チウラム, MEP)	22 物質 (ダラボン, アシュラム, イソフェンホス, エトリジアゾール, α-ベンゾエピン, β-ベンゾエピン, カズサホス, カフェンストロール, ACN, CNP, CNP-アミノ体, TPN, CYAP, DDVP, ジスルホトン, チウラム, トリフルラリン, MEP, プロシミドン, ベンフルラリン, ベンフレセート, モリネート)	10 物質 (エトリジアゾール, β-ベンゾエピン, カズサホス, CNP, CNP-アミノ体, TPN, DDVP, ジスルホトン, チウラム, MEP)	20 物質 (イソフェンホス, エトリジアゾール, α-ベンゾエピン, β-ベンゾエピン, カズサホス, カフェンストロール, ACN, CNP, CNP-アミノ体, TPN, DDVP, ジスルホトン, チウラム, トリフルラリン, MEP, プロシミドン, ベンフルラリン, ベンフレセート, モリネート, メタミドホス)

表 4. 対象の界面活性剤および水溶性ポリマー

界面活性剤の名称	略名	分類	号番号	年度※
1. PRTR制度対象化学物質の第一種指定化学物質に該当する界面活性剤				
直鎖アルキルベンゼンスルホン酸	LAS	陰イオン系	30	27
N,N-ジメチルドデシルアミン=N-オキシド	AO	両性イオン系	224	27
ドデシル硫酸ナトリウム	AS	陰イオン系	275	27
ヘキサデシルトリメチルアンモニウム=クロリド	HDTMAC	陽イオン系	389	27
ポリ(オキシエチレン)=アルキルエーテル	AE	非イオン系	407	26
ポリ(オキシエチレン)=オクチルフェニルエーテル	OPE	非イオン系	408	26
ポリ(オキシエチレン)=ドデシルエーテル硫酸エステルナトリウム	AES	陰イオン系	409	27
ポリ(オキシエチレン)=ノニルフェニルエーテル	NPE	非イオン系	410	26
2. ポリマー（非イオン界面活性剤の告示法で陽性となるもの）				
ポリエチレングリコール	PEG	非イオン系	-	26
ポリプロピレングリコール	PPG	非イオン系	-	26
ポリブチレングリコール	PBG	非イオン系	-	26

※分析法分科会で検討した年度

表 5. 非イオン界面活性剤、水溶性ポリマーの FIA/MS スペクトル

ポリマー部 (n数)	マススペクトル* (m/z)				
	AE1-20	NPE	OPE	PEG	PPG
	[M+23] ⁺	[M+23] ⁺	[M+23] ⁺	[M+23] ⁺	[M+23] ⁺
0	165	243	229	85	99
1	209	310	273	129	157
2	253	331	317	173	215
3	297	375	361	217	273
4	341	419	405	261	331
5	385	463	449	305	389
6	429	507	538	349	447
7	473	552	582	393	505
8	518	596	626	437	564
9	562	640	670	481	622
10	606	684	714	525	680
11	650	728	-	570	738
12	694	772	-	614	796
13	738	816	-	658	854
14	782	860	-	702	912
15	826	904	-	746	970
16	870	-	-	790	1028
17	914	-	-	834	1086
18	958	-	-	878	1144
19	1002	-	-	922	1202
20	1046	-	-	966	1260
21	1090	-	-	1010	1318
22	-	-	-	1054	1376
23	-	-	-	1098	1434
24	-	-	-	1142	1492

*: Na⁺負荷体として検出

表 6. 陽・陰イオン界面活性剤の FIA/MS スペクトル

マスペクトル (m/z)				
HDTMAC	AO	AS	AES	LAS
ESI+	ESI+	ESI-	ESI-	ESI-
284	230	265	265	297
285	460	293	309	311
		321	353	325
			397	339
			441	353
			485	

表 7 本研究で用いた LC-TOF-MS 測定条件

LC : Agilent 1200	
Column	GL Sciences Inertsil ODS-4 (2.1×150mm, 3 μ m)
Mobile phase	A : 5 mmol CH ₃ COONH ₄ in H ₂ O B : 5 mmol CH ₃ COONH ₄ in CH ₃ OH
Gradient profile	A 95:B 5 (0 min) – A 5:B 95 (30 min-50min)
Column temp	40°C
Injection volume	2 μ L
Flow rate	0.3 mL/min
MS : Agilent 6220 MSD	
Ionization	ESI-Positive
Measurement mode	Scan
Fragmentor Voltage	100 V and 100, 150, 200, 250 V
VCap voltage	3500 V
Scan range (m/z)	50-1000

表 8 検討に用いたモデル化合物および添加回収試験結果

No.	Class	Compound	LOD, ng L ⁻¹	RT, min	Log Pow	Reagent water, 200 mL								Effluent, 200mL	
						200 ng L ⁻¹				50 ng L ⁻¹				200 ng L ⁻¹	
						HLB+AC2		PS2+AC2		HLB+AC2		PS2+AC2		PS2+AC2	
						Avg, % (n=7)	RSD, %	Avg, % (n=7)	RSD, %	Avg, % (n=7)	RSD, %	Avg, % (n=7)	RSD, %	Avg, % (n=5 ^b)	RSD, %
1	Pest	Asulam	8	2.03	-0.11	62.3	10.0	19.4	12.9	67.3	19.3	24.3	63.1	NT	
2	PP	Sulfanilamide	40	3.65	-0.62	49.3	29.6	19.7	95.7	45.6	16.2	38.9	40.1	NT	
3	Pest	Methamidophos	8	4.35	-0.8	64.2	28.7	80.1	16.6	94.2	12.1	87.2	11.6	NT	
4	Pest	Acephate	20	6.51	-0.89	74.2	14.7	79.0	14.6	106.9	7.3	89.6	10.8	NT	
5	PP	Sulfadiazine	20	8.05	-0.09	79.6	11.6	81.7	10.4	98.1	11.9	99.9	7.3	24.8	20.8
6	PP	Acetaminophen ^a	20	8.31	0.46	77.9	8.9	45.7	10.9	93.2	4.4	47.3	12.4	44.0	28.7
7	Pest	Butocarboxim sulfoxide	8	8.87		90.0	5.9	117.8	12.2	131.5	11.4	115.2	9.4	NT	
8	PP	Terbutaline	8	8.97	0.9	87.6	5.7	81.5	10.2	94.0	4.3	101.7	4.9	52.3	18.0
9	PP	Sulfamethizole	8	9.03	0.54	84.5	9.7	85.3	9.2	89.0	15.4	90.8	6.3	28.1	6.0
10	PP	Sotalol	8	9.08	0.24	91.6	6.1	82.3	10.1	116.7	4.1	94.4	25.9	118.2	11.3
11	PP	Salbutamol	80	9.30	0.01	90.0	6.0	85.3	11.6	ND	ND	ND	ND	71.2	18.4
12	PP	Atenolol ^a	8	9.80	0.16	90.2	5.9	89.1	8.2	110.2	3.4	104.5	5.0	62.7	34.7
13	Pest	Dinotefuran	8	9.89	-0.64	83.5	4.6	65.7	9.7	106.9	3.9	70.5	21.5	NT	
14	PP	Sulfamethoxazole ^a	20	10.40	0.89	87.9	7.3	82.9	11.0	100.3	9.1	101.8	7.2	87.9	38.9
15	Pest	Aldicarb sulfone	8	10.56	-0.57	86.3	8.8	85.8	14.6	120.6	27.7	78.0	6.1	NT	
16	PP	Sulfathiazole	20	10.62	0.05	80.5	12.9	86.1	17.8	93.6	21.4	100.1	7.6	49.8	33.0

17	Pest	Nitenpyram	8	10.89	-0.66	72.8	13.6	79.7	12.1	87.7	15.7	87.8	11.1	56.4	22.2
18	PP	Sulfapyridine ^a	8	11.41	0.35	88.0	8.7	84.8	11.1	100.7	13.3	99.0	6.7	80.8	28.6
19	Pest	Oxamyl	8	11.50	-0.44	86.3	5.8	86.7	11.2	111.7	5.7	94.9	5.7	NT	
20	Pest	Propamocarb	8	11.51	0.84	78.4	18.1	89.6	9.3	111.7	7.9	93.1	5.7	NT	
21	PP	Sulfamerazine	8	11.55	0.14	90.1	8.6	84.9	11.6	101.5	11.5	99.2	6.6	53.5	20.6
22	Pest	Flumetsulam	8	11.64	-0.68	84.8	7.5	93.6	7.5	108.3	2.4	97.6	6.1	62.8	17.4
23	PP	Sulfamonomethoxine	8	11.78	-0.04	89.4	7.7	84.4	9.4	103.1	10.1	99.9	6.7	76.6	23.1
24	Pest	Benzobicyclon metabolite	8	12.20	3.06	81.9	15.6	98.2	14.9	110.3	11.8	124.5	14.1	NT	
25	PP	Sulpiride ^a	20	12.21	0.57	92.9	5.3	93.3	4.7	112.6	3.5	105.4	4.8	353.8	31.8
26	PP	Cotinine ^a	8	12.21	-0.23	82.4	15.4	80.0	17.6	111.5	15.7	98.1	3.7	60.9	11.8
27	Pest	Methomyl	8	12.22	0.093	70.7	20.5	71.4	23.7	106.1	15.8	91.2	9.6	NT	
28	PP	Ranitidine	20	12.52	0.27	46.1	27.7	39.3	11.5	38.4	29.4	48.9	13.7	67.8	12.9
29	Pest	Thiamethoxam	8	12.76	-0.13	86.8	5.5	85.2	10.9	107.7	4.1	93.5	5.3	NT	
30	Pest	Pymetrozin	8	12.98	-0.18	78.3	7.7	84.5	9.4	92.9	20.4	88.4	8.4	55.5	21.6
31	PP	Cimetidine	8	13.34	0.4	57.3	18.3	13.1	29.3	34.0	43.9	25.1	52.6	113.9	47.6
32	Pest	Thifensulfuron-methyl	80	13.88	0.02	83.7	4.8	95.0	8.8	ND	ND	ND	ND	69.0	13.6
33	Pest	Metsulfuron-methyl	80	13.89	0.018	82.5	6.1	92.1	8.3	ND	ND	ND	ND	74.4	9.4
34	Pest	Imazaquin	8	14.65	0.34	81.4	7.2	68.5	14.7	106.9	4.6	83.9	9.4	44.6	24.3
35	Pest	Thiofanox-sulfoxide	8	14.68	-0.245	89.5	6.0	110.5	13.7	121.6	13.2	95.8	21.7	NT	
36	Pest	Florasulam	80	14.70	-1.22	89.7	5.9	92.5	6.7	ND	ND	ND	ND	69.2	11.9
37	Pest	Azimsulfuron	80	14.72	0.043	82.9	5.1	83.2	10.0	ND	ND	ND	ND	49.6	18.3
38	Pest	Trinexapac-ethyl	40	14.85	2.44	93.9	12.7	94.9	11.1	ND	ND	ND	ND	NT	
39	PP	Carbadox	80	15.04	-1.37	63.5	18.1	90.5	22.8	ND	ND	ND	ND	63.1	15.7
40	Pest	Chlorsulfuron	80	15.09	-0.99	81.3	5.9	88.6	9.3	ND	ND	ND	ND	64.5	19.0

41	Pest	Clothianidin	20	15.13	0.7	92.6	6.2	93.5	6.7	112.2	4.3	92.5	8.6	NT	
42	Pest	Imidacloprid	40	15.21	0.57	82.9	6.7	85.2	7.9	110.9	5.6	93.4	7.4	81.7	8.8
43	Pest	Thiofanox-sulfone	8	15.28	0.186	85.1	9.2	92.0	19.1	116.6	19.7	93.4	5.8	NT	
44	PP	Antipyrine	8	15.41	0.38	83.9	11.0	78.3	19.2	110.5	13.4	97.6	3.4	71.5	16.4
45	Pest	Clofencet	80	15.43	-2.2	75.6	9.4	75.1	21.5	ND	ND	ND	ND	81.6	125.4
46	PP	Sulfadimethoxine	8	15.47	1.63	88.4	7.8	87.0	7.5	103.5	10.6	100.1	4.5	51.8	17.9
47	Pest	Cinosulfuron	80	15.53	2.04	86.2	5.4	93.2	9.1	ND	ND	ND	ND	78.2	9.0
48	PP	Pirenzepine	8	15.75	0.6	90.1	6.5	88.8	7.4	109.0	3.2	97.4	5.0	106.5	7.5
49	Pest	Foramsulfuron	80	15.89	0.166	85.4	5.7	106.2	11.3	ND	ND	ND	ND	70.3	14.0
50	PP	Primidone	20	15.91	0.91	88.5	7.6	102.5	6.3	93.4	8.7	90.1	7.1	NT	
51	Pest	Dioxacarb	20	15.96	0.57	78.2	9.9	77.3	19.5	107.7	18.9	73.0	43.9	NT	
52	Pest	Vamidotion	8	16.02	0.15	82.5	8.9	75.5	19.4	96.0	5.6	83.3	7.1	NT	
53	Pest	Thiabendazole metabolite	8	16.06	1.73	82.0	5.4	94.6	9.3	90.8	5.5	87.2	7.7	51.9	12.5
54	Pest	Flazasulfuron	80	16.11	-0.06	82.3	3.6	83.9	11.5	ND	ND	ND	ND	72.5	7.7
55	Pest	Sulfosulfuron	80	16.29	1	91.8	5.6	96.8	7.7	ND	ND	ND	ND	85.0	7.9
56	Pest	Acetamiprid	8	16.35	0.8	93.5	4.7	93.5	12.0	113.0	10.7	96.0	7.8	71.3	14.1
57	Pest	Ethoxysulfuron	80	16.37	2.89	92.8	4.8	100.4	9.9	ND	ND	ND	ND	NT	
58	PP	Scopolamine	8	16.43	0.98	93.4	5.9	95.9	8.6	103.2	3.5	99.3	3.5	72.4	12.2
59	Pest	Triasulfuron	80	16.59	1.1	88.9	4.8	101.3	8.7	ND	ND	ND	ND	85.4	9.2
60	PP	Trimethoprim ^a	8	16.66	0.91	94.7	5.3	97.0	7.3	103.4	4.3	102.5	6.5	90.9	9.3
61	Pest	Chloridazon	8	16.71	1.19	87.7	5.0	91.7	11.3	111.1	5.7	90.6	9.6	65.1	13.7
62	PP	Metoclopramide	8	16.85	2.62	91.3	6.3	92.1	11.4	99.0	4.7	94.7	12.9	89.3	9.5
63	Pest	Tribenuron methyl	40	16.89	0.78	53.1	23.6	22.8	12.9	78.8	32.7	49.3	24.6	82.5	26.3
64	Pest	Fenthion oxon sulfoxide	8	16.90	-0.11	91.6	8.4	99.3	15.8	134.6	25.8	105.0	8.0	78.2	15.7

65	PP	Candesartan ^a	8	16.92	5.01	91.0	7.9	91.1	9.4	99.1	9.4	101.6	5.7	84.7	20.8
66	Pest	Imazosulfuron	8	17.11	1.72	83.8	5.6	84.2	14.1	96.7	10.3	94.8	8.1	71.8	8.4
67	PP	Clenbuterol	80	17.16	2.61	89.1	6.2	91.0	5.6	ND	ND	ND	ND	NT	
68	PP	Pentoxifylline	20	17.44	0.29	99.9	5.5	90.0	16.0	123.8	8.1	105.4	4.7	83.5	9.1
69	Pest	Mesosulfuron-methyl	80	17.45	1.17	87.6	5.8	111.3	11.3	ND	ND	ND	ND	78.5	8.8
70	Pest	Fenthion oxon sulfone	8	17.48	-0.078	84.7	6.6	82.3	15.2	113.3	10.6	94.2	5.6	NT	
71	Pest	Oxycarboxin	8	17.50	0.772	87.4	9.5	87.3	15.0	108.5	10.3	97.6	15.0	NT	
72	PP	Ifosfamide	8	17.52	0.86	95.2	5.9	84.3	17.2	106.5	11.9	98.0	10.2	73.7	8.7
73	PP	Disopyramide ^a	8	17.55	2.58	94.5	5.2	98.7	6.0	110.5	3.4	104.5	6.8	111.2	12.1
74	PP	Ormetoprim	8	17.62	1.55	90.9	3.3	93.1	3.7	111.4	5.0	104.0	5.0	72.8	10.9
75	Pest	Carbendazim ^a	8	17.70	1.51	86.9	7.9	83.6	21.6	106.6	13.4	92.1	10.8	85.6	10.6
76	Pest	Ethametsulfuron-methyl	80	17.71	0.89	93.8	5.6	101.6	7.4	ND	ND	ND	ND	70.7	8.0
77	PP	Metoprolol	8	17.76	1.88	93.6	6.1	95.7	8.9	107.6	4.5	102.0	3.6	79.7	8.6
78	Pest	Naptalam	80	17.78	0.004	86.9	4.4	95.5	9.9	ND	ND	ND	ND	NT	
79	PP	Dicyclohexylamine ^a	8	18.03	3.69	86.2	12.4	87.8	13.2	109.4	8.1	99.9	3.0	63.7	59.9
80	Pest	Pyrazosulfuron-ethyl	80	18.24	3.16	87.4	4.8	88.8	12.2	ND	ND	ND	ND	64.3	17.7
81	Pest	Trifloxysulfuron-sodium	80	18.27	-0.43	91.3	4.4	103.0	8.3	ND	ND	ND	ND	61.8	10.3
82	PP	Ethenzamide	8	18.27	1.4	77.3	19.2	75.9	28.3	103.5	24.1	98.4	5.2	NT	
83	PP	Acetohexamide	20	18.32	2.44	94.4	18.6	89.2	9.9	113.4	6.6	112.2	26.1	NT	
84	PP	Cyclophosphamide	8	18.35	0.8	90.3	6.6	85.5	17.4	98.7	9.9	100.4	9.5	75.1	20.3
85	Pest	Thiacloprid	8	18.38	0.55	90.8	6.0	90.5	13.3	105.4	4.1	96.7	7.3	66.8	13.6
86	Pest	Iodosulfuron-methyl-sodium	80	18.45	-0.7	91.0	4.1	104.6	23.3	ND	ND	ND	ND	96.2	22.3
87	PP	Phenacetin	8	18.54	1.58	83.6	10.8	80.1	22.7	110.8	16.7	97.5	3.1	79.1	38.9
88	Pest	Butocarboxim	20	18.56	1.1	61.5	32.9	56.0	28.3	78.0	29.8	0.0	0.0	NT	

89	Pest	Halosulfuron-methyl	80	18.57	-0.0186	85.8	6.6	85.3	11.7	ND	ND	ND	ND	65.7	7.1
90	Pest	Tricyclazole	8	18.91	1.42	82.1	8.3	81.5	21.8	113.3	16.4	91.7	8.1	66.6	12.8
91	PP	Warfarin	8	19.10	2.27	90.1	6.2	82.6	13.2	99.1	4.2	102.9	5.3	73.7	10.6
92	Pest	Metosulam	80	19.39	2.46	87.4	6.2	105.7	8.9	ND	ND	ND	ND	85.6	9.9
93	Pest	Penoxsulam	80	19.54	-0.354	88.6	5.5	101.8	7.0	ND	ND	ND	ND	87.1	9.2
94	Pest	Tepraloxymid	20	19.58	2.88	77.5	13.3	67.4	25.4	93.2	11.4	83.1	20.0	73.8	10.7
95	PP	Tolbutamide	20	19.62	2.34	91.9	6.0	83.1	13.4	105.4	8.9	100.5	4.3	72.8	24.8
96	Pest	Metolcarb	20	19.66	1.63	64.9	31.5	61.6	29.4	98.2	31.5	84.0	26.8	NT	
97	Pest	Chlorimuron-ethyl	80	19.86	0.11	85.3	6.4	97.2	16.3	ND	ND	ND	ND	84.0	9.3
98	PP	Naproxen	40	19.91	3	86.5	9.2	65.9	45.6	104.7	14.3	100.2	9.3	NT	
99	PP	Carazolol	8	19.96	3.59	90.2	5.5	95.2	9.2	101.5	2.3	101.9	7.9	82.2	10.2
100	PP	Bisoprolol	8	19.97	2.14	93.7	6.3	95.3	7.9	105.4	3.7	109.3	8.9	96.4	11.1
101	PP	Epinastine	8	20.14	3.51	93.4	5.5	91.9	11.4	105.0	4.4	106.2	4.9	112.4	11.1
102	PP	Ketoprofen ^a	8	20.16	3.12	86.0	7.4	82.3	19.3	104.1	6.4	102.5	6.6	NT	
103	Pest	Diclosulam	40	20.33	0.85	90.8	6.3	88.2	5.7	99.9	6.2	93.1	10.2	78.3	14.1
104	Pest	Cyanazine	8	20.47	2.24	84.9	6.5	83.9	17.3	102.3	7.9	93.2	5.7	70.1	11.5
105	Pest	Metribuzin	8	20.58	1.6	70.0	17.8	61.2	38.6	94.9	22.0	83.9	12.0	66.7	21.5
106	PP	Flumequine	40	20.65	2.41	93.7	6.5	78.6	14.3	96.7	10.8	111.3	22.1	73.1	13.5
107	Pest	Bromacil	40	20.77	2.14	86.3	7.4	84.6	22.2	100.7	10.2	92.9	21.2	81.1	9.4
108	Pest	Sulfentrazone	80	20.79	1.48	88.7	4.4	93.3	11.4	ND	ND	ND	ND	77.5	10.3
109	Pest	Propoxur	8	20.83	1.56	67.4	26.5	75.4	20.6	95.9	20.4	86.5	12.6	NT	
110	Pest	Thidiazuron	8	20.83	1.77	86.1	5.4	90.0	10.6	103.1	4.9	90.3	12.9	NT	
111	Pest	Azamethiphos	8	20.89	1.05	105.6	13.4	109.2	25.4	143.7	18.6	135.1	18.4	NT	
112	PP	Ifenprodil	8	20.97	4.25	91.3	5.7	95.7	7.4	84.4	2.9	103.5	29.9	103.8	13.8