

2 短報

食品衛生施設における検査等の業務管理要領の改正について

○伴 埜 行 則（管理課疫学情報）

1 はじめに

平成9年の厚生労働省通知「食品衛生検査施設等における検査等の業務の管理の実施について」¹⁾（以下「業務管理要領」という。）は、食品衛生法に基づく検査に関して、信頼できる成績の発行機関であることを保証するために順守すべき事柄をまとめた文書である。京都市衛生環境研究所（以下「当所」という。）においても、この「業務管理要領」をベースに京都市衛生環境研究所食品検査等業務管理要綱（以下「京都市要綱」という。）を作成している。

この業務管理要領の改正については、厚生労働科学研究成果データベースの平成29年度～令和元年度に「国際整合性を踏まえた業務管理要領案の開発に関する研究」²⁾⁴⁾（以下「業務管理要領案開発」という。）としてその詳細が記載されており、現在の業務管理要領を国際的に求められる水準と整合させる改訂案が検討されている。

この「業務管理要領案開発」は、多数の地方衛生研究所が参加・協力する中でまとめられたもので、その成果の一部は、食品衛生検査施設等の信頼性確保部門責任者を対象とした研修会でも発表されている。その研修会では、信頼性確保部門の業務が拡充し、担当職員にも高度な専門的知識が要求されることが強調されている。

当所でも、これらの動きに対応するため、新しい業務管理要領に基づく京都市要綱の改正案の作成と信頼性確保部門に課せられた役割を担うために何が必要かを模索する取り組みを開始した。まだまだ前段階としての準備作業ではあるが、その概要を報告する。

2 方法

所内の関係職員に一連の業務管理要領改正の動向を説明し、「何がどう変わるのか」をテーマとした研修会を企画した。

次いで、京都市要綱の改正作業に着手するために、当所のGLP委員会を開催し了解を求めた。

「業務管理要領案開発」では、具体的な改訂案の例文が示されており（以下この例文を「雛形」という。）、この「雛形」をベースに現行の京都市要綱の内容を落とし込む形で京都市要綱改正案を作成する作業を進めた。作成後は、所内説明会を開催し、検査担当者等の意見を集約し、最終案をとりまとめた上、GLP委員会で審議・承認するというスケジュールを作成した。

なお、国の通知が未発出である事を考慮し、一連の作業の期限は設定しないこととした。

3 結果

(1) 文書体系

「業務管理要領案開発」では、業務管理要領（品質マニュアル）を一次文書、その内容を補足する手順書を二次文書、そして各試験検査の方法等を示す標準作業書を三次文書とする文書体系が提示されている。そのため、改正案は、一次文書とその内容を補完する二次文書を合わせて作成する必要がある。表1に「雛形」で示された二次文書の一覧を示す。

表 1 二次文書一覧

1	検体の受け入れに関する手順書
2	検査報告書の発行に関する手順書
3	検査に関する手順書
4	技能試験・内部品質管理に関する手順書
5	トレーサビリティに関する手順書
6	測定の不確かさ評価に関する手順書
7	不適合業務の管理に関する手順書
8	是正活動及び改善に関する手順書
9	教育訓練に関する手順書
10	苦情等の対応に関する手順書
11	内部監査に関する手順書
12	マネジメントレビューに関する手順書
13	文書及び記録の管理に関する手順書
14	検査の進行管理に関する手引き

二次文書のうち「9 教育訓練に関する手順書」、
「11 内部監査に関する手順書」及び「12 マネジメ
ントレビューに関する手順書」の3つの文書は、「雛
形」で例文が示されている。

さらに、「雛形」には、三次文書として「電子式非自
動はかりの定期点検標準作業書」、「電子式非自動はか
りの日常点検標準作業書」、「実用標準分銅の内部校正
標準作業書」、「電子式非自動はかりの内部校正標準作
業書」、「電子式非自動はかりの不確かさ評価標準作
業書」、「不確かさ評価（トップダウン方式）標準作
業書」、「不確かさ評価（ボトムアップ方式）標準作
業書」及び「不確かさ評価（ボトムアップ方式）標準作
業書（Ge 半導体検出器：放射性 Cs）」の8つの例文が
示されている。

「雛形」の一次文書を京都市要綱改正案とし、例示
されている二次文書及び三次文書についても、同時に
導入する方向で検討した。

(2) 京都市要綱改正案の作成

まず、「雛形」の示す一次文書をそのまま京都市要綱
改正案とし、不都合な部分を修正する手順で進めた。

「雛形」では、検査の適用範囲を「食品等の成分規
格、基準への適合を判定する検査に適用する。」（以下
「検査」という。）と定義している。

一方、京都市要綱では、食品に関する検査全般を適
用範囲としているため、改正案では、「雛形」の文書に
ある「検査」を「検査等」と変更し、規格基準の検査
以外にも適用するよう範囲を拡大した。

さらに、業務内容の適用範囲では、「一次試料のサン
プリング（収去）は除くものとする。」としているが、
京都市要綱では、試験品を採取する食品衛生監視員の
遵守事項を規定し、「試験品取扱標準作業書（採取及び
搬送）」を本庁課が作成し、検査部門責任者が承認して
いる。これは、検査結果に影響を及ぼさない収去方法
となるよう試験所が収去機関に要望するという意味合
いであり、収去の行為そのものを縛るものではないと
解釈される。そのため、京都市要綱改正案では、「一次
試料のサンプリング（収去）は除くものとする。」とい
う文言をそのまま導入し、「試験品取扱標準作業書（採

取及び搬送）」を従来通り本庁課作成、検査部門責任者
承認というスタイルを継続しても支障が無いと解釈し
た。

(3) 二次文書の作成

「雛形」が示す3つの二次文書を案文の通り導入す
ると、以下の5項目については現状の業務内容を大幅
に変更しなければならないことが予想される。

- ✓ 新任研修は、「教育訓練に関する手順書」で具体
的内容・手順の文書化、詳細な研修の記録の作成
等が求められることになり、各検査区分責任者の
作業量の大幅な増大が予想される。
- ✓ 内部点検は「内部監査」とし、現状のチェックリ
ストに一般要求事項（公平性及び機密保持）、組
織構成に関する事項、資源に関する事項及びプロ
セスに関する事項を追加する必要がある。
- ✓ ISO/IEC17025 では、紙媒体を前提にした要求事項
（個々の誤りに訂正線を施し、そのそばに正しい
値を記入する）から、電子媒体を意識した要求事
項に変更されており⁵⁾、検討を要する。
- ✓ 従来のGLP委員会は、「マネジメントレビュー
に関する手順書」に従い、マネジメントレビュー
となるが、実質的に変更を要しないと想定され
る。

また、「雛形」に無い二次文書は、「業務管理要領
案開発」に示された「食品衛生に関連した検査等
を実施する試験所の能力の一般必要事項と分析結果の
品質保証に関するガイドライン」（以下「ガイドライ
ン」という。）をベースに、現在の京都市要綱の内容
を落とし込む形で作成した。

その中で、「検体の受け入れに関する手順書」、「技
能試験・内部品質管理に関する手順書」及び「測定
の不確かさ評価に関する手順書」については、新し
い概念の導入を伴うことから、事前の十分な検討が
必要と思われた。

ア 検体の受け入れに関する手順書

サンプリングについては、ガイドラインに従い
「検査依頼者の意図を確認した上で、サンプリング
場所、サンプリングプラン及びサンプリング手順か

らの逸脱が無いことを確認する。」とした。

また、サンプリングプランは、「合理的である限り、国際的にも受け入れ可能な水準で、適切な統計的方法に基づいた内容であること」の部分そのまま導入すると、「明確なロットから抜き取った試料しか受け入れられない」ことになるが、これは「規格検査」の場合に限られるものと理解した。実際には「規格検査」以外の検査も多く実施しているため、「経験的に実施されてきたことや実際に実施可能であることを根拠に、数理によらず合意のみによって成立しているサンプリングプランについては、試験に支障のない範囲で受け入れる。」という「業務管理要領案開発」にある文言を追加した。

ここで、実態として「規格検査」以外の検査の割合を確認するために、過去の試験検査について調査した。

過去の年報に掲載されている試験検査の概要を整理し、食品検査の実施状況を「食品規格検査」、「乳等省令」、「食品一般の成分規格（残留農薬等・遺伝子組換え食品・放射能）」、「食品添加物」、「汚染物質（PCB、水銀等）」、「衛生規範の指導基準」、「実態調査」、「特定原材料」、「自然毒」、「器具容器包装」の10の分野に分類し、検体数について集計した（図1）。ただし、同一検体が複数の分野にまたがる場合には、その詳細を確認できないため重複計上している可能性がある。

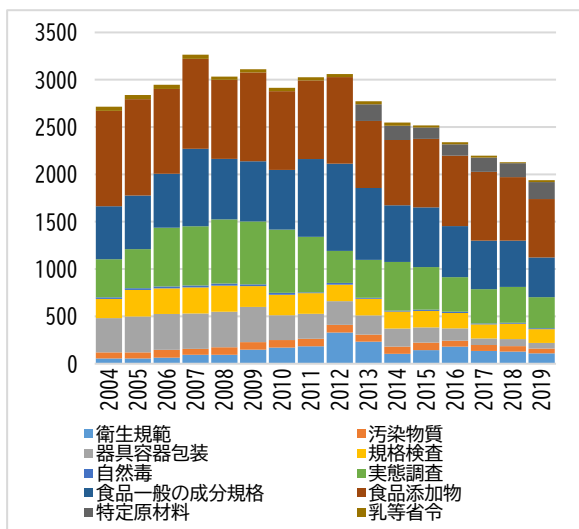


図1 年度別検体数

10の分野のうち「規格検査」、「乳等省令」、「食品一般の成分規格」及び「器具容器包装」を「規格検査」に該当するものとする、その合計の占める割合は、減少傾向にある。（図2）。

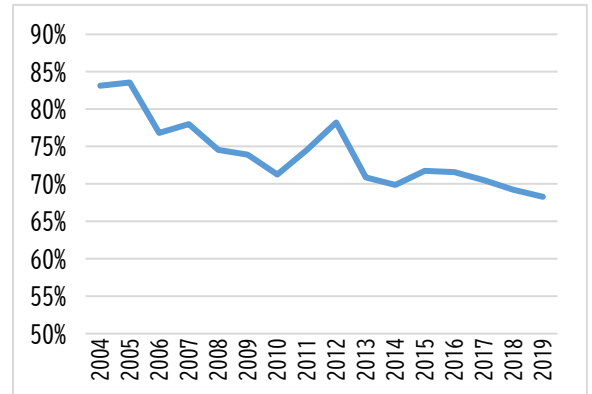


図2 規格基準の適否を判定する検査の割合

また、過去の違反事例について、規格基準違反、基準超過（食品添加物の使用基準超過）、表示不適切及びその他の違反（直ちに行政処分に繋がらない暫定基準、衛生規範の指導基準不適合、冷凍食品の残留農薬一律基準超過事例、特定原材料の検出事例等）に分類・整理した（表2）。

表2 過去の違反事例

年度	規格違反	基準超過	表示違反	その他
2004	1	3	3	1
2005				3
2006	3			
2007	4	1	5	2
2008	2	2	4	2
2009			7	4
2010	1	3	2	5
2011		4	3	2
2012	1	1	7	14
2013	3	1		16
2014	2	1	1	12
2015	1		1	10
2016				8
2017	1	1		9
2018	1	2		7
2019		2	1	10

違反の傾向においても「検査」の比重は小さく、「その他の検査」の比重が大きくなる傾向が見られる。

また、ガイドラインにあるサンプリングプランは、「監視指導計画に記載される検査項目ごとの年間の検査予定数について、検査目的に沿ったサンプリングプラン及びサンプリング手順で設定されていることを確認する。」と記述されている。京都市では監視指導計画案の策定段階で検査予定数を本庁課と協議しているため「検査目的とサンプリングプラン及びサンプリング手法の適合性について、関係所管課と十分に協議する。」に変更した。

また、令和3年度の京都市食品衛生監視指導計画（案）の内容を精査すると、業務管理要領の改正についての記述はされていない。そこで、他都市の監視指導計画の内容をインターネット上で調査した（126自治体、令和2年度計画又は令和3年度計画案、図3）。

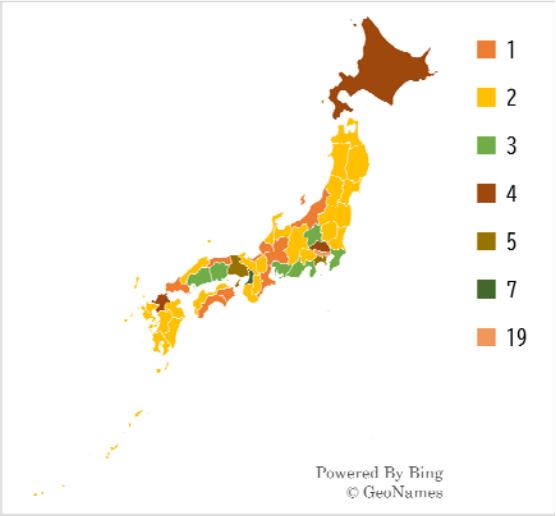


図3 監視指導計画を調査した都道府県別自治体数

「収去時のロット」、「規格違反の判断基準」及び「業務管理要領の改正」というキーワードに着目したが、ほとんどの監視指導計画に関連した記述は見いだせなかった。

ただ、新潟県の監視指導計画案には、「食品等の収去に際しては、ロットを代表するものを収去するよう考慮する」との記述、名古屋市の監視指導計画案には、「食品衛生検査施設における検査等の業務

管理要領の改訂等、今後の国の動向をみながら必要な対応を行います。」との記述があった。

イ 技能試験・内部品質管理に関する手順書

従来用いられてきた「外部精度管理」は、「雛形」には「技能試験」と表現されているため、こちらの用語を用いる。

ガイドラインでは、「信頼性確保部門責任者は、技能試験の年間計画等の管理及び内部品質管理結果の統計的手法を用いた評価を行い分析結果の品質保証を確保する。」とし、技能試験は、「固有の試験又は測定に対する個々の試験所のパフォーマンスの評価、及び試験所のパフォーマンスを継続的にモニターするために使用する。」とされており、そのままの記述を導入した。

食品衛生検査に関わる技能試験は、一般財団法人食品薬品安全センター秦野研究所⁶⁾が平成9年度より厚生労働省から食品衛生技能試験調査実施機関として具備すべき要件の適合の確認を受け実施している（表3、表4）。この他、国立医薬品食品衛生研究所 生化学部実施の遺伝子組換え食品検査の技能試験、特定原材料検査の技能試験調査研究等が実施されている。

表3 過去の理化学調査の内容

調査項目	調査対象物質	使用基材
重金属	カドミウム、鉛	清涼飲料水、米
食品添加物の定性試験	酸性タール色素中の許可色素	清涼飲料水、つゆ、漬物、醤油、果実ペースト、ジャム、みそ等
食品添加物の定量試験	サッカリンナトリウム、安息香酸、パラオキシ安息香酸エステル類、ソルビン酸	
残留農薬	クロルピリホス、フェニトロチオン、馬拉チオン、ダイアジノン、フェンチオン、フェントエート、EPN	にんじんペースト、ほうれんそうペースト、かぼちゃペースト、米油、とうもろこし油
残留動物用医薬品	フルベンダゾール、スルファジミジン	鶏卵、鶏肉ペースト

表 4 微生物学調査の一覧

調査対象物質	使用基材
一般細菌数測定	そば粉，寒天状基材，ゼラチン基材
大腸菌群	マッシュポテト，ハンバーグ，ツミレ
E. coli 検査	マッシュポテト，ハンバーグ
腸内細菌科菌群	ハンバーグ
黄色ブドウ球菌	マッシュポテト
サルモネラ属菌	マッシュポテト，液卵
一般細菌数測定	そば粉，寒天状基材，ゼラチン基材

当所は，2019 年度の移転時等を除き，食品薬品安全センター秦野研究所の他，その他の技能試験調査研究についても参加している（表 5）。

表 5 技能試験参加年度

技能試験調査	参加年度
理化学調査	
・ 重金属検査	2010→→→→→→→→2020
・ 残留農薬検査 I	2010→→→→→→→2017
・ 食品添加物検査 II	2010→→→→→→→→2020
・ 残留農薬検査 II	2010→→→→→→2018 2020
・ 残留動物用医薬品検査	2010→→→→→→→→2020
・ 食品添加物検査 I	2010→→→→→→→→2020
微生物学調査	
・ E.coli 検査	2010→→→→→→→→2020
・ 一般細菌数測定検査	2010→→→→→→→→2020
・ 腸内細菌科菌群検査	2015→→→→→2020
・ 黄色ブドウ球菌検査	2010→→→→→→2018 2020
・ サルモネラ属菌検査	2010→→→→→→2018 2020
・ 大腸菌群検査	2010→→→→→→2018 2020
食品表示関連外部精度管理調査	
・ 特定原材料検査	2017→→2020
・ 遺伝子組換え食品	2013→→2016 2020

現在，信頼性確保部門は，技能試験の窓口業務として技能試験の試料の受け渡し及び報告書の提出等を所管している。報告書の提出前に，検査部門の作成した技能試験のデータ（検査結果，検量線，標準

と試料のクロマトグラム，アンケート調査等）について，報告値のバラツキ，転記ミス，算出濃度の計算，実施方法と SOP の内容の確認等のチェックを行っている。技能試験に使用しているおもな SOP は，15 種類あるが，かなりの頻度で改正されている（表 6）。

表 6 技能試験使用 SOP と改正履歴

表題	改正年
汚染指標菌	2001, 2011, 2014, 2015, 2020
病原大腸菌	2001, 2010, 2012, 2013, 2015, 2016, 2017, 2020
サルモネラ属菌	2001, 2011, 2015, 2016, 2016, 2020
黄色ブドウ球菌	2001, 2009, 2010, 2015, 2016, 2016, 2020
食肉製品成分規格	2011, 2015, 2016
水菓成分規格	2015, 2015, 2020
保存料甘味料透析法	2014, 2016
保存料水蒸気蒸留法	2014, 2016
着色料分析法	1997, 2002, 2006, 2015, 2016
畜水産物中の残留動物用医薬品等一斉試験法他	2007, 2008, 2009, 2010, 2014, 2017
妥当性評価に基づく食品中の残留農薬等簡易一斉試験法（農産物編）	2013, 2015, 2015, 2015, 2016, 2018, 2018, 2019
安全性審査済み遺伝子組換えトウモロコシ混入率試験法	2005, 2006, 2006, 2009, 2013, 2013, 2018
安全性未審査遺伝子組換えコメ定性試験法	2008, 2009, 2011, 2013, 2013
米中のカドミウム試験法	2004, 2005, 2010, 2018
アレルギー物質を含む食品の試験法	2009, 2013, 2015, 2017

SOP の改正内容は，字句修正及び使用機器の更新に伴う場合もあるが，米中のカドミウム試験，残留農薬試験，残留動物用医薬品試験，保存料・甘味料試験等の測定機器の変更，前処理方法の大幅な変更をしたものもある。

また、細菌検査の SOP は、国が示す方法に準拠する場合が多く、国の方法が見直されたタイミングで SOP も改正される。また、内部品質管理については、新たに設けられる信頼性確保部門の業務となる。そこで、過去の技能試験の結果を用いて、この業務の実際を想定し、課題の抽出を試みた。

(7) 微生物検査の内部品質管理

2015 年には食肉製品の検査項目である黄色ブドウ球菌及びサルモネラ属菌の検査法が国際基準に沿ったものに改正され⁷⁾、SOP も改正された。

その結果、2016 年の技能試験の操作は、一般細菌数の培養時間が 24 時間から 48 時間に、黄色ブドウ球菌の培養温度が 35℃から 37℃に、サルモネラ属菌の前増菌・確認培地の培養温度が 36℃から 37℃に変更されている。

しかし、信頼性確保部門が内部品質管理として、これらの変更を確認するには、装置付属の温度センサーの温度管理を実施する必要があり、「雛形」で示された電子天秤の定期点検等と同様にインキュベーターの温度試験槽の指示値の校正⁸⁾に関する標準作業書を整備する必要が生じる。

また、内部品質管理の質にまで立ち入るためには、使用する培地の組成、シャーレの寸法及び培養器の点検記録等の確認、作業環境の清浄度（定期的な落下細菌等の検査）の実施等が考えられる。

ガイドラインの中では、微生物検査を実施する試験所における内部品質管理の方法が示されており、管理用試料として枯草菌芽胞溶液を用いる手法が紹介されている。これは、技能試験の一般細菌数試験で用いられている手法である。しかし、この手法は、検査対象となる食材の影響をモニターできないという限界を有する。当面は、技能試験の作業状況に立ち会うことも有用と考える。

(イ) 機器の変更に伴う影響

一般的に機器分析の場合、検査担当部門で、まず検量線を作成し、その直線性、バラツキ及び定量下限値等に管理基準を設定し、内部評価を行っ

ている。信頼性確保部門が行う内部品質管理としては、その検査担当部門の内部評価の確認以外に何が出来るかを考えた。

そこで、技能試験の検量線のデータの年推移を評価出来ないか検討した。一例として畜水産物中の残留動物用医薬品を取り上げる。測定機器としては、2016 年まで高速液体クロマトグラフ（以下「HPLC」という。）の検出器にフォトダイオードアレイ検出器（以下「PDA」という。）を用いていたが、2017 年に三連四重極型質量分析計（以下「MS/MS」という。）に切り替えられた。

PDA 検出器は 2013 年から 4 年間、MS/MS は 2017 年から 3 年間の各濃度と応答値について、報告された数値を平均した（図 4、図 5）。各濃度点のエラーバーは、標準偏差を示す。

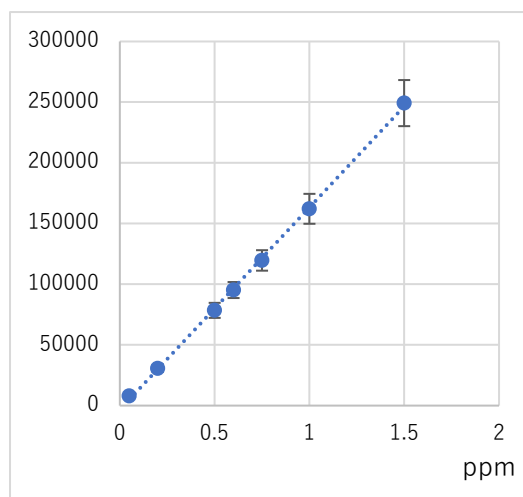


図 4 PDA 検出器を用いた検量線

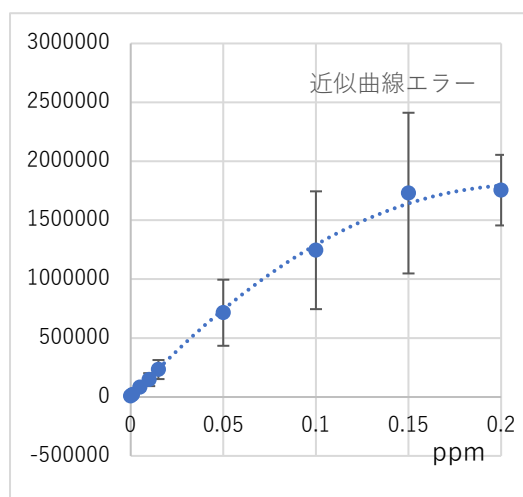


図 5 LC/MS/MS を用いた検量線

この2つのグラフを単純に比較すると、PDA 検出器の濃度別応答値は、高濃度ほど標準偏差も大きくなっているが、直線性は維持されている。

それに対し MS/MS は、高濃度になると応答値が近似直線から外れ、直線性は低濃度領域に限定される。ただ、検出感度は PDA 検出器の数倍高感度であることがわかる。

PDA 検出器は、ランバート・ベールの法則に基づき吸光度と濃度が正に比例し、その比例定数のモル吸光係数は物質固有の値である。HPLC で適切に対象物質を分離できれば、安定した吸光度と濃度の関係を維持できる^{9),10)}。そのため、検量線の年度推移の評価は、可能性があると思われた。

一方、MS/MS 検出器測定原理は、イオン化効率が物質により大きく異なり、装置周辺の雰囲気等の影響を受ける場合もあり、ピーク面積は測定毎に変動するため、検量線の年度別推移を評価することは無意味であると思われる。しかし、少なくとも内部品質管理には、測定装置の最低限の知識が必要なことを確認できた。

(7) 不適切事例の解析

次いで、過去の技能試験にあった不適切事例をモデルとする。

不適切事例

残留動物用医薬品検査（スルファジミジン）において、Xbr が上部管理限界線を上回った。

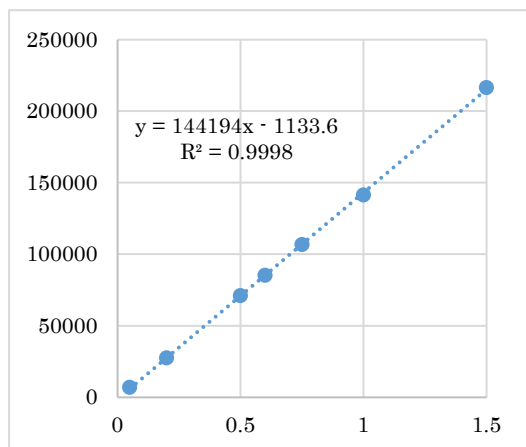


図 6 技能試験に用いた検量線

判明した原因

- ・ 測定時に HPLC のポンプが故障したが、報告期限を遵守するため急遽測定条件を変更して（ポンプ2台によるグラジエント分析法→ポンプ1台のアイソクラティック法に変更）測定を続行した。
- ・ 鶏モモ肉を用いて添加回収試験を行い、回収率等に問題ないことを確認した（技能試験試料は鶏ムネ肉が使用されていた。）。
- ・ 鶏モモ肉には存在しないが、鶏ムネ肉に標準と重なる妨害ピークが存在したため、試料より検出した標準ピークに加算され、回収率換算で130%となった。
- ・ 後日、ポンプ修理後グラジエント分析法を用いて分析すると、鶏ムネ肉の妨害ピークは標準と分離できることが確認できた。

この事例をモデルとし、信頼性確保部門が一連の情報提供を受けた時に、結果の適否を成績発行前に判断できるかを検証した。

想定される対応

- ✓ 検量線の直線性は良好で問題を見いだせない。
- ✓ 試験品のクロマトグラムにある妨害ピークは、完全に標準のピークに重なり、判別不能。
- ✓ 測定条件の変更は、結果報告にストップをかけた可能性がある。しかし、「測定条件の変更は検査結果に影響しない」という報告を受けた場合、異論を差しはさむことは困難である。
- ✓ 鶏ムネ肉のブランク試料のクロマトグラムの提出を求めれば、妨害ピークの存在を指摘出来た可能性はある。しかし、妥当性評価を実施する場合においても、同じ肉種の筋肉であれば、部位までは問われないことを考えると、鶏ムネ肉のブランク試料の検討を提言することは困難と思われる。

考察

測定装置の一部機能が不良な場合、工夫により残された機能で検査を継続するかどうかの判断について、試験所としてどう考えるかが問われている。

と思われる。一律にどんな場合も測定条件の変更を認めないとするのは、通常の試験検査の場合、現実的な対応と言える。しかし、緊急事態の対応と考えると、何らかの結果（推定値）を示す能力は、検査担当部門には求められることがあると思われる。

ウ 測定の不確かさ評価に関する手順書

測定の不確かさ評価は新たに導入される概念で、手順書の作成に際し、解説的な内容を含めて記述した。しかし、本当に理解するためには、実際に不確かさ評価を実践することが必要である。そこで、測定データが揃っている「米のカドミウム試験法」について不確かさ評価を検討した。

まず、米のカドミウム試験法の SOP を参考に特性要因図を作成した（図 7）。

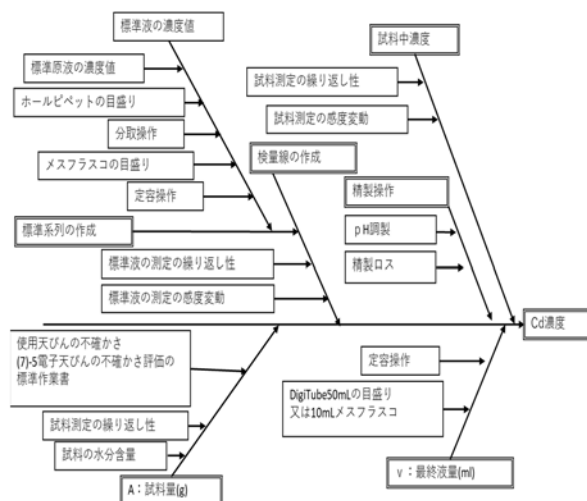


图 7 特性要因图

不確かさ評価の解説書¹¹⁾には、各要因の測定の不確かさを求める手法としてボトムアップ方式とトップダウン方式が示されている¹²⁾。

ボトムアップ方式では、特性要因図に示す各要因について繰返し実験等で確認し標準不確かさを求め合成するという煩雑な作業となる。

一方、トップダウン方式は、認証標準試料または技能試験試料を利用して不確かさを求めるため、ボトムアップ方式よりも大幅に労力を省くことが出来る。

米のカドミウム試験法の妥当性評価検討時には、技能試験用試料及び認証標準試料を管理試料として用いていたため、両者のデータによるトップダウン方式を用いた測定の不確かさ評価を試行した（表7、表8）。

表 7 認証標準試料を用いた妥当性評価の不確かさ評価

変動要因	変動	自由度	分散
試料間	0.000541094	4	0.000135274
試料内	0.000327346	5	0.000065469
計	0.00086844	9	
バラツキの不確かさ			0.002642052
かたよりの不確かさ			0.059886866
不確かさの合成			0.059945118

表 8 技能試験試料を用いた妥当性評価の不確かさ評価

変動要因	変動	自由度	分散
試料間	0.001543422	4	0.000385855
試料内	0.000507962	5	0.000101592
計	0.002051384	9	
バラツキの不確かさ			0.005331633
かたよりの不確かさ			0.022663066
不確かさの合成			0.023281772

不確かさ評価の計算は、下式のとおりである。

$$u_{\text{前処理}}^2 = u_{\text{バラツキ}}^2 + u_{\text{かたより}}^2$$

管理試料を繰返し測定し平均値と標準偏差を求め、平均値と認証値（付与値）との差を求め「かたより」の不確かさを、標準偏差より「バラツキ」の不確かさを算出し両者を合成した。

ガイドラインでは、管理用試料として認証標準試料が推奨されているが、今回の不確かさ評価では、認証標準試料を用いた値が大きくなった。

これは、妥当性評価で湿重量当りの測定値を求め
る一方、認証標準試料の認証値が乾燥重量当たりで
示されていたため¹³⁾、水分含量を測定し、湿重量当
りのカドミウム濃度に補正して比較する必要が生
じた。したがって、認証標準物質の不確かさ評価
は、カドミウム濃度測定の不確かさと水分含量測定
の不確かさが合成されたものとなり、不確かさ評価
の数値を大きくしたと思われる。

次いで、ボトムアップ方式による不確かさ評価を試行した（表 9）。

表 9 バジェットシートの一部

記号	不確かさ要因	標準不確かさ	感度係数	標準不確かさ
$u(x_0)$	検量線	0.002153	10mL÷2	0.01076
x_0	逆推定			
$u_b(S)$	天びん校正標準	0.0000049		
$u_r(S)$	天びん目盛	0.01	無視	
$u_d(S)$	はかり取り表示	0.0000040		
$u(S)$	はかり取り試料	0.0000064	0.21581	省略
$u_{CB}(Cd)$	Cd 定量			0.01076

令和 2 年度の技能試験参加時の検討時の資料の提供を受け、使用機器（電子天秤、測定装置等）・器具（ガラス体積計等）・試薬（標準原液等）の校正状況のうち、情報が入手できないものについては、推定値¹⁴⁾を用いた。

標準液を希釈する不確かさは、ガラス製体積計の JIS の許容差から求める目盛線、水の体膨張係数から求める実験室の温度変化及び繰返しの不確かさを合成するのが一般的だが¹⁵⁾、「不確かさの見積もりに関するガイド（原子吸光・炎光光度分析）」¹⁶⁾では、「採取試料ごとの測定不確かさに含める」としており、全体の検査の流れを見極める必要があった。

また、一般に合成された不確かさに大きく寄与しない場合は詳細に評価する必要がないとされているが、どの要因の寄与率が小さいかは、実際に計算して確認する必要があった。

ボトムアップ方式とトップダウン方式の結果を基に不確かさ評価の手法について、検査担当部門と信頼性確保部門共同で事例検討会（2021.1.29 13:00～15:00、9 名参加）を実施した。この検討会において、測定の不確かさ評価を実施するには、まず妥当性評価をする必要があり、トレーサビリティが確保された標準品・器具・機械を整備する必要があることが理解された。

また、実試料測定時の不確かさ評価に妥当性評価の結果を用いる場合の注意点として、妥当性評価に用いた器具・機器の変更、その他結果に影響を及ぼ

す要因について検証することが挙げられる。

そして、職員は、通常 3 年～5 年で異動対象となるため、ヒトによる不確かさ要因を排除するためには、些細なことでも研修内容に盛り込み、検査担当部門の共通認識を形成するとともに、その記録を残していく重要性が認識された。

測定の不確かさ評価は、技能試験・内部品質管理の具体的な方法に大きな示唆を与えるため、今後も共同で実施していくことを確認した。

(4) 改正案等の周知

改正案及び二次文書の作成後にその周知を行った。

いくつかの課題が浮上したため、翌年度以降継続して取り組む予定である。

- ・ 新型コロナウイルスの影響で、多数での会議の開催が困難になり、GLP 委員会は書面開催となった。
- ・ GLP 委員会（書面開催で業務管理要領の改正予定について報告 2020.7.22）
- ・ 改正案の方向性について所長への説明（2020.9.9 10:00～10:45）
- ・ 信頼性確保部門の業務を担う管理課（疫学情報担当）職員へ改正案の説明（2020.9.10 10:00～12:00）
- ・ 関係職員へ業務管理要領改正案について説明会を開催（2020.10.14 15:30～16:30）
- ・ 個別または内部監査時等に付随する形で部門別に意見聴取（2020.10.22 13:00～15:00, 2020.11.18 14:00～15:00, 2020.11.2 13:30～15:00）
- ・ GLP 委員会での審議・承認（未定）

4 考察

京都市要綱の改正には、検体の受け入れに関する手順書、技能試験・内部品質管理に関する手順書及び測定の不確かさ評価に関する手順書等二次文書を含めてパッケージとして作成する必要があった。

ガイドラインでは、「試験所はその活動に応じた取り組みを自ら決定するとともに実施し、管理し、見直し、必要に応じて改善する能力を持つ」ことが強調されており、その中心になるのが信頼性確保部門である。その信

信頼性確保部門が核となり進める内部品質管理は、実際の運用に当たって様々な課題が浮上した。

例えば、食中毒菌の有無を問う微生物試験において、いくら検査手法が「一つの食中毒菌」も見逃さない優れたものであっても、採取した試料の中に食中毒菌を捉える確率が妥当なものと表明出来なければならない。そのことを内部品質管理で確認するためには、信頼性確保部門の職員が食材を希釈した容量と食中毒菌の捕捉出来る確率の関係を把握し、的確に必要な情報を入手し確認する必要がある。

また、定量値が基準値近辺の場合、確認のための再検査を繰り返し、更に別の試験法で同等の数値となるかを確認するというのが通例であったが、不確かさ評価を付記した定量値ではこれらの確認作業は必須条件とはならないと考える。

ただし、この場合信頼性確保部門は、不確かさ評価をした時と今回の定量値との同等性を内部品質管理で保証しなければならない。分析手法の原理・限界を理解しなければ内部品質管理で何をチェックすべきかもわからないのである。

また、採用する試験法は、妥当性評価の実施が必要条件となり、検査担当者には相当量の負担を強いることになる。その結果、手慣れた手法に固辞するあまり、試験法開発等へのチャレンジ精神を失うことが懸念されるが、このことは研究所本来の能力の衰退につながる。

内部監査の本来の目的は、聖域を設けずあらゆることを見直し、変える勇気を持つことにありと理解すべきである。

「業務管理要領案開発」によると、内部監査員（信頼性確保部門職員）の養成に国がバックアップすることが提言されているが、残念ながら信頼性確保部門が深い知識と経験を求められる職場であるという認識は広く共有されておらず、検査経験のない者が担当しなければならない場合も想定しなければならない。信頼性確保部門に課せられた役割を担うための最低限のことは、検査担当者に万全の状態で業務に臨める環境を整えることと思われる。そのための一つの方法として、試験に用いる機械器具の保守点検管理に信頼性確保部門が関与し、常に検

査成績書と機械器具の正常稼働を確認できる体制を整えることが考えられる。

5 文献

- 1) 衛食第 117 号 平成 9 年 4 月 1 日 「食品衛生検査施設等における検査等の業務の管理の実施について」
- 2) 渡辺 卓穂他 厚生労働科学研究費補助金（食品の安全確保推進研究事業）平成 29 年度研究・分担報告書「ISO/IEC 17025 認定取得に向けた試験所の検討に関する研究」201723024A0005
- 3) 渡辺 卓穂他 厚生労働科学研究費補助金（食品の安全確保推進研究事業）平成 30 年度研究・分担報告書「国際整合性を踏まえた業務管理要領案の開発に関する研究」20182310A0004
- 4) 渡邊 敬浩他 厚生労働科学研究費補助金（食品の安全確保推進研究事業）平成元年度研究・分担報告書「国際食品規格策定プロセスを踏まえた食品衛生規制の国際化戦略に関する研究」201924024A
- 5) JIS Q 17025 : 2018 試験所及び校正機関の能力に関する一般要求事項
- 6) 渡辺 卓穂 食の安全を確保するための外部精度管理 p12-18, Vol. 67 No. 1 (2013) 日本海水学会誌
- 7) 食安発 0729 第 4 号 平成 27 年 7 月 29 日「食品、添加物等の規格基準に定めるサルモネラ属菌及び黄色ブドウ球菌の試験法の改正について」
- 8) 日本試験機工業会 温度試験槽及び温湿度試験槽の特性評価と校正に関するガイドライン (JTM K 12:2015)
- 9) 坊ノ下 雅夫 高速液体クロマトグラフ検出器 p23-32, Vol. 32, No. 1 (2011) CHROMATOGRAPHY
- 10) 釜谷 美則 吸光光度法 p158-162, No. 4 (2008) ぶんせき
- 11) 日本分析学会監訳 分析値の不確かさ 求め方と評価 丸善出版 ISBN978-4-621-08707-7
- 12) James N. Miller, Jane C. Miller データのとり方とまとめ方 共立出版 ISBN4-320-04360-X C3043
- 13) S. Miyashita et al. Development of a Certified

Reference Material (NMIJ CRM 7531-a) for the
Determination of Trace Cadmium and Other
Elements in Brown Rice Flour p.1171-1177,
Vol.28(2012) ANALYTICAL SCIENCES

- 14) 久保田 正明他 市販金属標準液の濃度の正確さ
T81-T84, Vol. 34(1985) BUNSEKI KAGAKU
- 15) 谷口 秀樹 金属の不確かさに関する研究 p34-38, 大
分県産業科学技術センター 研究報告 (平成 26 年
度)
- 16) 独立行政法人製品評価技術基盤機構認定センター
JNG320S0603-01 不確かさの見積もりに関するガイ
ド (原子吸光・蛍光光度分析)

沢の池周辺土壌における酸性雨の影響に関する一考察

A Study on the Effect of Acid Rain on the Soil Around Sawaike

橋本貴弘 松原三佳 小谷野貴文 川口かおる 大見武夫

Takahiro HASHIMOTO, Mika MATUBARA, Takahumi KOYANO, Kaoru KAWAGUCHI, Takeo OOMI

今回の調査ではチャートが存在する層位よりも上部に存在する土壌の酸性雨による影響について調査を行うため、沢の池周辺の植生が正常な地点及び枯れの観察される地点の土壌を採取し、土壌 pH(H₂O)、交換性カルシウム、交換性マグネシウム、交換性アルミニウムの測定を行ったところ、いくつかの知見が得られたので報告する。

1 目的

平成 15 年度から平成 29 年度までの沢の池酸性雨モニタリング調査結果から、夏期に表層 pH が上昇する傾向が見られ、降雨量の多い夏期は酸性雨が池周辺の地質であるチャート（堆積岩の一種）からアルカリ分を溶出させ、池水の pH を上昇させていることが示唆された¹⁾。

前報²⁾では、沢の池のチャートを用いて、模擬酸性雨（pH4）によるカラム溶出試験を実施した。現時点では、沢の池のチャートは交換性カルシウムイオンや交換性マグネシウムイオン等の塩基性陽イオンと交換性アルミニウムが溶出し酸中和が行われているが、さらに pH4 の酸性雨が長く降り続いた場合にはやがてこれらの塩基性陽イオンが枯渇し、生物に有害なアルミニウムが主となり酸中和が働くことが分かった。

2 調査方法

(1) 土壌試料の採取地点

沢の池周辺土壌の種類は図 1 に示すようにに乾性褐色森林土壌であり、植生はアカマツ、コナラ、ツツジ等が主である。また、池の北部にはスギの植林地が存在する。

図 1 土壌概況図



B-d 乾性褐色森林土壌	B 褐色森林土壌
GL 灰色低地土壌	Y 黄色土壌

図2 土壌試料の採取地点

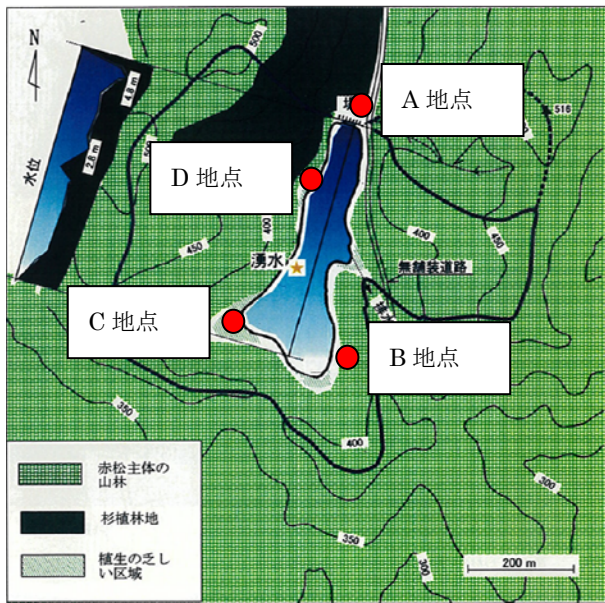


図2に示すように、地点Aは、植生が正常で池より約24m離れた位置にある。地点Bは一部のアカマツに枯れが確認され、池からは約3m離れた位置にある。地点C、Dはいずれも広範囲でアカマツの枯れが観察され(図3)、池から地点C、Dまでの距離はそれぞれ11m、6mであった。

各地点の表層には落ち葉、枝、実やこれらが分解した堆積層であるAo層があり、その下には腐植に富む暗色のA層、さらにその下には腐植に乏しく明るい色のB層、そして土の材料となった鉱物であるチャートの層であるC層が存在する。A層はB層に比べて炭素含有率が高く、通気性、透水性も良好で、土壌生物・微生物の活動が活発で、根も多く存在する³⁾。今回はA層を調査対象とした。各地点のA層の厚さは、A地点10cm、B地点4cm、C地点3cm、D地点2cmだった。

また、酸性雨は林冠(木の上で枝や木の集まった部分)や木の幹を伝わり落ちていく中で、樹木の種類により酸性度が変化して⁴⁾、幹の下の上層に入るため、今回はこのような

樹木の影響を除くため、樹木より2m以上離れた場所で土壌採取を行った。

(2) 各地点の土壌分析

採取した土壌は根や葉を取り除き、60℃で48時間乾燥させた後、2mmのふるいを通し、供試土壌とし、常法^{5) 6) 7)}により土壌pH(H₂O)、交換性陽イオン、交換性アルミニウムについて測定を行った。土壌pH(H₂O)の測定は、50ml デジチューブに供試土壌10gを取り、蒸留水25mlを加え、1時間振とう機で振り混ぜた後、pHメーターで測定した。交換性陽イオンの測定は、50ml デジチューブに供試土壌2gを取り、1N 酢酸アンモニウム液40mlを加え、1時間振とう機で振り混ぜた後、アドバンテック製ろ紙(No.6)でろ過した。ろ液を日立原子吸光光度計Z-2010を用いてフレームでカルシウム、マグネシウムを定量した。交換性アルミニウムの測定は、50ml デジチューブに供試土壌10gを取り、1N KCl 25mlを加え、1時間振とう機で振り混ぜた後、ろ液をアドバンテック製ろ紙(No.6)でろ過した。ろ液を日立原子吸光光度計Z-2010を用いてフレームレスで定量した。

図3 地点Dの風景



3 結果

(1) 土壌 pH (H₂O)

各地点の土壌 pH(H₂O)は、表1に示すように、4.362～4.662(平均4.518)だった。

(2) 交換性陽イオン

交換性カルシウムイオンは、表1に示すように、1.123～5.668(平均2.961)だった。交換性マグネシウムイオンは、0.802～1.718(平均1.340)だった。

(3) 交換性アルミニウム

交換性アルミニウムは、表1に示すように、0.090～0.645(平均0.413)だった。

4 考察

(1) 土壌 pH (H₂O)

表1で示すように、各地点とも(4.362～4.662)農業土壌(土壌条件の維持すべき目標値⁸⁾: pH5.0～6.5)と比べ低い値であり、全地点で酸性化が進んでいることが分かった。

(2) 交換性 (Ca+Mg)

環境省では、ポットによる人工酸性雨添加実験により、陽イオンの溶出傾向を交換性(Ca+Mg)の量から判断して3つのグループに分類している^{9) 10)}。交換性カルシウムイオンと交換性マグネシウムの和が5.0(meq/100g)以上の場合塩基緩衝型、2.5以上5.0未満の場合は塩基/アルミニウム緩衝型、2.5未満の場合はアルミニウム緩衝型

	(meq/100g)	(meq/100g)	(meq/100g)	(meq/100g)	(meq/100g)	(meq/100g)
	pH(H ₂ O)	交換性Ca	交換性Mg	交換性Al	交換性(Ca+Mg)	交換性Ca/Al比
A地点	4.362	5.668	1.718	0.090	7.386	63.281
B地点	4.399	2.829	1.452	0.645	4.282	4.386
C地点	4.662	2.223	1.387	0.326	3.610	6.810
D地点	4.647	1.123	0.802	0.591	1.925	1.901
平均	4.518	2.961	1.340	0.413	4.301	19.094

表1 各地点の土壌分析結果

	Ca	Mg	Al	Ca+Mg	Ca/Al	池からの距離	A層	植生
Ca	1							
Mg	0.874	1						
Al	-0.783	-0.659	1					
Ca+Mg	0.997	0.911	-0.776	1				
Ca/Al	0.945	0.694	-0.867	0.919	1			
池からの距離	0.843	0.624	-0.974	0.821	0.947	1		
A層	0.989	0.792	-0.798	0.973	0.979	0.880	1	
植生	0.949	0.783	-0.562	0.938	0.869	0.676	0.945	1

表2 各地点の測定値間の相関係数

と分類される。塩基緩衝型は交換性カルシウムやマグネシウムなどの交換性塩基が豊富にある状態でこれらのイオンが溶出し酸中和に働いている。塩基／アルミニウム緩衝型は減少した交換性塩基と交換性アルミニウムが共に溶出し酸中和に働いている。アルミニウム緩衝型は交換性塩基が枯渇し、交換性アルミニウムのみ溶出し酸中和に働いている。

表1に示すように、植生が正常のA地点は塩基緩衝型であったが、枯れの観察されたB、C地点は塩基／アルミニウム緩衝型、最も枯れの拡大が観察されたD地点ではアルミニウム緩衝型であった。また、表2では、A層は層の厚み(cm)、植生は、正常を3ポイント、一部の枯れを2ポイント、枯れの拡大を1ポイントとして評価を行った。表2で示すように、交換性(Ca+Mg)と植生は、高い相関関係($r=0.938$, $p<0.001$)を示し、交換性(Ca+Mg)と交換性アルミニウムは、高い負の相関関係($r=-0.776$, $p<0.001$)を示すことより、植生の枯れが観察される地点では、植生の成長に必要なカルシウムやマグネシウムが減少し、成長に有害であるアルミニウムが増加し、枯れを拡大していることが示唆された。

(3) 交換性Ca/Al比

樹木衰退との関係が深い酸性環境指標として、土壌のCa/Al比(モル比)がある。土壌溶液中のCa/Al比(モル比)が1を下回ると樹木が害を受ける確率は50%になる^{11) 12)}。表1で示すように、地点Aが63.281で最も高かったのに対し、地点Dは最も低い1.901で1との差は僅少であった。表2では、Ca/Al比と池からの距離、A層がともに高い相関関係(0.947 , $p<0.001$)、(0.979 , $p<0.001$)を示した。また、交換性カルシウムイオンとA層、池からの距

離も高い相関関係(0.989 , $p<0.001$)、(0.843 , $p<0.001$)を示すことより、カルシウムイオンを豊富に含む落ち葉などが池の波にさらわれない池より離れた場所の地面に多く堆積され、微生物の分解により腐植となり、層の厚いA層が形成され、安定的にカルシウムイオンを供給して、植生が正常に保たれていることが示唆された。

4 まとめ

植生の衰退となる原因には、酸性雨による土壌の酸性化、土壌中の有害金属の溶出量の増加、土壌中の塩基養分の溶脱減少、大気汚染ガスや農薬の暴露、雨量の減少、高温乾燥、その他の異常気象など¹³⁾の多くの可能性が考えられる。今回は、植生の枯れを酸性雨の影響について焦点を絞り調査を行ってきた。

土壌pH(H₂O)の結果より、沢の池周辺土壌は、全般的に酸性化が進んでいることが分かった。しかし、交換性(Ca+Mg)の結果より、池より離れた大勢の地点で枯れが観察されないのは、これらの地点のA層では、酸性雨の酸中和に交換性アルミニウムではなく、交換性カルシウムやマグネシウムが主として溶出して働いているため、植生が正常であることが推察できた。また、交換性Ca/Al比の結果から、池の波により落ち葉などが流される地点では、A層が発達せず、交換性カルシウム、マグネシウムが少ないため、酸性雨の酸中和に、交換性アルミニウムが溶出し働くため、植生の成長を阻害しているのではないかと示唆された。

過去の報告^{1) 2)}より、降雨量の多い夏期は酸性雨が池周辺の地質であるチャートからカルシウムイオン、マグネシウムイオン、アルミニウムを溶出させ池水のpHを上昇させていることが示唆されたが、今回の調査の結

果から、豊富なミネラル分を含んだ落ち葉などが蓄積し、分解され腐植が形成された層の厚いA層からは、カルシウムイオン、マグネシウムイオンなどの交換性塩基がチャートと同様に夏期の多雨により、池に流入し、池水のpHを上昇させているのではないかと示唆された。なお、池水の分析結果では、アルミニウムは高濃度で検出されておらず、夏期の多雨により池に流入する水は、カルシウム、マグネシウムが主でアルミニウムの流入は少ないと推察された。

5 文献

- 1) 橋本貴弘, 高倉尚江, 松原三佳, 三林裕, 照岡正樹: 酸性雨モニタリング(陸水)調査について, 京都市衛生環境研究所年報, 85, 91-96(2019)
- 2) 橋本貴弘, 高倉尚江, 松原三佳, 小谷野貴文, 大見武夫: 酸性雨の沢の池表層地質であるチャートへの影響に関する一考察, 京都市衛生環境研究所年報, 86, 126-130(2020)
- 3) 土壌断面の層位区分, 九州の森と林業(森林総合研究所九州支所), 第39号(1997)
- 4) 森林土壌の酸性化と樹幹流との関係, 九州の森と林業(森林総合研究所九州支所), 第35号(1996)
- 5) 土壌養分分析法委員会編: “土壌養分分析法”, (1991), (養賢堂)
- 6) 土壌標準分析・測定法委員会編: “土壌標準分析・測定法”, (1990), (博友社)
- 7) 布施泰朗, 管森岳弥, 山田武, 山田悦: 京都盆地の山間部における土壌緩衝能の経年変化(1992~2004), 分析化学, 58(4), 333-339(2009)
- 8) 京都府農林水産部農産流通課: 土壌・作物体・水質等の分析手引き, 14-125(2001)
- 9) 環境庁水質保全局土壌農薬課(監修(1990) 酸性雨 土壌・植生への影響, 公害研究対策センター
- 10) 津野洋, 宗宮功, 小島岳晴, 柳瀬仁志: 琵琶湖流域土壌における酸性雨に対する溶出水の水質特性に関する研究, 環境科学会誌 10(3), 221-232(1997)
- 11) Cronan, C. S. and Grigal, D. F. (1995) Calcium /Aluminum ratios as indicators of stress in forest ecosystems. J. Environ. Qual., 24, 209-226
- 12) 谷川東子, 高橋正通, 野口享太郎, 重永英年, 長倉淳子, 酒井寿夫, 石塚和裕, 赤間亮夫: 奥日光の森林衰退地域の樹木生葉と土壌の養分特性, 環境科学会誌, 22(6), 401-414(2009)
- 13) 藤井久雄, 樹木衰退の原因は?, 森林科学, 11, 50-57(1994)