

固相抽出

小池 裕也

1 はじめに

分析化学の進歩は著しく、実験機器の開発や測定操作の簡便化・全自動化が行われている。しかし、実際に様々な試料を分析する場合、何らかの試料調製や前処理操作が必要となる。例えば、環境試料中の重金属類の分離および濃縮には、溶媒抽出法や固相抽出法が広く用いられているが、分析する目的成分や分離除去したいマトリックスにより適切な方法を選ぶ必要がある¹⁾。固相抽出剤による重金属類の濃縮は原子スペクトル分光法などと組み合わせて、環境水や土壌等の環境試料の分析に多岐にわたって応用されている²⁾。古庄ら²⁾は、無機分析のための固相抽出法について、分離剤の種類や特徴を基礎事項としてまとめ、分析事例を報告している。

市販の無機分析用固相抽出剤には、無極性（逆相）型、イオン交換型、キレート型、高選択性型の分離モードがあり、その特徴と用途が整理されている²⁾³⁾。すべての固相抽出剤は網羅できていない可能性はあるが、代表的なものとして陰イオン及び陽イオン交換樹脂をあわせてイオン交換型が18種類、キレート型が8種類と多くのメーカーから様々なタイプの固相抽出剤が市販されている。固相抽出剤にはカートリッジ型とディスク型のタイプがあり、ディスク型は迅速・簡便かつ高流速・高容量、そして目詰まりが少ないことが特長で、環境試料等の短時間で大量試料の処理が可能となる。重金属類を多元素同時に濃縮する場合には、イミノ二酢酸系の官能基を持つ固相抽出剤が有効である²⁾。ディスク型の固相抽出剤は、粒子がカートリッジ型と比較して小さく、高い抽出率と短い処理時間での処理を実現できる。

イミノ二酢酸キレート樹脂ディスクを用いて海水や飲料水中のウランを20分で、200倍濃縮できたとの報告もある⁴⁾。また、塩中の微量金属元素（12元素）の予備濃縮に使用した報告もある⁵⁾。有機化合物の機器分析における前処理法として、試料マトリックスからの目的物質の濃縮法としても利用されており、イオン交換ディスクやキレートディスク等の環境試料等の適用例があ

る²⁾。陽イオン交換ディスクを用いて鉄マトリックス等を固相抽出分離する高純度鉄および鋼中の微量元素定量法の検討も行われている⁶⁾。さらに数種類の固相抽出ディスクを組み合わせることで、吸着特性を利用した化学形態分析も可能である。固相抽出ディスクを用いた水中ヒ素の形態別迅速濃縮法⁷⁾⁸⁾や陽イオン交換ディスクを用いた底質中微量元素の化学形態別分析も報告されている⁹⁾。

固相抽出法は化学物質の分離・精製の有効な手段であり、ごく微量な試料の前処理から工業的な規模の分離にいたるまで、幅広く活用されている¹⁰⁾。さらに医薬品分析、バイオ・生化学、食品分析、上水・環境水分析、無機分析、放射性核種分析など、広範囲な分野で簡便で迅速性に優れた抽出法として、その有用性が示されている¹⁰⁾。固相抽出は分析化学を支える技術として重要であると考えられる。ここでは、固相抽出の原理と分析化学への応用について解説する。

2 固相抽出法の基礎¹⁰⁾

固相抽出法は、1970年代後半に高速液体クロマトグラフィーの理論展開の過程で考案された分析前処理法である。分析試料中の目的成分の抽出・精製を行う方法であり、その概念図を図1に示す。固相抽出の手法として目的成分を固相に保持させた後に、マトリックス成分を洗浄のステップで分離・精製しながら目的成分を回収

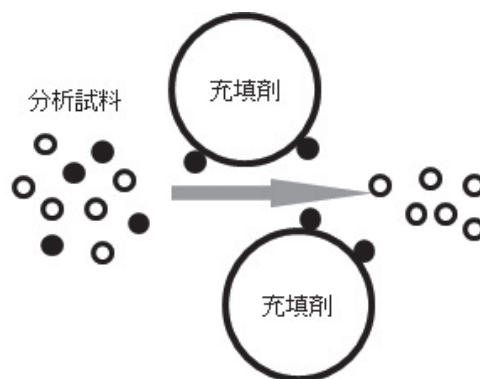


図1 固相抽出の概念図

●：充填剤と親和性のある物質 A；○充填剤と親和性のない物質 B

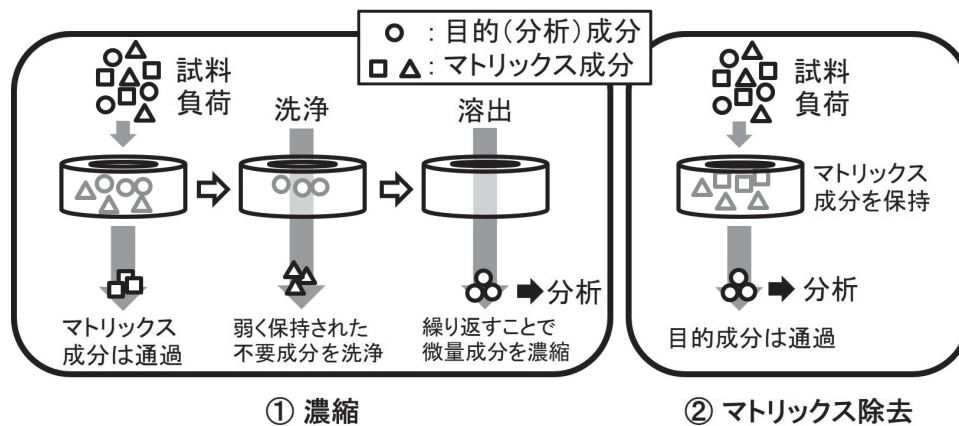


図2 固相抽出による濃縮とマトリックス除去の二つの活用方法

する手法（濃縮）が一般的である。この場合、優れたクリーンアップ効果も期待できる。一方で、マトリックス成分を固相に保持し、目的成分を通過させ分析に供する手法も用いられている（マトリックス除去）。固相に目的成分を保持する方法では、結果的に対象物質を濃縮できることもポイントである。二つの手法の概略図を図2に示す。固相抽出法の利点は、固相として使用される充填剤の種類を変えることで、様々な種類の試料の前処理を行うことができることである。

固相抽出剤に使用される充填剤は、基本的に液体クロマトグラフィーに使用されるカラムと同じ素材が用いられ、種類も豊富である。試料と溶媒の性質に合わせて充填剤が選択可能であり、その種類は吸着剤型（活性炭、グラファイトカーボン）、極性（順相）型（シリカゲル、アルミナ、フロロジル）、無極性（逆相）型（オクタデシル、オクチル、シクロヘキシル、フェニル）、イオン交換型（陽イオン交換、陰イオン交換）、混合型と様々である。複雑な組成を有する試料であるほど選択性が高い固相を選ぶことが重要であり、充填剤の選択性を調査しておく必要がある。固相を使用する際の注意すべき項目として、保持容量（イオン交換容量）、固相充填量、吸着特性と固相分離剤の特性（pH依存性、目的物質との適合性など）、通液速度と通液法（加圧方式、吸引方式、遠心分離方式、自然落下方式）がある。さらに、試料処理量と固相ロット間のばらつきの関係も考慮する必要がある。

適切な固相が選択できたところで、固相抽出は①コンディショニング、②試料の負荷、③洗浄、④溶出の四つの手順で行われる（図2①濃縮を参照）。一般的な固相抽出法の手順を以下に示す。コンディショニングでは、使用をする固相を各種溶媒との相互作用により活性化（平衡化）させる。固相抽出剤は、通常の場合は乾燥状態にあり、適切な溶媒により試料を負荷した際の吸着を最適化するためのコンディショニングである。試料は、抽出および湿式分解等により溶液化した後に、固相に通液す

る。この際には、自然落下、加圧、吸引といった方法を用いる。固相抽出では、目的成分を選択的に保持することが理想であるが、類似した構造、性質をもった夾雑成分が保持されることがほとんどである。その場合、洗浄工程で各種成分の保持力等の違いを利用して、適切な洗浄溶媒により夾雑成分を固相から洗い出す。最後に目的成分を固相から溶離可能な溶媒を用いて抽出する。この際に、通液量より少ない溶媒で抽出することで目的成分が濃縮される。また、前述のとおりマトリックス成分を保持させ、目的成分を通過させる方法もあるが、この場合は固相に保持させる成分がマトリックスとなるため、通過した目的成分を単離することが目的となる。

固相抽出を行う場合、各手順で分離目的成分、固相およびマトリックスのそれぞれが相互作用を起し、保持や溶出に大きく関与することを理解する必要がある。固相により溶媒が異なるため実際に操作を行う際には、「固相抽出ガイドブック」¹⁰⁾が参考になる。固相抽出は、分析対象物入りの溶液が固相を通過する際に、溶質がそれぞれの親和性に応じて保持したりそのまま流れ出たりすることを利用するもので、複雑な組成を持つ試料の分析法として極めて優れた方法であると考えられる。今後さらに様々な分野で、新しい発想での活用が期待される。

3 分析化学における固相抽出法の活用

3.1 環境分析と固相抽出

固相抽出ディスクは、組み合わせにより溶液化した環境試料について濃縮および分離から測定までを迅速に行うことができる。さらに、試料中の目的物質を固相抽出ディスクに単離、濃縮してラミネートフィルムで加工して保持することができるため、試料の取り扱いおよび保管が簡便であることも利点である。固相抽出ディスクを使用した濃縮および溶離による溶液分析と濃縮のみの直接分析の操作手順を図3³⁾に示す。試料の通液から分析まで固相の形状が保てるため、蛍光X線分析により固相を直接分析できる⁷⁾¹¹⁾。イミノ二酢酸キレート樹脂

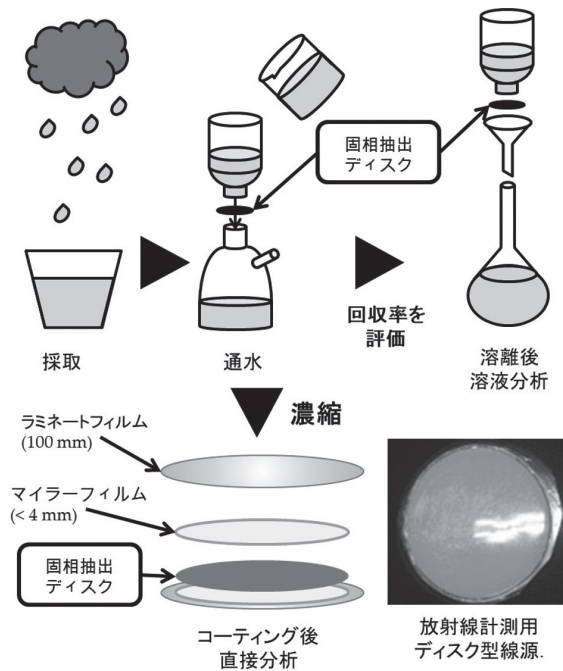


図3 一般的な固相抽出ディスクによる濃縮操作³⁾

ディスク上に濃縮した環境水中重金属の蛍光 X 線分析による直接多元素同時定量が行われている¹¹⁾。また、同様に濃縮したディスクを切り抜き、固体直接原子吸光度分析した報告もある¹²⁾。固相抽出ディスクの直接分析は、溶離操作を省略できることから分析の簡易化が可能となる。

環境分析を実施する場合、採取した試料を測定装置のある場所まで運搬する必要があるため、迅速な野外分析には適していない。可搬型の測定機器を用いることにより、採取した試料をその場で測定でき、従来の方法よりも短時間で測定が可能となる。通常の濃縮手法¹³⁾の応用では、河川水は 100 L の試料水を採取して持ち帰り、研究室で様々な処理を行い分析に供することになる。この方法では試料水の運搬に時間と労力が大きく、迅速な測定には向いていない。しかし、固相抽出ディスクを適用することで、現地で環境試料に対して、前処理から分析までを実施できると考えている。萩原ら¹⁴⁾は、ディスク固相抽出とハンドヘルド蛍光 X 線分析を組み合わせ、飲料水中の Mn, Fe, Cu, Zn, Cd, Hg, Pb を試料採取現場で定量する方法を開発した。酢酸緩衝溶液で pH 5 に調整した試料水 50 mL を通水した直径 13 mm のイミノ二酢酸キレートディスクを、ハンドヘルド蛍光 X 線分析に供することで水中の重金属を定量している。この方法は環境や人体に影響を与える試薬や電源を用いないことから、水中重金属のオンサイトスクリーニングに使用することができると報告している。迅速・簡便、高容量という固相抽出ディスクの利点を活かした、大量の試料を研究室等に持ち帰る必要がない、“パッシブサンプリング”も提案されている。パッシブ

サンプリングは、環境媒体中に固相抽出剤を一定期間放置し、分析対象物質の固相抽出剤への拡散現象を利用して、対象物質を吸着する方法である¹⁵⁾。

3・2 機器分析と固相抽出

機器分析では、複雑な組成の試料や超微量成分を扱う機会が多い。廃棄物からの溶出液や廃水には、その発生過程により多量のアルカリ・アルカリ土類金属や塩化物イオン、硫酸イオンなどのマトリックス成分が含まれており、さらにその濃度も異なることが想定される。これらのマトリックスが試料溶液中に高濃度に共存すると、機器分析においてさまざまな干渉の原因となる。したがって、目的元素を濃縮する際には、同時にマトリックスの分離が必要となる。海水中のマトリックス成分を迅速・簡便に除去できるキレート樹脂による固相抽出法が知られている^{16)~20)}。

固相抽出と機器分析を組み合わせた例として、固相抽出法と全反射蛍光 X 線分析 (TXRF) の分析例が報告されている^{20)~22)}。松田ら²²⁾は、都市ごみ焼却灰の溶出液 (環境庁告示第 13 号試験液) を固相抽出法で前処理し、その溶離液中の Pb を TXRF で定量する方法を検討している (図 4)。液体試料の乾燥痕を測定する TXRF 法では、試料中の高濃度のマトリックス成分により、スペクトルのバックグラウンドが高くなる。そこで、高濃度マトリックス成分を除去できるジーエルサイエンス社の InertSep mini ME-2²³⁾ を使用している。同一のゲルを使用した MetaSep ME-2 を用いた研究として、海水中の Ca^{2+} や Mg^{2+} だけでなく Cl^- や Br^- などの陰イオンを分離後、希土類元素を分析した例も報告されている¹⁶⁾。松田ら²²⁾の手法では、InertSep ME-2 (カラムサイズ 280 mg) に、2 M HNO_3 5 mL、純水 20 mL、pH 5 の

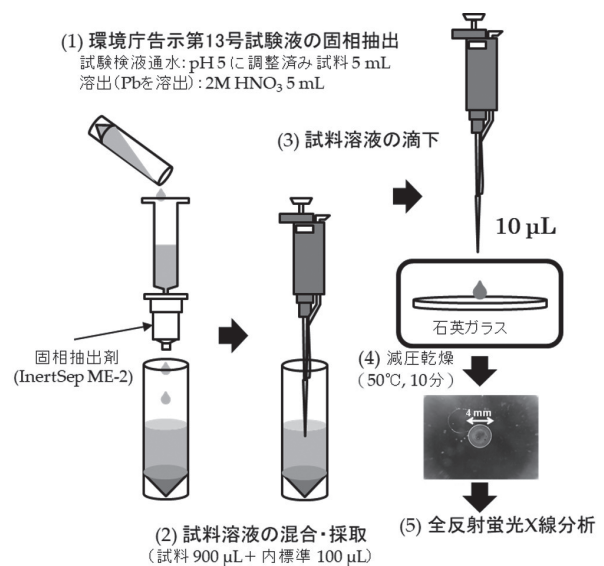


図4 環境庁告示第 13 号試験液の固相抽出/全反射蛍光 X 線分析の試料調製手順

0.1 M 酢酸アンモニウム溶液を順に通液しコンディショニングし、pH 5 に調整した環境庁告示第 13 号試験液 5 mL を通液し、Pb をカラム吸着させる。カラムに残存している Ca^{2+} 等のマトリックスイオンは純水 5 mL を通液して除去した後に、カラムに吸着された Pb を 2 M HNO_3 5 mL を通液し溶離することで分析試料を得ている。環境庁告示第 13 号試験液をキレート樹脂で固相抽出処理することで、測定試料となる溶液の乾燥痕上への塩の析出が抑えられ、K, Ca, Cl および Br などのマトリックス成分の X 線強度が 1/100 に減少し、Pb の定量精度と感度の向上が確認されている²²⁾。

3・3 放射化学と固相抽出

放射性核種には短寿命の核種もあり短時間での測定が必要であることから、迅速かつ簡便な濃縮分離技術と放射線計測の組み合わせが求められている。そこで、固相抽出剤の中でも、迅速・簡便に精度良く環境中の放射性核種を分離濃縮できる固相抽出ディスクが使用されている³⁾。雨水を通水したディスクのガンマ線スペクトルの測定により、短寿命の ^{212}Pb , ^{214}Pb , ^{212}Bi , ^{214}Bi を検出・定量できており、試料採取から放射能測定開始までの時間が最短で 30 分程度で済むことを利点としている²⁴⁾。東京電力福島第一原子力発電所事故由来の放射性セシウム (^{137}Cs : $T_{1/2}=30.2$ y, ^{134}Cs : $T_{1/2}=2.06$ y) も分析対象の一つである。多摩川集水域において、放射性セシウムは定量下限付近の極低濃度へと推移しており、より低濃度な汚染状況の把握の必要性という観点から重要であり、分析を続けている²⁵⁾。固相抽出の役割は大きく、固相に分離濃縮できることは試料減容化とマトリックス除去の利点から放射化学の分野でも非常に有効である。分析に用いることができる固相として、セシウムを選択的吸着可能なプルシアンブルーやフェロシアン化銅を担

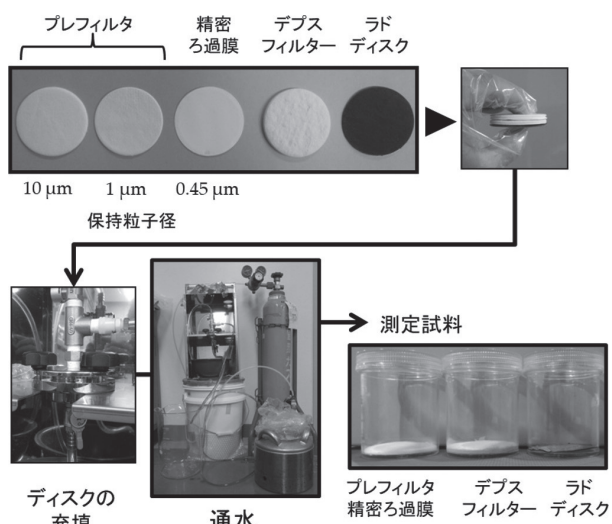


図 5 ラドディスクセシウムによるディスク型固相抽出法³⁾

持したフィルターカートリッジに関する研究があり、その有用性も示されている²⁶⁾²⁷⁾。放射性核種に注目して、開発された放射性核種専用固相抽出ディスク (CDS 社, EmporeTM Rad Disk) も市販されている。ラドディスクセシウムによるディスク型固相抽出法の流れを図 5³⁾ に示す。河川水中の溶存態放射性セシウムの分析には、蒸発濃縮法、リンモリブデン酸アンモニウム共沈法、プルシアンブルーフィルターカートリッジ法、固相ディスク法、イオン交換樹脂法といった予備濃縮技術が用いられており、固相ディスク法についても一定精度の分析結果が確保できることが報告されている²⁸⁾。

固相抽出法には、一つの試料から目的とする核種のみを分離するものが多い。溶出実験において一つの試料から複数の核種を分離・定量することが可能となれば、より詳細な鉱物からの溶出機構や放射性核種の存在形態を知ることができる²⁹⁾。そこで、複数の固相抽出剤を組み合わせた固相抽出により、鉱物試料から複数の核種を迅速かつ同時に分離する方法も提案されている²⁹⁾。放射性鉱物試料を王水で加熱しながら全溶させ、8 M 硝酸系にし、抽出クロマトグラフィーレジンを Eichrom Technologies 社の UTEVA[®] レジン, Sr レジンおよび DGA レジンを連結させたものに、5 mL の試料溶液を通液する。トリウム同位体およびウラン同位体が UTEVA[®] レジンに、鉛同位体が Sr レジンに、アクチニウム同位体が DGA レジンにそれぞれ抽出される。その後、8 M 硝酸で連結したレジンを洗浄することでラジウム同位体を回収する。連結したレジンを分解して、UTEVA[®] レジンに 5 M 塩酸と 0.02 M 硝酸を順に通液することでトリウム同位体とウラン同位体をそれぞれ溶離できる。Sr レジンに 0.05 M クエン酸アンモニウム、DGA レジンに 1 M 塩酸をそれぞれ通液することで抽出

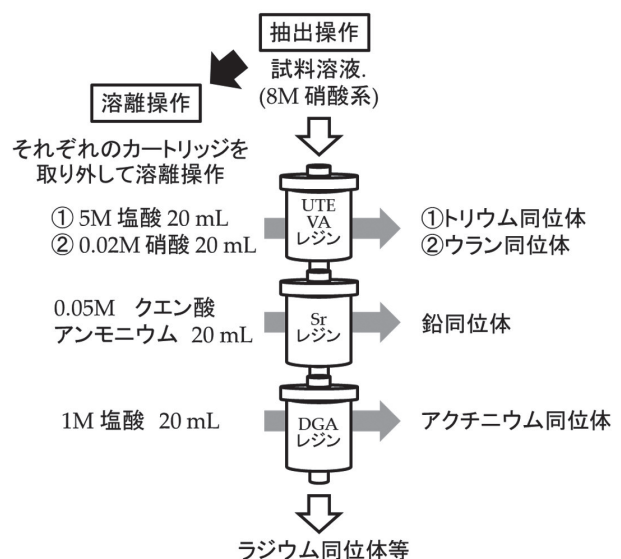


図 6 抽出クロマトグラフィーレジンを組み合わせた放射性核種の分離方法

した鉛同位体とアクチニウム同位体を溶離する。レジンをういて分離を行う場合、過塩素酸および硝酸を用いて溶液中に残留する樹脂を分解する。抽出クロマトグラフィーレジンをういた放射性核種の分離方法の概略図を図6に示す。以上の方法で放射性鉍物試料であるモナズ石 {monazite, リン酸塩鉍物 ((Y, Ca, Ce, U, Th) (Nb, Ta, Ti)₂O₆)} 中の放射性核種を分離・定量した分析例が報告されている。環境試料中の極微量な ⁹⁰Sr を放射線計測によって迅速かつ簡便に分析するために、Eichrom Technologies 社の抽出クロマトグラフィーレジンおよびCDS社のEmpore™イミノニ酢酸キレートディスクを用いた、放射性ストロンチウム分析用線源の作製に関する研究も進めている³⁰⁾。

4 おわりに

分析化学における分離・濃縮技術は、複数成分を含む混合物を分離し、それぞれの成分を正確に定量することが目的である。固相抽出の応用例として、メンブランフィルターへの固相抽出によるヒ素(Ⅲ)およびヒ素(Ⅴ)の目視分別分析法が報告されている³¹⁾。ヒ素(Ⅲ)錯体を捕集したフィルターに銅(Ⅱ)水溶液を接触させることで、銅(Ⅱ)錯体への変換によって黄色に着色し、色の濃淡によってヒ素の濃度を目視分析する手法である³¹⁾。固相抽出による「見える化」は、成分を正確に定量する以外の目的を達成する一つのアイデアである。今後、様々な目的のために新たな固相が提案されることを望んでいる。環境負荷を考慮した固相を検討し、固相抽出法を駆使した簡便かつ高感度な分析法を提案することが、今後のさらなる分析技術の向上につながると考えている。

謝辞 本入門講座の作成にあたり、明治大学名誉教授の中村利廣博士、明治大学大学院特任講師の萩原健太博士のご指導、株式会社リガクの松田渉氏、明治大学放射化学研究室メンバーのご協力に対して心からの謝意を表します。

文 献

- 1) 日本分析化学会編：“分析化学実技シリーズ応用分析編6環境分析”，p.182(2012)，(共立出版)。
- 2) 古庄義明，小野壯登，山田政行，大橋和夫，北出 崇，栗山清治，太田誠一，井上嘉則，本水昌二：分析化学 (*Bunseki Kagaku*)，**57**，969(2008)。
- 3) 小池裕也，萩原健太：*J. Soc. Inorg. Mater., Japan*，**22**，408(2015)。
- 4) 三浦 勉，森本隆夫，早野和彦，岸本武士：分析化学 (*Bunseki Kagaku*)，**49**，245(2000)。
- 5) 新野 靖，古賀明洋：*Bull. Soc. Sea Water Sci. Jpn.*，**58**，85(2004)。
- 6) 長谷川信一：鉄と鋼，**95**，911(2009)。
- 7) K. Hagiwara, T. Inui, Y. Koike, T. Nakamura : *Anal. Sci.*，**29**，1153(2013)。
- 8) K. Hagiwara, T. Inui, Y. Koike, M. Aizawa, T. Nakamura :

- Talanta*，**134**，739(2015)。
- 9) 稲垣和三，高津章子，鎗田 孝，岡本研作，千葉光一：分析化学 (*Bunseki Kagaku*)，**58**，175(2009)。
- 10) ジーエルサイエンス 固相抽出ガイドブック編集委員会編：“固相抽出ガイドブック”，(2012)，(ジーエルサイエンス)。
- 11) W. Abe, S. Isaka, Y. Koike, K. Nakano, K. Fujita, T. Nakamura : *X-Ray Spectrom.*，**35**，184(2006)。
- 12) T. Inui, A. Kosuge, A. Ohbuchi, K. Fujita, Y. Koike, M. Kitano, T. Nakamura : *Am. J. Anal. Chem.*，**3**，683(2012)。
- 13) 文部科学省：“放射能測定法シリーズ13ゲルマニウム半導体検出器等を用いる機器分析のための試料の前処理法”，p.6(1992)，(日本分析センター)。
- 14) 萩原健太，甲斐祥太郎，小池裕也，相澤 守，中村利廣：分析化学 (*Bunseki Kagaku*)，**65**，489(2016)。
- 15) 亀田 豊：ぶんせき (*Bunseki*)，**2013**，350。
- 16) 経遠 篤，鈴木美誠，古庄義明，古田直紀：分析化学 (*Bunseki Kagaku*)，**58**，623(2009)。
- 17) 宗林由樹，M. L. Firdaus，中塚清次，南 知晴，則末和宏：*Biomed. Res. Trace Elements*，**18**，319(2007)。
- 18) 高久雄一，石塚香織，長岡亜矢子，皆川昌幸，森田貴己，藤本 賢：分析化学 (*Bunseki Kagaku*)，**65**，399(2016)。
- 19) S. Kunimura, K. Amagasa : *ISIJ International*，**55**，2697(2015)。
- 20) 国村伸祐，菅原悠吾，徳岡佳恵，青野海奈，杉岡大志郎，袋井祐佳，寺田脩一郎：分析化学 (*Bunseki Kagaku*)，**68**，325(2019)。
- 21) 吉井 裕，伊豆本幸恵，高村晃大，酒井康弘：日本原子力学会2019年秋の大会予稿集，3D07(2019)。
- 22) 松田 渉，高原晃里，萩原健太，大淵敦司，池田 智，中村利廣，小池裕也：廃棄物資源循環学会論文誌，**32**，128(2021)。
- 23) S. Kagaya, Y. Aoki, Y. Saeki, T. Goto, M. Ohki, I. Obata, M. Saito, R. Shirota, M. Gemmei-Ide : *Bull. Soc. Sea Water Sci. Jpn.*，**71**，282(2017)。
- 24) 小池裕也，炭山裕彰，小田切裕輔，乾 哲朗，岩鼻雄基，栗原雄一，中村利廣：分析化学 (*Bunseki Kagaku*)，**62**，507(2013)。
- 25) 猪瀬聡史，萩原健太，青林 諒，小池裕也：放射化学，**45**，1(2022)。
- 26) 堀井雄太，宮本直人，狩野直樹，今泉 洋：*Radioisotopes*，**69**，217(2020)。
- 27) H. Tsuji, Y. Ishii, M. Shin, K. Taniguchi, H. Arai, M. Kurihara, T. Yasutaka, T. Kuramoto, T. Nakanishi, S. Lee, T. Shinano, Y. Onda, S. Hayashi : *Sci. Total Environ.*，**697**，134093(2019)。
- 28) M. Kurihara, T. Yasutaka, T. Aono, N. Ashikawa, H. Ebina, T. Iijima, K. Ishimaru, R. Kanai, Z. Karube, Y. Konnai, T. Kubota, Y. Maehara, T. Maeyama, Y. Okizawa, H. Ota, S. Otsaka, A. Sakaguchi, H. Tagomori, K. Taniguchi, M. Tomita, H. Tsukada, S. Hayashi, S. Lee, S. Miyazu, M. Shin, T. Nakanishi, T. Nishikiori, Y. Onda, T. Shinano, H. Tsuji : *J. Radioanal. Nucl. Chem.*，**322**，477(2019)。
- 29) 小池裕也，福田大輔，塩原良建：*J. Soc. Inorg. Mater., Japan*，**25**，108(2015)。
- 30) 藤井健悟，栗原雄一，鈴木亮一郎，松田 渉，大淵敦司，中村利廣，小池裕也：*Proceedings of the 17th Workshop on Environmental Radioactivity*，KEK Proceedings 2016-8，208(2016)。
- 31) 舟山剛史，水口仁志，志田惇一：分析化学 (*Bunseki Kagaku*)，**62**，685(2013)。



小池 裕也 (Yuuya Koike)

明治大学理工学部 (〒214-8571 神奈川県川崎市多摩区東三田 1-1-1). 明治大学大学院理工学研究科工業化学専攻博士後期課程修了. 博士 (工学), 第1種放射線取扱主任者. 《現在の研究テーマ》多摩川集水域における河川水及び底質中放射性セシウムの動態評価. 《趣味》ドライブ, おいしい日本酒探し.

E-mail : koi@meiji.ac.jp

原稿募集

創案と開発欄の原稿を募集しています

内容：新しい分析方法・技術を創案したときの着想, 新しい発見のきっかけ, 新装置開発上の苦心と問題点解決の経緯などを述べたもの. 但し, 他誌に未発表のものに限ります.

執筆上の注意：1) 会員の研究活動, 技術の展開に参考になるよう, 体験をなるべく具体的に述べる. 物語風でもよい. 2) 従来の分析方法や装置の問題点に触れ, 記事中の創案や開発の意義, すなわち主題の背景を分かりやすく説明する. 3) 図や表, 当時のスケッチなどを用いて理解しやすく

することが望ましい. 4) 原稿は図表を含めて4000~8000字 (図・表は1枚500字に換算) とする.

◇採用の可否は編集委員会にご一任ください. 原稿の送付および問い合わせは下記へお願いします.

〒141-0031 東京都品川区西五反田 1-26-2

五反田サンハイツ 304号

(公社)日本分析化学会「ぶんせき」編集委員会

[E-mail : bunseki@jsac.or.jp]