ISSN 1343-3512

福岡市保健環境研究所報

第 ４９ 号

令和５年度

福岡市保健環境研究所

はじめに

福岡市保健環境研究所は，福岡市民の健康と快適で良好な生活環境を守るため，昭和 45 年 10 月に衛生試験所として発足，平成 9 年 5 月に保健環境研究所として組織再編し，本市における保健・環境行政の科学的・技術的中核機関として試験研究等に取り組んでまいりました．

当研究所では，感染症や食中毒の原因究明やまん延防止，食品の安全性確保，大気，水質の汚染防止等の環境保全に関する様々な試験検査及び調査研究を実施しています．また，地域，市民に開かれた施設となるよう，併設された保健環境学習室「まもるーむ福岡」において，市民の皆様への情報の発信，NPO 等の交流活動の拠点としての活動等に取り組んでいます．

さて，福岡市では，令和 6 年 7 月に保健所の広域的機能及び専門的機能を強化し，健康危機管理体制を確保するため，市内 7 区に設置していた保健所を一元化しました．当研究所においても，新興・再興感染症や健康危機の発生に対応できるよう健康危機管理担当主査を新設し，健康危機管理体制の強化に取り組んでいるところです．

今後も社会のニーズ及び変化に柔軟に対応しながら，様々な行政課題の解決に貢献するため，科学的基礎データの収集と調査研究に取り組み，当研究所に課せられた使命を果たすべく努めてまいります．また，感染症，食中毒，環境事故等への健康危機管理体制の強化はもとより，地域に根差した調査研究，情報発信にも引き続き取り組み，地方における中核的な試験研究機関としての役割をしっかりと果たしていく所存です．

このたび，令和 5 年度の業務の成果を所報に取りまとめましたので，御高覧のうえ，ご指導，ご助言をいただければ幸いに存じます．

令和 6 年 12 月

福岡市保健環境研究所

所長　近藤　美由紀

目　　次

Ⅰ　施設・機構

1　沿　　革 …… 1
2　施　　設 …… 2
3　組織及び事務分掌・職員定数 …… 3
4　職員配置表 …… 4
5　予算（令和６年度当初予算） …… 4
6　福岡市保健環境研究委員会 …… 5
7　福岡市保健環境研究所倫理委員会 …… 5
8　令和５年度事業実績一覧 …… 6

Ⅱ　定期業務

1　微生物（保健科学課）
1）細菌担当 …… 9
2）ウイルス担当 …… 11
3）感染症担当 …… 11
2　理化学（保健科学課）
1）食品化学担当 …… 13
2）微量分析担当 …… 14
3　環境科学（環境科学課）
1）水質担当及び生物担当 …… 28
2）大気担当 …… 31
4　危機管理 …… 32

Ⅲ　非定期業務

1　微生物（保健科学課）
1）細菌担当 …… 33
2）ウイルス担当 …… 33
3）感染症担当 …… 36
2　理化学（保健科学課）
1）食品化学担当 …… 37
2）微量分析担当 …… 37
3　環境科学（環境科学課）
1）水質担当及び生物担当 …… 38
2）大気担当 …… 39

Ⅳ　情報発信・提供事業

1　保健環境学習室「まもるーむ福岡」 …… 41
2　体験学習，出前講座等 …… 43
3　施設見学・視察の受け入れ …… 44
4　広報誌等における情報の発信 …… 44
5　調査研究等報告会 …… 44

Ⅴ　技術研修等
1　指導研修　…… 47
2　学会，研修等（WEB 等を含む）　…… 47

Ⅵ　調査・研究
1　福岡市における光化学オキシダントの長期的な推移と高濃度要因の推定　…… 53
副田大介 ほか

Ⅶ　報告・ノート
1　高齢者施設で発生した下痢原性大腸菌食中毒事例　…… 65
川﨑恵 ほか
2　レジオネラ症患者及び利用施設からレジオネラ属菌を検出した事例　…… 68
笠愛 ほか
3　福岡市における SARS-CoV-2 ゲノム解析（2023 年度）　…… 72
宮本道彦 ほか
4　福岡市におけるインフルエンザウイルスのゲノム解析　…… 80
讃井武蔵 ほか
5　パルスフィールドゲル電気泳動法による薬剤耐性菌の分子疫学解析法の検討　…… 86
下田由布子 ほか
6　福岡市で発生した化学物質及び自然毒による食中毒事例　…… 91
大木望 ほか
7　ソルビン酸，安息香酸及びデヒドロ酢酸標準溶液の調製溶媒による安定性の比較　…… 96
近藤芳和子 ほか
8　グレープフルーツ缶詰から検出された不明色素の同定　…… 100
小出石千明 ほか
9　鯨肉製品中の亜硝酸根試験法の妥当性確認　…… 105
小出石千明 ほか
10　折り紙からの赤色２０１号の検出事例　…… 109
佐多建一 ほか
11　市販キットを用いた豆腐からの DNA 抽出法比較及び装置の同等性確認　…… 114
小出石千明 ほか
12　ナツメグ過剰摂取による食中毒を想定したエレミシン分析法　…… 119
矢野智也 ほか
13　血液中 PCB 分析における低温アルカリ分解法を用いた前処理方法　…… 126
増田栞 ほか
14　化学物質の網羅的簡易迅速測定法を用いた福岡市内河川水の分析　…… 131
宮﨑悦子 ほか
15　環境 DNA 技術を用いた魚類モニタリング調査手法の検討　…… 137
有本圭佑 ほか
16　福岡市内河川の底生動物を用いた環境評価－多々良川，2023 年－　…… 149
有本圭佑 ほか
17　福岡市における酸性雨の状況（2008～2022 年度）　…… 159
島田友梨 ほか

Ⅷ　資　　料

1　令和５年度 食中毒・相談等に伴う保健所からの依頼検査 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・　165
2　令和５年度 感染症発生動向調査事業関連のウイルス検査結果 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・　170
3　令和５年度 三類感染症発生状況 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・

Ⅰ　施　設・機　構

1　沿　　革

昭和 45 年 10 月	保健所検査室を統合し，1 所（課），3 係（職員数 13 名）で衛生試験所発足.
昭和 48 年　4 月	部長を新設．1 所（部），1 次長（課），3 係（職員数 29 名）となる.
昭和 50 年　4 月	1 所（部），2 課，3 係（職員数 36 名）となる.
昭和 58 年　4 月	1 所（部），2 課，4 係（職員数 36 名）となる.
昭和 61 年　4 月	1 所（部），2 課，4 係，1 主査（職員数 36 名）となる.
平成 元年　4 月	1 所（部），2 課，4 係，2 主査（職員数 36 名）となる.
平成 2 年　3 月	旧第一病院の仮庁舎に移転.
平成 4 年　4 月	1 所（部），2 課，4 係，4 主査（職員数 39 名）となる.
平成 5 年　4 月	1 所（部），2 課，4 係，4 主査（職員数 41 名）となる.
平成 7 年　4 月	1 所（部），2 課，4 係，5 主査（職員数 42 名）となる.
平成 8 年　4 月	1 所（部），2 課，5 係，6 主査（職員数 43 名）となる.
平成 9 年　4 月	1 所（部），3 課，5 係，6 主査（職員数 43 名）となる.
平成 9 年　5 月	保健環境研究所として新たに発足．「まもるーむ福岡」オープン.
平成 11 年　4 月	1 所（部），3 課，5 係，5 主査（職員数 42 名）となる.
平成 12 年　4 月	保健福祉局から環境局へ移管，1 所（部），3 課，1 係，9 主任研究員 （職員数 43 名）となる．（技術職の係長，主査制を廃止．主任研究員制とする．）
平成 12 年 10 月	廃棄物試験研究センターが課長制で発足．保健環境研究所の所属となる．1 所（部），3 課，1 所（課），1 係，12 主任研究員（職員数 52 名）となる.
平成 13 年　4 月	スタッフ制導入（課長制を廃止し， 主席研究員制とする）．1 所（部），3 主席研究員，1 所（課），1 係，12 主任研究員（職員数 49 名）となる.
平成 15 年　4 月	環境局環境啓発課の環境情報係及び主査（有害汚染物質専任）を保健環境研究所に移管し，企画調整課を新設．1 所（部），1 課，2 主席研究員，1 所（課），2 係，1 主査，12 主任研究員（職員数 53 名）となる.
平成 19 年　4 月	企画調整課を廃止．企画調整係を総務係に名称変更し，環境情報係・主査（有害汚染物質専任）を環境対策推進部環境保全課に移管．また，環境科学部門の博多湾担当を廃止し，環境生物担当は水質担当に名称を変更．1 所（部），2 主席研究員，1 所（課），1 係，11 主任研究員（職員数 46 名）となる.
平成 20 年　4 月	主席研究員を廃止し，環境科学課と保健科学課を設置．総務係を管理係とし，環境科学課に移管．1 所（部），2 課，1 所（課），1 係，11 主任研究員（職員数 46 名）となる.
平成 23 年　4 月	廃棄物試験研究センターの工場担当と埋立場担当を統合し，処理施設担当とする．1 所（部），2 課，1 所（課），1 係，10 主任研究員（職員数 46 名）となる.
平成 24 年　4 月	新設の環境監理部に環境科学課及び保健科学課を統合．保健環境研究所長を同部長が兼任，また，廃棄物試験研究センターを廃止し，主任研究員以下を環境科学課に統合．保健環境研究所は，2 課，1 係，10 主任研究員（職員 43 名）体制となる.
平成 26 年　4 月	環境監理部より分離.所長は同部長が兼任.副所長を新設（環境科学課長が事務代理）．保健環境管理課を新設し，環境科学課の管理係，資源化担当及び処理施設担当を移管．1 所（部），3 課，1 係，10 主任研究員（職員 44 名）体制となる.
平成 27 年　4 月	環境科学課環境化学担当，水質担当を環境水質担当，博多湾担当に名称を変更.
平成 28 年　4 月	保健環境管理課管理係を 1 名増員し，職員 45 名体制となる.
平成 29 年　4 月	環境科学課環境水質担当を水質担当に，博多湾担当を生物担当に名称を変更.
平成 30 年　4 月	副所長を廃止．保健環境管理課を廃止し，管理係及び主任研究員以下を環境科学課に統合．保健環境研究所は，2 課，1 係，10 主任研究員（職員 44 名）体制となる.
平成 31 年　4 月	環境科学課管理係を 1 名減員し，職員 43 名体制となる.
令和 3 年　4 月	保健科学課ウイルス担当を 1 名増員し，職員 44 名体制となる.
令和 3 年 10 月	保健科学課ウイルス担当主任研究員を 1 名増員し，職員 45 名体制となる.
令和 4 年　4 月	保健医療局を新設．保健環境研究所は環境局から保健医療局へ移管．環境科学課資源化担当及び処理施設担当は環境局に残置し，廃棄物試験研究センターとして環境監理部に課長制で発足．保健環境研究所長は専任とし，保健科学課ウイルス担当を 1 名減員．1 所（部），2 課，1 係，9 主任研究員（職員 36 名）体制となる.
令和 5 年　4 月	保健科学課ウイルス担当主任研究員 1 名及び環境科学課管理係 1 名を減員し，職員 34 名体制となる.
令和 6 年　4 月	保健科学課健康危機管理担当主任研究員 1 名を増員し，職員 35 名体制となる.

２　施　　設

敷地面積：2,725.65m^2
延床面積：7,384.41m^2　（うち，まもるーむ福岡　550m^2）
高　　さ：28.4m
構造規模：鉄骨鉄筋コンクリート造地上5階

1階　まもるーむ福岡
2階　会議室・技術研修室
3階　所長室・情報資料室
　　環境科学課（管理係）
　　保健科学課（微生物）
　　〔細菌担当，ウイルス担当，感染症担当，健康危機管理担当〕
4階　保健科学課（理化学）
　　〔食品化学担当，微量分析担当〕
5階　環境科学課（環境科学）
　　〔水質担当，生物担当，大気担当〕

3　組織及び事務分掌・職員定数

（令和6年5月1日現在）

- 所長 (35)
  - 保健科学課 (22)
    - 主任研究員　【細菌担当】 (4)
      1　食中毒及び食品の細菌検査並びに調査研究
      2　環境衛生及び環境保全関係の細菌検査並びに調査研究
    - 主任研究員　【ウイルス担当】 (3)
      1　ウイルス検査及び調査研究
      2　感染症発生動向調査事業検査
    - 主任研究員　【感染症担当】 (3)
      1　感染症の細菌検査及び調査研究
      2　腸内病原菌・梅毒等細菌検査
    - 主任研究員　【健康危機管理担当】 (1)
      1　健康危機管理に関する企画，計画及び訓練等
    - 主任研究員　【食品化学担当】 (6)
      1　食品及び添加物の化学検査並びに調査研究
      2　食中毒・相談の化学検査及び調査研究
      3　家庭用品及びその他衛生化学検査並びに調査研究
    - 主任研究員　【微量分析担当】 (4)
      1　食品の残留農薬・動物用医薬品・カビ毒等の検査及び調査研究
      2　食品及び血液中のPCB等汚染物質の検査及び調査研究
  - 環境科学課 (12)
    - 管理係 (2)
      1　所の所掌事務に関わる連絡調整・予算・決算・経理及び一般庶務
      2　保健環境研究所の庁舎管理
      3　保健環境学習室の運営管理
    - 主任研究員　【水質担当】 (3)
      1　水質理化学検査（飲用水，地下水等）
      2　微量化学物質の検査及び調査研究
    - 主任研究員　【生物担当】 (3)
      1　水質理化学検査（特定事業場排出水，浄化槽放流水等）
      2　博多湾の検査及び調査研究
      3　環境生物の検査及び調査研究
    - 主任研究員　【大気担当】 (3)
      1　大気汚染物質その他大気に係る検査及び調査研究

＊他に会計年度任用職員（検査員等）10 名を配置

4　職員配置表

（令和 6 年 5 月 1 日現在）

課＼職種	技術職				事務職	会計年度任用職員	計
	衛生管理	獣医師	臨床検査技師	化学			
所長（部長）	1						1
保健科学課（微生物）	9※	2	1			(3)	12 (3)
保健科学課（理化学）	9	1				(2)	10 (2)
環境科学課（管理係）	1※				2	(2)	3 (2)
環境科学課（環境科学）	8			1		(3)	9 (3)
計	28	3	1	1	2	(10)	35 (10)

※保健科学課長は微生物，環境科学課長は管理係でそれぞれ計上

5　予　　算（令和 6 年度当初予算）

1) 歳入

（単位：千円）

科目	保健福祉施設使用料	保健環境研究所手数料	感染症対策費負担金	環境市民ファンド受入金	雇用保険料	厚生年金保険料	衛生施設整備事業に充当する起債	その他の雑入	計
金額	250	1,265	4,195	2,552	181	2,727	31,000	398	42,568

2) 歳出

（単位：千円）

区分		保健衛生総務費	感染症対策費（保健予防課令達分）	環境衛生費（生活衛生課令達分）	食品衛生費（食品安全推進課令達分）	環境対策費（環境局令達分）	計
報酬		18,962					18,962
給料		2,150					2,150
職員手当等		8,076					8,076
共済費		7,921					7,921
報償費		332					332
旅費		4,481	230		338		5,049
需用費	印刷消耗品費	10,992	21,322	3,194	14,812	13,975	64,295
	被服費	52					52
	光熱水費	31,706					31,706
	修繕料	14,000					14,000
役務費		6,525	421				6,946
委託料		91,283	660			2,572	94,515
自動車借上料		13					13
借損料		113,264				3,018	116,282
工事請負費		59,992					59,992
機械器具等		8,217					8,217
諸会議費負担金		831	17		73		921
計		378,797	22,650	3,194	15,223	19,565	439,429

６　福岡市保健環境研究委員会

市民の健康を守り生活環境を保全するため，保健環境研究所が実施する調査研究に対して，専門的・客観的な立場から指導・助言を得ることを目的として，学識経験者と行政の委員からなる研究委員会を設置している．

1)所掌事務

・調査研究に関する提言
・調査研究に関する指導・助言
・調査研究に関する評価
・その他調査研究に関し必要な事項

2)委員（定員 20 名以内）

・学識経験を有する者（8 名）
・市職員（3 名）

3)令和 5 年度の開催状況

・開催日時　　令和 5 年 7 月 26 日（水）15：30～17：30
・場　　所　　保健環境研究所会議室
・議　　題
(1)調査研究実施計画（新規調査研究）について（2 件）
次世代シーケンサーを用いた臨床検体中の病原ウイルスの探索
福岡市における環境水中の抗菌薬の実態調査
(2)調査研究最終報告について（3 件）
輸入食品中の指定外食品添加物一斉試験法の開発
健康危機管理のための LC-QTOFMS を用いた植物性自然毒一斉分析法の開発
沿岸海域における新水質環境基準としての底層溶存酸素（貧酸素水塊）と気候変動の及ぼす影響把握に関する研究（Ⅱ型研究）

７　福岡市保健環境研究所倫理委員会

保健環境研究所で実施する研究について，「人を対象とする生命科学・医学系研究に関する倫理指針」（令和 3 年 3 月 23 日文部科学省・厚生労働省・経済産業省告示第 1 号）に基づき意見収集を行うため，福岡市保健環境研究所倫理委員会を設置している．

1)目的

次に掲げる事項について，参考となる意見を収集する．
・研究計画（変更を含む）に関すること
・不服申し立てに関すること
・研究報告に関すること
・試料及び情報の外部提供に関すること
・その他研究の実施に関して必要な事項

2)委員（定員 7 名以内）

・医学，医療の専門家等自然科学の有識者（1 名）
・倫理学，法律学の専門家等人文，社会学の有識者（1 名）
・研究対象者の観点も含めて一般の立場から意見を述べることができる者（3 名）
・福岡市役所に所属する者（1 名）

3)令和 5 年度の開催状況

(1)福岡市保健環境研究所倫理委員会設置要綱第 7 条に基づく迅速な意見収集（令和 5 年 11 月 20 日）
研究の名称：「次世代シーケンサーを用いた臨床検体中の病原ウイルスの探索」

８　令和５年度事業実績一覧

1)試験・検査，信頼性確保等事業

	部門（担当課）	項目名		検体数	項目数
(1)試験・検査等	微生物（保健科学課）	定期業務	食品収去検査	1,003	2,513
			環境衛生関係検査（プール，浴場水等）	455	543
			環境保全関係検査（事業場排水）	31	31
			井戸水等細菌検査	1,133	1,947
			HIV検査	2,880	2,904
			蚊のウイルス検査	0	0
			感染症発生動向調査事業（ウイルス検査）	72	113
			感染症発生動向調査事業（細菌検査）	35	70
			腸内病原菌検査（赤痢，チフス，O157等）	1,623	4,869
			梅毒検査	2,342	4,670
			結核菌遺伝子型別検査	39	39
		非定期業務	行政からの依頼検査（細菌）	393	2,039
			行政からの依頼検査（ウイルス）	195	532
			行政からの依頼検査（新型コロナウイルス関連）	2,306	3,678
			感染症発生動向調査ウイルス検査（全数把握）	159	415
			感染症法に基づく細菌検査	430	430
			行政からの依頼検査（感染症）	131	160
		小　計		13,227	24,953
	理化学（保健科学課）	定期業務	食品等行政収去検査	456	14,476
			家庭用品試買検査	29	41
		非定期業務	行政からの依頼検査（食品衛生法関係）	15	36
			行政からの依頼検査（その他）	11	71
			委託事業（血中PCB）	37	37
		小　計		548	14,661
	環境科学（環境科学課）	定期業務	公共用水域及び地下水等の水質検査	183	1,818
			公共用水域の底質調査	17	34
			特定事業場検査	36	271
			生活衛生関係検査	103	390
			井戸水等検査	924	7,585
			保健環境研究所排出水検査	4	120
			博多湾プランクトン調査	96	96
			大気検査	317	8,250
		非定期業務	行政からの依頼検査	70	525
			環境省委託調査	4	14
			その他の調査	4	36
		小　計		1,758	19,139
		計		15,533	58,753
(2)信頼性確保等	微生物（保健科学課）	外部精度管理		37	43
		内部精度管理		219	251
		機器日常検査等		12,334	12,334
		小　計		12,590	12,628
	理化学（保健科学課）	外部精度管理		34	84
		内部精度管理		284	12,234
		機器日常検査等		2,594	2,594
		妥当性評価		87	13,128
		小　計		2,999	28,040
	環境科学（環境科学課）	外部精度管理		4	33
		内部精度管理		93	976
		小　計		97	1,009
		計		15,686	41,677
	総　計			31,219	100,430

2)情報提供，技術研修，研究発表等

区	分		件数(回数)	人数
情報提供・啓発	まもるーむ福岡による講座・イベント等		170	4,142
	体験学習，講座等		6	61
	施設見学・視察の受け入れ		4	36
	広報誌等における情報提供		2	-
	調査研究等報告会		5	96
	計		187	4,335
技術研修等	研修生受入		7	36
	講師派遣		-	-
	学会，研修等派遣		76	228
	計		83	264
調査・研究	紙上発表	学会誌等	1	-
		所報	8	-
		小　計	9	-
	口頭発表等	学会・協議会等	5	-
		小　計	5	-
	計		14	-
総　計			284	4,599

3)調査研究等一覧

部門 (担当課)	タイトル	概要	実施計画期間
微生物 (保健科学課) 3件	浴槽水等の細菌群集構造（細菌叢）解析	レジオネラ属菌対策に資するため，レジオネラ属菌を検出した複数の浴槽水等の細菌群集構造（細菌叢）を解析し，共通して存在する菌等に関する知見を得，その知見からレジオネラ属菌汚染の指標への活用の可能性を検討する．	R4年度～R6年度
	薬剤耐性菌の分子疫学解析法（PFGE法）の検討	国内での院内感染発生事例があり，問題となっている薬剤耐性菌感染症のうち報告数が多い菌種について，酵素の反応条件や泳動条件等の検討を行い，マニュアルを作成して検査体制を整備する．	R3年度～R5年度
	次世代シーケンサーを用いた臨床検体中の病原ウイルスの探索	感染症発生時において，その後の感染拡大を防止するために，迅速かつ網羅的に病原体を探索し，特定することが求められている．次世代シーケンサーを活用した手法により，迅速かつ網羅的に病原ウイルスを探索することを目的とする．	R5年度～R7年度
理化学 (保健科学課) 1件	３層固相ミニカラムを用いた農産物中の残留農薬迅速一斉分析法の開発	農産物中の残留農薬検査の迅速化及び有機溶媒使用量削減を目的として，３層固相ミニカラムを用いた農産物中の残留農薬迅速一斉分析法の開発する．	R5年度～R7年度
環境科学 (環境科学課) 7件	災害時等における化学物質の網羅的簡易迅速測定法を活用した緊急調査プロトコルの開発	災害時等における有害化学物質漏洩等の危機管理事案に対し，迅速に原因物質の推定を行う網羅的簡易迅速測定法を活用したプロトコルの開発を行う（II型共同研究）．	R4年度～R6年度
	福岡市における環境水中の抗菌薬の実態調査	環境水に対する影響評価を目的として，使用量が多く難分解性の抗菌薬に着目し，LC-MS/MSによる水環境中の抗菌薬の実態調査を行う．	R5年度～R7年度
	海域における気候変動と貧酸素水塊（DO）/有機物（COD）/栄養塩に係る物質循環との関係に関する研究	博多湾の環境保全に資するため，課題となっている貧酸素水塊や気候変動が及ぼす影響把握などに関する調査研究を行う（II型共同研究）．	R5年度～R7年度
	環境DNA技術を用いた魚類の網羅的モニタリング調査の検討	博多湾環境保全計画（二次）の指標となっている魚類の調査に用いられている捕獲調査等に代わる効率的なモニタリング手法として，環境DNA技術を用いた調査の検討を行う．	R3年度～R5年度
	里海里湖流域圏が形成する生態系機能・生態系サービスとその環境価値に関する研究	博多湾のアマモ場周辺に生息している魚類について，環境DNA技術を用いた網羅的調査により，アマモ場の生態系機能に係る効果を検証する(II型共同研究)．	R3年度～R5年度
	福岡市における光化学オキシダントの長期的な推移と高濃度要因の検討	光化学オキシダントの新指標を用いて，福岡市における光化学オキシダントの長期的な経年推移を把握する．また，常時監視データや気象データを用いて，本市の高濃度事例が越境移流，地域汚染，複合のどの要因で生じているかを解析する．	R4年度～R5年度

	光化学オキシダント等の変動要因解析を通した地域大気汚染対策提言の試み	光化学オキシダントの高濃度化因子解明のため，高濃度となる気象条件や，Ox生成に寄与する物質の解析を行う（II型共同研究）．	R4年度～R6年度

4)研究協力等一覧

部門 （担当課）	概要
微生物 （保健科学課） 3件	EHECの検出状況解析への協力及びMLVA・PFGEの精度管理に参加した．（厚生労働科学研究費　新興・再興感染症及び予防接種政策推進研究事業）
	九州各県の地方衛生研究所に協力を募り，動物由来感染症の調査手法の共有や情報交換を行うことで九州地域における動物由来感染症サーベイランスの強化とネットワーク構築を行う．(厚生労働科学研究費　ワンヘルス動物由来感染症サーベイランスの全国展開に向けた基盤構築に資する調査研究　分担研究課題：地域のワンヘルス推進に関する取組のモデル事例の検討)
	RSVを含めた呼吸器系ウイルスについて，インフルエンザ様症状のような急性呼吸器症状を症例定義とし，その定義に即した検体を収集し，将来的に国内において検査陽性率を算出できるようなシステムを構築する．（日本医療研究開発機構研究費　RSウイルス感染症サーベイランスシステムの整備・流行動態解明および病態形成・重症化因子の解明に関する開発研究）
環境科学 （環境科学課） 1件	全国の一般居住住宅の室内空気汚染実態を明らかにすることを目的とした全国実態調査に参加した．（国立医薬品食品衛生研究所依頼）

Ⅱ　定　期　業　務

1　微生物（保健科学課）

定期業務として，食品衛生法，感染症の予防及び感染症の患者に対する医療に関する法律（以下,「感染症法」とする．）及び感染症発生動向調査に基づく細菌及びウイルスの検査を行った.

1)細菌担当

食品衛生法及び環境衛生・環境保全関係の法令に基づき，行政収去による各種細菌検査及び市民等からの依頼による井戸水等の細菌検査を実施した.

表 1　検体数総括

区分	検体数	項目数
食品収去検査	1,003	2,513
環境衛生関係検査	455	543
環境保全関係検査	31	31
井戸水等検査	1,133	1,947
計	2,622	5,034

(1)食品収去検査

食品収去検査は 1,003 検体，2,513 項目実施した．食品分類別検体数及び項目数を表 2 に示す.

(2)環境衛生関係検査

環境衛生関係検査はプール水及び公衆浴場等浴槽水の細菌検査を実施した．検体数及び項目数を表 3 に示す.

(3)環境保全関係検査

環境保全関係検査は事業場排水の細菌検査（大腸菌群）を 31 検体実施した.

(4)井戸水等検査

井戸水等の細菌検査は 1,133 検体実施した．検体数及び項目数を表 4 に示す.

表 4　井戸水等検査検体数及び項目数

区分	検体数	項目数	項目	
			一般細菌数	大腸菌
細菌検査	1,133	1,947	843	1,104

(5)精度管理

検査の信頼性を確保するための精度管理の実施状況総括を表 5 に示す.

外部精度管理として「2023 年度食品衛生外部精度管理調査」11 検体,「レジオネラ属菌検査の精度管理の調査研究」2 検体及びパルスネット九州ブロック精度管理における「腸管出血性大腸菌（EHEC）の反復配列多型解析法（MLVA 法)」4 検体について実施した.

内部精度管理として，食品収去検体と並行して実施する陽性対照確認試験を 72 検体及び市内の食品衛生検査施設間比較による精度管理を 15 検体実施した.

また，機器の日常検査を 5,399 件実施した.

表 5　精度管理の実施状況総括

区分	検体数	項目数
外部精度管理	17	18
内部精度管理	87	87
機器日常検査	5,399	5,399
計	5,503	5,504

表 3　環境衛生関係検査検体数及び項目数

区　分	検体数	項目数	項目					
			一般細菌数	大腸菌群	黄色ブドウ球菌	大腸菌	レジオネラ属菌	官能検査
プール水	88	163	75			75	13	
公衆浴場等浴槽水	363	363					363	
飲用温泉水	1	2	1	1				
リネンサプライ等	3	15	3	3	3			6
計	455	543	79	4	3	75	376	6

表２　食品収去検査食品分類別検体数及び項目数

食品分類	検体数	検査項目数計	生菌数	大腸菌群	黄色ブドウ球菌	サルモネラ属菌	E. coli	カンピロバクター	腸炎ビブリオ	恒温試験	細菌試験
牛乳・加工乳・乳飲料	2	6	2	2	2						
アイスクリーム類	42	120	42	42	36						
氷雪	3	6	3	3							
清涼飲料水	30	60	30	30							
魚介類	151	302	151	46					105		
卵類	6	6				6					
肉類	143	148				5		143			
食肉製品類	6	16			5	5	6				
鯨肉製品類	1	1		1							
冷凍食品	5	10	5	5							
菓子類	124	412	124	124	124	40					
めん類	34	102	34	15	34		19				
豆腐類	13	26	13	13							
漬物類	8	16	1	1	1		7		6		
弁当及びそうざい	423	1,256	422	405	422	7					
容器包装詰加圧加熱殺菌食品	10	20								10	10
その他	2	6	2	2	2						
計	1,003	2,513	829	689	626	63	32	143	111	10	10

2) ウイルス担当

市民から依頼されるHIVの血清検査及び調査業務として感染症発生動向調査に関わるウイルス検査を行った．各試験検査の検体数及び項目数を表6に示す．

表6　検体数総括

区分	検体数	項目数
市民からの依頼検査		
HIV検査	2,880	2,904
調査業務		
感染症発生動向調査（定点把握・ウイルス）	72	113
計	2,952	3,017

(1) HIV検査

昭和62年10月からHIV（HIV-1，HIV-2）検査を保健所で受け付け，当所で検査を実施している．

令和5年度は2,880検体のスクリーニング検査を実施し，このうちスクリーニング検査陽性の14検体について，確認検査（抗体検査14件，抗原検査10件）を行った結果，8検体が陽性（0.28%）であった．

(2) 感染症発生動向調査（定点把握・ウイルス）

感染症発生動向調査は，8医療機関に9つの病原体定点が指定されており，当所で検査を実施している．

令和5年度は患者41名から採取された72検体について，ウイルス分離等を行った（詳細は「Ⅷ　資料」に掲載）．

(3) 精度管理

検査の信頼性を確保するための精度管理の実施状況を表7に示す．

外部精度管理は，厚生労働省が行う外部精度管理事業「新型コロナウイルスの次世代シーケンシング（NGS）による遺伝子の解読・解析」3検体，「麻しん・風しんウイルスの核酸検出検査」5検体及び国立感染症研究所が行う「インフルエンザウイルス分離培養・亜型同定技術に関する実態調査（iTips 2023）」5検体について実施した．

内部精度管理として，検査に使用する培養細胞のマイコプラズマ汚染否定試験を1回6検体実施した．また，PCRによるウイルス遺伝子検出確認試験を16回110検体実施した．

機器の日常検査は3,762検体実施した．

表7　精度管理の実施状況総括

区分	検体数	項目数
外部精度管理	13	18
内部精度管理	116	148
機器の日常検査	3,762	3,762
計	3,891	3,928

3) 感染症担当

市民等からの依頼による腸内病原菌検査及び梅毒検査並びにサーベイランス業務として結核菌遺伝子型別検査及び感染症発生動向調査に関わる細菌検査を行った．検査区分ごとの検体数及び項目数を表8に示す．

表8　検体数総括

区分	検体数	項目数
腸内病原菌検査	1,623	4,869
梅毒検査	2,342	4,670
結核菌遺伝子型別検査	39	39
感染症発生動向調査（細菌）	35	70
計	4,039	9,648

(1) 腸内病原菌検査

腸内病原菌検査は1,623検体実施し，赤痢菌，サルモネラ属菌（チフス・パラチフス含む）及び腸管出血性大腸菌の3菌種について，それぞれ病原菌の検索を行った．陽性はサルモネラ属菌が2検体（0.1%）及び腸管出血性大腸菌が3検体（0.2%）であった．

(2) 梅毒検査

梅毒検査は2,328検体について，TP抗体検査及びカルジオリピン抗体検査を実施した．また，梅毒即日検査として14検体について，TP抗体検査を実施した．陽性は168検体（7.2%）であった．

(3) 結核菌遺伝子型別検査

「福岡市結核菌病原体サーベイランス事業」に基づき，当所に搬入された結核菌39株について，結核菌遺伝子型別検査（VNTR法）を実施した．

(4) 感染症発生動向調査（細菌）

感染症発生動向調査は，全数把握対象五類感染症の薬剤耐性菌感染症 35 検体について，薬剤耐性遺伝子検査及びディスク法による薬剤感受性試験を実施した．検体数及び項目数を表 9 に示す.

表 9　感染症発生動向調査（細菌）実施状況

区分	検体数	項目数
全数把握対象五類感染症		
カルバペネム耐性腸内細菌科細菌	32	64
バンコマイシン耐性腸球菌	3	6
計	35	70

(5) 精度管理の実施状況

検査の信頼性を確保するための精度管理の実施状況を表 10 に示す.

外部精度管理として，結核菌遺伝子型別外部精度評価における「結核菌 VNTR 解析」3 検体，パルスネット九州ブロック精度管理における「腸管出血性大腸菌 PFGE 解析」4 検体について実施した.

内部精度管理として，PCR による陽性対照確認試験を 16 回実施した.

機器の日常検査は 3,173 件実施した.

表 10　精度管理の実施状況総括

区分	検体数	項目数
外部精度管理	7	7
内部精度管理	16	16
機器日常検査	3,173	3,173
計	3,196	3,196

２　理化学（保健科学課）

定期業務として，食品衛生法，食品表示法及び家庭用品規制法に基づき，市内で製造及び流通している食品中の食品添加物，成分規格，残留農薬，動物用医薬品，その他の理化学検査及び家庭用品等の検査を実施した.

検査区分ごとの検査実施状況総括を表 1 に，項目分類ごとの検査実施状況総括を表 2 に示す.

食品等の行政収去検査については，食品分類ごとの検査実施状況を表 3 に示し，違反事例を表 4 に示す.

また，検査の信頼性を確保するため，食品衛生法に基づき実施した精度管理の実施状況総括を表 5 に示す.

表 1　検査区分ごとの検査実施状況総括

区分	検体数	項目数
食品等行政収去検査	456	14,476
（うち項目間の重複）	(30)	
家庭用品試買検査	29	41
計	485	14,517

（項目間の重複 30 検体を除く合計は 455 検体）

表 2　項目分類ごとの検査実施状況総括

区分	検体数	項目数
食品添加物	216	2,157
成分規格	27	140
残留農薬	42	10,799
動物用医薬品	28	1,220
カビ毒	2	2
遺伝子組換え食品	6	6
特定原材料	53	53
その他	82	99
家庭用品	29	41
計	485	14,517

（項目間の重複 30 検体を除く合計は 455 検体）

表 4　違反事例

食品名	検査項目	違反内容
豆腐	遺伝子組換え大豆（定性）	遺伝子組換表示の誤り※1
かぼちゃスコーン	特定原材料（卵）	卵表示なし※1

※1：食品表示法違反

表 5　精度管理の実施状況総括

区分	検体数	項目数
外部精度管理		
食品衛生外部精度管理調査	26	72
国等の調査研究	8	12
小計	34	84
内部精度管理		
日常的添加回収	256	12,143
濃度未知試料分析	28	91
小計	284	12,234
機器日常検査	2,594	2,594
妥当性評価	87	13,128
計	2,999	28,040

1) 食品化学担当

食品化学担当では試験検査業務として，食品添加物，成分規格，その他の理化学検査及び家庭用品等の検査を表 6 及び表 7 のとおり実施した.

表 7　家庭用品検査実施状況

家庭用品分類	検体数	項目数
家庭用繊維製品		
よだれかけ	2	2
帽子（24 月以内）	2	2
寝具（24 月以内）	1	1
おしめ	1	1
下着（24 月以内）	5	5
寝衣（24 月以内）	5	5
靴下（24 月以内）	2	2
外衣（24 月以内）	1	1
中衣（24 月以内）	3	3
手袋（24 月以内）	1	1
おしめカバー	1	1
家庭用化学製品		
家庭用接着剤	2	2
家庭用洗浄剤	3	15
計	29	41
違反件数	0	0

(1) 食品の検査

食品中の食品添加物検査として，保存料，甘味料，酸化防止剤，漂白剤，発色剤，着色料等の検査を実施した. このうち食品表示法違反が 2 件あった（表 4）が，使用基準に適合しないものはなかった.

成分規格等の検査は，清涼飲料水（ミネラルウォーター類），米，乳，乳製品，器具及び容器包装等について

実施した．いずれも基準に適合していた．

主要食品添加物の検出状況は「Ⅷ　資料（令和 5 年度主要食品添加物の検出状況）」に掲載する．

(2) 家庭用品の検査

家庭用繊維製品 24 検体及び家庭用接着剤 2 検体について，ホルムアルデヒドの検査を実施した．また，家庭用洗浄剤 3 検体について，水酸化ナトリウム・水酸化カリウム及び容器試験（圧縮・変形試験，耐酸・耐アルカリ試験，落下試験及び漏水試験）を実施した．いずれも基準に適合していた．

2) 微量分析担当

微量分析担当では試験検査業務として食品中の残留農薬，動物用医薬品等の検査を実施した．

(1) 農薬の検査

穀類，豆類，野菜及びこれらの加工品の計 42 検体について農薬の検査を実施した．検体数，項目数を表 8 に示す．それぞれの検査項目は表 9 に示す．その結果，表 10 に示す農薬を検出した．検出した農薬はいずれも基準値以内であった．

表 8　農薬検査実施状況

検体名	検体数		項目数	
穀類※	14	(1)	3,023	(274)
豆類	8	(3)	2,176	(816)
野菜※	20	(10)	5,600	(2,800)
計	42	(14)	10,799	(3,890)

※加工品を含む　　（ ）内は輸入品（内数）

表 10　農薬の検出状況

食品名	原産国	農薬名	検出数/検体数※	検出率 (%)	検出値		残留基準値 (ppm)
					平均 (ppm)	範囲 (ppm)	
小麦	アメリカ合衆国	ピペロニルブトキシド	2/5	40	0.03	0.01～0.04	24
玄米	国産	ブプロフェジン	1/6	17	0.01	0.01	0.5
玄米	国産	フルトラニル	1/6	17	0.17	0.17	2
玄米	国産	フェリムゾン	1/6	17	0.08	0.08	2
玄米	国産	トリシクラゾール	2/6	33	0.12	0.12	3
大豆	国産	プロシミドン	1/5	20	0.52	0.52	3
大豆	ブラジル	ハロキシホップ	1/5	20	0.10	0.10	0.1
にんにくの芽	中国	テブコナゾール	1/1	100	0.04	0.04	10
ミニトマト	国産	ジエトフェンカルブ	1/1	100	0.13	0.13	2
ミニトマト	国産	ジノテフラン	1/1	100	0.06	0.06	2
ミニトマト	国産	クロチアニジン	1/1	100	0.01	0.01	3

※同一の食品分類の検体のうち，当該農薬が検出された検体の割合

(2) 動物用医薬品の検査

乳，肉類，卵類，魚介類及び養殖魚介類の計 28 検体について動物用医薬品の検査を実施した．検体数及び項目数を表 11 に示す．それぞれの検査項目は表 12 に示す．その結果，表 13 に示す動物用医薬品を検出した．検出した動物用医薬品は基準値以内であった．

表 11　動物用医薬品検査実施状況

検体名	検体数		項目数	
乳	2	(0)	98	(0)
肉類	11	(0)	462	(0)
卵類	6	(0)	264	(0)
魚介類	3	(2)	132	(88)
養殖魚介類	6	(0)	264	(0)
計	28	(2)	1,220	(88)

( ) 内は輸入品（内数）

(3) カビ毒の検査

乳 2 検体についてアフラトキシン M1 の検査を実施した結果，いずれも定量下限(0.05 μg/kg)未満であった．

表 13　動物用医薬品の検出状況

食品分類名	原産国	動物用医薬品名	検出数/検体数※	検出率 (%)	検出値		残留基準値 (ppm)
					平均 (ppm)	範囲 (ppm)	
鶏の筋肉	国産	スルファメトキサゾール	1/7	14	0.01	0.01	0.02

※同一の食品分類の検体のうち，当該動物用医薬品が検出された検体の割合

表３　食品等行政収去検査実施状況（総括）

検体分類名	検体数	総検査項目数	食品添加物							残留農薬	動物用医薬品等	PCB	カビ毒	オカダ酸	成分規格				その他		
			保存料	甘味料	酸化防止剤	漂白剤	発色剤	着色料	品質改良剤等						食品添加物製剤等	乳理化学	金属類	器具容器包装・おもちゃ	食品理化学	遺伝子組換え食品	特定原材料
検査件数合計	426	14,476	314	198	335	25	44	1,203	38	10,799	1,220		2			15	83	42	99	6	53
（輸入品）	(91)	(4,879)	(87)	(58)	(234)	(6)		(483)		(3,890)	(88)							(30)	(1)		(2)
基準等違反件数	2	2																		1	1
（輸入品）																					
魚介類	54	456				4		12			396								44		
（輸入品）	(2)	(90)				(2)					(88)										
魚介類加工品	78	671	60	40	63		38	444											16		10
（輸入品）	(1)	(1)																	(1)		
肉卵類及びその加工品	23	758	18	8			6				726										
（輸入品）																					
乳・乳製品及びその加工品	3	113	3	2							98		2			8					
（輸入品）	(1)	(5)	(3)	(2)																	
アイスクリーム類・氷菓	6	63	12	8				36								7					
（輸入品）																					
穀類及びその加工品	51	3,211	9	6		2		108	38	3,023							6		8		11
（輸入品）	(2)	(279)	(3)	(2)						(274)											
野菜類・果物及びその加工品	64	5,218	61	38		19		102		4,976									9	6	7
（輸入品）	(11)	(874)	(6)	(4)		(4)		(42)		(816)											(2)
菓子類	57	264	52	30	54			84											20		24
（輸入品）	(12)	(158)	(12)	(8)	(54)			(84)													
清涼飲料水	12	202	12	8				105									77				
（輸入品）	(5)	(125)	(12)	(8)				(105)													
酒精飲料	14	305	42	28	13			222													
（輸入品）	(11)	(276)	(33)	(22)	(11)			(210)													
冷凍食品	10	2,800								2,800											
（輸入品）	(10)	(2,800)								(2,800)											
かん詰・びん詰食品	30	228	21	14	160			33													
（輸入品）	(28)	(206)	(15)	(10)	(160)			(21)													
添加物及びその製剤																					
（輸入品）																					
器具及び容器包装	8	42																42			
（輸入品）	(6)	(30)																(30)			
おもちゃ																					
（輸入品）																					
その他（上記以外）	16	145	24	16	45			57											2		1
（輸入品）	(2)	(35)	(3)	(2)	(9)			(21)													

表６　食品等収去検査実施状況（詳細）　1/4

検体分類名	食品添加物　検体数	食品添加物　項目合計	保存料									甘味料						酸化防止剤											
			検体数	項目数	ソルビン酸	デヒドロ酢酸	安息香酸	パラオキシ安息香酸エステル類	パラオキシ安息香酸メチル	プロピオン酸	サイクラミン酸	検体数	項目数	サッカリンナトリウム	アセスルファムカリウム	ステビア	ズルチン	検体数	項目数	Ｔｏｔａｌ－ＥＤＴＡ	ジブチルヒドロキシトルエン	ブチルヒドロキシアニソール	二酸化硫黄	エリソルビン酸	アスコルビン酸	没食子酸プロピル	ノルジヒドログアヤレチック酸	ターシャリーブチルヒドロキノン	トリヒドロキシブチロフェノン	ヒドロキシメチルブチルフェノール	没食子酸オクチル	没食子酸ラウリル
検査件数合計 （輸入品）	216 (68)	2,157 (868)	101 (29)	314 (87)	101 (29)	101 (29)	101 (29)	2	2	7		99 (29)	198 (58)	99 (29)	99 (29)			90 (66)	335 (234)	7 (7)	35 (24)	35 (24)	13 (11)			35 (24)	35 (24)	35 (24)	35 (24)	35 (24)	35 (24)	35 (24)
基準等違反件数 （輸入品）																															
魚介類 （輸入品）	5 (2)	16 (2)																													
魚介類加工品 （輸入品）	58	645	20	60	20	20	20					20	40	20	20			14	63		7	7				7	7	7	7	7	7	7
肉卵類及びその加工品 （輸入品）	6	32	6	18	6	6	6					4	8	4	4																
乳・乳製品及びその加工品 （輸入品）	1 (1)	5 (5)	1 (1)	3 (3)	1 (1)	1 (1)	1 (1)					1 (1)	2 (2)	1 (1)	1 (1)																	
アイスクリーム類・氷菓 （輸入品）	4	56	4	12	4	4	4					4	8	4	4																
穀類及びその加工品 （輸入品）	22 (1)	163 (5)	3 (1)	9 (3)	3 (1)	3 (1)	3 (1)					3 (1)	6 (2)	3 (1)	3 (1)																	
野菜類・果物及びその加工品 （輸入品）	35 (6)	220 (56)	19 (2)	61 (6)	19 (2)	19 (2)	19 (2)	2	2			19 (2)	38 (4)	19 (2)	19 (2)																	
菓子類 （輸入品）	23 (12)	220 (158)	15 (4)	52 (12)	15 (4)	15 (4)	15 (4)			7		15 (4)	30 (8)	15 (4)	15 (4)			12 (12)	54 (54)		6 (6)	6 (6)				6 (6)	6 (6)	6 (6)	6 (6)	6 (6)	6 (6)	6 (6)
清涼飲料水 （輸入品）	5 (5)	125 (125)	4 (4)	12 (12)	4 (4)	4 (4)	4 (4)					4 (4)	8 (8)	4 (4)	4 (4)																	
酒精飲料 （輸入品）	14 (11)	305 (276)	14 (11)	42 (33)	14 (11)	14 (11)	14 (11)					14 (11)	28 (22)	14 (11)	14 (11)			13 (11)	13 (11)				13 (11)									
冷凍食品 （輸入品）																															
かん詰・びん詰食品 （輸入品）	30 (28)	228 (206)	7 (5)	21 (15)	7 (5)	7 (5)	7 (5)					7 (5)	14 (10)	7 (5)	7 (5)			41 (41)	160 (160)	7 (7)	17 (17)	17 (17)				17 (17)	17 (17)	17 (17)	17 (17)	17 (17)	17 (17)	17 (17)
添加物及びその製剤 （輸入品）																															
器具及び容器包装 （輸入品）																															
おもちゃ （輸入品）																															
その他（上記以外） （輸入品）	13 (2)	142 (35)	8 (1)	24 (3)	8 (1)	8 (1)	8 (1)					8 (1)	16 (2)	8 (1)	8 (1)			10 (2)	45 (9)		5 (1)	5 (1)				5 (1)	5 (1)	5 (1)	5 (1)	5 (1)	5 (1)	5 (1)

表６　食品等収去検査実施状況（詳細）　2/4

検体分類名	漂白剤			発色剤			品質改良剤・製造助剤							着色料																				
																法定タール色素												指定外タール色素								
	検体数	項目数	二酸化硫黄	検体数	項目数	亜硝酸根	検体数	項目数	シリコーン樹脂	流動パラフィン	水分含量	プロピレングリコール	総リン	正リン	ミョウバン	着色料　検体数	着色料　項目数	食用赤色２号	食用赤色３号	食用赤色４０号	食用赤色１０２号	食用赤色１０４号	食用赤色１０５号	食用赤色１０６号	食用黄色４号	食用黄色５号	食用緑色３号	食用青色１号	食用青色２号	アゾルビン	ファストレッドＥ	ポンソー６Ｒ	オレンジＲＮ	オレンジⅡ	キノリンイエロー	グリーンＳ	パテントブルーＶ	ブリリアントブラックＢＮ
検査件数合計 （輸入品）	25 (6)	25 (6)	25 (6)	44	44	44	19	38			19	19				106 (46)	1,203 (483)	83 (23)	83 (23)	83 (23)	83 (23)	83 (23)	83 (23)	83 (23)	83 (23)	83 (23)	83 (23)	83 (23)	83 (23)	23 (23)	23 (23)	23 (23)	23 (23)	23 (23)	23 (23)	23 (23)	23 (23)	23 (23)
基準等違反件数 （輸入品）																																			
魚介類 （輸入品）	4 (2)	4 (2)	4 (2)													1	12	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1								
魚介類加工品 （輸入品）				38	38	38										37	444	37	37	37	37	37	37	37	37	37	37	37	37								
肉卵類及びその加工品 （輸入品）				6	6	6																													
乳・乳製品及びその加工品 （輸入品）																																			
アイスクリーム類・氷菓 （輸入品）																3	36	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3								
穀類及びその加工品 （輸入品）	2	2	2				19	38			19	19				9	108	9	9	9	9	9	9	9	9	9	9	9	9								
野菜類・果物及びその加工品 （輸入品）	19 (4)	19 (4)	19 (4)													9 (4)	102 (42)	7 (2)	7 (2)	7 (2)	7 (2)	7 (2)	7 (2)	7 (2)	7 (2)	7 (2)	7 (2)	7 (2)	7 (2)	2 (2)	2 (2)	2 (2)	2 (2)	2 (2)	2 (2)	2 (2)	2 (2)
菓子類 （輸入品）																8 (8)	84 (84)	4 (4)	4 (4)	4 (4)	4 (4)	4 (4)	4 (4)	4 (4)	4 (4)	4 (4)	4 (4)	4 (4)	4 (4)	4 (4)	4 (4)	4 (4)	4 (4)	4 (4)	4 (4)	4 (4)	4 (4)
清涼飲料水 （輸入品）																10 (10)	105 (105)	5 (5)	5 (5)	5 (5)	5 (5)	5 (5)	5 (5)	5 (5)	5 (5)	5 (5)	5 (5)	5 (5)	5 (5)	5 (5)	5 (5)	5 (5)	5 (5)	5 (5)	5 (5)	5 (5)	5 (5)
酒精飲料 （輸入品）																21 (20)	222 (210)	11 (10)	11 (10)	11 (10)	11 (10)	11 (10)	11 (10)	11 (10)	11 (10)	11 (10)	11 (10)	11 (10)	11 (10)	10 (10)	10 (10)	10 (10)	10 (10)	10 (10)	10 (10)	10 (10)	10 (10)
冷凍食品 （輸入品）																																			
かん詰・びん詰食品 （輸入品）																3 (2)	33 (21)	2 (1)	2 (1)	2 (1)	2 (1)	2 (1)	2 (1)	2 (1)	2 (1)	2 (1)	2 (1)	2 (1)	2 (1)	1 (1)	1 (1)	1 (1)	1 (1)	1 (1)	1 (1)	1 (1)	1 (1)
添加物及びその製剤 （輸入品）																																			
器具及び容器包装 （輸入品）																																			
おもちゃ （輸入品）																																			
その他（上記以外） （輸入品）																5 (2)	57 (21)	4 (1)	4 (1)	4 (1)	4 (1)	4 (1)	4 (1)	4 (1)	4 (1)	4 (1)	4 (1)	4 (1)	4 (1)	1 (1)	1 (1)	1 (1)	1 (1)	1 (1)	1 (1)	1 (1)	1 (1)

表６　食品等収去検査実施状況（詳細）　3/4

検体分類名	成分規格　検体数	成分規格　項目合計	食品添加物製剤				乳理化学									金属等														材質試験・溶出試験																	
			検体数	項目数	確認試験	純度試験	検体数	項目数	比重	酸度	乳脂肪分	無脂乳固形分	水分	乳固形分	MFB	検体数	項目数	バリウム	カドミウム	鉛	ヒ素	セレン	水銀	銅	マンガン	六価クロム	ホウ素	アンチモン	検体数	項目数	材質試験（カドミウム）	材質試験（鉛）	材質試験（揮発性物質）	溶出試験（アンチモン）	溶出試験（ゲルマニウム）	溶出試験（重金属・Pbとして）	溶出試験（過マンガン酸カリウム消費量）	溶出試験（蒸発残留物）	溶出試験（着色料）	溶出試験（ヒ素・As2O3として））	溶出試験（チアベンダゾール）	溶出試験（イマザリル）	溶出試験（オルトフェニルフェノール）	溶出試験（ジフェニル）	溶出試験（二酸化硫黄）
検査件数合計 （輸入品）	27 (6)	140 (30)					6	15	2	2	5	2		4		13	83	7	13	7	7	7	7	7	7	7	7	7	8 (6)	42 (30)	2	2	2			2	2	2			6 (6)	6 (6)	6 (6)	6 (6)	6 (6)
基準等違反件数 （輸入品）																																													
魚介類 （輸入品）																																													
魚介類加工品 （輸入品）																																													
肉卵類及びその加工品 （輸入品）																																													
乳・乳製品及びその加工品 （輸入品）	2	8					2	8	2	2	2	2																																		
アイスクリーム類・氷菓 （輸入品）	4	7					4	7			3			4																																
穀類及びその加工品 （輸入品）	6	6														6	6		6																											
野菜類・果物及びその加工品 （輸入品）																																													
菓子類 （輸入品）																																													
清涼飲料水 （輸入品）	7	77														7	77	7	7	7	7	7	7	7	7	7	7	7																		
酒精飲料 （輸入品）																																													
冷凍食品 （輸入品）																																													
かん詰・びん詰食品 （輸入品）																																													
添加物及びその製剤 （輸入品）																																													
器具及び容器包装 （輸入品）	8 (6)	42 (30)																											8 (6)	42 (30)	2	2	2			2	2	2			6 (6)	6 (6)	6 (6)	6 (6)	6 (6)
おもちゃ （輸入品）																																													
その他（上記以外） （輸入品）																																													

表６　食品等収去検査実施状況（詳細）　4/4

検体分類名	その他　検体数	その他　項目合計	食品理化学													遺伝子組換え食品			特定原材料								
			検体数	項目数	シアン化合物	VBN	ヒスタミン	水分	水分活性	塩分	pH	酸価	過酸化物価	ダニ		検体数	項目数	遺伝子組換え大豆（定性）	検体数	項目数	卵	乳	小麦	そば	落花生	えび・かに
検査件数合計 （輸入品）	141 (3)	158 (3)	82 (1)	99 (1)	3		62 (1)			3	3	14	14			6	6	6	53 (2)	53 (2)	11 (1)	13	12 (1)	9		8
基準等違反件数 （輸入品）	2	2														1	1	1	1	1	1					
魚介類 （輸入品）	44	44	44	44			44																			
魚介類加工品 （輸入品）	26 (1)	26 (1)	16 (1)	16 (1)			16 (1)												10	10	2	1				7
肉卵類及びその加工品 （輸入品）																										
乳・乳製品及びその加工品 （輸入品）																										
アイスクリーム類・氷菓 （輸入品）																										
穀類及びその加工品 （輸入品）	15	19	4	8								4	4						11	11	4	1		6		
野菜類・果物及びその加工品 （輸入品）	19 (2)	22 (2)	6	9	3					3	3					6	6	6	7 (2)	7 (2)	1 (1)		5 (1)	1		
菓子類 （輸入品）	34	44	10	20								10	10						24	24	4	11	7	2		
清涼飲料水 （輸入品）																										
酒精飲料 （輸入品）																										
冷凍食品 （輸入品）																										
かん詰・びん詰食品 （輸入品）																										
添加物及びその製剤 （輸入品）																										
器具及び容器包装 （輸入品）																										
おもちゃ （輸入品）																										
その他（上記以外） （輸入品）	3	3	2	2			2												1	1						1

表９　農薬検査項目及び定量下限一覧

No.	項目	定量下限				試 験 法
		穀類	豆類	野菜	小麦粉	
(1)	１，１－ジクロロ－２，２－ビス（４－エチルフェニル）エタン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(2)	２－（１－ナフチル）アセタミド	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(3)	２，４－Ｄ	0.01	－	－	－	LC/MS/MS
(4)	４－ＣＰＡ	－	－	0.01	－	LC/MS/MS
(5)	ＢＨＣ	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(6)	ＤＤＴ	0.01	－	0.01	－	GC/MS/MS
(7)	ＥＰＮ	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(8)	ＸＭＣ	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(9)	アイオキシニル	0.01	－	0.01	－	LC/MS/MS
(10)	アクリナトリン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(11)	アザコナゾール	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(12)	アザメチホス	0.01	－	－	－	LC/MS/MS
(13)	アシフルオルフェン	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(14)	アジムスルフロン	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(15)	アジンホスメチル	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(16)	アセタミプリド	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(17)	アセフェート	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(18)	アゾキシストロビン	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(19)	アトラジン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(20)	アニロホス	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(21)	アメトリン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(22)	アラクロール	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(23)	アラマイト	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(24)	イサゾホス	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(25)	イソキサチオン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(26)	イソキサンジフェンエチル	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(27)	イソフェンホス	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(28)	イソプロカルブ	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(29)	イソプロチオラン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(30)	イプロバリカルブ	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(31)	イプロベンホス	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(32)	イマザキン	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(33)	イマザリル	0.01	－	0.01	－	LC/MS/MS
(34)	イマゾスルフロン	－	0.01	－	－	LC/MS/MS
(35)	イミダクロプリド	0.01	0.01	－	－	LC/MS/MS
(36)	インダノファン	－	－	0.01	－	LC/MS/MS
(37)	エスプロカルブ	0.01	－	0.01	－	LC/MS/MS
(38)	エタメツルフロンメチル	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(39)	エタルフルラリン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(40)	エチオン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(41)	エディフェンホス	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(42)	エトキサゾール	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(43)	エトキシスルフロン	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(44)	エトフェンプロックス	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(45)	エトプロホス	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(46)	エトリムホス	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(47)	エンドスルファン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(48)	オキサジアゾン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(49)	オキサジキシル	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(50)	オキサジクロメホン	－	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(51)	オキサミル	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(52)	オキシカルボキシン	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(53)	オメトエート	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(54)	オリサストロビン	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(55)	カズサホス	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(56)	カフェンストロール	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(57)	カルバリル	－	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(58)	カルフェントラゾンエチル	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(59)	キナルホス	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(60)	キノキシフェン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(61)	キノクラミン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS

表９　農薬検査項目及び定量下限一覧

No.	項目	定量下限				試 験 法
		穀類	豆類	野菜	小麦粉	
(62)	キントゼン	0.01	－	0.01	－	GC/MS/MS
(63)	クマテトラリル	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(64)	クミルロン	－	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(65)	クレソキシムメチル	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(66)	クロキントセットメキシル	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(67)	クロジナホップ酸	－	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(68)	クロチアニジン	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(69)	クロフェンテジン	－	－	0.01	－	LC/MS/MS
(70)	クロプロップ	0.01	－	－	－	LC/MS/MS
(71)	クロマゾン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(72)	クロマフェノジド	0.01	－	0.01	－	LC/MS/MS
(73)	クロランスラムメチル	－	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(74)	クロリダゾン	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(75)	クロリムロンエチル	0.01	0.01	－	－	LC/MS/MS
(76)	クロルエトキシホス	0.01	－	－	－	GC/MS/MS
(77)	クロルスルフロン	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(78)	クロルタールジメチル	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(79)	クロルデン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(80)	クロルピリホス	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(81)	クロルピリホスメチル	0.01	0.01	0.01	0.01	GC/MS/MS
(82)	クロルフェナピル	0.01	－	0.01	－	GC/MS/MS
(83)	クロルフェンソン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(84)	クロルフェンビンホス	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(85)	クロルブファム	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(86)	クロルベンシド	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(87)	クロロネブ	0.01	－	－	－	GC/MS/MS
(88)	クロロベンジレート	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(89)	シアゾファミド	－	0.01	－	－	LC/MS/MS
(90)	シアナジン	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(91)	シアノホス	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(92)	ジウロン	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(93)	ジエトフェンカルブ	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(94)	シクラニリド	0.01	0.01	－	－	LC/MS/MS
(95)	ジクロスラム	－	0.01	－	－	LC/MS/MS
(96)	シクロスルファムロン	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(97)	ジクロトホス	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(98)	ジクロフェンチオン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(99)	ジクロホップメチル	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(100)	ジクロラン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(101)	ジコホール	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(102)	シニドンエチル	0.01	－	0.01	－	GC/MS/MS
(103)	シノスルフロン	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(104)	ジノテフラン	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(105)	シハロホップブチル	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(106)	ジフェナミド	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(107)	ジフェノコナゾール	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(108)	シフルトリン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(109)	ジフルフェニカン	0.01	－	0.01	－	GC/MS/MS
(110)	シプロコナゾール	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(111)	シプロジニル	－	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(112)	ジベレリン	0.01	－	－	－	LC/MS/MS
(113)	シペルメトリン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(114)	シマジン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(115)	シメコナゾール	－	0.01	－	－	LC/MS/MS
(116)	ジメタメトリン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(117)	ジメチリモール	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(118)	ジメチルビンホス	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(119)	ジメテナミド	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(120)	ジメトエート	0.01	－	－	－	LC/MS/MS
(121)	ジメトモルフ	－	－	0.01	－	LC/MS/MS
(122)	シメトリン	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS

表９　農薬検査項目及び定量下限一覧

No.	項目	定量下限				試 験 法
		穀類	豆類	野菜	小麦粉	
(123)	ジメピペレート	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(124)	シロマジン	－	－	0.01	－	LC/MS/MS
(125)	スピロキサミン	－	－	0.01	－	GC/MS/MS
(126)	スルフェントラゾン	0.01	0.01	－	－	LC/MS/MS
(127)	スルホスルフロン	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(128)	ゾキサミド	－	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(129)	ターバシル	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(130)	ダイアジノン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(131)	ダイアレート	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(132)	ダイムロン	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(133)	チアクロプリド	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(134)	チアベンダゾール	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(135)	チアメトキサム	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(136)	チオベンカルブ	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(137)	チジアズロン	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(138)	チフェンスルフロンメチル	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(139)	チフルザミド	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(140)	テクナゼン	0.01	－	－	－	GC/MS/MS
(141)	デスメディファム	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(142)	テトラクロルビンホス	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(143)	テトラコナゾール	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(144)	テトラジホン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(145)	テニルクロール	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(146)	テブコナゾール	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(147)	テブチウロン	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(148)	テブフェンピラド	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(149)	テフリルトリオン	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(150)	テフルトリン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(151)	テフルベンズロン	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(152)	テルブトリン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(153)	トリアジメノール	0.01	－	－	－	LC/MS/MS
(154)	トリアジメホン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(155)	トリアスルフロン	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(156)	トリアゾホス	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(157)	トリアレート	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(158)	トリクロルホン	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(159)	トリシクラゾール	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(160)	トリブホス	－	－	0.01	－	GC/MS/MS
(161)	トリフルスルフロンメチル	0.01	－	0.01	－	LC/MS/MS
(162)	トリフルミゾール	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(163)	トリフルラリン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(164)	トリフロキシストロビン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(165)	トリフロキシスルフロン	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(166)	トリベヌロンメチル	0.01	－	0.01	－	LC/MS/MS
(167)	トルクロホスメチル	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(168)	トルフェンピラド	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(169)	ナプタラム	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(170)	ナプロアニリド	－	0.01	－	－	LC/MS/MS
(171)	ナプロパミド	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(172)	ニトロタールイソプロピル	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(173)	ノバルロン	－	－	0.01	－	LC/MS/MS
(174)	パクロブトラゾール	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(175)	パラチオン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(176)	パラチオンメチル	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(177)	ハルフェンプロックス	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(178)	ハロキシホップ	－	0.01	－	－	LC/MS/MS
(179)	ハロスルフロンメチル	0.01	0.01	－	－	LC/MS/MS
(180)	ピコリナフェン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(181)	ビテルタノール	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(182)	ビフェントリン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(183)	ピペロニルブトキシド	0.01	0.01	0.01	0.01	GC/MS/MS

表９　農薬検査項目及び定量下限一覧

No.	項目	定量下限				試 験 法
		穀類	豆類	野菜	小麦粉	
(184)	ピペロホス	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(185)	ピラクロストロビン	0.01	0.01	－	－	LC/MS/MS
(186)	ピラクロニル	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(187)	ピラクロホス	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(188)	ピラゾスルフロンエチル	0.01	0.01	－	－	LC/MS/MS
(189)	ピラゾホス	0.01	－	0.01	－	GC/MS/MS
(190)	ピラゾリネート	0.01	－	－	－	LC/MS/MS
(191)	ピラフルフェンエチル	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(192)	ピリダフェンチオン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(193)	ピリダベン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(194)	ピリフタリド	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(195)	ピリブチカルブ	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(196)	ピリプロキシフェン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(197)	ピリミカーブ	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(198)	ピリミジフェン	－	－	0.01	－	LC/MS/MS
(199)	ピリミノバックメチル	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(200)	ピリミホスメチル	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(201)	ピリメタニル	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(202)	ピロキロン	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(203)	ビンクロゾリン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(204)	フィプロニル	－	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(205)	フェナミホス	－	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(206)	フェナリモル	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(207)	フェニトロチオン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(208)	フェノキサニル	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(209)	フェノチオカルブ	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(210)	フェノトリン	－	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(211)	フェノブカルブ	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(212)	フェリムゾン	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(213)	フェンアミドン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(214)	フェンクロルホス	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(215)	フェンスルホチオン	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(216)	フェントエート	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(217)	フェントラザミド	－	0.01	－	－	LC/MS/MS
(218)	フェンバレレート	0.01	0.01	0.01	0.01	GC/MS/MS
(219)	フェンピロキシメート	0.01	－	－	－	LC/MS/MS
(220)	フェンブコナゾール	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(221)	フェンプロパトリン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(222)	フェンプロピモルフ	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(223)	フェンメディファム	0.01	0.01	－	－	LC/MS/MS
(224)	フサライド	0.01	－	0.01	－	GC/MS/MS
(225)	ブタクロール	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(226)	ブタミホス	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(227)	ブピリメート	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(228)	ブプロフェジン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(229)	フラザスルフロン	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(230)	フラムプロップメチル	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(231)	フラメトピル	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(232)	プリミスルフロンメチル	0.01	0.01	－	－	LC/MS/MS
(233)	フリラゾール	－	0.01	－	－	GC/MS/MS
(234)	フルアクリピリム	－	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(235)	フルキンコナゾール	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(236)	フルジオキソニル	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(237)	フルシトリネート	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(238)	フルシラゾール	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(239)	フルチアセットメチル	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(240)	フルトラニル	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(241)	フルトリアホール	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(242)	フルバリネート	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(243)	フルフェノクスロン	0.01	－	－	－	LC/MS/MS
(244)	フルフェンピルエチル	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS

表９　農薬検査項目及び定量下限一覧

No.	項目	定量下限				試 験 法
		穀類	豆類	野菜	小麦粉	
(245)	フルミオキサジン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(246)	フルミクロラックペンチル	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(247)	フルメツラム	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(248)	フルリドン	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(249)	プレチラクロール	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(250)	プロシミドン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(251)	プロスルフロン	－	－	0.01	－	LC/MS/MS
(252)	プロチオホス	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(253)	プロパキザホップ	0.01	－	－	－	LC/MS/MS
(254)	プロパジン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(255)	プロパニル	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(256)	プロパホス	－	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(257)	プロパルギット	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(258)	プロピコナゾール	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(259)	プロピザミド	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(260)	プロヒドロジャスモン	0.01	－	0.01	－	GC/MS/MS
(261)	プロフェノホス	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(262)	プロポキスル	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(263)	ブロマシル	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(264)	プロメトリン	－	－	0.01	－	GC/MS/MS
(265)	ブロモキシニル	0.01	－	－	－	LC/MS/MS
(266)	ブロモプロピレート	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(267)	ブロモホス	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(268)	ブロモホスエチル	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(269)	ヘキサコナゾール	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(270)	ヘキサジノン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(271)	ヘキサフルムロン	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(272)	ヘキシチアゾクス	0.01	0.01	－	－	LC/MS/MS
(273)	ベナラキシル	0.01	－	0.01	－	GC/MS/MS
(274)	ベノキサコール	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(275)	ペノキススラム	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(276)	ヘプタクロル	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(277)	ペンコナゾール	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(278)	ペンシクロン	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(279)	ベンスルフロンメチル	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(280)	ベンゾビシクロン	－	－	0.01	－	LC/MS/MS
(281)	ベンゾフェナップ	－	－	0.01	－	LC/MS/MS
(282)	ベンダイオカルブ	－	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(283)	ペンディメタリン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(284)	ベンフルラリン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(285)	ベンフレセート	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(286)	ホサロン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(287)	ボスカリド	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(288)	ホスチアゼート	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(289)	ホスファミドン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(290)	ホスメット	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(291)	ホメサフェン	－	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(292)	ホラムスルフロン	－	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(293)	ホルクロルフェニュロン	0.01	0.01	－	－	LC/MS/MS
(294)	ホレート	－	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(295)	マラチオン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(296)	ミクロブタニル	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(297)	メカルバム	－	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(298)	メソスルフロンメチル	0.01	0.01	－	－	LC/MS/MS
(299)	メタベンズチアズロン	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(300)	メタミドホス	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(301)	メタラキシル及びメフェノキサム	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(302)	メチダチオン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(303)	メトキシクロール	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(304)	メトキシフェノジド	－	－	0.01	－	LC/MS/MS
(305)	メトスラム	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS

表９　農薬検査項目及び定量下限一覧

No.	項目	定量下限				試 験 法
		穀類	豆類	野菜	小麦粉	
(306)	メトスルフロンメチル	－	－	0.01	－	LC/MS/MS
(307)	メトミノストロビン	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(308)	メトラクロール	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(309)	メビンホス	－	－	0.01	－	LC/MS/MS
(310)	メフェナセット	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(311)	メフェンピルジエチル	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(312)	メプロニル	0.01	0.01	0.01	－	GC/MS/MS
(313)	モノクロトホス	0.01	0.01	－	－	GC/MS/MS
(314)	モノリニュロン	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(315)	ラクトフェン	－	0.01	－	－	LC/MS/MS
(316)	リニュロン	－	0.01	－	－	LC/MS/MS
(317)	レスメトリン	－	0.01	－	－	GC/MS/MS
(318)	レナシル	0.01	－	0.01	－	LC/MS/MS

※ 単位は全てppm

表 12　動物用医薬品検査項目及び定量下限一覧

No.	項目	定量下限				試験法
		食肉	魚介類	乳	卵	
(1)	２－アセチルアミノ－５－ニトロチアゾール	0.01	－	0.01	0.01	LC/MS/MS
(2)	ブロマシル	－	0.01	0.01	0.01	LC/MS/MS
(3)	エリスロマイシン	－	－	0.01	－	LC/MS/MS
(4)	クロピドール	0.01	0.01	0.01	0.01	LC/MS/MS
(5)	オキシテトラサイクリン	－	0.02	－	－	LC/MS/MS
(6)	オキシテトラサイクリン，クロルテトラサイクリン及びテトラサイクリン	0.02	－	0.02	0.02	LC/MS/MS
(7)	クロルテトラサイクリン	－	0.02	－	－	LC/MS/MS
(8)	テトラサイクリン	－	0.02	－	－	LC/MS/MS
(9)	ジアベリジン	0.01	0.01	－	0.01	LC/MS/MS
(10)	エトパベート	－	0.01	0.01	0.01	LC/MS/MS
(11)	ファムフール	0.01	0.01	0.01	0.01	LC/MS/MS
(12)	キシラジン	0.01	－	0.01	0.01	LC/MS/MS
(13)	フェノブカルブ	0.01	0.01	0.01	0.01	LC/MS/MS
(14)	フルベンダゾール	－	0.01	－	0.01	LC/MS/MS
(15)	サラフロキサシン	－	－	－	0.01	LC/MS/MS
(16)	フルメキン	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(17)	ジクロキサシリン	0.01	－	0.01	－	LC/MS/MS
(18)	ケトプロフェン	0.01	0.01	0.01	0.01	LC/MS/MS
(19)	レバミゾール	0.01	0.01	0.01	0.01	LC/MS/MS
(20)	リンコマイシン	0.01	0.01	0.01	0.01	LC/MS/MS
(21)	マホプラジン	0.01	0.01	0.01	0.01	LC/MS/MS
(22)	メロキシカム	0.01	0.01	0.01	0.01	LC/MS/MS
(23)	メンブトン	0.01	0.01	0.01	0.01	LC/MS/MS
(24)	スルファセタミド	－	－	0.01	0.01	LC/MS/MS
(25)	ナリジクス酸	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(26)	オルビフロキサシン	0.01	0.01	0.01	0.01	LC/MS/MS
(27)	オルメトプリム	0.01	0.01	0.01	0.01	LC/MS/MS
(28)	オキサシリン	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(29)	オキシベンダゾール	0.01	0.01	0.01	0.01	LC/MS/MS
(30)	フェノキシメチルペニシリン	0.01	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(31)	プラジクアンテル	0.01	0.01	0.01	0.01	LC/MS/MS
(32)	プリフィニウム	0.01	0.01	0.01	0.01	LC/MS/MS
(33)	スルファベンズアミド	－	0.01	0.01	0.01	LC/MS/MS
(34)	スルファブロモメタジンナトリウム	0.01	0.01	0.01	0.01	LC/MS/MS
(35)	スルファクロルピリダジン	0.01	0.01	0.01	0.01	LC/MS/MS
(36)	スルフィソミジン	0.01	－	0.01	0.01	LC/MS/MS
(37)	タイロシン	－	－	－	0.01	LC/MS/MS
(38)	チアベンダゾール	0.01	－	0.01	0.01	LC/MS/MS
(39)	スルファジアジン	0.01	0.01	0.01	0.01	LC/MS/MS
(40)	スルファジメトキシン	－	0.01	0.01	0.01	LC/MS/MS
(41)	スルファジミジン	0.01	0.01	0.01	0.01	LC/MS/MS
(42)	ピリメタミン	0.01	－	0.01	－	LC/MS/MS
(43)	ピロミド酸	0.01	－	0.01	－	LC/MS/MS
(44)	スルファドキシン	－	0.01	0.01	0.01	LC/MS/MS
(45)	スルファエトキシピリダジン	0.01	0.01	0.01	0.01	LC/MS/MS
(46)	スルファメラジン	0.01	0.01	0.01	0.01	LC/MS/MS
(47)	スルファメトキサゾール	0.01	0.01	0.01	0.01	LC/MS/MS
(48)	スルファメトキシピリダジン	0.01	0.01	0.01	0.01	LC/MS/MS
(49)	スルファモノメトキシン	0.01	0.01	0.01	0.01	LC/MS/MS
(50)	スルファニトラン	0.01	0.01	0.01	0.01	LC/MS/MS
(51)	スルファピリジン	0.01	0.01	0.01	0.01	LC/MS/MS
(52)	スルファキノキサリン	－	0.01	0.01	－	LC/MS/MS
(53)	スルファチアゾール	0.01	0.01	0.01	0.01	LC/MS/MS
(54)	スルファトロキサゾール	0.01	0.01	0.01	0.01	LC/MS/MS
(55)	トリメトプリム	0.01	0.01	0.01	0.01	LC/MS/MS
(56)	トリペレナミン	0.01	0.01	0.01	0.01	LC/MS/MS

※ 単位は全てppm

3　環境科学（環境科学課）

定期業務として，河川等公共用水域，事業場排出水及び井戸水等の水質検査並びに大気環境中の大気汚染物質等の検査を行った．

また，検査の信頼性を確保するために精度管理を実施した．

1) 水質担当及び生物担当

(1) 公共用水域及び地下水等の水質検査

環境局環境保全課依頼により行った水質検査の検体数及び項目数を表 1 に示す．

表 1　公共用水域及び地下水等の水質検査状況

区分	検体数	項目数
河川調査	17	96
博多湾調査	110	777
地下水調査	52	765
ゴルフ場農薬調査	4	180
計	183	1,818

①河川調査

環境基準の類型指定がなされている 7 河川（金屑川，室見川，名柄川，十郎川，七寺川，江の口川，瑞梅寺川）の 8 地点（環境基準点）で年 1 回，要監視項目の水生生物保全項目である 4-*t*-オクチルフェノール及び 2,4-ジクロロフェノールについて検査を行った．また，全環境基準点 16 地点で年 1 回，令和 2 年 5 月に要監視項目に指定されたペルフルオロオクタンスルホン酸（PFOS）及びペルフルオロオクタン酸（PFOA）について検査を行った．調査地点を図 1 に示す．

②博多湾調査

博多湾の環境基準点のうち東部，中部，西部海域各 1 地点（E-2，C-4，W-3）で年 12 回，環境基準の水生生物保全項目であるノニルフェノール，直鎖アルキルベンゼンスルホン酸及びその塩（LAS）の検査を行った．さらに，西部海域の環境基準点 3 地点（W-3，W-6，W-7）で年 1 回，要監視項目の水生生物保全項目である 4-*t*-オクチルフェノール及び 2,4-ジクロロフェノールの検査を行った．また，環境基準点 3 地点で年 1

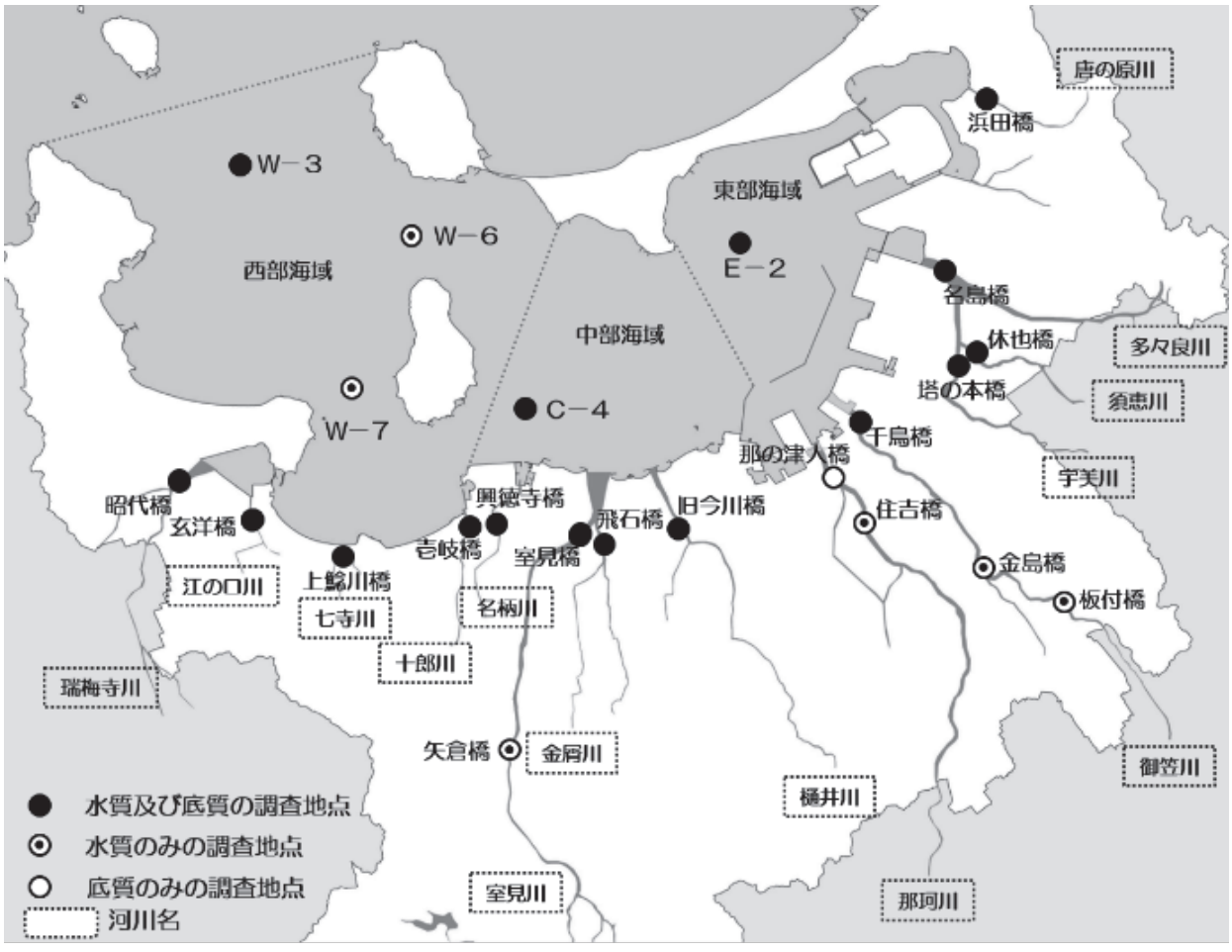


図 1　河川及び博多湾調査地点

回，ペルフルオロオクタンスルホン酸（PFOS）及びペルフルオロオクタン酸（PFOA）について検査を行った．調査地点を図 1 に示す．

③地下水調査

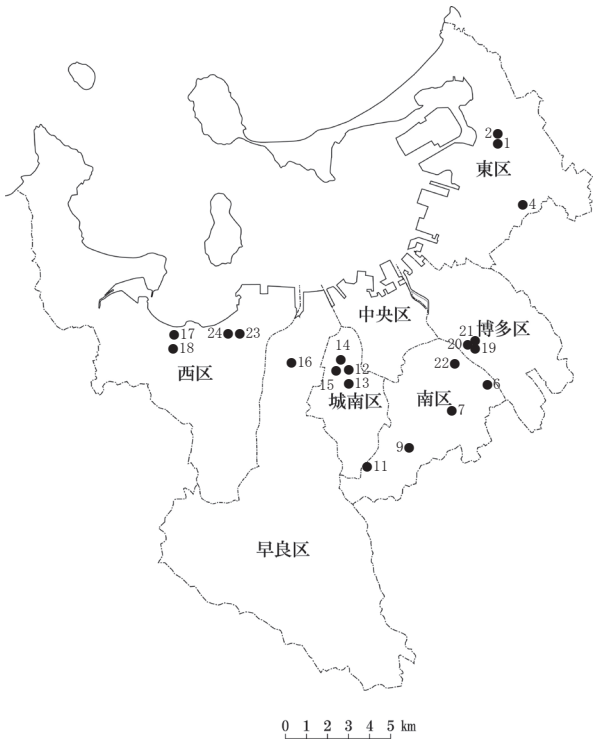
市内の地下水汚染状況を調べる概況調査において，13 地点で主に環境基準項目の検査を年 1 回行った．また，継続監視調査として，クリーニング所の周辺井戸等 20 地点で地下水環境基準を超えたテトラクロロエチレン及びその分解生成物であるジクロロエチレン等の低沸点有機塩素化合物の検査を，六価クロムによる土壌汚染が判明した土地の周辺井戸 3 地点で六価クロムの検査を年 2 回行った．それらの検査項目を表 2 に示す．また，継続監視調査の地点を図 2 に示す．

④ゴルフ場農薬調査

市内の 3 ゴルフ場の排水等について，「福岡県ゴルフ場農薬適正使用指導要綱」に基づき，ゴルフ場で使用されている農薬 43 種類の検査を年 1 回行った．

表 2　地下水検査項目

＜環境基準項目＞		
カドミウム	1,1-ジクロロエチレン	硝酸性窒素及び亜硝酸性窒素
全シアン	1,2-ジクロロエチレン	ふっ素
鉛	1,1,1-トリクロロエタン	ほう素
六価クロム	1,1,2-トリクロロエタン	1,4-ジオキサン
砒素	トリクロロエチレン	
総水銀	テトラクロロエチレン	＜一般項目及びその他の項目＞
アルキル水銀	1,3-ジクロロプロペン	p H
PCB	チウラム	電気伝導率
ジクロロメタン	シマジン	シス-1,2-ジクロロエチレン
四塩化炭素	チオベンカルブ	トランス-1,2-ジクロロエチレン
1,2-ジクロロエタン	ベンゼン	
クロロエチレン	セレン	



No.	測定地点
1	東区香椎駅前 No.1
2	東区香椎駅前 No.2
4	東区土井
6	南区井尻
7	南区中尾
9	南区花畑 No.2
11	南区桧原
12	城南区田島 No.1
13	城南区田島 No.2
14	城南区茶山 No.1
15	城南区茶山 No.2
16	早良区南庄
17	西区今宿駅前
18	西区今宿東
19	博多区博多駅南 No.1
20	博多区博多駅南 No.2
21	博多区博多駅南 No.3
22	南区那の川
23	西区下山門 No.1
24	西区下山門 No.2

※No. 3、8、10は採水ができなかったため調査なし
※No. 5は継続監視終了

図 2　地下水継続監視地点図

(2) 公共用水域の底質調査

環境局環境保全課依頼により，図 1 に示す河川及び博多湾の 17 地点の底質について，環境基準及び要監視項目の水生生物保全項目であるノニルフェノール及び 4-*t*-オクチルフェノールの調査を年 1 回行った．検体数及び項目数を表 3 に示す．

表 3　公共用水域の底質調査状況

区分	検体数	項目数
河川調査	14	28
博多湾調査	3	6
計	17	34

(3) 特定事業場検査

環境局環境保全課依頼により水質汚濁防止法に定める特定事業場（25 施設）の排出水について BOD 等の生活環境項目，重金属等の有害物質の検査を行った．検体数及び項目数を表 4 に示す．

表 4　特定事業場検査状況

区分	検体数	項目数
特定事業場排出水	36	271

(4) 生活衛生関係検査

各区衛生課依頼による遊泳用プール水（48 施設）及び各区生活環境課依頼による浄化槽放流水（27 浄化槽）の水質検査を行った．検体数及び項目数を表 5 に示す．

表 5　生活衛生関係検査状況

区分	検体数	項目数
遊泳用プール水	76	228
浄化槽放流水	27	162
計	103	390

(5) 井戸水等検査

市民依頼の井戸水等の水質検査を行った．飲用井戸等衛生対策要領に基づく検査のうち，依頼が最も多かったのは簡易項目（pH，濁度，色度，臭気，硝酸態窒素及び亜硝酸態窒素，亜硝酸態窒素，塩化物イオン，カルシウム，マグネシウム等（硬度），有機物（全有機炭素（TOC）の量），鉄及びその化合物）であり，その他，味等の定性試験項目や相談の内容に応じて分析を行う任意項目の依頼があった．また，建築物における衛生的環境の確保に関する法律に基づくビル管項目の依頼があった．検体数及び項目数を表 6 に示す．

表 6　井戸水等検査状況

区分	検体数	項目数
簡易項目	718	7,180
定性試験項目	191	191
任意項目	3	6
ビル管項目	12	208
計	924	7,585

(6) 保健環境研究所排出水検査

下水道法に定める特定事業場である保健環境研究所の下水排出水について，重金属等の有害物質の検査を年 4 回行った．検体数及び項目数を表 7 に示す．

表 7　保健環境研究所排出水検査

区分	検体数	項目数
保健環境研究所排出水	4	120

(7) 博多湾プランクトン調査

環境局環境調整課依頼により博多湾の環境基準点 E-6，C-10，C-4，W-7 の表層と底層において月 1 回，植物プランクトン出現数の計測を実施した．検体数及び項目数を表 8 に示す．

表 8　博多湾プランクトン調査状況

区分	検体数	項目数
植物プランクトン	96	96

(8) 精度管理

精度管理の実施状況を表 9 に，外部精度管理の実施状況内訳を表 10 に示す．

表 9　精度管理の実施状況総括

区分	検体数	項目数
外部精度管理	2	13
内部精度管理	23	136
計	25	149

表 10　外部精度管理の実施状況内訳

区分	調査項目
環境測定分析	
（模擬水質試料）	ジクロロメタン
	テトラクロロエチレン
	ベンゼン
	シス-1,2-ジクロロエチレン
	1,4-ジオキサン
	トリクロロエチレン
	トランス-1,2-ジクロロエチレン
	1,2-ジクロロエタン
	四塩化炭素
（模擬排水試料）	COD
	全窒素
	硝酸性窒素
	亜硝酸性窒素

2) 大気担当

環境局環境保全課依頼により大気検査を行った．検体数及び項目数を表 11 に示す．

表 11　大気検査状況

区分	検体数	項目数
降下ばいじん	11	132
酸性雨	88	968
フロン類	6	18
有害大気汚染物質（一般環境）	52	572
特定悪臭物質	0	0
$PM_{2.5}$ 成分分析	160	6,560
計	317	8,250

(1) 降下ばいじん

デポジットゲージ法により，博多区の 1 地点で測定を行った．

測定項目は，捕集液総量，降下ばいじん総量，不溶解性物質（総量，タール性物質，タール性物質以外の可燃性物質，灰分），溶解性物質（総量，灰分，強熱減量），pH，イオン成分（SO_4^{2-}，Cl^-）である．

(2) 酸性雨

早良区の曲渕ダム，城南区の城南区役所の 2 地点で雨水を採取し測定を週 1 回行った．

曲渕ダム，城南区役所における測定項目は，湿性沈着物の降水量，pH，電気伝導率，イオン成分（SO_4^{2-}，NO_3^-，Cl^-，NH_4^+，Na^+，K^+，Ca^{2+}，Mg^{2+}）である．

(3) フロン類

オゾン層破壊物質であるフロン 11，フロン 12，フロン 113 の大気環境濃度の測定を年 2 回行った．

(4) 有害大気汚染物質（一般環境）

大気汚染防止法に基づき，一般環境中の有害大気汚染物質の測定を月 1 回行った．

測定項目は，国において定められた優先取組物質 23 物質のうちベンゼン，トリクロロエチレン，テトラクロロエチレン，アクリロニトリル，塩化ビニルモノマー，クロロホルム，1,2-ジクロロエタン，ジクロロメタン，1,3-ブタジエン，塩化メチル，トルエンの 11 物質である．

(5) 特定悪臭物質

悪臭防止法に基づき規制の対象とされている 22 物質について検査を行っている．令和 5 年度は依頼がなかった．

(6) $PM_{2.5}$ 成分分析

春吉局及び元岡局において，季節毎に各 2 週間連続で毎日採取した $PM_{2.5}$ の成分分析を行った．

測定項目は，イオン成分（SO_4^{2-}，NO_3^-，Cl^-，NH_4^+，Na^+，K^+，Ca^{2+}，Mg^{2+}），無機元素成分（Na，Al，Si，K，Ca，Sc，Ti，V，Cr，Mn，Fe，Co，Ni，Cu，Zn，As，Se，Rb，Mo，Sb，Cs，Ba，La，Ce，Sm，Hf，W，Th，Ta，Pb），炭素成分（有機炭素，無機炭素）及び質量濃度である．

(7) 精度管理

精度管理の実施状況を表 12 に，外部精度管理の実施状況内訳を表 13 に示す．

表 12　精度管理の実施状況総括

区分	検体数	項目数
外部精度管理	2	20
内部精度管理	70	840
計	72	860

表 13　外部精度管理の実施状況内訳

区分	調査項目
酸性雨	pH
（模擬降水試料）	電気伝導率
	イオン成分 8 項目
	（SO_4^{2-}，NO_3^-，Cl^-，
	NH_4^+, Na^+, K^+, Ca^{2+}, Mg^{2+}）

4　危機管理

生物剤及び化学剤によるテロ，感染症・食中毒，災害に伴う環境汚染等の危機発生時に，的確な検査を行う等検査体制を強化するため，各種研修・訓練を行った．保健科学課の理化学部門では，健康危機発生時における検査体制の確立及び関係機関との連携・協力体制の検証を目的とした地方衛生研究所全国協議会九州ブロック実施の模擬訓練を行い，事前に，関係機関との研修を実施した．令和 5 年度に実施した危機管理に関する研修・訓練を表 1 に示す.

表 1　危機管理に関する研修・訓練

研修・訓練名	内　容	日 程	参加者
防護服着脱訓練	・防護服着脱訓練	6/2	保健科学課 15名
新型インフルエンザ等検査訓練	・新型コロナウイルス検査	7/21,8/2	保健科学課 5名
ヒスタミン分析訓練	・ヒスタミンによる食中毒を想定した検査	8/2～3	保健科学課 7名
自然毒・化学物質等による食中毒を想定した模擬訓練事前研修	・自然毒・化学物質等による主な食中毒と試験及び保健環境研究所危機管理対応マニュアルの概要	9/14	保健科学課 13名 食品安全推進課 2名 中央区衛生課 2名 城南区衛生課 1名
放射線モニタリング訓練	・放射線の基礎（座学） ・防護服の着脱，放射線測定（実技）	9/21	保健環境研究所長 保健科学課 2名 環境科学課 5名
有害物質の探索訓練	・LC-QTOFMS を使用した有害物質の探索訓練	10/5～6	保健科学課 7 名
重金属等混入事案訓練	・重金属による食中毒を想定した検査（ICP-MS）	10/26	保健科学課 7名
健康被害原因物質分析訓練	・地方衛生研究所全国協議会九州ブロックが実施する模擬訓練（ナツメグの過剰摂取による食中毒（エレミシン）を想定した事案）	11/15～17	保健環境研究所長 保健科学課 16名 環境科学課　4名
NAGINATA訓練	・環境水質事故時の原因物質の推定訓練 ・通常時の河川水の確認及びデータ取り	12/12～27	環境科学課 3名
火災原因油種分析訓練	・火災発生時の火災原因物質の推定訓練	12/12～1/4	環境科学課 3名
ツキヨタケ食中毒を想定した健康危機管理訓練	・ツキヨタケが含有する毒成分（イルジンS）による食中毒を想定した検査	12/20	保健科学課 4名
GC-MSを用いた異臭原因物質の特定訓練	・異臭発生時を想定した大気のサンプリング ・GC-MS測定，解析	12/20	環境科学課 5名
炭疽菌検査訓練	・炭疽菌検査	12/26	保健科学課 7名
金属関連定性分析操作訓練	・河川着色及び魚のへい死を想定した分析訓練	3/11	保健科学課 4名 環境科学課 4名
消防局及び保健医療局保健環境研究所の合同訓練	・B災害等対応連携強化に向けた消防局との合同訓練	3/25	保健科学課 9名 環境科学課 3名

Ⅲ　非　定　期　業　務

1　微生物（保健科学課）

非定期業務として，行政からの依頼検査，感染症発生動向調査に関わるウイルス検査及び感染症法に基づく細菌検査を行った．検体数及び項目数を表 1 に示す．

表 1　非定期業務総括

区分	検体数	項目数
1）細菌担当		
行政からの依頼検査（細菌）	393	2,039
2）ウイルス担当		
行政からの依頼検査（ウイルス）	195	532
感染症発生動向調査事業（全数把握・ウイルス）	159	415
3）感染症担当		
感染症法に基づく細菌検査	430	430
行政からの依頼検査	131	160
計	1,308	3,576

1) 細菌担当

食品衛生法に基づく保健所からの依頼検査等を実施した．細菌検査の検体数の総括を表 2 に示す．

表 2　検体数総括

区分	検体数	項目数
食品衛生法に基づく保健所からの依頼検査	354	1,999
その他	39	40
計	393	2,039

(1) 食品衛生法に基づく保健所からの依頼検査

細菌担当では，43 事例，354 検体，1,999 項目について検査を行った．これらのうち，保健所により病因物質が断定又は推定されたものは 26 事例，判明率は 60%であった．

病因物質が断定又は推定できたものの内訳は，カンピロバクター・ジェジュニ/コリ 14 事例，ノロウイルス 6 事例，クドア・セプテンプンクタータ 2 事例であった．項目数の内訳を表 3 に，詳細を「Ⅷ　資料（令和 5 年度食中毒・相談等に伴う保健所からの依頼検査）」に示す．

(2) その他の依頼検査

その他の依頼検査の内訳を表 4 に示す．

表 4　その他の依頼検査の内訳

区分	検体数	検査項目	(項目数)
施設調査	35	レジオネラ属菌	(35)
プール水	1	一般細菌数，大腸菌	(2)
浴槽水	1	大腸菌群数	(1)
河川水	2	鉄バクテリア顕鏡	(2)
計	39		(40)

2) ウイルス担当

保健所から依頼される食中毒，集団胃腸炎及び感染症発生動向調査において全数把握の対象となる感染症のウイルス検査を実施した．

表 5　検体数総括

区分	検体数	項目数
食品衛生法に基づく保健所からの依頼検査	136	318
感染症法に基づく保健所からの依頼検査	59	214
感染症発生動向調査事業（全数把握・ウイルス）	159	415
計	354	947

(1) 食品衛生法に基づく保健所からの依頼検査

ウイルス担当では，食品衛生法に基づく保健所からの依頼 25 事例，136 検体についてノロウイルス，ロタウイルス及びアデノウイルスの検査を行った．11 事例，60 検体からノロウイルスを検出した．月別の検出事例数を表 6 に示す．

(2) 感染症法に基づく保健所からの依頼検査

感染症法に基づく保健所からの依頼（集団胃腸炎）16 事例，59 検体について，ノロウイルス，ロタウイルス及びアデノウイルスの検査を行い，10 事例，31 検体からノロウイルスを検出した．月別の検出事例数を表 6 に示す．さらに追加検査を依頼された事例の検体について，アストロウイルス，サポウイルス及びアイチウイルスの検査を行い，3 事例，7 検体からサポウイルス又はアストロウイルスを検出した．

(3) 感染症発生動向調査事業（全数把握・ウイルス）

感染症発生動向調査事業における全数把握対象疾患（43 症例，159 検体）のウイルス検査結果を実施した．対象疾患ごとの検査状況を表 7 に示す．

⑷ 新型コロナウイルスゲノム解析

国の通知に基づき，保健所から依頼があった 8 検体及び民間検査機関から提供を受けた 2,298 検体の計 2,306 検体の SARS-CoV-2 陽性検体のうち 1,372 検体についてゲノム解析を実施した．なお，これらの SARS-CoV-2 陽性検体は，リアルタイム PCR により Ct 値を確認したのち，ゲノム解析に供した．月別のゲノム解析実施数を表 8 に示す．

表 3　食中毒・相談等に伴う保健所からの依頼検査項目内訳

		ヒト便・吐物	菌株	食品(残物・参考品)	ふきとり	その他	計
検体数		203	7	70	71	3	354
検査項目数計		1,646	7	77	263	6	1,999
検査項目	サルモネラ属菌	189			71		260
	コアグラーゼ陽性ブドウ球菌	190		1	71		262
	腸炎ビブリオ	133					133
	腸管出血性大腸菌	47		7	5	3	62
	その他の病原性大腸菌	43		47	5	3	98
	ウェルシュ菌	133		22			155
	セレウス菌	133					133
	エルシニア	129					129
	カンピロバクター	165	7		40		212
	ビブリオ・フルビアリス	129					129
	エロモナス・ハイドロフィラ						0
	エロモナス・ソブリア						0
	プレシオモナス・シゲロイデス						0
	ＮＡＧビブリオ	129					129
	ブドウ球菌エンテロトキシン						0
	クドア・セプテンプンクタータ	8					8
	コレラ菌						0
	大腸菌群	194			71		265
	その他	24					24

表 6　食品衛生法に基づく依頼検査及び感染症法に基づく依頼検査におけるノロウイルス検出事例数（月別）

	4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3	計
食品衛生法に基づく依頼検査	2		1						1	3	2	2	11
感染症法に基づく依頼検査			2					4	2	1	1		10
計	2		3					4	3	4	3	2	21

表 7　感染症発生動向調査事業（全数把握・ウイルス）の検査状況

対象疾患	検体数	検査項目（項目数）	陽性数
中東呼吸器症候群（MERS）	1	MERS ウイルス（1）	0
A 型肝炎	2	遺伝子型別検査（2）	2
E 型肝炎	4	遺伝子型別検査（4）	3
小児の原因不明の急性肝炎	10	アデノウイルス（10）	0
		単純ヘルペスウイルス（4）	0
		ヒトヘルペスウイルス（10）	0
		エンテロウイルス（4）	0
		ロタウイルス（1）	0
デング熱・チクングニア熱・ジカ熱	5	デングウイルス（5）	0
		チクングニアウイルス（5）	0
		ジカウイルス（2）	1
エムポックス	2	エムポックスウイルス（2）	2
		水痘帯状疱疹ウイルス（2）	0
リケッチア症・ 重症熱性血小板減少症候群（SFTS）	87	SFTS ウイルス（40）	0
		紅斑熱群リケッチア（36）	7※
		つつがむし病リケッチア（36）	0
		日本紅斑熱抗体（20）	2
		つつがむし病抗体（20）	0
麻しん・風しん	20	麻しんウイルス（20）	0
		風しんウイルス（20）	0
急性脳炎	27	ウイルス分離（11）	0
		麻しんウイルス（15）	0
		風しんウイルス（15）	0
		エンテロウイルス（21）	0
		ライノウイルス（6）	1
		アデノウイルス（27）	1
		ロタウイルス（21）	0
		サポウイルス（5）	0
		インフルエンザウイルス（16）	0
		パラインフルエンザウイルス（6）	0
		単純ヘルペスウイルス（21）	0
		新型コロナウイルス（6）	1
新型コロナウイルス感染症	1	新型コロナウイルス（1）	0
計	159	（415）	20

※*Rickettsia japonica*（日本紅斑熱リケッチア）のほか *Rickettsia typh*i が検出された 2 件を含む.

表 8　ゲノム解析実施数（月別）

	令和 5 年									令和 6 年			計
	4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3	
Ct 値確認のための SARS-CoV-2 検査数	108	244	453	542	410	284	55	31	48	51	52	28	2,306
ゲノム解析	64	76	277	188	188	188	188	57	39	22	53	32	1,372

3) 感染症担当

感染症法に基づく細菌検査（健康診断）及び保健所等からの依頼検査を実施した．検査区分ごとの検体数及び項目数を表 9 に示す．

表 9　検体数総括

区分	検体数	項目数
感染症法に基づく細菌検査	430	430
行政からの依頼検査	131	160
計	561	590

(1) 感染症法に基づく細菌検査

感染症法に基づく細菌検査（健康診断）を 430 検体実施した．それらの病原菌別検体数及び項目数を表 10 に，詳細を「Ⅷ　資料（令和 5 年度 三類感染症発生状況）」に示す．

表 10　病原菌別検査状況

区分	検体数	項目数
腸管出血性大腸菌	422	422
チフス菌	8	8
計	430	430

(2) 行政からの依頼検査

行政からの依頼検査内訳を表 11 に，分子疫学解析（PFGE）の詳細を「Ⅷ　資料（令和 5 年度 感染症（細菌）の分子疫学解析結果）」に示す．

表 11　行政からの依頼検査内訳

区分	検体数	検査項目（項目数）
病原菌同定検査	92	腸管出血性大腸菌（90） チフス菌（2）
レジオネラ症患者検査	5	レジオネラ属菌　(5)
分子疫学解析（PFGE）	16	腸管出血性大腸菌（4） レジオネラ属菌（3） 薬剤耐性菌（6） サルモネラ属菌（3）
腸内病原菌検査	17	腸管出血性大腸菌（17） サルモネラ属菌（17） 赤痢菌（12）
病原菌遺伝子検査	1	ジフテリア毒素遺伝子（1）
計	131	(160)

２　理化学（保健科学課）

非定期業務として，食品衛生法に基づく保健所からの依頼検査，その他の依頼検査，血中 PCB の検査を実施した．検体数及び項目数を表 1 に示す．

表 1　非定期業務総括

区分	検体数	項目数
食品衛生法に基づく保健所からの依頼検査	15	36
その他の依頼検査	11	71
血中 PCB の検査	37	37
計	63	144

1) 食品化学担当

(1) 食品衛生法に基づく保健所からの依頼検査

食品衛生法に基づく保健所からの依頼検査では，表 2 のとおり 15 検体，36 項目の検査を実施した．

(2) その他の依頼検査

その他の依頼検査では，表 3 のとおり 11 検体，71 項目の検査を実施した．

2) 微量分析担当

(1) 血中 PCB の検査

福岡県油症一斉検診に参画し，検診受診者の血液 33 検体及び対照血液（ポジティブコントロール 1 検体及びネガティブコントロール 3 検体）について血中 PCB の検査を実施した．

表 2　食品衛生法に基づく保健所からの依頼検査内訳

No.	依頼日	依頼元	検体	主な検査項目	検体数	項目数
1	4月 12 日	中央	鯖へしこの異味	ヒスタミン	3	3
2	5月 24 日	西	豚キムチ中の異物	検鏡，SEM，EDS，FT-IR	2	8
3	8月 4 日	東	しょうゆ漬けの異臭	残留塩素	2	2
4	8月 9 日	中央	牛肉及び牛肉調理品中の異物	検鏡，FT-IR	3	6
5	9月 27 日	城南	ハンバーグ中の異物	検鏡，SEM，FT-IR，オイルレッド染色	1	4
6	3月 18 日	城南	パン中の異物	検鏡，SEM，EDS，GC	1	4
7	3月 19 日	博多	オム焼きそば中の異物	検鏡，SEM，EDS	3	9
				計	15	36

表 3　その他の依頼検査内訳

No.	依頼日	依頼元	検体	主な検査項目	検体数	項目数
1	8月 8 日	博多	化粧品	ホルムアルデヒド	1	1
2	11月 28 日	保医）地域医療課	いわゆる健康食品	医薬品成分	10	70
				計	11	71

3　環境科学（環境科学課）

非定期業務として，行政からの依頼検査及び環境省委託調査を行った．検体数及び項目数を表 1 に示す．

表 1　非定期業務総括

区分	検体数	項目数
行政からの依頼検査	70	525
環境省委託調査	4	14
その他の調査	4	36
計	78	575

1) 水質担当及び生物担当

(1) 行政からの依頼検査

行政依頼検査の検体数及び項目数を表 2 に示す．

表 2　行政からの依頼検査状況

区分	検体数	項目数
水質関係相談等依頼検査	27	142
地下水汚染井戸周辺調査等	17	221
埋却地周辺の水質調査	12	78
計	56	441

①水質関係相談等依頼検査

市民からの相談を受けた行政部局から，臨時に依頼されたもの等である．検体数及び項目数を表 3 に，詳細を「Ⅷ 資料（令和 5 年度　水質関係相談処理等依頼検査結果）」に示す．

表 3　水質関係相談等依頼検査状況

区分	検体数	項目数
環境局環境保全課	7	103
各区生活環境課	11	17
その他	9	22
計	27	142

②地下水汚染井戸周辺調査等

環境局環境保全課の依頼で，汚染井戸周辺地区調査として博多区吉塚の地下水概況調査地点の周辺井戸について，地下水汚染が確認された近隣自治体周辺地域である博多区浦田・月隈の井戸について，また東区原田地区の地下水継続監視調査を終了するために同地区周辺井戸について地下水調査を実施した．検体数及び項目数を表 4 に示す．

表 4　地下水汚染井戸周辺調査等状況

地区	検体数	項目数
博多区吉塚	9	144
博多区浦田・月隈	3	27
東区原田	5	50
計	17	221

③埋却地周辺の水質調査

農林水産局農業振興課依頼により，高病原性鳥インフルエンザの埋却処理地周辺の水質調査（硝酸性窒素及び亜硝酸性窒素，COD，T-N，SS，pH，電気伝導率，陽イオン界面活性剤）を実施した．検体数及び項目数を表 5 に示す．

表 5　埋却地周辺の水質調査状況

区分	検体数	項目数
公共用水域	12	78
計	12	78

(2) 環境省委託調査

環境省が化学物質の環境中の残留状況を調べるために実施している化学物質環境実態調査について，本市では令和 4 年度に，初期環境調査，詳細環境調査及びモニタリング調査の 3 つの調査を受託した．

初期環境調査，詳細環境調査及びモニタリング調査では，博多湾の水質（1 検体）及び底質（3 検体）のサンプリング並びに基礎項目の分析を行った．さらに，初期環境調査では，シプロフロキサシンの分析を行った．詳細を「Ⅷ 資料（令和 5 年度化学物質環境実態調査（シプロフロキサシン）」に示す．調査状況を表 6 に示す．

表 6　化学物質環境実態調査状況

項目	水質	底質	計
pH	1	0	1
濁度	1	0	1
電気伝導率	1	0	1
COD	1	0	1
DO	1	0	1
SS	1	0	1
塩化物イオン	1	0	1
シプロフロキサシン	1	0	1
水分含有量	0	3	3
強熱減量	0	3	3
計	8	6	14

(3) その他の調査

多々良川の環境評価のための底生動物及び水質の調査を年 1 回 4 地点で行った．検体数及び項目数を表 7 に示す.

表 7　その他の調査状況

区分	検体数	項目数
河川の底生動物調査	4	36
計	4	36

2) 大気担当

(1) 行政からの依頼検査

環境局環境保全課からの依頼により行った大気検査の検体数及び項目数を表 8 に示す.

表 8　行政からの依頼検査状況

区分	検体数	項目数
アスベスト（空気中濃度）	12	72
アスベスト（同定）	2	12
計	14	84

Ⅳ　情報発信・提供事業

1　保健環境学習室「まもるーむ福岡」

保健や環境に関する情報の提供と学習の場として，子どもから大人まで楽しく学べる保健環境学習室「まもるーむ福岡」を保健環境研究所に併設している．

映像クイズや実験など体験しながら学ぶ「体験学習ゾーン」とタッチパネルでの学習クイズや展示物を見て学ぶ「展示学習ゾーン」を開設しており，保健や環境に関する書籍・DVD 等教材の無料貸出を行っているほか，週末には，専門家による講座や体験型イベント等を開催している．

また，環境保全活動に取り組む NPO 団体や個人等の交流・連携の支援も行っており，さまざまな活動の発表会や情報交換をしあう交流会等を開催している．

令和 5 年度来館者数は 6,120 人であった．前年度（5,879 人）に比べると，来館者数はやや増加した．

来館者	大人・子ども別内訳		団体・一般別内訳	
人数	大人	子ども	団体	一般
6,120 人	2,894 人	3,226 人	1,563 人	4,557 人

書籍・DVD 等	利用者数	貸出数
の貸出	608 人	1,692 冊

1)企画イベント

環境や保健衛生，生物多様性をテーマに，子どもから大人までを対象とした講座や観察会等を実施した．

講座名	対象	回数	参加者数	プログラム
特別講座	小学生～大人	14 回	404 人	ナメクジの凄い能力を知ろう カイコが支えるヒトの未来　等
実験教室	小学生	10 回	263 人	手に乗るシャボン玉を作ってみよう 極低温の世界を体験しよう 等
ラボ体験	子ども～大人	10 回	246 人	暗闇で光るスライムを作ろう シュワシュワと泡がでる入浴剤を作ろう 等
カブトガニ観察会	子ども～大人	6 回	109 人	「生きている化石」カブトガニを間近で観察してみよう
生物多様性講座	子ども～大人	2 回	65 人	干潟の生きものイラストでマイキーホルダーづくり　等
企業との連携	子ども～大人	1 回	27 人	プラスチックごみの削減とはみがき講座～体験エコバッグ作り～



薬屋さんを体験しよう



カイコが支えるヒトの未来〈病気予防と昆虫食〉



手に乗るシャボン玉を作ってみよう



風船ロケットを飛ばしてみよう

2)常設体験プログラム

クイズを中心に保健や環境について学ぶ映像シアター「ガイア」や，実験や工作などを通して学ぶミラクルラボ体験教室を随時実施した.

講座名	実施回数	利用者数	プログラム
映像シアター「ガイア」	67 回	1,568 人	おうちがなくなる？　海の色のひみつ　等
ミラクルラボ体験教室	53 回	1,330 人	暗闇で光るスライム，カラフルな人工いくら　等

3)NPO 等との共働・連携

環境保全活動推進のための連携体制の構築を目指し，環境保全活動に取り組む NPO 団体や個人，事業者等が，交流や情報交換を行う場として，「生きものと私たちのくらしトーク・カフェ」「ふくおか環境連絡交流会」及び「ふくおか環境活動発表会」を開催した.

講座名	回数	参加者数	プログラム
生きものと私たちのくらし トーク・カフェ	3 回	88 人	もっと気軽に！子どもと楽しむ自然体験 まちなかの木々を愛でる 「自宅で湿地帯ビオトープ」とは何か？
ふくおか環境連絡交流会	1 回	13 人	動画で分かる環境活動の魅力
ふくおか環境活動発表会	1 回	29 人	子どもと自然を学ぶ



トーク・カフェ
「まちなかの木々を愛でる」



ふくおか環境活動発表会
「子どもと自然を学ぶ」

4)環境活動 NEWS の発行

環境活動を行う NPO 団体や個人，事業者等の交流や連携を支援する取組みについて，情報発信を行った．

No.	発行月
環境活動 NEWS 9 号	R5. 12 月
環境活動 NEWS 10 号	R6. 3 月

２　体験学習，出前講座等

1)ほかんけん研究者体験

福岡市保健環境研究所（通称「ほかんけん」）の検査等を体験する講座（中学生～高校生向け）を，2 階会議室や実験室等で実施した．

講座名	対象	参加者数
DNA 分析にチャレンジ！	中学生～高校生	12 人
井戸水の安全性を確認してみよう～井戸水＝安心・安全？～	中学生～高校生	4 人

(1) 保健科学課

講座名　DNA 分析にチャレンジ！
日時　令和 5 年 8 月 22 日（火曜日）13：30～16：30
場所　2 階会議室（見学：4 階）
対象　中学生，高校生
人数　12 名
内容　食品から抽出した DNA を用いた食物アレルゲンの検査及び保健環境研究所の見学



(2) 環境科学課

講座名　井戸水の安全性を確認してみよう～井戸水＝安心・安全？～
日時　令和 5 年 8 月 18 日（金曜日）13：30～16：30
場所　5 階
対象　中学生，高校生
人数　4 名
内容　井戸水の安全性や検査方法について学び，複数の試料を用いて，実際に井戸水の検査を体験した．



2)出前講座

福岡市では，平成 13 年 11 月から市の担当職員が地域に出向いて，市の取組みや暮らしに役立つ情報などを説明する「出前講座」を行っており，令和 5 年度は以下のテーマで実施した．

令和 5 年度テーマ	実施回数	参加者数
食品添加物の話	3 回	45 人

3)環境に関するイベントへの出展

環境関連情報の発信のため，イベントへのブース出展を行った.

○生きものと私たちのくらし展
○出展ブース名　　川の生きものによる水質調査
○日時　　令和 5 年 5 月 17 日（水）～23 日（火）
○場所　　福岡市役所 1 階多目的スペース



出展ブース（生きものと私たちのくらし展）

3　施設見学・視察の受け入れ

区分	回数	延べ人数
学校関係	2 回	18 人
行政関係	2 回	18 人

4　広報誌等における情報の発信

1)関係機関が発行する広報誌及び WEB による情報提供

広報誌「暮らし上手のヒント」及び福岡市のホームページ（https://www.city.fukuoka.lg.jp/hofuku/shokuhinanzen/life/syokuhinanzen-ansin/kurashijouzu_vol12.html）を通して，広く市民に保健に関する情報の提供を行った.

広報誌（紙）名	投稿記事	発行者
暮らし上手のヒント Vol.12	食の安全・安心を科学的検査で支える	保健医療局生活衛生部

2)マスコミを通じた情報提供

テレビ，新聞等を通して，広く市民に保健や環境に関する情報の提供を行った.

期　日	内　　容	取材機関
R5. 6.26	（まもるーむ福岡）生物多様性クイズ，顕微鏡にによる微生物観察など，「体験型学習施設」まもるーむ福岡の紹介	TNC ももち浜ストア

5　調査研究等報告会

1)保健科学課業務報告会

(1)細菌・食品化学・微量分析担当

業務上関連のある所属の職員を対象に，保健科学課で実施した各種検査，危機管理訓練についての報告及びポスターセッション形式で個別の質問・相談会を行った.

○開 催 日　　令和 6 年 2 月 7 日（水）
○参加者数　　22 名
○プログラム
①病原性大腸菌を検出した食中毒事例
②食品に関する相談事例
③自然毒・化学物質等による食中毒に備えた危機管理訓練
④個別の質問・相談会（自由参加）

(2)ウイルス・感染症担当

業務上関連のある所属の職員を対象に，保健科学課で実施した各種検査及び調査研究の報告会を開催した．

○開 催 日　令和 6 年 2 月 29 日（木）

○参加者数　26 名

○プログラム

①保健所依頼のウイルス検査について

②新型コロナウイルス感染症検査対応について

③薬剤耐性菌の分子疫学解析

2)環境科学課業務報告会

業務上関連のある所属の職員を対象に，環境科学課で実施した各種検査及び調査研究の報告会を開催した．

(1)大気担当

○開 催 日　令和 6 年 1 月 17 日（水）

○参加者数　4 名

○プログラム

①福岡市における光化学オキシダントの長期的な推移と高濃度要因の検討

②福岡市における $PM_{2.5}$ 各成分の経年変化及び発生源寄与割合の推移

(2)水質・生物担当

○開 催 日　令和 6 年 2 月 16 日（金）

○参加者数　17 名

○プログラム

①河川事故時における未知物質の定性分析について

②油流出事故時の油種分析について

③DNA によるヒアリの同定と網羅的魚類のモニタリングについて

④浄化槽放流水の水質結果の考え方について

⑤保環研ツアー及び環境科学課の分析体験

3)県内保健環境研究所合同発表会

福岡県保健環境研究所及び北九州市保健環境研究所とともに，令和 5 年度は福岡県の担当により新型コロナウイルス感染症検査に関する合同成果発表会を開催した．

○開 催 日　令和 5 年 11 月 22 日（水）

○参加者数　27 名

○プログラム

①エクセル関数・マクロを用いた新型コロナウイルス PCR 検査の効率化（北九州市）

②新型コロナウイルス発症日以降の Ct 値の推移について（北九州市）

③新型コロナウイルス流行下におけるその他呼吸器ウイルスの検出状況（福岡県）

④北九州市における新型コロナウイルス感染症への対応と今後の課題（北九州市）

⑤福岡市における新型コロナウイルス検査対応について（福岡市）

⑥福岡県保健環境研究所における新型コロナウイルス感染症に係る取組（福岡県）

V　技　術　研　修　等

1　指導研修

1)研修生受入

研修・実習内容	日程	研修生・実習生	対応課
行政検査等に係る感染症担当者研修会	6/9	市職員（区健康課等）　17名	保健科学課
新任食品衛生監視員技術研修会（微生物部門）	8/17	新任食品衛生監視員　7名	保健科学課
新任食品衛生監視員技術研修会（理化学部門）	8/18	新任食品衛生監視員　7名	保健科学課
インターンシップ研修	8/25， 28～29	九州産業大学生命科学部 生命科学科学生　2名	保健科学課 環境科学課
インターンシップ研修	8/30～31	九州産業大学付属 九州産業高等学校学生　1名	保健科学課 環境科学課
職場体験研修	9/12，14	市職員（技術職）　1名	保健科学課
職場体験研修	10/3	市職員（技術職）　1名	環境科学課

2　学会，研修等（WEB 等を含む）

1)学会等

用務	日程	主催	開催都市	参加職員数
第32回感染研シンポジウム	5/22	国立感染症研究所	WEB 参加	環境科学課 3 名
国立研究開発法人国立環境研究所公開シンポジウム 2023	6/22	国立環境研究所	WEB 参加	環境科学課 4 名
II型共同研究「海域における気候変動と貧酸素水塊（DO）/有機物（COD）/栄養塩に係る物質循環との関係に関する研究」令和5年度全体会議（第1回）	6/26	国立環境研究所及び地方環境研究所	WEB 参加	環境科学課 2 名
インフルエンザ・レファレンス等関連会議	6/29	国立感染症研究所	WEB 参加	保健科学課 3 名
衛生微生物技術協議会第43回研究会	7/5～6	岐阜県保健環境研究所	岐阜県岐阜市	保健科学課 2 名
ノロウイルス（下痢症ウイルス）レファレンスセンター会議	7/24	国立感染症研究所	WEB 参加	保健科学課 4 名
第 5 回SFTS研究会学術集会	9/2	SFTS 研究会	WEB 参加	保健科学課 3 名
第 25 回腸管出血性大腸菌感染症研究会	9/12～13	岐阜大学	岐阜県岐阜市	保健科学課 1 名
第 64 回大気環境学会年会	9/13～15	公益社団法人 大気環境学会	茨城県つくば市	環境科学課 1 名
第 49 回九州衛生環境技術協議会	10/12～13	九州衛生環境技術協議会	福岡市	保健科学課 15 名 環境科学課 6 名
第 119 回日本食品衛生学会学術講演会	10/12～13	日本食品衛生学会	東京都江戸川区	保健科学課 2 名

用務	日程	主催	開催都市	参加職員数
廃棄物・土壌分野における有機フッ素化合物（PFAS）問題の動向と最新の知見	10/23	廃棄物資源循環学会	WEB 参加	環境科学課 3 名
令和 5 年度地域レファレンスセンター連絡会議（地域保健総合推進事業）	10/26	北九州市保健環境研究所	北九州市	保健科学課 2 名
水・大気環境連携セミナー	10/31	公益社団法人 日本水環境学会	WEB 参加	環境科学課 3 名
第 26 回自然系調査研究機関連絡会議（NORNAC26）	11/2～3	環境省	WEB 参加	環境科学課 1 名
第 60 回全国衛生化学技術協議会年会	11/9～10	全国衛生化学技術協議会	福島県福島市	保健科学課 3 名
第 46 回農薬残留分析研究会	11/13～14	日本農薬学会 農薬残留分析研究会	長野県長野市	保健科学課 1 名
II型共同研究「里海里湖流域圏が形成する生態系機能・生態系サービスとその環境価値に関する研究」令和 5 年度第 1 回連絡会議	11/20～21	国立環境研究所及び地方環境研究所	長崎県長崎市（一部 WEB 参加）	環境科学課 2 名
令和 5 年度地方衛生研究所全国協議会近畿支部 自然毒部会研究発表会	11/24	地方衛生研究所全国協議会　近畿支部	WEB 参加	保健科学課 6 名
第 6 回環境 DNA 学会九州大会	12/4～5	一般社団法人 環境 DNA 学会	福岡市	環境科学課 2 名
アルボウイルスレファレンスセンター関連会議	12/6	国立感染症研究所	WEB 参加	保健科学課 1 名
アデノウイルスレファレンスセンター会議	12/21	国立感染症研究所	WEB 参加	保健科学課 2 名
日本マイコトキシン学会第 90 回学術講演会	1/10	日本マイコトキシン学会	東京都世田谷区	保健科学課 1 名
II型共同研究「災害時等における化学物質の網羅的簡易迅速測定法を活用した緊急調査プロトコルの開発」全体会合	1/16	国立環境研究所	茨城県つくば市	環境科学課 1 名
令和 5 年度化学物質環境実態調査環境科学セミナー	1/29～30	環境省	WEB 参加	環境科学課 3 名
II型共同研究「光化学オキシダント等の変動要因解析を通した地域大気汚染対策提言の試み」Ox 高濃度グループ会合	1/31	国立環境研究所及び地方環境研究所	WEB 参加	環境科学課 4 名
第 39 回全国環境研究所交流シンポジウム	2/15～16	国立環境研究所	WEB 参加	環境科学課 2 名
II型共同研究「海域における気候変動と貧酸素水塊（DO）/有機物（COD）/栄養塩に係る物質循環との関係に関する研究」令和 5 年度全体会議（第 2 回）	2/20	国立環境研究所及び地方環境研究所	大阪市	環境科学課 1 名

用務	日程	主催	開催都市	参加職員数
令和 5 年度九州ブロック模擬訓練事業結果検討会	2/22	地方衛生研究所全国協議会　九州支部	WEB 参加	保健科学課 10 名
第 58 回日本水環境学会年会	3/6～8	公益社団法人 日本水環境学会	福岡市	環境科学課 2 名
第 24 回大気環境学会九州支部研究発表会	3/8	大気環境学会九州支部	福岡市	環境科学課 2 名
日本農薬学会第 49 回大会	3/14～16	日本農薬学会	奈良県奈良市	保健科学課 1 名
II型共同研究「里海里湖流域圏が形成する生態系機能・生態系サービスとその環境価値に関する研究」令和 5 年度第 2 回連絡会議	3/15	国立環境研究所及び地方環境研究所	WEB 参加	環境科学課 1 名

2) 研修等

用務	日程	主催	開催都市	参加職員数
地衛研 WEB セミナー（第 2 回）	4/24	地方衛生研究所全国協議会	WEB 参加	保健科学課 4 名
令和 5 年度第 1 回感染症危機管理研修会	5/26	国立感染症研究所	WEB 参加	保健科学課 3 名
第 2 回エアロゾル学会若手会基礎講習会	6/2	エアロゾル学会	WEB 参加	環境科学課 4 名
第 34 回酸性雨東京講演会	6/9	大気環境学会関東支部大気沈着部会	WEB 参加	環境科学課 2 名
第 47 回環境研究合同発表会	6/21	神奈川県市環境研究機関協議会	WEB 参加	環境科学課 2 名
令和 4 年度環境測定分析統一精度管理調査結果説明会	6/23	環境省	WEB 参加	環境科学課 5 名
令和 5 年度環境測定分析統一精度管理調査 九州ブロック会議	7/13	環境省	WEB 参加	環境科学課 3 名
第 14 回 FDSC 食品衛生精度管理セミナー	7/28	一般財団法人 食品薬品安全センター	東京都大田区	保健科学課 1 名
第 61 回分析化学講習会	8/8～10	日本分析化学会 九州支部	福岡市	保健科学課 1 名
令和 5 年度食品衛生検査施設信頼性確保部門責任者等研修会	8/16	厚生労働省 国立医薬品食品衛生研究所	WEB 参加	保健科学課 10 名
令和 4 年度食中毒疫学研修会（初級）伝達講習会	8/17	保健医療局生活衛生部食品安全推進課	福岡市	保健科学課 4 名
健康危機管理に関する技術研修	8/21	宮崎県衛生環境研究所	宮崎県宮崎市	保健科学課 1 名

用務	日程	主催	開催都市	参加職員数
令和 5 年度　国立衛研シンポジウム	8/23	国立医薬品食品衛生研究所	WEB 参加	保健科学課 3 名
令和 5 年度病原体等の包装・運搬講習会	8/24	厚生労働省健康局結核感染症課	福岡市	保健科学課 3 名
II型共同研究行政支援研究グループ第 1 回 RK 法勉強会	8/25	国立環境研究所及び地方環境研究所	WEB 参加	環境科学課 4 名
令和 5 年度薬剤耐性菌の検査に関する研修　基本コース	9/26～28	国立感染症研究所	東京都武蔵村山市	保健科学課 1 名
令和 5 年度薬剤耐性菌の検査に関する研修　アップデートコース	9/28	国立感染症研究所	東京都武蔵村山市（一部 WEB 参加）	保健科学課 3 名
HIV確認検査試薬に関するWEB研修会	10/13	大阪健康安全基盤研究所	WEB 参加	保健科学課 2 名
令和 5 年度地域保健総合推進事業地域専門家会議（九州ブロック）	11/17	北九州市保健環境研究所	北九州市	保健科学課 2 名
令和 5 年度食品中の残留農薬等に関するリスクコミュニケーション公開講座	11/17	日本食品衛生協会 日本食品衛生学会	大阪市	保健科学課 1 名
II型共同研究行政支援研究グループ第 2 回 RK 法勉強会	11/20	国立環境研究所及び地方環境研究所	WEB 参加	環境科学課 4 名
第 3 回 窒素循環シンポジウム	11/27	産業技術総合研究所	WEB 参加	環境科学課 3 名
令和 5 年度 公開調査研究発表会	11/28	農林水産消費安全技術センター	WEB 参加	保健科学課 4 名
令和 5 年度風疹実験室検査法の実地研修会	11/30～12/1	国立感染症研究所	東京都武蔵村山市	保健科学課 1 名
令和 5 年度水質分析研修 B コース	12/4～8	環境省環境調査研修所	埼玉県所沢市	環境科学課 1 名
第 21 回食品安全フォーラム	12/8	日本薬学会レギュラトリーサイエンス部会	東京都渋谷区	保健科学課 1 名
II型共同研究第 1 回 Ox 生成メカニズム勉強会	12/8	国立環境研究所及び地方環境研究所	WEB 参加	環境科学課 4 名
食品衛生危機管理研修伝達講習会	12/14	保健医療局生活衛生部食品安全推進課	福岡市	保健科学課 1 名
II型共同研究行政支援研究グループ第 3 回 RK 法勉強会	12/15	国立環境研究所及び地方環境研究所	WEB 参加	環境科学課 4 名
令和 5 年度検査機関に対する検査能力・精度管理等の向上を目的とした講習（検査能力向上講習会）	12/19～20	国立感染症研究所	WEB 参加	保健科学課 2 名
法学および工学的アプローチの連携による火災・事故時における化学物質と環境リスク管理制度並びに情報基盤に関する研究　地環研机上演習	1/17	国立環境研究所	茨城県つくば市	環境科学課 1 名

用務	日程	主催	開催都市	参加職員数
令和 5 年度動物由来感染症リファレンスセンター研修会	1/17～18	国立感染症研究所	東京都武蔵村山市	保健科学課 1 名
令和 5 年度ヒアリ講習会	1/22	環境省	福岡市	環境科学課 1 名
令和 5 年度 地方衛生研究所全国協議会 理化学部会 衛生理化学分野研修会	1/23	地方衛生研究所全国協議会　理化学部会	WEB 参加	保健科学課 10 名
II型共同研究第 2 回 Ox 生成メカニズム勉強会	2/9	国立環境研究所及び地方環境研究所	WEB 参加	環境科学課 4 名
令和 5 年度希少感染症診断技術研修会	2/14～15	国立感染症研究所	WEB 参加	保健科学課 8 名
令和 5 年度「ワンヘルス動物由来感染症サーベイランスの全国展開に向けた基盤構築に資する調査研究」技術研修会	2/15～16	福岡県保健環境研究所	福岡県太宰府市	保健科学課 2 名
令和 5 年度自治体職員向け ISO/IEC17025 研修会	2/19	公益財団法人日本適合性認定協会	WEB 参加	保健科学課 1 名
II型共同研究第 3 回 Ox 生成メカニズム勉強会	2/29	国立環境研究所及び地方環境研究所	WEB 参加	環境科学課 4 名
産学公民連携共同研究事業成果報告会	3/12	川崎市	WEB 参加	環境科学課 3 名
令和 5 年度 食品内で発見される昆虫等に関する検査技術研修会	3/12	地方衛生研究所全国協議会　保健情報疫学部会	WEB 参加	保健科学課 2 名
II型共同研究統計モデルグループ R 勉強会	3/13	国立環境研究所及び地方環境研究所	WEB 参加	環境科学課 4 名
群馬県衛生環境研究所・食品安全検査センター 令和 5 年度 業績発表会	3/21	群馬県	WEB 参加	環境科学課 3 名

Ⅵ　調　査・研　究

福岡市における光化学オキシダントの長期的な推移と高濃度要因の推定

副田大介・中島亜矢子・辻井温子・島田友梨

福岡市保健環境研究所環境科学課

Long-term Trends and Factors Contributing to High Concentrations of Photochemical Oxidants in Fukuoka City

Daisuke SOEDA , Ayako NAKASHIMA , Atsuko TSUJII and Yuri SHIMADA

Environmental Science Section, Fukuoka City Institute of Health and Environment

Summary

We analyzed photochemical oxidant (Ox) data obtained from permanent monitoring stations installed throughout Fukuoka Prefecture, including Fukuoka City, and attempted to estimate the factors contributing to the increase in Ox in the city. A cluster analysis was conducted for 41 stations in the prefecture using data from FY2008 to FY2020. The results were classified into five regions, suggesting differences in nitric oxide (NOx) titration effects and the influence of advection in each region. Based on the analysis of the weekend effect on high Ox concentration days, we predicted that the reduction of volatile organic compounds (VOCs) in urban areas and the reduction of NOx in the suburbs would be effective in reducing Ox concentrations in Fukuoka City. Based on these results, Shiyakusho Station (urban area) and Kashii Station (suburban area) were selected, and the partial least squares (PLS) regression model was used to estimate the factors that increased Ox concentrations in April, May, July, and August. The results showed that non-methane hydrocarbon (NMHC) and NOx contributed to the increase in daytime Ox concentrations at Shiyakusho and Kashii stations, respectively, suggesting that the optimal countermeasures for each area differed in the PLS regression model. This study suggests that, as a countermeasure for Ox pollution in the city, an effective strategy is to expand the NOx-limited area throughout the city by reducing NOx concentrations at the suburban level in parallel with the reduction of VOC concentrations in urban areas.

Key Words：光化学オキシダント　Photochemical Oxidant，クラスター解析　Cluster Analysis，週末効果　Weekend Effect，オゾン生成レジーム　Ozone Formation Regime，PLS 回帰　Partial Least Square Regression

1　はじめに

光化学オキシダント（以下，「Ox」とする．）は，窒素酸化物（以下，「NOx」とする．）や揮発性有機化合物（以下，「VOC」とする．）から光化学反応によって生成する，オゾンを主成分とする酸化性物質である．福岡市において Ox の環境基準達成率は，全国と同様に極めて低い状況であり，2022 年度の環境基準達成局は 0 であった[1)]．NOx や VOC の削減対策によって，Ox 前駆物質の濃度が減少しているにも関わらず，本市での Ox 年平均値は 1980 年度から 2000 年度にかけて長期的な増加傾向にある[2)]．直近では 2019 年 5 月 23 日に福岡市・北九州市など福岡県の広い範囲で光化学オキシダント注意報が発令されるなど，依然として 120 ppb を超えるような高濃度事例も観測されている．

この原因として，オゾン消失を伴う NO タイトレーション効果の低下や越境移流による Ox 濃度の増加[2)]等が考えられるが，地域によって発生源や移流による影響が異なるため，地域的な Ox 汚染状況の把握とその要因の明確化が求められる．

地域的な大気汚染物質の汚染状況を把握する手法としてクラスター分析がある．千葉県ではクラスター分析による大気常時監視測定局の分類で，都市域のクラスターで NO タイトレーション効果の影響が大きいことを報告

している[3]．また，金らはボックスモデルの計算領域を決定するために，兵庫県及び大阪府における一般大気測定局（兵庫：74 局，大阪：32 局）をクラスター分析により 3 つのクラスターに分類し，各クラスターをモデルの計算領域として設定した[4]．このように，多数の測定局のデータがある場合に，汚染状況の類似性から測定局をグループ化することは，地域の汚染状況に即した解析を行う上で有効である．

また，前駆物質の減少とは対照的に Ox 濃度が改善されない理由の一つとして，オゾンの生成濃度が前駆物質に対して非線形的に変化することが挙げられる．この非線形的な変化はオゾン生成レジームで表すことができ，Fig. 1 にそのモデル図を示す（井上ら[5]のオゾン濃度等値線図を引用）．オゾン濃度と NOx，VOC 濃度との非線

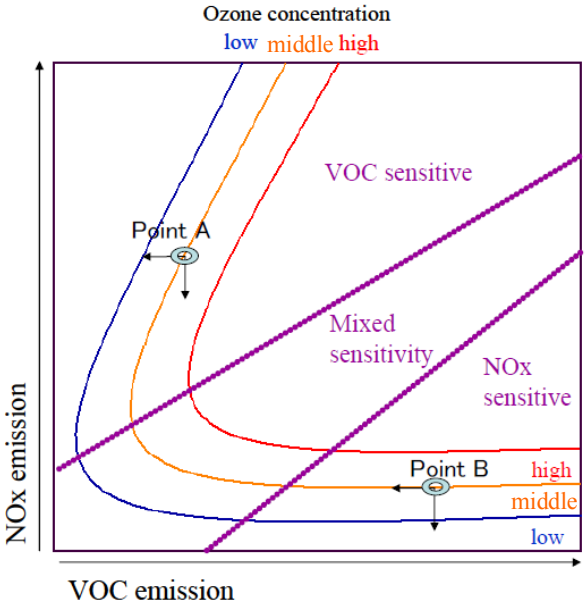


Fig.1 The schematic diagram of ozone concentration sensitivity to NOx and VOC emissions

形的な関係は，VOC 律速領域（VOC sensitive）と NOx 律速領域（NOx sensitive）の 2 種類に大別される．VOC 律速領域（Fig. 1 点 A）では，オゾン濃度は VOC 濃度の削減で減少するが，NOx 濃度の削減ではほとんど減少しないか，又は逆に増加する．NOx 律速領域（Fig. 1 点 B）では，オゾン濃度は NOx 濃度の削減で減少するが，VOC 濃度の削減ではほとんど減少しない．従って，ある地点のオゾン生成レジームを捉え，VOC 律速か NOx 律速かを把握することは，NOx 又は VOC 濃度のどちらを削減することが Ox 濃度低減に効果的かを予測することに繋がるため，Ox 対策上有効である[6]．

オゾン生成レジームを推定する手法には，主に二つの手法が用いられている．一つは，実測値を用いずにシミュレーションを基にした感度解析を行う方法である．九州では山村らが 2018 年夏季の高濃度日を対象に感度解析を行い，NOx と VOC 削減の効果に地域的な違いがあることを指摘している[7]．しかし，化学輸送モデルに基づくこの手法は，排出量データを推定するためのインベントリ整理にかかる時間から，現時点と排出量データが反映された時点とのタイムラグが生じるため，目的によっては排出量データ更新後の推計に限界がある[8]．一方で，実測値を基にオゾン生成レジームを推定する方法として，神成が提唱した Ox 濃度の週日から週末にかけての変動，いわゆる週末効果を利用した手法がある．Ox 濃度のパーセンタイル点に沿って，週日から週末にかけての変化を調査し，特定のパーセンタイル点で週末におけるオゾン濃度の上昇又は低下が逆転する現象を発見し，この反転現象が VOC 律速と NOx 律速の違いに対応することを報告している[9]．週末効果の反転現象には，低パーセンタイル点（オゾン濃度が低い日）で VOC 律速寄り，高パーセンタイル点（オゾン濃度が高い日）で NOx 律速寄りという特徴があるとともに，NOx や VOC の発生源地域で VOC 律速寄り，遠隔地域で NOx 律速寄りという空間的な特徴があることが言われている[10]．つまり，任意の地点におけるオゾン生成レジームを推定するためには，オゾン濃度等値線上で NOx，VOC 濃度を比較することがデータ解析の指針として提案される[6]．しかしながら，この手法に基づく報告は関東・関西地域に限定されており，前駆物質の汚染状況や越境移流の影響が異なる九州地域での解析はまだ行われていない．

また，ある変数が変動する要因を，複数の変数の中から見つける手法に多変量解析がある．PLS（Partial Least Square）回帰は多変量解析の手法の一つであり，分析化学の一分野として 1970 年代に誕生した計量化学（ケモメトリックス）という分野で広く利用されてきた[11, 12]．PLS 回帰は，複数の説明変数と目的変数の間の関係をモデル化するために用いられ，特に，説明変数間の多重共線性が問題となる場合に有効である．この手法では，変数間の相関を利用して，説明変数の新たな次元（主成分）を生成し，主成分を用いて目的変数を予測する．同様に多重共線性を回避する手法として主成分回帰があるが，主成分回帰が目的変数とは無関係に，主成分の分散が最大になるように主成分を抽出するのに対し，PLS 回帰は目的変数と主成分の共分散が最大になるように抽出するため，一般に予測精度が主成分回帰よりも高いと言われている[12]．PLS 回帰は大気環境分野での活用例は見られないが，気温と日射の関係等，一般的に相関性が高い気象データの場合でも，そのまま回帰式を構築する方法として有効であると考えられる．PLS 回帰では，目的変数への寄与が大きい説明変数を抽出することができるため，これをオゾン生成レジームの推定と組み合わせ

ることで結果の妥当性を評価できるものと考えられる．

以上のことから本研究では，まず，クラスター分析により，Ox 汚染状況の類似性から測定局をグループ化し，県内の地域特性を把握する．次に，実測値を基に県内のオゾン生成レジームを推定し，VOC 律速領域と NOx 律速領域の区別を試みた．また，PLS 回帰を用いて，本市における高濃度要因を地点間で比較し，得られた結果からオゾン生成レジームの推定結果の妥当性を検証した．

2　研究方法

2.1　解析地点及び使用データ

解析地点は，福岡県内の大気常時監視測定局のうち，期間中に継続した Ox 測定データのあった 41 局及び地域汚染の影響が少ない長崎県の対馬局とした. Ox 測定の継続性としては，1 日 20 時間以上測定した日数が年間 250 日以上ある年が 9 年以上あることを条件として抽出した．また本市の Ox 測定局のうち，都市部の代表局として市役所局，郊外部の代表局として香椎局を選定した．市役所局は，本市の中心地である天神に位置する一般環境大気測定局である．用途区分は商業地域であり，周辺には多くの商業施設が立ち並ぶとともに，交通の要所となっている．香椎局は，市役所局から東に約 10 km の場所に位置する一般環境大気測定局である．用途区分は住居専用地域であり，周辺には住宅が多い．大気汚染物質の測定データは，選定局の Ox，NOx，非メタン炭化水素（メタンを除く VOC の総称．以下，「NMHC」とする．）濃度の 1 時間値を使用した（ただし NMHC 濃度は一部の測定局のみで測定している）．気象データは各地域の測定局又は管区気象台から取得した．本市内の測定局，糸島局，太宰府局，宗像局は福岡管区気象台データ，北九州市内の測定局，苅田局，豊前局は北九州局データ，久留米市内の測定局，大牟田市内の測定局，筑後小郡局，柳川局は佐賀管区気象台データ，直方局，田川局は飯塚管区気象台データの 1 時間値を使用した．なお，850 hPa 比湿については，朝 9 時の高層気象データを 1 日の代表値として用いた．

2.2　解析期間

福岡県内の Ox 濃度の長期的な推移を調べるにあたり，解析期間が長く，かつ測定局数を確保できる，2008～2020 年度を対象期間とした．解析期間の 13 年間において，異常気象等の突発的要因の影響を小さくし，かつ一定のデータ数を確保して解析するため，2008～2011 年度を A 期，2012～2015 年度を B 期，2016～2020 年度を C 期としてそれぞれの期間（A 期，B 期は 4 年間，C 期は 5 年間）に区切った．

2.3　解析手法

2.3.1　クラスター分析

本報では，階層別クラスタリングの代表的な手法の一つである ward 法を使用し，距離にはユークリッド距離を用いた．使用データは，環境省の方法[13]に従い，測定局の Ox 濃度 1 時間値データから，Ox 日最高 8 時間平均値（以下，「MDA8」とする．）を求め，この年間 99 パーセンタイル値を算出し，各年度の濃度とした．MDA8 の年間 99 パーセンタイル値（以下，「MDA8-99」とする．）は，年度内で 4 番目に高い値に相当するため，極めて高い濃度の値を外れ値として除いたうえで，高濃度を抽出する指標である．なお，この濃度の 3 年移動平均値を求めたものが新指標とされ，長期的な推移を把握し，環境改善効果を検証する上で有効とされている[13]．

2.3.2　クラスターごとの濃度変化

A-C 期の Ox 濃度を解析するにあたっては，暖候期（4～9 月）における昼間（5～20 時）平均値を使用した．Ox 濃度が高くなりやすい暖候期に限定することで，Ox の高濃度域の濃度変動に着目した．また，同じ時間帯での解析により，他の測定項目や他の期間との比較を行った．

ポテンシャルオゾン（以下，「PO」とする．），NOx についても同様に解析した．Ox 濃度の増加の一因として，NOx 濃度の低下により，NO タイトレーション効果減少による影響が指摘されている[14]．NO タイトレーション効果とは，Ox の主成分であるオゾンが NO と反応することで，オゾンが消失し，それに伴い Ox 濃度が減少することを示す．本報では，NO タイトレーション効果の影響を考慮するため，PO の濃度変化についても解析を行った．NO タイトレーション効果の影響が増減しても，PO は変化しないため，NO タイトレーション効果の影響を無視した Ox 濃度を知ることができる[14]．PO の算出は，（1）のとおりに行った．α は発生源における NO_2/NOx 比を表すが，一般的に日本においては 0.1 が採用されているため[14～16]，本報でもこれを採用した．

$$［PO］ = ［Ox］ + ［NO_2］ - \alpha \times ［NOx］ \quad （1）$$

2.3.3　オゾン生成レジームの推定

県内で NMHC，NOx 両方を測定している 6 測定局（江川局，北九州局，祖原局，香椎局，筑後小郡局，国設大牟田局）を対象とした．週日（月～金曜）と日曜の Ox 濃度を比較するため，以下のとおり神成の報告[9, 10]を参考にした．週日と日曜の Ox 日最高 1 時間値を，10 パーセンタイルごとに区切り，それぞれ平均値を算出したのち，日曜 Ox/週日 Ox 比を区間ごとに求めた．なお，土曜については，週日と NMHC，NOx 濃度があまり変わらな

かったため，解析対象から除外した．また，同じ区間ごとに，昼間の平均 NMHC 濃度と NOx 濃度から，NMHC/NOx 比を算出した．平均値や比率の算出には，A-C 期の暖候期における各濃度データの 1 時間値を用いた．

Ox 高濃度日に限定したオゾン生成レジームの推定には，県内測定局を対象に，90～100 パーセンタイル区間での Ox 昼間平均値や Ox 日最高 1 時間値，NOx 濃度，全天日射量の日曜/週日比を算出した．

2.3.4 PLS 回帰

本報では，Ox 濃度の日内変化を解析するにあたり，日内変化量（以下，「ΔOx」とする．）に着目した指標を用いた．解析地点は，都市部の代表局として市役所局，郊外部の代表局として香椎局を選定した．Ox 日最高 1 時間値（以下，「Oxmax」とする．）は深夜から早朝付近にかけての Ox 濃度である Ox ベース濃度(以下,「Oxbase」とする．）と ΔOx の影響を受けると考えられる．そのため，本報では（2）に示すように Oxmax と Oxbase との差分を ΔOx の指標とする方法[16, 17]を採用した．

$$\Delta Ox = Oxmax - Oxbase \quad (2)$$

ΔOx：Ox 日内変化量
Oxmax：解析地点の Ox 日最高 1 時間値
Oxbase：解析地点の 3～6 時の 3 時間 Ox 平均濃度（ベース濃度）

Ox の地域生成を捉えるため Ox 日内変化量である ΔOx を目的変数とし，説明変数には，Oxbase や対馬局の Oxmax，前駆物質濃度，気象データを用いた．ΔOx の季節的な傾向の違いを捉えるため，本市の高濃度月（4～5 月）及び低濃度月（7～8 月）を解析期間として設定し，前駆物質である NOx と NMHC 濃度は, Ox 生成に関わる指標として朝 6～9 時の 3 時間平均濃度が使用される[16]ことから，本報でもこれを用いた．市役所局は NMHC を測定していないため，市役所局から近く，2008 年から継続した測定データがある千鳥橋局の NMHC 濃度を用いた．なお，市役所局の NOx 濃度と千鳥橋局の NMHC 濃度について，相関（R=0.61）があることを確認している．また気象データについては全天日射量，日平均気温，日最高気温，6～15 時の気温差，日平均風速，850 hPa 比湿を解析対象とした．

PLS 回帰を用いた予測では，入力データのオートスケール（各説明変数の平均を 0，標準偏差を 1 にする）を行い，説明変数のスケールの違いに起因するバイアスを排除した上で，wold 法を適用し，最適な主成分数を求めた．wold 法は，得られた予測誤差の減少が顕著でなくなった時点での主成分数を最適な主成分数と捉える手法である．

また出力された PLS モデルから重要な変数を選択する方法として，回帰係数の p 値と VIP（変数重要度）値の両方を評価する方法を採用した．具体的には, p 値が 0.05 未満の成分を統計的に有意なものと定義し，さらに VIP 値が 1 を超える成分を高濃度要因と判断した．

2.3.5 PLS 回帰予測値の精度評価

予測値の精度を評価するために，多くの研究で用いられている一個抜き交差検証法を採用した. この方法では，データセットからある 1 日分の測定値を除外し，残りの日数の測定値でモデルを構築して，除外した 1 日分の測定値を予測する．このプロセスをデータセット内の全ての日に対して繰り返し，予測値と実測値との誤差や決定係数を通じて，モデルの精度を評価した．

なお，全ての解析は，統計解析環境 R4.3.2[18]及びそのパッケージである tidyverse[19]，dplyr[20]，jpndistrict[21]，rmapshaper[22]，sf[23]，ggplot2[24]，mdatools[25]を使用して実施した．

3 研究結果及び考察

3.1 クラスター分析

クラスター分析の結果，福岡県内の測定局は 5 つのクラスターに分類できた．また，クラスターの分布を基にした地域区分を Fig. 2 に示す．地域は，福岡地域，北九州地域，久留米地域，大牟田地域，その他地域に分けられ，地域ごとに 1 種又は 2 種のクラスターが固まって分布していた．各地域で類似した MDA8-99 の推移を示し，また同じ地域内でも地点によっては濃度推移が異なる地点があるということを示唆している． Fig. 3 に各クラスターの MDA8-99 の推移を，Fig. 4 に A-C 期の暖候期に

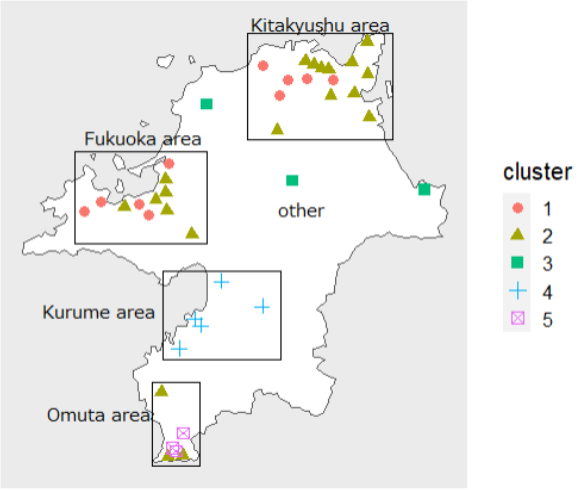


Fig. 2 Regional classification based on the distribution of clusters

おける Ox，PO，NOx 昼間平均値を示す．これらの結果から，県内 5 つの地域特性を考察した．

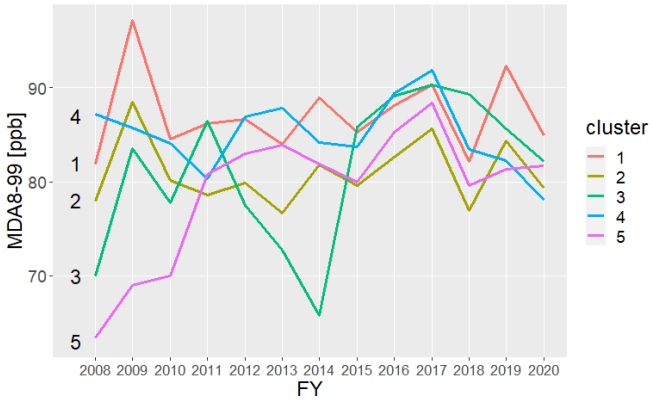


Fig. 3 MDA8-99 concentration trends for clusters

1) 福岡地域・北九州地域

クラスター1，2 が分布した． Ox 昼間平均値は異なる濃度を示したが，PO 昼間平均値は同程度だった．福岡地域及び北九州地域は，県の北部に位置し，玄界灘に面しており，越境移流の影響が大きい春季は，日中の海風で Ox 濃度が高くなりやすい地域である．また，県内でも交通量の多い高速道路や国道が通る地域である．このような気象場や発生源の類似性から同程度の PO 濃度を示していると考えられた．

また，クラスター2 の NOx 昼間平均値が期間を通して最も高く，期間中，クラスター2 の Ox 昼間平均値はクラスター1 よりも低かった．つまり，クラスター2 は NO タイトレーション効果の影響を強く受けていると考えられた．また，両クラスターは A 期から C 期にかけて，NOx 昼間平均値が減少し，Ox 昼間平均値が増加しているため，NO タイトレーション効果の減少により，Ox 昼間平均値が増加したと考えられた．

2) 久留米地域

クラスター4 のみが分布し，久留米地域一帯で同程度の MDA8-99 が推移していた．MDA8-99 は期間中，横ばいで推移していた．PO 昼間平均値についても A-C 期にかけて変動はなかったが，Ox 昼間平均値については，A 期から増加傾向が見られた．この理由としては，クラスター1，2 と同様に，NO タイトレーション効果の減少による影響と考えられた．

3) 大牟田地域

クラスター2，5 が分布した．いずれのクラスターも，県内で MDA8-99 が低く推移しているクラスターであった．2008～2010 年度ではクラスター2，5 の間に MDA8-99 の較差が 10～20 ppb 程度あったが，クラスター5 の濃度上昇により 2011 年度以降はクラスター2 と同程度になった．クラスター5 では同時期に PO 昼間平均値の顕著な増加があったため，MDA8-99 及び Ox 昼間平均値の濃度上昇は地域生成量の増加又は他地域からの移流（以下，「地域移流」とする．）や越境移流の影響の増加によるものと考えられた．

4) その他地域

クラスター3 のみが分布した．MDA8-99 が 2011～2014 年度にかけて大きく減少し，その後また増加した．福岡県北部を東西にかけて広い範囲で存在しており，Ox 昼間平均値，PO 昼間平均値及び MDA8-99 が同じように推移したことから，地域生成よりも地域移流や越境移流による影響が強い可能性が示唆された．

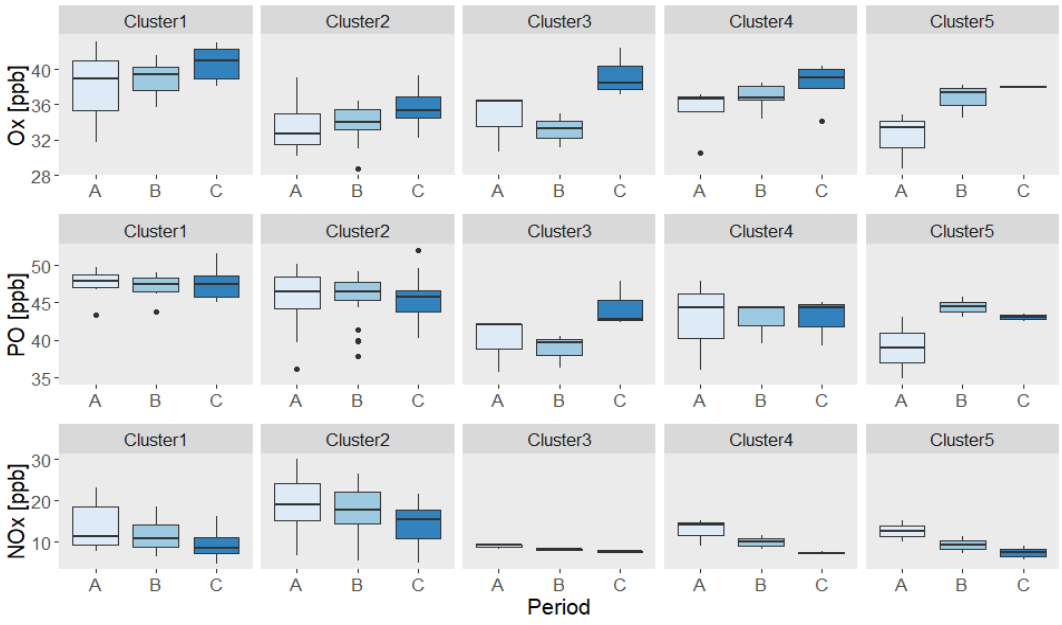


Fig. 4 Daytime average values of Ox, PO, and NOx during the warm season from Period A to Period C

3.2　週末効果

3.2.1　既報の手法によるオゾン生成レジームの推定

地域ごとにオゾン生成レジームの違いがあるかどうか検証するため，週末効果の影響を調べた．県内で NMHC，NOx の両方を測定している 6 局でパーセンタイルごとの NMHC/NOx 比及び Ox 日最高 1 時間値の日曜/週日比を算出した結果を Fig. 5 に示す．既報[9，26)]のように，高パーセンタイル（オゾン濃度が高い日）にかけて日曜/週日比が 1 を下回り，NOx 律速領域になっているというわ

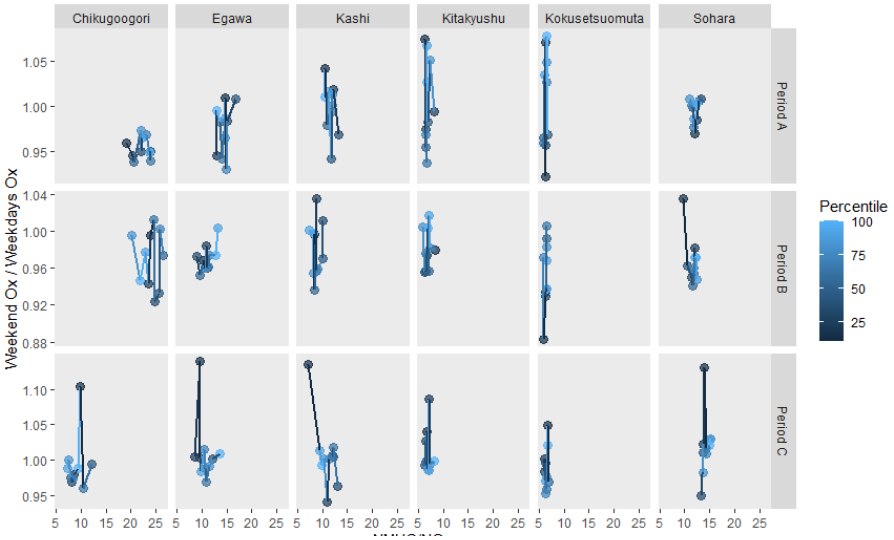


Fig. 5 Estimation of ozone production regime for six stations in Fukuoka Prefecture

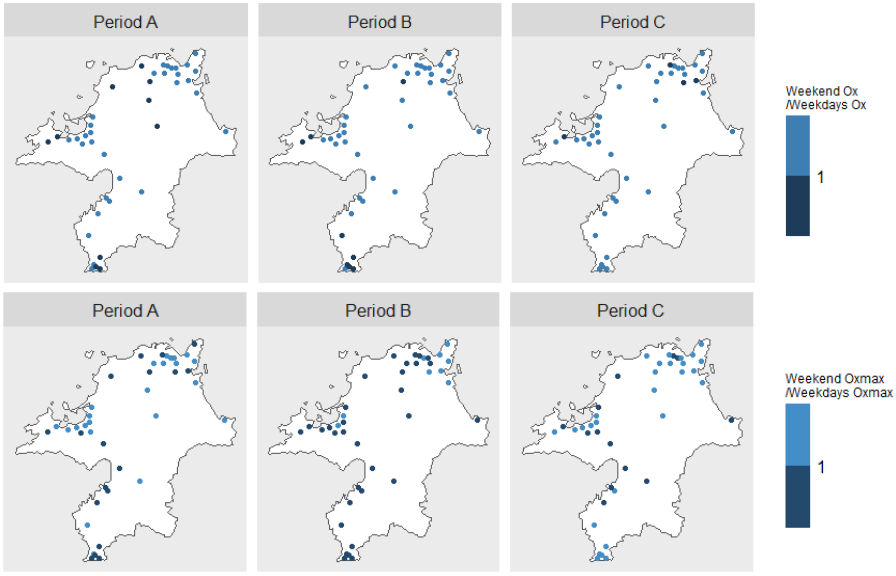


Fig. 6 Weekend effects of the Ox daytime average and Ox daily maximum one-hour concentrations on the 90th-100th percentile points in Fukuoka Prefecture

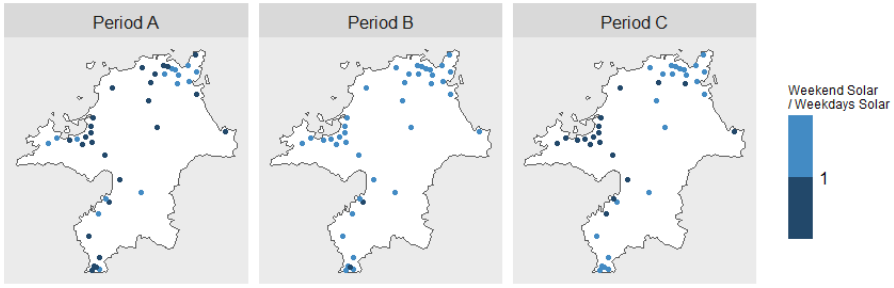


Fig. 7 Weekend/weekdays ratio of global solar radiation at the 90th-100th percentile points in Fukuoka Prefecture

けではなく，パーセンタイルによる一貫した特徴が見いだせず，レジーム判定ができなかった．既報は，関東・関西[9]，静岡[26]でのレジーム推定であり，Ox 日最高 1 時間値が地域生成の影響を受けているが，福岡県では Ox 日最高 1 時間値に与える移流の影響が大きく，このようにレジームの推定ができなかったと考えられた．

3.2.2　Ox 高濃度日に限定したオゾン生成レジームの推定

次に，90～100 パーセンタイル区間での Ox 昼間平均値及び Ox 日最高 1 時間値の日曜/週日比について，Fig. 6 に示す．3.2.1 のレジーム推定では，パーセンタイルによる一貫した特徴こそ見いだせなかったが，Ox 高濃度日だけを抽出すると，地点や期間によって日曜/週日比に傾向があることが確認された．Ox 昼間平均値では期を通して半数以上の地点で日曜/週日比が 1 を超えた（週末濃度増加）が，日最高 1 時間値では 1 を超えた測定局が特に B 期で少なかった．更に日最高 1 時間値が日曜に増えた測定局は福岡・北九州地域に集中しており，それ以外の多くの地点で日曜に減少した．中西らは，1993～2003 年度における 4～9 月の常時監視測定局のデータを用い，Ox 濃度の日曜/週日比の平均化時間による傾向の違いを示しており，昼間平均値ではほとんどの地域で日曜に増加しているが，日最高 1 時間値では日曜に増加する地域は主に東京と埼玉の一部に限られ，その他の多くの地域では日曜に減少していると報告している[27]．また，神成は，1990～1993 年度の 95～100 パーセンタイル区間における Ox 日最高 1 時間値の日曜/週日比を算出しており，関東地方の臨海部を中心に，Ox 日最高 1 時間値が日曜に増加する現象を報告している[9]．これらの報告を踏まえると，少なくとも 1990 年度から 2003 年度にかけて，臨海部を中心に Ox 日最高 1 時間値が日曜に増加する傾向が顕著であった．この傾向は，臨海部を中心とした地域が VOC 律速の領域であることを示唆している．本報でも 90～100 パーセンタイル区間に限定すると，NOx 濃度が高い福岡・北九州地域の都心部において関東地方の臨海部と同様の傾向が確認されたことから，福岡・北九州地域の都心部を中心に VOC 律速である可能性が示唆された．

3.2.3　オゾン生成レジームと全天日射量の関係

福岡県におけるレジームの変化を捉えるため，90～100 パーセンタイル区間における全天日射量の日曜/週日比を Fig. 7 に示す．B 期は県内のほとんどの地域で日曜に全天日射量が高かった．日射量が高いと，強い紫外線下で硝酸生成がより速やかに進むことで NOx がより早く除去されると言われている[6]．日曜に NOx 排出量が減少することを踏まえると，発生源から近い地点で NOx 濃度が低くなり，レジーム上の NOx 律速になると推察された．Ox 日最高 1 時間値，NOx 及び全天日射量の日曜/週日比を比べた結果を Fig. 8 に示す．B 期全天日射量の日曜/週日比は，A 期や C 期に比べて有意に高く，日曜における NOx 減少率が一番高いのは B 期であることから，NOx 発生源である福岡・北九州地域の都心部に近い地点で VOC 律速から NOx 律速へのレジームの反転が起こったのではないかと考えられた．

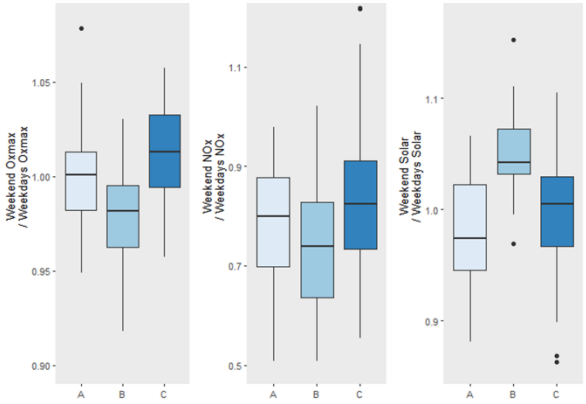


Fig. 8 Boxplots of the weekend/weekdays ratios of Ox,NOx, and global solar radiation (90th-100th percentiles)

3.3　PLS 回帰

3.3.1　解析対象期間の選択

香椎局における Ox 日最高 1 時間値パーセンタイル区間別の月分布を Fig. 9 に示す．90～100 パーセンタイル区間では 4・5 月の占める割合が大きく，0～10 パーセンタイル区間では 7・8 月が占める割合が大きかった．これは，越境移流による影響の違いに起因すると考えられる．これより，季節的な影響を考慮し，対象期間を 4・5 月，7・8 月とした．

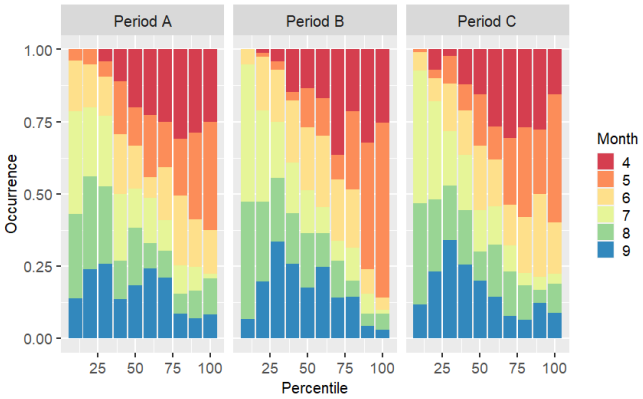


Fig. 9 Monthly distribution of the Ox daily maximum one-hour value by percentile interval at Kashii Station

3.3.2　予測値の精度評価

PLS 回帰による検証結果を Fig. 10 に示す．4・5 月の予測精度は，香椎局（Fig. 10（A））では，R^2 は 0.80，RMSE（二乗平均平方根誤差）は 8.56 ppb，市役所局（Fig.

10（B））では，R^2 は 0.72，RMSE は 8.39 ppb であった．R^2 及び RMSE の値は，測定局間で大きな差は見られなかった．一方で，7・8 月の予測精度は，香椎局（Fig. 10（C））では，R^2 は 0.51，RMSE は 12.07 ppb，市役所局（Fig. 10（D））では，R^2 は 0.45，RMSE は 10.47 ppb と 4・5 月よりも予測精度が悪かった．測定局間で大きな差はないため，季節的な高濃度要因の違いに起因すると考えられた．

Fig. 11 にサンプル日ごとの予測値と実測値の推移を示す．4・5 月は，香椎局（Fig. 11（A）），市役所局（Fig. 11（B））ともに全体的に精度良く予測できており，顕著な過大・過小評価は見られなかったのに対し，7・8 月は予測値の濃度範囲が狭く，低濃度側及び高濃度側を予測できていなかった．今回の解析では，夏季に特徴的な高濃度要因を網羅できていない可能性が示唆された．

3. 3. 3　高濃度要因の推定

季節別，測定局別の各予測モデルにおいて，各説明変数のモデル構築への寄与度を示す VIP 値を指標に，モデル構築に重要な変数を調べた（Table 1）．判定には，VIP 値が 1 を超え，Coefficient 値が統計的に有意だったもの

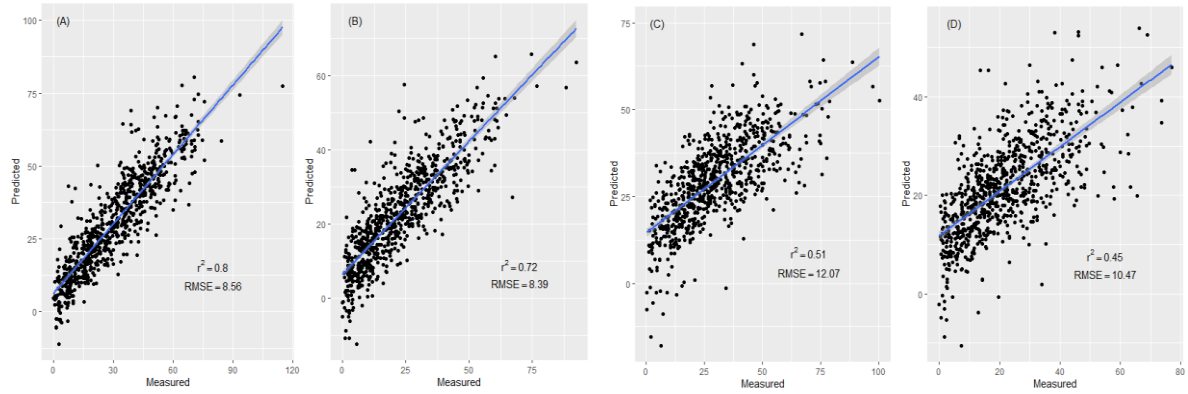


Fig. 10 Relationship between predicted and measured values by PLS regression（scatter diagram）

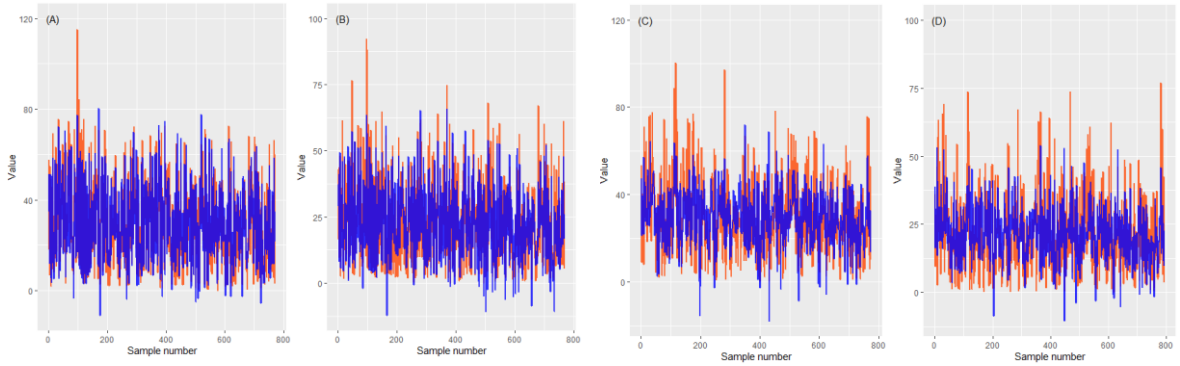


Fig. 11 Relationship between predicted and measured values by PLS regression(line graph）

Table 1 Contribution of each factor to PLS model construction

Factor	April, May				July, August			
	Kashii		Shiyakusho		Kashii		Shiyakusho	
	Coefficient	VIP	Coefficient	VIP	Coefficient	VIP	Coefficient	VIP
Global solar radiation [MJ/m^2]	0.22*	0.99	0.19*	**1.00**	0.23*	**1.20**	0.21*	**1.22**
850hPa specific humidity [g/g]	0.01	0.67	-0.02	0.69	-0.04	0.74	-0.09*	0.79
Temperature difference [°C]	0.05*	**1.14**	0.09*	**1.17**	0.01	**1.10**	0.07	**1.16**
Average Temperature [°C]	-0.03	0.44	-0.02	0.42	-0.03	0.73	-0.05	0.69
Maximum Temperature [°C]	0.07*	0.70	0.07*	0.68	0.09*	0.90	0.10*	0.90
Wind speed [m/s]	-0.01	0.94	0.02	0.91	-0.17*	0.91	-0.13*	0.78
NOx [ppb]	0.14*	**1.18**	-0.01	0.75	0.15*	**1.05**	0.00	0.69
NMHC [ppbC]	-0.02	0.76	0.1*	**1.05**	0.10*	0.78	0.14*	**1.05**
Oxbase [ppb]	-0.59*	**1.53**	-0.59*	**1.56**	-0.38*	**1.10**	-0.36*	**1.04**
Tsushima Oxmax [ppb]	0.45*	**1.18**	0.45*	**1.26**	0.47*	**1.32**	0.48*	**1.41**

* indicate significant coefficient at $p<0.05$.

VIPs >1.00 are shown in bold.

のうち，Coefficient 値が正の変数が ΔOx に正の寄与，負の変数が ΔOx に負の寄与があった変数であるとした．4・5 月の香椎局では，正に寄与するものは，対馬局の Oxmax，6〜15 時気温差及び NOx が，負に寄与するものは，Oxbase が抽出された．4・5 月の市役所局では，正に寄与するものは，対馬局の Oxmax，全天日射量，6〜15 時気温差及び NMHC が抽出され，負に寄与するものは，Oxbase が抽出された．4・5 月の両測定局に共通して寄与する変数は，対馬局の Oxmax，6〜15 時気温差及び Oxbase が挙げられた．春季において対馬局の Ox 濃度が高い日は，本市への越境移流が起こっている可能性が高く，また，6〜15 時気温差が大きいことで，混合層が発達し，地上と上空の Ox 濃度が均一化されることによって，日中にかけて Ox 濃度が増加すると考えられた．なお，Oxbase に関しては，負に寄与する変数として抽出されたが，これは（2）式の定義上，ΔOx とはパーセンタイル区間ごとに負の相関があるためであり，Ox 高濃度要因への直接的な因果関係はないと考えられたため，以降の解析では特に言及しなかった．前駆物質で正に寄与する変数には，香椎局の NOx と市役所局の NMHC が挙げられ，測定局間で寄与する物質が異なる結果となった．これは，3.2.2 において，香椎局（郊外部）は NOx 律速（A 期を除く），市役所局（都心部）は VOC 律速であることと整合性のある結果であった．いずれの Coefficient 値も 0〜0.2 の間で，対馬局の Oxmax よりも小さい値であるが，地域生成による上乗せが起こっている可能性が示唆された．

また，7・8 月で，VIP 値が 1 を超え，Coefficient 値が有意だったもののうち正に寄与するものは，香椎局では対馬局の Oxmax，全天日射量，NOx が抽出され，市役所局では対馬局の Oxmax，全天日射量，NMHC が抽出された．4・5 月同様に，7・8 月についても対馬局の Oxmax の寄与が大きいことから，本市への越境移流が起こっている可能性が示唆されたが，4・5 月と異なり，6〜15 時気温差の寄与はなかった．また，前駆物質については，香椎局では NOx，市役所局では NMHC の正の寄与があり，気象データでは唯一，全天日射量が正に寄与していた．今回の結果からは，4・5 月と 7・8 月で寄与する前駆物質の違いは見られなかった．

3.3.4　対策可能性の検討

本市の ΔOx に対する寄与が測定局，季節共通して高かったのは，対馬局の Oxmax，全天日射量であった．測定局の違いとしては，市役所局は NMHC の寄与が高く，香椎局は NOx の寄与が高いことが示唆され，3.3.2 でのレジームの推定と整合性のある結果が得られた．

以上より，本市の Ox 濃度が日中増加する要因としては，越境移流，日射が強い条件下での前駆物質からの地域生成である可能性が示唆された．これより，本市の Ox 濃度低減の指針の一つとして，地域生成による上乗せを少なくすることが有効と考えられた．都心部で VOC 律速，郊外部で NOx 律速である可能性を踏まえると，都心部を中心に VOC 濃度を削減しながら，NOx 濃度も郊外部レベルまで下げることによって，市内全域で NOx 律速領域，つまり，NOx 削減有効域を広げていき，NOx 濃度低減を続けていくことが Ox 対策上有効であると推察された．

4　結論

本市の Ox 汚染状況と対策の可能性を検討するため，クラスター分析による本市の汚染状況の把握や，週末効果によるレジーム推定及び PLS 回帰を用いた高濃度要因の推定を行った．本市は NOx 濃度により，都心部と郊外部で 2 つのクラスターが分布していた．Oxmax90〜100 パーセンタイル区間における週末効果を調査した結果，NOx 濃度が高い都心部を中心に週末の Oxmax 増加，郊外部では週末の Oxmax 減少が確認され，都心部ではオゾン生成レジームが VOC 律速，郊外部では NOx 律速であることが示唆された．さらに，都心部の代表局として市役所局，郊外部の代表局として香椎局を選定し，4・5 月及び 7・8 月における高濃度要因を PLS 回帰により推定したところ，越境移流や日射が強い条件下での前駆物質からの地域生成である可能性が示唆され，レジームの推定どおり，市役所局で NMHC（メタンを除く VOC の総称），香椎局で NOx の正の寄与があった．これより，本市の Ox 濃度低減の指針の一つとしては，地域生成による上乗せを少なくすることが考えられる．都心部を中心に VOC 濃度を削減しながら，NOx 濃度も郊外部レベルまで下げることによって，市内全域で NOx 律速領域，つまり，NOx 削減有効域を広げていき，NOx 濃度低減を続けていくことが Ox 対策上有効であると推察された．

謝辞

本研究を行うにあたり，ご助言及びご指導いただいた福岡大学林政彦教授並びに行政関係者の皆様に御礼申し上げます．

文献

1）福岡市環境局：福岡市大気測定結果報告書令和 4 年度（2022 年度）版
2）山﨑誠：福岡市における光化学オキシダントの経年変

動（第 1 報），福岡市保健環境研究所報，28，93～96，2002
3）根本創紀 : 千葉県における光化学オキシダントの長期変動と特徴，令和 3 年度千葉県環境研究センター年報，21，171～185，2021
4）金道龍，他 : 大阪・兵庫地域における光化学オキシダント濃度と一次原因物質排出量の関係に関する研究，大気環境学会誌，36（3），156～165，2001
5）井上和也，他 : 関東地方における夏季地表オゾン濃度の NOx, VOC 排出量に対する感度の地理分布 第 I 報 大小 2 種類の植物起源 VOC 排出量推定値を入力した場合の数値シミュレーションによる推定，大気環境学会誌，45（5），183～194，2010
6）神成陽容，大原利眞 : オゾン生成レジームに関する法則－オゾン低減戦略のための理論として－，大気環境学会誌，48（2），110～111，2013
7）山村由貴，他 : 福岡県における地域汚染由来の高濃度オゾンに対する NOx，VOC 排出量削減の効果，全国環境研会誌，45（4），51～61，2020
8）弓本桂也 : 物質輸送とデータ同化～化学輸送モデルと観測の融合～，大気環境学会誌，51（2），97～102，2016
9）神成陽容 : 関東・関西地域における光化学オキシダント濃度の週末効果に関する解析 第 1 報 二種類の週末効果反転現象の発見，大気環境学会誌，41（4），209～219，2006
10）神成陽容 : 関東・関西地域における光化学オキシダント濃度の週末効果に関する解析 第 2 報 ダイナミックに変化するオゾン生成レジームの検証，大気環境学会誌，41（4），220～233，2006
11）相島鐵郎 : ケモメトリックス－新しい分析化学，丸善（東京），1992
12）相島鐵郎 : 近赤外分光法におけるケモメトリックスの利用，日本食品工業学会誌，38（2），166～174，1991
13）環水大大発第 1602171 号 : 光化学オキシダントの環境改善効果を適切に示すための指標に係る測定値の取り扱いについて，平成 28 年 2 月 17 日
14）光化学オキシダント調査検討会：平成 24 年 3 月光化学オキシダント調査検討会報告書
15）武直子，他：ポテンシャルオゾンを用いた Ox の異常値スクリーニング方法の検討，大気環境学会誌，45（6），264～270，2010
16）坂本祥一，他 : 関東平野部における気象要因を考慮した近年の光化学オキシダント濃度変化の解析，大気環境学会誌，57（5），109～118，2022
17）上野広行，他 : 関東地方の夏季高濃度 Ox の長期的濃度変動要因の検討と前駆物質濃度削減効果の予測評価，大気環境学会誌，50（6），257～265，2015
18）R Core Team : R : A Language and Environment for Statistical Computing , R Foundation for Statistical Computing , Vienna , Austria , 2023 < https://www.R-project.org/ >（令和 6 年 4 月 4 日閲覧）
19）Hadley Wickham，et al : Welcome to the tidyverse，Journal of Open Source Software，4（43），1686，2019 < https://doi.org/10.21105/joss.01686 >（令和 6 年 4 月 4 日閲覧）
20）Hadley Wickham，et al : dplyr : A Grammar of Data Manipulation , R package version 1.1.4 , 2023 < https://CRAN.R-project.org/package=dplyr >（令和 6 年 4 月 4 日閲覧）
21）瓜生真也 : jpndistrict : Create Japanese Administration Area and Office Maps，2017＜https://github.com/uribo/jpndistrict＞（令和 6 年 4 月 4 日閲覧）
22）Andy Teucher，Kenton Russell : rmapshaper : Client for ‘mapshaper’ for ‘Geospatial’ Operations，R package version 0.5.0，2023＜https://CRAN.R-project.org/package=rmapshaper＞（令和 6 年 4 月 4 日閲覧）
23）Edzer Pebesma : Simple Features for R : Standardized Support for Spatial Vector Data，The R Journal，10（1），439～446，2018＜https://doi.org/10.32614/RJ-2018-009＞（令和 6 年 4 月 4 日閲覧）
24）Hadley Wickham : ggplot2 : Elegant Graphics for Data Analysis , Springer-Verlag New York , 2016 < https://ggplot2.tidyverse.org >（令和 6 年 4 月 4 日閲覧）
25）Sergey Kucheryavskiy : mdatools - R package for chemometrics，Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems，198，2020＜https://doi.org/10.1016/j.chemolab.2020.103937＞（令和 6 年 4 月 4 日閲覧）
26）小田祐一，結城茜：静岡県における光化学オキシダントの濃度推移とオゾン感度レジーム，令和 2 年度静岡県環境衛生科学研究所報告，63，59～64，2020
27）中西準子，他：詳細リスク評価書シリーズ 24 オゾン－光化学オキシダント－，丸善（東京），2009

要約

福岡市を含む福岡県全域に設置された常時監視測定局により得られる光化学オキシダント（Ox）のデータを解析し，本市の Ox 増加に寄与する要因の推定を試みた．2008 年度から 2020 年度まで

のデータを用いて，県内 41 箇所の測定局を対象にクラスター分析を実施した結果，5 つの地域に分類され，各地の NO タイトレーション効果の違いや移流の影響の違いを示唆する結果が得られた．Ox 高濃度日における週末効果を利用した分析から，本市では都心部での揮発性有機化合物（VOC）の削減，郊外での NOx 削減が Ox 濃度低減に効果的である可能性が示唆された．この結果に基づき，市役所局（都心部）と香椎局（郊外部）を選定し，PLS 回帰モデルを用いて 4・5 月及び 7・8 月の Ox 増加要因を推定した．その結果，日中の Ox 濃度増加に寄与する要因として，市役所局と香椎局では，NMHC と NOx がそれぞれ寄与を示し，PLS 回帰モデルにおいても地域ごとに最適な対策が異なることが示唆された．本研究により，本市の Ox 対策としては，都心部における VOC の濃度低減と並行して，NOx の濃度を郊外部レベルまで低減させることにより，市内全域での NOx 律速領域の拡大が有効であると推察された．

Ⅶ　報　告　・　ノート

高齢者施設で発生した下痢原性大腸菌食中毒事例

川﨑恵・田上紗弥加・笠愛・堤恵実・藤代敏行

福岡市保健環境研究所保健科学課

A case of Diarrheic *Escherichia coli* Food poisoning in an elderly care facility

Megumi KAWASAKI , Sayaka TANOUE , Ai RYU,
Megumi TSUTSUMI and Toshiyuki FUJISHIRO

Health Science Section，Fukuoka City Institute of Health and Environment

要約

令和 5 年 6 月，福岡市内の高齢者施設で患者数 19 名の食中毒が発生した．患者の主症状は下痢，発熱及び腹痛であった．細菌検査の結果，有症者便 10 検体，調理従事者便 1 検体，保存食 1 検体から 2 種類の下痢原性大腸菌が分離された．管轄保健所の疫学調査及び検査結果から，施設給食にて提供した食品が原因の下痢原性大腸菌 O159 及び O86 a による食中毒であると断定された．

Key Words：下痢原性大腸菌　Diarrheic *Escherichia coli*，食中毒　food poisoning，O159，O86
腸管毒素原性大腸菌　enterotoxigenic *E.coli*　ETEC, 腸管凝集性大腸菌　enteroaggregative *E.coli*
EAggEC，ST 遺伝子，aggR 遺伝子

1　はじめに

大腸菌は，通常病原性を有しないが，病原性遺伝子を保有し，特定の疾病を惹起する大腸菌を病原性大腸菌と呼ぶ．病原性大腸菌は下痢原性大腸菌と腸管外病原性大腸菌に大別される[1)]．

下痢原性大腸菌は，発生機序の違いにより，腸管出血性大腸菌（enterohemorrhagic *E.coli* ：EHEC）・腸管毒素原性大腸菌（enterotoxigenic *E.coli* ：ETEC）・腸管侵入性大腸菌（enteroinvasive *E.coli* ：EIEC）・腸管病原性大腸菌（enteropathogenic *E.coli*：EPEC）・腸管凝集性大腸菌（enteroaggregative *E.coli*：EAggEC）・びまん付着性大腸菌（diffusively adherent *E. coli*：DAEC）に分類される[1)]．

全国において令和 5 年に報告された食中毒事例 1021 件中，EHEC 以外の下痢原性大腸菌によるものは 3 事例であった[2)]．福岡市においては，EHEC 以外の下痢原性大腸菌による食中毒事例は平成 20 年から令和 4 年の 15 年間に 2 事例と非常に少ない[3)]．今回，市内の高齢者施設で発生した食中毒事例において，ETEC 及び EAggEC の 2 種類の下痢原性大腸菌を検出したので，その概要と検査結果を報告する．

2　概要及び検査方法

2.1　概要

令和 5 年 6 月 4 日，市内の高齢者施設から管轄保健所に入所者及び施設職員の複数名が食中毒様症状を呈していると連絡があった．患者の主症状は下痢，発熱及び腹痛であった．喫食者 41 名中有症者は 19 名で，発症日は 6 月 2 日～6 月 5 日の間であった. 原因究明及び感染の拡大防止のために，当該施設を利用する有症者の糞便（以下，「有症者便」とする．）11 検体，調理従事者の糞便（以下，「従事者便」とする．）4 検体，5 月 29 日～6 月 4 日に施設で提供された食事の保存食（以下，「保存食」とする．）47 検体，施設で使用されている井戸水（以下，「井戸水」とする．）3 検体及び施設のふきとり（以下，「ふきとり」とする．）3 検体が福岡市保健環境研究所へ搬入され，各食中毒菌の検査を実施した．細菌検査の結果, 有症者便 10 検体, 従事者便 1 検体, 保存食（加熱した鶏肉）1 検体から下痢原性大腸菌が分離された．また，下痢原性大腸菌が分離された有症者便 10 検体中 9 検体，従事者便及び保存食にて 2 種類の下痢原性大腸菌を検出した．管轄保健所は当該施設が給食で提供した食品（鶏肉のトマト煮：加熱した鶏肉）を原因食品と断定した．

2.2　材料及び方法

2.2.1　検査材料

市内の高齢者施設で発生した食中毒疑いの有症者便11検体，従事者便4検体，保存食47検体（調理施設A保存食43検体及び調理施設B保存食4検体），調理施設Aのふきとり3検体，井戸水3検体を対象とした．調理施設Aは，高齢者施設内にあり，給食受託事業者（以下，「事業者」とする．）が運営し，当該高齢者施設に食事を提供する．調理施設Bは，当該事業者が運営する別の高齢者施設にある調理施設であり，提供日の前日に調理し，急速冷凍，真空包装，チルド保管を行っている．（図1）

また，調理施設Bの保存食は，有症者19名の共通食である6月1日の夕食と同一時に調理したものであった．

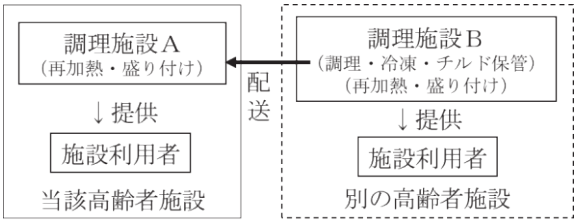


図1　給食の提供までの流れ

2.2.2　検査方法

各食中毒菌の検査は定法[4，5]に準じて実施した．

1）分離培養

（1）糞便からの分離

DHL平板寒天培地及びSS平板寒天培地を用いて直接塗抹分離培養を行うとともに，mEC培地にて増菌培養した増菌培養液（以下，「増菌培養液」とする．）をDHL平板寒天培地及びSS平板寒天培地に塗抹分離培養を行った．必要に応じて後述するスクリーニング試験及び免疫磁気ビーズ法を行った．

（2）ふきとりからの分離

DHL平板寒天培地及びSS平板寒天培地を用いて直接塗抹分離培養を行った．

（3）保存食，井戸水からの分離

増菌培養液を後述するリアルタイムPCR法[6]により，8種の病原性遺伝子検出試験を行い，病原遺伝子を検出した増菌培養液をDHL平板寒天培地及びSS平板寒天培地に塗抹分離培養を行った．

2）スクリーニング試験

増菌培養液の病原性遺伝子のリアルタイムPCR法[6]及び増菌培養液を塗抹培養後，生育した複数のコロニーをまとめて掻き取り，リアルタイムPCR法[6]により病原遺伝子を検出するいわゆるコロニースイープ法を行った．

リアルタイムPCR法はPowercheck™ Diarrheal E.coli 4-plex Real-timePCR Kit Ⅰ・Ⅱ[6]を用い，QuantStudio 5（Thermo Fisher SCIENTIFIC社製）で測定した．Powercheck™ Diarrheal E.coli 4-plex Real-timePCR Kit Ⅰ・Ⅱの添付文書[6]にしたがって行った．対象検出遺伝子を表1に示す．

表1　Powercheck™ Diarrheal E.coli 4-plex Real-timePCR Kit 検出遺伝子

Kit名	検出遺伝子
Kit Ⅰ	VT1，VT2，LT，ST
Kit Ⅱ	eaeA，aggR，bfpA，ipaH

3）免疫磁気ビーズ法

標的とする2種類の血清型O159又はO86aを選択的に分離するため，増菌培養後，免疫磁気ビーズ（Thermo Fisher SCIENTIFIC社製Dynabeads M-280 Sheep anti-Rabbit IgG[7]）を用い，O159又はO86aを選択濃縮し，塗抹分離培養を行った．

O159及びO86aの免疫磁気ビーズは，各血清群の免疫ウサギ血清(デンカ株式会社製病原性大腸菌免疫血清「生研」）及び抗ウサギIgG抗体結合ビーズを用い自家調整を行った[7]．

4）菌の同定

分離されたコロニーの同定は生化学的性状試験，O抗原・H抗原の血清型別試験（デンカ株式会社製病原性大腸菌免疫血清「生研」）及びリアルタイムPCR法[6]による8種の病原性遺伝子検出試験を組み合わせて実施した．

3　結果及び考察

3.1　下痢原性大腸菌の検出状況

細菌検査の結果，有症者便10検体，従事者便1検体，6月1日夕食の保存食1検体（調理施設A保存食：加熱した鶏肉）から下痢原性大腸菌が分離された．分離された下痢原性大腸菌はST遺伝子保有O159：H20（以下，「O159」とする．）及びaggR遺伝子保有O86a：H2（以下，「O86a」とする．）の2種類であった．下痢原性大腸菌を検出した12検体中11検体で，2種類の下痢原性大腸菌を検出した．それぞれ検出数は表2に示した．

また，有症者及び従事者の糞便における直接塗抹培養による検出状況は，O159が10検体のうち6件，O86aが11検体のうち3件であった．スクリーニング試験が陽性で，直接塗抹培養にて分離できなかった検体は，増菌

培養後，塗抹培養の実施及び免疫磁気ビーズ法を用いることにより分離及び同定した．有症者便の直接塗抹培養の検出状況の違いより，有症者の腸内における菌の存在比が異なることが推察された．

表 2　下痢原性大腸菌の検出状況

検体種別	検体数	検出数	
		O159	O86a
有症者便	11	9	10
従事者便	4	1	1
ふきとり	3	0	0
井戸水	3	0	0
保存食	47	1	1

3.2　施設の調査結果及び原因食品の特定

有症者 11 名の糞便の細菌検査の結果，9 名から下痢原性大腸菌 O159 及び O86a，1 名から O86a，6 月 1 日夕食の保存食（調理施設 A）：加熱した鶏肉から下痢原性大腸菌 O159 及び O86a を検出した．

調理は，前述のとおり事業者が運営する別の調理施設 B で提供日の前日に調理し，急速冷凍，真空包装，チルド保管したものを調理施設 A で再加熱，盛り付けを行い提供していた．

調理施設 B の 6 月 1 日夕食（加熱した鶏肉を含む）の保存食からは，下痢原性大腸菌は不検出であった．また，調理施設 B から調理施設 A とは別の高齢者施設に提供されていた同日調理品の喫食者に体調不良者はいなかった．

有症者 19 名の共通食は 6 月 1 日の夕食に当該調理施設 A で提供されたもののみで，同日の夕食を調理していた従事者便から下痢原性大腸菌 O159 及び O86a を検出した．当該調理従事者は 6 月 1 日調理した給食を喫食していたが，体調不良はなかった．疫学調査の結果，感染症が疑われる事象がなく，潜伏期間及び症状が下痢原性大腸菌と一致した．そのため，管轄保健所は当該調理施設 A で再加熱，盛り付け等を行う際に食品を汚染し，ETEC 及び EaggEC による食中毒が起きた可能性が高いと推察した．以上のことから，鶏肉のトマト煮（加熱した鶏肉）を原因食品とする下痢原性大腸菌 O159 及び O86a による食中毒と断定し，高齢者施設の調理施設 A は，6 月 9 日から 6 月 12 日の 3 日間の営業停止の行政処分がなされた．食品の汚染原因の特定には至らなかったが，新たな有症者は確認されず，二次感染へ拡がることはなかったと推察された．

4　まとめ

当事例では大腸菌以外の有意な食中毒菌が検出されなかったことから，下痢原性大腸菌を疑い，スクリーニング試験を実施した．その結果，ST 及び aggR の 2 種類の下痢原性遺伝子を検出し，下痢原性大腸菌の存在を確認したが，塗抹培養により複数の大腸菌が同一のシャーレ上で混在しており，下痢原性大腸菌を分離することが困難であった．一般的に細菌性食中毒の発生時の行政処分は培養による原因菌の分離及び同定が必要である．同一のシャーレ上に複数のコロニーが混在するなかから特定の下痢原性遺伝子を保有する菌の同定を迅速かつ確実に実施するためには，病原性遺伝子のリアルタイム PCR 法によるスクリーニングを行い，存在を確認後，免疫磁気ビーズ法により集菌したうえで，分離及び同定を行う方が効果的であると考えられた．

今後もより迅速で正確な検査を目指し，これまで以上に食中毒事例への対応に貢献したい．

文献

1）平成 21 年度食品安全確保総合調査「食品により媒介される感染症等に関する文献調査報告書」
2）厚生労働省医薬品食品局食品安全部監視安全課：2023 年食中毒統計資料　令和 5 年（2023）食中毒発生状況
3）福岡市食中毒発生状況（平成 20 年～令和 4 年）
4）食品由来感染症と食品微生物　中央法規出版　p 250
5）食品衛生検査指針　微生物編　改訂第 2 版　公益社団法人　日本食品衛生協会
6）Powercheck ™ Diarrheal E.coli 4-plex Real-timePCR Kit Ⅰ（VT1，VT2，LT，ST）・Ⅱ（eaeA，aggR，bfpA，ipaH）Protocol　Kogane Biotech 社
7）Dynabeads M-280 Sheep anti-Rabbit IgG Manuals & Protocols　Thermo Fisher SCIENTIFIC 社

レジオネラ症患者及び利用施設から レジオネラ属菌を検出した事例

笠愛・川﨑恵・田上紗弥加・堤恵実・藤代敏行

福岡市保健環境研究所保健科学課

Detection of *Legionella* spp. in a Facility used by a Legionnaires' disease patient

Ai RYU , Megumi KAWASAKI , Sayaka TANOUE , Megumi TSUTSUMI and Toshiyuki FUJISHIRO

Health Science Section, Fukuoka City Institute of Health and Environment

要約

令和 5 年（2023 年）4 月，福岡市内の医療機関からレジオネラ症発生届が提出された．当該患者及びその利用施設から採取された検体（延べ 26 検体）について検査を実施したところ，患者の気管洗浄液及び患者利用施設のシャワー水から *Legionella pneumophila* SG1 が分離された．それらの分離株の関連性を調べるためパルスフィールド・ゲル電気泳動法による分子疫学解析を実施したところ，PFGE 泳動像について，非常に高い類似度を示した．分離された菌株の分子疫学解析結果及び保健所が実施した疫学調査の結果から，患者利用施設のシャワー水が感染源であると管轄保健所が特定した．

Key Words：レジオネラ属菌　*Legionella* spp.，レジオネラ・ニューモフィラ SG1　*Legionella pneumophila* SG1，リアルタイム PCR　Real-Time PCR，パルスフィールド・ゲル電気泳動 pulsed-field gel electrophoresis（PFGE）

1　はじめに

レジオネラ症とは，レジオネラ属菌を病原体とする 4 類感染症であり，平成 25 年（2013 年）以降，国内において年間 1000~2500 件の届出が行われている[1)]．レジオネラ属菌は，環境中に広く存在する菌ではあるが，免疫機能が低い人が感染すると，レジオネラ肺炎，ポンティアック熱等を引き起こす．

また，分子疫学解析は，食中毒，感染症等発生時に感染源の究明，感染拡大防止及び再発防止のために重要であり，レジオネラ属菌においては，パルスフィールド・ゲル電気泳動法（以下，「PFGE 法」とする．）が広く用いられている．本稿では，患者及び患者利用施設から *Legionella pneumophila*（以下，「*L. pneumophila*」とする．）SG1 が分離された事例について報告する．

2　概要

令和 5 年（2023 年）4 月 14 日，福岡市内の医療機関からレジオネラ症発生届が管轄保健所へ提出された．当該患者は，4 月 7 日に発症したが，発症日の 3 週間以上前から同施設に入院しており，当該施設での感染が疑われた．患者及び患者利用施設から *L. pneumophila* SG1 が分離されたため，分離株の分子疫学解析を実施したところ，類似度は 0.94 で，同一由来である可能性が高いと考えられた．

3　検査方法

3.1　供試検体

供試検体を表 1 に示す.

供試検体のうち検水は，施設に①～④の給湯系統が存在していたため，それぞれから採水したものである．なお，患者が使用していたのは，A 階に給湯される①系のみであった．なお，一部のシャワー水は，出し始めの時点と流量が安定した後の時点とそれぞれ採水した.

表 1　供試検体

	検体名	検体数
患者	気管洗浄液	1
施設	A階シャワーふきとり（①系統）	1
	A階シャワー水（①系統）	6
	A階蛇口水（①系統）	3
	B階シャワー水（②系統）	6
	C階シャワー水（③系統）	4
	D階シャワー水（③系統）	4
	E階厨房の水（④系統）	1
	小計	25
合計		26

3.2　検査手順

レジオネラ属菌の分離・同定試験について，検査手順を図 1 に示す.

3.2.1　検水濃縮

検水濃縮は，厚生労働省通知[2)]に準じ，検水 500 mL をポリカーボネート製で，直径 47 mm，孔径 0.20 μm のメンブランフィルターを用いてろ過し，200 倍濃縮液を調製した.

3.2.2　遺伝子検査

遺伝子検査は，既報[3)]に従って実施した.

3.2.3　培養法

遺伝子検査で陽性となった検体について，培養法を実施した．その方法は，厚生労働省通知[2)]及び病原体検出マニュアル[4)]に準じた.

3.2.4　鑑別・同定

斜光法及び L-システイン要求性試験により菌の鑑別を行った．また，リアルタイム PCR 法及びレジオネラ免疫血清「生研」（デンカ株式会社）を用いて血清群を判定し，同定を行った.

3.3　疫学解析

分離菌株について， PFGE 法による分子疫学解析を実施した．検査は，病原体検出マニュアル[4)]に従って実施し，得られた泳動像のバンドパターンを CLIQS V1.4 ソフトウェア（株式会社スクラム）を用いて解析し，Dice 法にて類似度を算出した.

4　結果及び考察

レジオネラ属菌の分離・同定試験の結果を表 2 に示す．本事例では，患者の気管洗浄液は，1 検体陽性，また，施設のシャワー水は，3 検体陽性（遺伝子検査 23 検体陽性）となった．患者の気管洗浄液及び施設のシャワー水から *L. pneumophila* SG1 が分離された．患者由来菌株 1 株及び患者利用施設由来菌株 2 株について，PFGE 法を行った．泳動像を図 2 に示す．患者由来菌株及び患者利用施設由来菌株のバンドパターンが 2 バンド違いであった．また，患者由来菌株及び患者利用施設由来菌株の類似度は 0.94 で，同一由来である可能性が高いと考えられた.

保健所が患者及び施設調査を行ったところ，患者が感染の可能性が考えられる期間より以前から施設に入院しており，外出はなく空気感染の可能性がないこと，施設の浴槽，加湿器等の利用がない及び土壌への接触がないことが判明し，福岡市保健環境研究所の患者及び患者利用施設由来菌株の分子疫学解析の結果から施設のシャワー水が感染源だと特定した.

患者利用施設由来の検体から培養検査でレジオネラ属菌陽性となったものは，①系統のシャワー水のみであったが，遺伝子検査では，大部分の検体で陽性となっており，過去に①系統以外の給湯系統にもレジオネラ属菌が存在していたことが考えられる．また，清掃によりレジオネラ属菌が死滅しても，しばらくの間は，遺伝子が残存しているため，清掃によるレジオネラ除去を本稿で使用した遺伝子検査[3)]で確認することは難しい. そのため，近年開発されている生菌のみを検出する遺伝子検査法[5)]により迅速な検査が行えるように検査法の見直し，改良を検討していきたい.

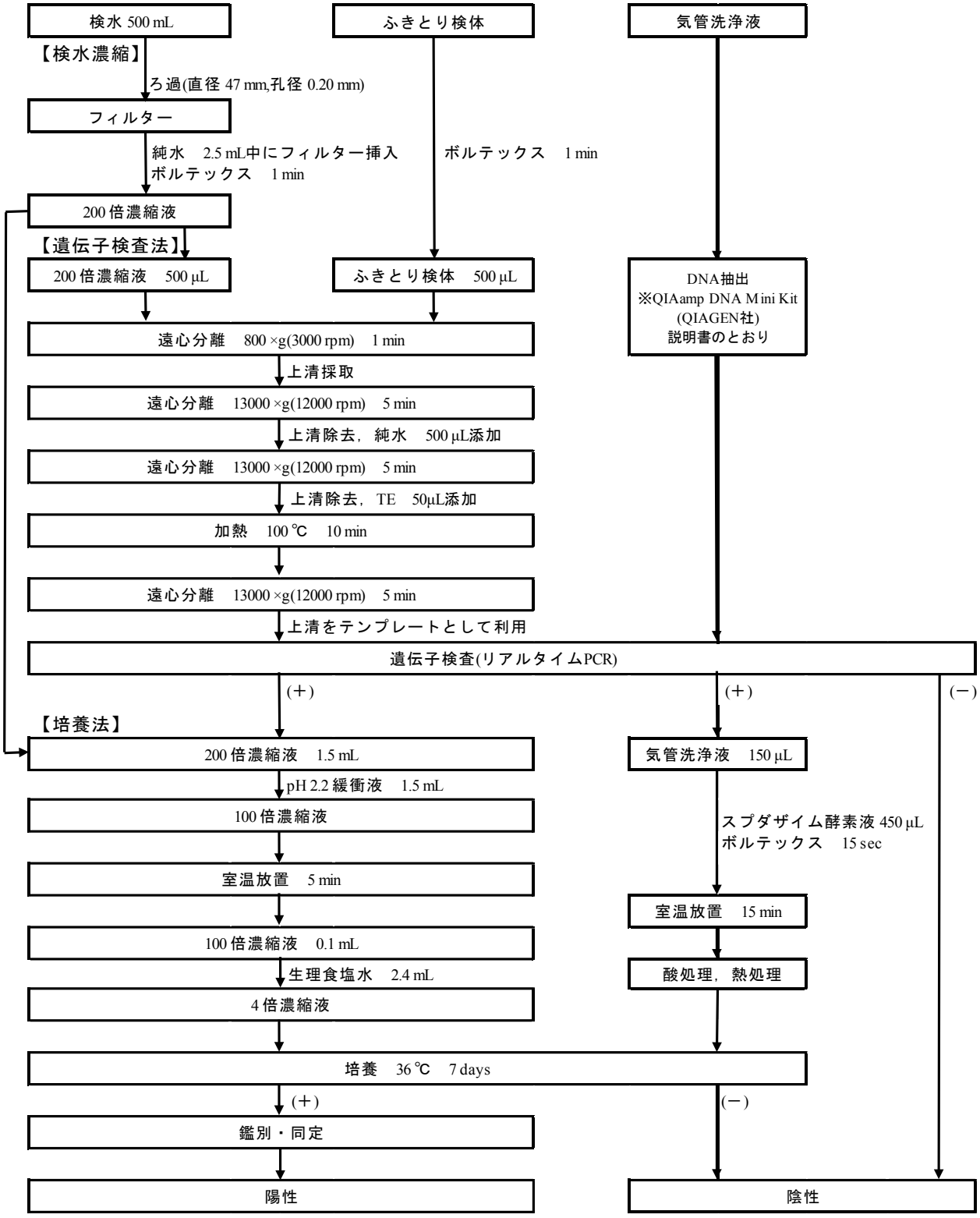


図 1　分離・同定試験のフローチャート

表 2　レジオネラ属菌の分離・同定試験の結果

採水日		4月17日	4月19日	4月20日	4月21日	4月22日	4月23日
検体名 ＼ 検査方法		PCR/培養	PCR/培養	PCR/培養	PCR/培養	PCR/培養	PCR/培養
患者	気管洗浄液	陽性/陽性※1	－/－	－/－	－/－	－/－	－/－
施設	A階シャワーふきとり(①系統)	陰性/－	－/－	－/－	－/－	－/－	－/－
	A階シャワー水(①系統)(出し始め)患者が利用	陽性/陽性※1	陽性/－	陽性/陽性	－※3/－※3	陽性/陰性	陽性/－
	A階シャワー水(①系)(安定後)患者が利用	陽性/陽性※1					
	A階蛇口水(①系統)	－/－	陽性/－	－※2/－※2	－※3/－※3	陽性/陰性	陽性/－
	B階シャワー水(②系統)	陽性/陰性	陽性/－	陽性/陰性	陽性/陰性	陽性/陰性	陽性/－
	C階シャワー水(③系統)	－/－	陽性/－	－※2/－※2	陽性/陰性	陽性/陰性	陽性/－
	D階シャワー水(③系統)	－/－	陽性/－	－※2/－※2	陽性/陰性	陽性/陰性	陽性/－
	E階厨房の水(④系統)	－/－	陰性/－	－/－	－/－	－/－	－/－

－:未実施

※1　PFGE 法実施

※2　貯湯槽清掃前のため，採水せず

※3　貯湯槽清掃中で採水不可

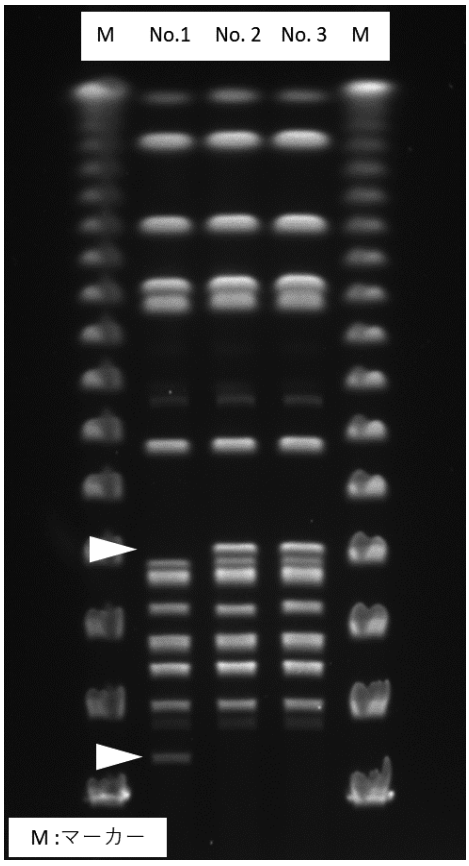


図 2　PFGE 泳動像

M:DNA マーカー

No.1:患者の気管洗浄液分離株

No.2:A 階シャワー（①系）出し始め分離株

No.3:A 階シャワー（①系）安定後分離株

文献

1）国立感染症研究所：発生動向調査年別一覧「レジオネラ症」，＜https://www.niid.go.jp/niid/ja/ydata/11529-report-ja2021-20.html＞（令和 6 年 9 月 13 日閲覧）

2）厚生労働省医薬・生活衛生局生活衛生課薬生衛発 0919 第 1 号：公衆浴場における浴槽水等のレジオネラ属菌検査方法について　別添公衆浴場における浴槽水等のレジオネラ属菌検査方法，令和元 年（2019 年）9 月 19 日

3）松永典久，他：リアルタイム PCR 法を用いた浴槽水等のレジオネラ属菌迅速検査法の開発，福岡市保健環境研究所報，43，52～58，2018

4）国立感染症研究所:病原体検出マニュアル「レジオネラ症」令和 2 年（2020 年）9 月 1 日改訂，＜https://www.niid.go.jp/niid/images/lab-manual/Legionella20200904.pdf＞（令和 6 年 9 月 13 日閲覧）

5）公益財団法人日本建築衛生管理教育センター：第 4 版 レジオネラ症防止指針，2017

福岡市における SARS-CoV-2 ゲノム解析（2023 年度）

宮本道彦・讃井武蔵・松平美咲・林萌

福岡市保健環境研究所保健科学課

Genome Analysis of SARS-CoV-2 in Fukuoka City (2023)

Michihiko MIYAMOTO ， Musashi SANUI ， Misaki MATSUDAIRA and Megumi HAYASHI

Health Science Section, Fukuoka City Institute of Health and Environment

要約

福岡市保健環境研究所では，令和 3 年（2021 年）2 月 5 日付け健感発 0205 第 4 号「新型コロナウイルス感染症の積極的疫学調査におけるゲノム解析及び変異株 PCR 検査について（要請）」に基づき, 2021 年 12 月から SARS-CoV-2 のゲノム解析を開始し, 現在も継続して実施している. 2023 年度に採取された福岡市内の SARS-CoV-2 陽性検体のゲノム解析結果を用いて, 系統別の検出状況を集計し，県内の定点報告数及び全国の系統別検出状況と比較した．夏季（8 月）及び冬季（1 月）に県内定点報告数がピークに達しており，夏季のピークでは，特定の系統に偏らず，複数の系統が混在した状況であった．冬季のピークでは，JN.1 系統の検出割合の増加が認められた．また，福岡市における系統別検出状況は，全国と同様の傾向にあった.

Key Words：新型コロナウイルス　SARS-CoV-2，　次世代シーケンサー　next generation sequencer，　ゲノム解析　genome analysis

1　はじめに

新型コロナウイルス感染症（Coronavirus disease of 2019：COVID-19）は，新型コロナウイルス（Severe Acute Respiratory Syndrome Coronavirus 2：SARS-CoV-2）に起因し，咳，高熱，肺炎を主症状とする新興感染症であり，2019 年 12 月に中華人民共和国湖北省武漢市において世界で初めて確認された．その後，日本国内においても感染者が確認され，福岡市では，2020 年 3 月に初めて陽性者を確認した．COVID-19 は，2023 年 5 月 8 日をもって「感染症の予防及び感染症の患者に対する医療に関する法律」（平成 10 年法律第 114 号）（以下，「感染症法」とする．）に基づく「新型インフルエンザ等感染症」から「五類感染症」に移行したが，現在も終息には至っていない.

SARS-CoV-2 は, 約 3 万塩基のプラス鎖 RNA ゲノムを有しており，感染と増殖を繰り返す過程でゲノムに変異を起こし, その変異速度は 2024 年 3 月末時点で約 28.675 塩基変異／ゲノム／年（約 12.7 日に 1 塩基変異）と推測されている（NextStrain＜https://nextstrain.org/ncov/gisaid/global/all-time?dmax=2024-03-31&l=clock＞）.

SARS-CoV-2 が変異を重ねていったことにより，これまでに感染性の増加や抗原性の変化が懸念される様々な変異株が出現し, その度に感染の拡大を繰り返してきた.

SARS-CoV-2 は，その発生初期から世界的にゲノム解析によるサーベイランスが実施されており，我が国においても国立感染症研究所（以下，「感染研」とする．）を中心にゲノムサーベイランス体制が構築されてきた.

福岡市保健環境研究所においても, 令和 3 年 (2021 年) 2 月 5 日付け健感発 0205 第 4 号「新型コロナウイルス感染症の積極的疫学調査におけるゲノム解析及び変異株 PCR 検査について（要請）[1)]」に基づき， 2021 年 12 月から SARS-CoV-2 陽性検体について，次世代シーケンサー（NGS）を用いたゲノム解析を開始した．当初は行政検査の陽性検体を対象として実施していたが，行政検査の重点化に伴い，ゲノム解析用検体確保のため，2022 年 7 月からは，市内民間検査機関から提供される陽性検体の受け入れを開始し，現在に至るまで継続的にゲノム解析を実施している.

本稿では，2023 年度（2023 年 4 月～2024 年 3 月）に当所で実施したゲノム解析結果及び得られた知見について報告する.

2　実験方法

2.1　解析対象

保健所及び市内民間検査機関から当所に搬入されたSARS-CoV-2陽性検体（検体採取日：2023年4月1日～2024年3月31日，検体種別：鼻咽頭ぬぐい液又は唾液）2306検体について，RNA抽出を行い，リアルタイムRT-PCRでCt値を確認した後，1385検体をゲノム解析の対象とした．

2.2　試薬・装置等

SARS-CoV-2陽性検体からのRNA抽出には，QIAamp Viral RNA mini kit（QIAGEN）を用いた．

リアルタイムRT-PCRは，TaqMan Fast Virus 1-Step Master Mix for qPCR（Thermo Fisher Scientific）を用い，QuantStudio 5（Thermo Fisher Scientific）で測定した．

以降の操作は，感染研病原体ゲノム解析研究センター（以下，「感染研ゲノムセンター」とする．）が作成した「新型コロナウイルスゲノム解読プロトコル Qiagen社 QiaSEQ FX 編 version 1.4[2)]」に従い実施した．

すなわち，LunaScript RT SuperMix（NEB）によりRNAを逆転写した後，感染研ゲノムセンターが設計したプライマーセット（ARTIC-N6及びN7プライマー）を用いたマルチプレックスPCRを実施した．

PCR産物について，QIAseq FX DNA Library Kit（QIAGEN）により，断片化反応及びインデックス付きアダプターの付加反応を行い，全ての検体をプーリング後，Agencourt AMPure XP（BECKMAN COULTER）を用いてライブラリーの精製を実施した．調整したライブラリーから，iSeq 100（illumina）により，各検体に含まれるSARS-CoV-2ゲノムの塩基配列情報（FASTQデータ）を取得した．

2.3　ゲノム解析

NGSから得られた各検体のFASTQデータについて，ウェブアプリケーションとして感染研ゲノムセンターが提供するCOG-JP（COVID-19 Genomic Surveillance Network in Japan）又は感染研インフルエンザ・呼吸器系ウイルス研究センターが提供するPathoGenS（Pathogen Genomic data collection System）を用いて，SARS-CoV-2ゲノム配列を再構築した後，Nextcladeによる解析を実施し，Pango Lineage（Phylogenetic Assignment of Named Global Outbreak Lineage）を決定した．

なお，解析に用いられたNextcladeのバージョンは，COG-JPでは，2.9.1，2.14.0及び3.00-alpha.1，PathoGenSでは，3.50である．

3　実験結果及び考察

3.1　ゲノム解析結果

SARS-CoV-2のゲノム解析の結果，解析不能であった176検体を除く1209検体についてPango Lineageを決定し，表1に示すとおり系統別に分類，集計した．なお，本報において「系統」と記載する場合は，単一のPango Lineageのみを示すのではなく，原則，その亜系統まで含むものとする．単一のPango Lineageを示す場合は，単に「Lineage」と記載する．

表1　本報における系統分類

系統	備考
BA.2系統	亜系統のBA.2.75系統及びBA.2.86系統を除く．
BA.5系統	
BA.2.75系統	
XBB系統	亜系統のXBB.1.5系統，XBB.1.9系統，XBB.1.16系統，XBB.2.3系統及びEG.5系統を除く．
XBB.1.5系統	
XBB.1.9系統	亜系統のEG.5系統を除く．
XBB.1.16系統	
XBB.2.3系統	
EG.5系統	
BA.2.86系統	亜系統JN.1系統を除く．
JN.1系統	
その他の組換え体	XBB及びその亜系統を除く組換え体．

系統別の検出数は，BA.2系統が1検体，BA.5系統が20検体，BA.2.75系統が63検体，XBB系統が92検体，XBB.1.5系統が131検体，XBB.1.9系統が187検体，XBB.1.16系統が293検体，XBB.2.3系統が89検体，EG.5系統が242検体，BA.2.86系統が28検体，JN.1系統が46検体，その他の組換え体が17検体であった．

系統別検出数の月次集計結果を表2に，検出したLineage及び検出数を表3に示す．また，変異株系統分岐の大まかな概念図を図1に示す．

3.2　系統別の検出状況

3.2.1　BA.2系統

2023年6月にBA.2系統のFV.1（BA.2.3.20.8.1.1.1）が1検体検出された．FV.1は，過去に世界保健機関（World Health Organization：WHO）による「監視下のオミクロン

の亜系統（Omicron Subvariants under Monitoring：OSUM）」に指定された BA.2.3.20 の亜系統であるが，散発的な検出であり，その後の検出はなかった．

3.2.2 BA.5 系統

BA.5 系統は，2022 年 6 月頃から 2023 年 3 月頃までのいわゆる第 7 波及び第 8 波で主流となった系統である．2023 年 4 月から 8 月にかけて，WHO により過去に OSUM に指定された BF.7（BA.5.2.1.7）系統及び同じく WHO により「監視下の変異株（Variants under Monitoring：VUM）」に指定された BQ.1（BA.5.3.1.1）系統を中心に検出されたが，既に XBB 系統及びその亜系統が主流となっていたため，検出数は僅かであり，2023 年 9 月以降検出されていない．

3.2.3 BA.2.75 系統

BA.2.75 は，BA.2 と比較して，Spike タンパク質に S:K147E, S:W152R, S:G257S, S:G339H, S:G446S, S:N460K 等の多くの変異を獲得しており，2022 年 6 月にインドで初めて報告された Lineage である[3，4]．BA.2.75 系統は，亜系統の CH.1.1（BA.2.75.3.4.1.1.1.1）系統及び DV.7（BA.2.75.3.4.1.1.1.1.1.7）系統とともに WHO により過去に OSUM 及び VUM に指定されていたが，2023 年度末時点では指定解除されている．本市では，2022 年 10 月に初めて検出され，2023 年度は，検出割合は高くはないが，4 月から 9 月にかけて継続的に検出しており，その中でも CH.1.1（BA.2.75.3.4.1.1.1.1）系統（亜系統の DV 系統及び FK 系統を含む．）の検出数が比較的多かった．なお，2023 年 10 月以降検出されていない．

3.2.4 XBB 系統

XBB は，BA.2 の亜系統である BJ.1（BA.2.10.1.1）と BA.2.75 の亜系統である BM.1.1.1（BA.2.75.3.1.1.1）の Spike 領域における組換え体であり，シンガポールで初めて報告された[5，6]．XBB 系統は，過去に OSUM 及び VUM に指定されていたが，2023 年度末時点では指定解除されている．本市では，2022 年 10 月に初めて検出され，2023 年度は 4 月から 10 月にかけて継続的に検出されていたが，以降は散発的な検出に留まり，2024 年 3 月以降検出されていない．

3.2.5 XBB.1.5 系統

XBB.1.5 は，XBB が Spike タンパク質に S:G252V 変異を獲得した XBB.1 から，更に S:F486P 変異を獲得した Lineage である[7]．2023 年度末時点において WHO による「注目すべき変異株（Variants of Interest：VOI）」に指定されている．XBB.1.5 系統は，2023 年 2 月中旬に本市で初めて検出され，以降，検出割合が 20%程度まで増加したものの，その後 XBB.1.16 系統，XBB.1.9 系統及び EG.5 系統への置き換わりが進み，2023 年 10 月以降散発的な検出に留まっている．

3.2.6 XBB.1.9 系統

XBB.1.9 は，XBB.1 が ORF9b:I5T 変異，更に ORF1a:G1819S 及び ORF1a:T4175I 変異を獲得した Lineage である．過去には亜系統の XBB.1.9.1 系統及び XBB.1.9.2 系統が VUM に指定されていたが，2023 年度末時点では XBB.1.9.2 の亜系統である EG.5 系統を除き，指定解除されている．XBB.1.9 系統は，2023 年 2 月末に本市で初検出後，2023 年 7 月頃までその検出割合を増加させてきたが，その後徐々に減少し，2023 年 11 月以降検出されていない．

3.2.7 XBB.1.16 系統

XBB.1.16 は，XBB.1 が Spike タンパク質に S:K478R 及び S:F486P 変異，更に S:E180V 変異を獲得した Lineage であり[8]，2023 年度末時点において WHO により VOI に指定されている系統である．本市では，2023 年 5 月に初めて検出された後，急速に検出割合が増加し，2023 年 7 月まで主流の系統であったが，2023 年 8 月以降，EG.5 系統への置き換わりが進み，2023 年 1 月以降検出されていない．

3.2.8 XBB.2.3 系統

XBB.2.3 は，XBB が S:D253G 変異を獲得した XBB.2 から更に S:S486P 及び S:P521S 変異を獲得した Lineage であり[9]，過去には WHO により VUM に指定されていたが，2023 年度末時点では指定解除されている．XBB.2.3 系統は，2023 年 5 月に本市で初めて検出されたが，同時期に検出され始めた XBB.1.16 系統や EG.5 系統のような検出割合の増加は認められず，2023 年 11 月以降検出されていない．

3.2.9 EG.5 系統

EG.5 は，XBB.1.9 が A16878T 変異及び A27507C 変異に次いで S:F486P 変異を獲得した XBB.1.9.2 が，更に ORF1a:A690V，ORF1a:A3143V 及び S:F456L 変異を獲得した Lineage であり[10]，EG.5 系統は，2023 年度末時点において WHO により VOI に指定されている．EG.5 系統は，2023 年 5 月に本市で初めて検出され，徐々に検出割合を増加させながら，2023 年 8 月にはこれまで主流であった XBB.1.16 系統から置き換わり，2023 年 12 月まで主流となったが，BA.2.86 系統や JN.1 系統の出現により，以降検出割合は減少している．

3.2.10 BA.2.86 系統

BA.2.86 は，親系統である BA.2 から Spike タンパク質に 30 箇所以上のアミノ酸変異を有しており，2023 年 7 月にデンマーク及びイスラエルで初めて確認された Lineage である[11～13]．BA.2.86 系統は，本市では，2023 年 10 月に初めて検出されており，亜系統の JN.1 系統とともに，EG.5 系統からの置き換わりが確認された．

3.2.11 JN.1 系統

JN.1 は，BA.2.86 が C12815T 変異及び ORF1a:K1973R 変異を獲得した BA.2.86.1[14] が，更に S:L455S 変異，ORF1a:R3821 変異及び ORF7b:F19L 変異を獲得した Lineage であり[15]，2023 年度末時点において WHO により VOI に指定されている．2023 年 12 月に本市で初検出後，検出割合が急速に増加した．

3.2.12 その他の組換え体

その他の組換え体（XBB 系統を除く組換え体）については，2024 年 1 月までは散発的な検出に留まっていたが，2024 年 2 月以降，親系統を BA.2.86 系統又は JN.1 系統とする組換え体が検出されている．特に BA.2.86.1 と FL.15.1.1（XBB.1.9.1.15.1.1）の組換え体である XDQ[16] の検出数が多く，これは本市だけでなく全国的にも同様の傾向にある．

3.3 系統別検出割合と定点報告数の推移

COVID-19 患者発生状況の集計は，2023 年 5 月の五類感染症移行に伴い，全数把握は終了となり，インフルエンザ／COVID-19 定点医療機関からの週次報告による集計に変更された．福岡県が公表している福岡県における COVID-19 定点報告数（福岡県保健環境研究所：福岡県感染症情報＜http://www.fihes.pref.fukuoka.jp/~idsc_fukuoka/idwr.html＞）を週単位から月単位に換算した数値を表 4 に示す．月ごとの系統別検出割合と定点報告数の推移を図 2 に示す．定点報告数のトレンドは，夏季（8 月頃）及び冬季（1 月頃）に報告数のピークに達した後，それぞれ春及び秋にピークアウトしており，過去の感染拡大の波と同様の挙動を示している．しかし，これまでは Alpha 株（B.1.1.7 系統）の出現に伴う第 4 波，Delta 株（B.1.617.2 系統）の出現に伴う第 5 波，BA.1 系統の出現に伴う第 6 波，BA.5 系統の出現に伴う第 7 波のように，新たな変異株（系統）の出現に伴い感染拡大のピークを迎えていたが，2023 年夏のピークでは，EG.5 系統の検出割合が比較的高いものの，特定の系統に偏ることなく複数の系統が混在している状況にあった．一方，冬のピーク時には，これまでの主流であった XBB 亜系統の検出割合は減少し，BA.2.86 系統及びその亜系統である JN.1 系統の検出割合の増加が認められた．

3.4 福岡市及び全国の系統別検出割合の推移

国立感染症研究所が公開している SARS-CoV-2 ゲノムサーベイランスによる都道府県別検出状況（国立感染症研究所：SARS-CoV-2 変異株について＜https://www.niid.go.jp/niid/ja/2019-ncov/2624-flu/12055-flu2-1-1.html＞）を基に作成した 2023 年 10 月（第 40 週）以降の系統別検出状況を図 3 に示す．福岡市及び全国のいずれも，EG.5 系統から BA.2.86 系統及び JN.1 系統に置き換わり，2 月から 3 月にかけて主に XDQ 系統を中心とする組換え体の検出割合が増加する同様の傾向が認められた．

表 2　福岡市における系統別検出状況（月別）

系統＼年月	2023 年									2024 年			計
	4 月	5 月	6 月	7 月	8 月	9 月	10 月	11 月	12 月	1 月	2 月	3 月	
BA.2 系統			1										1
BA.5 系統	13	4	1		2								20
BA.2.75 系統	11	12	15	12	5	8							63
XBB 系統	18	7	8	13	17	20	8				1		92
XBB.1.5 系統	17	25	24	15	14	27	1	4	3			1	131
XBB.1.9 系統	18	25	46	50	28	19	1						187
XBB.1.16 系統		77	70	69	37	36	2	1	1				293
XBB.2.3 系統		9	22	26	17	10	5						89
EG.5 系統		5	6	21	68	70	19	19	18	10	4	2	242
BA.2.86 系統							1		7	2	11	7	28
JN.1 系統									3	16	20	7	46
その他の組換え体			1		1			1	2		4	8	17
計	77	164	194	206	189	190	37	25	34	28	40	25	1209

表 3　福岡市において検出した Pango Lineage 及びその検出数

BA.2 系統 (1)						
FV.1 (1)						
BA.5 系統 (20)						
BA.5 (1)	BA.5.2.6 (2)	BF.5 (1)	BF.7 (1)	BF.7.4.3 (2)	BF.7.14 (1)	BF.7.15 (2)
CK.1.1 (2)	BQ.1.1 (3)	EF.1 (1)	BQ.1.1.18 (4)			
BA.2.75 系統 (63)						
CJ.1 (1)	CJ.1.3 (7)	CH.1.1 (2)	DV.6 (6)	DV.6.2 (2)	DV.7.1 (1)	FK.1 (1)
FK.1.1 (8)	FK.1.3.2 (2)	BN.1 (1)	BN.1.2 (10)	FR.1 (6)	FR.1.1 (1)	BN.1.2.7 (2)
BN.1.3 (10)	BN.1.3.5 (2)	BN.1.3.13 (1)				
XBB 系統 (92)						
XBB (2)	XBB.1 (8)	XBB.1.11.1 (2)	XBB.1.18.1 (2)	FE.1.1 (2)	XBB.1.22 (2)	XBB.1.22.1 (8)
FY.1 (1)	FY.1.2 (3)	FY.2 (17)	FY.3 (5)	FY.3.1 (5)	FY.3.3 (1)	FY.5 (4)
FY.6 (4)	XBB.1.22.2 (1)	XBB.1.24.3 (2)	XBB.1.41 (6)	XBB.1.41.1 (1)	JC.1 (1)	XBB.1.42 (4)
XBB.1.42.2 (2)	XBB.2 (9)					
XBB.1.5 系統 (131)						
XBB.1.5 (50)	XBB.1.5.1 (12)	XBB.1.5.4 (1)	XBB.1.5.5 (5)	XBB.1.5.12 (2)	FD.2 (1)	FD.3 (2)
XBB.1.5.18 (1)	XBB.1.5.24 (1)	EU.1.1 (1)	XBB.1.5.37 (1)	XBB.1.5.42 (2)	XBB.1.5.44 (2)	HC.1 (1)
XBB.1.5.48 (1)	XBB.1.5.49 (1)	XBB.1.5.57 (6)	XBB.1.5.62 (1)	XBB.1.5.63 (1)	GK.1 (3)	GK.1.1 (29)
XBB.1.5.91 (1)	JD.1.1 (5)	JD.1.1.8 (1)				
XBB.1.9 系統 (187)						
XBB.1.9 (5)	XBB.1.9.1 (52)	FL.2 (8)	FL.4 (19)	FL.4.5 (1)	FL.5 (1)	FL.10 (6)
FL.10.1 (3)	FL.15 (5)	FL.24 (4)	XBB.1.9.2 (28)	EG.1 (11)	EG.1.2 (3)	EG.1.4 (2)
EG.1.6 (1)	EG.2 (14)	EG.4 (16)	EG.4.4 (1)	EG.6.1 (7)		
XBB.1.16 系統 (293)						
XBB.1.16 (211)	XBB.1.16.1 (24)	FU.1 (13)	FU.2 (1)	XBB.1.16.2 (12)	GY.5 (1)	XBB.1.16.3 (2)
XBB.1.16.5 (2)	XBB.1.16.7 (3)	XBB.1.16.10 (1)	HF.1 (14)	XBB.1.16.18 (1)	XBB.1.16.19 (1)	XBB.1.16.20 (2)
XBB.1.16.21 (2)	XBB.1.16.23 (3)					
XBB.2.3 系統 (89)						
XBB.2.3 (5)	XBB.2.3.2 (24)	HH.1 (5)	XBB.2.3.3 (13)	GJ.1.1 (4)	GJ.1.2 (4)	JE.1 (2)
XBB.2.3.6 (22)	GM.3.1 (2)	XBB.2.3.8 (6)	XBB.2.3.9 (1)	GE.1 (1)		
EG.5 系統 (242)						
EG.5 (5)	EG.5.1 (99)	EG.5.1.1 (50)	HK.1 (1)	HK.2 (3)	HK.3 (32)	HK.3.2 (6)
HK.3.3 (1)	HK.7 (1)	HK.20.1 (2)	HK.23.1 (1)	HK.29 (1)	EG.5.1.2 (3)	EG.5.1.3 (1)
JG.3 (8)	JG.3.2 (2)	EG.5.1.4 (8)	JJ.1 (2)	EG.5.1.6 (1)	HV.1 (4)	HV.1.1 (4)
EG.5.1.7 (2)	EG.5.1.8 (4)	JR.1.1.1 (1)				
BA.2.86 系統 (28)						
BA.2.86 (1)	BA.2.86.1 (24)	JN.2 (1)	JN.3 (1)	BA.2.86.3 (1)		
JN.1 系統 (46)						
JN.1 (33)	JN.1.1 (3)	JN.1.1.1 (3)	JN.1.1.3 (1)	JN.1.4 (5)	JN.1.11.1 (1)	
その他の組替え体 (17)						
HW.1 (1)	HW.1.1 (1)	XBL.3 (1)	XCU (1)	XDA (1)	XDD (1)	XDK (2)
XDQ (7)	XDR (1)	XDS (1)				

(括弧)内の数字は検出数

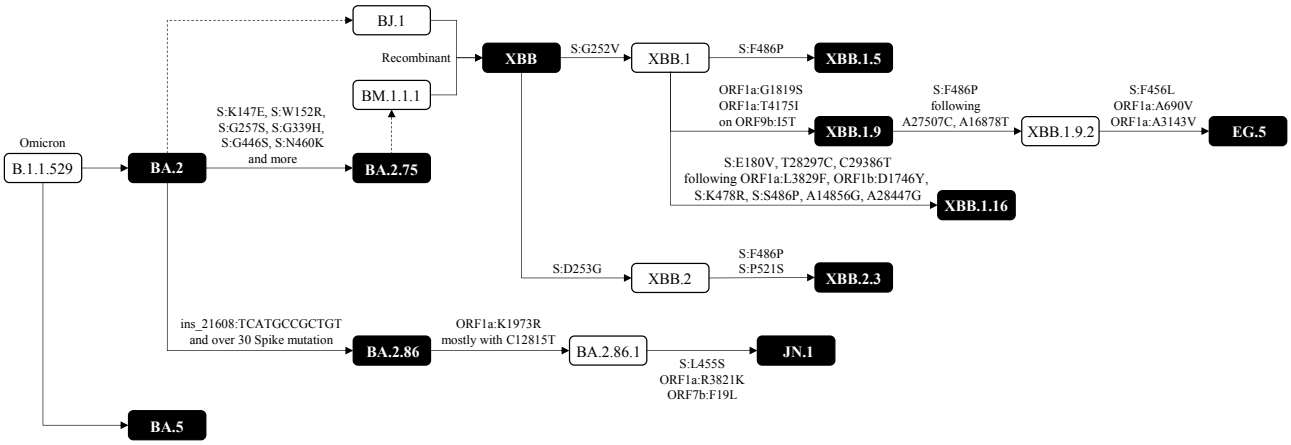


図 1　変異株の系統分岐（参考：Github/cov-lineages/pango-designation＜https://github.com/cov-lineages/pango-designation＞）

表 4　福岡県内の月別定点報告数※

2023 年									2024 年		
4 月	5 月	6 月	7 月	8 月	9 月	10 月	11 月	12 月	1 月	2 月	3 月
－	2057	4954	13694	13955	10872	2631	1346	3122	8605	7628	4236

※COVID-19 定点報告数を週単位から月単位に換算（週が 2 つの月にまたがる場合は，当該週の報告数を各月に属する日数で均等に按分）

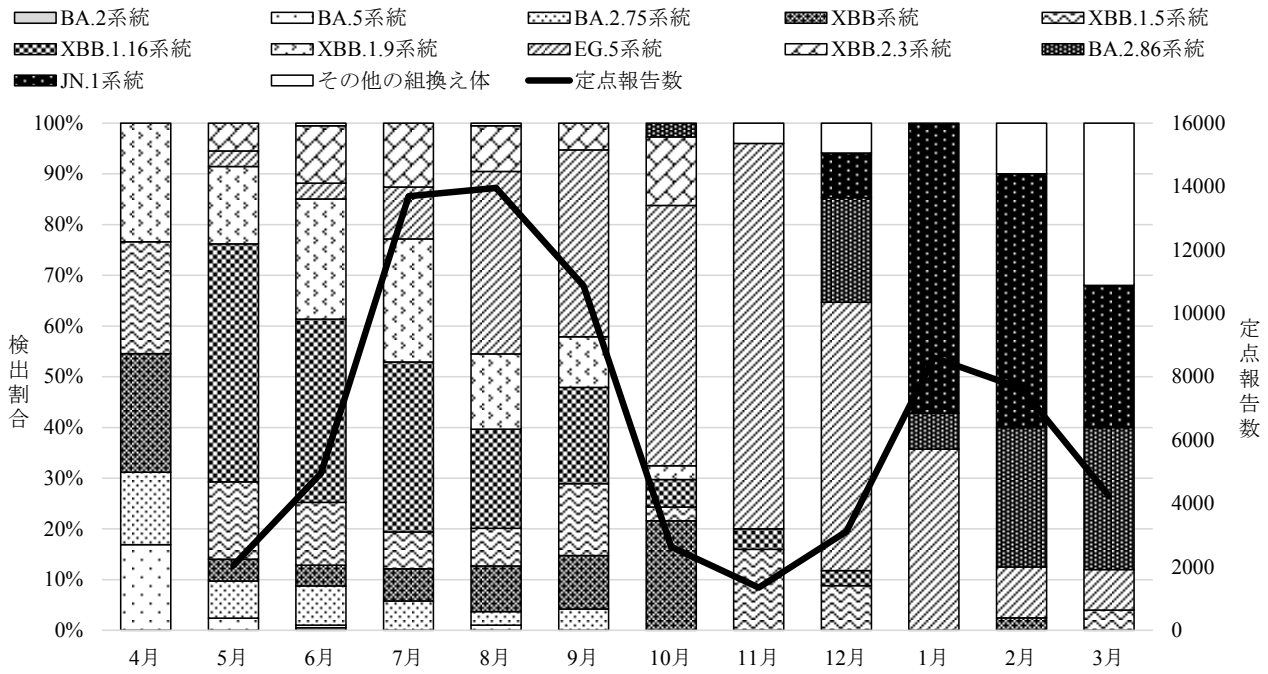


図 2　福岡市の系統別検出割合及び福岡県の定点報告数

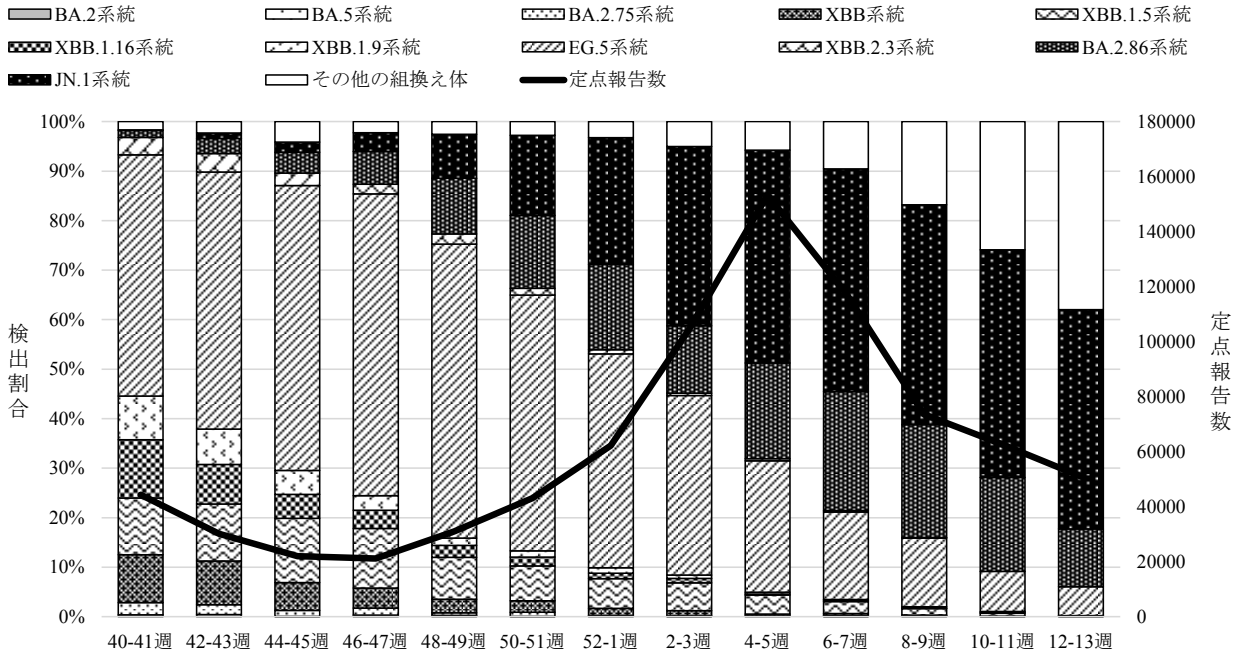


図 3　全国の系統別検出割合及び定点報告数

4　まとめ

2023 年度は，COVID-19 が感染症法上の五類感染症となったことで, 全数報告から定点報告への移行をはじめ, これまでの COVID-19 対応に関して大きな転換点を迎える年となった．社会経済活動における制限も撤廃されたことに伴い，人流がコロナ禍以前の水準に戻ることで，新たに発生する SARS-CoV-2 変異株の伝播が，これまで以上に加速することが考えられる．国内においても COVID-19 の終息には至っておらず，現在もなお，感染の拡大期と小康期を繰り返している状況にある．

当所では，国の要請に基づき，SARS-CoV-2 ゲノム解析を継続して実施しており，本市における SARS-CoV-2 変異株の動向を監視してきたが，2023 年度は，XBB 系統及びその亜系統を中心として多様な Lineage が検出された．特に冬季以降は，BA.2.86 系統，JN.1 系統，更にはこれらの系統を親系統とした様々な組換え体といった新たな変異株の出現を確認した．

新たな変異株は，感染・伝播性の増加や抗原性が変化する可能性を有しており，過去繰り返してきた大きな流行は，新たな変異株の出現が引き金になっていることからも，NGS を活用したゲノム解析によるモニタリングは，新たな変異株流入の探知に有用な手段であると言える．

文献

1）厚生労働省健康局結核感染症課長通知健感発 0205 第 4 号 : 新型コロナウイルス感染症の積極的疫学調査におけるゲノム解析及び変異株 PCR 検査について（要請），令和 3 年 2 月 5 日

2）国立感染症研究所病原体ゲノム解析研究センター : 新型コロナウイルスゲノム解読プロトコル Qiagen 社 QiaSEQ FX 編 version 1.4，2022 年 1 月 27 日

3）国立感染症研究所：新型コロナウイルス（SARS-CoV-2）の変異株 BA.2.75 系統について, 2022 年 7 月 8 日

4）Github：BA.2 sublineage with S:K147E, W152R, F157L, I210V, G257S, D339H, G446S, N460K, R493Q (73 seq as of 2022-06-29, mainly India)＜https://github.com/cov-lineages/pango-designation/issues/773＞

5）国立感染症研究所 : 感染・伝播性の増加や抗原性の変化が懸念される新型コロナウイルス（SARS-CoV-2）の変異株について（第 21 報），2022 年 10 月 21 日

6）Github : BJ.1/BM.1.1.1 (=BA.2.75.3.1.1.1) recombinant with breakpoint in S1 [>=5 sequences, 3x Singapore, 2x US as of 2022-09-12]＜https://github.com/cov-lineages/pango-designation/issues/1058＞

7）国立感染症研究所 : 感染・伝播性の増加や抗原性の変化が懸念される新型コロナウイルス（SARS-CoV-2）

の変異株について（第 24 報），2023 年 1 月 13 日
8）Github : XBB.1 Sublineage with S:E180V, S:K478R, S:S486P, ORF9b:I5T, ORF9b:N55S, ORF1a:L3829F, ORF1b:D1746Y (42 seq)＜https://github.com/cov-lineages/pango-designation/issues/1723＞
9）Github : XBB.2 with S:F486P,S:P521S - 11 sequences USA, India as 25-01-23＜https://github.com/cov-lineages/pango-designation/issues/1535＞
10）Github : XBB.1.9.2 sublineages with S:F456L (61 sequences throughout asia, europe, n. america)＜https://github.com/cov-lineages/pango-designation/issues/1918＞
11）国立感染症研究所：新型コロナウイルス（SARS-CoV-2）の変異株 BA.2.86 系統について，2023 年 9 月 8 日
12）国立感染症研究所 : 新型コロナウイルス（SARS-CoV-2）の変異株 BA.2.86 系統について（第 2 報），2023 年 11 月 16 日
13）Github : 2nd-Generation BA.2 Saltation Lineage, >30 spike mutations (3 seq, 2 countries, Aug 14)＜https://github.com/cov-lineages/pango-designation/issues/2183＞
14）Github : Rapid identification of BA.2.86 branches (=/>2seqs)((Archived))＜https://github.com/cov-lineages/pango-designation/issues/2236＞
15）国立感染症研究所：新型コロナウイルス（SARS-CoV-2）の変異株 JN.1 系統について，2023 年 11 月 16 日
16）Github : BA.2.86.1/FL.15.1.1 recombinant (25 seqs, 10 countries, 4 with S:A475V)＜https://github.com/cov-lineages/pango-designation/issues/2481＞

福岡市におけるインフルエンザウイルスのゲノム解析

讃井武蔵・松平美咲・宮本道彦

福岡市保健環境研究所保健科学課

Genome Analysis of Influenza Virus in Fukuoka City

Musashi SANUI， Misaki MATSUDAIRA and Michihiko MIYAMOTO

Health Science Section, Fukuoka city Institute of Health and Environment

要約

A型及びB型インフルエンザウイルスのゲノムは，8分節化したマイナス鎖RNAであり，そのゲノムを利用した様々な解析が行われている．福岡市保健環境研究所では次世代シーケンサーから得られたデータについて，ゲノム解析を実施するためLinux系OSであるUbuntuを利用した情報解析環境（仮想マシン）を構築した．令和5年度（2023年度）福岡県結核・感染症発生動向調査事業において分離した季節性のインフルエンザウイルス（A型（H1N1）pdm09，A型（H3N2）及びB型ビクトリア系統）について，収集した参照配列に対してマッピングし，結果について評価を行った．さらにゲノム解析によって得られたHA遺伝子を利用して型別毎に系統樹解析を実施し，国内ワクチン参照株を含めた標準株との比較を行った．また，得られたNA遺伝子に基づくアミノ酸配列を確認したが，抗インフルエンザ薬NA阻害剤オセルタミビル及びペラミビルに対する耐性変異H275Yは検出されなかった．

Key Words：インフルエンザウイルス　influenza virus，次世代シーケンサー　next generation sequencer，情報解析　data analysis，ゲノム解析　genome analysis，HA遺伝子系統樹解析　HA gene phylogenetic analysis，NA阻害剤耐性　NA inhibitor resistance

1　はじめに

インフルエンザウイルスは，発熱，咳嗽，頭痛，筋肉痛，関節痛を主症状とする感染症を起こすウイルスである．インフルエンザウイルスは，A型～D型に分類されるが，その中でもA型及びB型が季節的な流行を引き起こしている．A型についてはさらに抗原性の違いからHA（ヘマグルニチン）タンパク16種類及びNA（ノイラミニダーゼ）タンパク9種類を組み合わせた亜型に分類される．現在A型（H1N1）pdm09，A型（H3N2），B型ビクトリア系統及びB型山形系統の4種類が季節性インフルエンザとして，冬季になると世界各地で流行がみられており，国内では4価インフルエンザワクチンの参照型とされている．

A型及びB型インフルエンザウイルスのゲノムは8分節化したマイナス鎖RNAである．インフルエンザウイルスのゲノム解析を行うことで，HA遺伝子及びNA遺伝子による系統樹解析，抗インフルエンザ薬耐性変異の検出等が可能になる．国立感染症研究所インフルエンザ・呼吸器系ウイルス研究センター（以下，「感染研」とする.）が作成したインフルエンザ診断マニュアル（第5版）[1)]を参考にすることで，次世代シーケンサーを活用したインフルエンザウイルスのゲノム解析のためのライブラリー調製までは行うことができるが，塩基配列取得後の情報解析については，情報解析環境を独自に構築する必要があった．

本稿では，令和5年度（2023年度）福岡県結核・感染症発生動向調査事業における検査で分離・同定したインフルエンザウイルスについて，独自に構築した情報解析環境（仮想マシン）を利用し，ゲノム解析を実施して得られた結果等について報告する．

2　実験方法

2.1　解析対象

福岡県結核・感染症発生動向調査事業において，2023年9月以降にインフルエンザ病原体定点等から搬入され

た検体（鼻咽頭ぬぐい液等）について，MDCK 細胞によるウイルス分離を行った．分離株のうちモルモット血球を用いた HI（赤血球凝集抑制）試験で型別（A 型（H1N1）pdm09，A 型（H3N2），B 型ビクトリア系統）が同定された 15 件のインフルエンザウイルス分離株（表 1）について，ゲノム解析の対象とした．

表 1　解析の対象としたインフルエンザ分離株

株名	型別（系統）	採取年月
A/Fukuoka city/1/2023	H1N1pdm09	Sep-2023
A/Fukuoka city/2/2023	H1N1pdm09	Oct-2023
A/Fukuoka city/3/2023	H3N2	Oct-2023
A/Fukuoka city/4/2023	H3N2	Oct-2023
A/Fukuoka city/5/2023	H3N2	Oct-2023
A/Fukuoka city/6/2023	H1N1pdm09	Nov-2023
A/Fukuoka city/7/2023	H1N1pdm09	Dec-2023
A/Fukuoka city/8/2023	H1N1pdm09	Dec-2023
A/Fukuoka city/9/2023	H1N1pdm09	Dec-2023
A/Fukuoka city/10/2023	H1N1pdm09	Dec-2023
B/Fukuoka city/1/2023	ビクトリア系統	Dec-2023
B/Fukuoka city/1/2024	ビクトリア系統	Jan-2024
B/Fukuoka city/2/2024	ビクトリア系統	Jan-2024
B/Fukuoka city/3/2024	ビクトリア系統	Jan-2024
A/Fukuoka city/1/2024	H3N2	Feb-2024

2.2　試薬・装置等

インフルエンザウイルス分離株からの核酸抽出は，QIAamp Viral RNA mini kit（QIAGEN）を用いて行った．以降の操作は，インフルエンザ診断マニュアル（第 5 版）を参考にした．すなわち，Super Script III One-Step RT-PCR System with Platinum Taq DNA Polymerase （Thermo Fisher Scientific）により抽出した RNA の逆転写及び PCR 反応を行い，逆転写産物の増幅には，感染研が設計した A 型及び B 型のプライマーセットをそれぞれ用いた．ライブラリー調製は，QIAseq FX DNA Library Kit（QIAGEN）により，断片化反応及びアダプター付加反応を行い，ライブラリーの精製は，Agencourt AMPure XP（BECKMAN COULTER）を用いた．調製したライブラリーは，次世代シーケンサーiSeq 100（illumina）を使用し，塩基配列情報（fastq ファイル）を取得した．

2.3　情報解析

2.3.1　ゲノム解析

次世代シーケンサーから得られたデータは，仮想マシン上で解析を行った．Windows10（OS）を搭載した PC 上に， VMware WorkStation 16 Player にて仮想マシンを作成し，後述するコマンドを実行するために，仮想マシン上の OS は Linux 系 OS である Ubuntu 22.04 LTS を用いた．

作成した仮想マシン上に「bwa」，「samtools」及び「bcftools」コマンドをインストールした．インストールしたコマンドは，図 1 のとおり分節毎に実行し，それぞれゲノム解析（マッピング）及び得られた結果について評価を行った．マッピング用の参照配列は A 型（H1N1）pdm09，A 型（H3N2）及び B 型ビクトリア系統について，それぞれ表 1 のとおり NCBI（National Center for Biotechnology Information：＜https://www.ncbi.nlm.nih.gov＞）を通して塩基配列（fasta ファイル）を取得した．

2.3.2　HA 遺伝子による系統樹解析

インフルエンザウイルスは，遺伝子的に多様化が進んでおり，HA 遺伝子系統樹内の集団に対し命名法が検討されている（Github＜https://github.com/influenza-clade-nomenclature＞）．

2.3.1 で得られた各系統の HA 遺伝子配列について，塩基配列解析ソフトウェア MEGA（Molecular Evolutionary Genetics Analysis ）version10 を用いて系統樹を作成した．系統樹作成に用いる標準株は，感染研が作成している HA 遺伝子系統樹解析結果[2)]を参考に GISAID（Global Initiative on Sharing Avian Influenza Data：＜https://gisaid.org＞）を通してワクチン参照株等の HA 遺伝子配列を取得した．なお，系統樹作成は近隣結合法により行い，Boot Strap 値は 1000 とした．

2.3.3　NA タンパクアミノ酸変異の確認

季節性インフルエンザに対する抗インフルエンザ薬 NA 阻害剤オセルタミビル（商品名：タミフル）及びペラミビル（商品名：ラピアクタ）について，H1N1 の場合，NA タンパクの 275 番目のアミノ酸であるヒスチジンがチロシンに変異する（以下，「H275Y」とする.）と耐性に関わることが報告されている[3)]．

2.3.1 で得られた A 型（H1N1）pdm09 の NA 遺伝子配列について，Web アプリケーション Nextclade＜https://clades.nextstrain.org＞にアップロードし，NA タンパクの H275Y 変異を確認した．得られた結果は，薬剤耐性サーベイランス（H275Y スクリーニング PCR）結果と比較した．

なお，Nextclade 解析で選択した「reference dataset」（参照株）は， A/Wisconsin/588/2019 としており， H275Y は有していない．

```
$ bwa index [Nucleotide Accession].fasta
$ bwa mem [Nucleotide Accession].fasta [検体名(R1)].fastq [検体(R2)].fastq > [検体名-分節番号].sam
$ samtools view -bS [検体名-分節番号].sam > [検体名-分節番号].bam
$ samtools sort [検体名-分節番号].bam -o [検体名-分節番号].bam
$ samtools index [検体名-分節番号].bam
$ samtools mpileup -uf [Nucleotide Accession].fasta [検体名-分節番号].bam | bcftools call -c | vcfutils.pl vcf2fq > [検体名-分節番号]consensus.fasta
$ samtools depth [検体名-分節番号].bam > [検体名-分節番号]coverage.txt
$ awk '{if($3 >= 30) count++} END{printf("%.2f%%\n", (count/NR)*100)}' [検体名-分節番号]coverage.txt
```

図 1　ゲノム解析（マッピング）実行コマンド

表 2　マッピングに用いた各系統 8 分節の Nucleotide Accession

分節番号 （遺伝子名）	A 型 (H1N1)pdm09	A 型 (H3N2)	B 型 ビクトリア系統
1	NC_026438.1	NC_007373.1	NC_002204.1
2	NC_026435.1	NC_007372.1	NC_002205.1
3	NC_026437.1	NC_007371.1	NC_002206.1
4(HA)	NC_026433.1	NC_007366.1	NC_002207.1
5	NC_026436.1	NC_007369.1	NC_002208.1
6(NA)	NC_026434.1	NC_007368.1	NC_002209.1
7	NC_026431.1	NC_007367.1	NC_002210.1
8	NC_026432.1	NC_007370.1	NC_002211.1

3　実験結果及び考察

3.1　ゲノム解析

ゲノム解析を実施した 15 件の分離株について，分節毎のマッピング結果を表 2 に示す．結果は参照配列に対してマッピングされたリードが 30 以上あった領域の割合（%）を集計した．以降の解析に用いる分節 4（HA 遺伝子），分節 6（NA 遺伝子）については，いずれの型別においても 95%以上の領域で 30 以上のリードが確保されており，精度良くマッピングされていた．型別によってはマッピングの精度が低い傾向にある分節も確認されたため，参照配列の変更，de novo assemble 法の活用等も今後検討していく必要がある．

表 3　A 型（H1N1）pdm09 分離株のゲノム解析結果

A 型(H1N1)pdm09	分節番号							(%)
	1	2	3	4(HA)	5	6(NA)	7	8
A/Fukuoka city/1/2023	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00
A/Fukuoka city/2/2023	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	99.93	100.00	100.00
A/Fukuoka city/6/2023	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	99.93	100.00	100.00
A/Fukuoka city/7/2023	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00
A/Fukuoka city/8/2023	89.21	81.13	100.00	100.00	100.00	99.93	100.00	100.00
A/Fukuoka city/9/2023	64.30	75.42	100.00	100.00	100.00	99.93	100.00	100.00
A/Fukuoka city/10/2023	76.18	80.87	100.00	100.00	100.00	99.93	100.00	100.00

表 4　A 型（H3N2）分離株のゲノム解析結果

A 型(H3N2)	分節番号							(%)
	1	2	3	4(HA)	5	6(NA)	7	8
A/Fukuoka city/3/2023	89.28	83.04	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00
A/Fukuoka city/4/2023	66.89	73.75	96.28	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00
A/Fukuoka city/5/2023	100.00	85.18	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00
A/Fukuoka city/1/2024	75.05	82.87	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00

表 5　B 型ビクトリア系統分離株のゲノム解析結果

B 型ビクトリア系統	分節番号							(%)
	1	2	3	4(HA)	5	6(NA)	7	8
B/Fukuoka city/1/2023	50.53	84.04	58.77	95.94	100.00	100.00	100.00	98.36
B/Fukuoka city/1/2024	86.15	86.67	80.71	96.54	100.00	100.00	100.00	98.27
B/Fukuoka city/2/2024	96.41	93.00	87.94	97.07	100.00	100.00	100.00	97.81
B/Fukuoka city/3/2024	96.62	96.93	88.17	96.53	100.00	100.00	100.00	94.89

3.2　HA 遺伝子による系統樹解析

3.1 で得られた A 型（H1N1）pdm09，A 型（H3N2）及び B 型ビクトリア系統による HA 遺伝子について，系統樹の結果をそれぞれ図 2～図 4 に示す.

A 型（H1N1）pdm09 は，A/Fukuoka city/1/2023（2023 年 9 月採取）が 2023/24 シーズン（3 月 21 日時点）に感染研で系統樹解析された分離株の 28.6%程度を占めている「6B.1A.5a.2a」に分類された[2)]．一方で 2023 年 10 月以降に採取されたその他の株については，「6B.1A.5a.2a」からさらに複数変異（「P137S」，「K142R」，「D260E」，「T277A」，「E356D」，「I418V」及び「N451H」）を獲得した「6B.1A.5a.2a.1」に分類された．本系統は，2023/24 シーズン（3 月 21 日時点）に感染研で系統樹解析された分離株の 71.4%を占めている系統であり[2)]，国内ワクチン参照株と同系統であった.

A 型（H3N2）は，解析を行った全ての分離株について「3C.2a1b.2a.2a.3a.1」に分類され，2023/24 シーズンの国内ワクチン参照株の系統である「3C.2a1b.2a.2a」からさらに複数の変異（「D53N」，「N96S」，「I192F」，「N378S」，「E50K」，「I140K」，及び「I223V」）を獲得した下位系統であったが，福岡市保健環境研究所で行った HI 試験における HI 価は抗血清力価から 2 倍以内であったことから，本系統は国内のワクチンが比較的有効であったと考えられた．また，本系統は感染研で系統樹解析された分離株の 95.3%を占めていたが，同研究所における抗原性解析において，90%以上の株がワクチン参照株抗血清との反応性が 2 倍以内又は 4 倍であった[2)].

B 型ビクトリア系統は，解析した全ての分離株において，国内ワクチン参照株である「V1A.3a.2」と同系統のものに分類された.

A 型（H1N1）pdm09，A 型（H3N2），B 型ビクトリア系統はいずれもさらに詳細な分類である「subclade」が検討されている．subclade は，定期的に新規系統が追加されており，今後は分離株遺伝子情報の収集方法も確立していく必要がある.

3.3　NA タンパクアミノ酸変異の確認

3.1 で得られた A 型（H1N1）pdm09 の NA 遺伝子について，解析を行った分離株からオセルタミビル及びペラミビルに対する耐性 H275Y 変異は検出されなかった．また，薬剤耐性サーベイランスとして実施している H275Y スクリーニング PCR 結果と結果に相違はなかった.

アミノ酸変異の確認による解析は，その他の抗インフルエンザ薬の耐性変異にも同様の解析が行えると推測される．NA タンパク及び PA タンパクに作用する薬剤の既知の代表的な耐性変異は，WHO の Publications[3, 4)] にまとめられているため，今後さらなる薬剤耐性情報を収集し，応用を検討していく.

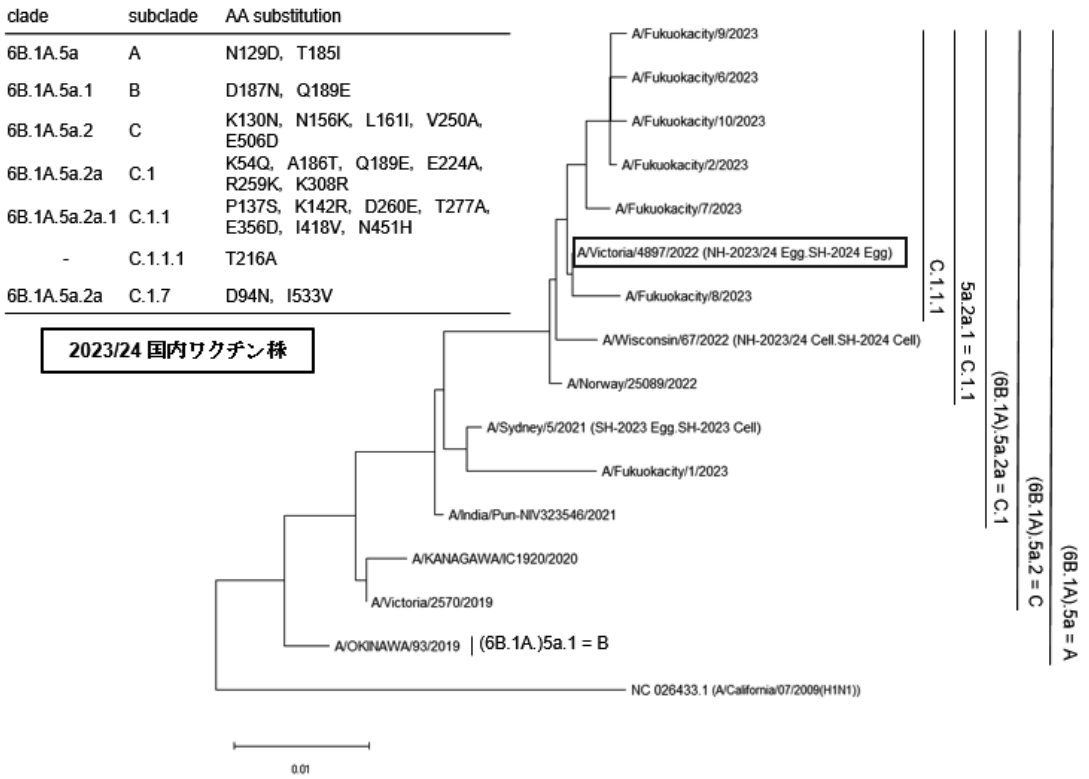


図 2　A 型（H1N1）pdm09 の HA 遺伝子系統樹

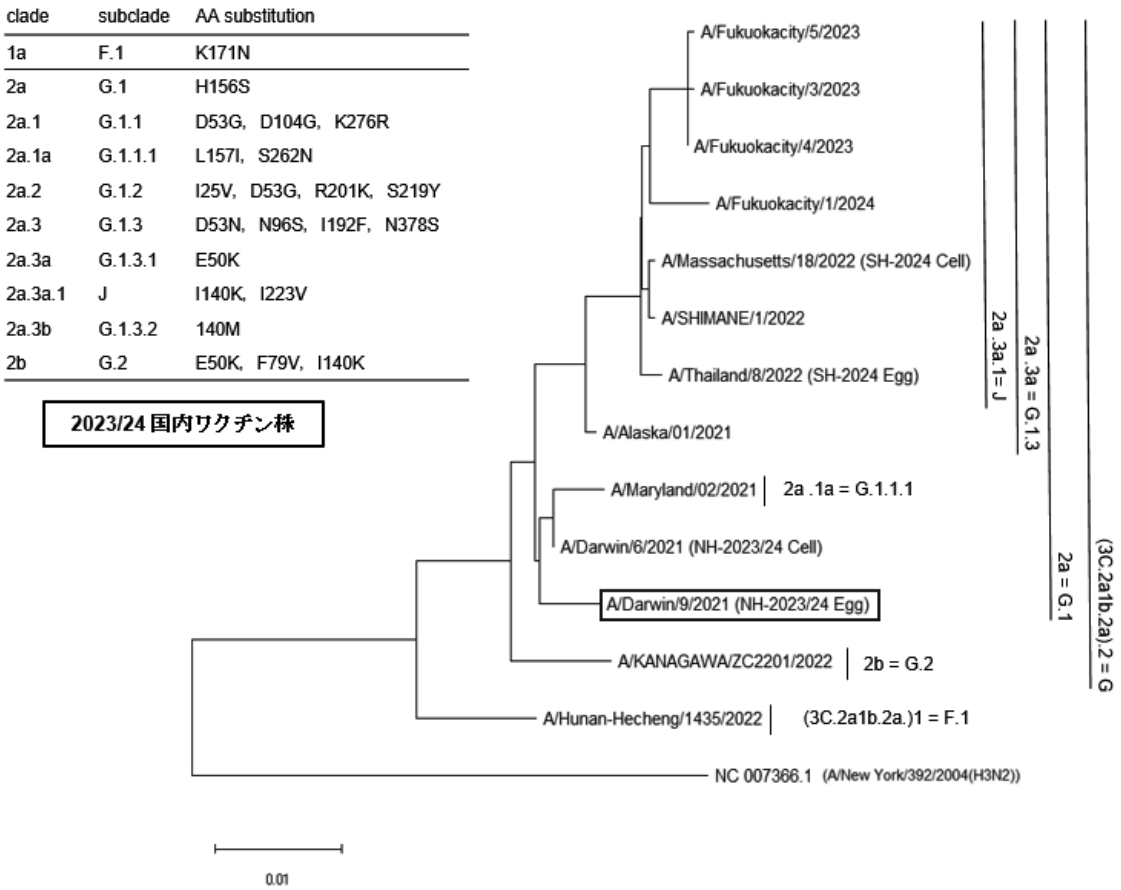


図 3　A 型（H3N2）の HA 遺伝子系統樹

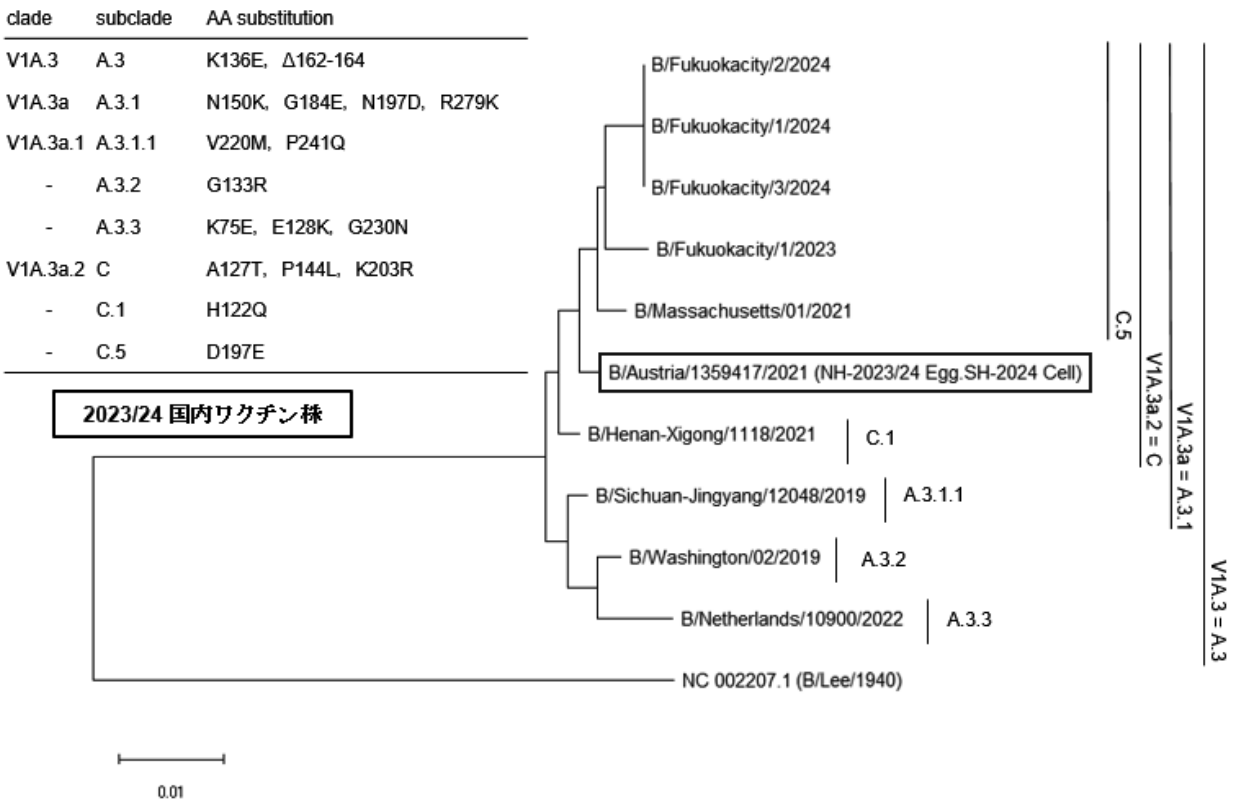


図 4　B 型ビクトリア系統の HA 遺伝子系統樹

4　まとめ

当所では，次世代シーケンサーを活用するため，情報解析環境を構築し，インフルエンザウイルス分離株 15 件について，ゲノム解析を実施し，全ての分離株についてリード等を確認することができた．しかし，ゲノム解析に関して，「ホスト（MDCK 細胞）ゲノム配列の除去」，「低品質な配列の除去」等さらなる情報解析精度の向上に努めていくとともに，ゲノム解析結果の新たな評価法も検討していく必要がある．今回構築した情報解析環境はインフルエンザウイルスに限らず，他のウイルス分離株についても応用していきたい．

得られたゲノム配列を利用して HA 遺伝子を用いた系統樹作成を行った．本稿では当所で分離したインフルエンザウイルス及び 2023/24 におけるワクチン株を含む標準株のみで系統樹解析を行ったところ，A 型（H3N2）ではワクチン株の系統からさらに変異を獲得した下位系統が確認された．他にも感染研により定期的に登録される国内で発生したインフルエンザウイルス及び海外において登録されるインフルエンザウイルスの HA 遺伝子情報は，GISAID を通じて収集することが可能であるため，今後は福岡市内で流行している季節性インフルエンザウイルスとの地域関連性の解析等に活かしていきたい．また，得られたゲノム配列を Nextclade にアップロードすることで，参照株に対するアミノ酸変異を確認することができ，本稿では NA 阻害剤オセルタミビル及びペラミビルに対する耐性変異 H275Y の有無を確認した．

今後インフルエンザウイルスのゲノムを活用した解析等を，保健所，市民，医療機関等へ情報発信することで本市の感染症サーベイランスに広く貢献していく．

文献

1）国立感染症研究所インフルエンザ・呼吸器系ウイルス研究センター：インフルエンザ診断マニュアル（第 5 版），令和 5 年（2023 年）8 月
2）国立感染症研究所インフルエンザ・呼吸器系ウイルス研究センター：インフルエンザウイルス流行株 抗原性解析と遺伝子系統樹，2024 年 3 月 21 日
3）WHO：Summary of neuraminidase (NA) amino acid substitutions assessed for their effects on inhibition by neuraminidase inhibitors (NAIs)，2023 年 3 月 7 日
4）WHO：Summary of polymerase acidic protein (PA) amino acid substitutions assessed for their effects on PA inhibitor (PAI) baloxavir susceptibility，2023 年 3 月 7 日

パルスフィールドゲル電気泳動法による薬剤耐性菌の分子疫学解析法の検討

下田由布子・田村佐和子*・新宮聡美・阿部有利

福岡市保健環境研究所保健科学課
*港湾空港局港湾計画部みなと環境政策課

Examination of the Molecular Epidemiological Analysis Method by Pulsed-Field Gel Electrophoresis for Antimicrobial Resistant Bacteria

Yuko SHIMODA , Sawako TAMURA* , Satomi SHINGU and Yuri ABE

Health Science Section, Fukuoka City Institute of Health and Environment
*Port Environment Section, Port Planning Department, Port & Airport Bureau

要約

福岡市内における薬剤耐性菌の院内感染事例の発生に備え，伝播経路の解明等に有用なパルスフィールドゲル電気泳動（PFGE）法による分子疫学解析の検査条件の検討を行った．感染症法における 5 類全数報告対象の薬剤耐性菌感染症のうち，市内発生例があるカルバペネム耐性腸内細菌目細菌（CRE）感染症及びバンコマイシン耐性腸球菌（VRE）感染症の 2 疾病について，市内発生数が多い CRE 7 菌種及び国内発生例がある VRE 2 菌種を対象とした．福岡市保健環境研究所で従来保有していた PFGE 装置を用いて，対象菌種の泳動条件等を検討し，至適検査条件を確定した．また，装置の違いによる影響を確認するため，新規導入した PFGE 装置を用いて，従来保有装置で確定した検査条件で PFGE 法を実施し，泳動画像の比較を行った．比較の結果，当所保有の新旧 2 台の PFGE 装置は，同じ検査条件で解析可能であった．対象菌種について PFGE 法の検査マニュアルを作成し，分子疫学解析の検査法を整備した．

Key Words : 分子疫学解析　Molecular epidemiological analysis，パルスフィールドゲル電気泳動法　Pulsed-field gel electrophoresis，カルバペネム耐性腸内細菌目細菌　Carbapenem-resistant Enterobacterales，バンコマイシン耐性腸球菌　Vancomycin-resistant Enterococci

1　はじめに

薬剤耐性菌による院内感染事例は国内で度々発生がみられ問題となっている．福岡市では感染症の予防及び感染症の患者に対する医療に関する法律（以下，「感染症法」とする．）における 5 類全数報告対象の薬剤耐性菌感染症の発生数が多く，院内感染事例の発生リスクが高い．院内感染は発生すると終息までに時間を要し，病原体や状況によっては致死的にもなりうるため，感染拡大防止措置等に迅速な対応が求められる．また，施設内の感染状況把握及び伝播経路の解明には，患者の疫学調査と病原体の分子疫学調査が不可欠であるため，福岡市保健環境研究所での分子疫学解析の検査対応が求められている．

薬剤耐性菌の分子疫学解析はパルスフィールドゲル電気泳動（以下，「PFGE」とする．）法が有用であるが，その泳動条件は菌種や装置の設置状況等により異なるため，統一されたマニュアルがなく，各施設で保有する装置の至適条件を検討しておく必要がある．そこで，院内感染事例発生時に迅速に分子疫学解析を実施し，感染拡大防止措置等に役立てるため，本市で発生数が多いカルバペネム耐性腸内細菌目細菌（以下，「CRE」とする．）感染症の 7 菌種及び国内発生例のあるバンコマイシン耐性腸球菌（以下，「VRE」とする．）感染症の 2 菌種について，当所保有の装置における PFGE 法の至適検査条件の検討を行った．

2　実験方法

2.1　供試菌株

CRE 感染症は本市で発生数の多い 7 菌種, VRE 感染症は国内発生例のある 2 菌種を対象とした．市内で分離された CRE 7 菌種 35 株，VRE 1 菌種（*E. faecium*）4 株及び腸球菌（*E. faecalis*）の標準菌株 3 株を供試菌株とした．菌種の内訳を表 1 に示す．

表 1　供試菌株

疾病	菌種	菌株数
CRE 感染症	*Enterobacter cloacae*	5
	Klebsiella aerogenes	5
	Klebsiella pneumoniae	5
	Serratia marcescens	6
	Citrobacter freundii	5
	Escherichia coli	5
	Klebsiella oxytoca	4
VRE 感染症	*Enterococcus faecium*	4
	Enterococcus faecalis（標準菌株）	3

2.2　PFGE 法

2.2.1　検査手順

PFGE 法は国立感染症研究所（以下，「感染研」とする．）のプロトコール[1)]及び研修配布資料[2，3)]に準じて実施した．検査手順を表 2 に示す．

表2　PFGE法の検査手順

	CRE	VRE
菌株の準備	・供試菌をミューラーヒントン寒天培地に塗抹し，濃密塗抹部分にセフタジジムディスクを置き，36℃で12～18時間培養する．	・供試菌をミューラーヒントン寒天培地に塗抹し，濃密塗抹部分にバンコマイシンディスクを置き，36℃で18～24時間培養する．
菌液調整及びプラグ作製	・菌を滅菌水に懸濁し，マクファーランド3～4程度に菌液を調整する． ・菌液を1% Seakem Gold Agarose (Lonza)ゲル液に等量加えて混和後，プラグモールドに入れ，氷上で固化させる．（1検体につきプラグ2枚作製）	・菌をTE(pH8.0)に懸濁し，マクファーランド4～5程度に菌液を調整する． ・菌液を1.2% InCert Agarose (Lonza)ゲル液に等量加えて混和後，プラグモールドに入れ，氷上で固化させる．（1検体につきプラグ2枚作製）
リゾチーム処理	なし	・プラグ2枚を2 mg/mLリゾチーム溶液1 mLに入れ，37℃でover night 振盪する． ・TE(pH8.0)で，2～3回プラグとチューブを洗浄する．
プロティナーゼK処理	・プラグ2枚を1 mg/mL プロティナーゼK，1% N-lauroylsarcosine in 0.5 M EDTA(pH8.0) 2 mLに入れ，50℃でover night 振盪する．	・1 mg/mL プロティナーゼK，1% N-lauroylsarcosine in 0.5 M EDTA(pH8.0) 2 mLを加え，50℃でover night 振盪する．
プロティナーゼK不活化処理	・プラグを4 mM Pefabloc SC(Roche)in TE(pH8.0) 2 mLに入れ，50℃で20分間振盪を2回行う． ・プラグとチューブをTE(pH8.0)で洗浄する． ・TE(pH8.0)を入れ替え，50℃で20分間振盪を2回行い，プラグを洗浄する． ・プラグを泳動用の大きさにカットする．	・プラグを4 mM Pefabloc SC(Roche)in TE(pH8.0) 2 mLに入れ，50℃で20分間振盪を2回行う． ・プラグとチューブをTE(pH8.0)で洗浄する． ・TE(pH8.0)を入れ替え，50℃で20分間振盪を2回行い，プラグを洗浄する． ・プラグを泳動用の大きさにカットする．
制限酵素処理	・カットしたプラグを制限酵素用Buffer 300 µLに入れ，使用する酵素の反応温度で20分間振盪する． ・Bufferを除去し，制限酵素液(30 U/プラグ)200 µLを加え，使用する酵素の反応温度で3時間振盪する． ・0.5×TBEに入れ替え，泳動まで室温で静置する．	・カットしたプラグを制限酵素用Buffer 300 µLに入れ，使用する酵素の反応温度で20分間振盪する． ・Bufferを除去し，制限酵素液(30 U/プラグ)200 µLを加え，使用する酵素の反応温度で3時間振盪する． ・0.5×TBEに入れ替え，泳動まで室温で静置する．
泳動	・プラグをコームに貼付け，1% Seakem Gold Agarose in 0.5×TBEで固め，泳動用ゲルを作製する． ・各菌種の泳動条件で泳動する．	・プラグをコームに貼付け，1% Seakem Gold Agarose in 0.5×TBEで固め，泳動用ゲルを作製する． ・各菌種の泳動条件で泳動する．
染色及び撮影	・ゲルを0.3 µg/mL エチジウムブロマイド溶液で30分間染色後，UV下で撮影する．	・ゲルを0.3 µg/mL エチジウムブロマイド溶液で30分間染色後，UV下で撮影する．

2.2.2　泳動条件の検討

泳動には，平成 24 年度に導入した CHEF Mapper XA システム（Bio-Rad）（装置 1）を用いた．泳動は感染研の研修配布資料[2，3]の検査条件を参考に実施した．泳動像において，レーン全体にバンドがシャープに分離され，最下段のバンドがゲル下端から 1～1.5 cm 程度に収まるようにスイッチング時間及び泳動時間を調整し，各菌種の至適泳動条件の検討を行った．その他の泳動条件は，感染研の研修配布資料[2，3]を参考に，電圧：6 v/cm，泳動 buffer：0.5×TBE，泳動 buffer 温度：14℃，電圧角度：120°とし，対象菌種全て同じ条件で実施した．

2.2.3　新規導入装置での解析

令和 5 年度に新規導入した CHEF Mapper XA システム（Bio-Rad）（装置 2）を用いて，装置 1 で確定した至適検査条件で PFGE 法を実施した．各菌種について，装置 1 及び装置 2 の泳動画像を比較した．

3　実験結果

3.1　PFGE 法の検査条件

装置 1 を用いて各菌種の泳動条件の検討を行い，確定した PFGE 法の検査条件を表 3 に示す．

3.2　新旧装置における泳動像の比較

装置 2 を用いて，3.1 で確定した検査条件で PFGE 法を実施し，装置 1 及び装置 2 の泳動画像を比較した結果，全ての菌種においてバンドの位置に大きな差は認められなかった．装置 1 及び装置 2 における各菌種の泳動像を図 1～図 9 に示す．

表3　PFGE法の検査条件

疾病	菌種	制限酵素の条件※		泳動条件	
		制限酵素	反応温度 (℃)	スイッチング時間 (sec)	泳動時間 (h)
CRE感染症	*Enterobacter cloacae*	SpeI	37	12.6～40.1	19
	Klebsiella aerogenes	SpeI	37	2.98～21.79	20
	Klebsiella pneumoniae	XbaI	37	12.6～40.1	19
	Serratia marcescens	SpeI	37	12.6～40.1	19
	Citrobacter freundii	XbaI	37	12.6～40.1	18.5
	Escherichia coli	XbaI	37	12.6～40.1	19
	Klebsiella oxytoca	XbaI	37	12.6～40.1	19
VRE感染症	*Enterococcus faecalis*	SmaI	30	2.16～26.29	21
	Enterococcus faecium	SmaI	30	2.98～17.33	20

※制限酵素の濃度及び反応時間は全菌種同じ条件で実施．（濃度：30 U/プラグ，反応時間：3時間）

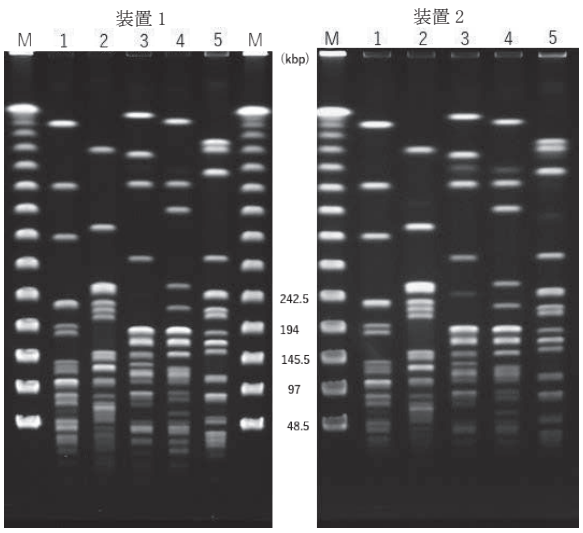


図 1　*Enterobacter cloacae* の PFGE 泳動像
M：Lambda Ladder(Bio-Rad)
1～5：*Enterobacter cloacae*

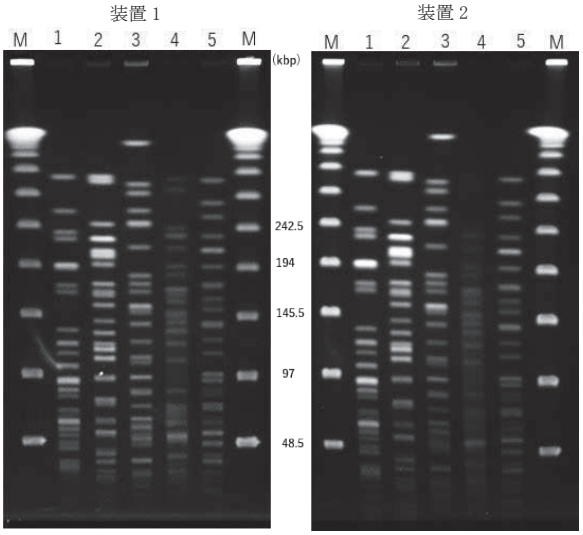


図 2　*Klebsiella aerogenes* の PFGE 泳動像
M：Lambda Ladder(Bio-Rad)
1～5：*Klebsiella aerogenes*

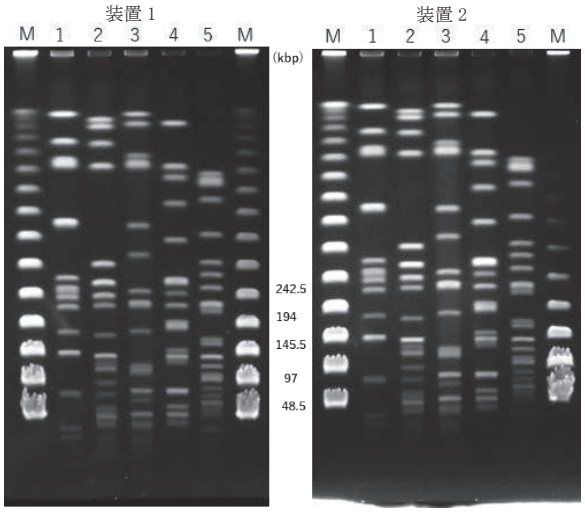


図 3　*Klebsiella pneumoniae* の PFGE 泳動像

M：Lambda Ladder(Bio-Rad)
1～5：*Klebsiella pneumoniae*

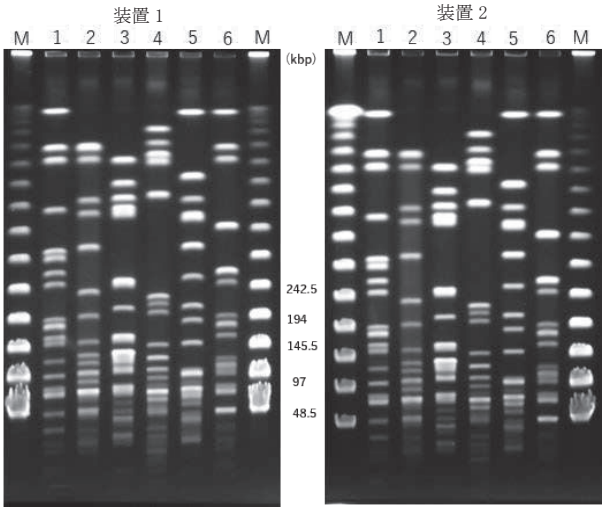


図 4　*Serratia marcescens* の PFGE 泳動像

M：Lambda Ladder(Bio-Rad)
1～6：*Serratia marcescens*

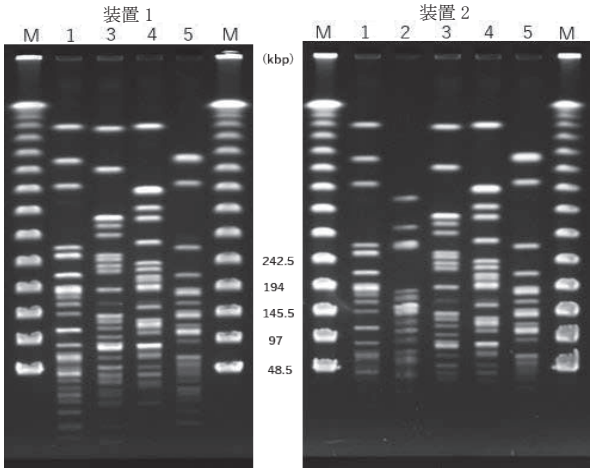


図 5　*Citrobacter freundii* の PFGE 泳動像

M：Lambda Ladder(Bio-Rad)
1～5：*Citrobacter freundii*

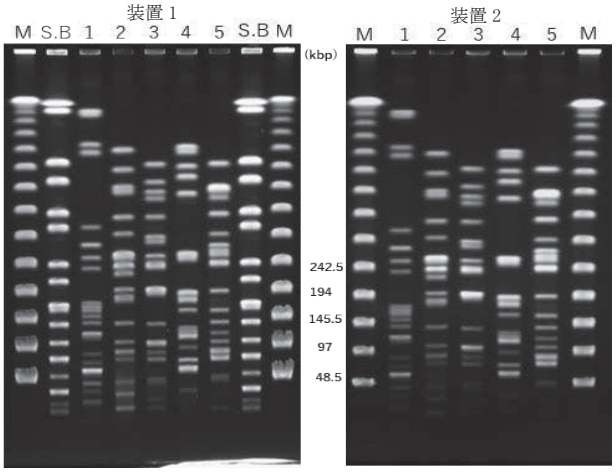


図 6　*Escherichia coli* の PFGE 泳動像

M：Lambda Ladder(Bio-Rad)
S.B：*Salmonella* Braenderup（マーカー菌株）
1～5：*Escherichia coli*

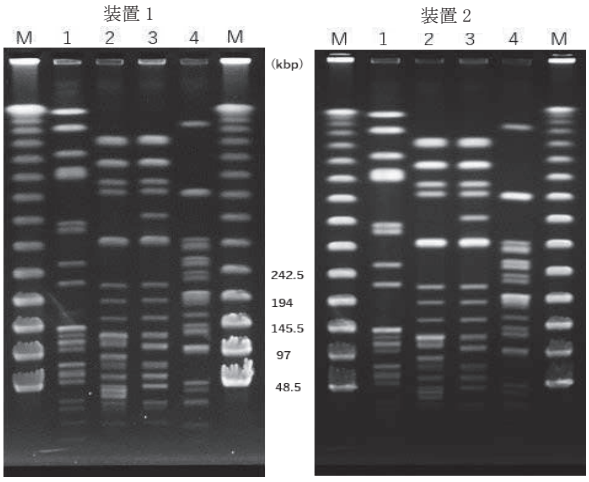


図 7　*Klebsiella oxytoca* の PFGE 泳動像

M：Lambda Ladder(Bio-Rad)
1～4：*Klebsiella oxytoca*

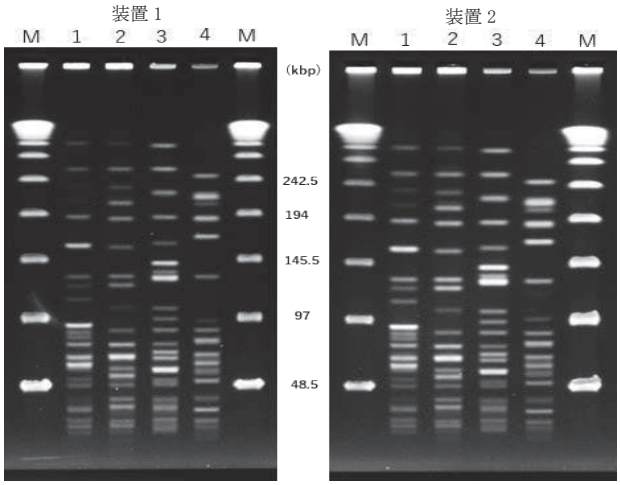


図 8　*Enterococcus faecium* の PFGE 泳動像

M：Lambda Ladder(Bio-Rad)
1～4：*Enterococcus faecium*

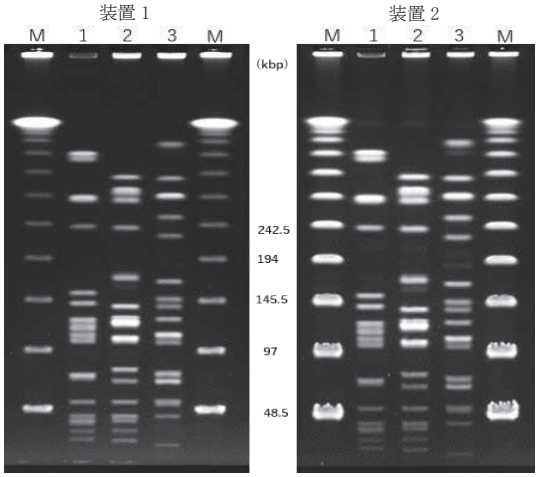


図 9　*Enterococcus faecalis* の PFGE 泳動像
M：Lambda Ladder(Bio-Rad)
1～3：*Enterococcus faecalis*

4　まとめ

本市での薬剤耐性菌の院内感染事例発生に備えて，市内発生数が多いCRE感染症の7菌種及び国内発生例のあるVRE感染症の2菌種について，PFGE法による分子疫学解析法の検査条件の検討を行った．

PFGE法は感染研のプロトコール[2，3]で実施し，リゾチーム，プロティナーゼK及び制限酵素の酵素類については，感染研の検査条件で問題なく処理できることを確認した．しかしながら，泳動については，当所保有の装置を用いると，ほぼ全ての菌種の泳動像でバンドがゲル下端からはみ出してしまい，感染研の検査条件では泳動時間が長すぎる結果となった．そのため，レーン全体にバンドが分離し，最下段のバンドがゲル下端から1～1.5 cm程度に収まる泳動像となるよう，スイッチング時間と泳動時間を調整し，泳動条件の検討を行った．

泳動条件の検討の結果，感染研と当所で至適泳動時間は大きく異なったが，これは装置の違いが要因の一つではないかと考えられた．そこで，装置の違いによる影響を確認するため，当所保有の従来装置と新規導入装置の2台について，同じ検査条件での泳動像を比較したところ，全ての菌種で両装置のバンドの位置に大きな差は認められなかった．PFGE法の泳動条件に影響を与える要因には，泳動装置以外に泳動bufferの流速等が考えられるが，今回，当所保有の2台の装置については同じ検査条件で解析可能であった．対象菌種について，当所保有装置におけるPFGE法の検査条件が確定し，疾病別に検査マニュアルを作成した．

本市では薬剤耐性菌による院内感染事例の発生リスクが高いため，薬剤耐性菌対策の強化が課題である．今回，市内発生リスクの高い疾病・菌種を対象にPFGE法による検査条件を確定し，事例発生時に備えた検査体制を整備することができた．今後は，国内発生例のあるその他の薬剤耐性菌感染症についても検査法を整備し，薬剤耐性菌の検査体制の強化に努めていきたい．

文献

1）国立感染症研究所：パルスフィールドゲル電気泳動法PFGEプロトコール，2010年11月
2）国立感染症研究所：令和元年度　薬剤耐性菌の検査に関する研修タイピングコースI　配布資料，2019年9月25日
3）国立感染症研究所：平成22年度　薬剤耐性菌解析機能強化技術研修　配布資料，2010年

福岡市で発生した化学物質及び自然毒による食中毒事例

大木望・坂本智徳

福岡市保健環境研究所保健科学課

Food Poisoning by Chemical and Natural Toxin in Fukuoka City

Nozomi OKI and Tomonori SAKAMOTO

Health Science Section, Fukuoka City Institute of Health and Environment

要約

福岡市保健環境研究所では，福岡市内で発生した化学物質及び自然毒による食中毒及び食品に関する相談事例について，検査を行っている．平成 8 年度（1996 年度）から令和 5 年度（2023 年度）までの 28 年間の化学物質及び自然毒由来の食中毒及び食品に関する相談事例は 741 件（食中毒疑いも含む）であった．当所で対応した事例のうち，チョウセンアサガオによる食中毒事例，ジャガイモの毒性成分による有症相談事例，スイセンの誤食による食中毒事例，ツキヨタケの誤食による食中毒事例，フグ毒による食中毒事例の 5 事例について時系列順に報告する．

Key Words：アトロピン　atropine，スコポラミン　scopolamine，ソラニン　solanine，チャコニン　chaconine，ガランタミン　galanthamine，イルジン S　illudin S，テトロドトキシン　tetrodotoxin

1　はじめに

福岡市保健環境研究所では，福岡市内で発生した化学物質及び自然毒による食中毒及び食品に関する相談事例の検査を行っている．平成 8 年度（1996 年度）から令和 5 年度（2023 年度）までの 28 年間で化学物質及び自然毒による食中毒及び食品に関する相談事例 741 件（食中毒疑いも含む）の検査を実施しており，そのうち，ヒスタミンの検査をした事例が 50 件，テトロドトキシンの検査をした事例が 23 件，ソラニン及びチャコニンの検査をした事例が 9 件，シュウ酸カルシウムの検査をした事例が 3 件，アトロピン及びスコポラピンの検査をした事例が 3 件，リコリン及びガランタミンの検査をした事例が 2 件，イルジン S の検査をした事例が 1 件であった．他 650 件については，異味，異臭，異物混入等による相談事例であった．当所で対応した事例のうち，ヒスタミンによる食中毒事例及びシュウ酸カルシウムの有症相談事例については報告している[1，2]．本報では，チョウセンアサガオの誤食による食中毒事例，ジャガイモの毒性成分による有症相談事例，スイセン及びツキヨタケの誤食による食中毒事例，フグ毒による食中毒事例の 5 事例について時系列順に報告する．

2　事例

2.1　チョウセンアサガオの誤食による食中毒事例

2.1.1　概要

平成 17 年（2005 年）6 月，自宅の庭に生えていた植物の実を天ぷらに調理して喫食したところ，吐き気，腹痛，呼吸困難の症状を呈した．また，近所の住民にも天ぷらを配布しており，喫食した住民は，構音障害，意識混濁の症状を呈した．搬送された医療機関から届け出があり，チョウセンアサガオによる食中毒が疑われたため，アトロピン及びスコポラミンの定量分析を行った．

2.1.2　試料

植物の実が入った天ぷら（以下，「残品」とする．），チョウセンアサガオの葉，蕾，患者の胃洗浄液，尿，血清

2.1.3　分析方法及び結果

高速液体クロマトグラフ-タンデム型質量分析計（以下，「LC-MS/MS」とする．）を用いてアトロピン及びスコポラミンを測定した結果，全ての試料から検出された（表 1）．

2.1.4　考察

本事例は，チョウセンアサガオの誤食による食中毒として定量分析を行った結果，全ての試料からアトロピン及びスコポラミンが検出された．ヒトの最小中毒量は，アトロピンが 70 μg/kg，スコポラミンが 14 μg/kg といわれており[3]，残品のスコポラミン含有量から計算すると，体重 50 kg のヒトであれば 10 g 程度を喫食すると最小中毒量に達するため，中毒症状を呈したと推察される．また，チョウセンアサガオの根はゴボウ，開花前のつぼみはオクラ，葉はモロヘイヤ及びアシタバ，種子はゴマと間違えやすい植物として知られており，本事例も食用の植物と誤って喫食したと推察される．

表 1　アトロピン及びスコポラミンの測定結果

試料	検出濃度（ppm）	
	アトロピン	スコポラミン
残品	4.0	69
チョウセンアサガオ（葉）	0.12	31
チョウセンアサガオ（蕾）	1.3	66
患者①（胃洗浄液）	0.0025	0.017
患者①（尿）	0.39	0.36
患者②（尿）	0.34	0.11
患者③（尿）	0.22	0.14
患者①（血清）	0.0022	0.0028
患者②（血清）	0.0007	0.0021
患者③（血清）	0.0006	0.0038
患者④（血清）	0.0019	0.0027

2.2　ジャガイモの毒性成分による有症相談事例

2.2.1　概要

平成 19 年（2007 年）9 月，店舗で購入したジャガイモを皮ごと調理し喫食したところ，ジャガイモのえぐみが強く食べられなかったと保健所に相談があった．

2.2.2　試料

ジャガイモ（相談品）の皮部分及び実部分，市販のジャガイモ（対照品）の皮部分及び実部分の 4 検体

2.2.3　分析方法及び結果

ジャガイモの異味に関する相談であったため，官能検査を行った．また，ジャガイモにはグリコアルカロイド類のα-ソラニン及びα-チャコニンが含まれていることが知られているため，フォトダイオードアレイ検出器付き高速液体クロマトグラフ（以下，「HPLC-PDA」とする．）を用いて分析した．

1）官能検査

ジャガイモ（相談品）をゆでて喫食したところ，8 人中 5 人がえぐみ及び苦みを感じた．

2）HPLC-PDA 法

試料 5 g にメタノール 30 mL を加え，ホモジナイズ（1000 rpm，2 min）後，メタノールを加え 50 mL にした．遠心分離（3000 rpm，10 min）し上清を試験溶液として HPLC-PDA でα-ソラニン及びα-チャコニンの濃度を測定した．HPLC-PDA の測定条件を表 2 に示す．

その結果，相談品の皮及び実並びに対照品の皮からα-ソラニン及びα-チャコニンを検出した（表 3）．

2.2.4　考察

本事例はジャガイモ中のα-ソラニン及びα-チャコニンによるものと考えられたことから，α-ソラニン及びα-チャコニンを HPLC-PDA を用いて測定した．その結果，相談品のジャガイモからは対照品のジャガイモより高濃度のα-ソラニン及びα-チャコニンを検出した．特に相談品のジャガイモの皮は高濃度であったため，相談者が喫食したジャガイモから強いえぐみを感じたと推察される．

ジャガイモの皮にはα-ソラニン及びα-チャコニンが多く含まれていると報告されており[4]，本事例のように皮つきのまま喫食する際は食中毒に注意する必要がある．

また，ジャガイモの毒性成分による食中毒は小学校の調理実習で発生することが多い．当所では市内の小学校で起きた 3 件の事例について検査を行った．いずれも小学校で調理したジャガイモを喫食したところ，舌の痺れ，腹痛，頭痛及び嘔吐の症状を呈し，検査の結果，α-ソラニン及びα-チャコニンを検出した（表 4）．また，追跡調査にて，食中毒が起きた小学校で栽培されたジャガイモは 100 g 以下の小さなジャガイモで，皮部のグリコアルカロイド類の濃度は高かった．未熟なジャガイモではα-ソラニン及びα-チャコニンの濃度は高くなると報告されている[5]．本事例も対照品のジャガイモと比べて，小さく，α-ソラニン及びα-チャコニン濃度が高かった．

表 2　HPLC-PDA の測定条件

カラム	Inertsil ODS-3 2.1×50 mm
移動相 A	10 mmol/L リン酸二水素カリウム（pH 7.6）
移動相 B	アセトニトリル
移動相混合比率	A：B＝35：65
流速	0.2 mL/min
測定波長	208 nm

表 3　α-ソラニン及びα-チャコニンの測定結果

試料	部位	検出濃度（ppm）	
		α-ソラニン	α-チャコニン
相談品	皮	550	950
	実	100	130
対照品	皮	200	560
	実	(−)	(−)

（−）は，定量下限未満

表 4　市内の小学校で起きた 3 事例

年	患者数	症状	検出濃度（ppm）*	
			α-ソラニン	α-チャコニン
H8 1996	16 名	腹痛，嘔吐	10～50	＜1～170
H10 1998	19 名	腹痛，嘔吐，頭痛	29～290	51～420
H11 1999	21 名	腹痛，頭痛，吐き気，発熱，舌の痺れ	29～100	65～240

*皮付きのジャガイモから検出された濃度

2.3　スイセンの誤食による食中毒事例

2.3.1　概要

平成 22 年（2010 年）3 月，友人からもらったニラを調理し喫食したところ，喫食した 4 人全員が，10 分後に嘔吐，吐き気，胃痛等の症状を呈し，受診した医療機関から食中毒疑いの届け出があった．

2.3.2　試料

友人からもらったニラ様植物，ニラ様植物の天ぷら（残品），スイセン（対照品）

2.3.3　分析方法及び結果

友人宅の庭で採取したニラ様植物からニラ特有の臭いはなく，スイセンとニラを間違えた可能性があったことから，薄層クロマトグラフ（以下，「TLC」とする．）及び LC-MS/MS を用いてアルカロイド類の測定を行った．また，喫食した食品が天ぷらであり，酸化した油による食中毒も考えられたことから AV 及び POV（酸価及び過酸化物価）の検査，有機リン系農薬の混入による食中毒も考えられたことから，炎光光度検出器付きガスクロマトグラフ（以下，「GC-FPD」とする．）を用いて農薬の分析も行った．

1）TLC 法

ドラーゲンドルフ試薬を噴霧し呈色させ，試験溶液の移動度及び色調を比較した．その結果，天ぷら，ニラ様植物，スイセン及びリコリンにおいて移動度及び橙色の色調が類似していた．

2）LC-MS/MS 法

試料 0.2～0.6 g にメタノールを 3～5 mL 添加し，乳鉢で粉砕した．メタノールで 10 mL に定容後，0.2 μm フィルターでろ過したろ液を試験溶液とし，LC-MS/MS で測定した結果，ニラ様植物及び残品からガランタミンが検出された．リコリン，アコニチン及びコルヒチンは不検出であった．

3）AV 及び POV の検査

天ぷらについての AV 及び POV の指標はないが，油菓子の指導要領[6]の基準を満たしていたため酸化した油による食中毒ではないと判断した．

4）GC-FPD 法

有機リン系農薬は不検出であった．

2.3.4　考察

本事例では，スイセンの誤食，酸化した油及び農薬による食中毒疑いで検査を行ったものである．検査の結果，ニラ様植物及びニラ様植物の天ぷら（残品）からガランタミンが検出された．ガランタミンはスイセンに含まれるアルカロイド類の毒性成分であり，スイセンの誤食による食中毒と推察された．スイセンの誤食による食中毒は全国で毎年発生している．なお，当所では，食中毒発生時に少量の残品で検査できるようにリアルタイム PCR を用いた遺伝子による鑑別法[7]を整備した．

2.4　ツキヨタケの誤食による食中毒事例

2.4.1　概要

平成 24 年（2012 年）10 月，山林で採取したキノコを調理して喫食したところ，喫食した 4 人全員が 10 分後に嘔吐，下痢等を呈し，受診した医療機関から食中毒の届け出があった．

2.4.2　試料

残品，山林で採取したツキヨタケ（参考品），シイタケ（対照品）

2.4.3　分析方法及び結果

患者がキノコを採取した同じ山林からツキヨタケが発見されたことからツキヨタケに含まれるイルジン S による食中毒が疑われ，LC-MS/MS よるイルジン S の定性分析及びリアルタイム PCR による遺伝子検査[8]を行った．

1)LC-MS/MS 法

試料 1 g をメタノールで 100 mL に定量したものを試験溶液とし，LC-MS/MS で測定した結果，残品及び参考品のツキヨタケからイルジン S を検出した．

2)リアルタイム PCR 法

リアルタイム PCR 法を行った結果，残品及び参考品のツキヨタケからツキヨタケの DNA を検出した．

2.4.4　考察

本事例は，ツキヨタケの誤食による食中毒疑いで検査を行ったものである．LC-MS/MS による定性分析を行った結果，残品からイルジン S が検出された．また，リアルタイム PCR による遺伝子検査からも残品からツキヨタケの DNA が検出された．

全国では毎年, 毒キノコによる食中毒が発生しており，中でもツキヨタケの誤食による食中毒は事件数及び患者数が最も多く，食用のキノコだと確実に判断できないものは採取しないように今後も注意喚起が必要である．

2.5　フグ毒による食中毒事例

2.5.1　概要

平成 26 年（2014 年）7 月，親族が持参したフグを自宅で調理し，刺身として喫食した．その後，残りを鍋に入れて喫食した．数時間後，喫食した 1 人がめまい，嘔吐，しびれ，舌の麻痺，手足の硬直，発汗の症状を呈し，受診した医療機関から食中毒疑いの届け出があった．

2.5.2　試料

フグ鍋のスープ，加熱済みのフグの身，患者の尿，患者の血液

2.5.3　分析方法及び結果

フグ毒による食中毒が疑われたため，テトロドトキシンについて LC-MS/MS を用いて分析を行った．

フグ鍋のスープについては，煮汁 20 μL 採取し 2%酢酸溶液で 20 mL に定容後，遠心ろ過し，ろ液を C18 カラム（Bond Elut Jr.500 mg）で処理したものを試験溶液とした．

加熱済みのフグの身については，試料 5 g に 2%酢酸溶液 100 mL を加えて，沸騰水浴中で 10 分間加熱し，脱脂綿でろ過した．残渣を 2%酢酸溶液で反復洗浄し，ろ過溶液と洗浄溶液を合わせて 200 mL に定容した．この抽出液 1 mL を水で 25 mL とした後，0.2 μm フィルターでろ過したろ液を試験溶液とした．

患者の尿については，100 μL 採取し 2%酢酸溶液で 10 mL に定容後，遠心ろ過し，ろ液を C18 カラム（Bond Elut Jr.500 mg）で処理したものを試験溶液とした．

患者の血清については，血清 1 mL を 2%酢酸溶液で 20 mL に定容したものを試験溶液とした．

LC-MS/MS で測定した結果，全ての試験溶液からテトロドトキシンを検出した（表 5）．

2.5.4　考察

本事例は，フグ毒による食中毒疑いで検査を行ったものである．LC-MS/MS を用いて定量分析を行った結果，全ての検体からテトロドトキシンが検出された. ヒト（体重 50 kg）のテトロドトキシンによる最小致死量は 2 mg と推定されている[9)]．

全国では毎年約 10 件の食中毒が発生しており, そのうちのほとんどが家庭での事例がほとんどである．フグの素人調理は危険であり，フグの処理にはフグの処理師でないと従事できない．また，フグの種類によって有毒部位が異なり，重症の場合は呼吸困難で死亡する場合もある．フグの調理には正しい知識及び技術が必要であることを周知することは重要である．

表 5　テトロドトキシンの測定結果

試料	検出濃度（ppm）
フグ鍋のスープ	3.7
加熱済みのフグの身	1.8
患者の尿	0.20
患者の血液	0.005

3　まとめ

福岡市で発生した平成 8 年度（1996 年度）から令和 5 年度（2023 年度）までの 28 年間の化学物質及び自然毒由来の食中毒及び食品に関する相談事例のうち，5 事例について報告した．なお，これらの調査は福岡市保健医療局食品安全推進課，各区保健所と協力して実施したものである．

文献

1) 保健科学課食品化学担当：食中毒及び食品に関する相談事例（令和 2，3 年度），福岡市保健環境研究所報，47，171～176，2021
2) 宮﨑悦子，他：クワズイモと疑われたサトイモ科植物による食中毒疑い事例，福岡市保健環境研究所報，45，153～158，2019
3) 東京都福祉保健局健康安全部食品監視課：平成 19 年東京都の食中毒概要 3 特集植物自然毒による食中毒, 125～127，2009
4) 松井久仁子，他：市販バレイショ中のソラニン類濃度について，福岡市保健環境研究所報，25，68～72，1999
5) 松井久仁子，他：小学生のバレイショによるソラニン中毒発症量の推定，福岡市保健環境研究所報，24，44～47，1998
6) 厚生省環境衛生局食品衛生課長通知　環食第 248 号：菓子の製造・取扱いに関する衛生上の指導について，昭和 52 年（1977 年）11 月 16 日
7) 近藤芳和子，他：スイセンによる食中毒疑い事例発生時の遺伝子による鑑別法，福岡市保健環境研究所報，47，108～112，2022

8) 鶴田小百合，他：Multiplex Real-Time PCR Assay for Simultaneous Detection of Omphalotus guepiniformis and Lentinula edodes，Bioscience，Biotechnology，and Biochemistry，76 (7)，1343～1349，2012
9) 公益社団法人 日本薬学会：衛生試験法・注解．金原出版，東京，2020，325-343

ソルビン酸，安息香酸及びデヒドロ酢酸標準溶液の調製溶媒による安定性の比較

近藤芳和子・宮﨑悦子*・大木望・江副サハラ・坂本智徳

福岡市保健環境研究所保健科学課
*福岡市保健環境研究所環境科学課

Stability of Sorbic acid, Benzoic acid and Dehydroacetic acid in Methanol and Ethanol as the Solvent

Kanako KONDO , Etsuko MIYAZAKI*, Nozomi OOKI , Sahara EZOE and Tomonori SAKAMOTO

Health Science Section, Fukuoka City Institute of Health and Environment
*Environmental Science Section, Fukuoka City Institute of Health and Environment

要約

福岡市保健環境研究所では，食品中の保存料（ソルビン酸，安息香酸及びデヒドロ酢酸）について，主な食品はカレーヅ抽出，一部の食品は水蒸気蒸留により抽出後，フォトダイオードアレイ検出器付き高速液体クロマトグラフを用いて測定し，一斉分析を行っている．二種類の抽出法それぞれで添加回収試験を行ったところ，水蒸気蒸留にて抽出する方法の結果にばらつきを認めた事例があった．カレーヅ抽出による一斉分析では，エタノールで調製した標準溶液を用いているが，水蒸気蒸留による一斉分析では，「第 2 版　食品中の食品添加物分析法」に従いメタノールで調製した標準溶液を用いている．そのため，調製溶媒の違いを評価した．2016 年の牟田らの報告からエタノールを用いて 1000 μg/mL に調製した混合標準溶液は 180 日間安定していたため，調製溶媒の違いによる経時的な安定性は低濃度の方が評価しやすいと考え，10 μg/mL に調製した標準溶液の経時的な安定性を評価した．10 μg/mL に調製後 4℃で保存し，調製から 0，1，2，3，4，8，12，16，20，24，36 及び 48 週後にフォトダイオードアレイ検出器付き高速液体クロマトグラフで測定した．その結果，メタノールで調製した標準溶液及びエタノールで調製した標準溶液の間で大きな差は認められなかった．

Key Words：ソルビン酸　sorbic acid，安息香酸　benzoic acid，デヒドロ酢酸　dehydroacetic acid，溶媒　solvent，高速液体クロマトグラフ　high performance liquid chromatograph（HPLC）

1　はじめに

ソルビン酸，安息香酸及びデヒドロ酢酸は，微生物の増殖を抑制し，保存性を高めることを目的に広く使用されている食品添加物である．福岡市保健環境研究所では，食品中のソルビン酸，安息香酸及びデヒドロ酢酸について，主な食品についてはカレーヅ抽出[1)]にて，一部の食品については水蒸気蒸留にて抽出後，フォトダイオードアレイ検出器付き高速液体クロマトグラフ（以下，「HPLC-PDA」とする．）を用いて測定し，一斉分析を行っている．二種類の抽出法それぞれで添加回収試験を行ったところ，水蒸気蒸留にて抽出する方法の結果にばらつきを認めた事例があった．カレーヅ抽出による一斉分析では，エタノールで調製した標準溶液を用いているが，水蒸気蒸留による一斉分析では，「第 2 版　食品中の食品添加物分析法」[2)]に従いメタノールで調製した標準溶液を用いている．そのため，調製溶媒の違いを評価した．エタノールを用いて 1000 μg/mL に調製した混合標準溶液は 180 日間安定していた[3)]ため，調製溶媒の違いによる経時的な安定性は低濃度の方が評価しやすいと考

え，10 μg/mL に調製した標準溶液の経時的な安定性を評価した．

2　方法

2.1　標準品及び試薬等

ソルビン酸標準品：関東化学（株）鹿特級を用いた．

安息香酸標準品：富士フイルム和光純薬（株）和光特級を用いた．

デヒドロ酢酸標準品：富士フイルム和光純薬（株）和光特級を用いた．

メタノール：富士フイルム和光純薬（株）高速液体クロマトグラフ用を用いた．

エタノール：富士フイルム和光純薬（株）高速液体クロマトグラフ用を用いた．

アセトニトリル：富士フイルム和光純薬（株）高速液体クロマトグラフ用を用いた．

各メタノール調製標準原液：ソルビン酸，安息香酸又はデヒドロ酢酸それぞれの標準品を 100 mg 精秤し，メタノールで溶解後正確に 100 mL とした．（1000 μg/mL）

各エタノール調製標準原液：ソルビン酸，安息香酸又はデヒドロ酢酸それぞれの標準品を 100 mg 精秤し，エタノールで溶解後正確に 100 mL とした．（1000 μg/mL）

2.2　試験溶液の調製

試験溶液の調製溶媒及び標準品を表 1 に示す．

表 1　試験溶液中の調製溶媒及び標準品

試験溶液 No.	調製溶媒	標準品
(1)	メタノール	ソルビン酸
(2)	メタノール	安息香酸
(3)	メタノール	デヒドロ酢酸
(4)	エタノール	ソルビン酸
(5)	エタノール	安息香酸
(6)	エタノール	デヒドロ酢酸
(7)	メタノール	ソルビン酸，安息香酸及びデヒドロ酢酸
(8)	エタノール	ソルビン酸，安息香酸及びデヒドロ酢酸

試験溶液 No.（1）～（3）：各メタノール調製標準原液を正確に 1 mL とり，メタノールで 100 mL に定容した．（各 10 μg/mL）

試験溶液 No.（4）～（6）：各エタノール調製標準原液を正確に 1 mL とり，エタノールで 100 mL に定容した．（各 10 μg/mL）

試験溶液 No.（7）：ソルビン酸，安息香酸及びデヒドロ酢酸のメタノール調製標準原液をそれぞれ正確に 1 mL ずつ混合し，メタノールで 100 mL に定容した．（各 10 μg/mL）

試験溶液 No.（8）：ソルビン酸，安息香酸及びデヒドロ酢酸のエタノール調製標準原液をそれぞれ正確に 1 mL ずつ混合し，エタノールで 100 mL に定容した．（各 10 μg/mL）

2.3　装置及び測定条件

HPLC-PDA は，溶媒脱気装置：DGU-20A$_{5R}$，送液ポンプ：LC-30AD，オートサンプラー：CBM-20A，フォトダイオードアレイ検出器：SPD-M30A，カラム恒温槽及びシステムコントローラー：CTO-20AC（以上，全て島津製作所製）を使用した．HPLC-PDA の測定条件を表 2 に示す．

表 2　HPLC-PDA の測定条件

カラム	Inertsil Ph 2.1×150 mm, 5 μm
カラム温度	25℃
移動相 A	2 mmol/L リン酸緩衝液 (pH3.0)
移動相 B	アセトニトリル
移動相混合比率	A液：B液＝9：1　（Isocratic）
流速	0.2 mL/min
注入量	4 μL
サンプル温度	4℃
測定波長	230 nm

2.4　安定性の評価方法

2.4.1　保存条件

2.2 のとおり調製した各試験溶液を 4℃（冷蔵庫）で保存した．試験期間中に複数回開閉及び採取を繰り返すことによる温度の影響を排除するため，各試験溶液は 1.5 mL ずつ 2 mL 容褐色ガラス製バイアルに予め採取した上で，バイアルラックに立て保存した．なお，冷蔵庫は当所の機器保守標準作業書に基づいて管理しているものを用いた．

2.4.2　保存期間及び測定時期

各試験溶液の保存期間は 48 週間とした．測定時期は，調製日，調製日から約 1，2，3，4，8，12，16，20，24，36 及び 48 週後とし，試験溶液 No.（1）～（8）（以下，「（1）～（8）」とする．）の各試験溶液について 3 バイアルずつを冷蔵庫から取り出し測定した．

2.4.3　保存安定性評価

各試験溶液中のピーク面積値を測定日毎に，調製日のピーク面積値で除し面積比を求めた．調製日の面積比を100%とし，過去の報告[2, 4]を参考に調製日から5%の減少を許容誤差として設定し，安定性を評価した．

3　実験結果及び考察

各標準品の単一溶液である（1）～（6）におけるソルビン酸，安息香酸及びデヒドロ酢酸の面積比を調製溶媒ごとに比較した．メタノールで調製した（1）～（3）の面積比を表3に，エタノールで調製した（4）～（6）の面積比を表4に示す．1つずつメタノールで調製した（1）～（3）は，ソルビン酸の面積比は20週後まで，安息香酸の面積比は48週後まで，デヒドロ酢酸の面積比は12週後まで95%以上であった．1つずつエタノールで調製した（4）～（6）は，ソルビン酸の面積比は36週まで，安息香酸の面積は48週後まで，デヒドロ酢酸の面積比は12週後まで95%以上であった．ソルビン酸及び安息香酸標準溶液の面積比はメタノール及びエタノールで2%を超える大きな差はなかった．

次に，標準品の混合溶液である（7）及び（8）におけるソルビン酸，安息香酸及びデヒドロ酢酸の面積比を調製溶媒ごとに比較した．メタノールで調製した（7）の面積比を表5に，エタノールで調製した（8）の面積比を表6に示す．3つを混合してメタノールで調製した（7）は，ソルビン酸及び安息香酸の面積比は48週後まで，デヒドロ酢酸の面積比は12週後まで95%以上であった．3つを混合してエタノールで調製した（8）は，ソルビン酸の面積比は36週後まで，安息香酸の面積比は48週後まで，デヒドロ酢酸の面積比は16週後まで95%以上であった．（7）及び（8）の混合溶液の場合，36週後までソルビン酸及び安息香酸の面積比はメタノール及びエタノールで大きな差はなかったが，48週後ではメタノールで調製した方が面積比は大きかった．48週後のデヒドロ酢酸の面積比は，メタノールで調製した方が面積比は10%高かった．

以上の結果から，ソルビン酸，安息香酸及びデヒドロ酢酸標準溶液を調製する際の溶媒として，メタノール及びエタノールの36週後までの面積比は3%以内の差であった．また，今回の条件下ではメタノール及びエタノールのどちらにおいても，デヒドロ酢酸は単一溶液よりも混合溶液として保存した方が，安定性が高かった．

表3　メタノールを用いて調製した試験溶液No.（1）～（3）の面積比

試験溶液No.	測定ピーク	経過週数毎の面積比（%）											
		0	1	2	3	4	8	12	16	20	24	36	48
(1)	ソルビン酸	100	97	96	95	97	95	96	95	95	94	96	94
(2)	安息香酸	100	98	98	97	98	97	98	97	97	96	97	96
(3)	デヒドロ酢酸	100	98	98	97	96	96	95	92	93	89	85	84

95%未満の面積比

表4　エタノールを用いて調製した試験溶液No.（4）～（6）の面積比

試験溶液No.	測定ピーク	経過週数毎の面積比（%）											
		0	1	2	3	4	8	12	16	20	24	36	48
(4)	ソルビン酸	100	97	97	97	97	96	96	96	96	95	96	94
(5)	安息香酸	100	99	98	99	99	98	98	98	97	97	97	95
(6)	デヒドロ酢酸	100	98	97	97	97	96	95	94	91	89	86	80

95%未満の面積比

表 5　メタノールを用いて調製した試験溶液 No.（7）の面積比

試験溶液 No.	測定ピーク	経過週数毎の面積比（%）											
		0	1	2	3	4	8	12	16	20	24	36	48
(7)	ソルビン酸	100	97	97	97	98	97	96	96	96	95	97	95
	安息香酸	100	99	98	99	100	99	98	98	97	97	98	97
	デヒドロ酢酸	100	99	98	98	99	96	96	94	93	94	92	91

95%未満の面積比

表 6　エタノールを用いて調製した試験溶液 No.（8）の面積比

試験溶液 No.	測定ピーク	経過週数毎の面積比（%）											
		0	1	2	3	4	8	12	16	20	24	36	48
(8)	ソルビン酸	100	97	97	97	97	96	96	96	96	95	96	92
	安息香酸	100	99	98	99	98	99	98	97	98	98	98	95
	デヒドロ酢酸	100	99	98	99	98	98	97	95	93	91	89	82

95%未満の面積比

4　まとめ

ソルビン酸，安息香酸及びデヒドロ酢酸の一斉分析で用いているメタノール及びエタノールで調製した標準溶液の安定性を比較した．10 μg/mL の標準溶液をメタノール及びエタノールを用いて調製した後，4℃にて保存し，調製から 0，1，2，3，4，8，12，16，20，24，36 及び 48 週後に HPLC-PDA にて測定した．また，混合溶液も同様に測定した．

その結果，調製溶媒としてメタノール及びエタノールのどちらを用いても，36 週後までは安定性に大きな差は認められなかった．また，今回の条件下では，メタノール及びエタノールのどちらの溶媒を用いても，混合溶液の方が単一溶液よりも安定性が高かった．

文献

1）牟田朱美，他：Carrez 抽出を用いた加工食品中の保存料・甘味料一斉分析に伴う不確かさの推定 日本食品化学学会誌 25 巻 3 号 167～173，2018

2）厚生省生活衛生局食品化学課長通知衛化第 15 号：食品中の食品添加物分析法について　別添「第 2 版　食品中の食品添加物分析法」，平成 12 年（2000 年）3 月 30 日

3）牟田朱美，他：ソルビン酸・安息香酸・デヒドロ酢酸混合標準溶液の長期安定性,福岡市保健環境研究所報，42，178-180，2016

4）小出石千明，他：フェノール系酸化防止剤混合標準溶液の長期安定性,福岡市保健環境研究所報，47，121-128，2022

グレープフルーツ缶詰から検出された不明色素の同定

小出石千明・大木望・宮﨑悦子*・坂本智徳

福岡市保健環境研究所保健科学課
*福岡市保健環境研究所環境科学課

Identification of Unknown Dyes Detected in Canned Grapefruit

Chiaki ODEISHI , Nozomi OKI , Etsuko MIYAZAKI* and Tomonori SAKAMOTO

Health Science Section, Fukuoka City Institute of Health and Environment
*Environmental Science Section, Fukuoka City Institute of Health and Environment

要約

令和元年（2019 年）7 月に実施した輸入食品の収去検査において，グレープフルーツ缶詰から，薄層クロマトグラフ法及び液体クロマトグラフ法により，指定外食品添加物であるキノリンイエローと類似した不明色素を検出した．しかし，検体の試験溶液を液体クロマトグラフ四重極飛行時間型質量分析計で測定した結果，キノリンイエローは検出されなかった．今後の収去検査で同様の色素を検出した場合に，誤判定を行うおそれがあることから，液体クロマトグラフ四重極飛行時間型質量分析計を用いて当該不明色素の構造推定を試みた．その結果，グレープフルーツ缶詰から検出された不明色素は，柑橘類に含まれるフラノクマリン類であるベルガプトールと推定された．

Key Words：グレープフルーツ缶詰　canned grapefruit，不明色素　unknown dyes，高速液体クロマトグラフ　high performance liquid chromatograph（HPLC），液体クロマトグラフ四重極飛行時間型質量分析計　liquid chromatograph quadrupole time-of-flight mass spectrometer（LC-QTOFMS）

1　はじめに

福岡市保健環境研究所では，食品衛生検査指針[1)] 及び第 2 版食品中の食品添加物分析法[2)] に準じ，国内で食品への使用が認められている法定タール色素 12 種及び国内で使用が認められていない指定外タール色素 9 種（アゾルビン，ファストレッド E，ポンソー6R，オレンジ RN，オレンジⅡ，キノリンイエロー（以下，「QY」とする．），グリーン S，パテントブルーV 及びブラック BN）の検査を実施している．検査においては，食品から抽出した着色料を，ポリアミドカラムで精製後，薄層クロマトグラフ（以下，「TLC」とする．）及びフォトダイオードアレイ検出器付き高速液体クロマトグラフ（以下，「HPLC-PDA」とする．）を用いて分析している．加工食品中の着色料の試験では，着色料に含まれる副成色素，着色料が変化して生成した色素等が不明色素として検出された事例が報告されている[3~8)]．不明色素が検出された場合，指定外着色料であるか判別することは収去検査において非常に重要となる．当所で，令和元年度（2019 年度）に輸入食品のグレープフルーツ缶詰の着色料の検査を実施したところ，TLC 法及び HPLC-PDA 法により，指定外タール色素である QY と類似した色素（以下，「不明色素」とする．）を検出した．不明色素が QY であった場合には，グレープフルーツ缶詰は，食品衛生法違反の食品となることから，不明色素が QY であるか確認を行った結果，QY ではないことが判明した．今回，今後の収去検査で同様の色素を検出した場合に，速やかに正しく判定できるよう液体クロマトグラフ四重極飛行時間型質量分析計（以下，「LC-QTOFMS」とする．）を用いて不明色素の構造推定を試みたので報告する．

2　実験方法

2.1　試料

福岡市内を流通していた，着色料を使用した旨の表示がないグレープフルーツ缶詰の固形部分を均質化したもの及びシロップ部分をそれぞれ試料とした．

2.2 試薬等

QY 標準品：東京化成工業（株）製（官封食用色素）

ベルガプトール（以下，「BT」とする．）標準品：富士フイルム和光純薬（株）製（純度≧60%）

QY 標準溶液：QY 標準品 10 mg を量り，蒸留水に溶解して 10 mL とし，標準原液とした．標準原液を蒸留水で適宜希釈して標準溶液（100 μg/mL）を調製した．

BT 標準溶液：BT 標準品 10 mg を量り，蒸留水に溶解して 10 mL とし，標準原液とした．標準原液を蒸留水で適宜希釈して標準溶液（10 μg/mL）を調製した．

ポリアミド：富士フイルム和光純薬（株）製ポリアミド C-200

ポリアミドカラム：あらかじめ水洗したポリアミド 0.5 g を内径 1 cm, 長さ 25 cm のコック付きガラス製クロマト管に湿式充填し，10%酢酸 10 mL でコンディショニングした．

抽出液：アンモニア水 35 mL を量り，99.5%エタノール 700 mL を加え，これに蒸留水を加え 1000 mL とした．

溶出液：アンモニア水 18 mL を量り，蒸留水を加えて 500 mL とした液に，99.5%エタノールを加え 1000 mL とした．

TLC 用展開溶媒（N 系展開溶媒）：アンモニア水，2.5%クエン酸ナトリウム水溶液及び 99.5%エタノールを 2：7：1 で混合した．

TLC 用展開溶媒（P 系展開溶媒）：1-プロパノール，酢酸エチル及び蒸留水を 6：1：3 で混合した．

0.1 mol/L 酢酸アンモニウム水溶液・アセトニトリル混液（99：1）：酢酸アンモニウム 7.7 g を量り，超純水で溶解し 1000 mL とし，その 990 mL にアセトニトリル 10 mL を加えた．

アセトニトリル：富士フイルム和光純薬（株）製 HPLC 用又は Honeywell International Inc. 製 LC/MS 用を用いた．

超純水：水道水を超純水製造装置で処理したもの（比抵抗＞18.2 MΩ・cm，TOC＜5 ppb）を用いた．

蒸留水：水道水を蒸留水製造装置で処理したものを用いた．

その他の試薬：富士フイルム和光純薬（株）製及び関東化学（株）製試薬特級品を用いた．

2.3 器具

TLC 用プレート：MACHEREY-NAGEL GmbH & Co. KG 製 Cellulose MN 400（AVICEL®），CEL 400-10，10×20 cm，層厚 0.10 mm．メタノールで空展開後，乾燥機にて 120℃，15 分間処理したものを用いた．

メンブランフィルター：アドバンテック東洋（株）製 DISMIC-13HP，親水性 PTFE，孔径 0.20 μm 及び 0.45 μm

2.4 装置

HPLC-PDA：（株）島津製作所製 ポンプ；LC-30AD，検出器；SPD-M20A

LC-QTOFMS：LC 部；（株）エービー・サイエックス製 Exion LC AC システム，

MS 部；（株）エービー・サイエックス製 X500R QTOF システム

超純水製造装置：オルガノ（株）製 PURELAB flex-UV

蒸留水製造装置：アドバンテック東洋（株）製 RFD240NA

2.5 試験溶液の調製

試料 10 g を 50 mL 遠沈管に採取し，抽出液 40 mL を加え，60℃で 30 分間加温抽出した．氷冷後，10000×*g*，4℃で 10 分間遠心分離した．上清をろ紙ろ過後，6%酢酸を適宜加えて中和後，減圧濃縮した．これに 6%酢酸を適宜加えて pH 4 程度としたものを 10000×*g*，4℃で 10 分間遠心分離した．上清をろ紙ろ過後，ろ液をポリアミドカラムに負荷し，1%酢酸 50 mL，熱蒸留水 50 mL 及び 70%エタノール 10 mL で順次洗浄した．溶出液 15 mL で溶出させ，6%酢酸で中和後，減圧乾固し，適宜蒸留水に溶解させ，メンブランフィルターでろ過したものを試験溶液とした．

2.6 測定条件

2.6.1 TLC 法

TLC 用プレートに QY 標準溶液及び試験溶液をスポットし，風乾後，N 系及び P 系展開溶媒を用いて展開し，色調及び移動度を観察した．

2.6.2 HPLC-PDA 法

HPLC-PDA の測定条件を表 1 に示す．

表 1　HPLC-PDA の測定条件

カラム	Inertsil ODS-2 2.1×150 mm，5 μm
カラム温度	40℃
移動相 A	0.1 mol/L 酢酸アンモニウム水溶液・アセトニトリル混液（99：1）
移動相 B	アセトニトリル
グラジエント条件	B：4%（0 分）-70%（30 分）-75%（35 分）
ポストラン	15 分
流速	0.2 mL/min
注入量	4 μL
サンプル温度	4℃
測定波長	190～700 nm

2.6.3　LC-QTOFMS 法

LC-QTOFMS の測定条件は LC 条件を表 1 と同一とし，MS 条件を表 2 のとおりとした．

表 2　LC-QTOFMS の MS 条件

イオン化	ESI-Negative
データ取得モード	IDA
カーテンガス流量	30 psi
ヒーター温度	500℃
ネブライザガス流量	60 psi
ターボガス流量	60 psi
スプレー電圧	-4500 V
コリジョン電圧	TOF MS：-5 V
	TOF MSMS：-35 V
TOFMS scan 範囲	*m/z* 100～1000
TOFMSMS scan 範囲	*m/z* 30～1000

3　実験結果及び考察

3.1　試験溶液及び QY の測定及び定性確認

3.1.1　TLC 法

2.6.1 に従って試験溶液を測定した結果，N 系展開溶媒では，QY と移動度及び色調が類似した不明色素を検出した．しかし，P 系展開溶媒では，同様の色素は検出しなかった．

3.1.2　HPLC-PDA 法

2.6.2 に従って QY 標準溶液及び試験溶液を HPLC-PDA で測定し，波長 450 nm におけるクロマトグラムを比較した（図 1）．QY は複数の化合物であるため，複数のピークが検出されると報告されており[2)]，本測定でも QY 標準溶液で 2 つのピークが検出された（QY①：14.493 分，QY②：14.936 分）．試験溶液は保持時間 14.513 分にピークが検出されたが，ピークトップの吸収スペクトルが QY①及び QY②と異なる吸収スペクトルを示した（図 2）．このことから，不明色素は QY と異なる物質であると考えられた．

3.1.3　LC-QTOFMS 法

2.6.3 に従って試験溶液を LC-QTOFMS で測定した結果，QY は検出されなかった．

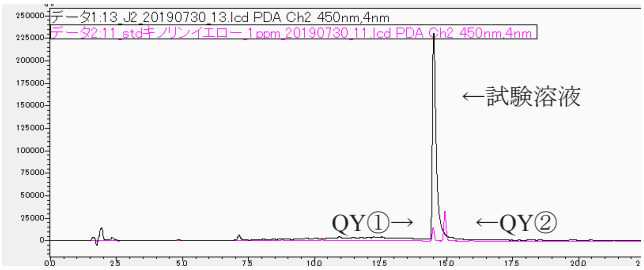


図 1　クロマトグラム

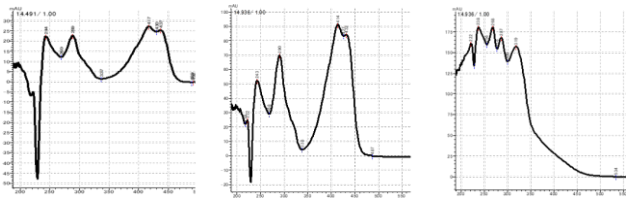


図 2　ピークトップの吸収スペクトル

3.2　不明色素の構造推定

不明色素は，QY と異なる物質と判断されたため，LC-QTOFMS を用いて不明色素の構造推定を行った．

3.2.1　LC-QTOFMS 法

2.6.3 に従って試験溶液を LC-QTOFMS で測定した結果，不明色素に相当する保持時間のピークのプリカーサーイオンスペクトルから *m/z* 201.0189 のイオンが見出され，そのプリカーサーイオンスペクトル及びプロダクトイオンスペクトルから組成式 $C_{11}H_6O_4$ が推定された（図 3）．この組成式について PubChem（https://pubchem.ncbi.nlm.nih.gov），ChemSpider（http://www.chemspider.com）等の化学物質データベースで検索したところ，フラノクマリン類の BT（図 4）が該当した．不明色素のプロダクトイオンはこの構造に対して約 80%が帰属された．BT は，グレープフルーツ等の柑橘類及びその加工品に含まれていると報告されている[9)]．これらのことから，不明色素は BT と推定された．

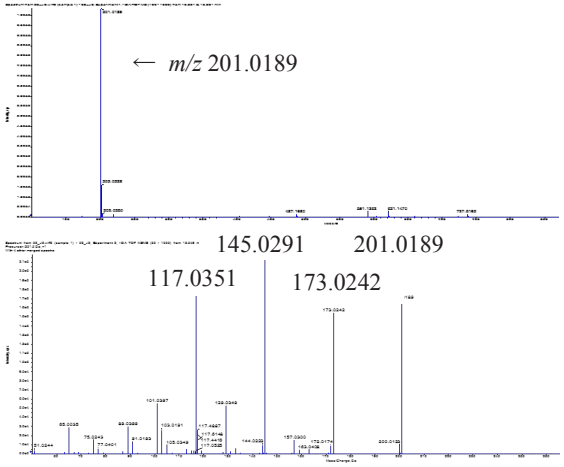


図 3　試験溶液の LC-QTOFMS 測定の結果
（上：プリカーサーイオンスペクトル
下：プロダクトイオンスペクトル）

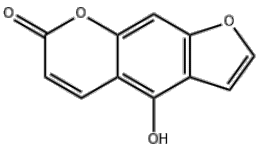


図 4　BT の構造（$C_{11}H_6O_4$）

3.3　試験溶液及び BT の測定及び定性確認

不明色素は BT と推定されたことから，TLC，HPLC-PDA 及び LC-QTOFMS を用いて定性確認を行った．

3.3.1　TLC 法

2.6.1 に従って試験溶液を測定した結果，N 系展開溶媒では，BT と移動度及び色調が類似したスポットを検出した．P 系展開溶媒では，色調が変化する特徴も類似していた．

3.3.2　HPLC-PDA 法

2.6.2 に従って試験溶液を HPLC-PDA で測定した結果，試験溶液から測定波長 450 nm で保持時間 13 分付近に BT と類似したピークを検出した（BT 10 ppm：13.271 分，シロップ部分：13.475 分，固形部分：13.354 分）（図 5）．また，ピークトップの吸収スペクトルについては，BT は検体のシロップ部分と類似していた（図 6）．

3.3.3　LC-QTOFMS 法

2.6.3 に従って試験溶液を LC-QTOFMS で測定した結果，試料のシロップ及び試料の固形部分からプリカーサーイオンスペクトル及びプロダクトイオンスペクトルのいずれからも BT と一致するピークが検出された．（図 7）．BT の構造に対して，検体のプロダクトイオンは，シロップ部分で 99.3%，固形部分で 96.8%が帰属された．これらのことから，検出された不明色素は BT と認められた．

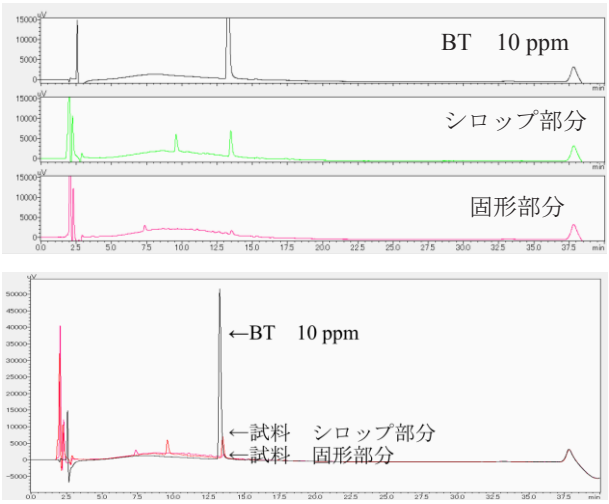
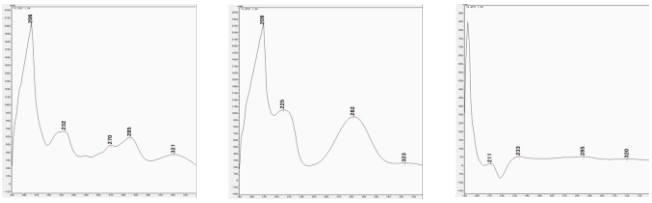
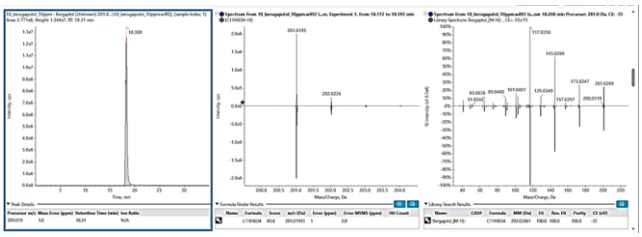


図 5　クロマトグラム（PDA 450 nm）

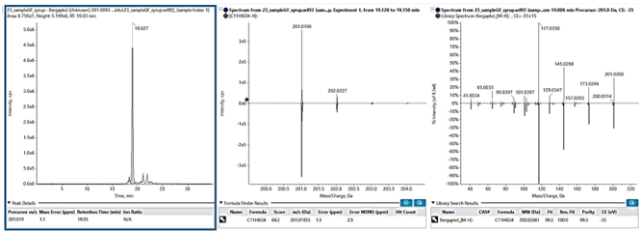


BT 10 ppm　　シロップ部分　　固形部分

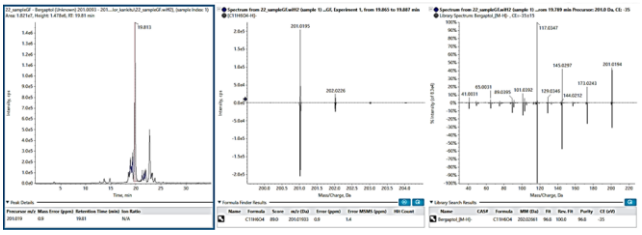
図 6　ピークトップの吸収スペクトル



BT 10 ppm



シロップ部分



固形部分

図 7　LC-QTOFMS 測定の結果
（左：*m/z* 201.020 のクロマトグラム，中央：プリカーサーイオンスペクトル，右：プロダクトイオンスペクトル）

4　まとめ

令和元年度（2019 年度）の収去検査において，グレープフルーツ缶詰から TLC 法及び HPLC-PDA 法により，指定外食品添加物である QY と類似した不明色素を検出した．不明色素が QY であった場合には違反食品となるため，確認を行った結果，QY ではないことが判明した．今回，今後の収去検査で同様の色素を検出した場合に，速やかに正しく判定できるよう不明色素を LC-QTOFMS 法により構造推定を行った結果, フラノクマリン類の BT と推定された．その後，BT 標準品を用いて TLC 法，HPLC-PDA 法及び LC-QTOFMS 法により組成式 $C_{11}H_6O_4$ の BT と確認した．

グレープフルーツ及びその加工品から不明色素が検出された際に, 当該色素が BT の色素であるか LC-QTOFMS 法により迅速に判別することが可能となった．

文献

1) 社団法人 日本食品衛生協会 厚生労働省監修：食品衛生検査指針 食品添加物編 2003，169～199，2003
2) 厚生省生活衛生局食品化学課：第 2 版食品中の食品添品加物分析法，113～131，2000
3) 川西徹，他：第 9 版食品添加物公定書解説書，D-1217～D-1222，（株）廣川書店（東京），2019
4) 石川ふさ子，他：はじかみ（生姜）から検出された不明色素の構造，食品衛生学雑誌，46（3），93～98，2005
5) 新藤哲也，他：乾燥いちごから検出された不明赤色色素の構造解析，食品衛生学雑誌，53（1），1～7，2012
6) Naoki Ochi，*et al*．：Identification of the monobrominated derivative of Acid Red 52（Food Red No. 106）in pickled vegetables，Food Additives &Contaminants：PartA，33（9），1387～1395，2016
7) 小出石千明，他：食品からの食用赤色 106 号の副成色素の検出，福岡市保健環境研究所報，47，113～120，2022
8) 近藤芳和子，他：加工食品からの食用赤色 102 号の副成色素の検出事例，福岡市保健環境研究所報，48，55～59，2023
9) グレープフルーツジュースおよび健康食品中のフラノクマリン類含有量調査，食品衛生学雑誌，49（4），326～331，2008

鯨肉製品中の亜硝酸根試験法の妥当性確認

小出石千明・佐多建一・粟屋真紀・大木望・
永井里苗・江副サハラ・坂本智徳

福岡市保健環境研究所保健科学課

Validation of an Analytical Method for Nitrite in Whale Meat Products

Chiaki ODEISHI , Kenichi SATA , Maki AWAYA , Nozomi Oki ,
Satomi NAGAI , Sahara EZOE and Tomonori SAKAMOTO

Health Science Section, Fukuoka City Institute of Health and Environment

要約

食品中の食品添加物分析法については，「食品中の食品添加物分析法について」（平成 12 年 3 月 30 日付け衛化第 15 号厚生省生活衛生局食品化学課長通知）の別添「第 2 版 食品中の食品添加物分析法」により定められている．今般，「食品中の食品添加物分析法の妥当性確認ガイドライン」（令和 6 年 3 月 8 日付け健生食基発 0308 第 1 号・健生食監発 0308 第 1 号 厚生労働省健康・生活衛生局食品基準審査課長・食品監視安全課長通知）が策定され，各試験所で導入している試験法についても，当該ガイドラインに示される性能の基準を満たせば，「第 2 版 食品中の食品添加物分析法」に定められた分析法の代わりに用いることができるとされた．そこで，福岡市保健環境研究所で実施する鯨肉製品中の亜硝酸根試験法について，当該ガイドラインに基づき妥当性確認を実施した結果，選択性は良好で，真度は 95%，併行精度は 1.3 RSD%，室内精度は 2.3 RSD%とガイドラインの性能基準を満たしており，本試験法の妥当性が確認された．

Key Words：亜硝酸根　nitrite，鯨肉製品　whale meat product，妥当性確認　validation
令和 6 年 3 月 8 日付け健生食基発第 1 号・健生食監発第 1 号厚生労働省健康・生活衛生局食品基準審査課長及び食品監視安全課長通知

1　はじめに

日本では，鯨肉製品のうち鯨肉ベーコンは，発色剤として亜硝酸ナトリウム，硝酸ナトリウム及び硝酸カリウムの使用が認められている．その使用基準は，亜硝酸ナトリウムについては，「亜硝酸根としてその 1 kg につき 0.070 g を超える量を残存しないように使用しなければならない」，硝酸ナトリウム及び硝酸カリウムについては，「亜硝酸根として，その 1 kg につき 0.070 g 以上残存しないように使用しなければならない」と定められている[1)]．

これら使用基準への適合を判定するための分析法については，平成 12 年 3 月 30 日付け衛化第 15 号厚生省生活衛生局食品化学課長通知「第 2 版 食品中の食品添加物分析法」（以下，「通知分析法」とする．）[2)]により定められている．ただし，令和 6 年 3 月 8 日付け健生食基発 0308 第 1 号・健生食監発 0308 第 1 号 厚生労働省健康・生活衛生局食品基準審査課長・食品監視安全課長通知「食品中の食品添加物分析法の妥当性確認ガイドライン」[3)]（以下，「ガイドライン」とする．）が策定されたことにより，ガイドラインに基づき妥当性が確認された分析法については，通知分析法の代わりに用いることのできる同等以上の性能を有する試験法とみなすこととされた．

亜硝酸根の通知分析法は，ジアゾ化反応を利用した比色法が採用されているが[2)]，福岡市保健環境研究所では，鯨肉製品中の亜硝酸根の試験を，通知分析法に準じた方法で行っている．ガイドラインでは，既存の添加試験データが利用可能な場合はそのデータを用いて性能を評価し，妥当性を確認することが可能とされていることから，今回，過去に実施した鯨肉製品中の亜硝酸根試験法の精度管理データを利用して試験法の

妥当性確認を行ったので報告する．

2　実験方法

2.1　試料

性能評価には，分析対象物質を含まない食品（以下，「ブランク試料」とする．）を用いることとされているが，今回性能評価の対象とした鯨肉製品（鯨肉ベーコン）については，発色剤として亜硝酸ナトリウム，硝酸ナトリウム及び硝酸カリウムのいずれも使用していないものを準備することが困難であったため，分析対象物質濃度の低い試料（以下，「トレース試料」とする．）として，亜硝酸ナトリウムが使用された鯨肉ベーコンを用いた．

2.2　標準品及び試薬

標準品：富士フイルム和光純薬 （株）製亜硝酸ナトリウム（特級）を用いた．

亜硝酸ナトリウム標準原液：標準品 150 mg を蒸留水に溶解し，正確に 100 mL とした（亜硝酸根として 1000 μg/mL）．

添加用亜硝酸ナトリウム標準溶液：標準品 105 mg を蒸留水に溶解し，正確に 100 mL とした（亜硝酸根として 700 μg/mL）．

検量線用亜硝酸ナトリウム標準溶液：亜硝酸ナトリウム標準原液 10 mL を正確に量り，蒸留水で正確に 100 mL とした（100 μg/mL）．この液 1 mL を正確に量り，蒸留水を加えて正確に 100 mL とした（1 μg/mL）．この液 0.5 mL，1 mL，2 mL，4 mL，6 mL 及び 8 mL を正確に量り，それぞれ正確に 20 mL とした（亜硝酸根として 0.025 μg/mL，0.05 μg/mL，0.1 μg/mL，0.2 μg/mL，0.3 μg/mL 及び 0.4 μg/mL）．

0.5 mol/L 水酸化ナトリウム溶液：水酸化ナトリウム（特級）20 g を蒸留水に溶かして 1 L とした．

酢酸亜鉛溶液（9→100）：酢酸亜鉛二水和物（特級）107.7 g を蒸留水に溶かして 1 L とした．

塩酸（1→2）：塩酸（特級）50 mL を蒸留水と混合し，100 mL とした．

スルファニルアミド溶液：スルファニルアミド（特級）0.25 g を塩酸（1→2）50 mL に加温しながら溶解した．

ナフチルエチレンジアミン溶液：*N*-1-ナフチルエチレンジアミン二塩酸塩（特級）0.06 g を蒸留水 50 mL に溶解した．

2.3　器具及び装置

ろ紙：アドバンテック東洋（株）製 No. 5A，18.5 cm

紫外可視分光光度計：（株）島津製作所製 UVmini-1240

蒸留水製造装置：アドバンテック東洋（株）製 RFD240ND

恒温水槽：ヤマト科学（株）製サーモメイト BF200

ホモジナイザー：（株）セントラル科学貿易製ポリトロン PT3100

水道水に含まれる硝酸根による影響を除くため，試験に使用するガラス器具類は，全て事前に蒸留水ですすいだものを使用した．

2.4　試験溶液の調製

2.4.1　試料試験溶液

試料 10 g を 200 mL のトールビーカーに量り，80℃～90℃の蒸留水 80 mL 及び 0.5 mol/L 水酸化ナトリウム溶液 12 mL を加え，直ちにホモジナイズ（10000 rpm，2 分間）した．ホモジナイザーのシャフトを 80～90℃の蒸留水 1 mL で 3 回洗い，洗液を 200 mL トールビーカーに加えた．200 mL トールビーカーの内容物を全て 200 mL のメスフラスコに移し，トールビーカーを 80～90℃の蒸留水 10 mL で 5 回洗い，洗液をメスフラスコに加えた．これに 0.5 mol/L 水酸化ナトリウム溶液 20 mL を加えて混和後，さらに，酢酸亜鉛溶液（9→100）20 mL を加えて混和し，80～90℃の水浴中で 20 分間加温した．氷水中で 10 分間以上冷却した後，蒸留水で正確に 200 mL としたものをろ紙ろ過し，ろ液を蒸留水で正確に 2 倍希釈し，試料試験溶液とした．

2.4.2　添加回収試験溶液

添加回収用試料としては，トレース試料である鯨肉ベーコン 10 g に，使用基準値相当 0.070 g/kg となるよう，添加用亜硝酸ナトリウム標準溶液を 1 mL 添加したものを作製し，試料試験溶液と同様に操作し，ろ液を蒸留水で 20 倍希釈したものを添加回収試験溶液とした．

2.4.3　空試験溶液

試料 10 g の代わりに水 10 mL を用い，試料試験溶液と同様に操作した後，遠心分離（5℃，12000×*g*，10 分間）し，上清を空試験溶液とした．

2.5　測定方法

2.5.1　検量線用亜硝酸ナトリウム標準溶液

検量線用亜硝酸ナトリウム標準溶液及び蒸留水各 5 mL を正確に量り，それぞれにスルファニルアミド溶液 1 mL ずつを加えて振り混ぜ，さらにナフチルエチレンジアミン溶液 1 mL ずつ加えて振り混ぜた後，蒸留水を

加えて正確に 10 mL とし，よく振り混ぜた．20 分間放置して発色させた後に蒸留水を対照として波長 540 nm における吸光度を測定し，それぞれ A_S 及び A_C とした．検量線用亜硝酸ナトリウム標準溶液の濃度及び A_S と A_C との吸光度差 ΔA_S を一次直線に回帰させ，検量線を作成した．

2.5.2　試料試験溶液，添加回収試験溶液及び空試験溶液

試料試験溶液，添加回収試験溶液及び空試験溶液を各 5 mL 正確に量り，それぞれにスルファニルアミド溶液 1 mL ずつを加えて振り混ぜ，さらにナフチルエチレンジアミン溶液 1 mL ずつを加えて振り混ぜた後，蒸留水を加えてそれぞれ正確に 10 mL とし，よく振り混ぜた．20 分間放置して発色させた後に蒸留水を対照として波長 540 nm における吸光度を測定し，それぞれ A_{Ta} 及び A_b とした．

また，着色ブランクとして，各試験溶液 5 mL を正確に量り，これに塩酸（1→2）1 mL 及び蒸留水を加えて正確に 10 mL とし，蒸留水を対照として波長 540 nm における吸光度を測定し，A_{Tc} とした．

吸光度の差 ΔA（$A_{Ta}-(A_b+A_{Tc})$）を求め，検量線から，試験溶液中の亜硝酸根の濃度を求めた．なお，A_{Tc} がマイナスである場合は 0 として計算した．

2.6　妥当性確認の方法

ガイドラインに基づき妥当性確認を実施した．検査員 5 名が，1 日 2 併行で添加回収試験を行った精度管理データを用いて，選択性，真度，併行精度及び室内精度を求め，試験法の性能を評価した．

3　結果及び考察

3.1　検量線

検量線用亜硝酸ナトリウム標準溶液を測定したところ，決定係数（R^2）0.999 以上の良好な直線性を示した．

3.2　選択性

2.1 に記載のとおり，トレース試料として亜硝酸ナトリウムを使用した鯨肉ベーコンを用いたが，トレース試料を用いる際には，試験溶液中の分析対象物質により得られる信号強度の目安が，原則として試験物質の添加により得られる信号強度の 10%未満であることが求められている[3]．そこで，鯨肉ベーコンを試料として，2.4 及び 2.5 のとおり試験溶液の調製及び測定を行った結果，鯨肉ベーコンの試料試験溶液の吸光度は，亜硝酸ナトリウムを添加した添加回収用試験溶液の吸光度の 0.6%であった．これは，ガイドラインの目標値である 10%未満を満たしていたことから，トレース試料として適切であると判断した．なお，着色ブランクの吸光度はマイナスであった．

3.3　真度

妥当性確認の結果を表 1 に示す．添加濃度と比較した真度は 95%であり，ガイドラインの目標範囲である 70～120%を満たしており，良好な結果であった．なお，真度の算出にあたっては，トレース試料の試験溶液の吸光度が検量線の最低濃度より低かったため，令和 6 年 3 月 8 日付け厚生労働省健康・生活衛生局食品基準審査課事務連絡「「食品中の食品添加物分析法の妥当性確認ガイドラインに関する質疑応答集（Q&A）」の公表について」[4] を参考に，トレース試料の試験溶液の吸光度を添加回収試験溶液の吸光度から差し引いて計算した．

3.4　精度

表 1 に示すとおり，併行精度が 1.3 RSD%，室内精度が 2.3 RSD%であり，ガイドラインに記載の目標範囲である 10 RSD%及び 15 RSD%未満を満たしており，良好な結果であった．選択性，真度及び精度の結果から，本試験法の妥当性が確認された．

表 1　性能評価結果

評価パラメーター	結果	目標値
選択性（%）	0.6	＜10
真度（%）	95	70～120
併行精度（RSD%）	1.3	＜10
室内精度（RSD%）	2.3	＜15

4　まとめ

ガイドラインに基づき，鯨肉製品中の亜硝酸根試験法の妥当性を確認した．その結果，ガイドラインに示された選択性，真度及び精度の目標値を満たしており，本試験法の妥当性が確認された．今後は，鯨肉製品以外の食品についても本試験法の妥当性を確認していく予定である．

文献

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

2)厚生省生活衛生局食品化学課長通知 衛化第 15 号：食品中の食品添加物分析法について 別添「第2版 食品中の食品添加物分析法」，平成 12 年 3 月 30 日
3)厚生労働省健康・生活衛生局食品基準審査課長及び厚生労働省健康・生活衛生局食品監視安全課長通知 健生食基発 0308 第 1 号及び健生食監発 0308 第 1 号：「食品中の食品添加物分析法の妥当性確認ガイドライン」，令和 6 年 3 月 8 日
4)厚生労働省健康・生活衛生局食品基準審査課事務連絡：「食品中の食品添加物分析法の妥当性確認ガイドラインに関する質疑応答集（Q&A）」の公表について，令和 6 年 3 月 8 日

折り紙からの赤色２０１号の検出事例

佐多建一・小出石千明・近藤芳和子・宮﨑悦子*・坂本智徳

福岡市保健環境研究所保健科学課
*福岡市保健環境研究所環境科学課

Determination of Red No.201 Eluted from Origami

Kenichi SATA , Chiaki ODEISHI , Kanako KONDO , Etsuko MIYAZAKI* and Tomonori SAKAMOTO

Health Science Section, Fukuoka City Institute of Health and Environment
*Environmental Science Section, Fukuoka City Institute of Health and Environment

要約

折り紙のうち 6 歳未満の乳幼児を対象としたものについては, 製造基準で着色料の使用が規制されており，化学的合成品たる着色料を使用する場合は，食品衛生法施行規則で定める着色料以外の着色料が溶出してはならないと定められている．

福岡市で令和 4 年度に収去した折り紙の溶出試験において, 着色料の溶出が認められた事例があった. 溶出液を薄層クロマトグラフ及びフォトダイオードアレイ検出器付き高速液体クロマトグラフで分析したところ，食品衛生法施行規則で定める着色料ではないことが確認された．そこで，高速液体クロマトグラフ四重極飛行時間型質量分析計を用いて, 未知着色料の構造推定を行ったところ，化粧品や外用の医薬品等に使用が認められている赤色 201 号であると推定されたため，赤色 201 号の標準品を用いて確認試験を行い，溶出した着色料が赤色 201 号であると同定した．

通常の定性分析法では, 食品衛生法施行規則で定める着色料以外の着色料を同定することは困難であるが，本事例では高速液体クロマトグラフ四重極飛行時間型質量分析計を用いて，精密質量から化合物を推定し，赤色 201 号を見出すことができた．この事例から，未知着色料を同定する手法として高速液体クロマトグラフ四重極飛行時間型質量分析計が有用であることが示された．

Key Words: 赤色 201 号(R201)　Red No.201，薄層クロマトグラフ法　thin-layer chromatograph，高速液体クロマトグラフ　high performance liquid chromatograph（HPLC），液体クロマトグラフ四重極飛行時間型質量分析計　liquid chromatograph quadrupole time-of-flight mass spectrometer（LC-QTOFMS）

1　はじめに

着色料は，多くの食品用の器具・容器包装及びおもちゃに使用されている．しかし，これらから着色料が溶出すると，人の体内に摂取されて健康に影響をおよぼす可能性がある．そこで，食品衛生法のおもちゃの規格基準では，乳幼児を対象としたおもちゃ（以下，「指定おもちゃ」とする．）には，乳幼児が接触することにより健康を損なうことがないよう，食品衛生法に基づき規格及び製造基準が設定されている．折り紙については，製造基準で着色料の使用が規制されており，化学的合成品たる着色料を使用する場合は，食品衛生法施行規則別表第 1 に掲げる着色料（以下，「法定着色料」とする．）以外の着色料の溶出が認められてはならないと定められている．

福岡市保健環境研究所では，着色料の試験法として，食品衛生検査指針[1)] 及び「第 2 版食品中の食品添加物分析法」[2)] に記載の分析法（以下，「公定法」とする．）に準じて, 薄層クロマトグラフ（以下,「TLC」とする．）及びフォトダイオードアレイ検出器付き高速液体クロマトグラフ（以下，「HPLC-PDA」とする．）を併用し，TLC で判定困難な場合等に HPLC-PDA を用いて確認し，結果を報告している．

令和 4 年度に福岡市で収去した指定おもちゃである折

り紙から，着色料の溶出が認められた事例があった．溶出液を TLC 及び HPLC-PDA で分析した結果，法定着色料ではない着色料であった．公定法では，法定着色料以外の着色料を同定することは困難であるが，今回，高速液体クロマトグラフ四重極飛行時間型質量分析計(以下，「LC-QTOFMS」とする．）を用いて，着色料の同定を試みたので報告する．

2　実験方法

2.1　試料

令和 5 年 3 月に福岡市内で収去された指定おもちゃである折り紙を試料とした．一包装中の 5 種類の絵柄それぞれについて検査を行った．

2.2　標準品及び試薬

法定着色料のうち酸性タール色素 12 種類の標準品(赤色 2 号（R2），赤色 3 号（R3），赤色 40 号（R40），赤色 102 号(R102),赤色 104 号(R104),赤色 105 号(R105)，赤色 106 号（R106），黄色 4 号（Y4），黄色 5 号（Y5），緑色 3 号（G3），青色 1 号（B1），青色 2 号（B2））：東京化成工業（株）製を用いた．

赤色 201 号（R201）の標準品：大和化工（株）製を用いた．

着色料標準溶液：各着色料の標準品 10 mg を量り，蒸留水 10 mL を加えて標準原液（1000 μg/mL）を調製した．法定着色料 12 種類及び R201 の標準原液を蒸留水で段階的に希釈し，各着色料の標準溶液を調製した．

N 系展開溶媒：アンモニア水，2.5%クエン酸ナトリウム水溶液及び 99.5%エタノールを 2：7：1 で混合した．

P 系展開溶媒：1-プロパノール，酢酸エチル及び蒸留水を 6：1：3 で混合した．

2.3　溶出試験

試料の着色されている部分を，その表面積 1 cm^2 につき 2 mL の割合の 40℃に加温した水に浸した後，40℃に保ちながら時々かき混ぜて 10 分間放置し,これを試験溶液とした．試験溶液 50 mL を，内径 20 mm，外径 24 mm のネスラー管に採り，着色料の溶出の有無を確認した．

2.4　TLC

TLC 用プレート：MACHEREY-NAGEL GmbH & Co. KG 製 Cellulose MN 400（AVICEL®），CEL 400-10，10 cm×20 cm，層厚 0.10 mm．プレートをメタノールで空展開後，乾燥機にて 120℃，30 分間処理したものを用いた．

溶出試験で着色料の溶出が認められた試験溶液について，エバポレーターで濃縮し，メンブレンフィルターでろ過したものを測定溶液とした．TLC 用プレートに各着色料の標準溶液及び測定溶液をスポットし，風乾後，N 系展開溶媒及び P 系展開溶媒を用いて展開し，色調及び移動度を確認した．

2.5　HPLC-PDA

装置は,(株)島津製作所製 ポンプ LC-30AD 及び PDA 検出器 SPD-M20A を用いて，各着色料の標準溶液及び測定溶液を表 1 の条件で測定した．

表 1　HPLC-PDA 測定条件

分析カラム	Inertsil ODS-2，2.1 mm×150 mm，5 μm（GL サイエンス（株）製）
カラム温度	40℃
移動相 A	0.1 mol/L 酢酸アンモニウム水溶液・アセトニトリル混液（99：1）
移動相 B	アセトニトリル
グラジエント条件	B：4%（0 min）- 70%（30 min）- 70%（35 min）
流速	0.2 mL/min
注入量	4 μL
サンプル温度	4℃
測定波長	黄系色素：450 nm，赤系色素：520 nm，青系色素：620 nm 吸収スペクトル：190 ～ 700 nm

2.6　LC-QTOFMS

装置は，（株）エービー・サイエックス製 Exion LC 及び X500R QTOF システムを用いて，各着色料の標準溶液及び測定溶液を測定した．測定条件は，LC 条件を表 1 と同一とし，MS 条件を表 2 のとおりとした．

表 2　LC-QTOFMS の MS 条件

イオン化モード	ESI-Negative
データ取得モード	IDA
ヒーター温度	500℃
スプレー電圧	-4500 V
TOFMS	
Declustering Potential	-80 V
Collision Energy	-5 V
スキャン範囲	*m/z* 100 ～ 1000
TOFMS/MS	
Declustering Potential	-80 V
Collision Energy	-35 V
スキャン範囲	*m/z* 30 ～ 1000

3　実験結果及び考察

3.1　未知着色料の検出

溶出試験で，2 種類の絵柄の試験溶液が赤色に着色した．この 2 つの試験溶液から測定溶液を調製し，以降の測定を行った．なお，以降のデータは，2 つの測定溶液の結果が同一であったため，1 つの測定溶液の結果のみ示す．

法定着色料標準溶液及び測定溶液を TLC で測定した結果を図 1 に示す．測定溶液において，1 種類の赤色スポットが認められたが，色調及び移動度は法定着色料のいずれのスポットとも一致しなかった．

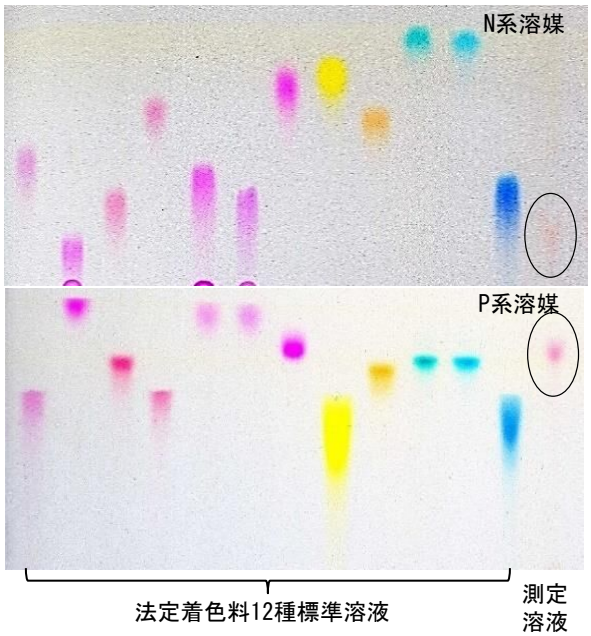


図 1　法定着色料標準溶液及び測定溶液の TLC

法定着色料標準溶液及び測定溶液を HPLC-PDA を用いて測定したクロマトグラムを図 2 に示す．通常当所で用いている赤系色素の測定波長である 520 nm において，R3 の近傍である保持時間 15.4 分付近に未知のピークが認められた．このピークのピークトップにおける吸収スペクトルは図 3 のとおりで，495 nm 付近に極大吸収波長を有していた．未知ピークの保持時間及び吸収スペクトルが法定着色料のいずれとも一致しなかったため，TLC の結果と合わせて，法定着色料以外の未知着色料のピークであると判断した．そこで，この未知着色料について LC-QTOFMS を用いて構造推定を試みた．

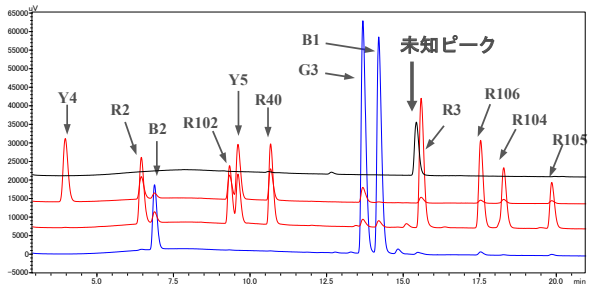


図 2　法定着色料標準品及び測定溶液の HPLC クロマトグラム

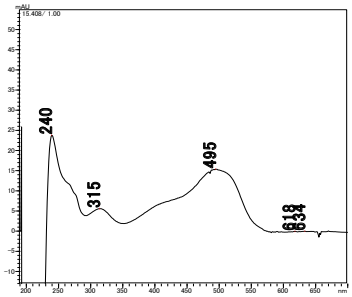


図 3　未知ピークのピークトップにおける吸収スペクトル

3.2　LC-QTOFMS 法（PDA 付き）による未知着色料の推定

測定溶液を LC-QTOFMS で測定したところ，装置に付属する PDA 検出器のクロマトグラム（図 4）において，保持時間 15.7 分付近に，HPLC-PDA において確認された未知着色料の吸収極大波長（495 nm）に吸収を持つ化合物のピークが検出された．このピークの MS スペクトルを図 5 に示す．特に強度が高い *m/z* 385.0503 のイオンをプリカーサーイオンとするプロダクトイオンスペクトルを図 6 に示す．これらのスペクトルについて，（株）エーピー・サイエックス製の解析ソフト（SCIEX OS Software）で化合物の組成式を推定した結果，$C_{18}H_{14}N_2O_6S$（モノアイソトピック質量 386.05726）と推定された．この組成式について化学データベースである Chemspider（http://www.chemspider.com/）で検索した結果，組成式 $C_{18}H_{14}N_2O_6S$ の候補化合物から，赤系色素として R201（図 7）が見出された．検出されたプロダクトイオンを R201 の構造に帰属させたところ，その構造に対してプロダクトイオンの約 95%が帰属された（図 8）．

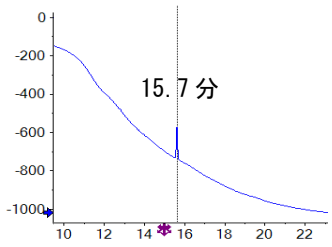


図 4　測定溶液の吸収波長 495 nm における抽出クロマトグラム

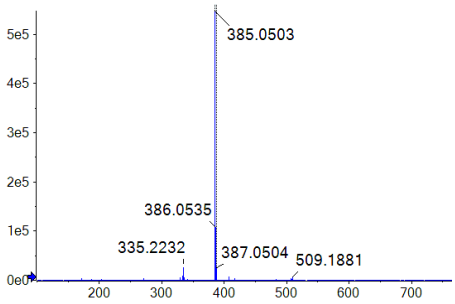


図 5　15.7 分の未知ピークの MS スペクトル

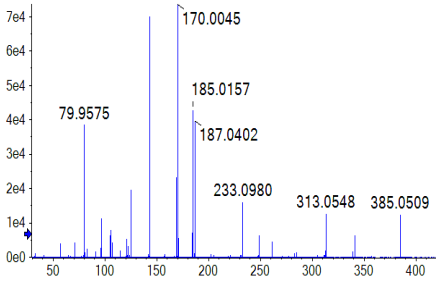


図 6　15.7 分の未知ピークの *m/z* 385.0503 のプロダクトイオンスペクトル

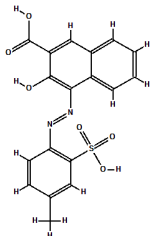


図 7　R201 の構造（$C_{18}H_{14}N_2O_6S$）

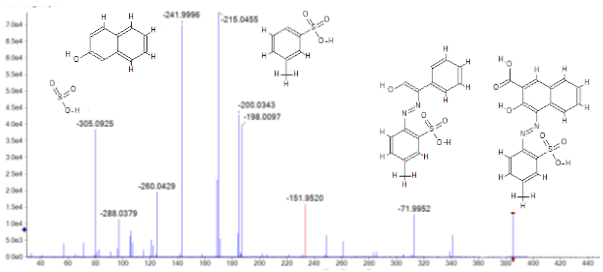


図 8　プロダクトイオンの帰属

3.3　R201 標準品を用いた確認試験

未知着色料が R201 であることを確認するため，R201 の標準溶液と測定溶液を TLC，HPLC-PDA 及び LC-QTOFMS で測定した．

TLC では，N 系展開溶媒及び P 系展開溶媒ともに，測定溶液と R201 標準溶液のスポットの色調及び移動度が一致した（図 9）．

HPLC-PDA では，測定波長 495 nm において，測定溶液と R201 標準溶液ともに，保持時間 15.4 分付近にピークが認められた（図 10）．また，ピークトップの吸収スペクトルについても一致していた（図 11）．

LC-QTOFMS で測定した結果，R201 標準溶液及び測定溶液プリカーサーイオンスペクトル及びプロダクトイオンスペクトルのいずれも一致した（図 12 及び図 13）．

これらの結果から，未知着色料は R201 であると判断した．

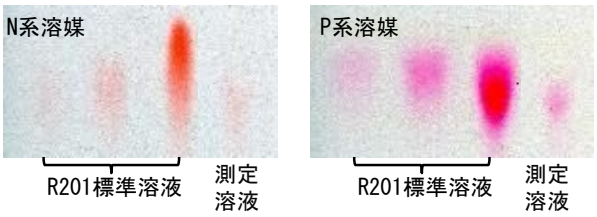


図 9　R201 標準溶液及び測定溶液の TLC

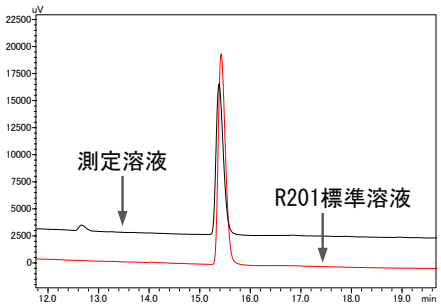


図 10　R201 標準溶液及び測定溶液の 495 nm におけるクロマトグラム

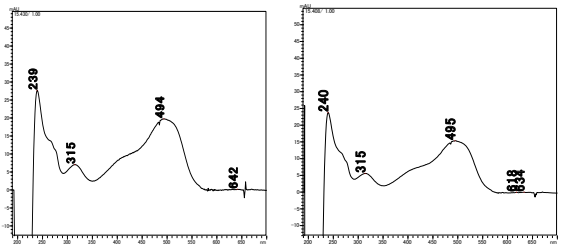


図 11　未知ピークのピークトップの吸収スペクトル（左）と R201 標準溶液のピークトップの吸収スペクトル（右）

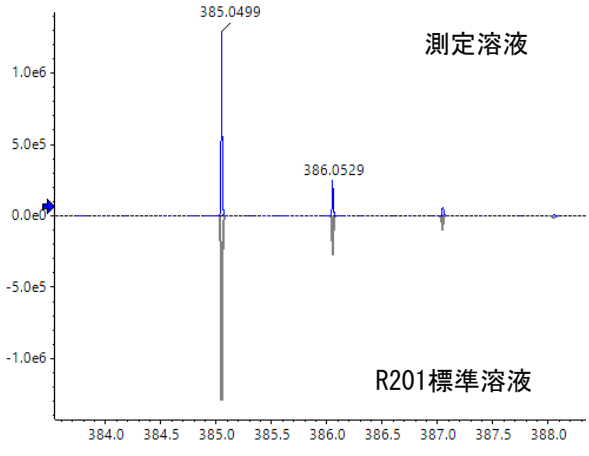


図 12　R201 標準溶液及び測定溶液のプリカーサーイオンスペクトル

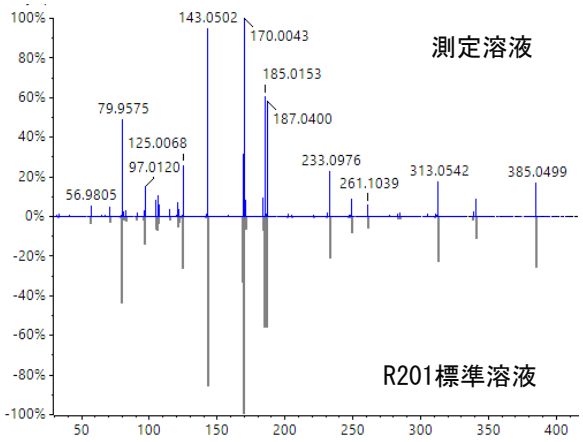


図 13　R201 標準溶液及び測定溶液の *m/z* 385.0503 のプロダクトイオンスペクトル

4　まとめ

令和 4 年度に本市で収去した指定おもちゃである折り紙の溶出試験において，着色料の溶出が認められた事例があった．指定おもちゃについては，製造基準で着色料の使用が規制されており，法定着色料以外の着色料が溶出してはならないと定められているため，通常の着色料の検査同様，溶出液を TLC 及び HPLC-PDA で分析し，法定着色料であるか否かを確認したところ，法定着色料ではない未知の着色料であることが分かった．そこで，LC-QTOFMS を用いて構造推定を試みたところ，溶出した着色料は R201 であることが分かった．R201 は化粧品や外用の医薬品等に使用が認められているタール色素であるが，指定おもちゃから溶出してはならない．

R201 の分析法は，公定法では示されておらず，通常は着色料を同定することは困難であるが，本事例では LC-QTOFMS を用いて，精密質量から化合物を推定し，R201 を見出すことができた．この事例から，未知着色料を同定する手法として LC-QTOFMS が有用であることが示された．

文献

1) 社団法人 日本食品衛生協会 厚生労働省監修：食品衛生検査指針 食品添加物編，169～199，2003
2) 厚生省生活衛生局食品化学課長通知 衛化第 15 号：食品中の食品添加物分析法について 別添「第 2 版 食品中の食品添加物分析法」，平成 12 年 3 月 30 日

市販キットを用いた豆腐からの DNA 抽出法比較及び装置の同等性確認

小出石千明・永井里苗・坂本智徳

福岡市保健環境研究所保健科学課

Consideration of DNA Extraction Methods from Tofu using commercially available kits and Equivalency Test of Real-Time PCR Devices

Chiaki ODEISHI , Satomi NAGAI and Tomonori SAKAMOTO

Health Science Section, Fukuoka City Institute of Health and Environment

要約

安全性審査済みの遺伝子組換え食品に関する任意表示については，令和 5 年（2023 年）4 月 1 日から大豆及びとうもろこし並びにこれらを原材料とする加工食品において，「遺伝子組換えでない」等と表示する際には，分別生産流通管理を行った上で，遺伝子組換え農産物の混入がないと認められることが必要となった. 大豆加工品の組換え遺伝子の定性検査法は通知検査法で定められているが，DNA の抽出に用いるキットの種類及び試料採取量については，各試験所で定める必要がある．そこで，通知に記載されている市販キットによる DNA 抽出法について，PCR に用いるために必要な DNA 抽出量，純度及び操作性を比較検証した結果，使用キットは Genomic-tip 20/G，試料採取量は 5 g とした．また，「安全性審査済みの遺伝子組換え食品の検査方法」では，定性検査に用いる装置が定められており，記載されていない装置を用いる場合は，記載されている装置との同等性を確認する必要がある．そこで，福岡市保健環境研究所で用いている装置について，通知に記載されている装置との同等性を確認した.

Key Words：遺伝子組換え食品　genetically modified food，豆腐　tofu，大豆加工品　processed soy food，リアルタイム PCR　real-time PCR（qPCR），装置の同等性確認　equivalency test of device

1　はじめに

我が国では, 食品衛生法及び昭和 34 年 12 月 28 日付け厚生労働省告示第 370 号[1] に基づき，組換え DNA 技術応用食品（遺伝子組換え食品）を輸入及び販売する際には，厚生労働省の安全性審査を受ける必要がある[2]．安全性審査を経て流通が認められた食品は, 令和 6 年(2024 年）3 月現在で，9 農産物及びこれらを原材料とした 33 加工食品群である．これらについては，食品表示法に基づいて表示基準が定められている[3]．具体的には，遺伝子組換え農産物及び遺伝子組換え農産物と分別生産流通管理をしていないものを使用している場合はその旨の表示が義務づけられている．また，遺伝子組換え大豆及びとうもろこしが混入しないように分別生産流通管理が行われたことを確認したものを使用している場合は，「遺伝子組換えでない」等を任意で表示（以下，「任意表示」とする．）することができる．大豆及びとうもろこし並びにそれらを原材料とする加工食品において，任意表示する際には，従前は，分別生産流通管理を行った上で，意図せざる混入が 5%以下であることとされていた．しかし，平成 31 年（2019 年）4 月 25 日に公布され，令和 5 年（2023 年）4 月 1 日に施行された食品表示基準の一部を改正する内閣府令[4]によって, 任意表示する際には，分別生産流通管理を行った上で，遺伝子組換え農産物の混入がないと認められることが必要となった．遺伝子組換え農産物の混入がないことを確認するための定性検査法として，平成 27 年 3 月 30 日付け消食表第 139 号消費者庁次長通知「食品表示基準について」の別添「安全性審査済みの遺伝子組換え食品の検査方法」（最終改正令和 3 年（2021 年）9 月 15 日）（以下，「通知検査法」とする．）[5] が定められている．大豆加工品である豆腐の検査法についても通知検査法で定められているものの，

DNA の抽出に用いるキットの種類は複数例示され，試料採取量については適量と記載されているため，これらの条件は各試験所で定める必要がある．そこで，通知検査法に記載されている市販キットによる DNA 抽出法を比較検証した．また，通知検査法では，定性検査に用いる装置が定められており，記載されていない装置を用いる場合は，記載されている装置との同等性を確認する必要がある．福岡市保健環境研究所で用いている装置は，Thermo Fisher Scientific 製の Quant Studio5（以下，「QS5」とする．）であり，通知検査法の定性検査法には記載がないことから，通知検査法に記載された装置（Applied Biosystems 製 ABI PRISM® 7900HT（以下，「7900HT」とする．））との同等性を確認したので，合わせて報告する．

2　実験方法

2.1　試料

福岡市内で流通していた豆腐 3 種を，通知検査法に従い粉砕したものを試料とした．試料の遺伝子組換えに関する表示を表 1 に示す．

表 1　試料の遺伝子組換えに関する表示

豆腐	遺伝子組換えに関する表示
A	遺伝子組換えでない（アメリカ産，カナダ産）
B	分別生産流通管理済み（アメリカ産，カナダ産）
C	遺伝子組換えでない（国産）

2.2　試薬，装置及び器具

2.2.1　試薬

DNA 抽出キット：（株）キアゲン製 DNeasy Plant Maxi Kit（（シリカゲル膜タイプキット法）（以下，「Plant Maxi Kit」とする．），（株）キアゲン製 Genomic-tip 20/G（（イオン交換樹脂タイプキット法）（以下，「Genomic-tip 20/G」とする．）

2-プロパノール：富士フイルム和光純薬（株）製分子生物学用 2-プロパノール

エタノール：富士フイルム和光純薬（株）製分子生物学用エタノール（99.5）

TE buffer：（株）ニッポンジーン製遺伝子工学研究用 TE（pH8.0）

マスターミックス：Thermo Fisher Scientific 社製 TaqMan Universal PCR Master Mix

Le1 プライマー対及びプローブ：（株）ニッポンジーン製ダイズ内在性 DNA Le1 オリゴヌクレオチドセット

P35S プライマー対及びプローブ：（株）ニッポンジーン製組換え DNA P35S オリゴヌクレオチドセット

RRS2 プライマー対及びプローブ：（株）ニッポンジーン製 GM ダイズ（RRS2）系統別 DNA RR2 オリゴヌクレオチドセット

陽性コントロールプラスミド（以下，「PC」とする．）：（株）ニッポンジーン製 GM Soy ΔΔCq Standard Plasmid Set（Le1，R35S，LLS2）

超純水：アドバンテック東洋（株）製 RFU666HA で製造した超純水を用いた．

滅菌超純水：オートクレーブを用いて 121℃，15 分加熱した超純水を用いた．

2.2.2　装置

qPCR 装置：QS5

冷却遠心機：久保田商事（株）製 6200，久保田商事（株）製 3780，（株）トミー精工製 CAX-571

分光光度計：Thermo Fisher Scientific 製 NanoDrop One

超純水製造装置：アドバンテック東洋（株）製 RFU666HA

オートクレーブ：（株）トミー精工製 BS-305

ホモジナイザー：（株）キアゲン製 TissueRuptor Ⅱ

2.3　分析方法

2.3.1　DNA 抽出法の比較

1) Plant Maxi Kit による抽出

試料 A 及び B について，試料採取量を 2 g，5 g，10 g 又は 20 g とし，通知検査法に示された DNA 抽出精製法に従い，DNA 試料原液を調製した．ただし，AP1 緩衝液及び RNase A 添加後にホモジナイズ工程を追加した．

2) Genomic-tip 20/G による抽出

試料 A～C について，試料採取量を 2 g，5 g 又は 10 g とし，通知検査法に示された DNA 抽出精製法に従い，DNA 試料原液を調製した．ただし，G2 緩衝液添加後にホモジナイズ工程を追加した．

2.3.2　DNA 試料原液中の DNA の濃度及び純度

調製した DNA 試料原液について 230, 260 及び 280 nm の吸光度を測定し，260 nm の吸光度から DNA 濃度を求めた．

また，280 nm の吸光度に対する 260 nm の吸光度の比（A260/A280）及び 230 nm の吸光度に対する 260 nm の吸光度の比（A260/A230）から DNA の純度を確認した．なお，純度の目標は， A260/A280 が通知検査法に記載のとおり 1.7～2.0，A260/A230 が糖，フェノール等の夾雑物の影響が少ないとされる[6] 2.0 以上とした．

2.3.3　qPCR

2.3.1 で抽出した試料 C の DNA 試料原液を滅菌超純水で 20 ng/μL に希釈調製し DNA 試料溶液とした．通知検査法に記載の ABI PRISM7900HT 96well 及び 384well を用

いた定性 PCR に従い， PCR 用反応溶液を調製し，QS5 にて，qPCR 及び測定結果の解析を行った.

2.3.4 測定結果の判定

通知検査法に記載の測定結果の判定に従い，qPCR の測定結果から判定を行った.

2.3.5 装置の同等性確認

通知検査法に記載の検査方法の同等性確認の方法に，通知記載機種のほかにも「同等の性能を有する機種を用いることができる」とあるが，当所では通知記載機種を保有していないため，当所と同一試薬を用いた文献[7]と比較し，装置の同等性の確認を行った．また，確認項目は通知検査法に記載にある感度，繰り返し再現性及び well 間差とし，増幅効率については QS5 が通知検査法の定量検査に記載されている装置であるため省略した.

1) 感度（検出限界）の比較

Le1，P35S 及び RRS2 の PC を滅菌超純水で希釈し，2，5，10 及び 100 copy/well となるよう調製し，検出限界測定用 DNA 溶液とした. 検出限界測定用 DNA 溶液を対応する各プライマー対及びプローブ並びにマスターミックスを用いて PCR 用反応液を調製し，10well 並行で日を変えて 3 回測定した．測定結果を文献と比較した.

2) 繰り返し再現性及び well 間差の確認

Le1 の PC を滅菌超純水で希釈した 500 copy/well の DNA 溶液，対応する各プライマー対及びプローブ並びにマスターミックスを用いて PCR 反応液を調製し，96well 併行で PCR 測定し，ΔCt が 1.0 未満であることを確認した．また，日を変えて 3 回測定し，いずれも ΔCt が 1.0 未満であることを確認した.

3 結果及び考察

3.1 DNA 抽出法の検討

通知検査法に記載の Plant Maxi Kit 及び Genomic-tip 20/G の DNA 抽出キットについて検討した. 2.3.1 に従い，試料 A～C について各 2 併行（n = 2）で抽出し，DNA 抽出量及び吸光度比（A260/A280）を測定した結果を表 2 に示す.

まず，試料 A 及び B について Plant Maxi Kit を用い DNA 抽出したところ，試料採取量 5 g 以上で DNA 抽出量 20 ng/μL 以上であったが，A260/A230 が 2.0 未満のものが多く，目標とした純度の DNA 抽出液が安定して得られなかった．そこで試料 A 及び B について Genomic-tip 20/G を用い DNA 抽出したところ，試料採取量 2 g で DNA 抽出量 500 ng/μL 以上，A260/A230 が 2.1 以上と良好な結果が得られた. よって，Plant Maxi Kit より Genomic-tip 20/G が本検査に適していると判断した. 試料 C は Genomic-tip 20/G で抽出し，試料採取量 2 g 及び 5 g で DNA 抽出量及び純度について良好な結果が得られた．また，キットの種類にかかわらず，試料採取量が 2 g の場合，70%エタノール沈殿で得られる沈殿 DNA の視認性が低く，操作性が悪かったため，DNA 抽出量，純度及び操作性を考慮し，試料採取量は 5 g が適当と判断した.

表 2 DNA の抽出量及び吸光度比（n = 2）

試料	キット種類	採取量 (g)	DNA抽出量 (ng/uL)	A260/A280	A260/A230
A	Plant Maxi Kit	2	22	1.74	1.17
			6	2.10	1.42
		5	38	1.87	1.81
			34	1.86	1.51
		10	56	1.82	1.54
			36	1.98	2.12
		20	55	1.85	1.40
			48	1.92	1.93
	Genomic-tip 20/G	2	567	1.89	2.15
			579	1.91	2.33
B	Plant Maxi Kit	2	11	1.89	1.53
			25	1.86	1.17
		5	39	1.91	1.68
			45	1.92	1.71
		10	36	2.07	2.24
			39	2.00	2.40
		20	66	1.96	2.05
			119	1.93	1.96
	Genomic-tip 20/G	2	679	1.92	2.30
			592	1.87	2.33
C	Genomic-tip 20/G	2	570	1.93	2.39
			522	1.94	2.45
		5	674	1.90	2.30
			806	1.92	2.25
		10	737	1.88	1.84
			742	1.89	1.68

3.2 qPCR

2.3.1 で抽出した試料 C について， 2.3.3 及び 2.3.4 に従い qPCR を行い，結果の判定を行った結果を表 3 に示す．すべての試料採取量において陰性であり，試料の遺伝子組換えに係る表示どおりの結果が得られた.

3.3 機器の同等性確認

3.3.1 感度（検出限界）の比較

2.3.5 の 1) に従い，QS5 を用いて得られた結果を表 4 に示す．7900HT を用いてダイズ Le1 について 10 併行試験を行った文献[7]と比較した結果，両機種とも 10 copy/well 以上で 10 well 全てにおいて検出され，同等の感度であることを確認した．また，P35S，RRS2 の感度についても Le1 と同程度であることが確認できた.

表 3　qPCR 結果

試料	試料採取量 (g)	Ct値 Le1	Ct値 P35S	Ct値 RRS2	ダイズ陽性対象試験（Le1）		P35S（RRS or LLS）検知試験		RRS2 検知試験		遺伝子組換え
C	2	24.91	-	-	＋	試験成立	－	陰性	－	陰性	陰性
		24.97	-	-	＋		－		－		
	2	24.92	-	-	＋	試験成立	－	陰性	－	陰性	
		24.81	-	-	＋		－		－		
	5	24.84	-	-	＋	試験成立	－	陰性	－	陰性	陰性
		24.82	-	-	＋		－		－		
	5	24.76	-	-	＋	試験成立	－	陰性	－	陰性	
		24.72	-	-	＋		－		－		
	10	26.44	-	-	＋	試験成立	－	陰性	－	陰性	陰性
		26.41	-	-	＋		－		－		
	10	26.02	-	-	＋	試験成立	－	陰性	－	陰性	
		25.97	-	-	＋		－		－		

表 4　ダイズ（Le1，P35S，RRS2）PC の感度確認

検出遺伝子	溶液中のコピー数	Ct平均値 1回目	Ct平均値 2回目	Ct平均値 3回目	ΔCt 1回目	ΔCt 2回目	ΔCt 3回目	検出率 1回目	検出率 2回目	検出率 3回目
Le1	2	(39.69)	(38.77)	(40.77)	(0.71)	(0.80)	(0.87)	3/10	4/10	4/10
	5	39.35	(39.90)	(39.89)	2.53	(2.61)	(3.08)	10/10	9/10	8/10
	10	37.89	38.54	38.5	2.58	3.32	1.89	10/10	10/10	10/10
	100	33.61	33.73	34.6	0.46	0.4	0.66	10/10	10/10	10/10
P35S	2	(38.85)	(38.30)	(39.20)	(2.57)	(2.34)	(3.61)	7/10	6/10	5/10
	5	38.02	37.54	37.2	2.88	2.91	3.34	10/10	10/10	10/10
	10	36.57	36.12	36.13	2.69	3.25	1.52	10/10	10/10	10/10
	100	32.6	32.47	32.4	0.42	0.48	0.65	10/10	10/10	10/10
RRS2	2	(39.80)	(39.34)	(38.49)	(2.57)	(2.91)	(2.10)	7/10	7/10	8/10
	5	(38.39)	37.96	38.21	(2.38)	3.83	2.94	8/10	10/10	10/10
	10	37.43	37.05	36.66	2.07	1.28	1.64	10/10	10/10	10/10
	100	33.35	33.09	32.84	0.51	0.34	0.43	10/10	10/10	10/10

ΔCt：Ct の最大値－最小値，（　）：検出された Ct のみを使用し算出した．

3.3.2　繰り返し再現性及び well 間差の確認

2.3.5 の 2）に従い，繰り返し再現性及び well 間差の確認を行った結果を表 5 に示す．実施した 3 回ともすべての well で検出され，繰り返し測定の平均値の差及び 96well 間差の ΔCt も 1.0 未満であり，通知検査法に記載の同等性確認方法の要件を満たしていた．

表 5　繰り返し再現性及び well 間差の確認

	Ct 平均値	Ct SD	RSD（%）	ΔCt
1回目	30.80	0.093	0.30	0.43
2回目	30.77	0.093	0.30	0.41
3回目	30.86	0.085	0.28	0.43

Ct SD：Ct の標準偏差，RSD：相対標準偏差

4　まとめ

安全性審査済みの遺伝子組換え食品の検査方法に基づき，市販キットを用いた豆腐の DNA 抽出法について，2 種の抽出法を比較検討した結果，当所では純度及び操作性の面から試料採取量 5 g とし，Genomic-tip 20/G による抽出が適当であった．また，通知試験法記載機種との同等性確認を行い，安全性審査済みの遺伝子組換え食品として豆腐の検査方法に対応可能であることを確認した．

文献

1）厚生省告示第 370 号：食品，添加物等の規格基準，昭和 34 年（1959 年）12 月 28 日
2) 厚生省告示第 233 号：組換え DNA 技術応用食品及び添加物の安全性審査の手続，平成 12 年（2000 年）5 月 1 日
3) 内閣府令第 10 号：食品表示基準，平成 27 年（2015 年）3 月 20 日
4) 内閣府令第 24 号：食品表示基準の一部を改正する内閣府令，平成 31 年（2019 年）4 月 25 日
5) 消費者庁次長通知消食表第 139 号別添：安全性審査済みの遺伝子組換え食品の検査方法，平成 27 年（2015 年）3 月 30 日
6) 消費者庁次長通知消食表第 286 号別添 1：アレルギー物質を含む食品の検査方法，平成 22 年（2010 年）9 月 10 日
7) 赤星千絵，他：LightCycler®480 を用いた遺伝子組み換え食品検査の検討，神奈川県衛生研究所研究報告，51，2021

ナツメグ過剰摂取による食中毒を想定したエレミシン分析法

矢野智也・常松順子・増田栞・小出石千明・大木望・佐藤秀樹

福岡市保健環境研究所保健科学課

Analysis Method of Elemicin Assuming that Overconsumption of Nutmeg will Induce Food Poisoning

Tomoya YANO , Junko TSUNEMATSU , Shiori MASUDA ,
Chiaki ODEISHI , Nozomi OKI and Hideki SATO

Health Science Section, Fukuoka City Institute of Health and Environment

要約

ナツメグは，ハンバーグやコロッケなどに香辛料として使用されており，過剰摂取により食中毒を起こすことが知られている．

LC-MS/MS を用い，福岡市保健環境研究所の自然毒一斉分析法を参考に，マッシュポテトにエレミシンを添加した試料を用いて分析法を検討したが，回収率が 53.6%であった．回収率低下の原因として水及びメタノール（1:9）混液とヘキサンの液液分配時に，エレミシンの一部がヘキサン層に移行したことが考えられた．そこで，抽出溶媒をメタノールのみとした結果，回収率が 86.5%に向上した．分析法の検証のため，市販のレトルトカレーを用いた添加回収試験（n=5）を行った結果，回収率は 67.7%，併行精度は 8.1RSD%であった．また，GC-MS/MS 及び LC-QTOFMS でエレミシンの特徴的なピークを確認できた．

Key Words：ナツメグ　nutmeg , エレミシン　elemicin , 過剰摂取　overconsumption
高速液体クロマトグラフ-タンデム型質量分析計　LC-MS/MS

1　はじめに

ナツメグは，ハンバーグやコロッケなどに香辛料として使用されているが，過剰摂取による食中毒事例も報告されている．わが国でも，幻覚・興奮作用を求めて自ら大量摂取し中毒に至った症例が報告されているが，依然食中毒の病因物質としての認知度は低く，分析法の報告も少ない[1)]．

また，福岡市保健環境研究所では，LC-QTOFMS を用いた植物性自然毒一斉分析法[2)]（以下，「自然毒一斉分析法」とする．）を確立しているが，ナツメグ中の病因物質であるエレミシンは対象成分に含まれていない．

今回，ナツメグ過剰摂取による食中毒に対応するために，ナツメグ中の精油成分であるエレミシンについて，抽出溶媒として水及びメタノール（1:9）混液を使用した自然毒一斉分析法に準じた方法で分析可能か検討を行った．しかし，当該分析法では十分な回収率が得られなかったため，回収率改善を目的として，LC-MS/MS によるエレミシン分析法について検討した結果を報告する．併せて，分析法検証のため行った脂質や香辛料などの夾雑物の多い加工食品である市販のレトルトカレーを用いた性能評価試験結果並びに GC-MS/MS 及び LC-QTOFMS を用いた定性試験結果も報告する．

2　実験方法

2.1　試料

2.1.1　前処理法検討用試料

ナツメグ入りのマッシュポテトを用いた．なお，本試料は，令和 5 年度地方衛生研究所九州ブロック模擬訓練（以下，「模擬訓練」とする．）で当所が調製したものである．

2.1.2　性能評価試験用試料

脂質や香辛料などの夾雑物の多い加工食品である市販のレトルトカレーを調製し用いた．

2.1.3　定性確認用試料

エレミシンが添加されたマッシュポテトを用いた．なお，本試料は模擬訓練事務局が，乾燥ポテトにナツメグ，エレミシン及び水を添加し，エレミシン濃度が 150 μg/g となるよう調製したものである．

2.2　標準品・試薬等

標準品：富士フイルム和光純薬社製エレミシンを用いた．

標準溶液：標準品 1 g を，アセトニトリル（富士フイルム和光純薬社製 LC/MS 用）1 mL に溶解し，適宜希釈して使用した．

検量線用標準溶液：標準溶液をメタノールで希釈し，0.5～50 ng/mL の溶液を調製した．

アセトニトリル：富士フイルム和光純薬社製 LC/MS 用を用いた．

メタノール：富士フイルム和光純薬社製 HPLC 用を用いた．

n-ヘキサン： 富士フイルム和光純薬社製残留農薬試験用を用いた．

2.3　装置・器具等

ホモジナイザー：IKA 社製 T18 digital UL-TRA-TURRAX®

振とう機：タイテック社製 RECIPRO SHAKER SR-2w

遠心機：久保田製作所社製フロア型冷却遠心機 S700FR

50 mL PP 遠沈管：Eppendorf 社製 Conical Tubes 50 mLAmber

0.2 μm フィルター：Agilent Technologies Syringe Filter PTFE-HI 13 mm，0.2 μm

LC-MS/MS：LC 部は Agilent 社製 1260 InfinityII，MS 部は Agilent 社製 6470 TripleQuad

LC-QTOFMS：LC 部は AB SCIEX 社製 ExionLC AC，TOF-MS 部は AB SCIEX 社製 X500R QTOF System

GC-MS/MS：GC 部は島津製作所社製 GC-2010 Plus，MS 部は島津製作所社製 TQ8050

2.4　測定条件

LC-MS/MS の測定条件及び対象化合物の測定イオン等を表 1 に示す．

LC 条件は，自然毒一斉分析法を参考に，分析カラムに Scherzo SM-C18 を用い，移動相に 10 mM ギ酸アンモニウム及びメタノールを用いたグラジエント分析とした．

MS/MS 条件は， Agilent Masshunter Optimizer を用いて MRM 条件を最適化し，強度の高い MS/MS トランジション，フラグメンター電圧及び CE の組み合わせを測定条件として選定した．

表 1　LC-MS/MS の測定条件

測定機器	LC部：1260Infinity Ⅱ MS部：Agilent 6470TripleQuad
分析カラム	Imtakt製　Scherzo SM-C18 (100 mm×2 mm, 3 μm)
流速	0.2 mL/min
注入量	5 μL
カラム温度	40 ℃
移動相	A液：10mMギ酸アンモニウム B液：メタノール
グラジエント条件	B液：1%（0 min）→99%（8 min）→99%（18 min） →1%（18.01 min）→1%（21 min）
測定モード	MRM
イオン化モード	ESI（＋）
Gas Temp(℃)	300
Gas Flow(l/min)	10
Nebulizer(psi)	50
SheathGasHeater	400
SheathGasFlow	12
Capillary(V)	4000

	Prec Ion	Prod Ion	Frag(V)	CE(V)	
Elemicin	209.1	168	80	13	定量イオン
Elemicin	209.1	153	80	21	確認イオン①
Elemicin	209.1	125	80	30	確認イオン②
Elemicin	209.1	110	80	30	確認イオン③
Elemicin	209.1	93	80	30	確認イオン④

2.5　前処理法の検討

精油成分であるエレミシンはヘキサン移行性が考えられたため，自然毒一斉分析法に準じた前処理法による試験法と，メタノール抽出での前処理法による試験法について，各々繰返し試験を 3 併行で実施し，回収率を比較した．併せて，エレミシンのヘキサン移行性確認試験を 3 併行で実施した．

2.5.1　試験用試料の調製

マッシュポテトの重量に対し，ナツメグの重量が 5%になるように市販のナツメグパウダーを添加したブランク試料 1.0 g に，エレミシン 1000 ng/mL を 100 μL 添加し，エレミシン濃度が 100 μg/g となるよう調製した．

2.5.2　自然毒一斉分析法に準じた前処理法

分析フローを図 1 に示す．試料 1 g に水及びメタノール（1:9）混液を 10 mL 加えたのち，脱脂を目的として n-ヘキサンを 10 mL 加えた．10000 rpm で 1 分間ホモジナイズし，1928 ×*g* で 5 分間遠心分離を行い，液液分配したのち，下層（水及びメタノール（1:9）混液層）を 5A ろ紙でろ過した．残渣を 50 mL PP 遠沈管に回収後，水及びメタノール（1:9）混液を 10 mL 加え，再度 10000 rpm で 1 分間ホモジナイズし，1928 ×*g* で 5 分間遠心分離を行い，5A ろ紙でろ過した．ろ液を合わせ 50 mL に定容したものを抽出液とし，抽出液を 0.2 μm フィルターでろ過し，試験溶液とした．試験溶液は必要に応じメタノールで希釈した．

2.5.3　メタノール抽出での前処理法

分析フローを図 2 に示す．試料 1 g にメタノールを

10 mL 加えたのち， 10000 rpm で 1 分間ホモジナイズし，1928 ×*g* で 5 分間遠心分離を行い，5A ろ紙でろ過した．残渣を 50 mL PP 遠沈管に回収後，メタノールを 10 mL 加え，再度 10000 rpm で 1 分間ホモジナイズし，1928 ×*g* で 5 分間遠心分離を行い，5A ろ紙でろ過した．ろ液を合わせ 50 mL に定容したものを抽出液とし，抽出液を 0.2 μm フィルターでろ過し，試験溶液とした．試験溶液は必要に応じメタノールで希釈した．

2.5.4　エレミシンのヘキサン移行性の確認試験

分析フローを図 3 に示す．エレミシン 150 μg/mL を水及びメタノール（1:9）混液：ヘキサン＝10 mL : 10 mL で混合した溶液に 1.0 mL 添加し，1 分間ホモジナイズした後，メタノール層にエレミシンがどれくらい含まれているか LC-MS/MS で測定した．

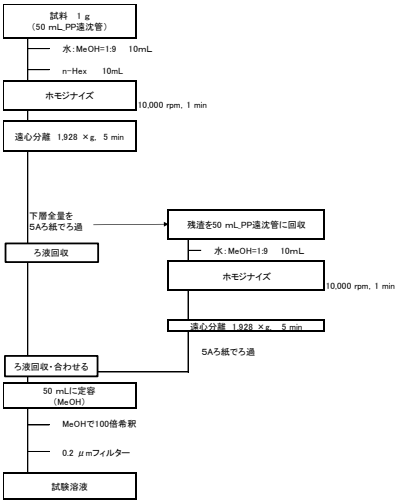


図 1　自然毒一斉分析法に準じた前処理法フロー

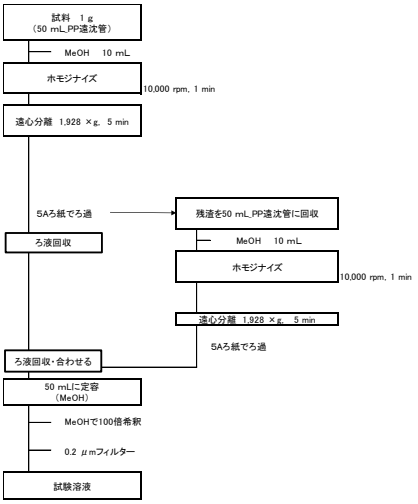


図 2　メタノール抽出での前処理法フロー

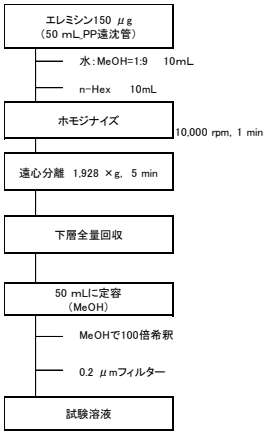


図 3　エレミシンのヘキサン移行性確認試験フロー

2.6　検量線の作成及び定量

検量線用標準溶液を LC-MS/MS で分析して得られた MRM のクロマトグラムのピーク面積による絶対検量線法で定量した．

2.7　マトリックス効果の確認

2.5.1 に示したブランク試料を用いて調製した試験溶液について，メタノールで 10 倍及び 100 倍希釈した溶液並びに希釈しない原液の試験溶液各 900 μL に 1000 ng/mL 検量線用標準溶液を 100 μL 添加し，100 ng/mL マトリックス添加標準溶液とした．同濃度の検量線用標準溶液に対するマトリックス添加標準溶液のピーク面積比を求めてマトリックス効果を算出した．

2.8　性能評価試験

2.8.1　試験用試料の調製

性能評価試験用試料として，市販のレトルトカレー 1.0 g にエレミシン 1000 μg/mL を 100 μL 添加し，エレミシン濃度が 100 μg/g となるよう調製したものを用いた．

なお，ナツメグ 1 g あたりのエレミシン含有量は 3.5 mg/g であり[3]，ナツメグの中毒量 5 g～15 g[1] から換算したエレミシンの中毒量は 17.5 mg～52.5 mg となる．一般的なレトルトカレー180 g がエレミシン濃度 100 μg/g となるように添加すると，カレー中のエレミシン量が 18 mg となり，上記中毒量の範囲に当てはまる．

2.8.2　性能評価試験

レトルトカレー及び 2.8.1 の方法で処理した性能評価試験用試料について，2.5.3 に従ってそれぞれ試験溶液を調製し，レトルトカレーについては希釈なし，性能評価試験用試料については 100 倍希釈したものを LC-MS/MS で測定（*n*=5）し，測定後，それぞれ定性及び定量を行った．本分析法の性能を厚生労働省医薬食品局食品安全部基準審査課事務連絡[4] に従い，選択性，回収

率，併行精度及び S/N 比で評価した．

2.9　他の分析機器での定性確認

定性確認用試料を用い，GC-MS/MS のスキャン分析及び LC-QTOFMS のターゲット分析を行った．それぞれの測定条件を表 2，表 3 に示す．

なお，GC-MS/MS でスキャン分析を行うにあたり，３層固相ミニカラムを用いた加工食品中に高濃度に含まれる農薬の迅速分析法[5)]を参考に，サンプル 1 g を酢酸エチルで抽出後 10 mL に定容し，３層固相カラムによる精製後，精製溶液 200 µL 窒素乾固させ，アセトン：ヘキサン=1：1 溶液 50 µL に転溶したものを定性分析用試料（5 倍希釈相当）として使用した．

LC-QTOFMS のターゲット分析については，2.5.3 に示したメタノール抽出での前処理方法により調製したものを 100 倍希釈し定性分析用試料として使用した．また，ライブラリ登録用試料として 0.5 ng/mL の標準液を使用した．

表 2　GC-MS/MS の測定条件

測定機器	GC部：GC-2010 Plus LC部：GC-MS TQ8050
分析カラム	名前：SH-Rxi-5Sil MS
	膜厚：0.25 µm
	長さ：30.0 m
	内径0.25 mm ID
カラム温度 (昇温条件)	105.0℃（3分）-10℃/分-130.0℃-4℃/分-200.0℃-8℃/分-290.0℃（6分）-10℃/分-300.0℃（3分）
注入口温度	250℃
検出器温度	230℃
注入方式	スプリットレス
キャリヤーガス	1.40 mL/分
注入量	2 µL

表 3　LC-QTOFMS の測定条件

測定機器	LC部：ExionLC AC MS部：X500R QTOF System
分析カラム	Imtakt製　scherzo SM-C18 (100 mm×2 mm, 3 µm)
流速	0.4 mL/min
注入量	5 µL
カラム温度	40 ℃
移動相	A液：10mMギ酸アンモニウム B液：メタノール
グラジエント条件	B液：1%（0 min）→99%（8 min）→99%（18 min） →1%（18.01 min）→1%（21 min）
測定モード	data-dependent acquisition （当該機種のIDA）
イオン化モード	ESI（＋）
Ionspray- voltage(V)	5500
Temperature(℃)	500
TOF-MSスキャン範囲	TOF-MS:m/z 50～2,000 TOF-MSMS:m/z30～1,000
コリジョン電圧	TOF-MS:5 V　TOF-MSMS:35±15 V

3　結果及び考察

3.1　前処理法の検討結果

3.1.1　自然毒一斉分析法に準じた前処理法

2.5.2 に従い前処理を行った試料①～③について，当所の自然毒一斉分析法に準じ，水及びメタノール（1:9）混液を 10 mL 加えたのち，脱脂を目的として n-ヘキサンを 10 mL 加えたところ，回収率が 49.5～55.9%，平均値 53.6%となった．結果を表 4 に示す．なお，ブランク試料にもナツメグが含まれるため前処理法検討用試料①～③のピーク面積値についてはブランク試料のピーク面積値を差し引いた値とし，回収率を求めた．

3.1.2　メタノール抽出での前処理法

2.5.3 に従い前処理を行った試料④～⑥について，抽出溶媒をメタノールのみとし， LC-MS/MS で測定したところ，回収率は 84.3～91.0%，平均値 86.5%となった．結果を表 5 に示す．なお，ブランク試料にもナツメグが含まれるため前処理法検討用試料④～⑥のピーク面積値についてはブランク試料のピーク面積値を差し引いた値とし，回収率を求めた．

3.1.3　エレミシンのヘキサン移行性の確認試験

エレミシンを添加した試料⑦～⑨のヘキサン層への移行性について，2.5.4 に従い確認した結果を表 6 に示す．全てのサンプルで回収率は 50%を超えたが，ヘキサン層へエレミシンが移行することも推測できた．

以上の結果から，エレミシンの食中毒については過剰摂取が問題となるため，定量を正確に行うために，回収率が 80%以上であったメタノール抽出法での前処理を行うこととした．

表 4　自然毒一斉分析法に準じた前処理法での前処理法検討用試料の回収率

サンプル名	回収率（%）
試料①	55.6
試料②	49.5
試料③	55.9

表 5　メタノール抽出での前処理法検討用試料の回収率

サンプル名	回収率（%）
試料④	84.3
試料⑤	84.3
試料⑥	91.0

表 6　エレミシンのヘキサン移行性確認試験における
メタノール層での回収率

サンプル名	回収率（%）
試料⑦	58.7
試料⑧	62.1
試料⑨	61.4

3.2　検量線

検量線を図 4 に示す．5～50 ng/mL の範囲で直線性が確認でき，決定係数は 0.999 以上であった．

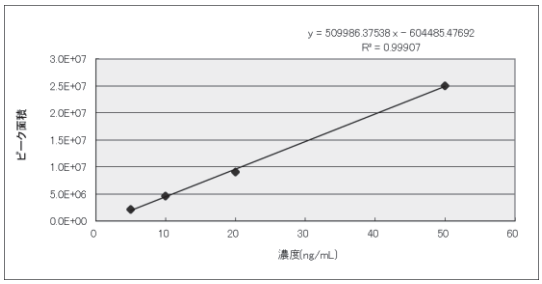


図 4　検量線

3.3　マトリックス効果の確認

ブランク試料にもエレミシンが含まれるため，ブランク試料から調製した試験溶液のピーク面積を差し引き算出したマトリックス効果は，10 倍希釈した場合 0.97，100 倍希釈した場合 1.07 であり，マトリックスによる測定結果への影響は認められなかった．

なお，エレミシン食中毒が過剰摂取によって発症するものであり，発症濃度及び検量線範囲を考慮すると，LC-MS/MS で測定するためには 10 倍希釈して測定することが前提となる．

3.4　性能評価試験の結果

市販のレトルトカレー及び 2.8.1 の方法で調整し 100 倍希釈した性能評価試験用試料①～⑤を用い，選択性，回収率，併行精度及び S/N 比を確認した．

レトルトカレーについては，スパイスに含まれるナツメグ含有のエレミシンとして，0.09 μg 程度確認できたが，100 倍希釈することを考えると，表 7 のとおり性能評価試験用の結果と比較しても微量であり無視できる程度であった．

3.4.1　選択性

クロマトグラムを図 5 に示す．選択性について，エレミシンのクロマトグラム（*n*=5）を確認したところ，妨害ピークは見られなかった．

3.4.2　回収率，併行精度及び S/N 比

回収率（5 併行の平均）及び併行精度の結果を表 7 に示す．エレミシンの回収率は 67.7％，併行精度は 8.1RSD％であった．また，エレミシンのピークの S/N 比については図 5 のとおりすべて≧1000 であった．

健康被害防止の観点から発出された事務連絡[4)]における性能評価の目標値は，回収率（50％～200％），併行精度 （RSD％＜30）及び評価濃度（回収率の評価で得られた成分のピークが S/N 比≧10）とされており，今回の結果はこの範囲内であった．

表 7　レトルトカレーを使用した性能評価試験の結果

サンプル	試料採取量（g）	試料中含量（μg）	回収率（%）	回収率平均（%）	RSD%
レトルトカレー	1.02	0.09176			
性能評価試験用試料①	1.03	65.82670	63.9		
性能評価試験用試料②	1.01	71.04455	70.3		
性能評価試験用試料③	1.02	62.13284	60.9	67.7	8.1
性能評価試験用試料④	1.03	75.60000	73.4		
性能評価試験用試料⑤	1.03	64.01893	62.2		

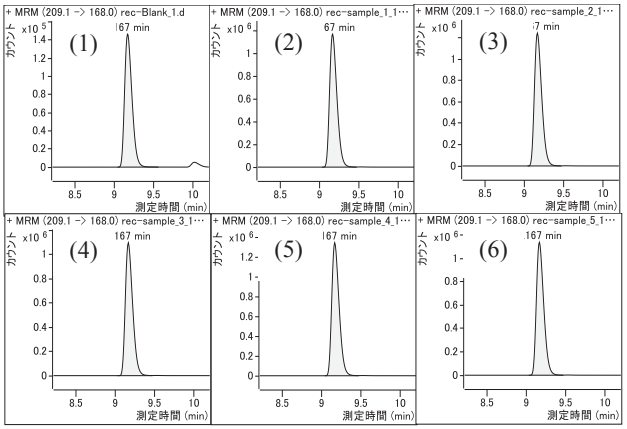


図 5　性能評価試験用試料中のエレミシンのクロマトグラム（（1）レトルトカレー（希釈なし），（2）～（6）添加回収試験用試料①～⑤（100 倍希釈））

3.5　定性試験の結果

定性確認用試料を用い，GC-MS/MS のスキャン分析及び LC-QTOFMS のターゲット分析を行ったところ，ナツメグの代表成分であるエレミシン及びエレミシンと同様に過剰摂取により食中毒を起こすミリスチシンがクロマトグラム上でピークとして検出された．

定性確認用試料について，GC-MS/MS のスキャン分析結果を図 6 に示す．

TIC クロマトグラムにおいて，保持時間 11 分周辺にナツメグ含有成分であるエレミシン，ミリスチシンの大きなピークが確認できた．NIST 検索との一致率は図 7 に示すとおり，エレミシンで 90％，ミリスチシンで 92％であった．

また，LC-QTOFMS のターゲット分析結果を図 8 に示

す．保持時間 3.05 分にエレミシンのピークが確認できた．LC-QTOFMS スキャン分析で得られた同位体パターンは，解析ソフトが示す理論値のパターンと一致しており，プロダクトイオンスペクトルは当所で作成したライブラリ結果と一致していた．

4　まとめ

ナツメグに含まれるエレミシンに対し，LC-MS/MS を用いた分析法を検討し，メタノール抽出での前処理法を確立した．分析法の性能評価として，レトルトカレーを用いた添加回収試験（添加濃度 100 μg/g，n=5）を行った結果，エレミシンの選択性は問題なく，回収率 67.7%，併行精度は 8.1RSD%，S/N 比≧1000 となった．

また，定性分析においては，GC-MS/MS 及び LC-QTOFMS でエレミシンの特徴的なピークを確認できた．

ナツメグは，ハンバーグやカレー，ジャガイモ料理など，日常的に喫食する食品に使用されることが多いが，過剰摂取により食中毒が発生することの認知度が低い．ナツメグ過剰摂取による食中毒はいつ発生してもおかしくないため，今回の検討によって，突発事案発生時にも検査可能な体制を整備できた．

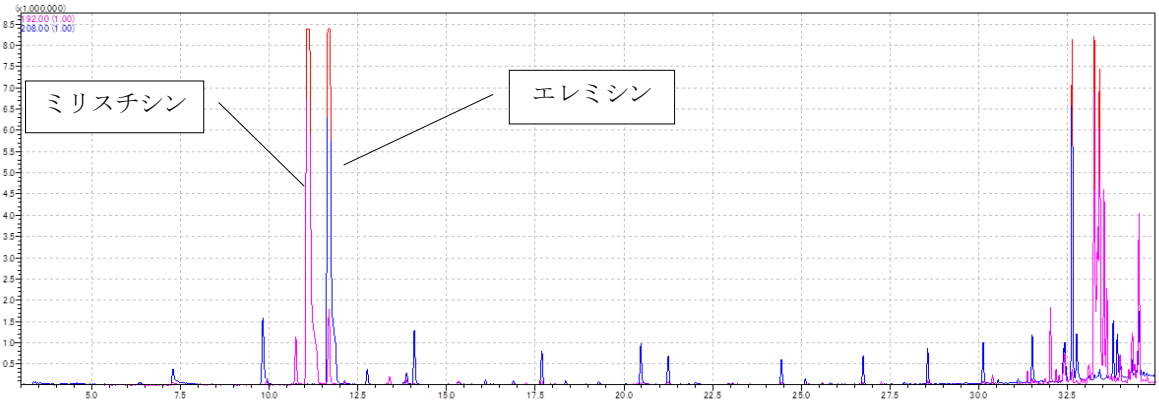


図 6　GC-MS/MS によるスキャン分析結果（TIC クロマトグラム）

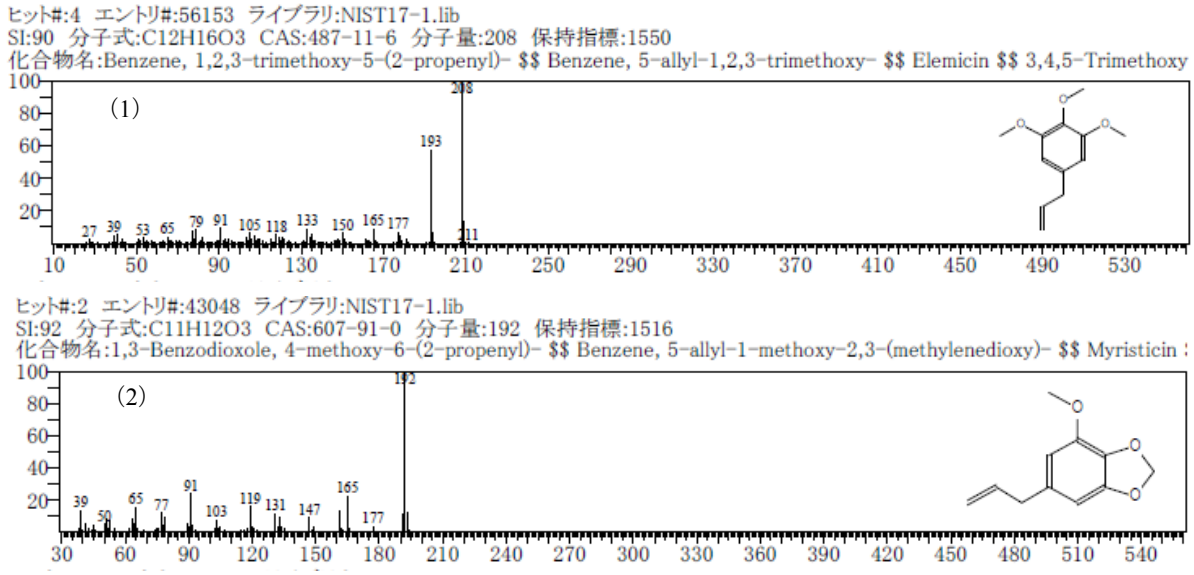


図 7　GC-MS/MS によるライブラリ検索結果
（（1）エレミシン，（2）ミリスチシン）

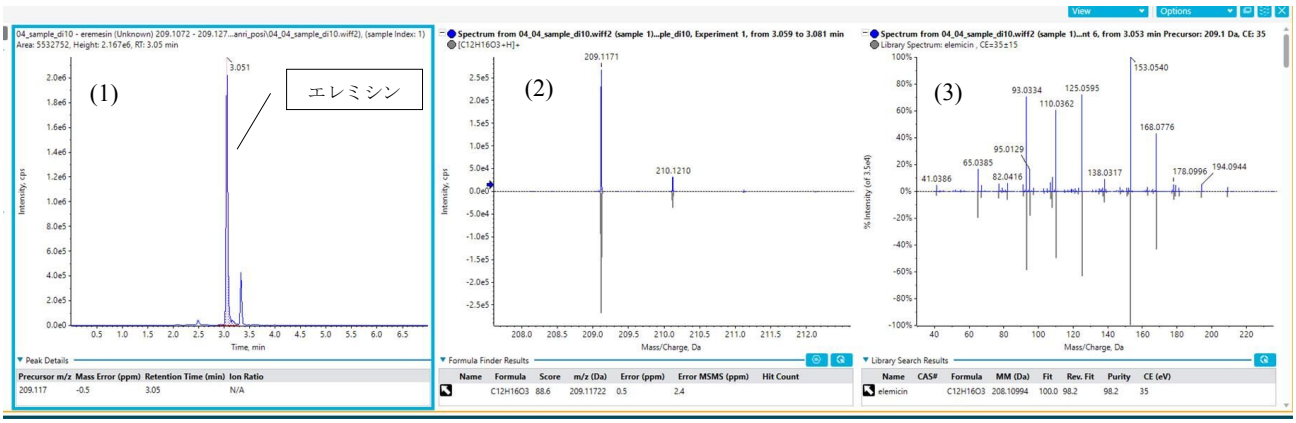


図 8　LC-QTOFMS によるターゲット分析結果
（（1）抽出イオンクロマトグラム，（2）MS スペクトル，（3）MS/MS スペクトル）

文献

1) 藤綱隆太朗，他：ナツメグ中毒の 1 例，日救急医会関東誌，39（2），285～287，2018
2) 佐藤秀樹，他：LC-TOF-MS による植物性自然毒の迅速一斉分析法の確立，食品衛生学雑誌，65（1），7～14，2024
3) Stafford,P.G.，et al：Psychedelics Encyclopedia. Berkeley CA: Ronin Publishing，292，1992
4) 厚生労働省医薬食品局食品安全部基準審査課事務連絡：加工食品中に高濃度に含まれる農薬等の迅速検出法について，平成 25 年（2013 年）3 月 26 日
5) 矢野智也，他：3 層固相ミニカラムを用いた加工食品中に高濃度に含まれる農薬の迅速分析法，福岡市保健環境研究所報，48，60～68，2023

血液中 PCB 分析における低温アルカリ分解法を用いた前処理方法

増田栞・常松順子・矢野智也・佐藤秀樹

福岡市保健環境研究所保健科学課

Pretreatment Using Low Temperature Alkali Digestion Method for Analysis of PCB in Whole Blood Sample

Shiori MASUDA , Junko TSUNEMATSU , Tomoya YANO and Hideki SATO

Health Science Section, Fukuoka City Institute of Health and Environment

要約

福岡市保健環境研究所における血液中 PCB 分析は，食品中の PCBs の分析法に準じて行っている．油脂等のアルカリ分解操作は，試験管に秤量した血液に蒸留水，エタノール及び水酸化カリウムを加え，83℃以上で 2～3 時間加熱する方法（熱アルカリ分解法）を用いているが，本手法は空冷管の取付けを要するため分析操作の簡便性に劣り，加熱中に突沸が起こりやすく危険を伴うといった課題がある．そこで，堀らの報告に準じて，低温（30℃）条件下で一晩放置するアルカリ分解法（低温アルカリ分解法）の検討を行った．令和 5 年度福岡県油症一斉検診受診者血液 7 検体を用いて検証した結果，熱アルカリ分解法に対する低温アルカリ分解法の総 PCB 濃度比は 0.872～1.033 であった．また，血中 PCB パターン判定に用いられる指標異性体#118，#153 及び #156 の各濃度比についても 0.828～1.170 となり，両分解法による大きな差は認められなかった．

Key Words：油症　Yusho，ポリ塩化ビフェニル　PCB，血液　blood，ガスクロマトグラフ-タンデム型質量分析計　GC-MS/MS

1　はじめに

昭和 43 年に福岡県，長崎県を中心とした西日本一帯でカネミ油症事件が発生した．これは，米ぬか油中に，脱臭工程の熱媒体として用いられたポリ塩化ビフェニル（PCB）等が混入したことで起こった大規模食中毒であった．当所では昭和 49 年から福岡県油症一斉検診に参画し，受診者血液の PCB 濃度を測定している．当所における血液中 PCB 分析は，食品中の PCBs 分析法に準じて行っているが[1, 2]，油脂等のアルカリ分解操作は，試験管に秤量した血液に蒸留水，エタノール及び水酸化カリウムを加え，83℃以上で 2～3 時間加熱する方法（以下，「熱アルカリ分解法」とする．）を用いている．しかし，本手法は空冷管の取付けを要するため分析操作の簡便性に劣り，加熱中に突沸が起こりやすく危険を伴うといった課題がある．これらの課題に対し，堀ら[3]は低温（30℃）条件下で一晩放置するアルカリ分解法（以下，「低温アルカリ分解法」とする．）の検討を行い，有用な結果を得ている．そこで当所でも前処理の安全性確保及び操作性向上のため，低温アルカリ分解法を検討したので結果を報告する．

なお，本検討は福岡市保健環境研究所倫理委員会による審査を受け，承認されたものである（許可番号第 2024-01 号）．

2　実験方法

2.1　試料

令和 5 年度福岡県油症一斉検診において，インフォームドコンセントを得て血液中 PCB 濃度を測定した受診者血液 7 検体を試料とした．熱アルカリ分解法で分析した結果，比較的濃度が低かった検体 69，73，128，136（以下，「低濃度群」とする．）と比較的濃度が高かっ

た検体 82，134，162（以下，「高濃度群」とする．）を選び，低温アルカリ分解法の検討対象とした．

2.2 標準品・試薬等

標準品：ケンブリッジアイソトープ研究所製
2,3',4,4',5-PentaChloroBiphenyl (#118),
2,2',3,4,4',5'-HexaChloroBiphenyl (#138),
2,2',4,4',5,5'-HexaChloroBiphenyl (#153),
2,3,3',4,4',5-HexaChloroBiphenyl (#156),
2,2',3,3',4,4',5-HeptaChloroBiphenyl (#170),
2,2',3,4,4',5,5'-HeptaChloroBiphenyl (#180)及び
2,2',3,4',5,5',6-HeptaChloroBiphenyl (#187)

ウインドウ標準品：ケンブリッジアイソトープ研究所製 PCB WINDOW DEFINING MIXTURE(DB-5) EC-1430．本標準品は#30,#37（3 塩化物），#54,#77（4 塩化物），#104,#126（5 塩化物），#155,#169（6 塩化物），#188,#189（7 塩化物）及び#194,#202（8 塩化物）の混合品である．

内部標準品（^{13}C-PCBs）：ケンブリッジアイソトープ研究所製
2,3',4,4',5-PentaChloroBiphenyl (#118),
2,2',3,4,4',5'-HexaChloroBiphenyl (#138),
2,2',4,4',5,5'-HexaChloroBiphenyl (#153),
2,3,3',4,4',5-HexaChloroBiphenyl (#156),
2,2',3,3',4,4',5-HeptaChloroBiphenyl (#170)及び
2,2',3,4,4',5,5'-HeptaChloroBiphenyl (#180)
#118，#153，#156，#170 及び#180 はクリーンアップスパイクとして，#138 はシリンジスパイクとして使用した．

シリカゲルカートリッジカラム：SUPELCO 社製 SPE DSC-Si Silica Tube 6 mL/500 mg をあらかじめヘキサン 10 mL でコンディショニングして使用した．

蒸留水：ヘキサン洗浄品を使用した．

その他の試薬：PCB 測定用又は特級を使用した．

検量線用混合標準溶液：標準品及びウインドウ標準品については，n-ノナンで溶解し 1～20 ng/mL の範囲内で段階的に調製した．

2.3 装置及び測定条件

GC-MS/MS の測定条件を表 1 に，対象化合物の測定イオン等を表 2 に示す．

表 1　GC-MS/MS 測定条件

機種	島津TQ8050-NX
カラム	HT-8 PCB 60 m,0.25 mm, 0.25 μm
カラム温度	130℃ (4 min)－20℃/min－240℃－2℃/min－285℃－20℃/min－310℃(12 min)
注入口温度	250℃
キャリアガス	He　2.6 mL/min
注入量	2 μL
イオン化法	EI
エミッション電流	160 μA

表 2　対象化合物の測定イオン等

PCBs	M.W.	Q1(*m/z*)	Q3(*m/z*)		CE（eV）
3塩化物	256	255.9	定量イオン	186.0	26
		257.9	確認イオン	186.0	26
4塩化物	290	289.9	定量イオン	219.9	26
		291.9	確認イオン	221.9	26
5塩化物	324	323.9	定量イオン	253.9	26
		325.9	確認イオン	255.9	26
6塩化物	358	359.9	定量イオン	289.9	28
		361.9	確認イオン	291.9	28
7塩化物	392	393.8	定量イオン	323.9	28
		395.8	確認イオン	325.9	28
8塩化物	426	427.8	定量イオン	357.8	28
		429.8	確認イオン	359.8	28

2.4 試験溶液の調製

2.4.1 熱アルカリ分解法

既報[2)]に準じた方法で調製した．試料 3 g を量り取り，内部標準品（クリーンアップスパイク）を各化合物につき 0.5 ng 相当になるよう添加した．次に，蒸留水で 8 mL にし，エタノールを加えて 15 mL にメスアップして，2 mol/L となるように水酸化カリウム 1.6 g を加え，攪拌した．本法では，試験管上部に空冷管を取り付け，約 83℃の湯浴で 2 時間程度加熱してアルカリ分解を行った．放冷後，蒸留水を加えて 30 mL にし，ヘキサン 10 mL で振とう抽出した後，ヘキサン層を採取した．水層にさらにヘキサン 10 mL を加え，同様に抽出した．これらのヘキサン層を合わせ，蒸留水で水層が中性になるまで洗浄し，無水硫酸ナトリウムで脱水後，ターボバップを用いて約 1 mL まで濃縮し抽出液とした．続いて，シリカゲルカートリッジカラムに抽出液を負荷し，ヘキサン 8 mL で溶出させ，溶出液を先尖試験管に採り，ターボバップで約 0.1 mL まで濃縮した．これに内部標準品（シリンジスパイク）を 0.5 ng 相当になるように添加し，試験溶液とした．

2.4.2 低温アルカリ分解法

試料 3 g を量り取り，内部標準品（クリーンアップスパイク）を各化合物につき 0.5 ng 相当になるよう添加した．次に，1.5 mol/L 水酸化カリウム/エタノール溶液を

4.5 mL 加え，攪拌した．本法では，30℃で一晩（約 17 時間）放置し，アルカリ分解を行った．その後，ヘキサン 5 mL でボルテックスにて振とう抽出し，エタノールを 0.5 mL 以上添加後，添加量分のヘキサン層を採取し，水層にさらにヘキサン 5 mL を加えて同様に抽出した．これらのヘキサン層を合わせ，蒸留水で水層が中性になるまで洗浄した．無水硫酸ナトリウムでの脱水以降の操作は「2.4.1 熱アルカリ分解法」と同様に行った．

2.5　ピークの同定及び定量

既報[2)]と同様の手順でピークの同定及び定量を行った．

3　結果及び考察

3.1　前処理方法の変更点

堀ら[3)]の報告する低温アルカリ分解法を当所用に変更した．変更点は以下 3 点である．

3.1.1　アルカリ溶液添加量

堀らの報告では量り取る血液量が 2 g となっている．当所で量り取る血液量は 3 g であるため，堀らの報告よりもアルカリ溶液添加量をスケールアップした．

3.1.2　抽出用ヘキサン量

堀らの報告では高分解能ガスクロマトグラフ・高分解能質量分析計（HRGC/HRMS）を用いて分析している．当所で用いる GC-MS/MS は HRGC/HRMS よりも測定感度が低いため，抽出用のヘキサンを増量した．

3.1.3　エタノール添加によるエマルジョンの低減

抽出時のエマルジョンを低減させるため，堀らの報告では遠心分離機を使用して水層とヘキサン層を分離させているが，当所のスケールでは遠心分離機を使用できない．PCB に係る環境基準の測定方法では，エマルジョンの分離改善にエタノールが用いられている[4)]．そこで，当所でもエタノールを 0.5 mL 以上添加することにより分離改善を図り，ヘキサン層を確保した．

3.2　総 PCB 濃度

アルカリ分解の温度条件を 30℃に変更した場合も，妨害のない良好なクロマトグラムが得られた．低濃度群検体の代表的な結果を図 1 に示す．本検討における PCB 内部標準物質の回収率は 53～99％で，目標値[1)]の 50～120％を満たした．定量値の一致性を確認するため，熱アルカリ分解法で得られた濃度値に対する低温アルカリ分解法濃度値の比を算出した．結果を表 3 に示す．総 PCB 濃度について，濃度比は 0.872～1.033 という結果であり，低濃度群，高濃度群ともに，両試験法間で大きな差は認められなかった．

3.3　「血中 PCB パターン」の判定に用いられる指標異性体の濃度

油症診断項目である「血中 PCB パターン」の判定に用いられる指標異性体の 2,3',4,4',5-PentaCB (#118)，2,2',4,4',5,5'-HexaCB (#153)及び
2,3,3',4,4',5-HexaCB (#156)の各濃度についても，熱アルカリ分解法で得られた濃度値に対する低温アルカリ分解法濃度値の比を算出した．結果を表 3 に示す．各濃度比は 0.828～1.170 となり，低濃度群，高濃度群ともに，両試験法間で大きな差は認められなかった．

4　まとめ

熱アルカリ分解法と低温アルカリ分解法を用いて血液中 PCB 分析を行った．油症診断の指標となる総 PCB 濃度並びに指標異性体である 2,3',4,4',5-PentaCB (#118)，2,2',4,4',5,5'-HexaCB (#153)及び
2,3,3',4,4',5-HexaCB (#156)濃度は，低濃度群，高濃度群ともに，両試験法間で大きな差は認められなかった．熱アルカリ分解法に比べて前処理の安全性及び操作性に優れる低温アルカリ分解法は有用と考えられた．

謝辞

本研究は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）に負うものである．ここに記して謝意を表します．

文献

1) 食品衛生検査指針理化学編：公益社団法人日本食品衛生協会，683～694，2015
2) 久保記久子，他：GC/MS/MS による血液中のポリ塩化ビフェニルの分析，福岡市保健環境研究所報，31，95～98，2005
3) 堀就英，他：血液中 PCB 異性体分離分析におけるアルカリ分解温度の検討，福岡医誌，104(4)，152～160，2013
4) 環境庁告示第 59 号：水質汚濁に係る環境基準について，付表 4 PCB の測定方法，昭和 46 年 12 月 28 日

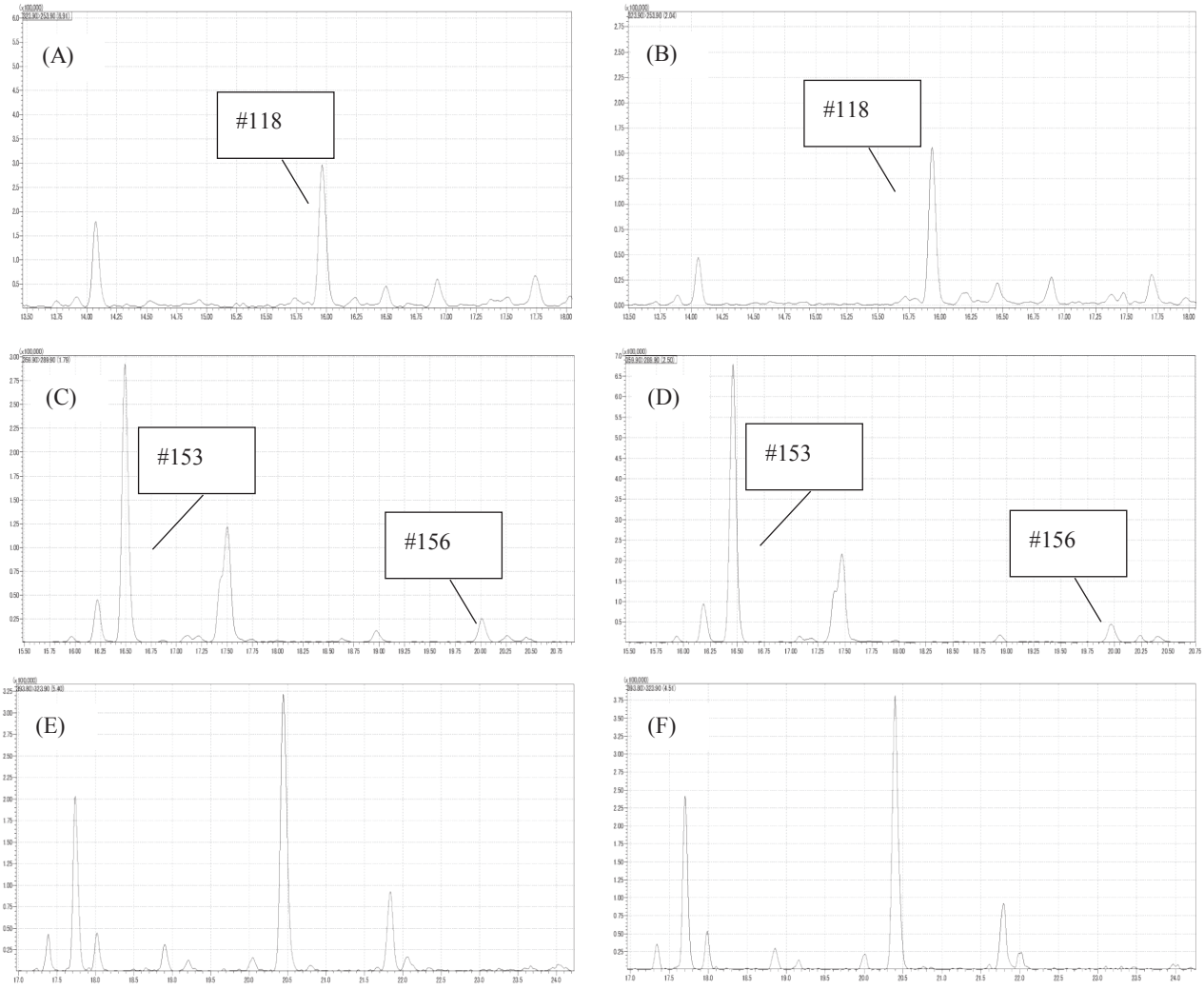


図 1　低濃度群検体（73）のクロマトグラム
（A）熱アルカリ分解法　　5 塩化物
（B）低温アルカリ分解法　5 塩化物
（C）熱アルカリ分解法　　6 塩化物
（D）低温アルカリ分解法　6 塩化物
（E）熱アルカリ分解法　　7 塩化物
（F）低温アルカリ分解法　7 塩化物

表 3　各化合物の分析濃度値（ng/g）及び熱アルカリ分解法濃度値に対する低温アルカリ分解法濃度値の比

		#118	#153	#156	Total TrCBs	Total TeCBs	Total PeCBs	Total HxCBs	Total HpCBs	Total OcCBs	Total PCBs
低濃度群	熱アルカリ分解法濃度	0.011	0.055	0.013	0.001	0.008	0.011	0.020	0.019	0.022	0.281
検体69	低温アルカリ分解法濃度	0.011	0.057	0.014	0.001	0.006	0.008	0.019	0.018	0.022	0.275
	濃度比	1.053	1.031	1.061	0.905	0.723	0.674	0.957	0.948	1.039	0.977
低濃度群	熱アルカリ分解法濃度	0.019	0.079	0.007	0.003	0.006	0.020	0.024	0.023	0.016	0.336
検体73	低温アルカリ分解法濃度	0.023	0.088	0.007	0.004	0.006	0.014	0.023	0.021	0.016	0.347
	濃度比	1.170	1.118	0.908	1.593	0.923	0.701	0.957	0.937	0.998	1.033
低濃度群	熱アルカリ分解法濃度	0.012	0.068	0.010	0.002	0.007	0.011	0.021	0.025	0.031	0.333
検体128	低温アルカリ分解法濃度	0.010	0.059	0.010	0.001	0.002	0.009	0.016	0.024	0.029	0.295
	濃度比	0.844	0.867	0.998	0.563	0.315	0.778	0.779	0.958	0.949	0.886
低濃度群	熱アルカリ分解法濃度	0.010	0.060	0.004	0.001	0.005	0.010	0.011	0.014	0.012	0.225
検体136	低温アルカリ分解法濃度	0.010	0.049	0.004	0.001	0.002	0.007	0.012	0.011	0.010	0.196
	濃度比	1.006	0.828	1.081	0.970	0.364	0.695	1.050	0.786	0.822	0.872
高濃度群	熱アルカリ分解法濃度	0.036	0.275	0.063	0.004	0.030	0.078	0.113	0.091	0.065	1.308
検体82	低温アルカリ分解法濃度	0.036	0.272	0.062	0.003	0.020	0.061	0.118	0.098	0.066	1.274
	濃度比	0.994	0.990	0.989	0.707	0.671	0.783	1.049	1.080	1.014	0.974
高濃度群	熱アルカリ分解法濃度	0.041	0.597	0.332	0.004	0.023	0.089	0.332	0.301	0.201	3.387
検体134	低温アルカリ分解法濃度	0.042	0.564	0.328	0.001	0.018	0.117	0.361	0.298	0.211	3.338
	濃度比	1.013	0.945	0.987	0.309	0.803	1.310	1.086	0.992	1.051	0.986
高濃度群	熱アルカリ分解法濃度	0.018	0.257	0.227	0.004	0.007	0.041	0.182	0.166	0.124	1.837
検体162	低温アルカリ分解法濃度	0.019	0.240	0.227	0.003	0.006	0.038	0.196	0.165	0.133	1.806
	濃度比	1.020	0.933	1.000	0.980	0.855	0.939	1.075	0.992	1.069	0.983

化学物質の網羅的簡易迅速測定法を用いた福岡市内河川水の分析

宮﨑悦子・井戸下風花・嶋田誠

福岡市保健環境研究所環境科学課

A Study of Non-Target Screening of Chemicals from River Water in Fukuoka City

Etsuko MIYAZAKI , Fuka IDOSHITA and Makoto SHIMADA

Environmental Science Section, Fukuoka City Institute of Health and Environment

要約

災害時等において環境水中へ漏洩した化学物質原因物質を迅速に特定するための網羅的な分析法の一つであるガスクロマトグラフ質量分析計（GC-MS）自動同定・定量データベースシステムの評価を目的として，精製水を用いた 13 種農薬混合標準液の添加回収試験を行った．その結果，当所で保有する 2 種類の自動同定･定量データベースシステムの解析を組み合わせることで全ての農薬の自動同定が可能であり，定量値は概ね 70～120%の範囲内であった．次に，福岡市内の 16 地点の河川水による実態調査を行った結果，複数の化学物質が検出された．

Key Words：河川水　river water，　農薬　pesticides，AIQS　Automated Identification and Quantification System，ガスクロマトグラフ質量分析　Gas Chromatograph Mass Spectrometry: GC-MS

1　はじめに

地震，火災等の大規模災害が発生した場合には，公共用水域，大気等への化学物質の漏洩が懸念される．想定される化学物質の種類は膨大であり,緊急時の分析には，標準品を必要としないデータベースによるスクリーニング検査が有効であると考えられる．データベースによる分析法としては，ガスクロマトグラフ質量分析計によるスキャン分析，液体クロマトグラフ飛行時間型質量分析計による分析を行い NIST 等のデータベース検索を行う方法，標準物質を用いずに物質の同定（以下，「自動定性」とする．）と半定量が可能な AIQS（Automated Identification and Quantification System）がある．金属等の元素類については，誘導結合プラズマ質量分析計による半定量分析がある．福岡市保健環境研究所では危機管理訓練として，定期的にこれらの機器を用いた分析訓練を実施している．

一方，当所は令和元年度から令和 3 年度には国立環境研究所を中心として地方環境研究所の共同研究（以下，「Ⅱ型共同研究」とする．）「災害時等の緊急調査を想定した GC/MS による化学物質の網羅的簡易迅速測定法の開発」に参加した．Ⅱ型共同研究で，装置非依存型で汎用性の高い解析ソフトである AXELL を使用した AIQS-GC（以下，「II 型 AIQS」とする．）が開発された．令和 4 年度からは引き続きⅡ型共同研究の「災害時における化学物質の網羅的簡易迅速測定法を活用した緊急調査プロトコルの開発」に参加し，当所は II 型 AIQS の提供を受け，分析が可能である．さらに，当所では独自に Agilent 社製の NAGINATA データベースシステム（以下，「NAGINATA」とする．）を保有しており，II 型 AIQS 及び NAGINATA の 2 つのデータベースシステムによる解析が可能な状況である．

これらの方法は,緊急時に対応した迅速分析法であり，自動定性と半定量を目的としているが，分析の精度を確認することは必要である．そこで，当所の分析条件での II 型 AIQS 及び NAGINATA の自動定性及び半定量性の評価を行うことを目的として，農薬混合標準品を用いた添加回収試験を行い，II 型 AIQS 及び NAGINATA の 2 つの方法による解析を行い自動定性及び半定量性の精度確認及び両者の結果の比較を行った．次に，河川に未知の化学物質が漏洩する等の事故が発生した際に行う平常時の対照との比較（差分解析）分析を目的として，市内の河川水を対照データとして取得し，平常時の河川水に含まれる化学物質の調査を II 型 AIQS 及び NAGINATA

を用いて行ったので，結果を報告する．

2　実験方法

2.1　試料

令和 5 年 10 月に福岡市の環境基準点 16 地点の河川から採取した水を水質試料とした．採水地点は，本市の東部から順に浜田橋，名島橋，休也橋，塔の本橋，千鳥橋，金島橋，板付橋，住吉橋，旧今川橋，飛石橋，室見橋，興徳寺橋，壱岐橋，上鯰川橋，玄洋橋及び昭代橋とした．図 1 に概略地図を示す．



図 1　採水地点図
（河川名及び●で採水地点を示す）

2.2　標準品・試薬等

添加用農薬混合標準液：富士フイルム和光純薬製 13 種農薬混合標準液（ジクロルボス（DDVP），フェノブカルブ，シマジン，ダイアジノン，プロピザミド，クロロタロニル，イプロベンホス，フェニトロチオン，チオベンカルブ，イソプロチオラン，イソキサチオン，クロルニトロフェン（CNP）及び EPN，各 10 μg/mL アセトン溶液）を用いた．

ジクロロメタン：関東化学製残留農薬・PCB 試験用（5000 倍濃縮）を用いた．

内部標準溶液：林純薬工業製 NAGINATA

内部標準 Mix II （4-クロロトルエン-d_4，1，4-ジクロロベンゼン-d_4，ナフタレン-d_8，フェナントレン-d_{10}，アセナフテン-d_{10}，クリセン-d_{12} 及びペリレン-d_{12} が各 50 μg/mL 含まれる *n*-ヘキサン溶液）を用いた．

装置性能評価用標準液：林純薬工業製 AIQS/NAGINA-TA クライテリア MixⅢ 標準品（2,4-ジクロロアニリン，2,4-ジニトロアニリン，2,6-ジクロロフェノール，2,6-ジメチルアニリン，2,6-ジメチルフェノール，キャプタホール，クロルピリホス，クロルピリホスメチル，フェニトロチオン，イソキサチオン，シマジン，1-オクタノール，ベンゾチアゾール，フタル酸ジエチル，りん酸トリブチル，ペンタクロロフェノール，リン酸トリス（2-クロロエチル），DFTPP，フタル酸ベンジル，ノナン（C9），デカン（C10），ウンデカン（C11），ドデカン（C12），トリデカン（C13），テトラデカン（C14），ペンタデカン（C15），ヘキサデカン（C16），ヘプタデカン（C17），オクタデカン（C18），ノナデカン（C19），エイコサン（C20），ヘンエイコサン（C21），ドコサン（C22），トリコサン（C23），テトラコサン（C24），ペンタコサン（C25），ヘキサコサン（C26），ヘプタコサン（C27），オクタコサン（C28），ノナコサン（C29），トラコンタン（C30），ヘントリアコンタン（C31），ドトリアコンタン（C32），トリトリアコンタン（C33），4-クロロトルエン-d_4，1,4-ジクロロベンゼン-d_4，ナフタレン-d_8，フェナントレン-d_{10}，アセナフテン-d_{10}，クリセン-d_{12} 及びペリレン-d_{12} が各 1 μg/mL 含まれるジクロロメタン溶液を用いた．

アセトン：関東化学製残留農薬・PCB 試験用（5000 倍濃縮）を用いた．

n-ヘキサン：関東化学製残留農薬・PCB 試験用（5000 倍濃縮）を用いた．

塩化ナトリウム：富士フイルム和光純薬製残留農薬・PCB 試験用を 600℃，3 時間加熱したものを用いた．

無水硫酸ナトリウム：富士フイルム和光純薬製残留農薬・PCB 試験用を 600℃，3 時間加熱したものを用いた．

精製水：ADVANTEC 666HA で調製した超純水をジクロロメタンで洗浄したものを用いた．

2.3　装置・器具等

振とう器：宮本理研製シェーカーMW-DRV

分液ろ紙：ADVANTEC　2S

ガスクロマトグラフタンデム質量分析計：Agilent7000D

2.4　試験溶液の調製

水質試料 0.5 L を 1 L 分液ロートに分取し，pH が 6～8 であることを確認後，塩化ナトリウム 15 g を添加，溶解した後，ジクロロメタン 50 mL を加えて 10 分間振とう抽出を 2 回繰り返し，静置後，ジクロロメタン層を分液ろ紙に無水硫酸ナトリウムを重層して脱水し，3 mL 程度に減圧濃縮した．ガラス製試験管に移し，50 μg/mL 内標準液を 10 μL 添加し，窒素気流下で 0.5 mL に濃縮し，試験溶液とした．ジクロロメタン洗浄水を水質試料と同様に操作したものを空試験液とした．添加試料は，水質試料 0.5 L に 13 種農薬混合液の各農薬濃度が 1 μg/L となるように添加し，同様に操作した．

2.5　分析条件

GC-MS の測定条件を表 1 に示す.

表 1　GC-MS 条件

項目	測定条件
GC	Ailent7890B
MS	Agilent 7000D
カラム	DB-5ms（Agilent製）30 m×0.25 mm, 0.25 μm
温度	40℃(2 min)-8℃/min-310℃(5 min)
注入口	250℃
トランスファーライン	300℃
イオン源	200℃
注入方法	スプリットレス
注入量	1 μL
キャリアガス	He
イオン化	EI法
スキャン範囲	45 amu～600 amu
スキャン速度	0.3 s/スキャン

2.6　解析条件

2.5 GC-MS 条件で分析したデータを II 型 AIQS 及び NAGINATA の 2 つの方法で解析を行った．自動定性解析の結果，点数化された判定が 5 点以上となった化学物質を検出（以下，「自動検出」とする．）とした.

II 型 AIQS : AXEL for NAGINATA ver1.00 II型共同研究用 No.36

NAGINATA：NAGINATA2 GC-MS 相対定量・精度管理支援ソフトウエア ver.2.03.05

3　実験結果及び考察

3.1　空試験

II 型 AIQS での解析の結果，空試験液からフタル酸ジブチル及びフタル酸ジエチルヘキシルが相対定量値で 0.1 μg/L 程度検出された．同様に，NAGINATA による解析ではフタル酸ジエチルが同程度濃度で自動検出された．これらのフタル酸エステル類については，試験室由来と考えられたが，試験の際には必ず空試験を実施することで試料由来かどうかを判断出来るため，特に問題はないと考えられた.

3.2　添加回収試験

13 種農薬混合液の各濃度が 1 μg/L となるように添加した試料をジクロロメタンで液液抽出して得られた試験溶液を GC-MS で分析し，そのデータ解析を II 型 AIQS 及び NAGINATA による方法で行った．結果を表 2 に示す．その結果，II 型 AIQS では添加した 13 種の農薬のうち，フェノブカルブ，シマジン，ダイアジノン，プロピザミド，クロロタロニル，イプロベンホス，フェニトロチオン，チオベンカルブ及びイソプロチオランの 9 種類が 2 併行試験のいずれの試料からも自動検出された．イソキサチオン, クロルニトロフェン及び EPN の 3 種類は 2 併行試験のうち 1 つで自動検出され, ジクロルボスは 2 併行試験でいずれも自動検出されなかった.

一方，NAGINATA による解析では，フェノブカルブ，シマジン，ダイアジノン，プロピザミド，クロロタロニル，チオベンカルブ，イソプロチオラン，EPN 及びジクロルボスの 9 種類が 2 併行試験のうちいずれも自動検出され，イプロベンホスが 2 併行試験のうち 1 つで自動検出され，フェニトロチオン，イソキサチオン及びクロルニトロフェンの 3 種類が 2 併行試験のいずれも検出されなかった.

表 2　添加試料の II 型 AIQS 及び NAGINATA による自動同定・定量結果

	AIQS		NAGINATA	
	No.1	No.2	No.1	No.2
フェノブカルブ	0.81	0.83	0.81	0.82
シマジン	0.98	1.0	1.0	1.1
プロピロザミド	0.83	0.78	0.83	0.78
ダイアジノン	1.0	1.2	1.1	1.2
クロロタロニル（TPN）	1.2	1.1	1.2	1.1
イプロベンホス	0.82	0.83	0.82	-
フェニトロチオン	0.95	0.90	-	-
チオベンカルブ	0.67	0.66	0.68	0.66
イソプロチオラン	0.43	0.43	0.43	0.42
イソキサチオン	0.54	-	-	-
クロルニトロフェン（CNP）	0.86	-	-	-
EPN	-	0.79	0.91	0.77
ジクロルボス	-	-	1.1	1.2

単位：μg/L，-：自動検出せず

II 型 AIQS 及び NAGINATA で自動検出された農薬の相対定量値は添加濃度の概ね 70～120%の範囲内であり，II 型 AIQS 及び NAGINATA による定量値の差は認められなかった．当所における標準品を用いない定量分析について，少なくとも今回添加した農薬に関しての定量性は問題ないものと考えられた.

今回，NAGINATA で自動検出されなかった農薬のうちイソキサチオン，フェニトロチオン及びクロルニトロフェンの 3 種類は，ピーク及びマススペクトルは認められており，手動による検出確認は可能であった．また，対照との差分解析によりピークを検出し, NIST のライブラリ検索する方法でも同定は可能であった．農薬の添加濃度が 1 μg/L と低濃度であったことから自動検出できなかった可能性が考えられたが，緊急時に分析対象とする化合物の濃度範囲は今回の添加濃度より十分に高濃度であると想定されることから，自動検出に加えて手動での検出で対応可能と考えられた．また，対照との差分を取ることで検査精度が高められるため，対照データの重要

性が示唆された．事故発生等の緊急時には事故現場より上流部の対照を採取することは困難なケースも考えられることから，平常時のデータ収集は重要である．

表 3　市内環境基準点 16 地点における河川水の II 型 AIQS による自動同定・半定量結果

		1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16
検出された物質	用途	浜田橋	名島橋	休也橋	塔の本橋	千鳥橋	金島橋	板付橋	住吉橋	旧今川橋	飛石橋	室見橋	興徳寺橋	壱岐橋	上鮫川橋	玄洋橋	昭代橋
フタル酸ジブチル（DBP）	可塑剤	0.14	0.10	0.12	0.12	0.21	0.13	0.19	0.10	0.10	0.24	0.09	0.14	0.13	0.24	0.11	0.15
フタル酸ジエチルヘキシル	可塑剤	0.32	0.21	0.42	0.41	0.43	0.50	0.48	0.29	0.30	0.81	0.35	0.46	0.43	0.48	0.63	0.24
フタル酸ジシクロヘキシル	可塑剤	0.11	-	0.15	0.15	0.15	0.18	0.17	0.10	0.11	-	0.13	0.17	0.16	-	0.24	0.08
フタル酸ジイソブチル	可塑剤	-	-	-	-	-	-	0.07	-	-	-	0.08	-	-	-	-	-
フタル酸ジエチル	可塑剤	-	0.06	0.06	-	0.06	-	-	0.05	0.06	0.05	0.06	-	-	-	-	0.04
ジブチルヒドロキシトルエン（BHT）	酸化防止剤	-	-	0.03	0.22	-	-	0.44	-	-	-	-	-	0.21	-	0.04	0.43
3,5-ジ-*tert*-ブチル-4-ヒドロキシベンズアルデヒド	香料	-	-	0.03	0.14	0.08	0.07	0.20	0.03	-	0.06	-	0.19	0.16	0.04	0.04	0.11
ベンゾチアゾール	香料	0.09	0.09	0.11	0.09	0.12	0.09	0.04	0.09	0.08	0.07	0.07	0.12	0.09	0.09	-	0.10
4-ノニルフェノール	界面活性剤	-	-	0.26	-	1.0	-	-	-	0.48	0.65	-	-	-	0.49	-	-
TCPP Tris(1-chloro-2-propyl)phosphate1	難燃剤	-	-	-	-	0.46	0.71	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
TCPP Tris(1-chloro-2-propyl)phosphate2	難燃剤	-	-	-	-	0.33	0.46	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
1-ナフチルアミン	アゾ染料	-	-	-	-	0.25	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
オクタデカン	アルカン	0.06	-	-	-	-	0.06	-	-	-	-	-	0.06	0.07	0.08	0.08	-
フェノール	消毒剤	-	-	-	-	0.03	0.05	0.04	0.04	0.04	0.03	-	0.04	0.03	0.04	-	0.05
2-*tert*-ブチル-4-メトキシフェノール	酸化防止剤	0.12	0.09	-	0.15	0.11	0.35	0.29	0.07	-	-	0.11	0.18	0.21	0.12	0.13	0.16
ヘプタデカン	アルカン	-	-	0.12	-	-	-	-	-	-	-	0.03	-	0.06	-	-	-
ノナデカン	アルカン	-	-	0.04	-	-	0.04	-	0.02	-	-	0.03	-	-	0.04	-	-
エイコサン	アルカン	-	-	0.03	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0.05	-	0.06	-
ヘンエイコサン	アルカン	-	-	-	-	-	-	-	-	0.05	-	0.05	0.06	0.10	0.10	0.08	-
トリコサン	アルカン	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0.07	0.06	0.06	0.07	-
テトラコサン	アルカン	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0.03	-	-	-
ジメタメトリン	除草剤	-	-	-	1.7	-	1.7	-	-	-	1.7	1.7	1.7	1.7	-	1.7	1.7
アニリン	染料	0.04	0.05	-	0.03	0.04	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
3-*tert*-ブチルフェノール＆4-*tert*-ブチルフェノール	合成樹脂変性剤	0.03	0.02	-	-	-	-	-	0.03	-	-	-	-	-	-	-	-
リン酸トリブチル	可塑剤	-	0.04	0.08	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
リン酸トリエチル	可塑剤	-	-	-	-	-	0.05	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
リン酸トリス（2-ブトキシエチル）	可塑剤	-	-	-	-	-	0.24	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
リン酸トリス（2-クロロエチル）	難燃剤	-	-	-	-	0.27	0.34	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
メタンスルホン酸エチル	変異原	-	-	0.49	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
L-メントール	香料,医薬品	-	-	-	-	-	-	-	-	0.05	-	-	0.05	-	0.04	-	-
2,6-ジ-*tert*-ブチル-1,4-ベンゾキノン	重合抑制剤	-	-	-	-	0.09	-	0.14	-	0.04	-	-	-	-	-	-	-
m-ｐ-クレゾール	原料,消毒剤	-	-	-	-		0.05	-	-	-	-	-	0.03	-	-	-	-
1-ノナノール	香料	-	0.08	-	-		0.08	-	-	-	-	-	0.02	-	-	0.05	-
キノリン	原料	-	-	-	-	0.03	0.05	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
ジエチルトルアミド	昆虫忌避剤	-	0.02	-	0.03	0.04	0.05	0.04	-	-	-	-	-	-	-	-	0.03
クロタミトン	かゆみ止め	-	0.33	-	0.10	0.58	0.92	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0.19
ガラクソリド	香料	-	-	-	-	0.20	0.52	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
トナリド	香料	-	-	-	-	-	0.04	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
カルバマゼピン	抗てんかん薬	-	-	-	-	-	0.14	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
シュードイヨノン（シュウドヨノン）	香料	-	-	-	-	-	0.18	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
ベンタゾン	除草剤	-	-	-	-	-	0.07	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
ベンジルアルコール	香料	-	-	-	-	-	-	0.03	0.05	-	-	0.03	-	-	0.04	-	-
トリクロルホン	殺虫剤	-	-	-	-	-	-	-	0.03	-	-	-	-	-	-	-	-
2-フェノキシエタノール	溶媒	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0.11
2-ヒドロキシベンゾチアゾール	加硫促進剤	-	-	-	0.06	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
カフェイン	医薬品	-	-	-	0.13	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
ヒドロキノン	写真の現像薬	0.36	-	-	-	-	-	-	-	-	0.22	-	-	-	-	-	-
β-シトステロール	ステロール類	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0.36	-	-	-	-	-	-
チモール	医薬品	0.03	0.03	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
コレステロール	コレステロール	-	0.25	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-

単位：μg/L，-：半定量による定量値0.01μg/L未満

3.3　河川水の分析結果

市内環境基準点16地点における河川水を2.4の方法で前処理を行い GC-MS による分析を行った．そのデータ解析をII型AIQS及びNAGINATAによる方法で行った．AIQSによる結果を表3に，NAGINATAによる結果を表4 に示す．自動検出された化学物質は，大別して，フタル酸ジブチル等の可塑剤，香料，医薬品，農薬類，酸化防止剤，フェノール類であった．II 型 AIQS 及び NAGINATA で自動検出された化学物質は，フタル酸エステル類はほぼ同様の傾向を示したが，一部の医薬品類はII型AIQSの方が多い傾向を示した．他都市ではカフェインの検出事例が多い[2～6]が，今回の調査では1地点のみでの検出であった．II 型 AIQS 及び NAGINATA で共通して自動検出された化合物は可塑剤のフタル酸エステル類，医薬品クロタミトン，香料ベンゾチアゾール，界面活性剤4-ノニルフェノールであった．他都市の報告[2～6]とも同様の傾向であった．検出された香料，医薬品類は，PPCPs（Pharmaceuticals and Personal Care Products）と推察された．同一河川を対象として LC-MS/MS 法で過去に実施したPPCPsの調査では医薬品類が多く検出された[7, 8]が．今回は GC-MS 法で分析を行ったことから，分析法の差により揮発性の高い化学物質である香料が多く検出されたものと考えられた．3.2の添加回収試験結果では，自動検出された農薬の種類は異なったが検出された農薬の数に差はあまりなかった．しかし，河川水による分析ではII型AIQSとNAGINATAでの定性結果の比較では，II 型 AIQS の方が自動検出された化学物質について多い傾向を示した．実際の運用では，微量の化学物質の自動検出状況を考慮すると II 型 AIQS 及び NAGINATA を併用することが現実的であると考えられた．

表4　市内環境基準点16地点における河川水のNAGINATAによる自動同定・半定量結果

		1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16
検出された物質	用途	浜田橋	名島橋	休也橋	塔の本橋	千鳥橋	金島橋	板付橋	住吉橋	旧今川橋	飛石橋	室見橋	興徳寺橋	壱岐橋	上総川橋	玄洋橋	昭代橋
フタル酸ジブチル	可塑剤	0.14	0.10	0.11	0.12	0.21	0.12	0.19	0.11	0.10	0.25	0.10	0.14	0.13	0.24	-	0.15
フタル酸ジエチルヘキシル	可塑剤	0.32	0.27	0.41	0.40	0.42	0.50	0.50	0.31	0.34	0.80	0.36	0.46	0.45	0.49	0.63	-
フタル酸ジシクロヘキシル	可塑剤	0.11	0.09	0.15	0.14	0.14	-	0.16	0.10	0.11	-	0.13	-	0.16	0.17	0.23	-
フタル酸ジイソブチル	可塑剤	-	-	-	-	-	-	0.06	-	-	-	0.08	-	-	-	-	-
フタル酸ジエチル	可塑剤	-	-	-	-	0.07	-	-	-	-	-	0.06	-	-	-	-	-
フタル酸ジメチル	可塑剤	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0.07
ジブチルヒドロキシトルエン（BHT）	酸化防止剤	-	-	-	0.23	-	-	0.46	-	-	-	-	-	0.24	-	-	-
3,5-ジブチル-4-ヒドロキシベンズアルデヒド	香料	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0.18	0.17	-	-	-
3,5-ジ-*tert*-ブチル-4-ヒドロキシベンズアルデヒド	不明	-	-	-	0.15	-	-	0.22	-	-	-	-	-	-	-	-	-
ベンゾチアゾール	香料	-	-	0.11	-	0.11	0.09	-	-	0.09	-	-	0.12	-	0.10	-	0.10
4-ノニルフェノール	界面活性剤	-	-	-	-	1.0	-	-	-	0.51	0.61	-	-	-	-	-	-
クロタミトン	かゆみ止め	-	0.31	-	-	0.55	0.86	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
TCPP Tris(1-chloro-2-propyl)phosphate1	難燃剤	-	-	-	-	0.44	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
1-ナフチルアミン	アゾ染料	-	-	-	-	0.25	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-

単位：μg/L, -:**半定量による定量値**0.01μg/L**未満**

4　まとめ

当所の分析条件での化学物質の網羅的なスクリーニング分析法の精度確認を目的として，農薬混合標準液の添加回収試験を行った．その結果，2 種類のシステムデータベースの解析を組み合わせることで添加した全ての農薬の自動同定が可能であり，半定量値は，概ね化学物質環境実態調査実施の手引き[9]における添加回収試験が省略可能となる許容範囲内（70～120%）であった．次に，市内の16地点の河川水による実態調査を行った結果，可塑剤，香料，医薬品，農薬類等の化学物質が自動検出された．

文献

1)環境省水・大気環境局水環境課：AIQS-GC によるスクリーニング分析法暫定マニュアル，令和 5 年（2023 年）3 月 https://www.env.go.jp/content/000123882.pdf（令和 6 年 8 月 21 日閲覧）

2)板倉直哉，他：網羅的分析を用いたさいたま市内河川水化学物質調査，さいたま市年報，131～134，2022

3)板倉直哉，他：網羅的分析を用いたさいたま市内河川

水化学物質調査，さいたま市年報，127～129，2023
4)川口豊太，他：GC/MS 自動同定定量システム（AIQS）による県内河川水中の化学物質のスクリーニング分析，愛知県環境調査センター所報，50，7～15，2022
5)中村慈実：自動同定定量システム AIQS を用いた横浜市内河川のスクリーニング分析結果について，横浜市環境科学研究所報，48，8～18，2024
6)加藤みか，他：都市内河川における半揮発性有機化合物の AIQS-GC-MS による調査研究，東京都環境科学研究所年報 2023，61～62，2024
7)宇野映介，他：福岡市における水環境中の PPCPs の存在実態と季節変動および生態リスク初期評価，福岡市保健環境研究所報，39，51～57，2014
8)宇野映介，他：福岡市における水環境中の PPCPs の存在実態と季節変動および生態リスク初期評価（Ⅱ），福岡市保健環境研究所報，40，61～66，2015
9)環境省大臣官房環境保健部環境安全課：化学物質環境実態調査実施の手引き（令和 2 年度版），令和 3 年（2021 年）3 月

環境 DNA 技術を用いた魚類モニタリング調査手法の検討

有本圭佑・中山恵利・大平良一

福岡市保健環境研究所環境科学課

Study on Fish Monitoring Investigation Methods using the Environmental DNA Technology

Keisuke ARIMOTO , Eri NAKAYAMA and Ryoichi OHIRA

Environmental Science Section, Fukuoka City Institute of Health and Environment

要約

福岡市では，博多湾環境保全計画を推進するための現状把握・施策評価の一環として，能古島及び志賀島のアマモ場において，地引網を用いた捕獲による魚類のモニタリング調査を行っている．今回，捕獲調査と環境 DNA メタバーコーディング法による調査を同時に行い，捕獲調査で確認された魚種と環境 DNA 調査で検出された魚種の比較を行った．

反復採水とプーリング採水による環境 DNA 調査をそれぞれ行い，結果の比較を行ったところ反復採水で検出種数は大幅に増加し，これまで捕獲調査でのみ確認された種が新たに検出されたことから，反復採水による環境 DNA 調査が，能古島及び志賀島のアマモ場を含む周辺海域の魚類相を明らかにするのに有効であると考えられた．

Key Words：環境 DNA　environmental DNA，メタバーコーディング法　metabarcoding method，魚類モニタリング調査　fish monitoring investigation

1　はじめに

福岡市では，博多湾環境保全計画を推進するための現状把握・施策評価の一環として，能古島及び志賀島のアマモ場において，地引網を用いた捕獲による魚類のモニタリング調査を行っている．

近年，魚類のモニタリング方法として，環境中を漂う細胞片等に由来する「環境 DNA」を用いた調査手法が注目を集めている[1)]．環境 DNA を用いた調査は，捕獲調査に比べて現地での作業が採水のみと簡便で，多地点や調査が困難な場所での調査を可能とし[2)]，また調査対象となる魚類を捕獲しないため生物や生態系への影響がほとんどないといった特徴がある[3)]．

国内では平成 30 年 4 月に一般社団法人環境 DNA 学会が設立され，環境 DNA 調査・実験マニュアル[4)]（以下，「マニュアル」とする．）が公開されている．

環境省でも種の分布情報の取得にあたり絶滅危惧種をはじめとした種の全国的な分布情報の把握や希少種の保全，外来種対策等の生物多様性保全施策への活用，環境アセスメントにおける生物調査の迅速化及び効率化を目的に，調査手法が捕獲等に限られていた淡水魚類や両生類について，環境 DNA 分析技術の標準化や一般への普及及びデータの効果的･効率的な共有が進められており，令和 6 年 5 月には淡水魚類に加えて両生類も含めた「環境 DNA 分析技術を用いた調査手法の手引き（淡水魚類・両生類）」第 1 版（以下，「手引き」とする．）を公表している．[3)]

本研究では，環境 DNA を用いた調査のうち，魚類の DNA を網羅的に検出するメタバーコーディング法に着目し，本市の魚類モニタリング調査（捕獲調査）と同時に環境 DNA メタバーコーディング法による調査（以下，「環境 DNA 調査」とする．）を行い，両者で確認・検出された魚種の比較をすることにより，環境 DNA 技術を用いた調査手法の検討を行った．

2　方法

2.1　調査地点及び調査時期

博多湾に位置する能古島及び志賀島のアマモ場（図 1）において，魚類の捕獲調査及び環境 DNA 調査を同時に行った．調査は令和 3 年度には 4 回，令和 4 年度及び 5

年度は各 3 回の頻度で大潮の干潮時に行った．



図 1　調査地点

2.2　令和 3 年度調査

2.2.1　調査日

環境 DNA 調査は，能古島で令和 3 年 4 月 28 日，7 月 21 日，10 月 20 日及び令和 4 年 1 月 18 日に，志賀島で令和 3 年 4 月 26 日，7 月 22 日，10 月 21 日及び令和 4 年 1 月 17 日に実施した．

捕獲調査は能古島で令和 3 年 4 月 26 日，7 月 21 日，10 月 19 日及び令和 4 年 1 月 17 日に，志賀島で令和 3 年 4 月 26 日，7 月 22 日，10 月 19 日及び令和 4 年 1 月 17 日に実施した．

2.2.2　調査方法

1) 捕獲調査

アマモ場を中心に地引網（長さ 10 m，高さ 1.5 m，目合 1 mm）を用い，約 30 m の距離を 2 回引網して魚類を捕獲した．

2) 環境 DNA 調査

(1) 採水

捕獲調査を行ったアマモ場周辺の 5 か所にて，表層水及び底層水を 1 L ずつ採水・混合した後，5 か所分を全量混合（以下，「プーリング採水」とする．）し Sterivex（孔径 0.45 μm，Merck）を用いて，1000 mL まで現地でろ過を行った．ろ過後は Sterivex 内の水分を除去し，RNAlater™ Solution（Thermo Fisher Scientific）を 2 mL 添加したものを試料とした．

(2) 分析

DNA 分析は採水した試料を外部検査機関に送付し，メタバーコーディング法による分析を依頼した．

プライマーはマニュアルに記載のプライマーMiFish-E，MiFish-U の 2/種を 1 : 1 の比率で混合したものを使用した．

分析結果から得られた魚種のリストのうち塩基配列のリード数が 100 未満のもの及び塩基配列の一致率が 97% 以下のものは除外した．種名の精査は過去の捕獲調査及び文献調査の結果を参考に行った．

なお，本研究で使用した 12S rRNA 遺伝子領域では種の識別が困難であった分類群については属名又は複合種群とした．

2.3　令和 4 年度及び令和 5 年度調査

2.3.1　調査日

令和 4 年度の環境 DNA 調査は，能古島で令和 4 年 7 月 27 日，10 月 12 日及び令和 5 年 1 月 22 日に，志賀島で令和 4 年 7 月 28 日，10 月 11 日及び令和 5 年 1 月 23 日に実施した．

捕獲調査は能古島で令和 4 年 7 月 18 日，10 月 12 日及び令和 5 年 1 月 23 日に，志賀島で令和 4 年 7 月 17 日，10 月 11 日及び令和 5 年 1 月 22 日に実施した．

令和 5 年度の環境 DNA 調査は，能古島で令和 5 年 7 月 4 日，10 月 28 日及び令和 6 年 1 月 25 日に，志賀島で令和 5 年 7 月 3 日，10 月 27 日及び令和 6 年 1 月 27 日に実施した．

捕獲調査は能古島で令和 5 年 7 月 4 日，10 月 26 日及び令和 6 年 1 月 25 日に，志賀島で令和 5 年 7 月 3 日，10 月 27 日及び令和 6 年 1 月 27 日に実施した．

2.3.2　調査方法

1) 捕獲調査

2.2.2　1) と同様の方法で行った．

2) 環境 DNA 調査

(1) 採水

捕獲調査を行ったアマモ場周辺にて，それぞれ 5 か所から表層水及び底層水を 1 L ずつ採水し，1 カ所毎に混合（以下，「反復採水」とする．）し Sterivex（孔径 0.45 μm，Merck）を用いて，現地でろ過を行った．ろ過後は Sterivex 内の水分を除去し，RNAlater™ Solution（Thermo Fisher Scientific）を 2 mL 添加したものを試料とした．

また，プーリング採水による試料の作成も併せて行った．

(2) 分析

DNA 分析はマニュアルに基づき，メタバーコーディング法により行った．

Sterivex からの DNA 抽出・精製はマニュアルに従い行った．試料より DNA を抽出・精製した後，マニュアルに記載のプライマーMiFish-E，MiFish-U，MiFish-U2 の 3 種を 1 : 2 : 1 の比率で混合したものを用いて，1st PCR を実施した．1st PCR 産物を精製・濃縮し，2nd PCR に用いた．調整したライブラリーは iSeq100（illumina）を用いて，塩基配列情報を取得した．

取得した塩基配列情報について，PMiFish pipeline v2.4.1 を用いた解析を実施し，魚種の判定を行った．得られた魚種のリストのうち塩基配列のリード数が 3 以下

のもの及び塩基配列の一致率が 98.5%未満のものは除外した．種名の精査は過去の捕獲調査，文献調査の結果及び MiFish 法に係る誤同定チェックシート[5]を用いて行った．

なお，本研究で解析の対象としている 12S rRNA 遺伝子領域では種の識別が困難であった分類群については属名又は複合種群とした．

3　研究結果及び考察

3.1　令和 3 年度調査

表 1 に令和 3 年度の捕獲調査と環境 DNA 調査の両調査で確認（検出）された種数を，表 2，3 に能古島及び志賀島の調査結果を示す．能古島では，捕獲調査で 23 種，環境 DNA 調査で 36 種，志賀島では，捕獲調査で 34 種，環境 DNA 調査で 34 種が確認（検出）された[6]．

能古島では，捕獲調査に比べ環境 DNA 調査で確認（検出）された種数は同数以上であり，確認（検出）された種の一部は一致した．

志賀島では，10 月及び 1 月は捕獲調査に比べ環境 DNA 調査で確認（検出）された種数は同数以上であったが，4 月及び 7 月では捕獲調査で確認された種の方が多かった．

能古島及び志賀島ともに捕獲調査と環境 DNA 調査で確認（検出）される種を比較したところ完全には一致しなかった．

次に，表 4 に令和 3 年度 7 月の捕獲調査で捕獲された魚種の総湿重量と環境 DNA 調査で検出された魚種の関係を示す．総湿重量が全体の 0.1%以上を占める種に着目すると，相対的に総湿重量が多い種は環境 DNA 調査でも検出される傾向にあり，一方で総湿重量が少なかった種は環境 DNA 調査では検出されにくい傾向がみられた．

これらのことから，プーリング採水による環境 DNA 調査では総湿重量が大きな種は検出されるが，総湿重量が小さく，放出される DNA 量が少ない種は検出されにくいことが示唆された．

表 1　令和 3 年度の両調査の確認（検出）種数

種（属）数

調査月	能古島			志賀島		
	捕獲調査	DNA調査		捕獲調査	DNA調査	
		反復	プーリング		反復	プーリング
4月	10	-	10	8	-	6
7月	9	-	19	24	-	18
10月	10	-	24	8	-	22
1月	4	-	6	5	-	5
計※1	23	-	36	34	-	34

※1（同一種の重複はカウントしない）

表 2　令和 3 年度調査結果（能古島）

科	属	種名	R3.4		R3.7		R3.10		R4.1		種数	
			捕獲	DNA	捕獲	DNA	捕獲	DNA	捕獲	DNA	捕獲	DNA
カレイ科	マガレイ属	マガレイ属		●		●				●		●
アイゴ科	アイゴ属	アイゴ			○			●			○	●
アイナメ科	アイナメ属	クジメ	○			●					○	●
イソギンポ科	ナベカ属	イダテンギンポ						●				●
		ナベカ				●				●		●
	イソギンポ属	イソギンポ				●						●
ウミタナゴ科	ウミタナゴ属	アオタナゴ	○								○	●
		ウミタナゴ属		●		●		●				
カジカ科	アナハゼ属	アナハゼ	○								○	
キス科	キス属	シロギス					○	●			○	●
スズキ科	スズキ属	スズキ	○		○			●		●	○	●
		ヒラスズキ		●								●
タイ科	クロダイ属	キチヌ						●				●
		クロダイ				●		●				●
	ヘダイ属	ヘダイ				●		●				●
タウエガジ科	ダイナンギンポ属	ダイナンギンポ						●				●
	タウエガジ属	タウエガジ			○						○	
	ムスジガジ属	ムスジガジ								●		●
ニシキギンポ科	ニシキギンポ属	ギンポ	○	●							○	●
ネズッポ科	ネズッポ属	ネズミゴチ/ヌメリゴチ				●		●				●
ハゼ科	ウキゴリ属	ニクハゼ	○		○						○	
	キララハゼ属	スジハゼ				●			○		○	●
		ツマグロスジハゼ					○				○	●
		モヨウハゼ/ツマグロスジハゼ						●				
	シロウオ属	シロウオ					○				○	
	チチブ属	アカオビシマハゼ				●	○	●			○	●
	ヒメハゼ属	ヒメハゼ	○	●			○	●	○		○	●
ヒイラギ科	ヒイラギ属	ヒイラギ				●	○	●		●	○	●
メジナ科	メジナ属	メジナ			○	●		●			○	●
メバル科	メバル属	タケノコメバル						●				●
		メバル属	○	●							○	●
サヨリ科	サヨリ属	サヨリ		●								●
トウゴロウイワシ科	ギンイソイワシ属	トウゴロウイワシ				●		●				●
ヨウジウオ科	オクヨウジ属	オクヨウジ					○				○	
	タツノオトシゴ属	ヒメタツ					○				○	
	ヨウジウオ属	ヨウジウオ	○		○		○		○		○	
アカエイ科	アカエイ属	アカエイ				●		●				●
ツバクロエイ科	ツバクロエイ属	ツバクロエイ				●						●
ゴンズイ科	ゴンズイ属	ゴンズイ				●		●				●
カタクチイワシ科	カタクチイワシ属	カタクチイワシ		●				●				●
ニシン科	サッパ属	サッパ/カタボシイワシ						●				●
カワハギ科	アミメハギ属	アミメハギ			○	●	○	●			○	●
フグ科	トラフグ属	クサフグ	○		○				○	●	○	●
		コモンフグ			○						○	
		トラフグ属		●		●		●				●
ボラ科	ボラ属	ボラ		●		●		●				●
計			10	10	9	19	10	24	4	6	23	36

○捕獲調査，●環境DNA調査

表 3　令和 3 年度調査結果（志賀島）

科	属	種名	R3.4		R3.7		R3.10		R4.1		種数	
			捕獲	DNA	捕獲	DNA	捕獲	DNA	捕獲	DNA	捕獲	DNA
ウシノシタ科	タイワンシタビラメ属	クロウシノシタ	○					●			○	●
カレイ科	マガレイ属	マガレイ属				●						●
ヒラメ科	ヒラメ属	ヒラメ				●						●
キュウリウオ科	アユ属	アユ							○		○	
アイゴ科	アイゴ属	アイゴ			○			●			○	●
アイナメ科	アイナメ属	クジメ	○		○	●					○	●
イソギンポ科	ハタタテギンポ属	ニジギンポ			○						○	
	ナベカ属	イダテンギンポ				●		●				●
		ナベカ				●		●				●
	イソギンポ属	イソギンポ				●		●	○		○	●
ウミタナゴ科	ウミタナゴ属	ウミタナゴ			○						○	●
		ウミタナゴ属				●						
カジカ科	アナハゼ属	アナハゼ			○						○	
キス科	キス属	シロギス			○	●	○	●			○	●
サバ科	サワラ属	サワラ						●				●
タイ科	クロダイ属	クロダイ		●		●		●				●
	マダイ属	マダイ			○						○	
タウエガジ科	カズナギ属	カズナギ	○								○	
タカノハダイ科	タカノハダイ属	タカノハダイ	○								○	
ニシキギンポ科	ニシキギンポ属	ギンポ	○								○	
ネズッポ科	ネズッポ属	ハナビヌメリ								●		●
		セトヌメリ/トビヌメリ								●		●
		ネズミゴチ/ヌメリゴチ		●	○		○		○		○	●
ハゼ科	キララハゼ属	スジハゼ			○		○	●			○	●
	クツワハゼ属	クツワハゼ						●				●
	シロウオ属	シロウオ							○		○	
	セジロハゼ属	セジロハゼ				●						●
	チチブ属	アカオビシマハゼ						●				●
		シモフリシマハゼ	○								○	
	ヒメハゼ属	ヒメハゼ					○		○		○	
ヒイラギ科	ヒイラギ属	ヒイラギ			○	●					○	●
ヒメジ科	ヒメジ属	ヨメヒメジ			○						○	
フエフキダイ科	フエフキダイ属	イトフエフキ					○	●			○	●
ベラ科	キュウセン属	キュウセン	○		○		○	●			○	●
	ホンベラ属	ホンベラ			○	●					○	●
メジナ科	メジナ属	メジナ				●		●		●		●
メバル科	メバル属	カサゴ			○						○	
		メバル属			○						○	
ダツ科	ダツ属	ダツ				●						●
トウゴロウイワシ科	ギンイソイワシ属	トウゴロウイワシ				●		●				●
ヨウジウオ科	タツノオトシゴ属	タツノオトシゴ属			○						○	
	ヨウジウオ属	ヨウジウオ			○						○	
アカエイ科	アカエイ属	アカエイ				●						●
ゴンズイ科	ゴンズイ属	ゴンズイ			○	●		●			○	●
カタクチイワシ科	カタクチイワシ属	カタクチイワシ		●				●				●
ニシン科	コノシロ属	コノシロ		●				●				●
	サッパ属	サッパ/カタボシイワシ						●				●
カワハギ科	アミメハギ属	アミメハギ			○		○				○	
	カワハギ属	カワハギ			○						○	
フグ科	トラフグ属	クサフグ	○		○		○			●	○	●
		コモンフグ			○						○	●
		トラフグ属		●	○	●		●			○	
ボラ科	ボラ属	ボラ		●				●		●		●
ドチザメ科	ドチザメ属	ドチザメ			○						○	
計			8	6	24	18	8	21	5	5	34	34

○捕獲調査，●環境DNA調査

表 4　捕獲魚種の総湿重量と環境 DNA 調査結果（令和 3 年 7 月）

能古島

種名	総湿重量(g)	割合※1	DNA検出
メジナ	85	23%	○
スジハゼ	82	23%	○
クジメ	71	19%	○
ヒメハゼ	27	7%	○
ウミタナゴ属	24	6%	○
アミメハギ	22	6%	○
トラフグ属	19	5%	○
ヒメジ	14	4%	
ヨウジウオ	11	3%	
カワハギ	5.5	2%	
タツノオトシゴ属	2.5	1%	
ゴンズイ	1.0	0.3%	○
ニクハゼ	0.2	0.1%	
計	364	100%	

志賀島

種名	総湿重量(g)	割合※1	DNA検出
トラフグ属	2034	41%	○
アイゴ	1975	40%	○
ウミタナゴ属	341	7%	○
クジメ	201	4%	○
アナハゼ※2	161	3%	
キュウセン	62	1%	
ゴンズイ	46	0.9%	
ヒイラギ	30	0.6%	
カワハギ	30	0.6%	
ヨウジウオ	12	0.2%	
スズキ	8.9	0.2%	
スジハゼ	3.1	0.1%	
計	4904	100%	

※1 各調査月の総湿重量の合計に占める各魚種の総湿重量の割合（0.1%未満の魚種は未記載）

※2 アナハゼはプライマーに不適合のため未検出

3.2　令和 4 年度及び令和 5 年度調査

表 5，6 に令和 4 年，5 年度の捕獲調査と環境 DNA 調査の両調査で確認（検出）された種数を示す．環境 DNA 調査では捕獲調査よりも多くの種を確認（検出）することができた．また，反復採水はプーリング採水による環境 DNA 調査よりも多くの種を確認（検出）することができた．

次に，表 7～10 に令和 4 年，5 年度の能古島及び志賀島の調査結果を示す．令和 4 年度の能古島では，捕獲調査で 28 種，環境 DNA 調査で 65 種，志賀島では，捕獲調査で 23 種，環境 DNA 調査で 84 種が確認（検出）された．また，令和 5 年度の能古島では，捕獲調査で 18 種，環境 DNA 調査で 56 種，志賀島では，捕獲調査で 20 種，環境 DNA 調査で 87 種が確認（検出）された．

令和 4 年度以降は反復採水による環境 DNA 調査を実施したことで，プーリング採水を行っていた令和 3 年度に比べて多くの種を検出でき，これまで捕獲調査でのみ検出された種も新たに検出することができた．

手引きによると，プーリング採水による環境 DNA 調査では，調査地点の全域に広く生息する主要な種は検出できるが，生息密度が低く，環境 DNA の存在量が少ないと考えられる種は，プーリング採水による環境 DNA 調査では検出できず，生息しているのに検出できない「偽陰性」が生じやすく，十分な注意が必要であると言われている．これは，令和 3 年度の捕獲調査で捕獲された種の総湿重量と環境 DNA 調査で検出された種の関係からもプーリング採水では総湿重量の割合が低い種の検出率が低く，能古島よりも志賀島のほうが生息しているが検出されなかった種の割合が多かったものと考えられる．

一方で手引きでは偽陰性に対する対応策として反復採水による環境 DNA 調査が挙げられており，生息密度が低いと考えられる種の検出を試みる際，採水時に種の DNA がサンプルに入る確率が低くなるため，採水反復数を 2 回以上に増やすことが推奨されている．令和 4 年度以降の反復採水による環境 DNA 調査の結果では，令和 3 年度の環境 DNA 調査と比べて多くの種を検出しており，生息密度の低い種を多くとらえることができるようになったと考えられる．

表 11 に令和 5 年 7 月の志賀島で実施した反復採水とプーリング採水の結果の比較を示す．反復採水で検出した種を得られたリード数が多い順に並べると，プーリング採水ではリード数が多い上位 22 種のうち 21 種を検出しており，一方でリード数が少ない下位 21 種のうち 4 種しか検出できていなかった．よって，反復採水とプーリン

グ採水を比較すると，プーリング採水では反復採水で検出される種のうち，生息密度の低い種を見逃している可能性が考えられた.

各採水方法の結果から，プーリング採水による環境 DNA 調査は, アマモ場の採水地点周辺の生息密度の高い種を主に検出でき，調査地点の主な生息種を把握するのには有効であるが，生息密度の低い種の偽陰性が起きるため, 魚類相の検出としては不十分であると考えられた. 一方で，反復採水による環境 DNA 調査は，アマモ場の採水地点周辺の種を網羅的に検出でき，生息密度の低い種を検出する確率が高いと考えられたが，開放的な水域のため移流してきた低濃度の DNA を検出してしまう可能性も考えられた.

表 5　令和 4 年度の両調査の確認（検出）種数

種（属）数

調査月	能古島			志賀島		
	捕獲調査	DNA調査		捕獲調査	DNA調査	
		反復	プーリング		反復	プーリング
7月	20	36	18	19	51	28
10月	15	46	32	7	53	29
1月	3	35	13	3	40	15
計※1	28	65		23	84	

※1（同一種の重複はカウントしない）

表 6　令和 5 年度の両調査の確認（検出）種数

種（属）数

調査月	能古島			志賀島		
	捕獲調査	DNA調査		捕獲調査	DNA調査	
		反復	プーリング		反復	プーリング
7月	13	39	22	14	64	38
10月	5	36	15	7	58	24
1月	3	32	12	6	37	15
計※1	18	56		20	87	

※1（同一種の重複はカウントしない）

表 7　令和 4 年度調査結果（能古島）

科	属	種名	R4.7		R4.10		R5.1		種数	
			捕獲	DNA	捕獲	DNA	捕獲	DNA	捕獲	DNA
ウミヘビ科	ウミヘビ属	ホタテウミヘビ		●						●
ウシノシタ科	タイワンシタビラメ属	クロウシノシタ		●						●
カレイ科	イシガレイ科	イシガレイ		●		●		●		●
	マガレイ属	マガレイ属		●						●
ササウシノシタ科	ササウシノシタ属	ササウシノシタ			○	●		●	○	●
アイゴ科	アイゴ属	アイゴ	○	●	○	●			○	●
アイナメ科	アイナメ属	クジメ	○	●				●	○	●
アジ科	ブリ属	ヒラマサ				●				●
		ブリ						●		●
イソギンポ科	ハタタテギンポ属	ニジギンポ			○	●			○	●
	ナベカ属	イダテンギンポ		●		●		●		●
		ナベカ		●		●		●		●
	イソギンポ属	イソギンポ				●		●		●
ウミタナゴ科	ウミタナゴ属	アオタナゴ	○						○	●
		ウミタナゴ属		●		●		●		
オニオコゼ科	オニオコゼ属	オニオコゼ			○	●			○	●
キス科	キス属	シロギス	○	●	○	●			○	●
クロサギ科	クロサギ属	クロサギ				●				●
クロユリハゼ科	サツキハゼ属	サツキハゼ属	○						○	
コチ科	コチ属	マゴチ	○		○	●			○	●
サバ科	サバ属	ゴマサバ/マサバ						●		●
	サワラ属	サワラ				●				●
シマイサキ科	シマイサキ属	シマイサキ	○	●		●			○	●
スズキ科	スズキ属	スズキ		●		●		●		●
		ヒラスズキ		●		●		●		●
タイ科	クロダイ属	キチヌ				●				●
		クロダイ		●		●		●		●
	ヘダイ属	ヘダイ				●				●
	マダイ属	マダイ						●		●
タウエガジ科	ダイナンギンポ属	ダイナンギンポ		●		●		●		●
	ムスジガジ属	ムスジガジ				●				●
ニシキギンポ科	ニシキギンポ属	ギンポ						●		●
ニベ科	シログチ属	シログチ				●		●		●
ネズッポ科	ネズッポ属	ハタタテヌメリ	○			●			○	●
		ネズミゴチ/ヌメリゴチ		●		●		●		●
ハオコゼ科	ハオコゼ属	ハオコゼ		●	○	●				●
ハゼ科	アカハゼ属	アカハゼ						●		●
	アゴハゼ属	ドロメ				●		●		●
	ウキゴリ属	ニクハゼ	○						○	
	キララハゼ属	ツマグロスジハゼ			○				○	●
		モヨウハゼ/ツマグロスジハゼ		●		●				
		スジハゼ		●	○	●		●	○	●
	クツワハゼ属	クツワハゼ			○				○	
	チチブ属	アカオビシマハゼ		●		●		●		●
		チチブ属	○						○	
	ヒナハゼ属	ヒナハゼ						●		●
	ヒメハゼ属	ヒメハゼ	○	●	○	●	○	●	○	●
	マハゼ属	マハゼ		●		●				●
		ハゼ科 sp.	○						○	
ヒイラギ科	ヒイラギ属	ヒイラギ		●		●		●		●
フエフキダイ科	フエフキダイ属	フエフキダイ		●						●
メジナ科	メジナ属	メジナ		●		●		●		●
メバル科	メバル属	タケノコメバル		●						●
		メバル属		●		●		●		●
サヨリ科	サヨリ属	サヨリ				●				●
ダツ科	ダツ属	ダツ				●				●
トウゴロウイワシ科	ギンイソイワシ属	トウゴロウイワシ		●		●				●
ヨウジウオ科	カワヨウジ属	ガンテンイシヨウジ	○						○	
	タツノオトシゴ属	サンゴタツ				●				●
		タツノオトシゴ属		●	○			●	○	●
	ヨウジウオ属	ヨウジウオ	○	●	○	●	○	●	○	●
アカエイ科	アカエイ属	アカエイ		●		●				●
ゴンズイ科	ゴンズイ属	ゴンズイ	○	●		●			○	●
カタクチイワシ科	カタクチイワシ属	カタクチイワシ				●		●		●
ニシン科	キビナゴ属	キビナゴ	○						○	
	コノシロ属	コノシロ				●		●		●
	サッパ属	サッパ/カタボシイワシ				●		●		●
	マイワシ属	マイワシ						●		●
カワハギ科	アミメハギ属	アミメハギ	○	●	○	●		●	○	●
	カワハギ属	カワハギ	○	●		●			○	●
フグ科	トラフグ属	クサフグ		●	○	●	○	●	○	●
		コモンフグ	○						○	
		トラフグ属	○			●			○	●
ボラ科	ボラ属	ボラ		●		●		●		●
ドチザメ科	ドチザメ属	ドチザメ		●						●
計			20	37	15	50	3	35	28	65

○捕獲調査，●環境DNA調査

表 8　令和 4 年度調査結果（志賀島）

科	属	種名	R4.7		R4.10		R5.1		種数	
			捕獲	DNA	捕獲	DNA	捕獲	DNA	捕獲	DNA
アナゴ科	クロアナゴ属	マアナゴ		●		●				●
ウミヘビ科	ウミヘビ属	ホタテウミヘビ				●				●
	ニンギョウアナゴ属	セレベスヒレアナゴ						●		●
ウシノシタ科	イヌノシタ属	ゲンコ				●				●
	タイワンシタビラメ属	クロウシノシタ		●		●				●
カレイ科	イシガレイ科	イシガレイ		●				●		●
	マガレイ属	マガレイ属		●						●
ササウシノシタ科	ササウシノシタ属	ササウシノシタ	○	●		●		●	○	●
	シマウシノシタ属	シマウシノシタ				●				●
ヒラメ科	ヒラメ属	ヒラメ		●		●				●
アイゴ科	アイゴ属	アイゴ	○	●	○	●			○	●
アイナメ科	アイナメ属	クジメ		●	○	●		●	○	●
アジ科	ブリ属	ヒラマサ						●		●
		ブリ						●		●
	マアジ属	マアジ				●		●		●
イサキ科	コショウダイ属	コショウダイ	○	●					○	●
	ヒゲダイ属	ヒゲダイ						●		●
イシダイ科	イシダイ属	イシガキダイ		●						●
		イシダイ		●		●				●
イソギンポ科	ハタタテギンポ属	ニジギンポ	○		○	●			○	●
	ナベカ属	イダテンギンポ		●		●		●		●
		ナベカ		●		●		●		●
	イソギンポ属	イソギンポ	○	●	○	●		●	○	●
	スジギンポ属	ホシギンポ				●		●		●
ウミタナゴ科	ウミタナゴ属	アオタナゴ	○						○	
		ウミタナゴ	○						○	●
		ウミタナゴ属		●		●		●		
オニオコゼ科	オニオコゼ属	オニオコゼ				●				●
カジカ科	アナハゼ属	アナハゼ	○	●					○	●
キス科	キス属	シロギス	○	●	○	●		●	○	●
クサウオ科	クサウオ属	クサウオ						●		●
クロサギ科	クロサギ属	クロサギ		●		●				●
		ダイミョウサギ				●				●
コチ科	コチ属	マゴチ		●		●				●
サバ科	サバ属	ゴマサバ/マサバ						●		●
	サワラ属	サワラ						●		●
シマイサキ科	シマイサキ属	シマイサキ	○	●		●			○	●
スズキ科	スズキ属	スズキ		●		●		●		●
		ヒラスズキ				●		●		●
タイ科	クロダイ属	クロダイ		●		●		●		●
	ヘダイ属	ヘダイ		●		●				●
	マダイ属	マダイ		●				●		●
タウエガジ科	カズナギ属	カズナギ/オオカズナギ						●		●
	ダイナンギンポ属	ダイナンギンポ		●		●		●		●
		ベニツケギンポ		●				●		●
	ムスジガジ属	ムスジガジ		●		●		●		●
テンジクダイ科	ツマグロイシモチ属	テンジクダイ		●						●
ニシキギンポ科	ニシキギンポ属	ギンポ						●		●
		ニシキギンポ属					○		○	
ネズッポ科	ネズッポ属	ネズミゴチ/ヌメリゴチ		●		●		●		●
ハオコゼ科	ハオコゼ属	ハオコゼ			○				○	
ハゼ科	キララハゼ属	スジハゼ		●				●		●
	クツワハゼ属	クツワハゼ		●						●
	シロウオ属	シロウオ				●		●		●
	チチブ属	アカオビシマハゼ		●		●		●		●
		チチブ属	○				○		○	
	ヒメハゼ属	ヒメハゼ	○	●				●	○	●
	マハゼ属	マハゼ	○	●					○	●
ハタ科	アカハタ属	キジハタ				●				●
ヒイラギ科	ヒイラギ属	ヒイラギ		●		●		●		●
ベラ科	ササノハベラ属	ホシササノハベラ				●				●
	ホンベラ属	ホンベラ		●						●
メジナ科	メジナ属	クロメジナ		●						●
		メジナ		●		●		●		●
メバル科	メバル属	カサゴ				●				●
		タケノコメバル						●		●
		メバル属	○	●		●		●	○	●
ワニギス科	ワニギス属	ワニギス						●		●
サヨリ科	サヨリ属	サヨリ						●		●
トウゴロウイワシ科	ギンイソイワシ属	ギンイソイワシ		●		●				●
		トウゴロウイワシ		●		●				●
ヨウジウオ科	ヨウジウオ属	ヨウジウオ		●			○		○	●
アカエイ科	アカエイ属	アカエイ				●				●
ツバクロエイ科	ツバクロエイ属	ツバクロエイ		●						●
ゴンズイ科	ゴンズイ属	ゴンズイ		●		●				●
カタクチイワシ科	カタクチイワシ属	カタクチイワシ				●		●		●
ニシン科	キビナゴ属	キビナゴ	○			●			○	●
	コノシロ属	コノシロ		●		●		●		●
	サッパ属	サッパ/カタボシイワシ				●				●
		カタボシイワシ				●				●
エソ科	マエソ属	トカゲエソ				●				●
		マエソ				●				●
カワハギ科	アミメハギ属	アミメハギ	○	●	○	●			○	●
	カワハギ属	カワハギ	○	●		●			○	●
	ヨソギ属	ヨソギ		●		●				●
フグ科	トラフグ属	クサフグ	○	●		●		●	○	●
		コモンフグ	○						○	
		トラフグ属		●		●				●
ボラ科	ボラ属	ボラ		●		●		●		●
ドチザメ科	ドチザメ属	ドチザメ		●						●
計			19	52	7	55	3	41	23	84

○捕獲調査，●環境DNA調査

表 9　令和 5 年度調査結果（能古島）

科	属	種名	R5.7		R5.10		R6.1		種数	
			捕獲	DNA	捕獲	DNA	捕獲	DNA	捕獲	DNA
アナゴ科	ギンアナゴ属	ギンアナゴ属				●				●
ウナギ科	ウナギ属	ニホンウナギ		●						●
ウシノシタ科	タイワンシタビラメ属	クロウシノシタ		●			○		○	●
カレイ科	イシガレイ科	イシガレイ		●		●		●		●
	マガレイ属	マガレイ属		●						●
ササウシノシタ科	ササウシノシタ属	ササウシノシタ		●						●
アイゴ科	アイゴ属	アイゴ		●		●				●
アイナメ科	アイナメ属	クジメ	○	●		●		●	○	●
アジ科	マアジ属	マアジ				●				●
イソギンポ科	ナベカ属	イダテンギンポ		●		●		●		●
		ナベカ		●		●		●		●
	イソギンポ属	イソギンポ		●		●		●		●
	スジギンポ属	ホシギンポ						●		●
ウミタナゴ科	ウミタナゴ属	アオタナゴ	○						○	●
		ウミタナゴ属		●		●		●		
オニオコゼ科	オニオコゼ属	オニオコゼ		●						●
カジカ科	アナハゼ属	アサヒアナハゼ	○						○	
		アナハゼ	○						○	
キス科	キス属	シロギス		●	○	●		●	○	●
コチ科	コチ属	マゴチ		●		●				●
シマイサキ科	シマイサキ属	シマイサキ		●		●				●
スズキ科	スズキ属	スズキ		●		●		●		●
タイ科	クロダイ属	キチヌ		●		●				●
		クロダイ		●		●		●		●
	マダイ属	マダイ		●		●		●		●
タウエガジ科	ダイナンギンポ属	ダイナンギンポ		●		●		●		●
ニシキギンポ科	ニシキギンポ属	ギンポ		●				●		●
ネズッポ科	ネズッポ属	ハタタテヌメリ				●				●
		ネズミゴチ/ヌメリゴチ			○	●		●	○	●
ハゼ科	アカハゼ属	アカハゼ				●				●
	アゴハゼ属	アゴハゼ		●				●		●
		ドロメ		●		●		●		●
	ウキゴリ属	ニクハゼ	○						○	
	キララハゼ属	スジハゼ	○	●				●	○	●
	チチブ属	アカオビシマハゼ		●		●		●		●
		チチブ属	○						○	
	ヒメハゼ属	ヒメハゼ		●	○	●	○	●	○	●
		ヒメハゼ属			○			●	○	●
	ヒモハゼ属	ヒモハゼ						●		●
	マハゼ属	マハゼ		●		●		●		●
	ミミズハゼ属	ミミズハゼ						●		●
ヒイラギ科	ヒイラギ属	ヒイラギ	○	●		●		●	○	●
ベラ科	キュウセン属	キュウセン		●						●
メジナ科	メジナ属	メジナ		●		●		●		●
メバル科	メバル属	カサゴ						●		●
		タケノコメバル	○						○	
		メバル属		●						●
サヨリ科	サヨリ属	サヨリ		●		●				●
ダツ科	ダツ属	ダツ		●						●
トウゴロウイワシ科	ギンイソイワシ属	トウゴロウイワシ		●						●
ヨウジウオ科	タツノオトシゴ属	サンゴタツ				●				●
	ヨウジウオ属	ヨウジウオ	○						○	
アカエイ科	アカエイ属	アカエイ				●				●
トビエイ科	マダラトビエイ属	ナルトビエイ				●				●
ゴンズイ科	ゴンズイ属	ゴンズイ		●		●				●
カタクチイワシ科	カタクチイワシ属	カタクチイワシ				●		●		●
ニシン科	キビナゴ属	キビナゴ				●		●		●
	コノシロ属	コノシロ		●		●		●		●
	サッパ属	サッパ/カタボシイワシ		●		●		●		●
	マイワシ属	マイワシ		●						●
カワハギ科	アミメハギ属	アミメハギ	○	●	○	●			○	●
	カワハギ属	カワハギ	○						○	
フグ科	トラフグ属	クサフグ	○	●		●	○	●	○	●
ボラ科	ボラ属	ボラ		●		●		●		●
計			13	41	5	38	3	32	18	56

○捕獲調査，●環境DNA調査

表 10　令和 5 年度調査結果（志賀島）

科	属	種名	R5.7		R5.10		R6.1		種数	
			捕獲	DNA	捕獲	DNA	捕獲	DNA	捕獲	DNA
アナゴ科	ギンアナゴ属	ギンアナゴ属				●				●
	クロアナゴ属	マアナゴ		●						●
ウミヘビ科	ウミヘビ属	ホタテウミヘビ		●						●
ウシノシタ科		ミナミアカシタビラメ						●		●
	タイワンシタビラメ属	クロウシノシタ						●		●
カレイ科	イシガレイ科	イシガレイ				●		●		●
	マガレイ属	マガレイ属		●		●				●
ササウシノシタ科	ササウシノシタ属	ササウシノシタ		●		●	○	●	○	●
	シマウシノシタ属	シマウシノシタ		●						●
キュウリウオ科	アユ属	アユ					○		○	
アイゴ科	アイゴ属	アイゴ		●		●				●
アイナメ科	アイナメ属	アイナメ						●		●
		クジメ	○	●		●		●	○	●
アジ科	ブリ属	ブリ		●				●		●
	マアジ属	マアジ		●		●				●
	ムロアジ属	マルアジ				●				●
イソギンポ科	ハタタテギンポ属	ニジギンポ			○				○	
	ナベカ属	イダテンギンポ		●		●		●		●
		ナベカ		●		●		●		●
	イソギンポ属	イソギンポ		●		●		●		●
	スジギンポ属	ホシギンポ		●		●		●		●
ウミタナゴ科	ウミタナゴ属	ウミタナゴ	○						○	●
		ウミタナゴ属		●		●				
オニオコゼ科	オニオコゼ属	オニオコゼ	○	●		●			○	●
カジカ科	アナハゼ属	アサヒアナハゼ		●						●
		アナハゼ		●						●
	サラサカジカ属	キヌカジカ		●						●
カマス科	カマス属	アカカマス				●				●
		ヤマトカマス	○						○	
キス科	キス属	シロギス	○	●	○	●		●	○	●
クロサギ科	クロサギ属	クロサギ				●				●
コチ科	イネゴチ属	イネゴチ				●				●
	コチ属	マゴチ		●		●		●		●
サバ科	サバ属	ゴマサバ/マサバ		●						●
	サワラ属	サワラ				●				●
シマイサキ科	シマイサキ属	シマイサキ		●						●
スズキ科	スズキ属	スズキ	○	●		●	○	●	○	●
		ヒラスズキ				●		●		●
タイ科	クロダイ属	キチヌ			○				○	
		クロダイ		●		●				●
	ヘダイ属	ヘダイ		●		●				●
	マダイ属	マダイ		●		●		●		●
タウエガジ科	カズナギ属	カズナギ/オオカズナギ		●						●
	ダイナンギンポ属	ダイナンギンポ		●		●		●		●
		ベニツケギンポ		●		●		●		●
	ムスジガジ属	ムスジガジ		●		●		●		●
チョウチョウウオ科	ハタタテダイ属	ムレハタタテダイ	○						○	
ニシキギンポ科	ニシキギンポ属	ギンポ				●				●
ニベ科	シログチ属	シログチ		●		●		●		●
ネズッポ科	ネズッポ属	ハタタテヌメリ		●						●
		ネズミゴチ/ヌメリゴチ		●		●		●		●
ハゼ科	イトヒキハゼ属	イトヒキハゼ		●						●
	キララハゼ属	スジハゼ	○	●		●			○	●
	シロウオ属	シロウオ			○				○	
	チチブ属	アカオビシマハゼ		●		●		●		●
		チチブ属	○						○	
	ヒメハゼ属	ヒメハゼ	○	●		●	○	●	○	●
	マハゼ属	マハゼ		●						●
ハタ科	アカハタ属	キジハタ				●		●		●
		クエ				●				●
ヒイラギ科	イトヒキヒイラギ属	オキヒイラギ				●				●
	ヒイラギ属	ヒイラギ		●		●		●		●
フエフキダイ科	フエフキダイ属	ハマフエフキ				●				●
ヘビギンポ科	ヘビギンポ属	ヘビギンポ		●		●				●
ベラ科	イトベラ属	イトベラ		●						●
	キュウセン属	キュウセン		●		●				●
	ホンベラ属	ホンベラ		●		●				●
メジナ科	メジナ属	クロメジナ		●				●		●
		メジナ		●		●		●		●
メバル科	メバル属	カサゴ		●		●		●		●
		タケノコメバル		●				●		●
		メバル属		●		●		●		●
サヨリ科	サヨリ属	サヨリ		●				●		●
ダツ科	ダツ属	ダツ		●						●
トウゴロウイワシ科	ギンイソイワシ属	トウゴロウイワシ		●						●
ヨウジウオ科	オクヨウジ属	オクヨウジ		●						●
		タツノオトシゴ属		●						●
	ヨウジウオ属	ヨウジウオ	○	●	○	●			○	●
アカエイ科	アカエイ属	アカエイ				●				●
ゴンズイ科	ゴンズイ属	ゴンズイ		●		●				●
カタクチイワシ科	カタクチイワシ属	カタクチイワシ		●		●				●
ニシン科	キビナゴ属	キビナゴ				●				●
	コノシロ属	コノシロ		●		●		●		●
	サッパ属	サッパ/カタボシイワシ		●		●		●		●
	マイワシ属	マイワシ		●						●
エソ科	マエソ属	トカゲエソ				●				●
カワハギ科	アミメハギ属	アミメハギ	○	●	○	●	○	●	○	●
	ウスバハギ属	ソウシハギ/ウスバハギ						●		●
	ウマヅラハギ属	ウマヅラハギ		●						●
	カワハギ属	カワハギ	○	●	○	●			○	●
	ヨソギ属	ヨソギ				●				●
ハコフグ科	コンゴウフグ属	コンゴウフグ	○						○	
フグ科	サバフグ属	シロサバフグ				●				●
	トラフグ属	クサフグ		●		●	○	●	○	●
		トラフグ属		●		●				●
ボラ科	ボラ属	ボラ		●		●		●		●
計			14	65	7	60	6	37	20	87

○捕獲調査，●環境DNA調査

表 11　反復採水とプーリング採水の環境 DNA 調査結果（令和 5 年 7 月）

志賀島

種名	リード数	プーリング	種名	リード数	プーリング	種名	リード数	プーリング
クサフグ	65,598	○	キュウセン	3,236	○	ヘビギンポ	346	○
メジナ	61,655	○	ベニツケギンポ	2,776	○	マアジ	309	
ボラ	43,947	○	カサゴ	2,006	○	ネズミゴチ/ヌメリゴチ	289	○
ウミタナゴ属	35,441	○	ホンベラ	1,920	○	コノシロ	280	
ヒイラギ	31,172	○	タツノオトシゴ属	1,903		ヒメハゼ	274	○
スズキ	27,350	○	アイゴ	1,701	○	アナハゼ	263	
スジハゼ	23,615	○	シマウシノシタ	1,500	○	ゴンズイ	213	○
クジメ	18,707	○	サッパ/カタボシイワシ	1,491	○	イトヒキハゼ	211	
マガレイ属	15,109	○	アカオビシマハゼ	1,412		ウマヅラハギ	193	
クロダイ	11,294	○	アサヒアナハゼ	1,368		ハタタテヌメリ	192	
シロギス	10,318	○	ヘダイ	1,090		ササウシノシタ	178	
アミメハギ	8,154	○	オニオコゼ	1,061	○	ホシギンポ	161	
トウゴロウイワシ	7,844	○	マゴチ	925		マダイ	154	
ダツ	7,418	○	シログチ	614		カズナギ/オオカズナギ	101	
ダイナンギンポ	7,371	○	タケノコメバル	608		カタクチイワシ	82	
トラフグ属	6,992	○	シマイサキ	570		ブリ	81	
マイワシ	6,072	○	マコガレイ	518		イトベラ	80	
サヨリ	5,410	○	クロメジナ	492	○	ゴマサバ/マサバ	74	
ナベカ	5,068	○	カワハギ	464	○	オクヨウジ	31	
イソギンポ	4,814		ムスジガジ	437		マアナゴ	6	
イダテンギンポ	3,436	○	マハゼ	403	○	キヌカジカ	4	
ヨウジウオ	3,237	○	メバル属	397				

4　まとめ

捕獲調査と環境 DNA 調査を同時に行い，捕獲調査で確認された種と環境 DNA 調査で検出された種の比較を行った．令和 3 年度結果からプーリング採水による環境 DNA 調査では主要な種は検出されるが，総湿重量が小さく DNA 量も少ないと考えられる種は検出されにくいことが示唆された．

さらに，令和 4 年度以降は反復採水とプーリング採水による環境 DNA 調査をそれぞれ行い，結果を比較したところ反復採水で検出種数は大幅に増加し，これまで捕獲調査でのみ確認された種が新たに検出されたことから，反復採水による環境 DNA 調査は，能古島及び志賀島のアマモ場を含む周辺海域の魚類相を明らかにするのに有効であると考えられた．

文献

1) 宮正樹：環境 DNA メタバーコーディングー魚類群集研究の革新的手法バケツ一杯の水で棲んでいる魚がわかる技術，化学と生物，Vol.57，No.4，242～250，2019
2) 今藤夏子，他：霞ヶ浦における定置網と環境 DNA を用いた魚類調査と種多様性の比較，水環境学会誌，Vol.41（A），137～139，2018
3) 環境省自然環境局生物多様性センター：環境 DNA 分析技術を用いた調査手法の手引き（淡水魚類・両生類）第 1 版，1～5，2024 年 5 月
4) 一般社団法人環境 DNA 学会：環境 DNA 調査・実験マニュアル　Ver.2.2，34～76，2020 年 4 月 3 日発行
5)環境省自然環境局生物多様性センター：MiFish に係る誤同定チェックシート ver.1.2（https://www.biodic.go.jp/edna/reports/mifish_checksheet_ver1.2.xlsx）
6) 環境科学課　生物担当：環境 DNA 技術を用いた魚類モニタリング調査手法の検討，福岡市保健環境研究所報，47，142～147，2022

福岡市内河川の底生動物を用いた環境評価 －多々良川，2023 年－

有本圭佑・中山恵利・大平良一

福岡市保健環境研究所環境科学課

Evaluation of River Environment by Bottom Fauna in Fukuoka City (Tatara River, in 2023)

Keisuke ARIMOTO , Eri NAKAYAMA and Ryoichi OHIRA

Environmental Science Section, Fukuoka City Institute of Health and Environment

要約

福岡市内河川の水環境について水質検査だけでは把握できない総合的･長期的な環境の実態を把握することを目的として，福岡市保健環境研究所では河川底生動物を指標とした水質評価を，1992 年より 5 河川においてそれぞれ 5 年毎に実施している．2023 年は多々良川の淡水域について上流より，一号橋，南蔵院，和田橋及び向川原橋の計 4 地点で底生動物の調査を実施し，ASPT（Average score per taxon），水生生物による水質判定を用いて環境評価を行った．ASPT は一号橋が 7.8，南蔵院が 7.7 で「とても良好」，和田橋が 7.2，向川原橋が 7.0 で「良好」となった．水生生物による水質判定によると，全ての調査地点で「きれいな水」であると評価された．

Key Words：淡水域　freshwater area，底生動物　bottom fauna，多々良川　Tatara River，ASPT　average score per taxon

1　はじめに

河川の水環境について総合的・長期的な環境の実態を把握するため，福岡市保健環境研究所では 1992 年から市内に流入する 5 河川（多々良川，那珂川，御笠川，樋井川及び室見川）の底生動物調査を 1 年に 1 河川ペースで実施し，これを用いた水質評価を行っている．2023 年は市の東部を流れる多々良川について調査した．多々良川は糟屋郡篠栗町大字篠栗字黒木原 456 番 1 地先を起点とし，博多湾を終点とする，延長 17.8 km，流域面積 168 km^2 の二級河川である[1)]．

2　調査方法

2.1　調査地点

2023 年 4 月 19 日に多々良川上流より一号橋，南蔵院，和田橋及び向川原橋の計 4 地点で調査を行った．調査地点を図 1 に示す．



図 1　調査地点

2.2　採取及び検査方法

底生動物の採取方法は環境省の「水生生物による水質評価法マニュアルー日本版平均スコア法ー」（以下，「水質評価マニュアル」とする．）[2)] に従った．採取は各調査地点で 3 回ずつ行い，タモ網に入った底生動物を 250 mL 管瓶に入れ，直ちに 70%エチルアルコールで固定し持ち帰った．同定を「河川生物の絵解き検索」[3)]，「滋賀の水生昆虫・図解ハンドブック」[4)]，「日本産水生昆虫検索図説」[5)] 及び「神奈川県版河川生物の絵解き検索」[6)] に従い，科（一部は綱）まで行った．流れの速さの測定は電磁流速計（KENEK 社 LP2100）を用いて行った．流れの速さの判定は「川の生き物を調べよう」[7)] を参考に

流れの速さが 30 cm/s 以下の場合には「おそい」，30～60 cm/s の場合には「ふつう」，60 cm/s 以上の場合には「はやい」とした．

また河川水を採取し，持ち帰った後水質検査を行った．pH（水素イオン濃度）は JIS K 0102 12.1 ガラス電極法，DO（溶存酸素）は JIS K0102 32.1 よう素滴定法，BOD（生物化学的酸素消費量）は JIS K0102 21 及び JIS K0102 32.3 隔膜電極法，SS（浮遊物質量）は昭和 46 年（1971 年）環境庁告示第 59 号　付表 9，T-N（全窒素）は JIS K 0102 45.2 紫外線吸光光度法，T-P（全りん）は JIS K 0102 46.3.1 ペルオキソ二硫酸カリウム分解法，EC（電気伝導率）は JIS K 0102 13 電気伝導率に従い測定した．

2.3　評価方法

底生動物の同定により得られた結果から，ASPT（Average score per taxon）の算出や水生生物による水質判定を行った．

ASPT は水質状況に周辺環境も合わせた総合的河川環境の良好性を相対的に表す指数で，水質評価マニュアル[2)]に従い，スコア表[2, 8)]を用いて算出する．底生動物の科ごとに決められたスコアが 1 から 10 まであり，出現した底生動物のスコアの合計（以下，「TS」とする．）を出現した底生動物の科の総数で割った値で示される．ASPT は小数点第二位を四捨五入し，小数点第一位までとした．ASPT の範囲と河川水質の良好性を表 1 に示す．水環境は ASPT と TS で評価した．

水生生物による水質判定は，水質階級を 4 段階（Ⅰ～Ⅳ）の階級毎に定められた指標生物を基に定める手法である．水質階級と水のきれいさの程度を表 2 に示す．水質階級の判定は「川の生きものを調べよう」[7)]に従った．

また，多様度指数は表 3 に示す Shannon-Wiener の多様度指数（H'）の式を用いて算出した．H' は採取された底生動物の種数が多く，かつ均等に採取されると高い値となり，多様性に富んでいると評価される．

表 1　ASPT の範囲と河川水質の良好性

ASPT の範囲	河川水質の良好性
7.5 以上	とても良好
6.0 以上 7.5 未満	良好
5.0 以上 6.0 未満	やや良好
5.0 未満	良好とはいえない

表 2　水質階級と水のきれいさの程度

水質階級	水のきれいさの程度
Ⅰ	きれいな水 （水が透明で川底まで見えるところ）
Ⅱ	ややきれいな水 （周りに田んぼがあって，水がやや濁っているところ）
Ⅲ	きたない水 （排水路が川につながっていたり，周りには多くの人家が見られたりするようなところ）
Ⅳ	とてもきたない水 （周りには工場なども多く，人がたくさん住んでいるようなところ）

表 3　Shannon-Wiener の多様度指数

$$H' = -\sum_{i=1}^{S} Pi \cdot \log_2 Pi \quad (0 \leqq H')$$

S =種数（科数）

Pi =種 i が全体に含まれる割合（ni/N）

ni =種 i の個体数

N =総個体数

3　結果及び考察

3.1　各調査地点における底生動物出現状況

多々良川における各調査地点の様子を図 2～5，底生動物の出現状況を表 4，優占科を表 5，TS，ASPT 及び H' を表 6，水質階級を表 7 に示す．

3.1.1　一号橋

調査地点の中で最も上流部に位置する．山間部に位置し周辺は山林であり，人家は少ない．三面をコンクリートで覆われた河川であり，頭大の石も所々にあるものの，上流部としては，生物の生息に適した浮石は少ない．採取場所の水深は 20～28 cm，流れの速さは 25～75 cm/s と「ふつう」又は「はやい」であった．

出現科数は 26 科で，総個体数は 818 であった．そのうちスコア 6 のコカゲロウ科が 331 で最も多く，次いでスコア 9 のヒラタカゲロウ科が 128 となり上位 2 種で全体の約半数を占めていた．

ASPT は 7.8 で「とても良好」，水質階級は Ⅰ の「きれいな水」，H' は 3.0 であった．

3.1.2　南蔵院

一号橋よりも下流に位置する．参拝客の多い寺院の近傍に位置し，近隣には人家及び土産屋などの施設が多数存在する．両岸はコンクリート護岸で，川原には多くの草・葦類が繁茂しており，頭大の石やこぶし大の石が多く見られた．採取場所の水深は 18～20 cm，流れの速さ

は 66～95 cm/s と「はやい」であった．

出現科数は 32 科で，総個体数は 1238 であった．そのうちスコア 9 のヒラタカゲロウ科が 243 で最も多く，次いでスコア 6 のユスリカ科（腹鰓なし）が 150 となり上位 2 種で約 3 割を占めていた．

ASPT は 7.7 で「とても良好」，水質階級は I の「きれいな水」，*H'* は 3.8 であった．

3.1.3　和田橋

南蔵院よりも下流に位置する．市街地に近く，住宅も多い．川の両岸はコンクリート護岸で川幅は広く，こぶし大の石が多くみられた．採取場所の水深は 15～20 cm，流れの速さは 46～70 cm/s と「ふつう」又は「はやい」であった．

出現科数 21 科で，総個体数は 1221 であった．そのうち，スコア 6 のユスリカ科（腹鰓なし）が 706 で，次いでスコア 6 のコカゲロウ科が 311 となり上位 2 種で約 8 割を占めていた．

ASPT は 7.2 で「良好」，水質階級は I の「きれいな水」，*H'* は 1.8 であった．

3.1.4　向川原橋

和田橋よりも下流に位置し，人口の多い地域である．両岸はコンクリート護岸で，川原には多くの草・葦類が繁茂しており，こぶし大の石が多くみられた．採取場所の水深は 15～24 cm，流れの速さは 62～76 cm/s と「はやい」であった．

出現科数は 18 科で，総個体数は 555 であった．そのうちスコア 6 のコカゲロウ科が 139 で，次いでスコア 6 のユスリカ科（腹鰓なし）が 99 となり上位 2 種で全体の 4 割を占めていた．

ASPT は 7.0 で「良好」，水質階級は I の「きれいな水」，*H'* は 3.1 であった．

3.2　全地点における底生動物出現状況

各調査地点で 18 科～32 科の底生動物が出現し，TS は 126～245，ASPT は 7.0～7.8，水生生物による水質判定における水質階級はいずれの地点も I，*H'* は 1.8～3.8 であった．一号橋は調査地点の中で最も上流部に位置することもあり，ASPT が 7.8 で最も高く，TS が 202，検出した科も 26 であり，コンクリート護岸であるが，水環境は良好な状態であった．南蔵院は ASPT が 7.7，TS が 245，検出した科が 32 であり，水環境は良好な状態であった．さらに ASPT は一号橋と同程度であるものの TS，検出した科及び *H'* は一号橋を上回っており，三面をコンクリートで覆われた一号橋と比較して，多くの草が繁茂している南蔵院は河川環境の違いからも生物の生息に適した環境であり多様性に富んでいると考えられた．

和田橋は ASPT が 7.2，TS が 151，検出した科が 21 であり，水環境は良好であると考えられた．しかし *H'* は 1.8 と他の地点と比べて最も低く，上位 2 種で約 8 割を占めるなど生物種が単一化しており，多様性を考慮すると生物の生息環境は他の地点よりも劣っていると考えられた．向川原橋は ASPT が 7.0 で「良好」，TS が 126，検出した科が 18 であり，水環境が良好であると考えられた．また，*H'* は一号橋よりもわずかに高いことから河川環境の違いからも向川原橋の生物の生息環境は良好であると考えられた．今回 ASPT は下流に向かうほど低くなる傾向が見られたが *H'* は同様の傾向を示さず，河川環境の状況から生物の生息に適した環境の良好さを反映していると考えられた．

3.3　各地点の水質分析結果

水質分析結果を表 8 に示す．pH，BOD，SS，T-N 及び T-P については採水地点による値の大きな差は認められなかった．

3.4　過去の多々良川のデータとの比較

3.4.1　ASPT

各調査地点 ASPT の推移を図 6 に示す．過去のデータは福岡市保健環境研究所報[9～14)]を引用した．1992 年，1998 年及び 2008 年は秋も調査を行っているが，今回の調査に合わせて春のデータを引用した．

一号橋において，ASPT は多少の変動はあるものの 7.0 以上で推移しており，水環境は非常に良好な状態を維持できていると考えられた．南蔵院において，ASPT は 2003 年に一度 7.0 を下回っているものの，基本的には 7.0 以上で推移していることから，水環境は良好な状態を維持できていると考えられた．和田橋と向川原橋において，多少の変動はあるものの経年的に ASPT は上昇傾向を示しており，水環境は改善傾向であると考えられた．

3.4.2　水質分析結果

各調査地点の BOD，T-N 及び T-P の推移を図 7 に示す．BOD と T-P については，若干の変動はあるが大きな差が見られなかった．T-N については，若干の変動はあるが今回の結果は減少傾向を示した．採水地点による値の大きな差は認められなかった．福岡市では水質汚濁防止法に基づく公共用水域の常時監視を福岡県が定めた水質測定計画に基づき行っており，今回の調査地点の最下流である向川原橋からさらに約 0.5 km 下流にある雨水橋において，月に 1 回水質測定を行っている[15)]．図 8 に，1992 年以降の雨水橋における BOD 年間平均値の推移を示す．1994 年をピークに経年的には減少傾向を示しており，その後は横ばいの傾向であることから，長期的には水環境は改善傾向であると考えられ，ASPT の結果と同じく近年は水環境が良好な状態を維持できていると考え

られた.

3.5　市内を流れる他の河川との比較

2019 年以降に調査を行った市内を流れる他の河川（以下,「他の河川」とする.）のデータとの比較を行った. 調査地点及び ASPT を図 9 に示す. 他の河川の ASPT は福岡市保健環境研究所報[16～19)]を引用した. いずれの河川においても ASPT は上流域から下流域へ向かい低くなる傾向が見られ, 多々良川でも同様の傾向が見られた. 最下流調査地点の向川原橋は ASPT が 7.0 で他の河川の淡水域最下流調査地点の ASPT5.9～7.0 と比べ最高値と同値を示した. 最上流調査地点の一号橋の ASPT は 7.8 で, 他の河川の最上流調査地点の ASPT7.1～8.0 と比べ高い値を示した. 以上のことから，多々良川は他の河川と同等に水環境が良好な状態であると考えられた.

4　まとめ

多々良川の淡水域について底生動物調査を実施し，ASPT 及び水生生物による水質判定を用いて環境評価を行った. ASPT は 7.0～7.8 で「とても良好」，上流域になるにつれて高くなり，一号橋が 7.8，南蔵院が 7.7 で「とても良好」，和田橋が 7.2，向川原橋が 7.0 で「良好」であると評価された. 水生生物による水質判定によると「きれいな水」であると評価された. また，過去の調査結果と比較したところ，全ての地点で ASPT は横ばいの傾向であり，良好な水環境を維持できていると考えられた. 今回 H' による評価も行ったところ，ASPT と異なる傾向を示し，河川環境の状況から ASPT で捉えられない生物の生息に適した環境の良好さを反映していると考えられた.



図 2　一号橋



図 3　南蔵院



図 4　和田橋



図 5　向川原橋

表 4　多々良川における底生動物出現状況（2023 年）

科名		スコア	個体数			
			一号橋	南蔵院	和田橋	向川原橋
ヒメフタオカゲロウ科	*Ameletidae*	8		2		1
チラカゲロウ科	*Isonychiidae*	8	2	30		
ヒラタカゲロウ科	*Heptageniidae*	9	128	243	42	
コカゲロウ科	*Baetidae*	6	331	132	311	139
トビイロカゲロウ科	*Leptophlebiidae*	9			17	
マダラカゲロウ科	*Ephemerellidae*	8	61	49	3	5
ヒメシロカゲロウ科	*Caenidae*	7	16	76	5	11
カワカゲロウ科	*Potamanthidae*	8			12	
モンカゲロウ科	*Ephemeridae*	8	4	2	3	1
サナエトンボ科	*Gomphidae*	7		25	2	5
アミメカワゲラ科	*Perlodidae*	9	1	4		
カワゲラ科	*Perlidae*	9	2	9	1	
ヘビトンボ科	*Corydalidae*	9		1		
ヒゲナガカワトビケラ科	*Stenopsychidae*	9	4		3	
クダトビケラ科	*Psychomyiidae*	8		4		
イワトビケラ科	*Polycentropodidae*	9	2			1
シマトビケラ科	*Hydropsychidae*	7	4	5		28
ナガレトビケラ科	*Rhyacophiidae*	9	26	21		
カワリナガレトビケラ科	*Hydrobiosidae*	9	2			
ヤマトビケラ科	*Glossosomatidae*	9	14	130	3	4
コエグリトビケラ科	*Apataniidae*	9	28	21		
クロツツトビケラ科	*Uenoidae*	10	2	24		
ニンギョウトビケラ科	*Goeridae*	7		4		
カクツツトビケラ科	*Lepidostomatidae*	9	1	7	1	
ケトビケラ科	*Sericostomatidae*	9		57		
ヒラタドロムシ科	*Psephenidae*	8		1	4	4
ヒメドロムシ科	*Elmidae*	8	45	22	1	54
ガガンボ科	*Tipulidae*	8	5	6		1
ブユ科	*Simuliidae*	7	29	113	1	7
ユスリカ科（腹鰓無）	*Chironomidae*	6	96	150	706	99
アブ科	*Tabanidae*	6		2		
ナガレアブ科	*Athericidae*	8			1	
サンカクアタマウズムシ科	*Dugesiidae*	7	3	2	1	65
カワニナ科	*Pleuroceridae*	8		71		
シジミガイ科	*Corbiculidae*	3			11	66
ミミズ綱（その他）	*Oligochaeta*	4	6	19	1	
ヨコエビ科	*Gammaridae*	8	2	3		6
ミズムシ科	*Asellidae*	2	1	2	92	58
サワガニ科	*Potamidae*	8	3	1		
総個体数			818	1238	1221	555
出現科数			26	32	21	18

表 5　多々良川における優占科（2023 年）

	調査地点	優占科 1	優占科 2
上流↓下流	一号橋	コカゲロウ	ヒラタカゲロウ
	南蔵院	ヒラタカゲロウ	ユスリカ（腹鰓なし）
	和田橋	ユスリカ（腹鰓なし）	コカゲロウ
	向川原橋	コカゲロウ	ユスリカ（腹鰓なし）

表 6　多々良川における TS，ASPT 及び H'（2023 年）

調査地点	TS	n	ASPT	H'
一号橋	202	26	7.8	3.0
南蔵院	245	32	7.7	3.8
和田橋	151	21	7.2	1.8
向川原橋	126	18	7.0	3.1

ASPT=TS/n
TS:検出された科のスコアの合計
n:検出した科の総数

表 7　多々良川における水質階級（2023 年）

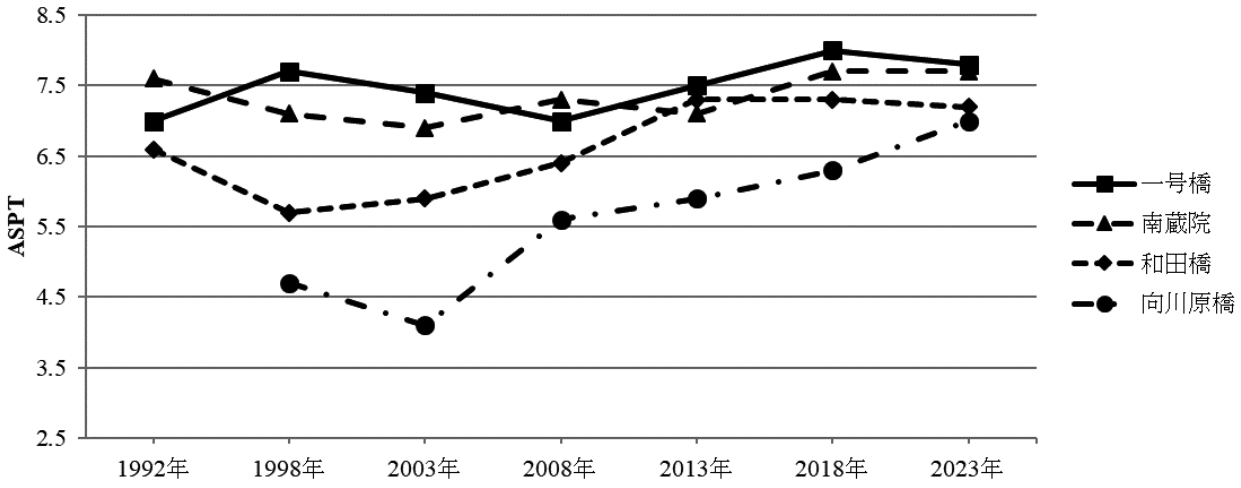
水質階級	指標生物	一号橋		南蔵院		和田橋		向川原橋	
	カワゲラ	2	○	9	○	1	○		
	ナガレトビケラ	26	○	21	○				
	ヤマトビケラ	14	○	130	●	3	○	4	○
Ⅰ	ヒラタカゲロウ	128	●	243	●	42	●		
きれいな水	ヘビトンボ			1	○				
	ブユ	29	●	113	○	1	○	7	○
	アミカ								
	ウズムシ	3	○	2	○	1	○	65	●
	サワガニ	3	○	1	○				
	ヨコエビ	2	○	3	○			6	○
	コガタシマトビケラ	4	○	5	○			28	○
	オオシマトビケラ								
Ⅱ	ヒラタドロムシ			1	○	4	○	4	○
やや	ゲンジボタル								
きれいな水	コオニヤンマ								
	カワニナ			71	○				
	ヤマトシジミ					11	○	66	●
	イシマキガイ								
	ミズムシ	1	○	2	○	92	●	58	○
	ミズカマキリ								
Ⅲ	ヒル								
きたない水	タニシ								
	イソコツブムシ								
	ニホンドロソコエビ								
	セスジユスリカ								
Ⅳ	チョウバエ								
とても	エラミミズ								
きたない水	サカマキガイ								
	アメリカザリガニ								

水質階級の判定	水質階級	Ⅰ	Ⅱ	Ⅲ	Ⅳ	Ⅰ	Ⅱ	Ⅲ	Ⅳ	Ⅰ	Ⅱ	Ⅲ	Ⅳ	Ⅰ	Ⅱ	Ⅲ	Ⅳ
	○と●の数	8	1	1	0	9	3	1	0	5	2	1	0	4	3	1	0
	●の数	2	0	0	0	2	0	0	0	1	0	1	0	1	1	0	0
	合計(1欄+2欄)	10	1	1	0	11	3	0	0	6	2	2	0	5	4	1	0
	その地点の水質階級	Ⅰ				Ⅰ				Ⅰ				Ⅰ			

見つかった指標生物の欄に○印，そのうち，数の多い２種類（３種類が同じくらいの数であれば３種類）に●印をつける．
印の横に個体数を示す．

表 8　多々良川における水質分析結果（2023 年）

調査場所	一号橋	南蔵院	和田橋	向川原橋
調査日	2023年4月19日	2023年4月19日	2023年4月19日	2023年4月19日
調査時刻	10:15	11:30	14:00	16:15
気温(℃)	23.4	25.3	26.1	24.6
水温(℃)	16.9	16.9	21.2	21.3
流速(cm/s)	25~75	66~95	46~70	62~76
pH	7.8	7.9	8.6	8.6
DO(mg/L)	9.6	9.6	11	11
BOD(mg/L)	1.2	0.9	1.2	1.6
SS(mg/L)	1	2	4	4
T-N(mg/L)	0.52	0.65	0.46	0.49
T-P(mg/L)	0.019	0.019	0.015	0.019
EC(mS/m)	11	15	22	22
ASPT	7.8	7.7	7.2	7.0
H'	3.0	3.8	1.8	3.1
水質階級	Ⅰ	Ⅰ	Ⅰ	Ⅰ



ASPT は 1992 年，1998 年，2003 年及び 2008 年は旧スコア表[8)]，
2013 年，2018 年及び 2023 年は新スコア表[1)] によって算出した．

図 6　多々良川における ASPT の推移

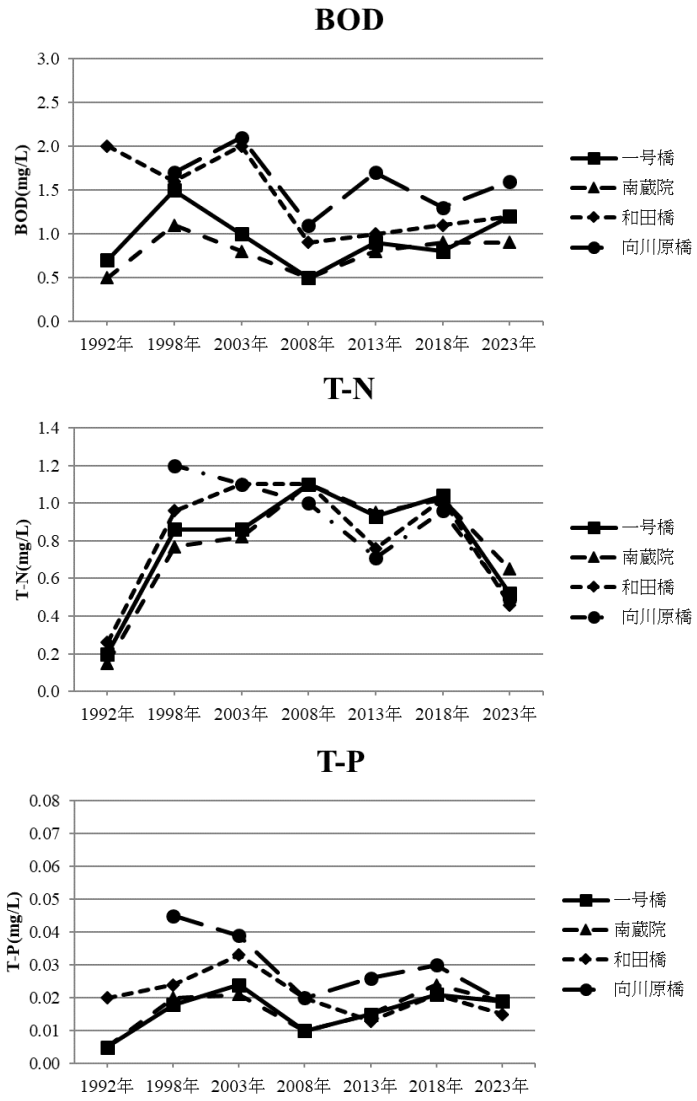


図 7　多々良川における BOD，T-N 及び T-P の推移

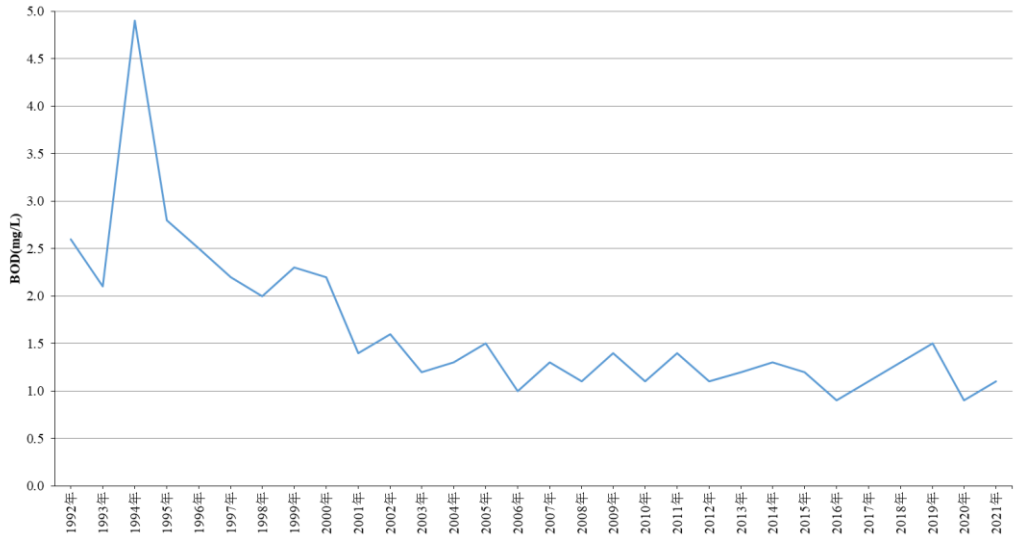


図 8　1992 年以降の雨水橋における BOD 年間平均値の推移



図 9　市内を流れる河川の ASPT

文献

1) 福岡市総務企画局企画調整部統計調査課編：福岡市統計書令和 5 年版，2024
2) 環境省水・大気環境局：水生生物による水質評価法マニュアルー日本版平均スコア法ー，2017
3) 環境省水・大気環境局：河川生物の絵解き検索，2017
4) 滋賀の理科教材研究委員会編：滋賀の水生昆虫・図解ハンドブック，2016
5) 川合禎次編：日本産水生昆虫検索図説，東京大学出版会，1985
6) 神奈川県環境科学センター：神奈川県版河川生物の絵解き検索，2021
7) 環境省水・大気環境局，国土交通省水管理・国土保全局編：川の生きものを調べよう　水生生物による水質判定，日本水環境学会，2012
8) 山崎正敏，他：河川の生物学的水域環境評価基準の設定に関する研究ー全国公害研協議会環境生物部会共同研究成果報告ー，全国公害研会誌，21，114～145，1996
9) 古川滝雄：福岡市内河川の水生底生動物に関する調査研究（多々良川の水生底生動物）（1992 年），福岡市衛生試験所調査研究報告書，1993
10) 山崎誠：福岡市内河川の水生底生動物に関する調査研究ー多々良川，1998 年ー，福岡市保健環境研究所報，24，81～93，1999
11) 廣田敏郎：水生底生動物による福岡市内河川の環境評価ー多々良川，2003 年ー，福岡市保健環境研究所報，29，123～130，2004
12) 岩佐有希子，他：福岡市内河川の底生動物をもちいた環境評価ー多々良川，2008 年ー，福岡市保健環境研究所報，34，53～60，2009
13) 清水徹也，他：福岡市内河川の底生動物をもちいた環境評価ー多々良川，2013 年ー，福岡市保健環境研究所報，39，76～83，2014
14) 益尾実希，他：福岡市内河川の底生動物を用いた環境評価ー多々良川，2018 年ー，福岡市保健環境研究所報，44，68～76，2019
15) 福岡市環境局：福岡市水質測定結果報告書
16) 益尾実希，他：福岡市内河川の底生動物を用いた環境評価ー那珂川，2019 年ー，福岡市保健環境研究所報，45，108～116，2020
17) 有本圭佑，他：福岡市内河川の底生動物を用いた環境

評価－御笠川, 2020 年－, 福岡市保健環境研究所報, 46，47～55，2021
18) 有本圭佑，他 : 福岡市内河川の底生動物を用いた環境評価－樋井川, 2021 年－, 福岡市保健環境研究所報, 47，75～83，2022
19) 有本圭佑，他 : 福岡市内河川の底生動物を用いた環境評価－室見川, 2022 年－, 福岡市保健環境研究所報, 48，89～98，2023

福岡市における酸性雨の状況（2008～2022 年度）

島田友梨・辻井温子・副田大介・中島亜矢子

福岡市保健環境研究所環境科学課

Observational studies of acid rain in Fukuoka City (FY 2008-2022)

Yuri SHIMADA, Atsuko TSUJII, Daisuke SOEDA and Ayako NAKASHIMA

Environmental Science Section, Fukuoka City Institute of Health and Environment

要約

福岡市では，1990 年度から酸性雨調査を行っている．今回，本市の降水における，2008～2022 年度の 15 年間の降水組成及び降水による酸や中和成分の沈着傾向について曲渕ダムを中心に解析し，城南区役所で測定している項目及び期間については両地点の比較も行った．15 年間で，pH は経年的に上昇傾向であり，非海塩成分（nss-SO_4^{2-}，NO_3^-，NH_4^+，nss-Ca^{2+}）は濃度，沈着量ともに減少傾向を示し，酸性化の改善が示唆された．また，NO_3^-/nss-SO_4^{2-}当量濃度比が上昇傾向であり，中国の排出ガス規制強化に伴う酸性成分の組成変化の可能性が考えられた．2018～2022 年度の城南区役所との比較では，経年的な傾向ははっきりと確認できなかったため，今後も 2 地点で調査を継続しデータを蓄積する必要がある．

Key Words：酸性雨　Acid rain，酸性沈着　Acid deposition，非海塩性　Non sea salt，大気汚染物質　Air pollutants，経年変化　Annual Variation

1　はじめに

火山等から噴出する二酸化硫黄の他，石油や石炭等の化石燃料の燃焼によって発生する硫黄酸化物及び窒素酸化物などの大気汚染物質は，大気中で硫酸や硝酸などの酸性物質に変化し，降水等に伴い地表面に沈着する．酸性物質の沈着は，健康被害や森林の衰退，人工物の劣化腐食等を引き起こし，いわゆる酸性雨の原因となる．日本では 1970 年代に関東地方に酸性度の強い雨が降り，目や喉の痛み等の健康被害や農作物被害が発生したことにより問題が表面化した[1)]．

そのような状況を背景として，国内では 1980 年代以降，環境省（庁）による全国調査[2)]，地方自治体の環境系の試験研究機関で構成される全国環境研協議会（以下，「全環研」とする．）による全国調査[3)]が実施されており，酸性雨についての知見を得ている．福岡市では 1990 年度から酸性雨調査を開始し[4)]，1991 年度からは，全環研による調査にも参画している．2001 年 10 月から曲渕ダム（以下，「曲渕」とする．）での調査を開始し，水素イオン指数（pH），電気伝導率（EC），降水量，イオン成分の測定を継続している．城南区役所（以下，「城南」とする．）では 1998 年度から pH，EC，降水量の調査を実施しているが，イオン成分については 2018 年度から測定を開始した．

今回，本市の降水における長期的な経年変化について曲渕を中心に解析し，城南で測定している項目及び期間については城南のデータを加えて解析したので報告する．

2　方法

2.1　調査期間

pH 及び降水量の経年変化解析では曲渕，城南ともに 2008 年 3 月 31 日から 2023 年 3 月 27 日（以下，「15 年間」とする．）を対象とした．イオン成分の経年変化も 15 年間を対象としたが，城南との比較の際には 2018 年 4 月 2 日から 2023 年 3 月 27 日（以下，「5 年間」とする．）を対象とした．

2.2　調査地点

調査地点を図 1 に示す．

曲渕は，本市の中心部から南西へ約 13 km，室見川上流の谷間標高約 170 m 地点に位置し，市街化調整区域に

属する．南側約 300 m に国道 263 号が通っているが，市街地に比べると交通量は少ない．国土交通省道路交通センサス（2021 年度）による国道 263 号の 24 時間交通量は 6710 台である[5]．

城南は，本市の中心部から南西約 3 km に位置し，商業地域に属する．南東約 130 m に国道 202 号が通り，周囲にはマンションが多く建ち並んでおり，国土交通省による同調査によると，国道 202 号の 24 時間交通量は 25610 台である[5]．



図 1　調査地点

2.3　試料採取方法及び測定方法

降雨の採取は，通年で原則 1 週間ごとに降雨時開放型自動雨水採取装置（小笠原計器（現 ANEOS 株式会社）製 US-330H）を用いて行った．採取した試料は，貯水量を計量後，湿性沈着モニタリング手引き書（第 2 版）（以下，「手引き書」とする．）[6]に基づき，pH，EC を測定し，残りを 0.2 μm フィルターでろ過を行った後にイオンクロマトグラフィーにてイオン成分濃度（硫酸イオン（SO_4^{2-}），硝酸イオン（NO_3^-），塩化物イオン（Cl^-），アンモニウムイオン（NH_4^+），ナトリウムイオン（Na^+），カリウムイオン（K^+），カルシウムイオン（Ca^{2+}），マグネシウムイオン（Mg^{2+}））を測定した．

測定方法は表 1 のとおりである．降水量は，貯水量を捕集面積で割って算出した．ただし，降雨が多くオーバーフローした週及び装置故障等により欠測した週は，曲渕については曲渕ダムの雨量計データを，城南については福岡管区気象台の観測データを代替降水量とした．また，手引き書[6]に基づき，イオンバランス（R1）及び電気伝導率のバランス（R2）による測定値の信頼性を評価し，すべての結果が許容範囲内にあることを確認した．

表 1　測定方法

測定項目	測定方法
pH	ガラス電極法
EC	導電率計法
イオン成分	イオンクロマトグラフ法

2.4　算出方法

2.4.1　海塩成分

日本列島は周囲を海に囲まれており，おもな大都市や工業地域はおおむね沿岸部に集中していることから，海塩の影響を受けやすい．本市も海に接した市であり，海塩の影響を受けていると考えられる．海塩は降水の酸性化には直接影響しないことから，降水等の酸性化の要因を検討する際には，人為発生源に由来する濃度や沈着量を把握するために，試料中の成分を海塩由来とそれ以外に分けて評価する必要がある[1]．本解析においては，試料中の Na^+，Cl^-，Mg^{2+}及び K^+は全て海塩由来であるとした．また，SO_4^{2-}と Ca^{2+}については，海水成分の濃度比率が海塩の発生から大気を経て降水中に溶解するまで変化しないものとして，降水中 Na^+と海塩中での Na^+の両成分の濃度比から次式により非海塩成分を算出した．ここで計算した非海塩性イオンは nss-（non-sea-salt）を，海塩性イオンは ss-（sea-salt）を前につけて区別した．

$$ss\text{-}SO_4^{2-}(\mu mol/L)=0.06028\times Na^+(\mu mol/L)$$
$$nss\text{-}SO_4^{2-}(\mu mol/L)=SO_4^{2-}(\mu mol/L)-ss\text{-}SO_4^{2-}(\mu mol/L)$$
$$ss\text{-}Ca^{2+}(\mu mol/L)=0.02161\times Na^+(\mu mol/L)$$
$$nss\text{-}Ca^{2+}(\mu mol/L)=Ca^{2+}-ss\text{-}Ca^{2+}(\mu mol/L)$$

（海水中の濃度を Na^+：468.3 mmol/L，SO_4^{2-}：28.23 mmol/L,Ca^{2+}：10.12 mmol/L とする．）

2.4.2　平均値及び年変化率

pH 及びイオン成分濃度の平均値は，降水量との加重平均により算出した．年平均値の算出には年間降水量，月平均値の算出には月間降水量を用いた．年変化率は最小二乗法による傾きで推定し，*t* 検定によりその有意性を確認した．

3　結果及び考察

3.1　降水量

各地点の年間降水量の経年変化を図 2 に示す．年間降水量は 1306 mm（城南）～2903 mm（曲渕）の範囲にあり，15 年間で増減はあるものの，大きな変化はなかった．曲渕と城南で増減の傾向は必ずしも一致しなかったが，

全ての期間で曲渕の方が多く，2019 年度の降水量が最も差が大きくその差は 876.2 mm であった．曲渕の降水量が多い傾向にあるのは，標高差が要因の一つと考えられる．

各地点の月別平均降水量を図 3 に示す．月別では，夏に多く，冬に少ない傾向であり，両地点ともに 7 月が最も多く曲渕で 405.5 mm，城南で 313.1 mm，曲渕は 1 月が最も少なく 98.0 mm, 城南は 2 月が最も少なく 70.9 mm であった．

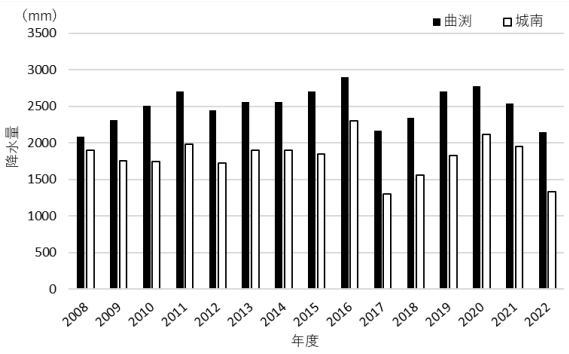


図 2　年間降水量の経年変化

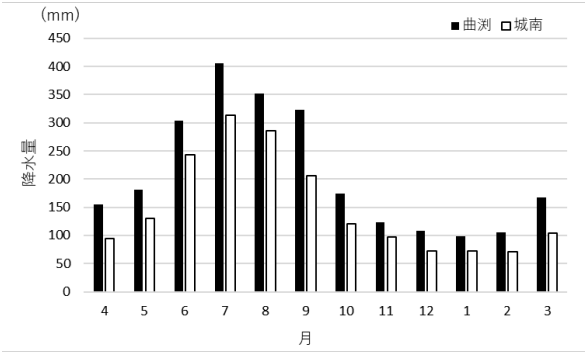


図 3　月別平均降水量

3.2　pH

3.2.1　経年変化

降水の酸性化に関与する成分は，前述のとおり非海塩成分であり, 降水の pH は, 非海塩性陰イオン（nss-SO_4^{2-}, NO_3^-）及び非海塩性陽イオン（nss-Ca^{2+}，NH_4^+）のバランスによって決まる．大気中の二酸化炭素が十分溶け込んだ場合の pH5.6 以下の降水のことを一般的に酸性雨と呼ぶ[7]．pH の経年変化を図 4 に示す．全ての期間で pH は 5.6 以下を示し，いわゆる酸性雨は継続していた．一方，曲渕では年 0.04 の上昇傾向（p<0.01），城南では年 0.03 の上昇傾向（p<0.01）を示し，特に 2021 年度には，両地点とも最高の 5.1 であった．pH の上昇傾向は全国的に見られており[8]，本市も酸性化からの回復兆候が示唆された. pH は水溶液の酸性と塩基性の程度を表す指標であり，水素イオン（H^+）濃度の常用対数をとって負号を付したもの（pH＝-$\log_{10}[H^+]$）である．つまり，pH が 1 上昇した場合，H^+濃度は 10 分の 1 に減少したことを示す．2008 年度と 2022 年度を比較すると，pH は 0.5 程度上昇しており, H^+濃度は約 3 分の 1 に減少したといえる．両地点の比較では，城南の pH が低い傾向であった．

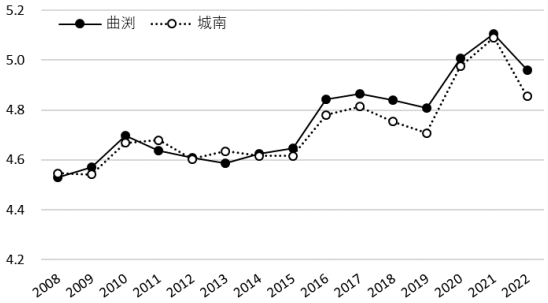


図 4　pH の経年変化

3.2.2　pH 分布

pH の箱ひげ図を図 5 に示す．期間を 2008～2012 年度（以下，「Ⅰ期」とする．），2013～2017 年度（以下，「Ⅱ期」とする．），2018～2022 年度（以下，「Ⅲ期」とする．）の 3 期間に分けた．曲渕の中央値は，Ⅰ期 4.5，Ⅱ期 4.6，Ⅲ期 4.8，城南の中央値はⅠ期 4.6，Ⅱ期 4.7，Ⅲ期 4.8 と両地点とも上昇傾向であった．また，pH4.0 を下回るような酸性度の高い降雨はⅠ期，Ⅱ期，Ⅲ期と減っており, 酸性化の低減が箱ひげ図からも確認できた．

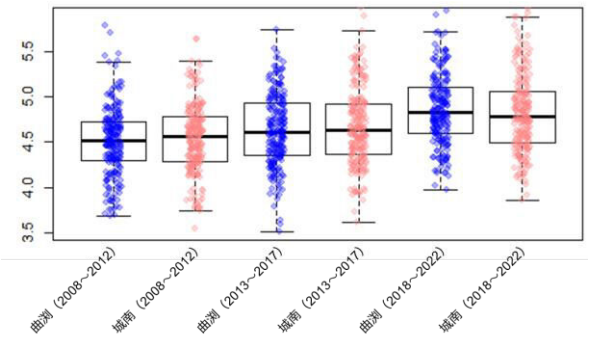


図 5　pH 箱ひげ図

3.2.3　経月変化

pH の月別推移を図 6 に示す．両地点とも冬に低下，春から夏にかけて上昇する傾向を示し，曲渕は 8 月で最も高く 4.9，城南は 7 月で 4.9 であった．最も低かったのは 12 月で，両地点とも 4.4 であった．降水量の月ごとの変化を示す図 3 と比較すると，pH は降水量と連動していた．降水量が多い夏は，雨による希釈で H^+濃度が低くなり，その結果 pH が高くなっていることが考えられた．冬は逆に降水量が少ないために大気中の酸性成分が少量の降雨に濃縮されることにより H^+濃度が高くなり pH が低くなったことが推察された．

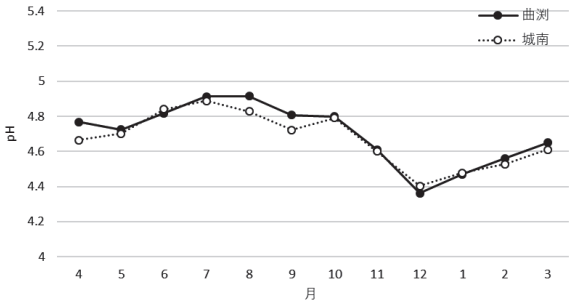


図 6　pH の月別推移

3.3　イオン成分濃度

pH は酸と塩基のバランスの結果であり，NO_3^-や SO_4^{2-}のような陰イオンと NH_4^+や Ca^{2+}のような陽イオンの種類と量によって決まってくる．したがって，降水中のイオン成分を測定し，総合的に解析する必要がある．

両地点におけるイオン成分濃度（nss-SO_4^{2-}，NO_3^-，NH_4^+，nss-Ca^{2+}，Mg^{2+}，K^+，Cl^-，Na^+）の経年変化を図 7 に示す．曲渕における 15 年間の経年変化では，海塩成分（Na^+，Cl^-，Mg^{2+}，K^+）は概ね横ばいで安定して存在している一方，その他の成分（nss-SO_4^{2-}，NO_3^-，NH_4^+，nss-Ca^{2+}）は減少傾向であった．年変化率では，nss-SO_4^{2-}の減少傾向は特に強く-0.8 μmol/L（p<0.01）であった．NO_3^-，NH_4^+，nss-Ca^{2+}はそれぞれ-0.7 μmol/L（p<0.01），-0.6 μmol/L（p<0.01），-0.1 μmol/L（p<0.05）であった．nss-SO_4^{2-}は，火山から排出されるガスや化石燃料の燃焼によって生じる二酸化硫黄を起源とし，本市では中国大陸由来の越境汚染の影響を示唆する物質でもある．中国の排出ガス規制強化により二酸化硫黄は経年的に減少しており，本市の $PM_{2.5}$ に含まれる SO_4^{2-}濃度も経年的に減少している[9]ことから，本市の降雨についても，越境汚染の影響が減少していると示唆された．nss-Ca^{2+}は主に土壌由来であり，本市では毎年飛来する黄砂の影響から，減少率が小さいと考えられた．両地点における 5 年間の経年変化では，海塩成分は両地点同程度もしくは城南の方が低い傾向にあった．その他の成分は城南の方が高い傾向にあった．城南を加えた 5 年間では，2022 年度にすべての成分が増加しているが，これが増加傾向への変化であるのか，又は減少傾向の中の一時的な変動であるのか，はっきりとした経年的傾向は確認できなかったため，今後も調査を継続しデータを蓄積する必要がある．

3.4　NO_3^-/nss-SO_4^{2-}当量濃度比

降水の質的な変化を解析するうえでは，降水量に依存しない nss-SO_4^{2-}に対する NO_3^-の当量濃度比（以下，「N/S 比」とする．）がしばしば用いられてきた[1)]．N/S 比は降水の酸性化にどちらの寄与が大きいかを示す指標である．曲渕における N/S 比の 15 年間の経年変化を図 8 に示す．既報[10)]によると，本市における 1992 年度の N/S 比は 0.32，1996 年度 0.50 であり，今回の解析では，2008 年度 0.58，2022 年度 0.79 と期間を通して 1 未満であり，nss-SO_4^{2-}の寄与が大きい状況が継続していた．一方で N/S 比は増加傾向であり，2008 年度以降は年率約 1.4%（p<0.05）の割合で増加していた．この増加は，降水の酸性化に寄与する成分が nss-SO_4^{2-}から NO_3^-に移行していることを示している．

このような N/S 比の増加傾向は日本列島の広い地域，特に日本海の沿岸地域で確認されており，東アジア地域の NOx 及び SO_2 排出量の変化に起因している可能性が指摘されている[1)]．本市の SO_2 及び NOx 排出量は単調に減少し続けている．一方中国では，SO_2 の単調な減少に対し（2015 年以降年率-8%），NOx 排出量は，2000 年代は増加し続け 2011 年をピークに減少傾向に転じたものの，2015 年以降では年率-3%と SO_2 と比較するとゆるやかな減少傾向である[11)]．また，2016～2019 年にかけて，越境汚染の影響を強く受ける長崎県福江島における $PM_{1.0}$ 中の NO_3^-/SO_4^{2-}比が増加しており，東アジア由来の大気中の組成比の変化が示されている[12)]．

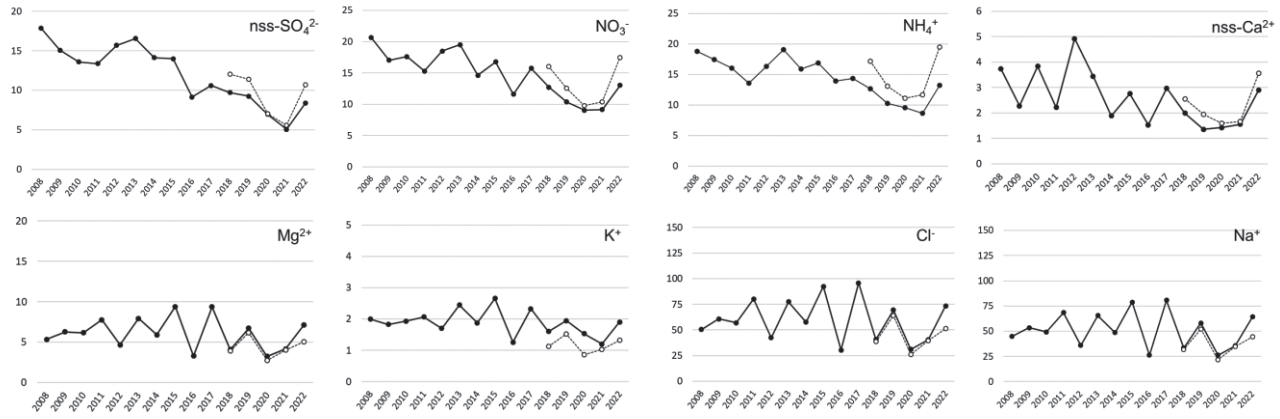


図 7　イオン成分濃度の経年変化（横軸：年度，縦軸：濃度（μmol/L），実線：曲渕，点線：城南）

したがって，中国の排出ガス規制強化に伴う SO_2 及び NOx の排出量の変化によって大気中の NO_3^-/ SO_4^{2-} 比が変化し，降水中の N/S 比が増加したと考えられた．今後も NOx の減少を上回る SO_2 の減少が続けば，N/S 比が 1 を超える可能性がある．曲渕及び城南の 5 年間の N/S 比の経年変化を図 9 に示す．2020 年度以降曲渕より城南の方が N/S 比が大きかった．越境汚染は広域的な汚染で本市域全体に同程度に影響すると考えると，この差は城南のローカルな人為的発生源の影響を示唆していると考えられた．

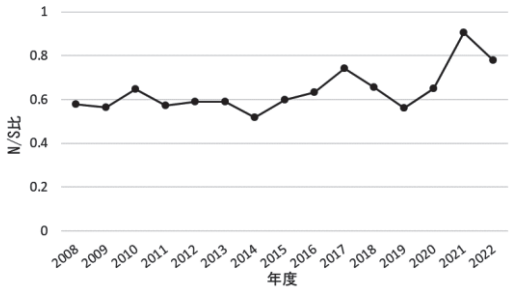


図 8　N/S 比の経年変化（15 年間）

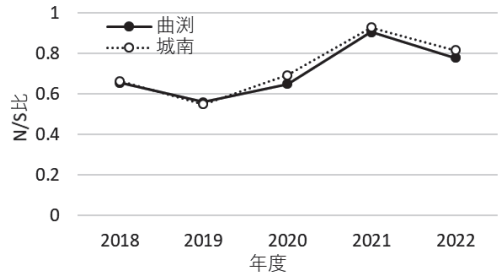


図 9　N/S 比の経年変化（5 年間）

3.5　沈着量

一般に酸性雨の影響を評価する場合，降水の成分濃度はあくまで 1 週間の短期的評価であり，酸性雨が及ぼす影響を把握するには，年間の雨量を考慮に入れた沈着量を用い，濃度に降水量を乗じた値で表される．降水の pH に主に影響を与えている非海塩成分の沈着量について経年変化を解析した．

曲渕における非海塩成分沈着量の経年変化を図 10 に示す．いずれの成分も経年的に減少傾向であった．また，城南との比較では，曲渕の沈着量の方が多い傾向であった．3.1 でも述べたように，曲渕の降水量が多いため，濃度が低くても雨が多く降ることにより沈着量が城南を上回ったと考えられた．

降水の酸性化に寄与する成分（nss-SO_4^{2-}，NO_3^-）の合計沈着量（以下，「酸性沈着」とする．）及び中和に寄与する成分（NH_4^+，nss-Ca^{2+}）の合計沈着量（以下，「中和沈着」とする．）についての経年変化を図 11 に示す．酸性沈着，中和沈着ともに減少傾向がみられ，酸性沈着量は年 2.7 mmol/m^2（p<0.01），中和沈着量は年 1.3 mmol/m^2（p<0.01）減少していた．酸性沈着及び中和沈着の合計を 100%とした場合の沈着割合の経年変化を図 12 に示す．酸性沈着割合は年-0.3%（p<0.01）と緩やかではあるが減少傾向であった．これらの減少は，降水量の経年推移（図 2）と連動していないことから，降水量の減少によるものではなく，その場に存在する汚染物質の量が減少している可能性が考えられた．

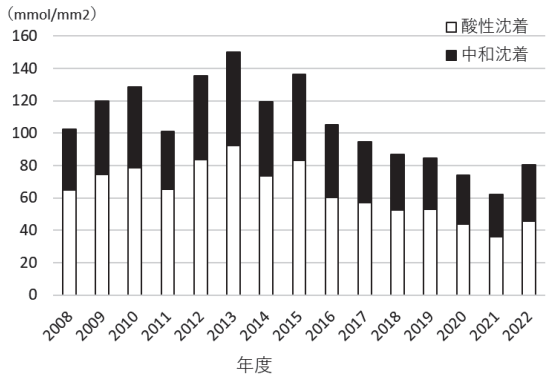


図 11　酸性沈着及び中和沈着の経年変化

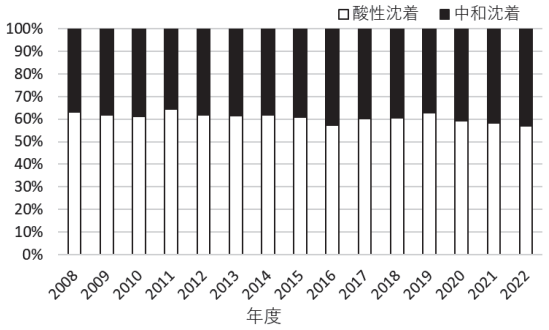


図 12　酸性沈着及び中和沈着割合の経年変化

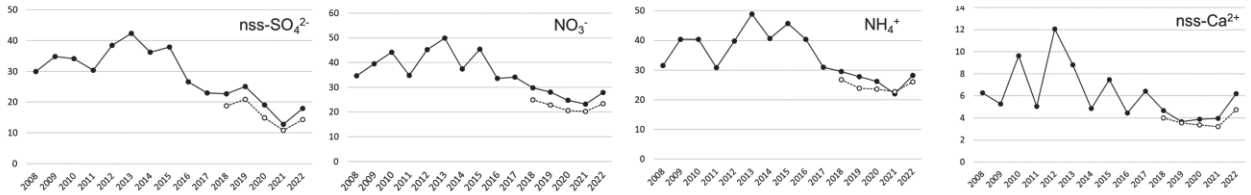


図 10　非海塩成分沈着量の経年変化（横軸：年度，縦軸：沈着量（mmol/m^2），実線：曲渕，点線：城南）

4　まとめ

本市の降水について，15 年間の降水組成及び降水による酸・中和成分の沈着傾向を，曲渕を中心に解析し，5 年間のイオン成分については城南のデータと比較した．

15 年間の経年変化から，以下のことが分かった．

（1）pH は期間通して 5.6 以下であり，いわゆる酸性雨は継続している一方で，pH は経年的に上昇傾向を示した．

（2）非海塩成分の濃度・沈着量ともに減少傾向で，酸性沈着量が減少傾向であったことから，酸性化の改善が示唆された．

（3）N/S 比が上昇傾向であり，中国の排出ガス規制強化の影響による酸性成分の組成変化の可能性が考えられた．

なお，5 年間の城南と曲渕の比較では，城南にローカルな人為的発生源由来の上乗せの可能性が考えられたが，経年的な傾向ははっきりとは確認できなかったため，今後も 2 地点で調査を継続しデータを蓄積する必要がある．

文献

1）藤田慎一，他：越境大気汚染の物理と化学改訂増補版，2017

2）環境省：越境大気汚染・酸性雨長期モニタリング計画，2019

3）全国環境研協議会：第 6 次酸性雨全国調査報告書 2019（令和元）年度，全国環境研会誌，46（3），2021

4）古川滝雄，他：福岡市における平成 2 年度の酸性雨の調査状況，福岡市衛誌報，16，52～56，1991

5）国土交通省：令和 3 年度全国道路・街路交通情勢調査一般交通量調査

6）環境省：湿性沈着モニタリング手引き書（第 2 版）

7）原宏：酸性雨－第 1 講－「酸性雨」と pH－，大気汚染学会誌，26（1），1991

8）環境省：越境大気汚染・酸性雨長期モニタリング報告書（平成 25～29 年度）

9）佐野七穂，他：福岡市における $PM_{2.5}$ 各成分の経年変化及び発生源寄与割合の推移，福岡市保健環境研究所報，47，55～65，2022

10）重岡昌代，他：降水における酸性成分の動態に関する調査研究（第 2 報），福岡市保健環境研究所報，23，145～80，1998

11）鵜野伊津志，他：中国における人為起源排出規制による東アジアスケールのエアロゾル組成の変化，エアロゾル研究，36（2），110～114，2021

12）吉野彩子，他：長崎福江島における大気質観測―COVID-19 による越境大気汚染への影響―，大気環境学会誌，55（6），248～251，2020

Ⅷ　資　　料

令和５年度 食中毒・相談等に伴う保健所からの依頼検査

保健科学課 細菌，ウイルス担当

No.	保健所	受付日	喫食又は購入施設	喫食者数	発症者数	潜伏期間	主症状	原因食品	検体 (陽性数/検体数)	病因物質	備考
1	城南	4/2	飲食店	259	72	平均 21.1時間	下痢, 嘔吐, 発熱，倦怠感，嘔気, 腹痛, 悪寒, 頭痛	当該施設が令和5年3/27 - 3/30にかけて提供した食事（推定）	ウイルス有症者便（1/1）	ノロウイルスGII.4	岡山県依頼
2	東 城南	4/12	飲食店	28	25	3 - 12 時間	嘔吐，下痢	当該施設が4/11に提供した「ヒラメの刺身」	有症者便（7/23） 従業員便（0/2） ふきとり（0/4） ウイルス有症者便（0/6）	クドア・セプテンプンクタータ	有症者便6検体からクドア・セプテンプンクタータ検出 有症者便1検体からウェルシュ菌検出
3	南	4/13	飲食店	不明	2	不明	下痢, 発熱, 腹痛, 嘔吐, 吐気	不明	有症者便（2/2）	カンピロバクター・ジェジュニ	
4	南 博多	4/14	飲食店	32	11	不明	嘔吐, 下痢, 発熱	当該施設が4/8から4/9にかけて提供した食事	ウイルス有症者便（4/4）	ノロウイルスGII	熊本県依頼 有症者便4検体からノロウイルスGII.2を検出
5	南	4/19	飲食店	8	5	不明	下痢, 発熱, 吐気, 頭痛, 腹痛	不明	有症者便（0/3） 従業員便（0/4） ふきとり（0/4）	カンピロバクター属菌	
6	早良	5/16	飲食店	31	23	不明	下痢, 発熱, 嘔吐	当該施設が5/12に製造した弁当	従業員便（0/2） ふきとり（0/5） ウイルス従業員便（0/2） ウイルス検食（0/1）	ノロウイルスGII.7	
7	中央 城南 早良	5/31	飲食店	6	6	不明	下痢, 嘔吐, 発熱	当該施設が5/27に製造した弁当	有症者便（0/5） 従業員便（0/1） ふきとり（0/4） ウイルス有症者便（5/5） ウイルス従業員等便（1/1） ウイルス検食（0/4）	ノロウイルスGII.7	
8	博多 中央	6/1	飲食店	13	6	48 - 96 時間	下痢, 腹痛, 発熱, 頭痛, 吐気，嘔吐	当該施設が5/26に提供した居酒屋料理	有症者便（5/9）	カンピロバクター・ジェジュニ	
9	博多	6/2	飲食店	7	3	約 77 時間	下痢, 腹痛, 発熱，嘔吐	当該施設が5/25に提供した食事	有症者便（1/1） ウイルス有症者便（0/1）	カンピロバクター・ジェジュニ	佐賀県依頼

No.	保健所	受付日	喫食又は購入施設	喫食者数	発症者数	潜伏期間	主症状	原因食品	検体 (陽性数/検体数)	病因物質	備考
10	早良	6/5	給食施設（高齢者施設）	41	19	12 - 96 時間	下痢, 発熱, 腹痛	当該施設が6/1に夕食として提供した「鶏肉のトマト煮（施設給食）」	有症者便（10/11） 従業員便（1/5） ふきとり（0/3） 検食（1/47） 水（0/3） ウイルス有症者便（0/6）	病原性大腸菌 O159 及び O86a	有症者便9検体，従業員便1検体及び検食1検体から病原性大腸菌O159及びO86a検出 有症者便1検体から病原性大腸菌O86a検出
11	中央	6/21	飲食店	4	3	不明	発熱，下痢	不明	有症者便（2/2） 従業員便（0/2） ふきとり（0/4）	不明	有症者便2検体からカンピロバクター・ジェジュニ検出
12	博多	6/22	飲食店	4	2	48 - 96 時間	発熱, 下痢, 頭痛，腹痛	当該施設が6/8に提供した居酒屋料理	菌株（2/3）	カンピロバクター・ジェジュニ	菌株の1検体はカンピロバクター・ジェジュニ遺伝子が検出されたが, 培養できない状態であった
13	西	6/30	飲食店	10	4	不明	腹痛, 下痢, 発熱	不明	菌株（1/1）	カンピロバクター・ジェジュニ	
14	南	7/6	飲食店	4	2	不明	腹痛, 下痢, 発熱	不明	有症者便（1/1） ウイルス有症者便（0/1）	不明	有症者便1検体からカンピロバクター・ジェジュニ検出
15	東	7/11	飲食店	3	3	39.5 - 51.5 時間	下痢, 腹痛, 発熱	当該施設が7/5に提供した「焼き鳥」	有症者便（1/1） ウイルス有症者便（0/1）	カンピロバクター・ジェジュニ	東京都依頼
16	博多 中央	7/13	飲食店	4	4	不明	腹痛, 下痢, 発熱, 頭痛, 吐気	不明	有症者便（1/2） 菌株（1/1） 従業員便（0/2） ふきとり（0/4）	不明	有症者便1検体及び菌株1検体からカンピロバクター・ジェジュニ検出
17	博多	7/20	飲食店	8	6	36 時間 -	下痢, 腹痛, 発熱，倦怠感，頭痛，悪寒	当該施設が7/8に提供した食事	有症者便（0/1）	カンピロバクター・ジェジュニ及びサルモネラ属菌（血清型Corvallis）	福岡県依頼
18	博多	8/23	飲食店	5	5	不明	下痢，腹痛	不明	有症者便（0/1）	不明	
19	博多	8/23	飲食店	3	2	不明	腹痛, 下痢, 吐気, 嘔吐, 悪寒	不明	有症者便（0/1）	不明	
20	西	8/30	飲食店	99	36	14 - 150 時間	下痢, 腹痛, 発熱	当該施設が8/11 - 13にかけて提供した夕食及び8/12に提供した昼食	有症者便（0/1）	腸管出血性大腸菌 O157（MLVA Comp：23c037）	三重県依頼
21	東	9/5	飲食店	2	2	不明	腹痛, 下痢, 吐気，発熱	不明	有症者便（1/2） 従業員便（1/3） ふきとり（0/4） ウイルス有症者便（0/2）	カンピロバクター・ジェジュニ	

No.	保健所	受付日	喫食又は購入施設	喫食者数	発症者数	潜伏期間	主症状	原因食品	検体 (陽性数/検体数)	病因物質	備考
22	中央	9/5	飲食店	8	4	24 - 96時間	下痢, 発熱, 腹痛, 頭痛, 嘔吐, 吐気	当該施設が8/28に提供したコース料理	有症者便（1/3） 菌株（2/2） 従業員便（0/2） ふきとり（0/6）	カンピロバクター・ジェジュニ/コリ	
23	東	9/21	そうざい製造業	不明	554	不明	嘔吐, 下痢, 吐気, 腹痛	当該施設が9/15及び9/16に製造した弁当	有症者便（3/3） ウイルス有症者便（0/2）	黄色ブドウ球菌（エンテロトキシンA型）及びセレウス菌（エンテロトキシン産生）	八戸市依頼 有症者便1検体から黄色ブドウ球菌（エンテロトキシンA型）及び病原性大腸菌eaeA遺伝子検出 有症者便1検体から黄色ブドウ球菌（エンテロトキシンA型）検出 有症者便1検体から病原性大腸菌eaeA遺伝子検出
24	東	9/25	飲食店	5	2	不明	発熱, 腹痛, 下痢	不明	有症者便（0/1）	不明	
25	中央	10/24	飲食店	2	2	不明	発熱,倦怠感, 腹痛, 下痢	不明	従業員便（0/1） ふきとり（0/4）	不明	東京都依頼
26	中央	10/26	飲食店	2	2	不明	下痢, 吐気, 頭痛, 腹痛,	不明	有症者便（2/2） ウイルス有症者便（0/2）	カンピロバクター・ジェジュニ	
27	早良	10/31	飲食店	不明	1	不明	腹痛, 下痢	不明	有症者便（0/1）	不明	
28	中央	11/6	飲食店	31	15	18 - 103.5時間	下痢, 発熱, 腹痛	当該施設が10/27に提供した「鶏炙りレバ刺し（推定）」	従業員便（0/3） ふきとり（0/4）	カンピロバクター・ジェジュニ	熊本県依頼
29	東 西	11/7	飲食店	9	3	2 - 6時間	嘔吐,下痢	当該施設が11/3に提供した「ヒラメの刺身」	有症者便（2/4） 従業員便（0/3） ふきとり（0/2） ウイルス有症者便（0/2）	クドア・セプテンプンクタータ	有症者便1検体からクドア・セプテンプンクタータ及びユニカプスラ・セリオラ検出 有症者便1検体からユニカプスラ・セリオラ検出
30	中央	11/27	飲食店	4	3	不明	下痢, 発熱, 頭痛, 腹痛	不明	有症者便（2/2） 従業員便（0/2） ふきとり（0/5） ウイルス有症者便（0/2）	カンピロバクター・ジェジュニ	
31	中央	12/7	飲食店	8	6	不明	下痢, 嘔吐, 発熱	不明	有症者便（0/4） ウイルス有症者便（4/4）	不明	北九州市依頼 有症者便4検体からノロウイルスGII.4検出

No.	保健所	受付日	喫食又は購入施設	喫食者数	発症者数	潜伏期間	主症状	原因食品	検体 (陽性数/検体数)	病因物質	備考
32	東	12/20	飲食店	2	2	不明	嘔吐, 下痢, 冷汗	不明	残品（0/1） 吐物（0/1） ウイルス吐物（0/1）	不明	
33	中央	1/5	飲食店	3	3	不明	腹痛, 下痢	不明	有症者便（1/2）	不明	有症者便1検体からカンピロバクター・ジェジュニ検出
34	南 中央 早良 西	1/6	飲食店	61	22	6 － 18 時間程度	下痢, 腹痛	当該施設が1/3に提供した「ローストビーフ（推定）」	有症者便（11/12） 従業員便（0/8） ふきとり（0/5） 検食（0/22） ウイルス有症者便（0/8）	ウェルシュ菌	有症者便10検体からウェルシュ菌検出 有症者便1検体からカンピロバクター・ジェジュニ検出
35	城南 西	1/12	飲食店	14	12	9 - 62.5 時間	発熱, 下痢, 嘔気	当該施設が1/8に提供した食事	有症者便（0/2） ウイルス有症者便（2/2）	ノロウイルスGII.17	福岡県依頼
36	早良 中央	1/15	飲食店	224	111	- 60 時間	下痢, 腹痛 吐気, 発熱, 嘔吐, 頭痛	当該施設が1/11に製造した弁当	有症者便（0/13） 従業員便（0/3） ふきとり（0/4） ウイルス有症者便（18/19） ウイルス従業員便（1/16） ウイルス検食（0/6）	ノロウイルスGII.7	
37	博多	1/18	飲食店	7	4	不明	発熱, 腹痛, 下痢	不明	有症者便（0/1）	不明	長崎市依頼
38	博多	1/20	飲食店	23	17	不明	下痢, 嘔気, 嘔吐, 発熱	当該施設が1/15に提供した食事	有症者便（0/15） ウイルス有症者便(14/14)	ノロウイルス	福岡県依頼 有症者便14検体からノロウイルスGII.4検出
39	東 中央	2/2	飲食店	3	3	不明	下痢, 嘔吐, 発熱, 頭痛	不明	有症者便（0/1） 従業員便（0/3） ふきとり（0/4） ウイルス有症者便(1/1) ウイルス従業員便(0/3)	不明	有症者便1検体からノロウイルスGI.3及びGII検出
40	城南	2/16	飲食店	4	2	不明	下痢, 発熱, 腹痛	不明	有症者便（1/1）	カンピロバクター・ジェジュニ	
41	南 博多	2/16	飲食店	8	5	不明	腹痛, 下痢	不明	有症者便（0/1） 従業員便（0/6） ウイルス有症者便（0/1） ウイルス従業員便（0/5）	不明	
42	早良	2/23	飲食店	10	6	不明	下痢, 腹痛, 嘔吐	当該施設が2/20に提供した弁当	有症者便（0/7） 従業員便（0/3） ふきとり（0/5） ウイルス有症者便（4/7） ウイルス従業員便（2/3）	ノロウイルス	有症者便3検体及び従業員便2検体からノロウイルスGII.2検出 有症者便1検体からノロウイルスGI.3検出
43	城南	2/29	飲食店	19	6	不明	吐気, 嘔吐, 発熱	不明	有症者便（0/1） ウイルス有症者便（1/1）	不明	佐賀県依頼 有症者便1検体からノロウイルスGII.7検出

No.	保健所	受付日	喫食又は購入施設	喫食者数	発症者数	潜伏期間	主症状	原因食品	検体 (陽性数/検体数)	病因物質	備考
44	博多	3/6	飲食店	2	2	不明	発熱，下痢	不明	有症者便（1/1）	不明	宮城県依頼 有症者便1検体からカンピロバクター・ジェジュニ検出
45	東	3/9	飲食店	12	7	不明	嘔吐，発熱，下痢，倦怠感，嘔気，悪寒，腹痛	不明	有症者便（0/4） ウイルス有症者便（2/2）	不明	大阪市依頼 有症者便1検体からノロウイルスGII.7を検出 有症者便1検体からノロウイルスGI.1及びGII.7を検出

令和 5 年度　感染症発生動向調査事業関連のウイルス検査結果

保健科学課　ウイルス担当

福岡市保健環境研究所では平成 4 年から福岡県結核・感染症発生動向調査事業に参加しており，現在，8 医療機関 9 病原体定点を対象に検査を行っている．表 1 に臨床診断名別ウイルス検査結果を示す.

令和 5 年度，病原体定点より採取された検体は，41 名，72 検体であった．患者数，検体数ともに無菌性髄膜炎が最も多かった.

表 1 令和 5 年度 臨床診断名別ウイルス検査結果

臨床診断名	患者数	検体数	陽性数	検体	検出ウイルス(株数)
インフルエンザ	15	15	15	咽頭ぬぐい液	インフルエンザ A/H1pdm09 型(7)，インフルエンザ A/H3 型(4)，インフルエンザ B/Victoria 系統(4)
咽頭結膜熱	1	1	0	咽頭ぬぐい液	
感染性胃腸炎	3	7	2	咽頭ぬぐい液	
				血液	
				糞便	A 群ロタウイルス(1)，サポウイルス(1)
手足口病	3	6	1	咽頭ぬぐい液	エンテロウイルス 71 型(1)
				血液	
				糞便	
突発性発しん	2	5	0	咽頭ぬぐい液	
				血液	
				糞便	
ヘルパンギーナ	4	10	0	咽頭ぬぐい液	
				血液	
				糞便	
				喀痰	
				その他	
無菌性髄膜炎	12	27	16	咽頭ぬぐい液	コクサッキーB2 型(1)，コクサッキーB4 型(1)，コクサッキーB5 型(1)
				血液	
				髄液	コクサッキーB2 型(1)，コクサッキーB4 型(1)，コクサッキーB5 型(5)
				尿	
				糞便	コクサッキーB2 型(1)，コクサッキーB5 型(3)
				喀痰	コクサッキーB5 型(2)
RS ウイルス感染症	1	1	1	咽頭ぬぐい液	RS ウイルス(1)
計	41	72	35		

表 2 に月別，検査法別ウイルス検出状況を示す．ウイルスの検出は細胞（RD-18S，VeroE6，HEp-2，Caco-2，MDCK）培養，PCR 等で行った．その結果，35 株のウイルスを検出した．検出率は 48.6%であった．

表 2　令和 5 年度 検体採取月別及び検査法別ウイルス検出状況

検出ウイルス	検体採取月別ウイルス検出状況												検出数	検査方法別ウイルス検出状況					
														組織培養法				※	PCR
	4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3		R	V	H	C	M	
A 群ロタウイルス	1												1						1
サポウイルス		1											1						1
インフルエンザ A/H1pdm09 型						1	1	1	4				7					7	2
インフルエンザ A/H3 型							3				1		4					4	
インフルエンザ B/Victoria 系統									1	3			4					4	
コクサッキーB2 型								3					3		2		3		3
コクサッキーB4 型					2								2	2	1	2	2		2
コクサッキーB5 型			3	8									11	8	5	9	8		8
エンテロウイルス 71 型						1							1						1
RS ウイルス												1	1	1		1			
計	1	1	3	8	2	2	4	4	5	3	1	1	35	11	8	12	13	15	18

※　細胞名の略称　R: RD-18S，V: VeroE6，H: HEp-2，C: Caco-2，M:MDCK

令和 5 年度 三類感染症発生状況

保健科学課　感染症担当

1　腸チフス

令和 5 年度は，福岡市において 5 年ぶりに 2 事例発生がみられた．発生状況を表 1 に示す．菌株は国立感染症研究所での精査の結果，事例 1 はファージ型 UVS4 で，アンピシリン，シプロフロキサシン及びスルファメトキサゾール・トリメトプリムの 3 薬剤に耐性を示し，事例 2 はファージ型 E1 で，ナリジクス酸及びシプロフロキサシンの 2 薬剤に耐性を示した．

表1　腸チフスの発生状況

事例	発生日	年齢	性別	保健所	血清型	参考情報
1	2023/7/28	29	M	東	*S.*Typhi	入院事例　ニジェールから訪日
2	2023/8/2	27	M	南	*S.*Typhi	入院事例　ネパール渡航歴あり

2　腸管出血性大腸菌感染症

令和 5 年度は 71 事例 87 名の感染者が発生した．腸管出血性大腸菌感染症の月別感染者数を図 1 に，発生状況を表 2 に示す．血清型は，O157 が 51 名（58.6%），O26 が 6 名（6.9%），O121，OUT（型不明）がそれぞれ 4 名（4.6%），O103 が 3 名（3.4%），O5，O15，O91，O111，O128，O145 がそれぞれ 2 名（2.3%），O8，O18，O70，O88，O148，O165，O170 がそれぞれ 1 名（1.1%）であった（複合感染による重複あり）．また，無症状病原体保有者は 21 名（24.1%）であった．

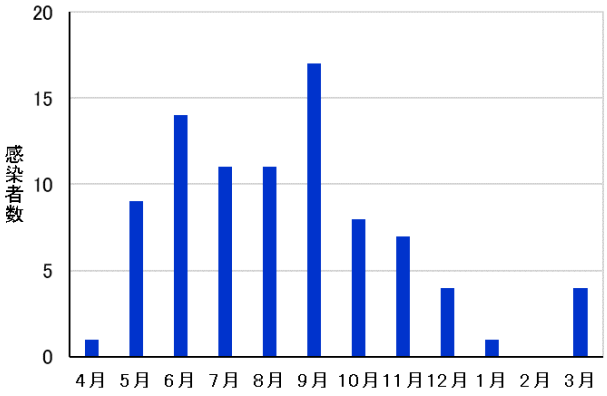


図 1　令和 5 年度腸管出血性大腸菌感染症の月別感染者数

表 2　腸管出血性大腸菌感染症の発生状況

事例	発生日	年齢	性別	保健所	血清型	毒素型	参考情報
1	2023/4/19	22	F	博多	O8:H-	VT2	無症　定期検便
2	2023/5/8	13	M	早良	O70:H11	VT1	焼肉喫食
3-1	2023/5/16	7	M	西	O26:H11	VT1	
3-2	2023/5/16	9	M	西	O26:H11	VT1	3-1 の家族
3-3	2023/5/17	7	M	西	O26:H11	VT1	3-1 の家族
3-4	2023/5/17	5	F	西	O26:H11	VT1	3-1 の家族
4-1	2023/5/17	52	F	城南	O157:H7	VT1&2	焼肉喫食
4-2	2023/5/20	52	M	城南	O157:H7	VT1&2	4-1 の家族　焼肉喫食
5	2023/5/22	30	M	東	O121:H19	VT2	生レバー，ユッケ喫食

事例	発生日	年齢	性別	保健所	血清型	毒素型	参考情報
6	2023/5/30	25	F	博多	O103:H2	VT1	馬刺喫食
7	2023/6/8	21	M	博多	O157:H7	VT2	入院事例
8-1	2023/6/10	3	M	西	O157:H7	VT2	
8-2	2023/6/13	41	F	西	O157:H7	VT2	無症　8-1 の家族
8-3	2023/6/13	9	M	西	O157:H7	VT2	8-1 の家族
9	2023/6/13	30	M	城南	O157:H7	VT2	
10	2023/6/13	19	F	早良	O157:H7	VT2	ステーキ，焼肉喫食
11	2023/6/14	7	F	西	O157:H7	VT1&2	
12-1	2023/6/16	37	F	博多	O157:H7	VT1&2	入院事例
12-2	2023/6/17	10	M	博多	O157:H7	VT1&2	12-1 の家族
13	2023/6/17	19	M	博多	O157:H7	VT2	
14	2023/6/23	38	M	東	O157:H7	VT1&2	サーロインカルパッチョ，肉寿司喫食
15	2023/6/26	11	M	西	O157:H7	VT2	
16	2023/6/26	54	F	早良	O26:H11	VT1	無症
17	2023/6/28	20	F	博多	O88:H12	VT1	無症　定期検便
18-1	2023/7/6	78	F	早良	O157:H-	VT2	入院事例
18-2	2023/7/10	75	M	早良	O157:H-	VT2	無症　18-1 の家族
19	2023/7/10	17	F	南	O157:H7	VT2	
20-1	2023/7/10	6	M	西	O5:H-	VT1	
20-2	2023/7/13	40	F	西	O5:H-	VT1	無症　20-1 の家族
21	2023/7/12	43	F	南	O157:H7	VT1&2	入院事例
22	2023/7/19	74	F	城南	O121:H19	VT2	
23	2023/7/19	31	M	博多	O157:H7	VT2	焼肉喫食
24	2023/7/21	45	M	南	O157:H7	VT2	
25	2023/7/28	73	M	東	O111:H-	VT1&2	すき焼き喫食
26	2023/7/28	25	F	東	O111:H-	VT1	無症　定期検便
27	2023/8/15	4	F	東	O157:H7	VT2	入院事例　馬刺喫食
28	2023/8/16	76	M	南	OUT:H25	VT1&2	無症
29-1	2023/8/16	44	F	博多	O157:H7	VT1&2	ハツ刺，焼肉喫食
29-2a	2023/8/18	12	M	博多	O157:H-	VT2	無症　29-1 の家族 ハツ刺，焼肉喫食 異なる 2 株分離
29-2b	2023/8/18	12	M	博多	O157:H7	VT1&2	異なる 2 株分離
30	2023/8/16	34	M	博多	O157:H7	VT1&2	

事例	発生日	年齢	性別	保健所	血清型	毒素型	参考情報
31	2023/8/16	20	M	中央	O157:H7	VT1&2	入院事例 焼肉，肉寿司喫食
32a	2023/8/17	51	M	南	OUT:H25	VT1&2	無症　異なる 2 株分離
32b	2023/8/17	51	M	南	O148:H28	VT1&2	異なる 2 株分離
33-1	2023/8/22	4	F	西	O157:H7	VT1&2	焼肉喫食
33-2	2023/8/22	6	F	西	O157:H7	VT1&2	33-1 の家族　焼肉喫食
34-1	2023/8/29	15	M	早良	O145:H-	VT1	ユッケ，レバ刺， センマイ刺喫食
34-2	2023/8/31	47	F	早良	O145:H-	VT1	34-1 の家族
35-1	2023/9/1	7	F	南	O157:H-	VT1&2	ハンバーグ喫食
35-2	2023/9/2	11	F	南	O157:H-	VT1&2	35-1 の家族 ハンバーグ喫食
35-3a	2023/9/2	74	F	南	O157:H7	VT2	35-1 の家族 ステーキ，ハンバーグ喫食 異なる 2 株分離
35-3b	2023/9/2	74	F	南	O157:H-	VT1&2	異なる 2 株分離
35-4	2023/9/2	71	M	南	O157:H-	VT1&2	35-1 の家族 ハンバーグ喫食
36	2023/9/5	80	F	南	O103:H2	VT1	入院事例
37	2023/9/6	9	F	城南	O165:H-	VT1&2	
38	2023/9/6	27	F	博多	O157:H7	VT1&2	焼肉喫食
39	2023/9/9	38	M	博多	O157:H7	VT1&2	焼肉喫食
40-1	2023/9/12	33	F	南	O15:H12	VT1	牛しゃぶ喫食
40-2	2023/9/13	1	M	南	O15:H12	VT1	40-1 の家族
41	2023/9/14	17	M	博多	O121:H19	VT2	
42	2023/9/15	41	F	南	O121:H19	VT2	入院事例
43	2023/9/15	23	F	東	O157:H7	VT2	無症
44	2023/9/19	12	M	博多	O157:H7	VT2	
45	2023/9/20	27	M	東	O157:H7	VT2	ハツ刺，焼肉喫食
46	2023/9/20	29	F	東	O170:H18	VT2	無症　定期検便
47	2023/9/26	21	F	東	O128:H2	VT1&2	無症　定期検便
48	2023/10/2	7	M	東	O157:H7	VT2	入院事例
49	2023/10/2	55	F	博多	O103:H2	VT1	無症
50	2023/10/5	18	F	博多	O18:H-	VT2	無症
51	2023/10/5	61	F	城南	O157:H7	VT2	入院事例
52	2023/10/10	58	F	西	O91:H-	VT2	焼肉喫食
53	2023/10/19	45	F	南	O157:H-	VT2	無症　定期検便

事例	発生日	年齢	性別	保健所	血清型	毒素型	参考情報
54	2023/10/20	11	M	東	O157:H7	VT2	牛生レバー，生ハツ喫食
55	2023/10/23	12	F	博多	O157:H7	VT1&2	入院事例
56	2023/11/2	29	M	南	O157:H7	VT2	
57	2023/11/6	76	F	南	O157:H7	VT1&2	入院事例 牛しゃぶ，ハンバーグ喫食
58	2023/11/7	16	M	南	O157:H7	VT1&2	焼肉喫食
59	2023/11/14	15	M	中央	O157:H-	VT1&2	ハンバーグ喫食
60	2023/11/16	22	F	南	O157:H-	VT1&2	ハンバーグ喫食
61	2023/11/17	55	M	南	O157:H-	VT1&2	ハンバーグ喫食
62	2023/11/20	21	F	南	O128:H2	VT1&2	無症　定期検便
63	2023/12/1	18	M	城南	OUT:H45	VT1&2	無症　焼肉喫食
64	2023/12/6	29	F	東	O157:H7	VT2	無症　定期検便
65	2023/12/15	12	M	中央	O157:H7	VT1&2	
66	2023/12/18	20	F	東	O91:H-	VT1&2	無症　定期検便
67	2024/1/12	13	F	中央	O157:H-	VT1&2	入院事例
68	2024/3/1	83	M	南	O157:H7	VT2	
69	2024/3/9	48	F	南	OUT:H19	VT2	焼肉喫食
70	2024/3/11	51	F	南	O26:H11	VT1	
71	2024/3/28	34	F	東	O183:H18	VT1&2	無症　焼肉喫食 定期検便

令和５年度 感染症（細菌）の分子疫学解析結果

保健科学課　感染症担当

１　腸管出血性大腸菌（EHEC）

表１　菌株情報

No.	菌株番号	血清型	毒素型	MLVA type	備考
1	23-008	O121:H19	VT2	23m5004	R5年5月分離
2	23-032	O121:H19	VT2	23m5007	R5年7月分離
3	23-061	O121:H19	VT2	23m5011	R5年9月分離
4	23-065	O121:H19	VT2	23m5011	R5年9月分離，No.3と共通事項なし

表2　パルスフィールドゲル電気泳動（PFGE）法の検査条件

プロティナーゼK処理	（濃度，反応温度，反応時間）	1mg/mL，50℃，20hr（overnight）
制限酵素処理	（使用酵素，酵素量，反応温度，反応時間）	Xba I，30U/プラグ，37℃，3hr
電気泳動条件	（アガロース濃度，電圧，泳動buffer温度，電圧角度）	1%，6V/cm，14℃，120°
	（スイッチング時間，泳動時間）	2.2s～54.2s，19hr

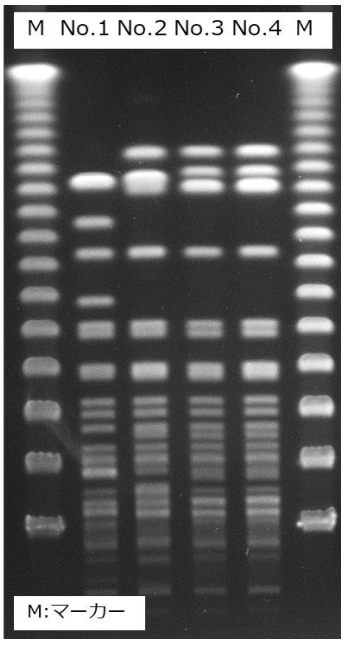


図１　EHEC の PFGE 泳動像

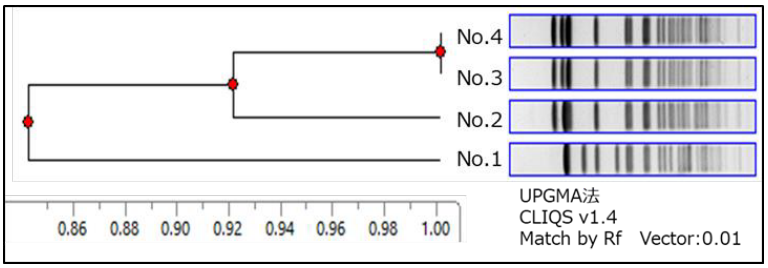


図２　EHEC の PFGE デンドログラム

表３　EHEC 4 株の類似度（Dice 法）

検体	No.1	No.2	No.3	No.4
No.1	1.00	0.74	0.74	0.74
No.2	0.74	1.00	0.87	0.87
No.3	0.74	0.87	1.00	1.00
No.4	0.74	0.87	1.00	1.00

分子疫学解析結果：検体No.3とNo.4は同一由来

2　レジオネラ属菌

表 4　菌株情報

No.	検体名	菌種		備考
1	患者分離株	*Legionella pneumophila*	SG1	気管支洗浄液から分離
2	患者利用施設シャワー水 分離株①	*Legionella pneumophila*	SG1	出し始めの水，貯湯槽
3	患者利用施設シャワー水 分離株②	*Legionella pneumophila*	SG1	流水安定後の水，貯湯槽

表5　パルスフィールドゲル電気泳動（PFGE）法の検査条件

プロティナーゼK処理	（濃度，反応温度，反応時間）	0.1mg/mL，50℃，1hr
制限酵素処理	（使用酵素，酵素量，反応温度，反応時間）	Sfi Ⅰ，50U/プラグ，50℃，4hr
電気泳動条件	（アガロース濃度，電圧，泳動buffer温度，電圧角度）	1%，6V/cm，14℃，120°
	（スイッチング時間，泳動時間）	5.0s～50s，21hr

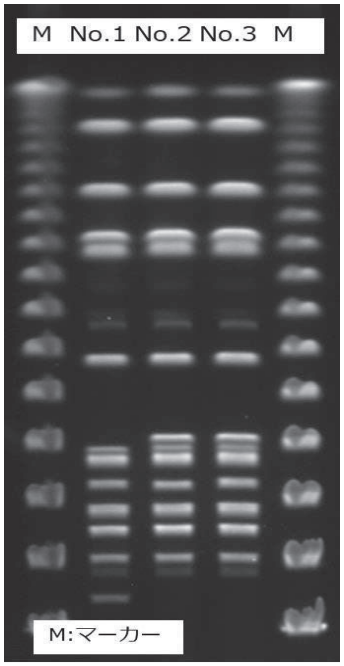


図 3　レジオネラ属菌の PFGE 泳動像

表 6　レジオネラ属菌 3 株の類似度（Dice 法）

検体	No.1	No.2	No.3
No.1	1.00	0.94	0.94
No.2	0.94	1.00	1.00
No.3	0.94	1.00	1.00

分子疫学解析結果：検体No.1～No.3は同一由来の可能性が高い

3　バンコマイシン耐性腸球菌（VRE）

表 7　菌株情報

No.	菌株番号	菌種	耐性遺伝子	備考
1	23-0012	*Enterococcus faecium*	*vanA*	R5に市内医療機関で分離
2	23-0022	*Enterococcus faecium*	*vanA*	R5にNo.1と同じ医療機関で分離
3	23-0023	*Enterococcus faecium*	*vanB*	R5に市内医療機関で分離
4	21-0005	*Enterococcus faecium*	*vanA*	R3に市内医療機関で分離（参考に実施）

表8　パルスフィールドゲル電気泳動（PFGE）法の検査条件

リゾチーム処理	（濃度，反応温度，反応時間）	2mg/mL，37℃，20hr（overnight）
プロティナーゼK処理	（濃度，反応温度，反応時間）	1mg/mL，50℃，20hr（overnight）
制限酵素処理	（使用酵素，酵素量，反応温度，反応時間）	Sma Ⅰ，30U/プラグ，30℃，3hr
電気泳動条件	（アガロース濃度，電圧，泳動buffer温度，電圧角度）	1%，6V/cm，14℃，120°
	（スイッチング時間，泳動時間）	2.98s～17.33s，20hr

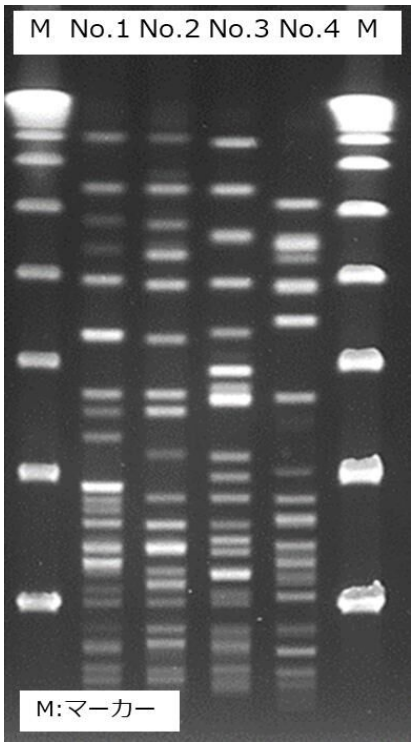


図 4　VRE の PFGE 泳動像

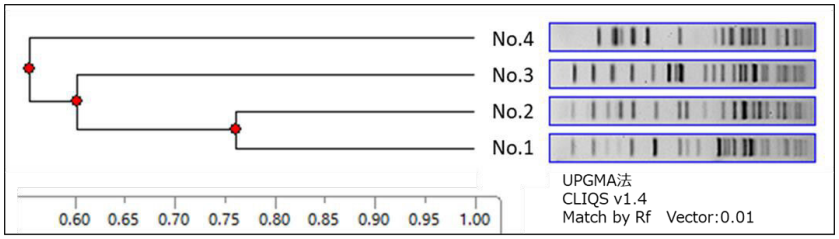


図 5　VRE の PFGE デンドログラム

表 9　VRE 4 株の類似度（Dice 法）

検体	No.1	No.2	No.3	No.4
No.1	1.00	0.76	0.64	0.67
No.2	0.76	1.00	0.57	0.49
No.3	0.64	0.57	1.00	0.51
No.4	0.67	0.49	0.51	1.00

分子疫学解析結果：検体 No.1～No.4 は異なる由来

4　カルバペネム耐性腸内細菌目細菌（CRE）

表 10　菌株情報

No.	菌株番号	菌種	カルバペネマーゼ遺伝子型	備考
1	23-0009	*Klebsiella pneumoniae*	KPC型	R5年6月分離
2	23-0030	*Klebsiella pneumoniae*	KPC 型	R5年12月にNo.1と同じ人物から分離

表11　パルスフィールドゲル電気泳動（PFGE）法の検査条件

プロティナーゼK処理	（濃度，反応温度，反応時間）	1mg/mL，50℃，20hr（overnight）
制限酵素処理	（使用酵素，酵素量，反応温度，反応時間）	Xba I，30U/プラグ，37℃，3hr
電気泳動条件	（アガロース濃度，電圧，泳動buffer温度，電圧角度）	1%，6V/cm，14℃，120°
	（スイッチング時間，泳動時間）	12.6s～40.1s，19hr

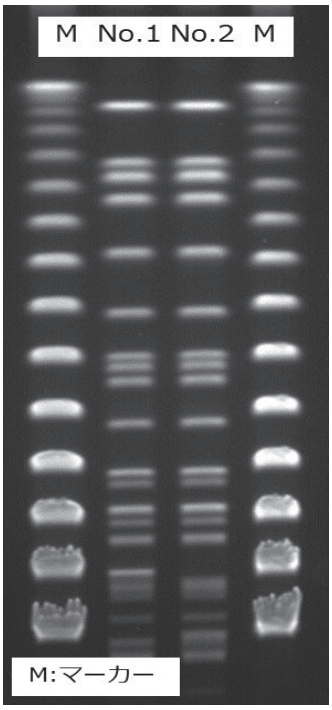


図 6　CRE の PFGE 泳動像

表 12　CRE 2 株の類似度（Dice 法）

検体	No.1	No.2
No.1	1.00	0.95
No.2	0.95	1.00

分子疫学解析結果：検体 No.1 と No.2 は同一由来の可能性が高い

５　サルモネラ属菌

表 13　菌株情報

検体No.	検体名	菌種	備考
1	患者分離株①	*Salmonella* Schwarzengrund	保育園児
2	患者分離株②	*Salmonella* Schwarzengrund	保育園児，No.1と同じ施設
3	患者分離株③	*Salmonella* Schwarzengrund	保育園児，No.1と同じ施設

表14　パルスフィールドゲル電気泳動（PFGE）法の検査条件

プロティナーゼK処理	（濃度，反応温度，反応時間）	1mg/mL，50℃，1hr
制限酵素処理	（使用酵素，酵素量，反応温度，反応時間）	Xba I，30U/プラグ，37℃，3hr
泳動条件	（アガロース濃度，電圧，泳動 buffer 温度，電圧角度）	1%，6V/cm，14℃，120°
	（スイッチング時間，泳動時間）	2.2s～54.2s，19hr

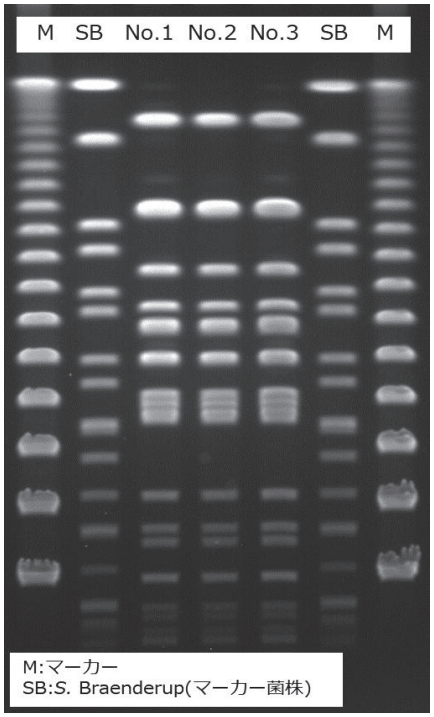


図 7　サルモネラ属菌の PFGE 泳動像

表 15　サルモネラ属菌 3 株の類似度（Dice 法）

検体	No.1	No.2	No.3
No.1	1.00	1.00	1.00
No.2	1.00	1.00	1.00
No.3	1.00	1.00	1.00

分子疫学解析結果：検体 No.1～No.3 は同一由来

食品に関する相談事例（令和 5 年度）

保健科学課　食品化学担当

1　はじめに

福岡市保健環境研究所では，市内に流通している食品の収去検査だけでなく，各区保健福祉センター衛生課（以下，「保健所」とする．）に寄せられる食品に関する相談の解決のための分析も行っている．令和 5 年度における理化学分野の相談件数は 7 件であり，異物混入に関する事例が 5 件，異臭に関する事例が 1 件，体調不良になった事例が 1 件であった（表 1）．異物混入に関する事例 5 件では，分析の結果，歯科材料が 1 件，樹脂様異物が 1 件，動物組織が 1 件，ごまが 1 件，その他が 1 件と推察された（表 2）．

本報では，今後の対応の参考として，上記相談事例 7 件のうち異物混入に関する事例 3 件及び異臭に関する事例 1 件について報告する．

表 1　相談内容別事例数（令和 5 年度）

相談内容	件数
異物混入に関する事例	5
異臭に関する事例	1
体調不良になった事例	1
合計	7

表 2　異物の分析結果別事例数（令和 5 年度）

異物の分類（推測）	件数
歯科材料	1
樹脂様異物	1
動物組織	1
ごま	1
その他	1
合計	5

2　使用機器

実体顕微鏡：ニコン製 SMZ-10A

走査型電子顕微鏡（SEM）：日本電子製 JCM-7000

エネルギー分散型 X 線分析装置（EDS）：日本電子製 JED-2300

フーリエ変換赤外分光光度計（FT-IR）：島津製作所製 IRAffinity-1S

水素炎イオン化検出器付きガスクロマトグラフ（GC-FID）：島津 Nexis GC-2030

3　事例

3.1　豚キムチに混入した硬質異物の事例

3.1.1　概要

飲食店で豚キムチを喫食したところ，硬質異物が入っていることに気づいた．

3.1.2　試料

一部ピンク色の硬質異物 2 片（以下，「異物 1」「異物 2」とする．）（図 1）及びヒトの歯（参考品）

3.1.3　結果

実体顕微鏡観察の結果，異物は参考品と異なり表面が滑らかであった（図 2）．

エネルギー分散型 X 線分析装置（EDS）による元素組成分析の結果，参考品が炭素，酸素及びカルシウムを主成分とするのに対し，異物は炭素，酸素，及びケイ素を主成分とし，その他バリウムが検出された（図 3）．

FT-IR により得られた異物の赤外吸収スペクトルからは，有機物に特徴的な C-H に由来する 2900 cm^{-1} 付近のピーク及びケイ酸塩に特徴的な Si-O に由来する 1050 cm^{-1} 付近のピークが検出された（図 4）．

3.1.4　考察

分析の結果から，異物は炭素，酸素及びケイ素を主成分とする，ガラス及び有機物に類似した物質の混合物であると推察され，コンポジットレジンの可能性があった．コンポジットレジンとは，歯科材料である歯冠修復物の一つで，虫歯等により歯の上部に小さな欠損が生じた場合に使用されるアクリル系樹脂及びフィラー（バリウムを含有するガラス質のものが多い）と呼ばれるシリカ系粉末を混合した充填剤である[1)]．コンポジットレジンは通常容易に剥離するものではないが，長期使用による接着剤劣化や歯の接着面に虫歯ができた場合等に，飲食中に剥離するとの報告がある[2)]．

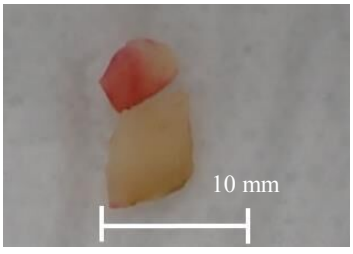
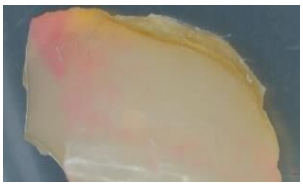
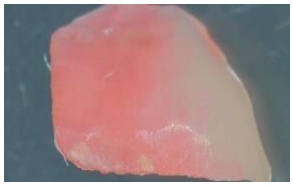


図 1　豚キムチ喫食中に発見された異物の写真



異物 1



異物 2



（参考品）ヒトの歯

図 2　硬質異物及び歯の実体顕微鏡写真

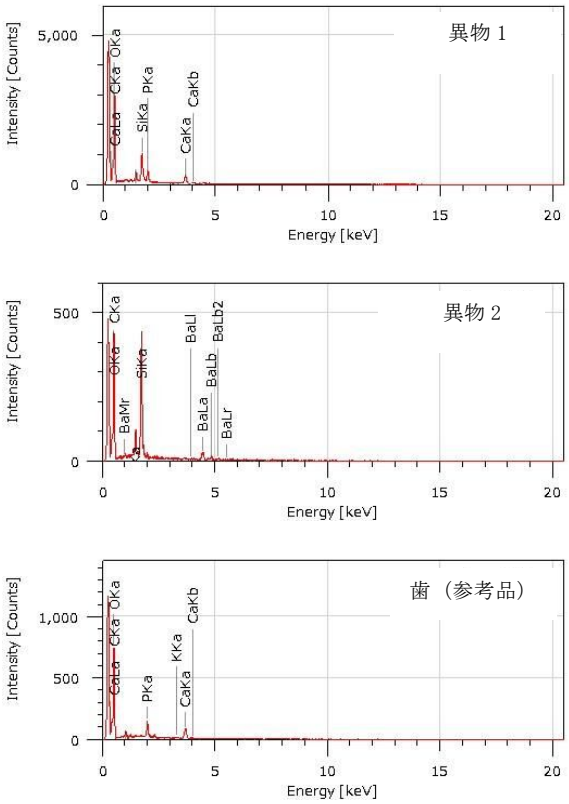


図 3　硬質異物及びヒトの歯の EDS スペクトル

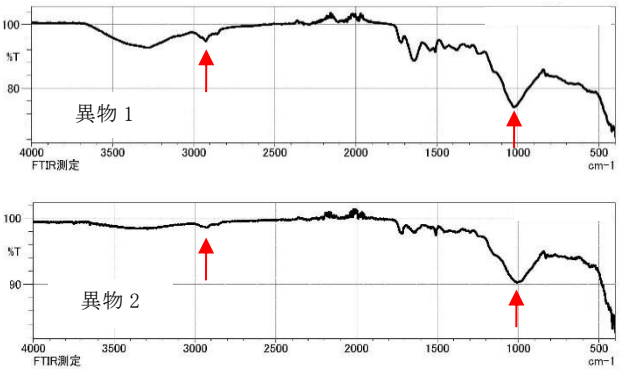


図 4　硬質異物の FT-IR スペクトル

3.2　牛肉及び牛肉調理品に混入したプラスチック様異物の事例

3.2.1　概要

店舗で購入した牛肉を使用し，調理した料理を喫食したところ，細く白い透明のプラスチックのような異物がいくつも入っていることに気づいた．

3.2.2　試料

透明のひも状異物 3 検体（以下，「異物 1」～「異物 3」とする．）（図 5），輪ゴム（参考品）及びヘアゴム（参考品）

3.2.3　結果

実体顕微鏡観察の結果，参考品の表面が平滑であるのに対し，異物 1～3 では表面の凹凸や縮れたような構造があり，調理時の加熱によって構造が変化したことが考えられた（図 6）．

FT-IR により得られた異物の赤外吸収スペクトルからは，C-H に由来する 2900 cm^{-1} 付近のピーク及び酢酸ビニルに特徴的な 1740，1370，1230 及び 1020 cm^{-1} 付近のピークが検出され，エチレン－酢酸ビニル共重合樹脂（EVA）のスペクトルと一致した．なお，異物と参考品のスペクトルは異なっていた（図 7）．

3.2.4　考察

実体顕微鏡観察において異物の表面は参考品である輪ゴム及びヘアゴムと類似している部分もあったが，FT-IR におけるスペクトルは参考品と異なっており，異物は EVA 又はそれに類似した樹脂で構成された物体であると推察された．



異物 1（着色なし）



異物 2（茶色に着色）



異物 3（黄色に着色）

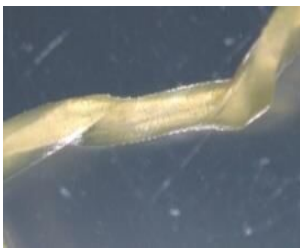
図 5　牛肉及び牛肉調理品喫食中に混入した異物の写真



異物 1



異物 2



異物 3



（参考品）輪ゴム



（参考品）ヘアゴム

図 6　異物及び参考品の実体顕微鏡写真

3.3　パンに混入した糞様異物の事例

3.3.1　概要

友人からもらったパンを喫食中に長細く黒い糞のような異物を発見した.

3.3.2　試料

4 mm 程度の黒色異物（図 8），ふりかけのごま（参考品）及びごま油（参考品）

3.3.3　結果

実体顕微鏡観察の結果, 外観及び中身は参考品と類似しており，中身は白色半透明であった（図 9）.

走査型電子顕微鏡（SEM）の結果, 中身の部分において, どちらも細胞壁のような構造が確認できた（図 10）.

異物及び参考品をヘキサン 1 mL で抽出したもの及び 1000 ppm に調製したごま油を表 3 の測定条件で GC-FID で分析した結果, 異物及び参考品のピークパターンは一致した（図 11）.

3.3.4　考察

分析の結果から，異物はごまであることが推察された.

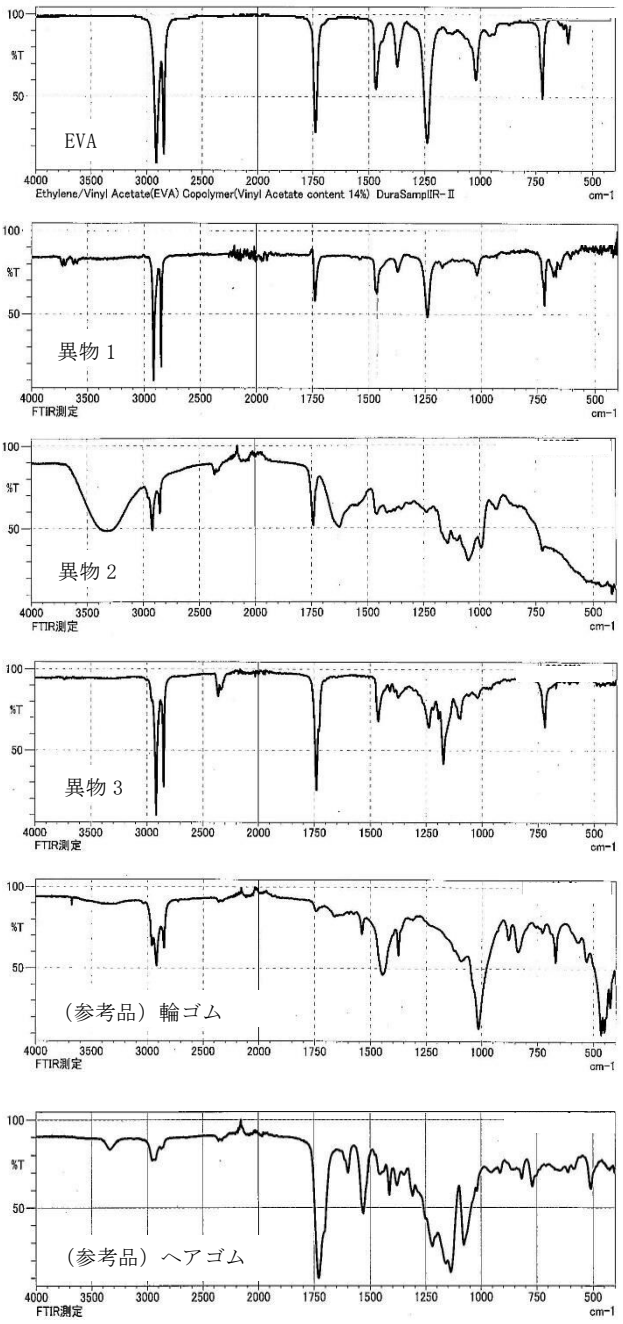


図 7　EVA，異物及び参考品の FT-IR スペクトル

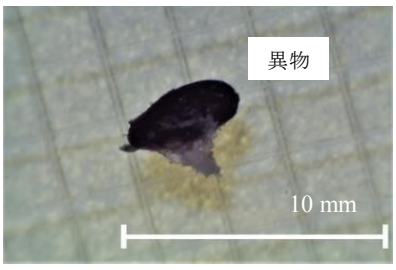
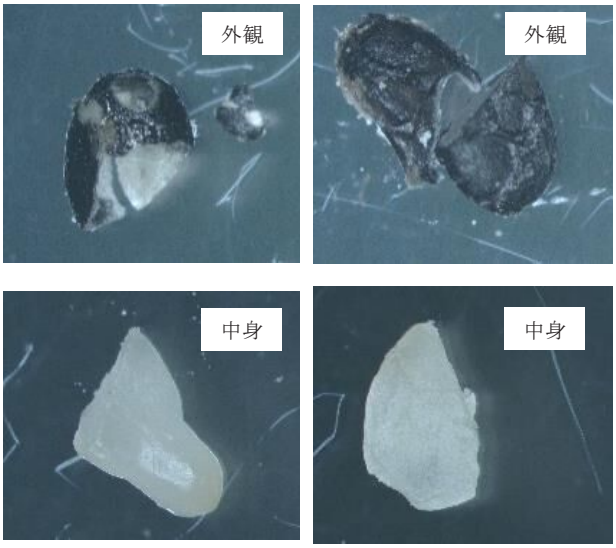
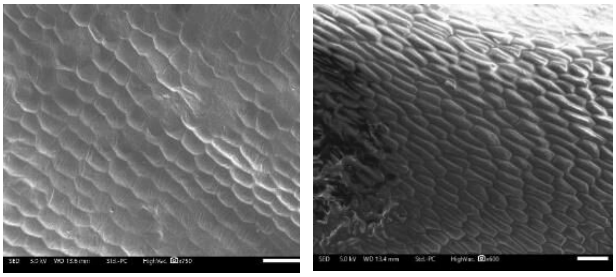


図 8 パン喫食中に発見された異物の写真



異物　　（参考品）ふりかけのごま

図 9　異物及び参考品の実体顕微鏡写真

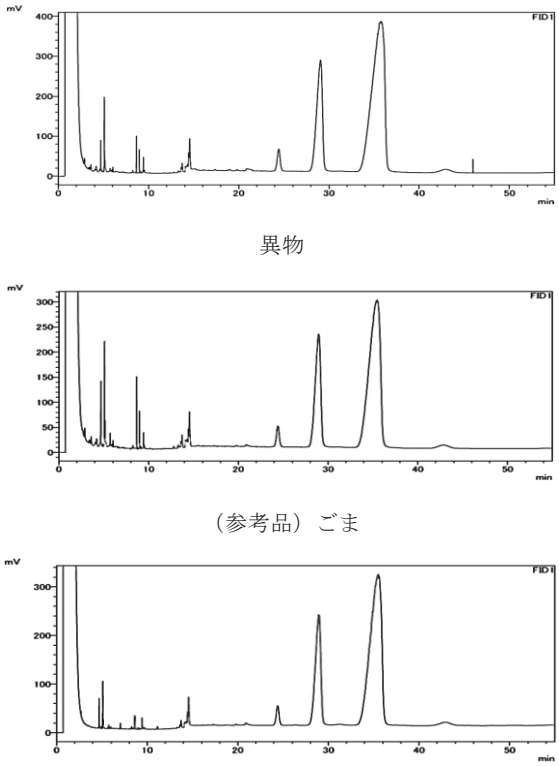


異物　　（参考品）ふりかけのごま

図 10　異物及び参考品の中身の SEM 写真

表 3　GC-FID の測定条件

カラム	Rtx-5（30 m，0.53 mmID，0.10 μm df）
カラム温度	初期 60℃→220℃（40℃/min）→
	320℃（10℃/min）→320℃（40 min）
注入口温度	310℃
検出器温度	320℃
キャリアガス	He 10 mL/min
注入方法	スプリットレス
注入量	2 μL
ガス流量	H_2 32 mL/min ， Air 200 mL/min
	N_2（メークアップ）24 mL/min



異物

（参考品）ごま

ごま油

図 11　異物及び参考品の GC-FID クロマトグラム

3.4　漬物からの塩素臭の相談事例

3.4.1　概要

飲食店で「おにぎりセット」（おにぎり，味噌汁，漬物）を注文し喫食したところ，漬物から塩素臭を感じた．

3.4.2　試料

漬物（開封後小分け品及び開封後残品）（図 12）

3.4.3　分析方法及び結果

試料を約 10 g 採取し，通気蒸留を行い，DPD 溶液に補集したのち捕集液の色により，残留塩素の有無を確認した．対照品として水道水及び 1 μg/mL 次亜塩素酸水について同様の操作を行った．その結果，水道水及び 1 μg/mL 次亜塩素酸水は発色したのに対し，試料の発色は認められなかった．

3.4.4　考察

分析の結果から，漬物から相談者が感じた異臭の原因は残留塩素ではないことが推察された．



開封後小分け品　　開封後残品

図 12　漬物の写真

4　まとめ

令和 5 年度に依頼された食品に関する相談のうち，「豚キムチに混入した硬質異物の事例」，「牛肉及び牛肉調理品に混入したプラスチック様異物の事例」，「パンに混入した糞様異物の事例」及び「漬物からの塩素臭の相談事例」の 4 事例について報告した．なお，これらの調査は各区保健所と協力して実施したものである．

文献

1) 平雅之，他 : コンポジットレジン配合フィラーの製品分析，調製と機能評価，岩手医科大学歯学雑誌，26，125〜131，2001

2) 公益社団法人日本食品衛生協会編 : 食品衛生検査指針理化学編 追補 2019 第 10 章 異物，126〜130，270〜275，公益社団法人日本食品衛生協会（東京），2019

「いわゆる健康食品」中のデキサメタゾン分析法

保健科学課　食品化学担当

1　はじめに

令和 5 年 4〜5 月に，国内で健康茶から抗炎症及び抗アレルギー作用をもつステロイドのデキサメタゾンが検出（3〜29 μg/g）された事例があった[1，2]．

デキサメタゾンの試験法については，畜産物を対象とした動物用医薬品としての試験法が定められている[3]．しかし，健康危機事案が発生した際は，原因物質が不明であることが多く，様々な食品が対象になることが多い．そこで，今後，同様の事例に対応できるよう，福岡市保健環境研究所における健康危機事案発生時の検査法である，高速液体クロマトグラフ四重極飛行時間型質量分析計（以下，「LC-QTOFMS」とする．）を用いたスクリーニング分析法による，デキサメタゾン検出の可否を確認した．さらに，食品マトリックスによる機器への負担軽減を目的として，固相抽出による精製法を検討したので，合わせて報告する．

2　方法

2.1　試料

市販のほうじ茶粉末

2.2　標準品・試薬等

超純水：オルガノ社製 PURELAB flex-UV により製造したもの（比抵抗>18.2 MΩ・cm，TOC <2 ppb）．

HPLC 用メタノール：関東化学（株）社製高速液体クロマトグラフ用

LC-MS 用メタノール：Honeywell 社製 LC-MS 用

アセトニトリル：Honeywell 社製 LC-MS 用

10 mmol/L ギ酸アンモニウム水溶液：富士フイルム和光純薬（株）社製高速液体クロマトグラフ用 1 mol/L ギ酸アンモニウム溶液を超純水で希釈した．

デキサメタゾン標準品：Riedel-de Haen 社製

標準原液：デキサメタゾン標準品 10 mg を正確に量り，アセトニトリルに溶解して正確に 10 mL とした（1000 μg/mL）．

標準溶液：標準原液を HPLC 用メタノールで希釈し，100 μg/mL とした．

添加用標準溶液：標準溶液を HPLC 用メタノールで適宜希釈し，3 μg/mL とした．

検量線用標準溶液：標準溶液を HPLC 用メタノールで適宜希釈し，0.002〜0.1 μg/mL とした．

2.3　装置・器具等

遠心分離機：TOMY 社製 冷却遠心機 CAX-571

メンブレンフィルター：アドバンテック東洋（株）社製 13HP020AN（0.2 μm）

PP チューブ：コーニングインターナショナル社製 15 mL 容ポリプロピレン製コニカルチューブ

バイアル：ジーエルサイエンス社製 1.5 mL 容褐色ガラスバイアル

カラム：Imtakt 社製 Scherzo SM-C18（50 mm×2 mm，3 μm）

LC-QTOFMS：LC 部：エービー・サイエックス社製 Exion LC AC, MS 部：エービー・サイエックス社製 X500R Q TOF システム

超純水製造装置：オルガノ社製 PURELAB flex-UV

2.4　測定条件

LC-QTOFMS の測定条件を表 1 及び表 2 に示す．

表 1　LC 条件

分析カラム	Scherzo SM-C18 50 mm×2 mm，3 μm（Imtakt 社製）
カラム温度	40℃
移動相 A	10 mmol/L ギ酸アンモニウム水溶液
移動相 B	メタノール
グラジエント	B：1%（0 min）- 99%（2.5 min）
条件	- 99%（5 min）- Post time 2 min
流速	0.4 mL/min
サンプル温度	4℃

表 2　TOFMS 及び TOFMS/MS 条件

イオン化モード	ESI-Positive
データ取得モード	IDA
ヒーター温度	500℃
スプレー電圧	5500 V
TOFMS	
Declustering Potential	80 V
Collision Energy	5 V
スキャン範囲	*m/z* 50～2000
TOFMS/MS	
Declustering Potential	80 V
Collision Energy	35 V
スキャン範囲	*m/z* 30～1000

2.5　精製に用いる固相カラムの検討

固相抽出にはジーエルサイエンス社製 InertSep GC 1 g/12 mL （以下，「GC カラム」とする．）及びジーエルサイエンス社製 InertSep PSA 500 mg/3 mL（以下，「PSA カラム」とする．）を用いた．各カラムについて，HPLC 用メタノールでコンディショニングした後，標準溶液約 2 mL を負荷し，通過液を LC-QTOFMS で測定した．

2.6　試験溶液の調製

試料 1 g を PP チューブに量り，HPLC 用メタノール 4 mL を加えて 1 分間ホモジナイズ後，HPLC 用メタノールで 10 mL に定容した．これを 10000×*g*，10 分間，室温で遠心分離し，上清を HPLC 用メタノールで 10 倍希釈及び 100 倍希釈し，メンブレンフィルターでろ過したものをそれぞれ試験溶液（10 倍希釈）及び試験溶液（100 倍希釈）とした．試験溶液（10 倍希釈）を HPLC 用メタノールでコンディショニングした PSA カラムに負荷し，通過液を試験溶液（PSA）とした．

2.7　添加回収試験

試料 1 g にデキサメタゾンが 3 μg/g となるように添加用標準溶液 1 mL を添加し，30 分間静置後，2.6 に従い，添加回収試験溶液（100 倍希釈）及び添加回収試験溶液（PSA）を調製した．回収率の算出にあたっては，検量線用標準溶液及び各試験溶液 5 μL を 2.4 に従って分析し，ピーク面積値を用いた絶対検量線法でデキサメタゾンを定量した．

3　結果及び考察

3.1　MS 条件の検討

検量線用標準溶液を ESI の Positive mode 及び Negative mode で測定した結果，Positive mode では水素イオン付加分子，Negative mode では，ギ酸イオン付加分子として矛盾しないイオンが検出された（図 1）．Positive mode 及び Negative mode で検出感度には大きな差がなかった．そこで，竹内ら[4]に倣い，Positive mode で分析を行うこととした．なお，検量線用標準溶液を測定した結果，決定係数は 0.9999 と直線性は良好であった．検量線を図 2 に示す．

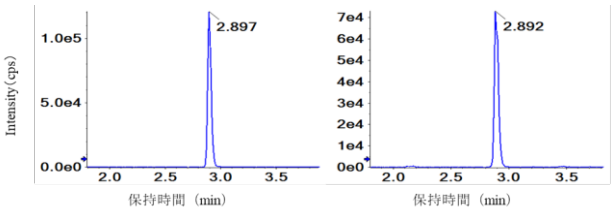


図 1　検量線用標準溶液（0.1 μg/mL）のクロマトグラム（左：Positive mode，右：Negative mode）

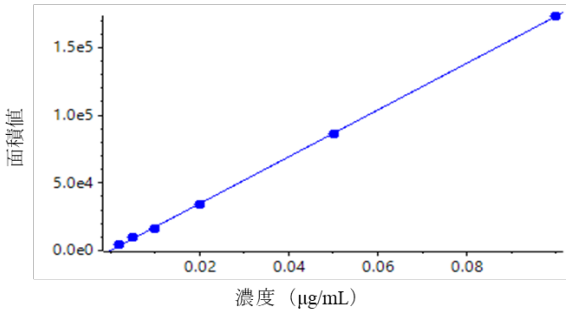


図 2　検量線

3.2　精製に用いる固相カラムの検討

機器への負担軽減及びマトリックス効果低減を目的として，固相カラムによる精製について検討した．標準溶液並びに 2.5 に従って調製した GC カラム通過液及び PSA カラム通過液をそれぞれ 2.4 に示した条件で測定した結果を表 3 に示す．GC カラム通過液及び PSA カラム通過液の面積値と標準溶液の面積値の比はそれぞれ 0.3 %及び 77%であったことから，精製方法として PSA カラムを採用した．

表 3　精製方法検討結果

測定溶液	面積値	標準溶液との比（%）
標準溶液（100 μg/mL）	223,853	—
GC 通過液	642	0.3
PSA 通過液	172,722	77

3.3　添加回収試験

添加回収試験の結果を表 4 に示す．添加回収試験溶液（100 倍希釈）及び添加回収試験溶液（PSA）は，いずれも回収率が 70～120%の範囲内であった．また，添加回収試験溶液（100 倍希釈）の結果から，PSA による精製を行わない場合でも回収率は 70～120%の範囲内であり，マトリックスによるイオン化阻害の影響は少ないと考えられた．機器への負担を考えると，PSA カラムによる精製も行うことが望ましいが，健康危機事案発生時には，迅速に結果を出すことが要求されることから，精製を行わず希釈のみで測定することも可能であると考えられた．

表 4　添加回収試験結果（*n*=2）

測定溶液	回収率（%）
試験溶液（100 倍希釈）	98
試験溶液（PSA）	76

4　まとめ

当所で健康危機事案発生時に通常用いている LC-QTOFMS を用いたスクリーニング分析法により，ppb（ng/mL）オーダーでデキサメタゾンを検出することが可能であった．また，ほうじ茶粉末に 3 μg/g となるようデキサメタゾンを添加し，添加回収試験を行った結果，希釈のみ又は希釈及び PSA カラムによる精製を行うことで，回収率は 70～120%の範囲内であり，良好な結果であった．

文献

1) 独立行政法人国民生活センター：発表情報，花粉症への効果をほのめかした健康茶にステロイドが含有－飲用されている方は，医療機関にご相談を－，令和 5 年（2023 年）4 月 12 日，令和 5 年（2023 年）4 月 17 日更新，＜https://www.kokusen.go.jp/news/data/n-20230412_1.html＞（令和 6 年（2024 年）3 月 4 日閲覧）

2) 独立行政法人国民生活センター：発表情報，ステロイドが検出された健康茶の類似商品でも検出！－検出された銘柄を飲用されている方は，医療機関にご相談を－，令和 5 年（2023 年）5 月 17 日，＜https://www.kokusen.go.jp/news/data/n-20230517_2.html＞（令和 6 年（2024 年）3 月 4 日閲覧）

3) 厚生省告示第 370 号：食品，添加物等の規格基準（第 1 食品 A），デキサメタゾン及びベタメタゾン試験法，昭和 34 年 12 月 28 日

4) 竹内浩，他：無承認無許可医薬品等の一斉分析法の検討，三重保環研年報，17，50～57，2015

令和５年度　主要食品添加物の検出状況

保健科学課　食品化学担当

用途	添加物名	食品名	依頼件数	検出数	検出率%	検出濃度分布（≧）										
保存料	ソルビン酸					3.0	2.0	1.5	1.0	0.50	0.30	0.20	0.10	0.05	0.01	単位(g/kg)
		魚肉ねり製品	9	4	44.4					3	1					
		加熱食肉製品	5	1	20.0					1						
		魚介乾製品	4	1	25.0							1				
		みそ	2	1	50.0									1		
		その他	81	0	0.0											
		計	101	7	6.9	0	0	0	0	4	1	1	0	1	0	
	安息香酸					2.5	2	1	0.6	0.5	0.2	0.1	0.05	0.02	0.01	単位(g/kg)
		清涼飲料水	4	3	75.0							3				
		その他	97	0	0.0											
		計	101	3	3.0	0	0	0	0	0	0	3	0	0	0	
	パラオキシ安息香酸エステル類（パラオキシ安息香酸として）					0.25	0.20	0.10	0.050	0.020	0.012	0.01	0.005	0.002	0.001	単位(g/L)
		しょう油	2	1	50.0			1								
		計	2	1	50.0	0	0	1	0	0	0	0	0	0	0	
甘味料	サッカリンナトリウム					2.0	1.5	1.2	1.0	0.50	0.30	0.20	0.10	0.05	0.01	単位(g/kg)
		魚肉ねり製品	9	4	44.4										4	
		しょう油	2	1	50.0							1				
		酢漬	1	1	100.0										1	
		その他	87	0	0.0											
		計	99	6	6.1	0	0	0	0	0	0	1	0	0	5	
	アセスルファムカリウム					15	10	6	5	2.5	1	0.5	0.35	0.1	0.01	単位(g/kg)
		たくあん漬	1	1	100.0								1			
		その他	98	0	0.0											
		計	99	1	1.0	0	0	0	0	0	0	0	1	0	0	
漂白剤	二酸化硫黄					5.0	2.0	1.5	0.90	0.50	0.35	0.30	0.20	0.10	0.003	単位(g/kg)
		コンニャク粉	4	4	100.0									4		
		えび	4	1	25.0										1	
		その他	17	0	0.0											
		計	25	5	20.0	0	0	0	0	0	0	0	0	4	1	
発色剤	亜硝酸根					0.070	0.060	0.050	0.040	0.030	0.020	0.010	0.005	0.002	0.001	単位(g/kg)
		辛子明太子	33	18	54.5									8	10	
		加熱食肉製品	5	5	100.0					1	1	2	1			
		たらこ	4	3	75.0									3		
		鯨肉ベーコン	1	1	100.0							1				
		乾燥食肉製品	1	0	0.0											
		計	44	27	61.4	0	0	0	0	1	1	3	1	11	10	
改良剤 品質	プロピレングリコール					2.0	1.5	1.4	1.3	1.2	1.1	1.0	0.60	0.10	0.05	単位(%)
		生めん	18	8	44.4		2	1	1				1	3		
		ギョウザの皮	1	0	0.0											
		計	19	8	42.1	0	2	1	1	0	0	0	1	3	0	

令和 5 年度　水質関係相談処理等依頼検査結果

環境科学課　水質担当・生物担当

1　環境局

依頼日	件名	項目	検体数	項目数	依頼部局
6 月 22 日	河川への流出油調査	油種分析	1	1	環境局環境保全課
7 月 24 日，7 月 25 日	地下水の水質検査	カドミウム，全シアン，鉛，六価クロム，ヒ素，四塩化炭素，ふっ素等	4	92	環境局環境保全課
10 月 11 日	河川の水質調査	PFOS，PFOA 等	2	10	環境局環境保全課
合計			7	103	

2　各区生活環境課

依頼日	件名	項目	検体数	項目数	依頼部局
4 月 17 日	河川水着色調査	pH，電気伝導度，チタン	1	3	西区生活環境課
5 月 24 日	ため池着色調査	pH，電気伝導度，にごり成分	1	3	西区生活環境課
10 月 5 日	水路等の油種分析調査	油種分析	3	3	西区生活環境課
10 月 11 日	河川の魚へい死調査	魚毒性試験	2	2	西区生活環境課
2 月 28 日	車両火災による水路油漏れ調査	魚毒性試験	2	2	西区生活環境課
2 月 28 日	水路白濁調査	魚毒性試験，元素分析	2	4	西区生活環境課
合計			11	17	

3　その他

依頼日	件名	項目	検体数	項目数	依頼部局
6 月 9 日	ため池の水質検査	魚毒性試験，pH，浮遊物質量，溶存酸素，COD，全窒素濃度，電気伝導度，ヒ素，亜鉛，銅	1	10	農林水産局農業施設課
8 月 30 日	プール水及び浴槽水の水質検査	pH，濁度，過マンガン酸カリウム消費量	2	5	城南区衛生課
12 月 27 日	火災の焼損物の調査	油種分析	3	3	消防局予防課
1 月 9 日	地下水の水質調査	臭気，A 重油	1	2	保健医療局生活衛生課
2 月 13 日	火災の焼損物の調査	油種分析	2	2	消防局予防課
合計			9	22	

令和 5 年度　水質事故等の相談事例

環境科学課　水質担当

1　はじめに

福岡市保健環境研究所では，市内の各区生活環境課，環境保全課，消防局等から依頼を受け，水質事故等の原因物質推定及び有害性確認の分析を行っている．過去 5 年間における水質事故内容別事例数は油流出事故が 16 件，白濁・着色事故が 8 件，火災の焼損物の油種分析依頼が 8 件，魚へい死事故が 7 件，鉄バクテリアが 3 件，その他が 15 件の計 57 件であった（図 1）．また，令和 5 年度における依頼件数は白濁・着色事故が 5 件，油流出事故が 2 件，火災の焼損物の油種分析依頼が 2 件，魚へい死事故が 1 件, その他が 4 件の計 14 件であった（表 1）．

本報では，令和 5 年度における相談事例 14 件のうち，白濁事故 2 件，油流出事故 1 件について報告する．

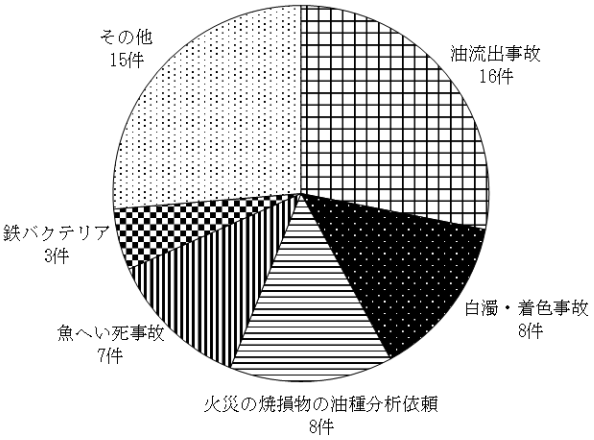


図 1　過去 5 年間の水質事故内容別事例数

表 1　水質事故内容別事例数（令和 5 年度）

相談の分類	件数
白濁・着色事故	5
油流出事故	2
火災の焼損物の油種分析依頼	2
魚へい死事故	1
その他	4
合計	14

2　使用機器

卓上走査電子顕微鏡（SEM-EDS）：日本電子製 JCM-7000

エネルギー分散型蛍光 X 線分析装置（EDS）：島津製作所 EDX-7200

ガスクロマトグラフ：島津製作所 NexisGC-2030

3　事例

3.1　水路白濁事故事例

3.1.1　相談内容

用水路の水が白濁しており，白濁の原因調査と併せて水質の安全性の確認も行いたいと生活環境課から相談があった（図 2）．



図 2　　用水路に流れる白濁水写真

3.1.2　試料

当該の用水路白濁水及び現場より上流の用水路の白濁していない水を対照品とした．

3.1.3　分析方法及び結果

白濁水及び対照品各約 100 mL を 0.45 μm のメンブレンフィルターを用いて吸引ろ過し，メンブレンフィルターを 60℃，30 分乾燥させ，エネルギー分散型 X 線分析装置（EDS）による元素分析を行った．その結果，白濁水は対照水より多くの Ti が検出された（図 3）．

白濁水及び対照品各 1000 mL にアカヒレ 3 匹を 2 時間遊泳させ，魚毒性試験を実施した．その結果，鼻上げ等の異常行動はなく，魚毒性は確認されなかった．

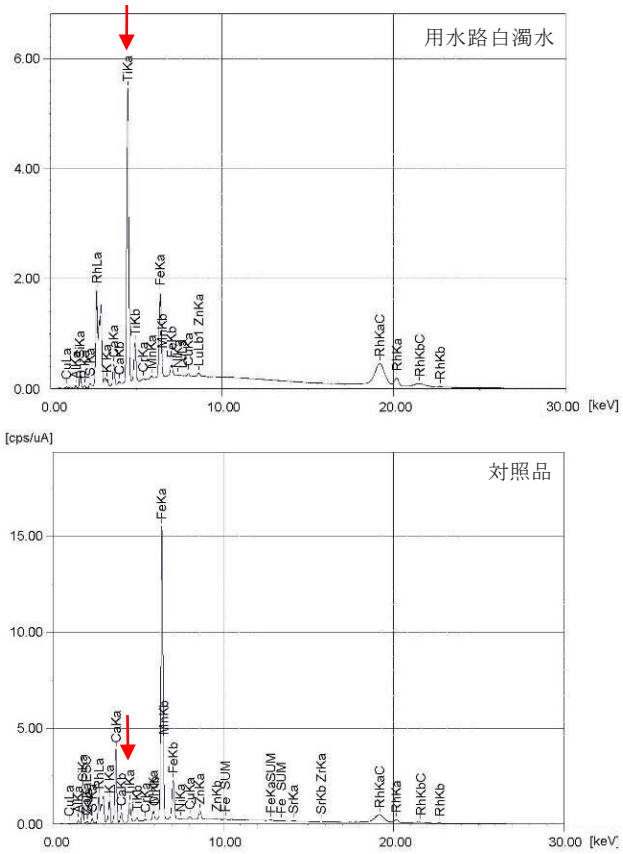


図 3　用水路白濁水及び対照品の EDS 測定結果
（上段：用水路白濁水，下段：対照品）

3.1.4　考察

元素分析の結果，白濁水からは対照水より多くの Ti が検出されたが，酸化チタンは白色顔料として広く使用される[1]こと，白濁事故において白色顔料成分の Ti が検出される事例が多いこと[2]から，白濁の原因は Ti が含まれる顔料成分であると推察された．

3.2　ため池白濁事故事例

3.2.1　相談内容

ため池の水が白濁していると生活環境課から相談があった．

3.2.2　試料

ため池の白濁水を試料とした．

3.2.3　分析方法及び結果

白濁水約 100 mL を 0.45 μm のメンブレンフィルターを用いて吸引ろ過し，メンブレンフィルターを 60℃，30 分乾燥させ，エネルギー分散型 X 線分析装置（EDS）による元素分析を行った．その結果，試料の白濁成分から Si，Al が検出された（図 4）．

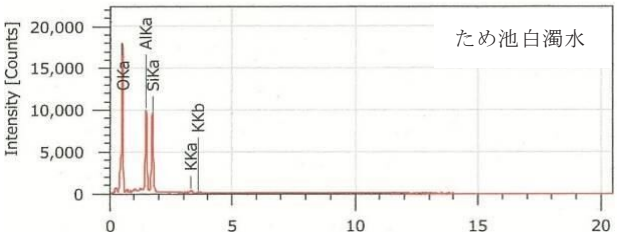


図 4　ため池白濁水の EDS 測定結果

3.2.4　考察

分析の結果から，白濁の原因は土壌由来の Si，Al であると推察された．また，生活環境課による現場の周辺調査において，現場上流に土砂崩れが見られたことから，白濁の原因は土砂崩れによる土砂の流入と推察された．

3.3　水路への油流出事故事例

3.3.1　相談内容

生活環境課から水路の水が茶色に着色して油が浮いており，水路上流に位置し原因と思われる施設のグリストラップ排出水が起因か鑑別してほしいとの相談があった．

3.3.2　試料

水路の 2 地点で採水した着色した水 2 検体（No.2～3）及び水路上流にある施設のグリストラップ排出水 1 検体（No.1）を対照品とした．

3.3.3　装置及び測定条件

ガスクロマトグラフ：島津製作所 NexisGC-2030

表 2　GC-FID の測定条件

分析カラム	Rtx-5 (30 m，0.53 mmID，0.10 μmdf)
カラム温度	初期 60℃-220℃(40℃/min)-320℃ (10℃/min)-320℃(40 min)
注入口温度	310℃
検出器温度	320℃
キャリアガス	He　10 mL/min
注入方法	スプリットレス
注入量	2 μL
ガス流量	H_2　40 mL/min
	Air 400 mL/min
	N_2 (メークアップ)30 mL/min

3.3.4　分析方法及び結果

持ち込まれた検体の外観及び臭気並びに依頼元の聞き取り結果から植物油の可能性が高いと考えられたため，ガスクロマトグラフ（GC-FID 法）によるピークパターンで判別を行った．今回の油種分析（植物油）のフロー

チャートを図 5 に示す.

検体 No.1 及び検体 No.3 は，油層を分液ロートに適量採取し，*n*-ヘキサンで希釈後，精製水で 5 回 *n*-ヘキサン層を洗浄し，得られた *n*-ヘキサン層を，無水硫酸ナトリウムを重層した分液ろ紙を用いてろ過し，*n*-ヘキサンを留去し油脂（試料 1 及び試料 3）を得た．検体 No.2 は油層を分液ロートに適量採取し，*n*-ヘキサンで希釈し，精製水を加えて振とうしたが，エマルジョンが生成し *n*-ヘキサン層の分離が困難となったため，無水硫酸ナトリウムを加えて振とうした．分離した *n*-ヘキサン層を分液ロートに採り，精製水で 5 回 *n*-ヘキサン層を洗浄後，無水硫酸ナトリウムを重層した分液ろ紙を用いてろ過し，*n*-ヘキサンを留去し油脂（試料 2）を得た．試料 1～3 の各 10 mg を *n*-ヘキサン 10 mL に溶解し，GC-FID でピークパターンを比較した．その結果，試料 1～3 のピークパターンは酷似していた（図 7）．次に，大豆油及びなたね油 10 mg を *n*-ヘキサン 10 mL に溶解したものを標準品とし，試料 1 とのピークパターンを比較した結果，試料 1 と大豆油のピークパターンが酷似していた（図 8）.

検体
　|←*n*-ヘキサンを添加し，振とう抽出
脱水
　|
減圧濃縮
　|←試料 10 mg を *n*-ヘキサン 10 mL に溶解
FID 分析

図5　油種分析（植物油）フローチャート

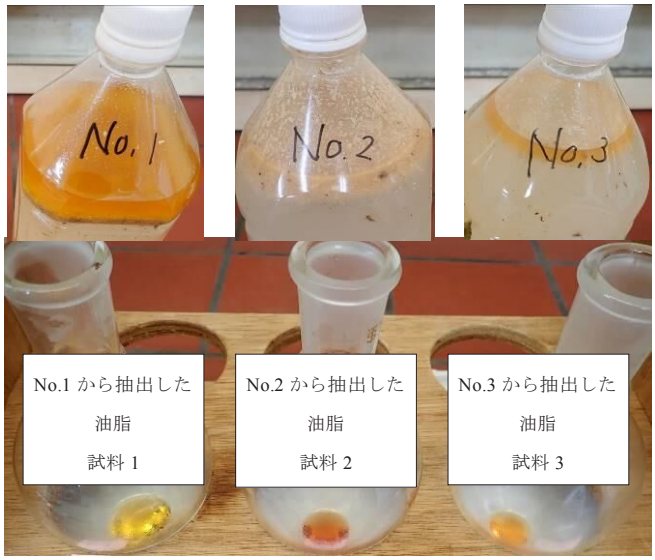


図 6　施設のグリストラップ排出水（No.1）及び水路の着色した水（No.2～3）から抽出した油脂（左から試料 1，試料 2，試料 3 とする.）

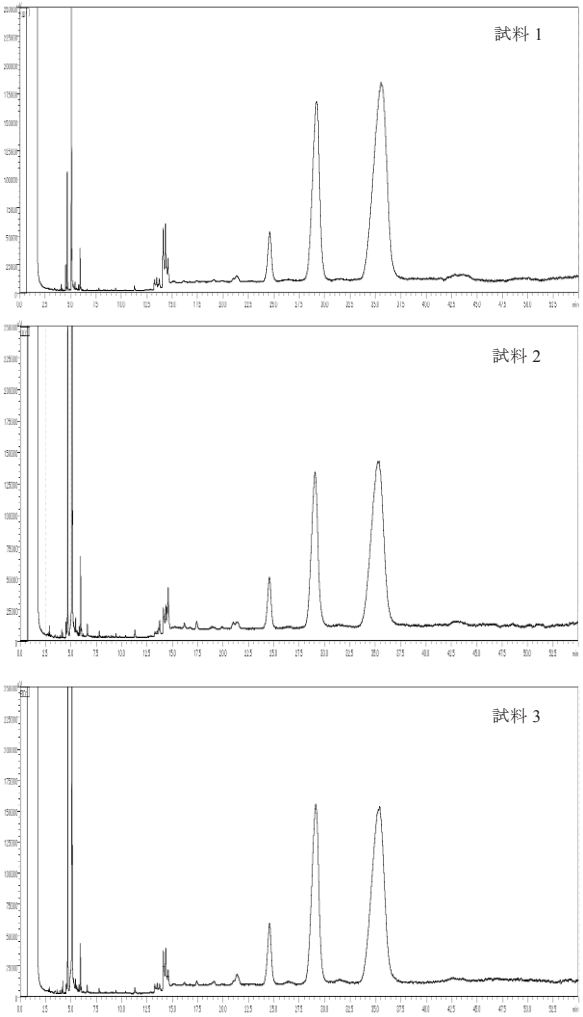


図 7　検体 No.1～3 から抽出した油脂のピークパターン

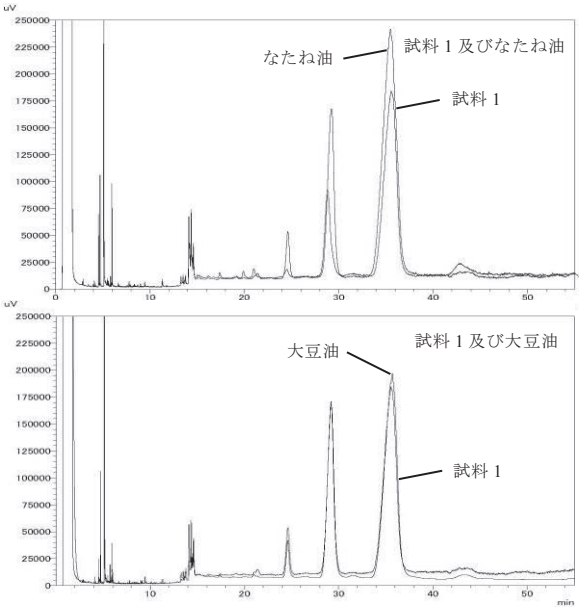


図 8　検体 No.1 から抽出した油脂及びなたね油，大豆油のピークパターン

3.3.5　考察

水路の着色した水から抽出した油脂のピークパターンは，水路上流にある施設のグリストラップ排出水から抽出した油脂のピークパターンと酷似していた．また，それらの油脂は植物油の大豆油であると推察された．

4　まとめ

令和 5 年度での水質事故等の原因物質推定及び有害性確認のための分析依頼のうち白濁事故 2 件，水路への油流出事故 1 件の 3 事例について報告した．

文献

1）高橋淳，他 : 塗料･インキがわかる技術読本，21-22 ，シーエムシー出版（東京），2004

2）小森陽昇，他 : 横浜市における水質事故検体の分析事例 (2016 年度)，横浜市環境科学研究所報，42，12-16，2018

令和 5 年度化学物質環境実態調査
(シプロフロキサシン)

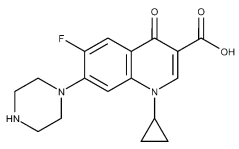
環境科学課　水質担当

1　はじめに

福岡市では，環境省が実施している化学物質環境実態調査（以下，「エコ調査」とする．）に開始当初から毎年参加してきた．エコ調査は，一般環境中における化学物質の残留状況を把握することを目的に実施されており，分析法開発調査，初期環境調査，詳細環境調査及びモニタリング調査から構成されている[1)]．そのうち，初期環境調査において令和 5 年度は，環境残留医薬品等（PPCPs）を含む環境リスクが懸念される化学物質について 12 物質群が調査対象とされた[2)]．シプロフロキサシンは抗菌剤として使用されるヒト用医薬品であり，動物用医薬品であるエンロフロキサシンの代謝物である[3)]．表 1 にシプロフロキサシンの構造及び性状を示す[3)]．博多湾環境保全計画[4)]では，生活関連化学物質の実態とその影響について注視していく必要があるとしており，福岡市保健環境研究所でも過去のエコ調査等で医薬品の分析を積極的に実施してきた[5~11)]．そこで，シプロフロキサシンを分析対象物質として選定した．博多湾の海水中に含まれるシプロフロキサシンについて，当所で分析を実施したので，その詳細について報告する．

表 1　シプロフロキサシンの構造及び性状等

分子式	$C_{17}H_{18}FN_3O_3$
分子量	331.35
CAS 番号	85721-33-1
沸点	566.55℃
融点	316.67℃
水溶解度	3×10^{4} mg/L（20℃）
蒸気圧	2.85×10^{-13} mmHg（25℃）
$logP_{ow}$	0.28
ヘンリー定数	5.09×10^{-19} atm-m^3/mol



2　方法

2.1　調査地点及び調査日

調査は令和 5 年 11 月 16 日に実施した．調査地点は博多湾の環境基準点のうち中部海域 C-4 地点を選定し，表層水のサンプリングを行った．調査地点を図 1 に示す．



図 1　調査地点図（博多湾中部海域 C-4）

2.2　試薬等

2.2.1　標準品

標準品はシプロフロキサシン塩酸塩水和物：富士フイルム和光純薬製製（純度＞98%），サロゲート内標準物質はシプロフロキサシン-*d*8 塩酸塩水和物 : Honeywell 製（純度≦100%）を使用した．

2.2.2　その他試薬

メタノール：富士フイルム和光純薬製　LC/MS 用

メタノール:富士フイルム和光純薬製　残留農薬, PCB 試験用

精製水 : 富士フイルム和光純薬製　超純水　LC/MS 用

ギ酸：富士フイルム和光純薬製　LC/MS 用

10 mol/L ギ酸アンモニウム溶液：ニッポンジーン製

水酸化ナトリウム：富士フイルム和光純薬製　試薬特級

固相カートリッジ：Waters 製　OasisHLB Plus 225 mg

2.3　装置及び測定条件

固相カートリッジへの通水は GL Sciemce 社製 アクアローダーAL898 を使用した．

LC-MS/MS の LC 部は島津製 LC-40DXR，MS 部は AB SCIEX 製 QTRAP4500 を使用した．LC-MS/MS の条件を表 2 に示す．

表 2　LC-MS/MS の測定条件

分析カラム	GL Science 製 InertSustain AQ-C18 (2.1 mm × 100 mm, 3 μm)	
移動相	A 液 : 0.1％ギ酸 ＋25 mmol/L 酢酸アンモニウム水溶液	
	B 液 : 0.1％ギ酸 ＋25 mmol/L 酢酸アンモニウムメタノール溶液	
グラジエント条件	0→2 min	B=0％
	2→4 min	B=0％→35％
	4→6 min	B=35％→80％
	6→8 min	B=80％→100％
	8→12 min	B=100％
	12→15 min	B=100％→0％ linear gradient
流量	0.2 mL/min	
カラム温度	40℃	
注入量	1 μL	
イオン化法	ESI-positive	
イオン源温度	650℃	
ESI キャピラリー電圧	5 kV	
検出モード	SRM	
モニターイオン	シプロフロキサシン	
	（定量）*m/z* 332 > 231	
	（確認）*m/z* 332 > 288	
	シプロフロキサシン-*d*8	
	（定量）*m/z* 340 > 235	
	（確認）*m/z* 340 > 296	

2.4　分析方法

分析方法は，令和 4 年度化学物質分析法開発調査報告書[3)]（以下，「報告書」とする．）に準拠して行った．水質試料 100 mL にサロゲート内標準液（100 ng / mL，メタノール溶液）を 100 μL 添加した後，水酸化ナトリウム水溶液で pH を 12（海水では pH 10.5））に調整し，十分に混和した．これを，メタノール 10 mL，精製水 10 mL でコンディショニングした固相カートリッジに 10 mL/min の流速で通水した．通水後，固相カートリッジを精製水 10 mL で洗浄し，遠心分離（3000 rpm，10 分）後に 1 時間窒素を通気し，固相中の水分を完全に除去した．その後，0.2％ギ酸含有メタノール溶液 10 mL で静かに溶出し，0.2％ギ酸含有メタノール溶液で 10 mL に定容した後，LC-MS/MS で分析した．分析カラムは機器の耐圧の関係から粒径 3 μm とした．分析フロー[3)]を図 2 に示す．

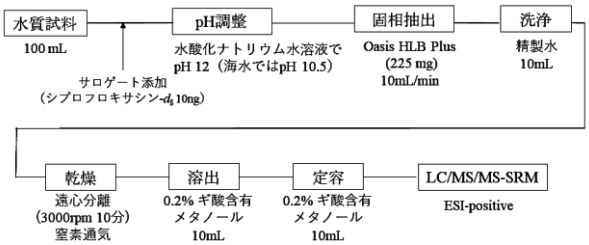


図 2　分析フロー

3　結果

3.1　検量線

シプロフロキサシン標準液 1 μL を LC-MS/MS に注入し，得られた定量イオンのクロマトグラムを図 3 に，また，対象物質とサロゲート内標準の濃度比及びピーク面積比から得られた検量線を図 4 に示す．係数 R^2=0.9999 で直線性は良好であった．

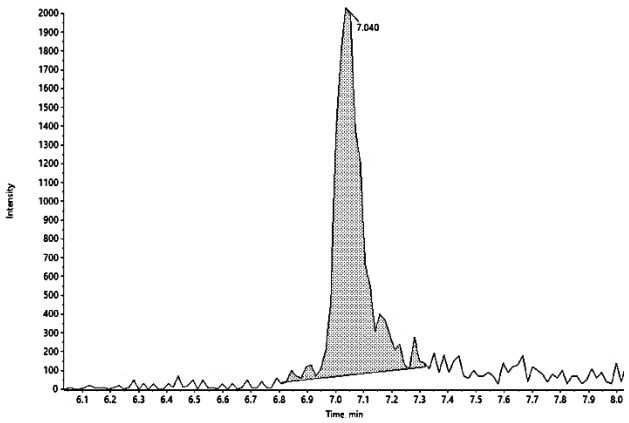


図 3　シプロフロキサシン標準液（0.1 ng/mL）のクロマトグラム（定量イオン *m/z*=332 > 231）

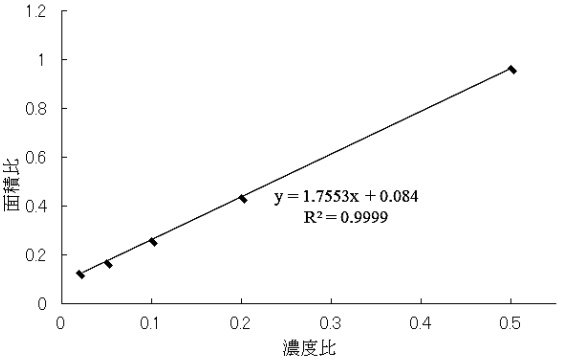


図 4　シプロフロキサシンの検量線
（濃度範囲 0.02～0.5 ng/mL サロゲート内標準 1 ng/mL）

3.2　装置検出下限値（IDL）及び定量下限値（IQL）

化学物質環境実態調査実施の手引き（令和 2 年度版）[1,2]（以下，「手引き」とする．）に準拠し，IDL 及び IQL を算出した結果を表 3 に示す．当所の IDL は 0.0016 μg/L であり，報告書[3]における IDL 0.0026 μg/L より低い値であった．

表 3　装置検出下限値(IDL)

平均値 (μg/L)	変動係数 (%)	IDL (μg/L)	IDL 試料換算値 (ng/L)	S/N 比
0.0454	1.0	0.0016	0.162	63

3.3　測定方法の検出下限値（MDL）及び定量下限値（MQL）

手引き[1,2]に準拠し，シプロフロキサシンが検出されないことを確認した海水を環境試料とし，標準物質を 0.005 μg/L となるように添加し，試料の前処理操作，試験液の調製及び LC-MS/MS による測定を行い，MDL 及び MQL を算出した．結果を表 4 に示す．当所の MDL は 0.00040 μg/L，MQL は 0.0011 μg/L であり，報告書[3]の MDL 0.00096 μg/L，MQL 0.0024 μg/L より低い値であった．

表 4　測定方法の検出下限値(MDL)及び定量下限値(MQL)

平均値 (μg/L)	変動係数 (%)	MDL (μg/L)	MQL (μg/L)	サロゲート回収率 (%)
0.00437	2.4	0.00040	0.0011	82

3.4　試料測定結果

博多湾中部海域 C-4 地点でサンプリングを行った環境試料について分析を行った結果，シプロフロキサシンは定量下限値未満であった．定量イオンのクロマトグラムを図 5 に示す．

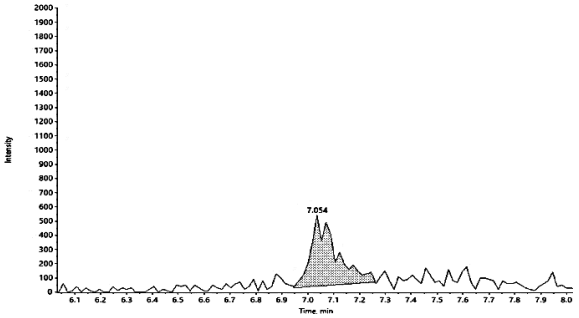


図 5　C-4 環境試料クロマトグラム
（シプロフロキサシン定量イオン *m/z*=332 > 231）

4　まとめ

博多湾中部海域 C-4 地点においてヒト用医薬品抗菌剤シプロフロキサシンの分析を行った．その結果，シプロフロキサシンは定量下限値未満であった．

この調査は令和 5 年度化学物質環境実態調査委託業務として実施したもので，結果については，環境省で取りまとめ，今後の施策検討に活かされる．

文献

1) 環境省大臣官房環境保健部環境安全課 : 令和 4 年度版化学物質と環境，令和 5 年(2023 年) 3 月
2) 環境省大臣官房環境保健部環境安全課 : 令和 5 年度化学物質環境実態調査詳細要領, 令和 5 年(2023 年) 7 月
3) 環境省大臣官房環境保健部環境安全課 : 化学物質と環境令和 4 年度化学物質分析法開発調査報告書, 令和 5 年(2023 年) 2 月
4) 福岡市環境局 : 博多湾環境保全計画（第二次） p 70, 平成 28 年(2016 年) 9 月
5) 宇野映介, 他 : 福岡市における水環境中の PPCPs の存在実態と季節変動および生態リスク初期評価，福岡市保健環境研究所報，39，51～57，2014
6) 宇野映介, 他 : 福岡市における水環境中の PPCPs の存在実態と季節変動および生態リスク初期評価（Ⅱ），福岡市保健環境研究所報，40，61～66，2015
7) 山下紗矢香，他 : 平成 27 年度化学物質環境実態調査（*N,N*-ジメチルアセトアミド），福岡市保健環境研究所報，41，55～58，2016
8) 八児裕樹，他 : 平成 28 年度化学物質環境実態調査，福岡市保健環境研究所報，42，146～151，2017
9) 八児裕樹，他 : LC-MS/MS を用いた環境水のカルバマゼピン，カフェイン及びケトプロフェンの一斉分析法の検討，福岡市保健環境研究所報，43，100～108，2018
10) 福岡市保健環境研究所環境局環境科学課水質担当 : 令和 3 年度化学物質環境実態調査，福岡市保健環境研究所報，47，137～140，2022
11) 福岡市保健環境研究所環境局環境科学課水質担当 : 令和 4 年度化学物質環境実態調査，福岡市保健環境研究所報，48，122～124，2023
12) 環境省大臣官房環境保健部環境安全課 : 化学物質環境実態調査実施の手引き（令和 2 年度），令和 3 年（2020 年）3 月

福岡市内河川の底生動物における生物多様度指数を用いた評価

環境科学課　生物担当

1　はじめに

河川の水質について総合的・長期的な実態を把握するため, 福岡市保健環境研究所では 1992 年から市内に流入する 5 河川（多々良川，室見川，樋井川，那珂川，御笠川）の底生動物調査を 1 年に 1 河川ペースで実施し，ASPT(Average score per taxon) を用いた水質評価を行っている．今回は 5 河川を対象に 1992 年から 2022 年までの生物多様度指数の推移についてまとめたので，その結果の概要を報告する．

2　方法

調査地点を図 1 に示す．なお，河川環境の変化により，調査地点が途中で変更になっている河川もあるため，これまで調査を実施したことがある全ての地点を示している．底生動物の採取方法は環境省の「水生生物による水質評価法マニュアルー日本版平均スコア法ー」（以下，「水質評価マニュアル」とする．）[1] に従った．採取は各調査地点で 3 回ずつ行い，直ちに 70%エチルアルコールで固定し持ち帰った．同定は科（一部は綱）まで行い，ASPT は水質評価マニュアル[1] に従い，スコア表を用いて算出した．ASPT の範囲と河川水質の良好性を表 1 に示す.

また，生物多様度指数は表 2 に示す Shannon-Wiener の多様度指数（H'）の式を用いて算出した．H' は採取された底生動物の種数が多く，かつ均等に採取されると高い値となり，多様性に富んでいると評価される．

表 1　ASPT の範囲と河川水質の良好性

ASPTの範囲	河川水質の良好性
7.5以上	とても良好
6.0以上7.5未満	良好
5.0以上6.0未満	やや良好
5.0未満	良好とはいえない

表 2　Shannon-Wiener の多様度指数（H'）

$$H'=-\sum_{i=1}^{S} Pi \cdot \log_2 Pi \quad (0 \leqq H')$$

S =種数（科数）

Pi =種 i が全体に含まれる割合（ni/N）

ni =種 i の個体数

N =総個体数

3　結果

3.1　ASPT

5 河川の ASPT の推移を図 2～6 に示す．室見川は，調査を始めた 1993 年からいずれの調査地点も ASPT が 6.0 以上を維持し，河川水質は「とても良好」もしくは「良好」であった．多々良川，那珂川の上流域では ASPT が概ね 6.0 以上の高い状態を維持し，河川水質が「とても良好」，もしくは「良好」であった．御笠川，樋井川の全地点及び多々良川，那珂川の中流～下流域では 1990 年代は ASPT が 6.0 未満であったが，2000 年代に入ると上昇傾向を示した．全体としては，河川水質は改善し，良好な状態を維持していると考えられた．

3.2　生物多様度指数

5 河川の出現科数の推移を図 7～11 に，H' の推移を図 12～16 に示す．生物の生息環境が大きく変化したと考えられる事例として，2012 年から 2017 年にかけて五ケ山ダム及び河川工事が行われていた那珂川に着目した．那珂川において，ASPT（図 4）での水質評価は上流域では良好であり，中流～下流域では河川水質は改善し良好な状態へ推移していた．2014 年調査が行われた轟橋において出現科数（図 9）と H'（図 14）がともに低下したが，2019 年度調査では上昇している．那珂川では 2012 年から 2017 年にかけて五ケ山ダム及び河川工事が行われており，2014 年調査時にも上流部でダム工事，中下流部で河川工事が行われていたことから，河川環境が一時的に変化したことにより生物相が単調になった可能性が考えられた．

4　まとめ

1992 年から 2022 年までの 5 河川を対象に河川環境の変遷についてまとめた結果，ASPT による水質評価によると，福岡市内河川の水質は改善し，良好な状態を維持していると考えられた．一方，生物多様度指数を用いた環境評価を行った結果，ASPT による水質評価では捉えられない河川環境の変化を反映していることが示唆された．



図 1　調査地点

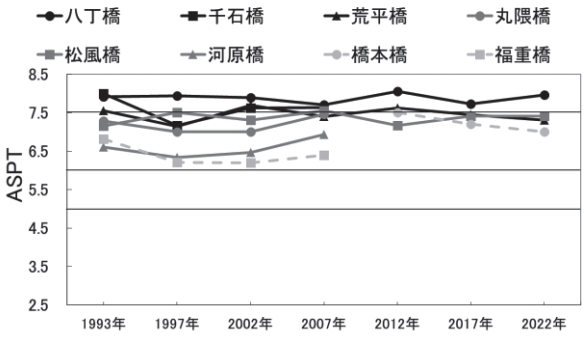


図 2　室見川の ASPT の推移

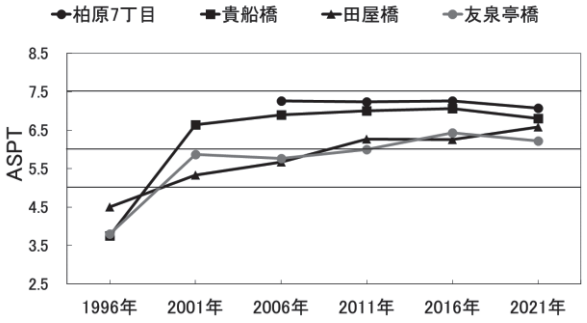


図 3　樋井川の ASPT の推移

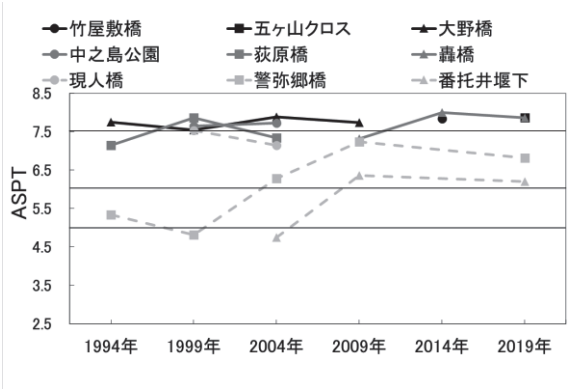


図 4　那珂川の ASPT の推移

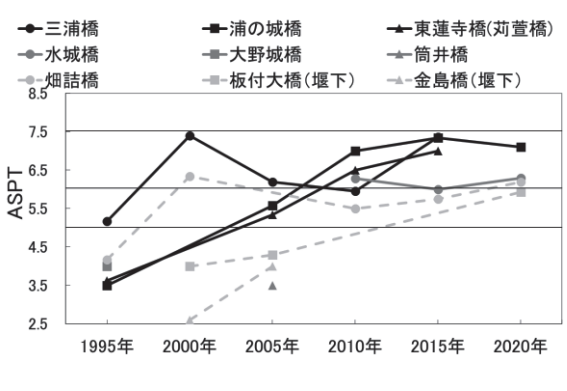


図 5　御笠川の ASPT の推移

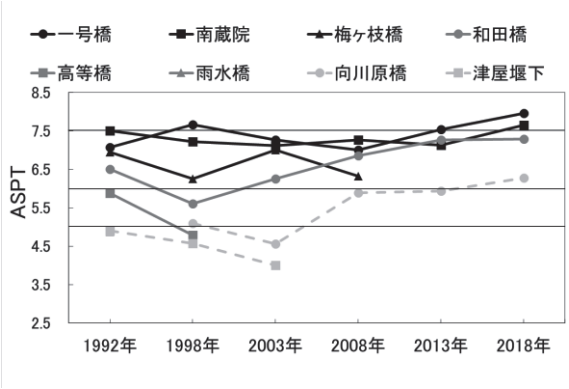


図 6　多々良川の ASPT の推移

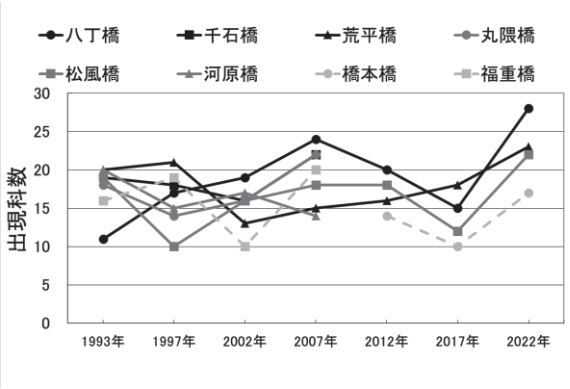


図 7　室見川の出現科数の推移

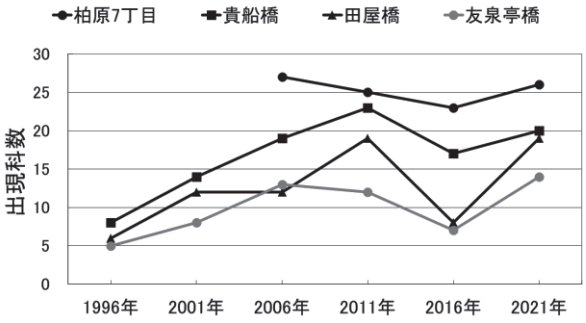


図 8　樋井川の出現科数の推移

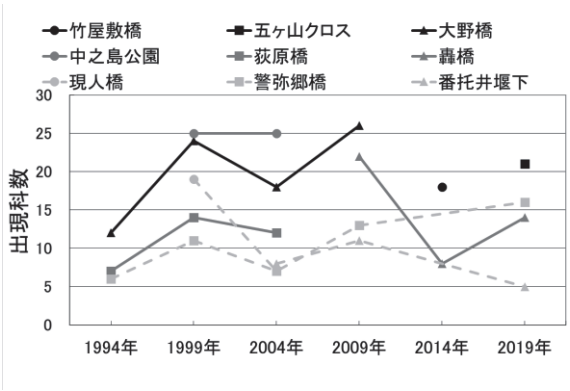


図 9　那珂川の出現科数の推移

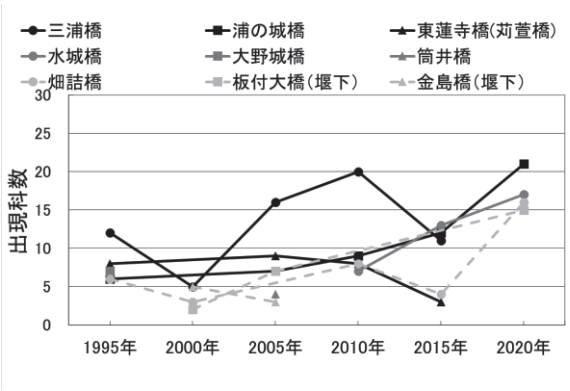


図 10　御笠川の出現科数の推移

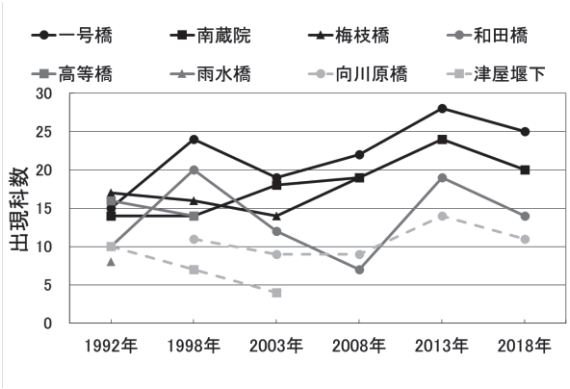


図 11　多々良川の出現科数の推移

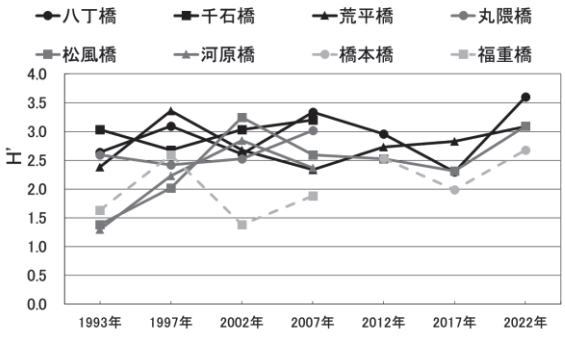


図 12　室見川の *H'*の推移

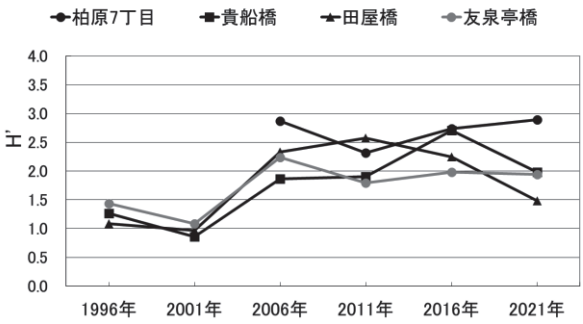


図 13　樋井川の *H'*の推移

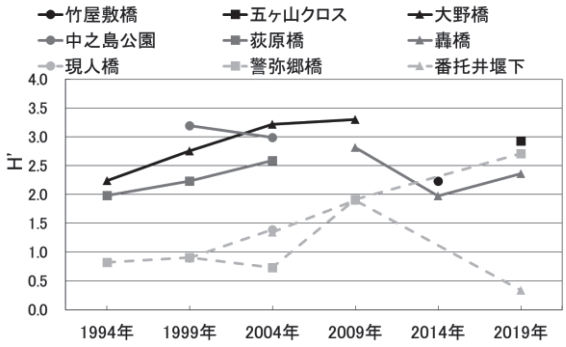


図 14　那珂川の *H'*の推移

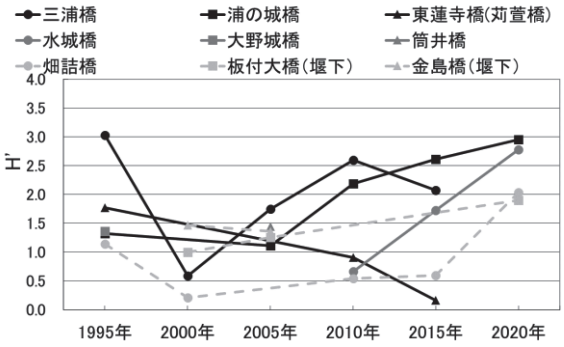


図 15　御笠川の *H'*の推移

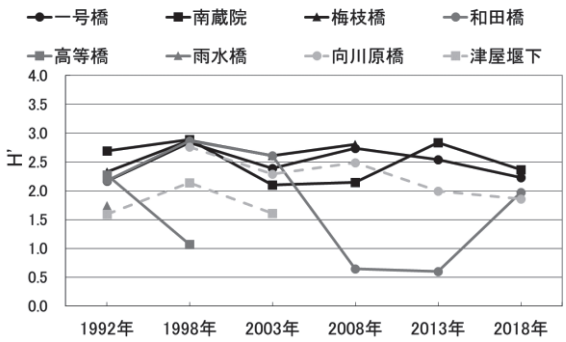


図 16　多々良川の *H'*の推移

文献

1）環境省水・大気環境局：水生生物による水質評価法マニュアルー日本版平均スコア法ー，2017

$PM_{2.5}$成分組成（令和5年度）

環境科学課　大気担当

1　はじめに

福岡市では，平成22年3月31日に改正された「大気汚染防止法第 22 条の規定に基づく大気の汚染の状況の常時監視に関する事務の処理基準」[1)]に基づき，平成23年秋季より$PM_{2.5}$の成分測定を市役所測定局（以下，「市役所局」とする．）で開始した．地域特性の把握のため，平成25年度からは元岡測定局（以下，「元岡局」とする．）を追加し，成分測定を行っている．また，令和4年度からは，市役所局の移設に伴い，春吉測定局（以下，「春吉局」とする．）での測定を開始した．

本報告では，令和5年度に実施した春吉局及び元岡局における$PM_{2.5}$質量濃度並びに$PM_{2.5}$の主要成分であるイオン成分，炭素成分及び無機元素成分の測定結果について述べる．

2　方法

2.1　調査地点及び調査期間

調査地点である大気常時監視測定局の春吉局（北緯33度35分，東経130度24分）及び元岡局（北緯33度35分，東経130度15分）を図1に示す．春吉局は，本市の中心地である天神の南に位置する一般環境大気測定局である．用途区分は商業地域であり，隣接する春吉公園と春吉小学校の敷地周辺にはマンション等が立ち並んでいる．元岡局は，春吉局から西に約14 km の場所に位置する一般環境大気測定局である．用途区分は市街化調整区域であり，周辺には住宅と田畑があり，付近の道路の交通量はさほど多くない．

調査は，以下の期間の午前10時から翌日の午前9時までとし，毎日実施した．

- 春季（令和5年5月11日～5月25日）
- 夏季（令和5年7月20日～8月3日）
- 秋季（令和5年10月19日～11月2日）
- 冬季（令和6年1月18日～2月1日）

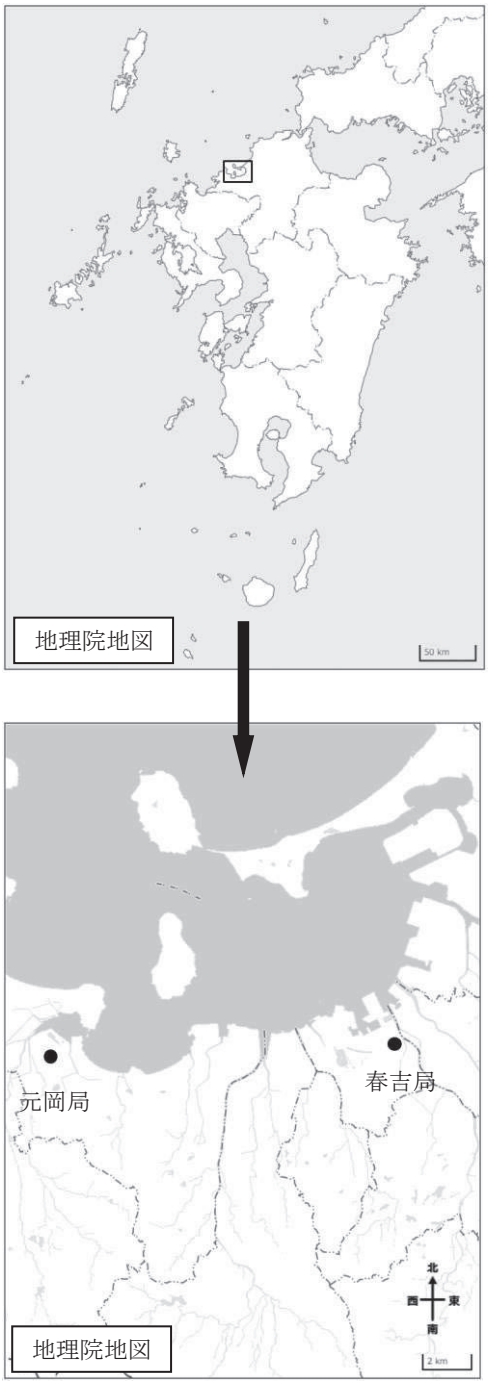


図1　調査地点

2.2　試料採取及び測定方法

試料採取及び測定方法は，「大気中微小粒子状物質（PM2.5）成分測定マニュアル」[2)]に従った．

試料採取は，すべての地点でローボリウムエアサンプラー（Thermo Fisher scientific 製：FRM2000）を用いて行った．

フィルターは，サポートリング付き PTFE フィルター（Whatman 製）及び石英フィルター（Pall 製）を使用した．

$PM_{2.5}$ 質量濃度は，捕集前後に PTFE フィルターを温度 21.5±1.5℃, 相対湿度 35±5%の室内で 24 時間以上静置したものを秤量し，捕集前後の差によって求めた．

イオン成分は，石英フィルターの 1/4 片を超純水 10 mL で 20 分間超音波抽出し, 孔径 0.45 μm の PTFE ディスクフィルターでろ過後，イオンクロマトグラフ（Dionex 製：ICS-1100，2100，機器更新のため冬季は Thermo Fisher scientific 製：Integrion RFIC，Aquion）で測定した．測定項目は SO_4^{2-}，NO_3^-，Cl^-，NH_4^+，Na^+，K^+，Ca^{2+}，Mg^{2+}の 8 項目とした．

炭素成分は，石英フィルターの 1 cm^2 を使用し，カーボンアナライザー（Sunset Laboratory 製：ラボモデル）で IMPROVE プロトコルに従い測定した．測定項目は OC1，OC2，OC3，OC4，EC1，EC2，EC3，OCPyro とした．有機炭素（OC）は OC＝OC1＋OC2＋OC3＋OC4＋OCPyro，元素状炭素（EC）は EC＝EC1＋EC2＋EC3－OCPyro で算出した．

Si を除く無機元素成分は, PTFE フィルターの 1/2 片をマイクロウェーブ（Anton Paar 製：Multiwave Pro）で酸分解した後，ICP-MS（Thermo Fisher scientific 製：iCAP RQ）で測定した．測定項目は，Na，Al，K，Ca，Sc，Ti，V，Cr，Mn，Fe，Co，Ni，Cu，Zn，As，Se，Rb，Mo，Sb，Cs，Ba，La，Ce，Sm，Hf，W，Ta，Th，Pb の 29 項目とした．Si は，捕集フィルターを蛍光 X 線分析装置（島津製作所製：EDX-7200）で測定した．

3　結果

3.1　$PM_{2.5}$ 質量濃度と各成分

$PM_{2.5}$ 質量濃度，イオン成分，炭素成分及び無機元素成分の測定結果について，各季節及び年間の平均濃度を算出した．なお，イオン成分，炭素成分及び無機元素成分の濃度算出にあたり，検出下限値未満については検出下限値の 1/2 の値を使用した．

3.1.1　$PM_{2.5}$ 質量濃度

$PM_{2.5}$ 質量濃度の測定結果を表 1 に示す． 年間平均濃度（濃度範囲）は，春吉局では 12 μg/m^3（3.7～26 μg/m^3），元岡局では 12 μg/m^3（3.3～28 μg/m^3）であった．

表 1　$PM_{2.5}$ 質量濃度

	春季	夏季	秋季	冬季	年間
春吉局	15	12	11	11	12
最小値	5.4	3.7	5.8	3.9	3.7
最大値	26	22	18	21	26
元岡局	14	13	10	9.8	12
最小値	5.6	3.3	5.0	3.8	3.3
最大値	28	26	18	18	28

（単位：μg/m^3）

3.1.2　イオン成分

$PM_{2.5}$ イオン成分の測定結果を表 2 に示す. 各イオン成分合計の年間平均濃度（濃度範囲）は, 春吉局で 5.8 μg/m^3（1.6～17 μg/m^3），元岡局で 5.7 μg/m^3（1.6～17 μg/m^3）であった．

イオン成分中では SO_4^{2-}の割合が最も多く（年間平均濃度：春吉局 3.0 μg/m^3，元岡局 2.9 μg/m^3），次いで NH_4^+（年間平均濃度：春吉局 1.5 μg/m^3，元岡局 1.5 μg/m^3）であった．

表 2　$PM_{2.5}$ イオン成分

		春季	夏季	秋季	冬季	年間
春吉局	SO_4^{2-}	3.7	4.4	2.0	1.9	3.0
	NO_3^-	0.78	0.21	0.81	2.1	0.97
	Cl^-	0.093	0.079	0.083	0.26	0.13
	NH_4^+	1.6	1.7	1.1	1.4	1.5
	Na^+	0.096	0.10	0.092	0.13	0.11
	K^+	0.094	0.037	0.082	0.078	0.073
	Ca^{2+}	0.13	0.084	0.19	0.057	0.12
	Mg^{2+}	0.026	0.018	0.017	0.039	0.025
	合計	6.5	6.6	4.3	6.0	5.8
	最小値	1.6	1.6	2.1	1.6	1.6
	最大値	13	17	7.7	14	17
元岡局	SO_4^{2-}	3.2	4.5	2.0	2.0	2.9
	NO_3^-	0.64	0.24	0.96	1.6	0.87
	Cl^-	0.092	0.051	0.15	0.23	0.13
	NH_4^+	1.5	1.8	1.2	1.4	1.5
	Na^+	0.088	0.082	0.13	0.14	0.11
	K^+	0.077	0.027	0.065	0.070	0.060
	Ca^{2+}	0.057	0.035	0.043	0.028	0.041
	Mg^{2+}	0.022	0.016	0.018	0.027	0.021
	合計	5.6	6.8	4.6	5.6	5.7
	最小値	1.8	1.6	2.4	1.7	1.6
	最大値	11	17	9.4	11	17

（単位：μg/m^3）

3.1.3 無機元素成分

$PM_{2.5}$ 無機元素成分の測定結果を表 3 に示す. 年間平均濃度（濃度範囲）は，春吉局で 690 ng/m³（170～6700 ng/m³），元岡局で 580 ng/m³（100～4700 ng/m³）であった.

表 3　$PM_{2.5}$ 無機元素成分

		春季	夏季	秋季	冬季	年間			春季	夏季	秋季	冬季	年間
春吉局	Na	92	64	72	110	83	元岡局	Na	89	62	93	110	87
	Al	210	27	61	26	81		Al	160	35	60	29	71
	Si	550	89	230	88	240		Si	460	83	250	79	220
	K	130	30	110	66	83		K	120	22	84	51	68
	Ca	140	36	140	36	88		Ca	53	23	58	24	40
	Sc	0.034	0.0088	0.0070	0.0072	0.014		Sc	0.027	0.0059	0.0077	0.0064	0.012
	Ti	12	1.4	4.1	2.2	4.8		Ti	9.0	1.3	3.4	1.8	3.9
	V	1.9	0.74	0.86	0.52	1.0		V	1.2	0.51	0.74	0.57	0.75
	Cr	0.93	1.4	0.67	0.64	0.91		Cr	1.2	3.5	0.71	0.65	1.5
	Mn	6.4	2.2	4.9	4.6	4.5		Mn	5.1	1.3	3.1	2.5	3.0
	Fe	140	32	74	56	75		Fe	110	28	60	41	61
	Co	0.076	0.018	0.032	0.025	0.038		Co	0.066	0.034	0.034	0.024	0.039
	Ni	1.5	0.67	0.78	0.65	0.89		Ni	0.99	1.8	0.78	0.55	1.0
	Cu	1.5	1.1	3.6	1.5	1.9		Cu	1.3	0.69	4.6	1.4	2.0
	Zn	15	9.4	14	14	13		Zn	14	5.4	12	12	11
	As	1.3	0.50	1.1	0.94	0.95		As	1.4	0.53	1.1	0.94	1.0
	Se	0.60	0.33	0.52	0.42	0.47		Se	0.64	0.32	0.56	0.45	0.49
	Rb	0.51	0.11	0.28	0.22	0.28		Rb	0.38	0.065	0.19	0.15	0.19
	Mo	0.40	0.25	0.28	0.31	0.31		Mo	0.36	0.24	0.37	0.44	0.35
	Sb	0.53	0.21	0.50	0.50	0.43		Sb	0.42	0.17	1.1	0.41	0.53
	Cs	0.036	0.0093	0.020	0.018	0.021		Cs	0.030	0.0093	0.017	0.017	0.018
	Ba	4.9	4.7	3.4	2.0	3.7		Ba	5.1	2.2	1.3	0.94	2.4
	La	0.11	0.021	0.052	0.033	0.053		La	0.087	0.014	0.041	0.032	0.044
	Ce	0.22	0.022	0.078	0.033	0.088		Ce	0.18	0.015	0.062	0.031	0.073
	Sm	0.015	0.0022	0.0044	0.0016	0.0057		Sm	0.012	0.0022	0.0035	0.0014	0.0049
	Hf	0.012	0.0037	0.0062	0.0050	0.0068		Hf	0.011	0.0023	0.0058	0.0046	0.0059
	W	0.15	0.087	0.078	0.061	0.093		W	0.18	0.070	0.078	0.13	0.12
	Ta	0.0037	0.0049	0.0028	0.0016	0.0033		Ta	0.0035	0.0012	0.0015	0.00084	0.0018
	Th	0.028	0.0016	0.0090	0.0028	0.010		Th	0.026	0.0014	0.0066	0.0031	0.0094
	Pb	3.2	1.1	2.9	2.8	2.5		Pb	3.5	0.97	3.4	3.0	2.7
	合計	1300	300	720	410	690		合計	1000	270	630	360	580
	最小値	180	170	260	290	170		最小値	120	100	350	140	100
	最大値	6700	480	1400	660	6700		最大値	4700	520	1100	570	4700

（単位：ng/m³）

3.1.4 炭素成分

$PM_{2.5}$ 炭素成分の測定結果を表 4 に示す. 年間平均濃度（濃度範囲）は, 春吉局で OC : 3.2 μg/m³ (1.1～5.4 μg/m³), EC : 0.53 μg/m³ (0.12～1.2 μg/m³), 元岡局で OC : 2.4 μg/m³ (0.53～4.9 μg/m³), EC : 0.42 μg/m³ (0.039～1.1 μg/m³) であった.

表 4 $PM_{2.5}$ 炭素成分

		春季	夏季	秋季	冬季	年間
春吉局	OC	3.3	3.3	3.4	2.7	3.2
	最小値	1.7	1.6	2.5	1.1	1.1
	最大値	5.4	4.9	5.0	4.4	5.4
	EC	0.52	0.39	0.63	0.56	0.53
	最小値	0.21	0.15	0.34	0.12	0.12
	最大値	1.2	0.74	1.1	1.1	1.2
元岡局	OC	2.6	2.8	2.5	1.6	2.4
	最小値	0.84	1.4	1.3	0.53	0.53
	最大値	4.9	4.6	3.8	3.1	4.9
	EC	0.41	0.28	0.57	0.40	0.42
	最小値	0.087	0.041	0.23	0.039	0.039
	最大値	1.1	0.74	0.97	0.86	1.1

（単位：μg/m³）

3.2 $PM_{2.5}$ 成分組成

$PM_{2.5}$ 成分組成を表 5 に示す. 年間平均で $PM_{2.5}$ 質量濃度に対する割合が高い成分は, 春吉局では OC が 26%, SO_4^{2-} が 25%, 元岡局では SO_4^{2-} が 25%, OC が 20%の順で多かった.

表 5 $PM_{2.5}$ 成分組成

		春季	夏季	秋季	冬季	年間
春吉局	SO_4^{2-}	25	38	18	17	25
	NO_3^-	5	2	7	19	8
	NH_4^+	11	14	10	13	12
	その他イオン	3	3	4	5	4
	OC	23	29	31	25	26
	EC	4	3	6	5	4
	無機元素	9	3	6	4	6
	その他	21	9	18	12	15
元岡局	SO_4^{2-}	22	36	19	21	25
	NO_3^-	4	2	9	17	7
	NH_4^+	10	15	12	15	13
	その他イオン	2	2	4	5	3
	OC	18	23	24	16	20
	EC	3	2	6	4	4
	無機元素	7	2	6	4	5
	その他	32	19	20	19	23

（単位：%）

文献

1) 環管大第 177 号・環管自第 75 号：大気汚染防止法第 22 条の規定に基づく大気の汚染の状況の常時監視に関する事務の処理基準, 令和 5 年 11 月 9 日

2) 環境省：大気中微小粒子状物質（PM2.5）成分測定マニュアル, 2019 年 5 月

令和 5 年度　福岡市の酸性雨調査結果

環境科学課　大気担当

1　はじめに

酸性雨は大気中の汚染物質が地表に沈着することで土壌，湖沼などを酸性化する原因となる．環境省では越境大気汚染や酸性沈着の影響の把握や将来の影響を予測することを目的として，昭和 58 年度から酸性雨対策調査，平成 13 年度からは酸性雨長期モニタリングを実施している．近年のモニタリング（平成 25～29 年度）では，中国における硫黄や窒素の酸化物の排出量の減少がみられることから，日本の降水 pH も近年は上昇の兆候がみられる[1)]との報告がある．また，環境省の調査を面的及び項目的に補完するもの[2)]として，平成 3 年度から全国環境研協議会による酸性雨全国調査が実施されている．福岡市では，平成 2 年度から市内の酸性雨調査を実施しており，平成 3 年度からは本調査に参加している．

今回，本調査の一環として令和 5 年 3 月 27 日から令和 6 年 3 月 25 日までの間，城南区役所（城南区鳥飼）と曲渕ダム（早良区曲渕）の 2 地点で酸性雨（湿性沈着）調査を行った結果について報告する．

2　調査方法

2.1　調査地点

図 1 に調査地点を示す．城南区役所は，本市の中心部から南西約 3 km に位置し，商業地域に属する．南東約 130 m に国道 202 号線が通り，周囲にはマンションが多く建ち並んでいる．

曲渕ダムは，本市の中心部から南西へ約 13 km，室見川上流の谷間標高約 170 m 地点に位置し，市街化調整区域に属する．南側約 300 m に国道 263 号が通っているが，市街地に比べると交通量は少ない．

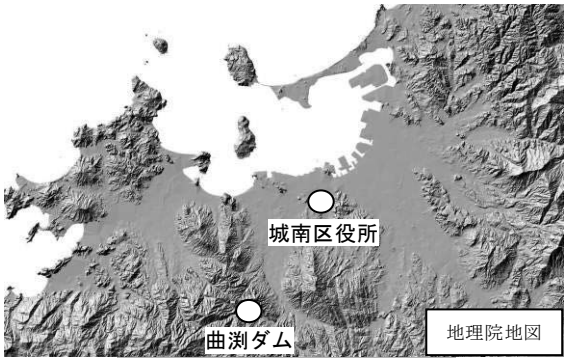


図1　調査地点

2.2　試料採取方法及び分析方法

降雨の採取は，通年で原則 1 週間毎に降雨時開放型自動雨水採取装置（小笠原計器（現 ANEOS 株式会社）製 US-330H）を用いて行った．測定項目は，降水量，pH，電気伝導率（以下，「EC」とする．）及びイオン成分（SO_4^{2-}，NO_3^-，Cl^-，NH_4^+，Na^+，K^+，Ca^{2+}，Mg^{2+}）である．

採取した試料は，貯水量を計量後，湿性沈着モニタリング手引き書（第 2 版）[3)]に準じて測定・分析した．

3　結果及び考察

3.1　令和 5 年度調査結果

令和 5 年度の城南区役所の調査結果を表 1 に，曲渕ダムの調査結果を表 2 に示す．pH 及び EC の平均値は，分析に供した降水量の加重平均により算出した．イオン成分沈着量は，各イオン成分に対し，分析に供した降水量を乗じて算出した．なお，城南区役所は 3 月 27 日～4 月 3 日，4 月 17 日～4 月 24 日，5 月 22 日～5 月 29 日，6 月 12 日～6 月 19 日，10 月 10 日～10 月 16 日，10 月 30 日～11 月 6 日及び 11 月 20 日～11 月 27 日が，曲渕ダムは 3 月 27 日～4 月 3 日，6 月 12 日～6 月 19 日，10 月 10 日～10 月 16 日，10 月 23 日～10 月 30 日，10 月 30 日～11 月 6 日及び 11 月 20 日～11 月 27 日が，少雨のため欠測となった．また，曲渕ダムは 5 月 15 日～6 月 8 日が採水器故障のため欠測となった．

年間降水量は，城南区役所で 1877.4 mm，曲渕ダムで 2461.3 mm であり，曲渕ダムの方が多かった．pH は，城南区役所では 4.18～5.89 の範囲で，年平均値が 5.03 であった．また，曲渕ダムでは 4.17～5.90 の範囲で，年平均値が 5.00 であった．環境省の令和 4 年度酸性雨調査結果（https://www.env.go.jp/air/acidrain/monitoring/r04/index.html）の全国の年平均値 5.07 と比較して，2 地点ともに，若干低い値であった．

2 地点のイオン成分の年間沈着量は，海塩由来である Na^+, Cl^-を除くと，NH_4^+, NO_3^-, 次いで SO_4^{2-}が多かった．また，イオン成分の年間沈着量は，曲渕ダムが城南区役所よりも多かった．

3.2　令和 5 年度経月変動

令和 5 年度の月毎の降水量，pH 及び EC を図 2 に示す．2 地点の降水量は，1 年を通じて同様の変動を示し，7 月

に最も多く10月に最も少なかった.2地点間の比較では,1 年を通じて曲渕ダムの降水量が城南区役所の降水量より多い傾向であった.pHは2地点ともに6月が最も高く,1月が最も低かった．ECは2地点ともに夏季に低く，秋季から冬季に高い傾向を示しており，城南区役所は 12月，曲渕ダムは11月が最も高かった．

酸性成分（nss-SO_4^{2-}，NO_3^-）及び塩基性成分（NH_4^+，nss-Ca^{2+}）の月間沈着量を図3に示す．どの成分も11月から3月にかけて曲渕ダムが城南区役所より多い傾向であった．また，10月が最も少なかった．

酸性成分及び塩基性成分の月間加重平均濃度の経月変化を図4に示す．2地点ともに酸性成分，塩基性成分ともに夏季に低く，冬季に高い傾向を示した．

酸性成分及び塩基性成分の等量濃度比の経月変化を図5に示す．酸性成分比（NO_3^-/nss-SO_4^{2-}）は，2地点ともに9月がNO_3^-の割合が最も小さく，12月がNO_3^-の割合が最も大きかった．塩基性成分比（NH_4^+/nss-Ca^{2+}）は，7月がNH_4^+の割合が最も大きかった．

表 1　城南区役所（湿性沈着物）

採取期間	降水量	pH	EC	SO_4^{2-}	NO_3^-	Cl^-	NH_4^+	Na^+	K^+	Ca^{2+}	Mg^{2+}	H^+
	mm		mS/m	mmol/m^2	mmol/m^2	mmol/m^2	mmol/m^2	mmol/m^2	mmol/m^2	mmol/m^2	mmol/m^2	mmol/m^2
3/27 - 4/3	0.0	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
4/3 - 4/10	29.6	4.85	1.5	0.39	0.39	0.99	0.63	0.84	0.04	0.09	0.09	0.42
4/10 - 4/17	60.2	4.98	1.0	0.68	0.77	0.71	1.22	0.59	0.06	0.25	0.10	0.63
4/17 - 4/24	0.0	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
4/24 - 5/1	81.6	4.83	0.9	0.70	0.79	0.48	1.13	0.31	0.04	0.11	0.05	1.21
5/1 - 5/8	135.0	5.27	0.8	0.56	0.60	4.46	0.74	3.76	0.09	0.13	0.37	0.73
5/8 - 5/15	2.9	4.18	5.0	0.17	0.16	0.14	0.19	0.09	0.01	0.05	0.02	0.19
5/15 - 5/22	21.8	5.01	1.0	0.27	0.24	0.16	0.46	0.10	0.01	0.05	0.02	0.21
5/22 - 5/29	0.8	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
5/29 - 6/5	94.8	5.13	0.6	0.50	0.71	0.46	1.09	0.31	0.03	0.08	0.05	0.70
6/5 - 6/12	34.7	5.26	0.6	0.23	0.38	0.07	0.69	0.04	0.01	0.04	0.01	0.19
6/12 - 6/19	0.0	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
6/19 - 6/26	61.1	5.30	0.4	0.22	0.37	0.12	0.54	0.07	0.01	0.05	0.02	0.31
6/26 - 7/3	183.3	5.32	0.4	0.41	1.08	0.80	1.22	0.67	0.03	0.08	0.08	0.88
7/3 - 7/10	356.1	5.04	0.6	1.28	2.34	1.60	3.67	1.42	0.09	0.15	0.15	3.28
7/10 - 7/18	6.8	5.43	0.9	0.04	0.13	0.16	0.17	0.13	0.01	0.02	0.01	0.03
7/18 - 7/24	28.4	5.33	0.3	0.06	0.13	0.20	0.16	0.18	0.01	0.01	0.01	0.13
7/24 - 7/31	25.4	4.29	2.7	0.69	0.64	0.35	0.69	0.18	0.01	0.14	0.03	1.30
7/31 - 8/7	37.4	5.19	0.9	0.27	0.66	0.29	1.00	0.25	0.01	0.15	0.02	0.24
8/7 - 8/14	83.4	5.50	0.4	0.27	0.20	0.74	0.30	0.68	0.03	0.12	0.06	0.26
8/14 - 8/21	26.2	4.81	1.9	0.34	0.52	1.69	0.52	1.49	0.04	0.09	0.15	0.41
8/21 - 8/28	21.5	4.86	1.3	0.17	0.50	0.22	0.45	0.20	0.01	0.07	0.02	0.30
8/28 - 9/4	9.4	5.89	0.8	0.06	0.13	0.17	0.24	0.14	0.01	0.03	0.01	0.01
9/4 - 9/11	30.5	5.34	0.6	0.13	0.16	0.72	0.24	0.65	0.02	0.05	0.06	0.14
9/11 - 9/19	61.8	4.76	1.1	0.73	0.29	0.61	0.46	0.38	0.03	0.07	0.04	1.07
9/19 - 9/25	4.5	5.16	1.9	0.04	0.13	0.38	0.14	0.34	0.01	0.02	0.03	0.03
9/25 - 10/2	3.7	4.40	3.8	0.15	0.17	0.19	0.24	0.15	0.01	0.03	0.02	0.15
10/2 - 10/10	14.4	5.75	0.5	0.05	0.14	0.18	0.19	0.17	0.01	0.03	0.01	0.03
10/10 - 10/16	0.0	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
10/16 - 10/23	4.9	4.39	6.0	0.15	0.25	1.30	0.16	1.19	0.03	0.04	0.13	0.20
10/23 - 10/30	2.1	4.90	7.6	0.08	0.09	0.92	0.08	0.83	0.02	0.03	0.09	0.03
10/30 - 11/6	0.0	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
11/6 - 11/13	19.6	4.45	3.5	0.47	0.49	1.91	0.48	1.66	0.04	0.11	0.19	0.70
11/13- 11/20	28.8	4.92	5.8	0.87	0.86	9.44	0.81	8.29	0.18	0.35	0.93	0.34
11/20 - 11/27	0.0	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
11/27 - 12/4	3.6	4.25	10.3	0.24	0.78	1.04	0.62	0.98	0.03	0.14	0.13	0.21
12/4 - 12/11	2.2	4.27	7.2	0.09	0.30	0.45	0.23	0.38	0.01	0.05	0.05	0.12
12/11 - 12/18	30.6	4.72	4.1	0.66	0.66	6.65	0.71	5.85	0.13	0.23	0.64	0.59
12/18 - 12/25	8.9	4.47	7.2	0.40	0.70	2.85	0.45	2.56	0.06	0.23	0.29	0.30
12/25 - 1/4	15.9	4.51	7.4	0.78	1.40	4.36	1.63	3.97	0.12	0.19	0.45	0.49
1/4 - 1/11	11.9	4.47	4.7	0.35	1.01	1.47	0.94	1.38	0.05	0.10	0.16	0.40
1/11 - 1/18	5.4	4.32	5.4	0.19	0.61	0.52	0.59	0.47	0.03	0.05	0.06	0.26
1/18 - 1/25	36.0	4.41	2.8	0.78	0.73	1.85	0.66	1.48	0.05	0.09	0.16	1.39
1/25 - 1/29	5.7	4.34	7.2	0.23	0.73	1.19	0.67	1.04	0.03	0.08	0.12	0.26
1/29 - 2/5	70.5	4.55	1.6	1.11	0.58	0.39	0.70	0.21	0.03	0.08	0.04	1.98
2/5 - 2/13	9.2	4.50	2.1	0.12	0.25	0.33	0.20	0.28	0.01	0.02	0.03	0.29
2/13 - 2/19	13.8	4.92	3.8	0.35	0.35	2.38	0.45	2.05	0.07	0.09	0.23	0.17
2/19 - 2/26	67.5	5.04	1.2	0.55	0.88	2.14	1.32	1.87	0.11	0.12	0.20	0.62
2/26 - 3/4	26.9	4.45	2.6	0.59	0.29	1.75	0.43	1.51	0.04	0.10	0.16	0.95
3/4 - 3/11	24.5	4.61	1.6	0.36	0.41	0.23	0.47	0.18	0.03	0.06	0.03	0.61
3/11 - 3/18	23.1	5.14	1.9	0.33	0.62	1.39	0.83	1.23	0.04	0.11	0.13	0.17
3/18 - 3/25	51.4	5.43	0.8	0.36	0.81	0.66	0.88	0.61	0.04	0.27	0.10	0.19
合計	1877.4	-	124.8	17.43	24.45	59.11	29.66	51.16	1.77	4.46	5.75	23.11
平均	-	5.03	-	0.39	0.54	1.31	0.66	1.14	0.04	0.10	0.13	0.51
最大値	356.1	5.89	10.3	1.28	2.34	9.44	3.67	8.29	0.18	0.35	0.93	3.28
最小値	0.0	4.18	0.3	0.04	0.09	0.07	0.08	0.04	0.01	0.01	0.01	0.01

表 2　曲渕ダム（湿性沈着物）

採取期間	降水量	pH	EC	SO_4^{2-}	NO_3^-	Cl^-	NH_4^+	Na^+	K^+	Ca^{2+}	Mg^{2+}	H^+
	mm		mS/m	mmol/m^2	mmol/m^2	mmol/m^2	mmol/m^2	mmol/m^2	mmol/m^2	mmol/m^2	mmol/m^2	mmol/m^2
3/27 - 4/3	0.0	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
4/3 - 4/10	41.0	5.13	1.1	0.47	0.35	1.17	0.43	0.95	0.33	0.16	0.14	0.30
4/10 - 4/17	53.5	5.08	0.9	0.59	0.62	0.43	0.86	0.37	0.13	0.26	0.08	0.44
4/17 - 4/24	2.3	5.83	7.2	0.24	0.40	0.33	0.35	0.34	0.03	0.22	0.07	0.00
4/24 - 5/1	119.3	4.83	0.8	0.83	1.02	0.68	0.92	0.53	0.06	0.13	0.09	1.78
5/1 - 5/8	249.6	5.20	0.9	1.28	0.82	9.60	0.95	8.25	0.20	0.30	0.82	1.57
5/8 - 5/15	2.1	4.49	3.6	0.10	0.10	0.12	0.10	0.07	0.01	0.05	0.03	0.07
5/15 - 5/22	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
5/22 - 5/29	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
5/29 - 6/5	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
6/5 - 6/12 ※	2.4	5.29	0.9	0.02	0.05	0.02	0.08	0.02	0.01	0.01	0.00	0.01
6/12 - 6/19	0.0	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
6/19 - 6/26	60.0	5.14	0.5	0.29	0.26	0.14	0.42	0.10	0.02	0.04	0.02	0.44
6/26 - 7/3	265.2	5.35	0.4	0.57	1.20	1.71	0.98	1.46	0.07	0.13	0.18	1.18
7/3 - 7/10	402.3	4.98	0.7	1.63	2.55	2.11	3.80	1.78	0.10	0.13	0.16	4.17
7/10 - 7/18	20.7	5.44	0.7	0.09	0.15	0.54	0.21	0.47	0.02	0.03	0.04	0.08
7/18 - 7/24	33.3	5.14	0.5	0.10	0.19	0.37	0.13	0.34	0.01	0.02	0.04	0.24
7/24 - 7/31	38.2	4.49	1.9	0.57	0.85	0.26	0.78	0.16	0.02	0.11	0.02	1.23
7/31 - 8/7	10.2	5.90	0.6	0.06	0.11	0.05	0.29	0.03	0.00	0.01	0.00	0.01
8/7 - 8/14	161.1	5.20	0.5	0.64	0.37	2.04	0.51	1.84	0.09	0.12	0.14	1.02
8/14 - 8/21	27.8	4.69	3.6	0.58	0.41	5.47	0.24	5.00	0.12	0.14	0.53	0.57
8/21 - 8/28	28.5	4.78	1.1	0.23	0.41	0.17	0.40	0.16	0.02	0.04	0.02	0.47
8/28 - 9/4	10.9	5.60	0.5	0.06	0.06	0.11	0.16	0.10	0.01	0.01	0.01	0.03
9/4 - 9/11	71.7	4.83	1.4	0.72	0.83	3.10	0.87	2.90	0.09	0.16	0.29	1.05
9/11 - 9/19	68.8	4.51	1.5	0.93	0.27	0.72	0.37	0.34	0.04	0.07	0.04	2.12
9/19 - 9/25	18.9	5.11	1.0	0.10	0.28	0.63	0.23	0.60	0.03	0.04	0.06	0.15
9/25 - 10/2	4.5	4.56	2.8	0.14	0.16	0.17	0.21	0.15	0.01	0.04	0.02	0.12
10/2 - 10/10	19.4	5.74	0.4	0.05	0.14	0.19	0.10	0.19	0.01	0.03	0.02	0.04
10/10 - 10/16	0.0	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
10/16 - 10/23	8.4	4.68	3.0	0.15	0.25	0.88	0.20	0.80	0.03	0.04	0.09	0.18
10/23 - 10/30	0.8	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
10/30 - 11/6	0.0	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
11/6 - 11/13	29.2	4.51	3.7	0.67	0.78	3.90	0.63	3.37	0.10	0.18	0.38	0.89
11/13- 11/20	67.3	5.03	5.1	1.69	1.62	19.87	1.37	17.46	0.37	0.66	1.95	0.63
11/20 - 11/27	0.0	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
11/27 - 12/4	4.9	4.27	11.5	0.39	1.28	1.60	1.03	1.52	0.06	0.25	0.20	0.27
12/4 - 12/11	8.0	4.43	3.3	0.14	0.49	0.47	0.33	0.40	0.02	0.06	0.05	0.30
12/11 - 12/18	109.8	4.88	3.1	1.57	1.15	19.89	1.03	17.30	0.38	0.52	1.91	1.46
12/18 - 12/25	18.2	4.21	8.4	0.90	1.69	5.96	1.10	5.50	0.14	0.32	0.62	1.12
12/25 - 1/4	17.0	4.79	4.8	0.53	0.83	3.48	0.76	3.15	0.09	0.14	0.36	0.28
1/4 - 1/11	18.5	4.73	2.9	0.32	0.69	1.86	0.59	1.73	0.05	0.08	0.18	0.35
1/11 - 1/18	3.3	4.17	10.2	0.20	0.59	1.02	0.52	0.94	0.03	0.06	0.11	0.22
1/18 - 1/25	68.5	4.68	2.9	1.17	1.00	8.20	0.81	7.08	0.14	0.22	0.80	1.45
1/25 - 1/29	14.0	4.41	6.2	0.54	1.70	2.13	1.79	1.83	0.08	0.16	0.23	0.54
1/29 - 2/5	71.8	4.52	1.8	1.16	0.93	0.64	0.82	0.44	0.04	0.07	0.06	2.16
2/5 - 2/13	7.4	4.56	2.4	0.10	0.18	0.48	0.11	0.44	0.01	0.02	0.04	0.20
2/13 - 2/19	47.9	4.79	3.0	0.92	0.86	5.83	0.88	5.20	0.17	0.18	0.57	0.77
2/19 - 2/26	105.0	5.12	1.5	0.93	1.13	6.05	1.76	5.44	0.19	0.24	0.57	0.79
2/26 - 3/4	37.1	4.50	2.1	0.65	0.25	2.03	0.25	1.74	0.05	0.10	0.18	1.17
3/4 - 3/11	28.1	4.64	1.5	0.34	0.42	0.29	0.43	0.23	0.03	0.05	0.04	0.65
3/11 - 3/18	38.3	5.17	1.9	0.58	1.14	2.37	1.36	2.14	0.07	0.22	0.24	0.26
3/18 - 3/25	46.4	5.62	1.1	0.44	0.77	1.44	0.72	1.29	0.06	0.40	0.18	0.11
合計	2461.3	-	114.0	23.66	29.33	118.51	29.87	104.16	3.53	6.23	11.56	30.89
平均	-	5.00	-	0.01	0.68	2.76	0.69	2.42	0.08	0.14	0.27	0.72
最大値	402.3	5.90	11.5	1.69	2.55	19.89	3.80	17.46	0.38	0.66	1.95	4.17
最小値	0.0	4.17	0.4	0.02	0.05	0.02	0.08	0.02	0.00	0.01	0.00	0.00

※6 月 5 日～8 日は採水器故障のため欠測．6 月 9 日～12 日の測定値を採用した．

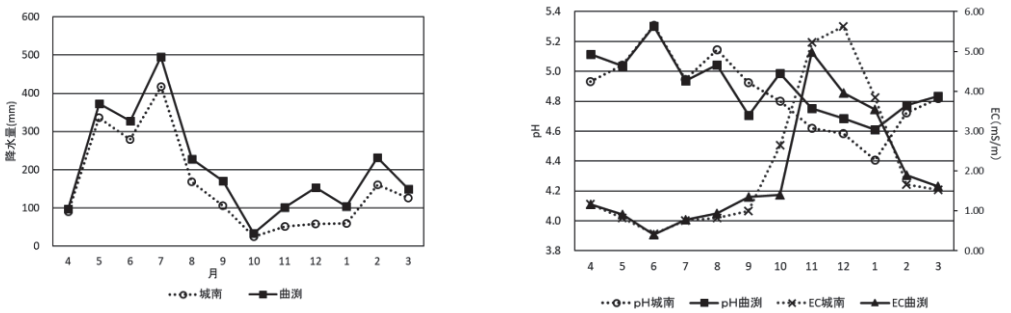


図 2　令和 5 年度降水量，pH，EC の経月変化

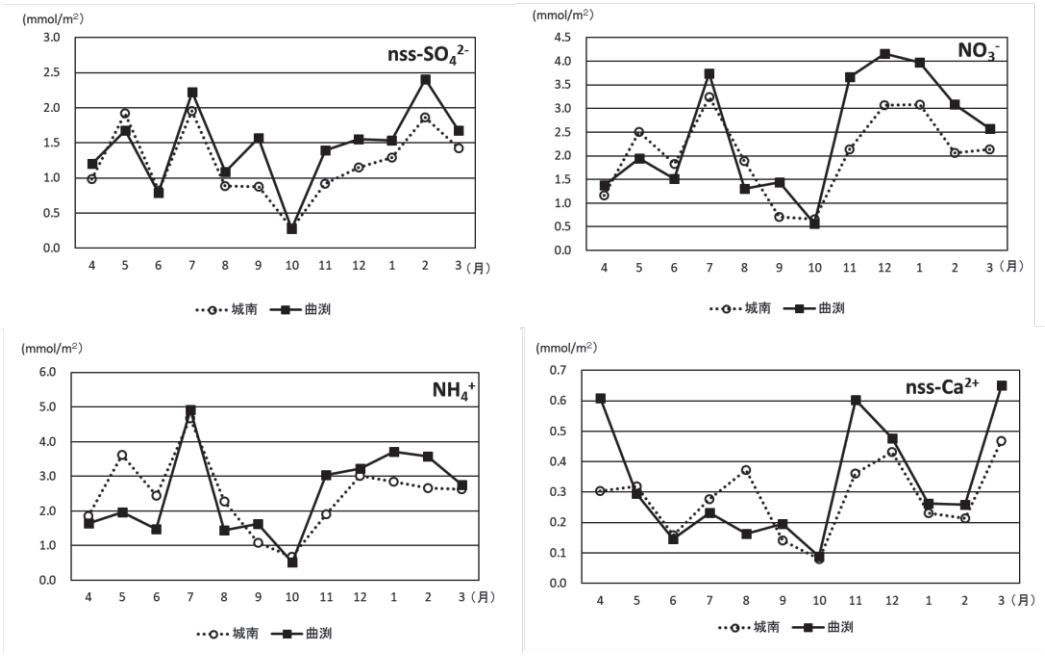


図 3　令和 5 年度イオン成分月間沈着量の経月変化（nss-SO_4^{2-}，NO_3^-，NH_4^+，nss-Ca^{2+}）

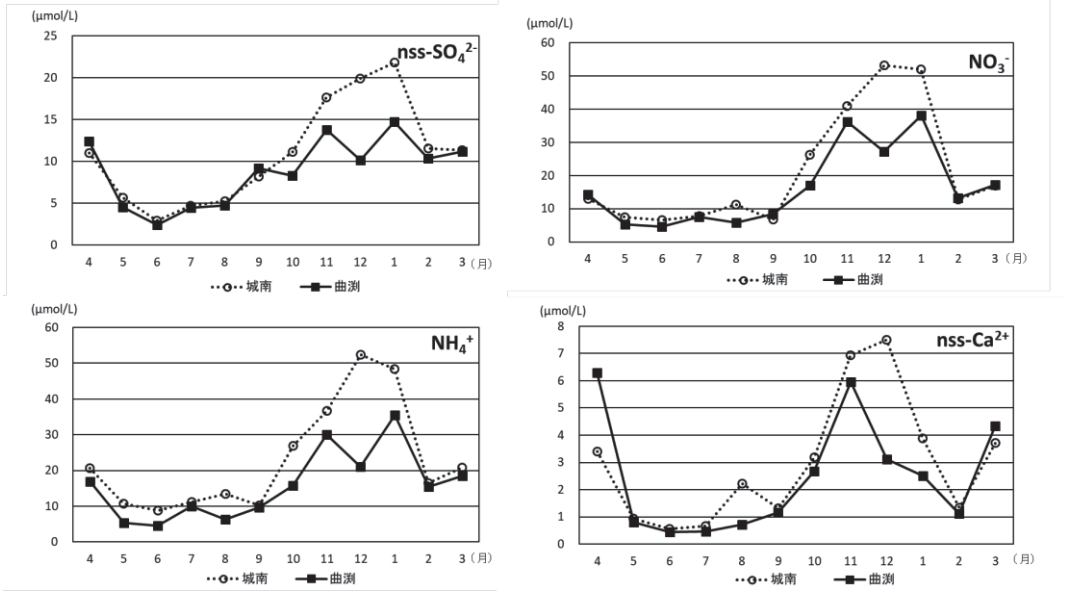


図 4　令和 5 年度イオン成分月間加重平均濃度の経月変化（nss-SO_4^{2-}，NO_3^-，NH_4^+，nss-Ca^{2+}）

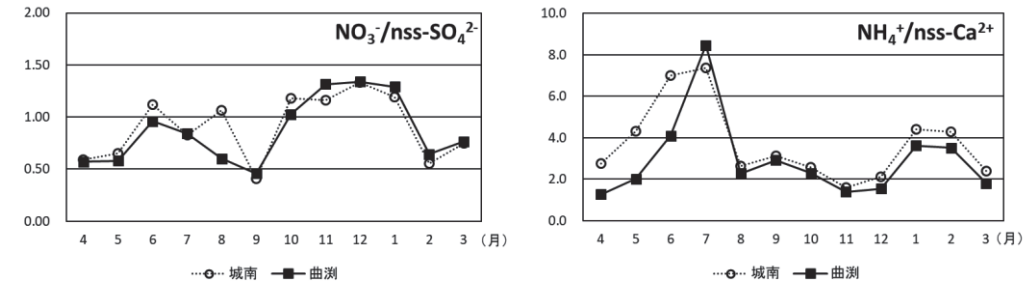


図 5　令和 5 年度酸性成分及び塩基性成分の等量濃度比の経月変化

文献

1) 環境省：越境大気汚染・酸性雨長期モニタリング報告書（平成 25～29 年度）

2) 全国環境研協議会 : 第 6 次酸性雨全国調査報告書 2019（令和元）年度

3) 環境省：湿性沈着モニタリング手引き書（第 2 版），2001

Ⅸ　学会等発表抄録

1　令和５年度　学会誌等論文発表

演　題　名	氏　名	雑　誌　名	巻(号)・頁・年(西暦)	抄録 No.
LC-TOF-MS による植物性自然毒の迅速一斉分析法の確立	佐藤秀樹 河野嘉了 田中志歩 常松順子 松永美樹 宮尾義浩 中牟田啓子	食品衛生学雑誌	65（1），7-14，2024	1）

学会誌等論文発表抄録

1）LC-TOF-MS による植物性自然毒の迅速一斉分析法の確立

佐藤秀樹・河野嘉了・田中志歩・常松順子・
松永美樹・宮尾義浩・中牟田啓子

食品衛生学雑誌

有毒植物による食中毒を想定し，LC-TOF-MS を用いた植物性自然毒 16 成分の迅速一斉分析法を確立した．試料に水- メタノール（1 : 9）及び *n*- ヘキサンを加え，ホモジナイズ抽出後に遠心分離し，精製操作を行わずに LC-TOF-MS で測定し，モノアイソトピックイオン［M＋H］$^{+}$（*m/z*）を用いた定性分析及び定量分析を行った．カレーを用いた添加回収試験の結果，定性は保持時間±0.2 分以内及び質量確度 5 ppm 以下で可能であり，定量は回収率 68～142%，併行精度 1.4～10.1%であった．また，有毒植物を煮たときの，煮た植物と煮汁中の有毒成分量を測定した結果，有毒成分の煮汁への移行が確認できた．したがって，食中毒が発生した場合，植物が残っていなくても，煮汁が確保できれば有用な分析試料となる可能性がある．

２　令和５年度　学会等口頭発表（WEB 等を含む）

演　題　名	発　表　者 （口演者○印）	学　会　名	会期	開催都市	抄録 No.
福岡県内の光化学オキシダントの濃度推移及び週末効果の地域的な違いについて	○副田大介 中島亜矢子 辻井温子 島田友梨	第 64 回大気環境学会年会	9/13～15	茨城県つくば市	1)
輸入食品中の指定外食品添加物一斉試験法の開発	○小出石千明	第 49 回九州衛生環境技術協議会衛生化学分科会	10/12	福岡市	2)
福岡市内河川の底生動物を用いた水質評価	○有本圭佑 大平良一	第 49 回九州衛生環境技術協議会生物分科会	10/12	福岡市	3)
折り紙からの赤色 201 号の溶出事例について	○佐多建一 小出石千明 近藤芳和子 坂本智徳 宮尾義浩	第 60 回全国衛生化学技術協議会年会	11/9～10	福島県福島市	4)
イオン交換固相を用いた高極性農薬の精製方法の検討	○増田栞 常松順子 佐藤秀樹 宮尾義浩	第 60 回全国衛生化学技術協議会年会	11/9～10	福島県福島市	5)

学会等口頭発表抄録（WEB 等を含む）

1)福岡県内の光化学オキシダントの濃度推移及び週末効果の地域的な違いについて

環境科学課　副田大介・中島亜矢子・辻井温子・
島田友梨

第 64 回大気環境学会年会

福岡県内の Ox 濃度の経年的な濃度推移や週日から週末にかけての Ox 濃度の変化（週末効果）の違いにより地域の特徴を明らかにするため，福岡県内の大気常時監視データの解析を行った．

Ox の長期的な指標（日最高 8 時間値の年間 99 パーセンタイル値の 3 年移動平均値）を算出し，クラスター分析を行ったところ，県内の測定局は濃度推移に応じて 4 つのクラスターに分類された．

また，週末効果では，県内測定局を対象に週日と日曜それぞれで高濃度日における各種平均値を算出し，週日の濃度に対する日曜の濃度（日曜/週日比）を算出した．2016～2020 年度における Ox の昼間平均値はほとんどの地域で日曜に増加しており，週末効果の影響が確認された．しかし，Ox 日最高 1 時間値の日曜/週日比は，地点によって増加及び減少を示すという異なる結果が得られた．これは，測定局のオゾン感度レジームの違いを表している可能性があると考えられた．

2)輸入食品中の指定外食品添加物一斉試験法の開発

保健科学課　小出石千明

第 49 回九州衛生環境技術協議会衛生化学分科会

当所では，国内での使用が認められていない食品添加物（以下，「指定外食品添加物」とする．）の収去検査に取り組んでおり，そのうち保存料 1 種，甘味料 2 種，フェノール系酸化防止剤 6 種及びタール色素 9 種について検査可能としている．しかし，これらに係る公定法は HPLC 法又は TLC 法による個別試験法であるため，全ての検査実施には時間と労力を要しているうえ，食品由来の妨害成分との分離に苦慮することが多く，質量分析による定性確認が必要な場合がある．

そこで，精密質量による確度の高い定性分析及び多成分の同時分析が可能な LC-QTOFMS を用い，70％アセトニトリル/*n*-ヘキサンの液液分配による脱脂操作及び限外ろ過による除タンパク操作を加えた一斉試験法を開発した．5 品目の食品に対して，指定外食品添加物 39 項目がそれぞれ 0.1 g/kg となるよう添加し，性能評価試験を実施した．その結果，29 項目で真度が 50～200％の範囲内であり，併行精度は 1.4～18.6％，室内精度は 2.9～21.1％であったことから，今回開発した試験法は，スクリーニング試験法として有用であると考えられた．開発した試験法を収去検査に適応することにより，現状よりも多くの項目に対応可能となり，市民の食の安全安心につながると考える．

3) 福岡市内河川の底生動物を用いた水質評価

環境科学課　有本圭佑・大平良一

第 49 回九州衛生環境技術協議会生物分科会

河川の水質について総合的・長期的な実態を把握するため，福岡市保健環境研究所では 1992 年から市内に流入する 5 河川（多々良川，室見川，樋井川，那珂川，御笠川）の底生動物調査を 1 年に 1 河川ペースで実施し，ASPT（Averae score per taxon）を用いた水質評価を行っているが，生物多様度指数を用いた環境評価は近年行われていない．そこで，今回は 1992 年から 2022 年までの 5 河川を対象に河川環境の変遷についてまとめた結果，河川水質は改善し，良好な状態を維持していると考えられた．また生物多様度指数を用いた環境評価を行った結果，ASPT による水質評価では捉えられない河川環境の変化を反映していることが示唆された．

4) 折り紙からの赤色 201 号の溶出事例について

保健科学課　佐多建一・小出石千明・近藤芳和子・坂本智徳・宮尾義浩

第 60 回全国衛生化学技術協議会年会

乳幼児を対象としたおもちゃ（以下，「指定おもちゃ」とする．）は，乳幼児が接触することにより健康を損なうことがないよう，食品衛生法に基づき規格及び製造基準が設定されている．折り紙のうち，指定おもちゃであるものについては，製造基準で着色料の使用が規制されており，化学的合成品たる着色料を使用する場合は，食品衛生法施行規則別表第 1 に掲げる着色料（以下，「法定着色料」とする．）以外の着色料の溶出が認められてはならないと定められている．

本市では定期的に指定おもちゃの収去検査を行っているが，令和 5 年に収去された折り紙の溶出試験において，着色料の溶出が認められた事例があった．溶出液を TLC 及び HPLC-PDA で分析したところ，その着色料が法定着色料ではないことが確認された．そこで， LC-QTOFMS を用いて未知着色料の構造推定を行ったところ，化粧品や外用の医薬品等に使用が認められているタール色素である赤色 201 号（以下，「R201」とする．）であると推定された．R201 の標準品を用いて確認試験を行ったところ，TLC 法，HPLC-PDA 法及び LC-QTOFMS 法すべて測定結果が一致したことから，溶出した着色料は R201 であると同定した．

通常，公定法では法定着色料以外の着色料を同定することは困難であるが，本事例では LC-QTOFMS を用いて精密質量から化合物を推定し，R201 を見出すことができており，未知着色料の同定に LC-QTOFMS が有用であることが示された．

5) イオン交換固相を用いた高極性農薬の精製方法の検討

保健科学課　増田栞・常松順子・佐藤秀樹・宮尾義浩

第 60 回全国衛生化学技術協議会年会

近年高極性農薬は除草剤等として繁用されており，食品への残留実態の把握が求められる．イオン交換カラムや HILIC カラム等を用いた LC-MS/MS による分析法で測定可能な成分は一度に数種類であり，一斉分析法については報告例が少ない．福岡市の収去検査では，現在高極性農薬の測定に対応できておらず，迅速かつ簡便な分析法の確立が急がれる．

そこで今回，小麦中に残留する高極性農薬の一斉分析法の開発を目的として，水抽出後，イミノクタジン，ジクワット，パラコート等の強塩基性化合物の分離精製を目的とした Oasis WCX（陽イオン交換固相カラム）の下に，グリホサート，グルホシネート及びその代謝物の分離精製を目的とした InertSep SAX-2（陰イオン交換固相カラム）を連結させた精製方法を検討した．抽出液への添加回収試験の結果，16 成分中 13 成分で回収率 70～120％を満たした．今後は目標値を満たさない 3 成分の回収率向上を目標に精製条件を検討し，小麦への添加回収試験を実施予定である．

編 集 委 員

近藤　美由紀・城戸　裕子・船越　吾朗・藤代　敏行

坂本　智徳・島田　友梨・笠　　愛・栗屋　真紀

富濵　大介・大久保　彰人

福岡市保健環境研究所報（ISSN　1343－3512）
第　４９　号

令和５年度版

発行所　　福岡市保健環境研究所

〒 810－0065　福岡市中央区地行浜２丁目１番３４号

ＴＥＬ 092(831)0660（代）

ＦＡＸ 092(831)0726

https://www.city.fukuoka.lg.jp/hokanken/index.html

（所報Web版を掲載しておりますのでご参照下さい）

印刷所　　城島印刷株式会社

〒 810－0012 福岡市中央区白金２丁目９－６

ＴＥＬ 092(531)7102

Annual Report

of

Fukuoka City Institute

of Health and Environment

Volume 49

December 2024

福岡市保環研報

Ann.Rep.Fukuoka Inst. of Health and Environment

Fukuoka City Institute of Health and Environment

2-1-34 Jigyohama

Chuo-ku Fukuoka Japan

https://www.city.fukuoka.lg.jp/hokanken/index.html