

福岡市保健環境研究所報

第 4 2 号

平成 2 8 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、市民の健康と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し、平成9年5月には、保健環境研究所として、科学的・技術的な機能を拡充・強化しながら、社会のニーズや変化に対応した業務及び組織運営を行ってまいりました。

当研究所では、保健や環境に係る法令に基づく試験・検査や、行政施策を科学的視点からサポートするための調査・研究を実施するとともに、体験型の保健環境学習室「まもる一む福岡」を併設し、市民等への情報の発信・提供に努めております。

近年は国際交流が盛んになりグローバル化の進展に伴い、保健分野では、ジカ熱やデング熱など蚊を媒介する感染症の発生や、ゴケグモ、ヒアリなど外来生物による咬傷事例、マダニやペットを介し感染する「重症熱性血小板減少症候群 (SFTS)」の増加など、今後一層の健康危機管理検査体制の強化が求められているところであります。

さらに、環境分野では、地球温暖化に伴う気候変動の影響により、熱中症で救急搬送される患者数が増加するとともに、大陸から飛来するPM_{2.5}などの大気汚染物質による健康影響が懸念されております。また、未来の世代に引き継いでいく博多湾などの良質な環境の保全が望まれております。

このような保健及び環境の時代のニーズに的確に対応していくため、職員一同、検査技術の向上など自己研鑽に努め、市民に開かれた研究所として、情報発信・提供を行い、今後とも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。

この所報は、平成28年度の業務の成果を取りまとめたものであります。ご高覧いただき、忌憚のないご意見をお寄せいただければ幸甚に存じます。

平成29年10月

福岡市保健環境研究所

所長 久保 祥三

目 次

I	施設・機構	
1	沿 革	1
2	施 設	1
3	組織及び事務分掌・職員定数	2
4	職員配置表	3
5	予算（平成29年度当初予算）	3
6	福岡市保健環境研究委員会	4
7	平成28年度事業実績一覧	5
II	情報発信・提供事業	
1	保健環境学習室「まもる一む福岡」	7
2	インターネットによる情報提供	8
3	夏休みこども体験学習会	8
4	ほかんけん研究者体験	9
5	県内保健環境研究機関合同成果発表会	9
6	出前講座	10
7	施設見学・視察の受け入れ	10
8	イベントにおける情報提供	10
9	各区衛生課が実施するリスクコミュニケーション事業における情報提供	10
10	広報誌による情報提供	11
11	マスコミを通じた情報提供	11
III	技術研修等	
1	指導研修	13
2	学会，会議，研修等派遣	13
3	共同研究	17
IV	定期業務	
1	環境科学（環境科学課）	
1)	環境水質担当及び博多湾担当	19
2)	大気担当	21
3)	精度管理の実施状況等	22
2	廃棄物（保健環境管理課）	
1)	廃棄物資源化担当	23
2)	廃棄物処理施設担当	23
3	微生物（保健科学課）	
1)	細菌担当	25
2)	ウイルス担当	27
3)	感染症担当	28

4	理化学（保健科学課）	
1)	食品化学担当	30
2)	微量分析担当	31
V	非定期業務	
1	環境科学（環境科学課）	
1)	行政からの依頼検査	39
2)	環境省委託調査	39
3)	その他の調査	40
2	廃棄物（保健環境管理課）	
1)	廃棄物資源化担当	41
2)	廃棄物処理施設担当	41
3	微生物（保健科学課）	
1)	細菌担当	43
2)	ウイルス担当	43
3)	感染症担当	45
4	理化学（保健科学課）	
1)	非定期依頼検査	46
2)	油症検診受診者の血中PCBの検査	46
3)	厚生労働省委託調査	46
4)	国立医薬品食品衛生研究所との共同研究	46
5)	健康危機管理を目的とした精度管理	46
VI	学会等発表抄録	
1	平成28年度 学会誌等論文発表	49
2	平成28年度 学会等口頭発表	51
VII	報告・ノート	
1	福岡市における化審法関連物質の環境実態調査	57
	高村範亮 ほか	
2	福岡市内河川の底生動物を用いた環境評価－樋井川，2016年－	62
	谷口勝彦 ほか	
3	博多湾における貧酸素水塊及び栄養塩類等に関する実態調査	70
	新田千穂 ほか	
4	資源化センターの減容・減量効果調査（平成16～28年度）	83
	前田茂行 ほか	
5	SYBR Green real-time PCR 法を用いた食品中のサルモネラ属菌スクリーニング法の検討	96
	古賀舞香 ほか	
6	媒介蚊からのデングウイルスRNA抽出法の検討	100
	財津修一 ほか	
7	繊維製品に含まれるアゾ化合物由来の特定芳香族アミン類の試験法に関する検討	104

	宮本道彦 ほか	
8	海産物中の有機ヒ素分析法開発	112
	戸渡寛法 ほか	
9	いわゆる健康食品の崩壊試験	117
	浜崎志帆 ほか	
10	加熱加工食品における特定原材料（小麦）の遺伝子検査法の検討	121
	宮崎悦子 ほか	
11	加工食品中に高濃度に含まれる農薬等の迅速検出法の検討—レトルトカレーでの性能評価—	125
	常松順子 ほか	
12	福岡市における食事からの残留農薬一日摂取量調査(2016)	132
	井邊早春 ほか	

VIII 資 料

1	平成26～28年度アルキルフェノール類・クロロフェノール類とLASの調査結果	141
2	平成28年度化学物質環境実態調査	146
3	平成28年度 水質関係苦情処理等依頼検査結果	152
4	平成28年度 福岡市におけるPM _{2.5} の成分組成	154
5	平成28年度 福岡市の酸性雨調査結果	157
6	福岡市の家庭系可燃ごみにおけるリサイクル可能ごみの排出状況	159
7	清掃工場における集じん灰処理キレート剤選定及び添加率の検討	163
8	中部汚泥再生処理センターにおける生物処理停止時の水質調査	165
9	平成28年度 食中毒・苦情検査結果	168
10	平成28年度 感染症発生動向調査事業関連のウイルス検査結果	173
11	平成28年度 感染症（三類）発生状況	175
12	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	178
13	平成28年度 主要食品添加物の検出状況	181
14	乳に含まれるアフラトキシンM1の試験法の検討	183
15	平成28年度 農薬検査項目及び定量下限一覧	187
16	平成28年度 動物用医薬品等検査項目及び定量下限一覧	190

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。「まもる一む福岡」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、廃棄物資源化担当及び廃棄物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。保健科学課食品化学担当 1 名を微量分析担当に振替え
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

2 施 設

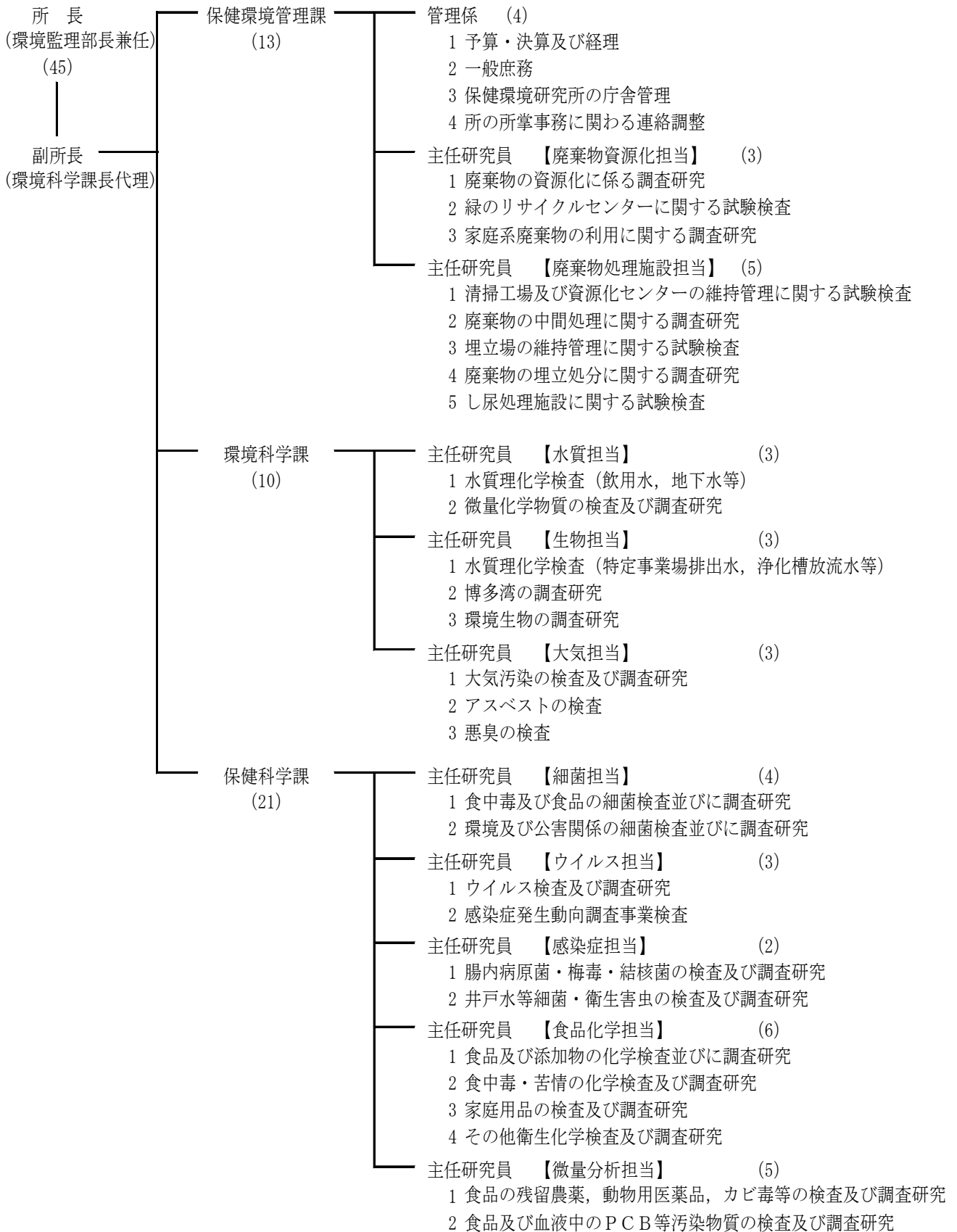
- 1階 まもる一む福岡
- 2階 会議室・技術研修室
- 3階 所長室・情報資料室
保健環境管理課(管理係)
保健科学課(微生物)
〔細菌担当, ウイルス担当, 感染症担当〕
- 4階 保健科学課(理化学)
〔食品化学担当, 微量分析担当〕
- 5階 環境科学課
〔水質担当, 生物担当, 大気担当〕

敷地面積：2,725.65㎡
 延床面積：7,384.41㎡（うち、「まもる一む福岡」550㎡）
 高 さ：28.4m
 構造規模：鉄骨鉄筋コンクリート造地上5階
 所 在 地：福岡市中央区地行浜2丁目1-34

・保健環境管理課（廃棄物）
 〔 廃棄物資源化担当, 廃棄物処理施設担当 〕
 所在地：福岡市東区箱崎ふ頭4丁目13-42（臨海工場3階）
 面 積：620㎡

3 組織及び事務分掌・職員定数

(平成29年5月1日現在)



*他に嘱託職員 (調査研究推進等, 病原微生物, 検査員等) 9名を配置

4 職員配置表（平成 29 年 5 月 1 日現在）

課 \ 職 種	技 術 職				事 務 職	嘱 託 職 員	計
	衛 生 管 理	獣 医 師	臨 床 検 査 技 師	化 学			
所 長（部 長）	1						1
副所長（環境科学課長兼任）	1						1
保健環境管理課（管理係）	1				4	(1)	5 (1)
保健環境管理課（廃棄物）	6			2			8
環境科学課（環境科学）	9					(3)	9 (3)
保健科学課（微生物）	7	2	1			(4)	10 (4)
保健科学課（理化学）	11					(1)	11 (1)
計	36	2	1	2	4	(9)	45 (9)

※保健環境管理課長は管理係、環境科学課長は副所長、保健科学課長は微生物でそれぞれ計上

5 予 算（平成 29 年度当初予算）

1) 歳入

（単位：千円）

科 目	環 境 施 設 使 用 料	保 健 環 境 研 究 所 手 料 数	感 染 症 対 策 費 負 担 金	健 康 保 險 料	雇 用 保 險 料	厚 生 年 金 保 險 料	そ の 他 の 雑 入	計
金 額	653	1,323	785	1,422	105	2,222	132	6,642

2) 歳出

（単位：千円）

区 分	環 境 局				保 健 福 祉 局				計
	環 境 総 務 費	環 境 対 策 費	廃 棄 物 処 理 費	施 設 費	保 健 衛 生 総 務 費	感 染 症 対 策 費	環 境 衛 生 費	食 品 衛 生 費	
報 酬		23,886							23,886
共 済 費		7,692	21			20			7,733
賃 金		1,200	1,435			1,355			3,990
報 償 費		302							302
旅 費		1,715	528		101	11	97	320	2,772
需 用 費	印 刷 消 耗 品 費	18,605	4,837		606	17,082	3,391	20,526	65,047
	被 服 費	52	70						122
	光 熱 水 費	30,170							30,170
	修 繕 料	2,430	770						3,200
役 務 費		2,579	311			301			3,191
委 託 料		49,142	58,195	7,747		1,139			116,223
自 動 車 借 上 料		13							13
借 損 料		104,243	6,294						110,537
機 械 器 具 等		4,131	244						4,375
共働事業提案制度負担金		2,099							2,099
諸 会 議 費 負 担 金	50	449	131					90	720
計	50	248,708	72,836	7,747	707	19,908	3,488	20,936	374,380

※廃棄物処理費及び施設費は保健環境管理課（廃棄物）関連の経費

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・助言を行うことを目的として、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 人以内）

- ・学識経験を有する者（10 人）
- ・市職員（3 人）

3) 平成 28 年度の開催状況

- ・開催日時 平成 28 年 8 月 4 日（木）15：30～17：47
- ・場 所 福岡市保健環境研究所 2 階会議室
- ・議 題

①調査研究最終報告について（6 件）

- 国内における化審法関連物質の排出源及び動態の解明（共同研究）
- PM_{2.5}の短期的/長期的環境基準超過をもたらす汚染機構の解明（共同研究）
- PM_{2.5}の健康影響調査（共同研究）
- 熱中症（暑さ指数）に関する調査
- バクテリオファージを用いた食中毒菌制御法の検討
- 麻しん患者数の正確な把握のための研究-臨床的に麻しんが疑われた症例からのウイルス検出-

②調査研究実施計画（新規調査研究）について（6 件）

- 高リスクが懸念される微量化学物質の実態解明に関する研究（共同研究）
- PM_{2.5}の環境基準超過をもたらす地域的/広域的汚染機構の解明
- 家庭系燃えるごみ用有料指定袋への手つかず食品等の排出実態調査
- Campylobacter属菌の迅速検査法の検討
- 加熱加工食品におけるアレルギー物質（小麦）の遺伝子検査法の検討
- 健康危機管理検査体制の強化（下痢性貝毒検査法と乳のアフラトキシンM1検査法の検討）

7 平成28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	環境科学 (環境科学課)	公共用水域・地下水検査, 環境ホルモン調査	282	2,261		
		プール・浄化槽放流水検査	210	932		
		特定事業場排水検査	38	291		
		酸性雨調査	97	691		
		有害大気汚染物質調査	48	528		
		悪臭検査	6	26		
		アスベスト検査	24	149		
		その他の大気環境調査 (PM _{2.5} , 室内空气中化学物質等)	312	7,553		
		市民依頼水質検査	1,182	9,963		
		行政からの苦情等依頼検査 (環境省委託調査を含む)	110	1,145		
その他の調査	323	2,830				
	小 計	2,632	26,369			
廃棄物 (保健環境管理 課)	清掃工場 (資源化センターを含む) 埋立場	し尿処理施設	72	551		
		緑のリサイクルセンター	28	184		
		廃棄物処理施設等からの依頼	463	2,331		
		資源化調査	687	2,204		
		その他の調査	328	1,007		
		小 計	3,234	25,122		
		微生物 (保健科学課)	食品等行政収去検査 食中毒・苦情検査 (細菌検査) 環境衛生関係検査 (プール・浴場水等) 環境保全関係検査 (事業場排水) その他の依頼検査 (細菌担当) 腸内病原菌検査 (赤痢・チフス・O157等) 感染症法に基づく防疫検便 結核菌検査 梅毒検査 井戸水等細菌検査 原虫・寄生虫等検査 その他の依頼検査 (感染症担当) 血清検査 (HIV, Ct, 風疹) 感染症発生动向調査事業ウイルス検査 食中毒・集団胃腸炎のウイルス検査 全数把握のウイルス検査 蚊のウイルス検査		1,209	3,917
					629	3,464
	554			683		
	33			33		
	74			74		
	2,217			6,651		
	568			568		
	16			16		
	904			1,808		
	1,355			2,371		
	121			121		
	101			127		
	3,794			5,406		
	298			298		
	176			176		
	93			130		
	15			15		
	小 計			12,157	25,858	
理化学 (保健科学課)	食品等行政収去検査 家庭用品試買検査 行政(保健所)からの依頼検査 (苦情) 行政(保健所以外)からの依頼検査 委託事業 (血中PCB)		663	22,039		
			60	84		
			17	28		
			29	3,929		
			47	47		
			小 計	816	26,127	
	計	18,839	103,476			
(2) 信頼性確保等	環境科学 (環境科学課)	外部精度管理	4	24		
		内部精度管理	2	2		
		小 計	6	26		
		微生物 (保健科学課)	外部精度管理	30	34	
内部精度管理	73		79			
機器日常検査等	8,665		8,665			
小 計	8,768		8,778			
理化学 (保健科学課)	外部精度管理 内部精度管理 機器日常検査等 妥当性評価		16	23		
			127	3,757		
			756	756		
			40	4,440		
		小 計	939	8,976		
	計	9,713	17,780			
	総 計	28,552	121,256			

2) 調査・研究等事業

区	分	件数(回数)	人数	
調査・研究	紙上発表	学会誌等	2	—
		所報	12	—
		小 計	14	—
	口頭発表	学会・協議会等	12	—
		小 計	12	—
	計	26	—	
情報提供・啓発	まもる一む福岡によるイベント・講座等		419	10,532
	体験学習等		6	63
	県内保健環境研究機関合同成果発表会		1	115
	出前講座		5	138
	施設見学・視察の受け入れ		15	206
	イベント等における情報提供		3	598
	広報誌・マスコミ等を通じた情報提供		11	—
		計	460	11,652
研 修	研修生受入		8	27
	講師派遣		1	1
	学会、会議、研修等派遣		61	91
	共同研究		6	—
		計	76	119
	総 計	562	11,771	

Ⅱ 情報発信・提供事業

1 保健環境学習室「まもる一む福岡」

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「まもる一む福岡」を保健環境研究所に併設している。

映像・音声や実験などを体験しながら学ぶ『体験学習ゾーン』及びパソコンや展示物を使って学ぶ『研究学習ゾーン』において情報の提供等を行っている。体験学習ゾーンではヒナモロコやカブトガニの飼育展示も行っている。

平成 28 年度来館者数は 18,868 人(平成 27 年度比 172%)であった。

来館者 人数	大人・子ども別内訳		団体・一般別内訳	
	大人	子ども	団体	一般
18,868 人	11,839 人	7,029 人	5,134 人	13,734 人

1) 映像シアター「ガイア」

保健、水環境、大気環境、外来生物・生物多様性、野鳥、食品化学の 6 分野で、クイズを中心に保健や環境について学べる映像プログラムを随時実施。

実施回数	利用者数	プログラム
164 回	4,243 人	クロツラヘラサギ福くんの冒険、辛子めんたいこって何でできているの？ 等

2) ミラクルラボ体験教室

保健衛生実験、科学実験、科学工作の 3 分野で、楽しみながら身近な保健や環境について学べるプログラムを随時実施。

実施回数	利用者数	プログラム
213 回	5,119 人	手洗いチェック、ちりめんじゃこワールド、身近な水の水質チェック 等

3) 理科応援教室（低学年向け・高学年向け）

小学校低学年・高学年それぞれを対象に、理科応援教室を定期的にも実施。

実施回数	参加者数	プログラム
23 回	722 人	ゲンゴロウ博士になろう、サインペンの色を分離してみよう 等

4) 特別講座

生物多様性の保全、健康と環境の安全・安心の確保をテーマに、大人まで楽しめる講座や観察会を定期的にも実施。

実施回数	参加者数	プログラム
11 回	292 人	身近な植物観察会、海辺の生きもの観察会、カブトガニの形の不思議 等

5) NPO等との連携

NPO 法人、大学等と連携し、一般市民を対象とした学習会を実施。また、環境活動団体、企業、学識者等との環境学習推進のための連携体制構築を目指し、参加型会議を実施した。

実施回数	参加者数	内容
8 回	156 人	一般市民対象：自然観察会、ワークショップ 環境活動団体等対象：ふくおか環境連絡会議



ミラクルラボ体験教室



〈特別講座〉カブトガニの形の不思議

2 インターネットによる情報提供

保健環境研究所のホームページ (<http://www.city.fukuoka.lg.jp/kankyo/hokanken/>) の中で、業務の紹介や所報(41号)のWeb版のアップ等を行うとともに、各課が取り組んでいる調査研究や試験検査等で得られた環境や保健に関する各種情報を提供した。

平成28年度は、市ホームページのリニューアルに伴い、保健環境研究所のホームページの見直しを行うとともに、過去に実施してきた調査研究の論文等(平成20年度以降)を業績集としてホームページに掲載した。

3 夏休みこども体験学習会

夏休みの学習イベントとして、各部門において小学4～6年生を対象に「夏休みこども体験学習会」を実施した。

事業名	第22回 夏休みこども体験学習会
日時	平成28年7月22日(金) 14:00 ～ 15:30
場所	福岡市保健環境研究所, 臨海工場
対象者	福岡市内在住の小学4～6年生
参加人数	1コース 8人, 2コース 10人, 3コース 7人, 4コース 10人 合計 35人
学習内容	1コース <きみも科学者だ!!～オリジナル入浴剤を作ってみよう～> 1 試薬を用いた発泡入浴剤の製作 2 簡易水質検査キットによる水の分析
	2コース <自由研究にぴったり!たべものの色の不思議に挑戦> ・食品に使われている着色料について ・食品中の色の性質について など実験をとおして学ぶ.
	3コース <作ってのぞこう!ミクロの世界!!～ペットボトルで手作り顕微鏡～> ・テキスト等を用いて,知識を深めてもらう. ・ペットボトルを使った顕微鏡作りやテンプレート作りを行う. ・作成した顕微鏡・テンプレートを用いて観察を行う.
	4コース <見よう 学ぼう エコ発電教室!～手で光るエコライトを作ってみよう～> 1 臨海工場探検 ①ごみで発電するしくみを調査する ②一般見学では見られない中央制御室などを探検する. 2 発電実験 実験を通じてエコ発電について学ぶ.



1 コース



2 コース



3 コース



4 コース

4 ほかんけん研究者体験

平成 28 年度から、新規に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（小学生向け，高校生向け）を保健環境学習室「まもるーむ福岡」で実施した。

実施回数	参加者数	プログラム
2 回	28 人	虫が教えてくれる福岡の川，DNA 分析にチャレンジ 等



第 1 回 虫がおしえてくれる福岡の川



第 2 回 DNA分析にチャレンジ

5 県内保健環境研究機関合同成果発表会

福岡県保健環境研究所，北九州市環境科学研究所とともに，平成 28 年度は福岡市の担当により生活に密着した環境や保健衛生に関する合同成果発表会を開催した。

○開催日 平成 28 年 11 月 4 日(金) 13:30～16:50

○会場 福岡市市民福祉プラザ（ふくふくプラザ）1 階 ふくふくホール

○参加者数 115 名

○プログラム

①特別講演 「どうなってるの？福岡の天気と環境」 講師：（一財）日本気象協会 松井 渉

②成果発表

【環境部門】

- ・知りたい福岡県のPM_{2.5} ～福岡県におけるPM_{2.5}濃度の実態～（福岡県）
- ・デンケンGO！（市民生活と電子顕微鏡）～走査型電子顕微鏡を利用した苦情対応事例とインターネット情報の活用について～（北九州市）
- ・PM_{2.5}のお話 ～福岡市ではどんな調査をしているの？～（福岡市）

【保健部門】

- ・これまでにわかったこと～PCB、ダイオキシンの健康への影響について～（福岡県）
- ・こんなものが食品の中から～食品中の異物苦情について～（北九州市）
- ・教えて！カンピロバクター食中毒～最近の食中毒事例と新しい検査法～（福岡市）

6 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、市の取り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、平成28年度は2つのテーマで実施した。

平成28年度テーマ	実施回数	参加者数
楽しい環境実験室	4回	125人
食品添加物の話	1回	13人
計	5回	138人

7 施設見学・視察の受け入れ

区分	回数	延人数
市民・市民団体	2回	20人
学校関係	5回	117人
行政関係	7回	66人
研究関係	1回	3人
計	15回	206人

8 イベントにおける情報提供

平成28年10月22日（土）・23日（日）に福岡市役所西側ふれあい広場で開催された「環境フェスティバルふくおか2016」に出展し、環境関連情報の提供を行った。

コーナー名	来場者数
お弁当の空容器でオリジナルキーホルダーを作ろう！	580人



出展コーナー

9 各区衛生課が実施するリスクコミュニケーション事業における情報提供

平成28年度は、南区衛生課が実施するリスクコミュニケーション事業において食品の検査や市民・消費者への情報の提供などに協力した。

区	事業名	主な協力業務	実施回数	参加者数
南区	ため蔵食ゼミ	施設見学・検査体験など	2回	18人

10 広報誌による情報提供

1) 「ほかんけんだより」の発行

市民へリアルタイムな保健，環境情報の発信・提供を行った。

No.	発行月	掲 載 記 事
第12号	H28. 7月	カンピロバクター・寄生虫の食中毒に注意！
第13号	H28. 9月	カビ毒ってなに？
第14号	H29. 2月	生きものが生まれ育つ博多湾
第15号	H29. 3月	焼却炉の調査・不燃ごみ調査から

2) 関係機関，団体等が発行する広報誌(紙)での情報提供

広報誌(紙)名	投 稿 記 事	発 行 者
月刊「公衆衛生情報」平成28年9月号	保育園における腸管出血性大腸菌O111の集団感染事例	(一財)日本公衆衛生協会
暮らし上手のヒント Vol.5	"台所の衛生管理を見直そう！ 身近な「有毒植物」にご注意を！"	保健福祉局生活衛生部

11 マスコミを通じた情報提供

テレビ，新聞等を通して，広く市民に環境や保健に関する情報の提供を行った。

期 日	内 容	取材機関
H28. 5.13	「マダニ」に関する標本貸与・写真提供	RKB 毎日放送
H28. 5.23	福岡市におけるセアカゴケグモの状況について	テレビ西日本
H28. 6.23	食中毒について	読売新聞
H29. 1.22	ほかんけん研究者体験「DNA分析にチャレンジ」の取材	西日本新聞・読売新聞
H29. 3. 1	ふくおか環境連絡会議の取材	九州朝日放送

Ⅲ 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
新規採用職員職場研修	4/12～13	新規採用職員 1名	保健環境管理課, 環境科学課 保健科学課
新任食品衛生監視員技術研修	6/23～24	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	8/5	福岡女子高等学校 1名	環境科学課
インターンシップ研修	8/22～25	九州産業大学 2名	保健環境管理課, 環境科学課 保健科学課
職場体験研修	8/24, 9/6	市職員(技術職) 3名	保健環境管理課, 環境科学課
インターンシップ研修	9/12～16	熊本大学 1名	環境科学課
中学生職場体験研修	9/14～15	松崎中学校 2名	保健環境管理課
環境衛生監視員研修	10/27	環境衛生監視員 10名	保健科学課

2) 講師派遣

用務	日程	主催	派遣先	派遣職員
JICA 課題別研修事業「準好気性埋立(福岡方式)処分場の設計・維持管理」講習	10/28	独立行政法人国際協力機構(JICA)	西部污水处理場(福岡市)	保健環境管理課 主任研究員 小原 浩史

2 学会, 会議, 研修等派遣

1) 学会等

用務	日程	主催	派遣先	派遣職員数
第63回福岡県公衆衛生学会	5/19	福岡県公衆衛生学会	福岡県吉塚合同庁舎(福岡市)	保健科学課 1名
第111回日本食品衛生学会学術講演会	5/19～20	日本食品衛生学会	タワーホール船堀(東京都江戸川区)	保健科学課 2名
平成28年度食品衛生研究発表会	7/8	福岡市	鮮魚市場会館(福岡市)	保健科学課 1名
衛生微生物技術協議会第37回研究会	7/21～22	衛生微生物技術協議会	広島市南区民文化センター, 広島県健康福祉センター(広島市)	保健科学課 2名
第57回大気環境学会年会	9/7～9	大気環境学会	北海道大学工学部(札幌市)	環境科学課 1名
日本防菌防黴学会第43回年次大会	9/26～27	日本防菌防黴学会	品川区立総合区民会館(東京都品川区)	保健科学課 1名
第27回廃棄物資源循環学会研究発表会	9/27～29	一般社団法人廃棄物資源循環学会	和歌山大学(和歌山県和歌山市)	保健環境管理課 1名

第112回 日本食品衛生学会学術講演会	10/26～29	日本食品衛生学会	函館国際ホテル (北海道函館市)	保健科学課 1名
県内保健環境研究機関合同成果発表会	11/4	福岡市保健環境研究所, 福岡県保健環境研究所及び北九州市環境科学研究所	福岡市市民福祉プラザ (福岡市)	環境科学科 1名 保健科学課 1名
第20回腸管出血性大腸菌感染症研究会	11/10	腸管出血性大腸菌感染症研究会	富山県民共生センター (富山県富山市)	保健科学課 1名
平成28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	11/11	地方衛生研究所全国協議会 近畿支部自然毒部会	滋賀県庁 (滋賀県大津市)	保健科学課 1名
第43回環境保全・公害防止研究発表会	11/17～18	環境省	山形テルサ (山形県山形市)	環境科学課 1名
第53回全国衛生化学技術協議会年会	11/17～18	全国衛生化学技術協議会	ホテル青森 (青森県青森市)	保健科学課 3名
第9回日本カンピロバクター研究会総会	11/25～27	日本カンピロバクター研究会	杏林大学井の頭キャンパス (東京都三鷹市)	保健科学課 1名
統計的手法を用いた環境及び生体科学調査の高度化に関する研究会	12/19～20	統計数理研究所	統計数理研究所 (東京都立川市)	環境科学課 1名
「PM _{2.5} の長期観測・解析と健康影響調査」に関する講演会・第17回大気環境学会九州支部研究発表会	1/27	大気環境学会九州支部	九州大学 (福岡市)	環境科学科 3名
第51回 日本水環境学会年会	3/15～17	日本水環境学会	熊本大学黒髪キャンパス (熊本市)	環境科学課 3名

2) 会議等

用 務	日 程	主 催	派 遣 先	派遣職員数
第25回環境化学討論会	6/8～10	日本環境化学会	朱鷺メッセ (新潟市)	環境科学課 1名
Ⅱ型共同研究「沿岸海域環境の物質循環現状把握と変遷解析に関する研究」平成28年度第1回全体会議	6/17	国立環境研究所	大阪府立環境農林水産総合研究所 (大阪市)	環境科学課 1名
Ⅱ型共同研究「PM _{2.5} の環境基準超過をもたらす地域的/広域的汚染機構の解明」キックオフ全体会合	6/23～24	国立環境研究所	国立環境研究所 (茨城県つくば市)	環境科学課 1名
第51回日本水環境学会年会熊本大会 第1回実行委員会	7/15	日本水環境学会	熊本大学黒髪キャンパス (熊本市)	環境科学課 1名
平成28年度環境測定分析統一精度管理九州ブロック会議	8/3	環境省	福岡県保健環境研究所 (福岡県太宰府市)	環境科学課 2名

平成28年度地域保健総合推進事業地方衛生研究所第1回ブロック会議	8/19	地方衛生研究所全国協議会	佐賀中央保健福祉事務所（佐賀県佐賀市）	保健科学課 1名
第42回九州衛生環境技術協議会	10/13～14	九州衛生環境技術協議会	都久志会館（福岡市）	環境科学課 5名 保健科学課 6名
平成28年度地域保健総合推進事業に基づく地方衛生研究所地域専門家会議	10/20～21	地方衛生研究所全国協議会	佐賀中部保健福祉事務所別館（佐賀県佐賀市）	保健科学課 1名
平成28年度第67回地方衛生研究所全国協議会総会	10/25	地方衛生研究所全国協議会	ホテルプリムローズ大阪（大阪市）	保健科学課 1名
動物由来感染症対策技術協議会	10/28	厚生労働省	赤坂区民センター区民ホール（東京都赤坂区）	保健科学課 1名
Ⅱ型共同研修「高リスクが懸念される微量化学物質の実態解明に関する研究」における研究推進会議	11/10～11	国立環境研究所	秋田県総合保健センター（秋田県秋田市）	環境科学課 1名
平成28年度「地域保健総合推進事業」全国疫学情報ネットワーク構築会議	11/22	地方衛生研究所全国協議会	東京都健康安全研究センター（東京都新宿区）	保健科学課 1名
平成28年度 地域保健総合推進事業に基づく地方衛生研究所地域レファレンスセンター会議	11/29	地方衛生研究所全国協議会	佐賀中央保健福祉事務所（佐賀県佐賀市）	保健科学課 1名
第51回日本水環境学会年会熊本大会 第2回実行委員会	12/22	日本水環境学会	熊本大学黒髪キャンパス（熊本市）	環境科学課 1名
平成28年度地域保健総合推進事業地方衛生研究所第2回ブロック会議	1/10	地方衛生研究所全国協議会	佐賀中央保健福祉事務所（佐賀県佐賀市）	保健科学課 1名
平成28年度 地域保健総合推進事業九州ブロック精度管理事業結果検討会議	2/21	地方衛生研究所全国協議会	佐賀県中部保健福祉事務所（佐賀県佐賀市）	保健科学課 2名
Ⅱ型共同研究「PM _{2.5} の環境基準超過をもたらす地域的/広域的汚染機構の解明」高濃度グループ会合	3/13～14	国立環境研究所及び地方環境研究所	あすか会議室（東京都中央区）	環境科学科 1名

3) 研修等

用 務	日 程	主 催	派 遣 先	派遣職員数
平成28年度 課題分析研修Ⅱ（底生動物）	4/17～21	環境省	環境調査研修所（埼玉県所沢市）	環境科学課 1名
平成28年度 機器分析研修	5/18～6/3	環境省	環境調査研修所（埼玉県所沢市）	環境科学課 1名
平成28年度蚊類調査に係る技術研修会	5/29～31	国立感染症研究所	国立感染症研究所（東京都新宿区）	保健科学課 1名
病原体等の包装・運搬講習会	6/2	厚生労働省	福岡第二合同庁舎（福岡市）	保健科学課 4名

平成28年度蚊媒介感染症に関する研修会	6/23	福岡県	福岡県庁（福岡市）	保健科学課 2名
第39回 質量分析講習会	6/28～29	日本質量分析学会	千里ライフサイエンスセンター （大阪府豊中市）	保健科学課 1名
2016年度レジオネラ属菌検査セミナー	7/14	日水製薬株式会社	日水製薬株式会社 本社（東京都台東区）	保健科学課 1名
MS 基礎講習会 in 九州	7/22	日本水環境学会	九州工業大学戸畑キャンパス（北九州市）	環境科学課 1名
平成28年度結核予防技術者地区別講習会	8/4～5	福岡県	天神ビル（福岡市）	保健科学課 2名
平成28年度廃棄物処理施設技術管理者講習	8/22～9/1	一般財団法人日本環境衛生センター	日本環境衛生センター西日本支局 （福岡県大野城市）	保健環境管理課 1名
平成28年度院内感染に関連する薬剤耐性菌の検査に関する研修	9/15～16	国立感染症研究所	国立感染症研究所村山庁舎 （東京都武蔵村山市）	保健科学課 1名
平成28年度 マイコトキシン研修会	9/28	食品衛生登録検査機関協会	食品衛生センター （東京都渋谷区）	保健科学課 1名
平成28年度アスベスト分析研修（第2回）	10/3～7	環境省	環境調査研究所 （埼玉県所沢市）	環境科学課 1名
平成28年度廃棄物分析研修	10/17～28	環境省	環境調査研修所 （埼玉県所沢市）	保健環境管理課 1名
平成28年度 貝毒分析研修会	10/24～28	水産研究・教育機構 中央水産研究所	水産研究・教育機構 中央水産研究所 （横浜市）	保健科学課 1名
平成28年度水質分析研修(Cコース)	11/24～12/9	環境省	環境調査研修所 （埼玉県所沢市）	保健環境管理課 1名
第3回 FDSC食品衛生精度管理セミナー	12/2	食品薬品安全センター	大田区産業プラザPio （東京都大田区）	保健科学課 1名
平成28年度VOCs分析研修（水質）	1/16～27	環境省	環境調査研修所 （埼玉県所沢市）	環境科学課 1名
平成28年度 地研全国協議会生理化学分野研修会 第2回 食品化学研究のための基礎セミナー	1/20～21	地方衛生研究所全国協議会	国立医薬品食品衛生研究所 （東京都世田谷区） 食品衛生センター （東京都渋谷区）	保健科学課 1名
平成28年度化学物質環境実態調査環境科学セミナー	1/23～24	環境省	KFCホール （東京都墨田区）	環境科学課 1名
平成28年度衛生薬業センター健康危機管理研修	1/27	佐賀県衛生薬業センター	佐賀中央保健福祉事務所（佐賀県佐賀市）	保健科学課 2名

平成28年度新しい食品表示に関する講演会	2/1	北九州生活科学センター	福岡生活衛生食品会館 (福岡市)	保健科学課 1名
狂犬病確定診断のための検査技術研修会	2/14~15	福岡県	福岡県動物愛護センター (福岡県古賀市) 福岡県保健環境研究所 (福岡県太宰府市)	保健科学課 2名
平成28年度希少感染症診断技術研修会	2/20~22	国立感染症研究所	国立感染症研究所 (東京都新宿区)	保健科学課 2名
平成28年度一般廃棄物処理施設管理技術講習会	2/22	環境省	大阪 YMCA 国際文化センター (大阪市)	保健環境管理課 1名
細菌のMLST法及びカンピロバクターのゲノム解析に関する研修	3/1~2	国立医薬品食品衛生研究所	国立医薬品食品衛生研究所 (東京都世田谷区)	保健科学課 2名
2016年度レジオネラ属菌検査セミナー	3/10	日水製薬株式会社	日水製薬株式会社 本社(東京都台東区)	保健科学課 1名

3 共同研究

内 容	共同研究者 (代表者)
高リスクが懸念される微量化学物質の実態解明に関する研究	国立環境研究所, 24自治体環境研究所
沿岸海域環境の物質循環現状把握と変遷解析に関する研究	国立環境研究所, 21自治体環境研究所
干潟・浅場や藻場が里海里湖流域圏において担う生態系機能と注目生物種との関係	国立環境研究所, 11自治体環境研究所
PM _{2.5} の環境基準超過をもたらす地域的/広域的汚染機構の解明	国立環境研究所, 51自治体環境研究所
平成28年度厚生労働科学研究課題 (食品の安全確保推進事業) 「食品を介したダイオキシン類等有害物質摂取量の評価とその手法開発に関する研究」	国立医薬品食品衛生研究所 (梶山 浩)
日本国内のHIV感染発生动向に関する研究	国立感染症研究所エイズ研究センター (松岡佐織)

IV 定期業務

1 環境科学（環境科学課）

定期的な業務として、有害化学物質、事業場排水、酸性雨や悪臭物質などの検査及び生活衛生関係検査等を行った。

また、検査の信頼性を確保するための精度管理を実施した。

1) 環境水質担当及び博多湾担当

(1) 公共用水域及び地下水の検査

平成 28 年度に行った検査の検体数及び項目数を表 1 に示す。

区分	検体数	延べ項目数
河川調査	124	832
博多湾調査	38	261
地下水調査	69	1,049
計	231	2,142

①河川調査

図 1 に示す 14 河川の 19 地点（環境基準点）及びその他の 12 地点（補助地点）で、水生生物保全項目であるノンルフェノール、直鎖アルキルベンゼンスルホン酸及びその塩(LAS)、4-t-オクチルフェノール、アニリン及び 2,4-ジクロロフェノールについて検査を行った。（表 2）

②博多湾調査



図 1 河川及び博多湾調査地点

環境基準点 5 地点（図 1）で、水生生物保全項目であるノンルフェノール、LAS、4-t-オクチルフェノール、アニリン及び 2,4-ジクロロフェノールについて検査を行った。

（表 2）

表 2 河川及び博多湾調査状況

区分	計	水質	
		河川	博多湾
検体数	162	124	38
延べ項目数	1,093	832	261

③地下水定期調査

市内の地下水汚染状況を調べる概況調査において、主に環境基準の設定された健康項目について検査を行った。また、継続監視調査として、クリーニング所周辺井戸等で地下水環境基準を超えたテトラクロロエチレン等と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について測定し、さらに、六価クロムによる土壤汚染が判明した土地の周辺井戸では六価クロムを測定した。

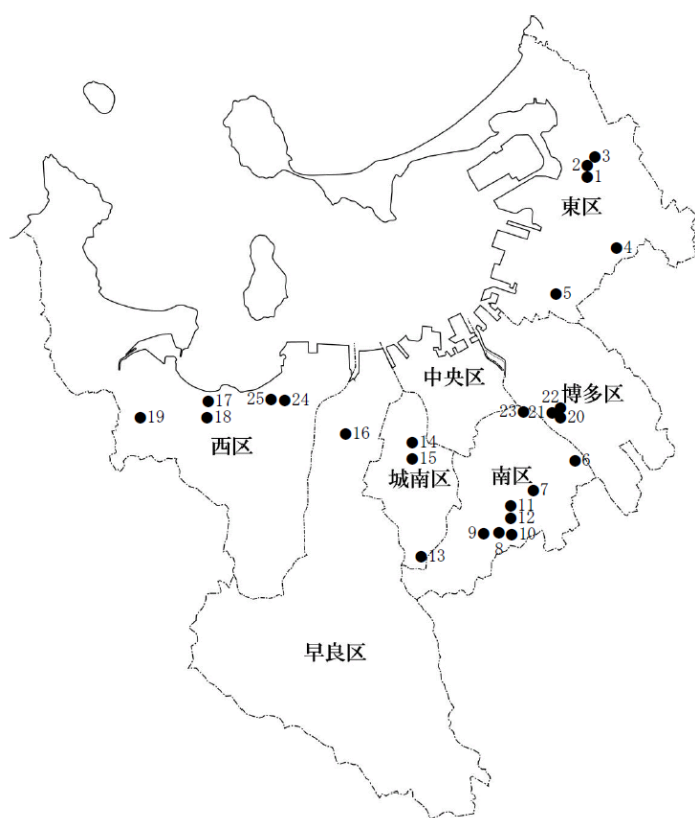
それらの検体数及び項目数を表 3 に、検査項目及び項目数を表 4 に示す。また、継続監視地点を図 2 に示す。

表 3 地下水検査状況

検体数	延べ項目数
69	1,049

表4 地下水検査状況

検査項目	延べ項目数	検査項目	延べ項目数
生活環境項目及びその他の項目		環境基準項目 (つづき)	
pH	69	PCB	14
電気伝導率	69	ジクロロメタン	14
亜硝酸性窒素	14	四塩化炭素	22
硝酸性窒素	14	1,2-ジクロロエタン	14
シス-1,2-ジクロロエチレン	57	塩化ビニルモノマー	57
トランス-1,2-ジクロロエチレン	57	1,1-ジクロロエチレン	57
濁度	14	1,2-ジクロロエチレン	57
色度	14	1,1,1-トリクロロエタン	49
臭気	14	1,1,2-トリクロロエタン	14
塩化物イオン	14	トリクロロエチレン	57
有機物 (全有機炭素 (TOC) の量)	14	テトラクロロエチレン	57
カルシウム, マグネシウム等 (硬度)	14	1,3-ジクロロプロペン	14
鉄及びその化合物	14	チウラム	14
総クロム	9	シマジン	14
環境基準項目		チオベンカルブ	14
カドミウム	14	ベンゼン	14
全シアン	14	セレン	14
鉛	14	硝酸性窒素及び亜硝酸性窒素	14
六価クロム	26	ふっ素	14
砒素	14	ほう素	14
総水銀	14	1,4-ジオキサン	14
アルキル水銀	14		
		計	1,049



No.	測定地点
1	東区香椎駅前 No.1
2	東区香椎駅前 No.2
3	東区香椎駅前 No.3
4	東区土井
5	東区原田
6	南区井尻
7	南区中尾
8	南区花畑 No.1
9	南区花畑 No.2
10	南区花畑 No.3
11	南区花畑 No.4
12	南区皿山
13	城南区東油山
14	城南区田島 No.1
15	城南区田島 No.2
16	早良区南庄
17	西区今宿駅前
18	西区今宿東
19	西区周船寺
20	博多区博多駅南 No.1
21	博多区博多駅南 No.2
22	博多区博多駅南 No.3
23	南区那の川
24	西区下山門 No.1
25	西区下山門 No.2

図2 地下水継続監視地点図

(2)環境ホルモンの調査

平成 28 年度に行った検査の検体数及び項目数を表 5 に示す。

表 5 環境ホルモン検査状況

区 分	検体数	延べ項目数
環境ホルモン調査	51	119

環境省は、ノニルフェノール、4-t-オクチルフェノール及びビスフェノール A について魚類に与える内分泌攪乱作用を確認している。そこで本市においても、これらの物質による汚染状況を把握するため、河川及び博多湾の水質、底質中のノニルフェノール、4-t-オクチルフェノール及びビスフェノール A について測定を行った。その検体数及び項目数を表 6 に示す。

表 6 環境ホルモン検査状況

区 分	計	水 質		底 質	
		河 川	博多湾	河 川	博多湾
検体数	51	28	6	14	3
延べ項目数	119	56	12	42	9

(3)特定事業場の検査

水質汚濁防止法に定める特定事業場の排水水について BOD 等の生活環境項目、有害物質の検査を行った。その検体数及び項目数を表 7 に示す。

表 7 特定事業場検査状況

検体数	延べ項目数
38	291

(4)生活衛生関係検査

生活衛生関係として、遊泳用プール水及びし尿浄化槽放流水等の水質検査を行った。その検体数及び項目数を表 8 に示す。

表 8 生活衛生関係検査状況

区 分	検体数	延べ項目数
遊泳用プール水	113	350
し尿浄化槽放流水	97	582
計	210	932

(5)井戸水等検査

市民から依頼される井戸水等の飲料水の水質検査を行った。依頼が最も多かったのは、飲用井戸等衛生対策要領に基づく簡易な項目の pH、濁度、色度、臭気、硝酸性及び亜硝酸性窒素、塩化物イオン、総硬度、有機物、鉄の 9

項目の検査（簡易項目検査）であり、959 検体の依頼があった。また、建築物における衛生的環境の確保に関する法律（通称、ビル衛生管理法）に基づく鉛、亜鉛、銅、蒸発残留物やトリハロメタンの検査（ビル管項目検査）は、11 検体の依頼があった。さらに、相談の内容に応じて任意の項目の分析を行う任意項目検査で 1 検体、味などの定性試験で 211 検体の依頼があった。検体数及び項目数は表 9 のとおりである。

表 9 飲料水水質検査状況

区 分	検体数	延べ項目数
簡易項目	959	9,590
ビル管項目	11	161
任意項目	1	1
定性試験項目	211	211
計	1,182	9,963

2)大気担当

大気担当が平成 28 年度に行った業務は、環境局環境保全課依頼による大気の検査、財政局依頼による室内空気の検査、各局から依頼されたアスベスト検査に大別できる。詳細については以下に示す。

(1)大 気

平成 28 年度に行った環境局環境保全課依頼の大気検査の区別検体数及び項目数を表 10 に示す。

表 10 大気検査状況

区 分	検体数	延べ項目数
降下ばいじん	11	132
重油中硫黄分	3	3
酸性雨	97	691
フロン類	6	18
有害大気汚染物質（発生源）	0	0
有害大気汚染物質（一般環境）	48	528
特定悪臭物質	6	26
PM _{2.5} 成分分析	165	6,765
計	336	8,163

①降下ばいじん

デボ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、硫酸イオン及び塩化物イオンである。

②重油中の硫黄分

福岡市いおう酸化物対策指導要綱に基づき市内のばい煙発生施設から重油を採取し検査を行った。

③酸性雨

早良区の曲淵ダム，城南区の城南区役所の2地点で，雨水を採取し分析を行った。

曲淵ダムにおける測定項目は，湿性沈着物の降水量，pH，電気伝導率，硫酸イオン，硝酸イオン，塩化物イオン，アンモニウムイオン，ナトリウムイオン，カリウムイオン，カルシウムイオン，マグネシウムイオン及び水素イオンである。城南区役所における測定項目は，湿性沈着物の降水量，pH，電気伝導率である。

④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の大気環境濃度調査を行った。

⑤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行った。

平成28年度は，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物質について，測定を行った。

⑥特定悪臭物質の機器測定

悪臭防止法に基づき，特定悪臭物質検査の機器測定を行った。

⑦PM_{2.5}成分分析

市役所局，元岡局及び西新局のPM_{2.5}を，季節毎に各2週間連続で毎日採取し，成分分析を行った。

測定項目は，イオン成分（塩化物イオン，硝酸イオン，硫酸イオン，ナトリウムイオン，アンモニウムイオン，カリウムイオン，マグネシウムイオン，カルシウムイオン），無機元素成分（ナトリウム，アルミニウム，ケイ素，カリウム，カルシウム，スカンジウム，チタン，バナジウム，クロム，マンガン，鉄，コバルト，ニッケル，銅，亜鉛，ヒ素，セレン，ルビジウム，モリブデン，アンチモン，セシウム，バリウム，ランタン，セリウム，サマリウム，ハフニウム，タンタル，タングステン，鉛，トリウム），炭素成分（有機炭素，無機炭素）及び質量濃度である。

(2)室内空気

財政局の依頼で市有建築物の新築・増改築後の室内空気中の化学物質の検査を行った。平成28年度は，ホルムアルデヒド，トルエン，キシレン，エチルベンゼン，スチレンの5項目について測定を行った。検体数及び項目数を表11に示す。

表11 室内空気中化学物質検査状況

検体数	延べ項目数
127	635

(3)アスベスト検査

各局からの依頼で，成型建築材・吹付材・断熱材のアスベスト含有の判定及びアスベスト使用建築物の解体工事現場の敷地境界における空気中アスベスト濃度の測定を行った。

平成28年度に行った検査の検体数及び項目数を表12に示す。

表12 アスベスト検査状況

区分	検体数	延べ項目数
判定検査	15	90
空気中濃度検査	9	59
計	24	149

3)精度管理の実施状況等

精度管理の実施状況を表13に，外部精度管理の実施状況内訳を表14に示す。

表13 精度管理の実施状況総括

区分	検体数	延べ項目数
外部精度管理	4	24
内部精度管理 (日常的添加回収)	2	2
計	6	26

表14 外部精度管理の実施状況内訳

区分	調査項目	結果
重金属	銅	良好
	(無機物試料水) 六価クロム	良好
VOC	ジクロロメタン	良好
	(模擬排水) トリクロロエチレン	良好
酸性雨	pH	良好
	(模擬降水試料) EC	良好
	イオン成分8項目 (SO ₄ ²⁻ , NO ₃ ⁻ , Cl ⁻) (NH ₄ ⁺ , Na ⁺ , K ⁺) Ca ²⁺ , Mg ²⁺)	良好

2 廃棄物（保健環境管理課）

定期業務として、家庭系ごみ・資源化センター搬入ごみなどの調査や清掃工場・埋立場など廃棄物処理施設の適正な維持管理に必要な試験業務を行った。

1) 廃棄物資源化担当

廃棄物資源化担当では、これまでのごみ減量・リサイクルの推進に関する施策の効果検証などを目的として、家庭系（可燃，不燃）ごみ，資源化センター搬入ごみなどの組成調査，また堆肥化物の性状に関する試験などを実施している。

調査試験結果については，施設の適正な維持管理を行うため，各施設へ速報値のフィードバックなどを行った。

なお，平成 28 年度に行った調査の検体数及び項目数は表 1 のとおりである。

表 1 廃棄物資源化関係調査試験検体数

区 分	検体数	延べ項目数
清掃工場・資源化センター		
ごみ		
資源化センター	8	672
家庭系(可燃)	12	624
家庭系(不燃)	12	948
緑のリサイクルセンター	28	184
計	60	2,428

(1) 清掃工場・資源化センター

① 家庭系可燃ごみ

臨海及び西部工場に搬入される家庭系可燃ごみの組成調査を行った。本調査では，地域特性を踏まえた今後のごみ減量，再資源化の推進のための基礎資料の取得も行うため，市内の指定地域より収集された家庭系可燃ごみを調査対象試料とした。

② 家庭系不燃ごみ

東部及び西部資源化センターに搬入される家庭系不燃ごみの組成調査，適正処理困難物の排出状況調査，及び家電製品の搬入状況等について調査を行った。本調査では，地域特性の把握も目的としており，市内の指定地域より収集された家庭系不燃ごみを調査対象試料とした。

③ 資源化センター

東部及び西部資源化センターに搬入される不燃ごみ並びに同センターにて破砕選別された処理物の組成調査を行い，資源化センターにおける破砕選別処理による減量・減量効果を検討した。

(2) 緑のリサイクルセンター

剪定樹木を有効活用するため，平成 8 年から緑のリサイクルセンターで剪定樹木を破砕・堆肥化し，土壌改良材として販売しており，出荷時の品質の安定化を図るため，堆肥化物等の性状試験など剪定樹木の堆肥化調査を行った。

2) 廃棄物処理施設担当

清掃工場，埋立場などの環境保全のための法規制に関する試験業務及び清掃施設の適正な維持管理に必要な試験業務を行った。また，試験結果を各施設へ速やかにフィードバックすることにより，適正な維持管理の向上に努めた。

平成 28 年度に行った試験検査の検体数及び項目数は表 2 のとおりである。

表 2 廃棄物処理施設関係試験検体数

区 分	検体数	延べ項目数
清掃工場・資源化センター		
ごみ	35	1138
灰質		
焼却灰	180	720
集じん灰	16	144
水質		
下水放流水等	117	2,254
ボイラー水	289	2,039
排ガス	78	684
臭気	29	315
騒音・振動	12	103
粉じん	175	302
アスベスト	46	276
ダイオキシン類 [※]	247	1,765
埋立場		
水質	209	5,470
臭気	5	5
発生ガス	156	678
アスベスト	8	48
ダイオキシン類 [※]	22	660
し尿処理施設		
水質	48	331
汚泥	12	60
臭気	12	160
計	1696	17,152

※コプラナーPCB を含むダイオキシン類の他，測定時の運転状況等を示す項目（一酸化炭素，SS 等）を含む。

(1) 清掃工場・資源化センター

①ごみ

清掃工場に搬入される可燃ごみ及び資源化センターの破碎可燃物について、ごみ組成並びに発熱量の試験検査を行った。

②灰質

清掃工場の焼却灰及び集じん灰の試験検査を行った。

③水質

清掃工場の排水処理装置やボイラーの適正な維持管理に必要な水質の試験検査を行った。

④排ガス

清掃工場の燃焼管理や排ガス処理装置の適正な維持管理に必要な排ガスの試験検査を行った。

⑤臭気・騒音・振動・粉じん

清掃工場及び資源化センターの敷地境界等における臭気、騒音、振動、粉じん等の試験検査を行った。

⑥アスベスト

清掃工場及び資源化センターの地域の生活環境への影響並びに作業環境の実態把握のため、アスベストの試験検査を行った。

⑦ダイオキシン類

清掃工場から排出される排ガスや排水等及び作業環境中のダイオキシン類の試験検査を行った。

(2) 埋立場

①水質

浸出水及び汚水処理場の適正な維持管理に必要な水質の試験検査を行った。

②臭気

敷地境界における臭気の試験検査を行った。

③発生ガス

安定化の指標となるメタンガスや二酸化炭素等の試験検査を行った。

④アスベスト

地域の生活環境への影響及び作業環境の実態把握のため、アスベストの試験検査を行った。

⑤ダイオキシン類

供用中埋立場及び埋立終了埋立場からのダイオキシン類の汚染状況を把握するため、埋立場周縁地下水のダイオキシン類の試験検査を行った。また、汚水処理場放流水のダイオキシン類の試験検査を行った。

(3) し尿処理施設

①水質

し尿処理施設の適正な維持管理に必要な水質の試験検査を行った。

②汚泥

脱水汚泥の含水率、発熱量等の試験検査を行った。

③臭気

敷地境界等における臭気の試験検査を行った。

3 微生物（保健科学課）

主な業務は、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及び感染症発生動向調査事業に基づく細菌及びウイルス検査であり、3つの担当で実施した。

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を実施した。

平成28年度における検査区分ごとの検体数の総括を表1に示す。

また、検査の信頼性を確保するための精度管理を実施した。

表1 検体数総括

区分	検体数	行政検査	
		保健所	その他
食品収去検査	1,209	1,209	
環境衛生関係検査	554	554	
環境保全関係検査	33		33
計	1,796	1,763	33

表3 環境衛生関係検体数及び項目数

区分	検体数	項目数計	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	112	224	112			112		
公衆浴場水	416	416					416	
飲用温泉水	5	10	5	5				
リネンサプライ等	4	16	4	4	4			4
冷却塔冷却水等	17	17					17	
計	554	683	121	9	4	112	433	4

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	12	12
内部精度管理		
陽性対照試験	31	37
指定する試験品による精度管理	13	13
小計	44	50
機器日常検査	4,166	4,166
計	4,222	4,228

表6 外部精度管理の実施状況内訳

区分	調査項目
	E. coli
微生物	一般細菌数測定
	腸内細菌科菌群
	黄色ブドウ球菌
	サルモネラ属菌
	大腸菌群
	レジオネラ属菌

(1) 食品収去検査

食品収去検査は1,209件、3,917項目実施した。表2に食品分類別検体数及び項目数を示す。

(2) 環境衛生関係検査

環境衛生関係検査はプール水、公衆浴場水、飲用温泉水、おしぼり（リネン関係）等の細菌検査を実施した。表3に検体数及び項目数を示す。

(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を実施した。表4に検体数及び項目数を示す。

表4 環境保全関係検体数及び項目数

区分	検体数	大腸菌群
事業場排水	33	33

(4) 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に示し、外部精度管理の実施状況内訳を表6に示した。

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	E. coli	大腸菌	O157	O111	O103	O121	O145	VTEC	カンピロバクター	乳酸菌	腸炎ヒパリオ	ブドウエンテロトキシン	クロストリジウム属菌	抗生物質	恒温試験	細菌試験	総菌数	ノロウイルス
牛乳・加工乳	14	57	10	10	7	4									4			14		4				4
乳製品	11	20		11												9								
アイスクリーム類	41	82	41	41																				
氷雪	2	4	2	2																				
清涼飲料水	67	134	67	67																				
魚介類	188	525	188	66			5	23	23	23	23	23	23	3		120								5
肉・卵類	86	527				84		29	57	57	57	57	57		51					21				
食肉製品	8	21		2	6	6	5											2						
鯨肉製品	2	4	2	2																				
弁当・惣菜類	470	1414	470	470	470	4																		
菓子類	126	405	126	126	126	27																		
穀類・麺類	33	99	33	11	33		22																	
豆腐	28	56	28	28																				
漬物	20	165				20	5	15	20	20	20	20	20			5								
瓶詰・缶詰・レトルト	8	16																			8			8
野菜類・果実類	62	261	35	10		27		27	27	27	27	27	27											
その他	43	127	42	29	28		14																	14
計	1209	3917	1044	875	670	172	51	71	127	127	127	127	127	3	55	9	125	14	2	25	8	8	4	19

2) ウイルス担当

平成 28 年度に実施した定期業務は、感染症発生動向調査事業に関わるウイルス検査、市民から依頼される HIV や風疹等の血清検査、二枚貝のノロウイルス検査及びヒトスジシマカのウイルス検査である。

各試験検査の検体数を表 7 に示す。

表7 検体数総括

区 分	計	行政検査	
		保健所	調査業務
感染症発生動向調査事業ウイルス検査	298		298
HIV抗体調査	3,019	3,019	
クラミジア抗体検査	1,643	1,643	
風疹抗体検査	744	744	
二枚貝のノロウイルス検査	5	5	
ヒトスジシマカのウイルス検査	15		15
計	5,724	5,411	313

(1) 感染症発生動向調査事業ウイルス検査

感染症発生動向調査事業は、8 医療機関に 9 つの検体採取定点を指定して実施している。

平成 28 年度は表 8 のとおり患者 184 名、298 検体が採取され、ウイルス分離を行った（詳細は「Ⅷ資料」に掲載）。

表 8 感染症発生動向調査事業検体数の推移

年度	平成 24	25	26	27	28
患者数	88	116	142	184	184
検体数	103	160	200	293	298

(2) HIV 抗体検査

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

平成 28 年度は 3,019 検体を実施し、このうちスクリーニング検査陽性の 23 検体については確認検査を行った結果、21 検体が陽性であり、残りの 2 検体は判定保留であった。

平成 24 年度からの年度別検体数の推移を表 9 に示す。

表 9 HIV 検体数の推移

年度	平成 24	25	26	27	28
検体数	3,353	3,722	3,461	3,172	3,019
陽性数	18	26	19	12	21

(3) クラミジア抗体検査

平成 13 年 6 月から、クラミジア抗体検査を保健所で受け付け、当所で検査を実施している。

平成 28 年度は、1,643 検体を実施した（表 10）。また平成 24 年度からの年度別検体数の推移を表 11 に示す。

表 10 クラミジア検査状況

検体数	IgA 抗体			IgG 抗体		
	陽性	陰性	保留	陽性	陰性	保留
1,643	202 (12%)	1,374 (84%)	67 (4%)	178 (11%)	1,415 (86%)	50 (3%)

表 11 クラミジア検体数の推移

年度	平成 24	25	26	27	28
検体数	1,468	1,677	1,633	1,539	1,643
IgA 陽性数	166	146	140	134	202
IgA 陽性率	11%	9%	9%	9%	12%
IgG 陽性数	208	215	211	158	178
IgG 陽性率	14%	13%	13%	10%	11%

(4) 風疹抗体検査

昭和 52 年度以降、妊娠を希望する女性を対象とした風疹抗体検査を保健所で受け付け、当所で検査を実施している。また、平成 25 年度の途中から妊娠を希望する女性と同居している配偶者等も検査対象に追加した。

平成 24 年度からの年度別検体数の推移を表 12 に、平成 28 年度の検査結果を表 13 に示す。

表 12 風疹検体数の推移

年度	平成 24	25	26	27	28
検体数	226	3,867	1,101	881	744
男性内数	(-)	(109)	(440)	(339)	(277)

表 13 年齢群別風疹 EIA 価分布

年齢	EIA 価					計
	<2.0	2~3.9	4~7.9	8~127.9	128.0≤	
≤19	0	0	0	1	0	1
20~24	0	1	5	8	0	14
25~29	15	34	58	127	1	235
30~34	27	21	28	215	6	297
35~39	19	9	10	98	3	139
40≤	7	5	5	41	0	58
計	68	70	106	490	10	744

(5) 二枚貝のノロウイルス検査

ノロウイルス食中毒予防対策の一環として、平成 28 年 5 月及び平成 28 年 10 月から平成 28 年 2 月にかけて二枚貝の取去検査を実施した。

5 検体の検査を実施し、1 検体が陽性であった。

(6) ヒトスジシマカのウイルス検査

平成 28 年 6 月から、福岡市感染症危機管理専門委員会の意見に基づき、蚊媒介感染症に係る平常時の対策として、ヒトスジシマカのウイルス保有状況を調査することとなった。6 月から 10 月にかけて、各月 1 回対象の 3 公園で採取したヒトスジシマカの雌について、デングウイルス、ジカウイルス、チクングニアウイルスの PCR 検査を実施した。15 検体（3 公園×5 ヶ月分）検査結果はすべて陰性であった。

(7) 検査の信頼性を確保するための検査

検査の信頼性を確保するための検査の実施状況は表 14 のとおり。

外部精度管理は、「検査施設における病原体等検査の業務管理要領の策定について」（平成 27 年 11 月 17 日健感発 1117 第 2 号）の別添「検査施設における病原体等検査の業務管理要領」に基づき国が行う外部精度管理調査として実施されたインフルエンザウイルスの核酸検出検査による型・亜型診断検査に参加した。また、厚生労働省の研究事業の一環として、地方衛生研究所を対象に実施された HIV 検査の精度管理に参加した。

内部精度管理として、マイコプラズマ汚染否定試験を 3 回実施した。また、PCR によるウイルスゲノム検出確認試験を 18 回実施した。

機器の保守点検は 3,727 件実施した。

表 14 検査の信頼性を確保するための検査の実施状況

区分	検体数	延べ項目数
外部精度管理	10	10
内部精度管理	21	21
機器の保守点検	3,727	3,727
計	3,758	3,758

3) 感染症担当

平成 28 年度に実施した定期検査は、腸内病原菌検査、井戸水等細菌検査、梅毒検査及び原虫・寄生虫検査であり表 15 に検体数と項目数を示す。

また、平成 28 年度から「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」）改正に基づき精度管理及び機械器具の保守管理を実施した。

表 15 定期検査検体数総括

区分	検体数	延べ項目数
腸内病原菌検査	2,217	6,651
井戸水等細菌検査	1,355	2,371
梅毒検査	904	1,808
原虫・寄生虫検査	121	121
計	4,597	10,951

(1) 腸内病原菌検査

腸内病原菌検査の検査件数は 2,217 件で、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。検体は健康診断等の一般検便で保健所からの依頼によるものである。表 16 に依頼別検体数を示す。

菌種別の陽性件数は、サルモネラ属菌（チフス・パラチフス含む）が 3 件（0.13%）であった。

(2) 井戸水等検査

井戸水等の細菌検査は、井戸水 851 件、水道水 131 件、プール水 54 件、船舶水 30 件及びその他 4 件であり、井戸水は一般家庭とボーリング業者からの依頼、水道水は主として「建築物における衛生的環境の確保に関する法律」プール水は「プールの安全標準指針」に基づくものである。なお、それぞれの不適件数は、井戸水 158 件（18.6%）、水道水 4 件（3.1%）、プール水 5 件（9.3%）、船舶水 4 件（13.3%）、その他 1 件（25%）であった。

また、「建築物における衛生的環境の確保に関する法律施行規則」に基づく雑用水の検査は 285 件の依頼があり、10 件（3.5%）から大腸菌が検出された（表 17）。

(3) 梅毒検査

梅毒検査は 904 件について実施した。検査方法は TPHA 法，RPR 法を同時に実施した。陽性は 37 件（4.09%）であった。

(4) 原虫・寄生虫検査

原虫・寄生虫検査は、蟻虫卵 118 件，その他 3 件，計 121 件の依頼であった。

(5) 精度管理の実施状況

精度管理の実施状況は表 18 のとおりである。

外部精度管理として 8 検体実施した。内訳は、「結核菌遺伝子型別外部精度評価」の 3 検体，シカジーニアス分子疫学解析 POT サーベイにおける大腸菌

の 1 検体，パルスネット九州ブロックが毎年実施している腸管出血性大腸菌 O157 の精度管理 3 検体である。

内部精度管理として 8 検体実施した。内訳は，VNTR は，12 か所のローカスに対応した反復数の確認を，腸管出血性大腸菌・コレラ菌・赤痢菌・サルモネラ属菌・百日咳菌・パラ百日咳菌・A 群溶血性レンサ球菌では PCR による病原遺伝子の確認を実施した。

また機器の日常検査は 772 件実施した。

表 18 精度管理の実施状況

区 分	検体数	延べ項目数
外部精度管理	8	12
内部精度管理	8	8
機器日常検査	772	772
計	788	792

表 16 腸内病原菌検査依頼別検体数

区 分	計	東	博多	中央	南	城南	早良	西
検体数	2,217	281	388	732	337	170	160	149

表 17 市民依頼の井戸水等検査件数及び不適件数（月別）

検体種類	検 体 数												
	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
井戸水	851 (158)	38 (6)	74 (20)	77 (23)	101 (14)	91 (23)	65 (17)	79 (18)	104 (17)	39 (6)	46 (1)	63 (3)	74 (10)
水道水	131 (4)	2 (0)	5 (1)	6 (0)	5 (1)	6 (0)	84 (2)	2 (0)	4 (0)	3 (0)	7 (0)	5 (0)	2 (0)
その他	4 (1)	0 (0)	0 (0)	0 (0)	1 (1)	1 (0)	0 (0)	0 (0)	0 (0)	0 (0)	2 (0)	0 (0)	0 (0)
プール水	54 (5)	4 (0)	4 (0)	4 (0)	4 (0)	4 (0)	4 (0)	10 (5)	4 (0)	4 (0)	4 (0)	4 (0)	4 (0)
船舶水	30 (4)	0 (0)	1 (0)	4 (1)	1 (0)	4 (2)	6 (1)	0 (0)	1 (0)	0 (0)	0 (0)	0 (0)	13 (0)
雑用水	285 (10)	30 (2)	22 (1)	25 (1)	22 (0)	25 (1)	22 (1)	26 (1)	21 (0)	25 (1)	21 (0)	26 (1)	20 (1)
合 計	1,355 (182)	74 (8)	106 (22)	116 (25)	134 (16)	131 (26)	181 (21)	117 (24)	134 (17)	71 (7)	80 (1)	98 (4)	113 (11)

() は不適件数

4 理化学（保健科学課）

食品衛生法及び家庭用品規制法に基づき、市内で製造又は流通している食品の添加物、成分規格、残留農薬、動物用医薬品及びその他の理化学検査並びに家庭用品の理化学検査を実施した。

平成 28 年度における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 に示した。

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、詳細を表 4 に示した。基準等違反事例を表 5、表示違反事例を表 6 に示した。

また、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 7 に示した。

表 1 検査区分ごとの検査実施状況総括

区分	検体数	延べ項目数
食品等行政収去検査	663	22,039
家庭用品試買検査	60	84
計	723	22,123

表 2 項目分類ごとの検査実施状況総括

区分	検体数	延べ項目数
食品添加物	328	2,626
残留農薬	102	15,752
動物用医薬品等	46	2,857
P C B	6	6
カビ毒	4	4
成分規格	87	542
その他	190	252
家庭用品	60	84
計	823	22,123

(項目間の重複 100 検体を除く合計は 723 検体)

表 5 食品理化学検査基準等違反事例

食品名	検査項目	検出値	基準値等
アイスクリーム	乳脂肪分	7.9%	8.0%以上

※食品衛生法第 11 条第 2 項違反

表 6 食品理化学検査表示違反事例

食品名	食品分類	表示違反内容
辛子めんたいこ	辛子明太子	食用黄色4号表示なし
辛子めんたいこ	辛子明太子	食用黄色4号表示なし
アイスクリーム	アイスクリーム	乳脂肪分虚偽記載
カップケーキ	菓子	食用黄色4号表示なし
カップケーキ	菓子	食用赤色40号及び食用黄色5号表示なし
クッキー	菓子	特定原材料（乳）表示なし

※いずれも食品表示基準第 3 条違反

表 7 精度管理の実施状況総括

区分	件数	延べ項目数
外部精度管理	16	23
内部精度管理		
日常的添加回収	120	3,743
濃度未知試料分析	7	14
機器日常検査	756	756
妥当性評価	40	4440
計	939	8,976

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の理化学検査等を表 4 及び表 8 のとおり実施した。

(1) 食品の検査

食品中の添加物検査として、保存料、甘味料、酸化防止剤、発色剤、漂白剤及び着色料等の検査を実施した。このうち表示違反として、着色料の表示なしが 4 件、特定原材料（乳）の表示なしが 1 件あった。

成分規格等の検査では、清涼飲料水（ミネラルウォーター類）、米、乳及び乳製品、器具及び容器包装、おもちゃ等について実施した。このうち成分規格違反として、乳脂肪分規格不適合が 1 件あった。また、表示違反として乳脂肪分虚偽記載が 1 件あった。

主要食品添加物の検出状況は「Ⅷ 資料」に掲載した。

(2) 家庭用品の検査

家庭用繊維製品 48 検体及び家庭用接着剤 6 検体について、ホルムアルデヒドの検査を実施した。また、住宅用洗剤 3 検体について、塩酸・硫酸及び容器試験を、家庭用洗剤 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を実施した。このうち基準を満た

さないものはなかった。

表8 家庭用品検査実施状況

家庭用品分類	検体数	延べ項目数
家庭用繊維製品		
よだれかけ	6	6
帽子 (24月以内)	3	3
寝具 (24月以内)	2	2
おしめ	2	2
下着 (24月以内)	6	6
寝衣 (24月以内)	6	6
靴下 (24月以内)	6	6
外衣 (24月以内)	6	6
中衣 (24月以内)	6	6
手袋 (24月以内)	3	3
おしめカバー	2	2
家庭用化学製品		
家庭用接着剤	6	6
住宅用洗浄剤	3	15
家庭用洗浄剤	3	15
計	60	84
違反件数	0	0

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農薬動物用医薬品等、カビ毒及びPCBの検査を実施した。

(1) 農薬の検査

穀類、野菜、茶、乳、肉類及びこれらの加工品等の計102検体について表9のとおり農薬の検査を実施した。その結果、表10に示す農薬を検出した。それぞれの検査項目は「Ⅷ 資料」に掲載した。

表9 農薬検査実施状況

検体名	検体数*	延べ項目数*
穀類	22 (4)	3,959 (1,400)
野菜	42 (26)	9,602 (5,942)
肉類	27 (1)	1,784 (62)
乳	3 (0)	15 (0)
その他 (茶)	8 (0)	392 (0)
計	102 (31)	15,752 (7,404)

※()内は輸入品

(2) 動物用医薬品等の検査

乳、肉類、卵類、養殖魚介類及び魚介類加工品の計46検体について表11のとおり動物用医薬品等の検査を実施した。その結果、表12に示す動物用医薬品等を検出した。それぞれの検査項目は「Ⅷ 資料」に掲載した。

表11 動物用医薬品等検査実施状況

検体名	検体数*	延べ項目数*
乳	7 (0)	511 (0)
肉類	9 (1)	663 (72)
卵類	11 (0)	715 (0)
養殖魚介類	13 (4)	884 (272)
魚介類加工品	6 (0)	84 (0)
計	46 (5)	2,857 (344)

※()内は輸入品

(3) カビ毒の検査

総アフラトキシンはナッツ類4検体について検査を実施した結果、定量下限(0.01ppm)未満であった。

(4) PCBの検査

暫定的規制値が定められている食品のうち卵類6検体についてPCBの検査を実施した結果、定量下限(0.01ppm)未満であった。

表3 食品等行政収去検査の総括

検体分類名	検体数	総検査項目数	食品添加物							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	残留農薬	動物用医薬品等	P C B	カビ毒	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	魚種鑑別
検査件数合計 (輸入品)	663 (112)	22039 (7791)	465 (43)	323 (30)	292 (201)	23 (8)	54 (198)	1446 (198)	23	15752 (6952)	2857 (344)	6	4	23	37 (1)	460	22 (3)	119 (2)	17 (8)	98 (1)	18
基準等違反件数 (輸入品)																					
魚介類 (輸入品)	47 (5)	945 (276)				4 (2)				884 (272)								57 (2)			
魚介類加工品 (輸入品)	111	1095	108	84	45		44	684		84							16			12	18
肉卵類及びその加工品 (輸入品)	53 (1)	3285 (134)	28	6			10	72		1784 (62)	6									1	
乳・乳製品及びその加工品 (輸入品)	25 (1)	666 (4)	54 (3)	32			24			15								30 (1)			
アイスクリーム類・氷菓 (輸入品)	7	57		14			36											7			
穀類及びその加工品 (輸入品)	61 (5)	4113 (950)	34 (1)	22		1 (1)	48	17		3959 (948)					10			14		8	
野菜類・果物及びその加工品 (輸入品)	120 (35)	10044 (5958)	107 (1)	77	8 (4)	16 (3)	192	6		9602 (5942)	4							11	17 (8)	4	
菓子類 (輸入品)	111 (26)	400 (184)	55 (6)	47 (16)	162 (162)		48											20		68	
清涼飲料水 (輸入品)	47 (2)	468 (18)					18 (18)									450					
酒精飲料 (輸入品)	19 (13)	206 (124)	23 (11)	4	15 (9)	2 (2)	162 (102)														
冷凍食品 (輸入品)																					
かん詰・びん詰食品 (輸入品)	21 (21)	130 (130)	15 (15)	10 (10)	26 (26)		78 (78)													1 (1)	
添加物及びその製剤 (輸入品)	3	23																	23		
器具及び容器包装 (輸入品)	1	2																			2
おもちゃ (輸入品)	7 (1)	20 (3)																			20 (3)
その他(上記以外) (輸入品)	30 (2)	585 (10)	41 (6)	27 (4)	36		84			392								1		4	

表 4 食品等収去検査実施状況 (詳細) 1/5

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	検体数	項目数	検体数	項目数	検体数	項目数	検体数	項目数	検体数	項目数	検体数	項目数															
検体数合計 (輸入品)	328 (74)	2626 (480)	184 (23)	465 (43)	183 (23)	127 (10)	145 (9)	4 (1)	6 (1)	164 (15)	159 (15)	323 (30)	87 (61)	292 (201)	9 (9)	29 (20)	18 (12)	2 (2)	2 (2)	29 (20)	29 (20)	29 (20)	29 (20)	29 (20)	29 (20)	29 (20)	29 (20)				
基準管反件数 (輸入品)																															
魚介類 (輸入品)	4 (2)	4 (2)																													
魚介類加工品 (輸入品)	90	965	46	108	46	23	39		42	42	42	10	45	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5		
肉卵類及びその加工品 (輸入品)	12	116	12	28	12	7	9		3	3	3	3																			
乳・乳製品及びその加工品 (輸入品)	18 (1)	110 (3)	18 (1)	54 (3)	18 (1)	18 (1)	16 (1)	2 (1)	16 (1)	16	16	16																			
アイスクリーム類・氷菓 (輸入品)	7	50							7	7	7	7	14																		
穀類及びその加工品 (輸入品)	29 (1)	122 (2)	12 (1)	34 (1)	12 (1)	9 (1)	11 (1)	2 (1)	11	11	11	22																			
野菜類・果物及びその加工品 (輸入品)	62 (7)	406 (8)	41 (1)	107 (1)	41 (1)	33 (1)	33	4	40	37	37	77	6 (4)	8 (4)	1 (1)		3 (3)	2	2												
菓子類 (輸入品)	47 (26)	312 (184)	20 (2)	55 (6)	19 (2)	16 (2)	16 (2)	4	25	22	22	47 (16)	36 (36)	162 (162)	18 (18)	18 (18)	18 (18)	18 (18)	18 (18)	18 (18)	18 (18)	18 (18)	18 (18)	18 (18)	18 (18)	18 (18)	18 (18)	18 (18)	18 (18)		
清涼飲料水 (輸入品)	2 (2)	18 (18)																													
酒精飲料 (輸入品)	19 (13)	206 (124)	17 (11)	23 (11)	17 (11)	3 (11)	3		2	2	2	4	15 (9)	15 (9)			15 (9)														
冷凍食品 (輸入品)																															
かん詰・びん詰食品 (輸入品)	20 (20)	129 (129)	5 (5)	15 (15)	5 (5)	5 (5)	5 (5)	5	5	5	5	10 (10)	12 (12)	26 (26)	8 (8)	2 (2)	2 (2)	2 (2)	2 (2)	2 (2)	2 (2)	2 (2)	2 (2)	2 (2)	2 (2)	2 (2)	2 (2)	2 (2)	2 (2)	2 (2)	
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)	18 (2)	188 (10)	13 (2)	41 (6)	13 (2)	13 (2)	13 (2)	2 (2)	14 (2)	14 (2)	14 (2)	27 (4)	8	36	4	4	4	4	4	4	4	4	4	4	4	4	4	4	4	4	

表 4 食品等収去検査実施状況 (詳細) 2/5

検体分類名	漂白剤		発色剤		防かび剤		品質改良剤・製造助剤				
	検体数	項目数	検体数	項目数	検体数	項目数	検体数	項目数	検体数	項目数	
検査件数合計 (輸入品)	23 (8)	23 (8)	54	54			23	23	2	17	4
基酒等濃度件数 (輸入品)											
魚介類 (輸入品)	4 (2)	4 (2)									
魚介類加工品 (輸入品)			44	44							
肉卵類及びその加工品 (輸入品)			10	10							
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)	1 (1)	1 (1)					17	17		17	
野菜類・果物及びその加工品 (輸入品)	16 (3)	16 (3)					6	6	2	2	4
菓子類 (輸入品)											
清涼飲料水 (輸入品)											
酒精飲料 (輸入品)	2 (2)	2 (2)									
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)											

表 4 食品等収去検査実施状況 (詳細) 5/5

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				魚種鑑別																				
			検体数	項目数	シアン化合物	V B N	水分	塩分	p H	酸価	過酸化 物価	ダニ	検体数	項目数	遺伝子組換え大豆 (定量)	検体数	項目数	卵	乳	小麦 (確認試験)	そば	落花生	えび・かに	検体数	項目数	魚種鑑別											
検査件数合計 (輸入品)	190 (10)	252 (11)	80 (1)	119 (2)	2	23 (1)	50 (1)	8	4	5	12	12	3	17 (8)	17 (8)	17 (8)	84 (1)	98 (1)	10	7	34	18	8	12	9	9	9	9	マダラ	カラフトシシヤモ							
基準等違反件数 (輸入品)																																					
魚介類 (輸入品)	34	57 (2)	34 (1)	57 (2)		23 (1)	34 (1)																														
魚介類加工品 (輸入品)	37	46	16	16		16											12	12	3																		
肉卵類及びその加工品 (輸入品)	1	1															1	1	1																		
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)	20	22	12	14			8			2	2	2	2				8	8	1	1	5	1															
野菜類・果物及びその加工品 (輸入品)	28	32 (8)	7	11	2		4	5									17 (8)	17 (8)	1	1	1	1	1														
菓子類 (輸入品)	64	88	10	20						10	10						54	68	8	6	28	18	2	6													
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)	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	5	1	1									1				4	4	1																		

表 10 農薬の検出状況

検体名	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)	
玄米	国産	メトミノストロビン	1/10	10.0	0.01	0.01	0.5
玄米	国産	ジノテフラン	1/10	10.0	0.06	0.06	2
小麦	アメリカ, オーストラリア	クロルピリホスメチル	2/7	28.6	0.03	0.01-0.05	10
小麦	オーストラリア	ピペロニルブトキシド	1/7	14.3	0.10	0.10	24
小麦	国産	テブコナゾール	1/7	14.3	0.01	0.01	2
大豆	ブラジル	プロシミドン	1/9	11.1	0.01	0.01	2
枝豆	台湾	アゾキシストロビン	2/3	66.7	0.04	0.03-0.04	5
枝豆	台湾	ビフェントリン	1/3	33.3	0.03	0.03	0.6
枝豆	台湾	フェンピロキシメート	1/3	33.3	0.04	0.04	2
枝豆	台湾	ジノテフラン	1/3	33.3	0.03	0.03	2
ほうれん草	中国	フルフェノクスロン	2/4	50.0	0.04	0.03-0.04	10
ほうれん草	中国	アゾキシストロビン	1/4	25.0	0.20	0.20	30
なす	国産	ジノテフラン	1/3	33.3	0.10	0.10	2
なす	国産	アゾキシストロビン	1/3	33.3	0.03	0.03	3
トマト	国産	プロシミドン	1/1	100.0	0.02	0.02	5
キャベツ	国産	ジノテフラン	1/1	100.0	0.02	0.02	2
未成熟いんげん	タイ	シペルメトリン	1/1	100.0	0.06	0.06	0.5
茶	国産	テブコナゾール	4/8	50.0	0.6	0.1-1.4	50
茶	国産	フルフェノクスロン	1/8	12.5	0.3	0.3	15

表 12 動物用医薬品等の検出状況

検体名	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)	
うなぎ加工品	国産	オキシリニック酸	1/6	16.7	0.02	0.02	0.1
えび	タイ	オキシテトラサイクリン	1/5	20.0	0.07	0.07	0.2

V 非定期業務

1 環境科学（環境科学課）

環境科学課が平成 28 年度に行った非定期業務は、苦情等行政部局からの依頼検査、環境省委託調査及びその他の調査である。検体数及び延べ項目数は表 1 のとおりである。

表 1 非定期業務総括表

区分	検体数	延べ項目数
行政からの依頼検査	105	1,126
環境省委託調査	5	19
その他の調査	323	2,830
計	433	3,975

1) 行政からの依頼検査

行政依頼検査の検体数及び延べ項目数は表 2 のとおりである。

表 2 行政からの依頼検査状況

区分	検体数	延べ項目数
水質関係苦情等依頼検査	55	365
地下水汚染原因調査	48	754
大気関係苦情等依頼検査	2	7
計	105	1,126

(1) 水質関係苦情等依頼検査

市民からの苦情等により行政部局から臨時に依頼されたものは 55 検体 365 項目であった。依頼部局は、各区生活環境課が多かった。依頼検査の検体数及び延べ項目数を表 3 に、詳細を「Ⅷ 資料」に示す。

表 3 水質関係苦情等依頼検査状況

区分	検体数	延べ項目数
環境局環境保全課	8	101
各区生活環境課	12	28
その他	35	236
計	55	365

(2) 地下水汚染原因調査

地下水概況等の調査後、硝酸性窒素及び亜硝酸性窒素が環境基準値を超えて検出された早良区野芥地区及びびっ素が環境基準値を超えて検出された早良区内野地区において周辺の地下水調査を実施した。また、九州大学箱崎キャンパス内において、九州大学が地下水調査を行った結果、環境基準を超える砒素及びその化合物が検出されたため、同キャンパス周辺地域の地下水調査を実施した。

検体数及び延べ項目数は表 4 のとおりである。

表 4 地下水汚染原因調査検体数

地区	検体数	延べ項目数
早良区内野	7	98
早良区野芥	8	128
九大箱崎キャンパス周辺	33	528
計	48	754

(3) 大気関係苦情等依頼検査

大気関係苦情等依頼の検体数及び延べ項目数を表 5 に示す。

① アスベスト含有検査

住宅都市局からの依頼で、苦情検体のアスベスト含有判定を行った。

② 異物検査

保健所からの依頼で、苦情検体の異物検査を実施した。

表 5 大気関係苦情等依頼検査状況

区分	検体数	延べ項目数
アスベスト含有検査	1	6
異物検査	1	1
計	2	7

2) 環境省委託調査

環境省は化学物質による環境汚染の未然防止を図るため、化学物質環境実態調査を行っている。本市では平成 28 年度は、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。

初期環境調査では、博多湾の水質（1 検体）について、ジクロフェナク、セルトラリン及びパロキセチンの分析を行った。また、ジクロフェナク、セルトラリン及びパロキセチン分析の精度管理調査として、未知濃度試料の分析を行った（1 検体）。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）のサンプリングを行った（分析は環境省が委託した他の機関で実施）。

また、水質試料及び底質試料に関して基礎項目の分析を行った。項目別検体数は表 6 のとおりである。

表6 化学物質環境実態調査状況

検査項目	海水	底質	精度管理	合計
ジクロフェナク	1	0	1	2
セルトラリン	1	0	1	2
パロキセチン	1	0	1	2
pH	1	0	0	1
濁度	1	0	0	1
電気伝導率	1	0	0	1
COD	1	0	0	1
DO	1	0	0	1
SS	1	0	0	1
塩化物イオン	1	0	0	1
水分含有量	0	3	0	3
強熱減量	0	3	0	3
計	10	6	3	19

る研究」, 博多湾担当が「沿岸海域環境の物質循環現状把握と変遷解析に関する研究」, 大気担当が「PM_{2.5}の環境基準超過をもたらす地域的/広域的汚染機構の解明」の調査を行った。

また, 河川の環境評価を行うため, 樋井川の底生動物及び水質の調査を行った。

検体数及び延べ項目数は表7のとおりである。

表7 その他の調査状況

区分	検体数	延べ項目数
高リスクが懸念される微量化学物質の実態解明に関する研究	245	1,960
沿岸海域環境の物質循環現状把握と変遷解析に関する研究	72	744
PM _{2.5} の環境基準超過をもたらす地域的/広域的汚染機構の解明	2	82
福岡市内河川の底生動物を用いた環境評価	4	44
計	323	2,830

3) その他の調査

国立環境研究所(以下「国環研」という)が行うⅡ型共同研究に参加した。Ⅱ型共同研究とは, 全国環境研協議会と国環研の協議のもとに共同研究計画を定め, 国環研と複数の地方環境研究所等の研究者が参加して共同研究を実施するものである。平成28年度は環境水質担当が「高リスクが懸念される微量化学物質の実態解明に関する

2 廃棄物（保健環境管理課）

非定期業務として、廃棄物処理施設及び関係課からの依頼による試験検査並びにその他の調査を行った。

1) 廃棄物資源化担当

平成 28 年度に行った非定期業務は、関係課からの依頼による試験検査及びその他の調査である。検体数及び項目数は表 1 のとおりである。

表 1 廃棄物資源化関係調査試験検体数

区 分	検体数	延べ項目数
行政からの依頼による試験検査		
選別施設搬入		
ペットボトルに関する調査	2	66
ペットベールに関する調査	6	222
手つかず食品排出実態		
（事業系ごみ）に関する調査	30	390
その他の調査		
手つかず食品排出実態		
（家庭系ごみ）に関する調査		
食品分類	12	156
排出袋数	611	1222
民間協力店搬入ペット		
ボトルに関する調査	2	64
可燃袋詳細分類		
に関する調査	12	60
不燃袋詳細分類		
に関する調査	12	24
計	687	2,204

(1) 行政からの依頼による試験検査

① 選別施設搬入ペットボトルに関する調査

（環境局施設部管理課依頼）

空きびん・ペットボトル選別処理施設に搬入されたペットボトルについてキャップの有無、異物混入、中汚れ等の分類により組成を調査した。

② ペットベールに関する調査

（環境局施設部管理課依頼）

空きびん・ペットボトル選別処理施設で成型されたペットベールについてキャップの有無、異物混入、中汚れ等の分類により組成を調査した。

③ 手つかず食品排出実態（事業系ごみ）に関する調査

（環境局循環型社会推進部資源循環推進課依頼）

期限切れでない食品や賞味期限、消費期限切れで未利用

のまま廃棄される食品について、事業系燃えるごみへの排出状況を調査した。

(2) その他の調査

① 手つかず食品排出実態（家庭系ごみ）に関する調査

期限切れでない食品や賞味期限、消費期限切れで未利用のまま廃棄される食品について、家庭系燃えるごみ用指定袋への排出状況を調査した。

② 民間協力店搬入ペットボトルに関する調査

民間協力店にて回収され、空きびん・ペットボトル選別処理施設に搬入されたペットボトルについてキャップの有無、異物混入、中汚れ等の分類により組成を調査した。

③ 可燃袋詳細分類に関する調査

家庭系可燃ごみ組成調査において、小分類項目をさらに細かく分類し、各分類の詳細な排出状況の調査を行った。

④ 不燃袋詳細分類に関する調査

家庭系不燃ごみ組成調査において、適正処理困難物や家電製品の詳細な排出状況の調査を行った。

2) 廃棄物処理施設担当

平成 28 年度に行った非定期業務は、廃棄物処理施設等からの依頼による試験検査及びその他の調査である。検体数及び項目数は表 2 のとおりである。

表 2 廃棄物処理施設関係試験検体数

区 分	検体数	延べ項目数
廃棄物処理施設等からの依頼		
による試験検査		
清掃工場・資源化センター	172	673
埋立場	236	1,519
し尿処理施設	55	139
その他の調査		
清掃工場の運転管理に		
関する調査	22	22
埋立場の運転管理に		
関する調査	121	728
し尿処理施設の運転管理に		
関する調査	185	257
計	791	3,338

(1) 廃棄物処理施設等からの依頼による試験検査

清掃工場、資源化センター、埋立場及びし尿処理施設からの依頼により、施設の運転管理等に関する試験検査を行

った。

依頼が多かった試験検査は、清掃工場で使用する薬剤の選定に関するもの、埋立場からの浸出水の水質に関するものであった。

(2) その他の調査

① 清掃工場の運転管理に関する調査

清掃工場の適切な運転管理方法を検討する調査を行った。

② 埋立場の運転管理に関する調査

汚水処理場で使用する凝集剤の選定に関する調査を行った。

③ し尿処理施設の運転管理に関する調査

し尿処理施設内の臭気や運転管理等に関する調査を行った。

3 微生物（保健科学課）

1) 細菌担当

平成28年度に実施した非定期業務は、保健所から依頼される食中毒・有症苦情検査及び無症苦情検査であり、表1に細菌検査の検体数の総括を示す。

表1 検体数総括

区 分	検体数
食中毒・有症苦情	627
無症苦情	2
その他	74
計	703

(1) 食中毒・有症苦情検査

平成28年度は、54事例の食中毒があり、細菌担当では、そのうち44事例、627検体について食中毒・有症苦情検査を行った。これらのうち病因物質が推定できたものは17事例、判明率は39%であった。

病因物質が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11事例、ウェルシュ菌3事例、セレウス菌2事例、ぶどう球菌1事例であった。項目数の内訳は表2に、詳細は「Ⅷ 資料」に示す。

(2) 無症苦情検査

平成28年度は、2事例、2検体について検査を行った。項目数の内訳は表3に、詳細は「Ⅷ 資料」に示す。

(3) その他の検査

その他の依頼検査の内訳を表4に示した。

表4 依頼検査の内訳

区 分	検体数	検査項目（件数）
レトルト食品	4	ボツリヌス菌（4）※
喀痰	7	レジオネラ属菌（7）
胸水	1	レジオネラ属菌（1）
尿	1	レジオネラ属菌（1）
施設調査	61	レジオネラ属菌（61）
計	74	74

※国立医薬品食品研究所に検査依頼

2) ウイルス担当

平成28年度に実施した非定期業務は、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である。

(1) 食中毒のウイルス検査

平成28年度は、54事例の食中毒があり、ウイルス担当では、そのうち20事例、148検体について検査を行った。そのうち、9事例、55検体からノロウイルスを検出した。月別の検出事例数は表5に示す。

(2) 食中毒以外の集団胃腸炎のウイルス検査

食中毒以外の集団胃腸炎6事例、28検体について、検査を行い、そのうち、5事例、11検体からノロウイルスを検出した。月別の検出事例数は表5に示す。

(3) 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

感染症発生動向調査における全体把握対象疾患（41症例、93検体）のウイルス検査の結果を表6に示す。これらの検査ではいずれもPCR法を実施した。

デングウイルスは1件がPCR法で陽性であった。なお、当該検体についてイムノクロマト法ではNS1抗原は陽性であったが、IgM、IgG抗体は陰性であった。麻しんウイルスは福岡県で届出された麻しん患者の家族由来の検体1検体が陽性であった。A型肝炎は2検体が陽性であった。患者2名はいずれも海外渡航歴はなかった。

表6 全数把握のウイルス検査状況

検査項目名	検体数	陽性数
デングウイルス	6	1
チクングニアウイルス	6	0
ジカウイルス	6	0
麻しんウイルス	30	1
風しんウイルス	33	0
A型肝炎ウイルス	2	2
SFTS ウイルス	19	0
ポリオウイルス	5	0
エンテロウイルス	14	0
パラインフルエンザウイルス	7	0
MERS ウイルス	2	0
計	130	4

表5 食中毒・集団胃腸炎事例のノロウイルス検出事例数(月別)

月	4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3	計
食中毒	0	0	0	0	0	0	3	1	2	3	0	0	9
食中毒以外の集団胃腸炎	0	0	0	0	0	0	1	2	0	2	0	0	5
計	0	0	0	0	0	0	4	3	2	5	0	0	14

表2 食中毒・有症苦情 検査項目内訳

	検査項目																						
	検体数	検査項目数計	サルモネラ属菌	コアグラマーゼ陽性 ブドウ球菌	腸炎ビブリオ	腸管出血性大腸菌	病原性大腸菌	ウェルシュ菌	セレウス菌	エルシニア	カンピロバクター	ビブリオ・フルビアリス	ハイドロフィラ	エロモナス	エロモナスソブリア	シゲロイデス	プレシオモナス	NAGビブリオ	セブテンプンクタータ	クドア・	コレラ菌	大腸菌群	その他
ヒト便・吐物	310	2550	295	295	219	75	75	190	199	188	241	208	4	4	4	4	4	208	11	19	292	23	
菌株	11	11		2				9															
食品(残物・参考品)	155	257	46	1	5	26	22	3	2	1	142	3						3	2	2		1	
ふきとり	151	634	151	151	27			6	30		76	23						23				147	
その他																							
計	627	3452	492	447	253	101	97	199	231	189	468	234	4	4	4	4	4	234	13	19	440	23	

表3 無症苦情 検査項目内訳

	検査項目																						
	検体数	検査項目数計	サルモネラ属菌	コアグラマーゼ陽性 ブドウ球菌	腸炎ビブリオ	腸管出血性大腸菌	病原性大腸菌	ウェルシュ菌	セレウス菌	エルシニア	カンピロバクター	ビブリオ・フルビアリス	ハイドロフィラ	エロモナス	エロモナスソブリア	シゲロイデス	プレシオモナス	NAGビブリオ	セブテンプンクタータ	クドア・	コレラ菌	大腸菌群	その他
食品(残物・参考品)	2	12	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1						1	1		1	1	1
計	2	12	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1						1	1		1	1	1

3) 感染症担当

平成 28 年度に実施した非定期検査は、感染症法に基づく防疫検便に加え今年度から始めた結核菌遺伝子解析（平成 28 年 10 月より実施）であり、表 7 に検査の検体総括を示す。

表 7 非定期検査検体数総括

区 分	検体数	延べ項目数
感染症法に基づく防疫検便	568	568
結核菌遺伝子解析	16	16
その他	101	127
計	685	711

(1) 感染症法に基づく防疫検便

感染症法に基づく細菌性赤痢、腸チフス、パラチフス、コレラ、腸管出血性大腸菌感染症発生に伴う防疫検便は 568 件であった。特にパラチフスは、福岡市においては 8 年ぶりの発生となった。それらの依頼別検体数を表 8 に、詳細を「Ⅷ 資料」に示す。

(2) 結核菌遺伝子解析

結核の発生動向を分子疫学的な観点から把握・分析し、集団感染事例への対応を始め本市結核対策に

役立てるため、感染症法第 15 条第 3 項に基づき市内居住の結核患者等に対して遺伝子型別検査を実施する「福岡市結核菌病原体サーベイランス事業」が 10 月より開始された。当所に搬送された結核菌 16 株について結核菌遺伝子解析を実施した。

(3) その他

その他依頼検査の内訳を表 9 に示す。

表 9 依頼検査の内訳

区 分	検体数	検査項目 (件数)
水細菌検査	14	一般細菌数 (14) 大腸菌 (14)
ライム病 ボレリア 抗体検査	12	IgG抗体 (12) IgM抗体 (12)
感染症サーベイ ランス	3	A群溶血性 レンサ球菌 (2) 百日咳 (1)
菌株精査	72	腸管出血性大腸菌 (64) 赤痢菌 (6) パラチフス菌 (2)
計	101	(127)

表 8 感染症法に基づく防疫検便検査依頼別検体数

区 分	計	東	博多	中央	南	城南	早良	西
細菌性赤痢	30	13	0	5	0	2	10	0
腸チフス	0	0	0	0	0	0	0	0
パラチフス	52	0	11	0	35	6	0	0
コレラ	0	0	0	0	0	0	0	0
EHEC	486	27	75	47	15	16	85	221
計	568	40	86	52	50	24	95	221

4 理化学（保健科学課）

保健科学課（食品化学担当、微量分析担当）が平成 28 年度に実施した非定期業務のうち、苦情等に伴う保健所（保健福祉センター）からの理化学依頼検査、行政機関からのその他の理化学依頼検査、油症検診受診者の血中 PCB の検査については、表 1 のとおり実施した。また、厚生労働省との共同研究、国立医薬品食品衛生研究所との共同研究及び健康危機管理を目的とした精度管理を実施した。

表 1 非定期依頼検査の内訳

区 分	検体数	延べ項目数
苦情等に伴う保健所からの理化学依頼検査	17	28
行政からのその他の理化学依頼検査	29	3,929
油症検診受診者の血中PCB検査	47	47
計	93	4,004

1) 非定期依頼検査

(1) 苦情等に伴う保健所からの依頼検査

苦情等に伴う保健所からの理化学依頼検査は、食品添加物、残留農薬、異物など 10 件、17 検体、28 項目について実施した（表 2）。

(2) 行政からのその他の依頼検査

安全で安心な農産物の生産及び供給に資するため、農林水産局の依頼により福岡市で生産された米について残留農薬の出荷前検査を 15 検体、3,855 項目実施した。また、保健福祉局の依頼により、いわゆる健康食品について医薬品成分の違法添加の検査を 10 検体、70 項目実施した。その他動物用医薬品など合わせて計 29 検体、3,929 項目の依頼検査を行った（表 3）。

2) 油症検診受診者の血中 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 43 検体及び対照血液 4 検体について実施した。対照血液は福岡県、北九州市及び福岡市において、それぞれ 10 名の血液を採取し混合したものであり、それをを用いて PCB ピークパターンの判定基準を求めた。対照血液の PCB 濃度は 0.35～0.41ppb で平均値は 0.38ppb であった。

また、1/2%値^{*1}及び 5/2%値^{*2}の平均値は 21.89 及び

7.54 で、油症検定用の標準偏差はそれぞれ 7.22 及び 1.73 となった。

※1：No.2 (2,4,5,2',4',5'-hexachlorobiphenyl 相当)に対する No.1 (2,4,5,3',4'-pentachlorobiphenyl 相当)の濃度比 (%)

※2：No.2 に対する No.5 (2,3,4,5,3',4'-hexachlorobiphenyl 相当)の濃度比 (%)

3) 厚生労働省委託調査

市民の食の安全安心を確保する観点から厚生労働省委託事業の「食品中に残留する農薬等の摂取量調査」に参画した。「LC/MS による農薬等の一斉試験法（農産物）」及び「GC/MS による農薬等の一斉試験法（農産物）」が適用可能な農薬について、市内で購入した食品を I～X IV の群に分類し調査した。

4) 国立医薬品食品衛生研究所との共同研究

平成 28 年度厚生労働科学研究課題（食品の安全確保推進事業）「食品を介したダイオキシン類等有害物質摂取量の評価とその手法開発に関する研究」の一部として、LC-MS/MS による有機ヒ素の形態別分析法の開発・改良を検討した。

5) 健康危機管理を目的とした精度管理

地方衛生研究所全国協議会九州ブロックでは、健康危機発生時に各地方衛生研究所が連携して速やかな対応が出来ること及び検査精度の向上を図るため、健康危機管理を目的とした加工食品中の異物混入の精度管理（定性・定量分析）を実施した。

平成 28 年度の試料は赤ワインに指定外甘味料ズルチンとメタノールを加えたものであった。試料とともに送付された事件の詳細が記載されたシナリオには、ズルチンが被害の原因であるか否か分析する旨の指示があったが、患者に重篤な視力障害が発生していたとの記述から、ズルチンだけでなくメタノールについても分析を実施した。ズルチンは HPLC-PDA で定量するとともに、保持時間及び紫外可視吸収スペクトルを標準品と比較することで確認した。メタノールは GC-FID で定量分析を行った。

結果については、定量結果からズルチンが本シナリオの健康被害の原因ではなく、メタノールが原因であることを正しく回答した。

表2 苦情等に伴う保健所からの依頼検査内訳

No.	依頼日	区名	検体	主な検査項目	検体数	項目数
1	4月4日	南	メロンパン	検鏡	1	1
2	5月9日	中央	和菓子	イムノクロマト(乳, 卵)	2	4
3	6月6日	博多	おにぎり	SEM, EDS	2	4
4	6月30日	博多	食肉	SEM, EDS, FT-IR	1	3
5	7月5日	博多	ブリのピリ辛	ヒスタミン	1	1
6	7月7日	中央	ピリ辛れんこん	SEM, EDS	2	4
7	7月19日	南	菓子	SEM, EDS	2	4
8	11月7日	城南	珍味	FT-IR	1	1
9	11月29日	東	ステーキソース	官能検査	4	4
10	3月29日	早良	かつおの水煮	検鏡, FT-IR	1	2
計					17	28

表3 行政からの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19日	保) 食品衛生検査所	養殖カンパチ	動物用医薬品	4	4
2	9月26日	農) 農業振興課	玄米	農薬	3	771
3	10月12日	農) 農業振興課	玄米	農薬	6	1,542
4	10月21日	保) 地域医療課	健康食品	医薬品成分	10	70
5	10月26日	農) 農業振興課	玄米	農薬	6	1,542
計					29	3,929

VI 学会等发表抄録

1 平成 28 年度 学会誌等論文発表

演 題 名	氏 名	雑 誌 名	巻(号)・頁・年(西 曆)	抄 録 No.
福岡市におけるノロウイルス (NoV) GII.17 の検出状況	古川 英臣 松藤 貴久 財津 修一 中牟田 啓子 庄嶋 貴之 高塚 公章 日高 千恵 古賀 順也 植山 誠 執行 睦実	病原微生物検出情報	38(1), 4~5, 2017	1)
急性白血病治療中に発症した 5 歳の成人 腸管定着ボツリヌス症例	本田 己喜子 中牟田 啓子 多々納 文 山本 信太郎 田中 衛 鳥尾 倫子 朝倉 宏 加藤 はる 他	病原微生物検出情報	38 (1) , 20~21, 2017	2)

学会誌等論文発表抄録

1) 福岡市におけるノロウイルス (NoV) GII.17 の 検出状況

保健科学課 古川 英臣・松藤 貴久・財津 修一・
中牟田 啓子
保健福祉局食品安全推進課 庄嶋 貴之・高塚 公章・
日高 千恵
保健福祉局保健予防課 古賀 順也・植山 誠・
執行 睦実

病原微生物検出情報

2015 年 1 月に初めてノロウイルス (NoV) GII.17 を検出
し、それ以降継続的に検出したので、2016 年 3 月までの
概要について報告する。

NoV を検出した 36 事例のうち NoV GII.17 が検出された
事例は 18 件で、半数を占めていた。

食中毒関係事例では GII.17 は 16 事例から検出され、そ
のうち 7 事例については GII.17 以外の NoV も同時に検出
された。さらに、そのうち 3 事例については同一検体から
2 つの異なる遺伝子型の NoV が検出された。感染症調査

事例 2 件においては GII.17 のみが検出された。

検出された NoV GII.17 株はすべて Kawasaki308 類似株
で、4 つのクラスターを形成した。また、各事例間に地理
的・時間的な偏りはなく、疫学調査においても関連性は認
められなかった。食中毒関係の 2 事例においては、同一事
例の中から、異なるクラスターの GII.17 株を検出した。

2) 急性白血病治療中に発症した 5 歳の成人腸管定 着ボツリヌス症例

保健科学課 本田 己喜子・中牟田 啓子
福岡市東区保健福祉センター健康課 多々納 文・
山本 信太郎
福岡市東区保健福祉センター衛生課 田中 衛
九州大学病院小児科 鳥尾 倫子・大山 紀子・
古賀 友紀・中島 健太郎・
西尾 壽乗・神野 俊介・
酒井 康成

国立医薬品食品衛生研究所食品衛生管理部

朝倉 宏

国立感染症研究所細菌第二部 岩城 正昭・加藤 はる・
柴山 恵吾

病原微生物検出情報

2016年8月、福岡市においてA型ボツリヌス毒素産生性ボツリヌス菌によるボツリヌス症患者が発生した。ボツリヌス症は、ボツリヌス菌等が産生するボツリヌス毒素によって神経麻痺症状を呈する疾患であり、届出票には食餌性、乳児、創傷、成人腸管定着、その他の5種類に分類されている。このうち成人腸管定着ボツリヌス症は、成人や1歳以上の小児が乳児ボツリヌス症と同じ機序で発症するボツリヌス症であり、明確な原因食品や創傷ボツリヌス症の証拠がなく、消化管に基質的あるいは機能障害があるか、抗菌薬を使用している場合に発症するといわれてい

る。今回の患者である5歳男児は、発症3か月前から抗癌剤とその後の抗菌薬・抗真菌薬使用により消化管細菌叢が攪乱された状態で、ボツリヌス菌芽胞を獲得し、日本で初めての成人腸管定着ボツリヌス症として届けられた。

今回のような事例では、1歳以上であるため、食餌性ボツリヌス症である可能性は否めず、喫食調査はもちろんのこと、患児の基礎疾患・治療に用いた投薬状況などの臨床背景の聞き取りや、喫食調査から得られた疑わしい食品等の検査を迅速に行うことやボツリヌス菌は感染症法では二種病原体であることから検査機関での検査に制約があるため、国立感染症研究所及び国立医薬品食品衛生研究所などの関係機関との連携も重要であると思われる。

2 平成 28 年度 学会等口頭発表

演 題 名	発 表 者 (口演者○印)	学 会 名	会 期	会 場	抄 録 No.
福岡市における腸管出血性大腸菌 (O157 等) の薬剤耐性の推移	○岩佐 奈津美 本田 己喜子	第 63 回福岡県公衆衛生学会	H28.5.19	福岡県吉塚合同庁舎 (福岡市)	1)
<i>Campylobacter</i> 属菌の迅速検査法の検討について	○高橋 直人 古賀 舞香 徳島 智子 松永 典久 丸山 浩幸	平成 28 年度食品衛生研究発表会	H28.7.8	鮮魚市場会館 (福岡市)	2)
カンパチ等に寄生する粘液胞子虫 <i>Uncinapsula seriolae</i> の顕微鏡検査方法の検討	○丸山 浩幸 高橋 直人 古賀 舞香 松永 典久 中牟田 啓子 福岡県 重村 洋明 江藤 良樹 世良 暢之	第 42 回九州衛生環境技術協議会	H28.10.13 ~14	都久志会館 (福岡市)	3)
ミネラルウォーター類中の元素類一斉分析法の妥当性確認	○戸渡 寛法 宮崎 悦子	第 42 回九州衛生環境技術協議会	H28.8.10.13 ~14	都久志会館 (福岡市)	4)
PM _{2.5} のお話 ~福岡市ではどんな調査をしているの?~	○中島 亜矢子	平成 28 年度県内保健環境研究機関合同成果発表会	H28.11.4	福岡市市民福祉プラザ (福岡市)	5)
教えて!カンピロバクター食中毒 ~最近の食中毒事例と新しい検査法~	○高橋 直人 古賀 舞香 徳島 智子 松永 典久 丸山 浩幸	平成 28 年度県内保健環境研究機関合同成果発表会	H28.11.4	福岡市市民福祉プラザ (福岡市)	6)
福岡市における腸管出血性大腸菌 (O157 等) の薬剤耐性の推移	○岩佐 奈津美 本田 己喜子	第 20 回腸管出血性大腸菌感染症研究会	H28.11.10 ~11	富山県民共生センター (富山市)	7)
福岡市内公共用水域におけるノニルフェノール測定結果	山下 紗矢香 ○高村 範亮 田辺 智子	第 43 回環境保全・公害防止研究発表会	H28.11.17 ~18	山形テルサ (山形市)	8)
LC-MS/MS による下痢性貝毒 (オカダ酸群) の分析法の検討	○藤井 優寿 宮地 夏海 常松 順子 中牟田 啓子	第 53 回全国衛生化学技術協議会年会	H28.11.17 ~18	ホテル青森 (青森市)	9)

福岡市近海で漁獲される魚介類中のヒ素濃度について	○戸渡 寛法 宮崎 悦子 赤木 浩一 片岡 洋平 宮本 道彦 牟田 朱美 穂山 浩 渡邊 敬浩	第 53 回全国衛生化学技術協議会年会	H28.11.17 ～18	ホテル青森 (青森市)	10)
福岡市の家庭系可燃ごみにおける手つかず食品排出状況調査	○望月 啓介 岡本 拓郎 前田 茂行 馬場 伸一	第 38 回全国都市清掃研究・事例発表会	H29.1.18～20	釧路市観光国際交流センター (釧路市)	11)
福岡市での健康影響調査の報告	○中島 亜矢子	PM _{2.5} の長期観測・解析と健康影響調査に関する講演会（大気環境学会九州支部第 17 回研究発表会）	H29.1.27	九州大学（福岡市）	12)

学会等口頭発表抄録

1) 福岡市における腸管出血性大腸菌（O157 等）の薬剤耐性の推移

保健科学課 岩佐 奈津美・本田 己喜子

第 63 回福岡県公衆衛生学会

腸管出血性大腸菌（EHEC）感染症は、重症例では意識障害や溶血性尿毒症症候群（HUS）を発症し死亡に至る場合もある。福岡市では、毎年 50 件前後の EHEC による感染事例が発生しているが、その薬剤耐性状況を調べた例がないため、今回、平成 17 年度から平成 26 年度までに当所へ搬送及び当所で検出された EHEC 陽性株計 932 株に対し、14 種類の薬剤（ABPC, CET, CTM, CAZ, CTX, CEPM, NFLX, TC, SM, KM, CP, FOM, IPM, MEPM）を用い薬剤耐性状況を調査した。

EHEC 全体としては 36.8%が薬剤耐性を獲得しており、特に O111 は 95.7%と耐性獲得率が高く、次に O26 が 45.8%となっていた。薬剤別では、ABPC, TC, SM においてそれぞれ 15.8%, 27.4%, 30.7%と耐性率が高かった。

ESBL 産生菌が O157 (TEM,CTX-M-15), O26 (CTX-M-15), O153 (CTX-M2G) で 1 株ずつ検出され、FOM 耐性菌が O91 で 1 株検出された。

FOM 耐性, ESBL 産生遺伝子はプラスミド上に存在し、同じ大腸菌はもちろんのこと、腸内細菌科の異なる菌種間でも伝達される可能性があり、院内感染などの起炎菌となりうる可能性が考えられ、今後の耐性菌の検出状況に注意が必要である。

2) *Campylobacter* 属菌の迅速検査法の検討について

保健科学課 高橋 直人・古賀 舞香・松永 典久
丸山 浩幸

早良区保健福祉センター衛生課 徳島 智子

平成 28 年度食品衛生研究発表会

カンピロバクター属菌による食中毒発生件数は依然として多く、福岡市内で発生する細菌性食中毒の大半を占めていることから、本食中毒において正確かつ迅速な検査が求められている。従来は、増菌培地で培養後選択分離培養を行い、コンベンショナル PCR(以下 cPCR)と生化学性状試験で菌株を同定していたが、cPCR 法では保健所の検体持込みから成績書発行までに時間を要してしまうだけでなく、電気泳動を行って目視判定を行う際に、バンドが不明瞭であったり非特異的なバンドが生じる問題が散見される。そこで、迅速で特異性の高いカンピロバクター属菌検出方法として、定性マルチプレックスリアルタイム PCR 法(以下リアルタイム PCR)の開発を行った。

今回用いたリアルタイム PCR では、偽陽性や偽陰性も見られず十分な特異性があると考えられることから、培養法で分離したカンピロバクター属菌の迅速な鑑別同定に有用であると考えられた。現在このリアルタイム PCR を食中毒発生時のカンピロバクター属菌の同定に使用しており、cPCR に比べ 4 時間以上時間を短縮できるようになった。

3) カンパチ等に寄生する粘液胞子虫 *Unicapsula seriolae* の顕微鏡検査方法の検討

保健科学課 丸山 浩幸・高橋 直人・古賀 舞香
松永 典久・中牟田 啓子
福岡県保健環境研究所 重村 洋明・江藤 良樹
世良 暢之

第42回九州衛生環境技術協議会

ヒラメの喫食がないにもかかわらず *Kudoa septempunctata* による食中毒と同様の症状を示す原因不明の食中毒事例が認められており、2014年から2015年11月までに福岡市内で発生した5件の食中毒疑い事件について、残品のカンパチ等及び患者便を当所で検査したところ、粘液胞子虫である *Unicapsula seriolae* 虫体及び遺伝子が検出された。しかし、顕微鏡検査において、クドア通知法（以下「通知法」）では観察及び計測が困難であった。そこで、通知法で *U.seriolae* 虫体を確認した市販流通品のカンパチを検体として、顕微鏡検査方法について検討した。

試験方法は①通知法②Percoll法③通知法のPBSを0.1%Tween80添加PBSに、遠心1500rpm10分を3500rpm15分に変更した方法（以下「Tween80添加法」）の3つとし、計測はBurker-Turk型計算盤を使用し、それぞれ3回検討してその結果を比較した。また上記採材した同部位をqPCR法によりコピー数を測定した。

陽性検体を3つの方法で3回検討した結果、孢子数は全てTween80添加法の検出量が一番多く12~32個（ $6.0 \times 10^4 \sim 1.6 \times 10^5$ 個/g）と通知法に比べ平均1.8倍、Percoll法は1.2倍の検出であった。コピー数は 1.1×10^7 、 7.9×10^8 、 1.6×10^9 copy/gで、コピー数と孢子数の相関は認められなかった。

また今回検討した検査方法としては、粘着除去及び遠心力を強化したTween80添加法が有効と示唆された。

4) ミネラルウォーター類中の元素類一斉分析法の妥当性確認

保健科学課 戸渡 寛法・宮崎 悦子

第42回九州衛生環境技術協議会

平成26年12月22日、清涼飲料水の成分規格の改正に合わせ、「食品中の有害物質等に関する分析法の妥当性確認ガイドライン」が示された。ミネラルウォーター類の成分規格のうち、ICP-MSによる同時測定が可能な元素10項目の一斉試験法を通知法に準じた方法で行い、ガイドラインに基づく妥当性確認を実施した結果、良好な結果が得られた。市内を流通するミネラルウォーター類22検体について、妥当性が確認された本試験法を用いた実態調査を行った結果、いずれの検体も成分規格に適合するものであった。

5) PM_{2.5}のお話 ~福岡市ではどんな調査をしているの?~

環境科学課 中島 亜矢子

平成28年度県内保健環境研究機関合同成果発表会

PM_{2.5}は非常に小さく肺の奥深くまで入りやすいという特徴があるため、肺がんや呼吸器系、循環器系への影響が心配されている。しかし、PM_{2.5}の健康影響に関する知見は限られており、未だわからないことが多いのが現状である。

福岡市保健環境研究所では、平成23年度から福岡市内のPM_{2.5}の成分の調査を行っており、年間を通して硫酸イオン、続いて有機炭素の割合が大きく、冬季は硝酸イオンが増える傾向にあることがわかった。また市民へのPM_{2.5}濃度に関する情報提供などの検討にあたっての調査の一つとして、平成25年度から平成27年度にかけて市内の小学生を対象にPM_{2.5}濃度と健康影響に関する調査を行った。期間中のPM_{2.5}の濃度は、平成26年度の最高は $49.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、平成27年度の最高は $32.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。

PM_{2.5}濃度が上昇した場合の子どもの症状の変化を統計的に解析した結果、PM_{2.5}濃度の上昇と症状との間に関連がみられるものはなかった。しかし「マスクをしていた」という項目との関連があり、PM_{2.5}濃度が上昇するとマスクをしていた割合が有意に増加することがわかった。

6) 教えて！カンピロバクター食中毒

~最近の食中毒事例と新しい検査法~

保健科学課 高橋 直人・古賀 舞香・松永 典久
丸山 浩幸

早良区保健福祉センター衛生課 徳島 智子

平成28年度県内保健環境研究機関合同成果発表会

迅速で特異性の高い菌種同定方法としてリアルタイムPCR法を開発し、検査法を改良した。この方法を実際の食中毒検査に利用することで、以前に比べて迅速な行政対応が可能になった。特に、平成28年度に福岡市中央区で発生した大規模食中毒において迅速検査法の有用性が示された。

7) 福岡市における腸管出血性大腸菌（O157等）の薬剤耐性の推移

保健科学課 岩佐 奈津美・本田 己喜子

第20回腸管出血性大腸菌感染症研究会

EHEC感染症は治療において、キノロン系薬剤、ホスホマイシンが第一選択薬として推奨されており、これらの薬剤にEHECが耐性を示すようになると治療が困難になる可能性が考えられる。今回、平成18年度から平成

27年度までに当所へ搬送及び当所で検出された EHEC 陽性株計 931 株に対し、14 種類の薬剤 (ABPC, CET, CTM, CAZ, CTX, CEP, NFLX, TC, SM, KM, CP, FOM, IPM, MEPM) を用い薬剤耐性状況を検査した。

EHEC 全体の薬剤耐性率は 36% となり、血清型別では O111 が 95.7% と最も高く、次いで O26 が 46.9%、O157 が 25.1% 及び O103 が 9.4% であった。O26 に関しては平成 24 年度以降の薬剤耐性率は 50% 以上の高い水準で推移していた。また、ESBL 産生菌が 4 株みられ、その内訳は O157 2 株 (TEM+CTX-M-15, 1 株; CTX-M-15, 1 株)、O26 1 株 (CTX-M-15)、O153 1 株 (TEM+CTX-M-2G) であった。さらに、ホスホマイシン耐性菌が O91 で 1 株検出された。

今回の調査で EHEC 治療の第一選択薬となるキノロン系薬剤に耐性を示す株は見られなかったがホスホマイシン耐性株が検出されたことから、EHEC においても高度耐性化してきていることが示唆され、今後の薬剤耐性発現状況に注意が必要と思われる。

8) 福岡市内公共用水域におけるノニルフェノール測定結果について

環境科学課 山下 紗矢香・高村 範亮・田辺 智子
第 43 回 環境保全・公害防止研究発表会

主に界面活性剤の原料として用いられているノニルフェノールについては、「環境ホルモン戦略計画 SPEED'98」において内分泌かく乱作用を有すると疑われる化学物質に挙げられており、平成 24 年 8 月には水生生物の保全に係る水質環境基準に新たに追加された。福岡市内の河川及び博多湾における水質及び底質のノニルフェノールについて調査を行った。その結果、水質については、河川では検出された地点もあったが、最高濃度でも生物特 A 基準値の半分以下と低濃度であり、博多湾では 1 度もノニルフェノールは検出されなかった。底質については河川及び博多湾ともにノニルフェノールが検出されており、強熱減量の高い地点でノニルフェノールが高濃度検出されたことから、ノニルフェノールは有機物の多い底質に蓄積しやすいものと考えられる。

9) LC-MS/MS による下痢性貝毒(オカダ酸群)の分析法の検討

保健科学課 藤井 優寿・宮地 夏海・常松 順子・
中牟田 啓子

第 53 回全国衛生化学技術協議会年会

下痢性貝毒を含む貝類の取扱いについては、平成 27 年 3 月 6 日厚生労働省通知により、機器分析法が導入され、オカダ酸群に対して 0.16mg0A 当量/kg の規制値が定められた。同時に、液体クロマトグラフ・タンデム型質

量分析計を用いた分析操作例が示されたが、カキに対する妥当性は確認されていない。そこで、本市の特産品であるカキを用い分析法の検討と妥当性評価を実施した結果、良好な結果が得られた。今回検討した分析法はカキの下痢性貝毒試験法として使用できると考えられた。

10) 福岡市近海で漁獲される魚介類中のヒ素濃度について

保健科学課 戸渡 寛法・宮崎 悦子・宮本 道彦・
牟田 朱美

水道局水道水質センター 赤木 浩一

国立医薬品食品衛生研究所 片岡 洋平・渡邊 敬浩・
穂山 浩

第 53 回全国衛生化学技術協議会年会

ヒ素は環境中に広く存在しており、無機態に加え、モノメチルアルソン酸 (MMA)、ジメチルアルソン酸 (DMA)、トリメチルアルソンオキサイド (TMAO)、テトラチルアルソニウム (TeMA)、アルセノベタイン (AB)、アルセノコリン (AC) 等の有機態の化合物が存在し、異なる毒性を持つことが知られている。これら 6 種の有機ヒ素化合物について LC-MS/MS によるヒ素形態別分析法の感度向上を目的とし、分析条件の再検討を行った結果、6 化合物の定量下限は 0.1~1mg/kg であった。ハマチを基材とする添加試料を分析した回収率は、TMAO が 13% と低かったが、MMA61%、DMA47%、TeMA116%、AB85%、AC109% と比較的 100% に近い値であった。また、魚介類 8 試料 (ハマチ、マアジ、マダイ、ウマヅラハギ、サワラ、イサキ、メバル、スルメイカ) の分析を行った結果、全ての試料から AB が検出され、濃度は 2.0~12mg/kg であり、世界各地で分析された魚介類の AB 濃度の範囲内であった。また、メバルからは TeMA0.4mg/kg が検出された。また海藻を原料とした市の特産品である「おきょうと」7 試料については 6 種全ての有機ヒ素化合物が定量下限未満であった。

11) 福岡市の家庭系可燃ごみにおける手つかず食品排出状況調査

保健環境管理課 望月 啓介・岡本 拓郎・

前田 茂行・馬場 伸一

第 38 回全国都市清掃研究・事例発表会

現在、日本国内では官民挙げて「食品ロス」削減に向け、「食品ロス削減国民運動」をはじめとした各種取り組みが展開されている。今回、福岡市の家庭系可燃ごみの中に期限切れ等が理由で未開封や未使用のまま廃棄された「手つかず食品」がどの程度含まれているか、また確認された手つかず食品を期限表示に従い分類し、分類毎の重量・個数、期限超過日数等を調査し、その排出傾

向について考察した。

家庭系可燃ごみ 200kg 中に含まれる手つかず食品の排出量は約 7.81kg であり、家庭系可燃ごみに占める割合は 3.9%であった。手つかず食品を期限表示に従って分類し、重量を比較した結果、「果物・野菜類」が最も多く、手つかず食品全体の約 4 割を占めた。

家庭系可燃ごみ 200kg 中に含まれる手つかず食品の排出個数は約 75.9 個であり、同様に個数割合を比較した結果、「(期限) 不明」が最も多く、全体の約 3 割を占めた。

賞味期限切れ食品の期限経過後に廃棄されるまでの期間を調査した結果、夏季は「1~7 日」と比較的早い期間で廃棄されたもの、秋・冬季は「半年以上」と長い期間経過して廃棄されたものが多かった。

賞味期限切れ食品を食品分類別に分類すると、「パン・シリアル類」等は期限後 2 週間以内で、「調味料」等は 1 ヶ月以上といった期限経過日数に関する経過が見られた。賞味期限切れ食品の食品分類別排出個数割合を調査した結果、「菓子(18.3%)」「水物(14.0%)」「デザート・ヨーグルト(8.3%)」の順に多かった。

12) 福岡市での健康影響調査の報告

環境科学課 中島 亜矢子

PM_{2.5}の長期観測・解析と健康影響調査に関する講演会
(大気環境学会九州支部第 17 回研究発表会)

PM_{2.5}濃度の変化と小児の自覚症状について、その関連を検討するために京都大学、国立環境研究所と共同で調

査を行った。

平成 25 年度から平成 27 年度にかけて市内の小児を対象に PM_{2.5}濃度と健康影響に関する調査を行った。小児に調査票を配布し、本人に自覚症状に関する日記形式の調査票を記入してもらい、調査期間終了後回収した。調査時に小児の健康状態に関することや生活環境について保護者に質問票を記載してもらい、調査票とともに回収した。

また、調査期間中の PM_{2.5}濃度は福岡市内の一般大気測定局 5 局の常時監視データの平均値を使用した。さらに市役所局では PM_{2.5}をサンプリングし成分分析を行った。

PM_{2.5}濃度と小児の症状との関係については、一般化推定方程式を使用して反復ロジスティック回帰をあてはめ、統計的に解析した。

調査期間中の PM_{2.5}の濃度について平成 26 年度の平均値は 28.4 μg/m³、濃度範囲は 9.9 μg/m³~49.9 μg/m³であり、平成 27 年度の平均値は 21.8 μg/m³、濃度範囲は 11.6 μg/m³~32.4 μg/m³であった。

小児全員を対象として、PM_{2.5}が単位濃度 (10 μg/m³) あたり上昇した場合の小児の症状の現れ方の変化を一般化推定方程式で統計的に解析した。その結果、PM_{2.5}濃度の上昇と症状の現れ方との間に関連がみられるものはなかった。しかし「マスクをしていた」という項目との関連があり、PM_{2.5}濃度が上昇するとマスクをしていた小児の割合が有意に増加することがわかった。

VII 報 告 ・ ノ ー ト

福岡市における化審法関連物質の環境実態調査

高村範亮・山下紗矢香・田辺智子

福岡市保健環境研究所環境科学課

Survey of Chemicals under Chemical Substances Control Law, in Fukuoka City

Noriaki TAKAMURA, Sayaka YAMASHITA and Tomoko TANABE

Environmental Science Section, Fukuoka City Institute of Health and Environment

要約

化学物質の審査及び製造等の規制に関する法律で規制されている物質の環境中での実態を把握するため、平成25～27年度にかけて福岡市内の河川や博多湾、排水などの水質及び底質の調査を行った。調査対象物質は、ペルフルオロオクタンスルホン酸を含む有機フッ素化合物（以下、「PFCs」という。）、ヘキサブロモシクロドデカン（以下、「HBCD」という。）、2,4-ジ-tert-ブチル-6-(5-クロロ-2H-1,2,3-ベンゾトリアゾール-2-イル)フェノール及びその類縁体であるベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤（以下、「UV327等」という。）とした。調査の結果、PFCsは河川の環境基準点よりも補助地点の水質試料で高濃度になる傾向が認められた。HBCDは一部の河川でγ-HBCDがわずかに検出されたが、その他の異性体は河川及び最終処分場のいずれの水質試料においても不検出であった。UV327等は調査した全ての底質試料でいずれかの類縁体が検出された。

Key Words : 化学物質の審査及び製造等の規制に関する法律 Chemical Substances Control Law, 有機フッ素化合物 perfluorinated organic compounds, ヘキサブロモシクロドデカン hexabromocyclododecane, 紫外線吸収剤 UV stabilizer

1 はじめに

化学物質による環境汚染を防止するため、日本国内における化学物質の製造等は、化学物質の審査及び製造等の規制に関する法律（以下、「化審法」という。）によって規制されている。化審法では難分解性、高蓄積性の化学物質のうち、人又は高次捕食動物への長期毒性が明らかかなものを第一種特定化学物質、毒性が不明なものを監視化学物質に指定している。第一種特定化学物質は環境中への放出を回避するために原則使用禁止となっているが、監視化学物質には使用についての制限は無い。一方で、監視化学物質が第一種特定化学物質に指定されることもあるため、あらかじめ環境中での実態を把握し、環境や生態系への影響を評価することは重要である。

化審法に関連する物質の中で、今回は第一種特定化学物質に指定されているペルフルオロオクタンスルホン酸（以下、「PFOS」という。）及びヘキサブロモシクロドデカン（以下、「HBCD」という。）なお、HBCDは調査開始時には監視化学物質であったが、調査中に第一種特定化学物質に指定された。）並びに監視化学物質に指定

されている2,4-ジ-tert-ブチル-6-(5-クロロ-2H-1,2,3-ベンゾトリアゾール-2-イル)フェノール（以下、「UV327」という。）に注目した。PFOSは主に半導体工業や写真工業、泡消火剤に使用されている¹⁾。第一種特定化学物質ではあるが、代替が困難等の理由によりエッチング剤や半導体用レジスト、業務用写真フィルムの製造での使用が法令上認められており、福岡市ではこれまでもPFOSを含む有機フッ素化合物（以下、「PFCs」という。）の環境実態調査を行ってきた^{2,3,4)}。HBCDは主に難燃剤として断熱材やカーテン等に使用されている⁵⁾。UV327は主にプラスチック等の紫外線による劣化防止のための紫外線吸収剤として使用されており⁶⁾、構造が類似した2-(2H-1,2,3-ベンゾトリアゾール-2-イル)-4,6-ジ-tert-ブチルフェノールが第一種特定化学物質に指定されている。HBCDとUV327は環境や生態系に影響を及ぼす恐れがある物質という報告⁷⁾もあり、環境中での実態を把握する必要があると考えられた。

そこで今回はこの3物質を調査対象とし、PFOSはPFCsとして、UV327はその類縁体であるベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤も加えて（以下、「UV327等」と

いう。)環境実態調査を行った。

なお、本調査は国立環境研究所と複数の地方環境研究所が参加して共同研究を実施するⅡ型共同研究「国内における化審法関連物質の排出源及び動態の解明」(平成25～27年度)の一環として行った。

2 調査方法

2.1 調査時期及び調査地点

PFCsの調査は平成27年度に行った。福岡市内での分布を把握するため、調査地点は市内の博多湾及び河川的环境基準点等34地点(図1)とし、季節ごと(平成27年4月, 7月, 10月及び平成28年1月)に水質試料を調査した。河川におけるサンプリングは海水の影響を低減するため、干潮時に行った。

HBCDの調査は平成25～26年度に行った。初期調査として、気象状況や海洋状況が比較的安定している秋(平成25年11月)に、下水処理水の影響を受ける名島橋及び千鳥橋並びに上流地点における河川の浚渫工事の影響を受ける恐れのある那の津大橋及び旧今川橋の環境基準

点4地点の水質試料を調査した。サンプリングは海水の影響を低減するため、干潮時に行った。また、HBCDが廃棄物から流出する可能性を調査するため、平成27年1月に福岡市内の最終処分場(東部埋立場, 西部埋立場)の水質試料でも調査を行った。

UV327等の調査は平成26年度、福岡市の底質の常時監視に合わせて8月に行った。UV327等は道路粉じんが排出源である可能性が示されている⁸⁾ことから、粉じんが堆積している可能性がある底質を調査試料とした。調査地点については、道路粉じん中の濃度と車両通行量に相関が認められるとの報告がある⁸⁾ことから、河川においては、幹線道路である国道3号線及び福岡都市高速のジャンクションが近くにあり、車両通行量が比較的多いと思われる千鳥橋とした。博多湾における調査地点は東部海域(湾奥)のE-2及び中部海域(湾央)のC-4とした。

2.2 調査対象物質

PFCsの調査対象物質は、炭素鎖の末端にスルホン酸基を有するもの4物質とカルボキシル基を有するもの5物質の計9物質とした(表1)。



図1 調査地点図

表1 PFCsの調査対象物質

物質	略記	MRM	ISTD
Perfluorobutanesulfonate	(C4) PFBS	299>80	
Perfluorohexanesulfonate	(C6) PFHxS	399>80	¹³ C ₃ -PFHxS
Perfluoroheptanesulfonate	(C7) PFHpS	449>80	
Perfluorooctanesulfonate	(C8) PFOS	499>80	¹³ C ₈ -PFOS
Perfluoropentanoic acid	(C5) PFPeA	263>219	¹³ C ₅ -PFPeA
Perfluorohexanoic acid	(C6) PFHxA	313>269	¹³ C ₅ -PFHxA
Perfluoroheptanoic acid	(C7) PFHpA	363>319	¹³ C ₄ -PFHpA
Perfluorooctanoic acid	(C8) PFOA	413>369	¹³ C ₈ -PFOA
Perfluorononanoic acid	(C9) PFNA	463>419	¹³ C ₉ -PFNA

HBCDの調査対象物質は、HBCDの立体異性体のうち、 α -HBCD、 β -HBCD及び γ -HBCDとした。

UV327等の調査対象物質は、2-(tert-ブチル)-4-メチル-6-(5-クロロ-2H-1,2,3-ベンゾトリアゾール-2-イル)フェノール(以下、「UV326」という。), UV327及び2-(3,5-ジ-tert-アミル-2-ヒドロキシフェニル)ベンゾトリアゾール(以下、「UV328」という。)とした。

2.3 分析方法

PFCsの分析方法は前報⁴⁾に従った。

HBCDの分析は当研究所で試料を採取した後、一部前処理を行い、II型共同研究の共同研究者である福岡県保健環境研究所に測定を依頼した。

UV327等の分析は当研究所で試料を採取した後、II型共同研究の共同研究者である(公財)東京都環境公社東京都環境科学研究所に測定を依頼した。

3 実験結果及び考察

3.1 水質中有機フッ素化合物

博多湾及び河川の環境基準点における調査地点ごとの年間平均濃度を図2に、河川の補助地点における調査地点ごとの年間平均濃度を図3に示す。環境基準点において博多湾よりも河川が高濃度であること、博多湾及び河川の濃度範囲については、前報⁴⁾と同様な結果である。一方、前報⁴⁾では河川の環境基準点について、市内の西部よりも東部でPFCsの濃度が高い傾向にあることを報告したが、今回の調査では、西部の河川でも金屑川(飛石橋)では比較的高濃度になっていた。また、河川の環境基準点と補助地点を比較すると、補助地点で高濃度になる傾向が認められた。諸岡川(諸岡橋)が合流する御笠川では、合流前後の環境基準点(板付橋, 金島橋)でPFCsの濃度の増減が小さく諸岡川の影響はほとんど認められなかったが、若久川(天代橋)が合流する那珂川では、合流後の環境基準点(住吉橋)で合流前の環境基準点(塩原橋)よりも濃度が高くなっていった。また、有田橋(金屑川)及び舟底橋(油山川)の下流に位置する飛石橋では前報⁴⁾よりもPFCsの濃度が高くなっており、両地点の影響を強く受けたのではないかと考えられる。補助地点の中でPFCsが高濃度であった諸岡橋, 天代橋, 有田橋及び舟底橋ではPFCsの中でPFOSの割合が最も多く、御島橋ではPFNAの割合が最も多かった。今回の調査では、これらの補助地点でPFCsが環境基準点よりも比較的高濃度に検出された理由は明らかにできなかったが、排出源に関する情報として有用な情報であると考え

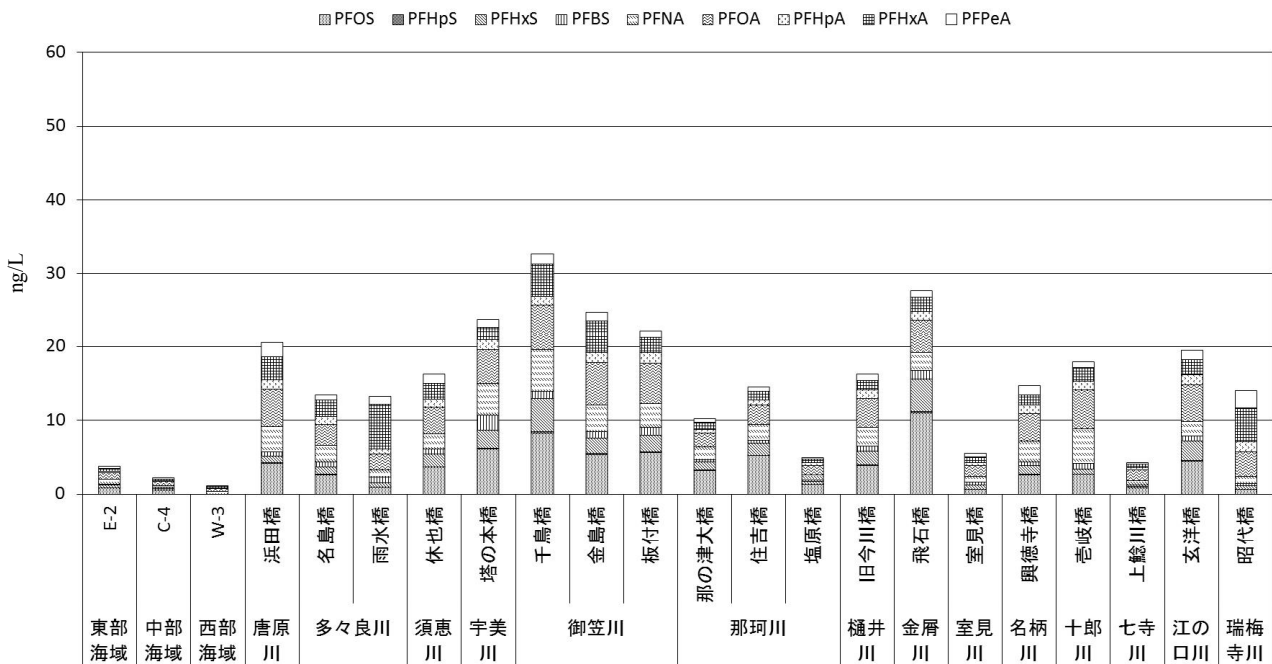


図2 博多湾及び河川の環境基準点におけるPFCsの年間平均濃度

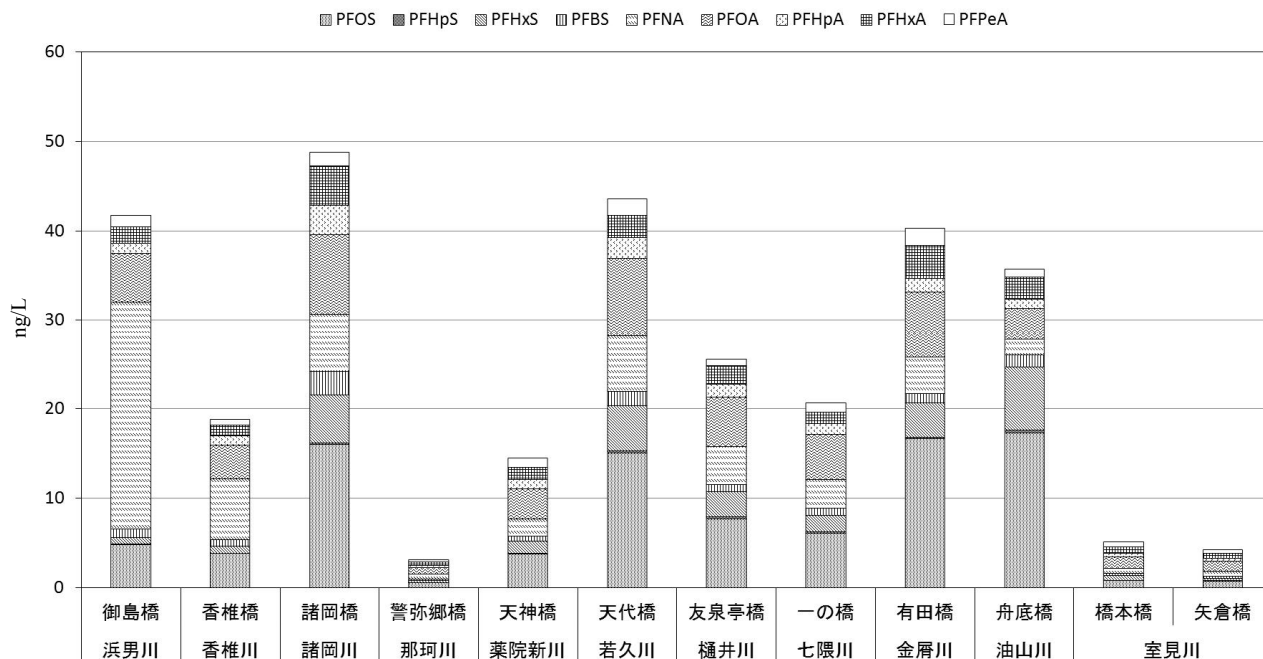


図3 河川の補助地点等における PFCs の年間平均濃度

えられる。なお、環境省が実施した化学物質環境実態調査（以下「エコ調査」という。）では、PFCsのうちPFOS及びPFOAを平成21～26年にかけて、国内の48～49地点の水質試料で調査している。その結果、PFOSは中央値が0.36～0.58 ng/L、最大値が7.5～230 ng/Lであり、PFOAは中央値が1.1～2.4 ng/L、最大値が23～50 ng/Lであった⁹⁾。また、環境省が公表している化学物質の環境リスク評価^{1,10)}によれば、PFOSの予測無影響濃度は23,000 ng/L、PFOAは310,000 ng/Lである。今回の調査におけるPFOS、PFOAの検出範囲はそれぞれ<0.2～41.4 ng/L、0.2～13.6 ng/Lであり、いずれの物質も検出範囲がエコ調査の中央値よりは高いが、最大値は超えていなかった。また、今回の調査で得られた最大値を予測無影響濃度と比較すると、PFOS、PFOAはそれぞれ約550分の1、約22000分の1であり、十分に低い値であると考えられた。PFNAについては、御島橋で比較的高濃度に検出されているが、物質の毒性等に関する情報が不足しているため、今後の研究の進展が望まれる。

3.2 水質中ヘキサブロモシクロドデカン

河川の環境基準点4地点における調査地点ごとの結果を表2に、最終処分場ごとの結果を表3に示す。河川では千鳥橋及び名島橋でγ-HBCDが検出されたが、その他の2地点ではいずれのHBCDも検出されなかった。西野の報告¹¹⁾によれば、全国の公共用水域の水質試料におけるHBCDの濃度の最大値はα-HBCDが0.8 ng/L、β-HBCDが0.08 ng/L、γ-HBCDが4.6 ng/Lであり、今回の福岡市の河川における結果は、最大値を示した名島橋

のγ-HBCDが全国の最大値の約8分の1であり、高い値ではなかった。最終処分場では埋立場ごとの浸出水、污水处理施設の処理水や放流水などを調査した。水質試料はSSが<1～35 mg/L、CODが5.4～24 mg/L、TOCが4.0～18 mg/Lと、試料によって懸濁物質や有機汚濁の指標に差があったが、いずれの試料からもHBCDは検出されなかった。西野らの報告¹²⁾によれば、全国の排水試料におけるHBCDの濃度の最大値はα-HBCDが23 ng/L、β-HBCDが0.95 ng/L、γ-HBCDが154 ng/Lであり、今回の結果はこれらと比較して十分に低い値である。

表2 河川の水質試料におけるHBCD濃度

採水地点	α-HBCD	β-HBCD	γ-HBCD
名島橋	N.D.	N.D.	0.55
千鳥橋	N.D.	N.D.	0.29
那の津大橋	N.D.	N.D.	N.D.
旧今川橋	N.D.	N.D.	N.D.
検出下限値	0.11	0.24	0.20

単位: ng/L, N.D.は検出下限値未満を示す

表3 最終処分場の水質試料におけるHBCD濃度

採水地点	α-HBCD	β-HBCD	γ-HBCD
東部埋立場	浸出水①	N.D.	N.D.
	浸出水②	N.D.	N.D.
	処理水	N.D.	N.D.
西部埋立場	浸出水①	N.D.	N.D.
	浸出水②	N.D.	N.D.
	放流水	N.D.	N.D.
検出下限値	0.62	0.48	0.74

単位: ng/L, N.D.は検出下限値未満を示す

3.3 底質中ベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤

博多湾2地点及び河川1地点における調査地点ごとの結果を表4に示す。いずれの地点においてもUV327等のいずれかが検出された。また、UV327やUV328は河川よりも博多湾の底質で濃度が高い傾向がある一方で、UV326は河川では検出されたが、博多湾では検出されなかった。UV327については、平成18年度に環境省が実施したエコ調査^{1,3)}において、底質試料から0.18~41 ng/g-dryの範囲で検出されており、特に都市部の河川や海からは18~41 ng/g-dryの範囲で検出されている。今回の調査でUV327の最大値を示したE-2の0.82 ng/g-dryをエコ調査の都市部での結果と比較すると、約20~40分の1であり、十分に低い値であると考えられた。一方、UV326やUV328については全国の環境中における存在量の情報が確認できず比較ができなかった。しかし、中田らの報告⁸⁾によれば、道路粉じん中のUV326やUV328の濃度は平均値と比較するとUV327の濃度の3~4倍程度であり、底質のUV327等が道路粉じんに由来するならば、今回のUV326やUV328の結果はUV327の約1.3~1.8倍であり、妥当な結果であると考えられた。

表4 博多湾及び河川の底質試料
におけるUV327等濃度

採泥地点	UV326	UV327	UV328
E-2	N.D.	0.82	1.1
C-4	N.D.	0.40	0.58
千鳥橋	0.49	0.28	0.51
検出下限値	0.14	0.13	0.07

単位: ng/g-dry, N.D.は検出下限値未満を示す

4 まとめ

平成25~27年度にかけて福岡市内の河川や博多湾、排水水などの水質及び底質に含まれるPFCs, HBCD及びUV327等の環境実態調査を行った。調査の結果、PFCsは河川の補助地点で環境基準点よりも高濃度になる傾向が認められ、その下流にある環境基準点では影響を受けて濃度が高くなっていると考えられる地点もあった。補助地点でPFCsが高濃度になる原因は明らかにできなかったが、PFOSやPFOAについては予測無影響濃度を十分に下回っており、環境への影響はすぐには出ないと考えられた。HBCDについては一部の河川で γ -HBCDがわずかに検出されたが、検出されたHBCDの濃度は全国調査と比較して高い値ではなかった。また、HBCDが廃棄物から流出する可能性を調査するために最終処分場の水質試料を分析したが、いずれの試料からもHBCDは検出されなかった。UV327等については、調査した全ての底質試料

でいずれかの類縁体が検出されたが、福岡市が都市部であることや、周辺の道路状況を考慮すると、十分に低い濃度であったと考えられる。今回調査した物質は、いずれも予測無影響濃度や他都市での検出濃度等と比較して低い値となっており、現時点では対策が必要な状況ではないと考えられる。

文献

- 1)環境省環境保健部環境リスク評価室：化学物質の環境リスク評価 第6巻, 2008
- 2)小原浩史他：福岡市内河川水及び博多湾の有機フッ素化合物に関する汚染実態調査, 福岡市保健環境研究所報, 35, 41~45, 2010
- 3)宗かよこ他：福岡市内水環境中における有機フッ素化合物の実態調査および排出調査, 福岡市保健環境研究所報, 36, 41~46, 2011
- 4)山下紗矢香他：福岡市の公共用水域における水質・底質中有機フッ素化合物調査, 福岡市保健環境研究所報, 40, 74~79, 2015
- 5)独立行政法人製品評価技術基盤機構他：製品含有化学物質のリスク評価 ヘキサブロモシクロドデカン, 2013
- 6)経済産業省：第一種監視化学物質について, 化学物質審議会安全対策部会安全対策小委員会(第8回)配布資料, 2009
- 7)独立行政法人港湾空港技術研究所：わが国の沿岸域環境で今後問題になるおそれのある残留性化学物質のスクリーニング：その方法論の整備, 港湾空港技術研究所資料, No.1203, 2009
- 8)中田晴彦他：道路粉塵におけるベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤の分布特性と路上負荷量の推定, 環境化学, 23, 37~42, 2013
- 9)環境省環境保健部環境安全課：平成27年度版化学物質と環境, 2016
- 10)環境省環境保健部環境リスク評価室：化学物質の環境リスク評価 第9巻, 2011
- 11)西野貴裕：国立環境研究所II型共同研究「国内における化審法関連物質の排出源及び動態の解明」の進捗状況について, 第41回環境保全・公害防止研究発表会講演要旨集, 92~93, 2014
- 12)西野貴裕他：国立環境研究所II型共同研究「国内における化審法関連物質の排出源及び動態の解明」の活動成果報告, 第43回環境保全・公害防止研究発表会講演要旨集, 90~91, 2016
- 13)環境省環境保健部環境安全課：平成19年度版化学物質と環境, 2008

福岡市内河川の底生動物を用いた環境評価 — 樋井川, 2016 年 —

谷口勝彦・新田千穂・上尾一之

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 (Hii River, in 2016)

Katsuhiko TANIGUCHI, Chiho NITTA and Kazuyuki UEO

Environmental Science Section, Fukuoka City Institute of Health and Environment

要約

河川の水環境について水質検査だけでは把握できない環境影響や長期的影響を把握することを目的として、河川底生動物を指標として環境評価を福岡市内に流入する 5 河川で順に実施している。2016 年度は樋井川の淡水域について底生動物の調査を実施し、ASPT 値、簡易水質判定法を用いて環境評価を行った。ASPT 値¹⁾ (Average score per taxon)は柏原 7 丁目が 7.3、貴船橋が 7.2、田屋橋が 6.1、友泉亭橋が 6.4 であった。簡易水質判定法によると、柏原 7 丁目、貴船橋は「きれいな水」、田屋橋、友泉亭橋は「ややきれいな水」と評価された。2011 年に実施した前回の調査結果と比較して生物指標及び水質とも横ばいの傾向であった。

Key Words: 淡水域 freshwater area, 底生動物 bottom fauna, 樋井川 Hii River, ASPT 値 average score per taxon, 環境評価 environmental assessment

1 はじめに

河川の水環境について総合的・長期的な影響を把握するため、福岡市は 1992 年度より市内に流入する河川の底生動物調査を実施し、これを用いた環境評価を行っており、2016 年度は市の中心部を流れる樋井川について調査した。樋井川は油山(597m)を水源とし、城南区、早良区、中央区を経て博多湾に注ぐ、延長 12.9km の二級河川である。

河川の水質評価は ASPT 値¹⁾、簡易水質判定法²⁾ による水質階級（以下「水質階級」とする。）を使用した。

なお、環境基準は今回の調査地点より下流の旧今川橋に B 類型で設定されており達成している。

2 調査方法

2.1 調査地点

2016 年 4 月 15 日に樋井川の上流より柏原 7 丁目、貴船橋、田屋橋、友泉亭橋の 4 地点で調査を行った。

調査地点の地図を図 1 に、調査地点の標高及び河口からの距離を図 2 に示す。

2.2 採取及び検査方法

採取方法は環境省によるキック・スワイプ法で行い、ネットに入った底生動物を 250mL 管瓶に入れ、直ちに 70%エチルアルコールで固定した。各地点で 3 試料ずつ採取し、同時に河川水も採取した。採取した試料は泥や夾雑物を除き、底生動物を取り出し、実体顕微鏡下で科（一部は綱）の同定を行い、個体数を計数した。

併せて、pH、DO、BOD、SS、T-N、T-P、EC の 7 項目について河川水の水質分析を行った。

2.3 評価方法

同定により得られた結果から、ASPT 値及び水質階級を算出するとともに 1996 年³⁾、2001 年⁴⁾、2006 年⁵⁾、2011 年⁶⁾の樋井川のデータ及び前年度以前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（室見川 2012 年⁷⁾、多々良川 2013 年⁸⁾、那珂川 2014 年⁹⁾、御笠川 2015 年¹⁰⁾）と比較した。なお、1996 年、2006 年、2011 年には年 2 回調査を行っており、春は

4月又は5月, 秋は10月に調査を行い, 春の調査と秋の調査の平均値をそれぞれの年度の調査結果として上記のデータ比較を行った. 水質調査の結果も同様に調査結果を比較した.

1) ASPT 値 (Average score per taxon)

ASPT 値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, スコア値¹⁾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値が1から10まであり, 出現した底生動物(科)のスコア値の合計(TS)を出現した底生動物の科の総数で割った値で示される. スコア値は10に近いほど清澄な水域であることを表す. なお, ASPT 値は小数点第二位を四捨五入し, 小数点第一位までとした.

$$ASPT = TS/n$$

TS: 検出された科のスコア値の合計

n: 検出した科の総数



図1 調査地点

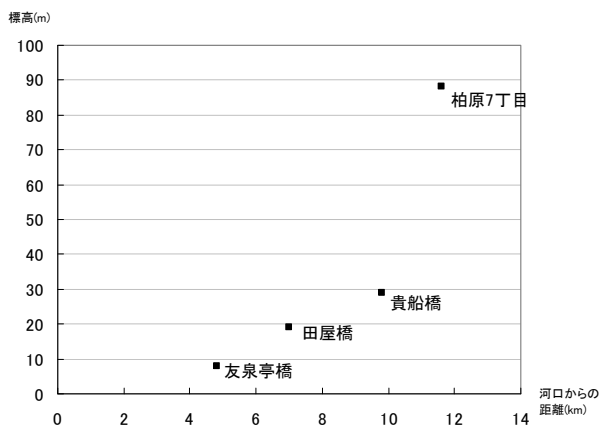


図2 調査地点の標高及び河口からの距離

2) 簡易水質判定法

環境省水環境部, 国土交通省河川局編集の「川の生き物を調べよう」²⁾により底生動物による水質判定を行うもので, 水質階級を「きれいな水」から「とてもきたない水」まで4段階(I~IV)に分ける手法である.

この方法は, 底生動物の中から水質階級ごとに指標生物を決め, 各階級で多く出現した上位2種(2番目と3番目が同数の場合は3種)を2点, それ以外に出現した種を1点として合計し, この値が最も高い階級をその地点の水質階級とするものである. 複数の水質階級で同じ値となった場合には, 数字の少ない方の水質階級をその地点の水質階級とする. 水質階級Iは「きれいな水(水が透明で川底まで見えるところ)」, IIは「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は「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ところ)」, IVは「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ところ)」を示す.

3 結果及び考察

3.1 調査結果

3.1.1 全地点における底生動物出現状況

各調査地点の底生動物の出現状況及び優占科を表1, 表2に示す. 各調査地点で7科~23科の底生動物が出現した.

ASPT 値は表3に示すとおり6.1~7.3, 簡易水質判定法による水質階級は表4に示すとおりI~IIであった. また, 年度別の各調査地点ASPT 値を表5に示す.

3.1.2 各調査地点における底生動物出現状況

1) 柏原7丁目(図3)

調査地点中最上流部に位置しており, 標高は約88mである. 山間部に位置し上流には牧場があり, 周辺は田畑が多く, 住宅も点在する地点である. コンクリート護岸で草が無い場所と, 木が茂り, 草のある土手が混在していた. 川には頭大の石が見られる場所と, 小石と砂の多い場所が混在していた. 水深は20cm, 流速は24~25cm/sであった.

出現科数は23科で, 総個体数は288であった. そのうちヨコエビ科が146で最も多く, 次いでコカゲロウ科が33, マダラカゲロウとユスリカ科(腹鰓なし)が24であった.

ASPT 値は7.3で, 水質階級はIの「きれいな水」であった.

2) 貴船橋(図4)

柏原7丁目から2.0km下流で, 標高約29mである. 途

中数ヶ所の砂防堰があり、周辺は田畑や住宅が存在する地点である、コンクリート護岸であり、護岸内に草は生えていた。水深は20cm、流速は38~53cm/sであった。

月の出現科数は17科で、総個体数は234であった。そのうちユスリカ科(腹鰓なし)が108で半数近くを占め、次いでコカゲロウ科が31、マダラカゲロウ科が27であった。

ASPT値は7.2で、水質階級はⅠの「きれいな水」であった。

3) 田屋橋 (図5)

貴船橋から3.0km下流に位置し標高約18mである。川の周囲は住宅や田畑が混在した地域である。採取場所の水深は30cm前後で、流速は35~55cm/sであった。

出現科数8科で、総個体数は121であった。そのうちヒメドロムシが51でほぼ半数を占め、次いでユスリカ科(腹鰓なし)が26、コカゲロウ科が21であった。

ASPT値は6.1で、水質階級はⅡの「ややきれいな水」であった。

4) 友泉亭橋 (図6)

田屋橋から2.0km下流に位置し、標高は約6mである。川の周囲は事業所や商業施設が多い。採取場所の水深は20cm、流速は35~42cm/sであった。

出現科数は7科で、総個体数は61であった。そのうちユスリカ科(腹鰓なし)が31で総個体数の半数を占め、次いでミズムシ科が13、コカゲロウ科とナガレトビケラ科が各7であった。

ASPT値は6.4で、水質階級はⅡの「ややきれいな水」と判別されたが、指標生物種及びその総数とも少なかった。

3.1.3 過去のデータとの比較

各調査地点ASPT値の推移を図7に示す。1996年の調査以降、一部で逆転が見られるものの、上流から下流へ下るにつれてASPT値が低下する傾向が確認された。

2016年度は友泉亭橋、でASPT値が少し高かったがスコアの低いヒル綱が検出されなかったことによるものと推察された。

3.1.4 他の河川との比較

市内河川の調査地点を図8、ASPT値を図9に示す。今年度調査を行った樋井川と他の河川のASPT値を比較すると、最下流調査地点の友泉亭橋はASPT値が6.4で、他の河川の淡水域最下流調査地点のASPT値5.5~7.1と比べて平均的な値であった。同様に、最上流調査地点の柏原7丁目のASPT値は7.3で、他の河川の最上流調査地点のASPT値7.4~8.0であり、ほとんどかわらない値であった。いずれの河川においてもASPT値は上流域から下流域へ向かい低くなる傾向が見られ、この傾向は樋井川でも確認された。

3.1.5 各地点の水質分析結果

1) 地点ごとの比較

水質分析結果を表6に示す。BODは0.6~1.1mg/Lであり上流から下流に向け値が高くなっていった。T-Nについては、中流域の田屋橋が0.77mg/Lで最も高かった。T-Pについては最上流域の柏原7丁目が0.033mg/Lで最も高かった。pHは7.6~8.2、DOは8.9~10.1mg/L、SSは1~5mg/L、ECは13~18mS/cmであった。

2) 過去のデータとの比較

各地点における年平均DO、BOD、T-N、T-Pの推移を図10に示す

2016年度の水質は2011年度と比較して差が小さく、横ばい傾向だった。

4 まとめ

樋井川の淡水域について底生動物調査を実施し、ASPT値及び簡易水質判定法を用いて環境評価を行った。ASPT値は6.1~7.3で、上流域から下流域へ下るにつれて次第に低下した。簡易水質判定法によると、最上流の柏原7丁目、及び貴船橋は「きれいな水」、田屋橋及び友泉亭橋は「ややきれいな水」と評価された。また、生物指標としては前回の調査結果と比較して横ばい傾向であった。また水質の検査結果に関しても、大きな変動はなく横ばい傾向だった。樋井川の調査ポイント上流域においては、近年、河川環境の変化や水質汚濁につながるような開発等がなかったため、底生動物による水質評価及び水質の維持につながっていると推察される。

文献

- 1) 全国公害研協議会生物部会(1995年): 大型底生動物による河川水域環境評価マニュアル(スコア法)
- 2) 環境省水環境部, 国土交通省河川局編: 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, 2006
- 3) 石松一男: 福岡市内河川の水生底生動物に関する調査研究—樋井川, 1996年—, 福岡市保健環境研究所報, 22, 92~102, 1997
- 4) 濱本哲郎他: 福岡市内河川の水生底生動物に関する調査研究—樋井川, 2001年—, 福岡市保健環境研究所報, 27, 111~115, 2002
- 5) 廣田敏郎他: 福岡市内河川の底生動物をもちいた環境評価—樋井川, 2006年—, 福岡市保健環境研究所報, 32, 66~73, 2007
- 6) 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—樋井川, 2011年—, 福岡市保健環境研究所報,

37, 45~52, 2012

7) 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－室見川，2012年－，福岡市保健環境研究所報，38, 63~70, 2013

8) 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－多々良川，2013年－，福岡市保健環境研究所報，39, 76~83, 2014

9) 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－那珂川，2014年－，福岡市保健環境研究所報，40, 103~109, 2015

10) 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－御笠川，2015年－，福岡市保健環境研究所報，41, 55~63, 2016

11) 野崎隆夫：大型底生動物を用いた河川環境評価－日本版平均スコア法の再検討と展開－，水環境学会誌 第35巻 第4号，118~121, 2012



図3 柏原7丁目



図4 貴船橋



図5 田屋橋



図6 友泉亭橋

表 1 樋井川における底生動物出現状況 (2016 年)

科名	個体数			
	柏原7丁目	貴船橋	田屋橋	友泉亭橋
フタオカゲロウ <i>Siphonuridae</i>	2			
ヒラタカゲロウ <i>Heptageniidae</i>	2	1		
コカゲロウ <i>Baetidae</i>	33	31	21	7
トビイロカゲロウ <i>Leptophlebiidae</i>	1			
マダラカゲロウ <i>Ephemerellidae</i>	24	27		
サナエトンボ <i>Gomphidae</i>	1	2		
カワゲラ <i>Perlidae</i>	7			
ヘビトンボ <i>Coryolalidae</i>	7			
クダトビケラ <i>Psychomyiidae</i>		1		
イワトビケラ <i>Polycentropodidae</i>			1	
シマトビケラ <i>Phyacophilidae</i>	5	5		1
ナガレトビケラ <i>Rhyacophilidae</i>	2	13	11	7
カクスイトビケラ <i>Brachycentridae</i>	1	1		
エグリトビケラ <i>Limnephilidae</i>	10	3		
メイガ <i>Crambidae</i>			1	
ゲンゴロウ <i>Dytiscidea</i>	2			
ヒラタドロムシ <i>Psephenidae</i>	2			1
ヒメドロムシ <i>Elmidae</i>	7	4	51	
ホタル <i>Lampyridae</i>	1			
ガガンボ <i>Tipulidae</i>	4	2		
ブユ <i>Simuliidae</i>	3	15		1
ユスリカ (腹鰓なし) <i>Chironomidae</i>	24	108	26	31
ヌカカ <i>Ceratopogonidae</i>		2		
カワニナ <i>Pleuroceridae</i>		2		
シジミガイ <i>Cordiculidae</i>			4	
ヒル網 <i>Hirudinea</i>	1	3		
ヨコエビ <i>Gammaridea</i>	146			
ミズムシ <i>Asellidae</i>	1	14	6	13
サワガニ <i>Potamidae</i>	2			
総個体数	288	234	121	61
科数	23	17	8	7

表 2 樋井川における優占科 (2016 年)

上 流 ↓ 下 流	調査地点	優占科 1	優占科 2
		柏原 7 丁目	ヨコエビ
	貴船橋	ユスリカ (腹鰓なし)	コカゲロウ
	田屋橋	ヒメドロムシ	ユスリカ (腹鰓なし)
	友泉亭橋	ユスリカ (腹鰓なし)	ミズムシ

表 3 樋井川における ASPT 値 (2016 年)

調査地点	TS	n	ASPT 値
柏原 7 丁目	161	22	7.3
貴船橋	123	17	7.2
田屋橋	49	8	6.1
友泉亭橋	45	7	6.4

表 4 樋井川における水質階級 (2016 年)

調査地点	出現科の数				優占科の数				合計				水質階級
	I	II	III	IV	I	II	III	IV	I	II	III	IV	
柏原 7 丁目	6	2	1	1	2	0	0	0	8	2	1	1	I
貴船橋	2	2	1	1	1	0	0	1	3	2	1	2	I
田屋橋	1	2	1	1	0	1	0	1	1	3	1	2	II
友泉亭橋	1	2	1	1	0	0	1	1	1	2	2	2	II

表 5 樋井川における年度別の ASPT 値

評価法	ASPT 値				
	1996 年	2001 年	2006 年	2011 年	2016 年
柏原 7 丁目			6.8	7.2	7.3
貴船橋	4.8	6.4	5.8	6.0	7.2
田屋橋		5.1	5.2	5.6	6.1
友泉亭橋	4.0	5.8	4.7	5.8	6.4

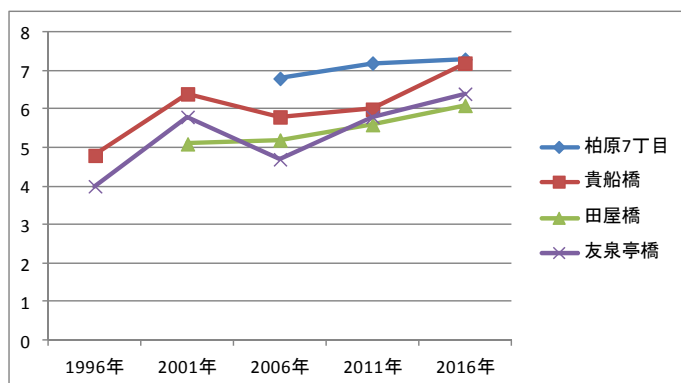


図 7 樋井川における ASPT 値の推移

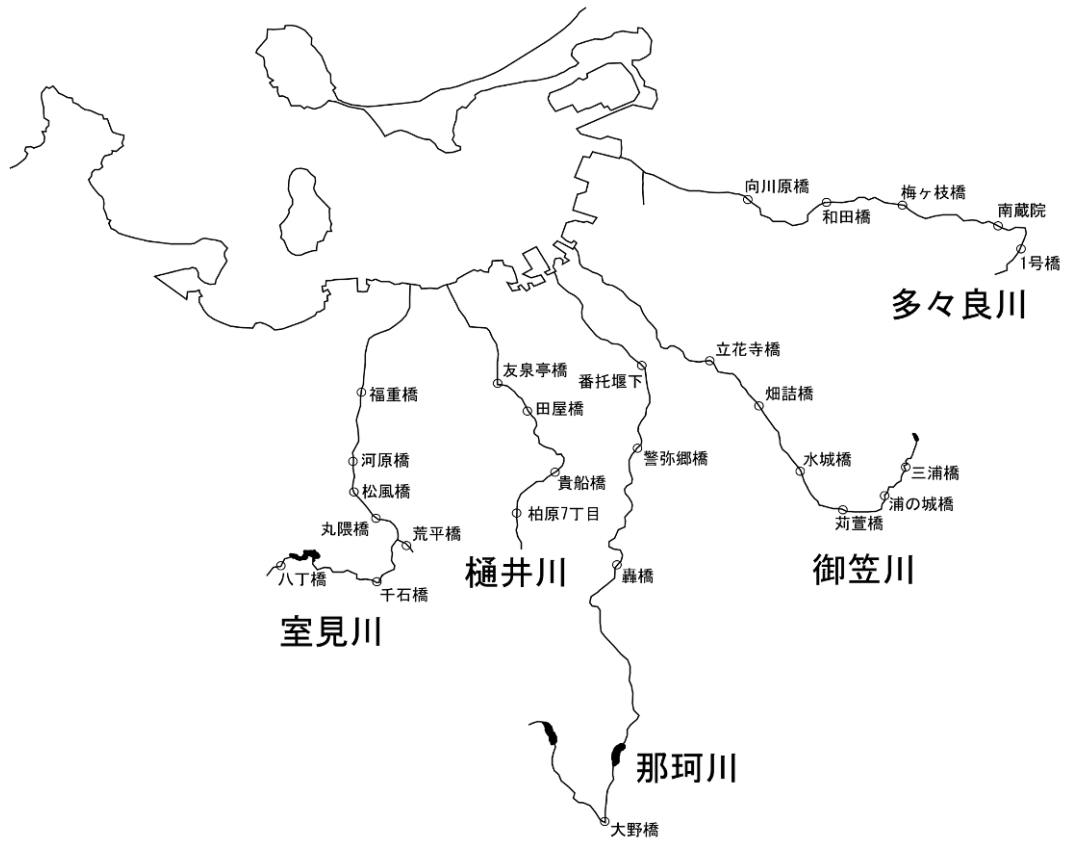


図 8 市内を流れる河川の調査地点

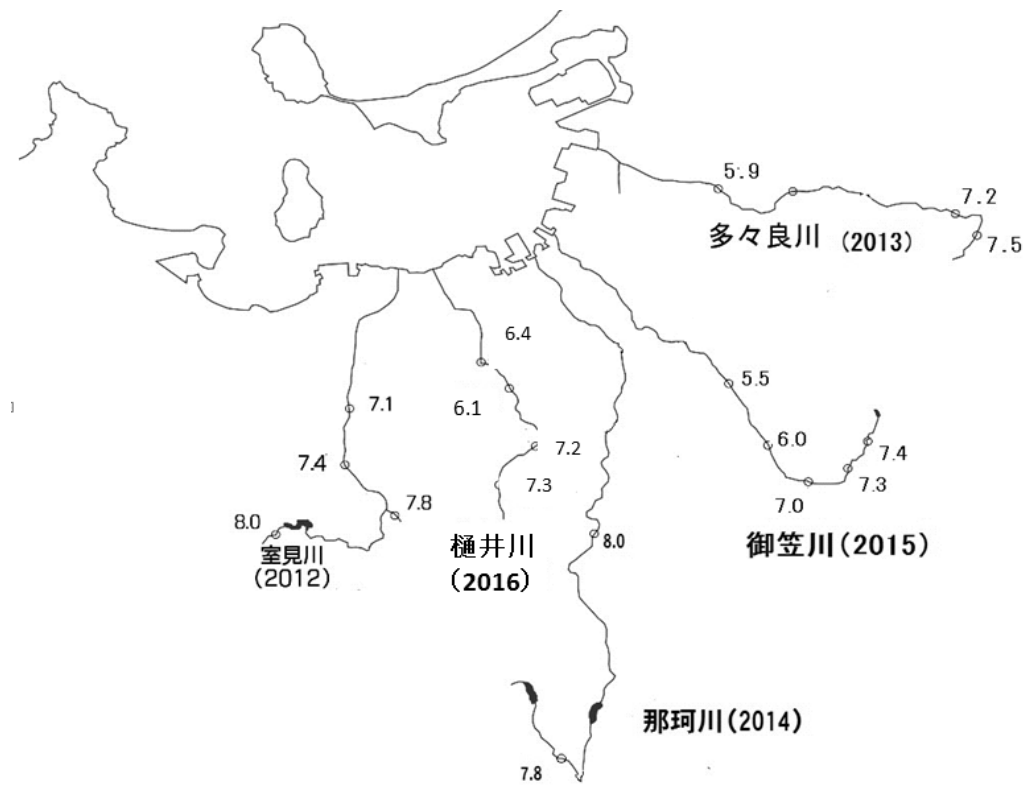


図 9 市内を流れる河川の ASPT 値

表 6 樋井川における水質分析結果 (2016年)

調査場所	pH	D0 (mg/L)	BOD (mg/L)	SS (mg/L)	T-N (mg/L)	T-P (mg/L)	EC (ms/m)
柏原7丁目	7.6	9.9	0.6	5	0.56	0.033	10
貴船橋	7.6	9.0	1.0	2	0.63	0.027	13
田屋橋	7.6	9.4	1.0	1	0.77	0.026	15
友泉亭橋	8.2	10.2	1.1	1	0.70	0.018	18

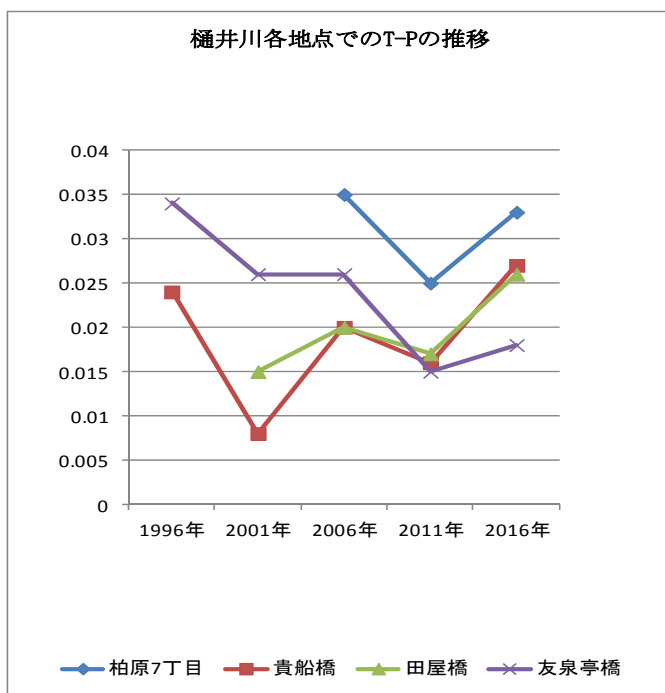
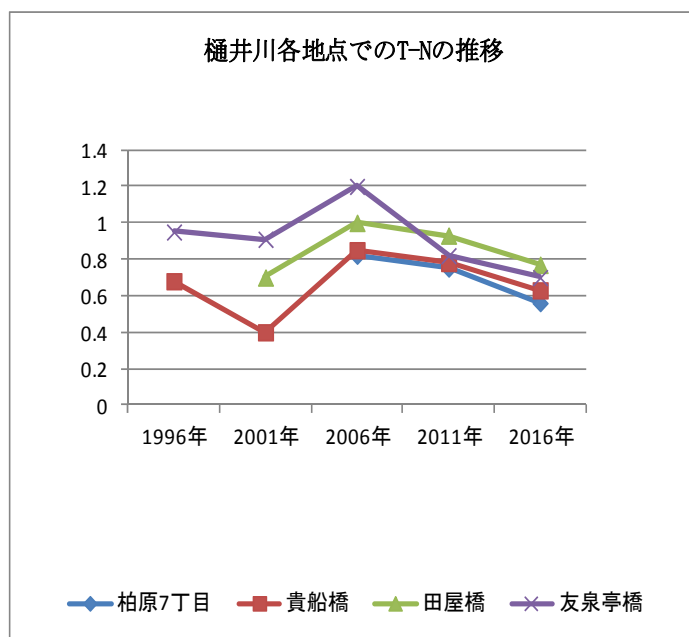
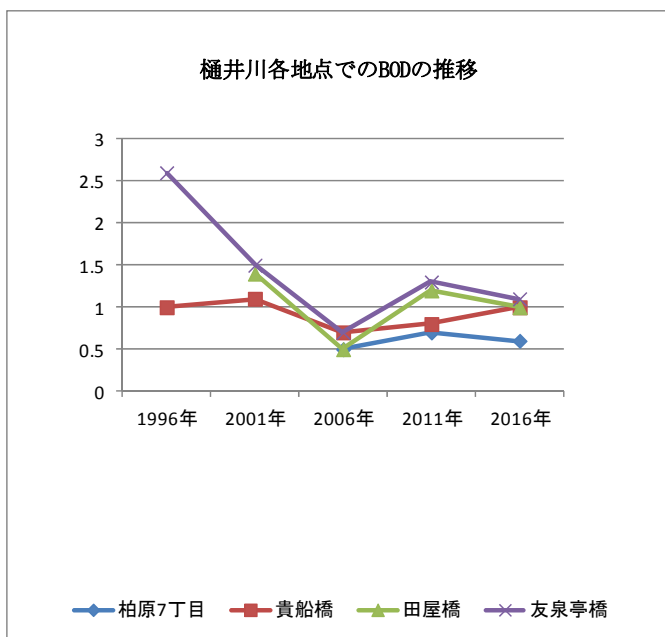


図 10 樋井川における BOD, T-N, T-P の推移

博多湾における貧酸素水塊及び栄養塩類等に関する実態調査

新田千穂・谷口勝彦・上尾一之

福岡市保健環境研究所環境科学課

Survey of Occurrence of Hypoxic Water Mass and Nutrients Concentration In Hakata Bay

Chiho NITTA, Katsuhiko TANIGUCHI and Kazuyuki UEO

Environmental Science Section, Fukuoka City Institute of Health and Environment

要約

平成26年度から平成28年度にかけて博多湾における貧酸素水塊発生と栄養塩類濃度の実態調査を行った。調査の結果、7月から9月にかけて各調査地点で貧酸素状態を確認した。クロロフィルaやCODに関する有機物指標は夏季表層で高い値を示し、植物プランクトンの増殖が寄与していると推察された。BODとCODの相関が強い地点でBODが0mg/L近くであっても、CODは1.5mg/L以上を示したものがあつたことから、CODは生物によって分解されにくい有機物が含まれている場合もあると考えられた。栄養塩類については、溶存性の栄養塩類が夏季より冬季の方が高い値になっていることが確認された。

Key Words : 栄養塩 nutrients, 貧酸素水塊 hypoxic water mass (hypoxia), 物質循環 biogeochemical cycle, 底層溶存酸素量 DO in bottom layer

1 はじめに

内湾、内海等の閉鎖性海域においては、人間の社会活動に伴う窒素・リン等の栄養塩類の流入により植物プランクトンや藻類が増殖することに伴い、その水質が悪化するといういわゆる富栄養化の現象がみられる。これらの海域では赤潮や貧酸素水塊の発生により漁業被害をはじめとする環境保全上の問題が発生するほか、レクリエーションや景観上の支障となっている。

このような閉鎖性海域における富栄養化の防止を図るため、環境省(当時、環境庁)では、平成5年に海域の窒素及びリンに係る環境基準及び排水基準の設定を行った¹⁾。

現在、水質が改善された水域が見られる一方で、全体的には依然として水環境の改善が十分には進んでおらず、海域によっては貧酸素水塊等が発生し、水域利用や水生生物等の生育・生息に支障となっており、生態系の劣化が進行しているという指摘がある²⁾。

さらに、海域への栄養塩類の流入を削減することによ

る植物プランクトンなどの低次生産量の低下と、海域の開発による生物の生息・生育場の減少等があいまって、魚類などの高次の生物へ栄養塩類が循環せず、水産資源の減少を招いているとの指摘もある³⁾。

現在の環境基準である化学的酸素要求量(COD)、全窒素(TN)及び全リン(TP)については、汚濁負荷量の抑制により制御可能と考えられている指標であるが、生物生息環境を直接的に表現する指標とは言い難い。特に底層の生物生息環境と環境基準の関連性について説明が困難となっている¹⁾。こうした中、環境省は底層溶存酸素量(底層DO)の環境基準を設定しており、水塊構造を立体的にとらえることや、貧酸素水塊形成に関する物質循環上重要な水質指標を含めた常時監視を行う必要性が検討課題となっている⁴⁾。

これらの現状を踏まえ、栄養塩状態の把握、貧酸素水塊生成要因に関する知見を得るため、地方公共団体環境研究機関等と国立環境研究所で共同研究(Ⅱ型共同研究)「沿岸海域環境の物質循環現状把握と変遷解析に関する研究」(平成26~28年度)に参加し調査を行った。

博多湾においては、例年、夏季に貧酸素水塊 (DO:3.6mg/L 以下を「貧酸素状態」とする.) が発生し、生物の生息・生育に影響を及ぼしている。また、TN, TP は環境基準をほぼ達成しているものの、COD の環境基準は一部の海域で達成していない。さらに、夏季の降雨による栄養塩類供給量の増加や、貧酸素による底泥からの栄養塩類溶出などで赤潮発生が助長される一方で、栄養塩類の供給が少なくなる冬季は海藻養殖に対するリン不足が懸念されている⁵⁾。

これらの課題を解決し、「生きものが生まれ育つ博多湾」(将来像)を実現するため、福岡市では「博多湾環境保全推進計画(第二次)」を策定し、計画を推進している。

そこで本研究では、博多湾における貧酸素水塊発生の実態を把握するため、多項目水質計等を用いて貧酸素水塊発生についての調査を行った。また、DO を消費する要因である有機物の性状を評価するため、COD や溶存性・懸濁性有機炭素(DOC・POC)、クロロフィル a (Chl a) を測定し、季節、地点での違い及び項目間の関係について比較し、実態の解明を試みた。また、貧酸素水塊発生の潜在性を推定する試みとして生物化学的酸素要求量(BOD)について測定した。さらに、栄養塩類の状態を確認するため、TN, TP, 硝酸性窒素(NO₃-N)、亜硝酸性窒素(NO₂-N)、アンモニア性窒素(NH₄-N)、リン酸態リン(PO₄-P)を測定し、季節間及び地点間の違いについて比較し、実態の解明を試みた。

また、COD が基準超過する要因の一つとして植物プランクトンの増殖が影響しているとされている。博多湾における状況について明らかにするため、平成 19 年度から平成 28 年度における博多湾内基準点 8 地点の Chl a と COD の相関性について確認した。

2 調査方法

2.1 調査項目

2.1.1 気象データ

降水量、日平均気温、最大瞬間風速、全天日射量を、気象庁(福岡管区気象台)による 1 日ごとの気象データを使用し調査した。

2.1.2 現地調査

DO, 塩分、水温及び Chl a を国立環境研究所から貸与された多項目水質計(Hydrolab)を船上から海中に垂下させ、垂直方向に水深約 20cm 間隔で調査した。

2.1.3 水質分析

現地調査で採取した試料の pH, COD, 溶存性 COD (D-COD), COD と D-COD の差から懸濁性 COD

(P-COD), DO, BOD, NO₃-N, NO₂-N, NH₄-N, PO₄-P, TN, TP, を測定した。なお、BOD は表層と底層(海底上 1.0m)から採取した海水について爆気したのち、DO を滴定で測定し、さらに 20°C で暗所に 3 日間静置した後の DO を測定し、3 日間で消費された DO を BOD₃ として求めた。

また、試料を分注及び 450°C で 4 時間焼成処理したガラス繊維フィルター-GFC を用いて吸引ろ過した。試料・フィルター類は冷凍して国立環境研究所に送付し、一連の分析が行われた⁶⁾。試料を分注したものは COD の分析に、ろ液は D-COD と DOC, 溶存性の全窒素(DTN), 溶存性の全リン(DTP), NO₃-N, NO₂-N, NH₄-N, PO₄-P, ケイ酸塩(シリカ:SiO₂)の分析に用いた。ろ紙は POC, Chl a の分析に用いた。P-COD は COD と D-COD の差から求めた。

2.2 調査地点及び調査日

博多湾内環境基準点の C-10 (中部海域)、補助地点の E-X1 (東部海域)及び貧酸素水塊が発生しない対照地点として C-1 (中部海域)の計 3 地点(図 1)で調査を行った。国立環境研究所への試料送付は C-10, E-X1 の 2 地点分を行った。

現地調査は、貧酸素水塊が発生しやすい 7 月から 9 月を中心に、以下の日程で計 25 回調査を行った。うち 9 回は水質汚濁防止法に基づく公共用水域の水質常時監視(常時監視)と同時に実施した。また、貧酸素水塊の発生がない 1 月にも調査を行った。

国立環境研究所への試料送付・測定は平成 23 年度から継続しており、夏季及び冬季に各 1 回、平成 23~28 年度全体では夏季 7 回、冬季 6 回の計 13 回行った。

平成 26 年	9 月 8 日,	9 月 30 日,	12 月 19 日*
平成 27 年	1 月 20 日,	4 月 17 日*,	6 月 1 日
	7 月 14 日,	7 月 29 日*,	8 月 21 日
	8 月 28 日,	9 月 15 日	
平成 28 年	1 月 6 日*,	6 月 7 日,	7 月 12 日*,
	7 月 19 日,	7 月 25 日,	8 月 5 日,
	8 月 9 日*,	8 月 16 日,	9 月 6 日*,
	9 月 9 日,	9 月 12 日,	9 月 27 日
	10 月 4 日*		
平成 29 年	1 月 12 日*		

* : 常時監視と同時に実施

下線 : 国立環境研究所へ試料送付

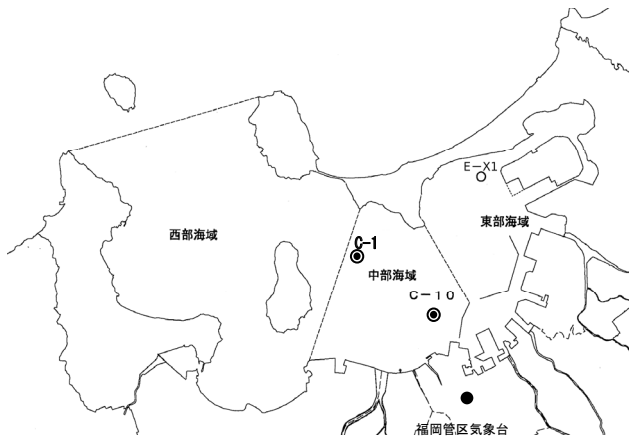


図1 調査地点

3 結果及び考察

3.1 気象データ

平成26年度から28年度の間で貧酸素水塊が発生していた7月から9月の福岡管区気象台の降水量、日平均気温、最大瞬間風速、全天日射量の変化を図2-1から図2-3に示した。また、調査を行った日を矢印で示した。なお、現地調査については、貧酸素水塊が発生していた7月から10月の表示とした。3か年とも気温は7月から8月にかけてピークとなり、8月を過ぎると気温が徐々に下降する傾向が見られた。平成27年度は平成26年度、平成28年度に比べ8月の気温が高く、降水量が少ない傾向にあった。

3.2 現地調査

多項目水質計による鉛直方向のDO、塩分、水温、Chl aの測定値を図3に示した。常時監視と同時に実施した日は常時監視のデータを用いた。

C-10とE-X1で7月から9月にかけて底層で貧酸素状態(DO: 3.6mg/L以下を「貧酸素状態」とする)が確認されることがあった。

【平成26年度】

9月8日の調査では、C-10とE-X1のいずれも、表層から中層でのChl aが高く、プランクトン増殖によるDO上昇が確認された。しかし水深2m付近からDOが低下し、いずれの地点も貧酸素が確認され、底層DOを比較すると、湾奥にあるE-X1の方が低い状況だった。この日、海水温は表層から底層までほぼ一定であるのに対し、鉛直方向に塩分差が確認されたことから、この時の貧酸素水塊発生には塩分による成層化の影響が考えられた。9月30日の調査前にも降雨の後高日射が続いていたが、表層と底層の塩分差が小さく、貧酸素は確認されなかった。

【平成27年度】

7月中旬から8月にかけてC-10とE-X1の底層で貧酸素状態が確認されることがあった。

DOは、C-10やC-1において、7月は水深が深くなるにつれて比較的なだらかに低下しているが、8月は水深2~4mで急速に低下した後底層まで低下することはなかった。一方でE-X1では水深2m以降底層まで急激に低下する傾向が見られた。

水温については、7月29日の調査では差が4度以上となり、貧酸素が発生しやすい状況となっていた。8月には底層の温度が25度以上まで上昇し、鉛直方向の差は小さくなったものの、底層の水温が高くなることで、引き続き貧酸素が発生しやすい状況となっていたと考えられる。

塩分については、鉛直方向の塩分差が大きくなる傾向がみられ、貧酸素が発生しやすい状況になっていたと考えられる。8月28日の調査では台風の影響による降雨で表層の塩分が大きく低下していた。

【平成28年度】

7月中旬から10月初旬にかけてC-10とE-X1の底層で貧酸素状態が確認されることがあった。C-1でも9月9日に貧酸素状態が確認されたが、当課の調査では期間中一度のみで、環境調整課による貧酸素調査⁷⁾や環境保全課による常時監視⁸⁾では確認されていなかった。

C-10とE-X1の貧酸素状態の状況を比較するとE-X1は底層のDOが0.5mg/Lを下回ることがあり、DO低下の度合いが強い傾向にあった。また、E-X1は底層近くで急激にDOが低下する傾向が見られた。E-X1のDO低下の度合いが大きい要因としては、①栄養塩類が比較的多い湾奥部に位置すること ②水深が浅いため、水温が上昇しやすく有機物分解が促進されることなどが推察されたが、今回の調査では明確にはわからなかった。

水温については、鉛直方向の温度差はC-10、C-1よりも、E-X1で小さい傾向にあった。

塩分については、鉛直方向の塩分差がC-1、C-10に比べ湾奥に位置するE-X1の方が大きかった。ただし、8月16日のE-X1は、鉛直方向の水温差と塩分差がなく、貧酸素水塊は確認されなかったが、底層近くでDOが低下していた。

10月4日の塩分差は、9月27日から9月30日までの累計282.5mmのまとまった降雨によって発生したと考えられた。このときは、E-X1が他の2地点に比べて鉛直方向の塩分差が大きかった。

いずれの地点でも鉛直方向に塩分差や水温差が確認され、貧酸素水塊の発生と関わりがある可能性が示唆された。

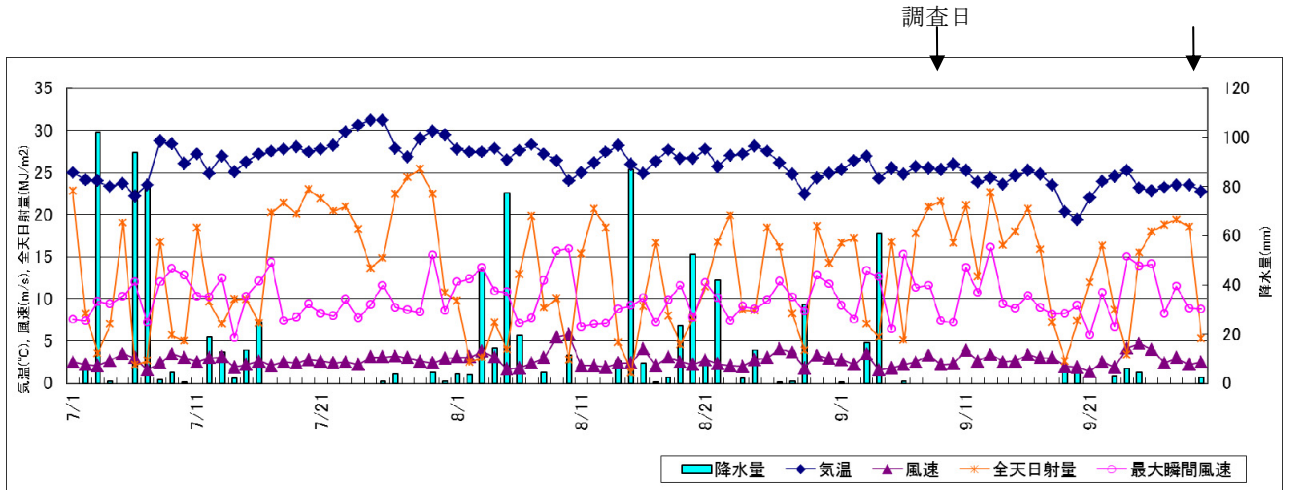


図 2-1 気象データ (福岡管区気象台) (平成 26 年 7 月～9 月)

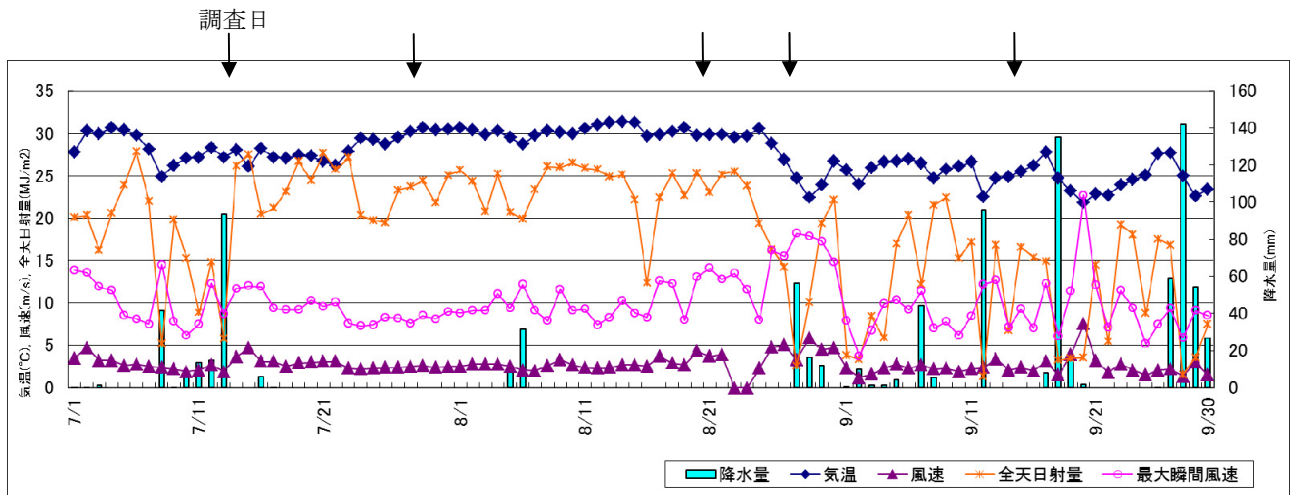


図 2-2 気象データ (福岡管区気象台) (平成 27 年 7 月～9 月)

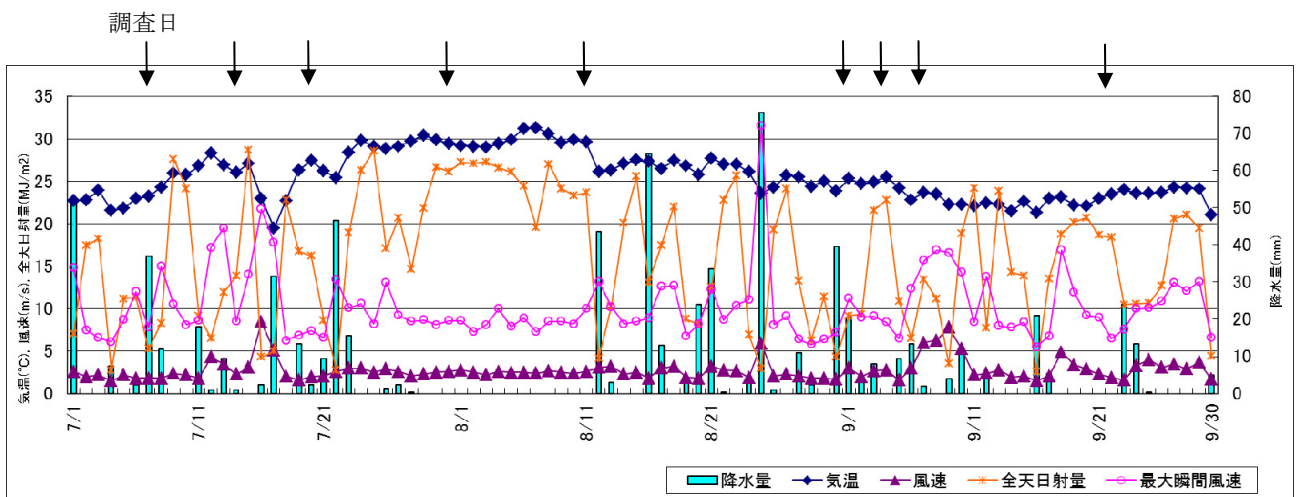


図 2-3 気象データ (福岡管区気象台) (平成 28 年 7 月～9 月)

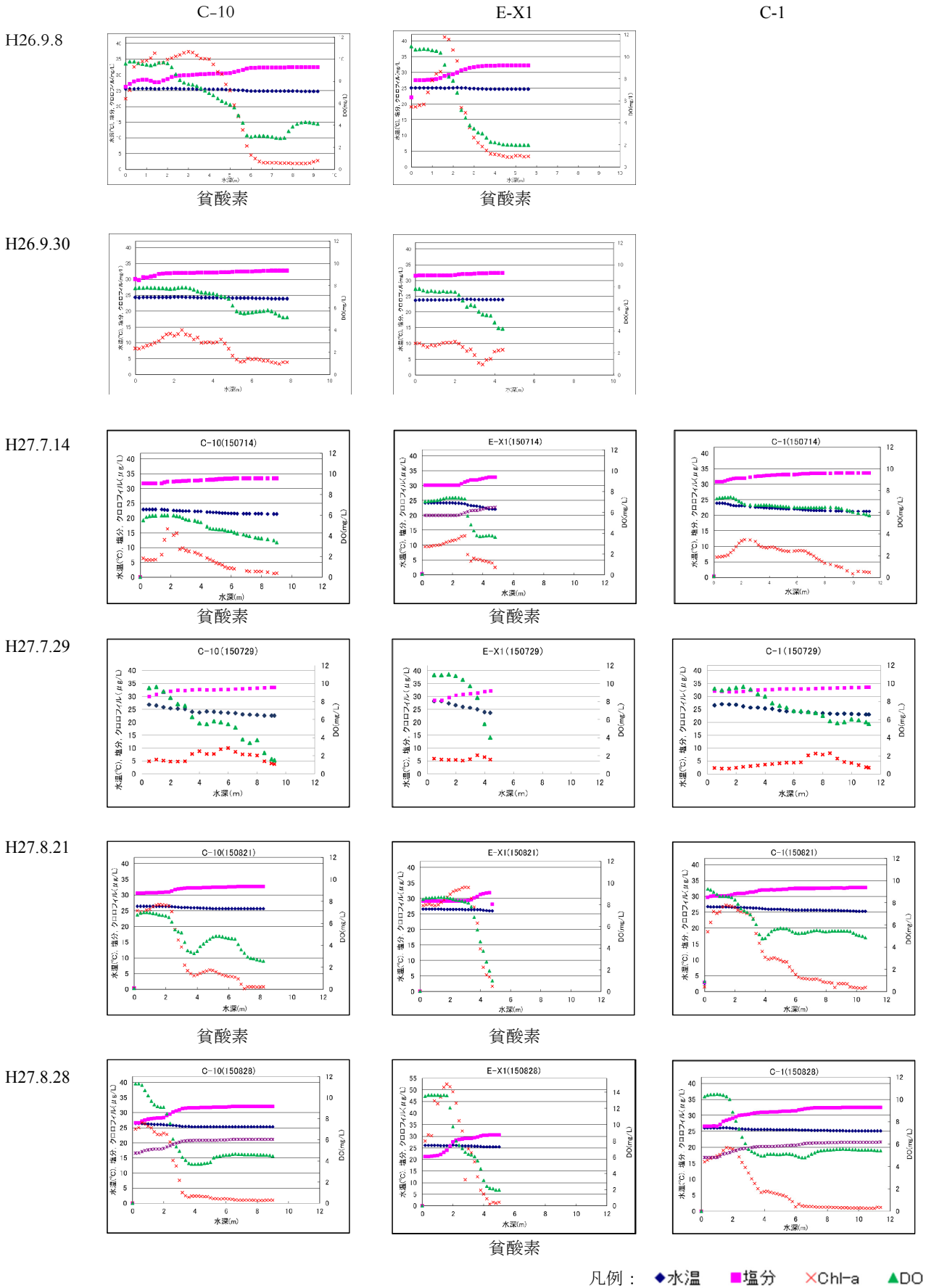
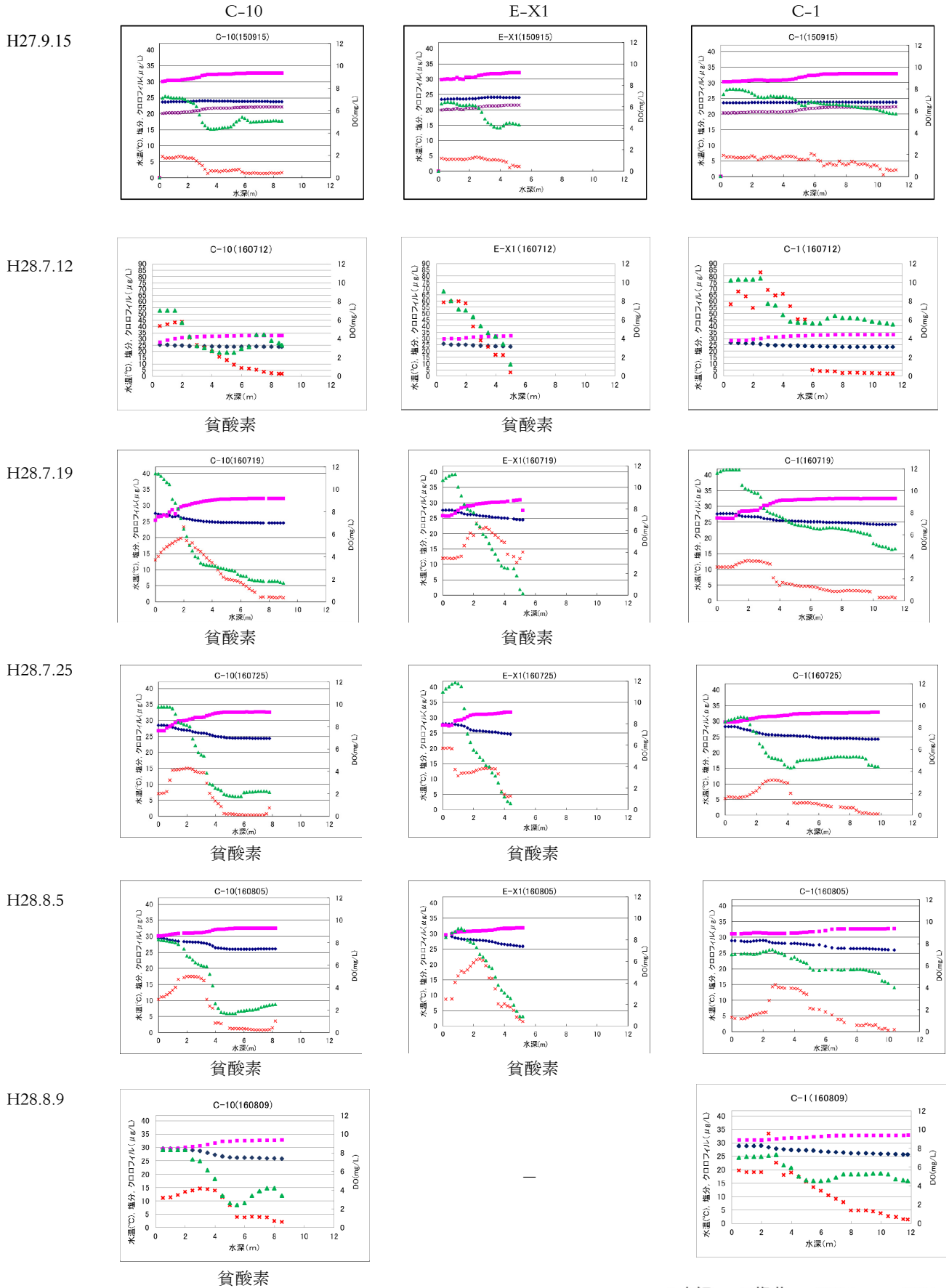


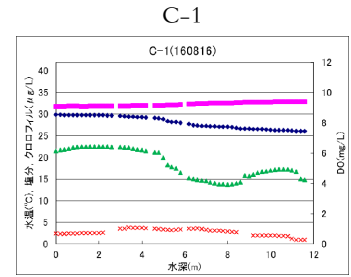
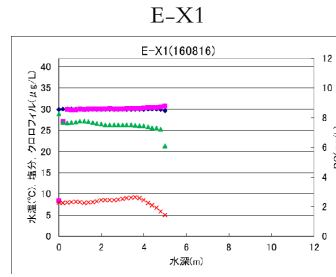
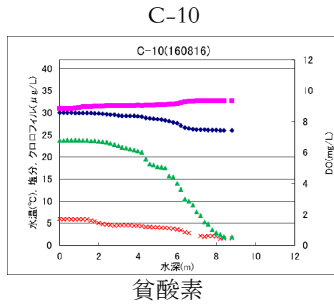
図 3-1 多項目水質計による調査結果 (7月~9月)



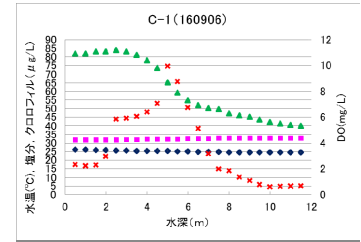
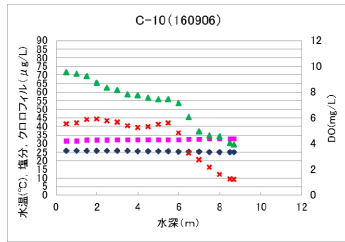
凡例: ◆水温 ■塩分 ×Chl-a ▲DO

図 3-2 多項目水質計による調査結果 (7月~8月)

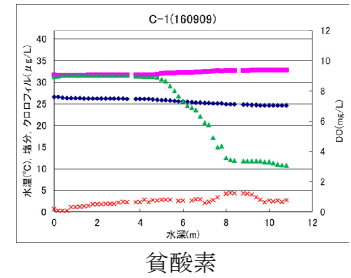
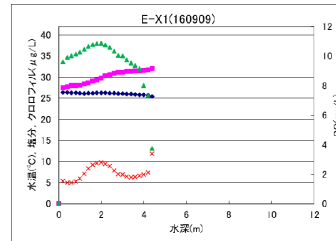
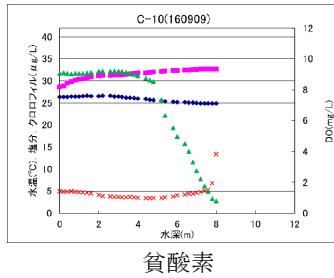
H28.8.16



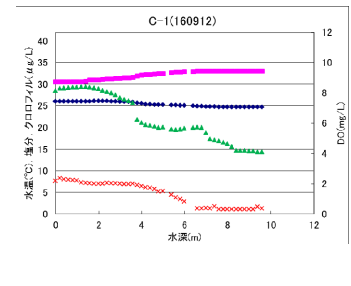
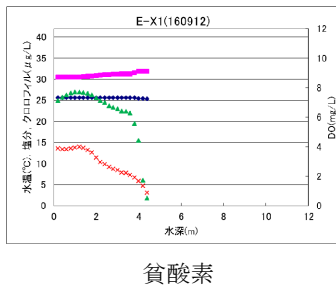
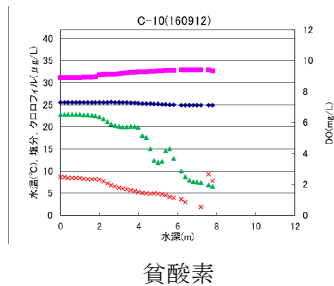
H28.9.6



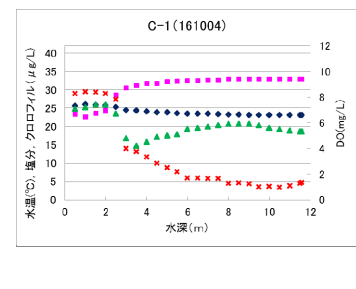
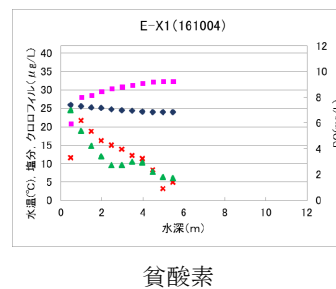
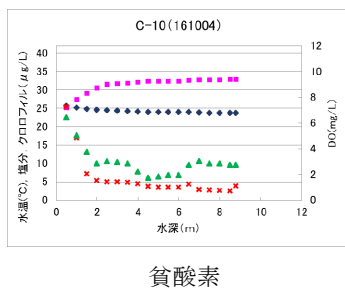
H28.9.9



H28.9.12



H28.10.4



凡例：◆水温 ■塩分 ×Chl-a ▲DO

※9月27日は機器不良により欠測

図 3-3 多項目水質計による調査結果 (7月~10月)

3.3 水質分析

3.3.1 BOD・COD 関連項目

BOD・COD 関連項目測定結果（平成 26 年～28 年度分）を表 1-1 に、有機炭素等測定結果（平成 23～28 年度分）を表 1-2 に示した。夏季を 7～9 月、冬季を 1～2 月の結果とし、異常値は除き、定量下限値未満は 0 とした。環境科学課測定分で、常時監視と同時に実施した日は、BOD を除き、常時監視のデータを用いた。

1) 季節間の比較

DO を除く項目は、概ね夏季が冬季に比べて高い傾向が見られ、特に表層は顕著であった。

COD に対する P-COD(COD-D-COD)の割合及び DOC+POC に対する POC の割合(懸濁性のものの割合)についても、夏季表層で高い傾向にあった。DO は夏季底層が低い傾向にあった。

夏季に表層と E-X1 底層で DO を除く各項目が高いのは、Chl a が高いことから、植物プランクトンの増殖(内部生産)の影響が大きいと推察された。また、懸濁性のものの割合が高いのも、植物プランクトンの増殖の影響が大きいと考えられた。E-X1 については水深が浅いため、底層近くでも植物プランクトンが増殖していたためと考えられた。

2) 地点間の比較

DO を除く項目は、夏季では概ね各項目とも E-X1, C-10, C-1 の順で高かったが、冬季には大きな違いはみられなかった。

夏季は湾口部より湾奥部において植物プランクトンが増殖していたためと考えられた。

表 1-1 BOD・COD 関連項目測定結果（平成 26 年度～28 年度平均値）

(単位は Chl a は $\mu\text{g/L}$, その他は mg/L かつこ内は標準偏差)

表層								
地点	時季	BOD	COD	D-COD	P-COD (COD-D-COD)	DO	pH	Chl a
C-10	夏季	2.5 (1.2)	4.1 (1.0)	2.3 (0.5)	1.7 (0.9)	8.8 (1.4)	8.4 (0.2)	17.6 (16.2)
	冬季	0.7 (0.3)	1.5 (0.7)	1.3 (0.5)	0.3 (0.2)	9.2 (0.8)	8.1 (0.0)	5.7 (3.9)
E-X1	夏季	2.3 (1.1)	4.5 (1.0)	2.4 (0.4)	2.1 (0.7)	10.0 (2.0)	8.4 (0.2)	17.3 (16.6)
	冬季	0.7 (0.6)	1.7 (0.7)	1.3 (0.5)	0.4 (0.3)	9.4 (1.3)	8.1 (0.1)	3.7 (0.7)
C-1	夏季	1.8 (0.9)	3.6 (1.1)	2.2 (0.6)	1.4 (0.8)	9.5 (1.6)	8.4 (0.2)	9.4 (8.0)
	冬季	0.3 -	1.0 (0.4)	0.8 (0.2)	0.2 (0.1)	8.8 (0.3)	8.1 (0.0)	4.8 (1.6)

底層								
地点	時季	BOD	COD	D-COD	P-COD (COD-D-COD)	DO	pH	Chl a
C-10	夏季	0.9 (0.7)	2.4 (1.0)	1.5 (0.3)	1.0 (0.8)	4.6 (1.2)	8.0 (0.1)	4.7 (7.1)
	冬季	0.7 (0.4)	1.8 (0.7)	1.1 (0.5)	0.7 (0.2)	8.9 (1.0)	8.1 (0.0)	5.8 (3.0)
E-X1	夏季	1.2 (0.7)	3.0 (0.7)	1.8 (0.4)	1.2 (0.5)	5.8 (2.4)	8.1 (0.3)	7.9 (5.1)
	冬季	0.8 (0.5)	1.7 (0.6)	1.2 (0.4)	0.5 (0.4)	9.3 (1.5)	8.1 (0.1)	5.1 (4.3)
C-1	夏季	0.8 (0.5)	1.8 (0.4)	1.3 (0.2)	0.5 (0.3)	5.6 (0.5)	8.1 (0.1)	2.0 (1.9)
	冬季	0.6 -	0.9 (0.5)	0.4 (0.6)	0.5 (0.1)	8.4 (0.2)	8.1 (0.0)	4.8 (1.4)

表 1-2 有機炭素等測定結果 (平成 23~28 年度 国立環境研究所分析平均値 (異常値は除く))

(単位は Chl a は $\mu\text{g/L}$, その他は mg/L かつこ内は標準偏差)

表層

地点	時季	BOD	COD	D-COD	P-COD (COD-D-COD)	DOC+POC	DOC	POC	Chl a
C-10	夏季	1.67 (0.61)	4.12 (0.93)	2.66 (0.52)	1.46 (0.88)	2.84 (0.75)	1.64 (0.29)	1.17 (0.55)	22.5 (13.3)
	冬季	0.60 (0.28)	2.11 (0.33)	1.67 (0.10)	0.43 (0.37)	1.66 (0.07)	1.16 (0.19)	0.50 (0.18)	4.38 (2.65)
E-X1	夏季	2.43 (1.82)	4.66 (1.05)	3.25 (0.36)	1.39 (0.89)	3.09 (0.45)	1.70 (0.17)	1.42 (0.38)	28.8 (11.20)
	冬季	0.30 (0.14)	2.06 (0.27)	1.74 (0.18)	0.32 (0.23)	1.46 (0.21)	1.12 (0.15)	0.34 (0.13)	2.09 (0.70)

底層

地点	時季	BOD	COD	D-COD	P-COD (COD-D-COD)	DOC+POC	DOC	POC	Chl a
C-10	夏季	1.80 (0.95)	2.60 (0.47)	2.15 (0.39)	0.42 (0.43)	1.95 (0.32)	1.41 (0.20)	0.54 (0.11)	7.12 (4.65)
	冬季	0.50 (0.14)	2.11 (0.52)	1.68 (0.09)	0.52 (0.56)	1.60 (0.26)	1.03 (0.16)	0.57 (0.31)	3.31 (1.97)
E-X1	夏季	1.67 (0.75)	3.30 (0.34)	2.40 (0.43)	0.92 (0.39)	2.58 (0.44)	1.48 (0.26)	1.04 (0.42)	15.0 (8.52)
	冬季	0.55 (0.35)	2.04 (0.27)	1.77 (0.23)	0.27 (0.19)	1.66 (0.22)	1.16 (0.06)	0.50 (0.25)	3.59 (3.14)

3) 項目間の関係

図 4 に各項目間の関係を示す。Chl a と P-COD 及び POC の関係では、C-10 及び E-X1 の表層では相関を示した。

C-10 及び E-X1 表層において COD と DOC+POC では強い相関がみられた。

BOD と COD については C-10, E-X1 のいずれも比較的強い相関があった。特に、BOD と COD の相関が強い E-X1 表層において、BOD が 0mg/L 近くでも COD が 1.5mg/L 以上を示したものがあつた。そのため、COD は生物によって分解されにくい有機物が含まれていると推察された。

BOD と Chl a については C-10 の底層、E-X1 の表層で比較的強い相関を示した。

表層の Chl a と P-COD 及び POC で相関があつたことから、P-COD, POC は植物プランクトンの増殖が寄与していると考えられた。

COD と DOC+POC では強い相関がみられた。しかし、C-10 の底層で相関が弱かつたが、原因はわからなかつた。

BOD については、DO の消費が有機物分解によるもののほか、植物プランクトンの呼吸やアンモニアの硝化が考えられる。今後、ろ過してプランクトンを除いた検体とろ過しない検体による BOD の違いについて

検討する必要があると考えられる。また、BOD とその他の項目との関連については現時点ではデータ数が少ない。そこで、物質循環のバランスを把握するため、海域に流れ込み、植物プランクトンに消費されるまでの栄養塩類について、今後も調査を続ける必要があると考えられる。

なお、本市が参加している前述の II 型共同研究「沿岸海域環境の物質循環と現状把握と変遷解析に関する研究」において、15 海域で海域版 BOD 測定が実施され、図 5 のとおり BOD と COD の相関 (相関係数 0.46) よりも BOD と Chl a の相関 (相関係数 0.56) が高いという結果が出ている。このことから、海域における酸素消費に関わる有機物 (因子) は COD より植物プランクトン (内部生産) であると示唆された。

そこで、博多湾においても COD の基準超過の要因として植物プランクトンの増殖が影響しているのか明らかにするため、博多湾常時監視における環境基準点 8 地点で平成 19 年度から平成 28 年度までの COD と Chl a の相関を確認したところ、図 6 のとおり相関を示し、博多湾においても植物プランクトンの増殖が COD 基準超過の影響要因と考えられることが確認された。

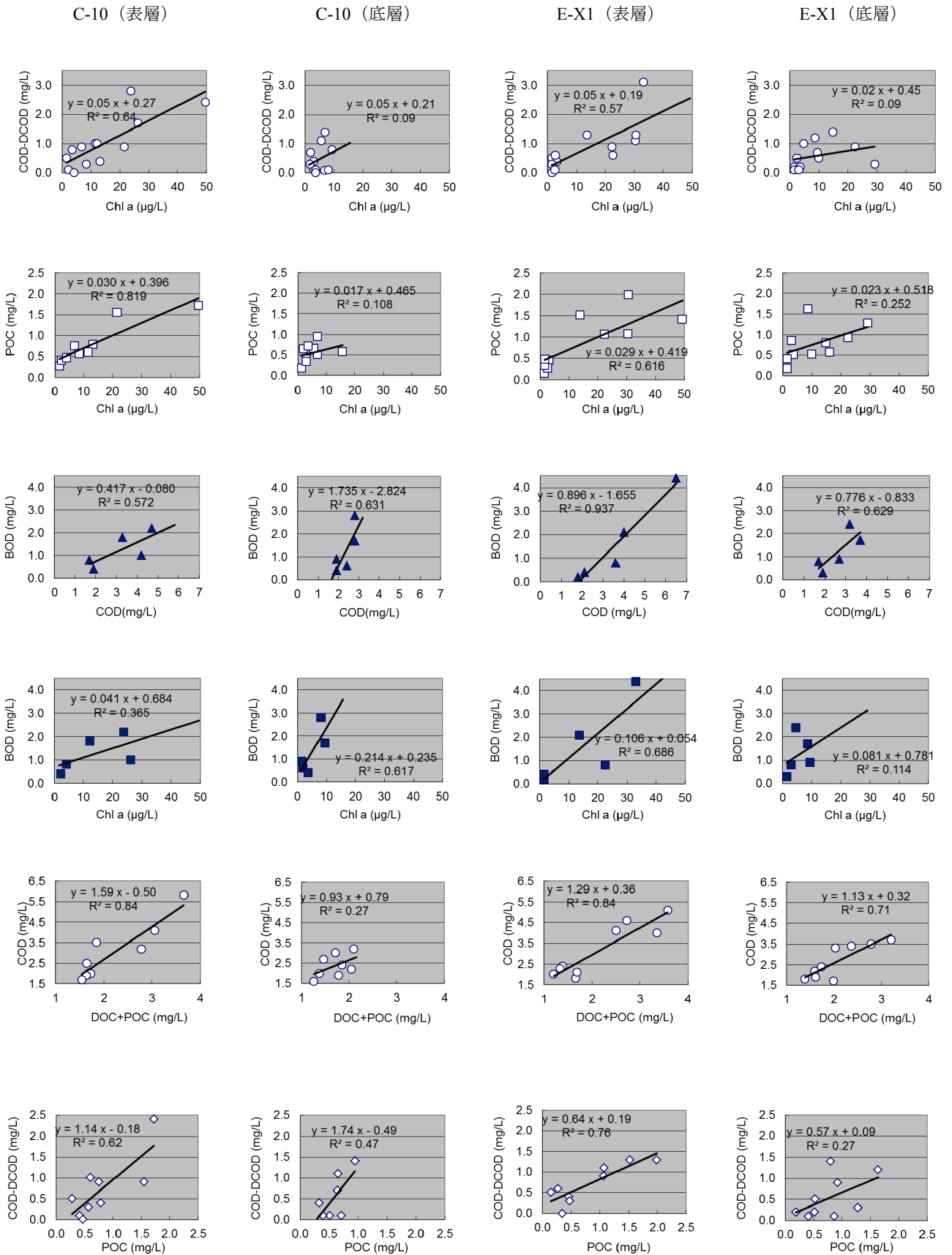


図4 有機炭素等項目間の関係

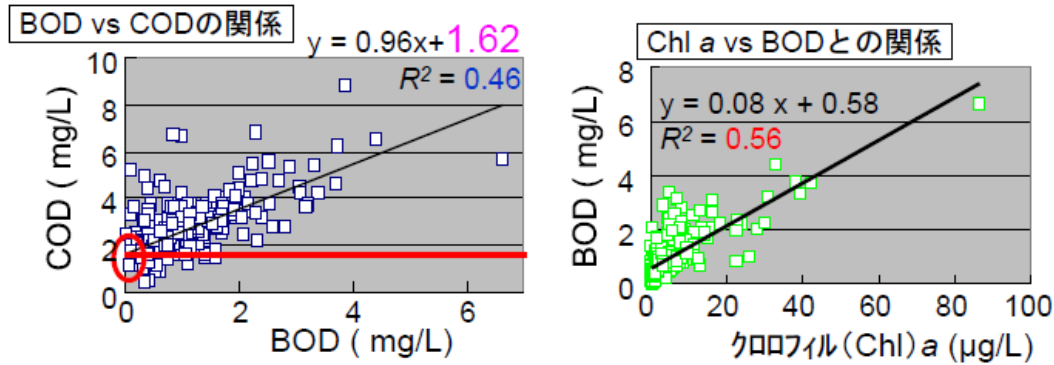


図5 II型共同研究に参加機関による全国15海域における海域版BOD測定結果

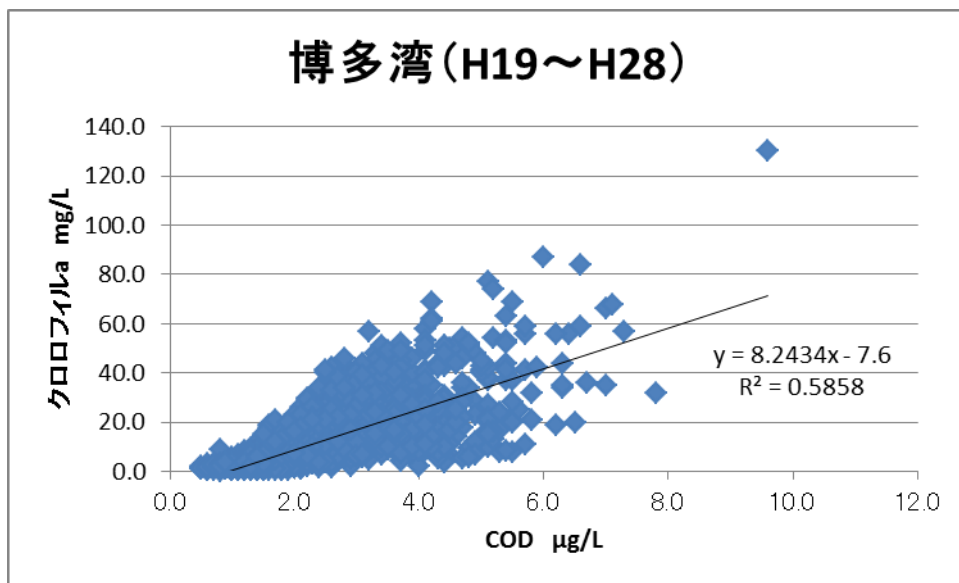


図6 博多湾環境基準点8地点におけるCODとクロロフィルaの相関

3.3.2 栄養塩類

平成26年度から平成28年度までの栄養塩類測定結果を表2に示した。夏季を7～9月、冬季を1～2月の結果とし、異常値は除き、定量下限値未満は0とした。

1) 季節間の比較

表層のDIN, DIP, 底層のDINについては、冬季が夏季より高い傾向がみられた。これは、植物プランクトンの消費によるものと考えられた。

DIN, DIPは冬季が夏季より高い傾向であった。

夏季は、冬季と比較して降雨量が多いため、海域への栄養塩類の流れ込みは多いが、大量増殖した植物プランクトンによって消費される一方、冬季は流れ込みが少ないものの、植物プランクトンによって消費される量が少ないため、溶存性の栄養塩類は夏季より冬季の方が高い傾向となっていると推察される。

本研究は、雨の影響の少ない時期に調査を行ってきたため、陸域から栄養塩類が流れ込み、植物プランクトンによって消費されるまでの状況はわかっていない。

栄養塩類の物質循環のバランスを把握するためには、海域に流れ込み、植物プランクトンに消費されるまでの栄養塩類について調査していく必要があると考えられる。

2) 地点間の比較

E-X1とC-10では特に傾向が見られなかったが、C-1については、他の2地点よりも栄養塩類が低い傾向がみられた。

湾奥部のE-X1から順にC-10, C-1と値が低くなっていくことが予想されたが、E-X1とC-10では大きな差がなく、E-X1よりC-10が高くなることもあった。

C-1が、他の2地点よりも値が低い傾向にあるのは、C-1は陸域から遠いため、陸域から流れ込んだ栄養塩類が拡散されて到達することや、栄養塩類の低い外海と近いことから海水交換を受けやすいためと考えられた。

表2 栄養塩類測定結果 (平成26~28年度)

(単位はすべて mg/L かつこ内は標準偏差)

地点	時季	DIN (NO ₃ -N+NO ₂ -N+NH ₄ -N)	TN	DIP (PO ₄ -P)	TP
C-10	夏季	0.087 (0.097)	0.522 (0.153)	0.006 (0.008)	0.040 (0.012)
	冬季	0.313 (0.040)	0.463 (0.067)	0.011 (0.003)	0.024 (0.005)
E-X1	夏季	0.059 (0.048)	0.575 (0.121)	0.006 (0.008)	0.046 (0.016)
	冬季	0.474 (0.167)	0.635 (0.201)	0.014 (0.007)	0.036 (0.017)
C-1	夏季	0.011 (0.015)	0.346 (0.120)	0.005 (0.009)	0.028 (0.012)
	冬季	0.238 (0.116)	0.335 (0.120)	0.008 (0.006)	0.018 (0.000)

地点	時季	DIN (NO ₃ -N+NO ₂ -N+NH ₄ -N)	TN	DIP (PO ₄ -P)	TP
C-10	夏季	0.120 (0.052)	0.373 (0.117)	0.018 (0.020)	0.045 (0.032)
	冬季	0.205 (0.047)	0.388 (0.112)	0.010 (0.003)	0.023 (0.003)
E-X1	夏季	0.127 (0.068)	0.491 (0.155)	0.012 (0.011)	0.046 (0.021)
	冬季	0.375 (0.096)	0.530 (0.143)	0.014 (0.004)	0.026 (0.002)
C-1	夏季	0.052 (0.020)	0.235 (0.055)	0.012 (0.010)	0.024 (0.006)
	冬季	0.104 (0.036)	0.195 (0.021)	0.007 (0.004)	0.016 (0.000)

4 まとめ

平成26年度から平成28年度にかけて多項目水質計を用いた貧酸素状態の現状把握を行ったところ、7月から9月にかけてC-10、E-X1で貧酸素状態を確認した。

Chl a や COD に関する有機物指標は夏季に高くなり特に表層で顕著だった。Chl a と P-COD 及び POC は表層において相関を示し、P-COD、POC は植物プランクトンの増殖が寄与していると推察された。また、BOD と COD については C-10、E-X1 の両地点とも相関を示した。特に相関が強い E-X1 表層において、BOD が 0mg/L 近くで COD が 1.5mg/L 以上を示すものがあったことから、COD は生物によって分解されにくい有機物が含まれていると考えられた。また、博多湾の常時監視 8 地点 10 年間の Chl a と COD について相関がみられたので、植物プランクトンが COD の基準超過の影響要因と考えられる。なお、BOD については、DO 消費の潜在性の指標になるものの、DO の消費が有機物分解のほか、植物プランクト

ンの呼吸やアンモニアの硝化があるため、そのことを加味した分析方法を検討する必要がある。BOD は、データ数が少なく、傾向等を見る上で今後さらなるデータの蓄積が必要である。

栄養塩類については、溶存性の栄養塩類が夏季より冬季の方が高い値になっていることが確認された。

博多湾は閉鎖性が強く容積に比べ流域面積が広いいため、降雨等による流入水の影響を受けやすく、夏季においては降雨の影響による富栄養化や植物プランクトンの増殖による有機汚濁が生じ、貧酸素水塊が発生する要因となっていると考えられる。しかし、栄養塩類の流れ込みが多いと考えられる降雨後の博多湾水質の動態を明らかにするための調査は実施していない。そのため、降雨の影響による博多湾の栄養塩類の増加や降雨後の栄養塩類の推移、貧酸素水塊や赤潮との関連等について実態を明らかにするため、日単位で連続した水質調査を実施する必要があると思われる。

文 献

- 1) 環境省：日本の閉鎖性海域（88 海域）環境ガイドブック
- 2) 今後の閉鎖性海域対策に関する懇談会：今後の閉鎖性海域対策を検討する上での論点整理，平成 19 年 3 月
- 3) 海域の物質循環健全化計画統括検討委員会，環境省：海域のヘルシープラン [海域の物質循環健全化計画] 策定の手引き（改訂版），平成 26 年 3 月
- 4) 牧 秀明：環境部局による海域の調査研究の在り方について，第 42 回環境保全・公害防止研究発表会
- 5) 福岡市環境局：博多湾環境保全計画（第二次），平成 28 年 9 月
- 6) 牧 秀明：茨城県沿岸海域公共用水域常時監視点における栄養塩類と COD に関連する有機物項目について，Ⅱ型共同研究報告書
- 7) 福岡市環境局：博多湾環境保全計画に係るモニタリング業務委託報告書
- 8) 福岡市環境局：平成 28 年度 博多湾水底質調査業務委託報告書

資源化センターの減容・減量効果調査（平成16～28年度）

前田茂行・望月啓介・岡本拓郎

福岡市保健環境研究所保健環境管理課

Survey on reducing effect in volume and weight by Shredding and Sorting Center (2004-2016)

Shigeyuki MAEDA, Keisuke MOCHIDUKI and Takuro OKAMOTO

Health and Environment Management Section, Fukuoka City Institute of Health and Environment

要約

福岡市では、燃えないごみ・粗大ごみは、資源化センターにて破砕選別処理を行い、ごみの減容化及び減量化並びに再資源化を図っている。保健環境研究所では、資源化センターの運転管理や今後の設備更新等のため、資源化センター搬入ごみ及び破砕選別処理物の組成を調査するとともに、その減容・減量効果について検証している。今回、本調査を開始した平成16年度から平成28年度までの減容・減量効果を検証した結果等について報告する。調査期間中において、搬入ごみ中の金属類の増減等のごみ質の経年変化があり、破砕選別処理での、有価物回収量にも増減がみられた。有価物のうちアルミについては、資源物の持ち去りを禁止する施策の効果や選別装置の一部改良の影響により、近年の回収量が微増となった。減容効果は88~92%、減量効果は37~49%で推移した。搬入される金属類の増減や選別装置の改良により減量効果に影響があったことが確認された。

Key Words : 資源化センター shredding and sorting center, 燃えないごみ non-burnable garbage, 選別物 sorting categories, 減容・減量効果 reducing effect in volume and weight

1 はじめに

福岡市では、「燃えないごみ」と「粗大ごみ」は、本市東区及び西区に設置する「資源化センター」にて、「破砕可燃物、破砕不燃物、回収鉄、回収アルミ」に破砕選別処理し、ごみ中の有価物（鉄、アルミ）の回収及びごみの減容・減量化による埋立地の延命を図っている。図1に代表として西部の処理フローを示す。

保健環境研究所では、東部及び西部資源化センターの「搬入ごみ」及び「破砕選別処理物」について組成を調査し、施設の運転管理や設備更新等に必要データを取得するとともに、破砕選別処理による減容・減量効果について検証している。

本調査が平成16年から開始されたことや第三次福岡市一般廃棄物処理基本計画（平成16年12月～）による各施策により、ごみ量が大きく減少した^{1) 2)}ことから、

本報告は、平成16年度からのデータを用い解析を行った。なお、平成16年度以降の「燃えないごみ」の排出に影響が考えられる本市ごみ処理関連施策は、表1のとおりである。

表1 平成16年度以降の主な燃えないごみに関する施策

①	H17.06	事業系ごみ自己搬入ごみ処理手数料の改定 110円/10kg → 140円/10kg
②	H17.10	家庭ごみ有料化（燃えないごみ45円/45L・袋）
③	H13.04 ～ H27.04	事業系ごみ許可業者の搬入手数料(処分経費) 減免率の改定（段階的廃止） 80%→70%→60%→50%→35%→20%→0%
④	H25.08	使用済小型電子機器回収事業の本格実施
⑤	H26.1～ H27.12	地域集団回収報奨金アルミ缶単価増額 (2年間限定5円/kg→50円/kg)
⑥	H26.04	「福岡市廃棄物の減量及び適正処理等に関する条例」の一部改正 家庭ごみ及び資源物の持ち去り及び買い取り行為を禁止

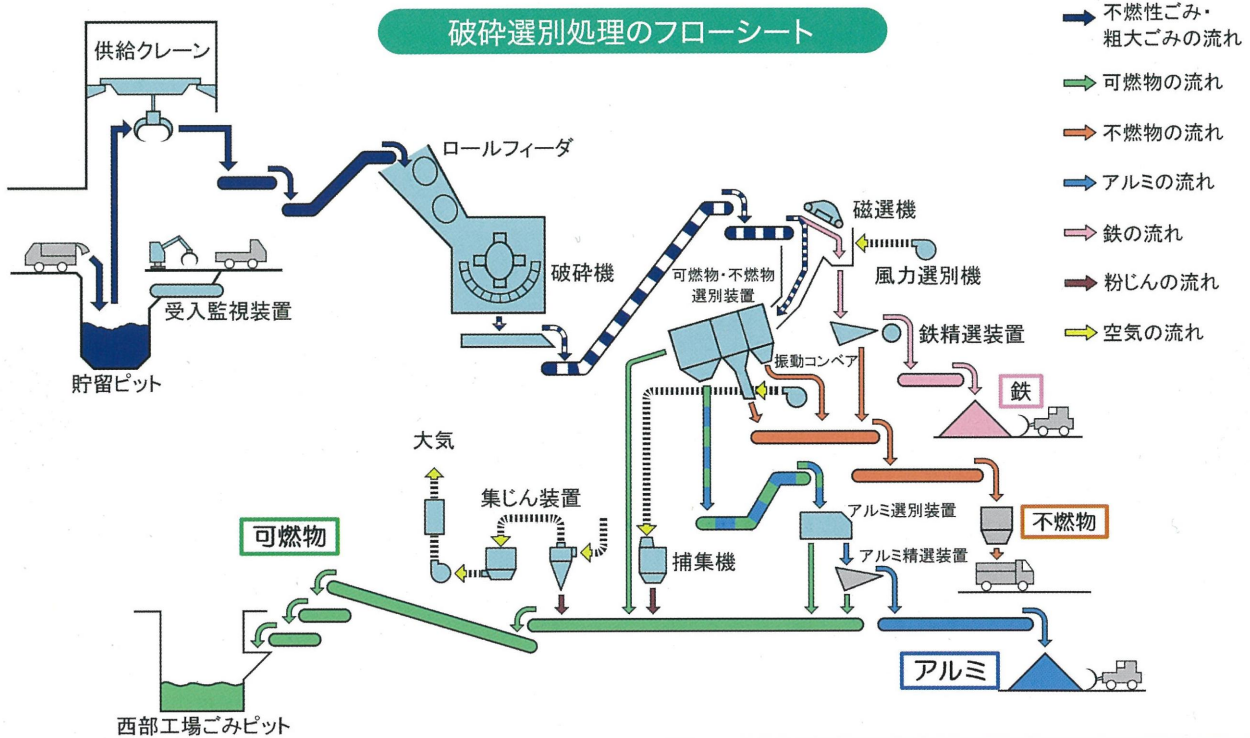


図1 破碎選別処理フロー (西部資源化センター) ³⁾

2 調査方法

2.1 調査方法

下記に示す平成16年度から28年度までのごみ関連各種統計資料を用い、東部・西部資源化センター及び市合計(東部・西部の計)の経年変化についてグラフ化し、データの推移について考察した。

- ・ごみ処理状況報(環境局施設部管理課集計値)
- ・東部資源化センター報, 西部資源化センター報
- ・資源化センターの減容・減量効果調査結果報告書



図2 資源化センター減容・減量効果調査作業(搬入ごみ)

資料に用いた「資源化センターの減容・減量効果調査」とは、図1中のごみピットから採取した搬入ごみ

1,000kg及び各ヤードから採取した破碎選別処理物100Lの展開調査であり、年4回実施している。図2に資源化センターの減容・減量効果調査での搬入物組成調査の作業状況の一部を示す。

2.2 調査内容

- ・搬入ごみ量の推移(搬入区分別)
- ・搬入ごみ組成の推移(重量比・容量比)
- ・組成別搬入ごみ量^{※1}の推移
- ・組成別搬入ごみ容量^{※1}の推移
- ・破碎選別処理量(回収量)の推移
- ・破碎選別処理物組成の推移(重量比・容量比)
- ・減容・減量効果の推移

※1 資源化センター搬入ごみ量及びごみ容量に組成調査結果での組成比を乗じて算出したもの。

3 結果及び考察

3.1 資源化センター搬入ごみ

3.1.1 搬入ごみ量の推移(搬入区分別)

搬入区分別の資源化センター搬入ごみ量の推移を図3に示す(搬入ごみ量は「ごみ処理状況報」に基づく数値)。

図3中「東部・西部合計の搬入量合計」より、資源化センターへのごみ搬入量は、平成17年度から23年度までは減少していたが、24年度以降は増加に転じ、28

年度は、約 2.8 万 t と 20 年度と同等のごみ搬入量となっている。増加は「一般家庭ごみ」と「事業系ごみ（自己搬入）」によるものである。両者は表 1 の①②による施策効果もあり平成 23 年度までは減少したが、その後は増加に転じている。また、「事業系ごみ（許可業者搬入）」は、両者とは異なり 16 年度より一貫して減少傾向にあることから表 1 中の③の効果があるものと思われる。

その他、搬入区分別ごみ量を東部と西部で比較すると、東部は「事業系ごみ（許可業者搬入）」が多く、西部は「一般家庭ごみ」が多いという特徴がある。搬入量合計について、東部と西部を比較すると西部の方が「一般家庭ごみ」の影響で増減の幅が大きい。また、「一般家庭ごみ」は東部、西部ともに 17 年度が、表 1 中②の家庭ごみ有料化前の駆け込み排出や福岡県西方沖地震（平成 17 年 3 月 20 日）の影響で搬入量が最も多くなっている。

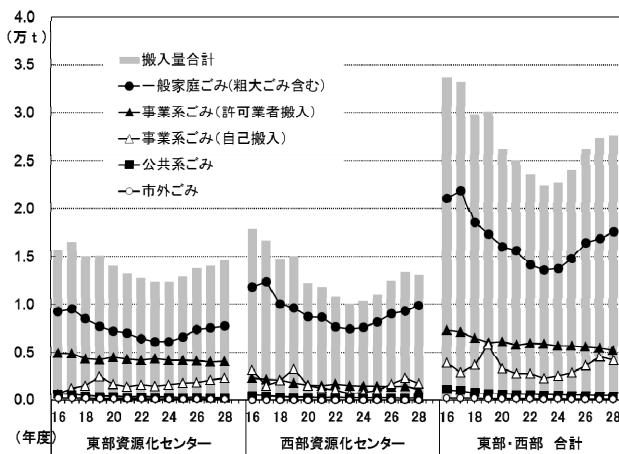


図 3 資源化センター搬入ごみ量の推移（搬入区分別）

3.1.2 搬入ごみ組成の推移（重量比）

東部・西部資源化センター搬入ごみ組成の推移（重量比）を図 4（積み重ね棒グラフ）及び図 5（上位 5 組成項目の折線グラフ）に示す。東部・西部平均については、搬入ごみ量で加重平均した。

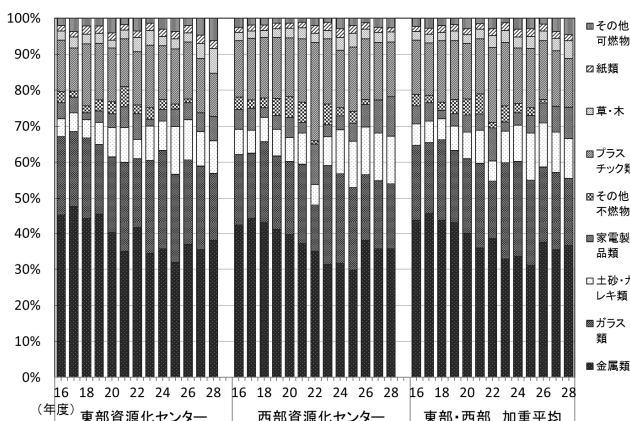


図 4 資源化センター搬入ごみ組成の推移（重量比）

図 4 より経年変化を見ると、「不燃物（金属類、ガラス類、土砂・ガレキ類、家電製品、その他不燃物の合計）」としての比率は、東部・西部資源化センターとも、概ね 70 ~ 80% の間で推移しており、「可燃物」は 20 ~ 30% の間で推移しているということになる。

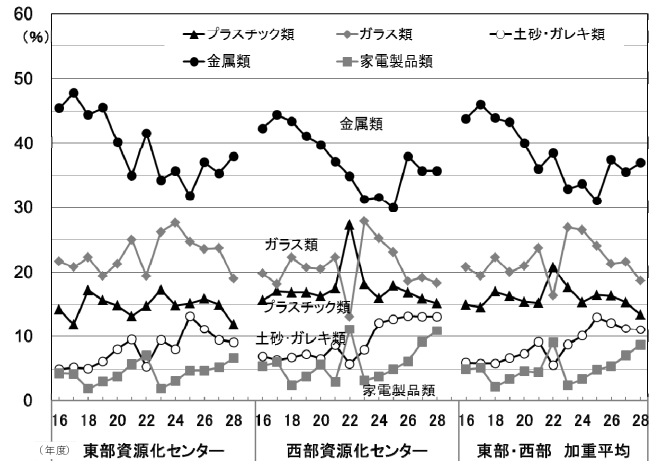


図 5 資源化センター搬入ごみ組成の推移（重量比）

図 5 の組成項目毎の比率の推移を大きく見ると、東部・西部資源化センターとも、平成 22 年度を除き組成項目の順位が入れ替わるような変化は見られないが、金属類が減少傾向にあるのに対し、土砂・ガレキ類が増加傾向にあると言える。細かく見てみると、最も組成比率の高い金属類は、17 年度から 25 年度までは減少していたが、26 年度からは上昇の傾向が見られる。

次に、平成 16~19 年度（以降「Ⅰ期」という。）、平成 20~22 年度（以降「Ⅱ期」という。）、平成 23~25 年度（以降「Ⅲ期」という。）、平成 26~28 年度（以降「Ⅳ期」という。）の東部・西部資源化センター搬入ごみ及び東部・西部加重平均での各組成比率を比較したものを表 2 に示す。Ⅰ期は家庭ごみ有料化を挟んだ 4 年間、Ⅱ期は搬入ごみ量が減少した 3 年間、Ⅲ期は搬入ごみ量が増加に転じた 3 年間、Ⅳ期は直近 3 年間の平均を表している。

表 2 より東部と西部を比較すると、全期間にて、金属類は東部、プラスチック類、家電製品類は西部が高く、図 3 より東部は事業系ごみ、西部は家庭ごみの割合が高いことが起因しているものと思われる。

また、表 2 中の東部・西部加重平均より金属類はⅢ期が最も低くなっており、Ⅱ期よりも 5.6 ポイント、Ⅳ期より 4.1 ポイント低かった。逆にガラス類は他の組成項目と異なりⅢ期が最も高く、他期より約 5 ポイント高い値となっていた。Ⅲ期は、他期と異なる組成比になっており、金属類の搬入減少もしくは、ガラス類の搬入増加が考えられた。土砂・ガレキと家電製品類についてはⅣ期が最も高くなっていた。

表2 資源化センター搬入ゴミ組成比率の比較

	(%)	I期	II期	III期	IV期	全期間
		16-19 年度 平均	20-22 年度 平均	23-25 年度 平均	26-28 年度 平均	16-28 年度 平均
東部	紙類	1.8	1.7	2.1	2.1	1.9
	プラスチック類	14.8	14.3	15.8	14.3	14.8
	草・木	2.8	2.9	3.1	4.5	3.3
	その他可燃物	2.6	3.2	2.7	4.4	3.2
	ガラス類	21.1	21.9	26.2	22.1	22.7
	土砂・ガレキ類	5.4	7.7	10.3	9.9	8.1
	金属類	45.8	38.9	34.0	36.7	39.4
	家電製品類	3.5	5.6	3.3	5.6	4.4
	その他不燃物	2.4	3.8	2.5	0.3	2.3
	西部	紙類	1.5	1.7	2.3	1.4
プラスチック類		16.7	20.4	17.3	16.0	17.5
草・木		2.2	2.8	3.2	2.8	2.7
その他可燃物		2.0	1.6	2.0	2.2	1.9
ガラス類		20.2	18.7	25.4	18.7	20.7
土砂・ガレキ類		6.9	7.0	11.0	13.2	9.3
金属類		42.8	37.2	30.9	36.4	37.3
家電製品類		4.5	6.6	4.1	8.8	5.9
その他不燃物		3.3	4.0	3.8	0.5	2.9
東部・西部 加重平均		紙類	1.7	1.7	2.2	1.8
	プラスチック類	15.7	17.2	16.5	15.1	16.1
	草・木	2.5	2.8	3.2	3.7	3.0
	その他可燃物	2.3	2.4	2.4	3.3	2.6
	ガラス類	20.7	20.4	25.8	20.6	21.8
	土砂・ガレキ類	6.1	7.4	10.7	11.5	8.7
	金属類	44.3	38.1	32.5	36.6	38.4
	家電製品類	4.0	6.1	3.7	7.1	5.1
	その他不燃物	2.9	3.9	3.0	0.3	2.5

3.1.3 組成別搬入ゴミ量（処理量）の推移

図5より、東部、西部資源化センターとも平成16年度以降の金属類の組成比率が低下し、土砂・ガレキ類の組成比率が上昇しているという結果であった。しかし、これは割合の変化であり、実際の資源化センターへの搬入ゴミのうち、何の組成項目がゴミ量として増減していたのかは分からない。そこで、各年度の東部・西部資源化センター搬入ゴミ量（処理量^{※2}）に各ゴミ組成の重量比を乗じ組成別搬入ゴミ量を推計し図6に示した。

※2 図3の搬入量は、ゴミ搬入車両の計量の積算値であるのに対し、図6は、ゴミピットから破碎選別処理施設へのクレーンでの投入量の積算値。両者の値は、各年度末時点でのゴミピット内の貯留量（処理の年度間の繰越）の大小やゴミピットにおける水分の蒸発その他の影響により差が生じるため、図3と図6の搬入量は必ずしも一致しない。3.1.3以降については、破碎選別処理の収支について考察するため、各年度の破碎選別処理量を搬入量として取り扱う。

図6の東部・西部合計の組成別搬入ゴミ量を見ると、金属類が大きく減少し、プラスチック類及びガラス類も減少傾向なのが見える。逆に土砂・ガレキ類は増加傾向である。図5では、プラスチック類及びガラス類の推移の傾向が見えなかったが、図6では減少傾向が表れている。これらより、図5での金属類の組成比率の減少は、

他の組成項目が増加したのではなく、ゴミ中の金属類が大きく減少したことによるものと考えられる。

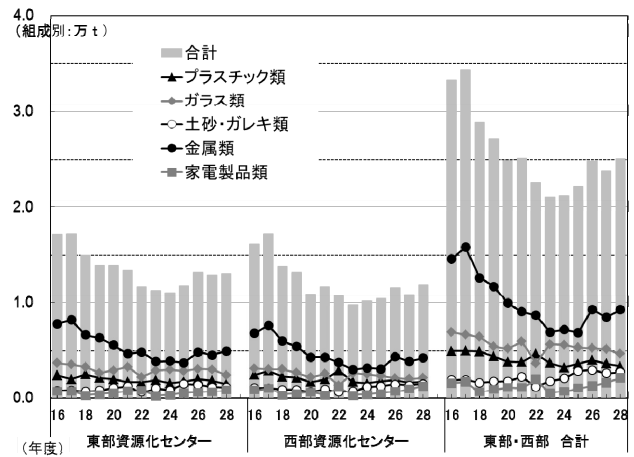


図6 資源化センター組成別搬入ゴミ量(処理量)の推移

次に、資源化センター組成別搬入ゴミ量の各年度推計値をI期からIV期の各期間で平均し比較したものを表3に示す。

表3 資源化センター組成別搬入ゴミ量（処理量）の比較

	(t)	I期	II期	III期	IV期	全期間
		16-19 年度 平均	20-22 年度 平均	23-25 年度 平均	26-28 年度 平均	16-28 年度 平均
東部	紙類	285	226	236	279	259
	プラスチック類	2,321	1,865	1,801	1,872	1,992
	草・木	435	366	357	593	438
	その他可燃物	408	412	313	571	425
	ガラス類	3,336	2,865	2,980	2,892	3,043
	土砂・ガレキ類	849	1,016	1,181	1,301	1,069
	金属類	7,246	5,059	3,868	4,810	5,400
	家電製品類	556	718	383	733	594
	その他不燃物	381	497	283	40	306
	合計	15,818	13,026	11,402	13,091	13,525
西部	紙類	231	185	236	164	206
	プラスチック類	2,511	2,263	1,755	1,838	2,124
	草・木	323	313	326	318	320
	その他可燃物	298	174	204	249	236
	ガラス類	3,031	2,094	2,564	2,147	2,503
	土砂・ガレキ類	1,034	790	1,120	1,521	1,110
	金属類	6,473	4,155	3,131	4,187	4,639
	家電製品類	703	729	414	1,013	714
	その他不燃物	489	455	378	54	355
	合計	15,092	11,159	10,127	11,490	12,207
東部・西部 合計	紙類	516	412	472	443	465
	プラスチック類	4,832	4,129	3,556	3,710	4,116
	草・木	758	679	683	911	758
	その他可燃物	707	585	517	820	661
	ガラス類	6,368	4,960	5,544	5,039	5,546
	土砂・ガレキ類	1,883	1,806	2,301	2,821	2,178
	金属類	13,719	9,214	7,000	8,997	10,039
	家電製品類	1,259	1,447	796	1,746	1,308
	その他不燃物	869	953	661	94	662
	合計	30,909	24,185	21,530	24,581	25,733

IV期とI期の比較から、東部・西部合計中の合計で、IV期が約 6,300 t 低くなっているが、その約 75%が「金属類」の減少によるものであった。逆に「土砂・ガレキ類」はI期に比べIV期の方が約 900 t (30%) 高くなっていた。次に、金属類に該当するごみの中で何が減少しているかについて検討した。本市では、「飲料缶」は燃えないごみとして収集し破碎選別処理している。これまでの組成調査で、「金属類」を細分類し「飲料缶(スチール缶・アルミ缶)」と「その他」に区分している。図7に搬入ごみ中の飲料缶重量の推計値の推移を示す。

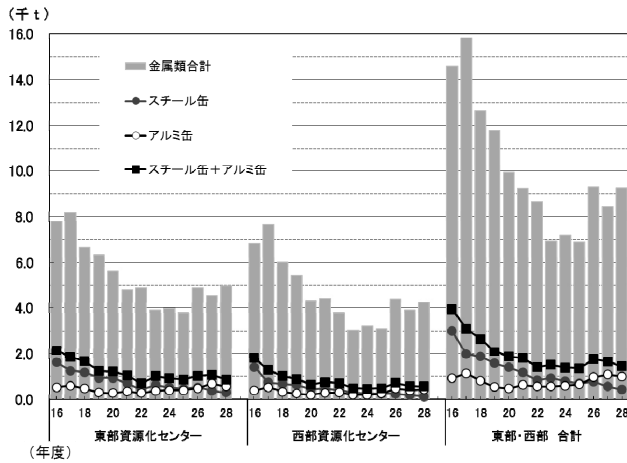


図7 資源化センター搬入ごみ中の飲料缶重量の推移

東部・西部合計よりスチール缶は平成16年度以降、年々減少しており、28年度は17年度の約1/5程度となっている。アルミ缶は平成17年度から20年度までは減少したがその後は微増で、26年度以降は顕著に増加している。この要因としては、26年度に施行された表1中⑥の『家庭ごみ及び資源物の持ち去り及び買い取り行為を禁止した「福岡市廃棄物の減量及び適正処理等に関する条例」の一部改正』(以降、「資源物持ち去り禁止条例」という。)の影響が考えられる。これは、表1中の施策の中で唯一、搬入ごみ量の増加に寄与する施策となっている。

また一方で、同時期に表1中⑤の「地域集団回収報奨金アルミ缶単価増額」という搬入ごみ量の減少に寄与する施策も行っているが、効果としては27年度のアルミ缶の地域集団回収量が25年度比で9.6%(47t)増加したという結果であり、図7中の東部・西部合計の27年度アルミ缶推計量(1,078t)は、25年度(652t)比で39.5%(426t)の増加となっていることから、報奨金により直接リサイクルに流れたアルミ缶量(指定ごみ袋以外での排出量)の増加よりも、資源化センターへのアルミ缶搬入量の増加の方がかなり大きかったため、「資源物持ち去り禁止条例」の効果の方が「報奨金の増額」の効果よりも大きかったと言える。

次に、図7より飲料缶(スチール缶+アルミ缶)の減少量は、搬入ごみ中の金属類合計の減少量と比較するとかなり少なく、搬入ごみ中の金属類の減少は、飲料缶以外の金属系ごみによる要因の方が大きいと考えられた。図7中に飲料缶以外の金属ごみ(平成18年度調査から追加)の素材別推移を追加したものを図8に示す。

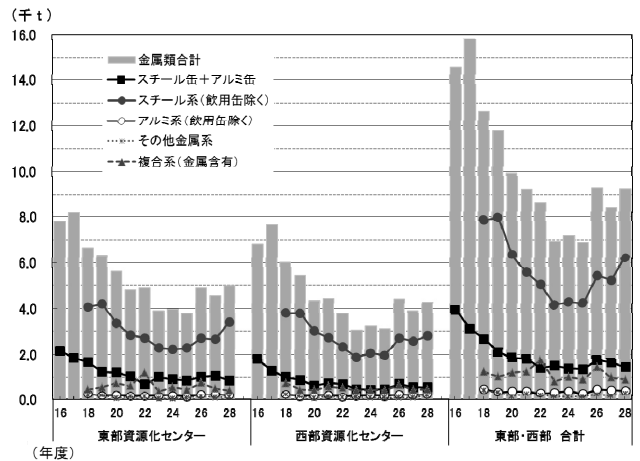


図8 資源化センター搬入ごみ中の金属素材別重量の推移

図8より、金属類の減少に最も影響があったものは、スチール系(飲用缶を除く)であったことがわかる。この分類中で調査時に排出が多いものとしては、小型のもので「食用缶・缶詰等の容器、食用等各種器具、雑貨、装飾品」などがある。大型では、「事務用品、自転車、家電製品以外の機器類」などがある。

金属類の減少の要因については、鉄スクラップ市場の影響が考えられる。参考に資源化センターの回収鉄平均売却単価を図9に示す。平成28年度は10円/kgを下回る時期があったのに対し、金属類が減少した平成23~25年度は、ほぼ20円/kgを上回っていた。さらに北京オリンピックのあった平成20年度は70kg/円と一時的に高値した時期もあった。このことから搬入ごみ中の金属類もこれら鉄スクラップ市場の影響を受け、「事業系ごみの自己搬入の減少(資源回収業者への持ち込み)」や「家庭系ごみの資源回収業者等による持ち去り」があったのではないかと推測される。近年は、資源化センター回収鉄売却単価が下降傾向であり、金属類搬入ごみ量が増加傾向となっていることから、上記の推測どおりとなるか、今後の推移について注視したい。

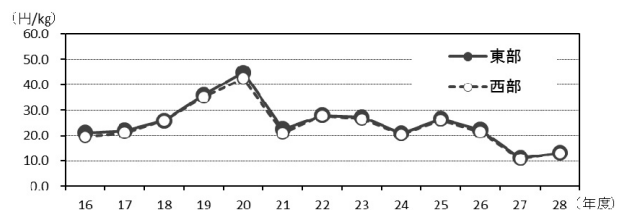


図9 資源化センター回収鉄平均売却単価

3.1.4 搬入ごみ組成の推移 (容量比)

東部・西部資源化センター搬入ごみ組成 (容量比) の推移を図 10 (積重ね棒グラフ) 及び図 11 (上位 3 項目折線グラフ) に示す。

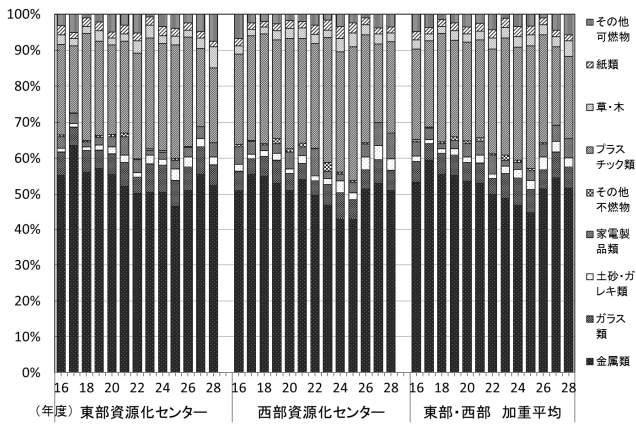


図 10 資源化センター搬入ごみ組成の推移 (容量比)

図 10 を見ると、「不燃物 (金属類, ガラス類, 土砂・ガレキ類, 家電製品, その他不燃物)」の比率は、概ね 50~70%で変動している。図 4 の重量比では、不燃物は概ね 70 ~ 80%だったが、搬入ごみの見た目 (容量比) は、図 10 より「可燃物」が約半分弱程度に見えることになる。

図 11 より組成項目ごとの容量比の推移を見ると、東部・西部資源化センターとも、金属類が図 5 の重量比に比べ減少の度合いが小さい。これより、金属系ごみの中でも比重の高い金属類の搬入が減少しているのではないかと考えられる。その他の特徴としては、図 5 の重量比では、金属類の次にはガラス類の割合が高く、続いてプラスチック類となるが、容量比では、金属類, プラスチック類, ガラス類の順に割合が高くなっている。搬入ごみの組成別容積比においても、経年で順位が変わるような組成の変化は見られなかった。

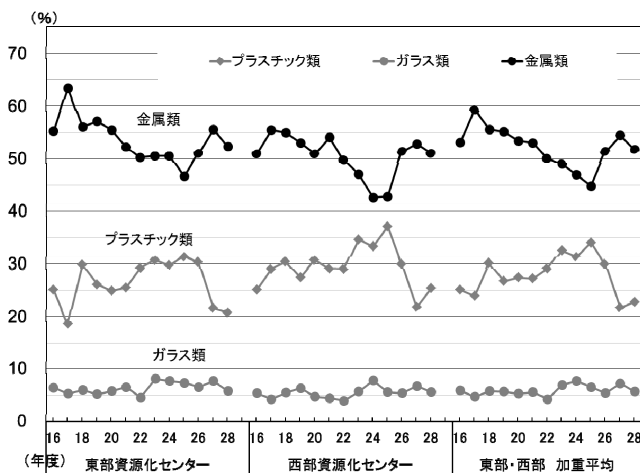


図 11 資源化センター搬入ごみ組成の推移 (容量比)

3.1.5 組成別搬入ごみ容量 (処理容量) の推移

各年度の東部・西部資源化センター搬入ごみ容量^{※3}に各ごみ組成の容量比を乗じたものを図 12 に示す。

※3 資源化センター搬入ごみ量を組成調査結果での搬入物単位容積重量で除して算出したもの。

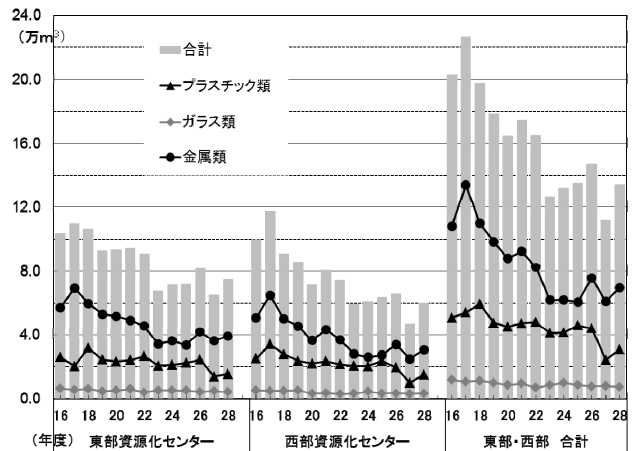


図 12 資源化センター組成別搬入ごみ容量の推移

図 12 より搬入ごみ容量 (グラフ中「合計」) は、大きく見ると平成 17 年度以降は減少傾向である。このごみ容量減少は、図 6 と同じく金属類によるものが大きい。また、プラスチック類も同様に減少傾向が見られた。

次に資源化センター搬入ごみ中の飲料缶容量の推移を図 13 に示す。図 13 は容積を示すグラフであることから、スチール缶とアルミ缶の比重差を考えないでよいため、おおよその飲料缶の本数と考えられる。不燃ごみとして搬入される飲料缶本数は、東部・西部資源化センター共に、平成 16 年度から 23 年度までは、スチール缶とアルミ缶の本数として概ね同程度の減少を示していたが、24 年度以降は、スチール缶がそのまま減少し、アルミ缶は増加という推移になっている。飲料容器としてスチール缶からアルミ缶への移行が更に進んでいること及び 3.1.3 でも述べた 26 年度に施行された表 1 中⑥の「資源物持ち去り禁止条例」の影響と思われる。

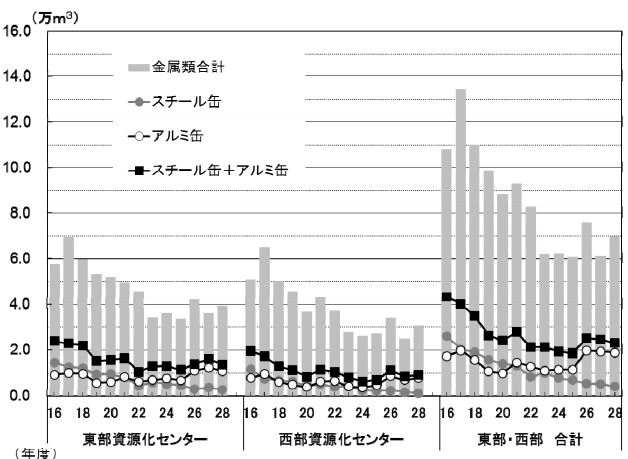


図 13 資源化センター搬入ごみ中の飲料缶容量の推移

また、スチール缶+アルミ缶を大きく見ると概ね、減少の傾向にあり、飲料容器として、スチール缶及びアルミ缶の金属系からペットボトル、紙パックへの移行もかなり多いと推測される。次に、図 14 に飲料缶以外の金属ごみの素材別推移を追加したものを図 14 に示す。

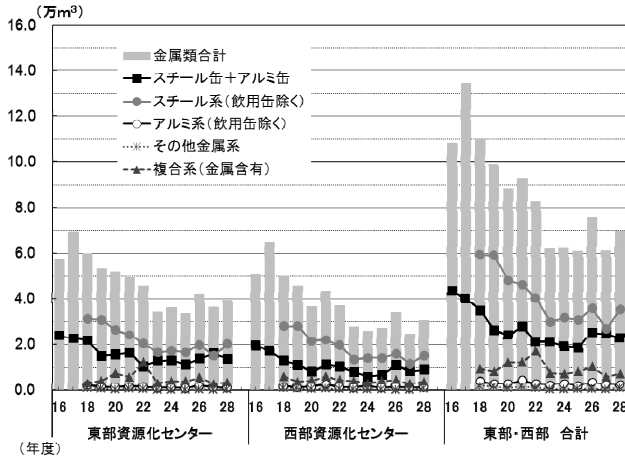


図 14 資源化センター搬入ごみ中の金属素材別容量の推移

図 14 より、金属類の容量減少に最も影響があったものは、図 8 と同様に、スチール系（飲用缶を除く）であったことがわかる。しかし、図 14 のスチール系（飲用缶を除く）は、スチール缶+アルミ缶の影響の度合いと比べると同程度であり、図 8 の重量推移と比較すると明らかに差が見られる。これよりスチール系（飲用缶を除く）は、より比重の高いものが減少していることになり、3.1.4 と同様のことが推察される。減少分の金属の一部は、他の資源回収ルートに流れていることも考えられた。

3.2 資源化センター破砕選別処理物

搬入ごみは、図 1 の処理フローのとおり、ごみピットにて貯留したのち、供給クレーンにて供給装置に投入され、図 15 に示す破砕機（スイングハンマ式）にて破砕処理後、各選別工程を経て、破砕可燃物、破砕不燃物、回収鉄、回収アルミの 4 種類に選別される。

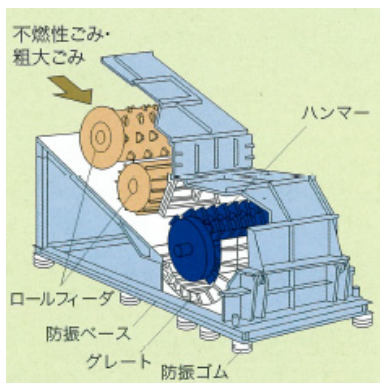


図 15 破砕機（スイングハンマ式）

3.2.1 各破砕選別処理量（回収量）の推移

資源化センターの各破砕選別処理量の推移を図 16 に示す（各処理量は「資源化センター報」を使用）。東部・西部資源化センターとも搬入ごみ量（図 6）の減少に伴い、当然ながら各破砕選別処理量の合計量も減少している。図 16 中で平成 17 年度は、家庭ごみ有料化、福岡西方沖地震等の特殊な要因があり特異な変動となっている。

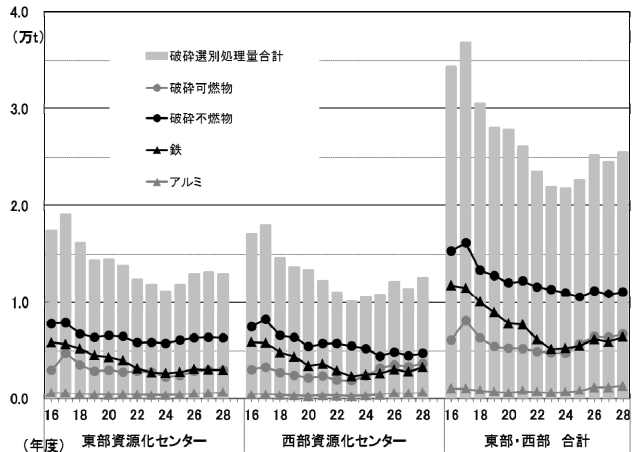


図 16 資源化センター各破砕選別処理量（回収量）の推移

図 16 で、各破砕選別処理量の経年変化を見ると、回収鉄の量は平成 16 年度から 23 年度までは年々減少していたが、23 年以降は徐々に増加している。23 年以降は破砕可燃物と回収鉄が同程度の回収量で推移している。

表 4 に、資源化センター各破砕選別処理量を I 期から IV 期の各期間で平均したものを示す。東部・西部合計の I 期と IV 期の平均値の比較から、各処理量合計で IV 期が I 期に比べ 7,363 t 減少している。その内訳は、破砕不燃物 3,326 t、回収鉄が 4,391t の減少、破砕可燃物 42 t、回収アルミが 314 t の増加となっている。

表 4 資源化センター各破砕選別処理量（回収量）の比較

	(t)					
	I 期 16-19 年度 平均	II 期 20-22 年度 平均	III 期 23-25 年度 平均	IV 期 26-28 年度 平均	全期間 16-28 年度 平均	
東部	破砕可燃物	3,572	2,929	2,548	2,994	3,054
	破砕不燃物	7,230	6,321	5,923	6,364	6,519
	回収鉄	5,326	3,862	2,777	3,074	3,880
	回収アルミ	564	455	420	651	526
各処理量合計	16,692	13,567	11,668	13,083	13,979	
西部	破砕可燃物	2,939	2,227	2,550	3,559	2,828
	破砕不燃物	7,176	5,656	5,055	4,714	5,768
	回収鉄	5,245	3,376	2,544	3,108	3,697
	回収アルミ	432	319	357	659	441
各処理量合計	15,793	11,577	10,506	12,040	12,734	
東部・西部合計	破砕可燃物	6,511	5,156	5,097	6,553	5,882
	破砕不燃物	14,405	11,976	10,979	11,079	12,286
	回収鉄	10,572	7,237	5,321	6,181	7,577
	回収アルミ	996	774	777	1,310	967
各処理量合計	32,485	25,144	22,174	25,122	26,712	

東部と西部を比較すると東部が回収アルミのみ増加しているのに対し、西部は、破碎可燃物と回収アルミが増加している。回収アルミについては東部が 87 t (13.4%) 増なのに対し、西部は 227t (34.4%) 増加していた。

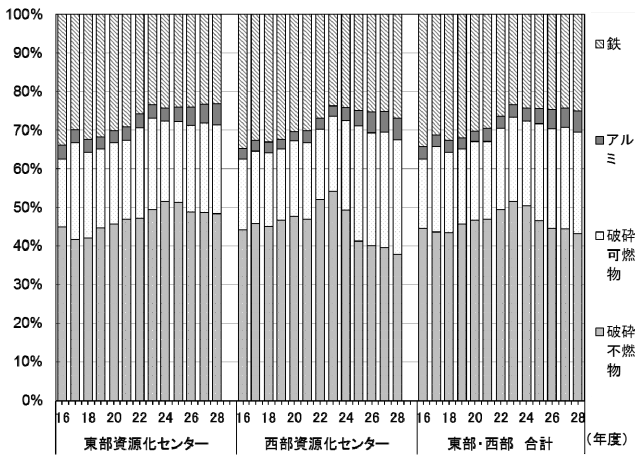


図 17 各破碎選別処理量（回収量）割合の推移（重量比）

次に、全処理量に占める各破碎選別処理量割合の推移を図 17 に示す。経年の変化の中で、鉄の割合の減少に伴い破碎可燃物の割合が増加している。

表 5 に、資源化センター各破碎選別処理量割合を I 期から IV 期の各期間で平均したものを示す。

表 5 資源化センター各破碎選別処理量（回収量）割合の比較

	I 期 16-19 年度 平均	II 期 20-22 年度 平均	III 期 23-25 年度 平均	IV 期 26-28 年度 平均	全期間 16-28 年度 平均	
						(%)
東部	破碎可燃物	21.3	21.7	21.8	22.9	21.9
	破碎不燃物	43.4	46.6	50.8	48.6	47.1
	回収鉄	32.0	28.3	23.8	23.5	27.3
	回収アルミ	3.4	3.4	3.6	5.0	3.8
西部	破碎可燃物	18.6	19.2	24.2	29.6	22.6
	破碎不燃物	45.5	48.9	48.3	39.2	45.5
	回収鉄	33.2	29.1	24.2	25.8	28.5
	回収アルミ	2.7	2.8	3.4	5.5	3.5
東部・西部合計	破碎可燃物	20.0	20.5	23.0	26.1	22.2
	破碎不燃物	44.4	47.7	49.5	44.1	46.3
	回収鉄	32.5	28.7	24.0	24.6	27.9
	回収アルミ	3.1	3.1	3.5	5.2	3.7

I 期と IV 期を比較すると、東部は回収鉄が 8.5 ポイント減少し、破碎不燃物が 5.2 ポイント増加しているのに対し、西部は回収鉄の 7.4 ポイントの減少に対し、破碎可燃物が 6.1 ポイント増加している。これは、後に述べる西部のアルミの回収量増加を目的とした選別設備の改良の影響によるものである。

表 2 より、搬入ごみ（東部・西部加重平均）の金属類比率は、I 期 44.3%、II 期 38.1%、III 期 32.5%、IV 期 36.6%であった。表 5 より、破碎選別処理後の金属類

（回収鉄＋回収アルミ）の量は、I 期 35.6%、II 期 31.8%、III 期 27.5%、IV 期 29.8% であり、この差分の金属類は、破碎可燃物、破碎不燃物に不純物として混入しているという推計になる。

3.2.2 破碎選別処理物組成の推移（選別区分別）

各破碎選別処理物中に占める選別対象物及び選別対象外物（不純物）の重量比及び容量比を以下に示す。

3.2.2.1 破碎可燃物

破碎可燃物中に占める可燃物及び不純物（不燃物・鉄・アルミ）の重量比を図 18 に、容量比及び破碎可燃物の単位容積重量の推移を図 19 に示す。また、参考例として、破碎可燃物展開調査前の写真を図 20 に示す。

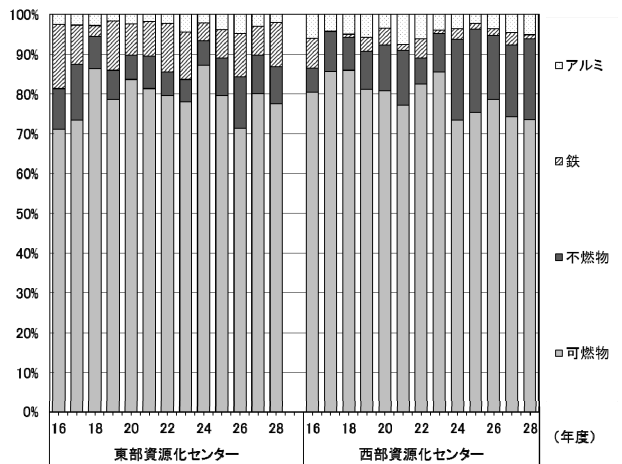


図 18 破碎可燃物組成比の推移（重量比）

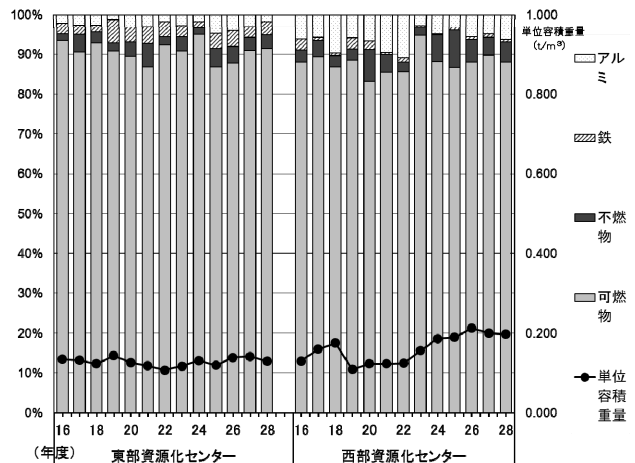


図 19 破碎可燃物組成比の推移（容量比）

破碎可燃物中の可燃物としては、プラスチック系のシートや袋等が多く、これに可燃物以外の金属等が巻込まれ不純物として混入する。図 20 の写真のとおり、可燃物としては、プラスチック製袋類、プラスチック製品破片、紙類、木切れが多く、可燃物以外の不純物として、飲料缶、飲料缶キャップ、針金状金属等の軽量なものが多い。



図 20 展開調査前「破碎可燃物」

破碎可燃物は、図 21 に示す円筒式の回転式選別装置（以下、「可燃物・不燃物選別装置」という。）※4 のふるい目で選別されず円筒を通過したものが主となり、その通過物に、その後の処理工程の「風力選別機」「アルミ選別措置」にて可燃物として選別されたものが加わる。

※4 供給側から、東部φ20mm, φ30mm, φ150mm, 西部φ20mm, φ60mm→φ20mm(H24.11~), φ253mm の口径の開口部が多数あり回転力により攪拌, ほぐし効果を与えながら選別する。

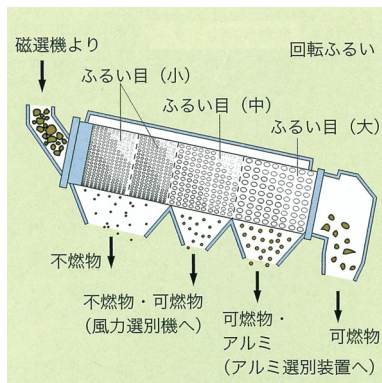


図 21 可燃物・不燃物選別装置

図 18, 図 19 より破碎可燃物中の可燃物以外の不純物としては、東部では鉄、西部では不燃物が多いという傾向が見られる。

次に、表 6 に I 期から IV 期の各期間の純度の平均値を示す。西部が、IV 期に純度（重量%）が低下し、単位容積重量が高くなっている。図 18 からわかるとおり、不燃物の混入が増加したためと考えられる。

西部では、平成 24 年 11 月より、アルミの回収量を増やすことを目的とし、図 21 中のふるい目（中）の穴の大きさを直径 60mm から 20mm に変更している。これにより、「不燃物・可燃物」の選別処理となる図 21 中のふるい目（中）の通過量が大きく減り、その後段のふるい目（大）のアルミ選別装置に回る量が増えることになり、表 4 のとおりアルミの回収量が増加している。ただ

し、これに伴い、「可燃物・アルミ（アルミ選別装置）」の選別工程で「可燃物」として選別される量も増えることから「破碎可燃物」も増えることになる。また、ふるい目（中）の通過量が大きく減るということは、今まで「不燃物」として選別されていたものが後段に回ることになり、最終的な選別物である可燃物中に不燃物の混入が増える。

表 6 破碎可燃物純度の比較

	(%)	I 期	II 期	III 期	IV 期	全期
		16~19 年度 平均	20~22 年度 平均	23~25 年度 平均	26~28 年度 平均	16~28 年度 平均
東部	純度(重量%)	77.4	81.5	81.6	76.3	79.1
	純度(容量%)	91.9	89.5	90.9	90.0	90.7
	単位容積重量(t/m ³)	0.133	0.117	0.122	0.136	0.128
西部	純度(重量%)	88.3	80.2	78.2	75.5	79.6
	純度(容量%)	88.2	84.7	89.9	88.6	87.9
	単位容積重量(t/m ³)	0.144	0.123	0.177	0.203	0.160

3.2.2.2 破碎不燃物

破碎不燃物中に占める不燃物及び不純物（可燃物・鉄・アルミ）の重量比の推移を図 22 に、容量比及び破碎不燃物の単位容積重量の推移を図 23 に示す。また、参考例として、破碎不燃物展開調査前の写真を図 24 に示す。

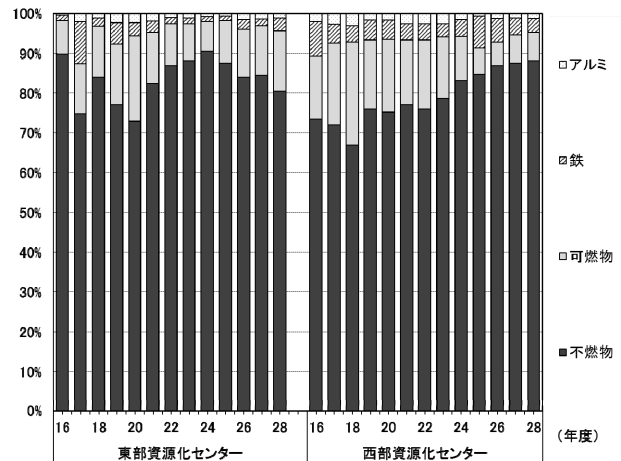


図 22 破碎不燃物組成比の推移（重量比）

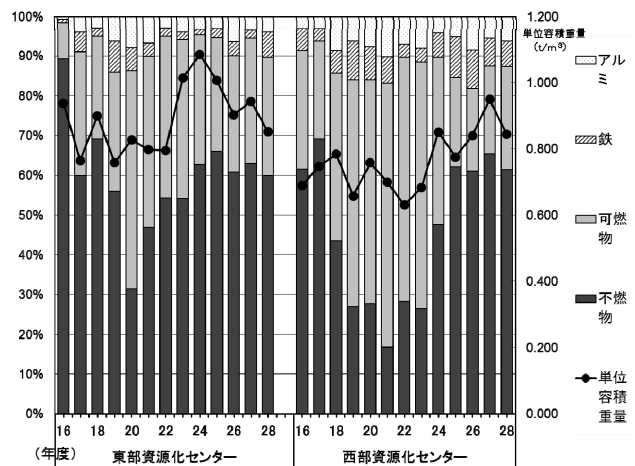


図 23 破碎不燃物組成比の推移（容量比）

破碎不燃物中の不燃物としては、図 23 の写真のとおり、土砂・ガレキ類（陶磁器破片含む.）、ガラス類破片が多く、不燃物以外の不純物としては、細かいプラスチック片、木片が多い。



図 24 展開調査前「破碎不燃物」

図 22, 図 23 より、西部にて破碎不燃物中の可燃物が減少し、破碎不燃物としての純度が上昇している。これについても、平成 24 年 11 月より、アルミの回収量を増やすことを目的とし、図 20 中のふるい目（中）の穴の大きさを直径 60mm から 20mm に変更したことによる影響と考えられる。

次に、表 7 に I 期から IV 期の各期間の破碎不燃物中の不燃物（純度）の平均値を示す。I 期から III 期までは、東部と西部の単位容積重量に差があり、純度にも差が見られたが、上記に示す西部の設備改良に伴い、IV 期では、単位容積重量がほぼ同等となり、純度については、西部の方が高くなっている。

表 7 破碎不燃物純度の比較

	(%)	I 期	II 期	III 期	IV 期	全期
		16-19 年度 平均	20-22 年度 平均	23-25 年度 平均	26-28 年度 平均	16-28 年度 平均
東部	純度(重量%)	81.5	80.7	88.7	82.9	83.3
	純度(容量%)	68.6	44.2	60.9	61.2	59.5
	単位容積重量(t/m ³)	0.839	0.806	1.034	0.899	0.890
西部	純度(重量%)	72.1	76.1	82.2	87.5	78.9
	純度(容量%)	50.3	24.2	45.4	62.7	46.0
	単位容積重量(t/m ³)	0.719	0.696	0.769	0.877	0.762

3.2.2.3 回収鉄

回収鉄中に占める鉄及び不純物（アルミ・可燃物・不燃物）の重量比を図 25 に、容量比及び回収鉄の単位容積重量の推移を図 26 に示す。また、参考例として、回収鉄展開調査前の写真を図 27 に示す。

回収鉄は破碎後の選別工程で最初に選別される破碎物である。鉄はまず図 28 に示す磁選機で選別するが、その時にプラスチック製の袋類やテープ類など絡みやすい

可燃物を一緒に巻き込み、その後の風力選別でも取り除けなかったものが不純物として混ざり込んでしまう。

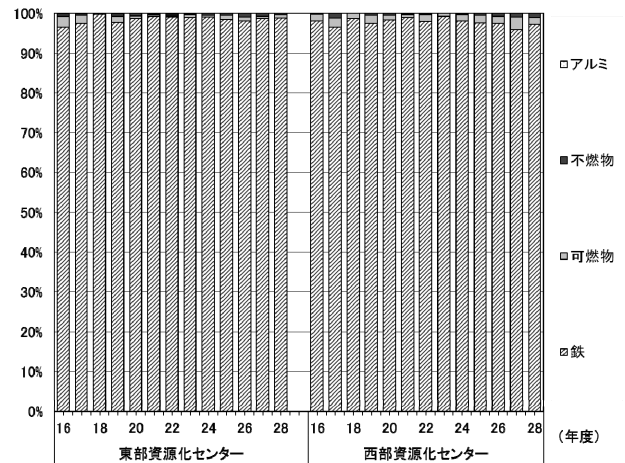


図 25 回収鉄組成比の推移（重量比）

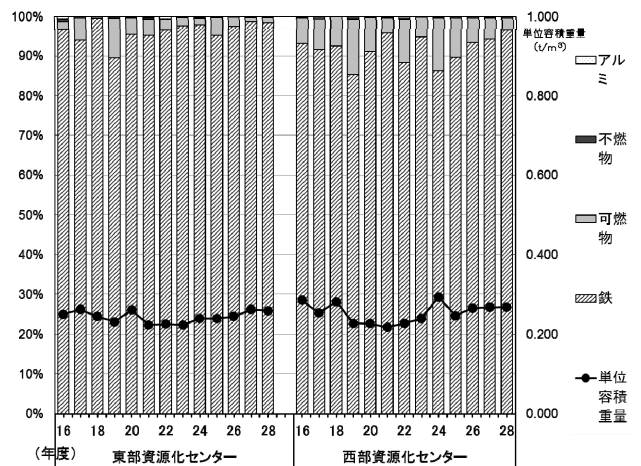


図 26 回収鉄組成比の推移（容量比）



図 27 展開調査前「回収鉄」

回収鉄中の鉄としては、図 27 の写真のとおり、飲料缶だけではなく、食用缶やその他のいろいろな形状の破碎された鉄製品が見られる。東部、西部共に、図 25 の重量比で見れば、不純物の混入は小さいが、図 26 の容量比では、不純物として可燃物の混入が多く見られる。

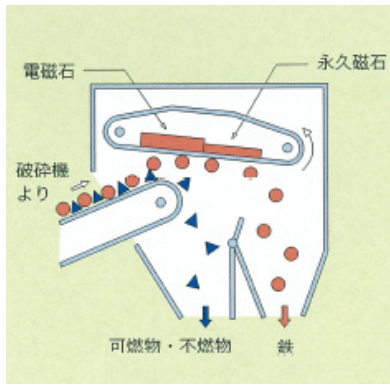


図 28 磁選機

次に、表 8 に I 期から IV 期の各期間の純度の平均値を比較したものを示す。東部、西部共に、各期で、純度（重量%）、純度（容量%）、単位容積重量で大きな差は見られなかった。

東部と西部を比較すると、純度（重量%）では差は見られないが、純度（容量%）では、西部の方が低い。これは、図 26 からわかるが、西部は東部より可燃物の混入が多く、表 2 より西部は東部より搬入ごみ中のプラスチック類の組成比が高いことも一因となっていることも考えられる。

表 8 回収鉄純度の比較

	(%)	I 期	II 期	III 期	IV 期	全期
		16~19 年度 平均	20~22 年度 平均	23~25 年度 平均	26~28 年度 平均	16~28 年度 平均
東部	純度(重量%)	97.8	99.0	98.9	98.5	98.5
	純度(容量%)	94.9	95.7	96.9	98.2	96.3
	単位容積重量(t/m ³)	0.247	0.236	0.234	0.255	0.243
西部	純度(重量%)	97.7	98.4	98.3	96.8	97.8
	純度(容量%)	90.6	91.7	90.2	94.8	91.7
	単位容積重量(t/m ³)	0.262	0.223	0.259	0.267	0.253

3.2.2.4 回収アルミ

回収アルミ中に占めるアルミ及び不純物（鉄・可燃物・不燃物）の重量比を図 29 に、容量比及び回収アルミの単位容積重量の推移を図 30 に示す。また、参考例として、回収アルミ展開調査前の写真を図 31 に示す。

回収アルミは、図 1 に示す破碎後の選別工程のうち、可燃物・不燃物選別装置の最後の開口部（最も大きい穴）を通過し、その後、図 32 に示すアルミ選別装置で選別される破碎物である。アルミ選別装置は、電磁力を利用し選別し、その後アルミ精選装置にて精選している。図 31 の写真のように、ほとんどがアルミ缶で、若干の不純物が見られる程度である。東部と西部を比較すると、図 29 及び図 30 より、西部の方が可燃物と不燃物の割合が高い。

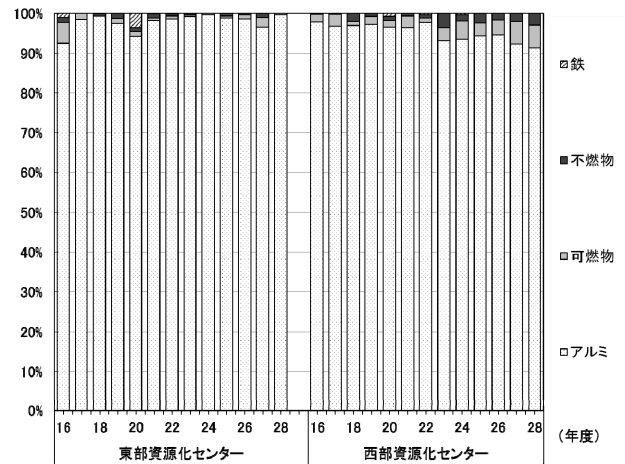


図 29 回収アルミ組成比の推移（重量比）

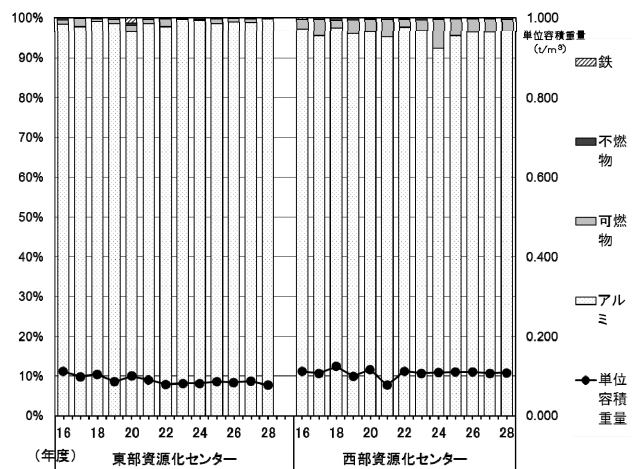


図 30 回収アルミ組成比の推移（容量比）



図 31 展開調査前「回収アルミ」

次に、表 9 に I 期から IV 期の各期間の純度の平均値の比較を示す。

各期を比較すると III 期及び IV 期の西部にて純度（重量%）が若干低くなっており、図 29 より、不燃物の混入が増えたためと思われる。これは、3.2.2.1 中に記した、アルミ回収量の増加を目的とした設備改良の影響によるものと考えられる。

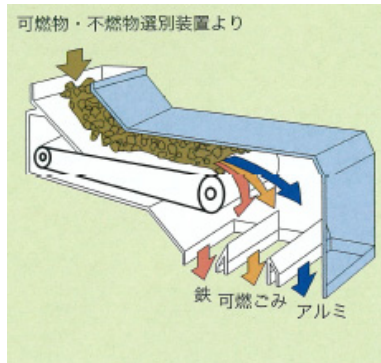


図 32 アルミ選別装置

東部と西部を比較すると、純度（容量%）にて、全期で西部の方が低く、図 29 より西部はもともと可燃物の混入が多いことがわかる。

表 9 回収アルミ純度の比較

	(%)	I 期	II 期	III 期	IV 期	全期
		16~19 年度 平均	20~22 年度 平均	23~25 年度 平均	26~28 年度 平均	16~28 年度 平均
東部	純度(重量%)	97.0	97.0	99.2	98.3	97.8
	純度(容量%)	98.6	97.8	99.2	99.6	98.8
	単位容積重量(t/m ³)	0.100	0.090	0.083	0.083	0.090
西部	純度(重量%)	97.2	96.9	93.7	92.8	95.3
	純度(容量%)	96.8	96.6	95.1	96.7	96.3
	単位容積重量(t/m ³)	0.110	0.102	0.109	0.108	0.107

3.3 減容・減量効果の推移

各年度の「資源化センターの減容・減量効果調査結果報告書」より東部・西部資源化センターの破碎選別処理による減容・減量効果結果の推移を図 33 に示す。

減容・減量効果は、図 34 の埋立量（「焼却灰推計量」及び「破碎不燃物量」）を搬入ごみ（ここでは、「資源化センター報」処理量データを使用）で除して算出している。

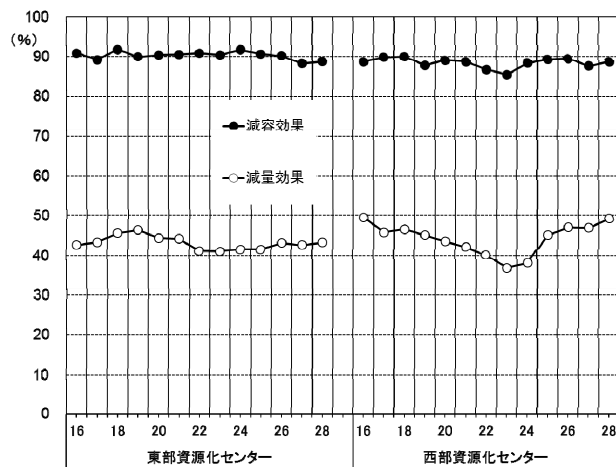


図 33 減容・減量効果結果の推移

図 33 より、東部、西部資源化センターにて、減容効

果で 88~92%、減量効果で 37~49%で推移し、減量効果の方が変動幅が大きかった。細かく見ると西部の減容・減量効果が平成 23 年度までは低下していたが、24 年度から上昇していた。これは、搬入ごみ中の金属類が減少から増加に転じたことやアルミ回収量を増やすための設備改良によるものと考えられる。設備改良については、アルミの回収量増加に伴い、破碎可燃物が増加（破碎不燃物は減少）するが、破碎可燃物は、図 34 のとおり、選別後に焼却処理されるため減容・減量効果としては、プラスの影響を及ぼすものと思われる。

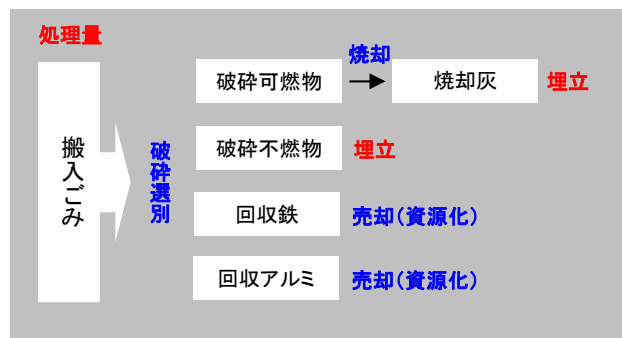


図 34 資源化センター処理フロー

次に、表 10 に I 期から IV 期の各期間の減容・減量効果の平均値の比較を示す。

各期を比較すると東部、西部共に III 期が減量効果が低くなっていた。これは、表 3 より III 期は搬入ごみ中の金属類が減少し、表 4 から回収鉄、回収アルミの処理量も減少したことが影響していると考えられる。

これらより、調査期間中において資源化センター搬入ごみは、搬入される金属類の減少等の経年変化が見られ、資源化センターの減量効果に数%の影響を与えていることが確認された。また、西部にておいては、選別処理設備の改良に伴い減量効果の向上も確認された。

表 10 減容・減量効果の比較

	(%)	I 期	II 期	III 期	IV 期	全期
		16~19 年度 平均	20~22 年度 平均	23~25 年度 平均	26~28 年度 平均	16~28 年度 平均
東部	減量効果(%)	44.5	44.3	41.4	43.1	43.2
	減容効果(%)	90.5	90.6	90.9	89.1	90.3
西部	減量効果(%)	46.8	42.0	40.0	47.7	44.3
	減容効果(%)	89.1	88.2	87.7	88.6	88.5

4 まとめ

1) 燃えないごみ関連施策の効果

表 1 に示す①~⑥の施策効果は、以下のとおりであった。

①事業系ごみ自己搬入ごみ手数料の改定

「事業系ごみ（自己搬入）」は、平成 23 年度以降増加していることから、効果は短期的であったと考えられる。

②家庭ごみ有料化

「一般家庭ごみ」は、平成 17 年度から 18 年度にかけて大きく減少しており、23 年度までは大きな効果があったと考えられるが、24 年度以降は増加していることから、以降の効果は他の要因により相殺されていると考えられる。

③事業系ごみ許可業者の搬入手数料減免率の改定

「事業系ごみ（許可業者搬入）」は、平成 16 年度より、一定の幅で減少しており、一般家庭ごみ及び事業系ごみ（自己搬入）と異なる推移をしていることから、一定の効果があって現在も継続していると考えられる。

④使用済小型電子機器回収事業の本格実施

家電製品の排出量は平成 25 年度以降も増加傾向であり、当事業（回収ボックスの設置）での回収量も年間数 t であることから、排出量に影響を与えるほどの効果は見られていない。

⑤地域集団回収報奨金アルミ缶単価増額

報奨金の増額により集団回収量が約 10%増加したことからごみ減量に一定の効果があったと考えられるが、同時期に実施した「⑥資源物持ち去り禁止条例の施行」によるごみ量の増加の影響の方が大きく、搬入ごみ量の減量としての効果は表れていない。

⑥資源物持ち去り禁止条例の施行

平成 26 年度以降の搬入ごみ中のアルミ缶推計量が顕著に増加していることや、表 4 の各破碎選別処理量において、調査期間中に特に設備の改良等を行っていない東部のⅢ期、Ⅳ期の比較で、各処理量合計が約 11%増加したのに対し、アルミの回収量が約 35%増加していることから、かなりの効果があったものと推測される。

2)搬入ごみ量の推移（搬入区分別）

搬入区分別ごみ量を東部と西部で比較すると、東部は「事業系ごみ（許可業者搬入）」が多く、西部は「一般家庭ごみ」が多いという特徴がある。東部・西部資源化センターへのごみ搬入量は、平成 17 年度から 23 年度までは減少していたが、24 年度以降は増加に転じている。増加は「一般家庭ごみ」と「事業系ごみ（自己搬入）」によるものである。

3)搬入ごみ組成の推移（重量比）

「不燃物（金属類、ガラス類、土砂・ガレキ類、家電製品、その他不燃物）」の比率は、概ね 70～80%で推移している。細かく見ると、東部・西部資源化センターとも、最も組成比率の高い「金属類」が、平成 17 年度から 25 年度までは減少していたが、26 年度からは上昇の傾向が見られる。

4)組成別搬入ごみ量の推移

金属類が大きく減少しており、プラスチック類及びガ

ラス類も減少傾向である。逆に土砂・ガレキ類は増加傾向である。これより、前段 3)の金属類の組成比率の減少については、他の組成項目のごみ量の増加でなく、金属系のごみ量が大きく減少しているものと考えられた。

5)搬入ごみ組成の推移（容量比）

「不燃物（金属類、ガラス類、土砂・ガレキ類、家電製品、その他不燃物）」の比率は、概ね 50~70%で変動しており、増加・減少の傾向は見られない。東部・西部資源化センターとも、重量比では、金属類の次にはガラス類の割合が高く、続いてプラスチック類となるが、容量比では、金属類、プラスチック類、ガラス類の順に割合が高くなっている。

6)組成別搬入ごみ容量の推移

大きく見ると平成 17 年度以降は減少傾向である。このごみ容量減少は、金属類の影響が大きい。また、プラスチック類についてもごみ容量の減少傾向が見られた。不燃ごみとして搬入される飲料缶本数は、東部・西部資源化センター共に、平成 16 年度から 23 年度までは、スチール缶とアルミ缶の本数として概ね同程度の減少を示していたが、24 年度以降は、スチール缶がそのまま減少し、アルミ缶は増加という推移になっている。飲料容器としてスチール缶からアルミ缶への移行が更に進んでいること及び 26 年度に施行された「資源物持ち去り禁止条例」の影響と思われた。

7)破碎選別処理量の推移（選別区分別）

東部・西部資源化センターとも搬入ごみ量の減少に伴い、当然ながら各破碎選別処理量の合計量も減少している。鉄の回収量は年々減少傾向にあり、平成 23 年以降は、破碎可燃物の発生量と同程度となっている。

8)破碎選別処理物組成の推移（選別区分別）

西部では、平成 24 年 11 月より、アルミの回収量を増やすことを目的とし、可燃物・不燃物選別装置（円筒式の回転式選別装置）のふるい目（中）の穴の大きさを直径 60mm から 20mm に変更した。これにより、アルミの回収量が増加した。これに伴い、西部の破碎可燃物中には、不燃物の混入が増加し、破碎不燃中には可燃物の混入が減少している。

9)減容・減量効果の推移

東部・西部資源化センターにて、減容効果 90%前後、減量効果 40~50%であった。調査期間中において、搬入ごみ中の金属類が減少した期間は、減量効果への影響が見られた。

文献

- 1) 前田茂行他：家庭系ごみ組成別排出量調査結果（平成 14~20 年度）、福岡市保健環境研究所報, 35, 127~132, 2009
- 2) 岡本拓郎他：家庭系ごみ組成別排出量調査結果（平成 17~27 年度）、福岡市保健環境研究所報, 41, 77~88, 2016
- 3) 福岡市環境局施設概要, 福岡市環境局, 10~11, 2016

SYBR Green real-time PCR 法を用いた 食品中のサルモネラ属菌スクリーニング法の検討

古賀舞香・高橋直人・松永典久・丸山浩幸

福岡市保健環境研究所保健科学課

Screening of Genus *Salmonella* in food by SYBR Green real-time PCR

Maika KOGA, Naoto TAKAHASHI, Norihisa MATSUNAGA
and Hiroyuki MARUYAMA

Health Science Section, Fukuoka City Institute for Health and the Environment

要約

迅速かつ簡便、正確なサルモネラ属菌のスクリーニング法の確立を目的に、サルモネラ属菌が特異的に保持している遺伝子のひとつである侵入性因子関連遺伝子 *invA* をターゲットとして、前培養培地から SYBR Green real-time PCR を実施後、培養法への移行の要否を決定する検査法の検討を行った。まず、サルモネラ属菌を含む 5 菌株で特異性確認試験を行った結果、サルモネラ属菌 3 菌株のみ陽性に判定され、かつ、融解曲線解析でピークが 83°C 付近にのみ確認された。次に、検出限界確認試験を行った結果、段階希釈菌液では 10⁴CFU/mL であった。また、鶏肉に段階希釈菌液を添加して前培養後に qPCR を行った結果、添加菌数に関係なく、Ct 値はほぼ一定となり、前培養培地の qPCR 結果と培養結果はすべて一致した。さらに、流通品における qPCR 結果と培養結果もすべて一致した。以上のことから、本法はスクリーニング法として有効であると考えられた。

Key Words : サルモネラ属菌 Genus *Salmonella*, 侵入性因子関連遺伝子 invasion gene *invA*, SYBR Green 定量 PCR SYBR Green real-time PCR, スクリーニング検査 Screening test, 前培養 preculture

1 はじめに

食品中のサルモネラ属菌の検査は厚生労働省通知¹⁾に従い、図 1 に示すとおり、前培養後に選択増菌する 2 段階増菌培養を行い、更に分離培養後、生化学性状試験や抗原型決定試験にて同定を行っている（以下、培養法という）。そのため、分離・同定には 5 日間以上を要し、操作も煩雑である。さらに、分離培地上でサルモネラ属菌の定型的集落と近似した集落を形成する菌の存在や、リジン陰性、硫化水素非産生等の非定型サルモネラ属菌の存在も知られており、培養法では検出が困難となる場合も少なくない。

一方、食品中の腸管出血性大腸菌 O26, O103, O111, O121, O145 及び O157 の検査については、厚生労働省通知²⁾に従い、real-time PCR にてベロ毒素遺伝子及び O 抗原遺伝子検出による増菌培地からのスクリーニングを行い、その結果で培養法への移行の要否を決定している（以下、PCR 後培養法という）。

「食品からの微生物標準試験法検討委員会」は、「最も基準となる標準的な細菌試験方法は培養法であり、規格化された標準法と、迅速法や簡便法等他の試験法を比較検討し、標準法と同等以上の精度や感度であると確認することで、それに準ずる方法と考えることができ、目的に適した試験法が広く利用できる」という旨の考えを示している³⁾。

本研究では迅速かつ簡便、正確なサルモネラ属菌のスクリーニング法の確立を目的に、サルモネラ属菌が特異的に保持している遺伝子のひとつである侵入性因子関連遺伝子 *invA*⁴⁾ をターゲットとして、SYBR Green real-time PCR（以下、qPCR という）でスクリーニングを行う PCR 後培養法の検討を行った。

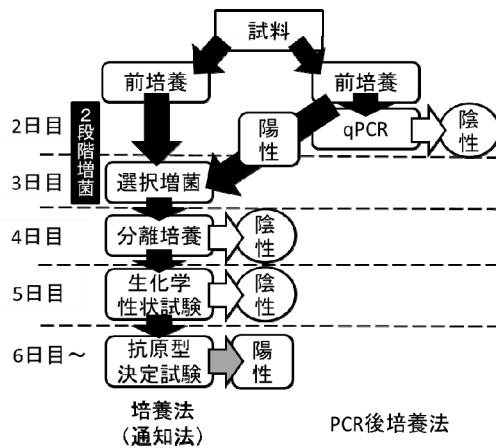


図1 検査フロー

2 実験方法

2.1 PCR 後培養法の検討

2.1.1 試料, 菌株, 試薬及び使用機器

試料：平成 27 年に市内で流通していた鶏肉

菌株：*Salmonella* Enteritidis (以下, SE という),
S.Senfteberg, *S.Schwarzengrund*,
Escherichia coli O124 (*invE*, *ipaH*),
Proteus vulgaris

試薬：Platinum SYBR Green qPCR SuperMix-UDG (invitrogen 社製)

使用機器：Mx3005P qPCR System (Agilent Technologies 社製)

2.1.2 qPCR 条件

プライマーの配列, 反応混液の組成, 反応条件は表 1~3 のとおりである。

表1 プライマーの塩基配列⁵⁾

塩基配列(5'-3')	増幅産物	Tm(°C)
(F) GATTCTGGTACTAATGGTGATGATC	288	82.6
(R) GCCAGGCTATCGCCAATAAC		

表2 反応混液の組成

試薬	容量(μL)
Platinum SYBR Green	25
プライマー F/R混液(10 μM)	1
ROX	0.1
滅菌水	18.9
テンプレート	5
計	50

表3 反応条件

条件	ステージ						
	初期変性 (1サイクル)		PCR反応 (40サイクル)		融解曲線分析 (1サイクル)		
温度 (°C)	50	95	95	60	95	55	95
時間 (秒)	120	12	15	30	60	30	30

2.1.3 特異性の確認

供試菌株 5 株の集落を TE100μL に懸濁し, 熱抽出法 (95 °C, 5 分加熱処理. 12,000rpm, 5 分遠心.) で DNA 抽出し, qPCR を行った。

2.1.4 qPCR の検出限界確認

緩衝ペプトン水 (以下, BPW という) に SE を接種, 37°C, 24 時間培養した. 12,000rpm, 10 分遠心集菌後, 滅菌水で洗浄, 遠心集菌したものを滅菌水 10mL で懸濁し, 菌体原液とした. その菌体原液を滅菌水で段階希釈し, 段階希釈菌液とした. 段階希釈菌液をトリプチケースソイ寒天培地に塗抹, 培養後集落数を計測し, 各段階希釈液の菌数オーダーを算出した。

各段階希釈菌液 100μL を熱抽出法で DNA 抽出し, qPCR を行った。

2.1.5 qPCR 結果と培養法結果の比較

段階希釈菌液各 1mL を鶏肉 4g に添加し, BPW45g を加えて, 1 分間ストマッキング処理し, 37°C, 24 時間前培養した。

前培養を行った BPW100μL をアルカリ熱抽出法 (10,000×g, 10 分遠心, 上清除去. 沈渣に 50mM NaOH 85μL を添加. 100°C, 10 分加熱処理. 1M Tris-HCl (pH7.0) 15μL を加えて中和. 10,000×g, 10 分遠心.) で DNA 抽出し, qPCR を行った。

また, 前培養を行った BPW を, テトラチオネート培地 (以下, TT 培地という) に 1mL, ラポポート・バシリアディス培地 (以下, RV 培地という) に 100μL 接種し, 37°C, 24 時間増菌培養した. 各増菌培地を DHL 寒天培地と ES サルモネラ寒天培地 II (以下, ES II 寒天培地という) に塗抹, 37°C, 24 時間培養し, 同定を行った。

2.2 流通品による比較

2.2.1 試料

試料:平成 28 年に市内で流通していた食品全 28 品(鶏正肉 8, 惣菜 9, 卵 11 検体) (以下, 流通品という)

2.2.2 流通品の qPCR 結果と培養法結果の比較

各流通品 25g に BPW225g を加えて, 1 分間ストマッキング処理し, 37°C, 24 時間前培養した. 前培養を行った BPW100μL をアルカリ熱抽出法で DNA 抽出し, qPCR を行った。

また, 前培養を行った BPW を, TT 培地に 1mL, RV 培地 100μL 接種し, 37°C, 24 時間培養した. 各増菌培地を DHL 寒天培地と ES II 寒天培地に塗抹, 37°C, 24 時間培養した。

3 実験結果

3.1 PCR 後培養法の検討

3.1.1 特異性の確認

供試菌株 5 株で検討を行った結果, サルモネラ属菌 3 株 (SE, *S.Senftenberg*, *S.Schwarzengrund*) のみが qPCR 陽性であり, 細胞侵入性に関与する病原遺伝子を保有した *Escherichia coli* O124 (*invE*, *ipaH*), 培養法でサルモネラ属菌と類似した集落を形成する *P. vulgaris* は qPCR 陰性であった. また, 図 2 のとおり, 融解曲線解析において, ピークは 83°C 付近のみであり, プライマーはサルモネラ属菌の特異的検出に機能したと確認された.

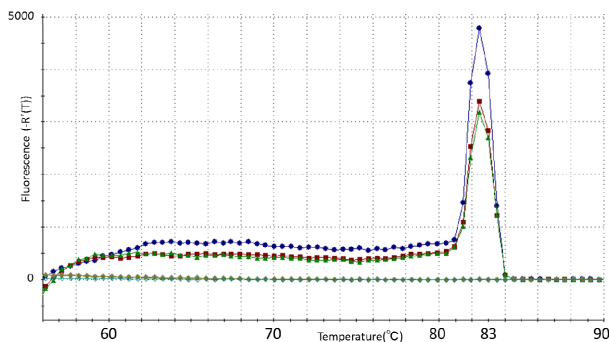


図2 融解曲線解析

3.1.2 qPCR の検出限界確認

段階希釈菌液の qPCR 結果を表 4 に示す. 検出限界は 10^4 CFU/mL であった.

表4 検出限界確認試験

菌数 オーダー (CFU/mL)	段階希釈菌液qPCR		
	qPCR結果	平均Ct値	標準偏差
10^1	-	---	---
10^2	-	---	---
10^3	-	---	---
10^4	+	38.93	0.1294
10^5	+	34.99	0.1072
10^6	+	31.09	0.1479
10^7	+	26.75	0.2366
10^8	+	22.68	0.0996
10^9	+	19.13	0.0260
NC	-	---	---

n=4

3.1.3 qPCR 結果と培養法結果との比較

前培養後の qPCR 結果と, 培養法の培養結果を表 5 に示す. 前培養後に qPCR を行うと, 添加菌数に関係なく, Ct 値はほぼ一定となり, 段階希釈菌液の Ct 値と比較すると 10^9 CFU/mL 相当の遺伝子量が得られていると推察された. また, qPCR 結果と培養結果はすべて一致した.

表5 qPCR結果と培養結果

接種菌数 オーダー (CFU)	前培養培地qPCR			培養法結果
	qPCR結果	平均Ct値	標準偏差	
10^1	+	15.63	1.760	+
10^2	+	15.37	1.502	+
10^3	+	16.01	1.261	+
10^4	+	15.50	1.226	+
10^5	+	17.19	1.048	+
10^6	+	18.43	0.4504	+
10^7	+	19.71	0.7178	+
10^8	+	18.92	1.033	+
10^9	+	17.94	1.257	+
NC	-	---	---	-

n=4

3.2 流通品の qPCR 結果と培養法結果の比較

流通品の qPCR 結果と培養法結果を表 6 に示す. 鶏肉 8 検体中 4 検体が, qPCR 結果, 培養結果ともに陽性で, 残りはすべて qPCR 結果, 培養結果ともに陰性であった. つまり, qPCR 結果と培養法結果はすべて一致した.

表6 流通品の qPCR 結果と培養法結果の比較

検体	前培養培地	培養法結果
	qPCR結果	
鶏肉	1	+
	2	+
	3	+
	4	+
	5	-
	6	-
	7	-
	8	-
肉類加工品	1	-
	2	-
	3	-
	4	-
惣菜	1	-
	2	-
	3	-
	4	-
卵	1	-
	2	-
	3	-
	4	-
	5	-
	6	-
	7	-
	8	-
液卵	1	-
	2	-
	3	-

4 考察

食品中のサルモネラ属菌の PCR 後培養法の検討を行った. その結果, プライマーはサルモネラ属菌の特異的検出に機能しており, qPCR の検出限界は 10^4 CFU/mL であった. また, 段階希釈菌液を添加した鶏肉を前培養すると, 添加菌数が少量であっても増菌して十分な遺伝子量を得ることができた. さらに, 段階希釈菌液を添加した鶏肉を前培養後行った qPCR 結果と培養法結果, 又, 流通品を前培養後行った qPCR 結果と培養法結果は, すべて一致した. 以上より, PCR 後培養法はサルモネラ属

菌のスクリーニング検査として適切であると考えられた。

検体のサルモネラ属菌汚染状態によって、次の4つの場合が想定される。

- ①検体に生菌が少量でも存在している場合：前培養で qPCR 検出限界以上に増菌され、qPCR 陽性と判定される。培養法に移行し、分離培養で集落を確認できることから、陽性の結果判定となる。
- ②検体に死菌のみが多量（約 10^5 CFU/g 以上）に存在している場合：増菌はしないが、前培養培地中に qPCR 検出限界以上存在していることとなり、qPCR 陽性と判定される。培養法に移行するが、分離培養では集落を確認できず、陰性の結果判定となる。
- ③検体に死菌のみが約 10^5 CFU/g 以下存在している場合：増菌せず、qPCR 検出限界以下しか含まれないため、qPCR 陰性と判定される。培養法に移行せず、陰性の結果判定となる。
- ④検体に生菌・死菌いずれも存在しない場合：ターゲット遺伝子が存在しないため、qPCR 陰性と判定される。培養法に移行せず、陰性の結果判定となる。

本法を用いると、qPCR 陰性は③と④のように生菌が存在しないことを意味し、検査開始の翌日に陰性の結果判定が可能であり、迅速なスクリーニング法として有効であると考えられる。一方、qPCR 陽性は①と②のように遺伝子の存在のみ判明し、培養法に移行する必要があるが、培養法に移行する検体が qPCR 陽性検体に限定される上に、生死は不明であってもサルモネラ属菌の存在

が判明した状態で検査を進めていくため、従来の培養法と比較して効率性・正確性の向上が期待できる。

今後も検討を続け、生死が判別できる方法等、より迅速かつ簡便、正確なサルモネラ属菌のスクリーニング法を確立したい。

文献

- 1) 厚生労働省通知食安発 0729 第 4 号食品：添加物等の規格基準に定めるサルモネラ属菌及び黄色ブドウ球菌の試験法の改正について、平成 27 年 7 月 29 日
- 2) 厚生労働省通知食安監発 1120 第 1 号：腸管出血性大腸菌 O26, O103, O111, O121, O145 及び O157 の検査法、平成 26 年 11 月 20 日
- 3) 食品からの微生物標準試験法検討委員会（標準法検討委員会）について、食品からの微生物標準試験法ホームページ (<http://www.nihs.go.jp/fhm/mmef/about.html>)
- 4) 松下 秀, 他：腸管感染症における LAMP 法の応用, モダンメディア, 50 巻 12 号, 293~299, 2004)
- 5) Fey, A. et al. : Establishment of a Real-Time PCR-Based Approach for Accurate Quantification of Bacterial RNA Targets in Water, Using *Salmonella* as a Model Organism, Appl. Environ. Microbiol., 70, 3618~3623, 2004

媒介蚊からのデングウイルス RNA 抽出法の検討

財津修一・古川英臣・松藤貴久・宮代守*

福岡市保健環境研究所保健科学課

*城南区保健福祉センター衛生課

Study on Dengue Virus RNA Extraction Methods from Mosquitoes

Shuichi ZAITSU, Hideomi FURUKAWA,
Takahisa MATSUFUJI and Mamoru MIYASHIRO

Health Science Section, Fukuoka City Institute of Health and Environment

*Hygiene Section, Jonan Health and Welfare Center

要約

平成 26 年 8 月に蚊媒介感染症であるデング熱の国内感染がおよそ 70 年ぶりに報告された。リアルタイム RT-PCR を用いたデングウイルス検査を行うため、ヒトスジシマカを用いてデングウイルスの RNA 抽出法を検討した。蚊の破碎, RNA 抽出及び RNA 精製法の検討を行った結果, 破碎はビーズ式破碎機でビーズ径 2.8mm と 1.4mm の混合ビーズを用い, RNA の抽出はフェノール・クロロホルム法で実施し, 精製はスピнкаラム法で実施した場合に最も良好な結果が得られた。また, 多数の検体を同時に検査する場合には, 抽出精製を操作が簡便なスピнкаラム法のみで行う方法も有用と考えられた。

Key Words: 蚊媒介感染症 Mosquito-Borne Diseases, リアルタイム RT-PCR Real-time RT-PCR, ヒトスジシマカ *Aedes albopictus*, デングウイルス dengue virus, RNA 精製 purification of RNA

1 はじめに

平成 26 年 8 月にデング熱の国内感染がおよそ 70 年ぶりに報告された。国際的な人の移動の活発化に伴い, 国内での感染があまり見られない感染症について, 海外から持ち込まれる事例が増加しており¹⁾, アジアの玄関口として海外からの観光客が多数来訪する本市においては特に患者発生時の体制を十分に整えておく必要がある。今後, デング熱の市内感染が発生した場合, 発生地域における蚊の密度調査を実施することとなるが, 併せて蚊のウイルス保有調査の実施も想定される。従前より, デングウイルスの検査について臨床検体に関しては, 国立感染症研究所監修のデングウイルス感染症診断マニュアル (<https://www.niid.go.jp/niid/images/lab-manual/Dengue2014.pdf>) を参考とし, リアルタイム RT-PCR 法により行っているところであるが, 蚊を検体とした場合の検査については実績がないことから, PCR 検査の前処理方法として蚊の破碎方法, RNA 抽出及び精製方法について検討を行った。

2 実験方法

2.1 蚊の破碎条件の検討

ビーズ式破碎機及び手動式ホモジナイザーを用いて検討を行った。本市が行った蚊の生息調査時に採取されたヒトスジシマカの雌(以下, ヒトスジシマカという。) 20 頭又は 50 頭に PBS(-) 600 μ L を添加し, ビーズ式破碎機 (Thermo Savant 社製 FastPrep FP120) を使用し, 最大スピード (6.5 m/s) で 45 秒間破碎を行った。破碎に使用するビーズは, Bertin Technologies 社製 Precellys Lysis kit CK28 (ビーズ径 2.8mm, 以下 CK28 ビーズという。), CKMix (ビーズ径 2.8mm と 1.4mm の混合, 以下 CKMix ビーズという。), CK14 (ビーズ径 1.4mm, 以下 CK14 ビーズという。) の 3 種類を用いた。また, ヒトスジシマカ 20 頭又は 50 頭に PBS(-) 200 μ L を添加し, 手動式ホモジナイザー (アズワン社製ビオラモホモジナイザーペッスル R-1.5) を用い破碎した。破碎したものについて, 破碎物の密度を 20 頭/600 μ L となるよう PBS(-) を用いて調整し, 実体顕微鏡で破碎物の状態を観察した。

2.2 リアルタイム RT-PCR 法

リアルタイム RT-PCR 装置は, Stratagene Mx3005P (Agilent Technologies) を使用し, 試薬は QuantiTect Probe RT-PCR Kit (QIAGEN) を用い, プライマー, プロローブは国立感染症研究所監修のデングウイルス感染症診断マニュアルを参考とし, 表 1 のプライマー, プロローブを用いた. また, 反応溶液の組成は表 2, 反応条件は表 3 のとおりである.

表 1 プライマー及びプロローブ

名称	配列(5'-3')
D1MEBEn469s forward	GAACATGGRACAAYTGCAACYAT
D1MEBEn536r reverse	CCGTAGTCDGTGTCAGCTGTATTTCA
D1MEBEn493p probe	FAM-ACACCTCAAGCTCC-MGB

表 2 反応溶液の組成

H ₂ O	16.5μL
QuantiTect Probe RT-PCR Master Mix	16.5μL
D1MEBEn469s (25μM)	1.0μL
D1MEBEn536r (25μM)	1.0μL
D1MEBEn493p (10μM)	1.0μL
鋳型RNA	5.0μL
Total	50.0μL

表 3 リアルタイム RT-PCR 反応条件

温度	時間	サイクル数
50°C	30min	} 40cycle
95°C	15min	
94°C	15sec	
60°C	1min	

2.3 RNA 抽出法の検討

PBS(-)1mL にヒトスジシマカ 20 頭及び国立感染症研究所より分与されたデングウイルス 1 型リアルタイム PCR 用スタンダードを 10 倍希釈したもの 10μL を加え, ビーズ式破砕機で破砕後, 3,000g, 3 分間遠心した. 上清を回収したものを検体とし, ①フェノール法 (Isogen II (ニッポンジーン) 使用), ②フェノール・クロロホルム法 (TRIzol LS (Invitrogen) 使用), ③スピнкаラム法 (QIAmp Viral RNA Minikit (QIAGEN) 使用), ④磁気ビーズ法 (Maxwell 16LEV simply RNA Tissue kit (Promega) 使用) の 4 つの方法で RNA 抽出を行った. 抽出に供する検体量はそれぞれ 140μL とした. 操作は各試薬の添付文書に従った. なお, ①及び②の方法は RNA 抽出後にそれぞれ添付文書に記載のエタノール沈殿法で

RNA 精製を行った.

2.4 RNA 精製法の検討

2.4.1 デングウイルス液の作成

デングウイルス 1 型 PCR 陽性の血清を VeroE6 細胞に接種し, 37°C, CO₂ インキュベーター (CO₂ 5%) で培養した. 盲継代を 5 回実施し, その分離液を 0.2%FBS 加 E-MEM で 10 倍希釈しデングウイルス液とした.

2.4.2 抽出に供するヒトスジシマカの乳剤の作成

PBS(-)1,000μL にデングウイルス液 10μL を加え, ここにヒトスジシマカを 20 頭又は 50 頭を加えたものをビーズ式破砕機で破砕し乳剤を作成した.

2.4.3 RNA の精製

2.4.2 で作成した乳剤各 400mL を前述のフェノール・クロロホルム法を用い RNA 抽出を行った. 得られた RNA 溶液から各 250μL をとり, ①エタノール沈殿法, ②スピнкаラム法 (QIAmp Viral RNA Minikit (QIAGEN) 使用), ③磁気ビーズ法 (Maxwell 16LEV simply RNA Tissue kit (Promega) 使用) の 3 通りの方法で精製を行った.

2.5 RNA 抽出・精製法の再検討

2.5.1 抽出に供するヒトスジシマカの乳剤の作成

PBS(-)800μL, ヒトスジシマカ 20 頭, デングウイルス液 10μL を混合したもの 8 セットを, ビーズ式破砕機により破砕し, 合わせて均一な乳剤とした.

2.5.2 RNA 抽出・精製

乳剤を①フェノール・クロロホルム法で抽出しスピнкаラムで精製, ②スピнкаラム法 (QIAmp Viral RNA Minikit (QIAGEN) 使用), ③磁気ビーズ法 (Maxwell 16LEV simply RNA Tissue kit (Promega) 使用) の 3 通りの方法で処理した.

抽出に供する乳剤の量は各キットの添付文書の記載に合わせて, ①は 400μL, ②は 140μL, ③は 200μL とした.

また, 検査者の手技によるばらつきが比較的大きいと思われる①については, 9 回試験を行い, ②及び③は各 3 回試験した.

3 結果

3.1 蚊の破砕条件の検討

検体に含まれている核酸を効率的に抽出するには, 検体をできるだけ均一に細かく粉砕するのがよいと考えられる. 実体顕微鏡で観察した結果は図 1~図 8 に示すとおり, 蚊 20 頭及び 50 頭のいずれにおいてもビーズ式破

碎機で CKMix ビーズを用いた場合に最も均一で細かく破碎された(図 3, 4)。以下, 本実験でビーズ式破碎機を使用する場合, CKMix ビーズを使用することとした。

3.2 RNA 抽出法の検討

①フェノール法, ②フェノール・クロロホルム法, ③スピнкаラム法, ④磁気ビーズ法の 4 種の方法で抽出した抽出物についてそれぞれリアルタイム RT-PCR を実施したところ, Ct 値は①が 35.21, ②が 34.85, ③が 35.69, ④が 37.05 であり, ②の方法を用いた場合に Ct 値が最も小さかった(表 4)。

表 4 RNA 抽出法の比較

RNA抽出法	精製法	Ct値
①フェノール法	エタノール沈殿法	35.21
②フェノール・クロロホルム法	エタノール沈殿法	34.85
③スピнкаラム法	—	35.69
④磁気ビーズ法	—	37.05

3.3 RNA 精製法の検討

2.4.3 に示す方法で RNA 精製後, リアルタイム RT-PCR を実施し, Ct 値を比較した。結果は表 5 のとおりである。いずれの精製方法を用いた場合も Ct 値は 20 頭を粉碎した場合と 50 頭を粉碎した場合では 20 頭を粉碎した場合のほうが Ct 値が小さかった。精製方法として②スピнкаラム法を用いた場合, 蚊の頭数にかかわらず, 3 つの精製方法の中で最も Ct 値が小さかった。

表 5 RNA 精製法の比較 (数値は Ct 値)

精製方法	蚊20頭	蚊50頭
①エタノール沈殿法	30.58	36.58
②スピнкаラム法	30.43	33.66
③磁気ビーズ法	36.75	No Ct

3.4 RNA 抽出・精製法の再検討

RNA 抽出法及び RNA 精製法の検討結果を受け, 良好と考えられる方法及び簡便な操作方法 2 法について再検討を

行った。各方法で抽出した RNA をリアルタイム RT-PCR に供した結果は表 6 のとおりである。フェノール・クロロホルム法で抽出後スピнкаラム法で精製する方法は検査者の手技によるばらつきが大きいと考えられたため 3 人で 3 検体ずつ操作を実施したが, Ct 値は 29.61 から 30.39 となり, 手技による大きな差は見られなかった。Ct 値の平均は①が 30.06, ②が 30.57, ③が 39.06 であり, ①の方法を用いた場合に Ct 値が最も小さかった。

表 6 RNA 抽出・精製法の比較 (数値は Ct 値)

RNA抽出・精製法	n数	平均	最大	最小
①フェノール・クロロホルム法で抽出, スピнкаラムで精製	9	30.06	30.39	29.61
②スピнкаラム法	3	30.57	30.70	30.37
③磁気ビーズ法	3	39.06	39.39	38.59

4 考察

比較した破碎法の中では, CKMix ビーズを用いたビーズ式破碎機での破碎が最も良好であった。また, 抽出精製の方法については, フェノール・クロロホルム法で抽出, スピнкаラムで精製する方法が最も良好な結果であった。しかし, スピнкаラムのみで抽出精製を行った場合との Ct 値の差は平均で 0.5 程度と大きいものではなく, 操作の簡便さは重要であることから, 多数の検体を同時に処理する場合には, スピнкаラム法のみで抽出精製する方法が最も適していると考えられた。

謝辞

本調査研究を実施するにあたりご協力を頂きました福岡市保健福祉局生活衛生課の皆様に深謝いたします。

文献

- 1) 厚生労働省告示第 260 号: 蚊媒介感染症に関する特定感染症予防指針, 平成 27 年 4 月 28 日厚生。労働省告示第 260 号

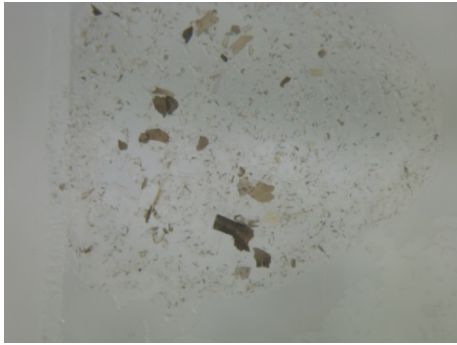


図1 蚊 50 頭のビーズ式破砕機による破砕結果
(CK28 ビーズを使用)

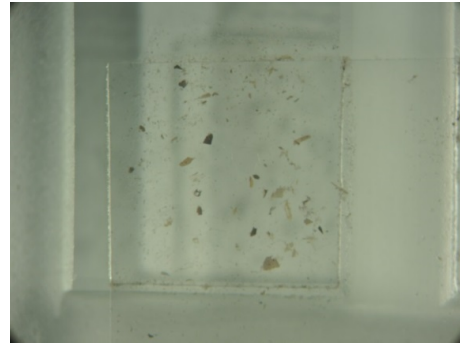


図2 蚊 20 頭のビーズ式破砕機による破砕結果
(CK28 ビーズを使用)

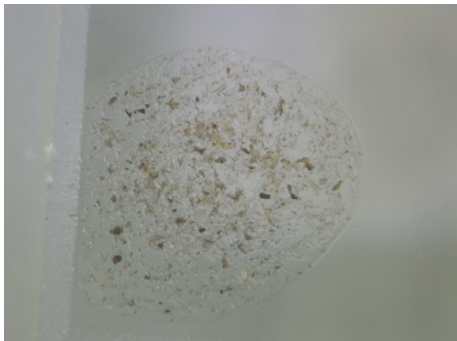


図3 蚊 50 頭のビーズ式破砕機による破砕結果
(CKMix ビーズを使用)

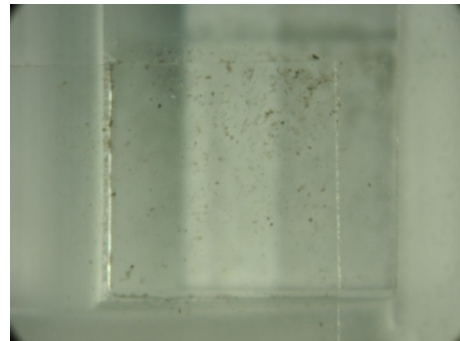


図4 蚊 20 頭のビーズ式破砕機による破砕結果
(CKMix ビーズを使用)



図5 蚊 50 頭のビーズ式破砕機による破砕結果
(CK14 ビーズを使用)

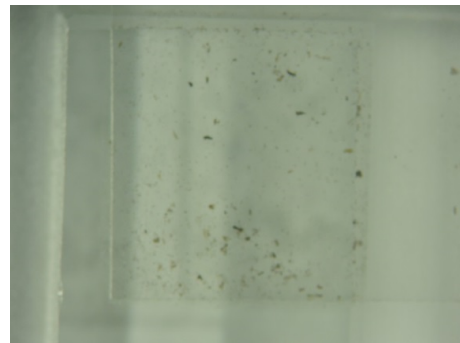


図6 蚊 20 頭のビーズ式破砕機による破砕結果
(CK14 ビーズを使用)

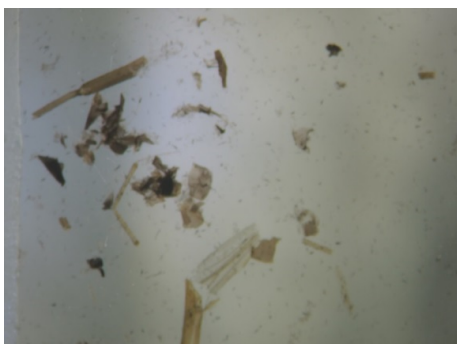


図7 蚊 50 頭の手動式ホモジナイザーによる
破砕結果

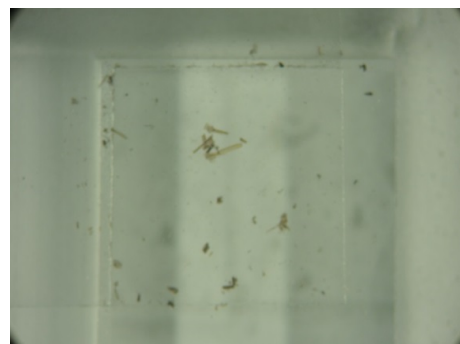


図8 蚊 20 頭の手動式ホモジナイザーによる
破砕結果

繊維製品に含まれるアゾ化合物由来の特定芳香族アミン類の試験法に関する検討

宮本道彦・宮崎悦子

福岡市保健環境研究所保健科学課

Study on testing method of primary aromatic amines (PAAs) derived from azo compounds contained in textile products

Michihiko MIYAMOTO and Etsuko MIYAZAKI

Health Science Section, Fukuoka City Institute of Health and Environment

要約

平成 28 年 4 月 1 日「有害物質を含有する家庭用品の規制に関する法律第 2 条第 2 項の物質を定める政令」が改正, 施行され, 有害物質として新たに 24 種の芳香族アミンを生成するアゾ化合物が指定されるとともに, 基準及び試験法が定められた。これに伴い, 検査体制を整備するため, GC-MS による定量分析法及び HPLC-PDA による定性分析法における分析条件の検討を実施した。GC-MS 分析による検出下限は実試料換算で 0.004~0.03 $\mu\text{g/g}$, 定量下限は実試料換算で 0.02~0.06 $\mu\text{g/g}$ であった。HPLC-PDA 分析では対象成分が概ね分離した良好なクロマトグラムが得られた。添加回収試験において, JIS L 1940-1:2014 の最低要求基準を満たしたものは半数程度に留まったため, 今後, 前処理の各工程における影響を検証する必要がある。

Key Words: アゾ化合物 azo compound, アゾ染料 azo colorant, 特定芳香族アミン類 primary aromatic amines (PAAs), 家庭用品 household products, 繊維製品 textile products, ガスクロマトグラフ質量分析計 GC-MS, 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 HPLC-PDA

1 はじめに

アゾ色素は工業分野では染料や顔料として, 食品や化粧品分野では着色料として用いられる等, 産業において広く用いられている色素である。しかし, 一部のアゾ色素は, 体内及び体表面の常在細菌, 生体内酵素により還元分解され, 発がん性を有する特定芳香族アミン(以下「特定 PAAs」という。)を生成する恐れがあることが報告されている。

このため EU や中国をはじめとした諸外国では既に規制されてきたが^{1, 2)}, 我が国においても平成 21 年に日本繊維産業連盟が, 平成 24 年に日本皮革産業連合会が自主基準を策定し運用してきた^{3, 4)}。

平成 27 年 4 月 8 日付け厚生労働省医薬食品局長通知「有害物質を含有する家庭用品の規制に関する法律第 2 条第 2 項の物質を定める政令の一部を改正する政令の制定について」により, 有害物質として新たに化学的変化により容易に 24 種の芳香族アミンを生成するアゾ化合

物が指定されるとともに, 平成 27 年 7 月 9 日付け厚生労働省医薬食品局通知「有害物質を含有する家庭用品の規制に関する法律施行規則の一部を改正する省令の制定について」により, アゾ化合物に係る基準及び試験法が定められた。改正政令及び施行規則は, 平成 28 年 4 月 1 日より施行されている^{5, 6)}。

この改正を受け, 施行規則に定められた試験法を基に, ガスクロマトグラフ質量分析計 (GC-MS) による定量分析法及び特定 PAAs が基準値を超えて検出された場合に用いる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 (HPLC-PDA) による定性分析法の分析条件の検討を行い, 併せて添加回収試験を実施したので, その結果を報告する。

2 実験方法

2.1 測定対象物質

GC-MS による分析では、測定対象物質を「有害物質を含有する家庭用品の規制に関する法律」で規制されているアゾ化合物由来の特定 PAAs 24 物質及び *p*-フェニルアゾアニリンの還元分解により生成するアニリン並びに 1,4-フェニレンジアミンの計 26 物質とした。

HPLC-PDA による分析では、上記からアニリン及び 1,4-フェニレンジアミンを除いた計 24 物質とした。測定対象物質の詳細を表 1 に示す。

表 1 測定対象物質

No.	Compound name	CAS No.
1	4-Aminodiphenyl	92-67-1
2	<i>o</i> -Anisidine	90-04-0
3	<i>o</i> -Toluidine	95-53-4
4	4-Chloro-2-methylaniline	95-69-2
5	2,4-Diaminoanisole	615-05-4
6	4,4'-Diaminodiphenyl ether	101-80-4
7	4,4'-Diaminodiphenyl sulfide	139-65-1
8	4,4'-Diamino-3,3'-dimethyldiphenylmethane	838-88-0
9	2,4-Diaminotoluene	95-80-7
10	3,3'-Dichloro-4,4'-diaminodiphenylmethane	101-14-4
11	3,3'-Dichlorobenzidine	91-94-1
12	2,4-Dimethylaniline	95-68-1
13	2,6-Dimethylaniline	87-62-7
14	3,3'-Dimethylbenzidine	119-93-7
15	3,3'-Dimethoxybenzidine	119-90-4
16	2,4,5-Trimethylaniline	137-17-7
17	2-Naphthylamine	91-59-8
18	<i>p</i> -Chloroaniline	106-47-8
19	<i>p</i> -(Phenylazo)aniline	60-09-3
20	Benzidine	92-87-5
21	2-Methyl-4-[(2-tolyl)azo]aniline	97-56-3
22	2-Methyl-5-nitroaniline	99-55-8
23	4,4'-Methylenedianiline	101-77-9
24	2-Methoxy-5-methylaniline	120-71-8
25	Aniline	62-53-3
26	1,4-phenylenediamine	106-50-3
I.S.1	Naphthalene-d ₈	1146-65-2
I.S.2	2,4,5-Trichloroaniline	636-30-6
I.S.3	Anthracene-d ₁₀	1719-06-8

2.2 試薬等

2.2.1 標準品

特定芳香族アミン類混合標準原液：関東化学社製 特定芳香族アミン類混合標準液（21 種）（環境分析用、各 100mg/L アセトニトリル溶液）

4-アミノジフェニル標準液：AccuStandard 社製 4-アミノジフェニル標準液（環境分析用、100mg/L アセトニトリル溶液）

ベンジジン標準原液：AccuStandard 社製 ベンジジン標準液（環境分析用 100mg/L アセトニトリル溶液）

2-ナフチルアミン標準原液：AccuStandard 社製 2-ナフチルアミン標準液（環境分析用 100mg/L アセトニトリル溶液）

アニリン/1,4-フェニレンジアミン混合標準原液：関東化学社製 アニリン/1,4-フェニレンジアミン混合標準液（環境分析用、各 100mg/L アセトニトリル溶液）

2.2.2 内部標準物質

ナフタレン-d₈ 標準品：関東化学社製 ナフタレン-d₈ 標準品（環境分析用）

2,4,5-トリクロロアニリン標準品：関東化学社製 2,4,5-トリクロロアニリン標準品（環境分析用）

アントラセン-d₁₀ 標準品：関東化学社製 アントラセン-d₁₀ 標準品（環境分析用）

2.2.3 その他の試薬等

メチル-tert-ブチルエーテル (MTBE)：関東化学社製 残留農薬試験・PCB 試験用（5,000 倍濃縮検定品）

メタノール：関東化学社製 残留農薬試験・PCB 試験用（5,000 倍濃縮検定品）

10%水酸化ナトリウム水溶液：水酸化ナトリウム（和光純薬工業社製 特級）2g を超純水 98mL に溶解させたものを用いた。

クエン酸緩衝液：クエン酸一水和物（和光純薬工業社製 特級）12.526g 及び水酸化ナトリウム 6.320g を超純水に溶解し、1,000mL としたもの（pH6.0）を用いた。

亜ジチオン酸ナトリウム水溶液：亜ジチオン酸ナトリウム（関東化学社製 特級）20g を超純水に溶解し、100mL としたものを用いた。

ケイソウ土カラム：ジーエル・サイエンス社製 InertSep K-Solute 20mL

HPLC 移動相 A：リン酸二水素カリウム（和光純薬工業社製 特級）0.68g を超純水に溶解して 1,000mL としたものに、メタノール（和光純薬工業社製 高速液体クロマトグラフィー用）150mL を加えたものを用いた。

HPLC 移動相 B：メタノール（和光純薬工業社製 高速液体クロマトグラフィー用）

2.3 機器等

GC-MS：島津製作所社製 GCMS-QP2020

HPLC-PDA：島津製作所社製 Nexera XR シリーズ（ポンプ①：LC-20ADXR, ポンプ②：LC-20ADXR, デガッサー：DGU-20A5R, オートサンプラー：SIL-20ACXR, カラムオーブン：CTO-20AC, PDA 検出器：SPD-M30A（85mm 高感度セル））

超純水製造装置：オルガノ社製 PURERAB flex-UV 及びその前処理装置としてオルガノ社製 PURELITE

PRB-002A を用いた。

ロータリーエバポレーター：ビュッヒ社製 R-210, B-491, V-700, V-850 及び R-100, B-100, V-100, I-100 を用いた。冷却循環装置として柴田化学社製 CoolMan PAL C-331 を用いた。

2.4 GC-MS による分析

2.4.1 標準溶液の調製

ナフタレン-d₈ 標準品, 2,4,5-トリクロロアニリン標準品及びアントラセン-d₁₀ 標準品をそれぞれメタノールに溶解し, 1,000µg/mL とした。これらを等容量混合したものに MTBE を加えて希釈し, 各 100µg/mL とした。さらにこれを MTBE で希釈し, 各 10µg/mL としたものを内部標準溶液とした。

特定芳香族アミン類混合標準原液, 4-アミノジフェニル標準原液, ベンジジン標準原液, 2-ナフチルアミン標準原液及びアニリン/1,4-フェニレンジアミン混合標準原液を等容量混合したものに MTBE を加えて希釈し, 10µg/mL 混合標準液 (26 種) とした。この 10µg/mL 混合標準液 (26 種) を MTBE で適宜希釈し, その 1mL を正確に採り, 内部標準溶液 50µL を正確に加えたものを標準溶液とした。

2.4.2 GC-MS 測定条件

GC-MS 測定条件は, 施行規則に示される試験法に基づき, 以下の表 2 のとおりとした。

表 2 GC-MS 測定条件

カラム	Rtx-35MS 内径0.32mm, 長さ30m, 膜厚0.25µm (レステック社製)
キャリアガス	He
流速	1.0mL/min
昇温条件	55°C(5min)-15°C/min-230°C(0min)- 5°C/min-290°C(0min)-20°C/min-
注入口温度	280°C
注入量	2µL
注入方法	スプリット(10:1)
インターフェース温度	280°C
イオン源温度	230°C
イオン化法	EI

2.4.3 検量線の直線性の検討

0.01, 0.02, 0.05, 0.1, 0.2, 0.5, 1.0, 2.0, 3.0µg/mL に調製した標準溶液を測定, 得られた測定対象物質と内部標準物質のピーク面積比から検量線を作成し, その決定係数 (r^2) を確認した。

2.4.4 検出下限及び定量下限の検討

0.0075, 0.01, 0.02, 0.05, 0.075µg/mL 標準溶液を測定し, 得られた測定対象物質と内部標準物質のピーク面積

比から検量線を作成した。0.01µg/mL 標準液を 10 回繰り返し測定した定量値の標準偏差 (σ) から, 以下に示す式により算出した下限値 (µg/mL) を実試料の下限値 (µg/g) に換算した。

$$\text{検出下限 (µg/mL)} : LOD = 3\sigma$$

$$\text{定量下限 (µg/mL)} : LOQ = 10\sigma$$

2.4.5 添加回収試験

50mL 容ガラス製ねじ口びんを反応容器とし, 細切した無着色の綿製品 1.0g を入れた反応容器に特定芳香族アミン類混合標準原液, 4-アミノジフェニル標準液, ベンジジン標準原液及び2-ナフチルアミン標準原液を特定 PAAs 各 3µg/mL となるように入れ, 施行規則に示される試験法に従い前処理を行い, MTBE で 10mL に定容したものを試験溶液とした。試験溶液 1mL を正確に採り, 内部標準溶液 50µL を正確に加えたものを GC-MS 分析に供した。操作フローを図 1 に示す。

今回の添加回収試験では, 前処理の還元工程により 2-メチル-5-ニトロアニリンは 2,4-ジアミノトルエンに, 2-メチル-4-[2-トリルアゾ]アニリンは *o*-トルイジンに, *p*-フェニルアゾアニリンはアニリン及び 1,4-フェニレンジアミン分解されるため, これら 7 物質を除いた 19 物質を対象とした。

2.5 HPLC-PDA による分析

2.5.1 標準溶液の調製

特定芳香族アミン類混合標準原液, 4-アミノジフェニル標準原液, ベンジジン標準原液及び2-ナフチルアミン標準原液を等容量混合したものにメタノールを加え 10µg/mL 混合標準液 (24 種) とした。これをメタノールで希釈し, 3µg/mL としたものを標準溶液とした。

2.5.2 HPLC-PDA 測定条件

HPLC-PDA 測定条件は, 施行規則に示される試験法に基づき, 以下の表 3 のとおりとした。

表 3 HPLC-PDA 測定条件

カラム	Zorbax Eclipse XDB-C18 内径4.6mm, 長さ150mm, 粒径3.5µm (アジレント・テクノロジー社製)
カラム温度	32°C
グラジエント条件	10%B(0min)-(22.5min)-55%B(0min)- (5min)-95%B(1min)-(0.5min)-
流速	0.6mL/min(27.5min)-(1min)- 2mL/min(0min)-(2.5min)-
注入量	5µL
測定波長	240, 260, 280, 380nm (200~600nm)

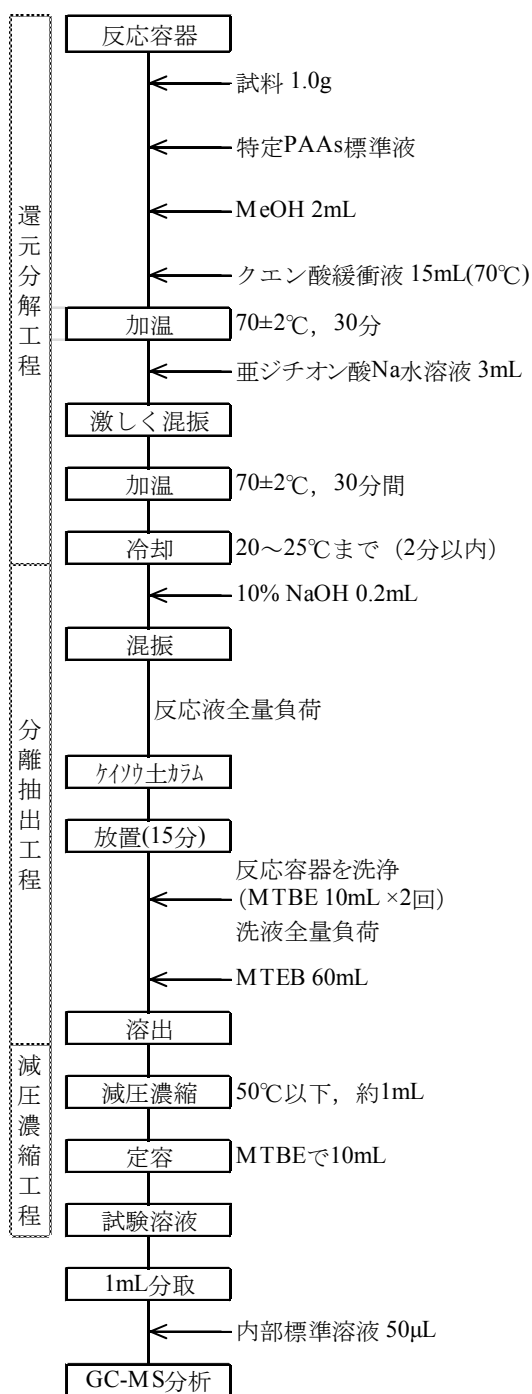


図1 添加回収試験操作フロー

3 結果及び考察

3.1 GC-MS 分析の結果

3.1.1 MS 条件の検討

施行規則に示される試験法では、各測定対象物質について SIM モードでモニターすべきイオンが各測定対象物質につき 1 種のみ示されているが、改めて確認を行った。電子イオン化 (EI) 法により各測定対象物質を SCAN モード (m/z 40~400) で測定し、得られた MS スペクト

ルを基に施行規則に示される試験法、河上らの報告⁷⁾、菅谷らの報告⁸⁾を参考に定量イオン及び確認イオンを決定した。なお、SIM モードでの検出感度向上を目的とし、保持時間を基に 8 つのタイムセグメントに区切り、各タイムセグメントの走査時間を 0.20 秒として測定した。各測定対象物質及び内部標準物質の保持時間及び MS 条件を表 4 に示す。内部標準物質添加 0.1μg/mL 混合標準溶液 (26 種) を SIM モードで測定したトータルイオンクロマトグラム (TIC) を図 2 に示す。

3.1.2 検量線の直線性

2.4.3 により各測定対象物質について作成した検量線の決定係数 (r^2) は 0.996~0.999 であり、良好な直線性を示した。

3.1.3 検出下限及び定量下限

2.4.4 により、検出下限及び定量下限を求めた結果、検出下限は実試料換算で 0.004~0.03μg/g、定量下限は実試料換算で 0.02~0.06μg/g であり、基準値の 30μg/g に対し、十分な感度が得られた。各測定対象物質の下限値は表 5 に示す。

3.1.4 添加回収試験

2.4.5 により添加回収試験を実施した結果、JIS L 1940-1 にある回収率の最低要求基準⁹⁾ (最低要求基準が示されていない物質については 70% とした。) を満たした測定対象物質は、19 物質中 11 物質であった。JIS L 1940-1 に「制御されていない状態で溶剤の除去を行った場合は、かなりの量のアミンが損失する可能性がある」との注記があり、減圧濃縮工程における設定条件が回収率に影響していると考え、当初の設定条件 (45°C, 100hPa) より緩やかな条件 (40°C, 350hPa) で再度、同様の添加回収試験を行ったが、回収率の改善は認められなかった (表 7)。

2,4-ジアミノトルエンや 2,4-ジアミノアニソール等のような比較的不安定なアミンは、分離・濃縮の過程でアミノ基が酸化されることが報告されており、これが低回収率となった原因の 1 つと推察される。酸化による回収率の低下の改善策として、特定 PAAs のアミノ基をアシル化し、酸化を受けない安定な誘導体として分析する方法^{10, 11)} や同位体標識された特定 PAAs を内部標準物質として用いる同位体希釈質量分析 (ID-MS) 法¹²⁾ が報告されている。しかし、前者の方法では、測定対象となる特定 PAAs の全てがアシル化できるものではないという点、後者の方法では、市販されている同位体標識された特定 PAAs が限定されている点から、現時点では課題が残るものとなっている。

今回検討した試験法の前処理は大きく 3 つの工程に分かれており、順に亜ジチオン酸ナトリウムによるアゾ色素の還元分解工程、ケイソウ土カラムによる水の除去及び特定 PAAs の分離抽出工程、エバポレーターを用いた減

圧濃縮工程が挙げられるが、酸化が原因の損失である場合、特に注意を要する工程は、還元工程後の抽出工程と減圧濃縮工程であると推察できる。まずは現行の試験法の各工程が回収率に与える影響を詳細に検証し、特定PAAsの損失につながる工程を特定した上で、改善を図ることが必要である。

3.2 HPLC-PDA による分析の結果

2.5.2 で示した方法により、各測定対象物質が概ね分離されたクロマトグラムが得られた。4,4'-ジアミノジフェニルスルフィドと2,4-ジメチルアニリン、4,4'-ジアミノ-3,3'-ジメチルジフェニルメタンと2,4,5-トリメチルアニリンについては、十分な分離が得られなかったが、溶離液中の溶媒の変更やカラムの変更により分離が可能であると考えられる。また、施行規則に示される試験法では、検出波長として240, 280, 305, 380nm等と例示されているが、4,4'-ジアミノジフェニルスルフィドについてはUV吸収スペクトルの吸収極大から260nmでの検出が適切であると考えられた。3 μ g/mL混合標準液(24種)を測定した保持時間及び検出波長を表6に、PDAクロマト

グラムを図3に示す。

4 まとめ

アゾ化合物に由来する特定PAAs24種、アニリン及び1,4-フェニレンジアミンの計26物質について、GC-MSによる定量分析及びHPLC-PDAによる定性分析における分析条件の検討を実施した。条件検討の結果、GC-MS分析における検量線の決定係数(r^2)は0.996~0.999であり、良好な直線性を示した。また、検出下限は実試料換算で0.004~0.03 μ g/g、定量下限は実試料換算で0.02~0.06 μ g/gであり、基準値の30 μ g/gに対し、十分な感度が得られた。HPLC-PDA分析では対象成分が概ね分離した良好なクロマトグラムが得られた。添加回収試験では、JIS L 1940-1:2014にある回収率の最低要求基準を満たした測定対象物質は、19物質中11物質であった。前処理の各工程における回収率への影響を検証し、改善を図る必要がある。

表4 GC-MS分析パラメーター

No.	Compound name	M.W.	Segment Group	I.S. Group	R.T. (min)	Monitor Ion (m/z)		
						Quantifier	Qualifier 1	Qualifier 2
25	Aniline	93	1	1	9.66	93	66	65
3	<i>o</i> -Toluidine	107	2	1	10.93	106	107	79
12	2,4-Dimethylaniline	121	3	1	11.94	121	106	120
13	2,6-Dimethylaniline	121	3	1	12.00	121	106	120
I.S.1	Naphthalene-d ₈	136	3	1	12.09	136	108	137
2	<i>o</i> -Anisidine	123	3	1	12.28	123	108	80
18	<i>p</i> -Chloroaniline	127	3	1	12.63	127	129	92
24	2-Methoxy-5-methylaniline	137	3	1	13.19	122	137	94
16	2,4,5-Trimethylaniline	135	3	1	13.23	120	135	134
26	1,4-phenylenediamine	108	3	2	13.59	108	80	107
4	4-Chloro-2-methylaniline	141	3	2	13.61	106	141	140
9	2,4-Diaminotoluene	122	4	2	14.80	122	121	94
5	2,4-Diaminoanisole	138	4	2	15.65	123	138	95
I.S.2	2,4,5-Trichloroaniline	196	4	2	15.86	195	197	124
17	2-Naphthylamine	143	4	2	16.27	143	115	116
22	2-Methyl-5-nitroaniline	152	4	2	16.73	152	106	77
1	4-Aminodiphenyl	169	5	3	17.91	169	168	141
I.S.3	Anthracene-d ₁₀	188	5	3	18.03	188	94	80
19	<i>p</i> -(Phenylazo)aniline	197	6	3	21.61	92	197	120
6	4,4'-Diaminodiphenyl ether	200	6	3	22.53	200	108	171
20	Benzidine	184	6	3	22.65	184	185	156
23	4,4'-Methylenedianiline	198	6	3	22.68	198	106	197
21	2-Methyl-4-[(2-tolyl)azo]aniline	225	6	3	23.67	106	225	134
8	4,4'-Diamino-3,3'-dimethyldiphenylmethane	226	7	3	24.48	226	211	225
14	3,3'-Dimethylbenzidine	212	7	3	25.05	212	106	196
7	4,4'-Diaminodiphenyl sulfide	216	8	3	26.67	216	184	80
11	3,3'-Dichlorobenzidine	252	8	3	27.08	252	254	127
10	3,3'-Dichloro-4,4'-diaminodiphenylmethane	266	8	3	27.20	231	266	195
15	3,3'-Dimethoxybenzidine	244	8	3	27.36	244	201	229

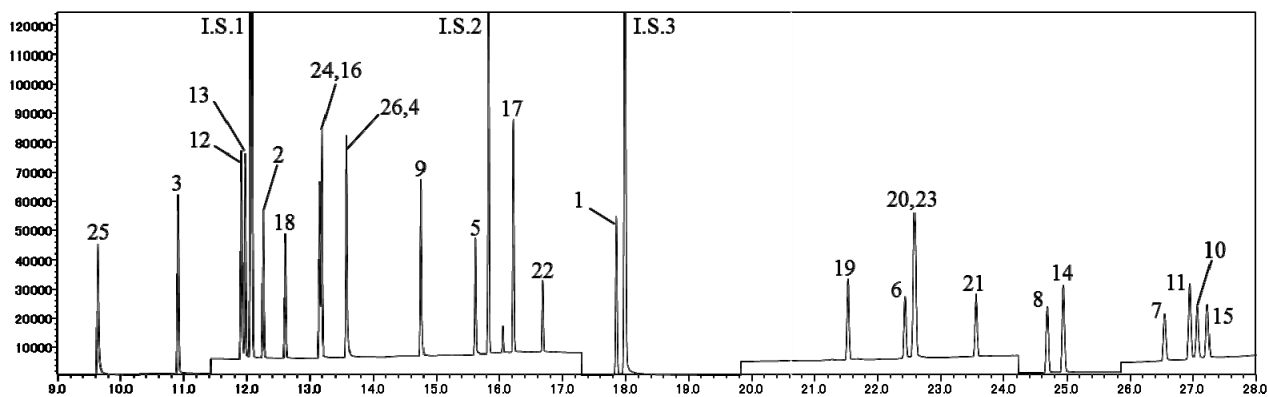
図2 GC-MS SIMトータルイオンクロマトグラム (内部標準物質添加0.1 μ g/mL混合標準溶液 (26種))

表5 GC-MS検出下限及び定量下限

No.	Compound name	LOD (μ g/g)	LOQ (μ g/g)
1	4-Aminodiphenyl	0.004	0.02
2	<i>o</i> -Anisidine	0.009	0.03
3	<i>o</i> -Toluidine	0.006	0.02
4	4-Chloro-2-methylaniline	0.02	0.05
5	2,4-Diaminoanisole	0.02	0.04
6	4,4'-Diaminodiphenyl ether	0.02	0.05
7	4,4'-Diaminodiphenyl sulfide	0.02	0.06
8	4,4'-Diamino-3,3'-dimethyldiphenylmethane	0.02	0.04
9	2,4-Diaminotoluene	0.009	0.03
10	3,3'-Dichloro-4,4'-diaminodiphenylmethane	0.02	0.04
11	3,3'-Dichlorobenzidine	0.02	0.05
12	2,4-Dimethylaniline	0.01	0.04
13	2,6-Dimethylaniline	0.01	0.04
14	3,3'-Dimethylbenzidine	0.02	0.04
15	3,3'-Dimethoxybenzidine	0.02	0.05
16	2,4,5-Trimethylaniline	0.009	0.03
17	2-Naphthylamine	0.005	0.02
18	<i>p</i> -Chloroaniline	0.007	0.03
19	<i>p</i> -(Phenylazo)aniline	0.02	0.04
20	Benzidine	0.02	0.04
21	2-Methyl-4-[(2-tolyl)azo]aniline	0.02	0.06
22	2-Methyl-5-nitroaniline	0.02	0.05
23	4,4'-Methylenedianiline	0.03	0.07
24	2-Methoxy-5-methylaniline	0.007	0.03
25	Aniline	0.02	0.04
26	1,4-phenylenediamine	0.02	0.06

表6 HPLC-PDA 保持時間及び検出波長

No.	Compound name	R.T. (min)	λ (nm)
5	2,4-Diaminoanisole	3.84	240
9	2,4-Diaminotoluene	4.66	240
20	Benzidine	10.93	280
6	4,4'-Diaminodiphenyl ether	11.57	240
2	<i>o</i> -Anisidine	12.86	240
3	<i>o</i> -Toluidine	14.10	240
23	4,4'-Methylenedianiline	16.76	240
18	<i>p</i> -Chloroaniline	17.72	240
22	2-Methyl-5-nitroaniline	18.04	240
15	3,3'-Dimethoxybenzidine	18.49	280
14	3,3'-Dimethylbenzidine	18.81	280
24	2-Methoxy-5-methylaniline	19.14	240
7	4,4'-Diaminodiphenyl sulfide	19.74	260
12	2,4-Dimethylaniline	19.83	240
13	2,6-Dimethylaniline	20.23	240
17	2-Naphthylamine	21.58	240
4	4-Chloro-2-methylaniline	23.19	240
8	4,4'-Diamino-3,3'-dimethyldiphenylmethane	24.30	240
16	2,4,5-Trimethylaniline	24.55	240
1	4-Aminodiphenyl	26.71	280
11	3,3'-Dichlorobenzidine	27.45	280
19	<i>p</i> -(Phenylazo)aniline	27.87	380
10	3,3'-Dichloro-4,4'-diaminodiphenylmethane	27.98	240
21	2-Methyl-4-[(2-tolyl)azo]aniline	28.67	380

表7 GC-MS添加回収試験における回収率, 変動係数 (CV%) 及び回収率の最低要求基準

No.	Compound name	45°C, 100hPa (n=6)		40°C, 350hPa (n=6)		Minimum requirement for recovery(%)
		Recovery(%)	CV%	Recovery(%)	CV%	
12	2,4-Dimethylaniline	86.0	5.4	79.6	4.5	-
13	2,6-Dimethylaniline	100.0	2.2	91.0	3.4	-
2	<i>o</i> -Anisidine	98.5	1.9	89.1	3.4	70
18	<i>p</i> -Chloroaniline	86.7	7.7	73.3	7.4	70
22	2-Methoxy-5-methylaniline	98.1	2.6	88.0	3.3	70
16	2,4,5-Trimethylamine	83.8	6.7	75.6	6.1	70
4	4-Chloro-2-methylaniline	85.1	3.9	80.9	4.0	70
5	2,4-Diaminoanisole	0.0	0.0	1.7	156.2	20
17	2-Naphthylamine	66.2	10.4	67.2	6.9	70
1	4-Aminodiphenyl	75.5	6.5	67.3	9.1	70
6	4,4'-Diaminodiphenyl ether	7.2	67.5	9.9	67.5	70
20	Benzidine	11.5	48.7	20.2	44.0	70
23	4,4'-Methylenedianiline	34.4	183.2	17.5	50.3	70
8	4,4'-Diamino-3,3'-dimethyldiphenylmethane	37.7	35.6	44.2	16.9	70
14	3,3'-Dimethylbenzidine	32.1	37.8	44.6	15.8	70
7	4,4'-Diaminodiphenyl sulfide	54.2	11.0	51.0	10.5	70
11	3,3'-Dichlorobenzidine	93.6	4.6	81.7	4.0	70
10	3,3'-Dichloro-4,4'-diaminodiphenylmethane	91.9	4.9	80.4	4.4	70
15	3,3'-Dimethoxybenzidine	49.7	27.1	61.0	6.7	70

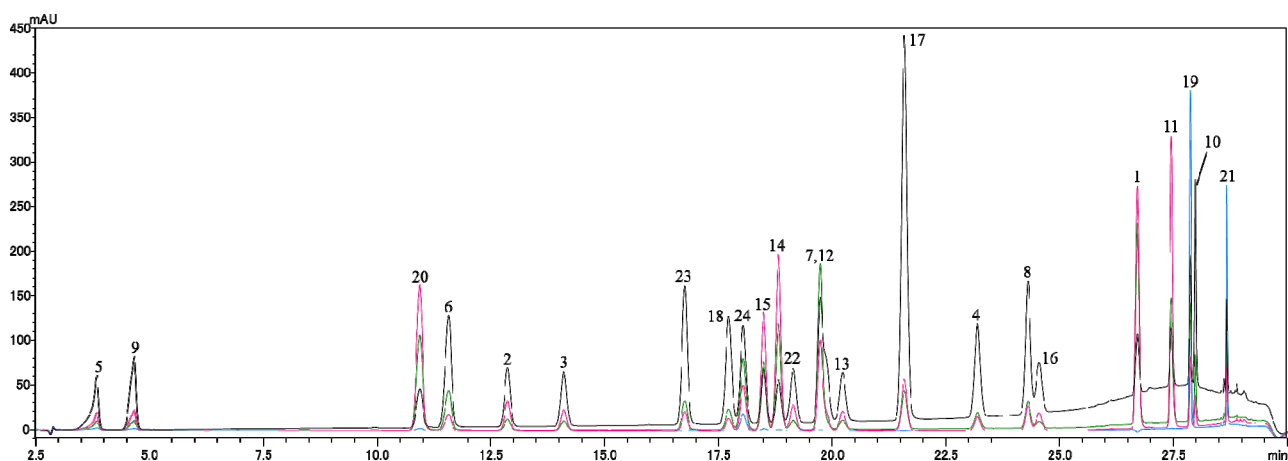


図3 HPLC-PDA クロマトグラム (3µg/mL混合標準溶液 (24種))

文献

- European Commission, COMMISSION REGULATION (EC) No 552/2009 of 22 June 2009, amending Regulation (EC) No 1907/2006 of the European Parliament and of the Council on the Registration, Evaluation, Authorisation and Restriction of Chemicals (REACH) as regards Annex XVII, Official Journal of the European Union, L 164/23, 26.6.2009
- 中華人民共和国国家質量監督檢驗檢疫総局 中国国家標準化管理委員会, 中華人民共和国国家標準 GB18401-2010 国家紡績產品基本安全技術規範, 中国標準出版社, 2011
- 日本繊維産業連盟, 繊維製品に係る有害物質の不使用に関する自主基準, 平成21年12月22日
- 社団法人 日本皮革産業連合会, 皮革製品に係る有害物質の不使用に関する自主基準, 平成24年3月23日
- 厚生労働省医薬食品局長通知 薬食発0408第1号: 有害物質を含有する家庭用品の規制に関する法律第2条第2項の物質を定める政令の一部を改正する政令の制定について, 平成27年4月8日
- 厚生労働省医薬食品局長通知 薬安発0709第1号: 有害物質を含有する家庭用品の規制に関する法律施行規

- 則の一部を改正する省令の制定について, 平成27年7月9日
- 7) Kawakami, T., Isama, K., Nishimura, T. : Survey of primary aromatic amines originating from azo dyes in commercial textile products in direct contact with skin and in commercial leather products in Japan., *Journal of Environmental Chemistry*, 22, 197-204, 2012
- 8) 菅谷なえ子, 佐藤芳樹, 高橋美津子, 桜井克巳, 河上強志 : 繊維製品に含まれるアゾ色素由来の特定芳香族アミンの分析及びその原因色素の探索, *薬学雑誌*, 137(1), 95-109, 2017
- 9) 日本工業規格 JIS L 1940-1:2014 : 繊維製品 - アゾ色素由来の特定芳香族アミンの定量方法 - 第1部: 繊維の抽出及び非抽出による特定アゾ色素使用の検出
- 10) 大西雅之 : 工業製品中の欧州規制対象物質試験法, *住友化学*2009-II, 57-66, 2009
- 11) 株式会社住化分析センター : アミン類の分析方法, 特開2010-236874, 2010
- 12) 宮本綾乃 : 繊維製品に含まれる有害物質の定量分析法に関する調査研究～特定芳香族アミンの法規制化に向けて～, *産業技術総合研究所計量標準報告*, 9(3), 341-353, 2016

海産物中の有機ヒ素分析法開発

戸渡寛法・宮崎悦子・中牟田啓子・赤木浩一*・片岡洋平**・渡邊敬浩**

福岡市保健環境研究所保健科学課

*福岡市水道局浄水部水道水質センター

**国立医薬品食品衛生研究所

Development of Analytical Method for Organic Arsenic in Seafood

Hironori TOWATARI, Etsuko MIYAZAKI, Keiko NAKAMUTA, Kouichi AKAKI,
Yohei KATAOKA and Takahiro WATANABE

Health Science Section, Fukuoka City Institute of Health and Environment

Water Quality Center, Water Purification Section, Fukuoka City Waterworks Bureau

National Institute of Health Sciences

要約

ヒ素化合物摂取による健康リスクを評価するための基礎データの取得に不可欠な分析法として、LC-MS/MSを用いた食品中の有機ヒ素化合物6種（モノメチルアルソン酸、ジメチルアルシン酸、トリメチルアルシンオキサイド、テトラメチルアルソニウム、アルセノベタイン、アルセノコリン）の一斉分析法を開発した。この分析法の性能を評価するために、認証試料及び添加試料を分析した。また、ICP-MSを用いた総ヒ素分析を併行して行い、結果を比較した。認証試料の分析結果と付与されていた認証値との比較から、開発した分析法のアルセノベタインを対象とした真度は78%、総ヒ素分析法の真度は102%と推定された。添加試料の分析結果から、回収率はテトラメチルアルソニウムで13%と低かったものの、その他5種の有機ヒ素化合物では47~116%、総ヒ素では109%であった。性能評価した分析法を用いて、福岡市内に流通していた魚介類8試料を分析した結果、すべての試料からアルセノベタインが0.86~5.2 mg/kgの濃度（ヒ素として）で検出され、試料の総ヒ素濃度の5割程度を占めることが明らかになった。

Key Words : 有機ヒ素化合物 organic arsenic compounds, 海産物 seafood, 高速液体クロマトグラフタンデム質量分析装置 LC-MS/MS, 誘導結合プラズマ質量分析装置 ICP-MS

1 はじめに

ヒ素は、無機態に加え、モノメチルアルソン酸(MMA)、ジメチルアルシン酸(DMA)、トリメチルアルシンオキサイド(TMAO)、テトラメチルアルソニウム(TeMA)、アルセノベタイン(AB)、アルセノコリン(AC)などの有機態の化合物として環境中に広く存在しており、異なる毒性を持つことが知られている。また、植物性の食品や海産物などにもヒ素化合物は含まれるが、形態は食品の種類に応じて異なっている。さらに近年、ヒ素化合物の長期摂取による健康リスクが懸念されている。精密なリスク評価のためには形態別の摂取量推定が不可欠であり、その推定の基礎となるデータを得るためのヒ素形

態別分析法の開発が求められている。ヒ素形態別分析法としては高速液体クロマトグラフ誘導結合プラズマ質量分析装置(HPLC-ICP-MS)を用いた方法が報告されているが、この方法では液体クロマトグラフィーによるヒ素化合物の完全な分離が必要であり、イオンペア試薬による機器の汚染などの課題がある。

そこで本研究では、完全分離の必要がなく、食品中の残留農薬等の分析で広く使用されている高速液体クロマトグラフタンデム質量分析装置(LC-MS/MS)による有機ヒ素形態別分析法を開発した。また、魚肉を基材とする認証試料や添加試料の分析を通じて性能を評価した後、福岡市内を流通していた海産物を分析した。以上の結果を、分析結果の適正を判断するために併行して実施

した誘導結合プラズマ質量分析装置 (ICP-MS) による総ヒ素分析の結果と合わせて報告する。

2 実験方法

2.1 試料

分析法の性能評価には、認証試料として認証標準物質 NMIJ CRM 7402-a タラ魚肉粉末(総ヒ素認証値 36.7 ± 1.8 mg/kg, AB 認証値 (ヒ素として) 35.5 ± 1.8 mg/kg) を使用した。

流通していた海産物として魚介類 8 試料 (サワラ, ハマチ, マアジ, メバル, マダイ, ウマヅラハギ, イサキ, スルメイカ) の筋肉部と, 海藻エゴノリを原料とする福岡市の特産品「おきうと」7 試料を入手し, 均質化して試料とした。

2.2 試薬及び試液

超純水: ADVANTEC 東洋(株)製 ULTRAPURE WATER SYSTEM により製造 (比抵抗 >18.2 M Ω ·cm, TOC <1 ppb)

硝酸: 関東化学(株)製 硝酸 1.42 (超高純度試薬)

酢酸: 関東化学(株)製 特級

0.15 mol/L 硝酸: 硝酸 4.8 mL を水で希釈して 500 mL としたもの。

3%酢酸添加 1%硝酸: 酢酸 30 mL 及び硝酸 10 mL を超純水で希釈して 1,000 mL としたもの。

1%硝酸: 硝酸 10 mL を超純水で希釈して 1,000 mL としたもの。

標準品: MMA, DMA, AB, AC は和光純薬工業(株)製を, TMAO, TeMA は(株)トリケミカル研究所製を, ヒ素標準液 (1,000 mg/L), ガリウム標準液 (1,000 mg/L) は関東化学(株)製を使用した。

2.3 標準溶液の調製

有機ヒ素形態別分析法の検量線用標準溶液は, 各標準品を超純水で溶解, 希釈し, MMA を $0.01 \sim 0.5$ μ g/mL, その他 5 種の有機ヒ素化合物を $0.001 \sim 0.5$ μ g/mL の範囲で調製した。

総ヒ素分析法の検量線用標準溶液は, ヒ素標準溶液を 3%酢酸添加 1%硝酸により希釈し, $0.05 \sim 5$ ng/mL の範囲で調製した。内部標準液は, ガリウム標準液を 1%硝酸で希釈し 100 ng/mL とした。

2.4 有機ヒ素形態別分析用試験溶液の調製

試料 2.0 g (乾燥品は 0.2 g) を採取し, 0.15 mol/L 硝酸を 5 mL 加え, 100°C で 2 時間加熱し, 30 分おきに攪拌した。遠心分離 ($2600 \times g$, 10 分間) 後, 水層を分取した。

残渣に超純水 5 mL を加えて振とう後, 同様に遠心分離し水層を合わせる操作を 2 回繰り返す, 合わせた水層を 20 mL に定容後, 10 倍希釈した。孔径 0.20 μ m のメンブランフィルターでろ過したものを測定溶液とした。

2.5 総ヒ素分析用試験溶液の調製

試料 0.20 g を採取して硝酸 5 mL を加え, マイクロ波分解装置 (MW) による分解後, 超純水で 50 mL に定容した。そのうち 1 mL を採取して酢酸 0.3 mL を加え, 超純水で 10 mL としたものを測定溶液とした。

なお, MW には PerkinElmer 社製マルチウェーブを使用し, 500 W で 5 分間, 1,000 W で 30 分間, 500 W で 15 分間を分解条件とした。

2.6 分析装置及び測定条件

有機ヒ素形態別分析のための LC-MS/MS 測定条件として, 使用機器及び HPLC 条件を表 1 に, イオン源パラメータを表 2 に, 化合物ごとのイオン化条件を表 3 に示す。また, 総ヒ素分析のための ICP-MS 測定条件を表 4 に示す。

表 1 有機ヒ素形態別分析の使用機器及び HPLC 条件

HPLC	Agilent Technology 1200 Series
MS/MS	ABSciex 4000QTrap
HPLCカラム	資生堂CR1:50 (2 mm \times 150 mm)
移動相A	0.1 %ギ酸
移動相B	0.1 %ギ酸アセトニトリル
流速	0.2 mL/min
グラジエント	B 99 % (0~1.5 min) →B 1 % (1.5~10min)
注入量	1 μ L

表 2 有機ヒ素形態別分析イオン源パラメータ

イオン化モード	CUR (psi)	CAD (-)	IS (V)	TEM ($^\circ\text{C}$)	GS1 (psi)	GS2 (psi)
ESI (+)	10	8	5500	700	40	70

表 3 有機ヒ素形態別分析のイオン化条件

分析対象化合物	Q1 (m/z)	Q3 (m/z)	DP (V)	CE (V)
MMA	141.1	90.9	46	31
DMA	139.1	90.8	46	27
TMAO	137.1	121.9	66	25
TeMA	135.1	119.8	61	25
AB	179.2	120.0	66	29
AC	165.2	120.8	66	25

3 結果及び考察

3.1 定量下限値の推定

0.001 µg/mL 又は 0.01 µg/mL の標準溶液を 10 回繰り返し測定し、ピーク面積の標準偏差の 10 倍を試料濃度換算することにより推定した有機ヒ素形態別分析法の定量下限値は、0.04~1 mg/kg であった。また、空試験溶液を 10 回繰り返し測定し、ノイズ強度の標準偏差の 10 倍を試料濃度換算することにより推定した総ヒ素分析法の定量下限値は 0.06 mg/kg であった。有機ヒ素形態別分析法における標準溶液 0.01 µg/mL のクロマトグラムを図 1 に、繰り返し測定の数値及び推定した定量下限値を表 5 に示す。

表 4 総ヒ素分析の ICP-MS 条件

装置	ICP-MS 7700e (Agilent Technology 社製)
RF パワー	1,550 W
プラズマガス (Ar)	15 L/min
キャリアガス (Ar)	1 L/min
反応ガス (He)	4.3 mL/min
測定モード	He モード
測定法	内部標準法
測定元素 (質量数)	As (75), Ga (71)

3.2 分析法の性能評価

認証試料の一回分析値と AB に付与されていた認証値を比較した結果から、有機ヒ素形態別分析法の AB を対象とした真度は 78% と推定された。

ハマチ 2.0 g に 6 種の有機ヒ素化合物を各 10 µg 添加することで添加試料を調製し、その分析結果から有機ヒ素形態別分析法の回収率を検証した。その結果、TMAO の回収率は 13% と低かったが、MMA, DMA, TeMA, AB, AC の回収率は、それぞれ 61%, 47%, 116%, 110%, 85% となり、理想的な回収率である 100% に比較的近い値であった。なお、ICP-MS を用いた総ヒ素分析法については、認証試料の分析結果から真度が 102% と推定された。また、ハマチ 0.20 g に総ヒ素量として 6 µg となるヒ素標準溶液を添加し調製した添加試料の分析結果からは、回収率が 109% となった。認証試料認証試料分析による真度及び添加試料分析による回収率を表 6 に示す。

有機ヒ素形態別分析法に従ってハマチから調製した溶液に 0.1 µg/mL となるよう有機ヒ素化合物の標準溶液を添加して測定し、得られた測定値と規定濃度との比を求めた結果、MMA では 103%, DMA では 114%, TMAO では 37%, TeMA では 112%, AB では 110%, AC では 73% であった。これらの結果から、TMAO での回収率が低くなる主要因は、LC-MS/MS 測定における試料由来の

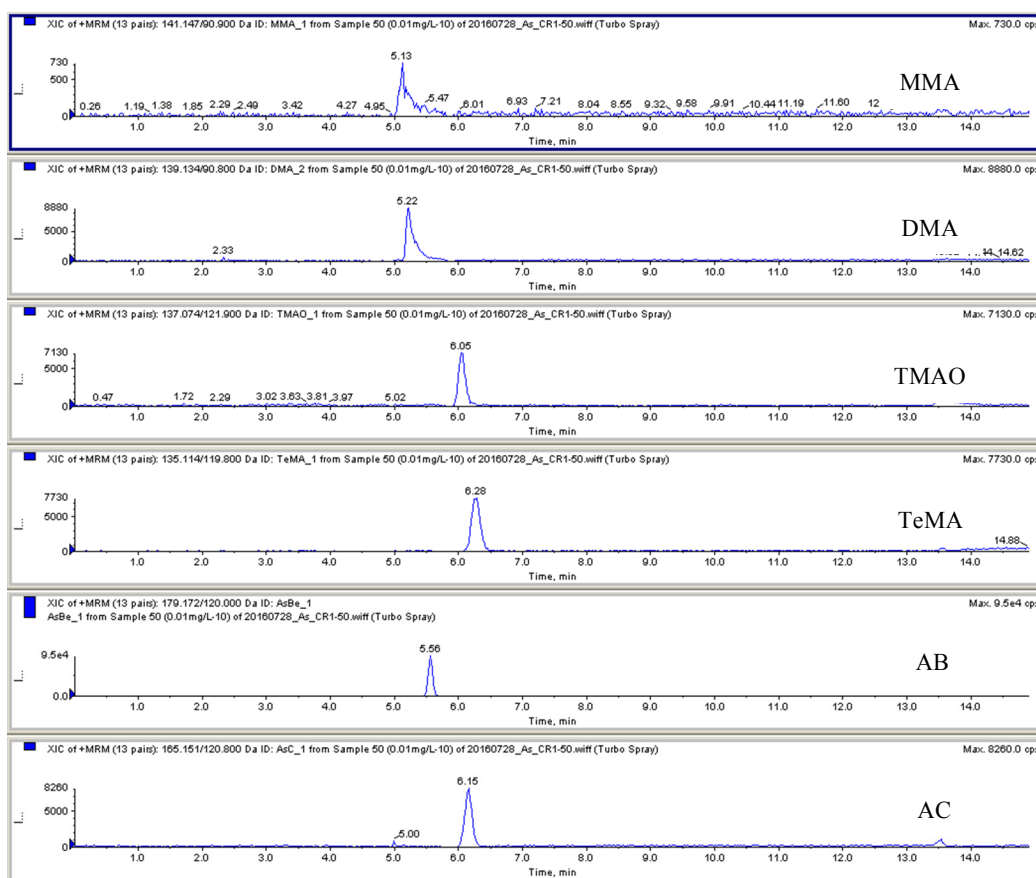


図 1 有機ヒ素形態別分析法における標準溶液 0.01 µg/mL のクロマトグラム

表5 有機ヒ素形態別分析法及び総ヒ素分析法の定量下限値推定

	MMA	DMA	TMAO	TeMA	AB	AC	総ヒ素
標準溶液濃度 (µg/mL)	0.01	0.001	0.001	0.001	0.001	0.001	空試験溶液
測定値							
1回目	0.008037	0.001767	0.000710	0.000851	0.000715	0.001712	0.000022
2回目	0.010157	0.001407	0.000773	0.000783	0.000679	0.001781	0.000020
3回目	0.009081	0.001362	0.000692	0.000902	0.000663	0.001641	0.000018
4回目	0.009994	0.001182	0.000554	0.000860	0.000669	0.001711	0.000018
5回目	0.008510	0.001182	0.000637	0.000749	0.000645	0.001647	0.000017
6回目	0.008543	0.001003	0.000712	0.000843	0.000635	0.001657	0.000016
7回目	0.007728	0.001003	0.000591	0.000792	0.000607	0.001714	0.000015
8回目	0.008624	0.001033	0.000682	0.000885	0.000519	0.001651	0.000016
9回目	0.006945	0.001092	0.000536	0.000783	0.000578	0.001705	0.000015
10回目	0.006700	0.001227	0.000706	0.000809	0.000658	0.001674	0.000016
10×標準偏差	0.011428	0.002363	0.000771	0.000499	0.000562	0.000437	0.000023
試料濃度換算した 定量下限値 (mg/kg)	1	0.2	0.08	0.05	0.06	0.04	0.06

表6 分析法の性能評価

	MMA	DMA	TMAO	TeMA	AB	AC	総ヒ素
認証試料による推定真度 (%)	(-)	(-)	(-)	(-)	78	(-)	102
添加試料の回収率 (%)	61	47	13	116	110	85	109

(-) ; 認証値なし

成分によるイオン化阻害だと考えられた。また、MMA及びDMAの測定ではイオン化阻害が認められなかったことから、これら2化合物の回収率が低くなる主要因は、試料からの抽出効率が低かったためと考えられた。

3.3 海産物試料の分析

2.1に示す海産物について、回収率が低かったTMAOを除く5種の有機ヒ素化合物及び総ヒ素の分析を行った(表7)。魚介類8試料のすべてからABが検出され、濃度はヒ素として0.86 mg/kg~5.2 mg/kgであった。Uneyamaらがまとめた世界各地で調査された魚介類のAB濃度はヒ素として0.25~16 mg/kgであり¹⁾、今回の結果はその範囲内であった。また、メバルからTeMAが検出され、濃度はヒ素として0.25 mg/kgであった。魚介類8試料の形態別ヒ素濃度及び総ヒ素濃度を図2に示す。いずれの試料もAB量が総ヒ素量の5割程度を占めていた。今回の結果は魚種ごとに1試料ずつ分析したものであり、魚種とヒ素濃度の関係に言及するためには試料数を増やして検討を行う必要がある。

一方、福岡市の特産品であるおきょうについては、有機ヒ素化合物5種と総ヒ素濃度は7試料いずれも定量下限値未満であった。

表7 魚介類試料中の形態別ヒ素濃度(ヒ素として)

	MMA	DMA	TeMA	AB	AC	総ヒ素
サワラ	(-)	(-)	(-)	0.86	(-)	2.5
ハマチ	(-)	(-)	(-)	1.6	(-)	2.6
マアジ	(-)	(-)	(-)	1.8	(-)	2.8
メバル	(-)	(-)	0.25	2.0	(-)	3.4
マダイ	(-)	(-)	(-)	1.7	(-)	4.9
ウマツラハギ	(-)	(-)	(-)	3.1	(-)	5.6
イサキ	(-)	(-)	(-)	4.2	(-)	7.6
スルメイカ	(-)	(-)	(-)	5.2	(-)	8.3

(-) ; 定量下限値未満

(mg/kg)

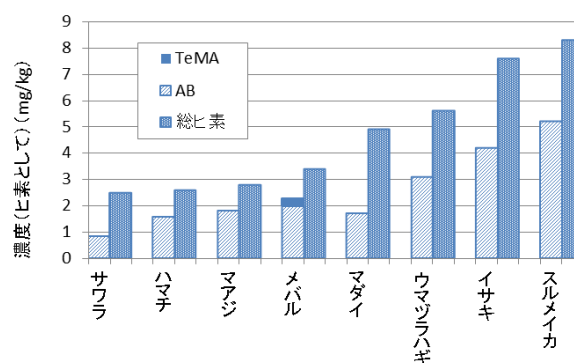


図2 魚介類中の形態別ヒ素濃度(ヒ素として)

²⁾にて一部発表済みである。

本研究は、一部を平成27年度厚生労働省科学研究費補助金(食品を介したダイオキシン類等有害物質摂取量の評価とその手法開発に関する研究)により実施した。また、本研究内容は第53回全国衛生化学技術協議会年会

文献

- 1) C. uneyama et al. : Arsenic in various foods: Cumulative data, Food Additives and Contaminants, 24 (5), 447~

534, 2007

2) 戸渡寛法, 他: 福岡市近海で漁獲される魚介類中のヒ

素濃度について, 第53回全国衛生化学技術協議会年会
講演集, 76~77, 2016

いわゆる健康食品の崩壊試験

浜崎志帆・牟田朱美・宮崎悦子

福岡市保健環境研究所保健科学課

Disintegration Test of “Health Foods”

Shiho HAMASAKI, Akemi MUTA, and Etsuko MIYAZAKI

Health Science Section, Fukuoka City Institute of Health and Environment

要約

健康の保持増進を標榜した食品のうち、保健機能食品以外の食品は、行政上「いわゆる健康食品」（以下、健康食品）と呼ばれている。健康食品は、日本薬局方や GMP のある医薬品と異なり、強制力のある製造管理の規格及び品質試験方法等がないため、品質にばらつきがあると予想される。そこで、日本薬局方に示された医薬品の崩壊試験法及び判定基準を用いて¹⁾、福岡市内で購入した健康食品 21 検体の崩壊性の実態調査を行った。その結果、検体中のカプセル剤 7 検体は規定時間以内に全ての製品が崩壊した。一方で、錠剤 13 検体のうち 10 検体及び丸剤 1 検体は、規定時間以内に崩壊しない製品が認められ、不適合と判定した。形状による崩壊性の差が認められ、一部の健康食品は、摂取しても体内で崩壊せずに体外に排出される可能性が考えられた。

Key Words : 崩壊試験 Disintegration Test, 健康食品 Health Foods, カプセル剤 Capsule, 錠剤 Tablet, 丸剤 Pill

1 はじめに

近年、健康に対する関心が高まる中で健康食品の利用が増えてきたが、健康被害が報告される例も出てきており、本市では平成 25 年度より健康食品の医薬品成分の買上調査を実施している²⁾。

健康食品は、カプセル剤や錠剤の形状をしていることが多く、食品として体内で吸収されるには、少なくとも崩壊性を一定程度満たす必要がある。医薬品の場合、GMP や日本薬局方により、製造管理について規格があり、崩壊試験や溶出試験などが課せられている。一方で、健康食品は、厚生労働省より「錠剤、カプセル状等食品の適正な製造に係る基本的な考え方について」及び「錠剤、カプセル状等食品の安全性に関する自主点検ガイドライン」が通知されているが³⁾、事業者の自主的な取り組みを推奨するものであり、強制力のある製造管理に関する規格等がないため、品質にばらつきがあると予想される。そこで、日本薬局方に準拠した方法を用いて、健康食品の崩壊性の実態調査を行った。

平成 27 年度及び平成 28 年度に医薬品成分の調査のため購入した健康食品 21 検体について崩壊試験を実施したのでこれを報告する。

2 実験方法

2.1 試料

平成 27 年度及び平成 28 年度に福岡市内で購入した強壮系及び痩身系の健康食品 21 検体を用いた。

2.2 装置

崩壊試験器：富山産業製 NT-1

硬度計：モンサント型錠剤硬度計

2.3 崩壊試験法及び判定方法

第十七改正日本薬局方崩壊試験法-即放製剤に準じて実施した。検体のうちカプセル剤は 20 分、錠剤は 30 分、丸剤は 60 分の規定時間以内に崩壊するかを確認し、補助盤はカプセル剤にのみ使用した。医薬品の判定基準に準じ、6 併行で実施し、全て崩壊で適合と判定することとした。1~2 個完全に崩壊しない場合はさらに 12 個を試験し、18 個のうち 16 個以上崩壊で適合とすることとした。

2.4 硬度試験

試料に硬度計で圧力をかけ、試料が破壊された時の圧

を測定した。20 併行で実施し、平均硬度を求めた。

3 実験結果及び考察

3.1 崩壊試験

健康食品 21 検体 (No.1~No.21) について、日本薬局方に準拠した方法及び判定方法を用いて崩壊試験を実施した。その結果、検体のうちカプセル剤 7 検体は、いずれも規定時間の 20 分以内に 6 個中 6 個が崩壊し、適合と判定した (表 1)。一方錠剤は、規定時間の 30 分を過ぎても崩壊しない製品が認められ、13 検体中 10 検体を不適合と判定した。不適合と判定した錠剤のうち 8 割が、規定時間を過ぎても 6 個中 6 個全て崩壊せず残っていた。また、丸剤 1 検体についても、規定時間の 60 分を過ぎても 6 個中 6 個が崩壊せず、不適合と判定した。

全て規定時間以内に崩壊したカプセル剤に対し、錠剤や丸剤には、規定時間を過ぎても原型を留めているもの

が多くあり、形状により崩壊性に差があることが認められた。これらの崩壊試験に適合しなかった製品は、摂取しても体内で崩壊せずに体外に排出される可能性が考えられた。

3.2 硬度試験

モンサント硬度計による硬度試験は容易に測定可能である。また、錠剤及び丸剤検体の一部が崩壊しにくい原因として、製品の硬度が高い可能性があるのではないかと予想し、錠剤及び丸剤 (検体不足のものは除く) 13 検体について硬度試験を実施した。試験は 20 併行で実施し、平均硬度を求めた。なお、丸剤については、錠剤硬度計を使用したため、参考値とした。

試験の結果、一般的な錠剤型医薬品の平均硬度 4~8kg と比較し、平均硬度が高い製品が 7 検体 (No. 9, No.10, No.13, No.17, No.18, No.19, No.20) 認められた (表 2, 図 1)。しかし、2 番目に平均硬度の高い No.9 は、崩壊試験にて 6 個中 6 個崩壊し、適合と判定していた。また、

表 1 崩壊試験結果表

No.	形状	目的	規定時間	崩壊試験		備考
				崩壊した個数 (時間)	判定	
1	カプセル剤	強壮剤	20分	6/6(10分)	適合	
2	カプセル剤	強壮剤	20分	6/6(15分)	適合	
3	カプセル剤	強壮剤	20分	6/6(15分)	適合	
4	カプセル剤	強壮剤	20分	6/6(9分)	適合	
5	カプセル剤	強壮剤	20分	6/6(8分)	適合	
6	カプセル剤	瘦身剤	20分	6/6(10分)	適合	
7	カプセル剤	瘦身剤	20分	6/6(20分)	適合	
8	錠剤	強壮剤	30分	6/6(16分)	適合	硬度試験を実施
9	錠剤	強壮剤	30分	6/6(22分)	適合	硬度試験を実施
10	錠剤	強壮剤	30分	2/6(30分)	不適合	硬度試験を実施
11	錠剤	強壮剤	30分	0/6(30分)	不適合	検体量不足のため 硬度試験は行わない
12	錠剤	瘦身剤	30分	6/6(30分)	適合	硬度試験を実施
13	錠剤	瘦身剤	30分	15/18(30分)	不適合	硬度試験を実施
14	錠剤	瘦身剤	30分	0/6(30分)	不適合	硬度試験を実施
15	錠剤	瘦身剤	30分	0/6(30分)	不適合	硬度試験を実施
16	錠剤	瘦身剤	30分	0/6(30分)	不適合	硬度試験を実施
17	錠剤	瘦身剤	30分	0/6(30分)	不適合	硬度試験を実施
18	錠剤	瘦身剤	30分	0/6(30分)	不適合	硬度試験を実施
19	錠剤	瘦身剤	30分	0/6(30分)	不適合	硬度試験を実施
20	錠剤	瘦身剤	30分	0/6(30分)	不適合	硬度試験を実施
21	丸剤	強壮剤	60分	0/6(60分)	不適合	硬度試験を実施

表 2 硬度試験結果表

No.	形状	崩壊試験	硬度試験(kg) (最大値及び最小値に塗りつぶし)										平均硬度(kg)
			1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	
			11	12	13	14	15	16	17	18	19	20	
8	錠剤	適合	3.1	3.6	3.5	3.3	2.9	3.6	3.7	3.2	3.0	3.5	3.3
			3.3	3.3	2.6	3.6	2.6	3.4	3.1	2.8	4.2	4.0	
9	錠剤	適合	14.3	13.4	12.7	11.4	11.0	12.1	12.2	11.6	12.0	11.8	12.1
			12.6	11.8	12.0	11.2	12.0	11.8	12.0	12.3	12.4	11.8	
10	錠剤	不適合	9.7	12.0	11.4	11.1	9.0	10.1	9.1	10.4	9.8	10.1	10.4
			10.0	10.2	10.3	11.6	9.6	9.8	9.2	12.0	9.9	11.9	
12	錠剤	適合	5.2	5.0	4.8	5.6	5.2	5.6	6.9	6.6	5.4	6.2	5.8
			5.0	5.4	5.4	5.7	6.0	5.5	5.2	7.5	5.8	7.3	
13	錠剤	不適合	16.6	16.2	16.6	17.2	17.7	18.1	18.7	16.1	17.6	18.0	17.2
			17.6	19.4	17.8	17.0	16.5	16.4	17.1	16.4	17.8	15.5	
14	錠剤	不適合	5.0	4.2	4.0	3.7	4.0	3.8	4.6	4.1	4.8	4.4	4.3
			4.0	4.8	3.7	4.7	4.9	4.2	3.8	4.3	4.1	4.6	
15	錠剤	不適合	6.2	5.9	5.8	6.8	5.9	6.0	5.7	5.5	5.8	5.5	6.2
			6.1	6.4	6.3	7.1	6.5	6.6	6.2	6.4	6.4	6.5	
16	錠剤	不適合	7.4	6.6	7.0	7.0	7.4	7.0	7.0	7.0	6.6	6.2	6.9
			6.1	6.2	7.3	7.2	7.0	7.0	6.6	7.5	6.4	6.7	
17	錠剤	不適合	8.0	8.4	8.3	7.9	8.0	8.6	8.3	8.8	8.8	8.1	8.5
			8.8	8.1	7.8	8.9	8.4	9.4	9.1	8.3	9.5	8.2	
18	錠剤	不適合	9.5	9.6	9.2	8.8	9.6	7.2	6.1	8.4	7.8	9.4	8.7
			7.0	8.6	9.8	6.8	9.0	10.3	9.3	6.9	9.1	11.6	
19	錠剤	不適合	9.7	10.9	11.5	10.4	11.4	12.5	11.1	11.0	11.2	11.0	11.0
			10.6	12.2	11.8	11.3	11.6	10.3	10.2	10.1	11.6	10.3	
20	錠剤	不適合	8.2	10.4	11.2	12.2	10.4	10.4	12.4	11.5	12.0	10.6	11.0
			10.5	9.6	11.9	12.2	11.6	12.5	12.6	10.8	9.7	10.8	
21	丸剤	不適合	7.3	7.1	7.3	7.1	3.2	3.5	8.8	5.1	8.6	16.7	6.6(参考値)
			6.2	4.3	5.6	6.0	8.2	7.0	8.4	4.7	3.4	3.3	

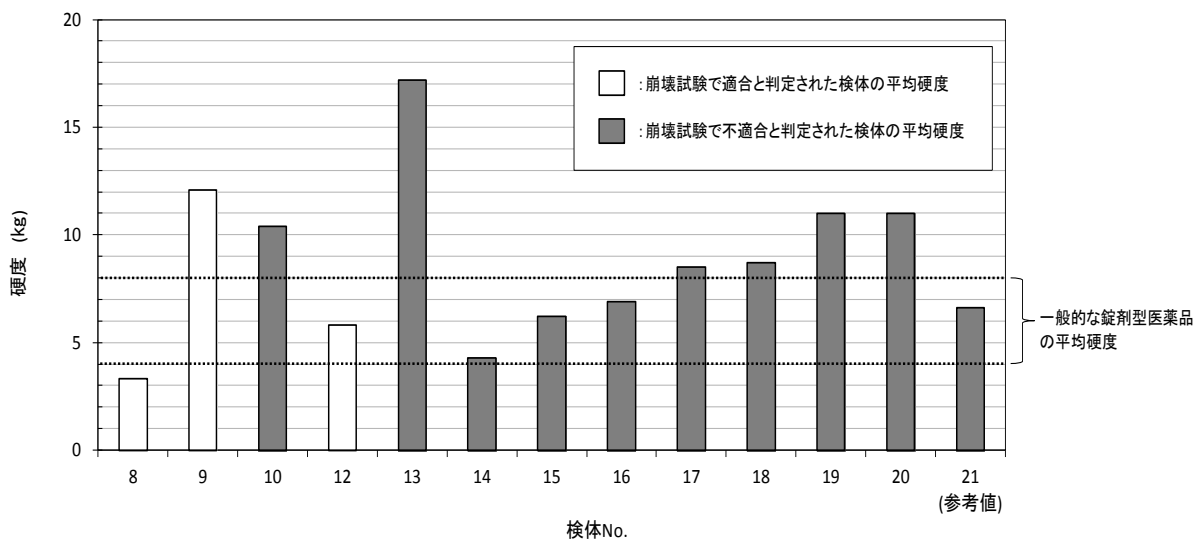


図 1 錠剤 (No.8~No.20) 及び丸剤 (No.21) の平均硬度 (n=20)

最も平均硬度の高い製品は No.13 であったが、No.13 は崩壊試験に適合しないものの、18 個中 15 個が崩壊しており、平均硬度が高い製品にも崩壊性が認められた。崩壊試験にて適合と判定した製品と、不適合と判定した製品の平均硬度に特徴的な差は認められず、崩壊しにくい原因が硬度にあるとは言えなかった。

また、20 併行の硬度の最小値と最大値は、No.18 は 6.1kg と 11.6kg であり、約 2 倍の差が認められた。さらに、No.21 は 3.2kg と 16.7kg であり、約 5 倍の差が認められ、同一包装内の製品に硬度のばらつきがあるものと推察された。

4 まとめ

日本薬局方に示された医薬品の崩壊試験法及び判定基準を用いて、健康食品の崩壊性の実態調査を行った。その結果、検体中のカプセル剤はいずれも適合と判定したが、錠剤の一部及び丸剤を不適合と判定し、形状による崩壊性の差が認められた。

さらに、崩壊性と硬度の関係を調べるため、錠剤及び丸剤について硬度試験を実施した結果、硬度の高い製品が認められたが、崩壊試験で崩壊しなかった原因が硬度であるとは言えなかった。

本試験により、一部の健康食品は、摂取しても体内で崩壊せずにそのまま体外に排出される可能性が考えられた。錠剤に関しては、検体の約8割が崩壊試験で不適合と判定され、錠剤設計の段階において、崩壊性を考慮されていない製品があると考えられた。食の安全を守るため、今後、健康食品を利用する上の注意点としてこの結果を市民啓発に活用したい。

謝辞

本試験を実施するにあたり様々なご指導を頂きました九州大学大学院薬学研究院グローバルヘルスケア分野小柳悟教授、松永直哉准教授に深謝いたします。また、試験実施の際ご協力頂きました薬剤学分野の研究室の皆様感謝いたします。

文献

- 1) 厚生労働省告示第64号：第十七改正日本薬局方，平成28年3月7日
- 2) 牟田朱美，他：LC-MS/MSによるいわゆる健康食品中の医薬品成分の分析，福岡市保健環境研究所報，95～97，41，2016
- 3) 厚生労働省通知食安発第0201003号：「錠剤、カプセル状等食品の適正な製造に係る基本的考え方について」及び「錠剤、カプセル状等食品の原材料の安全性に関する自主点検ガイドライン」について，平成17年2月1日

加熱加工食品における特定原材料（小麦）の遺伝子検査法の検討

宮崎悦子・川崎恵・牟田朱美・宮本道彦

福岡市保健環境研究所保健科学課

Study of the Detection Method for the Allergic substance Wheat in heat processed food by PCR method

Etsuko MIYAZAKI, Megumi KAWASAKI, Akemi MUTA and Michihiko MIYAMOTO

Health Science Section, Fukuoka City Institute of Health and Environment

要約

加熱加工食品においては、特定原材料（小麦）の検査でスクリーニング検査である ELISA 法で陽性と判定されたにもかかわらず、確認試験の PCR 法では陰性と判定される事例が報告されており、本市においても同様の事例があった。そこで、小麦粉添加米粉クッキーを調製して PCR 法を行い、小麦遺伝子の検出に対する加熱の影響を検討した。その結果、焼成温度が上昇するほど抽出 DNA の収量が減少し、陽性と判定される割合が低下した。その原因の一つとして加熱による DNA の分解又は断片化と推察されたため、PCR 試行回数を増やす手法と鋳型 DNA を 2 倍にする手法を検討した。確認試験で陰性と判定された実試料 2 検体を、PCR 法を再度 5 併行で実施した結果、いずれも 40%（5 回中 2 回）が陽性と判定された。同様に、鋳型 DNA を 2 倍にした場合も陽性と判定された。従って、PCR の試行回数を増やす、或いは鋳型 DNA 量を 2 倍にする手法が、正確な検査結果を出すための簡便かつ有効な手段であることが示唆された。

Key Words : 特定原材料 allergic substance 小麦 wheat, 加熱加工食品 heat processed food
ポリメラーゼ連鎖反応 PCR, エライザ ELISA Enzyme-Linked Immunosorbent Assay

1 はじめに

消費者庁次長通知^{1) 2)}に基づく特定原材料（小麦）の検査では、2種類の ELISA キットを用いるスクリーニング検査で両方又はいずれか一方で小麦タンパク質が 10 μ g/g 以上が検出された場合、陽性と判定される。スクリーニング検査で陽性となり、製造記録の確認を行い小麦の使用実態がない場合は、PCR 法による確認検査が行われる。具体的には、植物遺伝子と小麦遺伝子を検知する PCR を行うこととなっている。

本市において、ELISA によるスクリーニング検査で陽性となった加熱加工食品（焼菓子）が PCR による確認検査で陰性となる事例があった。この事例では、製造所内で常時小麦粉を大量に使用しており、コンタミネーションが強く疑われたため、小麦を含む旨の表示の指導を行った。しかし、効果的な行政指導のためには、確認試験でも確実に陽性となる検査を実施する必要がある。加熱加工食品においては同様の事例が知られており、特に焼成等加工段階が進んだ場合は、PCR の鋳型 DNA 量を増

減したり、プライマー量を増減したりすると増幅が認められるという報告がある³⁾。

そこで、今回、小麦粉を添加した米粉クッキーを調製し、通知に基づき ELISA 法及び PCR 法を行い、焼成温度による小麦タンパク質及び遺伝子の挙動を調査する実験を行った。また PCR 法について検討を行い、若干の知見を得たので結果を報告する。

2 実験方法

2.1 試料

小麦を使用していないことを確認した米粉（共立食品製「米の粉」）、バター、上白糖、卵、小麦粉（日清製粉製薄力小麦粉「フラワー」）。

平成 27~28 年度に市内で製造され、スクリーニング検査で陽性と判定されたが、確認試験の PCR 法で陰性と判定された焼菓子 2 検体。

2.2 試薬

ELISA には、森永生科学研究所製 FASPEKII 小麦（グリアジン）（以下「M キット」と略す）、日本ハム(株)製 FASTKIT エライザ Ver.III小麦（以下「N キット」と略す）を用いた。水は超純水を、DNA の抽出にはキアゲン社製 Genomic Tip 20/G を、緩衝液はキアゲン社製 Genomic DNA Buffer Set 付属のものを、 α -アミラーゼはシグマ社製、ProteinaseK はキアゲン社製を用いた。PCR には既報⁴⁾の試薬を用いた。

2.3 装置

フードプロセッサー：ナショナル社製 MK-K48, 型 (11.2 cm×13.3 cm)、マッフル炉：アドバンテック東洋社製 KM-420、マイクロプレートリーダー BioRad 社製 MODEL680、マイクロプレートウォッシャー BioRad 社製 MODEL1575、恒温槽：イワキ社製 ALB-22、アステック社製 BI-525、振とう器：ヤマト社製 BW201、冷却遠心機：久保田製作所製 KUBOTA3700、6200 分光光度計：Thermo Scientific 社製 NanoDrop ND-1000、サーマルサイクラー：BioRad 社製 iCycler E-gel, invitrogen 社製 E-gel4%agarose、ゲル撮影装置 UVP 社製 BioDoc-It System

2.4 試料の調製

米粉クッキー：バター25g、砂糖 20g、卵黄 15g で調製した卵液 60g に、米粉 40g、小麦粉 10mg を少量の水で懸濁した液を加え、よく混合し、型に入れ、5mm の厚さで 9 分割した。蒸しパン等の加熱温度である 100℃を対照とし、一般的なクッキーの焼成温度である 180℃、200℃、220℃の条件下でいずれも 20 分焼成した。焼成後冷却し、フードプロセッサーを用いて全量を粉砕したものを試料とした。この米粉クッキーには小麦粉 100 μ g/g、小麦タンパク質として約 10 μ g/g を含む。

焼菓子 2 検体は、それぞれ 1 包装を全量粉砕、均一化したものを試料とした。

2.5 試料の分析

小麦タンパク質の分析は、試料 1g を 2 つのキットを用いた ELISA により行った。小麦遺伝子の分析は、まず、試料 2g からイオン交換膜タイプのキットで抽出した DNA 溶液を 100 μ L とし、DNA 溶液の 230nm（糖類）、260nm（DNA）及び 280nm（タンパク質）の吸光度を測定した。260nm の吸光度(A260)から DNA 濃度を求めた。また、DNA とタンパク質との吸光度比 (A260/A280) 及び DNA と糖類との吸光度比 (A260/A230) から純度を評価した。次に 20ng/ μ L となるように調製した DNA 溶液を、植物検知用プライマー対及び小麦検知用プライマー

対を用いた PCR に供した。陽性対照には、小麦粉から同様に抽出した DNA 溶液を用いた。鑄型 DNA 量を 2 倍にするときは、DNA 溶液濃度を 40ng/ μ L に調整し、同様に操作を行った。PCR 産物は 4%アガロースゲル電気泳動し、ゲル撮影装置にて検出した。

3 実験結果及び考察

3.1 ELISA 法（小麦タンパク質）

ELISA の結果、米粉クッキーからは、N キットが 10～11 μ g/g、M キットが 8 μ g/g の小麦タンパク質が検出され、いずれも通知法の判定基準では陽性となった。検出された小麦タンパク質の量は推定される量に概ね合致しており、2 つのキット間での定量値の差は、キットが標的とするタンパク質が異なるためであると考えられた。つまり、ELISA の結果、100℃～220℃の焼成条件では定量値に影響がないことがわかった（表 1）。

表 1 米粉クッキーの ELISA 結果

	焼成温度			
	100℃	180℃	200℃	220℃
Nキット(μ g/g)	11	10	10	11
Mキット(μ g/g)	8.1	7.8	8.2	8.2
判定	陽性	陽性	陽性	陽性

3.2 DNA 抽出

米粉クッキーから DNA を抽出した結果、全体的に収量が少なく、100、180、200、220℃と焼成温度が上昇するほど、収量が 22、12、8.4、6.8 μ g と減少する傾向が認められた（図 1、表 2）。

抽出 DNA の純度は、DNA とタンパク質との吸光度比 A260/A280 は 1.4～1.8 であり、高純度とされる 1.8 より低値を示したものもあったが、PCR にほぼ適しているとされる 1.2 以上を満たしていた。それに対し、DNA と糖類の吸光度比 A260/A230 は 0.45～0.80 であり、高純度とされる 1.8 を大きく下回っており、糖類の除去が不十分な傾向が認められた。その理由の一つとして、この米粉クッキーが重量比 20%の大量の砂糖を含んでいるためであることが推測された。今後、DNA 抽出においては、PCR 阻害物質除去カラムを使用するなど^{5)、6)} 様々な加工食品の特性に合わせた精製方法の検討の余地があると考えられた（表 2）。

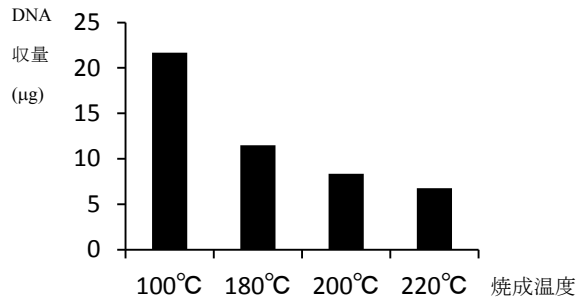


図1 米粉クッキーから抽出した DNA の収量

表2 米粉クッキーから抽出した DNA の収量と純度

	焼成温度			
	100°C	180°C	200°C	220°C
DNA量(μg)	21.7	11.5	8.4	6.8
A260	4.33	2.30	1.67	1.35
A280	2.71	1.28	1.03	0.98
A260/A280	1.6	1.8	1.6	1.4
A230/A260	0.67	0.80	0.66	0.45

3.3 PCR 及び電気泳動

3.2で抽出した DNA を用いて、焼成温度により陽性となる割合に差が出るののかの確認を目的とし、植物検知用プライマー対及び小麦検知用プライマー対を用いた PCR 及び電気泳動を各 25 回試行した。その結果、植物検知の増幅バンドは 100%検出されたが、小麦検知のバンドが検出されない現象が認められ、焼成温度が上昇するごとに、陽性と判定される割合は 88, 84, 84, 60%と低下した(表3)。この理由として、加熱により DNA の分解又は断片化が生じ、抽出された DNA 量が減少するだけでなく、鋳型となり得るに十分な長さの小麦 DNA 量が減少することが原因であると推察された。

そこで、PCR 法において分解又は断片化されていない小麦 DNA 量を増加させることを目的として、鋳型 DNA 量を通知法の 20ng/μL の 2 倍の 40 ng/μL となるよう調製して検討を行った。対象は米粉クッキー中で 60%と最も陽性率の低かった 220°Cの米粉クッキーとし、PCR を 10 回試行した。その結果、小麦検知のバンドは 100%検出され、陽性と判定された割合は 100%と上昇した。

通知法では、DNA 抽出については 2 併行で実施するように記載されているが、抽出した DNA での PCR の試行回数には記載がなく、通常 1 回の PCR で判定を行っている。米粉クッキーと同様の加熱加工食品の場合、陽性率を考慮すると PCR を 5 回程度試行する手法や、鋳型 DNA 量を 2 倍とする手法などの改良を加えることで、陽性と判定される確率が上昇するものと推察された。

表3 米粉クッキーの PCR 検討結果

	焼成温度				
	100°C	180°C	200°C	220°C	220°C
DNA濃度(ng/μL)	20	20	20	20	40
植物検知 (+)	25/25	25/25	25/25	25/25	10/10
小麦検知 (+)	22/25	21/25	21/25	15/25	10/10
陽性率 (%)	88	84	84	60	100

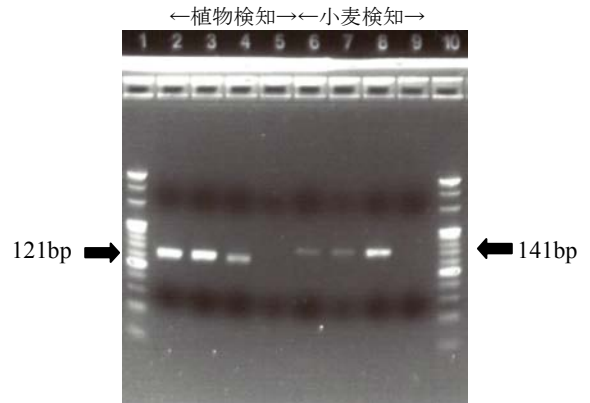


図2 植物及び小麦検知用 PCR 産物の電気泳動パターン
 レーン 1,10: 20bp Ladder Marker,2,3,6,7: 米粉クッキーDNA,
 4,8: 陽性対照 (小麦粉 DNA) 5,9: 陰性対照

3.4 実試料での検討

ELISA 法で陽性と判定されたにもかかわらず、確認試験の PCR 法では陰性と判定された実試料(チーズクッキー、ビスコッティ)について、PCR 法の試行回数を増加させる手法及び鋳型 DNA 量を 2 倍にする手法による検討を行った。

まず、それぞれ PCR 法で 5 併行の検査を実施した結果、いずれも 2 回陽性となり、陽性率は 40%であった(表4)。

チーズクッキーの焼成条件は、上段 188°C、下段 180°Cのオープンで約 16 分であり、180°Cの米粉クッキーとほぼ同じ焼成温度と時間であった。米粉クッキーと比較して陽性率は低かったが、その原因としては焼成温度と時間以外の可能性が示唆された。一方、ビスコッティは焼成条件が 180°C20 分、さらに 150°C30 分の合計 50 分焼成したものであり、180°Cの米粉クッキーと比較して陽性率が低かった。米粉クッキーより焼成時間が長いことが陽性率の低下の原因の一つであるものと推察された。

次に、実試料の鋳型 DNA 量を 2 倍にしてそれぞれ PCR を行ったところ、いずれも陽性となった。

これらの結果から、実試料においても陽性率の低下現象が認められ、その原因の一つは焼成によるものと推察された。また、実試料において PCR を 5 回程度試行する

手法又は鋳型 DNA 量を 2 倍にする手法で陽性となることがわかった。

表 4 実試料の PCR 結果 (n=5)

品名	チーズクッキー	ビスコッティ
焼成温度時間	上180°C/下188°C 16分	180°C20分 →150°C30分
植物検知 (+)	5/5	5/5
小麦検知 (+)	2/5	2/5
陽性率 (%)	40	40

4 まとめ

加熱加工食品の特定原材料（小麦）の検査において、スクリーニング検査（ELISA 法）で陽性と判定されたにもかかわらず、確認試験（PCR 法）では陰性と判定される事例があった。そこで、100～220°Cの焼成条件で調製した小麦粉添加米粉クッキーを用いた検討を行った。その結果、ELISA 法では焼成温度によらず全ての検体で陽性と判定された。一方、PCR 法においては、焼成温度が上昇するほど抽出 DNA 収量が減少し、陽性と判定される割合が低下した。これは、焼成による DNA の分解又は断片化が生じて PCR の鋳型となり得る小麦 DNA が減少していることが一因であると推察された。そこで、PCR を複数回試行する手法や、PCR の鋳型 DNA 量を通知法の 2 倍にする手法は、陽性判定される確率を上昇させることがわかった。また、今後、DNA 抽出において、加工食品の特性に合わせた精製方法には検討の余地があるものと考えられた。

確認試験で陰性と判定された実試料における検討で

は、焼成が原因と推察される陽性率の低下現象が認められたが、PCR を複数回試行する手法や鋳型 DNA 量を 2 倍にする手法により陽性と判定される確率が上昇するこ用いた PCR 法で確認試験を実施することが重要であるが、小麦遺伝子を検出できない場合には、これらの簡便な手法を組み合わせることで、正確な検査結果を出すための有効な手段であることが示唆された。

謝辞

この検討を行うにあたり、ご協力いただきました福岡市中央区保健福祉センター衛生課に深謝します。

文献

- 1) 消費者庁次長通知 消食表第 139 号, 食品表示基準について, 平成 27 年 3 月 30 日
- 2) 消費者庁次長通知 消食表第 169 号「食品表示基準について」の一部改正について, 平成 29 年 3 月 28 日
- 3) 萩野賀世ほか: 加工食品中の特定原材料（小麦）における PCR 法の検討, 化学生物総合管理第 6 巻第 1 号, 2010.3
- 4) 肥前昌一郎ほか: 食品中の特定原材料小麦実態調査および PCR 法における小麦の検出限界, 福岡市保健環境研究所報 32, 2006
- 5) 石本聖ほか: アレルギーマテリアルを原材料として含む加工食品からの DNA 検出法に関する検討, 石川県保健環境センター研究報告書 50, 2013
- 6) 福井優子ほか: アレルギーマテリアルを原材料として含む加工食品からの DNA 検出法に関する検討 (第 2 報), 石川県保健環境センター研究報告書 52, 2015

加工食品中に高濃度に含まれる農薬等の迅速検出法の検討 —レトルトカレーでの性能評価—

常松順子・藤井優寿・河野嘉了・宮地夏海・井邊早春

福岡市保健環境研究所保健科学課

Performance evaluation on Rapid Analysis Method of Pesticide Contamination in Processed Foods (retort-packed curry)

Junko TSUNEMATSU, Masatoshi FUJII, Yoshinori KAWANO,
Natsumi MIYACHI and Saharu IBE

Health Science Section, Fukuoka City Institute of Health and Environment

要約

近年、加工食品への農薬混入事例が発生している。そのため、健康危機管理上の検査体制強化の一環として、厚生労働省（以下、「厚労省」という。）の事務連絡「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」¹⁾（以下、事務連絡という。）に準拠し、レトルトカレーに対して添加回収試験(n=3)を行い、性能評価を行った。その結果、GC-MS/MSでは、性能パラメータの目標値（回収率 50~200%, RSD<30%, 以下「目標値」という。）を満足していた化合物数は171で、そのうち159化合物の回収率が70~120%であった。GC-FPDでは、目標値を満足していた化合物数は16で、そのうち15化合物の回収率が70~120%であった。LC-Q/TOFMSでは、目標値を満足していた化合物数は、厚労省が示したLC-MSによる農薬の一斉分析法のI法が68、II法が16となり、I法に比べII法は目標値を満足する化合物が少なかった。

Key Words : 農薬 pesticide, 迅速 rapid, 加工食品 processed food, ガスクロマトグラフ・タンデム型質量分析計 GC-MS/MS, 炎光検出器付ガスクロマトグラフ GC-FPD, 高速液体クロマトグラフ・飛行時間型質量分析計 LC-Q/TOFMS

1 はじめに

近年、加工食品への農薬混入事例が発生しており、平成20年には中国産冷凍餃子に混入した農薬メタミドホス（有機リン系殺虫剤）による中毒事例が発生した。さらに、平成25年には国内産冷凍食品に混入したマラチオン（有機リン系殺虫剤）による健康被害の訴えが散発し、加工食品への消費者の不安が高まる事態に陥った。

農薬による中毒の場合、比較的短時間で健康被害が現れ重篤になる場合も多く、加工食品に混入された場合はその社会的影響も大きい。

一方、加工食品は、穀類及び野菜、肉、魚など様々な食品成分と共に、分析上妨害となる脂肪や香辛料も含まれるため、農産物を対象とした残留農薬試験法では測定

が困難になることが予想される。

このような問題に対し、厚労省は、健康被害の拡大防止の観点から、加工食品中に高濃度に含まれる農薬等を簡便かつ迅速に検出することを目的として、平成25年3月26日事務連絡により、迅速検出法を示した。ただし、これらの方法は、対象食品ごとに評価する必要があることが明記されている。

そこで、当所での健康危機管理上の検査体制強化のため、分析上の妨害となる様々な食品成分や脂肪、香辛料を含むレトルトカレーに対し、3種類の分析機器を用い、性能評価試験を実施したので報告する。

2 実験方法

2.1 試料

福岡市内で販売されているレトルトカレーを購入し、細切均一化したものを用いた。

2.2 試薬等

2.2.1 検量線作成用標準溶液の作成

GC-MS/MS 及び FPD 用混合標準溶液：林純薬工業(株)製 PL2005 農薬 GC/MS Mix I～VI及び7と和光純薬工業(株)製 農薬混合液 PL-11-2 を全て混合し、アセトンを用いて 1.0mg/L に調製した。

GC-MS/MS 及び FPD 用検量線作成用標準液：上記混合標準溶液を、アセトンを用いて適宜希釈し、0.005～0.2mg/L の濃度範囲となるよう段階的に調製した。検量線作成時は、1% (w/v)PEG アセトン溶液を 25 μ L 入れた後、前述の各標準液を 1mL 加えたものを調製した。

LC-Q/TOFMS I 法用混合標準溶液：林純薬工業(株)製 PL2005 農薬 LC/MSMix4～7と和光純薬工業(株)製ネオニコチノイド系農薬混合標準液を全て混合し、メタノールを用いて 1.0mg/L (イミダクロプリド・チアクロプリド・チアマトキサムは 2.0mg/L) に調製した。

LC-Q/TOFMS I 法用検量線作成用標準液：上記混合標準溶液を、メタノールを用いて適宜希釈し、0.001～0.02mg/L (イミダクロプリド・チアクロプリド・チアマトキサムは 0.002～0.04mg/L) の濃度範囲となるよう段階的に調製した。

LC-Q/TOFMS II 法用混合標準溶液：林純薬工業(株)製 PL2005 LC/MSMix8～10 を全て混合し、メタノールを用いて 1.0mg/L に調製した。

LC-Q/TOFMS II 法用検量線作成用標準液：上記混合標準溶液を、メタノールを用いて適宜希釈し、0.001～0.02mg/L の濃度範囲となるよう段階的に調製した。

2.2.2 その他試薬等

GC-SPD 測定 RT 確定用標準品：フェニトロチオン、テルブホス、クロロピリホス、マラチオン、和光純薬工業(株)製有機りん農薬混合液 FA-3, RESTEK 社製 GC Multiresidue Pesticide Standard #9-OPP, すべての標準品は残留農薬試験用を用いた。

1% (w/v)PEG アセトン溶液：ポリエチレングリコール 300 (平均分子量 300：一級品) を 1g 秤とり、アセトンで 100mL にメスアップする。

カートリッジカラム：

ケイソウ土カラム：ジーエルサイエンス(株)製 (2mL)

C18 カラム：ジーエルサイエンス(株)製 InertSep

C18FF(1g/6mL)

GC/PSA カラム：ジーエルサイエンス(株)製 InertSep

GC/PSA (50mg/200mg/6mL)

0.2 μ m フィルター：アドバンテック東洋(株)製 PTFE

13HP020AN を使用した。

ガラス繊維ろ紙：アドバンテック東洋(株)製 GA200 を使用した。

その他の試薬：HPLC 用又は残留農薬試験用を使用した。

2.3 装置及び測定条件

2.3.1 GC-MS/MS

ガスクロマトグラフ：Thermo Fisher社製TRACE1300

注入口温度：270 $^{\circ}$ C

カラム：DB-5MS+DG(0.25mmi.d. \times 30m, 0.25 μ m)

カラム温度：50 $^{\circ}$ C(1min)–25 $^{\circ}$ C/min–125 $^{\circ}$ C–10 $^{\circ}$ C/min–300 $^{\circ}$ C(10min)–10 $^{\circ}$ C/min–310 $^{\circ}$ C(5min)

キャリアーガス流量：1mL/min

注入量：2.0 μ L(スプリットレス；1min)

タンデム型質量分析計：Thermo Fisher社製 TSQ8000Evo

イオン化電流：100 μ A

イオン化モード(電圧)：EI(70eV)

イオン源温度：300 $^{\circ}$ C

インターフェース温度：280 $^{\circ}$ C

2.3.2 GC-SPD

ガスクロマトグラフ：SIMAZU FPD-GC2010 Plus

注入口温度：270 $^{\circ}$ C

カラム：Rtx-OPPesticides (0.32mmi.d. \times 30m, 0.50 μ m)

カラム温度：60 $^{\circ}$ C(1min)–40 $^{\circ}$ C/min–140 $^{\circ}$ C–6 $^{\circ}$ C/min–310 $^{\circ}$ C(5min)

キャリアーガス流量：2.5mL/min

注入量：3.0 μ L(スプリットレス；1min)

検出器温度：310 $^{\circ}$ C

2.3.2 LC-Q/TOFMS

液体クロマトグラフ：Agilent 社製 1260Infinity

分析カラム：Waters 社製 Atrantis T3

2.1mm i.d. \times 100mm, 3.0 μ m

移動相：A 液：5 mmol/L 酢酸アンモニウム

B 液：アセトニトリル

グラジエント条件：表 1 に示した。

カラム温度：40 $^{\circ}$ C

注入量：5 μ L

飛行時間型質量分析計：Agilent 社

6530Accurate-Mass Q-TOF

イオン化法及びキャピラリー電圧：ESI

正イオンモード：4000 V 負イオンモード：-4000V

ネブライザ圧力：50 psi, 乾燥ガス：10L/min (280 $^{\circ}$ C)

シーガス：12L/min (400 $^{\circ}$ C)

フラグメンター電圧：130 V

スキャン範囲：m/z 100-1000

リファレンスマス

正イオンモード：121.0509 及び 922.0098

負イオンモード：112.9856 及び 980.0614

表1 LC-Q/TOFMSによるグラジエント条件

時間 (min)	A (%)	B (%)	流速 (mL/min)
0.0	100	0	0.2
10.0	100	0	0.2
20.0	10	90	0.2
33.0	10	90	0.2
33.1	100	0	0.3
45.0	100	0	0.3

2.4 試験溶液の調製

試験溶液調製のフローチャートを図1に示す。

サンプル量については、健康危機管理事案発生時に検体量が十分に取れない可能性も考慮し、厚労省の迅速検出法-2の1/2スケールの5gとした。抽出過程で用いる酢酸エチルと無水硫酸ナトリウムについてもスケールダウンし、抽出操作を行った。

精製操作については、厚労省の迅速検出法-2に準拠して行った。

2.5 性能評価試験

レトルトカレーにおいて、①GC-MS/MS及びGC-FPD用、②LC-Q/TOFMS I法用、③LC-Q/TOFMS II法用の3種類について、それぞれ評価濃度0.1ppmになるように添加試料3個を調製した。添加試料はサンプル中の脂肪が分離しないよう40℃程度に温めながら調製し、図1のフローチャートに従い分析を行い、事務連絡に従い選択性・回収率・併行精度を評価した。また、検量線の最下点濃度についても、試験法の信頼性保証として繰返し測定(n=3)を行い、RSD>10%でバラツキが大きい化合物は、評価対象から外した。

3 結果及び考察

3.1 GC-MS/MSでの性能評価試験結果

GC-MS/MSでは、農薬265化合物について、添加回収試験(n=3)を行った。表2に各回収率範囲の成分数を表3

表2 GC-MS/MS及びGC-FPDでの各回収率の成分数

回収率	成分数	
	GC-MS/MS	GC-FPD
<50%	6	0
≥50<70%	12	1
≥70<120%	159	15
≥120<150%	0	0
≥150<200%	0	0
>200%	0	0
評価基準 (50~200)	171	16

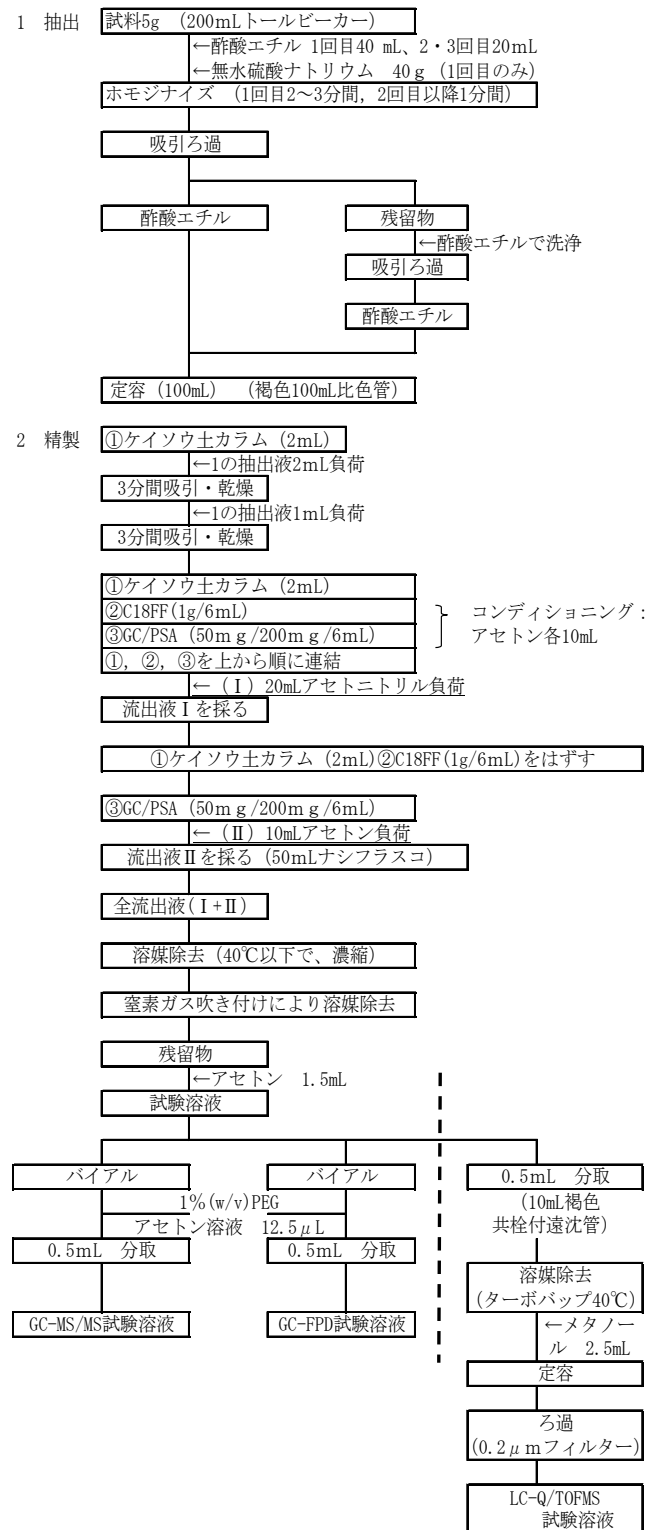


図1 試験溶液調製のフローチャート

に目標値を満足した成分の性能評価試験結果(平均値)を示す。これらの値について、事務連絡で示された性能パラメータの目標値(回収率 50~200%, RSD<30%, 以下「目標値」という。)と比較した結果、目標値を満足していた化合物数は171で、そのうち159化合物の回収

表 3 GC-MS/MS で目標値を満足した成分の性能評価試験結果(平均値)

化合物	CV (%)	回収率 (%)	化合物	CV (%)	回収率 (%)	化合物	CV (%)	回収率 (%)
alpha_BHC	8.0	67.2	Disulfoton	5.4	71.0	Omethoate	8.8	88.5
beta_BHC	1.5	102.7	Edifenphos	4.6	81.5	Oxadiazon	3.9	80.1
gamma_BHC	8.3	74.6	Endosulfan,alpha-	17.9	70.1	Oxadixyl	10.1	87.5
pp_DDD	15.9	76.7	Epoxiconazole	5.9	92.3	Paclbutrazol	5.0	94.4
pp_DDE	11.1	90.8	Esprocarb	7.2	86.5	Parathion ethyl	8.6	98.8
pp_DDT	9.4	90.1	Ethalfuralin	5.0	78.9	Parathion methyl	4.0	84.6
op_DDT	9.6	89.2	Ethion	9.9	92.5	Penconazole	5.8	93.6
Acetamiprid	4.4	88.4	Ethofumesate	4.7	90.3	Pendimethalin	8.2	90.7
Acetochlor	7.4	87.3	Ethoprophos	4.1	62.2	Perthane(Ethylan)	8.4	86.6
Alachlor	2.0	85.2	Etofenprox	7.8	86.3	Phenothrin 1,2	2.8	88.3
Aldrin	10.7	71.2	Etrimfos	3.9	81.9	Phenthoate	10.8	91.5
alpha_Chlorfenvinphos	5.8	95.6	Fenamidone	8.0	81.7	Phorate	8.8	64.0
beta_Chlorfenvinphos	3.0	84.8	Fenamiphos	12.0	90.6	Phosalone	19.3	79.3
Ametryn	3.7	92.8	Fenarimol	5.7	96.4	Phosphamidon	5.6	94.3
Atrazine	10.2	98.3	Fenchlorfos(Ronnel)	1.3	77.7	Piperonyl butoxide(PBO)	5.6	88.8
Benalaxyl	9.8	96.4	Fenitrothion	9.4	80.4	Piperophos	6.9	92.0
Benfluralin	9.1	80.1	Fenothiocarb	2.3	90.9	Pirimiphos methyl	5.5	91.0
Benfuresate	9.2	88.2	Fenpropathrin	12.3	91.6	Pretilachlor	7.8	85.3
Benoxacor	6.7	86.9	Fenpropimorph	3.9	90.3	Procymidone	1.9	92.8
Bifenthrin	7.0	89.5	Fensulfiothion	14.0	73.9	Profenofos	12.0	80.0
Bitertanol 1,2	6.4	92.2	Flamprop methyl	9.6	87.3	Prohydrojasmon 1,2	5.9	83.0
Bromacil	4.3	82.3	Fluacrypyrim	9.2	85.1	Propachlor	1.3	67.6
Bromobutide	6.4	111.0	Fludioxonil	13.9	88.1	Propanil	2.7	93.2
Bromophos methyl	1.9	83.7	Flumiclorac pentyl	9.6	82.4	Propargite 1,2	7.7	84.7
Bromopropylate	5.8	93.7	Fluridone	6.5	87.9	Propazine	6.7	100.0
Bupirimate	12.0	96.0	Flutolanil	4.3	88.2	Propoxur	13.5	63.4
Buprofezin	11.1	90.5	Flutriafol	3.4	98.5	Propyzamide	3.9	99.8
Butachlor	3.0	91.0	Fthalide	9.4	85.0	Pyrazophos	13.1	75.1
Butamifos	5.8	93.5	Furilazole	16.1	78.3	Pyributicarb	5.6	97.9
Cadusafos	4.7	77.1	Halfenprox	8.8	92.8	Pyridaben	6.7	91.4
Cafenstrole	21.5	72.4	Heptachlor	9.6	72.0	Pyrimethanil	5.1	87.7
Chlorbenseide	8.0	73.1	Hexaconazole	5.0	84.4	Pyriminobac methyl,E-	6.3	77.4
Chlorbufam	6.2	96.8	Hexazinone	4.1	91.3	Pyriminobac methyl,Z-	11.7	87.5
Chlorobenzilate	10.4	84.8	Imibenconazole desbenzyl	10.9	89.5	Pyriproxyfen	6.1	87.1
Chlorpyrifos	3.2	89.2	Iprobenfos	7.9	92.4	Pyroquilon	3.3	88.5
Chlorpyrifos methyl	19.9	71.8	Isazophos(Miral)	6.4	91.4	Quinoxifen	6.3	75.0
Chlorthal dimethyl(DCPA)	10.4	79.4	Isofenphos	5.1	84.5	Simazine	5.1	94.9
Cimidon ethyl	18.6	52.7	Isofenphos_oxon	3.5	88.9	Simetryn	5.4	91.6
cis_Permethrin	0.8	95.8	Isoprocarb	5.3	64.4	Tebuconazole	7.2	89.6
trans_Permethrin	5.1	91.4	Isoprothiolane	8.7	91.6	Tefluthrin	8.6	92.9
Clomazone	5.9	86.7	Isoxadifen_ethyl	4.3	90.4	Terbacil	6.3	98.7
Cyanazine	1.1	91.7	Isoxathion	2.5	89.9	Terbufos	9.1	74.3
Cyanophos	2.0	78.9	Kresoxim methyl	8.3	84.6	Terbutryn	1.9	93.3
Cyhalofop butyl	10.4	89.8	Lenacil	8.4	93.4	Tetrachlorvinphos	4.8	86.6
Cyproconazole	11.6	88.2	Malathion	5.5	88.2	Tetradifon	11.4	83.9
Demeton-S-methyl(Methyldemeton)	8.8	54.4	Mecarbam	5.9	91.9	Thifluzamide	7.3	77.5
Diallate 1,2	13.7	65.0	Mefenacet	9.3	86.8	Thiobencarb	10.7	88.2
Dichlofenthion	4.9	81.9	Mefenpyr diethyl	8.3	86.8	Thiometon	1.7	69.5
Dichloran	3.6	78.2	Mepronil	7.3	94.8	Tolclofos methyl	6.5	84.3
Diclofop methyl	3.6	90.3	Methidathion	10.6	82.1	Tolfenpyrad	1.6	95.8
Dicrotophos	5.8	103.3	Methoxychlor	6.6	93.2	Triadimefon	4.4	92.8
Dicyclomet 1,2	3.0	94.7	Metolachlor	4.4	89.7	Triadimenol 1,2	10.2	88.9
Dieckrin	13.8	67.3	Metominostrobin,E-	6.5	88.1	Tribuphos	4.0	87.9
Diethofencarb	2.2	94.5	Metominostrobin,Z-	8.3	88.2	Tricyclazole	8.1	84.0
Dimepiperate	4.7	91.5	Meviphos	2.3	65.9	Trifluralin	10.9	80.9
Dimethenamid	7.5	86.3	Monocrotophos	5.7	103.2	Uniconazole_P	13.5	72.2
Dimethoate	2.2	115.5	Myclobutanil	7.5	77.9	Vinclozolin	8.7	88.9
Dimethylvinphos E,Z	5.9	89.7	Naphthylacetamide,1,-(NAD)	2.2	93.9	XMC	7.6	71.6
Dioxathion	20.1	84.8	Napropamide	14.6	85.0			
Diphenamid	8.9	89.6	Nitrothal-isopropyl(Nitrothal)	5.6	97.1			

率が70~120%であった。

評価濃度0.1ppmに対し、回収率の最低は50%であったため、検量線の最下点濃度を0.005mg/Lに設定した。この濃度は、収去検査時に使用する農産物の農薬等試験の検量線最下点濃度より低い濃度であることから、繰返し測定(n=3)を行い、化合物毎の感度を確認した。

その結果、53化合物については、RSD>10%でバラツキが大きかったため、感度不足として今回の評価対象から外したが、添加回収試験(n=3)(測定濃度:0.01mg/L)の結果50~200%であり、そのうち47化合物の回収率は70~120%であった。評価濃度0.1ppmは、急性参照用量が示されている農薬等の中で最も小さな値であるトリアゾホスの急性参照用量(0.001 mg/kg 体重/日)を用いたことから、今回の結果で感度不足となった化合物のうち回収率50~200%の53化合物については、定性結果として原因物質の推定が可能な化合物と考えられた。

3.2 GC-FPD での性能評価試験結果

当所でのFPDによる有機リン系農薬の分析は、多くの有機リン系農薬を一度に測定するために開発されたRESTCK社製のRtx-OPPesticidesを使用している²⁾。このカラムはEPA法8141A規定の53成分が測定可能である。厚労省は迅速検出法を行うにあたって、信頼性保証として、添加試料を少なくとも1個同時に分析し、回収率を確認することとしている。そこで、添加回収試験を迅速に実施できる検査体制とするため、GC-FPDでも、GC-MS/MSと同じ混合標準液を使用し、回収率を確認した。

各有機リン農薬化合物のRT確定については、4種類の標準品(フェントロチオン、テルブホス、クロロピリホス、マラチオン)の測定とともに、Restek社のPro EZGC Chromatogram Modelerを用いたRtx-OPPesticidesでの化合物のRT情報と、上野ら³⁾のRtx-OPPesticidesでのRetention Index情報を用いた。その結果、直接測定によりRTを確定したテルブホス、クロロピリホス、マラチオンを含む23成分のRTを確定した。なお、フェントロチオンについては、混合標準液では他の成分と重なってしまい、確定できなかった。

評価濃度0.1ppmに対し、回収率の最低は50%であったため、検量線の最下点濃度を0.005mg/Lに設定した。その濃度における繰返し測定(n=3)を行った結果は、全てRSD≤10%と良好であった。性能評価試験での添加回収試験(n=3)結果として、表2に各回収率範囲の成分数を、表4に目標値を満足した成分の性能評価試験結果(平均値)を示す。これらの値について、目標値を満足していた成分は16成分で、そのうち15成分の回収率が70~120%であった。

表4 GC-FPDで目標値を満足した成分の性能評価試験結果(平均値)

確認 RT (min)	化合物名	分離	CV (%)	回収率 (%)
10.95	Mevinphos		3.1	74.9
12.45	Ethoprophos	×	3.4	85.7
12.53	Phorate	×	7.5	76.3
13.66	Diazinon		4.3	95.1
13.83	Terbufos		4.1	87.7
13.96	Fonofos		5.4	95.0
14.42	Omethoate	×	2.4	111.8
15.33	Dichlofenthion		5.0	92.3
15.76	Monocrotophos	×	3.1	111.7
16.31	Cyanophos		3.4	106.8
16.79	Chlorpyrifos		7.8	106.3
17.02	Fenthion		7.0	104.4
17.89	Parathion methyl	×	3.3	110.4
18.10	Malathion		3.3	105.1
18.82	Isofenphos		2.9	119.1
21.64	Isoxathion		4.1	112.9
22.39	Edifenphos	×	1.5	118.1
23.71	Cyanofenphos		2.0	104.2
23.88	Leptophos		8.7	68.7
24.03	Fensulfothion		1.1	108.7
25.32	Piperophos	×	1.6	114.2
26.02	Azinphos-methyl		6.6	79.4
26.27	Phosalone		7.5	98.2

なお、RTを確定した23成分のうち7成分は、分離が十分でなかったため評価対象から外したが、添加回収試験(n=3)の結果は目標値を満たしていた。これら7成分は、今回の検討では分離が十分ではなかったが、健康危機管理事案発生時には、単独の化合物を推定する可能性が高いことから、迅速検出法で推定可能な化合物であると考えられた。

また、小林ら⁴⁾は、有機リン系農薬39種類を含む57種類に対し、GC-MS及びGC-FPDを用いた加工食品中農薬の迅速分析法について報告している。今回の当所の結果は、GC-FPDで対象となる農薬が小林らの報告より少なかったが、回収率70~120%以外の農薬の占める割合はGC-MS/MSの結果よりも少なく、GC-FPDでの測定の方がやや安定して定量できる傾向が見られたという小林らの報告と同様の結果であった。

3.3 LC-Q/TOFMS での性能評価試験結果

当所での食品中の残留農薬試験法ではLC-MS/MSを使用している。LC-MS/MS分析は、選択性が高く高感度であるが、化合物同定については、GC/MSで汎用されているようなライブラリの整備は十分でない。一方、LC-Q/TOFMSでは、精密質量による化合物同定が可能で

ある。

健康危機管理事案が発生した場合、迅速に原因物質を推定できることが重要であるため、未知物質の精密質量による化合物同定が可能な LC-Q/TOFMS を用いた。

また、前述のとおり、添加回収試験を迅速に実施できる検査体制とするため、収去検査の残留農薬試験で使用している LC-MS/MS と同じ混合標準液と分析カラム

(Waters 社製 Atrantis T3) で検討した。

厚労省の LC/MS による農薬等の一斉試験法 (農産物) では、対象農薬が I 法と II 法と 2 つのグループに分かれている。標準品の林純薬工業(株)製 PL2005 LC/MSMix は 4~7 が I 法対応、8~10 が II 法対応で調製されており、当所ではそれぞれの対象農薬を 2 つのグループに分けて分析している。そこで今回も分けて分析することとし、I 法グループにはネオニコチノイド系農薬を混合した。ただし、II 法については、LC/MS による農薬等の一斉試験法 II (農産物) で行う酸添加は行わず、2 法とも同じ分析操作とした。

測定条件については、① I 法と II 法の農薬混合標準液 20ppb についてそれぞれスキャンモードでの正イオン・負イオンの測定を行い、② Agilent 社の Molecular Feature データベース検索によりターゲットイオンで一致率 90% 以上の化合物だけを抽出し、③②で得られた化合物リストの情報により定量用メソッドを作成した。これら①~③については、性能評価試験データを用いた。

データベース検索により一致率 90% 以上の化合物数は、I 法正イオン：99、I 法負イオン：39、II 法正イオン：46、II 法負イオン：44 であった。なお、I 法正イオンのうち、カルボキシシンとメタクリホスについては、回収率は 78% であったが、今回は MS/MS による化合物確定は行わなかったため評価対象から外した。

表 5 LC-Q/TOFMS での各回収率範囲の成分数

回収率	I 法		II 法	
	Posi	Nega	Posi	Nega
<50%	14	0	14	8
≥50<70%	16	5	7	4
≥70<120%	35	20	10	5
≥120<150%	0	2	0	0
≥150<200%	0	0	0	0
>200%	0	0	0	1
評価基準 (50~200)	51	27	17	9

性能評価試験としては、I 法 II 法それぞれで添加回収試験(n=3)を行った。表 5 に各回収率範囲の成分数を、表 6 及び表 7 に目標値を満足した化合物の性能評価試験結果(平均値)を示す。今回の結果で、これらの値について

目標値を満足していた化合物数は、I 法正イオン：51、I 法負イオン：27、II 法正イオン：17、II 法負イオン：9 であった。これら化合物のうち、正イオン負イオン両方で目標値を満足しているものが、I 法で 10 化合物、II 法で 9 化合物存在した。従って、目標値を満足していた化合物数は、I 法が 68、II 法が 17 であり、I 法に比べ II 法で目標値を満足する化合物が少なかった。

4 まとめ

健康危機管理上の検査体制強化のため、様々な食品成分と共に分析で妨害となる脂肪や香辛料を含むレトルトカレーに対して、厚労省の迅速検出法-2 に準拠し、GC-MS/MS、FPD、LC-Q/TOFMS の 3 種類の分析機器を用いて性能評価試験を行った結果、以下の結果が得られた。

1. GC-MS/MS では、目標値を満足していた化合物数は 171 で、そのうち 159 化合物の回収率が 70~120% であった。また、今回の結果で感度不足となった化合物のうち回収率 50~200% の 53 化合物については、定性結果として原因物質の推定が可能な化合物と考えられた。

2. GC-FPD では、GC-MS/MS と同じ混合標準液を使用し、テルブホス、クロロピリホス、マラチオンを含む 23 化合物の RT を確定した。目標値を満足していた化合物数は 16 で、そのうち 15 化合物の回収率が 70~120% であった。なお、RT を確定した 23 成分のうち 7 成分は、混合標準液での今回の検討では分離が十分ではなかったが、添加回収試験(n=3)結果は目標値を満たしていたことから、迅速検出法で推定可能な化合物であると考えられた。

3. LC-Q/TOFMS では、対象農薬を I 法と II 法の 2 つのグループに分けたが、2 法とも同じ分析操作で行った。

I 法と II 法それぞれで、Molecular Feature データベース検索で一一致率 90% 以上の化合物による定量メソッドを作成し測定条件とした。正イオン負イオン両方で目標値を満足しているものが、I 法で 10 化合物、II 法で 9 化合物存在したため、目標値を満足していた化合物数は、I 法が 68、II 法が 17 となり、I 法に比べ II 法で目標値を満足する化合物が少なかった。

文献

- 1) 厚労省事務連絡：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 3 月 26 日
- 2) 畑野 和広：キャピラリー・ガスクロマトグラフ／共注入法の PEG 農産物中の有機リン系農薬同時定量法への適用、福岡市保健環境研究所報, 28, 74~78, 2002

- 3) 上野英二, 大島晴美, 斎藤 勲, 松本 浩: デュアルカラム GC-FPD, NPD による野菜・果実中の有機リン系農薬の多成分分析, 食品衛生学雑誌 42, 385~393, 2001
- 4) 小林麻紀, 大塚健治, 田村康宏, 富澤早苗, 上條恭子, 岩越景子, 佐藤千鶴子, 永山敏廣, 高野伊知郎: GC-MS 及び GC-FPD を用いた加工食品中混入農薬の迅速分析法の検討, 食品衛生学雑誌 52, 226~236, 2011

表6 LC-Q/TOFMS で目標値を満足した成分の性能評価試験結果 (I 法・平均値)

ポジティブ測定				ネガティブ測定							
		CV%	回収率%			CV%	回収率%			CV%	回収率%
Acetamiprid	(M+H)+	1.2	98.5	Indanofan	(M+H)+	9.6	54.9	Acetamiprid	(M-H)-	1.2	103.0
Anilofos	(M+H)+	7.1	62.8	Iprovalicarb	(M+H)+	0.9	99.6	Boscalid	(M-H)-	2.1	86.5
Azafenidin	(M+H)+	2.2	80.2	Isoxadifen-ethyl	(M+NH4)+	7.1	80.7	Carpromamid	(M-H)-	6.6	67.8
Azoxystrobin	(M+H)+	0.7	88.6	Linuron	(M+H)+	12.8	68.3	Chloridazon	(M-H)-	3.4	100.8
Butafenacil	(M+H)+	3.5	85.5	Mepanipyrim	(M+H)+	3.8	57.2	Chloroxuron	(M-H)-	2.3	110.0
Carbaryl	(M+H)+	5.0	85.5	Methiocarb	(M+H)+	12.9	69.1	Chromafenozide	(M-H)-	13.4	126.4
Carbofuran	(M+H)+	4.0	90.0	Methomyl	(M+H)+	6.9	57.9	Clomeprop	(M-H)-	1.8	66.6
Chloridazon	(M+H)+	0.1	90.7	Methoxyfenozide	(M+H)+	11.3	62.8	Clothianidin	(M-H)-	2.9	94.6
Chromafenozide	(M+H)+	1.9	93.3	Monolinuron	(M+H)+	2.9	82.9	Cumyluron	(M-H)-	2.0	97.4
Cloquintocet mexyl	(M+H)+	4.9	80.5	Nitenpyram	(M+H)+	0.8	64.2	Cyflufenamid	(M-H)-	5.0	101.0
Cumyluron	(M+H)+	2.9	77.4	Oxamyl	(M+H)+	18.8	82.1	Dimethirimol	(M-H)-	2.6	111.5
Cyazofamid	(M+H)+	4.9	66.1	Oxaziclomefone	(M+H)+	2.7	86.8	Diuron	(M-H)-	3.8	106.7
Cyflufenamid	(M+H)+	10.6	56.2	Oxycarboxine	(M+H)+	1.2	96.0	Dymuron	(M-H)-	0.8	94.2
Cyprodinil	(M+H)+	1.0	88.9	Pencycuron	(M+H)+	7.6	66.4	Flufenoxuron	(M-H)-	4.3	109.7
Dimethirimol	(M+H)+	5.1	87.9	Pirimicarb	(M+H)+	1.9	102.1	Hexaflumuron	(M-H)-	7.4	58.4
Dimethomorph(E)1	(M+H)+	6.4	99.5	Pyrifthalid	(M+H)+	2.8	90.5	Imidacloprid	(M-H)-	2.3	83.9
Diuron	(M+H)+	4.0	84.1	Pyriproxyfen	(M+NH4)+	7.7	73.1	Iprovalicarb	(M-H)-	1.4	123.6
Dymuron	(M+H)+	2.4	82.7	Simeconazole	(M+H)+	18.4	52.3	Lufenuron	(M-H)-	2.5	70.5
Fenoxycarb	(M+H)+	13.5	56.9	Tebufenozide	(M+H)+	0.9	97.7	Methoxyfenozide	(M-H)-	7.2	92.8
Fenpyroximate(Etype)1	(M+H)+	2.2	80.8	Tebuthiuron	(M+H)+	0.1	98.3	Novaluron	(M-H)-	3.4	95.5
Fenpyroximate(Ztype)2	(M+H)+	6.3	72.3	Tetrachlorvinphos	(M+H)+	10.9	68.6	oryzalin	(M-H)-	3.0	65.2
Flufenacet	(M+H)+	7.0	67.0	Thiacloprid	(M+H)+	0.8	96.6	Parathion-ethyl	(M-H)-	10.6	61.8
Fluridon	(M+H)+	1.5	86.7	Thiamethoxam	(M+H)+	3.8	75.2	Pencycuron	(M-H)-	6.1	104.6
Furametpyr	(M+H)+	1.8	89.9	Thiodicarb	(M+H)+	4.9	64.1	Simeconazole	(M-H)-	1.7	100.6
Furathiocarb	(M+H)+	2.3	88.2					Thiacloprid	(M-H)-	2.0	92.5
Imazalil	(M+H)+	2.3	75.7					Triflumuron	(M-H)-	1.0	99.4
Imidacloprid	(M+H)+	0.4	79.6					Triticonazole	(M-H)-	3.0	92.8

表7 LC-Q/TOFMS で目標値を満足した成分の性能評価試験結果 (II 法・平均値)

ポジティブ測定				ネガティブ測定							
		CV%	回収率%			CV%	回収率%			CV%	回収率%
Flumetsulam	(M+H)+	12.7	51.2	Chlorimuron ethyl	(M+H)+	4.1	73.6	Chlorsulfuron	(M-H)-	1.7	60.2
Chlorsulfuron	(M+H)+	4.6	67.2	Penoxsulam	(M+H)+	1.5	98.1	Halosulfuron methyl	(M-H)-	10.6	91.5
Trifloxystrobin	(M+Na)+	4.3	65.7	Cloransulam-methyl	(M+H)+	4.4	80.9	Penoxsulam	(M-H)-	1.7	88.4
Sulfosulfuron	(M+H)+	3.6	95.5	Diclosulam	(M+H)+	5.2	81.0	Primisulfuron methyl	(M-H)-	10.1	87.4
Florasulam	(M+H)+	7.6	79.8	Primisulfuron methyl	(M+H)+	2.7	91.4	Prosulfuron	(M-H)-	2.1	85.9
Pyrazosulfuron-ethyl	(M+H)+	2.6	66.8	Triflusulfuron methyl	(M+H)+	8.2	54.1	Pyrazosulfuron-ethyl	(M-H)-	2.1	82.6
Tribenuron methyl	(M+H)+	1.9	65.0	Sulfentrazone	(M+H)+	2.3	102.3	Sulfentrazone	(M-H)-	4.9	66.7
Halosulfuron methyl	(M+H)+	3.9	90.8					Sulfosulfuron	(M-H)-	2.3	65.5
Prosulfuron	(M+H)+	0.3	94.7					Tribenuron methyl	(M-H)-	9.4	53.2

福岡市における食事からの残留農薬一日摂取量調査(2016)

井邊早春・河野嘉了・常松順子

福岡市保健環境研究所保健科学課

Studies on Daily Intake of Pesticides in Foods in Fukuoka City (2016)

Saharu IBE, Yoshinori KAWANO and Junko TSUNEMATSU

Health Science Section, Fukuoka City Institute of Health and Environment

要約

福岡市民が日常の食事から摂取している農薬量を推定するため、平成 28 年度に福岡市内を流通した食品を対象として、マーケットバスケット方式による農薬の一日摂取量調査を実施した。対象農薬は、平成 26～28 年に本所で検出された農薬及びネオニコチノイド系殺虫剤等を含む、24 農薬とした。調査対象食品は福岡市内の食料品店で購入した 167 品目について「平成 23～25 年度国民健康・栄養調査（北九州ブロック）」に基づき、14 の食品群に分類した後、調理を要する食品については、通常行われている調理方法に準じて調理を行い、試料を調製した。分析の結果、7 群（緑黄色野菜）及び 8 群（野菜類・藻類・きのこ類）の 2 種類の群から農薬を検出した。各農薬の検出値をもとに一日摂取量を算出し、一日摂取許容量（ADI）と比較したところ、対 ADI 比は 0.03 及び 0.3% であり、安全上問題ない量であると考えられた。また、農薬が検出された群において、どの食品由来か個別の食品について分析を行ったところ、基準値を超えるものはなかった。

Key Words : 農薬 pesticide, 一日摂取量 daily intake, 一日摂取許容量 ADI, 高速液体クロマトグラフ・タンデム型質量分析計 LC-MS/MS, 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

福岡市民が日常の食事を介して農薬等をどの程度摂取しているかを把握し、情報提供することは、市民の食の安全安心を確保する上で重要である。

厚生労働省は平成 3 年度より国民健康・栄養調査を基礎としたマーケットバスケット調査方式による一日摂取量調査を行っている。この調査は、加工食品、青果物、魚介類、肉類及び飲料水など食品全般を対象に、これらの食品を通じて実際に摂取する農薬等の量を求める方法である。この調査結果は、食品衛生法に基づく食品中の残留農薬の基準値の設定や見直しを行う上で、毒性試験結果や一日摂取許容量(ADI)などとともに重要な基礎データとなる。

福岡市においても平成 17 年度から同調査に参画しており、平成 19 年度より農薬の一斉分析法を用いた調査を行ってきた。また、福岡市独自の調査対象農薬を設定し、同様の調査方法を用いて福岡市民の食事からの農薬摂取量を調査している。平成 28 年度は、平成 26～28 年に本

所で検出された農薬及びネオニコチノイド系殺虫剤等を含む、24 農薬について調査を実施したので、その結果を報告する。

検出した農薬については、その食品群の平均一日摂取量及び ADI をもとに安全性の評価を行った。

2 実験方法

2.1 試料

福岡市内の食料品店において、「平成 23～25 年度国民健康・栄養調査（北九州ブロック）」を参考に代表的な食品 167 品目を購入した。調理を要する食品については、通常行われている調理方法に準じて調理を行い¹⁾、食品群ごとに「平成 23～25 年度国民健康・栄養調査（北九州ブロック）」の摂取割合に従って混合し均一化した。各群の一日摂取量と主な購入食品を表 1 に示した。

表1 一日摂取量と主な購入食品²⁾

食品群	一日摂取量(g)*	主な購入食品
1	344.7	精白米めし, もち
2	162.64	小麦粉類, めん類, パン類, いも類
3	32.8	砂糖・甘味料類, 菓子類
4	9.46	動・植物性油脂, バター, マーガリン
5	59.2	豆腐, 油揚げ, 納豆, 豆乳
6	96.67	生果, ジャム, 果汁飲料
7	89.1	緑黄色野菜, 野菜ジュース
8	191.7	淡色野菜, 漬物, きのこと類, 海藻類
9	678.8	酒類, 茶, コーヒー, 清涼飲料水
10	71.1	魚介類(生鮮品, 加工品), 魚肉練り製品
11	126.85	鶏卵, 豚肉, 牛肉, 鶏肉, ハム・ソーセージ
12	113.0	牛乳, ヨーグルト, 乳酸菌飲料, チーズ
13	89.0	調味料, 香辛料
14	-	ミネラルウォーター

*平成23~25年度国民健康・栄養調査集計(北九州ブロック)一日摂取量の値

2.2 試薬等

2.2.1 LC-MS/MS 分析用試薬等

標準原液: 表2示す農薬について, アセタミプリド, ジノテフラン, トリシクラゾール, ハロキシホップの4農薬は, 関東化学(株), 和光純薬工業(株), Dr.Ehrenstorfer GmbH製の各標準品を精秤し, アセトン又はアセトニトリルで約20mLに定容し標準原液とした。上記以外の7農薬については, 林純薬工業(株)製の混合標準原液PL2005 LC/MS MIX 4及び5(各成分20 μ g/mLアセトニトリル溶液)を使用した。すべての標準品は残留農薬試験用を用いた。

検量線作成用標準混合溶液: 標準原液を混合し, メタノールで1 μ g/mLとなるように希釈後, 適宜希釈し調製した。

0.5mol/Lリン酸緩衝液: リン酸水素ナトリウム52.7g及びリン酸二水素ナトリウム30.2gを量り採り, 水約500mLに溶解し, 1mol/L塩酸を用いてpHを7.0に調整した後, 水を加えて1Lとした。

C18FF/無水硫酸ナトリウム積層(C18 FF/DRY)ミニカラム: ジーエルサイエンス(株)製 InertSep C18FF/DRY(1g/3g)をあらかじめアセトニトリル10mLでコンディショニングして使用した。

グラファイトカーボン/アミノプロピルシリル化シリカゲル積層(GC/NH₂)ミニカラム: ジーエルサイエンス(株)製 InertSep GC/NH₂(1g/1g)をあらかじめアセトニトリル及びトルエン(3:1)混液10mLでコンディショニ

ングして使用した。

その他の試薬: 残留農薬試験用を使用した。

2.2.2 GC-MS/MS 分析用試薬等

標準原液: 表3に示す13農薬について, 林純薬工業(株)製の混合標準原液PL2005 GC/MS MIX I~V(各成分20 μ g/mLアセトニトリル溶液)を使用した。フェノブカルブは和光純薬(株)製の標準品を, 20 μ g/mLとなるようアセトンで希釈したものを使用した。

検量線作成用標準混合溶液: 各標準原液を混合し, アセトン及びヘキサン(1:1)混液で1 μ g/mLとなるよう希釈後, 適宜希釈し調製した。2, 4, 10, 13群以外の群についてはポリエチレングリコール300を0.025%となるように添加したもの(以下PEG含有標準溶液という)を使用した。

0.5mol/Lリン酸緩衝液: LC-MS/MS分析用と同様に調製した。

C18 FF/DRY ミニカラム: LC-MS/MSと同様に使用した。

GC/NH₂ ミニカラム: LC-MS/MSと同様に使用した。

ポリエチレングリコール300: 和光一級を使用した。

その他の試薬: 残留農薬試験用を使用した。

2.3 装置及び測定条件

2.3.1 LC-MS/MS

液体クロマトグラフ: Agilent社製 1260シリーズ
質量分析計(MS/MS): ABSCIEX社製 TQ5500
測定条件は表4及び表5に示した。

2.3.2 GC-MS/MS

ガスクロマトグラフ質量分析計: Bruker Daltonics社製 scion TQ
測定条件は, 表6及び表7に示した。

2.4 試験溶液の調製

2.4.1 1, 2, 3, 5, 12及び13群

「LC/MSによる農薬等の一斉試験法I(農産物)³⁾」及び「GC/MSによる農薬等の一斉試験法I(農産物)³⁾」(以下, 通知法)の「(1)穀類, 豆類及び種実類の場合」に準じて実施した。

2.4.2 4, 10及び11群

柿本ら⁴⁾の方法を参考に試験溶液を調製した。試料10g(4群は5g)に蒸留水10mLを加えた後, n-ヘキサン25mL及びヘキサン飽和アセトニトリル50mLを加えホモジナイズし, アセトニトリル層を分取しろ過した。残留物にヘキサン飽和アセトニトリル20mLを加え同様の操作を行い, アセトニトリル層を合わせて100mLに定容した。以降の操作については, 2.4.1と同様の方法で行った。

表2 調査対象農薬 (LC-MS/MS)

農薬名	主な用途	農薬数
アセタミプリド, イミダクロプリド, クロチアニジン, ジノテフラン, チアクロプリド, チアメトキサム, ノバルロン, フェンピロキシメート, フルフェノクスロン	殺虫剤	9
トリシクラゾール	殺菌剤	1
ハロキシホップ	除草剤	1

表3 調査対象農薬 (GC-MS/MS)

農薬名	主な用途	農薬数
クロルピリホスメチル, ピペロニルブトキシド, ピリミホスメチル, フェノブカルブ, マラチオン, ププロフェジン	殺虫剤	6
プロモブチド	除草剤	1
メトミノストロピン, オキサジキシル, ジフェノコナゾール, テブコナゾール, フルトラニル, メプロニル	殺菌剤	6

表4 LC-MS/MS の条件

液体クロマトグラフ		
分析カラム	Waters 社製 Atlantis T3 C18 (2.1mm i.d×50 mm, 3.0μm)	
カラム温度	40°C	
移動相	A 液 : 5 mmol/L 酢酸アンモニウム B 液 : アセトニトリル	
移動相流量	0.2 mL/min	
グラジエント条件	0% B (0 min)→0% B (1 min)→90% B (20 min)→90% B(30 min) →0% B (30.1 min)→0% B (40 min)	
注入量	5μL	
質量分析計		
	(ポジティブ測定)	(ネガティブ測定)
イオンスプレー電圧	5.500V	-4.500V
イオンソース温度	650°C	650°C

表5 各農薬の質量分析計の測定条件 (LC-MS/MS)

No.	農薬名	Q1(m/z)	Q3(m/z)	DP	CE	No.	農薬名	Q1(m/z)	Q3(m/z)	DP	CE
1	アセタミプリド	223.1	126	76	31	7	ノバルロン	493.0	158.0	96	31
2	イミダクロプリド	256.1	209	71	25	8	フェンピロキシメート	422.3	366.1	81	25
3	クロチアニジン	247.9	58	-55	-26	9	フルフェノクスロン	487.0	155.8	-65	-18
4	ジノテフラン	203.1	129.2	51	19	10	トリシクラゾール	190.1	163.1	101	35
5	チアクロプリド	253.1	126	81	31	11	ハロキシホップ	362.0	316.1	71	27
6	チアメトキサム	292.1	211.1	71	21						

表6 GC-MS/MS の条件

ガスクロマトグラフ	
注入口温度	280°C
カラム	アジレント・テクノロジー社製 DB-5MS+DG (0.25mm i.d×30m, 0.25µm)
カラム温度	50°C(1min)→25°C/min→125°C→10°C/min→300°C(10min)→10°C/min →310°C(10min)
キャリアーガス流量	1mL/min (ヘリウム)
注入量	2µL (スプリットレス)
質量分析計	
イオン化電流	50µA
イオン化モード	EI
イオン源温度	225°C
インターフェース温度	280°C

表7 各農薬の質量分析計の測定条件 (GC-MS/MS)

No.	農薬名	Q1(m/z)	Q3(m/z)	CE(eV)	No.	農薬名	Q1(m/z)	Q3(m/z)	CE(eV)
1	クロルピリホスメチル	286	241	-20	8	プロモブチド	232	176	-25
2	ピリミホスメチル	290	125	-20	9	(E)-メトミノストロピン	191	160	-20
3	マラチオン	173	99	-15	10	ブプロフェジン	190	175	-10
4	フルトラニル	173	145	-25	11	オキサジキシル	163	132	-20
5	メブロニル	269	119	-15	12	ビベロニルプトキシド	176	131	-15
6	テブコナゾール	250	125	-15	13	フェノブカルブ	150	121	-25
7	ジフェノコナゾール	323	265	-25					

2.4.3 6, 7, 8 及び 9 群

通知法の「(2) 果実, 野菜, ハーブ, 茶及びホップの場合」に準じて実施した。

2.4.4 14 群

試料 4 g にアセトニトリル 20 mL, 0.5 mol/L リン酸緩衝液 20 mL 及び塩化ナトリウム 10 g を加え振とうした。以降の操作については, 2.4.3 と同様の方法で行った。

2.5 マトリックス添加標準溶液の調製

食品群ごとに調製した試験溶液の溶媒を窒素気流下で除去し, 検量線作成用標準混合溶液に溶解したものをマトリックス添加標準溶液とした。

2.6 定量

LC-MS/MS においては試験溶液 5 µL を, GC-MS/MS においては試験溶液 2 µL を注入し, 得られたクロマトグラムのピーク面積から絶対検量線法により各農薬の濃度を求め, 試料中の含量を算出した。一部の群については, マトリックス添加標準溶液を用いた。

3 結果及び考察

3.1 添加回収試験

3.1.1 LC-MS/MS

各群 0.01 µg/g となるように 11 農薬の標準品を添加し, 回収試験を実施した。

標準溶液を使用して測定したところ, 6 群以外の群で回収率が 70~120% の範囲外となる化合物があり, 試料中のマトリックスがイオン化に影響を及ぼしていると考えられたため, マトリックス添加標準溶液を用いて測定した。その結果, 1, 2, 5, 10, 11, 12 群について回収率の向上が認められ, 各農薬の平均回収率は 68.0~94.8% となった。添加回収試験の結果を表 8 に示した。各農薬の定量限界値は 0.01ppm とした。

なお, すべての農薬において, 定量に支障を与えるような試料由来の妨害ピークは認められなかった。

3.1.2 GC-MS/MS

各群 0.01µg/g となるように 13 農薬の標準品を添加

し、回収試験を実施した。PEG 含有標準溶液を使用して測定したところ、2, 4, 10, 13 群において、回収率が 70～120% の範囲外となる化合物があり、120% を超える化合物が認められた。試料成分のマトリックス効果によるものと考えられたため、上記の群についてマトリックス添加標準溶液を用いて測定した。その結果、回収率の改善が認められ、各農薬の平均回収率は 93.5～106.5% となった。添加回収試験の結果について表 9 に示した。各農薬の定量限界値は 0.01ppm とした。

3.2 一日摂取量調査

1～14 群の試料について 24 農薬を分析した結果、検出した農薬について表 10 に示した。7 群からフルフェノクスロンを 0.064 µg/g、8 群からネオニコチノイド系殺虫剤であるジノテフランを 0.018 µg/g 検出した。なお、定量下限未満であったが 7 群のジノテフラン、クロチアニジン、8 群のアセタミプリド(ネオニコチノイド系殺虫剤)、フルフェノクスロンにピークが認められた。

検出した農薬の一日摂取量を算出し、平均体重を 50kg とした場合の ADI と比較したところ、表 10 に示したとおり対 ADI 比は 0.03% 及び 0.3% であった。このことから、今回調査した農薬の一日摂取量は、いずれも安全上問題のない量であったと考えられた。

また、厚生労働省が報告している調査結果⁵⁾と同様に、不検出であった農薬及び一部の群より検出されたが他の群から不検出であった農薬について、定量下限の 20% の濃度で農薬が残留していると仮定して、各食品群の重量と濃度から、食品群ごとの農薬の摂取量を推定した。この推定値と検出した農薬の一日摂取量を合算し、対 ADI 比を算出した場合においても、LC-MS/MS 分析項目では 0.0002% (ジノテフラン) ～3.9% (ハロキシホップ)、GC-MS/MS 分析項目では 0.0001% (マラチオン) ～0.3% (プロフェジン) の範囲で十分低い値と考えられた。

3.3 由来食品の確認

7 群から検出したフルフェノクスロン及び 8 群から検出したジノテフランが、それぞれどの食品由来であるか分析を行った結果を表 11 に示した。7 群のほうれん草からフルフェノクスロン、8 群のきゅうりからジノテフランを検出した。また、食品群ごとの分析では定量下限未満であったが、7 群のピーマン及び 8 群のきゅうりからアセタミプリド、8 群の大根からイミダクロプリド(ネオニコチノイド系殺虫剤)、7 群のきゅうりからジノテフラン、8 群のセロリからフルフェノクスロンを検出した。なお、個々の食品の基準値を超過するものはなかった。

3.4 ネオニコチノイド系殺虫剤の検出状況

本市では、平成 19 年度より農薬の一斉分析法を用いた調査を行っており、平成 25 年度以降は、「蜂群崩壊症候群」の要因の一つと考えられているネオニコチノイド系殺虫剤のうち本市で分析可能な 6 種類について継続して調査を行ってきた。「蜂群崩壊症候群」は、蜜蜂に関して 2000 年代より欧米で報告されており、蜜蜂が越冬できずに消失したり、働き蜂のほとんどが女王蜂や幼虫などを残したまま突然いなくなり蜜蜂の群が維持できなくなるといった現象である⁶⁾。

ネオニコチノイド系殺虫剤は、稲、果樹及び野菜等の幅広い作物に使用可能で、主要な害虫に対して優れた防除効果があり、粒剤の土壌処理、水で希釈した散布液の茎葉散布、動力散布機につないだホースからの粉剤の散布等の方法で使用されている。特に、イミダクロプリド、クロチアニジン、ジノテフラン及びチアメトキサムは、人及び水生生物に対する毒性が弱く、油に溶けにくく稲わらを餌とする畜産物に残りにくいという特徴から、水稻のカメムシ防除に重要な農薬である⁶⁾。

6 種類のネオニコチノイド系殺虫剤(アセタミプリド、イミダクロプリド、クロチアニジン、ジノテフラン、チアクロプリド、チアメトキサム)の平成 25～28 年度の検出状況を表 12 (食品群毎)及び表 13 (食品毎)に示した。アセタミプリド及びジノテフランは過去 4 年で毎年検出されたのに対し、クロチアニジン及びチアクロプリドは、一度も検出されなかった。検出された農薬の使用時期は、収穫前日～14 日前までであったことから⁸⁾、収穫の直前まで使用された農薬が残留した可能性があると考えられる。

由来食品の分析の結果、農薬が検出された 18 食品中 15 食品からアセタミプリド又はジノテフラン、もしくはその両方が検出されており、他の農薬と比較してより高濃度で検出されたが、個々の食品の基準値を超過するものはなかった。

本調査は福岡市内を流通した食品を対象として行われ、購入食品の多くは九州を原産地とするものが多かったが、その範囲は近郊他県だけでなく国内全域であった。表 14 に全国及び由来食品の原産地(国内)の平均農薬出荷量(平成 25～27 年度)を示した。全国及び九州内の出荷量はジノテフランが最大で、アセタミプリドも上位であったのに対し、北海道ではチアメトキサム及びイミダクロプリドが上位となる特徴が認められた。九州を原産地とする食品からジノテフラン及びアセタミプリドが多く検出され、イミダクロプリドが北海道産の大根からのみ検出されたことから、出荷量上位の農薬と検出頻度は一致する傾向があると考えられる。

4 まとめ

平成 28 年度に福岡市内を流通する食品を対象として、マーケットバスケット方式による農薬の一日摂取量調査を実施した。24 農薬の分析の結果、2 種類の群から農薬を検出した。それぞれの農薬の検出値をもとに一日摂取量を算出し、一日摂取許容量 (ADI) と比較したところ、対 ADI 比は 0.03% 及び 0.3% であり安全上問題ない量と考えられた。

平成 25~28 年度は、「蜂群崩壊症候群」の要因の一つと考えられているネオニコチノイド系殺虫剤のうち、本市で分析可能な 6 種類について継続して調査を行った結果、個々の基準値を超過するものはなかった。

食品の摂取量や種類は地域別に異なっており、市内を流通する食品を対象として農薬の一日摂取量を把握しておくことは、市民の食の安全安心を確保する上で重要なことであると考えられる。

謝辞

本調査を行うにあたり、食品の購入、試料の調製等を実施していただきました福岡市保健福祉局食品安全推進課、食肉衛生検査所、食品衛生検査所、各区保健福祉センター衛生課の職員の皆様に感謝いたします。

表 8 添加回収試験結果及び定量限界 (LC-MS/MS)

No.	項目	回収率 (%)														平均
		I	II	III	IV	V	VI	VII	VIII	IX	X	X I	X II	X III	X IV	
1	アセタミプリド	97.7	97.3	91.0	92.5	90.5	106.4	87.5	75.3	71.6	97.9	97.1	94.0	94.2	83.6	91.2
2	トリシクラゾール	86.9	88.4	97.1	78.0	86.0	86.8	73.9	72.3	78.7	87.9	90.2	80.6	90.6	84.0	84.4
3	フェンピロキシメート	65.8	88.5	71.6	60.3	82.7	81.2	65.5	70.1	74.0	84.1	82.5	92.8	65.8	90.3	76.8
4	イミダクロプリド	94.0	98.8	79.7	88.8	76.0	91.9	67.7	65.7	58.9	96.0	94.2	95.4	77.8	83.1	83.4
5	ジノテフラン	61.5	68.0	68.2	78.9	63.4	109.6	53.7	64.8	60.5	76.9	73.8	68.0	72.8	75.3	71.1
6	チアクロプリド	100.3	104.7	90.8	96.5	87.9	104.4	70.5	63.3	70.3	99.7	98.1	94.6	96.2	88.6	90.4
7	チアメキサム	83.9	95.3	75.7	86.7	71.4	87.2	74.8	53.4	53.9	96.5	92.8	76.8	72.2	69.7	77.9
8	ノバルロン	84.4	98.8	71.8	93.0	92.1	95.0	74.8	62.5	66.5	90.0	83.3	101.0	87.3	84.1	84.6
9	ハロキシホップ	78.1	101.5	78.9	84.9	73.6	84.5	66.7	72.0	69.4	81.6	68.9	89.3	84.3	78.7	79.5
10	フルフェノクスロン	84.1	110.3	88.1	101.3	104.7	89.0	45.0	90.0	86.1	107.8	108.5	103.2	81.8	92.5	92.3
11	クロチアニジン	103.2	105.5	99.6	90.1	109.9	95.6	81.1	84.5	89.0	101.6	97.7	103.5	98.0	94.0	96.7

*下線があるもの(項目)はマトリックス添加標準溶液で回収率を計算し、70~120%の範囲内に改善されたものを示す。
*網かけはマトリックス添加標準溶液で回収率を計算した群を示す。

表 9 添加回収試験結果(GC-MS/MS)

No.	項目	回収率 (%)														平均
		I	II	III	IV	V	VI	VII	VIII	IX	X	X I	X II	X III	X IV	
1	クロルピリホスメチル	95.0	90.3	108.6	81.9	108.2	89.3	93.5	102.4	116.3	72.8	76.3	106.8	85.9	89.1	94.0
2	ピリミホスメチル	96.9	90.3	117.2	82.3	114.2	89.3	97.0	108.6	117.2	78.5	85.7	117.0	80.9	86.6	97.3
3	マラチオン	105.4	94.2	124.5	90.0	128.8	98.3	98.7	127.4	126.1	91.0	95.1	129.2	85.8	96.5	106.5
4	フルトラニル	100.2	91.0	117.0	98.1	120.9	96.2	106.6	99.3	117.6	99.5	105.8	122.6	89.0	94.6	104.2
5	メブロニル	97.8	91.8	126.2	95.8	128.8	94.2	111.5	113.6	118.0	91.7	98.8	118.3	92.9	97.9	105.5
6	テブコナゾール	88.4	90.7	105.9	87.7	106.9	81.4	104.5	98.6	103.5	88.7	97.1	111.7	89.9	85.2	95.7
7	ジフェノコナゾール	87.3	93.1	123.7	91.9	116.5	88.0	98.1	116.0	116.2	90.9	99.8	126.1	79.2	81.1	100.6
8	プロモプチド	96.2	92.0	111.2	95.3	130.6	88.8	101.6	130.1	122.4	88.3	92.5	106.9	104.8	82.7	103.1
9	(E)-メトミノストロピン	105.5	78.3	100.4	99.3	120.2	99.4	96.3	131.7	113.3	89.6	96.0	105.5	93.0	102.0	102.2
10	ブプロフェジン	94.8	84.1	73.3	69.5	99.9	91.5	103.8	100.3	113.1	61.2	83.1	86.3	79.3	90.9	87.9
11	オキサジキシル	97.8	91.8	109.8	88.8	110.4	94.7	109.6	109.7	112.2	85.9	90.4	110.4	84.3	100.8	99.7
12	ピペロニルブトキシド	98.0	86.1	100.6	84.0	105.2	89.2	104.0	98.6	103.2	80.1	83.6	110.1	78.0	88.9	93.5
13	フェノブカルブ	101.1	89.8	131.2	115.0	134.4	99.5	109.7	104.8	88.3	63.9	99.2	110.6	95.1	111.0	103.8

*下線のあるもの(項目)はマトリックス添加標準溶液で回収率を計算し、70~120%に改善されたものを示す。
*網かけはマトリックス添加標準溶液で回収率を計算した群を示す。網かけの無い群はPEG含有標準溶液で回収率を計算した。

表 10 検出農薬及び一日摂取量

食品群	検出濃度 ($\mu\text{g/g}$)	食品摂取量 (g)	一日摂取量 (μg)	ADI (mg/kg 体重/day)	対 ADI 比 (%) ^{*1}	
ジノテフラン	8	0.018	191.7	3.4	0.22	0.03
フルフェノクスロン	7	0.064	89.1	5.7	0.037	0.3

*1 対 ADI 比は平均体重を 50kg として算出した。

表 11 食品毎の検出状況

農薬名	食品群	食品名	検出濃度 ($\mu\text{g/g}$)	基準値 (ppm)
アセタミプリド	7	ピーマン	0.06	1
	8	きゅうり	0.19	2
イミダクロプリド	8	大根	0.01	0.4
ジノテフラン	7	ピーマン	0.10	3
	8	きゅうり	0.58	2
フルフェノクスロン	7	ほうれん草	0.51	10
	8	セロリ	0.02	10

表 12 食品群毎のネオニコチノイド系殺虫剤の検出状況 (平成 25~28 年度)

農薬名	食品群	検出濃度($\mu\text{g/g}$)			
		H25	H26	H27	H28
アセタミプリド	6	0.002	(-)	(-)	(-)
	7	0.02	0.01	(-)	(-)
イミダクロプリド	7	(-)	0.001	(-)	(-)
クロチアニジン	—				
ジノテフラン	6	0.01	(-)	0.02	(-)
	7	0.004	(-)	(-)	(-)
	8	(-)	(-)	0.017	0.018
チアクロプリド	—				
チアメトキサム	7	(-)	0.002	(-)	(-)

(-): 定量下限値未満

表 13 食品毎のネオニコチノイド系殺虫剤の検出状況 (平成 25~28 年度)

農薬名	H25			H26		H27		H28	
	食品群	食品名	検出濃度 (µg/g)	食品名	検出濃度 (µg/g)	食品名	検出濃度 (µg/g)	食品名	検出濃度 (µg/g)
アセタミプリド	6	りんご (青森)	0.009			りんご (長野)	0.024		
		もも缶詰	0.006						
		りんご濃縮還元ジュース	0.004						
	7	にら (宮崎)	0.690	トマト (熊本)	0.001			ピーマン (鹿児島)	0.06
8							きゅうり (福岡)	0.19	
イミダクロプリド	7			かぼちゃ (輸入品)	0.006				
	8							大根 (北海道)	0.01
ジノテフラン	6	柿 (福岡)	0.13			みかん (熊本)	0.074		
						柿 (福岡)	0.031		
	7	ほうれん草 (長崎)	0.087	トマト (熊本)	0.002			ピーマン (鹿児島)	0.1
				ピーマン (鹿児島)	0.001				
8						きゅうり (福岡)	0.778	きゅうり (福岡)	0.58
チアメトキサム	7			ブロッコリー (福岡)	0.007				

食品名の下 () 内は原産地を示す。

表 14 平成 25~27 年度 平均農薬出荷量⁷⁾

	農薬出荷量 (t 又は kL)								
	全国	福岡	熊本	鹿児島	長崎	宮崎	長野	青森	北海道
アセタミプリド	50.7	2.2	2.4	0.7	0.7	0.8	3.8	3.7	4.1
イミダクロプリド	65.3	1.2	2.0	1.3	0.6	0.4	2.8	0.9	9.5
クロチアニジン	72.9	0.7	1.7	2.3	0.2	1.1	3.2	3.1	6.6
ジノテフラン	166.9	4.7	6.9	3.6	1.3	3.7	2.9	4.7	7.7
チアクロプリド	13.5	0.5	0.3	0.4	0.05	0.3	2.4	2.0	0.02
チアメトキサム	48.4	0.6	1.1	0.6	0.3	0.5	1.4	0.9	10.1

文献

- 1) 吉岡直樹, 秋山由美, 松岡智郁: 兵庫県民の残留農薬の一日摂取量調査研究—マーケットバスケット方式による 2003~2006 年度の結果—, 兵庫県立保健環境科学研究所センター紀要, 第 4 号, 116-121
- 2) 加藤由希子・常松順子: 福岡市における食事からの残留農薬一日摂取量調査(2014), 福岡市保健環境研究所報, 40, 178-183, 2014
- 3) 厚生労働省通知食安発第 0124001 号: 食品中に残留する農薬, 飼料添加物又は動物用医薬品の成分である物質の試験法について, 平成 17 年 1 月 24 日
- 4) 柿本洋一郎, 千葉真弘, 青柳光敏: 北海道における食品残留農薬一日摂取量実態調査(平成 22 年度), 北海道立衛生研究所報, 63, 15-20, 2013
- 5) 平成 27 年度 食品中の残留農薬の一日摂取量調査結果, 厚生労働省ホームページ (<http://www.mhlw.go.jp/file/06-Seisakujouhou-11130500-Shokuhinanzentu/0000162329.pdf>)
- 6) 農薬による蜜蜂の危害を防止するための我が国の取組 Q&A (2016.11 月改訂), 農林水産省ホームページ (http://www.maff.go.jp/j/nouyaku/n_mitubati/qanda.html#q8)
- 7) 化学物質データベース WebKis-Plus(<http://w-chemdb.nies.go.jp/>)
- 8) 農薬抄録, 独立行政法人 農林水産消費安全技術センターホームページ (<http://www.famic.go.jp/>)

VIII 資 料

平成 26～28 年度アルキルフェノール類・クロロフェノール類と LAS の調査結果

環境科学課 環境水質担当

1 はじめに

アルキルフェノール類は、非イオン界面活性剤であるアルキルフェノールエトキシレートの原料として用いられている。アルキルフェノールエトキシレートは微生物分解等を受けアルキルフェノール類となる¹⁾。アルキルフェノール類には、内分泌攪乱作用があり生分解性が低いため水生生物保全に係る水質環境基準項目に追加されたノニルフェノール（以下、NP という）や、水生生物の保全に関連する要監視項目である 4-t-オクチルフェノール、水環境リスクに関する知見の集積が必要な要調査項目であるビスフェノール A と 4-t-ブチルフェノールが含まれる。

また、クロロフェノール類には、過去に農薬の原料として使用され現在化審法の第 1 種特定化学物質で人の健康に係る要調査項目であるペンタクロロフェノールと、現在でも農薬の原料として用いられ水生生物の保全に関連する要監視項目である 2,4-ジクロロフェノールが含まれる。

さらに、家庭の洗濯用洗剤として多く使用されてきた陰イオン系界面活性剤である直鎖アルキルベンゼンスルホン酸及びその塩（以下、LAS という）については、環境中で検出される濃度と水生生物への毒性を勘案すると、水生生物への影響が懸念されることから、水生生物保全に係る水質環境基準項目に追加された。

本研究所では、市内の河川及び博多湾において、アルキルフェノール類 7 項目、クロロフェノール類 2 項目、ビスフェノール A、LAS について、年 4 回の水質実態調査を行っており、平成 26～28 年度の調査結果から得られた傾向について報告する。

2 調査方法

2.1 調査地点及び調査概要

アルキルフェノール類及びペンタクロロフェノール類は、前報³⁾と同様に、市内の河川のすべての環境基準点（19 地点）と、博多湾の環境基準点 3 地点の表層、中層、底層の計 9 地点において調査を行った。なお、平成 27 年度は水生生物保全環境基準の類型指定の基礎情報とする

ため、冷水性の魚介類であるカジカの生息域下流近傍の補助地点である矢倉橋についても調査を行った。一方、LAS については、市内の河川のすべての環境基準点（19 地点）と補助地点（12 地点）、博多湾の環境基準点 3 地点の表層、中層、底層の計 9 地点、合計 40 地点において調査を行った。調査期間は平成 26 年度から 28 年度までで、実施月は 4 月、7 月、10 月、1 月の年 4 回で、同日にサンプリングを行った。なお、河川の調査地点においては干潮時にサンプリングを行った。（図 1）

2.2 分析方法

アルキルフェノール類・クロロフェノール類については、前報の NP の分析方法と同様、外因性内分泌攪乱化学物質調査暫定マニュアル²⁾のエチル誘導体化法に準じて固相抽出法により分析を行い、GC-MS/MS にて濃度測定を行った。調査対象物質と各物質の報告下限値を表 1 に示す。

LAS については、前報³⁾と同様、環境省告示「水質汚濁に係る環境基準について」付表 12 に準じて分析を行い、LC-MS/MS にて濃度測定を行った。報告値については、炭素数 C10 から C14 までをそれぞれ定量し、その合計値を LAS 濃度とした。調査対象物質と各物質の報告下限値を表 2 に示す。

表1 アルキルフェノール類・クロロフェノール類の調査対象物質と報告下限値

物質名	報告下限値
ノニルフェノール	0.00006
4-t-オクチルフェノール	0.00004
ビスフェノール-A	0.00001
4-t-ブチルフェノール	0.00001
4-n-ベンチルフェノール	0.00001
4-n-ヘキシルフェノール	0.00001
4-n-ヘプチルフェノール	0.00001
4-n-オクチルフェノール	0.00001
2,4-ジクロロフェノール	0.0003
ペンタクロロフェノール	0.00001

単位: mg/L

表2 LASの調査対象物質と報告下限値

物質名	報告下限値
C10-LAS	0.00012
C11-LAS	0.00012
C12-LAS	0.00012
C13-LAS	0.00012
C14-LAS	0.00012

単位: mg/L

4 結果及び考察

4.1 アルキルフェノール類・クロロフェノール類の調査結果

すべての地点の NP の経年変化を表 3 に、ビスフェノ

ール A の経年変化を表 4 に示す。なお、その他のアルキルフェノール類・クロロフェノール類については、すべての地点及び調査回について、報告下限値未満であった。

博多湾においては、NP はすべての地点及び調査回について、報告下限値未満であった。ビスフェノール A は、E-2 と C-2 の表層で 1 月以外の時期に 0.00001～0.00002mg/L の検出が認められた。これらの値は、環境省の「化学物質の環境リスク初期評価」で設定された PNEC(予測無影響濃度) は 0.011mg/L(甲殻類の急性毒性値から設定) ⁴⁾ の 1/550 未満であり、かなり低い値であった。

河川については、すべての地点及び調査回について、NP とビスフェノール A 以外の項目で報告下限値未満であった。ビスフェノール A については、0.00001～0.00011 mg/L の検出が認められたが、検出時期及び地点で特徴的な動向は確認できなかった。なお、これらの値も、博多湾同様、PNEC : 0.011mg/L をかなり下回る値であった。

NP は、下水処理場の放流口より下流の金島橋と千鳥橋、名島橋で、7 月以外の時期に検出回数が他の地点より多かった。しかし、検出濃度は 0.00006～0.00010 mg/L であり、最も低濃度に設定されている河川及び湖沼の生物特 A 類型の環境基準値 : 0.0006mg/L を下回っていた。その他の地点については、上鯉川橋で平成 26 年度 4 月に、塔の本橋で平成 27 年 4 月、10 月、1 月に、いずれも環境基準値の 1/10 程度 (0.00006～0.00007mg/L) が検出されたが、それ以後の検出は認められなかった。

以上の結果から、市内の既存の水質調査地点のうち、河川についてはすべての環境基準点と補助地点において、博多湾については全域の代表となる環境基準点 3 地点において、最も低濃度に設定された環境基準値未満であることを確認することができた。

4.2 LAS の調査結果

博多湾については、すべての地点及び調査回について報告下限値未満であった。

河川における環境基準点の LAS 濃度の経年変化を図 2 に、補助地点等の LAS 濃度の経年変化を図 3 に示す。

LAS の環境基準値は、河川及び湖沼の類型のうち最も低濃度に設定されている生物特 A 類型で 0.02mg/L とされている。今回の調査で、環境基準点については、平成 27 年 1 月の壱岐橋 : 0.021mg/L を除くすべての地点及び調査回で、0.02mg/L 未満であり、壱岐橋と浜田橋以外の地点については概ね 0.005 mg/L 以下の値で推移していた。前報 ³⁾ で常態的に高い濃度である可能性を指摘された浜田橋は、他の地点より高い濃度で変動していたが、調査期間中の平均値としては 0.0068mg/L 程度であった。また、壱岐橋と浜田橋については、平成 26、27 年度とも

に、冬季 : 1 月に高くなり、夏季 : 7 月には低くなるという変動を示した。

一方、補助地点については、平成 27 年と 28 年の 1 月の香椎橋、平成 28 年 1 月の御島橋と有田橋で 0.02mg/L より高い値であったが、それ以外の地点及び調査回ではすべて 0.02mg/L 未満であった。なお、有田橋については、平成 28 年 1 月以外の調査回の値は 0.003mg/L 以下と低い値で推移していた。

御島橋、香椎橋、諸岡橋、天代橋、友泉亭橋の 5 か所については、調査期間中の平均濃度が、0.005mg/L を上回っており、環境基準点よりも濃度変動が大きかった。

LAS 濃度平均値とその各炭素数割合について、各環境基準点の結果を図 4 に、補助地点等の結果を図 5 に示す。LAS は、生分解性があり、活性汚泥に吸着されやすく、小森ら ⁵⁾ の報告によると下水処理により 97.8% が分解・除去されている。今回の結果で、下水処理場放流口より下流の金島橋と千鳥橋、名島橋の平均濃度は、他地点より低く、御笠川で下水処理場放流口より上流の板付橋より低かったことから、前報 ³⁾ と同様、下水処理による LAS の除去が下水処理場放流口より下流地点の LAS 濃度低下に影響しているものと考えられた。

炭素数ごとの調査結果を各地点に平均したものを図 4、5 に、各地点の LAS 濃度平均値と各炭素数割合の分布を図 6 に示す。C11 が最も組成割合が高く、C14 はすべての地点、調査回について定量下限値未満であり、全地点の各炭素数割合の平均は、C10 が 22%、C11 が 49%、C12 が 22%、C13 が 7%、平均炭素数が 11.2 となっていた。また、組成バランスについては、LAS 濃度が低くなると C10～C12 の割合は高くなるのに対し、C13 の割合は低くなった。この結果は、前報 ³⁾ 結果と異なり、検出濃度により組成バランスが異なる傾向となっていた。

文献

- 1) 高田秀重, 化学, 53 (7), 37 (1998)
- 2) 環境庁水質保全局水質管理課 : 外因性内分泌攪乱化学物質調査暫定マニュアル (水質, 底質, 水生生物), III-1,2
- 3) 戸渡寛法・宇野映介・豊福星洋・松尾友香 : 平成 25 年度ノルフェノールおよび LAS の調査結果, 福岡市保健環境研究所報, 39, 66～70, 2014
- 4) 環境省 化学物質の環境リスク評価 第 3 巻
- 5) 小森行也・岡本誠一 : 下水処理における直鎖アルキルベンゼンスルホン酸 (LAS) の除去特性, 「第 50 回下水道研究発表会講演集」 346～348

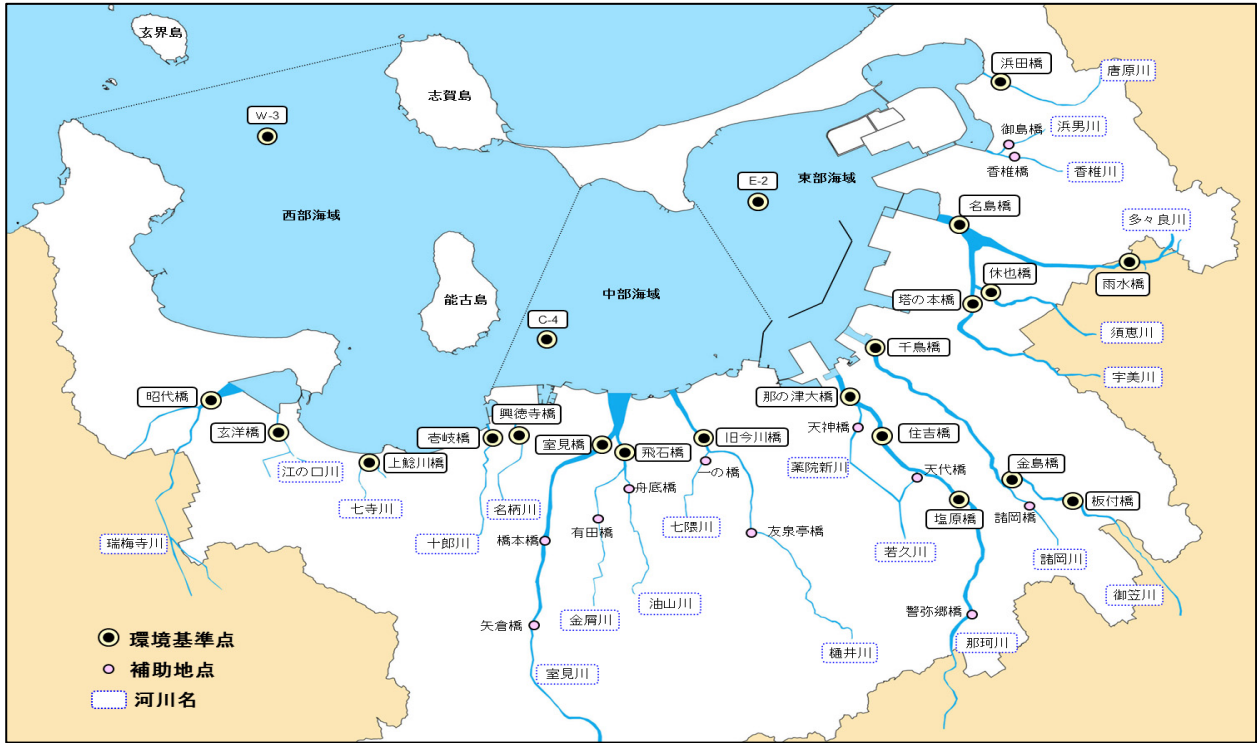


図1 調査地点

表3 ノニルフェノールの経年変化(平成26~28年度)

	H26.4	H26.7	H26.10	H27.1	H27.4	H27.7	H27.10	H28.1	H28.4	H28.7	H28.10	H29.1
E-2表層	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006
C-4表層	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006
W-3表層	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006
E-2中層	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006
C-4中層	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006
W-3中層	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006
E-2底層	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006
C-4底層	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006
W-3底層	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006
浜田橋	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006
名島橋	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	0.00007	0.00007	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006
雨水橋	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006
休也橋	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006
塔の本橋	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	0.00006	<0.00006	0.00007	0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006
千鳥橋	<0.00006	<0.00006	0.00009	<0.00006	0.00008	<0.00006	0.00007	0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006
金島橋	<0.00006	<0.00006	0.00006	<0.00006	0.00009	<0.00006	0.00009	0.00008	0.00010	<0.00006	<0.00006	0.00007
板付橋	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006
那の津大橋	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006
住吉橋	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006
塩原橋	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006
旧今川橋	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006
飛石橋	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006
室見橋	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006
興徳寺橋	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006
香岐橋	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006
上鯨川橋	0.00007	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006
玄洋橋	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006
昭代橋	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006
矢倉橋					<0.00006	<0.00006	<0.00006	<0.00006				

単位:mg/L

表4 ビスフェノールAの経年変化(平成26~28年度)

	H26.4	H26.7	H26.10	H27.1	H27.4	H27.7	H27.10	H28.1	H28.4	H28.7	H28.10	H29.1
E-2表層	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	0.00002	0.00001	<0.00001	<0.00001	0.00002	<0.00001	<0.00001
C-4表層	0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	0.00002	0.00001	<0.00001	<0.00001
W-3表層	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001
E-2中層	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001
C-4中層	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001
W-3中層	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001
E-2底層	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001
C-4底層	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001
W-3底層	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001
浜田橋	0.00001	<0.00001	0.00001	<0.00001	0.00003	<0.00001	<0.00001	<0.00001	0.00002	<0.00001	<0.00001	0.00002
名島橋	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	0.00001	<0.00001	0.00002	0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001
雨水橋	<0.00001	0.00002	<0.00001	<0.00001	<0.00001	0.00001	<0.00001	0.00001	0.00005	0.00002	<0.00001	<0.00001
休也橋	0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	0.00002	<0.00001	0.00001	0.00011	<0.00001	<0.00001	0.00001
塔の本橋	<0.00001	0.00001	<0.00001	<0.00001	0.00001	0.00003	<0.00001	<0.00001	0.00005	0.00001	0.00002	<0.00001
千鳥橋	0.00002	0.00001	<0.00001	<0.00001	0.00002	0.00002	0.00001	0.00005	0.00005	<0.00001	<0.00001	<0.00001
金島橋	0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	0.00002	0.00002	<0.00001	0.00001	0.00003	<0.00001	<0.00001	<0.00001
板付橋	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	0.00006	<0.00001	0.00003	0.00005	0.00002	<0.00001	<0.00001	<0.00001
那の津大橋	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	0.00002	<0.00001	<0.00001	<0.00001
住吉橋	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	0.00002	<0.00001	<0.00001	<0.00001
塩原橋	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001
旧今川橋	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	0.00002	<0.00001	<0.00001	<0.00001	0.00002	<0.00001	<0.00001	<0.00001
飛石橋	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	0.00002	<0.00001	<0.00001	<0.00001
室見橋	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001
興徳寺橋	<0.00001	0.00002	<0.00001	<0.00001	0.00002	0.00002	<0.00001	<0.00001	0.00003	0.00001	0.00001	<0.00001
香岐橋	<0.00001	0.00001	<0.00001	<0.00001	0.00001	0.00002	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001
上鯉川橋	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001
玄洋橋	0.00001	0.00002	<0.00001	0.00001	0.00007	0.00002	0.00001	0.00003	0.00002	0.00001	<0.00001	0.00001
昭代橋	<0.00001	0.00002	<0.00001	<0.00001	<0.00001	0.00001	<0.00001	0.00002	0.00002	<0.00001	<0.00001	<0.00001
矢倉橋					<0.00001	<0.00001	<0.00001	<0.00001				

単位:mg/L

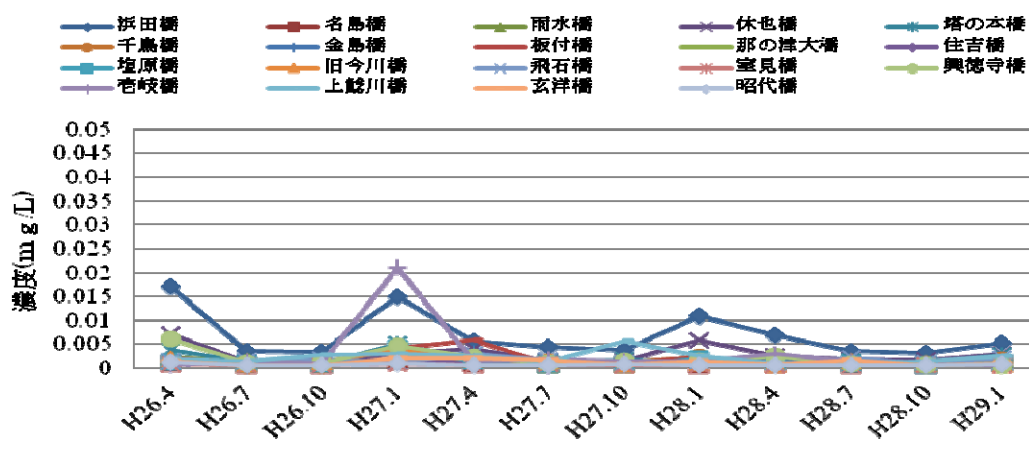


図2 河川の環境基準点におけるLAS濃度の経年変化(平成26~28年度)

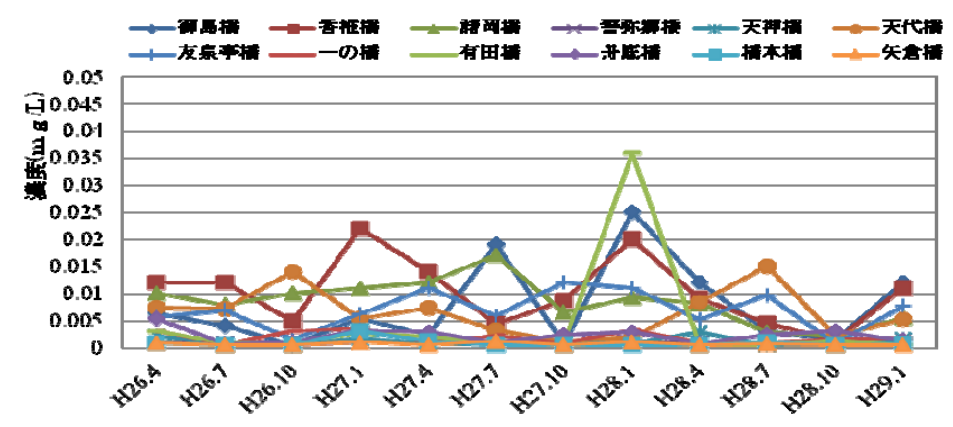


図3 河川の補助地点等におけるLAS濃度の経年変化(平成26~28年度)

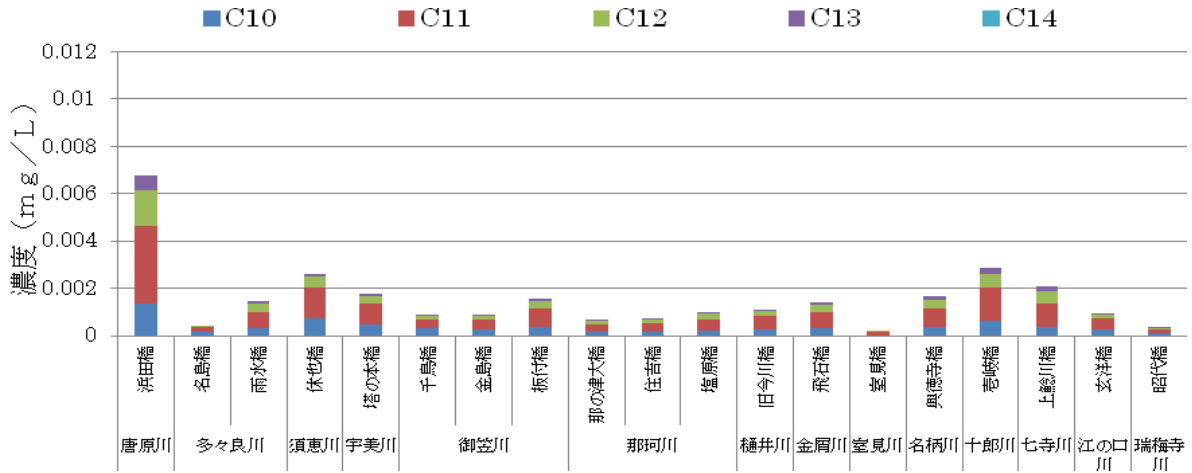


図4 河川の環境基準点におけるLAS平均値とその各炭素数割合（平成26～28年度）

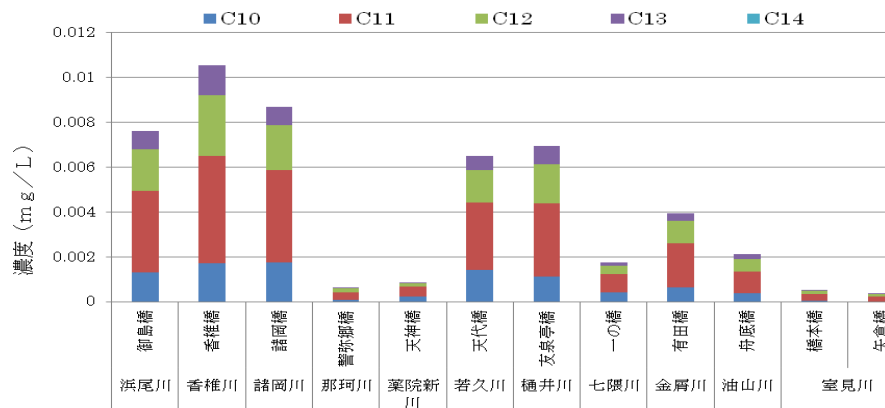


図5 河川の補助地点等におけるLAS平均値とその各炭素数割合（平成26～28年度）

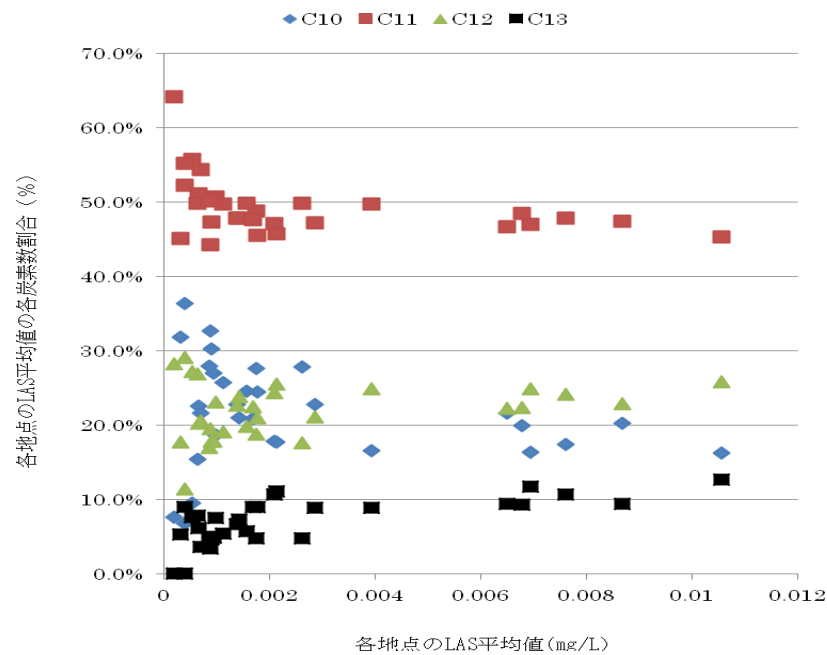


図6 河川の環境基準点・補助地点等におけるLAS濃度平均値と各炭素数割合の分布

平成 28 年度化学物質環境実態調査

八兒裕樹・高村範亮・山下紗矢香・田辺智子

福岡市保健環境研究所環境科学課

Environmental Survey and Monitoring of Chemicals in FY2016

Hiroki YACHIGO, Noriaki TAKAMURA, Sayaka YAMASHITA
and Tomoko TANABE

Environmental Science Section, Fukuoka City Institute of Health and Environment

要約

化学物質環境実態調査は環境省が実施しており、福岡市も毎年参加している。平成28年度、福岡市は初期環境調査においてサンプリングから対象物質の分析までを担当し、水質におけるジクロフェナク、セルトラリン及びパロキセチンについて調査を実施した。博多湾中部海域の海水について分析を行った結果、セルトラリン及びパロキセチンは検出されなかったが、ジクロフェナクについては、定量下限値未満の値であるものの検出された。

Key Words : 化学物質環境実態調査 (エコ調査) Environmental Survey and Monitoring of Chemicals, ジクロフェナク Diclofenac, セルトラリン Sertraline, パロキセチン Paroxetine, 高速液体クロマトグラフタンデム質量分析計 LC-MS/MS

1 はじめに

化学物質環境実態調査 (エコ調査) は環境省が実施しており、福岡市も毎年参加している。化学物質環境実態調査は一般環境中における化学物質の残留状況を継続的に把握することを目的として実施しており¹⁾、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。

平成 26 年度の化学物質環境実態調査 (初期環境調査) では、環境リスクを評価する上で暴露情報が不足しているとされる PPCPs (医薬品や化粧品等の日用品) に含まれる化学物質の実態調査が行われた。その結果、8 調査対象物質群中 5 物質群が検出された。また、福岡市内の河川及び博多湾でも、PPCPs 関連物質の存在実態を把握するための調査を行い、水環境中の水生生物に影響を及ぼす可能性のある物質が検出されたことをすでに報告している²⁾。このように、近年、医薬品等に含まれる化学物質が水環境中から検出されている。

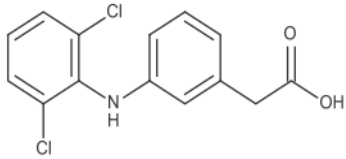
そのため、平成 28 年度、福岡市は初期環境調査において医薬品に含まれる物質であるジクロフェナク、セルトラリン及びパロキセチンについてサンプリングから対象物質の分析までを担当した。環境省は、これらの物質の調査要望理由について、いずれの物質も強い生態毒性に

関する知見が得られている一方で、環境中濃度に関する情報が不足しているためとしている。各物質の用途を表 1 に、各物質の構造を表 2 に、物理化学的性状を表 3 に示した。

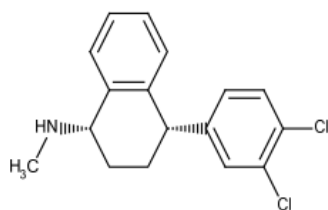
表 1 調査対象物質の用途

	ジクロフェナク	セルトラリン	パロキセチン
用途	解熱鎮痛剤 眼科用薬 酵素阻害剤 非ステロイド系消炎薬等	セロトニン拮抗薬 抗うつ薬等	抗うつ薬 選択的セロトニン再取込み阻害薬等

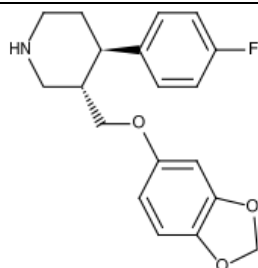
表 2 各物質の構造³⁾

物質名	構造
ジクロフェナク	

セルトラリン



パロキセチン

表3 各物質の物理化学的性状³⁾

	ジクロ フェナク	セルト ラリン	パロキ セチン
分子式	C ₁₄ H ₁₁ Cl ₂ NO ₂	C ₁₇ H ₁₇ Cl ₂ N	C ₁₉ H ₂₀ FNO ₃
分子量	296.149	306.23	329.37
CAS 番号	15307-86-5	79617-96-2	61869-08-7
融点 (°C)	156-158	243-245	120-133
水溶解度 (mg/L)	2.37 (25°C)	3.5 (25°C)	5.4 (25°C)
分配係数	4.51	5.1	3.6

2 実験方法

2.1 調査地点及び調査日

調査地点は福岡市内の一般環境の代表地点として、博多湾中部海域 C-4 地点 (図 1) とし、表層水をサンプリングした。サンプリングの採取時期は平成 28 年度化学物質環境実態調査委託業務詳細要領⁴⁾ において秋季 (9 月～11 月) に行うこととされているため、平成 28 年 10 月 18 日に実施した。



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

ジクロフェナク、セルトラリン、パロキセチンの 3 物質について、標準品は和光純薬製、サロゲート内標準物質は Toront Research Chemical 社製を使用した。

2.2.2 その他試薬

メタノール：関東化学製 残留農薬・PCB 用

ギ酸：関東化学製 高速液体クロマトグラフィー用

超純水：和光純薬工業製 LC/MS 用

固相カートリッジ：Waters 製 Sep-pak Plus C18

2.3 装置及び測定条件

LC-MS/MS の LC 部は島津製 LC-20Series, MS 部は AB SCIEX 製 QTRAP4500 を使用した。LC-MS/MS の条件を表 4 に示す。

表 4 LC-MS/MS の測定条件

分析カラム	GL Science 製 Inert Sustain C18 (2.1 mm×100 mm×3.0 μm)
移動相	A 液：0.1%ギ酸 B 液：メタノール
グラジエント	0→5min A=80%→25% B=20%→75%
条件	5→10min A=25%→10% B=75%→90% 10→20min A=10% B=90% 20→25min A=10%→80% B=90%→20% 25→30min A=80% B=20%
流量	0.2 mL/min
カラム温度	40°C
注入量	5 μL
イオン化法	ESI-Positive
イオン源温度	500°C
ESI キャピラリー電圧	5.5kV
検出モード	MRM (SRM)
モニターイオン	ジクロフェナク (定量) m/z 296.0 > 214.0 (確認) m/z 296.0 > 250.0 セルトラリン (定量) m/z 305.9 > 158.7 (確認) m/z 305.9 > 274.8 パロキセチン (定量) m/z 330.0 > 192.0 (確認) m/z 330.0 > 134.9 ジクロフェナク-d4 (定量) m/z 300.0 > 218.0 セルトラリン-d3 (定量) m/z 308.9 > 158.8 パロキセチン-d4 (定量) m/z 334.0 > 196.0

2.4 分析方法

分析方法は「平成 27 年度化学物質分析法開発調査報告書」⁶⁾ に準拠して行った。ガラス製容器に採取した水質試料 500mL にギ酸を添加して pH3 に調製し、サロゲート内標準液 (100 ng/mL) を添加した。メタノール 5 mL、超純水 5 mL でコンディショニングした固相カートリッジに 5 ml/min の流量で通水し、試料通水後に固相を超純水 10mL で洗浄した。固相洗浄後、メタノール 10mL を用いて固相から共栓遠沈管に溶出した。溶出後は、窒素気流下にて 40℃ で約 0.2 mL まで濃縮し、メタノールを加えて 1 mL に定容した後、LC-MS/MS で分析した。分析フローを図 2 に示した。

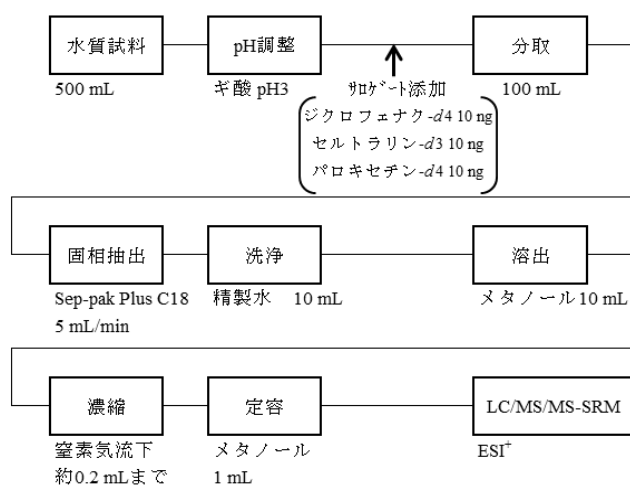


図 2 分析法フローチャート

3 実験結果及び考察

3.1 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の手引き (平成 27 年度版)」に準拠し、ジクロフェナク、セルトラリン及びパロキセチンの各物質について、検量線の最低濃度 (S/N=10 程度) の標準溶液を 7 回繰り返し LC-MS/MS に導入して分析し、一連の分析値の標準偏差を求め、以下の式により IDL 及び IQL を算出した。

$$IDL = t(n-1, 0.05) \times \sigma_{n-1,I} \times 2$$

$$IQL = 10 \times \sigma_{n-1,I}$$

$t(n-1, 0.05)$: 危険率 5%, 自由度 $n-1$ の t 値 (片側)

$n=7$ の場合は 1.9432

$\sigma_{n-1,I}$: IDL 算出のための測定値の標本標準偏差

結果を表 5 に示した。平成 27 年度化学物質分析法開発調査報告書における各物質の IDL は、ジクロフェナク 0.012 ng/mL, セルトラリン 0.0073 ng/mL, パロキセチン

0.055 ng/mL となっており、今回はこれらよりも良好な結果となった。

表 5 IDL 及び IQL

項目	ジクロ フェナク	セルト ラリン	パロキ セチン
標準品濃度 (ng/mL)	0.020	0.020	0.050
平均値 (ng/mL)	0.018	0.019	0.043
標準偏差 (ng/mL)	0.0011	0.0017	0.0048
IDL (ng/mL)	0.0044	0.0067	0.019
IDL 試料換算値 (ng/L)	0.044	0.067	0.19
IQL (ng/mL)	0.011	0.017	0.048

3.2 測定方法の検出下限値 (MDL) 及び定量下限値 (MQL)

「化学物質環境実態調査の手引き (平成 27 年度版)」に準拠し、定量下限値付近の濃度を持つ試料 (MDL 測定用試料) を用い、試料の前処理操作、試験液の調製及び LC-MS/MS による測定までを行った。この操作を 7 回繰り返し、得られた分析値を試料濃度に換算して標本標準偏差を求め、次式により MDL 及び MQL を算出した。

$$MDL = t(n-1, 0.05) \times \sigma_{n-1,M} \times 2$$

$$MQL = 10 \times \sigma_{n-1,M}$$

$t(n-1, 0.05)$: 危険率 5%, 自由度 $n-1$ の t 値 (片側)

$n=7$ の場合は 1.9432

$\sigma_{n-1,M}$: MDL 算出のための測定値の標本標準偏差

表 6 MDL 及び MQL

項目	ジクロ フェナク	セルト ラリン	パロキ セチン
標準添加濃度 (ng/L)	-	0.30	0.80
平均値 (ng/L)	0.42	0.60	0.70
標準偏差 (ng/L)	0.043	0.075	0.066
MDL (ng/L)	0.17	0.29	0.26
MQL (ng/L)	0.43	0.75	0.66

MDL 測定用試料は、ジクロフェナクは環境試料から IQL 以上の濃度が検出されたため、標準物質を添加せずに測定を行った。セルトラリン、パロキセチンは環境試料から検出されなかったため、試料に IDL 試料換算値の 5 倍程度になるよう標準品を添加し測定をおこなった。MDL 及び MQL の算出結果を表 6 に示した。

操作ブランク（超純水にサロゲートを添加した試料）について、前処理から LC-MS/MS 測定までを 7 回実施したところ、セルトラリンは環境試料よりも操作ブランクから算出した標準偏差の方が高い値となった。そのため、化学物質環境実態調査の手引き（平成 27 年度版）に記載のとおり、セルトラリンの MDL 及び MQL は操作ブランクの分析結果から算出した値を採用した。表 7 にセルトラリンの操作ブランクから算出した MDL 及び MQL の値を示した。なお、ジクロフェナク、及びパロキセチンについては、操作ブランクの検出は認められなかった。

表 7 セルトラリンの操作ブランクから算出した MDL 及び MQL

項目	セルトラリン 試料換算濃度 (ng/L)
最大値 (ng/L)	0.34
最小値 (ng/L)	0.023
平均値 (ng/L)	0.093
標準偏差 (ng/L)	0.11
MDL (ng/L)	0.44
MQL (ng/L)	1.1

3.3 添加回収試験

「化学物質環境実態調査の手引き（平成 27 年度版）」に準拠し、添加回収試験を実施した。前処理から LC-MS/MS による測定までを 3 回行い、次式により調査対象物質の回収率及びサロゲート回収率を算出した。

調査対象物質の回収率 (%) = (「標準物質を添加した試料の濃度」 - 「試料の濃度」) ÷ 「添加した標準物質分の濃度」 × 100

サロゲート回収率 (%) = 「試料中のサロゲート内標準のピーク強度」 ÷ 「検量線のサロゲート内標準のピーク強度」 × 100

ジクロフェナクは環境試料から MDL 以上検出されたため、MDL の 5 倍程度の濃度となるように標準品を添加して測定を行った。セルトラリン及びパロキセチンは試料中に調査対象物質が検出されなかったため、MDL の 30 倍程度の濃度となるように標準品を添加して測定を行った。結果を表 8 に示した。調査対象物質の回収率の分析基準は 70-120%、サロゲート回収率の分析基準は

50-120%であり、いずれもこの基準を満たしていた。

表 8 添加回収試験

項目	ジクロ フェナク	セルト ラリン	パロキ セチン
標準添加濃度 (ng/L)	1.0	8.0	8.0
平均値 (ng/L)	1.2	7.3	6.8
標準偏差 (ng/L)	0.021	0.15	0.23
変動係数(%)	1.7	2.1	3.3
環境試料平均値 (ng/L)	0.39	ND	ND
調査対象物質の 回収率(%)	79	90	85
サロゲート回収率 (%)	101	96	90

3.4 試料測定結果

表 9 に採取時の水質データ及び水質測定計画に基づいて測定した秋季における博多湾 C-4 地点（表層）の水質データ⁴⁾を示した（10 月は調査日 7~4 日前に累計 282 mm の降雨があったため、9 月及び 11 月のデータを示した）。採取時の水質データは、水質測定計画に基づいて測定した水質データと比較すると、pH、COD、SS、Cl⁻は同程度だった。

表 9 博多湾 C-4 表層の環境試料基礎データ⁵⁾

	採取時の 水質データ	水質測定計画に基づいて 測定した水質データ	
採取年月日	H28.10.18	H28.9.6	H28.11.8
天候	晴	晴	曇
気温(°C)	22.9	27.1	15.4
水温(°C)	23.2	25.7	18.5
pH	8.5	8.3	8.1
COD(mg/L)	2.8	3.3	1.6
SS(mg/L)	3	4	2
Cl ⁻ (mg/L)	19000	17800	18400

博多湾中部海域 C-4 地点でサンプリングを行った試料について分析を行った結果を表 10 に示した。分析は同一試料について前処理から測定までを 3 回行い、その平均を報告値とした。

表 10 試料測定結果

項目	ジクロフェナク	セルトラリン	パロキセチン
報告値 (ng/L)	0.380	ND	ND
検出下限値 (ng/L)	0.17	0.44	0.26
定量下限値 (ng/L)	0.43	1.1	0.66

ジクロフェナクのクロマトグラムを図 3-1～3-3 に、定量イオンに対する確認イオンの面積値比を表 11 に示した。ジクロフェナクは図 3-2 で示すように確認イオンのクロマトグラムでベースラインのドリフトが見られたが、表 11 に示すように確認イオンでも検出が認められた。ジクロフェナクは宇野ら²⁾ によって同地点で検出されたことを報告している (2013 年 7 月, 検出濃度 4.7 ng/L)。また, 同調査では福岡市内の河川 (31 地点) 及び博多湾 (3 地点) において, 年間を通じて 36% の頻度でジクロフェナクが検出されたことも報告されている (範囲 1~170 ng/L, 中央値 2.7 ng/L)。さらに, 鈴木⁶⁾ は, 首都圏の多摩川水系においてジクロフェナクが検出されたこと, 及び下水処理場におけるジクロフェナクの除去率は 40% 程度であることを報告している。以上のことから, ジクロフェナクは河川や海域で残存しやすい物質であることが推察された。

セルトラリン及びパロキセチンは, 今回の調査では検出されなかった。セルトラリン及びパロキセチンは, これまで博多湾における調査実績はなかったが, 本調査を通じて当研究所でも調査可能であることが確認できた。

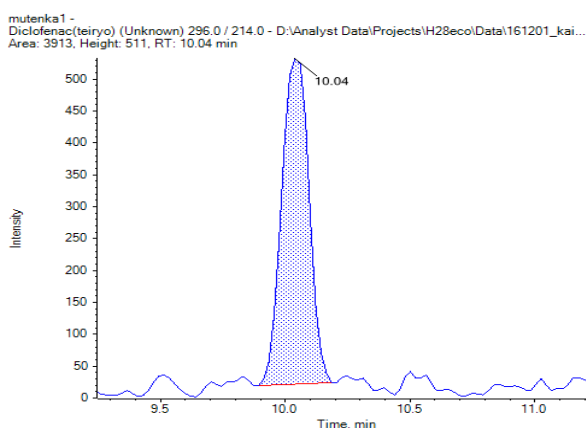


図 3-1 環境試料分析時のクロマトグラム (ジクロフェナク定量イオン $m/z = 296.0 > 214.0$)

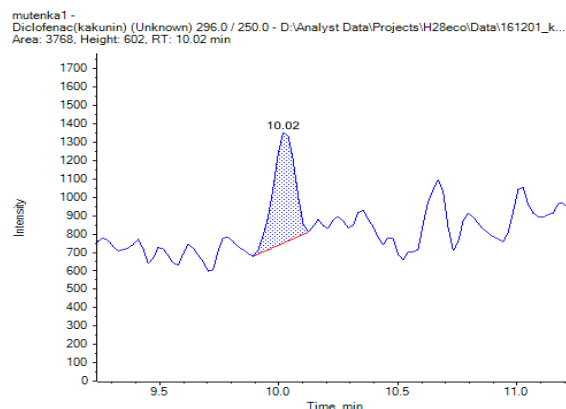


図 3-2 環境試料分析時のクロマトグラム (ジクロフェナク確認イオン $m/z = 296.0 > 250.0$)

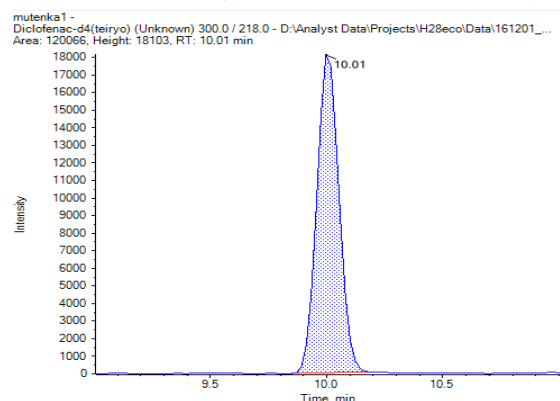


図 3-3 環境試料分析時のクロマトグラム (ジクロフェナク-d₄ 定量イオン $m/z = 300.0 > 218.0$)

表 11 ジクロフェナクのピーク面積比

	定量イオン ピーク面積 (Q)	確認イオン ピーク面積 (I)	面積値比 (I/Q)
標準品 (0.050 ng/mL)	5518	3890	0.705
環境試料 1	3913	3768	0.963
環境試料 2	4454	3477	0.781
環境試料 3	4327	3521	0.814

4 まとめ

博多湾中部海域 C-4 地点において, ジクロフェナク, セルトラリン, パロキセチンの分析を行った。その結果, セルトラリン及びパロキセチンは検出されなかったが, ジクロフェナクについては, 検出下限値以上定量下限値未満の値が検出された。

セルトラリン及びパロキセチンは, これまで博多湾における調査実績はなかったが, 本調査を通じて当研究所でも調査可能であることが確認できた。

文献

- 1)環境省総合環境政策局環境保健部環境安全課：化学物質環境実態調査の手引き（平成 27 年度版）
- 2)宇野映介，豊福星洋ら：福岡市内の水環境中における PPCPs の存在実態と季節変動および生物リスク初期評価，福岡市保健環境研究所報，39，51～57，2013
- 3)J-Global：科学技術総合リンクセンター
<http://jglobal.jst.go.jp/>
- 4)環境省総合環境政策局環境保健部環境安全課調査係：平成 28 年度化学物質環境実態調査委託業務詳細要領
- 5)福岡市の環境：博多湾と河川の水質・底質状況（速報）
http://www.city.fukuoka.lg.jp/kankyo/k-hozen/hp/sokutei/yousuiki_2.html
- 6)鈴木俊也：水環境中のヒト用医薬品の存在実態及び環境中濃度の予測，東京都健康安全センター年報，63，69～81，2012

平成 28 年度 水質関係苦情処理等依頼検査結果

環境科学課 博多湾担当・環境水質担当

1 環境局環境保全課

依頼日	件名	検査項目	検体数	延べ項目数
4月4日	河川水の着色原因調査	元素分析 (X線回折装置による元素分析)	1	1
5月11日	河川水の着色原因調査	魚毒性試験, 元素分析 (X線回折装置による元素分析)	1	2
6月20日	地下水の水質検査	カドミウム, 全シアン, 鉛, 六価クロム, ヒ素等	4	92
10月12日	河川の油状物質調査	油種分析	1	1
1月15日	魚へい死にかかる水質検査	魚毒性試験, pH 値, 電気伝導率, 簡易検査 (シアン, 六価クロム)	1	5
小計			8	101

2 環境局 (保全課以外)

依頼日	件名	検査項目	検体数	延べ項目数
6月9日	井戸水の水質検査	pH 値, 六価クロム, カドミウム	2	6
8月19日	井戸水の水質検査	六価クロム, ふっ素, pH 値, 電気伝導率, 塩化物イオン, 溶解性鉄	6	36
1月24日	井戸水の水質検査	六価クロム, ふっ素, pH 値, 電気伝導率, 塩化物イオン, 溶解性鉄	4	24
小計			12	66

3 各区生活環境課

依頼日	件名	検査項目	検体数	延べ項目数	依頼部局
6月1日	河川水の着色原因調査	元素分析, pH 値, 電気伝導率	1	3	博多区生活環境課
7月27日	河川水の発泡検査	pH 値, 電気伝導率, 魚毒性試験	2	5	城南区生活環境課
10月4日	河川の油様物質検査	官能検査 (臭気), pH 値, 電気伝導率, 光学顕微鏡による観察	2	5	西区生活環境課
11月14日	河川の油状物質調査	油種分析	1	1	早区生活環境課

12月8日	河川水の着色原因調査	元素分析, 農薬	1	2	博多区 生活環境課
12月12日	河川の油状物質調査	油種分析	2	2	南区 生活環境課
1月19日	河川の油様物質調査	官能検査(臭気), pH値, 電気伝導率, 光学顕微鏡による観察	1	4	西区 生活環境課
3月15日	河川水の着色原因調査	pH値, 電気伝導率, 魚毒性試験	2	6	南区 生活環境課
小計			12	28	

4 その他

依頼日	件名	検査項目	検体数	延べ 項目数	依頼部局
4月27日	受水槽水の検査	濁度, 色度, 臭気, pH値, 硝酸態窒素及び亜硝酸態窒素, 塩化物イオン, 有機物(TOC)等	3	30	教育委員会
5月2日	受水槽水の検査	外観, 濁度, 色度, 味, 臭気, pH値, 過マンガン酸カリウム消費量, 塩化物イオン	4	32	教育委員会
5月19日	井戸水の水質検査	外観, 濁度, 色度, 味, 臭気, 遊離残留塩素, pH値, 過マンガン酸カリウム消費量, 塩化物イオン	2	18	教育委員会
5月25日	ため池の水質検査	pH値, 電気伝導率, COD, シアン, 六価クロム, 溶存酸素濃度	1	6	農林水産局
6月22日	魚へい死にかかる水質検査	pH値, 電気伝導率, COD, シアン, 六価クロム, 魚毒性試験	1	6	農林水産局
6月22日	雨水利用水の検査	濁度, 色度, 臭気, pH値, 硝酸態窒素及び亜硝酸態窒素, 塩化物イオン, 有機物(TOC)等	1	10	教育委員会
9月2日	魚へい死にかかる水質検査	pH値, 電気伝導率, COD, 魚毒性試験	1	4	農林水産局
9月8日	魚へい死にかかる水質検査	pH値, 電気伝導率, COD, シアン, 六価クロム, 魚毒性試験	1	6	農林水産局
9月29日	金属製部品の検査	蛍光X線による元素分析, 実体顕微鏡による観察	3	4	教育委員会
9月29日	雨水利用水の検査	濁度, 色度, 臭気, pH値, 硝酸態窒素及び亜硝酸態窒素, 塩化物イオン, 有機物(TOC)等	3	27	道路下水道局
10月31日	雨水利用水の検査	濁度, 色度, 臭気, pH値, 硝酸態窒素及び亜硝酸態窒素, 塩化物イオン, 有機物(TOC)等	3	27	教育委員会
小計			23	170	

平成28年度 福岡市におけるPM_{2.5}の成分組成

環境科学課 大気担当

1 はじめに

福岡市では平成23年3月よりPM_{2.5}自動測定機による常時監視を実施している。また、平成23年秋季よりPM_{2.5}の成分分析を市役所測定局（以下「市役所局」という。）で開始し、平成25年度から元岡測定局（以下「元岡局」という。）が追加、平成26年度から西新測定局（以下「西新局」という。）が追加され、現在3測定局で成分分析を実施している^{1）、2）}。

平成28年度に実施した市役所局、元岡局及び西新局のPM_{2.5}の質量濃度、及びPM_{2.5}の主要成分であるイオン成分、炭素成分及び金属成分の成分分析の結果を報告する。

2 調査方法

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市役所局（北緯33度35分、東経130度24分）、元岡局（北緯33度35分、東経130度15分）及び西新局（北緯33度35分、東経130度21分）を図1に示す。市役所局は、福岡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び、また、交通の要所となっているため、交通量も非常に多い。元岡局は市役所局から西に約14km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環境にある。西新局は市役所局と元岡局のほぼ中間に位置して、用途区分は商業地域である。主要道路に近く、自動車排出ガス測定局である。

調査は以下の期間で実施した。

- ・春季（平成28年5月6日～5月20日）
- ・夏季（平成28年7月21日～8月4日*）
- ・秋季（平成28年10月20日～11月3日）
- ・冬季（平成29年1月19日～2月2日）

*元岡局のみ8月5日まで

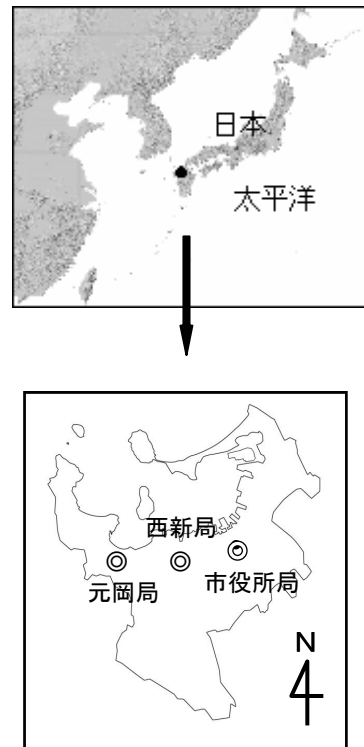


図1 調査地点

2.2 試料採取及び分析方法

試料採取は、市役所局、元岡局はFRM-2000（Thermo Scientific製）で、西新局はLV-250R（柴田科学（株）製）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}の質量濃度は、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、炭素成分及び無機元素成分の分析は、「大気中微小粒子状物質（PM_{2.5}）成分測定マニュアル（以下「マニュアル」という。）^{3）}に従った。

イオン成分の分析は、石英フィルターの1/4片を超純水10mLで20分間超音波抽出し、孔径0.45μm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-1600, 2100（春季・夏季）、ICS-1100, 2100（秋季・冬季））で分析した。測定項目はSO₄²⁻、NO₃⁻、Cl⁻、NH₄⁺、Na⁺、K⁺、Ca²⁺、Mg²⁺の8項目である。

炭素成分の分析は、石英フィルターの1cm²を使用し、カーボンアナライザー（Sunset Laboratory製：ラボモデル）

で Improve プロトコルに従い分析した。測定項目は OC1, OC2, OC3, OC4, EC1, EC2, EC3, OCPryo である。有機炭素 (OC) は $OC=OC1+OC2+OC3+OC4+OCPryo$, 元素状炭素 (EC) は $EC=EC1+EC2+EC3-OCPryo$ で算出した。

Si を除く無機元素成分の分析は, PTFE フィルターの 1/2 片をマイクロウェーブ (Perkin Elmer 製: Multiwave) で酸分解した後, ICP-MS (Agilent 製: 7700x (春季・夏季), Thermo scientific 製: iCAP RQ (秋季・冬季)) で分析した。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, Ta, W, Pb, Th の 29 項目である。Si は, 捕集フィルターを蛍光 X 線分析装置 (BRUKER 製: S2 RANGER) で分析した。

なお, 市役所局の 1 月 30 日及び 2 月 1 日, 元岡局の 7 月 27 日及び 2 月 1 日はマニュアルに従ったサンプリングが実施できなかったため欠測とした。

3 結果及び考察

3.1 PM_{2.5} 質量濃度と成分濃度の季節変化

3.1.1 PM_{2.5} 質量濃度

PM_{2.5} 質量濃度の季節ごとの平均値を表 1 に示す。質量濃度は, 市役所局では平均 16.8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (4.4~35.3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$), 元岡局では平均 15.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (2.8~35.7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$), 西新局では平均 15.9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (3.9~34.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) であった。市役所局, 元岡局及び西新局で成分分析期間中の質量濃度の平均は年平均基準値 (15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) を超過していた。一方, 日平均基準値 (35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) を超過したのは, 市役所局及び元岡局の各 1 日であった。

質量濃度における季節の変化をみると, 春季・夏季・冬季に濃度が高く, 秋季に濃度が低かった。

表 1 各季節の PM_{2.5} 質量濃度 (平成 28 年度)

	春季	夏季	秋季	冬季	平均
市役所局	18.3	17.8	12.1	19.5	16.8
元岡局	16.5	17.7	11.5	16.2	15.5
西新局	17.2	16.5	12.3	17.7	15.9
市役所局(H27)	21.0	18.5	23.0	21.7	21.0

(単位: $\mu\text{g}/\text{m}^3$)

3.1.2 イオン成分

PM_{2.5} 中のイオン成分における季節ごとの平均濃度を表 2 に示す。イオン成分合計の年平均は, 市役所局では 7.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (質量濃度の 45%), 元岡局では 7.1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (質

量濃度の 46%), 西新局では 7.2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (質量濃度の 45%) を占めていた。それぞれの測定局の間で大きな違いは見られなかった。

イオン各成分の中では全ての測定局で SO_4^{2-} が最も多く, 市役所局では平均 4.4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (質量濃度の 26%), 元岡局では平均 4.1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (質量濃度の 26%), 西新局では平均 4.2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (質量濃度の 26%) であった。

表 2 各季節の PM_{2.5} 中イオン濃度 (平成 28 年度)

	春季	夏季	秋季	冬季	平均	
市役所局	SO_4^{2-}	4.0	6.5	2.5	4.6	4.4
	NO_3^-	0.63	0.066	0.44	2.8	0.92
	NH_4^+	1.7	2.4	0.99	2.5	1.9
	その他	0.32	0.19	0.33	0.63	0.36
	体合計	6.6	9.2	4.3	11	7.6
元岡局	SO_4^{2-}	3.8	6.3	2.5	3.7	4.1
	NO_3^-	0.85	0.17	0.51	1.9	0.83
	NH_4^+	1.7	2.5	1.0	2.0	1.8
	その他	0.30	0.16	0.39	0.57	0.35
	体合計	6.6	9.2	4.4	8.2	7.1
西新局	SO_4^{2-}	3.9	6.4	2.5	3.8	4.2
	NO_3^-	0.67	0.048	0.52	2.4	0.92
	NH_4^+	1.6	2.4	1.0	2.2	1.8
	その他	0.30	0.15	0.38	0.65	0.37
	体合計	6.4	9.0	4.4	9.1	7.2
市役所局 (平成 27 年度)	SO_4^{2-}	6.8	6.9	6.3	4.1	6.0
	NO_3^-	1.1	0.21	1.5	3.6	1.6
	NH_4^+	2.7	2.5	2.7	2.7	2.6
	その他	0.37	0.48	0.42	0.57	0.46
体合計	11	10	11	11	11	

(単位: $\mu\text{g}/\text{m}^3$)

3.1.3 炭素成分

PM_{2.5} 中の炭素成分における季節ごとの平均濃度を表 3 に示す。炭素成分は, 市役所局では OC が平均 3.4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (質量濃度の 20%) であり, EC は平均 1.2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (質量濃度の 7%) であった。元岡局では OC が平均 2.7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (質量濃度の 17%) であり, EC は平均 0.83 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (質量濃度の 5%) であった。西新局では OC が平均 2.8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (質量濃度の 18%) であり, EC は平均 1.1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (質量濃度の 7%) であった。

表3 各季節のPM_{2.5}中炭素成分濃度（平成28年度）

		春季	夏季	秋季	冬季	平均
市役所局	OC	3.8	3.5	2.8	3.7	3.4
	EC	1.3	1.0	1.1	1.3	1.2
元岡局	OC	2.8	3.4	2.1	2.4	2.7
	EC	0.84	0.73	0.81	0.95	0.83
西新局	OC	3.0	3.0	2.4	2.9	2.8
	EC	1.2	0.98	1.1	1.3	1.1
市役所局 (平成27年度)	OC	3.4	3.1	4.2	3.5	3.5
	EC	1.4	1.4	1.8	1.7	1.6

(単位：μg/m³)

3.1.4 金属成分

PM_{2.5}中の金属成分合計における季節ごとの平均濃度を表4に示す。金属成分合計濃度は、市役所局では平均0.74μg/m³（質量濃度の4%）、元岡局では平均0.72μg/m³（質量濃度の5%）、西新局では平均0.74μg/m³（質量濃度の5%）であった。そして、3測定局の間で大きな違いは見られなかった。

表4 各季節のPM_{2.5}中金属成分濃度（平成28年度）

		春季	夏季	秋季	冬季	平均
市役所局		1.3	0.31	0.62	0.72	0.74
元岡局		1.0	0.34	0.68	0.81	0.72
西新局		1.2	0.37	0.63	0.75	0.74
市役所局 (平成27年度)		0.84	0.59	0.87	0.47	0.69

(単位：μg/m³)

4 まとめ

福岡市におけるPM_{2.5}の成分濃度の季節変動などを把握するため、平成28年度の四季毎に市役所局、元岡局及び西新局でPM_{2.5}の試料採取を行い、質量濃度、イオン成分、炭素成分、金属成分の測定を行った。その結果、採取期間の質量濃度平均が市役所局で16.8μg/m³、元岡局で15.5μg/m³、西新局で15.9μg/m³であり、全ての測定局で年平均基準値を超過していた。また、成分濃度についてはSO₄²⁻が最も多く約3割を占めていた。

文献

- 1) 肥後隼人, 他: 福岡市におけるPM_{2.5}の成分組成と発生源解析, 福岡市保健環境研究所報, 38, 71~76, 2013
- 2) 環境科学課大気担当: 平成27年度 福岡市におけるPM_{2.5}の成分組成, 福岡市保健環境研究所報, 41, 123~125, 2016
- 3) 環境省: 大気中微小粒子状物質(PM2.5)成分測定マニュアル, 2014

平成28年度 福岡市の酸性雨調査結果

環境科学課 大気担当

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。福岡市では、平成2年から市内の酸性雨調査を行っている。また、平成3年から始まった全国環境研協議会 酸性雨広域大気汚染調査研究部会による酸性雨全国調査に参加し、全国の環境研究所と連携して、日本全域における酸性雨の汚染実態を調査している。

今回、平成28年4月4日から平成29年4月3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ヶ所で酸性雨調査を行った。両地点とも、通年で1週間ごとに調査を行い、自動雨水採取装置で湿性沈着物を採取した。測定項目は、城南区役所では降水量、pH及び導電率、曲渕ダムでは降水量、pH、導電率及びイオン成分である。

平成28年度の調査結果を表1及び表2に示す。なお、表示桁数について、降水量、電気伝導率は小数点以下1桁に、pH、イオン濃度は小数点以下2桁に統一した。城南区役

所ではpHの範囲が4.01～5.34、年加重平均値が4.78であった。また、曲渕ダムではpHの範囲が3.59～5.74、年加重平均値が4.84であった。それぞれの年加重平均値は、全国平均（環境省平成27年度酸性雨調査結果）である4.83とほぼ同程度であった。

調査地点の概況

1 城南区役所

福岡市の中心部から南西約3kmに位置し、商業地域に属する。南東約130m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。

2 曲渕ダム

福岡市の中心部から南西へ約13km、室見川上流の谷間標高約170m地点に位置している。南側約300mに国道263号線が通っているが、林に遮られて排気ガスなどの直接の影響は見られない。

表1 城南区役所（湿性沈着物）

採取期間	降水量 mm	pH	電気伝導率 mS/m	水素イオン mmol/m ²
4/4-4/11	40.5	4.75	1.5	0.72
4/11-4/18	34.9	4.91	1.0	0.43
4/18-4/25	57.4	4.93	1.0	0.68
4/25-5/2	39.7	4.45	2.5	1.42
5/2-5/9	52.7	5.07	0.7	0.44
5/9-5/16	62.0	5.12	1.0	0.47
5/16-5/23	28.3	4.99	1.4	0.29
5/23-5/30	47.1	4.85	1.2	0.67
5/30-6/6	25.5	4.21	3.0	1.58
6/6-6/13	13.8	4.41	2.3	0.54
6/13-6/20	93.4	5.25	0.4	0.53
6/20-6/27	199.4	4.98	0.6	2.11
6/27-7/4	69.9	4.90	0.7	0.87
7/4-7/11	51.7	5.01	0.6	0.51
7/11-7/19	133.3	5.34	0.4	0.61
7/19-7/25	0.0	-	-	-
7/25-8/1	0.2	-	-	-
8/1-8/8	36.4	4.17	3.3	2.44
8/8-8/15	0.0	-	-	-
8/15-8/22	0.0	-	-	-
8/22-8/29	67.6	4.98	1.3	0.71
8/29-9/5	32.1	4.05	5.4	2.87
9/5-9/12	59.6	4.27	2.6	3.23
9/12-9/20	251.5	5.11	0.4	1.94
9/20-9/26	0.9	4.01	30.9	0.08
9/26-10/3	292.1	5.24	0.4	1.69

採取期間	降水量 mm	pH	電気伝導率 mS/m	水素イオン mmol/m ²
10/3-10/11	102.7	5.22	0.5	0.62
10/11-10/17	22.6	4.81	0.9	0.35
10/17-10/24	21.4	4.66	1.3	0.47
10/24-10/31	29.1	4.48	2.2	0.96
10/31-11/7	1.4	4.81	3.3	0.02
11/7-11/14	46.7	4.54	1.6	1.35
11/14-11/21	39.0	4.65	1.2	0.87
11/21-11/28	52.4	4.66	2.3	1.14
11/28-12/5	10.0	4.24	3.3	0.57
12/5-12/12	3.2	4.02	8.8	0.31
12/12-12/19	62.8	4.88	1.3	0.82
12/19-12/26	14.9	4.93	4.2	0.18
12/26-1/4	48.7	4.84	2.2	0.71
1/4-1/10	32.8	5.02	0.6	0.31
1/10-1/16	0.1	-	-	-
1/16-1/23	22.0	4.20	10.2	1.40
1/23-1/30	11.0	4.55	3.1	0.31
1/30-2/6	19.5	4.90	1.0	0.25
2/6-2/13	16.2	4.29	5.0	0.83
2/13-2/20	4.6	4.38	5.3	0.19
2/20-2/27	11.3	4.97	2.5	0.12
2/27-3/6	3.9	4.27	8.3	0.21
3/6-3/13	1.9	4.67	14.5	0.04
3/13-3/21	23.6	4.44	3.6	0.86
3/21-3/27	3.3	4.36	5.4	0.14
3/27-4/3	7.2	4.42	3.0	0.27
計	2302.4	-	158.3	38.11
平均(注)	-	4.78	1.3	0.73
最大値	292.1	5.34	30.9	3.23
最小値	0.0	4.01	0.4	0.02

※7/19～25、8/8～22は降雨なし。7/25～8/1、1/10～1/16は採水量が少ないため欠測。

(注) pHと電気伝導率は年加重平均

表2 曲淵ダム(湿性沈着物)

採取期間	降水量 mm	pH	電気 伝導率 mS/m	硫酸 イオン mmol/m ²	硝酸 イオン mmol/m ²	塩化物 イオン mmol/m ²	アンモ ニウム イオン mmol/m ²	ナトリウム イオン mmol/m ²	カリウム イオン mmol/m ²	カルシウム イオン mmol/m ²	マグネ シウム イオン mmol/m ²	水素 イオン mmol/m ²
4/4-4/11	68.4	4.85	1.5	1.19	1.12	0.82	2.15	0.63	0.17	0.24	0.10	0.96
4/11-4/18	75.4	5.01	0.7	0.59	0.48	0.37	0.90	0.32	0.16	0.14	0.08	0.74
4/18-4/25	76.8	5.17	0.5	0.41	0.52	0.14	0.72	0.11	0.07	0.16	0.05	0.52
4/25-5/2	92.2	4.68	2.0	1.41	0.76	5.51	1.09	4.74	0.14	0.21	0.51	1.93
5/2-5/9	103.3	5.14	0.6	0.62	0.53	0.45	1.01	0.40	0.09	0.14	0.11	0.74
5/9-5/16	107.0	5.02	0.8	0.83	0.63	1.82	0.82	1.49	0.09	0.13	0.21	1.01
5/16-5/23	16.2	4.93	1.0	0.13	0.18	0.26	0.25	0.22	0.02	0.02	0.03	0.19
5/23-5/30	61.8	4.96	0.8	0.65	0.92	0.17	1.52	0.16	0.06	0.08	0.06	0.68
5/30-6/6	37.8	4.37	1.9	0.78	0.31	0.15	0.27	0.07	0.03	0.04	0.03	1.62
6/6-6/13	24.2	4.61	1.3	0.40	0.32	0.10	0.51	0.08	0.02	0.07	0.03	0.59
6/13-6/20	101.7	5.31	0.3	0.21	0.34	0.09	0.51	0.10	0.04	0.01	0.07	0.50
6/20-6/27	248.1	5.16	0.4	0.73	1.31	0.42	1.87	0.40	0.11	0.07	0.19	1.72
6/27-7/4	100.9	4.99	0.6	0.49	0.69	0.40	0.79	0.34	0.07	0.12	0.11	1.02
7/4-7/11	74.2	5.26	0.3	0.19	0.25	0.06	0.36	0.08	0.04	0.05	0.07	0.41
7/11-7/19	193.1	5.26	0.5	0.52	0.80	2.18	1.25	1.79	0.12	0.15	0.27	1.07
7/19-7/25	20.7	4.47	2.0	0.43	0.40	0.15	0.63	0.12	0.02	0.05	0.03	0.70
7/25-8/1	1.6	5.02	1.3	0.02	0.03	0.03	0.06	0.03	0.00	0.01	0.00	0.02
8/1-8/8	13.3	4.14	3.4	0.47	0.64	0.10	0.50	0.08	0.02	0.12	0.02	0.96
8/8-8/15	0.0	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
8/15-8/22	1.1	5.03	3.1	0.05	0.05	0.03	0.13	0.03	0.00	0.01	0.00	0.01
8/22-8/29	127.4	5.09	1.6	1.08	0.56	12.07	1.00	10.08	0.21	0.30	1.07	1.04
8/29-9/5	24.8	4.05	5.3	1.24	0.64	2.25	0.35	2.01	0.06	0.12	0.24	2.22
9/5-9/12	49.1	4.38	2.1	1.05	0.75	0.15	0.57	0.16	0.04	0.06	0.03	2.07
9/12-9/20	314.0	5.15	0.5	1.28	0.97	3.57	1.28	3.06	0.14	0.11	0.36	2.25
9/20-9/26	1.1	3.59	40.6	-	-	-	-	-	-	-	-	0.29
9/26-10/3	313.8	5.30	0.4	1.31	0.87	0.98	2.39	1.01	0.15	0.09	0.17	1.56
10/3-10/11	96.8	5.32	0.5	0.41	0.26	1.69	0.35	1.36	0.06	0.05	0.13	0.46
10/11-10/17	21.6	4.90	0.8	0.19	0.13	0.16	0.15	0.14	0.01	0.02	0.02	0.27
10/17-10/24	26.6	4.50	1.6	0.39	0.59	0.32	0.36	0.29	0.02	0.05	0.04	0.84
10/24-10/31	56.0	4.59	2.0	0.82	1.09	4.15	0.55	3.58	0.09	0.17	0.39	1.45
10/31-11/7	2.7	4.40	2.8	0.12	0.13	0.09	0.09	0.10	0.01	0.06	0.02	0.11
11/7-11/14	55.6	4.71	1.1	0.78	0.55	0.79	0.66	0.70	0.06	0.15	0.11	1.08
11/14-11/21	42.5	4.70	1.1	0.51	0.56	0.44	0.73	0.43	0.05	0.08	0.07	0.84
11/21-11/28	64.7	4.62	2.2	0.99	2.13	2.96	1.50	2.61	0.10	0.23	0.31	1.57
11/28-12/5	10.2	4.20	3.9	0.35	0.50	0.77	0.35	0.75	0.03	0.06	0.09	0.65
12/5-12/12	1.4	4.06	8.2	0.10	0.31	0.20	0.17	0.23	0.01	0.07	0.03	0.12
12/12-12/19	24.0	4.55	2.6	0.64	0.91	2.02	0.83	1.92	0.06	0.23	0.22	0.68
12/19-12/26	8.9	4.21	8.8	0.63	0.53	4.11	0.55	3.60	0.09	0.15	0.39	0.55
12/26-1/4	26.3	4.56	3.3	0.62	0.89	2.94	0.63	2.63	0.07	0.09	0.29	0.72
1/4-1/10	4.6	5.74	0.4	0.02	0.03	0.07	0.04	0.08	0.00	0.01	0.01	0.01
1/10-1/16	0.0	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
1/16-1/23	21.2	4.11	14.5	1.98	2.35	15.57	2.28	12.87	0.34	0.45	1.54	1.64
1/23-1/30	18.6	4.55	2.9	0.49	0.62	1.09	0.61	1.01	0.09	0.09	0.12	0.52
1/30-2/6	30.0	4.82	1.0	0.33	0.24	0.59	0.26	0.52	0.03	0.06	0.06	0.46
2/6-2/13	23.1	4.42	3.9	0.77	1.11	3.02	0.89	2.65	0.08	0.21	0.32	0.88
2/13-2/20	10.9	4.37	5.2	0.60	0.71	1.40	0.88	1.30	0.08	0.15	0.17	0.46
2/20-2/27	18.2	4.79	2.0	0.47	0.56	0.89	0.94	0.76	0.05	0.09	0.09	0.29
2/27-3/6	4.9	4.33	6.4	0.32	0.51	1.24	0.45	1.06	0.03	0.13	0.13	0.23
3/6-3/13	6.6	4.45	13.7	0.72	0.97	5.05	0.89	4.44	0.14	0.36	0.49	0.24
3/13-3/21	41.0	4.52	3.1	1.23	1.20	4.15	1.75	3.69	0.14	0.22	0.42	1.25
3/21-3/27	7.7	4.26	4.9	0.43	0.72	0.71	0.89	0.60	0.04	0.13	0.08	0.43
3/27-4/3	30.6	4.45	3.2	1.16	1.98	1.38	2.60	1.09	0.08	0.26	0.15	1.08
合計	2903.0	-	173.1	31.17	33.67	88.10	40.31	75.93	3.65	6.08	9.55	41.66
平均(注)	-	4.84	1.2	0.64	0.69	1.80	0.82	1.55	0.07	0.12	0.19	0.83
最大値	314.0	5.74	40.6	1.98	2.35	15.57	2.60	12.87	0.34	0.45	1.54	2.25
最小値	0.0	3.59	0.3	0.02	0.03	0.03	0.04	0.03	0.00	0.01	0.00	0.01

※8/8～15, 1/10～16は降雨なし。9/20～26は採水量が少ないためイオン成分欠測。

(注) pHと電気伝導率は年加重平均

福岡市の家庭系可燃ごみにおけるリサイクル可能ごみの排出状況

保健環境管理課 廃棄物資源化担当

1 はじめに

福岡市の家庭から排出されるごみは、図1のとおり「燃えるごみ（以下可燃ごみ）」「燃えないごみ」「粗大ごみ」「空きびん・ペットボトル」の4つに分別し収集を行っている¹⁾。

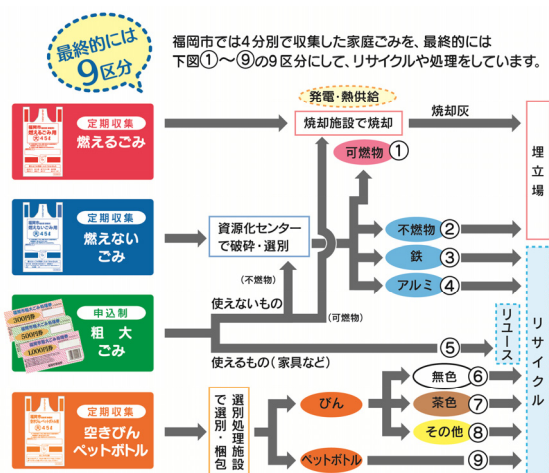


図1 福岡市の家庭系ごみの分別・処理フロー

当研究所では、これら家庭系ごみについて、循環型社会構築のための基礎資料とすることなどを目的として、ごみ質やリサイクル可能ごみの混入状況などを組成調査で確認している。

今回、可燃ごみ中の紙類、高分子類、繊維類の3区分各々について、リサイクル可/不可の判断基準に基づき、過去5年間のリサイクル可能ごみの排出状況について調査を行ったので報告する。

2 調査方法

平成22年及び27年国勢調査の結果(年齢構成、一戸建に住む世帯比率、共同住宅に住む世帯比率、一般世帯数に占める単独世帯の割合、地区別人口ピラミッド)及び校區別1人1日当たり資源回収量などをもとに毎年3つの調査対象地区を選定した。3地区を月1回の輪番とし、各地区について年4回、計12回調査を実施するとともに、年度毎に調査地区を更新した。

調査対象地区の一般家庭から排出された可燃ごみの中から破袋の少ない袋を200kg以上抽出し、試料とした。

抽出した可燃ごみの袋を破袋し、紙類、プラスチック類、木片・わら類、繊維類、金属類、ガラス類、陶磁器・その他不燃物、厨芥・雑芥類の8区分(大分類)に分類したのち、小分類に従い22分類した。さらにリサイクル可/不可の別にも分類した。分類後の各試料について重量を測定し、ごみ組成割合を求めた。

3 調査結果

2.1 リサイクル可能ごみ

リサイクル可能ごみの経年変化を図2に示す。過去5年間のリサイクル可能ごみ組成は20.3～23.5%であり、逆算すると76.5～79.7%がリサイクル不可能ごみということになる。リサイクル可能ごみ全体の重量割合に関しては大きな変化は見られていない。またリサイクル可能ごみ組成の内訳を見てみると、紙類、繊維類、プラスチック類の順に多く、紙類に関してはリサイクル可能ごみ全体の約8～9割を占めている。以下、リサイクル可能ごみ上位3組成について小分類毎に特徴を比較した。

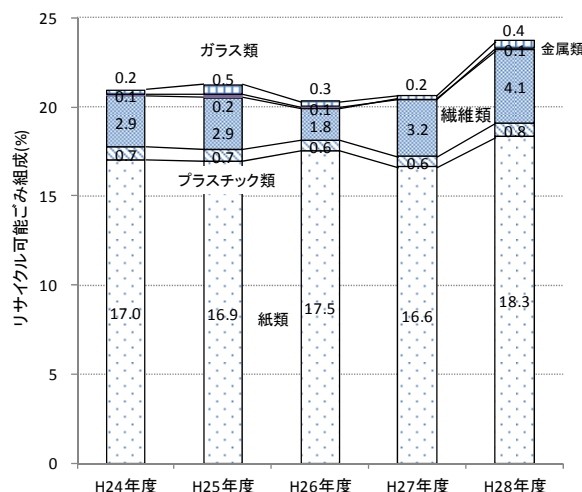


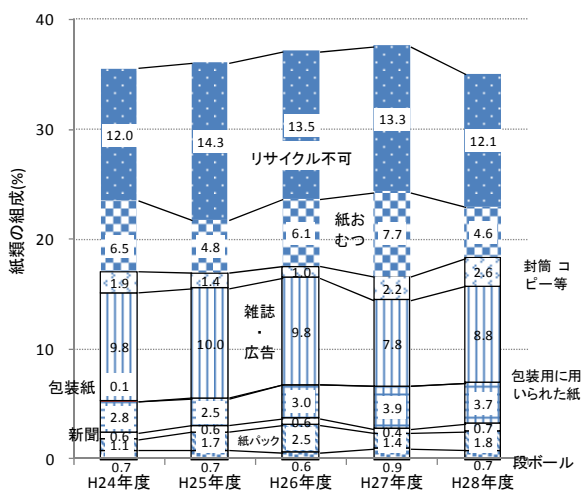
図2 リサイクル可能ごみの経年変化

2.2 リサイクル可能紙類

紙類についてリサイクル可/不可の判断基準及びその内訳を表1に示す。紙類のうち、紙おむつについては水溶化処理等により再生パルプ原料を得るといったリサイクルが技術的には可能であり、県内においても紙おむつ

のリサイクル施設が一部稼働しているが、現在、本市では家庭系可燃ごみ中の紙おむつに特化した分別・収集の採用には至っていないため、リサイクル不可として取り扱った。

紙類の経年変化を図3に示す。過去5年間のリサイクル可能紙類は16.9～18.3%である。リサイクル可能紙類の内訳を見てみると、段ボールや新聞紙に関しては割合が低い。これらは排出者にとってリサイクルできるものとして浸透しており、実際にリサイクルに回されているため、可燃ごみ中への排出が低く抑えられているものと思われる。逆に雑誌・広告、包装用に用いられる紙に代表される雑がみに関しては割合が高い状態が続いており、未だ雑がみはリサイクルできないと誤った考えを持



った排出者が一定数存在していると想定される。

本市の家庭系可燃ごみの分別ルール上、これらリサイクル可能紙類を可燃ごみとして排出することは直接ルール違反ではないが、段ボール、新聞紙、雑がみに関しては地域集団回収、紙リサイクルボックス、紙リサイクルステーション等を利用したリサイクルを推奨している。

(民間事業者が設置する紙の回収拠点も市内に転在している。) 特に雑がみに関しては以前からリサイクル可能であることの周知及びリサイクルルートへの誘導に重点的に力を入れているところでもあり、その組成に注目していく必要がある。

2.3 リサイクル可能プラスチック類

プラスチック類についてリサイクル可/不可の判断基準及びその内訳を表2に示す。リサイクル可能プラスチック類としては飲料水、酒、醤油等が入っている(リサイクルマークが表記されている)ペットボトル(油が入っているペットボトルにはリサイクルマークが表記されていない)、その他容器包装プラスチック(発泡スチロール)、発泡トレー(白色)の3つである。ここで、プラスチック製容器包装に該当するもの(※を表記)については、他市区町村においてリサイクル可能物として分別収集を行い、再生樹脂を得るといった材料リサイクルのほか、ケミカルリサイクルを行っている例もあるが、2.2の紙おむつ同様、本市では家庭系可燃ごみ中のプラスチック製容器包装に特化した分別・収集の採用には至っていないため、リサイクル不可として取り扱った。

プラスチック類の経年変化を図4に示す。リサイクル可能プラスチック類と不可能プラスチック類を比較する

表1 紙類のリサイクル可/不可の判断基準

小分類	リサイクル可	リサイクル不可
段ボール	段ボール (流通用除く)	《共通》
新聞	新聞紙 政党新聞 市政だより	・細かく破砕されたもの
紙バック	牛乳・飲料等の紙バック	
雑がみ	包装用に用いられた紙	・リサイクル不可能な加工(コーティング)をされたもの
	包装紙	・リサイクル不可能な用途に再利用されたことが明白なもの
	雑誌・広告	
	その他紙類	・著しく水分を含むもの
	封筒 コピー等	封筒 コピー用紙 ノート 書籍 教科書 紙袋
	紙おむつ	紙おむつ 生理用品
	その他	ティッシュ 紙タオル キッチンタオル

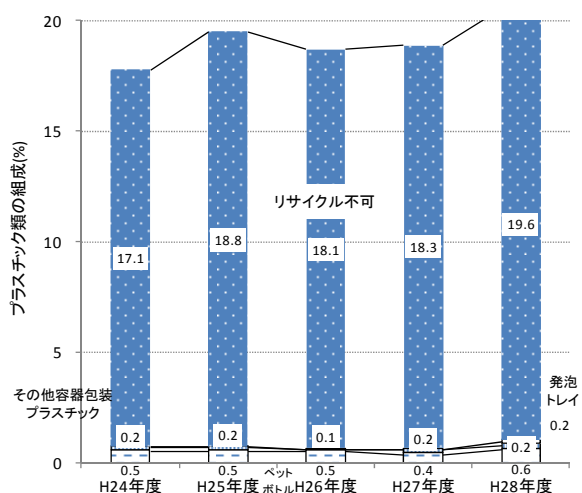


図4 プラスチック類の経年変化

と不可能なものが9割以上を占めていた。

過去5年間のリサイクル可能プラスチック類は0.5～0.8%、うちペットボトルが0.4～0.6%とごくわずかである。本市ではリサイクルマークの表記されたペットボトルに関しては「空きびん・ペットボトル用」指定袋にて排出するルールとなっているが、空きびん・ペットボトルの収集が月1回と可燃ごみの収集頻度と比較して少ないことや、使用する指定袋の種類を減らしたいといった排出者の思惑もあってか、可燃ごみの指定袋中にペットボトルが排出されることが散見される。ただし、ペットボトルの比重は小さいため、本数の多さの割には重量増加にあまり反映されていない状況である。

2.4 リサイクル可能繊維類

リサイクル可能ごみ全体のうち、紙類に次いで割合が高いのが繊維類である。繊維類についてリサイクル可/不可の判断基準及びその内訳を表3に示す。

表3 繊維類のリサイクル可/不可の判断基準

リサイクル可	リサイクル不可
一般衣類 タオル	ストッキング ぬいぐるみ 座布団 じゅうたん カーペット 布団
	《共通》 ・細かく破砕されたもの ・油等が多量に付着したもの

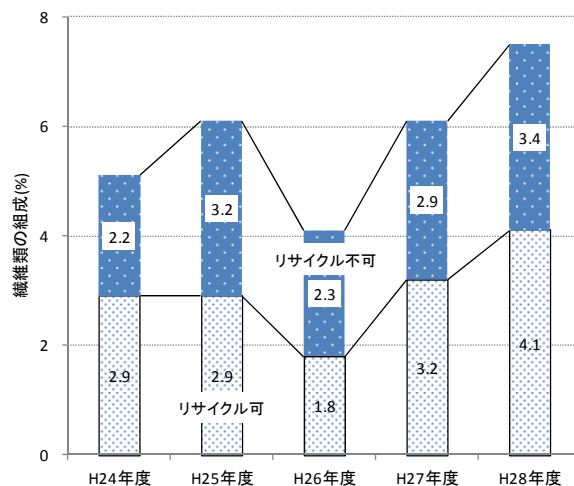


図5 繊維類の経年変化

繊維類の経年変化を図5に示す。過去5年間のリサイクル可能繊維類は1.8～4.1%であり、リサイクル可能繊維類とリサイクル不可能繊維類を比較すると可能なものが約5割程度を占めていた。3R（リデュース・リユース・リサイクル）のうち衣料は比較的反リユースが行われやすいものであるが、近年はリユースできない衣料については裁断し、反毛わたとして自動車の内装材に用いるといったリサイクルが行われてきている。

本市では一部の市有施設及び資源回収ボックスで衣

表2 プラスチック類のリサイクル可/不可の判断基準

小分類	リサイクル可	リサイクル不可
ペットボトル*	リサイクルマーク有 (飲料・調味料用)	リサイクルマーク無 (油用)
包装用ビニール袋*		透明ビニール袋
レジ袋*		コンビニ・スーパーの袋
その他容器包装プラスチック*	発泡スチロール	食品袋 卵パック ラップ チューブ
発泡トレイ*	白色 (弁当・インスタント麺容器)	着色 (弁当・インスタント麺容器)
その他プラスチック類		収集袋 傘袋 CD プラスチック製品

類の回収を開始したところである。回収拠点は未だ少ないものの、今後の回収量の推移については注目すべき点である。

3 まとめ

家庭系可燃ごみ中のリサイクル可能ごみは、過去5年間で 20.3～23.5%で推移している。リサイクル可能ごみのうち最も割合の高いものは紙類で、その中でも包装用

に用いられた紙、雑誌・広告に代表される雑がみが多く、13.8～15.1%で推移している。次に多いものは繊維類で1.8～4.1%で推移している。プラスチック類についてはペットボトルの割合が多く、0.4～0.6%で推移している。ペットボトルの比重は小さいため、0.4～0.6%といった割合の低さと比較して実際の本数は多い状況である。

文献

- 1) ふくおかの環境・廃棄物データ集(平成28年度)

清掃工場における集じん灰処理キレート剤選定及び添加率の検討

保健環境管理課 廃棄物処理施設担当

1 はじめに

清掃工場での廃棄物焼却処理により生じる集じん灰には廃棄物由来の鉛、カドミウム等の重金属類が含まれている。そのため埋立処分を行うには集じん灰から溶出される重金属類が環境省令に定められた基準（埋立基準）に適合するよう処理を行わなければならない。福岡市のA清掃工場ではその処理としてキレート剤添加を行っている。キレート剤とは、集じん灰の重金属類を化学的に捕捉し、重金属類溶出を防止するものである。現在A清掃工場ではキレート剤を集じん灰に対し約4%の割合で添加しているが、より低い添加を行っている廃棄物処理施設が実態調査¹⁾より確認されている。そこで、A清掃工場で使用されているキレート剤(計8銘柄)を用いて、4%より低い割合でキレート剤添加を行った集じん灰の溶出試験を行い、添加率削減のための検討を行うとともに、8銘柄のキレート剤重金属捕捉効率比較を行ったので報告する。

2 調査方法

2.1 対象施設

福岡市内のA清掃工場（ストーカ式焼却炉）

2.2 対象試料

2.2.1 集じん灰（電気集じん灰）

平成29年1月19日に採取したもの

2.2.2 キレート剤

A清掃工場にて使用されているジチオカルバミン系キレート剤8銘柄（以下①～⑧番号表記）

2.3 測定項目

全クロム(T-Cr)、カドミウム、鉛

2.4 試験方法

2.4.1 試料調整方法（キレート剤添加率）

集じん灰50gに対し、キレート剤を1%～4%において0.5%間隔でそれぞれ添加し蒸留水15mL(含水率30%)を加え混練したものを溶出試験試料とした。

2.4.2 溶出試験法 昭和48年環境庁告示13号

2.4.3 測定方法 ICP質量分析法

表1. 溶出試験結果

単位：mg/L

キレート剤 添加率	①			②			③			④		
	T-Cr	Cd	Pb	T-Cr	Cd	Pb	T-Cr	Cd	Pb	T-Cr	Cd	Pb
0%(未添加)	0.1	0.007	<u>17</u>	0.1	0.004	<u>19</u>	0.2	0.005	<u>16</u>	0.4	0.004	<u>15</u>
1%	0.4	<	<u>5.4</u>	0.2	<	<u>6</u>	0.7	<	<u>10</u>	0.9	<	<u>12</u>
1.5%	0.5	<	0.06	0.4	<	<u>1.2</u>	0.8	<	<u>1.4</u>	0.9	<	<u>1.7</u>
2%	0.5	<	0.02	0.5	<	0.05	0.5	<	0.01	0.5	<	0.03
2.5%	0.6	<	<	0.4	<	0.01	<	<	<	<	<	<
3%	0.5	<	<	0.4	<	<	<	<	<	<	<	<
3.5%	0.6	<	<	0.4	<	<	<	<	<	<	<	<
4%	0.6	<	0.02	0.4	<	<	<	<	<	<	<	<

キレート剤 添加率	⑤			⑥			⑦			⑧		
	T-Cr	Cd	Pb	T-Cr	Cd	Pb	T-Cr	Cd	Pb	T-Cr	Cd	Pb
0%(未添加)	0.3	0.006	<u>17</u>	0.3	<	<u>12</u>	0.2	0.007	<u>24</u>	0.4	<	<u>10</u>
1%	0.8	<	<u>11</u>	0.8	<	<u>8.6</u>	0.5	<	<u>11</u>	0.8	<	<u>8.9</u>
1.5%	0.9	<	<u>0.5</u>	0.9	<	<u>2.1</u>	0.6	<	0.1	0.8	<	<u>2.4</u>
2%	0.6	<	0.02	0.4	<	0.04	0.6	<	0.01	0.3	<	<
2.5%	<	<	<	<	<	<	0.6	<	<	<	<	<
3%	<	<	<	<	<	<	0.6	<	<	<	<	<
3.5%	<	<	<	<	<	<	0.5	<	<	<	<	<
4%	<	<	<	<	<	<	0.5	<	<	<	<	<

・「T-Cr」は全クロム、下線は埋立基準超過値、「<」は定量下限値未満を表す。

・埋立基準 Cr(6価クロムとして)：1.5mg/L、Cd：0.09mg/L、Pb：0.3mg/L

・定量下限値 Cr:0.1mg/L、Cd：0.003mg/L、Pb：0.01mg/L

3 調査結果

表1に溶出試験結果を示す。

全クロム(T-Cr)はキレート剤未添加で最大 0.4mg/L 検出したが、埋立基準(1.5mg/L)を満たしていた。また、銘柄③～⑥及び⑧は添加率 2.5%以上で定量下限値未満となった。銘柄①、②及び⑦は添加率 0～4%いずれでも検出された。

カドミウムはキレート剤未添加で最大 0.007mg/L 検出されたが、埋立基準(0.09mg/L)を満たしていた。また、添加率1%でいずれの銘柄でも定量下限値未満となった。

鉛はキレート剤未添加で 10～24mg/L 検出され、いずれも埋立基準(0.3mg/L)を超過していたが、①及び⑦は添加率 1.5%で、②～⑥及び⑧は2%で埋立基準を満足していた。

4 考察

調査結果より、全クロム、カドミウム、鉛のうち、全クロム及びカドミウムはキレート剤未添加で埋立基準を満たしていたため、鉛に対するキレート添加率について記述する。

4.1 銘柄の違いによるキレート効率比較

図1にキレート添加率と鉛溶出濃度を示す。今回検討を行った8種全ての銘柄でキレート添加率の上昇とともに、鉛溶出濃度が低下する傾向が認められた。また、いずれの銘柄でも添加率 1.5～2%で埋立基準を満たしており、鉛キレート効率に大きな差はないと考えられた。

4.2 キレート添加率削減の検討

調査結果よりいずれの銘柄でも添加率 1.5～2%で埋立基準を満たしており、添加率を現在の 4%より削減できることが確認された。一方、表2にA清掃工場における過去3年間の集じん灰(キレート未添加)溶出試験での鉛検出状況を示す。最大値と最小値の幅、平均値に対する標準偏差から、鉛溶出濃度は変動が大きいことがわかる。そのため、本調査結果を受けて、直ちに添加率を 1.5～2%削減にすることは埋立基準順守のためには難しく、今後は更に鉛溶出濃度の変動傾向や溶出濃度最大値での必要添加率などの検討が必要であると考えられた。

4.3 添加率削減への取組み

そこで現状のキレート添加率削減の取組みとして、直ちに添加率を 1.5～2%に削減するのではなく、4%から徐々に添加率を削減(例、4%→3.5%→3%)しながら断続

的に集じん灰溶出試験を行うことで、埋立基準適合を確認することを検討している。

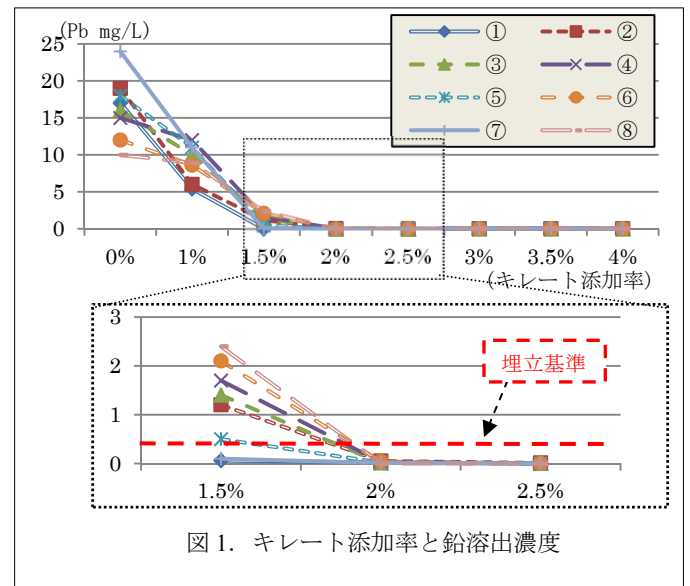


図1. キレート添加率と鉛溶出濃度

表2. 集じん灰(キレート未添加)溶出試験での鉛検出状況

平均値	34 mg/L
最大値	130 mg/L
最小値	0.01 mg/L
標準偏差	30

※過去3年間の値 (N=65)

5 まとめ

集じん灰に対して各種キレート剤(計8種)を0～4%添加し溶出試験を行った結果、いずれの銘柄も 1.5～2%で埋立基準を満たし、銘柄によるキレート効率に大きな差はなかった。現在清掃工場でのキレート剤添加率は約4%であるため、添加率を下げる可能性があるが、集じん灰からの鉛溶出濃度は変動が大きいため、添加率削減のためには溶出濃度の変動傾向、最大値での必要添加率などを確認する必要がある。

文献

- 樋口壮太郎：第5回最終処分技術 廃棄管理と最終処分技術(その5),都市と廃棄物5月号, Vol.46, No5, 41～46, 2016

中部汚泥再生処理センターにおける生物処理停止時の水質調査

保健環境管理課 廃棄物処理施設担当

1 はじめに

福岡市のし尿処理は、し尿収集人口3,085人（構成比0.2%）、浄化槽等人口9,164人（構成比0.6%）となっている（平成28年4月1日現在¹⁾。

し尿及び浄化槽汚泥については、市内に1カ所ある汚泥再生処理施設で処理を行っている。以前はし尿等を受け入れたのち下水処理場へ圧送処理を行う中継施設だったが、施設の更新時期を迎えるに当たり、既存施設を改造して汚泥再生処理施設へリニューアルし、平成27年11月から中部汚泥再生処理センターとして稼働を開始している²⁾。

中部汚泥再生処理センターでは、し尿等を固液分離方式で処理し、脱水汚泥は助燃剤として清掃工場で焼却している。ろ液については、生物処理を行った後、希釈して公共下水道へ排除している。今回、施設の電気設備点検を行うにあたり、全ての機器を停止する必要が生じた。市内唯一のし尿処理施設であり、稼働開始後は処理を停止した事例がないことから、生物処理の停止が処理水質に与える影響について調査を行ったので報告する。

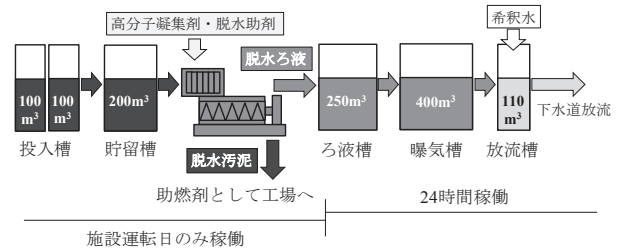


図1 中部汚泥再生処理センター処理フロー

2 処理概要

2.1 処理工程について

中部汚泥再生処理センターの処理フローを図1に示す。中部汚泥再生処理センターでは、受け入れたし尿及び浄化槽汚泥をまず投入槽にて一時貯留する。投入槽のし尿等は、破碎ポンプで荒破碎した後、貯留槽へと移送する。

貯留槽のし尿等は汚泥供給ポンプで微破碎し、高分子凝集剤及び脱水助剤を添加して凝集を行った後、スクリーンプレス脱水機により脱水する。脱水汚泥はホッパに一時貯留した後、助燃剤として清掃工場に搬出する。

脱水ろ液はろ液槽に貯留し、性状と量の平準化を行い、一定流量で曝気槽へと移送する。ろ液の移送以降の処理は24時間連続で行われる。曝気槽では、担体流動式接触曝気法による生物処理を行い、主にBODの処理を行う。曝気槽滞留時間はろ液の移送量により変動し、4～7日程度である。

曝気槽からは越流堰による自然流下で放流槽へ移行する。曝気槽への返送や余剰汚泥の引き抜きは行わず、放流槽で工業用水により下水排除基準以下まで希釈後、公共下水道に放流する。

2.2 施設停止時の状況

施設停止前は、曝気槽の曝気風量を高めに設定した運転を行った。停電当日は、16時から施設の停止を順次行い、停止完了後に停電作業を約2時間実施した。復電後は監視用設備の起動のみを行い、当日の作業を終了した。翌朝8時から現場の状況を確認し、順次機器の再稼働を行い、通常運転へと移行した。

3 調査方法

3.1 調査試料の採取場所

曝気槽の越流堰に近い場所から直接採取した。

3.2 調査日

平成28年11月14日～平成28年11月17日

3.3 施設停止期間

平成28年11月14日16時
～平成28年11月15日8時

3.4 調査項目及び分析方法

調査項目及び分析方法を表1に示す。

中部汚泥再生処理センターの放流水に係る基準は福岡市下水排除基準が適用され、有機性汚濁物質の規制基準はBODが適用される。しかし、今回の調査では生物処理が悪化した場合に迅速な対処が必要になることから、測定結果が比較的早く得られるTOCを調査項目とした。なお、これまでの調査で曝気槽内の亜硝酸性窒素が高い場合があり、CODは指標に向かないことが明らかになっている³⁾。

表1の項目に加え、処理状況を判断するために生物相の観察を行った。観察にはニコン社製の位相差顕微鏡

OPTIPHOT-2 を用いた。

表 1 分析項目及び分析方法

項目	分析方法
pH	JIS K0102 12.1 ガラス電極法
ORP	-
水温	JIS K0102 7.2
DO	JIS K0102 32.3 隔膜電極法
SS	昭和 46 年 12 月 28 日環境庁告示 59 号付表 9
TOC	JIS K0102 22.2 燃焼酸化-赤外線式 TOC 自動計測法
アンモニア性窒素	JIS K0102 35.2 紫外線吸光光度法
亜硝酸性窒素	JIS K0102 43.1.2 イオンクロマトグラフ法
硝酸性窒素	JIS K0102 43.2.5 イオンクロマトグラフ法

4 結果及び考察

4.1 曝気槽の水質変動

今回調査した曝気槽の水質測定結果を表 2 に示す。

平成 28 年 4～10 月において、曝気槽の pH は 5.7～8.0、DO は 0.3～1.0mg/L、SS は 390～630mg/L で推移していた。

施設を停止する際に曝気槽内の溶存酸素濃度を高くしておくため、調査の 4 日前より曝気風量を 8m³/min から 10m³/min に増やして運転した。その結果、曝気停止 6 時間前の DO は 2.0mg/L と高くなっていた。また、硝酸性窒素が高く、硝化が進行した影響で槽内の pH は 5.5 まで低下していた。

曝気停止から 16 時間後の曝気再開直前には DO が 0.21mg/L まで低下し、pH は 6.1 に上昇した。なお、この時の SS、TOC が極端に低下しているのは、曝気が槽内攪拌を兼ねているため上澄みを採取したことによるもの

と考えられる。

施設停止により曝気槽内の酸素濃度の低下が見られたことから、曝気風量 10m³/min で運転を再開した。曝気再開 10 分後には曝気槽内の DO が 0.76mg/L に上昇し、亜硝酸性窒素が 1.4mg/L に増加した。ろ液の移送は曝気再開 20 分後に開始した。曝気開始 7 時間後には DO が 2.5mg/L と曝気停止前と同等以上になり、亜硝酸性窒素が 3.7mg/L とさらに増加したが、26 時間後には全ての項目で停止前と同等の状態になった。

TOC 及び SS は曝気再開直前に上澄みを採取したものを除き、それぞれ 300mg/L、400mg/L 前後で安定して推移しており、処理水質に問題は生じなかった。

4.2 曝気槽の生物相

曝気停止前の生物相は、優占種は *Microthorax.sp* であり、他に *Oxytricha.sp* や *Podophrya.sp* などを含む複数の繊毛虫類、*Rotaria.sp* などの輪虫類も観測された。一般的に繊毛虫類及び輪虫類などの微後生生物が鞭毛虫類、肉質虫類より多い場合は処理が良好な時であり、生物相から良好に処理が行われていることが推察された。曝気再開 10 分後、7 時間後は生物の死骸が散見され、26 時間後には非常に負荷が高い状態の時に出現する動物性小型鞭毛虫類が増加した。しかし、同時に処理が良好な状態に向かう時に出現する有柄性繊毛虫類の *Vorticella.sp* も増加し、50 時間後には停止前と同等の状態に回復した。

5 まとめ

中部汚泥再生処理センターの電気設備点検に伴い、施設を約 16 時間停止した。曝気停止による生物処理への影響は、曝気再開後に生物の死骸や動物性小型鞭毛虫類が増加し、槽内の亜硝酸性窒素が増加するなどの影響が見られたが、いずれも一時的なものであり処理水質に問題

表 2 曝気槽の水質測定結果

項目	単位	曝気停止 6時間前	曝気停止 16時間後	曝気再開				
				10分後	7時間後	26時間後	50時間後	74時間後
水温	℃	27.6	26.5	27.0	26.1	25.4	26.5	25.5
pH	-	5.5	6.1	6.2	5.5	5.4	5.6	5.4
DO	mg/L	2.0	0.21	0.76	2.5	2.6	2.1	2.7
ORP	mV	255	174	140	227	249	236	250
SS	mg/L	420	14	390	440	430	420	410
TOC	mg/L	310	97	290	310	330	360	350
NH ₄ -N	mg/L	610	520	540	500	530	550	550
NO ₂ -N	mg/L	<1	<1	1.4	3.7	<1	<1	<1
NO ₃ -N	mg/L	140	120	120	110	120	120	130

は生じなかった。これは、施設停止前に曝気風量を増やした運転を行い、溶存酸素が十分にある状態で施設の停止を行ったことで、曝気槽内が嫌気的な状態になることを防ぐことができたためと考えられる。

今回の結果から、事前に曝気風量を上げ槽内の DO を高めておくことで、施設を停止する場合の影響を最小限に抑えることができると考えられる。しかし、曝気停止後 16 時間で溶存酸素がかなり低下しており、嫌気的狀態にまで至ると生物が死滅する恐れや、今回は発生の見られなかった臭気が生じる可能性があることから、停止期間をこれ以

上延長することは好ましくない。

文献

- 1) 福岡市環境局：ふくおかの環境・廃棄物データ集 平成 28 年度
- 2) 田中洋将：福岡市中部汚泥再生処理センター，都市清掃，Vol.70 No.335, 85～89, 2017
- 3) 福岡市環境局：中部汚泥再生処理センターの排水処理状況調査，試験結果報告書(平成 27 年度), 255～258, 2016

平成28年度 食中毒・苦情検査結果

保健科学課 微生物担当

1 平成28年度 食中毒・有症苦情 検査結果

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	中央	4/13	飲食店	不明	不明	不明	不明	不明	参考品 (0/10)	不明	
2	中央	4/25	飲食店	不明	不明	不明	不明	不明	参考品 (0/10)	不明	参考品1検体よりカンピロバクタージェジュニを検出
3	城南 中央	5/6	飲食店	3	2	不明	倦怠感, 下痢, 腹痛	不明	有症者便 (0/2) ウイルス有症者便(0/2)	不明	有症者便1検体よりカンピロバクタージェジュニ, 1検体よりカンピロバクターコリ, ウイルス1検体よりロタウイルスを検出
4	中央 東博多 西城南 南早良	5/9	飲食店	不明	266	10~140時間	下痢, 腹痛, 発熱	4/29~5/8に当該施設で提供されたハーブチキンのさしみ寿司, むね肉のたたき寿司	有症者便 (25/38) 従業員便 (4/7) 残品 (2/29) 菌株 (4/4)	カンピロバクタージェジュニ/コリ	
5	西	5/27	飲食店	6	2	不明	下痢, 嘔吐	不明	有症者便 (0/1) ウイルス有症者便(0/1)	不明	東京都より依頼. 有症者1名よりカンピロバクタージェジュニを検出
6	中央 城南	6/3	飲食店	4	2	不明	発熱, 下痢	不明	有症者便 (0/2) 従業員便 (0/2) ふきとり (0/4)	不明	有症者1名, 菌株1検体よりカンピロバクタージェジュニを検出
7	中央	6/6	飲食店	不明	1	不明	下痢, 発熱, 嘔吐, 腹痛	不明	参考品 (0/4)	不明	有症者1名は病院検便で腸管出血性大腸菌O26(VT1)を検出
8	中央	6/7	飲食店	不明	不明	不明	不明	不明	参考品 (0/10)	不明	参考品1検体よりカンピロバクターコリを検出
9	中央 西城南	6/13	飲食店	15	12	15.5~113.5時間	腹痛, 下痢, 頭痛等	6/5に当該施設で提供された食事	有症者便 (6/7) 従業員便 (0/2) ふきとり (0/4) 参考品 (1/1) ウイルス有症者便(0/3) ウイルス従業員便(0/2)	カンピロバクタージェジュニ/コリ	
10	中央	6/14	飲食店	不明	不明	不明	不明	不明	参考品 (0/10)	不明	
11	中央 西早良 東南	6/23	飲食店	9	7	59.5~84.5時間	下痢, 発熱, 腹痛等	6/18に当該施設で提供された食事	有症者便 (2/5) 従業員便 (0/1) ふきとり (0/4) 参考品 (1/1)	カンピロバクタージェジュニ/コリ	
12	中央 東	6/29	飲食店	45	20	不明	下痢, 腹痛等	6/27に当該施設で提供された食事	有症者便 (5/6) 従業員便 (0/2) ふきとり (0/6) 参考品 (0/2)	ウェルシュ菌	
13	中央	6/29	飲食店	不明	不明	不明	不明	不明	参考品 (0/13)	不明	参考品9検体よりカンピロバクターコリを検出

14	南 中央 博多	7/2	飲食店	3	3	不明	下痢, 腹痛等	不明	有症者便 (0/5) 従業員便 (0/3) ふきとり (0/4) 参考品 (0/2) 菌株 (0/1)	不明	菌株1検体より腸炎ビ ブリオを検出
15	中央	7/4	飲食店	不明	不明	不明	不明	不明	参考品 (0/13)	不明	
16	博多	7/5	飲食店 (仕 出し)	不明	不明	平均 14 時間 41 分	下痢, 腹痛	7/3 に当該施設で 調理された弁当	有症者便 (0/3) ウイルス有症者便(0/1)	ウェルシュ菌	神奈川県より依頼
17	東 早良 西	7/7	飲食店	8	6	不明	不明	不明	有症者便 (0/10) 従業員便 (0/4) ふきとり (0/5) 参考品 (0/2) ウイルス有症者便(0/5) ウイルス従業員便(0/2)	不明	
18	南 早良	7/12	飲食店	2	2	不明	下痢, 腹痛, 発熱, 頭痛	不明	有症者便 (0/3) 従業員便 (0/3) ふきとり (0/4) 参考品 (0/1) 菌株 (0/1)	不明	有症者 1 名, 菌株 1 検 体よりカンピロバクテ ラージェジュニを検出
19	中央	7/12	飲食店	不明	不明	不明	不明	不明	参考品 (0/13)	不明	参考品 1 検体よりカン ピロバクターコリを検 出
20	博多	7/22	飲食店	2	2	不明	腹痛, 下痢	不明	有症者便 (0/1)	不明	
21	中央	8/12	その他	—	—	—	—	—	ウイルス従業員便 (0/31)	—	医療機関で従事者便の 検査を行ったところ, 陽性となったため検査 したもの。使用してい たキットに不具合があ ったことが判明。
22	中央	8/15	飲食店	7	4	不明	嘔吐, 下痢	8/14 に当該施設 で提供された昼食	有症者便 (0/2)	セレウス菌	熊本県より依頼
23	東 中央	8/19	飲食店	不明	2	不明	下痢, 発熱	不明	有症者便 (2/2) 従業員便 (0/7) ふきとり (0/13) 参考品 (0/1)	カンピロバク ターゲジュ ニ/コリ	
24	東	8/24	飲食店	不明	2	不明	下痢, 発熱, 腹痛, 頭痛	不明	有症者便 (2/2)	カンピロバク ターゲジュ ニ/コリ	
25	中央	9/1	飲食店	10	4	不明	不明	不明	従業員便 (0/4) ふきとり (0/4) 参考品 (0/3)	不明	
26	早良	9/15	飲食店 (仕 出し)	12	9	1~3 時間	嘔吐, 下痢, 腹痛	9/13 に当該施設 で調理された弁当	従業員便 (0/1) ふきとり (0/7)	セレウス菌	
27	中央	9/17	飲食店	2	2	不明	頭痛, 発熱, 下痢	不明	従業員便 (0/7) ふきとり (0/9) 参考品 (0/3)	不明	参考品 2 検体よりカン ピロバクターゲジュ ニ, 参考品 1 検体より, サルモネラ属菌を検出
28	博多	9/28	飲食店	3	3	40~169 時間	下痢, 腹痛, 発熱	9/16 に当該施設 で提供された食事	従業員便 (0/4) ふきとり (0/6) 菌株 (2/2)	カンピロバク ターゲジュ ニ/コリ	
29	南	9/29	飲食店	4	2	不明	発熱, 頭痛, 吐気, 腹痛, 下痢	不明	有症者便 (0/1)	カンピロバク ターゲジュ ニ/コリ	
30	東	10/6	飲食店	114	31	不明	嘔吐, 吐気, 下痢	不明	有症者便 (0/11) ウイルス有症者便 (6/11)	ノロウイルス (G II, 6)	

31	東	10/7	飲食店	不明	5	不明	下痢, 腹痛, 発熱	不明	有症者便 (2/5) 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/コリ	
32	東	10/18	飲食店(披 露宴会場)	27	10	不明	下痢, 嘔吐, 発熱	不明	有症者便 (0/7) ウイルス有症者便(6/7)	ノロウイルス (G II. 6)	
33	早良 西 東 博多 中央	10/18	飲食店	6	4	不明	発熱, 頭痛, 下痢	10/14に当該施設 で提供された食事	有症者便 (4/5) 従業員便 (1/2) ふきとり (0/4) 参考品 (2/5)	カンピロバク タージェジュ ニ/コリ	
34	西 中央	10/24	飲食店	2	2	不明	嘔吐, 腹痛, 下痢	不明	有症者便 (0/2) 従業員便 (0/10) ふきとり (0/14) ウイルス有症者便(0/2)	不明	有症者2名よりクドア セブテンブクタータ 検出
35	中央 博多	10/25	飲食店	16	13	不明	不明	10/21に当該施設 で提供された食事	有症者便 (0/6) 従業員便 (0/8) ふきとり (0/5) 参考品 (0/1) ウイルス有症者便 (9/10) ウイルス従業員便(2/8)	ノロウイルス (G II. 17)	ウイルス従業員便1検 体からノロウイルス (G I) を検出
36	東 中央	10/25	飲食店	7	4	不明	下痢, 頭痛, 腹痛	10/21に当該施設 で提供された食事	有症者便 (4/4) 従業員便 (0/2) ふきとり (0/4) 参考品 (2/2)	カンピロバク タージェジュ ニ/コリ	
37	南	10/28	飲食店	5	5	不明	下痢, 腹痛, 発熱	10/19に当該施設 で提供された食事	有症者便 (3/7) 従業員便 (0/3) ふきとり (3/4) 参考品 (3/3)	カンピロバク タージェジュ ニ/コリ	
38	中央	10/31	飲食店	不明	不明	不明	不明	不明	参考品 (0/13)	不明	参考品1検体よりカン ピロバクターコリを検 出
39	東	11/7	飲食店	不明	7	不明	下痢, 腹痛, 嘔吐, 吐気	不明	ウイルス有症者便(5/6)	ノロウイルス (G II. 6)	福岡県より依頼
40	中央 南	11/7	飲食店(仕 出し)	6	6	不明	嘔吐, 腹痛, 下痢	11/6に当該施設 で調理された弁当	有症者便 (5/10) 従業員便 (2/5) 吐物 (1/1) ふきとり (2/12)	ぶどう球菌	
41	中央 東 南 早良	11/9	その他	不明	不明	不明	下痢	不明	有症者便 (0/15) 菌株 (0/1)	不明	有症者1名よりカンピ ロバクタージェジュ ニ, 病原大腸菌, 菌株よ り腸炎ビブリオを検出
42	中央	11/18	飲食店	4	3	不明	下痢, 発熱	不明	従業員便 (0/2) ふきとり (0/4) 参考品 (0/1)	不明	福岡県より依頼 参考品1検体よりカン ピロバクタージェジュ ニを検出
43	東	11/18	飲食店(披 露宴会場)	不明	不明	不明	不明	不明	有症者便 (0/1) ウイルス有症者便(0/1)	不明	東京都より依頼
44	東	12/3	飲食店	4	4	不明	下痢, 嘔吐, 吐気	不明	有症者便 (0/4) ウイルス有症者便(0/2)	不明	
45	早良	12/19	飲食店	6	6	不明	吐気, 嘔吐, 下痢, 腹痛	不明	有症者便 (0/6) 従業員便 (0/2) ふきとり (0/3) ウイルス有症者便(5/6) ウイルスふきとり(1/2)	ノロウイルス (G II. 2)	
46	早良 城南	12/21	飲食店	64	15	18~56 時間	吐気, 嘔吐, 発熱, 頭痛	12/18に当該施設 で提供された食事	有症者便 (0/6) 従業員便 (0/5) ふきとり (0/4) ウイルス有症者便(5/5) ウイルス従業員便(2/5) ウイルスふきとり(1/2)	ノロウイルス (G II. 4)	

47	東	1/6	飲食店	6	5	不明	吐気, 下痢, 発熱	不明	有症者便 (0/4) 従業員便 (0/7) ふきとり (0/6) ウイルス有症者便(4/4) ウイルス従業員便(1/7) ウイルスふきとり(2/8)	ノロウイルス (GⅡ.2)	
48	西	1/11	飲食店	60	48	不明	嘔吐, 吐気, 下痢, 腹痛	不明	有症者便 (0/1)	不明	福岡県より依頼
49	中央	1/12	飲食店	5	3	不明	不明	1/8 に当該施設で 提供された食事	従業員便 (0/6) ふきとり (0/4) ウイルス有症者便(2/6) ウイルスふきとり(0/2)	ノロウイルス (GⅡ.2)	
50	東	1/20	飲食店	不明	不明	不明	不明	不明	有症者便 (0/3) ウイルス有症者便(3/3)	ノロウイルス (GⅡ.2)	福岡県より依頼
51	中央	1/21	飲食店	3	3	不明	嘔吐, 下痢	不明	有症者便 (0/1) 従業員便 (0/3) ふきとり (0/4) 参考品 (0/1) 菌株 (0/1)	不明	
52	東	2/9	飲食店	4	4	不明	頭痛, 下痢, 発熱	不明	有症者便 (0/4) 従業員便 (0/2) ふきとり (0/5) ウイルス従業員便(0/2)	不明	有症者1名よりカンピ ロバクタージェジュニ を検出
53	東 中央	2/28	旅館	43	32	5~30 時間	下痢, 腹痛	2/26 に当該施設 で提供された鶏の 治部煮	有症者便 (1/8)	ウェルシュ菌	山口県より依頼
54	博多 東	3/24	飲食店	5	5	不明	嘔吐, 下痢	不明	有症者便 (0/1) 従業員便 (0/2) ふきとり (0/3) 参考品 (0/1)	不明	

2 平成28年度 無症苦情 検査結果

No.	保健所	受付日	苦情品	状況	結果
1	早良	6/10	白トリュフ	中身の空洞部分にカビ様異物がある。	苦情品緑変部を直接鏡検したところ、菌糸及び胞子様のカビに特徴的な構造を認めた。 鏡検による形態学的特徴から、Aspergillus 属 様のカビと推察された。
2	西	9/27	カット白菜キムチ	キムチを喫食し、5回ほど体調不良(腹痛)となった。	サルモネラ 陰性 黄色ブドウ球菌 陰性 腸炎ビブリオ 陰性 病原大腸菌 陰性 ウェルシュ菌 陰性 セレウス菌 陰性 エルシニア 陰性 カンピロバクター 陰性 ビブリオフォルビアリス 陰性 ナグビブリオ 陰性 大腸菌群 陰性

平成 28 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

当所では平成 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。

平成 28 年度、病原体定点より採取された検体は、184

名、298 検体で、平成 27 年度（184 名、293 検体）とほぼ同等の数であった。患者数は例年通りインフルエンザが最も多かったが、検体数では無菌性髄膜炎が最も多かった。

表 1 平成 28 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	54	61	35	咽頭ぬぐい液 気管吸引液 血液 髄液 尿 糞便	インフルエンザ A/H1pdm (4), インフルエンザ A/H3型(22), インフルエンザ B型(8) インフルエンザ A/H3型(1)
RSウイルス感染症	6	7	0	咽頭ぬぐい液 気管吸引液 糞便	
咽頭結膜熱	3	3	3	咽頭ぬぐい液	アデノ2型(1), エコー9型(1), コクサッキー B5型(1)
感染性胃腸炎	21	29	10	咽頭ぬぐい液 髄液 糞便	アデノ2型(1), エコー9型(1) A群ロタウイルス(2), アデノ1型(2), アデノ41型(1), サポウイルス(1), エコー9型(1), コクサッキー A6型(1), ノロウイルス G II .2(2)
水痘	1	2	0	咽頭ぬぐい液 糞便	
手足口病	29	48	13	咽頭ぬぐい液 髄液 糞便	アデノ2型(1), エコー30型(1), エコー9型(1), コクサッキー A16型(4), コクサッキー B5型(1) エコー30型(1) アデノ31型(1), エコー30型(1), コクサッキー A6型(1), コクサッキー B5型(1)
突発性発しん	4	8	2	咽頭ぬぐい液 髄液 糞便	アデノ1型(1) エコー9型(1)
ヘルパンギーナ	17	27	14	咽頭ぬぐい液 髄液 糞便	アデノ2型(1), コクサッキー A4型(3), コクサッキー B1型(1), コクサッキー B5型(3) コクサッキー B1型(1) コクサッキー A5型(1), コクサッキー B1型(1), コクサッキー B5型(3)
流行性耳下腺炎	2	3	0	咽頭ぬぐい液 糞便	
無菌性髄膜炎	33	86	22	咽頭ぬぐい液 気管吸引液 血液 髄液 尿 鼻腔ぬぐい液 糞便	エコー30型(1), エコー9型(1), コクサッキー B5型(5) エコー30型(1), コクサッキー B5型(6) アデノ31型(1), エコー30型(1), エコー9型(1), コクサッキー B5型(5)
流行性角結膜炎	9	9	3	結膜ぬぐい液	アデノ56型(2), 単純ヘルペスウイルス(1)
その他	5	15	3	咽頭ぬぐい液 血液 髄液 尿 糞便	アデノ2型(1) アデノ1型(1), アデノ2型(1)
計	184	298	105		

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, Polymerase Chain Reaction

（PCR）等で行った。その結果、107株のウイルスを検出した。2種類のウイルスが検出された検体が2検体あり、検出率は35.2%であった。

表2 平成28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												2						2
アデノ1型		1								1			2	4			3	3		
アデノ2型					1	1	2				1	1		6	1	3	5	6		
アデノ31型					1	1								2		2	1	2		
アデノ41型						1								1		1				
アデノ56型											1		1	2		2	2	2		
インフルエンザウイルスA/H1pdm	2												2	4						4
インフルエンザウイルスA/H3型								2	1	3	3	7	4	3	23	0	0	0	2	21
インフルエンザウイルスB型	1												1	2	3	1	8	0	0	8
エコー9型					2					3		2		7	4	6	2	7	0	
エコー30型										6				6	4	0	6	4	0	
コクサッキーA4型				3										3				3		
コクサッキーA5型								1						1	1					
コクサッキーA6型										2				2				2		
コクサッキーA16型							3	1						4	0	4	0	1	0	
コクサッキーB1型									2			1		3		2	3	3		
コクサッキーB5型	1	10		12	2									25	0	19	25	21	0	
サポウイルス						1								1						1
ノロウイルスG II.2													2	2						2
単純ヘルペスウイルス													1	1	1	1	1	1		
計	5	12	3	16	9	8	12	4	13	12	9	4	107	11	40	48	57	33	5	

※ 細胞名の略称 R: RD-18S, V: VeroE6, H: HEp-2, C: Caco-2, M: MDCK

平成 28 年度 感染症（三類）発生状況

保健科学課 感染症担当

1 細菌性赤痢

平成28年度は4事例の発生がみられた。

事例番号	発症日	年齢	性別	血清型	備考
1	2016/3/16	45	F	<i>S. sonnei</i>	ウガンダへ旅行
2	2016/5/17	25	F	<i>S. sonnei</i>	ベトナムへ旅行
3-1	2017/1/29	2	F	<i>S. flexneri</i>	国内発生
-2	健康保菌者	36	M	<i>S. flexneri</i>	3-1 の父
-3	健康保菌者	66	M	<i>S. flexneri</i>	3-1 の祖父
4	2017/1/22	25	F	<i>S. sonnei</i>	フィリピンへ旅行

2 腸管出血性大腸菌

平成 28 年度は 45 事例 64 名の感染者が発生した。腸管出血性大腸菌の月別感染者数を図 1 に、発生状況を表 1 に示した。血清型は、O157(35 名, 54.7%), O26 (8 名, 12.5%), O91 (4 名, 6.3%), O121 (4 名, 6.3%) O76 (2 名, 3.1%) O103 (2 名, 3.1%) O2, O5, O21, O80, O111, O125, O145, O179, O183 はそれぞれ 1 名であった。今年度は、O157 による集団発生が 2 事例みられた。また昨年度と比較して事例数ではほぼかわらないが、散発事例の多さから感染者数は若干増加している。また健康保菌者は 26 名 (40.6%) であり昨年度より増加している。

1)

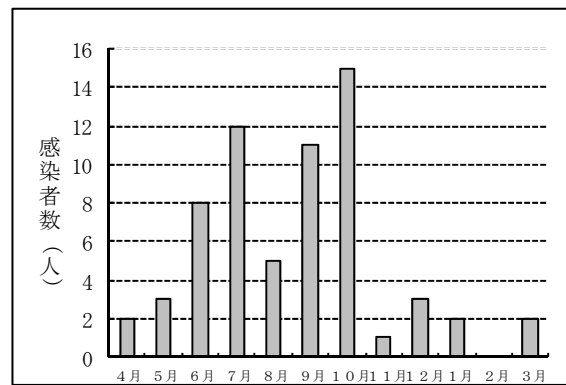


図 1 平成 28 年度における腸管出血性大腸菌の月別感染者数

表 1 腸管出血性大腸菌感染症の発生状況

事例	発症日	年齢	性別	保健所	血清型	毒素型	備考
1	2016/3/17	18	M	西	O157:H-	VT1&2	
2	2016/3/29	31	M	城南	O103:H2	VT1	
3	2016/5/3	5	F	博多	O157:H-	VT1&2	家族内 焼肉喫食
4	健康保菌者	51	F	西	O26:H11	VT1	小学校調理員定期検便
5	2016/5/19	29	M	東	O157:H7	VT1&2	入院事例
6-1	2016/5/30	5	M	中央	O26:H11	VT1&2	家族内
6-2	健康保菌者	12	M	中央	O26:H11	VT1&2	家族内 20160603 の兄
6-3	健康保菌者	38	F	中央	O26:H11	VT1&2	家族内 20160603 の母
6-4	健康保菌者	42	M	中央	O26:H11	VT1&2	家族内 20160603 の父

7	2016/5/27	9	F	城南	0157:H7	VT1&2	焼肉喫食
8	健康保菌者	37	F	博多	OUT:HUT	VT2	保育士定期検便
9	不明	46	F	早良	026:H11	VT1	大腸生検組織から検出
10	2016/6/24	15	F	西	0157:H-	VT1&2	検査センターでは VT 1
11	2016/6/29	6	M	東	0157:H7	VT1&2	焼肉喫食
12	2016/6/28	4	F	西	0111:H-	VT1	幼稚園園児
13	健康保菌者	78	M	早良	0103:H2	VT1	
14	健康保菌者	64	F	城南	0125:H34	VT2	保育士定期検便 焼肉喫食
15	2016/7/13	12	F	東	0157:H-	VT1&2	焼肉喫食
16-1	2016/6/22	8	F	城南	0157:H-	VT1&2	集団 学童保育施設 初発
16-2	健康保菌者	6	M	中央	0157:H-	VT1&2	集団 同じ学童保育施設
16-3	健康保菌者	6	F	中央	0157:H-	VT1&2	集団 同じ学童保育施設
16-4	健康保菌者	10	F	中央	0157:H-	VT1&2	集団 同じ学童保育施設
16-5	健康保菌者	8	F	中央	0157:H-	VT1&2	集団 同じ学童保育施設
17	健康保菌者	24	F	東	OUT:HNT	VT1	小学校職員定期検便 もつ鍋喫食
18	健康保菌者	49	F	中央	0157:H7	VT1&2	職員定期検便
19	2016/7/17	25	F	南	026:H11	VT1	バーベキュー喫食
20-1	2016/7/28	33	F	東	0157:H7	VT1&2	検査センターでは VT2
20-2	2016/7/28	33	F	東	0157:H7	VT2	東京にて焼肉弁当喫食
21	健康保菌者	39	F	東	091:HUT	VT1	保育士定期検便
22	2016/8/20	25	F	早良	0157:H7	VT1&2	横浜市在住
23	2016/8/9	82	F	早良	0157:H7	VT1&2	焼肉喫食
24	健康保菌者	56	F	城南	091:H-	VT1	従業員定期検便
25-1	健康保菌者	26	M	南	OUT:H19	VT1	家族内 従業員定期検便
25-2	健康保菌者	26	F	南	OUT:H19	VT1	家族内 従業員定期検便
26	2016/8/20	25	M	早良	0157:H7	VT1&2	ローストビーフ, 焼肉喫食
27-1	2016/9/7	8	F	西	0157:H7	VT2	家族内 初発 ハワイ旅行
27-2	2016/9/8	45	F	西	0157:H7	VT2	家族内 20160907 の母
27-3	2016/9/7	12	F	西	0157:H7	VT2	家族内 20160907 の姉
27-4	健康保菌者	47	M	西	0157:H7	VT2	家族内 20160907 の父
28-1	2016/9/10	17	F	早良	0157:H7	VT2	家族内 初発
28-2	健康保菌者	21	M	早良	0157:H7	VT2	家族内 20160911 の兄
29-1	健康保菌者	6	F	早良	0121:H19	VT2	家族内 20161002 の娘
29-2	2016/9/24	42	M	早良	0121:H19	VT2	家族内 初発

30	2016/9/11	10	F	南	0157:H7	VT1&2	検査センターで VT1 のみ検出
31	2016/9/12	19	F	博多	0157:H7	VT1&2	焼肉喫食
32-1	2016/10/2	4	M	東	0121:H19	VT2	家族内 初発 HUS 発症
32-2	健康保菌者	9	M	中央	0121:H19	VT2	家族内 20161005 の兄
33	2016/10/5	24	F	南	0157:H-	VT1&2	ソウル旅行
34	健康保菌者	21	F	西	091:HUT	VT1	飲食店定期検便
35	健康保菌者	44	F	西	OUT:H27	VT2	職員定期検便
36	2016/10/22	7	M	博多	OUT:H-	VT1	
37-1	2016/10/21	5	F	早良	0157:H7	VT2	集団 初発 保育園
37-2	健康保菌者	32	F	早良	0157:H7	VT2	集団 保育園 保育士
37-3	2016/10/21	1	F	早良	0157:H7	VT2	集団 保育園 初発の妹(双生児)
37-4	2016/10/21	1	F	早良	0157:H7	VT2	集団 保育園 初発の妹(双生児)
37-5	2016/10/25	1	F	早良	0157:H7	VT2	集団 保育園 妹と同じ組)
38	2016/11/15	8	M	東	0157:H-	VT1&2	医師会では VT1 のみ検出入院事例
39	2016/11/28	24	M	西	0157:H7	VT1&2	入院事例
40	健康保菌者	42	F	中央	OUT:H	VT2	小学校給食調理員 従業員定期検便
41	健康保菌者	51	F	中央	OUT:H-	VT1&2	保育士定期検便
42	2016/12/31	63	F	博多	0145:H-	VT2	レアステーキ喫食
43	2017/1/12	15	M	早良	0157:H-	VT1&2	検査センターでは VT1 のみ検出
44	2017/3/6	46	M	博多	091:H-	VT1	焼肉喫食
45	2017/3/8	18	M	中央	026:H	VT1	

3 パラチフス

平成 28 年度は、福岡市において 8 年ぶりに 3 事例発生した。

(1 事例は菌株が確保できなかった。)

事例番号	発症日	年齢	性別	血清型	備考
1	2016/4/20	25	F	<i>S.paratyphiA</i>	インドへ旅行
2	2016/4/30	18	M	<i>S.paratyphiA</i>	バングラデシュへ旅行

謝辞

喫食調査、患者情報の提供及び菌株の収集をしていただきました各保健福祉センターの皆様には感謝いたします。

文献

- 1) 保健科学課 感染症担当：平成27年度感染症（三類）発生状況，福岡市保健環境研究所報，41，135～137，2016

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

牟田朱美・浜崎志帆・宮崎悦子

福岡市保健環境研究所保健科学課

Long-term stability of standard mixture of sorbic acid , benzoic acid and dehydroacetic acid

Akemi MUTA , Shiho HAMASAKI and Etsuko MIYAZAKI

Health Science Division, Fukuoka City Institute for Hygiene and the Environment

要約

検査の信頼性確保を目的として、保存料（ソルビン酸（SOA）、安息香酸（BA）、デヒドロ酢酸（DHA））の一斉分析に使用する混合標準溶液の長期安定性について調査した。各標準原液を分取しエタノールで 1,000 μ g/mL に調製後 4 $^{\circ}$ C で 184 日間保存し、経時変化を記録した。その結果、SOA、BA、DHA の濃度はいずれも調製時と比較して $\pm 5\%$ を超える大幅な変化はなく、4 $^{\circ}$ C における 180 日間の保存は問題がないことを確認した。また、調製溶媒を水に変更した混合水溶液についても同様に保存試験を行った結果、SOA は 30 日経過後で調製時の 77%、90 日経過後で 30%、180 日経過後で 16%と経時的な減衰が認められ、DHA は 180 日経過後で調製時の 94%に減少し、溶媒の違いによる標準物質の安定性の差異が明らかとなった。

Key Words : ソルビン酸 sorbic acid, 安息香酸 benzoic acid, デヒドロ酢酸 dehydroacetic acid, 長期安定性 long-term stability, 高速液体クロマトグラフ HPLC

1 はじめに

保存料は、食品の保存性を高めることを目的として、使用が認められた多くの食品に使用されている。

当研究所では、食品の収去検査において、HPLC 法による保存料（ソルビン酸（SOA）、安息香酸（BA）、デヒドロ酢酸（DHA））の一斉分析を行っている。検査には、SOA、BA、DHA 各標準原液を分取し、エタノールで調製した 3 種混合標準溶液を用いており、この使用期限は経験的に調製日から 180 日間と規定していた。HPLC 測定の際、使用時点検として前回の検量線作成用標準溶液のピーク面積と比較して変化の割合が $\pm 5\%$ の規定範囲内であることを毎回確認しているものの、長期保存による成分の挙動を検証したデータはなかった。

当研究所が行う食品添加物の検査の中で、保存料は依頼数及び検出事例も多く、違反事例もあることから、今回、検査の信頼性確保を目的として、3 種混合標準溶液について、4 $^{\circ}$ C における 184 日間の保存試験を実施した。また、調製に用いる溶媒を、3 種混合標準溶液を元に検量線を作成する時の希釈溶媒である水とした 3 種混合水溶液についても同様に保存試験を行い、溶媒の違いによ

る長期保存性の差異について調査した。

2 実験方法

2.1 試料

保存試験用 3 種混合標準溶液（以下、標準溶液 A と略す）：褐色メスフラスコ（50mL 容）に SOA、BA、DHA 各標準原液を混合し、エタノールで 1,000 μ g/mL に調製した。

3 種混合水溶液（以下、標準溶液 B と略す）：褐色メスフラスコ（50mL 容）に各標準原液を混合し、水で 1,000 μ g/mL に調製した。

いずれも 4 $^{\circ}$ C で 184 日間保存した。

2.2 試薬等

標準品：SOA は関東化学（株）製鹿特級、BA は和光純薬工業（株）製試薬特級、DHA は東京化成工業（株）製東京化成 1 級を使用した。

標準原液：各標準品 1,000mg を精秤し、エタノールで 10,000 μ g/mL に調製した。

3種混合標準溶液:各標準原液を混合し1,000 $\mu\text{g}/\text{mL}$ となるようエタノールで希釈した。

検量線作成用混合標準溶液:3種混合標準溶液を0.1, 0.2, 0.5, 1, 2, 5, 10 $\mu\text{g}/\text{mL}$ となるよう水で希釈した。

エタノール:和光純薬工業(株)製試薬特級を使用した。

アセトニトリル:和光純薬工業(株)製高速液体クロマトグラフ用を使用した。

2.3 装置及び測定条件

高速液体クロマトグラフ(HPLC)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:CTO-20AC,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。LC条件は表1に示した¹⁾。

表1 LC条件

分析カラム	Inertsil Ph 2.1 \times 150mm, 5 μm (GLサイエンス社製)
カラム温度	25 $^{\circ}\text{C}$
移動相	A液:B液=9:1 A液:2mmol/Lリン酸緩衝液(pH3.0) B液:アセトニトリル
流量	0.2mL/min
注入量	4 μL
測定波長	230nm

2.4 分析方法

標準溶液A及び標準溶液Bを測定時に室温に戻し,10 $\mu\text{g}/\text{mL}$ となるよう水で希釈した試験溶液をHPLCに注入し,得られたクロマトグラムのピーク面積から絶対検量線法により各保存料の濃度を求めた。また,検量線の範囲外のものについては外挿して濃度を求めた。今回の試験では,検量線作成用混合標準溶液及び各保存料それぞれの希釈操作による誤差を考慮し,調製時の濃度 $\pm 5\%$ の変動を許容範囲とした。

測定時には,各標準原液から毎回新たに調製した検量線作成用混合標準溶液を同様に測定し,直線性($r^2 \geq 0.99$)及び前回の検量線作成用混合標準溶液とのピーク面積比が $\pm 5\%$ の範囲内であることを確認した。

3 実験結果及び考察

標準溶液Aを調製し,4 $^{\circ}\text{C}$ における184日間の保存試験を行った。各保存料の濃度推移を表2に示した。180日経過後の各保存料の濃度は,SOAが10.07 $\mu\text{g}/\text{mL}$,BA

が10.01 $\mu\text{g}/\text{mL}$,DHAが9.88 $\mu\text{g}/\text{mL}$ であった。また,調製時の濃度を100%とした時の184日間の濃度変化は,SOAが99~104%,BAが99~103%,DHAが98~102%であり,いずれも $\pm 5\%$ の範囲内の変動であった。このことから,一斉分析に使用する3種混合標準溶液の信頼性が確認された。

一方,溶媒を水とした標準溶液Bの保存試験では,180日経過後の各保存料の濃度は,SOAが1.58 $\mu\text{g}/\text{mL}$,BAが10.16 $\mu\text{g}/\text{mL}$,DHAが9.34 $\mu\text{g}/\text{mL}$ であった。また,調製時の濃度を100%とした時の濃度変化としては,SOAは30日経過後が77%,90日経過後が30%,180日経過後が16%と経時的な減衰が認められた(図2)。BAの184日間の濃度変化は97~101%であり, $\pm 5\%$ の範囲内の変動であった。DHAの濃度変化は,15日経過後が96%であり,その後は180日経過後まで92~97%を維持しており,約5%の減少が認められた。このことより,溶媒の違いによる標準溶液の長期安定性の差異が明らかとなった。

また,HPLC法による測定では,標準溶液Aは,調製時のクロマトグラムと比較して,180日経過後のクロマトグラムに変化は認められなかった(図3,図4)。一方,標準溶液Bの180日経過後のクロマトグラム上には,保持時間3分,5分及び7.5分付近に,調製時のクロマトグラムには認められないSOAの分解物と考えられる未知ピークが確認された。

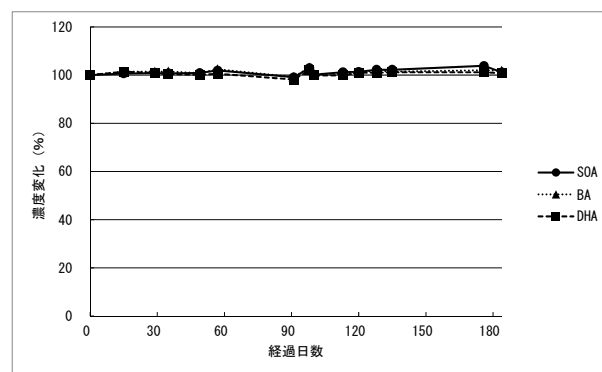


図1 標準溶液Aの濃度変化

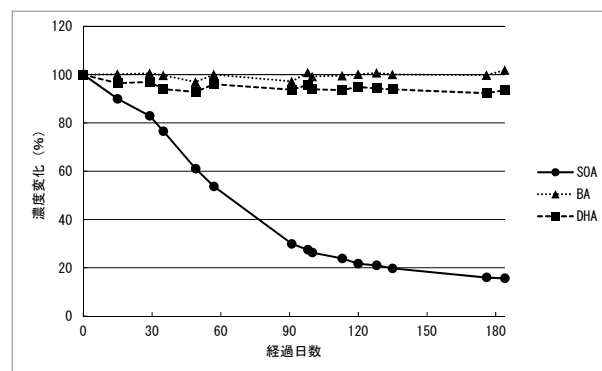


図2 標準溶液Bの濃度変化

表2 各保存料の濃度推移 単位 (µg/mL)

経過日数	標準溶液A			標準溶液B		
	SOA	BA	DHA	SOA	BA	DHA
0	9.96	9.82	9.80	10.10	9.97	9.98
15	10.02	9.97	9.94	9.08	9.99	9.63
29	10.04	9.97	9.89	8.37	10.03	9.68
35	10.03	9.97	9.85	7.73	9.94	9.38
49	10.05	9.91	9.82	6.17	9.66	9.27
57	10.15	10.06	9.86	5.42	9.97	9.58
91	9.87	9.75	9.62	3.02	9.69	9.36
98	10.25	10.14	10.01	2.78	10.06	9.55
100	9.97	9.87	9.79	2.66	9.90	9.37
113	10.08	9.88	9.80	2.41	9.93	9.34
120	10.10	9.93	9.90	2.19	9.98	9.47
128	10.18	10.02	9.90	2.12	10.04	9.41
135	10.18	9.97	9.92	1.99	9.98	9.37
176	10.34	10.02	9.92	1.61	9.95	9.21
184	10.07	10.01	9.88	1.58	10.16	9.34

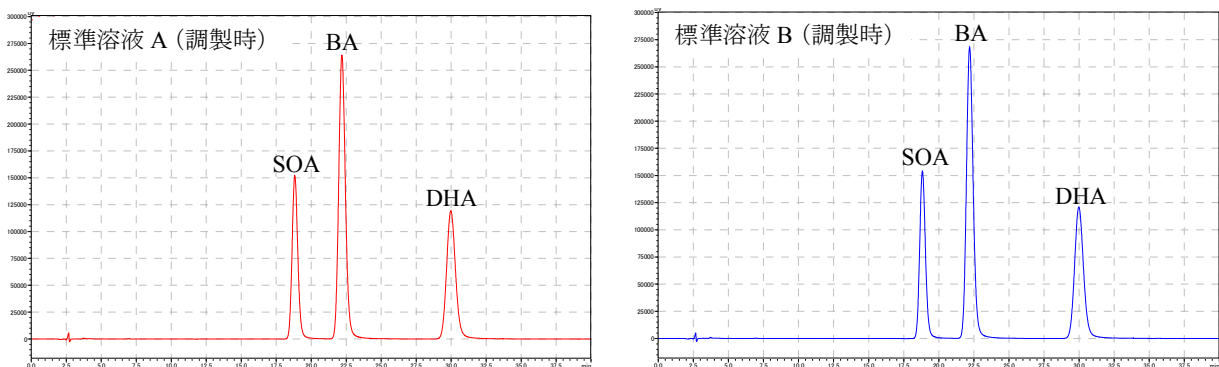


図3 左；標準溶液 A, 右；標準溶液 B (いずれも調製時) のクロマトグラム

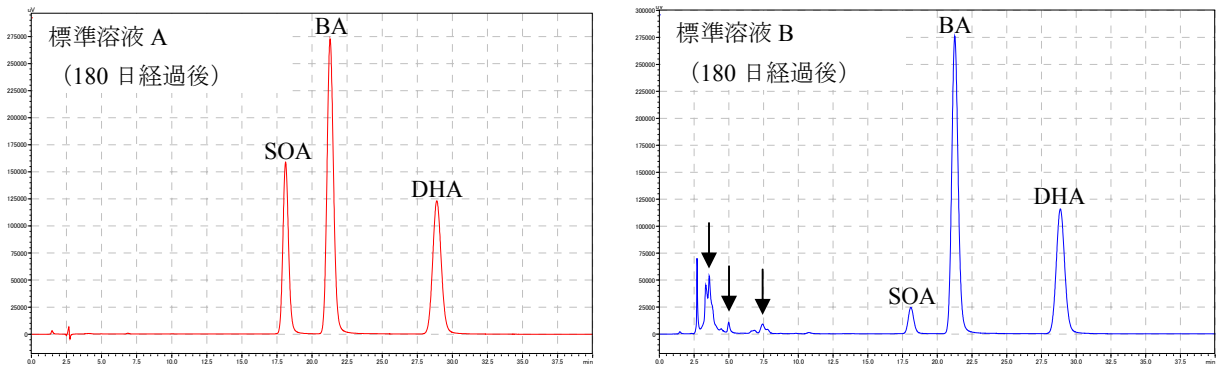


図4 左；標準溶液 A, 右；標準溶液 B (いずれも 180 日経過後) のクロマトグラム

4 まとめ

検査の信頼性確保を目的として、保存料 (SOA, BA, DHA) の 3 種混合標準溶液の長期安定性を調べるため、4°C における 184 日間の保存試験を実施した。その結果、SOA, BA, DHA の濃度は、調製時と濃度と比較していずれも ±5% の範囲内であったことから、検査で用いる 3 種混合標準溶液の 4°C における 180 日間の保存は問題がないことを確認した。また、調製に用いる溶媒を水に変更した 3 種混合水溶液について同様に保存試験を実施したところ、SOA の経時的な減衰及び DHA の 5% 程度の減

少が認められ、180 日経過後の HPLC クロマトグラム上には SOA の分解物と考えられる未知ピークが確認された。標準溶液の安定性は調製に用いる溶媒によって異なるため、溶媒を選択、変更する際には、溶解性だけでなく安定性の確認も行うことが重要である。

文献

- 1) 厚生労働省監修 日本食品衛生協会：食品衛生検査指針 食品添加物編 2003

平成 28 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 (≧)							単位 (g/kg)						
						1.5	1.3	0.9	0.8	0.6	0.5	0.3	0.2	0.1	0.03				
保存料	ソルビン酸	魚肉ねり製品	22	14	63.6														
		果実酒	14	3	21.4														
		加熱食肉製品	8	2	25.0				1										
		こうじ漬	2	2	100.0														
		塩漬	8	2	25.0						2								
		そうざい	10	1	10.0														
		みそ	5	1	20.0														
		酢漬	2	1	50.0														
		たくあん漬	1	1	100.0														
		しょう油漬	1	1	100.0														
		その他	110	0	0.0														
		計	183	28	15.3			1	7	1	8	2	2	1	5	1			
								1	0.8	0.7	0.6	0.5	0.4	0.3	0.2	0.1	0.03		単位 (g/kg)
		安息香酸	しょう油		7	1	14.3												
その他			138	0	0.0														
計			145	1	0.7														
																	単位 (g/kg)		
パラオキシ安息香酸エステル類	しょう油		7	4	57.1														
	その他		4	0	0.0														
	計		11	4	36.4														
																		単位 (g/kg またはg/L)	
甘味料	サッカリンナトリウム	魚肉ねり製品	18	4	22.2														
		しょう油	7	4	57.1														
		その他の魚介類加工品	3	1	33.3														
		たくあん漬	1	1	100.0														
		その他	135	0	0.0														
		計	164	10	6.1														
								1	0.9	0.6	0.3	0.2	0.1	0.08	0.06	0.04	0.02		
																			単位 (g/kg)
アセスルファミンカリウム	たくあん漬		1	1	100.0														
	その他		158	0	0.0														
	計		159	1	0.6														
																		単位 (g/kg)	
漂白剤	二酸化硫黄	コンニャク粉	3	3	100.0														
		その他の乾燥果実	3	2	66.6														
		えび	4	1	25.0														
		あん類	3	1	33.3														
		その他の野菜加工品	4	1	25.0														
		その他	7	0	0.0														
		計	24	8	33.3														
																			単位 (g/kg)

乳に含まれるアフラトキシン M1 の試験法の検討

宮地夏海・常松順子

福岡市保健環境研究所保健科学課

Study on the Analytical Method of Aflatoxin M1 in Milk

Natsumi MIYACHI and Junko TSUNEMATSU

Health Science Section, Fukuoka City Institute of Health and Environment

要約

平成 27 年 7 月 23 日, 厚生労働省からの通知により, アフラトキシン M1 は乳に対して 0.5 μ g/kg の規制値が設定され, 同時に, 乳に含まれるアフラトキシン M1 の試験法が通知された. 本市においても, これに対応するため, 2 種類の分析機器を用いて 0.05 μ g/kg 及び 0.5 μ g/kg となるように標準溶液を添加した試料を用いて添加回収試験を行った. 高速液体クロマトグラフ・蛍光検出器での回収率は 81.2~100.6%, 高速液体クロマトグラフ・タンデム型質量分析計での回収率は 78.8~99.5% であり良好な結果であった.

Key Words : アフラトキシン M1 aflatoxin M1, 乳 milk, 高速液体クロマトグラフ・蛍光検出器, HPLC-FLD, 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

平成 27 年 7 月 23 日, 厚生労働省からの通知¹⁾により, アフラトキシン M1 は乳に対して 0.5 μ g/kg の規制値が設定された. 同時に, 乳に含まれるアフラトキシン M1 の試験法が通知された²⁾. 本市においても, これに対応するため, 高速液体クロマトグラフ・蛍光検出器 (HPLC-FLD) 及び高速液体クロマトグラフ・タンデム型質量分析計 (LC-MS/MS) を用いて測定条件の検討を行ったので報告する.

2 実験方法

2.1 試料

市内に流通する市販牛乳を試料とした.

2.2 試薬等

標準原液 : 和光純薬工業(株)製 Aflatoxin M1 Standard Solution (0.5 μ g/mL アセトニトリル溶液)

標準溶液: 標準原液をアセトニトリルで適宜希釈した, それぞれ 1mL を採り, 溶媒を除去した. その残留物にアセトニトリル及び水 (1 : 4) 混液 1mL を加えて混合した

ものを標準溶液とした.

生理的リン酸緩衝液 (PBS) : Sigma-Aldrich 社製 Phosphate Buffered Saline Tablet 1 錠を 200mL の水で溶解し用いた.

イムノアフィニティカラム : 日本ハム(株)製 MycoCatch トータルアフラトキシンを使用した. カラム内の溶液を全部流出させた後, カラム内に PBS を満たし, 全量を流出させ, カラムのコンディショニングを行った. その後, さらに PBS を満たし, カラム容量の約半分量まで PBS を流出させて使用した.

ろ紙 : アドバンテック東洋(株)製 GA-100

アセトニトリル : 高速液体クロマトグラフ用及び LC/MS 用を使用した.

その他試薬類 : 高速液体クロマトグラフ用を使用した.

2.3 装置

2.3.1 HPLC-FLD

液体クロマトグラフ : Agilent社製 1290シリーズ

蛍光検出器 : Agilent社製 1290

2.3.2 LC-MS/MS

液体クロマトグラフ : 島津製作所製 NexeraXR

質量分析計 : ABSCIEX社製 TQ6500

2.4 試験溶液の調製

2.4.1 試料の調製

乳を37℃に加熱し、ガラス繊維ろ紙でろ過したものを試料とした。

2.4.2 精製及び試験溶液の調製

精製及び試験溶液の調製法を図1に示した。

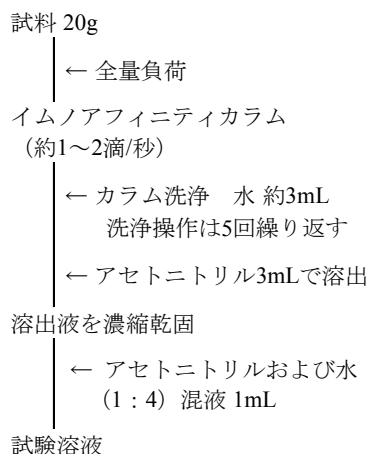


図1 精製及び試験溶液調製法

標準溶液 (1 μ g/L) のシグナルノイズ比 (S/N 比) は 8.3 であったため、より検出感度を上げるために、カラムの内径及び粒径、移動相の流速を表2に示した条件に変更して標準溶液を測定した。標準溶液 (1 μ g/L) のクロマトグラムを図2に示した。

表2：HPLC-FLD の測定条件2

分析カラム：	ジーエルサイエンス(株)製 Inertsil ODS-3
	2.1mm×100mm, 3 μ m
移動相：	A液：水, B液：アセトニトリル
	A液：B液=3：1 (アイソクラティック)
流速：	0.2mL/min
カラム温度：	40℃
注入量：	20 μ L
波長：	励起波長 (Ex) 365nm
	蛍光波長 (Em) 435nm

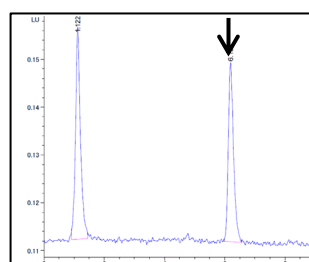


図2 標準溶液 (1 μ g/L) のクロマトグラム
(使用カラム：2.1mm×100mm, 3 μ m)

3 結果及び考察

3.1 測定条件の検討及び設定

3.1.1 HPLC-FLD の測定条件の検討

はじめに、測定条件例として示された仕様のカラムを使い標準溶液を測定した。測定条件を表1に示した。

表1：HPLC-FLD の測定条件1

分析カラム：	ジーエルサイエンス(株)製 Inertsil ODS-3
	4.6mm×150mm, 5 μ m
移動相：	A液：水, B液：アセトニトリル
	A液：B液=3：1 (アイソクラティック)
流速：	1.0mL/min
カラム温度：	40℃
注入量：	20 μ L
波長：	励起波長 (Ex) 365nm
	蛍光波長 (Em) 435nm

通知で示された定量限界値である 0.05 μ g/kg に対応する標準溶液 (1 μ g/L) のクロマトグラムを図1に示した。

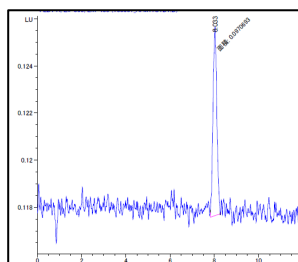


図1 標準溶液 (1 μ g/L) のクロマトグラム
(使用カラム：4.6mm×150mm, 5 μ m)

条件を変更して測定した標準溶液 (1 μ g/L) の S/N 比は 24.6 となり、測定条件変更前と比較して良好な感度が得られたことから、表2の測定条件を採用することとした。

3.1.2 LC-MS/MS の測定条件の設定

LC 部の測定条件を表3に示した。分析カラムは HPLC-FLD と同じカラムを使用し、その他の条件は通知の測定条件例のとおり設定した。

表3：LC 部の測定条件

分析カラム：	ジーエルサイエンス(株)製 Inertsil ODS-3		
	2.1mm×100mm, 3 μ m		
移動相：	A液：10mmol/L酢酸アンモニウム溶液		
	B液：アセトニトリル		
グラジエント条件：			
時間 (min)	A液 (%)	B液 (%)	流速 (mL/min)
0	70	30	0.20
8	20	80	0.20
9	20	80	0.20
9.1	70	30	0.20
15.0	70	30	0.20
カラム温度：	40℃		
注入量：	10 μ L		

次に、標準溶液をインフュージョン法により直接 MS 部に導入し、イオン化条件を検討した。通知で示されたプロダクトイオンの他、 m/z 115 が感度良く観測されたため確認用として追加した。MS 条件を最適化した結果を表4に示した。

表4 質量分析計の測定条件

イオン化	ESI(+)		
イオンスプレー電圧(V)	4500		
イオンソース温度(°C)	600		
Declustering Potential	76		
Entrance Potential	10		
Q1	Q3	CE	CXP
(m/z)	(m/z)	(V)	(V)
329	273	33	8
329	229	55	14
329	115	89	6

CE : collision energy

CXP : collision cell exit potential

3.2 添加回収試験

0.05µg/kg, 0.5µg/kgとなるよう試料に標準溶液を添加し, 添加回収試験を実施した。

3.2.1 ブランク試料の確認

定量を妨害するピークがないことを確認するため, 試料を図1に示した調製法で処理し, HPLC-FLD及びLC-MS/MSで測定した。図3にHPLC-FLDでの試料のクロマトグラムを, 図4にLC-MS/MSでの試料のクロマトグラムを示した。

HPLC-FLDではピークは検出されなかったが, LC-MS/MSでは定量及び確認イオンともにピークが検出され, 標準溶液とイオン比が一致していた。通知で示された定量限界値である0.05µg/kgに対応する標準溶液(1 µg/L)から得られるピーク面積と比較して, 40分の1の非常に小さなピークであったため, 本試料を添加回収試験に用いることとした。

なお, 平成13年度に, 国内の牛乳208検体を対象としたアフラトキシンM1の汚染実態調査を厚生労働省が実施している³⁾。その結果, 1検体を除く全ての検体から濃度範囲0.001~0.029µg/kgでアフラトキシンM1が検出されており, 試料中のアフラトキシンM1濃度もその範囲内であると推定された。

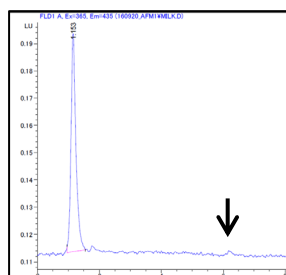


図3 HPLC-FLDでの試料のクロマトグラム

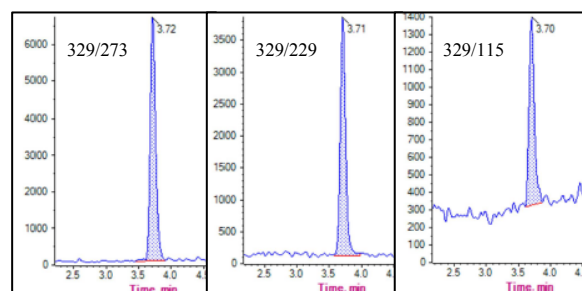


図4 LC-MS/MSでの試料のクロマトグラム

3.2.2 HPLC-FLD

添加回収試験の結果を表5に示した。それぞれの濃度で5回分析し, 0.05µg/kgとなるよう添加した試料の回収率は92.5~100.6%, 0.5µg/kgとなるよう添加した試料の回収率は81.2~94.5%となり良好な結果であった。

表5 添加回収試験結果 (HPLC-FLD)

添加濃度	0.05µg/kg			0.5µg/kg		
	回収率 (%)	平均値 (%)	CV (%)	回収率 (%)	平均値 (%)	CV (%)
添加試料1	99.5			82.5		
添加試料2	98.0			92.8		
添加試料3	100.6	97.9	2.9	87.7	87.7	6.1
添加試料4	92.5			94.5		
添加試料5	98.8			81.2		

3.2.3 LC-MS/MS

添加回収試験の結果を表6に示した。それぞれの濃度で3回分析し, 0.05µg/kgとなるよう添加した試料の回収率は96.4~99.5%, 0.5µg/kgとなるよう添加した試料の回収率は78.8~92.8%となり良好な結果であった。図5に標準溶液のクロマトグラムを示した。

表6 添加回収試験結果 (LC-MS/MS)

添加濃度	0.05µg/kg			0.5µg/kg		
	回収率 (%)	平均値 (%)	CV (%)	回収率 (%)	平均値 (%)	CV (%)
添加試料1	99.5			82.5		
添加試料2	98.0	98.0	1.3	78.8	84.7	7.0
添加試料3	96.4			92.8		

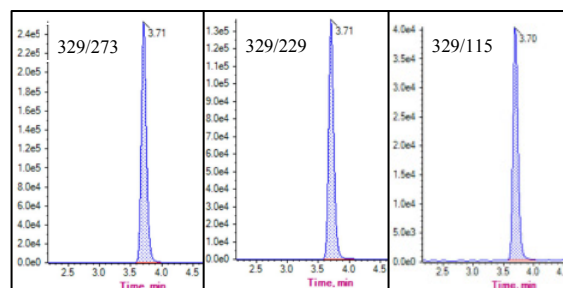


図5 標準溶液 (1µg/L) のクロマトグラム

4 まとめ

通知で示された試験法について、本市で対応するため、測定条件の検討を行った。添加回収試験の結果は良好であったため、本試験法の検査実施標準作業書を作成し、市内に流通する乳に対して適用する予定である。

- 2)厚生労働省通知食安発0723第5号：乳に含まれるアフラトキシンM1の試験法について，平成27年7月23日
- 3)食品安全委員会府食第 526 号：食品健康影響評価の結果の通知について，かび毒評価書，乳中のアフラトキシン M1 及び試料中のアフラトキシン B1，平成 25 年 7 月 1 日

文献

- 1)厚生労働省通知食安発0723第1号：乳に含まれるアフラトキシンM1の取扱いについて，平成27年7月23日

平成28年度 農薬検査項目及び定量下限一覧

保健科学課 微量分析担当

農作物及び加工品の検査項目及び定量下限 1/2

No.	項目	単位	定量 下限	試験法	No.	項目	単位	定量 下限	試験法
(1)	1,1-ジクロロ-2,2-ビス (4-エチルフェニル)エタン	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(50)	クロジナホップ酸	ppm	0.01	LC-MS/MS法
					(51)	クロチアニジン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(2)	BHC *	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(52)	クロフェンテジン *	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(3)	DDT *	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(53)	クロマゾン	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(4)	EPN	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(54)	クロランスラムメチル	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(5)	MCPB	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(55)	クロリムロンエチル	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(6)	XMC	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(56)	クロルスルフロン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(7)	アイオキシニル	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(57)	クロルタールジメチル	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(8)	アクリナトリン *	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(58)	クロルピリホス *	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(9)	アザコナゾール	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(59)	クロルピリホスメチル *	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(10)	アシフルオルフェン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(60)	クロルフェンゾン	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(11)	アジムスルフロン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(61)	クロルフェンビンホス	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(12)	アジンホスメチル	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(62)	クロルフルアズロン *	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(13)	アセタミプリド *	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(63)	クロルベンシド	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(14)	アセトクロール	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(64)	クロルベンジレート *	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(15)	アゾキシストロビン *	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(65)	シアナジン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(16)	アトラジン	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(66)	シアノホス	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(17)	アニロホス	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(67)	ジエトフェンカルブ	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(18)	アメトリン	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(68)	シクラニリド	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(19)	アラクロール	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(69)	ジクロスラム	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(20)	アラマイト	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(70)	ジクロスルファミロン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(21)	イソキサチオン	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(71)	ジクロフェンチオン	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(22)	イソフェンホス	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(72)	ジクロホップメチル	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(23)	イソプロカルブ	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(73)	ジクロルブロッブ	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(24)	イプロベンホス	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(74)	シノスルフロン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(25)	イマザキン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(75)	ジノテフラン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(26)	エスプロカルブ	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(76)	シハロホップブチル	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(27)	エタメツルフロンメチル	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(77)	ジフェノコナゾール *	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(28)	エタルフルラリン	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(78)	ジフルベンズロン *	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(29)	エチオン	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(79)	ジプロジニル	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(30)	エディフェンホス	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(80)	シペルメトリン *	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(31)	エトキサゾール *	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(81)	シマジン	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(32)	エトキシスルフロン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(82)	ジメタメトリン	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(33)	エトフェンブロックス	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(83)	ジメチルビンホス	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(34)	エトフメセート	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(84)	ジメテナミド	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(35)	エトプロホス	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(85)	ジメトエート *	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(36)	エトリムホス	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(86)	シメトリン	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(37)	オキサジアズン	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(87)	ジメビベレート	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(38)	オキサジキシル	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(88)	スルフェントラズン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(39)	オキサミル	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(89)	スルホスルフロン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(40)	オメトエート	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(90)	ターバシル	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(41)	カズサホス	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(91)	ダイアジノン *	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(42)	カフェンストロール	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(92)	ダイアレート	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(43)	カルバリル *	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(93)	ダイムロン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(44)	カルフェントラズンエチル	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(94)	チオベンカルブ	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(45)	キナルホス *	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(95)	チジアズロン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(46)	キノキシフェン	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(96)	チフェンスルフロンメチル	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(47)	キノクラミン	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(97)	チフルザミド	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(48)	キントゼン	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(98)	テトラクロルビンホス	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(49)	クレスキシムメチル *	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(99)	テトラコナゾール *	ppm	0.01	GC-MS/MS法

*茶の検査項目。ただし、定量下限は0.1ppm。

農作物及び加工品の検査項目及び定量下限 2/2

No.	項目	単位	定量 下限	試験法	No.	項目	単位	定量 下限	試験法
(100)	テトラジホン	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(165)	フルジオキソニル	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(101)	テニルクロール	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(166)	フルシトリネート *	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(102)	テブコナゾール *	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(167)	フルシラゾール	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(103)	テブフェンピラド	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(168)	フルトラニル	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(104)	テフルトリン *	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(169)	フルトリアホール	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(105)	テフルベンズロン *	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(170)	フルフェノクスロン *	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(106)	テルブトリン	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(171)	フルフェンピルエチル	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(107)	トリアジメノール *	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(172)	フルメツラム	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(108)	トリアジメホン	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(173)	フルリドン	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(109)	トリアスフロン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(174)	フレチラクロール	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(110)	トリアレート	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(175)	プロシミドン *	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(111)	トリクロルホン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(176)	プロスルフロン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(112)	トリシクラゾール	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(177)	プロチオホス *	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(113)	トリフルスルフロメチル	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(178)	プロバジン	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(114)	トリフルラリン	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(179)	プロバニル	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(115)	トリフロキシスルフロ	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(180)	プロバルギット	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(116)	トルクロホスメチル	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(181)	プロビコナゾール *	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(117)	ナブタラム	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(182)	プロビザミド	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(118)	ナブロパミド	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(183)	プロボキスル	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(119)	ニトターイソプロピル	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(184)	プロモキシニル	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(120)	パクロプロラゾール	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(185)	プロモプロピレート	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(121)	パラチオン *	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(186)	プロモホス	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(122)	パラチオンメチル *	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(187)	フロラスラム	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(123)	ハルフェンブロックス	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(188)	ヘキサコナゾール	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(124)	ハロキシホップ	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(189)	ヘキサジノン	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(125)	ハロスルフロメチル	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(190)	ヘキサフルムロン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(126)	ピコリナフェン	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(191)	ヘキシチアゾクス *	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(127)	ピテルタノール *	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(192)	ペナラキシル	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(128)	ピフェントリン *	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(193)	ペノキサコール	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(129)	ピペロニルブトキシド	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(194)	ペノキスラム	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(130)	ピペロホス	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(195)	ヘプタクロル	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(131)	ピラクロホス *	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(196)	ペンコナゾール *	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(132)	ピラゾスルフロエチル	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(197)	ペンシクロン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(133)	ピラフルフェンエチル	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(198)	ペンスルフロメチル	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(134)	ピリダフェンチオン	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(199)	ペンダイオカルブ	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(135)	ピリダベン *	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(200)	ペンディメタリン	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(136)	ピリプチカルブ	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(201)	ペンフルラリン	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(137)	ピリプロキシフェン	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(202)	ペンフレセート	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(138)	ピリミカーブ	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(203)	ホサロン *	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(139)	ピリミジフェン *	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(204)	ボスカリド	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(140)	ピリミノバックメチル	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(205)	ホスチアゼート	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(141)	ピリミホスメチル *	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(206)	ホスファミドン	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(142)	ピリメタニル	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(207)	ホスメット	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(143)	ピロキロン	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(208)	ホメサフェン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(144)	ピンクロゾリン	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(209)	ホラムスルフロ	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(145)	フェニトロチオン *	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(210)	ホルクロルフェニユロン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(146)	フェノキサニル	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(211)	マラチオン *	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(147)	フェノチオカルブ	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(212)	マイクロプタニル *	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(148)	フェノブカルブ *	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(213)	メソスルフロメチル	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(149)	フェンアミドン	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(214)	メタベンズチアズロン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(150)	フェンクロルホス	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(215)	メタミドホス *	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(151)	フェンスルホチオン	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(216)	メタラキシル及びメフェノキサム	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(152)	フェントエート	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(217)	メチダチオン	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(153)	フェンバレレート *	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(218)	メトキシクロール	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(154)	フェンピロキシメート *	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(219)	メスラム	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(155)	フェンプロピモルフ	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(220)	メトスルフロメチル	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(156)	フェンヘキサミド	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(221)	メトミノストロビン	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(157)	ブタクロール	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(222)	メトラクロール	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(158)	ブタミホス	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(223)	メフェナセツト	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(159)	ブピリメート	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(224)	メブロン	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(160)	フラザスルフロ	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(225)	ルフエヌロン *	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(161)	フラムプロップメチル	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(226)	レナシル	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(162)	グリミスルフロメチル	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(227)	イマザリル (茶のみ)	ppm	0.1	LC-MS/MS法
(163)	フルアクリピリム	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(228)	テブフェノジド (茶のみ)	ppm	0.1	LC-MS/MS法
(164)	フルキンコナゾール	ppm	0.01	GC-MS/MS法					

*茶の検査項目。ただし、定量下限は0.1ppm。

乳の検査項目及び定量下限

No.	項目	単位	定量下限	試験法
(1)	BHC	ppm	0.005	GC-MS/MS法
(2)	DDT	ppm	0.005	GC-MS/MS法
(3)	アルドリン及びディルドリン	ppm	0.005	GC-MS/MS法
(4)	エンドリン	ppm	0.005	GC-MS/MS法
(5)	フィプロニル	ppm	0.005	GC-MS/MS法

肉類の検査項目及び定量下限

No.	項目	単位	定量 下限	試験法	No.	項目	単位	定量 下限	試験法
(1)	BHC	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(32)	ピフェントリン	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(2)	DDT	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(33)	ピラフルフェンエチル	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(3)	アクリナトリン	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(34)	ピリダベン	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(4)	イソプロカルブ	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(35)	ピリプチカルブ	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(5)	エスプロカルブ	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(36)	ピリミカーブ	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(6)	エトキサゾール	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(37)	ピリミジフェン	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(7)	エトプロホス	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(38)	ピリミノバックメチル	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(8)	カフェンストール	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(39)	ピリミホスメチル	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(9)	キナルホス	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(40)	フィプロニル	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(10)	クロルピリホス	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(41)	フェントロチオン	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(11)	クロルピリホスメチル	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(42)	フェノキサニル	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(12)	クロロベンジレート	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(43)	フェノブカルブ	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(13)	シハロホップチル	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(44)	フェントエート	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(14)	ジフルフェニカン	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(45)	フェンバレレート	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(15)	シプロジニル	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(46)	ブタクロール	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(16)	シベルメトリン	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(47)	ブタミホス	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(17)	ジメチルピホス	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(48)	フルシトリネート	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(18)	ジメテナミド	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(49)	プレチラクロール	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(19)	シメトリン	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(50)	プロシミドン	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(20)	ターバシル	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(51)	プロチオホス	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(21)	ダイアジノン	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(52)	ヘブタクロール	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(22)	チオベンカルブ	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(53)	ペンコナゾール	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(23)	チフルザミド	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(54)	ペンダイオカルブ	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(24)	テブコナゾール	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(55)	ペンディメタリン	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(25)	テルブホス	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(56)	ホサロン	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(26)	トリフルラリン	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(57)	マラチオン	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(27)	トルクロホスメチル	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(58)	ミクロブタニル	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(28)	パクロプトラゾール	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(59)	メトラクロール	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(29)	パラチオン	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(60)	メフェナセット	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(30)	パラチオンメチル	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(61)	メプロニル	ppm	0.01	GC-MS/MS法
(31)	ハルフェンブロックス	ppm	0.01	GC-MS/MS法	(62)	レナシル	ppm	0.01	GC-MS/MS法

平成 28 年度 動物用医薬品等検査項目及び定量下限一覧

保健科学課 微量分析担当

乳及び肉類の検査項目及び定量下限

No.	項目	単位	定量 下限	試験法	No.	項目	単位	定量 下限	試験法
(1)	2-アセチルアミノ-5-ニトロチアゾール	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(35)	スルファメトキサゾール	ppm	0.01	LC-MS/MS法
					(36)	スルファメトキシピリダジン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(2)	5-ブロピルスルホニル-1H-ベンズイミダゾール-2-アミン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(37)	スルファメラジン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
					(38)	スルファモノメトキシ	ppm	0.01	LC-MS/MS法
					(39)	スルフィソミジン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(3)	アクロミド	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(40)	セファゾリン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(4)	エトバベート	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(41)	セフロキシム	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(5)	エリスロマイシン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(42)	チアベンダゾール	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(6)	オキサシリン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(43)	チアムリン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(7)	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	ppm	0.02	LC-MS/MS法	(44)	チアンフェニコール	ppm	0.01	LC-MS/MS法
					(45)	トリベレナミン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
					(46)	トリメトプリム	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(8)	オキシベンダゾール	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(47)	ナリジクス酸	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(9)	オキシロニック酸	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(48)	ニトロキシニル	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(10)	オルビフロキサシン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(49)	ニトロフラゾン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(11)	オルメトプリム	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(50)	ニフルスチレン酸ナトリウム	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(12)	キシラジン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(51)	ピランテル	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(13)	クロキサシリン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(52)	ピリメタミン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(14)	クロビドール	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(53)	ピロミド酸	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(15)	クロラムフェニコール	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(54)	ファミフル	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(16)	クロルスロン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(55)	フェネチシリン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(17)	ケトプロフェン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(56)	フェノキシメチルペニシリン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(18)	ジアベリジン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(57)	フェノブカルブ	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(19)	ジクロキサシリン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(58)	ブラジクアンテル	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(20)	ジニトルミド	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(59)	グリフィニウム	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(21)	スルファエトキシピリダジン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(60)	フルベンダゾール	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(22)	スルファキノキサリン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(61)	フルメキン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(23)	スルファクロピリダジン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(62)	プロマシル	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(24)	スルファジアジン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(63)	フロルフエニコール	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(25)	スルファジミジン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(64)	ベンゾカイン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(26)	スルファジメトキシ	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(65)	マホブラジン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(27)	スルファセタミド	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(66)	ミロキサシン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(28)	スルファチアゾール	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(67)	メチルプレドニゾロン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(29)	スルファドキシ	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(68)	メベンダゾール	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(30)	スルファトロキサゾール	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(69)	メロキシカム	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(31)	スルファニトラン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(70)	メンプトン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(32)	スルファペリジン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(71)	モランテル	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(33)	スルファプロモメタジンナトリウム	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(72)	リンコマイシン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
					(73)	レバミゾール	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(34)	スルファベンズアミド	ppm	0.01	LC-MS/MS法					

卵類の検査項目及び定量下限

No.	項目	単位	定量 下限	試験法	No.	項目	単位	定量 下限	試験法
(1)	2-アセチルアミノ-5-ニトロチアゾール	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(32)	スルファベンズアミド	ppm	0.01	LC-MS/MS法
					(33)	スルファメトキサゾール	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(2)	5-プロピルスルホニル-1H-ベンズイミダゾール-2-アミン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(34)	スルファメトキシピリダジン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
					(35)	スルファメラジン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
					(36)	スルファモノメトキシ	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(3)	アクロミド	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(37)	スルフィソミジン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(4)	エトパベート	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(38)	タイロシン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(5)	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	ppm	0.02	LC-MS/MS法	(39)	チアベンダゾール	ppm	0.01	LC-MS/MS法
					(40)	チアンフェニコール	ppm	0.01	LC-MS/MS法
					(41)	トリベレナミン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(6)	オキシベンダゾール	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(42)	トリメトプリム	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(7)	オキシソニック酸	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(43)	ナイカルバジン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(8)	オルビフロキサシン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(44)	ニトロキシニル	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(9)	オルメトプリム	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(45)	ニトロフラゾン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(10)	キシラジン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(46)	ニフルスチレン酸ナトリウム	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(11)	クロビドール	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(47)	ピランテル	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(12)	クロラムフェニコール	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(48)	ピリメタミン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(13)	クロルロン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(49)	ファミフル	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(14)	ケトプロフェン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(50)	フェノブカルブ	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(15)	サラフロキサシン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(51)	ブラジクアンテル	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(16)	ジアベリジン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(52)	プリフィニウム	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(17)	ジクラズリル	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(53)	フルベンダゾール	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(18)	ジニトルミド	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(54)	フルメキン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(19)	スルファエトキシピリダジン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(55)	プロマシル	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(20)	スルファキノキサリン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(56)	フロルフェニコール	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(21)	スルファクロルピリダジン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(57)	ベンゾカイン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(22)	スルファジアジン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(58)	マホブラジン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(23)	スルファジミジン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(59)	メチルプレドニゾン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(24)	スルファジメトキシ	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(60)	メベンダゾール	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(25)	スルファセタミド	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(61)	メロキシカム	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(26)	スルファチアゾール	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(62)	メンブトン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(27)	スルファドキシ	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(63)	モランテル	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(28)	スルファトロキサゾール	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(64)	リンコマイシン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(29)	スルファニトラン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(65)	レバミゾール	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(30)	スルファピリジン	ppm	0.01	LC-MS/MS法					
(31)	スルファプロモメタジンナトリウム	ppm	0.01	LC-MS/MS法					

養殖魚介類の検査項目及び定量下限

No.	項目	単位	定量 下限	試験法	No.	項目	単位	定量 下限	試験法
(1)	2-アセチルアミノ-5-ニトロチアゾール	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(34)	スルファピリジン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
					(35)	スルファプロモメタジンナトリウム	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(2)	5-プロピルスルホニル-1H-ベンズイミダゾール-2-アミン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(36)	スルファベンズアミド	ppm	0.01	LC-MS/MS法
					(37)	スルファメトキサゾール	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(3)	アクロミド	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(38)	スルファメトキシピリダジン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(4)	エトパベート	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(39)	スルファメラジン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(5)	オキサシリン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(40)	スルファモノメトキシシリン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(6)	オキシテトラサイクリン	ppm	0.02	LC-MS/MS法	(41)	セファゾリン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(7)	クロルテトラサイクリン	ppm	0.02	LC-MS/MS法	(42)	セフロキシム	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(8)	テトラサイクリン	ppm	0.02	LC-MS/MS法	(43)	チアベンダゾール	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(9)	オキシベンダゾール	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(44)	チアムリン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(10)	オキシリニック酸	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(45)	チアンフェニコール	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(11)	オルビフロキサシン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(46)	トリベレナミン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(12)	オルメトプリム	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(47)	トリメトプリム	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(13)	キシラジン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(48)	ナリジクス酸	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(14)	クロキサシリン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(49)	ニトロキシニル	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(15)	クロビドール	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(50)	ピランテル	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(16)	クロラムフェニコール	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(51)	ファミール	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(17)	クロルスロン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(52)	フェネチシリン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(18)	ケトプロフェン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(53)	フェノキシメチルペニシリン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(19)	酢酸メレンゲステロール	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(54)	フェノブカルブ	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(20)	サラフロキサシン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(55)	プラジクアンテル	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(21)	ジアベリジン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(56)	プリフィニウム	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(22)	ジニトルミド	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(57)	フルベンダゾール	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(23)	スルファエトキシピリダジン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(58)	フルメキン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(24)	スルファキノキサリン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(59)	プロマシル	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(25)	スルファクロルピリダジン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(60)	フロルフエニコール	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(26)	スルファジアジン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(61)	ベンゾカイン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(27)	スルファジミジン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(62)	マホブラジン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(28)	スルファジメトキシシリン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(63)	メベンダゾール	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(29)	スルファセタミド	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(64)	メロキシカム	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(30)	スルファチアゾール	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(65)	メンプトン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(31)	スルファドキシシリン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(66)	モランテル	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(32)	スルファトロキサゾール	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(67)	リンコマイシン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(33)	スルファニトラン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(68)	レバミゾール	ppm	0.01	LC-MS/MS法

魚介類加工品の検査項目及び定量下限

No.	項目	単位	定量 下限	試験法	No.	項目	単位	定量 下限	試験法
(1)	オキシリニック酸	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(8)	スルファモノメトキシシリン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(2)	オフロキサシン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(9)	トリメトプリム	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(3)	オルメトプリム	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(10)	ピリメタミン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(4)	スルファキノキサリン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(11)	ベンゾカイン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(5)	スルファジミジン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(12)	ミロキサシン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(6)	スルファジメトキシシリン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(13)	リンコマイシン	ppm	0.01	LC-MS/MS法
(7)	スルファメラジン	ppm	0.01	LC-MS/MS法	(14)	レバミゾール	ppm	0.01	LC-MS/MS法

編集委員

井上 武弘 ・ 馬場 伸一 ・ 中牟田啓子 ・ 藤井 理加
小原 浩史 ・ 常松 順子 ・ 丸山 浩幸 ・ 藤岡 栄子
望月 啓介 ・ 松永 典久 ・ 宮本 道彦 ・ 津留美由紀

福岡市保健環境研究所報 (ISSN 1343-3512) 第 4 2 号

平成 2 8 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 3 4 号

T E L 092(831)0660 (代)

F A X 092(831)0726

<http://www.city.fukuoka.lg.jp/kankyo/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

T E L 092(531)7102

Annual Report
of
Fukuoka City Institute
of Health and Environment

Volume 42

October 2017

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

<http://www.city.fukuoka.lg.jp/kankyo/hokanken/index.html>