

調査研究最終報告一覧

No	タイトル	研究期間 (年度)	部会	担当課	ページ
1	福岡市内における熱中症救急搬送と 気象条件との関連に関する調査研究	H29～30	環境	環境科学課 (大気担当)	1～8
2	食品中のヒ素形態別分析法の改良と海産物の実態調査	H28～30	保健	保健科学課 (食品化学担当)	9～23
3	PM2.5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(Ⅱ型共同研究)	H28～30	環境	環境科学課 (大気担当)	25～31
4	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)	H28～30		環境科学課 (水質担当)	32～36
5	ヒトとウシから分離された腸管出血性大腸菌(EHEC)の 薬剤耐性状況の推移	H29～30	保健	保健科学課 (感染症担当)	38～40
	家庭系燃えるごみ中の手つかず食品等の排出実態調査	H29～R1 (1年延長)	環境	環境科学課 (資源化担当)	-

※ タイトルごとに、当初の実施計画書と最終報告書を見開きにしております。

調査研究実施計画書

		分類	N		
タイトル	福岡市における熱中症救急搬送と気象条件との関連に関する調査研究				
担当課・ 担当者氏名	環境科学課 大気担当 : 松本弘子, 藤瀬朋子, 宇野映介				
調査研究期間	平成29年5月 ~ 平成30年3月				
目的及び必要性	本市では熱中症対策として、暑さ指数予測を基にした市民への情報提供を行っているが、これまでの熱中症救急搬送者の傾向を見ると、その時の気温や暑さ指数以外の要因も寄与する可能性が考えられる。このため、本市における熱中症搬送者と気象条件等との関連性を解析し、熱中症予防情報の適切なタイミングやターゲットを明らかにすることを目的とする。				
概要	1 熱中症搬送者数と気象条件等についての関連性の解析 2 地域別の搬送者数の分布と地域特性の関連性の解析 3 65歳以上の搬送者について上記と同様に解析				
年次計画	29年度	年度	年度	年度	年度
	データ解析・まとめ →				
	情報提供 →				
期待される成果	熱中症患者が発生しやすい気象条件や地域特性、65歳以上に特化する等の詳細な解析をすることで、より効果的なタイミング及び対象への熱中症予防の情報提供が可能となり、健康被害の予防に寄与することが期待できる。				
備考	消防局の熱中症救急搬送者データを使用				

(注1) 分類は別途定める調査研究の体系図に基づく分類記号(A, B, C・・・)

(注2) タイトルは、対外的にわかりやすいものにし、専門用語等を使う場合はサブタイトルをつけること。

(注3) 期待される成果については、行政施策への提言・反映目標及び市民への還元目標等を記載すること。

(注4) 関係部局及び共同研究者については、備考に記載すること。

(注5) 国の補助金等予算措置がある場合には、備考に記載すること。

調査研究最終報告書

	分類	N
タイトル	福岡市における熱中症救急搬送と気象条件との関連に関する調査研究	
担当課・ 担当者氏名	環境科学課 大気担当 : 松本弘子, 藤瀬朋子, 宇野映介	
調査研究期間	平成29年5月 ~ 平成31年3月	
目的及び必要性	本市では熱中症対策として、暑さ指数予測を基にした市民への情報提供を行っているが、これまでの熱中症救急搬送者の傾向を見ると、その時の気温や暑さ指数以外の要因も寄与する可能性が考えられる。このため、本市における熱中症搬送者と気象条件等との関連性を解析し、熱中症予防情報の適切なタイミングやターゲットを明らかにすることを目的とする。また、福岡市内の各地点における気温、湿度、暑さ指数(WBGT)を実測し、各地点の地域特性を明らかにするとともに、地域別の搬送者との関連を検証する。	
結果の概要	<p>1 熱中症救急搬送者の解析(H25-29年)・・・所報第43号参照</p> <ul style="list-style-type: none"> ・福岡市消防局の救急搬送者のデータを用いて解析を行った結果、性別では搬送者は女性より男性が多いこと、年齢階級別では男性の18-64歳、女性の65歳以上の階級で搬送者が最多であること、覚知時間別では日中の搬送者が多いものの夜間にも搬送者が発生していること、発生場所では住居が最も多いことが明らかとなった。 ・気象庁(福岡)の気象データを用いて熱中症発生と気象条件の関連について解析したところ、気温が33℃の時に搬送者が最も多く、日最高気温が29℃以上で搬送者数が増加すること、風向は北風と北北西が多く、風速の約9割が5m/s以下であることが明らかとなった。 ・校区別の熱中症搬送者数を解析したところ、校区毎にばらつきがみられたことから、校区人口の違いに加えて気象条件等の要因による可能性が考えられた。 <p>2 暑熱環境調査(H30年)・・・別紙参照</p> <ul style="list-style-type: none"> ・平成30年に福岡市内4地点でWBGTの実測及び気象データの収集を約1ヶ月間行い、気象庁(福岡)のデータも用いて解析した結果、石丸局はWBGTや気温が高く、元岡局はWBGTや気温が低い傾向を示した。これは周辺環境による影響が要因となっていると考えられた。 ・4地点の気温、湿度等の気象データを用いてWBGT推定値を算出し、実測値との比較を行ったところ、4地点とも強い相関を示し、WBGT推定値が暑熱環境を示すデータとして有用であることが示唆された。 ・今回収集した地点毎の気象データは、今後、地域別の搬送者との関連を検証するためのデータとして有用であると考えられた。 ・今後、各地点の夏季の気象データを収集し、地域別の搬送者との関連についてさらに調査研究を行う。 	
成果	<p>熱中症対策作業部会にて報告(H29年10月, H30年10月)</p> <p>大気環境学会九州支部第19回研究発表会にて発表(H31年3月)</p> <p>福岡市保健環境研究所所報第43号に掲載</p>	
備考 (今後の予定等)	<p>福岡市保健環境研究所所報第44号に掲載予定</p> <p>第60回大気環境学会にて発表予定(R1年9月)</p>	

添付書類: 発表論文, 投稿資料, その他の資料等

(注1)分類には、別途定める調査研究の体系図に基づく分類記号(A, B, C・・・)

(注2)成果には、調査研究実施計画書(様式1)に記載した目標に対する具体的な成果を記載すること。

(注3)国の補助金等予算措置がある場合には、備考に記載すること。

福岡市における熱中症救急搬送と気象条件等との関連

松本弘子・藤瀬朋子・宇野映介

福岡市保健環境研究所環境科学課

Connection with Ambulance Dispatchs of Heat Illness and Wether Conditions in Fukuoka City

Hiroko MATSUMOTO , Tomoko FUJISE , Eisuke UNO

Environmental Science Section, Fukuoka City Institute of Health and Environment

要約

福岡市では、熱中症に関する啓発及び注意喚起を始めとした施策を実施しており、より効果的な予防啓発等に活用できる科学的情報が求められている。

そこで、平成 25 年から平成 29 年の本市における熱中症救急搬送者の発生状況や気象条件との関連性を解析し、併せて校区別搬送者数を解析し、地域特性の要因について検討した。その結果、日最高気温が 31℃以上になると救急搬送者数が急激に増える傾向が見られた。また、救急搬送者数は校区ごとにばらつきがあり、地域の気象特性の違いが要因の 1 つとなっている可能性が示唆された。

Key Words : 熱中症 heat illness, 暑さ指数 heat stress index, 救急搬送 ambulance dispatch

1 はじめに

熱中症は、室温や気温が高い環境で体温の調節機能が働かなくなって生じる体の不調で、年齢に関わらず誰でも発症する可能性がある¹⁾。

福岡市では、熱中症対策を総合的に推進し、市民の生命及び健康を保護することを目的として、平成 26 年に福岡市熱中症対策推進本部を立ち上げ、熱中症に関する啓発及び注意喚起を始めとした各種施策を実施しており、より効果的な予防啓発等に活用できる科学的情報が求められている。

そこで、平成 25 年から平成 29 年の福岡市における熱中症救急搬送者の発生状況や気象条件との関連性を解析するとともに、福岡市の校区別救急搬送者数を解析し、地域特性について検討した。

2 方法

平成 25 年から平成 29 年における熱中症による救急搬送者（以下、搬送者という）のデータは福岡市消防局から提供を受け、気象条件は気象庁が観測した福岡（福岡市中央区大濠）の観測結果を用いて解析を行った。また、

小学校区データは国土交通省の国土数値情報を用いた。

3 結果・考察

3.1 福岡市の熱中症搬送者の発生状況

性別搬送者数の年次推移を図 1 に示す。男女とも搬送者数が最も多かったのは平成 25 年で、男性が 406 名、女性が 228 名であった。また、すべての年で女性よりも男性の搬送者数が多かった。なお、平成 25 年は夏の記録的猛暑の年で、熱中症による初の死亡事例も発生している。

性別・年齢階級別（0～6 歳，7～17 歳，18～64 歳，65 歳以上の 4 区分）の搬送者割合を図 2 に示す。男性は 18～64 歳が 50%と最も多く、女性は 65 歳以上が 48%で最も多かった。

行政区別の熱中症搬送者の発生率（人口 10 万対）を図 3 に示す。最も高いのは博多区（40）で、次いで東区（38）で、逆に、最も低いのは南区（23）であった。

覚知時刻別搬送者の割合を図 4 に示す。日中の搬送者が多く発生しているが、夜間の発生もみられた。

年齢階級別・発生場所別搬送者の割合を図 5 に示す。0～17 歳では半数が教育機関で発生しており、65 歳以上では一般住宅・共同住宅を合わせると約 6 割が住宅で発生

していた。

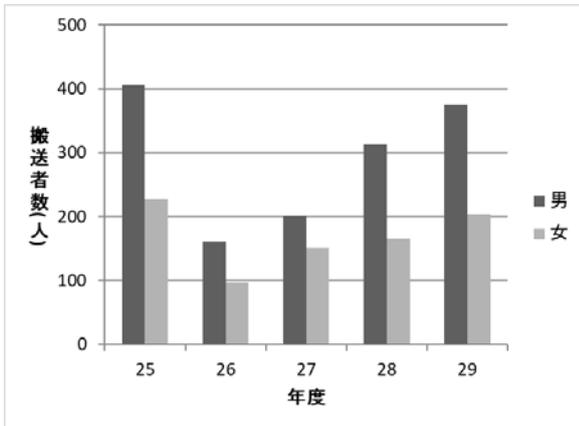


図1 性別搬送者数の年次推移 (平成25～29年)

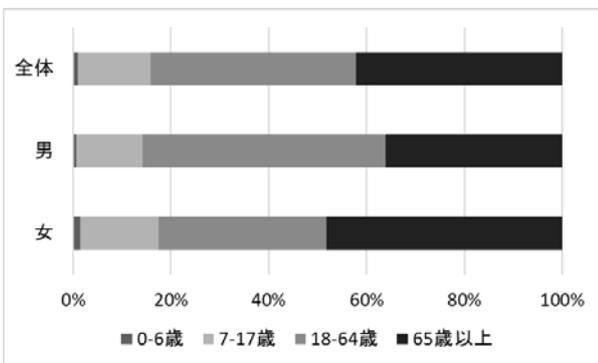


図2 性別・年齢階級別搬送者割合 (平成25～29年)

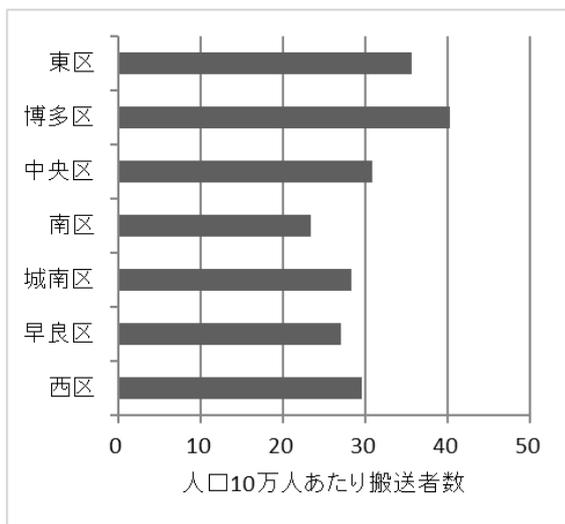


図3 人口10万人あたりの行政区別の搬送者数 (平成25～29年の年平均)

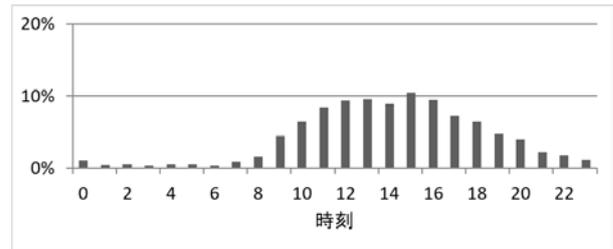


図4 覚知時刻別搬送者割合 (平成25～29年)

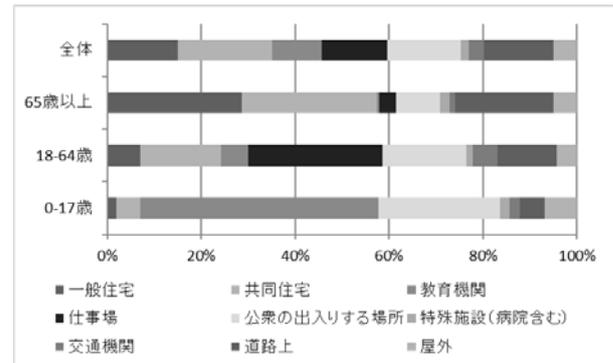


図5 年齢階級別・発生場所別搬送者割合 (平成25～29年)

3.2 福岡市の熱中症発生と気象条件

福岡市の熱中症発生と気象条件との関係を見るため、気象庁の気象データを用いて解析を行った。

3.2.1 熱中症搬送と気温との関係

覚知時の気温と年齢階級別搬送者数を図6に示す。全階級の合計では気温が33℃の時に搬送者数が最も多かった。

搬送された日の平均気温、最高気温、最低気温の累積数を図7に示す。日最高気温が29℃あたりから搬送者数が増加し、31℃、32℃を超えるあたりから急激に増加する傾向が見られた。

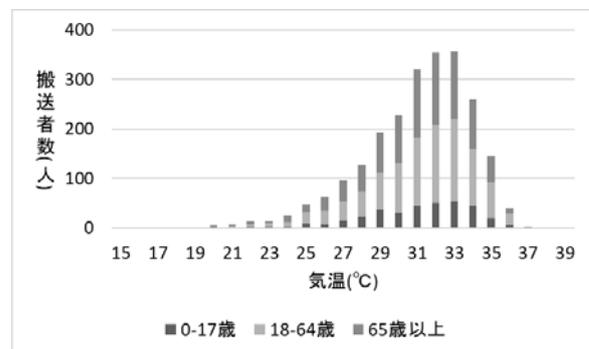


図6 覚知時気温と年齢階級別搬送者数 (平成25～29年)

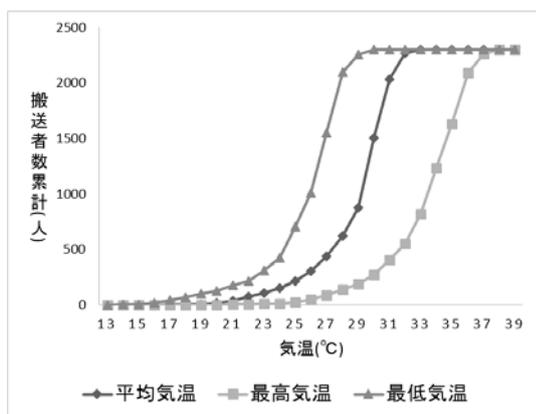


図7 搬送日の気温(平均, 最高, 最低)による搬送者数累計(平成25~29年)

3.2.2 熱中症搬送と風向き, 風速との関係

覚知時の風向を図8に, 覚知時の風速を図9に示す. 北及び北北西の風向きで搬送者数が顕著に多く, 風速は5 m/s以下で搬送者数の約9割を占めていた.

福岡市における夏季晴天時の14時, 15時の風向は主に博多湾から吹く海風(北西~北北西)であり²⁾, 日中に熱中症患者が多く発生していることから, 風向に偏りが見られたと考えられる.

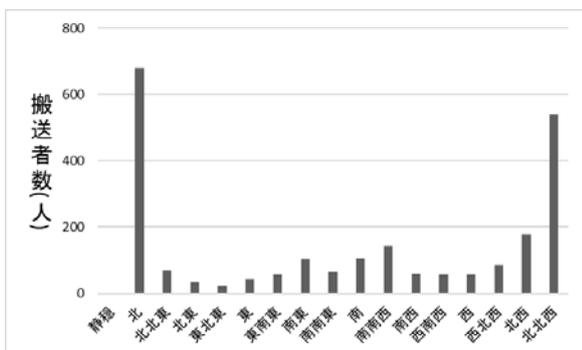


図8 覚知時の風向(平成25~29年)

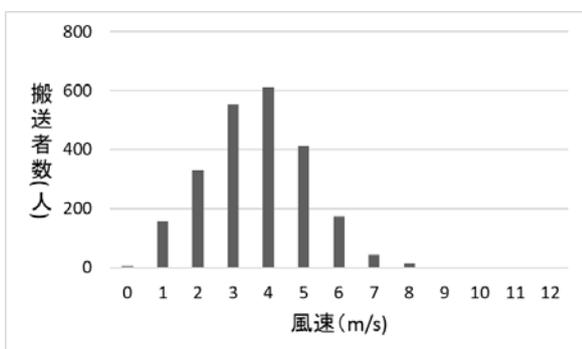


図9 覚知時の風速(平成25~29年)

3.2.3 熱中症搬送と気温, 湿度との関係

覚知時の気温と相対湿度の相関を図10に示す. 比較的気温が低い時は相対湿度のばらつきが見られるが, 高温

になるほどばらつきは小さく, 相対湿度が低い状況で搬送されていることが示された.

暑さ指数は気温が低くても湿度が高ければ高値を示し, 高温になるほどより低い湿度で高値を示す³⁾ことから, 暑さ指数との相関も示していると考えられた.

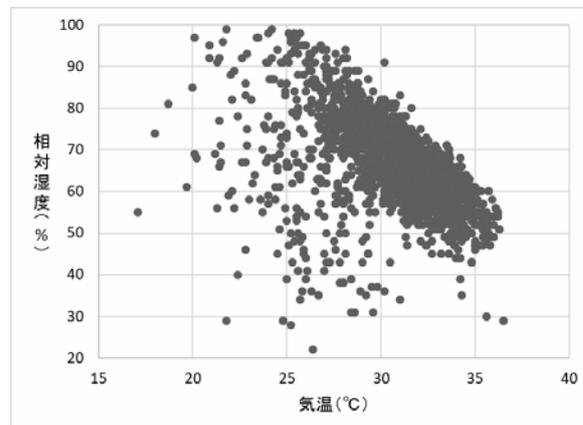


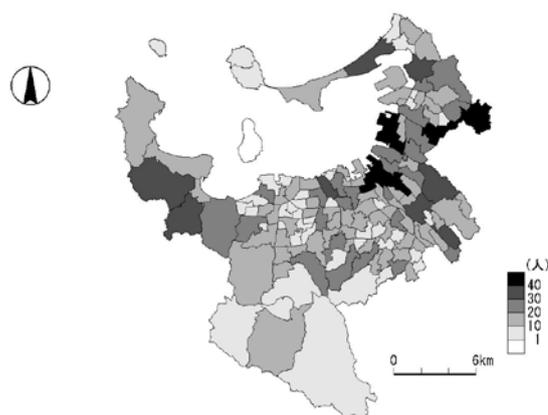
図10 覚知時の気温と湿度の相関(平成25~29年)

3.3 校区別の搬送者の分布

福岡市の校区別の全年齢の搬送者数を図11に, 65歳以上の搬送者数を図12に示す.

全年齢の搬送者数は, 昼間人口が多い東区, 博多区, 中央区⁴⁾で40人以上の校区があるものの, 他の行政区においても搬送者数が多い校区が見られた.

校区別の昼間人口は分からないものの, 搬送者数と校区別人口⁵⁾との関係が見られないことや, 全年齢, 65歳以上とも搬送者数は校区によってばらつきが見られたことから, 地域の気象特性が同一ではないことが要因の1つとなっている可能性が示唆された.



国土交通省国土政策局「国土数値情報(小学校区データ(データ基準年:2010年))」をもとに作成

図11 校区別搬送者数(全年齢)(平成25~29年)



国土交通省国土政策局「国土数値情報（小学校区データ（データ基準年：2010年）」をもとに作成

図 12 校区別搬送者数（65歳以上）（平成25～29年）

4 まとめ

福岡市における平成25～29年の熱中症搬送者の発生状況及び気象条件等との関連性について解析を行った。

搬送者数は女性より男性が多く、年齢階級別では男性は18～64歳が50%と最も多く、女性は65歳以上が48%で最も多かった。行政区別の熱中症搬送者の発生率が最も高いのは博多区で、最も低いのは南区であった。

熱中症搬送者数と気象条件との関係を解析したとこ

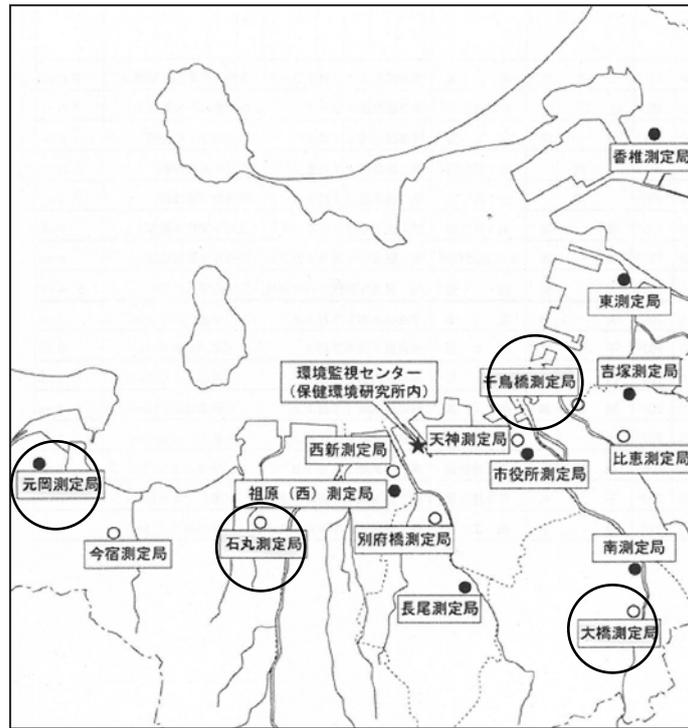
ろ、日最高気温が31℃以上になると搬送者数が急激に増えることが分かった。同じ日最高気温であっても、地域によって熱中症患者発生率に違いが見られるとの報告もあり⁶⁾、熱中症搬送者数の増加には気温以外にも要因があると考えられるが、今回の解析では分からなかった。

熱中症搬送者数の地域特性をみるために校区別の搬送者数の分布を調べたところ、昼間人口の多い東区、博多区、中央区以外でも搬送者数が多い校区があり、福岡市全体でみると校区ごとのばらつきがあることや、搬送者数と校区別人口との関係が見られないことから、地域の気象特性が同一ではないことが要因の1つとなっている可能性が示唆された。

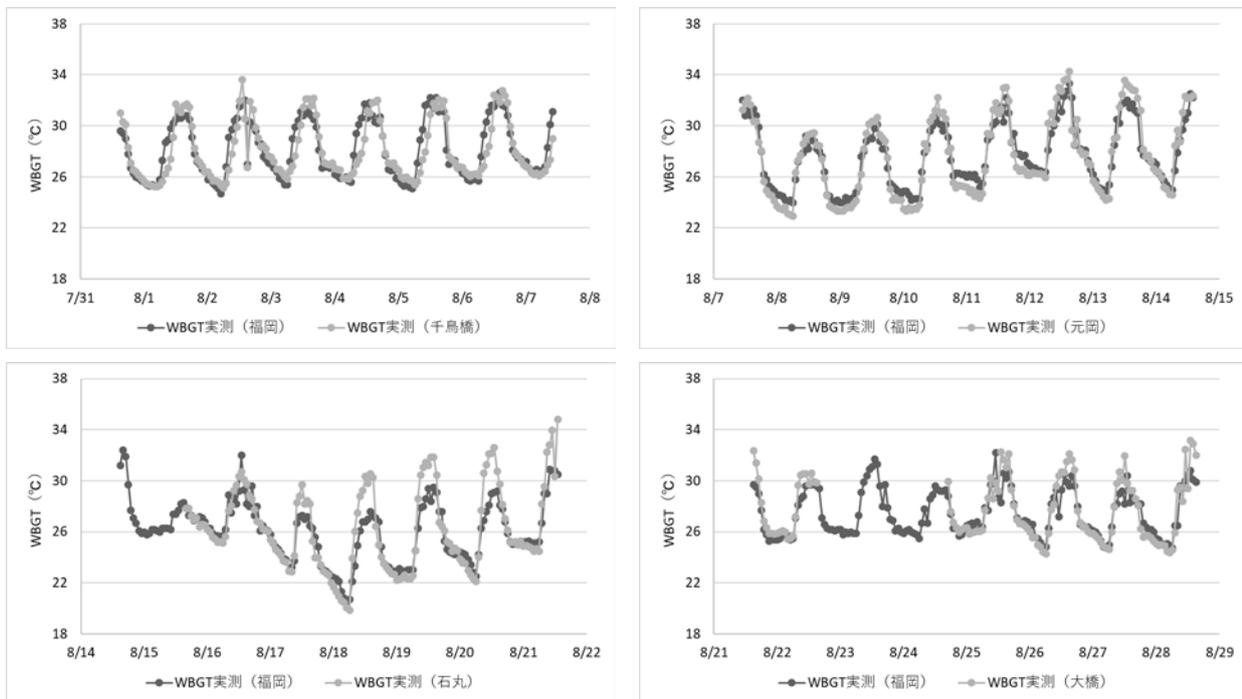
文献

- 1) 環境省：熱中症環境保健マニュアル，2018年3月
- 2) 上野悠大，棟上俊二：福岡平野・筑紫平野における夏季晴天時地上風の統計的解析による局地気象の研究，研究論文集－教育系・文系の九州地区国立大学間連携論文集－第3巻第1号，2009年
- 3) 日本生気象学会：日常生活における熱中症予防指針 Ver.3 確定版，2016年
- 4) 総務省統計局：平成27年度国勢調査
- 5) 福岡市：福岡市の人口 平成28年版，2016年
- 6) 国立環境研究所：熱中症患者速報 平成27年度報告書，平成28年2月

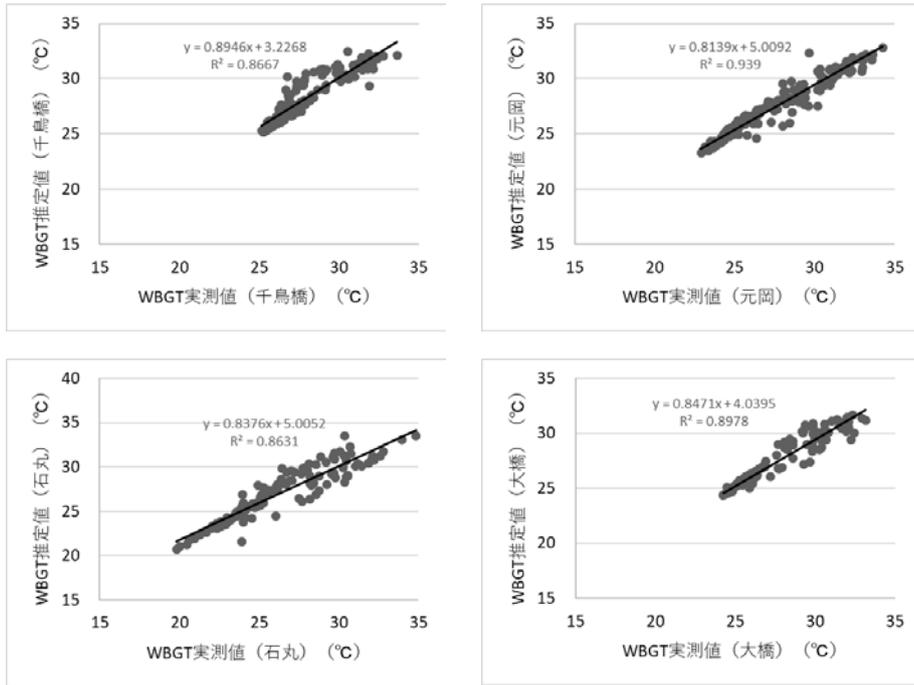
暑熱環境調査（平成 30 年）



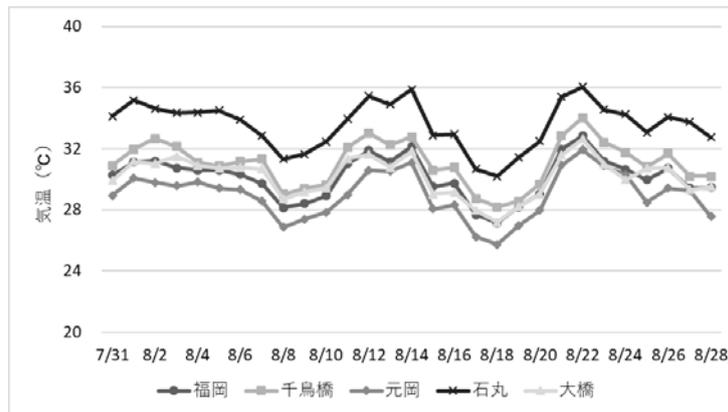
暑さ指数の測定地点



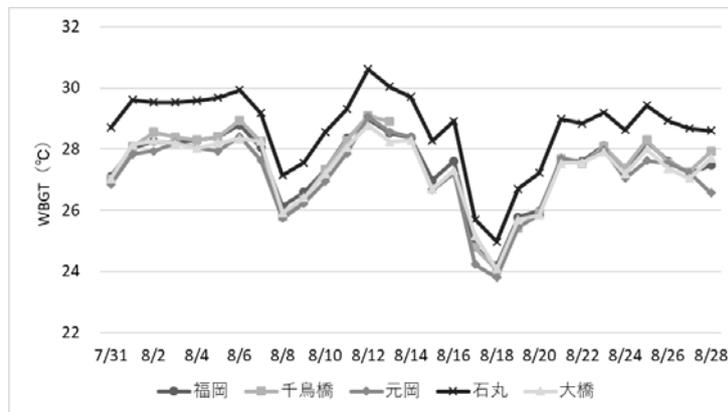
福岡の WBGT 実測値と各地点の WBGT 実測値の比較



各地点の WBGT 実測値－WBGT 推定値散布図



各地点の日平均気温 (7/31～8/28)



各地点の日平均 WBGT 推定値 (7/31～8/28)

調査研究実施計画書

		分類	H	
タイトル	食品中のヒ素形態別分析法の改良と海産物の実態調査			
担当課・ 担当者氏名	保健科学課 食品化学担当 宮崎悦子, 戸渡寛法, 宮本道彦, 牟田朱美			
調査研究期間	平成 28年度 ~ 平成 30年度			
目的及び必要性	<p>海産物中には、毒性の異なる様々な形態のヒ素が含まれているが、その含有量や割合は食品によって異なる。精密な健康リスク評価を行うためには低濃度まで検出する必要があり、高感度な形態別分析法が求められている。当研究所では、平成25年度からLC-MS/MSによる有機ヒ素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)の形態別分析法の検討を行ってきた。</p> <p>この分析法により実試料からはアルセノベタインが検出されたが、それ以外の化合物については感度が不十分で検出できなかった。また、添加回収試験による分析法の性能評価では、望ましい真度が得られていない化合物があった。そこで、感度と真度の向上を目的とした分析法の改良を行う。改良した分析法を用いて、福岡市で流通する魚介類や特産品であるおきうとなどの海産物に含まれる有機ヒ素の実態調査を実施する。</p>			
概要	<p>(1)有機ヒ素分析法の改良を行い、感度と真度を向上させる LC条件(LCカラム, 移動相)の検討, 抽出法の検討, 前処理法の検討を実施</p> <p>(2)実態調査 (1)で改良した分析法により, 食物連鎖過程にある藻類や魚介類等の有機ヒ素及び総ヒ素の実態調査を実施</p> <p>(3)実態調査の応用 実態調査の結果, 特徴的な結果が得られたものに関する追加調査やクッキングロス調査を実施</p>			
年次計画	28年度	29年度	30年度	年度
	分析法の改良	実態調査	実態調査(応用)	まとめ
期待される成果	共同研究結果として、検討した分析法や実態調査結果を報告することで、将来の耐容一日摂取量の設定や食品の成分規格等の設定の一助となるとともに、食の安全・安心につながる。			
備考	厚生労働行政推進調査事業「食品を介したダイオキシン類等有害物質摂取量評価とその手法開発に関する研究(H28-食品-指定010)(平成28年度から3年間)」において、国立医薬品食品衛生研究所との共同研究を実施し、厚生労働行政推進調査事業費補助金を受ける。			

(注1) 分類は別途定める調査研究の体系図に基づく分類記号(A, B, C・・・)

(注2) タイトルは、対外的にわかりやすいものにし、専門用語等を使う場合はサブタイトルをつけること。

(注3) 期待される成果については、行政施策への提言・反映目標及び市民への還元目標等を記載すること。

(注4) 関係部局及び共同研究者については、備考に記載すること。

(注5) 国の補助金等予算措置がある場合には、備考に記載すること。

調査研究最終報告書

	分類	H	倫理審査	該当・非該当
タイトル	食品中のヒ素形態別分析法の改良と海産物の実態調査			
担当課・ 担当者氏名	保健科学課 宮崎 悦子, 藤井優寿, 戸渡 寛法			
調査研究期間	平成 28 年度 ~ 平成 30 年度			
目的及び必要性	海産物中には、毒性の異なる様々な形態のヒ素が含まれているが、その含有量や割合は食品によって異なる。精密な健康リスク評価を行うためには低濃度まで検出する必要があり、高感度な形態別分析法が求められている。平成25~27年度の研究で開発したLC-MS/MSによる有機ヒ素化合物6種(MMA, DMA, TMAO, TeMA, AB, AC)の形態別分析法を改良し、福岡市で流通する海産物に含まれる有機ヒ素の実態調査を実施する。			
結果の概要	<p>LC-MS/MSによる有機ヒ素化合物形態別分析法について、カラムや移動相等の測定条件、試料からの抽出溶媒等の前処理条件等を検討し、分析法を改良した。測定対象としたMMA, DMA, TMAO, TeMA, AB, ACの定量下限値は0.01~0.5 mg/kgであり、いずれも旧分析法以上の感度となった。認証試料(メカジキ)及び添加試料(養殖マダイ)により推定した真度は77~90%であった。旧分析法と比べ、DMAの真度が47%から77%に、TMAOの真度が13%から90%になり、大幅に改善した。認証試料及び添加試料の5併行試験から推定した併行精度は、1.3~6.0 RSD%であった。</p> <p>実態調査は、福岡市鮮魚市場における取引量(平成24~28年度合計値)の上位10種類の魚(サバ, 天然ブリ, イワシ, アジ, 天然マダイ, メバチマグロ, サワラ, 養殖マダイ, カワハギ, カンパチ)について5検体ずつ行った。有機ヒ素化合物6種に加え、総ヒ素濃度も分析した。魚種ごとに総ヒ素濃度を比較すると、カワハギ, アジ, イワシなどの比較的小型の魚種は上位に、メバチマグロ, 天然ブリ, カンパチなどの大型の魚種は中位から低位にあった。カワハギは他の魚種と比べて総ヒ素濃度とAB濃度が比較的高い傾向にあった。また、イワシを除く9魚種は、測定した有機ヒ素化合物のうちAB濃度の割合が最も高かったが、イワシはDMA濃度の割合が高かった。養殖マダイは天然マダイと比べて総ヒ素濃度が低かった。</p>			
成 果	有機ヒ素化合物形態別分析法を改良し、感度と真度が向上した。改良した分析法により、福岡市で流通する魚50検体について実態調査を行った。総ヒ素濃度の範囲と総ヒ素濃度に占める有機ヒ素化合物の形態ごとの濃度割合について知見を得た。得られたデータは国立医薬品食品衛生研究所に報告した。			
備 考 (今後の予定等)	今後、食品分野の学術雑誌に投稿予定である。			

添付書類: 発表論文, 投稿資料, その他の資料等

(注1)分類には、別途定める調査研究の体系図に基づく分類記号(A, B, C・・・)

(注2)成果には、調査研究実施計画書(様式1)に記載した目標に対する具体的な成果を記載すること。

(注3)国の補助金等予算措置がある場合には、備考に記載すること。

平成 29 年度厚生労働行政推進調査事業費補助金（食品の安全確保推進研究事業）

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

研究分担報告書

食品の有害元素，ハロゲン難燃剤等の摂取量推定及び汚染実態の把握に関する研究

上記分担研究課題のうち「無機及び有機ヒ素の分析法開発と摂取量推定に関する研究」について、福岡市保健環境研究所で実施した「LC-MS/MS を用いた有機ヒ素化合物の化学形態別分析法の開発」の進捗状況を報告する。

研究協力者

福岡市環境局保健環境研究所 中牟田啓子，宮崎悦子，藤井優寿，戸渡寛法
福岡市水道局水道水質センター 赤木浩一

A. 研究目的

LC-ICP-MS によるヒ素化合物の形態別分析においては、互いの分析に影響の無いよう検出器導入前に各ヒ素化合物を分離する必要があるが、未知のものも含めて様々な形態が存在することから完全に分離することは難しい。

本研究では検出器導入前に各ヒ素化合物の完全分離を必要としない分析法として、残留農薬等の分析に広く用いられている LC-MS/MS を用いる分析法 (LC-MS/MS 法) を開発することを目的としている。

昨年度までに、フェニル系カラムを用いた LC-MS/MS 測定条件を検討し、最適な MS/MS 条件と HPLC 条件を決定した。今年度は、分析対象化合物を食品から効果的に

抽出、精製するための方法を検討した。検討対象の食品は、総ヒ素の含有量が多く、多様な形態のヒ素化合物を含有していると想定されること、日本人の摂食量が多いことから、魚介類とした。

B. 研究方法

分析対象化合物

多様な形態の有機ヒ素化合物の中でも、標準品が入手可能な次の 6 種類を対象とした。

- ①モノメチルアルソン酸 (MMA)，②ジメチルアルシン酸 (DMA)，③トリメチルアルシンオキシド (TMAO)，④テトラメチルアルソニウム (TeMA)，⑤アルセノベタイン (AB)，⑥アルセノコリン (AC)

試料

福岡市鮮魚市場における取引量が多い魚介類から7種(ハマチ, マアジ, マダイ, ウマヅラハギ, メバル, イサキ, スルメイカ)を選定し, 筋肉に相当する可食部をそれぞれフードプロセッサーにより粉碎, 均質化して試料とした.

試薬等

ギ酸及びギ酸アンモニウムは関東化学社製特級を用いた. 硝酸は関東化学社製 Ultra Pure 規格を用いた. アンモニア水は和光純薬工業社製特級を用いた. 水はADVANTEC 社製装置 (ULTRAPURE WATER SYSTEM) により製造した超純水 (比抵抗 > 18.2 MΩ · cm, TOC < 1 ppb) を用いた. メタノールはシグマアルドリッチ社製 LC-MS CROMASOLV 規格を用いた.

標準品: 次の6種類を使用した.

MMA, DMA, AB, AC は, 和光純薬工業社製, TMAO, TeMA はトリケミカル研究所社製を用いた.

標準原液: 6種類の標準品を水で溶解して 100 µg/mL となるよう調製した.

添加用混合標準液: 6種類の標準原液を等量混合し, 10 µg/mL となるよう水で希釈した.

標準液希釈用試液: 3.0 mol/L 硝酸 5 mL に水を 10 mL, メチルオレンジ溶液を 2 滴加えた. 溶液の色が黄色となるようアンモニア水で中和し, 水で 20 mL に定容した.

これを水で 100 倍に希釈した.

検量線用標準液: 各標準原液を適宜量とり, 標準液希釈用試液で希釈して検量線用標準液を調製した. なお, 標準液中の標準液希釈用試液の濃度が 99 vol%以上となるように希釈した.

3.0 mol/L 硝酸溶液: 硝酸 19.2 mL を量りとり, 水で 100 mL とした.

メチルオレンジ溶液: メチルオレンジ 0.1 g を量りとり, 水で 100 mL に定容後, 孔径 0.45 µm の PTFE フィルターでろ過した.

HPLC 用移動相: 0.3%ギ酸 + 5 mM ギ酸アンモニウム水溶液は, 水にギ酸 3 mL, ギ酸アンモニウム 0.32 g を混和して溶解し, 水で 1 L とした.

固相カラム: HLB は Waters 社製 Oasis HLB (1 g) を, C18 は GL Science 社製 Inertsep C18 (1 g) を, MC-1 は GL Science 社製 Inertsep MC-1 (1 g) を, SCX は GL Science 社製 Inertsep SCX (500 mg) を, WAX は Waters 社製 Oasis WAX (225 mg) を, WCX は Waters 社製 Oasis WCX (225 mg) を, PSA は GL Science 社製 Inertsep PSA (500 mg) を, MA-1 は GL Science 社製 Inertsep MA-1 (1 g) を, MA-2 は GL Science 社製 Inertsep MA-2 (1 g) を, SAX は GL Science 社製 Inertsep SAX を (1 g), IC-ME は GL Science 社製 MetaSep IC ME (280 mg) を, IC-MC は GL Science 社製 MetaSep IC MC (280 mg) を, IC-MA は GL Science 社製 MetaSep IC MA (280 mg) を用いた.

分析機器

LC-MS/MS : 次の 2 機種を使用した.

精製方法の検討における測定にはアジレントテクノロジー社製 1200 シリーズ及び AB SCIEX 社製 4000QTrap を用いた. その他の測定にはアジレントテクノロジー社製 1200 シリーズ及び AB SCIEX 社製 TQ5500 を用いた.

LC-MS/MS 測定条件

HPLC 条件

カラム: GL Science 社製 InertSustain Phenyl
(内径 2.1 mm 長さ 150 mm 粒子径 5 μm)

移動相: A 液: 0.3%ギ酸+5 mM ギ酸アンモニウム水溶液 / B 液: メタノール

グラジエント条件: 表 1

流速: 0.2 mL/min

カラム温度: 40°C

オートサンプラー温度: 4°C

注入量: 5 μL

測定時間: 15 min

MS/MS 条件

イオン化法: ESI

イオン化モード: ポジティブモード

イオン源のパラメータを表 2, 各分析対象化合物の測定条件を表 3 に示した.

測定溶液の調製

試料 2.0 g を量りとり, 3.0 mol/L 硝酸溶液 4 mL を加えてホモジナイズし, 3.0 mol/L 硝酸溶液 1mL でホモジナイザーを洗い込んだ. これを 100°C で 2 時間静置した. 静置中は 30 分間おきにボルテックス

ミキサーにより混和した. 2,300 \times g で 10 分間遠心分離後, 水層を分取した. 残渣に水 5 mL を加え, ボルテックスミキサーでよく混和した後, 同様に遠心分離後, 水層を合わせる操作を 2 回行った. 合わせた水層にメチルオレンジ溶液を 2 滴加え, 溶液の色が黄色となるようアンモニア水で中和し, 水で 20 mL に定容した. このうち 10 mL を分取し, 水飽和ヘキササン 5mL を加えて振とうして 10 分間静置後, 水層のみを採取することで脱脂した. これを水で 100 倍に希釈し, 孔径 0.45 μm メンブレンフィルターでろ過したものを測定溶液とした.

検量線の作成

検量線用標準液を用い, 前述の LC-MS/MS 測定条件にて測定して得られたピーク面積値の濃度に対する一次回帰式を最小二乗法により求め, 検量線を作成した. 検量線の例を図 1 に示した.

検討 1 精製方法の検討

検討 1.1 固相カラムの選定

測定に影響する試料由来のマトリクス成分を除去するための方法として, 固相カラムによる精製を検討した.

使用する固相カラムを選定するために, 各固相カラムに有機ヒ素化合物の標準液及び洗浄のための試薬を通液し, 有機ヒ素化合物の保持と通過の挙動を確認した. 固相カラムへの標準液及び試薬の通液量を表 4 に示した. 固相カラムを通過した標準

液及び試薬は、通流量と同量を分画し測定した。

逆相系である HLB, C18 はメタノール 5 mL, 水 5 mL, 10 mmol/L 硝酸 5 mL の順にコンディショニングし, 10 mmol/L 硝酸で希釈し 0.5 µg/mL とした添加用混合標準液を 10 mL ずつ計 20 mL 通液した。

さらに 10 mmol/L 硝酸を計 30 mL (2 mL × 5 回, 10 mL × 2 回), メタノールを計 20 mL (10 mL × 2 回) 通液した。

陽イオン交換系である MC-1, SCX はメタノール 5 mL, 水 5 mL, 10 mmol/L 硝酸 5 mL の順にコンディショニングし, 10 mmol/L 硝酸で希釈し 0.5 µg/mL とした添加用混合標準液を 10 mL ずつ計 20 mL 通液した。さらに 10 mmol/L 硝酸を計 10 mL (2 mL × 5 回), 3%アンモニア水を計 20 mL (2 mL × 5 回, 10 mL × 1 回) 通液した。

逆相系と弱イオン交換系がミックスされた WAX, WCX, PSA はメタノール 5 mL, 水 5 mL の順にコンディショニングし, アンモニア水で中和した 10 mmol/L 硝酸で希釈し 0.5 µg/mL とした添加用混合標準液を 10 mL ずつ計 20 mL 通液した。さらに水を計 30 mL (2 mL × 5 回, 10 mL × 2 回), メタノールを計 20 mL (10 mL × 2 回) 通液した。

陰イオン交換系である MA-1, MA-2, SAX はメタノール 5 mL, 1 mol/L 水酸化ナトリウム 5 mL, 水 100 mL の順にコンディショニングし, アンモニア水で中和した 10 mmol/L 硝酸で希釈し 0.5 µg/mL とした添加用混合標準液を 10 mL ずつ計 20

mL 通液した。さらに水を計 10 mL (2 mL × 5 回), 10 mmol/L 硝酸を計 20 mL (2 mL × 5 回, 10 mL × 1 回) 通液した。

イオン除去系である IC-ME, IC-MC, IC-MA は, 水 10 mL でコンディショニングし, アンモニア水で中和した 10 mmol/L 硝酸で希釈し 0.5 µg/mL とした添加用混合標準液 3 mL を通液することによる共洗い後, 同標準液を 5 mL 通液した。

検討 1.2 精製効果の確認

検討 1.1 にて選定した固相カラムについて, 測定に影響を与えるマトリクス成分を保持させ, 測定対象の有機ヒ素化合物を保持させずに通過させる精製方法を検討した。

標準液による固相カラムの選定と同様の方法でコンディショニングした固相カラムに, ハマチを試料として調製した測定溶液に測定対象の有機ヒ素化合物が各 100ng/mL となるように添加用混合標準液を添加した溶液を 2 mL ずつ計 10 mL 通液し分画した。採取した画分のうち, 有機ヒ素化合物の測定濃度がほぼ一定となった画分を平衡に達したとみなし, その濃度と理論濃度との比を求めた。

なお, 本検討における測定溶液の調製では, 試料に添加する硝酸溶液の濃度を 0.5mol/L とし, 水飽和ヘキサンによる脱脂を行わず, メンブランフィルターによるろ過を行う直前の希釈倍率を 10 倍とした。検量線用標準液は, 標準液希釈用試液ではなく水で希釈して調製した。コンディショ

ニング時に 10 mmol/L 硝酸により酸性とした HLB, C18 については, アンモニアによる中和処理を行わずに調製した測定溶液を通液した.

また, 固相カラムとは別の精製方法として, ヘキサンによる脱脂の精製効果を確認するため, 測定溶液調製において水飽和ヘキサンによる脱脂を行った場合についても, 同様に測定濃度と理論濃度との比を求めた.

検討 2 硝酸濃度の検討

ハマチを基材とした添加試料の回収率を指標とし, 抽出に用いる硝酸溶液の至適濃度を確認した. 有機ヒ素化合物の添加濃度は 5.0 mg/kg とし, 添加用混合標準液を添加後 30 分間経過してから抽出操作を開始した. 比較する硝酸溶液の濃度は 0.30, 0.50, 1.0, 3.0, 5.0 mol/L の 5 段階とした.

なお, 検量線用標準液は標準液希釈用試液ではなく水で希釈して調製した.

検討 3 標準液希釈方法の検討

検量線用標準液について, 水で希釈して調製した場合と, 標準液希釈用試液で希釈して調製した場合とでそれぞれ検量線を作成し, 硝酸濃度の検討において測定した添加試料の回収率を比較した.

定量下限値の推定

MMA は 1 ng/mL の標準液を, DMA, AC は 0.1 ng/mL の標準液を, TMAO, TeMA, AB は 0.05 ng/mL の標準液をそれぞれ 10

回繰り返し測定し, 求めた濃度の標準偏差の 10 倍を試料濃度換算することにより推定した.

実試料と添加試料の分析

7 種類の試料 (ハマチ, マアジ, マダイ, ウマヅラハギ, メバル, イサキ, スルメイカ) について有機ヒ素化合物濃度を定量した.

また, これらの試料について添加試料を調製して測定し, 回収率を求めた. 添加濃度は 5.0 mg/kg とし, 添加用混合標準液を添加後 30 分間経過してから抽出操作を開始した.

なお, 希釈倍率による回収率の差を確認するため, メンブランフィルターによるろ過を行う直前の希釈倍率を 10 倍とした測定溶液についても併せて測定した. 定量には, 10 倍に濃縮した標準液希釈用試液で希釈して調製した検量線用標準液を測定し, その結果から作成した検量線を使用した.

C.D. 研究結果及び考察

C.D. 1 精製方法の検討

C.D. 1.1 固相カラムの選定

採取した画分を測定して得られた有機ヒ素化合物の回収量からその画分までの累計回収率を求め, 図 2~14 に示した. なお, IC-ME, IC-MC, IC-MA については分画していないため 1 点のみのプロットとした.

MC-1 (図 4), SCX (図 5), WCX (図 7), PSA (図 8), MA-1 (図 9), SAX (図 11), IC-MC (図 13) については有機ヒ素化合

物 6 種のうち保持されたまま十分に溶出されない化合物が 1 つまたは複数あったことから、有機化合物の精製には適当ではないと判断した。

溶出が不十分だった化合物について、図 15 に示す各化合物の構造から、固相カラムへの保持の挙動を推察した。MC-1, SCX は陽イオン交換作用が強い固相カラムであることから、陽イオンである TeMA, AC の 2 種のイオンが強固に保持されたと推察された。比較的弱い陽イオン交換型の固相カラムである WCX についても、TeMA, AC の回収率は他の化合物に比べて低かった。陽イオン除去型固相カラムである IC-MC については TeMA, AC に加え TMAO の回収率が低かった。TMAO はプロトンが付加しやすい構造であることから、陽イオンとなって強固に保持されたと推察された。

また、MA-1, SAX は陰イオン交換作用が強い固相カラムであることから、陰イオンになりやすい構造である MMA や DMA が強固に保持されたと推察された。比較的弱い陰イオン交換型の固相カラムである PSA についても、MMA の回収率は他の化合物に比べて低かった。

HLB (図 2), C18 (図 3), MA-2 (図 10), WAX (図 6), IC-ME (図 12), IC-MA (図 14) については、測定対象化合物すべてがほとんど保持されずに通過することが確認されたため、これら 6 種の固相カラムを選定し検討を続けることとした。

C.D. 1. 2 精製効果の確認

選定した 6 種の固相カラム (HLB, C18, WAX, MA-2, IC-ME, IC-MA) について、精製効果を表 5 に示した。精製を行わない場合は、DMA, TMAO, AB における測定濃度と理論濃度との比がそれぞれ 77%, 76%, 121%であり、マトリクスの影響が比較的大きかった。DMA と TMAO の測定に対するマトリクスの影響はいずれの精製方法によっても低減されなかったが、AB における測定濃度と理論濃度との比はヘキサンによる脱脂で 101%となり、マトリクスの影響が低減されていた。これらの結果から、精製効果が比較的高かったヘキサンによる脱脂を測定溶液調製の操作に追加することとした。

C.D. 2 硝酸濃度の検討

各硝酸濃度における添加試料の回収率を表 6 に示した。硝酸溶液の濃度が高いほど、回収率が増加する傾向があったが、5.0 mol/L の硝酸では、加熱中に硝酸溶液が容器から吹き出すことがあったため、抽出に用いる硝酸濃度は 3.0 mol/L とした。

C.D. 3 標準液調製方法の検討

標準液希釈方法と添加試料からの回収率の関係を表 7 に示した。水で希釈して調製した標準液を使用した場合と比べ、標準液希釈用試液で希釈して調製した標準液を使用して定量した場合は、TeMA の回収率が 120%から 97%になるなど、MMA を除く 5 化合物の回収率が 100%に近づいた。これは、検量線用標準液の溶媒の成分が測定溶液の溶媒と近似した成分になったこ

とで、LC-MS/MS のイオン化部におけるイオン化効率の差が小さくなったためと推察される。

C.D.4 定量下限値の推定

標準液の繰り返し測定の結果から推定された定量下限値は、表 8 に示すとおり 0.01~0.5 mg/kg であった。

C.D.5 実試料と添加試料の分析

試料中の有機ヒ素化合物濃度を表 9 に、添加試料の回収率を表 10 に、クロマトグラムの例を図 16 に示した。7 種類すべての試料から AB が 4.3~16 mg/kg, AC が 0.06~0.23 mg/kg 検出された。また、マダイとイサキから DMA がそれぞれ 0.1 mg/kg, メバルから TeMA が 0.35 mg/kg 検出された。

添加試料の回収率は、一部を除いて 70~120%の範囲内であった(表 10)。スルメイカに添加した DMA と TMAO の回収率がそれぞれ 69%, 53%と低く、イサキに添加した AB の回収率が 138%と高かった。

AB は、他の有機ヒ素化合物と比べて試料中の濃度が高く、添加試料の添加濃度と同程度かそれ以上であった。測定において、試料濃度由来の AB の信号が添加濃度由来の信号に与える影響が大きく、回収率の算出に誤差を与える可能性がある。より高濃度になるよう添加した試料を用いるか、認証試料を用いて性能を確認する必要があると考える。

測定溶液の調製時に希釈倍率を下げることで、さらに低濃度まで定量可能にな

ることを期待し、希釈倍率を 100 倍から 10 倍に変更して調製した添加試料について回収率を求めた(表 11)。希釈倍率 100 倍の場合と比べ、AB を除く化合物の回収率が低く、DMA, TMAO については 7 種類すべての試料の回収率が 70%未満であり、正確な定量のためには 10 倍希釈では不十分であると考えられた。

E. 結論

魚介類を対象とした LC-MS/MS による有機ヒ素化合物 6 種の測定のための抽出方法及び精製方法を検討し、分析条件を決定した。また、決定した分析条件により 7 種類の魚介類中の有機ヒ素化合物濃度を分析し、それらを基材とした添加試料の分析を通じて分析法の性能を評価した。

表1 LC-MS/MS法のグラジエント条件

時間 (min)	A (%)	B (%)
0	100	0
4	100	0
10	10	90
15	10	90

表2 イオン源のパラメータ

CUR (psi)	CAD (-)	IS (V)	TEM (°C)	GS1 (psi)	GS2 (psi)
10	8	5500	700	70	80

※表中の略称は次の内容を示す
 CUR: コリジョンガスの圧力, IS: イオンスプレー電圧, TEM: イオン源温度,
 GS1: イオン源ガス1の圧力, GS2: イオン源ガス2の圧力

表3 分析対象化合物の測定条件

分析対象 化合物	Q1 (m/z)	Q3 (m/z)	DP (V)	CE (eV)
MMA	140.9	90.8	51	31
DMA	139.0	91.0	26	29
TMAO	136.9	107.0	56	31
TeMA	135.0	104.9	31	33
AB	179.0	120.0	61	27
AC	165.0	121.0	31	25

※表中の略称は次の内容を示す
 Q1: プリカーサイオンのm/z, Q3: プロダクトイオンのm/z,
 DP: オリフィスプレート電圧, CE: コリジョンエネルギー

表4 固相カラムの選定における試薬通液量

	HLB	C18	MC-1	SCX	WAX	WCX	PSA	MA-1	MA-2	SAX	IC-ME	IC-MC	IC-MA
コンディ ショニング	メタノール 5 mL				メタノール 5 mL			メタノール 5 mL			水 10 mL		
	水 5 mL				水 5 mL			1N NaOH 5 mL			標準溶液 3 mL (共洗い)		
	10 mmol/L硝酸 5 mL				-			水 100 mL			-		
通液した 標準溶液	有機ヒ素6種混合 0.5 µg/mL in 10 mmol/L硝酸				有機ヒ素6種混合 0.5 µg/mL in 10 mmol/L硝酸 (アンモニア水で中和)								
試薬 通液量	1	標準溶液 10 mL		標準溶液 10 mL		標準溶液 10 mL		標準溶液 10 mL		標準溶液 5 mL			
	2	標準溶液 10 mL		標準溶液 10 mL		標準溶液 10 mL		標準溶液 10 mL					
	3	10 mmol/L硝酸 2 mL		10 mmol/L硝酸 2 mL		水 2 mL		水 2 mL					
	4	10 mmol/L硝酸 2 mL		10 mmol/L硝酸 2 mL		水 2 mL		水 2 mL					
	5	10 mmol/L硝酸 2 mL		10 mmol/L硝酸 2 mL		水 2 mL		水 2 mL					
	6	10 mmol/L硝酸 2 mL		10 mmol/L硝酸 2 mL		水 2 mL		水 2 mL					
	7	10 mmol/L硝酸 2 mL		10 mmol/L硝酸 2 mL		水 2 mL		水 2 mL					
	8	10 mmol/L硝酸 10 mL		3%アンモニア水 2 mL		水 10 mL		10 mmol/L硝酸 2 mL					
	9	10 mmol/L硝酸 10 mL		3%アンモニア水 2 mL		水 10 mL		10 mmol/L硝酸 2 mL					
	10	メタノール 10 mL		3%アンモニア水 2 mL		メタノール 10 mL		10 mmol/L硝酸 2 mL					
	11	メタノール 10 mL		3%アンモニア水 2 mL		メタノール 10 mL		10 mmol/L硝酸 2 mL					
	12	-		3%アンモニア水 2 mL		-		10 mmol/L硝酸 2 mL					
	13	-		3%アンモニア水 10 mL		-		10 mmol/L硝酸 10 mL					

表5 精製によるマトリクスの影響の変化

精製方法	採取画分 (mL)	MMA (%)	DMA (%)	TMAO (%)	TeMA (%)	AB (%)	AC (%)
精製なし	-	100	77	76	116	121	108
HLB	4~6	97	69	74	106	119	109
C18	0~2	100	72	72	105	115	103
WAX	2~4	79	69	72	99	118	100
MA-2	6~8	57	65	68	108	107	108
IC-ME	0~2	84	67	59	105	105	100
IC-MA	0~2	92	70	64	108	104	98
ヘキサン脱脂	-	97	66	77	109	101	105

表6 硝酸濃度ごとの回収率

硝酸濃度 (mol/L)	MMA (%)	DMA (%)	TMAO (%)	TeMA (%)	AB (%)	AC (%)
0.30	36	49	37	106	72	91
0.50	53	58	42	107	80	95
1.0	89	69	74	121	85	108
3.0	96	75	79	120	86	110
5.0	120	69	87	138	102	124

10

表7 標準溶液希釈方法と添加試料からの回収率の関係

標準溶液希釈方法	MMA (%)	DMA (%)	TMAO (%)	TeMA (%)	AB (%)	AC (%)
水	96	75	79	120	86	110
標準液希釈用試液	107	79	90	97	98	103

表8 機器の定量下限値の推定

	MMA	DMA	TMAO	TeMA	AB	AC
標準溶液濃度 (ng/mL)	1	0.1	0.05	0.05	0.05	0.1
1回目	1.0	0.10	0.059	0.062	0.049	0.071
2回目	0.94	0.13	0.060	0.059	0.051	0.074
3回目	0.99	0.10	0.061	0.063	0.052	0.061
4回目	0.98	0.093	0.061	0.058	0.051	0.066
5回目	0.88	0.11	0.056	0.063	0.049	0.066
6回目	0.99	0.11	0.054	0.061	0.052	0.068
7回目	0.85	0.11	0.057	0.062	0.050	0.068
8回目	0.99	0.12	0.063	0.062	0.051	0.067
9回目	0.94	0.094	0.059	0.066	0.051	0.067
10回目	0.95	0.14	0.055	0.059	0.052	0.070
標準偏差	0.05	0.01	0.003	0.002	0.001	0.004
機器の 定量下限値 (ng/mL)	0.5	0.1	0.03	0.02	0.01	0.04
分析法の 定量下限値 (mg/kg)	0.5	0.1	0.03	0.02	0.01	0.04

11

19

表9 魚介類中の有機ヒ素化合物濃度

	MMA (mg/kg)	DMA (mg/kg)	TMAO (mg/kg)	TeMA (mg/kg)	AB (mg/kg)	AC (mg/kg)
ハマチ	(-)	(-)	(-)	(-)	4.3	0.23
マアジ	(-)	(-)	(-)	(-)	8.0	0.19
マダイ	(-)	0.1	(-)	(-)	6.7	0.18
ウマツラハギ	(-)	(-)	(-)	(-)	10	0.11
メバル	(-)	(-)	(-)	0.35	6.3	0.06
イサキ	(-)	0.1	(-)	(-)	13	0.21
スルメイカ	(-)	(-)	(-)	(-)	16	0.13

(-); 定量下限値未満

表10 魚介類への添加試験回収率 (100倍希釈)

	MMA (%)	DMA (%)	TMAO (%)	TeMA (%)	AB (%)	AC (%)
ハマチ	107	79	90	97	98	103
マアジ	99	75	88	94	81	100
マダイ	101	74	88	99	93	104
ウマツラハギ	99	84	83	93	73	96
メバル	100	79	84	98	101	102
イサキ	96	78	88	98	138	104
スルメイカ	86	69	53	96	91	101

12

表11 魚介類への添加試験回収率 (10倍希釈)

	MMA (%)	DMA (%)	TMAO (%)	TeMA (%)	AB (%)	AC (%)
ハマチ	87	31	64	78	123	89
マアジ	74	31	54	77	100	87
マダイ	74	31	46	76	96	88
ウマツラハギ	83	38	45	77	99	88
メバル	85	39	42	81	124	90
イサキ	76	33	56	78	140	89
スルメイカ	69	30	14	83	107	94

13

20

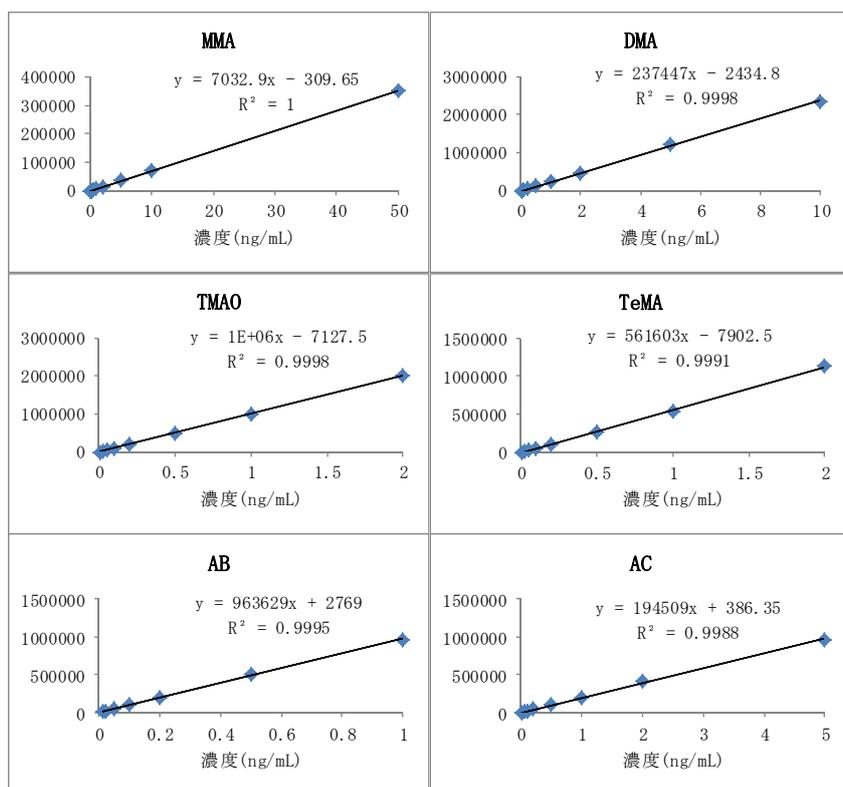


図1 有機ヒ素化合物の検量線

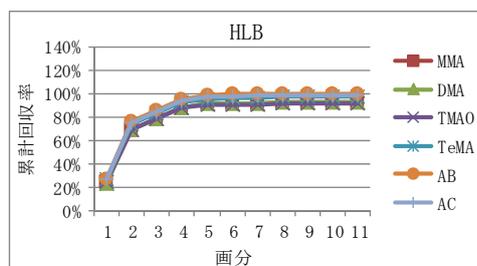


図2 HLBにおける画分ごとの累計回収率

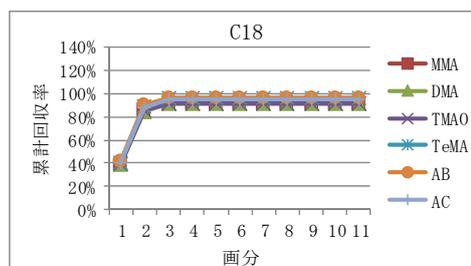


図3 C18における画分ごとの累計回収率

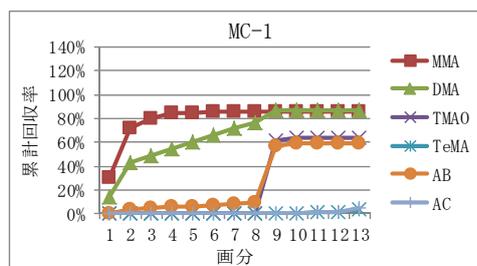


図4 MC-1における画分ごとの累計回収率

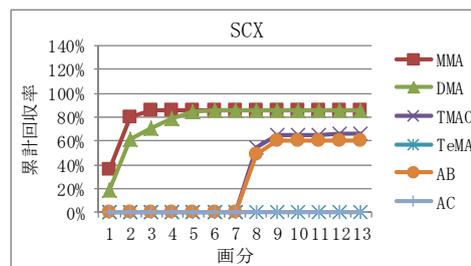


図5 SCXにおける画分ごとの累計回収率

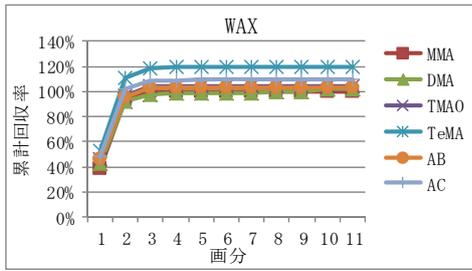


図6 WAXにおける画分ごとの累計回収率

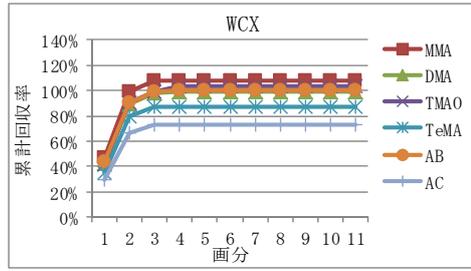


図7 WCXにおける画分ごとの累計回収率

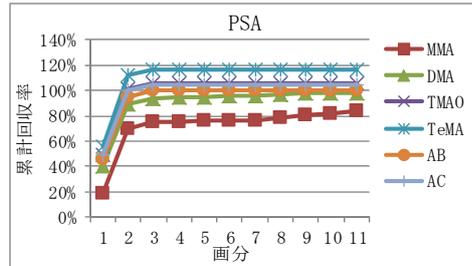


図8 PSAにおける画分ごとの累計回収率

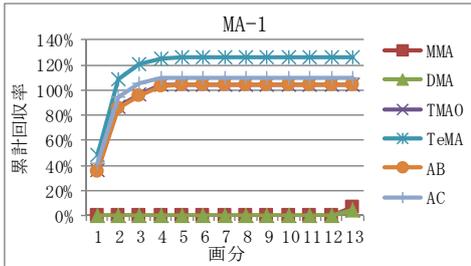


図9 MA-1における画分ごとの累計回収率

16

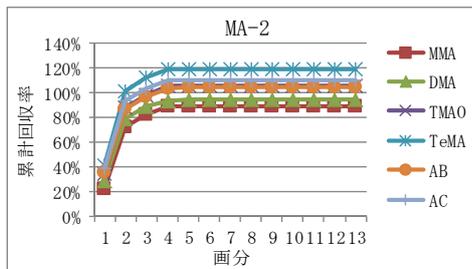


図10 MA-2における画分ごとの累計回収率

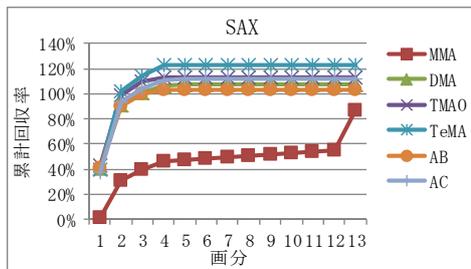


図11 SAXにおける画分ごとの累計回収率

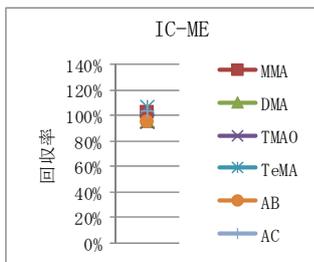


図12 IC-MEにおける回収率

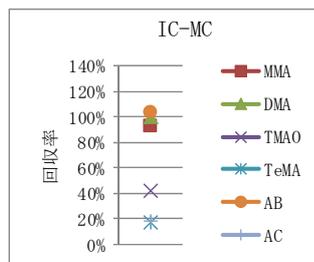


図13 IC-MCにおける回収率

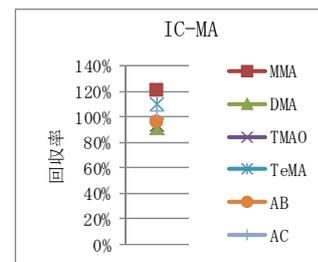


図14 IC-MAにおける回収率

17

22

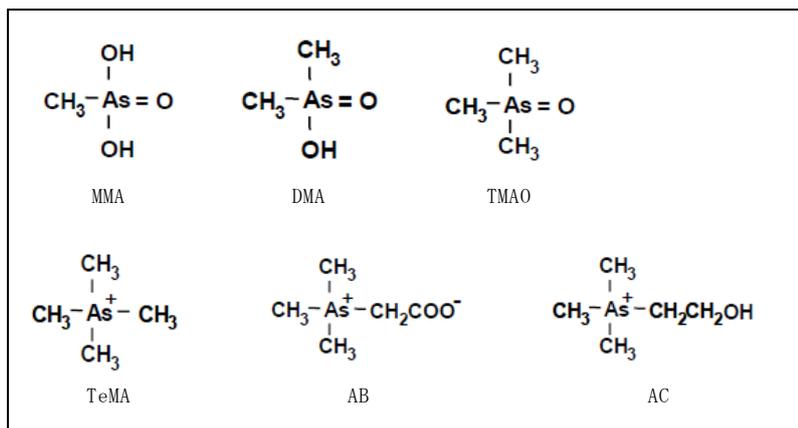


図15 測定対象の有機ヒ素化合物の構造

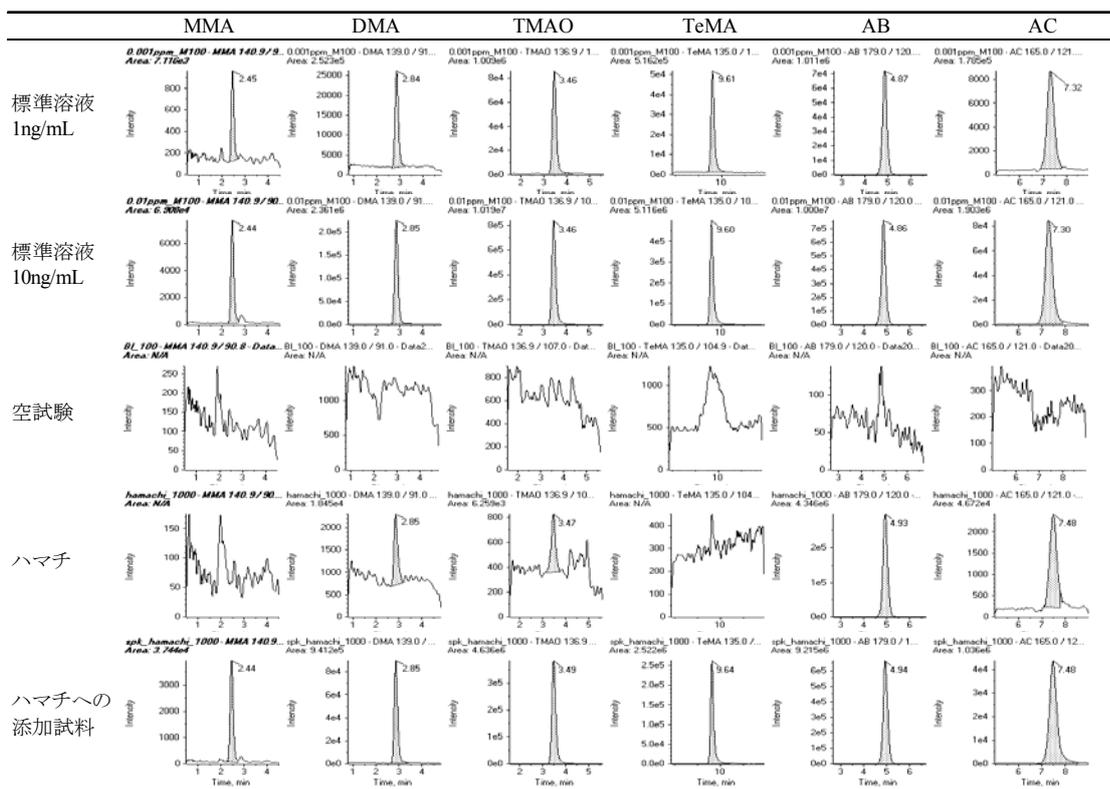


図16 クロマトグラムの例

調査研究実施計画書

		分類	M, P
タイトル	PM2.5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(Ⅱ型共同研究) (予算要求額 千円(経常は除く, 詳細は別紙))		
担当課・ 担当者氏名	環境科学課 大気担当 : 中島亜矢子, 宇野映介, 藤瀬朋子		
調査研究期間	平成28年度 ~ 平成30年度		
目的及び必要性	平成24年度以降の常時監視, 国立環境研究所と地方環境研究所との共同研究による高濃度事例の解析などの積み重ねによるPM2.5の汚染事象の解明により, 広域的汚染, 地域的汚染があることがわかってきた。高濃度事例においてどちらが支配的であるかは検討の必要がある。また瀬戸内海等の閉鎖性水域では年平均が高いという事象等その理由が明らかでないものもある。 この研究では全国各地域における地域的・地理的ファクターに着目し, 広域的/地域的高濃度メカニズムを解析することにより, 短期的/長期的PM2.5環境基準達成の知見を得る。		
概要	当研究所で担当する調査 1 汚染要因解析グループ PM2.5の高濃度事例が予測される日に, グループに属する研究所が1日の成分分析サンプリングを一齐に行う。参加機関の複数の地点で高濃度になった場合に分析を実施する。高濃度汚染の要因を分担して解析し, 共同でまとめる。		
年次計画	平成28年度	平成29年度	平成30年度
	実行計画作成		
	PM2.5高濃度時の成分分析, 必要なデータの収集		
	解析期間の選定, 要因解析		
			まとめ
期待される成果	<ul style="list-style-type: none"> 事例を分担して解析することにより, 一機関の負担が少なくなる。 国内で観測された高濃度事例(他都市のデータを含めた)を解析したデータセットが揃う。 高濃度事例の解析結果を行政にフィードバックできる。(常時監視のデータとあわせて, 年度の特徴を説明できる。) 		
備考	国立環境研究所, 全国環境研究所(55機関)とのⅡ型共同研究である。		

(注1) 分類は別途定める調査研究の体系図に基づく分類記号(A, B, C・・・)

(注2) タイトルは, 対外的にわかりやすいものにし, 専門用語等を使う場合はサブタイトルをつけること。

(注3) 関係部局及び共同研究者については, 備考に記載すること。

調査研究最終報告書

		分類	M, P
タイトル	PM2.5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(Ⅱ型共同研究) (予算額 千円(経常は除く))		
担当課・ 担当者氏名	環境科学課 大気担当 : 松本弘子, 宇野映介, 藤瀬朋子		
調査研究期間	平成28年度 ~ 平成30年度		
目的及び必要性	<p>平成24年度以降の常時監視, 国立環境研究所と地方環境研究所との共同研究による高濃度事例の解析などの積み重ねによるPM2.5の汚染事象の解明により, 広域的汚染, 地域的汚染があることがわかってきた。高濃度事例においてどちらが支配的であるかは検討の必要がある。また瀬戸内海等の閉鎖性水域では年平均が高いという事象等その理由が明らかでないものもある。</p> <p>この研究では全国各地域における地域的・地理的ファクターに着目し, 広域的/地域的高濃度メカニズムを解析することにより, 短期的/長期的PM2.5環境基準達成の知見を得る。</p>		
結果の概要	<p>本市が参加した高濃度事例解析グループでは, PM2.5の高濃度予測情報をもとに参加機関共同でPM2.5の採取および成分分析を実施した。本グループの総括は以下のとおりである。</p> <ul style="list-style-type: none"> ・1局あたりの高濃度出現日数が年々減少し, 2016年度以降は3日以下あった ・全国で100局以上が高濃度となる広域的な高濃度日が激減した ・高濃度となった主な要因は4~5月は黄砂, 11~12月はOCが寄与した地域汚染または地域汚染と越境汚染の複合, 3月は越境汚染と地域汚染の複合であった ・森林火災等のバイオマス燃焼による越境汚染が, 主に北日本で観測された <p>なお, 本市が報告書の執筆を担当した2016年10月下旬の高濃度事例について, 全国的には越境汚染と地域汚染の複合であるとしているが, 福岡に関しては他の地域に比べてより越境汚染の影響を受けていると考えられた。</p>		
成 果	高濃度時サンプリングの実施及び成分分析結果の報告(H28年度6日, H29年度3日, 平成30年度9日) 第6期報告書「高濃度事例(2016年10月上旬, 下旬)」を執筆		
備 考 (今後の予定等)	第7期Ⅱ型共同研究「光化学オキシダントおよびPM2.5汚染の地域的・気象的要因の解明」(2019-2021年)に参加		

添付書類: 発表論文, 投稿資料, その他の資料等

(注) 分類は別途定める調査研究の体系図に基づく分類記号(A, B, C・・・)

2015年10月上旬

福岡市 松本 弘子

【はじめに】

2015年10月8日から12日に四国から関東にかけてPM_{2.5}の高濃度事象が観測された。PM_{2.5}の同時観測で得られた成分分析結果から、これらの高濃度事例の要因について解析を行った。

【地点】

観音寺、桜井、神戸、四日市、名古屋、射水、前橋、加須

【結果と考察】

10月8日から12日までのPM_{2.5}質量濃度、SO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺、OC、EC濃度の推移を図1に示す。

10月8日～12日のPM_{2.5}質量濃度は、10月9日に桜井(31.7 μg/m³)、名古屋(33.6 μg/m³)、10日に観音寺(40.9 μg/m³)、神戸(32.1 μg/m³)、前橋(31.9 μg/m³)、加須では10日(39.4 μg/m³)から11日(41.1 μg/m³)にかけて高濃度が観測された。SO₄²⁻濃度は9日に桜井(10 μg/m³)、名古屋(11.7 μg/m³)で最高値を示していた。NO₃⁻濃度は前橋では10日(4.5 μg/m³)に最高値となり、加須では10日(4.1 μg/m³)から11日(7.4 μg/m³)にかけて高い値を示していた。EC濃度は名古屋では9日(2.1 μg/m³)に最高値を示し、加須では10日(3.5 μg/m³)から11日(3.3 μg/m³)にかけて高い値を示した。

10月9日～11日における桜井、名古屋、前橋、加須のPM_{2.5}質量濃度及び各成分濃度の相関を図2に示す。桜井と名古屋では、PM_{2.5}質量濃度はSO₄²⁻、NO₃⁻、OC、EC濃度のいずれとも相関が高く、前橋と加須では、PM_{2.5}質量濃度はNO₃⁻、OC、EC濃度と高い相関を示した。10月9日～11日の硫酸塩分布推定(CFORS¹)及び後方流跡線解析²⁾(図3)からは、越境汚染、地域汚染のいずれも可能性が示唆された。

以上のことから、2015年10月8日～12日の高濃度事例については、越境汚染、地域汚染の複合汚染の地域と、地域汚染の影響がより大きい地域が混在している可能性があるかと推察された。

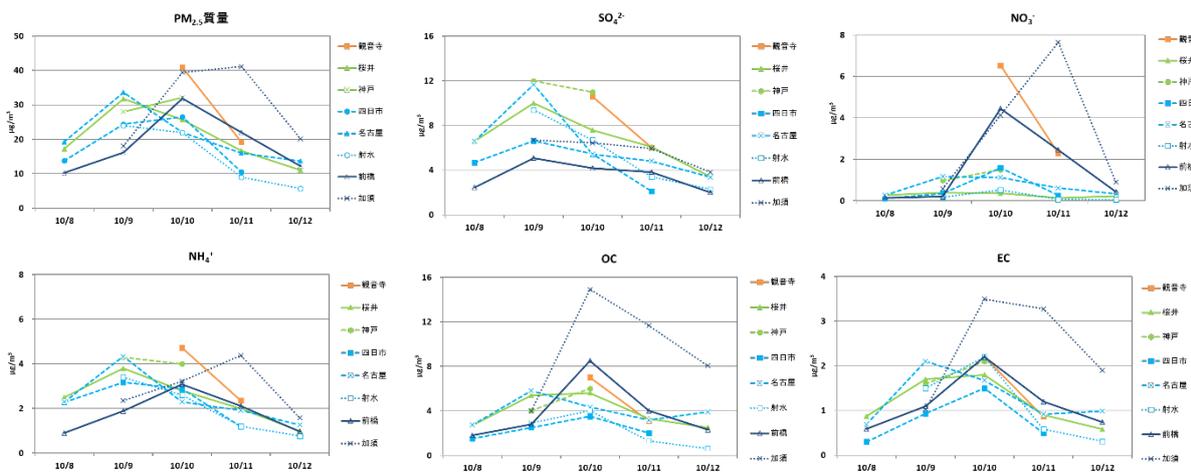


図1 2015年10月8日～12日のPM_{2.5}質量濃度、SO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺、OC、EC濃度の推移

桜井	PM _{2.5}	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	OC	EC
PM _{2.5}	1				
SO ₄ ²⁻	0.982	1			
NO ₃ ⁻	0.866	0.758	1		
OC	0.946	0.891	0.886	1	
EC	0.942	0.886	0.881	1.000	1

名古屋	PM _{2.5}	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	OC	EC
PM _{2.5}	1				
SO ₄ ²⁻	0.976	1			
NO ₃ ⁻	0.860	0.753	1		
OC	0.929	0.891	0.711	1	
EC	0.957	0.873	0.910	0.936	1

前橋	PM _{2.5}	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	OC	EC
PM _{2.5}	1				
SO ₄ ²⁻	0.415	1			
NO ₃ ⁻	0.969	0.189	1		
OC	0.972	0.299	0.952	1	
EC	0.973	0.450	0.913	0.986	1

加須	PM _{2.5}	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	OC	EC
PM _{2.5}	1				
SO ₄ ²⁻	0.343	1			
NO ₃ ⁻	0.924	0.272	1		
OC	0.896	0.094	0.695	1	
EC	0.962	0.132	0.834	0.976	1

図2 2015年10月9日～11日のPM_{2.5}質量濃度及び各成分濃度の相関（桜井、名古屋、前橋、加須）

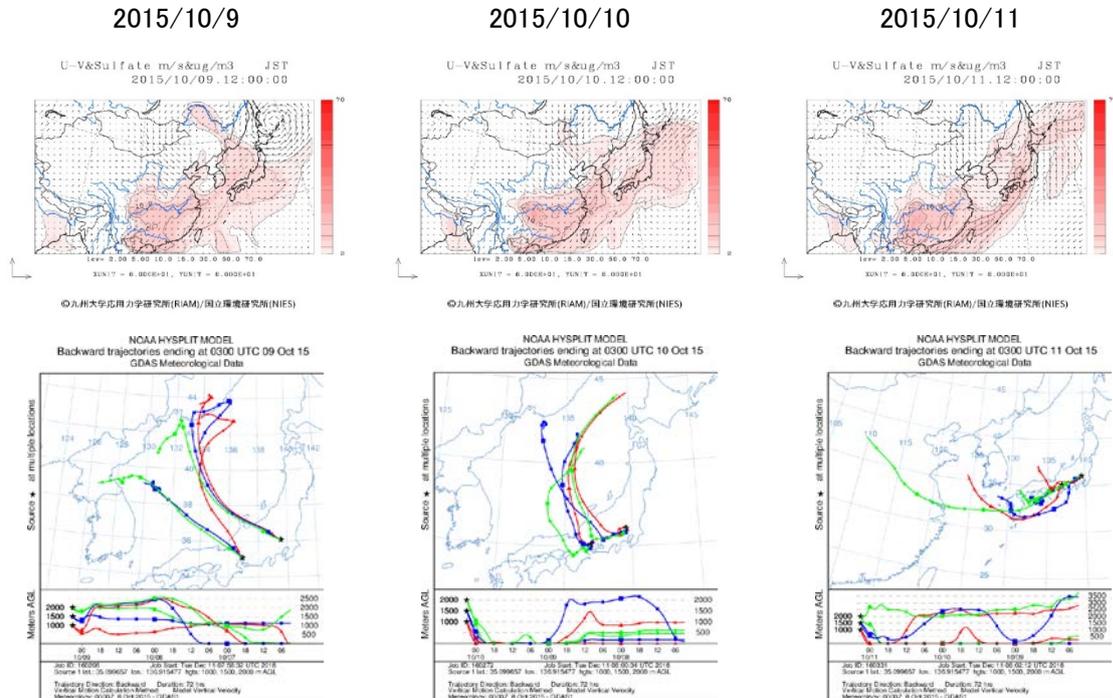


図3 2015年10月9日～11日の硫酸塩分布推定（CFORS）及び後方流跡線（起点：1000 m・1500 m・2000 m、72時間遡及、名古屋、加須）

- 1) CFORS ; <http://www-cfors.nies.go.jp/~cfors/index-j.html>
- 2) NOAA ; <http://www.ready.noaa.gov/HYSPLIT.php>

2015年10月下旬

福岡市 松本 弘子

【はじめに】

2015年10月20日から28日に九州、四国、中部にかけて、PM_{2.5}の高濃度事象が観測された。PM_{2.5}の同時観測で得られた成分分析結果から、これらの高濃度事例の要因について解析を行った。

【地点】

福岡、観音寺、天理、神戸、四日市、大府、名古屋、白山、射水、長野、前橋、加須、村山、石巻

【結果と考察】

10月20日から28日までのPM_{2.5}質量濃度、SO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺、OC、EC、V濃度の推移を図1に示す。

10月20日～28日のPM_{2.5}質量濃度は、福岡では10月21日～24日に高濃度が継続して観測された(最大値44.6 μg/m³)。また観音寺でも22日と24日に35 μg/m³超の高濃度が観測された。10月21日～24日の期間、SO₄²⁻濃度は福岡、観音寺とも比較的高くPM_{2.5}質量濃度と似た動きをしているが、NO₃濃度の顕著な増加は見られなかった。

10月21日～24日における福岡、観音寺、名古屋、加須のPM_{2.5}質量濃度及び各成分濃度の相関を図2に示す。福岡と観音寺では、PM_{2.5}質量濃度はSO₄²⁻濃度と相関が高く、NO₃濃度との相関は低かった。名古屋、加須ではPM_{2.5}質量濃度はSO₄²⁻、NO₃濃度ともに高い相関を示した。10月21日～24日の硫酸塩分布推定(CFORS¹⁾)及び後方流跡線解析²⁾(図3)からは、福岡における越境汚染の影響が示唆された。

10月20日～24日の福岡、観音寺、名古屋におけるV/Mn比、Pb/Zn比を図4に示す。福岡ではV/Mn比、Pb/Zn比のいずれも他の2地点より値が高く、石油燃焼の影響や越境汚染の影響が大きいことが示唆された。

以上のことから、2015年10月20日～28日の高濃度事例のうち10月20日～24日については、程度の差はあるが全体的に濃度上昇がみられ、越境汚染の影響に加えて地域ごとに様々な要因が関わっていると推察された。

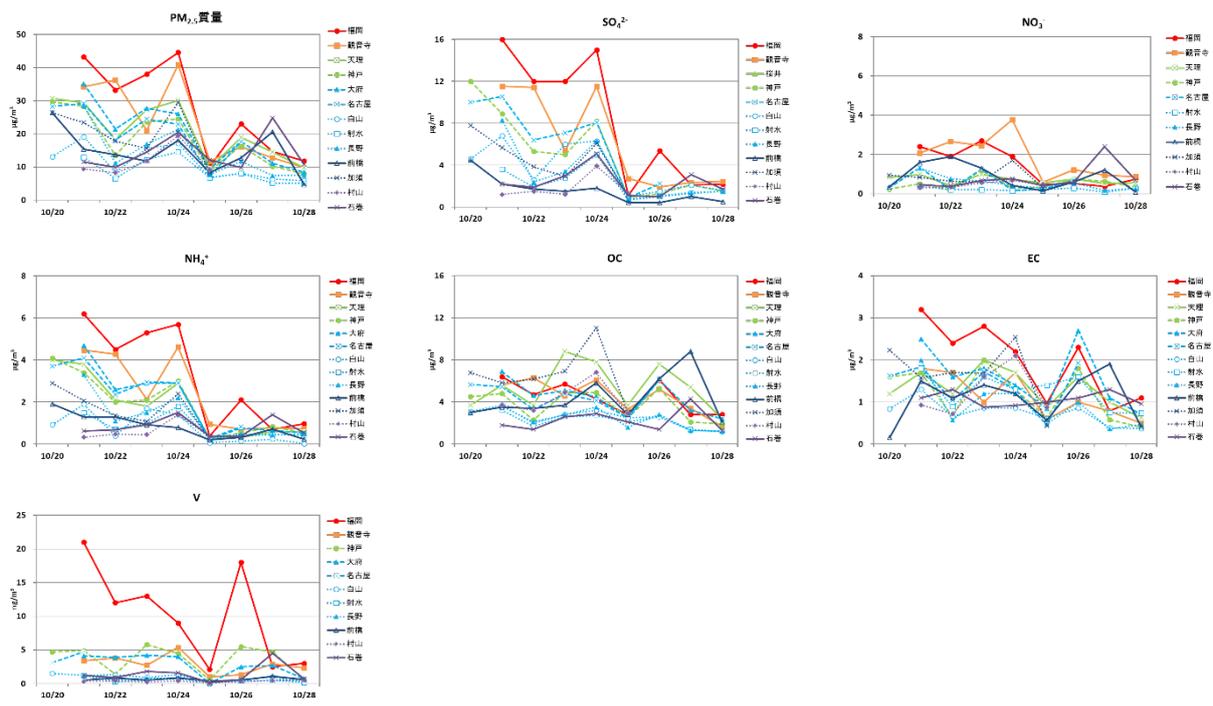


図1 2015年10月20日～28日のPM_{2.5}質量濃度、SO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺、EC、OC、V濃度の推移

福岡	PM _{2.5}	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	OC	EC
PM _{2.5}	1				
SO ₄ ²⁻	0.883	1			
NO ₃ ⁻	0.055	-0.113	1		
OC	0.153	0.267	0.799	1	
EC	0.165	0.310	0.752	0.997	1

観音寺	PM _{2.5}	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	OC	EC
PM _{2.5}	1				
SO ₄ ²⁻	0.946	1			
NO ₃ ⁻	0.567	0.269	1		
OC	0.937	0.917	0.456	1	
EC	0.907	0.993	0.173	0.867	1

名古屋	PM _{2.5}	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	OC	EC
PM _{2.5}	1				
SO ₄ ²⁻	0.891	1			
NO ₃ ⁻	0.813	0.531	1		
OC	0.987	0.815	0.892	1	
EC	0.932	0.676	0.953	0.977	1

加須	PM _{2.5}	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	OC	EC
PM _{2.5}	1				
SO ₄ ²⁻	0.951	1			
NO ₃ ⁻	0.938	0.785	1		
OC	0.743	0.499	0.928	1	
EC	0.782	0.556	0.947	0.990	1

図2 2015年10月21日～24日のPM_{2.5}質量濃度及び各成分濃度の相関(福岡、観音寺、名古屋、加須)

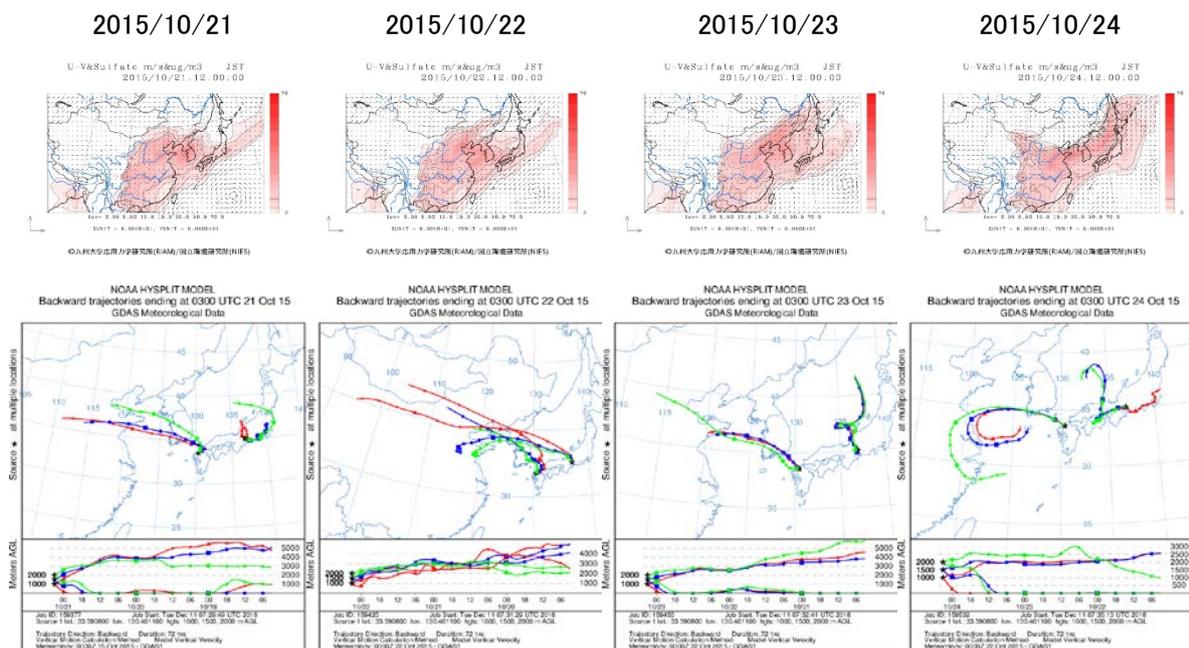


図3 2015年10月21日～24日の硫酸塩分布推定（CFORS）及び後方流跡線
 （起点：1000 m・1500 m・2000 m、72時間遡及、福岡・名古屋）

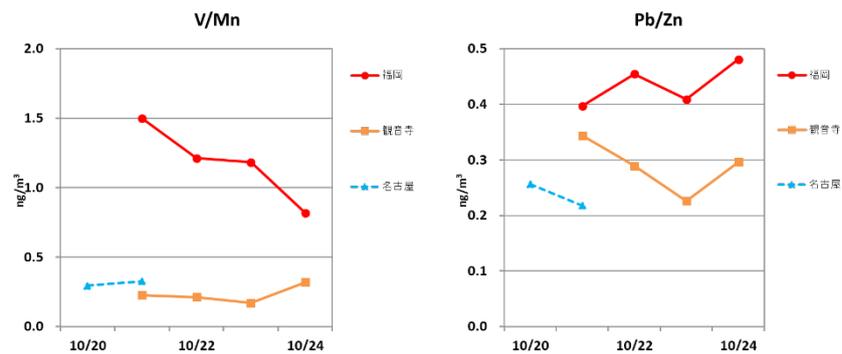


図4 2015年10月20日～24日のV/Mn比、Pb/Zn比（福岡、観音寺、名古屋）

- 1) CFORS ; <http://www-cfors.nies.go.jp/~cfors/index-j.html>
- 2) NOAA ; <http://www.ready.noaa.gov/HYSPLIT.php>

調査研究実施計画書

		分類	L, P	
タイトル	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)			
担当課・ 担当者氏名	環境科学課環境水質担当:田辺 智子, 山下 紗矢香, 高村 範亮			
調査研究期間	平成 28年度 ~ 平成 30年度			
目的及び必要性	<p>これまで先行研究として「国内における化審法関連物質の排出源及び動態の解明」を実施してきたが、リン酸エステル系難燃剤や、ネオニコチノイド系農薬による環境汚染の報告事例が増加しているため、今回の調査では上記2物質群の環境実態や排出源の解明を全国規模で行う。福岡市では調査に必要な情報収集や分析等を行う。</p> <p>また、国内における未解明の汚染化学物質に関して、ノンターゲット分析を通じたスクリーニングを行い優先的に調査すべき物質を選定し環境実態調査やリスク評価を目指す。</p>			
概要	<p>1. リン酸エステル系難燃剤, ネオニコチノイド系農薬の環境実態把握 分析方法の開発を進め, 実態把握を実施する。特に濃度が高い等の特徴がある物質については, 重点的に調査を進める。濃度の高い地域に関しては排出源を把握し, 排出源近傍での濃度を算出するとともに周辺地域での分布調査も進める。排出源近傍におけるデータを取りまとめるとともに物性から移行しやすい媒体を対象に実態調査を進め, 環境中での動態を把握する。 福岡市は分析の検討や試料採取など可能なものについて参加し, 情報共有を行う。</p> <p>2. ノンターゲット分析を通じた地域別要調査物質のスクリーニング 東京都等5機関共同で進めている「多種・新規化学物質の網羅的モニタリングと地域ネットワークを活用した統合的評価・管理手法の開発」の情報を共有し, 測定条件や測定対象地点を選定してLC-QTOFMS, GCMSを用いたノンターゲット分析を実施し, それぞれの地点における要調査物質を選定する。選定した要調査物質について, 汚染実態調査, 排出源解明を進める。 福岡市は試料採取など可能なものについて参加し, 情報共有を行う。</p>			
年次計画	28年度	29年度	30年度	年度
	環境実態詳細調査			
	共同研究			
期待される成果	<ul style="list-style-type: none"> ・難分解性の化学物質について, 環境中の存在実態が分かる。 ・全国的なデータ比較ができる。 ・他の研究所との情報共有, 分析技術の向上が期待できる。 			
備考	国立環境研究所によるⅡ型共同研究(全24機関)			

(注1) 分類は別途定める調査研究の体系図に基づく分類記号(A, B, C・・・)

(注2) タイトルは, 対外的にわかりやすいものにし, 専門用語等を使う場合はサブタイトルをつけること。

(注3) 期待される成果については, 行政施策への提言・反映目標及び市民への還元目標等を記載すること。

(注4) 関係部局及び共同研究者については, 備考に記載すること。

(注5) 国の補助金等予算措置がある場合には, 備考に記載すること。

調査研究最終報告書

		分類	L, P
タイトル	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)		
担当課・担当者氏名	環境科学課 水質担当:常松 順子, 高村 範亮, 八見 裕樹		
調査研究期間	平成 28 年度 ~ 平成 30 年度		
目的及び必要性	<p>これまで先行研究として「国内における化審法関連物質の排出源及び動態の解明」を実施してきたが、Ⅱ型共同研究「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」では、リン酸エステル系難燃剤や、ネオニコチノイド系農薬による生態系への影響の報告事例が増加しているため、2物質群の環境実態や排出源の解明を全国規模で行うこととしている。福岡市では調査に必要な情報収集や分析を行う。</p> <p>また、国内における生態系への影響が未解明な化学物質に関して、ノンターゲット分析を通じたスクリーニングを行い優先的に調査すべき物質を選定し、環境実態調査やリスク評価を目指す。</p>		
結果の概要	<p>1. ネオニコチノイド系農薬の環境実態把握 調査対象は、ネオニコチノイド系農薬7種類及びネオニコチノイド系農薬と類似した殺虫作用を有するフィプロニルとした。 平成28年度は水質試料をろ過するだけの簡便な前処理を行った後LC-MS/MSで測定し、平成29年度以降は汽水域の高塩濃度サンプルによる分析機器への負担を軽減するため、固相抽出法による前処理に変更後LC-MS/MSで測定し、定量下限を下げた調査を行った。福岡市内を流れる河川の環境基準点ではほぼ毎月、補助地点では3か月ごとに1回の調査を行った。 調査の結果、イミダクロプリド、ジノテフラン、チアメトキサム及びクロチアジンの4種類は毎年検出され、フィプロニルは定量下限を下げた平成29年度以降、アセタミプリドは平成30年度に検出された。 検出回数が最も多い農薬はジノテフランであった。これは、近年、ネオニコチノイド系農薬の中で全国及び福岡県内での出荷量が最も多かったことが一因と考えられた。農薬以外にシロアリ駆除剤等でも使用されるフィプロニルは、福岡県での殺虫剤に係る届出外排出量が近年増加傾向であり、今回の調査での金島橋の検出濃度平均値は、水産動植物の被害防止に係る農薬登録基準値の1/4程度の値であった。フィプロニルは、環境中において生物分解及び光加水分解をうけ、数種の分解産物を生成し、その中には残留性がやや高いものもあることから、検出濃度の推移を注視する必要があると考えられた。 各化合物の最大検出濃度は、いずれも水質汚濁に係る農薬登録基準及び平成29年11月以降に強化された水産動植物の被害防止に係る農薬登録基準値を下回っていた。 また、いずれの化合物も、樋井川から西側にある福岡市内のみを流れる河川の検出率が低かった。</p> <p>2. ノンターゲット分析を通じた地域別要調査物質のスクリーニング 調査対象物質として、環境省が策定した「水環境保全に向けた取組のための要調査項目リスト(208項目)」から既存の機器や方法で分析可能なGC/MS項目56項目を選定した。 環境実態調査等については、今年後から開始される「災害時等の緊急調査を想定したGC/MSによる化学物質の網羅的簡易迅速測定法の開発」(Ⅱ型共同研究)に参加し継続して行っていく。</p>		
成果	<ul style="list-style-type: none"> 生態系による影響が懸念されているネオニコチノイド系農薬の環境中の存在実態を把握できた。 共同研究のため、他の研究所との情報共有ができた。 		
備考 (今後の予定等)	<p>1. ネオニコチノイド系農薬の環境実態把握については、福岡市保健環境研究所報 第44号投稿予定</p> <p>2. 次年度以降は、上記Ⅱ型共同研究に参加し調査研究として進めていくとともに、親水性物質については、LC-MS/MSによる分析法が必要であることから、要調査項目であるネオニコチノイド系農薬の分析技術を活用することで、危機管理分析体制の強化に努める。</p>		

添付書類: 発表論文, 投稿資料, その他の資料等

(注1)分類には、別途定める調査研究の体系図に基づく分類記号(A, B, C・・・)

(注2)成果には、調査研究実施計画書(様式1)に記載した目標に対する具体的な成果を記載すること。

(注3)国の補助金等予算措置がある場合には、備考に記載すること。

福岡市内河川におけるネオニコチノイド系農薬類の実態調査 (平成 28~30 年度)

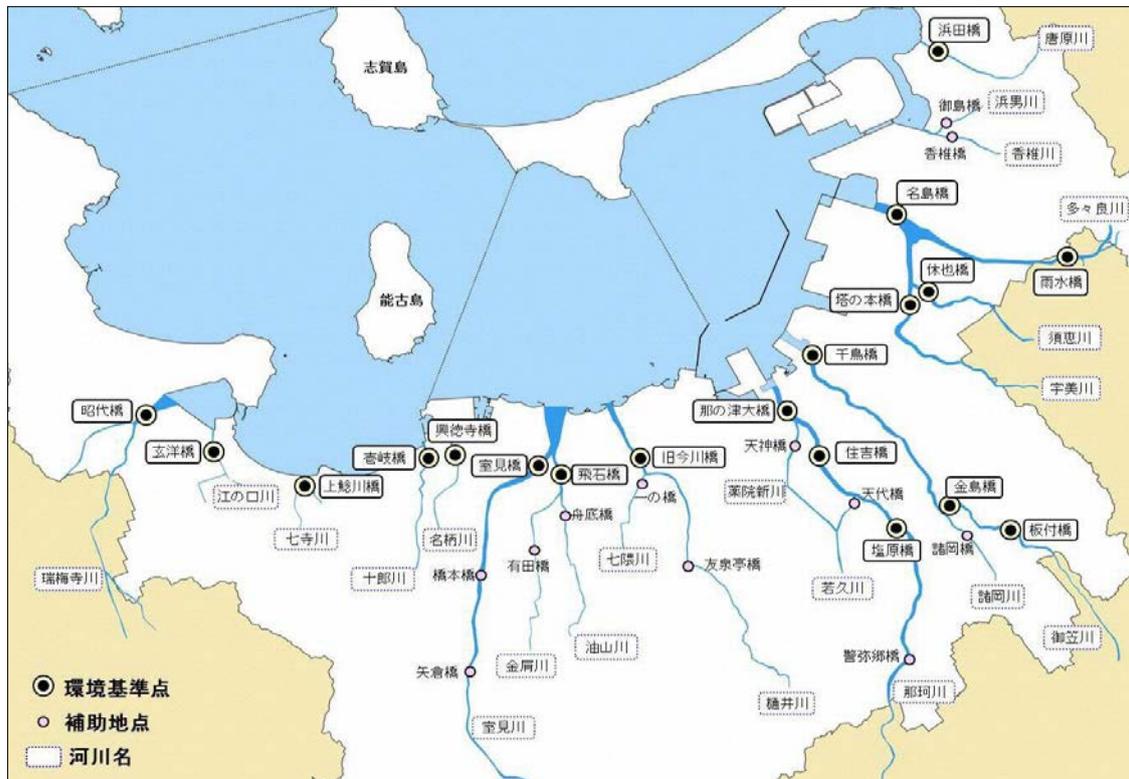


図 1 調査地点

表 1 ネオニコチノイド系農薬及びフィプロニルの検出率 (平成 30 年度)

	環境基準点	補助地点	全体
ジノテフラン	41.3%	31.8%	39.8%
クロチアニジン	9.6%	9.1%	9.5%
イミダクロプリド	9.2%	2.3%	8.1%
フィプロニル	10.4%	0.0%	8.8%

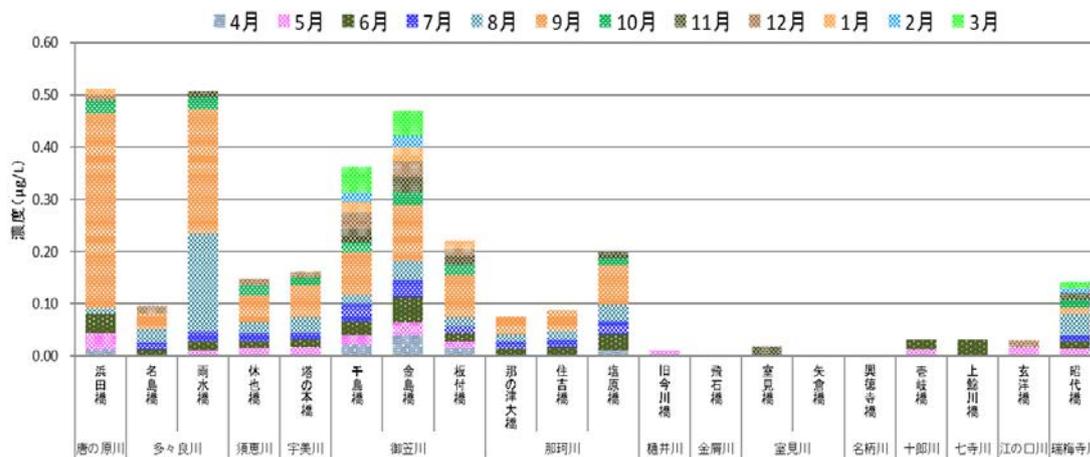


図 2 河川の環境基準点における河川水中ジノテフラン濃度(平成 30 年度)

表2 水稲栽培でのネオニコチノイド系農薬等使用時期（6～9月）の環境基準点（矢倉橋を含む）における各化合物の検出率

	平成29年度(6～9月)		平成30年度(6～9月)	
	市内のみ 検出率	市外を含む 検出率	市内のみ 検出率	市外を含む 検出率
ジノテフラン	6.3%	68.8%	6.3%	97.9%
クロチアニジン	6.3%	41.7%	6.3%	33.3%
イミダクロプリド	0.0%	27.1%	0.0%	27.1%
フィプロニル	9.4%	16.7%	15.6%	18.8%

市内のみ：市内のみを流れる河川（樋井川～江の口川）の環境基準点

市外を含む：市外からの流れ込みがある河川（唐の原川～那珂川、瑞梅寺川）の環境基準点

表3 ネオニコチノイド系農薬及びフィプロニルの最大検出濃度（平成28～30年度）

	(μg/L)		
	平成 28 年度	平成 29 年度	平成 30 年度
	最大検出濃度		
ジノテフラン	0.20	0.43	0.37
チアメトキサム	0.10	0.02	0.02
クロチアニジン	0.08	0.08	0.12
イミダクロプリド	0.08	0.11	0.07
アセタミプリド	<0.05	<0.01	0.02
チアクロプリド	<0.05	<0.01	<0.01
ニテンピラム	<0.05	<0.01	<0.01
フィプロニル	<0.05	0.013	0.011

（平成29年度については、6～3月）

表4 各化合物の農薬登録基準

	(μg/L)	
	水産動植物の 被害防止に係る 農薬登録基準	水質汚濁に係る 農薬登録基準
ジノテフラン	12 [※] (24000)	580
チアメトキサム	3.5	47
クロチアニジン	2.8	250
イミダクロプリド	1.9 [※] (8500)	150
アセタミプリド	2.5 ^{※2} (5.7)	180
チアクロプリド	3.6 [※] (840)	(300)
ニテンピラム	11 [※] (8900)	14000*
フィプロニル	0.024 [※] (1.9)	0.50* ² (5)

※平成29年11月29日に改正 ※²平成30年6月26日に改正

括弧内の数値は改正前の登録申請の場合

*平成29年11月29日に改正 *²平成30年3月22日に改正

括弧内の数値は平成18年8月3日前の登録申請の場合

調査研究実施計画書

分類 C

タイトル	ヒトとウシから分離された腸管出血性大腸菌の薬剤耐性状況の推移		
担当課・ 担当者氏名	保健科学課 感染症担当 阿部 有利, 本田己喜子		
調査研究期間	平成29年度 ~ 平成30年度		
目的及び必要性	<p>2016年4月に初めて我が国において薬剤耐性対策アクションプランが定められた。その中で「ヒト・動物・食品・環境等に関する統合的なワンヘルス動向調査」において地方自治体による検査情報等の分析・評価が戦略として挙げられている。</p> <p>当所では、過去12年間にヒトから分離された約1000株の腸管出血性大腸菌(EHEC)の薬剤耐性試験を実施し薬剤耐性の推移を調査した。またウシ直腸便からEHECの分離と薬剤耐性試験を実施し、ヒトとウシから検出されるEHECの薬剤耐性状況の比較をおこなった。その結果、ヒトとウシで耐性を示す薬剤に類似傾向がみられた。しかしウシEHECに関しては単年の調査であり、検体数も100件(うち分離EHEC39株)と少ないことから、現在得られている結果でヒトEHECとウシEHECの薬剤耐性状況を比較することは適当でなく、さらなる調査を継続する必要性がある。</p>		
概要	<p>1. 当所に搬入および当所で検出されたヒトのEHECの薬剤耐性状況の推移をみるため、薬剤耐性試験を継続実施する。</p> <p>検体:平成29年度~平成30年度にヒトから検出されるEHEC約200株 試験方法: 14薬剤(ABPC, CET, CTM, CAZ, CTX, CEPM, NFLX, TC, SM, KM, CP, FOM, MEPM, IPM)によるディスク拡散法を行う。 ディスク法の結果よりESBL産生菌が疑われる場合はPCRにて遺伝子型を確認。</p> <p>2. ヒトとウシのEHECにおける耐性薬剤の種類とその耐性率を比較する。</p> <p>と畜場に搬入されるウシ直腸便からのEHECの分離と薬剤耐性試験の実施 検体:ウシ直腸便 夏季・冬季 各50件/年度 EHEC分離方法: 検体を接種した増菌培地(TSB), 平板培地(クロモアガーSTEC等)よりVT遺伝子を検出し、VT遺伝子陽性検体に関してはEHECを分離し、血清型の確認をする。 薬剤耐性試験についてはヒトEHECと同様に行う。</p>		
年次計画	29年度	H30年度	
期待される成果	<p>ヒトのEHEC薬剤耐性動向を長期的にみることで、耐性状況の変化を把握できるとともに治療薬に耐性を示す菌をいち早く発見できる可能性があり、福岡市民の健康リスク管理ができる。またヒトのEHEC感染症の誘因の一つとされるウシEHECについては、ヒトEHECとの薬剤耐性状況の比較を行うことにより、福岡市内におけるヒト-動物間のワンヘルス動向調査の基礎資料となる。</p>		
備考			

(注1) 分類は別途定める調査研究の体系図に基づく分類記号(A, B, C・・・)

(注2) タイトルは、対外的にわかりやすいものにし、専門用語等を使う場合はサブタイトルをつけること。

(注3) 期待される成果については、行政施策への提言・反映目標及び市民への還元目標等を記載すること。

(注4) 関係部局及び共同研究者については、備考に記載すること。

(注5) 国の補助金等予算措置がある場合には、備考に記載すること。

調査研究最終報告書

	分類	C	倫理審査	該当	非該当
タイトル	ヒトとウシから分離された腸管出血性大腸菌 (EHEC) の薬剤耐性状況の推移				
担当課・担当者氏名	保健科学課 感染症担当 阿部有利, 本田己喜子				
調査研究期間	平成 29 年度 ~ 平成 30 年度				
目的及び必要性	<p>今日の薬剤耐性の現状を受け、日本では2016年4月「薬剤耐性 (AMR) 対策アクションプラン」が策定された。その中で「薬剤耐性情報収集」や「ヒト、動物等における薬剤耐性に関する動向調査」などが地方衛生研究所に求められている役割とされている。</p> <p>これまで当所では、過去12年間に福岡市内でヒトから分離されたEHEC約1000株の薬剤感受性試験を実施し、薬剤耐性の推移を調査した。また、EHECの保菌動物とされるウシの直腸便からEHECの分離と薬剤感受性試験を実施し、ヒトとウシのEHECの薬剤耐性状況を比較した。その結果、耐性を示す薬剤の種類等に類似傾向がみられ、両者の関連性が示唆された。しかしウシEHECに関しては単年の調査で検体数も少ないため、現時点で両者の比較を行うことは適当ではなく、引き続き調査を継続した。</p>				
結果の概要	<p>1. ヒトEHEC菌株の薬剤感受性試験 2017年4月～2019年3月末までに当所に搬入および当所にて分離されたヒトのEHEC 81事例137株について、14種類の薬剤を用いて薬剤感受性試験(図1)を実施した。14薬剤のうちいずれか1種類以上の薬剤に耐性を示すものを耐性株とし、薬剤耐性率は集団事例については代表株を用いて算出した。 103株のうち40株(38.8%)が1種類以上の薬剤に耐性を示した。</p> <p>2. ウシからのEHEC分離および分離菌株の薬剤感受性試験 2017年6月～2019年2月に福岡市食肉市場に搬入されたウシの直腸便200検体から75検体(EHEC保菌率37.5%)100株のEHECを分離した(図2)。分離したウシEHEC100株のうち48株(48%)が1種類以上の薬剤に耐性を示した。また、ウシのE.coli(EHEC1株含む)からESBL(基質特異性拡張型β-ラクタマーゼ)産生菌が8株分離された。</p> <p>3. ヒトとウシのEHECの薬剤耐性状況等の比較 ①血清型別検出率の比較(図3) ヒトEHECでは事例数、菌株数ともにO157,O26,O121,O103が大半を占めていた。 ウシから分離されたEHECは大半がOUT(型別不能)であり、ヒトとウシでは分離された血清型の分布が異なっていた。 ②EHEC薬剤耐性率の比較(図4, 5) ヒトEHEC (2017年) 耐性率:52.1%(25株/48株) 薬剤別耐性率: ABPC(37.5%), CET・TC・SM(各10.4%)の順で高値 (2018年) 耐性率:27.3%(15株/55株) 薬剤別耐性率: CP(10.9%), SM(9.1%), ABPC(7.3%)の順で高値 ◎FOM耐性株が2017年度と2018年度に1株ずつ検出 ウシEHEC (2017年) 耐性率:51.3%(20株/39株) 薬剤別耐性率: ABPC(33.3%), TC(28.2%), SM(23.1%)の順で高値 (2018年) 耐性率:45.9%(28株/61株) 薬剤別耐性率: TC(26.2%), SM(23.0%), ABPC(14.8%)の順で高値 ◎FOM耐性株が2017年度と2018年度に1株ずつ検出 ◎第3及び第4世代セファロスポリン系薬剤への耐性株が2018年度に2株検出</p> <p>4. まとめ ・薬剤耐性率はヒトEHECよりウシEHECの方が高い傾向を示した。 ・薬剤耐性状況を年度で比較すると、耐性率の高い薬剤の種類はヒトEHECでは年度ごとに異なっていたが、ウシEHECでは年度による大きな違いはなかった。ウシEHECの薬剤耐性状況はJVARM(家畜由来細菌の薬剤耐性モニタリング)のE.coliの結果とほぼ同じ傾向を示した。 ・同じ検出年度で薬剤耐性状況を比較すると、耐性率の高い薬剤等はヒトとウシで異なっていた。</p>				
成果	<p>・ヒトEHECの薬剤耐性動向を長期的に調査することで、臨床上脅威となるFOM耐性株の検出など薬剤耐性状況の変化を把握することができた。</p> <p>・EHECの保菌動物とされるウシ由来EHECについては、ヒトEHECと薬剤耐性状況についての明確な関連性は認められなかったが、FOM耐性株や第3及び第4セファロスポリン系薬剤耐性株の検出など、薬剤耐性化の状況が把握でき、「薬剤耐性 (AMR) 対策アクションプラン」で地衛研に求められている「薬剤耐性情報収集」、「ヒト、動物等における薬剤耐性動向調査」の基礎資料となった。</p>				
備考 (今後の予定等)	ヒトのEHECについては、今後も分離株の薬剤感受性試験を実施し、薬剤耐性に関する動向調査を継続していく。 平成30年度版の所報に投稿予定。				

添付書類: 発表論文, 投稿資料, その他の資料等

(注1)分類には、別途定める調査研究の体系図に基づく分類記号(A, B, C・・・)

(注2)成果には、調査研究実施計画書(様式1)に記載した目標に対する具体的な成果を記載すること。

(注3)国の補助金等予算措置がある場合には、備考に記載すること。

「ヒトとウシから分離された腸管出血性大腸菌(EHEC)の薬剤耐性状況の推移」

1. ヒトの EHEC 菌株の薬剤感受性試験

2017～2018 年度に福岡市内で分離されたヒト EHEC 81 事例 137 株(2017 年度:38 事例 82 株, 2018 年度:43 事例 55 株)について, 14 種類の薬剤を用いて薬剤感受性試験を実施(図1)。

薬剤耐性率は集団事例については代表株を用いて算出。103 株のうち 40 株(2017 年度:25 株/48 株, 2018 年度:15 株/55 株)が 1 種類以上の薬剤に耐性を示した。(耐性率 38.8%)



図1 薬剤感受性試験の方法

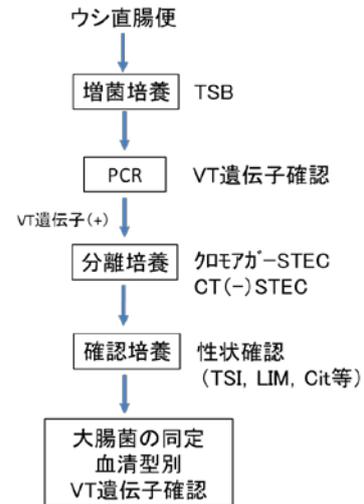


図2 ウシ直腸便からの EHEC の分離手順

2. ウシからの EHEC の分離および分離菌株の薬剤感受性試験

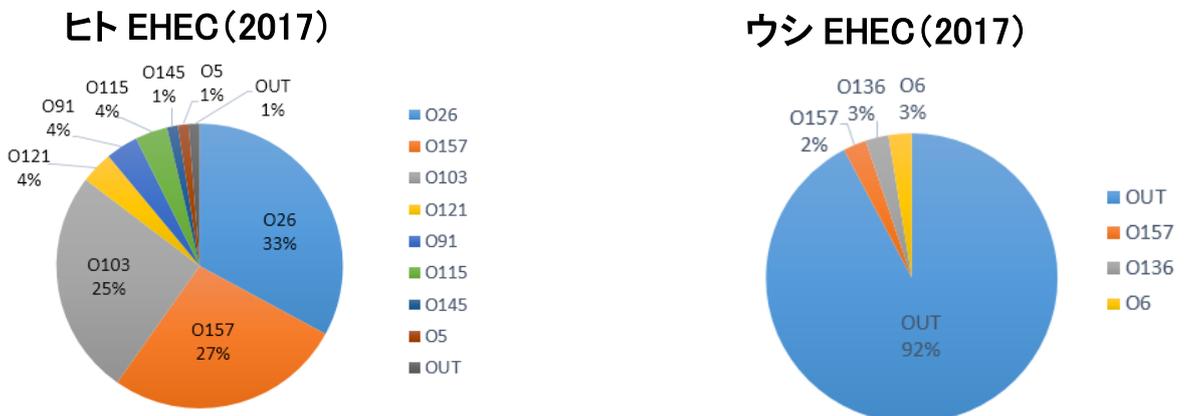
2017～2018 年度に福岡市食肉市場に搬入されたウシの直腸便 200 検体から, 75 検体(EHEC 保菌率:37.5%) 100 株の EHEC を分離(図2)。分離した 100 株のうち 48 株(2017 年度:20 株/39 株, 2018 年度:28 株/61 株)が 1 種類以上の薬剤に耐性を示した。(耐性率 48%)

3. ヒトとウシの EHEC の薬剤耐性状況等の比較

①分離菌株の血清型別の比較(図3)

ヒト EHEC については, 事例数, 菌株数ともに O157, O26, O121, O103 が大半を占めていた。

ウシ EHEC については, 分離菌株の 90%以上が OUT(型別不能)で, ヒトとウシでは血清型の分布が異なっていた。

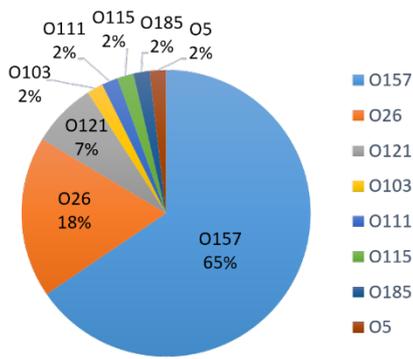


	O26	O157	O103	O121	O91	O115	O145	O5	OUT	計
菌株数	27	22	21	3	3	3	1	1	1	82
%	32.9	26.8	25.6	3.7	3.7	3.7	1.2	1.2	1.2	100.0
事例数	7	17	3	3	3	2	1	1	1	38
%	18.4	44.7	7.9	7.9	7.9	5.3	2.6	2.6	2.6	100.0

	OUT	O157	O136	O6	計
菌株数	36	1	1	1	39
%	92.3	2.6	2.6	2.6	100.0

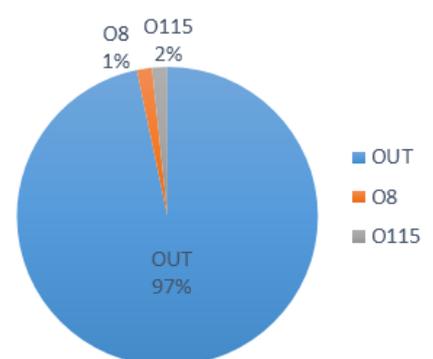
*O26, O103について各1件ずつ集団事例あり

ヒト EHEC (2018)



	O157	O26	O121	O103	O111	O115	O185	O5	計
菌株数	36	10	4	1	1	1	1	1	55
%	65.5	18.2	7.3	1.8	1.8	1.8	1.8	1.8	100.0
事例数	28	6	4	1	1	1	1	1	43
%	65.1	14.0	9.3	2.3	2.3	2.3	2.3	2.3	100.0

ウシ EHEC (2018)



	OUT	O8	O115	計
菌株数	59	1	1	61
%	96.7	1.6	1.6	100

図3 ヒトとウシ EHEC の血清型別の内訳

②EHEC 薬剤耐性率の比較(図4)

ヒト EHEC (2017 年度) 耐性率:52.1%(25 株/48 株)

薬剤別耐性率:ABPC(37.5%), CET・TC・SM(各 10.4%)の順で高値

(2018 年度) 耐性率:27.3%(15 株/55 株)

薬剤別耐性率:CP(10.9%), SM(9.1%), ABPC(7.3%)の順で高値

◎FOM 耐性株が 2017 年度と 2018 年度に 1 株ずつ検出

ウシ EHEC (2017 年) 耐性率:51.3%(20 株/39 株)

薬剤別耐性率:ABPC(33.3%), TC(28.2%), SM(23.1%)の順で高値

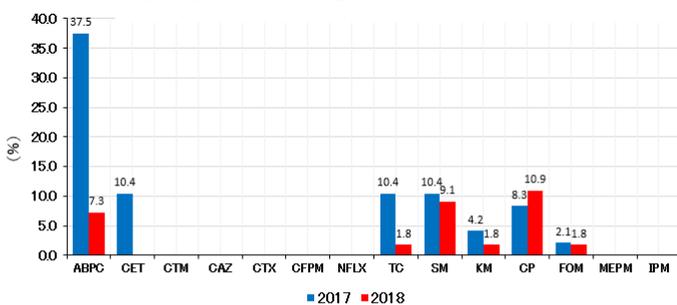
(2018 年) 耐性率:45.9%(28 株/61 株)

薬剤別耐性率:TC(26.2%), SM(23.0%), ABPC(14.8%)の順で高値

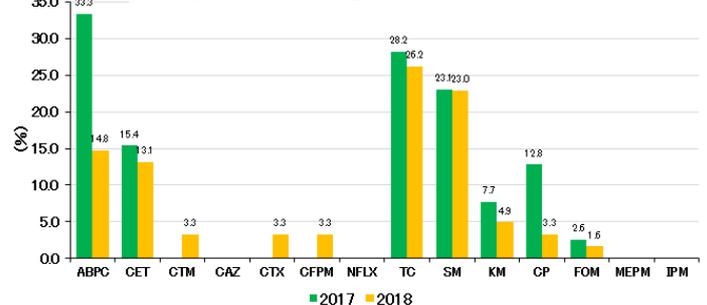
◎FOM 耐性株が 2017 年度と 2018 年度に 1 株ずつ検出

◎第 3 及び第 4 世代セファロスポリン系薬剤への耐性株が 2018 年度に 2 株検出

各薬剤に対する耐性率 (ヒト EHEC)



各薬剤に対する耐性率 (ウシ EHEC)

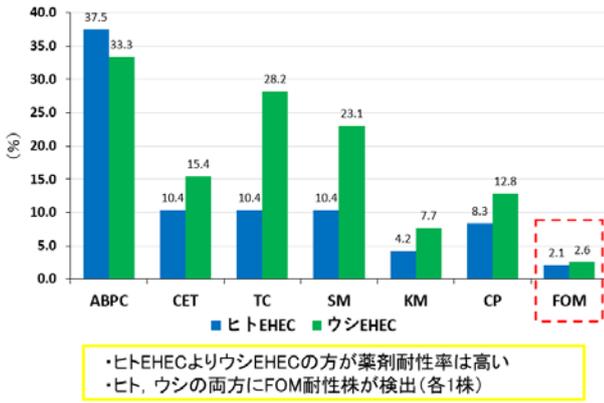


・薬剤別耐性率(2017)は、ABPC(37.5%)、CET・TC・SM(各10.4%)の順に高値
 ・薬剤別耐性率(2018)は、CP(10.9%)、SM(9.1%)、ABPC(7.3%)の順に高値
 ・1種類以上の薬剤に耐性・・・2017:52.1%(25株/48株) 2018:27.3%(15株/55株)
 ・2種類以上の薬剤に耐性・・・2017:18.8%(9株/48株) 2018:1.8%(1株/55株)

・薬剤別耐性率(2017)は、ABPC(33.3%)、TC(28.2%)、SM(23.1%)の順に高値
 ・薬剤別耐性率(2018)は、TC(26.2%)、SM(23.0%)、ABPC(14.8%)の順に高値
 ・1種類以上の薬剤に耐性・・・2017:51.3%(20株/39株) 2018:45.9%(28株/61株)
 ・2種類以上の薬剤に耐性・・・2017:35.9%(14株/39株) 2018:23.0%(14株/61株)

図4 年度における薬剤別耐性率の比較(ヒト及びウシ)

ヒトとウシ EHEC の薬剤耐性率の比較 (2017)



ヒトとウシ EHEC の薬剤耐性率の比較 (2018)

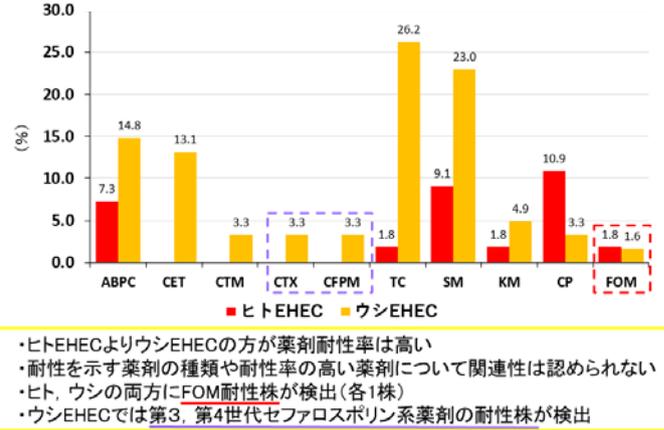


図5 ヒトとウシ EHEC の薬剤耐性率の比較(年度別)

4. まとめ

- ・薬剤耐性率はヒト EHEC よりウシ EHEC のほうが高い傾向を示した。
- ・薬剤耐性状況を年度で比較すると、耐性率の高い薬剤の種類はヒト EHEC では年度ごとに異なっていたが、ウシ EHEC では年度による大きな違いはなかった。ウシ EHEC の薬剤耐性状況は JVARM(家畜由来細菌の薬剤耐性モニタリングシステム)の E.coli の結果とほぼ同じ傾向を示した。
- ・同じ年度で薬剤耐性状況を比較すると、耐性率の高い薬剤等はヒトとウシで異なっていた。