

研 究 報 告 編

1 論文

原著

環境水中に含まれるりん酸ジメチル=2,2-ジクロロビニルの分析法の開発

酒谷圭一

液体クロマトグラフ質量分析計 (LC/MS) を用い、環境水中のりん酸ジメチル=2,2-ジクロロビニル (DDVP) を分析する方法を開発した。試料200 mLにギ酸を添加した後、DDVP- d_6 を10 ng添加し、固相カートリッジ (Sep-Pak PS2 Plus Short Cartridge) に通水した。固相カートリッジを超純水/メタノール(5:5)溶液10 mLで洗浄し、空気約20 mLを通気して水分を除去した後、アセトニトリル6 mLで溶出した。溶出液を窒素気流下で0.2 mLまで濃縮した後、0.1%ギ酸で1 mLに定容し、LC/MSで測定した。本分析法で用いた装置の検出下限値は0.60 pg、本分析法の検出下限値は河川水0.39 ng/L、海水0.43 ng/Lであった。環境水200 mLにDDVPを5.0 ng添加し添加回収試験を行った結果、回収率は河川水96%、海水95%であった。本分析法を用い、県内で採取した河川水及び海水を分析した結果、当該物質は検出されなかった。

[キーワード：分析法開発、りん酸ジメチル=2,2-ジクロロビニル、河川水、海水]

1 はじめに

化学物質は日常生活を豊かにし、また、便利で快適な生活を維持する上で欠かせないものとなっている。その一方で、その生産、使用及び廃棄の仕方によっては、環境汚染や健康被害といった問題を引き起こすことが懸念されている。このような状況に対応するため、環境省を主体とした“化学物質環境実態調査”が1974年より開始され、今日までに全国150以上の地点で環境中の化学物質の残留状況が調査されている¹⁾。

当所は化学物質環境実態調査に継続的に参加しており、県内の水質、底質及び大気中の各種化学物質の濃度を調査している。また、化学物質環境実態調査の支援事業として“分析法開発調査”にも取り組んでおり、化学物質環境実態調査において環境中の残留状況の把握が必要とされる化学物質のうち要求感度を満たす適切な分析法がないものについて新たな分析法を開発している。

筆者は令和元年度分析法開発調査に参加し、環境水中に含まれるりん酸ジメチル=2,2-ジクロロビニル (DDVP) の分析法を開発したので報告する。DDVPは国内において動物用医薬品、家庭用殺虫剤及び防疫用殺虫剤として用いられている有機リン化合物である²⁾。なお、環境省より提示された要求検出下限値は0.7 ng/Lであった。

2 方法

2・1 試料

県内で2019年10月に採取した環境水 (河川水及び海水) を試料として用いた。

2・2 試薬

2・2・1 標準物質

DDVPの標準物質はAccuStandard製の100 µg/mL メタノール溶液を用いた。また、サロゲート内標準物質としてCambridge Isotope Laboratories製のDDVP- d_6 (純度98%) を用いた。

2・2・2 溶媒

メタノール、アセトニトリル、ギ酸、ギ酸アンモニウム及び超純水は富士フィルム和光純薬製のLC/MS用を用いた。アンモニア水は富士フィルム和光純薬製の試薬特級を用いた。酢酸メチルは富士フィルム和光純薬製の和光一級を用いた。

2・3 標準液の調製

2・3・1 標準液

標準物質をメタノールで希釈し、1.0 µg/mLの標準液とした。

2・3・2 サロゲート内標準液

サロゲート内標準物質を10.0 mg量りとり、メタノールで100 mLとして100 µg/mLのサロゲート内標準原液を作製した。これをメタノールで希釈し、1.0 µg/mLのサロゲート内標準液とした。

2・3・3 検量線用標準液

標準液を0.1%ギ酸/アセトニトリル(8:2)溶液で順次希釈し、DDVPが0.50 ng/mL～100 ng/mLの濃度になるように検量線用標準液を作成した。各検量線用標準液にはDDVP- d_6 が10 ng/mLの濃度になるようにサロゲート内標準液を添

加した。

2・4 DDVP及びDDVP-*d*₆の測定

DDVP及びDDVP-*d*₆の測定には液体クロマトグラフ質量分析計（LC/MS、島津製作所製 Nexera X2／島津製作所製 LCMS-8050）を用いた。

LCについて、分析カラムはWaters製 XBridge C18（150 mm×2.1 mm、3.5 μm）を用いた。移動相はA：0.1%ギ酸、B：アセトニトリルとし、グラジエント条件（0→1 min：A:B = 80:20、1→5 min：A:80→10, B:20→90、5→15 min：A:B = 10:90、15→16 min：A:10→80, B:90→20、16→21 min：A:B = 80:20）で送液した。カラム流量は0.2 mL/min、カラム温度は40℃、試料注入量は10 μLとした。

MSについて、測定法はエレクトロスプレーイオン化法（ポジティブモード）とした。ドライイングガス流量は10 L/min、ネブライザーガス流量は2 L/min、インターフェース電圧は4.0 kV、ヒーティングガス流量は10 L/min、インターフェース温度は350℃、脱溶媒管温度は250℃、ヒートブロック温度は400℃とした。モニターイオン及びコリジョン電圧は、DDVPについて*m/z* 223.1 > 109.1、16 Vを定量用、*m/z* 221.1 > 109.1、16 Vを確認用とした。また、DDVP-*d*₆について*m/z* 229.1 > 115.1、16 Vを定量用、*m/z* 227.1 > 115.1、17 Vを確認用とした。

2・5 検量線の作成及び装置検出下限値の算出

検量線は検量線用標準液をLC/MSに注入し、得られたDDVPとDDVP-*d*₆の濃度比及び面積比から作成した。

装置検出下限値（IDL）は検量線に用いる最低濃度の検量線用標準液を7回繰り返し測定し、得られた測定値の標本標準偏差を用いて(1)式により算出した。

$$IDL = t(n-1, 0.05) \times \sigma_{n-1,I} \times 2 \quad (1)$$

ここで、*t*(*n*-1, 0.05)は危険率5%、自由度*n*-1の*t*値（片側）、 $\sigma_{n-1,I}$ はIDL算出のための測定値の標本標準偏差である。

2・6 前処理方法の検討

2・6・1 固相カートリッジ及び溶出溶媒の検討

試料の前処理に用いる固相カートリッジ及び溶出溶媒について検討した。固相カートリッジには、疎水性のポリマーを採用しているWaters製 Sep-Pak PS2 Plus Short Cartridge、Waters製 Oasis HLB Plus Short Cartridge及びAgilent Technologies製 Bond Elut Jr-Nexusの3種類の市販固相カートリッジを用いた。超純水200 mLにDDVPを5 ng添加した後、ギ酸を0.2 mL、DDVP-*d*₆を10 ng添加した。続いて、溶出溶媒及び超純水でコンディショニングした各固相

カートリッジに通水した。各固相カートリッジを超純水10 mLで洗浄し、空気約20 mLを通気して水分を除去した後、3種類の溶媒（メタノール、アセトニトリル、酢酸メチル）10 mLで溶出した。各溶出液を窒素気流下で1 mLまで濃縮したものを試験液とし、LC/MSで測定した。

2・6・2 固相カートリッジ洗浄溶液の検討

2・6・1の結果、最も回収率が良好であった固相カートリッジについて、試料通水後の洗浄に用いる溶液を検討した。超純水200 mLにギ酸0.2 mLを添加した後、DDVPを50 ng、DDVP-*d*₆を100 ng添加した。続いて、2・6・1と同様の手順で試料を固相カートリッジに通水するまでの操作を行った後、3種類の溶液（超純水、超純水/メタノール(8:2)溶液、超純水/メタノール(5:5)溶液）10 mLで固相カートリッジの洗浄を行った。各洗浄液を試験液とし、LC/MSで測定した。

2・6・3 溶出溶媒量の検討

2・6・1の結果、最も回収率が良好であった固相カートリッジ及び溶出溶媒を用い、溶出溶媒量の最適化を図った。超純水200 mLにギ酸を0.2 mL、DDVP-*d*₆を10 ng添加した後、2・6・1と同様の手順で脱水までの操作を行った。ただし、固相カートリッジの洗浄溶液は2・6・2の結果、最も良好だったものを用いた。続いて溶出溶媒を2 mLずつ流し、分画試験を行った。0～2 mL、2～4 mL、4～6 mL、6～8 mL、8～10 mLの各分画液を窒素気流下で1 mLまで濃縮したものを試験液とし、LC/MSで測定した。

2・7 添加回収試験

環境水を用いた添加回収試験を行った。試料200 mLにDDVPを5 ng添加した後、2・6で最適化された条件で前処理を行い、LC/MSで測定した。また、DDVPを添加しなかった試料についても同様の操作を行った。

2・8 分析法の検出下限値の算出

環境水を用い、分析法の検出下限値（MDL）を算出した。試料200 mLにDDVPを0.5 ng添加した後、2・6で最適化された条件で前処理を行い、LC/MSで測定した。この操作を7回繰り返し、得られた測定値の標本標準偏差を用いて(2)式によりMDLを算出した。

$$MDL = t(n-1, 0.05) \times \sigma_{n-1,M} \times 2 \quad (2)$$

ここで、*t*(*n*-1, 0.05)は危険率5%、自由度*n*-1の*t*値（片側）、 $\sigma_{n-1,M}$ はMDL算出のための測定値の標本標準偏差である。

2・9 分解性スクリーニング試験

DDVPの水中での安定性を確認するため、pH又は光によ

る分解性を調査した。10 mmol/L ギ酸アンモニウム水溶液 200mLをギ酸及び1 mol/L アンモニア水でpH5、7及び9に調整した後、DDVPを5 ng添加した。所定の期間（1時間及び7日）経過後、2・6で最適化された条件で前処理を行い、LC/MSで測定した。なお、試料の保存は室温（20℃）で行い、保存期間7日の試料については明所及び暗所のそれぞれで保存した。

2・10 保存性試験

化学物質環境実態調査では、試料採取機関と分析機関が異なる場合がある。その場合、試料採取から分析までに日数を必要とする。そこで、粗抽出液及び環境水について、冷暗所（4℃）でのDDVPの保存性を調査した。

粗抽出液は、河川水200 mLに対し2・6で最適化された前処理方法のうち溶出までの操作を行った後、DDVPを5 ng添加したものを保存試料とした。所定の期間（当日、3日、5日、7日、14日及び28日）経過後、DDVP-d₆を10 ng添加し、窒素気流下で0.2 mLまで濃縮した後、0.1%ギ酸で1 mLに定容したものを試験液とし、LC/MSで測定した。

環境水については、試料200 mLにDDVPを5 ng添加し、所定の期間経過後、2・6で最適化された条件で前処理を行い、LC/MSで測定した。また、河川水についてはギ酸を0.1%の濃度となるように、海水についてはギ酸を0.1%及び1%の濃度となるように前処理操作開始前に添加した試料についても同様の保存性試験を行った。

3 結果及び考察

3・1 検量線の作成及び装置検出下限値の算出

検量線は低濃度用（DDVP：0.50～10 ng/mL、DDVP-d₆：10 ng/mL）と高濃度用（DDVP：5.0～100 ng/mL、DDVP-d₆：10 ng/mL）をそれぞれ作成した（図1）。決定係数（R²）は低濃度用が0.9998、高濃度用が0.9999であり、両者ともに直線性は良好であった。

また、本研究で用いたLC/MSのIDLは0.60 pg（IDL試料換算値0.30 ng/L）であった。

3・2 前処理方法の検討

3・2・1 固相カートリッジ及び溶出溶媒の検討

試料の前処理に用いる固相カートリッジ及び溶出溶媒について検討した（n = 3）。各固相カートリッジ及び溶出溶媒からの回収率を図2に示す。なお、DDVPの回収率はサロゲート補正後のものである。固相カートリッジはSep-Pak PS2 Plus Short Cartridgeを、溶出溶媒はアセトニトリルを用いた場合がDDVP、DDVP-d₆ともに回収率が良好であったため、以降の操作はこれらを用いることとした。

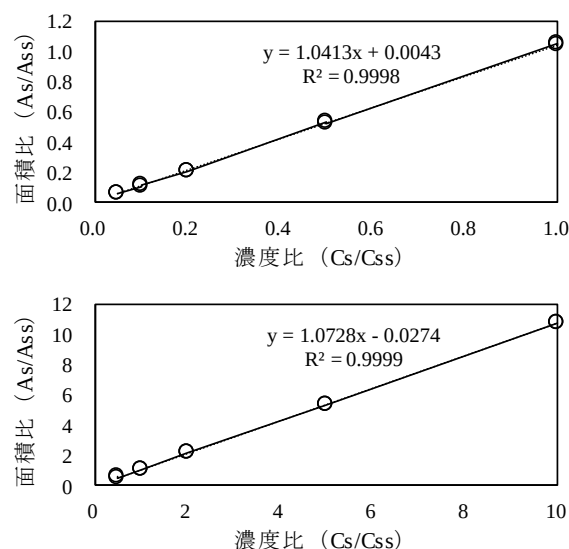


図1 検量線（上段：低濃度用、下段：高濃度用）

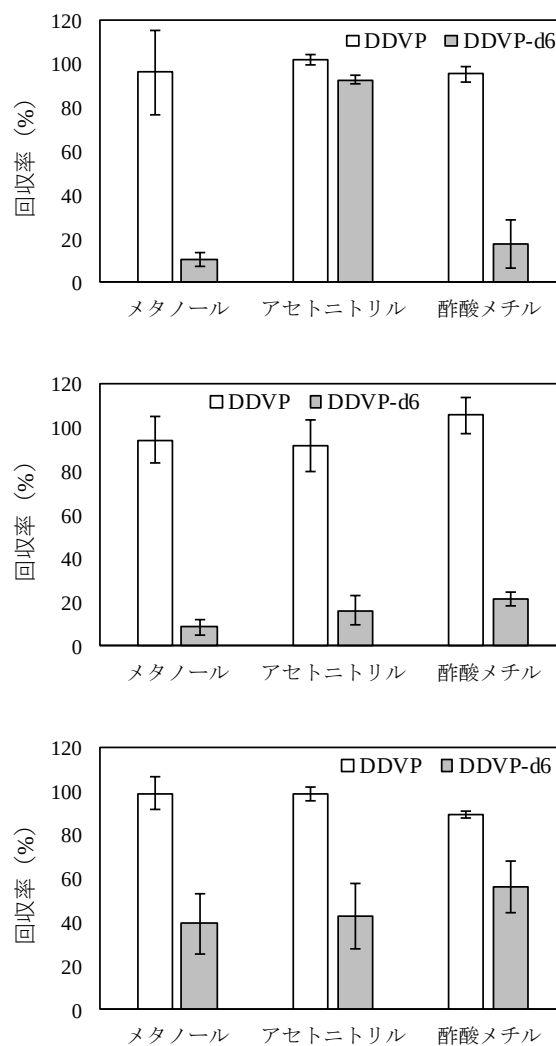


図2 各固相カートリッジ及び溶出溶媒における回収率（上段：Sep-Pak PS2 Plus Short Cartridge、中段：Oasis HLB Plus Short Cartridge、下段：Bond Elut Jr-Nexus）

3・2・2 固相カートリッジ洗浄溶液の検討

試料通水後の固相カートリッジの洗浄に用いる溶液を検討した（ $n = 2$ ）。超純水、超純水/メタノール(8:2)溶液及び超純水/メタノール(5:5)溶液で洗浄した結果、いずれの洗浄液からもDDVP及びDDVP- d_6 は検出されなかった。このため、最も洗浄効果が高いと考えられる超純水/メタノール(5:5)溶液を洗浄溶液として用いることとした。

3・2・3 溶出溶媒量の検討

溶出溶媒量の最適化を図ることを目的に、アセトニトリルを用いた分画試験を行った（ $n = 2$ ）。各分画液におけるDDVP- d_6 の回収率を図3に示す。回収率は0～2 mLで平均65%、2～4 mLで平均28%であった。一方、4～6 mL、6～8 mL及び8～10 mLではDDVP- d_6 は検出されなかった。以上の結果から、環境水を前処理する際は余裕をもってアセトニトリル6 mLで溶出することとした。

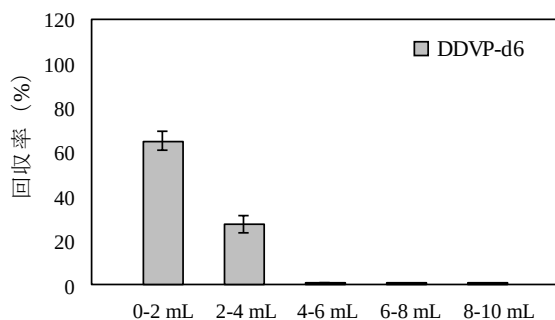


図3 分画試験結果

3・2・4 分析法の開発結果

3・2・1から3・2・3の検討結果をふまえ、図4のとおり分析法を開発した。

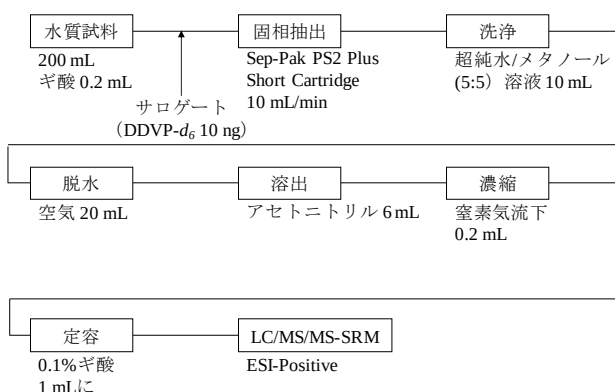


図4 開発した分析法のフローチャート

3・3 添加回収試験

環境水を用いた添加回収試験（ $n = 6$ ）の結果を図5に示す。なお、DDVPの回収率はサロゲート補正後のものである。河川水からの回収率は平均96%（サロゲート内標準の回収率は平均84%）、海水からの回収率は平均95%（サロゲ

ート内標準の回収率は平均93%）であり、回収率の許容範囲の目安とされる70～120%（サロゲート内標準の回収率は50～120%）³⁾を満足していた。また、DDVPを添加しなかった試料からは当該物質は検出されなかった（ $n = 2$ ）。

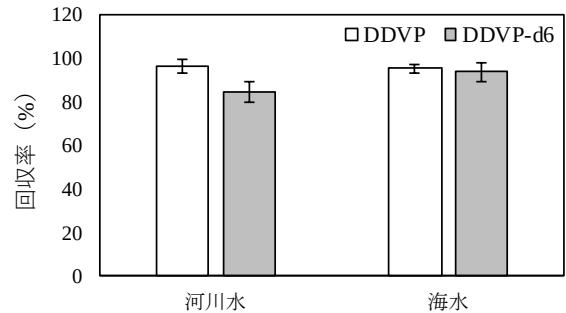


図5 添加回収試験結果

3・4 分析法の検出下限値の算出

本分析法のMDLは河川水で0.39 ng/L、海水で0.43 ng/Lであり、環境省より提示された要求検出下限値（0.7 ng/L）を満足していた。

3・5 分解性スクリーニング試験

分解性スクリーニング試験（ $n = 3$ ）の結果を図6に示す。DDVPの残存率はpHの上昇に伴い低下した。この結果は、塩基性においてDDVPの加水分解反応が促進されるとするLamoreauxらの研究⁴⁾と一致した。一方、光によるDDVPの分解は確認されなかった。

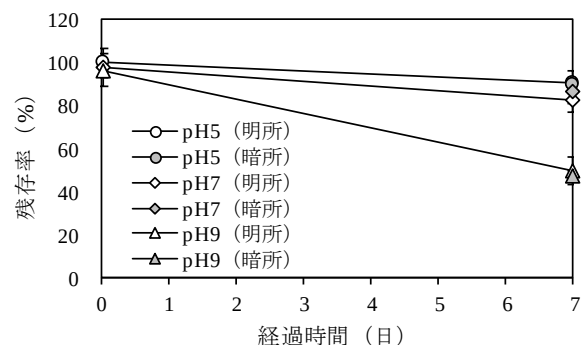


図6 分解性スクリーニング試験結果

3・6 保存性試験

保存性試験（ $n = 3$ ）の結果を図7に示す。粗抽出液は28日経過後も90%以上残存しており、保存性は良好であった。環境水については保存期間が長くなるにつれ残存率が低下した。このため、環境水にギ酸を添加したところ、保存性が向上した。残存率の許容範囲の目安は70%とされている³⁾。保存性試験の結果から、環境水中のDDVPを分析す

る場合は、試料採取後、速やかに抽出までの操作を行う必要があると考える。また、速やかに分析を行えない場合は、河川水であればギ酸を0.1%となるように添加した後、冷暗所に保存し、14日以内を目安に分析を行う、海水であればギ酸を1%となるように添加した後、冷暗所に保存し、7日以内を目安に分析を行うことが望ましいと考える。

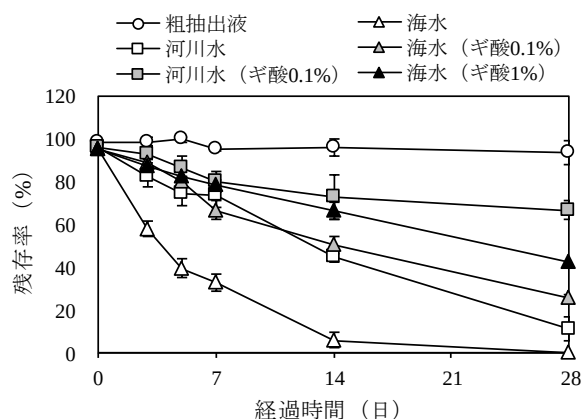


図7 保存性試験結果

4 まとめ

環境水中に含まれるDDVPの分析法を開発した。本分析法で用いたLC/MSのIDLは0.60 pg (IDL試料換算値0.30 ng/L)であった。検量線は0.50~100 ng/mLの濃度範囲で直線性が確認された。環境水を用いた添加回収試験結果は、河川水96% (サロゲート内標準回収率84%)、海水95% (サ

ロゲート内標準回収率93%)であった。MDLは河川水0.39 ng/L、海水0.43 ng/Lであった。なお、本研究で用いた河川水及び海水からは当該物質は検出されなかった。以上の結果から、本分析法は環境水中のDDVPについて0.4 ng/Lレベルの定量に適用可能と判断される。

謝辞

本研究は令和元年度環境省環境政策基盤整備費によるものである。ここに記して謝意を表します。

文献

- 1) 環境省：“化学物質環境実態調査－化学物質エコ調査ってどんな調査？－”, available from <https://www.env.go.jp/chemi/anzen/ecochousa.htht>, (accessed 2021-7-1)
- 2) 環境省：“環境省 化学物質情報検索支援システム”, available from http://www.chemicoco.env.go.jp/detail.html?worw=ジクロロボス9&chem_id=301&n_id=2, (accessed 2021-7-1)
- 3) 環境省：“化学物質環境実態調査実施の手引き（令和2年度版）”, p. 106 (2021).
- 4) Lamoreaux Robert J. and Newland Leo W.: The fate of dichlorvos in soil, Chemosphere, 7(10), 807-814, 1978.

(英文要旨)

Development of an analytical method for determination of dimethyl-2,2-dichlorovinyl phosphate in water

Keiichi SAKATANI

*Fukuoka Institute of Health and Environmental Sciences,
Mukaizano 39, Dazaifu, Fukuoka 818-0135, Japan*

We describe a procedure for the determination of dimethyl-2,2-dichlorovinyl phosphate (DDVP) in water samples by liquid chromatography-tandem mass spectrometry (LC/MS/MS). Formic acid is added to a 200-mL water sample, followed by 10 ng DDVP-d₆. Each water sample is passed through a solid phase extraction cartridge (Sep-Pak PS2 Plus Short Cartridge). The cartridge is washed with 10 mL water-methanol (1:1, v/v) and then dehydrated before elution with 6 mL acetonitrile. The eluate is concentrated to 0.2 mL under a flow of nitrogen, and adjusted to 1 mL with 0.1% v/v formic acid for LC/MS/MS-selected reaction monitoring analysis. The instrument detection limit is 0.60 pg. The detection limits of the method for DDVP in river water and sea water are 0.39 ng/L and 0.43 ng/L, respectively. The average recoveries from samples spiked with 5.0 ng DDVP were 96% from river water and 95% from sea water. The concentrations of DDVP in river and sea water surface samples collected in Fukuoka prefecture were below the detection limit.

[Key words; analytical method, dimethyl-2,2-dichlorovinyl phosphate, river water, sea water]

原著

福岡県内河川から瀬戸内海に流入する流達負荷量の変遷

志水信弘・柏原学・石橋融子

福岡県内河川から瀬戸内海への栄養塩等の流達負荷量を検討するため、タンクモデルによる平均年間流量と公共用水域測定結果を用いて試算を行った。その結果、平均年間流達負荷量は周防灘でBODが1,328 t/y、CODが2,836 t/y、T-Nが923 t/y、T-Pが62 t/yであり、響灘でBODが259 t/y、CODが517 t/y、T-Nが270 t/y、T-Pが11 t/yであった。これらの経年変化についてMann-Kendall傾向検定を行った結果、響灘流入河川のBOD、T-N及び北九州市内河川のBODの年間流達負荷量が有意な減少傾向を示した。この要因を発生源数の推移から考察した結果、北九州市では1900年代後半以降の行政人口と従業者数の減少に関連した生活系及び事業系発生負荷量の減少が要因の一つと考えられた。

[キーワード：瀬戸内海、福岡県、流達負荷量、Mann-Kendall傾向検定]

1 はじめに

閉鎖性水域である瀬戸内海では、環境基準達成のため水質汚濁防止法及び瀬戸内海環境保全特別措置法に基づき、CODは昭和55年から、窒素及びリンは平成14年から水質総量規制が実施されている。これにより瀬戸内海全域の発生負荷量は、昭和54年当時と比較して平成16年度にはCODで55%、窒素で67%およびリンで46%に低下したり。そのため瀬戸内海の水質は改善されたが²⁾、瀬戸内海の貧栄養化も問題となっており³⁾、最適な栄養塩負荷量については不明な部分が多い。これらの議論の前提として、瀬戸内海の栄養塩等の負荷量把握は重要な課題であるが、福岡県域からの流達負荷量やその変遷についての議論は少ない。

そこで、福岡県域からの河川を通じた瀬戸内海への流達負荷量について、公共用水域測定結果を用いてその量や変遷を明らかにするとともに、統計データから流達負荷量の変動要因について考察した。

2 負荷量の計算

2・1 対象河川、測定点及び地域

本研究では、瀬戸内海のうち周防灘及び響灘（図1）に流入する福岡県の河川で、2017年以前に20年以上水質測定が行われている河川（図1に黒実線で示す。）を対象とした。具体的には、豊前地域16河川（以降、豊前海流入河川とする。）及び北九州市内14河川（北九州市内河川とする。）を対象とした。対象測定点（図1に○で示す。）は、支川等の合流点より上流で対象河川の最下流の環境基準点又は補助点とした。

2・2 負荷量計算方法



図1 対象の河川及び測定点

水質データは、福岡県の公共用水域測定結果管理システム⁴⁾に登録されているBOD、COD、T-N、T-Pの値とした。データの登録期間は、豊前海流入河川（16河川）が1984-2017年、北九州市内河川が1988-2017年（ただし、貫川及び竹馬川は1990-2017年、相割川は1998-2017年）であった。データ数は、BODが11,311個、CODが7,826個、T-Nが2,744個、T-Pが2,743個であった。各項目値が報告下限値未満の場合には、報告下限値として取り扱い、測定地点ごとに年平均値を計算した。

流量は、過去の福岡県の調査^{5)・6)・7)}において各河川で構築したタンクモデル⁸⁾により、基準年の降水量データを用いて算出された対象測定点における平均流量（m³/s）を使用した。各対象年の補正平均流量は、下記の式により基準

年の平均流量を対象年の降水量で補正した。

対象年の補正平均流量(m³/s)＝

基準年の平均流量(m³/s) × 対象年の年間降水量(mm)

÷ 基準年の年間降水量(mm)

基準年は、北九州市内河川は 1992 年、豊前海流入河川のうち北部（音無川、祓川、今川、江尻川、長峡川及び小波瀬川）は 1997 年、南部（黒川、友枝川、佐井川、岩岳川、中川、角田川、上ノ河内川、城井川、真如寺川及び岩丸川）は 2002 年であった。降水量データは、アメダスデータ⁹⁾のうち北九州市内河川について八幡観測所の、豊前海流入河川について行橋観測所のものを使用した。

流達負荷量は、河川別に各年の補正平均流量を年間流量に変換し、水質データの年平均値を乗じて年間流達負荷量(t/y)を計算した。また、海域（周防灘流入河川、響灘流入河川）又は地域（北九州市内河川、豊前海流入河川）ごとに流達負荷量を合計した。

2. 3 その他のデータ

福岡県統計情報アーカイブ¹⁰⁾からデータを取得し、行政人口は住民基本台帳月報の毎年4月の市町村別人口を使用し、従業者数は工業統計調査の市町村別総括表の従業者数を使用した。市町村の面積、耕作地面積、宅地面積及び森林面積、公共下水道普及率及び污水处理区域内人口は、福岡県市町村要覧¹¹⁾（平成3、11、14、16、25、27、29年版）の値を使用した。家畜頭数は、農林水産省の作物統計調査¹²⁾の畜産累年統計の値を使用した。

3 結果と考察

3・1 各河川の平均年間流達負荷量

各河川の年間流達負荷量の平均及び海域別の合計値を表1に示す。海域別の上位3つの平均流量及び流達負荷量には下線を付した。周防灘流入河川の平均年間流達負荷量は、BODが1,328 t/y、CODが2,836 t/y、T-Nが923 t/y、T-Pが62 t/yであった。響灘流入河川では、BODが259 t/y、CODが517 t/y、T-Nが270 t/y、T-Pが11 t/yであり、響灘流入河川に比して周防灘流入河川の流達負荷量が3.4～5.6倍大きかった。これらを合計した福岡県域河川からの平均年間流達負荷量は、BODが1,588 t/y、CODが3,353 t/y、T-Nが1,193 t/y、T-Pが73 t/yであった。神菌¹³⁾は、周防灘西部海域への河川からの栄養塩負荷量（山国川を除く）をT-Nで1,009 t/y、T-Pで56 t/yと報告しており、本研究の値とほぼ一致した。

周防灘流入河川の流達負荷量は、平均流量が0.168～4.48 m³/sの幅を持つ大小20の河川から供給されていた。また、平均流量の上位3河川（祓川、今川、長峡川）が、各平均年間流達負荷量の上位3河川であった。これらの河川の流達負荷量の寄与は、BODで52.6 %、CODで51.1 %、T-Nで

表1 各河川の平均年間流達負荷量

海域別	河川	区分	平均流量 (m ³ /s)	平均流達負荷量(t/y)			
				BOD	COD	T-N	T-P
周防灘流入河川	黒川	I	0.401	26.0	58.5	17.4	1.37
	友枝川	I	1.41	52.2	119	42.9	2.35
	佐井川	I	0.939	41.9	81.1	29.6	1.07
	岩岳川	I	1.77	82.0	169	73.0	3.94
	中川	I	0.498	22.5	60.2	13.3	0.92
	角田川	I	0.465	19.7	51.5	12.4	1.37
	上ノ河内川	I	0.168	6.9	17.8	4.3	0.32
	城井川	I	2.14	60.3	134	52.8	1.72
	真如寺川	I	0.373	23.0	52.9	13.3	1.13
	岩丸川	I	0.904	42.0	113	32.3	2.38
	音無川	I	0.276	14.4	38.7	15.8	0.86
	祓川	I	<u>4.48</u>	<u>194</u>	<u>496</u>	<u>159</u>	<u>10.7</u>
	今川	I	<u>4.44</u>	<u>261</u>	<u>503</u>	<u>119</u>	<u>7.61</u>
	江尻川	I	0.681	53.6	113	38.9	3.91
	長峡川	I	<u>2.97</u>	<u>244</u>	<u>450</u>	<u>153</u>	<u>13.6</u>
	小波瀬川	I	1.20	78.5	159	56.3	4.82
	貴川	II	0.557	30.3	50.2	18.0	0.74
	竹馬川	II	1.35	56.9	112	49.3	2.11
	相割川	II	0.326	8.9	28.5	8.0	0.41
	奥畑川	II	0.371	10.8	28.3	15.2	0.55
小計				1328	2836	923	62
響灘流入河川	清滝川	II	0.025	0.6	2.2	1.3	0.06
	大川	II	0.260	11.8	23.3	17.1	0.49
	撥川	II	0.144	8.3	14.3	11.2	0.34
	村中川	II	0.085	3.8	7.6	5.2	0.19
	紫川	II	<u>4.01</u>	<u>120</u>	<u>258</u>	<u>104</u>	<u>4.60</u>
	板櫃川	II	<u>0.524</u>	17.5	34.6	15.1	0.81
	割子川	II	0.165	13.5	28.0	27.5	0.93
	新々堀川	II	0.385	<u>22.0</u>	<u>52.4</u>	<u>37.2</u>	<u>1.64</u>
	江川	II	<u>0.541</u>	<u>53.0</u>	<u>82.6</u>	<u>42.9</u>	<u>2.01</u>
	金手川	II	0.108	8.3	14.2	9.0	0.38
小計				259	517	270	11
合計				1588	3353	1193	73

区分（I：豊前海流入河川、II：北九州市内河川）

46.6 %、T-Pで51.6 %と約半分であった。

一方、響灘流入河川では、紫川の平均流量が他河川に比し約7～160倍大きかった。紫川の流達負荷量の寄与率は、BODで46.4 %、CODで49.8 %、T-Nで38.3 %、T-Pで40.3 %と響灘流入河川の合計値の約4～5割を占め、紫川単独の寄与が大きかった。板櫃川は、平均流量では第3位であるが、流達負荷量では新々堀川が第3位であり流量よりも水質汚濁による流達負荷量への寄与が大きな河川が見られた。

3・2 流達負荷量の経年変化

BOD、COD、T-N及びT-Pの年間流達負荷量の経年変化について、周防灘流入河川と豊前海流入河川のグラフを図2左段に、響灘流入河川と北九州市内河川を図2右段に示す。

周防灘流入河川と豊前海流入河川の年間流達負荷量は同程度であるため、長期データのある豊前海流入河川について検討した。BOD（図2左上段）では1980～1990年代に1,100 t/y前後であったが、1990年代末から2000年代前半に1,400 t/y前後に上昇し、2000年代末に1,200 t/y前後に低下した後、2010年代に再度1,400 t/y前後に増加していた。一方、COD（図2左上から2段目）は、一部を除き1980～2010年代

を通じ2,800 t/y前後で推移していた。T-N（図2左下から2段目）は、1980及び1990年代に700 t/y前後で推移した後、2000年代前半に1,000 t/y前後に増加し、後半以降800 t/y前後で推移した。T-P（図2左下段）もT-Nと同様な挙動を示し、1980及び1990年代に50 t/y前後を推移し、2000年代前半に70 t/y前後に増加し、後半以降60 t/y前後で推移した。

響灘流入河川と北九州市内河川の年間流達負荷量も同程度であるため、長期データのある響灘流入河川について検討した。BOD（図2右上段）は、1980～1990年代の300 t/y前後から2000年代前半に一過性に400 t/y弱まで上昇し、2000年代後半から急速に減少し、200 t/y弱となっており、期間全体をみると1990年代後半から顕著な減少傾向が見られた。COD（図2右上から2段目）は、1980～2010年代を通じ500 t/y前後で推移した。T-N（図2右下から2段目）は、1980年代後半から1990年代の350 t/y前後から2000年代前半に250 t/y前後に減少し、さらに2010年代では200 t/y前後に減少しておりBODと同様な減少傾向を示した。T-P（図2右下段）は、1980年代後半及び1990年代の13 t/y前後から

2000年代以降10 t/y前後に減少し、期間全体をみるとやや減少傾向が見られた。

次に、各年間流達負荷量の経年変化について、有意な傾向の有無を検定した。年間流達負荷量の変動分布が不明であるため、ノンパラメトリック検定法の1つであるMann-Kendall傾向検定を年間流達負荷量の時系列データに対して行い、 τ （Kendallの順位相関係数）及びp値を得た。計算は、統計ソフトR¹⁴⁾にKendallパッケージ¹⁵⁾を適用し使用した。 τ は、時系列データの変化傾向における相関の強さを示し、-1～1の値をとる。また、 $\tau > 0$ の場合には時系列データに増加傾向が、 $\tau < 0$ の場合には減少傾向があることを示し、p値がその有意水準を示す。本研究では、有意水準が5 %以下かつ τ が0.4以上又は-0.4以下であった場合に、有意な増加傾向又は減少傾向を有すると判断した。表2にその結果を示す。響灘流入河川ではBODとT-N、北九州市内河川ではBODの合計流達負荷量に有意な減少傾向があり、統計的な有意性が示された。また、その他の項目には、統計的な有意性は示されなかった。

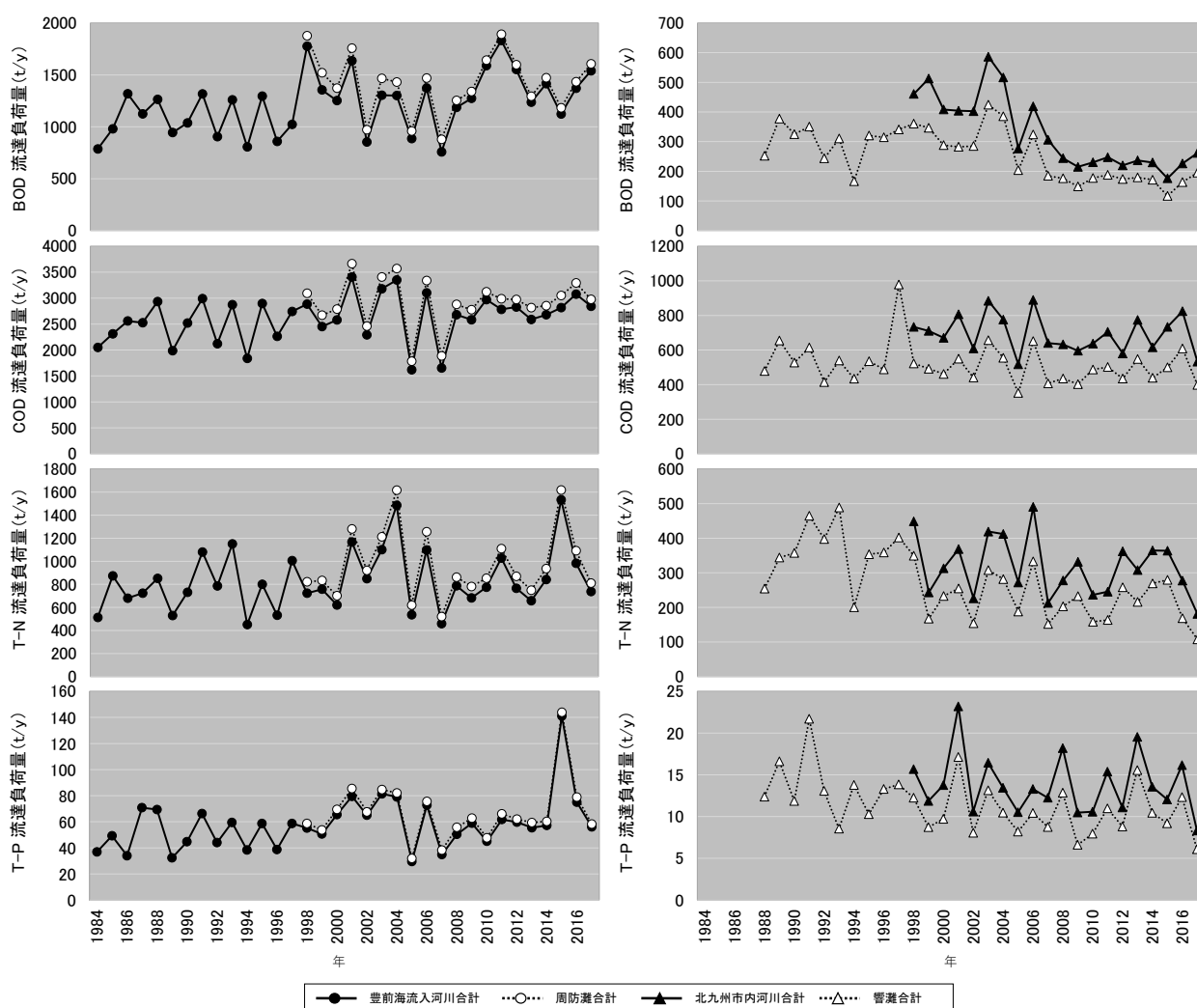


図2 年間流達負荷量の経年変化

表2 年間流達負荷量のMann-Kendall傾向検定の結果

河川又は海域	τ			
	BOD	COD	T-N	T-P
豊前海流入河川	0.27 *	0.22	0.14	0.21
周防灘	-0.032	0.032	0.074	-0.021
北九州市内河川	-0.60 **	-0.15	-0.15	-0.13
響灘	-0.44 **	-0.16	-0.40 *	-0.29 *

*: $p < 0.05$, **: $p < 0.01$

3・3 流達負荷量変化の要因

前段の年間流達負荷量の経年変化について、その変動要因を探るため、発生源別に対象期間（1984～2017年）の統計値の推移を考察した。対象地域は、対象河川流域市町村（図1の北九州市及び豊前地域2市5町）とした。ただし、筑豊地域に属す今川（図1）の上流域は、その全人口が豊前地域全人口の約6.5 %と少なく、また対象流域が市町村域の一部であるため人口等の統計値が豊前地域の数 %と極めて少なくなるため無視した。発生源は、生活系として行政人口及び污水处理区域内人口を対象とした。污水処理区域内人口の値が無い場合には、行政人口に公共下水道普及率を乗じた値を用いた。事業系発生源は従業者数を、農業系発生源は家畜頭数（牛、豚）を、面源は耕地、宅地及び森林面積を対象とした。各統計値の経年変化を図3に示し、面源について図4に示す。

まず、響灘のBOD、T-N及び北九州市内河川のBOD年間流達負荷量の変遷について、BOD年間流達負荷量の顕著な減少が見られた1995～2017年の北九州市統計値を考察した。北九州市の污水处理区域内人口（図3上段）は、1991年にすでに100 %に達し、負荷量減少要因として可能性が低かった。一方、行政人口（図3上から2段目）は、約101万人から約96万人へ5万人減少した。この人口減少による発生負荷量減少量は、表3の原単位を用いるとBODで1,100 t/y、CODで500 t/y、T-Nで260 t/y、T-Pで26 t/yと試算された。流域別下水道整備総合計画調査指針と解説¹⁶⁾によると従業員一人当たり排水量原単位は、1970～2010年代でほぼ一定である。このことから、事業場排水量は従業者数に依存し、排出負荷量が排水量に依存して変化すると仮定した。この時に北九州市の従業者数（図3中段）は、約7.4万人から4.7万人へと1995年比の6割に減少し、事業場排水量や発生負荷量も大きく減少したと推定された。家畜頭数は、確認出来るデータから豚（図3下から2段目）が約300頭、牛（図3下段）が約450頭減少しており、表3の原単位を乗じるとBODで130 t/y、CODで100 t/y、T-Nで52 t/y、T-Pで11 t/yの発生負荷量が減少するが、生活系と事業系を合わせた発生負荷量減少量に比しその寄与が小さかったと推定された。また、図4の北九州市の面源に大きな変動はなく、耕

地の減少と宅地の増加が見られた。この時に耕地を水田、宅地を市街地と見なすとBOD以外の各発生負荷量原単位（表4）は同程度であり、同規模の耕作地減少と宅地増加

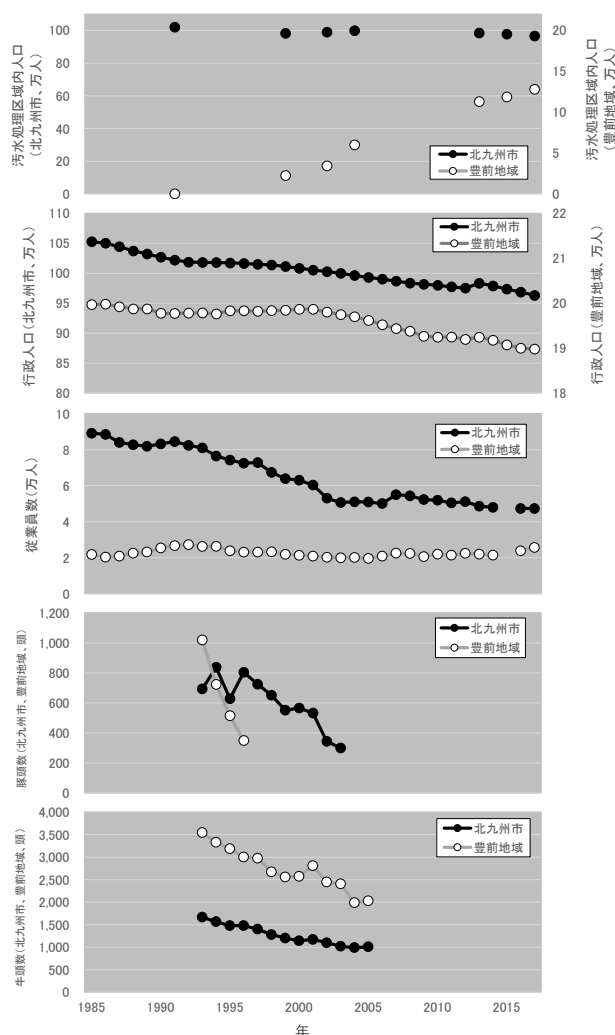


図3 污水处理区域内人口、行政人口、従業者数、豚及び牛頭数の経年変化

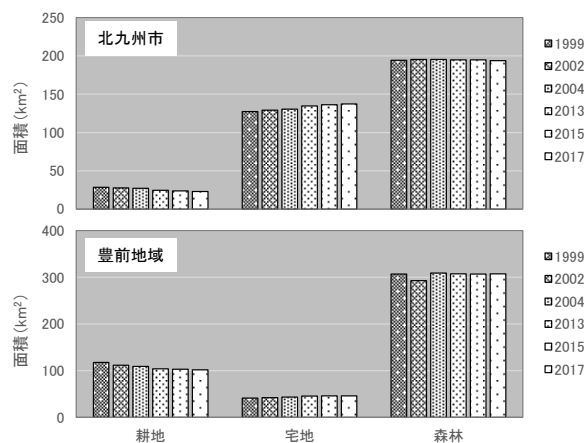


図4 面源の変化

表3 発生負荷量原単位¹⁵⁾

負荷発生源	発生負荷量原単位(g/人/日又はg/頭/日)			
	BOD	COD	T-N	T-P
人(人)	58	28	14	1.4
牛(頭)	640	530	290	50
豚(頭)	200	130	40	25
雑排水(人)	40	18	4	0.5
合併処理浄化槽(人)	10.9	7.7	6.5	0.75

表4 面源の発生負荷量原単位¹⁵⁾

面源	発生負荷量原単位(kg/ha/年)		
	COD	T-N	T-P
水田	48.4	10.6	1.41
市街地	53.1	11.9	0.83

では発生負荷量の変化が少ないため、有機物指標であるBODもCOD同様に発生負荷量の変化が少なかったと考えられた。これらを総合すると、1900年代後半から2000年代の北九州市での行政人口と従業者数の減少により、生活系及び事業系発生負荷量が減少した影響が大きく、これらが響灘及び北九州市内河川のBODやT-Nの年間流達負荷量の減少傾向へ影響した可能性があった。

次に周防灘及び豊前海流入河川の年間流達負荷量の変遷について、その流域の豊前地域の1985～2017年の発生源の統計値を検討した。豊前地域の污水处理区域内人口は、1991年から2017年に0人から13万人へ増加していた。当該地域では、污水处理区域内人口に合併処理浄化槽人口が多く含まれている。そこで、雑排水人口が合併処理浄化槽人口に転換したと仮定すると、表3の発生負荷量原単位の比較からBODやCODの発生負荷量は低下するが、T-N及びT-Pはほぼ変化しないことが分かる。このことから豊前地域の污水处理区域内人口増加は、主にBOD及びCODの発生負荷量減少に寄与したと推定された。行政人口は、20万人から19万人へ1万人減少し、表3の原単位を用いると発生負荷量の減少量は、BODで210 t/y、CODで100 t/y、T-Nで51 t/y、T-Pで5.1 t/yであった。従業者数は、2.2万人前後で推移し、大きな変化は無かった。家畜頭数は、確認出来るデータからは牛が約780頭、豚が約650頭減少し、表3の原単位を用いると発生負荷量がBODで230 t/y、CODで180 t/y、T-Nで92 t/y、T-Pで20 t/y減少したと推定された。また、図4の豊前地域の面源は、北九州市と同様に耕地減少と宅地増加が見られたが、先に議論したようにこれらによる発生負荷量の変化は小さいと推定された。污水处理区域内人口の増加によりBODやCODの発生負荷量減少割合はT-NやT-Pより大きかったと考えられるが、試算が困難であるため今回は無視し、行政人口と家畜頭数の発生負荷量の減少量を試算すると、BODで440 t/y、CODで280 t/y、T-Nで

表5 平均年間流達負荷量に対する発生負荷量減少量の割合の比較

地域	発生負荷量減少量(t/y)			
	BOD	COD	T-N	T-P
豊前地域(A)	440	280	140	25
北九州市(B)	1200	610	310	37
海域	平均年間流達負荷量(t/y)			
	BOD	COD	T-N	T-P
周防灘(C)	1328	2836	923	62
響灘(D)	259	517	270	11
A/C	0.33	0.10	0.15	0.40
B/D	4.6	1.2	1.1	3.4
(A/C)/(B/D)	0.07	0.08	0.13	0.12

140 t/y、T-Pで25 t/yであった。ここで豊前地域の発生負荷量減少量が周防灘流入河川及び豊前海流入河川の年間流達負荷量へ与えた影響の大きさを比較するため、その大きさを海域別の流入河川の平均年間流達負荷量に対する発生負荷量減少量の割合で表し、比較した。その結果を表5に示す。豊前地域の影響の大きさ(表5、A/C)は、北九州市のもの(表5、B/D)と比して0.07～0.13(表5、(A/C)/(B/D))と小さかった。このように影響の大きさの違いが要因の一つとなり、北九州市内河川や響灘流入河川と異なり、豊前海流入河川や周防灘流入河川の流達負荷量の経年変化が有意な傾向を示さなかったと考えられた。

ところで、北九州市では発生負荷量の減少が推定されるが、響灘流入河川や北九州市内河川のBODやT-Nと異なり、CODの年間流達負荷量は経年変化に変動がなく、ほぼ一定である。この要因は不明であるが、発生負荷量の削減にも関わらず瀬戸内海のCOD環境基準達成率が改善されない¹⁷⁾ことに関連してそのメカニズムは興味深く、さらなる検討が必要であった。

4 まとめ

福岡県内河川からの瀬戸内海への年間流達負荷量及びその変遷について、公共用水域測定結果を用いて検討した。その結果、平均年間負荷量は周防灘ではBODが1,328 t/y、CODが2,836 t/y、T-Nが923 t/y、T-Pが62 t/yであった。響灘流入河川では、BODが259 t/y、CODが517 t/y、T-Nが270 t/y、T-Pが11 t/yであった。

次に、年間流達負荷量の経年変化についてMan-Kendall傾向検定を行い、響灘流入河川のBOD、T-N及び北九州市内河川のBODの年間流達負荷量の経年変化は有意な減少傾向を有した。これらの年間流達負荷量の経年変化について、発生源数の推移からその要因を検討した。その結果、北九州市では、1900年代後半以降の行政人口と従業者数の減少に関連した生活系及び事業系負荷量の減少があった

と考えられ、これがBODやT-Nの流達負荷量減少に影響を与えた要因の一つと示唆された。また、豊前地域では行政人口及び家畜頭数の減少や污水处理区域内人口の増加に伴い、発生負荷量は減少したと考えられた。しかし、豊前地域の発生負荷量減少量は流達負荷量に与える影響が小さく、年間流達負荷量の経年変化が有意な傾向を示さなかったと示唆された。また、響灘流入河川や北九州市内河川のCODの年間流達負荷量には経年変化が見られず、BODのような発生負荷量減少の影響が見られない要因については不明であり、さらに検討が必要であった。

文献

- 1) 瀬戸内海的环境情報 (https://www.env.go.jp/water/heisa/heisa_net/setouchiNet/seto/kankyojoho/kan-kyohozen/kanho-2-4.htm) (2020/9/18アクセス)。
- 2) 阿保勝之ら：瀬戸内海における栄養塩濃度等の水質変化とその要因，沿岸海洋研究，55，101-111，2018。
- 3) 山本民次：瀬戸内海西部海域における貧栄養化，沿岸海洋研究，52，49-58，2014。
- 4) 福岡県環境部：公共用水域測定結果管理システム，(2020/3/19アクセス)。
- 5) 福岡県保健環境研究所：水質環境基準類型見直し調査業務報告書 北九州市内河川編，平成9年11月。
- 6) 福岡県保健環境研究所：水質環境基準類型見直し調査業務報告書 豊前海流入河川編，平成11年3月。
- 7) 福岡県保健環境研究所：水質環境基準類型見直し調査業務報告書 豊前海流入河川(南部)編，平成16年3月。
- 8) 国土交通省水管理・国土保全局：国土交通省河川砂防技術基準調査編 第3章第2節，20-23，平成26年4月
- 9) 気象庁：過去の気象データダウンロード (<https://www.data.jma.go.jp/gmd/risk/obsdl/>) (2020/12/1アクセス)。
- 10) 福岡県：情報統計アーカイブ (<https://www.pref.fukuoka.lg.jp/dataweb/>) (2020/12/1アクセス)。
- 11) 公益財団法人福岡県市町村振興協会：福岡県市町村要覧。
- 12) 農林水産省：市町村別データ長期累年 (https://www.maff.go.jp/j/tokei/kouhyou/sityo_tyouki/index.html#a15) (2020/12/1アクセス)。
- 13) 神菌真人，池内仁，寺田和夫：周防灘西部海域への流入河川からの栄養塩負荷量，福岡県豊前水試研報，1，131-135，1988。
- 14) Ross Ihaka & Robert Gentleman :A language and environment for statistical computing. R Foundation for Statistical Computing, Vienna, Austria. (<https://www.R-project.org/>), 2019.
- 15) A. I. McLeod :Kendall, Kendall rank correlation and Mann-Kendall trend test, R package version 2.2.(<https://CRAN.R-project.org/package=Kendall>), 2011.
- 16) 国土交通省水管理・国土保全局下水道部：流域別下水道整備総合計画調査指針と解説，平成27年1月。
- 17) 中央環境審議会：第6次総量規制のあり方について(答申)，平成17年5月。

(英文要旨)

Long-term variation in run-off loads from rivers in Fukuoka Prefecture to Seto Inland Sea

Nobuhiro SHIMIZU, Manabu KASHIWABARA and Yuko ISHIBASHI

*Fukuoka Institute of Health and Environmental Sciences,
Mukaizano 39, Dazaifu, Fukuoka 818-0135, Japan*

We studied the run-off loads from rivers in Fukuoka Prefecture to the Seto Inland Sea, using water quality data for public waters and average annual flow rates estimated using a tank model. The annual mean run-off loads were 1,328 t/y for biochemical oxygen demand (BOD), 2,836 t/y for chemical oxygen demand (COD), 923 t/y for total nitrogen (T-N), and 62 t/y for total phosphorus (T-P) in the Suo-nada; and 259 t/y for BOD, 517 t/y for COD, 270 t/y for T-N, and 11 t/y for T-P in the Hibiki-nada. Analyses of the changes over time using the Mann-Kendall trend test revealed a significant decreasing trend in the annual run-off loads of BOD and T-N in the Hibiki-nada, and of BOD in rivers in Kitakyushu City. We considered the effects of various factors on these changes. As a result, it was suggested that the decrease in the population and the number of employees in Kitakyushu City in the late 1900s reduced domestic and industrial emission loads, leading to the decreasing trend in the run-off loads.

[Key words ; Seto Inland Sea, Fukuoka Prefecture, run-off load, Mann-Kendall trend test]

原著

英彦山ブナ林におけるブナ実生の生残に及ぼす防鹿柵の効果

金子洋平・石間妙子・須田隆一

英彦山ブナ林における防鹿柵の設置が、ブナの実生更新を促進する効果があるのかを明らかにするために、防鹿柵内外でブナ実生の生残追跡調査を実施した。3年間の生残を追跡した結果、防鹿柵内の実生生存率は、柵外より高くなった。また、ブナ実生の死亡要因は、シカ食害や動物害と思われる消失が大半を占めており、土壌の体積含水率や林冠開空率は生存率と有意な関係は見られなかった。そのため、英彦山ブナ林の実生更新を促進するためには、防鹿柵の設置が有効であると考えられた。一方、柵内では2年目以降にノウサギ食害や動物害と思われる消失の割合が増加したことから、防鹿柵の下部に小型獣類の侵入防止用ネットを設置するなどの対策が必要であると考えられた。

[キーワード：ブナ林、防鹿柵、実生更新、死亡要因、英彦山]

1 はじめに

ブナ *Fagus crenata* Blume は、日本の冷温帯落葉広葉樹林に優占する代表的な樹種であり、ブナ林は北限の北海道渡島半島黒松内から南限の鹿児島県高隅山まで広く分布している。しかし、近年ではブナ林の衰退が各地で報告されており¹⁾²⁾³⁾、ブナ林衰退の簡易的なモニタリング手法の開発⁴⁾や神奈川県丹沢山地におけるブナ林衰退の原因究明及び保全活動⁵⁾⁶⁾が行われている。一方、地球温暖化に伴うブナ林の分布適域の減少も予測されており⁸⁾、今後ブナ林の再生はより困難になっていくと考えられることから、迅速な対応が必要となっている。

福岡県英彦山においても、ブナ林の衰退が著しい状況にある。英彦山ブナ林の衰退は、1991年の台風による大規模攪乱に起因するものであり、2001年において稜線部を中心に7割以上のブナが衰退または枯死している⁹⁾。また、当時はクマイザサ *Sasa senanensis* (Franch. et Sav.) Rehder が密生し林床への日光が遮られていたこと、近年ではニホンジカ *Cervus nippon* Temminck (以下、「シカ」) の密度が急速に増加し食害が増えたことから、後継樹の実生更新が阻害され、ブナ林の自然回復は一向に進んでいない。そのため福岡県では、2006年にクマイザサの刈り払い、翌年に防鹿柵の設置を行うなど、英彦山ブナ林の再生に取り組んでいる。

防鹿柵による植生保全の有効性については、多くの事例が報告されている¹⁰⁾¹¹⁾。しかし、防鹿柵の効果は一様ではなく、回復を期待する植物の生育が、ササ類やその他の植物の増加によって阻害されてしまう事例もある¹²⁾¹³⁾。また、植生の回復は、ネズミ類などの小型獣類の増加をもたらした¹⁴⁾¹⁵⁾、食害リスクを増加させる可能性も考えられる。そのため、防鹿柵設置後はモニタリングの実施によりその効果

を検証することが重要であり、必要に応じて順応的な管理を行う必要がある。

そこで本研究では、英彦山ブナ林において、ブナの実生更新に対する防鹿柵の効果を検証するために、防鹿柵の内外で生残追跡調査を行った。また、親個体の近くや種子・実生密度が高い場所では、植食者や土壌中の種特異的な病原菌が多く、種子や実生の生存率が低くなるとされているため¹⁶⁾¹⁷⁾、実生の生存率と親木との位置関係や実生密度の関係性について検証し、ブナの実生更新を促進させる方法について考察する。

2 調査方法

2・1 調査地の概要

英彦山は、福岡県田川郡添田町と大分県中津市山国町にまたがる標高1,199mの山であり、耶馬日田英彦山国定公園の一部をなしている。植生帯は、標高800m前後を境に暖温帯常緑広葉樹林から冷温帯落葉広葉樹林へと移行し、特に1,000m以上の地域ではブナ自然林(ブナークマイザサ群落)が分布している¹⁸⁾¹⁹⁾。高木層はブナのほか、コハウチワカエデ *Acer sieboldianum* Miq.、ミズメ *Betula grossa* Siebold et Zucc.、イヌシデ *Carpinus tschonoskii* Maxim.、エゴノキ *Styrax japonicus* Siebold et Zucc.などが混生し、高さ16~20mに達する。前述したようにブナ高木の衰退・枯死が進行しているため、高木層の植被率は20~50%程度である。低木層には、シロモジ *Lindera triloba* (Siebold et Zucc.) Blume、タンナサワフタギ *Symplocos coreana* (H.Lév.) Ohwi、カマツカ *Pourthiaea villosa* (Thunb.) Decne.などが生育するが、概して貧弱である。

シカは明治時代にはすでに英彦山に生息していたとさ

れるが、1990年代頃から生息地域の拡大及び個体数の増加が起きている²⁰⁾。英彦山とその北東部に位置する犬ヶ岳地域におけるシカの生息密度は、推定で平均24.8頭/km²、最も高い区域では53.1頭/km²に達しており²¹⁾、シカの適正頭数（生態系や林業に大きな被害が生じない密度レベル）の5頭/km²よりもはるかに多い。

英彦山地は、植物の種数が非常に豊富であり¹⁹⁾²²⁾、希少種の種数も多い²³⁾ことから、九州の中でも生物多様性保全の観点から特に重要度の高い地域の一つとされている²⁴⁾。また、ブナ林に依存するブナアオシャチホコ *Syntypistis punctatella* (Motschulsky)やブナタマバエ類などが確認されており²⁵⁾²⁶⁾、これらの種の局地的な絶滅を防止するためには、ブナ林の保全が重要である。さらに、英彦山は、山岳信仰（修験道）の霊場として国の史跡に指定されており、生物多様性保全の観点だけでなく、景観的・文化的観点からも保全の重要性が高い場所である。

福岡県によるブナ林再生の取組の一つが、英彦山の北岳と中岳間の鞍部（N33°28.7'、E130°55.7'、標高1050–1100m、図1）で実施されている。主な内容は、ブナの実生更新を促すことを目的とした2006年の大規模なクマイザサの刈り払い及び翌年の防鹿柵（125m×80m、高さ2m、目合15cm）の設置である。しかし、倒木によって防鹿柵が破損したことで、シカの侵入・食害により、林床植生はクマイザサから主にシカの忌避または不嗜好性植物¹⁹⁾²⁷⁾²⁸⁾であるイワヒメワラビ *Hypolepis punctata* (Thunb.) Mett. ex Kuhnやアオバスゲ *Carex insanae* Koidz. var. *papillatculmis* (Ohwi) Ohwi、裸地的部分に生育し採食耐性のあるミヤマササガヤ *Leptatherum nudum* (Trin.) C.H.Chen, C.S.Kuoh et Veldkampやヌカバ *Agrostis clavata* Trin. var. *nukabo* Ohwiなどが優占している。

2013年秋季に5年ぶりとなるブナ大豊作年が到来したことから防鹿柵の大規模な補修を実施し、調査枠を設定した。その後、2014年から2015年にかけて、倒木による防鹿柵の破損や柵下部からの潜り込みによるシカの侵入が複数回発生したため、調査時に柵の補修を実施するとともに（月に1回程度）、柵下部からの潜り込みが多い場所はスカート付きネットに変更し、シカの侵入を最小限に抑えるように努めた。その結果、2015年夏以降はシカの侵入は確認されていない。

調査地の近傍に位置するアメダス観測所における2014年から2017年の年平均気温は15.4°C（添田；N33°33.5'、E130°51.3'、標高92m）、年平均降水量は2,687mm（英彦山；33°29.3'、E130°55.4'、標高823m）であった²⁹⁾。

2・2 調査方法

2・2・1 ブナ実生の生残追跡

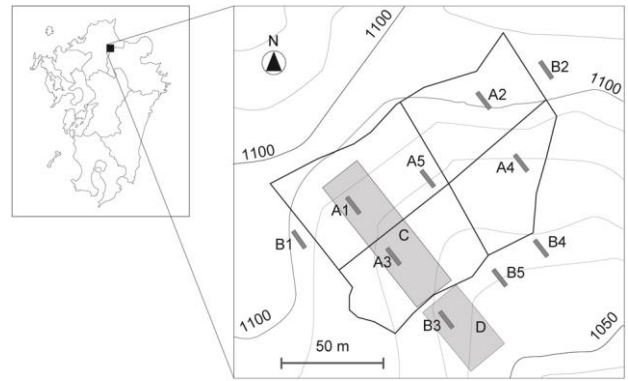


図1 調査地の位置

A1–A5 及び C は、防鹿柵内のコードラート、B1–B5 及び D は柵外のコードラートを示す。

ブナ実生の生存率及び死亡要因を明らかにするために、実生の生残追跡調査を行った。調査は、防鹿柵内外で2m×10mのコードラートを各5か所設置し（A1–A5、B1–B5；図1）、2m×2mのサブコードラート5個に分割して行った。実生は幹長が50cm以下の個体とし、針金にナンバークレープを取り付けた実生旗により個体識別し追跡調査を行った。調査は、2014年6月から10月、2015年5月から10月にかけて月に1回程度実施した。その後、2016年6月及び10月、2017年5月に調査を行い、計3年間の追跡調査を実施した。実生が死亡していた場合は、食害、枯死、虫害、菌害等の死亡要因を可能な限り記録した。食害については、食痕から採食した動物を記録したが、上胚軸が全て無くなっているものについては、動物害である可能性が高いが、消失として記録した。

ブナ実生の生残に関わる環境要因として、土壤水分及び光環境について調査した。土壤水分については、夏季に枯死が多く発生したことから、2014年7月及び2015年7月を対象とし、各サブコードラートの隣接地点から100 ml (V)のステンレス試料円筒（DIK-1801、大起理化学工業株式会社）を用いて土壌を採取し、湿重量（Ws）を計測後、105°Cで約48時間乾燥させ（恒温機、PERFECT OVEN PS-12；田葉井製作所株式会社）、恒量に達しているかを確認した後、乾燥重量（Wd）を計測した。これらの値から、体積含水率（(Ws–Wd)/V）を計算し、2014年と2015年の平均値を、各サブコードラートの土壤水分環境の指標とした。光環境については、2016年5月に全天空写真の撮影を行い（Nikon COOLPIX 880 + Nikon Fisheye lens FC-E8）、写真解析ソフト（CanopOn2）³⁰⁾により林冠開空率（%）を算出し、各サブコードラートの光環境の指標とした。全天空写真の撮影は、太陽の写りこみによる林冠開空率の過大評価を防止するために曇天日とし、各サブコードラートの中心部において地上高50cmの位置で撮影した。

2・2・2 親木の位置とブナ実生の生存率

親木の位置と実生の生存率の関係を明らかにするために、林冠木が比較的多く残存している場所を選定し、防鹿柵内に 20m×70m、柵外に 20m×35m のコドラートを設置した (C 及び D ; 図 1)。コドラートは、5m×5m のサブコドラートに分割し、2014 年 7 月と 2015 年 8 月に実生数を計数した。また、コドラートに樹冠がかかっている全ての林冠木を対象とし、種名及び樹冠の形を記録した樹冠投影図を作成した。各サブコドラートにかかっている樹冠面積を樹冠投影図から算出し、親木との距離の指標とした。

2・3 解析方法

防鹿柵内外において、ブナ実生の生存率に差があるかを明らかにするために、生存時間解析として、カプラン・マイヤー法 (Kaplan-Meier method) による生存曲線の作成及び Log-rank 検定による比較を行った。次に、環境要因がブナ実生の生存率に影響を及ぼすかを評価するために、一般化線形混合モデルを構築した。応答変数は、最終調査時のサブコドラートにおける生存率、説明変数は体積含水率、林冠開空率、ブナ実生密度とし、コドラート位置をランダム効果として組み込んだ。分布は二項分布、関数は logit を用いた。また、柵内外の死亡要因の比率の違いについては、フィッシャーの正確確立検定 (Fisher's exact Test) により比較を行った。

親木の位置とブナ実生の生存率の関係については、応答変数をサブコドラートの実生の生存率、説明変数をサブコドラートにかかっているブナの樹冠面積と実生密度とし、分布を二項分布、関数 logit を用いた一般化線形モデルにより評価した。一般化線形混合モデル及び一般化線形モデルに用いる説明変数は、分散拡大係数 (VIF) を計算し、多重共線性がないことを確認した。なお、2014 年及び 2015 年に防鹿柵内にシカが侵入し、シカ食害が合計 19 本発生したが、柵内へのシカの侵入は各地で多数報告されており

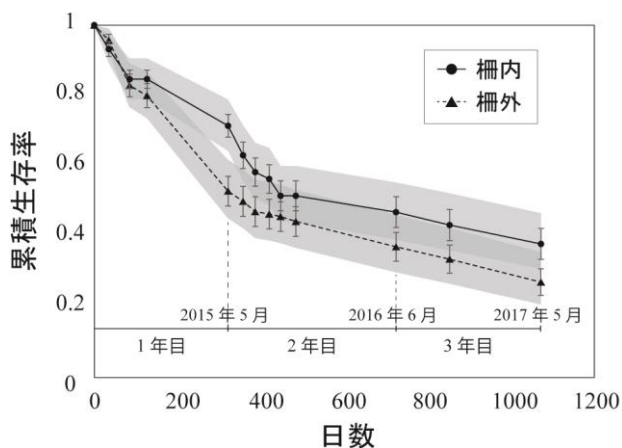


図2 カプラン・マイヤー法を用いたブナ実生の生存曲線
エラーバーは標準誤差、黒塗りは95%信頼区間を示す。

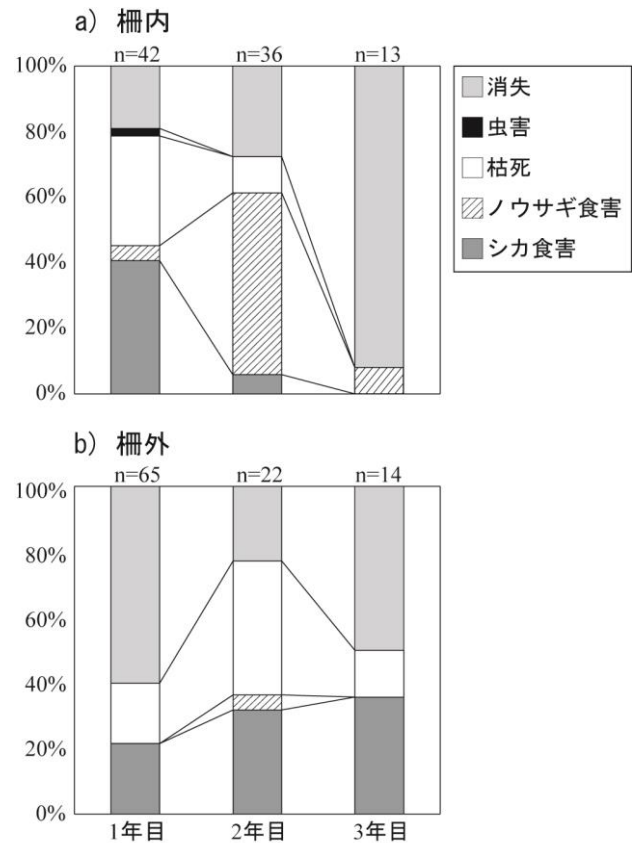


図3 防鹿柵内外におけるブナ実生の死亡要因の推移
n は各年に死亡した実生数を示す。

31)32)、不可避なものと考えられることから、一般的な事象として扱うこととし、これらを含める形で解析を行った。

これらの解析には、統計解析ソフトは R.ver.3.5.1³³⁾ を使用し、生存時間解析にはパッケージ”survival”、一般化線形混合モデルには”glmmML”を使用した。

本文及び図表における植物の和名・学名は、原則として「植物和名－学名インデックス (YList)」³⁴⁾に従った。

3 結果

3・1 ブナ実生の生残追跡

各コドラート (A1–A5、B1–B5) に出現した実生数は、4 から 68 本であり、合計で 287 本 (1 m² 当たり 1.4 本) であった。

3 年間にわたる実生の累積生存率は、防鹿柵内で有意に高かった (log rank-test, $p = 0.04$, 図 2)。1 年間 (2015 年 5 月時点) の累積生存率は、防鹿柵内で 0.71 (95% 信頼区間 0.65–0.79) であり、防鹿柵外の 0.53 (信頼区間 0.45–0.62) と大きな差が見られた。しかし、2 年目は防鹿柵内での死亡率が高かったことから、2 年間 (2016 年 6 月時点) の累積生存率は、防鹿柵内 0.47 (信頼区間 0.40–0.56)、防鹿柵外 0.37 (信頼区間 0.30–0.46) と累積生存率の差が小さくなった。3 年目の生存率は柵内外でほとんど変わらず、3

年間（2017 年 5 月時点）の累積生存率は、防鹿柵内 0.38（信頼区間 0.31–0.47）、柵外 0.27（信頼区間 0.21–0.36）であった。

ブナ実生の死亡要因は、防鹿柵内外で異なっていた（図 3）。防鹿柵内で死亡した実生は 91 本であり、死亡要因の内訳は消失 30 本、ニホンノウサギ *Lepus brachyurus* Temminck（以下「ノウサギ」）による食害 23 本、シカ食害 19 本、枯死 18 本、虫害 1 本であった。一方、防鹿柵外では、死亡した実生は 101 本であり、消失 51 本、シカ食害 26 本、枯死 23 本、ノウサギ食害 1 本で、死亡要因の比率には防鹿柵内外で有意な差が見られた（Fisher's exact Test、 $p < 0.001$ ）。また、死亡要因を年ごとにみると、柵外では、どの年も同じような傾向を示したものの、柵内では年毎に主要な死亡要因が異なり、2 年目にノウサギ食害の割合の増加、3 年目に消失の割合の増加が見られた。

一般化線形混合モデルによりブナ実生の生残に及ぼす環境要因等の影響を評価した結果、体積含水率、林冠開空率、実生密度はブナ実生の生存率に影響を及ぼしていないことが示された（表 1）。

表 1 ブナ実生の生存率に及ぼす要因

説明変数	防鹿柵内		防鹿柵外	
	係数	P 値	係数	P 値
体積含水率	–	0.297	+	0.432
林冠開空率	–	0.995	+	0.596
実生密度	–	0.215	+	0.377

3・2 親木の位置とブナ実生の生存率

コドラートに樹冠がかかっている林冠木の本数は、防鹿柵内は、ブナが 13 本、コハウチワカエデ、イヌシデが各 1 本の計 15 本であった（図 4）。一方、防鹿柵外では、ブナが 13 本、ミズメが 1 本の計 14 本であった。

出現したブナ実生数は、防鹿柵内 1,713 本であり、サブコドラート当たり平均 30.6 本（1–104 本）であった。柵外は、496 本であり、平均 17.7 本（0–42 本）であった。1 年後の実生の生存率は、防鹿柵内で平均 48.3%（0–100%）、柵外で平均 35.2%（0–77.3%）であった。

実生の生存率に及ぼす樹冠面積及び実生密度の影響を一般化線形モデルにより解析した結果、防鹿柵内及び柵外のどちらにおいても、有意な効果は見られなかった（表 2）。

表 2 ブナ実生の生存率に与える親木と実生密度の影響

説明変数	防鹿柵内		防鹿柵外	
	係数	P 値	係数	P 値
樹冠面積	–	0.746	+	0.811
実生密度	+	0.967	+	0.856

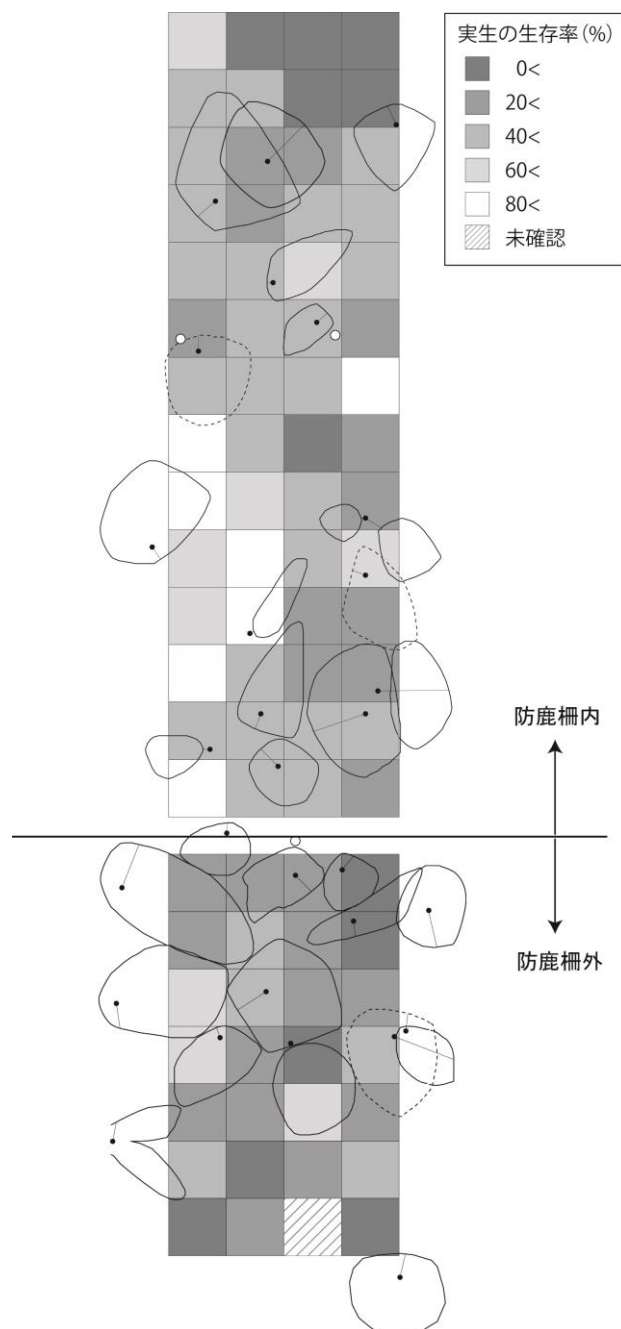


図4 樹幹投影図及びブナ実生の生存率

黒丸は樹木の位置、白抜き丸は枯死木の位置、実線はブナの樹冠、破線はブナ以外の樹木の樹冠を示す。

4 考察

ブナ実生の生存率は、防鹿柵外よりも柵内で高かった。積雪が少なく種子や実生が動物に見つけられやすい太平洋型ブナ林は、シカやネズミ類などの動物による食害が実生更新の主要な阻害要因の一つであると考えられており³⁵⁾³⁶⁾、太平洋型ブナ林に該当する本調査地においても、死亡要因の多くはシカによる食害や動物害と考えられる消失であった。同じく太平洋型ブナ林に属する宮城県牡鹿半島の金華山でも同様の結果が報告されている³⁷⁾。このこと

から、英彦山ブナ林においてブナ実生の更新を促すためには、防鹿柵の設置による動物害の低減が最も効果的な方法であると考えられる。ただし、英彦山は、枯死したブナの立木が多く残っており、倒木による防鹿柵の破損が定期的に生じると予想される。また、中岳山頂付近に設置された防鹿柵においては、風雪害と見られる折損等がたびたび発生している。このため、防鹿柵の破損と柵内へのシカ侵入の程度によっては、柵の効果は限定的になると思われる。したがって、シカの侵入を最小限に抑えるためには、頻繁な見回りと早急な柵の補修作業が必要不可欠である。

一方、今回の調査結果は、シカの排除だけでは十分ではないことも示唆している。防鹿柵内では、ノウサギによる食害の割合が顕著に増加し、その後動物害と思われる消失が増加した。防鹿柵の設置によって回復した植生は、天敵から身を隠すカバー（避難所）として機能することから、ブナの種子を摂食するネズミ類の個体数が増加することが報告されている¹⁴⁾¹⁵⁾。また、ノウサギ等の小型獣類は網目が10cm程度であれば容易に柵内に侵入することが知られている³¹⁾。本調査地で設置している防鹿柵の網目は15cmと大きいことから、防鹿柵内に侵入したノウサギによる食害の割合が増加したものと推察される。したがって、ブナの実生更新をより効果的に進めていくためには、防鹿柵の下部に小型獣類の侵入防止用ネットを設置するなどの対策が必要である。

親個体の近くや種子・実生密度が高い場所では、種特異的な病原菌等を介した距離依存的死亡及び密度依存的死亡が生じ、種子や実生の生存率が低下するとされるJanzen-Connell仮説¹⁶⁾¹⁷⁾は、世界中の様々な研究で支持されており³⁸⁾³⁹⁾、ブナの実生についても、親木の下ほど死亡率が高いことが報告されている⁴⁰⁾。しかし、本研究では、ブナ実生の生存率に親木との位置関係や実生密度の影響は見られなかった。その原因としては、本調査地がブナ林の衰退地域という特異な場所であり、菌害が発生しにくい良好な光環境⁴¹⁾⁴²⁾が整っていたこと、ブナを加害する昆虫類の個体数が減少していた可能性があること、さらにはシカ食害の影響等が考えられる。一方、今回の結果は当年生実生の1年間のみの追跡調査であったこと、既存研究⁴⁰⁾と比較して観察した実生数が少なかったこと、樹冠面積を親木との距離の指標として用いたことなど、調査方法による影響も考えられることから、さらに詳細な検証が必要である。

5 まとめ

本研究では、防鹿柵の設置及び定期的な補修作業が、柵内のブナ実生の生存率を上げることが示された。一方、小型獣類による食害の増加も引き起こすことが示されたため、ブナ実生更新を促進させるためには、防鹿柵の設置に

加えて、柵の下部に小型獣類防止用のネットを設置することが最も適した方法であると考えられた。

本研究結果は、実生の3年間の生残追跡を行ったものであるが、英彦山ブナ林における実生更新過程を明らかにするためには、種子や稚樹段階における死亡要因についても調査する必要がある。また、本研究では防鹿柵内における植生の回復状況を考慮していない。今後、クマイザサなどのブナ以外の植生が回復してきた場合は、光資源等を巡る競争が激化し、ブナ実生の更新を阻害する可能性も考えられるため、周辺植生の影響についても検証する必要がある。

文献

- 1) 谷脇徹：森林科学, 67, 2-5, 2013.
- 2) ミュージアムパーク茨城県自然博物館：茨城県自然博物館第 1 次総合調査報告書—筑波山・霞ヶ浦を中心とする県南部地域の自然—, 筑波山・霞ヶ浦の維管束植物, (菅谷正司ら編), p.109, 1998 (ミュージアムパーク茨城県自然博物館, 坂東市).
- 3) 中西隆之, 太田良和弘, 石井聖：静岡県環境衛生科学研究所報告, 52, 91-96, 2009.
- 4) 武田麻由子, 小松宏昭：森林科学, 67, 22-25, 2013.
- 5) 山根正伸ら：丹沢大山総合調査学術報告書, 703-710, 2007.
- 6) 神奈川県自然環境保全センター：特集 丹沢山地のブナ林衰退研究の最前線, 2012 (神奈川県自然環境保全センター, 厚木市).
- 7) 神奈川県自然環境保全センター：丹沢ブナ林再生指針, 2017 (神奈川県自然環境保全センター, 厚木市).
- 8) 松井哲哉ら：地球環境, 14, 165-174, 2009.
- 9) 猪上信義, 野田亮, 佐々木重行：九州森林研究, 55, 54-57, 2002.
- 10) S. Takatsuki：Biol. Conserv., 142, 1922-1929, 2009.
- 11) 前迫ゆり, 高槻成紀：シカの脅威と森の未来—シカ柵による植生保全の有効性と限界—, 2015 (文一総合出版, 東京).
- 12) 渡邊修ら：信州大学農学部紀要, 48, 17-27, 2012.
- 13) 中静透, 阿部友樹：シカの脅威と森の未来, 大台ヶ原のブナ林の30年, (前迫ゆり, 高槻成紀編), p.137, 2015 (文一総合出版, 東京).
- 14) 田中美江ら：日本森林学会誌, 88, 348-353, 2006.
- 15) 日野貴文ら：森林防疫, 65, 149-154, 2016.
- 16) D. H. Janzen: Am. Nat., 104, 501-528, 1970.
- 17) J. H. Connell: On the role of natural enemies in preventing competitive exclusion in some marine animals and in rain forest trees. In: Dynamics of Populations (P.J. den Boer and G.R. Gradwell eds.), p.298, 1971, (Centre for Agricultural

- Publishing and Documentation, Wageningen, The Netherlands).
- 18) 福岡県高等学校生物研究部会：福岡県植物誌, 1975 (博洋社, 福岡).
- 19) 熊谷信孝：英彦山・犬ヶ岳山地の自然と植物, 2010 (海鳥社, 福岡).
- 20) 池田浩一：福岡県森林林業技術センター研究報告, 6, 1-93, 2005.
- 21) 福岡県環境部自然環境課：令和3年度福岡県（耶馬日田英彦山国定公園第1・第2工区）指定管理鳥獣捕獲等事業実施計画（ニホンジカ）, https://www.pref.fukuoka.lg.jp/uploaded/life/573971_60714875_misc.pdf (2021/6/30 アクセス).
- 22) 大内準：英彦山, 英彦山の植物, (田川郷土研究会編), p.545, 1958 (田川郷土研究会, 福岡).
- 23) 福岡県環境部自然環境課：福岡県の希少野生生物 福岡県レッドデータブック2011ー植物群落・植物・哺乳類・鳥類ー, 2011 (福岡県環境部自然環境課, 福岡).
- 24) 中尾勝洋, 津山幾太郎, 堀川真弘：環境情報科学学術研究論文集, 28, 31-36, 2014.
- 25) 佐藤信輔, 津田清, 湯川淳一：日本環境動物昆虫学会誌, 21, 7-13, 2010.
- 26) 屋宜禎央, 広渡俊哉：日本環境動物昆虫学会誌, 30, 71-101, 2019.
- 27) 橋本佳延, 藤木大介：人と自然, 25, 133-160, 2014.
- 28) 神奈川県自然環境保全センター：神奈川県シカ不嗜好性植物図鑑, https://www.agri-kanagawa.jp/tebiki/fushiko_2016.pdf (2021/6/30 アクセス).
- 29) 気象庁：過去の気象データ検索, <http://www.data.jma.go.jp/obd/stats/etrn/index.php> (2021/6/30 アクセス).
- 30) 竹中明夫：全天写真解析プログラムCanopOn 2, <http://takenaka-akio.org/etc/canopon2/> (2021/6/30 アクセス).
- 31) 片平篤行：群馬県林業試験場第22号研究報告, 2018.
- 32) 酒井敦：水利科学, 359, 101-113, 2018.
- 33) R Core Team: R: A language and environment for statistical computing, 2018, (R Foundation for Statistical Computing, Vienna, Austria), <https://www.R-project.org/>.
- 34) 米倉浩司, 梶田忠：植物和名一学名インデックスYList, <http://ylist.info> (2021/6/30 アクセス).
- 35) 島野光司：植物地理・分類研究, 46, 1-21, 1998.
- 36) 丸田恵美子, 紙谷智彦：森林立地, 38, 43-52, 1996.
- 37) S. Takatsuki and T. Gorai : *Ecol. Res.*, 9, 115-120, 1994.
- 38) 今埜実希, 清和研二：日本生態学会誌, 61, 319-328, 2011.
- 39) L. S. Comita *et al.*: *J. Ecol.*, 102, 845-856, 2014.
- 40) M. Yamazaki, S. Iwamoto and K. Seiwa: *Plant Ecol.*, 201, 181-196, 2009.
- 41) Y. Ichihara and K. Yamaji: *J. Chem. Ecol.*, 35, 1077-1085, 2009.
- 42) K. Yamaji and Y. Ichihara: *For. Pathol.*, 42, 1-7, 2012.

(英文要旨)

Effects of deer-proof fences on the survival of beech (*Fagus crenata*) seedlings at Mt. Hiko, Fukuoka, Japan

Yohei KANEKO, Taeko ISHIMA and Ryuichi SUDA

*Fukuoka Institute of Health and Environmental Sciences,
Mukaizano 39, Dazaifu, Fukuoka 818-0135, Japan*

To determine which factors inhibit beech seedling regeneration at Mt. Hiko, the demography of beech seedlings was investigated inside and outside deer-proof fences for 3 years. The seedling survival rate was higher inside the deer-proof fences than outside of them. The major mortality factors for beech seedlings were deer grazing and disappearance due to animal damage. The survival rate was not significantly correlated with canopy openness or soil moisture. Thus, we concluded that it is important to establish deer-proof fences for beech seedling regeneration. In addition, because the death of beech seedlings by hare feeding and disappearance increased inside the fences after the second year, we suggest that a fine mesh net should be attached to fences to prevent the invasion of small animals.

[Key words ; beech forest, deer-proof fences, seedling regeneration, mortality factors, Mt. Hiko]

短報

浮遊物質を含まない水試料からの抽出時におけるダイオキシン類の挙動に関する検討

酒谷圭一・小木曾俊孝

浮遊物質を含まない水試料について、ろ過から抽出までの工程におけるダイオキシン類の挙動を調査した。上部にガラス繊維ろ紙を、下部に抽出用固相を装着した装置に試料を通水することで、ガラス繊維ろ紙、抽出用固相、試料瓶、装置及び通液におけるダイオキシン類の存在割合を算出した。その結果、ダイオキシン類の大半がガラス繊維ろ紙、抽出用固相及び装置に存在することが明らかとなった。また、これらのうち、ガラス繊維ろ紙及び装置に存在するダイオキシン類の割合は塩素数の増加に伴い増加することが確認された。

[キーワード：ダイオキシン類、抽出挙動、水質、浮遊物質]

1 はじめに

当所では、水試料中のダイオキシン類の試験検査は、“JIS K 0312 工業用水・工場排水中のダイオキシン類の測定方法¹⁾”で規定された方法に従い次のとおり行っている。試料にクリーンアップスパイクを添加した後、ろ過を行い、ろ液とろ過残差をそれぞれ抽出する。抽出後、硫酸処理、多層シリカゲルカラムクロマトグラフ及び活性炭カラムクロマトグラフを組み合わせた精製を行う。精製後、シリンジスパイクを添加し、高分解能ガスクロマトグラフ質量分析装置 (GC/HRMS) を用いて測定する。

今般、同試験検査において、クリーンアップスパイクの回収率がJIS K 0312で定められている50-120%を満足しない事例があった。これらの事例について検証したところ、特に浮遊物質 (SS) 量が1 mg/L未満となるようなSSの少ない試料において、1,2,3,4,6,7,8,9-オクタクロロジベンゾ-*p*-ジオキシン (1,2,3,4,6,7,8,9-OCDD) や1,2,3,4,6,7,8,9-オクタクロロジベンゾフラン (1,2,3,4,6,7,8,9-OCDF) の回収率が低くなる傾向が確認された。ろ過及び固相抽出後の精製から測定の工程においては、SSが回収率に及ぼす影響は小さいと考えられる。そこで、SSを含まない水を試料に用い、ろ過から固相抽出までの工程におけるダイオキシン類の挙動を調べた。なお、対象とするダイオキシン類はテトラからオクタクロロジベンゾ-*p*-ジオキシン (PCDDs) 及びテトラからオクタクロロジベンゾフラン (PCDFs) のうち2,3,7,8-位に置換塩素を持つもの並びにダイオキシン様PCB (DL-PCBs) の計29化合物 (PCDDs 7化合物、PCDFs 10化合物及びDL-PCBs 12化合物) とした。

2 方法

2・1 試料

SSを含まない試料として精製水1000 mLを用いた。

2・2 試薬

精製水は富士フィルム和光純薬製の超純水 (LC/MS用) を用いた。アセトン、メタノール、ジクロロメタン、トルエン、ノナン及び硫酸ナトリウムは富士フィルム和光純薬製のダイオキシン類分析用を用いた。ガラス繊維ろ紙は東洋濾紙製のGC-50を用いた。抽出用固相はジーエルサイエンス製のエムポアディスクを用いた。また、測定対象としたダイオキシン類29化合物の¹³C₁₂-ラベル化体をクリーンアップスパイクとして、1,2,3,4-テトラクロロジベンゾ-*p*-ジオキシン (1,2,3,4-TeCDD)、1,2,3,4,6,8,9-ヘプタクロロジベンゾフラン (1,2,3,4,6,8,9-HpCDF) 及び2,2',4,4',5,5'-ヘキサクロロビフェニル (2,2',4,4',5,5'-HxCB) の¹³C₁₂-ラベル化体をシリンジスパイクとして用いた。これらダイオキシン類の標準品はWellington製のものをを用いた。

2・3 ろ過及び抽出に用いた装置の構成

ろ過及び抽出にはジーエルサイエンス製の水中ダイオキシン固相抽出キットを用いた。装置の構成を図1に示す。

2・4 試験溶液の調製

抽出用固相はあらかじめアセトン、メタノール及び精製水でコンディショニングを行った。試料にクリーンアップスパイク0.2 ng (1,2,3,4,6,7,8,9-OCDD及び1,2,3,4,6,7,8,9-OCDFについては0.4 ng) を添加した後、上部にガラス繊維ろ紙を、下部に抽出用固相を装着した装置に約100 mL/minの速度で通水することでろ過及び抽出操作を行った。続い

て、ガラス繊維ろ紙、抽出用固相、試料瓶、装置及び通液におけるダイオキシン類の存在割合を調べるため以下の操作を行った。

ガラス繊維ろ紙及び抽出用固相は装置から取り外し、それぞれトルエンを用いてソックスレー抽出を行った後、ノナンを加えて濃縮し、シリンジスパイク0.5 ngを添加して試験溶液とした。

試料瓶の壁面はジクロロメタン、アセトン、トルエンの順に約20 mLで3回ずつ洗浄し、洗液を回収した。また、装置各部はジクロロメタン、アセトン、トルエンの順に約100 mLで3回ずつ洗浄し、洗液を回収した。なお、装置については抽出用固相よりも上流に位置するガラスファンネル、テフロンスクリーン、ガラスウェアベース、テフロンチューブ及びステンレスホルダーを洗浄した。洗液は硫酸ナトリウムを用いて脱水した後、ノナンを加えて濃縮し、シリンジスパイク0.5 ngを添加して試験溶液とした。

通液はジクロロメタン100 mLを用いて液液抽出した後、硫酸ナトリウムを用いた脱水を行い、ノナンを加えて濃縮し、シリンジスパイク0.5 ngを添加して試験溶液とした。

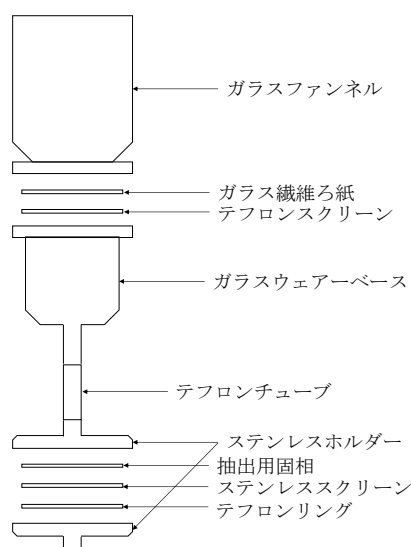


図1 ろ過及び抽出に用いた装置の構成

2・5 ダイオキシン類の測定

ダイオキシン類の測定にはオートインジェクタ（Agilent製 7693A）を取り付けたGC/HRMS（Agilent製 7890A／日本電子製 JMS-800D UltraFOCUS™）を用いた。ダイオキシン類の分離はSP-2331（Supelco製）、BPX-DXN（SGE Analytical Science製）及びHT8-PCB（SGE Analytical Science製）の各カラムによって行った。各カラムのサイズは、60 m×0.25 mm i.d.、膜厚0.25 μmであった。

2・6 各部分におけるダイオキシン類の存在割合の算出

クリーンアップスパイクのピーク面積とシリンジスパイクのピーク面積及び対応する相対感度係数を用いて、(1)式によりガラス繊維ろ紙、抽出用固相、試料瓶、装置及び通液におけるダイオキシン類の存在割合を算出した。

$$R = \frac{A_{CSI}}{A_{RSi}} \times \frac{Q_{RSi}}{RR_{RS}} \times \frac{1}{Q_{CSI}} \quad (1)$$

ここで、 R は存在割合、 A_{CSI} はクリーンアップスパイクのピーク面積、 A_{RSi} は対応するシリンジスパイクのピーク面積、 Q_{RSi} は対応するシリンジスパイクの添加量、 RR_{RS} は対応するシリンジスパイクに対する相対感度、 Q_{CSI} はクリーンアップスパイクの添加量である。

3 結果及び考察

3・1 各部分におけるダイオキシン類の存在割合

ガラス繊維ろ紙、抽出用固相、試料瓶、装置及び通液におけるダイオキシン類の存在割合を図2に示す。なお、各部分における存在割合の総和は、いずれのダイオキシン類においてもほぼ100%となったことから、100%換算値として示すこととした。

ダイオキシン類の存在割合はガラス繊維ろ紙において9～41%、抽出用固相において6～69%、装置において15～59%であり、これら3つの部分に89～95%と大半のダイオキシン類が存在していた。ガラス繊維ろ紙および抽出用固相に保持されたダイオキシン類は、JIS K 0312で定められたトルエンによるソックスレー抽出法を用いれば十分に回収することができる。一方、装置についてはジクロロメタンを用いて洗浄した洗液中に13～51%、さらにアセトンを用いて洗浄した洗液中にも2～9%のダイオキシン類が存在しており、回収率の向上には両者による入念な洗浄が有効と考えられる。なお、装置をトルエンを用いて洗浄した洗液中には、1,2,3,7,8,9-ヘキサクロロジベンゾフラン（1,2,3,7,8,9-HpCDF）が1%存在しており、他のダイオキシン類は確認されなかった。

試料瓶についてはジクロロメタンを用いて洗浄した洗液中に1～4%のダイオキシン類が存在していることが確認された。アセトン及びトルエンを用いて洗浄した洗液中にはダイオキシン類は確認されなかった。

通液については2～10%のダイオキシン類が存在しており、一部が捕集されることなく装置を通過していることが明らかとなった。

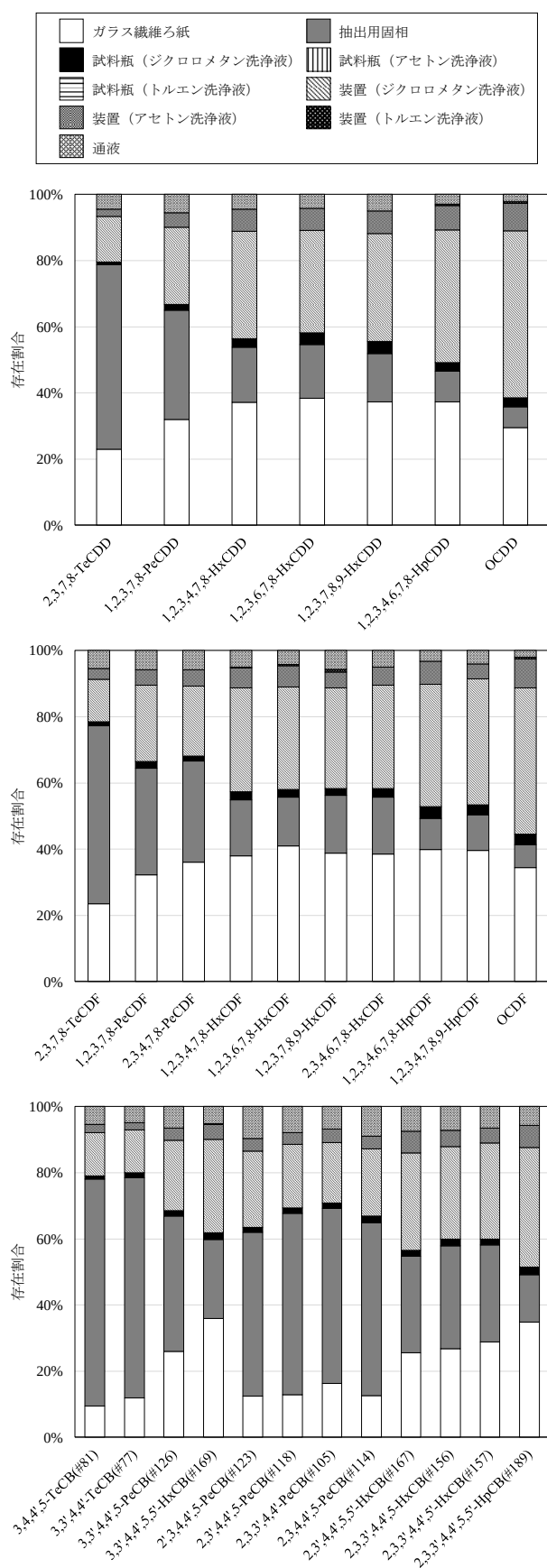


図2 ダイオキシン類の存在割合
(上段：PCDDs、中段：PCDFs、下段：DL-PCBs)

3・2 存在割合の化合物ごとの特徴

ダイオキシン類の大半が存在していたガラス繊維ろ紙、抽出用固相及び装置のうち、ガラス繊維ろ紙及び装置に存在するダイオキシン類の割合は塩素数の増加に伴い増加した。特に、クリーンアップスパイクの回収率がJIS K 0312で定められている50-120%を満足しない事例が確認された1,2,3,4,6,7,8,9-OCDDでは89%が、1,2,3,4,6,7,8,9-OCDFでは88%がこれらの部分に存在していた。ダイオキシン類については塩素数の増加に伴いオクタノール水分配係数 (log Kow) が増加する傾向にある²⁻⁶⁾。このため、塩素数の大きい化合物ほど、水からガラス繊維ろ紙や装置への吸着が起こりやすかったものと考えられる。一方、抽出用固相に存在するダイオキシン類の割合は塩素数の増加に伴い減少した。これはダイオキシン類の高塩素化体が抽出用固相に保持されにくかったためではなく、抽出用固相の上流に位置するガラス繊維ろ紙や装置へ吸着したためと考えられる。

4 まとめ

SSを含まない水質について、ろ過から抽出までの工程におけるダイオキシン類の挙動を調査した。その結果、ダイオキシン類の大半がガラス繊維ろ紙、抽出用固相及び装置に存在することが明らかとなった。また、これらのうち、ガラス繊維ろ紙及び装置に存在するダイオキシン類の割合は塩素数の増加に伴い増加することが確認された。特に、SSの少ない試料において回収率が低くなる傾向が確認された1,2,3,4,6,7,8,9-OCDDでは89%が、1,2,3,4,6,7,8,9-OCDFでは88%がこれらの部分に存在していた。ガラス繊維ろ紙および抽出用固相からはトルエンを用いたソックスレー抽出によって十分にダイオキシン類が回収されることを考慮すると、装置の洗浄を入念に行うことが回収率の向上に有効と考えられる。

文献

- 1) 日本規格協会: 工業用水・工場排水中のダイオキシン類の測定方法 (JIS K 0312), 2020.
- 2) Mackay *et al.*: Illustrated handbook of physical-chemical properties and environmental fate for organic chemicals, 1992.
- 3) Sijm *et al.*: Octan-1-ol / water partition coefficients of polychlorinated dibenzo-p-dioxins and dibenzofurans: Experimental values determined with a stirring method, Chemosphere, 19(1-6), 263-266, 1989.
- 4) Hawker Darryl W. and Connell Des W.: Octanol-water partition coefficients of polychlorinated biphenyl congeners, Environ. Sci. Technol, 22(4), 382-387, 1988.

- 5) Rapaport Robert A. and Eisenreich Steven J.:
Chromatographic determination of octanol-water partition coefficients (Kow's) for 58 PCB polychlorinated biphenyl congeners, Environ. Sci. Technol, 18(3), 163-170, 1984.
- 6) Risby Terence H. *et al.*: Physicochemical parameters of individual hexachlorobiphenyl congeners, Environ. Sci. Technol, 24(11), 1680-1687, 1990.

(英文要旨)

Extraction behavior of dioxins from water without suspended solids

Keiichi SAKATANI and Toshitaka KOGISO

*Fukuoka Institute of Health and Environmental Sciences,
Mukaizano 39, Dazaifu, Fukuoka 818-0135, Japan*

The objective of this work was to investigate the extraction behavior of dioxins from water without suspended solids. Each sample was first filtered through a glass fiber filter, and then extracted with a solid-phase extraction (SPE) disk. For the recovery test, the glass fiber filter, SPE disk, sample bottle, extraction apparatus, and clear filtrate were separately extracted. Most of the dioxins were detected from the glass fiber filter, the SPE disk, and the extraction apparatus. The recovery of dioxins from the glass fiber filter and extraction apparatus increased as the degree of chlorination increased.

[Key words; dioxins, extraction behavior, water, suspended solids]

資料

2020年度の細菌性・ウイルス性食中毒（疑い）事例について

江藤良樹・大石明・片宗千春・カール由起・重村洋明・廣瀬美和子・濱崎光宏
中村麻子・小林孝行・上田紗織・芦塚由紀

福岡県において2020年度に発生した細菌性・ウイルス性食中毒（疑い）事例は 13 事例であり、病理細菌課とウイルス課で検査した検体は延べ 224 検体であった。検出された食中毒細菌及びウイルスは、カンピロバクター・ジェジュニ、ノロウイルス、ウェルシュ菌及びサルモネラであった。病因物質（病因物質と疑われる物質）が検出された事例は 13 事例中 9 事例（69.2%）であった。

[キーワード：食中毒、カンピロバクター、ノロウイルス、ウェルシュ菌、サルモネラ]

1 はじめに

福岡県（北九州市、福岡市、久留米市を除く）における過去5年間の年間食中毒（疑い）事例での検査依頼数は、2015年度が 38 件、2016年度が 31 件、2017年度が 23 件、2018年度が 31 件、2019 年度が 18 件と推移している。今回、福岡県における食中毒予防対策に資することを目的とし、2020年度に福岡県内で発生、または、県民が他の都道府県で罹患し当所に検査依頼のあった食中毒（疑い）事例について、主として病因物質の観点から資料としてまとめた。

2 細菌性・ウイルス性食中毒発生時の検査方法

2020年度は、13 事例について、患者便、従事者便、食品、拭き取り、菌株などを対象に食中毒細菌検査及びウイルス検査を実施した。各検査の処理検体数は、細菌検査が 212 検体、ウイルス検査が 84 検体であった。細菌・ウイルス検査を実施したもの 72 検体、細菌検査のみ実施したもの 140 検体、ウイルス検査のみ実施したもの 12 検体であった。患者の症状などから細菌性食中毒が疑われる場合は、まず搬入された検体から食中毒細菌を検出するため、SS 寒天培地、TCBS 寒天培地、エッグヨーク食塩寒天培地、スキロー改良寒天培地、クロモアガーサルモネラ寒天培地などで直接分離培養するとともに、アルカリペプトン水、7.0% 塩化ナトリウム加トリブチケースソイブイオン、カンピロバクター選択増菌培地（プレストン組成）、ラポポート・バシリアディス培地などを用いて増菌培養し、直接培養と同様な培地で分離培養した。寒天平板培地に疑わしい集落が発育した場合は、釣菌して、TSI、LIM 寒天培地などを用いた生化学性状試験、血清型別、毒素型別、PCR

を用いた病原遺伝子の検出などの試験検査により、食中毒細菌の同定を行った。また、分離されたEHECは、「腸管出血性大腸菌MLVAハンドブック（O157、O26、O111編 第一版 地研協議会 保健情報疫学学会マニュアル作成ワーキンググループ編）」に従って遺伝子型別を行った。寄生虫が疑われる場合には、平成28年4月27日付け生食監発0427第3号「*Kudoa septempunctata* の検査法について」及び平成26年5月26日付け事務連絡「食中毒患者便からの *Kudoa septempunctata* 遺伝子検出法（参考）について」に基づき検査を行った。

ウイルス検査は、糞便（数グラム程度）をリン酸緩衝液（pH 7.5）で約 10% 乳剤とし、10,000 rpm で 20 分間遠心した。この上清から RNA を抽出し、逆転写酵素を用いて相補的な DNA を合成した。さらに、ノロウイルス等の遺伝子に特異的なプライマーを用いて PCR を実施し、増幅産物を電気泳動で確認した。増幅産物が確認された検体については、さらにシーケンスを行ない、その増幅産物の塩基配列を決定し、ノロウイルス等の確認及び遺伝子型の決定を行なった。

3 結果

2020 年度の食中毒（疑い）事例において病因物質として疑われる病原微生物が検出された事例、若しくは病因物質が特定された事例は 13 事例中 9 事例（69.2%）であった（表 1）。

病因物質別では、カンピロバクターによるものが 4 事例（30.8%）、ノロウイルスによるものが 2 事例（15.4%）、ウェルシュ菌によるものが 2 事例（15.4%）、サルモネラ菌によるものが 1 事例（7.7%）であった。2 事例から検出されたノロウイルスの遺伝子型の内訳は、GII.4

(2 事例) であった。病因物質が検出されなかった、若し であった。
くは、特定されなかった事例は 13 事例中 4 事例(30.8%)

表 1 2020 年度食中毒（疑い）事例で搬入された検体と検出された病因物質

番号	所轄保健福祉 環境事務所	初回検体 搬入日	細菌検査分					ウイルス検査分				病因物質
			喫食者便	従事者便	ふき取り	食品	菌株	計	喫食者便	従事者便	計	
1	北筑後、筑紫	6月9日	9	2		4		15	9	2	11	不明
2	筑紫、南筑後	7月18日	7	15		6	7	35			0	サルモネラ 血清型Oranienburg
3	宗像・遠賀	8月4日	4					4			0	カンピロバクター・ジェジュニ
4	南筑後	8月14日	1					1			0	不明
5	南筑後	9月9日	12	7		31		50	12	7	19	ウェルシュ菌
6	京築	10月5日	4					4	3		3	カンピロバクター・ジェジュニ
7	南筑後	10月9日	1					1			0	カンピロバクター・ジェジュニ
8	嘉穂・鞍手、田川、 宗像・遠賀	10月27日	9	8				17	9	12	21	ノロウイルスGII.4
9	粕屋	11月11日	1					1	1		1	カンピロバクター・ジェジュニ
10	南筑後	12月19日	1					1	1		1	不明
11	嘉穂・鞍手	12月29日	5	1				6	6	8	14	ノロウイルスGII.4
12	南筑後	2月6日	1					1	1		1	不明
13	筑紫	3月14日	12	3	4	57		76	10	3	13	ウェルシュ菌
合計			67	36	4	98	7	212	52	32	84	

資料

2020年度感染症細菌検査概要

大石明・片宗千春・廣瀬美和子・カール由起・重村洋明・江藤良樹・濱崎光宏

2020年度は、①コレラ、②ジフテリア、③劇症型溶血性レンサ球菌感染症、④カルバペネム耐性腸内細菌科細菌感染症、⑤侵襲性インフルエンザ菌感染症、⑥侵襲性肺炎球菌感染症、⑦腸管出血性大腸菌感染症の検査を実施した。これらの検査結果について、その概要を報告する。

[キーワード: コレラ、ジフテリア、劇症型溶血性レンサ球菌感染症、カルバペネム耐性腸内細菌科細菌感染症、侵襲性インフルエンザ菌感染症、侵襲性肺炎球菌感染症、腸管出血性大腸菌感染症]

1 はじめに

当所では県内で発生した感染症（疑いを含む。）に対して検査を実施している。本稿では2020年度に実施した①コレラ、②ジフテリア、③劇症型溶血性レンサ球菌感染症、④カルバペネム耐性腸内細菌科細菌感染症、⑤侵襲性インフルエンザ菌感染症、⑥侵襲性肺炎球菌感染症、⑦腸管出血性大腸菌感染症について検査の概要を報告する。

2 方法

①コレラ疑いで搬入された便 1 検体について、コレラ菌の分離・同定及びPCRによるコレラ毒素遺伝子の確認を行った。

②ジフテリア疑いで搬入された菌株 1 検体について、ジフテリア菌の同定及びPCRによるジフテリア毒素遺伝子の確認を行った。

③劇症型溶血性レンサ球菌感染症と診断され、当所に搬入された菌株 5 株について、生化学的性状検査を実施し、同定を行った。溶血性レンサ球菌であることを確認した後、衛生微生物技術協議会溶血性レンサ球菌レファレンスセンターの九州ブロックセンターである大分県衛生環境研究センターを通じて、国立感染症研究所に当該菌株の血清型別等の詳細解析を依頼した。

④CRE感染症と診断され、搬入された菌株28株について、平成29年3月28日付け健感発0328第4号厚生労働省健康局結核感染症課長通知別添に記載されている耐性遺伝子の検出及びカルバペネマーゼ産生性の確認を実施した。

⑤成人の侵襲性インフルエンザ菌感染症と診断され、搬入された菌株 2 株について、生化学的性状検査を実施し、

インフルエンザ菌であることを確認した後、国立感染症研究所で血清型別等を実施した。

⑥成人の侵襲性肺炎球菌感染症と診断され、搬入された菌株 12 株について、生化学的性状検査を実施し、肺炎球菌であることを確認した後、国立感染症研究所で血清型別等を実施した。

⑦EHEC感染症と診断され、当所に搬入された菌株 61 株について、生化学的性状検査、血清学的性状検査、毒素型別検査及びMLVA検査（O157、O26、O111）を実施した後、O157、O26、O111以外の菌株は国立感染症研究所に送付した。

3 結果

①コレラ疑いで搬入された便では分離培地上に疑わしいコロニーが認められたが、コレラ毒素遺伝子陰性及びO1血清、O139血清陰性であった。

②ジフテリア疑いで搬入された菌株ではジフテリア毒素遺伝子陰性であった。

③劇症型溶血性レンサ球菌感染症と診断され、搬入された菌株の内訳は、A群溶血性レンサ球菌 1 株、B群溶血性レンサ球菌 1 株、G群溶血性レンサ球菌 3 株であった（表1）。

④CRE感染症と診断され、搬入された菌株のうち 8 株は、カルバペネマーゼ産生腸内細菌科細菌（CPE）であり、全てIMP-1のカルバペネマーゼ遺伝子を保有していた（表2）。

⑤成人の侵襲性インフルエンザ菌感染症と診断され、搬入された菌株の内訳は、型別不能株（non-typable *H. influenzae*: NTHi）2 株であった（表3）。

⑥成人の侵襲性肺炎球菌感染症と診断され、搬入された菌株の血清型は、10A型が3株、3型、6A型、6C型、11A/C型、12F型、15C型、19A型、23A型、24F型がそれぞれ 1 株ずつであった（表4）。

⑦EHEC感染症と診断され、当所に搬入された菌株のO群血清型別の内訳は、O157 38 株、O26 8 株、O111 3 株、O8 4 株、O103 1 株、O128 1 株及びO血清群不明（OUT）6 株の計 61 株であった（表5）。

表1 2020年度 福岡県での劇症型溶血性レンサ球菌検査結果
（福岡市、北九州市、久留米市は除く）

地域	診断月	患者の 年齢	搬入 菌株数	検査結果	
				Lancefield 群別	<i>emm</i> 遺伝子型 または血清型別*
筑後	2020年4月	75歳	1	B群	I b 型
筑後	2020年4月	71歳	1	G群	<i>stG6792.3</i>
筑豊	2020年12月	71歳	1	A群	<i>emm28.0</i>
筑豊	2021年1月	90歳	1	G群	<i>stG6792.3</i>
筑豊	2021年3月	92歳	1	G群	<i>stG6792.3</i>

* A群及びG群は*emm* 遺伝子型、B群は血清型別を示す。

表2 2020年度 福岡県でのCRE届出数および月別CPE検出状況
（福岡市、北九州市、久留米市は除く）

地域	CRE 発生届出数	搬入 菌株数	CPE 検出件数												
			計	診断月											
				4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3
北九州	0	0	0												
福岡	30	19	3					2 (IMP-1)		1 (IMP-1)					
筑豊	9	8*	5				1 (IMP-1)	2* (IMP-1)					1 (IMP-1)	1 (IMP-1)	
筑後	2	1	0												
合計	41	28	8				1	4		1			1	1	

*うち2株は同一患者由来株

表3 2020年度 福岡県での成人の侵襲性インフルエンザ菌検査結果
(福岡市、北九州市、久留米市は除く)

地域	診断月	患者の年齢	Hibワクチンの 接種状況	搬入菌株数	血清型
筑豊	2020年5月	71歳	不明	1	型別不能
筑豊	2021年2月	71歳	あり	1	型別不能

表4 2020年度 福岡県での月別成人の侵襲性肺炎球菌検査結果
(福岡市、北九州市、久留米市は除く)

地域	搬入 菌株数	診断月別件数（検出された血清型）												
		3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3
北九州														
福岡			1 (6A型)									2 (15C型、6C 型)		1 (3型)
筑豊			1 (19A型)		1 (10A型)	1 (23A型)								
筑後		1 (12F型)	1 (10A型)						1 (11A-E型)	1 (10A型)				1 (24F型)
合計		1	3		1	1			1	1		2		2

表5 2020年度 福岡県でのEHEC検査結果
(福岡市、北九州市、久留米市は除く)

0群 血清型	菌株名	症状の有無	保健福祉 (環境) 事務所	発生届出日	毒素型	MLVA型	MLVA-comp	備考
0157	20EC001	有	嘉穂・鞍手	2020/3/30	Stx1+Stx2	19m0534	19c066	MLVA型が17領域中 1 つ異なる
	20EC003	有	嘉穂・鞍手	2020/5/12	Stx2	20m0037	20c002	
	20EC005	有	宗像・遠賀	2020/5/2	Stx2	20m0037	20c002	
	20EC004	無	嘉穂・鞍手	2020/5/16	Stx2	20m0038	20c002	
	20EC009	有	京築	2020/6/23	Stx1+Stx2	15m0333		
	20EC031	有	粕屋	2020/10/22	Stx1+Stx2	16m0399		
	20EC032	有	粕屋	2020/10/27	Stx1+Stx2	16m0399		
	20EC011	有	嘉穂・鞍手	2020/7/8	Stx2	20m0170	20c013	
	20EC013	無	筑紫	2020/7/14	Stx2	20m0171		
	20EC014	有	京築	2020/7/27	Stx2	20m0172		
	20EC015	有	嘉穂・鞍手	2020/7/31	Stx1	19m0403		
	20EC016	有	嘉穂・鞍手	2020/7/30	Stx1+Stx2	20m0176		
	20EC018	有	田川	2020/8/4	Stx1+Stx2	20m0176		
	20EC022	有	宗像・遠賀	2020/9/24	Stx1+Stx2	20m0176		
	20EC023	有	宗像・遠賀	2020/9/28	Stx1+Stx2	20m0176		
	20EC019	有	筑紫	2020/8/24	Stx1	20m0238	20c031	
	20EC025	有	筑紫	2020/10/13	Stx2	20m0353	20c048	
	20EC035	有	筑紫	2020/11/4	Stx2	20m0353	20c048	
	20EC036	有	筑紫	2020/10/16	Stx2	20m0353	20c049	
	20EC043	無	筑紫	2020/11/8	Stx2	20m0353	20c048	
	20EC044	無	筑紫	2020/11/5	Stx2	20m0353	20c048	
	20EC045	有	筑紫	2020/11/9	Stx2	20m0353	20c048	
	20EC046	有	筑紫	2020/11/12	Stx2	20m0353	20c048	
	20EC047	有	筑紫	2020/11/12	Stx2	20m0353	20c048	
	20EC048	有	筑紫	2020/11/9	Stx2	20m0353	20c048	
	20EC049	有	筑紫	2020/11/10	Stx2	20m0353	20c048	
	20EC050	有	筑紫	2020/11/13	Stx2	20m0353	20c048	
	20EC051	無	筑紫	2020/11/13	Stx2	20m0353	20c048	
	20EC052	有	筑紫	2020/11/9	Stx2	20m0353	20c048	
	20EC053	有	筑紫	2020/11/13	Stx2	20m0353	20c048	
	20EC054	無	筑紫	2020/11/14	Stx2	20m0353	20c048	
	20EC026	無	宗像・遠賀	2020/10/22	Stx1+Stx2	20m0354		
	20EC029	有	宗像・遠賀	2020/10/19	Stx1+Stx2	20m0354		
	20EC030	無	田川	2020/10/29	Stx1+Stx2	20m0337		
	20EC034	有	田川	2020/10/26	Stx1+Stx2	20m0337		
	20EC038	有	筑紫	2020/10/23	Stx1+Stx2	20m0337		
	20EC055	有	糸島	2020/12/17	Stx2	18m0468		
	20EC059	無	糸島	2020/12/21	Stx2	18m0468		
026	20EC002	無	粕屋	2020/4/25	Stx2	20m2030		
	20EC007	有	粕屋	2020/6/12	Stx1	20m2039		
	20EC008	無	粕屋	2020/6/16	Stx1	20m2039		
	20EC020	有	北筑後	2020/9/12	Stx1	20m2092	20c208	MLVA型が17領域中 1 つ異なる
	20EC021	無	北筑後	2020/9/17	Stx1	20m2093	20c208	
	20EC040	有	粕屋	2020/11/26	Stx1	20m2119		
	20EC042	有	田川	2020/12/7	Stx1	20m2141		
	20EC056	有	嘉穂鞍手	2020/12/21	Stx1	20m2142		
0111	20EC006	有	筑紫	2020/6/2	Stx1	20m3017		
	20EC010	無	糸島	2020/7/2	Stx1+Stx2	20m3030	20c305	
	20EC060	有	南筑後	2021/1/12	Stx1+Stx2	21m3003		
0103	20EC012	有	嘉穂・鞍手	2020/7/13	Stx1	20m4014		
0128	20EC039	無	宗像・遠賀	2020/11/24	Stx1+Stx2			
08	20EC017	無	粕屋	2020/7/14	Stx2			
	20EC028	無	粕屋	2020/10/5	Stx2			
	20EC037	無	粕屋	2020/10/20	Stx2			
	20EC058	無	粕屋	2021/1/27	Stx1+Stx2			
OUT	20EC024	有	粕屋	2020/9/29	Stx2			
	20EC027	無	宗像・遠賀	2020/10/23	Stx2			
	20EC033	有	粕屋	2020/10/20	Stx2			
	20EC041	無	粕屋	2020/11/30	Stx2			
	20EC057	無	粕屋	2021/1/23	Stx2			
	20EC061	無	筑紫	2021/3/19	Stx2			

資料

共通感染症発生状況等調査事業 (2019 年度-2020 年度調査分)

－ コリネバクテリウム・ウルセランス感染症 －

大石明・片宗千春・カール由起・重村洋明・江藤良樹・廣瀬美和子・大隈英子・濱崎光宏

県内の動物病院 8 施設に来院した愛玩動物 (ネコ) における、コリネバクテリウム・ウルセランスの保有状況を調査した。分離同定及び PCR による保有状況調査の結果、ネコ 164 頭のうち 1 頭からコリネバクテリウム・ウルセランスが分離同定され、本調査の保菌率は 0.6 % であった。また、この検体から分離された株はジフテリア毒素遺伝子が検出され、ジフテリア毒素が確認された。

[キーワード : 人獣共通感染症、コリネバクテリウム・ウルセランス感染症]

1 はじめに

福岡県では、動物における病原体の保有状況を広くモニタリングすることで、共通感染症のまん延防止に寄与することを目的として、2014 年度から福岡県共通感染症発生状況等調査事業を開始した¹⁾。2019 年度から 2020 年度では、県内の動物病院に来院する愛玩動物 (ネコ) に焦点を当て、コリネバクテリウム・ウルセランス感染症を対象として調査を行ったので報告する。

2 方法

2019 年 12 月から 2020 年 9 月にかけて、福岡県内の動物病院 8 施設に来院した愛玩動物 164 頭 (ネコ) から咽頭ぬぐい液 164 検体を採取し、コリネバクテリウム・ウルセランスの保有状況を調査した。

保有状況調査は、シードスワブ γ 3 号 (栄研化学) で採取したネコの咽頭ぬぐい液を勝川変法荒川培地 (自家調整) に塗抹し、37℃ で 72 時間、好気培養した。コリネバクテリウム・ウルセランスが疑われる黒色集落を 1 検体あたり最大 8 コロニー鈎菌し、羊血液寒天培地 (栄研化学) で 37℃、24-48 時間純培養した。純培養した菌体を 5% キレックス TE に懸濁した後、熱抽出法 (95℃、10min) により DNA を調製した。得られた DNA に対して、Seto ら²⁾のプライマーを用いた PCR 法により phospholipase D (PLD) 遺伝子を検出した。PLD が検出された場合は、Luciene ら³⁾のプライマーを用いた rpoB 遺伝子のシーケンスを行い、コリネバクテリウム・ウルセランスの同定を行った。また、国立感染症研究所が作成している病原

体検出マニュアル⁴⁾のプライマーを用いてジフテリア毒素遺伝子 (DT) の確認を行った。

さらに、DT が検出された場合、ジフテリア毒素産生性を確認するため、Vero 細胞を用いた毒素原性試験を実施した。

3 結果

コリネバクテリウム・ウルセランスの保有状況調査の結果、1 頭からコリネバクテリウム・ウルセランスが分離同定され、保菌率は 0.6 % であった。コリネバクテリウム・ウルセランスが検出された個体の飼育状況等を表 1 に示す。また、この分離株に対して DT の確認及び毒素原性試験を実施した結果、ジフテリア毒素が確認された。

4 文献

- 1) 福岡県 : 人と動物の共通感染症を知っていますか (<http://www.pref.fukuoka.lg.jp/contents/hitotodoubutu.html>)
- 2) Y. Seto et al. (2008) Jpn. J. Infect Dis, 61, 116-122.
- 3) T. Luciene et al. (2013) Mem Inst Oswaldo Cruz, Rio de Janeiro, 108 (3), 272-279.
- 4) 国立感染症研究所 : ジフテリア病原体検出マニュアル

表1 コリネバクテリウム・ウルセランスが検出された個体の飼育状況等

動物種	年齢	同居動物	飼育方法	入手先
雑種	11	多頭飼養	完全室内	野生からの保護

資料

2020年度収去食品の細菌学的検査及び残留抗生物質モニタリング検査

カール由起・廣瀬美和子・重村洋明・片宗千春・江藤良樹・大石明・濱崎光宏

福岡県食品衛生監視指導計画及び食品検査実施計画に基づき、保健福祉(環境)事務所等から搬入された食品について、食中毒の予防、流通食品の汚染実態の把握等を目的とした収去検査を行った。2020年度は新型コロナウイルス感染症の発生に伴い、例年よりも規模を縮小して実施した。鶏肉、豚肉、牛肉、生食用牛肉、生食用鮮魚介類の合計 45 検体について細菌学的検査を実施した(延べ 655 項目)。生食用牛肉 2 検体を除く 43 検体について、汚染指標菌及び食中毒菌の検査を行った結果、大腸菌群が 22 検体、黄色ブドウ球菌が 1 検体、サルモネラ属菌が 3 検体及びカンピロバクター・ジェジュニ／コリが 9 検体から検出された。鶏肉、牛肉、豚肉、生食用鮮魚介類など 37 検体について残留抗生物質モニタリング検査も併せて行ったが、いずれの検体からも残留抗生物質は検出されなかった。

[キーワード: 収去検査、食品検査、食中毒菌、残留抗生物質]

1 はじめに

厚生労働省食中毒統計資料¹⁾によると、2020年の食中毒は887事例発生しており、細菌性食中毒は 273 事例(30.8%)であった。細菌性食中毒のうち、カンピロバクター・ジェジュニ／コリによるものは 182 事例(66.7%)、サルモネラ属菌によるものは 33 事例(12.1%)、ウェルシュ菌によるものは 23 事例(8.4%)、黄色ブドウ球菌によるものは 21 事例(7.7%)、腸管出血性大腸菌によるものは 5 事例(1.8%)であった。これらの食中毒細菌は、調理又は加工を行う前の食品や原材料(食肉、野菜など)等に存在しているため、不適切な調理(加熱不足、調理器具の汚染など)や温度管理、あるいは食肉の生食などが行われると、食中毒を引き起こす原因となる。

当所では、食中毒発生の未然防止を目的とし、令和2年度福岡県食品衛生監視指導計画に基づき収去食品の食中毒細菌検査及び規格基準等の検査を行った。また、鶏肉、豚肉、牛肉及び生食用鮮魚介類等については、残留抗生物質のモニタリング検査を併せて行ったことから、これらの結果について報告する。

2 方法

2・1 検体

2020年7月27日及び10月13日に、県内 8 保健福祉(環境)事務所及び食肉衛生検査所から搬入された鶏肉 15 検体、豚肉 11 検体、牛肉 7 検体、生食用鮮魚介類 10 検体、生食用牛肉 2 検体の合計 45 検体を対象とした。

2・2 検査項目

検査項目は、汚染指標細菌(一般細菌数、大腸菌群[馬肉は糞便系大腸菌群]、推定嫌気性菌数)及び食中毒細菌(黄色ブドウ球菌、サルモネラ属菌、腸管出血性大腸菌 O26、O103、O111、O121、O145及びO157(以下「腸管出血性大腸菌」という。))、カンピロバクター・ジェジュニ／コリ、エルシニア・エンテロコリチカ、ウェルシュ菌、セレウス菌、腸炎ビブリオ、ナグビブリオ、ビブリオ・ミミカス及びビブリオ・フルビアリス)の 19 項目について検査した。このうち、エルシニア・エンテロコリチカについては豚肉 11 検体を対象とし、腸炎ビブリオ(腸炎ビブリオ最確数を含む。)、ナグビブリオ、ビブリオ・ミミカス及びビブリオ・フルビアリスについては生食用鮮魚介類 10 検体を対象とし検査を実施した。そのほか、生食用牛肉 2 検体については腸内細菌科菌群の検査を行った。また、37 検体(鶏肉 15 検体、牛肉 7 検体、豚肉 5 検体、生食用鮮魚介類 10 検体については、残留抗生物質(ペニシリン系、アミノグリコシド系、マクロライド系及びテトラサイクリン系)のモニタリング検査を併せて行った。

2・3 細菌検査

各項目の検査は、成分規格が設定されている食品については、食品、添加物等の規格基準及び各関連通知に示された方法に従い、それ以外の食品については、食品衛生検査指針及び平成26年11月20日付食安監発1120第1号厚生労働省医薬食品局食品安全部監視安全課長通知による「腸管出血性大腸菌 O26、O103、O111、O121、O145及びO157の検査法について」に従って実施した。

黄色ブドウ球菌、エルシニア・エンテロコリチカ、セレウス菌、腸炎ビブリオ、ナグビブリオ、ビブリオ・ミミカ

ス及びビブリオ・フルビアリスの具体的な検査方法は、検体 25 g に滅菌リン酸緩衝生理食塩水 225 mL を加えストマッカー処理し、7.0%塩化ナトリウム加トリプトンソーヤブイオン、ITC エルシニア増菌培地、食塩ポリミキシンプイオン及びアルカリペプトン水で増菌培養した後、エッグヨーク寒天培地、クロモアガーエルシニア寒天培地、NGKG 寒天培地、TCBS 寒天培地及びビブリオ寒天培地で分離培養を行った。当該菌が疑われるコロニーについて生化学性状等の確認試験を行った。

カンピロバクター・ジェジュニ／コリについては、検体 25 g にカンピロバクター選択増菌培地（プレストン組成）を 100 mL 加え、ストマッカー処理し微好気条件で培養した後に、スキロー改良培地、mCCDA 寒天培地で分離培養を行った。当該菌が疑われるコロニーについて、生化学的性状等の確認試験を行った。必要に応じてPCRで遺伝子検出を行い同定した。

腸管出血性大腸菌の検査は、mEC 培地で増菌培養後、アルカリ熱抽出法にて菌体DNAを抽出し、リアルタイムPCRでベロ毒素産生遺伝子の検出を行い、ベロ毒素遺伝子陽性であった検体については、O抗原遺伝子検査を行った。さらにO抗原遺伝子陽性であった検体については、免疫磁気ビーズにより当該O血清群の腸管出血性大腸菌を集菌し、CT-クロモアガーSTEC 寒天培地（全6種のO血清群分離用）のほか、CT-SMAC 寒天培地（O103、O121、O145及びO157分離用）、CT-RMAC 寒天培地（O26分離用）、CT-SBMAC 寒天培地（O111分離用）を用いて分離培養した。当該菌が疑われるコロニーについては、TSI寒天培地、LIM寒天培地及びC-LIG培地を用いて生化学性状等の確認試験を行った。その他必要に応じて、血清型別試験やベロ毒素確認試験を行い同定した。

サルモネラ属菌の検査は、検体 25 g に緩衝ペプトン水を 225 mL 加え、ストマッキングし培養した後、この一部を Rappaport-Vassiliadis 増菌培地及びテトラチオン酸塩培地で培養し、クロモアガーサルモネラ寒天培地及びDHL 寒天培地で分離培養した。なお、成分規格が設定されていない食品については DHL 寒天培地に替えてXLT4 寒天培地を用いた。当該菌が疑われるコロニーについては、生化学性状等の確認試験を行った後、血清型別試

験、必要に応じて、その他の細菌学的検査を行い同定した。

2・4 畜水産食品中の残留抗生物質検査

残留抗生物質検査は、平成6年7月1日衛乳第107号厚生省生活衛生局肉肉衛生課長通知に基づき、検体中の残留抗生物質（ペニシリン系、アミノグリコシド系、マクロライド系及びテトラサイクリン系）について検査を行った。

3 結果

3・1 細菌検査結果

各食品の一般細菌数は、鶏肉では 4.6×10^2 から 6.1×10^6 /g、豚肉では 300/g 以下 から 2.4×10^7 /g、牛肉では 5.1×10^4 から 6.6×10^6 /g、生食用鮮魚介類では 6.4×10^2 から 2.1×10^5 /g の範囲であった。

汚染指標菌及び食中毒菌の細菌検査結果を表1に示した。大腸菌群は 22 検体が陽性を示した。食中毒菌の結果については以下のとおりであった。サルモネラ属菌は鶏肉3 検体から検出され、血清型は全て Schwarzengrund であった。黄色ブドウ球菌は豚肉 1 検体から検出された。カンピロバクター・ジェジュニ／コリは鶏肉 9 検体から検出され、6 検体からはカンピロバクター・ジェジュニが、2 検体からはカンピロバクター・コリが、1 検体からはカンピロバクター・ジェジュニ及びカンピロバクター・コリが検出された。腸管出血性大腸菌、エルシニア・エンテロコリチカ、ウェルシュ菌、セレウス菌、腸炎ビブリオ、ナグビブリオ、ビブリオ・ミミカス及びビブリオ・フルビアリスはいずれの検体からも検出されなかった。また、生食用牛肉 2 検体については、腸内細菌科菌群は検出されず、規格基準に違反する検体はなかった。

3・2 畜水産食品中の残留抗生物質検査結果

検査した 37 検体については、いずれの検体からも残留抗生物質（ペニシリン系、アミノグリコシド系、マクロライド系及びテトラサイクリン系）は検出されなかった。

4 文献

- 1) 厚生労働省食中毒統計資料 (https://www.mhlw.go.jp/stf/seisakunitsuite/bunya/kenkou_iryuu/shokuhin/syokuchu/04.html)

表 1 汚染指標菌または食中毒菌の陽性検体数

食 品 種 別	検体数	検 査 項 目 別 の 陽 性 検 体 数									
		大腸菌群	腸内細菌科菌群	黄色ブドウ球菌	サルモネラ属菌	腸管出血性大腸菌	カンピロバクター・ジェジュニ／コリ	エルシニア・エンテロコリチカ	ウェルシュ菌	セレウス菌	腸炎ビブリオ
鶏 肉	10	10	-	0	3	0	7	-	0	0	-
鶏 肉（輸 入）	5	5	-	0	0	0	2	-	0	0	-
豚 肉	6	4	-	1	0	0	0	0	0	0	-
豚 肉（輸 入）	5	3	-	0	0	0	0	0	0	0	-
牛 肉	2	0	-	0	0	0	0	-	0	0	-
牛 肉（輸 入）	5	0	-	0	0	0	0	-	0	0	-
生 食 用 牛 肉	2	-	0	-	-	-	-	-	-	-	-
生 食 用 鮮 魚 介 類	8	0	-	0	0	0	0	-	0	0	0 ^{*1}
生 食 用 鮮 魚 介 類（輸 入）	2	0	-	0	0	0	0	-	0	0	0 ^{*1}
計	45	22	0	1	3	0	9	0	0	0	0

-：検査対象外

*1 腸炎ビブリオ定性試験及び腸炎ビブリオ最確数は陰性並びに3/g未満であった。

資料

2020年度性器クラミジア感染症及び淋菌感染症の抗原検査結果概要

片宗千春・廣瀬美和子・カール由起・重村洋明・大石明・江藤良樹・濱崎光宏

2020年度に当所に検査依頼された性器クラミジア感染症及び淋菌感染症に係る抗原検査の検体数は、199 件（男性 138件、女性 61 件）であり、この検査数は前年度の5分の1程度であった。これは、新型コロナウイルス感染症の流行による窓口業務の縮小や検査受診の自粛等の影響と考えられる。検査結果としては、性器クラミジア抗原陽性検体は 11 件（男性 4 件、女性 7 件）で、陽性率は 5.5% であった。一方、淋菌抗原陽性検体は 3 件（男性 1 件、女性 2 件）で、陽性率は 1.5% であった。

[キーワード：性器クラミジア感染症、淋菌感染症、抗原検査]

1 はじめに

性器クラミジア感染症及び淋菌感染症は、性感染症の中でも患者数が多い疾患である。国が実施する感染症発生動向調査によると、2019年は性器クラミジア感染症 27,221 件、淋菌感染症 8,205 件が報告されている。いずれの感染症も平成14年をピークに減少し、平成21年以降はほぼ横ばいとなっている¹⁾。患者数が多い原因のひとつとして無症候性の感染者の存在が指摘されており、本人が感染していることに気づかないまま性交渉を行い相手に感染させ、新たな感染者も感染に気がつかずに、さらに感染を拡大させるという“無症候性感染の連鎖”によって、若者の間で感染が拡大することが懸念されている^{2,3)}。

福岡県では性感染症予防対策の一環として、2004年3月から性器クラミジア感染症について抗体検査を開始した。2013年4月からは、尿を検体とする抗原検査に変更し、性器クラミジア感染症に加えて、淋菌感染症についても実施している。本稿では、2020年度に実施した検査の概要について報告する。

2 方法

2・1 検体

検査には、2020年4月から 2021年3月に県内 9 保健福祉（環境）事務所で採取した検査希望者の初尿 2 mL を用いた（性器クラミジア抗原検査 199 件；男性 138 件、女性 61 件、淋菌抗原検査 199 件；男性 138 件、女性 61 件）。

2・2 検査項目

初尿中の性器クラミジア抗原及び淋菌抗原について検査を実施した。

2・3 試薬及び機器

性器クラミジア抗原検査及び淋菌抗原検査の試薬は、アプティマ Combo2 クラミジア/ゴノレア（ホロジックジャパン株式会社）、機器はパンサーシステム（ホロジックジャパン株式会社）を用いた。

2・4 検査方法

尿検体 2 mL をアプティマ STD うがい液・尿採取セットの搬送用チューブに入れ、パンサーシステムを用いて測定した。

3 結果・考察

本事業における性器クラミジア抗原検査件数及び淋菌抗原検査件数を図1、図2 に示す。2017年までの抗原検査件数は850 件前後で推移していたが、2018年、2019年には性器クラミジア抗原検査及び淋菌抗原検査ともに 1,000 件を越えた。しかしながら、2020年度の抗原検査件数は199 件であり、前年の5分の1程度まで減少した。新型コロナウイルス感染症の流行による窓口業務の縮小や検査受診の自粛等の影響と考えられる。2020年度の性器クラミジア抗原検査及び淋菌抗原検査結果を表1 に示した。性器クラミジア及び淋菌抗原検査の搬入検体数は 20歳代が 77 件（男性 46 件、女性 31 件）と最も多く、次いで 30歳代が 60 件（男性 46 件、女性 14 件）であった。性器クラミジア抗原陽性は 11件（男性 4 件、女性 7 件）、淋菌抗原陽性は 3 件（男性 1 件、女性 2 件）であった。性器クラミジア抗原陽性率は、男性 2.9 %、女性 11.5 %であり、女性の方が男性より有意に高かった（ $p<0.05$, chi-square test）。

文献

1) 厚生労働省：感染症発生動向調査 性感染症報告数
(<http://www.mhlw.go.jp/topics/2005/04/tp0411-1.html>).

2) 余田 敬子ら：口咽科 2011；24：2；171-177

3) 性感染症 診断・治療ガイドライン2016（改訂版），日本性感染症学会誌：Vol.27,No.1 Supplement

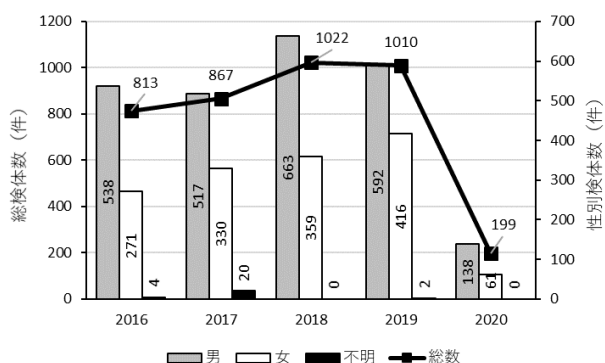


図1 性別性器クラミジア抗原検査数

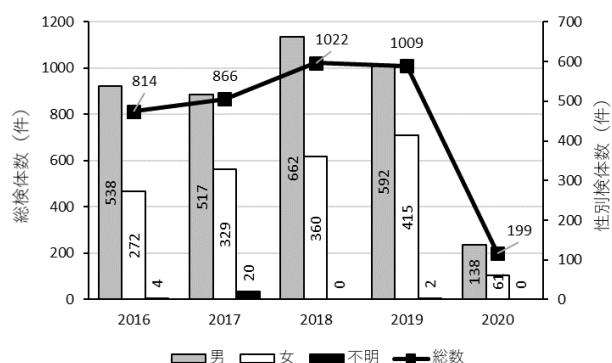


図2 性別淋菌抗原検査数

表 1 年齢区分別検体搬入数及び抗原陽性数（陽性率）

性別	年齢区分	クラミジア			淋菌		
		検体数	陽性数(陽性率)		検体数	陽性数(陽性率)	
男性	～19歳	1	0	(0.0%)	1	0	(0.0%)
	20～29歳	46	3	(6.5%)	46	0	(0.0%)
	30～39歳	46	1	(2.2%)	46	1	(2.2%)
	40～49歳	31	0	(0.0%)	31	0	(0.0%)
	50～59歳	7	0	(0.0%)	7	0	(0.0%)
	60歳～	7	0	(0.0%)	7	0	(0.0%)
	小計	138	4	(2.9%)	138	1	(0.7%)
女性	～19歳	9	2	(22.2%)	9	0	(0.0%)
	20～29歳	31	4	(12.9%)	31	2	(6.5%)
	30～39歳	14	1	(7.1%)	14	0	(0.0%)
	40～49歳	5	0	(0.0%)	5	0	(0.0%)
	50～59歳	2	0	(0.0%)	2	0	(0.0%)
	60歳～	0	-	(-)	0	-	(-)
	小計	61	7	(11.5%)	61	2	(3.3%)
計		199	11	(5.5%)	199	3	(1.5%)

資料

2020年の福岡県感染症発生動向調査におけるウイルス検出状況

小林孝行・上田紗織・中村麻子・芦塚由紀

2020年に感染症発生動向調査事業において採取された検体は、11疾病165件であった。疾病別の検体数は感染性胃腸炎が最も多く、次いでインフルエンザが多かった。採取された165件のうち、ウイルスが検出された検体は77件であった。感染性胃腸炎の検体からはノロウイルスGⅡ.4が、インフルエンザの検体からはインフルエンザウイルスA/H1pdm09亜型が最も多く検出された。

[キーワード：感染症発生動向調査、ノロウイルスGⅡ.4、インフルエンザウイルスA/H1pdm09亜型]

1 はじめに

福岡県における感染症発生動向調査事業は、「感染症の予防及び感染症の患者に対する医療に関する法律」（感染症法）に基づき「感染症発生動向調査事業実施要綱」に従い実施されている¹⁾。当所が担当する定点医療機関は、インフルエンザ定点が2定点、小児科定点が6定点、眼科定点が1定点、基幹定点が9定点である。当所はこれらの定点医療機関から搬入された検体についてウイルス検査を行っている。今回は2020年のウイルス検出状況について概要を報告する。

2 検体及び病原体の検出方法

2020年に福岡県（福岡市及び北九州市を除く）で採取された検体は11疾病165件であり、検体数は2019年の416件と比べて減少した。

疾病別及び検体種別検体数を表1に示す。2020年の疾病別の検体数は感染性胃腸炎が最も多く、次いでインフルエンザが多かった。検体種別では咽頭ぬぐい液が最も多く、次いで糞便が多かった。2020年は2019年と比べて、インフルエンザ、咽頭結膜熱、感染性胃腸炎、手足口病、ヘルパンギーナ、流行性角結膜炎、RSウイルス感染症、突発性発しん、伝染性紅斑の検体は減少し、無菌性髄膜炎、流行性耳下腺炎、水痘の検体が増加した。

病原体検出方法は主に国立感染症研究所の病原体検出マニュアルに準拠し、各種ウイルスを対象としたPCR法による特異遺伝子の検出により行った。

3 疾病別病原体検出状況

2020年1-12月に採取された165件について、ウイルス検出を行った結果を表2に示す。ウイルスが検出された検体は77件であった。このうち、複数のウイルスが検出された検体は3件であった。

インフルエンザはA/H1pdm09型が26件、B/ビクトリア

系統が4件、アデノウイルス1型が1件検出された。2020年1-3月にかけてこれらのウイルスが検出されたが、4月以降のインフルエンザの採取はなかった。咽頭結膜熱は、コクサッキーウイルスA(CA)4型が5件と最も多く検出され、次いで、アデノウイルス2型が3件検出された。感染性胃腸炎は、ノロウイルスGⅡ.4が4件と最も多く検出され、次いで、アストロウイルスが3件検出された。前年に最も検出されたA群ロタウイルスは検出されなかった。手足口病は、単純ヘルペスウイルス1型が1件検出されたのみであった。無菌性髄膜炎についても、水痘・帯状疱疹ウイルスが1件検出されたのみであった。ヘルパンギーナは、CA4型が6件検出された。RSウイルス感染症は、ライノウイルスが1件検出され、他にエコーウイルス9型が1件検出された。突発性発しんは、ヘルペスウイルス6型、CA4型、単純ヘルペスウイルス1型がそれぞれ1件検出された。水痘からは、水痘・帯状疱疹ウイルスが2件検出され、他にCA16型が1件検出された。流行性耳下腺炎及び伝染性紅斑からはウイルスは検出されなかった。

2020年は新型コロナウイルス感染症の流行により、採取された検体数が大幅に減少し、前年の40%となった。新型コロナウイルス感染症と同じ呼吸器感染症であるインフルエンザやRSウイルス感染症の検体数は、それぞれ前年の30% (35/118)、50% (9/18) と大きく減少した。検体数の減少に伴いウイルスの検出数も減少したが、検出状況はインフルエンザにおけるA/H1pdm09型、感染性胃腸炎におけるノロウイルスGⅡ.4やヘルパンギーナにおけるCA4型など、全国的な傾向とほぼ一致していた²⁾。また、本年の病原体検査のウイルス検出率は47% (77/165) で、前年の55% (227/416) に比べて減少した。

文献

1) 福岡県結核・感染症発生動向調査事業資料集令和2年、令和3年3月。

2) 病原微生物検出情報

(<https://www.niid.go.jp/niid/ja/iasr.html>)

表1 疾病別及び検体種別検体数*

疾病名	2019年 検体数	2020年							
		検体数	検体種別**						
			FC	NP	SF	ES	UR	SP	EX
インフルエンザ	118 (96)	35 (31)		35 (31)					
咽頭結膜熱	52 (10)	27 (13)		26 (12)			1 (1)		
感染性胃腸炎	95 (44)	44 (17)	43 (17)						1 (0)
手足口病	57 (36)	8 (1)	2 (1)	6 (0)					
ヘルパンギーナ	26 (17)	14 (6)		13 (6)	1 (0)				
急性脳炎	0 (0)	0 (0)							
無菌性髄膜炎	6 (0)	12 (1)	2 (0)	2 (0)	6 (1)		1 (0)		1 (0)
流行性角結膜炎	2 (1)	0 (0)							
流行性耳下腺炎	1 (0)	2 (0)		2 (0)					
RSウイルス感染症	18 (4)	9 (2)		9 (2)					
突発性発しん	24 (10)	5 (3)		5 (3)					
水痘	7 (4)	8 (3)				1 (0)			7 (3)
伝染性紅斑	10 (5)	1 (0)		1 (0)					
その他の疾患	0 (0)	0 (0)							
計	416 (227)	165 (77)	47 (18)	99 (54)	7 (1)	1 (0)	2 (1)	0 (0)	9 (3)

* ()内は陽性検体数

** FC:糞便, NP:咽頭ぬぐい液及びのど液, SF:髄液, ES:結膜ぬぐい液, UR:尿, SP:喀痰, EX:その他

表2 2020年における福岡県*の感染症発生動向調査結果

疾 病 名	採取月	検 出 ウ イ ル ス	検出数	検体種**	検出数
インフルエンザ	1～3月	インフルエンザウイルスA/H1pdm09型	26 件	NP	26
		インフルエンザウイルスB/ビクトリア系統	4 件	NP	4
		アデノウイルス1型	1 件	NP	1
咽頭結膜熱	1～3, 6, 8～12月	コクサッキーウイルスA4型	5 件	NP	5
		アデノウイルス2型	3 件	NP	3
		アデノウイルス1型	1 件	NP	1
		アデノウイルス11型	1 件	UR	1
		エコーウイルス9型	1 件	NP	1
		コクサッキーウイルスB4型	1 件	NP	1
		アデノウイルス5型+単純ヘルペスウイルス1型	1 件	NP	1
感染性胃腸炎	1～4, 6～12月	ノロウイルスGⅡ. 4	4 件	FC	4
		アストロウイルス	3 件	FC	3
		アデノウイルス2型	2 件	FC	2
		ノロウイルスGⅡ. 4+ライノウイルス	2 件	FC	2
		ノロウイルスGⅡ. 2	1 件	FC	1
		アデノウイルス31型	1 件	FC	1
		アデノウイルス41型	1 件	FC	1
		コクサッキーウイルスA4型	1 件	FC	1
		コクサッキーウイルスA9型	1 件	FC	1
		インフルエンザウイルスA/H1pdm09型	1 件	FC	1
手足口病	2, 5, 6, 8, 12月	単純ヘルペスウイルス1型	1 件	FC	1
無菌性髄膜炎	1, 2, 4, 6～8月	水痘・帯状疱疹ウイルス	1 件	SF	1
流行性耳下腺炎	1, 2月				
ヘルパンギーナ	1, 3, 5～9月	コクサッキーウイルスA4型	6 件	NP	6
RSウイルス感染症	1, 2, 8, 10, 11月	ライノウイルス	1 件	NP	1
		エコーウイルス9型	1 件	NP	1
突発性発しん	2, 4, 7, 12月	ヘルペスウイルス6型	1 件	NP	1
		コクサッキーウイルスA4型	1 件	NP	1
		単純ヘルペスウイルス1型	1 件	NP	1
水痘	1～3, 8, 10, 12月	水痘・帯状疱疹ウイルス	2 件	EX	2
		コクサッキーウイルスA16型	1 件	EX	1
伝染性紅斑	6月				
計			77 件		

*福岡市及び北九州市を除いた福岡県内の市町村

**FC:糞便, NP:咽頭ぬぐい液及びうがい液, SF:髄液, UR:尿, EX:その他

資料

福岡県保健環境研究所における新型コロナウイルス感染症(COVID-19)に係る 検査・解析・研修等の対応について(2020年1月-2021年3月)

上田紗織・小林孝行・中村麻子・大隈英子・石橋哲也・堀川和美・廣瀬美和子・佐藤洸・芦塚由紀
片宗千春・カール由起・重村洋明・大石明・江藤良樹・濱崎光宏・西巧・中島淳一
市原祥子・高尾佳子・枇杷美紀・原田純子・新谷俊二・村田美奈子・高橋浩司
古谷貴志・佐藤環・平川周作・田中義人・香月進

当所では、新型コロナウイルス(SARS-CoV-2)による感染症(COVID-19)に係る検査を2020年1月31日から開始した。2020年1月31日から2021年3月31日までに、SARS-CoV-2検査を32,020件行い、うち2,299件が陽性であった(陽性率7.2%)。また、他自治体からの依頼検査を990件、宿泊療養施設退所に必要な陰性確認検査を637件行った。COVID-19の流行が継続する中、変異株の流行状況の把握やCOVID-19の感染伝播の解明の重要性が高まった。このことから、2021年1月以降、SARS-CoV-2検査に加えて、N501Y変異に係る変異株スクリーニングを919件行い、うち5件が変異陽性であった。また、次世代シーケンサー(NGS)によるSARS-CoV-2の全ゲノム配列の解析を714検体行い、うち460検体(64.4%)の配列を取得した。得られた配列情報についてデータベースへの登録及び疫学情報と併せて保健所等への情報提供を行った。さらに、COVID-19に関する技術や知識を共有するために、SARS-CoV-2検査の技術研修や保健所等に対する研修会等を行った。

[キーワード: 新型コロナウイルス(SARS-CoV-2)、新型コロナウイルス感染症(COVID-19)、核酸増幅法、N501Y変異、変異株スクリーニング、次世代シーケンサー(NGS)]

1 はじめに

新型コロナウイルス(SARS-CoV-2)による感染症(COVID-19)は、2019年12月に中国湖北省武漢において初めて患者発生が報告された。その後、2020年1月16日に国内初の感染例が報告され、全国に感染が拡大した。当所では、2020年1月31日にCOVID-19疑いの検体について初めて検査を行った。そして、福岡県では2020年2月20日に福岡市で最初の患者が報告され²⁾、当所でも2020年3月19日に最初の陽性を検出した。COVID-19の流行が継続する中、変異株の流行状況の把握や、COVID-19感染伝播の解明の重要性が増した。そこで、当所ではSARS-CoV-2検査に加えて、変異株スクリーニング、次世代シーケンサー(NGS)を用いたCOVID-19の感染伝播の解明や変異株の確定を行った。また、保健所への技術研修や研修会等を通してCOVID-19に関する情報共有を行った。今回、2020年1月31日から2021年3月31日にかけて当所で行ったCOVID-19に係る対応について報告する。

2 新型コロナウイルス(SARS-CoV-2)の検査

SARS-CoV-2の検査は、感染症の予防及び感染症の患者に対する医療に関する法律(感染症法)第15条に基づいて行

った。また、九州・山口9県における感染症に対する広域連携に関する協定書に基づき他自治体からの依頼検査を行った。

2・1 検査方法

COVID-19疑い患者の検体(咽頭ぬぐい液、鼻咽頭ぬぐい液、唾液、喀痰等)について、核酸増幅法(RT-qPCR法、TMA法)を用いてSARS-CoV-2の検査を行った。また、2020年12月から2021年1月にかけて、県内3ヶ所の検査課(筑紫保健福祉環境事務所、北筑後保健福祉環境事務所及び田川保健福祉事務所)で抗原定量検査が開始され、当所では、抗原定量検査において判定保留となった検体について、福岡県新型コロナウイルス抗原定量検査実施要領に基づき、核酸増幅法による確定検査を行った。

2・2 県域の検査数及び検査結果

当所では、SARS-CoV-2の検査を2020年1月31日から開始した。その後、2021年3月31日までに、北九州市及び福岡市を除く県内9ヶ所の保健所、久留米市、大牟田市(2020年3月まで)及び県内3ヶ所の検査課の確定検査を含む32,020件について検査した。その結果、2,299件が陽性であった(陽性率7.2%)。月毎の検査数及び陽性数を表1に示す。なお、検査数は、当所における検査日と検査数に基づき集計したため、公表されている検査件数とは異なる。

月毎の検査数は、2021年1月に8,046件と最多であった。次いで、2020年8月に5,142件であった。1日最多検査数は、月毎の検査数同様、2021年1月に1日559件と最多であった。次いで、2020年12月の1日416件であった。陽性数は、2021年1月に555件と最多であった。次いで、2020年4月の401件であった。一方、陽性率は2020年4月が13.7%、次いで2020年5月の11.8%であった。また、2020年6月以降は、10%未満で推移した。

2・3 他自治体からの依頼検査

2020年3月に大分県から174件、2020年4月から7月にかけて北九州市から696件、2020年12月に福岡市から120件の計990件について検査を行った(表1)。

2・4 宿泊療養施設における陰性確認検査

COVID-19の流行当初、COVID-19患者又は無症状病原体保有者について、症状改善後または10日間の入院後に、2回核酸増幅法による検査を行い、両方で陰性が確認された場合に退院または宿泊療養施設からの退所ができるという基準を厚生労働省が定めていた³⁾。この基準に基づき、2020年4月から6月にかけて、県内に設けられた3ヶ所の宿泊療養施設(2020年6月15日時点)の延べ637検体について陰性確認検査を行った(表1)。なお、基準の改正等に伴い、当該検査は2020年6月15日で終了した。

3 変異株スクリーニング

COVID-19の流行が継続する中、2020年9月に英国においてN501Y変異があるアルファ株が検出された⁴⁾。その後、2020年12月25日に国内で初めて検出されて以降⁵⁾、全国に感染が広がった。アルファ株について、厚生労働省による監視体制の強化が行われ⁶⁾、当所でも2021年1月から、N501Y変異について、変異の有無を確認する変異株スクリーニングを開始した。

3・1 検査方法

変異株スクリーニングは、当所、保健所検査課及び民間検査会社のSARS-CoV-2検査で陽性となった検体の一部を対象に、RT-qPCR法で行った。一部の検体は、変異株スクリーニングによるN501Y変異の有無を確認せず、直接4のゲノム解析により変異株の確定を行った。

3・2 検査数および検査結果

N501Y変異スクリーニング検査は919件について検査を行った。その結果、5件が変異陽性となった(表1)。

4 ゲノム解析

COVID-19の流行に伴い、感染伝播の解明や変異株の流行状況を把握することの重要性が高まった。厚生労働省からの通知「新型コロナウイルス感染症における積極的疫学調査について(協力依頼)」⁷⁾に基づき、2020年4月から国

立感染症研究所(感染研)に検体を送付し、ゲノム解析を依頼した(合計971検体)。2020年9月に次世代シーケンサー(NGS)を導入し、感染研の協力を得て当所でもSARS-CoV-2の全ゲノム配列の解析を開始した。

4・1 検査方法

当所、保健所検査課、民間検査会社による検査及び他自治体の検査においてSARS-CoV-2陽性となった検体を対象とした。ゲノム解析の開始当初の2020年5月は、陽性検体から抽出したRNAを感染研に送付しゲノム解析を依頼した。当所でNGS解析を開始して以降は、当所にて、検体から抽出したRNAについて糸川ら⁸⁾の方法により全ゲノム配列を取得した。

4・2 検査数および検査結果

感染研に送付した971件のうち、689件(71%)について配列が取得された。当所においては、2020年11月から2021年3月31日までに714件についてゲノム解析を行い、460件(64.4%)について配列を取得した(表1)。得られた配列を、感染研のサーバーで組み立てを行い、国際的なデータベースGlobal Initiative on Sharing All Influenza Data (GISAID)へ登録した⁹⁾。また、得られた配列について疫学情報を併せてネットワーク解析を行い保健所に情報提供した。変異株の流行以降は変異株の確定を行った。

5 技術研修

2021年3月に北筑後保健福祉環境事務所から4名の研修者を受け入れ、SARS-CoV-2検査等について実習を含めた研修を行った。

6 情報提供

COVID-19に係る検査体制やNGS解析の結果等の情報提供のために、2020年1月から2021年3月にかけて、保健所を対象とした研修会を計12回、また、保健所、本庁及び医療機関に対して個別にNGS解析等に関する情報提供を計7回実施した(表2)。

7 検査に係る応援体制

COVID-19に対する検査対応において、所内の病理細菌課、企画情報管理課、生活化学課及び水質課から計18名の応援を受けた。また、筑紫保健福祉環境事務所、北筑後保健福祉環境事務所及び田川保健福祉事務所の検査課から計3名の応援を受けた。

表 1 2020 年 1 月から 2021 年 3 月までに当所で行った新型コロナウイルス(SARS-CoV-2)に係る検査及び解析の種類と月毎の実施数

	県内の検査						他自治体 依頼検査	宿泊療養施設 陰性確認	N501Y 変異株スクリーニング		ゲノム解析＊	
	保健所からの 検査	検査課の 確定検査	検査数計	1 日最多 検査数	陽性数	陽性率			検査数	陽性数	解析数	得られた 配列数
2020 年	1 月	4	-	4	4	0	0.0%	0	-	-	-	-
	2 月	85	-	85	16	0	0.0%	0	-	-	-	-
	3 月	400	-	400	43	15	3.8%	0	-	-	-	-
	4 月	2,925	-	2,925	224	401	13.7%	256	-	-	-	-
	5 月	1,080	-	1,080	86	127	11.8%	377	-	-	-	-
	6 月	560	-	560	50	0	0.0%	4	-	-	-	-
	7 月	2,972	-	2,972	334	188	6.3%	63	-	-	-	-
	8 月	5,142	-	5,142	358	350	6.8%	0	-	-	-	-
	9 月	1,513	-	1,513	321	53	3.5%	0	-	-	-	-
	10 月	583	-	583	129	24	4.1%	0	-	-	-	-
	11 月	1,795	-	1,795	273	140	7.8%	0	-	-	31	40
	12 月	4,109	109	4,218	416	252	6.0%	120	-	-	103	58
2021 年	1 月	7,900	146	8,046	559	555	6.9%	0	381	0	126	88
	2 月	1,704	76	1,780	274	144	8.1%	0	178	0	87	36
	3 月	877	40	917	103	50	5.5%	0	360	5	367	238
合計	31,649	371	32,020	-	2,299	7.2%	990	637	919	5	714	460

* 当所の次世代シーケンサー (NGS) による解析数を示す。(感染研への解析依頼数は 2020 年 4 月～2021 年 1 月までで合計 971 検体)

表 2 保健所等に対する情報提供の回数と対象

		回数	対象
2020 年	3 月	1	全保健所(研修会)
	4 月	1	保健所(個別情報提供)
	5 月	1	保健所(個別情報提供)
	6 月	3	全保健所(研修会)
	7 月	3	全保健所(研修会) 保健所(個別情報提供) 本庁(個別情報提供)
	8 月	2	全保健所(研修会)
	10 月	1	全保健所(研修会)
	11 月	1	全保健所(研修会)
	12 月	2	全保健所(研修会) 本庁(個別情報提供)
2021 年	3 月	4	全保健所(研修会) 保健所(個別情報提供) 本庁(個別情報提供)

文献

- 1) 厚生労働省：新型コロナウイルスに関連した肺炎の患者の発生について(1 例目), 令和 2 年 1 月 16 日, https://www.mhlw.go.jp/stf/newpage_08906.html (2021/8/26 アクセス)
- 2) 福岡市：福岡県内における新型コロナウイルス感染症の発生について, 令和 2 年 2 月 20 日, <https://www.pref.fukuoka.lg.jp/uploaded/attachment/62564.pdf> (2021/8/26 アクセス)
- 3) 厚生労働省：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における新型コロナウイルス感染症患者の退院及び就業制限の取扱いについて, 健感発 0203 第 3 号, 令和 2 年 2 月 3 日
- 4) WHO : COVID-19 Weekly Epidemiological Update Edition 46, published 29 June 2021, file:///C:/Users/ueda/Downloads/20210629_Weekly_Epi_Update_46.pdf (2021/8/26 アクセス)
- 5) 国立感染症研究所：感染性の増加が懸念される SARS-CoV-2 新規変異株について(第 2 報), 2020 年 12 月 25 日 20:00 時点, <https://www.niid.go.jp/niid/ja/diseases/ka/corona-virus/2019-ncov/10084-covid19-28.html> (2021/9/1 アクセス)
- 6) 厚生労働省：新型コロナウイルス感染症の積極的疫学調査における検体提出等について(要請), 健感発 0205 第 4 号, 令和 3 年 2 月 5 日
- 7) 厚生労働省：新型コロナウイルス感染症における積極的疫学調査について(協力依頼), 健感発 0316 第 3 号, 令和 2 年 3 月 16 日
- 8) K. Itokawa *et al.* : *PLoS One*, 2020 Sep 18;15(9):e0239403.
- 9) GISAIID : <https://www.gisaid.org/> (2021/8/26 アクセス)

資料

福岡県における新型コロナウイルスの検査体制強化と検査数の推移 (2020年1月～2021年6月)

上田紗織・小林孝行・中村麻子・大隈英子・石橋哲也・堀川和美・廣瀬美和子・佐藤郁美
佐藤洸・芦塚由紀・片宗千春・カール由起・重村洋明・大石明・江藤良樹・濱崎光宏
市原祥子・枇杷美紀・中島淳一・村田美奈子・高橋浩司・古谷貴志・佐藤環・平川周作
田中義人・香月進

新型コロナウイルス(SARS-CoV-2)を原因とする新型コロナウイルス感染症(COVID-19)は、2019年12月末から世界中で拡大した。福岡県においても、2020年2月20日に患者が報告されて以降県内に感染が広がった。検査の重要性が増す中、2020年7月から8月にかけてダイレクトPCR検出キットやパンサーシステムなどの新たな検査方法を導入することで、1日検査可能数が80検体から450検体に増加し、感染拡大に伴う検査数の増加に対応可能となった。また、2020年12月から2021年1月にかけて保健所検査課で抗原定量検査が開始されたことにより、当所に集中する検査が分散し、第3波以降も対応することができた。今後も感染状況に応じて検査体制を強化する必要がある。

[キーワード：新型コロナウイルス感染症(COVID-19)、新型コロナウイルス(SARS-CoV-2)、
核酸増幅法、抗原定量検査]

1 はじめに

新型コロナウイルス(SARS-CoV-2)により起こる新型コロナウイルス感染症(COVID-19)は、2019年12月に中国湖北省武漢において最初の患者発生が報告され、2020年1月6日に国内においても、厚生労働省より通知「中華人民共和国湖北省武漢市における原因不明肺炎の発生について」が发出された¹⁾。国内では、2020年1月16日に国内初の感染例が報告され²⁾、その後全国に感染が広まった。福岡県では、2020年2月20日に福岡市で最初の患者が報告された後³⁾、県全体に感染が拡大した。当所では、2020年1月31日にCOVID-19疑いの患者検体について初めて検査を行い、2020年3月19日に最初の陽性者を確認した。感染が拡大する中、福岡県では、政府による緊急事態宣言やまん延防止重点措置の発令、福岡県独自の福岡コロナ警報の発動を通して、感染拡大を抑えこむ努力が行われてきた。当所では、検査開始以降、感染状況に応じて検査体制を強化しながら、COVID-19に対応してきた。今回、2020年1月から2021年6月におけるCOVID-19に係る検査体制の強化と当所の検査数の推移について報告する。

2 検査方法

「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」(感染症法)第15条に基づき、県域9ヶ所の保健所(福

岡市、北九州市は除く)、久留米市保健所及び大牟田市保健所(2020年3月まで)において、COVID-19の疑いがあるとされた患者検体(咽頭ぬぐい液、鼻咽頭ぬぐい液、唾液、喀痰等)について、核酸増幅法を用いて新型コロナウイルス(SARS-CoV-2)の検査を行った。各保健所の管轄する地域を図1に示す。2020年1月31日の検査開始当初は、国立感染症研究所(感染研)の病原体検出マニュアル(感染研法)⁴⁾に基づいて、検体からRNAを抽出し、抽出したRNAを用いてコンベンショナルPCR法及びRT-qPCR法により検出した。1件目の陽性が確認されてからは、RT-qPCR法のみで検出した。その後、厚生労働省より感染研法以外の検査方法の普及が進められたことから^{5) 6)}、2020年7月1日から、前処理検体を直接RT-qPCR法に供試するSARS-CoV-2 Direct Detection RT-qPCR Kit (タカラバイオ)を使用した(「臨床検体を用いた評価結果が取得された2019-nCoV遺伝子検査方法について」⁶⁾に「感染研法との一定の一致率を示した遺伝子検査方法」と記載された方法)。2020年10月より、体外診断薬として承認されたTakara SARS-CoV-2ダイレクトPCR 検出キットを使用している。また、2020年8月11日からTMA法を用いたパンサーシステム(HOLOGIC)による検査も併用した。それぞれの検査方法と特徴について表1に示す。

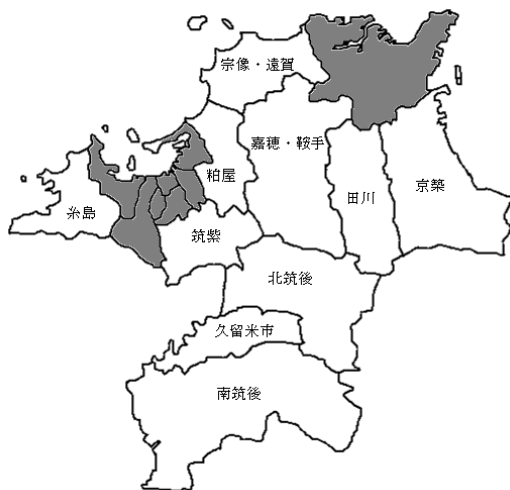


図 1 県域 9 ケ所及び久留米市の保健所が管轄する地域

2020年12月から2021年1月にかけて、県内3ヶ所の検査課(筑紫保健福祉環境事務所検査課(管轄保健所:筑紫、粕屋、糸島及び宗像・遠賀)、田川保健福祉事務所検査課(管轄保健所:嘉穂・鞍手、田川及び京築)、北筑後保健福祉環境事務所検査課(管轄保健所:北筑後及び南筑後))が、ルミパルス® SARS-CoV-2 Ag(富士レビオ)を用いた抗原定量検査を開始した。当所では、抗原定量検査で判定保留となった検体について、核酸増幅法による確定検査を行った。

検査数の集計は、当所における検査日と検査数に基づき集計した。そのため、福岡県が公表している検査件数と異なり、当所の検査数及び陽性数が福岡県全体の新規陽性者数の推移とは一致しない。また、2020年3月4日より、SARS-CoV-2検査が保険適用となり、医療機関や民間検査機関でも検査を行うことができるようになったため⁷⁾、当所の検査件数やその推移から福岡県全体の感染状況を直接評価することはできない。

3 結果と考察

当所で最初に COVID-19 疑いの検体が搬入されたのは、2020 年 1 月 31 日であった。その後、2021 年 6 月 30 日までに 42,843 検体を検査した。福岡県で検査数及び新規陽

性者数の報告が開始された 2020 年 1 月 28 日から 2021 年 6 月 30 日までの当所における検査数と陽性数及び福岡県における新規陽性者数の推移について図 2 に示す。また、月別検査数について表 2 に示す。2020 年 1 月 28 日から 2021 年 6 月 30 日までの間に陽性者数の顕著な増加が 4 回起こり、その都度、検査件数は増加した。検査開始当初は、1 日検査可能数は 80 検体であったが、その後、2020 年 7 月 1 日に RNA 抽出を必要としない検査方法に変更したことで 1 日検査可能数は 300 検体に、2020 年 8 月 11 日にパンサーシステムを導入したことで 450 検体に増強した。第 1 波の 2020 年 4 月は、1 日最多検査数が 224 検体であったが、第 2 波の 2020 年 8 月は、1 日最多検査数が 358 検体、第 3 波の 2021 年 1 月は 559 検体及び第 4 波の 2021 年 5 月は 517 検体であった。第 1 波の後、2020 年 7 月から 8 月にかけて、新たな検査方法を導入したことで検査能力が上がり、第 2 波以降の感染拡大に伴う検査増加に対応できた。一時的に 1 日検査可能数を超過したこともあったが、他部署からの応援体制の強化等により対応した。

2020 年 12 月から 2021 年 1 月にかけて、検査課による抗原定量検査が開始され、これまで当所に搬入されていた保健所の検体は、検査課で行うこととなった。それ以降、当所ではクラスター関連を中心に検査を行った。第 3 波の 2021 年 1 月は、当所での月検査件数は 8,046 検体、1 日最多検査数は 559 検体で、検査開始以降最多検査数となった。しかし、検査課における抗原定量検査が開始されたことから、検査が分散された結果の検査数であり、既存の体制のままであれば当所への検査がより集中していた可能性がある。一方、第 4 波では、県内の感染者数は 2021 年 5 月 12 日に新規陽性者数が過去最高の 634 人と感染が急拡大したが⁸⁾、当所の 2021 年 4 月検査数は 4,517 検体、1 日最多検査数は 517 検体であり、2021 年 1 月の検査数よりも少なかった。これは、検査課での抗原定量検査が稼働したことにより、当所に集中する検査が軽減されたためと考えられた。このように当所及び 3 ケ所の検査課で検査を行うことで、第 3 波以降の感染の急拡大に対応できた。

表 1 当所で導入した新型コロナウイルス(SARS-CoV-2)の検査法

核酸増幅法の種類	病原体検出マニュアル(感染研法)	SARS-CoV-2 Direct Detection RT-qPCR Kit (タカラバイオ)*	パンサーシステム(HOLOGIC)
	RT-qPCR 法	RT-qPCR 法	TMA 法
特徴	- 国立感染症研究所の病原体検出マニュアル - 前処理検体から RNA を抽出し、抽出した RNA を用いて PCR を行う	RNA 抽出を必要とせず、前処理検体を用いて PCR を行うことができる	- 全自動遺伝子検査装置 - 検体を入れてから検査結果が出るまですべて自動で行う - RNA 抽出を必要とせず、前処理検体から直接遺伝子検出ができる
検査所要時間(最短)	約 4 時間	約 2 時間	約 5 時間
当所における導入時期	2020 年 1 月～	2020 年 7 月～	2020 年 8 月～

* 2020 年 10 月より、体外診断薬として承認された Takara SARS-CoV-2 ダイレクト PCR 検出キットを使用している

当所に搬入された保健所ごとの検査数は、粕屋保健福祉事務所が最多で 11,142 検体、次いで筑紫保健福祉環境事務所が 7,592 検体、糸島保健福祉事務所が 7,194 検体と続いた。これらの保健所は福岡市と隣接した地域を管轄しているため、福岡市の感染状況が影響していることが考えられた。

月毎の陽性数(検査課の確定検査を含む)は、第 3 波のピークであり、検査数が最多であった 2021 年 1 月が 555 検体と最も多く、次いで第 1 波のピークである 2020 年 4 月が 401 検体、第 4 波のピークである 2021 年 5 月が 398 検体、第 2 波のピークである 2020 年 8 月が 350 検体と続いた。一方、陽性率は第 1 波のピークである 2020 年 4 月が 13.8%で最も高く、2020 年 5 月が 11.8%と続いた。その後、第 2 波の 2020 年 6 月以降は 10%以下で推移し、月検査数及び陽性数が最多であった 2021 年 1 月においても陽性率は 6.8%であった。第 2 波以降、国により濃厚接触者の定義が変更されたこと⁹⁾や検査対象が拡充されたこと¹⁰⁾により、検査数に対する陽性数が減少したと考えられた。

4 まとめ

世界的に感染が拡大した COVID-19 は、福岡県においても 2020 年 2 月以降感染が拡大し、当所での検査の重要性が増大した。当所では、2020 年 1 月 31 日から 2021 年 6 月 30 日までに、42,843 検体の検査を行った。2020 年 1 月 31 日の検査開始当初は感染研法を使用していたが、2020 年 7 月から 8 月にかけて、ダイレクト PCR 検出キットやパンサーシステムなど新しい検査方法を導入することで、1 日 80 検体から 450 検体まで検査能力を上げ、第 2 波以降の感染拡大に対応できた。また、2020 年 12 月から 2021 年 1 月にかけて検査課で抗原定量検査が開始されたことで、当所に集中する検査が分散し、第 3 波以降の感染拡大に伴う検査数の増大に対応できた。保健所別の検査数では、粕屋保健福祉事務所が最も多く、次いで筑紫保健福祉環境事務所、糸島保健福祉事務所と続いた。これらの保健所は福岡市と隣接した地域を管轄しているため、福岡市の感染状況が影響していると考えられた。陽性数は、第 3 波のピークである 2021 年 5 月が 555 検体と最も多かったが陽性率は 6.8%だったのに対し、陽性率は第 1 波のピークの 2020 年 4 月が 401 検体で 13.7%と最も高かった。第 2 波以降、国により濃厚接触者の定義が変更されたこと⁹⁾や検査対象が拡充されたこと¹⁰⁾により、陽性率が減少したと考えられた。

2020 年 1 月から 2021 年 6 月にかけて、新たな検査法の導入や、検査課での抗原定量検査の開始により、4 回の流行の波に対応することができた。COVID-19 は、いまだ終

息が見えない状況である。今後も感染状況に応じて検査体制を強化する必要がある。

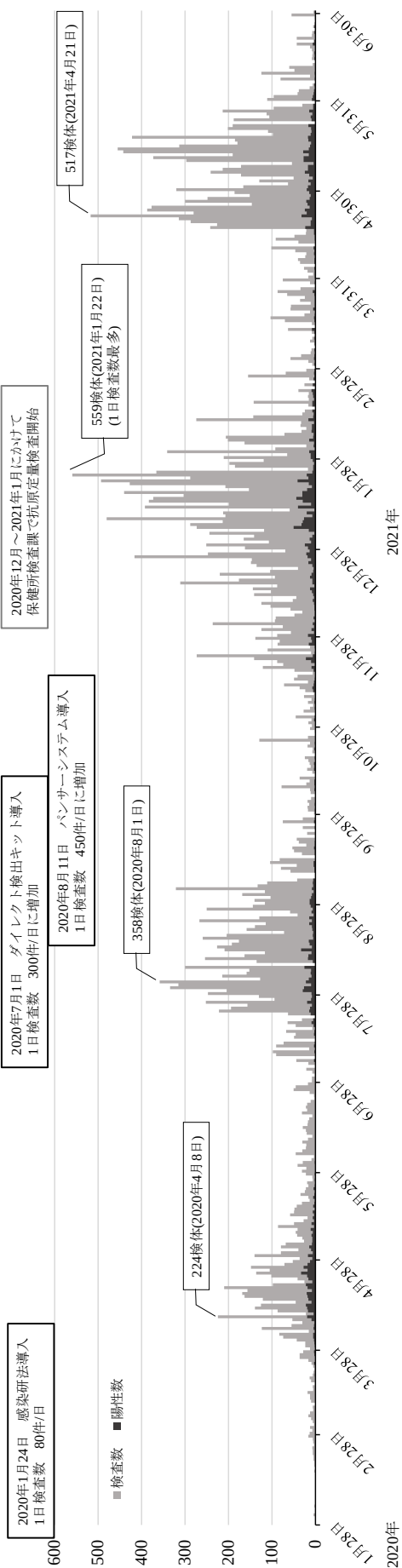
謝辞

COVID-19 に係る行政依頼検査等において、検体搬入等でご協力いただいた県域 9 ヶ所の保健福祉(環境)事務所、久留米市保健所及び大牟田市保健所の職員の方々、抗原定量検査を実施している県内 3 ヶ所の保健所検査課の職員の皆様に感謝申し上げます。

文献

- 1) 厚生労働省：中華人民共和国湖北省武漢市における原因不明肺炎の発生について 令和 2 年 1 月 6 日，
https://www.mhlw.go.jp/stf/newpage_08767.html.
- 2) 厚生労働省：新型コロナウイルスに関連した肺炎の患者の発生について(1 例目) 令和 2 年 1 月 16 日，
https://www.mhlw.go.jp/stf/newpage_08906.html.
- 3) 福岡市：福岡県内における新型コロナウイルス感染症の発生について 令和 2 年 2 月 20 日，
<https://www.pref.fukuoka.lg.jp/uploaded/attachment/62564.pdf>.
- 4) 国立感染症研究所：病原体検出マニュアル 2019-nCoV Ver.2.9.1，令和 2 年 3 月 19 日.
- 5) 厚生労働省：新型コロナウイルスに関する行政検査の遺伝子検査方法について(事務連絡)，令和 2 年 3 月 18 日.
- 6) 厚生労働省健康局結核感染症課，国立感染症研究所：臨床検体を用いた評価結果が取得された 2019-nCoV 遺伝子検査方法について，2020 年 10 月 23 日.
- 7) 厚生労働省：新型コロナウイルス核酸検出の保険適用に伴う行政検査の取扱いについて(健感発 0304 第 5 号)，令和 2 年 3 月 4 日.
- 8) ckan: 福岡県 新型コロナウイルス感染症 新規陽性者数，https://ckan.open-governmentdata.org/dataset/401000_pref_fukuoka_covid19_newlycases.
- 9) 国立感染症研究所感染症疫学センター：新型コロナウイルス感染症患者に対する積極的疫学調査実施要領，令和 2 年 4 月 20 日.
- 10) 厚生労働省新型コロナウイルス感染症対策推進本部：新型コロナウイルス感染症に係る行政検査に関する Q & A について(事務連絡)，令和 2 年 7 月 15 日.

当所における検査数及び陽性数



福岡県の新規陽性者数

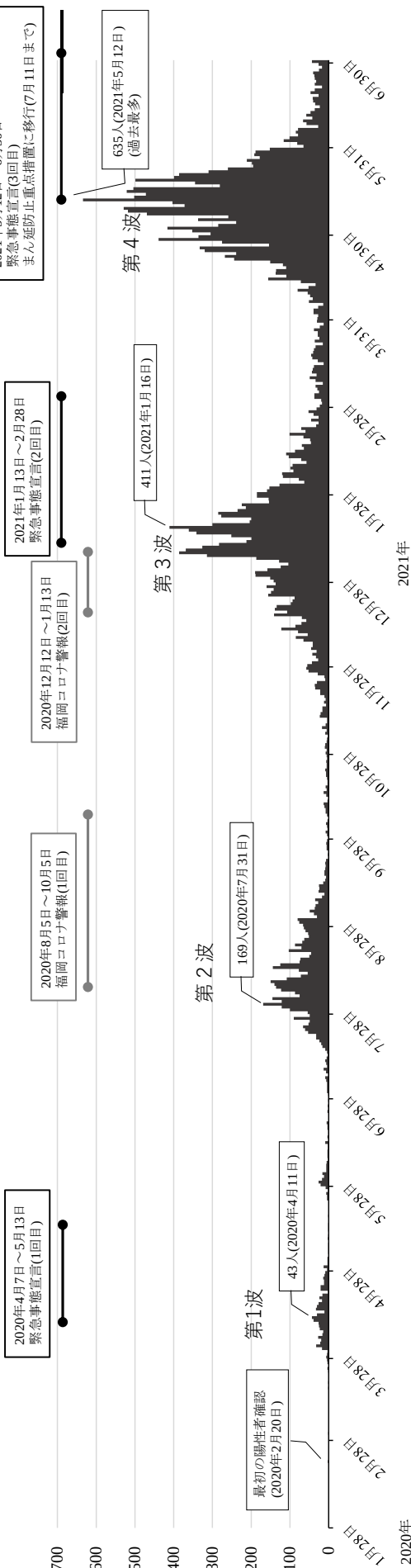


図 2 当所における検査数と福岡県新規陽性者数(2020 年 1 月 28 日～2021 年 6 月 30 日)

表 2 当所における県域 9 ヶ所の保健所、久留米市保健所及び大牟田市保健所ごとの月別検査数(2020 年 1 月—2021 年 6 月)

保健福祉(環境)事務所																			検査課の確定検査 *					合計	
筑紫	粕屋	糸島	宗像・ 遠賀	嘉穂・ 鞍手	田川	北筑後	南筑後	京築	久留米 市	大牟田 市	小計	筑紫	北筑後	田川	小計	検査数計	1日最多 検査数	陽性数	陽性率						
2020 年	1 月	0	0	4	0	0	0	0	0	0	4	-	-	-	-	4	4	0	-						
	2 月	11	10	15	14	6	2	3	0	18	85	-	-	-	-	85	16	0	-						
	3 月	23	49	22	74	44	30	19	34	24	400	-	-	-	-	400	43	15	3.8%						
	4 月	610	346	234	226	109	125	58	220	438	2925	-	-	-	-	2925	224	401	13.7%						
	5 月	250	159	68	116	113	73	18	61	159	1080	-	-	-	-	1080	86	127	11.8%						
	6 月	141	65	48	89	75	79	2	15	17	560	-	-	-	-	560	50	0	-						
	7 月	299	397	224	34	552	403	201	547	91	2972	-	-	-	-	2972	334	188	6.3%						
	8 月	983	1107	442	112	592	401	319	898	103	5142	-	-	-	-	5142	358	350	6.8%						
	9 月	363	260	192	46	96	359	3	128	44	1513	-	-	-	-	1513	321	53	3.5%						
	10 月	107	187	121	5	40	31	10	74	8	583	-	-	-	-	583	129	24	4.1%						
	11 月	638	269	203	28	105	263	26	194	69	1795	-	-	-	-	1795	273	140	7.8%						
	12 月	1691	512	619	39	86	0	343	819	0	4109	-	-	109	109	4218	416	252	6.0%						
2021 年	1 月	2376	2149	1819	469	401	0	156	530	0	7900	29	16	101	146	8046	559	555	6.9%						
	2 月	2	1207	252	52	183	3	2	3	0	1704	13	8	55	76	1780	274	144	8.1%						
	3 月	0	332	310	186	46	0	0	1	2	877	4	6	30	40	917	103	50	5.5%						
	4 月	9	734	593	53	71	0	2	2858	138	4458	25	13	21	59	4517	517	265	5.9%						
	5 月	85	2824	1901	403	6	0	1	254	1	5475	51	38	4	93	5568	445	398	7.1%						
	6 月	4	535	127	39	17	0	0	1	3	726	8	4	0	12	738	124	36	4.9%						
	合計	7592	11142	7194	1985	2542	1769	1163	6637	1148	42308	130	85	320	535	42843	-	2998	7.0%						

* 検査課が実施した抗原定量検査で判定保留になった検体の確定検査数を示す。

資料

輸入ダイエット用製品からの医薬品成分の検出

中西加奈子・小木曾俊孝・飛石和大・堀就英

福岡県において、令和元年7月にインターネットを利用して購入したダイエット製品が原因と疑われる健康被害事例が発生した。当該製品の残品に対して成分検査を実施したところ、7検体からシブトラミン、ヒドロクロロチアジド、アミロライド、フロセミド、ビスコジル、フルオキセチン及びクロルフェニラミンといった7種類の医薬品成分が検出された。なお、アミロライドは、初めて国内でダイエット用製品から検出を認めた事例であった。

[キーワード：ホスピタルダイエット、無承認無許可医薬品、健康食品、アミロライド]

1 はじめに

ホスピタルダイエットは、MDクリニックダイエットやヤンヒーホスピタルダイエットなどとも呼ばれ、タイの病院がダイエットを目的に処方する、複数の医薬品から構成される製品群の総称である。いずれも日本国内では承認を受けておらず、偽造製品であったり、有害物質が含まれていたりする可能性があり、健康被害が発生するおそれの大きい無承認無許可医薬品である。これまでインターネットを通じて主に個人輸入で入手されており、平成14年以降、複数の自治体から死亡例を含む健康被害事例が報告されている¹⁾。

福岡県では、令和元年7月2日に、インターネットで購入した製品が原因と疑われる健康被害が発生したとの情報が、県内の医療機関から寄せられた。保健所の聴き取り調査によると、患者は台湾の業者から購入したダイエット用製品を、朝（2カプセル、2錠剤）に3回、晩（3錠剤）に2回続けて摂取後、吐き気、全身倦怠、動悸、胸痛といった症状を呈し、医療機関を受診した。低張性脱水症状を起こしていたが、通院治療により回復したとのことであった²⁾。

今回、原因究明のために、患者から入手した当該製品の残品が当所に搬入された。そこで、LC-QTOF/MSを用いて成分検査を実施したところ、医薬品成分が検出されたので、その検査結果について報告する。

2 方法

2・1 検体

患者から入手したダイエット用製品残品合計7検体を用いた。7検体の形状は、カプセル2種類、錠剤5種類であった。製品名は不明だが、外箱に「YanHee Hospital」の記載があり、公表済みのダイエット用製品に類似していた。

2・2 標準品

フルオキセチン塩酸塩標準品、アミロライド塩酸塩及びフロセミドは東京化成製、クロルフェニラミンマレイン酸塩、ヒドロクロロチアジド及びシブトラミン塩酸塩一水和物標準品は富士フイルム和光純薬製、ビスコジルはシグマアルドリッチ製を用いた。

2・3 検量線の作成

標準品をフリー体として約 50 mg（シブトラミンは約 30 mg）をそれぞれ量りとり、メタノールで溶かして 1 mg/mL の標準原液を調製した。標準原液をメタノールで希釈し、0.1～5 µg/mL の標準溶液を調製して検量線を作成した。

2・4 装置及び測定条件

LC-QTOF/MS は Agilent 製 6540 Q-TOF/Agilent 製 1290 Infinity LCを用いた。測定条件を表1に示す。

表 1 測定条件

カラム：Atlantis T3, 3 µm, 2.1×75 mm (Waters 製)、40℃
流量：0.2 mL/min 注入量：1 µL
移動相：A 液 10 mM ギ酸アンモニウム, pH3.0、B 液 アセトニトリル 0～2.5min (A95%/B5%) →20～22.5min (A0%/B100%) →27.5min (A95%/B5%)
測定モード①：Autosms 測定範囲：100～1100 m/z
イオン化モード：ESI(+)又は ESI(-)
CE 20 V Fragmentor 120 V
測定モード②：Targetmsms 測定範囲：100～1100 m/z
イオン化モード ESI(+):
275.1310(Chlorpheniramine) CE 3,6,9,12 V、
280.1827(Sibutramine) CE 3,6,9,12 V、
310.1413(Fluoxetine) CE 2,4,6,8 V、
362.1387(Bisacodyl) CE 5,10,15,20 V、
230.0552(Amloride) CE 2,4,6,8 V
イオン化モード ESI(-):
329.0004(Furosemide) CE 5,10,15,20 V、
295.9572(Hydrochlorothiazide) CE 5,10,15,20 V

2・5 検査方法

各検体から2個ずつを取り、カプセル剤は内容物を、錠剤は乳鉢で粉末としたものを、それぞれ分析試料とした。分析試料0.1 gを精密に量り、メタノール2 mLで超音波抽出及び遠心分離を2回行い、抽出液をあわせて正確に10 mLとし、試料原液とした。試料原液をメタノールで1000倍希釈したものを試料溶液とした。

試料溶液1 µLをLC-QTOF/MSに注入し、クロマトグラム上のピークをデータベースと比較することによりスクリーニングを行った。

検出されたピークの精密質量が、データベース上の医薬品成分と一致した場合は、その医薬品成分の標準品を入手し、化合物ごとにコリジョンエネルギーの最適化を行い、試料溶液と標準品の溶液を同条件で分析した。試料から検出された当該ピークの保持時間及び各種イオンの精密質量等が、標準品と一致したことを確認することにより、医薬品成分を同定した。

3 結果

その結果、表2のとおり、全7検体から、シブトラミン、ヒドロクロロチアジド、アミロライド、フロセミド、ピサコジル、フルオキセチン、クロルフェニラミンといった7種類の医薬品成分の検出を確認した。

4 まとめ

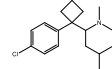
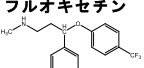
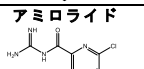
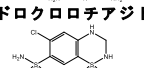
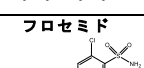
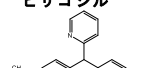
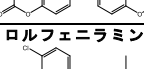
輸入ダイエット用製品 7 検体について、LC-QTOF/MSを用いて成分検査を実施したところ、7種類の医薬品成分が検出された。医薬品成分は、1検体に2成分含まれるものや、異なる形状であっても共通の成分が検出されるものがあった。また、各検体の剤型及び医薬品成分含量の平均値は、海外もしくは国内で承認された医薬品の剤型及び用量と、いずれも同等であった。なお、今回検出が認められたアミロライドは、ダイエット用製品から初めて国内で検出した医薬品成分でもあった。このアミロライド及びヒドロクロロチアジドは、海外では配合剤として流通しており、検出された錠剤中の配合量も同等であった。

今後も、輸入ダイエット用製品には国内未承認の新たな医薬品成分が含有され、健康被害が生じる可能性がある。その原因究明のためには医薬品成分等のデータベースを更に拡充するなど、対策が必要である。

文献

- 厚生労働省：「ホスピタルダイエット」などと称されるタイ製の医薬品成分を含有する無承認無許可医薬品による重篤な健康被害事例について、<https://www.mhlw.go.jp/kinkyu/diet/jirei/030902-1.html>
- 福岡県報道発表資料：医薬品成分を含有する製品の服用による健康被害（疑い）の発生について、令和元年8月20日

表2 各検体から検出された医薬品成分

用法	検体情報 剤型 色等	医薬品成分名	試料溶液濃度 (µg/mL)	1剤剤中の 医薬品成分含量 の平均値 (mg)	適応	副作用	医薬品としての 承認状況
朝食 30分 前	グレーと水色 カプセル	シブトラミン 	0.5121	15.9	肥満症の治療	血圧上昇、 心拍数増加等	国内 未承認 (海外 15mgカプセル承認)
	黄色と水色 カプセル	フルオキセチン 	1.2947	21.9	うつ病、 うつ症状	倦怠感、頭痛等	国内 未承認 (海外 20mgカプセル承認)
	オレンジ ひし形・「101」の刻印 錠剤	アミロライド 	0.2399	5.3	高血圧、 心性浮腫等	頭痛、 悪心・嘔吐等	国内 未承認 (海外 5mg錠承認)
	白色 丸形・割線・「w」の刻印 錠剤	ヒドロクロロチアジド 	2.5636	57.0	高血圧、 心性浮腫等	食欲不振、脱力感、 悪心・嘔吐、 低カリウム血症、 腹部不快感等	国内 12.5mg錠等承認 (海外 アミロライド 5mg・ ヒドロクロロチアジド 50mg 配合剤承認)
		フロセミド 	2.6598	37.1	高血圧、 心性浮腫等	ショック、めまい、 食欲不振、 悪心・嘔吐、 低カリウム血症等	国内 40mg錠等承認
就寝 前	黄色 錠剤	フルオキセチン	0.4615	9.2	うつ病、 うつ症状	倦怠感、頭痛等	国内 未承認 (海外 10mg錠承認)
	濃いピンク 錠剤	ピサコジル 	0.5043	4.3	便秘症等	過敏症状、 腹部不快感等	国内 2mg坐剤等承認 (海外 5mg錠)
	緑色 錠剤	クロルフェニラミン 	0.2620	2.4	じん麻疹、 皮膚疾患に伴う そう痒等	過敏症、眠気等	国内 2mg錠等承認

資料

空間放射線量率の上昇要因とその事例について

有田明人・檜崎幸範

モニタリングポスト（MP）では空間放射線量率（以下、線量率）を測定することができる¹⁾。線量率は諸要因によって上昇することがあり、その要因として①気象、②放射線治療者の接近、③非破壊検査の実施、④原子力施設における重大事象の発生、⑤除染など周辺的环境変化、⑥測定機器の異常等が考えられる。今回、県内のMPで観測した主な線量率の上昇事例について解説する。

[キーワード：環境放射能水準調査、放射能監視調査、空間放射線量率]

1 はじめに

福岡県では、福島第一原子力発電所事故以降にMPを8か所増設し、県内全9か所で線量率の測定を行っている。この測定値は諸要因によって上昇することがある。線量率上昇を、要因別に整理し報告する。

2 調査の概要

2・1 調査項目

線量率はNaI(Tl)シンチレーション式MPを設置した次の9か所で常時測定を行った。太宰府市(福岡県保健環境研究所)、糸島市(福岡県糸島総合庁舎、福吉小学校、引津小学校)、福岡市(福岡県庁)、久留米市(福岡県久留米総合庁舎)、飯塚市(福岡県飯塚総合庁舎)、北九州市(福岡県八幡総合庁舎)、行橋市(福岡県行橋総合庁舎)。その設置場所を図1に示す。

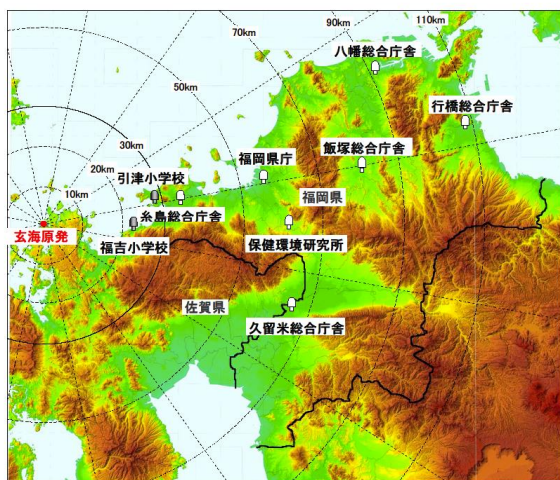


図 1 福岡県の MP 設置場所

2・2 測定装置

線量率測定は、NaI(Tl)シンチレーション式モニタリングポスト(日立アロカ製MAR-22)を用いて行った。太宰府市のMPは地上19m、その他は地上1mで測定を行っている。



写真1 モニタリングポスト（太宰府市）

3 線量率上昇時の解析手順

線量率は、様々な要因で上昇することが知られている。線量率が上昇したときの解析手順は次のとおりである。

①MP測定値変動幅の確認



②周辺にあるMP測定値の状況



③測定値上昇時の、落雷など気象状況の確認



④施設管理者等への聞き取り。(工事状況及び作業内容等)



⑤スペクトルデータの確認及び解析

4 線量率上昇要因及び事例

線量率が上昇する要因としては、①気象（降雪、落雷など）、②放射線治療者のMPへの接近、③MP近傍での非破壊検査の実施、④原子力施設における重大事象の発生、⑤除染など周辺の環境変化、⑥測定機器の異常などが考えられる。

4・1 平常時の線量率測定値

2018年度の県内9か所の線量率測定結果は表1のとおりである^{2) 3)}。原子力災害などあれば、線量率は大きく上昇するが、平常時はあまり変化しない。なお、最大値は要因によって異なる。

線量率は、土質に含まれるガンマ線放出核種からのガンマ線量にも依存する。県南地方は沖積層や安山岩の堆積地域であるため低い傾向を示す。県北地方はウラン、トリウム、カリウムなどを多く含んでいる花こう岩地域であるため高い傾向を示す。なお、太宰府の測定値が比較的低いのは、地上19mにあり、地表からの影響を受けにくいと推定される。

表1 県内9か所の測定値(2018) 単位：nGy/h

設置場所	市町村	年平均値	最大値
保健環境研究所	太宰府市	37.01±3.37	67.40
福岡県庁	福岡市	59.82±3.10	113.80
糸島総合庁舎	糸島市	43.30±2.71	80.40
福吉小学校	糸島市	43.76±3.30	100.99
引津小学校	糸島市	48.82±3.23	107.33
久留米総合庁舎	久留米市	35.61±3.78	85.90
飯塚総合庁舎	飯塚市	39.88±3.24	77.80
八幡総合庁舎	北九州市	60.88±2.63	107.10
行橋総合庁舎	行橋市	53.51±3.50	104.10

4・2 線量率上昇要因

4・2・1 気象

線量率は常に変動しており、降雨、降雪や落雷などの気象要因で上昇することがある。例えば雪が積もると地上からの影響を遮蔽するため、線量率が減少する⁴⁾。

図2に平常時のスペクトル及び図3に降雨時のスペクトルを示す。平常時のスペクトルを見ると、地表にある天然のカリウム(⁴⁰K)のピークのみ検出されている。一方、降雨時は、天然のビスマス(²¹⁴Bi)等が検出され、線量率が高くなる傾向にある。

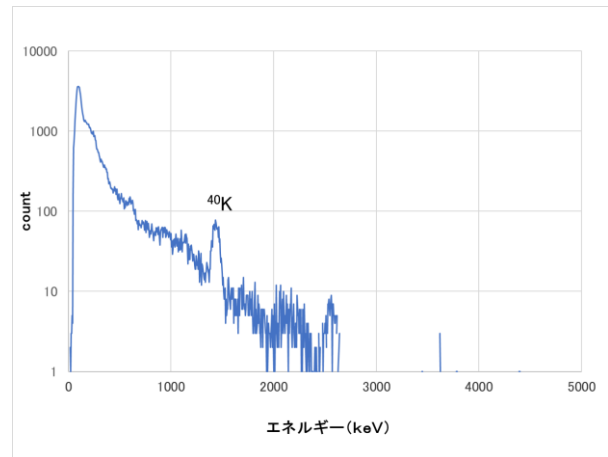


図2 平常時のスペクトル

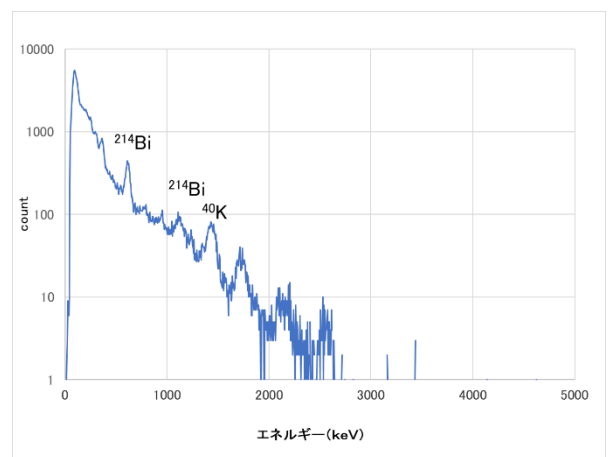


図3 降雨時のスペクトル

4・2・2 放射線治療者の接近⁵⁻⁷⁾

2018年9月19日に久留米市の線量率が上昇し、年平均の3倍の値が検出された。図4に線量率の経時変化を示す。久留米市のMPは駐車場の一角にあり、庁舎利用者が、MP周辺を自由に往来できる。線量率は15:52から上昇し、15:58には平常値に戻った(図4の(A))。また16:03にも急上昇し、短時間で平常値に戻った(図4の(B))。その時のスペクトルを図5に示す。スペクトルでは、511keVのピークが確認され、このピークを示すものは、PET-CT(※)等に使用される、¹⁸F等の放射性物質と推定された。

※PET-CT検査

がんを調べるPET検査と臓器を画像化するX線CT検査を組み合わせた検査。がんを調べるため放射性物質を含むブドウ糖を投与する。

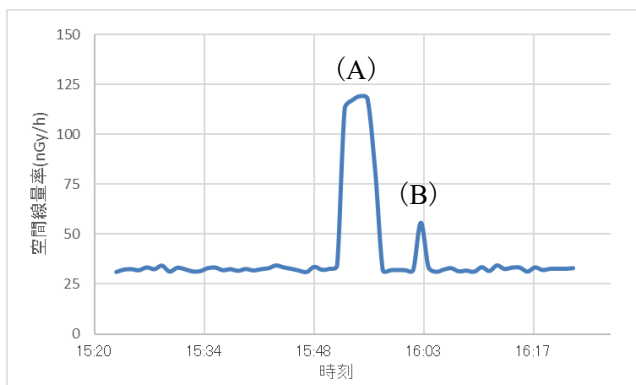


図4 2018年9月19日の久留米総合庁舎の線量率の経時変化

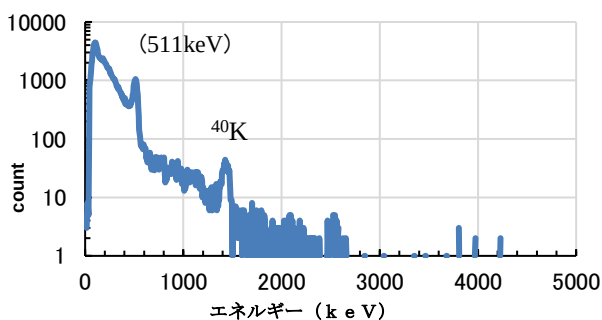


図5 放射線治療者接近時のスペクトル

4・2・3 非破壊検査

建物内部の状況等を調べるために非破壊検査を実施することがある。非破壊検査には①放射線透過による調査 ②超音波による調査 ③磁気による調査がある。この中で線量率に影響するのが、①の調査である。

2016年10月18日に糸島市（県糸島総合庁舎）のMPで年平均の10倍以上の線量率の上昇が見られた。図6に線量率変化のグラフを示す。気象要因でこれほど線量率が上昇することはなく、放射線源によるものと推定された。庁舎管理者への聞き取りにより、エアコン用配管用の穴をあけるために実施した非破壊検査が原因であることが判明した。写真2に非破壊検査装置を示す。

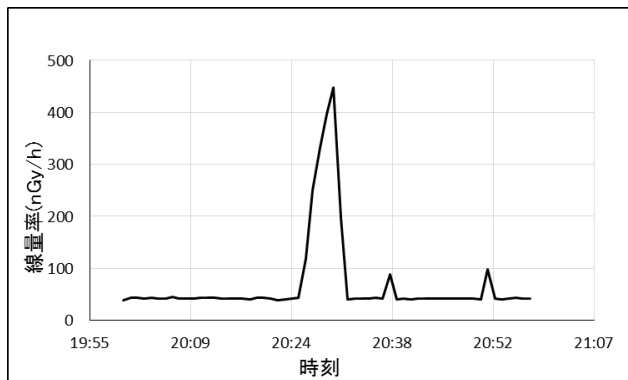


図6 2016年10月18日の糸島総合庁舎の線量率の経時変化



写真2 非破壊検査装置

4・2・4 測定機器の異常

2019年9月23日に台風の接近により福岡県保健環境研究所で一時的に停電が発生し、停電復帰後に線量率が1.0μGy/hを示すことがあった。図7にそのスペクトルを示す。スペクトルを確認すると、天然のカリウム(^{40}K)のピーク以外に、低エネルギー領域に多くのピークが検出されており、停電による測定機器の異常によりノイズが発生したと推定された。

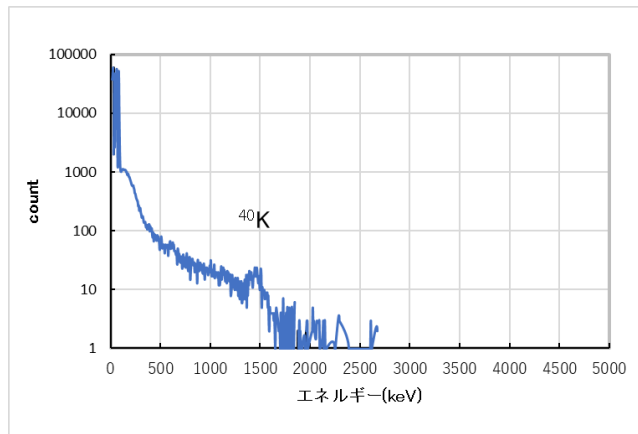


図7 2019年9月23日のスペクトル

5 まとめ

NaI(Tl)シンチレーション式MPは非常に高感度のため、わずかなガンマ線を検知して、測定値が上昇することがある。その線量率の上昇要因としては①気象、②放射線治療者の接近、③非破壊検査の実施、④原子力施設における重大事象の発生、⑤除染など周辺の環境変化、⑥測定機器の異常等が考えられる。本資料では線量率上昇時に、手順に

従って解析することによって、その要因を特定することができることを示した。

文献

- 1) 原子力規制委員会（編）：“連続モニタによる環境 γ 線測定法”放射能測定法シリーズ 17, 2017.
- 2) 有田明人、檜崎幸範、板垣成泰：福岡県における環境放射能水準調査，福岡県保健環境研究所年報，第 43 号，174-177, 2016.
- 3) 有田明人：平成28年度放射線監視結果調査検討会要旨集，91-104,2017.
- 4) 齋藤由美子：平成 30 年度監視結果調査検討会資料 2，3-13, 2018
- 5) 小西浩之、富士栄聡子、生嶋清見、保坂三継、中江大：都内の放射線量の推移とモニタリングポストの異常値対応，東京健安センター年報,64,173-179、2013.
- 6) 黒崎裕人、大野峻史、藤巻廣司、山崎興樹：モニタリングポストで検知された集団検診時の X 線の特徴，新潟県放射線監視センター年報，第 8 巻，32-37,2010.
- 7) 藤波直人,渡辺哲也,荒木智徳,水本美佳,筒井剛毅：環境放射線モニタによる放射性医薬品 ^{99m}Tc 被投与患者からのガンマ線検出例，保健物理，38（3），248-253, 2003.

資料

長期生分解性試験における有機物濃度の挙動について

秦弘一郎・柏原学

近年注目を集める難分解性有機物の評価には、長期の生分解性試験を行う必要があり、試験環境整備にかかるコストが多検体の分析の実施や比較検討を困難にしている。ガス置換による汚染防止及び酸素供給は、消費するガスの金銭的成本と、作業の煩雑化が考えられる。そこで、試験雰囲気浄化操作を省略した密閉系における生分解性試験中の有機物濃度について、その挙動を調査した。試験条件によっては長期生分解性試験後でも有機物汚染を防ぐことができることが確認された。また、溶存酸素が枯渇しない条件であれば、試験条件に関わらず生分解性試験後の有機物量は同程度の値であった。

[キーワード: COD_{Mn}、TOC、生分解性試験、難分解性有機物]

1 はじめに

近年、一部の閉鎖性水域において、水中に含まれる有機物量の指標であるCODの下げ止まりが見られ、その原因解明が閉鎖性水域の共通の課題となっている。陸域の閉鎖性水域である湖沼の場合には、CODの環境基準達成率は2018年度で54.3%と低く、その原因の一つとして難分解性有機物の存在が指摘されている^{2,3)}。閉鎖性海域においても、湖沼と同様に、難分解性有機物の蓄積がCODの下げ止まりの原因の一つと考えられている^{4,5)}。

難分解性有機物は、比較的長期間の生分解性試験後に残存する、生物による分解が困難な有機物の総称である。現在、難分解性有機物の評価手法には、公定法や統一手法が無く、各機関が独自に評価・検討を行った手法を用いている²⁻¹²⁾。一般的に有機物減少の変化が一定となる100日前後を試験期間とするものが多く、試験操作中の汚染を防ぐために、清浄な試験環境の構築と長期にわたる維持が必要となっている。しかしながら、フィルターを用いた試験雰囲気汚染防止対策、純空気ガスや純酸素ガスによる気相の置換等の試験環境整備にかかるコストが、試験導入や多数の検体の分析実施を困難にし、比較検討を難しくする一因となっている。

難分解性有機物を評価する際の生分解性試験を行うための設備にかかるコストは、多検体の分析や定期的なモニタリングを検討する場合には現実的ではない。例えば、気相置換を行う場合には、既報³⁾を参考に用いる純空気ガスの流量を0.01 L/sとし、試験期間を100日に設定すると、消費する純空気ガスの量は約86 m³となる。これは一般的な

47 Lポンベ（7.0 m³充填）の約12本分に相当する。また、ポンベを用いてガスを供給する場合には、頻繁にポンベの交換やガス流量の調整を行う必要が発生する。

長期生分解性試験を行う上では、汚染を十分に防ぎ、かつ、ガス置換等を行わない実験系が望ましい。そこで、試験コストや作業の手間を削減可能な密栓系において、検水を長期間保存した場合の有機物濃度の挙動について調べたので報告する。

2 試験方法

2・1 有機物量の評価

有機物の評価手法として、100℃における過マンガン酸カリウムによる酸素消費量（COD_{Mn}）及び全有機態炭素（TOC）を選定した。COD_{Mn}は「JIS K 0102¹³⁾ 17」に準拠し、TOCはTOC-L（株式会社島津製作所製）を用いて、「JIS K 0102 22.2」に準拠して測定した。

JIS K 0102 17には、COD_{Mn}の定量下限として0.5 mg-O/Lが規定されている。しかしながら、超純水の汚染の程度を確認するためには、より低濃度のCOD_{Mn}を評価する必要がある。また、TOCにおいては、装置の性能評価として、低濃度側の感度を確認する必要がある。そこで、COD_{Mn}については、「化学物質環境実態調査実施の手引き（平成27年度版）」¹⁴⁾を参考に分析方法の検出下限（MDL）を算出した。同様に、TOCについては、装置の検出下限を算定するため、装置検出下限（IDL）を算出した。

2・2 試料及び器具

超純水は、イオン交換水を超純水製造装置（RFU665DA、アドバンテック東洋株式会社製）によって精製したものをを用いた。海水は、福岡県南西部に位置する閉鎖性海域であ

る有明海（東経130.4113, 北緯33.0346; WGS84）において、令和2年10月19日に金属製のバケツを用いて採取した表層水を用いた。

試料の保管に用いるガラス製ネジ口瓶（柴田科学株式会社製）及びフラン瓶（宮本理研工業株式会社製）は、アセトン（富士フイルム和光純薬株式会社製残留農薬・PCB試験用）及びヘキサン（富士フイルム和光純薬株式会社製残留農薬・PCB試験用）で洗浄後、自然乾燥させ、使用前直前に超純水で洗浄したものを使用した。

2・3 超純水の有機物濃度の経日変化

気密性の高いポリプロピレン製のネジ式キャップ（ガラス製ネジ口瓶に付属のもの）又は通気性を持つシリコ栓（信越ポリマー株式会社製）を用いて栓をした場合の検水の有機物濃度の挙動について、 COD_{Mn} とTOCの濃度の経日変化を調べた。試験操作の概略を図1に示す。規格容量1 L（実容量1.1 L）のガラス製ネジ口瓶に対して検水として超純水1 Lを入れ、ネジ式キャップ又はシリコ栓で蓋をし、チャック付きのアルミ袋（株式会社生産日本社製）に封入した（それぞれ $n=3$ ）。それらを、 $20^{\circ}C$ に保たれた恒温室内で、水平振とう器(60 rpm)を用いて振とうし、0, 1, 7, 14, 28, 49, 102日目にそれぞれ約125 mLずつ採取し、 COD_{Mn} とTOCの分析に供した。また、採水操作の影響について検討するために、ネジ式キャップで密栓し、チャック付きアルミ袋に封入し、102日後に開封して COD_{Mn} とTOCの分析を行った（ $n=1$ ）。

2・4 密閉法による生分解性試験

超純水の有機物濃度の挙動に関する調査結果を基に、実検体を用いた生分解性試験後の有機物濃度について調査した。有機物を含む検水を用いる場合は、超純水を用いる場合とは異なり、検体中に含まれる有機物の酸化に伴う酸素消費が予想される。そこで、瓶の上部空間に十分な気相

容量を確保することで、密閉容器中で検水に酸素供給を行った（密閉法）。

実容量1.1 Lの容器に0.5 Lの検水を入れるとき、気相は0.6 L存在することになる。大気中に含まれる酸素の割合を21%とすると、系内の気相には約200 mgの酸素が存在する。海水に含まれるTOC及び全窒素（T-N）が全て完全酸化され CO_2 と NO_3 に変化すると仮定し、有明海海水のTOC及びT-Nをそれぞれ2 mg-C/L、1 mg-N/Lと十分に大きく見積もった場合、酸素消費量は約9 mg-O/Lとなる。この時の酸素消費量は、系内の酸素存在量の2%程度であり、変化量は十分に小さいものと考えた。上記を踏まえて海水における実験系を以下に示す通りに構築した。規格容量1 L（実容量1.1 L）のガラス製ネジ口瓶に対して検水として超純水又は海水0.5 Lを入れ、ネジ式キャップで蓋をし、チャック付きのアルミ袋に封入した。

また、試験中の振とう操作が生分解性試験後に残存する有機物量に与える影響を確認するため、密閉法による生分解性試験では振とうの有無について調べた（それぞれ $n=3$ ）。100日保管後の試料について、残存する有機物濃度の評価を行った（残存する COD_{Mn} ：R-COD、残存するTOC：R-TOC）。

2・5 BOD₁₀₀法による生分解性試験

生物化学的酸素要求量（BOD）は生分解性試験の一種であり、容器中に満たした検水に含まれる溶存酸素が枯渇しない範囲で試験が行われる。そこで、「JIS K0102 27. 生物化学的酸素要求量（BOD）」を参考に、試験期間を100日として溶存酸素による長期生分解性試験を行った（BOD₁₀₀法； $n=1$ ）。超純水又は海水を200 mL容のフラン瓶それぞれ6本に満水まで入れ、初期値と100日後の測定にそれぞれ3本ずつ用いた。用意したフラン瓶の2本を溶存酸素の測定に用い、1本を COD_{Mn} 及びTOCの測定に用いた。

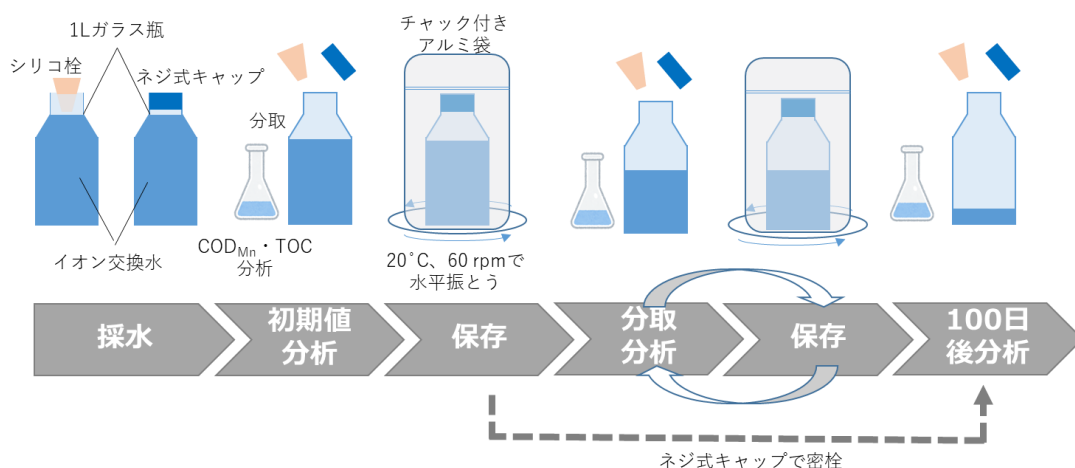


図1 経日変化試験操作の概略

3 結果

3・1 検出下限値の算出

COD_{Mn}のMDLはMDL = 0.19 mg-O/L、TOCのIDLはIDL = 0.11 mg-C/Lとなった（危険率5%、自由度5）。以下の報告では、MDL又はIDL未満であった分析値を0 mg/Lとして扱った。

3・2 COD_{Mn}及びTOCの経日変化

ガラス製ネジ口瓶に入れ、ネジ式キャップ又はシリコ栓で蓋をした超純水のCOD_{Mn}とTOCの経日変化をそれぞれ図2、図3に示す。並行試験を行った検体については、並行試験の平均値を示し、図中には並行試験の最大値及び最小値を併記した（以下の図も同様）。ネジ式キャップ又はシリコ栓を用いた両系列において、日数の経過とともに検水のCOD_{Mn}及びTOCの値が上昇した。102日目におけるCOD_{Mn}は、ネジ式キャップを用いた場合は0.28 mg-O/L、シリコ栓を用いた場合は1.7 mg-O/Lであった。102日目におけるTOCは、ネジ式キャップを用いた場合は0.58 mg-C/Lであり、シリコ栓を用いた場合は、1.2 mg-C/Lであった。検水をネジ式キャップで102日間密栓した場合のCOD_{Mn}及びTOCは、それぞれ<0.19 mg-O/L、0.21 mg-C/Lとなり、経日変化を調べるために順次採水を行ったものよりも汚染を低減できることが確認された。

3・3 超純水の密閉法及びBOD₁₀₀法による有機物汚染

超純水を検水として用いて、密閉法及びBOD₁₀₀法による生分解性試験実施後の有機物汚染を確認した。密閉法による100日後の超純水のCOD_{Mn}及びTOCの値は、試験中の振とうの有無に関わらずMDL又はIDL未満であった。また、BOD₁₀₀法による100日後の超純水は、COD_{Mn}はMDL未満であり、TOCは0.13 mg-C/Lであった。密閉法とBOD₁₀₀法のいずれの方法においても、生分解性試験中の有機物汚染をおおよそ防ぐことが可能であった。

3・4 密閉法及びBOD₁₀₀法による生分解性試験

密閉法及びBOD₁₀₀法による実試料の生分解性試験後の残存有機物濃度を測定した。用いた海水のCOD_{Mn}及びTOCの初期値はそれぞれ2.2 mg-O/L、1.1 mg-C/Lであった。

密閉法による生分解性試験後の海水の溶存酸素量（DO）は、全て8.0 mg-O/L以上であることを確認した。BOD₁₀₀法による海水の溶存酸素消費量は、3.7 mg-O/L（8.3 → 4.6 mg-O/L；44%）であり、「JIS K0102 27」に規定された酸素消費量の範囲（40 - 70%）内であった。満水にした場合には検水中の有機物酸化によるDOの減少が見られたが、瓶の上部空間に気相を確保した場合には、DOは飽和濃度付近で維持されていた。

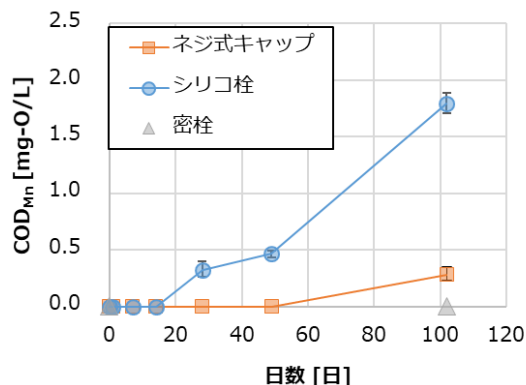


図2 超純水の COD_{Mn} 経日変化

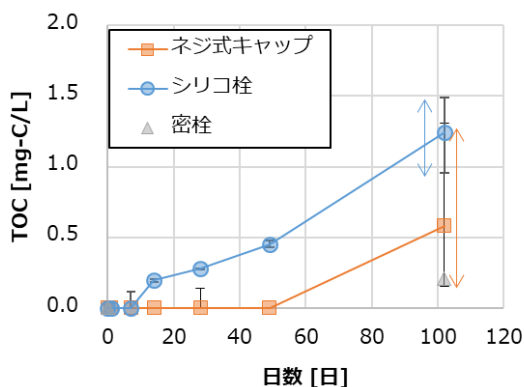


図3 超純水の TOC 経日変化

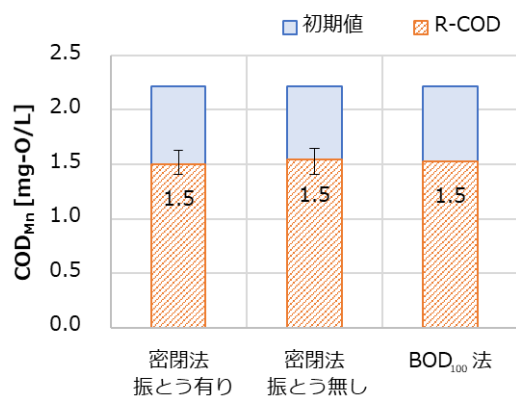


図4 R-COD の評価結果

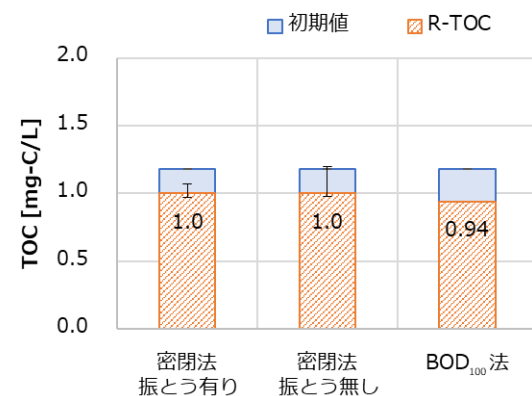


図5 R-TOC の評価結果

密閉法及びBOD₁₀₀法による生分解性試験後の残存有機物濃度の評価結果を図4、5に示す。R-COD及びR-TOCは、いずれの手法を用いた場合においても同程度の結果を示した。溶存酸素が枯渇しない試験条件であれば、安定した結果を得ることができる可能性が示された。

参考文献

- 1) 環境省：令和2年版 環境・循環型社会・生物多様性白書 (<http://www.env.go.jp/policy/hakusyo/r02/pdf/full.pdf>) , 2020.
- 2) 今井章雄：難分解性溶存有機物, 環境儀, 13, 4-5, 2004.
- 3) 佐藤佑一ら：琵琶湖における難分解性有機物の起源:発生源における生分解性試験とボックスモデルによる推計, 水環境学会誌, 39, 17-28, 2016.
- 4) 仲川直子ら：大阪湾海水中難分解性溶存有機物の特性について, 兵庫県立健康環境科学研究所報告, 5, 89-94, 2008.
- 5) 服部廉ら：河川水中の難分解性有機物についての検討-公共用水域常時監視データの検討と河川水長期分解性試験-, 愛知県環境調査センター所報, 39, 35-39, 2011.
- 6) 福島武彦ら：湖水溶存有機物の紫外外部吸光度：DOC比の特性とその水質管理への利用, 水環境学会誌, 20, 397-403, 1997.
- 7) 中嶋昌紀, 松本弘史, 矢持進：大阪湾および淀川・大和川における難分解性有機窒素の動態について, 土木学会論文集B2 (海岸工学) , 68, No. 2, I_1036-I1040, 2012.
- 8) 大津一哲, 上本清次：八代海流入河川の難分解性有機物, 熊本県保健環境科学研究所報, 43, 98-100, 2013.
- 9) 三好佳子, 三好直哉, 村松隆：ため池中の溶存態有機物の分画と道程に関する実験法の開発(II) -腐食物質の物性評価に関する簡易実験法-, 宮城教育大学環境教育研究紀要, 16, 1-6, 2014.
- 10) 安田能生弘ら：河北潟における難分解性有機物に関する実態調査 (最終報), 石川県保健環境センター研究報告書, 52, 1-6, 2015.
- 11) 陣野宏宙ら：諫早湾干拓調整池等における有機物特性に関する研究, 水環境学会誌, 42, 177-184, 2019.
- 12) 柏原学ら：堂面川および有明海における難分解性有機物に関する調査, 用水と廃水, 63, No. 5, 39-46, 2021.
- 13) JIS K 0102:2016. 工場排水試験方法, 日本規格協会.
- 14) 環境省：化学物質環境実態調査実施の手引き (平成27年度版) . (<https://www.env.go.jp/chemi/kurohon/tebiki/mat01.pdf>) , 2016.

資料

還元気化原子吸光光度法を用いた水銀分析の操作ブランク低減に関する検討

古賀敬興

還元気化原子吸光光度法を用いた水銀分析について、操作ブランクの低減方法について検討した。作業環境への暴露、分解試薬の添加、加熱及び放冷操作の 3 つの条件が揃った際に正の誤差が生じることが確認できた。加熱及び放冷時において試験管に蓋をすることで操作ブランクが低減できることが確認でき、これによってより安定した信頼性の高い分析結果を得ることができると期待される。

[キーワード：水銀、還元気化原子吸光光度法、コンタミネーション]

1 はじめに

当所では還元気化原子吸光光度法を用いた水道水中の水銀分析を行っている。水銀は水道水質基準項目 (51項目) に設定されており、その基準は 0.5 µg/L 以下である。定量下限値は原則基準値の 1/10 以下とされていることから、定量下限 (検量線下限値) は 0.05 µg/L としている。分析操作は、公定法である告示¹⁾の別表第 7 に従い、検水に分解試薬として酸を添加し、加熱分解後塩化スズ (II) を添加することで水銀を還元気化させ原子吸光光度計で測定するというものである。本測定において操作ブランクは機器ブランク (分解操作を行っていない超純水を測定したもの) に比べて大きな吸光度が測定されており、サンプル調製及び測定日によってその大きさにばらつきが見られていた。このことから、操作の過程に正の誤差要因が存在することが示唆された。そこで、より安定した信頼性の高い分析結果を得ることを目的として操作ブランク低減方法について検討したので報告する。

2 試験方法

2・1 検討項目

正の誤差要因として、分解処理時のコンタミネーションと、添加試薬のコンタミネーションが疑われたため、この 2 つについて検討した。送液及び送気ラインの汚れも正の誤差要因となり得るが、その影響は検体処理方法によらず一定であると考えられること、定期的な洗浄及び部品交換を行っていること、機器ブランクの測定では定量値に影響を与えるほどの吸光度は測定されていないことから検討項目とはしなかった。

JIS K 0102 (2019) 66.1 全水銀において原子吸光光度法を用いた水銀測定ではベンゼンやアセトンが 253.7 nm の

波長の光を吸収することで正の誤差を生むことが指摘されている²⁾。加熱操作を行う実験室ではアセトンなどの有機溶剤を使用することがあるため、これら有機溶剤が測定サンプルに混入した可能性が考えられた。また、過マンガン酸カリウム溶液は空気中の水銀を吸収しやすいことが指摘されており³⁾、大気汚染防止法施行規則に基づく排ガス中のガス状水銀の分析³⁾においては、ガス状水銀の吸収液として硫酸酸性の過マンガン酸カリウム溶液が採用されている。当所における水道水中の全水銀測定のための分解処理は、試験管に検体と過マンガン酸カリウム溶液等の酸を添加した後、蓋をせずに加熱操作を 2 時間行い放冷するものである。これには 2.5 時間程度の時間を要しており、この間にコンタミネーションの影響を受けた可能性が考えられた。

試薬のコンタミネーションについては、前述のとおり特に過マンガン酸カリウム溶液のコンタミネーションについて確認する必要があると考えられた。

2・2 試薬等

水銀標準溶液は 100 mg/L 水銀標準液 (JCSS) を 1 % 塩酸 (有害金属測定用)、1 % 硝酸 (有害金属測定用) となるように段階的に希釈して 2.5 µg/L となるように調製したものをを用いた。硫酸 (1+1) は硫酸 (有害金属測定用) を超純水で希釈したものをを用いた。塩化スズ (II) 溶液は塩化スズ (II) 二水和物 (有害金属測定用) 10 g を超純水 60 mL に加え、更に硫酸 3 mL を加えて加熱溶解させ、冷後、超純水を加えて 100 mL に定容したものをを用いた。5 % 過マンガン酸カリウム溶液は排水試験用を用いた。10 % 塩化ヒドロキシルアンモニウム溶液は超純水 100 mL に対して塩化ヒドロキシルアンモニウム (有害金属測定用) を 10 g 溶解させたものをを用いた。アセトン及びヘキサンは残留農薬・PCB 試験用 (濃縮 5000) をを用いた。これらの試薬は富士フィルム和光純薬 (株) 製のものである。超

純水は超純水製造装置 RFU665DA (アドバンテック東洋(株)) で製造したものを用いた。検体には超純水を用いた。

還元気化原子吸光度計には RA-3A (日本インスツルメンツ(株)) を用いた。

2・3 試験条件

試験は告示の別表第 7 に従い実施した。検体 5 mL を 15 mL 試験管に採り、硫酸 (1+1) 0.5 mL、硝酸 0.2 mL 及び 5% 過マンガン酸カリウム溶液 0.5 mL を加えた (分解試薬添加)。その後、試験管に蓋をせずにウォーターバスを用いて 95℃ の条件で 2 時間加熱した。30 分間放冷し常温まで冷却した後、10% 塩化ヒドロキシルアンモニウム溶液 0.2 mL を加えよく攪拌したものを測定サンプルとした。これに塩化スズ (II) 溶液 0.3 mL を加えた後直ちに通気装置に連結してバブリングし、波長 253.7 nm で吸光度を測定した。この条件 (従来法) を標準条件とし、2・4 及び 2・5 に示す検討試験を併せて実施した。検量線用標準系列は、0.05, 0.1, 0.3, 0.5 µg/L となるように 2.5 µg/L 水銀標準溶液を段階的に超純水で希釈して 5 mL としたものを用いた。定量には測定から得られた吸光度のピーク面積を用いた。

2・4 有機溶剤の影響確認

水銀分析作業を行う試験室で定常的に用いている有機溶剤について、混入した際の影響を確認した。用いた有機溶剤はアセトンとヘキサンであり、これらは主に有機分析に使用する器具の洗浄に用いている。アセトンとヘキサンそれぞれについて、以下の 2 条件で測定サンプルを調製

し測定 (n=4) を行った (図 1 (a) 及び (b))。

(a) 超純水 5 mL にアセトン又はヘキサン 10 µL を加え、分解試薬添加、加熱及び放冷操作 (蓋無し)、塩化ヒドロキシルアンモニウム溶液添加を行ったもの (アセトン、ヘキサン 加熱有り)

(b) 超純水 5 mL にアセトン又はヘキサン 10 µL を加え、分解試薬添加、塩化ヒドロキシルアンモニウム溶液添加を行ったもの (アセトン、ヘキサン 直前調製)

また、比較のため 2.5 µg/L 水銀標準溶液 0.6 mL を超純水で希釈し 5 mL としたもの (0.3 µg/L) を標準条件で分解処理したサンプルを調製した。

2・5 誤差要因の検討

加熱時におけるコンタミネーション及び試薬のコンタミネーションの影響を確認するため、以下の (c)~(j) の 8 条件で測定サンプルを調製し測定 (n=5) を行った (図 1 (c)~(j))。実際の分析業務においては (c) 及び (d) の結果は操作ブランク、(i) の結果は機器ブランクに当たる。

(c) 加熱及び放冷時において試験管に蓋をつけずに処理したもの (蓋無し、標準条件)

(d) 加熱及び放冷時において試験管に蓋をつけて処理したもの (蓋有り)

(e) 分解試薬を添加せず、蓋をつけずに加熱及び放冷したもの (試薬添加無し)

(f) 加熱操作を行わず 2.5 時間蓋をつけずに室温で静置したもの (蓋無し・加熱無し)

(g) 加熱操作を行わず 2.5 時間蓋をつけて室温で静置

	検体	分解試薬添加	蓋	加熱操作 2h, 放冷 0.5 h	静置 2.5 h	塩化ヒドロキシルアンモニウム溶液添加
(a) 蓋無し(標準条件) アセトン or ヘキサン添加	超純水+ アセトン or ヘキサン	○		○		○
(b) 直前調製 アセトン or ヘキサン添加	超純水+ アセトン or ヘキサン	○				○
(c) 蓋無し(標準条件)	超純水	○		○		○
(d) 蓋有り	超純水	○	○	○		○
(e) 試薬添加無し	超純水	○		○		○
(f) 蓋無し, 加熱無し	超純水	○			○	○
(g) 蓋有り, 加熱無し	超純水	○	○		○	○
(h) 直前調製	超純水	○				○
(i) 超純水	超純水					
(j) 0.05 µg/L 添加	0.05 µg/L 溶液	○		○		○

図 1 各サンプルの処理条件 (a), (b) は n=4, (c)~(j) は n=5

したもの (蓋有り・加熱無し)

(h) 分解試薬添加後、直ちに塩化ヒドロキシルアンモニウム溶液を添加したもの (直前調製)

(i) 超純水を測定サンプルとしたもの (超純水)

(j) 検体として 2.5 µg/L 水銀標準溶液 0.1 mL を超純水で 5 mL に希釈したもの (0.05 µg/L) を用い (c) と同様に処理したもの (0.05 µg/L 添加)

用いた蓋は、試験管に被せるものであり、密閉性はない。各サンプルのピーク面積は (i) 超純水サンプルのピーク面積との差とした。

また、(c) 及び (d) の調製方法によって検量線用標準系列を 3 併行それぞれ調製し測定を行った。標準系列の濃度は 0.05, 0.1, 0.3, 0.5 µg/L とした。測定の結果から妥当性評価ガイドライン⁴⁾に従い検量線の真度及び併行精度を評価した。

3 結果

3・1 有機溶剤の影響

各条件で測定されたピーク面積を表 1 (a), (b) に示す。

(a) アセトン添加 (0.31)、(a) ヘキサン添加 (0.14)、(b) ヘキサン添加 (0.05) で測定されたピーク面積は、水銀濃度換算で < 0.05 µg/L であり正の誤差は確認できなかった。一方 (b) アセトン添加 では水銀濃度換算で 0.3 µg/L に相当するピーク面積が測定され、正の誤差が確認できた。アセトン添加のサンプルについて、加熱操作の有無で異なる結果になったことから、95℃ の加熱操作でアセトン (沸点 56℃) が揮発したことが考えられた。

図 2 に標準溶液 (0.3 µg/L) と (b) アセトン及びヘキサン添加サンプルの吸光度プロファイルを示す。標準溶液 (0.3 µg/L) と (b) アセトン (0.3 µg/L 相当) のピーク形状を比較すると、標準溶液はピークの立ち上がりが鋭く、その後は指数関数的に吸光度が低下していたのに対し、アセトンによる吸光は、立ち上がり及びその後の吸光度低下が緩やかであった。このピーク形状から、標準溶液では塩化スズ (II) 溶液添加及びバブリング開始後に溶液中の水銀が短時間で還元気化されるのに対し、アセトンはバブリングによって緩やかに気化していることが推測された。水銀の測定において図 1 (b) アセトンに見られるようなピーク形状が確認された場合は、水銀ではない物質の混入によって正の誤差が生じた可能性があり、誤差要因の検討や他の分析方法による確認等を行うことが望ましいと言える。

3・2 誤差要因の検討結果

加熱時におけるコンタミネーション及び試薬のコンタミネーションの影響を確認した結果を表 1 に示す。(c) 蓋無し (標準条件) ではピーク面積 0.48、(d) 蓋有りではピ

表 1 各サンプルの測定結果
((a), (b) n = 4 、 (c) ~ (j) n = 5 の平均と標準偏差)

	ピーク面積	標準偏差
(a) 蓋無し(標準条件)		
アセトン添加	0.31	0.10
ヘキサン添加	0.14	0.04
(b) 直前調製		
アセトン添加	4.2	0.47
ヘキサン添加	0.05	0.02
(c) 蓋無し(標準条件)	0.48	0.03
(d) 蓋有り	0.14	0.06
(e) 試薬添加無し	0.01	0.01
(f) 蓋無し、加熱無し	0.06	0.02
(g) 蓋有り、加熱無し	0.04	0.02
(h) 直前調製	0.04	0.02
(i) 超純水	0.00	0.01
(j) 0.05 µg/L 添加	1.42	0.10

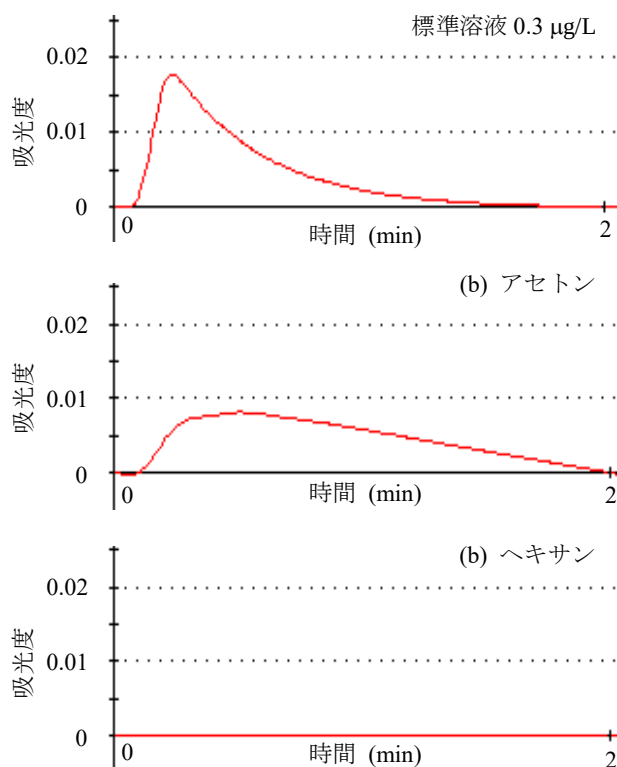


図 2 水銀標準溶液、アセトン及びヘキサン添加サンプルの吸光度プロファイルの比較

ーク面積 0.14 であり、加熱及び放冷時に試験管に蓋をすることで正の誤差を低減できることが確認できた。

(c) 蓋無し (標準条件) の条件から、分解試薬を添加しない条件としたものが (e) 試薬添加無し (ピーク面積 0.01)、加熱及び放冷をしない条件としたものが (f) 蓋無し・加熱無し (ピーク面積 0.06) であり、どちらも正の誤差が確認できない程度までピーク面積が小さくなった。前述の蓋の有無の結果と併せて、作業環境への暴露、分解試薬の添加、加熱及び放冷操作の 3 つの条件が揃った際に正の誤差が生じることが確認できた。

また、(h) 直前調製 (ピーク面積 0.04) と (i) 超純水においても有意な差は無く、添加試薬のコンタミネーションは確認できなかった。

この正の誤差について考察するため、(c) 蓋無し (標準条件) で得られたピーク形状 (図 3) を確認した。ピーク形状は図 1 で示した標準溶液のものと類似しており、この正の誤差は、塩化スズ (II) 溶液添加及びバブリング時に短時間で気化する物質に起因するものであると考えられた。作業環境中からの水銀混入が最も疑われたが、硫酸酸性過マンガン酸カリウム溶液は液温が低いほど水銀の吸収効率が高くなるとされており³⁾、(c) 蓋無し (標準条件) と (f) 蓋無し・加熱無しの結果と整合しないため、作業環境中からの水銀の混入以外の要因が疑われた。

次に (c) 蓋無し (標準条件) 及び (d) 蓋有りの条件で調製した検量線用標準系列の試験結果を表 2 及び図 4 に示す。図 4 の作図には 3 併行で実施した試験の平均値を用いた。表 2 及び図 4 に示すとおり、(d) 蓋有りでは (c) 蓋無し (標準条件) と比較して、各性能パラメータは同等以上であり、各濃度でピーク面積は小さかった。

以上のように、我々の分析環境では試薬由来のコンタミネーションの影響は小さく、分解試薬を添加し作業環境へ暴露させた状態で加熱及び放冷操作を行うことで正の誤差が生じることが確認できた。正の誤差要因の特定及びその機構の考察は十分ではないが、作業環境中からコンタミネーションに繋がる物質が混入したことが考えられ、加熱及び放冷中に試験管に蓋をすることでその影響の緩和が可能であることが確認できた。これによってより安定した信頼性の高い分析結果を得ることができると期待される。

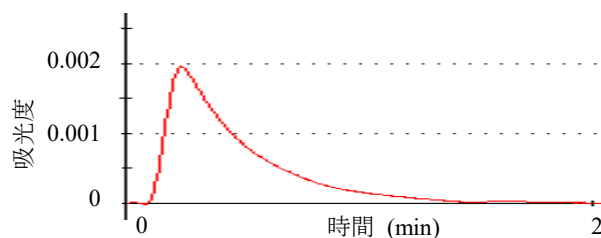


図 3 (c) 蓋なし (標準条件) の吸光度プロファイル

表 2 標準系列の性能パラメータ (3 併行)

	R ² 値平均 (-)	各濃度の 真度の範囲 (%)	各濃度の 併行精度の 範囲 (RSD%)
(c) 蓋無し (標準条件)	0.9998	98.5 ~ 107.6	0.20 ~ 6.92
(d) 蓋有り	0.9999	99.0 ~ 104.6	0.32 ~ 2.92

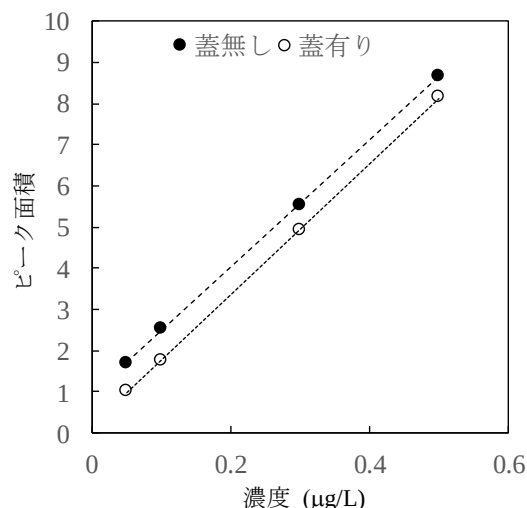


図 4 検量線評価結果 (3 併行)

文献

- 1) 水質基準に関する省令の規定に基づき厚生労働大臣が定める方法 (平成15 年厚生労働省告示第 261 号 最終改正令和 2 年 3 月 25 日厚生労働省告示第95号)
- 2) 並木博ら: 詳解 工場排水試験方法 改定 4 版, 第 1 版, p. 510, 2008, (財団法人日本規格協会, 東京)
- 3) 排出ガス中の水銀測定法 (環境省告示第 94 号 平成 28 年 9 月 26 日)
- 4) 水道水質検査方法の妥当性評価ガイドライン (平成 24 年 9 月 6 日付け健水発 0906 第 1 号別添 (最終改正: 平成 29 年 10 月 18 日付け薬生水発 1018 第 1 号))

資料

使い捨て手袋の金属溶出試験結果

古賀敬興

NBR 製 5 種、PCV 製 1 種、NR 製 1 種の使い捨て手袋について超純水及び 2% 硝酸を用いた金属元素溶出試験を行った。NBR 製は 2% 硝酸条件で Al (27) : 0.007 mg/L ~ 0.4 mg/L、Zn (66) : 0.3 mg/L ~ 3 mg/L の溶出が確認された。一方 PCV 製では 2% 硝酸条件で Zn (66) : 0.1 mg/L と NBR 製よりも低い溶出量であり、他元素の溶出は確認できなかった。NR 製は Al (27) : 0.3 mg/L、Zn (66) : 3 mg/L であり溶出量は NBR 製と同程度であった。Zn の溶出は、加硫促進助剤としてゴム製品に広く使用される ZnO に由来するものと考えられた。使い捨て手袋が Zn の汚染源となり得るため、Zn の微量分析を行う際には特に注意する必要があることが確認できた。

[キーワード：使い捨て手袋、溶出試験、金属、コンタミネーション]

1 はじめに

公共用水域における環境基準及び要監視項目、排水基準、水道水質基準では、カドミウム (Cd)、鉛 (Pb)、砒素 (As)、セレン (Se)、亜鉛 (Zn)、ニッケル (Ni)、モリブデン (Mo)、アンチモン (Sb)、マンガン (Mn)、ウラン (U)、鉄 (Fe)、銅 (Cu)、クロム (Cr)、アルミニウム (Al) 等の金属元素について基準値や指針値が設定されている。当所では公共用水域をはじめ、排水や地下水、ミネラルウォーター類など様々な検体について金属元素の微量分析を行っており、そのコンタミネーションの低減に取り組んでいる。

分析では様々な器具・用具を用いるが、そこからの測定対象物質の混入はコンタミネーションを考える上で重要である。和久井ら (2001) は使い捨て手袋に対して、食品衛生法に準拠した 4% 酢酸を用いた溶出試験を行っており、アルミニウム (Al)、Cu、Zn などの溶出を確認している¹⁾。溶出する金属元素の種類や量は製品ごとに違いがあると考えられるため、各実験室で実際に使用している用具を用いた試験が必要である。また、金属分析では硝酸を主に用いることから、硝酸に対する溶出について確認する必要があると考えられた。

以上から、硝酸に対する使い捨て手袋からの金属溶出について、その有無と程度の大きさに関する情報を得ることを目的とした金属溶出試験を実施したためその結果を報告する。

2 試験方法

2・1 対象

福岡県保健環境研究所 (〒818-0135 太宰府市大字向佐野 39)

2・1・1 試料

対象とした使い捨て手袋は、ニトリルゴム (NBR) 製 5 製品 (NBR 1~5)、ポリ塩化ビニル (PVC) 製 1 製品、天然ゴム (NR) 製 1 製品の合計 7 製品である。

2・1・2 測定元素

通常の業務において ICP-MS を用いて測定している Cd、Pb、As、Se、Zn、Ni、Mo、Sb、Mn、U、Fe、Cu、Cr、Al に加え、ミネラルウォーター類における基準設定項目であるバリウム (Ba) を測定元素とした。

2・2 試験条件

2・2・1 試薬等

超純水は ADVANTEC 製 RFU665DA で調製したもの (比抵抗 : 18.2 MΩ・cm、TOC : ≤ 1 µg/L) を用いた。溶媒には、硝酸を超純水で希釈し 2% 硝酸としたものと超純水を使用した。内部標準用インジウム溶液は、1000 mg/L インジウム標準液 (ICP 分析用) を超純水及び硝酸で 0.01 mg/L (2% 硝酸) に調製したものを使用した。硝酸は有害金属測定用を用いた。試薬はいずれも富士フイルム和光純薬 (株) 製である。標準系列調製には 10 mg/L 混合標準溶液 (ジーエルサイエンス (株) 製、特注混合試薬) を超純水および硝酸で 2% 硝酸となるように段階的に希釈したものを使用した。

2・2・2 溶出条件

当所で行う金属分析では主に硝酸を用いることから、溶出試験に用いる溶媒は 2% 硝酸を用いた。分析操作でコンタミネーションを考慮するとき重要となるのは手袋の外側表面であることから、手袋外側だけが接液するようにした (図 1)。各使い捨て手袋について、溶媒に超純水及び 2% 硝酸を用いた試験 (n=3) を実施した。また、操作

ブランクとして、使い捨て手袋を浸漬しない同様の試験 (n = 3) を実施した。

詳細な条件は以下のとおりである。ポリプロピレン (PP) 製 500 mL ボトルに超純水又は 2% 硝酸 50 mL を入れ、図 1 のように手袋を被せた上から蓋をし、10 回激しく振とうし溶媒と手袋を接触させ溶出液とした。その溶出液 1 mL 及び 50 μ L を PP 製遠沈管に取り、超純水を加えて 10 mL (それぞれ 10 倍及び 200 倍希釈) とした後、硝酸 0.2 mL と 0.01 mg/L インジウム溶液を加え測定サンプルとした。

2・3 分析方法

測定には ICP-MS Agilent 7900 (Agilent Technologies 製) を用いた。測定条件は、高周波出力 : 1.4 kW、キャリアガス流量 : Ar 1.0 L/min、補助ガス流量 : Ar 0.8 L/min、コリジョンガス : He ガス、コリジョンガス流量 : 7.5 mL/min、測定質量数 : Al (27), Cr (52), Mn (55), Fe (56), Ni (60), Cu (63), Zn (66), As (75), Se (82), Mo (95), Cd (111), In (115), Sb (121), Ba (137), Pb (208), U (238) とした。検量線の濃度範囲は 0.0005 mg/L ~ 0.025 mg/L とした。

3 試験結果

溶出試験結果を表 1 に示す。元素ごとの結果に着目すると、Cr (52), Mn (55), Ni (60), Cu (63), As (75), Se (82), Mo (95), Cd (111), Sb (121), Pb (208), U (238) は超純水及び 2% 硝酸どちらの条件でも溶出は確認できなかった。一方で Ba (137) は 2% 硝酸で、Al (27), Fe (56), Zn (66) は 2% 硝酸及び超純水で溶出が確認された。特に Zn (66) は PVC の超純水条件を除く全ての条件で溶出が確認され、他の 2% 硝酸で溶出が確認された元素と比べても数 mg/L 程度と高い濃度であった。ゴム製品では、加硫促進助剤として ZnO が広く使用されており²⁾、これが溶出した結果であると考えられた。

次に手袋の材質ごとの結果に着目すると、NBR 製は 2% 硝酸条件で Al (27) : 0.007 mg/L ~ 0.4 mg/L、Zn (66) : 0.3 mg/L ~ 3 mg/L であった。PVC 製は NBR 製と比較して溶出濃度は低く、Al (27) : < 0.005 mg/L、Zn (66) : 0.1 mg/L であった。NR 製は Al (27) : 0.3 mg/L、Zn (66) : 3 mg/L と NBR 製と同程度であった。

検討に用いた手袋は PVC 製、NR 製共に 1 製品のみであるが、上記のとおり今回の条件では PVC 製が最も金属元素の溶出が少なかった。

Zn は公共用水域における生活環境の保全に関する環境基準として基準値が定められており、その報告下限値は 0.001 mg/L と低いためコンタミネーションについては特に注意が必要な金属元素である。使い捨て手袋が Zn の汚染源となり得るため、Zn の微量分析を行う際には特に注



図 1 金属溶出試験の様子

意する必要があることが確認できた。

文献

- 1) 和久井千世子ら : 食衛誌, 42, 322-328, 2001.
- 2) 有我望 : 日本ゴム協会誌, 87, 77-82, 2014.

表 1 使い捨て手袋の金属溶出試験結果 (n = 3 の平均値 単位 : mg/L)

溶出液	手袋の種類	Al (27)	Cr (52)	Mn (55)	Fe (56)	Ni (60)	Cu (63)	Zn (66)	As (75)	Se (82)	Mo (95)	Cd (111)	Sb (121)	Ba (137)	Pb (208)	U (238)
超純水	BL	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	NBR 1	-	-	-	0.005	-	-	0.006	-	-	-	-	-	-	-	-
	NBR 2	-	-	-	0.005	-	-	0.006	-	-	-	-	-	-	-	-
	NBR 3	-	-	-	-	-	-	0.01	-	-	-	-	-	-	-	-
	NBR 4	-	-	-	-	-	-	0.02	-	-	-	-	-	-	-	-
	NBR 5	0.02	-	-	-	-	-	0.02	-	-	-	-	-	-	-	-
	PVC	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	NR	0.03	-	-	-	-	-	2	-	-	-	-	-	-	-	-
	BL	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	NBR 1	0.1	-	-	-	-	-	2	-	-	-	-	-	-	-	-
2% 硝酸	NBR 2	0.03	-	-	-	-	-	2	-	-	-	-	-	-	-	-
	NBR 3	0.007	-	-	-	-	-	0.3	-	-	-	-	-	0.006	-	-
	NBR 4	0.4	-	-	-	-	-	3	-	-	-	-	-	-	-	-
	NBR 5	0.2	-	-	0.006	-	-	4	-	-	-	-	-	-	-	-
	PVC	-	-	-	-	-	-	0.1	-	-	-	-	-	-	-	-
	NR	0.3	-	-	0.01	-	-	3	-	-	-	-	-	-	-	-
	BL	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	NBR 1	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	NBR 2	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	NBR 3	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-

- : < 0.005 mg/L

資料

2020年度における生物（動物関係）に関する問い合わせ状況

中島 淳・石間妙子・塙 麗文・金子洋平・須田隆一

当所で窓口依頼検査以外で回答した動物に関連する問い合わせの内容について概要をまとめた。2020年度は電話や持ち込み、電子メールによる質問が49件であった。問い合わせは県庁各課・保健福祉環境事務所・県警察等の県機関から22件、市町村から11件、民間業者から1件、一般県民から15件であった。前年度3件の問い合わせがあった特定外来生物ヒアリ類疑い種の同定依頼は4件、前年度11件であったゴケグモ類疑い種の同定依頼は6件であった。また、同じく特定外来生物のツマアカスズメバチ疑い種の同定依頼は1件であった。

[キーワード：衛生害虫、ペストコントロール、アリ、ハチ、クモ]

1 はじめに

当所では窓口依頼検査として生物同定試験を実施しているが、それ以外にも日常的に電話や持ち込み等による生物に関する問い合わせに答えることが多い。本報では2020年度に寄せられた質問のうち、動物に関連するものについてその内容をまとめた。

2 方法

動物に関連する各問い合わせについて、依頼元を県、市町村、民間業者、一般県民、その他の5つに区分した。また、質問内容については一般的な不明種に関する同定依頼、ゴケグモ類疑い種（セアカゴケグモ、ハイイログケグモ）の同定依頼、マダニ類疑い種の同定依頼、ツマアカスズメバチ疑い種の同定依頼、ヒアリ類疑い種（ヒアリ、アカカミアリ）の同定依頼、生物多様性・外来種に関する一般的な質問、その他、の7項目に区分して整理した。

3 結果及び考察

表1に2020年度の月ごとの問い合わせ件数を示す。全体で49件の問い合わせがあり、最も問い合わせが多かったのは10月の10件で、次いで6月が9件、9月が6件であった。全体の問い合わせ件数は2010年度が24件、2011年度が24件、2012年度が57件、2013年度が68件、2014年度が52件、2015年度が51件、2016年度が55件、2017年度が54件、2018年度が57件、2019年度が62件であり¹⁾、問い合わせ件数はやや少なかった。

図1に問い合わせの依頼元と件数を示す。問い合わせは県機関からのものが最も多く、県機関では保健福祉環境事務所からの問い合わせが多かったが、ほぼすべての場合において所管市町村または県民からの質問の仲介であった。市町村からの依頼も同様に一般市町村民からの質問の仲介であった。依頼元の傾向は過去と比較して、大きな違いはなかった。

問い合わせの具体的内容は不明種に関する同定依頼が30件と最も多く、次いでゴケグモ類疑い（6件）が多かった（図2）。ゴケグモ類疑い種として問い合わせがあった6

表1 各月における内容別の問い合わせ件数

質問内容	月												計
	4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3	
不明種同定依頼	2	2	9	2	1	2	7	1	2	1	1		30
ゴケグモ類疑い	1				1	3	1						6
マダニ類疑い													0
ツマアカスズメバチ疑い							1						1
ヒアリ疑い	1				1	1	1						4
生物多様性・外来種									1			1	2
その他		2						1	1	1	1		6
計	4	4	9	2	3	6	10	2	4	2	2	1	49

件のうち、セアカゴケグモであったのは3件で、その他はジグモ（1件）、マダラヒメグモ（1件）、イエオニグモ（1件）であった。また、ヒアリ類疑い種として問い合わせがあった4件はいずれもヒアリではなく、ヒメアリ（2件）、キイロシリアゲアリ（1件）、オオアリ属の一種（1件）であった。ツマアカスズメバチ疑い種として問い合わせがあった1件は、コガタスズメバチであった。

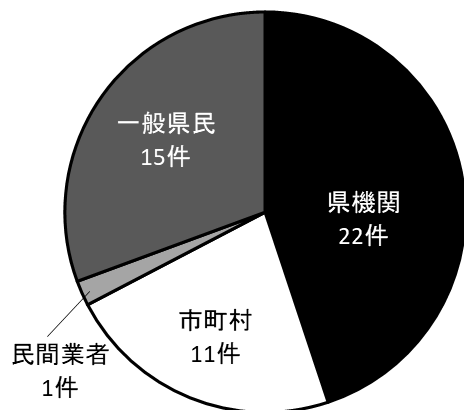


図1 2020年度における問い合わせ元の件数

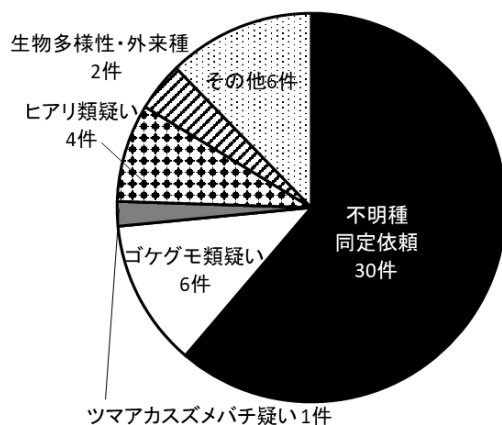


図2 2020年度における内容別の問い合わせ件数

不明種同定依頼において種まで同定できたのは、シロマダラ（3件）、ヤマカガシ（3件）、ニホンヒキガエル（2件）、タヌキ、アナグマ、アライグマ、イノシシ、ヒドリガモ、カンムリカイツブリ、コウノトリ、ハイタカ、ヒヨドリ、サバンナモニター、セマルハコガメ、ワニガメ、コ

シボソヤンマ、ネアカヨシヤンマ、コオイムシ、オバボタル、クロキオビジョウカイモドキ、タカサゴキララマダニ、アマミサソリモドキ、スジエビ、オオクビキレガイ、オオマリコケムシが1件ずつであった。このうち、ヒドリガモ、カンムリカイツブリ、ハイタカは県域で死亡していたもので、鳥インフルエンザ検査対象種としての同定依頼に対応したものである。

本年度は10月に篠栗町でシロマダラが確認され（今回の3件のうちの1件）、珍しいヘビとして大手メディア等で報道された結果、その後に新宮町と福岡市中央区からも相次いで同定依頼があり、いずれも本種と確認された。また、3件のヤマカガシについても、シロマダラ疑いとして同定依頼のあったものである。

ペットの遺棄・逸出由来としてはセマルハコガメ、ワニガメ、サバンナモニターが各1件ずつあり、このうちワニガメは大川市の水路で生きた個体が、サバンナモニターは久留米市で死んだ個体が、それぞれ発見され当所で同定を行ったものである。セマルハコガメについては警察署からの写真による同定依頼で、発見場所等の詳細は不明である。

また、10月には久留米市（田主丸町）において生きたサソリモドキ類の成体1個体と幼体2個体が発見され、当所に持ち込まれた。いずれも外部形態の特徴からアマミサソリモドキと同定された。幼体が複数発見されたこと、久留米市職員による発見場所周辺での聞き取り調査では以前から見かけていたとの住民からの情報が得られたことから、すでに定着している可能性が高い。本種は福岡県内では外来種であり、すでに糸島市において定着が報告されている²⁾。植木や資材等に紛れて人為的に持ち込まれたものと思われ、今後の生息状況に注意する必要がある。

本報をまとめるにあたり、クモ類の同定に際してご教示いただいた馬場友希博士（国立研究開発法人農業環境技術研究所）、爬虫類の同定に際してご教示いただいた田原義太慶氏、アリ類の同定に際してご教示いただいた細石真吾博士（九州大学）にこの場を借りてお礼申し上げる。

文献

- 1) 中島 淳、石間妙子、塙 麗文ら：福岡県保健環境研究所年報，47，107-108，2020.
- 2) 今泉晃、唐沢重孝：Edaphologia, 96, 19-20, 2015.

資料

2020年度における生物同定試験の結果

石間妙子・中島 淳・塙 麗文・須田隆一

当所で窓口依頼検査として行っている生物同定試験について、2020年度の結果概要をまとめた。依頼件数は34件で、依頼内容別にみると、食品中異物が22件、事業所内発生が5件、その他（由来不明など）が7件で、家屋内発生と皮膚掻痒は0件であった。1件につき複数の分類群が検出されたものが2件あった。検出回数が最も多いのはハエ目とチョウ目で、次いでコウチュウ目であった。種まで同定できたものは13件15検体で、チョウ目のノシメマダラメイガは複数回検出された。同定依頼の件数は9月が7件と最も多く、次いで7月と8月が6件であった。

[キーワード：衛生害虫、ペストコントロール、食品中異物]

1 はじめに

当所では、窓口依頼検査として生物同定試験を実施している。本試験は、主に衛生害虫を対象とし、持ち込まれた虫体（昆虫綱以外も含む）について、種の同定を行い、その結果について成績書の発行を行うものである。本試験の依頼内容は、衛生害虫に関する社会的関心の変化によって年変動があることから、本報では、2020年度における生物同定試験の結果をまとめ、その傾向について考察を行った。

2 検査の方法

持ち込まれた検体は、発生状況についての聞き取りを行い、その経緯から食品中異物（食品中から発見されたもの）、家屋内発生（一般住居から発見されたもの）、事業所内発生（工場や会社事務所等で発見されたもの）、皮膚掻痒（皮膚掻痒症原因ダニ類の検査）、その他（研究機関依頼、由来不明など）の5つに区分して記録した。

持ち込まれた検体のうち、皮膚掻痒症原因ダニ類の検査として持ち込まれた検体（室内塵）については、室内塵を篩別後、2.0-0.074 mmの室内塵（細塵）を対象にダーリング液懸濁遠沈法¹⁾を用いて抽出し、実体顕微鏡を用いて直接鏡検、またはプレパラート標本にした後に生物顕微鏡で鏡検して同定した。

皮膚掻痒症原因ダニ類以外の検体については、実体顕微鏡下で直接鏡検し同定した。このうち、乾燥している検体は、10%水酸化カリウム溶液に数時間浸潤し、軟化させた後に鏡検した。また、粘着テープなどに付着している検体は、2-プロパノール液に24時間程度浸潤し、粘着物を剥がした後に鏡検した。

3 結果及び考察

2020年度における生物同定試験の依頼件数は計34件であった。最近5年間の依頼件数は33-77件であり²⁻⁶⁾、前年度・一昨年度と同様、件数が少ない傾向がみられた。

34件の依頼理由の内訳を図1に示す。食品中異物が全体の65%にあたる22件と最も多く、残り12件のうち事業所内発生が5件、その他が7件であった。過去5年間の本試験において、食品中異物の依頼件数の割合は49~77%で、おおむね全体の半数以上を占めている²⁻⁶⁾。また、1992-2011年度までの20年間の結果においても、食品中異物を由来とする検査依頼が近年増加していると指摘されていることから⁷⁻⁸⁾、2020年度も例年と同様の傾向であったといえる。

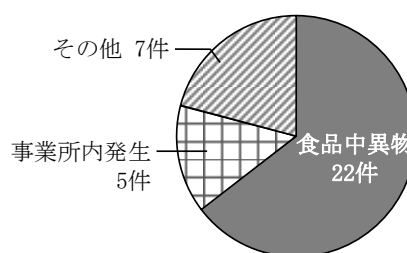


図1 2020年度における生物同定検査の依頼理由

月別の依頼件数と依頼理由の内訳を図2に示す。依頼件数が最も多かったのは9月の7件で、次いで7月と8月の6件、12月の4件であった。1992年度以降の結果においても、夏季を中心に依頼件数が多いことが報告されており²⁻⁸⁾、2020年度も例年と同様の傾向であった。

表1に、34件の検体から検出された虫体について、目レベルの検出数の内訳を月別に示す。34件のうち2件からはそれぞれ2種類が検出された。つまり、検出された分

類群数は全体で 36 種類となった。36 種類の検体のうち、目まで同定できたものは 33 検体で、他の 3 検体は破損が著しいため綱以上の高次分類群までしか同定できなかった。検出数が多かった分類群としては、ハエ目とチョウ目が 8 検体と最も多く、次いでコウチュウ目であった。これらの分類群は、農業害虫や乾燥食品の害虫、不快害虫などとしてよく知られる種が多く含まれる目である。

ハエ目は、8 検体のうちハナアブ科が 3 検体、ショウジョウバエ科、クロバネキノコバエ科、フンバエ科、ミバエ科がそれぞれ 1 検体で、残りの 1 検体は科以下の同定はできなかった。チョウ目は、8 種類の検体のうちメイガ科が 5 検体で、その他は科以下の同定はできなかった。

持ち込まれた検体のうち、種まで同定できたものの内訳を表 2 に示す。計 15 検体が種まで同定され、そのうち 7 検体は食品中異物、4 検体は事業所内発生であった。このうち、ノシメマダラメイガは 3 回検出された。本種は、穀類や菓子類、飼料など広範囲のものを食べ、食品・貯穀害虫としてよく知られる種である。表 2 に示す種のほとんどは、古い時代から食品混入や家屋内害虫として問題視されている節足動物で、継続して一定の問題を起しているこ

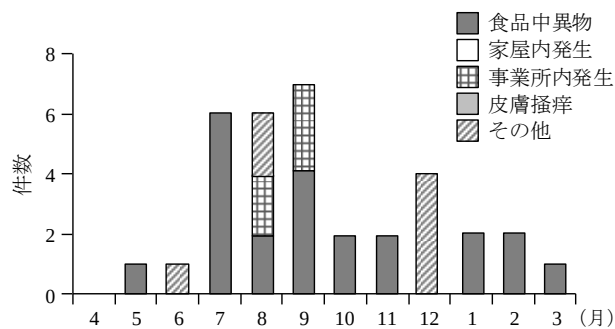


図 2 2020 年度における月別の依頼件数と内訳

とがわかる。

今後も本試験の動向を整理していきたい。

文献

- 1) 宮本句子、大内忠行：衛生動物，27，251-259，1976.
- 2) 石間妙子、中島 淳、須田隆一：福岡県保健環境研究所年報，43，187-188，2016.
- 3) 石間妙子、中島 淳、須田隆一：福岡県保健環境研究所年報，44，139-140，2017.
- 4) 石間妙子、中島 淳、須田隆一：福岡県保健環境研究所年報，45，130-131，2018.
- 5) 石間妙子、中島 淳、須田隆一：福岡県保健環境研究所年報，46，120-121，2019.
- 6) 中島 淳、埴 麗文、石間妙子ら：福岡県保健環境研究所年報，47，109-110，2020.
- 7) 緒方 健、山崎正敏、杉 泰昭：福岡県保健環境研究所年報，29，154-155，2002.
- 8) 中島 淳、石間妙子、須田隆一：福岡県保健環境研究所年報，39，113-114，2012.

表 1 各月における目別の検出数

綱	目	月												計
		4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3	
クモ	ダニ								1					1
	クモ						1			2				3
昆虫	ゴキブリ					1				1				2
	コウチュウ			1		3				1		1		6
	ハチ						1		1			1		3
	ハエ		1		2		3	1			1			8
	チョウ				4	2						1	1	8
	目不明										1			1
甲殻	ウオジラミ							1						1
節足動物門	綱不明						2							2
貧毛	ナガミミズ					1								1
計		0	1	1	6	7	7	2	2	4	2	3	1	36

表 2 種まで同定できた 15 検体の種名と発生状況

目	種名	検体の発生状況
ゴキブリ	チャバネゴキブリ	その他 (由来不明)
コウチュウ	メダカチビカワゴミムシ	その他 (由来不明)
コウチュウ	コクヌストモドキ	その他 (由来不明)
コウチュウ	フタトゲホソヒラタムシ	事業所内発生 (畳)
コウチュウ	ヒラナガムクゲキスイ	事業所内発生 (畳)
コウチュウ	オオメノコギリヒラタムシ	食品中異物 (豆)
コウチュウ	アカビロウドコガネ	事業所内発生 (段ボール)
ハチ	トビイロシワアリ	事業所内発生 (工場内)
ハチ	シマメイガコマユバチ	食品中異物 (アーモンド)
ハエ	キイロショウジョウバエ	食品中異物 (ごはん)
チョウ	ノシメマダラメイガ	食品中異物 (インゲン)
チョウ	ノシメマダラメイガ	その他 (由来不明)
チョウ	ノシメマダラメイガ	食品中異物 (アーモンド)
チョウ	スジコナマダラメイガ	食品中異物 (コロッケ)
ウオジラミ	サケジラミ	食品中異物 (サケ切り身)

福岡県保健環境研究所年報投稿規定

1 投稿資格

本誌への投稿者は、福岡県保健環境研究所に所属する職員（職員であった者及び職員と共同研究を行った者を含む）に限る。

2 原稿の種類

投稿原稿は総説、原著、短報、及び資料とする。

- (1) 総説：保健・環境分野の既発表の研究成果・今日の問題点・将来の展望を文献などにより総括し、解析したものをいう。
- (2) 原著：独創的な内容で、保健・環境分野に関する価値ある結論及び新事実並びに新技術を含むものをいう。
- (3) 短報：断片的あるいは萌芽的研究であるが、独創的な内容で保健・環境分野に関する価値ある結論及び新事実並びに新技術を含むものをいう。
- (4) 資料：調査、試験検査の結果または統計等をまとめたものとし、原著や短報のような独創性を重視するのではなく、調査結果自体の有用性を重んじた内容のものをいう。

3 原稿の書き方

- (1) 原稿はできるだけ簡潔に、わかり易く作成し、印刷ページにして（図、表を含め）、総説及び原著は 6 頁以内、短報及び資料は 4 頁以内を原則とする。
- (2) 原稿は「年報原稿作成要領」に従って作成する。ただし、資料については英文の要旨は省くものとする。
- (3) ヒトを対象とした研究で、倫理的配慮を必要とする場合は、必ず「方法」の項に研究対象者に対する倫理的配慮を記載する。

4 原稿の提出、査読及び掲載の可否

- (1) 原稿は「調査・研究発表伺い」により決裁を受けた後、編集委員会に提出する。その形式は別に定める「年報原稿作成要領」に従うこと。
- (2) 編集委員会は、複数の査読員に査読を依頼する。ただし、資料についての査読は行わない。編集委員会は査読員の意見を著者に伝え、必要に応じ修正を求める。
- (3) 修正を求められた著者は、2 週間以内に修正原稿を再提出する。この期間に修正原稿の提出がなく、かつ編集委員会まで連絡がない場合は撤回したものとする。
- (4) 編集委員会は、査読結果に基づき掲載の可否及び掲載区分を決定する。

5 校正

印刷時の著者校正は、1 回とする。

校正は、誤植のみとし、校正時の文字、文章、図表等の追加、添削及び変更は原則として認めない。

6 その他

その他編集上必要な事項は、編集委員会で協議する。

附 則

この規定は昭和 54 年 4 月 10 日より施行する。

平成 16 年 5 月 10 日一部改正

平成 19 年 10 月 1 日一部改正

平成 25 年 4 月 1 日一部改正

2 調查研究終了報告

研究分野：保健

調 査 研 究 名	国保データベースを活用した地域包括ケアシステム構築に向けた医療・介護需要量予測モデルの開発
研究者名（所属） ※ O印：研究代表者	○西 巧、高尾佳子、市原祥子、枇杷美紀、田中義人、香月進、 吉富秀亮、山田直司（保健医療介護総務課）、西川隆一郎（医療指導課）、 鳥巢由美子（医療保険課）、真子美和（高齢者地域包括ケア推進課）、 池田純一（介護保険課）、前田俊樹（福岡大学医学部衛生・公衆衛生学教室） 今任拓也（国立がん研究センター社会と健康研究センター）、 馬場園明（九州大学大学院医学研究院医療経営・管理学講座）
本庁関係部・課	保健医療介護総務課，医療指導課，医療保険課，高齢者地域包括ケア推進課，介護保険課
調 査 研 究 期 間	平成30年度 ― 令和2年度 （ 3年間 ）
調 査 研 究 種 目	1. ☒ 行政研究 ☐ 課題研究 ☐ 共同研究（共同機関名： ） ☐ 受託研究（委託機関名： ） 2. ☒ 基礎研究 ☐ 応用研究 ☐ 開発研究 3. ☐ 重点研究 ☐ 推奨研究 ☐ I S O推進研究
福岡県総合計画	大項目：高齢者や障がいのある人が安心してはつらつと生活できること 中項目：高齢者が安心して生活する社会を作る 小項目：適切な介護サービスの確保
福岡県環境総合ビジョン（第四次福岡県環境総合基本計画）※環境関係のみ	柱： テーマ：
キ ー ワ ー ド	①地域包括ケアシステム ②医療計画 ③介護保険事業支援計画 ④国保データベース
研 究 の 概 要	
1）調査研究の目的及び必要性 福岡県では、効率的かつ質の高い医療提供体制を整備するために、「福岡県保健医療計画」及び「福岡県高齢者保健福祉計画」を策定し、3年毎の見直しを行うこととなった。両計画の見直しには、「療養病床」から生じる新たな医療・介護のサービス需要量について、整合性のある推計を行う必要がある。国が推奨する推計方法としては、患者調査や病床機能報告に加え、国保データベース(KDB) のデータを用いたものが示されているが、集計データの精緻さの観点では、KDBデータが最も優れているとしている。しかしながら、患者単位・診療毎のデータであり、データ量が膨大であること等から、作業負担が大きいという課題があった。そこで、本研究では、KDB等レセプトデータを活用し、実証的な医療・介護サービス需要量を推計することを目的とした。	
2）調査研究の概要 KDBの医療・介護情報を一体的に分析し、医療・介護需要量の推計と在宅医療・在宅看取りの現状を把握することで、福岡県の実態に応じた次期保健医療計画・高齢者保健福祉計画策定に参考となる情報を提供する。	
3）調査研究の達成度及び得られた成果（できるだけ数値化してください。） （平成30年度） 平成25-29年度のKDBデータを受領し、医療区分1の療養病棟退院患者を追跡し、医療・介護サービス受給状況について集計した。 （令和元年度） 行政ニーズに基づき、本県の在宅医療の現状及び医療と介護の連携の実態を把握するために、研究期間を延長した。平成30年度のKDBデータに加え、平成25年度以降のKDB格納前のレセプト情報(レセ電コード情報)を受領し、KDBに含まれていない情報を追加した。死亡票との連結解析に先立ち、死亡月の療養場所と死亡前1年間の療養場所を把握し、人口動態調査死亡票の集計結果との比較・検証を行った。 （令和2年度） 人口動態調査死亡票の情報を追加し、死因・死亡場所別の死亡前1年間の療養場所の遷移と医療・介護資源利用状況についての分析を行った。	
4）県民の健康の保持又は環境の保全への貢献 地域の実情に応じたより正確な医療・介護需要量の推計を行ったことで、効率的な医療・介護提供体制の構築は医療・介護資源の効率的な使用に加え、高齢者の生活の質向上のために貢献できたと考える。	
5）調査研究結果の独創性、新規性 県庁関係課からの種々の行政ニーズへの対応に加え、学術的意義を高めるために、「国保-後期」間の被保険者資格の異動を超えて追跡可能な保健医療介護縦断データベース、死亡票の連結を行った点で高い新規性を有する。	

6) 成果の活用状況（技術移転・活用の可能性）

福岡県の実態に応じた次期医療計画・介護保険事業支援計画等の策定時に活用できる情報を提供した。技術面に関しては、本研究で構築したデータベースを活用し、共同研究機関と連携して研究を継続し、成果の発表を行うことで、様々な保健医療介護情報の利活用を今後も推進していく。

7) 当該調査研究課題に関する発表等

① 行政に対する情報提供

平成30年度は療養病床退院患者の医療・介護需要量に係る推計結果について報告し、令和元年度は、死亡月の療養場所と死亡前一年間の療養場所について報告した。

② 県民への情報提供（保環研ニュース・年報・新聞報道等）

特になし

③ 学会誌掲載、学会発表

【原著論文(1stのみ、全て査読付)】

Nishi T, Maeda T, Imatoh T, Babazono A. Comparison of regional with general anesthesia on mortality and perioperative length of stay in older patients after hip fracture surgery. Int J Qual Health Care. 2019 Nov 30;31(9):669-675. doi: 10.1093/intqhc/mzy233.

Nishi T, Babazono A, Maeda T. Association between income levels and irregular physician visits after a health checkup, and its consequent effect on glycemic control among employees: A retrospective propensity score-matched cohort study. J Diabetes Investig. 2019 Sep;10(5):1372-1381. doi: 10.1111/jdi.13025.

Nishi T, Maeda T, Katsuki S, Babazono A. Impact of the 2014 coinsurance rate revision for the elderly on healthcare resource utilization in Japan. Health Economics Review 11: 24.

【学会発表】

西巧、前田 俊樹、馬場園 明:専門職によるがん疼痛緩和指導と終末期の積極的治療との関連。第56回日本医療・病院管理学会学術総会

西巧:居住地周辺の社会的及び地理的環境が糖尿病発症に与える影響の評価:3年間の縦断研究。日本経済学会 2018年度秋季大会

西巧、馬場園明、前田俊樹、今任拓也: Helicobacter pylori一次除菌療法におけるカリウム競合型アシッドブロッカー:ボノプラザンの費用効果分析。医療経済学会 第11回若手研究者育成のためのセミナー

西巧:高齢者における自己負担率増加が医療資源利用に与える影響:レセプトデータを用いたInterrupted time series analysisの試み。日本経済学会 2019年度春季大会

西巧、高尾佳子、市原祥子、吉田まり子、田中義人、香月進:福岡県における保健医療介護縦断データベース構築の試みについて。第33回公衆衛生情報研究協議会研究会

西巧、前田 俊樹、馬場園 明:新規治療開始した高齢糖尿病患者におけるケアの継続性と入院リスク・医療費の関連。第57回日本医療・病院管理学会学術総会

西巧、香月進、前田俊樹、馬場園明:国保データベースを活用した、市区町村別生活習慣病有病率の推定と可視化の試み。第78回日本公衆衛生学会学術総会

西巧、前田俊樹、原田勝孝、香月進:脳梗塞入院患者の再入院予測モデル構築の試み。第58回日本医療・病院管理学会学術総会

西巧、前田俊樹、香月進:国保データベースを活用した、死亡月の療養場所と死亡前一年間の療養場所把握の試み。第79回日本公衆衛生学会学術総会

④ その他（学会賞の受賞、特許出願）

特になし

調 査 研 究 名	種鶏等における食中毒原因細菌に関する汚染実態調査
研究者名（所属） ※ ○印：研究代表者	○カール由起、片宗千春、重村洋明、大石明、江藤良樹、濱崎光宏（福岡県保健環境研究所）、中山志幸（田川保健福祉事務所）、世良暢之（帝京大学）、横山栄二（千葉県衛生研究所）、橋野正紀、関塚剛史、黒田誠、泉谷秀昌、村上光一（国立感染症研究所）
本庁関係部・課	保健医療介護部 生活衛生課
調 査 研 究 期 間	平成30年度 — 令和2年度 （３年間）
調 査 研 究 種 目	１． □行政研究 □課題研究 ■共同研究（共同機関名： ） □受託研究（委託機関名： ） ２． ■基礎研究 □応用研究 □開発研究 ３． □重点研究 □推奨研究 □ＩＳＯ推進研究
福岡県総合計画	大項目：災害や犯罪、事故がなく、安全で安心して暮らせること 中項目：暮らしの安全・食の安全を守る 小項目：食品の安全・安心の確保
福岡県環境総合ビジョン（第四次福岡県環境総合基本計画）※環境関係のみ	柱： テーマ：
キーワード	① 種鶏 ② 食中毒原因細菌 ③ 汚染実態 ④ 分子疫学解析
研 究 の 概 要	
１）調査研究の目的及び必要性 食中毒等による健康被害低減に向け、カンピロバクターをはじめとした鶏肉の喫食が原因となる食中毒原因細菌について研究を実施した。 福岡県では、鶏肉の喫食が原因と考えられるカンピロバクター食中毒が食中毒事例の中で最も多く発生している。しかし、市販鶏肉におけるカンピロバクター等の汚染経路は未だ不明な点も多い。さらに鶏肉が市販されるまでには多くの組織が関与しており、調査研究体制の構築が困難な状況にある。 また、腸管出血性大腸菌（EHEC）は広域にまたがる食中毒を起こすことが多く、こうした広域的食中毒事例を早期探知し、感染源の究明を図るためには、検査体制や情報共有方法等の改善が必要である。 本研究は、種鶏（肉用鶏の親鶏）から肉用鶏、市販鶏肉に至るまでの新たな調査研究体制を構築した上で、カンピロバクター及びサルモネラの汚染状況を把握し、汚染経路を究明した。また、EHECについては食中毒の早期探知及び感染源の究明を図るための方法を検討した。これら結果を関係機関へ情報提供・共有することで、食中毒等による健康被害の低減に寄与することを目的とした。	
２）調査研究の概要 種鶏（肉用鶏の親鶏）から肉用鶏、市販鶏肉に至るまでの新たな調査研究体制を構築し、カンピロバクター及びサルモネラによる汚染実態の把握を試みた。また、当該細菌について分子疫学的手法を用い、汚染経路を究明する。加えて、EHECについても、国立感染症研究所等と共同し、同様な分子疫学解析を検討し、感染源の解明や広域的食中毒事例の把握に有効な情報の取得を図った。	
３）調査研究の達成度及び得られた成果（できるだけ数値化してください。） １ 種鶏調査のための研究体制の構築 先行研究（平成27年度―平成29年度）の調査研究体制に、種鶏の食鳥処理場を加えた新たな研究体制を構築し、計908検体の検査材料（種鶏304検体、肉用鶏120検体、市販鶏肉99検体、食中毒患者の糞便等385検体）を収集できた。 ２ カンピロバクター及びサルモネラによる種鶏等の汚染実態調査 収集した検査材料からカンピロバクターやサルモネラ等の食中毒原因細菌を分離同定した。国内15県で飼育された種鶏274検体からのカンピロバクター及びサルモネラの分離率は、それぞれ49.6%及び32.1%であり、先行研究で明らかとなった肉用鶏の分離率（それぞれ55.4%及び19.8%）と同様に高いことが明らかとなった。 ３ カンピロバクター及びサルモネラによる汚染経路の究明 一貫して生産されている種鶏と肉用鶏から、酷似した特徴（遺伝子型、薬剤感受性パターン）を有するカンピロバクター・ジェジュニが分離され、種鶏に由来したカンピロバクターが肉用鶏へと伝播していることが推察された。一方、サルモネラについては、種鶏と肉用鶏で同一血清型のサルモネラによる汚染は認められなかった。また、種鶏由来カンピロバクター・ジェジュニの中に、食中毒患者由来株と一致する遺伝子型があり、種鶏に由来するカンピロバクターがヒトへと伝播している可能性が示唆された。 ４ EHECに関する調査 EHECの分子疫学解析の手法がMLVAに統一されたことを踏まえ、九州の各地方衛生研究所で使用している分子疫	

学解析の調査を行った。MLVAを実施可能な地方衛生研究所は年々増加しており、今後全国的なデータベースが構築されていくことになると考えられる。また、EHEC検出状況調査の結果、EHECのO群血清型の内、O157が最も多く検出されていること、EHECの集団発生事例は保育所で多い傾向があることが明らかとなった。

4) 県民の健康の保持又は環境の保全への貢献

福岡県は、鶏肉の喫食が原因と考えられるカンピロバクター食中毒の事例数が、食中毒事例の38.7%（令和2年食中毒 31事例中12事例）を占める。県民の食品の安全・安心の確保には、当該菌による食中毒への対策が重要な課題の一つであると言える。本研究の結果から、種鶏に由来したカンピロバクターが肉用鶏・ヒトへと伝播していることが推察された。食品の生産段階での対策も併せて行うことで、食中毒による健康被害の低減につながることが期待される。

5) 調査研究結果の独創性、新規性

種鶏は肉用鶏に比べて飼育羽数が少なく、厳格に飼育管理されている。このため、種鶏の検体入手が難しく、これまで種鶏を用いた調査はほとんど実施されていなかった。本研究では、種鶏の検体を確保するため、先行研究（平成27年度～平成29年度）の調査研究体制に、種鶏の食鳥処理場を加えた新たな研究体制を構築した。これまで種鶏から肉用鶏、市販鶏肉、ヒトに至る鶏肉のフードチェーンを一体的に調査しているものは他になく、独自性がある。

6) 成果の活用状況（技術移転・活用の可能性）

保健福祉環境事務所、食肉衛生検査所職員及び他地方衛生研究所職員を対象とした研修を通じて、本研究における技術移転を実施した。また、講演などを通じ、食鳥検査員、食肉衛生検査職員、学校給食共同調理場職員、食品取扱従事者等が所属する関係機関への情報提供を行った。そのほか、食品衛生、公衆衛生行政に関係する学会での発表や論文発表を行った。本研究の成果は、今後の食中毒予防施策をとる際の基礎資料として活用し得ると考えられる。

7) 当該調査研究課題に関する発表等

① 行政に対する情報提供

- 衛生検査技術研修 【平成30、平成31/令和元年度】
保健医療介護部主催 対象：保健福祉（環境）事務所、食肉衛生検査所、久留米市、大牟田市職員
- 保健部門業務研修 【平成30年度】
保健環境研究所主催 対象：保健福祉（環境）事務所
- 町立保育園職員研修会 【平成30、平成31/令和元年度】
志免町立保育園主催 対象：保育園職員、食品取扱従事者等
- 平成30年度筑紫野市学校給食共同調理場職員研修会 【平成30年度】
筑紫野市学校給食課主催 対象：食品取扱従事者等
- 腸管出血性大腸菌の遺伝子型別検査（反復配列多型解析法：MLVA）の技術研修 【平成30年度】
保健環境研究所主催 対象：熊本県保健環境科学研究所、鹿児島県環境保健センター職員

② 県民への情報提供（保環研ニュース・年報・新聞報道等）

- 令和元年度第1回検査員会議 【平成31/令和元年度】
（公財）佐賀県食鳥協会主催 対象：食鳥検査員、食肉衛生検査職員等

③ 学会誌掲載、学会発表

【学会誌等掲載】

- ・ Eiji Yokoyama, Hiroaki Shigemura et al. “Isolation of *Salmonella enterica* serovar Agona strains and their similarities to strains derived from a clone caused a serovar shift in broilers” *Journal of Infection and Chemotherapy*, 2019 Jan;25(1):71-74.
- ・ Yasushi Torii, Eiji Yokoyama, Hiroaki Shigemura et al. “Genetic characteristics of emerging *Salmonella enterica* serovar Agona strains isolated from humans in the prior period to occurrence of the serovar shift in broilers” *Journal of Veterinary Medical Science* ;Vol 81(8), 1117-1120, 2019.
- ・ Taisei Ishioka, Yuki Carle, Hiroaki Shigemura et al. “Contrasting Results from Two Commercial Kits Testing for the Presence of *Clostridium perfringens* Enterotoxin in Feces from Norovirus-Infected Human Patients” *Clinical Laboratory*. Vol. 66(5), 2020.
- ・ Hiroaki Shigemura, Tsuyoshi Sekizuka, Yoshiki Etoh, Yuki Carle, Makoto Kuroda, Koichi Murakami et al. “Food workers as a reservoir of extended-spectrum-cephalosporin-resistant *Salmonella* strains in Japan.” *Applied and Environmental Microbiology*. Vol. 86, No.13, e00072-20. 2020.
- ・ Hiroaki Shigemura, Shiko Nakayama, Akira Ohishi, Yuki Carle, Eiko Ookuma, Yoshiki Etoh, Tsuyoshi Sekizuka, Makoto Kuroda, Nobuyuki Sera, Koichi Murakami et al. “Transmission of extended-spectrum cephalosporin-resistant *Salmonella* harboring a *bla*_{CMY-2}-carrying IncA/C₂ plasmid chromosomally integrated by *ISEcp1* or *IS26* in layer breeding chains in Japan” *The Journal of Veterinary Medical Science*, 2020 [印刷中]

【学会発表等】

- ・ 重村 洋明、カール 由起、中山 志幸、世良 暢之ほか、「鶏からヒトへの食中毒原因サルモネラ伝播を明らか

にする研究」第39回日本食品微生物学会学術総会 2018年9月27日～28日 大阪府

- ・ 松本一浩、重村洋明ほか、「健康保菌者より検出されたサルモネラの血清型について」第39回日本食品微生物学会学術総会 2018年9月27日～28日 大阪府
- ・ 重村洋明、中山志幸、カール由起、世良暢之、村上光一、「市販鶏肉から分離されるサルモネラの薬剤耐性状況調査」平成30年度獣医学術九州地区学会（福岡） 2018年10月14日 福岡
- ・ 重村洋明、中山志幸、カール由起、世良暢之、村上光一ほか、「採卵鶏及び採卵鶏農場から分離されたサルモネラの薬剤耐性保有状況調査」第92回日本細菌学会総会 2019年4月23日～25日 北海道
- ・ 重村洋明、中山志幸、カール由起、世良暢之、村上光一、「市販鶏肉から分離されるサルモネラの薬剤耐性状況調査—鶏肉に残存する広域スペクトルセファロsporin耐性サルモネラ—」平成30年度日本獣医師会獣医学術学会年次大会 2019年2月8日～10日 神奈川県
- ・ 横山栄二、鳥居恭司、重村洋明ほか、「次世代シーケンサーを用いたブロイラー農場におけるサルモネラ血清型シフトの公衆衛生的意義の評価」平成30年度日本獣医師会獣医学術学会年次大会 2019年2月8日～10日 神奈川県
- ・ 重村洋明、中山志幸、カール由起、大隈英子、世良暢之、村上光一ほか、「セフチオフル使用自粛前に鶏卵生産環境でもESC耐性サルモネラは拡大していたのか」第162回日本獣医学会学術集会 2019年9月10日～12日 茨城県
- ・ 濱崎光宏、「病原体検査における精度管理について」九州衛生環境技術協議会 2019年10月3日～4日 長崎
- ・ 重村洋明、カール由起、大隈英子、世良暢之、村上光一ほか、「鶏卵生産環境のサルモネラからも鶏肉由来サルモネラに拡大していたESC耐性関連プラスミドは見つかるのか」令和元年度獣医学術九州地区学会（日本獣医公衆衛生学会）（九州地区）2019年11月8日 佐賀県
- ・ 重村洋明、カール由起、大隈英子、世良暢之、村上光一ほか、「鶏卵生産環境における bla_{CMY-2} 保有ESC耐性サルモネラの拡大」第93回日本細菌学会総会 2020年2月19日-21日 愛知県

【報告書等】

- ・ 濱崎光宏、江藤良樹、カール由起、中山志幸、重村洋明ほか、厚生労働科学研究費補助金 新興・再興感染症及び予防接種政策推進研究事業 「食品由来感染症の病原体の解析手法及び共有化システムの構築のための研究」平成30年度分担研究報告書
- ・ 濱崎光宏、カール由起、江藤良樹、大石明ほか、厚生労働科学研究費補助金 新興・再興感染症及び予防接種政策推進研究事業 「食品由来感染症の病原体の解析手法及び共有化システムの構築のための研究」令和元年度分担研究報告書
- ・ 濱崎光宏、カール由起、片宗千春ほか、厚生労働科学研究費補助金 新興・再興感染症及び予防接種政策推進研究事業 「食品由来感染症の病原体の解析手法及び共有化システムの構築のための研究」令和2年度分担研究報告書
- ・ 濱崎光宏、カール由起、江藤良樹、重村洋明、大石明、片宗千春ほか、厚生労働科学研究費補助金 新興・再興感染症及び予防接種政策推進研究事業 「食品由来感染症の病原体の解析手法及び共有化システムの構築のための研究」平成30年度～令和2年度分担研究報告書

④ その他（学会賞の受賞，特許出願）

- ・ 重村洋明、カール由起、ほか 日本獣医公衆衛生学会 九州地区学会長賞 受賞 2018年10月14日
- ・ 重村洋明、カール由起、ほか 日本獣医公衆衛生学会 九州地区学会長賞 受賞 2019年11月8日

研究分野：保健

調 査 研 究 名	ノロウイルス等のウイルスを原因とする感染症及び食中毒発生予防、被害拡大防止に関する研究
研究者名（所属） ※ ○印：研究代表者	○中村麻子、小林孝行、上田紗織、芦塚由紀（ウイルス課）、佐藤環（生活化学課）、田中義人（保健科学部）、小木曾俊孝（計測技術課）、新谷俊二（企画情報管理課）、吉富秀亮（保健医療介護部ワンヘルス総合推進室）
本 庁 関 係 部 ・ 課	保健医療介護部 がん感染症疾病対策課
調 査 研 究 期 間	平成30年度 — 令和2年度 （3年間）
調 査 研 究 種 目	1. ☒ 行政研究 ☐ 課題研究 ☒ 共同研究（共同機関名：群馬パース大学、北里大学、北海道大学、九州大学、佐賀大学、地方衛生研究所5機関、九州医療センター、国立感染症研究所 国立医薬品食品衛生研究所） ☐ 受託研究（委託機関名： ） 2. ☒ 基礎研究 ☐ 応用研究 ☐ 開発研究 3. ☐ 重点研究 ☐ 推奨研究 ☐ I S O 推進研究
福岡県総合計画	大項目：誰もが元気で健康に暮らせること 中項目：健康被害の防止、暮らしの安全・食の安全を守る 小項目：感染症対策の推進、食の安全・安心の確保
福岡県環境総合ビジョン（第四次福岡県環境総合基本計画）※環境関係のみ	柱： テーマ：
キ ー ワ ー ド	①ノロウイルス ②遺伝子解析 ③感染症法 ④食品衛生法
研 究 の 概 要	
1）調査研究の目的及び必要性 ノロウイルスを原因とする食中毒患者は全国で毎年約2万人発生し、食中毒患者の半分以上を占めている。また、ノロウイルスを原因とする感染性胃腸炎患者は数百万人存在すると推測されており、ノロウイルスの対策は公衆衛生上重要な課題である。平成28年に発出された通知（生食監発0401）によりノロウイルスの遺伝子型別解析が推奨され、平成28年の感染症法改正によりウイルス検査の質の確保及び探索的検査が求められるようになった。 ノロウイルス等のウイルス遺伝子は頻繁に変異がおこるため、食中毒の原因究明及び流行動態を詳細に把握するには、遺伝子の変異に対応した検査法に改良していく必要がある。また、ノロウイルスは非常に感染力が強く、患者の糞便等からは大量のウイルスが排出され、環境中で長期間感染力を保つため、制御が困難な病原体である。現在、治療薬やワクチンが無く、有効な消毒剤は次亜塩素酸ナトリウムのみであるため、有効な消毒剤や治療薬及び予防薬の開発が求められている。 そこで本研究では、ノロウイルス等の遺伝子検査法を改良することにより食中毒の原因及び流行動態を明らかにし、ノロウイルスに有効な消毒法や予防及び治療法の開発を行うことで、ノロウイルスを中心としたウイルスによる食中毒や感染症の発生予防及び被害の拡大防止に貢献することを研究の目的とした。	
2）調査研究の概要 本研究ではノロウイルス等のウイルスを原因とする感染症及び食中毒発生予防、被害拡大防止のため、以下の事項について平成30年度から令和2年度までの3年間研究を行った。 1)当課に搬入された食中毒検体（例年約150件）及び感染症発生動向調査検体（例年約150件）を用い、ノロウイルス等のウイルス遺伝子の変化に対応するため、遺伝子検査法及び解析法を改良した。 2)ノロウイルスに有効な消毒法や予防及び治療に寄与する物質を探索するため、キノコ抽出物及び天然生理活性物質を収集し評価及び解析を実施した。	
3）調査研究の達成度及び得られた成果（できるだけ数値化してください。） ① ノロウイルス遺伝子検査の解析範囲を350塩基から600塩基程度に拡大し、より詳細な解析が可能となった（国立感染症研究所の病原体検出マニュアルを作成）。 ② 食中毒検体よりGII.17を検出し、従来法の解析範囲である350塩基の10倍である、カプシド及びポリメラーゼ全領域の塩基配列（3,500塩基）を解析し、他自治体と共有することで、広域的・同時多発的な食中毒（刻みのり事件）の早期終息に貢献した（Emerg Infect Dis., 24,920-923, 2018）。また、食中毒検体よりGI.5を検出し、カプシド及びポリメラーゼ全領域の塩基配列（3,500塩基）を解析し、遺伝学的特徴を明らかにした（Jpn J Infect Dis., 71, 390-392, 2018）。 ③ ノロウイルスに有効な消毒法や予防及び治療に寄与する候補物質を検索するため、評価系の導入及び構築を行った（厚労科研費H30年度報告書）。候補物質として65種類のキノコ抽出物を収集し、その抽出物について、LC-TOF MS測定及び抗ノロウイルス活性を測定後、多変量解析により有効成分を特定した（ホクト生物科学振興財団助成報	

告書)。さらに、天然生理活性物質ライブラリー234物質を収集し、抗ノロウイルス活性を評価した結果、アニソマインが抗ノロウイルス活性を示すことが明らかとなった(福岡県保健環境研究所年報第46号, 65-69, 2018)。今後、より詳細な作用機序等の解明が必要である。

4) 県民の健康の保持又は環境の保全への貢献

本研究により、ノロウイルスの遺伝子解析範囲を広げ、他自治体と連携することで、広域的・同時多発的に発生したノロウイルスによる食中毒(刻みのり事件等)の被害拡大防止に寄与できた。さらに、抗ノロウイルス活性を示す5つの物質を明らかにし、ノロウイルスに有効な消毒法や予防・治療に寄与する新たな知見を得た。

5) 調査研究結果の独創性、新規性

ノロウイルス検査法の改良を行い新しいマニュアル作成を行った。加えて、新たな抗ノロウイルス活性を持つ成分の検索を行った。

6) 成果の活用状況(技術移転・活用の可能性)

- ・今後の行政依頼検査、食中毒検査への活用
- ・民間や大学等から依頼された、試験物質の評価、共同研究等による商品化の検討

7) 当該調査研究課題に関する発表等

① 行政に対する情報提供

- ・保健部門業務研修、感染症に関する研修及び食品衛生に関する研修による、保健所及び本庁職員等(福岡検疫所、独立行政法人国立病院機構及び産業医科大学職員、研修医)への啓発、情報提供
- ・食中毒が発生した場合の推定感染経路の調査、管轄保健所への調査結果の情報提供
- ・同時多発広域的食中毒発生時に、他自治体への情報提供

② 県民への情報提供(保環研ニュース・年報・新聞報道等)

- 年報
 - ・食中毒発生状況の情報提供
- 新聞報道等
 - ・新型コロナウイルス対策においては、検査体制の強化、抗ウイルス薬の共同開発等について情報提供
- その他
 - ・福岡県結核・感染症発生動向調査事業資料集による情報提供
 - ・毎月、福岡県医師会報及び当所のホームページ上でウイルスの流行状況を情報提供
 - ・結核・感染症発生動向調査研修会にてウイルスの流行状況について情報提供
 - ・筑紫野市学校給食共同調理場職員研修及び町立保育園職員研修において情報提供

③ 学会誌掲載、学会発表

- 論文
 - ・Takayuki Kobayashi, Hideaki Yoshitomi, Asako Nakamura, Yuki Ashizuka, Jumboku Kajiwara, Mamoru Noda, Genetic Characterization of Rarely Reported G1.Pc_G1.5 Norovirus Strain Detected from a Suspected Foodborne Outbreak in Japan, Japanese Journal of Infectious Diseases, Vol.71, No.5, 390-392, 2018.
 - ・Naomi Sakon, Hideaki Yoshitomi, Asako Nakamura, et al., Foodborne Outbreaks Caused by Human Norovirus G II .P17-Contaminated Nori, Japan, 2017, Emerging Infectious Diseases, Vol.24, No.5, 2018.
 - ・吉富秀亮, 中村麻子, 小林孝行, 芦塚由紀, 福岡県で2015年に検出されたノロウイルスGI.3の系統樹解析, 福岡県保健環境研究所年報第45号, 76-79, 2018.
 - ・小林孝行, 吉富秀亮, 中村麻子, 小木曾俊孝, 芦塚由紀, 梶原淳睦, 上間匡, 抗ノロウイルス活性を有する天然生理活性物質の探索, 福岡県保健環境研究所年報第46号, 65-69, 2019.
 - ・Yuki Matsushima, Hideaki Yoshitomi, et al., Evolutionary Analysis of the VP1 and RNA-Dependent RNA Polymerase Regions of Human Norovirus GII.P17- GII.17 in 2013-2017, Frontiers in Microbiology Vol.10, 2189, 2019.
- 学会発表
 - ・小林孝行, 吉富秀亮, 中村麻子, 芦塚由紀, 梶原淳睦, 福岡県におけるノロウイルスの検出状況について, 第65回福岡県公衆衛生学会, 福岡市, 2018.
- その他
 - ・サポウイルス、アストロウイルス、ライノウイルス、麻疹ウイルス、新型コロナウイルス、HIVについて英文雑誌3報、IASR(病原微生物検出情報)4報、報告書3報、国内学会発表5題(招待講演1題含む)を報告した。

④ その他(学会賞の受賞、特許出願)

なし

研究分野：環境

調 査 研 究 名	マルチコプター等を用いた低空撮による県内環境情報モニタリング手法の確立
研究者名（所属） ※ ○印：研究代表者	○熊谷博史、片宗千春、酒谷圭一、小木曾俊孝、塚谷裕子（計測技術課）、高橋浩司（企画情報管理課）、田中義人（保健科学部）、平川周作、古閑豊和、古賀敬興（水質課）、藤川和浩（廃棄物課）、石間妙子（環境生物課）
本 庁 関 係 部 ・ 課	環境部環境保全課
調 査 研 究 期 間	平成30年度 ― 令和2年度 （ 3年間 ）
調 査 研 究 種 目	1. ☒ 行政研究 ☐ 課題研究 ☐ 共同研究（共同機関名： ） ☐ 受託研究（委託機関名： ） 2. ☒ 基礎研究 ☐ 応用研究 ☐ 開発研究 3. ☐ 重点研究 ☐ 推奨研究 ☐ I S O 推進研究
福岡県総合計画	大項目：環境と調和し、快適に暮らせること 中項目：自然と共生し、快適な環境をつくる 小項目：快適な生活環境の形成
福岡県環境総合ビジョン（第四次福岡県環境総合基本計画）※環境関係のみ	柱：健康で快適に暮らせる生活環境の形成 テーマ：統合的な対策
キ ー ワ ー ド	①マルチコプター ②低空撮 ③環境事故対応 ④環境監視体制構築 ⑤環境情報提供
研 究 の 概 要	
1）調査研究の目的及び必要性 ・ 地方自治体の環境行政機関は、その管轄内で環境問題や事故が発生した際には、周辺状況を俯瞰的に把握した上で、その問題に対処する必要がある。一方で、近年マルチコプターを含むドローン技術発展が目覚ましく、それらに対して利活用が可能となってきた。 ・ しかしながら現状では初期コストゆえに導入に踏み切れない機関があること、あるいは導入したものの運用上の知見が乏しく、ツールを有効活用できていない状況にある。 ・ 本研究では、福岡県内の環境問題に対してマルチコプターを活用し、様々な地域環境問題を俯瞰するための技術を確立し、それらの技術を他機関に情報提供することを目指す。	
2）調査研究の概要 ・ 自作マルチコプター等を活用することで、環境分野に適用可能なシステムを構築する。 ・ 福岡県内における環境問題（湖沼、森林等）を対象に、上記システムを適用し活用方法について検討する。 ・ それらの結果をもとに、地方行政機関が同システムを運用する上での有用性や限界について考察を加え、最終的に論文等を通じて、これらの成果を情報提供する。	
3）調査研究の達成度及び得られた成果（できるだけ数値化してください。） ・ 当所におけるマルチコプター及び解析環境を整備し、職員によって運用可能なシステムが構築された。 ・ 県営公園筑豊緑地内の小規模湖沼において、問題視されていた浮上藻類の現状把握に利用した。その結果により現場の対策に向けた基礎情報を提供することが可能となった。 ・ 英彦山鹿柵内の植生を 2 年間にわたり調査した。秋季に実施した鹿柵内の植生分布では、同時期でも植生面積に違いがみられ、調査時時期だけでなく植生状況や植生の立体構造を考慮する必要があることが明らかになった。 ・ 平尾台広谷湿原で調査を実施し、オルソ画像から湿原の位置を推定した。従来、地上からの判別が困難だった湿地の分布を、空撮画像から推定できる可能性が示唆された。	
4）県民の健康の保持又は環境の保全への貢献 ・ 従来では人力だけでは困難であった広範囲の調査を、マルチコプターを用いることで短時間かつ効率的に実施が可能となった。また得られた空撮結果により対象データを定量化することで、現状把握や対策実施の効果などに必要な客観的な定量情報を提供することが可能となった。	
5）調査研究結果の獨創性、新規性 ・ 自作マルチコプターを用いたことにより現場の状況に合わせた活用が可能となった。筑豊緑地での調査では、可視光カメラと近赤外カメラとを搭載した空撮を行い、それらの結果を用いて湖沼水表面に浮遊している藻類の面積を簡便に定量化する方法を開発した。	
6）成果の活用状況（技術移転・活用の可能性） ・ 本研究での各調査については環境科学部各課（水質課、環境生物課）と共同で実施した。それぞれの調査で使用した技術は、各課が抱える案件を円滑に進める上での有効なツールとなりうることが実証された。	

7) 当該調査研究課題に関する発表等

① 行政に対する情報提供

- ・ 平成30年度全国環境研協議会九州支部総会講演「環境調査へのドローンの利活用～福岡県保健環境研究所の導入事例～」、2018年7月20日
- ・ 第427回福岡県保健環境研究所集談会「環境調査へのドローンの活用～富栄養化湖沼での調査事例～」、2018年12月28日
- ・ 筑豊緑地内ため池のアオコ発生に関する原因究明調査 平成29年度報告書、2018年4月
- ・ 筑豊緑地内ため池のアオコ発生に関する原因究明調査 平成30年度報告書、2019年4月
- ・ 筑豊緑地内ため池のアオコ発生に関する原因究明調査等 最終報告書、2020年3月

② 県民への情報提供（保環研ニュース・年報・新聞報道等）

- ・ 令和3年度県内保健環境研究機関合同成果発表会「環境調査へのドローンの活用～富栄養化湖沼での対策に向けた調査事例～」（仮題）、2021年11月（予定）

③ 学会誌掲載、学会発表

- ・ 第54回日本水環境学会年会「小規模湖沼に発生した浮上藻類のマルチコプターによる定量化」、2020年3月16-18日
- ・ 水環境学会誌「マルチコプターを用いた小規模湖沼における浮上藻類の定量化」投稿中

④ その他（学会賞の受賞、特許出願）

- ・ 令和2年度福岡県職域表彰（知事表彰）「県営公園内ため池の水環境改善対策の提案」、2021年2月5日

研究分野：環境

調 査 研 究 名	福岡県における平常時の放射線・放射能の実態把握と上昇要因の解析
研究者名（所属） ※ 〇印：研究代表者	〇檜崎幸範、有田明人、馬場義輝（大気課）
本 庁 関 係 部 ・ 課	環境部・環境保全課
調 査 研 究 期 間	平成28年度 ― 令和2年度 （ 5年間 ）
調 査 研 究 種 目	1. ■行政研究 ■課題研究 □共同研究（共同機関名： ） □受託研究（委託機関名： ） 2. ■基礎研究 □応用研究 □開発研究 3. □重点研究 □推奨研究 □ I S O 推進研究
福岡県総合計画	大項目：災害や犯罪、事故がなく、安全で安心して暮らせること 中項目：災害に強いまちをつくる 小項目：防災・減災対策の推進
福岡県環境総合ビジョン （第四次福岡県環境総合基本計画）※環境関係のみ	柱 ：健康で快適に暮らせる生活環境の形成 テーマ：その他の生活環境の保全
キ ー ワ ー ド	①全β放射能 ②空間放射線量率 ③宇宙線生成核種 ④平常の変動幅 ⑤上昇要因
研 究 の 概 要	
1）調査研究の目的及び必要性 福島第一原子力発電所の原子力災害を踏まえ、平常時から環境中の放射線・放射能を適切に把握し、評価することが求められている。福岡県では、環境試料中の放射能を継続して把握してきたことに加え、固定型の放射線測定器（モニタリングポスト）を増設し、環境放射線・放射能のモニタリングを強化している。しかし、環境放射線・放射能は、原子力災害等により放出される人工放射性核種だけでなく、天然に存在する放射性核種によって常に変動していることから、これらの上昇時には人為由来によるものか自然由来によるものかを判断することが求められる。そのためには、自然由来の環境放射線・放射能の平常時の変動幅とそれらの上昇要因を把握しておくことが重要になる。（※令和元年から行政課題）	
2）調査研究の概要 平常時の環境放射線・放射能の実態把握のため、以下の検討を行った。 （ア） 降水中の全β放射能の分析 （イ） モニタリングポストによる空間放射線量率及びブスペクトル解析によるγ線放出核種の解析 （ウ） 大気浮遊じん中の放射性物質（宇宙線生成核種 ⁷ Be 等）の挙動解析 （エ） 緊急時用モニタリング機器の平常時データの取得と特性並びに評価	
3）調査研究の達成度及び得られた成果（できるだけ数値化してください。） 【平成 28 年度（1 年次）】 平常時における降水中の β 線放出核種の推定及び全 β 放射能の検出に寄与する要因の解析を行った。 【平成 29 年度（2 年次）】 梅雨期における広域での高空間放射線量率事象の発生機構を、観測データ及びモデル解析により解明した。 【平成 30 年度（3 年次）】 大気中 ⁷ Be 濃度を連続して測定し、その特徴を明らかにすると共に ⁷ Be の粒径や沈着速度等の降下因子を決定した。 【令和元年度（4 年次）】 緊急時用モニタリング機器（固定式電子線量計等）の平常時データ取得と特性を把握した。 【令和 2 年度（5 年次）】 緊急時用モニタリング機器（ダストモニタ）の平常時データ取得と特性を把握及び全体の取りまとめを実施した。	
4）県民の健康の保持又は環境の保全への貢献 放射線量の異常が発生したときに、原子力災害かどうかの区別が容易に判断できること。原子力災害の影響は長期にわたるので、平常時と同レベルに戻った判定に活用できる。	
5）調査研究結果の独創性、新規性 県内の放射線及び放射能の実態を把握し、被ばく線量評価及び健康影響との関連性解析に資する唯一の研究である。	

6) 成果の活用状況（技術移転・活用の可能性）

放射線に起因する健康リスクに関して科学的に裏付けされた適切な情報を周知することができる。

7) 当該調査研究課題に関する発表等

① 行政に対する情報提供

福岡県職員及び市町村の防災部局担当者を対象にした「緊急時放射線モニタリング研修会」にて放射線防護・危機管理について講演を行った。

② 県民への情報提供（保環研ニュース・年報・新聞報道等）

保環研ニュース及び福岡県保健環境研究所年報第43号にて「福岡県における環境放射能水準調査」及び45号にて「福岡県における玄海原子力発電所UPZ圏内の放射能監視体制」について情報提供を行った。

③ 学会誌掲載、学会発表

<学会誌掲載>

- ・有田明人, 檜崎幸範, 板垣成奏: 福岡県における環境放射能水準調査, 福岡県保健環境研究所年報, 43, 174-177 (2017).
- ・檜崎幸範: 福岡県における玄海原子力発電所UPZ圏内の放射能監視体制, 福岡県保健環境研究所年報, 45, 3-4 (2017).
- ・土田大輔, 矢口廉大奈, 山澤弘実, 檜崎幸範; 梅雨期における温帯低気圧の東進に伴う空間放射線量率の上昇機構, 保健物理, 55(1), 5-14 (2020).
- ・Y. Narazaki, A. Sakoda, S. Takahashi, N. Momoshima; Cosmogenic ^7Be : Particle size distribution and chemical composition of ^7Be -carrying aerosols in the atmosphere in Japan, *J. Environ. Radioact.*, (in press)
- ・Y. Narazaki, A. Sakoda, S. Takahashi, H. Itoh, N. Momoshima; Long-term and high-resolution measurements of atmospheric ^7Be concentrations and an analysis of their temporal variations at Dazaifu (western Japan), *J. Environ. Radioact.*, 投稿中

<学会発表>

- ・檜崎幸範, 土田大輔, 高橋駿太, 伊藤久徳, 百島則幸, 藤高和信: 大気中 ^7Be 濃度の測定と変動解析, 環境放射能研究会発表 (2018).
- ・有田明人, 檜崎幸範, 板垣成奏: 福岡県における環境放射能調査, 平成28年度放射線監視結果調査検討会発表 (2018).

④ その他（学会賞の受賞、特許出願）

- ・檜崎幸範: 日本保健物理学会 2020年度学会賞（啓発賞）受賞

研究分野：環境

調 査 研 究 名	大気シミュレーションモデルと新たな指標成分によるPM _{2.5} の発生源解明
研究者名（所属） ※ 〇印：研究代表者	〇山村由貴、力寿雄、梶原佑介、中川修平、濱村研吾（大気課）、新谷俊二、高尾佳子（企画情報管理課）、平川周作（水質課）
本庁関係部・課	環境部環境保全課
調 査 研 究 期 間	平成30年度～令和2年度（3年間）
調 査 研 究 種 目	1. ☒ 行政研究 ☐ 課題研究 ☒ 共同研究（共同機関名：国立環境研究所） ☐ 受託研究（委託機関名： ） 2. ☒ 基礎研究 ☐ 応用研究 ☐ 開発研究 3. ☐ 重点研究 ☐ 推奨研究 ☐ I S O推進研究
福岡県総合計画	大項目：環境と調和し、快適に暮らせること 中項目：自然と共生し、快適な環境をつくる 小項目：快適な生活環境の形成
福岡県環境総合ビジョン（第四次福岡県環境総合基本計画）※環境関係のみ	柱：健康で快適に暮らせる生活環境の形成 テーマ：大気環境の保全
キ ー ワ ー ド	①PM _{2.5} ②発生源 ③寄与率 ③WRF/CMAQモデル解析 ④付着微生物群集組成
研 究 の 概 要	
1）調査研究の目的及び必要性 PM _{2.5} やオキシダント等の濃度削減対策を実施するうえで、主要な発生源を推定することは非常に重要である。現在、PM _{2.5} については、発生源の指標となる粒子中のイオン、金属、炭素成分濃度データの解析、後方流跡線による風向確認や人為発生源の少ない長崎県の離島のPM _{2.5} 濃度との比較から、定性的に推定している。しかし、現状では推定できる発生源の種類が少なく、越境汚染の判断や国内外の地域毎の寄与率等、定量的な推定も困難である。そこで本研究では、シミュレーションによる生成・移流過程の計算及び発生源の指標となる新たな成分（付着微生物群集組成）の測定を行うことで、PM _{2.5} やオキシダント等の汚染物質について、国内外の発生地域や発生源の解明及び各要因の寄与率の推定を行った。	
2）調査研究の概要 気象・大気質モデルWRF/CMAQを用いて福岡県内のPM _{2.5} 、オキシダントおよびそれらの前駆物質濃度を計算し、観測データと比較してその再現性を評価した。十分な再現性が得られたモデルを用いて、PM _{2.5} やオキシダント高濃度事例を解析し、主要発生源やその寄与率を推定した。また、PM _{2.5} に付着した微生物の群集解析を行い、シミュレーション結果と合わせて、付着微生物の群集組成がPM _{2.5} の発生源の指標となり得るか検討を行った。	
3）調査研究の達成度及び得られた成果（できるだけ数値化してください。） ワークステーションに気象・大気質モデル（WRF/CMAQ）を導入し、環境に合わせた調整を実施、計算用排出量データを取得し、計算環境を整備した。 PM _{2.5} と光化学オキシダントについて、モデルに用いる物理過程の検討や発生源データ・気象データの改良などを行うことで、モデルが科学的知見の拡充や規制対策などへの適用が妥当とされる基準であるperformance criteria（Mean Fractional Bias ≤±60%、Mean Fractional Error≤±75%）を満たす、再現性の高い計算結果を得ることができた。 このモデルを用いて、西日本において影響の大きい、春季の越境汚染と夏季の火山由来SO ₂ によるPM _{2.5} 高濃度事例を解析した。春季については、PM _{2.5} に含まれるSO ₄ ²⁻ は越境汚染の寄与が大きい、NO ₃ ⁻ は越境汚染に加えて地域汚染の寄与があること、すなわち、越境汚染の影響がPM _{2.5} 含有成分ごとに異なることが明らかになった。夏季については、越境汚染の影響は小さく、桜島火山から噴出したSO ₂ が九州西方海上へ移流し、液相・気相反応によってSO ₄ ²⁻ を生成していたことが明らかになった。 オキシダントについては、北部九州域を高解像度で計算することで、オキシダント生成の原因物質であるNO _x 、VOC排出量を削減した場合の、オキシダント濃度変化の詳細な地理的分布を明らかにした。 また、PM _{2.5} サンプルの付着微生物群集解析を行った結果、PM _{2.5} の発生源によって微生物群集組成が異なる可能性が示唆された。	
4）県民の健康の保持又は環境の保全への貢献 PM _{2.5} やオキシダント等の大気汚染物質の主要発生源を解明すること、また、原因物質の排出量削減効果を試算することは、効果的な大気汚染物質濃度削減施策を策定するうえで重要である。	

5) 調査研究結果の独創性、新規性

夏季は、日本の南海上から清浄な気塊が流入するため、PM_{2.5}は低濃度であると認識されてきた。しかし、本研究によって、夏季においても、太平洋高気圧下で火山から噴出したSO₂がSO₄²⁻粒子を生成することで、広域・長期間にわたりPM_{2.5}高濃度事例を引き起こすことが示された。

また、これまで、化学輸送モデルを用いた高解像度でのNO_xやVOC排出量に対するオゾン濃度の感度解析に関する研究は、主に関東地方を対象に行われてきた。本研究では初めて、九州地域を対象とした高解像度の計算を行い、福岡県内オゾン濃度のNO_x、VOC排出量削減に対する感度の地理的分布を明らかにした。

エアロゾルの付着微生物群集解析については、黄砂を対象とした研究は行われているが、PM_{2.5}の発生源の指標として活用した例はない。本研究により、付着微生物群集組成がPM_{2.5}の発生源を示す新たな指標となり得ることが示唆された。

6) 成果の活用状況（技術移転・活用の可能性）

本研究では、過去の事例解析を中心に行ったが、シミュレーションに用いる気象データに予報データを用いることで、汚染物質濃度の予報が可能となる。さらに、予報データを用いて、特定の物質・排出源からの排出量を削減した計算（感度計算）を行うことにより、汚染物質濃度のみでなく、その主要排出源や汚染物質濃度削減施策の効果を予測することが可能となる。

7) 当該調査研究課題に関する発表等

① 行政に対する情報提供

本調査研究の成果については、調査研究発表等で行政担当者に情報提供している。また、PM_{2.5}やオキシダント高濃度事例が起きた際は、シミュレーションを用いて主要発生源等を解析し、結果を環境保全課へ報告している。

② 県民への情報提供（保環研ニュース・年報・新聞報道等）

2020年8月のPM_{2.5}高濃度時、シミュレーションによる解析結果をもとに、県の大気測定結果（速報値）公開ウェブサイト（<http://www.taiki.pref.fukuoka.lg.jp/homepage/Nipo/OyWbNpKm0106.htm>）にPM_{2.5}の発生源を記載した。

③ 学会誌掲載、学会発表

H30年度

- [学会誌掲載] 2件：①九州大学応用力学研究所所報，第155号，1-10. 2018、
②大気環境学会誌，53巻，第5号，A80-88. 2018

- [学会発表] 2件：第59回大気環境学会年会、大気環境学会九州支部第19回研究発表会

H31年度

- [学会発表] 1件：第60回大気環境学会年会

R2年度

- [学会誌掲載] 3件：①大気環境学会誌，53巻，5号，169-180. 2020
②Scientific Reports，volume 10，Article number6450 . 2020
③全国環境研会誌，Vol.45，No.4，51-61, 2021

- [学会発表] 1件：第61回 大気環境学会年会

④ その他（学会賞の受賞，特許出願）

特になし

研究分野：環境

調 査 研 究 名	季別運転を行う下水処理場の放流水に含まれる栄養塩類の動態に関する研究
研究者名（所属） ※ O印：研究代表者	○柏原学、秦弘一郎、松木昌也、古賀敬興、古閑豊和、平川周作、黒川陽一、宮脇崇、志水信弘、松本源生、石橋融子、山西博幸（佐賀大学）
本庁関係部・課	環境部環境保全課（水質係）
調 査 研 究 期 間	平成30年度 — 令和2年度 （3年間）
調 査 研 究 種 目	1. ☒ 行政研究 ☐ 課題研究 ☒ 共同研究（共同機関名：佐賀大学） （協力機関名：福岡県水産海洋技術センター有明海研究所、大牟田市企業局） ☐ 受託研究（委託機関名： ） 2. ☒ 基礎研究 ☐ 応用研究 ☐ 開発研究 3. ☐ 重点研究 ☐ 推奨研究 ☐ I S O推進研究
福岡県総合計画	大項目：環境と調和し、快適に暮らせること 中項目：自然と共生し、快適な環境をつくる 小項目：快適な生活環境の形成
福岡県環境総合ビジョン（第四次福岡県環境総合基本計画）※環境関係のみ	柱：健康で快適に暮らせる生活環境の形成 テーマ：水環境の保全
キ ー ワ ー ド	① 栄養塩類調整運転 ② 下水処理場 ③ 有明海
研 究 の 概 要	
1）調査研究の目的及び必要性 近年、閉鎖性水域の環境については、環境基準監視による水質保全を行う一方で、豊かな漁場を目指した栄養塩類の供給が重要となっており、本県では有明海に面する大牟田市北部浄化センター（以下、浄化センター）及び南部浄化センターにて漁場環境を改善するため栄養塩類調整運転（以下、季別運転）を実施している。しかし、これらの取組による環境保全面に対する影響と漁場環境への効果の検証は行われていない。そのため、環境保全課より有明海における栄養塩の実態調査が要望されている。浄化センターは、平成16年度から季別運転を実施しており、すでに10年以上経過しているが、浄化センター放流水、堂面川及び有明海の栄養塩類に関する調査はなされておらず、堂面川及び有明海の水環境への影響及び漁場への寄与等を把握する上で栄養塩類を中心とした調査が必要である。 そこで、本研究では下水処理場の季別運転が行われている有明海において、詳細な栄養塩の実態調査を行い、季別運転に関する知見の集積、環境基準値の遵守とノリ生産性向上への活用を図ることを目的とした。	
2）調査研究の概要 ○ 浄化センター放流水及び堂面川上流から有明海への栄養塩類流入負荷量調査 ○ 堂面川における栄養塩類分布調査...浄化センター由来の栄養塩類の到達状況を調査する。 ○ 底泥からの栄養塩類溶出試験の実施...季別運転による底質への影響及び栄養塩類溶出挙動を調査する。 ○ 円滑な季別運転実施に係る調査...季別運転切替に伴う変化について浄化センター工程水を調査する。	
3）調査研究の達成度及び得られた成果（できるだけ数値化してください。） ○ アンモニア性窒素及び塩素剤を含む試料の全窒素分析法を開発した。 ○ 負荷量調査を実施し、月平均の全窒素供給量は硝化抑制期に硝化促進期の約2.9倍であることが分かった。 ○ 栄養塩類濃度の時間変化を調査し、堂面川河口付近の栄養塩がノリ養殖場まで到達していることを確認した。 底泥からの栄養塩類溶出試験については、解析中。 ○ 曝気槽の細菌叢を解析した結果、季別運転により硝化細菌の割合が変化していることを確認した。	
4）県民の健康の保持又は環境の保全への貢献 ○ 生活環境の保全に関する環境基準の一つである全窒素の新規分析法を開発し、本調査研究のようなアンモニア性窒素及び塩素剤を含む試料において正確に評価することができた。 ○ 本調査地域にて、適切な栄養塩管理によりノリ養殖場への栄養塩供給が可能であることが明らかとなった。	
5）調査研究結果の獨創性、新規性 ○ 全窒素分析の公定法における問題点と解決方法を明らかにした。 ○ 本調査地域にて、詳細に栄養塩類に関する調査は初めてであり、季別運転による影響を含めた栄養塩類の挙動を明らかにし、負荷量調査により、季別運転による栄養塩類供給量を明らかにした。	
6）成果の活用状況（技術移転・活用の可能性） ○ 季別運転に関する知見の集積が進み適切な栄養塩管理による放流先海域への栄養塩供給の可能性が示された。 ○ 季別運転を実施する機関（大牟田市企業局）及び関係機関（福岡県水産海洋技術センター有明海研究所、福岡有明海漁業協同組合連合会）との情報共有を行った。	

7) 当該調査研究課題に関する発表等

① 行政に対する情報提供

- 本調査研究の成果については、成果報告会や調査研究発表等で行政担当者に情報提供している。
- 「季別運転を行う下水処理場の放流水に含まれる栄養塩類の動態と放流先海域における栄養塩類及びCODに関する研究」という研究テーマで採択された「瀬戸内海環境保全・創造に係る研究助成」（特定非営利活動法人瀬戸内海研究会）にて、下記のとおり定期的に専門家の先生方の助言をいただき、また同時採択された兵庫県や大阪府の研究所職員と試験方法と分析方法について意見交換、情報共有を行った。
 - ・第1回瀬戸内海の環境保全・創造に係る研究委託事業 意見交換ワーキング（2018年2月）
 - ・42th瀬戸内海水環境研究会議（2018年8月）
 - ・平成30年度瀬戸内海の環境保全・創造に係る研究ワークショップ（2018年12月）研究成果は平成30年度「瀬戸内海の環境保全・創造に係る研究委託事業意見交換」ワーキング（2019年2月）にて、口頭発表を行った。
- 大牟田市企業局、福岡県水産海洋技術センター有明海研究所のり養殖課、福岡有明海漁業協同組合連合会及び弊所水質課の季別運転に関わる関係者による会合「有明海の環境保全に係る合同会議」を2019年9月9日に福岡県水産海洋技術センター有明海研究所で開催し、様々な立場の関係者と季別運転を中心に情報共有を行った。

② 県民への情報提供（保環研ニュース・年報・新聞報道等）

- 本調査研究の調査結果を年報にて報告した。
 - 「フラップゲートを経由して排出される下水処理場放流水の栄養塩類の経時的変動調査」第47号, 67-71, 2020.
- 下水処理場での季別運転について福岡県保健環境研究所ホームページにて紹介した。
 - 「下水処理場における季別運転の試み」
(<http://www.fihes.pref.fukuoka.jp/~suishitsu/Topics20190123/topics20190123.html>)

③ 学会誌掲載、学会発表

[学会誌掲載] 3件

- ・「季別運転を行う終末処理場放流水中に含まれる溶存態亜酸化窒素濃度の変化」
全国環境研会誌, 44(4), 186-191, 2019.
- ・「アンモニア性窒素及び塩素剤を含む下水処理場放流水の全窒素濃度分析法に関する検討」
水環境学会誌, 43(2), 35-41, 2020.
- ・「堂面川および有明海における難分解性有機物に関する調査」
用水と廃水, 63(5), 39-46, 2021.

[学会発表] 9件

平成29年度土木学会西部支部研究発表会（2018年3月）、平成29年度日本水環境学会九州沖縄支部研究発表会（2018年3月）、第52回日本水環境学会年会（2件）（2018年3月）、第45回環境保全・公害防止研究発表会（2018年11月）、第53回日本水環境学会年会（2019年3月）、第45回九州衛生環境技術協議会（2019年10月）、2019年度日本水環境学会九州沖縄支部研究発表会（2020年2月）、第23回日本水環境学会シンポジウム（2020年9月）

④ その他（学会賞の受賞、特許出願）

研究表彰：福岡県保健環境研究所 奨励賞（平成31年3月）
学会賞：日本水環境学会九州沖縄支部 学術奨励賞（令和3年3月）