

熊 本 県
保健環境科学研究所報
令和5年度（2023年度）

Annual Report
of
Kumamoto Prefectural Institute
of Public-Health and Environmental Science

No.53 2023

熊本県保健環境科学研究所

はじめに

昨年4月、約25年ぶりに当研究所に赴任しました。以前と比べ、敷地内の樹木は眺望を遮るまでに生長しています。建屋には老朽化が目立つものの、あの熊本地震にも耐え、風貌や雰囲気は大きく変わっていないことに懐かしさを感じると同時に安堵もしているところです。

さて、当研究所では、保健・衛生分野と環境分野での県内の中核的な試験研究機関として、感染症、食品、環境関係の試験検査や調査研究等の業務を行っています。一昨年、感染症法上の位置づけが5類に変更された新型コロナウイルスのPCR検査も、これまで延べ約7万人の検査を行って参りました。

全力で取り組んで参りましたが、一方で、他の様々な業務を犠牲にしなければならない面があったのも事実でした。現在、日々の業務に追われながら、研究発表会など一旦中止または後回しとしていたものを一つ一つ復活させている状況です。まだまだ道半ばの段階です。

また、以前から指摘がありましたが、団塊の世代の大量退職後の技術やノウハウ継承の問題、人員削減や人事異動短期化等の流れのなかで、検査体制の維持や専門性の向上等、多くの課題を抱える状況にもあります。

そのような課題へ対応するため、今後、将来に向けた人材育成に力を入れていくことは必須であろうと認識しています。「人」は全ての礎です。特に、研究技術者の育成には長い年月を要します。継続的かつ中長期的な観点で取り組んでいくことが重要と考えているところです。

結びとなりますが、昨年夏、本県内の滝で水遊びをした方々が次々と体調不良を訴える事案が発生しました。また、昨年末には台湾の半導体メーカーが本県菊陽町での量産を開始したと発表されました。更に、有機フッ素化合物（PFAS）が人の健康に影響を及ぼす可能性等に高い関心が集まっています。このような突発的事案や変わりゆく社会情勢に対応するため、また、科学的根拠に基づく施策の展開や県民の皆様への適切な情報発信等のため、今後とも試験検査や調査研究に取り組んで参ります。

この所報は、主に令和5年度（2023年度）に職員が日々取り組んだ試験検査や調査研究の成果等を取りまとめたものです。関係者の皆様には、ご高配いただき忌憚のないご意見を頂戴できれば幸いです。

引き続き心からのご理解、ご協力をよろしくお願いします。

令和7年（2025年）3月

熊本県保健環境科学研究所

所長 榮田 智志

目 次

1 運 営

1・1 沿革・組織機構	1
1・2 職員の構成	2
1・3 職員の一覧表	2
1・4 施設及び主要備品	3
1・5 学会・研修等	5

2 業 務 実 績

2・1 微生物科学部	7
2・2 生活化学部	9
2・3 大気科学部	12
2・4 水質科学部	15

3 調査研究

3・1 報文

1) ノンパラメトリックデータの回帰：一般化加法モデルによる大気環境データの非線形回帰モデル構築に関する検討	18
2) 続・熊本地域の地下水管理行政の現状について	45

3・2 資料

1) 感染症発生動向調査に伴う病原体検査（2023 年度）	51
2) 日本脳炎調査（2023 年度）	55
3) LC-MS/MS によるテトロドトキシン分析法の検討	57
4) SFE-GC/MS/MS による畜水産物中残留農薬の一斉分析法の検討	60
5) 農産物及びミネラルウォーター類中の残留農薬検査結果（2016 年度～2023 年度）	73
6) 熊本県における放射能調査（2023 年度）	81
7) 熊本県の酸性雨長期モニタリング調査結果（2023 年度）	86

3・3 誌上発表論文抄録	90
--------------------	----

3・4 学会・研究会発表抄録

1) 所外における学会・研究会	92
-----------------------	----

Annual Report of Kumamoto Prefectural Institute
of Public-Health
and Environmental Science
No. 53 2023
Contents (Research)

Regular Articles

- 1) Regression on Nonparametric Data
- A Study on the Construction of Nonlinear Regression Model for Atmospheric Environment Data Using Generalized Additive Model -
Shoei FURUSAWA
- 2) The sequel to “Current status of groundwater management in the Kumamoto area”
Yasunori NAKAHORI, Jun SHIMADA^{*1}, Takahiro HOSONO^{*1}, Kimio KATSUYA^{*2}, Hitomi KOGA^{*2}, Masatoshi KAWASAKI^{*3}, Takamaru KOBAYASHI^{*4} and Yasuhiro TAWARA^{*4}
^{*1} Kumamoto University
^{*2} Kumamoto Groundwater Foundation
^{*3} Suntory Holdings Limited
^{*4} Geosphere Environmental Technology Corporation

Reports

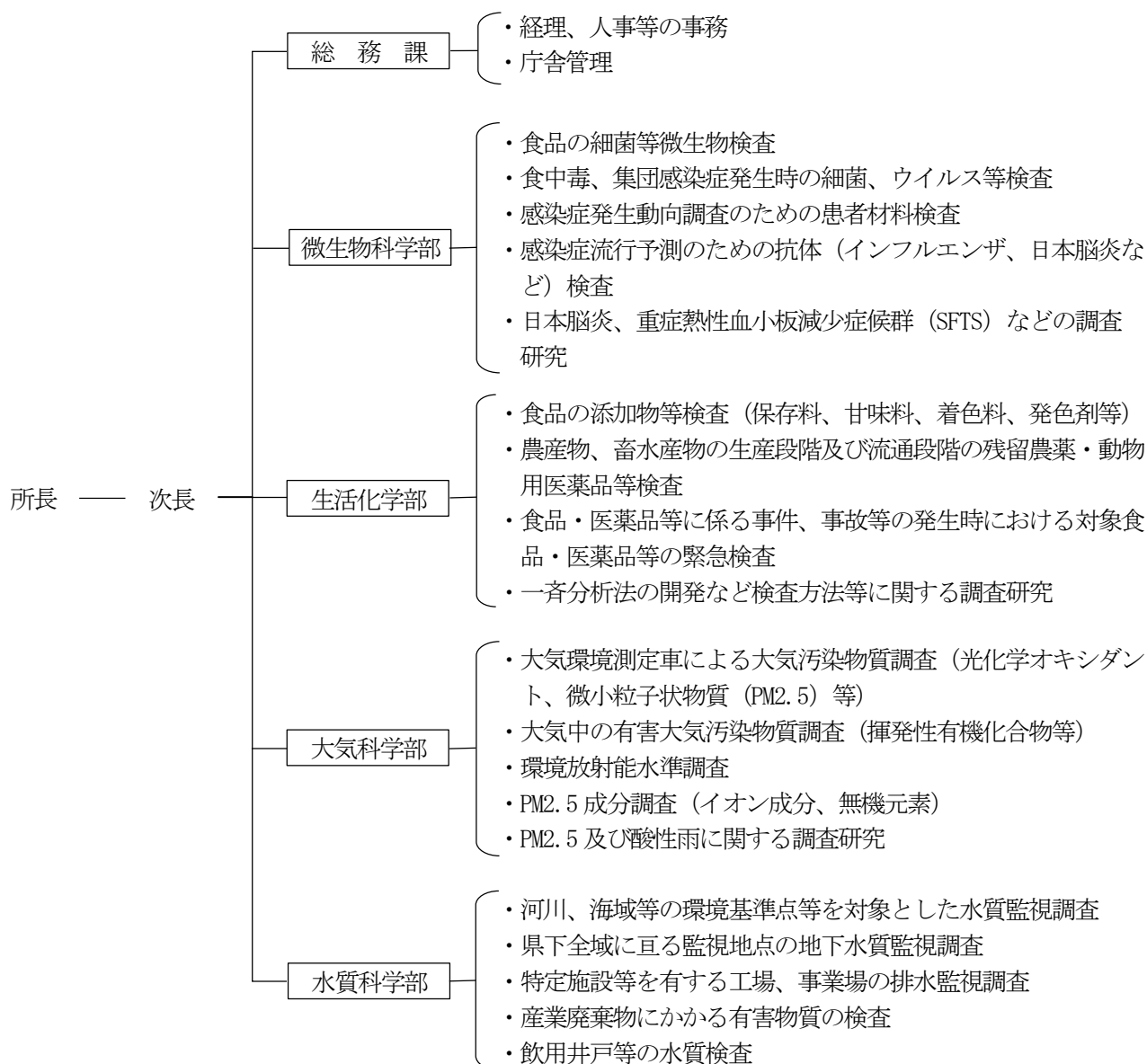
- 1) Epidemiological Surveillance of Infection Diseases in Kumamoto Prefecture (2023)
Yukie INOUE, Sumika RYU, Seiya HARADA, Takaaki HIRANO, Ichiro IZU, Misato MORI and Eisuke TOKUOKA
- 2) Surveillance of Japanese Encephalitis Virus Infection in Kumamoto Prefecture (2023)
Sumika RYU, Eisuke TOKUOKA
- 3) Study on analytical method of Tetrodotoxin by LC-MS/MS
Eriko SHIMA, Kazuma YAGI^{*1}, Yuko NAKAHARA^{*2}, Ai AOKI, Kentaro MONDA, Kana TAMURA and Asami IMATSUJI
^{*1} Former employee of the Institute of Health and Environmental Sciences
^{*2} Department of Health Welfare and the Environment, Kamoto Area Development Bureau, Northern Kumamoto Administrative Headquarters
- 4) Study of simultaneous analysis for residual pesticides in livestock and marine products by SFE-GC/MS/MS
Kentaro MONDA, Ai AOKI, Asami IMATSUJI, Eriko SHIMA, Kana TAMURA and Yuko NAKAHARA^{*}
^{*} Department of Health, Welfare and the Environment, Kamoto Area Development Bureau, Northern Kumamoto Administrative Headquarters
- 5) Survey of pesticide residues in agricultural products and bottled water (April 2016 – March 2024)
Kana TAMURA, Eriko SHIMA, Kentaro MONDA, Ai AOKI and Asami IMATSUJI

- 6) Radioactivity survey data in Kumamoto Prefecture(2023)
Kazunori UENO, Yumiko SUITO, Satoshi TOYONAGA, Shoei FURUSAWA, and Koki MITSUI
- 7) Long-term monitoring of acid deposition in Kumamoto Prefecture(2023)
Kazunori UENO, Shoei FURUSAWA

1 運 営

1・1 沿革・組織機構

昭和 23 年 12 月	厚生省 3 局長通達に基づき、細菌検査所と衛生試験所を統合し、熊本市に「熊本県衛生研究所」として発足
26 年 10 月	熊本県衛生研究所条例（現熊本県保健環境科学研究所条例）公布
45 年 7 月	熊本県衛生研究所に公害部を増設
46 年 9 月	「熊本県衛生公害研究所」と改称（生物科学部、理化学部、公害部）
52 年 4 月	公害部の組織改編（生物科学部、理化学部、大気部、水質部）
平成 7 年 4 月	宇土市に新築移転、「熊本県保健環境科学研究所」と改称（微生物科学部、生活化学部、大気科学部、水質科学部、地下水科学室（水質科学部部内室））
21 年 4 月	地下水科学室を廃止し、水質科学部に統合（微生物科学部、生活化学部、大気科学部、水質科学部）



1・2 職員の構成

(令和6年6月1日現在)

組 織	職 員 数									合 計
	事務系	技 術 系							技能 吏員	
		医師	獣医師	薬剤師	理工系 技師	農学系 技師	検査技師	小計		
所 長					1			1		1
次 長	1							1		1
総 務 課	2							2		2
微生物科学部			4	3				7		7
生活化学部				3		1	1	5		5
大気科学部				1	4			5		5
水質科学部				3	4			7		7
合 計	3	0	4	10	9	1	1	28	0	28

1・3 職員の一覧表

(令和6年6月1日現在)

職		氏 名		職		氏 名				
所 長		榮 田 智 志		大 気 科 学 部	大気科学部長 研 究 参 事 〃 研 究 員 〃	出納 由美子				
次 長		松 岡 和 美				豊 永 悟 史				
総 務 課	総務課長(兼務)	松 岡 和 美				古 澤 尚 英				
	主 幹 主 任 主 事	稲 葉 智 裕 小山 祐佳里				三 井 浩 揮 上 野 一 憲				
微 生 物 科 学 部	研 究 主 幹 (微生物科学部長)	徳 岡 英 亮		水 質 科 学 部	研 究 主 幹 (水質科学部長) 研 究 参 事 研 究 員 〃 〃 〃 〃	中 堀 靖 範				
	研 究 主 幹 〃	平 野 孝 昭 伊 豆 一 郎				永 田 武 史 芹 川 大 成				
	研 究 参 事	森 美 聡				小 原 彬 生				
	研 究 主 任	井上 祐希江				奥 村 美 紘				
	研 究 員 〃	笠 純 華 原 田 誠 也				北 岡 宏 道 松 村 光 紗				
	生 活 化 学 部	研 究 主 幹 (生活化学部長)	今 辻 麻 美							
		研 究 参 事	島 絵 里 子							
研 究 主 任 〃		田 村 香 菜 門田 健太郎								
研 究 員		青 木 愛								

1・4 施設及び主要備品

1・4・1 施設

			(単位 m ²)
敷地			22,998.74
庁舎概要			
本館	鉄筋コンクリート造 3階建 (平成7年2月20日)		5,436.08
1F	総務課 微生物科学部 テレメーター室		1,880.82
2F	生活化学部 大気科学部 会議室 講堂		1,735.38
3F	水質科学部 図書室 教養室		1,735.38
RF			84.50
排水処理室	鉄筋コンクリート造		9.90
車庫	鉄骨造		113.10
動物舎	鉄筋コンクリート造		158.40
危険物等倉庫	鉄筋コンクリート造・一部鉄骨造		50.00
感染性廃棄物保管庫	軽量鉄骨造		23.85
屋外検体受付室	軽量鉄骨造		9.78
計			5,801.11

施設の建物別面積

			(単位 m ²)
区 分	面 積	備 考	
管 理 部 門	109.20		
研 修 部 門	230.50	図書室 61.0 会議室 講堂 149.2 教養室 20.3	
技 術 部 門	4,316.96		
倉 庫	326.64		
ボイラー・機械室等	316.80		
その他・共通部門	135.98		
小 計	5,436.08		
その他	排水処理室	9.90	
	車 庫	113.10	
	動 物 舎	158.40	
	危険物等倉庫	50.00	
	感染性廃棄物保管庫	23.85	
	屋外検体受付室	9.78	
計		5,801.11	

1・5 学会・研修等

1・5・1 出席した主要な学会・研究会等

年 月	名 称	場所・ 方法	氏 名
5年6月	環境研究合同発表会	Web	豊永
7月	第43回衛生微生物技術協議会	岐阜県	徳岡、井上
7月	結核予防技術者地区別講習会（九州地区）	熊本市	笠
8月	Ⅱ型共同研究対面会合及び勉強会	つくば市	豊永、古澤
9月	環境科学会2023年会*	神戸市	豊永
9月	第64回大気環境学会年会*	つくば市	豊永
10月	第49回九州衛生環境技術協議会分科会	福岡市	島、田村、森、 笠、豊永、澤田
10月	水・大気環境連携セミナー	Web	豊永
11月	第60回全国衛生化学技術協議会年会	福島市	田村
11月	第46回日本農薬学会農薬残留分析研究会	長野市	門田
12月	2023年度環境情報科学研究発表大会*	東京都	豊永
6年1月	令和5年度化学物質環境実態調査 環境科学セミナー	Web	出納、上野
1月	地環研Ⅱ型-B共同研究「災害時等における化学物質の網羅的簡易迅速測定法を活用した緊急調査プロトコルの開発」全体会合	Web	小原
2月	希少感染症診断技術研修会	Web	徳岡、平野、伊豆 森、原田、井上、 笠
2月	令和5年度九州ブロック模擬訓練事業結果検討会	Web	中原、島、田村
2月	全国環境研究所交流シンポジウム	Web	豊永
3月	化学輸送モデル研究集会	Web	豊永
3月	令和5年度環境放射能水準調査に係る技術検討会	Web	上野
3月	大気環境学会九州支部第24回研究発表会*	福岡市	豊永・古澤
3月	第58回日本水環境学会年会*	福岡市	豊永、小原
3月	大気環境学会環境大気モニタリング分科会第54回研究会	Web	豊永

*職員が発表した学会等

1・5・2 出席した技術研修等

年 月	名 称	場所・方法	氏 名
5年 8月	病原体等の包装・運搬講習会	福岡県	徳岡、井上、笠
9月	令和5年度特定機器分析研修Ⅰ（ICP-MS）第1回	埼玉県	芹川
10月	令和5年度特定機器分析研修Ⅱ（LC/MS/MS）第2回	埼玉県	奥村
11月	環境省環境調査研修所「令和5年度アスベスト分析研修」	所沢市	三井
11月	PK法研修会	Web	豊永、古澤
12月	0x メカニズム勉強会	Web	豊永、三井
6年 1月	動物由来感染症レファレンスセンター研修会（野兔病）	東京都	笠
2月	環境省環境調査研修所「令和5年度大気分析研修」	所沢市	古澤
3月	「ワンヘルス動物由来感染症サーベイランスの全国展開に向けた基盤構築に資する調査研究」技術研修会	福岡県	平野、笠

2 業務実績

2・1 微生物科学部

令和5年度は、新型コロナウイルス感染症が感染症法上5類に移行し、新型コロナウイルス検査数は令和4年度と比較して激減した。この他、それ以外の各感染症の検査、食中毒・有症苦情の原因微生物検査、食品の微生物規格基準検査、ツツガムシ病・日本紅斑熱患者の血清学的検査、健康福祉部職員のB型肝炎（HBs抗原・抗体）検査等を行った。また、国庫委託事業として、感染症流行予測調査事業（日本脳炎の感染源調査）、感染症発生動向調査事業等を行った。これらの試験・検査業務に加え、調査研究を行った。

主な試験検査及び調査研究の概要は次のとおりである。なお、業務実績を別表に示す。

2・1・1 試験検査

1) 感染症検査

感染症発生届に基づき、保健所等から依頼された検体（細菌159検体、ウイルス・リケッチア及びその他107検体）について、検査を行った。検出された病原体は腸管出血性大腸菌、日本紅斑熱リケッチア、ツツガムシ病リケッチア、SFTSV等であった。

2) 食中毒・有症苦情検査

食中毒・有症苦情関連の77検体について、原因微生物の検索及び同定検査を行った。その結果、原因微生物としてノロウイルス、カンピロバクター等が検出された。

3) 食品中の微生物検査

魚肉練り製品等57検体の微生物規格検査等を行った。

4) 新型コロナウイルス検査

新型コロナウイルス感染症が感染症法上の5類感染症に移行したこともあり、保健所から通常検査のために搬入された検体は23検体と、令和4年度の26,040検体から大きく減少した。ゲノム解析832検体を実施した。

5) その他微生物検査

健康福祉部職員のうち希望のあった88名の血清についてHBs抗原及びHBs抗体検査を行った。

6) 感染症流行予測調査

日本脳炎の感染源調査を、6月下旬～8月下旬にかけて、生後4～6ヶ月のブタ92頭についてJEVに対するHI抗体及び2-ME感受性抗体を測定した。詳しくは3・2資料の項に掲載した。

7) 感染症発生動向調査事業に伴う検査

令和5年4月から令和6年3月までに、検査定点医療機関等において採取された105検体について、A549、RD-A、VeroE6等による組織培養法、遺伝子学的検査法等を用いて病原体の検査を行った。詳しくは3・2資料の項に掲載した。

2・1・2 調査研究

動物由来感染症に関する研究として、令和5年度から重症熱性血小板減少症候群ウイルス等のダニ媒介感染症の予防に資するための研究を、また同じく令和5年度より下水中の薬剤耐性菌に係る調査研究を実施している。

微生物科学部業務実績表

分 類	事 業 名	業 務	令和 5 年度		令和 4 年度	
			件 数	延項目数	件 数	延項目数
行政検査	(1) 感染症病原体検査	細菌	159	223	264	489
		ウイルス・リケッチア・その他	107	270	86	207
	(2) 食中毒・有症苦情検査	原因物質検査	77	1246	217	1085
	(3) 食品中の微生物検査	からし蓮根・馬刺・魚肉練り製品等	35	35	19	19
		野生鳥獣肉等	26	26	13	13
		生カキ・海水	8	8	8	8
	(4) 新型コロナウイルス検査	通常検査	23	23	26,040	26,040
		ゲノム解析	832	832	1,210	1,210
	(5) その他の微生物検査（B型肝炎検査等）		88	88	76	76
	合 計		1355	2751	27933	29147
国庫委託調査	(6) 感染症流行予測調査（感染源）		92	92	90	90
	(7) 感染症発生動向調査		105	1050	116	1160
	合 計		197	1142	206	1250
調査研究	動物由来感染症に関する調査研究		634	1134	0	0
	薬剤耐性細菌に係る調査研究		129	258	231	462
	その他		0	0	0	0
	合 計		763	1392	231	462
総 計			2315	5285	28370	30859

2・2 生活化学部

令和5年度は、行政依頼検査として農産物の残留農薬検査、食品中の食品添加物等の規格基準検査、畜水産食品中の動物用医薬品等残留検査のほか、熊本県食の安全安心推進条例に基づく県産農林水産物中の農薬・動物用医薬品等の出荷前残留検査を実施した。また、医療機器等の品質、有効性及び安全性の確保等に関する法律に基づく医薬品の検査を実施した。

主な試験検査及び調査研究の概要は次のとおりである。なお、業務実績を別表に示す。

2・2・1 試験検査

1) 食品・食品添加物等の規格基準検査

食品中の添加物検査として、保存料、甘味料等の検査を実施した結果、基準を超えるものはなかった。

2) 魚介類の水銀検査

県内で漁獲され、県内に流通している魚介類の総水銀検査は、平成13年度から八代保健所試験検査課で行い、当所では同課の検査の結果、総水銀の値が暫定的規制値を超えた検体について有機水銀検査を実施することとしている。

令和5年度は該当する検査はなかった。

3) 畜水産食品中の動物用医薬品等残留検査

生産段階で使用される動物用医薬品、飼料添加物等が、食肉・魚介類等の畜水産食品中に残留している実態を把握するため、食肉、養殖魚介類、牛乳等について、動物用医薬品の検査を実施した結果、基準値超過はなかった。

また、食肉衛生検査所から依頼のあった病畜疑いの牛肉及び豚肉の検査を計4検体実施した。

4) 食品中の残留農薬検査

輸入食品を含む穀物、野菜、果実等の農作物について、残留農薬試験を実施した結果、基準値超過はなかった。

5) 特定アレルギー物質検査

食品中の特定アレルギー物質（落花生、そば、えび・かに）の表示確認試験を実施した結果、えび・かに（検体：魚肉練り製品）で混入疑いが1件あった。

6) 医薬品等に関する試験検査

GMP（医薬品及び医薬部外品の製造管理及び品質管理の基準）調査要領に基づき、組織や品質マニュアル等を整備し公的認定試験検査機関として、平成24年10月1日認定を受けた。

令和5年度は、ミグリトール口腔内崩壊錠25mgの確認試験を実施した結果、該当する成分が含有していることを

確認した。

7) 薬事に関する業務

医薬品的な効能効果を表示した食品（いわゆる健康食品）による健康被害が疑われる場合などに、本庁担当課からの依頼を受け、含有成分等の分析を行うこととしている。

令和5年度は該当する検査はなかった。

8) 器具、容器包装の規格基準検査

食品の調理、製造加工、運搬及び保存等に用いられる器具及び容器包装について、食品衛生法で定められた規格基準（カドミウム、鉛）の検査を実施した結果、基準値超過はなかった。

9) おもちゃの規格基準検査

おもちゃについては、食品衛生法で定められた規格基準（重金属、ひ素、着色料）の検査を実施した結果、基準値超過はなかった。

10) GLPに関する精度管理試験

（GLP：Good Laboratory Practice）

内部点検作業書（SOP：Standard Operating Procedure）に基づき、信頼性確保部門責任者による内部点検を実施しているが、その一環として、一般財団法人食品医薬品安全センター秦野研究所が実施する食品衛生外部精度管理調査に参加した。

調査項目は、食品添加物（ソルビン酸）、残留農薬（アトラジン、クロルピリホス、チオベンカルブ、フェントエート、フルトラニル、マラチオンの6種類中の3種）、残留動物用医薬品（スルファジミジン）であり、結果は残留農薬の定量で不満足な結果となり、それ以外の項目については全て良好であった。

11) 衛生検査施設における医薬品外部精度管理

医薬品医療機器法に規定する登録試験検査機関については、その試験成績の信頼性の確保及び検査技術の向上を

図るため、「医薬品の試験検査機関における試験検査の実施の基準」において、必要に応じて外部精度管理を受ける機会を設けることとされている。

令和5年度は、外部精度管理試験を実施しなかった。

12) 熊本県食の安全安心推進条例に基づく出荷前農林水産物中の残留農薬等検査

熊本県産の主要な農林水産物について農薬、動物用医薬品等の出荷前における残留検査を実施した結果、食品衛生法の基準値を超えるものはなかった。

また、他機関が実施した収去検査による基準値超過事例1件において、出荷再開前の確認検査を実施し、基準値の超過が無いことを確認した。

13) 有症苦情に関する検査

令和5年度は該当する検査はなかった。

14) 地方衛生研究所九州ブロック模擬訓練

健康危機発生時における検査体制の確立と関係機関との連携・協力体制の検証を目的に、原因不明の健康危機事案を想定した毒性物質の定性・定量検査の模擬訓練に参加した。想定シナリオ及び送付試料のLC-MS/MS分析により、対象物質はナツメグに含まれるエレミンであることを推定した。

2・2・2 調査研究

1) 食品中の食品添加物の一斉分析法検討及び妥当性確認

令和6年に「食品中の食品添加物分析法の妥当性確認ガイドライン」が策定され、経過措置期間である令和11年3月7日までに、食品添加物分析法の妥当性を確認する必要がある。当所では、独自に食品添加物の迅速一斉分析法を開発し分析をおこなってきたが、着色料等のピーク形状や感度等に一部課題が残っていた。このため、当所で開発したLC/MS/MSによる食品添加物の迅速一斉分析法において、分析カラムの検討及び試験溶液の溶媒比率の変更により、着色料等のピーク形状の改善が見られた。

2) SFE-GC/MS/MSによる畜水産物中農薬の残留農薬分析法検討

当所では、SFE-GC/MS/MSを用いた残留農薬の一斉分析法を確立し年間100検体の農産物の検査を実施しており、今般、SFE-GC/MS/MSを用いた畜水産物中農薬の一斉分析法の開発に取り組んだ。当所で開発した「SFE-GC/MS/MSによる農産物中の残留農薬一斉分析法（H31年度熊本県保健環境科学研究所報）」について、畜水産物を対象に2濃度（0.01ppm、.1ppm）を添加し、「食品中に残留する農薬等に関する試験法の妥当性評価ガイドライン」に沿って妥当性評価試験を実施した（畜水産物は牛肉、鶏肉、ぶり、はちみつの4品目、検討農薬数は284成分）。結果、牛肉（223成分）とぶり（213成分）において妥当性評価ガイドラインの評価基準を満たしており、今後の畜水産物中農薬の分析体制が構築につながった。

3) LC/MS/MSによるテトロドトキシン分析法の構築

本県では、例年、フグ毒（テトロドトキシン）による食中毒が発生している。フグによる食中毒は致死率が高く、迅速な検査が求められているが、フグ毒の検査は、食品衛生検査指針に示されているマウス検定法であり、当所ではマウスを常備していないため、迅速な対応は困難である。

当所では、これまで、マウスを使用せずLC/MS/MSを用いた機器分析による迅速分析法を報告したが、近年、食中毒での分析事例がなかったため、今回の分析機器の変更に伴い、新たな分析条件を検討し、カラム及び移動相の種類を変更した。

2・2・3 その他

1) 保健環境研究所検体管理システムの機能追加及び改修

令和4年度に当該システムを構築し、令和5年度から運用を開始したが、GLP管理上、必要な機能の追加及び改修を行った。これまで紙で運用していた搬入票を当該システム入力とし、分析データの保存及び成績書の発行まで一元的に管理できるようにした。

生活化学部業務実績表

分 類	事 業 名	業 務	令和 5 年度		令和 4 年度	
			検体数	延項目数	検体数	延項目数
行政検査	(1) 食品・添加物等の規格基準検査	清涼飲料水成分規格	6	16	13	29
		甘味料	20	60	2	6
		着色料	20	280	2	36
		保存料	20	140	3	3
		発色剤 亜硝酸ナトリウム	1	1	1	1
		漂白剤 二酸化硫黄等	0	0	0	0
		プロピレングリコール	0	0	0	0
		米（玄米）中のCd	0	0	1	1
		酸化防止剤	20	120	0	0
		防かび剤	4	12	0	0
		メラミン	0	0	0	0
		小 計	91	629	22	76
		(2) 魚介類の水銀検査		0	0	0
	(3) 畜水産食品中の動物用医薬品残留検査	通常収去分	61	5,856	49	3,773
		食検からの依頼検査	4	384	5	5
		小 計	65	6,240	54	3,778
	(4) 食品中の残留農薬検査	野菜,果実,米穀等	37	18,685	21	7,053
	(5) 特定アレルギー物質検査		24	48	13	26
	(6) 医薬品等に関する試験検査	確認検査等	1	1	1	1
	(7) 薬事に関する業務	健康食品等	0	0	0	0
	(8) 器具・容器包装規格基準検査	材質及び溶出試験	4	8	0	0
	(9) おもちゃの規格基準検査		2	6	0	0
	(10) GLPに関する精度管理試験	保存料,重金属	1	1	1	1
		残留農薬,合成抗菌剤	2	3	2	4
		小 計	3	4	3	5
	(11) 衛生検査施設における医薬品外部精度管理試験		0	0	0	0
	(12) 熊本県食の安全安心推進条例に基づく出荷前農薬等検査	野菜,果実,穀類,茶	22	8,457	22	6,330
		畜水産物	12	1,152	21	1,526
		小 計	34	9,609	43	7,856
	(13) 有症苦情に関する検査		0	0	0	0
	(14) 地方衛生研究所九州ブロック模擬訓練		1	1	1	2
	(15) その他の行政依頼検査		1	1	10	100
国委託事業	(16) 農薬等の試験法開発・検証事業		1	0	10	400
	総 計		264	35,232	178	19,297

2・3 大気科学部

令和5年度は、大気環境測定車による大気環境調査、有害大気汚染物質調査及びアスベスト環境調査等を実施した。また、微小粒子状物質（PM_{2.5}）については成分調査を行った。その他、二次生成大気汚染物質（光化学オキシダント（Ox）、微小粒子状物質（PM_{2.5}））の発生要因等についての調査研究を行った。

試験検査の結果は、別途「大気・化学物質・騒音等環境調査報告書」及び「環境白書」として公表される。

主な試験検査及び調査研究の概要は次のとおりである。業務実績を別表に示す。

2・3・1 試験検査

1) 大気環境測定車による大気環境調査

熊本県では、県内35か所に設置した大気汚染常時監視測定局（以下「測定局」という。）における大気汚染物質（二酸化いおう、二酸化窒素及び光化学オキシダント等）濃度の常時監視を実施している。

このほか大気環境測定車により、既存の測定局だけでは捉えられない局地的な事象や常時監視における高濃度あるいは環境基準達成率の低い項目等の調査を機動的に実施している。

令和5年度は地域の光化学オキシダント濃度上昇に影響を与える各種要因の寄与を明らかにするため、令和3年度から継続して測定を行ってきた草地畜産研究所敷地（阿蘇市）において8月末にかけて延べ210日間の調査を行った。（2.3.2.4参照）。

また、9月からは半導体関連企業集積に伴う大気環境モニタリングの一環として、菊陽町において一般環境大気の状態把握のため、測定を行った。（令和6年度も調査を継続している。）

2) 酸性雨長期モニタリング調査

県内では酸性雨による被害は顕在化していないが、東アジアの経済発展に伴う酸性物質排出量の増加による影響が懸念される。そこで、昭和63年10月から酸性雨の実態を把握するための調査を行っている。

令和5年度は宇土市及び阿蘇市一の宮の2地点で調査を実施した。1週間毎に回収した降水について、pH、電気伝導率及びイオン成分を測定した。得られたデータを用いて湿性沈着量等の算出と解析を行い、結果を3・2資料の項に掲載した。

3) 微小粒子状物質（PM_{2.5}）成分調査

微小粒子状物質（PM_{2.5}）には多種の物質が含まれるが、それらの科学的情報が不明であることから、平成25年7月に本調査を開始した。

令和5年度は原則として国（環境省）が統一した日程に基づき、県央の宇土市1地点において春季、夏季、秋季及び冬季の計4回にわたり試料を採取し、イオン成分及び無機元素並びに炭素成分を測定した。なお、炭素成分の分析については民間分

析機関に委託した。

4) 有害大気汚染物質調査

低濃度であっても長期的に暴露されると発がん性等の健康影響の可能性があるとされる「有害大気汚染物質」による汚染を把握するため、平成9年10月から本調査を行っている。

令和5年度は、一般環境調査として玉名市の1地点で毎月1回、年12回試料を採取し、重金属類、アルデヒド類及び揮発性有機化合物類（VOCs）等を測定した。また、発生源周辺調査として菊陽町の1地点での調査を開始し、奇数月に1回、年6回試料を採取し、重金属類、アルデヒド類及び揮発性有機化合物類（VOCs）等を測定した。なお、VOCsのうち6項目の分析は民間分析機関に委託した。

5) アスベスト環境調査

アスベストモニタリングマニュアル（第4.1版 平成29年7月環境省）に基づき、一般環境中の総繊維数濃度を測定している。なお、分析走査電子顕微鏡法によるアスベスト繊維数の計測は民間分析機関に委託している。令和5年度は山鹿市の2地点において調査を行った。

また、平成30年10月より解体工事現場等における蛍光顕微鏡を用いたアスベスト漏えい監視調査を行っており、令和5年度は11件の調査を行った。

6) 九州新幹線鉄道騒音調査

九州新幹線鉄道の平成16年3月部分開業及び平成23年3月全線開業に伴い、沿線の騒音及び振動について環境基準値または指針値の超過状況を把握し、沿線住民の生活環境を保全するための調査を行っている。

令和5年度は計7地点において実施した。

7) 半導体関連企業集積に伴う大気環境モニタリング調査（金属類）

県内で半導体関連企業の集積が進む中で、規制外の金属類等による環境影響を心配する意見が県に寄せられている。こうし

た意見に応え、県民の不安解消を図るために、工場の稼働前から大気環境モニタリングを行い、企業の集積による環境の変化を客観的かつ科学的に把握することを目的に、令和5年9月から調査を開始した。

令和5年度は、菊陽町の1地点で季節毎に1回、年3回試料を採取し、大気環境中の金属類を測定した。

8) 環境放射能水準調査（原子力規制庁委託）

平常時及び緊急時における放射能の分布状況を把握し、影響について正確な評価に資することを目的に、平成元年度から国の委託により環境等試料の放射性核種分析、定時降水中の全ベータ放射能測定及びモニタリングポストによる空間放射線量率測定調査を行っている。

令和5年度の調査結果を3・2資料の項に掲載した。

9) 化学物質環境実態調査（環境省委託）

令和5年度はモニタリング調査（8物質対象）として、1地点で試料採取を行った。

2・3・2 調査研究

1) 酸性雨広域大気汚染調査

日本全域における酸性沈着による広域大気汚染実態の把握を目的とした全国環境研協議会による共同調査であり、当研究所は平成3年度から参加している。令和5年度も継続して調査を実施し、酸性雨長期モニタリング調査（2.3.1.2）参照）のデータについて共同解析を実施した。

2) 光化学オキシダント等の変動要因解析を通じた地域大気汚染対策提言の試み（国立環境研究所とのⅡ型共同研究）

令和2年度における光化学オキシダント（Ox）の環境基準達成率は全国が0.2%、県内が0%であり、依然として非常に低い状況が続いており、令和元年5月には県内で光化学スモッグ注意報が10年ぶりに発令されている。また、微小粒子状物質（PM_{2.5}）による大気汚染は、近年全国規模で改善傾向にあるが、依然として環境基準達成率の低い地域がある。

これらの物質による大気汚染は高い地域依存性を持つと同時に広域的な汚染の影響を受けるため、全国の地方環境研究所と国立環境研究所による共同研究が進められている。

当研究所は行政支援グループに参画し、空間濃度分布予測手

法を行政支援に活用する手法の検討を行った。

熊本県内の光化学オキシダントによる大気汚染の状況について、大気汚染物質の空間濃度分布予測手法である Regression Kriging 法等により、県内全域の詳細な濃度分布の予測を試みた。また、この手法を簡易に使用できるツールの開発を国立環境研究所と共同で進めた。

3) 二次生成大気汚染物質（光化学オキシダント（Ox）、微小粒子状物質（PM_{2.5}））の発生要因調査

発生源から直接排出されるガスなど（一次大気汚染物質）から大気中での化学反応を経て生成し、光化学オキシダント（Ox）及び微小粒子状物質（PM_{2.5}）の濃度上昇の原因とされる二次生成大気汚染物質について、周辺の発生源の影響がない熊本県農業研究センター草地畜産研究所（阿蘇市、標高930m地点）において、大気環境測定車による調査を令和3年度に引き続き実施した。VOCs等の測定は熊本大学戸田敬教授の協力のもとで行った。これらの測定データを基に発生要因を詳細に解析した。

4) アスベスト解体工事の効果的監視に向けた立入支援システムの検討

大気汚染防止法の改正により、解体工事におけるアスベストの排出規制対象がレベル3まで拡充された。これに伴い、県の指導権限が広がり立入等の業務量が大幅に増加することが見込まれ、効率的な立入計画の策定や無届（無報告）による解体工事に対する監視の強化が重要となる。

そこで建物の情報や解体等工事業者の情報等から、各工事の立入優先度を設定する手法を検討した。これらの手法をベースとして、公害関係届出等台帳システムに組み込む形で立入優先度を半自動的に判定するシステムが構築され、実際に立入検査対象の設定等に活用された。なお、手法の一部について、専門誌に論文を掲載した。

5) 地方環境研究所の研究成果の活用に関する研究

地方環境研究所で実施された研究成果の自治体の政策等への活用状況や活用に至るメカニズム等をインタビュー調査等により明らかにすることを試みた。

これまでの調査結果の総合的な分析から、研究成果が活用に至るメカニズム及び研究の種類が明らかになった。

大気科学部業務実績表

分 類	事 業 名	業 務	令和5年度		令和4年度	
			件 数	延項目数	件 数	延項目数
行政検査	(1) 大気環境測定車による大気環境調査		303	4503	210	2792
	(2) 酸性雨調査		45	495	46	506
	(3) 微小粒子状物質 (PM _{2.5})成分調査	(イ) イオン成分	64	512	64	512
		(ロ) 無機元素	64	832	64	832
		小 計	128	1,344	128	1,344
	(4) 有害大気汚染物質 調査	(イ) 重金属類	40	120	26	78
		(ロ) VOCs, アルデヒド類	80	180	53	117
		小 計	120	300	79	195
	(5) アスベスト環境 調査	(イ) 一般環境	6	6	6	6
		(ロ) 解体現場等	29	29	17	17
		小 計	35	35	23	23
(6) 九州新幹線鉄道騒音調査		7	7	6	6	
(7) 半導体関連企業集積に伴う大気環境モニタリング 未規制金属類		4	72	—	—	
合 計		642	6,756	492	4866	
国庫委託 調 査	(8) 環境放射能水準調査 (原子力規制庁委託)	(イ) 空間放射線量率	2,148	2,148	2,202	2,202
		(ロ) 全ベータ放射能	100	100	90	90
		(ハ) ガンマ線核種分析	26	118	26	118
		小 計	2,274	2,366	2,318	2,410
	(9) 化学物質環境実態調査（環境省委託）		6	12	6	12
	合 計		2,280	2,378	2,324	2,422
総 計			2,922	9,134	2,816	7,288

2・4 水質科学部

令和5年度は「公共用水域及び地下水水質測定計画」に基づく公共用水域や地下水の水質調査、水俣湾環境調査等を行った。これらの結果は「水質調査報告書（公共用水域及び地下水）」及び「熊本県環境白書」等として公表される。

また、水質汚濁防止法に基づく特定事業場等排水監視調査、熊本県地下水保全条例に基づく対象事業場の排水及び地下水調査のほか、産業廃棄物最終処分場や不法投棄箇所周辺の地下水・公共用水域の調査を行った。この他、飲用井戸の水質検査等を行った。

主な試験検査及び調査研究の概要は次のとおりである。なお、業務実績を別表に示す。

2・4・1 試験検査

1) 公共用水域水質測定計画に係る調査

公共用水域監視調査として、河川水及び河川底質を対象として県内 53 河川 128 調査地点（国，県，市の合計）で行っている。うち熊本県分 34 河川 53 地点の河川水計 454 検体について生活環境項目及び健康項目等として延べ 3,412 項目、底質については 6 検体延べ 24 項目の分析を行った。

また海域では 4 海域の健康項目について、海水 14 検体延べ 161 項目、底質 16 検体延べ 103 項目の分析を行った。

2) 地下水質測定計画に係る調査

県内各地域の地下水質の概況を把握するため、県内の地下水位観測井戸を対象として計25検体延べ25項目の分析を行った。

また、荒尾地域硝酸性窒素削減計画に定められた指標井戸の地下水質動向調査（特定地点調査）として、35検体延べ175項目の分析を行った。

3) 特定事業場等排水監視調査

水質汚濁防止法及び県生活環境の保全等に関する条例に係る特定事業場や指定工場等の排水について、主要 6 工場 46 検体延べ 268 項目、一般工場 79 検体延べ 477 項目の分析を行った。

4) 水俣湾環境調査

水俣湾における水質等の状況を把握することを目的として、海水 12 検体、地下水 4 検体、底質 3 検体について総水銀、濁度、塩化物イオン等延べ 33 項目の分析を行った。

5) 産業廃棄物に係る調査

廃棄物の処理及び清掃に関する法律施行前の自社最終処分場周辺等における有害物質の監視調査として、23 検体延べ 117 項目の分析を行った。

6) 荒尾浦川流域化学物質汚染対策調査

荒尾市浦川流域における化学物質汚染に係る調査として、ペンタクロロフェノール等について9検体延べ9項目の分析を行った。

7) 飲用井戸等の行政検査

飲用井戸等衛生対策要領により飲用井戸等の衛生の確保を図るため、水道水質基準の一部項目（セレン，鉛，亜鉛，アルミニウム，鉄，マンガン，ひ素，ふっ素，ほう素等）について、30検体延べ350項目の分析を行った。

8) 研究所排水等自主検査

当研究所の排水は宇土市終末処理場で処理されているが、当該排水の水質が下水道法に定める下水排除基準に適合しているか確認するための自主検査を年 2 回実施し、2 検体延べ 56 項目の分析を行った。

併せて、当研究所敷地内の井戸水についても年 2 回 2 検体延べ 36 項目の分析を行った。

9) 精度管理調査

環境測定分析の精度の向上を図り、環境測定データの信頼性の確保に資することを目的に環境省が実施する標記調査に参加し、3検体延べ18項目の分析を行った。

10) 化学物質環境実態調査

環境省委託化学物質環境実態調査モニタリング調査として緑川（平木橋）で1検体、また詳細環境調査として緑川（平木橋）で1検体、大鞘川（第二大鞘橋）で1検体を採取し、調査担当機関に送付した。

併せて、当研究所においても採取直後の水質について生活環境項目等延べ14項目の分析を行った。

2・4・2 調査研究

1) 地下水中硝酸性窒素の変動要因の検討

過去の地下水質測定結果や土地の利用状況等を用いて、熊本地域における地下水の硝酸性窒素等の濃度と窒素負荷量の空間的・経時的な変動を比較、解析し、地下水の硝酸性窒素の濃度と窒素負荷量との関係について検討した。

水質科学部業務実績表

分 類	事 業 名	業 務	令和5年度		令和4年度	
			件数	延項目数	件数	延項目数
行政 検 査	(1) 公共用水 域監視調査	(イ) 河川調査（河川+河川底質）	460	3,436	381	3,128
		(ロ) 海域調査（海水+海域底質）	30	264	34	253
		(ハ) 委託クロス調査	4	12	4	12
		小 計	494	3,712	419	3,393
	(2) 地下水質 測定計画に 係る調査	(イ) 概況調査，特定地点調査	60	200	111	1,433
		(ロ) 委託クロス調査	2	8	1	2
		小 計	62	208	112	1,435
	(3) 特定事業 場排水監視 調査	(イ) 主要工場	46	268	42	201
		(ロ) 一般工場	79	477	42	247
		(ハ) 有害工場	70	537	0	0
		小 計	195	1282	84	448
	(4) 地下水 保全条例に 係る調査	(イ) 井戸水	47	142	0	0
		(ロ) 排水	52	156	0	0
		小 計	99	298	0	0
	(5) 水生生物を指標とした川の水環境調査		1	2	7	14
	(6) 水俣湾水域環境調査		19	33	15	27
	(7) 産業廃棄物に係る調査		23	117	24	130
	(8) ゴルフ場で使用する農薬の分析		0	0	0	0
	(9) 荒尾浦川流域化学物質汚染対策調査		9	9	4	4
	(10) 飲用井戸等の行政検査		30	350	30	420
	(11) その他の行政検査		19	132	3	7
	(12) 研究所排水自主検査		4	92	4	112
	(13) 環境測定分析統一精度管理調査		3	18	2	6
	(14) 苦情・水質事故に関する分析		0	0	7	25
	(15) グリーン農業に係る地下水質調査		0	0	0	0
	(16) 調査研究等に係る分析		107	1,313	61	79
委託 調査	(17) 化学物質環境実態調査		3	14	3	15
総 計			1,068	7,580	775	6115

3 調 査 研 究

3・1 報 文

1) ノンパラメトリックデータの回帰：一般化加法モデルによる 大気環境データの非線形回帰モデル構築に関する検討

古澤 尚英

要 旨

ノンパラメトリックデータの回帰・推論・予測を行う場合、一般化加法モデルを用いると、線形回帰モデルに比べて予測精度が高く、モデルの説明性が高いと言われている。本報では、ノンパラメトリックデータである光化学オキシダント濃度について、一般化加法モデルで日射量、気温及び風速データを用いた回帰・推論・予測を行い、最適なモデルを得ることができた。また、一般化加法モデルは線形回帰モデルより高い精度で回帰・推論・予測を行うことができ、環境データを解析する際の重要な選択肢の一つとなることが示された。

キーワード：一般化加法モデル，光化学オキシダント，予測，推論，R 言語

は じ め に

大気汚染物質は、大気汚染防止法第 22 条に基づき都道府県知事が監視することとなっており¹⁾、大気汚染防止法第 22 条の規定に基づく事務の処理基準²⁾に基づき常時監視項目や観測局数等の体制整備にすることが定められている。大気汚染物質のうち、自動測定機によりモニタリングされている窒素酸化物、硫黄酸化物、微小粒子状物質等の物質は、令和 4 年度の全国調査結果において環境基準をほぼ 100%達成していたが、一方で、光化学オキシダント（以下「Ox」という。）は環境基準達成率が 0.1%）であった。

このような状況から、Weather Research and Forecasting model (WRF) や (CMAQ) 等の大気環境シミュレーション等を用いて、大気汚染物質の空間濃度分布の予測、大気汚染物質の生成、飛来予測などの研究が進められている^{4) - 6)}。また、大気汚染物質の空間濃度分布予測は、大気汚染常時監視測定局の配置検討や光化学オキシダント注意報等発令地域区分の検討等、行政的な活用がしやすい有用なデータであるが、一方で、大気環境シミュレーションには専用のソフトウェアの準備が必要であり、これらのソフトウェアの構築には多大なコストがかかるため地方自治体職員が単独で実施することは難しく、シミュレーションモデルを用いた検討は一部の研究者が先行して実施している状況である。

そこで筆者を含む検討メンバーは、国立環境研究所と地方環境研究所とのⅡ型実施共同研究⁷⁾の枠組みにおい

て、常時監視測定局の観測体制見直し及び発令地域区分等の検討に使用する目的で、大気汚染物質の空間濃度分布を統計・機械学習的に求めるライブラリの開発を行った^{8), 9)}。このライブラリに導入した空間濃度分布を計算する Regression Kriging 法（以下「RK 法」という。）は、土地利用回帰モデル (Land Use Regression: LUR) と地球統計学手法である Ordinary Kriging (OK) を組み合わせた手法であり、大気汚染物質の空間濃度分布を精度良く予測できると報告されている^{10), 11)}。筆者らは既報¹¹⁾で微小粒子状物質を対象とした検討を行ったが、このライブラリでは予測できる大気汚染物質の対象を拡張して構築した。また、LUR の計算方法に、線形回帰モデル以外にもランダムフォレスト、サポートベクトルマシン、一般化線形モデル、一般化加法モデル及びニューラルネットワークの全 6 モデルを利用できるようにした⁸⁾。このライブラリを利用して Ox の高精度な空間濃度分布を計算する条件検討を進めているが、これら 6 モデルのうち一般化加法モデル（以下「GAM」という。）を実装するための日本語情報が少なく、また、大気環境データのような時間-空間情報を持つノンパラメトリックデータに適応させた事例は更に情報が少ない状況であった。そのため、本報では Ox 空間濃度分布を予測する GAM の構築・精度検証の検討を行い、GAM の有用性について実証するとともに、今後の環境データ解析における基礎検討資料とすることを目的とする。

方 法

1. 線形回帰モデルについて

従来、環境分野における事象の解析や予測には線形回帰モデルが広く利用されてきたため、GAM と比較するためにもまずは線形回帰モデルの構築と解釈の方法を解説する。

式 1 に線形回帰式を示す¹²⁾。 $p > 1$ である場合は重回帰式とも呼ばれる。

$$\hat{Y} = \beta_0 + \sum_{j=1}^p X_j \beta_j \quad (\text{式 1})$$

式 1 において、 $\hat{Y}$ は予測変数、 β_0 は切片、 X_j は説明変数、 β_j は各説明変数の重み (直線の傾き) を示している。この線形回帰モデルは、説明変数の効果が重み β_j として表現され、事象に対する説明性が高く解釈も容易であることから広く利用されている。R による線形回帰モデルを構築する `lm()` 関数では、直線以外にも対数、累乗等の曲線を当てはめたモデルを構築することもできる。一方で、回帰直線・曲線に当てはまりが悪い事象は予測精度が著しく悪くなることが知られており、正規分布に従わない、大気汚染物質の観測データのようなノンパラメトリックデータはその傾向が大きい。このことから、近年はランダムフォレストやニューラルネットワーク等の機械学習モデルを用いた解析により、推論・予測が行われている事例が増えている¹³⁾。高い精度が得られる機械学習モデルであるが、ランダムフォレスト、サポートベクトルマシン及びニューラルネットワーク等のモデルは、モデル内部はブラックボックスと呼ばれ、説明変数がどのように作用して予測を行っているのかは説明が難しいとされている¹⁴⁾。そのため、解釈などの説明性を求める場合は線形回帰、精度の高い回帰や予測を行う場合は機械学習を使う等、目的に応じて使い分けられている。

2. 一般化加法モデルについて

一般化加法モデル (Generalized Additive Model: GAM) は、もともと一般化線形モデル (Generalized Linear Model: GLM) で非線形性を扱うことができるよう改良されたモデルであり、説明性と予測精度の両方を備えたモデルと言われている¹⁴⁾。式 2 に GAM のモデル式を示す。

$$Y = \alpha + \sum_{j=1}^p f_j(X_j) + \epsilon \quad (\text{式 2})$$

式 2 で、 ϵ は平均 0 の誤差項を表す。式 1 と異なるのは、説明変数がそれぞれ非線形な平滑化関数 f_j に適用されていることである。また、GAM では 1 つの関数を全データに対してそのまま適応させるのではなく、はじめにデータを複数の区間に分割し、それぞれの区間にパラメータを調整した平滑化関数を設定し、各平滑化関数の合計値が回帰モデルとなる回帰スプラインが代表的な手法となっている¹⁴⁾。区間数や規定関数を適切に選択することで、どのようなデータに対しても回帰が可能と言われている。GAM に関する詳細は参考文献^{12), 15)}を参照してほしい。

3. 利用するデータの選定及び計算条件

Ox 生成の起源として、日射量、気温、風速及び VOC 等の前駆物質の存在が挙げられる^{16), 17)}。九州では春先 4~5 月にかけてこれらの気象条件が揃うことが多く、熊本県で過去に光化学スモッグ注意報等を発令したのもこの時期であった¹⁸⁾。本報で構築する Ox の回帰モデル構築の説明変数には、信頼性の高いデータが手に入りやすい日射量、気温及び風速を用いることとした。また、GAM では時空間属性を含めてモデル化することが可能であり¹⁹⁾、本報ではこれらの検討も行うことから、緯度、経度及び時

表 1 使用したデータの一覧

利用データ	目的変数・説明変数名	概要
常時監視測定局観測データ	Ox	光化学オキシダント 1 時間値濃度 [ppb]
地上付近気象庁気象データ (MSM-S)	temperature	気温 1 時間値 [°C]
	wind-speed	風速 1 時間値 [m/s]
地上付近気象庁気象データ (MSM-r1h)	solar-radiation	日射量 1 時間値 [W/m ²]
位置情報	lon	経度 [°]
	lat	緯度 [°]
時間	date	通算時間 [-]
	time	0 ~ 23 [hour]

間 (通算時間及び日内変動時間 0 ~ 23 時) も説明変数として準備した。データの詳細は表 1 に示す。

学習及び予測を行う期間は、九州の広い範囲で Ox 濃度が高濃度となり、熊本県でも注意報の発令が行われていた 2019 年 5 月 23 日 ~ 5 月 24 日を含む 10 日間とした。また、予測地点には九州域を 5 × 5 [km] の格子領域に分割した地点を設定した。表 2 に計算条件の一覧を示す。

4. 解析を実行するためのツールの選択

解析には R version 4.4.1 (2024-06-14) 及び mgcv パッケージ (ver. 1.9.1) を用いた。R は回帰モデルの構築が容易であり、かつ、構築できるモデルの種類が多いことから、経済、医療、環境など様々な分野の解析に利用されている。また、mgcv パッケージは R で GAM を実行するための標準的なパッケージであり、利用実績も多いことから採択した。

以降では、GAM を用いて非線形モデルによる一般的なモデル (BASE)、時間効果モデル (temporally varying coefficient model: TVC)、空間効果モデル (spatially varying coefficient model: SVC) 及び時空間効果モデル (Spatially and Temporally Varying Coefficient models: STVC) による GAM を構築する。なお、比較として線形回帰モデル (Linear Regression model: LM) による回帰モデルも構築する。

回帰モデルの構築と予測

1. 一般的な回帰モデル

時間や空間効果を検討する前に、本章では一般的な回帰モデルの構築について解説する。

1.1 線形回帰モデルによる予測

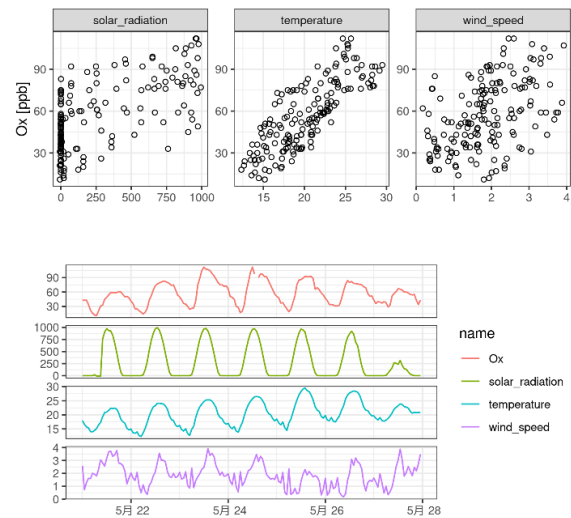


図 1 宇土運動公園における Ox 濃度と日射量、気温及び風速の関係。各変数の散布図及び時系列図。

R での回帰モデル構築について簡単に紹介する。回帰モデル解説には、分かりやすいように宇土運動公園 1 局のデータを使ってモデルを構築し、目的変数 (Ox) と説明変数 (日射量、気温及び風速) の関係を確認する。宇土運動公園局の Ox 濃度、日射量、気温及び風速については図 1 に示す。図 1 によると、Ox 濃度と日射量及び気温は正の相関関係が見られている。また、時系列データから日射量、気温及び Ox 濃度が日内変動で関連した挙動を示していることが示されている。

続いて、リスト 1 に線形回帰によるモデル化の結果 (m1) を示す。以下に、出力結果について簡単に解説する。

表 2 計算条件

計算対象	概要
学習データ	対象期間: 2019-05-21 0h ~ 2019-05-27 23h
	予測変数: 九州域の常時監視測定局 Ox 1 時間値データ (Ox)
	説明変数: 日射量 (solar-radiation) 気温 (temperature) 風速 (wind-speed)
予測データ	対象期間: 2019-05-23 6h ~ 2019-05-24 23h
	計算領域: 5 × 5 [km] (九州域)
	説明変数: 日射量 (solar-radiation) 気温 (temperature) 風速 (wind-speed)

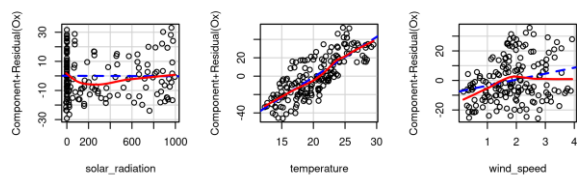


図 2 宇土運動公園における Ox 濃度の線形回帰分析結果
青破線:回帰直線 赤曲線:平滑化曲線

Call: には線形回帰モデルの構築方法が表示されている。
formula が実際のモデル式を表し、予測変数 Ox を説明変数である日射量 (solar_radiation), 気温 (temperature) 及び風速 (wind_speed) で説明している。

Coefficients: には線形回帰式の切片 (Intercept) と各説明変数の重み (Estimate) が示されており、標準誤差 (Std.Error), t 値 (t value) 及び p 値 ($\text{Pr}(>|t|)$) が更に続いている。また、最後列には p 値の優位性 (Signif.codes) が記号 (*, .,) で示されている。それ以降は決定係数

(R^2 値: Multiple R-squared) や F 検定の結果から求めた p 値 (p-value) が示されている。

リスト 1 から、線形回帰では R^2 値が 0.67 であり、予測に用いた説明変数のうち気温及び風速の影響が大きかった。なお、日射量の影響は小さかった。

図 2 に線形回帰で得られた Ox と各説明変数との関係を示す。図の x 軸は説明変数の値、 y 軸は各説明変数による Ox の予測値を示している。また、青破線は線形回帰により得られた回帰直線を示したもので、赤実線は平滑化曲線を示す。図 2 から、説明変数のうち気温は回帰直線と平滑化曲線がほぼ一致しており、当てはまりが良い結果であった。一方で、日射量と風速はデータのばらつきが大きく、直線性が見られず十分にモデル化されていなかった。

1.2 一般化加法モデルによる予測

次に、同じデータを用いて GAM による回帰の方法を示す。GAM を使った計算には、mgcv パッケージの gam()

リスト 2 宇土運動公園における Ox 濃度の一般化加法モデル結果

```
(m2 <- gam(formula = Ox ~ s(solar_radiation) + s(temperature) + s(wind_speed), data = na.omit(uto))) |> summary()

Family: gaussian
Link function: identity

Formula:
Ox ~ s(solar_radiation) + s(temperature) + s(wind_speed)

Parametric coefficients:
            Estimate Std. Error t value Pr(>|t|)
(Intercept)  57.1617    0.9612   59.47  <2e-16 ***
---
Signif. codes:  0 '***' 0.001 '**' 0.01 '*' 0.05 '.' 0.1 ' ' 1

Approximate significance of smooth terms:
              edf Ref.df      F  p-value
s(solar_radiation) 2.210  2.732  1.676 0.227818
s(temperature)      6.949  8.040 22.072 < 2e-16 ***
s(wind_speed)       3.645  4.528  4.979 0.000663 ***
---
Signif. codes:  0 '***' 0.001 '**' 0.01 '*' 0.05 '.' 0.1 ' ' 1

R-sq. (adj) = 0.743  Deviance explained = 76.3%
GCV = 168.19  Scale est. = 154.28    n = 167
```

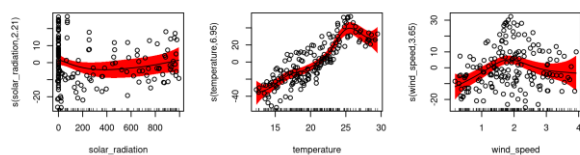


図 3 宇土運動公園における O_x 濃度の一般化加法モデル結果

黒破線: 回帰曲線 赤色領域: 95%信頼区間

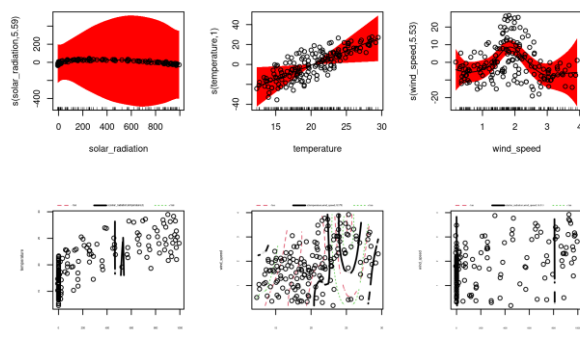


図 4 宇土運動公園における O_x 濃度の交互作用項を導入した GAM 予測結果

黒破線: 回帰曲線 赤色領域: 95%信頼区間

関数を用いる。また、GAM ではスプライン関数を適応させるために $s()$ 関数で説明変数を囲ってモデル式を構築する。モデル化した GAM の結果 (m2) をリスト 2 に示す。線形回帰と似た出力となっているが、切片や説明変数の重みを示す `coefficients:` はパラメトリックとノンパラメトリック (Approximate significance of smooth terms:) に分けて表示されている。また、結果に逸脱度の説明性 (Deviance explained) [%] と一般化クロスバリデーション (Generalized Cross Validation: GCV) 誤差が表記されている点は、線形回帰の結果の表示と異なっている。ここで、逸脱度の説明性 (Deviance explained) とは、説明変数を用いずに計算した際の逸脱度 (Null Deviance) と説明変数を用いて計算した際の逸脱度 (Residual Deviance) との比をとっており、値が大きいほどモデルの適合度は高いと言える (式 3)。

表 3 説明変数間の相関係数

	solar_radiation	wind_speed	temperature
solar_radiation	1	0.4575	0.7593
wind_speed	0.4575	1	0.4405
temperature	0.7593	0.4405	1

Deviance Explained =

$$\left(1 - \frac{\text{Null Deviance}}{\text{Residual Deviance}}\right) \times 100 \quad (\text{式 3})$$

m2 の結果では、 R^2 値は 0.74 であり、線形回帰よりも良い結果であった。また、逸脱度の説明性は 76.3 [%] であり、総合的には m1 よりも m2 が良い結果となっていた。

次に、説明変数の効果を図 3 に示す。図の黒実線は回帰曲線、赤色領域は 95%信頼区間を表している。これによると、気温は 25 [°C]、風速は 2 [m/s] 付近で O_x 濃度が高い関係性が見られた。説明変数の効果についても線形回帰の結果と異なっていた。

1.3 説明変数の選択と交互作用について

交互作用とは、説明変数間で何らかの関係性が見られることを指し、この交互作用をモデルに組み込み事で予測精度が向上することがある。GAM では説明変数の交互作用を適応させた GA2M が考案されており、`mgcv` パッケージでは説明変数の交互作用を標準で扱うことができる²⁰⁾。本章では、GAM の交互作用の確認方法と説明変数の選択方法について確認する。

はじめに、交互作用の確認のため説明変数間の相関係数を確認する (表 3)。変数間に相関が見られる場合、交互作用がある可能性は高い。表 3 によると、日射量、気温及び風速の間には一定以上の相関があり、特に日射量と気温の間に強い相関が見られた。このように、説明変数間で交互作用が見られる可能性が高いことから、m2 モデルにすべての変数同士の交互作用を追加したモデル (m3) を定義した。m3 の結果をリスト 3 及び図 4 に示す。交互作用を定義していない m2 モデルと比べ、交互作用を定義した m3 は R^2 値及び逸脱度の説明性が向上しており、m3 は m2 より明らかに良い結果となった。一方で、m3 の説明変数の中には m2 より p 値が低く、精度が悪くなる変数も見られていた。本検討では上記手順のように全ての説明変数間の組み合わせに相関が見られたため全ての組み合わせを適応させた計算を行ったが、本来、交互作用を検討する場合は、計算負荷軽減のためにも、事前に関連性の高い説明変数の組み合わせを検討し、その中から特に効果が期待される組み合わせを取捨選択して計算させるべきであり、このようにすることで回帰モデルの予測精度向上が期待できるようになると思われる。

一方で、上記のように説明変数が複数存在する場合に説明変数間の関係を個別に確認することは、時間に余裕がある場合を除き非効率であり、期待どおりの結果が得られない場合もある。そ

リスト 3 交互作用を追加した GAM の構築

```
(m3 <- gam(formula = Ox ~ s(solar_radiation) + s(temperature) + s(wind_speed) +
            s(solar_radiation, temperature) + s(temperature, wind_speed) + s(solar_radiatio
n, wind_speed), data = na.omit(uto))) |> summary()
```

Family: gaussian
Link function: identity

Formula:
O_x ~ s(solar_radiation) + s(temperature) + s(wind_speed) + s(solar_radiation, temperature) + s(temperature, wind_speed) + s(solar_radiation, wind_speed)

Parametric coefficients:

	Estimate	Std. Error	t value	Pr(> t)
(Intercept)	57.1617	0.7618	75.03	<2e-16 ***

Signif. codes: 0 '***' 0.001 '**' 0.01 '*' 0.05 '.' 0.1 ' ' 1

Approximate significance of smooth terms:

	edf	Ref.df	F	p-value
s(solar_radiation)	5.585e+00	5.604	0.022	0.99994
s(temperature)	1.000e+00	1.000	5.224	0.02401 *
s(wind_speed)	5.526e+00	6.630	3.864	0.00121 **
s(solar_radiation, temperature)	1.071e-06	27.000	0.000	0.22728
s(temperature, wind_speed)	1.279e+01	27.000	2.800	< 2e-16 ***
s(solar_radiation, wind_speed)	1.951e+01	27.000	2.540	< 2e-16 ***

Signif. codes: 0 '***' 0.001 '**' 0.01 '*' 0.05 '.' 0.1 ' ' 1

R-sq. (adj) = 0.839 Deviance explained = 88.2%
GCV = 133.12 Scale est. = 96.923 n = 167

のため、ステップワイズ法のように説明変数の取捨選択を自動化する手法も広く利用されており、計算時間の短縮化も期待できる。R の `mgcv` パッケージでは、GAM のステップワイズ法は定義されていないため、本報では単純な GAM の前方ステップワイズ法を新たに定義し、説明変数の自動化による取捨選択の手法を確認することとする。なお、説明変数の取捨選択の判断は *BIC* 基準²¹⁾として実行した (リスト 4; 全出力は文末に記載)。

リスト 4 の結果を確認すると、気温及び風速を説明変数としたモデルが *BIC* 基準で最も当てはまりの良い結果である結果となった。一方で、 R^2 値及び逸脱度の説明性を基準とすると、気温、風速及び日射量と風速の交互作

用項を説明変数とすると、`m3` よりもモデルの当てはまりが良くなっていた。これは *BIC* 基準がパラメータの数 (説明変数の数) に対してペナルティを取る方法に起因していると思われ、ステップワイズ法を適用する場合は基準とする統計量の選択にも注意を払う必要がある。なお、R の `step()` 関数にも使われている *AIC* 基準で試したところでは、全ての説明変数及び交互作用を含めることが、最も良い当てはまりとなっていた。

1.4 交差検証法による精度管理

続いて、モデルの精度検証に広く利用されている交差検証法 (クロスバリデーション) を用いた検証を行う。交

リスト 4 前方ステップワイズ法による交互作用項を導入した GAM の構築 (結果のみ表示)

```
Family: gaussian
Link function: identity

Formula:
Ox ~ s(temperature) + s(wind_speed)

Parametric coefficients:
              Estimate Std. Error t value Pr(>|t|)
(Intercept)  57.1617      0.9672   59.1    <2e-16 ***
---
Signif. codes:  0 '***' 0.001 '**' 0.01 '*' 0.05 '.' 0.1 ' ' 1

Approximate significance of smooth terms:
              edf Ref.df      F  p-value
s(temperature) 7.468  8.429 38.812 < 2e-16 ***
s(wind_speed)   3.870  4.797  5.983 8.29e-05 ***
---
Signif. codes:  0 '***' 0.001 '**' 0.01 '*' 0.05 '.' 0.1 ' ' 1

R-sq. (adj) = 0.74  Deviance explained = 75.8%
GCV = 168.67  Scale est. = 156.21    n = 167
```

差検証法では、予測に用いるデータを学習用と予測用に分け、学習用データのみを使って構築したモデルで予測用データを再現する作業を行う。一般的な交差検証法では、データを 10 分割し、9/10 のデータを用いて回帰モデルを構築し、残り 1/10 のデータを予測する。この計算を全ての組み合わせ (10 パターン) に対して行う (10-fold-cross-validation)。また、分割数を k で表して k -fold-cross-validation とも呼ばれている。

リスト 5 に新たに GAM 用の交差検証法を定義した。この関数を用いて、ここまでに構築したモデル m1、m2 及び m3 の予測精度評価を行った。交差検証法の評価には R^2 値及び RMSE 値を用いた。

図 5 に交差検証法による精度評価の結果を散布図で示す。この図より、3 モデルの中では m3 で R^2 値が最も大きく、RMSE 値が最も小さい値となり、交互作用項を導入したモデルの予測精度が最も良い結果となった。一方で、線形回帰モデルの m1 は、3 モデルの中で最も予測精度が悪い結果となった。このように、交差検証法を用いると予測精度を簡単に比較することができ、ここまでに構築した m1 ~ m3 では、GAM は線形回帰よりも予測精度が高いことが示された。

1.5 モデルの再構築

前節までの検討により、宇土運動公園 1 局の観測データを用いた回帰分析では、線形回帰モデルよりも GAM の予測精度が高く、かつ、回帰の説明性が高いことが示された。次節からは、九州全域の観測データを用いて回帰モデルを構築・比較していくため、すでに構築したモデルの m1 及び m2 を、九州全域のデータを使ってモデルを再構築した (m1: LM, m2: BASE, リスト 6)。次節以降では新しい m1 (LM) 及び m2 (BASE) を用いて、時間及び空間属性を導入した GAM との比較を行う。

なお、m3 で構築した交互作用項ありのモデルについては、次節からは扱うデータの次元が増えることで回帰モデルの構築の難易度が上がることが予想されるため、これ以上の検討は本報では扱わないこととする。検討方法は他の研究論文等を参照してほしい²²⁾。

2. 時間効果を考慮した GAM

前章では、一般的な事象である、無次元のデータを用いた GAM の構築について検討した。本章からは、対象期間の九州全域の常時監視測定局 Ox 濃度 1 時間値を用いて、時間-空間変動を考慮した GAM の構築について検討

リスト 5 交差検証法の定義

```
cross_validation <- function(data = NULL,
                             formula = NULL,
                             nfold = 10,
                             rep = 10, ...) {

  stopifnot(nfold > 0)
  nfold <- floor(nfold)
  num <- seq(1, rep, by = 1)
  apply(do.call(cbind, lapply(num, function(n) {
    id <- sample(nrow(data))
    fold_list <- split(id, ceiling(seq_along(id) / floor(length(id) / nfold)))
    ret <- matrix(NA, nrow = length(id), ncol = 1)
    for (fn in fold_list) {
      fit_model <- mgcv::gam(formula = formula, data = data[-fn, ], ...)
      ret[fn] <- predict(fit_model, newdata = data[fn, ])
    }
    return(ret)
  })), 1, mean)

  RMSE <- function(x = double(),
                   y = double()) {
    round(sqrt(mean((x - y) ^ 2, na.rm = TRUE)), digits = 2)
  }

  R2 <- function(obs = double(),
                 predict = double()) {
    round(1 - mean((obs - predict) ^ 2, na.rm = TRUE) / var(obs, na.rm = TRUE), digits = 2)
  }
}
```

リスト 6 m1 (LM) 及び m2 (BASE) モデルの再構築

```
m1 <- lm(formula = Ox ~ solar_radiation + temperature + wind_speed, data = Kyushu)
m2 <- gam(formula = Ox ~ s(solar_radiation) + s(temperature) + s(wind_speed), data = Kyushu)
```

リスト 7 時間効果を導入した GAM (m4) の構築

```
m4 <- gam(formula = Ox ~ s(time, bs = "gp") + s(date, bs = "gp"),
          data = Kyushu)
```

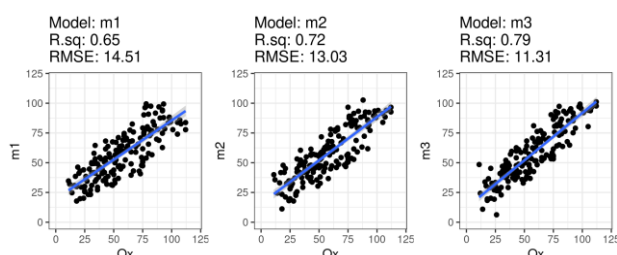


図 5 宇土運動公園のデータを用いた交差検証法による精度管理の結果
青線: 回帰直線

する。本節では時間効果を考慮した GAM (TVC) の検討を行う。

GAM の構築には、引き続き mgcv パッケージの gam() 関数を用いる。mgcv パッケージで時間変動を扱うためには説明変数に時間情報を追加する必要があり、本報では通算時間 (date) による s(date, bs = "gp")、または、日内変動時間 (0 ~ 23 時: time) による s(time, bs = "gp") をモデル式に追加する必要がある。ここで bs = "gp" はスプライン関数にガウスモデルを適用させる方法であり、

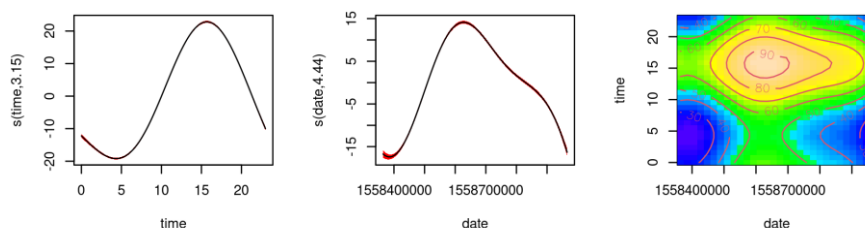


図 6 時間効果を用いた GAM (m4) の結果

黒破線: 回帰曲線 赤色領域: 95%信頼区間

コンター図: x 軸及び y 軸の説明変数の関係が見られる場合の 0x 濃度の平均濃度 [ppb]

リスト 8 時間効果及びその他説明変数を用いた GAM (m5) の構築

```
(m5 <- gam(formula = 0x ~ s(time, bs = "gp") + s(date, bs = "gp") + s(solar_radiation) + s(temperature) + s(wind_speed),
  data = Kyushu)) |> summary()
```

Family: gaussian
Link function: identity

Formula:
0x ~ s(time, bs = "gp") + s(date, bs = "gp") + s(solar_radiation) + s(temperature) + s(wind_speed)

Parametric coefficients:

	Estimate	Std. Error	t value	Pr(> t)
(Intercept)	57.56980	0.08307	693	<2e-16 ***

Signif. codes: 0 '***' 0.001 '**' 0.01 '*' 0.05 '.' 0.1 ' ' 1

Approximate significance of smooth terms:

	edf	Ref. df	F	p-value
s(time)	3.230	3.528	902.01	<2e-16 ***
s(date)	4.743	4.959	1939.84	<2e-16 ***
s(solar_radiation)	3.921	4.831	55.97	<2e-16 ***
s(temperature)	5.179	6.363	651.66	<2e-16 ***
s(wind_speed)	8.552	8.943	87.63	<2e-16 ***

Signif. codes: 0 '***' 0.001 '**' 0.01 '*' 0.05 '.' 0.1 ' ' 1

Rank: 37/50
R-sq. (adj) = 0.708 Deviance explained = 70.8%
GCV = 161.4 Scale est. = 161.22 n = 23361

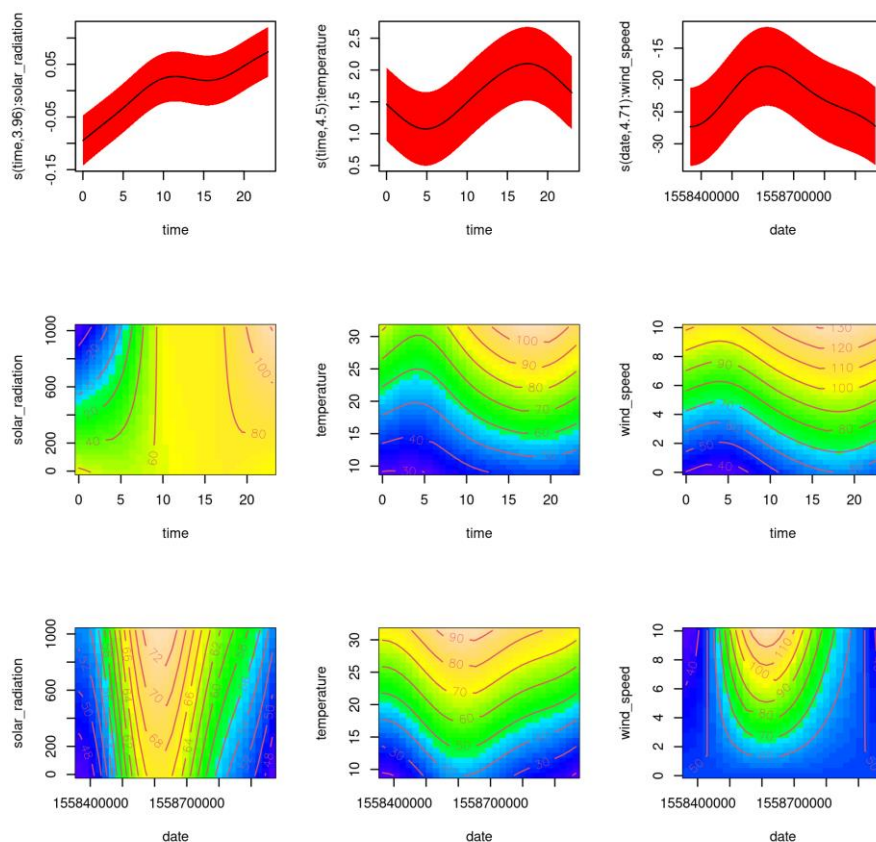


図 7 時間効果を説明変数に追加した GAM (m5) の結果

黒破線: 回帰曲線 赤色領域: 95%信頼区間

コンター図: x 軸及び y 軸の説明変数の関係が見られる場合の Ox 濃度の平均濃度 [ppb]

このオプションをつけることで時間及び空間効果が考慮されるようになる¹⁹⁾。

はじめに、説明変数に時間効果のみで構築したモデル (リスト 7, 図 6: m4) について検討する。なお、図 6 には、これまで同様 plot() 関数による説明変数 (単独または複数) 毎の Ox 濃度の予測値に加え、vis.gam() 関数による、2 つの説明変数間の関係をコンター図にして示している。

m4 の結果から、24 時間のうちで Ox 濃度が最も高くなる時間帯は 15 時付近、通算時間では 3 日 ~ 4 日目付近 (2019/5/23 ~ 5/24) であり、図 1 に示した時系列図と一致する結果が得られた。

この m4 モデルの説明変数に日射量、気温及び風速を追加したモデルの結果をリスト 8 及び図 7 に示す (m5)。m5 では、日射量が 600 [W/m²] 付近で最低値となっていた。気温は 20 [°C] 以上で Ox 濃度との関係が最大になっていた。風速は 2 ~ 6 [m/s] 付近でプラスであり、それ以上風速が早くなっても影響度はほぼ変わらなかった。時間情報と日射量、気温及び風速の関係では、日射量が多く、気温も高くなりやすい 15 時~20 時の間で Ox 濃度が高く

なる傾向を示していた。なお、風速は 15 時~20 時の間や 5/3 ~ 5/4 付近で、6 [m/s] の風があるときに Ox 濃度が最大値となっていた。

次に、日射量、気温及び風速を時間情報の因子とするモデルを構築する。この場合、説明変数を s(date, bs = "gp", by = temperature) のように記述して GAM を構築する²³⁾。by = temperature 部分が気温のデータを時間情報の因子として取り込む設定を表している。なお、説明変数の冒頭に 0 + を入れると、計算の過程で自動的に決定される切片係数を明示的に初期化し、各説明変数 (本報の場合、日射量、気温及び風速) の値を切片係数に割り当てようになる²³⁾。

日射量及び気温を日内変動時間 (0 ~ 23 時)、風速を通算時間の変動モデルとして構築した結果をリスト 9 及び図 8 に示す (m6)。この結果、各説明変数の効果が m6 では m5 に比べて時間情報に適合しており、モデルが改善されていることが分かる。また、m6 の逸脱度の説明性は 95.7 [%] で、m5 の 70.8 [%] に比べて大幅に向上していた。

リスト 9 時間効果を説明変数の因子として導入した GAM (m6) の構築

```
(m6 <- gam(formula = Ox ~ 0 +
            solar_radiation + s(time, bs = "gp", by = solar_radiation) +
            temperature + s(time, bs = "gp", by = temperature) +
            wind_speed + s(date, bs = "gp", by = wind_speed), data = Kyushu)) |> summary()
```

Family: gaussian
Link function: identity

Formula:
Ox ~ 0 + solar_radiation + s(time, bs = "gp", by = solar_radiation) +
temperature + s(time, bs = "gp", by = temperature) + wind_speed +
s(date, bs = "gp", by = wind_speed)

Parametric coefficients:

	Estimate	Std. Error	t value	Pr(> t)
solar_radiation	-0.01999	0.02369	-0.844	0.39868
temperature	0.83077	0.28834	2.881	0.00397 **
wind_speed	25.72510	3.09354	8.316	< 2e-16 ***

Signif. codes: 0 '***' 0.001 '**' 0.01 '*' 0.05 '.' 0.1 ' ' 1

Approximate significance of smooth terms:

	edf	Ref. df	F	p-value
s(time):solar_radiation	3.964	4.595	108	<2e-16 ***
s(time):temperature	4.496	5.081	539	<2e-16 ***
s(date):wind_speed	4.709	5.220	1755	<2e-16 ***

Signif. codes: 0 '***' 0.001 '**' 0.01 '*' 0.05 '.' 0.1 ' ' 1

Rank: 26/39
R-sq. (adj) = 0.696 Deviance explained = 95.7%
GCV = 167.99 Scale est. = 167.88 n = 23361

以上の結果から、時間変動を考慮したモデルでは m6 が最も良い結果となったため、以降では m6 を TVC の代表として比較を行う。

補足だが、日内変動時間のように循環する数値情報を扱う場合、GAM のモデル式では bs = "cc" とすることで、スプラインが循環する情報を扱うことができるようになる²⁰⁾。このように設定するほうが良い結果となる場合もあるため、適用するスプラインや説明変数の関係を詳しく見ながらモデルを構築する必要がある。

3. 空間効果を考慮した GAM

本節では、空間効果を取り入れた GAM (SVC) の構築を

行う。位置情報の経度 (lon) と緯度 (lat) を交互作用とし、スプラインはガウシアンモデルを設定して s(lon, lat, bs = "gp") のようにしてモデルを構築すると、空間効果を取り入れたモデルができる。

まず、リスト 10 及び図 9 に空間効果のみで構築した GAM の結果 (m7) を示し、Ox 濃度との関連度を確認する。m7 の結果 (図 9) では、X-Y 平面上に経度及び緯度の効果が等高線で示されている。これによると、福岡県の北九州市周辺や大分県の一部で Ox 濃度が高くなる傾向にあり、長崎県や鹿児島県では Ox 濃度が低い傾向にあった。なお、海上で Ox の生成にプラスの影響が見られている領域は、もともとデータが存在しない範囲であるた

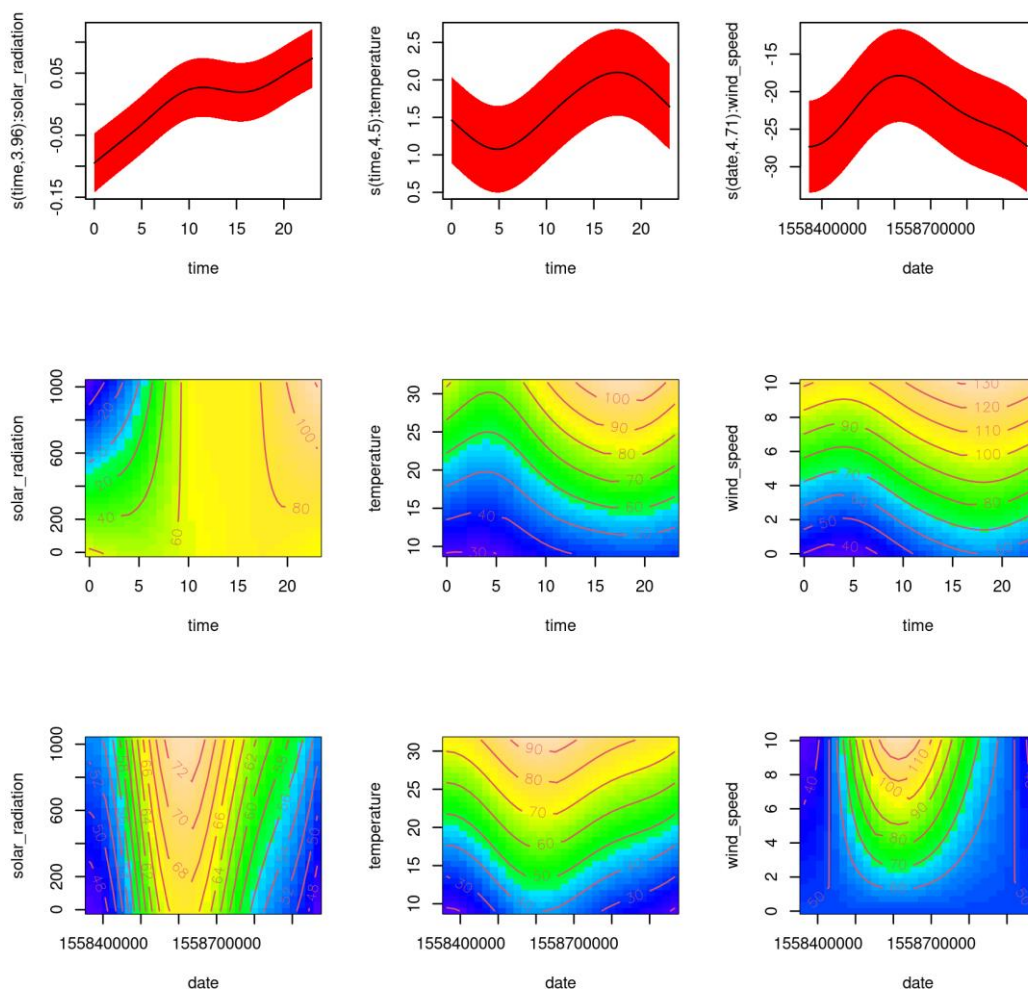


図 8 時間効果を説明変数の因子として導入した GAM (m6) の結果

黒破線: 回帰曲線 赤色領域: 95%信頼区間

コンター図: x 軸及び y 軸の説明変数の関係が見られる場合の 0x 濃度の平均濃度 [ppb]

リスト 10 空間効果を導入した GAM (m7) の構築

```
m7 <- gam(formula = 0x ~ s(lon, lat, bs = "gp"), data = Kyushu)
```

めこのようになっているが, 本検討では海上の予測は行わないため検討は省略する。

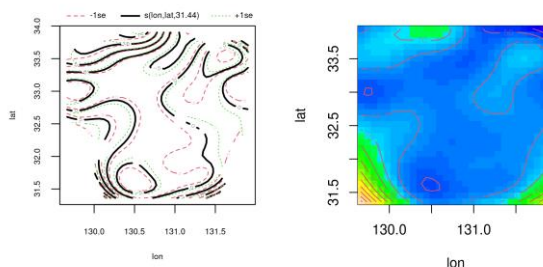


図 9 空間効果を導入した GAM (m7) の結果

黒破線: 回帰曲線 赤色領域: 95%信頼区間

コンター図: x 軸及び y 軸の説明変数の関係が見られる場合の 0x 濃度の平均濃度 [ppb]

リスト 11 空間効果を説明変数に追加した GAM (m8) の構築

```
(m8 <- gam(formula = Ox ~ s(lon, lat, bs = "gp") + s(solar_radiation) + s(temperature) + s(wind_speed), data = Kyushu)) |> summary()
```

Family: gaussian
Link function: identity

Formula:
Ox ~ s(lon, lat, bs = "gp") + s(solar_radiation) + s(temperature) + s(wind_speed)

Parametric coefficients:

	Estimate	Std. Error	t value	Pr(> t)
(Intercept)	57.5698	0.1017	565.9	<2e-16 ***

Signif. codes: 0 '***' 0.001 '**' 0.01 '*' 0.05 '.' 0.1 ' ' 1

Approximate significance of smooth terms:

	edf	Ref. df	F	p-value
s(lon, lat)	31.702	31.965	60.43	<2e-16 ***
s(solar_radiation)	8.875	8.995	36.08	<2e-16 ***
s(temperature)	8.833	8.992	1359.28	<2e-16 ***
s(wind_speed)	5.626	6.823	82.29	<2e-16 ***

Signif. codes: 0 '***' 0.001 '**' 0.01 '*' 0.05 '.' 0.1 ' ' 1

R-sq. (adj) = 0.562 Deviance explained = 56.3%
GCV = 242.39 Scale est. = 241.81 n = 23361

続いて、m7 に日射量、気温及び風速を説明変数として追加した結果をリスト 11 及び図 10 に示す (m8)。m8 では、経度 131 度~131.5 度付近及び緯度 33.5 度以上での領域で、日射の強さに関係なく Ox 濃度が高くなる傾向にあった。気温及び風速効果は、位置情報に関係なく、気温が高く風速が遅いほど Ox 濃度が高くなる傾向にあった。また、m8 の逸脱度の説明性は 56.3 [%] であり、m6 と比べて極端に低い値となっていた。

最後に、日射量、気温及び風速を空間情報の因子に設定して構築したモデルの結果をリスト 12 及び図 11 に示す (m9)。m9 結果では、m8 の結果に比べて日射量及び風速の効果がより現実的なものとなっており、m8 で見られた極端な地域性は見られなかった。なお、m9 の逸脱度の説明性は 93.1 [%] となっており、m7 や m8 と比べて良い結果であった。

以上の結果から、空間変動を考慮したモデルでは m9 が最も良い結果となり、以降では m9 を SVC の代表と

して比較を行う。

4. 時空間効果を考慮した GAM

最後に、本節では時空間効果を考慮したモデル (STVC) を構築する。時空間効果によるモデル化では、位置情報 lon 及び lat に加え、時間情報 date または time を交互作用とし、s(lon, lat, date, bs = "gp") のようにモデルを構築する^{19) 23)}。

まずは時空間情報のみで構築したモデルを構築し (m10), その結果をプロットする (リスト 13 及び図 12)。なお、これまで各説明変数による Ox 濃度の予測値をプロットしていたが、時空間効果の情報量が多くなり、結果の表示が見にくくなってしまうため、本節では vis.gam() 関数だけで結果を表示する。

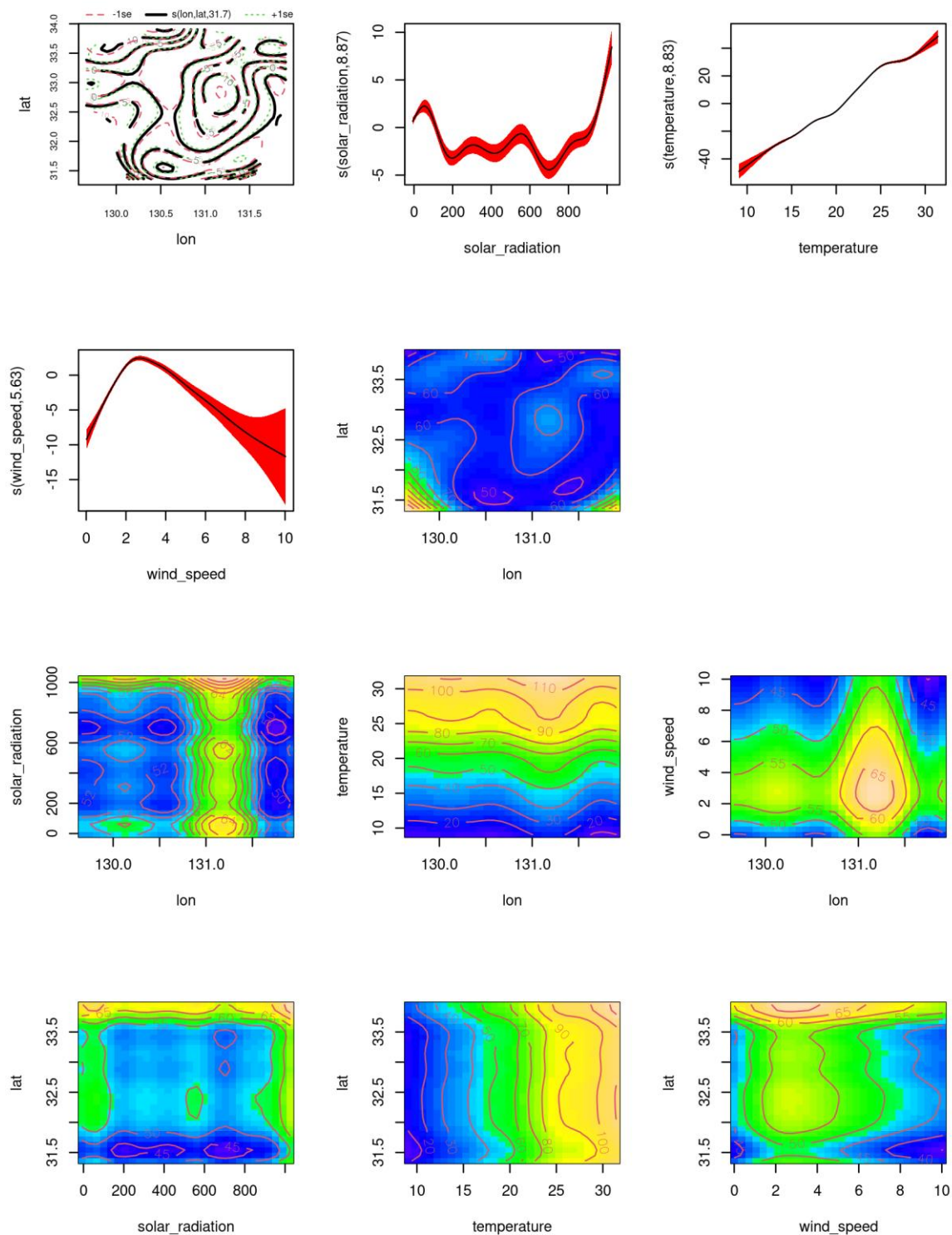


図 10 空間効果を説明変数に追加した GAM (m8) の結果

黒破線: 回帰曲線 赤色領域: 95%信頼区間

コンター図: x 軸及び y 軸の説明変数の関係が見られる場合の 0x 濃度の平均濃度 [ppb]

リスト 12 空間効果を説明変数の因子として導入した GAM (m9) の構築

```
(m9 <- gam(formula = 0x ~ 0 +
  solar_radiation + s(lon, lat, bs = "gp", by = solar_radiation) +
  temperature + s(lon, lat, bs = "gp", by = temperature) +
  wind_speed + s(lon, lat, bs = "gp", by = wind_speed), data = Kyushu)) |> summar
y()

Family: gaussian
Link function: identity

Formula:
0x ~ 0 + solar_radiation + s(lon, lat, bs = "gp", by = solar_radiation) +
  temperature + s(lon, lat, bs = "gp", by = temperature) +
  wind_speed + s(lon, lat, bs = "gp", by = wind_speed)

Parametric coefficients:
              Estimate Std. Error t value Pr(>|t|)
solar_radiation   0.04438    0.09031   0.491   0.623
temperature      16.20156   10.78568   1.502   0.133
wind_speed       -70.56022   74.90184  -0.942   0.346

Approximate significance of smooth terms:
              edf Ref.df      F p-value
s(lon,lat):solar_radiation 26.60  29.02  8.614 <2e-16 ***
s(lon,lat):temperature     30.75  31.44 20.808 <2e-16 ***
s(lon,lat):wind_speed      30.42  31.14 16.827 <2e-16 ***
---
Signif. codes:  0 '***' 0.001 '**' 0.01 '*' 0.05 '.' 0.1 ' ' 1

Rank: 99/102
R-sq. (adj) = 0.514 Deviance explained = 93.1%
GCV = 270.07 Scale est. = 269.04 n = 23361
```

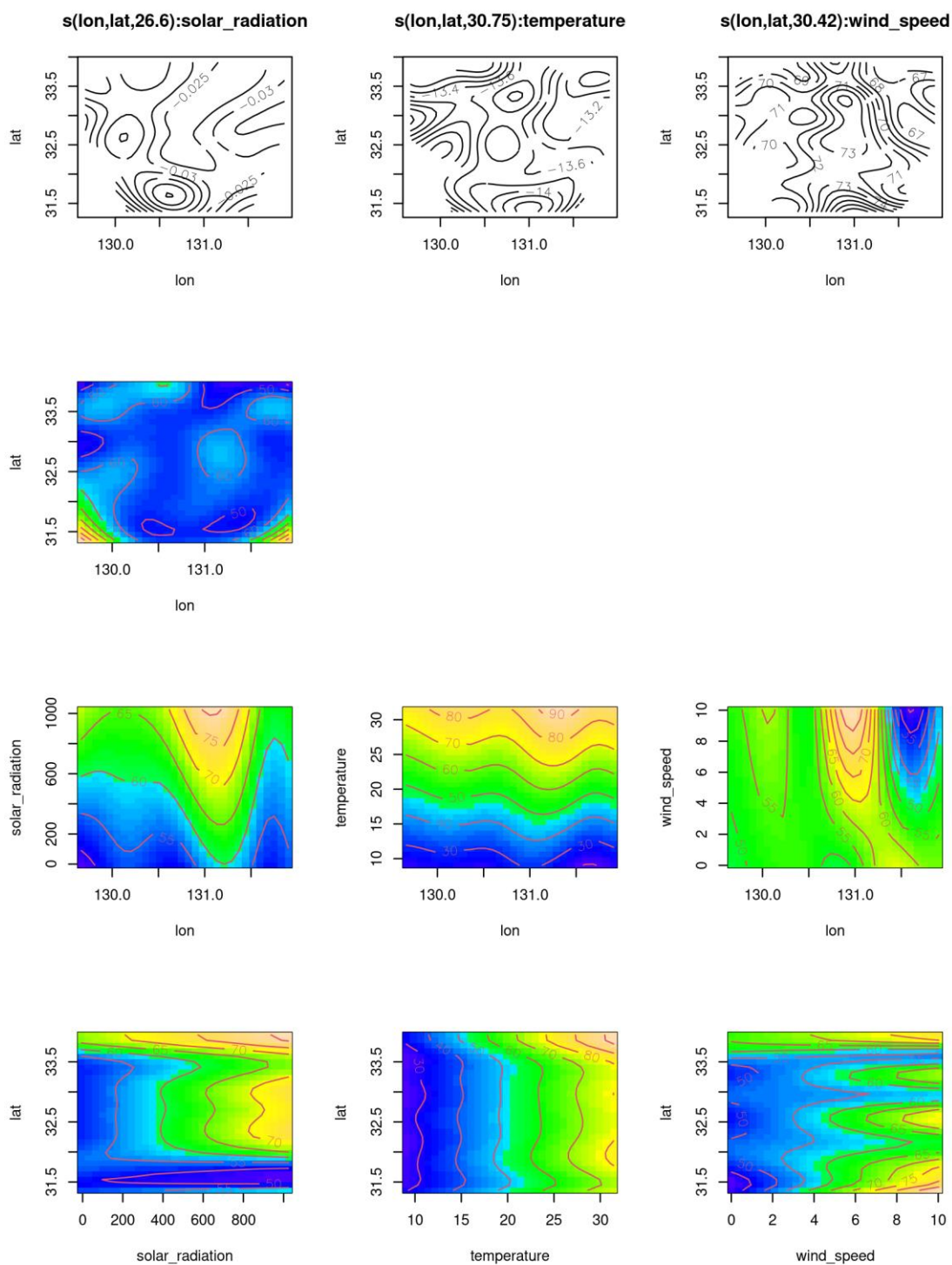



図 11 空間効果を説明変数の因子として導入した GAM (m9) の結果

黒実線: 回帰曲線

コンター図: x 軸及び y 軸の説明変数の関係が見られる場合の 0x 濃度の平均濃度 [ppb]

リスト 13 時空間効果を導入した GAM (m10) の構築

```
m10 <- gam(formula = 0x ~ s(lon, lat, time, bs = "gp") + s(lon, lat, date, bs = "gp"), data = Kyushu)
```

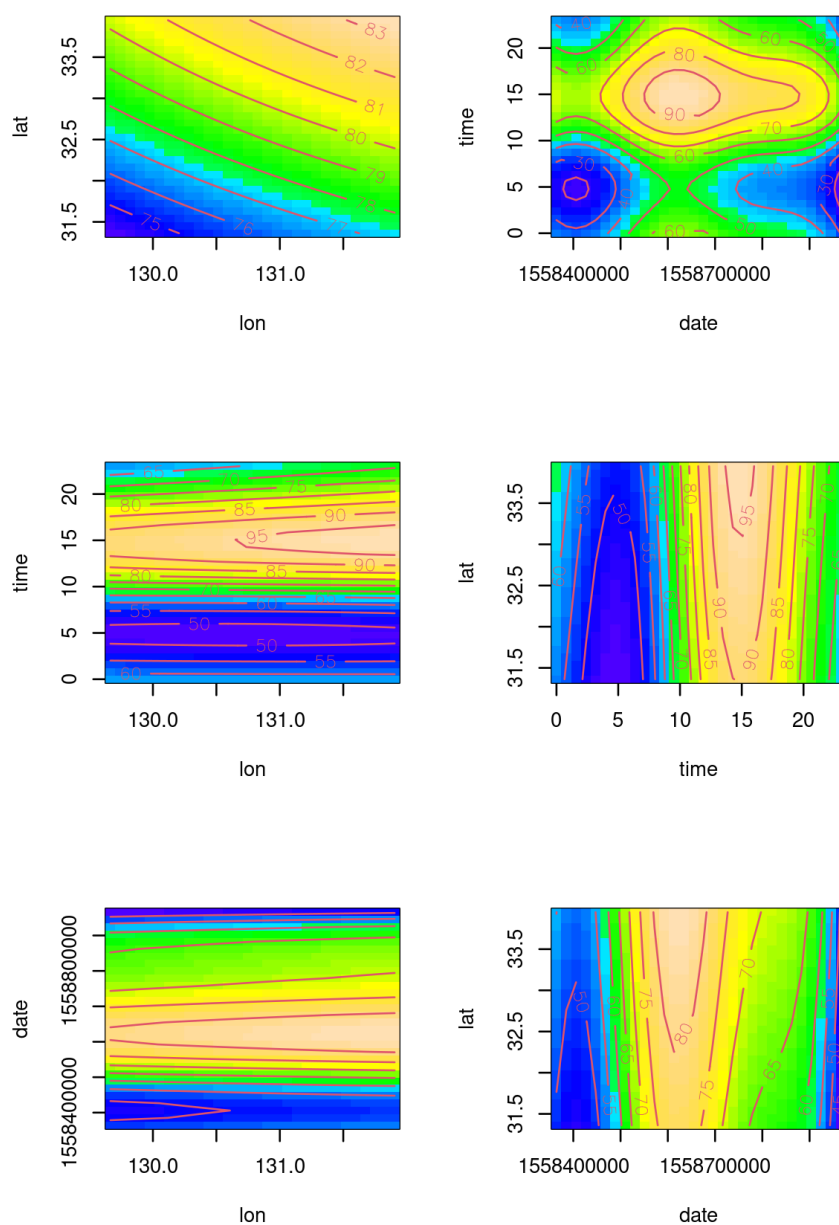


図 12 時空間効果を導入した GAM (m10) の結果

黒破線: 回帰曲線 赤色領域: 95%信頼区間

コンター図: x 軸及び y 軸の説明変数の関係が見られる場合の 0x 濃度の平均濃度 [ppb]

m10 の結果では、時間及び空間変動効果は m6 (TVC) 及び m9 (SVC) と同様の結果となっていたが、空間変動において m8 及び m9 で見られた地域差がほぼなくなり、北東から南西にかけて徐々に O_x 濃度が低くなる傾向になっていた。

次に m11 に日射量、気温及び風速を説明変数として追加したモデルの結果をリスト 14 に示す。m11 では、各説明変数の *p* 値が 0.01 以下で当てはまりは良かったが、モデル結果のプロット (vis.gam()) がエラーで出力されなかった。そのため、m11 のモデルの評価は省略することとする。

最後に、日射量、気温及び風速を時空間効果の因子に設

定して構築したモデルの結果をリスト 15 及び図 13 に示す (m12)。なお、m12 ではプロットの数が多いため、時間属性を上 2 段、空間属性を下 2 段に分けて表示している。m12 の時間変動は m6 とほぼ同じ結果となっていた。また、空間変動は m9 とは異なり、空間依存性をほとんど示さなかった。日射量のみ空間的な変動が確認されたが、空間効果は小さかった。

なお、m12 モデルの R^2 値は 0.72、逸脱度の説明性は 96.0 [%] であり、これまでに構築したモデルの中でも良い結果となった。

このように、GAM では空間効果より時間効果の影響度が強く現れる結果となった。

リスト 14 時空間効果を説明変数に追加した GAM (m11) の構築

```
m11 <- gam(formula = Ox ~ s(lon, lat, date, bs = "gp") + s(lon, lat, time, bs = "gp") + s(solar_radiation) + s(temperature) + s(wind_speed),
            data = Kyushu)) |> summary()
```

Family: gaussian
Link function: identity

Formula:
Ox ~ s(lon, lat, date, bs = "gp") + s(lon, lat, time, bs = "gp") +
s(solar_radiation) + s(temperature) + s(wind_speed)

Parametric coefficients:

	Estimate	Std. Error	t value	Pr(> t)
(Intercept)	57.56980	0.08764	656.9	<2e-16 ***

Signif. codes: 0 '***' 0.001 '**' 0.01 '*' 0.05 '.' 0.1 ' ' 1

Approximate significance of smooth terms:

	edf	Ref. df	F	p-value
s(lon, lat, date)	6.963	6.999	1534.95	<2e-16 ***
s(lon, lat, time)	2.000	2.000	64.51	<2e-16 ***
s(solar_radiation)	8.897	8.997	132.95	<2e-16 ***
s(temperature)	6.849	7.980	1610.95	<2e-16 ***
s(wind_speed)	7.486	8.441	68.40	<2e-16 ***

Signif. codes: 0 '***' 0.001 '**' 0.01 '*' 0.05 '.' 0.1 ' ' 1

Rank: 35/131
R-sq. (adj) = 0.675 Deviance explained = 67.6%
GCV = 179.69 Scale est. = 179.45 n = 23361

リスト 15 時空間効果を説明変数の因子として導入した GAM (m12) の構築

```
(m12 <- gam(formula = 0x ~ 0 +
  solar_radiation + s(lon, lat, time, bs = "gp", by = solar_radiation) +
  temperature + s(lon, lat, time, bs = "gp", by = temperature) +
  wind_speed + s(lon, lat, date, bs = "gp", by = wind_speed), data = Kyushu)) |>
summary()
```

Family: gaussian
Link function: identity

Formula:
0x ~ 0 + solar_radiation + s(lon, lat, time, bs = "gp", by = solar_radiation) +
temperature + s(lon, lat, time, bs = "gp", by = temperature) +
wind_speed + s(lon, lat, date, bs = "gp", by = wind_speed)

Parametric coefficients:

	Estimate	Std. Error	t value	Pr(> t)
solar_radiation	0.8676	1.4072	0.617	0.5375
temperature	9.8369	4.1690	2.360	0.0183 *
wind_speed	7.7110	0.7122	10.827	<2e-16 ***

Signif. codes: 0 '***' 0.001 '**' 0.01 '*' 0.05 '.' 0.1 ' ' 1

Approximate significance of smooth terms:

	edf	Ref.df	F	p-value
s(lon, lat, time):solar_radiation	31.042	32.086	25.11	<2e-16 ***
s(lon, lat, time):temperature	13.848	14.336	180.45	<2e-16 ***
s(lon, lat, date):wind_speed	7.917	7.924	1307.07	<2e-16 ***

Signif. codes: 0 '***' 0.001 '**' 0.01 '*' 0.05 '.' 0.1 ' ' 1

Rank: 58/315
R-sq. (adj) = 0.72 Deviance explained = 96%
GCV = 154.97 Scale est. = 154.61 n = 23361

以上の結果から、時空間変動を考慮したモデルでは m12 が最も良い結果となり、以降では m12 を TSVC の代表として比較を行う。

5. 最適な回帰モデル式の選択

これまで構築した m1 (LM), m2 (BASE), m6 (TVC), m9 (SVC) 及び m12 (STVC) について比較検証を行う。モデルの比較には、 R^2 値、 $RMSE$ 値、 AIC 、 BIC 及び逸脱度の説明性 (Dev.exp) を用いる。また、予測精度

の比較には、10-fold-cross-validation で求めた R^2 値及び $RMSE$ 値を用いる。

各モデルの統計量を表 4 に示す。この結果によると、 R^2 値、 $RMSE$ 、 AIC 及び BIC は、m6 (TVC) 及び m12 (SVC) が他のモデルに比べて良い結果となっていた。また、逸脱度の説明性については、m2 (BASE) が最も低く、それ以外の m6 (TVC)、m9 (SVC) 及び m12 (STVC) で高い値を示していた。

続いて、交差検証法による予測精度検証の結果を図 14

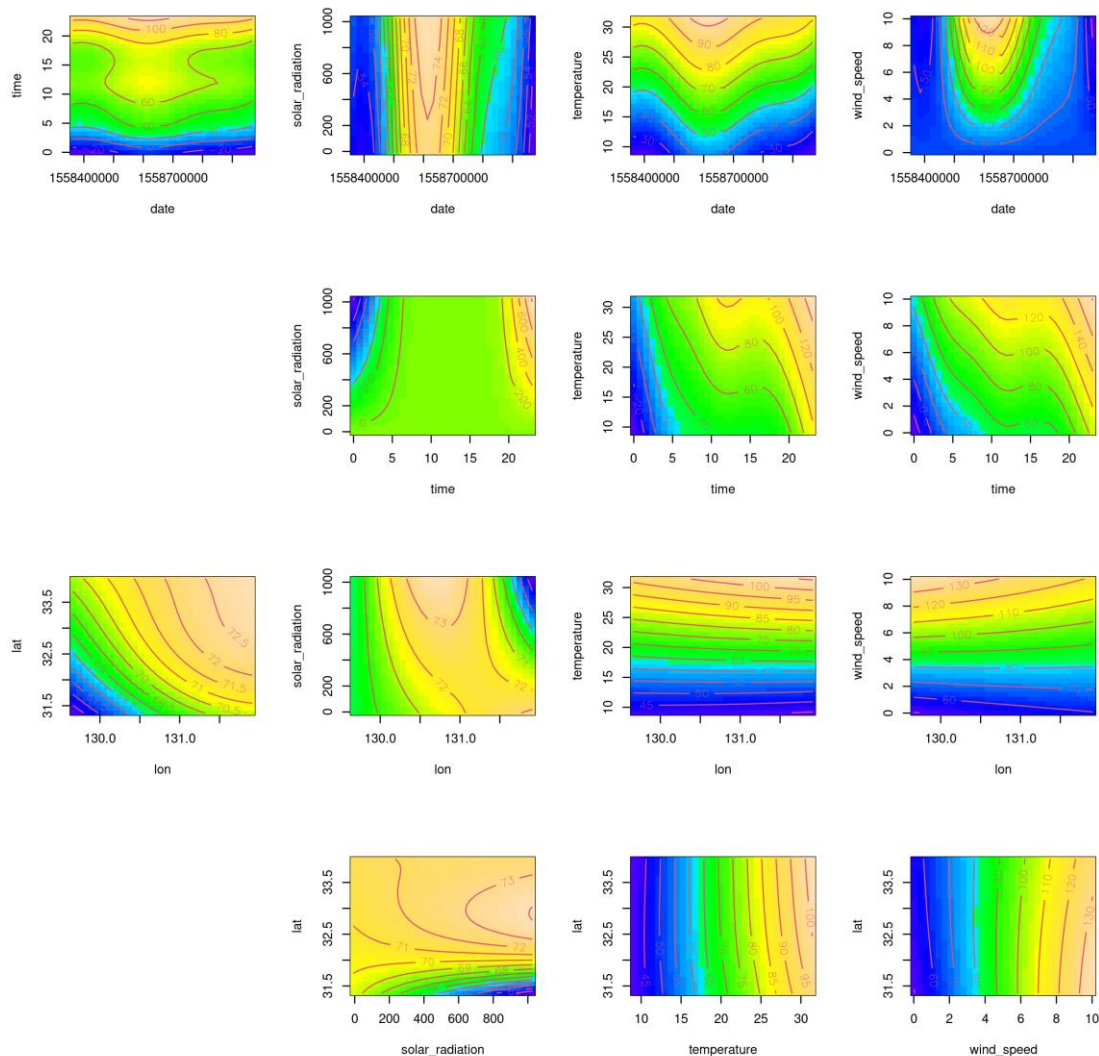


図 13 時空間効果を説明変数の因子として導入した GAM (m12) の結果

黒破線: 回帰曲線 赤色領域: 95%信頼区間

コンター図: x 軸及び y 軸の説明変数の関係が見られる場合の 0x 濃度の平均濃度 [ppb]

表 4 GAM の予測精度の比較 R2 値 (R. sq), AIC, BIC 及び逸脱度の説明性 (Dev. exp)

	R. sq	AIC	BIC	Dev. exp
m1 (LM)	0.5016	197540.5	197580.8	—
m2 (BASE)	0.5265	196364.1	196565.3	0.5269
m6 (TVC)	0.6961	185996.5	186122.3	0.9566
m9 (SVC)	0.5136	197087.9	197815.3	0.9307
m12 (STVC)	0.7201	184112.0	184554.0	0.9601

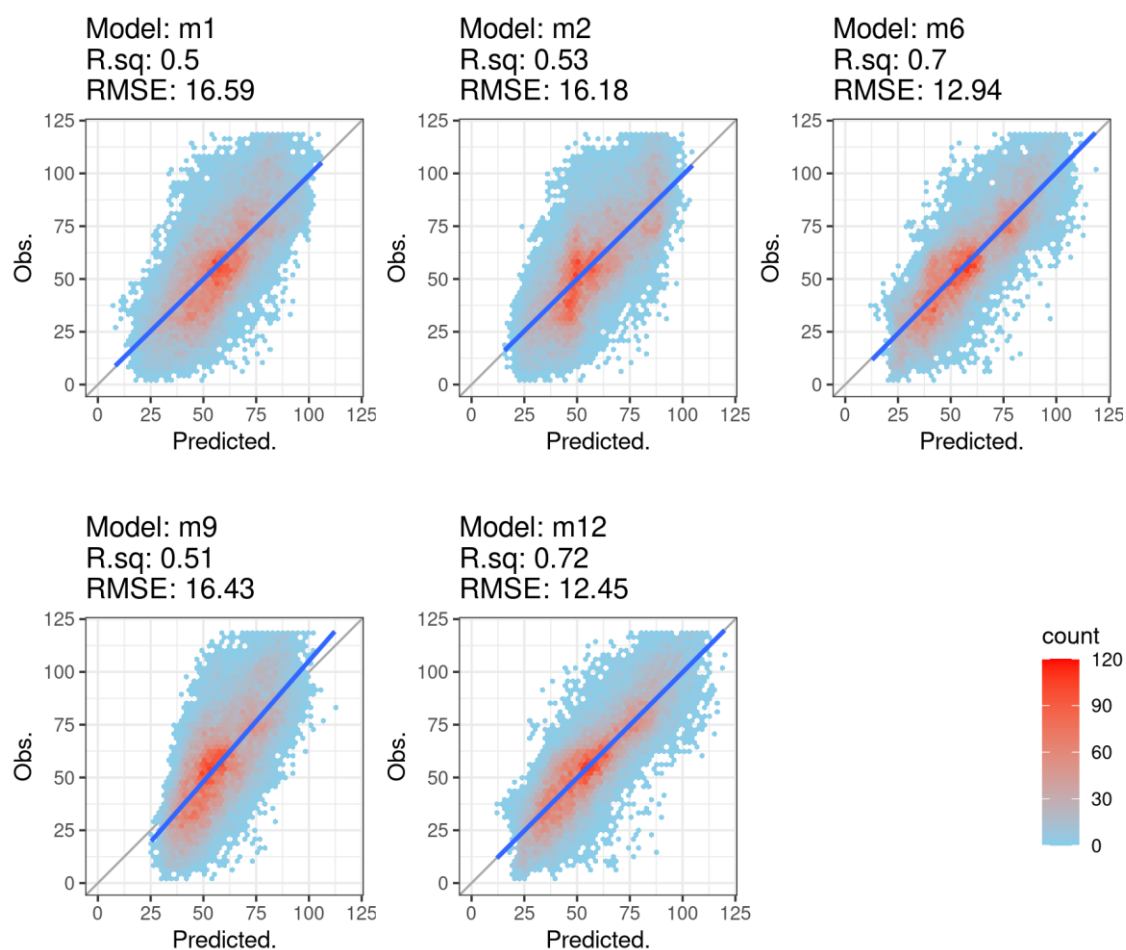


図 14 時空間効果を導入した GAM の結果比較

黒線: 観測値 (Obs.) 及び予測値 (Predicted.) の同値線 青実線: 回帰直線

に示す。これらの散布図では、y 軸に観測値、x 軸に交差検証法の結果を示しており、データの重なり部分の色を変えて表示できるよう密度分布で示している。

図 14 によると、m6(TVC) 及び m12(STVC) で精度が高い結果となり、それ以外の m1(LM)、m2(BASE) 及び m9(SVC) とは R^2 値及び RMSE 値に大きな差が見られた。m6(TVC) 及び m12(STVC) では、データの密度が大きい領域が回帰直線付近に集まっており、かつ、線形に伸びていることから、これらのモデルの予測精度が高いことが示された。なお、m6(TVC) と m12(STVC) との予測精度の差は小さく、空間変動の効果は時間変動の効果に比べて小さいことが示された。しかしながら、時間効果だけでは説明ができなかった不確実性を空間効果が補って GAM が構築されていると思われるため、時間効果単独よりも時空間効果を取り込んだモデルを構築することでモデルの説明性が高くなっていると思われる。

これらの結果から、時空間効果を組み込んだ m12(STVC) の精度及び回帰の説明性が、これまで構築したモデルの中で最も良い結果であることが示された。

6. 時空間データの予測

m12(STVC) を使って空間濃度分布の予測を行う。表 2 に示す条件で予測地点のデータを作成し、R の predict.gam() 関数で空間濃度分布の予測計算を行った (図 15)。結果は 2019-05-23 6h~2019-05-24 23h までの時間帯について示している。なお、図 15 では m12(STVC) による O_x 空間濃度分布予測値を地図上にコンター図として表示し、更に、常時監視測定局の位置及び観測値をコンター図に重ねて表した。

図 15 から、m12(STVC) の予測値は観測値を概ね再現できていることが示された。特に、 O_x 濃度の予測値が低濃度になりやすい夜間~早朝の時間帯の予測精度について

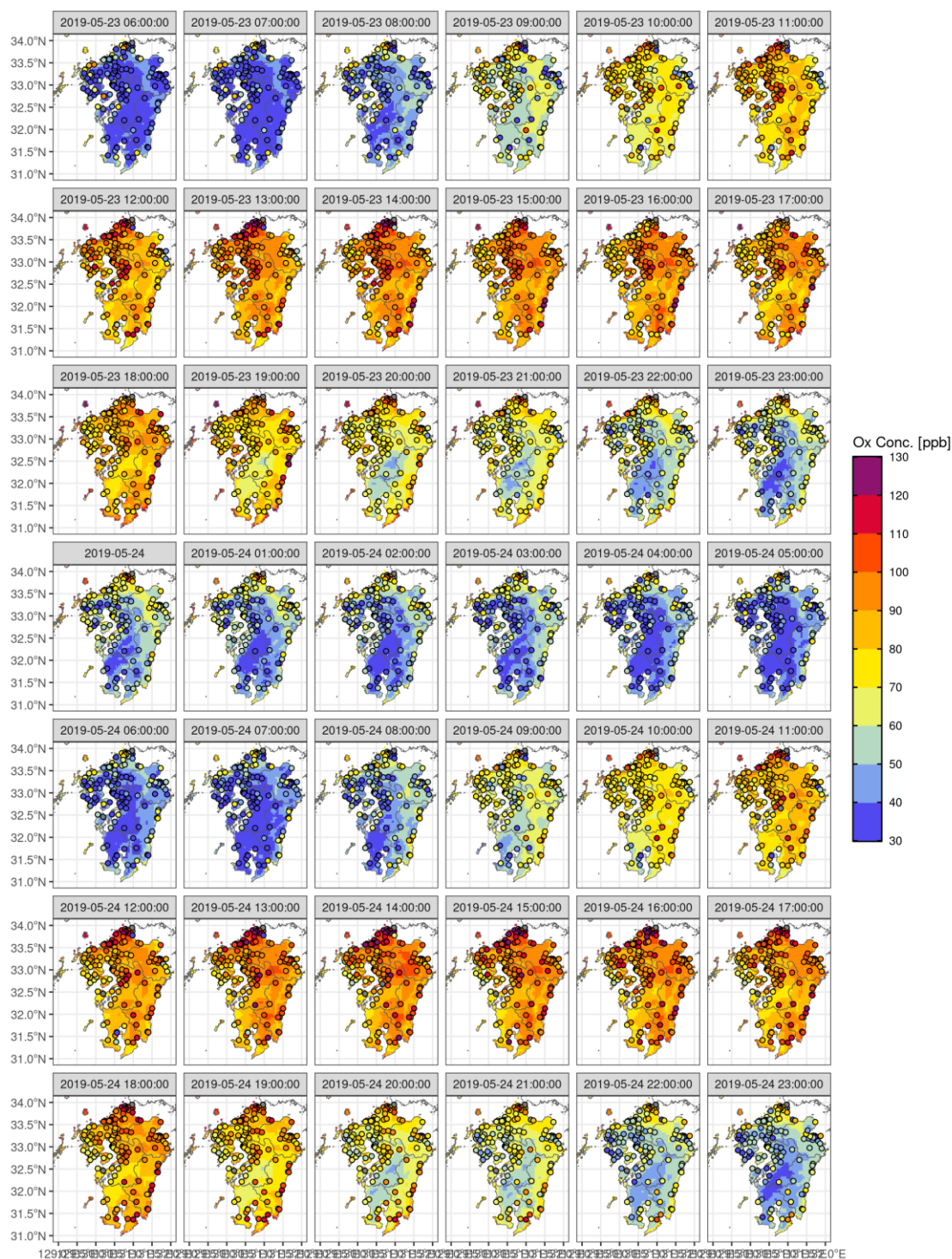


図 15 m12 (STVC) モデルを用いた空間濃度分布の予測結果

ポイントデータ: 常時監視測定局の位置及び観測値

コンター図: m12 モデルを用いた Ox の空間濃度分布

ては高い予測精度となっていた。一方で、日中に Ox 観測値が 120 [ppb] を超過するような極端に高い濃度を観測

していた時間、2019/5/23 6h 付近で日射量が少ない時間帯に既に Ox 濃度が上昇している時間、2019/5/24 0h 付近の

ように日中に上昇した Ox 濃度が夕方～夜間でも低下しなかった時間帯について、 $m12$ (STVC) では十分な予測ができなかった。

予測が十分ではなかった理由として、以下の 2 つの要因が考えられる。1 つ目の要因は、 $m12$ のモデルに組み込んだ通算時間 (date) の変動が実際の Ox 濃度の変動を捉えきれていなかったことである。 $m6 \sim m9$ において、date の効果は 3～4 日目の濃度が最も高くなるように、なだらかな曲線としてモデル化がされていた。観測値であれば日内変動が見られるように、 Ox 濃度の増減が表されているはずであるが、GAM を構築する際の設定でこのような結果となった。機械学習では、予測を行う場合に学習データからの過学習が度々問題になっていることを考えると、この程度の予測誤差は起こりうると思われる。一方で、日射量や気温の変動は毎日同じでは無いため、時間効果を time として構築した GAM では、時間変動の情報だけでは極端な観測値の予測は難しいと思われる。

2 つ目の要因は、説明変数として使用した日射量、気温及び風速では説明できない事象が実際に起きていたことである。 Ox の生成に大きく影響している日射量と気温は、日の出から日の入りの時間帯に大きく依存しており、日の入り後の時間は日射の影響がないことから、 Ox の生成量が 0 になる。更に、 Ox の主成分である O_3 は、 NO による分解で減少することが知られている²⁴⁾。そのため、 Ox の国内における生成量は日射量に大きく影響を受けると言えるが、国外で生成された Ox 、又は Ox の前駆物質が国内に流入する現象である越境移流が起きていた場合、日射量、気温、風速及びこれらの相互関係からだけでは説明することができない濃度の変動を示すこととなり、通常であれば Ox 濃度が低下している時間帯に Ox 濃度が上昇する可能性がある。本報の計算対象期間では、夜間に観測値で Ox 濃度が高い時間及び場所が確認でき、国外からの越境移流があった可能性が高い。これらの事象の詳細な解析は本報の検討内容から逸脱するため追加検討は行わないこととするが、越境移流を説明することができる説明変数には、化学輸送モデルによるシミュレーションの結果等、明らかに国外からの影響と識別することができるデータに限られている⁶⁾。他にも、回帰の結果に地球統計学手法である Kriging を組み合わせて、予測誤差を補間する手法の検討が行われており¹¹⁾、この手法を取り入れて予測精度を高めることも改善策の一つと言える。

ま と め

GAM により構築される予測精度の高いモデルは、その結果から多くの情報を得ることができ、説明変数及び予測変数間の関係性を詳しく確認することができた。構築し

たモデルの中では、時空間効果を導入したモデルで最も高い予測精度及び説明性を示していたが、説明性が高い反面、 $m12$ (STVC) による空間濃度分布の予測結果のように、空間的な変動は観測値と異なる部分もあった。そのため、計算結果をそのまま受け入れるのではなく、GAM の結果を確認し、必要に応じてモデルを改善していく必要があることが示された。加えて、本報では時空間効果を定義する際に、説明変数を因子として指定する方法が最も精度が高い結果となっていたが、 $m5$ 、 $m8$ 及び $m11$ のように "説明変数 + 時空間効果の交互作用" とする方法が良い場合もある。予測変数の種類でもモデルの構築方法は異なってくるため、最低限、本報で解説した方法を試して欲しい。

文 献 (MS ゴシック 9pt)

- 1) e-Gov ポータル . <https://elaws.e-gov.go.jp/> (2024 年 7 月閲覧)。
- 2) 環境省 : 大気汚染防止法第 2 2 条の規定に基づく大気の汚染の状況の常時監視に関する事務の処理基準 . https://www.env.go.jp/air/osen/law22_kijun.htm (2024 年 7 月閲覧)。
- 3) 環境省 : 令和 4 年度 大気汚染状況について . https://www.env.go.jp/press/press_03287.html (2024 年 7 月閲覧)。
- 4) 菅田誠治, 大原利真, 黒川純一, 早崎将光 : 大気汚染予測システム (VENUS) の構築と検証, *J. Jpn. Soc. Atmos. Environ.*, **46**(1), 49-59 (2011)。
- 5) 山村由貴, 新谷俊二, 力寿雄, 中川修平, 王哲, 鶴野伊津志 : 夏季の太平洋高気圧条件下における高濃度 $PM_{2.5}$ に対する火山の寄与解析, *J. Jpn. Soc. Atmos. Environ.*, **55**(4), 169-180 (2020)。
- 6) 古澤尚英, 板橋秀一, 豊永悟史, 村岡俊彦 : 2014 年冬季の熊本県中心部における微小粒子状物質の発生源感度解析, *J. Jpn. Soc. Atmos. Environ.*, **53**(5), 194-205 (2018)。
- 7) 国立環境研究所: 地方環境研究所等との共同研究. <https://www.nies.go.jp/kenkyu/chikanken/> (2024 年 7 月閲覧)。
- 8) 古澤尚英, 曾我稔, 豊永悟史, 荒木真, 菅田誠司 : 大気環境学会九州支部第 24 回研究発表会講演要旨集, p14, (2024)。
- 9) 古澤尚英, 豊永悟史, 荒木真, 曾我稔, 菅田誠司 : 第 65 回大気環境学会年会講演要旨集, p306, (2024)。
- 10) 辻本昌礼, 山本浩平, 亀田貴之 : 気象モデル推定値を取り入れた Land Use Regression モデルによ

- る国内大気汚染物質濃度分布推定, *J. Jpn. Soc. Atmos. Environ.*, **57**(1), 1-14 (2022).
- 11) 小原大翼, 豊永悟史, 古澤尚英, 荒木真, 山本裕典, 矢野弘道, 山崎文雅 : 地方自治体における PM2.5 常時監視ネットワークの効率化の検討 (I) - Regression Kriging 法による空間濃度分布予測-, *J. Jpn. Soc. Atmos. Environ.*, **57**(2), 53-65 (2022).
 - 12) 杉山将, 井手剛, 神寫敏弘, 栗田多喜夫, 前田 英作 監訳 : 統計的学習の基礎 データマイニング・推論・予測, p14, p337-348 (2014), (共立出版) ; {Trevor Hastire, Robert Tibshirani, Jerome Friedman: "The Elements of Statistical Learning -Data Mining, Inference, and Prediction Second Edition-", (2009), (Springer New York) }.
 - 13) Araki, S., Shima, M., Yamamoto, K : Spatiotemporal land use random forest model for estimating metropolitan NO2 exposure in Japan, *Science of The Total Environment*, **634**, 1269-1277 (2018).
 - 14) 松田晃一 訳 : 解釈可能な AI -機械学習モデルの解釈手法を実践的に理解する-, p24-61 (2023), (株式会社マイナビ出版) ; {Ajay Thampi: Interpretable AI -Building Explainable Machine Learning Systems-, (2022), (Manning Publications) }.
 - 15) 辻谷将明, 外山信夫 : R による GAM 入門, *行動計量学*, **34**(1), 111-131 (2007).
 - 16) 大原利眞, 若松伸司, 鶴野伊津志, 安藤保, 泉川碩雄 : 関東・関西地域における光化学オキシダントの経年動向に関する解析, *J. Jpn. Soc. Atmos. Environ.*, **30**(2), 137-148 (1995).
 - 17) 星純也, 石井康一郎 : 関東地域における揮発性有機化合物 (VOC) 排出量の変化と光化学オキシダント生成の関係について, *J. Jpn. Soc. Atmos. Environ.*, **48**(5), 215-222 (2013).
 - 18) 熊本県 : 熊本県の大気汚染の状況 . <https://kumamoto-taiki.jp/index.html> (2024 年 7 月閲覧).
 - 19) 村上大補 : 実践 Data Science R ではじめる地理空間データの統計解析入門, (2022), (講談社).
 - 20) Simon Wood. : Mixed GAM Computation Vehicle with Automatic Smoothness Estimation (CRAN `mgcv` package manual.). <https://cran.r-project.org/web/packages/mgcv/index.html> (2024 年 7 月閲覧).
 - 21) Schwarz Gideon. : Estimating the dimension of a model, *The annals of statistics*, 461-464 (1978).
 - 22) Simon N. Wood : Generalized additive models: an introduction with R, p40 (2017), (chapman and hall/CRC).
 - 23) Lex Comber. : Modelling Space and Time with GAMS: spatially and temporally varying coefficient models. <https://bookdown.org/lexcomber/AGILE2024/> (2024 年 8 月閲覧).
 - 24) 秋元肇 : 大気反応化学, p167-168 (2014), (朝倉書店).

リスト4 前方ステップワイズ法による交互作用項を導入した GAM の構築

```

stepwise_gam <- function(target = character(), ex = character(), int_lev = NULL, FUN = BIC, data) {
  FUN <- substitute(FUN)
  message_gam <- function(model) {
    message("=====")
    message("formula: ", deparse(formula(model)))
    message(deparse(FUN), ": ", eval(bquote(round(. (FUN) (model), digits = 2))))
    message("R.sq: ", round(summary(model)$r.sq, digits = 4))
    message("Deviance explained: ", round(summary(model)$dev.expl * 100, digits = 2), "%")
    message("=====\n")
  }
  create_formula <- function(target, ex) {
    parse(text = paste(target, "~", paste(paste0("s(", ex, ")"), collapse = " + ")))[[1]] |> as.formula()
  }
  ## calc normal gam
  ms <- lapply(ex, function(x) {
    mgcv::gam(create_formula(target, x), data = data)
  })
  num <- eval(bquote(which.min(Map(. (FUN), ms))))
  m <- ms[[num]]
  message_gam(m)
  for (i in setdiff(seq(1, length(ex), by = 1), num)) {
    m2 <- mgcv::gam(create_formula(target, ex[c(num, i)]),
                    data = data)
    message_gam(m2)
    if (eval(bquote(. (FUN) (m2))) <= eval(bquote(. (FUN) (m)))) {
      num <- c(num, i)
      m <- m2
    }
    rm(m2)
  }
  ## calc interactions
  if (!is.null(int_lev)) {
    pat <- combn(ex, int_lev)
    for (i in seq(1, ncol(pat), by = 1)) {
      formula <- parse(text = paste(paste(deparse(formula(m)), collapse = ""), paste0(" + s(",
      paste(pat[, i], collapse = ", ", ")")")))[[1]] |> as.formula()
      m2 <- mgcv::gam(formula,
                      data = data)
      message_gam(m2)
      if (eval(bquote(. (FUN) (m2))) <= eval(bquote(. (FUN) (m)))) {

```

```

    num <- c(num, i)
    m <- m2
  }
  rm(m2)
  rm(formula)
}
}

message("Completed.")
message("=====¥n")
return(m)
}

stepwise_gam(target = "Ox", ex = c("solar_radiation", "temperature", "wind_speed"), int_lev =
2, data = uto, FUN = BIC) |> summary()
=====
formula: Ox ~ s(temperature)
BIC: 1380.16
R. sq: 0.6928
Deviance explained: 70.44%
=====

=====
formula: Ox ~ s(temperature) + s(solar_radiation)
BIC: 1380.45
R. sq: 0.7103
Deviance explained: 72.56%
=====

=====
formula: Ox ~ s(temperature) + s(wind_speed)
BIC: 1372.93
R. sq: 0.7397
Deviance explained: 75.75%
=====

=====
formula: Ox ~ s(temperature) + s(wind_speed) + s(solar_radiation, temperature)
BIC: 1413.78
R. sq: 0.79
Deviance explained: 82.89%
=====

=====
formula: Ox ~ s(temperature) + s(wind_speed) + s(solar_radiation, wind_speed)

```

```

BIC: 1420.05
R. sq: 0.8161
Deviance explained: 85.82%
=====

=====

formula: 0x ~ s(temperature) + s(wind_speed) + s(temperature, wind_speed)
BIC: 1381.82
R. sq: 0.7576
Deviance explained: 78.17%
=====

Completed.
=====

Family: gaussian
Link function: identity

Formula:
0x ~ s(temperature) + s(wind_speed)

Parametric coefficients:
              Estimate Std. Error t value Pr(>|t|)
(Intercept)  57.1617      0.9672   59.1    <2e-16 ***
---
Signif. codes:  0 '***' 0.001 '**' 0.01 '*' 0.05 '.' 0.1 ' ' 1

Approximate significance of smooth terms:
              edf Ref.df      F p-value
s(temperature) 7.468  8.429 38.812 < 2e-16 ***
s(wind_speed)  3.870  4.797  5.983 8.29e-05 ***
---
Signif. codes:  0 '***' 0.001 '**' 0.01 '*' 0.05 '.' 0.1 ' ' 1

R-sq. (adj) = 0.74 Deviance explained = 75.8%
GCV = 168.67 Scale est. = 156.21 n = 167

```

2) 続・熊本地域の地下水管理行政の現状について

中堀 靖範, 嶋田純^{*1}, 細野高啓^{*1}, 勝谷仁雄^{*2}, 古閑仁美^{*2},
川崎雅俊^{*3}, 小林嵩丸^{*4}, 田原康博^{*4}

要 旨

熊本地域では生活用水のほぼ 100%を地下水で賄う等, 地下水は県民の暮らしや経済活動を支える共通の基盤となっている。この地下水の質と量を健全な状態で次世代に引き継ぐため, 様々な主体により地下水の調査研究や保全の取組みが長年に渡り進められてきた。本報文では平成 22 年 (2010 年) 以降の県内の地下水保全の主な取組みと, その後明らかとなった熊本地域の地下水流動等の解析結果について整理した。

キーワード: 地下水, GETFLOWS, 涵養

はじめに

熊本県は, 県内の上水道水源の約 80%を地下水に依存しており, 地下水に恵まれた全国的にも極めて稀な県である。中でも阿蘇外輪山西麓から熊本平野及びその周辺の台地に広がる熊本都市圏は県人口の半数を超える約 100 万人を擁しており, その生活用水のほぼ 100%を地下水で賄っているほか, 工業や農業などの産業用水にも多くの地下水が利用される等, 地下水は県民の暮らしや経済活動を支える共通の基盤となっている。

一方で, 熊本県内では平成元年 (1989 年) 頃から地下水の硝酸性窒素汚染が確認され, また同時期には熊本地域における地下水位の低下も顕在化していた。このような状況から, 地下水の質と量を健全な状態で次世代に引き継ぐため, 行政のみならず様々な主体により地下水の調査研究や保全の取組みが長年に渡り進められてきた。

熊本地域における地下水保全の状況については平成 22 年 (2010 年) までの取組みについて小嶋¹⁾が報告しており, 本報文では平成 22 年 (2010 年) 以降の県内の地下水保全の主な取組みと, その後明らかとなった熊本地域の地下水流動等の解析結果について報告する。

1. 平成 22 年 (2010 年) 以降の地下水保全の主な取組み

平成 22 年 (2010 年) までの熊本地域における地下水保全の取組みは小嶋が報告しており, 平成 8 年 (1996 年) に第一次熊本地域地下水総合保全管理計画を策定, 平成 16 年 (2004 年) には第一次計画を引き継ぐ形で第二次熊本地域地下水総合保全管理計画を策定し, これに

基づいて地下水涵養や採取量抑制, さらに地下水質悪化等に対する様々な施策が行われてきた。特に, 平成 16 年 (2004 年) には熊本地域で人工涵養が開始され, それまで低下傾向であった菊陽町辛川の観測井の地下水位は平成 17 年 (2005 年) を境に増加傾向に転じている

(図 1)。この地下水位の回復基調は, 平成 22 年 (2010 年) までの地下水保全の取組みはもちろんのこと, それまでの取組みを地域全体でより一層強化して本日まで継続した取組みの積み重ねによるものと考えられる。

そこで, 本報文では平成 22 年 (2010 年) から令和 5 年 (2023 年) までの熊本地域の地下水保全の主要な取組みについて整理した。

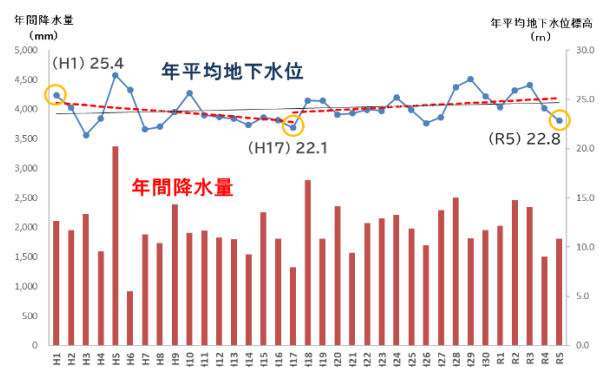


図 1 菊陽町辛川の年平均地下水位と降水量の経年変化

1.1 公益財団法人くまもと地下水財団の設立

平成 22 年 (2010 年) 頃の熊本地域では, 地下水の硝酸性窒素汚染対策や水量保全に係る地下水涵養の推進に

^{*1} 熊本大学 ^{*2} 公益財団法人くまもと地下水財団 ^{*3} サントリーホールディングス株式会社

^{*4} 株式会社地圏環境テクノロジー

向け、様々な団体により地下水保全の取組みが進められていた。

その中でも、①熊本地域の地下水保全を図るため熊本県と熊本地域の市町村で構成された「熊本地域地下水保全対策会議」、②地下水利用企業や農業団体、熊本県、熊本市周辺自治体などで構成された「熊本地域地下水保全活用協議会」、③地下水保全に取り組んでいた「財団法人熊本地下水基金」の3組織については、平成24年(2012年)に統合され、熊本地域の住民、事業者、行政が一体となって地下水保全に取り組む新組織として公益財団法人くまもと地下水財団(以下、「財団」という。)が設立された。

財団の活動は、地下水の調査研究、広報啓発、助成事業等多岐に渡っており、その中でも設立当初から継続的に取り組んでいる地下水涵養の主要な取組みとして、水田オーナー制度と冬期湛水事業がある。

熊本地域の豊富な地下水は、阿蘇山の火砕流堆積物が100m以上も厚く降り積もった水の浸透性の高い地層が広がる白川中流域において、約400年前の加藤清正公の時代から堰と用水路を築いて広域的に水田が開墾されたことにより、水田を通じて莫大な量の水が浸透することで育まれたとされている。その一方で、熊本地域は都市化により昭和51年(1976年)以降の40年間で住宅等の非涵養域が約2.2倍に拡大した。水田等の涵養域が減少すると自然涵養量が減少するため、これが地下水量の減少の大きな要因の一つになっていると指摘されてきた(図2)²⁾。このような状況で、地下水量を保全するためには現在の地下水涵養量をできる限り維持し、さらには増やしていく必要があり、そのためには営農の維持や人工的な地下水涵養が求められる。

財団が実施する水田オーナー制度は、地下水涵養に取

り組む事業者等が地下水涵養効果の高い地域の水田で米を契約栽培する制度で、営農の維持に貢献するものである。令和4年(2022年)までの10年間で財団が実施した水田オーナー制度により涵養された地下水の総量は約29万2,063m³とされている²⁾。

また、冬期湛水事業は稲刈り後の冬場の休耕田に水を張って地下水を涵養する取組みで、農地の減少により水田からの涵養量が減る中、限られた涵養地で水張り期間を増やすことで人工涵養量を増やす取組みである。平成24年度(2012年度)～令和5年度(2023年度)の12年間で財団が行った冬期湛水事業により涵養された地下水の総量は約1,902万m³とされている²⁾。

後述するとおり、熊本地域では県条例により地下水採取許可者に対して地下水涵養の目標設定を課しており、半導体関連企業の進出に伴い、地下水を利用し、地下水涵養に取り組む企業が今後増えることが予想される。そのため、財団による地下水涵養の取組みは今後ますます重要となり、財団には熊本地域における地下水保全の中心的な役割が期待される。



図3 大津町瀬田地区の冬期湛水の様子

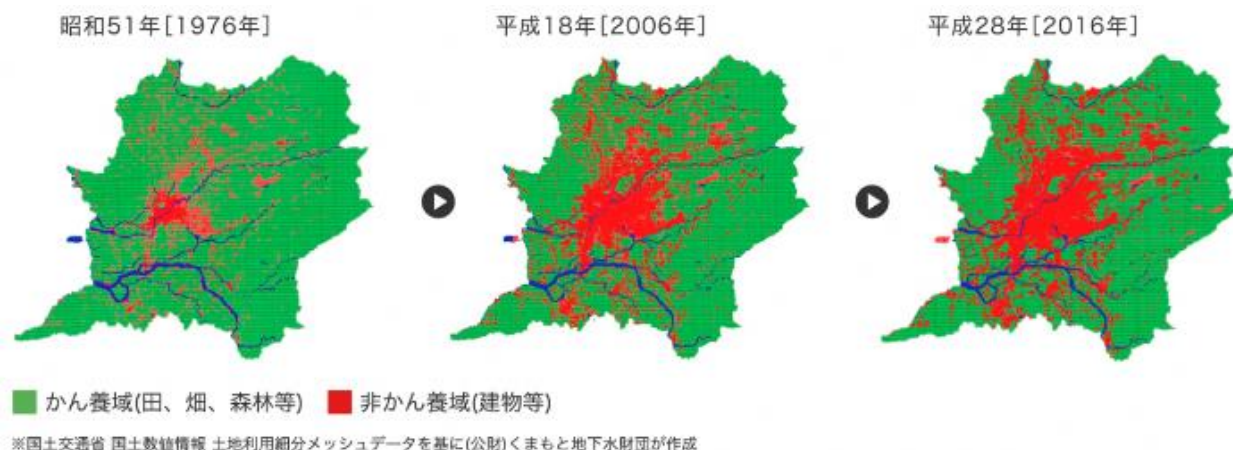


図2 熊本地域のかん養域と非かん養域の推移

1.2 熊本県地下水保全条例の改正

熊本県では、地下水の適正管理を目的とした「熊本県地下水の採取に関する条例」(昭和 53 年(1978 年))と地下水汚染防止対策を目的とした「熊本県地下水質保全条例」(平成元年(1989 年))により、全国的にも早い段階から地下水保全に係る規制や取組みを進めてきた。これらの条例は平成 10 年(1998 年)に熊本県地下水保全条例(以下、「条例」という。)として統合された後、平成 23 年(2011 年)に大きな改正(以下、「平成 23 年改正」という。)が行われた。主要な改正概要を以下にまとめる。

(1)地下水を公共水として位置づけ

水質汚濁防止法では、河川、湖沼、海域を公共の用に供される水域(公共用水域)として定めているが、これに地下水は含まれていない。地下水の流動は、河川及び海への流出を繰り返す水の循環の一部をなすものであり、県民生活及び地域経済の共通の基盤となっていることを踏まえ、熊本県では平成 23 年改正において地下水を「公共水」として条例に位置づけ、事業者、県及び県民が連携、協働して保全の取組みを推進することとした。

(2)重点地域の指定

改正前の条例では、地下水の採取に伴う障害が生じ、及び生ずるおそれのある地域等を指定地域として指定し、地下水保全の取組みを特に推進してきた。平成 23 年改正では、指定地域の中でも特に地下水の水位が低下している地域等を重点地域として指定し、地下水の採取や水利用の合理化、地下水の涵養等の規制を強化した。現在この重点地域には、熊本市周辺の熊本地域※が指定されている。

※熊本県地下水保全条例で定める重点地域(熊本地域)(図 4)は、熊本市、菊池市(旧旭志村・旧泗水町のみ)、宇土市、合志市、大津町、菊陽町、西原村、御船町、嘉島町、益城町、甲佐町



図 4 熊本県地下水保全条例で定める重点地域

(3)地下水採取許可制度の導入

平成 23 年改正前の条例では、一定規模以上の揚水機による地下水採取の届出制度を導入し、地下水の採取量の報告を義務付けていたが、平成 23 年改正では大口の揚水機による地下水採取の許可制度を新たに導入した。特に、重点地域として指定した熊本地域では揚水機の吐出口の断面積が 19cm² 超の揚水機を設置する井戸を許可の対象とし、許可の要件として揚水試験の実施や水量測定器の設置等を規定した。これにより、新たな大規模揚水による周辺地域への地下水位の著しい低下や塩水化、地盤の沈下等の地下水障害を未然に防止するだけでなく、地下水採取者が揚水量を適正管理できる体制を整備した。

(4)水利用の合理化及び地下水涵養目標の導入

県では、地下水採取許可制度の導入とともに、地下水の合理的な使用の促進に関する指針(地下水使用合理化指針)及び地下水の涵養の促進に関する指針(地下水涵養指針)を定め、平成 23 年改正により地下水採取の許可を受けようとする者に対し、これらの指針を踏まえた水利用の合理化計画や地下水の涵養計画の作成を義務付けた。特に重点地域の地下水採取許可者に対しては、地下水涵養指針により「許可採取者が地下水涵養を実施すべき量に関する目標」を具体的に定めた。この目標について、平成 23 年改正当時は地下水採取量の 1 割としていたが、地下水の収支バランスを保ち、持続的に利用していくため令和 4 年(2022 年)9 月に地下水採取量に見合う量(原則 10 割)に改正した。

(5)地下水汚染の防止に向けた改正

地下水汚染の未然防止に向けては、平成 23 年度(2011 年)に水質汚濁防止法が改正され、全国的な規制として有害物質を使用・貯蔵する事業場に対して事前の届出と構造基準の適合、排水基準の適合及び自主検査等の義務が課された。熊本県では平成 23 年改正による独自の規制として、水質汚濁防止法に定める有害物質や条例に定める指定物質に係る井戸水の水質検査の実施を義務付け、有害物質や指定物質を使用する事業者が自ら地下水汚染の有無を確認するようにした。

2. 熊本地域の地下水の流動等の解析

熊本地域の地下水の流動等の解析は様々な主体により行われてきた。最初に行われた広域的な地下水解析には地下水総合保全管理計画(平成 8 年(1996 年))策定に向け、平成 4 年度(1992 年度)から平成 6 年度(1994 年度)にかけて県及び熊本市が実施した地下水総合調査がある。

この調査データ等を基に、国土交通省九州地方整備局熊本河川国道事務所は熊本地域の水循環機構の解明と白川の定常流量の検討等のため GETFLOWS[®]による熊本地域水循環モデル（以下、「熊本モデル」という。）を構築した³⁾。

GETFLOWS[®]とは、株式会社地圏環境テクノロジーが開発した地表水と地下水の完全水理連成および熱輸送を包含した統合型地圏流体シミュレーターである。熊本モデルでは気象、地表の地形・土地利用、地下の地質構造、水利用等の条件を設定し、三次元格子を用いてモデル化されている。

国土交通省により構築された熊本モデルは、その後、熊本大学やサントリーグローバルイノベーションセンター株式会社、財団等様々な主体により、熊本地域の硝酸性窒素汚染の解析、熊本地震による地下水位や湧水量の変動等の解析に用いられ、その都度熊本モデルには新たなデータが組み込まれて再構築されてきた^{4)~8)}。

県においても、半導体関連企業の集積により熊本地域の地下水採取量の増加が見込まれることを踏まえ、地下水の持続的な利用を図ることを目的として、前述の団体との協働により熊本モデルの再構築に取組み、熊本地域の地下水について解析を行った。本報文では、熊本モデルの再構築の概要と地下水の流動等の解析結果について報告する。

2.1 熊本モデルの再構築

熊本地域には精緻な三次元格子モデルを構築するための豊富なデータが存在する。

まず、正確な地質データの豊富さが挙げられる。熊本地域には現在も 3,000 以上の井戸が存在しており、熊本地域の地質断面図⁹⁾では、この豊富な井戸の地質情報を基にした熊本地域全体の地質データを取りまとめている。熊本モデルの再構築に当たっては、この資料を基に熊本地域の地質情報をより正確に再現し、地質ごとに透水係数、間隙率等のパラメータを設定する等緻密な地下水の流動を再現した。

次に、地下水に係る観測データの豊富さも挙げられる。県では県内 34 箇所の地下水観測井のうち 17 井を熊本地域に設置しており、加えて熊本市も熊本市内 20 か所 33 本の観測井を設置している¹⁰⁾。さらに、東海大学の調査を引き継ぎ、財団では江津湖の湧水量調査を継続的に実施している。加えて、県では昭和 53 年（1978 年）から一定規模以上の井戸による取水量の報告を取りまとめ、延べ 6,000 以上の井戸による地下水採取量を集計してきた。これらのデータを、河川流量や気象データ等と

組み合わせて解析することで、より精度の高い水循環の現況再現を行い、熊本モデルを再構築することができた。なお、熊本モデルの現況再現解析や再構築に係る詳細については、川崎ら¹¹⁾や小林ら¹²⁾により報告されている。

2.2 熊本地域の地下水の流動等に係る解析結果

再構築した熊本モデルにより、熊本地域の地下水の流動等に係る解析を行った。主な事柄については以下のとおりである。

なお、広範囲の地下の水理地質構造を詳細に把握することには限界があり、シミュレーションモデルによる予測結果は構築した水理地質情報の精度に応じた範囲で相応の誤差が生じ得る。また、熊本モデルは今後の更なるデータ更新により再構築する予定であり、本報文で示す流線図や地下水の貯留量、水収支等の予測結果は今後も相応に変化する場合があることに留意が必要である。

(1) 熊本地域の地下水の流線図

熊本モデルの精緻化によって得られた地下水の流線図を図 5 に示す。この流線図は、地表面直下に置いた粒子を地表水および地下水の三次元流動場に沿って追跡した結果を二次元平面上に投影したもので、地表水を青線、地下水を緑線で描画している。

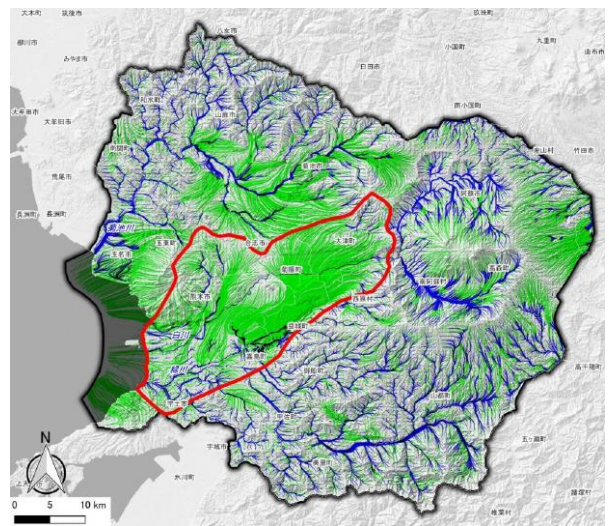


図 5 熊本地域及びその周辺の地表水・地下水の流線図

まず、白川中流域から江津湖周辺の下流に向けて地下水の流れが卓越しており、これが日量 50 万 m³を超える江津湖の湧水量につながっていると考えられる。

また、阿蘇カルデラ内の降水により生み出される地下水はカルデラから出る際、多くは一度表流水として湧出

し、白川へと流れていることが視覚的に示された。なお、阿蘇カルデラから立野火口瀬を通じて熊本地域に直接流入している地下水も確認されており¹³⁾、カルデラ内の全ての地下水が表流水となり白川へ流出しているわけではないことに留意が必要である。

(2) 熊本地域の水収支及び地下水貯留量

再構築した熊本モデルにより熊本地域の地下水の貯留量と水収支を算出した。対象範囲は、地下水の流線を基に熊本地域へと流れ込む図 5 に示す赤線内の範囲とし、深度により地層の違いはあるものの、表土～先阿蘇火山岩類を包含する深度範囲（基盤岩は含まない）までを対象とした。その結果、第一帯水層 14.5 億 m^3 、第二帯水層 85.5 億 m^3 、深部帯水層 771 億 m^3 となり、合計 871.2 億 m^3 の地下水が貯留されていることがわかった。これは琵琶湖の貯水量（275 億 m^3 ）¹⁴⁾ の約 3.2 倍に相当する。また、このうち熊本地域で主に利用されている第 1、第 2 帯水層の地下水の合計貯留量は、地下水の年間採取量（令和 3 年度実績：1.6 億 m^3 ）の 62.5 年分に相当する約 100 億 m^3 と試算された。

次に、熊本モデルから算出された平成 27 年（2015 年）の水収支を表 1 に示す。地下水の流入量の約 90% は雨水の地下浸透（涵養）が占めている。これは降雨量によって毎年大きく変動することが推定される。一方、流

出量の約 75% が湧水、約 14% が地下水の揚水が占めており、人工的な地下水採取に比べて湧水の方が 5 倍以上多いことが推定された。この地下水の収支の経年的な推移（図 6）を見ると、流出量に比べ流入量がより大きく変動しており、降水に比べて地下水の変動が小さく相対的に安定していることが示されるとともに、流入量よりも流出量が上回る年があることも推定された。

地下水は表流水とは異なり貯留性が大きく、その貯留量が熊本地域は膨大であるため、降雨量が少なくなることによって流出量が流入量を上回った場合でも直ちに地下水が枯渇することではなく、安定して水利用ができることが改めて確認された。

ただし、地下水の流出量は経年変動が少ないが、流入量は毎年大きく変動しており、これは降雨量の変化によるものと考えられる。流出量の構成要素の一つである地下水の採取量が変動することは流出量を変動させることになるため、持続可能な水利用を目指すためには降雨からの涵養を補うように安定的な流入量の補強が必要であり、そのためには人工的な涵養を拡大することが重要と考えられる。

ま と め

熊本地域では、様々な主体により地下水の調査研究や保全の取組みが長年に渡り進められ、特に平成 16 年（2004 年）の人工涵養開始翌年を境に熊本地域の地下水位は回復傾向へと転じた地点もある。このような地下水保全の取組みは平成 22 年度（2010 年度）以降さらに加速し、財団の設立や条例の改正等が行われ、現在の地下水保全の体制が維持されている。

また、GETFLOWS[®]を用いた熊本地域の地下水解析についても、これまで様々な主体によって実施されてきた。県においても、大学や民間企業、財団等との協働により熊本モデルの再構築や解析を実施し、熊本地域の地下水の流動や貯留量等について改めて明らかにした。一方で降雨量が少ない年には流入量よりも流出量が大きく、貯留量が減少している時期があることもわかった。今後、半導体関連企業の進出等に伴い地下水涵養域における開発が進められ、地下水採取量が増加する可能性を考慮すると、安定的な地下水量確保のため、水利用の合理化による地下水採取量の削減や人工的な地下水涵養の取組みがますます重要となる。

熊本地域における経済発展と地下水保全を両立し、豊かな地下水を未来へ守り、育て、活かしていくためにも、引き続き地下水保全に向けて官民一体となった地下水保全の取組みが求められる。

表 1 熊本地域の水収支（平成 27 年（2015 年））の試算結果

流入成分		流出成分	
項目	水量	項目	水量
地下水流入量	1.2 (207)	土壌蒸発量	0.0 (4)
浸透量	10.6 (1879)	地下水流出量	1.1 (199)
		湧水量	8.3 (1475)
		地下水取水量	1.5 (259)
流入成分合計	11.8 (2086)	流出成分合計	10.9 (1936)

※億 m^3 /年（カッコ内は mm /年）

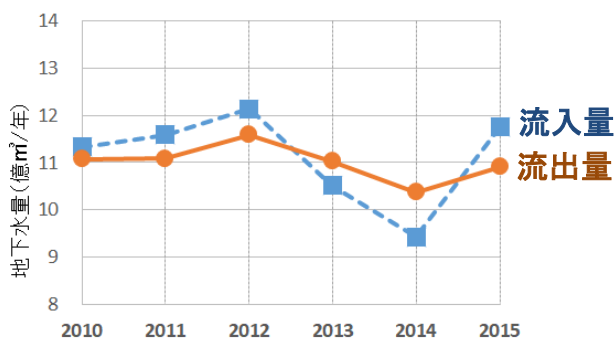


図 6 熊本モデルによる地下水の流出量と流入量の試算結果

謝 辞

熊本モデルによる地下水解析に際しては、熊本大学の嶋田純名誉教授や細野高啓教授をはじめ、公益財団法人くまもと地下水財団の勝谷仁雄事務局長と古閑仁美氏、サントリーホールディングス株式会社の川崎雅俊氏等多くの方に多大な協力や助言をいただきました。ここに改めて感謝の意を表します。

文 献

- 1) 小嶋一誠：地下水学会誌, 52(1), 49-64 (2010).
- 2) 公益財団法人くまもと地下水財団ホームページ.
<https://kumamotogwf.or.jp/> (2025 年 2 月閲覧).
- 3) 中元道男, 萩原健介, 北嶋清：平成 24 年度九州国土交通研究会論文集, (2012).
- 4) 嶋田純：戦略的創造研究推進事業 CREST 研究領域「持続可能な水利用を実現する革新的な技術とシステム」研究課題「地域水循環機構を踏まえた地下水持続利用システムの構築」終了報告書, (2016).
- 5) 田原康博, 吉田堯史, 福岡庸一, 細野高啓, 嶋田純：熊本地震によって生じた地下水位変化の数理モデリング, 日本地球惑星科学連合 2018 年大会, AHW24-06 (2018).
- 6) 細野高啓, 山田千聡, 柴田智郎, 田原康博, 嶋田純：熊本地震による地下水変化メカニズム, 日本地球惑星科学連合 2018 年大会, AHW24-04 (2018).
- 7) 川崎雅俊, 田原康博, 福岡庸一, 嶋田純：日本地下水学会 2022 年春季講演会講演予稿, 134-139, (2022).
- 8) 川崎雅俊, 田原康博, 福岡庸一, 嶋田純：日本地下水学会 2022 年秋季講演会講演予稿, 216-220, (2022).
- 9) 熊本地盤研究会：“熊本地域の地質断面図～地下地質と熊本地震～” (2019), (熊日出版).
- 10) 熊本市ホームページ.
https://www.city.kumamoto.jp/kankyo/hpkiji/pub/detail.aspx?c_id=5&type=top&id=27515 (2025 年 2 月閲覧).
- 11) Masatoshi Kawasaki, Motomitsu Sawada, Yasuhiro Tawara, Takamaru Kobayashi, Yo-ichi Fukuoka, Kazuhiro Tada, Jun Shimada, Takahiro Hosono, Kimio Katsuya, Keiichi Shin-no, Hitomi Koga and Yasunori Nakahori : EGU General Assembly 2024, 14-19, (2024).
- 12) 小林嵩丸, 多田和広, 田原康博, 中堀靖範, 嶋田純, 細野高啓, 古閑仁美, 勝谷仁雄, 川崎雅俊：熊本地域水循環モデルの構築, 日本地下水学会 2024 年秋季講演会講演予稿集, (2024).
- 13) 市川勉：森林環境 2023, p.84-96, (2023).
- 14) 滋賀県ホームページ.
<https://www.pref.shiga.lg.jp/ippan/kankyoshizen/biwako/gaiyou.html> (2025 年 2 月閲覧).

3・2 資 料

1) 感染症発生動向調査に伴う病原体検査 (2023 年度)

井上祐希江 笠 純華 平野孝昭 原田誠也
森 美聡 伊豆一郎 徳岡英亮

はじめに

熊本県感染症発生動向調査事業¹⁾に基づき、2023 年度に検査依頼のあった検体について病原体検査を実施した結果を取りまとめたので報告する。

調査方法

1. 検査材料

県内の病原体定点やその他の医療機関で採取された咽頭ぬぐい液 (鼻咽腔拭い液及び鼻汁を含む)、結膜ぬぐい液 (眼脂を含む)、および便を検体とした。各種検体の受付数を表 1 に示した。なお、搬入された検体は、検査に供するまで 4℃または-80℃で保存した。

2. 検査方法

検査方法については、既報^{2),3)}及び国立感染症研究所が定めるマニュアル⁴⁾に準じ、PCR 法マイクロプレートによる細胞培養法で検査を実施した。分離ウイルスの同定は PCR 法ならびにシーケンス法を用いた。

結 果

2023 年度は、臨床検体 97 件の検査依頼があり、そのうち 64 件から病原ウイルスが分離、あるいは遺伝子が検出された。疾患別に分類したウイルス検出数を表 2 に示した。

1. 呼吸器系疾患の患者から検出されたウイルス

呼吸器系疾患と診断された患者検体の中で、インフルエンザ、上気道炎、下気道炎、咽頭結膜熱と診断された 41 検体から、混合感染を含め 35 件の病原ウイルス、あるいは遺伝子が検出された。その内訳は、インフルエンザウイルス A(H1pdm09 型)が 3 件、A(H3)型が 1 件、アデノウイルスの型別不明(NT)が 1 件、エンテロウイルス NT が 1 件、ヒトライノウイルスが 21 件、ヒトボカウイルスが 1 件、ヒトコロナウイルス NL63 型が 1 件、ヒトヘルペスウイルス 6B 型が 1 件、7 型が 1 件、パラインフルエンザウイルス 3 型が 1 件、RS ウイルスが 3 件であった。

2. 下痢症疾患の患者から検出されたウイルス

感染性胃腸炎と診断された 2 検体のうち 1 検体から、ノロウイルス GII が検出された。

3. 眼関連疾患の患者から検出されたウイルス

流行性角結膜炎、その他結膜炎等と診断された 13 検体から、8 件の病原ウイルス、あるいは遺伝子が検出された。その内訳は、アデノウイルス 3 型が 1 件、56 型が 3 件、NT が 3 件、ライノウイルスが 1 件であった。

4. その他の疾患の患者から検出されたウイルス

ヘルパンギーナ、手足口病、発疹症、流行性耳下腺炎等と診断された 49 検体のうち、混合感染を含め 27 件の病原ウイルス、あるいは遺伝子が検出された。その主な内訳はアデノウイルス NT が 1 件、エンテロウイルス 71 型が 7 件、NT が 1 件、コクサッキーウイルス A6 型が 4 件、パレコウイルスが 1 件、ヒトライノウイルスが 3 件であった。ヘルペスウイルス 6 型はヘルパンギーナ、手足口病、発疹症、流行性耳下腺炎と様々な疾患の患者検体から 9 件検出された。7 型は流行性耳下腺炎の患者検体由来の 1 件のみであった。

考察とまとめ

2023 年度における本事業の総検査数は 97 件であり、検出された病原体の種類は 2022 年度と概ね同様であった。なお、2023 度は約 3 年ぶりに 4 件のインフルエンザ疑いの検体が搬入され、その全てでインフルエンザウイルスが検出された。

世界で見ると、コロナ禍のインフルエンザの感染者数は、新型コロナウイルス感染症が流行する 2020 年 4 月以前と比べて大幅に減少していたことが報告されている^{6,7)}。各国が新型コロナウイルス感染症の拡大防止策として、公衆衛生対策や渡航規制などの感染対策を強化したことに伴い、インフルエンザを含むその他の感染症も同時に抑えられたため患者数が減少したと考えられる⁶⁾。このことに関しては、日本国内及び本県でも同様で、インフルエンザの流行は低調であった^{5),7-10)}。

しかし 2023 年度の秋ごろから、本県ではインフルエ

ンザの感染者の報告数が増加し、冬には 1 週間に 3 千件超の報告があった¹⁰⁾。2022 年度までとは一転して 2023 年度にインフルエンザの患者数が増加した。その背景には、コロナ禍での感染拡大防止対策が強化されたことに伴うインフルエンザ感染率低下によって自然免疫の獲得機会が減少したことや¹¹⁾、インフルエンザワクチンの接種者の減少等も相まって、県民のインフルエンザに対する免疫が低下した可能性が考えられる^{12~16)}。このような県民の免疫が低下した状況下で、渡航規制や外出自粛の解除が行われ、人々の往来の再開したことがインフルエンザ患者数増加につながったと考えられる。

2023 年度は市中でのインフルエンザの流行が報告される中、所に搬入されたインフルエンザ疑いの検体は 4 件のみであり、検査数と県内全体の流行、患者数との乖離が見られた¹⁰⁾。

本検査を継続することによって、経年的なデータが蓄積される。感染症の発生情報の正確な把握と分析結果を迅速に、広く公表することにより、今後も県民に向けた感染症の注意喚起につながることが期待される。

感染症に対する有効かつ的確な予防・診断・治療に係る対策を図り、多様な感染症の発生及びまん延を防止するために精度の高いデータを得ることが必要である。高精度のデータを得て、それを維持するには、より多くの検査が必要となるため、検体提供元である医療機関との連携も重要である。

文 献

- 1) 熊本県：熊本県感染症発生動向調査事業実施要領 <https://www.pref.kumamoto.jp/uploaded/attachment/247909.pdf> (2023 年 4 月閲覧)
- 2) 西村浩一, 松尾 繁, 田端康二, 甲木和子：熊本県保健環境科学研究所報, 30, 49 (2000)
- 3) 松尾 繁, 田端康二, 西村浩一, 甲木和子：熊本県保健環境科学研究所報, 31, 71 (2001).
- 4) 国立感染症研究所：病原体検出マニュアル <https://www.niid.go.jp/niid/ja/labo-manual.html> (2023 年 4 月閲覧) .
- 5) 徳岡英亮, 井上祐希江, 前田莉花, 原田誠也, 平野孝昭, 伊豆一郎, 森 美聡, 八尋俊輔：熊本県保健環境科学研究所報, 52, 82 (2022) .
- 6) Dhanasekaran V, *et al.*: Nature Communications. 2022 Mar 31, 13(1), 1721.
- 7) 立石晶子, 柳元伸太郎：CAMPUS HEALTH, 60 (2), p.7-12 (2023)
- 8) 厚生労働省：令和 5 年度インフルエンザ Q&A <https://www.mhlw.go.jp/content/001158487.pdf> (2024 年 2 月閲覧)
- 9) 井上祐希江, 前田莉花, 佐藤磨美, 原田誠也, 平野孝昭, 小原敦美, 森 美聡, 八尋俊輔：熊本県保健環境科学研究所報, 51, 46 (2021) .
- 10) 熊本県 感染症発生情報(週報) <https://www.pref.kumamoto.jp/soshiki/30/51400.html> (2024 年 2 月閲覧)
- 11) Rolfes M.A, *et al.*: JAMA. 2023,329(6), 482-489.
- 12) Krammer F. Nat Rev Immunology. 2019, 19(6), 383-397.
- 13) 2019 年度感染症流行予測調査におけるインフルエンザ予防接種状況および抗体保有状況：IASR Vol. 41 p.201-204: 2020 年 11 月号
- 14) 2020 年度感染症流行予測調査におけるインフルエンザ予防接種状況および抗体保有状況：IASR Vol. 42 p.252-255: 2021 年 11 月号
- 15) 2021 年度感染症流行予測調査におけるインフルエンザ予防接種状況および抗体保有状況：IASR Vol. 43 p.252-255: 2022 年 11 月号
- 16) 2022 年度感染症流行予測調査におけるインフルエンザ予防接種状況および抗体保有状況 (2023 年 4 月現在)：IASR Vol. 44 p.176-179: 2023 年 11 月号

表 1 検体受付数

病原体定点種別	検体数	検体種別		
		咽頭ぬぐい液	結膜ぬぐい液	便
小児科	72	71	0	1
インフルエンザ	1	1	0	0
眼科	12	0	12	0
基幹	3	3	0	0
その他	9	9	0	0
合計	97	84	12	1

表 2 疾患別ウイルス検出数 [令和 5 年(2023 年)4 月 1 日～令和 6 年(2024 年)3 月 31 日]

		4 月	5 月	6 月	7 月	8 月	9 月	10 月	11 月	12 月	1 月	2 月	3 月	計
インフルエンザ	検体受付数	0	0	0	0	0	0	0	0	0	4	0	0	4
	Influenza A(H1pdm09)										3			3
	Influenza A(H3)										1			1
	陰性													0
	検査中・検査不能													0
インフルエンザ 様疾患	検体受付数	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	陰性													0
	検査中, 検査不能													0
RSV 感染症	検体受付数	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	陰性													0
	検査中, 検査不能													0
上気道炎	検体受付数	0	8	0	4	0	2	3	5	0	1	2	0	25
	Enterovirus NT								1					1
	Human coronavirus NL63+Human rhinovirus				1									1
	HHV-6B+HHV-7		1											1
	Human rhinovirus+Human bocavirus				1									1
	Parainfluenza 3		1											1
	Human rhinovirus		4		1			3	1		1	2		12
	RSV				1		2							3
	陰性		2						3					5
	検査中, 検査不能													0
下気道炎	検体受付数	0	10	0	0	0	0	0	0	0	0	0	1	11
	Human rhinovirus		6										1	7
	陰性		4											4
	検査中・検査不能													0
百日咳	検体受付数	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	陰性													0
	検査中, 検査不能													0
咽頭結膜熱	検体受付数	0	0	0	0	0	0	0	0	0	1	0	0	1
	Adenovirus NT										1			1
	陰性													0
	検査中, 検査不能													0
その他呼吸器	検体受付数	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	陰性													0
	検査中, 検査不能													0
感染性胃腸炎	検体受付数	0	0	0	0	0	0	0	0	0	2	0	0	2
	Norovirus G2										1			1
	陰性										1			1
	検査中, 検査不能													0
流行性角結膜炎	検体受付数	1	0	0	0	0	0	0	1	0	1	0	0	3
	Adenovirus 3								1					1
	Adenovirus 56										1			1
	Adenovirus NT	1												1
	陰性													0
	検査中, 検査不能													0
その他結膜炎等	検体受付数	1	0	0	0	1	0	0	4	0	3	1	0	10
	Adenovirus 56					1			1					2
	Adenovirus NT								1		1			2
	Human rhinovirus											1		1
	陰性	1							2		2			5
	検査中, 検査不能													0
ヘルパンギーナ	検体受付数	0	4	0	1	0	0	1	0	0	0	0	0	6
	HHV-6		2					1						3
	Human rhinovirus				1									1
	陰性		2											2
	検査中, 検査不能													0
手足口病	検体受付数	0	1	0	1	7	2	1	3	0	1	2	0	18
	Coxsackievirus A6							1	2					3
	Enterovirus 71					4								4
	Enterovirus NT						1							1
	Parvovirus NT										1			1
	Coxsackievirus A6+HHV-6								1					1
	Enterovirus 71+HHV-6				1	2								3
	陰性		1			1	1					2		5
	検査中, 検査不能													0
発疹症	検体受付数	0	0	0	0	0	2	0	0	0	2	0	1	5

熊本県保健環境科学研究所報 第 53 号, 51-54(2023)資料

		4 月	5 月	6 月	7 月	8 月	9 月	10 月	11 月	12 月	1 月	2 月	3 月	計
	Human rhino						2							2
	HHV-6												1	1
	陰性										2			2
	検査中, 検査不能													0
突発性発疹	検体受付数	0	0	0	0	0	0	0	1	0	1	0	0	2
	陰性								1		1			2
	検査中, 検査不能													0
伝染性紅斑	検体受付数	0	1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	1
	陰性		1											1
	検査中, 検査不能													0
水痘	検体受付数	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	陰性													0
	検査中, 検査不能													0
心筋炎	検体受付数	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	陰性													0
	検査中, 検査不能													0
無菌性髄膜炎	検体受付数	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	陰性													0
	検査中, 検査不能													0
細菌性髄膜炎	検体受付数	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	陰性													0
	検査中, 検査不能													0
脳炎・脳症等	検体受付数	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	陰性													0
	検査中, 検査不能													0
流行性耳下腺炎	検体受付数	0	3	1	0	0	0	0	1	0	1	0	1	7
	HHV-6												1	1
	HHV-7								1					1
	陰性		3	1							1			5
	検査中, 検査不能													0
不明熱	検体受付数	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	陰性													0
	検査中, 検査不能													0
その他	検体受付数	1	1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	2
	Adeno NT	1												1
	陰性		1											1
	検査中, 検査不能													0
検体受付総数		3	28	1	6	8	6	5	15	0	17	5	3	97
陽性		2	14	0	6	7	5	5	9	0	10	3	3	64
陰性		1	14	1	0	1	1	0	6	0	7	2	0	33
検査中, 検査不能		0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0

2) 日本脳炎調査 (2023 年度)

笠 純華 徳岡英亮

はじめに

日本脳炎 (以下「JE」という。) は, JE ウイルス (以下「JEV」という。) を保有している蚊 (主にコガタアカイエカ) によって媒介される感染症で, 典型的なヒトの臨床像は急性髄膜脳炎である。1970 年以前には全国で年間 1,000 人を超える患者が発生したこともある JE だが, ワクチンの普及により患者数は激減した。1992 年以降は一桁台が続いていたが, 2016 年は 25 年ぶりに 10 人を超える患者が報告された¹⁾。本県における JEV 患者は 2014 年に 1 名の報告を最後に確認されていなかったが, 2022 年は 8 年ぶりに 3 名の感染が確認された。また, そのうち 1 名は, 記録が残っている 2006 年以降, 本県では初めての死亡例となった。JE は, 発症すると致死率 (20~40%程度) が高く, 回復後も半数近くにパーキンソン様症状, 麻痺, 精神障害などの後遺症がみられることから, ワクチンの積極的接種が推奨されている。

本県では例年, 厚生労働省の感染症流行予測調査事業の一環として飼育ブタの感染源調査を実施している。

調査方法

1. ブタ血清の赤血球凝集抑制 (HI) 抗体及び 2-メルカプトエタノール (2ME) 感受性抗体調査

2023 年 7 月 3 日から 2023 年 8 月 21 日の間 (7 月 16 日から 22 日及び 8 月 13 日から 19 日の週は未実施) の週 1 回, 計 6 日間にわたって, 県内の養豚場から熊本県畜産流通センター (菊池市七城町) に搬入された飼育ブタ (原則として飼育業者別に 5 検体ずつ) の放血血液を, 各日 15 検体を目安に, 計 92 検体採取した。採取した血液は血清を分離後, 常法²⁾により HI 抗体価を測定するとともに, 新鮮感染の指標である 2ME 感受性抗体価を測定した。

2. ブタ血清中の JEV 特異遺伝子 (JEV 遺伝子) 検出

HI 抗体価測定に用いたブタ血清を検体として, リアルタイム RT-PCR 法³⁾による JEV 遺伝子を検出する検査を実施した。

結 果

1. ブタ血清の赤血球凝集抑制 (HI) 抗体及び 2-メルカプトエタノール (2ME) 感受性抗体調査

飼育地別のブタ血清中の HI 抗体保有状況を表 1 に示

す。2023 年度は 7 月上旬から検査を開始したところ, 開始当初から熊本市で HI 抗体を保有しているブタが確認された。

次に, HI 抗体価及び 2ME 感受性抗体保有数を表 2 に示す。7 月 24 日の天草市の検体 (HI 抗体陽性) から初めて 2ME 感受性抗体が確認され, その後, 8 月 21 日まで継続的に確認された。

本県の JE 注意報発令基準 (ブタ血清から 2ME 感受性抗体を保有するブタが 1 頭でも検出された場合又は JEV 遺伝子を保有するブタが 1 頭でも検出された場合) に従い 7 月 27 日に JE 注意報が発令された。

2. ブタ血清中の JEV 遺伝子検出

JEV 遺伝子検出状況を表 1 に併記した。ブタ血清中の JEV 遺伝子は, 8 月 21 日の熊本市植木町の 1 検体から検出された。

考 察

7 月上旬から HI 抗体を保有するブタが確認されたが, 抗体価が 10 倍と低かったため, 移行抗体と考えられた。7 月 24 日に 1 頭の 2ME 感受性抗体を持つブタが確認されたことから, JEV は, 7 月下旬から活動が活発化したと推察された。これは, 過去の JE 注意報発令時期 (2021 年 : 7 月 28 日, 2022 年 : 8 月 4 日) と比較しても例年通りであるといえる。

注意報発令後の 7 月 31 日, 8 月 7 日, 8 月 21 日の HI 抗体保有率にばらつきが見られたが, サンプル数が 1 地域につき 5 検体程度と少ないためであると考えられる。

ま と め

2023 年は, 全国で 6 名の JE 患者が報告された⁴⁾。本県では, 8 年ぶりに 3 名の患者の発生が確認された 2022 年に引き続き, 2023 年も 2 名の感染が報告された。報告された時期は, 1 件が 9 月, もう 1 件は 11 月であったため, 夏期だけに限らず秋期も JEV 感染の恐れがあることを広く県民に周知し, 注意を促す必要がある。

また, 豚は JEV を増殖させることで知られるが, 本県は豚の飼養頭数が多く, 2023 年現在全国第 9 位の約 34 万頭⁵⁾であるという側面からも注意が必要である。

文 献

- 1) 多屋馨子：臨床と微生物，44，193 (2017).
- 2) 厚生労働省：感染症流行予測調査事業検査術式，(2019).
- 3) 高崎智彦：厚生労働科学研究費補助金（新興・再興感染症研究事業）平成 20 年度分担研究報告書，81-84 (2009).
- 4) 国立感染症研究所：IDWR 感染症発生動向調査週報 2023 年第 52 週，(2023).
- 5) 農林水産省：畜産統計調査/確報 令和 5 年畜産統計，(2023).

表 1 飼育地別ブタの HI 抗体保有状況及び JEV 遺伝子検出状況等

採血年月日	熊本市	山鹿市	大津町	小国町	上天草市	天草市	HI 抗体保有率
2023 年 7 月 3 日	1/5	0/5		0/5			7%
2023 年 7 月 10 日	0/5		0/5		0/6		0%
2023 年 7 月 24 日				2/5	0/5	2/5	27%
2023 年 7 月 31 日	5/5		5/5		4/5		93%
2023 年 8 月 7 日	0/5				2/5	1/6	19%
2023 年 8 月 21 日	3/5(1)		0/5		0/5		20%

HI 抗体陽性数/検査頭数 () 内は JEV 遺伝子検出数

表 2 ブタの HI 抗体価及び 2ME 感受性抗体保有数

採血年月日	検査頭数	HI 抗体価								2ME 感受性抗体陽性数
		<10	10	20	40	80	160	320	640≤	
2023 年 7 月 3 日	15	14	1	0	0	0	0	0	0	0
2023 年 7 月 10 日	16	16	0	0	0	0	0	0	0	0
2023 年 7 月 24 日	15	11	0	2	0	0	0	0	2	1
2023 年 7 月 31 日	15	1	0	2	0	0	0	0	12	1
2023 年 8 月 7 日	16	13	3	0	0	0	0	0	0	0
2023 年 8 月 21 日	15	12	0	0	0	0	0	0	3	0

3) LC-MS/MS によるテトロドトキシン分析法の検討

島 絵里子 八木一真*1 中原優子*2 青木 愛 門田健太郎 田村香菜 今辻麻美

はじめに

本県では、平成 26 年から令和 5 年までの過去 10 年間で、フグによる食中毒が 6 件発生している¹⁾。フグによる食中毒は、食後 20 分から 3 時間程度の短時間で現れるとされ²⁾、重症の場合は呼吸困難を起し、他の食中毒に比べ致死率（患者数のうちの死亡者数の割合）が高いことが特徴である。そのため、迅速な食中毒検査が求められるが、食品衛生検査指針に示されているフグ毒（テトロドトキシン）の分析法はマウス検定法³⁾であることから、マウス管理の煩雑さや動物愛護に加えて、高感度、迅速化を目指し、機器分析による検査法の検討が各地でなされてきた^{4~8)}。

当所では、過去に、マウスを使用せず LC-MS/MS を用いた機器分析による迅速分析について報告したが^{9), 10)}、今回、LC-MS/MS の機種変更に伴い、新たな分析条件を検討したので、その結果を報告する。

分析方法

1. 試薬等

1.1 標準品

テトロドトキシン（生化学用）は富士フイルム和光純薬（株）製を用いた。

1.2 その他試薬等

酢酸（HPLC 用）、アセトニトリル（HPLC 用）、ギ酸（LC/MS 用）は富士フイルム和光純薬（株）製を用いた。

1.3 標準溶液等の調製

標準原液は、標準品 1 mg を水で 10 mL に定容し、100 µg/mL とした。検量線用標準溶液は、0.1, 0.2, 0.5, 1, 2 及び 10 ng/mL となるよう標準原液を水：アセトニトリル（1：1）で適宜希釈した。

1.4 検討用試料

添加回収試験には、有毒部位を除去して市販されているフグ（トラフグ）の筋肉を使用した。

2. 試験溶液の調製

食品衛生検査指針の方法³⁾を参考に操作を行った。

均質化した試料 5.00 g を 100 mLPP 製遠心管に採り、0.1%酢酸 20 mL を加え、2 分間ホモジナイズした。0.1%酢酸でシャフトを洗いこみ、沸騰浴中で時々攪拌しながら 10 分間加熱抽出した。その後、室温になるまで放冷し、

3,000 rpm で 5 分間遠心分離し、上清をガラスろうと（11G2）でろ過した。沈殿物に 0.1%酢酸 15 mL を加え、5 分間振とうし、3,000 rpm で 5 分間遠心分離し、上清をろ過して先のろ液と合わせた。水で 50 mL に定容して抽出液とし、水：アセトニトリル（1：1）で 100 倍希釈し、0.2 µm のシリンジフィルター（Agilent Technologies 社、水系／非水系（兼用））に通し、試験溶液とした。分析フローを図 1 に示す。

3. 装置

Waters 社製の LC-MS/MS 装置にて分析を行った。

LC: ACQUITY UPLC H-Class Plus

MS/MS : Xevo TQ-XS

4. 添加回収試験

テトロドトキシンは毒力 10 MU/g 以下の場合は食用に供しても健康を害する恐れがないと判断されている³⁾。試料 5.00 g に 10 MU/g に相当する濃度である 2.2 µg/g になるようテトロドトキシン標準原液を添加し、30 分間放置した後、試験は 5 併行で実施した。

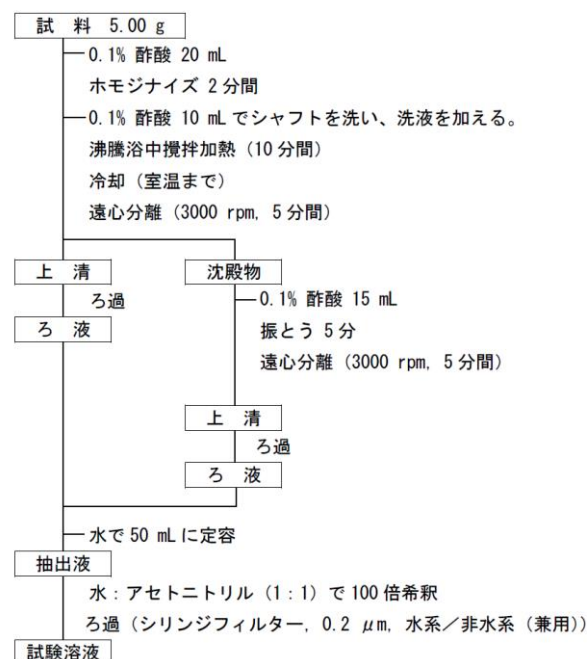


図 1 分析フロー

*1 元保健環境科学研究所職員 *2 現県北広域本部鹿本地域振興局保健福祉環境部

結果及び考察

1. 分析条件の検討

1.1 測定イオン等

テトロドトキシン標準溶液を用いて、インフュージョン分析によって最適条件を得た。得られた測定イオン等の条件を表 1 に示す。

1.2 カラムの検討

まず、当所で保有していた HILIC カラムでの検討を開始したが、保持時間が短く、夾雑物の影響を受けることが問題となった。

そのため、保持を強める効果を持つ他のカラムを選択することとした。テトロドトキシンの分子構造を考慮し、HILIC モードに加えて、カチオン性低分子化合物には陽イオン交換による保持も行うカラム、HILICpak VC-50 2D¹¹⁾での検討を行った。

1.3 移動相の検討

HILICpak VC-50 2D カラムにはギ酸水溶液及びアセトニトリルの相性が良い¹¹⁾ため、A 液 0.1%ギ酸、B 液アセトニトリルで検討した。A : B の比率を変更し、B の比率が高くなると溶出時間が遅れ、A < B になると 20 分以内に溶出されなくなった。なお、比率の変化によるピーク形状の変化はあまり見られなかった。他の夾雑成分の影響や分析時間を考慮し、溶出時間が 6 分程度となるよう A : B の比率を 60:40 に決定し、アイソクラティック分析とした。保持時間 5.4 分にテトロドトキシンのピークが確認された。

試料溶液の組成については、移動相の組成に近づけた方がピーク形状が改善されるとの報告¹²⁾から、最終溶液を水:アセトニトリル (1 : 1) で希釈することとした。また、検量線用標準溶液も同様に水:アセトニトリル (1 : 1) で希釈した。希釈用の水 : アセトニトリルの 10% 程度の比率変更によるピーク形状及び保持時間に差は見られなかった。LC-MS/MS の測定条件を表 2 に示す。

1.4 注入量の検討

当所の装置では、50 μ L まで注入可能であるため、5, 10, 20 μ L の注入量を検討したところ、5 μ L では定量下限値での感度が若干不足し、10 μ L 以上で S/N 比 10 以上の十分な感度のピークを得ることができたため、マトリックスの影響を考慮して注入量を 10 μ L に決定した。

2. 検量線

マトリックスによるイオン化阻害等の影響を確認するために、フグ筋肉を試験溶液と同様に 50 mL に定容後、100 倍に希釈し、このマトリックスを添加したテトロドトキシン 10 ng/mL 標準溶液と添加していない 10 ng/mL 標準溶液を測定した。その結果、マトリックス添加標準溶液で顕著なイオン化阻害は認められなかったため、絶対検量線

法を用いた。検量線を図 2 に示した。

検量線は 0.1~10 ng/mL の範囲において良好な直線性を示し、相関係数 0.999 以上であった。また、定量下限値は 0.1 ng/mL で、試料中濃度に換算すると 0.1 μ g/g であるため、フグ毒の毒力があるとされる 10 MU/g に相当する試料中濃度 2.2 μ g/g を十分に下回る値であった。

表 1 測定イオン等

Ch	Compound name	Precursor ion (m/z)	Product ion (m/z)	Cone Voltage (V)	Collision Energy (eV)
1	Tetrodotoxin	320.01	162.02	62	36
2	Tetrodotoxin	320.01	301.65	62	22

表 2 LC-MS/MS 測定条件

LC	ACQUITY UPLC H-Class Plus (Waters社製)
Analytical Column	HILICpak VC-50 2D (2.0 mm i.d.×150 mm, 5 μ m, Shodex)
Temperature	40°C
Mobile Phase	(A) 0.1% HCOOH aq./ (B) CH ₃ CN = 60/40
Flow Rate	0.2 mL/min
Injection Volume	10 μ L
MS/MS	Xevo TQ-XS (Waters社製)
Ionization	ESI (positive)
Analysis Mode	MRM
Capillary Voltage	0.5 kV
Source Temperature	150°C
Desolvation Temperature	400°C
Cone Gas Flow	150 L/hr
Desolvation Gas Flow	800 L/hr

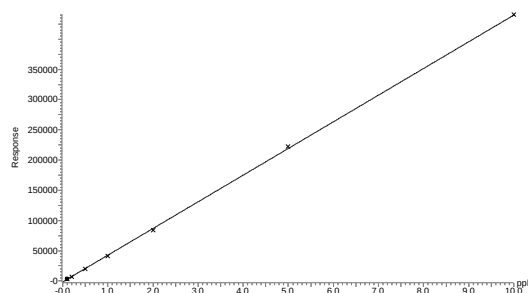


図 2 テトロドトキシンの検量線

3. 添加回収試験

試料中濃度 2.2 μ g/g となるようテトロドトキシンを添加し、添加回収試験 5 併行で実施したところ、平均回収率は 87.0%、標準偏差 0.046、併行精度 2.4 RSD%であった。

添加回収試験におけるテトロドトキシン標準溶液 2 ng/mL 及び試験溶液のクロマトグラムを図 3 に示す。試験溶液中のテトロドトキシンのピークは、S/N 比が 10 以上あり、十分な感度が得られた。また、マトリックス由来成分等による妨害ピークは見られなかった。

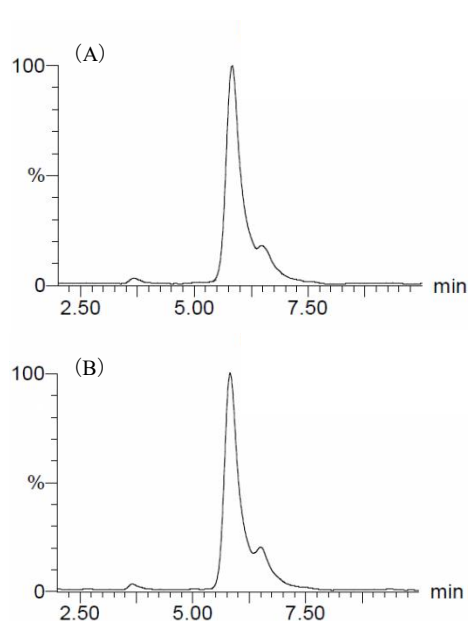


図3 テトロドトキシンのクロマトグラム
(A) 標準溶液 2 ng/mL, (B) 添加回収試験溶液

ま と め

今回, LC-MS/MS 装置の機種変更に伴い, フグ毒テトロドトキシンの分析条件を検討し, 分析に適したカラム及び移動相条件を新たに決定した。フグ(トラフグ)の筋肉を用いた添加回収試験を行ったところ, 平均回収率は 87.0%, 併行精度 2.4 RSD%であった。定量下限値は, 試料中濃度に換算すると 0.1 $\mu\text{g/g}$ であるため, フグ毒の毒力があるとされる 10 MU/g に相当する試料中濃度 2.2 $\mu\text{g/g}$ を十分に下回る値であった。これらの結果から, この分析法が食品中のテトロドトキシンの定量に有用であることが確認できた。

本県におけるフグによる食中毒は, フグの味噌汁やフグの煮付け等の調理品が原因となっているため, 今後は, 実際の食中毒に備えて, 当該調理品を想定した追加検討を行う予定である。さらに, 食中毒発生時には, 食品残渣だけでなく, 患者血清等の生体試料を検査するケースも想定されるため, 生体試料中のテトロドトキシンの分析について検討していくこととしている。

文 献

- 1) 熊本県健康危機管理課: 熊本県内におけるフグによる食中毒発生状況
<https://www.pref.kumamoto.jp/soshiki/30/4929.html> (2025 年 1 月閲覧)。
- 2) 厚生労働省: 自然毒のリスクプロファイル: 魚類: フ

グ毒

https://www.mhlw.go.jp/topics/syokuchu/poison/animal_det_01.html (2025 年 1 月閲覧)。

- 3) 公益社団法人日本食品衛生協会: “食品衛生検査指針・理化学編”, p.661-666 (2005), (公益社団法人日本食品衛生協会)。
- 4) 立野幸治, 敷田行雄, 藤原美智子, 吹屋貞子: 山口県環境保健センター所報, 50, 47-49 (2007)。
- 5) 下堂菌栄子, 西村修一, 大小田修司, 福司山郁恵, 岩屋あまね, 榎元清美, 佐久間弘匡: 鹿児島県環境保健センター所報, 11, 98-101 (2010)。
- 6) 浦山豊弘, 肥塚加奈江, 赤木正章, 北村雅美, 大畠律子, 石井 学: 岡山県環境保健センター年報, 37, 133-136 (2013)。
- 7) 古井真理子, 藤井愛実, 松渕亜希子: 秋田県健康環境センター年報, 17, 34-36 (2021)。
- 8) 増田栞, 佐藤秀樹, 常松順子, 矢野智也, 松永美樹: 福岡市保健環境研究所報, 48, 69-74 (2023)。
- 9) 福島孝兵, 村川 弘, 吉田達雄, 吉元秀和, 飛野敏明: 熊本県保健環境科学研究所報, 38, 33-39 (2008)。
- 10) 西名武士, 飛野敏明, 吉田達雄, 山本理世, 村川 弘: 熊本県保健環境科学研究所報, 43, 70-76 (2013)。
- 11) Shodex HPLC Columns: Shodex 技術情報誌, No.005.
https://www.shodex.com/ja/catalog/technical_articles.html (2025 年 1 月閲覧)。
- 12) Shodex HPLC Columns: アプリケーションデータ, 試料溶解液の分離への影響 (NH2P-50 4E).
<https://www.shodex.com/ja/dc/03/02/45.html> (2025 年 1 月閲覧)。

4) SFE-GC/MS/MS による畜水産物中残留農薬の一斉分析法の検討

門田健太郎 青木 愛 今辻麻美 島 絵里子 田村香菜 中原優子*

はじめに

本県では、農産物の残留農薬一斉分析を液体クロマトグラフィータンデム型質量分析計（以下「LC/MS/MS」という。）とガスクロマトグラフィータンデム型質量分析計（以下「GC/MS/MS」という。）の 2 系統で実施しており、高極性の農薬については LC/MS/MS を、中～低極性農薬については GC/MS/MS を用いて分析を行っている。

また、平成 12 年度より超臨界流体抽出（以下「SFE」という。）及びガスクロマトグラフィー質量分析計（以下「GC/MS」という。）による農産物中の残留農薬の一斉分析法を検討しており、平成 31 年度には SFE 抽出液を GC/MS よりも物質の選択性が高い GC/MS/MS で測定する農産物中の残留農薬一斉分析法（以下「SFE-GC/MS/MS 法」という。）について報告している^{1,2)}。

農薬は農産物だけでなく、畜水産物においても農薬が残留した家畜飼料や河川等に流入した農薬で汚染された水を介して移行・残留することが懸念される。そのため、畜水産物中の残留農薬を分析することは、食の安全安心を確保することに寄与する。

今回、本県で開発した SFE-GC/MS/MS 法について畜水産物中の残留農薬一斉分析法として適用できるか検討するため、5 種類の畜水産物を用いて、「食品中に残留する農薬等に関する試験法の妥当性評価ガイドライン（以下「ガイドライン」という。）」³⁾に沿った妥当性評価試験を実施したので、その結果について報告する。

調査方法

1 分析対象農薬

本試験の分析対象農薬数は 278 農薬で、化合物名及びブリーカーサーイオン（以下「Q1」という。）、プロダクトイオン（以下「Q3」という。）は表 1 のとおりである。

2 試薬等

2.1 標準品

標準品は、富士フイルム和光純薬製、関東化学製、林純薬工業製、Chem Service 製を用いた。

2.2 混合標準溶液

粉末の標準品はそれぞれ秤量し、アセトンに溶解した（以下「個別標準溶液」という。）。混合標準溶液は、各化

合物の濃度が 1 µg/mL となるように、個別標準溶液と市販の混合標準溶液を混合して作製した。なお、アセタミプリド、アセフェート及びメタミドホスは市販の混合標準溶液に 5 倍量含まれていることから、混合標準溶液での濃度は 5 µg/mL となった。

2.3 その他の試薬

アセトン（関東化学製、残留農薬分析用）

1-ヘキサンスルホン酸ナトリウム

（以下「1-HXS」という。富士フイルム和光純薬工業製）
ケイソウ土（アジレントテクノロジー製）

3 試料

今回の試験では、牛肉、鶏肉、ぶり、鶏卵及びはちみつ の 5 種類を供試した。牛肉及び鶏肉は筋肉部位、ぶりは頭部、内臓、骨、皮を除いた魚肉のみ、鶏卵は卵黄と卵白を混合したもの、はちみつは百花蜜を用いた。はちみつ以外の試料はホモジナイザーで均一化した後、-20℃で冷凍保存し、分析開始時に用事解凍した。はちみつは冷蔵で保管されていたものを室温に戻して分析に用いた。

4 分析機器

4.1 SFE 装置

抽出機器：Nexera UC（島津製作所製）

CO₂圧力：15 MPa

抽出カートリッジ温度：40℃

抽出条件：スタティック 4 分-ダイナミック 4 分

ースタティック 2 分-ダイナミック 2 分

抽出操作は、既報²⁾を参考に行った（試料：1.0 g、1-HXS：0.25 g、ケイソウ土：1.25 g）。抽出物は HPLC カラム（Shim-pack VP-ODS（4.6 mm×50 mm, 4.6 µm, 島津製作所製））に捕集し、抽出操作終了後、カラムにアセトンを 2.9 mL で 4 分間送液し、溶出液を試験管に回収した。回収した溶出液は 10 mL に定容し、うち 1 mL をバイアルに分取してアセトン 0.1 mL を加えて測定に供した。抽出フローを図 1 に示す。なお、精製を行わないことで試料由来の夾雑物による影響が想定されることから、検量線はマトリックスマッチ検量線とした。

*現県北広域本部鹿本地域振興局保健福祉環境部

表 1 分析対象農薬

No.	化合物名	定量イオン		定性イオン		No.	化合物名	定量イオン		定性イオン	
		Q1 (m/z)	→ Q3 (m/z)	Q1 (m/z)	→ Q3 (m/z)			Q1 (m/z)	→ Q3 (m/z)	Q1 (m/z)	→ Q3 (m/z)
1	BHC (α)	219	→ 183	217	→ 181	91	ジクロロボス	185	→ 93	187	→ 93
2	BHC (β)	219	→ 183	217	→ 181	92	シハロトリン (γ)	197	→ 161	197	→ 141
3	BHC (γ)	219	→ 183	217	→ 181	93	シハロトリン (α)	197	→ 161	197	→ 141
4	BHC (δ)	219	→ 183	217	→ 181	94	シハロホップブチル	256	→ 120	357	→ 256
5	DDD (4, 4')	235	→ 165	237	→ 165	95	ジフェナミド	167	→ 165	167	→ 152
6	DDE (4, 4')	246	→ 176	248	→ 176	96	ジフェニルアミン	168	→ 167	169	→ 168
7	DDT (2, 4)	235	→ 165	237	→ 165	97	ジフェノコナゾール I	323	→ 265	325	→ 267
8	DDT (4, 4')	235	→ 165	237	→ 165	98	ジフェノコナゾール II	323	→ 265	325	→ 267
9	EPN	169	→ 77	157	→ 110	99	シフルトリン I	163	→ 127	226	→ 206
10	EPTC	128	→ 43	128	→ 86	100	シフルトリン II	163	→ 127	226	→ 206
11	XMC	122	→ 107	122	→ 77	101	シフルトリン III	163	→ 127	226	→ 206
12	アクリナトリン	289	→ 93	208	→ 181	102	シフルトリン IV	163	→ 127	226	→ 206
13	アザコナゾール	217	→ 173	219	→ 175	103	ジフルフェニカン	266	→ 218	266	→ 183
14	アジンホスメチル	160	→ 77	160	→ 132	104	シプロコナゾール I	222	→ 125	222	→ 82
15	アセタミプリド	152	→ 116	207	→ 166	105	シプロコナゾール II	222	→ 125	222	→ 82
16	アセトクロール	223	→ 132	223	→ 147	106	シベルメトリン I	163	→ 127	165	→ 127
17	アセフェート	136	→ 94	136	→ 42	107	シベルメトリン II	163	→ 127	165	→ 127
18	アゾキシストロビン	344	→ 329	344	→ 156	108	シベルメトリン III	163	→ 127	165	→ 127
19	アトラジン	215	→ 58	215	→ 200	109	シベルメトリン IV	163	→ 127	165	→ 127
20	アニコホス	226	→ 157	226	→ 184	110	シマジン	186	→ 91	201	→ 173
21	アメトリン	227	→ 185	227	→ 170	111	ジメタメトリン	212	→ 94	212	→ 122
22	アラクロール	188	→ 160	237	→ 160	112	ジメチベン	124	→ 76	118	→ 58
23	アルドリノ	263	→ 193	255	→ 220	113	ジメチルビンホス (E)	295	→ 109	297	→ 109
24	アレスリン I	123	→ 81	136	→ 93	114	ジメチルビンホス (Z)	295	→ 109	297	→ 109
25	アレスリン II	123	→ 81	136	→ 93	115	ジメチナミド	230	→ 154	232	→ 154
26	アレスリン III	123	→ 81	136	→ 93	116	ジメトエート	125	→ 47	125	→ 79
27	アレスリン IV	123	→ 81	136	→ 93	117	ジメトモルブ (E)	301	→ 165	387	→ 301
28	イサゾホス	257	→ 162	257	→ 119	118	ジメトモルブ (Z)	301	→ 165	387	→ 301
29	イソキサチオン	177	→ 130	313	→ 130	119	シメトリン	213	→ 170	213	→ 185
30	イソキサチオンオキソン	161	→ 105	161	→ 77	120	ジメビペレート	145	→ 112	145	→ 69
31	イソフェンホス	213	→ 121	213	→ 185	121	シラフルオフェン	179	→ 151	286	→ 258
32	イソフェンホスオキソン	229	→ 201	229	→ 121	122	ターバシル	161	→ 88	161	→ 144
33	イソプロカルブ	136	→ 121	121	→ 77	123	ダイアジノン	304	→ 179	199	→ 93
34	イソプロチオラン	290	→ 118	290	→ 204	124	チアベンダゾール	201	→ 174	174	→ 65
35	イプロジオン	314	→ 245	316	→ 247	125	チオベンカルブ	257	→ 100	257	→ 72
36	イプロジオン代謝物	329	→ 142	331	→ 142	126	チオメトリン	88	→ 60	246	→ 88
37	イプロベンホス	204	→ 91	204	→ 122	127	チフルザミド	194	→ 166	194	→ 125
38	イマザメタベンズメチルエステル I	245	→ 144	245	→ 176	128	デメトリン	263	→ 193	277	→ 241
39	イマザメタベンズメチルエステル II	245	→ 144	245	→ 176	129	テクナゼン	261	→ 203	213	→ 142
40	イマザリル	215	→ 173	217	→ 175	130	テトラクロロビンホス	331	→ 109	329	→ 109
41	イミベンコナゾール	253	→ 82	255	→ 82	131	テトラジホス	354	→ 159	356	→ 159
42	イミベンコナゾール脱ベンジル体	235	→ 166	270	→ 235	132	デニルクロール	288	→ 141	288	→ 174
43	ウニコナゾール p	234	→ 165	234	→ 137	133	テブコナゾール	250	→ 125	250	→ 153
44	エスプロカルブ	222	→ 91	222	→ 162	134	テブフェンピラド	276	→ 171	333	→ 171
45	エチオフェンカルブ	168	→ 107	168	→ 77	135	テフルトリン	177	→ 127	177	→ 137
46	エチオン	231	→ 129	231	→ 175	136	デルタメトリン	255	→ 174	253	→ 172
47	エディフェンホス	310	→ 109	310	→ 173	137	テルブトリン	241	→ 185	241	→ 170
48	エトキサゾール	300	→ 270	300	→ 285	138	テルブホス	231	→ 129	231	→ 175
49	エトフェンブロックス	163	→ 107	163	→ 135	139	トリアジメノール I	168	→ 70	128	→ 65
50	エトフメセート	207	→ 161	286	→ 207	140	トリアジメノール II	168	→ 70	128	→ 65
51	エトプロホス	158	→ 97	158	→ 114	141	トリアジメホス	208	→ 181	208	→ 111
52	エトリジアゾール	211	→ 183	213	→ 142	142	トリアホス	257	→ 162	285	→ 162
53	エンドスルファン (α)	205	→ 170	241	→ 206	143	トリアレート	268	→ 184	270	→ 186
54	エンドスルファン (β)	205	→ 170	241	→ 206	144	トリシクラゾール	189	→ 162	189	→ 161
55	エンドリン	263	→ 193	279	→ 209	145	トリブホス	202	→ 113	169	→ 113
56	オキサジアゾン	175	→ 112	258	→ 175	146	トリフルミゾール	206	→ 179	278	→ 73
57	オキサジキシル	163	→ 132	163	→ 117	147	トリフルラリン	306	→ 264	306	→ 206
58	カズサホス	159	→ 97	158	→ 97	148	トリフロキシストロビン	186	→ 145	190	→ 130
59	カフエンストロール	188	→ 82	188	→ 119	149	トルクロホスメチル	265	→ 250	265	→ 93
60	カブタホル	183	→ 79	150	→ 79	150	トルフェンピラド	383	→ 171	383	→ 145
61	カルバリル	144	→ 115	144	→ 116	151	ナフロバミド	271	→ 72	271	→ 128
62	カルフェントラゾンエチル	340	→ 312	330	→ 310	152	ニトロタールイソプロピル	236	→ 194	236	→ 148
63	カルボキシシ	235	→ 143	143	→ 87	153	ノルフルラゾン	303	→ 145	303	→ 302
64	カルボスルファン	160	→ 57	160	→ 62	154	バクロブトラゾール	236	→ 125	236	→ 167
65	カルボフラン	164	→ 103	164	→ 149	155	バシチオン	291	→ 109	291	→ 81
66	キナルホス	146	→ 118	146	→ 91	156	バシチオンメチル	263	→ 109	263	→ 246
67	キノキシフェン	307	→ 237	307	→ 272	157	ハルフェンブロックス	265	→ 117	163	→ 117
68	キノクラミン	207	→ 172	209	→ 172	158	ビデルタノール I	170	→ 115	170	→ 141
69	キノメチオナート	206	→ 148	234	→ 206	159	ビデルタノール II	170	→ 115	170	→ 141
70	キャブタン	149	→ 70	149	→ 79	160	ビフェノックス	341	→ 310	341	→ 311
71	キントゼン	249	→ 214	295	→ 237	161	ビフェントリン	181	→ 165	181	→ 166
72	クレソキシムメチル	206	→ 116	206	→ 131	162	ビペロホス	320	→ 122	140	→ 98
73	クロマゾン	125	→ 89	204	→ 107	163	ビラクロホス	360	→ 97	194	→ 138
74	クロルタルジメチル	301	→ 223	299	→ 221	164	ビラゾキシフェン	367	→ 105	367	→ 91
75	クロルピリホス	314	→ 258	316	→ 260	165	ビラゾホス	232	→ 204	221	→ 193
76	クロルピリホスメチル	286	→ 93	288	→ 93	166	ビラフルフェンエチル	412	→ 349	349	→ 307
77	クロルフェナビル	328	→ 247	247	→ 227	167	ビリダフェンチオン	340	→ 199	340	→ 109
78	クロルフェンビンホス (α) (E)	267	→ 159	323	→ 267	168	ビリダベン	147	→ 117	147	→ 132
79	クロルフェンビンホス (β) (Z)	267	→ 159	323	→ 267	169	ビリフェノックス (E)	262	→ 91	262	→ 200
80	クロルプロファム	213	→ 127	213	→ 171	170	ビリフェノックス (Z)	262	→ 91	262	→ 200
81	クロロベンジレート	251	→ 139	253	→ 141	171	ビリブチカルブ	165	→ 108	165	→ 93
82	シアナジン	225	→ 189	198	→ 91	172	ビリブプロキシフェン	136	→ 96	136	→ 78
83	シアノホス	243	→ 109	243	→ 116	173	ビリミカーブ	238	→ 166	166	→ 96
84	ジエトフェンカルブ	267	→ 225	267	→ 168	174	ビリミジフェン	184	→ 169	186	→ 171
85	ジクロシメット I	277	→ 221	277	→ 155	175	ビリミノバックメチル (E)	302	→ 256	302	→ 230
86	ジクロシメット II	277	→ 221	277	→ 155	176	ビリミノバックメチル (Z)	302	→ 256	302	→ 230
87	ジクロフェンチオン	279	→ 223	279	→ 205	177	ビリミホスメチル	290	→ 125	305	→ 180
88	ジクロフルアニド	226	→ 123	224	→ 123	178	ビリメタニル	199	→ 198	198	→ 118
89	ジクロホップメチル	253	→ 162	340	→ 253	179	ピロキロン	173	→ 130	173	→ 144
90	ジクロラン	206	→ 176	208	→ 178	180	ピンククロリン	285	→ 212	285	→ 213

表 1 分析対象農薬(続き)

No.	化合物名	定量イオン		定性イオン		No.	化合物名	定量イオン		定性イオン	
		Q1 (m/z)	→ Q3 (m/z)	Q1 (m/z)	→ Q3 (m/z)			Q1 (m/z)	→ Q3 (m/z)	Q1 (m/z)	→ Q3 (m/z)
181	ファミキサドン	330	→ 196	329	→ 193	230	プロフェノホス	339	→ 269	337	→ 267
182	フィプロニル	367	→ 213	369	→ 215	231	プロベナゾール	130	→ 103	158	→ 103
183	フェナミホス	303	→ 195	303	→ 288	232	プロボキシル	110	→ 64	152	→ 110
184	フェナリメル	219	→ 107	251	→ 139	233	プロマシル	205	→ 188	207	→ 164
185	フェニトロチオン	277	→ 260	277	→ 109	234	プロメトリン	241	→ 184	226	→ 184
186	フェノキサニル	293	→ 155	293	→ 198	235	プロモブチド	296	→ 120	298	→ 120
187	フェノキサプロップエチル	361	→ 288	288	→ 91	236	プロモブチド酸プロモ体	177	→ 119	118	→ 117
188	フェノチオカルブ	160	→ 72	253	→ 160	237	プロモプロピレート	341	→ 183	341	→ 185
189	フェノトリン I	183	→ 153	183	→ 168	238	ヘキサクロロベンゼン	284	→ 214	284	→ 249
190	フェノトリン II	183	→ 153	183	→ 168	239	ヘキサコナゾール	175	→ 111	256	→ 159
191	フェノブカルブ	150	→ 121	121	→ 77	240	ヘキサジノン	171	→ 71	171	→ 85
192	フェンシルホチオン	293	→ 97	293	→ 125	241	ベナラキシル	266	→ 148	206	→ 132
193	フェンチオン	278	→ 109	278	→ 169	242	ベノキサコール	259	→ 120	261	→ 120
194	フェントエート	274	→ 121	274	→ 125	243	ヘプタクロル	272	→ 237	274	→ 239
195	フェンバレート I	167	→ 125	225	→ 119	244	ベルメトリン (cis)	163	→ 127	183	→ 168
196	フェンバレート II	167	→ 125	225	→ 119	245	ベルメトリン (trans)	163	→ 127	183	→ 168
197	フェンブコナゾール	198	→ 129	198	→ 102	246	ベンコナゾール	248	→ 157	250	→ 157
198	フェンプロバトリン	265	→ 210	265	→ 89	247	ベンダイオカルブ	166	→ 151	223	→ 166
199	フェンプロピモルブ	128	→ 70	128	→ 110	248	ベンディメタリン	252	→ 162	252	→ 191
200	フサライド	243	→ 215	241	→ 213	249	ペンフルカルブ	190	→ 144	190	→ 74
201	ブタクロール	237	→ 160	238	→ 162	250	ペンフルラリン	292	→ 264	292	→ 206
202	ブタミホス	286	→ 202	286	→ 185	251	ペンフレセート	256	→ 163	163	→ 121
203	ブチレート	156	→ 57	146	→ 90	252	ホサロン	367	→ 182	182	→ 111
204	ブピリメート	273	→ 193	273	→ 108	253	ボスカリド	140	→ 112	342	→ 140
205	ブプロフェジン	172	→ 57	175	→ 132	254	ホスチアゼート I	195	→ 103	195	→ 60
206	ブラチオカルブ	163	→ 107	163	→ 135	255	ホスチアゼート II	195	→ 103	195	→ 60
207	フラムプロップメチル	276	→ 105	230	→ 170	256	ホスファミドン I	264	→ 127	264	→ 193
208	フルアクリピリム	320	→ 183	189	→ 129	257	ホスファミドン II	264	→ 127	264	→ 193
209	フルジオキシソニル	248	→ 127	248	→ 154	258	ホスメット	160	→ 77	160	→ 133
210	フルシトリネート I	199	→ 107	157	→ 107	259	ホレート	260	→ 75	231	→ 175
211	フルシトリネート II	199	→ 107	157	→ 107	260	マラチオン	173	→ 99	173	→ 127
212	フルシラゾール	233	→ 165	233	→ 152	261	ミクロブタニル	179	→ 125	179	→ 152
213	フルトラニル	281	→ 173	173	→ 145	262	メタクリホス	208	→ 180	240	→ 180
214	フルトリアホル	123	→ 95	123	→ 75	263	メタミドホス	141	→ 95	141	→ 79
215	フルバリネート-tau-I	250	→ 55	250	→ 200	264	メタラキシル	234	→ 146	249	→ 190
216	フルバリネート-tau-II	250	→ 55	250	→ 200	265	メチオカルブ	153	→ 109	168	→ 153
217	フルミオキサジン	287	→ 259	354	→ 312	266	メチダチオン	145	→ 85	145	→ 58
218	フルミクロラックベンチル	423	→ 318	423	→ 308	267	メトキシクロール	227	→ 169	227	→ 141
219	ブレチラクロール	262	→ 202	238	→ 162	268	メトブレン I	153	→ 111	191	→ 135
220	ブクロラズ	180	→ 138	310	→ 70	269	メトブレン II	153	→ 111	191	→ 135
221	ブロシミドン	283	→ 96	285	→ 96	270	メトミノストロビン (E)	196	→ 77	191	→ 160
222	ブロチオホス	267	→ 239	309	→ 239	271	メトミノストロビン (Z)	196	→ 77	191	→ 160
223	ブロボクロー	196	→ 120	176	→ 120	272	メトラクロール	238	→ 162	238	→ 133
224	ブロボニル	161	→ 99	217	→ 161	273	メトリブジン	198	→ 82	198	→ 110
225	ブロボルギット	173	→ 135	135	→ 107	274	メビンホス	192	→ 127	193	→ 127
226	ブロビコナゾール I	259	→ 69	259	→ 173	275	メフェナセット	192	→ 136	192	→ 109
227	ブロビコナゾール II	259	→ 69	259	→ 173	276	メブロニル	269	→ 119	269	→ 210
228	ブロビザミド	173	→ 145	173	→ 109	277	モノクロトホス	192	→ 127	193	→ 127
229	ブロファミ	179	→ 137	179	→ 93	278	レナシル	153	→ 136	153	→ 82

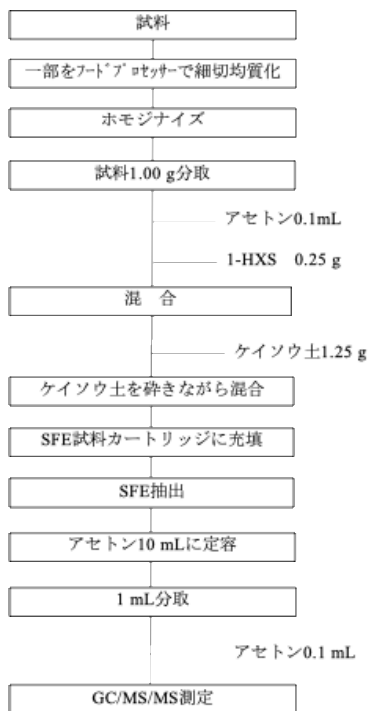


図 1 分析フロー

4.2 GC/MS/MS

測定機器：7010B (アジレントテクノロジー製)

カラム：VF-5ms (φ0.25 mm×30 m, 膜厚 0.25 μm)

昇温条件：70°C(2分)→25°C/分→150°C(0分)→3°C/分
→200°C(0分)→8°C/分→310°C(5分)

注入時圧力：35 psi (1.5 分)

注入口温度：250°C

MS インターフェース温度：320°C

MS イオン化法：EI

MS 測定モード：SIM

注入量：3 μL

5 妥当性評価試験

妥当性評価試験は、試料 1.0 g に 0.1 μg/mL 及び 1 μg/mL の混合標準液を 0.1 mL 添加し (以下「試料中濃度 0.01 mg/kg」及び「試料中濃度 0.1 mg/kg」という。), SFE で抽出後, GC/MS/MS で測定した。

また、本試験は 3 名の分析者がそれぞれ 2 併行の試験を 2 日間で実施した。

得られた結果から、ガイドラインで定義されている選択性、真度、併行精度、室内精度及び定量限界を算出し、表 2 及び表 3 に示した。

選択性及び定量限界がガイドラインに不適合なもの、検量線の測定点数不足で定量できなかったものは空欄で示した。また真度は、古謝の報告⁴⁾を参考に、A (70%以上 120%以下、ガイドライン適合範囲)、B-1 (50%以上 70%未満)、B-2 (120%超過)、C (50%未満)、— (定量限界未満)にグループ分けした。また、真度が—となったものは、併行精度及び室内精度も—で示した。

全ての項目でガイドラインの目標値に適合した化合物については○、一つでも目標値に不適合の項目がある場合は×を評価の欄に示した (表 2, 3)。

6 検量線

検量線は 0.5, 1, 5, 10, 50, 100 ng/mL になるように、標準液をブランク試料から得られた抽出液で希釈し、マトリックス添加標準溶液を調整し、装置に注入して、ピーク面積法で作成した。

結 果

1 牛肉

牛肉の妥当性評価試験の結果、全ての項目でガイドラインの目標値に適合した化合物数は、221 化合物 (全分析化合物数に対する割合: 79%, 以下同じ) であった (表 2)。

ガイドラインの目標値に不適合となった化合物のうち、空欄で示したものは 17 化合物であった。また、真度が—及び C となったものは、試料中濃度 0.01mg/kg が 27 化合物、試料中濃度 0.1mg/kg が 13 化合物であった。

なお、真度がガイドラインの目標値に適合し、併行精度または室内精度がガイドラインの目標値に不適合となった化合物はなかった。

2 ぶり

ぶりの妥当性評価試験の結果、全ての項目でガイドラインの目標値に適合した化合物数は、202 化合物 (73%) であった (表 2)。

ガイドラインの目標値に不適合となった化合物のうち、空欄で示したものは 32 化合物であった。また、真度が—及び C となったものは、試料中濃度 0.01mg/kg が 28 化合物、試料中濃度 0.1mg/kg が 10 化合物であった。

なお、真度がガイドラインの目標値に適合し、併行精度または室内精度がガイドラインの目標値に不適合となっ

たものは 1 化合物であった。

3 鶏肉

鶏肉の妥当性評価試験では、全ての化合物がガイドラインの目標値に不適合となり、空欄で示したものは 29 化合物、真度が—及び C となったものは試料中濃度 0.01mg/kg が 240 化合物、試料中濃度 0.1mg/kg が 47 化合物であった (表 3)。

鶏肉は他の試料と比較して、試料中濃度 0.01mg/kg では真度が—だった化合物が試料中濃度 0.1mg/kg では A 及び B-1 となる化合物が多かった。

4 はちみつ

はちみつの妥当性評価試験の結果、全ての化合物でガイドラインの目標値に不適合となり、空欄で示したものが 114 化合物と他の試料と比較して多かった (表 3)。これは、はちみつが他の試料と比較して定量限界が高い化合物が多く、定量限界が残留基準値を超過したためであった。

5 鶏卵

鶏卵では、抽出操作時に SFE 装置が停止し、抽出できなかったため GC/MS/MS による測定が行えず、妥当性を評価することができなかった。

考 察

本試験の結果、牛肉とぶりで 200 化合物以上がガイドラインの目標値に適合した。一方、鶏肉とはちみつでは全ての化合物でガイドラインの目標値に不適合となり、鶏卵では抽出ができなかった。

鶏肉について、南浦らの報告⁵⁾では、分析条件や試験方法が本試験とは異なるものの、SFE 装置で抽出し GC/MS/MS で測定する分析法について、184 の化合物で妥当性が示されており、本試験で検討した分析法についても分析条件等を見直すことで一斉分析が可能になると考えられる。

一方、はちみつは糖類が主成分の高極性物質であり、中～低極性農薬を対象とした本法では、農薬成分を抽出できなかったと考えられる。このため、はちみつ中の農薬成分を SFE 装置で抽出するためには、モディファイアの使用や抽出条件の検討等、分析法の改良が必要であると考えられた。

鶏卵では、SFE 時の温度や圧力条件により鶏卵のタンパク質が変性し、SFE 装置の流路が詰まることで抽出できなかったと予想された。

ま と め

本試験では、本県で開発した SFE-GC/MS/MS 法による畜水産物中残留農薬の一斉分析について検討した。

その結果、牛肉とぶりは 200 以上の化合物で妥当性が示され、残留農薬の一斉分析法として有効な試験法であると考えられた。一方で、鶏肉とはちみつではガイドラインの目標値を達成しなかった。また、鶏卵では抽出時に SFE 装置が停止し、抽出できなかった。そのため、本試験ではこれら 3 種類の試料について、試験法の妥当性が認められない結果となった。

本試験で検討した SFE-GC/MS/MS 法は、厚生労働省から通知されている「GC/MS による農薬等の一斉試験法(畜水産物)」⁶⁾と比較して溶媒の使用量が少なく、操作が簡便であることから、スクリーニング検査法として有用である。今後、本試験で対象としなかった試料に対する妥当性評価や本試験で妥当性が確認できなかった試料に対する分析法の再検討を行うことで、本県における食の安全安心の確保に向けて取り組んでいく。

参考文献

- 1) 飛野敏明, 松下 豪, 木庭亮一, 西名武士, 杉村千佳夫: 熊本県保健環境科学研究所報, 31, 44-49 (2001)
- 2) 富永純司, 本田大輔, 松本理世, 中原優子, 小林将英, 山口奈穂, 西名武士, 福島宏暢: 熊本県保健環境科学研究所報, 49, 19-35 (2019)
- 3) 「食品中に残留する農薬等に関する試験法の妥当性評価ガイドラインについて」(平成 19 年 11 月 15 日, 食安発第 1115001 号厚生労働省医薬食品局食品安全部長通知)(平成 22 年 12 月 24 日, 一部改正, 食安発第 1224 第 1 号)
- 4) 古謝あゆ子: 沖縄県衛生環境研究所報, 47, 82-86 (2013)
- 5) 南浦茉奈, 上床知佐奈, 竹田依加, 中永絵里, 上 眞佐美: 奈良県保健研究センター年報, 56, 40-45 (2021)
- 6) 厚生労働省医薬商品局食品安全部長通知「食品に残留する農薬, 飼料添加物又は動物用医薬品の成分である物質の試験法について」(平成 17 年 11 月 29 日, 食安発第 1129002 号)(平成 18 年 10 月 3 日, 一部改正, 食安発第 1003001 号)

表 2 妥当性評価試験結果（牛肉及びぶり）

No.	化合物名	牛肉								ぶり											
		試料中濃度				試料中濃度				試料中濃度				試料中濃度							
		真度	0.01mg/kg		室内 精度	真度	0.1mg/kg		室内 精度	定量限界	評価	真度	0.01mg/kg		室内 精度	真度	0.1mg/kg		室内 精度	定量限界	評価
			併行 精度				併行 精度						併行 精度				併行 精度				
1	BHC (α)	A	2.4	10.2	A	1.7	4.2	0.005	○	A	3.4	15.8	A	4.6	6.0	0.005	○				
2	BHC (β)	A	2.8	12.5	A	2.1	4.8	0.005	○	A	4.9	13.7	A	9.7	9.9	0.005	○				
3	BHC (γ)	A	2.4	13.2	A	1.8	4.6	0.005	○	A	2.9	14.5	A	4.5	6.1	0.005	○				
4	BHC (δ)	A	3.7	8.2	A	1.4	6.6	0.005	○	A	3.2	13.8	A	8.6	9.4	0.005	○				
5	DDD (4,4')	A	4.2	21.3	A	8.3	14.0	0.005	○	—	—	—	A	5.0	5.8	0.01	×				
6	DDE (4,4')	A	2.7	8.6	A	1.7	5.7	0.005	○	—	—	—	A	4.4	6.6	0.05	×				
7	DDT (2,4')	A	5.1	9.1	A	3.1	7.3	0.005	○	A	4.5	6.3	A	4.0	6.0	0.005	○				
8	DDT (4,4')	A	3.0	10.4	A	1.7	5.0	0.005	○	A	3.2	13.5	A	7.9	8.5	0.005	○				
9	EPN	A	1.7	14.4	A	2.1	4.9	0.005	○	A	2.8	13.0	A	5.1	6.9	0.005	○				
10	EPTC	A	2.7	15.4	A	2.4	4.8	0.005	○	A	3.4	13.6	A	4.5	5.8	0.005	○				
11	XMC	A	3.3	15.0	A	2.8	5.8	0.005	○	A	3.4	16.3	A	4.8	5.4	0.005	○				
12	アクリナトリン	A	4.7	17.5	A	2.3	7.6	0.005	○	A	5.0	14.9	A	4.8	6.5	0.005	○				
13	アザコナゾール	A	4.3	14.2	A	3.3	7.9	0.005	○	A	3.2	17.3	A	5.1	5.1	0.005	○				
14	アジンホスメチル	A	4.0	15.6	A	2.5	5.1	0.005	○	A	1.9	16.4	A	5.5	6.5	0.005	○				
15	アセタミプリド	—	—	—	C	3.8	33.8	0.025	×								×				
16	アセトクロール	A	3.9	21.4	A	2.0	7.7	0.005	○	A	2.4	12.4	A	4.8	6.3	0.005	○				
17	アセフエート	—	—	—	C	2.5	33.0	0.025	×								×				
18	アゾキシストロビン	A	4.5	21.8	A	3.3	11.9	0.005	○	A	3.4	11.8	A	7.8	10.0	0.005	○				
19	アトラジン	A	4.3	18.2	A	3.3	6.1	0.005	○	A	3.3	14.2	A	6.0	6.3	0.005	○				
20	アニコロホス	A	2.5	12.9	A	2.1	5.0	0.005	○	A	3.1	13.1	B-2	3.5	9.3	0.005	×				
21	アメトリン	A	3.3	19.0	A	2.8	9.1	0.005	○	A	3.7	11.6	A	6.0	6.3	0.005	○				
22	アタクロール	A	3.0	21.2	A	1.9	7.6	0.005	○	A	3.4	11.1	A	4.6	6.0	0.005	○				
23	アルドリシ	A	5.5	12.0	A	0.7	6.2	0.005	○	A	4.4	15.2	A	4.1	6.8	0.005	○				
24	アレスリン I								×								×				
25	アレスリン II								×								×				
26	アレスリン III								×								×				
27	アレスリン IV								×								×				
28	イサゾホス	A	5.2	17.3	A	2.2	6.4	0.005	○	A	5.3	15.3	A	4.4	5.7	0.005	○				
29	イソキサチオン	A	2.0	16.2	A	2.0	4.7	0.005	○	A	3.2	13.3	A	5.0	6.4	0.005	○				
30	イソキサチオンオキソソ								×								×				
31	イソフエンホス	A	3.2	15.6	A	1.8	5.6	0.005	○	A	3.7	15.9	A	4.8	6.5	0.005	○				
32	イソフエンホスオキソソ	A	3.4	21.8	A	3.5	14.5	0.005	○	A	2.7	13.8	A	4.7	5.2	0.005	○				
33	イソプロカルブ	A	3.4	14.1	A	2.5	5.6	0.005	○	A	3.1	14.7	A	4.6	5.3	0.005	○				
34	イソプロチオラン	A	6.9	14.1	A	1.6	5.2	0.005	○	A	5.7	18.2	A	4.8	6.1	0.005	○				
35	イソプロジオン	A	6.9	8.4	A	2.7	7.7	0.005	○	A	3.4	10.9	A	6.3	8.3	0.005	○				
36	イソプロジオン代謝物	A	11.2	13.4	A	3.2	9.5	0.005	○	A	9.0	9.9	A	8.0	10.6	0.005	○				
37	イソロベンホス	A	3.1	19.3	B-2	3.1	18.0	0.005	×	A	2.8	14.6	A	4.9	5.8	0.005	○				
38	イマザメタベンズメチルエステル I	—	—	—	B-1	6.9	9.9	0.005	×	B-1	4.4	9.2	B-1	10.9	12.1	0.005	×				
39	イマザメタベンズメチルエステル II	—	—	—	B-1	6.2	9.0	0.005	×	—	—	—	B-1	10.8	14.8	0.005	×				
40	イマザリル	—	—	—	B-1	10.2	10.4	0.005	×	—	—	—	B-1	7.3	9.0	0.005	×				
41	イミベンコナゾール	A	2.7	11.2	A	6.1	6.8	0.005	○	—	—	—	C	17.8	20.4	0.005	×				
42	イミベンコナゾール脱ベンジル体	—	—	—	C	9.9	11.1	0.005	×	—	—	—	C	10.3	9.4	0.005	×				
43	ウニコナゾール p	A	4.9	19.3	A	3.3	7.1	0.005	○	A	6.1	17.5	A	5.9	5.6	0.005	○				
44	エスプロカルブ	A	3.1	12.1	A	1.7	4.6	0.005	○	A	3.6	15.8	A	4.8	6.2	0.005	○				
45	エチオフェンカルブ	A	3.7	19.4	A	3.8	14.3	0.005	○	A	2.1	14.3	A	5.0	7.6	0.005	○				
46	エチオン	A	2.6	11.9	A	1.6	4.2	0.005	○	A	3.3	10.5	A	4.9	6.6	0.005	○				
47	エディフェンホス	A	3.5	15.4	A	2.6	5.8	0.005	○	A	3.5	11.8	A	5.3	7.5	0.005	○				
48	エトキサゾール	A	2.7	15.4	A	2.3	4.9	0.005	○	A	5.7	16.9	A	5.3	6.5	0.005	○				
49	エトフェンブロックス	A	1.9	18.3	A	1.9	3.9	0.005	○	A	2.8	10.4	A	9.9	10.8	0.005	○				
50	エトフメセート	—	—	—	A	2.4	6.4	0.01	×								×				
51	エトプロホス	A	2.4	19.3	A	2.6	10.9	0.005	○	A	2.8	14.5	A	4.6	5.6	0.005	○				
52	エトリジアゾール	A	2.4	15.0	A	2.3	4.5	0.005	○	A	3.7	13.1	A	4.7	6.2	0.005	○				
53	エンドスルファン (α)	A	3.6	8.0	A	1.5	4.8	0.005	○								×				
54	エンドスルファン (β)	A	3.1	9.6	A	2.5	5.2	0.005	○								×				
55	エンドリン	A	1.3	16.0	A	2.0	4.3	0.005	○												

※空欄：選択性，定量限界がガイドラインの目標値に不適合なもの，検量線の測定点数不足により定量できないもの。

※A：真度 70%以上 120%以下，B-1：真度 50%以上 70%未満，B-2：真度 120%超過，C：真度 50%未満，—：選択性が目標値を満たさない，検量線の測定点数不足により定量不可，定量限界が基準値より高い，または真度が下限値未満となり真度を算出できないなどの理由から妥当性が確認できなかったもの。

なお，真度が—のものは，併行精度及び室内精度も—で示した。

※○：全ての項目でガイドラインの目標値に適合，×：いずれか1項目でもガイドラインの目標値に不適合。

表 2 妥当性評価試験（牛肉及びぶり）（続き）

No.	化合物名	牛肉							ぶり								
		試料中濃度			試料中濃度			定量限界	評価	試料中濃度			試料中濃度				
		0.01mg/kg			0.1mg/kg					0.01mg/kg			0.1mg/kg				
		真度	併行精度	室内精度	真度	併行精度	室内精度			真度	併行精度	室内精度	真度	併行精度	室内精度		
56	オキサジアゾン	A	3.0	10.3	A	1.3	5.0	0.005	○	A	3.8	15.6	A	4.3	6.3	0.005	○
57	オキサジキシル	—	—	—	B-1	9.0	10.0	0.005	×	—	—	—	A	9.8	8.8	0.005	×
58	カズサホス	A	2.6	20.2	B-2	2.3	11.6	0.005	×	A	3.4	14.7	A	4.6	5.6	0.005	○
59	カフエンストロール	A	4.9	12.9	A	2.6	8.6	0.005	○	A	3.6	11.3	A	5.8	7.7	0.005	○
60	カブタホール								×								×
61	カルバリル	A	3.4	22.3	A	4.5	9.1	0.005	○	A	2.9	15.4	A	8.4	7.8	0.005	○
62	カルフェントラゾンエチル	A	3.0	10.4	A	1.6	5.1	0.005	○	A	3.3	14.9	A	4.6	6.1	0.005	○
63	カルボキシシ	—	—	—	B-1	14.5	28.3	0.005	×	B-1	3.1	12.8	B-1	11.7	17.0	0.005	×
64	カルボスルファン	A	11.7	22.9	B-2	5.6	10.8	0.005	×								×
65	カルボフラン	B-2	3.5	17.6	B-2	4.1	10.9	0.005	×	—	—	—	A	7.2	11.0	0.01	×
66	キナルホス	A	3.7	14.8	A	1.8	4.7	0.005	○	A	3.9	11.3	A	4.6	6.1	0.005	○
67	キノキシフェン	A	3.0	12.0	A	2.0	5.5	0.005	○	A	4.0	16.2	A	5.8	6.7	0.005	○
68	キノクラミン	—	—	—	A	6.5	8.3	0.005	×	—	—	—	B-1	10.9	10.0	0.005	×
69	キノメチオナート	A	3.4	14.5	A	1.7	5.1	0.005	○	A	4.4	16.9	A	5.5	6.5	0.005	○
70	キャブタン	—	—	—	—	—	—	0.005	×	—	—	—	—	—	—	0.005	×
71	キントゼン	A	2.1	13.3	A	1.3	3.9	0.005	○	A	2.8	9.8	A	4.3	6.2	0.005	○
72	クレンキシムメチル	A	3.6	12.1	A	2.4	4.4	0.005	○	A	3.6	13.1	A	4.9	6.1	0.005	○
73	クロマゾン	A	3.4	13.4	A	2.3	5.3	0.005	○	A	3.0	15.1	A	4.5	5.7	0.005	○
74	クロルタルジメチル	A	2.7	12.3	A	1.6	5.4	0.005	○	A	4.2	14.8	A	4.8	6.0	0.005	○
75	クロルピリホス	A	2.6	12.6	A	1.3	4.4	0.005	○	A	4.6	10.9	B-2	4.9	6.3	0.005	×
76	クロルピリホスメチル	A	2.7	16.4	A	1.3	4.5	0.005	○	A	3.9	13.3	A	4.9	6.2	0.005	○
77	クロルフェナビル	A	4.8	15.6	A	3.1	5.9	0.005	○	A	6.9	18.7	A	5.6	6.8	0.005	○
78	クロルフェンビンホス（a）（E）	A	5.8	16.6	A	2.6	6.3	0.005	○	A	5.3	20.9	A	4.5	5.9	0.005	○
79	クロルフェンビンホス（d）（Z）	A	2.8	15.4	A	2.3	5.7	0.005	○	A	2.6	17.2	A	4.6	5.6	0.005	○
80	クロルプロファム	A	3.3	18.6	A	1.8	6.1	0.005	○	A	5.0	18.4	A	4.5	5.8	0.005	○
81	クロロベンジレート	A	2.9	13.3	A	2.0	4.6	0.005	○	A	3.2	12.3	A	4.8	6.5	0.005	○
82	シアナジン	B-1	5.7	24.6	A	5.3	8.2	0.005	×	B-1	5.0	19.9	A	7.7	8.2	0.005	×
83	シアノホス	A	2.0	14.9	A	2.2	4.7	0.005	○	A	3.3	13.2	A	4.6	5.7	0.005	○
84	ジエトフェンカルブ	A	5.3	17.6	A	2.7	5.8	0.005	○	A	3.8	12.9	A	4.8	6.0	0.005	○
85	ジクロシメットⅠ	A	4.2	12.4	A	1.6	5.2	0.005	○	A	4.1	30.5	A	3.9	4.1	0.005	×
86	ジクロシメットⅡ	A	3.8	12.0	A	1.3	5.9	0.005	○	A	5.1	7.4	A	3.2	5.4	0.005	○
87	ジクロフェンチオン	A	2.4	15.5	A	1.7	4.3	0.005	○	A	3.7	10.2	A	4.7	6.0	0.005	○
88	ジクロフルアニド	—	—	—	—	—	—	0.005	×	—	—	—	—	—	—	0.005	×
89	ジクロホップメチル	A	2.8	10.9	A	2.2	5.2	0.005	○	A	3.0	16.6	A	4.8	6.3	0.005	○
90	ジクロラン	A	3.0	22.5	A	2.7	7.7	0.005	○	A	2.8	10.8	A	5.9	6.0	0.005	○
91	ジクロルボス	A	3.1	18.6	A	1.0	5.2	0.005	○	—	—	—	B-1	6.2	13.4	0.005	×
92	シハロトリン（y）	A	6.6	9.5	A	2.4	5.4	0.005	○	A	9.1	14.7	A	6.0	7.4	0.005	○
93	シハロトリン（s）	A	5.9	13.2	A	2.2	4.8	0.005	○	A	3.2	12.1	A	4.7	7.0	0.005	○
94	シハロホップブチル	A	2.5	17.7	A	2.1	4.6	0.005	○	A	3.4	13.4	A	5.3	6.4	0.005	○
95	ジフェナミド	A	5.7	15.1	A	3.0	5.8	0.005	○	A	3.3	14.2	A	4.9	5.4	0.005	○
96	ジフェニルアミン	—	—	—	B-1	25.6	57.6	0.005	×	A	2.7	14.7	A	4.5	6.2	0.005	○
97	ジフェノコナゾールⅠ	A	3.3	14.8	A	2.4	6.3	0.005	○	A	2.5	12.0	A	8.6	11.0	0.005	○
98	ジフェノコナゾールⅡ	A	2.7	14.0	A	3.4	7.1	0.005	○	A	3.2	12.0	A	10.0	11.0	0.005	○
99	シフルトリンⅠ	A	4.2	20.4	A	1.6	4.0	0.005	○	A	3.6	10.8	A	4.7	6.7	0.005	○
100	シフルトリンⅡ	A	4.0	14.6	A	1.5	5.9	0.005	○	A	2.1	15.0	A	5.1	7.5	0.005	○
101	シフルトリンⅢ	A	5.3	14.8	A	4.7	7.1	0.005	○								×
102	シフルトリンⅣ	A	5.8	19.1	A	1.6	4.7	0.005	○	B-2	5.5	20.6	A	7.7	8.8	0.005	×
103	ジフルフェニカン	A	3.0	10.0	A	2.0	4.5	0.005	○	A	3.8	13.9	A	4.6	6.3	0.005	○
104	シプロコナゾールⅠ	A	13.6	20.7	A	4.1	6.5	0.005	○								×
105	シプロコナゾールⅡ	A	3.7	16.7	A	5.7	7.9	0.005	○	A	2.7	6.3	A	9.1	8.3	0.005	○
106	シベルメトリンⅠ	A	2.0	15.0	A	1.6	4.6	0.005	○	A	2.5	14.3	A	6.0	7.5	0.005	○
107	シベルメトリンⅡ	A	3.1	12.5	A	1.6	4.7	0.005	○	A	5.0	18.7	A	5.5	7.4	0.005	○
108	シベルメトリンⅢ	—	—	—	A	3.3	5.4	0.01	×	A	4.5	6.5	A	4.7	8.5	0.01	○
109	シベルメトリンⅣ	A	6.0	16.2	A	2.7	5.4	0.005	○	A	3.2	9.0	A	7.2	8.4	0.005	○
110	シメジン	A	3.0	13.2	A	3.4	6.2	0.005	○	A	3.6	18.3	A	9.0	8.5	0.005	○
111	ジメタメトリン	A	2.4	13.4	A	2.3	4.8	0.005	○	A	3.7	11.5	A	6.5	7.2	0.005	○
112	ジメチルピ	A	6.1	11.0	A	1.8	6.2	0.005	○	A	4.8	10.6	A	5.5	6.0	0.005	○
113	ジメチルビンホス（E）	A	3.8	13.0	A	2.3	5.7	0.005	○	A	2.7	14.6	A	4.9	5.8	0.005	○
114	ジメチルビンホス（Z）	A	4.5	12.5	A	2.6	5.6	0.005	○	A	5.0	18.5	A	3.6	6.0	0.005	○
115	ジメテナミド	A	3.4	19.6	A	2.2	7.0	0.005	○	A	2.7	12.5	A	4.6	5.7	0.005	○
116	ジメトエート	B-1	4.3	21.1	A	6.3	13.9	0.005	×	A	2.3	19.8	A	8.5	7.8	0.005	○
117	ジメトモルフ（E）	B-1	5.5	14.5	B-1	6.7	9.5	0.005	×	—	—	—	B-1	12.6	14.1	0.005	×
118	ジメトモルフ（Z）	A	3.2	19.2	A	5.5	14.0	0.005	○	—	—	—	B-1	11.4	12.3	0.005	×
119	シメトリン	A	3.0	24.4	A	4.1	9.1	0.005	○	A	3.2	15.2	A	8.4	8.2	0.005	○
120	ジメピバシート	A	3.8	14.3	A	2.1	6.9	0.005	○	A	4.4	16.1	A	4.9	6.8	0.005	○
121	シラフルオフェン	A	2.5	15.5	A	1.5	3.8	0.005	○	A	2.9	13.2	A	7.4	8.8	0.005	○
122	ターバシル	—	—	—	A	8.6	14.6	0.005	×	—	—	—	B-1	10.9	9.7	0.005	×
123	ダイアジノン	A	3.4	15.4	A	1.8	5.5	0.005	○	A	2.9	16.5	A	4.8	6.0	0.005	○
124	チアベンダゾール	—	—	—	C	4.4	17.2	0.005	×	—	—	—	C	7.0	14.8	0.005	×
125	チオベンカルブ	A	2.8	16.4	A	2.1	5.2	0.005	○								×
126	チオメトン	A	2.9	20.2	A	2.0	9.2	0.005	○	A	3.0	14.6	A	4.0	6.4	0.005	○
127	チフルザミド	A	4.9	8.1	A	2.1	5.1	0.005	○	A	4.4	14.4	A	4.6	6.1	0.005	○
128	ディルドリン	A	8.3	19.5	A	1.6	5.5	0.005	○	A	8.4	16.6	A	3.5	5.6	0.005	○
129	テクナゼン	A	2.9	17.6	A	1.8	4.2	0.005	○	A	4.2	14.5	A	4.9	6.0	0.005	○
130	テトラクロルビンホス	A	4.9	16.2	A	2.2	6.6	0.005	○	A	3.7	11.2	A	4.7	6.6	0.005	○

表 2 妥当性評価試験（牛肉及びぶり）（続き）

No.	化合物名	牛肉							ぶり								
		試料中濃度			試料中濃度			定量限界	評価	試料中濃度			試料中濃度				
		真度	併行 精度	室内 精度	真度	併行 精度	室内 精度			真度	併行 精度	室内 精度	真度	併行 精度	室内 精度		
																0.01mg/kg	0.1mg/kg
131	テトラジホン	A	5.9	11.5	A	1.8	5.2	0.005	○	A	4.9	8.2	A	6.4	7.2	0.005	○
132	ケニルクロール	A	3.4	19.4	A	2.2	5.2	0.005	○	A	2.6	16.9	A	4.6	6.0	0.005	○
133	テブコナゾール	A	2.9	17.7	A	3.3	7.4	0.005	○	A	4.9	15.4	A	7.0	6.6	0.005	○
134	テブフェンピラド	A	2.4	16.2	A	2.2	4.5	0.005	○	A	5.5	9.7	B-2	3.9	9.6	0.005	×
135	テフルトリン								×								×
136	デルタメトリン	A	3.6	11.6	A	1.5	5.0	0.005	○	A	5.7	6.5	A	9.8	12.0	0.005	○
137	テルブトリン	A	3.5	15.4	A	2.3	5.2	0.005	○								×
138	デルブホス	A	2.1	15.0	A	1.9	6.2	0.005	○	A	3.6	13.7	A	4.6	6.2	0.005	○
139	トリアジメノール I	A	2.3	19.3	A	3.8	11.2	0.005	○	A	8.9	11.1	A	4.8	5.6	0.005	○
140	トリアジメノール II	—	—	—	A	8.7	16.8	0.010	×								×
141	トリアジメホス	A	4.3	15.7	A	1.9	4.7	0.005	○	A	3.9	13.0	A	4.3	5.6	0.005	○
142	トリアノホス	A	4.5	12.6	A	2.4	5.0	0.005	○	A	4.3	8.5	A	4.3	6.6	0.005	○
143	トリアレート	A	2.0	14.7	A	1.4	4.3	0.005	○	A	4.0	14.3	A	4.8	6.4	0.005	○
144	トリシクラゾール	—	—	—	C	6.5	22.3	0.005	×	—	—	—	C	7.7	12.6	0.005	×
145	トリブホス	A	3.7	12.2	A	1.5	5.0	0.005	○	A	6.2	12.3	A	4.8	6.7	0.005	○
146	トリフルミゾール	A	5.5	22.1	A	2.0	5.0	0.005	○	A	3.0	14.8	A	4.6	6.3	0.005	○
147	トリフルラリン	A	2.7	13.9	B-2	1.6	8.8	0.005	×	A	2.8	15.5	A	4.6	5.9	0.005	○
148	トリフロキシストロビン	A	2.5	12.5	A	2.0	4.4	0.005	○	A	3.1	13.2	A	5.6	6.3	0.005	○
149	トルクロホスメチル	A	2.3	19.1	A	1.7	4.7	0.005	○	A	3.4	15.8	A	4.6	6.1	0.005	○
150	トルフェンピラド	A	3.1	5.0	A	2.5	7.4	0.005	○	B-1	6.6	5.7	B-1	12.0	14.5	0.005	×
151	ナブロバミド	A	5.6	6.9	A	1.7	5.5	0.005	○	A	7.8	12.7	A	3.5	5.5	0.005	○
152	ニトロタールイソプロピル	A	1.9	15.0	A	1.7	6.5	0.005	○	A	3.2	10.8	A	4.6	6.5	0.005	○
153	ノルフルラジン	—	—	—	B-1	9.7	10.8	0.005	×	—	—	—	B-1	11.1	9.9	0.005	×
154	バクロブタゾール	A	4.9	21.3	A	3.4	14.0	0.005	○	A	5.1	17.9	A	4.7	5.8	0.005	○
155	パラチオン	A	3.4	15.3	A	2.1	6.3	0.005	○	A	4.3	16.0	A	5.0	6.6	0.005	○
156	パラチオンメチル	A	2.0	20.0	B-2	2.5	10.1	0.005	×	A	3.7	12.6	A	4.8	6.0	0.005	○
157	ハルフェンプロックス	A	2.6	13.4	A	1.6	4.1	0.005	○	A	1.9	9.6	A	6.2	7.4	0.005	○
158	ピテルタノール I	A	2.6	27.4	A	4.5	9.8	0.005	○	—	—	—	A	11.0	10.2	0.005	×
159	ピテルタノール II	B-1	10.2	24.1	A	10.0	15.5	0.005	×	—	—	—	B-1	12.7	12.4	0.005	×
160	ピフェノックス	A	6.2	15.5	A	2.1	5.5	0.005	○	A	4.7	16.4	A	4.9	6.3	0.005	○
161	ピフェントリン	A	2.9	12.9	A	1.4	3.7	0.005	○	A	4.3	18.0	A	5.6	6.9	0.005	○
162	ピペロホス	A	3.5	15.5	A	2.5	5.4	0.005	○	A	3.9	11.5	A	4.5	6.6	0.005	○
163	ピラクロホス	A	3.9	17.3	A	2.5	8.3	0.005	○	A	3.8	11.2	A	5.7	7.0	0.005	○
164	ピラゾキシフェン								×								×
165	ピラゾホス	A	2.6	19.3	A	2.0	5.4	0.005	○	A	3.8	12.2	A	5.3	6.6	0.005	○
166	ピラフルフェンエチル	A	5.0	16.6	A	2.4	5.0	0.005	○	A	3.4	16.2	A	4.7	6.2	0.005	○
167	ピリダフェンチオン	A	3.1	18.7	A	2.9	6.5	0.005	○	A	3.9	11.8	A	5.6	6.9	0.005	○
168	ピリダベン	A	2.0	17.4	A	2.1	5.9	0.005	○	A	3.3	12.3	A	9.2	9.5	0.005	○
169	ピリフェノックス (E)	A	1.7	16.2	A	2.8	9.4	0.005	○	A	4.7	17.7	A	4.8	6.1	0.005	○
170	ピリフェノックス (Z)	A	4.4	18.8	A	2.9	6.3	0.005	○	A	4.6	18.4	A	4.7	5.8	0.005	○
171	ピリブチカルブ	A	2.3	12.1	A	1.6	4.1	0.005	○	A	3.1	9.9	A	4.7	6.4	0.005	○
172	ピリブキシフェン	A	3.5	14.4	A	2.2	4.4	0.005	○	A	2.4	11.3	A	6.6	7.4	0.005	○
173	ピリミカープ	A	3.9	20.5	A	2.9	8.4	0.005	○	A	3.1	15.6	A	5.1	5.6	0.005	○
174	ピリミジフェン	A	2.2	21.2	A	2.7	6.4	0.005	○	B-1	4.7	14.4	A	11.9	13.0	0.005	×
175	ピリミノバクメチル (E)	A	3.1	16.1	A	2.6	5.7	0.005	○	A	3.3	13.4	A	4.6	5.9	0.005	○
176	ピリミノバクメチル (Z)	A	3.7	15.9	A	2.6	5.7	0.005	○	A	3.9	14.7	A	4.4	6.0	0.005	○
177	ピリミホスメチル	A	3.5	13.8	A	1.6	4.3	0.005	○	A	1.9	16.3	A	5.1	6.3	0.005	○
178	ピリメタニル	A	2.8	15.2	A	2.3	4.8	0.005	○	A	2.6	14.8	A	5.4	6.3	0.005	○
179	ピロキロン	A	4.0	19.7	A	4.8	7.5	0.005	○	A	1.8	17.4	A	7.3	6.4	0.005	○
180	ピンクロゾリン	A	5.6	12.9	A	2.3	6.3	0.005	○	A	4.5	14.9	A	4.5	6.2	0.005	○
181	ファモキサドシ	—	—	—	B-1	13.1	23.0	0.005	×	—	—	—	C	16.8	19.0	0.005	×
182	フィズロニル	A	2.2	19.6	A	2.5	9.9	0.005	○	A	2.9	10.8	A	4.4	5.8	0.005	○
183	フェナミホス	A	6.6	22.3	A	4.0	6.8	0.005	○	A	2.5	16.4	A	4.9	7.0	0.005	○
184	フェナリモル	A	3.6	22.8	A	3.5	7.8	0.005	○	B-1	3.7	6.0	A	9.5	9.5	0.005	×
185	フェニトロチオン	A	2.6	16.6	A	1.6	5.7	0.005	○	A	3.4	13.3	A	4.8	5.9	0.005	○
186	フェノキサニル	A	2.8	15.3	A	1.9	5.4	0.005	○	A	3.9	12.0	A	4.7	5.8	0.005	○
187	フェノキサプロップエチル	A	2.0	14.5	A	2.1	5.2	0.005	○	A	3.2	17.2	A	5.3	6.5	0.005	○
188	フェノチオカルブ	A	3.0	15.5	A	2.2	5.0	0.005	○	A	3.0	12.1	A	4.8	5.8	0.005	○
189	フェノトリン I								×								×
190	フェノトリン II	A	9.7	10.9	A	1.6	5.3	0.005	○								×
191	フェノブカルブ	A	3.7	14.9	A	2.6	6.2	0.005	○	A	2.9	15.5	A	4.7	5.3	0.005	○
192	フェンスルホチオン	A	2.1	16.5	A	3.8	14.4	0.005	○	A	2.4	9.9	A	5.5	6.9	0.005	○
193	フェンチオン	A	3.1	13.7	A	2.2	4.3	0.005	○	A	3.1	13.3	A	4.5	6.2	0.005	○
194	フェントエート	A	2.7	11.1	A	2.3	5.6	0.005	○	A	5.2	11.7	A	5.6	7.3	0.005	○
195	フェンバレート I	A	4.0	14.6	A	1.6	4.1	0.005	○	A	4.5	8.9	A	6.3	8.9	0.005	○
196	フェンバレート II	A	5.8	15.7	A	1.6	4.0	0.005	○	A	5.5	15.0	A	5.3	8.7	0.005	○
197	フェンブコナゾール	A	3.9	20.4	A	2.8	7.0	0.005	○	A	2.3	16.6	A	8.5	8.5	0.005	○
198	フェンブロバトリン	A	3.6	10.4	A	1.8	4.2	0.005	○	A	6.1	19.2	A	4.9	6.8	0.005	○
199	フェンブプロピモルブ	A	2.6	13.5	A	2.2	4.3	0.005	○	A	2.8	15.7	A	4.9	6.2	0.005	○
200	フサライド	A	3.5	15.3	A	2.1	5.5	0.005	○	A	3.3	13.9	A	5.7	6.2	0.005	○
201	ブタクロール	A	5.9	15.2	A	2.2	7.0	0.005	○	A	6.5	15.5	A	4.6	6.2	0.005	○
202	ブタミホス	A	2.7	15.9	A	1.9	5.2	0.005	○	A	3.7	10.6	A	5.1	6.5	0.005	○
203	ブチレート	A	2.4	14.1	A	2.0	4.4	0.005	○	A	3.4	14.4	A	4.5	6.0	0.005	○
204	ブピリメート	A	5.2	17.2	A	2.0	5.6	0.005	○	A	4.3	11.6	A	5.0	6.1	0.005	○
205	ブプロフェジン	A	6.3	9.1	A	2.9	5.8	0.005	○	A	14.0	14.7	A	5.4	5.1	0.005	○

表 2 妥当性評価試験（牛肉及びぶり）（続き）

No.	化合物名	牛肉						ぶり									
		試料中濃度			試料中濃度			試料中濃度			試料中濃度						
		0.01mg/kg			0.1mg/kg			0.01mg/kg			0.1mg/kg						
		真度	併行 精度	室内 精度	真度	併行 精度	室内 精度	定量限界	評価	真度	併行 精度	室内 精度	真度	併行 精度	室内 精度	定量限界	評価
206	フラチオカルブ	—	—	—	C	10.7	21.4	0.005	×	A	8.6	18.1	B-1	8.0	13.6	0.005	×
207	フナムブロップメチル	A	4.7	14.1	A	2.2	5.9	0.005	○	A	3.3	17.9	A	4.4	5.8	0.005	○
208	フルアクリピリム	A	3.8	10.7	A	2.3	4.3	0.005	○	A	2.3	12.6	A	5.3	6.8	0.005	○
209	フルジオキソニル	—	—	—	C	12.4	11.8	0.005	×	—	—	—	C	13.4	11.0	0.005	×
210	フルシトリネート I	A	2.7	16.0	A	1.9	5.6	0.005	○	A	2.4	18.1	A	5.7	7.4	0.005	○
211	フルシトリネート II	A	3.7	16.6	A	1.9	4.8	0.005	○	A	2.9	13.3	A	5.4	7.9	0.005	○
212	フルシラゾール	A	4.7	17.9	A	2.1	6.2	0.005	○	A	2.9	12.8	A	5.3	6.1	0.005	○
213	フルトラニル	A	12.3	18.3	A	4.0	12.7	0.005	○	A	13.1	28.8	B-2	9.4	11.8	0.005	×
214	フルトリアホル	—	—	—	—	—	—	—	×	—	—	—	—	—	—	—	×
215	フルバリネート-tau-I	A	3.3	11.9	A	1.7	3.9	0.005	○	A	3.4	14.0	A	5.6	8.9	0.005	○
216	フルバリネート-tau-II	A	4.2	10.4	A	1.8	4.0	0.005	○	A	3.2	8.3	A	6.2	9.1	0.005	○
217	フルミオキサジン	A	2.2	25.0	A	2.3	10.3	0.005	○	A	3.4	14.7	A	5.8	8.8	0.005	○
218	フルミクロラックベンチル	A	2.2	15.9	A	2.2	11.4	0.005	○	A	4.1	10.5	A	6.4	9.6	0.005	○
219	プレチラクロール	A	3.9	11.9	A	1.0	4.6	0.005	○	A	3.2	8.5	A	5.0	6.1	0.005	○
220	プロクロラズ	A	3.9	25.2	A	3.2	12.3	0.005	○	A	4.2	12.7	A	6.8	7.2	0.005	○
221	プロシミド	A	3.0	10.4	A	2.0	4.7	0.005	○	A	4.0	16.5	A	4.8	6.1	0.005	○
222	プロチオホス	A	8.9	9.3	A	3.4	11.5	0.005	○	A	10.1	28.6	B-2	5.0	10.2	0.005	×
223	プロバクロー	—	—	—	C	17.7	40.5	0.005	×	A	3.3	21.0	A	5.4	7.3	0.005	○
224	プロバニル	—	—	—	B-1	9.6	11.0	0.005	×	—	—	—	B-1	11.2	10.4	0.005	×
225	プロバルギット	A	6.2	9.8	A	2.2	7.0	0.005	○	A	9.3	8.8	A	4.4	6.2	0.005	○
226	プロピコナゾール I	A	8.0	13.2	A	2.5	6.1	0.005	○	—	—	—	—	—	—	—	×
227	プロピコナゾール II	A	4.4	16.4	A	1.8	5.9	0.005	○	A	5.1	12.5	A	4.5	5.5	0.005	○
228	プロピザミド	A	3.4	15.5	A	2.1	5.8	0.005	○	A	3.6	16.9	A	4.9	5.9	0.005	○
229	プロフアム	—	—	—	—	—	—	—	×	—	—	—	—	—	—	—	×
230	プロフェノホス	A	5.1	15.0	A	1.1	4.1	0.005	○	A	3.5	10.8	A	5.2	7.7	0.005	○
231	プロベナゾール	—	—	—	—	—	—	—	×	—	—	—	A	8.2	9.7	0.01	×
232	プロボキスル	A	2.8	17.4	A	2.8	7.0	0.005	○	A	3.1	15.0	A	4.8	5.5	0.005	○
233	プロマシル	—	—	—	—	—	—	—	×	—	—	—	—	—	—	—	×
234	プロメトリン	A	3.4	20.4	A	2.4	9.3	0.005	○	A	3.6	13.2	A	5.8	6.5	0.005	○
235	プロモブチド	A	3.2	19.1	A	2.5	8.5	0.005	○	A	6.0	10.7	A	5.2	6.3	0.005	○
236	プロモブチド脱プロモ体	A	2.7	20.9	A	2.7	7.9	0.005	○	A	4.9	15.2	A	4.2	5.2	0.005	○
237	プロモプロピレート	A	3.1	13.2	A	1.8	4.4	0.005	○	A	4.2	9.7	A	5.4	6.5	0.005	○
238	ヘキサクロロベンゼン	A	1.6	11.1	A	1.4	5.2	0.005	○	A	3.3	17.2	A	4.5	5.9	0.005	○
239	ヘキサコナゾール	A	17.7	20.7	A	7.4	16.4	0.005	○	A	17.0	28.2	B-2	14.7	16.8	0.005	×
240	ヘキサジノン	—	—	—	C	9.1	10.4	0.005	×	—	—	—	B-1	9.6	9.5	0.005	×
241	ヘキサキシル	A	4.4	18.0	A	2.5	6.3	0.005	○	A	4.3	15.2	A	4.6	5.7	0.005	○
242	ヘノキサコール	A	3.8	16.2	A	2.2	5.6	0.005	○	A	4.0	13.5	A	4.8	6.2	0.005	○
243	ヘプタクロール	A	2.7	15.6	A	1.5	4.0	0.005	○	A	4.1	14.2	A	4.8	6.3	0.005	○
244	ペルメトリン (cis)	A	3.1	14.6	A	1.8	4.7	0.005	○	A	3.2	11.9	A	5.8	6.8	0.005	○
245	ペルメトリン (trans)	A	4.0	14.3	A	1.9	5.1	0.005	○	A	3.9	11.2	A	5.3	6.6	0.005	○
246	ペンコナゾール	A	3.6	15.1	A	2.5	5.7	0.005	○	A	2.9	15.7	A	5.1	6.0	0.005	○
247	ペンダイオカルブ	A	4.0	18.2	A	3.2	8.3	0.005	○	A	3.8	15.7	A	4.9	5.9	0.005	○
248	ペンディメタリン	A	2.2	16.2	A	2.2	5.5	0.005	○	A	3.6	15.9	A	4.8	6.6	0.005	○
249	ペンゾラカルブ	—	—	—	—	—	—	—	×	—	—	—	—	—	—	—	×
250	ベンゾフルラリン	A	1.9	17.4	B-2	1.7	8.4	0.005	×	A	3.6	13.2	A	4.8	6.1	0.005	○
251	ベンゾレサート	A	3.9	19.8	A	2.1	5.0	0.005	○	A	2.6	13.8	A	4.8	6.0	0.005	○
252	ホサロン	A	3.1	10.6	A	2.3	4.7	0.005	○	A	5.1	12.7	A	5.9	6.9	0.005	○
253	ボスカリド	A	2.3	20.1	A	3.4	6.1	0.005	○	B-1	2.7	13.9	A	10.7	11.4	0.005	×
254	ホスチアゼート I	A	2.7	18.2	A	3.2	8.4	0.005	○	A	1.6	10.5	A	4.7	6.1	0.005	○
255	ホスチアゼート II	A	2.7	24.0	A	2.9	8.8	0.005	○	A	4.1	15.0	A	5.1	5.6	0.005	○
256	ホスファミドシ I	A	5.9	15.9	A	4.8	16.6	0.005	○	A	3.5	13.4	A	5.1	6.4	0.005	○
257	ホスファミドシ II	A	3.7	17.5	B-2	3.3	18.7	0.005	×	A	4.8	17.5	A	4.7	5.3	0.005	○
258	ホスメット	A	4.5	10.5	A	2.6	5.1	0.005	○	A	3.5	11.8	A	5.1	6.5	0.005	○
259	ホレート	A	3.5	17.0	A	2.1	8.2	0.005	○	A	3.4	18.6	A	4.2	5.5	0.005	○
260	マラチオン	A	2.9	13.0	A	2.2	4.7	0.005	○	A	4.6	14.6	A	4.5	6.0	0.005	○
261	ミクロブタニル	A	4.5	12.1	A	3.1	7.0	0.005	○	A	4.2	13.7	A	4.9	5.2	0.005	○
262	メタクリホス	A	2.3	16.9	A	2.1	4.4	0.005	○	A	2.8	15.7	A	4.5	5.8	0.005	○
263	メタミドホス	—	—	—	—	—	—	—	×	—	—	—	—	—	—	—	×
264	メタウキシル	A	4.4	18.2	A	3.1	10.2	0.005	○	A	4.2	14.1	A	4.8	5.9	0.005	○
265	メチオカルブ	—	—	—	—	—	—	—	×	—	—	—	—	—	—	—	×
266	メチダチオン	A	3.3	16.5	A	2.0	5.8	0.005	○	—	—	—	—	—	—	—	×
267	メトキシクロール	A	2.9	13.1	A	2.2	4.8	0.005	○	A	3.3	11.7	A	6.7	7.5	0.005	○
268	メトブレン I	—	—	—	—	—	—	—	×	—	—	—	—	—	—	—	×
269	メトブレン II	A	15.1	18.4	B-2	3.1	10.5	0.005	×	—	—	—	—	—	—	—	×
270	メトミノストロビン (E)	A	3.9	17.7	A	2.8	6.4	0.005	○	A	3.8	18.7	A	4.1	5.1	0.005	○
271	メトミノストロビン (Z)	A	5.8	17.4	A	3.2	6.6	0.005	○	A	4.2	17.1	A	5.2	5.5	0.005	○
272	メトラクロール	A	4.0	14.8	A	2.0	4.7	0.005	○	A	3.8	14.9	A	4.7	6.1	0.005	○
273	メトリゾジン	A	2.6	22.6	A	3.5	8.9	0.005	○	A	3.1	14.5	A	5.1	5.8	0.005	○
274	メピンホス	A	2.8	15.8	A	1.9	8.8	0.005	○	—	—	—	A	6.6	9.1	0.005	×
275	メフェナセツ	A	3.7	20.3	A	3.2	6.4	0.005	○	A	1.8	11.7	A	7.9	7.6	0.005	○
276	メブロニル	A	3.0	11.4	A	2.3	6.1	0.005	○	A	2.7	14.7	A	6.8	7.3	0.005	○
277	モノクロトホス	—	—	—	C	3.8	26.6	0.005	×	—	—	—	C	6.1	12.0	0.005	×
278	レナシル	—	—	—	C	8.3	9.4	0.005	×	—	—	—	C	9.6	9.5	0.005	×

表 3 妥当性評価試験（鶏肉及びはちみつ）

No.	化合物名	鶏肉								はちみつ							
		試料中濃度			試料中濃度			定量限界	評価	試料中濃度			試料中濃度			定量限界	評価
		真度	併行 精度	室内 精度	真度	併行 精度	室内 精度			真度	併行 精度	室内 精度	真度	併行 精度	室内 精度		
1	BHC (α)	—	—	—	A	7.5	14.6	0.005	×	—	—	—	C	7.3	8.7	0.005	×
2	BHC (β)	—	—	—	B-1	8.6	16.6	0.005	×	—	—	—	B-1	7.4	11.5	0.005	×
3	BHC (γ)	—	—	—	A	7.4	13.8	0.005	×	—	—	—	C	6.0	9.5	0.005	×
4	BHC (δ)	—	—	—	B-1	8.6	16.0	0.005	×	—	—	—	C	4.8	14.1	0.005	×
5	DDD (4,4')	—	—	—	B-1	8.0	18.8	0.005	×	—	—	—	C	7.6	24.4	0.005	×
6	DDE (4,4')	—	—	—	C	9.8	18.8	0.005	×	—	—	—	C	7.9	23.2	0.005	×
7	DDT (2,4')	—	—	—	C	9.5	17.0	0.005	×	—	—	—	C	7.7	9.6	0.005	×
8	DDT (4,4')	—	—	—	C	10.4	20.0	0.005	×	—	—	—	C	8.3	14.5	0.005	×
9	EPN	—	—	—	B-1	9.1	16.9	0.005	×								×
10	EPTC	—	—	—	A	5.1	9.5	0.005	×			—	C	13.2	23.1	0.005	×
11	XMC	—	—	—	A	4.4	8.6	0.005	×	—	—	—	C	7.8	13.3	0.005	×
12	アクリナトリン	—	—	—	C	10.2	22.5	0.005	×								×
13	アザコナゾール	—	—	—	A	6.6	11.2	0.005	×	—	—	—	C	7.9	14.7	0.005	×
14	アジンホスメチル	—	—	—	A	6.6	13.2	0.005	×	—	—	—	C	10.1	13.6	0.005	×
15	アセタミプリド								×								×
16	アセトクロール	—	—	—	A	6.7	14.2	0.005	×	—	—	—	C	6.9	13.7	0.005	×
17	アセフエート								×								×
18	アゾキシストロビン	—	—	—	A	7.9	14.4	0.005	×								×
19	アトラジン	—	—	—	A	6.8	12.7	0.005	×	—	—	—	C	9.1	19.6	0.005	×
20	アニロホス	—	—	—	B-1	9.3	16.8	0.005	×								×
21	アメトリン	—	—	—	A	8.3	13.9	0.005	×	—	—	—	C	8.2	15.4	0.005	×
22	アラクロール	—	—	—	A	6.1	14.0	0.005	×	—	—	—	C	6.3	13.4	0.005	×
23	アルドリシ	—	—	—	B-1	5.6	13.7	0.005	×	—	—	—	C	9.4	10.1	0.005	×
24	アレスリン I								×								×
25	アレスリン II								×								×
26	アレスリン III	—	—	—	B-1	10.8	20.1	0.01	×								×
27	アレスリン IV	—	—	—	B-1	12.0	17.8	0.01	×								×
28	イサゾホス	—	—	—	A	7.6	12.9	0.005	×	—	—	—	C	8.7	15.7	0.005	×
29	イソキサチオン	—	—	—	B-1	9.7	17.0	0.005	×	—	—	—	C	9.9	15.0	0.005	×
30	イソキサチオンオキシゾン								×								×
31	イソフエンホス	—	—	—	B-1	8.7	16.5	0.005	×	—	—	—	C	7.8	19.6	0.005	×
32	イソフエンホスオキシゾン	—	—	—	A	7.2	13.8	0.005	×								×
33	イソプロカルブ	—	—	—	A	4.4	9.0	0.005	×	—	—	—	C	7.9	14.4	0.005	×
34	イソプロチオサン	—	—	—	A	7.1	11.7	0.005	×	—	—	—	C	8.1	17.5	0.005	×
35	イブロジオン								×								×
36	イブロジオン代謝物	—	—	—	B-1	11.9	18.6	0.005	×								×
37	イブロベンホス	—	—	—	A	7.0	13.8	0.005	×								×
38	イマザメタベンズメチルエステル I								×								×
39	イマザメタベンズメチルエステル II								×								×
40	イマザリル	—	—	—	C	12.0	15.8	0.005	×	—	—	—	—	—	—	0.005	×
41	イミベンコナゾール	—	—	—	B-1	9.6	18.2	0.005	×								×
42	イミベンコナゾール脱ベンジル体	—	—	—	C	10.8	11.8	0.005	×	—	—	—	C	9.7	21.5	0.005	×
43	ウニコナゾール p	—	—	—	B-1	9.0	15.5	0.005	×								×
44	エスプロカルブ	—	—	—	B-1	8.8	16.6	0.005	×	—	—	—	C	6.8	14.1	0.005	×
45	エチオフェンカルブ								×	—	—	—	C	10.2	16.2	0.005	×
46	エチオン	—	—	—	B-1	10.4	18.0	0.005	×	—	—	—	C	7.1	18.5	0.005	×
47	エディフェンホス	—	—	—	B-1	7.5	16.1	0.005	×								×
48	エトキサゾール	—	—	—	B-1	9.6	17.4	0.005	×	—	—	—	C	7.2	31.9	0.005	×
49	エトフェンプロックス	—	—	—	C	10.9	20.8	0.005	×	—	—	—	C	9.4	28.0	0.005	×
50	エトフメセート								×	—	—	—	C	9.0	15.0	0.01	×
51	エトプロホス	—	—	—	A	5.2	10.0	0.005	×	—	—	—	C	8.2	15.6	0.005	×
52	エトリジアゾール	—	—	—	A	6.2	12.1	0.005	×	—	—	—	C	13.5	25.9	0.005	×
53	エンドスルファン (α)	—	—	—	B-1	9.9	18.0	0.005	×								×
54	エンドスルファン (β)	—	—	—	B-1	9.5	17.4	0.005	×								×
55	エンドリン	—	—	—	B-1	9.2	16.7	0.005	×								×

※空欄：選択性，定量限界がガイドラインの目標値に不適合なもの，検量線の測定点数不足により定量できないもの。

※A：真度 70%以上 120%以下，B-1：真度 50%以上 70%未満，B-2：真度 120%超過，C：真度 50%未満，—：選択性が目標値を満たさない，検量線の測定点数不足により定量不可，定量限界が基準値より高い，または真度が下限値未満となり真度を算出できないなどの理由から妥当性が確認できなかったもの。

なお，真度が—のものは，併行精度及び室内精度も—で示した。

※○：全ての項目でガイドラインの目標値に適合，×：いずれか 1 項目でもガイドラインの目標値に不適合。

表 3 妥当性評価試験（鶏肉及びはちみつ）（続き）

No.	化合物名	鶏肉							はちみつ								
		試料中濃度			試料中濃度			定量限界	評価	試料中濃度			試料中濃度			定量限界	評価
		0.01mg/kg			0.1mg/kg					0.01mg/kg			0.1mg/kg				
		真度	併行 精度	室内 精度	真度	併行 精度	室内 精度			真度	併行 精度	室内 精度	真度	併行 精度	室内 精度		
56	オキサジアゾン	—	—	—	B-1	9.4	16.9	0.005	×	—	—	—	C	7.9	14.0	0.005	×
57	オキサジキシル	—	—	—	B-1	10.8	9.8	0.005	×	—	—	—	C	10.4	23.5	0.005	×
58	カズサホス	—	—	—	A	6.7	12.3	0.005	×	—	—	—	C	7.0	15.9	0.005	×
59	カフエンストロール	—	—	—	B-1	7.2	14.1	0.005	×								×
60	カブタホル								×								×
61	カルバリル	—	—	—	A	6.8	11.0	0.005	×	—	—	—	C	9.8	12.9	0.005	×
62	カルソフェントラゾンエチル	—	—	—	B-1	9.1	15.9	0.005	×	—	—	—	C	7.8	22.7	0.005	×
63	カルボキシシ	—	—	—	A	20.8	19.7	0.005	×	—	—	—	C	6.6	14.8	0.005	×
64	カルボスルファン								×								×
65	カルボフラン	A	6.1	13.5	B-2	5.4	9.0	0.005	×	—	—	—	C	9.3	16.7	0.005	×
66	キナルホス	—	—	—	A	8.2	14.3	0.005	×	—	—	—	C	7.5	12.3	0.005	×
67	キノキシフェン	—	—	—	C	8.6	23.7	0.005	×	—	—	—	C	6.9	12.9	0.005	×
68	キノクラミン	—	—	—	B-1	7.8	9.6	0.005	×	—	—	—	C	9.2	16.8	0.005	×
69	キノメチオナート	—	—	—	C	7.4	30.3	0.005	×	—	—	—	C	9.7	17.1	0.005	×
70	キャブタン	—	—	—	—	—	—	0.005	×								×
71	キントゼン	—	—	—	B-1	8.6	17.2	0.005	×	—	—	—	C	8.1	11.4	0.005	×
72	クレンキシムメチル	—	—	—	A	8.8	15.8	0.005	×	—	—	—	C	7.1	20.0	0.005	×
73	クロマゾン	—	—	—	A	4.9	9.4	0.005	×	—	—	—	C	7.6	16.0	0.005	×
74	クロルタールジメチル	—	—	—	A	8.3	15.0	0.005	×	—	—	—	C	8.2	21.7	0.005	×
75	クロルピリホス	—	—	—	B-1	5.9	12.5	0.005	×								×
76	クロルピリホスメチル	—	—	—	B-1	9.2	17.6	0.005	×	—	—	—	C	8.4	20.7	0.005	×
77	クロルフェナビル	—	—	—	B-1	11.1	17.5	0.005	×								×
78	クロルフェンビンホス（a）（E）	—	—	—	A	8.1	15.5	0.005	×								×
79	クロルフェンビンホス（g）（Z）	—	—	—	A	7.9	15.2	0.005	×								×
80	クロルプロファミ	—	—	—	A	6.4	12.7	0.005	×	—	—	—	C	6.8	14.1	0.005	×
81	クロロベンジレート	—	—	—	B-1	8.6	16.1	0.005	×	—	—	—	C	7.2	18.1	0.005	×
82	シアナジン	—	—	—	A	6.7	8.7	0.005	×	—	—	—	C	10.5	20.6	0.005	×
83	シアノホス	—	—	—	A	5.4	10.6	0.005	×	—	—	—	C	7.3	16.3	0.005	×
84	ジエトフェンカルブ	—	—	—	A	6.7	12.3	0.005	×	—	—	—	C	5.7	22.8	0.005	×
85	ジクロシメット 1	—	—	—	B-1	8.1	15.4	0.005	×	—	—	—	C	10.4	18.4	0.005	×
86	ジクロシメット 11	—	—	—	A	8.5	14.8	0.005	×	—	—	—	C	9.0	21.3	0.005	×
87	ジクロフェンチオン	—	—	—	B-1	8.8	16.4	0.005	×	—	—	—	C	8.0	19.2	0.005	×
88	ジクロフルアニド	—	—	—	—	—	—	0.005	×	—	—	—	C	13.5	21.5	0.005	×
89	ジクロホップメチル	—	—	—	B-1	9.4	17.2	0.005	×	—	—	—	C	6.4	17.5	0.005	×
90	ジクロラン	—	—	—	A	6.0	10.7	0.005	×	—	—	—	C	6.5	12.9	0.005	×
91	ジクロルホス	—	—	—	A	4.2	8.9	0.005	×	—	—	—	C	12.5	26.2	0.005	×
92	シハロトリン（γ）	—	—	—	C	11.6	20.7	0.005	×								×
93	シハロトリン（λ）	—	—	—	C	11.9	21.4	0.005	×								×
94	シハロホップグチル	—	—	—	B-1	9.5	17.6	0.005	×								×
95	ジフェナミド	—	—	—	A	6.1	11.2	0.005	×	—	—	—	C	7.9	14.1	0.005	×
96	ジフェニルアミン	—	—	—	A	6.0	11.5	0.005	×								×
97	ジフェノコナゾール 1	—	—	—	B-1	9.3	16.4	0.005	×								×
98	ジフェノコナゾール 11	—	—	—	B-1	9.3	16.5	0.005	×								×
99	シフルトリン I	—	—	—	C	11.6	21.9	0.005	×	—	—	—	C	10.8	25.5	0.01	×
100	シフルトリン 11	—	—	—	C	11.2	21.4	0.005	×								×
101	シフルトリン 111								×								×
102	シフルトリン IV	—	—	—	C	11.3	21.0	0.005	×								×
103	ジフルフェニカン	—	—	—	B-1	9.8	17.5	0.005	×	—	—	—	C	8.7	25.4	0.005	×
104	シプロコナゾール 1								×								×
105	シプロコナゾール 11								×	—	—	—	C	12.9	27.2	0.005	×
106	シベルメトリン I	—	—	—	C	11.0	21.7	0.005	×								×
107	シベルメトリン 11	—	—	—	C	12.2	22.1	0.005	×								×
108	シベルメトリン 111	—	—	—	C	11.2	20.5	0.01	×								×
109	シベルメトリン IV	—	—	—	C	12.4	23.8	0.01	×								×
110	シメジン	—	—	—	A	7.7	11.5	0.005	×								×
111	ジメタメトリン	—	—	—	B-1	8.7	15.4	0.005	×	—	—	—	C	7.4	16.2	0.005	×
112	ジメチピン	B-1	6.6	11.3	A	2.9	7.5	0.005	×	—	—	—	C	10.5	13.9	0.005	×
113	ジメチルビンホス（E）	—	—	—	A	7.6	15.3	0.005	×	—	—	—	C	7.3	14.7	0.005	×
114	ジメチルビンホス（Z）	—	—	—	A	7.1	14.3	0.005	×	—	—	—	C	8.1	18.0	0.005	×
115	ジメテナミド	—	—	—	A	5.7	10.9	0.005	×	—	—	—	C	7.2	13.8	0.005	×
116	ジメトエート	—	—	—	B-1	10.2	10.0	0.005	×	—	—	—	C	11.5	15.6	0.005	×
117	ジメトモルフ（E）	—	—	—	B-1	10.9	15.5	0.005	×								×
118	ジメトモルフ（Z）	—	—	—	B-1	9.1	14.2	0.005	×								×
119	シメトリン	—	—	—	A	5.8	11.2	0.005	×	—	—	—	C	8.6	14.4	0.005	×
120	ジメビベレート	—	—	—	A	8.3	15.5	0.005	×	—	—	—	C	7.3	16.1	0.005	×
121	シラフルオフェン	—	—	—	C	10.9	21.2	0.005	×	—	—	—	C	8.2	28.7	0.005	×
122	ターパシル	—	—	—	B-1	11.2	11.5	0.005	×	—	—	—	C	10.4	26.4	0.005	×
123	ダイアジノン	—	—	—	B-1	7.6	14.1	0.005	×	—	—	—	C	9.7	16.8	0.005	×
124	チアベンダゾール	—	—	—	C	16.7	16.9	0.005	×	—	—	—	—	—	—	0.005	×
125	チオベンカルブ	—	—	—	A	9.2	15.9	0.005	×	—	—	—	C	9.2	16.0	0.005	×
126	チオメトン	—	—	—	A	6.0	11.1	0.005	×	—	—	—	C	9.8	14.0	0.005	×
127	チフルザミド	—	—	—	B-1	9.4	16.4	0.005	×	—	—	—	C	9.0	24.2	0.005	×
128	ディルドリン								×	—	—	—	C	8.9	15.1	0.005	×
129	ラクナゼン	—	—	—	B-1	7.1	13.8	0.005	×	—	—	—	C	14.3	27.2	0.005	×
130	テトラクロルビンホス	—	—	—	B-1	7.8	16.0	0.005	×	—	—	—	C	7.8	17.1	0.005	×

表 3 妥当性評価試験（鶏肉及びはちみつ）（続き）

No.	化合物名	鶏肉								はちみつ							
		試料中濃度			試料中濃度			定量限界	評価	試料中濃度			試料中濃度			定量限界	評価
		真度	併行 精度	室内 精度	真度	併行 精度	室内 精度			真度	併行 精度	室内 精度	真度	併行 精度	室内 精度		
131	テトラジホン	—	—	—	B-1	9.0	17.1	0.005	×	—	—	—	C	11.2	17.4	0.005	×
132	デニルクロール	—	—	—	B-1	8.4	15.4	0.005	×	—	—	—	C	7.8	33.3	0.005	×
133	ケブコナゾール	—	—	—	B-1	8.6	15.0	0.005	×	—	—	—	—	—	—	—	×
134	テブフェンピラド	—	—	—	B-1	9.0	17.1	0.005	×	—	—	—	C	7.8	23.4	0.01	×
135	テフルトリン	—	—	—	—	—	—	—	×	—	—	—	—	—	—	—	×
136	デルタメトリン	—	—	—	C	11.3	23.0	0.005	×	—	—	—	—	—	—	—	×
137	ケルブトリン	—	—	—	A	8.3	15.0	0.005	×	—	—	—	C	7.8	15.2	0.005	×
138	テルブホス	—	—	—	B-1	8.0	15.4	0.005	×	—	—	—	C	8.0	13.4	0.005	×
139	トリアジメノール I	—	—	—	A	8.3	14.2	0.005	×	—	—	—	—	—	—	—	×
140	トリアジメノール II	—	—	—	—	—	—	—	×	—	—	—	—	—	—	—	×
141	トリアジメホス	—	—	—	A	6.7	12.6	0.005	×	—	—	—	C	8.0	15.6	0.005	×
142	トリアゾホス	—	—	—	A	7.6	13.8	0.005	×	—	—	—	C	12.5	18.4	0.005	×
143	トリアレート	—	—	—	B-1	8.5	16.2	0.005	×	—	—	—	C	8.7	16.5	0.005	×
144	トリシクラゾール	—	—	—	—	—	—	0.005	×	—	—	—	—	—	—	0.005	×
145	トリブホス	—	—	—	B-1	9.5	16.0	0.005	×	—	—	—	C	8.5	27.5	0.005	×
146	トリフルミゾール	—	—	—	B-1	8.0	17.7	0.005	×	—	—	—	—	—	—	—	×
147	トリフルラリン	—	—	—	C	8.4	16.9	0.005	×	—	—	—	C	8.3	12.1	0.005	×
148	トリプロキシストロビン	—	—	—	B-1	10.2	17.5	0.005	×	—	—	—	C	9.2	24.7	0.005	×
149	トルクロホスメチル	—	—	—	B-1	7.5	14.8	0.005	×	—	—	—	C	7.4	18.1	0.005	×
150	トルフェンピラド	—	—	—	B-1	6.4	12.4	0.005	×	—	—	—	—	—	—	—	×
151	ナゾロバミド	—	—	—	A	5.2	9.2	0.005	×	—	—	—	C	9.8	24.0	0.005	×
152	ニトロタールイソプロピル	—	—	—	B-1	8.7	16.2	0.005	×	—	—	—	C	8.0	16.1	0.005	×
153	ノルフルラゾン	—	—	—	C	11.6	12.3	0.005	×	—	—	—	C	10.0	20.9	0.005	×
154	バクプロトラゾール	—	—	—	A	7.7	14.7	0.005	×	—	—	—	—	—	—	—	×
155	バクチオン	—	—	—	A	7.6	15.4	0.005	×	—	—	—	C	9.4	15.1	0.005	×
156	バクチオンメチル	—	—	—	A	5.6	12.3	0.005	×	—	—	—	C	6.7	11.9	0.005	×
157	ハルフェンプロックス	—	—	—	C	11.5	21.7	0.005	×	—	—	—	—	—	—	—	×
158	ピテルタノール I	—	—	—	B-1	9.8	16.4	0.005	×	—	—	—	—	—	—	—	×
159	ピテルタノール II	—	—	—	—	—	—	—	×	—	—	—	—	—	—	—	×
160	ピフェノックス	—	—	—	B-1	9.8	16.2	0.005	×	—	—	—	—	—	—	—	×
161	ピフェントリン	—	—	—	C	10.1	19.0	0.005	×	—	—	—	C	7.5	18.5	0.005	×
162	ピペロホス	—	—	—	B-1	8.9	15.7	0.005	×	—	—	—	—	—	—	—	×
163	ピラクロホス	—	—	—	B-1	8.7	17.1	0.005	×	—	—	—	—	—	—	—	×
164	ピジジキシフェン	—	—	—	—	—	—	—	×	—	—	—	—	—	—	—	×
165	ピラゾホス	—	—	—	B-1	9.5	17.0	0.005	×	—	—	—	—	—	—	—	×
166	ピラフルフェンエチル	—	—	—	B-1	9.3	17.5	0.005	×	—	—	—	—	—	—	—	×
167	ピリダフェンチオン	—	—	—	A	8.5	14.2	0.005	×	—	—	—	—	—	—	—	×
168	ピリダベン	—	—	—	B-1	9.6	17.9	0.005	×	—	—	—	—	—	—	—	×
169	ピリフェノックス (E)	—	—	—	A	6.9	14.0	0.005	×	—	—	—	C	11.1	19.1	0.005	×
170	ピリフェノックス (Z)	—	—	—	A	7.4	13.5	0.005	×	—	—	—	C	8.0	15.0	0.005	×
171	ピリブチカルブ	—	—	—	B-1	9.5	17.6	0.005	×	—	—	—	C	9.5	22.6	0.005	×
172	ピリジロキシフェン	—	—	—	B-1	10.1	18.8	0.005	×	—	—	—	—	—	—	—	×
173	ピリミカブ	B-1	6.7	12.7	A	4.2	8.6	0.005	×	—	—	—	C	12.4	18.0	0.005	×
174	ピリミジフェン	—	—	—	B-1	8.8	16.2	0.005	×	—	—	—	—	—	—	—	×
175	ピリミノバクメチル (E)	—	—	—	A	7.2	12.9	0.005	×	—	—	—	C	9.8	30.7	0.005	×
176	ピリミノバクメチル (Z)	—	—	—	A	5.8	10.7	0.005	×	—	—	—	C	10.2	27.5	0.005	×
177	ピリミホスメチル	—	—	—	B-1	8.6	16.4	0.005	×	—	—	—	C	7.8	15.3	0.005	×
178	ピリメタニル	—	—	—	A	6.9	12.8	0.005	×	—	—	—	C	8.3	21.9	0.005	×
179	ピロキロン	—	—	—	A	6.6	8.8	0.005	×	—	—	—	C	11.3	17.1	0.005	×
180	ピンクログリン	—	—	—	A	8.0	15.1	0.005	×	—	—	—	C	12.1	19.9	0.005	×
181	ファモキサドン	—	—	—	B-1	9.6	19.0	0.005	×	—	—	—	—	—	—	—	×
182	フィプロニル	—	—	—	B-1	9.3	17.4	0.005	×	—	—	—	—	—	—	—	×
183	フェナミホス	—	—	—	A	6.0	11.1	0.005	×	—	—	—	—	—	—	—	×
184	フェナリモル	—	—	—	B-1	8.9	15.3	0.005	×	—	—	—	—	—	—	—	×
185	フェニトロチオン	—	—	—	A	6.6	12.6	0.005	×	—	—	—	C	8.6	13.6	0.005	×
186	フェノキサニル	—	—	—	A	7.5	14.2	0.005	×	—	—	—	—	—	—	—	×
187	フェノキサプロップエチル	—	—	—	B-1	9.9	18.6	0.005	×	—	—	—	C	7.4	32.7	0.005	×
188	フェノチオカルブ	—	—	—	A	7.3	13.3	0.005	×	—	—	—	C	7.0	16.8	0.005	×
189	フェノトリン I	—	—	—	—	—	—	—	×	—	—	—	—	—	—	—	×
190	フェノトリン II	—	—	—	C	11.1	20.3	0.005	×	—	—	—	—	—	—	—	×
191	フェノブカルブ	—	—	—	A	5.6	10.3	0.005	×	—	—	—	C	8.2	15.1	0.005	×
192	フェンシルホチオン	—	—	—	A	7.1	12.0	0.005	×	—	—	—	—	—	—	—	×
193	フェンチオン	—	—	—	A	7.9	15.1	0.005	×	—	—	—	C	7.9	15.9	0.005	×
194	フェントエート	—	—	—	B-1	12.9	19.8	0.005	×	—	—	—	C	7.2	13.6	0.005	×
195	フェンバレレート I	—	—	—	C	11.1	21.3	0.005	×	—	—	—	—	—	—	—	×
196	フェンバレレート II	—	—	—	C	11.8	21.4	0.005	×	—	—	—	—	—	—	—	×
197	フェンブコナゾール	—	—	—	B-1	8.4	14.8	0.005	×	—	—	—	—	—	—	—	×
198	フェンプロバトリン	—	—	—	C	9.7	18.1	0.005	×	—	—	—	—	—	—	—	×
199	フェンプロピモルフ	—	—	—	A	7.5	14.4	0.005	×	—	—	—	C	8.1	13.8	0.005	×
200	フサライド	—	—	—	A	6.9	14.3	0.005	×	—	—	—	C	8.1	18.2	0.005	×
201	ブタクロール	—	—	—	B-1	8.6	18.2	0.005	×	—	—	—	—	—	—	—	×
202	ブタミホス	—	—	—	B-1	8.0	15.9	0.005	×	—	—	—	—	—	—	—	×
203	ブチレート	—	—	—	B-1	5.8	11.8	0.005	×	—	—	—	C	15.0	25.3	0.005	×
204	ブリメート	—	—	—	B-1	8.2	16.1	0.005	×	—	—	—	C	12.4	24.6	0.005	×
205	ブプロフェジン	—	—	—	B-1	8.5	17.4	0.005	×	—	—	—	C	8.7	17.3	0.005	×

表 3 妥当性評価試験（鶏肉及びはちみつ）（続き）

No.	化合物名	鶏肉							はちみつ								
		試料中濃度 0.01mg/kg			試料中濃度 0.1mg/kg			定量限界	評価	試料中濃度 0.01mg/kg			試料中濃度 0.1mg/kg			定量限界	評価
		真度	併行 精度	室内 精度	真度	併行 精度	室内 精度			真度	併行 精度	室内 精度	真度	併行 精度	室内 精度		
206	フラチオカルブ	—	—	—	—	—	—	0.005	×								×
207	フラムブロッブメチル	—	—	—	A	7.2	12.8	0.005	×	—	—	—	C	5.5	17.1	0.005	×
208	フルアクリピリム	—	—	—	B-1	8.8	16.9	0.005	×								×
209	フルジオキシニル	—	—	—	C	13.3	15.5	0.005	×	—	—	—	C	14.6	18.0	0.005	×
210	フルシトリネート I	—	—	—	C	11.8	21.7	0.005	×								×
211	フルシトリネート II	—	—	—	C	11.5	21.9	0.005	×								×
212	フルシラゾール	—	—	—	A	7.9	14.0	0.005	×	—	—	—	C	8.2	18.2	0.005	×
213	フルトラニル	—	—	—	A	7.8	8.4	0.005	×	—	—	—	C	6.8	22.8	0.005	×
214	フルトリアホル								×	—	—	—	C	9.2	20.8	0.005	×
215	フルバリネート-1au-I	—	—	—	C	11.6	22.8	0.005	×								×
216	フルバリネート-1au-II	—	—	—	C	11.4	21.9	0.005	×								×
217	フルミオキサジン	—	—	—	B-1	7.4	19.2	0.005	×								×
218	フルミクロラックベンチル	—	—	—	C	10.0	21.7	0.005	×								×
219	プレチラクロール	—	—	—	B-1	7.8	15.4	0.005	×	—	—	—	C	8.1	22.8	0.005	×
220	プロクロラズ	—	—	—	B-1	8.2	15.7	0.005	×								×
221	プロシミドン	—	—	—	A	7.3	13.9	0.005	×	—	—	—	C	8.2	20.2	0.005	×
222	プロチオホス	—	—	—	B-1	5.8	12.4	0.005	×	—	—	—	C	6.4	12.4	0.005	×
223	プロバクロー	—	—	—	C	5.3	26.4	0.005	×				C	8.1	12.6	0.005	×
224	プロバニル	—	—	—	C	11.8	13.0	0.005	×	—	—	—	C	9.4	14.3	0.005	×
225	プロバルギット	—	—	—	B-1	10.4	19.0	0.005	×								×
226	プロピコナゾール I	—	—	—	A	9.7	15.0	0.005	×	—	—	—	C	7.4	22.1	0.005	×
227	プロピコナゾール II	—	—	—	A	7.5	14.0	0.005	×	—	—	—	C	9.0	24.8	0.005	×
228	プロピザミド	—	—	—	A	6.7	12.5	0.005	×	—	—	—	C	7.7	13.8	0.005	×
229	プロファミ								×								×
230	プロフェノホス	—	—	—	A	5.8	10.8	0.005	×	—	—	—	C	10.9	22.2	0.005	×
231	プロベナゾール								×								×
232	プロギキシル	B-1	6.4	11.3	A	4.0	8.0	0.005	×	—	—	—	C	8.8	13.3	0.005	×
233	プロマシル								×	—	—	—	C	11.9	23.0	0.005	×
234	プロメトリン	—	—	—	A	8.2	15.3	0.005	×	—	—	—	C	8.4	13.7	0.005	×
235	プロモブチド	—	—	—	A	8.3	14.5	0.005	×								×
236	プロモブチド脱プロモ体	—	—	—	A	6.5	11.4	0.005	×	—	—	—	C	8.6	12.9	0.005	×
237	プロモプロピレート	—	—	—	B-1	10.0	17.2	0.005	×				C	7.0	23.7	0.005	×
238	ヘキサクロロベンゼン	—	—	—	B-1	7.8	14.7	0.005	×	—	—	—	C	11.8	20.4	0.005	×
239	ヘキサコナゾール	—	—	—	A	16.6	37.0	0.005	×	—	—	—	C	8.3	20.5	0.005	×
240	ヘキサジノン	—	—	—	C	10.5	9.3	0.005	×				C	13.1	33.6	0.005	×
241	ベナラキシル	—	—	—	A	7.6	14.0	0.005	×	—	—	—	C	10.7	27.6	0.005	×
242	ベノキサロール	—	—	—	A	6.1	11.1	0.005	×	—	—	—	C	7.8	16.5	0.005	×
243	ヘプタクロ	—	—	—	B-1	8.5	16.2	0.005	×	—	—	—	C	8.5	10.6	0.005	×
244	ベルメトリン (cis)	—	—	—	C	11.7	20.6	0.005	×								×
245	ベルメトリン (trans)	—	—	—	C	11.9	20.7	0.005	×								×
246	ベンコナゾール	—	—	—	A	7.8	14.5	0.005	×	—	—	—	C	7.7	14.7	0.005	×
247	ベンダイオカルブ	—	—	—	A	4.6	9.1	0.005	×	—	—	—	C	9.0	14.2	0.005	×
248	ベンディメタリン	—	—	—	B-1	9.3	17.8	0.005	×								×
249	ベンフラカルブ								×								×
250	ベンフルラリン	—	—	—	C	8.4	16.9	0.005	×	—	—	—	C	8.0	11.9	0.005	×
251	ベンフレセート	—	—	—	A	5.5	10.1	0.005	×	—	—	—	C	7.8	18.4	0.005	×
252	ホサロン	—	—	—	B-1	9.5	17.8	0.005	×								×
253	ホスカリド	—	—	—	B-1	8.1	14.5	0.005	×	—	—	—	C	10.0	25.5	0.005	×
254	ホスチアゼート I	—	—	—	A	4.8	9.2	0.005	×								×
255	ホスチアゼート II	B-1	6.1	9.7	A	4.7	10.2	0.005	×								×
256	ホスファミドン I	—	—	—	A	4.3	9.4	0.005	×								×
257	ホスファミドン II	B-1	7.6	11.0	A	4.7	10.3	0.005	×								×
258	ホスメット	—	—	—	A	6.7	13.3	0.005	×								×
259	ホレート	—	—	—	A	7.3	14.0	0.005	×	—	—	—	C	9.5	12.7	0.005	×
260	マウチオン	—	—	—	A	6.0	11.4	0.005	×	—	—	—	C	7.5	20.5	0.005	×
261	ミクロブタニル	—	—	—	A	7.6	13.3	0.005	×				C	8.2	18.6	0.005	×
262	メタクリホス	—	—	—	A	5.0	9.0	0.005	×	—	—	—	C	12.4	12.7	0.005	×
263	メタミドホス								×								×
264	メタラキシル	B-1	7.1	11.4	A	5.0	9.1	0.005	×	—	—	—	C	9.1	19.5	0.005	×
265	メチオカルブ								×								×
266	メチダチオン	—	—	—	A	5.8	10.9	0.005	×								×
267	メトキシクロール	—	—	—	B-1	10.2	18.6	0.005	×	—	—	—	C	8.4	15.8	0.005	×
268	メトブレン I								×								×
269	メトブレン II	—	—	—	B-1	10.5	17.7	0.005	×								×
270	メトミノストロピン (E)	—	—	—	A	5.5	10.8	0.005	×	—	—	—	C	9.2	20.5	0.005	×
271	メトミノストロピン (Z)	—	—	—	A	6.3	10.7	0.005	×	—	—	—	C	7.5	19.0	0.005	×
272	メトラクロール	—	—	—	A	6.1	11.3	0.005	×	—	—	—	C	7.7	16.0	0.005	×
273	メトリブジン	B-1	9.9	14.5	A	4.5	8.8	0.005	×	—	—	—	C	9.6	16.6	0.005	×
274	メビンホス	B-1	4.4	8.3	A	3.0	6.3	0.005	×	—	—	—	C	10.3	16.7	0.005	×
275	メフェナセート	—	—	—	A	7.3	13.8	0.005	×								×
276	メフロニル	—	—	—	A	8.1	14.9	0.005	×								×
277	モノクロトホス	—	—	—	C	4.3	7.8	0.005	×								×
278	レナシル	—	—	—	C	10.3	10.4	0.005	×	—	—	—	C	14.9	30.2	0.005	×

5) 農産物及びミネラルウォーター類中の残留農薬検査結果 (2016 年度～2023 年度)

田村香菜 島 絵里子 門田健太郎
青木 愛 今辻麻美

はじめに

当所では、県内に流通している食品等の安全性を確保するため、熊本県食品衛生監視指導計画¹⁾に基づき、継続的に農産物等の残留農薬検査を実施している。

ポジティブリスト制度が施行された 2006 年度以降、独自に開発した一斉分析法²⁻¹⁵⁾を用いてスクリーニング検査を実施しており、2006 年度から 2015 年度までの検査結果については前回報告¹⁶⁾を行った。本稿では、その後の農産物等の残留農薬の検出状況等を把握するため、2016 年度から 2023 年度までの 8 年間の調査結果をまとめたので報告する。

調査方法

1. 検査対象食品等

県内に流通していた農産物及びミネラルウォーター類の 39 種（延べ 410 検体）について、2016 年 4 月から 2024 年 3 月までの 8 年間にわたり検査を実施した。年間の検体数推移を図 1 に示す。年間の検体数は 2016 年度から 2018 年度の平均で年間 101 検体に対し、2019 年度から 2023 年度の平均は年間 21 検体であった。2019 年度以降の検体数の減少は、新型コロナウイルス感染症の影響等により事業を縮小したためである。

農産物の分類表記は、厚生労働省において農薬等の残留基準値を設定する際に使用される表記に従った。

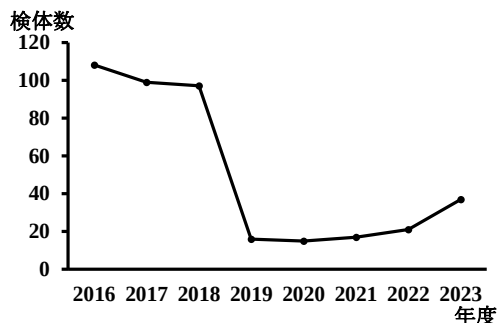


図 1 年間検体数推移

2. 検査対象農薬

検査対象農薬は年度により異なるが、本稿では検査回

数に関わらず検査を実施した全ての農薬延べ 479 項目を集計等の対象とした（表 1）。1 検体あたりの平均検査項目数は 368 項目であり、8 年間の全ての検体の延べ検査項目数は 150,893 項目であった。農薬の分類について、殺ダニ剤は殺虫剤として分類表記した。

3. 検査方法

農産物の場合、超臨界流体抽出（SFE）及びガスクロマトグラフィータンデム型質量分析計（GC/MS/MS）による一斉分析法（SFE-GC/MS/MS 法）¹⁵⁾並びに含水アセトニトリル抽出と液体クロマトグラフィータンデム型質量分析計（LC/MS/MS）による一斉分析法（溶媒抽出-LC/MS/MS 法）⁹⁾により測定を行った。なお、2016 年 4 月から 12 月の期間は、平成 28 年熊本地震による装置故障のため、SFE-GC/MS/MS 法による農産物の検査は実施せず、溶媒抽出-LC/MS/MS 法のみ実施した。

ミネラルウォーター類の場合、固相抽出及び GC/MS/MS による一斉分析法（固相抽出-GC/MS/MS 法）並びに LC/MS/MS による一斉分析法（LC/MS/MS 法）¹²⁾により測定を行った。なお、2016 年 4 月から 7 月の期間のみ GC/MS/MS ではなく GC/MS により測定を行った。

各一斉分析法の試験溶液の調製は、既報^{9,12,15)}に準じて実施した。検査毎に添加回収試験を行い、回収率が 70%～120%の項目のみを検査結果とした。また、各一斉分析法の結果、基準値超過疑いの場合には、「食品に残留する農薬、飼料添加物又は動物用医薬品の成分である物質の試験法について」（平成 17 年 1 月 24 日付け食安発第 0124001 号）に基づいて分析を実施した。

4. 測定機器

4. 1 GC/MS 又は GC/MS/MS

2016 年 4 月～7 月（ミネラルウォーターのみ測定）

GC:7890A（Agilent 製）、MS:5975C（Agilent 製）

2017 年 2 月～2023 年 12 月

GC:7890B（Agilent 製）、MS/MS:7010B（Agilent 製）

2024 年 1 月～2024 年 3 月

GC:8890GC（Agilent 製）、MS/MS:7010C（Agilent 製）

表 1 検査対象農薬

No.	農薬等名	No.	農薬等名	No.	農薬等名	No.	農薬等名	No.	農薬等名
1	1-ナフタレン酢酸	51	イソプロカルブ	101	カルプロバミド	151	ジエトフェンカルブ	201	シモキサニル
2	2, 4-D	52	イソプロチオラン	102	カルベタミド	152	シエノビラフェン	202	シラフルオフェン
3	4-クロロフェノキシ酢酸	53	イソプロパリン	103	カルベンダジム, チオファネート, チオファネートメチル及びベノミル	153	ジオキサカルブ	203	シンメチリン
4	BHC	54	イナベンフィド	104	カルボスルファン	154	ジオキサチオン	204	スピノサド
5	c i s-メトコナゾール	55	イプロジオン	105	カルボフラン	155	ジオキサベンゾホス	205	スピロキサミン
6	DBEDC	56	イプロバリカルブ	106	キナルホス	156	シクロニリド	206	スピロジクロフェン
7	DDT	57	イプロベンホス	107	キノキシフェン	157	シクロエート	207	スピロメシフェン
8	EPN	58	イマザキン	108	キノクラミン	158	シクロキシジム	208	スルフェントラゾン
9	EPTC	59	イマザメタベンズメチルエステル	109	キノメチオナート	159	ジクロシメット	209	スルプロホス
10	MCPA	60	イマザモックスアモンモニウム塩	110	キャプタン	160	ジクロスラム	210	スルホスルフロ
11	MCPB	61	イマザリル	111	キントゼン	161	シクロスルファミロン	211	セクブメトン
12	MPMC	62	イマゾスルフロ	112	クミルロン	162	ジクロフェンチオン	212	ゾキサミド
13	s w e p	63	イミシアホス	113	クレソキシムメチル	163	ジクロフルアニド	213	ターバシル
14	TCMTB	64	イミダクロプリド	114	クロキントセットメキシル	164	シクロプロトリン	214	ダイアジノン
15	XMC	65	イミベンコナゾール	115	クロジナホッププロパルギル	165	ジクロベニル	215	ダイアレート
16	γ-BHC	66	インダノファン	116	クロジナホップ酸	166	ジクロホップメチル	216	ダイムロン
17	アイオキシニル	67	インドキサカルブ	117	クロチアニジン	167	ジクロラン	217	チアクロプリド
18	アクリナトリン	68	エスプロカルブ	118	クロピラリド	168	ジクロルブロッ	218	チアジニル
19	アザコナゾール	69	エタメツルフロメチル	119	クロフェンセット	169	ジクロルボス及びナレド	219	チアゾビル
20	アザメチホス	70	エチオフェンカルブ	120	クロフェンテジン	170	ジコホール	220	チアベンダゾール
21	アシフルオルフェン	71	エチオン	121	クロブロッ	171	ジチオビル	221	チアメトキサム
22	アシベンゾラル-S-メチル	72	エチブロー	122	クロマゾン	172	シノスルフロ	222	チオジカルブ及びメソミル
23	アジムスルフロ	73	エディフェンホス	123	クロマフェノジド	173	ジノテフラン	223	チオベンカルブ
24	アシュラム	74	エトキサゾール	124	クロメトキシニル	174	シハロトリン	224	チオメトン
25	アジンホスエチル	75	エトキシスルフロ	125	クロメブロッ	175	シハロホップブチル	225	チジアズロン
26	アジンホスメチル	76	エトフェンブロッ	126	クロランスラムメチル	176	ジフェナミド	226	チフェンスルフロメチル
27	アセタミプリド	77	エトフメセート	127	クロラントラニリブロー	177	ジフェニル	227	チフルザミド
28	アセトクロール	78	エトプロホス	128	クロリダゾン	178	ジフェニルアミン	228	テクナゼン
29	アセフェート	79	エトベンザニド	129	クロリムロンエチル	179	ジフェノコナゾール	229	デスメディファム
30	アゾキシストロビン	80	エトリジアゾール	130	クロルスルフロ	180	ジフェンゾート	230	デスメトリン
31	アトラジン	81	エトリムホス	131	クロルタールジメチル	181	シフルトリン	231	テトラクロルビンホス
32	アニラジン	82	エボキシコナゾール	132	クロルニトロフェン	182	シフルフェナミド	232	テトラコナゾール
33	アニロホス	83	エマメクチン安息香酸塩	133	クロルピリホス	183	ジフルフェニカン	233	テトラジホ
34	アミスルフロ	84	エンドスルファン	134	クロルピリホスメチル	184	ジフルベンズロン	234	テトラメトリン
35	アミノカルブ	85	エンドリン	135	クロルフェナビル	185	シフルメトフェン	235	テニルクロール
36	アメトリン	86	オキサジアゾン	136	クロルフェンビンホス	186	シプロコナゾール	236	テブコナゾール
37	アラクロール	87	オキサジキシル	137	クロルブファム	187	シプロジニル	237	テブチウロン
38	アラニカルブ	88	オキサジクロメホ	138	クロルフルアズロン	188	シペルメトリン	238	テブフェノジド
39	アラマイト	89	オキサミル	139	クロルプロファム	189	ジベレリン	239	テブフェンピラド
40	アルジカルブ及びアルドキシカルブ	90	オキシカルボキシ	140	クロルメコート	190	シマジ	240	テブラロキシジム
41	アルドリン及びディルドリン	91	オキシフルオルフェン	141	クロロクロ	191	シメコナゾール	241	テフルトリン
42	アレスリン	92	オキシボコナゾールフマル酸塩	142	クロロタロニル	192	ジメタメトリン	242	テフルベンズロン
43	イオドスルフロメチル	93	オリサストロビン	143	クロロネブ	193	ジメチビン	243	デメトン-S-メチル
44	イサゾホス	94	オリザリン	144	クロロベンジレート	194	ジメチリモール	244	デルタメトリン及びトラロメトリン
45	イソウロン	95	オルトフェニルフェノール	145	サイネピリン	195	ジメチルビンホス	245	テルブカルブ
46	イソカルボホス	96	カズサホス	146	シアゾファミド	196	ジメテナミド	246	テルブトリン
47	イソキサジフェンエチル	97	カフェンストロー	147	シアナジン	197	ジメトエート	247	テルブホス
48	イソキサチオン	98	カブタホール	148	シアノフェンホス	198	ジメトモルフ	248	テルブメトン
49	イソキサフルトール	99	カルバリル	149	シアノホス	199	シメトリン	249	トラルコキシジム
50	イソフェンホス	100	カルフェントラゾンエチル	150	ジウロン	200	ジメビペレート	250	トリアジメノール

表 1 検査対象農薬（続き）

No.	農薬等名	No.	農薬等名	No.	農薬等名	No.	農薬等名	No.	農薬等名
251	トリアジメホン	301	ビラフルフェンエチル	351	フラザスルフロ	401	プロモキシニル	451	メタミトロン
252	トリアスルフロ	302	ビリダフェンチオン	352	フラチオカルブ	402	プロモブチド	452	メチオカルブ
253	トリアゾホス	303	ビリダベン	353	フラムブロップメチル	403	プロモプロビレート	453	メチダチオン
254	トリアレート	304	ビリダリル	354	フラメトビル	404	プロモホス	454	メチルダイムロン
255	トリクラミド	305	ビリチオバックナトリウム塩	355	ブリミスルフロメチル	405	プロモホスエチル	455	メトキシクロール
256	トリクロビル	306	ビリフェノックス	356	フリラゾール	406	フロラスラム	456	メトキシフェノジド
257	トリクロルホン	307	ビリフタリド	357	フルアクリリウム	407	ヘキサクロロベンゼン	457	メトコナゾール
258	トリシクラゾール	308	ビリブチカルブ	358	フルアジナム	408	ヘキサコナゾール	458	メトスラム
259	トリチコナゾール	309	ビリフルキナゾン	359	フルオメツロン	409	ヘキサジノン	459	メトスルフロメチル
260	トリデモルフ	310	ビリブロキシフェン	360	フルキンコナゾール	410	ヘキサフルムロン	460	メトブレン
261	トリブホス	311	ビリミカーブ	361	フルジオキシニル	411	ヘキシチアゾクス	461	メトプロトリン
262	トリフルスルフロメチル	312	ビリミジフェン	362	フルシトリネート	412	ペナラキシル	462	メトミノストロビン
263	トリフルミゾール	313	ビリミノバックメチル	363	フルシラゾール	413	ペノキサコール	463	メトラクロール
264	トリフルムロン	314	ビリミホスメチル	364	フルスルファミド	414	ヘプタクロル	464	メトリブジン
265	トリフルラリン	315	ビリメタニル	365	フルチアセットメチル	415	ベルメトリン	465	メトルカルブ
266	トリフロキシストロビン	316	ビレトリン	366	フルトラニル	416	ベンコナゾール	466	メビコートクロリド
267	トリフロキシスルフロ	317	ピロキロン	367	フルトリアール	417	ベンシクロン	467	メビンホス
268	トリメタカルブ	318	ピンクロズリン	368	フルバリネート	418	ベンスルフロメチル	468	メフェナセット
269	トルクロホスメチル	319	ファミキサドン	369	フルフェナセット	419	ベンゾビシクロン	469	メフェンビルジェチル
270	トルフェンビラド	320	フィプロニル	370	フルフェノクスロン	420	ベンゾフェナップ	470	メブロニル
271	ナブタラム	321	フェナミホス	371	フルフェンビルエチル	421	ベンダイオカルブ	471	モノクロトホス
272	ナブアロニド	322	フェナリモル	372	フルベンジアミド	422	ベンチアバリカルブイソプロビル	472	モノリニユロン
273	ナブプロバミド	323	フェニトロチオン	373	フルミオキサジン	423	ベンチオビラド	473	モリネート
274	ニコスルフロ	324	フェノキサニル	374	フルミクロラックベンチル	424	ベンディメタリン	474	ラクトフェン
275	ニトラリン	325	フェノキサブロップエチル	375	フルメツラム	425	ベントキサゾン	475	リニユロン
276	ニトロタールイソプロビル	326	フェノキシカルブ	376	フルリドン	426	ベンフアラカルブ	476	リムスルフロ
277	ノバルロン	327	フェノチオカルブ	377	フルロキシビル	427	ベンフルラリン	477	ルフェスロン
278	バクロブトラゾール	328	フェノトリン	378	ブレチラクロール	428	ベンフレセート	478	レスメトリン
279	バラチオン	329	フェノブカルブ	379	プロシミドン	429	ホサロン	479	レナシル
280	バラチオンメチル	330	フェリムゾン	380	プロスルフロ	430	ボスカリド		
281	ハルフェンブロックス	331	フェンアミドン	381	プロチオホス	431	ホスチアゼート		
282	ハロキシホップ	332	フェンクロルホス	382	フロニカミド	432	ホスファミドン		
283	ハロスルフロメチル	333	フェンスルホチオン	383	プロバキザホップ	433	ホスメット		
284	ビオレスメトリン	334	フェンチオン	384	プロバクロール	434	ホノホス		
285	ピコリナフェン	335	フェントエート	385	プロバニル	435	ホメサフェン		
286	ピテルタノール	336	フェントラザミド	386	プロバホス	436	ホラムスルフロ		
287	ビフェナゼート	337	フェンバレレート	387	プロバモカルブ	437	ホルクロルフェニユロン		
288	ビフェノックス	338	フェンピロキシメート	388	プロバルギット	438	ホルベット		
289	ビフェントリン	339	フェンブコナゾール	389	プロビコナゾール	439	ホレート		
290	ビペロニルブトキシド	340	フェンブロボトリン	390	プロビザミド	440	マラオキソン		
291	ビペロホス	341	フェンブロボモルフ	391	プロヒドロジャスモン	441	マラチオン		
292	ヒメキサゾール	342	フェンヘキサミド	392	プロファム	442	マンジブプロバミド		
293	ビメトロジン	343	フェンメディファム	393	プロフェノホス	443	ミクロブタニル		
294	ビラクロストロビン	344	フサライド	394	プロヘキサジオンカルシウム塩	444	ミルベメクチン		
295	ビラクロニル	345	ブタクロール	395	プロベナゾール	445	メカルバム		
296	ビラクロホス	346	ブタフェナシル	396	プロボキスル	446	メソスルフロメチル		
297	ビラゾキシフェン	347	ブタミホス	397	プロマシル	447	メタアルデヒド		
298	ビラゾスルフロエチル	348	ブチレート	398	プロメカルブ	448	メタクリホス		
299	ビラゾホス	349	ブピリメート	399	プロメトリン	449	メタベンズチアズロン		
300	ビラゾリネート	350	ブプロフェジン	400	プロメトン	450	メタミドホス		

4. 2 LC/MS/MS

2016 年 4 月～2020 年 9 月

LC:NexerX2(島 津 製 作 所 製) , MS/MS:TRIPLE QUAD5500(AB SCIEX 製)

2020 年 10 月～2024 年 3 月

LC: AQUITY UPLC H-Class PLUS(Waters 製), MS/MS: Xevo TQ-XS (Waters 製)

結果及び考察

1. 農産物等分類別の農薬検出状況

表 2 に農産物等分類別農薬検出状況を示す。調査した 410 検体中 251 検体 (検出率 61.2%; 以下同様) から農薬が検出された。また、そのうち輸入検体では 66 検体中 39 検体 (59.1%) から検出された。分類別に見ると、農産物においては 355 検体中 251 検体 (70.7%) から農薬が検出された。ミネラルウォーター類においては 55 検体全てで農薬は検出されなかった。さらに農産物の分類別では、野菜類は 173 検体中 116 検体 (67.1%), 果実類は 140 検体中 115 検体 (82.1%), いも類は 15 検体中 4 検体 (18.2%), 穀類は 18 検体中 16 検体 (88.9%) から農薬が検出された。種実類は 9 検体を調査し、全ての検体で農薬は検出されなかった。

農産物における当所の検出率は他機関^{17~21)}よりも高い。その理由として、当所での定量下限値 (農産物で最低 1 ppb, ミネラルウォーターで最低 0.025 ppb) が通知法の定量限界よりも低いことや、当所の 1 検体あたりの検査項目数が多い (平均 368 項目) こと等が考えられた。

ミネラルウォーター類における検出状況について、佐藤らの調査²²⁾では複数の検体で農薬が検出されており、

検出された検体は全て国内産であったのに対し、今回の調査では国内産を含む全ての検体で農薬が検出されなかった。理由として、検査している農薬成分が異なることが挙げられる。また、今回の調査ではミネラルウォーター類の採水地までは把握できていないが、採水地の違いが検出状況の違いとして現れた可能性も考えられた。

2. 農産物別農薬検出状況

表 3 に農産物別農薬検出状況を示す。検出率が 100% となった農産物は、野菜類ではトマト、かぼちゃ、えだまめ、未成熟えんどうであり、果実類ではメロン、グレープフルーツ、日本なし、ぶどう、レモン、もも、オレンジであった。なお、このうち、かぼちゃ、えだまめ、グレープフルーツ、レモン、オレンジは今回調査した農産物の全てが輸入検体である。

果実類は調査した全種類の農産物で検出率が 50%以上であったが、野菜類は農産物の種類によって 0~100% まで幅広い検出率を示した。野菜類のうち検出率が 50% 未満の農産物は、検査部位が地中で生育するもの (にんじんに代表される根菜等) に多く見られた。また、いも類は、検出率の高い農産物 (さといも) でも 50%に留まった。これらの結果は前回報告¹⁶⁾と概ね同様の傾向であった。果実類や、根菜以外の野菜類では検査部位が地上で生育するため農薬が直接付着しやすい。さらに、これらに使用する農薬には収穫前日まで使用できるものも多いため、検出率が高い傾向を示したと考えられた。

表 2 農産物等の分類別農薬検出状況

分類	検査検体数	検出検体数	検出率 (%)
農産物			
野菜類	173 (22)	116 (18)	67.1 [81.8]
果実類	140 (20)	115 (19)	82.1 [95.0]
いも類	15 (4)	4 (2)	18.2 [50.0]
種実類	9 (0)	0 (0)	0.0 [0.0]
穀類	18 (0)	16 (0)	88.9 [0.0]
小計	355 (46)	251 (39)	70.7 [84.8]
ミネラルウォーター類	55 (20)	0 (0)	0.0 [0.0]
合計	410 (66)	251 (39)	61.2 [59.1]

*()内は輸入検体の数値 (再掲)

**[]内は輸入検体の検出率

表 3 農産物別農薬検出状況

分類	農産物名	検査検体数	検出検体数	検出率 (%)
野菜類	トマト	43 (0)	43 (0)	100.0 [0.0]
	かぼちゃ	9 (9)	9 (9)	100.0 [100.0]
	えだまめ	3 (3)	3 (3)	100.0 [100.0]
	未成熟えんどう	2 (0)	2 (0)	100.0 [0.0]
	未成熟いんげん	5 (2)	4 (2)	80.0 [100.0]
	ピーマン	5 (0)	4 (0)	80.0 [0.0]
	はくさい	9 (0)	7 (0)	77.8 [0.0]
	きゅうり	9 (0)	7 (0)	77.8 [0.0]
	ブロッコリー	4 (4)	3 (3)	75.0 [75.0]
	なす	7 (0)	5 (0)	71.4 [0.0]
	レタス	6 (0)	4 (0)	66.7 [0.0]
	アスパラガス	5 (0)	3 (0)	60.0 [0.0]
	しょうが	12 (0)	7 (0)	58.3 [0.0]
	ほうれんそう	4 (0)	2 (0)	50.0 [0.0]
	キャベツ	16 (0)	7 (0)	43.8 [0.0]
	にんじん	7 (0)	2 (0)	28.6 [0.0]
	にんにく	4 (4)	1 (1)	25.0 [25.0]
	ごぼう	4 (0)	1 (0)	25.0 [0.0]
	大根	13 (0)	2 (0)	15.4 [0.0]
	たまねぎ	5 (0)	0 (0)	0.0 [0.0]
	カリフラワー	1 (0)	0 (0)	0.0 [0.0]
果実類	メロン	9 (0)	9 (0)	100.0 [0.0]
	グレープフルーツ	8 (8)	8 (8)	100.0 [100.0]
	日本なし	7 (0)	7 (0)	100.0 [0.0]
	ぶどう	5 (0)	5 (0)	100.0 [0.0]
	レモン	2 (2)	2 (2)	100.0 [100.0]
	もも	2 (0)	2 (0)	100.0 [0.0]
	オレンジ	1 (1)	1 (1)	100.0 [100.0]
	いちご	17 (0)	15 (0)	88.2 [0.0]
	バナナ	8 (8)	7 (7)	87.5 [87.5]
	その他のかんきつ類	14 (1)	12 (1)	85.7 [100.0]
	すいか	14 (0)	11 (0)	78.6 [0.0]
	みかん	45 (0)	32 (0)	71.1 [0.0]
	なつみかん	8 (0)	4 (0)	50.0 [0.0]
いも類	さといも	4 (4)	2 (2)	50.0 [50.0]
	かんしょ	11 (0)	2 (0)	18.2 [0.0]
種実類	くり	9 (0)	0 (0)	0.0 [0.0]
穀類	玄米	18 (0)	16 (0)	88.9 [0.0]
合計		355 (46)	251 (39)	70.7 [84.8]

*(0)内は輸入検体の数値（再掲）

**[]内は輸入検体の検出率

3. 農薬別の検出状況

全部で 102 種類の農薬が検出され、そのうち検出検体数が 10 検体以上の農薬は 21 種類であった（表 4）。これらの農薬の用途は全て殺虫剤あるいは殺菌剤であった。最も多かったのはジノテフラン（88 検体）で、トマト、玄米、みかん、メロン等から検出された。次いでフロニカミド(49 検体)、クロラントラニリプロール(38 検体)、アセタミプリド（32 検体）の順に多く検出された。このうち、クロラントラニリプロールは前回報告¹⁶⁾では検査対象とされていない。また、前回報告において検出数順

で 10 番目以内に入らなかったボスカリド（初回登録 2005 年、以下同様）及びチアメトキサム（2000 年）は本稿の検出検体数順で見るとそれぞれ 6 番目及び 7 番目であった。逆に、前回報告で検出数が 10 番目以内であったピリダベン（1991 年）、エトフェンプロックス（1987 年）、メチダチオン（1967 年）、クロルピリホス（1971 年）は本稿の検出検体数が 10 検体未満となり、表 4 には含まれなかった。このことから、前回報告とは使用農薬が変化しており、初回登録年が古い農薬の使用が減っている可能性が示唆された。

表 4 10 検体以上から検出された農薬

農薬名	日本における 初回登録年	用途	検査 検体数	検出 検体数	検出された農産物等名（検出検体数）*
ジノテフラン	2002	殺虫剤	410	88	トマト(28)、みかん(26)、玄米(7)、メロン(6)、きゅうり(3)、その他のかんきつ類(2)、だいこん(2)、はくさい(2)、レタス(2)、日本なし(2)、いちご、キャベツ、なす、なつみかん、ぶどう、ほうれんそう、もも、未成熟えんどう
フロニカミド	2006	殺虫剤	399	49	トマト(21)、すいか(8)、いちご(6)、メロン(5)、キャベツ(3)、きゅうり(3)、アスパラガス(2)、レタス
クロラントラニリプロール	2009	殺虫剤	410	38	トマト(10)、玄米(6)、いちご(5)、日本なし(4)、えだまめ(3)、レタス(3)、しょうが(3)、かぼちゃ、はくさい、ブロッコリー、ほうれんそう
アセタミプリド	1995	殺虫剤	407	32	トマト(9)、その他のかんきつ類(4)、えだまめ(3)、いちご(2)、みかん(2)、もも(2)、未成熟いんげん(2)、きゅうり、すいか、なつみかん、はくさい、ピーマン、レタス、レモン、日本なし
イミダクロプリド	1992	殺虫剤	410	27	かぼちゃ(5)、未成熟いんげん(4)、かぼちゃ(3)、はくさい(3)、グレープフルーツ(2)、その他のかんきつ類(2)、えだまめ、きゅうり、さといも、トマト、ピーマン、ぶどう、ブロッコリー、メロン
ボスカリド	2005	殺菌剤	410	24	トマト(13)、いちご(4)、日本なし(2)、きゅうり、なす、ブロッコリー、メロン、未成熟えんどう、
チアメトキサム	2000	殺虫剤	410	23	みかん(5)、キャベツ(4)、かぼちゃ(3)、トマト(3)、ブロッコリー(2)、きゅうり、さといも、はくさい、未成熟えんどう、にんにく、日本なし
アゾキシストロビン	1998	殺菌剤	410	22	いちご(3)、すいか(3)、バナナ(3)、えだまめ(2)、トマト(2)、ピーマン(2)、ぶどう(2)、メロン(2)、しょうが、ブロッコリー、えんどう
クロチアニジン	2001	殺虫剤	410	19	トマト(7)、ほうれんそう(2)、なす、かぼちゃ、かんしょ、キャベツ、さといも、ぶどう、みかん、レタス、にんにく、日本なし
ベンチオピラド	2008	殺菌剤	410	19	トマト(12)、いちご(4)、かぼちゃ、メロン、日本なし
ピリフルキナゾン	2010	殺虫剤	385	18	トマト(16)、なす、メロン
カルベンダジム、チオファネート、チオファネートメチル及びベノミル	1971	殺菌剤	110	17	その他のかんきつ類(6)、みかん(5)、なつみかん(2)、バナナ(2)、メロン、日本なし
イマザリル	-	殺菌剤	398	12	グレープフルーツ(8)、レモン(2)、オレンジ、その他のかんきつ類
スピロメシフェン	2007	殺虫剤	378	12	トマト(9)、その他のかんきつ類(2)、かぼちゃ
ピラクロストロビン	2006	殺菌剤	410	12	トマト(5)、グレープフルーツ(3)、日本なし(2)、いちご、かぼちゃ
フェンピロキシメート	1991	殺虫剤	400	12	トマト(8)、いちご、その他のかんきつ類、なす、みかん
クレソキシムメチル	1997	殺菌剤	404	11	日本なし(3)、その他のかんきつ類(3)、もも(2)、はくさい、ぶどう、未成熟えんどう
シアゾファミド	2001	殺菌剤	410	11	トマト(6)、しょうが(3)、その他のかんきつ類、かぼちゃ
シラフルオフェン	1995	殺虫剤	386	11	玄米(4)、日本なし(3)、その他のかんきつ類(3)、みかん
トリフルミゾール	1986	殺菌剤	244	11	トマト(3)、かぼちゃ(3)、しょうが(2)、すいか(2)、メロン
フルベンジアミド	2007	殺虫剤	391	11	いちご(2)、トマト(2)、ほうれんそう、もも、かぼちゃ、かんしょ、すいか、みかん、日本なし

*0がないものは検出検体数 1

4. 検出値と残留基準値の量的関係

4.1 残留基準値に対する検出値の比率

検出された農薬について、残留基準値に対する検出値の割合を表 5 に示す。本稿の対象期間（2016～2023 年度）では、10%未満である場合が 671 件であり、全検出検数 740 件のうち 90%以上を占めた。前回報告¹⁶⁾の対象期間（2006～2015 年度）では、10%未満である場合が 1418 件であり、全検出件数 1563 件のうちの 90%以上を占めた。本稿の検体数は前回報告の半数以下ではあるが、前回報告同様に農薬の残留レベルは十分に低く、適切な農薬の使用が反映されていると考えられた。

4.2 残留基準値超過事例

残留基準値を超過した事例を表 6 に示す。残留基準値を超過して農薬が検出されたのはすべて野菜類で、調査期間中 3 例であった。ピーマンから殺虫剤チオジカルブ及びメソミルが基準の 1.4 倍、はくさいから除草剤フルアジホップブチルが一律基準の 7 倍、ほうれんそうから殺虫剤フルベンジアミドが一律基準の 3 倍の濃度でそれぞれ検出された。

農産物等の残留農薬の検出状況等をまとめた。

その結果、調査した 410 検体中 251 検体から農薬が検出され、検出率は 61.2%であった。

農産物別では、果実類は調査した全種類の農産物で検出率が 50%以上であったが、野菜類は農産物の種類によって 0～100%まで幅広い検出率を示した。

農薬別では、全部で 102 種類の農薬が検出され、そのうち検出検体数が 10 検体以上の農薬は 21 種類であった。また、初回登録年が古い農薬の使用が減少している可能性が示唆された。

残留基準値に対する検出値の割合が 10%未満である件数は全検出件数の 9 割以上を占め、前回報告同様に農薬の残留レベルは十分に低いと考えられた。残留基準値超過事例は 410 検体中 3 検体であった。

今後も、県内に流通している食品等の安全性を確保するため、継続して調査を行っていく必要がある。また、残留実態を把握し、必要に応じて検査対象農薬を見直すことで、より実態に即した検査体制の充実に繋がると考える。

ま と め

2016 年度から 2023 年度までの期間に当所で調査した

表 5 残留基準値に対する検出値の割合

		調査期間			
		2006～2015 ¹⁶⁾		2016～2023	
		検出件数	割合(%)**	検出件数	割合(%)**
割合*	0%以上 10%未満	1418	90.7	671	90.7
	10%以上 50%未満	123	8.4	62	7.9
	50%以上 100%未満	13	0.5	4	0.8
	100%以上	9	0.4	3	0.6
	合計	1563	100.0	740	100.0

*割合 = 検出値／残留基準値 × 100

**調査期間中の全検出件数に占める割合

表 6 基準値超過事例

No.	年度	検体	検出項目	検出値 (μg/g)	基準値 (μg/g)
1	2016	ピーマン	チオジカルブ及びメソミル	1	0.7
2	2017	はくさい	フルアジホップブチル	0.07	0.01*
3	2018	ほうれんそう	フルベンジアミド	0.03	0.01*

*一律基準

文 献

- 1) 熊本県：令和 6 年度(2024 年度)熊本県食品衛生監視指導計画
https://www.pref.kumamoto.jp/uploaded/life/199522_517848_misc.pdf (2024 年 9 月閲覧).
- 2) 飛野敏明, 松下 豪, 木庭亮一, 西名武士, 杉村千佳夫:熊本県保健環境科学研究所報, **31**, 44-49(2001).
- 3) 西名武士, 村川 弘, 福島孝兵, 飛野敏明:熊本県保健環境科学研究所報, **33**, 31-37 (2003).
- 4) 村川 弘, 福島孝兵, 西名武士, 荒木誠士, 飛野敏明:熊本県保健環境科学研究所報, **35**, 45-50 (2005).
- 5) 西名武士, 村川 弘, 福島 孝兵, 飛野敏明:熊本県保健環境科学研究所報, **35**, 51-56 (2005).
- 6) 西名武士, 福島孝兵, 村川 弘, 飛野敏明:熊本県保健環境科学研究所報, **35**, 57-63 (2005).
- 7) 西名武士, 福島孝兵, 村川 弘, 飛野敏明:熊本県保健環境科学研究所報, **35**, 78-85 (2005).
- 8) 村川 弘, 吉田達雄, 吉元秀和, 飛野敏明:熊本県保健環境科学研究所報, **37**, 29-35 (2007).
- 9) 福島孝兵, 増永ミキ, 宮原喜子, 飛野敏明:熊本県保健環境科学研究所報, **37**, 36-47 (2007).
- 10) 村川 弘, 飛野敏明:熊本県保健環境科学研究所報, **39**, 71-73 (2009).
- 11) 村川 弘, 吉田達雄, 濱田寛尚, 吉元秀和, 飛野敏明:熊本県保健環境科学研究所報, **39**, 78-83 (2009).
- 12) 吉田達雄, 飛野敏明:熊本県保健環境科学研究所報, **40**, 25-33 (2010).
- 13) 濱田寛尚, 吉田達雄, 飛野敏明, 村川 弘:熊本県保健環境科学研究所報, **41**, 83-85 (2011).
- 14) 濱田寛尚, 吉田達雄, 飛野敏明, 村川 弘:熊本県保健環境科学研究所報, **41**, 86-88 (2011).
- 15) 富永純司, 本田大輔, 松本理世, 中原優子, 小林将英, 山口奈穂, 西名武士, 福島宏暢:熊本県保健環境科学研究所報, **49**, 19-35 (2019).
- 16) 濱本 愛, 西名武士, 村川 弘, 宇梶徳史, 松崎達哉:熊本県保健環境科学研究所報, **46**, 56-65 (2016).
- 17) 福田勝一朗, 山口陽子, 宮崎則文, 野田日登美, 大窪かおり:佐賀県衛生薬業センター所報, **44**, 44-47 (2023).
- 18) 北川陽子, 東 恵美子, 小阪田正和, 吉光真人, 福井直樹, 阿久津和彦, 梶村計志:大阪健康安全基盤研究所研究年報, **1**, 47-56 (2017).
- 19) 北原清志, 宮川あし子, 小山和志, 安藤景子, 高橋佳代子, 天野保希, 竹澤有紗, 鎌田光貴, 宇都宮れい子, 土屋としみ:長野県環境保全研究所研究報告, **17**, 61-66 (2021).
- 20) 富永智子, 中村哲也, 吉田理恵, 中西淳治, 岩佐智佳:徳島県立保健製薬環境センター年報, **9**, 26-31 (2019).
- 21) 石原 旭, 我妻拓弥, 石井 徹, 山田浩子, 高野美紀子, 末永美知子:福島県衛生研究所年報, **36**, 76-81 (2018).
- 22) 佐藤 学, 仲野富美, 上村 仁:神奈川県衛生研究所研究報告, **51**, 17-20 (2021).

6) 熊本県における放射能調査 (2023 年度)

上野一憲 出納由美子 豊永悟史 古澤尚英 三井浩揮

はじめに

熊本県では 1989 年 10 月に科学技術庁(現原子力規制庁)の委託を受け、熊本市を拠点に環境放射能水準調査を開始し、1995 年度からは宇土市に拠点を移して調査を継続している。2012 年度にモニタリングポストを 1 地点から 6 地点に増設し、その 10 分間値等はインターネットを通じて公開されている¹⁾。

本報では 2023 年度の調査結果を報告する。

調査方法

1. 調査地点

試料採取地点及び測定地点を図 1 に示す。合志市、御船町及びあさぎり町は 1989 年度、宇土市は 1995 年度、熊本市、荒尾市、水俣市、天草市及び八代市は 2012 年度から調査を行っている。

2. 測定方法

測定方法は「環境放射能水準調査委託実施計画書 令和 4 年度 原子力規制庁」及び文部科学省放射能測定法シリーズによる。

2.1 全ベータ放射能測定調査

宇土市(本研究所屋上)において、午前 9 時に定時降水を採取した。この試料を濃縮・乾固し、午後 2 時にベータ線測定装置を用いてベータ線を測定した。

2.2 空間放射線量率調査

(1) モニタリングポストによる連続測定

以下の 6 地点において、モニタリングポストによる空間放射線量率を連続測定した。その 10 分間値は原子力規制庁に自動送信された。なお、検出器の地上高は宇土市が 14.5m、その他が 1m である。

測定地点：宇土市(本研究所屋上)

熊本市(県庁)

荒尾市(荒尾市役所)

水俣市(県環境センター)

天草市(県天草保健所)

八代市(八代東高校、2021 年 2 月までは八代市役所)

(2) サーベイメータによる測定

本研究所屋上のモニタリングポスト測定値と比較するため、近傍の気象露場において、地上高 1m の空間放射線量率をサーベイメータで測定した。この調査

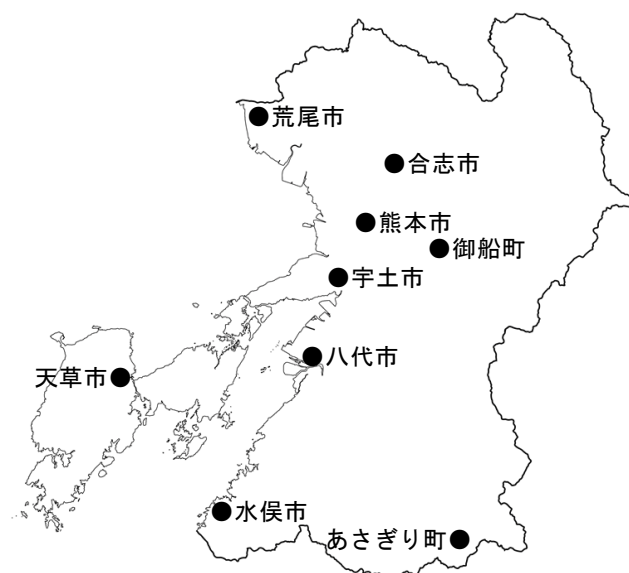


図 1 調査地点

を毎月 1 回、年 12 回実施した。

2.3 核種分析調査

(1) 大気浮遊じん

宇土市(本研究所気象露場)において、3 カ月で 10,000m³ の大気浮遊じんをろ紙に吸引採取した。採取したろ紙を合わせ核種分析を行った。この調査を年 4 回実施した。

(2) 降水物

宇土市(本研究所屋上)において、1 ヶ月間の降水物を大型水盤に受け、翌月の初めに回収した。この降水物試料を蒸発濃縮し、核種分析を行った。この調査を年 12 回実施した。

(3) 陸水(蛇口水)

宇土市(本研究所)において、水道蛇口から蛇口水 100L を採取した。この試料水を濃縮し、核種分析を行った。

(4) 土壌

宇土市(本研究所)において、深度 0~5 cm と 5~20 cm の土壌を採取した。2 層の土壌はそれぞれ乾燥・粉碎・ふるいわけをし、核種分析を行った。

(5) 精米、野菜類(ダイコン、ハウレンソウ)

合志市(熊本県農業研究センター生産環境研究所)で生産された精米及び野菜類を入手した。精米は前処理することなく核種分析を行った。野菜類は炭化と灰

化を行い、核種分析を行った。

(6) 牛乳

合志市（熊本県農業研究センター畜産研究所）で生産された原乳を入手し、前処理することなく核種分析を行った。

(7) 茶

御船町（熊本県農業研究センター茶業研究所）及びあさぎり町（熊本県農業研究センター球磨農業研究所）で生産された荒茶を入手した。これらの荒茶は炭化と灰化を行い、核種分析を行った。

3. 測定装置

3.1 全ベータ放射能測定調査

ベータ線測定装置：日立 JDC-5200

3.2 空間放射線量率調査

モニタリングポスト：アロカ MAR-22

サーベイメータ：アロカ TCS-171B

3.3 核種分析調査

ゲルマニウム半導体検出器

: キャンベラジャパン GC-3018

調査結果

1. 全ベータ放射能測定調査

定時降水の調査結果を表 1 に示す。100 検体のうち 1 月の 1 検体から 1.5Bq/L (4.9MBq/km²) の全ベータ放射能が検出された。この結果は過去 5 年の年間値の 0.35 倍（月間降下量で 0.35 倍）であったが、過去 10 年の年間値の範囲内であった。

なお、降水量は 6 月が最大であった。

2. 空間放射線量率調査

モニタリングポストによる連続測定結果の集計結果を表 2 に示す。機器更新のため、2024 年 3 月 13 日～3 月 20 日（天草市は 3 月 19 日）の期間は欠測となった。各地点の平均値は過去 5 年の年間値と同程度であり、全地点における最大値、最小値及び平均値は、

それぞれ 104, 19 及び 39nGy/h であった。

宇土市近傍の地上高 1m におけるサーベイメータによる測定結果の最大値、最小値及び平均値は、それぞれ 41, 31 及び 35nGy/h であった。この平均値は宇土市平均値 28nGy/h より 8nGy/h 高い。これは宇土市モニタリングポストの検出器が地上高 14.5m に設置されているのに対し、サーベイメータによる測定は地上高 1m で行うことから、土壌・地質等に由来する放射線量の影響を反映しているものと考えられた。

3. 核種分析調査

ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線放出核種の測定結果を表 3 に示す。人工放射性核種 ¹³⁷Cs について、土壌 0～5cm は 1.5Bq/kg 乾土 (56MBq/km²)、土壌 5～20cm は 1.6Bq/kg 乾土 (190MBq/km²)、茶の最大値は 0.16 Bq/kg 乾物であった。これらの値は過去 5 年間の調査結果の範囲内であった。

なお、その他の人工放射性核種は検出されなかった。

ま と め

2023 年度の熊本県における環境放射能水準調査の全ベータ放射能測定調査、空間放射線量率調査及び核種分析調査の結果に異常は認められなかった。

謝 辞

本調査にあたり、試料提供に御協力いただきました熊本県農業研究センターの生産環境研究所、茶業研究所、球磨農業研究所及び畜産研究所の関係各位に謝意を表します。

文 献

- 1) 原子力規制庁：放射線モニタリング情報共有・公表システム
<https://www.erms.nsr.go.jp/nra-ramis-webg/>
原子力規制庁：環境放射線データベース
<https://www.kankyo-hoshano.go.jp/data/database/>

表 1 定時降水中の全ベータ放射能調査結果

(調査地点：宇土市)

採取年月	降水量 (mm)	検体数	降 下 量		
			最低値	最高値	月間降下量
			(Bq/L)		(MBq/km ²)
2023年 4月	205.6	7	ND		ND
5月	253.7	8	ND		ND
6月	423.2	14	ND		ND
7月	255.2	12	ND		ND
8月	145.0	12	ND		ND
9月	72.5	6	ND		ND
10月	46.4	3	ND		ND
11月	59.3	5	ND		ND
12月	59.8	8	ND		ND
2024年 1月	16.5	5	ND	1.5	4.9
2月	196.3	10	ND		ND
3月	369.2	10	ND		ND
年間値	2102.7	100	ND	～ 1.5	ND ～ 4.9
過去5年の年間値	1904.8	89	ND	～ 4.3	ND ～ 14

ND：計数値がその計数誤差の3倍以下

降水量及び検体数：年間値欄は各月の合計、過去5年の年間値欄は過去5年の平均値

表 2 モニタリングポストによる空間放射線量調査結果

調査地点 (検出器の地上高)	熊本市 (1m)			八代市 (1m)			荒尾市 (1m)			水俣市 (1m)			宇土市 (14.5m)			天草市 (1m)		
	最大値	最小値	平均値	最大値	最小値	平均値	最大値	最小値	平均値	最大値	最小値	平均値	最大値	最小値	平均値	最大値	最小値	平均値
2023年 4月	78	32	35	100	42	45	66	31	35	94	40	43	64	26	29	73	47	50
5月	57	32	35	74	42	44	57	31	34	66	39	42	48	24	28	66	47	50
6月	62	32	35	80	41	45	78	30	35	104	38	43	56	20	29	89	46	51
7月	73	32	35	85	41	44	91	30	34	63	38	41	56	19	28	84	46	49
8月	62	32	35	64	42	44	53	32	34	57	40	43	71	26	28	66	48	51
9月	80	32	35	62	42	44	54	31	34	64	40	43	43	23	28	62	48	50
10月	55	33	35	70	42	45	48	32	34	68	41	44	44	26	28	82	48	51
11月	56	33	36	92	42	45	61	32	35	74	41	44	43	26	29	85	48	51
12月	55	32	35	76	42	45	59	31	34	78	40	43	47	26	29	85	48	51
2024年 1月	49	32	35	62	42	44	58	32	34	72	40	43	43	26	29	68	48	50
2月	59	32	36	72	42	45	69	31	35	74	40	43	50	21	29	87	47	51
3月	63	28	34	64	35	42	57	26	32	74	34	41	57	19	27	73	38	47
年間値	80	28	35	100	35	44	91	26	34	104	34	43	71	19	28	89	38	50
過去5年の年間値	110	31	35	115	42	48	120	30	34	160	38	43	80	25	28	116	44	50

環境放射線データベースから検索・抽出・集計

八代市：2021年度は八代東高校における測定結果、過去5年の年間値は主に八代市役所における測定結果
機器更新のため、3月13日～3月20日(天草市は3月13日～3月19日)の期間は欠測

表 3 ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線放出核種分析調査結果

試料名	調査地点	採取年月	検体数	¹³⁷ Cs			¹³⁴ Cs			¹³¹ I			⁴⁰ K			単位
				2023年度 最低値 最高値	過去5年 最低値 最高値	ND	2023年度 最低値 最高値	過去5年 最低値 最高値	ND	2023年度 最低値 最高値	過去5年 最低値 最高値	ND	2023年度 最低値 最高値	過去5年 最低値 最高値		
大気浮遊じん	宇土市	2023年4月 ～2024年3月	4	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.090	mBq/m ³
降下物	宇土市	2023年4月 ～2024年3月	12	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	1.8	MBq/km ²
陸水	蛇口水	2023年6月	1	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	130	160	mBq/L
土壌	0～5cm	2023年11月	1	1.5	1.2	1.8	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	150	200	Bq/kg乾土
				56	36	64	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	5200	6300	MBq/km ²
	5～20cm	2023年11月	1	1.6	1.3	2.0	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	160	210	Bq/kg乾土
精米	合志市	2023年10月	1	190	150	270	ND	ND	ND	ND	ND	ND	25000	18000	27000	MBq/km ²
野菜類	ダイコン	2023年11月	1	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	28	21	29	Bq/kg生
				ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
	ホウレンソウ	2023年11月	1	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	230	210	270
茶	御船町 あさぎり町	2023年5月 2023年6月	2	ND 0.16	ND 0.25	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	410	600	710	Bq/kg乾物
牛乳	合志市	2023年8月	1	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	52	48	55	Bq/L

ND：測定値がその検出限界値未満
-：分析対象外核種

ND：測定値がその検出限界値未満 -：分析対象外核種

7) 熊本県の酸性雨長期モニタリング調査結果 (2023 年度)

上野一憲 古澤尚英

はじめに

熊本県では、1988 年 10 月から県内における酸性雨の状況を把握するため、長期モニタリング調査¹⁾を行っている。採取方法について、当初はろ過式採取装置を用いていたが、2004 年 4 月から降水試料と非降水時における降下物を分けて捕集する降水時開放型採取装置に変更し²⁾、2008 年からは降水試料のみ調査を行っている。なお、非降水時における降下物の結果（乾性沈着）については、既報³⁾を参照されたい。

本報では 2023 年度の宇土及び阿蘇一の宮の調査結果について報告する。

調査方法及び分析方法

1. 調査地点及び降水採取方法

過去に実施した地点を含む酸性雨調査地点を図 1 に示した。

2023 年度は宇土（熊本県保健環境科学研究所）及び阿蘇一の宮（熊本県阿蘇地域振興局）の 2 地点で引き続き調査を実施した。降水試料の採取は小笠原計器製降水採取器 US-300 型を用い、1 週間ごとの回収を行った。

調査月の区切りと降水試料の回収日は、酸性雨全国調査実施要領⁴⁾の別表月割り表に従った。

2. 分析方法

採取した降水試料について pH、電気伝導度（以下「EC」という。）及びイオン成分を分析した。

pH 測定は東亜ディーケーケー製 HM-42X を用い、複合電極は GST-5841C を使用した。EC 測定は東亜ディーケーケー製 CM-42X を用い、電導度セルは CT-58101B を使用した。なお、pH 及び EC は恒温水槽を使用して 25℃で測定した。

イオン成分分析はダイオネクス製 ICS-1600 を用い、イオンクロマトグラフ法で行った。分析条件として、カチオンについてはカラムとして Dionex IonPacTM CS16、溶離液として 30 mmol/L メタンスルホン酸溶液を用い、流速は 1.0 mL/min に設定した。また、アニオンについてはカラムとして Dionex IonPacTM AS23、溶離液として 4.5 mmol/L Na₂CO₃、0.5 mmol/L NaHCO₃ 混合溶液を用い、流速 1.0 mL/min に設定した。

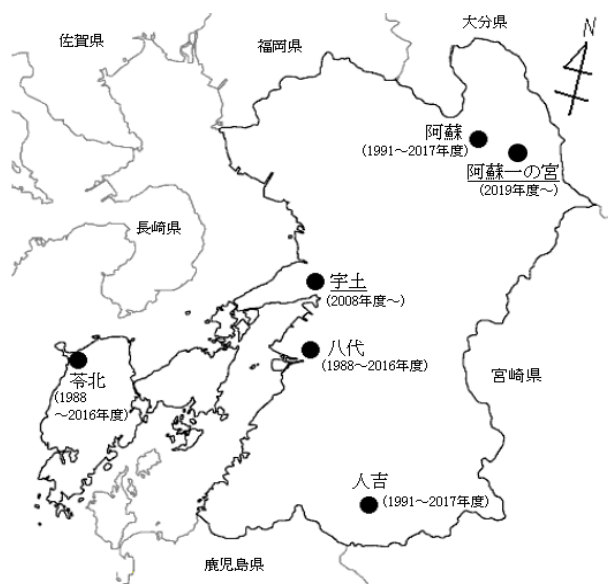


図 1 酸性雨調査地点

調査結果及び考察

1. 2022 年度⁵⁾ との比較

表 1 に 2023 年度の調査地点における pH、EC 及びイオン成分総括表を示した。年間降水量は回収時の捕集量から算出した。各年平均値は月毎の降水量との加重平均により算出した。

年間降水量について、宇土においては 2022 年度と比べ 354.0 mm 増加した。また、阿蘇一の宮においては 2022 年度と比べ 513.5 mm 減少した。

pH の年平均値について、宇土においては 2022 年度と比べ 0.02 高かった。また、阿蘇一の宮における pH の年平均値は 2022 年度と比べ 0.09 高かった。

EC の年平均値について、宇土においては 2022 年度と比べ 0.01 mS/m 高かった。また、阿蘇一の宮においては 2022 年度と比べ 0.16 mS/m 低かった。

イオン成分の年平均濃度について、宇土においては主に海塩由来成分である Cl⁻及び Na⁺並びに SO₄²⁻及び K⁺は 2022 年度と比べそれぞれ 1.3 µmol/L、0.2 µmol/L、0.3 µmol/L、0.5 µmol/L 高かった。NO₃⁻、NH₄⁺、Ca²⁺及び H⁺は 1.2 µmol/L、1.2 µmol/L、0.4 µmol/L、0.8 µmol/L 低く、Mg²⁺は変わらなかった。また、阿蘇一の宮においては Na⁺及び K⁺についてはそれぞれ 0.2 µmol/L、0.1

表 1 pH, EC 及びイオン成分総括表 (2023 年度) 注1)

調査地点		pH	EC mS/m	SO ₄ ²⁻ μmol/L	NO ₃ ⁻ μmol/L	Cl ⁻ μmol/L	NH ₄ ⁺ μmol/L	Na ⁺ μmol/L	K ⁺ μmol/L	Ca ²⁺ μmol/L	Mg ²⁺ μmol/L	H ⁺ μmol/L	年間降水量 ^{注2)} mm
阿蘇一の宮 n=42	平均	4.61	1.33	10.6	7.0	17.9	14.6	7.8	0.7	1.4	1.0	24.5	
		4.52	1.49	10.6	7.9	22.0	15.8	7.6	0.6	1.8	1.1	30.0	2459.1
	最高	5.16	2.79	30.4	36.1	53.7	73.6	33.2	1.9	6.5	4.4	55.7	1945.6
	最低	4.25	0.60	5.0	4.3	5.6	8.7	2.4	0.3	0.7	0.5	7.0	
宇土 n=45	平均	4.79	1.04	7.9	8.6	17.0	10.9	13.3	1.2	1.7	1.7	16.2	
		4.77	1.03	7.6	9.8	15.7	12.1	13.1	0.7	2.1	1.7	17.0	2171.5
	最高	5.13	4.12	31.7	59.7	76.5	52.1	56.0	13.5	14.4	7.7	66.8	1817.5
	最低	4.17	0.70	5.1	5.8	5.7	5.9	4.6	0.3	0.7	0.7	7.5	

注1) n: 検体数。平均は分析に供した雨水の降水量を基に加重平均により算出。表中の最高値及び最低値は、月平均（加重平均）値から抽出。

イタリック体: 2022年度の成分加重平均濃度及び降水量。

注2) オーバーフローした週の降水量は雨量計の降水量を用いて年間降水量を算出。

表 2 pH 及び EC の月別平均（加重平均）と月別イオン成分沈着量 (2023 年度)

調査地点	月	試料数	降水量 mm	pH	EC mS/m	SO ₄ ²⁻ meq/m ²	nss-SO ₄ ²⁻ meq/m ²	NO ₃ ⁻ meq/m ²	Cl ⁻ meq/m ²	nss-Cl ⁻ meq/m ²	NH ₄ ⁺ meq/m ²	Na ⁺ meq/m ²	K ⁺ meq/m ²	Ca ²⁺ meq/m ²	Mg ²⁺ meq/m ²	H ⁺ meq/m ²	月別沈着量 meq/m ²
阿蘇一の宮	4	2	107.6	4.39	2.09	3.6	3.5	0.8	2.4	1.9	1.7	0.5	0.1	0.6	0.2	4.4	14.3
	5	6	419.3	4.65	1.09	8.2	8.1	2.1	4.5	3.3	4.7	1.0	0.2	1.2	0.4	9.3	31.5
	6	4	646.1	5.06	0.60	6.4	5.9	2.8	6.0	1.1	5.6	4.2	0.3	1.2	1.0	5.6	33.2
	7	4	225.5	4.50	1.69	7.4	7.1	2.3	3.2	0.5	3.9	2.3	0.1	0.5	0.6	7.1	27.4
	8	4	341.9	4.82	0.94	6.2	5.9	1.8	3.7	0.6	3.9	2.7	0.1	0.5	0.7	5.2	24.7
	9	4	68.5	4.85	0.88	1.4	1.4	0.6	0.4	0.1	1.4	0.2	0.0	0.1	0.1	1.0	5.2
	10	2	32.0	5.16	0.82	0.5	0.5	0.4	0.4	0.1	0.7	0.3	0.0	0.1	0.1	0.2	2.7
	11	3	66.3	4.50	2.25	2.8	2.6	1.2	2.9	0.3	2.0	2.2	0.1	0.3	0.5	2.1	14.2
	12	3	83.6	4.71	1.42	2.5	2.3	1.7	2.3	0.4	2.7	1.6	0.1	0.6	0.4	1.6	13.5
	1	2	16.3	4.52	2.79	1.0	0.9	0.6	0.9	0.3	1.2	0.5	0.0	0.2	0.1	0.5	5.0
	2	4	234.9	4.32	2.25	5.1	4.9	1.6	9.2	6.8	4.3	2.1	0.4	0.7	0.5	11.3	35.2
	3	4	217.2	4.25	2.61	6.7	6.5	1.7	8.0	6.1	3.7	1.6	0.3	0.9	0.5	12.1	35.4
	年間合計	42	2459.1	4.61	1.33	51.9	49.6	17.3	43.9	21.4	35.9	19.1	1.6	7.0	5.1	60.3	242.3
宇土	4	2	95.3	4.79	1.07	1.9	1.8	0.8	1.0	0.0	1.4	0.8	0.1	0.4	0.2	1.6	8.1
	5	6	459.2	4.85	0.75	6.0	5.7	2.7	2.9	0.4	3.4	2.1	0.2	0.9	0.7	6.5	25.4
	6	4	382.6	4.84	1.02	5.2	4.3	2.7	9.1	0.3	3.3	7.5	0.4	0.9	1.8	5.5	36.5
	7	4	282.1	4.88	0.88	3.2	2.8	2.1	4.3	-0.2	1.9	3.8	0.2	0.5	0.9	3.8	20.7
	8	4	148.8	4.77	1.02	2.9	2.7	1.3	1.3	0.3	2.5	0.9	0.1	0.4	0.2	2.5	12.1
	9	4	94.2	4.79	0.78	1.0	1.0	0.5	0.8	0.2	0.6	0.6	0.0	0.1	0.1	1.5	5.3
	10	3	52.3	5.13	0.70	0.5	0.5	0.7	0.3	0.0	1.0	0.3	0.0	0.2	0.1	0.4	3.5
	11	3	64.9	4.74	2.42	2.8	2.4	1.3	5.0	1.1	1.3	3.3	0.9	1.9	1.0	1.2	18.5
	12	4	65.9	4.42	2.00	2.2	2.0	1.2	2.4	0.5	1.3	1.6	0.1	0.4	0.4	2.5	12.0
	1	3	14.2	4.17	4.12	0.9	0.8	0.9	1.0	0.0	0.7	0.8	0.0	0.2	0.2	1.0	5.6
	2	4	212.1	4.68	1.28	3.8	3.3	1.9	5.0	0.4	2.5	3.9	0.3	0.4	1.0	4.4	23.2
	3	4	299.8	4.83	0.95	4.1	3.7	2.5	3.9	0.0	3.8	3.3	0.2	0.9	0.8	4.4	24.0
	年間合計	45	2171.5	4.79	1.04	34.5	31.0	18.7	37.0	3.0	23.6	28.9	2.5	7.2	7.5	35.3	195.2

μmol/L 高かった。NO₃⁻, Cl⁻, NH₄⁺, Ca²⁺, Mg²⁺及び H⁺については、それぞれ 0.9 μmol/L, 4.1 μmol/L, 1.2 μmol/L, 0.4 μmol/L, 0.1 μmol/L, 5.5 μmol/L 低く、SO₄²⁺は変わらなかった。

2. 経月変化

表 2 に 2023 年度の阿蘇一の宮及び宇土における pH 及び EC の月別平均（加重平均）と月別イオン成分沈着量を、図 2 に 2023 年度の月別沈着量に対する各イオン成分沈着量の占める割合を示した。pH 及び EC の月別平均は降水量との加重平均により算出し、イオン成分沈着量は各イオン成分濃度に降水量を乗じて算出した。

pH では、阿蘇一の宮で 3 月の 4.25 が最も低く、次いで 2 月の 4.32, 4 月の 4.39 の順であった。また、宇土では 1 月の 4.17 が最も低く、次いで 12 月の 4.42, 2 月の 4.68 の順であった。

EC では、阿蘇一の宮で 1 月の 2.79 mS/m が最も高く、次いで 3 月が 2.61 mS/m, 11 月及び 2 月が 2.25

mS/m の順であった。また、宇土では 1 月の 4.12 mS/m が最も高く、次いで 11 月の 2.42 mS/m, 12 月の 2.00 mS/m の順であった。

月別イオン成分沈着量では、阿蘇一の宮では 3 月, 2 月, 6 月の順に高い値を示した。特に、5 月, 7 月は非海塩性である nss-SO₄²⁻が、2 月, 3 月は nss-Cl⁻が際立って高い値を示した。また、宇土では降水量の多かった 6 月が最も高く、次いで 5 月, 4 月の順で高い値を示した。アニオン成分のうち nss-Cl⁻/nss-SO₄²⁻比で阿蘇一の宮では 0.14 (7 月) ~2.77 (2 月) の間で推移した。また、宇土では-0.13 (7 月) ~0.89 (11 月) の間で推移した。

図 3 に H⁺に対する nss-SO₄²⁻及び nss-Cl⁻の各成分濃度間の相関を示した。阿蘇一の宮は対 nss-Cl⁻が高い相関 (r=0.873) を示した。また、宇土は対 nss-SO₄²⁻が高い相関を示した (r=0.894)。阿蘇一の宮は nss-Cl⁻が、宇土は nss-SO₄²⁻が降水の酸性化に寄与しているものと考えられた。

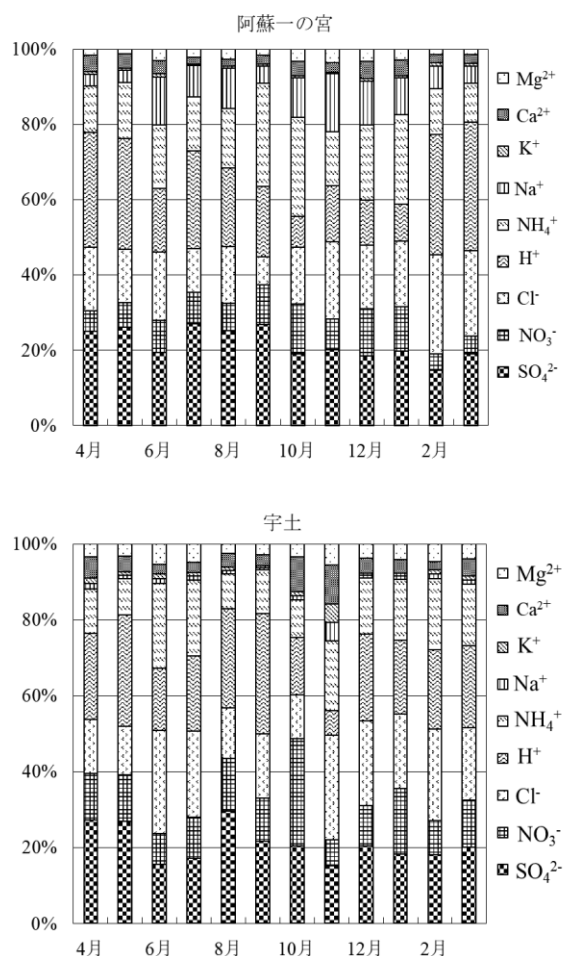


図 2 月間沈着量に対する各イオン成分沈着量の割合

3. 経年変化

2008 年度から 2023 年度までの平均 pH, EC 及びイオン成分年間沈着量の推移を表 3 に示した。なお、他の調査地点の調査開始 (1989 年度) からのデータは既報⁶⁾を参照されたい。

宇土におけるイオン成分については 2022 年度と比較して高いレベルであった。また、阿蘇一の宮については阿蘇山の火山活動が活発だった 2019 年度は宇土と比較して SO_4^{2-} , Cl^- , H^+ の沈着量が際立って多かったが、2020 年度以降はイオン種による差はあるものの同様のレベルであった。

4. 低 pH (pH4 未満) の降水事例

表 4 に降水試料の低 pH の事例を示した。宇土においては、pH4 未満の降水試料は 12 月に 1 検体、次いで低 pH の降水試料が 1 月と 2 月に観測された。阿蘇においては、pH4 未満の降水試料は 3 月に 1 検体、次いで低 pH の降水試料が 1 月と 2 月に観測された。

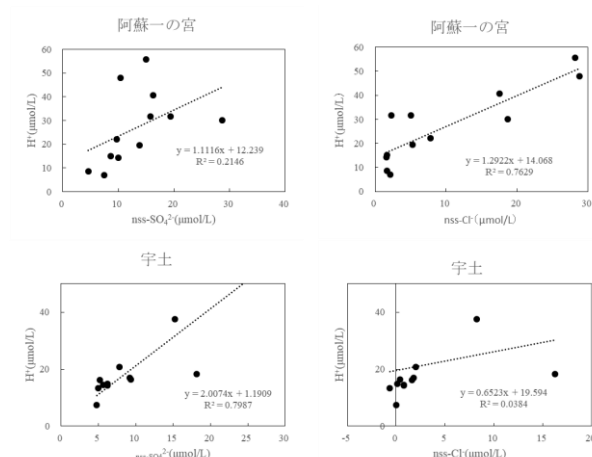


図 3 H^+ に対する $nss-SO_4^{2-}$ 及び $nss-Cl^-$

表 5 に阿蘇山の噴火警報・予報及び噴火警戒レベルの状況を示した⁷⁾。阿蘇山の火山活動は 2023 年 3 月 23 日以降噴火警戒レベルを 1 に引き下げられたが、2024 年 1 月 23 日噴火警戒レベル 2 に引き上げられた。これより阿蘇一の宮の 2 月、3 月において低 pH 及び高 $nss-Cl^-$ 沈着量が観測された。

これらの阿蘇山の火山活動の状況を踏まえ、阿蘇一の宮では火山活動に伴い噴気孔温度が高くなると HCl が増加することにより⁸⁾ $nss-Cl^-/Cl^-$ 比が大きくなることから火山性ガスに含まれる HCl が低 pH 化に寄与していると推測された。

ま と め

阿蘇一の宮における年平均 pH は 2019 年度に 4.10 と極めて低い pH を示したが、その後の 4 年間は 4.6 前後で推移している。また、宇土における年平均 pH は 4.7 前後で推移しており、特異な pH の変化はなかった。

阿蘇一の宮は阿蘇山の火山活動の影響を受けやすいと考えられ、今後も阿蘇一の宮での降水成分の情報を蓄積することにより阿蘇山の火山活動から排出される SO_4^{2-} や Cl^- の関係を検討していきたい。

謝 辞

本調査の実施にあたり、阿蘇一の宮における降水試料の採取及び搬入に御協力いただきました阿蘇保健所に深謝いたします。

文 献

- 1) 今村 修, 久保 清: 熊本県衛生公害研究所報, 19, 53 (1989).

表 3 イオン成分年間沈着量の推移

調査地点	年度	年間降水量 mm	pH	EC mS/m	SO ₄ ²⁻ meq/m ²	NO ₃ ⁻ meq/m ²	Cl ⁻ meq/m ²	NH ₄ ⁺ meq/m ²	Na ⁺ meq/m ²	K ⁺ meq/m ²	Ca ²⁺ meq/m ²	Mg ²⁺ meq/m ²	H ⁺ meq/m ²	年間沈着量 meq/m ²
阿蘇	2008 ^{注1)}	2424.6	4.50	1.50	74.8	23.5	37.3	37.0	20.8	4.3	13.3	6.6	73.6	291.3
	2009	2655.3	4.52	1.57	90.0	32.6	54.9	47.5	31.6	6.3	19.4	10.2	80.0	372.4
	2010	2190.9	4.61	1.91	80.0	33.4	60.3	49.4	32.9	4.0	21.5	9.5	50.0	341.0
	2011	2580.0	4.80	1.38	80.5	30.4	39.2	42.5	26.1	7.1	23.0	8.8	41.1	298.8
	2012 ^{注2)}	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	2013	2455.9	4.54	2.26	99.5	44.1	87.9	67.1	48.3	8.9	28.9	15.5	69.9	470.2
	2014 ^{注3)}	2339.9	4.27	3.38	110.5	28.4	123.5	43.3	29.5	4.2	35.8	15.8	124.9	515.8
	2015	2728.4	4.60	1.83	84.4	22.9	62.5	38.8	26.4	4.4	21.1	11.2	69.1	340.7
	2016	3802.1	4.61	1.56	116.0	40.5	59.0	61.2	33.3	3.4	14.8	9.5	94.2	431.9
	2017	2655.3	4.74	1.21	66.6	24.2	33.5	32.9	25.0	2.0	11.6	7.0	48.8	251.7
阿蘇一の宮	2019	2236.1	4.10	4.48	110.7	20.4	199.6	35.5	23.9	3.9	52.1	20.3	177.4	643.7
	2020	2428.6	4.55	1.39	50.3	16.4	46.8	27.9	15.8	1.9	8.1	5.3	68.7	241.2
	2021	2151.6	4.63	1.30	55.7	17.7	32.8	40.6	17.5	2.3	11.6	5.7	50.0	233.9
	2022	1945.6	4.52	1.49	41.2	15.3	42.7	30.7	14.8	1.2	7.1	4.1	58.3	215.4
	2023	2459.1	4.61	1.33	51.9	17.3	43.9	35.9	19.1	1.6	7.0	5.1	60.3	242.3
宇土	2008	2389.6	4.55	1.55	72.5	25.0	38.5	34.8	28.7	2.8	12.8	8.0	64.9	288.1
	2009 ^{注4)}	1446.2	4.44	1.92	51.7	23.5	35.8	28.6	29.4	1.6	10.6	7.7	52.7	241.6
	2010	1744.1	4.69	1.57	50.9	22.1	31.2	32.0	24.7	1.6	11.3	6.6	35.7	215.9
	2011	2180.5	4.69	1.45	58.9	23.4	31.4	30.1	23.7	2.2	9.7	5.8	44.5	229.7
	2012	2106.8	4.71	1.56	59.9	22.6	43.5	33.7	35.8	2.6	10.8	8.7	41.5	259.2
	2013 ^{注5)}	1968.3	4.69	1.49	50.8	21.8	31.3	27.2	25.6	1.7	10.3	6.7	36.5	211.9
	2014	1775.1	4.62	1.71	57.5	21.4	27.9	25.5	22.7	1.9	10.1	6.4	42.2	215.5
	2015	2415.5	4.86	1.18	47.4	18.8	41.3	23.8	36.7	2.2	9.5	9.5	33.7	222.8
	2016	2649.6	4.85	1.11	55.2	27.5	39.8	33.4	31.8	2.3	11.9	8.6	37.8	248.5
	2017	2203.3	4.75	1.22	47.8	20.3	38.7	20.8	30.9	1.9	8.5	7.8	38.8	215.4
	2018	1996.5	4.69	1.35	49.6	20.0	29.5	21.6	21.7	1.5	8.8	6.3	40.7	199.8
	2019	2296.5	4.68	1.31	47.1	20.7	39.3	23.8	28.5	1.8	7.8	7.9	47.7	224.8
	2020	2550.0	4.69	1.18	43.8	23.7	49.7	27.6	40.7	2.5	8.7	10.5	51.6	258.8
	2021	2289.5	4.78	0.91	28.9	16.8	38.3	19.3	31.4	1.8	6.9	7.8	38.0	189.2
	2022	1817.5	4.77	1.03	27.8	17.8	28.6	22.0	23.8	1.3	7.5	6.0	30.9	165.6
	2023	2171.5	4.79	1.04	34.5	18.7	37.0	23.6	28.9	2.5	7.2	7.5	35.3	195.2

注1) 欠測月（9月、10月）を含む。 注2) 2012年7月2日から2013年2月24日まで欠測。 注3) 試料未回収を含む。
 注4) 欠測月（2月、3月）を含む。 注5) 2013年9月2日から2013年12月2日まで降水量のみ測定分、2014年1月24日から2月10日までの欠測を含む。

表 4 低 pH (pH4 未満) 観測事例

地点名	捕集		降水量	pH	EC	SO ₄ ²⁻	nss-SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	nss-Cl ⁻	NH ₄ ⁺	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	nss-Ca ²⁺	Mg ²⁺	H ⁺
	開始日	終了日	mm		mS/m	μmol/L	μmol/L	μmol/L	μmol/L	μmol/L	μmol/L	μmol/L	μmol/L	μmol/L	μmol/L	μmol/L	μmol/L
阿蘇一の宮	2024/1/29	2024/2/9	51.1	4.01	4.51	18.8	17.6	10.5	88.8	66.3	30.9	19.2	1.1	3.2	2.8	2.4	97.7
	2024/2/13	2024/2/19	27.4	4.09	3.64	25.8	25.3	9.6	49.0	40.1	29.6	7.5	1.6	2.2	2.0	1.3	81.3
	2024/3/11	2024/3/18	21.4	3.83	6.61	18.3	17.9	7.7	119.7	113.0	26.8	5.7	1.1	2.5	2.3	1.5	147.9
	2023/12/25	2024/1/4	7.5	3.89	5.67	41.4	40.5	29.1	63.6	46.3	27.8	14.7	1.1	3.7	3.4	2.3	128.8
宇土	2024/1/22	2024/1/29	0.6	4.03	9.69	59.6	46.2	191.5	264.1	4.0	162.5	221.2	8.3	23.3	18.4	27.3	93.3
	2024/2/13	2024/2/19	3.1	4.10	4.83	42.3	38.2	32.0	89.7	10.4	41.9	67.5	4.2	6.4	4.9	8.3	79.4

表 5 阿蘇山の噴火警戒の状況 (2023 年度発表履歴)⁷⁾

2023年1月30日 15時00分	噴火警戒レベルを2（火口周辺規制）に引き上げ
2023年3月23日 11時00分	噴火警戒レベルを1（活火山であることに留意）に引き下げ
2024年1月23日 15時00分	噴火警戒レベルを2（火口周辺規制）に引き上げ

- 緒方和博, 矢野弘道, 上野一憲, 今村 修: 熊本県保健環境科学研究所報, 35, 91 (2005).
- 松本依子, 上野一憲, 今村 修: 全国環境研会誌, 33(4), 219 (2008).
- 全国環境研協議会・酸性雨広域大気汚染調査研究

部会: 酸性雨全国調査実施要領 (2023 年度).

- 上野一憲, 豊永悟史: 熊本県保健環境科学研究所報, 52, 98 (2022).
- 宮本 俊, 古澤尚英: 熊本県保健環境科学研究所報, 44, 96 (2014).
- 国土交通省気象庁ホームページ: 月間火山概況・火山活動解説資料/火山活動解説資料 (阿蘇山). http://www.data.jma.go.jp/vois/data/tokyo/STOCK/monthly_v-act_doc/monthly_vact_vol.php?id=503 (2024 年 5 月閲覧)
- 平林順一: 京大防災研究所年報, 24B-1 (昭和 56.4), 11 (1981).

3・3 誌上発表論文抄録

熊本県におけるβ—ラクタム系薬剤耐性腸内細菌目細菌の保有状況調査 (2015年4月～2020年3月)

感染症学雑誌 Vol97, No5, p153~161. (2023)

八尋 俊輔*¹, 原田 誠也*², 小原 敦美*², 藺牟田直子*³, 大岡唯祐*³, 西順一郎*³

*¹熊本県健康福祉部健康局薬務衛生課, *²熊本県保健環境科学研究所,

*³鹿児島大学大学院医歯学総合研究科微生物学分野

熊本県におけるβ—ラクタム系薬剤耐性腸内細菌目細菌 (β—lactam antibiotics-resistant *Enterobacterales*; BLARE) の腸管内保菌状況を把握するため, 2015年4月～2020年3月間に当所に搬入された糞便1,434検体から菌分離を試みたところ, 340検体(23.7%)から354株のBLAREが分離された。このうち343株(96.9%)は大腸菌であり, ESBL産生大腸菌が305株(86.2%)を占めた。さらに, その中の133株(43.6%)は世界的な拡散が報告されているパンデミック・クローン群の大腸菌O25b-ST131と判定されたことから, このクローン群の拡大が熊本県における薬剤耐性菌腸管内保菌率増加の一因であることが示唆された。

なお, 分離されたESBL産生菌はすべてCTX-M型遺伝子保有株であり, CTX-M-9 groupが210株(67.7%), CTX-M-1 groupが80株(25.8%), およびCTX-M1とCTX-M-9の両group保有株が13株(4.2%)などであった。

また, 分離株を検査対象施設の大まかな種類別に集計したところ, 乳幼児施設での分離率が35%を超え, 複数の施設でESBL産生大腸菌の水平伝播が確認されたことから, 乳幼児施設はBLAREのリザーバーの一つである可能性が高いと思われた。

Distribution of Human Sapovirus Strain Genotypes over the Last Four Decades in Japan: a Global Perspective

Jpn.J.Infect.Dis.: Volume 76 Issue 4 p255-258, (2023) .

Yen Hai Doan¹, Yasutaka Yamashita², Hiroto Shinomiya², Takumi Motoya³, Naomi Sakon⁴, Rieko Suzuki⁵, Hideaki Shimizu⁶, Naoki Shigemoto⁷, Seiya Harada⁸, Shunsuke Yahiro⁸, Kyoko Tomioka⁹, Akie Sakagami¹⁰, Yo Ueki¹⁰, Rika Komagome¹¹, Kyohei Saka¹², Reiko Okamoto-Nakagawa¹³, Komei Shirabe¹³, Fuminori Mizukoshi¹⁴, Yono Arita¹⁵, Kei Haga¹⁶, Kazuhiko Katayama¹⁶, Hirokazu Kimura¹⁷, Masamichi Muramatsu¹⁸, Tomoichiro Oka¹⁸

1)Center for Emergency Preparedness and Response,

2)-17) Prefectural or City Institute of Public Health or University (2)Ehime Pref., 3)Ibaraki Pref., 4)Osaka Pref., 5)Kanagawa Pref., 6)Kanagawa Pref., 7)Kawasaki City. 8)Kumamoto Pref., 9)Saitama Pref., 10)Miyagi Pref., 11)Hokkaido Pref., 12)Aomori Pref., 13)Yamaguchi Pref., 14)Tochigi Pref., 15)Shizuoka Pref., 16)Kitasato Univ., 17)Gunma Paz Univ.,

18) National Institute of Infectious Diseases

Sapovirus (SaV) infections are a public health problem because they cause acute gastroenteritis in humans of all ages, both sporadically and as outbreaks. However, only a limited amount of SaV sequence information, especially whole-genome sequences for all the SaV genotypes, is publicly available. Therefore, in this study, we determined the full/near-full-length genomic sequences of 138 SaVs from the 2001 to 2015 seasons in 13 prefectures across Japan. The genogroup GI was predominant (67%, n = 92), followed by genogroups GII (18%, n = 25), GIV (9%, n = 12), and GV (6%, n = 9). Within the GI genogroup, four different genotypes were identified: GI.1 (n = 44), GI.2 (n = 40), GI.3 (n = 7), and GI.5 (n = 1). We then compared these Japanese SaV sequences with 3,119 publicly

available human SaV sequences collected from 49 countries over the last 46 years. The results indicated that GI.1, and GI.2 have been the predominant genotypes in Japan, as well as in other countries, over at least four decades. The 138 newly determined Japanese SaV sequences together with the currently available SaV sequences, could facilitate a better understanding of the evolutionary patterns of SaV genotypes.

Emergence of Novel Type C Botulism Strain in Household Outbreak, Japan

Emerging Infectious Diseases: Volume 29, Number 10, p2175-2177,(2023)

Rika Maeda¹⁾, Misato Mori¹⁾, Seiya Harada¹⁾, Ichiro Izu¹⁾, Takaaki Hirano¹⁾, Yukie Inoue¹⁾, Shunsuke Yahiro¹⁾, Hiromi Koyama²⁾

1) Kumamoto Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science

2) Northern Kumamoto Administrative Headquarters Kamoto Area Development Bureau, Yamaga, Japan

In 2021, an outbreak of food poisoning caused by *Clostridium botulinum* type C occurred in Kumamoto, Japan. Analysis of the isolated strain revealed that it possessed the bont/C gene and was slightly different from the reference bont/C gene. The risk for human infection with this new toxin type may be low.

アスベスト対策を目的とした解体等工事の立入検査における優先度設定手法の検討

クリーンテクノロジー Vol 33, No5, p.56(2023)

著者名 豊永悟史^{*1,2}, 古澤尚英^{*3,4}, 中島尚哉^{*2}, 山形卓^{*2}

^{*1}熊本県保健環境科学研究所, ^{*2}熊本県環境生活部環境局環境保全課, ^{*3}熊本県人吉保健所, ^{*4}熊本県宇城保健所

本研究では、施工業者への指導履歴にパレート分析を適用することで、立入の優先度を設定する手法を検討した。立入記録の指導項目を飛散リスクの高さで4段階に分類し、分類ごとにリスク係数を設定した。このリスク係数を施工業者別に集計したところ、集計値は施工業者間で30倍以上の違いが見られる結果となった。パレート分析の結果に基づき、施工業者をリスクの集計値が高い順にA～Cの3ランクに分類したところ、全体の約15%を占めるAランクの施工業者による飛散リスクが、飛散リスク全体の約50%を占めると推定された。以上のことから、これらの施工業者は、優先的な立入検査対象とすることが望ましいと考えられた。

3・4 学会・研究会発表抄録

3・4・1 所外における学会・研究会

多変量解析による解体等工事業者の特性評価：アスベスト対策への活用の試み

第64回大気環境学会年会 2023年9月13日～9月15日 産業総合技術研究所

発表者 豊永悟史^{*1}，古澤尚英^{*1}

^{*1}熊本県保健環境科学研究所

アスベスト対策のための自治体による解体・改修工事への立入検査に活用することを最終的な目的として，解体・改修業者から報告される工事情報に対して群集生態学的指標を試験的に適用した特性解析を行った。その結果，解体業者では工事を実施する建物の種類が，改修業者では工事を実施する地理的な範囲が工事件数の増減と強く関連していることが示され，異なる特性を有していることが示唆された。また，解体業者間のニッチ重複度指数は法令違反と関連している可能性が示された。

アスベスト対策を目的とした多変量解析を用いた解体等工事業者の特性評価

環境科学会2023年会 2023年9月7日～9月8日 神戸大学鶴甲第2キャンパス

発表者 豊永悟史^{*1}，古澤尚英^{*1}

^{*1} 熊本県保健環境科学研究所

本研究は，解体・改修業者から報告される工事情報に対して，群集生態学的手法を試験的に導入することで各業者の特性評価を試みた。結果として，解体業者と改修業者が異なる特性を有している可能性等が示された。また，解体業者における各指標と立入記録の比較により，ニッチ重複度指数と違反状況との関連性も示唆された。以上の結果は，群集生態学的手法の導入が解体・改修業者の特性やその違反との関連性を把握する上で有効な手段となり得ることを示している。

地方環境研究所の研究成果が行政施策に活用される要因と機序

—PM_{2.5}関連研究を例に—

2023年度環境情報科学研究発表大会 2023年12月18日 日本学会館

発表者 豊永悟史^{*}

^{*1}熊本県保健環境科学研究所

本研究では，PM_{2.5}関連研究を所管する地方環境研究所（以下，「地環研」）及び行政部署の職員を対象としたインタビュー調査を実施し，研究成果の行政活用メカニズムを明らかにすることを試みた。統合的な分析の結果，行政活用された研究には①政策一体型研究と②政策分離型研究の2種類が存在することが示された。①では政策過程の一部に研究過程が組み込まれており，②では両過程は基本的に分離していた。行政活用メカニズムとしては，①では研究の開始時点で活用が決定される「計画的活用」が観察された。②では研究成果を得た後で活用が模索され，活用の有無がタイミング等に依存する「機会的活用」が観察された。①の推進によって行政活用頻度や地環研の存在意義の向上が期待されるが，継続的に政策一体型研究を実施するための仕組みや，知識ブローカー等の人材を駆使していくことが必要と考えられる。

地方環境研究所における研究成果の行政施策への活用メカニズム

第58回日本水環境学会年会 2024年3月6日～8日 九州大学伊都キャンパス

発表者 豊永悟史*

*熊本県保健環境科学研究所

地方環境研究所（以下、「地環研」）の研究成果の行政施策への活用メカニズムを明らかにするために、PM_{2.5} 関連研究を担当する地環研及び行政部署の職員を対象としたインタビュー調査を実施した。インタビュー調査は Web 会議システムを用いた半構造化面接として行い、各部署の役割、各部署の体制、部署間の関係性、研究成果の行政活用状況等について聞き取りを実施した。調査結果を分析した結果、行政活用された研究には政策一体型研究と政策分離型研究の2種類が存在することが示された。政策一体型研究では政策過程の一部に研究過程が組み込まれており、行政活用メカニズムとしては研究の開始時点で活用が決定される「計画的活用」が観察された。政策分離型研究では両過程は基本的に分離しており、行政活用メカニズムとしては研究成果を得た後で活用が模索され、活用の有無がタイミング等に依存する「機会的活用」が観察された。

プロセスのパッケージ化による再現可能なデータ解析手法展開の実践報告

—光化学オキシダント空間濃度分布推計手法(RK 法)を事例として—

第24回大気環境学会九州支部研究発表会 2024年3月8日 アクロス福岡

発表者 古澤尚英*

*熊本県保健環境科学研究所

昨今、インターネット上には様々なオープンデータが公開されており、研究者による利用も進められている。オープンデータのデータ構造は、情報の内容や種類に最適化された状態で共有されているためデータ毎に異なっていることが多く、その利用に際しては研究者自らがデータを扱いやすい構造に変換する作業（データハンドリング）が必要となる。一般的にデータハンドリングは多くの時間を要する工程であり、特にデータハンドリングの経験が少ない研究者には大きな困難が伴う。

近年、地方自治体では、大気汚染常時監視測定局の配置の効率化等の検討が進められており、オープンデータを活用した大気汚染物質の空間濃度分布の予測に対するニーズが高まってきている。これらの検討は地方環境研究所（大気環境分野）が担う場合があるが、先に述べたデータハンドリングの困難さが検討を進める上での課題の一つとなっている。この課題の解決を目的として、筆者らは、データハンドリングやその後のデータ解析に係るプロセスを容易にする支援ツールの開発を行った。なお、この開発は国立環境研究所と地方環境研究所によるⅡ型共同研究「光化学オキシダント等の変動要因解析を通じた地域大気汚染対策提言の試み」の一環として行った。

統計データを用いた地下水中硝酸性窒素の変動要因の検討

第58回日本水環境学会年会 令和6年（2024年）3月6日～8日 九州大学伊都キャンパス

小原彬生*¹ 豊永悟史*¹, 廣畑昌章*¹, 小原大翼*²

*¹ 熊本県保健環境科学研究所, *² 熊本県環境生活部環境局環境保全課

硝酸性窒素及び亜硝酸性窒素（硝酸性窒素等）は、乳児にメトヘモグロビン血症を引き起こす原因と言われており、地下水における環境基準超過率の高さなどから全国的な政策課題となっているが、要因となる窒素負荷の種類と寄与の大きさはさまざまであり、対策が必要な地域に応じた現状把握が必要である。そこで本研究では、既存の統計データを活用し、硝酸性窒素等の濃度と窒素負荷量の空間的・経時的な変動を比較して解析することで、対策の参考となる情報を提供することを試みた。

熊本地域を対象に2007年から2021年までの地下水質測定結果を用いて解析を行った。硝酸性窒素

等濃度が 5mg/L を上回る地点から半径 500m 以内に別の 5mg/L を上回る地点が存在した場合、その地点の半径 1km を高濃度エリアとした。高濃度エリアの窒素負荷状況を把握するため、窒素負荷量を各統計データから原単位法で算出し、100m×100m メッシュの土地利用情報と対応させ、高濃度エリア内とエリア外で比較した。

高濃度エリアとして 18 地点が抽出され、高濃度エリア全体の平均窒素負荷量はエリア外と比較し約 1.8 倍となり、高濃度エリアでは窒素負荷量が高いことが示唆された。一方で個別の高濃度エリアにおける硝酸性窒素等濃度と窒素負荷量には明確な相関は見られなかった。今回の分析では窒素負荷に対する地下水濃度変動の経時的なずれや地下水流動の影響は考慮できていないため、今後は個別の地域における詳細な解析に取り組むことが重要と考えられる。

ダイヤルインシステムによる

各部室への直通電話のご案内

(市外局番 0964)

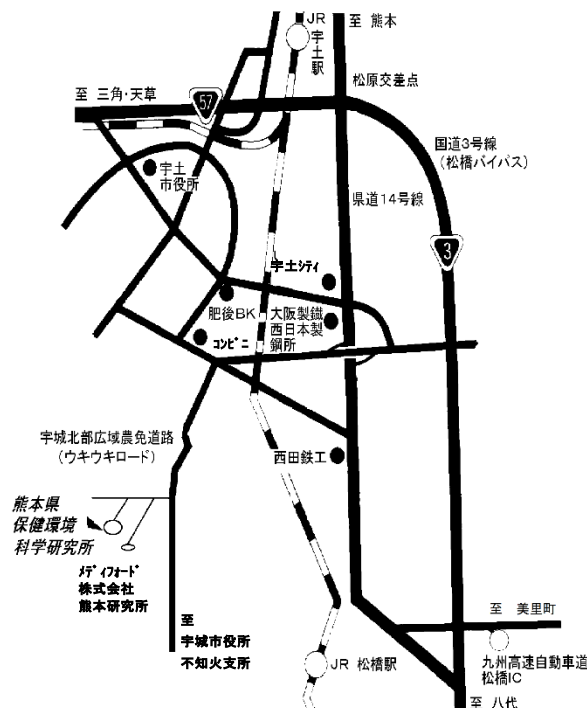
総務課 (代) 23-5771

微生物科学部 23-5794

生活化学部 23-5795

大気科学部 23-5924

水質科学部 23-5936



令和5年度版 所報編集委員会

委員長 榮田 智志

副委員長 松岡 和美

委員 井上 祐希 江

古澤 尚英

田村 香菜

永田 武史

熊本県保健環境科学研究所報

令和5年度 第53号
2023

編集

熊本県保健環境科学研究所

〒869-0425

熊本県宇土市栗崎町 1240-1

TEL (0964) 23-5771 (代)

熊本県保健環境科学研究所

〒 869-0425 熊本県宇土市栗崎町1240-1

TEL (0964) 23-5771 (代)

Kumamoto Prefectural Institute
of Public-Health and Environmental Science

1240-1 Kurizaki-machi, Uto City

Kumamoto 869-0425, Japan

発行者：熊本県

所属：保健環境科学研究所

発行年度：令和6年度（2024年度）