

**(1) 企画・管理担当**

企画・管理担当は、予算執行等の管理的業務とともに、調査研究に関する総合調整及び評価、衛生及び環境教育の技術指導に関する企画・調整、衛生及び環境情報の収集及び解析、研修指導及び精度管理に関する企画・調整、衛生及び環境に係る広報等を主な業務としている。

**ア 調査研究の調整及び評価****(ア) 内部評価委員会**

センターで実施する調査研究課題について、本庁関係課・室及びセンター職員で構成する内部評価委員会において、事前評価、中間評価、事後評価、追跡評価を実施する。また、試験検査業務の業務評価を行う。

**(イ) 外部評価委員会**

内部評価委員会で選定された調査研究課題について、有識者で構成する外部評価委員会で評価を行う。

**(ウ) 調査研究報告会**

年度内の調査研究結果の報告会を行う。

**イ 環境・衛生教育**

令和2年度は新型コロナウイルス感染症のため未実施となったが、6月の環境月間に例年地元の小学校3年生を対象に、実習や施設見学を通して環境や健康の大切さを学ぶ体験学習を行っている。

また、各種団体からの依頼による体験学習や研修の受け入れも行っている。

**ウ 情報の整備**

所内LANを構築し、同時に複数のクライアントからサーバ上のデータを利用することができるようになり、業務の効率化が図られている。

関係担当において、これまでに次のシステムを開発し、これらのシステムの改良やデータの更新等の運用・管理が行われている。

- ①温泉情報データベース
- ②公共用水域水質測定管理
- ③地下水水質測定管理
- ④大気常時測定結果管理

⑤酸性雨測定結果管理

⑥備品管理

⑦公用車予約管理

⑧会議室・分析機器の予約管理

**エ 広報**

広報誌「衛生環境研究センターだより」はトピックスとして「新型コロナウイルス感染症について」、調査研究の紹介として「高速液体クロマトグラフ質量分析装置（LC-MS/MS）による植物性自然毒の迅速一斉分析法の検討」などの内容を掲載しており、県内各保健所、市町村等関係機関に配布した。

また、衛生環境研究センターのホームページで、当センターの施設や業務の紹介、感染症情報等について情報提供している。また、調査研究課題、外部評価結果及び研修指導など、時期に応じて速やかに公表している。

(URL <http://www.pref.oita.jp/site/13002/>)

## (2) 化学担当

化学担当は、食品衛生法、食品表示法、医薬品、医療機器等の品質、有効性及び安全性に関する法律、有害物質を含有する家庭用品の規制に関する法律などに基づく行政検査や依頼検査のほか、それぞれの分野に関連した調査研究、研修指導等を主たる業務としている。

これらの業務の概要は、次のとおりである。

### ア 食品衛生に関する業務

#### (ア) 行政検査

食品衛生法に基づき食品・生活衛生課が策定した大分県食品衛生監視指導計画により、県特産食品、県内広域に流通する食品、輸入食品を重点に、以下の項目について、県下5ブロックの食品衛生監視機動班が収去・搬入した食品及び食中毒、違反・苦情食品の検査を行う。

##### a 残留農薬

県産あるいは輸入野菜・果物等に残留する農薬の検査を30検体で行った。また、一斉試験法の測定項目の拡大を随時検討し、現在では353項目379成分が測定可能である。

##### b 動物用医薬品（合成抗菌剤、抗生物質等）

市販されている食肉、鶏卵、養殖魚介類等に残留する合成抗菌剤及び抗生物質等の検査を60検体で行った。現在では100項目112成分が測定可能である。

##### c 食品添加物

市販されている県産の漬物等について、合成保存料（ソルビン酸、安息香酸等）や漂白剤、甘味料、発色剤の検査を50検体で行った。

##### d 特定原材料（アレルギー物質）検査

アレルギー物質7品目（乳、卵、小麦、そば、落花生、えび、かに）を使用している場合は、その旨を表示する義務がある。流通している食品で使用表示のない10検体について検査を行った。

### イ 家庭用品に関する業務

薬務室の行政検査として、有害物質を含有する家庭用品の規制に関する法律に基づき、市販の乳幼児用衣類おむつ、下着等に使用されているホルムアルデヒド及びアゾ化合物の残留量検査を20検体について行った。

### ウ 薬事に関する業務

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検査機関として、平成25年3月25日認定を受けた。

### エ 食品衛生検査施設における検査等の業務管理

（GLP：Good Laboratory Practice）

内部点検標準作業書（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。

#### (ア) 外部精度管理

食品衛生外部精度管理事業として、食品薬品安全センター秦野研究所が実施している外部精度管理に参加し、食品添加物（ソルビン酸）、動物用医薬品（スルファジミジン）及び農薬3成分（アトラジン、クロルピリホス、フルトラニル）について精度管理を実施している。

#### (イ) 妥当性評価

平成22年12月24日、厚生労働省部長通知を受け、以下食品について終了している。

##### ・動物用医薬品

牛肉、豚肉、鶏肉、鶏卵、ハマチ、エビ、サケ、ヒラメ

##### ・残留農薬

かぼす、きゅうり、トマト、だいこんの根、レモン、さつまいも、日本なし、おどろ、なす、ピーマン、バナナ、ねぎ

### オ 調査研究

#### ・LC-MS/MSを用いたヒスタミン分析法の検討

#### ・生体試料中のフグ毒テトロドトキシン分析法の検討

表1 令和2年度業務実績（化学担当）

項 目	区 分	検 体 数	成 分 数
総 件 数		385	30,506
◎行 政 検 査			
食品衛生	残留農薬	30	11,370
	動物用医薬品	60	6,720
	食品添加物	50	380
	アレルギー物質	10	20
	シアン化合物		
	食中毒	36	1,412
	違反・苦情食品	3	3
	スクリーニング		
	計	189	19,905
薬事衛生			
家庭用品		20	145
小 計		209	20,050
◎依 頼 検 査			
食品衛生			
小 計		0	0
◎調 査 研 究			
残留農薬・動物性医薬品			
遺伝子検査			
危機管理対策		38	148
食品添加物			
家庭用品			
小 計		38	148
◎精度管理・妥当性評価		138	10,308
小 計		138	10,308

### (3) 微生物担当

微生物担当の業務は、細菌、ウイルス、リケッチア及び血清免疫学等に関する各分野の行政検査、委託業務検査、依頼検査、調査研究並びに検査技術の研修・指導などである。

行政検査では、感染症、食中毒、収去食品等の検査、公共用水域や海水浴場等の水質検査、公衆浴場水等のレジオネラ属菌検査、特定性感染症（クラミジア、エイズ等）の検査及び保健所からの依頼による検査を行っている。

委託業務検査では、厚生労働省の感染症流行予測事業、大分市（中核市）との委託契約に基づく食品等の微生物学的検査及び検疫所との委託契約に基づく検疫感染症検査を行っている。

依頼検査では、つつが虫病の血清学的検査などを行っている。

調査研究では、感染症・食中毒の動態及び疫学に関する研究や新しい検査方法の開発・導入に関する研究等に取り組んでおり、その一部は国や他の地方衛生研究所等との共同研究（分担研究、研究協力を含む）である。

研修・指導業務では、主に保健所の検査担当者を対象とした検査実技等の研修を行うとともに、「大分県試験検査精度管理事業実施要綱」に基づき微生物部門の精度管理を実施している。また、「大分県衛生環境研究センター研修生取扱要綱」に基づき県内の臨床検査技師専門学校の臨地実習等を行っている。

このほか、県健康づくり支援課内に設置されている大分県感染症情報センターに対して、感染症情報の収集・解析・還元等の業務支援を行っている。

#### ア 感染症

「感染症の予防及び感染症の患者に対する医療に関する法律」に基づき実施している大分県感染症発生動向調査事業における全数把握疾病について、2020年は、結核168人、腸管出血性大腸菌感染症32人、E型肝炎4人、A型肝炎1人、コクシジオイデス症1人、重症熱性血小板減少症候群7人、つつが虫病20人、日本紅斑熱2人、レジオネラ症14人、アメーバ赤痢4人、ウイルス性肝炎1人、カルバペネム耐性腸内細菌科細菌感染症15人、急性脳炎11人、クロイツフェルト・ヤコブ病1人、劇症型溶血性レンサ球菌感染症8人、後天性免疫不全症候群12人、侵襲性

インフルエンザ菌感染症1人、侵襲性肺炎球菌感染症4人、水痘（患者が入院を要すると認められるものに限る。）6人、梅毒33人、播種性クリプトコックス症2人、バンコマイシン耐性腸球菌感染症4人、百日咳114人の報告があった。なお、2020年2月から新型コロナウイルス感染症が全数把握の指定感染症として定められ720人が報告された。

腸管出血性大腸菌感染症32人の原因菌の血清型（ベロ毒素型）は、O157（VT1,2）が8人、O157（VT2）が6人、O103（VT1）が6人、O26（VT1）が4人、OUT（VT1）が4人、OUT（VT2）が2人、O146（VT2）が1人、OUT（VT1,2）が1人であった。このうち、集団的発生は、ある保育園で発生したOUT（VT1）の4人と別の保育園でのO157（VT1,2）の2人であり、それ以外は家庭内感染または散発事例であった。

当所では同調査事業の一環として、検査定点で採取した臨床検体からの原因微生物検索を行っているが、2020年は新型コロナウイルス感染症の検査対応に忙殺され、3月11日から7月6日までの検体受付を中止した。その後、ウイルス検査は再び8月以降の受付を中止した。細菌関係は主に溶血性レンサ球菌感染症及び感染性胃腸炎の検体を検査している。2020年は、溶血性レンサ球菌感染症では76検体を検査し、25検体（33%）からA群溶血性レンサ球菌を分離した。T型別は、多い順にT-4型（14）、T-1型（4）、T-12型（4）、T-9型（1）、型別不能が2株であった。細菌性感染性胃腸炎では、112検体を検査し、56検体（50%）から下痢症起因細菌を検出した。その内訳はサルモネラが28株と多く、次いで病原性大腸菌24株、その他が10株であった。ウイルス関係は、4ヶ月分だけだが、インフルエンザ様疾患、無菌性髄膜炎等の患者材料（咽頭拭い液、脊髄液、糞便等）53検体を検査し、11検体（21%）から7種13件のウイルスを検出した。検出されたのは、インフルエンザウイルスAH1pdmが4件、アデノウイルス3型が3件、ヒトヘルペスウイルス5型が2件、ライノウイルス、RSウイルス、ヒトヘルペスウイルス1型及びヒトヘルペスウイルス6型が各1件であった。

麻しんおよび風しんについては、排除状態の達成と維持のため、健康づくり支援課（現、感染症対策課）の通知に基づき、感染が強く疑われる患者全員の麻しん及び風しんPCR検査を実施している。2020年は7名14検体（大分市からの依頼含む）の検査を

実施し、麻しん及び風しんウイルスは不検出であった。

新型コロナウイルスについては、2020年2月から検査を開始し、同年末までに10,076検体を検査した。

## イ 食中毒

2020年に微生物による食中毒が疑われた検査は6事例（他自治体からの依頼も含む）で、例年より少なかった。この内、細菌・寄生虫関係では4事例を検査し、EAST1遺伝子保有大腸菌O7を1事例（海藻サラダの原材料）、*Kudoa septempunctata*を1事例（患者便と天然ヒラメ）で検出した。ウイルス関係では3事例（細菌検査と重複あり）を検査し、2事例からノロウイルスGIIを検出した。

調査の結果、検査事例のうち、ノロウイルス1事例、クドア1事例の計2事例が微生物を原因とする食中毒事件と断定され（他県事例を除く）、残りは感染症や原因不明事例とされた。

## ウ 感染症流行予測事業

厚生労働省の感染症流行予測事業に基づき、県産豚の血液を対象に日本脳炎の感染源調査を行ったところ、7月29日に最初のHI抗体保有豚が確認された。また、日本脳炎汚染地区の判定基準であるHI抗体保有率50%以上を超えたのは8月26日であった。

## エ インフルエンザ

2019/2020シーズンは、2019年第52週をピークとし、2020年第10週に終息した。2020/2021シーズンは、流行のないまま終わった。2020年の年間定点当たりの報告数は119.09人で、例年と比べ（4分の1程度）非常に少なかった。

2019/2020シーズンに提出された患者の検体からはAH1pdm09のみが検出された。

## オ 食品検査

大分県食品衛生監視機動班等が収去した食品80検体について、食中毒起因菌及び抗生物質等を検査した。食用肉では40検体中、黄色ブドウ球菌が6件、サルモネラ属菌が4件、カンピロバクターが2件、毒素原性大腸菌（ETEC）が1件検出された（重複検出2検体）。鶏卵10検体についてサルモネラ属菌と抗生物質、養殖魚介類20検体について抗生物質の検

査を行い、全て不検出であった。県産ミネラルウォーター10検体の検査では、1検体から原水の基準である100cfu/mLを超える一般細菌数が検出された。

## カ 水の検査

2020年度は、水質汚濁防止法等に基づく公共用水域の環境水を301検体、公衆浴場水41検体の微生物検査を実施した。公衆浴場水では41検体中19検体（46%）からレジオネラ属菌が検出された。内訳は「掛け流し施設」では浴槽水12検体中8検体（67%）、湯口水11検体中5検体（46%）で、「循環式施設」では浴槽水6検体中1検体（17%）、湯口水6検体中3検体（50%）、「非循環式施設」では浴槽水3検体中2検体（67%）、湯口水3検体中0検体（0%）であった。

## キ 血清学的検査等

（ア）リケッチアに対する抗体検査

本県におけるつつが虫病患者は例年10月から11月を中心に発生しているが、2020年度は疑い患者の血清22検体について検査依頼があり、6検体が有意の抗体上昇を示して、つつが虫病と診断された。

（イ） HIV抗体等の検査

「大分県HIV抗体検査実施要領」に基づくHIV抗体の確定検査等は0件であった。また、「福祉保健部及び生活環境部医療従事者等職員のB型肝炎感染防止対策実施要綱」による保健所職員等のHBs抗原・抗体について、各91検体計182成分の検査を実施した。2007年度から大分県特定感染症検査事業としてクラミジアとC型肝炎ウイルス（HCV）の検査を実施しているが、2020年度はクラミジアPCR検査を71件実施し陽性2件、HCV検査は0件であった。

## ク 調査研究

細菌関係において、レジオネラ属菌の検査法の研究課題等に取り組んだ。

## ケ 研修指導

保健所や食肉衛生検査所の検査担当者を主体に、検査業務に関する精度管理を実施した。なお、例年実施していた臨床検査技師専門学校の学生や大学生に対しての臨地実習は、新型コロナウイルス感染症流行の影響を受けて希望者がなかった。

表2 令和2年度業務実績（微生物担当）

項 目	区 分	検 体 数	成 分 数
総 件 数		17,013	34,672
◎行政検査			
（病原体分離・同定・検出）			
感染症		14,567	30,184
食中毒		44	283
食品		81	245
水質検査		342	506
その他			
（血清検査）			
エイズ			
B型肝炎		182	182
その他（C型肝炎等）			
小 計		15,216	31,400
◎委託業務検査			
感染症流行予測調査		160	240
食中毒・食品・血清等（大分市）		254	518
小 計		414	758
◎依頼検査			
（病原体分離・同定・検出）			
飲用水		1	2
（血清検査）			
つつが虫病		22	220
小 計		23	222
◎調査研究			
共同研究		954	1,269
感染症疫学調査研究		182	599
食中毒病原体調査研究		194	275
検査法開発導入調査研究			
小 計		1,330	2,143
◎精度管理			
小 計		30	149
小 計		30	149

#### (4) 大気・特定化学物質担当

大気・特定化学物質担当は、大気汚染や悪臭等の環境保全対策に資するため、法律等に基づく行政検査、委託検査業務並びに調査研究業務を主たる業務としている。

##### ア 行政検査

###### (ア) 大気汚染の常時監視

大気汚染防止法に基づき、昭和46年度からテレメータシステムで監視を行っている。令和2年度は、大気汚染状況の常時監視を県内10か所においてオンラインシステムで二酸化硫黄、窒素酸化物、浮遊粒子状物質、光化学オキシダント、微小粒子状物質（PM2.5）及び風向・風速を測定している。

平成27年10月からは2地点で微小粒子状物質の成分分析を開始している。

###### (イ) 交通環境・一般環境の大気測定調査

常時監視測定局が設置されていない道路沿道などの地域の大气汚染物質濃度（二酸化硫黄、窒素酸化物、浮遊粒子状物質、一酸化炭素、光化学オキシダント）の実態を把握するため行った。

###### (ウ) 有害大気汚染物質調査

大気汚染防止法に基づき、平成9年度から一般環境等における揮発性有機化合物（VOC）等の有害大気汚染物質についてモニタリング調査を行っている。令和2年度は、行政検査により5市の一般環境等において調査を行った。

###### (エ) 浮遊粉じん調査

浮遊粉じんによる大気の汚染状況を把握するため、令和2年度は、行政検査により重金属成分等の調査を1市の固定発生源周辺で行った。

###### (オ) 悪臭物質等調査

悪臭等防止対策の資料とするため、令和2年度は、旧産業廃棄物最終処分場1か所におけるアンモニア、硫黄化合物等の調査を行った。

##### イ 委託検査業務

###### (ア) 環境放射能調査

放射能のバックグラウンドを測定し、環境放射能の水準を把握するため、文部科学省（現在は原子力規

制庁）の委託を受け、昭和62年度から調査を行っている。令和2年度も引き続き、定時降水中のβ線や、モニタリングポストにより空間放射線量率の測定を行うとともに、大気浮遊じん、降下物、土壌、野菜、牛乳等のγ線を測定し、環境中に存在する放射性核種の調査を行った。

###### (イ) 化学物質環境実態調査

平成25年度から環境省の委託を受けて、環境リスクが懸念される化学物質の大気環境中の量を調査している。その結果は、「特定化学物質の環境への排出量の把握等及び管理の改善の促進に関する法律」の「指定化学物質」及びそれ以外の化学物質に係る施策の基礎資料等として利用されている。

##### ウ 精度管理

令和2年度は酸性雨測定（全環研）に関する分析機関間比較調査、原子力規制庁委託環境放射能水準調査に関する精度管理、国際原子力機関（IAEA）の海水の放射能分析についての精度管理事業に参加した。

##### エ 調査研究

###### (ア) 酸性雨調査

平成3年度から全国環境研協議会の酸性雨全国調査に参加している。

また、県内における酸性雨の実態と推移の把握を目的として、大分市において昭和60年度から継続的に調査を行っている。

###### (イ) PM2.5の新たな指標成分の測定方法の検討

大分県では、常時監視測定局でPM2.5濃度を測定しているが、環境基準を超えているため平成27年10月から成分分析を行い、発生源を推定するための研究を行っている。平成30年からは調査研究としてPM2.5発生源推定のための新たな指標成分であるケイ素およびレボグルコサンに係る測定方法の検討を始めた。

###### (ウ) 大分県における大気中フロンに係る測定方法の検討

令和元年度から一般大気環境中のフロン類の濃度を測定する方法についての検討を行っている。

###### (エ) 国立環境研究所との共同研究

令和元年度から「PM2.5の広域的汚染機構の解析」に参加している。

表3 令和2年度業務実績（大気・特定化学物質担当）

項目	区 分	検 体 数	成 分 数
総 件 数		1,133	34,235
◎行政検査			
大気汚染常時監視		120	25,302
PM2.5成分分析調査		448	5,152
交通環境・一般環境調査		5	840
有害大気汚染物質調査		216	876
浮遊粉じん調査		12	60
悪臭物質等調査		2	46
その他		4	48
小 計		807	32,324
◎委託業務検査			
環境放射能調査（原子力規制庁）		167	253
小 計		167	253
◎依頼検査			
小 計		0	0
◎調査研究			
酸性雨調査		89	790
フロン類調査		60	700
小 計		149	1,490
◎精度管理			
酸性雨調査		2	20
放射能調査		8	148
小 計		10	168

## (5) 水質担当

水質担当は、水質汚濁防止法、廃棄物処理法、温泉法に基づく行政検査、委託業務検査、依頼検査並びに調査研究を主たる業務としている。

### ア 行政検査

(ア) 測定計画による調査（公共用水域及び地下水の水質調査）

公共用水域の水質測定は、昭和46年度から水質汚濁防止法に定める測定計画に基づいて実施している。令和2年度は、県担当分の39河川58地点、2湖沼6地点において生活環境項目（9項目）、健康項目（26項目）、要監視項目（24項目）、水生生物保全項目（3項目）、特定項目（1項目）、特殊項目（2項目）及びその他項目（8項目）について年1～12回の測定を行った。

また、地下水の水質測定は、測定計画に基づき県担当分の59井戸において環境基準項目（27項目）、要監視項目（23項目）及びその他項目（7項目）について年1～2回の測定を行った。

(イ) 海水浴場水質調査

県下の主要海水浴場（年間利用者数が、おおむね1万人以上）の水質の現況を把握するとともに、その結果を公表して住民の利用に資することを目的として、昭和47年度から実施している。

令和2年度は、6か所について、遊泳期間前2回、遊泳期間中1回調査を実施した。

(ウ) 工場・事業場排水監視調査

水質汚濁防止法及び瀬戸内海環境保全特別措置法に基づく規制対象工場・事業場の排水監視のため、水質測定を行っている。

令和2年度は、生活環境項目、健康項目等について、203検体、1,123成分の水質測定を行った。

(エ) 廃棄物処理施設等維持管理状況等調査

廃棄物及び清掃に関する法律に基づき県が指導・監督を行っている産業廃棄物処分場等の維持管理指導のため、水質測定を行っている。

令和2年度は、金属等の有害物質を中心に排出される放流水、浸透水及び地下水等について、101検体、1,839成分の水質測定を行った。

(オ) 温泉資源監視基礎調査

平成13年度から、温泉資源の現状を把握し、実施してきた保護対策の効果を見守るために県が実施している温泉資源監視基礎調査事業に基づき、実施している。

令和2年度は、温泉資源を保護するために指定した保護地域等において34点（大分市、別府市、日田市、竹田市、由布市、九重町）の泉源において、年1回、泉温、遊離二酸化炭素等の現地試験や試験室において密度、ナトリウム等の化学成分の試験を34検体、延べ1,672成分にわたり行った。

(カ) その他

測定計画外の公共用水域・地下水の水質調査等の分析を22検体、延べ163分実施した。

### イ 委託業務検査

(ア) 瀬戸内海広域総合調査

瀬戸内海全域にわたって、ほぼ同時期に調査を行い瀬戸内海の水質状況を的確に把握するための調査で、環境省の委託を受け、昭和47年度から調査を行っている。

令和2年度は、春季、夏季、秋季、冬季の年4回、15地点の表層水、底層水を現地船上において採水、水温等の測定、試験室において生活環境項目、クロロフィル a、栄養塩類等を延べ118検体、2,164成分の検査を行った。

(イ) 化学物質環境実態調査

環境リスクが懸念される化学物質について、特定化学物質の環境中への排出量の把握及び管理の改善の促進に関する法律の指定化学物質の指定、その他化学物質による環境リスクに係る施策について検討する際の暴露の可能性について判断するための基礎資料等とするための調査で環境省の委託を受け、平成2年度から調査を行っている。

令和2年度は、秋季（10月）に1回、大分川河口域の船上で採水、採泥及び水温の現場測定等を行った。また、水中の化学的酸素要求量等の一般項目や底泥中の硫化物濃度の測定を行うとともに、冬期（1月）には魚体の脂質重量等を測定し、計7検体67成分の測定を行った。

なお、化学物質の分析は、環境省委託分析機関で実施した。

## ウ 依頼検査

### (ア) 温泉分析

令和2年度は、一般からの依頼により10検体497成分の鉱泉分析試験（中分析試験）及び1検体3成分の飲用試験を行った。

事業場の排水監視計画に基づき、事業場排水の水質について、化学的酸素要求量（COD）等の項目を測定するとともに、TOCについても併せて測定を実施し、他の水質項目との相関を調査した。

### (イ) 国立環境研究所との共同研究

令和2年度は、「災害時等の緊急調査を想定したGC-MSによる化学物質の網羅的簡易迅速測定法の開発」に参加した。

## エ 調査研究

### (ア) 事業場排水等に係る全有機炭素（TOC）の調査

表4 令和2年度業務実績（水質担当）

項目		区分	検体数	成分数
総件数			1,778	17,514
◎行政検査				
測定計画による調査			546	8,982
海水浴場調査			66	132
事業場監視調査			203	1,123
産業廃棄物処理施設等維持管理状況等調査			101	1,839
温泉分析	中分析試験		34	1,672
	うち飲用試験			
	可燃性ガス測定			
その他			40	330
小計			990	14,078
◎委託業務検査				
瀬戸内海広域総合調査			118	2,164
化学物質環境実態調査			7	67
小計			125	2,231
◎依頼検査				
温泉分析	中分析試験		10	497
	うち飲用試験		1	3
	可燃性ガス測定			
その他			30	60
小計			40	557
◎調査研究				
水環境保全・温泉に関する調査研究			632	642
小計			632	642
◎精度管理				
環境測定分析統一精度管理調査			1	6
その他				
小計			1	6

## 8

## 研修状況

## (1) 衛生環境研究センター主催による研修

研修名等	研修等の概要	期間	参加者数	実施担当
	なし（企画）			

## (2) 研修生等の受入状況

研修名	所属	研修者	期間	参加者数	実施担当
SSH研究機関訪問研修	大分県立佐伯鶴城高校	2年生 3年生	R2.11.10	17	企画・管理、化学、微生物、大気・特定化学物質、水質
新型コロナウイルス感染症検査	大分市保健所	衛生課 衛生検査担当班	R2.5.26	2	微生物
新型コロナウイルス感染症（変異株検出）検査	大分市保健所	衛生課 衛生検査担当班	R3.3.22	2	微生物
大分県庁学生インターンシップ	県立広島大学、熊本大学、高知工科大学、別府大学、岡山大学	環境、化学等学部生、院生	R2.8.25-26 R2.8.31-9.1	5	企画・管理、化学、水質
農薬測定研修	大分県科学捜査研究所	職員	R2.6.15-17	1	化学

## (3) 研修参加状況

研修内容	参加先	参加職員		期間
		担当	氏名	
令和2年度光化学オキシダント自動計測器の校正に係る研修	福岡県保健環境研究所（太宰府市）	大気・特定化学物質担当	道野 慎吾	R2.10.9
令和2年度Agilent GC/MS MassHunterデータ解析入門 定性Ver.10	アジレントテクノロジー 芝浦オフィス（東京都港区）	大気・特定化学物質担当	道野 慎吾	R2.11.5~11.6
環境放射能分析研修（緊急時におけるガンマ線スペクトル解析法）	公益財団法人日本分析センター（リモート）	大気・特定化学物質担当	末松 久枝	R2.12.15~12.17
令和2年度地域保健総合推進事業に基づく地方衛生研究所地域レファレンスセンター連絡会議	Web開催（担当：沖縄県）	微生物担当	岡崎 嘉彦	R2.10.16
新型コロナウイルス感染症に係る検体採取及びPCR研修会	大分県医師会館	微生物担当	高野 真実	R2.11.8
令和2年度希少感染症診断技術研修会	Web開催（国立感染症研究所）	微生物担当	林 徹 高野 真実	R2.12.22 R3.2.9~2.10
レジオネラweb研修会	Web開催（関東化学(株)福岡支店）	微生物担当	高野 真実	R3.1.27
令和2年度検査機関に対する検査能力・精度管理等の向上を目的とした講習会（ウイルス検査）	Web開催（国立感染症研究所）	微生物担当	池田 稔	R3.3.15~3.19
令和2年度遠隔参加型分析実習 Aコース農薬（GC/MS）	環境省環境調査研修所（リモート）	水質担当	安藤 佐和乃	R2.10.26~11.24
令和2年度遠隔参加型分析実習 Cコース金属類（ICP-MS）	環境省環境調査研修所（リモート）	水質担当	安藤 佐和乃	R3.1.25~2.15

## (1) 調査・事例

- 1) LC-MS/MSを用いたヒスタミン等不揮発性アミン類の一斉分析法の検討 ..... 31
- 2) PM2.5発生源推定のための指標成分に係る測定方法の検討 ..... 36
- 3) 公共用水域におけるPFOS及びPFOAの測定 ..... 43
- 4) 事業場排水等に係る全有機炭素（TOC）の調査 ..... 48

# LC-MS/MSを用いたヒスタミン等不揮発性アミン類の一斉分析法の検討

武田 亮、森 智貴\*、鷲野 美希、廣田 梓、松原 輝博

## Studies on simultaneous analysis method for non-volatile amines such as histamine by LC-MS/MS

Ryo Takeda, Tomoki Mori, Miki Washino, Azusa Hirota, Teruhiro Matsubara

Key word：不揮発性アミン類Non-volatile amines、ヒスタミンHistamine、食中毒Food poisoning

### 要 旨

高速液体クロマトグラフ質量分析装置（以下、LC-MS/MS）を用いたヒスタミン等不揮発性アミン類の一斉分析法について、前処理方法と装置の測定条件を検討し、検査体制を確立した。実際の検体での前処理及び標準品を用いた添加回収試験を実施し、検査方法の実用性を確認することができた。

### はじめに

ヒスタミン食中毒とは、常温放置等の不適切な管理によって不揮発性アミン類であるヒスタミン等が多く蓄積された魚介類やその加工品を喫食した場合に生じるアレルギー様の食中毒である。当県においても、ヒスタミンを原因とする食中毒事例が散発しており、当該事例においては高速液体クロマトグラフ（以下、HPLC）や簡易測定キットによる分析を実施している。しかしながら、HPLCは操作が煩雑で分析に時間がかかること、また、簡易測定キットは使用期限があり常に更新して備える必要があるうえ、分析できるのはヒスタミンのみであるという問題点がある。

このため、ヒスタミンを含む不揮発性アミン類について、迅速に定性及び定量分析できる体制を整備しておく必要があると考え、本研究に取り組んだ。

### 方 法

#### 1 試料

試料は、いずれも包丁またはフードプロセッサーで細切、均一化したうえで冷凍保存したものを、解凍して使用した。

##### (1) 添加回収用

市販の鮮魚(イワシ)の筋肉部位

##### (2) 実検体

ヒスタミン食中毒疑い事例で搬入されたイワシ丸干しの筋肉部位

#### 2 対象項目及び標準品・試薬等

測定対象とした項目及び標準品として使用した試薬は以下のとおり。なお、ヒスチジンはヒスタミンの前駆物質であり、不揮発性アミン類には含まれないが、含有量をモニタリングするため分析対象とした。

##### ①ヒスタミン(HIS)：

ヒスタミン二塩酸塩（富士フィルム和光純薬、和光特級）

##### ②カダベリン(CAD)：

カダベリン二塩酸塩（関東化学、鹿特級）

##### ③チラミン(TYM)：

チラミン塩酸塩（関東化学、鹿特級）

##### ④スペルミジン(SPD)：

スペルミジン（富士フィルム和光純薬、生化学用）

##### ⑤プトレシン(PUT)：

1,4-ブタンジアンモニウムジクロリド（富士フィルム和光純薬、>99.0%）

##### ⑥ヒスチジン(HID)：

L-ヒスチジン（富士フィルム和光純薬、和光特級）

アセトニトリルは残留農薬試験用、ギ酸はLC/MS用、ギ酸アンモニウムは和光特級、塩酸は1mol/L容量分析用、PTFE製メンブランフィルターはDIS-MICフィルター（13HP045AN）を用いた。

\* 大分県環境保全課

### 3 標準溶液及び検量線

各標準品を不揮発性アミン類の濃度として1,000  $\mu\text{g}/\text{mL}$ となるよう、それぞれ0.1mol/L塩酸に溶解し、標準原液とした。

各標準原液 (1,000  $\mu\text{g}/\text{mL}$ )を混合し、混合標準液 (100  $\mu\text{g}/\text{mL}$ )を調製した。これを精製水で希釈したものを検量線用標準液とし、1ng/mL~100ng/mLの7点検量線を作成した。

### 4 前処理

茶屋らの報告<sup>1)</sup>を参考に、図1に示す方法で実施した。

試料1.0gに25mLの精製水を加え、ホモジナイズ (10,000rpm、1分間)し、シャフトを15mLの精製水で洗浄した後、精製水で50mLに定容した。その後、遠心分離 (3,000rpm、5分間)し、上清1mLを分取し、0.1%ギ酸アセトニトリル4mLを加え、ボルテックスで攪拌した。その後、さらに遠心分離 (3,000rpm、5分間)し、上清0.5mLを分取し、精製水で10mLに定容し、メンブランフィルターでろ過したものを試験溶液とした。

なお、ヒスタミン等の不揮発性アミン類はガラスに吸着する可能性があることから、使用する器具は可能な限りプラスチック製のものを用いた。



図1 操作フロー

### 5 装置及び測定条件

表1に装置の測定条件を、表2にMSにおける成分ごとの測定条件を記載する。

表1 装置及び測定条件

LC条件	
装置	: Agilent社製 1260Infinity II
分析カラム	: Merck社製 ZIC®-pHILIC(5 $\mu\text{m}$ 、2.1×100mm)
カラム温度	: 40°C
移動相	: (A液)0.45%ギ酸60mMギ酸アンモニウム (B液)アセトニトリル %B...67%
測定時間	: 20min.
流速	: 0.2mL/min.
注入量	: 5 $\mu\text{L}$
MS条件	
装置	: AB Sciex社製 QTRAP4500
イオン化法	: ESI(+)
測定モード	: MRM

表2 MS測定条件

測定成分	Q1 (m/z)	Q3 (m/z)	DP (V)	CE (V)
ヒスタミン	111.994	94.7	36	21
カダベリン	103.020	86.1	26	13
チラミン	137.963	120.9	31	15
スベルミジン	146.120	72.1	36	19
プトレシン	89.069	72.0	16	13
ヒスチジン	155.999	110.1	11	17

### 6 添加回収試験

1.(1)の添加回収用試料に100  $\mu\text{g}/\text{mL}$ の混合標準液を添加し、抽出操作を実施した。添加回収は、検体換算で100  $\mu\text{g}/\text{g}$ となるよう添加したもの (高濃度)と、10  $\mu\text{g}/\text{g}$ となるよう添加したもの (低濃度)をそれぞれ、n=5で実施した。また、対照として試料に混合標準液を加えずに抽出操作を行うものをn=1で実施した (以下、SBL)。

評価について、高濃度は1ng/mL~100ng/mLの7点検量線を、低濃度は1ng/mL~10ng/mLの4点検量線を、それぞれ用いた。

なお、ヒスチジンはヒスタミン生成の前駆物質であり食中毒の直接の原因物質ではないこと、SBLから高濃度で検出され回収率が計算できなかったことから評価対象から除外した。

### 7 実検体の定量

1.(2)の実検体試料について抽出操作をn=5で実施した。

なお、当該検体は高濃度のヒスタミンが検出される可能性が高いことから、試料液を精製水で20倍に希釈して測定した。また、対照として6のSBLについて、同様に試料液を精製水で20倍に希釈したものを併せて測定した。

## 結 果

### 1 不揮発性アミン類の検出

測定対象とした項目のうち、スペルミジンのみピークを確認することができなかったが、その他の5項目は、いずれもピークが確認された。

100ng/mLの標準液を測定した際の各物質のクロマトグラフを図2に示す。

### 2 検量線の直線性

ヒスタミン、カダベリン、チラミンについては1~100ng/mL、プトレシンについては1~50ng/mL、ヒスチジンについては2~100ng/mLの範囲で相関係数0.995以上の良好な直線性が得られた。

なお、ヒスチジンについては、1ng/mLでは明瞭に分離したピークが認められなかった。

### 3 定量限界

各項目の検量線の最低濃度において、SN比を求めたところ、全てSN $\geq$ 10を満たしており、検量線の範囲で定量可能であることが確認できた。

試料溶液を希釈せずに測定した場合、検体換算での定量限界はヒスタミン、カダベリン、チラミン、プトレシンは5 $\mu$ g/g、ヒスチジンは10 $\mu$ g/gとなる。

### 4 添加回収試験結果

各項目のn=5での添加回収試験の結果を表3に示す。

なお、SBLには定量限界以上となるヒスタミン、カダベリン、チラミン、プトレシンは検出されていないが、ヒスチジンは、検量線の最高濃度を大幅に超過する濃度で検出されている。このため、ヒスチジンについては回収率を計算することができなかった。

ヒスタミン、カダベリン、プトレシンは高濃度、低濃度ともに回収率平均が70~120%の範囲内となったが、チラミンは、高濃度、低濃度ともに回収率平均が70%を下回った。

変動率は、いずれの項目も高濃度、低濃度ともに10%以下となった。

表3 添加回収試験結果

測定成分	添加量 ( $\mu$ g/g)	検体数	回収率 (%)	回収率平均 (%)	変動率 (%)
ヒスタミン	10	5	84.9 ~ 105.2	91.3	7.82
	100	5	72.0 ~ 80.9	75.3	4.67
カダベリン	10	5	90.1 ~ 109.7	98.7	6.68
	100	5	75.0 ~ 84.6	79.9	4.26
チラミン	10	5	58.7 ~ 70.3	64.3	6.34
	100	5	52.8 ~ 59.8	56.6	4.13
プトレシン	10	5	71.3 ~ 87.6	80.9	6.70
	100	5	78.2 ~ 86.6	83.0	3.97

### 5 検体の定量結果

実検体及びSBLにおける各項目の定量結果を表4及び表5に示す。

実検体においてヒスタミン、カダベリン、チラミンが定量限界以上の濃度で検出された。プトレシン、ヒスチジンは定量限界以下であった。なお、試料液を希釈して測定したことから、定量限界はヒスタミン、カダベリン、チラミン、プトレシンで100 $\mu$ g/g以下、ヒスチジンで200 $\mu$ g/g以下である（いずれも検体換算）。

SBLにおいては、ヒスタミン、カダベリン、チラミン、プトレシンはいずれも定量限界以下であり、ヒスチジンのみが定量限界以上の濃度で検出された。SBLを希釈せずに測定した結果では、ヒスチジンが検量線の最高濃度を大幅に超過することから、20倍希釈での測定結果を用いてヒスチジンの含有量を計算した。

なお、定量限界は、ヒスタミン、カダベリン、チラミン、プトレシンで5 $\mu$ g/g以下、ヒスチジンで10 $\mu$ g/g以下である（いずれも検体換算）。

表4 実検体試料測定結果

測定成分	検体数	希釈倍率	測定値 (ng/mL)	検体換算 ( $\mu$ g/g)	変動率 (%)
ヒスタミン	5	20	26.0(24.3~29.1)	2,600	6.33
カダベリン	5	20	8.9(8.4~9.6)	890	4.39
チラミン	5	20	2.3(2.1~2.5)	230	5.95
プトレシン	5	20	N.D.( $<$ 1)	N.D.( $<$ 100)	—
ヒスチジン	5	20	N.D.( $<$ 2)	N.D.( $<$ 200)	—

表5 SBL試料測定結果

測定成分	検体数	希釈倍率	測定値 (ng/mL)	検体換算 ( $\mu$ g/g)
ヒスタミン	1	1	N.D.( $<$ 1)	N.D.( $<$ 5)
カダベリン	1	1	N.D.( $<$ 1)	N.D.( $<$ 5)
チラミン	1	1	N.D.( $<$ 1)	N.D.( $<$ 5)
プトレシン	1	1	N.D.( $<$ 1)	N.D.( $<$ 5)
ヒスチジン	1	20	33.5	3,400

## 考 察

実際の食中毒疑いの検体及び標準品を用いた鮮魚への添加回収試験により、検討した前処理及び測定方法を用いてヒスタミンを含む複数の不揮発性アミン類を迅速に定量することが可能であることを確認できた。

食中毒疑いの検体から高濃度のヒスタミンが検出できたこと及びヒスタミンを5 µg/g以上（検体換算）で定量可能であることから、実際の食中毒疑いの事例においても、原因物質がヒスタミンであるかどうかの特定に使用できると考える。

なお、実際の食中毒疑い事例においては、高濃度のヒスタミンが検出される可能性が高いことから、試料液を適宜希釈して測定する必要がある。また、今回測定した食中毒疑いの検体では、高濃度のヒスタミンが検出されたが、ヒスタミンの前駆物質であるヒスチジンは検出されなかった。一方、対照として用いた鮮魚ではヒスタミンは検出されず、高濃度のヒスチジンが検出された。このことから今回の検体では、微生物的腐敗により、ヒスチジンがほとんどヒスタミンに分解されていたと推測される。このように、ヒスチジンとヒスタミンの含有量の差を確認することで、検体の保管状態等に問題がなかったかを推測する目安としても活用できると考える。

## 参 考 文 献

- 1) 茶屋真弓, 穂積和佳, 岩元由佳, 原田卓也, 吉田純一: LC/MS/MSによる不揮発性アミン類の迅速一斉分析法の検討と鮮魚中のヒスタミン産生菌の分離について, 鹿児島県環境保健センター所報第19号 (2018), 56 - 63

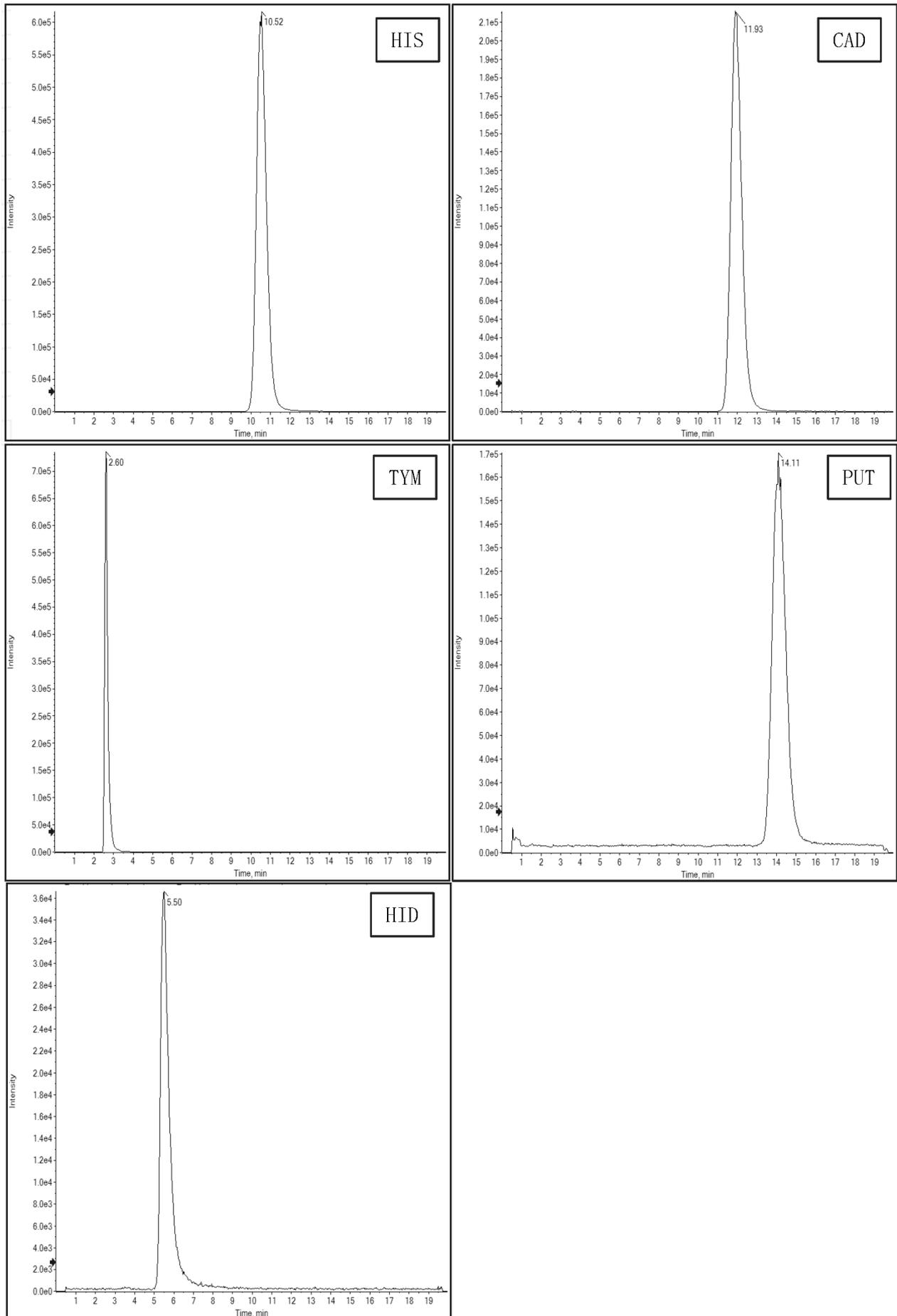


図2 分析対象アミン類のクロマトグラフ