

第 29 回 研究 発表 会  
要 旨 集

平成 23 年 3 月 11 日

宮城県保健環境センター

# 第29回保健環境センター研究発表会 プログラム

日 時 平成23年3月11日（金） 9：00～15：20

場 所 保健環境センター（大会議室，環境情報センター環境学習室）

日 程

- |            |                   |             |
|------------|-------------------|-------------|
| 1. 開 会     |                   | 9：00        |
| 2. あいさつ    | 保健環境センター所長        |             |
| 3. 研究発表    |                   |             |
| 演題（口頭発表）   | 1～5               | 9：10～10：25  |
| 休憩         |                   | 10：25～10：40 |
| 演題（口頭発表）   | 6～9               | 10：40～11：40 |
| 昼食・休憩      |                   | 11：40～12：40 |
| 演題（ポスター発表） | 10～14             | 12：40～13：40 |
| 休憩         |                   | 13：40～13：55 |
| 演題（口頭発表）   | 15～19             | 13：55～15：10 |
| 4. あいさつ    | 保健環境センター副所長兼水環境部長 |             |
| 5. 閉 会     |                   | 15：20       |

.....

## 発表方法

- ・口頭発表 セッションⅠ～セッションⅢ  
場所：大会議室  
時間：発表10分，質疑5分，計15分
- ・ポスター発表 コアタイム：12：40～13：40  
場所：環境情報センター環境学習室  
ポスター：B1パネル2枚以内

=== 研究発表 ===

○ 発表者

セッションⅠ 座長：畠山敬

9:10 ~ 10:25

1. 平成22年11月12日の黄砂飛来によるSPM高濃度  
大気環境部 ○仁平明 佐藤直樹 中村栄一 菊地秀夫
2. 粒子状物質濃度からの黄砂の推察  
大気環境部 ○佐藤直樹 仁平明 中村栄一 菊地秀夫
3. 有害大気汚染物質発生源調査及び周辺環境調査  
大気環境部 ○佐久間隆 小泉俊一 小川武 小室健一 北村洋子 菊地秀夫
4. 宮城県沿岸域における表層水温のトレンドーダミー変数を用いた重回帰分析による推定ー  
水環境部 ○福地信一 阿部郁子 佐々木久雄 藤原秀一
5. 廃棄物分析情報迅速検索システム活用最終処分場等水質の状況について  
水環境部 ○秋野正造 藤原秀一

=== 休憩 ===

10:25 ~ 10:40

セッションⅡ 座長：福地信一

10:40 ~ 11:40

6. トータルダイエツスタディ試料を用いた魚介類中残留農薬検査の実態調査  
生活化学部 ○高橋祐介 吉田直人 千葉美子 氏家愛子
7. 動物用医薬品の一斉分析法と問題点  
生活化学部 ○吉田直人 高橋祐介 千葉美子 氏家愛子
8. うなぎ中マラカイトグリーン検査における問題点  
生活化学部 ○千葉美子 吉田直人 高橋祐介 氏家愛子
9. 加工食品に含まれる甲殻類タンパク質検査法の検討  
生活化学部 ○山口友美 高橋祐介 氏家愛子

=== 昼食・休憩 ===

11:40 ~ 12:40

**ポスターセッション (コアタイム)**

12:40 ~ 13:40

10. 食品中のサッカリン検査

生活化学部 ○小野寺由貴子 山口友美 柳茂 齋籐善則 平木恵理 氏家愛子

11. 石巻地区における多環芳香族炭化水素類の発生源に関する一考察

大気環境部 ○小泉俊一 佐久間隆 小川武 北村洋子 菊地秀夫

12. 伊豆沼・内沼浄化対策としての堰操作と底質の巻上の検討 (第 I 報)

水環境部 ○渡部正弘 鈴木壽雄 福地信一 藤原秀一

13. 女川原子力発電所周辺海域における放射性ヨウ素の濃度分布と拡散シミュレーション解析

原子力センター ○木村昭裕 石幡祐士 長山美穂 伊藤節男 安藤孝志 石川陽一

14. 1991 年以降仙台市内で分離された黄色ブドウ球菌のコアグラージェ型と毒素型

仙台市衛生研究所 ○駒木望 畠山拓 石田ひろみ 酒井克朗 成田美奈子  
星俊信 勝見正道 小黒美舎子

=== 休 憩 ===

13:40 ~ 13:55

**セッションⅢ 座長：佐久間隆**

13:55 ~ 15:10

15. 管内と畜場でみられた豚サルモネラ症

食肉衛生検査所 ○中田聡 川村健太郎 坂上亜希恵 平塚雅之 谷津壽郎

16. 生食用鮮魚介類等のヒスタミン産生菌に関する調査 (第 2 報)

微生物部 ○宮崎麻由 中居真代 有田富和 那須務 渡邊節 沖村容子

17. 夏季に検出される腸炎ビブリオ及びサルモネラの動態について

微生物部 ○後藤郁男 沖村容子

18. 2010 年手足口病・ヘルパンギーナから検出されたエンテロウイルスについて

微生物部 ○阿部美和 高橋由理 植木洋 佐藤由紀 菅原優子 沖村容子

19. 酵素を用いたカキからのノロウイルス濃縮法の検討

微生物部 ○高橋由理 阿部美和 植木洋 佐藤由紀 菅原優子 沖村容子  
国立医薬品食品衛生研究所 野田衛  
東北大学大学院工学研究科 真砂佳史 大村達夫

# 1 平成 22 年 11 月 12 日の黄砂飛来による SPM 高濃度

大気環境部 ○仁平明 佐藤直樹 中村栄一 菊地秀夫

## 1. はじめに

黄砂が飛来すると日本の広範な地域で SPM 環境基準を超過する大気汚染事象が生じることがある。近年の黄砂の大規模化は過放牧や耕地拡大等の人為的要因によるとの指摘があり、また、大気中に浮遊する黄砂粒子が放射バランスや雲の生成・降水過程を通じて気候に影響を及ぼすなど、地球環境問題としての側面を持ってきたといわれる。加えて黄砂は越境汚染でもある。大規模な黄砂は現象として比較的明瞭で、その動態を知れば Ox 等、他の汚染物質の越境汚染解明に繋がる。更に現在は数値モデルによる黄砂予測が Web 上で公開されており、その妥当性を検証するためにも全国規模での観測値の整理・解析が求められる。

国環研と地環研による C 型共同研究では、これに参加する都道府県・政令市が保有している大気汚染常時監視観測値を統一するデータベースの整備を進めており、ほぼ全国を網羅している。本稿ではこれを利用し、平成 22 年 11 月 12 日に本県にも飛来した黄砂時の SPM 高濃度事例について解析した。

## 2. 解析データ

大気汚染常時監視データ：上記データベースを使用。

気象データ：気象庁ホームページ (<http://www.jma.go.jp/jp/g3>) から引用。

CFORS (化学天気予報システム) データ：国立環境研究所ホームページ (<http://www-cfors.nies.go.jp/~cfors/index-j.html>) から引用。

ライダーデータ：国立環境研究所ホームページ (<http://www-lidar.nies.go.jp/>) から引用。

## 3. 結果と考察

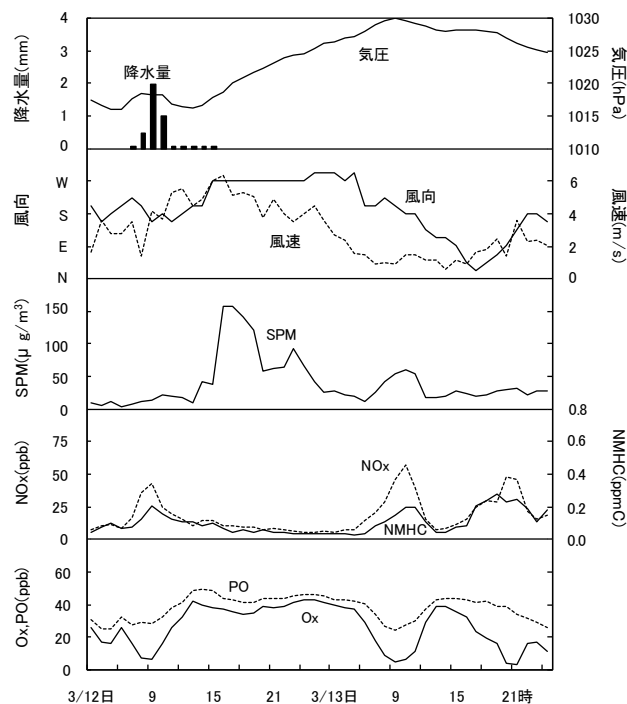
平成 22 年 11 月 12 日 2 時に長崎県対馬で SPM が  $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$  以上となり、4 時に環境基準  $200 \mu\text{g}/\text{m}^3$  を超過した。 $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$  以上の領域はその後九州本土から中国・四国地方に拡大し、日本海沿岸を北上した後、18 時には宮城県に到達し、20 時に古川 2 及び古川自排局で環境基準を超過した。この間、対馬においては 16 時以降  $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$  を下回り、北海道・青森県では  $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$  以上になることはなかった。

CFORS による黄砂予測の高濃度域は、3 時に九州・中国地方の日本海沿岸に接近、9 時に九州北部と中国地方西部を覆い、15 時には北海道・東北地方の日本海沿岸に到達、その後 24 時にかけて北海道・東北地方を横断している。SPM 観測値と比較すると、宮城・山形県以南の地域はかなり良く一致しているが、高濃度予測域通過時に降水のあった北海道及び東北北部の状況は大きく異なっている。

当日は日本海を低気圧が北東に進み、これから伸びる寒冷前線が本州を通過したときである。CFORS の高濃度域は寒冷前線の後面に弓状に形成され、前線の移動に伴って北東進している。黄砂現象の典型的な事例であり、前線後面の高濃度域は気象衛星可視画像でも確認できた。

下図に新潟地方気象台における気象要素と当該気象台近傍の山木戸測定局における大気汚染物質濃度を示す。寒冷前線通過の際に降水があった。前線が通過した後は西風に変わり、黄砂の飛来によって SPM 濃度は急増している。ライダー観測によれば、概ね 15 時～翌日 3 時の間、地表から高度約 2000m まで黄砂粒子が認められる。この間は大陸由来の大気に置換されていたことになり、NO<sub>x</sub>、NMHC 濃度は低く、PO は約 40ppb でほぼ一定であった。SPM は 13 日 10 時にも極大を示している。NO<sub>x</sub>、NMHC も同様な増加がみられ、ライダーでも大気汚染性エアロゾルを観測していることから、移動性高気圧下で安定層が形成され地域汚染が生じたものと考えられる。

宮城県内では北部の古川・笹岳、南部の柴田・岩沼で新潟県山木戸のような SPM 濃度の急増がみられたが、仙台から石巻にかけての地域濃度増加は急激でなかった。黄砂の到達が 18 時以降で、地表付近の大気が安定化し始めたため影響は直接的でなかったと推測される。



大気常時監視変化図 (2010年11月)  
汚染物質濃度：山木戸(新潟県)、気象要素：新潟地方気象台  
(注) 降水量0.1mmは0.5mm未満の感雨を表す

## 2 粒子状物質濃度からの黄砂の推察

大気環境部 ○佐藤直樹 仁平明 中村栄一 菊地秀夫

### 1. はじめに

粒子状物質の性質はその粒径によって異なる場合があることから、粒径で区別し解析することは非常に重要である。自動測定法による粒子状物質の測定は、最小単位が1日平均値である手動のフィルター捕集-質量法（標準測定法）と異なり、1時間値が得られるため現象解明に重要な時間変動を把握することができる。そこでPM2.5及びPMcoarse(PM<sub>10-2.5</sub>)を自動測定している国設箕岳局の測定結果に着目し、高濃度(100 μg/m<sup>3</sup>以上)の値が観測された平成22年3月21日及び同年11月12～13日の黄砂について解析した。

### 2. 方法

- ①対象物：PM2.5, PMcoarse(PM<sub>10-2.5</sub>)
- ②測定場所：標高約170mの丘陵地に位置し、近くに大気汚染の発生源がない国設箕岳局
- ③測定方法：自動測定機による連続測定
- ④使用データ：期間は平成21年12月1日～平成22年11月30日で、比較のため2つの対象物が同時に測定できた1時間値を用いた。

### 3. 結果

図1 平成22年3月21日の濃度推移

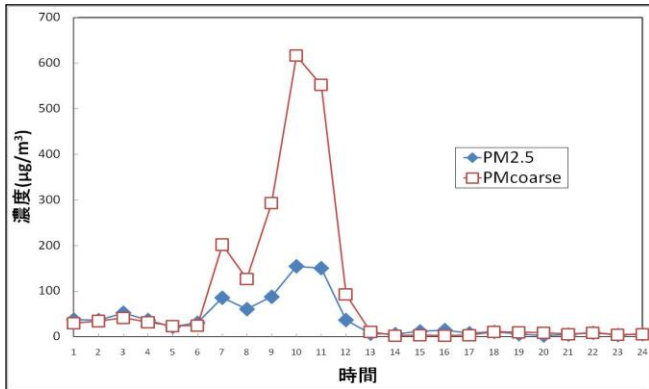


図2 平成22年11月12～13日の濃度推移

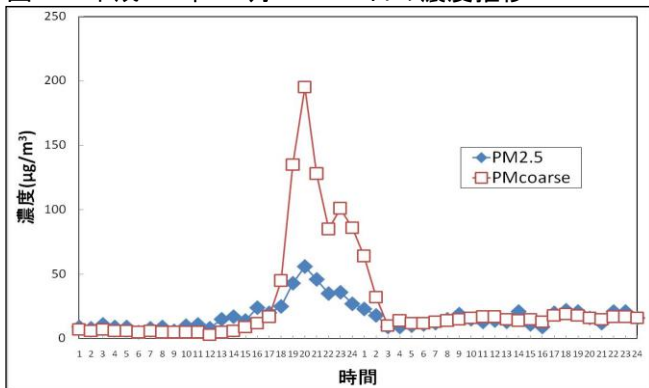


図3 散布図

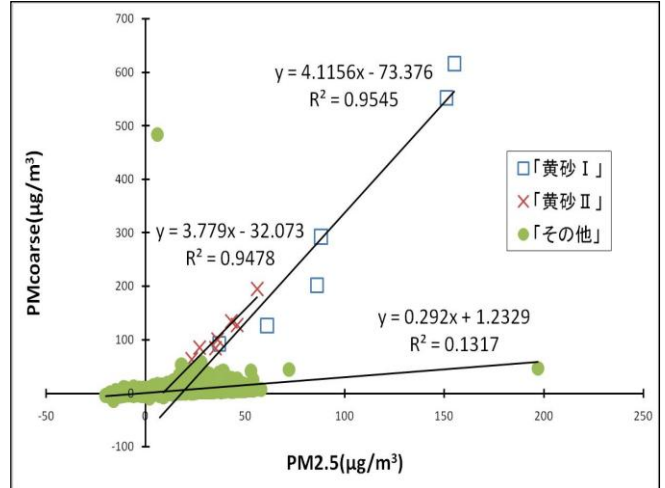


表 相関係数

PM2.5:PMcoarse—相関係数 R	
「黄砂 I」	0.977
「黄砂 II」	0.974
「その他」	0.363

※図1より3月21日の7時から13時までの1時間値を「黄砂 I」、図2より11月12日の18時から13日の3時までの1時間値を「黄砂 II」とし、その他の時間を「その他」として別々に分析した。

- ・「その他」は相関係数が小さくPM2.5とPMcoarseの重量比にばらつきがあった。一方、「黄砂 I」及び「黄砂 II」は相関係数が1に近く、PM2.5とPMcoarseの重量比はほぼ一定であった。
- ・回帰直線の式から、およそ「その他」はPM2.5<PMcoarse、「黄砂 I」及び「黄砂 II」はPM2.5>PMcoarseとなった。

### 4. 考察

本件の2つの事例によれば、黄砂粒子は粗大粒子と微小粒子の重量比が一定で多くが粗大粒子で占められていると推察されるが、明らかにするためには今後より多くの事例を解析し知見を蓄積していく必要がある。

### 3 有害大気汚染物質発生源調査及び周辺環境調査

大気環境部 ○佐久間隆 小泉俊一 小川武 小室健一 北村洋子 菊地秀夫

#### 1. はじめに

本調査は、有害大気汚染物質の発生源と考えられる工場・事業場における排出実態等を把握し、今後の有害大気汚染物質対策の推進に資することを目的としている。今回ジクロロメタンを取り扱っている事業場を対象として排出口、敷地境界濃度及び周辺環境濃度測定等の実態調査を行った。併せて拡散計算プログラムを用いて周辺環境濃度を推定し、その適合性を確認したので報告する。

なお、本調査は平成 21 年度環境省委託事業として実施したものである。

#### 2. 調査方法

(1) 排出口測定；調査対象として O 市にある Y 事業場を選定した。測定対象物質であるジクロロメタンは断熱注入機ノズルの洗浄、製品用接着剤の溶剤として用いられている。製造工程でジクロロメタンが排出される排出口 3 ヶ所において 10 月及び 11 月に試料採取を行った。試料採取方法はバッグ採取法とし、バッグに 3 分間採取した試料を実験室に持ち帰り、100ml を炭素系吸着剤に吸着させ二硫化炭素 2ml で抽出後、GC/MS 法により分析した。

(2) 敷地境界、周辺環境；事業場の敷地境界 4~5 ヶ所、周辺環境 4 ヶ所において上記と同じ時期に試料採取を行った。試料採取方法は有害大気汚染物質マニュアルに準拠した容器採取法とし、キャニスター容器を用い約 24 時間試料採取を行った。試料は大気試料濃縮導入装置に導入後、GC/MS 法により分析した。

(3) 拡散計算による環境濃度の推定；「経済産業省一低煙源工場拡散モデル (METI-LIS)」により環境濃度の推定を行った。

#### 3. 結果と考察

排出口測定結果を表 1 に示した。A 工場の注入工程では 10 月測定時と 11 月測定時の濃度に差がなく変動が少なかった。B 工場では乾燥工程、塗布工程ともに 11 月測定時が低濃度であった。日変動の要因は製品によって接着剤の使用量が変動するためと考えられた。敷地境界の濃度測定結果を表 2 に示した。主煙源の直近で風下に位置している北側が最も高濃度であったが、環境基準の  $150 \mu\text{g}/\text{m}^3$  を下回っていた。しかし、平成 20 年度全国調査の発生源周辺における平均値  $3.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$  を大きく超える地点も見られ、風向によって発生源からの影響が大きいことが推察された。また実測排出量、1 日あたりの実稼働時間、年間稼働日数から年間排出量を推定したところ、B 工場が 6.9 t/年 (平均)、A 工場が 1.2 t/年 (平均) であった。いずれも事業場の PRTR 届出量と比べ少ない年間排出量であった。製造工程が完全な密閉状態でないことなどから工場内に揮発拡散する量も多いと考えられた。

環境濃度実測値と METI-LIS により推定した計算値との関係を図 1 に示した。短期間の調査であったが、概ね良好な結果が得られた。特に実測排出量の 2 倍で計算したもののは回帰線がほぼ図の対角線に近いものであり、拡散モデルが今後の有害大気汚染物質の調査等に有用であると考えられた。

表 1 排出口測定結果

工場	工程	調査月	濃度 (g/Nm <sup>3</sup> )	排出ガス量 (Nm <sup>3</sup> /時)	排出量 (g/時)
A	注入	10 月	2.6	580	1,500
		11 月	2.3		1,300
B	乾燥	10 月	12	190	2,300
		11 月	9.8		1,900
	塗布	10 月	1.8	2,000	3,600
		11 月	0.78		1,600

表 2 敷地境界測定結果 (第 2 回目 ; 11 月)

地点	主煙源からの位置関係	主風向	風速 (m/s)	濃度 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )
敷地_1	北側	SSE/WSW	1.0	48
敷地_2	東側			7.3
敷地_3	南側			1.9
敷地_4	西側			8.6
敷地_5	東側			7.4

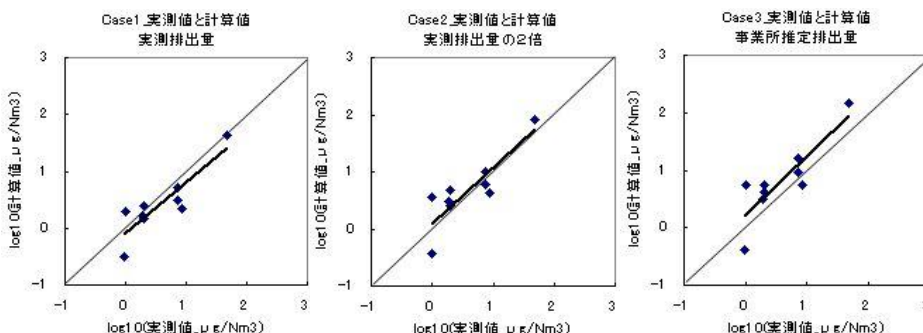


図 1 実測値と推定計算値との関係

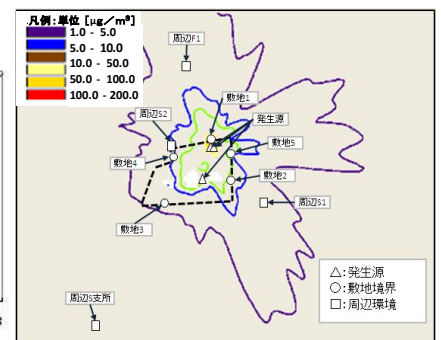


図 2 環境濃度推定図

# 4 宮城県沿岸域における表層水温のトレンド

—ダミー変数を用いた重回帰分析による推定—

水環境部 ○福地信一 阿部郁子 佐々木久雄\* 藤原秀一

\*現 東北大学大学院工学研究科

## 1. はじめに

地球温暖化が沿岸域の水環境に及ぼす影響を把握するためには、海水温の上昇率を正確に評価することが重要と考えられる。

沿岸域における水温については、公共用水域水質測定計画に基づき観測しているデータが1970年代から30年以上にわたり集積されている。しかし、観測頻度が月1回であり、採水日や採水時刻が不規則であるため、そのまま解析し水温上昇率を求めると、偏りの発生が懸念される。

平成20年度から行われている、国立環境研究所と地方公共団体環境研究機関とのC型共同研究「地球温暖化がもたらす日本沿岸域の水質変化とその適応策に関する研究」において、これらの問題を解決すべく季節変動を有する時系列データの解析手法を種々検討したところ、ダミー変数を用いた重回帰分析の適用が最も有効であるとの検討結果が得られたことから、全国規模で海水温上昇率の調査を実施することになった。

本報告は、宮城県沿岸域における海水温上昇率の結果を取りまとめたものである。

## 2. 解析方法

### 2.1 使用データ

表1のとおりである。

表1 使用したデータ一覧

地点名	気仙沼湾 大島北沖	鮎川湾 御番所崎沖 (外洋)	松島湾 桂島西 (内湾)
データ			
基準点番号	606-01	624-01	603-55
水深(m)	30	25	5
観測期間	1979.4~ 2010.11	1980.5~ 2010.11	1977.4~ 2010.11
観測数	379	307	404

### 2.2 解析方法

以下の3手法により解析を行った。

- ①ダミー変数を用いた重回帰分析 ( $Y = \text{トレンド成分} + \text{季節変動成分} + \text{残差}$ )
- ②12ヶ月移動平均法により季節調整を行った単回帰分析
- ③統計数理研究所のWeb-decomp<sup>注)</sup> ( $Y = \text{トレンド成分} + \text{季節変動成分} + \text{短期循環変動成分} + \text{曜日効果} + \text{ノイズ}$ )

## 3. 結果及び考察

- ①ダミー変数を用いた重回帰分析結果

表2に示すとおり、気仙沼湾大島北沖は統計的に有

意な結果は得られず、海水温のトレンドはみられなかった。この基準点は、大川の河口に近いことから、陸水の影響を直接受けることが原因と考えられる。

外洋に面している鮎川湾御番所崎沖については有意ではないが、0.0012(°C/月)という僅かなトレンドが得られた。

松島湾桂島西における傾き効果については危険率1%で有意な結果が得られ、トレンドは0.0033(°C/月)で年間0.0396°Cとなり、観測が始まって以来34年間で約1.35°C上昇という結果が得られた。内湾のため気温の影響を受けやすいことが原因と考えられる。

表2 ダミー変数を用いた重回帰分析結果

地点名	気仙沼湾 大島北沖	鮎川湾 御番所崎沖	松島湾 桂島西
傾き効果 (°C/月)	-0.0003	0.0012	0.0033**
4月(°C)	-4.0086	-	-3.1360
5月(°C)	-1.1365	-3.4822	0.6695
6月(°C)	2.9481	0.1715	4.7456
7月(°C)	5.0046	4.1929	8.3953
8月(°C)	8.3736	6.6660	11.0449
9月(°C)	7.5052	6.6970	8.6681
10月(°C)	4.1835	3.5894	4.0795
11月(°C)	0.8403	0.0463	-1.1032
12月(°C)	-2.8304	-2.7247	-5.7693
1月(°C)	-6.4463	-7.0626	-9.5878
2月(°C)	-7.2654	-	-9.1911

\*\*：危険率1%で有意

- ②12ヶ月移動平均の単回帰分析結果

移動平均法により季節調整を行った解析についても重回帰分析と同様の結果が得られた。桂島西では $Y = 0.0032X + 13.6$ となり、重回帰分析結果によるトレンド0.0033(°C/月)とほぼ同様の結果となった。

- ③Web-decompによる解析結果

Web-decompによる解析結果についても重回帰分析と同様の結果が得られ、桂島西については明確な海水温上昇トレンドが確認された。

なお、本報告は県内沿岸域3地点のみの解析結果であるが、C型共同研究に参加している26機関により、全国規模で海水温のトレンドを把握することとしており、本年度末までに全国的な傾向が明らかになる予定となっている。

注) <http://ssnt.ism.ac.jp/inets2/japaneseVersion/title.html>



# 5 廃棄物分析情報迅速検索システム活用 最終処分場等水質の状況について

水環境部 ○秋野正造 藤原秀一

## 1. はじめに

現在、最終処分場や不法投棄現場等に関する水質データ等は台帳等に記載、保管されており、探し出すのに膨大な時間を要す。昨年度は一部電子化を行い3秒/回で検索できるシステムの構築を行った。今年度は、平成元年度まで遡って電子化を行い、更にこれを利用して分析物質の基準超過状況及び検出状況並びに BOD 値との関係を調べた。

## 2. 方法(電子ファイルの作成及び検索)

- (1) 昨年度作成した最終処分場、不法投棄等の水質検査結果のデータベースに H 元年までのデータを加え、636 個のエクセルファイルにした。
- (2) 写真及び緯度経度情報は H22 年度分を追加しそれぞれ JPEG 等画像ファイル及びエクセルに記載した。
- (3) 「基準超過」、「検出」と「基準項目」を AND 検索で検索し、「最終処分場」と「不法投棄・不適正処理」別に計数した。検索には Windows の検索コンパニオンを使用。
- (4) 最終処分場毎に検索した水質データファイルを 1 つのエクセルファイルに統合し、経過を一覧にした。

## 3. 結果及び考察

### (1) 水質基準超過、検出状況

毎年立入検査をほぼ定期的に行っている最終処分場(一般廃棄物+産業廃棄物)と不法投棄・不適正処理の 2 通りに分けて、表 1-A、B に「基準超過」、「検出」の状況を頻度が多い順に整理した。

表 1-A 最終処分場における  
放流水・浸透水等の検査結果

最終処分場	基準超過	最終処分場	検出
As	11	溶解性Mn	34
Pb	4	As	34
pH	2	溶解性Fe	25
Cr <sup>6+</sup>	1	Pb	23
T-Hg	1	Cu	8
1,2-ジクロロエタン	1	Cr <sup>6+</sup>	5
BOD	1	テトラクロロエチレン	4
n-Hex 鉱油	1	B	3
延べ項目数	22	F	2
		1,2-ジクロロエタン	1
		Zn	1
		T-Cr	1
		Se	1
		ジクロロメタン	1
		ベンゼン	1
		n-Hex 鉱油	1
		延べ項目数	145
		総検査件数	385

表 1-B 不法投棄、不適正処理現場にお  
ける水の水質・廃棄物溶出試験・含有量

緊急(不法投棄、不適正処理)	基準超過	緊急(不法投棄、不適正処理)	検出
Pb	6	Pb	25
As	5	As	11
pH	2	T-Hg	2
ジクロロメタン	1	トリクロロエチレン	2
延べ項目数	14	ジクロロメタン	1
		PCB	1
		延べ項目数	42

総検査件数 385 総検査件数 251

最終処分場では基準超過した頻度の内訳は、砒素の基準超過、検出の 97%が産業廃棄物処分場で、鉛については 7~8 割が産業廃棄物処分場で残りが一般廃棄物処分場であった。最終処分場、不法投棄・不適正処理いずれの場合も廃棄物に含有されているか付着している金属類が多く検出されており、テトラクロロエチレンやトリクロロエチレンの様な有機溶剤や洗剤は鉛、砒素

等の金属類に比べて少ない状況であった。

### (2) 最終処分場の水質の変遷

表 2 は A 市の産業廃棄物処分場(安定型)を検索システムで検索した個々のエクセルファイルを 1 つのファイルに統合し、時系列に並べたものであるが BOD 値が数 mg/L 以上と大きい期間を中心に砒素及び 1,2-ジクロロエタンが基準を超過し、鉛及びジクロロメタンを検出する傾向があった。

表 2 最終処分場における浸透水の検査結果

所在地	A市	A市	A市	A市	A市	A市	A市
施設名称	A処分場	A処分場	A処分場	A処分場	A処分場	A処分場	A処分場
施設区分①(一般・産廃)	産廃	産廃	産廃	産廃	産廃	産廃	産廃
施設区分②(安定型・管理型)	安定型	安定型	安定型	安定型	安定型	安定型	安定型
採水種別	浸出水	浸透水	浸透水	浸透水	浸透水	浸透水	浸透水
採水年	1999	2002	2003	2004	2005	2006	2007
水温(℃)	25.8	18.6	19.3	21	19.4	18.5	20
透視度(度)	30以上	7.4	22	50以上	24	50以上	50以上
pH	8.1	7.5	7.7	7.5	7.6	7.8	7.9
BOD(mg/L)	0.9	220	14.0	19	18	2.4	0.6
Pb(mg/L)	0.01未満	0.001未満	0.001未満	0.001未満	0.007	0.003	0.001未満
As(mg/L)	0.001未満	0.01	0.005	0.005	0.034	0.004	0.002
ジクロロメタン(mg/L)	0.02未満	0.004	0.002未満	0.002未満	0.002未満	0.002未満	0.002未満
1,2-ジクロロエタン(mg/L)	0.004	0.0004	0.0004	0.027	0.0005	0.0004	0.0004
未満	0.0037	未満	0.027	0.0005	未満	未満	未満

同様の傾向が他にも、一般廃棄物処分場(管理型)を含めて散見されていた。

同時に何項目も検出されることから、廃棄物自体の問題で水質が基準超過するのではない場合でも、有機物が混入又は含有する廃棄物の腐敗等により流動化し、BOD 値が上昇すると固着していた砒素等が溶出する可能性が考えられる。原因の可能性として、酸素の供給で硫酸化細菌や鉄酸化細菌が活性化し硫酸や鉄(III)が生成し、酸の働きで金属が可溶化し、例えば鉄(III)の作用で硫化銅が硫酸第二銅となり可溶化していることが想定される。<sup>1)</sup>

- (1)  $S + 3/2O_2 + H_2O \rightarrow SO_4^{2-} + 2H^+$  (硫酸化細菌)
- (2)  $S^{2-} + 2O_2 \rightarrow SO_4^{2-}$  (硫酸化細菌)
- (3)  $Fe^{2+} + 1/4O_2 + H^+ \rightarrow Fe^{3+} + 1/2H_2O$  (鉄酸化細菌)
- (4)  $CuS + Fe_2(SO_4)_3 \rightarrow CuSO_4 + 2FeSO_4 + S$

## 4. まとめ

- (1) 最終処分場、不法投棄等の水質検査結果(H 元~21 年度)等を電子化し、容易に検索可能とした。
- (2) 最終処分場、不法投棄・不適正処理毎の 2 通りに分けて基準超過及び検出頻度が多い順に整理した。
- (3) 一部の最終処分場で BOD 値が数 mg/L 以上と大きい期間を中心に砒素及び 1,2-ジクロロエタンが基準鉛及びジクロロメタンを検出する傾向があった。

### 参考文献

- 1) 鎌田樹志, 浅野孝幸, 三津橋浩行: バクテリアリーチング処理による廃棄物の有効利用支援技術, 北海道立工業試験場報告, No.293(1994)

# 6 トータルダイエツトスタディ試料を用いた 魚介類中残留農薬検査の実態調査

生活化学部 ○高橋祐介 吉田直人 千葉美子 氏家愛子

## 1. はじめに

我が国では、有機塩素系農薬の DDT, BHC などの残留性・蓄積性の高い物質は化学物質審査法により既に使用が禁止されているが、過去に使用した農薬の土壌への残留による農産物への移行も確認されている。このような残留性・蓄積性が高く毒性の強い農薬は、POPs (Persistent Organic Pollutants) 条約が発効されたことにより加盟各国で規制がなされているが、未だ使用している国もあり、輸入魚介類の汚染が懸念される。

魚介類中の残留農薬は、農産物に対する農薬投与とは異なり非意図的汚染によるものであり、また、食形態として同種の魚介類を毎日大量に継続摂取するとは考えにくい。そこで、県民の平均的な魚介類由来の農薬一日摂取量を把握するため、国民栄養調査に基づきマーケットバスケット方式により調整したトータルダイエツトスタディ(TDS)魚介類 X 群試料中の濃度を測定し、一日許容摂取量 (ADI) との比較を行うことにより安全評価を実施したので報告する。

## 2. 材料と方法

### 2.1 試料

TDS 試料魚介類 X 群は 2002,2004,2006,2008,2010 年度にマーケットバスケット方式により調製したものを使用した。また、検体と同時に 2010 年度 X 群に農薬標準混合液 (332 農薬) を試料換算 0.02ppm となるよう添加したものをを用いた添加回収試験 (n=3) を実施し、各農薬の回収率 (%) と CV 値 (%) を求めた。

### 2.2 農薬の抽出及び一斉分析法

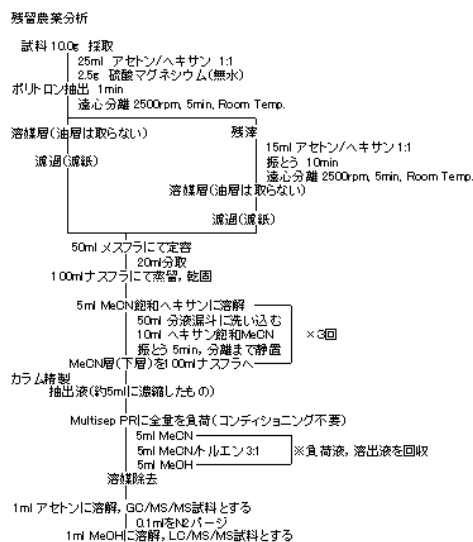


図 1 魚介中残留農薬分析フロー

農薬の一斉分析は図 1 に示すフロー(平成 21 年度に検討した方法)により実施した。TDS 試料は平成 21 年度に検討したうなぎ、サケ類と同様に野菜、果実類に比べて油脂が多いため、アセトン-ヘキサン分配や Multisep PR カラムによる精製が有効である。TDS 試料より抽出した農薬の分析は GC/MS/MS (ブルカー・ダルトニクス社製 1200L) 及び LC/MS/MS (AB サイエックス社製 API 3000) を使用した。

## 3. 結果及び考察

上記検査の結果、添加回収試験(n=3)における回収率が 50~150%かつ CV 値(%)が 15 以下となった 272 農薬について定量を行い、19 農薬を検出した。検出した農薬の試料中の含有量及び国民栄養調査における東北地方の魚介類摂取量から一日摂取量を算出したところ、表 1 に示す結果が得られた。なお、検出下限を超え、定量下限値 (0.01ppm) 未満であったものは参考値として計算を行った。BHC や DDT, クロルデン、クロルベンジレートなど、残留性、生物への蓄積が高いとされる農薬が検出されたが、検出された農薬はいずれも標準的な日本人(体重 50kg と想定)の ADI を大きく下回っており、魚介類からの農薬摂取量はきわめて低く、安全性は高いと考えられた。

農薬摂取量の経年変化についてはオルトフェニルフェノールが 0.07~0.96µg/day と 10 倍近い変動を示したが、他の農薬では特に大きな変動は確認されず、農薬摂取量は 2002 年度以降、低いレベルで推移していると考えられた。

表 1 検出された農薬及び一日の摂取量換算した 2002~2010X 群試料のうち最高値を示したもの

農薬名	用途	ADK(µg/day)		一日摂取量 最高値(µg)
		/1kg	/50kg	
*γ-BHC	殺虫	5	250	0.13
*BHC	殺虫	12.5	625	0.24
*DDT	殺虫	5	250	1.4
*クロルデン	殺虫	0.5	25	0.43
*デアフェノラト	殺虫	2.1	105	0.0088
*トリアゾス	殺虫	1.2	60	0.55
*フェントロチオン	殺虫	6	300	0.063
*メチカルブ	殺虫	24	1200	0.011
*クロルベンジレート	ダニ	20	1000	0.0089
*イソプロチオラン	殺菌	100	5000	0.13
*イプロヘンホス	殺菌	35	1750	0.042
オルトフェニルフェノール	殺菌	400	20000	0.96
*ジフェニルアミン	殺菌	80	4000	0.10
*フサライド	殺菌	40	2000	0.059
*フルトラル	殺菌	87	4350	0.050
*ヘキサクロロベンゼン	殺菌	0.6	30	0.10
*グリロン	除草	10	500	0.0041
*チオベンカルブ	除草	9	450	0.072
*トリフルリン	除草	24	1200	0.081

\*: 参考値

# 7 動物用医薬品の一斉分析法と問題点

生活化学部 ○吉田直人 高橋祐介 千葉美子 氏家愛子

## 1. はじめに

ポジティブリスト制度の施行により、動物用医薬品(以下動医薬)等の規制が強化されているなか、当県では平成 21 年度から輸入流通品を対象とした検査強化を行っている。当県の動医薬検査については、現在リストに掲載されている約 250 種類の約半数を目標として一斉分析法の検討を行ってきた。従来法であるオンライン固相抽出法については、昨年度報告<sup>1)</sup>したとおり、定量検査法としては問題点があることが判明し、厚生労働省通知法を基に抽出溶媒や精製カラムの最適条件を検討してきた。この結果、広範な物性を有する多種類の動医薬を同一溶媒による抽出とその精製を行うことによる一斉分析法では、現段階においてガイドライン<sup>2)</sup>に示す回収率等の目標値を満足することが困難であった。

そこで、179 種の動医薬を対象とした村川らの一斉分析法<sup>3)</sup>について、当県での動医薬検査への適用を検討したところ良好な結果が得られたので、検討及び検査で得られた知見及び問題点について報告する。

## 2. 方法

### 1) 試料

輸入流通品の豚筋肉、牛筋肉及び鶏筋肉

### 2) 装置及び測定条件

LC/MS/MS は Agilent Technologies 製 1100Series 及び(株)AB Sciex 製 API3000 を用いた。分析カラムは Agilent Zorbax SB-Aq(2.1×100mm, 1.8µm)を用い、移動相は 0.1%ギ酸(A)とアセトニトリル(B)のグラジエント(0min, A:0%→5min, A:100%→15min, A:100%)とした。試料注入量は 20µL 及びカラム温度は 40℃とした。

3) 試料溶液調製は、図 1 に示す村川らの方法<sup>3)</sup>による。

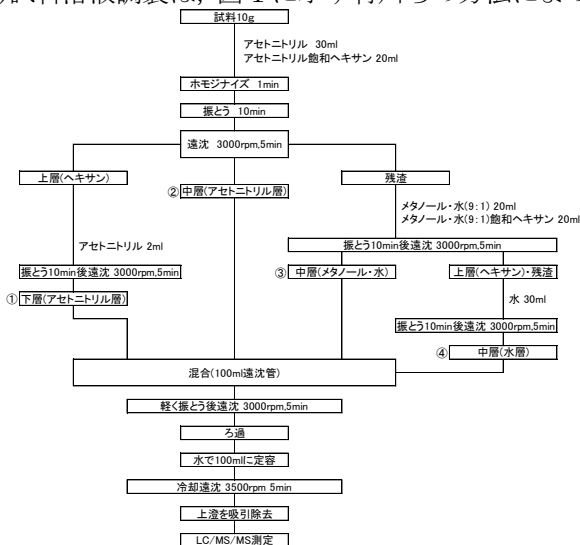


図 1 試料溶液調製方法

## 3. 結果

### 1) 動物用医薬品の分画試験

村川らの試料調製法が当県で検査対象としている動医薬に適用可能であるかを確認するために、図 1 の方法による添加回収試験(豚肉、牛肉試料換算 50ppb)を行い、各画分①～④で抽出される動医薬の回収率を調査した。その結果、②アセトニトリル画分での平均回収率は 70%を超えており、③メタノール/水画分では平均回収率 9%の結果が得られ、主に②と③の画分に抽出されていることがわかった。また、①アセトニトリル飽和ヘキサン画分及び④水層画分でも約 20%程度抽出される動医薬が数種類～10 種類あり、それぞれの画分で相補的に抽出されていることが確認された。

### 2) 実試料への適用

図 1 の方法により、豚肉、牛肉、鶏肉の輸入流通品の検査及び添加回収試験(試料換算:0.02ppm, n=5)を実施した。その結果、ガイドラインの目標値である回収率 70～120%、変動係数 15%以下であった動医薬数はそれぞれ豚肉 97、牛肉 90 及び鶏肉 78 であった。これらの動医薬について定量を行った結果、鶏肉 2 検体にそれぞれジクラズビルが 0.10ppm、エトキシキンが 0.01ppm 検出されたが、いずれも残留基準値未満であった。

### 3) 迅速分析の必要性

上記の牛肉の検査において、1 検体に試料換算 0.044ppm のノルフロキサシン(以下 NFX)を検出した(定量イオン 1 個及び確認イオン 2 個で NFX であることを確認)。基準値は「不検出」であったため、当所 SOP の規定に従い均一化後凍結保存をしていた当該試料の再検査(n=5)を実施したが、NFX は検出されなかった。そこで、原因調査のため、凍結保存検体内での代謝、加水分解等または試料の凍結融解による NFX 減衰の可能性を考慮し、減衰モデル試験を実施した。NFX 標準液を添加(試料換算 10ppb)した各試料について、冷蔵または冷凍保存後の経時変化及び凍結融解回数による変化の調査を行った。その結果、いずれのモデルでも減衰は確認できなかった。これは、食品分析で一般的に実施されている添加回収試験(細胞の外への添加)と飼育過程の投与により細胞内に取り込まれた実試料における動医薬の環境条件が異なるためと考えられ、食品分析上の問題点として再確認された。このことから、流通品の検査では、凍結融解をなるべく繰り返さず、迅速に試験を実施することが重要であると考えられた。

1) 吉田直人他: 第 28 回宮城県保健環境センター研究発表会要旨集, p11(2010).

2) 厚生労働省通知, "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", 平成 19 年 11 月 15 日

3) 村川弘他: 第 47 回全国衛生化学技術協議会年會講演集, p82(2010).

## 8 うなぎ中マラカイトグリーン検査における問題点

生活化学部 ○千葉美子 吉田直人 高橋祐介 氏家愛子

### 1. はじめに

動物用医薬品マラカイトグリーン（以下 MG）は、食品において「不検出」とされる農薬等の成分である物質として定められ、MG 及びその代謝物であるロイコマラカイトグリーン（以下 LMG）を分析対象とする試験法が告示により規定されている。

輸入食品の検査を強化している当県においても、2008 年度からうなぎ中 MG の検査を、告示試験法に準じて実施しているが、2009 年度に実施した検査において、LMG とその安定同位体標識標準品（以下 LMG-d6）との回収率の不一致や LMG-d6 の低回収率が問題となり、大熊らは昨年度の研究発表会において、代替法の検討結果を報告した。

しかし、その後の検討により、大熊らの方法は、試験品の個体差によって脱脂が不十分な試料があること、またサロゲートを使用しない方法であるため、回収率が 70% と「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」に規定されている回収率 70~120% の範囲内にあるものの、必ずしも満足できる結果ではなかった。

そこで、LMG と LMG-d6 の挙動が一致しない原因を明らかにし、脱脂に用いる精製用ミニカラムの検討を行ったところ、良好な結果が得られたので報告する。

### 2. 方法

#### 2.1 試料

2010 年度買上検査試験品のうなぎ蒲焼を、フードプロセッサにより細切、均一化後凍結保存したもの。

#### 2.2 試薬

##### (1) 標準原液及び標準品

MG 標準原液は、マラカイトグリーンしゅう酸塩 1,000 $\mu$ g/mL アセトニトリル溶液、マラカイトグリーン-d5（以下 MG-d5）標準品は、マラカイトグリーンしゅう酸塩-d5、LMG 標準品及び LMG-d6 標準品はいずれも、林純薬工業(株)製を用いた。MG 以外の標準原液は、それぞれ 100 $\mu$ g/mL になるようにメタノールを用いて調整し、LMG、LMG-d6 はアセトニトリル（以下 CH<sub>3</sub>CN）で、MG、MG-d5 は 0.2%ギ酸/CH<sub>3</sub>CN を用いて所定の濃度に希釈した。

##### (2) 精製用ミニカラム

Bond Elut Jr. SCX(500mg, Varian)  
Sep-pak C18(360mg, Waters)  
Sep-pak Vac C18(1g, Waters)  
InertSep C18(1g, GL Sciences)  
Empore C18 Extraction Disks(3M)

##### (3) その他の試薬

ギ酸は、和光純薬工業(株)LC/MS 用を、その他の試薬類は、関東化学(株)残留農薬試験・PCB 試験用（300 倍濃縮）及び高速液体クロマトグラフィー用を用いた。

### 2.3 装置

LC/MS : Agilent Technologies(株)製  
1100 シリーズ LC/MSD

LC/MS/MS : (株)AB Sciex 製 API3000

### 2.4 試料溶液の調整

試料 5g にクエン酸・リン酸緩衝液(pH3.0)10mL を加え 1 分間ホモジナイズする。これに CH<sub>3</sub>CN 15mL を加え、5 分間振とう後、3,000rpm で 5 分間遠心分離し、CH<sub>3</sub>CN/水層を別容器に分取する。残留物に CH<sub>3</sub>CN 15mL を加え、上記と同様に振り混ぜ、遠心分離した後、CH<sub>3</sub>CN 層を先の CH<sub>3</sub>CN/水層に合わせる。これを予めメタノール 10mL と CH<sub>3</sub>CN 10mL でコンディショニングした InertSep C18 に負荷し、流出液をとる。その後、CH<sub>3</sub>CN/水(3/1)で溶出し、溶出液と先の流出液を合わせ、ジクロロメタンに転溶する以降の操作は告示試験法と同様に行う。ただし、最終残留物に CH<sub>3</sub>CN 1.0mL を加えて溶かした後、500 $\mu$ L を分取し、0.2%濃度となるようにギ酸を添加する。これを MG、MG-d5 試験溶液とし、残った CH<sub>3</sub>CN ベースの試験溶液で LMG、LMG-d6 の測定を行うこととした。

### 3. 結果

#### 3.1 標準液の希釈溶媒による安定性

MG は生体内で酵素により還元され、LMG に代謝されるが、分析中の標準液でも同様の現象が見られたため、MG、MG-d5、LMG 及び LMG-d6 をそれぞれ各溶媒で希釈し、経時変化をみた。CH<sub>3</sub>CN で希釈した場合、MG、MG-d5 では時間の経過とともに、MG は LMG に、MG-d5 は LMG-d6 に変換していた。MG と MG-d5 は同様の減少傾向を示したが、生成した LMG と LMG-d6 は同一の増加率を示さず、これが分析中における LMG とそのサロゲートとの挙動が一致しない原因と推測された。また、LMG、LMG-d6 では、MG、MG-d5 への変換は認められなかった。一方、0.2%ギ酸/CH<sub>3</sub>CN で希釈した場合は、MG、LMG とともに LMG、MG への変換は抑制され、それぞれのサロゲートも変換は起こらなかった。しかし、LMG、LMG-d6 において時間の経過とともにアバンドランスの低下が認められ、両者の低下傾向が一致しなかったため、MG、MG-d5 は 0.2%ギ酸/CH<sub>3</sub>CN で、LMG、LMG-d6 は CH<sub>3</sub>CN で希釈することとした。

#### 3.2 脱脂用ミニカラムの検討

ヘキサンによる脱脂に代わる方法として、脂質の除去に有効と考えられるミニカラム C18 系の検討を行った。その結果、Sep-pak C18 では MG と MG-d5 及び LMG と LMG-d6 の回収率の差が大きく、サロゲート補正はできないと考えられた。InertSep C18 では、MG 及び LMG とそのサロゲートの挙動も一致し、サロゲートの回収率も 40%以上を確保できた。

# 9 加工食品に含まれる甲殻類タンパク質検査法の検討

生活化学部 ○山口友美 高橋祐介 氏家愛子

## 1. はじめに

平成20年6月の省令改正により、それまで特定原材料に準ずる品目として表示を推奨するとされていた「えび」及び「かに」が特定原材料として表示義務品目となり、2年間の猶予期間を経て平成22年6月より表示の義務化が完全施行された。

これに伴い、今年度より宮城県では「えび」及び「かに」を対象としたアレルギー物質を含む食品の検査を開始することとした。そこで、検査対象品目であるインスタント食品についてELISA法による検査の検討を行ったところ、「えび」または「かに」の表示があるものでも定量下限値未満となった検体があった。さらに、日水製薬(株)では、「頭胸部を含むえび」そのものを試料とする場合は通常実施している抽出法ではなく、加熱抽出法を行うことを推奨している。そのため、少量の「頭胸部を含むえび」が含まれる試料の検査において、加熱抽出法の必要性を検討したので報告する。

## 2. 方法

### 2.1 試料

市販されている2種類の頭胸部を含む乾燥えび(試料A:天日干し乾燥した桜えび, 試料B:ボイル処理後乾燥したアキアミ)及びインスタント食品を用いた。

### 2.2 試薬

(株)マルハニチロ食品製甲殻類キット「マルハ」及び日水製薬(株)製FAテストEIA-甲殻類「ニスイ」のELISA法による2種類の定量検査キットを用いた。

### 2.3 試料抽出液の調製

試料は均一になるようにフードプロセッサー、ミルサー等で粉碎し、粉末状とした。

#### (1) 通常抽出法 (以下通常法)

試料1gに検体抽出液19mlを加え、室温で一晩振とう抽出した。

#### (2) 加熱抽出法 (以下加熱法)

試料1gに検体抽出液19mlを加えてよく混合した後、速やかに沸騰浴中で30分間加熱抽出した。

## 3. 結果及び考察

### 3.1 頭胸部を含むえびを測定試料とする場合の抽出法の違いによる測定値の比較

日水製薬(株)では、頭胸部を含む非加熱の甲殻類をELISA法で測定すると、頭胸部に多く含まれるプロテアーゼの影響により甲殻類タンパク質が分解され反応性が低下するため、加熱処理によりプロテアーゼを失活させる方法が有効であるとしている<sup>1)</sup>。このプロテアーゼが測定値に与える影響を確認するため、2種類の乾燥えび(試料A, B)を用いて通常法と加熱法を行い、ELISA法の測定値を比較した。

試料Aの通常法では93 $\mu\text{g/g}$ と低値を示したが、加熱法では51,000 $\mu\text{g/g}$ と、通常法の500倍以上の値となった。試料Bの通常法では460,000 $\mu\text{g/g}$ 、加熱法では510,000 $\mu\text{g/g}$ であり、通常法、加熱法ともにほぼ同じ値であった。

試料Aにおいて通常法の値が低く、加熱法で高い値を示したのは、試料Aが天日干し乾燥した非加熱のものであるため、加熱処理を行わない通常法ではプロテアーゼが残存しており、甲殻類タンパク質がプロテアーゼにより分解され低値となったが、加熱法では加熱によりプロテアーゼが失活して甲殻類タンパク質に影響を与えなかったためと考えられた。また、試料Bにおいて通常法と加熱法で値の差が見られなかったのは、試料Bがボイル処理済みのものであるため、ボイル処理を行った時点でプロテアーゼがすでに失活していたと考えられた。

### 3.2 えび添加模擬試料の測定

買上検査で実際に測定する検体に含まれる甲殻類タンパク質含量を想定し、加熱法の測定値をもとに試料A(約50,000 $\mu\text{g/g}$ )及び試料B(約500,000 $\mu\text{g/g}$ )をそれぞれ甲殻類タンパク質が約10 $\mu\text{g/g}$ (ELISA法における陽性判定基準値)となるように、甲殻類タンパク質が含まれていないインスタント食品で希釈して模擬試料(試料A', 試料B')を作製した。これらを用いて通常法及び加熱法を行って、ELISA法により測定した(n=2)。

測定結果を表1に示した。試料A', B'ともに通常法と加熱法で測定値の差はほとんど見られなかった。これはえびそのものを測定したときと異なり、試料中のえび含有量が少ないため、タンパク質を分解するプロテアーゼの量も少なく、抽出時のプロテアーゼによる影響がほとんどなかったためと考えられた。従って、試料の一部に少量の「頭胸部を含むえび」が含まれる場合には、加熱法を行う必要はないと思われた。

表1 えび添加模擬試料のELISA法による測定結果

	通常法	加熱法
試料A'-1	19	>20
試料A'-2	>20	16
試料B'-1	2.3	1.4
試料B'-2	3.2	2.2

試料中濃度( $\mu\text{g/g}$ )

## 参考文献

1) 柴原裕亮ほか: 食品衛生学雑誌, 50, 153-159(2009)

# 10 食品中のサッカリン検査

生活化学部 ○小野寺由貴子 山口友美 柳茂 齋藤善則 平木恵理 氏家愛子

## 1. はじめに

当所では平成 19 年度より食品中のサッカリン及びサッカリンナトリウム（以下、SA）は、アセトニトリル-水/1:1 による抽出を行い、高速液体クロマトグラフィー（以下、HPLC）により定量を行っている。主な検査対象食品は清涼飲料水、魚介加工品、魚練り製品及び漬物であり、添加回収試験における平均回収率は 86~94%である。しかし、魚介加工品の酢だこの回収率については、他品目に比べ低回収傾向(74~88%)が認められていた。この原因として原材料に含まれる醸造酢により抽出液の pH が低くなるため、酸性物質である SA の回収率が低下したものと考えられた。

そこで、酢だこの SA 検査における回収率の向上を目的として、抽出溶媒の検討を行ったので報告する。

## 2. 方法

### 2.1 試料

試料は添加物として SA 表示のない酢だこを用いた。

### 2.2 標準品

標準品は関東化学(株)製サッカリンナトリウムを用いた。

### 2.3 装置および測定条件

HPLC はフォトダイオードアレイ検出器付(株)島津製作所製 Prominence シリーズ、分析カラムは TOSOH TSKgel ODS-80Ts (φ 4.6×150mm) (東ソー(株))を用いた。カラム温度は 40℃、移動相は 0.01%ギ酸-2mmol/L-酢酸ジブチルアンモニウム/アセトニトリル(80:20)とした。モニタリングは 230nm の波長で行った。

### 2.4 試料溶液の調製

試料 5g を分取し、アセトニトリル-塩化ナトリウム(0.2M)/1:1(以下 A 液)30mL を加え、超音波振とう後、遠心し、上清を分取する。残渣に A 液 20mL を加え、振とう遠心し、上清を分取する。残渣及びろ紙を A 液で洗浄後、水で 100mL に定容し、試料溶液とした。試料溶液を水で 10 倍に希釈し、0.45μm メンブランフィルターでろ過した後、HPLC で測定した。

## 3. 結果と考察

### 3.1 抽出液 pH の検討

日常検査において、酢だこ抽出液の pH が 5 以下の試料で回収率が 80%以下になる傾向があった。そこで、添加回収率と抽出液の pH の関係を調べるため、現行法の抽出溶媒(アセトニトリル:水/1:1) の pH を、1M HCl 及び 1M NaOH を用いて調整し、添加回収試験(試料換

算 0.6g/kg)を行った。この結果、抽出液の pH が 5.5 以上では回収率が 88%以上の安定した回収率を得ることができた (Fig.1)。次に、原材料の異なる 2 種類の酢だこ試料の抽出液 pH を 5.5 以上に調整するため、抽出溶媒にアセトニトリル-リン酸緩衝液(pH4~7)/1:1 を用いて、添加回収試験(試料換算 0.6g/kg)を行った。ほとんどの抽出液において適切な pH に調整できなかったにも関わらず、pH5.5 以下の抽出液でも添加回収率は 84%以上と良好な結果であった(Table.1)。この結果から、回収率向上には pH の影響だけではなく、塩による効果が推察された。

### 3.2 抽出液中塩濃度の検討

塩濃度が回収率に与える影響を調べるため、抽出溶媒としてアセトニトリル-塩化ナトリウム溶液(0~0.6M)/1:1 を用いて、原材料の異なる 3 種類の酢だこ試料で添加回収試験(試料換算 0.6g/kg)を行った。この結果、塩化ナトリウム濃度が 0.2M 以上では、すべての試料で回収率の向上が見られた(Fig.2)。

これらのことから、酢だこの SA 検査において、抽出液の pH を 5.5 以上に調整するか、または、抽出液中の塩化ナトリウム濃度を 0.2M 以上にすることで回収率を向上させることが出来ることがわかった。日常検査においては、簡便で迅速な検査法が求められることから、抽出溶媒としてアセトニトリル-塩化ナトリウム(0.2M)/1:1 を用いることが適当であると考えられた。

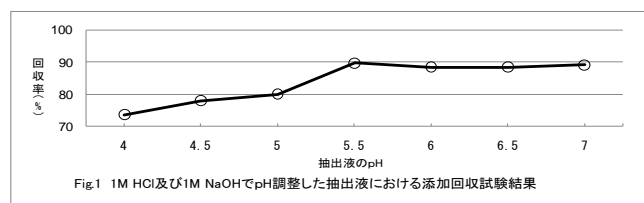
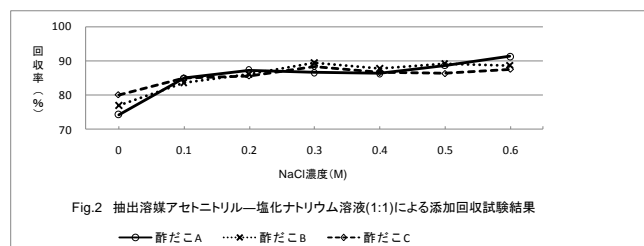


Table.1 リン酸緩衝液による試料溶液のpHと添加回収試験結果

リン酸緩衝液pH	4	4.5	5	5.5	6	7	
酢だこA	試料溶液pH	4.5	4.6	4.6	4.7	5.1	6.6
	回収率(%)	84	87	85	88	87	91
酢だこB	試料溶液pH	3.9	3.9	3.9	4.0	4.2	4.7
	回収率(%)	87	87	88	87	87	91

注: pHの測定は抽出液を100mLに定容した試料溶液で行った。



# 1 1 石巻地区における多環芳香族炭化水素類の発生源に関する一考察

大気環境部 ○小泉俊一 佐久間隆 小川武 北村洋子 菊地秀夫

## 1. はじめに

PAHs(Polycyclic Aromatic Hydrocarbons 多環芳香族炭化水素類)は、石油、アスファルト、タイヤなど石油化学製品中に、また、木材、石炭などの燃焼排ガス、及び、ディーゼル車など自動車排ガス中に見られる。ベンゾ[a]ピレンをはじめとする発ガン性を持つものや、それ自体発ガン性がないものであっても環境中での反応により発ガン性を持つ誘導体を生じるものもあり、環境中での挙動、そして対策を考える上で、その発生源について関心が持たれるところである。PAHsの中でも、2環、3環のPAHsはガス状として、4環以上のPAHsは粉じんに付着する形で大気へ拡散することが知られている。これまでの石巻地区における環境調査で、ガス状PAHs、特にナフタレンの存在比率が高いことが判明し、その発生源を明らかにすることが急務となっているが、ガス状PAHsの発生源情報が少なく、発生源の推定を非常に困難なものにしている。そこで、発生源のPAHsの採取方法、分析法を検討し、発生源の排出状況等を整理することにより、環境に対する発生源寄与の推定を試みるものである。

## 2. 方法

### 2.1 調査地点

工場等が立地しておりバイオマス発電施設がある①固定発生源の近傍、②沿道、③固定発生源及び移動発生源近傍の影響が少ない比較対照地点の3地点を調査地点とした。

### 2.2 試料採取方法及び分析方法

環境試料の採取・分析については、石英繊維ろ紙(QFF)の後方にポリウレタンフォーム(PUF)を2個、さらにバックアップ吸着材として活性炭素繊維フェルト(ACF)1枚を取り付け、ハイボリュームエアースンプラを用いて、流速100L/分で一週間大気を吸引捕集した。PAHsについては、高速溶媒抽出装置により抽出を行い、クリーンアップをした後、GC/MSによりPAHs17種の濃度測定を行った。金属成分については石英繊維ろ紙を分取し酸分解の後ICP-MSで分析した。固定発生源の排出ガス中の試料採取方法は、JISK0311「排ガス中のダイオキシン類の測定方法」に準じJISⅢ形装置で試料採取を行い、環境試料と同様PAHs17種の濃度測定を行った。金属成分については除塵施設であるバグフィルターより採取し、蛍光X線分析法により分析した。

## 3. 結果と考察

### 3.1 環境調査結果

各地点における総PAHs濃度は沿道で最も濃度が高く100~300ng/m<sup>3</sup>、次いで固定発生源近傍50ng/m<sup>3</sup>、比較対照地点20ng/m<sup>3</sup>の順であり、粉じん濃度に比例する結果であった。石英繊維ろ紙で捕集されたものを

粒子状PAHs、PUFとACFで捕集されたものをガス状PAHsとすると、ガス状PAHsの存在比が非常に高く、中でも2環のナフタレンは総PAHsの7割をしめる結果であり、採取地点のPAHsの濃度差はガス状PAHsによるものであることがわかった。

### 3.2 発生源調査結果

比較的PAHs排出の多いとされているバイオマス発電施設排ガス中のPAHs分析結果では3,4環が主な成分であり、2環のナフタレンは低濃度であった。検出された成分の殆どがPUF及びACFに吸着されていることから、これらの成分は排ガス温度70℃程度ではガス化していたものと考えられ、更に分子量が大きく粒子として存在するPAHsは高精度の除塵装置であるバグフィルターで高効率に除去されているものと考えられる。

### 3.3 石巻地区の粉じんの発生源

石英繊維ろ紙で採取された環境粉じんの金属分析結果と発生源金属成分分析値を用いCMB法により発生源寄与を計算したところ、いずれの地点でも、海塩粒子及び土壌の寄与率が高く、沿道ではディーゼル排ガスの影響も見られ、海岸の道路近傍の特徴を表している。

### 3.4 粒子状PAHsの発生源

粒子状PAHsは粉じん濃度の約1000分の1の濃度で存在しているが、4環以上のPAHs分析値とバイオマス発電施設、ディーゼル排ガス等の発生源分析値を用いCMB法により発生源寄与を計算したところ、夏期はバイオマス発電施設、ディーゼル排ガス、タイヤの寄与が大きい、冬期にはバイオマス発電施設の影響が消滅しディーゼル排ガス、タイヤに加えてアスファルトの影響が見られる。これは、夏期にバイオマス発電施設方向からの風が多く、冬期にその風が殆ど見られないためと考える。

### 3.5 ガス状PAHsの発生源

環境中で2環のナフタレンが高濃度で検出されたがバイオマス発電施設排ガス中には少量しか存在しておらずバイオマス発電施設が主な発生源とは考えられない。粉じん及び粒子状PAHsの発生源寄与計算結果から沿道ではディーゼル排ガスの寄与が大きい結果であった。また、ディーゼル排ガスにはナフタレン、アセナフテンが多いとの報告もありナフタレンの発生源はディーゼル排ガスと推察される。

## 参考文献

- 1)環境保健クライテリア No202
- 2)尾崎則篤:環境工学研究論文集 Vol.42.2005
- 3)早狩進:環境データ解析用マクロの紹介と解析例, 大気環境学会誌 Vol.36.2001

# 1 2 伊豆沼・内沼浄化対策としての堰操作と底質の巻上の検討 (第 I 報)

水環境部 ○渡部正弘 鈴木壽雄 福地信一 藤原秀一

## 1. はじめに

伊豆沼・内沼は環境省が公表した「COD が高い水域」において平成 20, 21 年度と 2 年連続で湖沼の全国ワースト 1 位となっており水質の改善が急務とされている。沼の水質浄化対策として、下流堰操作による底質の系外排出が提案されてきた。これまでは沼が濁っていない時でも堰を倒すと沼から底質が排出されると考えられてきたが、堰操作のみで底質が排出されるかどうか試験を行った。また、風が吹いた時の底質の巻上を利用した底質除去が提案されているが、この巻上の発生時期について濁度計を設置して調査した。

## 2. 方法

〔堰操作試験〕伊豆沼下流の荒川の飯土井水門の可倒堰を倒し 2 日間沼出口と荒川沼口橋で採水調査を行った。

【開始日】平成 22 年 9 月 22 日、平成 22 年 12 月 15 日  
〔濁度連続観測〕伊豆沼中央に濁度計を設置し測定した。

【期間】平成 20 年 9 月から 1 年間

〔気象データ〕近傍の気象庁築館アメダスデータによる。

## 3. 結果と考察

### (1) 堰操作

平成 22 年 9 月 22 日の試験では自動採水器を用いて沼出口とその 400m 程下流の沼口橋で採水し、SS を測定した結果を図 1 に示す。この期間中に雨は降ったものの強い風は吹かず風による巻上の影響はなかったものと考えられる。沼口橋では堰を倒して数時間は SS が高くなった。これは河川に堆積していた底泥が流速の上昇に伴い巻上がったためと考えられる。沼出口での SS は堰操作の前後で変化はなかった。堰操作のみでは沼の底質の巻上は認められず沼から底質は排出されないことがわかった。

### (2) 巻上の発生条件

平成 21 年 9 月より 1 年間の伊豆沼中央の濁度データから底質の大きな巻上の月別の発生回数を抽出し図 2 に示す。図 2 の巻上回数は濁度ピークが 2 日間で形成されているものも 1 回と数えている。1 年間だけの伊豆沼中央の濁度データからではあるが、12 月から 3 月にかけて巻上が多く発生する傾向があった。大きな巻上はほぼ最大瞬間風速 15m/s 以上の強風が継続する時に発生しており、この期間での築館アメダスデータでの 15m/s 以上の強風の月別の日数を図 3 に示す。強風時でも巻上が発生しない場合があったが、これは春から秋にかけてはハスが、厳寒期には氷がそれぞれ沼の水面を覆うため巻上までには至らなかったものと考えられる。

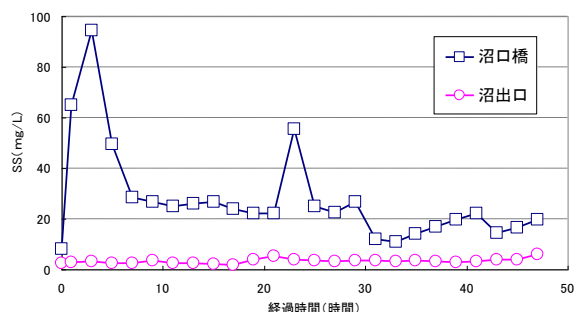


図 1 堰操作による伊豆沼出口と荒川沼口橋での SS 変化(H22.9.22~24)

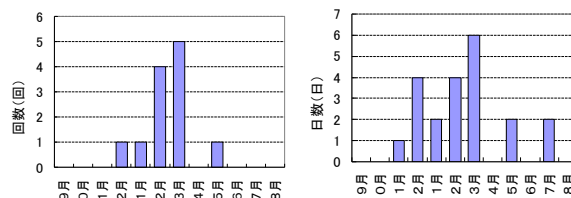


図 2 伊豆沼中央での巻上回数  
(H20.9~H21.8)

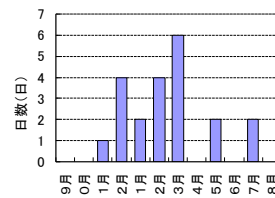


図 3 築館アメダスでの  
最大瞬間風速  
15m/s 以上の日数  
(H20.9~H21.8)

### (3) 堰操作と巻上

伊豆沼は下流域との水位差がほとんどないという地形的な制約から堰操作を行わなければ大きく沼水を排出することができないが、巻上時に堰操作をすれば、沼水と共に沼の底質を排出できると考えられる。近年は沼でハスが繁茂しているので春から秋までは巻上はほとんど期待できず、12 月から 3 月頃であれば巻上時の堰操作の実施による底質の排出が可能と考えられる。この時期は沼への流入水量が少ない時期ではあるが、導水により流入水量を増やせば堰操作による水位低下を数週間で回復可能で、巻上時の堰操作を何度も実施できると考えられる。

## 4. まとめ

伊豆沼下流の堰操作のみでは沼から底質が排出されないことがわかった。また、沼底質の巻上は 12 月から 3 月にかけて多く発生する傾向があるので、巻上時に堰操作を行えば効果的に沼から底質の排出ができ伊豆沼・内沼水質浄化対策に役立つと考えられる。

## 謝辞

堰操作試験および濁度観測にご協力をいただいた関係者の皆様に深謝いたします。



# 1.3 女川原子力発電所周辺海域における放射性ヨウ素の濃度分布と拡散シミュレーション解析

原子力センター ○木村昭裕 石幡祐士 長山美穂 伊藤節男 安藤孝志 石川陽一

## 1. はじめに

沿岸に生育する海藻は海水から特定の元素や物質を濃縮することが知られている。褐藻の一種であるアラメはヨウ素などを濃縮するため、放射性ヨウ素などの濃度変動の指標生物とすることができる。宮城県では、東北電力㈱女川原子力発電所周辺の環境放射能モニタリングにアラメを用いている。放射性ヨウ素の I-131 (半減期 8.0 日) は原子力発電所の炉内には存在するものの、通常は外部に放出されることはない。しかし、事故時等には放出の可能性も考えられる。そのため、環境試料中に I-131 が検出された場合には当該原子力発電所との関連の有無について検討する必要がある。宮城県では、1986 年に旧ソ連チェルノブイリ原子力発電所事故起因の I-131 がアラメも含めた種々の環境試料中に検出されたが、これ以降は検出されることがなかった。しかし、東北電力が 2006 年 7 月に採取した発電所前面海域のアラメから微量の I-131 が検出されたため、宮城県はその発生源や分布状況を確認するために広域環境調査等を行ってきた<sup>1)</sup>。一方、広域の分布調査には限界があるため、海洋における放射性物質の拡散シミュレーション解析も有効であると考えられるが、これまで、女川湾周辺の解析を行なった例はない。

本研究発表会では、宮城県における 2006 年の I-131 検出時から 2010 年 12 月までの検出状況の推移及び濃度の分布状況と女川原子力発電所から放出されたと仮定した場合の物質拡散シミュレーション結果との比較について報告する。

## 2. 測定等の方法と結果

### 1) アラメ試料の採取及び放射能測定

アラメ試料は、女川原子力発電所の前面海域、その周辺海域、及び発電所から直線で 10 km 以上離れた対照海域ごとに幾つかの地点を選定して採取した。試料は生のまま粉碎し、2.0 L のマリネリ容器に充填した後に、ゲルマニウム半導体検出器で放射能の測定を行った。アラメ中の I-131 放射能濃度は、発電所前面海域では ND (検出下限値未満、以下同様) ~0.30 Bq/kg 生、周辺海域では ND~0.13 Bq/kg 生、対照海域では ND~0.47 Bq/kg 生であった。これらの濃度はごく微量であり、人体に影響を及ぼすレベルではなかった。アラメ中の I-131 濃度を同時期の海域間で比較すると、発電所から西側に直線で約 30 km の距離にある対照海域のほうが発電所前面海域より高い値を示す傾向がみられた。例えば、2009 年 8 月には、前述の対照海域のアラメが 0.24 Bq/kg 生であるのに対し、発電所前面海域及び周辺海域では 0.11~

0.14 Bq/kg 生の範囲であった。また、I-131 が検出されたアラメ採取日前の数週間の女川原子力発電所の運転状況等には異常は認められなかった。以上のことから、アラメに検出される I-131 は同発電所とは無関係であると推定された。一方、宮城県以外の海域については、Morita ら<sup>2)</sup>は 2007 年~2009 年に行った全国的調査において、原子力施設周辺以外の海域のアラメを含む褐藻中に最大 0.37 Bq/kg 生の I-131 を検出し、その起源については医療利用起源であろうと述べている。

### 2) 拡散シミュレーション解析との比較検討

I-131 が、女川原子力発電所から連続的に放出されたと仮定し、濃度分布シミュレーション解析を行った。シミュレーション解析は、伊藤忠テクノソリューションズ㈱に委託した。対象海域の地形を 100 m 間隔で数値モデル化し、非圧縮粘性流体に関するナビエ・ストークスの運動方程式と連続方程式を基礎とし、流動対象を海流 (恒流) と潮汐流 (平均潮または平均大潮) に限定して流動場を求め、拡散方程式を基礎としてその流動場における単位量濃度の物質拡散状況を解析した。その解析によると、放出から 36 時間後までの間に、物質は初めは発電所東方向に、次いで南東方向に拡散し、発電所から直線で約 6 km 先の地点で、濃度は初期値の 1000 分の 1 程度まで低下する結果となった。この結果から逆算すると、同発電所からの継続的な I-131 の放出を仮定した場合、例えば、発電所前面海域のアラメから 0.30 Bq/kg 生の I-131 が検出されるためには、毎秒約 0.5 L の炉水 (I-131 濃度: 10 Bq/L<sup>3)</sup>) 流出が必要となる。また、対照海域に比べて、同発電所付近のアラメ中 I-131 濃度は桁違いに高濃度になることが要求される。これらは事実と矛盾しており、この解析結果からも、I-131 の検出原因は同発電所と無関係であると推定できる。

## 3. 結語

宮城県沿岸のアラメから継続的に人工放射性核種の I-131 が検出されている現象について検討した。I-131 が検出される海域や濃度分布、女川原子力発電所の運転状況及び拡散シミュレーション解析結果などから、その原因は同発電所とは無関係であると考えられた。

- 1) 木村昭裕ほか、宮城県原子力センター年報 24 巻、14-25(2006)
- 2) T. Morita *et al.*, *Sci. Total Environ.* 408, 3443-3447(2010).
- 3) 東北電力㈱ 原子力情報 女川原子力発電所 (データファイル) 燃料の監視状況、<http://www.tohoku-epco.co.jp/genshi/datafile/nenryokanshi/nenkansi.html>.

# 14 1991年以降仙台市内で分離された黄色ブドウ球菌の コアグララーゼ型と毒素型

仙台市衛生研究所 ○駒木望 畠山拓 石田ひろみ 酒井克朗 成田美奈子 星俊信  
勝見正道 小黒美舎子

## 1. はじめに

黄色ブドウ球菌 (*Staphylococcus aureus* 以下 *S.aureus*) は、食中毒や感染症の原因菌として広く知られているが、健康なヒトや動物も保菌しており、その分布は広範囲にわたる。仙台市内では1991年～2010年の20年間に *S.aureus* を原因菌とする食中毒が9件発生しているが、*S.aureus* 以外の微生物を原因とする食中毒や苦情由来の検体からも高率 (458件中32件 7.0% 平成21年度集計) に分離される。また、収去食品からも約1.4% (996件中14件 平成21年度集計) から分離されている。今回、仙台市衛生研究所で1991年以降分離され、保存していた *S.aureus* について、PCR法によりコアグララーゼ型と毒素型を調査したので報告する。

## 2. 材料および方法

1991年～2010年に分離され、保存していた *S.aureus* 180株 (収去食品検体由来63株、苦情、食中毒検体由来117株) について、シカジーニナス DNA抽出キット (関東化学) を用いてDNAを抽出し、シカジーニナス コアグララーゼ検出セット (関東化学) と黄色ブドウ球菌検出用 Primer Set (タカラバイオ エンテロトキシンA～E検出用) を使用して各遺伝子の検出を試みた。また、既存の抗血清または抗体を用いた製品 (ブドウ球菌コアグララーゼ型別用試薬「生研」およびエンテロトックスF「生研」逆受身ラテックス凝集反応によるブドウ球菌エンテロトキシン検出用キット) との相関性を調査した。

## 3. 結果

### (1) コアグララーゼ型

収去食品検体由来株 (63株) では、コアグララーゼVII型が21株 (33.3%) と最も多く、次いで、V型13株 (20.6%)、III型8株 (12.7%)、VIII型8株 (9.5%) の順に多く判別された。苦情および *S.aureus* を原因菌としない食中毒検体から分離された菌株 (70株) では、コアグララーゼVII型が20株 (28.6%) と最も多く、次いで、II型9株 (12.9%)、III型とIV型が各8株 (11.4%) と収去食品検体由来株と同様に各型が幅広く判別された。一方、*S.aureus* を原因菌とする食中毒検体から分離された菌株 (47株) では、コアグララーゼVII型28株 (59.6%)、IV型13株 (27.7%) で、この2つの型で供試株の8割以上を占めていた。PCR法と抗血清を用いた市販のキットとの相関性を調査した結果、100% (93/93) 一致した。

### (2) 毒素型

収去食品検体由来株 (63株) では、B型毒素遺伝子保有株9株 (14.3%)、A型毒素遺伝子保有株7株

(11.1%)、C型毒素遺伝子保有株5株 (7.9%) の順に多く検出されたが、A～E型の毒素遺伝子非保有株が39株 (61.9%) と半数以上を占めていた。苦情および *S.aureus* を原因菌としない食中毒検体から分離された菌株 (70株) では、A型とB型毒素遺伝子保有株が各9株 (12.9%)、C型とD型毒素遺伝子保有株が各5株 (7.1%) と収去食品検体由来株と同様の傾向を示したが、A～E型の毒素遺伝子非保有株が41株 (58.6%) と半数以上を占めていた。一方、*S.aureus* を原因菌とする食中毒検体から分離された菌株 (47株) では、A型毒素遺伝子保有株が24株 (51.1%) と過半数を占め、A型とB型両毒素遺伝子保有株も6株 (12.8%) とこれに次いだ。PCR法と抗体を用いた市販のキットとの相関性を調査した結果、100% (65/65) 一致した。

表 仙台市内で分離された *S.aureus* の  
コアグララーゼ型と毒素遺伝子保有状況

コアグララーゼ型 (PCR法)	株数	分離率 (%)	毒素遺伝子保有株数 (PCR法)	保有率 (%)	A	A.B	A.C	A.D	B	C	D	-
1	2	1.1	0	0.0	0	0	0	0	0	0	0	2
2	15	8.3	9	60.0	1	0	0	0	2	1	5	6
3	16	8.9	6	37.5	2	0	0	1	1	2	0	10
4	22	12.2	18	81.8	16	2	0	0	0	0	0	4
5	21	11.7	0	0.0	0	0	0	0	0	0	0	21
6	2	1.1	2	100.0	1	0	1	0	0	0	0	0
7	69	38.3	47	68.1	19	5	0	0	16	7	0	22
8	13	7.2	5	38.5	0	0	0	0	3	1	1	8
ut	20	11.1	2	10.0	0	0	0	0	1	0	0	18
計	180	100.0	89	49.4	40	7	1	1	23	12	6	91

## 4. 考察

1991年以降仙台市衛生研究所で分離された *S.aureus* のコアグララーゼ型と毒素型をPCR法により検査した結果、収去食品検体由来株 (63株)、苦情および *S.aureus* を原因菌としない食中毒検体から分離された菌株 (70株) と *S.aureus* を原因菌とする食中毒検体から分離された菌株 (47株) では、コアグララーゼ型、毒素型の分布に差が認められた。また、今回、供試した菌株においては、PCR法と抗血清等を用いた市販のキットとの相関性はコアグララーゼ型、毒素型ともに100%であり、PCR法によるコアグララーゼ型、毒素型の同定は検査を迅速に進める上で有用であると思われた。

# 15 管内と畜場でみられた豚サルモネラ症

食肉衛生検査所 ○中田聡 川村健太郎 坂上亜希恵 平塚雅之 谷津壽郎

## 1. はじめに

豚サルモネラ症は敗血症や下痢症を主徴とする感染症であり、*Salmonella Choleraesuis*(以下 SC)、*S. Enteritidis*, *S. Typhimurium*, *S. Dublin* を原因とするものは、家畜伝染病予防法に基づく届出が必要であり、と畜場法に基づく全部廃棄の対象となる。また、食中毒の原因菌でもあり、さらに急性胃腸炎や敗血症を起こすことから、家畜衛生と公衆衛生の両方において重要な危害因子といえる。

一方、と畜場に搬入されるサルモネラ感染豚は、明らかな臨床症状を示さず、解体検査時に肝臓病変等により発見されることが多い。

管内と畜場において同一農場からの搬入豚でサルモネラ症を疑う症例が多発し、細菌学的検査および病理組織学的検査を実施したので概要を報告する。

## 2. 材料および方法

### (1) 材料

H21年10月からH22年1月に搬入された豚で、内臓検査時に豚サルモネラ症が疑われた18症例を対象とした。18症例すべてが同一農場から搬入された。

### (2) 方法

#### ① 細菌学的検査

定法によりサルモネラ菌を分離し、血清学的検査および薬剤感受性試験、パルスフィールドゲル電気泳動(以下、PFGE)による分子疫学解析を行った。

#### ② 病理組織学的検査

肝臓および肝リンパ節について肉眼的に観察した後、HE染色、Gram染色を実施し鏡検した。

## 3. 結果

### ① 細菌学的検査

18症例を検査した結果、8症例より22株のサルモネラ菌が分離された。血清型はすべて硫化水素非産生性のSCであり、豚サルモネラ症と診断した。

4症例から分離されたSC10株について実施したPFGEでは、*Bln I* および *Xba I* 処理のいずれにおいても同一パターンを示した。

3症例から分離されたSC3株について実施した薬剤感受性試験では、いずれもミノサイクリン(MINO)に対して耐性を示し、他の16薬剤に対しては感受性を示した。

### ② 病理学的検査

すべての症例で、肉眼で認めた肝小葉内の白色結節病巣に一致して肉芽腫性炎を認めた。これら4症例では、病変の大きさやグリソン鞘への細胞浸潤の程度、あるいは炎症細胞の優位性に違いが見られた。また、このうち3症例においては肝リンパ節にも同様の壊死性病変を認め、肝臓および肝リンパ節内の病巣の一部にグラム陰性桿菌を認めた。

一方、豚サルモネラ症と診断されなかった7症例では、肉眼的に白色結節病変周囲に間質の増生を伴った限局性の間質性肝炎であり、組織像ではグリソン鞘に結合組織の増生と著しい好酸球の浸潤を認めた。その他、肝臓全体のグリソン鞘に線維増生をみる間質性肝炎や、び慢性に肝細胞の壊死と線維化、炎症細胞浸潤をみる慢性肝炎像を認めるものもあった。

また、豚サルモネラ症と診断されたもので、SCが分離されなかった肝臓および肝リンパ節で肉芽腫性炎を認めたものや、反対にSCが分離された肝リンパ節で肉芽腫性炎を確認できなかったものがあった。

## 4. 考察

同一農場から搬入された豚で、精密検査を実施した18頭のうち8頭からSCが分離され、サルモネラ症と診断して全部廃棄処分とした。

今回分離されたSCは宿主適応性が高く、豚で急性敗血症を起こすことが知られている。急死例を除き、主に肝臓の混濁腫脹、チフス結節、リンパ節の腫脹、充出血、カタル性腸炎、腸の充出血、肺の水腫・充血が所見とされ、中でも肝臓の巣状病巣であるチフス結節は重要な所見であるとされる。

今回、豚サルモネラ症と診断された症例においても全ての肝臓に小葉内結節性病巣を認めた。

一方、豚サルモネラ症ではなかった症例の多くは、間質の増生を伴う寄生性肝炎像であり、肝小葉内の巣状壊死病変を認めなかったことから、と畜検査では、この巣状壊死病変の確認をもって本症を疑うことの有用性が改めて示された。

また、肉眼的に異常を認めない肝リンパ節で、組織検索では高率に壊死性病変を認めたことから、サルモネラ症の病理組織学的検査の際は肝臓とともに肝リンパ節の検索が有用であると思われる。

豚サルモネラ症と診断された症例において、臓器からSCが分離されない検体でも組織検索で肉芽腫性炎を認めた例があったことから、複数臓器からの菌分離の実施と共に、凍結切片等による迅速組織診断を併用することが、確定診断の一助となるものと思われる。

今回、同一農場の豚から分離されたSCはPFGEによる分子疫学的解析から同一であることが判明した。よって、組織像で症例により異なる病態を示した原因については、病原の違いによるものではなく生体反応の程度あるいは炎症ステージの違いによるものであることが明確となった。さらに今回分離されたSCは多くの薬剤に感受性であったことから検査結果のフィードバックにより、農場での衛生対策が講じられ、改善が図られつつある。

最後になりましたが、御指導を賜りました保健環境センター微生物部の皆様に深謝いたします。

# 16 生食用鮮魚介類等のヒスタミン産生菌に関する調査（第2報）

微生物部 ○宮崎麻由 中居真代 有田富和 那須務 渡邊節 沖村容子

## 1. はじめに

魚介類を摂食する機会の多い我が国では、ヒスタミンを原因とするアレルギー様食中毒が年間数例～数十例発生している。宮城県でも平成21年に2件の発生があり、うち1件は患者数が100名を超えるものであった。我々は平成21年度に、県内に流通する生食用鮮魚介類等のヒスタミン産生菌による汚染実態調査を行った。78検体中22検体からヒスタミン脱炭酸酵素遺伝子が検出され、*Morganella morganii* 他ヒスタミン産生菌12菌種が分離された。一方、ヒスタミン産生菌量は $<3.0\sim 15/\text{ml}$  (MPN値)であり、一般細菌数に対して少ないという結果であった。

ヒスタミン食中毒の主な原因食品はマグロやメカジキ等の大型赤身魚である。今回、代表的なヒスタミン産生菌の発育至適温度を確認するとともに、魚の水揚げ、解体、加工、流通、販売そして家庭や飲食店等での取り扱いの間で何度も凍結融解が繰り返されると仮定した実験を行い、ヒスタミン産生菌の増殖およびヒスタミン産生量を測定した。

## 2. 方法

(1) 平成21年度の調査で検出された代表的なヒスタミン産生菌 (*Morganella morganii*, *Klebsiella oxytoca*) を Histidine Broth に各々  $10^3\text{cfu/ml}$  添加後、 $0^\circ\text{C}$  から  $25^\circ\text{C}$  まで  $5^\circ\text{C}$  間隔で培養し、混積平板培養法により経時的に菌数の測定を行った。また、ヒスタミン産生量はキット (チェックカラー-Histamine: キッコーマン) を用いて測定した。

(2) (1)のヒスタミン産生菌について、それぞれ0.3%寒天および10%Glycerine加HistidineBrothに $10^9\text{cfu/ml}$ 添加した。加工室の室温と処理時間を $25^\circ\text{C}$ 1時間、保管・流通時の温度を $-80^\circ\text{C}$ と想定して、これを50回繰り返し、(1)と同様に菌数とヒスタミン産生量を測定した。

## 3. 結果

(1)  $0^\circ\text{C}$ では両菌とも増殖はほとんど認められなかったが、 $5^\circ\text{C}$ 以上の各温度で48時間までに菌数が増加した。(図1)。また、菌数の増加に伴ってヒスタミン産生量も増加する傾向を示し(図2)、いずれも $25^\circ\text{C}$ で最も早く最高値に達した。

(2) 凍結融解実験は一旦菌数が減った後、緩やかな上昇が認められた(図3)。また、培養時間の増加に伴いヒスタミン産生量が増加した(図4)。

## 4. 考察

代表的なヒスタミン産生菌である *M. morganii* および *K. oxytoca* では、培養温度と菌数、培養温度とヒス

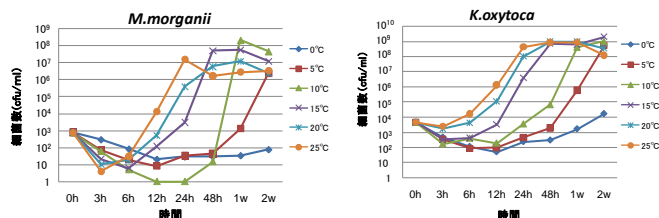


図1 温度別経時変化 (細菌数)

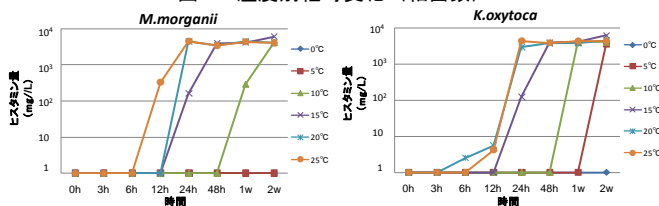


図2 温度別経時変化 (ヒスタミン産生量)

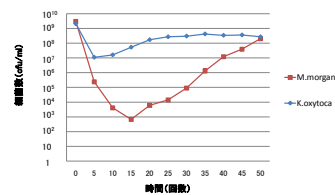


図3 凍結融解実験 (細菌数)

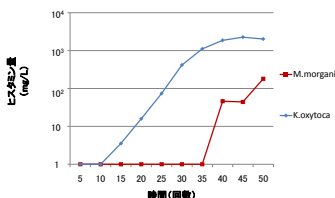


図4 凍結融解実験 (ヒスタミン産生量)

タミン産生量、さらに菌数とヒスタミン産生量に大きな関連があり、加工処理での室温と想定した $25^\circ\text{C}$ に近いほど菌数およびヒスタミン産生量は短時間で増加する傾向にあった。さらに、菌液の凍結と解凍を繰り返した場合でもヒスタミンは産生・蓄積されるため、遠洋で漁獲され、解体、流通するまでの間に多くの加工施設や加工工程を必要とするマグロなど大型の魚では、特にその間の温度や衛生管理の徹底が重要であると思われた。また、我々のこれまでの調査から、生食用鮮魚介類であってもヒスタミンによる食中毒の危険があり、ヒスタミン産生菌は環境常在菌であるため、加工・流過程で食品を汚染する可能性が十分にあることが示されている。

ヒスタミンによる食中毒の防止は、家庭においても生食用であることを過信せずに、鮮魚介類は低温保存し早めに摂食する等、十分注意することが必要であると考えられる。

# 17 夏季に検出される腸炎ビブリオ及びサルモネラの動態について

微生物部 ○後藤郁男 沖村容子

## 1. はじめに

県では、夏季の食中毒予防の一環として昭和49年に「魚介類による腸炎ビブリオ食中毒注意報発令要領」を定めているが、平成17年には「警報発令」を目的とした要領改正を行い県民へのさらなる注意喚起と食品衛生指導の徹底を図っている。微生物部ではこの改正を受けて、従来からの近海海水温と環境中の腸炎ビブリオ調査に加えて発生危険度評価のための広域海水温と気温変動のモニタリングを開始した。また、食中毒菌等の検出状況を評価に反映させるため県医師会健康センター（協力検査機関）から分与された菌株の精査を並行して行った結果、夏季には腸炎ビブリオとサルモネラの検出率が高いという実態が明らかとなった。本報告ではそれら食中毒菌の動態について報告する。

## 2. 材料及び方法

### (1) 警報発令のための評価値の算出

注意報発令は石巻湾海水温の旬平均が19℃を超えた場合とし、警報の発令基準となる評価値は、1.仙台市の予想最高気温（気象庁発表）、2.青森県・宮城県・千葉県の上三県沖の平均海水温（北東アジア地域GOOS）、3.腸炎ビブリオ検出件数（当部と協力検査機関で検出された菌株数）、4.県内の腸炎ビブリオ食中毒発生件数の4項目とし、それぞれを点数化して加算方式で求めた。なお、警報はこの評価値が10点以上の日の継続3日目をもって本庁担当課が発令した。

### (2) 腸炎ビブリオ菌株とサルモネラ菌株の精査

協力検査機関から提供された腸炎ビブリオ菌株は生化学性状試験と食塩耐塩試験、O抗原・K抗原の血清型別を行った。また、耐熱性溶血毒素（TDH）遺伝子を検出するPCRを実施した。サルモネラ菌株は生化学性状試験とO抗原・H抗原の血清型を決定して同定した。

### (3) 海泥の調査

月1回、名取川河口汽水域の海泥を採取して腸炎ビブリオの検出に供した。腸炎ビブリオの検出は常法による分離培養とレシチン依存性溶血毒素の遺伝子を検出するPCRを実施して最確数（MPN値）を求めた。

## 3. 結果

### (1) 評価値と警報の発令状況

評価値10点以上の日が3日以上継続して警報が発令されたのは平成17年と平成20年の8月中旬であった。一方、平成18年と平成21年は評価値10点以上が継続せず警報発令は無く、また、平成19年と平成22年は評価値が警報発令基準を超えたが警報は発令されなかった。

### (2) 腸炎ビブリオ菌株とサルモネラ菌株の精査

協力検査機関より提供された腸炎ビブリオ菌は合計103株で詳細を表1に、また、サルモネラ菌は合計267株で年別内訳を表2に示した。

表1 腸炎ビブリオ菌株精査の結果

年(平成)	17年	18年	19年	20年	21年	22年	合計
精査数	34	18	22	9	5	15	103
TDH陽性率(%)	94.1	83.3	87.5	88.9	80.0	86.7	86.8

表2 サルモネラ菌株精査数

年(平成)	17年	18年	19年	20年	21年	22年	合計
精査数	62	41	46	46	27	45	267

### (3) 海泥の腸炎ビブリオ調査

平成17年から平成22年の間に、海泥の腸炎ビブリオのMPN値が最高となったのは、いずれの年も8月あるいは9月で、表3に当該月のMPN値を示した。

表3 海泥の腸炎ビブリオ最確数(MPN値)

年(平成)	17年	18年	19年	20年	21年	22年
MPN値が最高となった月	9	9	8	8	9	8
MPN値	9300	4300	1100	11000	4600	9300

### (4) 評価値の再検討

平成18年と平成21年は評価値10点以上が継続することなく警報は発令されなかったが、一つの試みとして環境調査で得られた海泥の腸炎ビブリオMPN値とサルモネラ検出数を点数化し、この2年の結果に加えて再解析したところ、両年とも8月中旬から下旬に評価値が10点に達する期間がみられた。

## 4. 考察

かつて腸炎ビブリオによる食中毒発生件数は、サルモネラと並んで上位を占めていたが、近年では全国的に大きく減少している。当県においても同様で、6年間の調査結果からも腸炎ビブリオが夏季の食中毒や胃腸炎の主因では無くなりつつあるものと思われる。しかしながら、環境調査では海水温の上昇に伴い海泥のビブリオMPN値が大きく上昇することや海泥中に腸炎ビブリオ病原因子が検出されること、さらに胃腸炎患者から検出される腸炎ビブリオの多くがこの因子を持つことなど、依然として海産物が夏季の腸炎ビブリオ食中毒の発生源である事実には変わりはない。

一方、当部では協力検査機関で検出した食中毒菌の精査を行っているが、サルモネラの分与数は年間でおおよそ45株にも及び、その多くが夏季に集中していた。そこで、「腸炎ビブリオ警報」のための評価値に環境のビブリオ調査結果とサルモネラ検出数を新しいファクターとして加えた結果、大変興味深いことに従来では「警報発令」に満たない年においても評価値の高い期間が存在した。

これらのことから、夏季の食中毒予防対策では原因菌の検出実態と食中毒発生の要因を総合的に考慮すべきであり、「腸炎ビブリオ」に関してだけでなく夏季の食中毒予防全般にわたる注意喚起の方法について考えるべき時期にあるのではないかとと思われる。

## 5. 謝辞

貴重な菌株を提供いただきました宮城県医師会健康センターに深謝します。

# 18 2010年手足口病・ヘルパンギーナから検出されたエンテロウイルスについて

微生物部 ○阿部美和 高橋由理 植木洋 佐藤由紀 菅原優子 沖村容子

## 1. はじめに

手足口病及びヘルパンギーナはともにエンテロウイルスを原因とし、例年5月から9月（第20週から第40週）に主に小児の間で流行する感染症である。2010年の宮城県における両疾患の定点あたりの患者報告数は2006年からの5年間でもっとも多く、ピーク時の第28週には、手足口病が6.17人、ヘルパンギーナが12.02人であった。

当センターでは感染症発生動向調査事業に基づき両疾患の病原体検査を行ったので、検出されたエンテロウイルスについて報告する。

## 2. 方法

検体採取は各保健所を通して医療機関に依頼した。咽頭ぬぐい液は冷蔵もしくは凍結の状態に搬入され、抗生剤を添加混和後（凍結のものは溶解後に）、氷冷で20分間静置し、3000rpm、20分間冷却遠心分離した上清を細胞接種液とした。この細胞接種液をHEp-2, RD18s, Vero9013, Caco-2の各細胞に接種し、3代目まで形態の観察を行った。CPE（細胞変性効果）が現れた細胞の上清を用いてエンテロウイルスVP1領域のPCRを行い、陽性のものについてダイレクトシーケンスを実施した。また、CPE陰性の検体が多かったため、シーズン途中よりCPE陰性の検体について細胞接種液（咽頭ぬぐい液）を用いて同様にPCR、ダイレクトシーケンスを行った。得られた塩基配列についてDDBJ（DNA Data Bank of Japan）のBLASTによる相同性の検索を行った。

## 3. 結果

手足口病と診断された患者検体17件中ウイルス分離陽性であったものは11件で、内訳はエンテロウイルス71型（EV71）が9件、A群コクサッキーウイルス6型（CA6）が2件であった。また、細胞接種液から遺伝子を検出したものは1件で、CA6であった。

一方、ヘルパンギーナ患者検体36件中ウイルス分離陽性検体は14件で、内訳はA群コクサッキーウイルス2型（CA2）が1件、4型（CA4）が9件、CA6が4件であった。細胞接種液から遺伝子を検出したものは16件で、内訳はCA2が3件、CA4が4件、CA6が8件、型不明1件であった。

分離されたウイルスのうちEV71はVero9013とCaco-2で分離され、CA2はRD18s、CA4は主にRD18sとCaco-2であったがVero9013で分離された株も1例あった。CA6はRD18sとCaco-2で分離された。

## 4. 考察

ウイルスの分離率は手足口病で64.7%、ヘルパンギ

ーナで38.9%であった。

分離されたウイルスはA群コクサッキーウイルスとEV71であったのでHEp-2での分離はなかった。A群コクサッキーウイルスに感受性の高いRD18sとVero9013で主に分離されたが、広く感受性を持つCaco-2のみで分離された株も3件あった。

手足口病から分離されたウイルスの中で最も多かったのはEV71で81.8%であった。国立感染症研究所感染症情報センター 病原体検出情報（IASR）1月31日現在の2010年検出分のデータにおいても、手足口病患者から最も多く検出されているウイルスはEV71であり、全国的な流行と一致する結果であった。手足口病の主な原因ウイルスはEV71とA群コクサッキーウイルス16型（CA16）であるが、年によって流行するウイルスが異なる。IASRのデータでは、2009年の検出ウイルスは混在していたが、2008年に流行したウイルスはCA16であった。2009年は県内で手足口病の大きな流行はみられず、採取された検体4件からウイルスは分離されなかったことから全国との比較はできなかった。2008年は検体7件中2件のCA16が分離されている。

ヘルパンギーナで最も多く分離されたウイルスはCA4の64.3%であり、次にCA6が28.6%であった。遺伝子のみの検出も含めるとCA4が43.3%、CA6が40.0%とほぼ同程度の割合であった（CPE陰性の細胞接種液でPCRを行っていないものを除く）。IASRのデータではCA4が最も多く、次いでCA2、CA6の順であり、県内ではCA6の割合がやや高い結果となった。一般的にヘルパンギーナの原因ウイルスはCA4が最も多く、次いでCA10、CA6であるとされるが、手足口病と同様に検出されるウイルスには年によって変化があり、県内では2009年は検体13件中3件でB群コクサッキーウイルス3型が、2008年は検体14件中CA4が3件、CA10が2件分離されている。

## 5. まとめ

2010年県内の手足口病患者から検出されたウイルスで最も多かったのはEV71、ヘルパンギーナ患者からの検出ウイルスはCA4であり、どちらも全国データと一致する結果であった。

両疾患とも症状のみで原因ウイルスを特定できないことから、県内の病原体検査を継続していくことは重要である。

また、手足口病・ヘルパンギーナは一般に予後の良好な疾患であるが、とくにEV71による手足口病の流行時には中枢神経合併症の頻度が高くなることが報告されており、その発生傾向も監視する必要があると思われる。

# 19 酵素を用いたカキからのノロウイルス濃縮法の検討

微生物部

○高橋由理 阿部美和 植木洋 佐藤由紀 菅原優子

沖村容子

国立医薬品食品衛生研究所

野田衛

東北大学大学院工学研究科

真砂佳史

大村達夫

## 1. はじめに

2009年度生食用カキが原因と推定される食中毒が、宮城県をはじめ全国的に増加した。当所では、2003年11月（食安監発第1105001号）に定量PCRによるノロウイルス（NoV）遺伝子検出が公定法に追加されて以来、同法で市販生食用カキを対象にNoV遺伝子検出検査を行っているが、陽性と判断される実測値10コピーを越える検体は確認されていない。

NoV遺伝子の検出感度を向上させることは、カキを原因とする食中毒のリスクを低減させる上で重要である。特に、カキを対象としたNoV検査では、カキ中腸腺に付着しているグリコーゲン及び脂肪などが、ウイルス濃縮やRNA抽出を阻害すると報告されている。

そこで、我々は高感度なNoV検出法の開発を目的として、ウイルス濃縮行程において、酵素による消化及び乳剤調製用緩衝液のpHの違いによるNoV遺伝子検出効果の比較、検討を行ったので報告する。

## 2. 方法

### 2.1 カキ試料

他県産冷凍カキ69個（ロット1:35個, ロット2:34個）および県内産加熱用カキ40個を使用した。

### 2.2 試薬

#### (1) 酵素の違いによる比較

糖質を分解する $\alpha$ -アミラーゼ（AM：枯草菌由来, 20units/mg以上, 和光純薬）、脂質を分解するリパーゼ（LP：ブタ肝臓由来, 25.9USP units/mg, 和光純薬）及び糖質、たん白質、脂質を分解するパンクレリパーゼ（PL：ブタ膵臓由来, 和光純薬）を用いた。PLはAM, LP, プロテアーゼを含有する酵素であり、各々の酵素活性はAM 100units/mg, LP 24units/mg, Protease 100units/mgである。

#### (2) 乳剤調製用緩衝液のpHの違いによる比較

AMの至適pH7.45リン酸緩衝液, LPとPLの至適pH9.0グリシン緩衝液を作製し、それぞれの緩衝液と供試酵素を加え比較、検討した。

### 2.3 操作

カキは1個体ずつ無菌的にハサミで中腸腺を摘出し、中腸腺2個を1検体とした。検体重量の9倍量の緩衝液を加え、ストマッキングにより10%乳剤を作製した。

AMは2.5mg/ml, LPとPLは10mg/mlとなるように酵素を添加した。37°C, 1時間消化後, 8,000×g, 20分遠心分離した上清を分取し, ポリエチレングリコール（PEG）とNaClをそれぞれ最終濃度0.12g/ml, 0.058g/mlとなるように加え, 完全に溶解させた。次に, 8,000×g, 30分遠心分離し, 沈渣を400 $\mu$ lの0.5% Zwittergentで再浮遊させRNA抽出材料とした。遺

伝子検査は、公定法に従い定量PCR法により行った。

## 3. 結果

### 3.1 他県産冷凍カキ

表1に他県産冷凍カキのNoV遺伝子検出結果を示した。AM処理でのみ遺伝子が検出されており、AMの至適pHである7.45において2well(duplicate)ともに遺伝子が検出された検体が2件あった。

### 3.2 県内産加熱用カキ

表2に県内産加熱用カキのNoV遺伝子検出結果を示した。酵素処理を行わなかった系とAM処理では、5検体すべてNoV G2群が検出された。

表1 NoV遺伝子検出結果（他県産冷凍カキ）

ロット	検体番号	pH	酵素処理なし		AM処理		LP処理		PL処理	
			G1	G2	G1	G2	G1	G2	G1	G2
1	1	9.0	-	-	-	-	-	-	-	-
	2		-	-	0.52	1.5	-	-	-	-
	3		-	-	-	-	-	-	-	-
	4		-	-	0.53	-	-	-	-	-
	5	7.45	-	-	-	-	-	-	-	-
	6		-	-	0.58	1.1	-	-	-	-
	7		-	-	-	0.24	-	-	-	-
2	1	9.0	-	-	-	-	-	-	-	-
	2		-	-	-	-	-	-	-	-
	3		-	-	0.43	1.2	-	-	-	-
	4		-	-	-	-	-	-	-	-
	5	7.45	-	-	-	0.36	-	-	-	-
	6		-	-	0.46	-	-	-	-	-

表2 NoV遺伝子検出結果（県内産加熱用カキ）

検体番号	pH	酵素処理なし		AM処理		LP処理		PL処理	
		G1	G2	G1	G2	G1	G2	G1	G2
1	7.45	-	3.7	-	19	-	-	-	-
2		-	1.6	-	13	-	-	-	-
3		-	2.8	-	17	-	-	-	-
4		-	1.3	13	30	-	0.77	-	-
5		-	1.2	15	23	-	-	-	-

網掛けはduplicateで遺伝子が検出されたことを示す数字は実測値(copy/ $\mu$ l cDNA)

## 4. 考察

今回の実験の結果、使用した緩衝液のpHに依存せず、NoV遺伝子の検出率、検出値（実測値）共にAM処理が最も高かった。一方、LP処理、PL処理は酵素処理を行わなかった系と比較しても検出率が低く、LP処理、PL処理がPEGによる濃縮もしくはRNA抽出にマイナスの影響を与えたことが示唆された。

一方、奥村らはLP処理がカキからのウイルス濃縮に効果があることを報告しており、特に脂肪が蓄積される春季のカキでは、効果が高いことを確認している。

今回の実験では、AM処理とLP処理及びPL処理の間に、顕著な検出率の差が出たことについては不明である。今後これらの原因を解明し、検出感度の向上に繋げたい。