

第 3 2 回 研 究 発 表 会 要 旨 集

平成 2 9 年 3 月 1 0 日

宮城県保健環境センター

第32回保健環境センター研究発表会 プログラム

日 時 平成29年3月10日（金） 午前10時から午後3時30分まで

場 所 保健環境センター（大会議室）

日 程

- | | | | |
|---|--------------|-------------|-------------|
| 1 | 開 会 | | 10:00 |
| 2 | あいさつ | 保健環境センター所長 | |
| 3 | 研究発表 | | |
| | セッションⅠ（口頭発表） | 1～ 3 | 10:15～11:00 |
| | セッションⅡ（口頭発表） | 4～ 5 | 11:00～11:30 |
| | 昼食・休憩 | | 11:30～13:00 |
| | セッションⅢ（口頭発表） | 6～10 | 13:00～14:15 |
| | 休憩 | | 14:15～14:30 |
| | セッションⅣ（口頭発表） | 11～13 | 14:30～15:15 |
| 4 | 講 評 | 保健環境センター副所長 | |
| 5 | 閉 会 | | 15:30 |

発表方法等

- 1 発表時間は、発表10分、質疑5分、合計15分です。
- 2 次の演者及び座長は、指定の席で待機願います。

=== 研究発表 ===

○ 発表者

セッションⅠ 座長：安藤大気環境部長

10:15 ~ 11:00

- 1 濁川水系における水質調査について
ー清水原橋（補助測定点）での異常水質に関する現地調査報告ー
水環境部 ○三品 道子 加川 綾乃 石川 文子 佐藤 優
矢崎 知子 郷右近 順子 佐藤 重人
- 2 底層溶存酸素量と生物種の関連性の調査 ー湖沼への類型指定に向けて（第1報）ー
水環境部 ○佐藤 優 福地 信一 郷右近 順子 佐藤 重人
- 3 東北地方太平洋沖地震による地下水への影響について
ー地下水常時監視データからの経年的な比較ー
水環境部 ○加川 綾乃 郷右近 順子 佐藤 重人

セッションⅡ 座長：佐藤水環境部長

11:00 ~ 11:30

- 4 仙台空港周辺における航空機騒音測定調査
ー航空機騒音測定・評価マニュアルに基づく測定評価方法等の再検証ー
大気環境部 ○島影 裕徳 菊地 英男* 安藤 孝志
※ 元 保健環境センター
- 5 宮城県における揮発性有機化合物（VOC）のオゾン生成への寄与について
大気環境部 ○日野 栞 佐藤 郁子* 佐久間 隆 安藤 孝志
※ 現 中南部下水道事務所

=== 昼食・休憩 ===

11:30 ~ 13:00

セッションⅢ 座長：高橋生活化学部長

13:00 ~ 14:15

- 6 県内で今シーズンに流行したノロウイルスの遺伝子型について
微生物部 ○小泉 光 菅原 直子 佐々木 美江 植木 洋 渡邊 節
- 7 流入下水中の水中病原ウイルスの挙動
微生物部 ○菅原 直子 小泉 光 佐々木 美江 植木 洋 渡邊 節
- 8 環境中に生息するレジオネラ属菌の感染リスク調査
微生物部 ○山口 友美 有田 富和 吉川 弓林 畠山 敬 渡邊 節

- 9 仙台市内で分離されたA群溶血性レンサ球菌の *emm* 遺伝子解析
仙台市衛生研究所 ○勝見 正道 星 俊信 尾崎 瑤子 神鷹 望
千田 恭子 牛水 真紀子 森 直子 坂本 宣子
山田 香織 松原 弘明 大金 由夫

- 10 リアルタイムPCRを用いた豚丹毒菌の迅速な検出法の検討
食肉衛生検査所 ○高橋 巧

=== 休 憩 ===

14:15 ~ 14:30

セッションⅣ 座長：渡邊微生物部長

14:30 ~ 15:15

- 11 業務用食用赤色102号中に存在する不純物について
生活化学部 ○佐々木 多栄子 千葉 美子 高橋 剛
- 12 モニタリング調査における当所のメチル水銀分析法について
生活化学部 ○戸澤 亜紀 千葉 美子 高橋 剛
- 13 LC-MS/MSによる下痢性貝毒（オカダ酸群）分析法の検討
生活化学部 ○佐藤 智子 千葉 美子 佐藤 由紀 高橋 剛

1 濁川水系における水質調査について

-清水原橋（補助測定点）での異常水質に関する現地調査報告-

水環境部 ○三品道子 加川綾乃 石川文子 佐藤優 矢崎知子 郷右近順子
佐藤重人

1 はじめに

蔵王山は常時観測対象の火山であり、濁川水系の発源地となっている。県では平成7年度より清水原橋を公共用水域補助測定点として設定し、以後水質観測が継続されている。平成27年4月～5月にはお釜付近が震源とみられる火山性微動が観測され、平成27年11月・平成28年1月には清水原橋地点でのpH低下（pH4）が確認されたため上流部の現地調査を実施した。

2 調査概要・測定方法

濁川はお釜西側に位置する馬の背付近を源流とし、振子沢・丸山沢等お釜付近を源流とする水源と合流して清水原橋へ至る。そのため、それぞれの水源に関して、濁川合流前後に調査地点を設定し調査を実施した。また、濁川の上流部にあるお釜及びお釜に流入する水系及び付近の土壌について調査を実施した。

2.1 調査地点（図1）

2.1.1 濁川上流部

イ 濁川：源頭部（馬の背付近）→振子沢合流後
→丸山沢合流前→丸山沢合流後

ロ 振子沢：濁川合流前

ハ 丸山沢：濁川合流前

2.2.2 お釜及び流入河川

イ お釜湖水：西岸・北岸

ロ お釜流入河川：

五色川（上流・中流・下流（お釜流入部））

ハ お釜周辺：五色川下流（お釜流入部）土壌

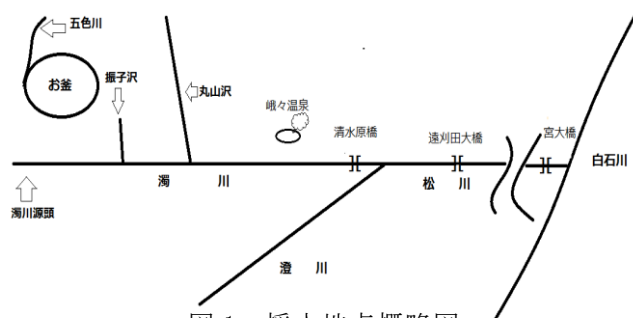


図1 採水地点概略図

2.2 調査項目

pH(ガラス電極法), EC(電気伝導度計法), Cl⁻・SO₄²⁻(イソクロマトグラフ), Cu・Zn・T-Fe・T-Cr・Cd・Pb・Al・Si (ICP発光分析), SiO (比色法), 流量(流量計法)

3 結果及び考察

濁川は上流部にてpHの低下とSO₄²⁻濃度の上昇

が確認されたが、下流になるほどpH上昇しSO₄²⁻濃度が低下する傾向が見られた(表1)。流入する支川である振子沢・丸山沢はいずれも濁川上流部よりpHが高くSO₄²⁻濃度が低いことからpH低下の原因ではないと推定された(表2)。

表1 濁川

地点	濁川	振子沢	振子沢	丸山沢	丸山沢	清水原橋
	源頭部	合流前	合流後	合流前	合流後	
採水年月日	H28.9.2	H28.7.22				H28.7.21
pH	3.8	3.6	3.6	3.7	4.3	4.8
SO ₄ ²⁻ (mg/L)	100	510	470	410	280	120
流量(m ³ /S)	0.02	0.21	0.39	0.27	0.86	1.51

表2 流入する支川

地点	振子沢	丸山沢
採水年月日	H28.7.22	
pH	4.3	6.4
SO ₄ ²⁻ (mg/L)	160	37
流量(m ³ /S)	0.17	0.31

お釜湖水は西岸・北岸地点間で水質に差は認められず、平成7年の調査と同じ傾向であった(表3)。

五色川は、上流部から中流部にかけての水質に差は認められなかった。中流部から下流部にかけては火口壁の崩落土砂中に河川水が伏流し、一旦流路が途絶えていたが、再び下流部で湧出しお釜へ流入していた。下流部ではpH低下やEC・SO₄²⁻の上昇が認められた。(表3)下流部周囲の土壌は白色粘土状でpHは3.0であった。

表3 お釜・五色川

地点	お釜		五色川		
	西岸	北岸	上流	中流	下流
採水年月日	H28.10.14		H28.10.14		
pH	3.3	3.3	4.4	4.3	2.8
SO ₄ ²⁻ (mg/L)	279	280	75	74	1600
EC(mS/m)	69	70	19	19	269
Cl ⁻ (mg/L)	3	3	3	3	-注

注：測定不能

4 まとめ

本調査によってpH低下の直接要因を特定することは出来なかったが、調査実施期間(平成28年6月～10月)における清水原橋のpHは4.8～6.2であり、pH低下している時期ではなかったことも影響があったと推定される。今後も清水原橋等の常時監視地点の水質変動に留意し、異常な水質の兆候が認められた場合は、必要な現地調査を実施していきたいと考えている。

2 底層溶存酸素量と生物種の関連性の調査

—湖沼への類型指定に向けて（第1報）—

水環境部 ○佐藤優 福地信一 郷右近順子 佐藤重人

1 はじめに

平成 28 年 3 月に、海城および湖沼等における底層溶存酸素量（以下底層 D0）が新たな環境基準として定められた。

これをうけ当所では今年度より県内内陸湖沼の調査を行うこととし、本年は、県内最大級の自然由来湖沼である長沼を対象として、現地水質調査並びに生息魚種についての文献及びアンケートによる調査を行ったので、その結果について報告する。

2 調査概要

＜対象湖沼・長沼について＞

水深は 1～3m と浅く、河川流入も少ないため恒常的に高 COD 値を呈している。洪水調節として用いられる他、2000m の漕艇競技コースが常設されている。

2.1 現地水質調査

2.1.1 調査日程

貧酸素の原因となる水温躍層が形成されやすい夏季（7 月）、躍層が解消される秋季（10 月）に実施した。

2.1.2 調査地点

沼を 200m メッシュで区切り、上流部、中央部（漕艇場）、下流部（環境基準点）を基点として測定地点を選定した（21 地点）。なお、主に沼内のハスが繁茂している地点は調査船が立ち入れないため調査対象外とした。

2.1.3 調査方法

船上より各調査地点で多項目水質計を吊下し、水質（D0、pH、chl-a、EC、ORP、水深、濁度、水温）の測定を行った。なお、4 地点（秋季は 5 地点）では併せて採水（上層・下層）を実施し、各種水質分析（各態窒素、リン酸態リン、全窒素、全リン、全鉄、全マンガン、COD、SS）を行った。

2.2 生息魚種についての文献調査とアンケート

平成 18 年に宮城県内水面水産試験場がとりまとめた資料を参考に独自の調査票を作成し、現在から 10 年程度前までの魚類生息状況について長沼を所管する関係部局、自治体、漁協、有識者へのアンケート調査を実施した。併せて、環境省の資料より魚種別の貧酸素耐性値についてとりまとめた。

3 結果・考察

3.1 現地水質調査

各地点での測定データから換算された長沼における底層 D0 の濃度分布を図 1 に示した。

夏季は秋季と比較して湖内全域で酸素濃度が低下しており、下流域には周囲よりも濃度が低下し

た地点もあった。これらの地点では、クロロフィル濃度が他地点（13.2～23.6 $\mu\text{g/L}$ ）に比べて低く（4.6～8.0 $\mu\text{g/L}$ ）になっていたが、他の測定項目では D0 値との関連は見られなかった。

周囲に繁茂するハスや、近隣の汚濁源など、沼の立地や地形、周辺環境からの影響が考えられた。

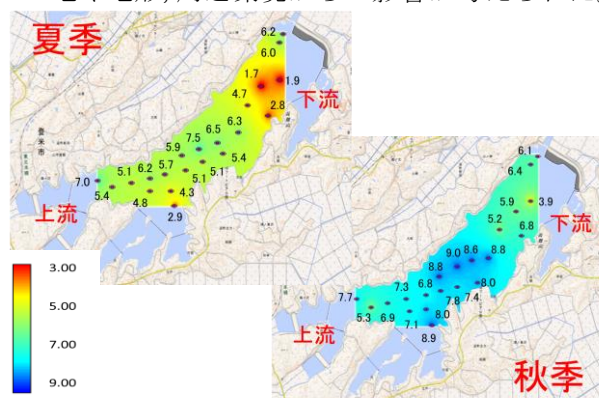


図 1 長沼底層 D0 濃度平面分布（mg/L）

3.2 水質分析

採水を行った全地点で夏季、秋季ともに上層の COD 値が 7.2～8.6mg/L と環境基準（5mg/L）を超えていたが、他の項目では特に異常な値は見られなかった。

3.3 生息魚種についての文献調査とアンケート

アンケートを集計したところ、長沼には現在までに 40 種の魚種が生息していたが、うち 10 種は最後の確認が 5 年以上前であり、現在生息が確認できるのは 30 種となっていた。

主な生息魚種と貧酸素耐性値の一部を表 1 に示す。

表 1 長沼の主な生息魚種と貧酸素耐性

分類			最終確認 時期	貧酸素 耐性値
科	属	種		
ウナギ	ウナギ	ウナギ	1年以内	1.6
		タモロコ	タモロコ	1年以内
コイ	モツゴ	モツゴ	1年以内	1.2
	カマツカ	カマツカ	1年以内	2.3
ドジョウ	ドジョウ	ドジョウ	1年以内	1.2

4 まとめ

長沼は、水深が浅く恒常的に高い COD 値を示し、近年はハスが増加している。

本調査により、底層 D0 が低下している地点が存在したことを確認したが、アンケート調査からは多様な魚種が生息していることがわかった。

今後、他湖沼における測定データや、生息魚種の特性と貧酸素の関係についてさらに調査を進めることで、県内湖沼の実態に即した類型指定を行う際の基礎資料の一端として活用できると考えられる。

3 東北地方太平洋沖地震による地下水への影響について

ー地下水常時監視データからの経年的な比較ー

水環境部 ○加川綾乃 郷右近順子 佐藤重人

1 はじめに

平成23年3月11日に発生した東北地方太平洋沖地震によって大規模な地殻変動が生じ、県内沿岸部では多くの地域で津波による被害を受け、県内各地の地下水質へ相当の影響を及ぼしたものと考えられる。そこで、地下水常時監視データを活用し、地震前に沿岸部で実施した概況調査地点について改めて調査（以下、再度概況調査）を実施し、過去の調査結果と比較した。また、概況調査で環境基準超過が発見された場合、その超過項目について継続して行っている調査（以下、継続監視調査）地点における地震前後での水質の比較を行ったので報告する。

2 調査概要

2.1 再度概況調査

2.1.1 調査対象

石巻及び気仙沼保健所管内に存在し、震災以前10年間に概況調査を実施した井戸を調査対象とした。調査対象井戸数は計22件であり、そのうち津波被害を受けたのは11件、うち2件について今回調査を行った。また、津波被害を受けていない1件についても調査を行った（表1）。採水は平成28年9月に実施した。

2.1.2 調査項目及び方法

現場にて湧出状況の確認、採水及び井戸所有者への聞き取りを行い、環境庁告示第10号等の公定法に準拠した水質測定を行った。水質は、環境基準項目、pH、電気伝導度、塩化物イオン及び水温の実測値を比較した。

表1 調査対象

分類	井戸No.	対象環境基準項目	保健所	所在地	津波被害	備考
再度概況	#1	全て	石巻	東松島市小野	○	H13実施
	#2		気仙沼	気仙沼市三日町	○	H17実施
	#3		気仙沼	気仙沼市新田		H22実施
継続	#4	ひ素	仙南	角田市佐倉		H12から継続
	#5		塩釜	大和町鶴巣大平		H7から継続
	#6		気仙沼	気仙沼市唐桑町		H8から継続
	#7					H10から継続
	#8	VOCs	塩釜	大和町吉岡		H4から継続
	#9					H5から継続
	#10					
	#11		大崎	栗原市築館萩沢		H2から継続
	#12					
	#13			栗原市志波姫堀口		H8から継続
	#14					
	#15					
	#16					
	#17	硝酸性窒素及び	仙南	蔵王町円田		H20から継続
	#18	亜硝酸性窒素	塩釜	七ヶ浜町花淵浜	○	H19からH25まで継続 電気伝導度も比較

2.2 継続監視調査

2.2.1 調査対象

震災以前から今年度まで継続監視調査を実施している井戸（#4～17）及び津波被害を受け、

地震前後に継続監視調査を実施していた井戸（#18）の計15件を対象とした。

2.2.2 調査項目及び方法

過去に基準超過が確認された項目、pH、電気伝導度及び水温を対象とし水質の経年比較を行った（表1）。

3 結果

3.1 再度概況調査

- ・調査対象井戸数22件のうち、11件が津波による被害を受けていた。
- ・3件いずれにおいても、測定項目の環境基準を満たしていた。
- ・ふっ素では上昇傾向が見られた。
- ・pHやほう素、硝酸性窒素及び亜硝酸性窒素では、上昇及び減少傾向の双方が見られた。
- ・地下水の塩水化の指標として、電気伝導度の比較を行ったところ、顕著な変動は見られなかった。

3.2 継続監視調査

- ・硝酸性窒素及び亜硝酸性窒素については、地震前後での変動が確認できなかった。
- ・VOCsについては、急激な変動が見られる井戸があったが、地震の影響によるものなのかは不明であった。
- ・電気伝導度については、対象井戸中で唯一津波被害を受けた#18において大きく上昇していることが認められた。

4 考察

継続監視調査の経年比較において、津波被害を受けた地下水の電気伝導度の上昇が確認できた地点があった。これは、海水が地下水に流入し、電解質濃度が上昇したこと等が原因として推測される。

概況調査の震災前後比較では、中川ら¹⁾の報告にあるような地下水質の大幅な変動については確認できなかったが、震災から5年以上が経過していることや調査実施件数の少なさも要因の一つであると考えられる。

今後、県内内陸部についても多くの井戸を対象として地下水質の変動等調査を実施し、地震による地下水質への影響等の資料としていきたい。

（参考文献）

¹⁾ 中川啓 他 (2014): 東北地方太平洋沖地震による津波被害を受けた南三陸町における地下水・河川水・土壌調査。地下水学会誌, 56(2), 107-109

4 仙台空港周辺における航空機騒音測定調査

— 航空機騒音測定・評価マニュアルに基づく測定評価方法等の再検証 —

大気環境部 ○島影裕徳 菊地英男※ 安藤孝志
※元 保健環境センター

1 はじめに

航空機騒音に係る環境基準の一部を改正する告示（環境省告示第114号）が平成25年4月1日に施行され、航空機騒音の評価指標が「WECPNL」から、時間帯補正等価騒音レベル「 L_{den} 」に改正された。環境省では、平成21年7月に、改正後の環境基準に対応した「航空機騒音測定・評価マニュアル」（現在の最新版は平成27年10月版以下、「マニュアル」という）を作成し、今後はマニュアルに基づく測定データを蓄積し、測定・評価方法等の再検証を行う予定としている。今回、平成27年度環境省委託業務として、マニュアルに基づく測定・評価方法等の再検証に資するため騒音測定調査を行ったので報告する。

2 調査概要・測定方法

仙台空港周辺3地点において自動測定及び有人測定をそれぞれ航空機騒音測定・評価マニュアルに準じて1日間実施した。調査にあたっては有人測定との比較による自動測定の精度検証、マニュアルに示す手法による測定・評価が困難な観測事例の整理、その他測定・評価時に気づいた事項のとりまとめを含むものとして実施した。

有人測定においては、精密騒音計リオン(NL-32)を用い、測定時間中の騒音レベルを0.1秒間隔で連続記録し、航空機騒音イベント毎の最大騒音レベル($L_{A, Smax}$)、単発騒音暴露レベル・騒音暴露レベル($L_{AE}(T)$)、継続時間(s)及び測定期間の L_{den} を求めた。航空機騒音イベントの記録に際しては、騒音計からの出力をレベルレコーダで確認し、騒音発生状況について記録を行った。

自動測定においては、航空機騒音自動監視装置リオン(NA-37 (AN-37R 音響識別及び電波式上空識別装置付))を用い、設定した閾値及び継続時間(65.0dB, 5.0s)を超えた騒音イベントに対し、識別情報を確認しながら航空機騒音を抽出し、とりまとめを行った。

3 結果・考察

自動測定の有人測定との比較を行った結果を表1に示す。

L_{den} の比較において名取本郷、名取杉ヶ袋は-0.1dB、-0.4dBと差が小さく精度は良好なものと考えられた一方で、名取館腰においては-1.0dBと若干差が見られた。この差の原因を検証するため有人測定について閾値の条件を自動測定と合わせて比較を行った。観測した自動測定及び有人測定の飛行回数は同程度である一方で $L_{A, Smax}$ 平均、

L_{AE} 平均については自動測定の方が小さいことから、自動測定と有人測定における航空機騒音の識別捕捉精度の違いではなく、マイクロホンで検出された航空機の騒音レベルの違いに原因があり、これは自動測定地点と有人測定地点の立地条件の違いによるものと考えられた。

表1 自動測定と有人測定の比較

測定地点	名取本郷			名取本郷 (有人測定識別条件追加※)		
	自動測定	有人測定	差	自動測定	有人測定	差
$L_{A, Smax}$ 平均[dB]	75.3	72.9	2.4	75.3	75.4	-0.1
L_{AE} 平均[dB]	84.2	82.0	2.2	84.2	84.4	-0.2
騒音発生回数	64	111	-47	64	61	3
平均継続時間[s]	19.3	29.1	-9.8	19.3	20.4	-1.1
評価値 L_{den} [dB]	54.6	54.7	-0.1	54.6	54.6	0.0

測定地点	名取杉ヶ袋			名取杉ヶ袋 (有人測定識別条件追加※)		
	自動測定	有人測定	差	自動測定	有人測定	差
$L_{A, Smax}$ 平均[dB]	73.5	71.8	1.7	73.5	73.4	0.1
L_{AE} 平均[dB]	81.8	80.2	1.6	81.8	81.7	0.1
騒音発生回数	141	261	-120	141	138	3
平均継続時間[s]	17.0	27.1	-10.1	17.0	19.1	-2.1
評価値 L_{den} [dB]	55.0	55.4	-0.4	55.0	55.0	0.0

測定地点	名取館腰			名取館腰 (有人測定識別条件追加※)		
	自動測定	有人測定	差	自動測定	有人測定	差
$L_{A, Smax}$ 平均[dB]	72.5	72.8	-0.3	72.5	73.6	-1.1
$L_{AE(T)}$ 平均[dB]	82.3	82.2	0.1	82.3	83.0	-0.7
騒音発生回数	55	71	-16	55	57	-2
平均継続時間[s]	26.0	25.1	0.9	26.0	24.8	1.2
評価値 L_{den} [dB]	51.0	52.0	-1.0	51.0	51.9	-0.9

※1: 有人測定(条件追加)については、有人測定イベントデータから $L_{A, Smax}$ が65.0 dBを超え、継続時間が5.0 sを超えているものを抽出し再計算したものを示す。

今回の測定においては、マニュアルに示す手法による測定・評価が困難な観測事例は少なかった。

その他測定・評価時に気づいた事項として、表2に各測定地点における電波式識別装置の受信割合を示す。

表2 電波式識別装置の受信割合

測定地点	名取本郷	名取杉ヶ袋	名取館腰
応答電波を受信した航空機騒音発生回数	56	113	49
航空機騒音発生回数	64	141	55
受信割合※	87.5%	80.1%	89.1%

※ 応答電波を受信した航空機騒音発生回数/航空機騒音発生回数

今回の測定における航空機騒音イベントの電波式識別機能による応答電波の受信割合は80.1%~89.1%であり、電波式識別機能による判別を重視する場合は、受信感度設定を含め精度の向上が必要と考えられた。

5 宮城県における揮発性有機化合物（VOC）のオゾン生成への寄与について

大気環境部 ○日野菜 佐藤郁子* 佐久間隆 安藤孝志

※現 中南部下水道事務所

1 はじめに

揮発性有機化合物（VOC）は、それ自身が有害性を持つほか、光化学オキシダント（Ox）や浮遊粒子状物質（SPM）等の生成に関与している物質である。

VOCは、Oxの主成分であるオゾンを生成し、その生成能力（最大オゾン生成能（Maximum Incremental Reactivity, 以下「MIR」という。))は物質毎に異なることが知られている。

今般、県内3地点で実施している有害大気汚染物質のモニタリング調査結果から、VOCのオゾン生成への寄与の解析を行うとともに、大気汚染常時監視データを用いて、Oxや窒素酸化物（NOx）等大気汚染物質とVOCの関連性の解析を試みたので報告する。

2 調査方法

調査は表1の3地点で、平成27年4月から平成28年3月まで月1回、24時間サンプリングを実施した。

VOCの採取・測定は有害大気汚染物質測定方法マニュアルに準拠し、キャニスター採取、GC-MS分析法で行った。大気汚染物質のデータは、各測定地点近傍の測定局の1時間値を用いて、24時間の平均値を算出した。

表1 調査地点

地域分類	調査地点	備考	調査対象物質		
			VOC	Ox	NOx
道路沿道	名取市	名取自動車排出ガス測定局	○	×	○
一般環境	塩釜市	塩釜一般環境大気測定局	○	○	○
	大河原町	大河原合同庁舎*	○	○	○

*大河原は隔年実施。柴田局の大気汚染常時監視データを使用した。

オゾン生成評価の対象とした物質を表2に示す。本県で測定しているVOC計40物質のうち、MIR値が設定されている31物質とした。

表2 オゾン生成評価対象物質

物質名	MIR値	物質名	MIR値
●ベンゼン	0.72	1,1,1-トリクロロエタン	0.01
●トリクロロエチレン	0.64	四塩化炭素	0
●テトラクロロエチレン	0.03	1,2-ジクロロプロパン	0.29
●ジクロロメタン	0.04	c-1,3-ジクロロプロペン	3.7
●アクリロニトリル	2.24	t-1,3-ジクロロプロペン	5.3
●塩化ビニルモノマー	2.83	1,1,2-トリクロロエタン	0.09
●塩化メチル	0.04	1,2-ジプロモエタン	0.1
●トルエン	4.0	クロロベンゼン	0.32
●クロロホルム	0.02	エチルベンゼン	3.04
●1,2-ジクロロエタン	0.21	m-,p-キシレン	7.8*
●1,3-ブタジエン	12.61	o-キシレン	7.64
プロモメタン	0.02	スチレン	1.73
クロロエタン	0.29	1,3,5-トリエチルベンゼン	11.76
1,1-ジクロロエチレン	1.79	1,2,4-トリエチルベンゼン	8.87
1,1-ジクロロエタン	0.07	p-ジクロロベンゼン	0.18
●優先取組物質		o-ジクロロベンゼン	0.18

* m-キシレンおよびp-キシレンのMIR値の平均値

3 結果と考察

3.1 オゾン生成に寄与する物質の評価

年間VOC総濃度の成分割合（図1）と、最大オゾン生成推計濃度（VOC濃度（ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ） \times MIR値）の成分割合（図2）を比較評価した。

VOC総濃度中の割合は、全調査地点でトルエンが最も高かった。最大オゾン生成推計濃度中の割合は名取と大河原でトルエン、塩釜でキシレンが最大となり、これら2物質がオゾン生成へ大きく寄与する可能性が示唆された。また、全調査地点で最大オゾン生成推計濃度中の割合は上位9物質が共通しており、芳香族類や不飽和炭化水素類が9割を占める結果となった。

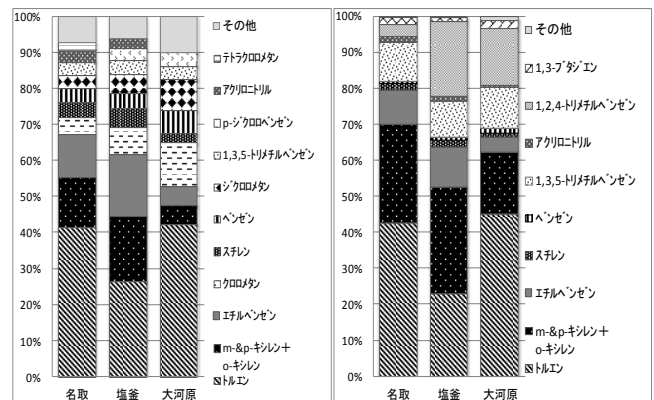


図1 VOC総濃度成分割合 図2 最大オゾン生成推計濃度成分割合

3.2 最大オゾン生成推計濃度とOx値の関連性

塩釜（平成25～27年度）及び大河原（平成25～27年度）の調査結果から、最大オゾン生成推計濃度とOx値との関連性を調査した。光化学オキシダントが発生しやすい5月から9月の間で、降雨がなかった日のデータを用いた。上位9物質から算出した最大オゾン生成推計濃度と、その日の最高値から日の出前の値を引いたOx値を用いて解析を行った。

解析の結果、Ox値は最大オゾン生成推計濃度の総量に関わらず8月に最も高くなる傾向を示し、有意な相関は得られなかった。しかし、塩釜でスチレンや1,3,5-トリメチルベンゼン、アクリロニトリルとOxの間で有意な正の相関がみられた。

（参考文献）

California Environmental Protection Agency : Tables of Maximum Incremental Reactivity (MIR) Value

6 県内で今シーズンに流行したノロウイルスの遺伝子型について

微生物部 ○小泉光 菅原直子 佐々木美江 植木洋 渡邊節

1 はじめに

今シーズン県内の感染性胃腸炎患者の定点医療機関あたりの報告数は、第41週を境に急増し、第48週のピーク時には45.75人となり過去10年間で最も多かった。この期間のノロウイルス(NoV)による感染性胃腸炎集団発生事例数を過去3シーズンの同時期と比較すると2014/2015シーズンは発生事例の報告はなかったが、2015/2016シーズンが8事例に対し、今シーズンは98事例と多く、県内ではNoVによる感染性胃腸炎の大流行が確認された。

そこで流行の原因を把握するために、NoVによる感染性胃腸炎の今シーズンの発生状況、ならびに検出されたNoV遺伝子の分子疫学的解析を行い、過去のシーズンと比較したので報告する。

2 対象材料・方法

2.1 対象材料

2016年9月から2017年1月の期間に、県内で発生した感染性胃腸炎集団発生事例102事例から検出されたNoV遺伝子を調査対象とした。分子疫学的解析は、各事例でCt値が低い検体を1検体選び実施した。なお、系統解析には過去の感染性胃腸炎集団発生事例で検出したNoV遺伝子のデータも使用した。

2.2 方法

リアルタイムRT-PCR法でNoV遺伝子陽性と判定された検体について、Capsid領域の一部を増幅領域とするCOG-2F/G2-SKRプライマーを用いてRT-PCRを行った。また、RT-PCRで増幅が確認されない検体はG2-SKF/G2-SKRプライマーを用いたnested PCRを実施した。ダイレクトシーケンス法で塩基配列を決定し、MEGA6によりアライメントし分子疫学的解析を行った。遺伝子型の決定はNorovirus Genotyping Tool Version 1.0(<http://www.rivm.nl/mpf/norovirus/typingtool>)を用いた。

3 結果

今回対象材料とした102事例全ての事例でNoV GII群を検出した。塩基配列を決定し遺伝子型別を行った結果、遺伝子型を決定できた98事例のうち94事例からGII.2が検出された。それ以外にはGII.3が2事例、GII.6とGII.17が各1事例検出された。

施設別発生状況は幼稚園・保育所での発生が73事例、小学校が22事例、中学校・高校が6事例および介護老人保健施設が1事例で、低年齢層での

感染が9割を占めた。

発生施設別の遺伝子型検出状況は、GII.2が介護老人保健施設を除いた全ての施設から検出された。また、GII.3およびGII.6は幼稚園・保育所で発生した事例から、GII.17は介護老人保健施設で発生した事例から検出された(表1)。

今シーズンと過去6シーズンに感染性胃腸炎集団発生事例から検出されたGII.2の割合を比較したところ、2010/2011シーズンが42事例中19事例(45%)、2011/2012シーズンが13事例中1事例(8%)、2012/2013シーズンが21事例中2事例(10%)であった。GII.2によるNoVの流行が2010/2011シーズンにも確認されたため、同シーズンに検出した株も併せて系統解析を行った。その結果、今シーズンと2010/2011シーズンに検出されたGII.2株は大きく2つのクラスターに分類され、さらに今シーズンに検出された一部の株と2010/2011シーズンに検出された株は2つのサブクラスターに分類された。以上の結果より、今シーズン流行しているGII.2は、2010/2011シーズンに検出された同遺伝子型の流行株と比較した場合、系統が異なることが確認された。

表1. 発生施設別のNoV遺伝子型検出状況

	G	G	G	G	不明
	II.2	II.3	II.6	II.17	
幼稚園・保育所	69	2	1	0	1
小学校	21	0	0	0	1
中学校・高校	4	0	0	0	2
介護老人保健施設	0	0	0	1	0
計	94	2	1	1	4

4 考察・まとめ

本県において、2010/2011シーズン以降、GII.2を流行株とした感染性胃腸炎の流行は確認されていない。そのため、それ以降に生まれたGII.2の感受性者が増えたことにより、同遺伝子型を流行株とした感染性胃腸炎が低年齢層を中心として流行したと考えられる。

2014/2015シーズンに発生し、大流行が予想されたGII.17のような新規遺伝子型だけではなく、今回のGII.2のように過去の流行期以降に検出がほとんど確認されていない遺伝子型の動向にも注意が必要である。

また、今シーズンのGII.2による流行は広域的に確認されていることから、詳細な分子疫学的解析と、全国規模での情報交換が必要である。

7 流入下水中の水中病原ウイルスの挙動

微生物部 ○菅原直子 小泉光 佐々木美江 植木洋 渡邊節

1 はじめに

現在、感染症の流行状況の把握と感染拡大防止のための注意喚起は、感染症発生動向調査の定点医療機関からの患者報告数が根拠となっている。

しかし、この患者報告数は発症患者が受診後に集計を行うため、報告数が注意報・警報レベルに達し、注意喚起を行う頃には流行が拡大している。また、感染性胃腸炎は、小児科定点からの患者数のみで成人の流行状況は把握されていない。

一方、下水処理施設へ流入する流入下水には、ヒトから排泄された病原微生物が直接流れ込むため、流入下水の継続的な監視により、流行の早期探知と潜在的流行の把握が可能となる。

そこで、流入下水中の水中病原ウイルス挙動の把握を目的とし、胃腸炎起因ウイルスのノロウイルス (NoV) とサポウイルス (SaV) についてはリアルタイム PCR 法を用いて遺伝子を定量的に検出した。また、近年再興感染症として問題とされている、A 型肝炎ウイルス (HAV) および E 型肝炎ウイルス (HEV) 遺伝子を検出した。

2 材料および方法

2.1 材料

宮城県内の都市部に所在する下水処理場の流入下水について、平成 28 年 7 月～平成 29 年 1 月の期間に毎週 1 回採水し、計 30 検体を試料とした。

2.2 方法

混和した下水を 25 または 50mL 測り取り、ポリエチレングリコール法により処理を行った試料をウイルス濃縮液とし、厚生労働省通知法 (食安監発第 0514004 号) に従い、濃縮液よりウイルス RNA の抽出、逆転写反応を行った。NoV 遺伝子は Kageyama らの方法、SaV 遺伝子は Oka らの方法に準じてリアルタイム PCR 法により定量的に検出した。HAV、HEV 遺伝子の検出は、国立感染症研究所の病原体検出マニュアルに従い実施した。

各ウイルス遺伝子が検出された場合には、ダイレクトシーケンスを行い、MEGA6 でアライメント後、Norovirus typing tool または、Blast を用いて遺伝子型を決定した。

3 結果および考察

3.1 SaV の検出状況

SaV 遺伝子は、調査期間中全ての試料から検出され、 $3.5 \times 10^3 \sim 3.7 \times 10^6$ copies/L の濃度で推移した。今シーズンに散発事例や胃腸炎の集団感染事例の患者からの SaV の検出は 1 事例のみであったが、下水中からは遺伝子が継続して検出され、濃度の増減も確認されたことから、処理区域内での小規模な流行や不顕性感染等の潜在的な SaV 感

染者の存在が示唆された。

3.2 NoV の検出状況

SaV 同様、全ての試料から NoV が検出され、G I 群が $0 \sim 1.6 \times 10^5$ copies/L、G II 群が $1.3 \times 10^4 \sim 4.3 \times 10^7$ copies/L で、G I 群と比べ G II 群が高値で推移した。SaV 遺伝子の濃度推移と比較し、全ての期間で高値を示したことから、SaV 感染者よりも NoV 感染者の割合が高かったと考えられた。また、NoV G II 群の濃度推移と感染症発生動向調査の感染性胃腸炎患者報告数と比較を行ったところ、推移が一致し、さらに流行期には下水中の NoV 遺伝子濃度が患者数増加よりも早い週から明確に上昇していたことが確認された。(図 1)

一方、今シーズンの胃腸炎流行期に発生した集団感染事例の患者検体からは NoV G II 群が検出され、遺伝子型は G II.2 が 90%以上を占めた。下水中から検出された NoV も同様に G II.2 であった。これらのことから、下水中より検出される NoV 等の胃腸炎起因ウイルスは感染性胃腸炎の流行状況を反映し、ウイルス濃度を継続的に監視することにより、早期探知の可能性も示された。

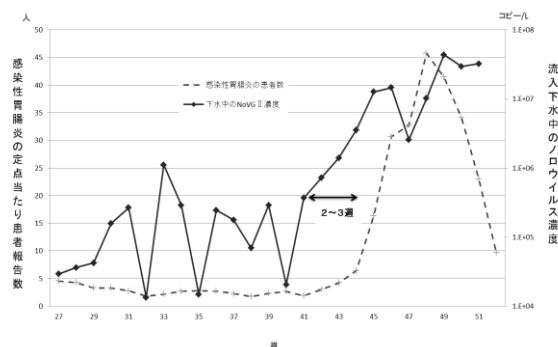


図 1 感染性胃腸炎患者報告数と下水中の NoV (G II) 遺伝子濃度推移

3.3 HAV および HEV の検出状況

HAV 遺伝子は検出されなかったが、HEV 遺伝子は、8 月下旬～9 月に採取した試料の 3 検体からのみ検出され、この時期に散発的な患者発生が考えられた。

(謝辞)

本研究は厚生労働科学研究費補助金「ウイルスを原因とする食品媒介性疾患の制御に関する研究」の一環として行った。

8 環境中に生息するレジオネラ属菌の感染リスク調査

微生物部 ○山口友美 有田富和 吉川弓林 畠山 敬 渡邊 節

1 はじめに

レジオネラ症は、レジオネラ属菌が原因で起こる感染症であり、重症例では死亡することがある。

宮城県において平成 26～28 年にレジオネラ症として届出のあった患者は 88 名であった。そのうち、感染源不明である事例は 67.0%と半数以上を占めており、感染源の把握が十分にできていないのが現状である。

そこで、本研究では宮城県におけるレジオネラ症の感染源が浴槽水以外である事例も数多く存在する可能性があると考え、浴槽水以外の感染源として考えられる環境物（水たまり）を対象に、レジオネラ属菌の検索を行った。さらに、水たまりから分離された菌株について、浴槽水由来株および患者由来株との比較を行ったので報告する。

2 材料および方法

2.1 材料

平成 26～28 年度にアスファルト道路の水たまりを 72 カ所から採取し、菌検索の材料とした。

さらに、レジオネラ症患者から分離された *L.pneumophila* 血清群 1 (*Lp* SG1 ; 8 株)、浴槽水から分離された *Lp* SG1 (49 株) を比較対象菌株とした。

2.2 分離培養および菌種の同定

検体は酸処理または熱処理を行った後、寒天培地に塗抹してレジオネラ属菌の分離培養を行った。また、レジオネラ検出試薬キット E (栄研化学) を用いて LAMP 法による遺伝子の検出を行った。分離されたレジオネラ属菌は PCR 法により *Lp* の同定を行い、レジオネラ免疫血清 (デンカ生研) を用いて血清型別を実施した。

2.3 分離菌株の遺伝子解析

Lp SG1 と同定された株については、Kozak らが報告したプライマーを用いた PCR 法による *lag-1* 遺伝子の検出およびパルスフィールドゲル電気泳動 (PFGE) 法を実施した。

3 結果

3.1 水たまりからの検出

培養法によりレジオネラ属菌が検出されたのは水たまり 72 検体中 38 検体 (52.8%) であった。LAMP 法によりレジオネラ属菌遺伝子が検出されたのは 46 検体 (63.9%) であり、分離培養・LAMP 法のいずれかが陽性となった検体は 56 検体 (77.8%) であった。

培養陽性であった 38 検体の菌数は 1,000 CFU/100mL 未満が 10 検体、1,000～9,900 CFU/

100mL が 22 検体、10,000 CFU/100mL 以上が 6 検体であった。

3.2 分離株の菌種・血清型別

水たまり 38 検体から分離されたレジオネラ属菌 126 株について菌種同定を行ったところ、114 株 (90.5%) が *Lp* であった。血清型別では SG1 が 52 株と最も多く、次いで SG8 が 17 株、SG5 が 12 株、SG6 が 11 株であった。

3.3 *lag-1* 遺伝子保有状況

患者由来 SG1 の 9 割が保有している *lag-1* 遺伝子を水たまり由来 SG1 (52 株) について調べたところ、25 株 (48.1%) と約半数が陽性 (*lag-1+*) であった。

3.4 水たまりと浴槽水における検出率の比較

分離培養陽性となった水たまりと浴槽水 (平成 26～28 年度の 115 検体) について、*Lp* 血清群毎の検出率を比較したところ、SG1 (*lag-1+*) と SG8 で明らかな違いが認められた。水たまりでは SG1 (*lag-1+*) は 36.8% (38 検体中 14 検体) から検出されたが浴槽水では 5.2% (115 検体中 6 検体)、SG8 は水たまりで 44.7% (38 検体中 17 検体) から検出されたが浴槽水では 5.2% (115 検体中 6 検体) であった。

3.5 PFGE 解析

水たまり由来 SG1、浴槽水由来 SG1 および患者由来 SG1 について、*lag-1+* 株と *lag-1(-)* 株にわけて PFGE 解析を行った。*lag-1+* の患者由来株 7 株のうちの 4 株については水たまり由来株との遺伝子型の類似度が 95% 以上であった。*lag-1(-)* の患者由来株は 1 株のみであったが、この株は浴槽水由来株との類似度が 89% であった。

4 考察

今回の調査で、水たまりにおいてレジオネラ属菌陽性となった検体は 77.8% と高率であった。また、その菌数が 1,000 CFU/100mL 以上であった検体は培養陽性検体の 73.7% を占めており、浴槽水の 12.2% に比べ明らかに多かった。

さらに分離株の遺伝子解析から、水たまりでは浴槽水に比べ、レジオネラ症との関連が指摘されている *lag-1* 遺伝子を保有する SG1 の検出率が高いこと、患者由来株と類似度が高い株が水たまり由来株に多くみられることが明らかとなった。

これらのことから、水たまりがレジオネラ症の感染源となりうることが示唆された。今後は、浴槽水以外の感染源も視野に入れたレジオネラ症対策が必要と考えられる。

9 仙台市内で分離された A 群溶血性レンサ球菌の *emm* 遺伝子解析

仙台市衛生研究所 ○勝見正道 星俊信 尾崎瑤子 神鷹望 千田恭子 牛水真紀子
森直子 坂本宣子 山田香織 松原弘明 大金由夫

1 はじめに

A 群溶血性レンサ球菌 (*Streptococcus pyogenes* GAS) は、幼児を中心に咽頭炎や扁桃炎、猩紅熱等様々な疾患を引き起こす。GAS の菌体表層には、群多糖体のほかに M, R および T 蛋白質が存在しており型別に利用されている。M 蛋白質は抗オプソニン活性を有し、細胞への接着にも関与しており、病原因子として知られているが、市販血清がないため型別はほとんど行われていなかった。しかし、M 蛋白質をコードする遺伝子 (*emm*) のシークエンスを行い型別する方法が開発され、疫学調査の手段として広く利用されるようになった。

今回は仙台市内の病原体定点医療機関で A 群溶血性レンサ球菌咽頭炎と診断された患者から分離された GAS について *emm* 型別と *emm* 遺伝子の解析を行った。

2 材料と方法

2012 年から 2016 年の間に仙台市内 2 か所の小児科病原体定点で A 群溶血性レンサ球菌感染症と診断された患者検体から分離された GAS 93 株について、T 型ごとに株を選定し、国立感染症研究所「A 群溶血レンサ球菌 (*Streptococcus pyogenes*) 検査マニュアル」に従い *emm* 遺伝子解析を行い、CDC の *Strep* HOME, *Streptococcus pyogenes* Database の BLAST-*emm* 検索により *emm* 型別を実施した。また、増幅した *emm* 遺伝子の PCR 産物について塩基配列を確定した後アミノ配列に変換し、配列の比較を行った。

3 結果

3.1 T4 型

解析を行った 26 株は全て *emm*-cluster E1 の *emm* 4.0 と型別された。一方、*emm* 遺伝子の PCR 増幅産物の大きさは 920bp 13 株, 836bp 8 株, 815bp 3 株, 794bp 2 株と 4 つに分類された。アミノ酸配列の比較では、今回解析した *emm* 遺伝子の 165 番目のアミノ酸から始まる配列の組み換え、脱落、挿入による 4 種類の組み合わせが見られた。

3.2 T12 型

解析を行った 22 株は、*emm*-cluster A-C4 に群別され、*emm*12.7 と *emm*12.0 に各 11 株型別された。*emm* 遺伝子の PCR 増幅産物の大きさは全て 1458bp で株による差異は認められなかった。アミノ酸配列の比較では大きく 2 つのクラスターに分類され、*emm* 型の違いと一致した。

3.3 T1 型

解析を行った 13 株は、*emm*-cluster A-C3 に群別され、12 株が *emm*1.0 に、1 株が *emm*1.14 に型別された。*emm* 遺伝子の PCR 増幅産物の大きさは 1175 bp が 12 株, 1091bp が 1 株と 2 つに分類された。アミノ酸配列の比較では、今回解析した *emm* 遺伝子の 130 番目から始まる 28 個のアミノ酸の脱落が 1 株で見られたことから、*emm* 型別結果と合わせ 3 種類の組み合わせが見られた。

3.4 TB3264 型

解析を行った 12 株は全て *emm*-cluster E4 の *emm* 89.0 に型別された。一方、*emm* 遺伝子の PCR 増幅産物の大きさは 844bp 9 株, 823bp, 739bp, 718bp 各 1 株と 4 つに分類された。アミノ酸配列の比較では、今回解析した *emm* 遺伝子の 141 番目のアミノ酸から始まる配列の組み換え、脱落、挿入による 4 種類の組み合わせが見られた。

3.5 その他の T 型

T6 型 5 株は、*emm*-cluster M6 に群別され、4 株が *emm* 6.4 に、1 株が *emm* 6.0 に型別された。T28 型 5 株は、*emm*-cluster E4 に群別され、全ての株が *emm* 28.10 に型別された。T25 型 4 株は、*emm*-cluster E6 に群別され、全ての株が *emm* 75.0 に型別された。T 型別が不明であった 6 株のうち A-C5 群の *emm* 3.95 が 2 株、E3 群の *emm* 58.0、M6 群の *emm* 6.4、E4 群の *emm* 89.0 と *emm* 28.10 が各 1 株型別された。

4 考察

日本における GAS の型別は、抗血清が市販されている T 型別を中心に行われているが、血清型の種類が少なく、地域の疫学調査の手段としては詳細さに欠ける面がある。一方、*emm* 遺伝子による型別は 19 群の 100 以上の型が報告されている。これまでの報告で、T 型別結果と *emm* 型別の菌型は相対することが報告されているが、今回行った増幅した *emm* 遺伝子の解析を組み合わせることで、より詳細な疫学調査が可能となることがわかった。

10 リアルタイム PCR を用いた豚丹毒菌の迅速な検出法の検討

食肉衛生検査所 ○高橋巧

1 はじめに

豚丹毒は、豚丹毒菌 (*Erysipelothrix* 属菌) による感染症である。と畜検査で全部廃棄の原因の上位を占めている。関節炎型豚丹毒の検査は、細菌培養により行われ、行政処分に至るまで 4~5 日を要する。そのため、合格判定となる場合の枝肉の品質保持に問題を残しており、迅速な検出法の開発が望まれている。

このたび、*Erysipelothrix* 属菌特異的なプライマーを新たに 2 組設計し、従来より当所で豚丹毒菌遺伝子検出に用いていたプライマー MO-101, MO-102 と性能を比較・検討したので概要を報告する。

2 方法

2.1 プライマーの設計

当所の検査で分離培養された豚丹毒菌野外株を用いて 16S-23S rRNA スペーサー領域のシーケンシングを実施した。その結果を元に、*Erysipelothrix* 属菌特異的なプライマーを設計した (表 1)。

表 1 新規設計プライマー

プライマー名	配列(5'→3')	増副産物
ER16S-23S SF	GAGAGTCCGTTGGAATCTCAAG	189bp
ER16S-23S SR	GCTTTGATTGCTTACTTAATTGCTTAAGTTACTG	
ER16S-23S TF	GTAAGCAATCAAAGCAAACA CACAGC	89bp
ER16S-23S TR	CACATGTAATTTTCGCGCCC	

2.2 コンベンショナル PCR での検討

各プライマーの鋳型となる濃度既知の DNA 溶液 (コントロール DNA) を調製し、 $10^0 \sim 10^6$ コピー/チューブとなるよう反応溶液を調製した。また、コントロール DNA を豚丹毒菌培養陰性の関節液で希釈し、市販の試薬 (Mighty prep reagent for DNA ; タカラバイオ社) をもちいて DNA 抽出したものを鋳型 DNA として用い、同様に反応溶液を調製した。

2.3 リアルタイム PCR での検討

反応溶液は市販のプレミックス (SsoAdvanced Universal Inhibitor-tolerant SYBR Green Supermix; バイオラッド社) を用いて調製した。

前述のコントロール DNA が $4 \times 10^1 \sim 4 \times 10^6$ コピー/ウェルとなるよう反応溶液を調製した。また、豚丹毒菌培養検査済みの関節液 (豚丹毒菌陰性 4 検体, 陽性 4 検体) より DNA 抽出操作行ったもの及びそれを蒸留水で 100 倍に希釈したもの

を鋳型 DNA として用いて反応溶液を調整し、反応の結果と培養結果とを比較した。

3 結果と考察

コンベンショナル PCR で MO-101, MO-102 及び ER16S-23S SF, SR を用いた際の検出限界は 10^4 コピー/チューブ, ER16S-23S TF, TR を用いたときには 10^3 コピー/チューブだった。DNA を関節液で希釈し、DNA 抽出したものを検体とした場合でも、検出限界は変わらなかった。ER16S-23S TF, TR はほかのプライマーより検出感度が優れており、今回用いた DNA 抽出法はコンベンショナル PCR の検出感度に影響がなかった。

リアルタイム PCR では、いずれのプライマーでも 4×10^1 コピー/ウェルで増幅が認められ、 4×10^1 から 4×10^6 コピー/ウェルの範囲で定量が可能であることが確認された。融解曲線分析では、いずれのプライマーでも単一のピークが認められた。リアルタイム PCR はコンベンショナル PCR と比較して数百倍高感度であると分かった。

豚丹毒菌培養検査を実施済みの関節液を用いたリアルタイム PCR では、プライマー ER16S-23S SF, SR を用いた場合、培養陰性の検体では 4 検体中 2 検体で 40 コピー/ウェル以下となり、培養陽性の検体では 1000~10000 コピー/ウェルとなった。プライマー ER16S-23S TF, TR を用いた場合、培養陰性の検体では希釈するにつれて豚丹毒菌 DNA は未検出および 40 コピー/ウェル以下となった。一方培養陽性の検体では 4 検体中 1 検体のみが 40 コピー/ウェル以下となり、それ以外の検体はおおむね 100~1000 コピー/ウェルを示した。培養検査とリアルタイム PCR の結果に明確な関連は認められず、判定に用いるには適切な反応系および判定基準が必要であると考えられた。

新規に作成したプライマーの *Erysipelothrix* 属菌における検出範囲及び特異性はデータベース上のみの確認であるので、実際の微生物を用いた検討が必要である。

今後ともよりよい検出法を構築するために検討を重ねたい。

(謝辞)

本検討を実施するに当たり、ご指導・ご助言をいただきました、石巻専修大学柴田清孝教授に深謝いたします。

11 業務用食用赤色 102 号中に存在する不純物について

生活化学部 ○佐々木多栄子 千葉美子 高橋剛

1 はじめに

わが国では、12種の酸性タール色素が、食品に使用できる合成着色料として許可されている。その一種である食用赤色 102 号（以下、R102）は、第 8 版食品添加物公定書において、ファーストレッド E、アマランス（食用赤色 2 号）およびボンソー 6R の 3 種の付随色素が記載されている。

今回、R102 の使用表示のある収去食品より、R102 の付随色素として示されていない食用赤色 40 号（以下、R40）に類似した物質（以下、類似物質）を検出したため、収去食品に使用された着色料製剤を入手し、物質の推定を試みたので報告する。

2 方法

2.1 試料

収去食品の製造所において使用されていた業務用赤色 102 号粒剤（製造者：A 株式会社）

2.2 標準品

食品着色料検査用対照試液（0.1%水溶液）：東京化成工業株式会社

R2, R3, R40, R102, R104, R105, R106

（R:食用赤色）

3 試料の調製

① 試料を 50%エタノールで、1ppm, 10ppm, 0.1%（1000ppm）となるよう調製した。

② 0.1%試料液に、1ppm となるよう R40 を添加した。

③ 薄層クロマトグラフ（TLC）で展開した試料のスポットを掻き取り、50%エタノールで抽出した。（薄層プレート：RP-18F254S, 展開溶媒：メタノール-アセトニトリル-5%硫酸ナトリウム（3:3:10））

4 結果

① 色素粒剤中に含まれる類似物質の量が微量であるため、1ppm および 10ppm 試料からは検出されず、最も高濃度の 0.1%においてのみ、類似物質のピークが確認できた。保持時間（以下、RT）は、標準品（以下、STD）の R40 より約 0.15 秒早く（表 1）、吸収スペクトルは、R40 と近似していた（図 1）。

② 0.1%試料液に添加した R40 のピークは、RT 差約 0.16 秒（表 2）で類似物質と完全に分離され、異なる物質であることが推定できた。

③ TLCにより 4つのスポットが得られた（表 3）。これらの抽出液を HPLC で測定したところ、No. 3 の抽出液で、R40 と類似したピークがみられた。No. 3 は同時に展開した STD の R40 の Rf 値とも一致していた。

この No. 3 の抽出液を LC-MS で測定した結果、観測された MS スペクトルパターンは、R40 の m/z=451 および R102 の m/z=537 と異なっており、R40 および R102 とは別の物質であること、さらに、検出された m/z より、この物質は、R102 中に不純物として含有することが報告されている指定外色素の構造異性体であることが推察された。

5 まとめ

化学合成により製造される酸性タール色素には、未反応原料、反応中間体、付随色素およびその異性体が存在する。

これらは、酸性タール色素の食品添加物としての成分規格基準を逸脱する含有量ではないが、近年における分析技術の進歩により、今後、頻繁に検出されることも想定される。検査にあたっては、色素中有機性不純物の存在も考慮し、LC-MS を併用するなどして、慎重に行う必要があると思われる。

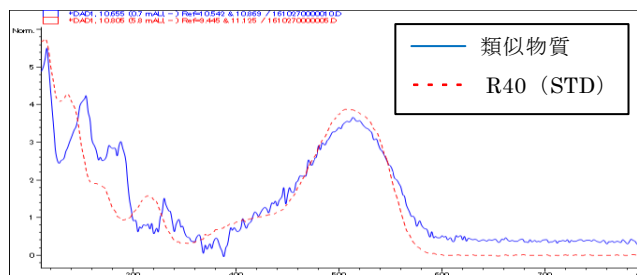


図 1 R40 および類似物質の吸収スペクトル

表 1

	RT
類似物質	10.657
R40 (STD)	10.808

表 2

	RT
類似物質	10.742
R40 (STD)	10.890
R40 (添加)	10.906

表 3 各スポットの Rf 値

スポット	Rf 値	備考
No. 1	1.00	
No. 2	0.85	R102のRf値と一致
No. 3	0.44	R40のRf値と一致
No. 4	0.27	

（謝辞）

本検討を実施するに当たり、ご協力いただきました、仙台保健福祉事務所に深謝いたします。

（参考文献）

「赤色 102 号中に微量存在するアゾ化合物の構造解析」合田ら 食衛誌 June 2013 Vol.54

12 モニタリング調査における当所のメチル水銀分析法について

生活化学部 ○戸澤亜紀 千葉美子 高橋剛

1 はじめに

魚介類の水銀の暫定的規制値は、総水銀として0.4ppm、参考としてメチル水銀0.3ppmとなっている。検査の手順としては、まず総水銀の分析を行い、その結果が0.4ppmを超える場合には、さらにメチル水銀の分析を行い、その結果が0.3ppmを超えた場合、暫定的規制値を超えたと判定する。

メチル水銀の公定分析法として、厚生労働省環境衛生局長通知に塩酸酸性ベンゼン抽出 GC-ECD法が示されている。しかし、この分析法では、発がん性が懸念されているベンゼンを使用していることから、当所においては、より感度が高く選択性に優れたフェニル誘導体化 GC-MS法を採用している。

今回、スズキを対象とした平成28年度モニタリング調査において、総水銀が暫定的規制値を超過したため、メチル水銀分析を実施したところ、分析数の増加とともに徐々に感度および精度の低下が見受けられたため、改めて分析方法の検討を行い、妥当性評価を実施したので報告する。

2 実験方法

2.1 試料

妥当性評価用試料として認証標準物質タラ魚肉粉末(NMLJ CRM 7402-a)、添加回収試験用試料として市販流通品のスズキ刺身(未凍結品)を用いた。

2.2 試料溶液の調製

図1のフローに従い試料溶液を調製した。

2.3 妥当性評価

分析者2名が1日2回3日間分析する計画で実施した。

2.4 添加回収試験

添加回収試験にはスズキを用い、試料中濃度が暫定的規制値である0.3ppmになるようにメチル水銀を添加し、n=5の併行試験を実施した。

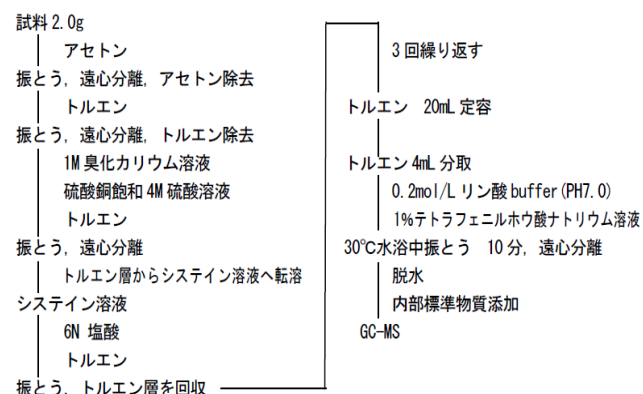


図1 分析フロー図

表1 真度・精度の目標値および結果

	真度 (%)	併行精度 (RSD%)	室内精度 (RSD%)
分析値	89.6	3.1	4.1
ガイドライン目標値 濃度 (0.1<~≦10mg/kg)	80~110	10>	15>

3 結果および考察

3.1 妥当性評価結果

作成した検量線(0, 5, 12.5, 25, 50ng/mL)の決定係数は、3日間の分析すべてで0.99以上であった。また、表1のとおり真度・精度ともに非常に良好な結果となり、「食品中の金属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)の目標値を満たしていた。今回、試料溶液の調製工程にアセトン・トルエンによる脱脂操作を追加した。さらに、従来は塩酸酸性下(pH2.0)で行っていたフェニル誘導体化を中性付近で行うことで、カラムに吸着する副生成物を抑制することができた。これらことからGC-MSへの負荷が軽減され、安定した分析が可能となったと考える。

3.2 添加回収試験結果

添加回収率は、添加試料の含有量から未添加試料の含有量を差し引き、添加試料で得られた分析値と添加量の比から求めた。当初、凍結保存したスズキを用いて試験を実施したが、回収率が約50%と低い結果となった。試料を未凍結品に変更したところ、回収率は70~75%とやや低い結果ではあるものの改善が認められた。メチル水銀はSH基に対する親和性が高いため、組織中ではシステイン残基に結合している。凍結融解を繰り返した試料ではシステイン残基が壊れているため、添加したメチル水銀と結合せず回収率が低くなったと推測される。

4 まとめ

メチル水銀分析法の改良を検討し、妥当性評価を実施した。ガイドラインに示された真度および精度の目標値を満たす結果が得られた。このことから、本法はモニタリング調査におけるメチル水銀分析法として使用できると考える。添加回収試験は試料の種類や状態により回収率が低くなる可能性があるため、認証標準物質を用いて精度管理を実施することが適当と考える。

(参考文献)

1) Performance Evaluation of an Improved GC-MS Method to Quantify Methylmercury in Fish, 食品衛生学雑誌 56(3), 69-76, 2015

13 LC-MS/MSによる下痢性貝毒（オカダ酸群）分析法の検討

生活化学部 ○佐藤智子 千葉美子 佐藤由紀 高橋剛

1 目的

平成 27 年 3 月から下痢性貝毒（オカダ酸群）の公定法に機器分析法が導入され、オカダ酸、ジノフィシトキシン-1、ジノフィシトキシン-2（以下「OA」、「DTX1」、「DTX2」という。）並びにそれらのエステル化合物に対し規制値が定められた¹⁾。しかし、検査法²⁾（以下「通知法」という。）については、分析操作例が示されただけであり、その妥当性確認は各検査機関の必須事項となっている。

二枚貝はその産地や時期によって得られる試料中の夾雑物が多様であり、全ての試料において、機器分析時に同様のマトリックス効果を受けるとは限らない。

そこで今回、ホタテガイの中腸腺を試料とし、LC-MS/MS を用いたマトリックス検量線を使用しない分析法を検討し、その妥当性を確認したので報告する。

2 方法

2.1 試料

平成 28 年 4 月から 8 月に宮城県沿岸で養殖されたホタテガイを宮城県漁業協同組合から買い上げ、通知法に従い試料を調製した。

2.2 試薬

2.2.1 標準品

NRC(カナダ国立研究機構)製の CRM-OA, CRM-DTX1, CRM-DTX2 を使用した。

2.2.2 試薬類

関東化学(株)製の HPLC 用メタノール、アセトニトリル、残留農薬・PCB 試験用 n-ヘキサン、その他の試薬類は、試薬特級を使用した。

2.2.3 精製用固相

- ①InertSep C18 (200mg, 500mg:GL Sciences 社製)
- ②Captiva ND Lipids (Agilent Technologies 社製)
- ③Supel QuE Z-Sep 2mL Tube (Sigma-Aldrich 社製)

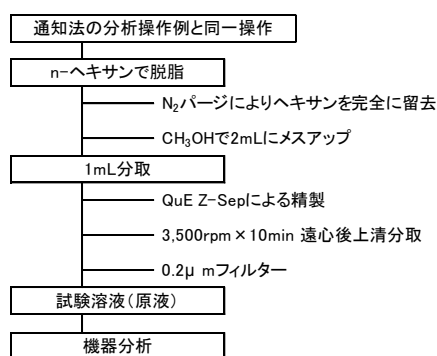


図 1 試験溶液原液の調製

表 1 妥当性確認試験結果

	試料溶液(原液)			5倍希釈溶液		
	真度(%)	併行精度(RSD%)	室内精度(RSD%)	真度(%)	併行精度(RSD%)	室内精度(RSD%)
OA	87	6.3	9.2	71	7.4	14
DTX1	81	5.8	12	73	7.7	12
DTX2	90	8.1	11	76	8.1	14
ガイドライン目標値	70~120	<15	<20	70~120	<15	<20

2.3 装置及び測定条件

LC 部は Agilent Technologies 1200 Infinity series, MS/MS 部は AB SCIEX QTRAP4500 LC-MS/MS system を使用した。

2.4 試験溶液の調製

通知法の分析操作例に従い試料の抽出を行い、脱脂以降は図 1 のとおり調製した。

3 結果及び考察

3.1 分析法検討

LC-MS/MS の測定条件について検討した。その結果、移動相にメタノールを使用することにより感度の向上が認められた。また、検討した条件により試験溶液を測定したところ、マトリックス効果によるイオン化促進が認められた。マトリックスの影響は、OA では 5~10 倍に、DTX1 は 50 倍に希釈することで回避できた。次に、固相による精製方法を検討した。使用した C18, Captiva 及び Z-Sep の中で、操作時間が短く簡便であり、精製効率が優れている Z-Sep を用いることとした。

3.2 妥当性確認

今回確立した分析法により、ホタテガイの中腸腺を試料として、分析者 2 人、2 併行 3 日間の試験を行い、試験溶液原液と原液をメタノールで 5 倍希釈した溶液について、妥当性を確認した。その結果、全てのオカダ酸群について通知法で示された妥当性確認のガイドライン目標値を満たした(表 1)。

4 まとめ

今回、通知法の分析操作例を改良し、独自にオカダ酸群の迅速検査法を確立した。確立した手法で天然に毒化した試料を検査し、その有用性を確認した。

今後は、確立した手法が可食部全体にも適応するか検討する予定である。

(参考文献)

- 1) 麻痺性貝毒等により毒化した貝類の取扱いについて(平成 27 年 3 月 6 日付食安発 0306 第 2 号)
- 2) 下痢性貝毒(オカダ酸群)の検査について(平成 27 年 3 月 6 日付食安基発 0306 第 4 号, 食安監発 0306 第 2 号)