

# B 調 查 研 究

## 資 料

# 平成 25 年度に発生した三類感染症

## Cases of Category III Infectious Disease 2013

微生物部

Department of Microbiology

平成 25 年度の「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」に規定される三類感染症の届出は殆どが腸管出血性大腸菌（以下、EHEC とする。）を原因とするものであった。

### 1 EHEC

EHEC 感染症の事例数は、県外からの行政検査依頼等を含め 59 事例であった。関連調査として患者由来株、患者家族等の便及び患者の感染原因として疑われる家畜・井戸水等の環境物など合計 348 件を検査した結果、48 事例から 99 株の EHEC を検出した(表 1)。

宮城県では、従来から患者発生数が多く報告されている血清型 O157、O26、O111 以外の希な血清型菌を原因とする事例が多く、平成 25 年度は 22 事例から 42 株を検出した。全事例数におけるこれら事例の割合は 37.3%(22/59 事例)で、株数の割合は 42.4%(42/99 株)であった。

菌を検出した 48 事例の届出原因となった血清型と検出数の内訳は、O157 による事例が 10 事例(No.9, 11, 13, 16, 18, 19, 28, 30, 36, 47)で、関係者 19 名と飼育牛 6 頭から菌が検出された。さらに、O26 が 12 事例(No.2, 4, 8, 10, 12, 25, 26, 31, 34, 38, 39, 41) 27 名、O111 が 4 事例(No.20, 32, 44, 48) 5 名であった。他の血清型としては、血清型別不能（以下、OUT とする。）による事例が 13 事例(No.1, 7, 14, 15, 17, 21, 22, 24, 27, 37, 40, 45, 46) 19 名と最も多く、O103 が 3 事例(No.3, 6, 33) 4 名、O121 が 2 事例(No.23, 35) 5 名、O145 が 1 事例(No.5) 3 名、O126(No.43)、O165(No.42)、O168(No.29) が各 1 事例 1 名であった。

また、平成 25 年度は、関連調査において届出原因となった血清型とは異なる血清型の EHEC が検出さ

れる事例が多く、OUT 事例(No.1)の関連調査で O74 が 1 名、O103 の事例(No.3)で OUT が 1 名、O157 の事例(No.19)で O103 が 2 名、O121 の事例(No.35)で O103 が 1 名、O111 の事例(No.44)で OUT が 1 名から検出された。飼育牛が係わった O157 事例(No.13)では、O157 の他にも O119、O136 が各 1 頭から検出された。

OUT の事例のうち 7 事例(No.7, 24, 27, 37, 40, 45, 46)、O103 の 2 事例(No.3, 33)、O26 の 1 事例(No.8)、O111 の 1 事例(No.48)及び O126、O145、O168 の各事例は、職場等の定期検便で発見された事例で健康保菌者であった。これら健康保菌者の居住地域は全て県北部(石巻、栗原、大崎、登米)であり、県南部地域及び仙台市近郊地域には見られないことから、特定の地域との関連性が強いものと考えられた。

PFGE(パルスフィールドゲル電気泳動)による遺伝子型解析では、同一事例またはそれと関連した事例から検出された菌株はいずれも高い相同性を示した。特に、牛が関連した事例(No.13)では、牛由来株と人由来株の遺伝子パターンとの相同性が高く、感染牛を中心として感染が広まったことが推察された。また、O145 に関しては平成 24 年度に発生した株との相同性が高く、平成 21 年度及び 23 年度に発生した株の PFGE パターンとは明らかに異なることから、県北部では新たな遺伝子型菌によるアウトブレイクが昨年度から引き続き起こっている可能性が示された。

### 2 細菌性赤痢

細菌性赤痢は 2 事例 2 名を検査したが、いずれも検出されなかった。



# 宮城県結核・感染症発生動向調査事業

## Infectious Diseases and Agents Surveillance in Miyagi Prefecture

微生物部

Department of Microbiology

キーワード：感染症；定点；週報；月報

*key words* : infectious diseases ; clinic sentinels ; weekly report ; monthly report

### 1 はじめに

宮城県保健環境センター微生物部内に設置されている「宮城県結核・感染症情報センター（以下、情報センターとする。）」では、1994年4月1日に施行された「感染症の予防および感染症の患者に対する医療に関する法律」に基づき、感染症の発生予防と蔓延防止を目的に、感染症患者の発生状況を週単位および月単位で収集、解析してホームページなどで公開している。さらに、同微生物部で検出した定点把握対象疾患の五類感染症のうち11疾患について病原体検出情報も併せて提供している。

本事業は、厚生労働省が運用している感染症サーベイランスシステム（以下、NESID とする。）を用いて行われる。県内の各医療機関より、全ての医師に届出が義務付けられている全数把握疾患と県が医師会の協力のもとに定めた定点医療機関から報告される定点把握疾患についての情報が最寄りの保健所に寄せられ、各保健所がNESIDに入力する。情報センターではこれらの報告内容を検討して国立感染症研究所にある中央感染症情報センターに報告し、全国集計結果と共に還元情報を受け取る。この集計結果をもとに、宮城県感染症対策委員会の情報解析部会事務局として解析を行い、週報・月報としてとりまとめ、各保健所、県医師会の地域医療情報センター、仙台市衛生研究所等に情報提供している。また、情報センターのホームページに、速報版および週報・月報を掲載して情報発信を行なっている。

### 2 結核・感染症情報センター

#### 2.1 全数把握感染症報告数

全ての医師に届出が義務付けられている一類から五類感染症（78疾患）について、2013年1月から12月までの報告数を表1に示した。一類感染症は報告がなく、二類感染症は結核で357例の報告があった。この結核については無症状病原体保有者の報告数が増加傾向にある。三類感染症は、細菌性赤痢、腸管出血性大腸菌感染症（EHEC）およびパラチフスの報告があった。EHECは153例で昨年とほぼ同じ報告数となった。EHECは一般的にはO157、O26およびO111といった血清型が多いとされるが、宮城県では特にO26の発生が多く、その他O103、O145、O121、O111などの事例もみられる。

これらの今後の動向に注目すべきである。四類感染症は、E型肝炎、A型肝炎、つつが虫病、デング熱、レプトスピラ症およびレジオネラ症が報告された。報告数が最も多かったのはレジオネラ症で、肺炎型が64例、ポンティアック熱が2例であった。つつが虫病は3例、昨年報告のなかったデング熱も2例みられた。五類感染症は、梅毒が44例、アメーバ赤痢が35例、後天性免疫不全症候群が18例とどれも昨年より増加しており、その感染経路の多くが性的接触とされた症例であった。性感染症予防の観点からも今後の動向に注視する必要がある。五類感染症で特に目立った疾患としては風しんであり、全国的な傾向と同様に、20歳代～40歳代の男性を中心に、宮城県でも報告数が107例と増加した。また、2013年4月に追加された疾患として、侵襲性肺炎球菌感染症が22例、侵襲性インフルエンザ菌感染症2例の報告があった。他にクロイツフェルト・ヤコブ病9例、ウイルス性肝炎（E型およびA型を除く）5例、破傷風3例、劇症型溶血性レンサ球菌感染症が4例みられた。

#### 2.2 定点把握感染症報告数

県内定点医療機関から毎週報告される五類感染症と毎月報告される疾患について、全国と宮城県全域（仙台市も含む）の累積報告数と定点当たりの報告数を表2に示した。定点医療機関数は各保健所ごとに人口により決められており、週報のインフルエンザ定点は93機関、小児科定点は58機関、眼科定点は12機関、基幹定点は12機関、月報の性感染症定点は17機関、耐性菌の報告を行う基幹定点は12機関となっている。各感染症の動向は定点あたりの報告数を指標にして解析、評価される。定点あたりの報告数が最も多かったのは感染性胃腸炎で、宮城県全域の定点当報告数は299.98であり、昨年と比較して減少している。昨年増加がみられたマイコプラズマ肺炎では、定点報告数は78.42と減少した。さらに、昨年全国的に流行したインフルエンザは、定点当報告数が172.10と昨年より半減し、同じく流行がみられた流行性耳下腺炎も定点報告数が21.12と半減した。伝染性紅斑は定点報告数が14.66と昨年の2.5倍に増加した。また、2013年10月に新たに追加された感染性胃腸炎（ロタウイルス）の定点報告数は0.17であった。これについては、医療機関でのロタウイルス抗原検出用キットの

表 1 全数把握感染症報告数

疾病名		報告数	疾病名		報告数
<b>一類感染症</b>					
1	エボラ出血熱		39	東部ウマ脳炎	
2	クリミア・コンゴ出血熱		40	鳥インフルエンザ(鳥インフルエンザ(H5N1)を除く)	
3	痘そう		41	ニパウイルス感染症	
4	南米出血熱		42	日本紅斑熱	
5	ペスト		43	日本脳炎	
6	マールブルグ病		44	ハンタウイルス肺症候群	
7	ラッサ熱		45	Bウイルス病	
<b>二類感染症</b>			46	鼻疽	
8	急性灰白髄炎		47	ブルセラ症	
9	結核	357	48	ベネズエラウマ脳炎	
10	ジフテリア		49	ヘンドラウイルス感染症	
11	重症急性呼吸器症候群(病原体がコロナウイルス属 SARSコロナウイルスであるものに限る)		50	発疹チフス	
12	鳥インフルエンザ(H5N1)		51	ポツリヌス症(乳児ポツリヌス症を含む)	
<b>三類感染症</b>			52	マラリア	
13	コレラ		53	野兔病	
14	細菌性赤痢	1	54	ライム病	
15	腸管出血性大腸菌感染症	153	55	リッサウイルス感染症	
16	腸チフス		56	リフトバレー熱	
17	パラチフス	1	57	類鼻疽	
<b>四類感染症</b>			58	レジオネラ症	66
18	E型肝炎	1	59	レプトスピラ症	1
19	ウエストナイル熱(ウエストナイル脳炎含む)		60	ロッキー山紅斑熱	
20	A型肝炎	2	<b>五類感染症</b>		
21	エキノкокクス症		61	アメーバ赤痢	35
22	黄熱		62	ウイルス性肝炎(E型肝炎及びA型肝炎を除く)	5
23	オウム病		63	急性脳炎(ウエストナイル脳炎、西部ウマ脳炎、ダニ媒介脳炎、東部ウマ脳炎、日本脳炎、ベネズエラウマ脳炎及びリフトバレー熱を除く)	
24	オムスク出血熱		64	クリプトスポリジウム症	
25	回帰熱		65	クロイツフェルト・ヤコブ病	9
26	キャサナル森林病		66	劇症型溶血性レンサ球菌感染症	4
27	Q熱		67	後天性免疫不全症候群	18
28	狂犬病		68	ジアルジア症	
29	コクシジオイデス症		69	侵襲性インフルエンザ菌感染症	2
30	サル痘		70	侵襲性髄膜炎菌感染症	
31	重症熱性血小板減少症候群		71	侵襲性肺炎球菌感染症	22
32	腎症候性出血熱		72	先天性風疹症候群	
33	西部ウマ脳炎		73	梅毒	44
34	ダニ媒介脳炎		74	破傷風	3
35	炭疽		75	バンコマイシン耐性黄色ブドウ球菌感染症	
36	チクングニア熱		76	バンコマイシン耐性腸球菌感染症	2
37	つつが虫病	3	77	風しん	107
38	デング熱	2	78	麻しん	

2013年3月4日追加：重症熱性血小板減少症候群

2013年4月1日追加：侵襲性インフルエンザ菌感染症，侵襲性肺炎球菌感染症

2013年4月1日変更：侵襲性髄膜炎菌感染症

表2 定点把握感染症報告数

疾病名	全国		宮城県全域	
	累積報告数	定点当報告数	累積報告数	定点当報告数
インフルエンザ	1,166,322	237.20	16,005	172.10
RSウイルス感染症	96,534	30.72	1,346	23.21
咽頭結膜熱	72,972	23.22	790	13.62
A群溶血性レンサ球菌咽頭炎	253,953	80.83	5,161	88.98
感染性胃腸炎	1,071,217	340.93	17,399	299.98
水痘	175,025	55.70	3,584	61.79
手足口病	303,321	96.54	4,670	80.52
伝染性紅斑	10,115	3.22	850	14.66
突発性発疹	89,462	28.47	1,927	33.22
百日咳	1,662	0.53	13	0.22
ヘルパンギーナ	94,751	30.16	2,158	37.21
流行性耳下腺炎	41,005	13.05	1,225	21.12
急性出血性結膜炎	668	0.98	13	1.08
流行性角結膜炎	20,606	30.26	172	14.33
細菌性髄膜炎	448	0.95	11	0.92
無菌性髄膜炎	1,297	2.75	14	1.17
マイコプラズマ肺炎	11,336	24.07	941	78.42
クラミジア肺炎	749	1.59	19	1.58
感染性胃腸炎(ロタウイルス)	159	0.34	2	0.17
性器クラミジア感染症	25,606	26.29	465	27.35
性器ヘルペスウイルス感染症	8,778	9.01	198	11.65
尖圭コンジローマ	5,743	5.90	219	12.88
淋菌感染症	9,488	9.74	197	11.59
メチシリン耐性黄色ブドウ球菌感染症	20,155	42.43	359	29.92
ペニシリン耐性肺炎球菌感染症	3,161	6.65	93	7.75
薬剤耐性緑膿菌感染症	319	0.67	6	0.50
薬剤耐性アシネトバクター感染症	8	0.02	-	-

2013年10月14日追加: 感染性胃腸炎(ロタウイルス)

使用により今後報告数が増加するものと思われる。

### 3 病原体検出情報

#### 3.1 対象と疾病

病原体検査対象疾病は、疾病・感染症対策室と協議し、定点把握対象の五類感染症の中から、咽頭結膜熱、A群溶血性レンサ球菌咽頭炎、感染性胃腸炎、ヘルパンギーナ、手足口病、流行性耳下腺炎、インフルエンザ、急性出血性結膜炎、流行性角結膜炎、細菌性髄膜炎、無菌性髄膜炎の11疾患とした。

#### 3.2 検体採取協力医療機関

宮城県結核・感染症発生動向調査事業実施要綱(1999年4月施行)の基準に従って宮城県医師会の協力を得て選定している病原体定点医療機関は3小児科定点、1眼科定点、7基幹定点および5インフルエンザ定点(そのうち2定点は小児科定点を兼ねる)で、さらに、患者発生情報を考慮して一部の患者定点医療機関へも検体採取を依頼し、今年度は21医療機関の協力を得た。

#### 3.3 検査材料と検査対象病原体

インフルエンザ、A群溶血性レンサ球菌咽頭炎、ヘルパンギーナ、手足口病等の10疾患については、咽頭拭い液

を、感染性胃腸炎については糞便を採取し検体とした。呼吸器疾患の細菌検査は、主にA群溶血性レンサ球菌を対象とし、ウイルス検査は、インフルエンザ、RS、アデノウイルスを対象とした。また、腸管系疾患の細菌検査は、病原性大腸菌、赤痢菌、サルモネラ属菌、カンピロバクター、腸炎ビブリオ、エルシニアを対象とし、ウイルス検査は、ノロウイルス、ロタウイルス、エンテロウイルス、アデノウイルス、サポウイルス、ヒトパレコウイルスを対象とした。

#### 3.4 検査方法

細菌検査は直接選択培地に塗抹後、疑わしいコロニーについて直接鏡検や、生化学的性状検査、血清型別検査、ラテックス凝集反応、薬剤感受性試験およびPCR法等による病原因子の検索を行い同定した。ウイルス検査は、HEp-2、RD-18s、Vero9013、Caco2、MDCKの5種類の細胞を用いて分離培養を行い、分離されたウイルスは赤血球凝集抑制試験、抗原検出キットならびに分子疫学的解析より同定を行った。

#### 3.5 結果

検体は 5 病原体定点医療機関および 16 患者定点医療機関の協力により採取した。採取された 268 件の月別診断名別検体数を表 3 に示した。診断名別に見ると感染性胃腸炎が 134 件 (50.0%) と最も多く、続いてインフルエンザ 94 件 (35.1%)、ヘルパンギーナ 22 件 (8.2%)、手足口病 18 件 (6.7%) であった。

月別の検体ではヘルパンギーナ、手足口病と診断された患者からの検体は 6 月から 8 月に多かった。この傾向は毎年確認されているが、流行の規模は例年より小さかった。

一方、感染性胃腸炎患者からの検体は通年採取され、流行期の 12 月から 2 月の検体数が多くなっている。また、インフルエンザの検体は流行のピーク時の 1 月から 3 月まで採取された。

診断名別の病原体検出状況を表 4 に示した。インフルエンザと診断された 94 件中 93 件 (検出率 98.9%) から病原体 (遺伝子またはウイルス株) が検出された。内訳はイン

フルエンザウイルス AH3 が 32 件、AH1pdm09 が 31 件、B 型が 29 件だった。2 シーズンぶりに AH1pdm09 が流行し、また、シーズン当初から B 型が検出されるなど、3 つの型が同時に流行するという例年とは違う流行パターンを示した。ヘルパンギーナ 22 件からはコクサッキーウイルス 16 件、型不明のエンテロウイルス 3 件が検出された。手足口病 18 件からは 13 件のコクサッキーウイルスが検出された。また、感染性胃腸炎患者検体 134 件中 63 検体 (47.0%) から病原体が検出 (重複病原体検出検体有り) され、その内訳はノロウイルス 33 件 (52.4%)、サポウイルス 10 件 (15.9%)、アデノウイルス 6 件 (9.5%)、ヒトパレコウイルス 5 件、ロタウイルス 4 件、エコーウイルス 3 件、コクサッキーウイルス 1 件、黄色ブドウ球菌 6 件、腸管病原性大腸菌 (EPEC) 2 件、腸管凝集集着性大腸菌 6 件、カンピロバクター 2 件であった。

表 3 月別診断名病原体検査件数

診断名 \ 月	計	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月	3月
インフルエンザ	94										37	34	23
感染性胃腸炎	134	4	4	2	3	6	6	12	14	40	17	17	9
ヘルパンギーナ	22			6	9	7							
手足口病	18					18							
計	268	4	4	8	12	31	6	12	14	40	54	51	32

表4 診断名別病原体検出状況

診断名 検出病原体	インフル エンザ	ヘル パン ギー ナ	手足 口病	感染性 胃腸 炎	そ の 他	合 計
Influenza virus AH1pdm09型	31					31
Influenza virus AH3型	32					32
Influenza virus B型	29					29
Influenza virus A-not subtyped	1					1
Adenovirus 41型				6		6
Coxsackievirus A2型		13	1			14
Coxsackievirus A5型		1				1
Coxsackievirus A6型		2	12			14
Coxsackievirus B1型				1		1
Echovirus 6型				3		3
Enterovirus-not typed		3				3
Norovirus GI群				1		1
Norovirus GII群				32		32
Rotavirus group A G1型				3		3
Rotavirus group A G2型				1		1
Sapovirus				10		10
Human Parechovirus 1型				3		3
Human Parechovirus 6型			1			1
Human Parechovirus-not typed				2		2
S. aureus II				1		1
S. aureus VI				1		1
S. aureus UT				4		4
EPEC 0145				1		1
EPEC OUT				1		1
enteroaggregative Escherichia coli				6		6
Campylobacter jejuni				2		2

# 感染症流行予測調査

## National Epidemiology Surveillance of Vaccine-preventable Diseases

微生物部

Department of Microbiology

キーワード：麻疹；風疹；日本脳炎；抗体保有状況

*Key words* : Measles; Rubella; Japanese encephalitis; distribution of antibody positives

### 1 はじめに

感染症流行予測調査は「集団免疫の現状把握及び病原体の検索等の調査を行い、各種疫学資料と併せて検討し、予防接種事業の効果的な運用を図り、さらに長期的視野に立ち総合的に疾病の流行を予測する」ことを目的として、厚生労働省の依頼により全国規模で実施されている。調査は、社会集団の抗体保有状況を知るための感受性調査と、病原体の潜伏状況及び潜在流行を知るための感染源調査により得られた結果を総合的に分析し、年毎の資料としている。平成 25 年度は、麻疹感受性調査、風疹感受性調査、日本脳炎感受性及び感染源調査を実施したので、その結果について報告する。

### 2 各調査における対象及び検査方法

#### 2.1 麻疹感受性調査

9月2日から11月6日の期間で採血を行った県内在住の0～45歳の健康住民172名を対象とした。検査方法は感染症流行予測調査事業検査術式<sup>1)</sup>(以下、検査術式とする。)に従い、粒子凝集法を用い、血清中の麻疹ウイルスに対するPA抗体価を測定した。

#### 2.2 風疹感受性調査

9月2日から11月6日の期間で採血を行った県内在住の0～61歳の健康住民298名(男性140名、女性158名)を対象とした。検査方法は、検査術式に従い、赤血球凝集抑制(HI)法により血清中の風疹ウイルス抗体価を測定した。

#### 2.3 日本脳炎感受性調査

9月2日から11月6日の期間で採血を行った県内在住の0歳～61歳の健康住民170名を対象とした。検査方法は「PAP法を応用したフォーカス計測法による日本脳炎中和抗体価測定法」<sup>2)</sup>を用い血清中の日本脳炎ウイルスの中和抗体を測定した。

#### 2.4 日本脳炎感染源調査

県内で飼育された6ヶ月齢のブタ97頭を対象とし、7月31日から9月24日の期間に5回の採材を行った。検査術式に従いHI法を用いたブタ血清中の抗体価測定を行い、HI抗体陽性の場合には2ME感受性試験によりIgM抗体の確認を行った。

### 3 結果

#### 3.1 麻疹感受性調査

麻疹抗体保有状況調査結果を表1に示す。全体の抗体保有率は92.4%で昨年の94.1%<sup>3)</sup>を下回った。年齢別では0～1歳区分でワクチン定期接種年齢前<sup>3)</sup>の割合が多いため52.6%と低いが、その他の年齢区分ではすべて90%以上の抗体保有率であった。麻疹の発症予防に必要な抗体価は128倍以上<sup>4)</sup>とされているが、128倍以上の抗体保有率は89.5%(154/172)で昨年の89.8%<sup>3)</sup>と同程度であった。接種不明者を除くワクチン接種率は92.6%(125/135)であった。

#### 3.2 風疹感受性調査

風疹抗体保有状況調査結果を表2に示す。全体の抗体保有率は89.6%と前年度の88.7%<sup>3)</sup>を上回った。また、男女別抗体保有率では男性85.7%、女性93.0%で女性の保有率が高かった。年齢別抗体保有率は麻疹と同様にワクチン未接種者の割合が多い。0～1歳で47.4%と最も低く、次に40歳以上が81.0%(男性66.7%、女性95.2%)であった。他の年齢区分ではおおむね90%以上の抗体保有率であったがさらに男女別抗体保有率は2～3歳女性、20～24歳男性、30～39歳男性で88.9%のやや低い抗体保有率であった。また、風疹の感染防御に必要な抗体価は国内では未だ議論が定まっていないが、32倍<sup>5)</sup>あるいは64倍<sup>6)</sup>以上の抗体価が必要と考えられている。64倍以上の抗体保有率は全体で42.3%(男性45.0%、女性39.9%)であった。接種不明者を除く全体のワクチン接種率は82.4%(159/193)で前年度の77.2%<sup>4)</sup>を上回った。男性の接種率は79.0%(64/81)、女性の接種率は84.8%(95/112)であった。

#### 3.3 日本脳炎感受性調査

日本脳炎抗体保有状況調査結果を表3に示す。全体の抗体保有率は50.0%で前回調査(平成23年度)の47.5%<sup>7)</sup>を若干上回った。年齢区分別ではワクチン定期接種年齢前の年齢区分0～1歳での抗体保有率は0%であった。2～4歳の年齢区分では46.7%(平成23年度39.4%)<sup>7)</sup>、5～9歳の年齢区分では76.0%(平成23年度48.1%)<sup>7)</sup>と平成23年度を大きく上回った。また、30～39歳、40歳以上の年齢区分では20%以下であった。接種不明者を除く全体のワクチン接種率は66.7%(88/132)と平成23年度の

60.5%<sup>7)</sup>を上回った。

3.4 日本脳炎感染源調査

日本脳炎感染源調査結果を表4に示す。97頭の血清中の日本脳炎HI抗体価を測定した結果、1件で1:10の抗体価を示した。この検体は2ME感受性試験陽性で新鮮感染であることが確認され、日本脳炎感染蚊の活動があったことが示唆された。

4 まとめ

平成25年度感染症流行予測調査は、麻しん感受性、風しん感受性、日本脳炎感受性及び感染源調査を行った。調査対象集団の麻しん感受性調査における抗体保有率は92.4%であり、発症予防に必要とされる128倍以上の抗体保有率は89.5%であった。県内での患者発生は報告されていないが、全国では平成26年3月までに平成24、25年同時期の倍以上の麻しん患者が報告されている。麻しんウイルスは感染力が強く、国内でも感染の機会があることからワクチン接種の啓蒙が必要と考えられる。また、風しん抗体保有率は89.6%であった。平成25年は全国的に風しんが流行し、県内でも患者が報告された。全国デ

ータでは報告された患者の半数以上が成人男性であったが、今回の調査でも年齢区分40歳以上の男性の抗体保有率は66.7%で、0～1歳区分を除くと最も低い保有率であった。小児と比較すると成人のワクチン接種率は低く、先天性風しん症候群(CRS)予防の観点からも罹患歴の明らかでない成人へのワクチン接種啓蒙も必要と考えられた。日本脳炎は近年県内での患者発生は報告されていないが、西日本では毎年数件ずつ発症者を確認しており、平成25年は9件の報告があった。今回の感染源調査では日本脳炎感染蚊の活動が示唆されており、県内でも感染の可能性は否定できない。感受性調査では全体の抗体保有率は50%であった。特に30歳以上では抗体保有率は10%台と低く、これはワクチン効果の減弱及び日本脳炎感染蚊への暴露機会減少のためと考えられる。ワクチン接種率、抗体保有率ともに前回(平成23年)、前々回(平成21年)を上回ったものの、定期接種年齢(第1期:3歳)以降の年齢区分でも麻しん風しんと比較すると低い。平成17～21年の間、日本脳炎ワクチンの積極的勧奨が行われなかったことが影響していると考えられた。

表1 麻しん感受性(抗体保有状況)調査結果

年齢区分	ワクチン接種歴	件数	PA抗体価											抗体保有率(%) <sup>※</sup>	
			<16	16	32	64	128	256	512	1024	2048	4096	8192≤		
0～1歳	有	12	2				1		5	3	1			83.3	52.6
	不明	3	3											0.0	
	無	4	4											0.0	
2～3歳	有	12						2	2	2	3	3		100.0	92.3
	不明	1	1											0.0	
	無	0													
4～6歳	有	11						2	5		3		1	100.0	100.0
	不明	0													
	無	0													
7～9歳	有	14					2	1	3	4	4			100.0	100.0
	不明	3						1	1	1				100.0	
	無	0													
10～14歳	有	22			1	1		4	6	3	5	2		100.0	100.0
	不明	1						1						100.0	
	無	0													
15～19歳	有	24						5	4	11	4			100.0	93.1
	不明	5	2			1		1	1					60.0	
	無	0													
20～29歳	有	18				1		5	4	6	1	1		100.0	100.0
	不明	4								3	1			100.0	
	無	0													
30～39歳	有	12		1			2	2	2	2	3			100.0	96.2
	不明	11					2	1	4	1	2	1		100.0	
	無	3	1							1	1			66.7	
40歳以上	有	0													100.0
	不明	9						2	1	1	1	3	1	100.0	
	無	3						1	1	1				100.0	
全体	有	125	2	1	1	2	5	21	31	31	24	6	1	98.4	92.4
	不明	37	6	0	0	1	2	6	7	6	4	4	1	83.8	
	無	10	5	0	0	0	0	1	1	2	1	0	0	50.0	
総計		172	13	1	1	3	7	28	39	39	29	10	2	92.4	

※抗体価16倍以上について算出

表2 風しん感受性（抗体保有状況）調査結果

年齢区分	性別	ワクチン 接種歴	件数	風しん抗体価								抗体保有率 (%)※		
				<8	8	16	32	64	128	256	512≤			
0～1歳	男	有	9	2	1			2	2	2			77.8	53.8
		不明	2	2										
		無	2	2									0.0	
	女	有	3	1					2				66.7	
		不明	1	1									0.0	
		無	2	2									0.0	
2～3歳	男	有	4		1		2			1			100.0	100.0
		不明	0	0										
		無	0	0										
	女	有	8				1	5	1	1			100.0	
		不明	1	1									0.0	
		無	0	0										
4～9歳	男	有	12			4	4	1	3				100.0	100.0
		不明	3		1			2					100.0	
		無	0											
	女	有	13			3	6	3	1				100.0	
		不明	0											
		無	0											
10～14歳	男	有	10		1	3	3	3					100.0	100.0
		不明	1				1						100.0	
		無	0											
	女	有	12		1	4	4	1	2				100.0	
		不明	0											
		無	0											
15～19歳	男	有	3		1			2					100.0	100.0
		不明	1		1								100.0	
		無	0											
	女	有	22			5	9	6	2				100.0	
		不明	3	2		1							33.3	
		無	0											
20～24歳	男	有	10	1	1	1		3	2		2		90.0	88.9
		不明	7	1		3	3						85.7	
		無	1		1								100.0	
	女	有	12		2	6	2	1	1				100.0	
		不明	6			1	2	2	1				100.0	
		無	0											
25～29歳	男	有	7		1	2	2	2					100.0	94.4
		不明	10	1	1		4	2	1	1			90.0	
		無	1				1						100.0	
	女	有	7		1	2	1	1	1	1			100.0	
		不明	4		1		1	1		1			100.0	
		無	5	1		1		3					80.0	
30～39歳	男	有	8				2	3	2	1			100.0	88.9
		不明	20	3		1	3	7	6				85.0	
		無	8	1		2		3	2				87.5	
	女	有	14	1		3	2	2	5	1			92.9	
		不明	17	1		2	8	5	1				94.1	
		無	7			3		1	2		1		100.0	
40歳以上	男	有	1							1			100.0	66.7
		不明	15	7		1	1	3		2	1		53.3	
		無	5		1	1	2		1				100.0	
	女	有	4	1		1	2						75.0	
		不明	14		1	1	5	6	1				100.0	
		無	3		1		1				1		100.0	
全体	男	有	64	3	6	10	13	16	10	4	2		95.3	85.7
		不明	59	14	3	5	12	14	7	3	1		76.3	
		無	17	3	1	4	3	3	3	0	0		82.4	
	女	有	95	3	4	24	27	19	15	3	0		96.8	
		不明	46	5	2	5	16	14	3	1	0		89.1	
		無	17	3	1	4	1	4	2	0	2		82.4	
総計			298	31	17	52	72	70	40	11	5	89.6		

※抗体価8倍以上について算出

表3 日本脳炎感受性（抗体保有状況）調査結果

年齢区分	ワクチン 接種歴	件数	日本脳炎抗体価							抗体保有率(%)※		
			<10	10	20	40	80	160	320≤			
0～1歳	有	0									0.0	0.0
	不明	2	2									
	無	16	16									
2～4歳	有	7				1		1	5	100.0	46.7	46.7
	不明	3	3							0.0		
	無	5	5							0.0		
5～9歳	有	16			2	1	1	4	8	100.0	76.0	76.0
	不明	4	1		1		1		1	75.0		
	無	5	5							0.0		
10～14歳	有	20	2	2		2	3	4	7	90.0	78.3	78.3
	不明	1	1							0.0		
	無	2	2							0.0		
15～19歳	有	22	3	1	1	3	3	5	6	86.4	79.3	79.3
	不明	4	1					1	2	75.0		
	無	3	2				1			33.3		
20～29歳	有	7					3	1	3	100.0	54.2	54.2
	不明	8	4			2	1	1		50.0		
	無	9	7			1		1		22.2		
30～39歳	有	13	10	2			1			23.1	12.5	12.5
	不明	9	9							0.0		
	無	2	2							0.0		
40歳以上	有	3	2	1						33.3	16.7	16.7
	不明	7	6	1						14.3		
	無	2	2							0.0		
全体	有	88	17	6	3	7	11	15	29	80.7	50.0	50.0
	不明	38	27	1	1	2	2	2	3	28.9		
	無	44	41	0	0	1	1	1	0	6.8		
総計		170	85	7	4	10	14	18	32	50.0		

※抗体価10倍以上について算出

表4 日本脳炎感染源調査結果

採材日	生産地	頭数	HI抗体価							抗体保有率(%)	2ME感受性試験	
			<10	10	20	40	80	160	320≤		HI陽性	2ME陽性
7月31日	角田	19	19							0.0		
8月6日	角田	22	22							0.0		
8月23日	角田	22	21	1						4.5	1	1
9月10日	角田	14	14							0.0		
9月24日	角田	20	20							0.0		
全頭数		97	96	1						1.0	1	1

※抗体価10倍以上について算出

## 参考文献

- 1) 厚生労働省健康局結核感染課・国立感染症研究所 感染症流行予測調査事業委員会：感染症流行予測調査事業検査術式(2002)
- 2) 国立感染症研究所 ウイルス第一部第二室：PAP法を応用したフォーカス計測法による日本脳炎中和抗体価測定法研修会資料(平成18年11月9-10日)
- 3) 宮城県保健環境センター年報, No.31, 46(2013)
- 4) 厚生労働省健康局結核感染課・国立感染症研究所

- 5) 厚生労働省健康局結核感染課・国立感染症研究所 情報センター：平成21年度(2009年度)感染症流行予測調査報告書(2012)
- 6) 厚生労働省健康局結核感染課・国立感染症研究所 情報センター：平成18年度(2006年度)感染症流行予測調査報告書(2008)
- 7) 宮城県保健環境センター年報, No.30, 45(2012)

# 平成 25 年度収去検査結果(細菌検査)実績

## Food Safety Concerning Bacterial Contamination in 2013

微生物部

Department of Microbiology

食品衛生法第 24 条及び 28 条に基づく収去品の検査を実施した。平成 25 年度も震災の影響で検査件数は回復しなかった。細菌検査は検体数として 1,327 件、延べ 3,246 項目の検査を実施した。実績を表 1 に示した。

表 1 平成 25 年度食品収去検査結果 (細菌検査) 実績

食品区分	項目	検体数	細菌数	基準を超えたもの	大腸菌群	基準を超えたもの	大腸菌	基準を超えたもの	大腸菌最確数	基準を超えたもの	黄色ブドウ球菌	基準を超えたもの	サルモネラ属菌	腸炎ビブリオ	腸炎ビブリオ最確数	乳酸菌数	クロストリジウム属菌	VTEC	セレウス菌	赤痢菌	発育しうる微生物	抗生物質	延項目数	
魚介類	生食用かき	89	76						76						44			13						209
	生食用鮮魚介類	90													90									90
冷凍食品	無加熱	4	4	4																				8
	凍結直前加熱	8	8	8																				16
	凍結直前未加熱	22	22			22																		44
魚介類加工品	魚肉練製品	88	88	88	2						7			10										176
	その他	21	11	7																				35
肉卵類及びその加工品	食肉製品(加熱後包装)	59	59			59				59		59												236
	食肉製品(包装後加熱)	6	6	6													6							18
	食肉製品(乾燥)	4	4			4																		8
	食肉	8																					8	8
生乳	4	4																						4
牛乳・加工乳	牛乳	76	76	76																				152
	加工乳・低脂肪乳	0																						0
乳製品	乳飲料	36	36	36																				72
	発酵乳	11		11												11								22
アイスクリーム類・氷菓	アイスクリーム	16	16	16	3																			32
	アイスマルク	7	7	7	1																			14
	氷菓	3	3	3																				6
穀類及びその加工品	生めん	19	19			19				19														57
	ゆでめん	16	16	16						16														48
	その他	3	3			3				3														9
野菜類・果物及びその加工品	野菜・果物	0																						0
	つけもの(一夜漬け)	59				59	1						59											118
菓子類	豆腐	81	81	2	81	1				63														225
	和生菓子	121	121	6	121	8				121	1													363
清涼飲料水	洋生菓子	143	143	2	143	22				143														429
	ミネラルウォーター	0																						0
氷雪	清涼飲料水	28				28																		28
		10	10	10																				20
かん詰・びん詰食品・レトルト		27																						27
その他の食品	弁当	43	43	1		41				41														125
	調理パン	11	11			2				2														15
	そうざい	202	202	1		191				191														584
	そうざい中間品	12	12			12				12											12			48
食品計		1,327	1,081	14	661	37	412	1	76	0	677	1	59	69	134	11	6	13	0	12	27	8	3,246	
輸入食品再掲		16	16		5		11				8		8											48
合計		1,327	1,081	14	661	37	412	1	76	0	677	1	59	69	134	11	6	13	0	12	27	8	3,246	

## 平成 25 年度食中毒検査結果

## The Result of Examination on Food Poisoning in 2013

微生物部

Department of Microbiology

平成 25 年度検査した食中毒及び有症苦情は 21 事例であった。これらについて原因究明のため実施した検査状況を表 1 に示した。微生物検査を実施して病因物質が検出されたのは 14 件 (66.7%) で、このうちノロウイルス GII 群遺伝子を検出した事例が 9 件と最も多く、GI 群遺伝子 1 件、GI、GII 群遺伝子を共に検出した事例が 1 件であった。11 月から 1 月の冬季に発生する食中毒事例

のほとんどはノロウイルスによるものであったが、ノロウイルスによる食中毒は通年検出される傾向がある。平成 25 年度は例年に比べて食中毒事例数は少なく、病因物質の微生物が検出されたものは有症苦情 1 事例のみであった。また、サポウイルスによる有症苦情が 2 事例あった。

表 1 食中毒検査結果

No.	受付月日	担当保健所・支所	発病場所	原因食品	検体数	検体 (内訳)					病因物質	備考
						患者便	健康者便	食品	拭き取り	吐物		
1	H25. 4. 17	大崎	山形県	旅館の食事	1	1					ノロウイルスGI	関連調査 (有症苦情)
2	H25. 4. 26	岩沼・石巻	名取市	飲食店の食事	29	3	21		5		サポウイルス	有症苦情
3	H25. 6. 11	仙南・石巻	蔵王町	不明 (旅館の食事)	19	4	4	6	5		検出せず	食中毒
4	H25. 6. 15	仙南	仙台市	仕出し弁当	22		6	16			検出せず	有症苦情
5	H25. 6. 22	塩釜	山形県	仕出し弁当	7	7					検出せず	関連調査 (食中毒)
6	H25. 8. 30	登米	秋田県	不明	7			7			検出せず	有症苦情
7	H25. 9. 6	塩釜	多賀城市	不明	2	2					サポウイルス	有症苦情
8	H25. 10. 12	岩沼	仙台市	不明 (飲食店の食事)	1	1					検出せず	関連調査 (食中毒)
9	H25. 10. 18	気仙沼	気仙沼市	不明	11			11			黄色ブドウ球菌・セレウス菌	有症苦情
10	H25. 11. 2	石巻	岐阜県	不明	4	4					検出せず	関連調査 (有症苦情)
11	H25. 11. 12	仙南・岩沼	仙台市	不明	2	2					ノロウイルスGII	有症苦情
12	H25. 11. 12	石巻	石巻市	不明	2	1				1	ノロウイルスGII	関連調査 (有症苦情)
13	H25. 11. 30	塩釜	横浜市	不明	1	1					ノロウイルスGII	関連調査 (有症苦情)
14	H25. 11. 30	岩沼	岩沼市	寿司	1	1					検出せず	有症苦情
15	H25. 12. 18	岩沼	岩沼市	不明	8	6	2				ノロウイルスGII	有症苦情
16	H25. 12. 26	石巻・仙南	大河原町	不明	8	6	2				ノロウイルスGII	有症苦情
17	H25. 12. 27	塩釜	千葉県	不明	1	1					ノロウイルスGII	関連調査 (有症苦情)
18	H25. 12. 27	仙南・栗原	栃木県	不明 (当該旅館で提供された食事)	2	2					ノロウイルスGII	関連調査 (食中毒)
19	H26. 1. 14	大崎	福岡市	不明	14	14					ノロウイルスGII	関連調査 (有症苦情)
20	H26. 1. 16	大崎・塩釜	大崎市	法事の料理	27	12	5		10		ノロウイルスGII	有症苦情
21	H26. 1. 31	岩沼	名取市	飲食店の食事	18	6	9		3		ノロウイルスGI・GII	食中毒
合計					187	74	49	40	23	1		

# 宮城県の過去 10 年間における A 群ロタウイルスの動向

## Genotyping of Group A Rotavirus in Miyagi Prefecture(2003-2012)

鈴木優子 木村俊介 阿部美和 植木 洋 佐藤俊郎\*1  
 Yuko SUZUKI, Shunsuke KIMURA, Miwa ABE, Yo UEKI, Toshiro SATO

キーワード：A群ロタウイルス；遺伝子型；ワクチン

Keyword: Group A Rotavirus ; Genotype ; Rotavirus Vaccine

### 1 はじめに

ロタウイルスは胃腸炎を引き起こすウイルスとして広く知られている。レオウイルス科 (family Reoviridae) のロタウイルス属 (genus Rotavirus) に分類され、11本の分節化した二本鎖 RNA をゲノムとして有し、外殻、内殻、及びコア蛋白からなる 3 重構造を持つ。内殻蛋白である VP6 の抗原性の差異により A~G の 7 群に分類され、このうちヒトに感染するのは A, B, C 群で、主となるのは A 群である。A 群ロタウイルス (ARV) は、外殻の表面蛋白で中和抗原である VP7 (G 遺伝子型) と VP4 (P 遺伝子型) により細分類されている<sup>1)</sup>。世界中で検出される ARV の野外株は、G1P[8], G2P[4], G3P[8], G4P[8], G9P[8] の 5 種類で約 90% を占めるといわれている<sup>2)</sup>。また、ARV の主流株の遺伝子型はシーズンや地域により異なることが知られている。このロタウイルスの引き起こす胃腸炎の重症化を予防する目的でワクチンが開発され、世界各国でワクチンの導入は進んでいる。日本においても、2011 年 11 月にロタウイルスワクチンの投与が開始された。海外では、ワクチン効果によるロタウイルス胃腸炎患者の減少<sup>3)</sup>の報告がある一方、ワクチン導入後、流行株に変化がみられた<sup>4)</sup>との報告もある。

そこで、県内のロタウイルスワクチンの導入前後における ARV の主流株の遺伝子型を把握することを目的に、過去に検出された ARV の遺伝子型の分子疫学調査を行ったので報告する。

### 2 対象及び検査方法

#### 2.1 対象

2003/04 シーズンから 2012/13 シーズンまでの 10 シーズンに宮城県結核・感染症発生動向調査事業で採取された感染性胃腸炎患者の糞便検体のうち、RT-PCR 法またはイムノクロマト法で ARV 陽性であった検体 65 件を用いた。なお、2010/11 シーズンは東日本大震災の影響で流行期を含む 3 月後半から 7 月までの調査を休止しており、その他の期間でも ARV の検出がなかった。

#### 2.2 方法

糞便の 10% 乳剤もしくは、シードスワブの懸濁液を 10,000rpm 10 分間遠心、その上清をウイルス抽出液とし、QIAamp Viral RNA Mini Kit(QIAGEN)を用い RNA を抽出した。得られた RNA をもとに逆転写反応を行った後、型別をするために、VP7 遺伝子 (G 型) 及び VP4 遺伝子 (P 型) を増幅するための PCR を行った。電気泳動で目的とする増幅産物を確認後、ダイレクトシーケンス法で塩基配列を決定し、MEGA5 を用いて分子疫学的解析を行った。

### 3 結果

過去 10 シーズンに検出した ARV 株を解析した結果、G1P[8] (52.3%), G3P[8] (35.4%), G9P[8] (4.6%), G2P[4] (3.1%) の順であった (図 1)。これらの遺伝子型は世界中で報告されている主要 5 種類に含まれていた。

一方、非通常株である G6P[9] 及び G12P[9] がそれぞれ 1 検体検出された。特に G6 はウシロタウイルスの主要な遺伝子型でありヒトからの報告例は少ないが、古くは Iizuka ら<sup>5)</sup>によりイタリアで分離された G6 株である PA151 株がウシロタウイルスと AU-1 型のヒト/ネコロタウイルスとの遺伝子分節再集合体 (リアソータント) であることを確認しており、県内でも ARV のリアソータント株を原因とした胃腸炎の発生が推測された。

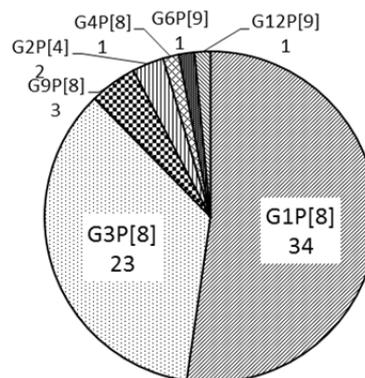


図 1 過去 10 シーズンにおける ARV 遺伝子型別

\*1 現 食肉衛生検査所

また、各シーズンごとの流行株の遺伝子型は、2004/05、2005/06、2011/12 及び 2012/13 シーズンでは G1P[8]が主流となり、2003/04、2006/07、2008/09 シーズンでは G3P[8]が主流となり（図 2）、シーズンにより流行株の遺伝子型が変化しているのが認められたが、ワクチン接種事業開始後二年しか経過していないこと、さらには任意接種であるため接種率が県内では 40%台であることなどからワクチンによる遺伝子型の変化は確認できなかった。

#### 4 まとめ

県内の 2003/04 シーズンから 2012/13 シーズンまでの 10 シーズンにおける ARV の遺伝子型別を行った結果、G1P[8]、G3P[8]が大部分で、全体の 88%を占めた。検出された遺伝子型の大部分はワクチンに含まれる遺伝子型だった。

一方、本研究では、G6[9]も検出されヒト由来の ARV 遺伝子と動物由来の ARV 遺伝子の遺伝子再集合体（

リアソータント）があった可能性も示唆された。G6[9]は世界的にも報告例が少なく今後詳細な調査が必要である。

ワクチンによるロタウイルス胃腸炎の発生動向の変化を監視するため、我が国においても 2013 年 10 月よりロタウイルスサーベイランスが始まった。その中でワクチンの評価が目的の一つとなっている。胃腸炎の減少と

共に主流型（遺伝子型）の変化も想定され、評価をより確実にするためにも遺伝子型の把握は非常に重要であり、今後継続した調査が必要と考えられる。

#### 参考文献

- 1) 片山和彦：ロタウイルス概要. IASR, 32(3), 63-64 (2011)
- 2) 牛島廣治：ウイルス性胃腸炎の診断法と疫学の過去、現在と今後の展望. ウイルス 第 59 巻 第 1 号, 75-90 2009
- 3) Tate JE, et al: Decline and change in seasonality of US rotavirus activity after the introduction of rotavirus vaccine. Pediatrics, 2009 [Epub ahead of print] CDC, MMWR58:1146-1149, 2009
- 4) Kirkwood CD, Boniface K, Barnes GL, Bishop RF: Distribution of rotavirus genotypes after introduction of rotavirus vaccines, rotarix and rotateq, into the national immunization program of Australia. Pediatr Infect Dis J 30: S48-S53, 2011.
- 5) Iizuka, M., et al. Serotype G6 human rotavirus sharing a conserved genetic constellation with natural reassortants between members of the bovine and AU-1 genogroups. Arch Virol 135: 427-432, 1994.

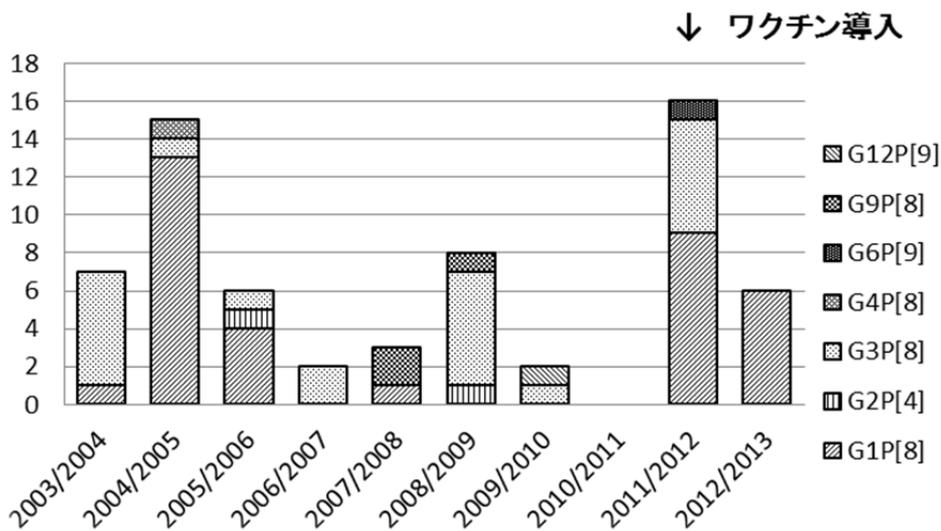


図 2 シーズンごとの ARV 遺伝子型別

# 豚におけるカンピロバクター汚染について

## Pig pollution by *Campylobacter*

中居真代\*1 中村久子 松島桂子 小林妙子 渡邊 節 佐藤俊郎\*2  
 Masayo NAKAI, Hisako NAKAMURA, Keiko MATSUSHIMA,  
 Taeko KOBAYASHI, Setsu WATANABE, Toshiro SATO

宮城県内の豚 130 件、牛 4 件、犬 38 件、猫 60 件におけるカンピロバクター保有状況を確認したところ、豚から 52 件（40%）カンピロバクターを検出し、そのうち 94%の 50 件が *Campylobacter coli* (*C.coli*) で、6%の 2 件が *Campylobacter jejuni* (*C.jejuni*) であった。分離された豚由来 *C.coli* についてテトラサイクリン (TC) , エリスロマイシン (EM) , ナリジクス酸 (NA) , ノルフロキサシン (NLFX) に対する薬剤感受性試験を行った結果、TC は 81% , EM は 49% , NA は 65% , NLFX は 70%の耐性率を有していた。全体の 95%に耐性株が認められ多剤耐性菌も多くみられた。また、パルスフィールドゲル電気泳動 (PFGE) による遺伝子解析を行った結果、農場ごとに相同性は見られず多様な遺伝子パターンが確認された。

キーワード：カンピロバクター；豚；薬剤感受性試験；パルスフィールドゲル電気泳動 (PFGE)

Key words : *Campylobacter* ; pig ; Drug susceptibility test ; Pulsed field Gel Electrophoresis(PFGE)

## 1 はじめに

カンピロバクター・ジェジュニ/コリ (*Campylobacter jejuni/coli*) はヒトに発熱、下痢、腹痛などの症状を引き起こす。また、食中毒原因物質にも定められており、H24 年全国食中毒統計では、病因物質別事件数がノロウイルスに次いで 2 番目に多く 226 件、患者数は 1,834 人であった<sup>1)</sup>。宮城県のカンピロバクターによる食中毒件数は、H24 年は 3 件で患者数は 52 名であった<sup>2)</sup>。また、感染症法に定める定点把握疾患の感染性胃腸炎患者、いわゆる散発性下痢症患者を調査すると、年間 1~2 件がカンピロバクター胃腸炎である。このようにヒト検体からカンピロバクターが検出されるのは稀ではない。

カンピロバクターは、家畜、野生動物の腸管内に広く分布している。宮城県でも過去に鶏肉及び鶏レバーの調査を行い、鶏肉で 60%、鶏レバーの 90%から *C.jejuni* を検出している<sup>3)</sup>。そのことをふまえ、今回県内産の豚、牛、犬及び猫のカンピロバクター保菌状況を確認した。また、豚から高率で分離された *C.coli* について、薬剤感受性試験及びパルスフィールド電気泳動法を用いた遺伝子解析を実施した。

## 2 対象及び検査方法

### 2.1 対象

H25 年 9 月から 11 月に宮城県食肉流通公社で処理された豚の便 130 件及び牛の便 4 件、宮城県動物愛護センターで採取した犬の便 38 件及び猫の便 60 件を対象とした。

\*1 現 塩釜保健所岩沼支所

\*2 現 食肉衛生検査所

## 2.2 方法

### 2.2.1 カンピロバクターの分離同定

当所の食中毒検査マニュアルに基づき、直接選択培地は CCDA 培地 (OXOID) を使用し 42℃48 時間で微好気培養を行った。増菌培養についてはボルトン培地 (OXOID) を使用し、42℃24 時間微好気培養後、CCDA 培地に塗抹後 42℃48 時間で微好気培養を行った。CCDA 培地上に発育した疑わしいコロニーを血液寒天培地で純培養後、グラム陰性らせん状桿菌でカンピロバクター LA (デンカ生研) でラテックス凝集反応により菌体凝集するものをカンピロバクターとし、さらに PCR 法でカンピロバクター属を確認し、制限酵素 *Alu I* 処理により菌種同定を行った。

### 2.2.2 薬剤感受性試験

検出された *C.coli* 43 件は、5%馬血加ミューラーヒントン培地を用い、一濃度ディスク法 (KB ディスク：栄研化学) で TC (薬剤含有量 15µg) , EM (薬剤含有量 15µg) , NA (薬剤含有量 30µg) , NLFX (薬剤含有量 10µg) に対する薬剤感受性試験を実施した。

### 2.2.3 PFGE 法

検出された *C.coli* のうち 48 株について、制限酵素 *Sma I* を用いた PFGE を実施し菌株の関連性を確認した。比較対象として、H25 年に食中毒事件から検出されたヒト由来 1 株、H23 年市販鶏肉由来 1 株も同時に分析した。プロトコルは八尋ら<sup>4)</sup>の方法を参考とした。電気泳動は BIO-RAD 社製 Chef Mapper を用い、パルスタイム 6.8~38.4 秒、泳動時間 19 時間の条件で行い、遺伝子パターンの解析は Fingerprinting II (Dice) を使用した。

### 3 結果

#### 3.1 カンピロバクターの分離同定

カンピロバクターの検出結果を表1に示した。豚130件のうち52件(40%)からカンピロバクターが検出された。牛4件からは1件、猫60件からは3件、犬38件からは2件検出された。豚52件の内訳は、*C.coli*が50件(94%)、*C.jejuni*が2件(6%)であった(図1)。

表1 カンピロバクター検出結果

検体	検体数	検出数	菌種	
			<i>C.coli</i>	<i>C.jejuni</i>
豚	130	52	50	2
牛	4	1	0	1
猫	60	3	2	1
犬	38	2	1	1
総数	232	58	53	5

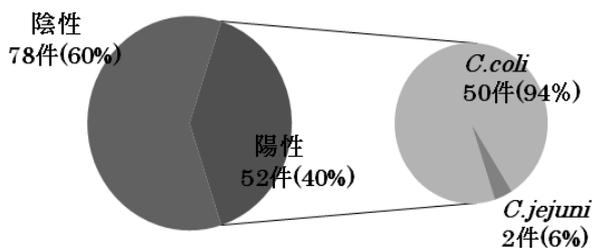


図1 豚におけるカンピロバクター検出結果 (n=130)

#### 3.2 薬剤感受性試験

*C.coli*の薬剤感受性試験の結果を図2、図3に示した。TC耐性株は35株(81%)、EM耐性株は21株(49%)、NA耐性株は28株(65%)、NLPX耐性株は30株(70%)であった。このうち4剤すべてに耐性を示したのは11株(25%)、3剤は18株(42%)、2剤は4株(9%)、1剤は8株(19%)で、すべて感受性の株は2株(5%)であった。

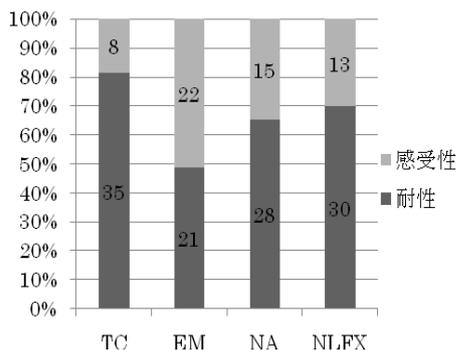


図2 薬剤耐性率 (n=43)

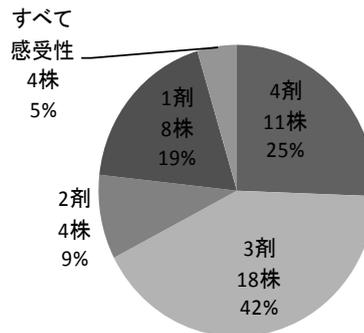


図3 耐性薬剤数 (n=43)

#### 3.3 PFGEによる遺伝子解析

豚由来株48株、鶏肉由来株1株、食中毒ヒト由来株1株計50株について、PFGE遺伝子パターンの解析結果を図4に示した。90%相同性を示す菌株が5組あったものの、菌株の多くは遺伝子パターンが多岐にわたり、同一農場での相同性は見られなかった。

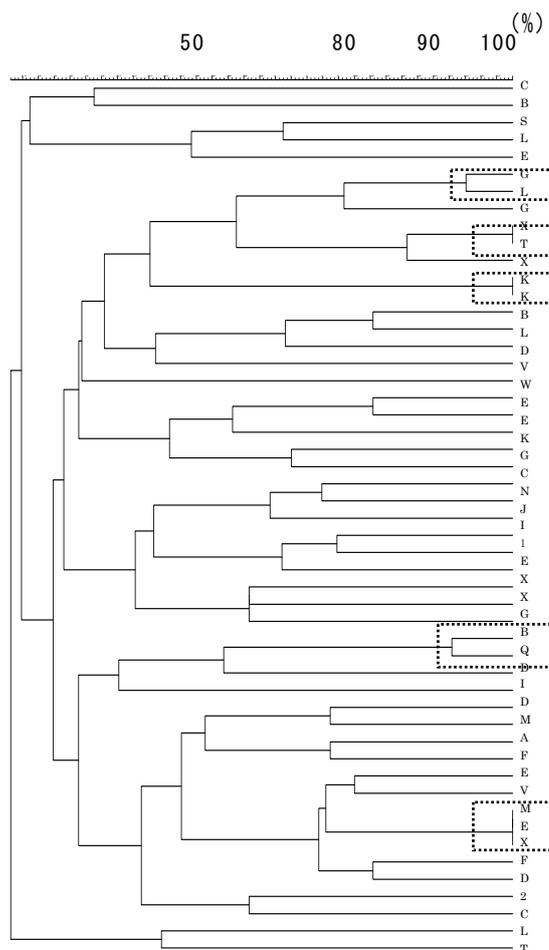


図4 PFGEの解析結果

※A~W: 農場別豚由来株

1: 鶏肉由来株

2: 食中毒ヒト由来株

## 4 考察

豚 130 件中 52 件 (40%) からカンピロバクターが検出され、牛、猫及び犬と比較して高率であった。そのうち 50 件 (94%) は *C.coli* であった。過去の報告では豚と体から *C.coli* が 46.6% 検出されており<sup>5)</sup>同様の結果となった。

薬剤感受性試験については、TC は耐性率 81% と最も高率であった。TC を含むテトラサイクリン系薬剤は比較的安価で抗菌スペクトルを広く有することから、治療薬、感染症予防として利用されてきた。そのため、高率で耐性菌が検出されたと考えられる。EM は耐性率 49% であった。EM はヒトのカンピロバクター治療の第一選択薬であり、*C.coli* による胃腸炎の治療には効果がないことが危惧される。TC、EM とともに家畜における薬剤耐性に関する全国的な実態調査結果<sup>6)</sup>とほぼ同様の結果を示した。

NA、NFLX 耐性率は今回それぞれ 66%、70% であった。宮城県では H21 年に *C.coli* の薬剤感受性試験が行われ、NA 耐性株が 35%、NFLX 耐性株が 32% であり<sup>7)</sup>、5 年間で耐性率が上昇したことが確認された (図 5)。また近年ニューキノロン系の耐性株の増加が問題となっており、今回の結果はそれを裏づける結果となった。さらに耐性薬剤数をみると、検査した 95% が薬剤耐性を獲得しており、そのうち 67% が 3 剤以上の耐性を獲得している。これは他の腸内細菌に比べカンピロバクターが薬剤耐性を獲得しやすいためと思われる。

畜産現場における抗菌性物質の使用法の遵守や医療現場の胃腸炎治療薬の動向を注視することの必要性を感じた。今後もカンピロバクター薬剤耐性の動向を継続して調査することが重要であると考えられる。

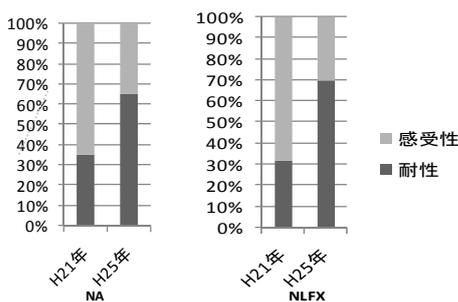


図 5 耐性率の変化

PFGE における遺伝子解析では、同一農場から検出

された *C.coli* であっても同一パターンはほとんど示さず、複数の遺伝子型が存在することがわかった。一部ではあるが、異なった農場 (X,T) や (M,E,X) から同じ遺伝子パターンをもった *C.coli* が検出されたのは興味深かった。今後特定農場の精査をすることにより農場との因果関係が明らかになるとと思われる。

カンピロバクター食中毒の原因として特に多いのは *C.jejuni* であり鶏肉であるが、今回の調査で豚においてもカンピロバクターが高率に分布していることが確認されたことから、鶏肉と同様に農場汚染の低減や処理場での衛生管理の徹底など特に注意が必要である。

H24 年 7 月から食品衛生法に基づいて生食用牛レバーの販売提供が禁止され<sup>8)</sup>、その代替として豚生レバーの摂食増加が懸念されている。件数は少ないが実際に豚生レバーによる食中毒も起きていることから、生食しないよう注意喚起をすると共に、加熱調理の徹底、手洗いの励行やまな板や調理器具を清潔に保つなど調理時の衛生管理が食中毒防止には重要である。今後も汚染調査等を通じて食中毒防止に貢献していきたいと考えている。

## 参考文献

- 厚生労働省 HP (食中毒統計資料)  
<http://www.mhlw.go.jp/topics/syokuchu/04.html>
- 宮城県 HP (食中毒統計資料)  
<http://www.pref.miyagi.jp/soshiki/shoku-k/sokuhou.html>
- 渡邊節, 川野みち, 小林妙子, 山田わか, 齋藤紀行, 川向和雄: 宮城県保健環境センター年報, 23, 98-101 (2005)
- 八尋俊輔, 宮坂次郎, 中島隆一: カンピロバクターの分子疫学解析の検討: 熊本県保健環境科学研究所報, 36, 40-42 (2006)
- 坂崎利一他: “食水系感染症と細菌性食中毒”138, (2000) (中央法規)
- 農林水産省 動物医薬品検査所: 家畜由来細菌の抗菌性物質感受性実態調査結果
- 高橋恵美, 佐々木美江, 有田富和, 加藤浩之, 小林妙子, 畠山敬, 菅原優子, 谷津壽郎, 御代田恭子: 宮城県保健環境センター年報, 27, 44-47 (2009)
- 厚生労働省医薬食品局食品安全部長通知“食品、添加物等の規格基準の一部を改正する件について”平成 24 年 6 月 25 日, 食安監発 0625 第 1 号 (2013)

# 宮城県における海水及び海泥からの *Vibrio vulnificus* 検出状況

## Isolation of *Vibrio vulnificus* from Sea Water and Sea mud in Miyagi

小林妙子 松島桂子 中村久子 宮崎麻由\*1  
中居真代\*2 渡邊 節 佐藤俊郎\*3

Taeko KOBAYASHI, Keiko MATUSHIMA, Hisako NAKAMURA, Mayu MIYAZAKI  
Masayo NAKAI, Setsu WATANABE, Toshiro SATO

キーワード：ビブリオ・バルニフィカス；海水；海泥；カキ

Key words: *Vibrio vulnificus*; sea water; sea mud; oyster

### 1 はじめに

*Vibrio vulnificus* (以下 Vv) は腸炎ビブリオと類似した細菌で、発育に食塩を要求する病原性ビブリオの一種である。主に魚介類を介してヒトへ感染し、特に肝疾患や基礎疾患を持つヒトに敗血症をおこし死亡に至ることから、人食いバクテリアとも呼ばれている<sup>1)</sup>。平成13年度から宮城県名取市閑上地区の名取川河口の汽水域に調査定点（以下定点）を設け、海水及び海泥における Vv の生息状況を調査してきた。これまでの結果から、Vv は宮城県内の汽水域にも生息していることを確認し報告している<sup>2,3)</sup>。

平成23年3月の東日本大震災で一時的に中止していたが Vv 生息状況調査を6月に再開した。今回は現在の Vv 汚染状況を把握するため、定点における海水及び海泥の調査を行った。さらに、平成25年度は松島湾内養殖カキの Vv 汚染状況についても調査を行った。

### 2 材料及び方法

#### 2.1 調査期間

定点での海水及び海泥は、平成23年6月から平成25年12月まで、松島湾内の養殖カキは、平成25年4月から平成25年3月まで（8月を除く）毎月1回実施した。

#### 2.2 調査定点及び材料

定点における海水及び海泥を検体とした。定点採取時には海水温を測定した。

養殖カキは、松島湾内の A, B, C の3地点（A：高城川河口から3.5km, B：河口から3.0km, C：河口から2.5km）を定点とし実施した。

#### 2.3 使用培地

Vv の増菌用と Vv 菌数（以下 MPN 値）算定用にアルカリペプトン水（MERCK：以下 APW），分離用に mCPC 培地（自家製）を使用した。

#### 2.4 海水及び海泥からの Vv 検出

##### 2.4.1 海水

倍濃度アルカリペプトン水 100ml に海水 100ml を接種し、これを原液として 10 倍、100 倍、1,000 倍及び 10,000 倍に希釈し、各希釈濃度を APW 各 3 本（以下 MPN 管）に接種し 37℃ 一夜培養した。各 MPN 管から PCR 法により Vv 特異溶血毒素遺伝子（Vvh 遺伝子）を確認し、陽性管数から PCR-MPN 値を算出した。また、各 MPN 管から 1 白金耳を mCPC 培地に塗抹し、40℃ 一夜培養を行った。

##### 2.4.2 海泥

海泥 20g を APW180ml に加え 10 倍希釈液とした。さらに 100 倍、1,000 倍及び 10,000 倍に希釈し、各希釈濃度を MPN 管に接種し 37℃ 一夜培養した。MPN 管からの Vv 検出は海水と同様の方法で行った。

#### 3.5 養殖カキからの Vv 検出

各地点から採取したカキについて、むき身 15~20g をストマッカー袋に秤量し、10 倍量の APW を加え 10 倍液とした。これをさらに 100 倍、1,000 倍及び 10,000 倍に希釈し、各希釈濃度を MPN 管に接種し 37℃ 一夜培養した。MPN 管からの Vv 検出は海水と同様の方法で行った。

#### 2.6 分離株の同定

Vv の同定は、mCPC で黄色の扁平なコロニーを鈎菌し、菌株の生化学性状試験及び PCR 法による Vvh 遺伝子を確認して Vv と同定した。生化学性状試験は、1%NaCl 加 TSI, 1%NaCl 加 LIM, 1%NaCl 加 VP の性状、耐塩性試験、糖分解試験（サリシン分解性）について調べた。

### 3 結果

#### 3.1 海水及び海泥の Vv 生息状況

定点における海水及び海泥の Vv 検出状況と定点採水時の海水温について図1のグラフに示した。

海水温は6月頃から20℃を超え海水温が上昇し、11月には10℃以下となった。特に平成23年度は高温時期

\*1 現 石巻保健所 \*2 現 塩釜保健所岩沼支所

\*3 現 食肉衛生検査所

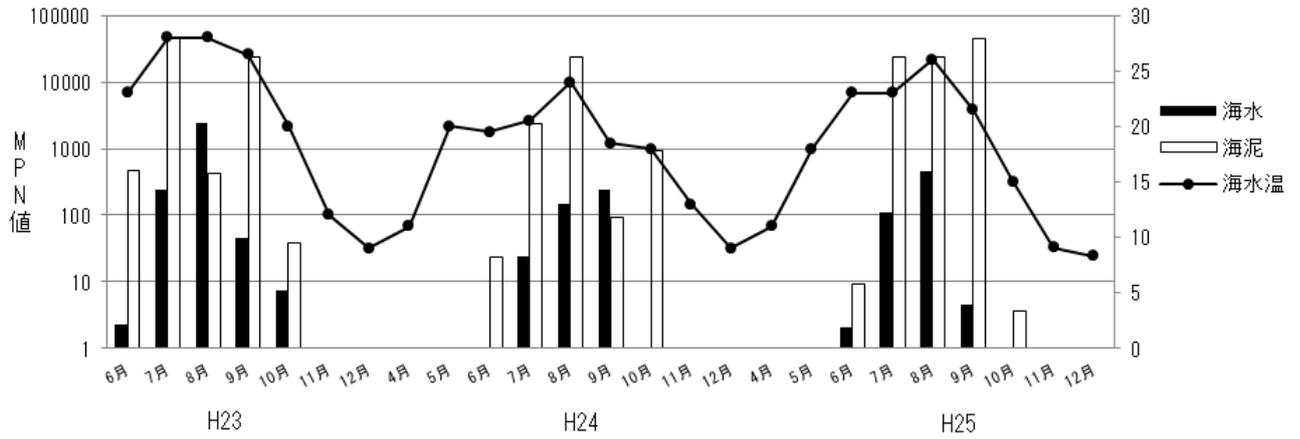


図1 関上海水及び海泥からのVv検出状況

が長く続いた。海水からは6月から10月までVvが検出され、平成23年8月は2,400/100mlと高値を示した。海泥も同様に6月から10月までVvが検出され、毎年7月から9月の夏期はMPN値が高く推移した。

3.2 養殖カキからのVv検出状況

カキのVv汚染について、平成25年4月から平成26年3月までの月別Vv検出状況を図2に示した。8月は悪天候により実施できなかったが、Vvは7月から10月まで検出された。VvのMPN値が最も高かったのは10月のB地点で、0.92/100gであった。VvのMPN値はどの地点においても低い値を示した。また7月のC地点ではVvの菌分離には至らなかった。

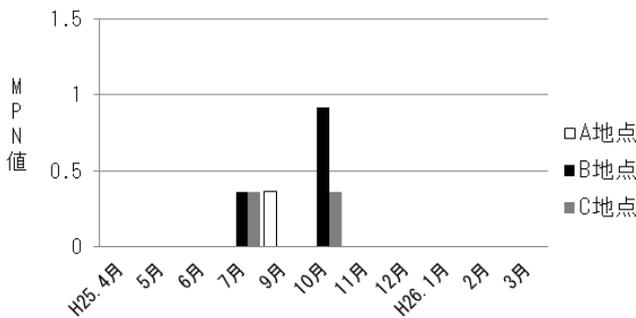


図2 松島湾カキからのVv検出状況

4 考察

海水及び海泥の定点調査において、Vvは海水温が20°Cを超える6月頃から増え始め、8月にMPN値が最高となり、おおむね10°C以下になる11月からは検出されなくなった。調査で検出されたVvは、いずれ

も海水より海泥の方がMPN値が高かった。特に海水温の高い7月から9月においては、海泥でMPN値が10<sup>4</sup>/100gを超える高値のVvが検出された。これらの結果から、Vvは他のビブリオ属と同様に夏場に菌数が増える傾向があり、Vvの増殖には海水温が大きく影響していることが明らかであることが確認された。

またVv菌数の算出は、APW増菌後のPCR法でVv陽性となったMPN管数によりMPN値を算出したが、実際に菌を分離のできないものもあった。

これまで宮城県内ではVv感染の報告はないが、全国では北九州地域や瀬戸内海沿岸に発生がみられ、年間200例の報告がありその50~70%が死亡している。生カキや魚介類の生食が原因と思われるVv感染症も発生しており、他のビブリオ属菌と同様に食中毒の起原因菌となることから、食品媒介の防止対策に役立てるためにも継続した調査が必要である。

参考文献

- 1) 平成15年度厚生労働科学研究費補助金 新興・興感染症研究事業報告書：ビブリオ・バルニフィカスによる重篤な経口感染症に関する研究 (2004)
- 2) 齋藤紀行, 山田わか, 渡邊 節, 小林妙子, 川野みち, 田村広子, 三品道子, 菅原直子, 佐藤由美, 畠山 敬, 谷津壽郎, 秋山和夫, 川向和雄: 宮城県保健環境センター年報, 20, 102 (2005)
- 3) 田中真弓, 川本 歩: 鳥取県の海水及び魚からのビブリオ・バルニフィカスの検出状況 鳥取県衛生環境研究所報, 44, 33 (2004)

# ヒスタミンの迅速な分析法の検討

## Examination of the quick analysis method of the Histamine

瀧澤 裕 庄司 美加 千葉 美子 大倉 靖

Yu TAKIZAWA, Mika SHOJI, Yoshiko CHIBA, Yasushi OKURA

液体クロマトグラフタンデム型四重極質量分析計（以下「LC-MS/MS」とする。）を用いた、簡便かつ迅速なヒスタミン等不揮発性アミン類の新たな分析法の検討を行った。添加回収試験では、チラミンを除く不揮発性アミン類において、絶対検量線法及び内部標準法ともに、「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「金属ガイドライン」とする。）の添加濃度 $10 < \sim \leq 100 \text{mg/kg}$ の目標値（真度：90～110%，併行精度：10%未満）を満たす良好な結果が得られた。また、食品衛生検査指針理化学編（2005）記載の高速液体クロマトグラフ法（B）（以下「参考法」とする。）との比較においても、相関係数が0.98以上であり、かつ回帰直線の回帰係数が1に近い結果が得られた。以上より、LC-MS/MSを用いた新たな分析法は、ヒスタミンを原因とする食中毒などの有症苦情が発生した際の有用な方法であることが示唆された。

キーワード：不揮発性アミン；ヒスタミン；食中毒；LC-MS/MS

Key words：Nonvolatile amine；Histamine；Food poisoning；LC-MS/MS

### 1 はじめに

ヒスタミンは、食品中に含まれる遊離ヒスチジンが、*Morganella morganii* 等のヒスタミン産生菌により脱炭酸されることで生成する不揮発性アミンの一つである。ヒスタミンによる食中毒は、一般的に食品中のヒスタミン濃度が  $100 \text{mg}/100 \text{g}$  程度含有する食品を摂食することで発症すると言われており、食後 30～60 分程で顔面紅潮、頭痛、蕁麻疹等の一過性のアレルギー様症状が現れる<sup>1)</sup>。ヒスタミン産生菌は、ヒスタミン以外にもカダベリン、チラミン、プトレシンなどの不揮発性アミン類を産生することが知られており、これらの不揮発性アミン類はヒスタミンの作用を増強すると言われている<sup>2,3)</sup>。

ヒスタミンを原因とする食中毒事件は、全国で毎年十数件発生しており、宮城県においてもほぼ毎年のように発生している。食中毒などの有症苦情が発生した場合には、原因食品の特定並びに原因物質の究明が急がれるが、当センターで採用してきた参考法<sup>4)</sup>では、前処理操作が煩雑で時間を要するため、迅速さに欠けることが課題となっていた。この度、LC-MS/MSを用いた分析方法を検討した結果、簡便かつ迅速なヒスタミン等の不揮発性アミン類の新たな分析法について良好な結果が得られたので報告する。

### 2 実験方法

#### 2.1 試料

添加回収試験用試料：市販のマグロぶつ切りを細切・均質化して試料とした。

精度確認用模擬試料：ヒスタミン産生菌（*Morganella morganii*）により意図的に汚染させ、不揮発性アミン類を適量産生させたサバ、マグロさく、サバみりん干し及びさんまのつみれを各 3 検体、それ

ぞれ細切・均質化して試料とした。なお、当該模擬試料の調製は、当センター微生物部に依頼した。

#### 2.2 試薬

標準品：ヒスタミン二塩酸塩、カダベリン二塩酸塩、プトレシン二塩酸塩、チラミン塩酸塩は和光純薬工業（株）製の食品分析用のものを用いた。

内部標準物質：ヒスタミン- $\alpha, \alpha, \beta, \beta$ - $d_4$  二塩酸塩は関東化学（株）製のものを用いた。その他の試薬は和光純薬工業（株）製および関東化学（株）製のものを用いた。また、膜ろ過フィルターは、13HP045CN（ $0.45 \mu\text{m}$ ）アドバンテック東洋（株）製のものを用いた。

混合標準原液：ヒスタミン二塩酸塩（ $85.85 \text{mg}$ ）、カダベリン二塩酸塩（ $87.57 \text{mg}$ ）、プトレシン二塩酸塩（ $92.56 \text{mg}$ ）、チラミン塩酸塩（ $64.62 \text{mg}$ ）を正確に量り採り、 $0.1 \text{mol/L}$  塩酸で溶解させメスフラスコで  $25 \text{mL}$  に定容したものを混合標準原液（ $1 \text{mg/mL}$ ）とした。

内部標準溶液：ヒスタミン- $\alpha, \alpha, \beta, \beta$ - $d_4$  二塩酸塩を  $0.1 \text{mol/L}$  塩酸で溶解させ  $500 \mu\text{g/mL}$  とした。

移動相 A：LC/MS 用ギ酸（ $1 \text{mL}$ ）を精製水に溶解させ、全量で  $1,000 \text{mL}$  とした。

0.1%ギ酸アセトニトリル：LC/MS 用ギ酸（ $1 \text{mL}$ ）を残留農薬試験用アセトニトリルに溶解させ、全量で  $1,000 \text{mL}$  とした。

### 3 装置及び測定条件

#### 3.1 新規分析法

表1にLC条件、表2にMS/MS条件、表3にMRM条件を示した。

#### 3.2 参考法

LCはAgilent Technologies1200 Infinity seriesを

表1 LC条件

LC部	Agilent Technologies 1200 Infinity series							
カラム	SHISEIDO CAPCELL CORE PC (2.1mmφ×150mm), 2.7 μm							
分離モード	HILICモード							
移動相	A相 0.1%ギ酸		B相 0.1%ギ酸アセトニトリル					
溶出方法	グラジエント法							
		min	0	1	3	10	10.01	25
	A	%	10	10	90	90	10	10
	B	%	90	90	10	10	90	90
流量	0.2mL/min							
カラム温度	40℃		注入量	10 μL				

表2 MS/MS条件

MS/MS部	AB Sciex QTRAP4500 LC-MS/MS system		
イオン化法	ESI (Posi)	測定モード	MRM
イonspray電圧 (IS)	5,000V	ターボガス温度 (TEM)	700℃
カーガスを (CUR)	10psi	コアガスを (CAD)	8psi
コアガスを (GS1)	70psi	ターボガスを (GS2)	30psi

表3 MRM条件

	分子量 (M.W.)	Q1 (m/z)	Q3 (m/z)	DP (V)	CE (V)	CXP (V)
ヒスタミン (定量)	111.1	112.1	95.1	31	25	8
ヒスタミン (定性)	111.1	112.1	68	31	27	6
内部標準物質	115.1	116	99	31	19	8
チラミン	137.2	138.1	121	16	13	10
カダベリン	102.2	103.1	86.1	26	19	8
ブトレシン	88.2	89.2	71.9	41	19	6

使用した。HPLC 用カラムはナカライテスク製 Cosmosil 5C18・AR (内径 4.6mm, 長さ 250mm, 粒子径 5μm) を使用した。移動相はアセトニトリル/水 (65 : 35) を使用し, 注入量は 10μL, カラム温度は 40℃, 流量は 1mL/min, 測定波長は EX : 325nm, EM : 525nm とした。

## 4 試験溶液の調製

### 4.1 新規分析法

試料 5.0g に精製水 25mL を加え, 均質化するまでホモジナイズを行い, 15mL の精製水でシャフトを洗浄した。均質化した試料溶液とシャフトの洗浄液を合わせ精製水で 50mL に定容し, 試料溶液をろ紙 (5A) でろ過した。ろ液を 1mL 分取し, 0.1%ギ酸アセトニトリル 3mL 製水で 50mL に定容し, 試料溶液をろ紙 (5A) でろ過した。ろ液を 1mL 分取し, 0.1%ギ酸アセトニトリル 3mL を加え, 2 分間ボルテックスミキサーで混和した後, 毎分 3,000 回転で 5 分間遠心分離を行った。上清を 100μL 分取し, 0.1%ギ酸/0.1%ギ酸アセトニトリル (1 : 1) 溶液 900μL で希釈した後, 希釈した試料から 100μL 分取し, 内部標準物質含有 0.1%ギ酸/0.1%ギ酸アセトニトリル (1 : 1) 溶液 900μL で希釈したものを試験溶液とした (図1左)。

### 4.2 参考法

試料 5.0g に 20%トリクロロ酢酸 5mL 及び精製水 75mL を加え, 毎分 10,000 回転で 10 分間ホモジナイズにより均質化し, 水で 100mL に定容した。定容後 30 分間静置し, ろ紙 (5A) でろ過したろ液を 5mL 分

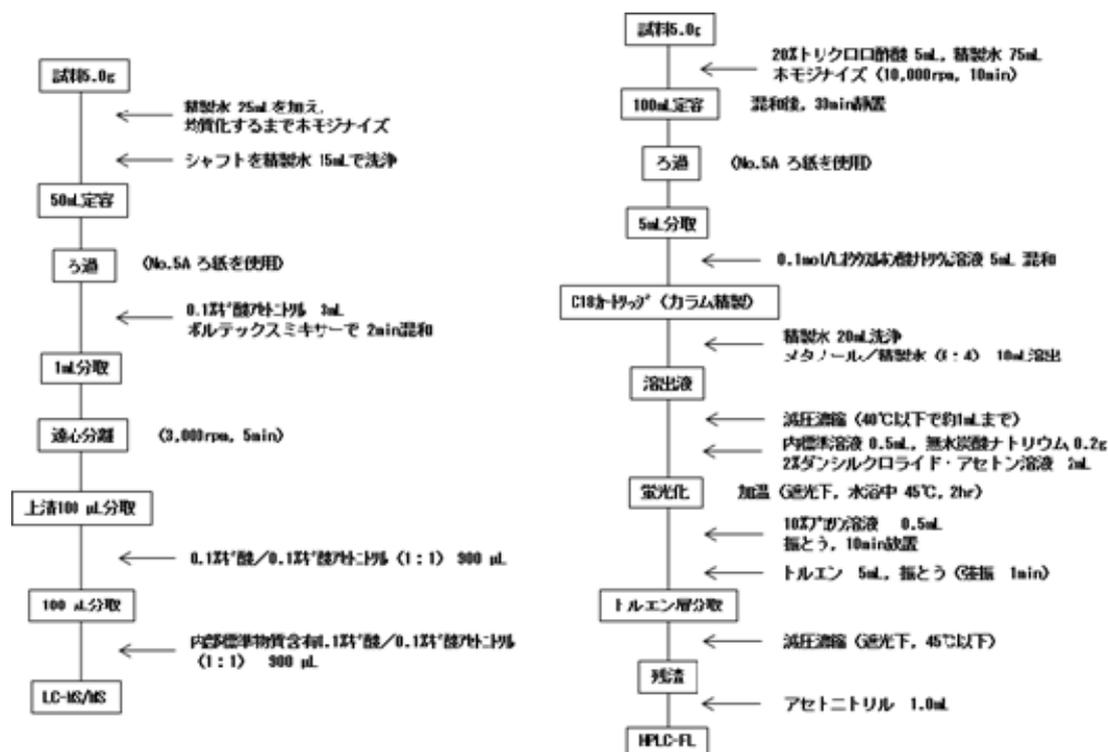


図1 分析フロー (左: 新規分析法, 右: 参考法)

取し、0.1mol/L オクタンスルホン酸ナトリウム 5mL を加え混合した。次にメタノール 10mL、水 5mL 及び 0.05M オクタンスルホン酸ナトリウム 5mL でコンディショニングした Sep-Pak Vac C18 カートリッジ (1,000mg) (以下「固相カラム」とする。) に試料溶液を負荷し、20mL の精製水で洗浄した。固相カラムに保持した試料をメタノール/水 (6 : 4) 10mL で溶出し、約 1mL になるまで減圧濃縮した。濃縮した試料に 10µg/mL の 1,8 - ジアミンオクタノン 0.5mL、無水炭酸ナトリウム 0.2g 及び 2%ダンシルクロライド・アセトン溶液 2mL を加え、遮光条件下 45℃ の水浴中で 2 時間加熱した。誘導体化した試料に 10%プロリン溶液 0.5mL を加えて振とうし、10 分間放置した後、トルエン 5mL を加え 1 分間強振し、毎分 2,000 回転で 5 分間遠心分離した。試料溶液のトルエン層を全量回収し減圧濃縮により乾固させ、アセトニトリル 1.0mL で溶解し、0.45µm のフィルターでろ過したものを試験溶液とした (図 1 右)。

## 5 結果及び考察

### 5.1 抽出・除タンパク法の検討

参考法に準じて除タンパクを行い、得られた試料溶液についてマトリックス効果の影響を検討したところ、除タンパクに用いるトリクロロ酢酸及び魚由来の油脂成分の作用によるイオン化促進効果の影響が見られた。そのため、新規分析法ではイオン化促進効果の影響を受けない抽出・除タンパク法として固相カラム及び溶媒抽出法によるクリーンアップを検討した。検討に用いた固相カラムではヒスタミンの回収率にバラツキが見られたため、溶媒抽出法で検討したところ、抽出に水、除タンパクに 0.1%ギ酸アセトニトリルを用いることで、絶対検量線及び内部標準法においてイオン化促進効果の影響を受けない良好な結果が得られた。

### 5.2 添加回収試験

試料に調整した混合標準液を 50µg/g となるよう内部標準物質と共に添加し、30 分放置後、図 1 左のフローに従い分析を行った。ただし、試料溶液の最終希釈は、内部標準物質を含まない溶液で行った。絶対検量線及び内部標準法により算出したそれぞれの真度及び精度に大きな差異はなく、ともにチラミンを除く 3 種の不揮発

表 4 添加回収試験の結果 (n=3)

	絶対検量線		内部標準法	
	真度 (%)	精度 (%)	真度 (%)	精度 (%)
ヒスタミン	92	2.9	93	5.5
カダベリン	90	3.4	95	6.1
プトレシン	91	4.0	100	6.7
チラミン	65	5.0	64	4.5
ガイドライン目標値 (10<~≦100mg/kg)	90~110	<10	90~110	<10

性アミンにおいて「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」<sup>5)</sup> (以下「金属ガイドライン」とする。) における添加濃度 10<~≦100mg/kg の目標値、真度 90~110%及び併行精度 10%未満を満たす結果が得られた (表 4)。チラミンの真度が 70%を下回ったことについては、Log Pow が他の不揮発性アミンに比べて高いことに起因するものと推測される。そのため新規分析法においては、チラミンの分析値は参考値若しくはスクリーニング検査としてモニタリングする程度に止める必要があると考えられた。

なお、本結果から、以後内部標準物質は回収率の補正ではなく、マトリックス効果の補正を目的として添加することとした。

### 5.3 参考法との比較

新規分析法の精度を確認するため、精度確認用模擬試料について参考法及びキッコーマン食品(株)製のチェックカラーヒスタミン (以下「簡易キット法」とする。) による分析を新規分析法と併行して実施した。参考法により得られたヒスタミン濃度と新規分析法 (絶対検量線、内部標準法) から得られたヒスタミン濃度を比較した結果、共に相関係数が 0.98 以上であり、強い正の相関が認められ、また、回帰直線の回帰係数が 1 に近いことから、分析精度に問題がないことが確認された (図 2)。なお、簡易キット法で得られた結果においても良好な結果が得られている。

このことから、新規分析法は、参考法と同等の分析法であり、実試料に十分適用可能であると考えられる。

## 6 まとめ

新規分析法では、不揮発性アミン類の抽出に水を用いることで、定容・ろ過までの前処理時間を大幅に短縮することができた。また、除タンパク処理に 0.1%ギ酸アセトニトリルを用いることで、トリクロロ酢酸で見られたイオン化促進作用、保持時間の変動、ピーク形状の変化

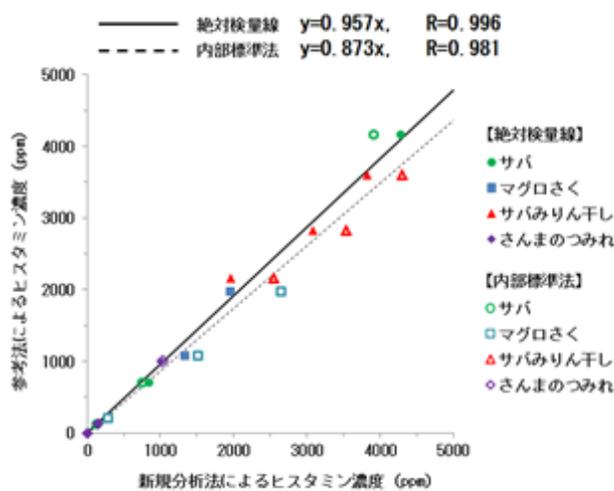


図 2 ヒスタミン濃度相関図 (新規分析法 n=2, 参考法 n=3)

などの現象が改善され、従来よりも効率的な除タンパク添加回収試験における絶対検量線の結果は、新規分析法は金属ガイドラインの真度、併行精度を満たしており、処理が可能となった。さらに、新規分析法は、LC-MS/MS を用いているため、試料の精製・誘導体化が不要であり、希釈のみでマトリックス効果の軽減が可能である。なお、内部標準物質による補正の必要性はないと考えられるが、未知の検体によるマトリックス効果にも対応するため、敢えて内部標準物質を含む溶液で試験溶液を最終希釈することとした。

以上より、精製及び誘導体化を要さず、前処理を含め数時間で分析ができる新規分析法は、ヒスタミン等の不揮発性アミン類を精度よく、迅速に分析する手段として十分な性能を有し、加工食品を含め幅広く応用ができるものと思われる。

## 参考文献

- 1) 吉田 達雄, 濱田 寛尚, 吉元 秀和, 飛野 敏明, 村川 弘: 熊本県保健環境科学研究所報, 40, 20, (2010)
- 2) 観 公子, 牛山 弘文, 新藤 哲也, 斉藤 和夫: 食品衛生学雑誌, 46(3), 127, (2005)
- 3) 竹内 浩, 一色 博, 澤田 陽子, 林 克弘, 前田 千恵, 原有 紀, 竹川 雄太, 村田 将, 志村 恭子: 三重県保健: 環境研究所年報, 14, (57), 41, (2012)
- 4) 社団法人 日本食品衛生協会: 食品衛生検査指針理化学編, 621, (2005)
- 5) 食品中の金属試験法に関する妥当性評価ガイドラインについて, 食安発第 0926003 号, 平成 20 年 9 月 26 日

# STQ 法における抽出方法の検討—LC 測定対象農薬—

## Examination of the extraction method in the STQ method LC measurement subject pesticide

瀧澤 裕 大内 亜沙子 千葉 美子 高橋 美保  
Yu TAKIZAWA, Asako OUCHI, Yoshiko CHIBA, Miho TAKAHASHI

当部では、これまで独自法により残留農薬の検査を行っていたが、器具洗浄や前処理に係る労力、コスト等が課題となっていた。そこで、アイスティサイエンス（株）が開発した、QuEChERS 法と固相カートリッジ法を組み合わせた STQ 法（Solid Phase Extraction Technique with QuEChERS）を新たに導入し、さといもを対象に予備実験を兼ねた妥当性評価を行った。予備試験では、アイスティサイエンス（株）が提案する STQ 法に定容操作を加えて検査を実施したが、「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の一部改正について」（以下「妥当性評価ガイドライン」とする。）に示されている目標値を満たす農薬数が極端に少なくなる結果となった。そのため、妥当性評価では、抽出操作時の抽出回数及び定容量を変更したところ、妥当性評価ガイドラインの目標値を満たす良好な結果が得られた。

キーワード：残留農薬；QuEChERS 法；STQ 法；LC-MS/MS

Key words：Pesticide residue；QuEChERS method；STQ method；LC-MS/MS

### 1 はじめに

宮城県では、平成 18 年 5 月に施行されたポジティブリスト制度に対応すべく、独自に開発した一斉分析法を用いて、約 300 項目の残留農薬検査を実施してきたが、平成 19 年 11 月には、「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」が通知され、各試験機関が実施する試験法の妥当性を評価する手順が示された。さらに、平成 22 年 12 月には、妥当性評価ガイドライン<sup>1)</sup>において、平成 25 年 12 月 13 日までに評価を実施することが明文化されているが、妥当性評価は検査を実施する各種の農産物それぞれに対して実施する必要があるため、当所で採用している独自法では、迅速・簡便さ、そしてコストの面が課題となってしまう。

近年、Quick（迅速）、Easy（簡便）、Cheap（安価）、Effective（効率）、Rugged（堅牢）、かつ Safe（安全）な方法である QuEChERS 法が、欧米で汎用されており注目を集めている。そのオリジナル法は、ポリプロピレン製の遠沈管内で農薬の抽出、塩析、脱水を行い、精製には分散固相抽出を行う迅速かつ簡便な方法であるため、各企業から QuEChERS 法のキットが販売されている。しかし、この方法は抽出後の定容操作を要しない分、予め添加した内部標準物質で回収率を補正しなければならぬため、内部標準物質の選択やコストの面が課題となってしまう。また、食品によっては精製不足となり、測定時のマトリクス効果の影響を受けやすくなるなどの課題も挙げられている。

一方、アイスティサイエンス（株）が提案する STQ 法は、QuEChERS 法による抽出操作に、精製効果を高めるための固相カートリッジ法を組み合わせた方法であり、ロータリーエバポレーター等による減圧濃縮操作が

不要な残留農薬一斉分析法である。しかし、GC-MS では試料の大量注入装置が、LC ではタンデム型四重極質量分析計を用いた MRM 分析が必要となる。

この度、当所では、高感度 LC-MS/MS を配備したのを機に、STQ 法を導入する目的で、導入の課題になると考えられる抽出操作後の定容操作について、抽出回数と定容量に着目し、妥当性評価の予備実験を兼ねた検討を行ったので報告する。

### 2 実験方法

#### 2.1 試料

無農薬のさといもを細切・均一化して試料とした。

#### 2.2 試薬

農薬標準品として、PL2005 農薬 LC/MS Mix4, 5, 6, 7, 8, 9, 10 は林純薬工業（株）製、アルジカルブスルホキシド、メチオカルブスルホキシド、メチオカルブスルホンは、Dr.Ehrensorfer GmbH 製のものを使用した。その他の試薬は HPLC 用、残留農薬試験用及び試薬特級に準じたものを使用した。

混合標準原液：アルジカルブスルホキシド、メチオカルブスルホキシド、メチオカルブスルホンをメタノールで溶解させメスフラスコで 50mL に定容し、更に 1mL ずつ等量混合したものを 100mL に定容し混合標準原液（10µg/mL）とした。

混合標準液：PL2005 農薬 LC/MS Mix4, 5, 6, 7, 8, 9, 10 をメタノール/水（4/1）で希釈し、混合標準原液と等量混合した混合標準液（1µg/mL）とした。

移動相 A：酢酸アンモニウム（7.7g）を精製水（100mL）に溶解し、そこから 1mL 分取したものを精製水で全量 1,000mL とした。

移動相 B: 酢酸アンモニウム (7.7g) を精製水 (100mL) に溶解し、そこから 1mL 分取したものをメタノールで全量 1,000mL とした。

### 2.3 固相抽出ミニカートリッジ

Smart-SPE C18-30, Smart-SPE PSA-30 は、試料を負荷する直前にアセトン 2mL 及びアセトニトリル 2mL でコンディショニングし、Smart-SPE C18-50 は、試料を負荷する直前にアセトン 2mL 及びメタノール/水 (4/1) 2mL でコンディショニングした。

なお、全ての固相ミニカートリッジは、アイスティサイエンス (株) 製のものを使用した。

## 3 装置および測定条件

### 3.1 装置

LC-MS/MS の LC 部は Agilent Technologies 社製 1200 Infinity series, MS/MS 部は AB Sciex 社製 QTRAP4500 を用いた。ホモジナイザーは、KINEMATICA 社製 POLYTRON PT-MR2100 を用いた。遠心分離機は、KOKUSAN 社製 H-40F を用いた。

#### 3.2.1 測定条件 (LC 条件)

カラム: CAPCELL PAK AQ (内径 2.0mm, 長さ 150mm, 粒子径 3 $\mu$ m, SHISEIDO 社製), カラム温度: 40°C, 注入量: 5 $\mu$ L, 移動相 A: 5mmol/L 酢酸アンモニウム溶液, 移動相 B: 5mmol/L 酢酸アンモニウムメタノール溶液, 流速: 0.2 $\mu$ L/min, グラジエント条件: 0min

(A : B=80 : 20)  $\rightarrow$  1min (A : B=60 : 40)  $\rightarrow$  3.5min (A : B=60 : 40)  $\rightarrow$  6min (A : B=50 : 50)  $\rightarrow$  8min (A : B=45 : 55)  $\rightarrow$  17.5min (A : B=5 : 95)  $\rightarrow$  30min (A : B=5 : 95)  $\rightarrow$  30.01min (A : B=80 : 20)  $\rightarrow$  45min (A : B=80 : 20)

#### 3.2.2 測定条件 (MS/MS 条件)

イオン化法: ESI-positive または negative, 測定モード: MRM, イオンスプレイ電圧:  $\pm$ 4500V, ターボガス温度 (TEM): 300°C, カーテングス (CUR): 30psi, コリジョンガス (CAD): 4psi, ネブライザーガス (GS1): 50psi, ターボガス (GS2): 80psi

## 4 試験溶液の調製

### 4.1.1 予備試験に用いた STQ 法

試料 10.0g に精製水 2mL (加える精製水の量は検体の水分含有量による), アセトニトリル 10mL を加え, 12,000rpm で 1 分間ホモジナイズした。ホモジナイズした試料溶液に塩化ナトリウム 1g, クエン酸 3 ナトリウム 2 水和物 1g, クエン酸水素 2 ナトリウム 1.5 水和物 0.5g, 無水硫酸マグネシウム 4g を加え, ただちに 1 分間激しく振とうし, 攪拌した。その後, 試料溶液を 3,000rpm, 5 分間で遠心分離し, 上層のアセトニトリル層を全て回収して, アセトニトリルで 10mL に定容した。次に, 正確に 1mL 分取した試料溶液を Smart-SPE C18-30, Smart-SPE PSA-30 で精製し, 0.4%ギ酸メタノール

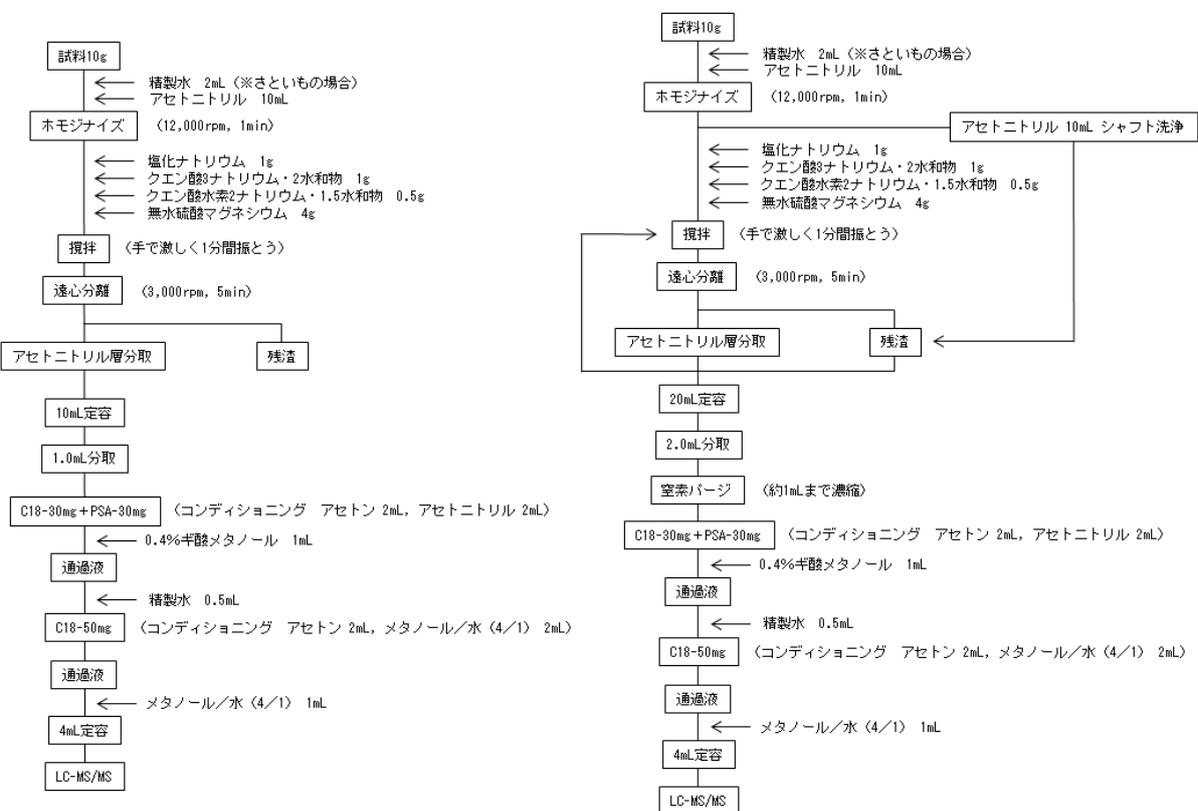


図 1 STQ 法 (左: 予備試験時, 右: 妥当性評価時)

1mLで酸性農薬を溶出した。その流出液に精製水 0.5mL を加え攪拌した後、流出液の全量を Smart-SPE C18-50 で精製し、メタノール/水 (4 /1) 1mL で洗浄した。最後に、この洗浄液を精製水で 4mL に定容したものを試験溶液とした (図 1 左)。

4.1.2 妥当性評価に用いた STQ 法

試料 10.0g に精製水 2mL (加える精製水の量は検体の水分含有量による)、アセトニトリル 10mL を加え、12,000rpm で 1 分間ホモジナイズした。ホモジナイズした試料溶液に、塩化ナトリウム 1g、クエン酸 3 ナトリウム 2 水和物 1g、クエン酸水素 2 ナトリウム 1.5 水和物 0.5g、無水硫酸マグネシウム 4g を加え、ただちに 1 分間激しく振とうし攪拌した。その後、試料溶液を 3,000rpm、5 分間で遠心分離し、上層 (アセトニトリル層) を全て回収した。さらに、残渣にシャフトの洗液 10mL を加え、1 分間激しく振とうし攪拌した後に、3,000rpm、5 分間で遠心分離させた試料の上層 (アセトニトリル層) を全て回収して、アセトニトリルで 20mL に定容した。次に、正確に 2mL 分取した試料溶液を窒素パージにより約 1mL まで濃縮し、以降の精製操作は予備試験と同様とした (図 1 右)。

4.2 検量線

混合標準液をメタノール/水 (4/1) で希釈し、1.25, 2.5, 3.13, 3.75ng/mL の検量線作成用標準溶液を調製した。これらの溶液 5μL を LC-MS/MS に注入し、各検量線作成用標準溶液に対して得られたピーク面積から、最小 2 乗法により一次回帰直線を作成し検量線とした。検量線は、寄与率が 0.95 以上のものを直線性があるものとし、必要に応じて重み付けを行った。

5 妥当性評価

無農薬のさといも 10.0g を試料として、分析者 1 名、2 併行、5 日間の枝分かれ試験を行った。添加濃度は、ポジティブリスト制度における一律基準値である 0.01ppm に設定した。試験結果の評価は、妥当性評価ガイドラインに従って行った。

なお、添加試料は、事前に選択性に問題がないことを確認したものを使用した。

6 結果

試料に、調製した 0.1ppm の混合標準液を 1mL 添加し、30 分放置後、図 1 に示す各フローに従い分析を行った。予備試験では、妥当性評価ガイドラインの真度の目標値 (添加濃度 0.001 < ~ ≤ 0.01ppm, 真度 70~120%) を満たす農薬数は、150 農薬中 50 農薬であったが、妥当性評価では、妥当性評価ガイドラインの真度の目標値を満たす農薬数は、150 農薬中 138 農薬に、大幅に増加し (図 2)、その大半に 5 ≤ ~ < 15% の真度の改善が見られた (図 3)。しかし、一方で、併行精度及び室内精度については、予備試験と妥当性評価の結果に大きな差

異は認められなかった (図 4,5)。

7 考察及びまとめ

この度の予備実験において多くの農薬が妥当性評価ガイドラインの真度の目標値を下回ったのは、添加した農

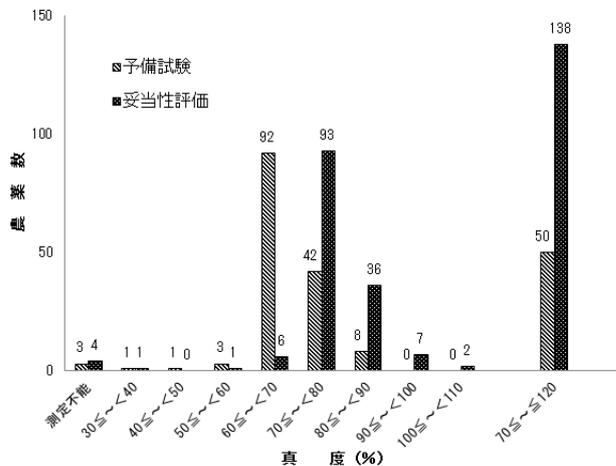


図2 真度の変化

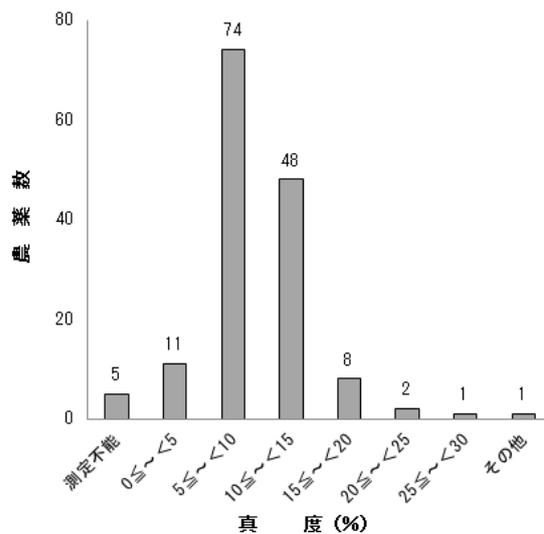


図3 真度の差

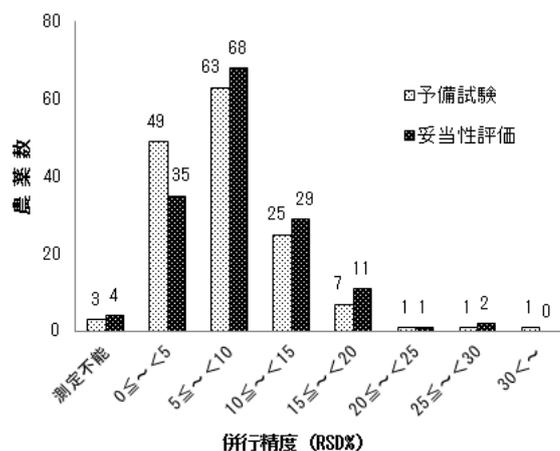


図4 併行精度の変化

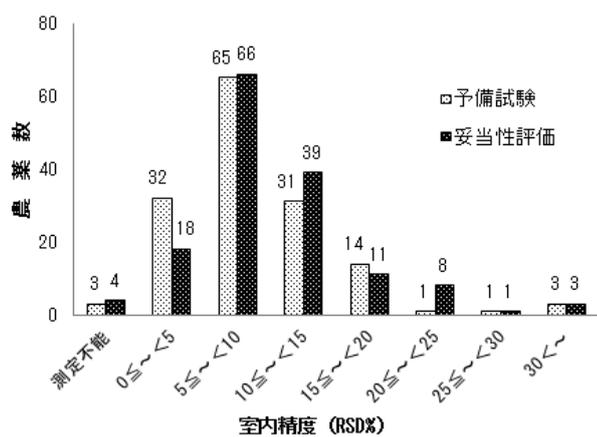


図5 室内精度の変化

菓が抽出溶媒であるアセトニトリルに完全に移行していなかったものと推察される。内部標準物質による真度の補正を行えば、妥当性評価ガイドラインの目標値を満た

す良好な結果が得られると思われるが、コストの面を踏まえると、当センターでは、2回の抽出操作を経て20mLに定容する定容操作を加えたSTQ法の方が適切である。

当センターにおいて、以前から採用していた独自法は、労力やコスト面等に課題が見られたが、新たに採用したSTQ法は、迅速、簡便かつ安価な検査を可能とした。しかし、この度の検査はさといものみの結果だが、従来のSTQ法に改良が必要であることが示唆されたことから、用いる試料によっては更なる検討が必要となると考えられる。

## 参考文献

- 1) 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の一部改正について、食安発 1224 第 1 号，平成 22 年 12 月 24 日

# 冷凍食品にマラチオンが混入された事案への対応について

## Inspection example of the Malathion in Frozen Food

大内 亜沙子 石幡 茜 瀧澤 裕 高橋 祐介 千葉 美子 大倉 靖  
Asako OUCHI, Akane ISHIHATA, Yu TAKIZAWA,  
Yusuke TAKAHASHI, Yoshiko CHIBA, Yasushi OKURA

キーワード：マラチオン；冷凍食品；GC-MS/MS

Key words：Malathion；Frozen Food；GC-MS/MS

### 1 はじめに

平成25年12月、冷凍食品を購入した消費者から臭気に関する苦情が寄せられ、その苦情品から有機リン系殺虫剤の一種であるマラチオンが検出された。この製品は、国内工場で製造・販売されていた商品であったことから、直ちに出荷停止及び自主回収の措置がとられたが、当該ロット製品は、同一工場で10月に製造されたものであり、既に全国各地で販売、喫食されていた。

この事件の通報を受け、当県でも保健所等に相談窓口を設置するなど対応に追われた。また、当部にも有症苦情として持ち込まれた喫食残品中マラチオンの分析が依頼された。検査対象となった加工食品（冷凍食品）は、多岐にわたっており、これらの分析経験がなかったことから、分析は「加工食品中に高濃度に含まれる農薬等の迅速検出法について」（平成25年3月26日付け厚生労働省医薬食品局食品安全部基準審査課事務連絡<sup>1)</sup>）に示されている「加工食品中に高濃度に含まれる農薬等の迅速検出法・3」をベースにして、操作の一部を変更した方法により実施することとした。

しかし、この迅速検出法は、健康被害の防止の観点から加工食品中に高濃度に含まれる農薬等を簡便かつ迅速に検出することを目的として開発されたものであるため、抽出効率や性能（真度、精度、選択性等）は確認されていない。

そこで、依頼検査を実施するにあたり、類似の冷凍食品を用いて試験法の性能評価を実施し、その結果をもとにマラチオンの検査を行ったので報告する。

### 2 性能評価

#### 2.1 評価対象品目

ラザニア（日清フーズ株式会社）、ミックスピッツァ（株式会社 明治）、えびグラタン（株式会社 明治）、ベーコンきのこクリームコロッケ（日本水産株式会社）の4品目（いずれも冷凍食品）を評価対象品目とした。

#### 2.2 方法

##### 2.2.1 装置および測定条件

装置：バリアンテクノロジー社製 1200L GC/MS/MS GC条件

カラム：Agilent J&W HP-5ms

0.25mm i.d. × 30m, 膜厚 0.25 μm

カラム温度：70℃(2分)→25℃/分→150℃→3℃/分  
→200℃→8℃/分→280℃(10分)

注入口温度：180℃

キャリアガス：ヘリウム 1.5mL/分

注入方法：スプリットレス（パルス 40psi）

注入量：2 μL

#### MS/MS条件

イオン化モード：EI（70eV）

トランスファライン温度：310℃

イオン源温度：280℃

測定モード：MRM

定量イオン：173>99(m/z), CE 15(eV)

確認イオン：173>127(m/z), CE 10(eV)

#### 2.2.2 試料溶液調製

評価対象4品目をそれぞれフードプロセッサーで均一化し、1試料あたり5.0gを分取した。各品目3試料について試料換算0.1mg/kgとなるようマラチオンを添加し、図1に示すフローにより抽出および精製を行った。

#### 2.3 性能評価結果

迅速検出法の性能評価結果を表1に示した。いずれの品目においても回収率および併行精度の値は、「加工食品中に高濃度に含まれる農薬等の迅速検出法について」における目標値を満たしていた。また、ブランクとして用いた試料からマラチオンは検出せず、妨害ピークも認められなかったことから、選択性にも問題がないことを確認した。

この結果から、当該検出法は冷凍食品4品目（ラザニア、ピザ、グラタン、クリームコロッケ）中のマラチオン含有の有無を判断する方法として使用可能であると評価された。

### 3 行政依頼検査

#### 3.1 検査対象製品

県内各保健所より依頼された「とろ〜りベーコンポテトコロ!」、 「焼きラザニア2個入り」、 「ミックスピザ3枚入り」、 「とろ〜りコーンクリームコロッケ」、

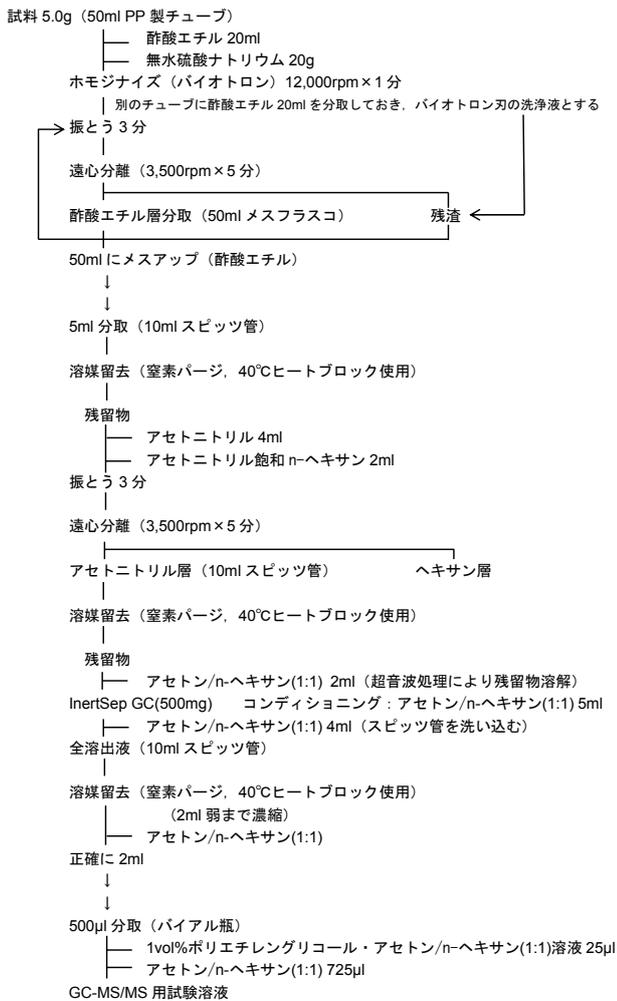


図 1 試料溶液調整フロー

表 1 性能評価結果

品目	回収率(%)			併行精度 (RSD%)
	平均	最大	最小	
ラザニア	104	112	99.3	5.40
ミックスピッツァ	114	118	112	2.17
えびグラタン	128	135	119	5.39
クリームコロッケ	104	107	101	2.39

「加工食品中に高濃度に含まれる農薬等の迅速検出法について」による回収率及び併行精度の目標値

0.1mg/kgの濃度の場合      回収率 50~200%  
併行精度 RSD% <30

表 2 冷凍食品中マラチオンの検査結果

商品名	検査年月日	検査結果
1   とろ〜りベーコンポテトコロ!	H25. 1. 8	検出せず
2   焼ラザニア2個入り	H25. 1. 8	検出せず
3   ミックスピザ3枚入り	H25. 1. 8	検出せず
4   とろ〜りコーンクリームコロッケ	H25. 1. 8	検出せず
5   とろ〜りコーンクリームコロッケ	H25. 1. 8	検出せず
6   えびとチーズのグラタン	H25. 1. 8	検出せず
7   えびとチーズのグラタン	H25. 1. 8	検出せず
8   とろ〜りコーンクリームコロッケ	H25. 1.22	検出せず

検出下限値 : 0.01ppm

表 3 添加回収試験結果

品目	検査年月日	回収率
1   コロッケ	H25. 1. 8	110%
2   ラザニア	H25. 1. 8	98%
3   ピッツァ	H25. 1. 8	120%
4   グラタン	H25. 1. 8	100%
5   コロッケ	H25. 1. 22	120%

(n = 1)

「えびとチーズのグラタン」の5種(いずれも株式会社アクリフーズ群馬工場で製造された冷凍食品), 延べ8検体について検査を実施した。

### 3.2 方法

検査依頼のあった冷凍食品は, すでに開封, 喫食後の残品であったことから, 全量をフードプロセッサーにより細切, 均一化後検査に供した。その後の手順および装置については, 性能評価時と同様に実施した。

### 3.3 検査結果

検査結果を表2に示した。すべての製品においてマラチオンは不検出(検出下限値 0.01ppm)であった。

また, 検査と併行して実施した添加回収試験 (n=1)の結果は, 表3に示したとおり良好な結果が得られた。

## 4 まとめ

冷凍食品農薬混入事件に関連し, 健康被害を訴えて保健所に持ち込まれた8件の冷凍食品について, 製品中の有機リン系農薬マラチオンを対象に検査を実施した。検査に先んじて実施した分析法の性能評価では, 「加工食品中に高濃度に含まれる農薬等の迅速検出法について」に規定する4つの性能パラメータ, 「選択性」, 「回収率」, 「併行精度」, 「評価濃度の確認」を満足する結果が得られ, 検査依頼された冷凍食品中のマラチオンについて定量することができた。検査した冷凍食品すべてにおいて, マラチオンは検出下限値未満であった。

## 参考文献

1) 厚生労働省医薬食品局食品安全部基準審査課事務連絡“加工食品中に高濃度に含まれる農薬等の迅速検出法について”平成25年3月26日



表2 残留農薬検査結果

No.	品名	検体数		定量した 農薬数	検出農薬名	用途	基準値 (ppm)	検査結果 <sup>注)</sup>	検出件数	定量下限値 (ppm)
		国産品	輸入品							
1	冷凍えだまめ	0	4	293	アセタミプリド	殺虫剤	3	N.D. ~0.012	3/4	0.005
					シベルメトリン	殺虫剤	5.0	N.D. ~0.15	2/4	0.005
					メタラキシル	殺菌剤	0.2	N.D. ~0.006	1/4	0.005
2	冷凍いんげん	0	4	292	アセタミプリド	殺虫剤	3	N.D. ~0.009	2/4	0.005
					シベルメトリン	殺虫剤	0.5	N.D. ~0.013	2/4	0.005
					チオジカルブ及びメソミル	殺虫剤	1	0.010~0.048	4/4	0.005
					アゾキシストロビン	殺菌剤	3	0.010~0.025	4/4	0.005
3	冷凍さといも	0	4	286	すべての農薬でN.D.					
4	冷凍ブルーベリー	0	4	282	イミダクロプリド	殺虫剤	4	N.D. ~0.023	3/4	0.005
					マラチオン	殺虫剤、ダニ駆除剤	0.5	N.D. ~0.008	1/4	0.005
					アゾキシストロビン	殺菌剤	5	N.D. ~0.009	1/4	0.005
					イプロジオン	殺菌剤	15	N.D. ~0.005	1/4	0.005
					キャプタン	殺菌剤	20	N.D. ~0.30	2/4	0.005
					シプロジニル	殺菌剤	3	N.D. ~0.049	3/4	0.005
					ピラクロストロビン	殺菌剤	1	N.D. ~0.043	3/4	0.005
					フルジオキシニル	殺菌剤	2	N.D. ~0.006	2/4	0.005
ボスカリド	殺菌剤	3.5	N.D. ~0.28	3/4	0.005					
5	アスパラガス	1	4	294	クロルピリホス	殺虫剤	5	N.D. ~0.031	1/5	0.005
6	かぼちゃ	2	1	304	すべての農薬でN.D.					
7	キウイ	0	5	285	すべての農薬でN.D.					
8	冷凍ほうれんそう	2	1	311	クロチアニジン	殺虫剤	3	N.D. ~0.008	1/3	0.005
					イミダクロプリド	殺虫剤	15	N.D. ~0.016	2/3	0.005
9	バナナ	0	4	275	ピフェントリン	殺虫・防ダニ剤	0.1	N.D. ~0.01	1/4	0.005
10	ブロッコリー（冷凍品含む）	0	4	280	すべての農薬でN.D.					
11	ウーロン茶	0	4	137	エンドスルファン	殺虫・防ダニ剤	30	N.D. ~0.011	1/4	0.01
					ピフェントリン	殺虫・防ダニ剤	25	0.24~0.40	4/4	0.01
					ピリダベン	殺虫・防ダニ剤	10	N.D. ~0.01	1/4	0.01
					フェンバレレート	殺虫・防ダニ剤	1.0	0.01~0.13	4/4	0.01
					ブプロフェジン	殺虫剤	20	0.06~0.15	3/4	0.01
12	コーヒー豆	0	4	46	すべての農薬でN.D.					
計		5	43	3,085						

注) N.D. : 定量下限値未満(0.01ppm)

表3 輸入食品中の食品添加物の検査結果

検体名	検体数 (輸入品)	検査項目	使用基準値 (g/kg)	検査結果 <sup>注2)</sup>	検出件数
果実酒	5	ソルビン酸	0.20	N.D.	0/5
シロップ	5		1.0	N.D.	0/5
水煮野菜	5	二酸化硫黄	0.030	N.D.	0/5
乾燥果実	5		2.0 <sup>注1)</sup>	N.D. ~0.15	3/5 <sup>注3)</sup>
クッキー・ビスケット	5	tert-ブチルヒドロキノン	(指定外添加物)	N.D.	0/5

注1) 乾燥果実(干しぶどうを除く)。干しぶどうの使用基準値は1.5g/kg未満

注2) N.D. : 定量下限値未満(果実酒, シロップ0.01g/kg, 水煮野菜0.0050g/kg, 乾燥果実0.006g/kg)

または検出下限値未満(クッキー・ビスケット1μg/g未満)

注3) 使用表示のある3件中3件から検出

表4 えび中のトリフルラリンの検査結果

品名	検体数		検査項目	基準値 (g/kg)	検査結果 <sup>注)</sup> (g/kg)	検出件数
	国産品	輸入品				
えび	0	5	トリフルラリン	0.001	N.D.	0/5

注) N.D. : 定量下限値(0.0005g/kg)未満

表5 りんご果汁中のかび毒の検査結果

品名	検体数		検査項目	基準値 ( $\mu\text{g/g}$ )	検査結果 <sup>注)</sup>	検出件数
	国産品	輸入品				
りんごジュース	0	5	パツリン	0.050	N.D.	0/5

注) N.D. : 検出下限値 (0.010  $\mu\text{g/g}$ ) 未満

表6 かんきつ類中の防ばい剤の検査結果

品名	検体数		検査項目	基準値 (g/kg)	検査結果 <sup>注)</sup> (g/kg)	検出件数
	国産品	輸入品				
オレンジ	0	2	イマザリル	0.0050	0.0014~0.0015	2/2
			ジフェニル	0.070	N.D.	0/2
			オルトフェニルフェノール	0.010	N.D.	0/2
			チアベンダゾール	0.010	0.0012~0.0014	2/2
			フルジオキシニル	0.010	N.D.	0/2
			アゾキシストロビン	0.010	N.D.	0/2
グレープフルーツ	0	2	イマザリル	0.0050	0.0016~0.0020	2/2
			ジフェニル	0.070	N.D.	0/2
			オルトフェニルフェノール	0.010	N.D.	0/2
			チアベンダゾール	0.010	N.D. ~0.0002	1/2
			フルジオキシニル	0.010	N.D.	0/2
			アゾキシストロビン	0.010	N.D.	0/2

注) N.D. : 定量下限値 (0.0001g/kg) 未満

表7 残留動物用医薬品の検査結果

検体名	検体数		検査項目数	検出動物用 医薬品名	主用途	基準値 (ppm)	検査結果 <sup>注)</sup>	検出件数
	国産品	輸入品						
豚肉	0	5	50	オルビフロキサシン	合成抗菌剤	0.02	N.D. ~0.004	1/5
				ジフロキサシン	合成抗菌剤	0.02	N.D. ~0.005	2/5
				フルメキン	合成抗菌剤	0.5	N.D. ~0.001	1/5
牛肉	0	5	64	ケトプロフェン	その他	0.05	0.003~0.005	5/5
鶏肉	0	5	44	すべての動物用医薬品でN.D.				

注) N.D. : 定量下限値未満 (医薬品により異なり, 0.001~0.01ppm)

表8 アレルギー物質を含む食品の検査結果

検体名	測定対象原材料	検体数		検査結果 <sup>注1)</sup>	不適率
		国産品	輸入品		
うどん・そうめん (そば表示なし8件)	そば	8	0	陰性8	0/8
魚肉練り製品 (小麦表示なし8件)	小麦	8	0	陰性8	0/8
インスタント麺 (えび, かに表示なし8件)	えび, かに	0	8	陰性8	0/8
食肉製品 (乳表示なし6件, 表示あり2件)	乳	8	0	陰性5, 陽性3 <sup>注2)</sup>	1/8
食肉製品 (卵表示なし8件)	卵	0	8	陰性8	0/8
ビスケット・クッキー (落花生表示なし8件)	落花生	0	8	陰性8	0/8

注1) 陽性 : 食品採取重量1gあたりの特定原材料由来のたんぱく含有量が $10\mu\text{g}$ 以上陰性 : 食品採取重量1gあたりの特定原材料由来のたんぱく含有量が $10\mu\text{g}$ 未満

注2) 3検体中2検体は「乳」表示があるため適正表示。残り1検体は「乳」を含む酵素製剤を使用していたことによる。

表 9 水銀の検査結果

検体名	検体数	検査結果 (ppm)		検出件数 <sup>注)</sup>
		総水銀 (暫定的規制値 : 0.4ppm)	メチル水銀 (暫定的規制値 : 0.3ppm)	
ヒレグロ (クマヤナギガレイ)	1	0.06	総水銀の測定結果が 暫定的規制値未満で あったため、実施せず	1/1
サバ	1	0.18		1/1
マコガレイ	1	0.04		1/1
アイナメ	1	0.08		1/1
ぼっけ (ケムシカジカ)	1	0.12		1/1
マコガレイ	1	<0.02		0/1
マダラ	1	0.16		1/1
ヒラメ	1	0.06		1/1

注) 検査を実施した検体のうち、定量下限値 (0.02ppm) 以上の値が検出された件数を表す

表 10 医薬品等検査結果

検査品目	検体数	検査項目	項目数	不適件数
洗眼剤	1	イプシロン-アミノカプロン酸	2	0
		タウリン		

表 11 浴槽水検査結果

検査項目	検体数	基準超過件数
濁度	58	0
過マンガン酸カリウム消費量	58	0

表 12 家庭用品検査結果

検査品目	検体数	検査項目	項目数	不適件数
乳幼児(出生後24月以内)用繊維製品	20	ホルムアルデヒド	1	0
上記を除く繊維製品	20	ホルムアルデヒド	1	0
合計	40		1	0

## 石巻地区における大気中多環芳香族炭化水素類の調査

## Study on Atmospheric Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Ishinomaki

佐久間 隆 菊池 恵介\*1 小泉 俊一 北村 洋子  
佐藤 郁子 榎野 光永\*2Takashi SAKUMA, Keisuke KIKUCHI, Syun-ichi KOIZUMI,  
Yoko KITAMURA, Ikuko SATOU, Mitsunaga KAYANO

キーワード：多環芳香族炭化水素類 (PAHs)

**Key words** : polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs)

## 1 はじめに

東日本大震災の津波により石巻工業港付近一帯の環境は一変し、津波堆積物からの巻き上げ粉じんなどによる大気汚染が懸念された。また、復旧・復興に伴い石巻市雲雀野地区に震災廃棄物の分別施設や焼却施設が建設され、平成24年8月以降順次本格的に稼働し、これらの施設からの環境汚染が懸念された。このような状況の中化石燃料などの不完全燃焼過程から生成し、高分子のものは発癌性や変異原性を有することが知られる多環芳香族炭化水素類 (Polycyclic Aromatic Hydrocarbons ; 以下 PAHs) について石巻地区における環境大気中濃度を測定し、同地区で平成19年度に実施した環境大気中 PAHs 調査結果<sup>1)</sup>との比較を試みたので報告する。

## 2 方法

## 2.1 調査地点

調査地点の概要を表1及び図1に示した。平成19年度に調査した3地点のうち大型バイオマス発電施設の陸地側で比較的濃度が高いと予測された付近に位置する①K高校 (固定発生源近傍) と②S高校 (比較対象地点) の2地点で調査を行った。平成19年度に調査した沿道 (臨港道路釜北線) は採取装置の電源確保が困難であったため実施し

表1 調査地点の概要

地点名	区分	備考
① K高校	固定発生源近傍	屋上
② S高校	比較対象地点	屋上

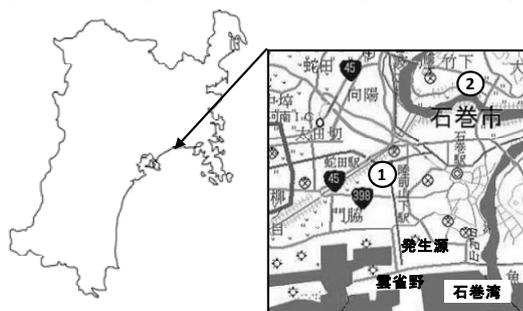


図1 調査地点

なかつた。

## 2.2 調査期間

平成24年9月11日～18日と9月18日～25日に一週間サンプリングを2回実施した。

## 2.3 試料採取及び分析

試料の採取、分析は平成19年度に行った環境大気中 PAHs 調査と同じ方法により実施した。即ち、試料採取はハイボリュームエアースンプラ (紀本電子(株)製) を用い、捕集材として石英繊維ろ紙 (QFF) , そ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枚を装着し、流速100 L/分で一週間吸引捕集した。試料の抽出操作は高速溶媒抽出装置 (ダイオネクス社製 ASE-200) を用い、QFF, ACF はトルエン、PUF はアセトンで抽出、最後にトルエンで濃縮したものを粗抽出液とした。粗抽出液 1ml を液液抽出し無水硫酸ナトリウムを少量加え脱水後、n-ヘキサンに転溶し、シリカゲルカラムクロマトグラフィによりクリーンアップに供した。40%ジクロロメタン含有 n-ヘキサンで溶出させた画分を濃縮後トルエンに転溶し、GC/MS (島津製作所 QP-2010) により分析を行った。分析対象の PAHs は17物質とした。

## 3 結果と考察

測定結果を表2に示した。また、粉じん濃度と捕集材別 PAHs 濃度を表3に示した。平成19年度との比較では季節的な変動を考慮し、今回試料採取した9月に時期的に近い8月下旬に採取したデータを用いた。粉じん濃度は平成19年に比べ数倍高く、K高校がS高校より1.5倍程度高かった。2地点とも1回目採取時が2回目採取時より高かったが、試料採取時の風向を見ると1回目のとき SSE が多く (図2) , 南に位置している雲雀野地区処理施設由来の巻き上げ粉じん等の影響があったと推察された。総 PAHs

表3 粉じん濃度及び捕集材別PAHs濃度

	K高校			S高校		
	平成24年 9月-1	平成24年 9月-2	平成19年 8月	平成24年 9月-1	平成24年 9月-2	平成19年 8月
粉じん濃度 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	97.3	52.2	30.5	61.7	37.1	13.2
総PAHs濃度 ( $\text{ng}/\text{m}^3$ )	34	45	60	17	15	28
QFF	0.96	0.89	1.5	0.47	0.65	0.55
PUF	5.7	10	7.1	3.2	5.3	5.1
ACF	27	34	52	13	9.0	22.0

\*1 現 宮城県東部保健福祉事務所

\*2 現 宮城県原子力センター

表2 PAHs濃度測定結果

単位:ng/m<sup>3</sup>

PAHs	環数	K高校						S高校					
		H24.9.11-18採取			H24.9.18-25採取			H24.9.11-18採取			H24.9.18-25採取		
		QFF	PUF	ACF									
Naphthalene	2	0.015	0.093	18	0.015	0.10	27	0.009	0.046	7.5	0.004	0.068	6.1
Acenaphthylene	3	<0.025	0.037	1.4	<0.025	0.086	1.8	<0.025	0.028	1.1	<0.025	0.058	0.53
Acenaphthene	3	<0.010	0.15	3.5	<0.010	0.11	2.6	<0.010	0.042	1.4	<0.010	0.069	1.1
Fluorene	3	0.004	0.29	1.5	<0.003	0.50	1.5	<0.003	0.095	1.1	<0.003	0.32	0.79
Phenanthrene	3	0.056	2.3	2.7	0.044	5.1	1.4	0.025	1.1	2.0	0.027	3.0	0.50
Anthracene	3	0.008	0.12	0.13	0.005	0.17	0.067	0.005	0.030	0.086	0.005	0.076	0.020
Fluoranthene	4	0.11	1.6	0.006	0.074	2.3	0.003	0.043	1.0	<0.003	0.053	0.88	<0.003
Pyrene	4	0.11	1.0	<0.002	0.087	1.8	<0.002	0.051	0.77	<0.002	0.064	0.64	<0.002
Benzo[a]anthracene	4	0.051	0.005	<0.002	0.038	0.014	<0.002	0.017	0.002	<0.002	0.021	<0.002	<0.002
Chrysene	4	0.11	0.079	<0.002	0.092	0.11	<0.002	0.046	0.074	<0.002	0.062	0.048	<0.002
Benzo[b]fluoranthene	5	0.097	<0.005	<0.005	0.099	<0.005	<0.005	0.061	<0.005	<0.005	0.083	<0.005	<0.005
Benzo[k]fluoranthene	5	0.075	0.003	<0.002	0.088	0.002	<0.002	0.041	<0.002	<0.002	0.056	0.002	<0.002
Benzo[e]pyrene	5	0.073	0.002	<0.002	0.072	0.003	<0.002	0.040	<0.002	<0.002	0.048	0.002	<0.002
Benzo[a]pyrene	5	0.060	0.001	<0.001	0.043	<0.001	<0.001	0.013	<0.001	<0.001	0.028	0.001	<0.001
Indeno[1,2,3-cd]pyrene	6	0.083	<0.005	<0.005	0.098	0.096	<0.005	0.059	<0.005	<0.005	0.095	0.096	<0.005
Dibenzo[a,h]anthracene	5	0.016	<0.014	<0.014	0.020	<0.014	<0.014	0.010	<0.014	<0.014	0.015	<0.014	<0.014
Benzo[g,h,i]perylene	6	0.096	<0.004	<0.004	0.11	0.015	<0.004	0.050	<0.004	<0.004	0.089	0.012	<0.004

注: <表示は検出下限値未満を示す。

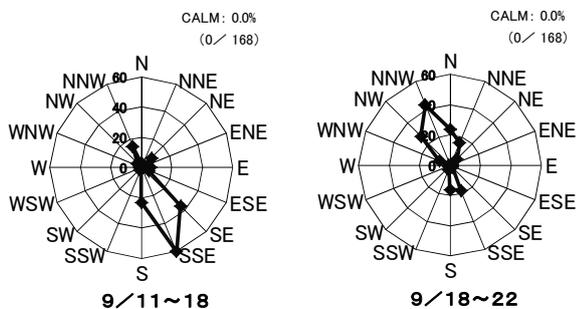


図2 試料採取時の風向(石巻)

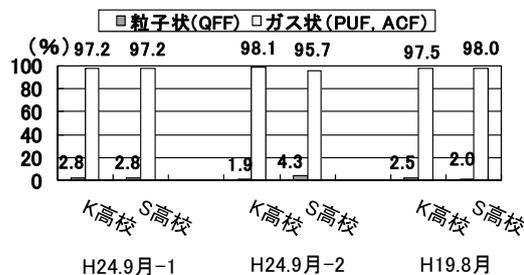


図3 粒子状PAHsとガス状PAHsの割合

濃度は K 高校, S 高校ともに平成 19 年に比べ 4 割前後低い濃度であったが, ACF で捕集した PAHs の濃度が低かったためであった (表 3)。

捕集材の QFF 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 とし, 総 PAHs に対するそれぞれの割合を図 3 に示した。K 高校, S 高校ともにガス状 PAHs の割合は 9 割以上であり, 平成 19 年と同様高い割合であった。しかし, ガス状 PAHs の大部分を占める 2 環と 3 環の PAHs の総 PAHs に対する割合は, 平成 19 年に比較し K 高校, S 高校ともに低い割合となっていた (表 4)。PAHs の発生源として自動車交通があり, ディーゼル燃料自動車の排気ガスには 2 環ナフタレンと 3 環アセナフテンが多い<sup>2)</sup> との報告もある。このことは, 震災による工場事業場の本格的稼働の遅れに伴う大型車両数の低下も一因と考えられた。

表4 総PAHsに対する2環, 3環PAHsの割合

	K高校			S高校		
	平成24年 9月-1	平成24年 9月-2	平成19年 8月	平成24年 9月-1	平成24年 9月-2	平成19年 8月
2環/総PAHs	53.8	59.1	71.6	44.9	41.3	56.0
2環+3環 /総PAHs	89.4	88.7	94.4	86.5	84.7	90.3

参考文献

- 1) 佐久間隆, 小泉俊一, 菱沼早樹子, 北村洋子: 全国環境研会誌: 37, 35 (2012)
- 2) 多環芳香族炭化水素類 (PAH). 環境保健クライテリア, 202, 1998

# 大気中の揮発性有機化合物調査

## Study on Volatile Organic Compounds in Atmospheric Samples

佐藤 郁子 佐久間 隆 北村 洋子  
小泉 俊一 菊池 恵介\*<sup>1</sup> 榎野 光永\*<sup>2</sup>

Ikuko SATOU, Takashi SAKUMA, Yoko KITAMURA  
Syun-ichi KOIZUMI, Keisuke KIKUCHI, Mitsunaga KAYANO

キーワード：有害大気汚染物質；揮発性有機化合物（VOCs）

**Key words** : hazardous air pollutants ; volatile organic compounds (VOCs)

### 1 はじめに

平成8年5月の大気汚染防止法の改正に伴い、地方公共団体は有害大気汚染物質による大気汚染状況の把握に努めなければならないと定められ、本県では平成9年10月から県内4地点において有害大気汚染物質のモニタリング調査を開始した。

揮発性有機化合物（以下「VOCs」）についてはベンゼン、トリクロロエチレン及びテトラクロロエチレン等の優先取組物質の測定を調査開始当初から行ってきたが、加えて優先取組物質以外のVOCsについても測定を実施したので報告する。

### 2 方法

#### 2.1 調査地点

調査は有害大気汚染物質モニタリング事業の3地点で実施し、調査区分を括弧内に示した。なお、一般環境の調査地点は隔年で実施するため、前年度の調査地点であった大崎市（一般環境）については測定を実施しなかった。

- ①名取市 名取自動車排出ガス測定局（沿道）
- ②塩竈市塩釜一般環境大気汚染測定局（発生源周辺）
- ③大河原町 宮城県仙南保健福祉事務所屋上（一般環境）

#### 2.2 調査期間、測定頻度

平成25年4月から平成26年3月まで月1回24時間試料採取を実施し、測定を行った。

#### 2.3 調査対象物質

優先取組物質11物質を含むVOCs計40物質を対象とした。

#### 2.4 試料採取及び測定方法

「有害大気汚染物質測定方法マニュアル<sup>1)</sup>」に従い実施した。大気試料は真空化した6Lキャニスター容器を用い24時間採取、大気試料濃縮装置（ジーエルサイエンス社製AERO Tower System）により試料を導入し、ガスクロマトグラフ質量分析計（日本電子社製JMS-Q1050GC）で分析を行った。

### 3 結果

#### 3.1 平成25年度測定結果

VOCsの測定結果（年平均値）を表1に示した。年平均値は12回の測定値を算術平均して算出した。また、平均値の算出にあたり測定値が検出下限値未満の場合は検出下限値の1/2値を用い、検出下限値以上で定量下限値未満の場合は測定値をそのまま用いた。

優先取組物質11物質のうち環境基準の定められているベンゼン、トリクロロエチレン、テトラクロロエチレン及びジクロロメタンの4物質については、環境基準を超える物質は無かった。また、指針値が定められている物質についても指針値を超える物質はなく、さらに、平成24年度に実施した全国データ<sup>2)</sup>と比較したところ、アクリロニトリル及びトルエンが高めであったが、その他の物質は同程度か低めであった。

優先取組物質以外の物質について各調査地点における年平均値を比較したところ、調査地点間で極端に濃度が高いあるいは低い物質は見られなかった。また、フロン類4物質、塩化メチル及び四塩化炭素の各調査地点における濃度差は小さかった。

#### 3.2 年平均値の推移

優先取組物質のうち当初から測定を行っている9物質について、平成10年度からの年平均値の推移を図1-1~9に示した。ベンゼン、トリクロロエチレン、テトラクロロエチレン等の濃度は、測定当初より継続して減少傾向であった。なお、各物質及び沿岸地の名取市、塩竈市ともに東日本大震災の影響が考えられるような年平均値の推移は見られなかった。（平成23年3月は8・9日にサンプリングを実施、測定。また、23年度は9月から測定を再開している。）

### 4 参考文献

- 1) 環境省水・大気環境局大気環境課：有害大気汚染物質測定方法マニュアル、平成23年3月改訂
- 2) 環境省報道発表資料：平成24年度大気汚染状況について（有害大気汚染物質モニタリング調査結果報告）、平成26年3月28日

\* 1 現 宮城県東部保健福祉事務所

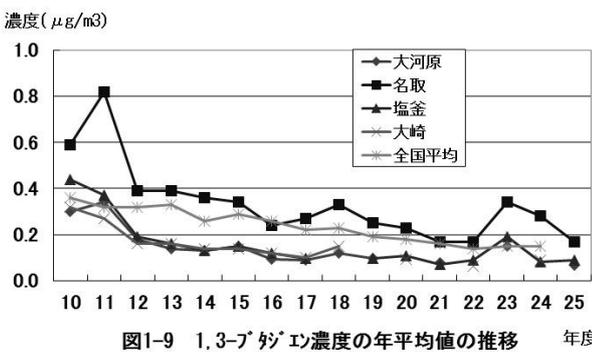
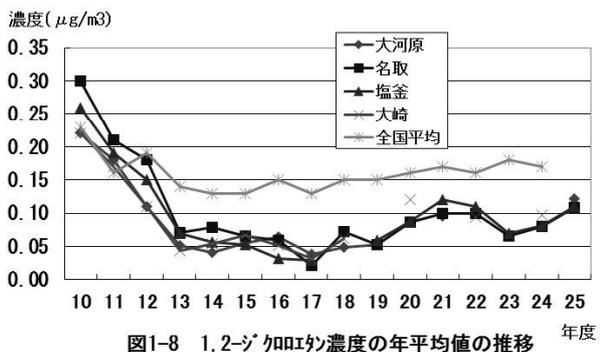
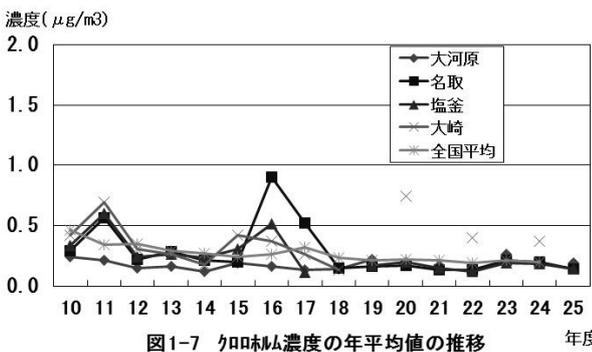
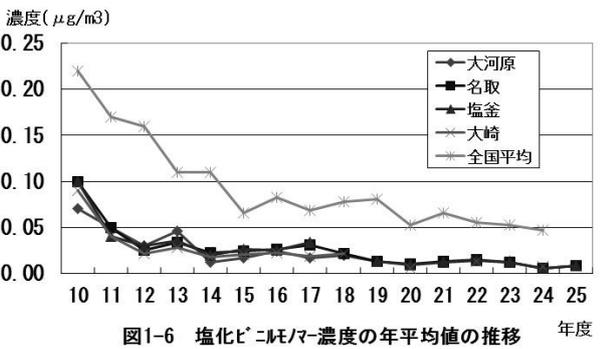
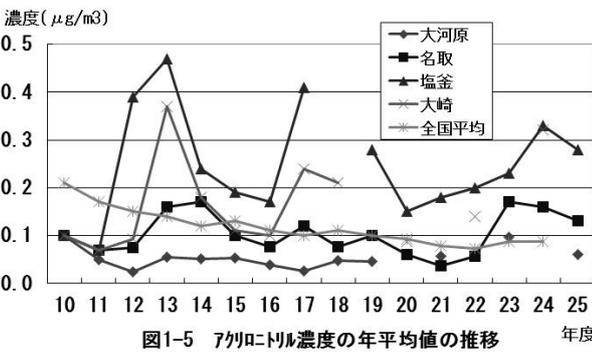
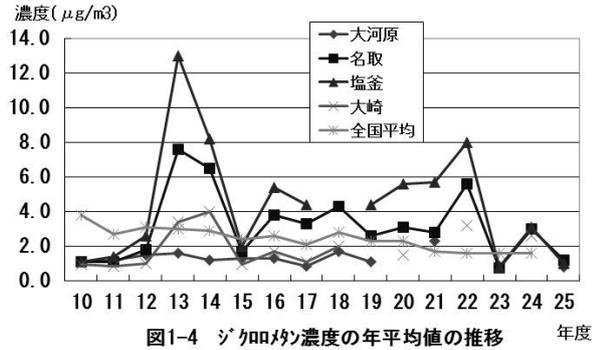
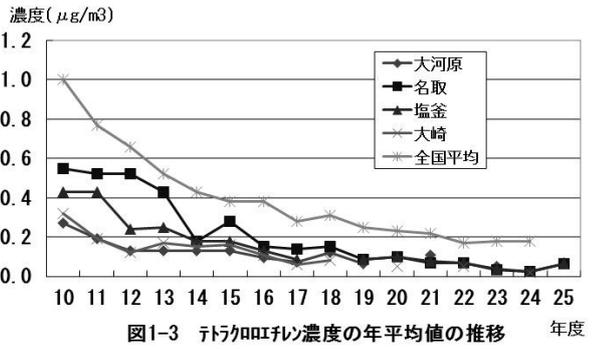
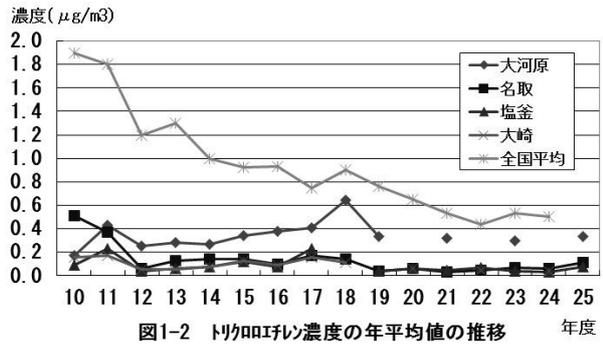
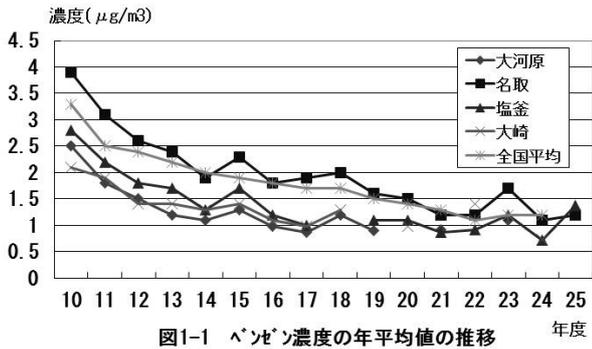
\* 2 現 宮城県原子力センター

表1 VOCsの測定結果(年平均値;平成25年度)

No.	物質名	大河原町 (一般環境)	名取市 (道路沿道)	塩蓋市 (発生源周辺)	全体平均	最低濃度	最大濃度	検出下限値(3σ)		定置下限値 (10σ)平均	環境基準 指針値	単位: $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 全国7-9 <sup>2</sup> (平成24年度)
								最小	最大			
1	Freon12	2.6	2.6	2.6	2.6	2.4	2.8	0.003	0.009	0.019		
2	Freon114	0.088	0.12	0.14	0.12	ND	0.18	0.003	0.012	0.025		
3	Chloromethane	1.2	1.2	1.2	1.2	0.94	1.5	0.003	0.006	0.016		1.4
4	Chloroethene	0.0080	0.0077	0.0084	0.0080	ND	0.052	0.003	0.008	0.015	10	0.047
5	1,3-Butadiene	0.066	0.17	0.090	0.11	0.0090	0.30	0.003	0.007	0.016	2.5	0.15
6	Bromomethane	0.030	0.040	0.030	0.034	ND	0.095	0.003	0.010	0.022		
7	Chloroethane	0.021	0.027	0.019	0.022	ND	0.12	0.004	0.011	0.019		
8	Freon11	1.4	1.4	1.4	1.4	1.2	1.6	0.003	0.008	0.014		
9	Freon113	0.55	0.56	0.55	0.55	0.48	0.61	0.003	0.021	0.020		
10	1,1-Dichloroethene	0.0024	0.0020	0.0020	0.0021	ND	0.0081	0.003	0.007	0.013		
11	Dichloromethane	0.79	1.2	1.0	1.0	0.30	2.4	0.005	0.012	0.026	150	1.6
12	Acrylonitrile	0.062	0.13	0.28	0.16	ND	0.56	0.003	0.004	0.012	2	0.088
13	1,1-Dichloroethane	0.0058	0.0058	0.0058	0.0058	ND	0.037	0.003	0.007	0.019		
14	c-1,2-Dichloroethene	0.0031	0.0031	0.062	0.023	ND	0.71	0.006	0.007	0.019		
15	Chloroform	0.19	0.14	0.14	0.16	ND	0.37	0.003	0.007	0.013	18	0.2
16	1,1,1-Trichloroethane	0.028	0.034	0.033	0.032	ND	0.081	0.003	0.008	0.014		
17	Tetrachloromethane	0.62	0.63	0.63	0.62	0.53	0.71	0.003	0.011	0.021		
18	1,2-Dichloroethane	0.12	0.11	0.11	0.11	0.016	0.34	0.003	0.007	0.016	1.6	0.17
19	Benzene	0.74	1.2	1.4	1.1	0.33	2.9	0.005	0.016	0.039	3	1.2
20	Trichloroethylene	0.33	0.11	0.072	0.17	0.011	0.92	0.003	0.009	0.020	200	0.50
21	1,2-Dichloropropane	0.054	0.055	0.055	0.055	ND	0.17	0.003	0.010	0.023		
22	c-1,3-Dichloropropene	0.0059	0.0031	0.0031	0.0040	ND	0.037	0.003	0.008	0.020		
23	Toluene	11	34	13	19	1.4	92	0.003	0.009	0.019		8.4
24	t-1,3-Dichloropropene	0.0033	0.0033	0.0033	0.0033	ND	ND	0.003	0.008	0.021		
25	1,1,2-Trichloroethane	0.0040	0.0040	0.0040	0.0040	ND	ND	0.008	0.008	0.025		
26	Tetrachloroethylene	0.070	0.062	0.062	0.065	ND	0.17	0.003	0.010	0.021	200	0.18
27	1,2-Dibromoethane	0.0038	0.0038	0.0038	0.0038	ND	ND	0.003	0.013	0.025		
28	Chlorobenzene	0.014	0.019	0.033	0.022	ND	0.094	0.003	0.008	0.021		
29	Ethylbenzene	3.4	6.7	5.7	5.3	0.56	15	0.006	0.012	0.025		
30	m-&p-Xylene	2.4	5.1	5.3	4.3	0.45	11	0.008	0.012	0.032		
31	o-Xylene	0.80	1.5	1.7	1.3	0.16	2.8	0.003	0.008	0.019		
32	Styrene	0.24	1.4	1.7	1.1	0.0087	4.5	0.003	0.003	0.010		
33	1,1,2,2-Tetrachloroethane	0.0064	0.0064	0.0064	0.0064	ND	ND	0.003	0.028	0.042		
34	1,3,5-Trimethylbenzene	1.0	1.1	0.86	0.99	ND	8.3	0.007	0.009	0.027		
35	1,2,4-Trimethylbenzene	0.58	1.0	0.91	0.82	0.085	3.0	0.003	0.011	0.024		
36	m-Dichlorobenzene	0.0023	0.019	0.0023	0.0078	ND	0.20	0.003	0.009	0.015		
37	p-Dichlorobenzene	0.32	0.42	0.72	0.48	0.18	2.6	0.003	0.003	0.010		
38	o-Dichlorobenzene	0.12	0.11	0.10	0.11	ND	0.28	0.003	0.011	0.016		
39	1,2,4-Trichlorobenzene	0.036	0.036	0.006	0.026	ND	0.37	0.009	0.017	0.038		
40	Hexachlorobutadiene	0.0049	0.0049	0.0049	0.0049	ND	ND	0.003	0.018	0.032		

注: 年平均値の算出にあたり, 検出下限値未満の値は検出下限値の1/2を平均値算出に用いた。「ND」は, 検出下限値未満を示す。

は優先取組物質を示す。



# 東日本大震災の被災地における環境大気中ダイオキシン類 調査結果について

## Investigation Results of Dioxin in Air Environment at the Areas affected by the Great East Japan Earthquake

沖田 若菜\*1 菱沼 早樹子 黒江 聡 樫野 光永\*2 渡部 正弘  
Wakana OKITA, Sakiko HISHINUMA, Satoshi KUROE,  
Mitsunaga KAYANO, Masahiro WATANABE

### 1 はじめに

東日本大震災で発生した災害廃棄物は被災地に設置された二次仮置き場内災害廃棄物仮設焼却炉（以下、「仮設焼却炉」という。）で焼却処理された。焼却処理により発生が懸念されるダイオキシン類の環境大気における動向を把握するため、大気環境中ダイオキシン類モニタリング調査（以下、「被災地環境大気モニタリング」という。）を行った。通常、ダイオキシン類の安全性は毒性等量（TEQ）で評価するが、より詳細な情報を得るために組成解析は実測濃度で行った。

### 2 方法

#### 2.1 調査地点及び調査時期

調査地点は図1に示したとおり、仮設焼却炉周辺の山元町山寺地区、亘理町吉田体育館、岩沼市玉浦小学校、名取市閑上浄水場、石巻市築山地区、南三陸町戸倉地区、気仙沼市本吉総合支所、気仙沼市階上中学校の合計8地点である。

調査時期は表1に示したとおりである。各調査地点に対応する仮設焼却炉の稼働期間を併せて示した。調査は平成24年2月の仮設焼却炉稼働前及び平成24年9月から平成25年12月の仮設焼却炉稼働期間中に行った。平成24年度は外部機関に分析委託した。平成24年2月及び平成25年度は当センターで分析した。同時期に仮設焼却炉排ガスの分析を実施しており、全ての仮設焼却炉で排出基準を満たしていることを確認した。

#### 2.2 試料採取及び測定

試料採取及び測定は「ダイオキシン類に係る大気環境調査マニュアル<sup>1)</sup>」に準拠して行った。試料はハイボリウムエアサンプラで7日間連続採取した。ただし、平成24年2月全地点及び平成25年8月の気仙沼市本吉総合支所は24時間採取とした。

### 3 結果及び考察

#### 3.1 TEQ及び実測濃度

今回調査地点のTEQ及び実測濃度を表2に示す。TEQ

\*1 現 気仙沼保健福祉事務所

\*2 現 原子力センター

は全地点、全期間で環境基準（0.6 pg-TEQ/m<sup>3</sup>）を大きく下回っていた。

#### 3.2 仮設焼却炉稼働前後の実測濃度での組成の比較

仮設焼却炉稼働前のデータがある岩沼市玉浦小学校、南三陸町戸倉地区、気仙沼市階上中学校の3地点の実測濃度の組成を図2に示す。仮設焼却炉稼働前のデータは網掛けで示した。対照として当センターで分析した一般環境大気及び仮設焼却炉排ガスの組成を併せて示した。県南内陸部の代表例として大河原合同庁舎の組成を、県北内陸部の代表例として大崎合同庁舎の組成を、沿岸部の代表例として石巻合同庁舎の組成を用いた。仮設焼却炉排ガスはPCDDsが大部分を占めているので、仮設焼却炉稼働の影響があればPCDDsの割合が増加すると推測される。仮設焼却炉稼働前後の実測濃度の組成を比較すると、岩沼市玉浦小学校ではPCDDsの割合が仮設焼却炉稼働後の平成24年9月、平成25年7月で増加が認められた。しかし、その増加量は一般環境大気の大崎合同庁舎の季節変動と同程度であることから仮設焼却炉の影響とは考えにくい。南三陸町戸倉地区、気仙沼市階上中学校では仮設焼却炉稼働後のPCDDsの割合の増加は認められなかった。南三陸町戸倉地区、気仙沼市階上中学校のPCDFsの割合は減少し、DL-PCBsの割合は増加した。DL-PCBsは夏期に濃度が大きくなることが知られており<sup>2)</sup>、これまでの一般環境大気調査で石巻合同庁舎ではDL-PCBsの割合が極端に大きい傾向があることがわかっている<sup>3)</sup>。南三陸町戸倉地区、気仙沼市階上中学校の組成は沿岸部の石巻合同庁舎と類似の傾向を示し、DL-PCBsの増加は季節変動によるものと推察される。

#### 3.3 一般環境大気と被災地環境大気の比較

今回調査地点の実測濃度の組成を図3に示す。対照として一般環境大気組成を併せて示した。

県南4地点、すなわち山元町山寺地区、亘理町吉田体育館、岩沼市玉浦小学校、名取市閑上浄水場ではPCDDsの割合が比較的大きく、内陸部の一般環境大気組成に近い組成であった。その中で岩沼市玉浦小学校ではPCDDsの変動が比較的大きく、大崎合同庁舎の組成に類似していた。石巻市築山地区ではPCDFs及び

DL-PCBsの変動が大きかった。南三陸町戸倉地区、気仙沼市本吉総合支所、気仙沼市階上中学校の県北3地点の組成はDL-PCBsの割合が大きく、夏期に増加する傾向があり、石巻合同庁舎の組成によく似ていると言える。

4 まとめ

今回調査した全ての地点でTEQは環境基準を大幅に下回っていた。仮設焼却炉稼働前のデータがある3地点において稼働前後で実測濃度の組成に仮設焼却炉の影響を受けたと考えられる変化は認められなかった。県南4地点の組成は内陸部の一般環境大気の組成に類似していた。石巻市築山地区ではPCDFs, DL-PCBsの変動が大

きかった。県北3地点の組成は石巻合同庁舎の組成と類似していた。

参考文献

- 1) 環境省「ダイオキシン類に係る大気環境調査マニュアル」平成20年3月
- 2) 黒川陽一, 松枝隆彦, 大崎靖彦, 中村又善, 高田智, 深町和美: 環境化学, 4, 29(1994).
- 3) 加藤謙一, 中村朋之, 菱沼早樹子, 鈴木滋, 斉藤善則, 橋本俊次, 柏木宜久: 宮城県保健環境センター年報, 23, 138(2005).



図1 調査地点

表1 調査時期(平成23年度~平成25年度)

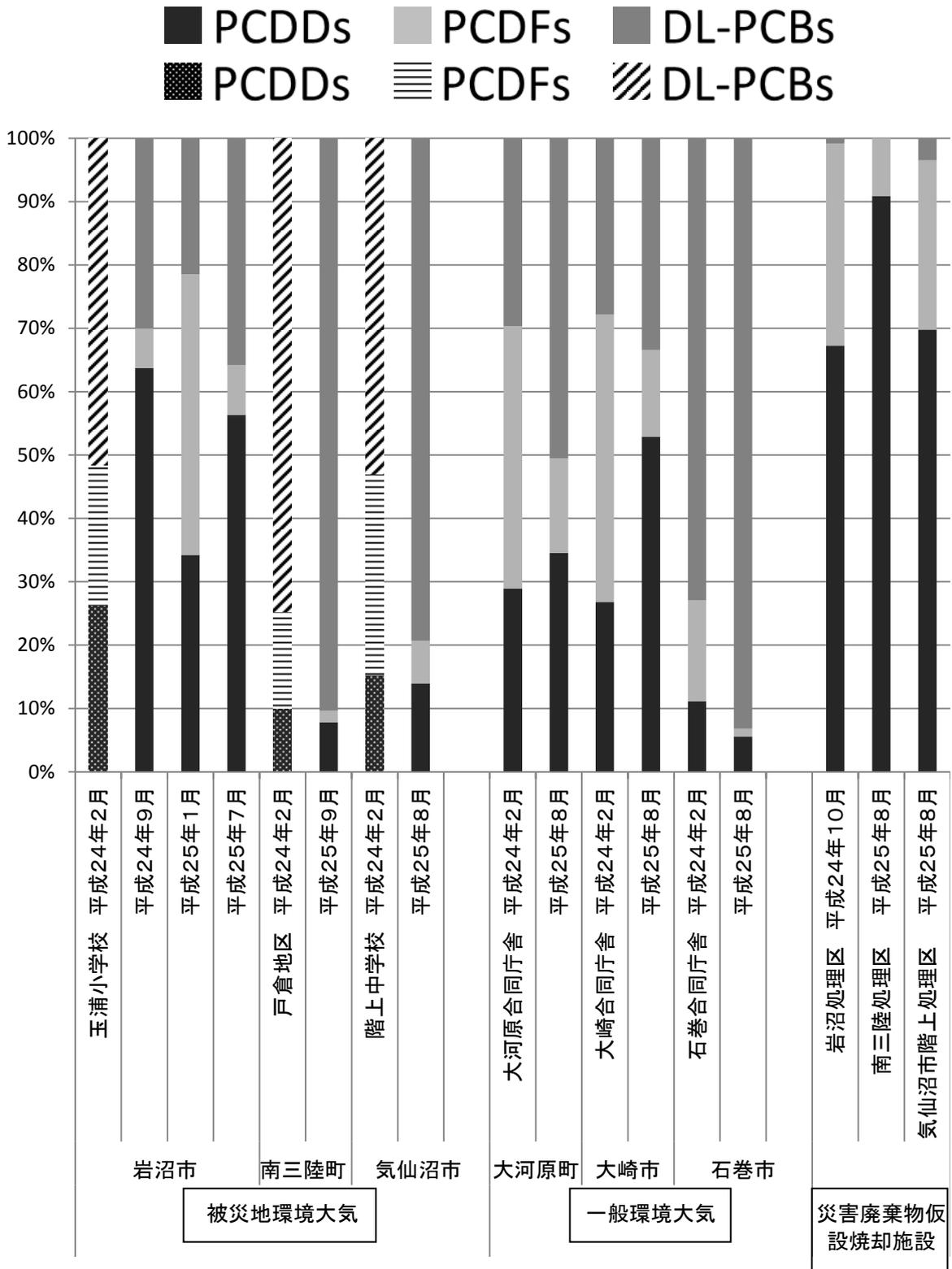
市町村	地点名	平成23年度		平成24年度		平成25年度	
		仮設焼却炉稼働前	夏期	冬期	夏期	冬期	
		試料採取日					
		仮設焼却炉稼働期間					
山元町	山寺地区		H24.9.14~21	H25.1.8~15	H25.7.4~11	H25.10.2~9	
	山元処理区		H24.5.28稼働開始~H25.12.26焼却終了				
亶理町	吉田体育館		H24.9.14~21	H25.1.8~15	H25.7.4~11		
	亶理処理区		H24.4.27稼働開始~H25.11.8焼却終了				
岩沼市	玉浦小学校	H24.2.16~17	H24.9.14~21	H25.1.8~15	H25.7.11~18		
	岩沼処理区		H24.6.11稼働開始~H25.10.19焼却終了				
名取市	関上浄水場		H24.9.14~21	H25.1.8~15	H25.7.11~18	H25.10.2~9	
	名取処理区		H24.5.10稼働開始~H25.10.1焼却終了				
石巻市	築山地区		H24.9.14~21	H25.1.8~15	H25.9.5~12	H25.12.4~11	
	石巻処理区		H24.6.22稼働開始~H26.1.18焼却終了				
南三陸町	戸倉地区	H24.2.23~24			H25.9.5~12		
	南三陸処理区		H24.12.12稼働開始~H25.10.26焼却終了				
気仙沼市	本吉総合支所				H25.8.29~30		
	小泉処理区		H25.4.10稼働開始~H25.8.31焼却終了				
	階上中学校	H24.2.23~24			H25.8.22~29		
	階上処理区		H25.3.8稼働開始~H25.11.15焼却終了				

表2 被災地環境大気のTEQと実測濃度一覧

単位 TEQ: pg-TEQ/m<sup>3</sup> 実測濃度: pg/m<sup>3</sup>

市町村名	地点名	試料採取年月	上段: TEQ, 下段: 実測濃度			
			PCDDs	PCDFs	DL-PCBs	合計
山元町	山寺地区	平成24年9月	0.0044	0.0042	0.0019	0.011
			2.3	0.49	2.3	5.1
		平成25年1月	0.0042	0.0056	0.00046	0.010
			0.23	0.41	0.25	0.89
平成25年7月	0.0043	0.0045	0.0036	0.012		
	1.7	0.74	5.0	7.4		
平成25年10月	0.0042	0.0033	0.0020	0.0095		
	0.84	0.40	2.0	3.3		
亶理町	吉田体育館	平成24年9月	0.0043	0.0052	0.0024	0.012
			3.0	0.60	6.2	9.9
		平成25年1月	0.0042	0.0083	0.00082	0.013
			0.44	0.64	0.29	1.37
平成25年7月	0.0044	0.0052	0.0042	0.014		
	2.7	0.86	2.0	5.5		
岩沼市	玉浦小学校	平成24年2月	0.0042	0.0033	0.00048	0.0080
			0.31	0.26	0.60	1.2
		平成24年9月	0.0050	0.0051	0.0020	0.012
			7.4	0.72	3.5	12
平成25年1月	0.0043	0.0083	0.00092	0.013		
	0.50	0.64	0.31	1.4		
平成25年7月	0.0042	0.0028	0.0018	0.0087		
	3.1	0.42	1.9	5.4		
名取市	関上浄水場	平成24年9月	0.0047	0.0066	0.0028	0.014
			4.7	0.69	6.03	11
		平成25年1月	0.0043	0.0072	0.00092	0.012
			0.76	0.58	0.45	1.8
平成25年7月	0.0042	0.0035	0.0018	0.0096		
	3.1	0.45	1.8	5.3		
平成25年10月	0.0042	0.0037	0.0015	0.0094		
	1.7	0.45	1.3	3.5		
石巻市	築山地区	平成24年9月	0.0073	0.0099	0.0029	0.020
			1.2	1.0	4.0	6.2
		平成25年1月	0.0058	0.0086	0.0010	0.015
			0.40	0.67	0.33	1.4
平成25年9月	0.0042	0.0022	0.0015	0.0078		
	0.69	0.16	2.6	3.4		
平成25年12月	0.0069	0.014	0.0016	0.023		
	0.83	1.1	0.82	2.8		
南三陸町	戸倉地区	平成24年2月	0.0042	0.0032	0.0010	0.0084
			0.14	0.21	1.0	1.4
平成25年9月	0.0041	0.0021	0.0027	0.0089		
	0.19	0.04	2.2	2.4		
気仙沼市	本吉総合支所	平成25年8月	0.0042	0.0029	0.0016	0.0087
			0.35	0.23	1.2	1.7
平成24年2月	階上中学校	0.0043	0.0094	0.0011	0.015	
		0.32	0.66	1.1	2.1	
平成25年8月	0.0041	0.0022	0.0016	0.0079		
	0.33	0.16	1.9	2.4		
一般環境大気	大河原合同庁舎	平成24年2月	0.0043	0.0082	0.0011	0.014
			0.37	0.53	0.38	1.3
	平成25年8月	0.0043	0.0047	0.0026	0.012	
		1.3	0.56	1.9	3.8	
大崎合同庁舎	平成24年2月	0.0042	0.0065	0.00082	0.012	
		0.26	0.44	0.27	0.97	
平成25年8月	0.0042	0.0035	0.0020	0.0097		
	1.9	0.49	1.2	3.6		
石巻合同庁舎	平成24年2月	0.0042	0.0045	0.0011	0.010	
		0.26	0.37	1.7	2.3	
平成25年8月	0.0041	0.0022	0.0035	0.0099		
	1.2	0.26	2.0	2.2		

※対照として一般環境大気データのデータを併せて示した。



注：網掛けで示したのは仮設焼却炉稼働前のデータである。

図2 仮設焼却炉稼働前後の実測濃度の組成比較

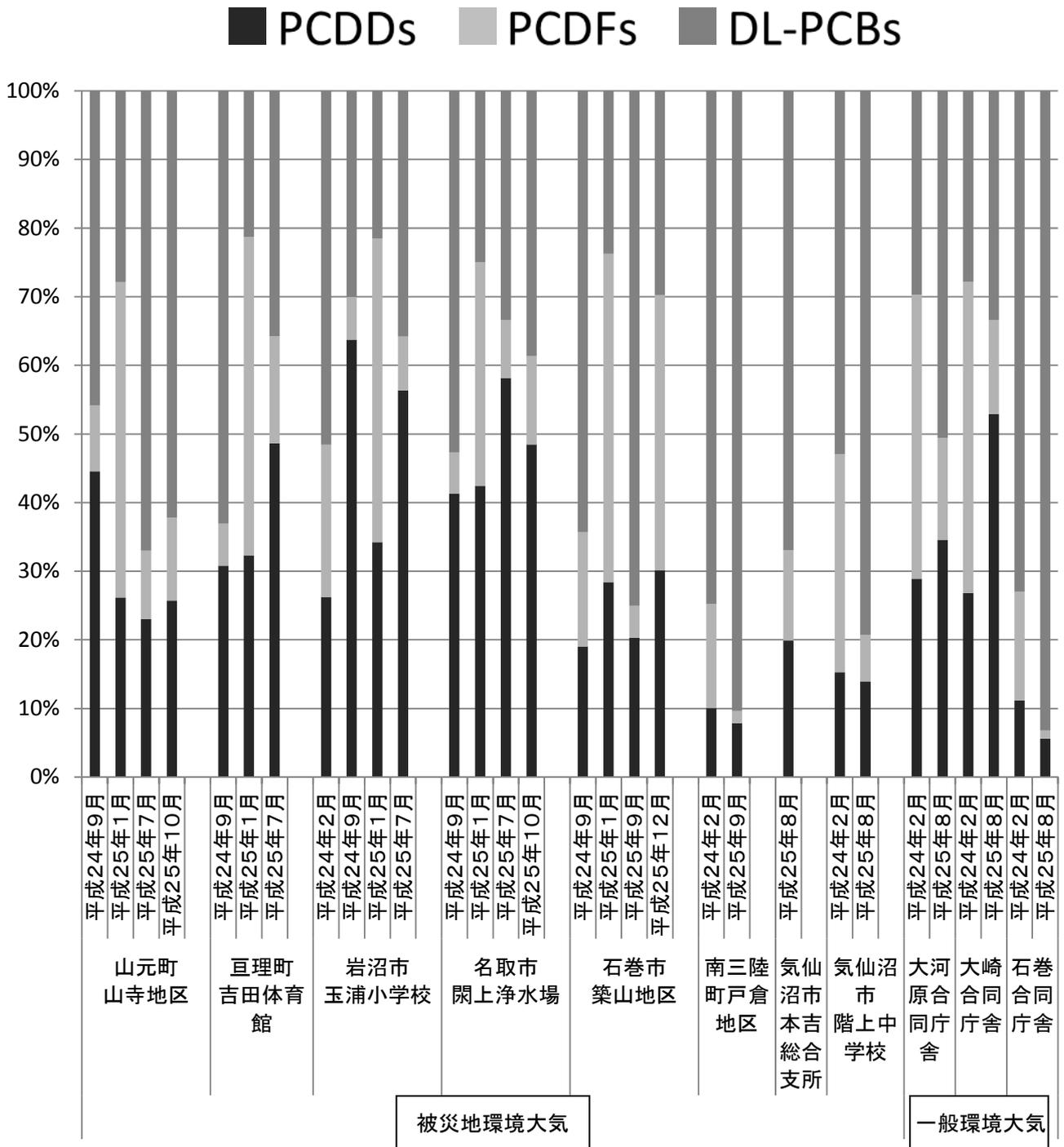


図3 実測濃度の組成

# 沿岸海域における COD 構成要素等調査結果

## Findings of the COD component in nearshore waters

福地 信一 千葉 文博

Shinichi FUKUCHI, Fumihiro CHIBA

### 1 はじめに

国立環境研究所と地方公共団体環境研究機関のⅡ型共同研究「沿岸海域環境の診断と地球温暖化の影響評価のためのモニタリング手法の提唱」(平成 23~25 年度)に宮城県保健環境センターも参画し、全国的に見られる沿岸海域における COD 漸増傾向を解明すべく COD 構成要素の詳細調査を実施するとともに、閉鎖性海域において顕在化している貧酸素水塊発生状況の調査を実施したものである。

### 2 調査方法

#### 2.1 調査地点及び時期

##### 2.1.1 公共用水域常時監視データ

平成 13~22 年度までの「宮城県公共用水域及び地下水水質測定結果報告書」から松島湾桂島及び西浜における COD データを抽出した。

##### 2.1.2 COD 構成要素調査

図 1 に示すとおり、松島湾においては環境基準点である桂島 (A 類型) 及び西浜 (B 類型) の 2 地点で、平成 23~25 年度までの 3 年間にわたり、水温躍層が形成される 8 月と循環期に入る 12 月に計 6 回採水調査を実施した。

##### 2.1.3 鉛直分布調査

松島湾では上記 2 地点について、3 年間にわたり年 1 回 8 月に実施した。

また、図 2 に示すとおり、気仙沼湾では環境基準点である神明崎 (B 類型)、蜂ヶ崎 (B 類型)、大川河口 (B 類型) 及び大島北 (A 類型) の 4 地点を選定し、東日本大震災後の平成 23 年 9 月及び平成 24 年 9 月に実施した。

なお、両湾とも環境省が指定した閉鎖性海域 88 地点に含まれている。

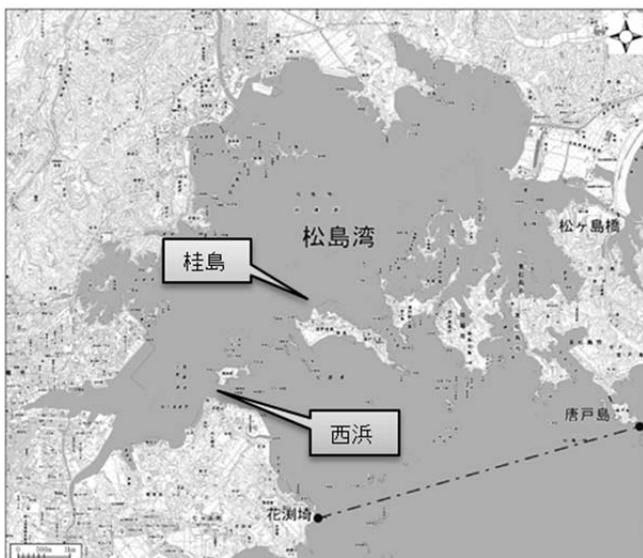


図 1 松島湾調査地点



図 2 気仙沼湾調査地点

2.2 測定項目及び分析方法

COD 関連項目については、採取した海水を当日中による過・分注し、試料水及びフィルター類は冷凍処理し国立環境研究所に送付した。

測定項目は、COD, DCOD (溶存性 COD), DOC (溶存性有機炭素), POC (懸濁性有機炭素), Chl-a, 各態 NP, T-NP である。

分析は、「茨城県沿岸海域公共用水域常時監視点における COD と関連する有機物項目について」<sup>1)</sup>に記載されている方法により国立環境研究所が実施した。

溶存酸素 (DO), 水温等の垂直分布の調査は、多項目水質計(Hydrolab DS4a)を船上から垂下し、表層から海

底まで約 10cm 間隔で測定を実施した。

3 調査結果

3.1 COD 変遷状況

図 3 に桂島及び西浜における平成 13~22 年度までの 10 年間の COD 変遷状況を示すが、両地点とも夏季に高く冬季は低い傾向を示し、近似直線のとおり全体的には漸増傾向を示している。

図 4 及び図 5 に COD75% 値を示すが、桂島は A 類型の環境基準値 2mg/L を超過しており、西浜は B 類型の環境基準値 3mg/L を達成している。

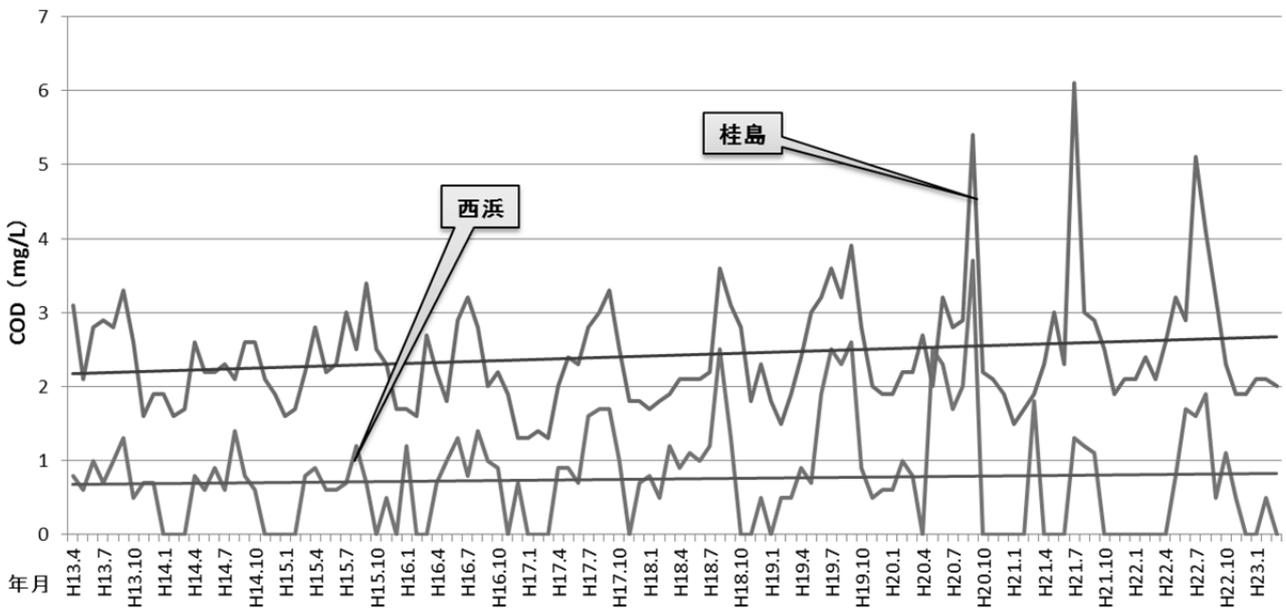


図 3 桂島、西浜における COD の変遷状況

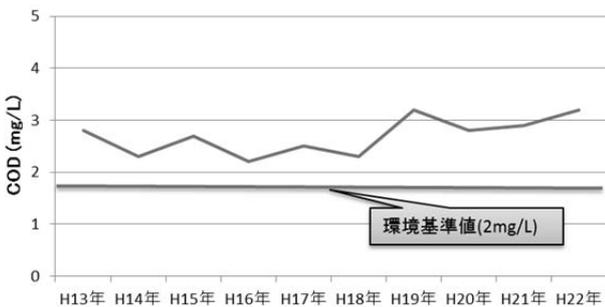


図 4 桂島の COD 75% 値

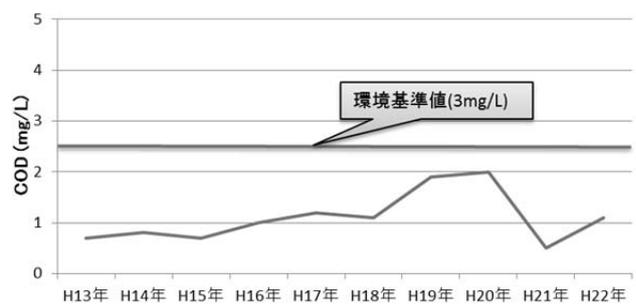


図 5 西浜の COD 75% 値

### 3.2 COD構成要素調査結果

表1にCOD構成要素の調査結果を示す。桂島と西浜に際立った差は見られず、いずれの項目も同程度のレベルであり、夏季に高く冬季は低い傾向となっている。平成23年8月は震災5ヶ月後のデータであるが、Chl-aが高く懸濁性のCOD(COD-DCOD:CODからDCODを引いたもの)やPOCが高いことから、懸濁性有機物の

の多くを占める植物プランクトンの影響が考えられる。それ以外のデータはCODとDCODがほぼ同程度の値となっていることや、POCに比べDOCが高いことからCODと有機炭素の成分は溶存性物質が大部分を占めているものと考えられる。

表1 COD構成要素調査結果

採水地点	採水年月日	COD	DCOD	COD-DCOD	DOC+POC	DOC	POC	Chl-a	塩分
松島湾 桂島	H23.8.30	5.31	2.60	2.70	3.01	2.00	1.01	7.70	31.8
	H23.12.13	2.21	1.21	1.00	2.03	1.31	0.71	6.77	
	H24.8.27	2.90	3.30	-0.40	1.97	1.49	0.48	8.39	30.5
	H24.12.17	1.60	1.60	0.00	1.57	1.13	0.44	4.35	29.7
	H25.8.19	3.11	2.61	0.50	1.78	1.49	0.29		26.4
	H25.12.17	1.80	1.60	0.20	1.08	0.92	0.16	1.40	30.0
松島湾 西浜	H23.8.30	4.71	2.50	2.20	2.99	1.58	1.41	12.04	31.5
	H23.12.13	1.91	1.31	0.60	1.60	1.28	0.32	3.37	
	H24.8.27	3.00	2.80	0.20	1.95	1.47	0.48	6.09	29.8
	H24.12.17	2.50	2.10	0.40	2.25	1.72	0.53	12.02	29.4
	H25.8.19	3.11	2.91	0.20	2.33	1.57	0.76		26.4
	H25.12.17	1.90	1.80	0.10	1.10	1.02	0.08	1.04	29.8

単位：Chl-a( $\mu\text{g/L}$ )、塩分( $\text{‰}$ )、他( $\text{mg/L}$ )

図4に桂島と西浜におけるCOD関連項目間の関係を示す。POCとChl-aは正相関を示しているが、懸濁性のCOD(COD-DCOD)とChl-aの相関はそれほど高くなく、Chl-aは有機炭素に関与しているものと考えられる。懸濁性のCODとPOCは正相関を示し、懸濁性のCODは懸濁性有機炭素つまり植物プランクトンの存在量に関与しているものと考えられる。CODと

(DOC+POC)は高い正相関を示し、有機炭素がCODを支配しているものと考えられる。国立環境研究所の中間報告によると、全国的にはDCODとDOCには高い相関が得られているが、松島湾については、低い正相関を示しているもののDCODの主成分がDOCとは断言できないと考えられる。

なお、桂島と西浜における差は見られなかった。

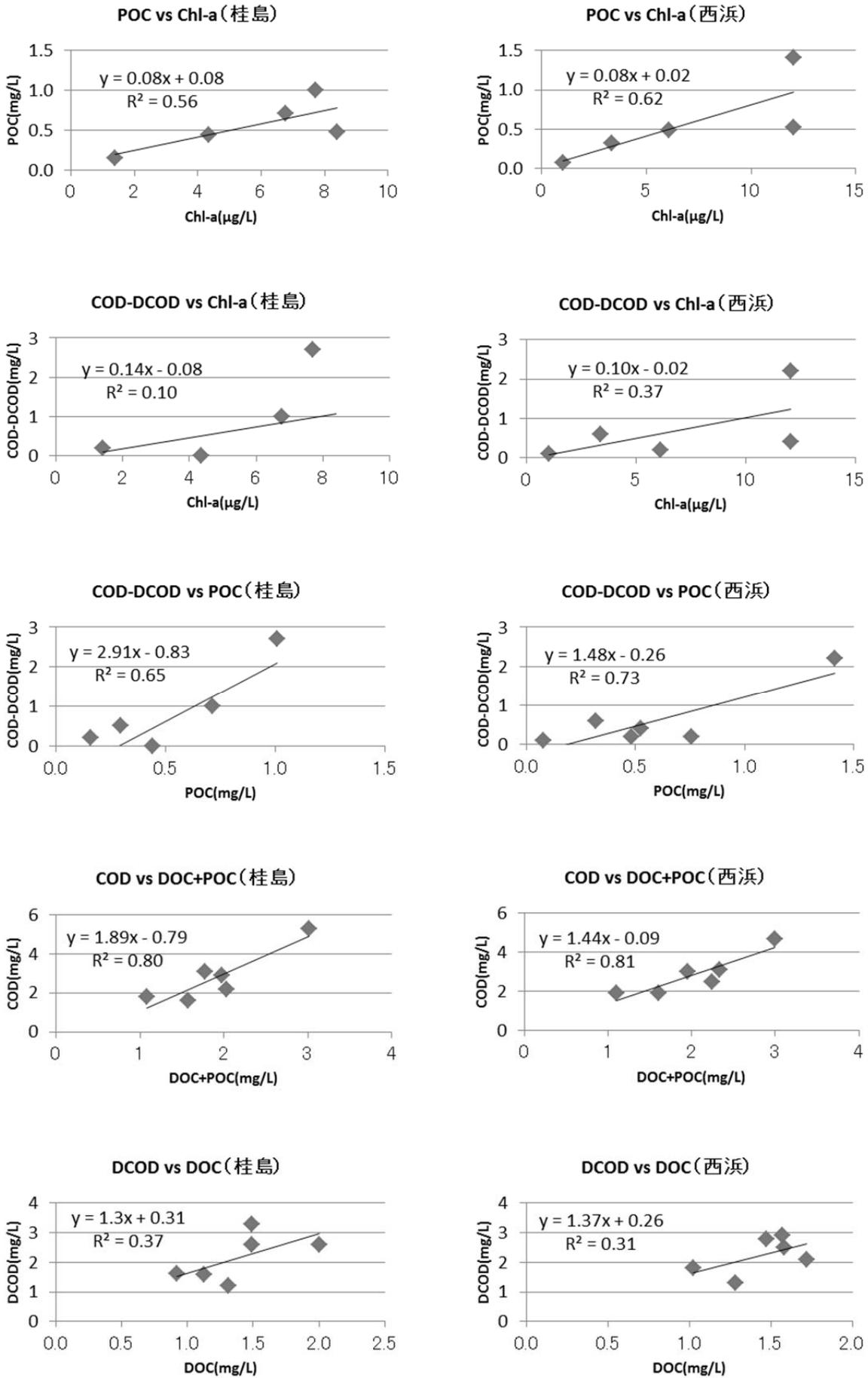


図 4 桂島と西浜におけるCOD関連項目間の関係

### 3.3 栄養塩類調査結果

表2に栄養塩類調査結果を示す。桂島は季節による変動は見られないが、西浜は冬季に比較し夏季の栄養塩濃度が低い傾向にあり、夏季には植物プランクトンの生産

活動により栄養塩類が取り込まれているものと考えられる。

表2 栄養塩類調査結果

採水地点	採水年月日	NO <sub>3</sub> -N	NO <sub>2</sub> -N	NH <sub>4</sub> -N	DIN	DTN	PO <sub>4</sub> -P	DTP	SiO <sub>2</sub>
松島湾 桂島	H23.8.30	N.D.	N.D.	0.005	0.005	0.228	0.006	0.023	2.813
	H23.12.13	N.D.	0.003	0.004	0.007	0.176	0.000	0.007	0.358
	H24.8.27	N.D.	0.001	N.D.	0.001	0.285	0.021	0.031	0.938
	H24.12.17	N.D.	0.001	N.D.	0.001	0.163	0.002	0.012	0.200
	H25.8.19	N.D.	0.001	0.004	0.005	0.159	0.008	0.017	2.277
	H25.12.17	0.066	0.006	0.014	0.086	0.202	0.017	0.019	0.867
松島湾 西浜	H23.8.30	N.D.	N.D.	0.003	0.003	0.209	0.001	0.016	2.347
	H23.12.13	0.108	0.017	0.147	0.272	0.479	0.029	0.037	1.521
	H24.8.27	N.D.	0.002	N.D.	0.002	0.219	0.006	0.017	1.468
	H24.12.17	0.018	0.006	0.096	0.120	0.291	0.002	0.018	0.269
	H25.8.19	N.D.	0.000	0.000	0.001	0.163	0.005	0.013	2.305
	H25.12.17	0.160	0.015	0.082	0.256	0.388	0.023	0.026	1.226

単位：mg/L

### 3.4 鉛直分布調査結果

図5に松島湾における水質鉛直分布調査結果を示す。H23.8.30のデータでは、桂島及び西浜とも1m付近に弱い躍層が見られChl-aが変化している。塩分濃度から判断して淡水流入量は少なく、DO値は底層に行くほど低くなるが貧酸素状態とはなっていない。

H24.8.27のデータでは、西浜において3m付近に水温躍層がみられ、表層では水温28℃が底層では24℃とな

っている。DO値は表層で6.3mg/Lであったが、底層では貧酸素水塊の目安とされ、底生生物の生息状況に変化を引き起こす臨界濃度とされる4.3mg/Lを下回る3.2mg/Lを観測した。

H25.8.19のデータでは、桂島において2m付近に水温躍層が見られ、西浜では5m付近に水温躍層が見られたが、貧酸素状態とはならなかった。

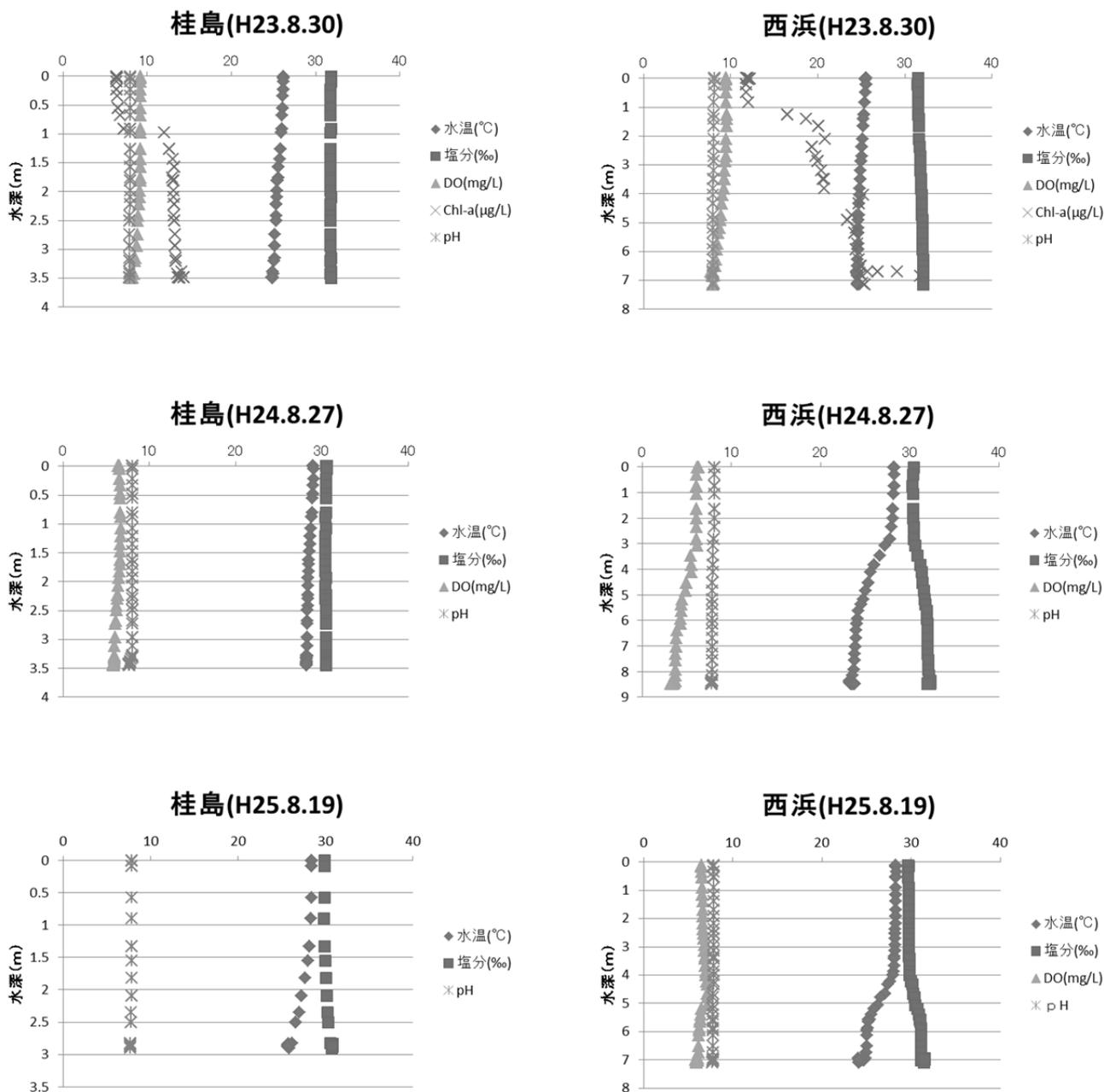


図5 松島湾における水質鉛直分布調査結果

図6に気仙沼湾における水質鉛直分布調査結果を示す。震災後の H23.9.15 のデータによると、湾奥である神明崎、蜂ヶ崎では表層付近に植物プランクトンの影響と考えられる Chl-a の変化が見られるが、水温躍層は形成されていない。津波被害で処理機能を失った未処理排水が大量に流れ込んだ大川河口では、低塩分表層水による表層 DO の低下が見られた。最深部の大島北では、水深 27m 付近に水温躍層が形成され、これを境に貧酸素水塊が発生し、最深部では DO 値が 3.2mg/L まで低下した。

H24.9.6 は、気仙沼湾では *Prorocentrum* 属（渦鞭毛藻）による赤潮が大発生しており、湾奥部の神明崎では表層 DO が光合成により過飽和となっていたが、底層では DO 値 2.3mg/L と貧酸素水塊を形成していた。蜂ヶ崎、大川河口では、低塩分表層水が見られ、大島北では水温が徐々に低下し、10~15m にかけて DO 値が急激に低下し、底層では 4.8mg/L まで低下したが、貧酸素水塊の目安 4.3mg/L には至らなかった。

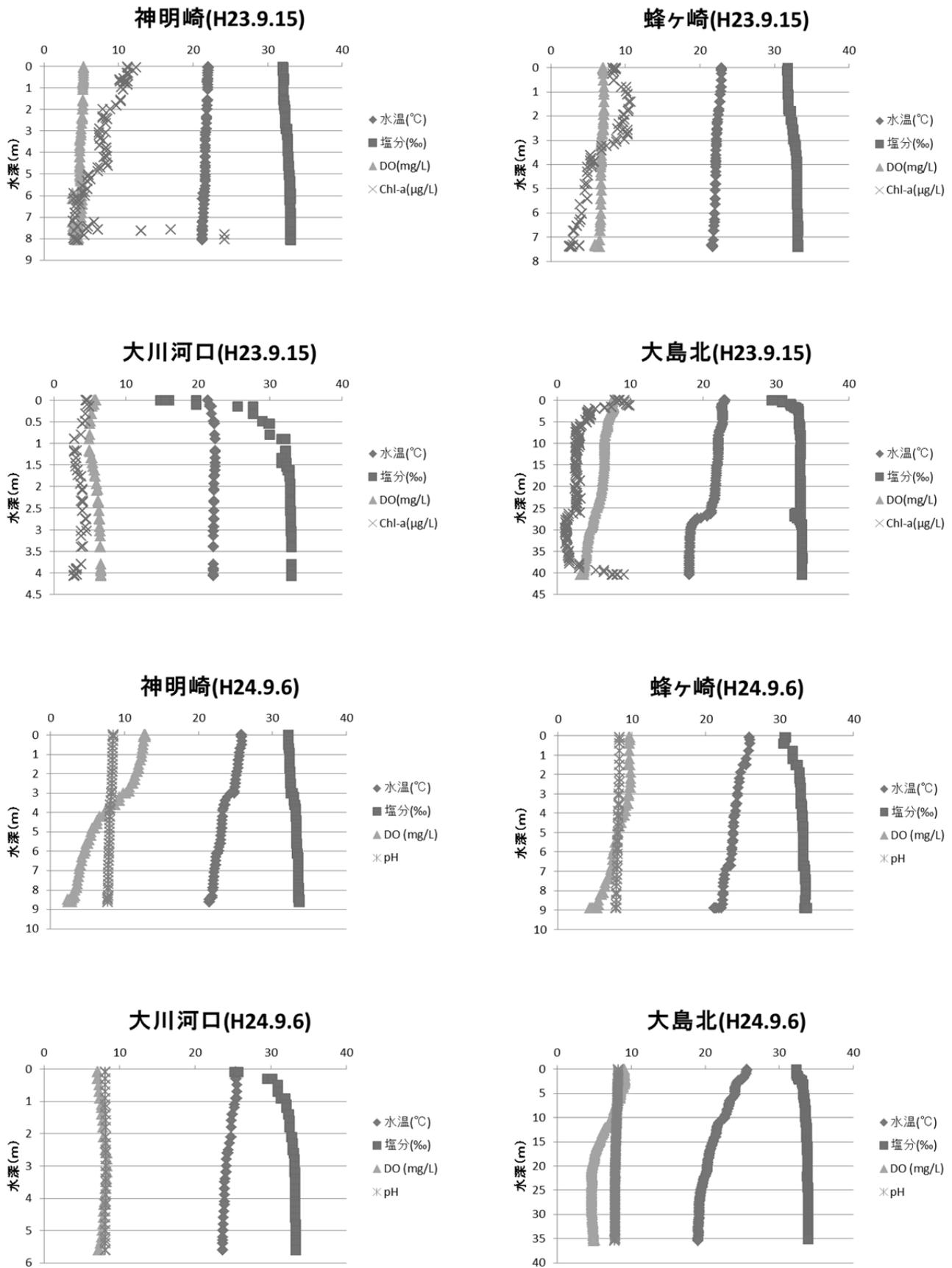


図6 気仙沼湾における水質鉛直分布調査結果

#### 4 まとめ

- ① 過去 10 年間のデータによると、松島湾桂島及び西浜における COD トレンドは、夏季に高く冬季は低い傾向を示し、全体的には漸増傾向を示している。COD75%値では、桂島は A 類型の環境基準値 2mg/L を超過しており、西浜は B 類型の環境基準値 3mg/L を達成している。
- ② COD 構成要素の調査結果では、桂島と西浜に際立った差は見られず、いずれの項目も同程度のレベルであり、夏季に高く冬季は低い傾向となっている。平成 23 年 8 月は震災 5 ヶ月後のデータであるが、Chl-a が高く懸濁性の COD や POC が高いことから、懸濁性有機物の多くを占める植物プランクトンの影響が考えられる。それ以外のデータは COD と DCOD がほぼ同程度の値となっていることや、POC に比べ DOC が高いことから COD と有機炭素の成分は溶存性物質が大部分を占めているものと考えられる。
- ③ COD 関連項目間の関係では、POC と Chl-a は正相関を示しているが、懸濁性の COD と Chl-a の相関は高くなく、Chl-a は有機炭素に関与しているものと考えられる。懸濁性の COD と POC は正相関を示し、懸濁性の COD は懸濁性有機炭素つまり植物プランクトンの存在量に関与しているものと考えられる。COD と (DOC+POC) は高い正相関を示し、有機炭素が COD を支配しているものと考えられる。DCOD と DOC は低い正相関を示している。
- ④ 栄養塩類調査結果では、桂島は季節による変動は見られないが、西浜は冬季に比較し夏季の栄養塩濃度が低い傾向にあり、夏季には植物プランクトンの生産活動により栄養塩類が取り込まれているものと考えられる。
- ⑤ 松島湾における水質鉛直分布調査結果によると、H23.8.30 のデータでは、桂島及び西浜とも 1m 付近に弱い躍層が見られ Chl-a が変化している。塩分濃度から判断して淡水流入量は少なく、DO 値は底層に行くほど低くなるが貧酸素状態とはなっていない。
- H24.8.27 のデータでは、西浜において 3m 付近に水温躍層がみられ、表層では水温 28℃が底層では 24℃となっている。DO 値は表層で 6.3mg/L であったが、

底層では貧酸素水塊の目安とされる 4.3mg/L を下回る 3.2mg/L を観測した。

H25.8.19 のデータでは、桂島において 2m 付近に水温躍層が見られ、西浜では 5m 付近に水温躍層が見られたが、貧酸素状態とはならなかった。

- ⑥ 気仙沼湾における水質鉛直分布調査結果によると、震災後の H23.9.15 のデータでは、湾奥である神明崎、蜂ヶ崎では表層付近に植物プランクトンの影響と考えられる Chl-a の変化が見られるが、水温躍層は形成されていない。大川河口では、低塩分表層水による表層 DO の低下が見られた。最深部の大島北では、水深 27m 付近に水温躍層が形成され、これを境に貧酸素水塊が発生し最深部では DO 値が 3.2mg/L まで低下した。
- H24.9.6 は、気仙沼湾に赤潮が大発生しており、湾奥部の神明崎では表層 DO が過飽和となっていたが、底層では 2.3mg/L と貧酸素水塊を形成していた。大島北では 10~15m にかけて DO 値が急激に低下し、底層では 4.8mg/L まで低下したが、貧酸素水塊の目安 4.3mg/L には至らなかった。

本報告書は、宮城県のデータをまとめたものであるが、II 型共同研究参加機関が各々のデータをまとめ、国立環境研究所が報告書として取りまとめることから、東京湾と松島湾の比較等全国的な傾向が把握できるものと期待される。

#### 参考文献

- 1) 国立環境研究所 牧秀明  
「茨城県沿岸海域公共用水域常時監視点における COD と関連する有機物項目について」  
【平成 26 年 3 月】
- 2) 鹿児島県環境保健センター 貴島宏 他  
「鹿児島湾における水質調査に関する考察」  
【平成 24 年度所報第 13 号】
- 3) 宮城県公共用水域及び地下水水質測定結果  
報告書  
【平成 13~22 年度】