

# 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

1994年4月1日から施行された感染症法において、感染症発生動向調査は感染症の発生を予防するために重要な事業とされ充実が図られている。本調査は、患者の発生を週単位または月単位で収集し、分析、公開する患者情報と感染症拡大防止のための病原体情報の機能を有している。患者情報に関する結核・感染症情報センターとしての業務は、センター内の組織改変により2006年4月1日より企画情報部から微生物部に業務移管された。

この業務は厚生労働省のWISHネットを用い、全ての医療機関に報告が義務づけられている一類から五類感染症(58疾病)及び、県内定点医療機関から毎週報告される定点報告五類感染症(21疾病)と県独自に選定した4疾病、並びに毎月報告される定点報告五類感染症(7疾病)

の患者発生情報を県内各保健所経由で収集し、毎週並びに毎月集計の上、中央感染症情報センター(国立感染症研究所)へオンラインにより報告すること。及び還元されたデータをもとに県が設置する感染症対策委員会情報解析部会事務局として解析コメントを作成し週報、月報としてとりまとめ、保健所、市町村、県医師会、県地域医療情報センター、教育委員会等へ還元並びにホームページ上で公開することである。これらの情報を2006年1月から12月までの集計(2006年第1週から第52週)として報告する。また宮城県では2002年4月より宮城県医師会と県内の医療機関及び保健所の協力を得て「宮城県結核・感染症発生動向調査事業実施要綱」に基づき、感染症の病原体検査を開始した。今回は2006年4月から2007年3月までに得られた病原体の検出状況を報告する。

表1 全数把握感染症報告数(2006)

疾病名	報告数	疾病名	報告数
<b>一類感染症</b>		30	デング熱
1	エボラ出血熱	31	ニパウイルス感染症
2	クリミア・コンゴ出血熱	32	日本紅斑熱
3	重症急性呼吸器症候群(SARS)	33	日本脳炎
4	痘そう	34	ハンタウイルス肺症候群
5	ペスト	35	Bウイルス病
6	マールブルグ病	36	ブルセラ症
7	ラッサ熱	37	発疹チフス
<b>二類感染症</b>		38	ボツリヌス症
8	急性灰白髄炎	39	マラリア
9	コレラ	40	野兔病
10	細菌性赤痢	41	ライム病
11	ジフテリア	42	リッサウイルス感染症
12	腸チフス	43	レジオネラ症
13	パラチフス	44	レプトスピラ症
<b>三類感染症</b>		<b>五類感染症</b>	
14	腸管出血性大腸菌感染症	45	アメーバ赤痢
<b>四類感染症</b>		46	ウイルス性肝炎(E型、A型を除く)
15	E型肝炎	47	急性脳炎(ウエストナイル脳炎、日本脳炎を除く)
16	ウエストナイル熱(ウエストナイル脳炎を含む)	48	クリプトスポリジウム症
17	A型肝炎	49	クロイツフェルト・ヤコブ病
18	エキノコックス症	50	劇症型溶血性レンサ球菌感染症
19	黄熱	51	後天性免疫不全症候群
20	オウム病	52	ジアルジア症
21	回帰熱	53	髄膜炎菌性髄膜炎
22	Q熱	54	先天性風疹症候群
23	狂犬病	55	梅毒
24	高病原性鳥インフルエンザ	56	破傷風
25	コクシジオイデス症	57	バンコマイシン耐性黄色ブドウ球菌感染症
26	サル痘	58	バンコマイシン耐性腸球菌感染症
27	腎症候性出血熱	<b>指定感染症</b>	
28	炭疽	インフルエンザ(H5N1)	
29	つつが虫病		

## 2 結核・感染症情報センター

### 2.1 全数把握感染症報告数

全ての医療機関に報告が義務づけられている一類から五類感染症(58疾病)について表1に示した。なお、一類から五類感染症の分類は2007年4月1日より感染症法の改正により変更になったが、今回の集計は改正前の分類によるものである。一類感染症は報告がなく、二類感染症は細菌性赤痢が8件あった。三類の腸管出血性大腸菌感染症は51件と2005年の98件に比較してかなり減少した。四類はレジオネラ症10件、E型肝炎2件、A型肝炎4件、オウム病、ブルセラ症、レプトスピラ症、ポツリヌス症がそれぞれ1件報告された。ポツリヌス症については本誌論文「井戸水を原因とした乳児ポツリヌス症の発生とその疫学的対応」を参照されたい。五類感染症は梅毒が20件と多く、アメーバ赤痢16件、ウイルス性肝炎(E型・A型を除く)、後天性免疫不全症候群がそれぞれ15件、その他に急性脳炎、クロイツフェルト・ヤコブ病、髄膜炎菌性髄膜炎、破傷風、バンコマイシン耐性腸球菌感染症が1件ずつ報告されたが、特に例年と変化があるものではなかった。後天性免疫不全症候群は初発症例からの累計数で91件になった。

### 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21疾病と毎月報告される7疾病について、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。定点医療機関数は保健所ごとに人口により定数が決められている。週報のインフルエンザ定点は99医療機関(小児科定点を含む)、小児科定点は61医療機関、眼科定点は12医療機関、基幹定点は12医療機関、月報の性感染症定点は19医療機関、耐性菌に関しては12基幹定点医療機関に依頼した。2006年12月に全国的に猛威を振るった感染性胃腸炎に関しては宮城県でも同様に報告数が多く、定点医療機関数で割った定点当たり報告数でも1定点当たり約40件昨年より多く報告されたことになる。今年のノロウイルスによる感染性胃腸炎については本誌論文「2006年シーズンに検出されたノロウイルス遺伝子型についての検討」を参照されたい。また全国的に夏場に大きな流行をみた咽頭結膜熱(プール熱)は宮城県ではそれほど大きな流行は見られなかった。例年と比較してまた全国と比較して、その他の疾病で特に特徴あるものはなかった。

表2 定点把握感染症報告数(2006)

2006年 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	900146	201.69	15014	153.20
RSウイルス感染症	24706	8.20	435	7.13
咽頭結膜熱	95991	31.86	840	13.77
A群溶血性レンサ球菌咽頭炎	265304	88.05	6118	100.30
感染性胃腸炎	1148340	381.13	25938	425.21
水痘	265270	88.04	6152	100.85
手足口病	99847	33.14	1583	25.95
伝染性紅斑	60554	20.10	1735	28.44
突発性発疹	103357	34.30	2515	41.23
百日咳	1504	0.50	13	0.21
風疹	509	0.17	10	0.16
ヘルパンギーナ	115147	38.22	3941	64.61
麻疹	521	0.17	9	0.15
流行性耳下腺炎	200458	66.53	5027	82.41
急性出血性結膜炎	822	1.30	78	6.50
流行性角結膜炎	31391	49.67	170	14.17
細菌性髄膜炎	367	0.94	14	1.40
無菌性髄膜炎	1131	2.90	4	0.40
マイコプラズマ肺炎	9487	24.33	396	39.60
クラミジア肺炎	297	0.76	43	4.30
成人麻疹	40	0.10	2	0.20
性器クラミジア感染症	31961	33.96	648	34.11
性器ヘルペスウイルス感染症	10402	11.05	241	12.68
尖圭コンジローマ	6388	6.79	227	11.95
淋菌感染症	12421	13.20	250	13.16
メチシリン耐性黄色ブドウ球菌感染症	22581	50.97	470	42.73
ペニシリン耐性肺炎球菌感染症	5177	11.69	104	9.45
薬剤耐性緑膿菌感染症	631	1.42	40	3.64

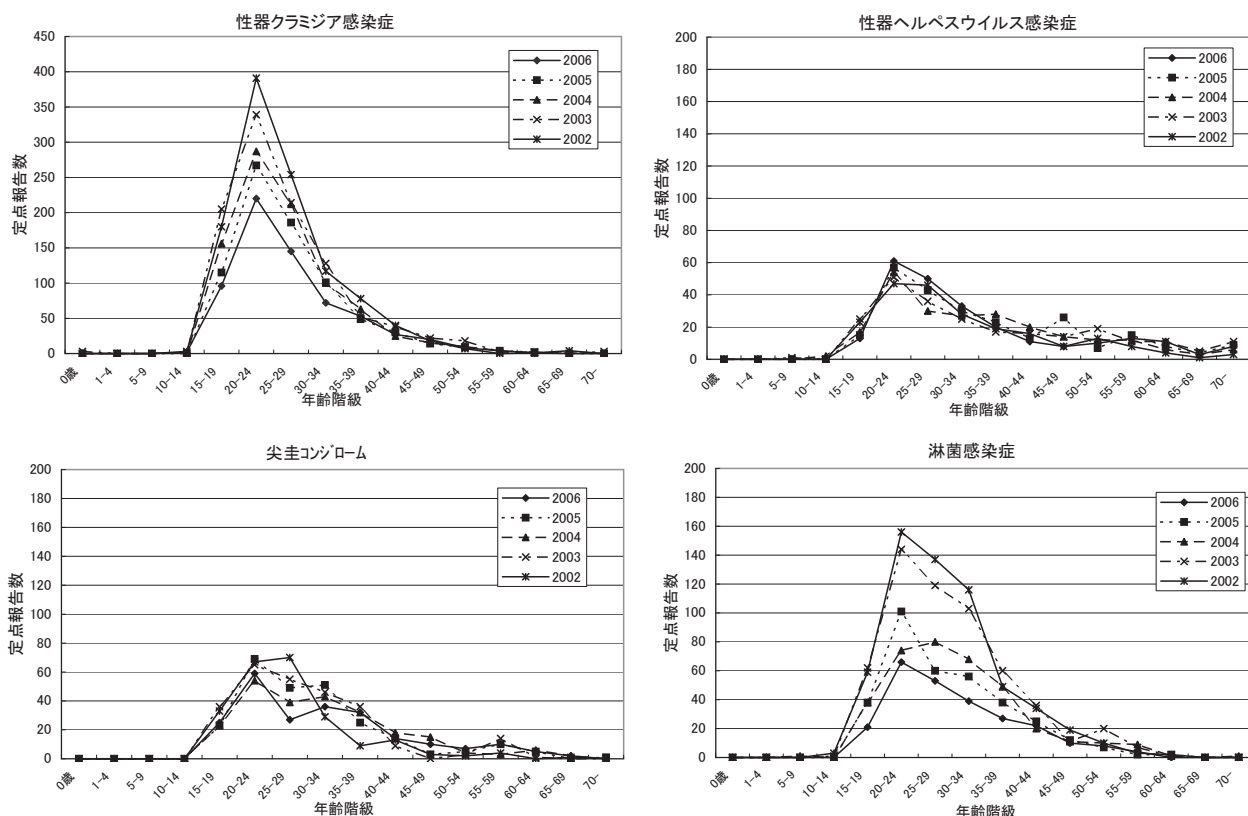


図1 年齢階級別性感染症

### 2.3 年齢階級別性感染症

月報として毎月報告している中で、最近低年齢化が問われている性感染症4疾病について、過去5年間の年齢階級別グラフで示した(図1)。どの感染症も20歳代でピークとなるが、10代でも比較的高い数値を示していることから、早い時期に性感染症に対する教育が必要と思われる。

## 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健康対策課と協議し、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、麻疹、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12疾患とした。

### 3.2 検体採取協力医療機関

要綱の基準に従って宮城県医師会が選定した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6インフルエンザ定点(そのうち3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、流行性耳下腺炎等の11疾患については、主に咽頭拭い液を、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、パラインフルエンザ、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、アデノウイルスを一部の検体についてはアストロウイルス、サポ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, LLC-MK2, RD-18s, Vero, CaCo2, MDCKの6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中和試験、赤血球凝集抑制試験等により同定した。また、PCR法や増幅した遺伝子のシーケンスおよび迅速化のため抗原検出ELISA法キットも使用した。

### 3.5 結果

6病原体定点医療機関および15患者定点医療機関の協力により検体を採取した。採取された検体は187件で月別、診断名別検体数を表3に示した。診断名別に見るとインフルエンザが78件(41.7%)と最も多く、続いて感染性胃腸炎61件(32.6%)、A群溶血性レンサ球菌咽頭炎が19件(10.2%)、ヘルパンギーナ12件、手足口病6件、咽頭結膜熱5件、流行性耳下腺炎2件であった。月別の主な検体採取状況は、4から6月にシーズン後期のインフルエン

ザが15件採取され、5月から8月には手足口病、ヘルパンギーナ、咽頭結膜熱（プール熱）が採取された。感染性胃腸炎では年間を通じて採取された。今年度はノロウイルスによる感染性胃腸炎の報告が通常より早く始まり、例年になく大きなピークを示したが、集団感染症としての発生が多く、その結果発生動向調査の検体採取は少なくなった。またこれとは反対にインフルエンザの流行は例年より遅く、検体も1月に入ってから増加した。

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78件中68件（検出率87.2%）から病原体が検出された。内訳はインフルエンザウイルスA香港（H3）型が51件、Aソ連（H1）型が5件、B型が13件だった。2006/07シーズンの県内におけるインフルエンザの流行は、1月に入ってから始まり5月まで続いた。シーズン初めのインフルエンザウイルスの型はA香港（H3）型で47件だった。平成19年度の集計も入るが、3月末から5月までの検体からはB型とAソ連（H1）型のみを検出であった。B型は全シーズン中14件、Aソ連（H1）型は11件の検出だった。また同一検体からAソ連（H1）型とB型が検出されたものが1件あった。A群溶血性レンサ球菌咽頭

炎患者からの検体19件中14件（73.3%）からA群溶血性レンサ球菌が検出された。手足口病6件からは4件のエンテロウイルスが、ヘルパンギーナ12件からは9件のコクサッキーウイルスが、流行性耳下腺炎2件から1件のムンプスウイルスが、咽頭結膜熱5件からは1件のアデノウイルス3型、2件のコクサッキーウイルスA4型が検出された。また感染性胃腸炎の検体61件中30件（49.2%）から病原体が検出され、その内訳はノロウイルス19件、アデノウイルス3件、ロタウイルス6件、サポウイルスとキャンピロバクターがそれぞれ2件、また同一検体から複数の病原体が検出された例が2件あった。

表3 平成18年度感染症発生動向調査事業(病原体検査)

診断名	月	計	4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3
インフルエンザ		78	1	12	2						1	16	32	14
咽頭結膜熱		5				3		1					1	
A群溶血性レンサ球菌咽頭炎		19		1								8	9	1
感染性胃腸炎		61	3	7	14	4	5	1	5	11	6	3	1	1
ヘルパンギーナ		12				6	6							
手足口病		6		3	1	1	1							
流行性耳下腺炎		2							2					
他の呼吸器系疾患		2			1		1							
その他		2						1					1	
計		187	4	23	18	14	13	3	7	11	7	28	43	16

表4 診断名別病原体検出状況

診断名	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	流行性耳下腺炎	咽頭結膜熱	感染性胃腸炎	他の呼吸器疾患	その他	合計
Influenza virus A(H1)型	5									5
A(H3)型	51									51
B型	13									13
Adenovirus 3型						1	1			2
Adenovirus 型不明							2			2
Mumps virus					1					1
Enterovirus 71型				4						4
Coxsackie virusA4型			8			2				10
Coxsackie virusB4型			1							1
Rsvirus	1									1
Norovirus G I 型							2			2
Norovirus G II 型							17			17
Sapovirus							2			2
Rotavirus							6			6
group AstreptococcusT-1型		5								5
T-4型		5								5
T-12型		4								4
Campylobacter jejuni							2			2
1検体より複数の病原体	2*						2**			4

\* Influenza virusとRotavirus:Influenza virusAとB

\*\* NorovirusとRotavirus: NorovirusとSapovirus



# 感染症流行予測調査

## National Epidemiological Surveillance of Vaccine-preventable Diseases

微生物部  
Department of Microbiology

キーワード：麻疹；風疹；抗体保有状況；日本脳炎；インフルエンザ

**Key words** : measles ; rubella ; distribution of antibody positives ; japanease encephalitis ; influenza

### 1 はじめに

感染症流行予測調査は「集団免疫の現況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、総合的に分析し年度ごとの資料としている。平成18年度は、麻疹感受性調査、風疹感受性調査、日本脳炎感染源調査及びインフルエンザ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および検査方法

#### 2.1 麻疹感受性調査

9月19日から10月30日の期間で採血を行った、県内在住の0～59歳の健康住民244名を対象とした。検査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)に従い、粒子凝集反応(PA)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19日から10月30日の期間で採血を行った、県内在住の0～59歳の健康住民274名(男性136名、女性138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に対するHI抗体価を測定した。

#### 2.3 日本脳炎感染源調査

県南地方で飼育された6ヶ月齢のブタ126頭を対象とし、8月8日から10月10日までの期間に6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。

#### 2.4 新型インフルエンザ(新型インフルエンザウイルスの出現監視を目的とした)感染源調査

7月6日から10月2日の期間で採材したブタの鼻腔拭い液100件を対象とし、検査術式に従いウイルス分離を行った。ウイルスが分離された場合は、国立感染症研究所より指定配布された抗血清3種を用いHI法による亜型の同定を行うこととした。

### 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93.0%で昨年の93.5%<sup>2)</sup>とほぼ同じ結果であった。0～1歳群は62.5%と最も低かったが、これはワクチン接種年齢に達しておらず自然感染の機会も無かった乳幼児が含まれているためである。2歳以上の各年齢群では、10～14歳群で85.0%と低かったものの、90%以上が抗体を保有していた。しかし、集団生活を送る各年齢群に抗体陰性者が存在しており、患者発生時の感染が懸念される。不明者を除くワクチン接種歴別では、接種者97.6%、未接種者72.0%とワクチンの効果は良好であった。また全体のワクチン接種率は83.6%(127/152)であるが、2歳から19歳以下の年齢群では流行を抑制するために必要とされる95%以上<sup>3)</sup>を達成していた。一方、未接種者の76%(19/25)が抗体を保有しており、自然感染により抗体を獲得したものと推測される。しかし、2001年の流行以降全国規模の流行は無く、抗体陰性者の蓄積は今後大きな問題と成りうる。また、抗体を持っていても発症予防には不十分と考えられる64倍以下<sup>3)</sup>の抗体保有者の割合も2.6%あり、ワクチン接種による流行の抑制だけでは感染のコントロールは難しく、追加接種による抗体価の維持も必要になると考えられる。そのため、2006年の予防接種法改正により施行されたワクチンの2回接種法の積極的な勧奨が必要と考えられる。

#### 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。年齢区分別では、0～1歳が56.5%(男62.5%、女50.0%)、10～14歳で55.0%(男45.0%、女66.7%)と50%前後の低い保有率であった。他の年齢群は20～24歳女性と35～39歳男性が70%台でやや低いものの、80%以上の高い保有率を示し、全体としては85.4%で昨年の84.9%<sup>2)</sup>とほぼ同様の結果を得た。しかし、全ての年齢群で抗体陰性者が存在していた。男女別では男性83.8%、女性87.0%と女性が若干高く、女子中学生限定で1977年から行われた定期接種が影響していると考えられる。不明者を除くワクチン接種歴別では、接種者94.7%、未接種者67.9%と有意な差を示した。19歳以下のワクチン接種率は、接種年齢に達していない乳幼児が含まれる0～

表1 麻疹感受性（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	6			2	1		2						1		100	62.5
	不明	5	2				1	1	1						60.0		
	無	5	4					1							25.0		
2～3歳	有	16						1		1	7	1	5	1	100	94.7	
	不明	3	1				1						1	66.7			
	無	0															
4～9歳	有	24							1	4	6	7	2	4	100	97.0	
	不明	8	1				1			1	2	2	1	87.5			
	無	1									1				100		
10～14歳	有	16	1			1	1	1	5	5	2			93.8	85.0		
	不明	3	1					1	1					66.7			
	無	1	1											0			
15～19歳	有	25	1				1	6	6	4	4	1	2	96.0	93.5		
	不明	5	1					2	1				1	75.0			
	無	1								1				100			
20～24歳	有	8			1		1	1	3	1			1	100	94.4		
	不明	8						1	2	2	3			100			
	無	2	1							1				50.0			
25～29歳	有	13	1				1	3	1	4		3		92.3	93.3		
	不明	15	1				2	1	2	2	5	1	1	93.3			
	無	2						1			1			100			
30～34歳	有	10						1	2	3	3		1	100	100		
	不明	12					2	4	3	1	2			100			
	無	2					1				1			100			
35～39歳	有	5								1	2	1	1	100	95.2		
	不明	14						1	1	3	2	4	3	100			
	無	2	1										1	50.0			
40歳以上	有	4								3	1			100	100		
	不明	19				1	1	4	2	4	1	1	5	100			
	無	9					1		2	2	2	1	1	100			
全体	有	127	3		3	2	5	15	22	34	20	13	10	97.6	93.0		
	不明	92	7			1	8	15	14	14	15	8	10	92.4			
	無	25	7				3	1	3	4	4	1	2	72.0			
総計		244	17		3	3	16	31	39	52	39	22	22	93.0%			

※抗体価16倍以上について算出

1歳が54.5%と最も低く、その後9歳までは90%を超えるが、10～14歳で70.6%、15～19歳で60.0%と漸次低下した。この年齢群は、ワクチン接種年齢時1989年から導入され1993年に中止されたMMRワクチン定期接種の年代と前後しており、ワクチン接種の差し控えがあったものと推測される。一方、ワクチン未接種者は67.9%（36／53）が抗体を保有しており、1994年以前は5年毎に風疹の流行が起きていたため<sup>4)</sup>、自然感染により抗体を獲得したものと推測される。しかし、1994年以降は1998年にあった小規模な流行を最後に患者報告は激減している<sup>5)</sup>。今回の調査でも14才以下の未接種者は抗体を保有していなかった。このような抗体陰性者の蓄積は、患者発生時に地域的な流行を起こすおそれがあり、流行が拡大した場合は抗体を持たない妊婦の感染による先天性風疹症候群（CRS）の発生が懸念される。流行の抑制とCRSの発生防止のためにもワクチン接種率の向上が望まれる。また、流行を抑制した場合、野生株暴露によるブースター効果が期待出来なくなり、経時的抗体の減衰が起きると考えられる<sup>6)</sup>。そのため、追加接種の勧奨など適切な対応策を提案する必要がある。

### 3.3 日本脳炎感染源調査

表3に示すとおり、126頭のブタ血清中の日本脳炎抗体価を測定した結果、7件が1：10以上<sup>7)</sup>の抗体価を示した。これらの血清は2ME感受性試験陽性であり、新鮮感染である事を確認した。このことから平成18年度宮城県における日本脳炎ウイルス感染蚊の活動は活発であったと推測される。感染症法の改正に伴い全数把握となった1999年から2005年までの全国における患者発生は、西日本に限局していた。しかし、2006年感染症発生動向調査で報告された8名の患者の内1名は茨城県での発生であった。今後夏季の気温が高く推移した場合、我が県でも患者発生が危惧される事から、今後もブタの感染状況を監視する事が重要である。

### 3.4 新型インフルエンザ感染源調査

ブタ鼻腔拭い液100件を対象にMDCK細胞を使用しインフルエンザウイルス分離を行ったところ、9月に採取した3件からウイルスを分離した。RT-PCRおよびダイレクトシークエンスによる解析の結果、3件ともインフルエンザA／H3N2亜型であることを確認した。なお、詳細は資料『ブタからのインフルエンザウイルスの分離』に示した。

表2 風疹感受性（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	HI抗体価								抗体保有率(%)※		
				<8	8	16	32	64	128	256	512<			
0～1歳	男	有	2	8						2			100	62.5
		不明	6		2		1			1		1	50.0	
		無	1		1								0	
	女	有	4	8				1			1	1	100	
		不明												
		無	4		4								0	
2～4歳	男	有	10	12						7	2	4	90	91.7
		不明	2				1	1					100	
		無												
	女	有	11	14				2	1	3	1	1	100	
		不明	2		1			1			1		50.0	
		無	1		1								0.0	
5～9歳	男	有	9	15			1	3	3	1	2		100	86.7
		不明	5		1		1	1					80.0	
		無	1		1								0	
	女	有	9	11				2	2	3	2		100	
		不明	2				1	1					100	
		無												
10～14歳	男	有	5	11		2				2	1		100	45.0
		不明	2		2								0	
		無	4		4								0	
	女	有	7	9	2	1	1	1	1	1			71.4	
		不明	1						1				100	
		無	1		1								0	
15～19歳	男	有	7	15	1	1	1	2		2			85.7	80.0
		不明	3		1		1						66.7	
		無	5		1			1	2	1			80.0	
	女	有	8	16			2	3	2	1			100	
		不明	3		1		1	1					66.7	
		無	5		1					4			80.0	
20～24歳	男	有	1	11							1		100	100
		不明	9			1	1	2	3	2			100	
		無	1						1				100	
	女	有	4	14	1				1	2			75.0	
		不明	6		2			4					66.7	
		無	4		1		2		1				75.0	
25～29歳	男	有	1	14						1			100	92.9
		不明	11		1		1	4	3	2			90.9	
		無	2						2				100	
	女	有	4	24				1	2			1	100	
		不明	13					7	1	4	1		100	
		無	7		1			4	1		1		85.7	
30～34歳	男	有	1	17						1			100	94.1
		不明	12			1	3	4	2	2			100	
		無	4		1			2	1				75.0	
	女	有	5	9				1	1	1		2	100	
		不明	4		1	1	1						75.0	
		無	0											
35～39歳	男	有	1	13					1				100	76.9
		不明	11		3				2	2	3	1	72.7	
		無	1						1				100	
	女	有	3	13				1		1	1		100	
		不明	9					3	4	1	1		100	
		無	1			1							100	
40歳以上	男	有	0	20										90.0
		不明	14		2	1		3	6	1	1		85.7	
		無	6					1	2	1	1	1	100	
	女	有	2	20			1			1			100	
		不明	13		1		5	2	2	2	1		92.3	
		無	5					3	1	1	1		100	
全体	男	有	37	136	2	3	2	5	13	10	2		94.6	83.8
		不明	74		12	1	5	11	20	12	11	2	83.8	
		無	25		8			2	7	6	1	1	68.0	
	女	有	57	138	3	1	4	12	10	14	8	5	94.7	
		不明	53		6	1	1	7	21	7	7	3	88.7	
		無	28		9			3	7	6	1	1	67.9	
総計			274	40	6	12	40	78	55	30	13	85.4		

※抗体価8倍以上について算出

表3 日本脳炎感染源調査結果

採血日	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
8月8日	19	19									
8月23日	20	18			1	1			10.0	2	2
9月5日	24	24									
9月12日	21	20	1						4.8	1	1
9月28日	18	14	1	2	1				22.2	4	4
10月10日	24	24									
全頭数	126	119	2	2	2	1			5.6	7	7

#### 4 まとめ

平成18年度の感染症流行予測調査は、麻疹感受性調査、風疹感受性調査、日本脳炎感染源調査および新型インフルエンザ感染源調査をおこなった。麻疹感受性調査における調査実施者全体の抗体保有率は93.0%と高かったが、幼稚園や学校などの集団生活を送る各年齢群で抗体陰性者が存在した。ワクチン接種歴別では接種者97.6%、未接種者72.0%でワクチンの効果は良好であった。風疹感受性調査における男女別の抗体保有状況は、男性83.8%、女性87.0%と女性が若干高く、またワクチン接種別では、接種者94.7%、未接種者67.9%と有意な差を示した。しかし、全ての年齢群に抗体陰性者が存在していた。麻疹および風疹は、ワクチン普及に伴い大規模な流行が起これにくくなっている。そのような状況で抗体を獲得し感染防御に必要な抗体価を維持するためには、ワクチン接種率の向上と追加接種の啓発が必要と考えられる(2007年5月末現在、2007年15週から成人麻疹の全国規模での発生が確認された)。

日本脳炎感染源調査では7件が2ME感受性試験陽性であり、県内のウイルス感染蚊の活動が活発であったと

推測される。新型インフルエンザ感染源調査では3件からウイルスを分離したが、新型インフルエンザではなかった。いずれにおいても感染源調査はウイルスの潜伏状況を知るうえで重要であり、実態調査の継続は今後も必要である。

#### 参考文献

- 1) 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術式(2002)
- 2) 宮城県保健環境センター年報, No.24, 141(2006)
- 3) 国立感染症研究所感染症情報センター, 感染症流行予測調査報告書, 153(2005)
- 4) 国立感染症研究所感染症情報センター, 病原微生物検出情報, Vol.21, No.1(2000)
- 5) 国立感染症研究所感染症情報センター, 病原微生物検出情報, Vol.27, No.4(2006)
- 6) 国立感染症研究所感染症情報センター, 感染症流行予測調査報告書, 115(2005)
- 7) 国立感染症研究所感染症情報センター, 感染症流行予測調査報告書, 100(2005)



## 平成 18 年度に宮城県で発生した 2 類 3 類感染症

THE cases of Infectious Diseases Categories II and III in Miyagi prefecture (2006)

微生物部  
Department of Microbiology

キーワード：細菌性赤痢；腸管出血性大腸菌感染症；O157；O26；O103

**Key words**：bacterial shigellosis；entero hemorrhagic E. coli Infection；O157；O26；O103

2 類感染症の発生は、細菌性赤痢が 2 件（患者数 6 名）（表 1）。赤痢患者 6 名のうち *S. flexeri* 3 名、*S. sonnei* 3 名であった。それぞれの家族内感染であった。*S. flexneri*、*S. sonnei* は定型的な赤痢菌の性状を示し、*invE* および *ipaH* を保有していた。

渡航歴は、*S. sonnei* 1 名に認められた。

3 類感染症（腸管出血性大腸菌感染症）の発生は 20 事例で、124 件の検体（糞便、ふきとり、水）について検査を行った結果、陽性者は 23 名であった（表 2）。内訳は、O26 が 5 事例 6 名、O103 が 2 事例 2 名、O157 が 13 事例 15 名であった。O26 が登米保健所管内で 3 事例、大崎保健所管内で 2 事例、石巻保健所管内で 1 事例であった。O103 は大崎保健所管内および登米保健所管内でそ

れぞれ 1 事例であった。O157 は大崎保健所管内、岩沼保健所管内、石巻保健所管内、黒川保健所管内がそれぞれ 3 事例で、塩釜保健所管内で 2 事例、登米保健所管内および気仙沼保健所管内で 1 事例であった。集団発生は無く、すべて家族内感染であった。

表 1 2 類感染症発生状況

感染症名	菌種・血清型	人数
細菌性赤痢	<i>Shigella sonnei</i> I	3
細菌性赤痢	<i>Shigella flexneri</i> 6	3

表 2 3 類感染症発生状況（届出）

No.	受付日	保健所	年齢(才)	性別	血清型	ベロ毒素
1	5.11	大崎	3	女	O157:H7	VT1, 2
2	6.26	登米	11ヶ月	女	O26:H11	VT1
3	6.30	大崎	1	女	O26:HNM	VT1
4	6.30	大崎	29	女	O26:HNM	VT1
5	7.1	登米	4	女	O26:HNM	VT1
6	7.6	登米	7	女	O103:H2	VT1
7	7.19	石巻	46	女	O26:H11	VT1
8	7.26	石巻	10	女	O157:H7	VT2
9	8.1	塩釜	16	女	O157:H7	VT1, 2
10	8.2	塩釜	18	女	O157:H7	VT2
11	8.8	大崎	16	女	O103:H19	VT1
12	8.11	岩沼	2	女	O157:H7	VT2
13	8.11	岩沼	28	女	O157:H7	VT2
14	8.11	大崎	11	男	O157:H7	VT2
15	8.11	大崎	4	女	O157:H7	VT2
16	8.23	登米	3	女	O157:H7	VT2
17	9.4	黒川	8	男	O157:H7	VT1, 2
18	9.5	黒川	30	男	O157:H7	VT1, 2
19	10.26	登米	6	男	O26:H11	VT1
20	11.8	気仙沼	52	女	O157:H7	VT1, 2
21	12.14	石巻	52	男	O157:H7	VT2
22	3.12	石巻	62	女	O157:H7	VT1, 2
23	3.21	黒川	18	女	O157:H7	VT1, 2

## 平成 18 年度食中毒検査結果

## The Result of Examination of Food Poisoning in 2006

微生物部  
Department of Microbiology

キーワード：食中毒；ノロウイルス；ボツリヌス菌

Key words : food poisoning ; Norovirus ; Clostridium botulinum

平成 18 年度、食中毒発生および有症苦情について原因究明のため実施した検査状況を表に示した。

病原物質が検出されたのは 31 事例中 24 事例(77%)で、うち 18 事例からノロウイルスを検出した。その他、検出した原因物質はカンピロバクターが 3 事例、ボツリヌス菌、サルモネラ属菌、黄色ブドウ球菌が各 1 事例であった。ノロウイルスによる事例は 10 月下旬から全国的に猛威を振るい、感染事例が過去 10 年で最大になった。宮城県でも同

様の傾向を示し冬場にノロウイルスによる食中毒等が多発し、検査の結果一部の検体からノロウイルス G II 4 の変異株が検出された。詳細は論文に示した。また、過去に日本で発生したボツリヌス菌食中毒は“いずし”や“芥子レンコン”によるものや 1 歳未満の乳児の蜂蜜による乳児ボツリヌス症が知られているが、今回遭遇したのは白湯や粉ミルクの調製に使用していた井戸水を原因食品とした極めて特異な事例であった。詳細は論文に示した。

表 食中毒検査結果

No.	受付月日	担当保健所	発病場所	原因食品	検体数	検体 (内訳)						検出微生物	備考
						患者便	健康者便	環境	食品	ふき取り	菌株		
1	H18. 4. 4	仙南・大崎	東京都	旅館の食事	3	3						ノロウイルス	関連調査 (食中毒)
2	H18. 4. 12	登米	登米市	不明	4	3	1					ノロウイルス	有症苦情
3	H18. 4. 28	大崎	仙台市	親子丼	1						1	サルモネラ・エンテリチス	関連調査 (食中毒)
4	H18. 6. 8	大崎・塩釜	色麻町	演習場の食事	44	32	5		7			カンピロバクター・ジエニコリノリ	食中毒
5	H18. 6. 26	石巻	韓国他	不明	6	6						検出せず	有症苦情
6	H18. 7. 5	仙南	村田町	不明	97	53	3		26	15		ノロウイルス	感染症
7	H18. 7. 12	大崎・黒川	色麻町	和風鶏ハンバーグ (推定)	87	10	12		59	4	2	カンピロバクター・ジエニ	食中毒
8	H18. 7. 16	石巻	石巻市	調理実習の食事	7	7						カンピロバクター・ジエニ	食中毒
9	H18. 7. 31	仙南	福島県	(仕出し料理)	1	1						検出せず	関連調査 (食中毒)
10	H18. 9. 8	仙南	福島県	旅館の食事	2	2						検出せず	関連調査 (食中毒)
11	H18. 10. 3	塩釜	松島町	キノコ汁	3	3						検出せず	カンピロバクター (推定)
12	H18. 10. 8	大崎	大崎市	井戸水	9			5	3		1	ボツリヌス菌 (A型毒素)	食中毒
13	H18. 10. 9	大崎	大崎市	不明	7	3			1		2	黄色ブドウ球菌エンテロトキシン A, C	苦情
14	H18. 10. 22	栗原	栗原市	不明	5	5						ノロウイルス	有症苦情
15	H18. 10. 25	黒川	東京都	飲食店の食事	1	1						ノロウイルス	関連調査 (食中毒)
16	H18. 10. 31	仙南	白石市	不明	2	2						ノロウイルス	有症苦情
17	H18. 11. 10	仙南・塩釜	埼玉県	不明	19		19					検出せず	関連調査
18	H18. 11. 18	岩沼	亘理町	不明	29	18	3				8	ノロウイルス	有症苦情
19	H18. 11. 20	大崎・登米・石巻・塩釜	大崎市	旅館の食事	65	14	18	6	22		5	ノロウイルス	食中毒
20	H18. 11. 27	気仙沼	気仙沼市	飲食店の配達弁当	28	12	8				8	ノロウイルス	食中毒
21	H18. 11. 27	仙南	船岡町	不明	16	8	8					ノロウイルス	有症苦情
22	H18. 12. 1	塩釜	京都市	飲食店の食事	2	2						ノロウイルス	関連調査 (食中毒)
23	H18. 12. 2	仙南	白石市	不明	7	2	5					ノロウイルス	有症苦情
24	H18. 12. 6	黒川	大阪府	飲食店の食事	1	1						ノロウイルス	関連調査 (食中毒)
25	H18. 12. 14	黒川	仙台市	旅館の食事	1	1						ノロウイルス	関連調査 (食中毒)
26	H18. 12. 14	石巻	女川町他	不明	3		3					ノロウイルス	有症苦情
27	H18. 12. 18	石巻	福島県他	不明	6	6						ノロウイルス	有症苦情
28	H18. 12. 19	築館	沖縄県他	不明	6	6						ノロウイルス	有症苦情
29	H19. 3. 5	気仙沼	気仙沼市他	不明	9		9					検出せず	有症苦情
30	H19. 3. 6	石巻	東京都	生かき	27		27					検出せず	関連調査 (食中毒)
31	H19. 3. 20	大崎	大崎市	不明	15	6	3				6	ノロウイルス	有症苦情
合計					513	207	124	11	118	49	3		

## 平成 18 年度収去食品検査（細菌検査）実績

### Food Safety Survey Concerning Bacterial Contamination in 2006

微生物部  
Department of Microbiology

食品衛生法第 22 条および第 24 条に基づく収去品の検査を実施した。細菌検査について、検体 2,301 件（かき養殖海域海水 142 件含む）、総計 5,252 項目の検査を実施した。実績を表 1 に示した。

表 1 平成 18 年度食品等収去検査実績

食品区分	項目	検体数	細菌数	大腸菌群	基準等を超えたもの	大腸菌群最確数	基準等を超えたもの	大腸菌	基準等を超えたもの	大腸菌最確数	基準等を超えたもの	黄色ブドウ球菌	基準等を超えたもの	サルモネラ属菌	腸炎ビブリオ	基準等を超えたもの	腸炎ビブリオ最確数	基準等を超えたもの	乳酸菌数	クロストリジウム属菌	VTEC	緑膿菌	腸球菌	発育しうる微生物	延項目数
			基準等を超えたもの	基準等を超えたもの	基準等を超えたもの	基準等を超えたもの	基準等を超えたもの	基準等を超えたもの	基準等を超えたもの	基準等を超えたもの	基準等を超えたもの	基準等を超えたもの	基準等を超えたもの	基準等を超えたもの	基準等を超えたもの	基準等を超えたもの	基準等を超えたもの	基準等を超えたもの	基準等を超えたもの	基準等を超えたもの	基準等を超えたもの	基準等を超えたもの	基準等を超えたもの	基準等を超えたもの	
魚介類	生食用かき	223	203							203						119				30					555
	生食用鮮魚介類	133														133									133
	その他	0																							0
冷凍食品	無加熱	5	5	5												1									11
	凍結直前加熱	16	16	16	1																				32
	凍結直前未加熱	23	23					23																	46
	生食用鮮魚介類	1	1	1													1								3
魚介類加工品	魚肉練製品	192	192	1	192	4																			384
	その他	38	16	1	13	1		1			9	1	23	1							1			1	65
肉卵類及びその加工品	食肉製品(加熱後包装)	85	85					85			85	85													340
	食肉製品(包装後加熱)	16	16	16	1														16						48
	食肉製品(乾燥)	4	4					4																	8
	食肉	4	4					4	1		4	4													16
生乳	74	74																							74
牛乳・加工乳	牛乳	167	167	167	1																				334
	加工乳・低脂肪乳	31	31	31																					62
乳製品	乳飲料	47	47	47																					94
	発酵乳	40		40															40						80
	乳酸菌飲料	10		10															10						20
	チーズ他	0																							0
アイスクリーム類・氷菓	アイスクリーム	27	27	27	2																				54
	アイスマルク	10	10	10	4																				20
	氷菓	0																							0
穀類及びその加工品	生めん	39	39					39			39														117
	ゆでめん	31	31	31	1						31														93
	その他(ワフタン皮・即席めん)	4	4					4			4														12
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)	41						41	2					41											82
	つけもの	0																							0
	豆腐	129	129	9	129	16					88														346
菓子類	和生菓子	130	130	15	130	21					130	2													390
	洋生菓子	168	167	7	168	59					168	1													503
	その他	0																							0
	清涼飲料水	14	2	14																		8	8		32
氷雪	ミネラルウォーター	24		24																					24
	清涼飲料水	13	13	13	1																				26
水	0																								0
かん詰・びん詰食品・レトルト	26																						26		26
その他の食品	弁当	101	101	2				96			96														293
	調理パン	13	13					4			4														21
	そうざい	280	280	2				243			243	1													766
器具および容器包装	0																							0	
食品計	2,159	1830	37	1084	112		544	3	203	901	4	90	64	1	254	50	16	31	8	8	27			5,110	
その他	142					142	14																		142
輸入食品再掲	16	6	12				2																2	2	24
合計	2,301	1830	37	1084	112	142	14	544	3	203	901	4	90	64	1	254	50	16	31	8	8	27		5,252	

# PP2A 阻害法を用いるオカダ酸群測定キット及び ELISA 法による イエットキシシ群測定キットの実証試験結果

## The Results of Detection of the Okadaic Acids Using PP2A Obstruction Method and the Yessotoxins Using ELISA Method.

千葉 美子 福原 郁子 柳田 則明\*  
Yoshiko CHIBA, Ikuko FUKUHARA, Noriaki YANAGITA

キーワード：下痢性貝毒 (DSP)；プロテインフォスファターゼ 2A (PP2A)；オカダ酸 (OA) 群；  
酵素免疫測定 (ELISA)；イエットキシシ (YTX) 群

**Key words**：diarrhetic shellfish poison；protein phosphatase 2A；okadaic acids；  
enzyme-linked immunosorbent assay；yessotoxins

### 1 はじめに

下痢性貝毒の我が国の公定試験法はマウス毒性試験を採用しており、可食部 1g 当たり 0.05MU を規制値としている。しかし下痢性貝毒は、化学構造の違いによりオカダ酸 (okadaic acid: OA) 群、イエットキシシ (yessotoxin: YTX) 群、ペクテノトキシシ (pectenotoxin: PTX) 群の 3 群に分けられ、EU の新規制では可食部 100g 当たり OA 群 16 $\mu$ g、YTX 群 100 $\mu$ g、PTX 群 16 $\mu$ g と個別の基準が設けられている。そのため、EU ではマウス毒性試験法のほかに HPLC 法、LC/MS 法、ELISA 法等も検査法として認められ、近年は動物愛護の観点からも動物試験に依存しない貝毒分析法の開発が各国で進められている。

我が国では平成 16 年度から 18 年度まで、農林水産省のプロジェクト研究「現場即応型貝毒検出技術と安全な貝毒モニタリング体制の開発」が(独)水産総合研究センターを中核機関とし、東北大学、北里大学、大阪府立公衆衛生研究所、(財)日本食品分析センターを共同研究機関として実施された。この研究の目的は、生産現場で二枚貝の下痢性貝毒及び麻痺性貝毒を簡便かつ迅速に検査できる簡易測定キットを開発するとともに、簡易測定キットを生産現場の貝毒モニタリング体制に導入することにある。

(財)日本食品分析センターでは下痢性貝毒の簡易測定法開発を担当しており、当部ではそれにより開発された OA 群及び YTX 群測定キット (いずれも試用品) を用いた実証試験に参加した。

また、簡易測定キットの性能を詳細に評価するため、(独)水産総合研究センター東北水産研究所が行った LC/MS/MS による個別の貝毒成分測定結果を併せて報告する。

### 2 方法

#### 2.1 測定実施項目

下痢性貝毒成分のうち OA 群及び YTX 群

#### 2.2 試料及び前処理法

試験品として収去検査を終了した可食部の残品 (全量をホモジナイズして均質化したもの) を -30 $^{\circ}$ C で保存し、試験品の規定保存期間 (3 ヶ月) 終了後の二枚貝類 26 検体 (あさり 11 件、ほたて 6 件、かき 9 件) を試料として用いた。

前処理は、凍結保存試料を解冻し均一化した後、図 1 により検体抽出液を調製し、使用時まで -30 $^{\circ}$ C で冷凍保存した。

#### 2.3 測定方法

##### 2.3.1 オカダ酸群測定方法

OA 群の構造式を図 2 に示した。このキットは、OA を指標として検体中の OA 群を測定する。測定用試料溶

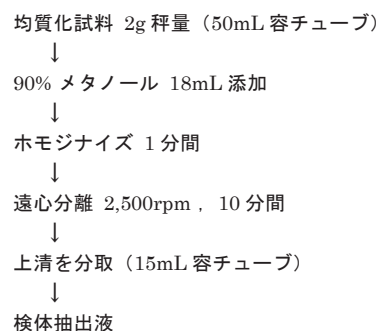


図 1 検体抽出液の調製方法<sup>1), 2)</sup>

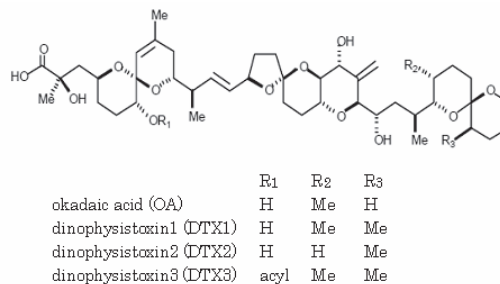


図 2 オカダ酸群構造式

\* 現 石巻保健福祉事務所

液の調製方法を図3に、OA群測定フローを図4に示した。測定溶液中のOA相当量として0.10ng/ml、試料中では0.10 $\mu$ g/gから測定可能で、エステル型OAを含む検体は、アルカリ加水分解処理をすることによりOA総量として求めることもできる。ただし、この場合の定量下限値は0.14 $\mu$ g/gとなる。また、OA群(OA, DTX1及びDTX3の加水分解物)以外のその他の主要な脂溶性貝毒(PTX6, YTX)は、このキットで使用しているPP2Aに対する阻害活性が極めて低いため、試料中の濃度に換算して2 $\mu$ g/g程度までは測定に影響がないことが確認されている。

### 2.3.2 イエットキシン群測定方法

YTXの構造式を図5に示した。このキットは間接競合ELISA法を利用し、YTXを指標として検体中のYTX群を測定する。測定用試料溶液の調製方法を図6

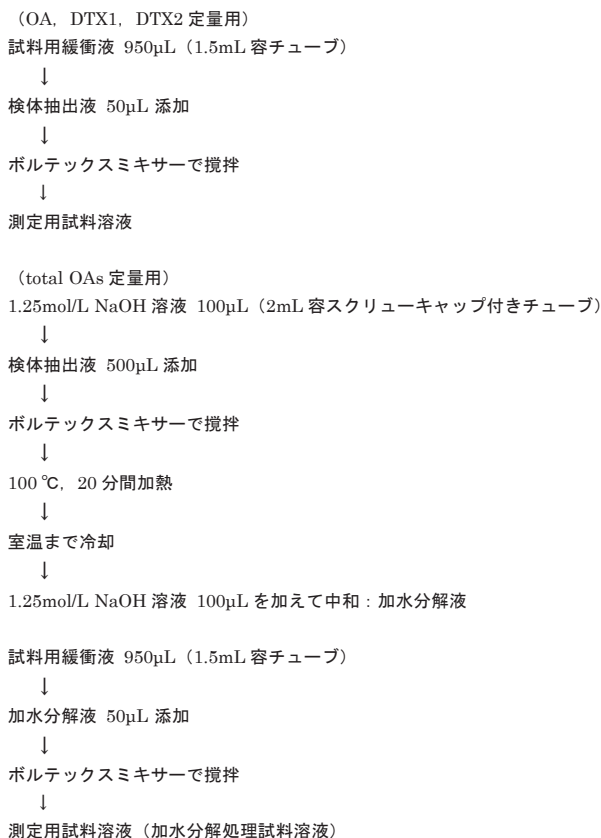


図3 オカダ酸群測定用試料溶液の調製方法<sup>1)</sup>

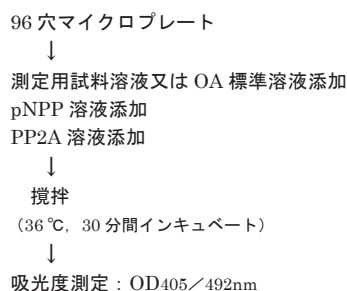


図4 オカダ酸群測定フロー<sup>1)</sup>

に、YTX群測定フローを図7に示した。測定溶液中のYTX相当量として0.10 $\mu$ g/gから測定可能で、YTX群(YTX, 450H-YTX)以外の下痢性貝毒(OA群)及び他の主要な脂溶性貝毒(PTX6)は、このキットで使用している抗YTX抗体に対する交差性が極めて低いため、試料中の濃度に換算して10 $\mu$ g/g程度までは測定に影響がないことが確認されている。ただし450H-YTXは、YTXに比べ8~15倍高くこのキットの抗体と反応するため、LC/MS法に比べ約8~15倍程度高い測定値となる。なお、主に海外で検出されるhomo-YTX等に対する抗体の交差性については、同等であると推定されるが検討中である。

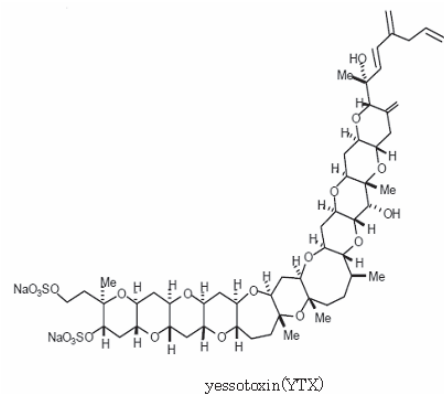


図5 イエットキシン構造式

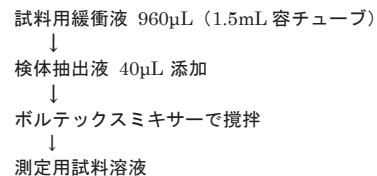


図6 イエットキシン群測定用試料溶液の調製方法<sup>2)</sup>

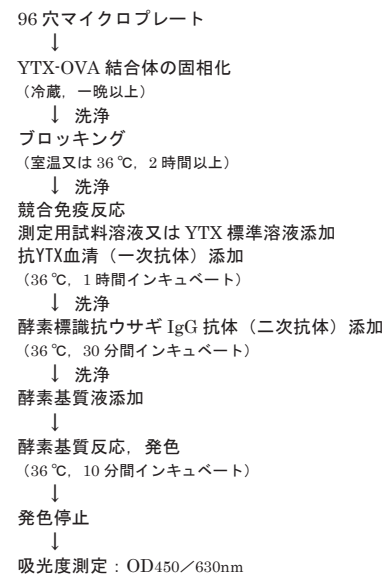


図7 イエットキシン群測定フロー



### 3 結果と考察

#### 3.1 公定法による検査結果

公定法による下痢性貝毒及び麻痺性貝毒の検査結果を表1に示した。

#### 3.2 オカダ酸群及びイエットキシン群のキットによる測定結果

OA (エステル型OA及びOA総量) 群濃度, YTX群濃度をそれぞれのキットを用いて測定した結果及び(独)水産総合研究センター東北水産研究所が実施したLC/MS/MSによる測定結果(定量下限値:0.015µg/g, 検出下限値:0.005µg/g)を表2に示した。

### 4 まとめ

「PP2A 阻害法を用いるオカダ酸群測定キット」及び「ELISA 法によるイエットキシン群測定キット」の実証試験により, 二枚貝の可食部濃度を測定した結果, OA 総量として26件中1検体から0.14µg/g, YTX群は26検体中8件から0.10µg ~ 0.37µg/gの濃度範囲で検出した。これらは, いずれも公定法では検出下限値未満の検体であった(公定法0.05MU/gは, OA群濃度として約0.2µg/g, YTX群濃度として約0.1µg/gに換算される)。YTX群は公定法での抽出操作中に, 水溶性物質(麻痺性貝毒等)と共に大部分が除去されることが確認されており, 公定法では検出できなかったYTX群を検出したと思われる。LC/MS/MSでの測定結果は, YTX群のみ7件から

検出され, その濃度はキットより約10倍程度低い値を示したことから450H-YTXの存在が推測された。今回の実証試験では, 試料として中腸腺ではなく可食部全体を用いたため感度が悪く, 検出検体数が少なかったため相関を見るまでには至らなかった。全国的なデータでは両キット共LC/MS法との高い相関が認められ<sup>3)</sup>, スクリーニング法として十分利用可能であると考えられた。

### 謝辞

この度のコラボレーションに参加させて頂いた(財)日本食品分析センターの関係各位に深謝いたします。

### 引用文献

- 1) (財)日本食品分析センター: Protein Phosphatase 2A (PP2A) 阻害法を用いたオカダ酸群測定キットの実証試験のための取扱説明書(2006年9月)
- 2) (財)日本食品分析センター: 酵素免疫測定(Enzyme-Linked Immunosorbent Assay: ELISA)法を用いたイエットキシン群測定キットの実証試験のための取扱説明書(2006年9月)
- 3) (独)水産総合研究センター東北水産研究所: 先端技術を活用した農林水産省研究高度化事業「現場即応型貝毒検出技術と安全な貝毒モニタリング体制の開発」, 平成16年度研究成果選, 2(平成17年8月)

表1 公定法による測定結果

貝種	下痢性貝毒	麻痺性貝毒
あさり	< 0.05	< 1.91
あさり	< 0.05	< 1.91
ほたて	< 0.05	< 1.91
かき	< 0.05	< 1.91
かき	< 0.05	< 1.91
かき	< 0.05	< 1.91
ほたて	< 0.05	< 1.91
かき	—	14
かき	—	18
かき	—	12
かき	< 0.05	< 1.91
あさり	< 0.05	< 1.91
あさり	< 0.05	< 1.91
あさり	< 0.05	< 1.91
あさり	< 0.05	< 1.91
ほたて	< 0.05	2.1
あさり	< 0.05	< 1.91
ほたて	< 0.05	< 1.91
あさり	< 0.05	< 1.91
あさり	< 0.05	< 1.91
ほたて	< 0.05	< 1.91
あさり	< 0.05	< 1.91
あさり	< 0.05	< 1.91
ほたて	< 0.05	< 1.91
あさり	< 0.05	< 1.91
あさり	< 0.05	< 1.91
かき	< 0.05	< 1.91
かき	< 0.05	< 1.91

(単位: MU/g可食部)

表2 キット及びLC/MS/MSによるオカダ酸群, イエットキシン群の測定結果

OA群		YTX群	OA群	YTX群
加水分解なし	加水分解あり			
< 0.1	< 0.14	< 0.1	N.D.	N.D.
< 0.1	< 0.14	< 0.1	N.D.	N.D.
< 0.1	< 0.14	0.10	N.D.	N.D.
< 0.1	< 0.14	< 0.1	N.D.	N.D.
< 0.1	< 0.14	< 0.1	N.D.	N.D.
< 0.1	0.14	< 0.1	N.D.	N.D.
< 0.1	< 0.14	0.11	N.D.	0.0186
< 0.1	< 0.14	0.29	N.D.	0.0240
< 0.1	< 0.14	0.23	N.D.	0.0167
< 0.1	< 0.14	0.15	N.D.	0.0202
< 0.1	< 0.14	< 0.1	N.D.	N.D.
< 0.1	< 0.14	< 0.1	N.D.	N.D.
< 0.1	< 0.14	0.18	N.D.	N.D.
< 0.1	< 0.14	< 0.1	N.D.	N.D.
< 0.1	< 0.14	0.37	N.D.	0.0395
< 0.1	< 0.14	< 0.1	N.D.	N.D.
< 0.1	< 0.14	< 0.1	N.D.	N.D.
< 0.1	< 0.14	< 0.1	N.D.	N.D.
< 0.1	< 0.14	< 0.1	N.D.	N.D.
< 0.1	< 0.14	< 0.1	N.D.	N.D.
< 0.1	< 0.14	< 0.1	N.D.	N.D.
< 0.1	< 0.14	< 0.1	N.D.	N.D.
< 0.1	< 0.14	< 0.1	N.D.	0.0242
< 0.1	< 0.14	< 0.1	N.D.	N.D.
< 0.1	< 0.14	0.21	N.D.	0.0097
< 0.1	< 0.14	< 0.1	N.D.	N.D.

キットによる測定結果 (µg/g可食部)

LC/MS/MS測定結果 (µg/g可食部)

## 平成 18 年度生活化学部検査結果

### Surveillance Data of Chemical Substances in Foods, Household Articles, Drugs and Other Products in 2006

生活化学部  
Department of Chemical Pollution

平成 18 年度の生活化学部における食品、医薬品、家庭用品、浴槽水等の検査結果は、表 1 から表 7 のとおりである。

表 1 カビ毒検査結果

検体名	検体数	検査項目	
		パツリン	
りんごジュース	10	結果 検出率	<0.01 0/10

注) 検出率: 定量下限値以上の値が検出されたもの。

表 2 遺伝子組換え食品検査結果

試験法	検体名	検体数	結果 検出率	組換え遺伝子
定性試験(スターリンクとうもろこし; CBH351)	とうもろこし加工品 (ポップコーン)	10	結果 検出率	不検出 10 0/10
定量試験(ラウンドアップレディー大豆; RRS)	大豆加工品(豆腐)	10	結果 不適率	ND~0.13% 0/10

注) 安全性審査済みのラウンドアップレディー大豆について、分別生産流通管理が適正に行われた場合、5%以下の意図せざる混入がみとめられている。

表 3 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	結果 不適率	対象アレルゲン
うどん	そば	10	結果 不適率	陰性 10 0/10
ビスケット・クッキー (卵表示なし)	卵	10	結果 不適率	陰性 9 陽性 1 1/10
ベビーフード (乳表示なし)	乳	9	結果 不適率	陰性 9 0/9

注) 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 μg 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 μg 未満。

表 4 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
内服薬	2	一硝酸イソソルビド定量試験	1	0
造影カテーテル	1	外観試験	1	0
		溶出物試験	4	0
無承認無許可医薬品	1	医薬品成分*定性試験	5	1
合計	4		11	1

\*: 強壯用医薬品成分シテナフィル類似物質(タラフィル等)

表 5 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		40	0

表6 残留動物用医薬品検査結果

NO.	医薬品名	用途	検査品目および検査件数			
			鶏卵	鶏肉	豚肉	牛肉
1	チアンフェニコール	合成抗菌剤	ND	ND	ND	ND
2	2-アセチルアミノ-5-ニトロチアゾール	寄生虫駆除剤	ND	ND	ND	ND
3	ナイカルバジン	合成抗菌剤	-	ND	ND	ND
4	フロルフェニコール	抗生物質	ND	ND	ND	ND
5	ベンジルペニシリン	抗生物質	-	-	ND	ND
6	エトバペイト	合成抗菌剤	ND	ND	ND	ND
7	クロサンテル	寄生虫駆除剤	-	ND	-	-
8	チアベンダゾールと5-ヒドロキシチアベンダゾールの和	寄生虫駆除剤	ND	ND	ND	ND
9	5-ブロピルスルホニル-1H-ベンズイミダゾール-2-アミン	寄生虫駆除剤	ND	ND	ND	ND
10	フラゾリドン	合成抗菌剤	-	ND	-	-
11	スルファメトキサゾール	合成抗菌剤	-	ND	-	-
12	スルファメラジン	合成抗菌剤	-	ND	-	-
13	スルファジミニン	合成抗菌剤	-	ND	-	-
14	スルファモノメキシシン	合成抗菌剤	-	ND	-	-
15	ダノフロキサシン	合成抗菌剤	-	ND	ND	ND
16	スルファクロルピリダジン	合成抗菌剤	-	ND	-	-
17	エンロフロキサシン	合成抗菌剤	ND	ND	ND	ND
18	オフロキサシン	合成抗菌剤	ND	ND	ND	ND
19	クロビドール	合成抗菌剤	ND	ND	ND	ND
20	スルファジアジン	合成抗菌剤	ND	ND	-	-
21	シプロフロキサシン	合成抗菌剤	-	-	ND	ND
22	リンコマイシン	抗生物質	ND	ND	ND	ND
23	スルファチアゾール	合成抗菌剤	ND	-	-	-
24	レバミゾール	寄生虫駆除剤	ND	ND	ND	ND
25	ピランテル	寄生虫駆除剤	ND	ND	ND	ND
26	ピリメタミン	合成抗菌剤	-	ND	ND	ND
27	オルメトプリム	合成抗菌剤	ND	ND	ND	ND
28	トリメトプリム	合成抗菌剤	ND	ND	ND	ND
29	モランテル	寄生虫駆除剤	ND	ND	ND	ND
30	キシラジン	鎮静剤	-	ND	ND	ND
31	ジアベリジン	合成抗菌剤	ND	ND	ND	ND
32	サラフロキサシン	合成抗菌剤	-	ND	ND	ND
33	イソメタジウム	寄生虫駆除剤	-	-	ND	ND
34	スルファグアナジン	合成抗菌剤	ND	ND	ND	-
35	ナリジクス酸	合成抗菌剤	-	ND	ND	ND
36	アルベンダゾール	寄生虫駆除剤	ND	ND	ND	ND
37	ピロミド酸	合成抗菌剤	-	ND	ND	ND
38	フルベンダゾール	寄生虫駆除剤	ND	ND	ND	ND
39	チルミコシン	抗生物質	ND	-	-	-
40	オキシリン酸	合成抗菌剤	ND	ND	ND	ND
41	スルファキノキサリン	合成抗菌剤	-	ND	-	-
42	スルファジメキシシン	合成抗菌剤	ND	ND	-	ND
43	フルメキン	合成抗菌剤	-	ND	ND	ND
44	ジフラゾン	合成抗菌剤	ND	-	-	ND
45	オキサシリン	合成抗菌剤	-	ND	ND	ND
46	エプリメクチン	寄生虫駆除剤	-	ND	ND	ND
47	ジフルベンズロン	殺虫剤	ND	ND	ND	ND
48	トルフェナム酸	消炎剤	ND	ND	ND	ND
49	スルファセタミド	合成抗菌剤	ND	ND	ND	-
50	スルファペリジン	合成抗菌剤	ND	ND	-	-
51	トリクロルホン	殺虫剤	-	ND	ND	ND
52	トリベレナミン	抗ヒスタミン剤	ND	ND	ND	ND
53	アクロミド	殺虫剤	-	ND	-	-
54	スルファメトキシピリダジン	合成抗菌剤	-	ND	-	-
55	エリスロマイシン	抗生物質	ND	ND	ND	ND
56	スルファニトラン	合成抗菌剤	ND	ND	ND	ND
57	スルファベンズアミド	合成抗菌剤	ND	ND	-	-
58	フェノプカルブ	殺虫剤	ND	ND	ND	ND
59	ロベニジン	合成抗菌剤	ND	ND	ND	ND
60	チアムリン	抗生物質	ND	ND	ND	ND
61	ヒドロコルチゾン	消炎剤	ND	ND	ND	ND
62	ナフシリン	抗生物質	ND	ND	ND	ND
63	ノボビオシン	抗生物質	ND	ND	ND	ND
64	テメホス	殺虫剤	ND	-	ND	ND
65	フルニキシシン	合成抗菌剤	ND	ND	ND	ND
66	メベンダゾール	寄生虫駆除剤	ND	ND	ND	ND
67	ファミフル	殺虫剤	ND	ND	ND	ND
68	デキサメタゾン	消炎剤	ND	ND	ND	ND
69	スルファドキシシン	合成抗菌剤	ND	ND	-	-
検 体 数			6	6	5	5
検 出 率			0/6	0/6	0/5	0/5
検 査 項 目 数			45	62	51	51
総 項 目 数			270	372	255	255

注) ND: 定量下限値未満(定量下限値:0.01ppm, ナフシリンのみ0.005ppm)。

-: 定量できないもの。

検出率: 定量下限値以上の値が検出されたもの。

表7 食品中の残留農薬検査結果

品名	検出農薬名	用途	国産品				輸入品				単位:ppm	
			検体数	濃度範囲	検出件数	基準超過件数	検体数	濃度範囲	検出件数	基準超過件数	基準値(ppm)	検出下限値(ppm)
きゅうり	オキサジキシル	殺菌剤		ND~0.047	1	0					5	0.005
	チアベンダゾール	殺菌剤		ND~0.015	9	0					2	0.005
	プロシミドン	殺菌剤		ND~0.050	4	0					5	0.005
	メタラキシル	殺菌剤		ND~0.008	1	0					2*	0.005
	アルドリン及びディルドリン	殺虫剤	10	ND~0.006	1	0	0				0.02	0.005
	エチオフェンカルブ	殺虫剤		ND~0.006	1	0					5.0	0.005
	イトフェンブ ロックス	殺虫剤		ND~0.006	1	0					2	0.005
	クロルフェナビル	殺虫剤		ND~0.008	1	0					1	0.005
	メタミドホス	殺虫剤		ND~0.014	1	0					1.0	0.005
未成熟いんげん	トリアジメノール	殺菌剤		ND	0	0		ND~0.022	2	0	1	0.005
	フルジオキシニル	殺菌剤		ND~0.013	1	0		ND	0	0	5	0.005
	イソキサチオン	殺虫剤	4	ND	0	0	6	ND~0.013	1	0	0.1	0.005
	イトフェンブ ロックス	殺虫剤		ND~0.012	1	0		ND~0.054	1	0	5	0.005
	ミクロブタニル	殺虫剤		ND	0	0		ND~0.013	1	0	1.0	0.005
	シメエート	殺虫剤		ND	0	0		ND~0.009	1	0	1	0.005
トマト	イプロジオン	殺菌剤		ND~0.017	1	0					5.0	0.005
	シエトフェンカルブ	殺菌剤		ND~0.008	1	0					5.0	0.005
	テトラコナゾール	殺菌剤		ND~0.035	2	0					1	0.005
	フルジオキシニル	殺菌剤		ND~0.013	1	0					2	0.005
	プロシミドン	殺菌剤	10	ND~0.14	2	0	0				5	0.005
	アセタミプリド	殺虫剤		ND~0.029	1	0					5	0.005
	ピメロジン	殺虫剤		ND~0.013	4	0					1	0.005
	ピリダベン	殺虫剤		ND~0.063	2	0					1.0	0.005
	フルフェクスロン	殺虫剤		ND~0.008	1	0					0.5	0.005
	冷凍えだまめ	イソプロチオラン	殺菌剤						ND~0.007	1	0	0.01
イプロジオン		殺菌剤						ND~0.006	1	0	5.0	0.005
イメピコナゾール		殺菌剤						ND~0.005	1	0	0.01	0.005
オキサジキシル		殺菌剤						ND~0.007	1	0	5	0.005
シフェノコナゾール		殺菌剤						ND~0.020	1	(1)	0.01	0.005
フロバモカルブ		殺菌剤						ND~0.012	1	0	0.01	0.005
プロピコナゾール		殺菌剤						ND~0.007	1	0	1	0.005
アセタミプリド		殺虫剤						ND~0.036	3	0	5	0.005
アセフェート		殺虫剤						ND~0.016	1	0	0.5	0.005
イトフェンブ ロックス		殺虫剤						ND~0.034	3	0	5	0.005
クロルピリホス		殺虫剤	0				10	ND~0.034	1	0	0.3	0.005
クロルフルアスロン		殺虫剤						ND~0.008	3	0	2.0	0.005
シベルメリン		殺虫剤						ND~0.11	3	0	5.0	0.005
フィプロニル		殺虫剤						ND~0.003	1	(1)	0.002	0.002
ベルメリン		殺虫剤						ND~0.13	1	0	3.0	0.005
エンドスルファン		殺虫剤						ND~0.006	1	0	0.5	0.005
クロルフェナビル		殺虫剤						ND~0.014	1	0	0.05	0.005
フェントエート		殺虫剤						ND~0.008	1	0	0.1	0.005
フェンバレレート		殺虫剤						ND~0.036	1	0	1.0	0.005
フェンピロキシメート		殺虫剤						ND~0.006	1	0	2.0	0.005
メタミドホス	殺虫剤						ND~0.007	1	0	0.5	0.005	
メタベンズチアスロン	除草剤						ND~0.005	1	0	0.01	0.005	
ブロッコリー	シハロリン	殺虫剤	1	ND	0	0	9	ND~0.007	1	0	0.5	0.005
	シフルトリン	殺虫剤		ND	0	0		ND~0.005	1	0	2.0	0.005
	ベルメリン	殺虫剤		ND	0	0		ND~0.007	1	0	2.0	0.005
だいこん(根)	ホスチアゼート	殺虫剤	8	ND~0.009	1	0	0				0.2	0.005
日本なし	クレソキシメチル	殺菌剤		ND~0.30	9	0					5	0.005
	シフェノコナゾール	殺菌剤		ND~0.029	5	0					1	0.005
	シプロジニル	殺菌剤		ND~0.047	1	0					5	0.005
	ピテルタノール	殺菌剤		ND~0.018	1	0					0.6	0.005
	フェンコナゾール	殺菌剤		ND~0.019	2	0					1	0.005
	ヘキサコナゾール	殺菌剤		ND~0.008	1	0					0.5	0.005
	アセタミプリド	殺虫剤	10	ND~0.007	2	0	0				5	0.005
	シベルメリン	殺虫剤		ND~0.015	1	0					2.0	0.005
	シラフルオフエン	殺虫剤		ND~0.058	5	0					2	0.005
	フェントロチオン	殺虫剤		ND~0.037	1	0					0.2	0.005
	クロルフェナビル	殺虫剤		ND~0.023	4	0					1	0.005
	フェンピロキシメート	殺虫剤		ND~0.006	1	0					1.0	0.005
	フェンプロパトリン	殺虫剤		ND~0.050	3	0					5	0.005
	メソミル	殺虫剤		ND~0.11	3	0					3**	0.005
なす	アセタミプリド	殺虫剤	10	ND~0.031	1	0	0				5	0.005
	イトフェンブ ロックス	殺虫剤		ND~0.035	1	0					2	0.005
	デルタメトリン及びトラロメトリ	殺虫剤		ND~0.006	1	0					0.5	0.005
	エンドスルファン	殺虫剤		ND~0.011	1	0					0.5	0.005

注1)分析対象農薬数は、殺菌剤:70種類、殺虫剤:132種類、除草剤:80種類、植物成長調整剤:5種類、葉害軽減剤:1種類

注2)ND:検出下限値未満

注3)基準超過件数の欄:( )内数字は、ポジティブリスト制度導入前に製造されたもので基準適用対象外のもの。

注4)基準値の欄: \*:メタラキシルおよびメフェノキサム、\*\*:チオジカルブおよびメソミルの基準値

# 産業廃棄物最終処分場における発生ガス及び水質に与える降雨の影響

## Influence of Rainfall on Gas Emission and Water Quality in the Industrial Waste Landfill

菅原 隆一\*<sup>1</sup> 柳 茂 高橋紀世子  
葛岡 勝悦\*<sup>2</sup> 斎藤 善則

Ryuichi SUGAWARA, Shigeru YANAGI, Kiseko TAKAHASHI  
Syoetu KUZUOKA, Yoshinori SAITO

キーワード：産業廃棄物処分場；発生ガス；水質；降雨

Key words : Industrial Waste Landfill ; Landfill Gas ; Water Quality ; Rainfall

### 1 はじめに

宮城県の南部に位置するT処分場は、安定型産業廃棄物処分場として平成2年8月に事業者から設置届出が提出され、平成13年5月に埋立処分終了届出が提出された。埋立面積は87,557㎡で推定埋立容量は1,027,809㎡である。当該処分場は平成11年1月以降硫化水素等悪臭の苦情が頻発し、県は指導・改善命令を行ってきたが、平成15年3月からは管理者不在となったことから、県が代執行により維持管理を行っている。平成16年3月に県はT処分場の廃止に向けた対策を総合的に検討するため、学識経験者、住民代表、行政関係者等で構成する「総合対策検討委員会」を設置し、その委員会での検討や提案を踏まえ体系立てた各種調査を実施している<sup>1)</sup>。その調査の一環として当センターでは、毎月1回、ガス抜き管モニタリング調査（発生ガス及び水質調査）を実施しているが、これまでの調査結果では7～8月に測定値が大きく変動する傾向があり、その原因として降雨の影響が推察された。そこで、今回、梅雨期の6～8月に週1回の詳細調査を実施し、降雨状況と調査項目との関連性について検討を行った。

### 2 調査方法

#### 2.1 調査地点及び期間

毎月実施しているガス抜き管モニタリング調査の7地点の中から比較的硫化水素濃度の高い3地点（No.8, H16-10及びH16-11）と硫化水素濃度は低いが硫酸イオン濃度及び酸化還元電位が高いNo.7-2を選び、さらに水質監視採水地点である浸透水採取設備を加えた計5地点について調査を実施した。各地点を図1に、ガス抜き管等の現況を表1に示す。調査は2006年6月14日から8月17日まで、週1回、計10回実施した。

#### 2.2 調査項目及び方法

表2に調査項目を示す。ただし、浸透水採取設備は水質調査のみである。降水量は処分場内に設置している降雨計のデータを用いた。発生ガス調査の硫化水素、二酸化炭素及び酸素は検知管法、メタンは吸引式ガス検知器法、

発生ガス量は乾式ガスメーター法を用いた。水質調査は原則としてJISK0102に準拠し、アルキルフェノール類は環境省暫定マニュアル<sup>2)</sup>を参考にして、固相抽出後にエチル化しGC/MS法<sup>3)</sup>で測定した。

### 3 結果及び考察

#### 3.1 降水量調査

図2(2-1)に今回の調査期間を含む4～8月の日降水量を示す。期間中の最高降雨は6月9日の57.5mmで、6月の月間降水量は130mmであった。7月の降雨は全て50mm以下で大雨はなかったものの月間降水量は326mmと多

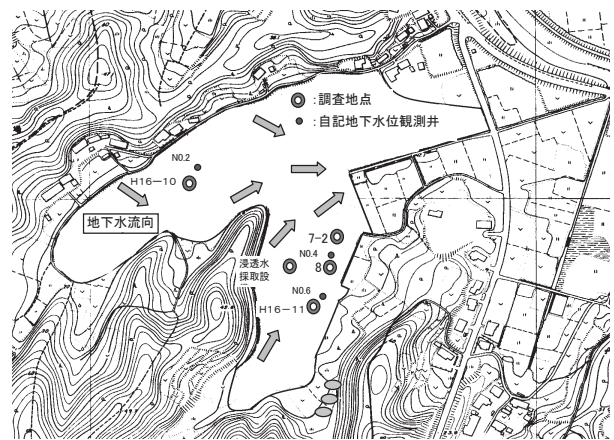


図1 調査地点

表1 ガス抜き管の現況

名称	井戸深度(m)	管径(mm)	材質
No.7-2	6.9	300	塩化ビニル
No.8	7.2	300	塩化ビニル
H16-10	21.4	80	ステンレス、ストレーナ付き
H16-11	20.4	80	ステンレス、ストレーナ付き
浸透水採取設備	9.9	300	塩化ビニル

表2 調査項目

調査内容	調査項目
降水量調査	降水量、水位標高、地下水流動
発生ガス調査	硫化水素、二酸化炭素、酸素、メタン、発生ガス量、ガス温度、孔内温度
水質調査	水位、水温、pH、SS、BOD、硫酸イオン、硝酸性窒素、塩化物イオン、電気伝導率、酸化還元電位、鉛、砒素、ふっ素、ほう素、4-tert-ブチルフェノール及びビスフェノールA(以下4-t-BP及びBPAと記載)

\* 1 現 宮城県循環器・呼吸器病センター

\* 2 現 (財)日本冷凍食品検査協会



かった。図2 (2-2) に自記地下水位観測井3カ所 (No.2, No.4, No.6) の水位標高を示す。水位標高は3カ所とも6月中旬からしだいに上昇し、8月初旬にピークに達するが、これは図2 (2-1) に示す降水量の30日移動平均のグラフ (当日を含め過去30日間の降水量の日平均値をプロットしたグラフ) とほぼ一致していた。図1に各自記地下水位観測井の位置と処分場内の地下水流向を矢印で示す。観測井のNo.2はH16-10に、No.4はNo.7-2及びNo.8に、No.6はH16-11に近い位置にある。これらNo.2, 4, 6の井戸深度は19~20mと同程度で、No.4とNo.6は地下水流動が一致している。

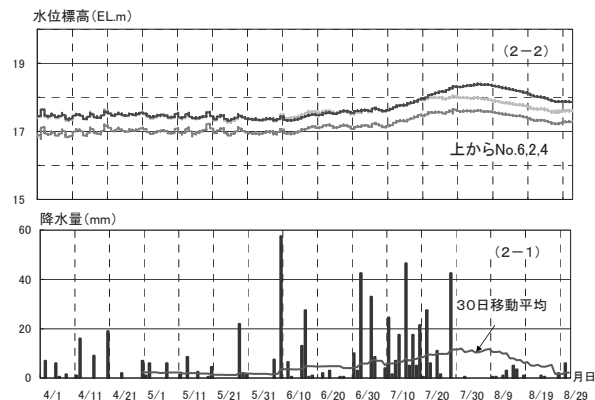


図2 降水量と水位標高の変動 (2006/4/1 ~ 8/31)

### 3.2 発生ガス調査

図3に各地点における測定値の変化を示す。硫化水素は全4地点で7月13日から8月2日までの3週間に大幅な濃度低下があり、特にNo.7-2, H16-10及びH16-11は0.2ppm未満の検出限界以下まで低下したが、その後、No.7-2を除く地点では1~3週間で以前の濃度まで復元した。メタンと二酸化炭素も硫化水素に類似した変動パターンを示した。また、発生ガス量はNo.7-2及び平常発生ガス量の多いH16-10とH16-11ではほとんど発生しない状態まで減少したが、その後、No.7-2を除く地点では復元した。

### 3.3 水質調査

BODは地点中最も濃度の高いH16-11で調査前半に上昇し、後半にほぼ元の濃度に戻った。硫酸イオンはNo.7-2で7月中旬に大幅に上昇し、その後低下した。塩化物イオンは地点により上昇傾向を示すところと低下傾向を示すところがあった。電気伝導率はH16-11で前半に上昇したが、以後はほぼ横這いであった。酸化還元電位は最も高い値を示す浸透水採取設備で7月上旬まで漸増し、その後次第に低下した。全ての調査地点でほう素は13mg/L以下、ふっ素は3.2mg/L以下で推移した。4-t-BPとBPAはH16-11で最も濃度が高く、次いでNo.8で高かったが、他のNo.7-2, H16-10及び浸透水採取設備の3地点ではH16-11の1/10以下と低い濃度であった。鉛と砒素は概ね0.001mg/L未満から0.003mg/Lの範囲にあり、硝酸性窒

素はほぼ全測定値が0.1mg/L未満であった。H16-11では、各項目で7月5日に大きな変動がみられた。5地点の水位は8月初旬にピークがあり、これは図2の降水量と水位標高の変動と同様の変化を示しており、水位への降雨の影響は30日移動平均値で表すことができた。

### 3.4 各調査地点における調査項目の相関

表3に1%両側確率のt検定による項目間の相関を示した。各地点の相関数 (相関係数が0.77以上の数) は、No.8で最も多く、次いでH16-11, No.7-2, H16-10, 浸透水採取設備の順であった。地点毎の特徴として、No.7-2では発生ガス測定項目の相関数が多く、No.8では水質測定項目の相関数が多かった。BODと塩化物イオン、BODとBPA、塩化物イオンとほう素、電気伝導率とほう素、電気伝導率とふっ素、ほう素とふっ素は、3地点以上で正の相関が認められ、二酸化炭素と酸素、酸素とメタン、孔内温度と週降水量は、3地点以上で負の相関が認められた。

降雨を表す指標として、週降水量 (調査日の翌日から次の調査日までの1週間の降水量) と水位に注目し、両者和其他の測定項目との関係と比較してみると、水位の方が相関のある項目が多く、水質変動とより密接に関連していた。週降水量では、No.7-2で孔内温度 (孔口から1m下の温度)、BOD及び塩化物イオン濃度の低下 (負の相関) と硫酸イオン濃度の上昇 (正の相関) する傾向がみられた。他の地点ではNo.8で孔内温度及びメタン濃度の低下、H16-10で水温の低下、浸透水採取設備で孔内温度の低下する傾向がみられた。H16-11では相関は認められなかった。

一方、水位では、No.7-2で硫化水素、二酸化炭素、発生ガス量及びメタン濃度の低下と酸素濃度及び水温の上昇、No.8で水温、BOD、pH、塩化物イオン、電気伝導率、ほう素、ふっ素及びBPA濃度の低下する傾向がみられた。また、H16-10では塩化物イオンとほう素濃度の上昇、H16-11ではメタン、発生ガス量及び二酸化炭素濃度の低下、浸透水採取設備では水温及び酸化還元電位の低下とBOD及びBPA濃度の上昇する傾向がみられた。上記の変動の原因としてNo.7-2とH16-11では降雨から供給された酸素により嫌気性反応の衰退が、No.8では流入した降雨による希釈が、H16-10と浸透水採取設備では降雨の浸透による有機物等の溶出が考えられた。

各地点間の関連性に関しては、水位と発生ガスの測定項目ではNo.7-2とH16-11で比較的類似した傾向を示したが、水位と水質の測定項目では地点間の類似性は認められなかった。特にNo.7-2, No.8及び浸透水採取設備の3地点は距離が数十mと近く、井戸の深度も6.9~9.9mと浅井戸で地下水流向も同一方向であるが、3地点間では発生ガス及び水質の測定項目とも関連性は認められず、各地点の周辺に埋め立てられた地下の廃棄物と降水の挙動が影響していると考えられた。

#### 4 まとめ

産業廃棄物最終処分場における発生ガス及び水質に与える降雨の影響を調査するため、梅雨期の6～8月にガス抜き管等5地点で週1回、計10回の詳細調査を実施し、降雨状況と各調査項目の関連性について検討を行った。その結果、水位は降水量の30日移動平均値とほぼ一致し、水位への降雨の影響は30日間の降雨量平均で説明できた。

降雨を表す指標として水位と他の測定項目との相関を比較したところ、発生ガス測定項目との関係で一部の地点間に類似した傾向がみられたが、水質測定項目との関係では地点間で明確な関係は認められなかった。この原因として発生ガス測定項目では、降雨から供給された酸素により嫌気性反応の衰退が生物化学反応に影響した

が、水質測定項目では、降雨による希釈効果で濃度が減少した地点と有機物の溶出により濃度が上昇した地点があり、地下の廃棄物と降水の挙動が複雑に影響していると考えられた。今回の調査期間では日降水量が100mmを超えるような降雨はなく、今後は大雨の影響を調査することも必要と考えている。

#### 参考文献

- 1) 三沢松子, 阿部智, 山田義輝, 井上雄三: 第27回全国都市清掃研究・事例発表会講演論文集 p.305(2006).
- 2) 環境庁水質保全局水質管理課: 外因性内分泌攪乱物質調査暫定マニュアル (1998).
- 3) 高橋紀世子, 吾妻正道, 斎藤善則: 宮城県保健環境センター年報, 24, 72 (2006).

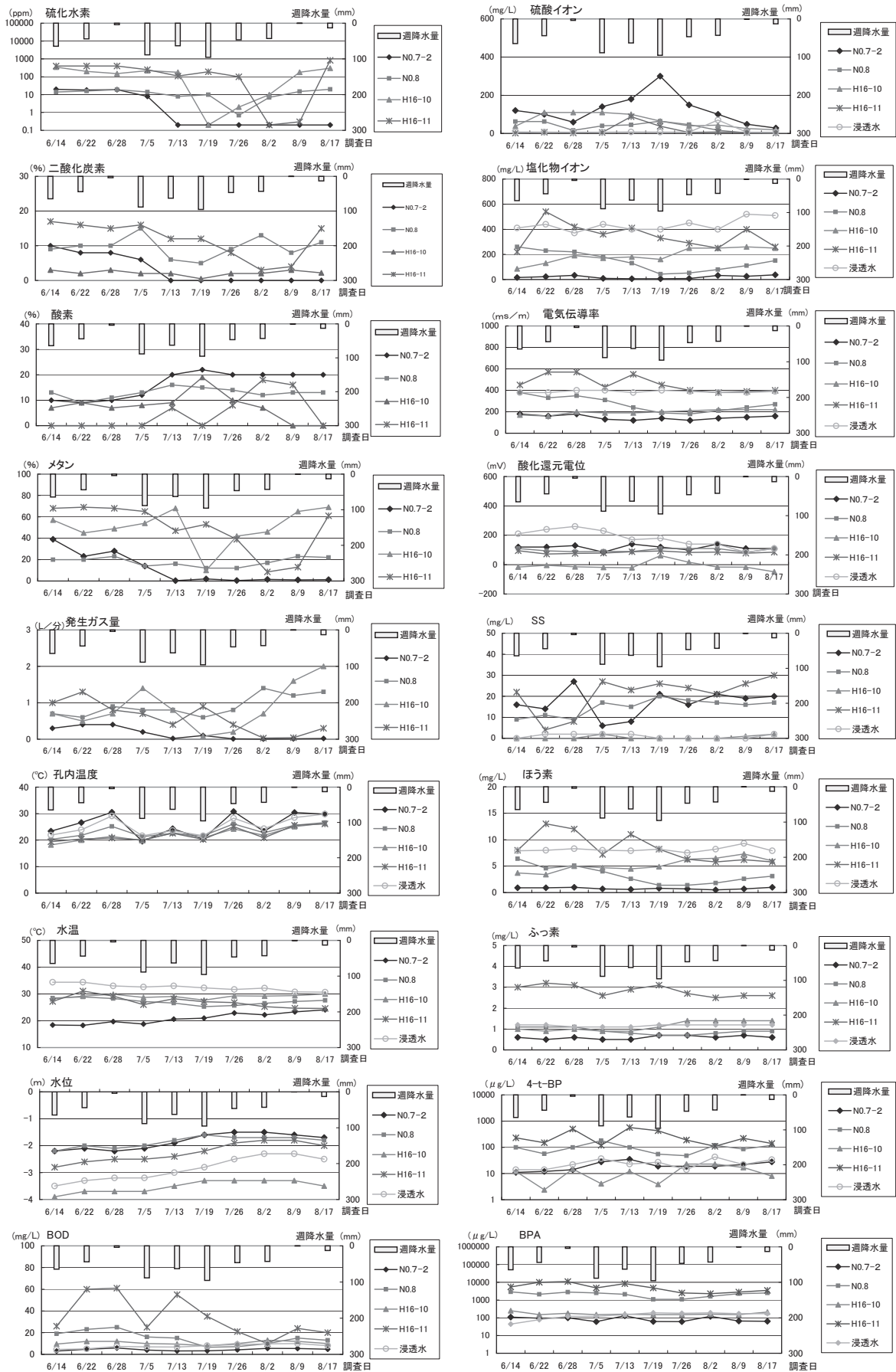


図3 測定値の変化

表3 各調査地点における調査項目の相関

[No. 7-2]

	水温	pH	BOD	SS	ふっ素	塩化物イオン	硫酸イオン	水位	孔内温度	硫化水素	二酸化炭素	酸素	メタン	発生ガス量	電気伝導率	酸化還元電位	4-t-BP	BPA	ほう素	避降水量	
水温	1																				
pH	<b>0.90</b>	1																			
BOD	0.33	0.45	1																		
SS	0.35	<b>0.78</b>	0.60	1																	
ふっ素	0.61	0.65	0.15	0.60	1																
塩化物イオン	0.32	0.58	<b>0.81</b>	0.65	0.02	1															
硫酸イオン	-0.23	-0.27	-0.70	-0.25	0.14	<b>-0.81</b>	1														
水位	<b>0.85</b>	0.61	0.14	0.23	0.65	0.00	0.17	1													
孔内温度	0.51	0.61	0.59	0.47	0.35	0.51	-0.66	0.17	1												
硫化水素	<b>-0.80</b>	-0.41	0.06	0.08	-0.39	0.16	-0.24	<b>-0.88</b>	0.00	1											
二酸化炭素	<b>-0.85</b>	-0.53	-0.03	-0.05	-0.45	0.08	-0.20	<b>-0.91</b>	-0.12	<b>0.98</b>	1										
酸素	<b>-0.85</b>	0.55	-0.08	0.11	0.54	-0.13	0.30	<b>0.91</b>	0.05	<b>-0.96</b>	<b>-0.98</b>	1									
メタン	<b>-0.85</b>	-0.42	-0.06	0.07	-0.32	-0.12	-0.20	<b>-0.86</b>	-0.08	<b>0.97</b>	<b>0.98</b>	<b>-0.92</b>	1								
発生ガス量	<b>-0.85</b>	-0.41	0.08	0.10	-0.41	0.12	-0.13	<b>-0.86</b>	-0.05	<b>0.96</b>	<b>0.94</b>	<b>-0.94</b>	<b>0.90</b>	1							
電気伝導率	-0.30	0.19	0.32	0.57	0.00	0.62	-0.49	-0.55	0.25	0.74	0.67	-0.61	0.76	0.68	1						
酸化還元電位	-0.04	0.23	0.14	0.36	-0.12	0.26	0.05	0.01	0.00	0.05	-0.07	0.11	0.03	0.02	0.19	1					
4-t-BP	0.36	-0.05	-0.24	-0.52	-0.26	-0.23	0.09	0.26	-0.14	-0.67	-0.60	0.54	-0.66	-0.64	-0.65	-0.10	1				
BPA	-0.38	-0.22	-0.02	-0.05	-0.49	0.12	-0.06	-0.32	-0.15	0.30	0.24	-0.23	0.30	0.19	0.18	<b>0.84</b>	-0.06	1			
ほう素	-0.21	0.25	0.09	0.39	0.00	0.37	-0.30	-0.52	0.35	0.59	0.54	-0.50	0.57	0.62	<b>0.77</b>	-0.15	-0.41	-0.25	1		
避降水量	-0.47	-0.60	<b>-0.80</b>	-0.56	-0.22	<b>-0.90</b>	<b>0.85</b>	-0.09	<b>-0.88</b>	-0.05	0.06	0.02	0.02	0.01	-0.44	-0.17	0.13	-0.02	-0.3	1	

[No. 8]

	水温	pH	BOD	SS	ふっ素	塩化物イオン	硫酸イオン	水位	孔内温度	硫化水素	二酸化炭素	酸素	メタン	発生ガス量	電気伝導率	酸化還元電位	4-t-BP	BPA	ほう素	避降水量	
水温	1																				
pH	<b>0.84</b>	1																			
BOD	<b>0.82</b>	<b>0.86</b>	1																		
SS	<b>-0.87</b>	<b>-0.85</b>	<b>-0.90</b>	1																	
ふっ素	<b>0.98</b>	<b>0.95</b>	<b>0.84</b>	<b>-0.82</b>	1																
塩化物イオン	<b>0.94</b>	<b>0.92</b>	<b>0.91</b>	<b>-0.89</b>	<b>0.95</b>	1															
硫酸イオン	-0.07	-0.19	-0.03	-0.12	-0.01	0.13	1														
水位	<b>-0.84</b>	<b>-0.85</b>	<b>-0.84</b>	<b>0.88</b>	<b>-0.98</b>	<b>-0.98</b>	-0.21	1													
孔内温度	-0.13	-0.05	-0.15	0.21	-0.19	-0.33	-0.74	0.37	1												
硫化水素	0.74	<b>0.82</b>	0.69	-0.49	0.74	0.67	-0.36	-0.52	0.06	1											
二酸化炭素	0.32	0.30	0.21	-0.06	0.26	0.29	-0.33	-0.34	-0.02	0.21	1										
酸素	-0.73	-0.61	-0.66	0.57	-0.72	-0.57	0.11	0.49	0.00	-0.49	-0.50	1									
メタン	<b>0.77</b>	<b>0.81</b>	0.69	-0.63	0.74	0.59	-0.57	-0.43	0.32	<b>0.78</b>	0.11	-0.54	1								
発生ガス量	-0.06	0.03	-0.20	0.25	-0.15	-0.26	<b>-0.90</b>	0.34	0.56	0.12	0.39	-0.06	0.41	1							
電気伝導率	<b>0.82</b>	<b>0.83</b>	<b>0.89</b>	<b>-0.87</b>	<b>0.95</b>	<b>0.99</b>	0.11	<b>-0.87</b>	-0.34	0.70	0.31	-0.55	0.58	-0.26	1						
酸化還元電位	-0.34	-0.26	-0.59	0.31	-0.35	-0.31	0.23	0.23	-0.07	-0.35	0.00	0.17	-0.38	0.07	-0.29	1					
4-t-BP	0.20	0.29	0.18	0.01	0.16	0.29	-0.37	-0.32	-0.17	0.33	0.73	0.01	0.11	0.37	0.33	-0.21	1				
BPA	<b>0.83</b>	<b>0.81</b>	<b>0.80</b>	-0.72	<b>0.83</b>	<b>0.86</b>	-0.29	-0.81	-0.07	<b>0.78</b>	0.33	-0.34	0.74	0.10	<b>0.88</b>	-0.43	0.55	1			
ほう素	<b>0.89</b>	<b>0.82</b>	<b>0.88</b>	<b>-0.89</b>	<b>0.94</b>	<b>0.98</b>	0.17	<b>-0.87</b>	-0.36	0.64	0.25	-0.51	0.56	-0.30	<b>0.99</b>	-0.24	0.27	<b>0.85</b>	1		
避降水量	-0.40	-0.44	-0.36	0.32	<b>-0.85</b>	-0.15	0.78	0.04	<b>-0.78</b>	-0.42	-0.08	0.42	<b>-0.81</b>	-0.61	-0.13	0.30	0.10	-0.36	-0.1	1	

[H16-10]

	水温	pH	BOD	SS	ふっ素	塩化物イオン	硫酸イオン	水位	孔内温度	硫化水素	二酸化炭素	酸素	メタン	発生ガス量	電気伝導率	酸化還元電位	4-t-BP	BPA	ほう素	避降水量	
水温	1																				
pH	0.27	1																			
BOD	0.61	0.04	1																		
SS	0.21	0.32	-0.21	1																	
ふっ素	0.36	-0.06	0.24	0.02	1																
塩化物イオン	0.61	-0.15	0.35	0.16	<b>0.83</b>	1															
硫酸イオン	-0.06	-0.23	0.06	-0.02	<b>-0.85</b>	-0.47	1														
水位	0.07	-0.49	0.03	-0.19	0.71	<b>0.77</b>	-0.44	1													
孔内温度	0.64	0.15	0.09	0.21	0.74	<b>0.87</b>	-0.53	0.65	1												
硫化水素	0.14	<b>0.81</b>	-0.07	0.43	-0.34	-0.42	-0.01	-0.76	-0.13	1											
二酸化炭素	0.53	0.68	0.53	-0.05	0.06	0.04	-0.13	-0.45	0.07	0.57	1										
酸素	-0.70	-0.60	-0.63	-0.25	-0.18	-0.25	0.15	0.34	-0.22	-0.56	<b>-0.87</b>	1									
メタン	0.60	0.73	0.30	0.34	0.07	0.21	-0.14	-0.28	0.37	0.68	0.73	<b>-0.87</b>	1								
発生ガス量	0.50	0.74	0.18	0.71	0.25	0.37	-0.28	-0.09	0.49	0.61	0.44	-0.65	0.75	1							
電気伝導率	0.41	-0.13	0.17	0.18	<b>0.84</b>	<b>0.92</b>	-0.58	0.76	<b>0.78</b>	-0.41	-0.02	-0.12	0.09	0.37	1						
酸化還元電位	-0.88	-0.87	-0.43	-0.47	-0.07	-0.21	0.09	0.37	-0.28	-0.68	-0.70	<b>0.92</b>	<b>-0.93</b>	<b>-0.78</b>	-0.10	1					
4-t-BP	0.36	-0.23	0.44	-0.42	0.64	0.60	-0.46	0.45	0.38	-0.41	0.38	-0.38	0.17	-0.12	0.57	-0.12	1				
BPA	-0.02	0.60	-0.19	0.14	-0.03	-0.38	-0.37	-0.59	-0.18	0.70	0.47	-0.36	0.35	0.23	-0.20	-0.41	-0.02	1			
ほう素	0.42	-0.08	0.31	0.05	<b>0.89</b>	<b>0.94</b>	-0.64	<b>0.78</b>	<b>0.77</b>	-0.41	0.11	-0.21	0.15	0.35	<b>0.94</b>	-0.10	0.66	-0.28	1		
避降水量	<b>-0.86</b>	-0.44	-0.65	0.07	-0.49	-0.55	0.30	-0.10	-0.60	-0.17	-0.68	0.65	-0.51	-0.46	-0.43	0.54	-0.43	-0.13	-0.5	1	

[H16-11]

	水温	pH	BOD	SS	ふっ素	塩化物イオン	硫酸イオン	水位	孔内温度	硫化水素	二酸化炭素	酸素	メタン	発生ガス量	電気伝導率	酸化還元電位	4-t-BP	BPA	ほう素	避降水量	
水温	1																				
pH	0.67	1																			
BOD	0.61	0.64	1																		
SS	<b>-0.86</b>	-0.63	-0.73	1																	
ふっ素	<b>0.87</b>	<b>0.80</b>	<b>0.81</b>	-0.67	1																
塩化物イオン	0.69	0.34	<b>0.80</b>	-0.66	0.50	1															
硫酸イオン	0.20	-0.11	0.39	0.15	0.21	0.21	1														
水位	-0.67	-0.57	-0.60	0.46	-0.70	-0.29	-0.09	1													
孔内温度	-0.51	-0.15	-0.31	0.44	-0.53	-0.12	-0.04	0.71	1												
硫化水素	0.09	0.41	0.15	-0.07	0.21	-0.08	-0.30	-0.35	0.08	1											
二酸化炭素	0.50	0.51	0.49	-0.26	0.58	0.18	-0.02	-0.86	-0.42	0.73	1										
酸素	-0.51	-0.48	-0.51	0.16	-0.61	-0.18	-0.15	0.71	0.25	-0.62	<b>-0.91</b>	1									
メタン	0.56	0.55	0.54	-0.33	0.63	0.22	-0.05	<b>-0.83</b>	-0.41	0.71	<b>0.89</b>	<b>-0.94</b>	1								
発生ガス量	<b>0.78</b>	0.64	0.60	-0.58	<b>0.85</b>	0.39	-0.07	<b>-0.84</b>	-0.67	0.36	<b>0.79</b>	-0.74	<b>0.82</b>	1							
電気伝導率	<b>0.91</b>	0.64	<b>0.98</b>	<b>-0.77</b>	<b>0.81</b>	0.73	0.38	-0.69	-0.43	0.18	0.55	-0.									

## 環境中全 PCB 分析の検討 (2)

### Study on the Analytical Method of All PCBs in Environment (2)

鈴木 滋 菱沼早樹子 中村 朋之  
岩澤 理奈 斎藤 善則

Shigeru SUZUKI, Sakiko HISHINUMA, Tomoyuki NAKAMURA  
Rina IWASAWA, Yoshinori SAITO

キーワード：PCB 分析；多層シリカゲルカラム；アルミナカラム

**Key words** : Analysis of PCBs ; Multilayer Silica Gel Column ; Alumina Column

#### 1 はじめに

我々は平成 14 年度から PCDD / DF 類については 4 塩素化以上の全異性体分析を行い汚染源解明の検討を行ってきた。しかし PCB 類は、Co-PCB 類と呼ばれる 14 種類の分析しか実施しておらず、その汚染の全容は把握していない。また平成 13 年 6 月にいわゆる PCB 特別措置法が制定され、PCB の分解処理の実施に伴い、都道府県は区域内での PCB 廃棄物の状況を把握するとともに PCB 廃棄物の確実かつ適正な処理を実行することが定められた。これらの観点から県内環境の PCB 汚染の実態を把握することは、今後の施策を有効に行うために必要と考えられたため、全 209 成分の分析法を検討した。前報<sup>1)</sup>では精製過程での、低塩素化体の回収率の低下等の問題点を報告したが、今回はそれらを検討し、良好な回収率が得られる方法を確立したので、以下報告する。

#### 2 方法

##### 2.1 精製法

図 1

##### 2.2 GC 条件

カラム：HT 8-PCB (60m)

注入量：2 $\mu$ L (スプリットレス)

昇温条件：100 $^{\circ}$ C (1分)  $\rightarrow$  (20 $^{\circ}$ C / 分)  $\rightarrow$  200 $^{\circ}$ C  $\rightarrow$  (2 $^{\circ}$ C / 分)  $\rightarrow$  320 $^{\circ}$ C (14分)

MS 条件：イオン化電圧 40V, イオン化電流 500 $\mu$ A, 加速電圧 4.8KV, 分解能 1 万以上

##### 2.3 標準品

検量線作成用標準品：関東化学(株)製 TPCB-CAL-A, クリーンアップスパイク用標準品：関東化学(株)製 TPCB-CL-A100, シリンジスパイク用標準品：関東化学(株)製 TPCB-SY-A100

##### 2.4 試薬類

溶媒類：すべて関東化学(株)製, ダイオキシン類分析用多層シリカゲル：和光純薬工業(株)製, プレセップ多層シリカゲル, ダイオキシン類分析用

10% AgNO<sub>3</sub>, 10% KOH, 44%硫酸シリカゲル類：すべて和光純薬工業(株)製, ダイオキシン類分析用

シリカゲル：ジーエルサイエンス社製, ヘキサン洗浄

シリカゲル (70 / 200 mesh)

アルミナ：ICN 社製, Alumina B-Super I for dioxin analysis 塩基性活性度 I

##### 2.5 実験

###### 2.5.1 シリカゲルカラムでの溶出パターンの検討

内径 10mm のカラムにシリカゲル (6g) を湿式充填し、上部に無水硫酸ナトリウム 1g を積層する。このカラムにクリーンアップスパイク (以下 CS) の <sup>13</sup>C<sub>12</sub>PCB 類 500 ~ 1000pg (1 ~ 2 及び 8 ~ 10 塩素体 1000pg, その他 500pg) を添加後、n-ヘキサン 200mL で溶出する。溶出画分は 50mL ずつ分画し、各画分を、それぞれ濃縮後シリンジスパイク (以下 SyS) を 500 ~ 1000pg (2 及び 8 塩素体は 1000pg, その他は 500pg) を添加し、GC / MS に付す。

###### 2.5.2 多層シリカゲルカラムでの溶出パターンの検討

和光純薬工業(株)製, ダイオキシン類分析用多層プレセップカラム (成分は JIS 法と同一, 予め溶出溶媒 100mL で洗浄) に①と同様の CS を添加し、以後①と全く同様の操作を行い、GC / MS に付す。

###### 2.5.3 新多層カラムでの溶出パターンの検討

図 1 の組成の多層シリカゲルカラム (予め溶出溶媒と同じ組成の溶媒 100mL で洗浄) に①と同様の CS を添加後、n-ヘキサン、或いは 10% CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub> / n-ヘキサンで溶出し以後①と同様の操作を行い、GC / MS に付す。

###### 2.5.4 アルミナカラムでの溶出パターンの検討

内径 10mm のカラムにアルミナ 10g, その上部に無水硫酸ナトリウム 1g を湿式充填する。このカラムに①と同様の CS を添加後、n-ヘキサン 100mL を流す。この画分は 20mL ずつ分画し、その後 10% CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub> / n-ヘキサンを 200mL (50mL ずつ分画) 流し、各分画を濃縮後、SyS を①と同じ量添加し GC / MS に付す。

###### 2.5.5 大気試料での分析法

平成 15 年 8 月 ~ 平成 18 年 1 月の期間中、県内で採取した大気試料 (夏期, 冬期) の抽出液 (トルエン) について、その 250ml 相当をとり、これに CS を 200 ~ 400pg (1 ~ 2 及び 8 ~ 10 塩素体 400pg, その他 200pg) を添加後、図 1 に従い精製を行い、GC / MS に付す。



### 3 結果

#### 3.1 シリカゲルでの挙動

結果を図2に示したが、シリカゲルでのPCB類の挙動は低塩素化体が遅れ、高塩素化体が早く溶出されることが判明した。シリカゲル6gを使用した場合、図示されているように1, 2塩素化体が50~100mLの画分に溶出された。シリカゲル3gでの溶出実験では、すべての異性体が50mLまでに溶出されており、これらの実験からシリカゲル総量6gまでは1塩素化体も含め、良好に回収されることが判明した。

#### 3.2 多層シリカゲルでの挙動

前報<sup>1)</sup>で報告したようにダイオキシン類分析の公定法と同じ組成ではPCB類の1塩素化体(#3)は全く溶出されない。しかし精製効率を上げるためには多層カラムはかなり有効と考えられるため、さらに溶媒の極性を上げ、20%及び50% CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>/n-ヘキサンで溶出実験を行った。しかしそれでも#3は全く回収されず、基本的にダイオキシン類分析法の多層シリカゲル組成では非可逆的吸着(或いは分解)が起こっている可能性が大きいと推定された。一方、各担体(10% AgNO<sub>3</sub>-シリカゲル, 44% H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>-シリカゲル, 10% KOH-シリカゲル)3gを用いて添加回収実験を行うと、5% CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>/n-ヘキサン100mL溶出で#3も含めすべてのPCB類が良好に回収されており、公定法での#3の低回収率は、これらを組み合わせることにより、何らかの反応が付随して起きている可能性も示唆された。

#### 3.3 新多層カラムでの挙動

前述のように多層シリカゲルの公定法での組成では#3が全く回収されないが、精製効率を考慮すると多層カラムは必要であると考え、図1に示すように、シリカゲル総量として6g以内に収まるような組成(硫酸シリカゲル3g, AgNO<sub>3</sub>-シリカゲル1.5g, シリカゲル合計1.5g)を充填したカラムを用い溶出パターンを調べた。その結果n-ヘキサンのみの溶出では図3に示すように、#3を回収するためには400~500mLの溶出量が必要となるが、極性を上げ10% CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>/n-ヘキサンで溶出すると50mLの溶出量でほぼすべてのPCB類が溶出されることが判明した。(図4)

#### 3.4 アルミナカラムでの挙動

図5にアルミナカラムの10% CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>/n-ヘキサンでの溶出パターンを示した。本法ではまずn-ヘキサンでの洗浄が精製効率上必要であるが、100mLの洗浄ではPCB類の溶出は認められなかった。10% CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>/n-ヘキサン溶出では1塩素化の#3がやや遅れて溶出されるが、100mLを展開すると、すべてのPCB類が溶出されることが判明した。

#### 3.5 大気試料での回収率

表1に大気試料でのCSの回収率を示したが、ほぼすべての塩素数で良好な回収率が得られ、特に問題になった1塩素化体の#3についても69~82%と良好な結果であった。図1の操作での問題点として、新多層シリカゲルカラムでの溶出液(10% CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>/n-ヘキサン)を

エバポレーターで濃縮した後、そのままアルミナカラムに添加すると、残存しているCH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>がアルミナでの分画を乱し、洗浄のn-ヘキサン画分に9~10塩素化体等が溶出される。このため溶出液をエバポレーターで濃縮する際は、濃縮終了後、さらにn-ヘキサン100mLを加え濃縮する操作を2回行い、確実にCH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>を留去してから、アルミナカラムへ添加する必要がある。

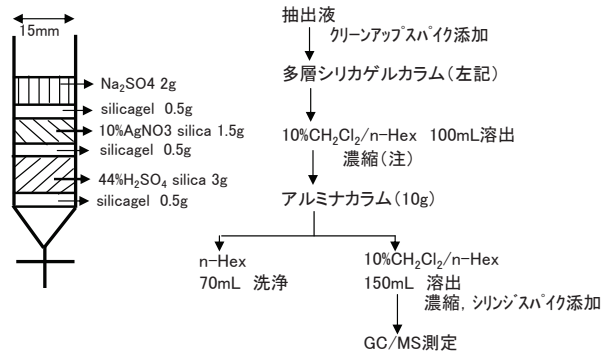


図1 新多層シリカゲル法によるPCB類の精製法

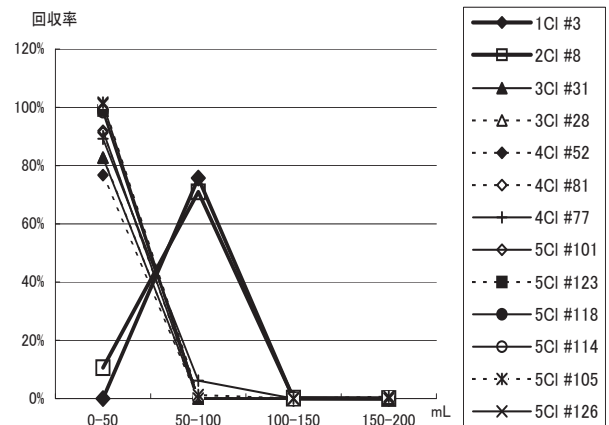


図2 シリカゲルカラム(6g)での溶出パターン(1~5塩素化PCB類, n-ヘキサン)

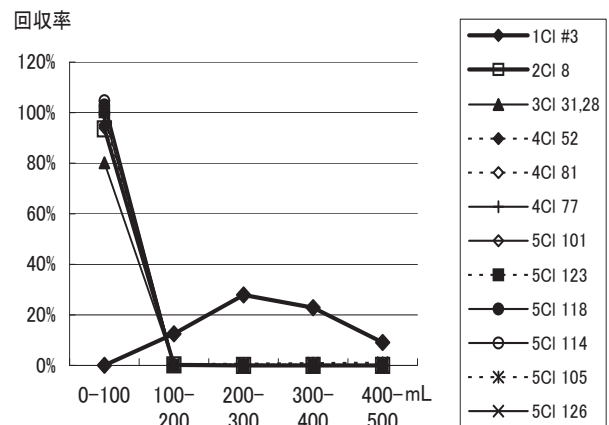


図3 新多層シリカゲルでのPCB類溶出パターン(1~5塩素化PCB類, n-ヘキサン)

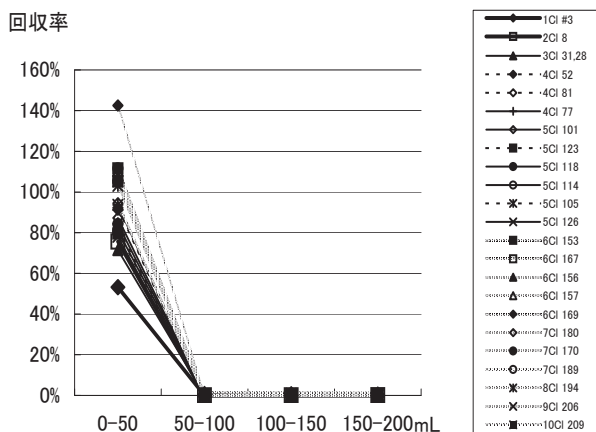


図4 新多層シリカゲルでのPCB類溶出パターン (10% CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub> / n-ヘキサン)

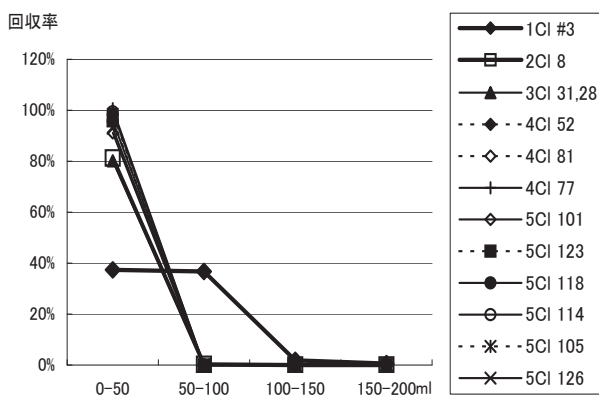


図5 アルミナカラムでのPCB類溶出パターン (1~5塩素化PCB類, 10% CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub> / n-ヘキサン)

表1 大気試料でのPCB類の回収率

	異性体	A	B	C	D	E	F
1Cl	PCB-3	69%	82%	80%	71%	74%	73%
2Cl	PCB-8	78%	89%	86%	86%	87%	83%
3Cl	PCB-31	106%	93%	96%	99%	118%	82%
	PCB-28	97%	94%	95%	84%	106%	72%
4Cl	PCB-52	88%	88%	91%	85%	82%	92%
	PCB-81	115%	92%	105%	109%	99%	106%
	PCB-77	119%	102%	113%	106%	96%	105%
5Cl	PCB-101	105%	105%	96%	95%	90%	88%
	PCB-123	124%	105%	96%	101%	94%	99%
	PCB-118	108%	106%	111%	105%	101%	94%
	PCB-114	114%	108%	106%	102%	105%	95%
	PCB-105	123%	113%	117%	108%	101%	98%
PCB-126	128%	128%	133%	120%	121%	109%	
6Cl	PCB-153	109%	87%	86%	100%	95%	99%
	PCB-167	118%	115%	114%	108%	110%	110%
	PCB-156	121%	114%	112%	104%	116%	111%
	PCB-157	121%	111%	118%	115%	119%	108%
	PCB-169	133%	134%	133%	126%	131%	123%
7Cl	PCB-180	119%	93%	109%	108%	118%	98%
	PCB-170	119%	92%	114%	108%	121%	104%
	PCB-189	107%	92%	106%	91%	104%	89%
8Cl	PCB-194	94%	102%	108%	98%	98%	100%
9Cl	PCB-206	98%	105%	108%	109%	103%	114%
10Cl	PCB-209	108%	103%	118%	105%	103%	106%

## 4 考察

環境中のPCB分析法を検討し、最終的にすべてのPCB類が良好に回収される方法を開発した。検討した分析法は、基本的にダイオキシン類分析法に準じ高分解能GC/MS-SIM法を用いる方法を検討したが、PCB類は塩素数の違いにより、その物性が大きく異なるため、全てのPCB類を効率良く精製するのは、問題が多い。特に1塩素化体の#3 (4-Chlorobiphenyl) が他のPCB類と挙動が大きく異なり、ダイオキシン類精製法での公定法である多層シリカゲルカラムでは、溶媒の極性を上げて回収されず、非可逆的な吸着が起こっているものと推察された。これはダイオキシン類での多層シリカゲルによる2,3,7,8-TCDDの非可逆的な吸着<sup>3, 4)</sup>と状況が似ており、今後その解決に向けて検討する必要があると思われる。原因としてはAgNO<sub>3</sub>-シリカゲルが疑われるが、硫黄化合物やフタル酸エステル類の除去にAgNO<sub>3</sub>-シリカゲルが有効であることを考慮し<sup>4)</sup>、1.5gだけ使用することとした。またシリカゲルの量が多すぎると、#3を回収するために多量の溶媒が必要となることから、シリカゲルの総量を6gになるように調整し、溶出溶媒の極性を上げて回収率の低下を防ぐこととした。

従来、PCB類分析で低塩素化体の回収率が低い場合は前報<sup>1)</sup>で検討したように揮発性が大きな原因と考えられていたが、今回の結果を踏まえ、シリカゲルカラムでの挙動も大きな原因ではないかと推察された。本法による大気の実試料での回収率は全異性体とも70~130%前後と良好な結果が得られており、十分に実用可能な方法である。

## 参考文献

- 1) 鈴木滋, 菱沼早樹子, 加藤謙一, 斎藤善則: 宮城県保健環境センター年報, 24, 165 (2006).
- 2) 鈴木滋, 菱沼早樹子, 加藤謙一, 斎藤善則: 第15回環境化学討論会要旨集, p.278 (2006).
- 3) 水上桐子, 濱田典明, 本田克久: 第15回環境化学討論会要旨集, p.280 (2006).
- 4) 伊藤智博, 山本美穂, 小島孝, 黒岡正治, 林田一良: 第9回環境化学討論会要旨集, p.206 (2000).

# 大気中の揮発性有機化合物調査

## Study on Volatile Organic Compounds in Atmospheric Samples

佐久間 隆 小泉 俊一 北村 洋子  
木戸 一博 加賀谷秀樹

Takashi SAKUMA, Syun-ichi KOIZUMI, Yoko KITAMURA  
Kazuhiro KIDO, Hideki KAGAYA

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」）は、優先取組物質であるベンゼン、トリクロロエチレン及びテトラクロロエチレン等の9物質について調査開始当初から測定を行っているが、優先取組物質以外のVOCsについても県内における濃度分布状況を把握する必要があると考え、前年度に引き続き調査を行ったので報告する。

### 2 方法

#### 2.1 調査地点

調査は次の4地点で行い、調査区分を括弧内に示した。

- ①大河原町 仙南保健福祉事務所（一般環境）
- ②名取市 名取自動車排出ガス測定局（沿道）
- ③塩竈市 塩釜大気汚染測定局（発生源周辺）
- ④大崎市 古川Ⅱ大気汚染測定局（一般環境）

#### 2.2 調査期間、測定頻度

平成17年4月から平成18年3月までの一年間、月に1回24時間試料採取を実施した。

#### 2.3 調査対象物質

優先取組物質9物質を含むVOCs合計41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（Tekmar社製AUTOCAN）により試料を導入しGC/MS（HP社製HP6890 + 日本電子社製JEOL JMS-AM II 15）で分析を行った。

### 3 結果

VOCsの測定結果（年平均値）を表1に示した。年平均値は原則として12回の測定結果を算術平均して算出した。なお、平均値の算出にあたり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用いた。優先取組物質9物質のうち大気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ベンゼンの4物質について、環境基準を超える物質は無かった。さらに、優先取組物質について平成16年度地方公共団体等における有害大気汚染物質モニタリング調査結果<sup>2)</sup>と比較したところ、名取市のジクロロメタン及びクロロホルム、塩竈市のジクロロメタン及びアクリロニトリル、大崎市のアクリロニトリルが高めであったが、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、各調査地点の年平均値を比較したところ、前年度同様にフロン類4物質、四塩化炭素及び1,1,1-トリクロロエタンは調査地点による差が非常に少なかった。一方、トルエンは名取市と塩竈市で、エチルベンゼン、キシレン類は塩竈市で特異的に高い濃度を示した。

### 4 まとめ

前年度に引き続き優先取組物質に加え優先取組物質以外のVOCsについて、各調査地点における単年度の濃度分布状況を把握した。今後データの蓄積を図り多変量解析等を行うことにより、県内の汚染実態がより明確になると考える。

### 参考文献

- 1) 環境庁大気保全局大気規制課：有害大気汚染物質測定方法マニュアル、平成10年3月
- 2) 環境省環境管理局大気環境課：平成16年度地方公共団体等における有害大気汚染物質モニタリング調査結果、平成17年10月

表 1 VOCs の測定結果 (年平均値; 平成 17 年度)

No.	物質名	大河原町 (一般環境)	名取市 (沿道)	塩齋市 (発生源周辺)	大崎市 (一般環境)	全体平均	最低濃度	最大濃度	検出下限値(3σ)		定量下限値(10σ) 平均	環境基準等 全国平均 <sup>2)</sup> (平成16年度)
									最小	最大		
1	Freon12	2.6	2.5	2.6	2.6	2.6	2.2	2.7	0.003	0.021	0.034	
2	Freon114	0.11	0.11	0.13	0.14	0.12	0.092	0.26	0.003	0.004	0.011	
3	Chloromethane	1.1	1.1	1.2	1.2	1.1	0.95	1.8	0.002	0.006	0.011	
4	Chloroethene	0.017	0.031	0.034	0.019	0.025	ND	0.18	0.003	0.007	0.015	10
5	1,3-Butadiene	0.091	0.27	0.097	0.10	0.14	0.023	0.52	0.002	0.007	0.014	0.083
6	Bromomethane	0.044	0.056	0.049	0.048	0.049	ND	0.087	0.004	0.010	0.022	
7	Chloroethane	0.046	0.065	0.049	0.035	0.049	0.021	0.14	0.003	0.007	0.014	
8	Freon11	1.4	1.4	1.4	1.5	1.4	1.2	1.6	0.005	0.012	0.024	
9	Freon113	0.59	0.59	0.61	0.61	0.60	0.58	0.66	0.007	0.016	0.032	
10	1,1-Dichloroethene	0.005	0.008	0.006	0.002	0.005	ND	0.073	0.002	0.009	0.014	
11	Dichloromethane	0.83	3.3	4.4	1.1	2.4	0.31	15	0.004	0.007	0.017	150
12	Acrylonitrile	0.026	0.12	0.41	0.24	0.20	ND	0.69	0.003	0.012	0.018	2
13	1,1-Dichloroethane	0.003	0.003	0.003	0.003	0.003	ND	0.006	0.004	0.012	0.022	
14	c-1,2-Dichloroethene	0.003	0.003	0.003	0.003	0.003	ND	0.004	0.003	0.008	0.016	
15	Chloroform	0.13	0.52	0.11	0.26	0.26	0.080	3.4	0.001	0.004	0.007	0.26
16	1,1,1-Trichloroethane	0.10	0.11	0.11	0.10	0.11	0.094	0.18	0.002	0.009	0.017	
17	Tetrachloromethane	0.59	0.61	0.60	0.62	0.61	0.56	0.68	0.004	0.011	0.023	
18	1,2-Dichloroethane	0.038	0.021	0.029	0.032	0.030	ND	0.078	0.005	0.007	0.019	0.15
19	Benzene	0.87	1.9	1.0	0.98	1.2	0.31	3.6	0.003	0.017	0.026	3
20	Trichloroethene	0.41	0.17	0.23	0.16	0.24	0.011	1.3	0.006	0.015	0.039	200
21	1,2-Dichloropropane	0.025	0.032	0.027	0.021	0.026	ND	0.12	0.002	0.007	0.019	
22	c-1,3-Dichloropropene	0.012	0.004	0.004	0.004	0.006	ND	0.10	0.005	0.009	0.024	
23	Toluene	3.4	7.7	5.1	28	40	1.3	190	0.003	0.008	0.019	
24	t-1,3-Dichloropropene	0.006	0.002	0.002	0.003	0.003	ND	0.051	0.002	0.004	0.010	
25	1,1,2-Trichloroethane	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	ND	0.003	0.002	0.006	0.013	
26	Tetrachloroethene	0.072	0.14	0.087	0.061	0.090	0.009	0.38	0.005	0.017	0.033	200
27	1,2-Dibromoethane	0.003	0.003	0.003	0.003	0.003	ND	0.005	0.002	0.009	0.017	
28	Chlorobenzene	0.029	0.050	0.078	0.064	0.055	0.019	0.27	0.002	0.005	0.010	
29	Ethylbenzene	7.2	9.4	11	5.1	8.2	0.83	35	0.003	0.005	0.011	
30	m-&p-Xylene	4.0	7.3	35	16	15	1.0	130	0.004	0.005	0.013	
31	o-Xylene	1.2	2.6	24	12	10	0.36	79	0.002	0.004	0.010	
32	Styrene	0.16	2.5	1.8	1.9	1.6	0.016	12	0.003	0.031	0.047	
33	1,1,2,2-Tetrachloroethane	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	ND	0.003	0.002	0.006	0.014	
34	1,3,5-Trimethylbenzene	0.13	0.88	0.39	0.30	0.43	0.030	2.7	0.002	0.004	0.011	
35	1,2,4-Trimethylbenzene	0.38	2.6	1.3	1.0	1.3	0.12	6.7	0.003	0.005	0.013	
36	m-Dichlorobenzene	0.014	0.007	0.003	0.003	0.006	ND	0.12	0.004	0.006	0.016	
37	p-Dichlorobenzene	0.16	0.33	0.37	0.27	0.28	0.061	1.0	0.003	0.008	0.018	
38	o-Dichlorobenzene	0.039	0.049	0.032	0.036	0.039	ND	0.14	0.003	0.008	0.016	
39	1,2,4-Trichlorobenzene	0.14	0.31	0.040	0.048	0.14	ND	2.3	0.004	0.019	0.036	
40	Hexachlorobutadiene	0.018	0.018	0.005	0.005	0.011	ND	0.089	0.008	0.012	0.030	

注: 平均濃度の算出に当たり, 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。  
 は優先取組物質である。

# ボツリヌス菌が検出された井戸水の水質特性

## Water Quality on the Well Water detected *C. botulinum*

清野 茂 嵯峨 京時\*<sup>1</sup>  
Shigeru SEINO, Kyouji SAGA

キーワード：水質特性；井戸水；ボツリヌス菌

Key words：water quality；well water；*C. botulinum*

### 1 はじめに

平成18年9月に県内で乳児ボツリヌス症が発生し、その後の調査により感染原因が井戸水であり国内外でも初めての特異的な事例であることが判明した。そこで、患者宅を含む周辺井戸水の水質特性を検討したので報告する。

### 2 方法

#### 2.1 検体

細菌・水質等の検査用に採取された患者宅を含む15戸の周辺井戸水<sup>1)</sup>を検体とした。

#### 2.2 方法

電気伝導度、カチオン及びアニオン（イオンクロマトグラフ法）、溶性けい酸（モリブデン青法）、アルカリ度（[カチオン] - [アニオン] の計算値）などの11項目を測定した。なお、pH値、濁度、一般細菌数、大腸菌群は畠山<sup>1)</sup>の結果を用いた。

### 3 結果及び考察

#### 3.1 地域の概要<sup>2)~6)</sup>

本県北西部大崎低地の東縁部にあたり、北西方からの清滝丘陵（標高20～40m）が南方に開く馬蹄形の南側にありかつすり鉢を呈する窪地に位置し、泥炭を含み腐植に富む土壌が分布する後背湿地である（標高約15m）。水系は北側に旧迫川支流の萱刈川、南側に江合川支流の田尻川がいずれも東流する河川に挟まれた地域で浅層の地下水は豊富であると推定される。鮮新世末（約1,000万年前）に海退陸地化し、丘陵地間の河谷となり、さらに入江であったため、沼や湿地が広範囲に存在し、砂・泥・亜炭などの陸成の堆積があった。縄文海進（6,000～7,000年前）では海の侵入を蒙らなかったものの埋積作用の進行により埋積谷底は低湿地となり、最近まで谷地、沼沢地が残り、泥炭土壌が分布していると考えられる。そのため浅層地下水は水質が悪く、良質な地下水は深層の被圧地下水と考えられる。本地域の地質ボーリング柱状図によると<sup>2) 3) 4)</sup>、泥炭（スクモ）などの腐植土層が深度10mから20m付近に存在し、亜炭層を狭在する泥岩<sup>5) 6)</sup>がみられる。聞き取り調査では、本地域の西側には亜炭鉱が存在していたことが得られた。一般に、ボツリヌス菌は芽胞として自然界に分布し土壌や海及び湖沼などの泥から検出される。本地域の地質構造や堆積環境からボツリヌス菌の芽胞の存在が容易に想定される。

積があった。縄文海進（6,000～7,000年前）では海の侵入を蒙らなかったものの埋積作用の進行により埋積谷底は低湿地となり、最近まで谷地、沼沢地が残り、泥炭土壌が分布していると考えられる。そのため浅層地下水は水質が悪く、良質な地下水は深層の被圧地下水と考えられる。本地域の地質ボーリング柱状図によると<sup>2) 3) 4)</sup>、泥炭（スクモ）などの腐植土層が深度10mから20m付近に存在し、亜炭層を狭在する泥岩<sup>5) 6)</sup>がみられる。聞き取り調査では、本地域の西側には亜炭鉱が存在していたことが得られた。一般に、ボツリヌス菌は芽胞として自然界に分布し土壌や海及び湖沼などの泥から検出される。本地域の地質構造や堆積環境からボツリヌス菌の芽胞の存在が容易に想定される。

#### 3.2 井戸水の水質特性

硝酸性窒素、溶性けい酸、塩素イオン、カリウムイオンなど含有量が多い。泥炭土壌からの溶出や多量の施肥が行われたためと考えられる（表1）。

#### 3.3 井戸水のパターンダイアグラム及びキーダイアグラム

パターンダイアグラム（図1）によれば、本地域の浅層地下水はNa-HCO<sub>3</sub>型であり、キーダイアグラム（図2）により地層中を流動する間に地表からの供給により塩素イオン、硝酸性窒素、硫酸イオンが増加していると考えられる。

#### 3.4 多変量解析による井戸水の解析

細菌・化学分析13項目を用いたクラスター分析（標準化ユークリッド平方距離、ウォード法<sup>7)</sup>）により、井戸水は3グループに区分された<sup>1)</sup>。ボツリヌス菌が検出された井戸水を含むグループは、南方に開析した馬蹄形をなす丘陵の内側に位置する（図3）。雨水起源の地下水や豊富な伏流水

表1 井戸水の水質化学分析等結果

採水場所	(1)	(2)	(3)	(4)	(5)	(6)	(7)	(8)	(9)	(10)	(11)	(12)	(13)	(14)	(15)
採水年月日	H18.11.7	H18.11.7	H18.11.7	H18.11.7	H18.11.7	H18.11.7	H18.11.7	H18.11.14	H18.11.14	H18.11.14	H18.11.14	H18.11.14	H18.11.14	H18.11.14	H18.11.14
pH値	7.2	6.5	6.9	7.4	7.1	6.4	6.6	7.2	6.6	6.8	6.6	6.8	6.7	6.6	6.8
濁度	NTU	<0.1	1.6	0.1	1.1	1.7	0.1	0.1	1.0	0.2	0.1	2.0	0.4	0.4	2.0
一般細菌数	n/mL	30	600	440	151	370	270	74	37	650	4	293	158	93	56
大腸菌群	MPN/100mL	141	816	1203	250	1	613	326	1	866	2	308	214	72	45
硝酸性窒素及び亜硝酸性窒素	mg/L	1.62	3.91	6.47	4.76	<0.01	9.78	5.56	<0.01	2.57	0.33	8.91	0.38	3.51	0.65
電気伝導度	mS/m	30.8	29.5	31.9	34.7	9.9	35.4	24.5	9.9	19.1	13.7	32.9	12.3	21.4	22.5
ナトリウムイオン	mg/L	45.0	39.5	30.0	37.6	10.4	38.3	21.0	12.3	19.2	15.2	36.3	14.4	24.8	37.7
カリウムイオン	mg/L	5.6	4.6	5.9	7.7	1.9	5.7	4.6	1.9	3.9	3.3	4.4	3.8	4.3	5.9
カルシウムイオン	mg/L	27.7	13.1	24.1	26.6	6.3	26.1	34.7	6.3	15.1	11.1	27.1	12.2	20.4	21.6
マグネシウムイオン	mg/L	13.9	6.0	11.6	8.6	5.9	11.1	8.1	5.5	6.3	5.5	9.0	2.6	4.3	6.2
塩素イオン	mg/L	57.4	73.9	60.9	87.5	5.1	64.2	64.2	5.0	22.8	17.5	60.7	13.1	41.2	41.4
硫酸イオン	mg/L	25.2	16.5	32.9	9.7	<0.1	19.5	15.4	<0.1	23.8	5.6	18.5	3.8	10.0	12.1
重炭酸イオン	mg/L	71.9	34.3	30.2	46.0	45.5	35.3	22.7	46.4	34.1	44.1	38.9	40.2	32.1	53.2
溶性けい酸	mg/L	93.1	55.0	88.0	41.9	80.1	66.4	93.9	78.7	53.9	88.2	88.9	71.9	67.0	74.1

\* 1 現 共和コンクリート工業(株)



は南東方へ移動しながら、すり鉢を呈しかつ泥炭を含み腐植に富む土壤に覆われた窪地中へ浸透し、泥炭（スクモ）などの腐植土層に侵入すると、腐植が溶解される。その時ボツリヌス菌の芽胞が溶出し、その地下水は高濁度を呈すると推定される。乳児ボツリヌス症が発生した井戸水には、泥炭（スクモ）などの腐植土層中に含まれているボツリヌス菌の芽胞が溶出したと考えられる。

#### 4 課題

現在、井戸は封鎖されたが、乳児ボツリヌス症の感染経路が井戸水であり、その原因がボツリヌス菌であることから、周辺地域の泥炭（スクモ）などの腐植土や亜炭の溶出実験を行って、ボツリヌス菌の芽胞を検出することを課題とした。

#### 参考文献

1) 畠山敬ら；井戸水を原因とした乳児ボツリヌス症の

発生とその疫学的対応，25，宮城県保健環境センター年報，41～44（2007）

2) 宮城県；土地分類基本調査「古川」，5万分の1，15-28（1980）

3) 北村信，大沢穠，石田琢二，中川久夫；古川地域の地質，地域地質研究報告（5万分の1図幅），地質調査所，32p.（1981）

4) 宮城県；土地分類基本調査「涌谷」，5万分の1，15-33（1987）

5) 宮城県；宮城県地震地盤図作成調査報告書，地質断面図IV 4（昭和60年3月）

6) ㈱長谷地質調査事務所；昭和62年度T地区委4号T町農村環境改善センター建設予定地地質調査報告書，70p.（昭和62年11月）

7) 早狩進；Excelアドイン工房，<http://www.jomon.ne.jp/~hayakari/>（2003）

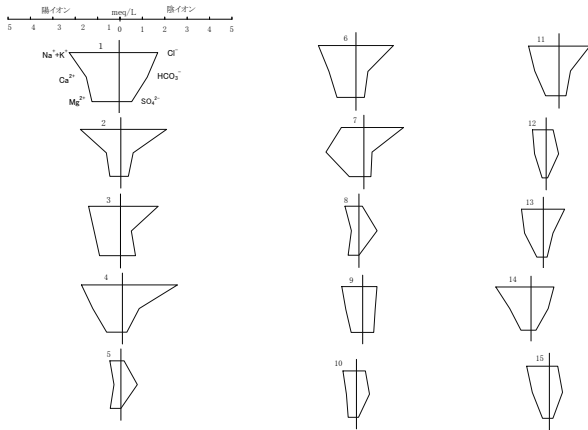


図1 井戸水のパターンダイアグラム

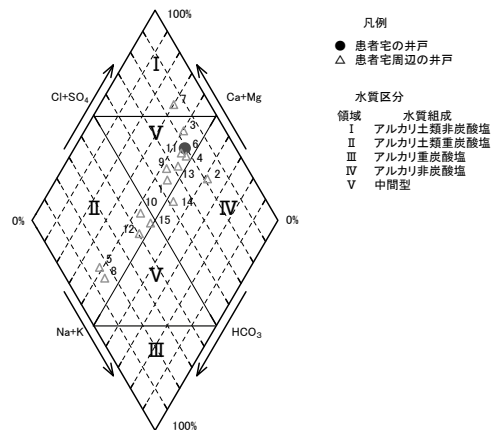


図2 井戸水のキーダイアグラム

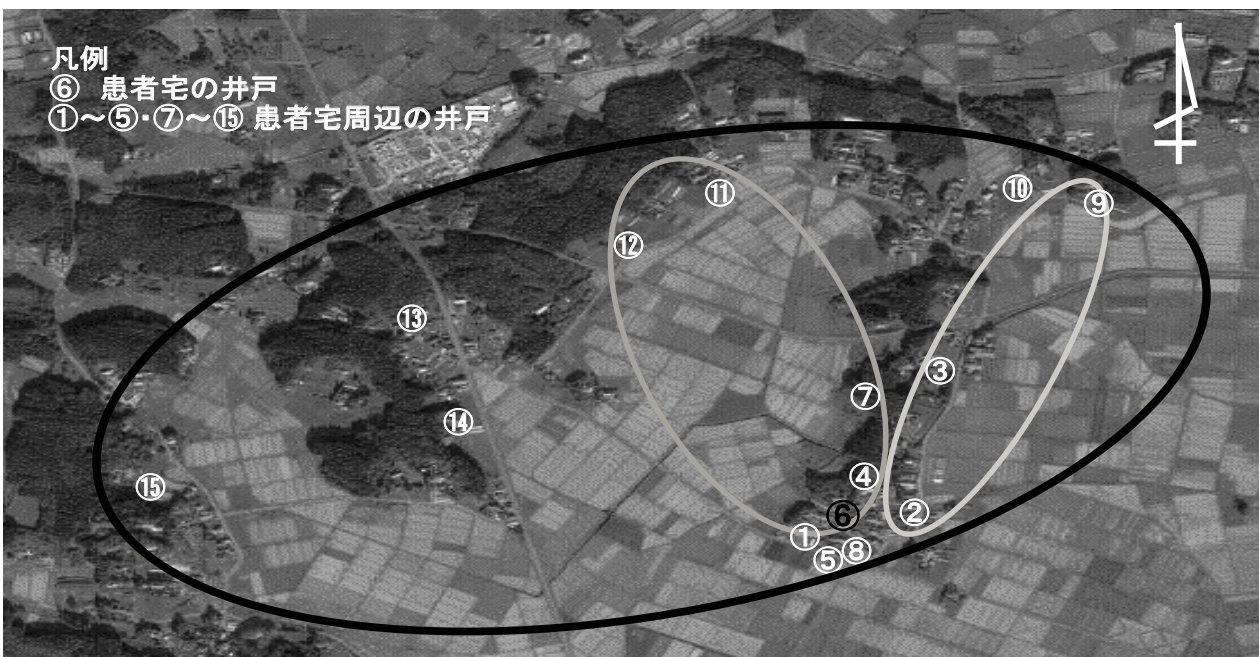


図3 井戸水のデンドログラム