

# 第25回保健環境センター研究発表会 プログラム

日 時 平成19年3月2日(金) 8:50~16:40

場 所 保健環境センター 大会議室

日 程

1.開 会 8:50

あいさつ

2.研究発表

演 題 1~11 9:00~11:45

昼食・休憩 11:45~12:45

演 題 12~26 12:45~16:40

3.閉 会 16:40

-----  
発表方法等

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

=== 研究発表 ===

発表者

セッション 座長：加賀谷 秀樹 9:00 ~ 9:45

1. 一般廃棄物焼却処理に伴う塩類の発生状況  
環境化学部 柳 茂 菅原隆一 高橋紀世子 葛岡勝悦 斎藤善則
2. 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  
環境化学部 菅原隆一 柳 茂 高橋紀世子 葛岡勝悦 斎藤善則
3. ダイオキシン類汚染源寄与率算出手法の検討  
- 指標異性体を用いた概算手法とベイズ型重回帰によるケミカルマスバランス法との比較 -  
環境化学部 中村朋之 鈴木 滋 菱沼早樹子 岩澤理奈 斎藤善則  
(独)国立環境研究所 橋本俊次  
統計数理研究所 柏木宣久

セッション 座長：鈴木 滋 9:45 ~ 10:45

4. 酸性雨自動測定に基づく事例解析(2)  
大気環境部 仁平 明 木立 博 高橋誠幸 加賀谷秀樹
5. 宮城県における大気環境中の有害大気汚染物質モニタリング調査結果  
大気環境部 佐久間隆 小泉俊一 北村洋子 木戸一博 加賀谷秀樹
6. パッシブサンプラーによる県内の大気汚染状況  
大気環境部 北村洋子 佐久間隆 小泉俊一 木戸一博 加賀谷秀樹
7. ディーゼル発電施設排出ガス実態調査及び環境影響調査結果  
大気環境部 小泉俊一 佐久間隆 北村洋子 木戸一博 木立 浩 高橋誠幸  
仁平 明 小室健一 加賀谷秀樹  
企画情報部 中村栄一

セッション 座長：中村 栄一 10:45 ~ 11:45

8. 自動車排出ガスによる汚染状況と自動車交通量の関連  
大気環境部 高橋誠幸 木立 博 仁平 明 加賀谷秀樹
9. 浮遊粒子状物質自動測定機のメーカー間の差について  
大気環境部 木立 博 高橋誠幸 仁平 明 加賀谷秀樹

10. 宮城県における PM2.5 調査結果 (炭素成分及び金属成分)  
大気環境部 木戸一博 佐久間隆 小泉俊一 北村洋子 加賀谷秀樹

11. 女川原子力発電所前面海域における放射性ヨウ素 131 の検出について  
原子力センター 面川和信 木村昭裕 高橋正人 伊藤節男 石川陽一 佐藤博明

=== 昼食・休憩 === 11:45 ~ 12:45

セッション 座長 : 佐藤 勤 12:45 ~ 13:45

12. バイオアッセイ手法の事業場排水を含む環境調査への適用事例について  
水環境部 大金仁一 阿部郁子 柳沢ちさえ 佐々木久雄 栗野 健 嵯峨京時  
環境化学部 高橋紀世子

13. 鉛川の湧水とその水質特性について - 鉛川水質監視調査結果 -  
水環境部 清野 茂 小山孝昭 牧 滋 栗野 健 嵯峨京時  
栗原保健所 小川 武 大庭和彦  
環境対策課 深澤茂之 四十物良一

14. 伊豆沼・内沼の水生植物による水質浄化の検討  
水環境部 渡部正弘 大金仁一 小山孝昭 佐々木久雄 栗野 健 嵯峨京時

15. 松島湾におけるアカモク藻場の生態学的調査結果  
水環境部 佐々木久雄 小山孝昭 嵯峨京時  
三国屋建設コンサルタント(株) 久保田龍二

セッション 座長 : 谷津 壽郎 13:45 ~ 14:30

16. 残留農薬抽出法の検討  
生活化学部 氏家愛子 長谷部洋 柳田則明

17. LC/MS/MS による残留動物用医薬品の一斉分析  
生活化学部 遠藤美砂子 柳田則明

18. 収去検査のための食品中保存料・甘味料の簡易分析  
生活化学部 千葉美子 氏家愛子 長谷部洋 福原郁子 曾根美千代 加藤謙一  
新垣康秀 柳田則明

=== 休 憩 === 14:30 ~ 14:40

セッション 座長：柳田 則明

14:40 ~ 15:40

19. 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

微生物部 畠山 敬 三品道子 高橋恵美 佐々木美江 後藤郁男 上村 弘  
谷津壽郎 齋藤紀行  
環境化学部 葛岡勝悦 斎藤善則  
水環境部 清野 茂 嵯峨京時  
大崎保健所 高橋美穂 千葉文明 大山英明 藤原公男 佐藤仁一

20. *Listeria monocytogenes* の食品汚染実態調査

微生物部 菅原直子 佐々木ひとえ 加藤浩之 小林妙子 渡邊 節 山田わか  
谷津壽郎 齋藤紀行

21. 微生物部におけるレプトスピラ病依頼検査について - 過去5年間の成績 -

微生物部 沖村容子 庄司美加 佐藤千鶴子 佐藤由紀 植木 洋 上村 弘  
齋藤紀行

22. ブタからのインフルエンザウイルスの分離

微生物部 佐藤由紀 庄司美加 佐藤千鶴子 植木 洋 沖村容子 谷津壽郎  
齋藤紀行

セッション 座長：栗野 健

15:40 ~ 16:40

23. 今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

微生物部 庄司美加 植木 洋 佐藤千鶴子 佐藤由紀 沖村容子 谷津壽郎  
齋藤紀行

24. 河川水・海水における潜在的な細菌増殖能

微生物部 渡邊 節 菅原直子 佐々木ひとえ 加藤浩之 小林妙子 山田わか  
谷津壽郎 齋藤紀行

25. 浴槽からの迅速検査法を利用したレジオネラ属菌検出の試み

微生物部 佐々木美江 高橋恵美 三品道子 菅原直子 畠山 敬 上村 弘  
谷津壽郎 齋藤紀行

26. 腸管出血性大腸菌（EHEC）感染症が多発した地域の河川水量の増減におけるEHECの挙動

微生物部 三品道子 高橋恵美 佐々木美江 畠山 敬 上村 弘 谷津壽郎  
齋藤紀行

# 1. 一般廃棄物焼却処理に伴う塩類の発生状況

環境化学部 柳 茂 菅原隆一 高橋紀世子  
葛岡勝悦 斎藤善則

## 1 はじめに

全国的に一般廃棄物最終処分場から発生する浸出水中の塩類濃度が上昇している。それは昨今の最終処分場の逼迫から延命化を図る必要があり、可燃物はすべて減容化のため、焼却処理して最終処分場に埋め立てられるため、結果として多量の無機塩類が蓄積するためである。県内はもとより、全国的にも浸出水中の塩類濃度を調査した事例は少ない。本研究では、適正な維持管理及び処分方法、さらに資源化利用等の基礎資料とするため、一般廃棄物焼却施設による塩類発生状況を調査した。

## 2 調査方法

### 2-1 焼却灰の発生状況及び塩類含有量試験

8事業場の焼却炉（～ はストーカ炉、～ はストーカ炉 + 灰溶融炉、～ は流動床炉、～ は流動床式ガス化溶融炉）について、焼却灰発生量と塩類含有量を調査した。

### 2-2 浸出水の再利用施設の塩類蓄積調査

事業場～ はストーカ炉で、最終処分場浸出水を水処理後、焼却炉の冷却水として再利用している施設で、その塩類の蓄積状況を調査した。

## 3 結果と考察

### 3-1 焼却灰の発生状況及び塩類含有量試験

再利用可能ながれき類、及びスラグを焼却灰発生量の対象としない場合、最終焼却灰発生量はストーカ炉～ 平均 47kg/人/年、ストーカ炉 + 灰溶融炉 21kg、流動床炉～ 平均 15kg、ガス化溶融炉 12kgの順に減少した（図1）。塩化物イオンの発生量はストーカ炉～ 平均 1.3kg/人/年、流動床炉～ 平均 0.97kgと流動床炉が低い値を示した（図2）。これは管理目標の設定、すなわち消石灰投入量の違いが大きな要因ではないかと推定される（図3）。

### 3-2 浸出水の再利用施設の塩類蓄積調査

浸出水の再利用事業場～ では塩化物イオン濃度が主灰、飛灰とも～ に比べて、異常に高い値を示し、リサイクル系内に蓄積されていることが認められた（図4）。一方、事業場～ では塩化物イオン濃度の系内蓄積は、主灰、飛灰とも認められなかった。しかし、ガス冷却室直後の煙道に、樹氷状に多量の塩類が堆積していることが判り、このことが原因と思われた。また、平成17年度調査では主灰 0.6kg/人/年、飛灰 0.7kgと主灰にも多く含有していたが、平成18年度では主灰 0.3kg、飛灰 1.0kgと飛灰に多く含有し、主灰では減少していた。割合が変化した理由は不明である（図4）。浸出水の凝集沈殿処理で除去が不可能なナトリウム、カリウムも塩化物イオンと同様に飛灰に多く含有していた。

このように塩類が蓄積し、施設の機能が低下することや、埋立面積の拡張に伴う浸出水量の増加を考えれば、将来的には脱塩処理や放流等の検討が必要になるものと考えられる。

最後に本調査の実施に当たり、試料を提供して頂いた各施設の皆様とご協力を頂いた関係保健所の皆様に感謝の意を表します。

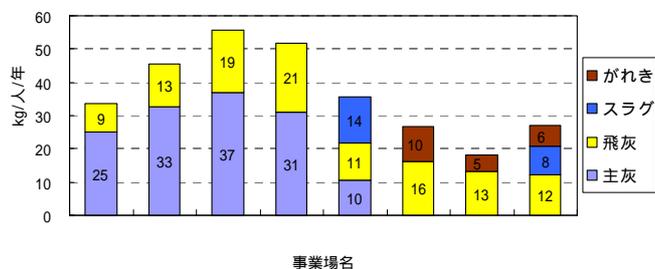


図1 一人当たりの焼却灰発生量

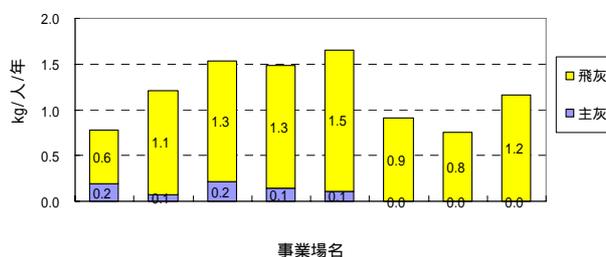


図2 一人当たりの塩化物イオンの発生量

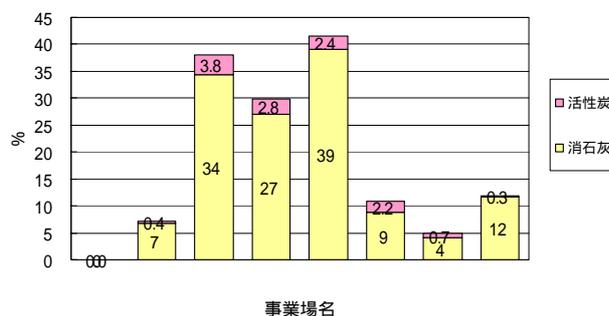


図3 消石灰と活性炭投入量 (飛灰に占める割合)

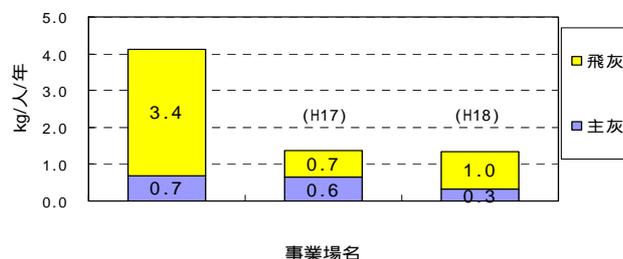


図4 浸出水の再利用事業場における一人当たりの塩素イオンの発生量

## 2. 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

環境化学部 菅原隆一 柳 茂 高橋紀世子  
葛岡勝悦 齋藤善則

### 1. はじめに

当部では、T処分場の廃止に向けた対策を総合的に検討する一環として毎月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

調査地点は、図1に示すガス抜き管モニタリング調査の4地点(No.7-2, No.8, H16-10, H16-11)と浸透水採取設備の計5地点である。表1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。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。

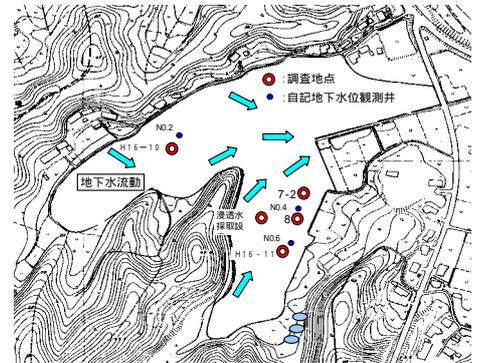


図1 調査地点

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, ぶっ素, 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)

### 3. 調査結果及び考察

#### 3.1 降水量調査

図2(2-1)に今回の調査期間を含む4~8月の降水量を示し、図2(2-2)に自記地下水水位観測井3ヵ所(No.2, No.4, No.6)の水位標高を示す。水位標高は3ヵ所とも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(2-1)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日間の降水量の平均値をプロットしたグラフ)とほぼ一致しており、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。

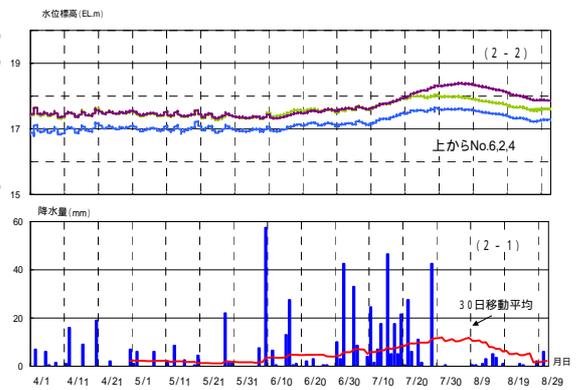


図2 降水量と水位標高の変動(2006/4/1~8/31)

#### 3.2 発生ガス及び水質調査

発生ガス調査では、硫化水素と発生ガス量が大幅に変動した。硫化水素は7月中旬以降にNo.7-2, H16-10及びH16-11で0.2ppm未満の検出限界以下まで低下し、発生ガス量も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1~3週間で以前の値まで復元した。水質調査では、7月初旬にH16-11でBOD, 塩化物イオン, 電気伝導率, 4-t-BP, BPA, ほう素, 及びぶっ素で大幅な変動がみられた。また、No.7-2では7月中旬に硫酸イオンの大幅な上昇がみられた。

#### 3.3 各調査地点における調査項目の相関

1%両側確率のt検定による項目間の相関を求めた。また、降雨の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)と降雨の影響を表す指標として水位に注目し、両者その他の測定項目との相関関係を比較した。その結果を表2, 3に示す。週降水量では相関のある項目数が少ないが、孔内温度では3地点で負の相関を示した。水位では地点により相関項目に違いがみられ、発生ガス測定項目ではNo.7-2とH16-11で比較的類似した傾向を示したが、水質測定項目では地点間の類似性は認められず、各地点の周辺に埋め立てられた廃棄物や雨水の層内での挙動の影響が強く示唆された。週降水量と水位には明確な関連が認められず、週降水量では測定項目との関係を十分に説明することができなかった。

表2 週降水量と測定項目の相関

	正の相関	負の相関
孔内温度		No.7-2, No.8, 浸透水
メタン		No.8
水温		No.16-10
BOD		No.7-2
Cl <sup>-</sup>		No.7-2
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	No.7-2	

表3 水位と測定項目の相関

	正の相関	負の相関
H <sub>2</sub> S		No.7-2
CO <sub>2</sub>		No.7-2, No.16-11
O <sub>2</sub>	No.7-2	
メタン		No.7-2, No.16-11
発生ガス量		No.7-2, No.16-11
水温	No.7-2	No.8, 浸透水
BOD	浸透水	No.8
Cl <sup>-</sup>	No.16-10	No.8
EC		No.8
ORP		浸透水
pH		No.8
B	No.16-10	No.8
F		No.8
BPA	浸透水	No.8

注)浸透水処理施設は浸透水と記載する。

# 3. ダイオキシン類汚染源寄与率算出手法の検討

- 指標異性体を用いた概算手法とベイズ型重回帰によるケミカルマスバランス法との比較 -

環境化学部 中村朋之 鈴木 滋 菱沼早樹子 岩澤理奈 斎藤善則  
 (独) 国立環境研究所 橋本俊次  
 統計数理研究所 柏木宣久

## 1 はじめに

ダイオキシン類により汚染された地域において汚染原因を解明するためにこれまで種々の統計手法を用いた発生源予測手法が提案されてきた。こうした中で、埼玉県環境科学国際センターから指標異性体を用いたダイオキシン類汚染源寄与率の概算手法(以下、概算手法という)が今年の学会において発表された。今回、環境媒体である水質、底質及び土壌についてスクリーニング法として概算手法が適用が否か検討した。比較対象とする統計的手法としては、柏木が開発した多重共線性に対応するベイズ型重回帰によるケミカルマスバランス法(Bmr-CMB法)を採用し、両者の検討を行った。

## 2 方法

### 2-1 対象媒体

土壌：不法投棄現場採取試料、水質：公共用水域水質環境基準超過地点、火災現場近くに所在するため池採取試料、底質：公共用水域水質環境基準点における底質試料

### 2-1 概算手法による寄与率計算

概算手法は、1,2,3,7,8-PnCDD、#105-PnCB、2,3,4,7,8-PnCDF、1,2,3,4,6,7,8-HpCDDの4異性体の実測濃度により寄与率の概算が可能である方法である。計算式について以下に示す。

$$TEQ_{\text{燃焼}} = 1.80C_{2,3,4,7,8\text{-PnCDF}} - 0.0000928C_{\#105\text{-PnCB}} - 0.114C_{1,2,3,7,8\text{-PnCDD}}$$

(ただし、 $TEQ_{\text{燃焼由来}} < 0$  のときは、 $TEQ_{\text{燃焼由来}} = 0$  とする)

$$TEQ_{\text{PCB}} = 0.00115C_{\#105\text{-PnCB}}$$

$$TEQ_{\text{PCP}} = 0.0313C_{1,2,3,4,6,7,8\text{-HpCDD}}$$

$$TEQ_{\text{CNP}} = 1.42C_{1,2,3,7,8\text{-PnCDD}} + 0.0000269C_{\#105\text{-PnCB}} - 0.534C_{2,3,4,7,8\text{-PnCDF}}$$

(ただし、 $TEQ_{\text{CNP由来}} < 0$  のときは、 $TEQ_{\text{CNP由来}} = 0$  とする)

### 2-2 Bmr-CMB法による寄与率計算

Bmr-CMB法では、発生源寄与率として濃度寄与が算出されるため、以下の方法にてTEQ寄与率を算出した。

#### 2-2-1 発生源データの最適化

発生源データとして、CNP、PCPの農薬類及び燃焼系とした。説明変数として環境省報告様式に基づき2,3,7,8位塩素置換体17種、1,3,6,8-,1,3,7,9-TeCDD及び2,3,7,8体を除いた同族体濃度とした。それぞれの発生源は農薬についてはk-meansクラスタリングにより整理(鈴木ら：環境化学, 16, 437-448 (2006))し、燃焼系については寄与率計算を実施する媒体に応じて、種々選択した。

#### 2-2-2 Bmr-CMB法によるTEQ寄与率の算出

2-2-1で得られた発生源データを用いて、Bmr-CMB法により4種類の確率分布(ガンマ分布：Gm, 対数正規分布：Ln, 多項分布：Mn, 打ち切り正規分布：Tn)に基づき発生源濃度寄与率の演算を実施した。各々の分布により得られた結果は、寄与率と共に得られる対数尤度の大小によって予測の当てはまりについて判断し、最適な結果を選択した。次に得られた濃度寄与率を基に各発生源のTEQ濃度から次式によりTEQ寄与率を算出した。

$$\frac{(TEQ_{X_n}/C_{X_n}) \times r_n}{\sum_{X_1}^{X_n} ((TEQ_{X_n}/C_{X_n}) \times r_n)} \times 100$$

$TEQ_{X_n}$ ：当該発生源のTEQ濃度

$C_{X_n}$ ：当該発生源の実測濃度

$r_n$ ：当該発生源のBmr-CMB法により算出された発生源寄与率

$X_1 \sim X_n$ ：各種発生源

## 3 結果及び考察

### 3-1 土壌について

燃焼系の発生源として不法投棄現場に埋立てたと推察される燃え殻を選択し、当該土壌で観察された異性体分布状況から農薬系の発生源を使用した。Bmr-CMB法の適用に際し、土壌試料の検討は、現場の状況を反映した発生源を使用しているため、今回検討した水質及び底質と比較し、推定精度が高いことが予測されたため、本要旨では本試料の解析に使用したBmr-CMB法による4種類の確率分布全て及び概算手法により得られた結果について下図に示した。St.1及び4では燃焼系の燃え殻及び農薬系のPCPによる寄与は両者間でほぼ類似した傾向を示したが、農薬系のCNPに関しては概算手法において寄与が過小に評価された。St.3ではBmr-CMB法による4種類の確率分布の相違が大きいため、未知発生源が存在する可能性が示唆された。

### 3-2 水質について

公共用水域水質環境基準超過地点については、燃焼系の発生源として降下煤塵及び県内の産業廃棄物焼却炉で採取された燃え殻を用いた。また火災現場近くに所在するため池については、現場で採取された燃え殻試料を解析対象として使用した。この結果いずれにおいてもBmr-CMB法と比較して、概算手法により算出された結果はPCP及び燃焼系の寄与が高く、CNPは低く評価される傾向にあった。

### 3-3 底質について

公共用水域水質環境基準超過地点で採取したいずれの試料においても水質試料と同様Bmr-CMB法と比較して、概算手法により算出された結果はPCP及び燃焼系の寄与が高く、CNPは低く評価される傾向が観察された。

### 3-4 総合結果

3-1から3-3の結果により、概算手法は汚染された現場に対し、スクリーニング的に概況を知る上では有効な手段である。しかし、精度が要求される場合にはBmr-CMB法の利用が適していると考えられる。概算手法として用意されている発生源は農薬系のCNP及びPCP、燃焼系、PCB系の4つであり、ダイオキシン類として主要な発生源として知られる漂白系、更には当該地域特有の発生源には対応できないことから、使用に当たっては、解析を実施する対象地域の状況に合わせて、手法を適用する必要があるものと思われる。

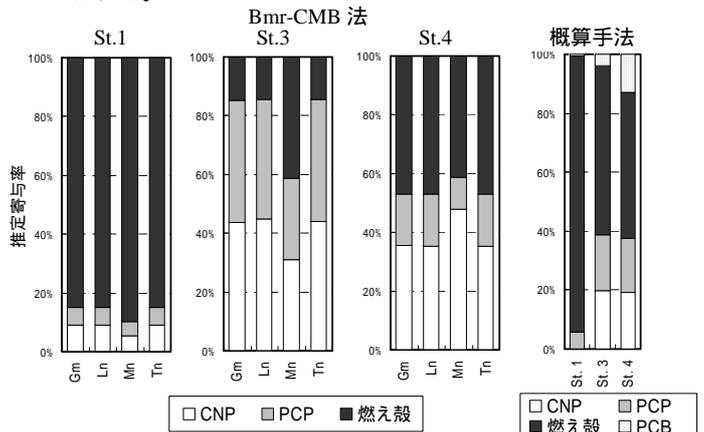


図 不法投棄現場における土壌中ダイオキシン類のTEQ寄与率推定

## 4 . 酸性雨自動測定に基づく事例解析 ( 2 )

大気環境部 仁平 明 木立 博 高橋誠幸  
加賀谷秀樹

### 1. はじめに

0.5mm降水毎にpH、ECを連続測定する酸性雨自動測定は、国の第2次酸性雨対策調査(昭和63年度～)で採用され県内においては2ヵ所の国設局で測定を行ってきた。その後国設局における測定は廃止になったが、本県では測定値の信頼性に課題は残るものの酸性雨の動的状態を把握する上で必要であるとの認識から、県独自にも測定機を整備し現在まで測定を継続している。また、測定結果の評価に関しては、pHは地表付近でアルカリダストの影響を受ける場合が多いため、より積極的に降水の汚染度及び中和度を評価するものとして、汚染導電率ECpと水素イオン比rHを提案してきた<sup>1)</sup>。本報ではこれらの指標を用い低pHが出現したときの降水事例について解析した。

### 2. 方法

#### 2.1 解析データ

丸森大気常時測定局(以下「丸森局」という。)における平成18年度酸性雨自動測定結果。

#### 2.2 評価指標

降水の汚染度の指標として $EC_p = EC - \alpha [H^+]$ 、中和度の指標として $rH = 2 \beta [H^+] / (EC_p + \alpha [H^+])$ を用いた。ここで、 $[H^+]$ と $\alpha (= 349.81 Scm^2/eq)$ は水素イオン当量濃度とその極限当量電導度、 $\beta (= 67.19 Scm^2/eq)$ は定数で $H^+$ 以外のイオン成分の極限当量電導度の代表値である。

### 3. 結果と考察

#### 3.1 汚染空気の影響による事例

丸森局において2006年4月11～12日に観測した雨は11日9時頃に感雨し、時を同じくして地表付近の大気中では $NO_2$ の増加がみられた。このときは霧を伴う霧雨で最初の0.5mm採取時間は約13時間と長かったが、ECp、rHはともにこの後の1.0mm目に最大となりpHは3.75に低下した。 $NO_2$ は1.0mm目を採取した直前に極大になっている。降水中ECpと大気中 $NO_2$ の変化傾向が類似しており、鶴田らが報告したカイツーンを用いた立体調査の結果<sup>2)</sup>、即ち雲粒によるエアロゾル、 $SO_2$ ガスの捕集率はほぼ100%であったのに対し、 $NO_2$ は雲粒に取り込まれず雲の中の大気中に存在していることが可能であった事実を当てはめれば、 $SO_4^{2-}$ や $NO_3^-$ 等の酸化性物質を含むエアロゾルや $SO_2$ 、 $NO_2$ ガスによる汚染空気が雲粒と大気にそれぞれ影響し、降水中ECpと大気中 $NO_2$ の増加が連動して生じたのではないかと推察される。

#### 3.2 やませ時の事例

丸森局において2006年7月8～10日に降った雨の0.5mm目にpH3.43が出現した。同時にECも $225 \mu S/cm$ を記録するなど、酸化性物質による汚染が顕著であった。8日9時過ぎに感雨し、約30時間を要して翌9日15時頃に最初の0.5mmを採取している。その後1.5mm目までは降雨強度の小さい状態が続き、rHは30～40%程度と大きく中和作用はほとんど働いていなかった。9日22時頃から雨が強まったが、rHはECpと同様に降水量とともに減少する変化をしていた。当時の気象条件は、前半の降雨強度の小さい雨はオホーツク海の高気圧からの湿った東寄りの風、所謂やませの影響による霧雨であり、後半の強まった雨は東北部に北上し停滞した梅雨前線の影響によるものである。やませの場合は冷たく湿った風が大気の下層に流れ込むため、雲は低いところができる。やませの影響が支配的だった期間中の降水は低pH、高ECの状態であった。オホーツク海から汚染空気が流入するとは考えにくい。低い雲のため地域汚染の影響をより受けやすいことが考えられ、これによって雨水は酸性化したのではないかと推察される。梅雨前線の影響を受け始めた9日22時以降はECが急速に減少し、pHは5.4前後に収束していた。

### 4. おわりに

様々な形態で起きる降水汚染の現象把握のため、低pH出現のほか黄砂時や海塩粒子の影響が著しい場合などの解析も進めている。解析事例を増やし法則性を見出すことによって、県の環境基本目標である「酸性雨のメカニズム解明」に資したいと考えている。

#### 参考文献

1)仁平ら:宮城県保健環境センター年報、24、84(2006)

2)鶴田ら:酸性雨に関する調査研究報告書(横浜市環境科学研究所)、1993、119

# 5. 宮城県における大気環境中の有害大気汚染物質 モニタリング調査結果

大気環境部 佐久間隆 小泉俊一 北村洋子  
木戸一博 加賀谷秀樹

## 1 はじめに

平成8年5月に「大気汚染防止法の一部を改正する法律」が公布され、国及び地方公共団体は有害大気汚染物質の大気汚染状況の把握に努めなければならないことが定められた。宮城県では測定対象となっている優先取組物質22物質のうち、平成9年10月から揮発性有機化合物9物質について濃度測定を開始し、その後測定物質の追加を行い現在19物質について大気環境中濃度測定を実施している。

今回、平成10年度から17年度までの調査結果をまとめ宮城県内における有害大気汚染物質の年次推移、地域汚染の特徴等を把握したので、その概要について報告する。

## 2 調査方法

### 2.1 調査地点

県内4地点で、その概要を表1及び図1に示した。

表1 調査地点の概要

地点名	地点分類	備考
大河原町	一般環境	仙南保健福祉事務所屋上
名取市	道路沿道	名取自動車排出ガス測定局
塩竈市	発生源周辺	塩釜大気汚染測定局
大崎市古川	一般環境	古川大気汚染測定局



図1 調査地点

### 2.2 調査期間、測定頻度

平成10年4月から平成18年3月まで、毎月1回24時間サンプリングを実施した。

### 2.3 試料採取及び分析法

環境庁編「有害大気汚染物質測定方法マニュアル」に従い実施した。

## 3 結果

調査結果の概要を表2に示した。各調査地点の年平均値は、平成10年度と11年度に名取においてベンゼンが環境基準値を超えることがあったが、その他の物質はすべて環境基準、指針値を下回っている。

各物質の年平均値の推移では、テトラクロロエチレン、ベンゼン、塩化ビニルモノマー、1,2-ジクロロエタン、1,3-ブタジエン、ベンゾ[a]ピレンで低下傾向が見られ、トリクロロエチレン、アルデヒド類はほぼ横ばいの状態であった。ジクロロメタン、アクリロニトリル、クロロホルムは、上昇傾向にある地点も見られた。また、全国平均との比較では、ジクロロメタン、アクリロニトリル、クロロホルム、酸化エチレンで濃度が高めの地点が見られた。

表2 各地点の調査結果概要

単位:  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ , ベンゾ[a]ピレン及び金属類は $\text{ng}/\text{m}^3$

調査対象物質	年度	大河原町			名取市			塩竈市			大崎市古川			環境基準 指針値
		平均値	最小値	最大値	平均値	最小値	最大値	平均値	最小値	最大値	平均値	最小値	最大値	
トリクロロエチレン	H10-H17	0.32	0.17	~ 0.43	0.20	0.064	~ 0.51	0.12	0.042	~ 0.23	0.11	0.052	~ 0.17	200
テトラクロロエチレン	H10-H17	0.14	0.072	~ 0.27	0.35	0.14	~ 0.55	0.24	0.087	~ 0.43	0.16	0.061	~ 0.32	200
ベンゼン	H10-H17	1.4	0.87	~ 2.5	2.5	1.8	~ 3.9	1.7	1.0	~ 2.8	1.4	0.98	~ 2.1	3
ジクロロメタン	H10-H17	1.3	0.83	~ 1.6	3.4	1.1	~ 7.6	4.8	1.1	~ 13	1.7	0.84	~ 4.0	150
アクリロニトリル	H10-H17	0.050	0.024	~ 0.10	0.11	0.070	~ 0.17	0.26	0.070	~ 0.47	0.16	0.070	~ 0.37	2
塩化ビニルモノマー	H10-H17	0.033	0.012	~ 0.070	0.039	0.023	~ 0.10	0.039	0.020	~ 0.10	0.033	0.018	~ 0.090	10
クロロホルム	H10-H17	0.17	0.12	~ 0.24	0.40	0.20	~ 0.90	0.32	0.11	~ 0.60	0.36	0.18	~ 0.69	18
1,2-ジクロロエタン	H10-H17	0.095	0.038	~ 0.22	0.12	0.021	~ 0.30	0.10	0.029	~ 0.26	0.093	0.032	~ 0.22	1.6
1,3-ブタジエン	H10-H17	0.18	0.091	~ 0.34	0.43	0.24	~ 0.82	0.21	0.097	~ 0.44	0.18	0.10	~ 0.32	2.5
アセトアルデヒド	H10-H17	2.6	1.7	~ 5.1	3.1	2.4	~ 4.1	2.7	1.3	~ 3.7	2.1	1.2	~ 2.9	
ホルムアルデヒド	H10-H17	2.5	1.9	~ 4.0	4.2	3.2	~ 5.5	2.4	1.5	~ 2.9	2.0	1.6	~ 2.4	
ベンゾ[a]ピレン	H10-H17	0.32	0.11	~ 0.47	0.43	0.15	~ 0.73	0.30	0.048	~ 0.53	0.27	0.090	~ 0.41	
ニッケル	H14-H17	2.0	0.70	~ 2.6	3.2	0.91	~ 5.0	3.1	1.1	~ 5.4	11	2.8	~ 17	25
ヒ素	H14-H17	0.77	0.25	~ 1.4	1.0	0.30	~ 1.6	1.0	0.33	~ 1.6	1.4	0.30	~ 2.4	
バリウム	H14-H17	1.4	< 0.40	~ < 10	1.4	< 0.40	~ < 10	1.4	< 0.40	~ < 10	1.4	< 0.40	~ < 10	
マンガン	H14-H17	11	5.2	~ 13	32	17	~ 45	18	9.5	~ 30	12	6.5	~ 18	
クロム	H14-H17	3.1	1.3	~ 4.0	4.7	1.7	~ 6.2	4.1	1.0	~ 7.1	3.2	0.5	~ 4.7	
酸化エチレン	H14-H17	0.26	0.20	~ 0.36	0.45	0.32	~ 0.67	0.27	0.22	~ 0.35	0.27	0.23	~ 0.32	
水銀	H17	1.8	-	~ -	2.0	-	~ -	1.8	-	~ -	1.7	-	~ -	40

注: 平均値の欄は年平均の算術平均値を記載した。検出下限値未満のデータは検出下限の1/2を用い平均値を算出した。

## 6 . パッシブサンプラーによる県内の大気汚染状況

大気環境部 北村洋子 佐久間隆 小泉俊一  
木戸一博 加賀谷秀樹

### 1 はじめに

宮城県は大気汚染防止法に基づき、大気汚染測定局で大気環境の汚染状況の常時監視を行っているが、非汚染地域や生態系への影響等の研究を主たる目的とした汚染物質濃度の把握等の配置にはなっていない。一方、パッシブサンプラーによる大気汚染物質の測定は、電源を必要とせず、取扱いが簡便で安価なため、数多くの任意の場所に設置でき、山間部等での測定も容易であることから、面的かつ広域的な測定・評価が可能である。また、窒素循環の観点からアンモニアガスについても測定が可能である。

本報告は平成 15 年から全環研共同調査と歩調を合わせ行っているパッシブサンプラーによる大気汚染物質濃度調査のうち平成 17 年度までの 3 カ年分の結果をまとめたものである。

### 2 調査方法

2.1 調査期間：平成 15 年 4 月～平成 18 年 3 月

2.2 採取方法：小川式パッシブサンプラーを用い約 1 ヶ月単位で捕集

2.3 採取地点：丸森局、保健環境センター、原子力センター寄磯局、国設籠岳局、内水面水産試験場

2.4 測定項目および分析方法

一酸化窒素、二酸化窒素、窒素酸化物：TRAACS 800 法 オゾン、アンモニア、二酸化硫黄：硝酸イオン、アンモニウムイオン、硫酸イオンとしてイオンクロマトグラフ法

### 3 調査結果

3.1 各成分の全期間平均濃度について図 1 に示す。

二酸化窒素については市街地である保健環境センターが全期間平均で 13.5ppb で最も高く、他地点は 3ppb 以下であった。オゾンについては全期間平均で寄磯局、籠岳局、内水面水産試験場で 25ppb 以上であったのに対し、保健環境センターが 20ppb 以下と最も低い値であった。アンモニアについては保健環境センターが 1.26ppb で最も高く、他地点は 1ppb 以下であった。二酸化硫黄については保健環境センターが若干高い値を示したが、全地点で 1ppb 以下であった。

3.2 各地点における経時変化について

一酸化窒素、二酸化窒素についてはほぼ全地点同様の変動を示しており良い相関が得られた。オゾンについても全地点同様の変動を示しており、かなり良い相関が得られた。アンモニアガスについては保健環境センターを除いた地点では同様な変動を示しており、季節による差が若干ではあるが認められた。

3.3 常時監視局データとの関係について

丸森局および籠岳局について常時監視局データとの関係を調べた。その結果オゾンについては絶対値での差はあるものの良好な相関が得られた。また、二酸化窒素については丸森局では良い相関が見られたが、籠岳局では相関は良くなかった。

### 4 まとめ

今後問題になるであろうアンモニアガス濃度の把握や生態系への影響が懸念される山間部や海岸部などでの汚染物質濃度を継続的にモニターしていくにはパッシブサンプラーは有効な手段であると考えられる。

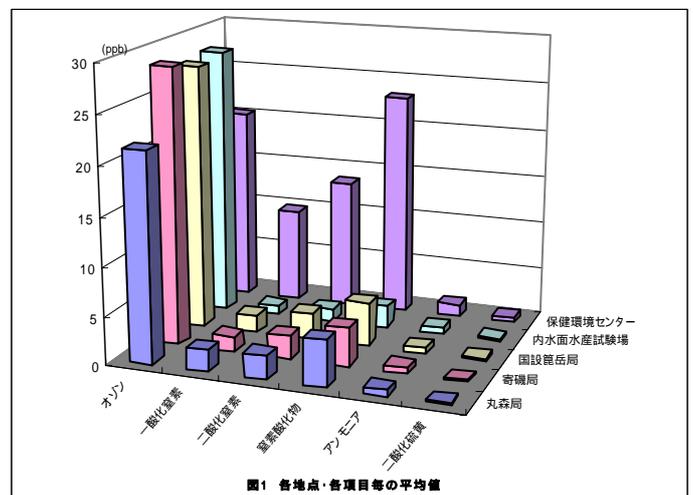


図1 各地点・各項目毎の平均値

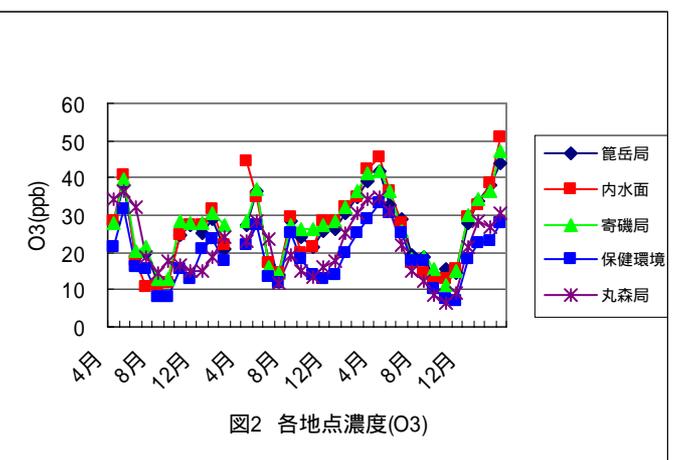


図2 各地点濃度(O3)

# 7.ディーゼル発電施設排出ガス実態調査及び環境影響調査結果

大気環境部 小泉俊一 佐久間隆 北村洋子 木戸一博 木立 博  
 企画情報部 高橋誠幸 仁平 明 小室健一 加賀谷秀樹  
 中村栄一

## 1.はじめに

コージェネレーションシステム等の分散型電源の普及に伴い、自家発電用のディーゼル機関の設置が増えているが、窒素酸化物の排出基準が他のばい煙発生施設に比べ著しく緩く、また排出口が低い位置にあることが多いことから、環境への影響が懸念される。そこで平成16年度から3カ年に渡りディーゼル機関の排出実態及び環境影響調査を実施したので報告する。

## 2.方法

### (1) 煙道排ガス測定

JIS Z8808,K0104 に定められた測定方法により排ガス温度、排ガス流量、窒素酸化物濃度、酸素濃度を測定した。

### (2) 環境影響調査

平成16年度は色麻町のS工場周辺で、平成17年度は美里町のI工場周辺で、平成18年度は栗原市のK病院周辺で風下方向に移動測定車及びNO<sub>x</sub>計を設置し約1ヶ月間連続測定を実施しNO<sub>2</sub>等の環境影響について調査した。

## 3.結果

### (1) 煙道排ガス測定結果

発電能力248Kwから1250Kwまで16の施設の排出ガスを測定した結果を表1に示す。排出ガスの窒素酸化物濃度は酸素補正值で見ると630から1200ppmでありボイラなど他の燃焼施設に比べ格段に高く、そのうち5施設は排出基準値950ppmを超過していた。排出ガス温度は熱回収を実施している病院施設以外は400℃付近に集中し高熱量排ガスとなっている。煙突高は20mを超えるものもあるが殆どが6mで程度でありボイラなどの燃焼施設に比べ低く、拡散による希釈効果が期待できず、気象条件によっては周辺に局地汚染を生じさせるおそれが認められた。

表1 煙道排ガス測定結果

	事業所名	規模	温度	排ガス量	煙突高	NO <sub>x</sub> (補正值)
		Kw		Nm <sup>3</sup> /H	m	ppm
1	T産業仙台工場	535	410	1000	4.6	800
2	M中核病院	390	400	1800	20.8	880
3	S東北工場	496	340	2000	8	1100
4	L仙台ファクトリー	390	380	3300	4.5	770
5	I小牛田工場	537	410	3100	5.7	680
6	T村田工場	1250	410	3700	12	630
7	S製線	536	430	2300	5.6	650
8	TS丸森工場	537	370	1100	4.6	930
9	I柴田	300	440	950	5.5	1200
10	S白石	248	420	980	6	990
11	K中央病院	400	240	1600	25.3	770
12	K工業	495	400	980	4.7	720
13	KS大河原工場	499	400	1500	7.9	670
14	Y造船	280	410	1500	5	1000
15	T富谷工場	535	410	2500	4.6	710
16	T水産	250	340	1000	6	1100

### (2) 環境影響調査結果

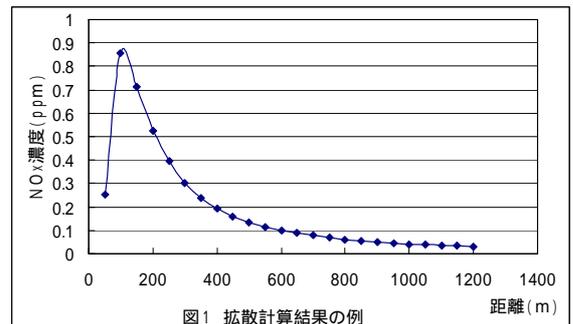
#### イ 色麻町S工場周辺 (平成16年度調査)

S工場には496Kwの発電施設が2基設置されておりこの他に窒素酸化物の大きな発生源はない。平成

17年2月に約1ヶ月間風下方向100m、200m、450m地点でNO<sub>2</sub>等の環境測定を実施したが、200m地点ではNO<sub>2</sub>の日平均値の最大が0.038ppmに達し、発電施設の影響だけで高い汚染状況が観測された。

#### ロ 美里町I工場周辺 (平成17年度調査)

I工場には537Kwの発電施設が4基設置されており、南側に国道108号線が通じているが、道路(車)からの影響の少ない地点を選定し発電施設の影響を観測した。平成18年1月に約1ヶ月間風下方向100m、200m、250m地点でNO<sub>2</sub>等の環境測定を実施した。100m地点のNO<sub>2</sub>の日平均値は0.016ppmから0.077ppmの間であり、観測日数25日の内21日間は0.04ppmを超過し、10日間は0.06ppmを超過し環境基準を超過していた。



#### ハ 栗原市K病院周辺 (平成18年度調査)

K病院には400Kwの発電施設が2基設置されており西側には国道4号線が通じている。平成18年7月から約1ヶ月間300m、500m地点でNO<sub>2</sub>等の環境測定を実施した。NO<sub>2</sub>の日平均値の最大値は0.013ppmであり前2者に比べ汚染の状況は低いものであった。これは、当施設の煙突高が20mを超え、前2者の煙突高が8m及び6mであり拡散の状況が全く異なるためと考えられた。

## 4.まとめ

ディーゼル発電施設の排出ガス中の窒素酸化物濃度はボイラ等の燃焼施設に比べ格段に高く、煙突高が低い施設では他の燃焼施設では見られない局地汚染が発生していることが確認された。また、平成17年度末の届け出状況を見るとディーゼル機関の設置施設数は598でボイラに次いで2番目に多い施設であり、他の地域でも局地汚染が発生している可能性が高く、今後何らかの排出規制強化等の対応が必要と思われる。

# 8 . 自動車排出ガスによる汚染状況と自動車交通量の関連

大気環境部 高橋誠幸 木立 博 仁平 明  
加賀谷秀樹

## 1 はじめに

自動車からの大気汚染物質による濃度の推計手法は、交通量(台)と排出係数(1台の自動車が排出する単位距離あたりの排出量、g/km)、道路条件、気象条件等を用いる。そこで、継続的に通年測定している自動車排出ガス測定局 10 局と、約 1 ヶ月間の調査を毎年数地点で実施している大気環境測定車の収集データを解析し、自動車排出ガスによる汚染状況と自動車交通量の関連を調べた。

## 2 Calm(静穏)時の NOx 濃度と自動車交通量の関連

道路近傍での自動車排出ガスによる汚染状況は、気象条件による拡散への影響が少ない Calm 時に的をしばると、自動車交通量との関連性があることが考えられる。そこで、道路交通センサスの自動車交通量データ(昼間、夜間)と、過去 7 年間の幹線道路周辺における Calm 時の NOx 濃度(夏期、冬期)の関連を解析した。

その結果、昼夜間各 12 時間内の Calm 時における NOx 濃度の平均と 12 時間交通量の相関係数を表 - 1 に示すが、冬期の夜間が危険率 1 % で有意な相関があることがわかり、これは大気安定度と拡散の面からも頷ける。

表 - 1 Calm 時の平均濃度と平日 12 時間の交通量の相関係数

項目	昼夜間	土、日、祝日の扱い	夏期冬期	相関係数	危険率_%で有意	データ数 <sup>*</sup>
NOx	昼間		夏期	0.327		11
	昼間		冬期	0.740		15
	夜間		夏期	0.650		67
	夜間		冬期	0.892	1%	44
	夜間	土、日、祝日を除く	夏期	0.595		47
	夜間	土、日、祝日を除く	冬期	0.905	1%	33
NO	夜間		冬期	0.875	1%	44
	夜間	土、日、祝日を除く	冬期	0.889	1%	33
NO2	夜間		冬期	0.570		44

\* データ数(7 調査地点の平均データ数、約一ヶ月のうち何時間が Calm だったかを示す)

## 3 二酸化窒素(NO<sub>2</sub>)の環境基準のゾーン下限値 0.04ppmの達成状況と自動車交通量

NO<sub>2</sub>の日平均値の年間 98%値が環境基準のゾーン下限値 0.04ppmを達成しているか、すなわち県の環境基本計画の目標値でもある環境基準のゾーン下限値の達成状況について、昭和 60 年度から平成 17 年度までの 21 年間にわたり自動車排出ガス測定局の測定結果を調べた。その結果、平日の昼間 12 時間の自動車交通量が 30,500 台以上のグループ(図-1)と 23,100 台以下のグループ(図-2)で達成状況に明瞭な差異があった。このことを踏まえて、宮城県内(仙台市を除く)の道路交通センサスの調査単位区間について、二酸化窒素(NO<sub>2</sub>)の環境基準のゾーン下限値 0.04ppmについての達成状況のスクリーニングを試み、(超過、達成するか不明、達成)の 3 グループに分類出来た。これらは、宮城県自動車交通公害防止計画の施策体系の交通流対策のうち道路網整備対策で、環境基準の達成を考慮に入れたバイパス等の整備などの施策立案に資することができる。

図 - 1 二酸化窒素(NO<sub>2</sub>)の日平均値の年間98%値の経年変化

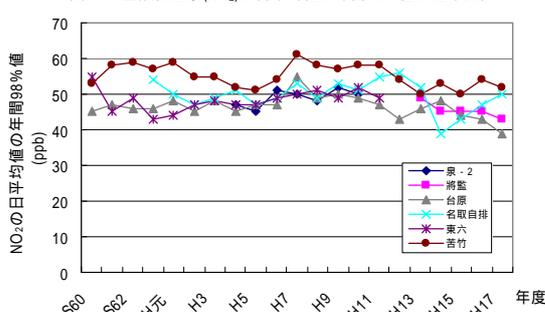
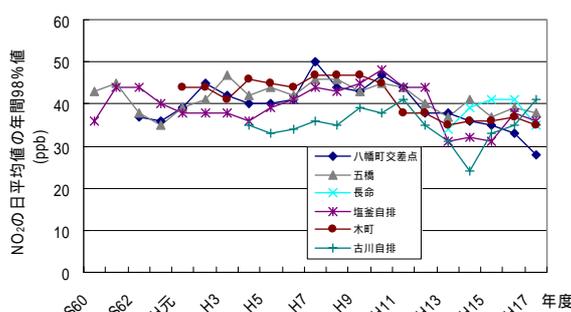


図 - 2 二酸化窒素(NO<sub>2</sub>)の日平均値の年間98%値の経年変化



平日の昼間 12 時間の自動車交通量(台)は、将監 49,600 台原 42,200 名取自排 36,100 東六・苦竹 30,500 及び八幡町交差点 23,100 五橋 22,700 長命 22,200 塩釜自排 21,600 木町 18,300 古川自排 18,000。

## 9 . 浮遊粒子状物質自動測定機のメーカー間の差について

大気環境部 木立 博 高橋誠幸 仁平 明  
加賀谷秀樹

### 1. はじめに

保健環境センター大気環境部では県内に設置した大気常時測定局において大気汚染状況を監視している。測定項目のひとつである浮遊粒子状物質(以下 SPM と略す)計は 24局に設置しているが、測定機メーカーは4社あり、測定機更新による測定値の変動等からメーカー間で測定値に差があることが考えられた。

### 2. 測定機の更新による測定値の変動

平成17年9月下旬に SPM 計を5局で更新した。柴田科学製から東亜 DKK 製に更新したものが3局(名取自排局、石巻 局、松島局)、紀本電子製から東亜 DKK 製に更新したものが2局(築館局、白石局)であった。平成17年度上半期及び平成18年度上半期の各局の平均値の比較を図1に示す。更新がなかった局では各局で若干の平均値の低下がみられたが、柴田科学から東亜 DKK に更新した局では平均値の低下が極端に大きかった。紀本電子から東亜 DKK に更新した局では、更新しなかった局と同程度の平均値の低下がみられた局と、平均値の上昇がみられた局があった。

平成17年度上半期及び平成18年度上半期の各局の平均値をメーカーごとに分けて比較したものを図2に示す。柴田科学製のものに比べ他社の測定値が低い傾向があるが、特に、柴田科学から東亜 DKK に更新した局の測定値低下が著しく、平成17年度上半期で最も濃度が高かった名取自排局の測定値は、平成18年度上半期では柴田科学製の最下位に近い値を示した。名取自排局は国道4号線に面して自動車交通の影響が強く、NO<sub>2</sub>濃度はH17年度及びH18年度ともに最も高い濃度を示しており、SPM濃度の変動は異常と言える。

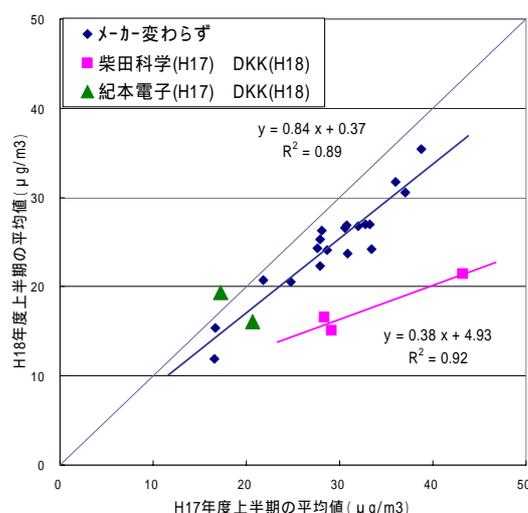


図1 H17年度及びH18年度の測定値の比較

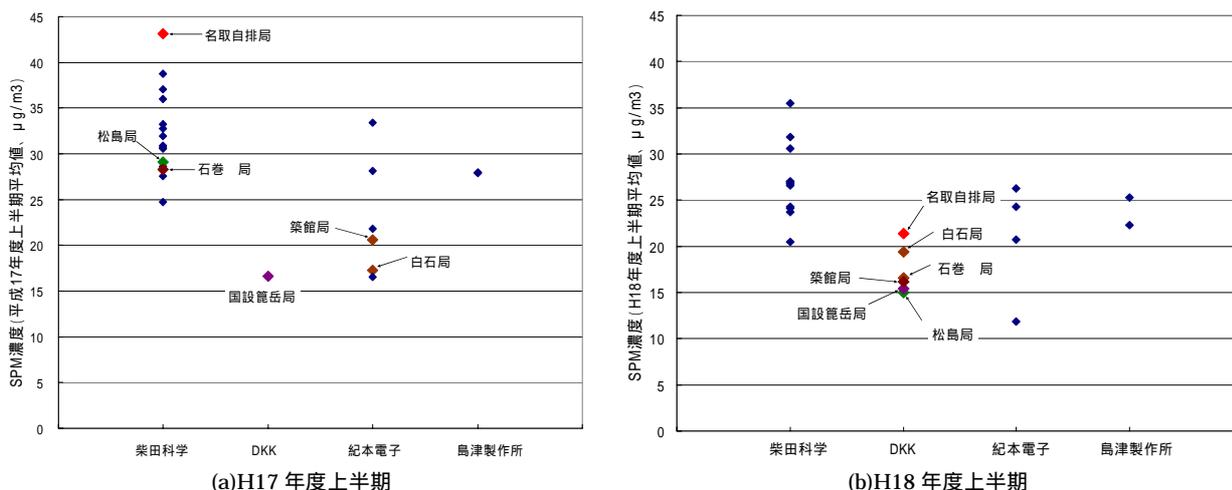


図2 メーカーごとの測定値の比較

### 3. まとめ

SPM 計更新による測定値の変動から、柴田科学製に比べ他メーカーの測定値は低い傾向があり、その中でも東亜 DKK 製は異常に測定値が低いと考えられた。測定値のメーカー間における差は、測定局間、測定項目間の比較における不合理さや測定値自体の信頼性、継続性に対する疑問を生じ、公害対策の施策評価を困難とする重大な問題である。そしてこれは全国にも波及する問題であるため、国レベルでの対応が必要と考えられる。

# 10. 宮城県における PM2.5 調査結果 (炭素成分及び金属成分)

大気環境部 木戸一博 佐久間隆 小泉俊一  
北村洋子 加賀谷秀樹

## 1 はじめに

粒径 2.5 μm 以下の微小粒子状物質 (PM2.5) の組成や発生源寄与率を明らかにするため、名取自動車排ガス測定局 (以下名取と略) と自動車排ガスの影響の少ない国設籠岳局 (以下籠岳と略) において元素状炭素 (以下 EC と略) と有機炭素 (以下 OC と略) 及び金属成分について調査を行い、CMB 法 (Chemical Mass Balance 法) により PM2.5 への自動車排ガス等の発生源寄与率を推定したので報告する。

## 2 方法

### (1) 調査期間及び調査地点

調査は (春季) 平成 17 年 4 月, 5 月 (夏季) 7 月, 8 月 (秋季) 10 月, 11 月 (冬季) 12 月, 平成 18 年 1 月に名取と籠岳の 2 地点で実施した。

### (2) 調査方法

浮遊粒子状物質の捕集は、ローボリウムアンダーセンエアサンプラ - (柴田科学社製 AN-200) を用いた。ローボリウムアンダーセンエアサンプラは 0 段目 (dp50=11 μm) 4 段目 (dp50=2.1 μm) バックアップフィルターの 2 段に組み、巨大粒子 (粒径 11 μm 以上)、粗大粒子 (粒径 2.1 μm 以上 11 μm 未満)、微小粒子 (粒径 2.1 μm 未満) に分けて捕集した。捕集用ろ紙は石英ろ紙 (Pallflex2500QAST) を用い、28.3L/min の空気吸引量で 2 週間捕集した。

### (3) 分析方法

炭素の分析は CHN コーダ (MT-5 型柳本製作所製) で分析し、600 の He 雰囲気中で加熱処理したときに揮発する炭素を OC、850 の He 雰囲気中で燃焼した残りの炭素を EC とした。元素組成分析は粒子励起 X 線分析法 (PIXE 法) により行った。

## 3 結果と考察

### (1) 粒径別濃度

名取と籠岳の全粒子状物質濃度 (TSP濃度) の平均は 39.2 μg/m<sup>3</sup>, 17.8 μg/m<sup>3</sup> と沿道の名取が田園地域の籠岳の約 2 倍の値を示した。微小粒子濃度の平均は名取が 16.4 μg/m<sup>3</sup>, 籠岳が 9.9 μg/m<sup>3</sup> であった。微小粒子濃度は TSP の約 4 割から 5 割を占めていた。

### (2) 微小粒子に含まれる EC・OC 濃度と重金属濃度

微小粒子中の炭素成分及び重金属成分濃度の平均を表 1 に示した。EC 濃度の平均は名取が 4300ng/m<sup>3</sup> で籠岳は 1200ng/m<sup>3</sup> と沿道が田園地域より約 3 倍高濃度であった。OC濃度の平均は名取が 1500ng/m<sup>3</sup> で籠岳は 1000ng/m<sup>3</sup> と EC と同様に沿道が田園地域より高い値を示した。重金属成分は Cu を除き、沿道と田園地域で有意な差は認められなかった。

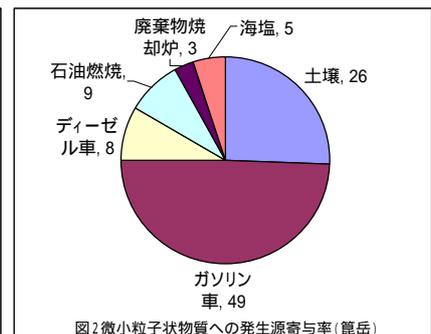
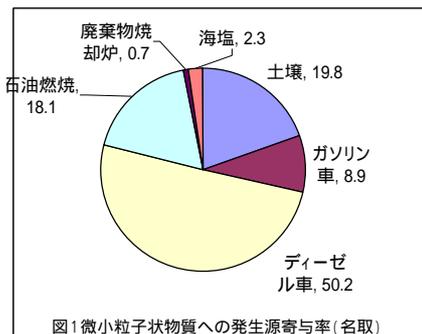
表1 炭素・重金属成分濃度

	名取	籠岳
K	66	85
Ca	50	35
Ti	13	9
V	1	1
Cr	2	4
Mn	8	8
Fe	173	242
Ni	2	3
Cu	14	6
Zn	72	56
Pb	16	21
EC	4300	1200
OC	1500	1000

(ng/m<sup>3</sup>)

### (3) 発生源寄与率の推定

微小粒子中の炭素成分及び金属成分を元に CMB 解析を用いて発生源寄与率の推定を行い、名取の結果を図 1 に、籠岳の結果を図 2 に示した。名取、籠岳ともにディーゼル車やガソリン車の寄与率が大きく、微小粒子への自動車排ガスの影響が大きいことが明らかとなった。



# 11. 女川原子力発電所前面海域における放射性ヨウ素 131 の 検出について

原子力センター 面川和信 木村昭裕 高橋正人  
伊藤節男 石川陽一 佐藤博明

## 緒 論

平成18年7月に東北電力株式会社が女川原子力発電所前面海域で採取した海藻の「あらめ」を分析したところ、人工放射性物質のヨウ素131(半減期8日)が微量に検出された。宮城県では旧ソ連チェルノブイリ原子力発電所事故の影響により環境試料に検出された例があるが、その後は検出されることがなかった。全国的にも、過去に石川県で海藻の「ほんだわら」から検出された例などがあるのみである。原子力発電所では、ヨウ素131は運転中または停止直後の原子炉の燃料棒内に主に存在しており、原子炉水中にも一部が存在している。

このため、女川原子力発電所からの放出の可能性も含め、その放出源や分布状況等を確認するため、東北電力と合同で調査を行った。

## 調査方法

女川原子力発電所の前面海域及び周辺海域、対照水域の環境試料を採取した(図1)。採取した海産生物などの試料をその種類や測定目的に応じて、未処理あるいは粉碎、乾燥、灰化等の処理をした後に、ゲルマニウム半導体検出器で放射能を測定した。



図1 試料採取地点  
調査結果

種々の環境試料を調査したところ、ヨウ素131は濃縮係数が高い「あらめ」から検出されたものの、海水やヨウ素の濃縮係数が低い魚介類等からは検出されなかった。図2に「あらめ」の調査結果を示す。8月中旬以降、ヨウ

素131は前面海域(印)では検出されなくなったが、周辺海域(印)、及び発電所から直線距離で10数km以上離れた対照水域(印)では継続して検出された。

検出されたヨウ素131の放射能濃度は、仮に、原子力発電所の原子炉水中のヨウ素131が全量放出され生物濃縮されたと仮定しても、説明できないものであった。

さらに、原子炉水には人工放射性物質のコバルト60も含まれるが(表1)、コバルト60の放射能濃度がヨウ素131の500倍程度高いにもかかわらず、「あらめ」からは検出されなかった。以上の理由から、発電所からヨウ素131が放出された可能性は極めて低いと推定された。

この調査で検出されたヨウ素131による預託実効線量(生涯の総被ばく線量)は、最大濃度の「あらめ」(0.33ベクレル/kg生)を1年間食べ続けても0.00008ミリシーベルトであり、一般公衆が自然界から受ける1年間の被ばく量(約2.4ミリシーベルト)と比較して極めて低く、人体に対する影響は無視できる程度に少ないレベルであった。

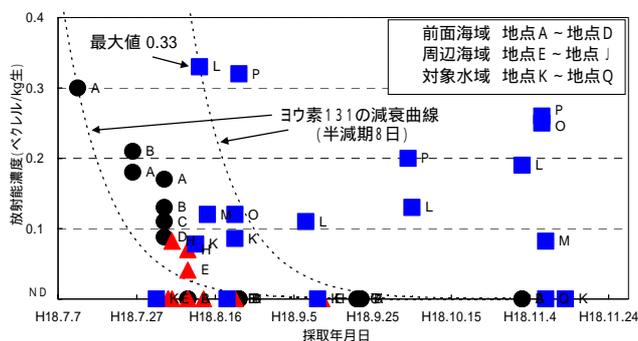


図2 あらめ中のヨウ素131濃度の経時変動

表1 女川原子力発電所3号機の原子炉水の放射能濃度(平成18年度)

人工放射性物質	放射能濃度(ベクレル/ml)	
	運転中 4月1日 ~7月7日	停止中 7月7日 ~7月31日
コバルト60	4.38 ~ 7.19	0.391 ~ 0.416
ヨウ素131	0.0121 ~ 0.0145	ND

## 結 語

海藻の「あらめ」に検出されたヨウ素131は、女川原子力発電所に起因するものではないと推定された。

なお、ヨウ素131の半減期が約8日と短いにもかかわらず長期にわたって検出が続いていることから、今後当分の間、調査を継続する予定である。

# 12. バイオアッセイ手法の事業場排水を含む環境調査への適用事例について

水環境部

大金仁一 阿部郁子 柳沢ちさえ

環境化学部

佐々木久雄 栗野 健 嵯峨京時  
高橋紀世子

## 1. はじめに

内分泌かく乱作用を有する化学物質の調査手法としてバイオアッセイを用いる方法が開発され、環境調査等に利用されている。バイオアッセイを用いる手法は環境や生物への影響を総合的に評価できる可能性があり、手法の改善を含め関係機関において様々の検討がなされている。

宮城県においても 2003 年より、酵母ツーハイブリッドアッセイ法（以下「酵母 Two-hybrid 法」と記す）を用いた調査を実施しており、生活排水などの流入が少ないにもかかわらずエストロゲン様活性の高い河川が確認されている。原因調査を行ったところ、河川上流部に立地する事業所の排水に由来することが判明し、昨年報告している。今回は事業所内における発生源の究明と、そのエストロゲン様活性の低減方法について調査を行ったので報告する。

## 2. 調査方法

河川調査を行うと共に、事業所の廃水処理系統毎に調査を行い、原因工程の解明を図った。また調査で採取した試料を用いて、粉末活性炭を用いた活性低減化試験を室内実験で行った。

### 2.1 試料の前処理方法

国立環境研究所の白石らの方法を参考に行った。試料に酢酸バッファー：メタノール(1:9)液を添加しガラスフィルター（GF/C）でろ過する。次に洗浄・コンディショニングした固相ディスク(Waters Sep-Pak t C18 カートリッジ)に通水し、吸引乾燥後ジクロロメタンで溶出した。窒素ガスの吹き付けにより溶媒を留去した後 DMSO (Dimethyl sulfoxide) に転溶し試料とした。

### 2.2 酵母 Two-hybrid 法

白石らの方法に準じて行った。供試菌株は、国立環境研究所より分与された生物種（ヒト hER、メダカ mER）のエストロゲン受容体遺伝子組込酵母及び試料に含まれる化学物質の酵母への毒性作用を評価するための酵母 YTOX 株を用いた。

### 2.3 粉末活性炭を用いた活性低減化試験

試料に粉末活性炭懸濁液を添加し、活性炭濃度が 0 から 20mg/L になるように試料を調整後、スターラーを用いて 1 時間攪拌し、試料と活性炭を接触させた。次にガラスフィルター（GF/C）を用いてろ過し、メダカ酵母を用いて酵母 Two-hybrid 法にて測定を行った。

## 3. 結果及び考察

工場の排水処理経路の概略を図 1 に示し、エストロゲン様活性の測定値を表 1 に示す。加熱工程以外の系統においては、殆どエストロゲン様活性は認められなかった。昨年の発表に

おいて、2005 年 8 月の事業所排水の測定値が他の調査月の値と比較し、極端に低い値を示していると報告したが、これは点検のため加熱工程が停止していたためと判明した。これらのことよりエストロゲン様活性の原因工程は加熱工程であることが判明した。次に、洗煙廃水及び排水中のエストロゲン様活性の低減化を目的に、粉末活性炭を用いた試験を行ったところ、図 2 に示すように有効であることが判明した。一方、原因物質として想定されるノニルフェノール等の数項目について測定を行ったが、物質の特定には至っていない。このため現在、国立環境研究所との共同研究で物質の特定に取り組んでいる。

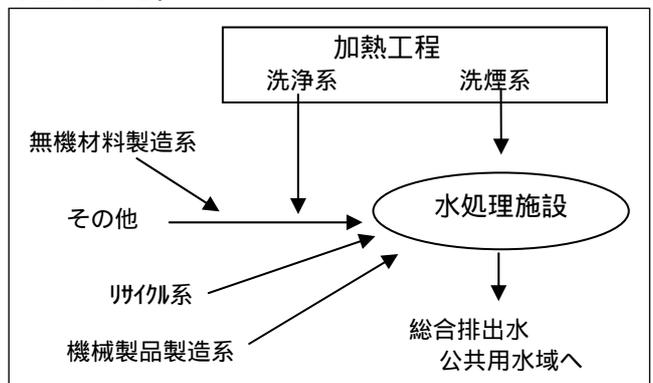


図 1 事業所の排水処理経路の概略

表 1 エストロゲン様活性（E2 換算濃度）の測定値

調査地点 (2005 年 12 月)	mER(-S9)	hER(-S9)
	ppt as E2	ppt as E2
洗浄系	270	13
洗煙系	250	15
総合排水水	36	1.6

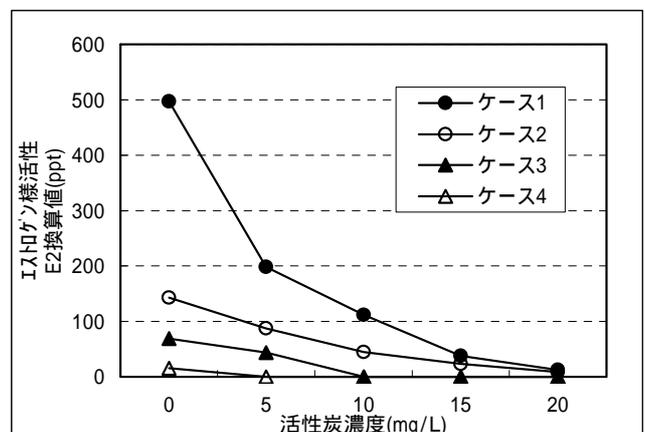


図 2 粉末活性炭による活性低減化試験

# 13. 鉛川の湧水とその水質特性について

## - 鉛川水質監視調査結果 -

水環境部 清野 茂 小山孝昭 牧 滋 栗野 健 嵯峨京時  
栗原保健所 小川 武 大庭和彦  
環境対策課 深澤茂之 四十物良一

### 1. はじめに

鉛川では環境基準を超過する鉛など重金属が検出されるが、この原因は「河床・河岸に高濃度の鉛を含む湧水があるなど地質構造由来の自然汚濁」とされている。本県では、平成14年度から5ヶ年計画で鉛川水質監視調査の一環として、湧水の精査を行っており、平成16年度には3ヶ年間の調査概要を報告した。今回は湧水の水質特性と発生機構を明らかにするため、湧水の変数解析、河床堆積物調査や浸漬実験・溶出試験を行ったので報告する。

### 2. 方法

湧水は河川水温との差が2℃以上を目安に採水し、重金属などを分析すると共に、湧出地点の上流・下流の流量も測定した。湧水はクラスター分析により分類した。河床堆積物調査では岩質を調査し、河床堆積物からの溶出状況を見るため、浸漬実験と溶出実験を行った。さらに薄片の反射顕微鏡により構造観察や粉末X線回折測定により鉱物の同定を行った。

### 3. 結果及び考察

**3.1 湧水の特 性** 湧水は56ヶ所で確認され、その半数以上は河床湧水であった。河床湧水の発生機構は河川水が出入りする河床間隙水域すなわちハイポレックゾーン(HZ)の存在にあり(図1)、河道勾配の緩い氾濫原では河床堆積物が多く埋積することからHZ水も多いと推定される。向原橋から二迫川合流点では流量の増減が多いことから、この区間は発生機構と一致する。

**3.2 湧水の変数解析** 湧水はHZ水と露頭湧水に2大別され、さらにHZ水は河川水由来と浅い地下水由来の2種類に分類された。このことから、HZ水と河床堆積物の関連性が推定される。

**3.3 河床堆積物調査及び浸漬実験・溶出実験** 河床堆積物の岩質は堆積岩が最も多く、次いで脈石(鉱石、ズリなど)、火山岩の順で、流域の地質環境を反映していた(図2)。浸漬実験では脈石との反応により鉛など重金属がHZ水に溶出し、粒径が小さい程重金属濃度が高いことから接触性の大小が濃度の高低に影響したと考えられる。脈石の溶出実験では、鉄と硫酸イオンは表面部で、亜鉛は内部でそれぞれ多く溶出した。このことから、河床堆積物に混在する脈石の中に黄鉄鉱などの硫化鉱物が存在すると、水に

鉛などの重金属が溶出すると考えられる。

### 4. まとめ

鉛川における湧水を水質特性と河床堆積物の関連性から検討したところ、鉛川の湧水の半数以上は河床湧水であり、河川水が出入りするHZからの発生である。周辺の井戸や地下水には鉛など重金属が検出されないことから、湧水がHZにある脈石との接触により、鉛などの重金属が溶出し河川へ流出することが推定される。

鉛川の湧水の水質特性とその発生機構が解明されたことから、今後の鉛川の水質浄化を検討するに当たっての基礎資料になるものと考えられる。



図1 湧水の発生機構模式図

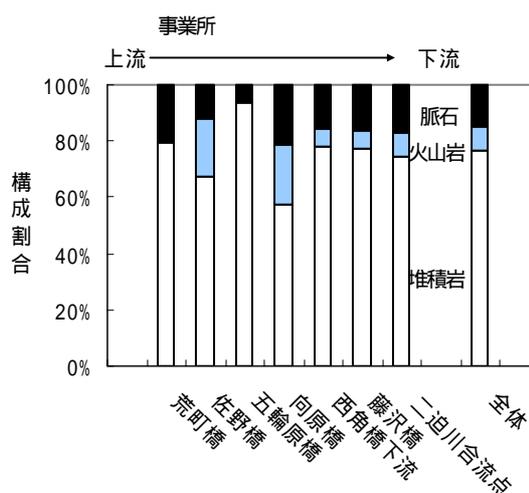


図2 河床堆積物の岩質構成割合

# 14. 伊豆沼・内沼の水生植物による水質浄化の検討

水環境部

渡部正弘 大金仁一 小山孝昭

佐々木久雄 粟野 健 嵯峨京時

## 1. はじめに

県北部に位置する伊豆沼・内沼は湖水が滞留し、水質汚濁と浅底化が問題となっている。これまで流入負荷削減化対策等がいくつか実施されているが、環境省が公表した「COD でみた湖沼の水質下位水域」において平成 15, 16, 17 年度と 3 年連続で全国ワースト 2 位となっている。汚濁負荷のうち約 25% は内部負荷であるという報告もあり内部生産を抑制するため沼に生息する水生植物に着目し、昨年度はヒシの水中からの栄養塩吸収能を測定しその能力が大であることがわかっている。今年度は湖畔の試験池等の現地調査と底質からの栄養塩の溶出を考慮した室内実験を実施したので報告する。

## 2. 方法

試験対象とした水生植物は浮葉植物のヒシで、伊豆沼湖畔の水生植物園にあるヒシで覆われている池を試験池として、その水質とヒシを調査した。

室内実験は 20 の恒温室にて栄養塩の底質からの溶出試験と植物の吸収試験を組み合わせた試験を実施した。筒状採泥器により伊豆沼から採取した底質の上に蒸留水を満たし栄養塩を溶出させ、十分栄養塩が溶出した時に水生植物を投入し栄養塩を吸収させ、定期的に試験水を採取し、溶存態窒素 (DIN) を測定した。

## 3. 結果と考察

### (1) 現地調査

試験池は、ヒシが繁茂しており流出入水が認められず汚濁メカニズムを究明するには適した単純な池であった。この池を調査したところ水中の栄養塩濃度は小さく、栄養塩の流入もないことから、大量のヒシの生体量を維持するための栄養塩は底質からのみ供給されていると考えられた。そこで、栄養塩の底質からの溶出と植物による吸収の関係を明らかにするため室内実験を実施した。

### (2) 溶出に関する室内実験

結果を図 1 に示す。底質から水中へ溶出した栄養塩は、ヒシを投入すると急に減少し速やかにヒシに吸収されることがわかった。

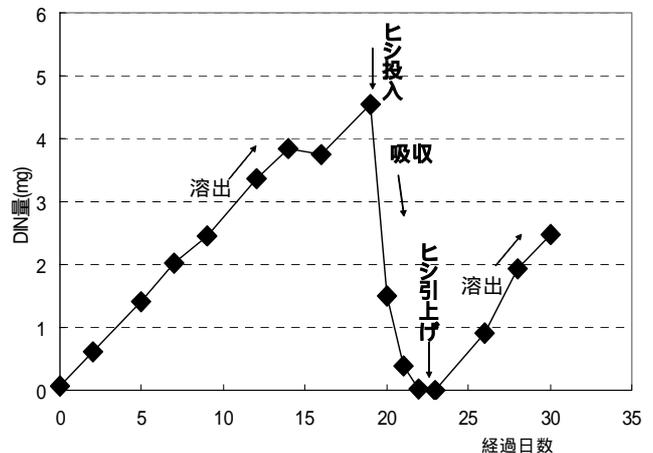


図1 栄養塩の底質からの溶出と植物の吸収

### (3) 検討結果

現地調査と室内実験の結果から、試験池では栄養塩類が底質から水中にもたらされ、それをヒシが素早く吸収し成長に利用して繁茂しているものと考えられた。

このことから伊豆沼・内沼の中では、春から夏にかけて水生植物によって水中から栄養塩が効率的に吸収され、プランクトン等の内部生産を抑えている可能性があることが推察された。

また、ヒシ等の水生植物は水中の小動物等の隠れ場所ともなり、その群落の増加は生物多様性にも寄与するものと思われる。

このように、ヒシ等水生植物の活用による水質浄化は「環境にやさしい方法」と考えられる。今後、生態系に配慮した水生植物の配置を行っていくことが肝要である。

## 4. まとめ

水生植物ヒシは、内部負荷の大きな原因となっている底質から水中に溶出する栄養塩を速やかに吸収し、水環境改善に効果的であることが判明した。

今後、これらの水生植物の特性を考慮し、浄化能力を十分発揮できるよう適正に配置する等の取り組みが、伊豆沼の水環境保全につながるものと考えられる。

# 15. 松島湾におけるアカモク藻場の生態学的調査結果

水環境部 佐々木久雄 小山孝昭 嵯峨京時  
三国屋建設コンサルタント(株) 久保田龍二

## 1. はじめに

松島湾では、湾内の水質を改善するために「松島湾リフレッシュ計画」が策定され、これまで宮城県の各部局が多方面にわたる様々な事業を展開してきた。その一環として「海藻活用水質浄化事業」が実施されており、褐藻類のアカモク(ホンダワラ科)における窒素・リンなどの吸収による水質浄化効果が確認されている。そこで本報告ではアカモク藻場の生態系機能に着目し、生態系構成・季節変化等について調査を行い、藻場の生態学的意義の定量化を試みたので、その結果を報告する。

## 2. 調査期間及び方法

2005年6月～2006年6月にかけて、松島湾内2地点(桂島、寒風沢島)のアカモク藻場において、潜水による植物・動物の目視観察(ヘルトランスレト)および方形区(1m×1m)による定量採集を行なった。採集した試料は、室内にて種の同定、種別湿重量・個体数等の計測を行なった。

## 3. 結果及び考察

### 1) アカモク藻場の構成種

アカモク藻場構成種は、植物は桂島で21～33種、寒風沢島で33～40種が確認され、アカモクを主体として、多年生のアラメや季節によりワカメなどが優占していた。動物は桂島で44～54種、寒風沢島で36～46種が確認され、甲殻類や貝類などが優占していた。また季節によりヨコエビ類の大発生が確認されたのが特徴的であった。

### 2) アカモクの生長度合いの変化

図1にアカモクの生長変化を示した。アカモクの全長は、11月には最大0.8mで冬期間は緩やかに、2月以降から春季にかけて急激に成長し、4月には5m程に達し、6月までは横這いである。一方湿重量は4月以降も増加し、6月には22.8kg/m<sup>2</sup>にまで達した。

### 3) アカモクに蝟集する生物群集(葉上生物)

図2に葉上生物の観察結果を示した。アカモク群落では各季節共に40種前後の葉上生物が確認された。ヨコエビ類は概ね各季節で優占種となっており、桂島においては1月と6月において大量発生し、1m<sup>2</sup>当たり10万を超える個体数の出現が確認された。

### 4. まとめ

藻場を形成するアカモクは2月以降急激に成長し、各季節共に多様な生態系構成の中心的役割を示している。その象徴的現象は蝟集する生物種の豊富さやヨコエビ類などによって示され、これらは魚類などの餌料生物として食物連鎖の基点となっていることが推察される。さらにアカモク藻場ではメバルの稚魚やアイナメの卵塊なども確認されており、魚類の産卵・育成の場など生物の成育空間として価値の高い場所となっていることが明確となった。

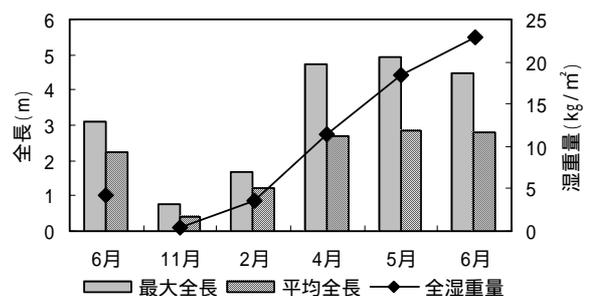


図1 アカモクの生長度合い(寒風沢島)

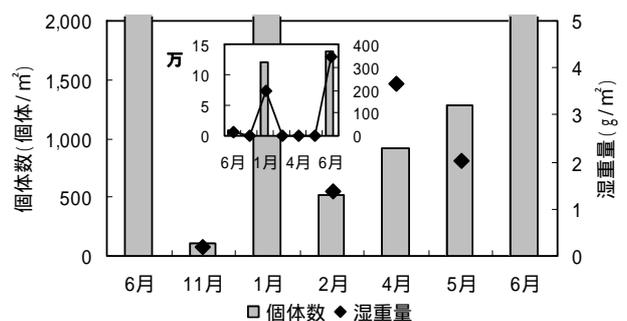


図2 ヨコエビ類の出現状況(桂島)

## 16. 残留農薬抽出法の検討

生活化学部 氏家愛子 長谷部洋 柳田則明

### 1. はじめに

農薬の分析については、食品中の濃度既知の標準試料がないため、農薬の抽出については、農薬標準液を野菜等の試料に添加して行う標準添加回収試験で評価を行ってきており、実試料からの抽出率を把握することができなかつた。今年度、基準値未満ではあるが、多種類の農薬が検出された野菜があったことから、クリーンナップをせず高感度で分析可能な LC/MS/MS を使用し、抽出法について検討を行い知見を得たので報告する。

### 2. 方法

#### 2.1 試料

H18 年度に行政検査を実施した野菜のうち、農薬が数種類以上検出されたきゅうり、日本梨および冷凍枝豆を使用した。試料は搬入当日、ミキサーまたはフードプロセッサにより細切均一化し、保存袋に入れ即日凍結保存しておいたものを使用した。

#### 2.2 試料液の調製

試料各 20g にアセトニトリルを 1 回目抽出 30ml、2 回目抽出 20ml 加え、2.3 の方法に示す抽出法で抽出を行った。抽出時には食塩 6g を添加し塩析を行った。抽出後は、遠心分離により溶媒層を採取して、アセトニトリルで 50ml に定容後、0.2 μm フィルターでろ過し LC/MS/MS の試料溶液とした。

#### 2.3 抽出方法

当所で従来から農薬の抽出法として採用してきた「振とう法(5 分, 2 回)」(以下 A 法)、「超音波抽出 10 分, 振とう 5 分 2 回」(以下 B 法)、「パイオトロンによるホモジナイズ 1 分, 振とう 5 分, 2 回」(以下 C 法)で抽出を行った。また、振とう抽出の時間を、5 分~60 分の範囲で変え(2 回抽出)、振とう時間と抽出率の関係についても検討を行った。

### 3. 結果および考察

- 1) 農薬不検出の冷凍枝豆に、LC/MS/MS 分析対象農薬と、今回、各野菜に検出された農薬を追加した 73 種類の農薬標準液を、試料換算で 5ng/g となるよう添加をし、A 法により分析を実施した。添加回収率は 73 農薬全てで 76%~110%(Ave.94%)と良好な結果が得られた。
- 2) きゅうりは、アセフェート、シプロジニル、エトフェンプロックス、メタミドホス、イミダクロプリドの 5 農薬が検出された。C 法を基準にした時の抽出率 A/C は 89%~104%、B/C は 96%~101% と A,B,C 3 法による差が小さかった。きゅうりは水分含有率が高く、ホモジナイズにより皮を含めた全体が細均一化されるため、農薬は振とう抽出

法でも良好であった。

- 3) 日本梨は、メソミル、イミダクロプリド、クレソキシムメチル、ジフェノコナゾール、シプロジニル、シラフルオフェンの 6 農薬が検出された。メソミル、イミダクロプリドの抽出率 A/C は 80%以上であったが、残る 4 農薬は、28%~53%であった。B/C は、シラフルオフェンが 58%と低く、これらの低抽出率の農薬は水溶解度が低く、オクタノール分配係数(LogPow)の高い農薬であった。日本梨については、果皮と果肉中の農薬分布を調査し、果皮中濃度が果肉中濃度の数倍~数十倍高いことを報告<sup>1)</sup>しており、今回の結果は、果皮に付着した低極性農薬が、振とうまたは超音波抽出では極性の高い水/アセトニトリル混合層に移行し難いことが原因と考えられた。
- 4) 冷凍枝豆は、クロルフルアズロン、ルフェヌロン、シベルメトリン、ペルメトリン、クロルピリホス、フィプロニル、フェントエート、イプロジオン、ジフェノコナゾール、プロピコナゾール、アセフェート、メタミドホスが検出された。抽出率 A/C は、LogPow が高い尿素系農薬のクロルフルアズロン及びルフェヌロンで 55%、51%、トリアゾール系農薬のジフェノコナゾールで 63%と低抽出率であったが、B/C はアセフェートを除き 83%~110%と超音波抽出を加えることにより抽出率が増大した。枝豆は鞘と豆をホモジナイズして試料とするため、水分含量が少なく、超音波をかけることによりアセトニトリル層に移行しやすくなったと考えられた。
- 5) 振とう時間(5, 15, 30, 60 分)と抽出率の関係について、冷凍枝豆を使用し検討を行った。振とう抽出では時間が長くなると抽出率に増大傾向があったが、60 分でも 78%(ジフェノコナゾール)~115%であり、揮発性のあるアセフェートでは逆に時間が長くなると低下傾向があった。
- 6) 抽出の挙動には、LogPow、水溶解度が酷似しているクロルフルアズロンとシベルメトリン、分子構造が酷似しているシベルメトリンとペルメトリン、プロピコナゾールとジフェノコナゾールに 0.01% 有意(t-value)な相関が認められた。

以上の結果、一斉分析では、高極性から低極性の幅広い農薬を同時に抽出するため、様々の性質の食品からの抽出法としては、細胞を破壊できるパイオトロンによる抽出が最適であると考えられた。

1) 新目眞弓, 菊池秀夫, 氏家愛子, 大江浩:宮城県保健環境センター年報, 9, 176-177(2001).

# 17. LC/MS/MS による残留動物用医薬品の一斉分析

生活化学部 遠藤美砂子 柳田則明

## 1. はじめに

平成 18 年 5 月 29 日から施行されたポジティブリスト制度により、動物用医薬品について約 240 物質に残留基準が設定された。当部においても昨年度までに LC/MS による分析法を開発し、行政モニタリング検査にて動物用医薬品 36 物質の一斉分析を行なった。今回、より多くの動物用医薬品を簡便に検査するため、カラムスイッチング法を用いたオンライン固相抽出(SPE)/LC/MS/MS による一斉分析法について検討したので報告する。

## 2. 方法

- 1) 検討試料：牛肉，豚肉，鶏肉
- 2) 検討物質：動物用医薬品 63 物質
- 3) 試験溶液の調製

試料 5g にアセトニトリル/メタノール(4:1) 20ml を加え、ホモジナイズした後、遠心分離し上清を採取した。残渣を同様に操作して、先程の上清と合わせ 50ml にメスアップした。そこから 5ml を採取し、濃縮乾固した後、1ml のアセトニトリル：水 (1:1) に溶解し、遠心分離した上清を試験溶液とした。

## 4) 測定機器

HPLC：Agilent1100 シリーズ

カラムスイッチング HPLC の構成：図 1

MS/MS：Applied Biosystems API3000

## 5) HPLC 条件

精製用カラム：Waters OASIS HLB (2.1 × 20mm, 25 μm)，分析用カラム：Agilent Zorbax SB-Aq (2.1 × 50mm, 3.5 μm)，移動相：A 液；0.1% 甲酸，B 液；アセトニトリルのグラジエント (表 1)，カラム温度：40 °C，注入量 10 μL

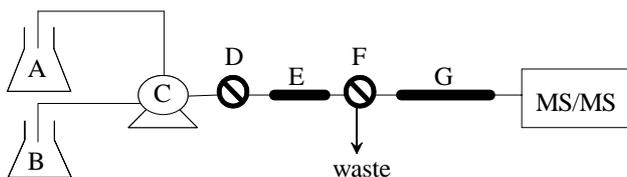


図1 カラムスイッチングHPLCシステム

A: 0.1% formic acid B: acetonitrile C: LC pump D: injector E: Oasis HLB cartridge column F: switching valve G: analytical-column

表1 グラジエント条件

Time (min)	0.00	0.90	0.95	1.50	2.00	2.50	3.00
0.1% 甲酸 (%)	100	100	100	5	5	100	100
アセトニトリル (%)	0	0	0	95	95	0	0
流速 (ml/min)	1.0	1.0	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2
Valve Position	Waste	Waste	Waste	Waste	Waste	Waste	MS/MS

Time (min)	6.00	11.00	12.00	15.00	19.00	19.50	20.00
0.1% 甲酸 (%)	5	5	100	100	100	100	100
アセトニトリル (%)	95	95	0	0	0	0	0
流速 (ml/min)	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	1.0	1.0
Valve Position	MS/MS	MS/MS	MS/MS	MS/MS	MS/MS	Waste	Waste

## 6) MS/MS 条件

イオン化：エレクトロスプレー (Positive/Negative mode) ねぶライザーガス：13，カーテンガス：11 (Pos)，9 (Neg)，イオンスプレー電圧：5500V (Pos)，-3500V (Neg)，イオンソ

ース温度：450 (Pos)，550 (Neg)

## 3. 結果

### 1) カラムスイッチング LC 条件の検討

移動相は分析用カラムで良好な分離が得られた 0.1% 甲酸とアセトニトリルのグラジエント系を用いて検討した。0.1% 甲酸水溶液を 1 ml/min で流すことで、すべての物質を精製用カラムに保持することができた。カラムスイッチングによる至適分析条件 (表 1) を決定し、再現性を確認したところ、保持時間の相対標準偏差 (%RSD) は 1% 以内、面積の %RSD は 12% 以内と良好な結果が得られた。

### 2) 前処理法の検討

アセトニトリルは夾雑物の最も少ない抽出溶媒である。しかし、アセトニトリルのみを抽出溶媒とした場合サルファ剤の回収率が低くなる傾向が認められた。そこで、メタノールを含む溶媒で抽出したところ、サルファ剤の回収率が改善されたため、アセトニトリル/メタノール(4:1)を抽出溶媒とした (表 2)。

### 3) 添加回収試験

牛肉で 62 物質，豚肉で 61 物質，鶏肉で 62 物質について、回収率 60~140%，相対標準偏差 20% 以下の結果が得られた。

### 4) 検出下限値

検出下限値 (S/N=3) は、すべての化合物で 10ng/g 以下であり、検出下限値が残留基準値 (一律基準を含む) の 2 分の 1 を超える化合物はなかった。

### 5) 実態調査

市販の牛肉 5 検体，豚肉 5 検体および鶏肉 6 検体について本法により分析した結果、動物用医薬品は検出されなかった。

表2 サルファ剤の添加回収率 (20ng/g添加)

医薬品名	100%アセトニトリル(n=5)		20%メタノール(n=3)		50%メタノール(n=3)	
	回収率(%)	標準偏差	回収率(%)	標準偏差	回収率(%)	標準偏差
Sulfacetamide	43.4 ± 5.9	87.3 ± 3.1	92.3 ± 6.4			
Sulfaguandine	51.4 ± 3.8	86.3 ± 7.2	86.7 ± 6.7			
Sulfadiazine	38.0 ± 3.2	90.0 ± 6.2	87.0 ± 6.9			
Sulfathiazole	28.6 ± 4.2	84.7 ± 3.2	87.0 ± 8.5			
Sulfapyridine	28.4 ± 1.9	82.7 ± 8.6	84.7 ± 5.1			
Sulfamerazine	31.0 ± 7.2	92.0 ± 4.6	84.3 ± 4.5			
Sulfadimidine	28.8 ± 9.7	95.3 ± 3.5	84.7 ± 9.1			
Sulfamethoxypyridazine	36.4 ± 20	97.0 ± 9.2	84.0 ± 7.8			
Sulfamonomethoxine	39.4 ± 14	90.0 ± 17	80.0 ± 4.4			
Sulfadoxine	46.2 ± 4.6	88.0 ± 2.6	84.7 ± 3.5			
Sulfachlorpyridazine	39.2 ± 6.7	81.0 ± 0.0	87.3 ± 2.5			
Sulfamethoxazole	50.4 ± 7.5	88.0 ± 8.5	88.3 ± 4.5			
Sulfadimethoxine	62.6 ± 5.9	108 ± 5.6	114 ± 4.4			
Sulfabenzamide	26.4 ± 3.5	86.7 ± 5.1	80.3 ± 2.1			
Sulfaquinolaxine	42.4 ± 4.8	93.7 ± 7.5	99.7 ± 4.6			

## 4. おわりに

オンライン SPE/LC/MS/MS を用いることで、試料中の極性夾雑物を簡便に取り除くことができるため、前処理の抽出溶媒に極性の高い溶媒を利用することが可能になった。そのため、極性の高い物質の回収率を向上させることができ、広範囲な動物用医薬品の一斉分析を実現することができた。

## 18. 収去検査のための食品中保存料・甘味料の簡易分析

生活化学部

千葉美子 氏家愛子 長谷部洋 福原郁子  
曾根美千代 加藤謙一 新垣康秀 柳田則明

### 1. はじめに

宮城県では昨年度、保存料であるソルビン酸（以下 SoA）及び安息香酸（以下 BA）の検査を約 600 件、甘味料であるサッカリンナトリウム（以下 SA）の検査を約 100 件実施した。このうち SA は、漬物や魚介類乾製品等、同一試験品で他の検査項目（SoA あるいは BA）と合わせて依頼されるものが大半を占めている。

また今年度は、機構改革による統廃合により、全県下の収去試験品を 1 か所で実施することになり、1 回の検査で 20～40 試験品の SoA、SA 分析を実施しなければならない状況となった。

SoA、BA を従来法である水蒸気蒸留法で分析した場合、高速液体クロマトグラフ（以下 HPLC）にかけるまでの前処理として 1 試験品あたり約 1 時間を、SA においては、従来法の透析法による分析で約 20 時間を要する。また透析法では、試験品の種類によって透析補助液の選択が難しく、標準添加回収試験で低回収率しか得られないものもある。

このような状況のもと、検査の簡便化・迅速化とともに、検査精度を保持した簡易分析法の検討を行い、ルーチン分析法として十分活用できる方法を確立したので報告する。

### 2. 方法

#### 1) 試料

魚肉ねり製品、食肉製品、魚介類乾製品、漬物（いずれも試験品として収去搬入された食品）をフードプロセッサで可能な限り細切均一化し、試料とした。

#### 2) 分析方法

抽出溶媒にアセトニトリル/水（1/1）を使用し、超音波抽出、振盪抽出、バイオトロンによる抽出またはこれらを組み合わせた抽出を行った後、遠心分離を行い溶媒層を分取して水で定容した。この溶液を水で希釈し、0.45 μm のフィルターでろ過後、HPLC 用試料溶液とした。

#### 3) 評価方法

従来法による測定値と、簡易分析法による測定値の比較を行うことで、簡易分析法の評価を行った。

### 3. 結果及び考察

#### 1) HPLC 測定条件

LC/MS 用イオンペア試薬（以下 IPC）を 2mM になるように添加することにより、pH 調整することなく pH4.1 の移動相が得られるため、この調整法を用い検討した。IPC のうち DPAA、DBAA、DAAA を使用し、アセトニトリル/0.01% ギ酸・2mM-IPC（20/80）、流速 1.0ml/min で分析し比較した結果、分離状況から DBAA を使用することとした。

#### 2) 抽出方法

それぞれの食品を対象として、A 法（抽出溶媒 50ml、

超音波 10 分、振盪 5 分、遠心分離後溶媒層を分取する 1 回抽出）、B 法（抽出溶媒 50ml、バイオトロン 30 秒破碎、振盪 5 分、遠心分離後溶媒層を分取する 1 回抽出）、C 法（1 回目：抽出溶媒 30ml、振盪 10 分、遠心分離後溶媒層を分取。2 回目：抽出溶媒 20ml、振盪 10 分、遠心分離後溶媒層を分取し 1 回目と合わせる）、D 法（1 回目：抽出溶媒 30ml、バイオトロン 30 秒破碎、振盪 5 分、遠心分離後溶媒層を分取。2 回目：抽出溶媒 20ml、振盪 5 分、遠心分離後溶媒層を分取し 1 回目と合わせる）、E 法（1 回目：抽出溶媒 30ml、超音波 10 分、振盪 5 分、遠心分離後溶媒層を分取。2 回目：抽出溶媒 20ml、振盪 5 分、遠心分離後溶媒層を分取し 1 回目と合わせる）の各抽出方法を検討し、従来法と D 法及び E 法の 3 法で測定値が一致する良好な結果を得た。この結果からより簡便な E 法を簡易分析法として採用することとした。

#### 3) 実試料による従来法との比較

簡易分析法の評価にあたっては実試料を使用し、従来法と測定値の比較を行うことが妥当であると考え、SoA と SA またはそのいずれかの添加物を含有する試験品を用いて分析を行った。低回収率傾向のある魚介類乾製品（いか珍味）の SA 及び糖分の多い魚肉ねり製品（カステラ蒲鉾）の SoA の測定値で、簡易分析法が従来法より高い値を示したほかは、非常に良好な一致（ $R^2=0.9971$ ）を得た（図参照）。

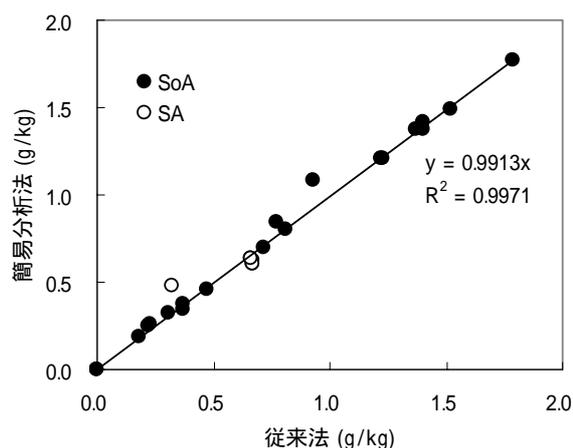


図 従来法と簡便法における測定値の比較

### 4. まとめ

日常検査の保存料、甘味料の分析において従来法に代え、簡便かつ迅速に分析する方法を検討し、検査実施標準作業書として承認を得るに至った。この簡易分析法により、低回収率傾向であった試験品についても、良好な結果が得られた。行政検査を迅速に行うことで、食の安全の観点からも有効であると考えられる。

# 19. 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

微生物部	畠山 敬	三品道子	高橋恵美	佐々木美江	後藤郁男
	上村 弘	谷津壽郎	齋藤紀行		
環境化学部	葛岡勝悦	齋藤善則			
水環境部	清野 茂	嵯峨京時			
大崎保健所	高橋美穂	千葉文明	大山英明	藤原公男	佐藤仁一

## 1. はじめに

乳児ボツリヌス症は、ボツリヌス菌芽胞を生後1年未満の乳児が経口的に摂取した場合にのみ起こり、乳児の未発達な腸管内で増殖したボツリヌス菌の産生する毒素により引き起こされる重篤な感染症である。国内では1986年の初発例以来、本症例で21例が報告されているが、その多くは輸入ハチミツに混入した菌が原因であった。

我々は、昨年9月に1ヶ月齢の乳児がボツリヌス症に罹患するという事例に遭遇した。発生当初は感染原因が不明であったため、感染症と食中毒の両面から調査を行ったが、原因が白湯や粉ミルクの調製に使用していた井戸水であるという、国内外でも初めての極めて特異的なケースであることが判明した。また、患者宅周辺地域はほぼ全戸が井戸を保有しているため、同一水源の汚染による拡散被害を防止することを目的として周辺井戸からの菌検出と水質検査等を行った。

## 2. 事件の概要とその対応

### 【事件の概要と宮城県の対応】

仙台市内の医療機関で治療を受けていた県内の乳児からボツリヌス菌が分離されたことから、仙台市より患者宅についての調査依頼を受けた。保健所での聞き取り調査の結果、患者は母乳、粉ミルク、白湯の他に飲食物の摂取はなく、粉ミルクの調整及び白湯に井戸水を使用していることが判明した。

そこで、井戸水を国立感染症研究所に送付しボツリヌス菌の検査を依頼すると同時に、患者宅での実地調査を行い井戸水、周辺土壌等の採取と自宅内ふき取り検査などを実施した。さらに、患者宅周辺への拡大被害を防止するため、近隣の井戸の使用状況把握と井戸水の細菌・水質等の調査を実施し、検査結果に基づいて井戸所有者各戸に対する衛生指導と広報等による啓発を行った。

### 【厚生労働省の対応】

国立感染症研究所の検査で、患者宅の井戸水、および患者が使用中の粉ミルクからボツリヌス菌A型毒素が検出されたことから、厚生労働省食品安全部監視安全課では粉ミルクによる食中毒事件を疑った。後に、粉ミルクは発症後に開封されたもので同一ロット製品の検査結果も陰性であることが明らかとなり、井戸水に存在する菌の二次汚染によるものであることが判明した。そこで、同省健康局水道課は水道法に基づく患者宅およびその周辺の井戸水調査を県に依頼した。

## 3. 調査結果

### 【患者宅のボツリヌス菌検査結果】

患者宅では井戸水、井戸水使用の旧調理場床拭き取り、井戸水使用の旧調理場の排水溝の泥、里芋畑の土、大根畑の土、粉ミルク残品2種類、ハウスダスト、亀の飼育水の計9検体を採取してボツリヌス菌検査を行った。

その結果、井戸水および粉ミルク残品の1つからボツリヌス菌A型毒素遺伝子が検出されたが、同じ嫌気性菌であるウエルシュ菌等の混入のため菌の分離は不可能であった。そこで、ボツリヌス菌の生物学的性状・芽胞の物理化学的性状を考慮して適切な分離方法を模索・検討し井戸水の再検査を試みた結果、ボツリヌス菌を分離することに成功した。

### 【周辺井戸の検査結果】

患者宅周辺民家の井戸水についても同様にボツリヌス菌により汚染されていることが危惧されたため、患者宅を含めた近隣15戸の井戸について、井戸の使用状況の調査と細菌・水質検査（一般細菌、大腸菌、濁度、ボツリヌス菌、食中毒菌）を実施した。その結果、2戸が常時飲用、その他にも時々お茶として飲用している民家が数戸あることが明らかとなり、水質検査では前述の民家を含む9戸が水道法に基づく水質基準に適合していないことが判明した。また、食中毒菌等の検査では7戸の井戸からウエルシュ菌、10戸からエロモナス菌が分離されたが、患者宅井戸水以外からボツリヌス菌は検出されなかった。

### 【同一水源の推定】

患者宅と同じ水源を持つ井戸の分布を調べるため、上記の細菌・水質検査に水質化学分析の結果を加えて解析を行った。その結果、この地域は3種類の水源に分けられることが明らかとなり、患者宅の井戸と同様の性状を持つ井戸が他にも4戸存在することが判明した。

## 4. 衛生指導

以上の結果をもとに、保健所では当センターと協同し患者宅に対して「当該井戸を閉鎖し、飲用のみならず一般生活用水としても一切利用しない」ことを説得し、患者宅周辺の井戸所有者には「井戸水を食品の調理や飲用に供しない」よう指導を行った。さらに、新生児を持つ保護者に対しては検診等の機会を利用して乳児ボツリヌス症の予防についての啓発を行うとともに、広報を通じて広く市民に注意を喚起した。

## 20. *Listeria monocytogenes* の食品汚染実態調査

微生物部

菅原直子 佐々木ひとえ 加藤浩之 小林妙子  
渡邊 節 山田わか 谷津壽郎 斎藤紀行

【はじめに】

*Listeria monocytogenes* (以下 LM) は、感染によりヒトにリステリア症を引き起こす。リステリア症は周産期の流産死や胎児敗血症、成人には髄膜炎、敗血症などの症状を示す。

1980年代に欧米諸国で乳製品や食肉製品などを原因とする食中毒集団感染事例が相次いで報告された。日本でも平成5年に乳および乳製品のリステリア菌の汚染防止についての通知が当時の厚生省から出され、食中毒原因菌の一つとされている。欧米では、現在も多くの食中毒事例があり、死亡例も少なくない。日本でも2001年に国内産ナチュラルチーズによる食中毒が発生している。

近年、これら乳製品等に加え生食用鮮魚介類や魚介加工品、生食用野菜などの ready-to-eat 食品(加熱せずにそのまま食べる食品や調理済みの食品)を原因とする感染事例や検出例の報告があるが、汚染経路などについての報告は少ない。

このことから汚染実態の把握を目的として県内の市場に流通する ready-to-eat 食品を中心とした食品、食材について LM の検出を実施した。また、迅速検査法として LAMP 法による測定の検討も併せて行った。

【材料および方法】

### 1. 材料

#### (1) ready-to-eat 食品・94 検体

魚介類加工品(魚卵、スモークサーモン)、生鮮魚介類、乳製品(ナチュラルチーズ、アイスクリーム類)、生食用芽物野菜

#### (2) 食材等・15 検体

生乳、食肉(鶏肉、合鴨肉)

### 2. 方法

#### (1) LM 検出

##### a 生乳、乳製品

通知の方法に従い、材料を EB 培地で 10 倍乳剤とし、30 で 48 時間培養後、Oxford 培地(以下 OX)、PALCAM 培地(以下 PAL)及びコロモアガー・リステリア培地(以下 C-Lis)に塗抹し、35 で 48 時間培養した。疑わしい集落を、0.6%酵母エキス加トリブチケソイ平板培地(以下 TSYEA)に釣菌、生化学性状の確認及び PCR による病原因子の検出を行った。

##### b その他の食品、食材

ISO の方法を参考に、材料を harf-Fraser 培地で 10 倍乳剤とし、30 で 24 時間培養後、10ml Fraser 培地に 100  $\mu$ L を接種した。さらに 35 で 48 時間培養後、OX、PAL、C-Lis の各培地に塗抹、疑わしい集落を TSYEA に釣菌後、乳製品の方法と同様に生化学性状及び病原因子の検出を行った。

#### (2) 生化学性状確認

分離菌についてグラム染色、カタラーゼ試験、SIM 確認培地での傘上発育、VP 試験、糖分解性、CAMP テスト、血清型別及び病原因子の確認(*hly*, *prtA*)を行った。

#### (3) LM 菌数測定

MPN3 本法により測定をおこなった。判定を平板塗抹法および PCR 法それぞれで行った。

#### (4) LAMP 法

LM標準株(ATCC株)をharf-Fraser培地に植菌し、30 で 24 時間培養後、培養液を 10 倍段階希釈し、原液から  $10^9$  倍まで希釈した液それぞれについて、Loop-amp *L.monocytogenes* 検出試薬キット(栄研化学製)を使用し、測定を行った。同時に、各希釈液中の LM 菌数を測定し、比較を行った。

【結果および考察】

#### 1, 各食品・食材からの検出状況

魚介類加工品の魚卵 22 検体中 2 検体(9.1%)から、LM が検出された。また、LM 以外の *Listeria* 属菌も 5 検体より検出された。乳製品のナチュラルチーズや芽物野菜からは検出されなかった。

また、食肉の鶏肉 7 検体中 1 検体から LM が、2 検体からその他の *Listeria* 属菌が検出された。

各食品・食材中の LM 菌数は平板塗抹法で 30 未満 ~ 60MPN / 100g と少量の汚染であった。

MPN 値測定において、PCR 法と平板塗抹法では MPN 値に結果に差がみられるものがあった。これは、平板培地の選択性などにより、生育が抑制されている可能性が示唆され、菌が少数の検体では菌分離にも影響があるのではないかと考えられた。

#### 2, 菌株の同定

通常の LM 検出には OX 及び PAL を分離用培地としているが、これらの培地上では LM とその他の *Listeria* 属菌の集落は灰色 ~ 茶褐色で同じ形態をとるため、区別は難しい。しかし、発色酵素基質培地の C-Lis では、LM の集落周囲に特異的にハロー形成が認められ、LM の選択的分離が可能であった。

検出した LM の血清型は、魚卵からの検出菌は 1/2b 及び 3a、鶏肉からの検出菌は 4b であった。また、検出した全ての LM は病原因子(*hly* 及び *prtA*)を保有していた。

#### 3. LAMP 法

LM標準菌株でのLAMP法による測定を試みた結果、LAMP法陽性となったものは、LM菌数が  $10^5$ CFU/mL以上のものであった。

【まとめ】

今回、食品・食材、計3検体から LM が検出され、県内に流通している ready-to-eat 食品にも汚染菌数は少量であったが、LM 汚染があることが分かった。しかし、菌数測定の際に PCR 法と平板塗抹法に差がみられたことから、さらに分離に使用する培地などの検討が必要であると考えられた。

食品中の LM 菌数が少ないことから、従来の LM 検出法では 2 段階増菌を行わなければならない、検出に長時間を要する。しかし増菌培養した後に LAMP 法を使用すれば、十分に検出でき、迅速に LM 検出が可能となると考えられた。

## 21. 微生物部におけるレプトスピラ病依頼検査について

- 過去5年間の成績 -

微生物部 沖村容子 庄司美加 佐藤千鶴子 佐藤由紀  
植木 洋 上村 弘 齋藤紀行

### 1. はじめに

レプトスピラ病は、主にネズミ等の腎臓に保菌され尿に排泄される病原レプトスピラ (*Leptospira interrogans*) が皮膚の傷口や汚染された飲食物の摂取により感染し、5～14日の潜伏期を経て、発熱、黄疸、全身倦怠感、筋肉痛、結膜充血等の多彩な臨床症状を起こす人獣共通感染症である。現在、230以上の血清型に分類されており、血清型によって重症型の黄疸出血性レプトスピラ病(ワイル病)と軽症型の秋季レプトスピラ病及びその他に分けられる。

本疾患は、過去において風土病と考えられており、宮城県においても1959年に患者882名(死亡者35名)におよぶ大流行を記録し、全国有数の多発地域であった。しかし、農作業の機械化、土地改良事業の推進及びワクチン接種を含む予防対策により、1976年以降は患者数が激減し、現在では発生が希な感染症となった。一方、患者報告が激減した地域でも、野ネズミのレプトスピラ保菌率は過去と同様に10～40%と変動はなく、いまだ感染の危険がある。

当センターはレプトスピラの標準血清型13株を継代し、生菌での抗体検査が可能な全国でも数少ない検査機関である。過去5年間に於いて県内外の医療機関等から依頼のあった検体から、3例のレプトスピラ病感染を示す結果が得られたので報告する。

### 2. 材料および方法

主に急性期と回復期のペア血清による抗体検査で、発症直後の場合は抗原検査も行った。抗体検査は生菌10～13株に対する顕微鏡下凝集試験(Microscopic Agglutination Test)を行い、抗原検査は暗視野顕微鏡下での血液中のレプトスピラ様物質の検索、コルトフ培地による培養および鞭毛遺伝子(*flaB*)を対象としたPCR検査を行った。いずれの方法も病原体検出マニュアルに準じた。

### 3. 結果および考察

平成14年度から18年度にかけて22事例45件について抗原・抗体検査を行い、ワイル病2例、秋季レプトスピラ病1例の感染を示す結果を得た。なお、22事例中5事例が県外の医療機関等からの依頼であった。

〔事例1〕東北地方の67才女性で感染原因は不明、平成14年8月20日腰痛、腹痛、全身倦怠感でかかりつけ医を受診したが症状が軽快せず入院となった。その際、意識障害があり、一時、人工呼吸となったが、ステロイド剤、抗生剤投与により回復した。原因病原体究明のため平成15年1月に検査依頼があり、検査の結果、ワイル病の病原体である *Leptospira interrogans* serovar Copenhageni に2,560倍の抗体価を示した。

〔事例2〕四国地方の63才男性で台風による水害の後かたづけで感染したと推定された。平成16年9月2日に医療機関を受診し、黄疸、出血傾向、腎障害よりワイル病が疑われ、相談を受けた地方衛生研究所より検査依頼があった。9月8日急性期に採血した血清にPCR検査を試みたが陰性であった。そこで22日採血の回復期血清と併せて抗体検査を行った結果、秋季レプトスピラ病の病原体である serovar Australis (秋疫C) に1,280倍の抗体価を示した。

〔事例3〕県内の67才男性でネズミの尿より感染したと推定された。平成18年12月5日に医療機関を受診し、黄疸、肝障害、腎障害よりワイル病が疑われ、直ちに抗生剤投与、腎透析を行い回復した。抗生剤投与前の5日と、11日に採血した血液について検査依頼があった。5日採血のパフィーコートにレプトスピラ様物質を認めたと、PCR検査は陰性であった。抗体検査は11日と25日に採血した血清でワイル病の病原体である serovar Copenhageni、serovar Icterohaemorrhagiae、に各々、640倍、2,560倍の抗体価を示した。

3例ともに回復しているが、事例1では診断まで5ヶ月を要した。特に、発熱、かぜ様症状が主症状である軽症型では、抗生剤投与により直ちに軽快するため報告されない例も多いと考えられる。また、診断には抗原・抗体検査結果とともに、病原体との接触の機会(職業、行動等)や渡航歴等の疫学情報も必要となるが、近年、流行地域である東南アジアでの耐久レース競技での感染や輸入げっ歯類からの感染等の報告もあり、その接触の機会は多岐にわたっている。よって、希少感染症ではあるが重症型では死亡することもあり、あらゆる機会をとらえて本疾患の情報を提供し、注意を促していく必要がある。

## 22. ブタからのインフルエンザウイルスの分離

微生物部 佐藤由紀 庄司美加 佐藤千鶴子 植木 洋  
沖村容子 谷津壽郎 齋藤紀行

### [はじめに]

インフルエンザウイルスは、ヒトをはじめ水鳥、家禽、ブタなど多くの動物に感染する。特にブタはトリ型とヒト型のどちらのウイルスにも感染するレセプターを持っているため、ブタがトリ、ヒト両方のウイルスに同時に感染した場合、ブタの感染細胞内で新しいウイルスができる可能性があり、ブタは新型ウイルス出現の担い手となっている。このようなことから、厚生労働省は毎年行っている「感染症流行予測調査事業」の中で、昨年度から新型インフルエンザウイルスの出現監視を目的としたブタ鼻腔拭い液からのウイルス分離による感染源調査を開始した。宮城県は今年度よりこの事業に参加している。100 検体についてインフルエンザウイルスの検査を実施した結果、3 検体からウイルスを分離したので報告する。なお、合わせて同シーズンのヒトから分離されたウイルスとの関連性も検討したので報告する。

### [対象および検査方法]

対象は栗原保健所管内の施設で飼育された 6 ヶ月齢のブタの鼻腔拭い液で、検体採取時期と件数は 7 月上旬 25 件、7 月下旬 15 件、8 月 20 件、9 月 20 件、10 月 20 件の総検体数 100 件とした。ウイルスの分離方法は「感染症流行予測調査事業術式」に従った。細胞培養は MDC K 細胞を用いてマイクロプレート法で行い、1 代目は細胞変性効果 (CPE:cytopathic effect) の有無にかかわらず 0.5%七面鳥血球で赤血球凝集反応を実施し、陰性の場合は盲継代を 1 回行い 2 代目まで CPE の観察を行った。CPE が認められ、赤血球凝集反応陽性を示した検体については、国立感染症研究所から指定された抗血清を用い、赤血球凝集抑制試験 (HI:hemagglutinin inhibition test) を行うこととした。HA(hemagglutinin)の亜型及び NA (neuraminidase) の亜型については HA と NA をコードするウイルス遺伝子の一部を RT-PCR で増幅し、さらにダイレクトシーケンスにより確認した。

### [結果および考察]

総検体数 100 件中、9 月に採取した 3 件に CPE が認められた。この培養上清について 0.5%七面鳥血球を用い赤血球凝集反応を行ったところ、凝集が確認された。さらにインフルエンザ同定キットによる型別判定は A 型を示したが、培養では HI 試験を行うに十分な凝集価が得られなかったため実施できなかった。そこで HA、NA の亜型を決定するために RT-PCR を行い、3 件ともに H3N2 であることが確認できた。この 3 件の HA の領域について塩基配列が決定できた 294bp について相同性を調べた結果、100%の一致が認められた。また、この 3 件と 2006 年 5 月に県北でヒトから分離された H3N2 型 3 件について、分子疫学的解析を行った。HA の領域について塩基配列が決定できた 294bp について調べた結果、塩基配列の相同性は 96.3%であり、また、アミノ酸配列の相同性は 92.9%であった。以上の結果より、ヒトとブタから検出された H3N2 は異なった遺伝子型であることが示唆されたが、詳細についてはさらに HA、NA 領域の精査が必要である。今回分離したウイルスは、しばしばブタより分離される亜型であり、危惧された H5 などの新型ではなかったが、今後とも同事業に参加し監視を続ける必要があると考えられる。

最後に、今回の調査に協力していただきました食肉衛生検査所、栗原保健所健康対策班の方々に深く感謝いたします。

## 23. 今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

微生物部 庄司美加 植木 洋 佐藤千鶴子 佐藤由紀  
沖村容子 谷津壽郎 齋藤紀行

### 1. はじめに

国立感染症研究所の病原微生物検出情報によれば、2006年シーズンの国内でのノロウイルス(NoV)による感染性胃腸炎集団発生は、例年より早い時期から増加が確認され、過去10年間で最大規模の流行であると報告している。県内でも感染症発生動向調査による定点医療機関当たりの胃腸炎患者報告数は、昨シーズンの1.5倍を越えた。NoVによる感染性胃腸炎の流行は国内に留まらず、特に2000年以降アメリカやオーストラリアさらにはヨーロッパを中心に報告されている。

NoVは遺伝子の一部の領域の塩基配列から大きくgenogroup(G)群と群に分けられ、少なくともG群は15、G群は18以上の遺伝子型が存在する。特に感染性胃腸炎事例ではG群が高頻度に検出される。

一方、遺伝子型と病原性の関係については不明な点が多く、病原性を検討するための一つの手段として、疫学的データの蓄積が考えられる。そこで我々は今シーズン県内で流行したNoVによる感染性胃腸炎の集団発生事例や食中毒事例で検出したNoV遺伝子について、分子疫学的解析を行ったので報告する。

### 2. 材料と方法

NoVによる感染性胃腸炎集団発生事例で検出されたNoV遺伝子の内12件、同じく食中毒事例で検出された遺伝子の内13件、その他、県外で発生した食中毒関連事例で検出したNoV遺伝子1件と発生動向調査胃腸炎検体1件を分子疫学解析の調査対象とした。なおNoV遺伝子の検出は、公定法に従い定量PCR法で実施した。塩基配列の決定は、Capsidをコードしている領域増幅用のプライマー(G2SKF/R)を用いてRT-PCRを実施後、増幅産物をABI310でダイレクトシーケンスを行った。塩基配列を決定後Clustal Xを用いてアライメントしNJ法で系統樹を作成した。

### 3. 結果と考察

感染症発生動向調査における県内の感染性胃腸炎の定点医療機関当たりからの患者報告数は、過去5年間で最も多く、NoVによる感染性胃腸炎の流行は例年になく大規模であったことが確認された。また2006年度(12月末現在)のノロウイルスによる感染性胃腸炎の集団発生事例数は、すでに昨シーズンの事例数の2倍を超えている。

今回対象としたNoVによる胃腸炎患者から検出されたウイルス遺伝子の、Capsid蛋白をコードしている領域の一部の249ntについて塩基配列を決定し、系統解析を行った結果、遺伝子群はすべてG群の遺伝子で、遺伝子型はG/4(accession No. X76716 Bristol/93/UK)の近縁株であった。これらの株は一つのクラスターを形成し、クラスター内での相同性は、塩基配列のレベルでは98.8%、アミノ酸レベルでは、97.6%で同一の遺伝子型と考えられた。これらの株は2003年から2005年の期間中に県内の感染性胃腸炎事例や食中毒事例で検出されたG/4近縁株とは異なったクラスターを形成した。さらに1995年から1996年にアメリカで流行し、その後ブラジル、カナダ、中国、ドイツ、オランダ、イギリスで、1997年から2000年にオーストラリアで流行したG/4の変異株(accession No. AF080549 US95/96)ともクラスターを異にした。また2002年にアメリカとイギリスで流行したG/4変異株のFarmington Hill(accession No. AY502023)、b4s6(accession No. AY587985)のクラスターにも属さなかった。

今回検出した変異株については、さらなる詳細な分子疫学解析が必要であるとともに、この株による今後の流行には十分な警戒を要する。

## 24. 河川水・海水における潜在的な細菌増殖能

微生物部 渡邊 節 菅原直子 佐々木ひとえ 加藤浩之  
小林妙子 山田わか 谷津壽郎 齋藤紀行

### 1. はじめに

海産食品の微生物汚染の原因は、病原性のある海洋微生物によるもののほか、病原体を保有する動物の排泄物が、陸環境を汚染し水を通じ河川や海へと流入し、海環境、魚介類を汚染するものが考えられる。

環境水中には多くの有機物、塩類が含まれ、流入した細菌はそれらを利用して生存するが、細菌の増殖は環境水中のこれらの量に左右される。すなわち、細菌数の増減は潜在的に環境水中の物質量を示すものと思われる。

化学分析により環境水中の栄養源全てを明らかにすることは困難であることから、それに代わる方法として水道水質検査では同化性有機炭素 (Assimilable Organic Carbon : AOC) 測定法が用いられている。この手法を応用し、食中毒の原因となる大腸菌及びブドウ球菌を被検菌として、環境水における細菌増殖能力を測定する細菌増殖能 (Ability of Bacterial Growth : ABG) 法を考案した。平成 16 年度、AOC 法と ABG 法の環境水への応用を鳴瀬川で試みたところ、AOC は上流の漆沢ダムでは検査に応用が可能であることが示唆された。ABG 法は上流だけではなく、多量に有機物が混入する中・下流水においても細菌学的変動をとらえることができた。平成 17 年 18 年、松島湾等の海水で検討したところ若干の知見を得たので報告する。

### 2. 材料と方法

#### 1) 供試細菌

大腸菌 ATCC25922 (*Escherichia coli*: EC) 及びブドウ球菌 ATCC25923 (*Staphylococcus aureus*: SA) を用いた。

#### 2) 地点および時期

平成 16 年 4 月～平成 17 年 3 月：鳴瀬川の上流 (漆沢ダム)、中流 (三本木地区)、下流 (矢本野蒜地区)

平成 17 年 8 月及び 10 月：松島湾内 6 ポイント (P1 から P6)

平成 18 年 6 月、8 月及び 10 月：松島湾 3 ポイント (P2、P4、P5) 及び石巻湾西部 (P7、P8)

対照：滅菌蒸留水 (DW)、滅菌リン酸緩衝生理食塩水 (PBS)

#### 3) 細菌増殖能 (Ability of Bacterial Growth : ABG) 試験

採水後の各検体は遠心ろ過後、70 30 分加温し被検水とした。被検水 50ml に最終濃度が ml 当たり  $10^3$  程度になるよう調整した各菌液を 1ml 添加し、25 で培養した。1、4、7 日目に菌数を大腸菌は BTB 乳糖寒天培地、ブドウ球菌はマニット食塩培地各 2 枚を用い測定した。

#### 4) 大腸菌数と大腸菌群数

各被検水 100ml をコリラートをを用い大腸菌 MPN および大腸菌群 MPN を求めた。

### 3. 結果と考察

鳴瀬川、松島湾等より採水した被検水について EC と SA を用いた ABG 法を試みた。対照とした DW では EC、SA とともに急激に減少した。PBS では EC は 7 日目まで菌数が維持されたが、SA は直ちに減少した。

調査した多くの河川水や海水では EC は 100 倍から 1000 倍の増殖傾向を示したが、SA は減少傾向を示した。このことは被検水中に EC が利用できる栄養分が存在するが、SA の増殖に必要なアミノ酸等が存在しないためと推察された。

平成 16 年 12 月の鳴瀬川の検水で SA の増殖がみられた。平成 17 年度松島湾の 6 調査ポイントの海水について ABG 法を行った結果、8 月の海水 P3 では EC が 4 日目まで減少、10 月の海水では P5 以外のほかのポイントで 4 日目までに菌が不検出と、河川水と異なる挙動を示した。しかもこれらのポイントでの大腸菌数・大腸菌群数との相関が認められた。

さらに、平成 18 年度の調査でも EC 増殖に同様の現象が確認できた。すなわち、松島湾内及び石巻湾西部の海水で EC の増殖遅延あるいは増殖抑制がみられたことから、海水中に細菌増殖を抑制するものが存在する可能性が示唆された。

以上のことから、ABG 法を用いた環境水の水質検査は水系の持つ細菌学的リスク等を評価するのに有用な手法と考えられた。今後はデータを積み重ね、使用菌の検討、化学的水質検査との比較等を行い ABG 法の精度を高めていくことが課題と考える。

## 25. 浴槽からの迅速検査法を利用したレジオネラ属菌検出の試み

微生物部 佐々木美江 高橋恵美 三品道子 菅原直子  
畠山 敬 上村 弘 谷津壽郎 齋藤紀行

### 1. はじめに

全数届出の4類感染症であるレジオネラ症の診断には、臨床所見に加え尿中からの抗原検出、培養による病原体の検出あるいは血清抗体価の上昇など、いずれかの検査で陽性となる必要がある。特に尿中からの抗原検出は迅速で操作も簡便なため広く利用されている。2004年から尿中抗原検査試薬が保険適用となったことから届出数は161件(2004年)、281件(2005年)、508件(2006年)と年々増加している。

レジオネラ症の感染源としては、レジオネラ属菌で汚染された浴槽、冷却塔、給湯による事例が報告され、中でも浴槽を原因とした場合には集団発生が多く見られることから、発生時の感染拡大防止の観点から感染源究明のため、早急な対応が重要である。しかし、現在、通常実施されている培養法では結果を得るまでに7~10日を要するため、速やかな衛生指導を行うことが困難である。

そこで、今回、迅速に結果の得られる定量PCR法を用いて浴槽水からのレジオネラ属菌遺伝子の検出を試み、従来の培養法と比較し、その有用性を検討した。

### 2. 材料および方法

公衆浴場および温泉施設の浴槽水59件を対象として培養法および定量PCR法を実施した。

培養法は公定法に準拠し、検水200mLを6000rpm、30分遠心して2mLに濃縮した後に、恒温水槽で50~20分間加熱処理した試料100μLを培地に塗抹培養を行った。培養3日目からレジオネラ属菌様コロニーを釣菌して生化学性状の確認とPCR法によるレジオネラ属菌と*L. pneumophila*に特異的な遺伝子の検出を行い、菌種を同定した。

定量PCR法では前処理として、検水200mLを0.22μmメンブランフィルターで吸引し、予め分注したTaKaRa DEXPAT液0.5mLにろ過処理済みのフィルターを入れ、1分間混和した。次にフィルターを取り出し、10~10分間加熱後、遠心し、回収した上清にイソプロパノール350μL、glycogen2μLを添加し、よく混和後、遠心を行った。更に、上清を除去し、70%エタノール700μLを添加し遠心後、沈殿物を風乾しトリス塩酸バッファー10μLに溶解したものを定量PCRの鋳型とした。

また、定量PCR法のプローブおよびプライマーは、市販のTAKARA CycleavePCR Legionella Detection Kit(タカラバイオ)を使用して5SrRNA遺伝子(レジオネラ属菌特異遺伝子)およびMip遺伝子(*L. pneumophila*特異遺伝子)を同時に検出し、増幅装置はABI Prism 7900HT(Applied Biosystem社)を用いた。

### 3. 結果

#### (1) 菌検出率の比較

培養法では59浴槽中21浴槽(36%)からレジオネラ属菌が検出され、定量PCR法では27浴槽(46%)と培養法より高い検出率を示した。

培養法で検出または不検出となった浴槽の結果を、定量PCR法の結果と比較すると、両方法で検出されたのは19浴槽、不検出となったのは30浴槽で、双方の結果は49浴槽(83%)で一致した。

両方法の結果が異なった浴槽は10浴槽(17%)で、このうち培養陰性・定量PCR陽性は8浴槽(14%)、培養陽性・定量PCR陰性は2浴槽(3%)であった。

培養陰性・定量PCR陽性のうち2浴槽は、残留塩素濃度が0.3mg/L、0.8mg/Lと高く、そのほかの6浴槽は換水から採水までの日数が0日から1日であった。更に培養陽性・定量PCR陰性の2浴槽のうち1浴槽は温泉を利用しており、定量PCR法では測定不能となった。

#### (2) 検出菌数の比較

培養法と定量PCR法で検出した菌数を比較したところ、両者間に強い相関が見られた。

### 4. 考察

今回の検討では定量PCR法は培養法より検出率が高いことが確認された。PCR法においては生菌と死菌が同じ挙動を示すため、死菌を同時に検出する可能性が考えられる。このことから、レジオネラ属菌の検査として単独に用いる場合は、十分な検討が必要となる。しかし、検査直前に消毒剤を投入された浴槽からの遺伝子検出が可能で、定量PCRは検体搬入後1日で結果が得られるため、衛生指導後の陰性確認においては有用な検査であると思われる。

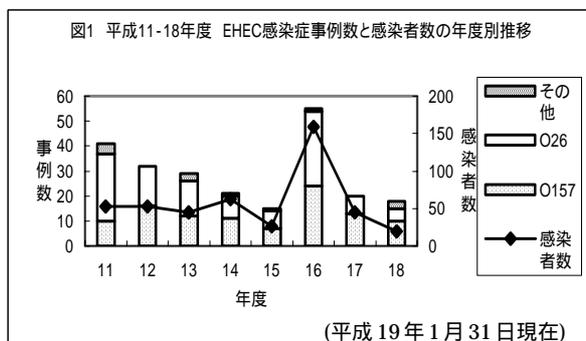
# 26. 腸管出血性大腸菌 (EHEC) 感染症が多発した地域の河川水量の増減における EHEC の挙動

微生物部

三品道子 高橋恵美 佐々木美江 畠山 敬  
上村 弘 谷津壽郎 齋藤紀行

## 1. はじめに

宮城県では、平成 16 年度に腸管出血性大腸菌 (EHEC) 感染症が多発 (55 事例 157 人) した (図 1)。発生要因として、肉用牛飼養実態・気温と正の相関、降水量と負の相関があることが判明している。しかし、平成 16 年度は降水量が多い日にも 5 事例発生したことから、河川の増水も一つの要因であることが推測された。そこで、多発した地域における河川水の増減と EHEC の挙動との相関性を検討したので報告する。



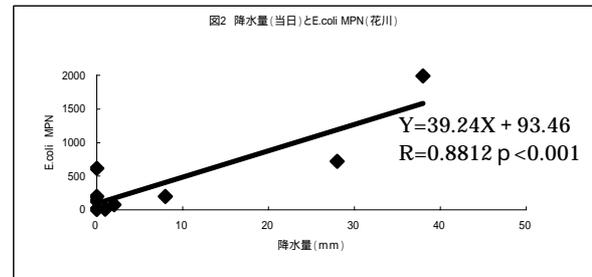
## 2. 材料および方法

- (1) 降水量：気象庁電子閲覧室の観測地点別のデータを用いた。採水定点：白石川 (白石、大河原、柴田) 鳴瀬川と支流 (本流、田川 (加美)、花川 (色麻)) 江合川 (古川)、迫川と支流 (佐沼、三迫川 (金成)) とした。
- (2) EHEC 分離同定：mEC 培地にて増菌培養し、SMac RMac DHL 培地にて分離培養を実施、得られたコロニーより釣菌し、生化学性状、血清型を確認した。STX 産生株については PCR 及び PFGE による遺伝子解析を実施した。
- (3) *E. coli* MPN の測定：コリラート「アスカ」QT トレイにより検水 100ml 中の最確数 (MPN) を測定した。
- (4) EHEC MPN の測定：最確数法に準じ、各希釈段階 3 本ずつ用いた。培養後 PCR を実施し、VT 遺伝子を検出した試験管数を陽性管数とし、検水 100ml 中の EHEC MPN を算出した。

## 3. 結果

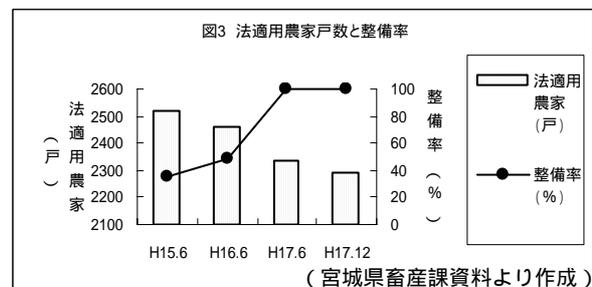
- (1) *E. coli* MPN と当日降水量は、花川 ( $R=0.8812$   $p<0.01$   $Y=39.24X+93.46$ , 図 2) 大河原 ( $R=0.9153$   $p<0.01$   $Y=24.71X+330.79$ ) で、高い正の相関が認められた。古川 ( $R=0.2325$ ) 佐沼 ( $R=0.5649$ ) では、相関が認められなかった。
- (2) VT 遺伝子が検出された採水定点は、江合川 (古川 2/12 回), 花川 (色麻 1/12 回), 田川 (加美 2/11 回), 三迫川 (佐沼 3/8 回) で、特に田川と三迫川では高率に検出された。
- (3) 検出された EHEC は O26:H11 VT1 (江合川),

O159:H19 VT2, OUT:HUT VT1,2 (いずれも鳴瀬川本流) であった。



## (4) 家畜排せつ物処理施設の整備状況

平成 16 年後半に約 50% が整備された (図 3)。



## 4. 考察

降雨後の *E. coli* MPN、EHEC MPN は、いずれの河川でも増加し、河川毎に特徴があることが判明した。また、夏季は冬季よりも検出率が高く、環境中で死滅することなく、分裂増殖も行われている<sup>1)</sup>ことが示唆された。

平成 16 年度後半は、家畜排せつ物法の措置期間 5 年の最終年度であり、県内全域で、畜舎周辺などに糞尿処理施設や堆肥舎が駆け込みで建設されたと思われる。この際、旧堆肥舎や野積みの区域が整理整地され、降雨後に多量の *E. coli* が雨水や土砂とともに河川に流出し、*E. coli* MPN は現在と比較ならないほど高かったことが推測された。当時、河川水から患者菌株と PFGE パターンの一致した菌が分離されている<sup>2)</sup>。

以上より、河川が EHEC 感染経路の一つであった重要な根拠であると考えられる。平成 17 年以降は、川底などの堆積物の泥土化、小規模牛飼養農家の減少及び家畜排泄物の適正処理等により河川への *E. coli* の流出は更に減少しているものと思われ、県内における増水した河川からの EHEC 感染症は限りなく零に近くなることが期待される。今後も増水した河川の微生物学的監視を継続し、感染予防の観点から地域住民と河川との関わり方について注意を喚起することが重要であると考えられた。

- 1) 齋藤紀行 菅原直子 小林妙子 渡邊 節 山田わか：宮城県保健環境センター年報 24,132-135,2006
- 2) 田村広子 佐々木美江 畠山 敬 川野みち 谷津壽郎 秋山和夫：宮城県保健環境センター年報 24,50-54,2006