



活彩あomor

I S S N 0917-1924

青森県環境保健センター研究報告

Bulletin
of
Aomori Prefectural Institute of Public Health and Environment

No.23 2012

青森県環境保健センター

は じ め に

青森県環境保健センターは、県民の生活環境の保全及び保健衛生の向上に係る試験研究並びに情報提供を組織目標に掲げて業務を遂行し、環境行政、保健衛生行政の推進に大きな役割を果たしてきています。

今冬は、ノロウイルスによる食中毒や感染症事例が全国で多発しました。あらためて食の安全・安心、健康危機管理への対応が重要であることを県民が認識されたことと考えます。

現在、毒性の強い鳥インフルエンザウイルスがヒトに感染しやすいように変異して発生することが懸念されています。このような新型インフルエンザや新興・再興感染症発生などの緊急事態への対処や県民の健康被害の拡大を防止するためには、迅速かつ適切に職員が対応することが不可欠です。そのためには、検査技術の習熟と検査結果の信頼性を確保するとともに、平時から試験研究機関として危機管理能力の向上・維持に取り組んでいくことが必要と考えています。

また、環境保全対策の面では、近年、光化学オキシダント、微小粒子状物質、酸性雨などの広域大気汚染問題がクローズアップされています。これらの問題については、広域的に調査研究する必要があるため、関係機関と連携して対処することがますます重要となってきています。

ここに当所の調査研究の成果を平成24年度研究報告(第23号)として取りまとめました。御高覧のうえ皆様の率直な御意見をいただければ幸いに存じます。

今後とも御指導、御支援を賜りますようお願いいたします。

平成25年 3月

青森県環境保健センター
所 長 工 藤 真 哉

目 次

I 報 文

青森県における腸管出血性大腸菌感染症の発生状況（2011年） 武沼浩子 福田 理 三上稔之	1
2011/12 シーズンに発生したノロウイルスによる集団胃腸炎事例の遺伝子学的解析 東海林 彰 筒井理華 古川紗耶香 福田 理 三上稔之	5
青森県におけるヒトライノウイルス及びRS ウイルスの遺伝子学的検討 筒井理華 東海林 彰 古川紗耶香 吉田綾子 井上 治 三上稔之	12
ヘッドスペースーガスクロマトグラフ質量分析法による1, 4-ジオキサンの分析について 野澤直史 工藤香織	19
大気汚染常時監視測定項目の経年変化について 渡部陽一 岩間貴士	23

II ノート

飲用水戸等衛生対策事業における水質検査結果—平成20年度から平成24年度まで— 棟方美穂子 楢山宝孝 木村淳子 福田 理 武沼浩子 三上稔之 増田幸保	27
水道水質外部精度管理調査結果（平成23年度） 木村淳子 楢山宝孝 増田幸保	31
農産物中の残留農薬検査結果—平成19年度から平成23年度まで— 工藤志保 工藤 翔 櫻庭麻恵 山本明美 増田幸保	36
陸奥湾東部海域ホタテガイ中環境汚染物質の調査結果（第2報） —平成12年度から平成23年度まで— 工藤志保 工藤 翔 玉熊義久 櫻庭麻恵 山本明美 増田幸保	43
公共用水域におけるダイオキシン類モニタリング調査結果 工藤香織 野澤直史	46

III 他誌投稿・学会等発表抄録	50
------------------------	----

Contents

I Original Articles

The occurrence of enterohemorrhagic <i>E. coli</i> infection in Aomori Prefecture (in 2011)	
Hiroko Takenuma, Osamu Fukuda, Toshiyuki Mikami	1
Gene analysis of Norovirus responsible for gastroenteritis outbreaks in season 2011/12	
Akira Toukairin, Rika Tsutsui, Sayaka Kogawa, Osamu Fukuda, Toshiyuki Mikami	5
Gene analysis of human rhinoviruses and respiratory syncytial viruses in Aomori Prefecture	
Rika Tsutsui, Akira Toukairin, Sayaka Kogawa, Ayako Yoshida, Osamu Inoue, Toshiyuki Mikami	12
Analysis of 1,4-dioxane by Headspace Gas Chromatography–Mass Spectrometry	
Naofumi Nozawa, Kaori Kudo	19
Change over time in constantly–monitored parameters of air pollution	
Yoichi Watanabe, Takashi Iwama	23

II Notes

Results of Water Quality Test for Drinking Water from Non-regulated Well	
–From Fiscal 2008 to 2012–	
Mihoko Munakata, Takatoshi Narayama, Junko Kimura, Osamu Fukuda, Hiroko Takenuma, Toshiyuki Mikami, Yukiyasu Masuda	27
Results of External Quality Control for Tap Water Quality (Fiscal 2011)	
Junko Kimura, Takatoshi Narayama, Yukiyasu Masuda	31
Results of Examination for Pesticide Residue in Agricultural Products	
–From Fiscal 2007 to 2011–	
Shiho Kudo, Sho Kudo, Asae Sakuraba, Akemi Yamamoto, Yukiyasu Masuda	36
Surveillance Results of Environmental Pollutants in Scallops in Eastern Mutsu Bay (Second Report)	
–From Fiscal 2000 to 2011–	
Shiho Kudo, Sho Kudo, Yoshihisa Tamakuma, Asae Sakuraba, Akemi Yamamoto, Yukiyasu Masuda	43
Results of dioxins monitoring study in public water body	
Kaori Kudo, Naofumi Nozawa	46

III Summaries of Other Publications/

Abstracts of Presentations in Society Meetings	50
--	----

I 報 文

青森県における腸管出血性大腸菌感染症の発生状況 (2011年)

武沼浩子 福田 理 三上稔之

同じ地域内で、感染経路が不明である異なる事例の血清型別 O157 が同一の遺伝子パターンであることが確認された。血清型の内訳では、これまで高頻度に検出される血清型は O157 であったが、2011 年は O26 が最も多くその他 O111、O91、O37、O121 が検出された。2009 年から 2011 年まで当所に収集された腸管出血性大腸菌感染症情報から発生時期は、8 月に最も多く、冬季にも患者発生が認められた。患者属性ではいずれの年次も女性の割合が多く、年齢別では 10 歳未満が多い傾向にあった。家族内で発生した事例では同一の遺伝子パターンが認められた。

Key Words : EHEC,O157,O26,VT1,VT2, PFGE

1. はじめに

腸管出血性大腸菌感染症は、感染症法において全数報告対象疾患 (3類全数把握対象疾患) であり、診断した医師は直ちに最寄りの保健所に届け出なければならない。本疾患は、ベロ毒素を産生する腸管出血性大腸菌 (EHEC) の感染によって起こる全身性疾患であり、症状は、無症状から腹痛、水様性下痢、致命的なものまで様々な臨床症状が知られている。特に、腸管出血性大腸菌感染症に引き続き発症することがある溶血性尿毒症症候群 (Hemolytic Uremic Syndrome,HUS)は、死亡あるいは腎機能や神経学的障害などの後遺症を残す可能性のある重篤な疾患である¹⁾。EHECによる感染症は、感染力が強く少ない菌量で感染が成立するため²⁾二次感染によるまん延防止が重要となる。

今回、本県の2009年から2011年に届出のあった腸管出血性大腸菌感染症発生状況および2011年のEHECのPFGEパターンの解析を行ったので報告する。

2. 方法

2.1 菌株

青森県で発生届があり、分離された腸管出血

性大腸菌23株は、各保健所を經由し収集された。

2.2 PFGE 法による遺伝子解析

2011年に収集したEHEC分離菌23株についてPFGEを行った。制限酵素は *XbaI* を使い、プラグ用アガロースは 1% Seakem Gold Agarose、PFGE装置は Bio-Rad社 CHEFF DRⅢ、泳動条件は 6.0V、2.2~54.2sec、19hr、buffer 0.5×TBE、バッファー温度は 14℃により実施した。

2.3 血清型別

血清型別は病原大腸菌免疫血清「生研」(デンカ生研)を使用し、O型別、H型別を行った。

2.4 患者情報

感染症サーベイランスシステム (NESID) によりデータを収集し、集計を行った。

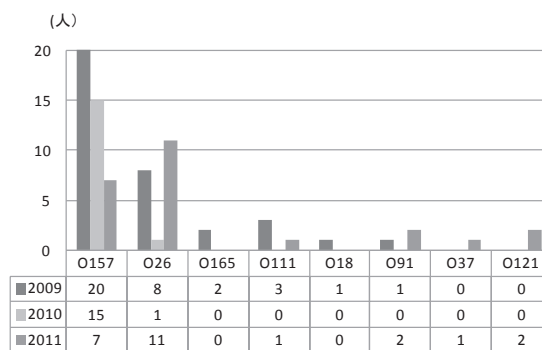


図1 血清型別分離数 (2009-2011)

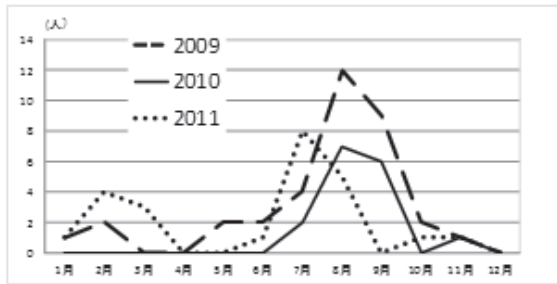


図2 月別年別発生状況 (2009-2011)

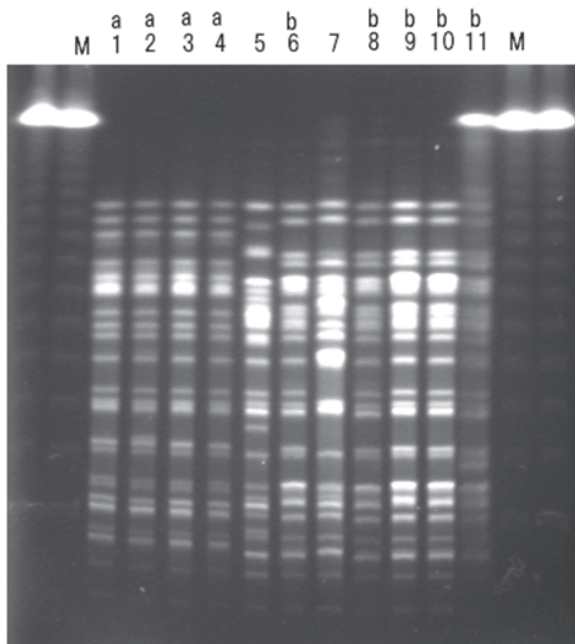


図3 O26 PFGE-DNA 切断パターン

3. 結果及び考察

1)図1には、県内で発生した2009年から2011年までのEHECの血清型別の分離数を示した。

血清型別分離数は2009年ではO157が57.14% (20/35)で全体の半分以上を占め次いでO26が22.85% (8/35)、O111の順で、その他O165、O18、O91が分離された。2010年ではO157が93.3% (14/15)、O26が6.66% (1/15)であった。2011年では、2月から3月および7月から8月の集団発生によりO26が最も多い44% (11/25)であり、次いでO157が32% (7/25)、O91とO121が8% (2/25)で、O111とO37が4% (1/25)であった。

2009年、2010年はO157が分離数の半分以上を占めていたが、2011年はO26がO157を分離数で上回ったことや複数の血清型の菌が見られたことから、O157以外の血清型の毒素産生菌について今後、注視が必要である。

2)月別発生状況は、2009年では、7月をピークとし、2010年と2011年では、8月をピークに7月から10月にかけて発生が認められ、また1月から3月の冬季にも少数の発生が見られた(図2)。2009年には見られなかった2010年、2011年の冬季発生は、夏季発生EHECの潜在的感染なのか、感染源が異なるものなのかは、今後、菌株のゲノム解析を進める必要がある。

3)2009年から2011年までの年齢・性別割合では、いずれの年次も9歳以下の年齢層が多く、性別では女性の割合が多い傾向にあった(表3)。2009年には、5歳女兒において、腹痛、水様性下痢、血便、嘔吐、発熱、急性腎不全、溶血性尿毒症候群(HUS)、痙攣を発症する事例もあり、患者数の多かった9歳以下ではHUSを発症する危険性もあり、注意が必要である¹⁾。

4)図3には、2011年収集のEHEC血清型O26のPFGEのDNA切断パターンを示した。レーン1は2月25日に届出のあった4歳男児が腹痛、水様性下痢で発症、レーン2、3は、同居家族の8歳男児が腹痛・下痢、6歳女兒が腹痛で発症、レーン4は母親であり、無症状の保菌者であった。家族4人から検出されたEHEC株は同一の遺伝子パターンであった(図3、表1)。

レーン6は、7月15日に届出のあった5歳男児で症状は水様性下痢、腹痛、嘔吐であった。レーン8は7月26日届出4歳女兒で腹痛、下痢、レーン9は7月28日届出2歳女兒、下痢、発熱、レーン10は7月25日1歳男児、腹痛、血便、レーン11は8月15日届出15歳男児であり、レーン6、8、9、10は同一保育園内の集団事例であった。レーン6、8、9、10、11の5人から検出されたEHEC株は同一のPFGE遺伝子パターンであり、レーン11の15歳男児は、レーン6、8、9、10初発の患者から30日後の8月15日の届出であり保育園児らと同じ遺伝子パターンであったことから感染源が同一である可能性が示唆された。

5)図4に2011年に収集のEHEC血清型別O157が7株、O121が2株、O37、O91、O111が各々1株ずつのPFGEパターンを示した。レーン1から7は血清型別O157のDNA切断パターンでレーン4、5が同じパターンを示し、レーン4は7月分離株、レーン5は8月分離株で同じ地域での散发例であることから、共通の感染源で時間的な差で発生し

た事例と考えられる。レーン 8 からレーン 12 では同一の遺伝子パターンは認められなかった (図 4、表 2)。

6)EHEC 感染症は小児や高齢者で重症化することがあるとされている⁶⁾。本県においても20歳代から40歳代では無症状患者が認められるが、10歳未満と80歳以上の年齢層で、血便や腎不全などの重症症状が認められた(表1、2、3)。

保育園や幼稚園等の乳幼児や高齢者が集団で生活をしている環境において、無症状保菌者が存在した場合、知らない間に感染が成立し集団発生につながる可能性があり、無症状保菌者の探査は重要な課題と考える。

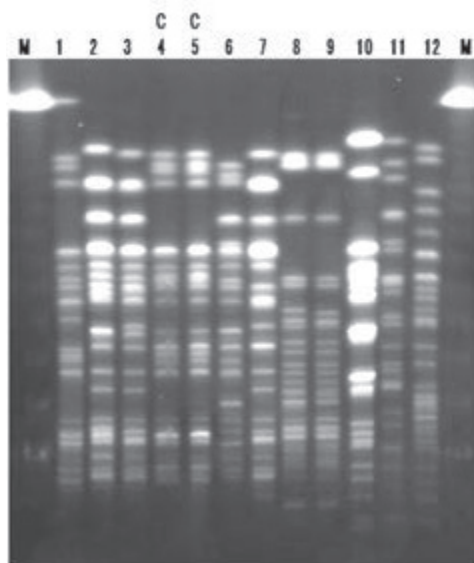


図4 0157、0121、037、091、0111-DNA 切断パターン

表1 026 発生届詳細

レーン番号	年齢	性別	保健所名	種別	症状	O血清型別	毒素型	P
1	4	男	弘前	家族内	腹痛、水様性下痢	O26:H11	VT1	a
2	8	男	弘前	家族内	腹痛、水様性下痢	O26:H11	VT1	a
3	6	女	弘前	家族内	腹痛	O26:H11	VT1	a
4	39	女	弘前	家族内	なし	O26:H11	VT1	a
5	32	男	上十三	散発	なし	O26:H11	VT1	
6	5	男	弘前	集発	水様性下痢、腹痛、嘔吐	O26:H11	VT1	b
7	5	女	弘前	散発	腹痛、水様性下痢、嘔吐	O26:H11	VT1	
8	4	女	弘前	集発	腹痛、水様性下痢	O26:H11	VT1	b
9	2	女	弘前	集発	水様性下痢、発熱	O26:H11	VT1	b
10	1	男	弘前	集発	腹痛、血便	O26:H11	VT1	b
11	15	男	弘前	散発	腹痛、水様性下痢、血便、 発熱	O26:H11	VT1	b

P:DNA泳動同一パターンを英小文字で示した。

表2 0157、0121、037、091、0111 発生届詳細

レーン番号	年齢	性別	保健所名	種別	症状	O血清型別	毒素型	P
1	80	女	弘前	散発	腹痛、血便	O157:H-	VT1VT2	
2	69	女	弘前	散発	腹痛、水様性下痢、血便	O157:H7	VT1VT2	
3	63	女	上十三	散発	腹痛、血便	O157:H7	VT2	
4	87	男	上十三	散発	腹痛、水様性下痢、血便、 発熱、溶血性貧血、 急性腎不全、脳症	O157:H7	VT2	c
5	80	女	上十三	散発	腹痛	O157:H7	VT2	c
6	9	男	弘前	散発	腹痛、水様性下痢、発熱	O157:H7	VT2	
7	74	女	上十三	散発	腹痛、水様性下痢、血便	O157:H7	VT2	
8	7	女	五所川原	散発	腹痛、血便、嘔吐、発熱	O121:H19/H6	VT2	
9	25	女	青森市	散発	なし	O37:H-	VT1	
10	27	男	八戸	散発	腹痛、水様性下痢、微熱	O121:H19	VT2	
11	29	女	上十三	散発	なし	O91:H-	VT1	
12	15	男	上十三	散発	腹痛、水様性下痢	O111:H-	VT1VT2	

P:DNA泳動同一パターンを英小文字で示した。

表3 年齢別性別割合 (2009-2011)

年齢	2009			2010			2011		
	男	女	合計	男	女	合計	男	女	合計
0-9	9	9	18	1	2	3	5	5	10
10-19	1	1	2	1	2	3	2	0	2
20-29	0	3	3	2	2	4	1	2	3
30-39	0	3	3	1	0	1	1	1	2
40-49	0	1	1	0	0	0	1	0	1
50-59	0	5	5	0	2	2	0	0	0
60-69	0	2	2	1	0	1	0	2	2
70-79	0	0	0	0	2	2	0	1	1
80~	0	1	1	0	0	0	1	2	3
合計	10	25	35	6	10	16	11	13	24

4. まとめ

血清型の内訳では、これまで高頻度に検出される血清型はO157であったが、2011年はO26が最も多くその他O111、O91、O37、O121が検出された。2009年から2011年まで当所が収集した腸管出血性大腸菌感染症の発生時期は、8月に最も多く、冬季にも患者発生が認められた。

患者は、いずれの年次も女性の割合が多く、年齢別では9歳以下が多い傾向にあった。

家族内で発生した事例では同一の遺伝子パターンが認められた。

同じ地域内で発生時期が異なる散発事例において PFGE の DNA 切断パターンが同一である事例が認められた。

文 献

- 1)濱崎祐子ほか：溶血性尿毒症症候群（HUS）治療に関する留意点,小児感染免疫 Vol.19 No.1 2007
- 2) Caprioli J, Peng L, Remuzzi G : The hemolytic uremic syndromes. Current Opinion in Critical Care 11 : 487-492, 2005
- 3)吉田眞一、柳雄介編：戸田新細菌学,547-553
- 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.32,125-126,2011
- 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.31,152-153,2010
- 6)坂崎利一編：新訂 食水系感染症と細菌性食中毒,269-272
- 7)寺嶋淳：国立感染症研究所
<http://www.nih.go.jp/niid/ja/diseases/sa/cm/392-encyclopedia/439-ehc-intro.html>

The occurrence of enterohemorrhagic E. coli infection in Aomori Prefecture (in 2011)

Hiroko Takenuma, Osamu Fukuda, Toshiyuki Mikami

We confirmed that the different cases that occurred in the same area, whose routes of infection were unknown, had the same genetic pattern of serogroup O157. Previously, the serogroup detected most frequently was O157. In 2011, the most common serogroup was O26; O111, O91, O37, and O121 were also detected. According to the information on enterohemorrhagic E. coli infection collected in our site between 2009 and 2011, the infection occurred most often in August, and it also occurred in winter. In each of the years, the infection developed more frequently in women than in men, and occurred often in children under 10 years old. In domestic cases, the same genetic patterns were found within same families.

Key Words: EHEC, O157, O26, VT1, VT2, PFGE

2011/12 シーズンに発生したノロウイルスによる集団胃腸炎事例の遺伝子学的解析

東海林 彰 筒井理華 古川紗耶香 福田 理 三上稔之

2011/12 シーズンに発生したノロウイルス (NV) による集団胃腸炎事例 17 事例について、遺伝子解析を行った結果、NVG I のみが 1 事例から、G II のみが 11 事例から検出され、G I と G II の両遺伝子が検出されたものが 5 事例あった。遺伝子型では、NV Genogroup II/2 (NVG II/2) が最も多く 6 事例から検出され、2010/11 シーズンと同様の傾向がうかがわれた。17 事例中、食中毒と行政判断がなされたものは 5 事例あり、そのうち調理従事者から NV が検出された事例は 4 事例で、患者から検出された NV の遺伝子型と一致していた。ただし、1 つの食中毒事例で複数の遺伝子型が検出される場合があり、患者と調理従事者の遺伝子型が一致しない場合があるため注意が必要である。

また、2012 年には従来の G II/4 変異株とは異なる変異株の発生が報告されていることから、本県においてもその発生動向に注意する必要がある。

Key words : Norovirus, NVG II/2, NVG II/4, Molecular epidemiology

1. はじめに

ノロウイルス (Norovirus、以下 NV) は、電子顕微鏡で観察される形態学的分類で SRSV (小型球形ウイルス)、あるいはノーウォーク様ウイルスという属名で呼ばれてきたウイルスであり、2002 年の国際ウイルス命名委員会での正式名称が決定され、世界で統一して用いられるようになった¹⁾。

NV は、ウイルス性胃腸炎の主要な病原体となる RNA ウイルスで、大きく genogroup (G) I ~ V に分けられ、G I と G II が主に人に感染し、少なくとも G I は 15、G II は 19 の遺伝子型が存在する²⁾。NV は人に対して嘔吐、下痢などの急性胃腸炎症状を起こし、糞便および吐物中に大量に排出され、症状消失後も長期に糞便中への排泄が続き、手指や環境などを介して人→人感染を起こすほか、NV で汚染された食品の摂取により食中毒が起こる³⁾。

青森県では、2006/07 シーズンから 2009/10 シーズンまで NVG II/4 が主流型であったが、2010/11 シーズンは G II/4 の検出数は減少し、G II/2 が最多で検出されている⁴⁾。今回、本県における 2011/12 シーズンの NV による集団胃腸炎事例について、ウイルスの遺伝子解析を行い、発生動向及び流行型等を分子疫学的に検討したので報告する。

2. 材料と方法

2.1 検査材料

2011/12 シーズンに県内 (青森市を除く) で発生した NV による集団胃腸炎事例 15 事例から得られた 264 検体 (糞便 145、吐物 2、食品 41、ふきとり 76) を用いた (表 1)。また、青森市保健所から情報提供を受けた 4 事例 (糞便 12) (H24.11.30 現在で検体提供のあったもの) について cDNA の分与を受け、遺伝子解析に用いた (表 2)。

2.2 検査方法

検体処理、RNA 抽出、PCR 及び遺伝子解析は、「ノロウイルスの検出法について」(平成 15 年 11 月 5 日付食安監発第 1105001 号) に準じて行った。

3. 結果

2011/12 シーズンに発生した集団胃腸炎事例の概要を表 1 及び表 2 に示した。NV による集団胃腸炎事例は 17 事例で (a1 は 1 と同一事例、a2 は 9 と同一事例)、食中毒と行政判断がなされたものは、5 事例であった (表 1: 事例番号 3、5、6、9、13、表 2: a2)。

検体からの NV 遺伝子検出では、発症者及び調理従事者便 157 検体中 99、吐物 2 検体中 1 から NV 遺

表1 青森県内（青森市保健所管内を除く）で発生したノロウイルスによる集団胃腸炎事例（2011/12 シーズン）

事例番号	発生年月日	発生施設等	発症者数(職員)	喫食者数又は団体母数(職員)	糞便				吐物		食品		ふき取り		検査結果		
					発症者ほか		調理従事者		陽性数	検査数	陽性数	検査数	陽性数	検査数		陽性数	検査数
					陽性数	検査数	陽性数	検査数									
1※1	H23.10.16	家庭	6	11	1	1									NVGII/12		
2	H23.11.17	保育所	43(2)	74(13)	2	4									NVGII/2		
3	H23.12.18	飲食店	17	68	7	10	1	12			0	16	0	16	NVG I /14(発症者3名、調理従事者1名) NVG I /8 (発症者2名) NVGII/2 (発症者1名) 遺伝子解析不可能 (3名)		
4	H23.12.12	家庭	3	8	3	4							0	5	NVGII/2		
5	H23.12.8	ホテル	16	59	7	8	2	7							NVG I /14 (発症者3名、調理従事者1名) GI/7 (発症者1名) GI/4 (発症者1名) 遺伝子解析不可能 (4名)		
6	H23.12.7	飲食店	8	21	7	8	1	10			0	3	0	12	NVG I /14 (発症者4名、調理従事者1名) GI/8 (発症者1名) NVGII/2 (発症者1名) 遺伝子解析不可能 (3名)		
7	H23.12.18	小学校	24	134名以上	12	12					0	8	0	9	NVGII/2 遺伝子解析不可能 (2名)		
8	H23.12.30	家庭	3	5	3	3							0	3	NVG I /14		
9※2	H23.12.23	ホテル	33	52	14	14	0	4			0	2	0	6	NVG I /8 (発症者7名) NVG I /14 (発症者5名) NVGII/2 (発症者3名) NVGII/4 (発症者1名) NVGII/12 (発症者1名) 遺伝子解析不可能 (5名)		
10	H24.1.4	介護老人福祉施設	18	205(74)	6	6			1	1					NVGII/4		
11	H24.2.21	自衛隊	2	3	2	3	0	5					0	7	NVGII/13 (発症者1名) NVGII/14 (発症者1名)		
12	H24.3.10	小学校	20	82(14)	8	9	0	3			0	3	0	4	NVG I /1 (発症者7名) NVGII/6 (発症者1名)		
13	H24.4.3	飲食店	7	34	4	4	2	6	0	1	0	4	0	11	NVGII/12 (発症者4名、調理従事者1名) 遺伝子解析不可能 (1名)		
14	H24.4.18	小学校	22	96(20)	2	2									NVGII/13		
15	H24.5.10	保育所	21(1)	76(12)	3	7	0	3			0	5	0	3	NVGII/13		

表2 青森市保健所管内で発生したノロウイルスによる集団胃腸炎事例（2011/12 シーズン）

事例番号	発生年月日	発生施設等	発症者数	喫食者数	糞便				吐物		食品		ふき取り		検査結果		
					発症者		調理従事者		陽性数	検査数	陽性数	検査数	陽性数	検査数		陽性数	検査数
					陽性数	検査数	陽性数	検査数									
a1※1	H23.10.16	家庭	6	11	4	4		0		0		0		0	NVGII/12		
a2※2	H23.12.23	ホテル	33	52	1	1		0		0		0		0	NVG I /14 NVGII/2		
a3	H23.12.26	ホテル	3	4	1	1		0		0		0		0	NVGII/4		
a4	H24.1.31	特別養護老人ホーム	32	不明	6	6		0		0		0		0	NVGII/4		

表中の は、食中毒事例を示す。

※1：事例番号1とa1は発生場所が同一の事例。

※2：事例番号9とa2は発生場所が同一の事例。

伝子が検出されたが、食品（41 検体）及びふき取り（76 検体）からは検出されなかった。

遺伝子群別では、G I のみが 1 事例、G I と G II の混合事例が 5 事例、G II のみが 11 事例であった。

上述の 17 事例について、100 株（NVG I : 30 株、NVG II 53 株、NVG I 及び NVG II : 17 株）の Capsid 領域の塩基配列を決定し、系統樹を作成し、比較を試みた。複数の遺伝子型が確認された事例については、系統樹で事例番号に枝番を付し、系統ごとに検体数を表記した（図 1、2）。

系統樹解析の結果、NVG I では 5 事例（事例番号 3、5、6、8、9、a2）から G I /14/AB112100Saitama T25G1/01/JP 類似株が検出され、3 事例（事例番号 3、6、9）から G I /8/AB0817238WUG1/00/JP 類似株が検出された。また、事例番号 5 及び 12 から、それぞれ G I /7/AJ277609Winchester/94/UK 及び G I /1/M87661Norwalk/68/US 類似株が検出された。

NVG II では、6 事例（事例番号 2、3、4、6、7、9、a2）から G II /2/Melksham/89/UK (X81879) 類似株が検出され、5 事例（事例番号 5、9、10、a3、a4）から G II /4/Bristol/93/UK (X76716) 類似株が検出され、3 事例（1、9、13、a1 及び 11、14、15）からそれぞれ、G II /12/SaitamaU1/97/JP (AB039775) 及び G II /13/M7/99/US (AY130761) 類似株が検出された。また、その他にも事例番号 11 及び 12 から、それぞれ G II /14/Kashiwa47/00/JP (078334) 及び G II /6/SaitamaU3/97/JP (AB039776) 類似株が検出された。

4. 考察

2011/12 シーズンに発生した NV による集団胃腸炎事例の遺伝子解析の結果、事例数では G II /2 が最も多く 6 事例から検出され、次いで G II /4、G I /14 が 5 事例から検出された（図 3、4）。本県における 2010/11 シーズンの遺伝子解析結果と比較すると、2010/11 シーズンも G II /2 が最多で検出されており⁴⁾、2011/12 シーズンと同様の傾向がうかがえた。

全国における 2008-2012 年（11 月 28 日現在）の年別ウイルス検出状況をみると、NVG I では、G I /4 と G I /8 の検出数が多く、NVG II では、G II /4 が主流を占めている。但し、NVG II では、G II /2 も 2010 年には 478 件の報告があり⁵⁾、増加傾向が見られていたことを考慮すると、本県における NVG II の検出状況は全国の流行状況と類似した発生動向を示していたものと思われる。NVG I については、NVG II に比べ検出事例数が少ないが、本県では G I /14 の検出事例が多かった。

NV の感染経路としては、便や吐物に接触した手を介する接触感染や、NV に汚染された食品を介する感染がよく知られている。NV の食品汚染による食中毒事例では、多数の患者が発生し、大規模な食中毒事例となる頻度が高いが、原因食品は推定できても食品からの NV 検出は困難なことが多い⁶⁾。2011/12 シーズンの本県における集団胃腸炎事例においても食品及びふき取り検体から NV が検出された事例はなかった。今後は検出感度の高い検査方法も視野に入れた検査方法を検討していく必要があるかもしれない。

また、「ノロウイルスの食中毒対策について（平成 19 年 10 月 12 日食安発第 1012001 号）」の中では、食中毒の判断根拠を明確にすることが求められており、調理従事者から NV が検出された場合においても、食中毒と判断する際は、患者と調理従事者の遺伝子型が同一であることが掲げられている。今回、遺伝子解析した事例の中にも、調理従事者から NV が検出され、食中毒と判断された事例（3、5、6、13）があり、それらの事例では調理従事者と患者の遺伝子型は一致していた。ただし、二枚貝のようにウイルスを蓄積する食品が原因となった食中毒の場合、1 つの事例で複数の遺伝子型が検出される場合があり、食中毒であっても、患者と調理従事者の遺伝子型が一致しない場合があることから行政判断を下す際には注意が必要である。

2012 年 10 月に新潟県の集団胃腸炎事例から検出された NV は、従来の G II /4 変異株とは異なる変異株であることが報告され、今後の発生動向が注目されている⁷⁾。この変異株は調査の結果、2012 年 1 月から北海道と大阪で発生が確認されていた。本県の 2011/12 シーズンの遺伝子解析の結果、この変異株は検出されなかったが、2012/13 シーズンはこの変異株の流行が予測されることから、本県においても発生動向に注意していく必要がある。

5. まとめ

1) 2011/12 シーズンに発生した NV による集団胃腸炎事例は 17 事例で、遺伝子群別では、G I のみが 1 事例、G I と G II の混合事例が 5 事例、G II のみが 11 事例であった。

2) 検出ウイルスの遺伝子型は、NVG II /2 が最も多く 6 事例から検出され、次いで G II /4、G I /14 が 5 事例から検出された。

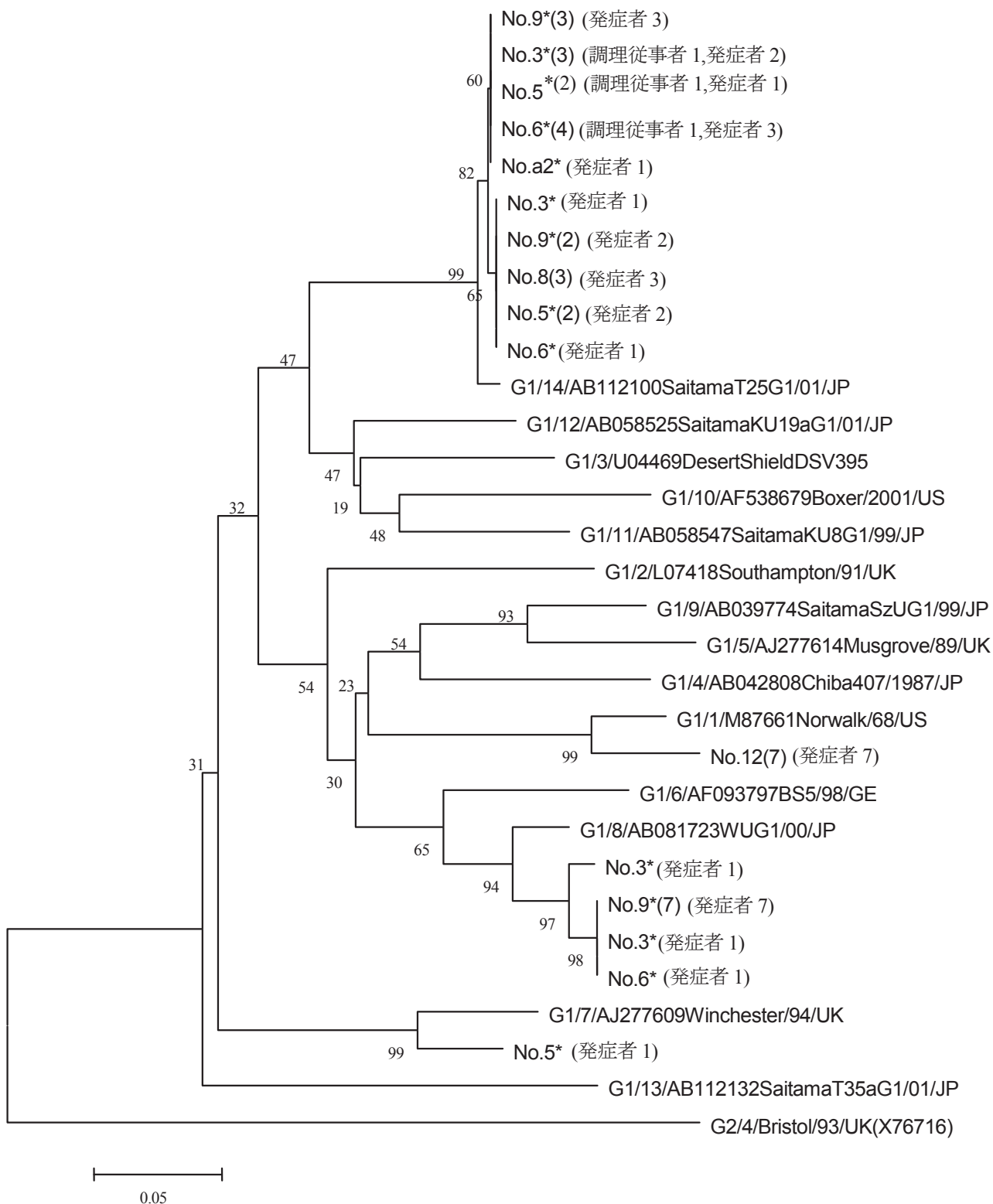


図1 2011/12 シーズン集団胃腸炎事例から検出されたNVG I (capsid 領域 260nt) 系統樹 (NJ 法、数字:bootstrap 値 (bootstrap1000 回)) * : 食中毒事例、数字 : 表 1 及び表 2 の事例番号、(数字) : 検体数

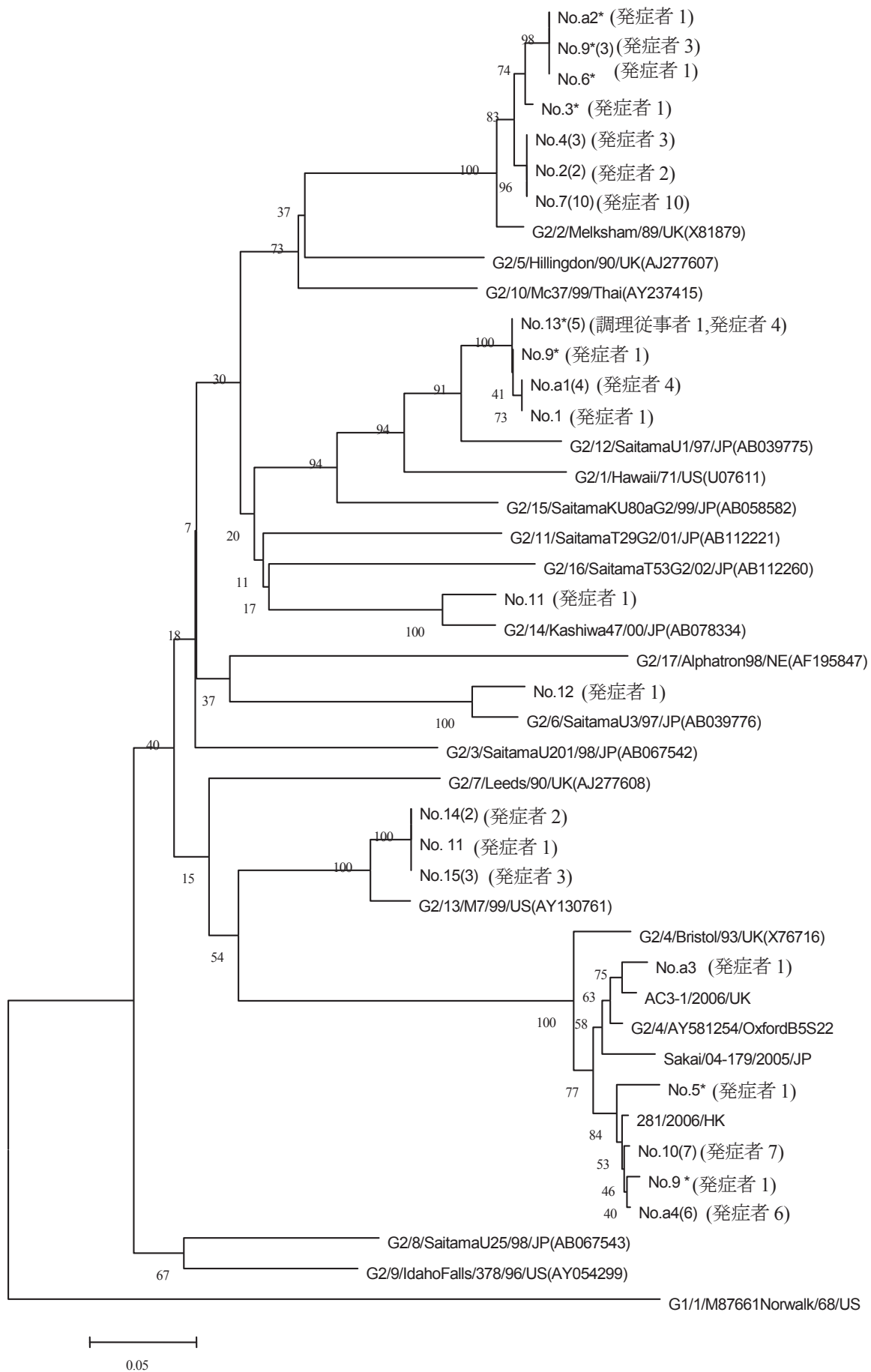


図2 2011/12 シーズン集団胃腸炎事例から検出された NVG II (capsid 領域 279nt) 系統樹 (NJ 法、数字: bootstrap 値 (bootstrap1000 回)) * : 食中毒事例、数字 : 表 1 及び表 2 の事例番号、(数字) : 検体数

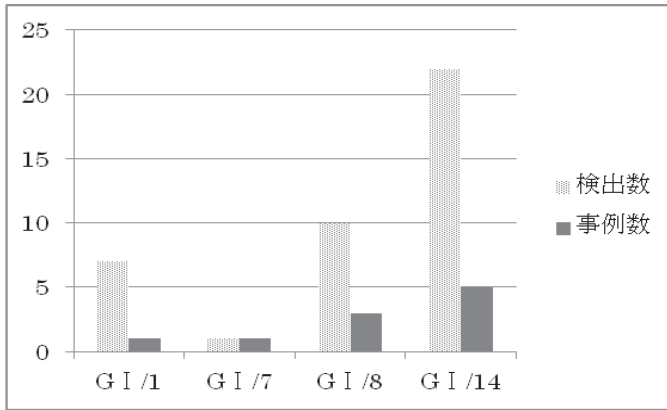


図3 2011/12 シーズン NVG I 検出数と事例数

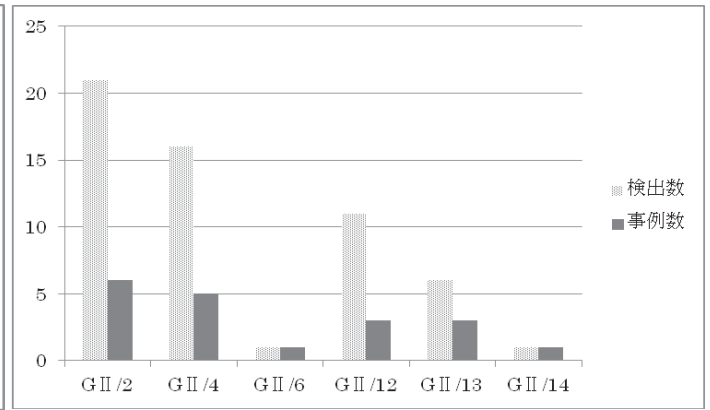


図4 2011/12 シーズン NVG II 検出数と事例数

- 3)食品及びふき取り検体から NV が検出された事例はなかった。
- 4)集団胃腸炎事例のうち食中毒と行政判断された事例は5事例であり、そのうち調理従事者から NV が検出された事例は3事例で、患者から検出された NV の遺伝子型と一致していた。
- 5)2012年には従来の G II /4 変異株と異なる変異株の発生が報告されていることから今後の動向に注意していく必要がある。

文 献

- 1)国立感染症研究所感染症情報センター：感染症発生動向調査週報ノロウイルス 2004 年第 11 週掲載
- 2)国立感染症研究所感染症情報センター：ノロウイルスの流行2006/07～2009/10シーズン. 病原微生物検出情報,31(11),312-314-314,2010

- 3)国立感染症研究所感染症情報センター：ノロウイルス食中毒 2011 年現在. 病原微生物検出情報,32(12),352-353,2011
- 4)吉田綾子ほか：ウイルス性集団胃腸炎事例の発生動向 (2010/11シーズン) 青森県環境保健センター研究報告, 22,1-10,2011
- 5)国立感染症研究所感染症情報センター：ノロウイルス検出速報. 感染症情報センターホームページ
- 6)国立感染症研究所感染症情報センター：食品中からノロウイルス遺伝子が検出された食中毒事例. 病原微生物検出情報,32(12),364-365,2011
- 7)国立感染症研究所感染症情報センター：ノロウイルス G II /4 の新しい変異株の遺伝子解析と全国における検出状況. 病原微生物検出情報, 33(12), 333-334

Gene analysis of Norovirus responsible for gastroenteritis outbreaks in season 2011/12

Akira Toukairin, Rika Tsutsui, Sayaka Kogawa, Osamu Fukuda, and Toshiyuki Mikami

We performed gene analysis in 17 cases of gastroenteritis outbreaks due to Norovirus (NV) in season 2011/12. NVGI was detected in 1 case and NVGII was detected in 11 cases. Both NVGI and NVGII were detected in 5 cases. The most common genotype was NV genogroup II/2 (NVGII/2), which was detected in 6 cases. This trend seemed to be similar to that in season 2010/11. Of the 17 cases, 5 were considered food poisoning by the regulatory yardstick. In 4 of the 5 cases, NVs were detected from cooking workers and the genotype detected in cooking workers was the same as that detected in patients in each case. In food poisoning cases, however, caution should be exercised because several genotypes are sometimes detected in a single case and the genotypes may not be the same between patients and cooking workers.

In addition, a novel variant that is different from known GII/4 variants has been reported in 2012, and we should pay attention to its occurrence in Aomori Prefecture.

Key Words: Norovirus, NVGII/2, NVGII/4, molecular epidemiology

青森県におけるヒトライノウイルス及び RS ウイルスの遺伝子学的検討

筒井理華 東海林 彰 古川紗耶香 吉田綾子¹ 井上 治² 三上稔之

県内における呼吸器ウイルス動向を把握するため、2011 年 4 月から 2012 年 3 月までに医療機関を受診した呼吸器系小児患者由来検体から検出した、ヒトライノウイルス (Human Rhinovirus : 以下、HRV) 及び RS ウイルス (Respiratory Syncytial virus : 以下、RSV) 検出株について分子疫学解析を試みた。HRV は主として HRV subgroup A(HRV-A) および subgroup C(HRV-C) に分類された。RSV は RSV subgroup A(-A) が genotype GA2 に RSV subgroup B が genotype BA に分類された。HRV では、HRV-A が年間を通して検出され、HRV-C は 7~9 月を除き秋から初夏にかけて検出され、遺伝学的に多様な株が流行していた可能性が示唆された。また、G 遺伝子の C 末端超可変領域において複数のアミノ酸置換があり、positive selection site が確認された。

Key Words : Rhinovirus, Respiratory Syncytial virus, Molecular epidemiology
Positive selection sites, ARIs

1. はじめに

急性呼吸器感染症 (Acute Respiratory Infections : ARIs) の原因の多くは、RSV、HRV、ヒトメタニューモウイルス、ヒトパラインフルエンザウイルス等であることが知られている。主に上気道炎症状を呈する RSV や HRV 等の呼吸器ウイルス感染症の中には、乳幼児において肺炎や気管支炎など下気道炎を発症し重症化したり、喘息発作が悪化することがあり、RSV や HRV 等は非常に注意を要する病原体ウイルスであることが知られている^{1~3)}。

本研究では、感染症発生動向調査事業の病原体定点由来の急性呼吸器感染症検体から検出した HRV 及び RSV 遺伝子について、ダイレクトシーケンスを実施し、遺伝学的解析の検討を行った。

2. 材料と方法

2.1 検査材料

2011 年 4 月から 2012 年 3 月までに急性呼吸器症状を呈し病原体定点医療機関を外来受診あるいは入院小児患者から採取された鼻咽頭ぬぐい液、咽頭ぬぐい液および鼻汁 401 検体を用いウイルス検索を行った。

2.2 検査方法

RNA 抽出後、HRV は VP4/VP2 領域遺伝子、RSV は G 遺伝子⁴⁾をそれぞれ RT-PCR 法により増幅し、増幅産物について、ダイレクトシーケンスにより塩基配列解析を行った。HRV の VP4/VP2 領域遺伝子及び RSV の G 遺伝子について系統樹解析を行った。また、G 蛋白の C 末端可変領域で変異が生じているか SLAC 法、FEL 法、IFEL 法、REL 法⁵⁾による解析を行った。

3. 結果

401 検体中 HRV は 91 株 (22.7%)、RSV は 46 株 (11.5%) 検出された。

HRV が検出された 91 株について、分子系統

1 環境政策課 2 十和田食肉衛生検査所

樹解析を行った結果、HRV genotype A の 54 株は、10 のクラスターに、HRV genotype B の 4 株は 3 のクラスターに、HRV genotype C の 33 株は 8 のクラスターにそれぞれ分類された(図1)。検出株間の塩基配列の相同性は、HRV-A 54 株では 71~100%、HRV-B 4 株では 81~100%、HRV-C 33 株では 69~100%であった。患者年齢は 0~14 歳 (4.74 (±1.89) 歳 (mean±SD))、男女比は 45/46 であった。

HRV 陽性 91 検体のうち、12 検体から、複数のウイルスが検出 (RSV 1 株、ヒトメタニューモウイルス 5 株、ヒトパラインフルエンザウイルス 3 型 1 株、アデノウイルス (AdV) 1 型 2 株、AdV2 型 1 株、コクサッキーウイルス A6 型 1 株、ヒトボカウイルス 1 株、HHV6 型 1 株) された。

HRV-A は 54 株で上気道炎 16 名の患者から 16 株、細気管支炎・気管支炎・肺炎を含む下気道炎 38 名の患者から 38 株検出された。HRV-B は 4 株で、上気道炎 3 名の患者から 3 株、下気道炎 1 名の患者から 1 株検出された。HRV-C は 33 株で、上気道炎 11 名の患者から 11 株、下気道炎 22 名の患者から 22 株検出された (表 1)。

喘鳴の有無について確認できた 67 名の患者のうち、上気道炎患者で喘鳴があった 3 人は、HRV-A が 2 名、HRV-C が 1 名、下気道炎患者で喘鳴があった 29 人は、HRV-A が 19 名、HRV-B が 1 名、HRV-C が 9 名であった (表 1)。

RSV が検出された 46 株について、分子系統樹解析を行った結果、RSV-A 6 株および RSV-B 40 株にそれぞれ分類された (図 2)。このうち、27 株の RSV (RSV-A ; 4 株および RSV-B ; 23 株) について、RSV-A の 4 株はすべて genotype GA2、RSV-B の 23 株はすべて BA に分類された (図 2)。検出株間の塩基配列相同性は、RSV-A が 97~98%、RSV-B が 95~100%であった。患者年齢は 0~3 歳 (1.42 (±0.67) 歳 (mean±SD)) で、男女比は 23/23 であった。

RSV 陽性の 46 検体のうち、3 検体から複数のウイルスが検出 (HRV1 株、HBoV1 株およびコクサッキーウイルス A6 型 1 株) された。RSV-A は 6 株で上気道炎患者が 1 株、細気管支炎・気管支炎・肺炎を含む下気道炎患者が 5 株であった。RSV-B は 40 株で上気道炎患者が 3 株、下気道炎患者が 37 株であった (表 2)。

RSV の G 蛋白質の C 末端可変領域におけるアミノ酸置換について推定される positive

selection site は、RSV-A では、5箇所

(Phe208Ile /Leu, Asn250Ser, Met262Ser/Glu/Lys, Asr273Gly/Tyr, Ser290Leu/Pro)、negative selection が4箇所見られた (表3)。RSV-B では positive selection site は見られなかったが、negative selection が10箇所見られた (表4)。

4. 考察

本県における ARIs 検体から HRV は通年で 91 株、RSV は秋から初夏にかけて 46 株が検出された。

HRV は、検出された 91 株のうち、HRV-A が 54 株春から夏を中心に検出され、HRV-C が 33 株春と冬を中心に検出されたことから、通年では HRV-A が主となって HRV-C と混在した流行が推測された。

荒川らは、国内における HRV は HRV-A が主に検出されていることを報告しており⁶⁾、本県においても同様の傾向であった。また、解析された 91 株の遺伝子解析では、HRV-A は 10 のクラスター、HRV-C は 8 のクラスター、HRV-B は 3 のクラスターに分類され、遺伝学的に多様であった。このように同じ subgroup 内であっても、多様に分類されることから分類方法等の検討が必要である。

下気道炎患者の場合は、HRV-A 70.4% (38/54)、HRV-B 25.0% (1/4)、HRV-C 66.7% (22/33) で、さらに喘鳴があった患者は、HRV-A 50.0% (19/38)、HRV-B 100% (1/1)、HRV-C 40.9% (9/22) であり、今回のデータからは、遺伝子型別による喘鳴等臨床症状の明らかな違いは、認められなかった。

RSV は RSV subgroup A が 6 株、subgroup B が 40 株検出され、さらに A 4 株、B 23 株の genotype を調べたところ、genotype A では、4 株全てが genotype GA2、B の 23 株全てが genotype BA であった。Fujitsuka らは国内において、主に genotype GA2 および BA 株が検出されていることを報告しており⁷⁾、本県においても同様の傾向であり、RSV-B を主とした流行が推測された。また、遺伝学的分類においては、subgroup A および B のいずれも 95%以上の高い相同性を示し、遺伝的に近縁な株が流行していたと推測され、さらに他の遺伝子領域も解析し、総合的なウイルス学的解析が必要と思われた。

アミノ酸が変化する非同義置換とアミノ酸が変化を起ささない同義置換の比較で、非同義置

換は同義置換に比べて、影響が大きいと考えられる。positive selection とは、非同義置換と同義置換の比が 1 より大きい場合、タンパク質の変性が有意に働くことを示す。抗原や感染性を認識する遺伝子である G 蛋白の C 末端可変領域で、変異について確認したところ、いくつかのサイトで positive selection を確認した。検出株の相同性は Subgroup A、B とともに高かったが、C 末端超可変領域では複数箇所でもアミノ酸置換が確認され、今後継続して ARIs ウイルスサーベイランスを実施し、検出されるウイルスの動向に注意を払う必要があると示唆された。

5. まとめ

HRV および RSV 検出株の分子疫学解析成績から HRV は HRV-A および HRV-C が主に流行し、それらは遺伝学的に多様な株であった。また、RSV-A は genotype GA2、RSV-B は BA が主に流行であった。positive selection site と推定されるアミノ酸置換が確認されたことから、今後も新たな変異を引き起こす可能性があり、引き続き解析していく必要がある。

謝 辞

本研究の一部は、厚生労働科学研究費補助金事業重症呼吸器ウイルス感染症のサーベイランス・病態解明及び制御に関する研究より補助を受けて実施した。

文 献

- 1)国立感染症研究所感染症情報センター：感染症の話〈RS ウイルス感染症〉。感染症発生動向調査週報,
http://idsc.nih.gov/idwr/kansen/k04/k04_22/k04_22.html,2004
- 2)Johnston et al. : BMC Infectious Diseases. **13**, 1225-1229,1995
- 3)Sigurs et al. : J Respir Crit Care Med. **161**, 1501-1507,2000
- 4)Parveen et al. : J Clin Microbiol. **44**,3055-3064, 2006
- 5)Pond et al. : Bioinformatics. **21**,2531-2533, 2005
- 6)Arakawa et al. : J Med Microbiol. **60**,2012
- 7)Fujitsuka et al. : BMC Infectious Diseases. **11**,168,2011

表 1 HRV 検出結果

sub group	検出数	症状	株	喘鳴	
				あり	なし
HRV-A	54	上気道炎	16	2	9
		細気管支炎	3	3	0
		気管支炎	12	3	5
		肺炎	23	13	5
HRV-B	4	上気道炎	3	0	2
		細気管支炎	0	0	0
		気管支炎	0	0	0
		肺炎	1	1	0
HRV-C	33	上気道炎	11	1	7
		細気管支炎	0	0	0
		気管支炎	12	6	2
		肺炎	10	3	5

表 2 RSV 検出結果

sub group	検出数	症状	株
RSV-A	6	上気道炎	1
		細気管支炎	1
		気管支炎	1
		肺炎	3
RSV-B	40	上気道炎	3
		細気管支炎	7
		気管支炎	5
		肺炎	25

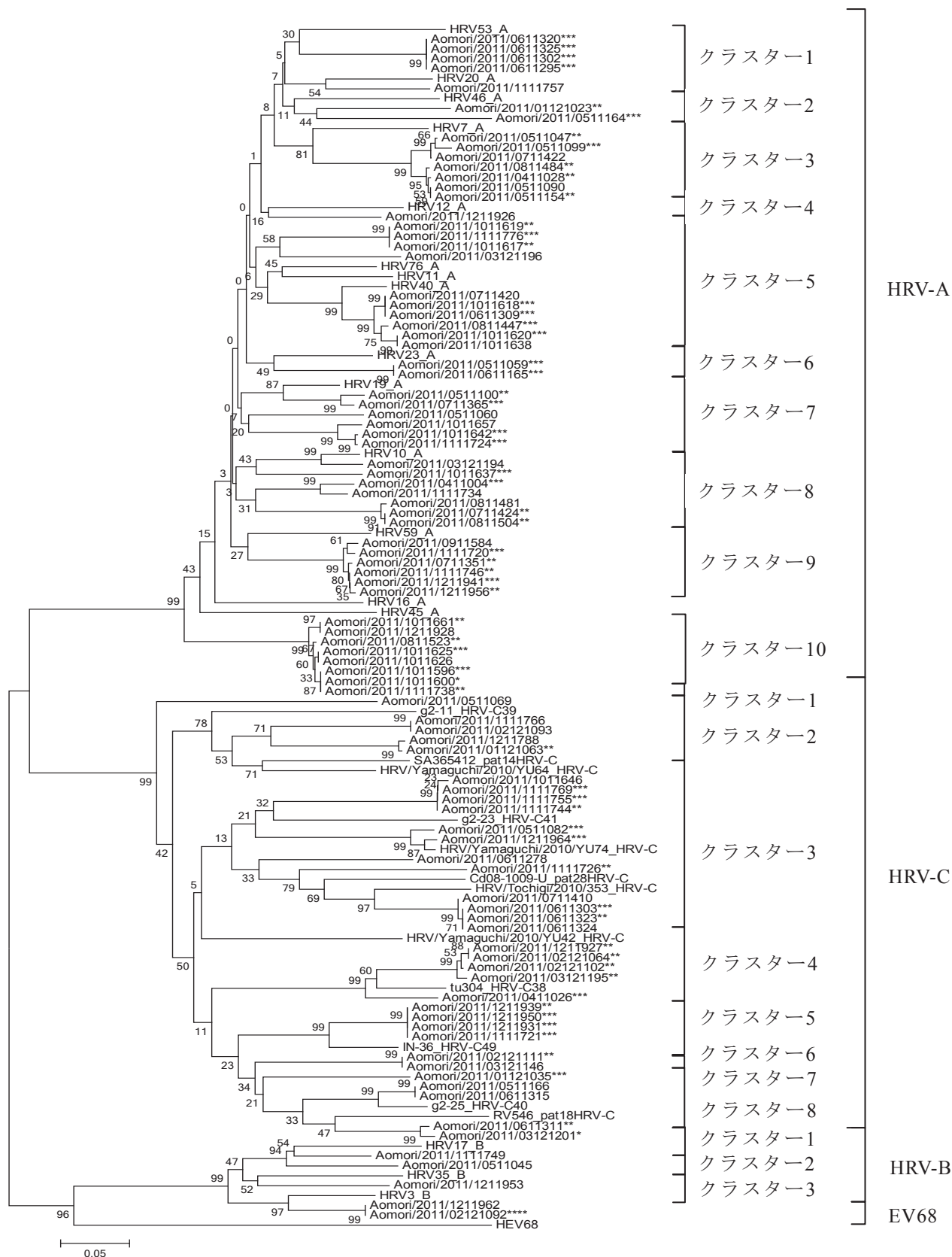


図1 HRV (VP4/VP2 遺伝子 (HRV-A・B : 390nt、HRV-C : 384nt)) 分子系統樹

- * : 細気管支炎
- ** : 気管支炎
- *** : 肺炎
- 「*」無し : 上気道炎

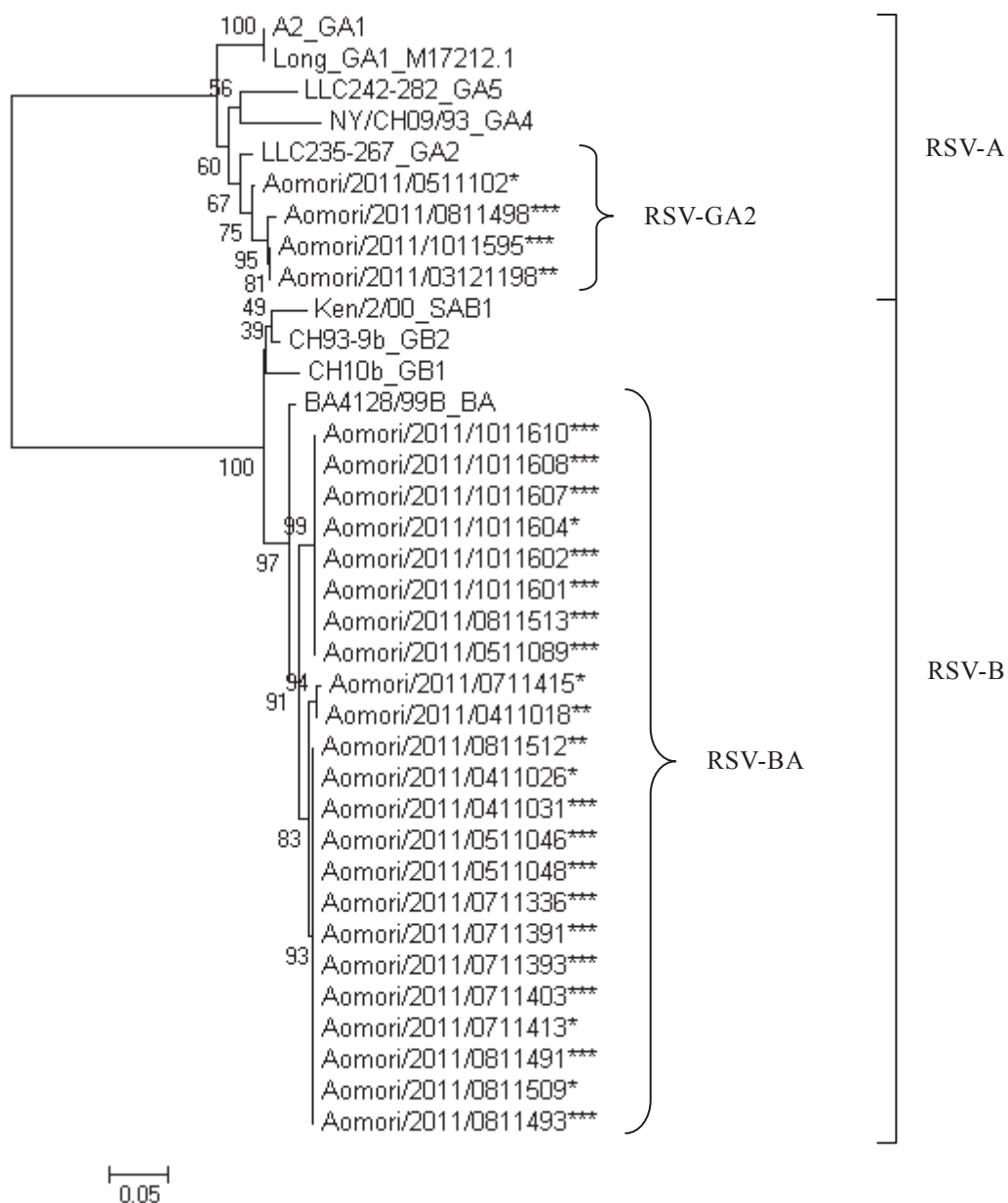


図2 RSV (G遺伝子 (RSV-A : 371nt、RSV-B : 424nt) 分子系統樹

- * : 細気管支炎
- ** : 気管支炎
- *** : 肺炎

表 3 RSV-A の G 蛋白の C 末端可変領域における Positive selection sites

RSV-A					
aa position	Change	SLAC	FEL [†]	IFEL	REL ^{††}
171-Val	Val		*		
175-Ile	Ile		*		
208-Phe	Ile,Leu				*
230-Pro	Pro		*		
250-Asn	Ser				*
254-Gly	Gly		*		
262-Met	Ser,Lys,Glu				*
273-Asr	Gly,Tyr				*
290-Ser	Leu,Pro				*

p-value < 0.1, Bayes factor > 20

†FEL: Fixed effects likelihood ††REL: Random effects likelihood

表 4 RSV-B の G 蛋白の C 末端可変領域における Positive selection sites

RSV-B					
aa position	Change	SLAC	FEL [†]	IFEL	REL ^{††}
202-Pro	Pro		*		*
216-Pro	Pro		*		*
220-Ala	Ala				*
229-Ile	Ile		*		*
253-Asp	Asp		*		*
269-Pro	Pro				*
272-Leu	Leu				*
279-His	His				*
285-Ser	Ser				*
294-Thr	Thr				*

p-value < 0.1, Bayes factor > 20

†FEL: Fixed effects likelihood ††REL: Random effects likelihood

Gene analysis of human rhinoviruses and respiratory syncytial viruses in Aomori Prefecture

Rika Tsutsui, Akira Toukairin, Sayaka Kogawa, Ayako Yoshida, Osamu Inoue, Toshiyuki Mikami

To identify trends in respiratory viruses in Aomori Prefecture, we performed molecular epidemiological analysis in the strains of human rhinoviruses (HRVs) and respiratory syncytial viruses (RSVs) derived from pediatric patients with respiratory diseases who presented to medical institutions between April 2011 and March 2012. HRVs were classified mainly into HRV subgroup A (HRV-A) and subgroup C (HRV-C). RSVs in subgroups A and B were classified into genotypes GA2 and genotype BA, respectively. In HRVs, HRV-A was detected at any time throughout the year, while HRV-C was detected from autumn to early summer, except between July and September. These results suggested that genetically various strains had been prevalent. Several amino acid substitutions were found in the C-terminal hypervariable region of glycoprotein (G) gene, and positive selection sites were identified.

Key Words: rhinovirus, respiratory syncytial virus, molecular epidemiology, positive selection sites, ARIs

ヘッドスペースーガスクロマトグラフ質量分析法による 1, 4-ジオキサンの分析について

野澤直史 工藤香織

平成24年5月に水質汚濁に係る環境基準及び地下水の水質汚濁に係る環境基準における1,4-ジオキサンの分析方法にヘッドスペースーガスクロマトグラフ質量分析法が追加されたことから、ヘッドスペースーガスクロマトグラフ質量分析法による1,4-ジオキサンの分析について検討した結果、1,4-ジオキサン5~100 μ g/Lにおいて検量線が良好な直線性であることを確認した。また、公定分析方法に定める5 μ g/Lを定量できることを確認した。

Key words : 1,4-dioxane

1. はじめに

1,4-ジオキサンは、常温で無色透明の液体で揮発性物質であり、水に溶けやすく、油にも溶けやすい性質から、広く溶剤として使われており、有機化合物を製造する際の反応溶剤として使われているほか、トランジスター、合成皮革や塗料などの溶剤として使われている。

2009年度のPRTRデータによると、わが国では1年間に約180トンが化学工業等の事業所から環境中へ排出されたものと見積もられている。

環境中へ排出された1,4-ジオキサンは水中に入った場合は、加水分解されず、また微生物分解もされにくく、大気中へ揮発することによってゆっくり失われると考えられている¹⁾。

1,4-ジオキサンは、平成21年11月に水質汚濁に係る環境基準及び地下水の水質汚濁に係る環境基準に設定され、分析方法は活性炭抽出ーガスクロマトグラフ質量分析法のみであったが、平成24年5月に1,4-ジオキサンの分析方法にヘッドスペースーガスクロマトグラフ質量分析法が追加された^{2) 3)}。

これまで活性炭抽出ーガスクロマトグラフ質量分析法により分析を行っていたが、活性炭抽出ーガスクロマトグラフ質量分析法は、分析にかかる前処理操作が多く、時間も要することから、分析

の効率化を図るため、ヘッドスペースーガスクロマトグラフ質量分析法による1,4-ジオキサンの分析について検討したので報告する。

2. 方法

2.1 試薬

1,4-ジオキサン標準原液：和光純薬工業(株)製

1,4-ジオキサン-d8 標準原液：和光純薬工業(株)製

塩化ナトリウム：和光純薬工業(株)製

メタノール：和光純薬工業(株)製

ブランク水：市販ミネラルウォーター

2.2 試料調製方法

1,4-ジオキサン標準液は、標準原液をメタノールで希釈し5~100mg/Lに調製した。1,4-ジオキサン-d8 標準液は、標準原液をメタノールで希釈し10mg/Lに調製した。

バイアル瓶に塩化ナトリウム3gを取り、ブランク水10mlを注入し、1,4-ジオキサン標準液10 μ L及び内標準液として1,4-ジオキサン-d8 標準液を各20 μ L添加した。バイアル瓶を密栓し、塩化ナトリウムが溶解するまで振とうし、測定試料とした。

2.3 測定条件

装置：サーモフィッシャーサイエンティフィック(株)製ガスクロマトグラフ質量分析計

HS部 TRI PLUS

GC部 TRACE GC Ultra

MS部 TSQ Quantum

装置の測定条件を表1に示す。

表1 測定条件

オートサンプラー条件	
アジテーター温度：	80 °C
加熱時間：	30 min
シリンジ温度：	120 °C
注入量：	2 mL
GC 条件	
カラム：	DB-624 60 m×0.32 mm I.D., df=1.8 μm
オープン温度：	40 °C(5 min)-5 °C /min-150 °C
	-10 °C/min-200 °C (15 min)
注入口温度：	200 °C
注入法：	スプリット(スプリット比 1 : 10)
キャリアガス流量：	1.2 mL/min
トランスファーライン温度：	200 °C
MS 条件	
イオン化法：	EI
イオン源温度：	200 °C
イオン化電流：	50 μA
測定モード：	SIM
測定質量数：	1,4-ジオキサン 88、(58)
	: 1,4-ジオキサン-d8 96、(64)

3. 結果と考察

3.1 SIM クロマトグラム

1,4-ジオキサン (5μg/L) 及び 1,4-ジオキサン-d8 (20μg/L) について測定を行った。SIM クロマトグラムを図1、2に示す。

1,4-ジオキサンは保持時間 18.6 分、1,4-ジオキサン-d8 は 18.5 分であり、1,4-ジオキサン-d8 は、1,4-ジオキサンと比べ感度が低いですがピークを確認することができた。

定量に用いる質量数は、公定分析方法のとおり 1,4-ジオキサンは 88、1,4-ジオキサン-d8 は 96 とした。

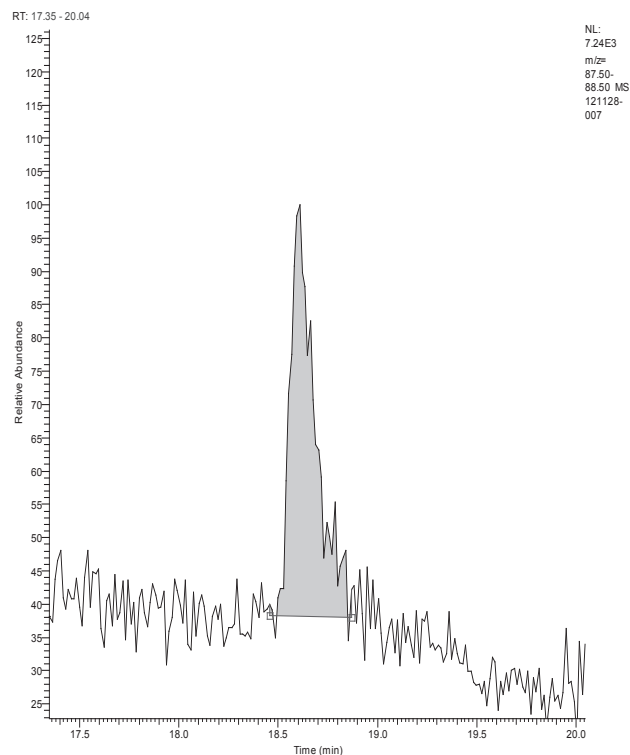


図1 1,4-ジオキサンのSIMクロマトグラム (m/z 88)

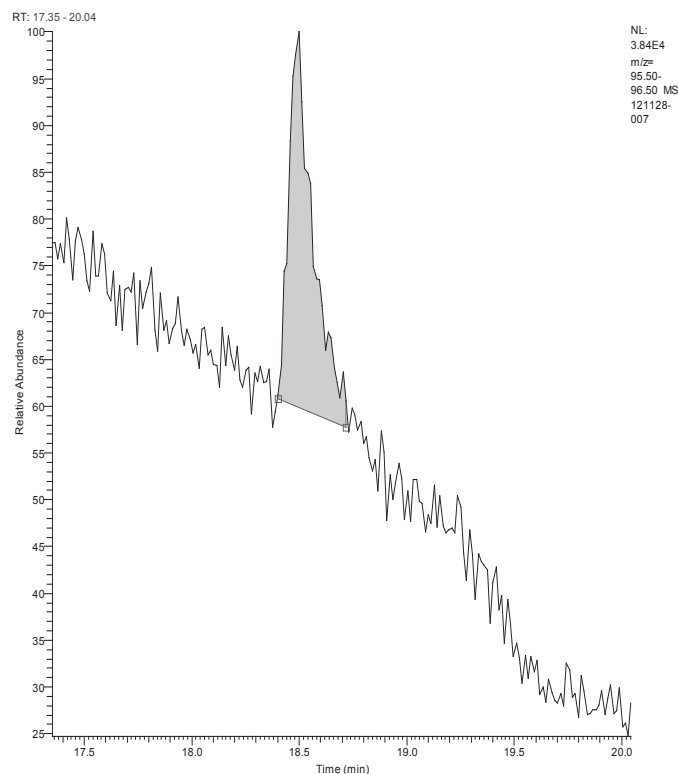


図2 1,4-ジオキサン-d8のSIMクロマトグラム (m/z 96)

3.2 検量線

1,4-ジオキサン（5～100 $\mu\text{g/L}$ ）に 1,4-ジオキサン-d8（各 20 $\mu\text{g/L}$ ）を添加し測定を行い検量線を作成した。検量線を図 3 に示す。

1,4-ジオキサンの 5～100 $\mu\text{g/L}$ における検量線の決定係数は 0.9999 であり良好な直線性であった。

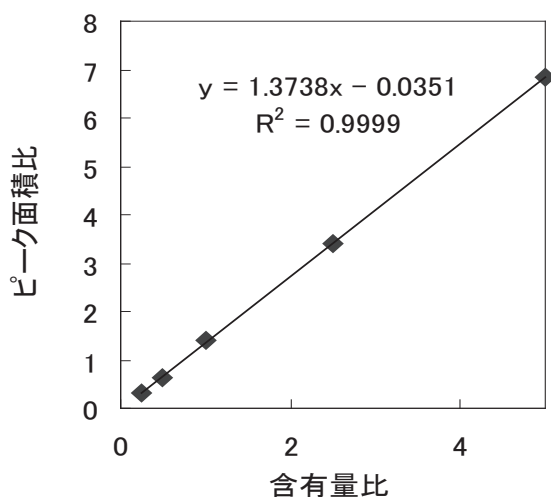


図 3 1,4-ジオキサンの検量線の例

3.3 検出下限値及び定量下限値

1,4-ジオキサン（5 $\mu\text{g/L}$ ）を 5 回測定し、検出下限値及び定量下限値を表 2 のとおり算出した。

定量下限値 0.28 $\mu\text{g/L}$ であり、環境基準値 0.05 mg/L の 1/10 である 5 $\mu\text{g/L}$ を測定できることを確認した。

また、公定分析方法で定める定量下限 5 $\mu\text{g/L}$ を下回ることを確認した。

表 2 検出下限値及び定量下限値

測定結果 ($\mu\text{g/L}$)	試料 1	5.00
	試料 2	4.98
	試料 3	4.98
	試料 4	5.00
	試料 5	4.93
標準偏差 ($\mu\text{g/L}$)		0.028
検出下限値 ($\mu\text{g/L}$)		0.084
定量下限値 ($\mu\text{g/L}$)		0.280

4. まとめ

ヘッドスペース-ガスクロマトグラフ質量分析法による 1,4-ジオキサンの分析について検討を行った。

- 1)1,4-ジオキサンの 5～100 $\mu\text{g/L}$ における検量線は良好な直線性であった。
- 2)1,4-ジオキサンの公定分析方法で定める定量下限値 5 $\mu\text{g/L}$ を定量できることを確認した。
- 3)ヘッドスペース-ガスクロマトグラフ質量分析法による 1,4-ジオキサンの分析ができることを確認できたことから、従来行っていた活性炭-ガスクロマトグラフ質量分析法に比べ、前処理操作や時間の効率化を図ることができるものと考えられる。

文 献

- 1)環境省：リスクコミュニケーションのための化学物質ファクトシート 2011 年版
(<http://www.env.go.jp/chemi/communication/factsheet.html>)
- 2)環境省：「水質汚濁に係る環境基準の一部を改正する件」，環境省告示第84号，平成24年5月23日
- 3)環境省：「地下水の水質汚濁に係る環境基準の一部を改正する件」，環境省告示第85号，平成24年5月23日

Analysis of 1,4-dioxane by Headspace Gas Chromatography–Mass Spectrometry

Naofumi Nozawa, Kaori Kudo

We analyzed the results of 1,4-dioxane by Headspace Gas Chromatography–Mass Spectrometry because it has been added in the analysis methods of 1,4-dioxane for Environmental Quality Standards for Water Pollution and Groundwater Pollution in May 2012. We confirmed that the calibration curve has a good linearity at 5–100 $\mu\text{g/L}$ of 1,4-dioxane. We also confirmed that 5 $\mu\text{g/L}$ of 1,4-dioxane is quantifiable, which is required for an official method of analysis.

Key Words: 1,4-dioxane

大気汚染常時監視測定項目の経年変化について

渡部陽一 岩間貴士

平成 22 年度に更新した青森県大気汚染常時監視テレメータシステムでは、昭和 49 年度までの測定値にアクセス可能となった。この機能を使用し、測定項目のトレンドグラフを作成し、青森県の大気汚染状況の確認を行った。

Key words : air pollution , continuous monitoring

1. はじめに

県では、平成 22 年度に青森県大気汚染常時監視テレメータシステムの更新を行った。それまで使用していたシステムでは平成 5 年度以降の測定値についてのみアクセスできたが、新システムでは昭和 49 年(1974 年)以降の測定値にもアクセスすることが可能となった。

このデータを使用して過去 38 年間(昭和 49 年度から平成 23 年度)の大気汚染常時監視測定項目(二酸化硫黄、二酸化窒素、一酸化炭素、オキシダント及び浮遊粒子状物質)の経年変化を報告する。

なお、青森市が管理している測定局については青森市が平成 18 年に中核市へ移行したため除外した。

2. 対象測定局

測定結果を使用した測定局は、表 1 のとおりであり、測定局の設置場所は、図 1 のとおりである。

八戸については臨海工業地帯の工場等による大気汚染が著しかったため、昭和 49 年度から現在まで継続して測定を行っている。六ヶ所についてはむつ小川原開発対象地域であるため、昭和 52 年度から現在まで継続して測定を行っている。それ以外の地域については、県内全域の大気汚染状況を一体的及び効率的に把握するため、地域の人口、自然的状況及び社会的状況等を勘案して、平成 13 年度から計画的に測定局を設置し、測定を行っている。

表 1 測定局一覧

区分	市町村	番号	局名	期間	
一般環境大気測定局	八戸市	1	八戸市庁	昭和49年度から平成6年度	
		2	八戸第2魚市場	昭和49年度から平成21年度	
		3	八戸工大第一高校	昭和49年度から平成12年度	
		4	八戸工業高校	昭和49年度から昭和61年度	
		5	根岸小学校	昭和49年度から平成23年度	
		6	桔梗野小学校	昭和52年度から平成23年度	
		7	鮎小学校	昭和52年度から平成12年度	
		8	旭ヶ丘小学校	昭和52年度から平成12年度	
		9	八戸保健所	昭和52年度から平成12年度	
		10	八戸小学校	平成8年度から平成23年度	
		11	小中野中学校	平成13年度から平成20年度	
		12	八戸特別地域気象観測所	平成22年度から平成23年度	
自動車排出ガス測定局	弘前市	13	弘前第一中学校	平成13年度から平成23年度	
		14	五所川原第三中学校	平成14年度から平成23年度	
	黒石市	15	スポカールイン黒石	平成14年度から平成23年度	
		16	三本木中学校	平成15年度から平成23年度	
	三沢市	17	岡三沢町内会館	平成15年度から平成23年度	
		18	蒼生小学校	平成15年度から平成23年度	
	六ヶ所村	千歳中学校	19	千歳中学校	昭和52年度から昭和59年度
			20	戸鏡小学校	昭和52年度から平成20年度
		尾越小学校	21	尾越小学校	昭和52年度から平成20年度
			22	鯉ヶ沢町舞戸	平成22年度から平成23年度
八戸市		23	六日町	昭和52年度から平成23年度	
		24	八日町	昭和55年度から昭和57年度	
	25	文京小学校	平成13年度から平成23年度		
	26	南部幼稚園	平成15年度から平成20年度		

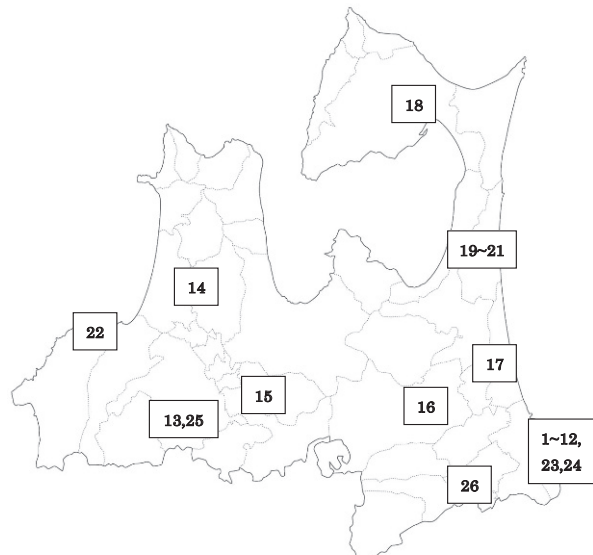


図 1 測定局設置場所

3. 方法

3.1 二酸化硫黄、二酸化窒素

各測定局の年平均値を用い、地域別に相加平均を求めた。

3.2 一酸化炭素

各測定局の年平均値を用い、一般環境大気測定局と自動車排出ガス測定局の区分別に相加平均を求めた。

3.3 オキシダント

各測定局の年最大値を用い、地域別にそのグループ内での最大値を使用した。

3.4 浮遊粒子状物質

測定値が保存されている昭和 63 年度以降について、各測定局で基準を超過した時間数、局数を用い、地域別にそのグループ内での短期的評価基準超過総時間数、長期的評価超過局数を求めた。

4. 結果及び考察

4.1 二酸化硫黄

地域別の年平均値の推移は、図 2 のとおりである。

八戸地域の年平均値は昭和 49 年度から平成 2 年度にかけて減少し、その後はほぼ一定である。現在の年平均値は清浄地と考えられる六ヶ所と同等のレベルである。減少した理由は、使用燃料が C 重油から A 重油に変更されたことや燃料の低硫黄化などが考えられる。

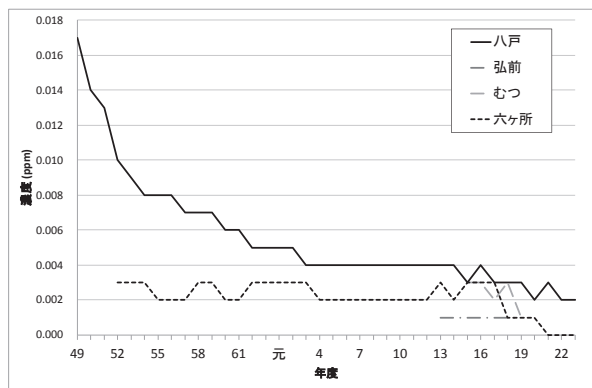


図 2 二酸化硫黄 地域別年平均値

4.2 二酸化窒素

地域別の年平均値の推移は、図 3 及び図 4 のとおり、一般環境大気測定局と自動車排出ガス測定局に分けて示した。

一般環境大気測定局では、昭和 50 年代から測定を継続している八戸、六ヶ所において、昭和 50 年後半から年平均値が概ね一定である。

自動車排出ガス測定局では、八戸において平成 10 年度頃から年平均値が減少している。

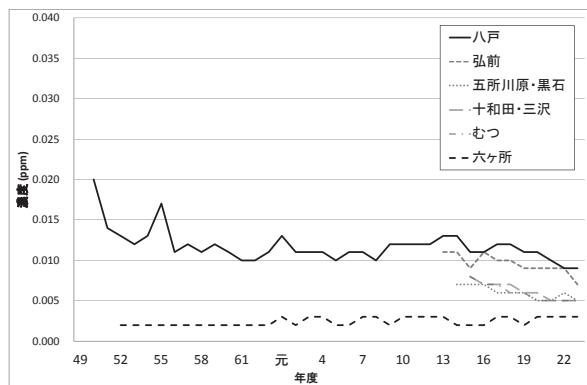


図 3 二酸化窒素 地域別年平均値
一般環境大気測定局

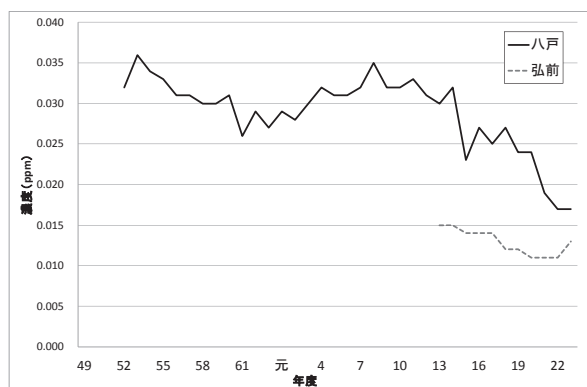


図 4 二酸化窒素 地域別年平均値
自動車排出ガス測定局

4.3 一酸化炭素

一般環境大気測定局と自動車排出ガス測定局の年平均値の推移は、図 5 のとおりである。

一般環境大気測定局の年平均値は、昭和 56 年度以降概ね一定である。

自動車排出ガス測定局の年平均値は、昭和 54 年度から平成 2 年度、平成 11 年度から平成 15 年度にかけて減少している。減少した理由は、自動車排ガス規制による自動車燃料の品質向上、自動車エンジンの性能向上が考えられる。

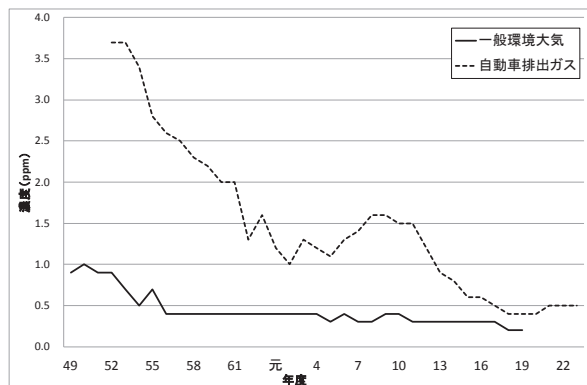


図 5 一酸化炭素 年平均値

4.4 オキシダント

地域別の年最大値の推移は、図6のとおりである。昭和50年代から測定を継続している八戸、六ヶ所では、平成元年度から平成12年度において、六ヶ所の年最大値が八戸の年最大値より高い傾向が見られた。平成13年度以降では、年最大値が一番高い測定局が数年ごとに代わっている。

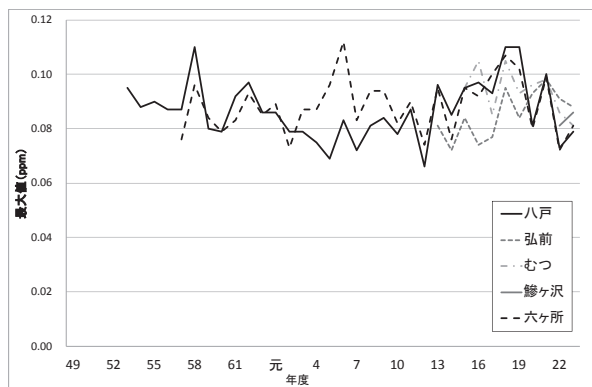


図6 オキシダント 地域別年最大値

4.5 浮遊粒子状物質

環境基準の短期的評価である1時間値が $0.20\text{mg}/\text{m}^3$ を超えた時間数の地域別推移は、図7のとおりである。

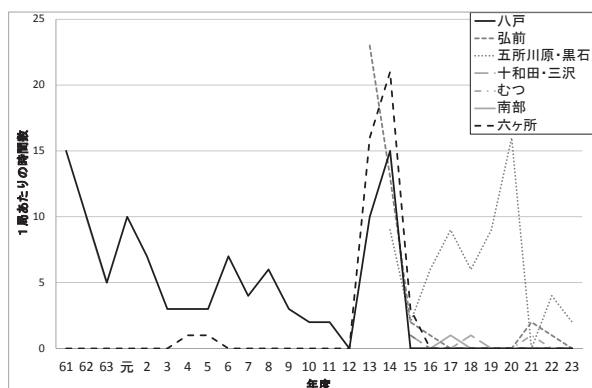


図7 浮遊粒子状物質

1時間値が $0.20\text{mg}/\text{m}^3$ を超えた1局あたりの時間数

昭和61年度から超過時間数は減少傾向にある。平成13、14年度に超過時間数が増加しているが、これは黄砂によるものと推定している。平成16年度以降、五所川原・黒石地区のみで超過時間数が高いが、これは津軽地域の稲わら焼きが原因であると考えられる。

環境基準の長期的評価である日平均値が $0.10\text{mg}/\text{m}^3$ を超えた局数の推移は、図8のとおりである。

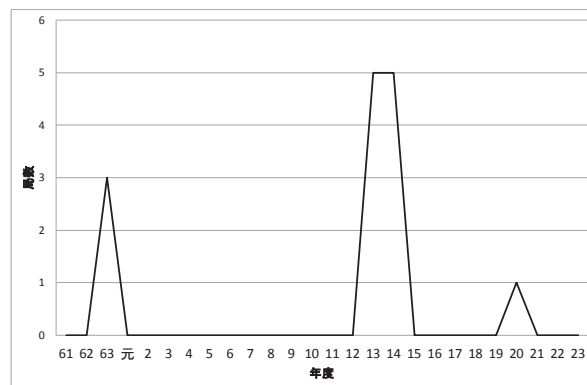


図8 浮遊粒子状物質
日平均値が $0.10\text{mg}/\text{m}^3$ を超えた局数

5. まとめ

1) 二酸化硫黄

昭和40年代から測定を行っている八戸では、低下傾向にあり現在は平成15年度頃までの六ヶ所と同等のレベルにあると考えられる。昭和50年代から測定を行っている六ヶ所では一定であったが、平成18年度から平成21年度に低下した。平成13年度から平成19年度に測定を行った八戸、六ヶ所以外の地域の測定局は、六ヶ所と同様の傾向を示している。

2) 二酸化窒素

一般環境大気測定局では、昭和40、50年代から測定を行っている八戸、六ヶ所とも昭和50年代後半から概ね一定である。平成13年度から平成15年度に測定を開始した八戸、六ヶ所以外の地域の測定局においても同様の傾向を示している。

3) 一酸化炭素

自動車排出ガス測定局では減少傾向にあり、一般環境大気測定局では昭和56年度以降概ね一定である。

4) オキシダント

平成19年度までは概ね八戸、六ヶ所地域の測定局の年最大値が他の地域の測定局より高かったが、平成20年度以降は、弘前、むつ地域の測定局の年最大値が他の地域の測定局より高くなっている。

5) 浮遊粒子状物質

短期的評価超過の原因が黄砂と推定される平成13、14年度を除外すると、それまで超過時間数の高かった八戸地域が減少し他の地域との差が見られなくなった。平成16年度以降超過時間数が高いのは五所川原・黒石地域であり、稲わら焼きが原因であると考えられる。

Change over time in constantly-monitored parameters of air pollution

Yoichi Watanabe, Takashi Iwama

In the telemeter system that is constantly monitoring air pollution in Aomori Prefecture, updated in fiscal 2010, the values measured in and after fiscal 1974 are accessible. Using this function, we prepared the trend graphs of measurement parameters and reviewed the state of air pollution in Aomori Prefecture.

Key words : air pollution ,continuous monitoring

II ノ ー ト

飲用井戸等衛生対策事業における水質検査結果

—平成 20 年度から平成 24 年度まで—

棟方美穂子 楯山宝孝¹ 木村淳子 福田 理
武沼浩子 三上稔之 増田幸保

水道法等で規制を受けない県内の飲用井戸等を対象として、平成 20 年度から平成 24 年度までに水質検査を実施した結果、水質基準に適合しなかったものは 247 検体中 74 検体であった。

Key words : Drinking well water, water quality test

1. はじめに

県では、水道法（対象：水道事業の用に供する水道、専用水道及び簡易専用水道）、建築物における衛生的環境の確保に関する法律（対象：特定建築物）及び青森県小規模水道規制条例（対象：小規模水道）の適用を受けない一般飲用井戸及び業務用飲用井戸等（以下「飲用井戸等」という。）の衛生確保を図ることを目的として「青森県飲用井戸等衛生対策要領」を定め、飲用井戸等衛生対策事業を実施している。

飲用井戸等衛生対策事業では、飲用井戸等の汚染の実態を把握するための水質検査、井戸設置者等に対する適正管理の指導及び衛生対策の普及啓発等を行っており、水質検査は当所で実施している。平成 20 年度から平成 24 年度までに実施した水質検査結果について取りまとめたので報告する。

2. 方法

2.1 検査対象

青森市保健所を除く県内 6 保健所で管内の飲用井戸等を選定し、平成 20 年度は 58 検体、平成 21、22、23 年度は各 47 検体、平成 24 年度は 48 検体の合計 247 検体を対象とした。

2.2 検査項目

一般細菌、大腸菌、硝酸態窒素及び亜硝酸態窒素、塩化物イオン、有機物（全有機炭素（TOC）

の量）、pH 値、味、臭気、色度、濁度、鉄及びその化合物（平成 20 年度は未実施）、ヒ素及びその化合物、鉛及びその化合物の合計 13 項目

2.3 検査方法

水質基準に関する省令の規定に基づき厚生労働大臣が定める方法（平成 15 年 7 月 22 日厚生労働省告示第 261 号）及び上水試験方法 2011 年版（日本水道協会）に基づき実施した。

なお、検体の採取及び運搬は、管轄する各保健所職員が実施した。

3. 結果と考察

3.1 年度別不適検体数

水質基準に関する省令（平成 15 年 5 月 30 日厚生労働省令第 101 号）に適合しなかった検体数と検査項目について、年度別に表 1 に示した。

水質基準不適検体数は、平成 20 年度は 58 検体中 14 検体、平成 21 年度は 47 検体中 15 検体、平成 22 年度は 47 検体中 12 検体、平成 23 年度は 47 検体中 13 検体、平成 24 年度は 48 検体中 20 検体であった。平成 20 年度から平成 24 年度における不適率は 24.1%～41.7%であり、平均は 30.2%であった。

不適項目内訳では、大腸菌及び pH 値が各 17 検体で、最も多かった。次いで硝酸態窒素及び亜硝酸態窒素 16 検体、一般細菌 11 検体、味 9 検体、臭気及び色度各 6 検体、塩化物イオン、濁度、ヒ素及びその化合物各 5 検体、鉄及びその化合物 4

1 八戸環境管理事務所

表1 年度別水質基準不適検体数

年度	検体数	不適 検体数	不適率 (%)	不適項目内訳													合計 (延数)
				一般 細菌	大腸菌	硝酸態窒 素及び亜 硝酸態窒 素	塩化物 イオン	有機物 (TOC)	pH値	味	臭気	色度	濁度	鉄及び その化 合物	ヒ素及 びその 化合物	鉛及び その化 合物	
H20	58	14	24.1	3	4	3	0	0	5	0	0	2	2	-	0	0	19
H21	47	15	31.9	1	5	3	0	0	2	0	0	2	1	0	4	0	18
H22	47	12	25.5	2	1	3	2	0	3	1	3	1	2	1	1	0	20
H23	47	13	27.7	2	1	3	2	0	4	3	1	0	0	0	0	0	16
H24	48	20	41.7	3	6	4	1	0	3	5	2	1	0	3	0	0	28
合計	247	74	-	11	17	16	5	0	17	9	6	6	5	4	5	0	101
平均	49.4	14.8	30.2	2.2	3.4	3.2	1.0	0.0	3.4	1.8	1.2	1.2	1.0	1.0	1.0	0.0	-

注) 複数の項目で不適となった検体があるため、不適検体数と不適項目内訳の合計は一致しない。

表2 保健所別水質基準不適検体数

管轄 保健所	検体数	不適 検体数	不適率 (%)	不適項目内訳													合計 (延数)
				一般 細菌	大腸菌	硝酸態窒 素及び亜 硝酸態窒 素	塩化物 イオン	有機物 (TOC)	pH値	味	臭気	色度	濁度	鉄及び その化 合物	ヒ素及 びその 化合物	鉛及び その化 合物	
東地方	42	17	40.5	2	5	1	2	0	7	2	0	3	2	1	0	0	25
弘前	42	4	9.5	2	2	0	1	0	0	1	0	0	0	0	0	0	6
八戸	42	15	35.7	2	3	7	2	0	0	2	2	0	1	0	2	0	21
五所川原	39	13	33.3	3	4	2	0	0	5	2	0	0	1	0	0	0	17
上十三	40	17	42.5	2	2	5	0	0	3	2	3	3	1	3	0	0	24
むつ	42	8	19.0	0	1	1	0	0	2	0	1	0	0	0	3	0	8
合計	247	74	-	11	17	16	5	0	17	9	6	6	5	4	5	0	101
平均	41.2	12.3	30.1	1.8	2.8	2.7	0.8	0.0	2.8	1.5	1.0	1.0	0.8	0.7	0.8	0.0	-

注) 複数の項目で不適となった検体があるため、不適検体数と不適項目内訳の合計は一致しない。

検体であった。有機物(全有機炭素(TOC)の量)、鉛及びその化合物については、すべて水質基準に適合していた。

3.2 保健所別不適検体数

水質基準に関する省令に適合しなかった検体数と検査項目について、管轄する保健所別に表2に示した。

水質基準不適検体数は、東地方保健所管内で42検体中17検体、弘前保健所管内では42検体中4検体、八戸保健所管内では42検体中15検体、五所川原保健所管内では39検体中13検体、上十三保健所管内では40検体中17検体、むつ保健所管内では42検体中8検体であった。

水質基準不適率は、上十三保健所管内で42.5%と最も高く、弘前保健所管内で9.5%と最も低かった。各保健所管内の平均は30.1%であった。

東地方保健所管内では、不適項目内訳はpH値が7検体で最も多く、次いで大腸菌が5検体と多かった。

八戸保健所管内では、不適項目内訳は硝酸態窒素及び亜硝酸態窒素が7検体で最も多く、管轄保健所別においても最も多かった。

五所川原保健所管内では、不適項目内訳はpH値が5検体、上十三保健所管内では、硝酸態窒素

及び亜硝酸態窒素が5検体で最も多かった。

3.3 検査結果

平成20年度から平成24年度までの検査結果の平均、最小値及び最大値等について、管轄する保健所及び項目別に表3に示した。

硝酸態窒素及び亜硝酸態窒素の平均値は、八戸保健所管内の5.6mg/Lが最も高く、最大値は八戸保健所管内の29mg/Lであった。

塩化物イオンは、五所川原保健所管内では水質基準に適合しない検体はなかったが、平均値が43.2mg/Lと最も高かった。最大値は、東地方保健所管内の665mg/Lであった。

有機物(全有機炭素(TOC)の量)の平均値は、東地方保健所管内及び五所川原保健所管内の0.3mg/Lが最も高く、最大値は、五所川原保健所管内の2.2mg/Lであった。

pH値の平均値は、東地方保健所管内の6.2が最も低く、むつ保健所管内の7.8が最も高かった。最大値は上十三保健所管内の9.0であった。

pH値について、水質基準に適合しなかったものの検査結果を表4に示した。東地方保健所管内及び五所川原保健所管内はすべて5.8未満と低く、上十三保健所管内及びむつ保健所管内はすべて8.6より高かった。

表3 平成20年度から平成24年度までの検査結果

管轄 保健所	硝酸態窒素及び亜硝酸態窒素 (mg/L)			塩化物イオン (mg/L)		
	【10 mg/L以下】			【200 mg/L以下】		
	平均値	最小値	最大値	平均値	最小値	最大値
東地方	2.2	< 0.01	11	40.9	11	665
弘前	3.1	0.33	9	30.5	7	344
八戸	5.6	0.12	29	25.6	5	318
五所川原	3.4	0.01	15	43.2	8	124
上十三	4.1	0.15	16	19.3	5	82
むつ	0.8	0.01	20	22.1	9	135

管轄 保健所	有機物 (全有機炭素 (TOC) の量) (mg/L)			pH値		
	【3 mg/L以下】			【5.8以上8.6以下】		
	平均値	最小値	最大値	平均値	最小値	最大値
東地方	0.3	< 0.25	1.8	6.2	5.2	8.5
弘前	0.2	< 0.25	1.9	6.3	5.8	6.9
八戸	0.2	< 0.25	1.0	6.7	6.1	8.3
五所川原	0.3	< 0.25	2.2	6.3	5.2	7.5
上十三	0.1	< 0.25	1.5	7.1	6.0	9.0
むつ	0.0	< 0.25	0.6	7.8	5.8	8.9

管轄 保健所	味 () 内は不適検体数	臭気 () 内は不適検体数
	【異常でないこと】	【異常でないこと】
東地方	微金気味(1)、微塩味(1)	-
弘前	微塩味(1)	-
八戸	微渋味(1)、微塩味(1)	微硫化水素臭(1)、微枯草臭(1)
五所川原	微金気味(2)	-
上十三	微金気味(2)	微硫化水素臭(1)、微泥臭(1)、微下水臭(1)
むつ	-	微硫化水素臭(1)

管轄 保健所	色度 (度)			濁度 (度)		
	【5度以下】			【2度以下】		
	平均値	最小値	最大値	平均値	最小値	最大値
東地方	1.5	< 0.1	22.8	0.3	< 0.05	3.7
弘前	0.5	< 0.1	4.7	0.0	< 0.05	0.5
八戸	0.4	< 0.1	1.9	0.1	< 0.05	2.6
五所川原	0.8	< 0.1	2.8	0.2	< 0.05	4.5
上十三	1.3	< 0.1	12.8	0.2	< 0.05	2.1
むつ	0.3	< 0.1	1.2	0.0	< 0.05	0.2

管轄 保健所	鉄及びその化合物 (mg/L)			ヒ素及びその化合物 (mg/L)		
	【0.3 mg/L以下】			【0.01 mg/L以下】		
	平均値	最小値	最大値	平均値	最小値	最大値
東地方	0.02	< 0.05	0.37	0.000	< 0.001	0.002
弘前	0.02	< 0.05	0.13	0.000	< 0.001	0.001
八戸	0.02	< 0.05	0.19	0.001	< 0.001	0.014
五所川原	0.04	< 0.05	0.23	0.000	< 0.001	0.005
上十三	0.06	< 0.05	0.48	0.001	< 0.001	0.010
むつ	0.01	< 0.05	0.11	0.003	< 0.001	0.017

管轄 保健所	鉛及びその化合物 (mg/L)		
	【0.01 mg/L以下】		
	平均値	最小値	最大値
東地方	0.000	< 0.001	0.004
弘前	0.000	< 0.001	0.002
八戸	0.000	< 0.001	0.001
五所川原	0.000	< 0.001	0.002
上十三	0.000	< 0.001	0.001
むつ	0.000	< 0.001	0.004

注1) 【】内は水質基準を示す。

注2) 値が定量下限未満の場合は、定量下限値に不等号 (<) を付して表記した。

注3) 平均値は、定量下限未満の値が含まれる場合は、その値を0として計算した。

注4) 鉄及びその化合物は、平成21年度から平成24年度までの期間の値である。

表4 平成20年度から平成24年度までのpH値の検査結果

管轄 保健所	pH値の検査結果	
	〔水質基準（5.8以上8.6以下）に 不適となったもののみ〕	
東地方	5.4、5.7、5.2、5.7、5.7、5.4、5.6	
弘前	-	
八戸	-	
五所川原	5.6、5.7、5.2、5.6、5.7	
上十三	9.0、8.8、8.7	
むつ	8.9、8.7	

味は、9検体が水質基準に適合せず、微金気味が5検体、微塩味が3検体、微渋味が1検体だった。

臭気は、6検体が水質基準に適合せず、硫化水素臭が3検体、微枯草臭、微泥臭及び微下水臭が各1検体だった。

色度の平均値は、東地方保健所管内の1.5が最も高く、最大値も東地方保健所管内の22.8であった。

濁度の平均値は、東地方保健所管内の0.3が最も高く、最大値は五所川原保健所管内の4.5であった。

鉄及びその化合物の平均値は、上十三保健所管内の0.06 mg/Lが最も高く、最大値は上十三保健所管内の0.48 mg/Lであった。

ヒ素及びその化合物の平均値は、むつ保健所管内の0.003 mg/Lが最も高く、最大値はむつ保健所管内の0.017 mg/Lであった。

鉛及びその化合物の最大値は、東地方保健所管内及びむつ保健所管内の0.004 mg/Lであった。

4. まとめ

平成20年度から平成24年度までに県内の飲用井戸等について、一般細菌、大腸菌、硝酸態窒素及び亜硝酸態窒素、塩化物イオン、有機物（全有機炭素（TOC）の量）、pH値、味、臭気、色度、濁度、鉄及びその化合物（平成20年度は未実施）、ヒ素及びその化合物、鉛及びその化合物の合計13項目の水質検査を実施した結果は、以下のとおりであった。

- 1)水質基準に適合しなかったものは、合計247検体中74検体であった。
- 2)水質基準に適合しなかった項目は、大腸菌及びpH値が17検体で最も多く、次いで硝酸性窒素及び亜硝酸性窒素が16検体だった。
- 3)有機物（全有機炭素（TOC）の量）、鉛及びその化合物は、すべて水質基準に適合した。
- 4)飲用井戸等を管轄する保健所別の水質基準不適合率は、上十三保健所管内で42.5%と最も高く、弘前保健所管内で9.5%と最も低かった。各保健所管内の平均は30.1%であった。

文 献

- 1)青森県：青森県飲用井戸等衛生対策要領 昭和62年8月21日 青環第521号青森県環境保健部長通知
- 2)厚生労働省：水質基準に関する省令 平成15年5月30日厚生労働省令101号
- 3)厚生労働省：水質基準に関する省令の規定に基づき厚生労働大臣が定める方法 平成15年7月22日厚生労働省告示第261号
- 4)日本水道協会：上水試験方法 2011年版

水道水質外部精度管理調査結果 (平成23年度)

木村淳子 楢山宝孝¹ 増田幸保

県内6水道水質検査施設を対象に、測定値の信頼性確保及び分析技術の向上を目的として塩化物イオン、硝酸態窒素及び亜硝酸態窒素について水道水質外部精度管理調査を実施し、 $\bar{X}-R$ 管理図及びZスコアを基に各施設の評価を行った。塩化物イオン、硝酸態窒素及び亜硝酸態窒素のどちらもR管理図において1施設が上部管理限界を外れていたがZスコアはすべての施設で2以下であった。

Key words : external quality control, $\bar{X}-R$ control, Cl^- , NO_3^- , NO_2^-

1. はじめに

本調査は県内の自ら水質検査を行う水道事業者の水質検査技術を把握し、測定値の信頼性確保及び分析技術の向上を目的として、「水道水質検査の精度管理に関する調査」(厚生労働省)を参考に、平成11年度から実施している。試料は当所が作製し、各施設に対し配付している。

平成11～22年度調査結果は既報^{1)~10)}に報告済みであることから、今回は平成23年度の調査結果を報告する。

2. 方法

2.1 実施対象

県内6検査施設

2.2 実施期間

平成23年11月15日～12月8日

2.3 実施項目

塩化物イオン、硝酸態窒素及び亜硝酸態窒素

2.4 実施方法

各項目について5回併行試験の測定結果と平均値、分析方法(前処理方法、測定方法、測定条件等を含む分析フロー)、定量方法(検量点数、検量範囲、評価方法等)の報告を求めた。又、分析チャートの提出も求めた。

2.5 試料

(1) 添加用標準液

塩化物イオン:塩化ナトリウム(和光純薬(株)製容量分析用標準物質)を500℃で50分加熱し放冷

後1.649gを測り超純水で100mLとし原液とした。(10mg/mL)

硝酸態窒素:硝酸ナトリウム(関東化学(株)製特級)を105℃4時間乾燥し放冷後6.066gを測り超純水で1Lとし原液とした。(1mg/mL)

亜硝酸態窒素:亜硝酸ナトリウム(和光純薬(株)製特級)を硫酸デシケートで18時間乾燥後4.926gを測り超純水で1Lとし原液とした。(1mg/mL)

(2) 試料作製及び配付方法

ポリ容器に塩化物イオン原液60.0mL、硝酸態窒素原液100.0mL、亜硝酸態窒素原液50.0mLを正確にとり超純水で20Lとし分析試料とした。これを1Lポリタンクに分配しクール宅急便で送付または直接配付した。

(3) 試料の最終濃度及び目標値

最終濃度は塩化物イオンが30mg/L、硝酸態窒素及び亜硝酸態窒素が7.5mg/Lであり、これを目標値とした。

(4) 試料の均一性の確認

結果を表1に示す。

均一性確認のための分析方法はイオンクロマトグラフによる定量法を用いた。

作製した試料20個中10個を無作為に選びn=2で各容器の濃度を測定し一元配置分散分析(F検定)により調査試料の均一性確認を行った。

分散比(F比)が有意水準5%に対するF値(自由度9,10)3.02に比較し小さいので試料間の濃度が均一であることを確認した。

1 八戸環境管理事務所

表 1 作製試料の均一性

	塩化物イオン	硝酸イオン	亜硝酸イオン
平均値 (mg/L)	30.53	22.20	8.248
標準偏差 (mg/L)	0.624	0.680	0.142
変動係数 (%)	2.04	3.06	1.72
F比	1.385	1.464	0.689
上の値に対する有意確率	0.308	0.280	0.706
有意水準 5%点	3.02	3.02	3.02

表 2 作製試料の安定性

	塩化物イオン	硝酸イオン	亜硝酸イオン
作製日濃度 (mg/L)	30.2	22.1	8.29
作製 3 週間後濃度 (mg/L)	30.2	21.9	8.26
安定性の基準 (作製日濃度±10%)	27.2~33.3	19.8~24.3	7.46~9.12

(5) 試料の安定性

結果を表 2 に示す。

調査試料中の塩化物イオン、硝酸イオン及び亜硝酸イオンの安定性について作製当日及び 3 週間後に濃度測定し作製当日濃度±10%以内であることを確認した。

2.6 統計処理の方法

各検査施設から得られたデータを基に \bar{X} -R 管理図、Z スコアを求め、評価を行った。

3. 結果及び考察

3.1 塩化物イオン

(1) 測定結果

分析方法はすべての施設でイオンクロマトグラフによる定量法を用いた。

測定結果を表 3 及び図 1 に示した。平均値は 29.1~30.4 mg/L であった。標準偏差は 0.000~0.513mg/L、変動係数は 0.00~1.76% であった。全データの最大値は 30.6mg/L、最小値は 28.4 mg/L、各平均値は 29.8mg/L、標準偏差 0.129mg/L、変動係数は 0.44% であった。

表 3 塩化物イオン

施設 No.	最大値 mg/L	最小値 mg/L	平均値 mg/L	標準偏差 mg/L	変動係数 %	範囲 mg/L	Z スコア
1	29.9	29.8	29.9	0.055	0.18	0.1	0.1
2	29.7	28.4	29.1	0.513	1.76	1.3	-1.4
3	30.0	30.0	30.0	0.000	0.00	0	0.4
4	30.1	30.1	30.1	0.000	0.00	0	0.6
5	29.4	29.3	29.4	0.055	0.19	0.1	-0.9
6	30.6	30.2	30.4	0.152	0.50	0.4	1.3
平均	30.0	29.6	29.8	0.129	0.44	0.3	

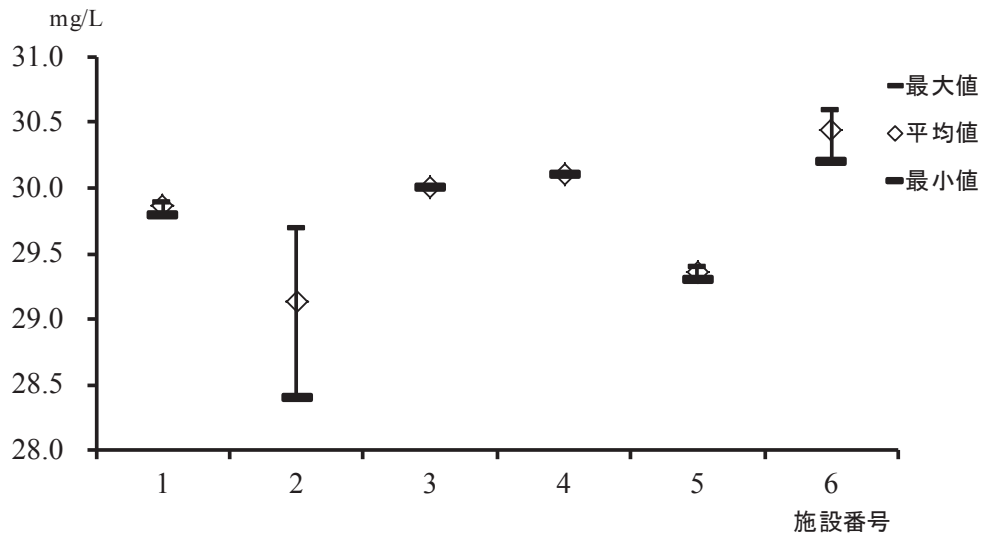


図1 塩化物イオン

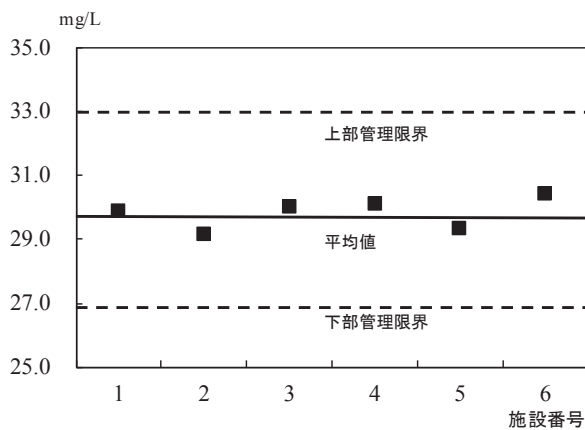


図2 塩化物イオン \bar{X} 管理図

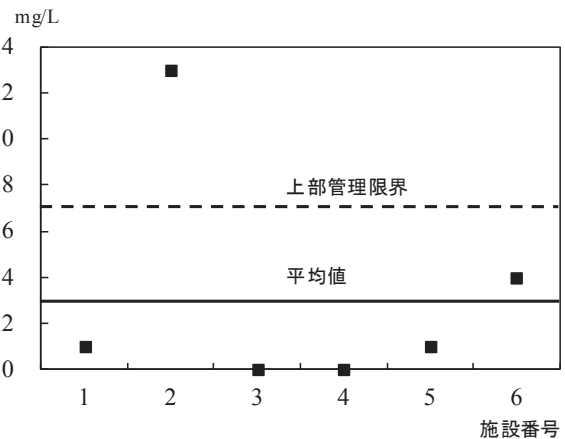


図3 塩化物イオン R管理図

(2) 解析結果

\bar{X} 管理図及びR管理図を図2、図3に示した。

上部管理限界、下部管理限界はそれぞれ目標値の110%値 (33.0mg/L)、90%値 (27.0 mg/L) としたが全ての施設が管理限界内にあった。

R管理図では測定値の範囲の平均値は0.3mg/L、上部管理限界は、上水試験方法に従い範囲の平均値に D_4 (2.115) を乗じた値0.669 mg/Lであり、施設No2が管理限界を超えた。Zスコアはすべての施設で2未満であり良好であった。

3.2 硝酸態窒素及び亜硝酸態窒素

(1) 測定結果

分析方法はすべての施設でイオンクロマトグラフによる定量法を用いた。

各施設の測定結果を表4及び図4に示した。

平均値は6.80~7.55 mg/Lであった。標準偏差は

0.006~0.110mg/L、変動係数は0.08~1.62%であった。全データの最大値は7.62mg/L、最小値は6.65mg/L、平均値は7.34mg/L、標準偏差の平均は0.04mg/Lであった。

(2) 解析結果

\bar{X} 管理図及びR管理図を図5、図6に示した。

\bar{X} 管理図で平均値の平均は7.34mg/Lで目標値とほぼ同じ値であった。上部管理限界と下部管理限界をそれぞれ目標値の110%値 (8.25mg/L)、90%値 (6.75mg/L) とした。すべての施設が管理限界内にあった。

R管理図においては範囲の平均は0.101mg/Lで上部管理限界は0.213mg/Lであり施設No2が管理限界を超えていた。また、Zスコアで全ての施設が2以下であった。

表 4 硝酸態窒素及び亜硝酸態窒素

施設No.	最大値 mg/L	最小値 mg/L	平均値 mg/L	標準偏差 mg/L	変動係数 %	範囲 mg/L	Zスコア
1	7.48	7.44	7.46	0.015	0.20	0.04	0.4
2	6.93	6.65	6.80	0.110	1.62	0.28	-2.0
3	7.48	7.47	7.48	0.006	0.08	0.01	0.5
4	7.45	7.42	7.43	0.011	0.15	0.03	0.3
5	7.37	7.30	7.33	0.027	0.37	0.07	0.0
6	7.62	7.45	7.55	0.068	0.90	0.17	0.8
平均	7.39	7.29	7.34	0.040	0.55	0.10	

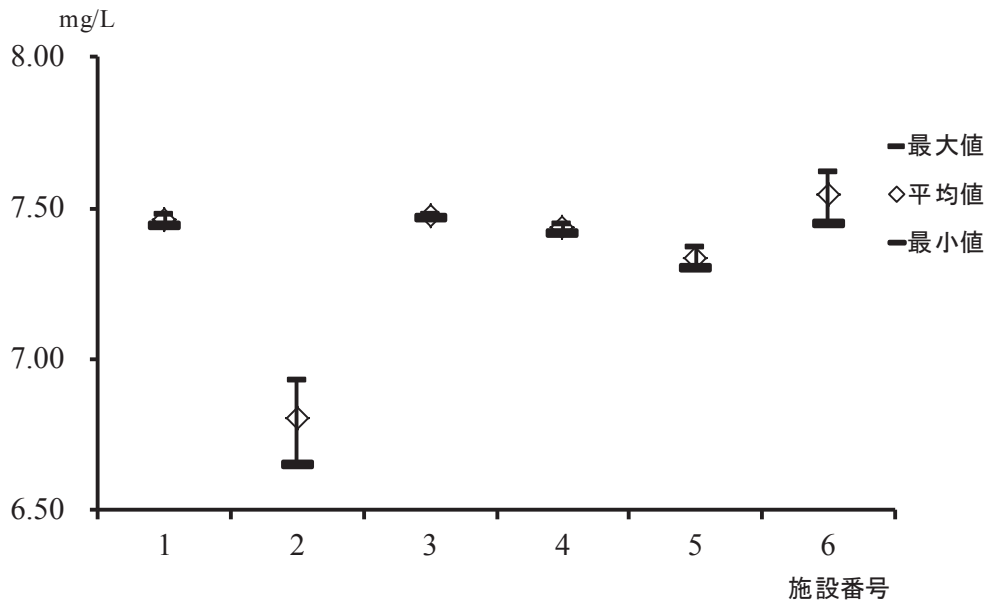


図 4 硝酸態窒素及び亜硝酸態窒素

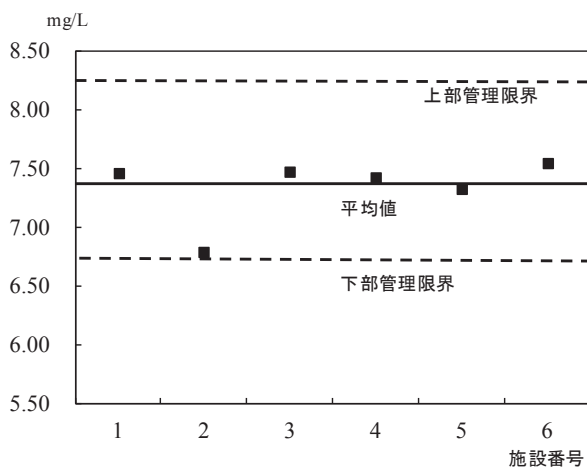


図 5 硝酸態窒素及び亜硝酸態窒素 X管理図

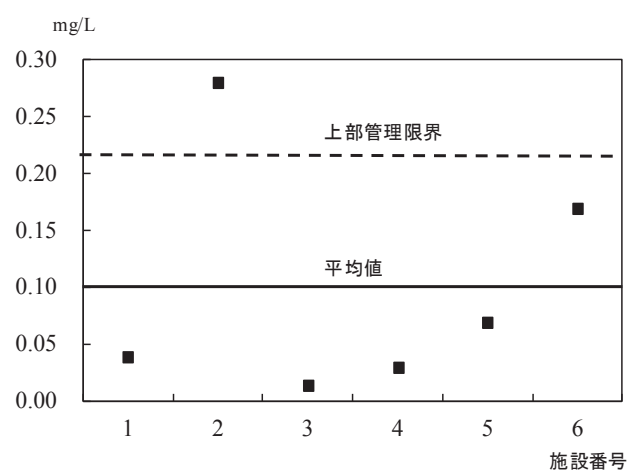


図 6 硝酸態窒素及び亜硝酸態窒素 R管理図

4. まとめ

県内6検査施設を対象として、塩化物イオン、硝酸態窒素及び亜硝酸態窒素について水道水質外部精度管理調査を行い $\bar{X}-R$ 管理図およびZスコアを基に解析を行った。

- 1)塩化物イオン、硝酸態窒素及び亜硝酸態窒素の $\bar{X}-R$ 管理図で1施設が管理限界を超えていた。
- 2)塩化物イオン、硝酸態窒素及び亜硝酸態窒素のZスコアはすべての施設で2以下であった。

文 献

- 1)木村淳子ほか:水道水質外部精度管理調査結果.青森県環境保健センター研究報告,**11**,64-69,2000
- 2)村上淳子ほか:水質精度管理実施状況(平成12年度～14年度).青森県環境保健センター研究報告,**14**,71-80,2003
- 3)村上淳子ほか:水質精度管理実施状況(平成15年度).青森県環境保健センター研究報,**15**,51-54,2004
- 4)村上淳子ほか:水道水質外部精度管理調査結果(平成16年度).青森県環境保健センター研究報告,**16**,

62-65,2005

- 5)村上淳子ほか:水道水質外部精度管理調査結果(平成17年度).青森県環境保健センター研究報告,**17**,44-48,2006
- 6)村上淳子ほか:水道水質外部精度管理調査結果(平成18年度).青森県環境保健センター研究報告,**18**,46-49,2007
- 7)村上淳子ほか:水道水質外部精度管理調査結果(平成19年度).青森県環境保健センター研究報告,**19**,51-54,2008
- 8)木村淳子ほか:水道水質外部精度管理調査結果(平成20年度).青森県環境保健センター研究報告,**20**,38-40,2009
- 9)木村淳子ほか:水道水質外部精度管理調査結果(平成21年度).青森県環境保健センター研究報告,**21**,47-50,2010
- 10)木村淳子ほか:水道水質外部精度管理調査結果(平成22年度).青森県環境保健センター研究報告,**22**,52-55,2011

農産物中の残留農薬検査結果 —平成19年度から平成23年度まで—

工藤志保 工藤 翔 櫻庭麻恵¹ 山本明美² 増田幸保

平成19年度から平成23年度に青森県内で収去された農産物の残留農薬検査結果をとりまとめた。その結果、農産物延べ456検体について検査を実施しており、そのうち基準値を超えたものは1検体であった。なお、県産農産物における農薬検出率は45.5%、輸入農産物における農薬検出率は68.3%であった。また、5年間で検出された農薬は、72種類であった。

Key words : Agricultural products, Pesticide residues, Simultaneous determination

1. はじめに

当センターでは、青森県内に流通している食品の安全性を確保するため、主に県産農産物の残留農薬検査を実施している。

平成18年5月に食品中に残留する農薬等にポジティブリスト制度が導入され、残留基準が設定されていない農薬についても一定量(0.01ppm)を超えて残留する場合には、その食品の流通が原則として禁止されることになった。

これに伴い、当センターにおいても、試験方法及び検査対象農薬等の見直しを行い、多数の農薬を迅速に分析可能な一斉分析法による検査を実施することとし、また、検査機器については、ガスクロマトグラフ・質量分析計(以下GC/MSとする。)2台及び液体クロマトグラフ・質量分析計(以下LC/MS/MSとする。)1台を使用し、検査対象農薬数を大幅に増やしてきた。

今回、ポジティブリスト制度導入後の平成19年度から平成23年度に実施した農産物の残留農薬検査について、検出状況等を取りまとめたので、報告する。

2. 方法

2.1 検体

表1に示すとおり、平成19年4月から平成24

年3月までに県内で収去され当センターに搬入された県産農産物及び輸入農産物26品目 456検体を対象とした。

表1 検査対象農産物

農産物	検体数				
	平成19年度	平成20年度	平成21年度	平成22年度	平成23年度
1 アスパラガス	4			6	
2 いちご		5		6	
3 キャベツ	5				3
4 玄米	10	9			
5 ごぼう	5	5	5		
6 だいこん	4	4	4	9	10
7 とうもろこし				4	8
8 トマト	10	5	9	5	11
9 長いも	5	4	4		6
10 にんじん	5	5	5	10	5
11 にんにく	3	6	7	6	7
12 ねぎ	5	4	4	11	13
13 はくさい	5				
14 ぼれいしょ	5	4	4	8	5
15 ビーマン		4	3		
16 ぶどう	5				
17 ブロッコリー	6				
18 ほろんそう	5			6	6
19 りんご	20	18	17	16	12
20 レタス	5				
21 アスパラガス(輸入)		5			
22 オレンジ(輸入)				3	3
23 グレープフルーツ(輸入)				4	1
24 スウィーティ(輸入)					1
25 バナナ(輸入)		6	2		6
26 レモン(輸入)		5	3	1	1
総 数	107	89	67	95	98

2.2 検査対象農薬

検査対象農薬の項目数を表2に示した。

農産物及び年度ごとに多少異なるが、1検体当たりの最大はトマトの265項目、最小はにんにくの157項目であった。

1 : 弘前環境管理事務所 2 : 保健衛生課

表2 検査対象農薬の項目数

農産物	検査項目数				
	平成19年度	平成20年度	平成21年度	平成22年度	平成23年度
1 アスパラガス	233			244	
2 いちご		253		230	
3 キャベツ	236				255
4 玄米	230	246			
5 ごぼう	229	255	260		
6 だいこん	235	253	260	235	253
7 とうもろこし				239	251
8 トマト	233	255	265	249	257
9 長いも	234	255	262		260
10 にんじん	235	245	259	222	250
11 にんにく	229	254	264	157	259
12 ねぎ	230	251	254	204	249
13 はくさい	231				
14 ばれいしょ	236	252	256	238	255
15 ピーマン		254	259		
16 ぶどう	229				
17 ブロッコリー	232				
18 ほうれんそう	231			234	245
19 りんご	231	252	259	236	251
20 レタス	236				
21 アスパラガス(輸入)		254			
22 オレンジ(輸入)				234	232
23 グレープフルーツ(輸入)				219	220
24 スウィーティ(輸入)					222
25 バナナ(輸入)		257	263		250
26 レモン(輸入)		246	258	238	228
平均	232	252	260	227	246

2.3 検査方法

(1) GC/MS一斉分析法

GC/MSによる農薬等の一斉試験法（農産物）（平成17年11月29日付け食安発第1129002号厚生労働省医薬食品局食品安全部長通知）を一部変更した方法

(2) LC/MS/MS一斉分析法

「限外ろ過法を用いたLC/MS/MSによる農産物中の残留農薬一斉分析」の方法¹⁾

2.4 装置及び測定条件

(1) GC/MS①

装置：GCMS-QP5050A（島津製作所）
 カラム：DB-XLB（内径0.25mm×30m、膜厚0.1μm）
 カラム温度：80℃(1min)-20℃/min-140℃-4℃/min-200℃-8℃/min-300℃(5min)
 注入口温度：250℃
 インターフェース温度：280℃
 注入量：2μL

(2) GC/MS②

装置：GCMS-QP2010（島津製作所）
 カラム：VF-5MS（内径0.25mm×30m、膜厚0.25μm）
 カラム温度：70℃(1min)-25℃/min-140℃-3℃/min-250℃-8℃/min-280℃-20℃/min-300℃(10min)
 注入口温度：280℃
 インターフェース温度：280℃
 注入量：2μL

(3) LC/MS/MS

装置：ACQUITY UPLC Xevo TQ MS (Waters)
 カラム：BEH C18 2.1×100mm 1.7μm
 注入量：5μL
 流量：0.3ml/min
 移動相：A:5mmol/L酢酸アンモニウム溶液
 B:メタノール

グラジエント①：

分析時間9分

時間	A液	B液
初期条件	90.0%	10.0%
5.0分	10.0%	90.0%
6.0分	90.0%	10.0%

グラジエント②：

分析時間13分

時間	A液	B液
初期条件	95.0%	5.0%
1.0分	60.0%	40.0%
2.0分	35.0%	65.0%
8.0分	5.0%	95.0%
9.0分	0.0%	100.0%
9.5分	95.0%	5.0%

3. 結果及び考察

3.1 農産物別農薬検出状況

(1) 県産農産物

農産物別の農薬検出状況を表3に示した。

全検体数415検体のうち189検体から農薬が検出され、全体の検出率は45.5%であった。

農薬検出率が50%を超えた農産物は、りんご90.4%、ピーマン85.7%、ぶどう80.0%、レタス80.0%、トマト67.5%、いちご63.6%、はくさい60.0%、玄米52.6%、キャベツ50.0%であった。

基準値を超えたものは、平成23年度に1検体あり、にんじんからシアノホス0.427ppm（基準値0.05ppm）が検出された。他はすべて基準値内であり、その検出濃度は基準値を大幅に下回る値であった。

農薬が全く検出されなかった農産物は、ごぼう、とうもろこし、にんにく、ブロッコリーであった。

(2) 輸入農産物

農産物別の農薬検出状況を表4に示した。

全検体数41検体のうち28検体から農薬が検出され、全体の検出率は68.3%であった。

県産農産物と比較し農薬の検出率は高いが、基準値を超えたものはなかった。

オレンジ、グレープフルーツ、スウィーティの検出率が100%となっているが、これは、柑橘類にポストハーベストとして使用されている防かび剤のイマザリルやチアベンダゾールがすべての検体から検出されたことによるものである。

アスパラガスからは、農薬は検出されなかった。

表3 県産農産物における検出状況

No.	農産物	分析 件数	検出 検体数	検出率 ^{※1} (%)	検出農薬
1	アスパラガス	10	3	30.0	アゾキシストロビン ジクロルボス及びナレド ベルメトリン
2	いちご	11	7	63.6	アクリナトリン アセタミプリド アゾキシストロビン エンドスルファン クレゾキシムメチル チアクロプリド チオジカルブ及びメソミル テトラジホン ビテルタノール プロシムドン ミクロブタニル
3	キャベツ	8	4	50.0	アセフェート チアマトキサム フェンバレート
4	玄米	19	10	52.6	クロチアニジン ジクロシメット トリシクラゾール フェニトロチオン フェリムゾン フサライド
5	ごぼう	15	0	0.0	
6	だいこん	31	14	45.2	アジンホスメチル アセフェート オキサミル チオジカルブ及びメソミル トルフェンピラド フェンバレート ベルメトリン メタミドホス
7	とうもろこし	12	0	0.0	
8	トマト	40	27	67.5	アセタミプリド アセフェート アゾキシストロビン イプロジオン インドキサカルブ エンドスルファン クロチアニジン クロルフェナビル ジェトフェンカルブ チアクロプリド トルフェンピラド フェントエート フルジオキシニル フルバリネート プロシムドン ベルメトリン ペンフラカルブ メタミドホス
9	長いも	19	2	10.5	アセフェート メタミドホス
10	にんじん	30	9	30.0	アセフェート イプロジオン トリフルラリン トルフェンピラド フェントエート ペンディメタリン クレゾキシムメチル シアノホス ^{※2} ジクロルボス及びナレド トルクロホスメチル
11	にんにく	29	0	0.0	
12	ねぎ	37	9	24.3	EPN アセフェート アゾキシストロビン イプロジオン クレゾキシムメチル クロルフェナビル シアゾファミド シベルメトリン トルフェンピラド ベルメトリン メタラキシル及びメフェノキサム
13	はくさい	5	3	60.0	アセタミプリド アセフェート
14	ばれいしょ	26	6	23.1	アセフェート トリフルラリン メタラキシル及びメフェノキサム
15	ピーマン	7	6	85.7	アクリナトリン イプロジオン エトフェンブロックス チアマトキサム トリアジメノール プロシムドン メタラキシル及びメフェノキサム ベルメトリン
16	ぶどう	5	4	80.0	キャプタン クレゾキシムメチル フルジオキシニル ベルメトリン
17	ブロッコリー	6	0	0.0	
18	ほうれんそう	17	6	35.3	イプロジオン イミダクロプリド クロチアニジン シアゾファミド シベルメトリン ダイアジノン チアマトキサム トルクロホスメチル
19	りんご	83	75	90.4	アセタミプリド カルバリル キャプタン クレゾキシムメチル クロチアニジン クロルフェナビル クロルピリホス クロルピリホスメチル シハロトリン シフルトリン シプロジニル シベルメトリン チアクロプリド チアマトキサム テプフェンピラド トリフロキシストロビン ビフェントリン フェニトロチオン フェンプロバトリン プロチオホス プロバルギット ベルメトリン メチダチオン
20	レタス	5	4	80.0	アセフェート イプロジオン カルボスルファン クレゾキシムメチル クロルフェナビル ペンフラカルブ
	総 数	415	189	45.5%	

※1: 検出率=(検出検体数/分析件数)×100
 ※2: 基準超過項目

表4 輸入農産物における検出状況

No.	農産物	分析 件数	検出 検体数	検出率 ^{※1} (%)	検出農薬
1	アスパラガス	5	0	0.0	
2	オレンジ	6	6	100.0	イマザリル カルバリル クロルピリホス チアベンダゾール ビリプロキシフェン
3	グレープフルーツ	5	5	100.0	イマザリル オルトフェニルフェノール チアベンダゾール フェンプロナゾール
4	スイーティ	1	1	100.0	イマザリル クロルピリホス チアベンダゾール ビリプロキシフェン
5	バナナ	14	9	64.3	アゾキシストロビン イプロジオン クロルピリホス チアベンダゾール デルタメトリン及びトラロメトリン ビフェントリン フェノブカルブ フェンプロピモルフ
6	レモン	10	7	70.0	アセフェート イマザリル クレゾキシムメチル クロルピリホス シマジン チアベンダゾール ビリプロキシフェン ビリメタニル フルジオキシニル マラチオン
	総 数	41	28	68.3%	

※1: 検出率=(検出検体数/分析件数)×100

3.2 農薬別の検出件数

平成19年度から平成23年度の5年間に検出された農薬を表5に示した。

5年間で検出された農薬は、72種類であった。

また、同一検体から複数の農薬が検出された検体もあり、延べ検出検体数は478検体であった。

表5 平成19年度～平成23年度検出農薬一覧

No.	検出農薬項目	延べ検出 検体数	検出農産物(件数)
1	クレゾキシムメチル	41	いちご(1) にんじん(1) ねぎ(4) ぶどう(2) りんご(29) レタス(3) レモン(1)
2	フェンプロバトリン	37	りんご(37)
3	トリフロキシストロビン	34	りんご(34)
4	プロバルギット	26	りんご(26)
5	アセフェート	24	キャベツ(1) だいこん(2) トマト(7) 長いも(2) にんじん(1) ねぎ(1) はくさい(2) ぼれいしょ(4) レタス(3) レモン(1)
6	クロルピリホス	24	オレンジ(1) スウィーティ(1) パナナ(3) りんご(13) レモン(6)
7	チアベンダゾール	20	オレンジ(6) グレープフルーツ(5) スウィーティ(1) パナナ(1) レモン(7)
8	イプロジオン	18	トマト(4) にんじん(2) ねぎ(2) パナナ(4) ビーマン(4) ほうれんそう(1) レタス(1)
9	イマザリル	17	オレンジ(6) グレープフルーツ(5) スウィーティ(1) レモン(5)
10	トルフェンピラド	15	だいこん(5) トマト(7) にんじん(1) ねぎ(2)
11	ベルメトリン	13	アスパラガス(1) だいこん(2) トマト(4) ねぎ(2) ビーマン(1) ぶどう(2) りんご(1)
12	カルバリル	12	オレンジ(1) りんご(11)
13	チアクロプリド	12	いちご(1) トマト(1) りんご(10)
14	アセタミプリド	10	いちご(4) トマト(4) はくさい(1) りんご(1)
15	アキキストロビン	9	アスパラガス(1) いちご(1) トマト(4) ねぎ(2) パナナ(1)
16	シベルメトリン	8	ねぎ(2) ほうれんそう(2) りんご(4)
17	メタミドホス	8	だいこん(1) トマト(5) 長いも(2)
18	クロチアニジン	7	玄米(2) トマト(1) ほうれんそう(1) りんご(3)
19	シハロトリン	7	りんご(7)
20	キャプタン	6	ぶどう(1) りんご(5)
21	フサライド	6	玄米(6)
22	オキサミル	5	だいこん(5)
23	オルトフェニルフェノール	5	グレープフルーツ(5)
24	シプロジニル	5	りんご(5)
25	ピフェントリン	5	パナナ(1) りんご(4)
26	フェリムゾン	5	玄米(5)
27	メタラキシル及びメフェノキサム	5	ねぎ(1) ぼれいしょ(2) ビーマン(2)
28	クロルフェナビル	4	トマト(1) ねぎ(1) りんご(1) レタス(1)
29	チアメトキサム	4	キャベツ(1) ビーマン(1) ほうれんそう(1) りんご(1)
30	トリフルラリン	4	にんじん(3) ぼれいしょ(1)
31	フルジオキソニル	4	トマト(2) ぶどう(1) レモン(1)
32	プロシミドシ	4	いちご(1) トマト(1) ビーマン(2)
33	アクリナトリン	3	いちご(2) ビーマン(1)
34	シアゾファミド	3	ねぎ(1) ほうれんそう(2)
35	ジエトフェンカルブ	3	トマト(3)
36	シフルトリン	3	りんご(3)
37	トリシクラゾール	3	玄米(3)
38	ピリプロキシフェン	3	オレンジ(1) スウィーティ(1) レモン(1)
39	フェントエート	3	トマト(1) にんじん(2)
40	フェンバレレート	3	キャベツ(2) だいこん(1)
41	フェンプロナゾール	3	グレープフルーツ(3)
42	ミクロブタニル	3	いちご(3)
43	EPN	2	ねぎ(2)
44	アジンホスメチル	2	だいこん(2)
45	イミダクロプリド	2	ほうれんそう(2)
46	エトフェンプロックス	2	ビーマン(2)
47	エンドスルファン	2	いちご(1) トマト(1)
48	ジクロロボス及びボナレド	2	アスパラガス(1) にんじん(1)
49	シマジン	2	レモン(2)
50	チオジカルブ及びメモリル	2	いちご(1) だいこん(1)
51	デルタメトリン及びトラロメトリン	2	パナナ(2)
52	トルクロホスメチル	2	にんじん(1) ほうれんそう(1)
53	ピテルタノール	2	いちご(2)
54	フェントロチオン	2	玄米(1) りんご(1)
55	フェンプロビモルフ	2	パナナ(2)
56	ベンフラカルブ	2	トマト(1) レタス(1)
57	インドキサカルブ	1	トマト(1)
58	カルボスルファン	1	レタス(1)
59	クロルピリホスメチル	1	りんご(1)
60	シアノホス	1	にんじん(1)
61	ジクロシメット	1	玄米(1)
62	ダイアジノン	1	ほうれんそう(1)
63	テトラジホン	1	いちご(1)
64	テフエンピラド	1	りんご(1)
65	トリアジメノール	1	ビーマン(1)
66	ピリメタニル	1	レモン(1)
67	フェンブカルブ	1	パナナ(1)
68	フルバリネート	1	トマト(1)
69	プロチオホス	1	りんご(1)
70	ペンディメタリン	1	にんじん(1)
71	マラチオン	1	レモン(1)
72	メチダチオン	1	りんご(1)
	総 数	478	

最も検出頻度が高い農薬はクレソキシムメチルで7種類の農産物 延べ41 検体から検出された。41 検体のうち29 検体はりんごであった。

次に検出頻度が高いのは、フェンプロパトリン37 検体、トリフロキシストロビン34 検体、プロパルギット26 検体であるが、これらはすべてりんごから検出されていた。

これらの検出濃度は、各農産物における基準値を大幅に下回っており、適正な農薬使用を実施していると推定された。(表6)

表6 検出頻度が高い農薬の検出濃度範囲

農薬名	農産物	検出濃度範囲 (ppm)	基準値 (ppm)
クレソキシムメチル	いちご	0.04	5
	にんじん	0.02	0.3
	ねぎ	0.014~0.219	2
	ぶどう	0.160~0.179	15
	りんご	0.010~0.190	5
	レタス	0.02	30
レモン	0.025	10	
フェンプロパトリン	りんご	0.015~0.167	5
トリフロキシストロビン	りんご	0.006~0.111	3
プロパルギット	りんご	0.012~0.34	3

国内で農薬登録のないメタミドホスが、だいこん、トマト、長いもの8 検体から検出されていたが、これらの検体からはアセフェートも検出されていたことから、アセフェートが代謝されメタミドホスが生じ検出されたものと考えられる。

3.3 残留基準超過事例

平成19 年度から平成23 年度の5 年間で基準を超過したのは、シアノホスが検出されたにんじん1 検体のみであった。

にんじんのシアノホス基準値0.05ppm に対し、0.427ppm が検出された。

保健衛生課で調査したところ、生産者の知識不足により、シアノホス乳剤の1000 倍希釈液を庭木に散布し、残りの20L 程度をネギ、枝豆、じゃがいも、キャベツ、ブルーベリー、にんじんを栽培している100m²の畑全体に散布したとのことであった。

食品衛生法第11 条第2 項違反として、行政処分の対象となったが、自主回収を速やかに開始したことと、健康被害の報告がないことから、改善勧告による行政指導が行われた。

3.4 検出農薬の推定一日摂取量とADI との比較

農産物から検出された農薬について、ヒトに対する影響を考慮するため、最大検出濃度から一日摂取量を推定し、ADI (許容一日摂取量) と比較した。5 年間に検出された72 種類の農薬の最大検出濃度にその農産物の一日摂取量を乗じたものを推定一日摂取量とし、体重50kg のヒトにおける各農薬のADI に対する割合を算出した結果を表7 に示した。

表7 検出農薬の推定一日摂取量とADI との比較

No.	検出農薬項目	検出農産物	最大検出濃度 (μg/g)	推定一日摂取量 (μg/日)	ADI (mg/50kg/日)	対ADI比 (%)
1	クレソキシムメチル	ねぎ	0.219	10.118	18.00	0.06
2	フェンプロパトリン	りんご	0.167	3.457	1.30	0.27
3	トリフロキシストロビン	りんご	0.111	2.298	2.00	0.11
4	プロパルギット	りんご	0.34	7.038	0.50	1.41
5	アセフェート	トマト	0.282	3.722	0.12	3.10
6	クロルピリホス	スウィーティ	0.12	2.556	0.05	5.11
7	チアベンダゾール	スウィーティ	1.424	30.331	5.00	0.61
8	イプロジオン	ねぎ	0.77	35.574	3.00	1.19
9	イマザリル	オレンジ	2.176	46.349	1.50	3.09
10	トルフェンビラド	だいこん	0.07	2.100	0.28	0.75
11	ペルメトリン	アスパラガス	0.05	1.710	2.50	0.07
12	カルバリル	りんご	0.111	2.298	0.38	0.61
13	チアクロプリド	トマト	0.052	0.686	0.50	0.14
14	アセタミプリド	いちご	0.184	0.000	3.50	0.00
15	アズキシストロビン	ねぎ	0.26	12.012	9.00	0.13
16	シペルメトリン	ほうれんそう	0.12	2.064	1.00	0.21
17	メタミドホス	トマト	0.198	2.614	0.03	8.71
18	クロチアニジン	玄米	0.038	12.434	4.85	0.26
19	シハロリン	りんご	0.035	0.725	1.00	0.07
20	キャプタン	りんご	0.098	2.029	5.00	0.04

No.	検出農薬項目	検出農産物	最大検出濃度 ($\mu\text{g/g}$)	推定一日摂取量 ($\mu\text{g/日}$)	ADI ($\text{mg}/50\text{kg/日}$)	対ADI比 (%)
21	フサライド	玄米	0.157	51.370	2.00	2.57
22	オキサミル	だいこん	0.013	0.390	0.45	0.09
23	オルトフェニルフェノール	グレープフルーツ	0.29	6.177	20.00	0.03
24	シプロジニル	りんご	0.02	0.414	1.35	0.03
25	ピフェントリン	りんご	0.01	0.207	0.50	0.04
26	フェリムゾン	玄米	0.167	54.642	0.95	5.75
27	メタラキシル及びメフェノキサム	ピーマン	0.031	0.124	1.10	0.01
28	クロルフェナピル	トマト	0.07	0.924	1.30	0.07
29	チアメキサム	ピーマン	0.01	0.040	0.90	0.00
30	トリフルラリン	ばれいしょ	0.018	0.466	1.20	0.04
31	フルジオキシニル	トマト	0.04	0.528	16.50	0.00
32	プロシミドン	トマト	0.192	2.534	1.75	0.14
33	アクリナトリン	いちご	0.031	0.000	1.20	0.00
34	シアゾファミド	ねぎ	0.061	2.818	8.50	0.03
35	ジエトフェンカルブ	トマト	0.04	0.528	21.50	0.00
36	シフルトリン	りんご	0.02	0.414	2.00	0.02
37	トリシクラゾール	玄米	0.037	12.106	1.50	0.81
38	ピリプロキシフェン	レモン	0.028	0.596	5.00	0.01
39	フェントエート	トマト	0.051	0.673	0.15	0.46
40	フェンバレレート	キャベツ	0.132	3.049	0.90	0.34
41	フェンブコナゾール	グレープフルーツ	0.03	0.639	1.50	0.04
42	マイクロブタニル	いちご	0.13	0.000	1.20	0.00
43	EPN	ねぎ	0.02	0.924	0.07	1.32
44	アジンホスメチル	だいこん	0.003	0.090	0.07	0.13
45	イミダクロプリド	ほうれんそう	0.048	0.826	2.85	0.03
46	エトフェンブロックス	ピーマン	1.225	4.900	1.50	0.33
47	エンドスルフェン	いちご	0.036	0.000	0.29	0.00
48	ジクロロボス及びナレド	アスパラガス	0.015	0.513	0.20	0.26
49	シマジン	レモン	0.04	0.852	0.25	0.34
50	チオジカルブ及びメソミル	だいこん	0.021	0.630	1.00	0.06
51	デルタメトリン及びトラロメトリン	バナナ	0.02	0.334	0.50	0.07
52	トルクロホスメチル	にんじん	0.01	0.194	3.50	0.01
53	ビテルタノール	いちご	0.035	0.000	0.50	0.00
54	フェニトロチオン	りんご	0.03	0.621	0.30	0.21
55	フェンブプロピモルフ	バナナ	0.013	0.217	0.15	0.14
56	ベンフラカルブ	トマト	0.019	0.251	0.50	0.05
57	インドキサカルブ	トマト	0.027	0.356	0.26	0.14
58	カルボスルフェン	レタス	0.007	0.323	0.50	0.06
59	クロルピリホスメチル	りんご	0.02	0.414	0.50	0.08
60	シアノホス	にんじん	0.427	8.284	0.05	16.57
61	ジクロシメット	玄米	0.008	2.618	0.25	1.05
62	ダイアジノン	ほうれんそう	0.01	0.172	0.25	0.07
63	テトラジホン	いちご	0.02	0.000	-	-
64	テブフェンピラド	りんご	0.053	1.097	0.11	1.04
65	トリアジメノール	ピーマン	0.039	0.156	1.50	0.01
66	ピリメタニル	レモン	0.047	1.001	8.50	0.01
67	フェノブカルブ	バナナ	0.012	0.200	0.60	0.03
68	フルバリネート	トマト	0.02	0.264	0.25	0.11
69	プロチオホス	りんご	0.083	1.718	0.08	2.29
70	ペンディメタリン	にんじん	0.03	0.582	6.00	0.01
71	マラチオン	レモン	0.063	1.342	15.00	0.01
72	メチダチオン	りんご	0.008	0.166	0.05	0.33

- :ADI値が不明であるため、算出していません。

各農産物の一日摂取量は、平成 22 年度国民健康・栄養調査の食品群別栄養素等摂取量に従い、ADI は日本又は JMPR (FAO/WHO 合同残留農薬専門家会議) の値²⁾を使用し、設定のないものについては諸外国の値を用いた。

ADI に対する割合が最も高かったのは、基準値を超過したシアノホスの 16.57%であったが、今回検出されたすべての農薬について、毎日摂取したとしても健康上問題となるレベルではないと考えられる。

4. まとめ

平成 19 年度から平成 23 年度までの 5 年間に青森県内で収去された農産物の残留農薬検査結果は以下のとおりであった。

- 1) 農薬検出率は、県産農産物が 45.5%、輸入農産物が 68.3%であった。基準値を超過したものは、シアノホスが検出されたにんじん 1 検体だけであり、他はすべて基準値内であった。
- 2) 検出された農薬は 72 種類であり、最も検出頻度の高い農薬はクレソキシムメチルであった。

文 献

- 1) 畠山えり子ほか：限外ろ過法を用いた LC/MS/MS による農産物中の残留農薬一斉分析. 食品衛生学雑誌, 47, 137-145, 2006
- 2) 国立医薬品食品衛生研究所「農薬等 ADI 関連情報データベース」: http://www.nihs.go.jp/hse/food-info/pest_res/index.html

陸奥湾東部海域ホタテガイ中環境汚染物質の調査結果 (第2報)

—平成12年度から平成23年度まで—

工藤志保 工藤 翔 玉熊義久¹ 櫻庭麻恵²
山本明美³ 増田幸保

平成12年度から平成23年度までの陸奥湾東部海域におけるホタテガイ中の環境汚染物質 (PCB、有機塩素系農薬、クロルデン類、ベンゾ[a]ピレン) の調査結果は、すべて定量下限未満であった。

Key words : Mutsu Bay, scallop, polychlorinated biphenyls, organochlorine pesticides, Chlordanes, benzo[a]pyrene

1. はじめに

本県の主要水産食品の1つであるホタテガイは、平成7年3月のEU査察の結果、衛生管理対策の不備を理由に輸入禁止措置をとられていたが、管理体制等の整備を行い、平成13年9月のEU側査察官による本県への現地査察等が実施された結果、加工施設及び管理体制がEUの定める要件を満たしているとして、輸入再開が認められた¹⁾。

現在、本県の対EU輸出ホタテガイモニタリング検査は、「対EU輸出水産食品の取扱要領」(厚生労働省、農林水産省、水産庁)及び「青森県対EU輸出ホタテガイ管理要領」等に基づき、生産海域である陸奥湾東部海域5定点で、貝毒、微生物、毒素産生性プランクトン及び環境汚染物質の調査を実施している。

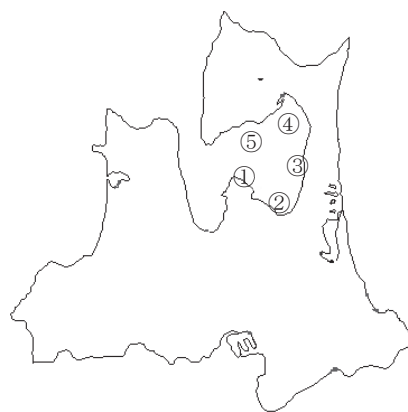
環境汚染物質の調査は、貝の輸出部位に人の健康に危害を与える量のハロゲン化合物、重金属、多環芳香族炭化水素が含有されていないことを確認するため実施しているものであり、これらの項目のうち、重金属類については既に報告²⁾している。

今回は、ハロゲン化合物及び多環芳香族炭化水素の平成12年度から平成23年度までの調査結果について取りまとめたので報告する。

2. 方法

2.1 試料

図1に示す平内、野辺地、むつ、川内の4調査地点から採取された養殖ホタテガイ(籠及び耳づり)を調査対象とした。



- ①平内地点 (籠、耳づり) ④むつ地点 (籠)
②野辺地地点 (籠、耳づり) ⑤川内地点 (籠)
③横浜地点 (籠、耳づり)

図1 調査地点

採取回数は、毎年度6月と11月の年2回である。

平内地点及び野辺地地点については、養殖形態の違う籠と耳づりの2種類を採取しており、それぞれの垂下水深は籠20m、耳づり30mである。

むつ地点及び川内地点は籠のみとなっており、それぞれの垂下水深は、むつ10m、川内20mである。

1 青森環境管理事務所 2 弘前環境管理事務所
3 保健衛生課

横浜地点は、貝毒等のサンプリング定点ではあるが、環境汚染物質のサンプリングの地点になっていないため、実施していない。

以上のことから、試料点数としては、①平内（籠）、②平内（耳づり）、③野辺地（籠）、④野辺地（耳づり）、⑤むつ（籠）、⑥川内（籠）の6点となる。

検査部位は、貝の輸出部位である貝柱と生殖巣（卵巣、精巣）を対象とした。

2.2 調査項目

(1) ハロゲン化合物

① PCB

② デルドリン（アルドリンを含む。）、総 DDT（pp'-DDT、pp'-DDE、pp'-DDD、op'-DDT）、ヘプタクロル（ヘプタクロルエポキシドを含む。）、オキシクロルデン、トランスクロルデン、シスコルデン、トランスノナクロル（以下、有機塩素系農薬及びクロルデン類とする。）

(2) 多環芳香族炭化水素

ベンゾ[a]ピレン

2.3 分析方法

(1) PCB

「衛生試験法・注解（1990）日本薬学会編」係数法に準拠した。

測定機器：電子捕獲型検出器付ガスクロマトグラフ（GC-ECD）

測定条件：

カラム DB-1(内径0.53mm×15m,膜厚1.5μm)

カラム温度 190°C(65min)-10°C/min-250°C(3min)

注入口温度 250°C

検出器温度 280°C

(2) 有機塩素系農薬及びクロルデン類

GC/MSによる農薬等の一斉試験法（畜水産物）（平成17年1月24日付け食安発第0124002号厚生労働省医薬食品局食品安全部長通知）の一部を変更した方法で行った。

測定機器：電子捕獲型検出器付ガスクロマトグラフ（GC-ECD）

測定条件：

カラム DB-1(内径0.32mm×30m,膜厚0.25μm)

カラム温度 80°C-20°C/min-170°C(2min)-2°C/min-220°C-15°C/min-280°C

注入口温度 250°C

検出器温度 300°C

(3) ベンゾ[a]ピレン

「衛生試験法・注解2005 日本薬学会編」に準拠した。

測定機器：液体クロマトグラフ

測定条件：

カラム CAPCELL PAK C18 UG120 5μm粒径（内径4.6mm×15cm）

カラム温度 30°C

流速 1.5ml/min

注入量 10μL

検出器 蛍光検出器

測定波長 励起波長384nm、蛍光波長406nm

移動相 アセトニトリル-水（7：3）

2.4 定量下限

各調査項目の定量下限値を表1に示した。

表1 定量下限値一覧

調査項目	単位：μg/g					
	平成12年度	平成13年度	平成14年度	平成15年度	平成16年度	平成17年度
PCB	0.005	0.005	0.005	0.005	0.02	0.02
デルドリン (アルドリンを含む)	0.0025	0.0025	0.0025	0.0025	0.0025	0.0025
総DDT	0.0025	0.0025	0.0025	0.0025	0.0025	0.0025
ヘプタクロル (ヘプタクロルエポキシドを含む)	0.0013	0.0013	0.0013	0.0013	0.0013	0.0013
クロルデン類	0.0013	0.0013	0.0013	0.0013	0.013	0.0013
ベンゾ[a]ピレン	-	-	-	-	-	-

ベンゾ[a]ピレンについては、平成12年度～平成19年度までは調査未実施

単位：μg/g

調査項目	平成18年度	平成19年度	平成20年度	平成21年度	平成22年度	平成23年度
PCB	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.01
ディルドリン (アルドリンを含む)	0.0025	0.004	0.004	0.004	0.004	0.002
総DDT	0.0025	0.004	0.004	0.004	0.004	0.002
ヘプタクロル (ヘプタクロルエポキシド を含む)	0.0013	0.004	0.004	0.004	0.004	0.002
クロルデン類	0.0013	0.004	0.004	0.004	0.004	0.002
ベンゾ[a]ピレン	-	-	0.001	0.001	0.001	0.001

ベンゾ[a]ピレンについては、平成12年度～平成19年度までは調査未実施

3. 結果及び考察

3.1 PCB

各年度により、定量下限値が多少異なるが、陸奥湾東部海域のホタテガイの貝柱と生殖巣中のPCBは、すべて定量下限未満であった。

なお、既報³⁾では、平成5～6年度に当センターで実施している県産ホタテガイの検査の結果、検査部位がむき身全体であるが、0.002～0.012 μg/gのPCBが検出されており、また、魚類についても、平成12年頃まで、低濃度であるが長期にわたりPCBが検出されていたと報告している。

3.2 有機塩素系農薬及びクロルデン類

陸奥湾東部海域のホタテガイの貝柱と生殖巣中の有機塩素系農薬及びクロルデン類は、すべての項目で定量下限未満であった。

なお、既報³⁾では、平成元～8年度に当センターで実施した県内産ホタテガイのクロルデン類の検査の結果、検査部位がむき身全体であるが、今回と同様に、すべての項目について定量下限未満であったと報告している。また、新山⁴⁾らは北海道産のホタテガイを対象とした検査において、貝柱のみではクロルデン類は検出されないが、その他の部分からは微量のシスクロルデン及びトランスノナクロルを検出したと報告している。

3.3 ベンゾ[a]ピレン

EUにおいて、二枚貝におけるベンゾ[a]ピレンの許容最大基準値(10.0μg/kg wet weight)が設定⁵⁾されたため、新たに環境汚染物質の調査項目に追

加され平成20年11月から検査を開始しているものである。

平成20年11月から平成23年11月まで、7回調査しているが、すべて定量下限未満であり、検出は見られない。

4. まとめ

平成12年度から平成23年度までの陸奥湾東部海域のホタテガイ(貝柱、生殖巣)中の環境汚染物質調査結果をとりまとめたところ、PCB、有機塩素系農薬及びクロルデン類、ベンゾ[a]ピレンは、すべて定量下限未満であった。

文 献

- 1)古川章子ほか：対EU輸出ホタテガイ生産海域モニタリング検査における試験所認定制度の導入。青森県環境保健センター研究報告,15,12-23,2004
- 2)植山宝孝ほか：陸奥湾東部海域ホタテガイ中重金属濃度の調査結果。青森県環境保健センター研究報告,21,35-41,2010
- 3)工藤志保ほか：県産食品における有害物質残留量の経年的推移について。青森県環境保健センター研究報告,16,18-24,2006
- 4)新山和人ほか：北海道産魚介類中のクロルデン類残留に関する実態調査。北海道立衛生研究所報,46,18-24,1996
- 5)COMMISSION REGULATION(EC) No 1881/2006 of 19 December 2006 setting maximum levels for certain contaminants in foodstuffs

公共用水域におけるダイオキシン類モニタリング調査結果

工藤香織 野澤直史

平成23年度における青森県内の公共用水域水質及び底質のダイオキシン類調査結果は、水質及び底質ともに全地点において環境基準を達成しており、全地点の平均値は水質及び底質ともに平成22年度における全国平均値よりも低い値であった。また、ダイオキシン類の構成割合をみると、水質及び底質ともに毒性等量ではPCDDs及びPCDFsの合計が総濃度の90%以上を占める地点がほとんどであったが、実測濃度ではCo-PCBsの割合が高い地点もみられた。

Key words : Dioxins, PCDDs, PCDFs, Co-PCBs

1. はじめに

本県では、平成11年度から公共用水域（水質及び底質）におけるダイオキシン類モニタリング調査を外部委託により実施している。調査地点及び地点数は年度により異なるが、平成21年度以降は河川18地点、湖沼2地点、海域5地点の計25地点（うち継続調査地点：河川7地点、湖沼2地点、海域4地点の計13地点）で調査を実施している（図1のとおり）。

今回、平成23年度の調査結果を中心に、公共用水域におけるダイオキシン類の濃度レベル、組成の特徴について取りまとめたので報告する。

2. 方法

2.1 調査概要

(1) 調査地点

公共用水域水質25地点（河川18地点、湖沼2地点、海域5地点）及び底質10地点（河川8地点、海域2地点）

(2) 調査回数及び時期

水質については23地点が年1回、2地点が年2回、底質10地点については年1回調査を行った。

年1回の調査については夏季（7～8月）に、年2回の調査については夏季（7～8月）及び秋季（10月）に実施した。

(3) 測定方法

水質については「JIS K 0312（工業用水・工場排

水中のダイオキシン類の測定方法）」、底質については「ダイオキシン類に係る底質調査測定マニュアル（環境省）」に従った。

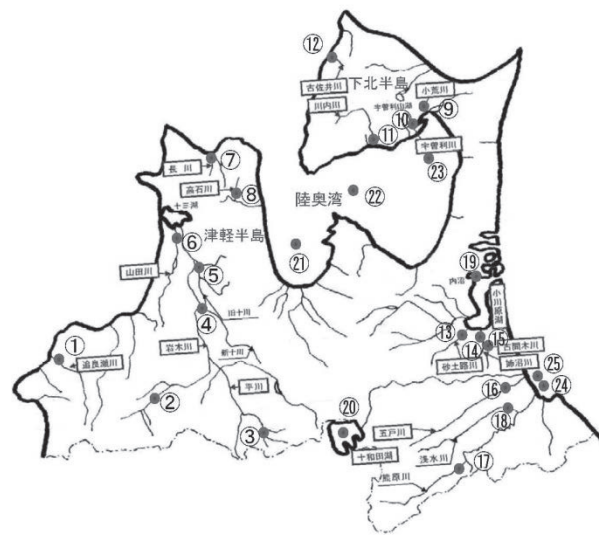


図1 調査地点図

2.2 解析方法

解析には、平成23年度におけるダイオキシン類の毒性等量及び実測濃度（年2回の調査地点については平均値）を用いた。また、継続調査地点（河川7地点、湖沼2地点、海域4地点）における経年変化には、毒性等価係数の見直しが行われた平成20年度以降の4年間の毒性等量を用いた。

3. 結果と考察

3.1 ダイオキシン類濃度

(1) 水質調査結果

平成23年度における水質のダイオキシン類濃度を図2に示した。全ての地点において環境基準（年平均値：1pg-TEQ/L以下）を達成していた。また、全地点の平均値は0.11pg-TEQ/L（濃度範囲：0.042~0.64pg-TEQ/L）であり、平成22年度の全国平均値¹⁾ 0.19 pg-TEQ/Lよりも低い値であった。

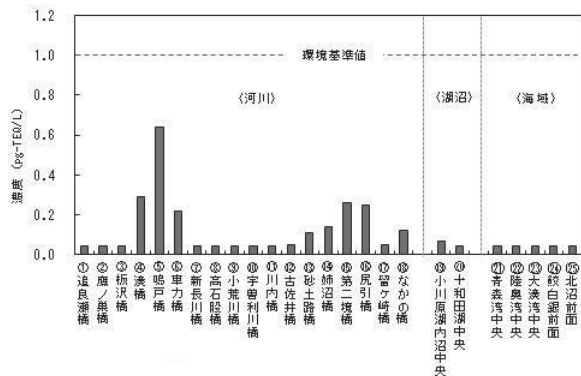


図2 ダイオキシン類濃度（水質）

(2) 底質調査結果

平成23年度における底質のダイオキシン類濃度を図3に示した。全ての地点において環境基準（150pg-TEQ/g以下）を達成していた。また、全地点の平均値は3.6pg-TEQ/g（濃度範囲：0.13~30pg-TEQ/g）であり、平成22年度の全国平均値¹⁾ 6.9 pg-TEQ/gよりも低い値であった。

なお、⑤を除いた9地点の平均値は0.65pg-TEQ/gであった。

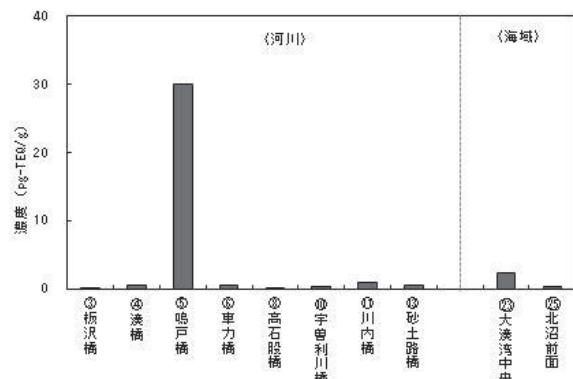


図3 ダイオキシン類濃度（底質）

(3) 水質における経年変化

継続調査地点について、河川、湖沼及び海域に区分し、平成20~23年度におけるダイオキシン類濃度の平均値を図4に示した。いずれも大きな変動はみられず、ほぼ横ばいで推移している。

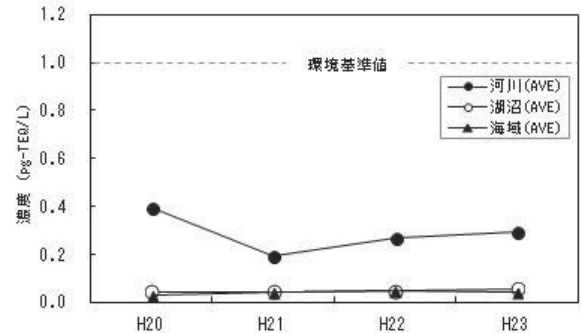


図4 継続調査地点における経年変化（水質）

3.2 ダイオキシン類の構成割合

(1) 水質におけるダイオキシン類の構成割合

毒性等量によるPCDDs、PCDFs、Co-PCBsの構成割合を図5に、実測濃度によるPCDDs、PCDFs、Co-PCBsの構成割合を図6に示した。毒性等量ではPCDDs及びPCDFsの合計が総濃度の90%以上を占める地点がほとんどであった。一方、実測濃度ではCo-PCBsの構成割合が高い地点が下北半島の河川2地点、陸奥湾の海域3地点でみられた。Co-PCBsの構成割合が高いこの5地点については、Co-PCBsの実測濃度が他の地点と比べ高いわけではなく、総濃度そのものが他の地点と比べて低く、割合としてみた場合、相対的に高くなったものである。

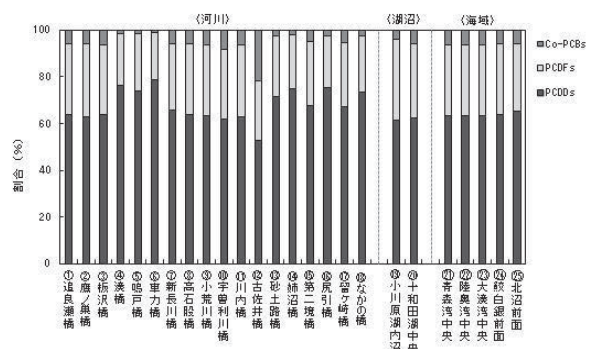


図5 毒性等量による構成割合（水質）

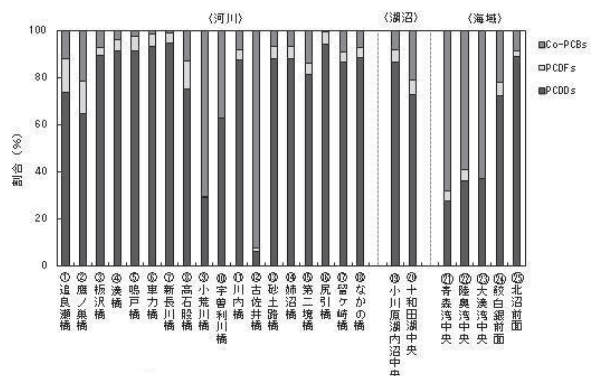


図6 実測濃度による構成割合（水質）

(2) 底質におけるダイオキシン類の構成割合

毒性等量による PCDDs、PCDFs、Co-PCBs の構成割合を図 7 に、実測濃度による PCDDs、PCDFs、Co-PCBs の構成割合を図 8 に示した。水質と同様、毒性等量では PCDDs 及び PCDFs の合計が総濃度の 90%以上を占める地点がほとんどであった。一方、実測濃度では Co-PCBs の構成割合が高い地点が下北半島の河川 1 地点のみでみられた。Co-PCBs の構成割合が高いこの地点については、Co-PCBs の実測濃度が他の地点と比べ高い値となっていた (図 9)。

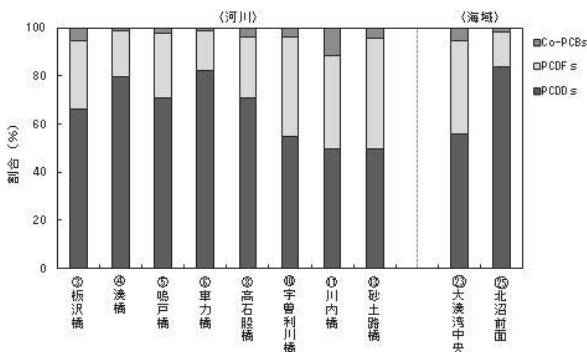


図 7 毒性等量による構成割合 (底質)

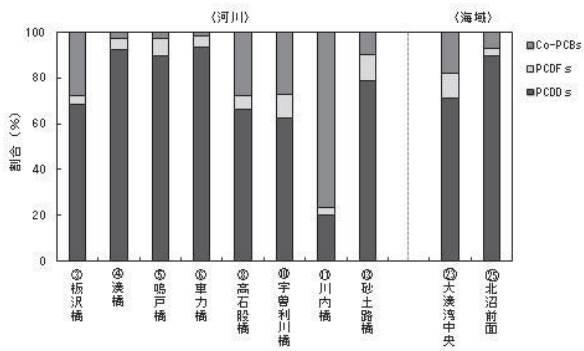


図 8 実測濃度による構成割合 (底質)

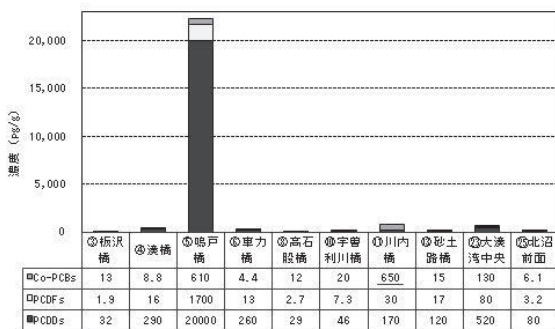


図 9 ダイオキシン類実測濃度 (底質)

(3) 水質における PCDDs/PCDFs の同族体組成比

水質において毒性等量が環境基準の 1/10 (0.1pg-TEQ/L) を超えた河川 8 地点を対象に、PCDDs/PCDFs の合計濃度に対する各同族体の組成比を図 10 に示した。8 地点とも TeCDDs 及び OCDD の割合が高く、その合計は全体の 80%以上を占めていた。TeCDDs や OCDD は過去に使用された農薬 PCP、CNP の不純物由来と推定されており^{2, 3)}、本県においても、この 8 地点周辺の田畑の占有状況を考慮すると、過去に使用された農薬の影響が示唆される。

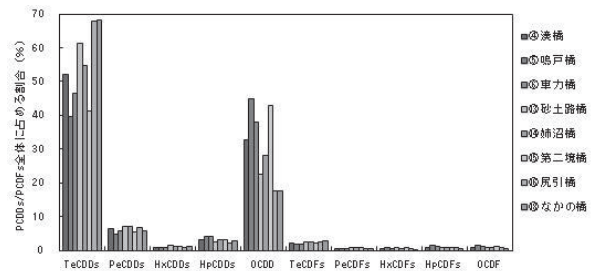


図 10 実測濃度による同族体組成比 (水質)

(4) 底質における PCDDs/PCDFs の同族体組成比

水質における毒性等量が 0.1pg-TEQ/L を超えた河川 8 地点のうち、底質の調査を実施した 4 地点の同族体組成比を図 11 に示した。底質においても TeCDDs 及び OCDD の割合が高く、その合計は水質と同様、全体の 80%以上を占めていた。

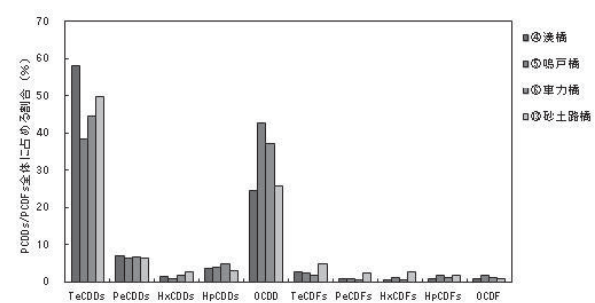


図 11 実測濃度による同族体組成比 (底質)

(5) 水質における Co-PCBs 異性体組成比

水質において Co-PCBs 実測濃度の高い河川 5 地点の異性体組成比を図 12 に示した。すべての地点で同様の検出パターンを示し、#118 の比率が最も高く、次いで#105、#156 とモノオルト体の割合が高い傾向がみられた。

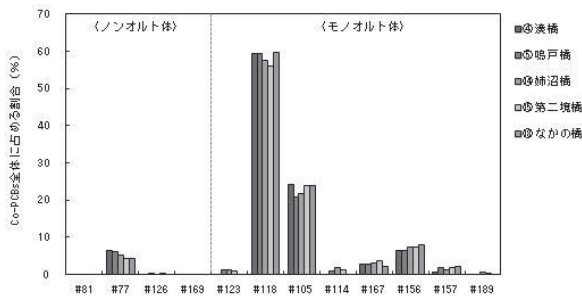


図 12 Co-PCBs 異性体組成比 (水質)

(6) 底質における Co-PCBs 異性体組成比

底質において Co-PCBs 実測濃度の高い 5 地点の異性体組成比を図 13 に示した。水質とほぼ同様の検出パターンを示し、モノオルト体の割合が高い傾向がみられた。

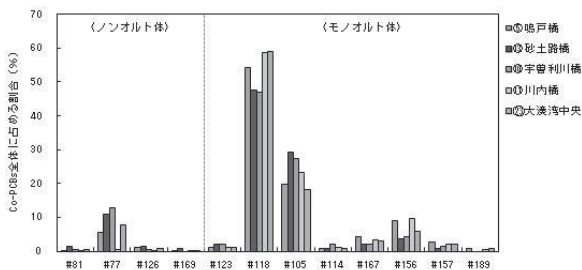


図 13 Co-PCBs 異性体組成比 (底質)

4. まとめ

平成 23 年度における公共用水域水質及び底質のダイオキシン類調査結果は、以下のとおりであった。

- 1) 県内の公共用水域におけるダイオキシン類濃度は、水質及び底質ともに全地点で環境基準を達成しており、それぞれの平均値は平成 22 年度における全国平均値よりも低い値であった。
- 2) 平成 20～23 年度における継続調査地点の水質中ダイオキシン類濃度は、河川、湖沼及び海域のいずれもほぼ横ばいで推移していた。
- 3) 水質におけるダイオキシン類の構成割合は、毒性等量では PCDDs 及び PCDFs の合計が総濃度の 90%以上を占める地点がほとんどであったが、実測濃度では Co-PCBs の構成割合が高い地点が河川で 2 地点、海域で 3 地点みられた。
- 4) 底質におけるダイオキシン類の構成割合は、毒性等量では PCDDs 及び PCDFs の合計が総濃度の 90%以上を占める地点がほとんどであったが、実測濃度では Co-PCBs の構成割合が高い地点が河川で 1 地点みられた。

- 5) 実測濃度による PCDDs/PCDFs の同族体組成比は、水質及び底質ともに TeCDDs 及び OCDD の割合が高く、その合計は全体の 80%以上を占めていた。
- 6) 実測濃度による Co-PCBs 異性体組成比は、水質及び底質ともに #118 の比率が最も高く、次いで #105 とモノオルト体の割合が高い傾向がみられた。

文 献

- 1) 環境省：平成 22 年度ダイオキシン類に係る環境調査結果（平成 24 年 3 月）
- 2) 益永茂樹，中西準子：日本の農薬中のダイオキシン類，1999 年環境化学会発表
- 3) 赤崎いずみほか：県内河川におけるダイオキシン類の分布状況及び発生由来の推定，宮崎県衛生環境研究所年報，19,75-80,2008

Ⅲ 他誌投稿・学会等発表抄録

他誌投稿抄録

一過性の麻痺を呈した患者からのエンテロウイルス 71 型の検出—青森県

筒井理華 東海林彰 古川紗耶香 三上稔之 沖栄真¹ 吉田弘²: IASR Vol. 33 p. 310-311: 2012 年 11 月号

2012 年 7 月に青森県 G 市の定点医療機関から搬入された麻痺を呈した患者検体から、エンテロウイルス 71 型 (EV71) が検出されたのでその概要について報告する。分離培養には、GMK、L20B、RD-A、HEp-2、HeLa、RD、Vero E6 の 7 種類の細胞を使用した。結果、咽頭ぬぐい液から EV71 が検出および分離され、糞便および直腸ぬぐい液からも EV71 が分離された。髄液からは検出および分離されなかった。分離された細胞はいずれも GMK、RD-A 細胞であった。また、EV71 は、A、B1~5、C1~5 ゲノグループに分類され、今回検出および分離された EV71 を VP4-VP2 領域の系統解析した結果、C2 ゲノグループに属した。麻痺発症後の各種検体から EV71 が検出されたが、ポリオウイルスは検出されなかった。OPV 接種と一過性麻痺発症の関連は不明だが、EV71 感染による中枢神経疾患が疑われる。

1 つがる西北五広域連合西北中央病院

2 国立感染症研究所

学会等発表抄録

2011 年 6 月から 8 月にかけて青森県で検出された RS ウイルスの分子疫学

筒井理華, 吉田綾子¹, 井上治², 野田雅博³, 木村博一³: 第 53 回日本臨床ウイルス学会, 2012.6.16~17 (豊中市)

本邦における RSV の流行は、冬期を中心に起こる場合が多い。しかし、2011 年は夏季においても例年に比し、患者発生が多く見られた。本県でも、黒石地域を主体に、夏季において RSV が多く検出された。今回、2011 年 6 月~8 月に検出された RSV(G 遺伝子)の分子疫学解析を行ったので以下に報告する。

解析の結果、塩基解析が可能であった 13 株は、RSV-A の 2 株が Genotype GA2、RSV-B の 11 株

全てが BA であった。検出株間の塩基配列相同性は RSV-A が 98.9%、RSV-B が 95.7~100%と高かった。また、C-末端可変領域において、いくつかのサイトでアミノ酸置換と positive selection が見られた。

昨年、本県も他県と同様に患者定点からの RSV 感染症患者報告数が夏季に増加し、特に黒石地域を主体に RSV が検出された。検出株には、G 遺伝子の C-末端可変領域において、positive selection と推定される変異が見られた。RSV は比較的流行が少ない夏季においても、地域流行を主体とした流行が見られることがあり、今後の動向に注意を払う必要があると思われた。

1 環境政策課

2 十和田食肉衛生検査所

3 国立感染症研究所

青森県内の呼吸器系ウイルス検出状況(2011 年 4 月~2012 年 3 月)

筒井理華 吉田綾子¹ 井上治² 三上稔之 安保亘³ 河内暁一⁴ 北澤淳一⁵ 野村由美子⁶ 佐藤澄人⁷ 中畑徹⁸ 小田誠⁹ 鈴木豊¹⁰ 葛西幹雄¹¹: 第 32 回青森感染症研究会, 2012.6.30(弘前市)

青森県における呼吸器系ウイルス感染症の発生動向を把握するため、2011 年 4 月から 2012 年 3 月に定点医療機関を受診した呼吸器疾患児由来検体から、ウイルスの検索を実施した。その結果、239 検体からウイルスが検出された。内訳は、ヒトライノウイルス(HRV)が 88 件、Respiratory syncytial ウイルス(RSV)44 件、ヒトメタニューモウイルス(HMPV)27 件、ヒトパラインフルエンザウイルス(HPIV)8 件、ボカウイルス(HBoV)15 件、エンテロウイルス(EV)14 件、アデノウイルス(AdV)15 件、インフルエンザウイルス(FluV)39 件が検出された。そのうち HRV 検出株について分子疫学解析を試み、HRV spicisA(-A)、HRV-B および HRV-C に分類され、遺伝学的に多様な株が流行していた可能性が示唆された。また、HRV-A は春から夏を中心に通年で発生し、HRV-B、HRV-C は冬季を中心に流行していたことが示唆された。

1 環境政策課

2 十和田食肉衛生検査所

3 青森県立中央病院

4 河内小児科内科クリニック

5 黒石市国民健康保険黒石病院

6 国立病院機構弘前病院

- 7 五所川原市立西北中央病院
- 8 下北医療センターむつ総合病院
- 9 十和田市立中央病院
- 10 八戸市立市民病院
- 11 弘前市立病院

青森県における結核発生動向（2007～2011）

大川郁子，三上稔之：平成 24 年度地研支部公衆衛生情報研究部会研修会，2012.11.2（福島県福島市）

感染症発生動向調査における県内の 2007～2011 年の結核患者発生数は、年により変動はあるが増加傾向が見られた。発生届の患者情報を集計すると、年齢層別では毎年 10 歳代以下は少なく、70 歳代以上は多く、50～60 歳代では増加傾向であった。病型別では、無症状病原体保有者が年毎に増加し、2011 年は 50%を超えていた。職業別では、医療関係職が年毎に増加していた。また医療関係職では、無症状病原体保有者の割合が、2007 年の 0%から 2011 年には 90%以上に増加した。

以上のことから、患者数増加傾向の要因として、感染の広がりも考えられるが、新しい検査方法により以前は診断できなかった患者が確認できるようになったことも考えられる。

編 集 者

工藤真哉 齋藤輝夫（研究報告部会長） 坂上博章
三上稔之 増田幸保 米谷康治
東海林 彰 工藤志保 工藤香織

青森県環境保健センター研究報告

（平成 24 年度）

平成 25 年 3 月発行

編 集 青森県環境保健センター



認定範囲

【化学試験】

水産毒： サンプリング・麻痺性貝毒

下痢性貝毒・記憶喪失性貝毒

微生物： ホタテガイのサルモネラ属菌検査

ホタテガイの大腸菌検査

発 行 〒030-8566 青森市東造道 1-1-1

電 話(017)736-5411 FAX(017)736-5419

メールアドレス KANKYOSENTA@pref.aomori.lg.jp

ホームページ <http://www.pref.aomori.lg.jp/soshiki/kankyo/kankyosenta/center-home.html>

印 刷 〒030-0803 青森市安方 2-17-3

会社名 ワタナベサービス（株）

電 話 （017）777-1388

当センターの研究報告は上記ホームページでご覧になれます。

（環境保護のため、再生紙を使用しています。）

この印刷物は 250 部作製し、印刷経費は 1 部当たり 336 円です。

