

研 究 報 告 編

原著論文

甲状腺末を含有する健康食品中の3,3',5-トリヨードチロニン及びチロキシンのHPLC分析法

森田邦正, 毛利隆美, 中川礼子

逆相系の高速液体クロマトグラフを使って, 甲状腺末を含有する健康食品中の 3,3',5-トリヨードチロニン及びチロキシンの分析法を検討した. 健康食品はメタノール及び水/メタノール (1:1) を用いて洗浄後, Pronase を用いて加水分解した. 3,3',5-トリヨードチロニン及びチロキシンは 2%アンモニア水メタノール溶液で抽出し, 固相抽出法(Bond Elut C18 カートリッジ)を用いてクリーンアップした. 高速液体クロマトグラフはカラムに Inertsil ODS-3 (4.6x 150mm, 5 μ m)を, 移動相に水/メタノール/リン酸 (500:500:1, v/v) を用い, 測定波長 230 nm で分析した. 本法による健康食品からの 3,3',5-トリヨードチロニン及びチロキシンの回収率は 70 ~ 80%, 定量下限値は 3,3',5-トリヨードチロニンが 0.8 μ g/g, チロキシンが 1.4 μ g/g であった.

[キーワード : 甲状腺, 3,3',5-トリヨードチロニン, チロキシン, HPLC, 固相抽出法, 健康食品]

1 はじめに

乾燥甲状腺は食用獣の甲状腺をとり乾燥した淡黄色～灰褐色の粉末で, わずかに特異な肉臭がある. 甲状腺内の3,3',5-トリヨードチロニン(T₃)及びチロキシン(T₄)はタンパク質と結合してチログロブリンの形で胞内に貯蔵されている. チログロブリンはタンパク分解酵素の作用によって分解され, T₃及び T₄が血中に遊離し, ホルモン作用を呈する. 乾燥甲状腺末は生体の基礎代謝を高める作用があり, 粘液水腫, クレチン症, 甲状腺機能低下症, 甲状腺腫等の治療薬として適応される. 治療開始時, 乾燥甲状腺末は15~40mg/day から投与し, 副作用のないことを確認し, 6~9週間で維持量40~200mg/day に増量する. 過量になると甲状腺機能亢進時にみられる各種の副作用が現れる. パセドウ病のような症状や精神病のような症状を伴う. 頻脈, 心悸亢進, 月経不順, 無月経, 精神不安定及び下痢等の諸症状が頻度が高い. 300mg/day 以上の連用で, なかには3ヶ月くらいの短期服用でも見られる例がある¹⁾. 乾燥甲状腺末は1965年頃, 痩身目的で「やせ薬」として乱用されたことがある¹⁾. 平成12~14年にダイエット用健康食品に混入され, 全国的に甲状腺機能亢進ような症状を伴う健康被害が多数発生した.

乾燥甲状腺末中の T₃及び T₄ を測定する方法として, 甲状腺組織中のチログロブリンをタンパク分解酵素を用いて加水分解後, HPLC で定量する方法が米国薬局方

(USP: United States Pharmacopeia) に報告されている²⁾. さらに, 血中の T₄ を固相抽出し LC/MS で測定する方法³⁾や健康食品中の T₃及び T₄ を LC/MS で測定する方法⁴⁾が報告されている. しかし, 甲状腺末が混入された健康食品中には, 各種の妨害成分が存在するため, これらの方法で HPLC を用いて測定することは困難である. そこで, 2種類の健康食品を用いて, 甲状腺末を含有する健康食品中の T₃及び T₄の HPLC 分析法を検討した.

2 実験方法

2・1 試薬

乾燥甲状腺末は帝国臓器製薬(株)製の日本薬局方品を用いた. Tris(hydroxymethyl) aminomethane は和光純薬工業(株)製, 2-Mercapto-1-methylimidazole は Aldrich 製, Pronase は Calbiochem Novabiochem 製 No537088, メタノールは和光純薬工業(株)製の HPLC 分析用を用いた.

T₃及び T₄標準原液は3,3',5-トリヨードチロニンナトリウム(Sigma 製)を10.3mg, チロキシナトリウム5水和物(Sigma 製)を11.4mg 秤量し, 2%アンモニア水-メタノールを加えて100ml とし冷暗所に保存した. 用時, この液1~5ml をとり2%アンモニア水-メタノールを加えて50ml としたものを標準溶液とした.

酵素緩衝液は0.11M 塩化ナトリウム, 0.04M Tris(hydroxymethyl) aminomethane 及び0.05M 2-Mercapto-

1-methylimidazole を 6M 塩酸で、pH8.4±0.05 に調製し冷暗所に保存した。Pronase 溶液は Pronase 90mg を秤量し、酵素緩衝液を加え30ml としたものを用時調製した。

固相抽出には Varian 製の Bond Elut C18 カートリッジ (500 mg, 3 ml) を用いた。

2%アンモニア水-メタノール溶液はアンモニアを2%含むメタノール溶液を調製した。

2・2 装置

紫外吸光度検出器 (SPD-10AV) 及びデータ処理装置 (C-R3A) 付 HPLC は島津製作所 (株) 製の LC10A を、カラムは GL サイエンス (株) 製の InertsilODS-3 (4.6×150 mm, 5 μm) を使用した。

2・3 実験操作

2・3・1 乾燥甲状腺末中の T₃ 及び T₄ の分析法

乾燥甲状腺末の分析法は USP の方法²⁾ に準じて作成したが、抽出溶剤は1%リン酸アセトニトリル溶液からメタノールに変更した。加水分解時間は小坂ら⁴⁾の実験結果から18~20時間とした。乾燥甲状腺末20mg を10ml の試験管に秤量し、Pronase 溶液3ml を加え、窒素ガスを約1分間流す。試験管を遮光し、37℃で18~20時間、時々振り混ぜながら加水分解する。試料の Pronase 溶液を遠心分離後、水層を採取し残渣にメタノール1ml を加え振とう抽出する。遠心分離後、メタノール層を採取し水層と合わせ、2%アンモニア水-メタノールを加えて5ml とする。

2・3・2 乾燥甲状腺末を含有する健康食品中の T₃ 及び T₄ の分析法

健康食品0.2g を10ml の試験管に秤量し、メタノール8ml 及び水/メタノール (1:1, v/v) 8ml でそれぞれ2回洗浄し (それぞれ30分間及び15分間振とう抽出)、遠心分離後上層の洗浄液は捨てる。これに Pronase 溶液3ml を加え、窒素ガスを約1分間流す。試験管を遮光し、37℃で18~20時間、時々振り混ぜながら加水分解する。試料の Pronase 溶液を遠心分離後、水層を採取し残渣に2%アンモニア水-メタノール2ml を加え2回振とう抽出する。2%アンモニア水-メタノール抽出液を窒素ガス中40~50℃で0.8ml 以下に濃縮後、水層と合わせ、メタノールを加えて4ml とする。Bond Elut C18 カートリッジはメタノール2ml, 水2ml を順次流しコンデショニングする。4ml の試料抽出液から2ml を採取し、水を加えて5ml に希釈する。これを Bond Elut C18 カートリッジに流し T₃ 及び T₄ を保持させた後、水2ml 及び水/メタノール (8:2, v/v) 4ml で洗浄する。2%アンモニア水-メタノール3ml を流し T₃ 及び T₄ を溶出する (初液5-6滴は捨てる)。溶出液は窒素ガス気流下40~50℃で1ml 以下まで濃縮後、2%アンモニア水-メタノールを加えて1ml にし試料溶液とする。

2・3・3 T₃及びT₄のHPLC測定条件

カラム	InertsilODS-3 (4.6×150 mm)
移動相	水/メタノール/リン酸 (50:50:0.1, v/v)
流量	1.2 ml/min
カラム温度	45℃
注入量	10 μl
測定波長	230 nm
保持時間	T ₃ : 7.9分, T ₄ : 16.1分

3 結果及び考察

3・1 乾燥甲状腺末から生成される T₃ 及び T₄ 量

治療薬としての乾燥甲状腺末の用量は15~40mg/day であることから、10~50mg の乾燥甲状腺末に Pronase 溶液3ml を加え、実験操作に従って乾燥甲状腺末から生成する T₃ 及び T₄ 量を測定した (n=1)。その結果、乾燥甲状腺末10~50mg の範囲内でほぼ一定の T₃ 及び T₄ の生成量がみられ、1 g の乾燥甲状腺末当たり T₃ が341~387 μg 及び T₄ が1175~1279 μg 生成した (図1)。

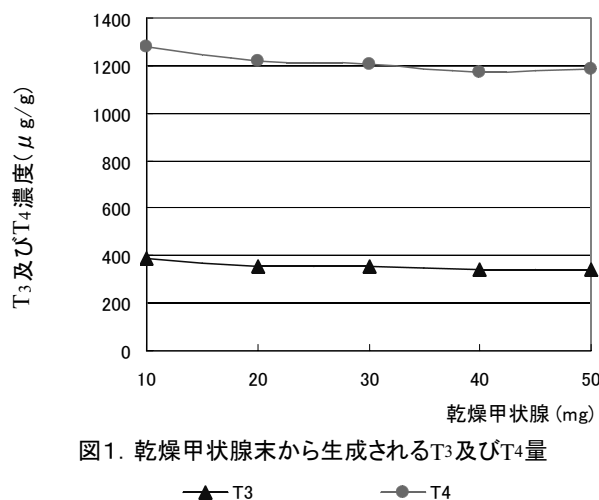


図1. 乾燥甲状腺末から生成される T₃ 及び T₄ 量

3・2 乾燥甲状腺末のメタノール及び水/メタノール (1:1) 洗浄が T₃ 及び T₄ の生成に及ぼす影響

健康食品には各種の植物やその抽出成分が混入され HPLC 測定の妨害となりやすい。また甲状腺末を含む健康食品の Pronase 処理において、チログロブリンの加水分解が妨害されることが報告されている⁴⁾。健康食品に含まれる夾雑成分をあらかじめ除去する目的で、乾燥甲状腺末20mg をメタノール8ml で2回 (それぞれ30分間及び15分間振とう抽出) 洗浄後、さらに水/メタノール (1:1, v/v) 8ml で2回 (それぞれ30分間及び15分間振とう抽出) 洗い、洗浄による T₃ 及び T₄ の生成への影響を検討した。図2(A)に T₃ 及び T₄ の標準溶液、図2(B)に乾燥甲状腺末の試料溶液の HPLC クロマトグラムを示す。

表 1 乾燥甲状腺末のメタノール及び水／メタノール（1:1）
洗浄によるT₃及びT₄生成への影響

	T ₃	T ₄
	μg/g ± 標準偏差	
乾燥甲状腺末（未洗浄）	357.4±7.6	1218.7±31.3
乾燥甲状腺末（洗浄）	357.0±8.1	1222.6±14.2

乾燥甲状腺末量 20mg, 実験回数 (n=5)

未洗浄の乾燥甲状腺末の T₃及び T₄量はそれぞれ 357.4 μg/g 及び 1218.7 μg/g, 変動係数 2.6% 以内であった (表1)。一方, 洗浄した乾燥甲状腺末の場合, T₃及び T₄量はそれぞれ 357.0 μg/g 及び 1222.6 μg/g, 変動係数 2.3% 以内であった。洗浄による乾燥甲状腺末の損失及び加水分解への影響は認められなかった。

市販されている健康食品 A (納豆菌を含有するダイエット用健康食品) 0.2g に乾燥甲状腺末 20mg を添加後, 2・3・2の実験操作に従って試料溶液を調整した。図 2 (C) にメタノール及び水／メタノールで洗浄した健康食品 A の HPLC クロマトグラムを示す。図 2 (B) の乾燥甲状腺末のクロマトグラムと比べて T₃の前のピークが洗浄の効果により除去されている。図 2 (E) のメタノール及び水／メタノール未洗浄の健康食品 A のクロマトグラムでは T₃及び T₄のピークが多くの妨害成分と重なり定量することはできない。この洗浄方法を用いた場合, Pronase による加水分解時の乾燥甲状腺末から生じる成分及び健康食品に存在する HPLC 測定の妨害成分をかなり除けるものと考えられた。

3・3 酵素処理後の共存物質の除去

乾燥甲状腺末の用量 (維持量) は約 50mg/day である。健康食品には 1日当たりの用量が 15錠以上と多いものがある。用量が多い健康食品 (乾燥甲状腺末 50mg/4.5g/15錠) の場合, 試料 0.2 g を秤量すると乾燥甲状腺末として 2.2mg, 表 1 から T₃及び T₄量としてそれぞれ約 0.8 μg 及び 2.7 μg となり, HPLC で定量するためには試料溶液を濃縮する必要がある。このことから, Bond Elut C18 カートリッジを用いてクリーンアップし, 溶出液を濃縮する方法を検討した。乾燥甲状腺末 20mg を用いて, 乾燥甲状腺末の実験操作に従って調製した T₃及び T₄の試験溶液を用いて, 2%アンモニア水-メタノールの溶出量を検討した。その結果, T₃及び T₄は 0~3ml に 100% 溶出したことから, 2%アンモニア水-メタノール溶液量は 23 ml とした。実試料の測定時には溶出液を

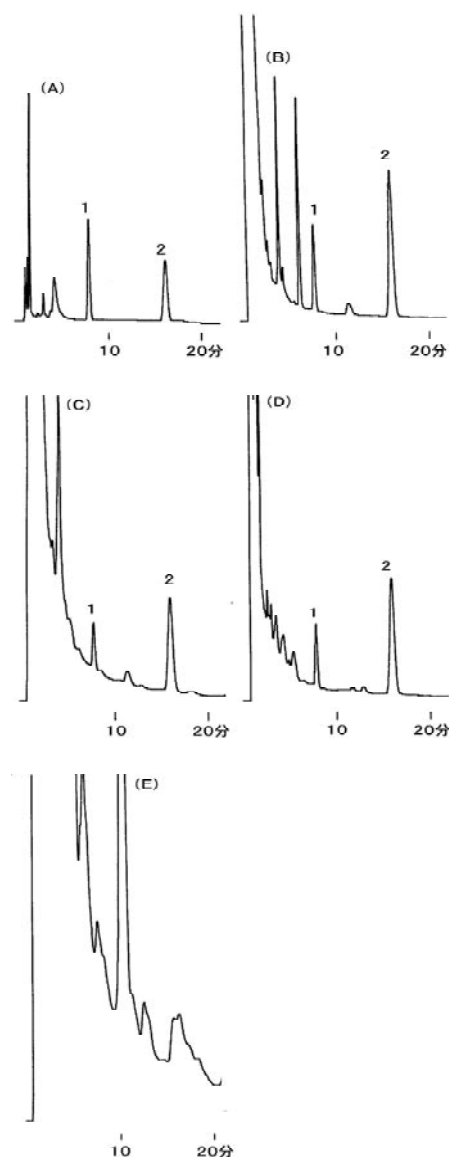


図 2 標準溶液 (A, T₃及びT₄各々 19 ng), 乾燥甲状腺末 20 mg (B), メタノール及び水／メタノールで洗浄した健康食品 (C), Bond Elut C18 カートリッジ処理した健康食品 (D) 及びメタノール及び水／メタノール未洗浄の健康食品 (E) の HPLC クロマトグラム
1, T₃; 2, T₄

窒素ガス気流下で濃縮後, 2%アンモニア水-メタノールを加え 1ml にした。図 2 (D) に Bond Elut C18 カートリッジで処理した健康食品 A の HPLC クロマトグラムを示す。図 2 (C) のメタノール及び水／メタノールで洗浄後のクロマトグラムと比べて (D) のクロマトグラムは T₃の前の成分が効果的に除去されている。しかし, 1日当りの用量が 3錠あるいは 3カプセル以下の健康食品や共存物質が少ないと考えられる健康食品の場合は, Bond Elut C18 の操作を省いて T₃及び T₄を定量することが十分可能である。

3・4 回収率と再現性

健康食品 A 及び B (納豆菌を含有するダイエット用健

健康食品)を用いて添加回収実験を行った。健康食品0.2gに乾燥甲状腺末20mgを添加後、実験操作に従って回収率を求めた。繰り返し実験は5回行い、その結果を表2に示した。

表2 健康食品からのT₃及びT₄の添加回収試験結果

	T ₃	T ₄
	回収率 ± 標準偏差	
健康食品 A		
Bond Elut C18 処理前	70.7±2.5	69.8±0.6
Bond Elut C18 処理後	71.1±0.9	68.0±1.0
健康食品 B		
Bond Elut C18 処理前	77.2±1.7	79.8±1.9
Bond Elut C18 処理後	81.5±2.7	78.2±2.8

健康食品A及びBにおいてT₃及びT₄は未検出であった。健康食品0.2gに乾燥甲状腺末20mgを添加した。実験回数 (n=5)。

健康食品 A の場合、Bond Elut C18処理前の回収率は T₃が70.7% (68.7～74.8%) 及び T₄が69.8% (68.8～70.1%) であり、Bond Elut C18処理後の回収率は T₃が71.1% (70.3～72.6%) 及び T₄が68.0% (66.9～69.3%) であった。健康食品 B の場合、Bond Elut C18処理前の回収率は T₃が77.2% (74.7～79.1%) 及び T₄が79.8% (76.8～82.0%) であり、Bond Elut C18処理後の回収率は T₃が81.5% (77.0～83.4%) 及び T₄が78.2% (73.9～80.9%) であった。変動係数はいずれも3.5%以内でありほぼ満足する結果がえられた。しかし、回収率は若干低い傾向にあった。小坂らは T₃及び T₄は吸着性が高く、酢酸エチル抽出液をろ紙でろ過するろ紙に吸着し極端に回収率が低下すると報告している⁴⁾。

そこで、健康食品を酵素処理し2%アンモニア水-メタノール2ml で2回抽出した後、その残渣に2%アンモニア水-メタノール2ml を加え1回抽出した結果、T₃及び T₄が健康食品 A の場合約4%、健康食品 B の場合約3%回収され、少量が抽出残渣に残留していることが分かった。回収率の低下の原因は加水分解処理後の試料に T₃及び T₄

が吸着し、抽出が非常に困難なことによるものと考えられた。実験操作 2・3・2 で2%アンモニア水-メタノール抽出液の代わりに乾燥甲状腺末の分析法に示したメタノールを用いた場合、健康食品 A の T₃及び T₄の回収率が17.2～17.8%低下した。それゆえ実試料の抽出液には2%アンモニア水-メタノール溶液を用いた。本法による T₃及び T₄の定量下限値は T₃が0.8 µg/g 及び T₄が1.4 µg/g であった。

健康被害の発生するおそれが否定できない中国製ダイエット用健康食品として厚生労働省のホームページ上に公表されている健康食品9品目を入手し測定した。その結果、その含有量は T₃が17.5 µg/g (7.6～23.6 µg/g)、T₄が54.6 µg/g (15.1～76.3 µg/g) であった。乾燥甲状腺末量に換算すると、約45.7mg/g (14.4～63.4mg/g) に相当する。この9品目の測定値は試料をメタノール及び水/メタノールで洗浄したものあるいは未洗浄のものであり、いずれも Bond Elut C18未処理の検体である。なお、本法を応用する際の注意点として、T₃及び T₄は洗剤で落ちにくいため、試験に使用したガラス器具は1～2 N の硫酸等ですすぎ洗いの必要がある。

4 まとめ

甲状腺末を含有する健康食品中の T₃及び T₄の HPLC 分析法を検討した。その結果、試料を Pronase を用いて加水分解する前にメタノール及び水/メタノールを用いて洗浄することにより共存物質を効果的に除去することができた。また、Pronase で加水分解後の抽出液を Bond Elut C18 カートリッジ処理することにより、さらに共存物質を除去することができた。また、回収率、再現性ともにほぼ満足する結果が得られた。

文献

- 1) 日本薬局方解説書編集委員会：第13改正日本薬局方解説書、(pp. D332-336)；東京：廣川書店、1998。
- 2) The United States Pharmacopeia 24th：United States Pharmacopeial Convention Inc.，1655-1656，2000。
- 3) Tai S et al.：Clin. Chem.，48，637-642，2002。
- 4) 小坂妙子・浜田洋彦：食衛誌，43，225-229，2002。

Analysis of 3,3',5-Triiodo-L-thyronine and L-thyroxine in Health Foods containing the Thyroid by HPLC

Kunimasa MORITA, Takami MOHRI and Reiko NAKAGAWA

*Fukuoka Institute of Health and Environmental Sciences,
Mukaizano 39, Dazaifu, Fukuoka 818-0135, Japan*

A reverse-phase HPLC method for determining 3,3',5-triiodo-L-thyronine (T₃) and L-thyroxine (T₄) in health foods is described. A sample was washed with methanol and methanol/water (1:1, v/v), before hydrolyzing using a Pronase at 37 °C for 18 h. T₃ and T₄ was extracted with 2% ammonium hydroxide in methanol. The sample solution for HPLC was applied to solid phase extractions (Bond Elut C18) with 2% ammonium hydroxide in methanol as mobile phase. The HPLC analysis was carried out on a column of InertsilODS-3 (4.6 x 150 mm, 5 µm) with H₂O/CH₃OH/H₃PO₄ (650:350:5, v/v) as mobile phase and the eluate was monitored by UV detection at 230 nm. The average recovery of T₃ and T₄ from the health food sample was 70-80%. The quantitation limits of this method of T₃ and T₄ were 0.8 and 1.4 µg/g, respectively.

[Key words; Thyroid, 3,3',5-triiodo-L-thyronine, L-thyroxine, HPLC, Solid phase extractions, Health Food]

原著論文

健康食品中のリオチロニンナトリウム及びレボチロキシニンナトリウムの HPLC 分析法

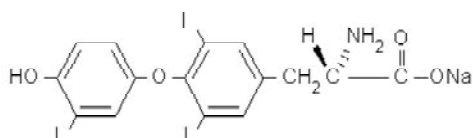
森田邦正, 毛利隆美, 中川礼子

逆相系の高速液体クロマトグラフを使って, 健康食品中のリオチロニンナトリウム及びレボチロキシニンナトリウムの分析法を検討した. 健康食品中のリオチロニンナトリウム及びレボチロキシニンナトリウムは 0.1 %酢酸メタノールを用いて抽出し, 固相抽出法(Bond Elut Certify カートリッジ)を用いて, 2 %アンモニア水-メタノール溶液でクリーンアップした. 高速液体クロマトグラフはカラムに Inertsil ODS-3 (4.6 x 150 mm, 5 μ m)を, 移動相に水:アセトニトリル:酢酸 (650:350:5, v/v)を用い, 測定波長 230 nm で分析した. 本法による健康食品からのリオチロニンナトリウム及びレボチロキシニンナトリウムの回収率は 77 ~ 82%, 定量下限値は リオチロニンナトリウムが 0.5 μ g/g, レボチロキシニンナトリウムが 0.7 μ g/g であった.

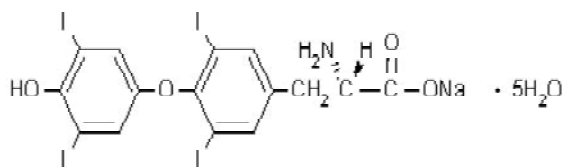
[キーワード: リオチロニンナトリウム, レボチロキシニンナトリウム, HPLC, 固相抽出法, 健康食品]

1 はじめに

リオチロニンナトリウム (T_3Na) 及びレボチロキシニンナトリウム (T_4Na) は合成甲状腺ホルモンである. 白色粉末でエタノールにややとけにくく, 水にほとんど溶けない. 水酸化ナトリウム試液やアンモニア試液に溶ける. 化学式は T_3Na が $C_{15}H_{11}I_3NNaO_4$ (m. w. 672. 96), T_4Na が $C_{15}H_{10}I_4NNaO_4$ (m. w. 798. 86) である¹⁻²⁾.



リオチロニンナトリウム (T_3Na)



レボチロキシニンナトリウム (T_4Na)

T_3Na 及び T_4Na は組織の基礎代謝を増大させ, 粘液水腫, クレチン病, 甲状腺機能低下症, 慢性甲状腺炎の治療薬として適応される. T_3Na は初回量 5~25 μ g/day から開始し, 1~2週間で漸次増量し, 維持量 25~75 μ g/day とする. T_3Na は他の甲状腺ホルモン製剤より効果の持

続が短い (生物学的半減期 2 日以内), 発現が早く, 活性も T_4Na の約 4 倍である. T_4Na は初回量 25~100 μ g/day から投与を開始し, 維持量 100~400 μ g/day まで増量する¹⁻²⁾. 体内の T_4Na は約 80% が T_4 から T_3 に脱ヨード化反応を受け活性を発現し, 生物学的半減期が 6~7 日と長い. 血中の甲状腺ホルモンの 99% 以上がグロブリンやアルブリンと結合し, 肝臓でジヨードチロニンに脱ヨード化, あるいはグロクロン酸及び硫酸抱合体に代謝され胆汁及び消化管内に排泄された後, 腸管循環される³⁾. 甲状腺ホルモンは初期に腎臓から排泄され, 結腸に達した抱合体は糞中に排泄される. T_3Na はサイロニン, チロナミンの製品名で 5 μ g 及び 25 μ g 含まれる錠剤が販売され, T_4Na はチラージン S の製品名で 1 錠中 25 μ g 及び 50 μ g 含まれる錠剤と 1 g 中 100 μ g 含まれる散剤が販売されているが⁴⁾, 肥満の治療のために使用される医薬品ではない.

T_3Na 及び T_4Na の過剰投与により, 心悸亢進, 脈拍増加, 不整脈, 狭心症等の循環器症状, 振戦, 不眠, 頭痛, めまい, 発汗, 神経過敏, 興奮, 不安感, 躁うつ等の精神症状, 食欲不振, 嘔吐, 下痢等の消化器症状や筋肉痛, 月経障害, 体重減少, 脱力感, 皮膚の潮紅等の症状が現れることがある. またまれに肝機能障害がある¹⁻²⁾.

健康食品中の T_3Na 及び T_4Na の分析法は報告されていない. T_3Na 及び T_4Na の測定方法として逆相カラムと移動相にアセトニトリル/水/リン酸 (40:60:0. 5, v/v)⁴⁾, アセトニトリル/水 (60:40, v/v)⁵⁾, メタノール/水/リン酸 (50:50:0. 1, v/v)⁶⁾を用いた HPLC 法が報告され

ている。しかし、いずれも錠剤の試験法であり、健康食品に適用するにはクリーンアップ法の検討が必要である。

2 実験方法

2・1 試薬

T₃Na 及び T₄Na 標準原液は T₃Na (Sigma 製) を10.0 mg, T₄Na 5水和物 (Sigma 製) を11.1mg 秤量し、2%アンモニア水-メタノールを加えて100 ml とし冷暗所に保存した。用時、標準原液1~5ml をとり2%アンモニア水-メタノールを加えて50ml としたものを標準溶液とした。

メタノールは和光純薬工業 (株) 製の HPLC 分析用を用いた。固相抽出には Varian 製の Bond Elut Certify カートリッジ (LRC, 300mg, 10ml) を用いた。

2%アンモニア水-メタノール溶液はアンモニアを2%含むアンモニア水-メタノール溶液を調整した。

2・2 装置

紫外吸光度検出器 (SPD-10AV) 及びデータ処理装置 (C-R3A) 付 HPLC は島津製作所 (株) 製の LC10A を、カラムは GL サイエンス (株) 製の Inertsil ODS-3 (4.6×150mm, 5 μ m) を使用した。

2・3 実験操作

2・3・1 T₃Na 及び T₄Na の分析法

健康食品0.1g を10ml の試験管に秤量し、0.1%酢酸メタノール2ml を加え、10分間振とう抽出する。2500 rpm で遠心分離した後、メタノール層を採取する。残渣に0.1%酢酸メタノール2ml を加え、さらに1回抽出する。抽出液を合わせ、水を加えて10ml とする。Bond Elut Certify カートリッジ (LRC, 300mg, 10ml) にメタノール2ml, 水2ml, 酢酸 (1→1000) 2ml を順次流しコンデショニングする。抽出溶液10ml を Bond Elut Certify カートリッジに流し T₃Na 及び T₄Na を保持させた後、水2 ml 及びメタノール2ml で洗浄する。2%アンモニア水-メタノール溶液4ml を流し T₃Na 及び T₄Na を溶出する。初液1ml を捨て、2-4ml を採取する。溶出液は窒素ガス気流下40~50℃で乾固し、2%アンモニア水-メタノール溶液0.5ml を加え、試料溶液とする。

2・3・2 T₃Na 及び T₄Na の HPLC 測定条件

カラム	Inertsil ODS-3 (4.6×150mm)
移動相	水/アセトニトリル/酢酸 (65:35:0.5, v/v)
流量	1 ml/min
カラム温度	40℃
注入量	10 μ l
測定波長	230 nm
保持時間	T ₃ Na : 4.5分, T ₄ Na : 8.0分

3 結果及び考察

3・1 共存物質の除去

試料抽出液中の共存物質を Bond Elut Certify カートリッジを用いて除去する方法を検討した。T₃Na 及び T₄Na をそれぞれ40 μ g Bond Elut Certify に保持させ、2%アンモニア水-メタノール溶液の溶出量を検討した。その結果、2%アンモニア水-メタノール溶液0~1ml では T₃Na 及び T₄Na 溶出量は添加量のそれぞれ0%であった。溶出液1~2ml ではそれぞれ82.1%及び89.0%, 2~3ml では7.1%及び8.1%, 3~4ml ではそれぞれ1.3%, 溶出液4~5ml では T₃Na 及び T₄Na 溶出量は添加量のそれぞれ1%以下であった。このことからクリーンアップ操作において、2%アンモニア水-メタノール溶出量は4ml とした。実試料の測定時には溶出液を窒素ガス気流下で乾固した後、2%アンモニア水-メタノール溶液を加え0.5ml にした。図1に標準溶液及び添加回収試験で得られた健康食品 A の HPLC クロマトグラムを示した。このクリーンアップ操作によって共存物質を効果的に除去することができた。

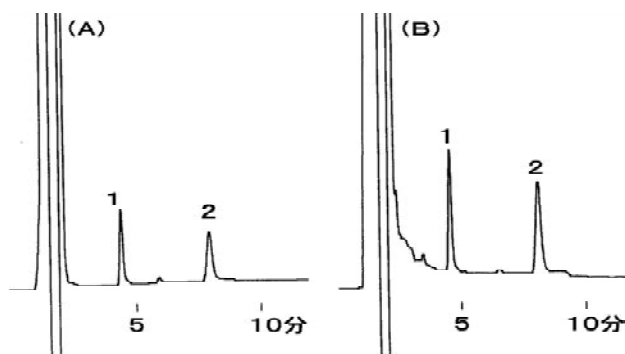


図1 標準溶液 (A, T₃Na 及び T₄Na 各々25ng) 及び健康食品A (B) の HPLC クロマトグラム 1, T₃Na; 2, T₄Na

3・2 T₃Na 及び T₄Na の回収率と再現性

市販されている健康食品 A 及び B (納豆菌を含有するダイエット用健康食品) を用いて添加回収試験を行った。健康食品0.1 g に T₃Na 及び T₄Na をそれぞれ2.5 μ g を添加し実験操作に従って回収率を求めた。繰り返し実験は5回行い、その結果を表1に示した。

健康食品 A の回収率は T₃Na が76.7% (72.9~80.5%), T₄Na が77.8% (76.0~80.5%) であった。健康食品 B の回収率は T₃Na が81.2% (74.9~85.9%), T₄Na が81.7% (75.7~86.5%) であった。変動係数はいずれも5%以内でありほぼ満足する結果を得た。本法による定量下限値は T₃Na が0.5 μ g/g, T₄Na が0.7 μ g/g であった。本法を用いてダイエット用健康食品5種類について応用したが、いずれも未検出であった。

表 1 健康食品からのT₃Na及びT₄Naの
添加回収試験結果

	T ₃ Na	T ₄ Na
	回収率±標準偏差**	
健康食品 A*	76.7±3.0	77.8±1.9
健康食品 B*	81.2±4.1	81.7±4.1

* 健康食品A及びBにおいてT₃Na及びT₄Naは未検出であった。

**健康食品0.1gを採り、T₃Na及びT₄Naをそれぞれ2.5 µg添加した。実験回数 (n=5)

4 まとめ

健康食品中の T₃Na 及び T₄Na の HPLC 分析法を検討した。その結果、Bond Elut Certify カートリッジを用い効果的に共存物質を除去することができた。また、回収率、再現性ともにほぼ満足する結果を得た。

文献

- 1) 日本薬局方解説書編集委員会：第13改正日本薬局方解説書，(pp. C2642-2646)；東京：廣川書店，1998.
- 2) 日本薬局方解説書編集委員会：第13改正日本薬局方解説書，(pp. C2838-2844)；東京：廣川書店，1998.
- 3) FDA Talk Paper on Unithyroid Approval，(8/22/2000)，1-14，2000.
- 4) 日本医薬情報センター：日本医薬品集；東京：薬業時報社，2000.
- 5) R. L. Garnick et al. : J. Pharm. Sci. , 73, 75-77, 1984.
- 6) S. L. Richheimer & T. M. Amer : J. Pharm. Sci. , 72, 1349-1351, 1983.
- 7) R. S. Rapaka et al. : J. Pharm. Sci. , 70, 131-134, 1981.

Analysis of Liothyronine Sodium and Levothyroxine Sodium in Health Foods by HPLC

Kunimasa MORITA, Takami MOHRI and Reiko NAKAGAWA

*Fukuoka Institute of Health and Environmental Sciences,
Mukaizano 39, Dazaifu, Fukuoka 818-0135, Japan*

A reverse-phase HPLC method for determining liothyronine sodium (T₃Na) and levothyroxine sodium (T₄Na) in health foods is described. T₃Na and T₄Na in health foods was extracted with 0.1% acetic acid in methanol. The sample solution for HPLC was applied to solid phase extractions (Bond Elut Certify) with 2% ammonium hydroxide in methanol as mobile phase. The HPLC analysis was carried out on a column of Inertsil ODS-3 (4.6 x 150 mm, 5 µm) with H₂O/CH₃CN/CH₃COOH (650:350:5, v/v) as mobile phase and the eluate was monitored by UV detection at 230 nm. The recovery of T₃Na and T₄Na from the health food sample was 77-82%. The quantitation limits of this method of T₃Na and T₄Na were 0.5 and 0.7 µg/g, respectively.

[Key words; Liothyronine sodium, Levothyroxine sodium, HPLC, Solid phase extractions, Health Food]

原著論文

採水用器材に由来する鉛汚染事例

石橋融子^{*1}, 松尾宏^{*1}, 中村又善^{*1}, 笹尾敦子^{*2}, 上田修^{*3}

海水試料から環境基準値(0.01mg/l)を超える鉛が検出された。鉛が基準値を超過した原因を検討した結果、採水を行った委託業者が使用していたハイロート採水器が汚染源であることがわかった。このハイロート採水器の台座の中のおもりには鉛が使用されていた。また、台座接合部には隙間があり、海水が容易に侵入できる構造となっていた。よって、おもりの鉛表面に鉛の化合物(Laurionite 及び Cerussite)を主成分とする白色粉体が生成し、それが、試料容器に海水を入れる際、台座部に侵入した海水とともに試料容器に混入したことにより、鉛汚染を引き起こしたものと考えられた。

[キーワード:鉛, 安定同位体, Laurionite, Cerussite, ハイロート採水器]

1 はじめに

2002年7月に海水試料から初めて環境基準値(0.01mg/l)を超える鉛が同一海域の数地点で検出された。試料採取は、委託業者がバンドーン採水器及びハイロート採水器を用いて行い、直ちに本研究所に搬入され、分析が行われた。

過去に、対象海域では、1985年に0.01-0.05mg/l 検出された事例はあるが、それ以降、鉛は検出下限値(1985-1992年度:0.01mg/l, 1993年度以降:0.005mg/l)以下であった。また、この海域に流入する河川では、1985年度以降、鉛が5回検出されているが、いずれも環境基準値以下で、陸域からの鉛汚染の兆候はみられなかった。

環境調査では、コスト・効率性の面から専門業者への委託が進み、試料採取、搬送、分析などの工程が細分化される傾向にある。このような状況の中で、分析の精度を確保するためには、全作業工程の管理が重要となる。

今回、鉛が基準値を超過した原因を究明するため、周辺調査を行うとともに、試料採取及び分析に至る各工程における汚染要因を検討したので報告する。

2 方法

2・1 調査地点及び調査期間

対象海域の調査地点は、St. 1-11の11地点である。定点観測は年1回で、2002年度は7月であった。しかし、このとき、鉛が基準値を超過したことから、2002年12月より毎月1回採水を行い、汚染源が判明した2003年6月まで

続けた。採水は、2002年7月及び2002年12月-2003年3月はA社が行い、2003年4-6月はB社が行った。対象海域に流入する河川については、2002年7月及び2003年4月に環境基準点9地点で市役所及び本研究所が採水を行った。

2・2 検討方法

次のような原因が考えられたので、順次検討を行った。

1. 周辺調査

- (1)対象海域に流入する河川水の調査
- (2)鉛を使用している事業場調査(市役所)

2. 試料採取及び分析に至る工程

- (1)干渉物質による分析上の問題
- (2)調査船体からの汚染物質の溶出
- (3)固定試薬及び試料容器の汚染
- (4)採水器の汚染

具体的な方法等について、以下に述べる。

2・2・1 海水及び河川水の分析方法

採水時に硝酸を試料の1%加えた。硝酸を加えた試料50mlに塩酸2mL及び硝酸2mLを加え、ホットプレート上で加熱分解し、50mlに定容した。測定は、ICP質量分析計(ICP-MS)(Perkin Elmer: ELAN5000)で行った(直接分析法)¹⁾。内標は、ビスマス(Bi)を使用した。さらに、得られた値を確認するため、図1のフローチャートに従って、試料の前処理を行い、ICP-MS及びICP発光分析計(ICP-AES)(Perkin Elmer: OPTIMA3000)で測定を行った(溶媒抽出法)¹⁾。ICP-AESの内標は、イットリウム(Y)を使用した。

*1 福岡県保健環境研究所 (〒818-0135 福岡県太宰府市大字向佐野39)

*2 元福岡県保健環境研究所 (〒818-0135 福岡県太宰府市大字向佐野39)

*3 筑紫保健福祉環境事務所 (〒816-0943 福岡県大野城市白木原3丁目5-25 筑紫総合庁舎)

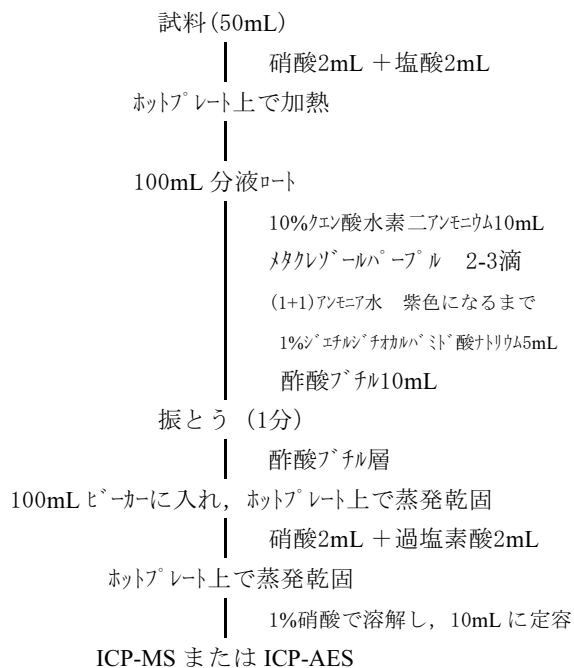


図1 溶媒抽出法のフローチャート

硝酸を加えていない海水試料1検体について、0.45及び0.20 μ m のメンブランフィルターでろ過した後、直接分析法で分析した。

2・2・2 調査船

2艘の漁船 a 及び b 船 (a 船: St. 1-4, 8, 10 及び 11, b 船: St. 5-7 及び 9) で試料を採取した。2003年2月の採水の際、船を交換して実施した。

2・2・3 固定試薬及び試料容器

2002年7月の採水時は、委託業者が固定試薬及び試料容器を用意したが、2002年12月以降は、鉛汚染のない固定試薬及び試料容器を本研究所で用意した。

2・2・4 採水器

河川水はバケツ、海水は、委託業者の採水器を用いて採水した。委託業者 A 社はバンドーン採水器及びハイロート採水器を使用し、B 社はバンドーン採水器のみを使用した。鉛が検出された検体は、全て A 社が採水した海水であったので、A 社の採水器のみ検討を行った。

A 社は、a 船でハイロート採水器、b 船でバンドーン採水器を使用していた。ハイロート採水器を図2に示す。使用されたハイロート採水器は、古いもので、台座部等に



図2 ハイロート採水器

修理した跡があり、ポリピンを固定するため、ゴムバンドが用いられていた。

(1) 浸漬試験

ハイロート採水器及びバンドーン採水器を蒸留水10Lに1時間浸漬した後、その浸漬水中の鉛を測定した。また、ハイロート採水器の台座部及びゴムバンドを蒸留水に浸漬した浸漬水、ハイロート採水器の容器内側及びゴムバンド隙間に付着した白色物質の洗浄水についても同様に測定した。

(2) 鉛含有量試験

ハイロート採水器の台座部を解体し、中の金属部分を削り取ったもの及び金属部分表面に付着した白色粉末を剥離したものをそれぞれ硝酸で加熱分解し、ICP-MS で測定した。図3に、解体したハイロート採水器台座部のおもりを示す。

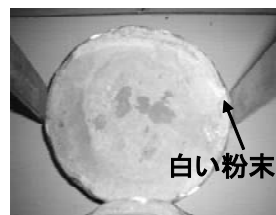


図3 ハイロート採水器台座部のおもり

(3) 鉛安定同位体の分析

鉛が検出された海水3検体 (2003年3月採取, St. 1, 2 及び 3) を溶媒抽出した。台座部の中の金属部分を削り取ったものを希硝酸で溶解し、同様に溶媒抽出した。また、対象海域で採取した底質2検体 (St. 6 及び 8) について、塩酸及び硝酸を加え、ホットプレート上で加熱分解し、同様に溶媒抽出した。これらの試料について、ICP-MS (Perkin Elmer : ELAN DRC) を使用し、標準物質 NIST 981を用いて鉛安定同位体を測定した。測定した鉛の質量数は、206, 207 及び 208 で、測定値の変動係数は0.5% 以下であった。

(4) X線回折による分析

台座部の中の金属部分表面に付着した白色粉末を剥離し、X線回折法 (マック・サイエンス : MXP18A) により、構成成分を分析した。

3 結果及び考察

3・1 分析法の検討

2002年7月に採水した海水試料について、直接分析法により測定を行った結果を表1に示す。St. 1-4 及び 11 で鉛が検出された。この測定値の確認を行うため、別の方法 (溶媒抽出-ICP-MS 法及び溶媒抽出-ICP-AES 法) で分析を行い、比較した (表1)。その結果、ICP-MS による直接分析法と溶媒抽出による2分析法の測定値が近かったことから、鉛の検出は試料のマトリックスによる干渉等の分析上の異常値ではなく、実際に試料中に鉛が存在していることが確認された。

また、一般的に鉛の水への溶解度は低いことが知られ

ている³⁾。汚染のあった海水を0.45及び0.20 μm のメンブランフィルターでろ過して測定したところ、鉛は0.005 mg/l 未満であった。よって、試料中の鉛の形態は、懸濁性であることがわかった。

表1 異なる分析法による鉛の分析結果

調査地点	直接分析法	溶媒抽出法	
	ICP-MS	ICP-MS	ICP-AES
St. 1	0.016	0.016	0.012
St. 2	0.007	0.010	0.007
St. 3	0.032	0.028	0.020
St. 4	0.008	0.011	0.007
St. 5	<0.005	<0.005	<0.005
St. 6	<0.005	<0.005	<0.005
St. 7	<0.005	<0.005	<0.005
St. 8	<0.005	<0.005	<0.005
St. 9	<0.005	<0.005	<0.005
St. 10	<0.005	<0.005	<0.005
St. 11	0.064	—	0.046

(単位：mg/l)

3・2 固定試薬及び試料容器からの汚染に関する検討

2002年12月以降、本研究所で固定試薬及び試料容器を用意し、委託業者が採水を行ったが、表2に示すように、依然、鉛が検出されたことから、検出された鉛は、固定試薬及び試料容器由来ではないと推定された。

表2 海水の鉛測定結果

地点	2002年	2003年		
	12月	1月	2月	3月
St. 1	0.015	0.007	<0.005	0.013
St. 2	<0.005	<0.005	<0.005	0.047
St. 3	<0.005	0.007	<0.005	0.073
St. 4	0.011	0.013	<0.005	<0.005
St. 5	<0.005	<0.005	<0.005	<0.005
St. 6	<0.005	<0.005	<0.005	<0.005
St. 7	<0.005	<0.005	<0.005	<0.005
St. 8	<0.005	<0.005	<0.005	0.016
St. 9	<0.005	<0.005	<0.005	<0.005
St. 10	<0.005	0.022	<0.005	0.026
St. 11	<0.005	<0.005	0.010	0.009

(単位：mg/l)

注) 網掛け部分は、a 船で採水した地点

3・3 調査船体からの汚染に関する検討

表2に、a 船で採水した地点を網掛けで示す。2002年12月及び2003年1月に鉛が検出された地点は、全て a 船で採水した地点であったため、2月の採水時には、船の

みを交換して採水した。しかし、b 船で採水した St. 11 で再び検出され、a 船では検出されなかったことから、船体に由来する汚染ではないと推定された。

3・4 海水及び河川水の分析

2002年7月及び2003年4月に、対象海域に流入する河川水（環境基準点9地点）について、鉛の分析を行ったが、全て0.005mg/l 未満であった。また、2003年4月以降、採水の委託業者が A 社から B 社にかわった。B 社が採水した試料は、全ての地点で0.005mg/l 未満であった。

これらのことから、鉛は、河川から対象海域に流入したのではなく、A 社の採水用具に鉛の汚染源があったものと推察された。

3・5 採水器からの汚染に関する検討

3・5・1 浸漬試験結果

ハイロート採水器及びバンドン採水器を蒸留水に浸漬して鉛を測定した結果、バンドン採水器浸漬水は、0.005mg/l 未満であったが、ハイロート採水器浸漬水は、0.028mg/l 検出された。そこで、ハイロート採水器が鉛の汚染源であると考え、ハイロート採水器の容器内側を洗浄し、鉛を測定したが、0.005mg/l 未満であった。ハイロート採水器は、ポリビンを固定するため、ゴムバンドが使用されていた（図2）が、このゴムバンドの隙間に白色物質が付着していた。よって、ゴムバンドの浸漬水及び白色物質洗浄水について測定を行った。また、ハイロート採水器の台座部を蒸留水に浸漬した浸漬水についても測定した。結果を表3に示す。ハイロート採水器の台座部浸漬水から0.21mg/l 検出されたことから、台座部が鉛の汚染源であると考えられた。

表3 ハイロート採水器部位別の鉛分析結果

試料	鉛 (mg/l)
ゴムバンド浸漬水	<0.005mg/l
ゴムバンド隙間の白色物質洗浄水	0.092mg/l
台座部浸漬水	0.21mg/l

3・5・2 鉛含有量試験結果

A 社の了承を得て、ハイロート採水器の台座部を解体したところ、おもりとして円柱状の金属が入っていた。また、おもり表面には白色の粉体が付着していた（図3）。おもり及び白色粉体の鉛含有量を測定したところ、それぞれ92.8及び81.4%を示し、鉛の純度が非常に高いことがわかった。

ハイロート採水器で試料を採水する際に、採水器を傾けて注入する操作が行われる。この時、白色粉体が試料に混入した場合に、鉛汚染を引き起こすものと推察された。

3・5・3 鉛安定同位体分析結果

鉛の起源として、採水器の他に、底質による巻き上げも考えられる。鉛安定同位体比は、鉛の起源によって異なることが知られている²⁾ことから、海水、底質及びおもりの安定同位体比 ($^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 及び $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$) を求めることにより、鉛の起源について検討した。

$^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 値は、相違が見られなかった。図4に海水の鉛濃度と $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ の関係を示す。St. 6及び8の底質の $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 値は、2.100及び2.103で、平均値2.102であった。ハイロート採水器台座部のおもりは、2.079であった。底質及びおもりの安定同位体比を、図4内に太線で示す。海水試料の $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 値は、2.077-2.085の範囲にあり、おもりと近い値であった。また、鉛濃度の上昇 (St. 1:0.013mg/l, St. 2:0.047mg/l, St. 3:0.073mg/l) とともに、 $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 値は、おもりの値近くに変化した。よって、鉛汚染の起源は、底質による巻き上げでなく、おもりであると考えられた。

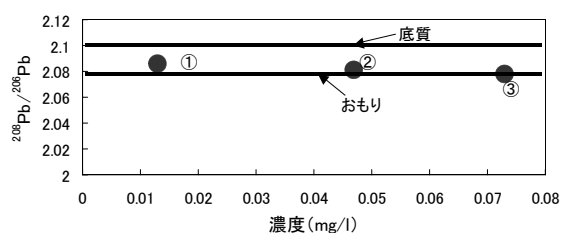


図4 海水の鉛濃度と安定同位体比の関係並びに底質及びハイロート採水器のおもりの安定同位体比

3・5・4 鉛の形態

おもり表面に付着した白色粉体を剥離し、X線回折法により、構成成分を分析した。結果を図5に示す。主成分は、Laurionite (PbClOH) 及び Cerussite (PbCO_3) であった。山崎らの報告では、金属鉛は雨水と大気に晒されると容易に風化し、Hydrocerussite ($\text{Pb}[\text{Pb}(\text{OH})_2\text{CO}_3]_2$) 及び Cerussite からなる白色皮膜が生じることが報告されている⁴⁾。今回は、同様に、Cerussite が検出された。しかし、Hydrocerussite は検出されず、Laurionite が生成していたが、その生成機構等については、今後の課題である。

4 まとめ

海水試料で、2002年7月に環境基準値 (0.01mg/l) を

超える鉛が検出された。試料採取は、委託業者が行っているため、汚染原因を究明するため、試料採取から分析に至る各作業工程について、以下の手順で検討した。

(1) 分析値の確認

ICP-MS (直接分析法) 及び溶媒抽出— ICP-MS または ICP-AES で分析を行った。その結果、鉛は試料中に存在していることが確認された。

また、海水試料中の鉛は、ろ過した場合、0.005mg/l 未満となったことから、懸濁性であると考えられた。

(2) 鉛汚染の継続性

2002年12月から毎月採水し、分析したが、鉛は検出された。

(3) 周辺調査

対象海域へ流入する河川の環境基準点で鉛の分析を行ったが、全て0.005mg/l 未満であった。また、鉛を大量に排出している事業場も存在しなかった。

(4) 固定試薬及び試料容器

固定試薬及び試料容器を本研究所で用意したが、依然として鉛は検出されたことから、固定試薬及び試料容器による汚染が原因ではないことが明らかとなった。

(5) 調査船

採水を行った2艘の漁船のうち、鉛の検出された検体は、全て一方の船で採水されたものであった。よって、漁船のみを交換し、採水したが、鉛が検出されたことのない漁船の方で検出され、それまで鉛を検出した試料を採取していた漁船の採取した試料からは検出されなかった。よって、調査船に由来する汚染ではないと推定された。

(6) 採水器

委託業者が使用していたハイロート採水器を蒸留水に浸漬したところ、その浸漬水から鉛が検出された。よって、ハイロート採水器が汚染源であると考えられた。特にハイロート採水器の台座部の浸漬水で高濃度の鉛が検出された。台座を解体し、中のおもりの鉛含有量を求めたところ、おもりは鉛でできていることがわかった。また、おもり表面には、白色物質が付着しており、鉛含有量は高かった。

海水、底質及びおもりの鉛安定同位体比 $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ を求めたところ、海水試料は、底質よりハイロート台座のおもりと近い値を示したことから、底質の巻き上げではなく、おもりが汚染源であると考えられた。

おもり表面に付着した白色粉体を X 線回折法で分析したところ、主成分は、Laurionite 及び Cerussite であった。

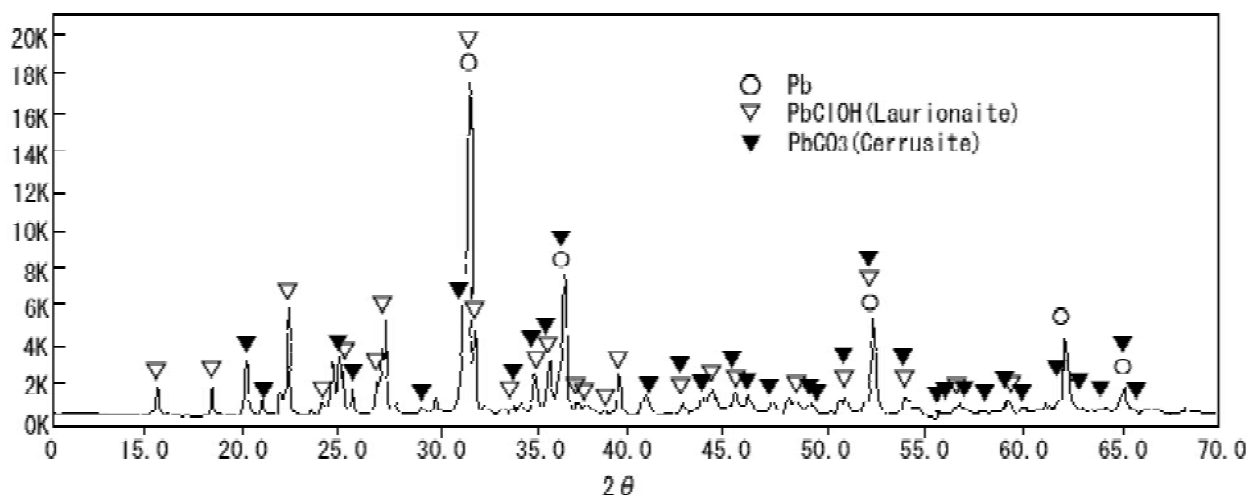


図5 X線回折パターン

以上のことから、ハイロート採水器を海中に入れた際、台座の隙間から海水が台座内部に入ったと考えられる。そこで、おもりの鉛表面に生成した Laurionite 及び Cerussite を主成分とする白色粉体が、ハイロート採水器から試料容器に海水を移し替えるときに、台座部に侵入した海水とともに試料容器に入ったことによって、鉛汚染を引き起こしたものと考えられた。

文献

- 1) 平河喜美男：工業排水試験方法 JIS K 0102, (pp. 200-213)；東京：(財) 日本規格協会, 1998.
- 2) 向井人史・吉永淳：環境科学, 5(4), 789-798, 1995.
- 3) 社団法人日本化学会：化学便覧基礎編, II-170；東京：丸善, 1993.
- 4) 山崎康廣ら：千葉県環境研究センター年報第一号, 153-157, 2001.

Case of lead contamination by water sampler

Yuko ISHIBASHI*, Hiroshi MATSUO*, Matayoshi NAKAMURA*, Atsuko SASAO* and Osamu UEDA**

**Fukuoka Institute of Health and Environmental Sciences,
Mukaizano 39, Dazaifu, Fukuoka 818-0135, Japan
**Chikushi Health, Welfare, and Environment Office,
Shirakibaru 3-5-25, Onojo, Fukuoka 816-0943, Japan*

Lead concentrations in sea water samples were over the environmental quality standard value (0.01mg/l). On examination, the source of contamination was the Heyroth water sampler used by the contractor. The weight in the base of Heyroth water sampler is composed of lead. The joint in base has a gap and sea water can enter easily. Therefore, Laurionite and Cerussite are produced on the surface of the weight by long term weathering. Hence the reason for lead contamination may be that sea water containing Laurionite and Cerussite from the base entered the bottle.

[Key words; Lead, Isotope ratio, Laurionite, Cerussite, Heyroth water sampler]

資料

平成15年度の食中毒事例について

村上光一，長野英俊，濱崎光宏，堀川和美，石黒靖尚，
世良暢之，江藤良樹，梶原淳睦，千々和勝己

福岡県において平成15年度に発生した食中毒29事例（959検体）について，主として病因物質の観点から事例をまとめた．本年度も福岡県においては，春季から秋季においてはカンピロバクターをはじめとする細菌性食中毒が，冬季にはノロウイルスを原因とするウイルス性食中毒が多く見られた．病因物質が判明した事例は29事例中25事例（86％）であった．病因物質別に見ると，カンピロバクターによるものが8事例（28％），サルモネラによるものが5事例（17％）及びノロウイルスによるものが4事例（14％）であった．これら3種で全体の病因物質の約6割を占めていた．その他に腸管出血性大腸菌O157を含む下痢原性大腸菌，腸炎ビブリオ，黄色ブドウ球菌による食中毒事例があった．カンピロバクターによる食中毒は，鶏肉，内臓，あるいは牛肉などを加熱せずに，あるいは加熱不足で摂食して罹患したと考えられる例が，8事例中，5事例と多かった．

〔キーワード：食中毒，カンピロバクター，サルモネラ，ノロウイルス〕

1 はじめに

病原微生物による感染症は，医療の発達した現代社会でも，ヒトにとって脅威であることに変わりはない．その中でも，食品を介して発生する食中毒は，食文化の急激な変化により多発し，かつ大規模化しており，積極的な対策を講ずることが必要である．この数年間の代表的な食中毒事例を振り返ると，平成8年度の腸管出血性大腸菌O157の集団発生事例，平成10，11年度のイカ乾製品を原因食品とするサルモネラによる食中毒事例，平成12年度の黄色ブドウ球菌のエンテロトキシンA型に汚染された脱脂粉乳を原因食品とする大規模食中毒事例，平成13年度の韓国産牡蠣によるソリネ赤痢菌事例など，その病因物質は多岐に及び，その対策も一元的なものでなく，多元的なものが必要であることが分かる．このように過去の事例を紐解くことは食中毒予防を考える上で重要である，全国レベルのみならず地域における食中毒予防を考えるとき，福岡県下での食中毒発生例を詳細に検討することも重要である．今回，平成15年度に県域で発生した食中毒事例について，病因物質の特徴などを解析した．その結果について報告する．

2 食中毒発生時の検査

平成15年度は，29事例，959検体（患者便，従事者便，食品残品，拭き取り，菌株など）について，食中毒細菌

及びウイルスについて検査を実施した．

患者の症状などから細菌性食中毒が疑われる場合は，まず搬入された検体を，アルカリペプトン水，7.5％食塩加ブイヨン，プレストン，ラポポート・パシリアディス培地などの培地を用いて増菌培養し，TCBS 寒天培地，食塩卵寒天培地，スキロー寒天培地，SM-ID 寒天培地などで分離培養した．寒天平板培地に疑わしい集落が発育した場合は，釣菌して，TSI，SIM などを用いた生化学性状試験，血清型別，毒素型別，Polymerase chain reaction（PCR法）を用いた病原遺伝子の検出などの試験検査を実施して食中毒細菌の同定を行なった．

一方，ウイルス性食中毒と考えられる場合は，糞便（数グラム程度）をリン酸緩衝液で10％乳剤とし，3000rpmで10分間遠心後，その上清を10000rpmで30分間遠心した．この上清からRNAを抽出し，逆転写酵素を用いて相補的なDNAを合成し，ノロウイルスの遺伝子に特異的なプライマーを用いてPCRで増幅し，増幅産物を電気泳動で確認した．増幅産物が確認された検体についてはさらにシーケンスを行ってその増幅産物の塩基配列を決定し，ノロウイルスの最終確認を行った．さらに上記上清を超遠心分離（40000rpm，90分間）により濃縮精製後，リタングステン酸を用いてネガティブ染色し，30000～40000倍で電子顕微鏡観察した．

表1 平成15年度の食中毒事例の概要

所管する保健福祉環境事務所	検体搬入日	細菌検体数	ウイルス検体数	両課共通検体数	総検体数	検体の内訳						患者数	病因物質	病因物質の詳細	原因食品	事件の概要
						食品・食材等	便	吐物等	拭き取り	菌株	その他					
1:遠賀	4月23日	11	0	0	11	4	5			2		139	サルモネラ	血清型 Enteritidis	シュークリーム	菓子店の市販シュークリームを購入して
2:遠賀	4月25日	74	9	9	74	28	11	7	27		1	13	黄色ブドウ球菌	エンテロトキシンA型	仕出し弁当	老人福祉施設にて外部から購入した弁当を食して
3:遠賀	5月19日	3	0	0	3		1			2		1	サルモネラ	血清型 Manhattan	不明	家庭内事例
4:筑紫	5月23日	7	8	4	11	3	8					17	ノロウイルス	遺伝子型 G2	不明	職場でのバーベキュー大会にて
5:筑紫	5月26日	13	0	0	13		4		8	1		6	カンピロバクター	C. jejuni, Penner 血清型:型別不能	飲食店の料理	鶏肉のさしみ等の鶏料理を食して
6:粕屋・宗像	5月26日	14	2	2	14	2	4		7	1		9	カンピロバクター	C. jejuni, Penner 血清型:G型、F型	飲食店の料理	焼き鳥店の料理にて
7:嘉穂	6月23日	11	0	0	11		3		8			4	不明		家庭内	センマイの刺身等を食して
8:宗像	7月10日	32	0	0	32	5	12		11	4		25	カンピロバクター	C. jejuni, Penner 血清型:型別不能	飲食店の料理	焼肉の食べ放題等を食して
9:久留米	7月11日	36	0	0	36	10	8		16		2		不明		仕出し弁当(推定)	ちらし寿司弁当を食して(推定)
10:宗像・嘉穂	7月16日	15	0	0	15		10		5			11	腸炎ビブリオ	血清型 O3:K6(TDH陽性)	刺身等の料理	グループで宿泊した旅館の料理を食して
11:筑紫	7月17日	4	0	0	4		2			2		5	サルモネラ	血清型 Enteritidis	飲食店の料理	コース料理を食して
12:粕屋	7月20日	189	0	0	189	167			22			(55)	下痢原性大腸菌(腸管出血性大腸菌 O157)	VT2 陽性	—	保育施設での事例であった。給食(食品)からは原因菌が分離されなかった
13:嘉穂	8月14日	74	0	0	74	35	21		18			63	腸炎ビブリオ	血清型 O3:K6、O3:K29、O8:K41(TDH陽性)	仕出し弁当	親族で法事の仕出し弁当を食して
14:嘉穂	8月14日	10	0	0	10	5	3	2				3	黄色ブドウ球菌	エンテロトキシンA型及び型別不能	不明	家庭内事例
15:鞍手	8月17日	19	0	0	19	4	9		4	2		4	腸炎ビブリオ		飲食店の料理	刺身等を食して
16:筑紫	8月22日	1	0	0	1					1		4	サルモネラ	血清型 Enteritidis	飲食店の料理	家族等で鶏肉の刺身等を食して
17:粕屋	8月22日	156	0	0	156	80	54		16	2	4	162	下痢原性大腸菌	血清型 O25 astA 遺伝子検出	不明	更生施設内での事例
18:八女	9月5日	42	0	0	42		42					72	カンピロバクター	C. jejuni, Penner 血清型:B型、P型、Z型	不明	生徒等が宿泊した施設の食事が共通食であるが原因食は不明
19:筑紫	9月17日	27	16	16	27		27					171	下痢原性大腸菌	血清型 O20 eaeA 遺伝子検出	不明	生徒等が宿泊した施設の食事あるいは飲料水原因と推測された
20:遠賀	10月3日	23	0	0	23		13		10			9	カンピロバクター	C. jejuni, Penner 血清型:O型、F型、型別不能	飲食店の料理	職場の懇親会で生レバー等を食して
21:糸島	11月6日	24	0	0	24	6	12		6			19	カンピロバクター	C. jejuni, Penner 血清型:O型、Z2型、及びC. coli	飲食店の料理	鶏肉の刺身等を食して
22:糸島	11月23日	43	0	0	43	12	21		10			15	カンピロバクター	C. jejuni, Penner 血清型:C型、型別	飲食店の料理	生徒等が焼肉店で肉を十分加熱せず食した
23:久留米・山門	11月27日	4	4	4	4	4						9	サルモネラ	血清型 Enteritidis	不明	結婚披露宴における食中毒事例
24:田川・嘉穂	11月29日	17	0	0	17	7	2		8			1	不明		不明	家族が飲食店で食事をしていた
25:筑紫	12月10日	14	7	7	14		7		7			13	ノロウイルス	遺伝子型 G2	不明	東北地方の高校生が修学旅行に九州を訪れ、県外の施設の食事を原因として発症(関連調査)
26:久留米	2月7日	0	9	0	9		9						ノロウイルス	遺伝子型 G1, G2	不明	県内の高校生が修学旅行で北海道を訪れて
27:宗像	3月3日	27	9	1	35	7	23		5			20	不明(黄色ブドウ球菌検出)		不明	小学生等がお別れ会に参加し、弁当を食して
28:京築	3月25日	46	27	27	46		27	2	15		2	22	ノロウイルス	遺伝子型 G2	バーベキュー	小学生等がスポーツ関連の親睦会に参加して
29:宗像	3月29日	2	0	0	2					2		3	カンピロバクター	C. jejuni, Penner 血清型:型別不能	飲食店の食事	家族が焼き鳥店でレバーの刺身等を食して
計		938	91	70	959	379	338	11	203	19	9	820				

患者数は一部未確定を含む

3 食中毒検査結果

平成15年度は、病因物質が判明した事例は29事例中25事例(86%)であった。病因物質別に見ると、カンピロバクターによるものが8事例(28%)、サルモネラによる

ものが5事例(17%)及びノロウイルスによるも4事例(14%)であった。これら3種で全体の病因物質の約6割を占めていた。その他に腸管出血性大腸菌O157を含む下痢原性大腸菌、腸炎ビブリオ、黄色ブドウ球菌による

食中毒事例があった。(表1, 図1)。

カンピロバクターによる食中毒は、鶏肉、内臓、あるいは牛肉などを加熱せずに、あるいは加熱不足で食して罹患する例が、8件中5件と多かった。カンピロバクターは主として鶏などの家畜の腸管内などに広く分布するが、鶏肉、牛肉などを、刺身などの形で生食しないようにすれば、福岡県内のカンピロバクターによる食中毒事例数は大きく減少すると考えられる。

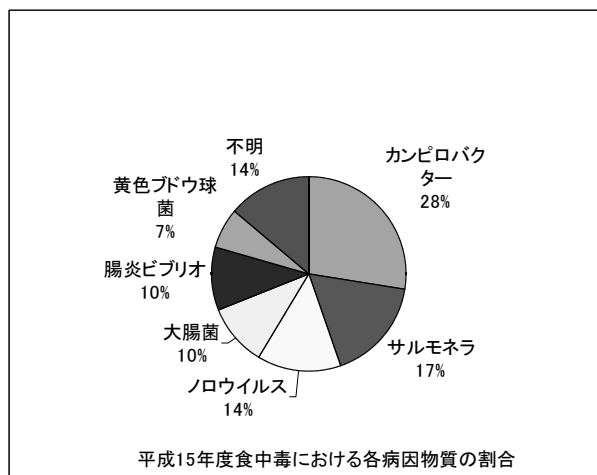
サルモネラによる食中毒では、ケーキ店で作られたシュークリームを原因とする事例が目立った。この事例では、市販の液卵を使用し、食中毒を起こしているが、加熱殺菌が十分な液卵を使用することによって、防止できた事例であると考えられ、液卵の取り扱いに関して、今一度注意を喚起する必要があると考えられた。

腸炎ビブリオの血清型は平成8年度から増加傾向が見られていた O3:K6の他に、O3:K29, O8:K41が認められた。これらの株はいずれも腸炎ビブリオの病原因子である耐熱性溶血毒素 (TDH) を産生した。

4 事例紹介

平成15年度は、下痢原性大腸菌による事例が3事例起こった。9月に発生した事例では、県内の中学校において、1年生の生徒及び教職員等が、平成15年9月10日の朝から12日の夕刻にかけて、県外の民間施設に研修旅行に出かけた。その後、11日の正午ごろから、16日の正午にかけて、289名中171名 (59.2%) が腹痛、下痢、発熱、嘔気、嘔吐、頭痛、悪寒あるいは倦怠感のいずれかの症状を示した。搬入された便27件について、下痢原性大腸菌等を含む食中毒細菌及びノロウイルスを検査した。下痢原性大腸菌の病原因子遺伝子検査は寒天平板上の大腸菌集落の菌苔を収集し PCR 法にて、毒素原性大腸菌遺伝子、志賀毒素産生性大腸菌遺伝子、腸管侵入性大腸菌遺伝子、及び接着等に関与する遺伝子 (*eaeA*, *bfpA*, *aggR*, *astA*) を検索した。また、遺伝子の塩基配列の決定はダイターミネーター法で行なった。なお、原因食品等の検査は他県で実施されたが原因食品等は不明であった。この結果、下痢原性大腸菌以外に食中毒の病因物質と考えられる微生物は検出されなかった。PCR による下痢原性大腸菌遺伝子の検査で、*eaeA* と考えられる遺伝子を検出したので、*eaeA* を有する下痢原性大腸菌の単離を試みた。その結果、8名の糞便から *eaeA* を保有する下痢原性大腸菌血清型 O20 : H6 を分離した。PCR 産物の塩基配列を決定したところ既知の *eaeA* とほぼ一致し、PCR にて検出した遺伝子が真に *eaeA* であると同定した。

eaeA を有する下痢原性大腸菌は、腸管病原性大腸菌 (EPEC) であると広く認知されていること、また他の食中毒細菌あるいはウイルスが検出されていないことから、この事例の病因物質は、腸管病原性大腸菌 O20 :H6 であると結論付けた。



下痢原性大腸菌による事例のうち、8月に発生したものは、更生施設内で発生した。患者年齢は22～78歳であり、主要症状は下痢、腹痛、嘔吐、発熱 (37～38℃) であった。患者便11検体について、検査したところ、9名の糞便から *astA* を保有する下痢原性大腸菌血清型 O25 を分離した。このほか、下痢原性大腸菌の主たる病原因子を検出せず、また他の食中毒細菌を分離しなかった。このため、この事例の病因物質は *astA* を保有する下痢原性大腸菌血清型 O25 と考えられた。食品残品等143件を検査したが原因食品は明らかにならなかった。

ノロウイルス (SRSV 様粒子) による食中毒は、5月および12～3月に発生した4事例で認められた。ノロウイルスは遺伝子型で、*Norwalk virus*, *Southampton virus* などを含むグループ1 (G1), *Hawaii virus*, *Mexico virus*, *Snowmountain virus* などを含むグループ2 (G2) に分けることができる。今年度のノロウイルスの遺伝子型は、塩基配列を解析した結果、3事例が G2, 1事例が G1, G2 であった。

文献

- 1) 坂崎利一：細菌性食中毒、食水系感染症と細菌性食中毒；東京：中央法規，453-518，2000。
- 2) 食中毒衛生研究会：食中毒事例の疫学調査マニュアル；東京：中央法規，2001。

資料

平成15年度感染症細菌検査概要

堀川和美，村上光一，長野英俊，濱崎光宏，石黒靖尚

平成15年度に当課で実施した感染症細菌検査項目は，ソネ赤痢菌コリシン型別，黄色ブドウ球菌の型別検査，コレラ菌検査，髄膜炎菌の血清型別検査並びに腸管出血性大腸菌の国立感染症研究所への送付であった．平成15年度の特記事項は，当年3月に県内某病院で発生した黄色ブドウ球菌感染症に関するコアグラゼ型別，エンテロトキシン型別及びDNA解析等を実施した事であった．これらの知見を含め当年度の検査概要を報告する．

[キーワード：腸管出血性大腸菌，赤痢菌，コリシン型別，コレラ菌，DNA解析，黄色ブドウ球菌]

1 細菌検査（腸管出血性大腸菌を除く）

当年度は，赤痢，黄色ブドウ球菌感染症，コレラ及び髄膜炎の9事例，27検体について検査を実施した（表1）．

1・1 ソネ赤痢菌コリシン型別検査及び赤痢菌型別検査

ソネ赤痢5事例，5検体についてコリシン型別を実施した（表1）．コリシン型別は，微生物検査必携 細菌・真菌検査第3版に準拠した¹⁾．その結果インドを旅行した患者由来1株はコリシン型0型，フィリピン及びウズベキスタン渡航歴のある患者由来各1株並びに渡航歴のない患者由来2株は6型であった．

1・2 赤痢菌の同定及び血清型別検査

当年11月筑紫保健保健環境事務所から，インド旅行者（10月4日－15日）由来の赤痢菌（疑い）が搬入され，同定及び血清型別検査を実施した．搬入された菌株は，生化学性状及び遺伝子（*ipaH*，*invE*）検査の結果赤痢菌と同定された．また，血清型別検査の結果，シゲラ・フレキシネリ菌（B 亜群赤痢菌）であったが，型因子血清及び群因子血清には凝集しなかった．

1・3 黄色ブドウ球菌に関する検査

当年3月県内某病院から，整形外科で変形性膝関節症治療の際，膝関節腔内注入を行なった患者31名のうち6名の患者が化膿性膝関節炎を発症し，その全員から黄色ブドウ球菌が検出された旨の届出があった．6名の患者及び関連調査で検出された黄色ブドウ球菌（19検体，38株）について菌種の同定，エンテロトキシン型，コアグラゼ型別検査，Toxic Shock Syndrome Toxin (TSST)-1の産生の有無検査，薬剤感受性試験並びにパルスフィールド・ゲル電気泳動（PFGE）を実施した．これらの検査

結果から黄色ブドウ球菌を原因とする病院内感染の可能性が示唆された（表2）．また，本事例で検出された黄色ブドウ球菌はいずれも抗生剤に感受性であった．

1・4 コレラ菌検査

当年8月久留米保健福祉環境事務所三潴支所管内で海外渡航歴の無いコレラ患者が発生し，搬入された菌株についてコレラ菌の確認及び関連検査を実施した．検査方法は微生物検査必携 細菌・真菌検査第3版に準拠した¹⁾．搬入されたコレラ菌はコレラ毒素産生性遺伝子を保有していた（表1）が，血清型は O1ではなく O8であった．

1・5 髄膜炎菌検査

当年7月髄膜炎菌株が粕屋保健福祉環境事務所から搬入され，確認検査を行なった後血清型別及び遺伝子型別検査のため感染症研究所（感染研）に送付した．その結果，血清型は B 群で遺伝子型は687型であった．血清型 B 群は日本で最も多く検出される血清群である．しかし，遺伝子型別検査の結果から，本菌株の病原性は比較的高い分類に属していた．

2 腸管出血性大腸菌検査

当年度搬入された腸管出血性大腸菌は，O157が102株，O26が12株及び O 群型別不能株が2株の計116株であった（表3）．102株の O157のうち88株（86.3%）がベロ毒素（VT）2単独産生株で，14株が VT1及び2産生株，1株が VT1単独産生株であった．12株の O26は，すべて H 血清型は11で VT1産生株であった．O 群血清型別不能として搬入された1株は，血清型別を行った結果，O119：H7（VT1）及び O91:H21（VT1）であった．これら菌株は，諸

性状及び VT を確認の上、PFGE による DNA 解析のため感染研に送付した。感染研での DNA 解析の結果を表3に示す。当年度は保育所で発生した O157及び O26による集団発生事例がそれぞれ3事例及び1事例であった。DNA 解析の結果、事例毎にほぼ同一パターンを示し、同一の由来による感染であることが判明した。

文献

- 1) 厚生省監修，財団法人日本公衆衛生協会：微生物検査必携 細菌・真菌検査第3版；1887.

表1 平成15年度感染症細菌検査

事例	所轄事務所	搬入年月日	発症年月日	検査項目	検査 件数	検査 結果	海外渡 航歴	渡航先
1	久留米	H15.4.18	H15.3.31	ソネ赤痢菌コロシシ型別	1	0	有り	インド
2	久留米・三潞支所	H15.7.22	H15.6.25	ソネ赤痢菌コロシシ型別	1	6	無し	－
3	久留米・三潞支所	H15.7.22	(保菌者)	ソネ赤痢菌コロシシ型別	1	6	無し	－
4	粕屋	H15.8.7	H15.7.4	髄膜炎菌血清型別	1	B群	無し	－
5	久留米・三潞支所	H15.8.29	H15.8.22	コレラ菌血清型別	1	8	無し	－
6	筑紫	H15.9.2	H15.8.11	ソネ赤痢菌コロシシ型別	1	6	有り	フィリピン
7	嘉穂	H15.9.17	H15.9.1	ソネ赤痢菌コロシシ型別	1	6	有り	ウズベキスタン
8	筑紫	H15.11.10	H15.10.8	赤痢菌型別検査	1	別記	無し	－
9	田川	H15.3.18	H15.3.4	黄色ブドウ球菌型別及びDNA解析	19	別記	無し	－
計					27			

表2. 黄色ブドウ球菌分離株のエンテロトキシン型別，TSST-1，コアグララーゼ型別及びPFGE型別検査結果

検体 番号	検査対象	採取日	エンテロトキ シン型 ¹⁾	TSST-1 ²⁾ 産生の 有無	コアグ ラーゼ型 ³⁾	PFGE タイプ
1	膝関節内液1	3月9日	型別不能	－	I	A
2	膝関節内液2	3月12日	型別不能	－	I	A
3	膝関節内液3	3月16日	型別不能	－	V	C'
4	膝関節内液4	3月16日	型別不能	－	I	A
5	ふき取り41(手)	3月19日	型別不能	＋	IV	B
6	ふき取り43(手)	3月19日	型別不能	－	V	C
7	ふき取り45(手)	3月19日	型別不能	－	I	A
8	ふき取り46(白衣)	3月19日	型別不能	－	I	A
9	膝関節内膿5	3月21日	型別不能	－	V	C
10	左膝関節内液6	3月12日	型別不能	－	V	C
11	右膝関節内液6	3月12日	型別不能	－	V	C
12	右鼻腔拭い液No.68-1	3月30日	A	＋	IV	B'
13	左鼻腔拭い液No.73-1	3月30日	型別不能	＋	IV	B
14	右鼻腔拭い液No.76-1	3月30日	型別不能	－	I	A
15	左鼻腔拭い液No.77-1	3月30日	型別不能	－	I	A
16	右鼻腔拭い液No.68-2	3月30日	A	＋	IV	検査せず
17	左鼻腔拭い液No.73-2	3月30日	型別不能	＋	IV	検査せず
18	右鼻腔拭い液No.76-2	3月30日	型別不能	－	I	検査せず
19	左鼻腔拭い液No.77-2	3月30日	型別不能	－	I	検査せず

1) エンテロトキシン A, B, C, D

2) Toxic Shock Syndrome Toxin-1

3) コアグララーゼ I, II, III, IV, V, VI, VII, VIII

表3-1 平成15年度に搬入された腸管出血性大腸菌のPFGE解析結果

菌株番号	搬入事務所	発症 年月日	届出 年月日	血清型	VT型	DNAパターン			備考
						<100bp	100-200bp	>200bp	
03E001	久留米	H15.5.18	H15.5.22	O157:H7	1+2	II c	II c	ND	
03E002	宗像	H15.5.25	H15.5.27	O157:H7	1+2	II a	II b	I	
03E003	筑紫	H15.6.11	H15.6.17	O26:H11	1	ND	ND	ND	
03E004	久留米	H15.6.26	H15.6.30	O157:H7	2	ND	ND	ND	
03E005	久留米	(保菌者)	H15.7.3	O157:H7	2	ND	ND	ND	03E004に同じ
03E006	久留米	H15.6.25	H15.7.1	O157:H7	2	III b	ND	III	
03E007	久留米	(保菌者)	H15.7.4	O157:H7	2	III b	ND	III	
03E008	粕屋	H15.7.6	H15.7.15	O157:H7	2	ND	ND	III	
03E009	田川	H15.7.2	H15.7.18	O157:H7	1+2	II a	II c	ND	
03E010	糸島	H15.6.30	H15.7.3	O157:H7	1+2	ND	II b	III	
03E011	宗像	(保菌者)	H15.7.28	O157:H7	2	III k	III a	III	
03E012	宗像	H15.7.20	H15.7.26	O157:H7	1+2	II g	II a	I	
03E013	筑紫	H15.7.19	H15.7.25	O157:H7	1+2	II a	II b	ND	
03E014	宗像	(保菌者)	H15.7.31	O157:H7	2	II k	ND	III	
03E015	久留米	H15.8.8	H15.8.12	O157:H7	1+2	II a	II b	I	
03E016	久留米	H15.8.5	H15.8.13	O26:H11	1	ND	ND	ND	
03E017	久留米	(保菌者)	H15.8.15	O157:H7	1+2	II a	II b	I	03E015に同じ
03E018	久留米	(保菌者)	H15.8.16	O157:H7	1+2	II a	II b	I	03E015に同じ
03E019	久留米	(保菌者)	H15.8.17	O157:H7	1+2	II a	II b	I	03E015に同じ
03E020	八女			O26:H11	1	ND	ND	ND	
03E021	八女			O26:H11	1	ND	ND	ND	03E020に同じ
03E022	八女			O26:H11	1	ND	ND	ND	03E020に同じ
03E023	八女			O26:H11	1	ND	ND	ND	03E020に同じ
03E024	八女			O26:H11	1	ND	ND	ND	03E020に同じ
03E025	八女			O26:H11	1	ND	ND	ND	03E020に同じ
03E026	八女			O26:H11	1	ND	ND	ND	03E020に同じ
03E027	八女			O26:H11	1	ND	ND	ND	03E020に同じ
03E028	八女			O26:H11	1	ND	ND	ND	03E020に同じ
03E029	八女	H15.8.31	H15.8.30	O26:H11	1	ND	ND	ND	03E020に同じ
03E030	筑紫	H15.8.31	H15.8.30	O157:H7	2	ND	V''	III	
03E031	筑紫	H15.9.3	H15.9.6	O157:H7	2	ND	V''	III	
03E032	嘉穂	H15.8.14	H15.9.4	O157:H7	2	III c	IV	IV	
03E033	筑紫	H15.8.20	H15.8.23	O157:H7	2	ND	V'	III	
03E034	筑紫	(保菌者)	H15.8.27	O157:H7	2	ND	V'	III	
03E035	筑紫	(保菌者)	H15.8.27	O157:H7	2	ND	V'	III	
03E036	筑紫	(保菌者)	H15.8.27	O157:H7	2	ND	V'	III	
03E037	筑紫	(保菌者)	H15.8.28	O157:H7	2	ND	V'	III	
03E038	筑紫	H15.8.26	H15.8.28	O157:H7	2	ND	V'	III	
03E039	筑紫	(保菌者)	H15.8.28	O157:H7	2	ND	V'	III	
03E040	筑紫	(保菌者)	H15.8.28	O157:H7	2	ND	V'	III	
03E041	筑紫	(保菌者)	H15.8.28	O157:H7	2	ND	V'	III	
03E042	筑紫	(保菌者)	H15.8.28	O157:H7	2	ND	V'	III	
03E043	筑紫	H15.8.26	H15.8.28	O157:H7	2	ND	V'	III	
03E044	筑紫	(保菌者)	H15.8.28	O157:H7	2	ND	V'	III a	
03E045	筑紫	(保菌者)	H15.8.28	O157:H7	2	ND	V'	III	
03E046	筑紫	(保菌者)	H15.8.28	O157:H7	2	ND	V''	III	
03E047	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	III k	III a	III	
03E048	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	III k	III a	III	03E047と1バンド違い
03E049	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	III k	III a	III	03E047と同じ
03E050	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	III k	III a	III	03E047と同じ
03E051	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	III k	III a	III	03E047と同じ
03E053	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	III k	III a	III	03E047と同じ
03E054	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	III k	III a	III	03E047と同じ
03E055	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	III k	III a	III	03E047と同じ
03E056	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	III k	III a	III	03E047と同じ
03E057	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	III k	III a	III	03E047と同じ
03E058	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	III k	III a	III	03E047と同じ
03E059	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	III k	III a	III	03E047と同じ
03E060	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	III k	III a	III	03E047と同じ
03E061	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	III k	III a	III	03E047と同じ
03E062	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	III k	III a	III	03E047と同じ

表3-2 平成15年度に搬入された腸管出血性大腸菌のPFGE解析結果

菌株番号	搬入事務所	発症 年月日	届出 年月日	血清型	VT型	DNAパターン			備考
						<100bp	100-200bp	>200bp	
03E063	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	IIIk	IIIa	III	03E047と同じ
03E064	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	IIIk	IIIa	III	03E047と同じ
03E065	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	IIIk	IIIa	III	03E047と同じ
03E066	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	IIIk	IIIa	III	03E047と同じ
03E067	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	IIIk	IIIa	III	03E047と同じ
03E068	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	IIIk	IIIa	III	03E047と同じ
03E069	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	IIIk	IIIa	III	03E047と同じ
03E070	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	IIIk	IIIa	III	03E047と同じ
03E071	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	IIIk	IIIa	III	03E047と同じ
03E072	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	IIIk	IIIa	III	03E047と同じ
03E073	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	IIIk	IIIa	III	03E047と同じ
03E074	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	IIIk	IIIa	III	03E047と同じ
03E075	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	IIIk	IIIa	III	03E047と同じ
03E076	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	IIIk	IIIa	III	03E047と同じ
03E077	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	IIIk	IIIa	III	03E047と同じ
03E078	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	IIIk	IIIa	III	03E047と同じ
03E079	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	IIIk	IIIa	III	03E047と同じ
03E080	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	IIIk	IIIa	III	03E047と同じ
03E081	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	IIIk	IIIa	III	03E047と同じ
03E082	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	IIIk	IIIa	III	03E047と同じ
03E083	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	IIIk	IIIa	III	03E047と同じ
03E084	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	IIIk	IIIa	III	03E047と同じ
03E085	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	IIIk	IIIa	III	03E047と同じ
03E086	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	IIIk	IIIa	III	03E047と同じ
03E087	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	IIIk	IIIa	III	03E047と同じ
03E088	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	IIIk	IIIa	III	03E047と同じ
03E089	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	IIIk	IIIa	III	03E047と同じ
03E090	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	IIIk	IIIa	III	03E047と同じ
03E091	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	IIIk	IIIa	III	03E047と同じ
03E092	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	IIIk	IIIa	III	03E047と同じ
03E093	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	IIIk	IIIa	III	03E047と同じ
03E094	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	IIIk	IIIa	III	03E047と同じ
03E095	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	IIIk	IIIa	III	03E047と同じ
03E096	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	IIIk	IIIa	III	03E047と同じ
03E097	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	IIIk	IIIa	III	03E047と同じ
03E098	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	IIIk	IIIa	III	03E047と同じ
03E099	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	IIIk	IIIa	III	03E047と同じ
03E100	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	IIIk	IIIa	III	03E047と同じ
03E101	粕屋	(保菌者)	H15.7.20	O157:H7	2	IIIk	IIIa	III	03E047と同じ
03E102	粕屋	(保菌者)	H15.9.7	O157:H7	2	IIIa	ND	III	調理従事者
03E103	久留米	(保菌者)	H15.9.18	O157:H7	1+2	ND	ND	ND	調理従事者
03E104	遠賀	H15.10.14	H15.10.20	O157:H7	2	ND	IV	IV	03E105と1バンド違い
03E105	粕屋	H15.10.21	H15.10.29	O157:H7	2	ND	IV	IV	
03E106	粕屋	H15.10.1	H15.10.2	O157:H7	1+2	II a	ND	ND	
03E107	粕屋	(保菌者)	H15.10.2	O157:H7	1+2	II a	ND	ND	03E106と同じ
03E108	粕屋	(保菌者)	H15.10.8	O157:H7	1+2	II a	ND	ND	03E106と同じ
03E109	粕屋	(保菌者)	H15.10.27	O157:H7	2	ND	IV	IV	03E105と同じ
03E110	粕屋	(保菌者)	H15.11.2	O157:H7	2	ND	IV	IV	03E105と同じ
03E111	粕屋	(保菌者)	H15.11.4	O157:H7	2	ND	IV	IV	03E105と同じ
03E112	粕屋	(保菌者)	H15.11.3	O157:H7	2	ND	IV	IV	03E105と同じ
03E113	遠賀	H15.11.11	H15.11.17	O119:H7	1	ND	ND	ND	
03E114	筑紫	H15.11.25	H15.12.2	O157:H7	1	ND	ND	III	
03E115	久留米	H15.12.4	H15.12.10	O157:H7	2	II a'	ND	ND	
03E116	嘉穂	(保菌者)	H16.1.26	O91:H21	1	ND	ND	ND	調理従事者

* DNA のパターンは、*Xba*I で酵素処理した DNA の PFGE 像を分子量 <100kb, 100-200kb, >200kb の部分を下記に示すように分け、さらに1バンド違いではダッシュ (') を付け、またこれらに該当しないパターンは ND と表記され、これらの組み合わせにより型別されている。

<100kb : I--a, b, c, II--a, b, c, d, e, f, g, h, j, k, m, n, III--a, b, c, d, e, f, g, h, k, m,
IV--a, b, V--a, b, c, VI--1種のみ, VII--1種のみ, 計32種類

100-200kb : I --1種のみ, II --a, b, c, d, e, III--a, b, IV--1種のみ, V--a, b, VI--1種のみ, 計12種類

>200kb : I --3種, II-VI各1種のみ, 計8種類

資料

平成15年度収去食品中の食中毒細菌検査

濱崎光宏^{*1}，堀川和美^{*1}，村上光一^{*1}，長野英俊^{*2}，石黒靖尚^{*1}

一般に市販されている食品について，食中毒の予防，汚染食品の排除，流通食品の汚染実態の把握を目的とした食品収去検査を行った．牛肉，豚肉，鶏肉，魚介類，魚介類乾燥品および生野菜合計103検体について，汚染指標細菌および食中毒細菌の検査を行った．その結果，大腸菌群76件，黄色ブドウ球菌23件，セレウス菌10件，サルモネラ20件，腸炎ビブリオ1件，カンピロバクター2件が検出された．さらに，当年度は，生食用カキ5件について，一般細菌数，大腸菌群，腸炎ビブリオおよび赤痢菌について検査を行った．その結果，いずれの検体からも腸炎ビブリオおよび赤痢菌は検出されなかった．また，畜水産食品については，残留抗生物質モニタリング検査も併せて行った．その結果，いずれの検体からも残留抗生物質は検出されなかった．

〔キーワード：収去検査，食品検査，細菌〕

1 はじめに

食中毒の発生件数は，平成8年から増加傾向にあり，平成10年以降は全国で年間2000件以上発生している．そのうち細菌が原因の事例が約80%を占めている．その中でも，平成8年に大阪府堺市での腸管出血性大腸菌 O157 による集団食中毒事件，平成11年の乾燥イカ菓子を原因とするサルモネラの広域食中毒事件，平成12年の乳飲料中への黄色ブドウ球菌毒素混入事件，平成13年の輸入生食用カキを原因とする赤痢菌の食中毒事件など大規模な食中毒が発生している．そこで，福岡県では，汚染食品の排除，食中毒発生の未然防止対策，流通食品の汚染実態の把握を目的とし，食品衛生法に基づき，知事の権限で食品衛生監視員が収去した食品について，汚染指標細菌や食中毒細菌の検査を行った．また，厚生労働省医薬局食品保健部監視安全課長通知（平成13年3月30日，食監発第53号）により，畜水産食品について，残留抗生物質の有無を調査した．

2 方法

2・1 検査項目

検査項目は，汚染指標細菌（一般細菌数，大腸菌群，嫌気性細菌数）および食中毒細菌（黄色ブドウ球菌，サルモネラ，腸管出血性大腸菌 O157，カンピロバクター，エルシニア，ウエルシュ菌，セレウス菌，ナグビブリオ，

腸炎ビブリオ，ビブリオ・ミミカス，ビブリオ・フルビアリス）の14項目について検査した．また，当年度は，生食用カキについて，一般細菌数，大腸菌群，腸炎ビブリオおよび赤痢菌の4項目について検査を行った．

2・2 検体

平成15年5月12日から12月1日にかけて，県生活衛生課を通じ県内13保健所で収去した牛肉15件，豚肉15件，鶏肉32件，魚介類20件，魚介類乾燥品6件，生野菜10件および生食用カキ5件合計103検体について検査した．

2・3 細菌検査方法

それぞれの食品について各項目の検査方法は，成分規格がある食品は公定法（食品衛生法および関連法規）¹⁾ に従い実施し，それ以外の食品に関しては，食品衛生検査指針²⁾ および検査課微生物マニュアル³⁾ に従い実施した．

エルシニア，カンピロバクター，黄色ブドウ球菌，ビブリオ属，セレウス菌の検査方法は，検体25g に PBS を 225ml 加えストマッキングし，エルシニア増菌培地，プレストン培地，アルカリペプトン，ポリミキシン B および7.5%塩化ナトリウムブイヨンで増菌培養した後，CIN 寒天培地，スキロー寒天培地，TCBS 寒天培地，NGKG 寒天培地，ビブリオ寒天およびエッグヨーク寒天培地などの分離培地で検出した．検査対象と考えられるコロニーを釣菌し，TSI や SIM で生化学性状を確認し

*1 福岡県保健環境研究所 (〒818-0135 福岡県太宰府市大字向佐野39)

*2 田川保健福祉環境事務所 (〒825-8577 福岡県田川市大字伊田松原通り3292-2)

た．必要に応じて血清型別試験や他の細菌学的検査を行い同定した．腸管出血性大腸菌 O157の検査方法は、検体25g にノボビオシン加 mEC 培地（modified escherichia coli broth with noboviciin, 以下 N-mEC と略す）を225ml 加えストマッキングした．37℃で24時間培養後、免疫磁気ビーズで腸管出血性大腸菌 O157を集菌した．クロモアガー O157寒天培地および CT-SMAC 寒天培地で検出した．検査対象と考えられるコロニーを釣菌し、TSI, SIM, リジンで生化学性状を確認した．必要に応じて血清型別試験やペロ毒素産生試験を行い同定した．サルモネラの検査方法は、検体25g に Buffered pepton water（以下 BPW と略す）を225ml 加えストマッキングし、37℃で24時間培養後、ラパポートブイヨンおよびハートテトラチオン増菌培地で培養し、XLT4寒天培地および SMID 寒天培地で検出した．検査対象と考えられるコロニーを釣菌し、TSI, SIM およびリジンで生化学性状を確認した．必要に応じて血清型別試験や他の細菌学的検査を行い同定した．赤痢菌の検査方法は検体25g に BPW を225ml 加えストマッキングし、37℃で20時間好気的に培養し、ノボビオシン加 Shigella broth に接種し44℃で20時間嫌気的に培養した．DHL およびクロモアガー O157 TAM で検出し、必要に応じて生化学性状の確認を行った．

魚介類については腸炎ビブリオ検査の代わりに、厚生労働省医薬局食品保険部基準課長通知（平成13年度6月29日、食基発第22号）により、腸炎ビブリオ菌数を測定する最確数検査を実施した．また、汚染指標細菌の検査は、常法により行った．

2・4 畜水産食品の残留物質モニタリング検査方法

牛肉15件、豚肉15件、養殖魚介類20件の、合計50件に付いて、残留抗生物質等（ペニシリン系、アミノグリコシド系、マクロライド系、テトラサイクリン系、クロラムフェニコール、ノボビオシン、フマル酸チアムリン）の有無を、微生物を用いた簡易検査法により検査した．

3 結果

3・1 細菌検査結果

細菌検査結果を表1に示す．大腸菌群は76件が陽性を示し、黄色ブドウ球菌は23件から検出された．また、鶏肉2件から *Campylobacter jejuni* が検出され、その血清型は、Penner の J および K であった．腸炎ビブリオは魚介類1件から検出され、セレウス菌は牛肉1件、鶏肉3件、魚介類乾燥品2件、生野菜4件、合計10件から検出された．サルモネラは鶏肉20件から検出され、*Salmonella Infantis* が13件、*Salmonella Haifa* が1件、*Salmonella Manhattan* が2件、*Salmonella Cerro* が1件、血清型別不能が3件検出された．また、他の食中毒細菌については検出されな

かった．全ての生食用のカキから赤痢菌および腸炎ビブリオは、検出されなかったが、生食用カキ5検体のうち1検体から大腸菌が検出され、その菌数は、130cfu/100g であった．

3・2 畜水産食品の残留物質モニタリング検査結果

いずれの検体からも残留抗生物質等は検出されなかった．

4 考察

食品ごとの大腸菌群の検出率を比較すると、生野菜が100%と最も高く、鶏肉が93.8%、魚介類が85.0%であった．黄色ブドウ球菌については、魚介類が50.0%、牛肉および豚肉が20.0%、セレウス菌については、生野菜で40%、魚介類乾燥品で33.3%、鶏肉で9.4%であった．サルモネラおよびカンピロバクターについては、鶏肉のみから62.5%および6.3%の検出率であり、鶏肉の食中毒細菌による汚染が最も高く、調理する際には十分な加熱が必要であり、使用する調理機材も他の食品と区別するのが望ましいと考えられた．過去の本調査における鶏肉のサルモネラおよびカンピロバクターの検出状況⁴⁾を比較すると、平成14年度はサルモネラが48.0%、カンピロバクターが4.0%検出され、平成13年度は、サルモネラが50.0%検出された．当年度の検出率と比較すると、カンピロバクターは平成14年度と変化がないが、サルモネラは増加傾向にある．サルモネラは、細菌性食中毒の最も多い病因物質であり、鶏肉を扱う飲食店、小売業者等への注意および啓蒙が必要と考えられる．

汚染指標菌である大腸菌は、ほとんどの食品から検出されており、流通課程で何らかの汚染が生じた可能性がある．特に、今回調査を行った生野菜からの大腸菌の検出率は最も高く、食する前に流水で洗浄し、長時間室温に放置しない等その取り扱いに注意することが望ましいと考えられる．

平成14年度から調査した生食用カキからは、赤痢菌が検出されなかった．搬入されたカキは国内産であるため、国内産のカキについて赤痢菌の汚染は、現在の所無いと考えられる．また、一般細菌数、大腸菌数共に他の食品と比較して低く、その流通経路でも細菌学的な汚染は無いものと考えられる．

5 まとめ

今回の調査で、現在流通している食品中の食中毒細菌、残留抗生物質等の汚染状況を把握することができた．これらのデータは、今後、食中毒予防対策および食品の安全性確保のために利用でき、食品衛生行政に役立つものと考えられる．

文献

- 1) 厚生省監修：食品衛生小六法，平成11年度版，222-706，東京：新日本法規，1999.
- 2) 厚生省監修：食品衛生検査指針・微生物編，67-203，東京，日本公衆衛生協会，1990.
- 3) 福岡県保健福祉部：検査課微生物マニュアル，8-60，福岡，1999.
- 4) 福岡県保健環境研究所：福岡県保健環境研究所年報，30，183-185，福岡，2002.

表1 汚染指標細菌あるいは食中毒細菌が検出された検体数

	検査件数	大腸菌群	黄色ブドウ 球菌	カンピロバ クター	腸炎ビブリ オ	セレウス菌	サルモネラ	赤痢菌
牛肉	15	10	3	0	0	1	0	検査せず
豚肉	15	8	3	0	0	0	0	検査せず
鶏肉	32	30	6	2	0	3	20	検査せず
魚介類	20	17	10	0	1	0	0	検査せず
魚介類乾燥品	6	1	0	0	0	2	0	検査せず
生野菜	10	10	1	0	0	4	0	検査せず
生食用カキ	5	1	検査せず	検査せず	0	検査せず	検査せず	0
計	103	77	23	2	1	10	20	0

資料

平成15年度感染症流行予測調査（ジフテリア，破傷風，百日咳）

濱崎光宏^{*1}，村上光一^{*1}，堀川和美^{*1}，長野英俊^{*2}，石黒靖尚^{*1}

ジフテリア，破傷風，百日咳に対する県民の抗体保有状況を調査した。0歳2ヶ月から61歳までの男女291名の血清について破傷風毒素，ジフテリア毒素，百日咳毒素および百日咳繊維状赤血球凝集素に対する抗体価を調査した結果，0.01IU/ml以上を抗体陽性とする破傷風毒素に対する抗体の陰性率は24.4%，ジフテリア毒素に対する抗体の陰性率は16.5%であった。百日咳毒素および百日咳繊維状赤血球凝集素に対する抗体価調査では，1単位/ml以上を抗体陽性とした場合，百日咳毒素に対する抗体の陰性率は全体で17.5%，百日咳繊維状赤血球凝集素に対する抗体の陰性率は3.8%であった。

[キーワード：流行予測調査，ジフテリア毒素抗体価，破傷風毒素抗体価，百日咳毒素抗体価，百日咳繊維状赤血球凝集素抗体価]

1 はじめに

ジフテリア，破傷風および百日咳の感染予防を目的としたワクチンは，三種混合ワクチン（DPT）と呼ばれており，生後6ヶ月から2歳までの乳幼児に接種されている。予防接種法によると，DPTは一類疾病接種に分類されており，ワクチン接種の努力をしなければならないワクチンの1つである。1974年12月から1975年1月にかけて発生したDPTによる死亡事故をきっかけに，DPT接種を一時中断した。その結果，百日咳の患者が増加し，1979年にピークに達した。副反応が少ない沈降精製百日咳ジフテリア破傷風ワクチン（DaPT）が開発され，予防接種も再開された。その後，百日咳患者数は減少したが，2000年以降も患者数は，推定1万人以上発生しており，注意が必要な感染症である。

また，ジフテリアは，国内での患者はほとんど見られないが，1990年から1995年にかけてロシアで125000人の患者が発生し，4000人以上の死亡が確認された。このように世界各地で流行が確認されており，輸入感染症として国内に侵入する可能性があるため抗毒素抗体を維持する必要がある。

破傷風は，国内の患者発生数は，毎年100人以下であるが，致死率が20～50%と高く，創傷感染し，発病の危険度は個人の免疫に依存するため，予防接種により抗毒素抗体を維持する必要がある。

そこで，福岡県において，集団免疫の現状把握および長期的な視野で疾病の流行を予測することを目的とし，平成15年6月25日健発第0625003号厚生労働省健康局長通知による「平成15年度感染症流行予測調査の実施」に基づき調査を行った。なお，山形県，茨城県，東京都，福井県，大阪府，愛媛県，宮崎県の各自治体でも同様な検査を実施した。

2 方法

2・1 検査項目

検査項目は，平成15年度感染症流行予測調査実施要領に基づき，ジフテリア毒素に対する抗体価，破傷風毒素に対する抗体価，百日咳毒素に対する抗体価並びに百日咳繊維状赤血球凝集素に対する抗体価の4項目であった。

2・2 検体

本調査は，平成15年7～10月に宗像保健福祉環境事務所および，粕屋保健福祉環境事務所によって採血された7年齢区分（0-4歳～50歳以上）291名の血清を対象とし，ジフテリア，破傷風および百日咳に対する抗体価を測定した。なお，本調査において，20～29歳の男性の血清を得ることができなかった。

2・3 検査方法

検査方法は，感染症流行予測調査検査術式¹⁾に従い実施した。血清を56℃で30分非働化し，以下の試験に使用

*1 福岡県保健環境研究所 (〒818-0135 福岡県太宰府市大字向佐野39)

*2 田川保健福祉環境事務所 (〒825-8577 福岡県田川市大字伊田松原通り3292-2)

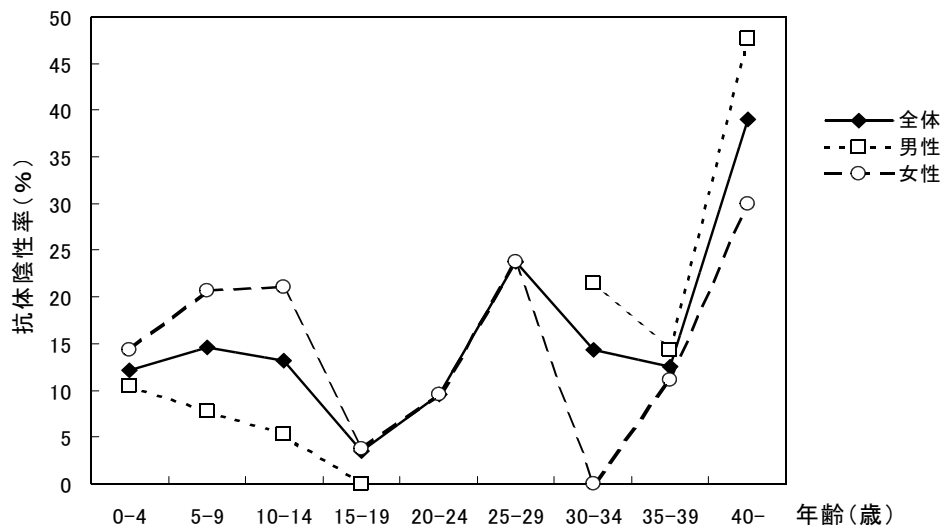


図1 ジフテリア毒素に対する年齢別抗体陰性率

した。ジフテリア毒素に対する抗体価測定は、96穴マイクロプレートを用いた培養細胞法で行った。血清を2倍段階希釈し、16CD₅₀/25 μ lに希釈したジフテリア毒素を添加後、37℃で30分中和した。培養液および3 $\times$ 10⁵cells/mlのVero細胞を加え、37℃で4～5日間培養し細胞変性効果を観察した。細胞変性効果が観察された最初の希釈倍率から抗体価を算出した。破傷風毒素に対する抗体価測定は、破傷風抗体測定キット（(財)化学血清療法研究所）を用いて実施した。96穴U型マイクロプレートを用い、血清を2倍段階希釈した。感作ラテックスを加え、室温で2時間反応後、凝集像の判定を行った。凝集が観察された最大希釈倍率から抗体価を算出した。百日咳毒素および百日咳赤血球凝集素に対する抗体価測定は、百日咳抗体価測定キット（(株)武田薬品工業）を用いて、ELISAボール法で行った。24穴マイクロプレートに血清、希釈液、百日咳毒素抗原結合固相および百日咳繊維状赤血球凝集素抗原結合固相を加え、37℃で1時間反応した。洗浄液で3回洗浄し、標識抗体を加え室温で30分反応した。洗浄液で3回洗浄後、発色液を加え、492nmの吸光度を測定した。キットに付属の陽性コントロールを用いて検量線を作成し、それぞれの検体の抗体価を算出した。

3 検査結果

3・1 ジフテリア感受性調査

ジフテリア毒素に対する抗体価の調査結果を図1に示す。ジフテリアの感染防御水準は0.01IU/mlと考えられているため、判定は0.01IU/ml以上を抗体陽性とした。抗体陰性率は全体で16.5%、年齢区分で陰性率が最も高

かったのは40歳以上のグループで39.0%、ついで25-29歳のグループで23.8%の順であった。また、最も抗体陰性率が低かったのは15-19歳のグループで3.4%、ついで20-24歳のグループで9.5%の順であった。予防接種の効果が期待されている0～19歳の年齢区分において、女性の方が男性より抗体陰性率が高い傾向が観察された。

3・2 破傷風感受性調査

破傷風毒素に対する抗体価の調査結果を図2に示す。破傷風の感染防御水準は0.01IU/mlと考えられているため、判定は0.01IU/ml以上を抗体陽性とした。抗体陰性率は全体で24.4%、年齢区分で陰性率が最も高かったのは40歳以上のグループで87.8%、ついで35-39歳のグループ56.3%の順であった。また、最も抗体陰性率が低かったのは15-19歳のグループで0.0%、ついで0-4歳のグループ3.0%の順であった。破傷風毒素に対する抗体調査においては、性別による抗体陰性率に差は認められなかった。

3・3 百日咳感受性調査

百日咳毒素に対する抗体価調査の結果を図3に示す。判定は、1単位/ml以上を抗体陽性とした。抗体陰性率は全体で17.5%、年齢区分で陰性率が最も高かったのは、5-9歳のグループで41.8%、ついで15-19歳のグループで27.6%の順であった。また、最も抗体陰性率が低かったのは40歳以上のグループで2.4%、ついで30-34歳のグループで4.8%の順であった。

百日咳繊維状赤血球凝集素に対する抗体価調査の結果を図4に示す。判定は、1単位/ml以上を抗体陽性とした。抗体陰性率は全体で3.8%、年齢区分で陰性率が最も高かったのは25-29歳のグループで14.3%、ついで35-39歳

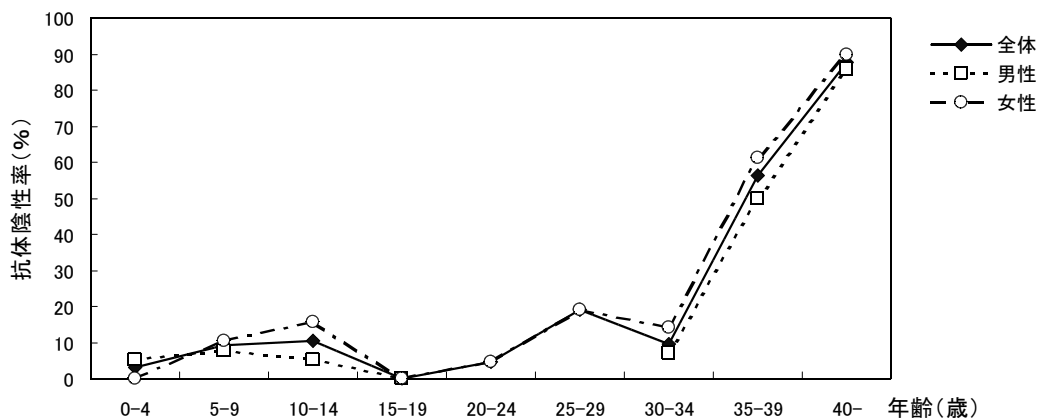


図2 破傷風毒素に対する年齢別抗体陰性率

のグループ6.3%の順であった。また、最も抗体陰性率が低かったのは10-14, 15-19歳および20-24歳のグループで0.0%, ついで40歳のグループ2.4%の順であった。

百日咳毒素および百日咳繊維状赤血球凝集素に対する抗体調査において、破傷風毒素に対する抗体調査と同様に性別による抗体陰性率の差は認められなかった。

4 考察

破傷風およびジフテリア毒素に対する抗体価は、乳幼児や児童などの若年齢層で抗体陰性率が低く、年齢を経るに従って抗体陰性率が高くなる傾向が見られた。これらの結果から、予防接種により効果的に破傷風およびジフテリア毒素に対する抗体価が得られていると考えられる。しかし、百日咳においては、百日咳毒素に対する抗体価に関して5-9歳の若年齢層で抗体陰性率が高くなっており、予防接種による十分な抗体価が得られていない。この原因については、不明であるが、今回調査したこのグループの予防接種歴を見ると58人中4人が接種歴不明であるが、他の54人に関しては3~4回接種していた。また、百日咳毒素および百日咳繊維状赤血球凝集素に対する抗体共に年齢を経るに従って抗体陰性率が低くなる傾向があり、30歳以上では被験者の多くが百日咳菌もしくはパラ百日咳菌に感染（不顕性感染を含む）した可能性が示唆された。百日咳の感染防御水準は不明であるが、予防接種の効果を過去に調査した結果²⁾から、2回以上予防接種を受けた人では、90%以上の発病防御効果が認め

られた。今後、百日咳の感染防御水準の調査は必要と考えられるが、百日咳の患者発生を減少させるためにも予防接種を2回以上接種するように奨励しなければならないと考えられる。

また、今回の抗体調査において、ジフテリア毒素および破傷風毒素に対する抗体陰性率が20歳以上で上昇していることから、ジフテリアおよび破傷風の感染者数が百日咳の感染者数と比較して少ないことが示された。このことは、それぞれの患者報告数を裏付けるものである。

5 まとめ

今回の調査で、福岡県民のジフテリア毒素、破傷風毒素、百日咳毒素および百日咳繊維状赤血球凝集素に対する抗体保有状況を把握することができた。これらのデータは、今後、疾病の流行予測、感染予防、効果的な予防接種のために利用でき、公衆衛生行政に役立つものと考えられる。また、このような感染症の流行を防止するためには、予防接種により集団免疫を高めるのが良いと考えられる。そのためにも、適切な予防接種の普及を行うことは、行政の重要な役割であると考えられる。

文献

- 1) 国立感染症研究所感染症流行予測事業委員会
：感染症流行予測調査術式，53-68，東京，2002。
- 2) 予防接種リサーチセンター：最新予防接種の知識，63-80，東京，1990。

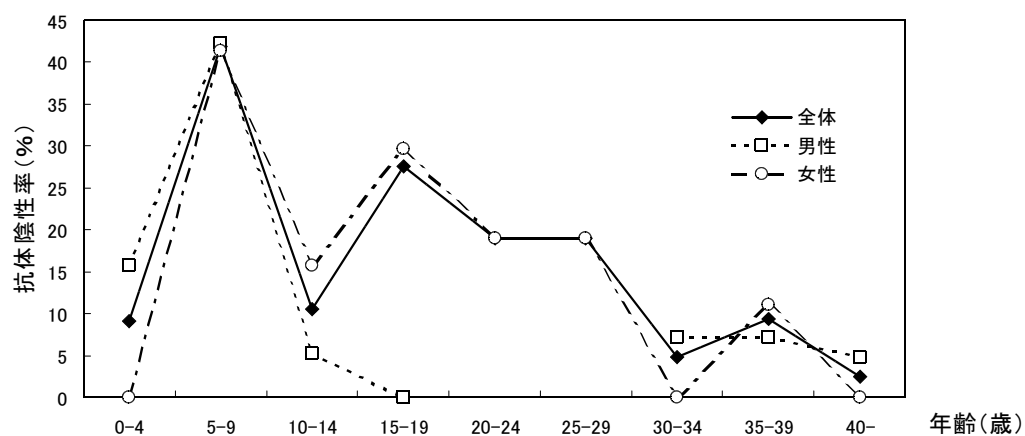


図3 百日咳毒素に対する年齢別抗体陰性率

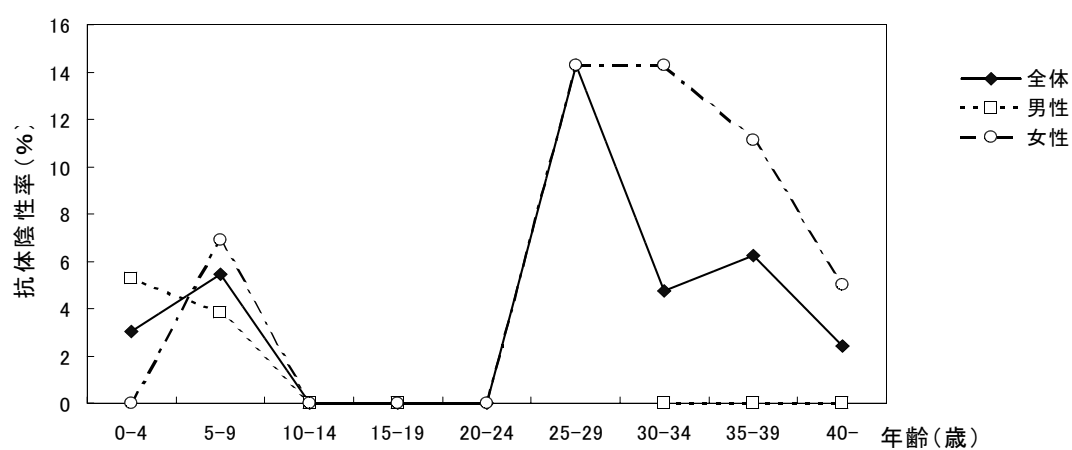


図4 百日咳繊維状赤血球凝集素に対する年齢別抗体陰性率

資料

平成15年度食品の食中毒菌汚染実態調査

濱崎光宏*¹，長野英俊*²，堀川和美*¹，村上光一*¹，石黒靖尚*¹

一般に市販されている食品について，食中毒の予防，汚染食品の排除，流通食品の汚染実態の把握を目的とする食中毒菌の汚染実態調査を行った．ステーキ用牛肉，ミンチ肉，生食用肉および野菜合計122検体について，大腸菌，サルモネラおよび腸管出血性大腸菌 O157の検査を行った．その結果，大腸菌45件およびサルモネラ1件が検出された．腸管出血性大腸菌 O157は，いずれの検体からも検出されなかった．また，当年度は，生食用カキ10件について赤痢菌の検査を行ったが，いずれの検体からも赤痢菌は検出されなかった．

[キーワード：食品検査，細菌，汚染実態調査]

1 はじめに

最近の食中毒事件は広域にわたって発生し，患者数も多くなる傾向が見られる．例えば，平成8年に関西地方で発生した腸管出血性大腸菌 O157による集団食中毒事件では，患者数が6000人を越え大規模な食中毒事件であった．平成10年のイクラのしょうゆ漬けを原因とする腸管出血性大腸菌 O157の食中毒事件，平成13年度の輸入カキを原因とするサルモネラの食中毒事件など大規模な食中毒が発生している．今後，このような食中毒を未然に防止するためにも食品の安全性確保は，行政の重要な役割である．

福岡県では，汚染食品の排除，食中毒発生の未然防止対策，流通食品の汚染実態を把握を目的とし，平成15年6月24日食発第0624002号厚生労働省医薬局食品保健部長通知による平成15年度食品の食中毒菌の汚染実態調査の実施に基づき調査を行った．なお，北海道，岩手県，千葉県，東京都，神奈川県，奈良県，山口県，宮崎県，沖縄県，札幌市，千葉市，川崎市，横浜市，福岡市，北九州市，宮崎市の各自治体でも同様な検査を実施した．

2 方法

2・1 検査項目

検査項目は，大腸菌，サルモネラおよび腸管出血性大腸菌 O157の3菌種について行った．また，生食用カキについては，赤痢菌について検査を実施した．

2・2 検体

平成15年9月8日から12月1日にかけて，県生活衛生課を通じ県内13保健所で収去した野菜類（カイワレ，アルファ，レタス，みつば，モヤシ，キュウリ，カット野菜）60件，ミンチ肉20件，生食用の牛レバーや牛たたきなどの牛肉類34件，鶏肉類3件および馬肉類7件，生食用カキ10件，合計132検体について検査した．

2・3 検査方法

それぞれの食品について各項目の検査方法は，成分規格がある食品は公定法（食品衛生法および関連法規）¹⁾に従い実施し，それ以外の食品に関しては，食品衛生検査指針²⁾および検査課微生物マニュアル³⁾に従い実施した．腸管出血性大腸菌 O157の検査は，検体25g にノボオシン加 mEC 培地（modified escherichia coli broth with noboviocin，以下 N-mEC と略す）を225ml 加えストマッキングした．37℃で24時間培養後，免疫磁気ビーズで O157を集菌し，クロモアガー O157寒天培地および CT-SMAC 寒天培地で検出した．検査対象と考えられるコロニーを釣菌し，TSI，SIM，リジンで生化学性状を確認した．必要に応じて血清型別試験やペロ毒素産生試験を行い同定した．大腸菌の検査は，検体25g に N-mEC 225ml 加え，ストマッキングした後，37℃で24時間培養した．ダーラム管入り EC 培地で2次増菌を行い，クロモアガー ECC 寒天培地で検出した．サルモネラの検査は，検体25g に Buffered pepton water（以下 BPW と略す）を225ml 加えストマッキングした．37℃で24時間培養後，

*1 福岡県保健環境研究所 (〒818-0135 福岡県太宰府市大字向佐野39)

*2 田川保健福祉環境事務所 (〒825-8577 福岡県田川市大字伊田松原通り 3292-2)

ラパポートブイヨンおよびハートテトラチオン増菌培地で培養し、XLT4寒天培地および SMID 寒天培地で検出した。検査対象と考えられるコロニーを釣菌し、TSI, SIM およびリジンで生化学性状を確認した。必要に応じて血清型別試験や他の細菌学的検査を行い同定した。赤痢菌の検査は、検体25g に BPW を225ml 加えストマッキングし、37℃で20時間好氣的に培養し、ノボビオシン加 Shigella broth に接種し44℃で20時間嫌氣的に培養した。DHL およびクロモアガー O157TAM で検出し、必要に応じて生化学性状の確認を行った。また、成分規格基準は食品衛生法（食品、添加物等の規格基準）で行った。

3 検査結果

検査結果を表1に示す。大腸菌は122検体中45件（36.9%）から検出された。サルモネラは、生食用鶏肉（鶏タタキ）から *Salmonella* *Infantis* が1件検出された。腸管出血性大腸菌 O157は、いずれの検体からも検出されなかった。また、いずれの生食用カキからも腸炎ビブリオおよび赤痢菌は検出されず、同時に実施した成分規格も違反はなかった。

4 考察

食品ごとの大腸菌の検出率を比較すると、ミンチ肉が80.0%と最も高く、生食用鶏肉が75.0%、ステーキ用牛肉が45.0%、生食用牛肉および生食用馬肉が33.3%、生野菜が18.3%であり、糞便汚染の指標菌として検査を行う大腸菌が多く検出されている。特にミンチ

肉を調理する際には、十分な加熱が必要であり、使用する調理機材も他の食品と区別するのが望ましいと考えられる。また、今回の調査で、生食用の肉類からも多数大腸菌が検出されていることから、これらの食品は、長時間室温に放置せず、適切な温度管理を行い保存するようしなければならないと考えられる。

サルモネラや腸管出血性大腸菌 O157は、動物の腸管内に保有されており、食肉処理の過程で汚染が広がるということが知られている。当年度の調査で、サルモネラについては、鶏肉のみから25.0%検出されたが、腸管出血性大腸菌 O157は検出されなかった。サルモネラの検出率も比較的低く、食品衛生監視員の適切な指導の成果と考えられる。

5 まとめ

今回の調査で、現在流通している食品中の食中毒細菌の汚染状況を把握することができた。これらのデータは、今後、食中毒予防対策および食品の安全性確保のために利用でき、食品衛生行政に役立つものと考えられる。

文献

- 1) 厚生省監修：食品衛生小六法，平成11年度版，222-706，東京：新日本法規，1999
- 2) 厚生省監修：食品衛生検査指針・微生物編，67-203，東京：日本公衆衛生協会，1990.
- 3) 福岡県保健福祉部：検査課微生物マニュアル，8-60，福岡，1999.

表1 食品の食中毒菌汚染実態調査において検出された検体数

	検査検体数	大腸菌	サルモネラ	腸管出血性大腸菌 O157	赤痢菌
野菜	60	11	0	0	検査せず
ステーキ用 牛肉	20	9	0	0	検査せず
ミンチ肉	20	16	0	0	検査せず
生食用鶏肉	4	3	1 (<i>Salmonella</i> <i>Infantis</i>)	0	検査せず
生食用牛肉	9	3	0	0	検査せず
生食用馬肉	9	3	0	0	検査せず
生食用カキ	10	検査せず	検査せず	検査せず	0
計	132	45	1	0	0

資料

過去3年間にけるインフルエンザウイルスの分離状況

江藤良樹，世良暢之，梶原淳睦，千々和勝己

平成13年度から平成15年度の感染症発生動向調査事業における，インフルエンザウイルスの分離状況を報告する．感染症発生動向調査病原体定点の医療機関において，平成13年からの3年間で，臨床症状からインフルエンザと診断された387件の検体が採取された．これらの検体よりウイルス分離を行ったところ，インフルエンザウイルス A/H1型が16株，A/H3型が95株，B 型が18株，その他のウイルスが13株分離された．年度ごとに代表される分離株は，平成13年度は A/H1型が，平成14年は A/H3型が，翌年の平成15年度も A/H3型であった．また，当研究所では，MDCK によるインフルエンザウイルス分離に加えて発育鶏卵による分離を行っているが，この3年間で発育鶏卵によるウイルスの分離率が低下し，平成15年度には1株も分離できなかった．

[キーワード：インフルエンザウイルス，MDCK，発育鶏卵，分離率]

1 はじめに

本県では感染症流行の実態を明らかにし，感染症流行のメカニズムを解明するために感染症発生動向調査事業を実施している．当研究所で実施した平成13年度から平成15年度までの福岡県感染症発生動向調査事業のウイルス検索における，インフルエンザウイルス分離状況について報告する．

2 材料及び方法

平成13年度から平成15年度に県下（福岡市，北九州市を除く）の感染症発生動向調査病原体定点の医療機関において，インフルエンザ患者から採取された咽頭ぬぐい液等の検査材料が，平成13年に91件，平成14年に167件，平成15年に129件の計387件が当研究所に搬入された．これらの検体を，MDCK 細胞及び発育鶏卵に接種しインフルエンザウイルスの分離を行った．また，Vero，FL，RD-18s，HEp-2の4種の培養細胞による，インフルエンザウイルス以外のウイルス分離も同様に試みた．分離されたウイルスは国立感染症研究所より分与された抗血清やゲンカ生研製の抗血清を用い，中和試験，赤血球凝集阻止（HI）試験により血清型別を同定した．また，HI 試験を行うのに十分な赤血球凝集（HA）力価が得られなかった検体については，PCR 法による同定を行った．

3 結果及び考察

各年度における患者より採取された検体数と検査結果を表1に，福岡県内の一定点当たりのインフルエンザ患者報告数の推移と分離ウイルスを図1に示した．平成13

年度に主な流行型として A/H1型が16株分離されたが，平成14年以降には A/H1型は分離されていない．一方で，平成13年度に1株だけ分離されていた A/H3型は平成14年度に48株，平成15年度に46株が分離され，平成14年度以降は主な流行型となった．インフルエンザ患者報告数と流行型の関係を見てみると，流行型が A/H1型から A/H3型と変わった平成14年にはピーク時の患者数が前年の2倍程度まで増加している（図1）．インフルエンザウイルス B 型は平成13年度に4株，14年に12株，平成15年度に2株が分離された．

各年度のインフルエンザ流行期における月別の分離株数を図2.1，図2.2，図2.3 に示した．平成13年度の流行期には主に A/H1型が分離されたが，A/H1型が分離されたのは前半のみで，それ以降は A/H3型と B 型が数株分離された（図2.1）．平成14年度の流行期には，前半に A/H3型が多く分離され，後半には B 型が多く分離された（図2.2）．一定点当たりの患者数は前半にピークがあることから，前半に A/H3型による流行が起こった後に B 型による小規模な流行あったと考えられる．平成15年度は流行期の分離株の大半が A/H3型が占めたことから，A/H3型による流行であったことがわかる（図2.3）．

表2に各年度ごとのインフルエンザウイルスの分離率を示した．発育鶏卵と MDCK を合わせた分離率は，平成13年度に23.3%，平成14年度に39.7%，平成15年度に45.0%となり，平成14年に A/H1型から A/H3型へと流行型が変わるとともに分離率も大きく上昇している．

MDCK のみでの分離率を見てみると、平成14年度に分離率が前年の21.1%から37.1%へと高くなっていることから、A/H3型はA/H1型に比べ、MDCK で分離されやすいと考えられる。一方で、発育鶏卵での分離率は平成13年から低下を続け、平成15年度には一株も分離できていない。このことから、平成14年度からの流行株である A/H3型はニワトリへの感染性が低くなっていると推測される。このことは、流行株に対して有効なワクチン製造へ

の大きな問題点となる。

また、今シーズンには、日本国内で高病原性トリインフルエンザ（A/H5型）によるニワトリの大量死が発生した。現在流行している A/H5型のヒトへの感染性は非常に低いと考えられているが、今後、ヒトへの感染性を獲得する可能性も否定できない。これらのことから、インフルエンザウイルスの今後の動向が注目される。

表1 過去3年間のインフルエンザ検査結果

採取数（種別）		分離ウイルス	数（検体種別）
平成13年度	91（NP83,SF5,FC2,PS1）	インフルエンザウイルスA/H1型	16株（NP16）
		インフルエンザウイルスA/H3型	1株（NP1）
		インフルエンザウイルスB型	4株（NP4）
		アデノ2型	10株（NP10）
		エコー11型	1株（NP1）
平成14年度	167（NP145,PS16,SF5,FC1）	インフルエンザウイルスA/H3型	48株（NP48）
		インフルエンザウイルスB型	12株（NP12）
		アデノ4型	1株（NP1）
		エコー13型	1株（NP1）
		インフルエンザウイルスB陽性	1件（PS1）
平成15年度	129（NP108,PS19,FC2）	インフルエンザウイルスA/H3型	46株（NP46）
		インフルエンザウイルスB型	2株（NP2）
		インフルエンザウイルスA/H3陽性	8件（PS8）
		インフルエンザウイルスB陽性	5件（PS5）
ウイルス分離数			142株
NP:鼻咽頭材料、FC:糞便、SF:髄液、PS:ペア血清			

NP:鼻咽頭材料、FC:糞便、SF:髄液、PS:ペア血清

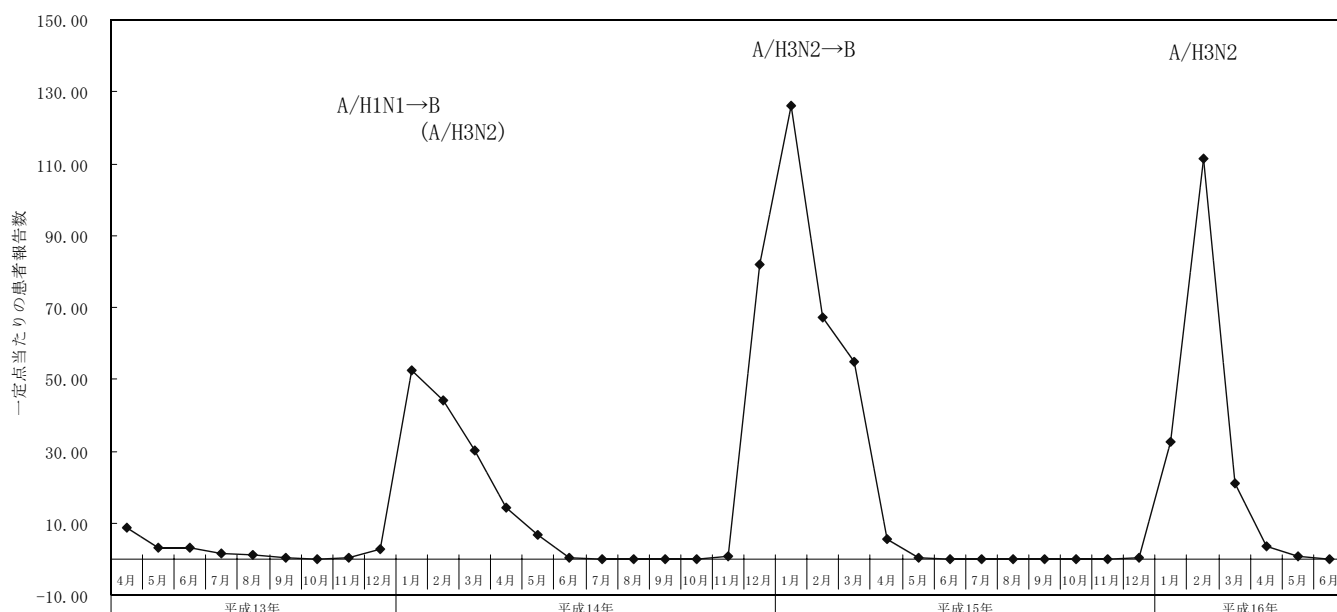


図1 インフルエンザの一定点あたりの患者報告数とウイルス型（福岡県全体）

（福岡県医師会解析委員会資料より引用）

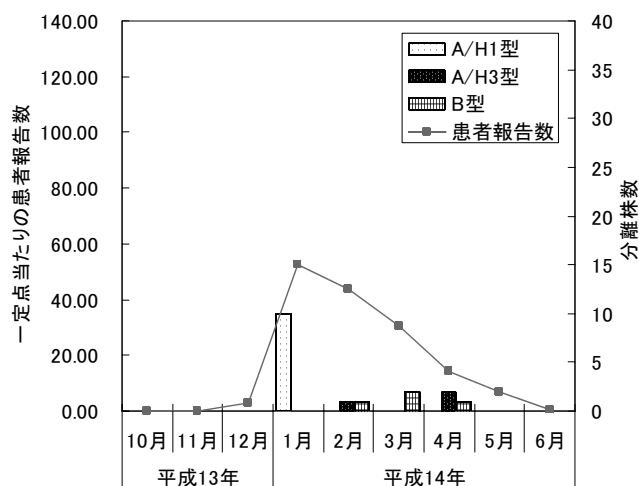


図2.1 平成13年/平成14年の流行期の月別分離株数

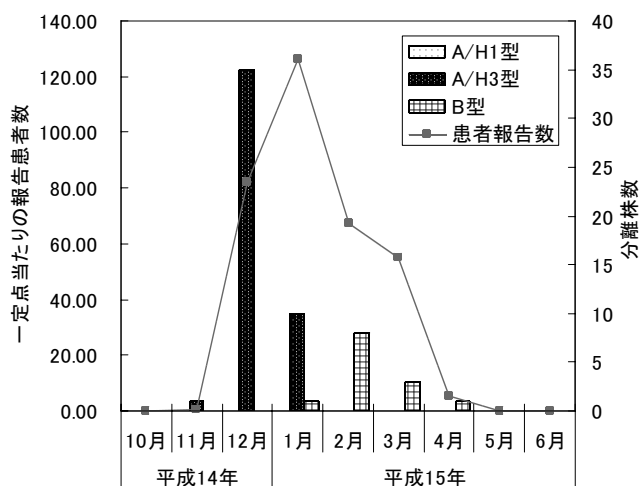


図2.2 平成14年/平成15年の流行期の月別分離株数

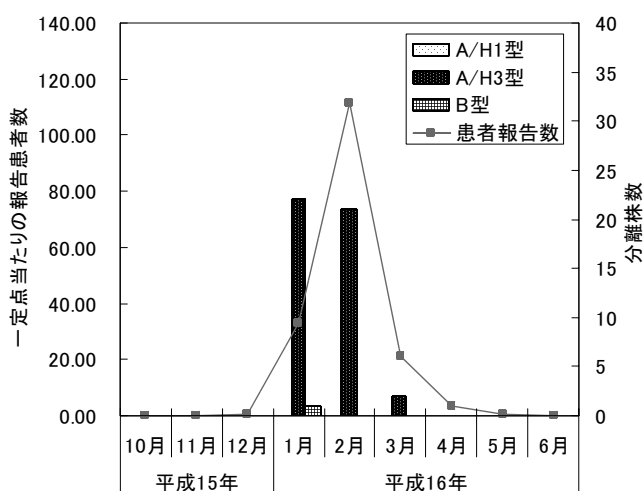


図2.3 平成15年/平成16年の流行期の月別分離株数

表2 インフルエンザウイルスの分離率比較

	分離株数(MDCK+発育鶏卵)			分離率
	A/H1	A/H3	B	
平成13年度	16	1	4	23.3% (21/ 90)
平成14年度		48	12	39.7% (60/151)
平成15年度		46	2	45.0% (48/110)
	16	95	18	37.1% (129/351)
	分離株数(MDCK)			分離率
	A/H1	A/H3	B	
平成13年度	14	1	4	21.1% (19/ 90)
平成14年度		47	9	37.1% (56/151)
平成15年度		46	2	43.6% (48/110)
	14	94	15	35.0% (123/351)
	分離株数(発育鶏卵)			分離率
	A/H1	A/H3	B	
平成13年度	7	1		9.6% (8/ 83)
平成14年度		2	4	4.1% (6/145)
平成15年度				0.0% (0/108)
	7	3	4	4.2% (14/336)

資料

福岡県内における有明海流入河川の水質と流域環境の変化

田中義人^{*1}，熊谷博史^{*1}，松尾宏^{*1}，中村又善^{*1}，上田修^{*2}，野中正浩^{*3}

福岡県内の有明海流入河川である筑後川，矢部川及び大牟田市内河川2河川を対象とし，昭和40年代からの水質の経年変化を調査した．併せて行政人口や下水道人口などの推移を調査し，各河川流域毎の流域環境の特徴を検討した．その結果，BOD，CODについては，各河川とも概ね改善がみられたが，T-N及びT-Pによる水質汚濁は顕著な改善はみられていなかった．一方，流域環境（人口，世帯数及び下水道整備率等）の推移は社会的条件等の影響により，各流域毎に特性があることが明らかになった．今後は，各流域環境に応じた情報の収集と解析を行い，その特性に応じた的確な水質保全対策を検討する必要がある．

[キーワード：有明海流入河川，BOD，COD，栄養塩類，流域環境]

1 はじめに

有明海における環境問題は，平成12年に起きたノリの不作によって大きな注目を集めることとなった．この問題に対して，国をはじめ関係する各機関は現在，種々の調査研究や対策の検討を行っているところである．福岡県においても有明海再生のための県計画を策定し，有明海の環境保全に取り組んでいる．一般有明海問題は，ノリの不作，二枚貝等の漁業資源の激減，潮位差の減少，貧酸素水塊の発生や底質の変化など種々の現象が指摘されており，これらが複雑に絡んでいる問題であると考えられる．このため，この問題の解決や有効な対策の検討には多岐にわたる情報の収集及び共有化とその解析が不可欠となっている．一方，有明海問題の検討には，有明海流域を地形的に3つに分けて考えることができる．すなわち，有明海の海域自体と陸域及びその間にあって，有明海に特徴的な潮の干満の影響を受ける広い干潟や河川感潮域である．このうち福岡県では，昭和40年代より感潮域及び非感潮域における有明海流入河川の水質データを蓄積しており，今回，流域環境に関する情報と共に報告し，有明海に関する情報共有化へ向けた取り組みの一環としたい．

2 対象河川と概要

福岡県内における有明海流入河川は，筑後川水系河川，矢部川水系河川および大牟田市内河川からなっている．このうち筑後川2地点（若津及び瀬の下），矢部川2地点（浦島橋及び船小屋）及び大牟田市内を流れる大牟田川

と堂面川のそれぞれ1地点を対象とした．各河川の概要を表1に示す．また，福岡県内の有明海流域及び今回の対象地点の位置を図1に示す．これら地点のうち，筑後川の若津，矢部川の浦島橋及び大牟田市内河川の2地点は感潮域の調査地点である．

筑後川は有明海に流入する最大の河川で，流域は佐賀県，大分県，熊本県及び福岡県にまたがる．水系としては86河川の支流を持つ一級河川である．矢部川は福岡県内を流れ，23河川の支流をもつ一級河川である．大牟田市内河川は大牟田市内を流域とする二級河川である．

表1 対象河川の概要

河川名 (水系)	流域面積 (km ²)	延長 (km)	流量測定例 (m ³ /sec)
筑後川水系	2,860	143	115(瀬の下) ¹⁾
矢部川水系	620	61	18(船小屋) ²⁾
大牟田市内河川			
大牟田川水系	11	8.2	0.1(中流地点) ³⁾
堂面川水系	29	4.2	0.3(中流地点) ³⁾

3 有明海流入河川水質の経年変化

3・1 生物化学的酸素要求量(BOD)及び化学的酸素要求量(COD)の経年変化

各地点におけるBOD，CODの変化を図2～4に示す．各水質データは，年間1回から12回程度測定されたデータの年間平均値⁴⁾を示している．全体的にみると各河川

*1 福岡県保健環境研究所 (〒818-0135 福岡県太宰府市大字向佐野39)

*2 福岡県筑紫保健福祉環境事務所 (〒816-0943 大野城市白木原3-5-25福岡県筑紫総合庁舎内)

*3 福岡県環境部環境保全課 (〒812-8577 福岡市博多区東公園7-7)



図1 福岡県内の有明海流域と対象地点
(太枠線内が有明海流域)

とも降水量が少ない年（昭和59年と平成6年）等に一時的な水質の悪化がみられているものの，調査を開始した昭和40年代から概ね改善されていることがわかる．また，筑後川と矢部川については，有明海の潮の干満が影響しない非感潮域地点より潮の干満が影響する感潮域地点のBOD, COD が共に高く推移している．また，COD の変動については，感潮域の水質が大きく変動しているのに対して，非感潮域では変動が小さいことがわかる．近年，上流の非感潮域のCOD に変化はないものの，下流の感潮域のCOD が比較的改善し，非感潮域の値と近くなっている．このことは，上流からの流入負荷の増減によらない感潮域独特の汚濁機構に変化が生じたことを示唆していると考えられる．すなわち，感潮域における汚濁機構は陸域からの汚濁負荷の流入のみならず，感潮域特有の懸濁物質の巻き上げや沈降，塩分遡上現象に伴う塩水と淡水との混合などが相互に影響を及ぼしあっている特殊な機構からなっていることを示している．これらの機構変動の解明には，不明なことも多く，今後も引き続き検討する必要がある．

3・2 全窒素（T-N），全リン（T-P）及び懸濁物質（SS）の経年変化

各地点におけるT-N及びT-Pの変化を図5～8に示す．T-N及びT-Pによる水質汚濁は前述したBOD, CODによる汚濁に比して著しい改善はみられなかった．ただし，大牟田市内河川のT-Pのみは降水量が少ない年等を除いて改善の傾向が見られる．また，前項で述べたBOD, CODの傾向と同様に感潮域地点のT-N, T-Pについても，非感潮域地点より高い傾向が見られる．また，近年は，CODの傾向と同様に感潮域でのT-N, T-Pが低下し，非感潮域との差が若干小さくなる傾向も見られる．ただし，最

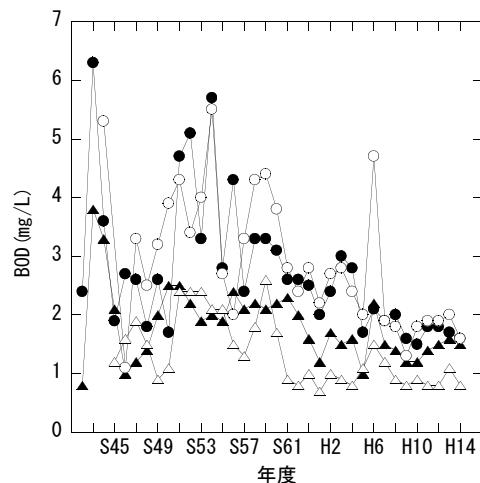


図2 筑後川，矢部川のBODの経年変化

● 筑後川（若津） ○ 矢部川（浦島橋）
▲ 筑後川（瀬の下） △ 矢部川（船小屋）

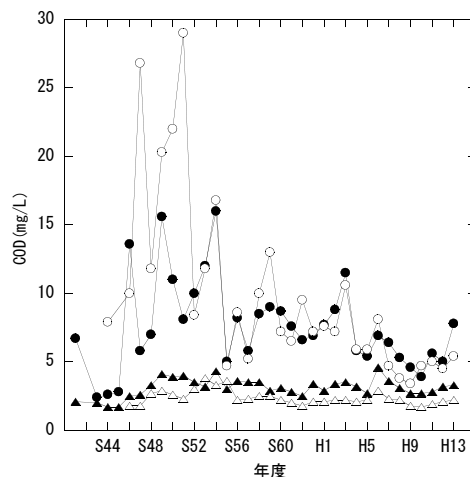


図3 筑後川，矢部川のCODの経年変化

● 筑後川（若津） ○ 矢部川（浦島橋）
▲ 筑後川（瀬の下） △ 矢部川（船小屋）

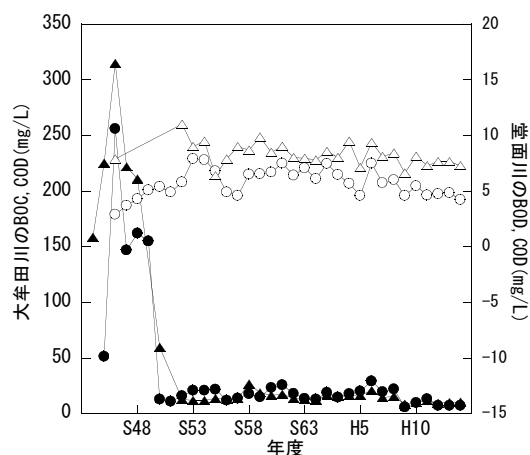


図4 大牟田市内河川のBOD, CODの経年変化

● 大牟田川（BOD） ○ 堂面川（BOD）
▲ 大牟田川（COD） △ 堂面川（COD）

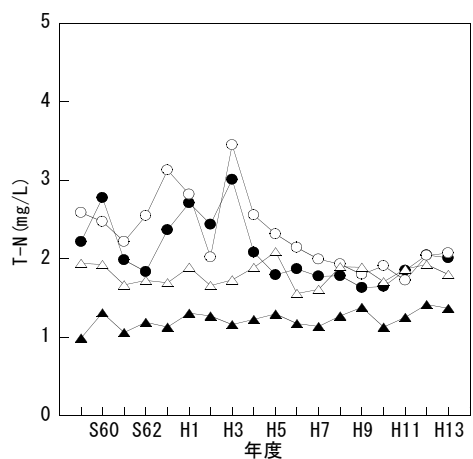


図 5 筑後川、矢部川のT-Nの経年変化

● 筑後川（若津） ○ 矢部川（浦島橋）
▲ 筑後川（瀬の下） △ 矢部川（船小屋）

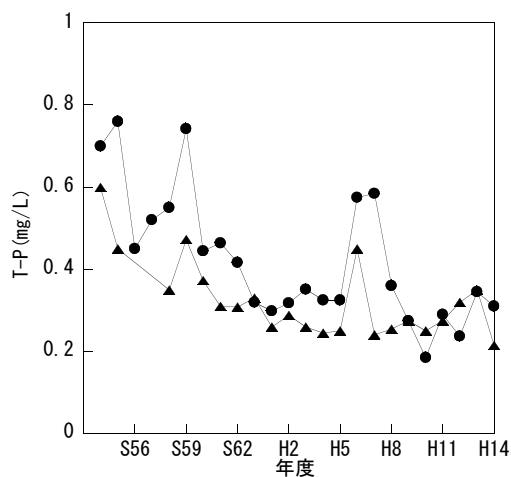


図 8 大牟田市内河川のT-Pの経年変化

● 大牟田川 ▲ 堂面川

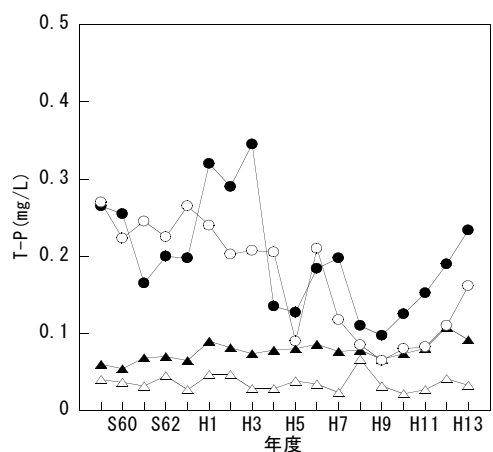


図 6 筑後川、矢部川のT-Pの経年変化

● 筑後川（若津） ○ 矢部川（浦島橋）
▲ 筑後川（瀬の下） △ 矢部川（船小屋）

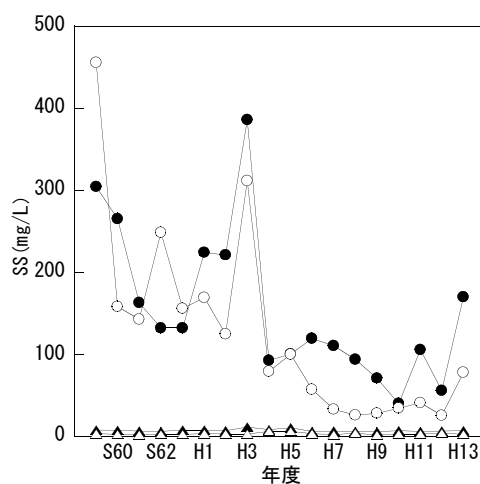


図 9 筑後川、矢部川のSSの経年変化

● 筑後川（若津） ○ 矢部川（浦島橋）
▲ 筑後川（瀬の下） △ 矢部川（船小屋）

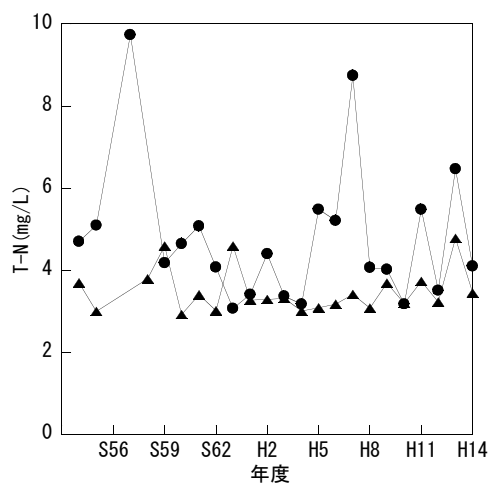


図 7 大牟田市内河川のT-Nの経年変化

● 大牟田川 ▲ 堂面川

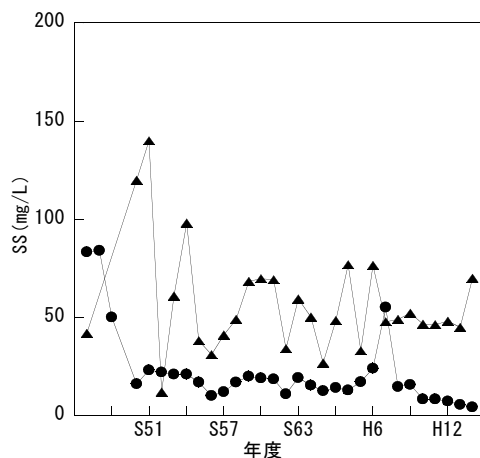


図 10 大牟田市内河川のSSの経年変化

● 大牟田川 ▲ 堂面川

表2 有明海流入河川のN/P比

	筑後川		矢部川		大牟田川	堂面川
	若津	瀬の下	浦島橋	船小屋		
N/P	25.2	16.3	34.9	119	25.2	25.2

近5年間では筑後川、矢部川の感潮域で T-P のみが増加している。一方、矢部川水系では T-N と T-P の関係で他の水系とは異質な特徴的な汚濁現象がみられている。山本らは、全国的にも矢部川の T-N と T-P の比率（N/P 比）が100前後と非常に高いことを報告している⁹⁾。その原因として土地利用形態の特徴が示唆されるとしている。今回のデータ（18年間の年平均値）で N/P 比平均を算出した結果を表2に示す。その結果、矢部川の感潮域の浦島橋では N/P は34.9と著しく高くはないが、非感潮域の船小屋で N/P 比が119と他の地点と比較して著しく高いことがわかる。この現象は、船小屋の上流における流域の特徴に起因する現象と考えられるが詳細については今後の調査が必要である。有明海のような閉鎖性水域に対する影響を考察する場合、流入する T-N、T-P の負荷解析及び汚濁機構は非常に重要である。有明海に対する絶対的な総負荷量としては、筑後川の占める比率が高いが、矢部川のように流域の持つ特徴を考慮した流域対策もまた、重要且つ必要であると考えられる。

各地点における SS の経年変化を図9及び図10に示す。筑後川、矢部川の感潮域における SS が減少傾向にあることがわかる。一方、非感潮域の瀬の下及び船小屋では変動は小さい。一般に、感潮域における SS の変動は、潮位、採水時期及び先行降雨等により影響を受けることが知られている。前述のように、この感潮域での懸濁物質の挙動や汚濁質に対する影響などは今後の重要な検討課題であると考えられる。

4 福岡県内の有明海流域環境の変化について

福岡県内の有明海流域環境の経年変化を検討するために各統計資料を収集、整理した。流域の市町村は35市町村であるが、今回の検討では、全体的な傾向を把握する目的で筑後川流域、矢部川流域及び大牟田市内河川流域に分類した。

4・1 流域内行政人口及び下水道人口の変化について

福岡県内有明海流域の人口及び世帯数の経年変化を図11及び図12に示す⁹⁾。有明海流域全体では、人口、世帯数共に増加している。しかし、有明海流域内においても、流域毎の差があり、人口、世帯数が共に増加しているのは筑後川流域、特に久留米市及び福岡市近郊のみである。一方、矢部川流域と大牟田市内河川流域の人口は減少しているものの世帯数は微増傾向である。

福岡県内の下水道人口整備の推移を図13に示す。

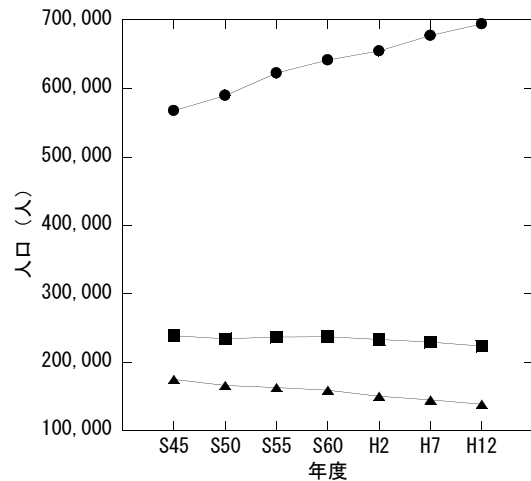


図11 有明海各流域人口の経年変化

● 筑後川流域 ■ 矢部川流域
▲ 大牟田市内河川

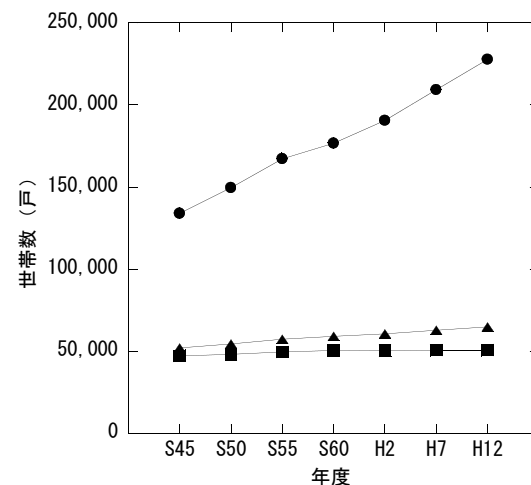


図12 有明海各流域世帯数の経年変化

● 筑後川流域 ■ 大牟田市内河川
▲ 矢部川流域

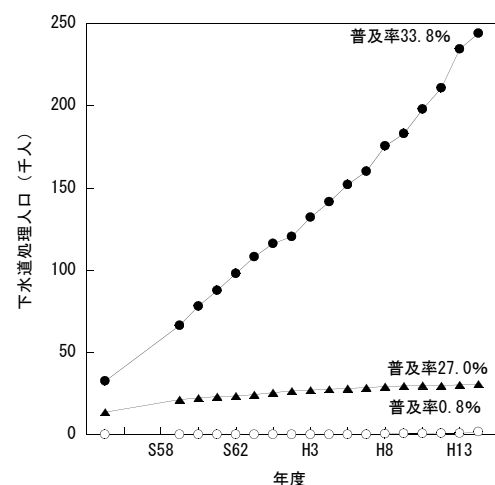


図13 下水道（水洗化）人口の経年変化

● 筑後川水系 ○ 矢部川水系
▲ 大牟田市内河川

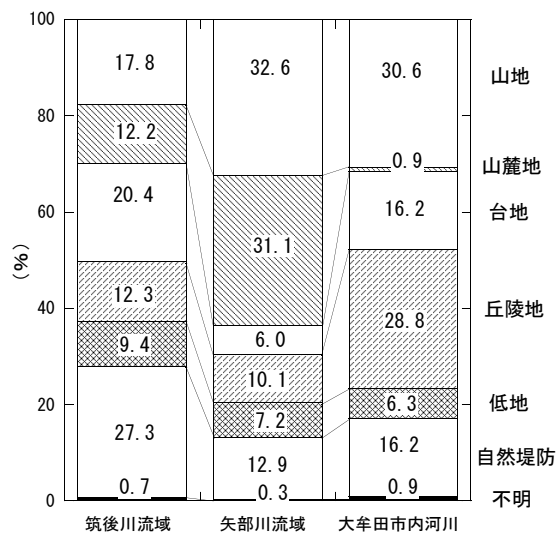


図 14 有明海流域の地形割合

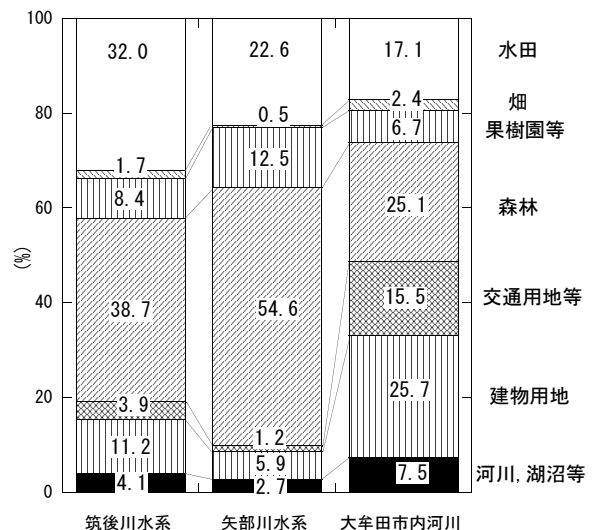


図 15 有明海流域の土地利用割合

2県以上にまたがる有明海流域及び筑後川については、国により昭和53年度に下水道整備総合計画の基本方針が制定されている。その基本方針に沿って福岡県内の有明海流域でも現在、公共下水道、流域下水道等の整備が進められている。平成14年度までに、19市町村において下水道整備が計画あるいは進行されており、水洗化率は筑後川流域で33.8%、大牟田市内河川流域で27.0%、矢部川流域で0.8%となっている。

4・2 流域内の面源負荷に関する情報

流域内負荷量を把握するためには、面源負荷に関する情報が必要となる。今回、面源系の情報は、経年変化を追跡する資料が入手できなかった為、単年度の情報を整理した。図14に平成9年度国土数値情報に基づく各流域の地形分類割合を示す。矢部川流域が他の流域より山地及び山麓地の占める割合が高い。一方、筑後川流域は比較的山地、山麓地の傾斜が急な地形が少ない。山地や山麓地の分布の多少は、降雨時の汚濁物質の流出機構に影響があり、流域の特性を表す要因である。一方、低地の占める割合は筑後川流域で9.4%、矢部川流域で7.2%であり、特に河口域で多く分布しており、特徴的な感潮域を構成している。このように有明海へ流入する河川の流況はそれぞれ異なることから、その特徴を把握する必要がある。平成9年度国土数値情報に基づく各流域の土地利用割合を図15に示す。筑後川水系及び矢部川水系は、水田、畑、果樹園等、森林で約8割に達しているが、大牟田市内河川では水田と森林の割合が低い。また、矢部川は森林の割合が高く、筑後川水系は水田の割合が高いなどの特徴が現れている。これら土地利用の相違は、面源系負荷対策を考慮する上で重要であり、さらに細かい

流域分割あるいは市町村単位での把握が必要である。また、前述した矢部川における N/P 比の特徴についても、松尾らは有明海流域のある地域において、流域の作付けの違いによって N/P が大きく異なることを報告しており⁷⁾、作付け作物の把握や栽培手法等の対策も必要である。一方、農政部局においても、現在、過剰施肥等による環境影響を小さくする対策等が指導されており、今後、各方面における対策とも連携を促進する必要がある。

5 まとめ

有明海流入河川の有機汚濁は、調査を開始した昭和40年代より総じて改善している。一方、栄養塩類による水質汚濁は有機汚濁に比して、著しい改善はみられていない。筑後川及び矢部川において、各水質は感潮域地点が非感潮域地点より高濃度であることが明らかになったが、近年、感潮域における懸濁物質濃度及び栄養塩類の低下により、その差が小さくなっている傾向が見られる。この原因究明のためには、感潮域での汚濁機構解明を検討しなければならない。今後、有明海流入河川の水質改善を効果的に進めていくためには、各河川の流域の地形的特徴や土地利用形態、污水处理施設の整備状況などの社会的条件、感潮域を含めた水質の汚濁機構などを踏まえて必要な対策を検討する必要がある。現在、福岡県では、有明海に流入する各河川で汚濁負荷量調査を実施しており、その調査結果も活用しながら、有明海流域の汚濁負荷削減に向けた取り組みを各河川流域の特徴を踏まえ、より効果的に推進していきたいと考えている。またこれらの調査を通じて得られたデータについては、地理情報システム（GIS）等も活用しながら、有明海再生に

係る関係機関と共有し、各機関が連携した効果的な取り組みにつなげていきたいと考えている。

文献

- 1) (独)水資源機構 HP ; [http://www. water. go. jp/](http://www.water.go.jp/)
- 2) (社)日本河川協会 HP ; [http://www. japanriver. or. jp/](http://www.japanriver.or.jp/)
- 3) 福岡県保健環境研究所測定結果，未発表
- 4) 環境白書 福岡県 昭和46年版～平成15年度版
- 5) 山本民次・川口修：水環境学会誌，27 (5)，293-300，2004.
- 6) 福岡県調査統計年鑑
- 7) 松尾宏ら：用水と廃水，41 (6)，513-519，1999

資料

不法投棄廃棄物の性状調査事例

宇都宮彬，永瀬誠，鳥羽峰樹，高橋浩司，土田大輔

不法投棄調査の多くは，その初期段階で投棄物の種類が特定されるが，種類の特定が難しいものや有害物質の存在が疑われるものについては，理化学的分析を実施している．平成13年度から15年度に保健環境研究所で実施した分析を伴う不法投棄物調査のうち原状回復が終了したものについて，分析項目や分析手法などの調査事例をまとめた．

投棄物の分析は，まず，色相や含水率，pH などの理化学的性状を調べ，物質の特定につながる成分について検討を行い，分析項目や分析方法を選択した．この際に，無機成分の元素分析には蛍光 X 線分析が有効であり，水溶性成分の分析にはイオンクロマトグラフィーが有効であった．また，有機物の同定にガスクロマトグラフィーが有効で，硫酸ピッチに含まれる油分が典型的な石油系物質であることを確認した．

[キーワード：不法投棄，蛍光 X 線分析，硫酸ピッチ，硫酸カルシウム]

1 はじめに

平成13年度の不法投棄は，全国で1150件，24.2万トンであり，不法投棄された廃棄物の原状回復割合は，58.5%であった（図1）¹⁾．平成12年に「廃棄物の処理及び清掃に関する法律」を改正し，排出事業者責任の強化，マニフェスト制度の強化，罰則の強化などを行った．このことにより，投棄件数の減少は見られないが，大規模な不法投棄の減少により，投棄量については減少していくと考えられる．

不法投棄廃棄物の種類と投棄量割合は，がれき類41%，木くず12%，その他建設廃棄物18%で建設廃棄物が71%を占める．この他，主なものとしては，廃プラスチック

類8%，汚泥8%，金属くず3%であった¹⁾．

福岡県の平成13年度の不法投棄件数は24件，投棄量は4748トン，原状回復割合は53.1%であった¹⁾．不法投棄の初期段階で，県庁環境部と保健福祉環境事務所環境課の担当者による調査が行われ，投棄物の多くは，目視により，その種類が特定されている．種類の特定が難しいものや有害物質の存在が疑われるものについて，保健環境研究所で化学分析による不法投棄物の性状調査を行っている．

廃棄物の不法投棄に関連する調査は，排出事業者の特定が難しいことや原状回復に時間がかかること，及び化学分析で投棄物の性状を特定することが難しいことなどから，調査報告例は比較的少ない．

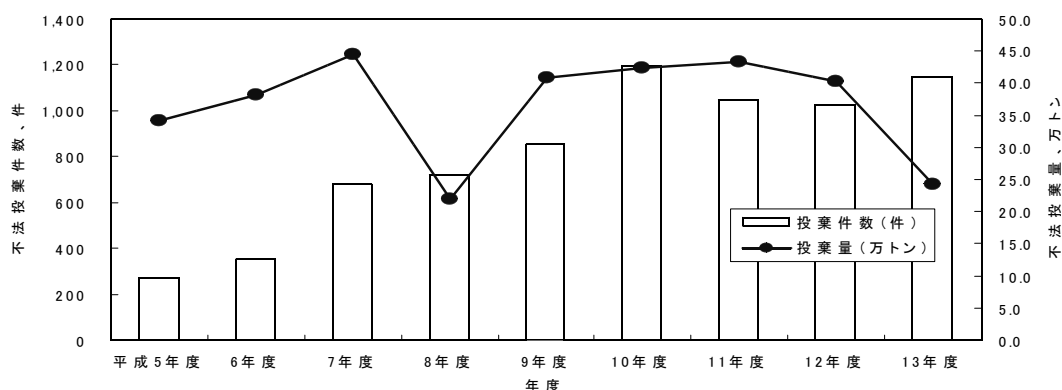


図 1 廃棄物不法投棄件数と投棄量¹⁾

平成13年度～15年度に保健環境研究所で実施した化学分析を伴う廃棄物の不法投棄調査のうち原状回復が終了したものについて、調査手法や分析項目について調査事例を報告する。

2 調査事例

2・1 白色研磨剤の不法投棄

A) 調査の経緯及び概要

A 町山中に、白色粒状物が約2m³ (4m × 5m × 0.1m) 投棄されていた。保健福祉環境事務所担当者の目視による調査では、白色の粒径のそろった比較的均質な粒状物であるが、投棄物の使用目的や排出源の推定が困難であったため、投棄物の成分特定と有害物質溶出の有無について検査を行った。

B) 分析項目及び結果

固体状の投棄物については、試料のおおよその性状を把握するため、1) 試料の形状、色を肉眼で観察、2) 密度、3) 含水率 (100℃)、4) 強熱減量 (600℃) について分析を行った。投棄物は、密度2.4g/cm³の粒径1mm以下の粒子で、含水率、強熱減量ともに小さく、無機化合物と推定された。また、粒子表面に撥水性の化合物が付着し、密度が1g/cm³を超えているにもかかわらず、水の表面に浮き沈降しなかった。

試料が無機成分と予想される場合には、蛍光 X 線による分析がその主成分を把握する手法として有効であるため、蛍光 X 線分析法による構成成分の分析を行った。蛍光 X 線分析法は、粉体試料に強力な X 線を照射した際に、物質を構成する元素 (原子番号11 (Na) 以上の元素) から発生する固有 X 線 (蛍光 X 線) の強度を用いて構成元素組成を求める方法で、短時間に成分組成を求めることができる。

さらに、有機化合物の存在を確認するため炭素成分の測定、及び結晶性の化合物の同定に X 線回折法を用いた。分析を行った成分とその結果を表1に示す。また、金属成分について有害物質の溶出試験を行った。

蛍光 X 線分析の結果、投棄物は、ケイ素及びアルミニウムを主成分とする無機物で、X 線回折の結果、石英 (SiO₂) の存在が確認された (図2)。また、溶出試験の結果、有害金属類の溶出は見られなかった。

以上のことから、投棄物は主に石英からなる工業用に用いられる珪砂に近いものと推定された。珪砂の用途として、サンドブラスト用研磨剤、工業用濾過材、骨材などに使われている。投棄物は、粒子径が比較的均一であること、及び粒子の表面が有機物で覆われていることから、プラスチック用の研磨剤や表面加工材として使用され、投棄されたと推定された。

表 1 測定成分と結果

成分組成	蛍光X線分析法 *)	SiO ₂	74%
		Al ₂ O ₃	12%
		K ₂ O	8.6%
		CaO	2.1%
		Fe ₂ O ₃	1.5%
	CN分析計	T-C	0.04%
化合物同定	X線回折法	SiO ₂	
ヘキサン抽出物質			0.01%
溶出試験 (告示第13号)		pH	7.5
		EC	7.7 μS/cm
	T-Hg, Cd, Pb, Cr (VI), As, Se		下限値未満

*) 蛍光X線分析による成分組成は酸化物に換算して求めている。

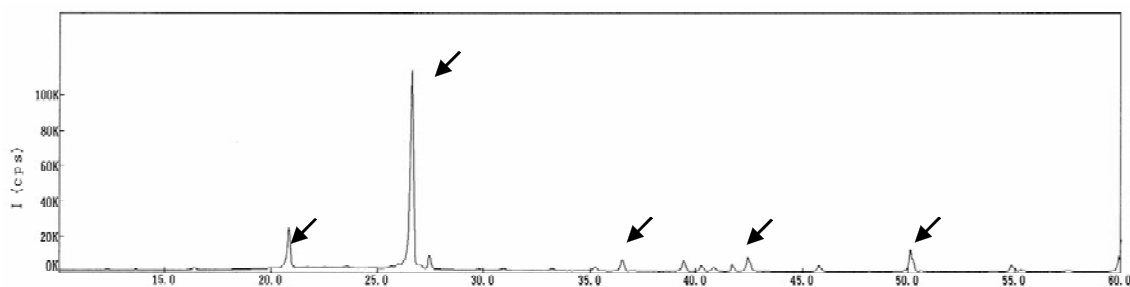


図 2 X線回折 (←はSiO₂の主なピークを示す。)

2・2 硫酸ピッチの不適正処理

A) 調査の経緯及び概要

B 市の郊外に、ドラム缶133本が放置され、ドラム缶の一部から強い酸性を示す内容物が漏れ出し、不正軽油を生産する際に生じる硫酸ピッチが不適正に保管(処理)された疑いが生じた。そのため、ドラム缶内容物が硫酸ピッチかどうかの確認調査について依頼を受け、分析を実施した。また、同時にドラム缶周辺土壌について、環境汚染の有無について分析を行った。

B) 分析項目及び結果

ドラム缶内容物は、黒色の水を含有した固体であった。三重県科学技術振興センターの報告²⁾による硫酸ピッチの分析法を基に、含水率、pH、EC、硫酸イオン含有量、油分含有量について分析を行った。分析結果を表2に示す。試料は揮発性の有機物の含有が疑われたため、水分含有量は80℃の乾燥減量から求めた。また、ヘキサンに抽出した油分を GC/FID で測定し、そのクロマトグラムから油分の同定を行った。

ドラム缶内容物は、硫酸イオンを含有する強酸性で、油分が含まれていること及び GC/FID のクロマトグラムが典型的な石油系物質（軽油、A 重油）のパターンを示したことから、硫酸ピッチであると推定した。

表 2 分析項目と結果

溶出試験（固液比（1/10））	pH	0.7
	EC	183600 μ S/cm
	SO ₄ ²⁻ 濃度	27800mg/l
	SO ₄ ²⁻ 含有量	27.8%
油分含有量（ヘキサン抽出）		1.7%
含水率（80℃乾燥減量）		12.8%

2・3 硫酸カルシウムの不適正処理

A) 調査の概要

C 市の山間部において、硫化水素臭を有する水が染み

出し、廃棄物が不適正に埋立てられた可能性があるため、県環境部と保健福祉環境事務所による掘削調査を伴う現地調査が行われた。目視による調査で、量くずと白色の堆積物が埋め立てられていることが確認された。白色堆積物の特定及び硫化水素臭の発生原因を推定するため、分析を実施した。

B) 分析項目及び結果

白色堆積物を主な投棄物として採取し、分析対象試料とした。また、有害物質の環境影響を評価するため、土壌、河川水を含む数試料について分析を行った。

投棄物の特定のための分析項目と分析方法を選択した。目視調査、含水率、強熱減量について分析を行った結果、投棄物は、含水率37.1%、強熱減量8.9%で、粒径の小さい比較的均一な白色の湿泥であった。この試料を風乾後、蛍光 X 線分析による元素分析（成分組成）、溶出試験による重金属及び水溶性のイオン成分の分析を行った。また、試料の主成分の含有量を測定した。方法として、試料0.1g を精秤し、塩酸を1滴（0.027g）加えた後蒸留水5ml に溶解させ、これを試験溶液とし、イオンクロマトグラフィーでイオン成分を測定した。さらに、X 線回折による無機化合物の同定を行った。これらの分析結果を表3に示す。

蛍光 X 線分析による成分組成の結果、主成分は硫黄とカルシウムであった。カルシウム及び硫酸塩のイオンクロマトグラフ法による含有量も同様の結果であった。X 線回折では、硫酸カルシウム（CaSO₄・2H₂O）が同定された。溶出試験の結果も硫酸イオンとカルシウムイオン濃度が高く、その濃度レベルは硫酸カルシウムからの両イオンの溶解濃度にほぼ等しかった。以上のことから、投棄物は硫酸カルシウムが主成分の物質と推定した。

また、投棄物から硫酸イオンが供給され、有機物が存在したため硫化水素が発生したと考えられた。

表 3 分析項目と結果

成分組成	蛍光X線分析法	SiO ₂	2%
		Al ₂ O ₃	0%
		SO ₃	55.0%
		CaO	43.0%
		T-C	0.72%
化合物同定	CN分析計	CaSO ₄ ・2H ₂ O	
溶出試験（固液比 1/10）	X線回折法	Na ⁺	9mg/l
		K ⁺	<1mg/l
		Mg ²⁺	<1mg/l
		Ca ²⁺	460mg/l
		Cl ⁻	<1mg/l
		SO ₄ ²⁻	1460mg/l
	T-Hg, Cd, Pb, Cr(VI), As, Se等		報告下限値未満
含有量		Ca	18.6%
		SO ₄	51.9%

3 おわりに

産業廃棄物の不法投棄は、住民の廃棄物処理に対する不信感を高めている。福岡県では、不法投棄の拡大を防止するため、不法投棄に対して監視を強化し、厳正に対処している。不法投棄の初期段階で、県環境部局と保健福祉環境事務所環境課による調査が行われ、投棄物の多くはその種類が特定されているが、投棄物の特定が難しいものや有害物質の存在が疑われるものについて、化学分析による不法投棄物の性状調査を行っている。

平成13年度から15年度に保健環境研究所で実施した化学分析を伴う不法投棄物調査のうち原状回復が終了したものについて、調査事例をまとめた。

投棄物の分析は、まず、色相や含水率、pH などの理化学的性状について調べ、物質の特定につながる成分に

ついて検討を行い、分析項目及び分析方法を選択した。無機成分の主成分分析には、蛍光 X 線分析が有効であり、水溶性成分の分析にはイオンクロマトグラフィーが有効であった。また、有機物の同定にガスクロマトグラフィーが有効であった。これらの分析法を用いることにより、投棄物の特定ができた。

文献

- 1) 環境省：廃棄物不法投棄の状況（平成13年度），
[http://www. env. go. jp](http://www.env.go.jp)
- 2) 吉岡理他：不法投棄された硫酸ピッチの分析法について，平成14年度廃棄物研究発表会要旨集（全国環境研協議会），4-7，2004.

資料

産業廃棄物最終処分場浸透水，放流水・埋立物の検査結果

宇都宮彬，永瀬誠，鳥羽峰樹，高橋浩司，土田大輔

産業廃棄物最終処分場の浸透水，放流水（浸出液），埋立物等の平成13年度から15年度の検査結果を用いて，最終処分場の周辺環境に及ぼす影響について評価した．また，地下水環境基準を超える可能性の高い項目を抽出し，その原因廃棄物について考察を行った．

BOD が基準の20mg/l を超えた施設は安定型最終処分場7施設で，SS が基準の60mg/l を超えた施設は管理型最終処分場1施設であった．地下水等検査項目では，安定型最終処分場維持管理基準を超えた項目と施設数は，鉛3施設，クロム（VI）1施設，ヒ素4施設，ジクロロメタン1施設であった．

最終処分場で特に注意が必要な項目は，BOD，鉛，ヒ素，ジクロロメタンで，これらは，廃棄物に付着・混入して埋立処理された可能性が高いと考えられた．BOD については，溶存性有機物の増加が原因となるが，埋立地に混入する有機物は多岐にわたるため，その原因有機物の特定は難しい．鉛は生活資材として広く使用され，その発生源が多岐にわたるため，廃棄物に付着・混入しやすいと考えられる．ジクロロメタンは，主に事業場で溶剤として使用されるため，廃溶剤が不適正に混入した可能性が高い．また，ヒ素は，地下水環境調査で最も検出事例の多い元素で，その原因として地質由来の可能性が否定できないと考えられる．

[キーワード：最終処分場，浸透水，安定性，BOD，鉛]

1 はじめに

廃棄物の最終処分は，土壤の浄化能力を頼りに廃棄物を安定化させる方法である．環境に影響を及ぼす物質を生成しない不活性で有害な産業廃棄物を処理する安定型最終処分場や，有害性はないが環境を汚染する可能性のある管理型最終処分場では，埋立物の安全性や最終処分場の環境影響について，地下水水質の保持の観点から注意を払わなければならない．

廃棄物の最終処分場は，「廃棄物の処理及び清掃に関する法律」でその構造や維持管理基準が定められている．この構造・維持管理基準を遵守すれば，埋立中は重大な問題が発生しないと考えることができる．しかし，近年，プラスチック製品や種々の化学製品が使用・廃棄され，埋立による環境汚染の可能性は増大していると考えられる．

福岡県は，廃棄物の処理及び清掃に関する法律に基づき，産業廃棄物の収集，運搬もしくは処分を業とする事業所に立入検査を実施している．最終処分場については，現状を調査し実態を把握することにより適正な維持管理の確保をはかるため，最終処分場の検査を伴う立入検査を年3回以上行い，「一般廃棄物の最終処分場及び産業廃棄物の最終処分場に係る技術上の基準を定める省令」（昭和52年総理府・厚生省令第1号）に基づき，浸透水，放

流水（浸出液）および埋立物について，基準に適合しているかどうかの検査を実施している．

本報告では，平成13年度から15年度に実施した検査結果を整理し，最終処分場の環境影響を地下水環境基準に基に評価した．また，今後の最終処分場の適正な管理運営のため，地下水環境基準を超える可能性の高い項目とその原因廃棄物について考察を行った．

2 調査の方法

2・1 検査試料

試料は保健福祉環境事務所が採取し，当日もしくは翌日に当所へ搬入した．平成13年度から15年度に検査した試料数は210試料であり，その内訳は，安定型最終処分場45施設の浸透水123試料，管理型最終処分場14施設の放流液（浸出液）33試料，及び21施設の埋立物や埋立地跡地土壌54試料であった．

2・2 検査項目及び分析方法

分析項目，分析方法及びその基準値を表1に示す．埋立判定基準の溶出検液は「産業廃棄物に含まれる金属等の検定方法」（昭和48年環境庁告示第13号）に基づいて行った．

廃棄物の埋立処分による環境影響として，土壤汚染や地下水汚染が考えられる．このため，安定型最終処分場

表 1 分析項目と分析方法

分析項目	単位	分析方法	安定型浸透 水基準値 *1	管理型放流 水基準値 *2	埋立判定 基準 *3	地下水環 境基準 *4	土壌環境 基準 *5
pH（水素イオン濃度）		JISK0102 ガラス電極法	—	5.8～8.6	—	—	—
EC（電気伝導率）	μ S/cm	JISK0102	—	—	—	—	—
BOD（生物化学的酸素要求量）	mg/l	JISK0102	20	60	—	—	—
T-Hg（全水銀）	mg/l	JISK0102 還元気化原子吸光法	0.0005	0.005	0.005	0.0005	0.0005
Cd（カドミウム）	mg/l	JISK0102 ICP発光分光分析法	0.01	0.1	0.3	0.01	0.01
Pb（鉛）	mg/l	JISK0102 ICP発光分光分析法	0.01	0.1	0.3	0.01	0.01
Cr(VI)（六価クロム）	mg/l	JISK0102 ジフェニルカルバジド吸光光度法	0.05	0.5	1.5	0.05	0.05
As（ヒ素）	mg/l	JISK0102 水素化物発生原子吸光法	0.01	0.1	0.3	0.01	0.01
CN（シアノ）	mg/l	JISK0102 4-ピリジンカルボキシ酸-ピラゾール吸光光度法	不検出	1.0	1.0	不検出	不検出
O-P（有機燐）	mg/l	JISK0102 ガスクロマトグラフ法	—	1.0	1.0	—	不検出
PCB（ポリ塩素化ビフェニル）	mg/l	JISK0102 ガスクロマトグラフ法	不検出	0.003	0.003	不検出	不検出
トリクロロエチレン	mg/l	JISK0125 ヘッドスペースーガスクロマトグラフ質量分析法	0.03	0.3	0.3	0.03	0.03
テトラクロロエチレン	mg/l	JISK0125 ヘッドスペースーガスクロマトグラフ質量分析法	0.01	0.1	0.1	0.01	0.01
ジクロロメタン	mg/l	JISK0125 ヘッドスペースーガスクロマトグラフ質量分析法	0.02	0.2	0.2	0.02	0.02
四塩化炭素	mg/l	JISK0125 ヘッドスペースーガスクロマトグラフ質量分析法	0.002	0.02	0.02	0.002	0.002
1,2-ジクロロエタン	mg/l	JISK0125 ヘッドスペースーガスクロマトグラフ質量分析法	0.004	0.04	0.04	0.004	0.004
1,1,1-トリクロロエタン	mg/l	JISK0125 ヘッドスペースーガスクロマトグラフ質量分析法	0.02	0.2	0.2	0.02	0.02
シス-1,2-ジクロロエチレン	mg/l	JISK0125 ヘッドスペースーガスクロマトグラフ質量分析法	0.04	0.4	0.4	0.04	0.04
1,1,1-トリクロロエタン	mg/l	JISK0125 ヘッドスペースーガスクロマトグラフ質量分析法	1.0	3.0	3.0	1.0	1.0
1,1,2-トリクロロエタン	mg/l	JISK0125 ヘッドスペースーガスクロマトグラフ質量分析法	0.006	0.06	0.06	0.006	0.006
1,3-ジクロロプロペン	mg/l	JISK0125 ヘッドスペースーガスクロマトグラフ質量分析法	0.002	0.02	0.02	0.002	0.002
ナフタレン	mg/l	昭和46年12月環境庁告示第59号 高速液体クロマトグラフ法	0.006	0.06	0.06	0.006	0.006
シジメ	mg/l	昭和46年12月環境庁告示第59号 ガスクロマトグラフ質量分析法	0.003	0.03	0.03	0.003	0.003
チオベンザル	mg/l	昭和46年12月環境庁告示第59号 ガスクロマトグラフ質量分析法	0.02	0.2	0.2	0.02	0.02
ベンゼン	mg/l	JISK0125 ヘッドスペースー、ガスクロマトグラフ質量分析法	0.01	0.1	0.1	0.01	0.01
Se（セレン）	mg/l	JISK0102 水素化物発生原子吸光法	0.01	0.1	0.3	0.01	0.01
SS（浮遊物質）	mg/l	JISK0102	—	60	—	—	—
Hex（ヘキサン抽出物質）*6	mg/l	JISK0102	—	5（30）	—	—	—
F（フッ素）*7	mg/l	JISK0102 ランタンーアリザリンコンプレキソン吸光光度法	—	8	—	0.8	0.8
B（ホウ素）*7	mg/l	JISK0102 ICP発光分光分析法	—	10	—	1	1
アンモニア、アンモニア化合物、亜硝酸化合物、硝酸化合物*7	mg/l	JISK0102 イオンクロマトグラフ法	—	100	—	—	—

*1）安定型処分場浸透水基準：一般廃棄物の最終処分場及び産業廃棄物の最終処分場に係る技術上の基準を定める省令（昭和52年総・厚令1）

*2）管理型処分場放流水基準：一般廃棄物の最終処分場及び産業廃棄物の最終処分場に係る技術上の基準を定める省令（昭和52年総・厚令1）

*3）産業廃棄物の埋立判定基準：金属等を含む産業廃棄物に係る判定基準を定める省令（昭和48年総令5）

*4）地下水環境基準：地下水の水質汚濁に係る環境基準（平成9年環告10）

*5）土壌環境基準：土壌の汚染に係る環境基準について（平成3年環告46）

*6）鉱油含有量5mg/l、動植物油脂類含有量30mg/l

*7）フッ素、ホウ素及びアンモニア・アンモニウム化合物・亜硝酸化合物・硝酸化合物は平成14年4月1日から施行。

経過措置として施行日から3年間はF：50mg/l、B：15mg/l、アンモニア・アンモニウム化合物・亜硝酸化合物・硝酸化合物：200mg/l。

については、浸透水の水質基準は地下水環境基準と同等の値が用いられている。また、廃棄物最終処分場の環境影響を把握するため処分場周辺の地下水の水質検査が義務づけられている。

3 結果

3・1 安定型最終処分場水質検査結果

安定型産業廃棄物最終処分場については、産業廃棄物の処理基準（廃棄物の処理及び清掃に関する法律施行令第6条）に、1)廃プラスチック類（自動車等破砕物、鉛含有プリント配線板、廃容器包装不要物を除く）、2)ゴムくず、3)金属くず（自動車等破砕物、鉛含有プリント配線板、鉛蓄電池の電極不要物、鉛管・鉛板不要物、廃容器包装不要物を除く）、4)ガラスくず等（自動車等破砕物、廃ブラウン管、廃石膏ボード、廃容器包装不要物を除く）、5)工作物の除去コンクリート等がれき類の5品目を安定型産業廃棄物とし、安定型産業廃棄物は十分な選別を行い熱しゃく減量5%以下とするように定められている（平成10年環境庁告示第34号）。

安定型最終処分場45施設の浸透水（123試料）の検査結果を表2に示す。安定型産業廃棄物は酸性やアルカリ

性を示す成分は溶出しないと想定されるため、浸透水のpHについては基準が定められていない。しかし、管理型最終処分場の放流水の維持管理基準（pH5.8～8.6）と比べると、pH5.8未満の浸透水が見られた安定型最終処分場が1施設、pH8.6を超える浸透水は3施設で見られた。酸性の浸透水が観測された施設は旧産炭地域内に位置し、処分場周辺に酸性の湧水が見られることから、浸透水の酸性化原因は主に地質由来と考えられた。

浸透水 EC の平均値は1180 μ S/cm で、約半数の施設で1000 μ S/cm を超えていた。安定型最終処分場の浸透水の EC は、浸透水の起源となる降水や地下水の EC（数10 μ S/cm ～数100 μ S/cm）と比較すると、高いと考えられる。これは、コンクリートくずからの塩の溶出やそのほかナトリウム塩、カルシウム塩、硫酸塩などの溶解性の高い塩類が安定型廃棄物に付着・混入して埋立られているためと考えられる。

その他の項目（地下水等検査項目）で報告下限値を超えて検出された項目は、カドミウム、鉛、クロム（VI）、ヒ素、ジクロロメタン、1,1,1-トリクロロエタンで、その最大値と検出数を表2に示す。このなかで、基準を超えた項目は、鉛、クロム（VI）、ヒ素、ジクロロメタン

表2 安定型最終処分場浸透水検査結果（45施設、123試料） 単位：EC μ S/cm, pH, EC以外はmg/l

	pH	EC	BOD	T-Hg	Cd	Pb	Cr (VI)	As	CN	PCB	トリクロロエチレン	テトラクロロエチレン
最大値	9.4	5830	320	<0.0005	0.002	0.019	0.08	0.024	<0.1	<0.0005	<0.002	<0.0005
最小値	3.3	109	<0.5	<0.0005	<0.001	<0.005	<0.04	<0.005	<0.1	<0.0005	<0.002	<0.0005
検出数				0	1	10	1	10	0	0	0	0

	ジクロロメタン	四塩化炭素	1,2-ジクロロエタン	1,1-ジクロロエチレン	シス1,2-ジクロロエチレン	1,1,1-トリクロロエタン	1,1,2-トリクロロエタン	1,3-ジクロロプロペン	チウラム	シマジン	チオベンカルブ	ベンゼン	セレン
最大	0.064	<0.0002	<0.0004	<0.002	<0.004	0.0014	<0.0006	<0.0002	<0.0006	0.0004	<0.002	<0.001	<0.002
最小	<0.002	<0.0002	<0.0004	<0.002	<0.004	<0.0005	<0.0006	<0.0002	<0.0006	<0.0003	<0.002	<0.001	<0.002
検出数	2	0	0	0	0	2	0	0	0	0	0	0	0

であった。BODの最高値は320mg/lで、基準の20mg/lを超える施設が7施設見られた。

3・2 管理型最終処分場水質検査結果

管理型最終処分場14施設の放流水（浸出液）33試料の検査結果を表3に示す。

pHは5.8～8.6の範囲であった。ECの平均値は、1110 μ S/cmで、安定型最終処分場の平均値にほぼ等しかった。ECが1000 μ S/cmを超える施設は4施設であった。BODの最高値は14mg/lで安定型最終処分場に比べ低かった。SSの最高値は326mg/lで、基準値（60mg/l）を超えていた。

その他の項目（地下水等検査項目）で報告下限値を超えて検出された項目は、鉛、ヒ素で、その最大値と検出数を表3に示す。管理型最終処分場放流水の基準を超えた施設は1施設で項目はSSとヒ素であった。基準を超えた放流水（浸出液）の試料溶液は、赤褐色の沈殿物が見られ、鉄分を多く含有する水質であった。管理型最終処分場は、遮水シート等で、浸出液による公共用水域および地下水汚染防止に必要な措置を施した構造を有しているが、管理型最終処分場の浸出液を地下水環境基準と比較すると、2施設で鉛が基準値を超えていた。

3・3 溶出試験検査結果

安定型最終処分場14施設、管理型最終処分場5施設及び旧埋立処分場跡地1施設の埋立物、土壌の溶出試験結果を表4に示す。

pHは6.9～12.7の範囲であった。ECの平均値は、720 μ S/cmであった。管理型最終処分場の1試料で、pH、EC、Pb、Cr(VI)ともに最高値を示したが、いずれも埋立判定基準以下であった。

安定型最終処分場の埋立廃棄物には埋立判定基準は適

用されないが、浸透水の水質基準が地下水環境基準と同じであることから、安定型最終処分場の埋立物溶出試験結果を土壌環境基準と比較したところ、安定型最終処分場の1施設で鉛が土壌環境基準を超えていた。

4・考察

4・1 基準を超えた項目と濃度

安定型最終処分場、管理型最終処分場の維持管理基準を超えたものについて、最終処分場毎に、項目とその濃度を表5に示す。BODが20mg/lを超えた安定型最終処分場は7施設の7試料で、SSが60を超える施設は管理型最終処分場1施設3試料であった。

鉛、クロム(VI)、ヒ素、ジクロロメタンが維持管理基準を超えた施設はそれぞれ、3施設、1施設、4施設、1施設であり、項目間の関連性は見られなかった。基準値以下であっても検出された試料を含めると、ヒ素、鉛は同じ施設で継続して検出される傾向があった。また、浸透水の鉛が基準値を超えた安定型処分場Hの埋立物溶出試験においても鉛が0.013mg/l検出された。

基準を超えた最終処分場における原因説明調査は、原因埋立物の特定及び埋立地層内での溶出過程の推定を行わなければならない。しかし、埋立物の全体が把握できないこと、目視により汚染物質を特定できないことなどからその原因埋立物の特定は難しく、さらに、地質や埋立地内の水の移動などの条件が埋立地で異なるため、原因の説明調査には多大の時間と労力を要する。

安定型最終処分場で基準を超えた項目は廃棄物に付着・混入して埋立処理された可能性が高い。基準超過頻度や化学特性から、特に注意が必要な項目として、ジクロロメタン、BOD、鉛、ヒ素について考察する。

表 3 管理型最終処分場放流水（浸出水）検査結果（14施設、33試料）

単位：EC μ S/cm, pH, EC 以外は mg/l

	pH	EC	BOD	SS	n-Hex	T-Hg	Cd	Pb	O-P	Cr (VI)	As	CN	PCB	トリクロロエチレン
最大値	8.2	7960	14	326	<5	<0.0005	<0.001	0.042	<0.1	<0.04	0.21	<0.1	<0.0005	<0.002
最小値	6.2	211	0.6	<1	<5	<0.0005	<0.001	<0.005	<0.1	<0.04	<0.005	<0.1	<0.0005	<0.002
検出数					0	0	0	2	0	0	3	0	0	0

	テトラクロロエチレン	ジクロロメタン	四塩化炭素	1,2-ジクロロエタン	1,1-ジクロロエチレン	シス-1,2-ジクロロエチレン	1,1,1-トリクロロエタン	1,1,2-トリクロロエタン	1,3-ジクロロプロペン	チウラム	シマジン	チオベンカルブ	ベンゼン	セレン
最大値	<0.0005	<0.002	<0.0002	<0.0004	<0.002	<0.004	<0.0005	<0.0006	<0.0002	<0.0006	<0.0003	<0.002	<0.001	<0.002
最小値	<0.0005	<0.002	<0.0002	<0.0004	<0.002	<0.004	<0.0005	<0.0006	<0.0002	<0.0006	<0.0003	<0.002	<0.001	<0.002
検出数	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0

表 4 溶出試験結果（20施設、52試料）

単位：EC μ S/cm, pH, EC 以外は mg/l

	pH	EC	T-Hg	Cd	Pb	O-P	Cr (VI)	As	CN	PCB	トリクロロエチレン	テトラクロロエチレン	ジクロロメタン
最大値	12.7	11400	<0.0005	<0.001	0.29	<0.1	0.53	0.007	<0.1	<0.0005	<0.002	<0.0005	<0.002
最小値	6.9	30	<0.0005	<0.001	<0.005	<0.1	<0.04	<0.005	<0.1	<0.0005	<0.002	<0.0005	<0.002
検出数			0	0	2	0	1	3	0	0	0	0	0

	四塩化炭素	1,2-ジクロロエタン	1,1-ジクロロエチレン	シス-1,2-ジクロロエチレン	1,1,1-トリクロロエタン	1,1,2-トリクロロエタン	1,3-ジクロロプロペン	チウラム	シマジン	チオベンカルブ	ベンゼン	セレン
最大値	<0.0002	<0.0004	<0.002	<0.004	<0.0005	<0.0006	<0.0002	<0.0006	<0.0003	<0.002	0.002	0.008
最小値	<0.0002	<0.0004	<0.002	<0.004	<0.0005	<0.0006	<0.0002	<0.0006	<0.0003	<0.002	<0.001	<0.002
検出数	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	3	3

表 5 基準を超えた項目と濃度

最終処分場	種類	BOD mg/l	SS mg/l	Pb mg/l	Cr (VI) mg/l	As mg/l	ジクロロメタン mg/l
A 安定型	浸透水					0.018	
						0.024	
						0.017	
B 安定型	浸透水			0.019			
C 安定型	浸透水	320				0.016	
D 安定型	浸透水	42					
E 安定型	浸透水	54					
F 安定型	浸透水			0.012			
G 安定型	浸透水	36					
H 安定型	浸透水			0.017			
		34					
I 安定型	浸透水						0.064
J 安定型	浸透水	28					
K 安定型	浸透水	27					
L 安定型	浸透水				0.08	0.013	
M 管理型	浸出水		65				
			83				
			326			0.21	

4・2 ジクロロメタン

平成14年度の PRTR データでは、ジクロロメタン（分子式 CH_2Cl_2 ）の生産量は約64,000トン、国内排出量が約43,000トンで、廃棄物への移行が約8,400トンであった。また、ジクロロメタンは3番目に排出量の多い化学物質で、届出排出量構成比は化学工業が18%、金属製品製造業が15%、輸送用機械器具製造業が14%、プラスチック製品製造業が11%、電気機械製造業が9%であった¹⁾。排出量のほとんどが空气中に排出され、水に排出されたものも容易に揮発するため、環境中へ排出されたジクロロメタンは、大部分が空气中に存在すると考えらる。ジクロロメタンは、土壌中に原液のまま排出された場合、土壌への吸着性が弱いので地下浸透して地下水を汚染し、長い間、残留する可能性がある²⁾。

ジクロロメタンは洗浄剤や塗装剥離剤、ポリカーボネート樹脂の重合溶剤として、主に工場・事業所で使用されていることから、溶剤として使用したジクロロメタンがプラスチックや金属くずなどに付着し、安定型最終処分場に混入したと考えられる。

4・3 BOD（生物化学的酸素要求量）

BOD は水中の微生物の増殖時に使われる有機物含有量の指標で、微生物が利用しやすい有機物量を表すことができる。従って、浸透水の BOD が20mg/l を超える最終処分場では、硫酸イオンの存在や嫌気的雰囲気などの条件が整えば、硫化水素やメタンガスが発生する可能性があると考えられる。

埋立地に密着不可分として供給される有機物は、木くず、紙くず、プラスチック等に付着混入し易い食品かすなどの生活消費材があり、その発生源は多岐にわたる。このため、溶存性有機物（BOD）の原因となる廃棄物の特定は困難である。

BOD の高濃度の原因を特定するためには、溶存性有機物からその原因有機物を特定しなければならない。セルロースやタンパク質などの有機物の加水分解生成物を予測して、これを測定することは現状では困難である。このため、BOD の高濃度の最終処分場については、今後、浸透水の有機物や窒素に関する測定データを蓄積する必要がある。

4・4 鉛、ヒ素

平成14年度の鉛及びその化合物の PRTR 届出排出量・移動量の合計は17,000トンで、このうち届出排出量が9,600トンで、その殆どが事業所内での埋立で、移動量の合計が7,400トンで、事業所外への廃棄物としての移動となっている。鉛及びその化合物の排出・移動量の多い事業場は、非鉄金属製造業、電気機器類製造業、金属鉱業、窯業・土石製品製造業、金属製品製造業、化学工

業、プラスチック製品製造業、輸送用機械器具製造業、パルプ・紙・紙加工品製造業であった¹⁾。

鉛は一般的用途として顔料やハンダ、鉛蓄電池、プラスチックの安定剤等に広く用いられ、安定型最終処分場では、主にプラスチックの着色材や印刷インク等の顔料として、電池、ハンダくずなどの鉛金属が廃プラスチックや金属くずに混じって混入する可能性が高い。

ヒ素及びその化合物の PRTR 届出排出量・移動量の構成は、事業所内での埋立処分が97%で7100トン/年、事業所外への移動が2.5%で、金属鉱業と比鉄金属製造業の2業種で総届出排出量・移動量の98%を占め、鉛に比べ、移動量の割合が小さい¹⁾。

ヒ素は半導体の材料、農薬、殺鼠剤、医薬品、木材の防腐・防蟻材、触媒、無機薬品として用いられる。安定型最終処分場へは、防腐・防蟻加工した木くずや農薬等を経由して移動すると考えられる³⁾。

鉛、ヒ素等の金属類は広く環境中に分布し、土壌中の金属類は、pH、酸化・還元状態、塩類濃度などの変化により、その溶解性が高くなることも考えられる。このため、原因説明調査では、地質やバックグラウンド地域の水質についても検討を行わなければならない。特に、ヒ素は、国の地下水環境調査において環境基準を超えて検出される頻度の最も多い項目で⁴⁾、その原因としては主に地質由来と考えられている。

5 まとめ

福岡県では、最終処分場の検査を伴う立入検査は、廃棄物の処理及び清掃に関する法律に基づき、年3回実施され、浸透水、放流水（浸出液）、埋立物等の分析検査を実施している。平成13年度から平成15年度の3年間の最終処分場の検査結果から、最終処分場の地下水への環境影響を評価した。また、地下水に影響を及ぼす可能性の高い項目を抽出し、その原因廃棄物等について考察を行った。

BOD が20mg/l を超えた施設は安定型最終処分場7施設の7試料であり、SS が60mg/l を超えた施設は管理型最終処分場1施設3試料であった。その他、地下水等検査項目では、安定型最終処分場の維持管理基準を超えた項目と施設数は、それぞれ、鉛3施設、クロム（VI）1施設、ヒ素4施設、ジクロロメタン1施設であった。

基準を超えた最終処分場においては、原因埋立物の特定が難しいこと及び地質や地下水などの条件が埋立地で異なることから、原因の解明調査に多大の時間と労力を要している。

最終処分場で特に注意が必要な項目は、BOD、鉛、ヒ素、ジクロロメタンで、これらは、廃棄物に付着・混

入して埋立処理された可能性が高いと考えられた。埋立地に混入する有機物は木くずや紙くずからプラスチック等に付着混入し易い食品かすなど多岐にわたるため、BOD の原因有機物の特定は難しい。鉛は、塗料、インク、電池、ハンダなどの生活資材として広く使用され、その発生源が多岐にわたるため、廃棄物に付着・混入し易いと考えられる。ジクロロメタンは、主に事業場で溶剤として使用されるため、廃溶剤が不適正に混入した可能性が高い。また、ヒ素は、地下水環境調査で最も検出事例の多い元素で、その原因に地質由来の可能性が否定できなと考えられる。

文献

- 1) 経済産業省製造産業局化学物質管理課，環境省環境保健部環境安全課：平成14年度 PRTR データの概要－化学物質の排出量・移動量の集計結果－，<http://www.prtr-info.jp>
- 2) 日本水道協会：上水試験方法解説編2001年版，615-617，2001.
- 3) 日本水道協会：上水試験方法解説編2001年版，404-409，2001.
- 4) 環境省編：平成15年版環境白書，133-135，2003.

2 調査研究終了報告書

調査研究終了報告書

研究分野：感染症の発生拡大防止及び食品の安全性確保に関する研究

調 査 研 究 名	SRSV（ノロウイルス）を原因とするウイルス性食中毒の高感度検出法の開発
研究者名（所属） ※ ○印：研究代表者	○濱崎光宏，石黒靖尚（病理細菌課），長野英俊（田川保健福祉環境事務所） 梶原淳睦（研究企画課），江藤良樹，世良暢之，千々和勝己（ウイルス課）
本 庁 関 係 部 ・ 課	生活衛生課
調 査 研 究 期 間	平成 1 3 年度 — 1 5 年度 （3 年間）
調 査 研 究 種 目	1. ☒ 行政研究 ☐ 課題研究 ☐ 共同研究（共同機関名： ） ☐ 受託研究（委託機関名： ） 2. ☒ 基礎研究 ☐ 応用研究 ☐ 開発研究 3. ☐ 重点研究 ☒ 推奨研究 ☐ I S O 推進研究
ふくおか新世紀計画 第 2 次実施計画	大項目：安心してはつらつと暮らせる心豊かな社会づくり 中項目：子どもや高齢者と生き生き暮らす健康社会作り 小項目：県民の健康的な暮らしづくりの推進
キ ー ワ ー ド	①ウイルス性食中毒 ② Norovirus ③ SRSV ④食品衛生 ⑤ Norwalk like virus
研 究 の 概 要	
1）調査研究の目的及び必要性 ウイルス性食中毒の主な原因ウイルスであるノロウイルスは，培養細胞や動物を使った培養方法が確立されていないため，ウイルスの検出は電子顕微鏡法および PCR 法の2つの方法で行っている．しかし，その検出感度は低く，検査時間も長く要するため，食中毒ウイルス検査のような行政処分を伴う検査において問題である．また，食品からのノロウイルスの検出方法は，確立されておらず，食中毒の明確な原因究明をすることが困難である．これらの問題を解決するために，ノロウイルスの迅速で高感度な検出方法および，食品からのノロウイルス検出方法の確立は必要不可欠である．そこで，本研究では，ノロウイルスの検出効率の上昇と検査時間の短縮を行うため，新たなプライマーのデザイン，PCR 条件の検討および食品からノロウイルスの検出方法の確立を行う．	
2）調査研究の概要 ノロウイルスの検出効率を上昇させるため，福岡県下で流行しているノロウイルスの遺伝子型を調査し，新たなプライマーのデザインを行った．新たにデザインしたプライマーについて，現在使用しているプライマーとの比較検討を行った．また，ノロウイルスの迅速で高感度な検出方法のために，PCR 条件の検討を行った．さらに，食材からのノロウイルスの検出方法について検討した．	
3）調査研究の達成度及び得られた成果（できるだけ数値化してください） 新たなプライマーをデザインするために福岡県で流行している69株のノロウイルスの遺伝子型を決定した．決定した塩基配列を元に新たなプライマーのデザインを行った．新しくデザインしたプライマーは，現在使用している RNA ポリメラーゼ領域のプライマーと比較して同程度の検出率であった．また，検査時間短縮のため PCR 条件を検討した結果，3時間かかっている反応時間を1.5時間に短縮することができ，検出効率を16倍上昇させることができた．さらに，食材からのノロウイルスの検出方法も確立した．ノロウイルスの回収率は，30～50%であり，検査業務に十分使用できると考えられる．	
4）県民の健康の保持又は環境の保全への貢献 最近，ノロウイルスによる食中毒および感染症事例は増加傾向にあり，公衆衛生上重要なウイルスである．本研究により検査時間が短縮され，検出率も向上した．また，食材からのノロウイルスの検出も可能となり，食中毒の原因究明，感染拡大防止等にも貢献するものと考えられる．	
5）調査研究結果の独創性，新規性 本研究で新たにデザインしたプライマーは，他の報告がなく新規性があると考えられる．また，食品からのノロウイルスの検出方法は詳細な検討はされておらず，本研究で初めて検討された．	
6）成果の活用状況（技術移転・活用の可能性） 今後，ノロウイルスの検査時間が短縮され，いち早く検査結果を行政施策に反映できることとなった．また，食材からのノロウイルスの検出も可能となり，食中毒の原因究明および感染拡大防止に活用されると考えられる．	

終了報告論文を119頁～122頁に掲載しています．

調査研究終了報告書

研究分野：感染症の発生拡大防止及び食品の安全性確保に関する研究

調 査 研 究 名	エイズ予防対策としての福岡県における HIV-1分離株の解析
研究者名（所属） ※ ○印：研究代表者	○千々和勝己，江藤良樹（ウイルス課） 林純（九州大学），柏木征三郎（福岡県赤十字血液センター）
本庁関係部・課	健康対策課
調 査 研 究 期 間	平成13年度 — 15年度 （3年間）
調 査 研 究 種 目	1. ☒ 行政研究 ☐ 課題研究 ☒ 共同研究（共同機関名： ） ☐ 受託研究（委託機関名： ） 2. ☒ 基礎研究 ☐ 応用研究 ☐ 開発研究 3. ☐ 重点研究 ☐ 推奨研究 ☐ ISO推進研究
ふくおか新世紀計画 第2次実施計画	大項目：安心してはつらつと暮らせる心豊かな社会作り 中項目：子どもや高齢者と生き生き暮らす健康社会づくり 小項目：県民の健康的な暮らしづくりの推進
キ ー ワ ー ド	① HIV ② AIDS ③薬剤耐性 ④サブタイプ
研 究 の 概 要	
1）調査研究の目的及び必要性 HIV 感染者には発症予防のため抗ウイルス剤の投与が一般的となり，また，使用する薬剤も多種となっている．それに伴い，多様な薬剤耐性株の出現が確認され，治療上大きな問題となっている．そこで，県内の薬剤耐性株の実態を把握することにより，治療上有益な情報を得ることを目的とする．また，感染ウイルスのサブタイプを決定し，感染経路を含む分子疫学的な情報を得て，予防対策立案の参考とすることも目的とした．	
2）調査研究の概要 HIV-1感染者の血液から，HIV-1 RNA を抽出し，その逆転写酵素・プロテアーゼ領域の遺伝子上の薬剤耐性変異の有無を検討した．過去に採取し保存していたものも含めた，治療開始前と思われる検体について，逆転写酵素領域の薬剤耐性変異を調べたが，23件全てに耐性変異が見られなかった．しかし，プロテアーゼ領域の薬剤耐性変異は9件中6件に見られた．治療中の3名の感染者については，逆転写酵素とプロテアーゼ遺伝子上の薬剤耐性変異の経時的変化を観察することができた．また，これまでに，通算60名についてはサブタイプを決定することができ，依然サブタイプ B が56名と多いが，サブタイプ E が3名，サブタイプ C も1名見られた．	
3）調査研究の達成度及び得られた成果（できるだけ数値化してください） HIV 感染者の血液中のウイルス RNA を抽出し，薬剤耐性変異の解析を行う手法を確立した．また，薬剤耐性に関わる遺伝子の塩基配列からサブタイプを決定できるデータベースを作成し，従来，薬剤耐性変異の解析とは別個に行っていたサブタイプの決定を一度の解析で可能とした．また，経時的な解析により，感染者の体内で薬剤耐性変異が変化する様子をとらえることができた．	
4）県民の健康の保持又は環境の保全への貢献 薬剤耐性変異の解析結果は，医療機関へ速やかに報告し，治療の参考とした．また，薬剤耐性株の流行実態の解明と，サブタイプの分布についての監視は，HIV 感染症の制圧のためには欠かせない情報であり，今後の対策立案に有用である．	
5）調査研究結果の独創性，新規性 薬剤耐性株の流行実態の解明と，サブタイプの分布についての監視は，本県はもとより九州内では，この研究でしか実施されていない．逆転写酵素阻害剤に対する耐性株による感染は見られなかったことは全国の傾向とも一致するが，プロテアーゼ阻害剤に対する耐性変異が治療前の感染者に見られたことは，注意する必要がある．また，福岡県においても B 以外のサブタイプ（E，C）が増えてきている傾向があり，新たな感染経路が拡大しないように，注意が必要である．	
6）成果の活用状況（技術移転・活用の可能性） 研究成果は，各年の厚生労働科学エイズ対策研究事業「HIV の検査体制の構築に関する研究」報告書に記載され，成果は公表されている．今回，薬剤耐性に関与する遺伝子領域の塩基配列から，サブタイプを決定する方法を確立したが，この手法は遺伝子解析がある程度可能なエイズ拠点病院等では，今後活用されることが考えられる．	

終了報告論文を123頁～126頁に掲載しています．

調査研究終了報告書

研究分野：感染症の発生拡大防止及び食品の安全性確保に関する研究

調 査 研 究 名	インフルエンザウイルスの流行株の解析
研究者名（所属） ※ ○印：研究代表者	○梶原淳睦，世良暢之，江藤良樹，千々和勝己（ウイルス課）
本 庁 関 係 部 ・ 課	健康対策課
調 査 研 究 期 間	平成13年度 — 15年度 （3年間）
調 査 研 究 種 目	1. ☒ 行政研究 ☐ 課題研究 ☐ 共同研究（共同機関名： ） ☐ 受託研究（委託機関名： ） 2. ☒ 基礎研究 ☐ 応用研究 ☐ 開発研究 3. ☐ 重点研究 ☐ 推奨研究 ☐ ISO推進研究
ふくおか新世紀計画 第2次実施計画	大項目：安心してはつらつと暮らせる心豊かな社会づくり 中項目：子どもや高齢者と生き生き暮らす健康社会作り 小項目：県民の健康的な暮らしづくりの推進
キ ー ワ ー ド	①インフルエンザウイルス ②疫学 ③遺伝子解析 ④薬剤耐性
研 究 の 概 要	
1）調査研究の目的及び必要性 インフルエンザウイルスは遺伝子変異を頻繁に起こし抗原性の変異や薬剤耐性ウイルスが出現し，ワクチンや治療薬といったインフルエンザ対策を困難にしている．そこで，これら薬剤耐性ウイルス等の変異株の出現や流行に対する監視体制の整備及び変異株の解析を行い，変異株に対し迅速に対応するための情報提供を行うことを目的とした．	
2）調査研究の概要 インフルエンザ患者の咽頭ぬぐい液等からインフルエンザウイルスを分離し，ウイルス遺伝子の M2蛋白質活性部位及びヘマグルチニンの抗原決定部位の遺伝子変異を解析し，薬剤耐性変異の有無や抗原性の変異を解析する．さらに，これら検査の効率的な運用法を検討し，日常業務に応用するためマニュアル化する．	
3）調査研究の達成度及び得られた成果（できるだけ数値化してください） M 遺伝子；平成13～15年度の A 型インフルエンザ流行株はアマンタジンに対する薬剤耐性変異を起こしていない事が確認できた． HA 遺伝子；B 型の流行株はワクチン株である B/山東/ 7/97類似であった． A/H3N2型はワクチン株の A/パナマ/2007/99に対し平成14年度流行株は12アミノ酸が，平成15年度流行株は17アミノ酸が変異しており，抗原型の変異を遺伝子レベルで明らかにすることができた．また，遺伝子解析の手法を用いることにより，赤血球凝集活性が弱い流行株も容易に検出及び同定することができた．	
4）県民の健康の保持又は環境の保全への貢献 インフルエンザは県下でも毎年多数の患者が発生しており，流行株の薬剤耐性や抗原性変異の情報を医療現場へ提供することにより，インフルエンザ流行の予防や治療等県民の健康保持に貢献することが期待できる．	
5）調査研究結果の独創性，新規性 県下でのインフルエンザ流行株の変異を速やかに解析し，監視するシステムはこれまで存在しない．	
6）成果の活用状況（技術移転・活用の可能性） インフルエンザ流行株の抗原変異や薬剤耐性について情報提供した． 日常のインフルエンザ検査業務に応用し，検査の迅速・高感度化に寄与した．	

終了報告論文を127頁～130頁に掲載しています．

調査研究終了報告書

研究分野：ダイオキシン類，有害化学物質による健康被害の防止とその対策に関する研究

調 査 研 究 名	油症及びダイオキシン類に関する研究
研究者名（所属） ※ ○印：研究代表者	○飯田隆雄，戸高 尊，平川博仙，堀就英，芦塚由紀，中川礼子，松枝隆彦， 飛石和大，片岡恭一郎
本 庁 関 係 部 ・ 課	生活衛生課
調 査 研 究 期 間	平成13年度 — 15年度 （3年間）
調 査 研 究 種 目	1. ☒ 行政研究 ☐ 課題研究 ☒ 共同研究（共同機関名：全国油症治療研究班，九大学油症治療研究班，慶應大学医 東農大，北大学医，自治医科大学，大阪府公衆衛生研究所） ☐ 受託研究（委託機関名： ） 2. ☒ 基礎研究 ☒ 応用研究 ☒ 開発研究 3. ☐ 重点研究 ☐ 推奨研究 ☐ ISO推進研究
ふくおか新世紀計画 第2次実施計画	大項目：安心してはつらつと暮らせる心豊かな社会づくり 中項目：平穏で安全な県民性活の確保 小項目：豊かで安心できる消費生活の確保
キ ー ワ ー ド	①カネミ油症 ②ダイオキシン類 ③血液 ④環境ホルモン ⑤人体臓器・組織
研 究 の 概 要	
1）調査研究の目的及び必要性 油症は，PCDFsを主な原因物質としPCDDsやPCBsの影響も加わったダイオキシン類の複合的汚染による大規模な人体被害例である．油症診断基準に患者血中 PCDFs 濃度を取り入れて見直すという国の方針に対応するためヒト血中ダイオキシン類の極微量で迅速・精密分析法の開発と実施体制の構築が必要となった．油症患者の血中 PCDF 等ダイオキシン類の追跡調査は油症患者個々人の健康管理に資するとともにこれら強毒性化学物質の人体影響を解明する貴重なケーススタディーでもある．血中ダイオキシン類調査はベトナム，台湾をはじめとするアジア諸国の被害例に応用可能であるとともに，一般人に対するダイオキシン類環境汚染の影響を解明するための有用な手段となる．	
2）調査研究の概要 油症発生当時，約14,000人が被害を届け出た．一方，認定油症患者は1,500人程度が生存しており福岡県をはじめ関東以西の各都府県に居住している．全国で油症一斉健康診断が毎年行われ，400人近くの患者が受診している．これらの受診者の希望者全員の血中 PCDF 等のダイオキシン類濃度を測定する．このため，迅速・高精度分析法を開発し，測定体制を構築した．これらのデータは油症診断基準の基礎データとして活用されると同時にデータベース化され油症症状との関連を検討し，ダイオキシン類の人体影響解明に使用される．アジア諸国（ベトナム，韓国，台湾，中国等）のダイオキシン研究の技術支援を行う．	
3）調査研究の達成度及び得られた成果（できるだけ数値化してください） 血中ダイオキシン類の超高感度・迅速分析法を確立した．この分析法の確立と分析体制の構築により血液試料量は約十分の一に，分析時間は約五分の一になった．血液試料の少量化，分析時間短縮，データの高精度化，分析用資材の省資源化を達成した．このことによりフィールド調査の可能性を飛躍的に拡大し，ダイオキシン類によるヒト汚染影響研究の進展の条件を整えた．	
4）県民の健康の保持又は環境の保全への貢献 油症患者の PCDF 等体内残留量を明らかにすることにより適切な健康管理をサポートする．ダイオキシン類のヒトの健康影響を究明することは人類の健康保持に資するものである．	
5）調査研究結果の独創性，新規性 血中ダイオキシン分析法に①凍結乾燥法，② Accelerated Solvent Extraction (ASE)，③クリーンアップ系のダウンサイジング，④ Solvent Cut Large Volume (SCLV) injection system を導入して「超高感度・迅速分析法」を確立した．さらに，回収率，ブランク等超微量分析に伴う様々な問題に対して適切な対策を講じることによって，高感度で高精度の再現性の良い分析が可能になった．	
6）成果の活用状況（技術移転・活用の可能性） ①油症：本分析法を用いて平成13年度に福岡県の油症患者78名の血中ダイオキシン類分析を試験的に行った．この分析法をさらに改良し，平成14年度（371名），15年度（343名）の油症患者の血中ダイオキシン類濃度全国調査を実施した．②ベトナムのホットスポット住民の血液，母乳，土壌，魚試料120件の調査を行った．③中国河北省都市部及び農村部住民の母乳試料60件についてダイオキシン類濃度調査を実施した．④平成15年度出産者母体血100件のダイオキシン類濃度調査を実施した．⑤剖検試料20例の脾臓，脾臓，腎臓，肺臓中ダイオキシン類濃度を測定した．⑥大学や国立研究所の職員等に血中ダイオキシン分析技術研修をした．⑦ベトナム，韓国，中国の見学者に対応した．⑧国内，国際学会，専門雑誌で成果を報告した．本分析法はヒト試料中ダイオキシンの最も信頼できる分析法である．	

終了報告論文を131頁～134頁に掲載しています．

調査研究終了報告書

研究分野：ダイオキシン類，有害化学物質による健康被害の防止とその対策に関する研究

調 査 研 究 名	ダイオキシン類の排泄促進に関する研究 ーダイオキシンの人体汚染防止及び食生活指針に関する研究ー
研究者名（所属） ※ ○印：研究代表者	○森田邦正（生活化学課），飛石和大（計測技術課） 近藤隆一郎（九大農学研究院）
本 庁 関 係 部 ・ 課	生活衛生課
調 査 研 究 期 間	平成13年度ー15年度（3年間）
調 査 研 究 種 目	1. ☐ 行政研究 ☐ 課題研究 ■共同研究（共同機関名： ） ☐ 受託研究（委託機関名： ） 2. ☐ 基礎研究 ☐ 応用研究 ■開発研究 3. ☐ 重点研究 ☐ 推奨研究 ☐ ISO推進研究
ふくおか新世紀計画 第2次実施計画	大項目：安心してはつらつと暮らせる心豊かな社会づくり 中項目：安全で安心して暮らせる生活の確保 小項目：平穏で安全な県民生活の確保
キーワード	①ラット ②葉緑素 ③海藻 ④緑茶 ⑤食物繊維 ⑥ダイオキシン
研 究 の 概 要	
1）調査研究の目的及び必要性 ダイオキシン(コプラナー PCB 及びダイオキシン類)は，極めて体内に残留し易い毒物で，母親から胎児へ，母乳から乳児へ移行する等人体への影響が懸念されている．ダイオキシンによる人への健康障害を未然に防止するためには，食品経路のダイオキシンの吸収を抑制し体外に排泄する方法と，すでに体内に蓄積したダイオキシンを効果的に体外に排除する方法を開発することが必要である．ダイオキシンから身を守る食生活の方法を提示することは，県民(国民)の健康維持と不安の解消に役立つ．	
2）調査研究の概要 5～15年の長い生物学的半減期をもつダイオキシンは，難代謝物で脂溶性であるため人の消化管で90%以上が吸収される．その後，血流を通じて各組織へ移行し，主に脂肪組織と肝臓に蓄積する．体内のダイオキシンは胆汁及び消化管壁から消化管内へ分泌され，糞経路で排泄される．人の主要なダイオキシンの排泄経路は，未変化体の消化管経路による糞中排泄である．ダイオキシンによる人への健康障害を防止するためにはダイオキシンを体外へ排泄促進することが重要である．本研究では，ダイオキシンの吸収及び排泄機構の解明と排泄促進法の開発を目的として，①ダイオキシンの消化管吸収を抑制し，体外に排泄促進する方法を解明する．②すでに体内に蓄積したダイオキシンを消化管経路で体外に排除する方法を解明する．③上記知見を総合して，ダイオキシンの人体汚染を未然に防止する食生活の方法を提示する．	
3）調査研究の達成度及び得られた成果（できるだけ数値化してください） ラットを用いて8種類の PCB の再吸収抑制に及ぼすクロロフィル，クロレラ，海藻類（わかめ，ひじき，こんぶ，のり）及び緑茶の効果について検討した．0.5%のクロロフィル，10%のクロレラ，10%の海藻類及び10%の緑茶投与群の PCB 糞中排泄量はコントロール群と比べてそれぞれ3.2倍，2.9倍，1.4～2.3倍，6.9倍の増加が認められた．クロロフィルが多く含まれる食品であるクロレラ，海藻類及び緑茶は人体からの PCB の排泄促進に有効かもしれない． ダイオキシンから身を守る食生活指針：葉緑素と食物繊維はダイオキシン類の吸収及び再吸収を抑制し，糞中排泄を促進する機能があることが分かった．葉緑素と食物繊維が多く含まれる様々な食品（緑茶，緑色野菜，クロレラ，海藻類）を日々摂取する食生活を心掛けることが大切である．	
4）県民の健康の保持又は環境の保全への貢献 提示することは，県民（国民）の健康維持と不安の解消に役立つ．ラットの実験結果から，人の食生活指針について提言することができる．	
5）調査研究結果の独創性，新規性 人及び動物によるダイオキシンの排泄促進の方法に関する研究は，国内外で報告件数が極めて少ない．健常者及び患者に対する食生活指針と根本的な治療法はまだ開発されていないのが現状である．	
6）成果の活用状況（技術移転・活用の可能性） 雑誌，新聞等への話題提供	

終了報告論文を135頁～138頁に掲載しています．

調査研究終了報告書

研究分野：ダイオキシン類、有害化学物質に関する研究

調 査 研 究 名	大気中ダイオキシン類関連化合物の植物葉への沈着状況解明のためのモデル植物葉試作と大気長期計測法の開発
研究者名（所属） ※ ○印：研究代表者	○黒川陽一，大石興弘（保健環境研究所） 宗伸明，今任稔彦（九州大学大学院）
本 庁 関 係 部 ・ 課	環境部 環境保全課
調 査 研 究 期 間	平成14年度 — 15年度（2年間）
調 査 研 究 種 目	1. ☐ 行政研究 ☐ 課題研究 ■共同研究（共同機関名：九州大学大学院） ■受託研究（委託機関名：平成14年度科学研究費補助金交付（特定領域(A)）） 2. ■基礎研究 ☐ 応用研究 ☐ 開発研究 3. ☐ 重点研究 ☐ 推奨研究 ☐ I S O推進研究
ふくおか新世紀計画 第2次実施計画	大項目：快適で潤いのある循環型社会づくり 中項目：地球的視野に立った快適環境の保全と創造 小項目：快適な生活環境の保全
福岡県環境総合基本計画	柱：生活環境の保全 テーマ：化学物質の適正な管理
キ ー ワ ー ド	①ダイオキシン類 ②代理表面 ③大気長期モニタリング
研 究 の 概 要	
1）調査研究の目的及び必要性 各種焼却場等から放出されたダイオキシン類関連物質は、大気を経由して植物の葉や土壌などの表面に沈着する。特に植物の葉へのこれらダイオキシン類関連物質の移行は食物連鎖の最初に位置することから、その移行の機構を解明することは人の健康リスク評価をする上で極めて重要である。しかし実際の植物葉では、葉の性状等の様々な差異により共通する移行機構を明確にすることが困難である。そのため本研究では、人工的な代理表面（モデル葉）を使用して大気から植物葉へのダイオキシン類関連物質の移行を解明する。またダイオキシン類による大気汚染指標としての植物葉に代わる代理表面を用い、より長期的かつ簡易に地域の汚染度を調査するための大気中ダイオキシン類の計測手法の開発を目的としている。	
2）調査研究の概要 ①植物葉のモデルとなり得る表面の検索を行い、これらの表面への大気中ダイオキシン類関連化合物の沈着機構の調査を行う。 ②大気中ダイオキシン類の長期間にわたる汚染状況を明らかにする測定法を代理表面を用いて開発する	
3）調査研究の達成度及び得られた成果（できるだけ数値化してください） 大気中のダイオキシン類の植物葉への主要な移行経路であるガス状沈着は、いくつかの疎水性表面で再現されることが分かった。汚染土壌からの影響は、蒸散によるものより植物葉表面への吸着や取り込みの影響が大きいことが推察された。またスコットフィルターの大気中ダイオキシン類の長期計測法への応用を検討した結果、大気中ダイオキシン類の吸着性が大きく、大気中ダイオキシン類濃度を反映する有効な簡易的な手法となる可能性が示された。	
4）県民の健康の保持又は環境の保全への貢献 代理表面による長期計測法は、より長期的なダイオキシン類の傾向の把握及び電源や機器を必要としないどこでも簡易的に汚染傾向を知る手法としてより多くの地域でハイボリウムエアーサンプラー法を補完するものとしての効果が期待される。	
5）調査研究結果の独創性、新規性 実際の植物葉を使用することが困難な実験系を代理表面を用いてモデル化した点に新規性がある。特に除草剤中のダイオキシン類により汚染された土壌からの植物葉への移行について、より可能性の高い知見が得られた。また大気中のダイオキシン類汚染を簡易的に測定する計測法の開発の可能性を見いだした。	
6）成果の活用状況（技術移転・活用の可能性） 効果的な代理表面は大気中のダイオキシン類を簡易的に測定するサンプラーになり得るが、さらにシェルターの工夫や多くの実際の空気中濃度との比較が必要となる。	

終了報告論文を139頁～142頁に掲載しています。

調査研究終了報告書

研究分野：ダイオキシン類，有害化学物質に関する研究

調 査 研 究 名	底質中のダイオキシン類の処理に関する研究
研究者名（所属） ※ ○印：研究代表者	○大野健治，松枝隆彦，黒川陽一，飛石和大，北直子，桜木建治（計測技術課）， 馬場義輝（水質課），石黒靖尚（病理細菌課）
本 庁 関 係 部 ・ 課	環境保全課
調 査 研 究 期 間	平成14年度 — 15年度 （2年間）
調 査 研 究 種 目	1. ☒ 行政研究 ☐ 課題研究 ☐ 共同研究（共同機関名： ） ☐ 受託研究（委託機関名： ） 2. ☐ 基礎研究 ☒ 応用研究 ☐ 開発研究 3. ☐ 重点研究 ☐ 推奨研究 ☐ ISO推進研究
ふくおか新世紀計画 第2次実施計画	大項目：快適で潤いのある循環型社会づくり 中項目：地球的視野に立った快適環境の保全と創造 小項目：快適な生活環境の保全
福岡県環境総合基本計画	柱：生活環境の保全 テーマ：土壌環境の保全
キ ー ワ ー ド	①ダイオキシン類 ②分解 ③底質 ④処理技術
研 究 の 概 要	
1）調査研究の目的及び必要性 大牟田川河川水のダイオキシン類による汚染原因は，大牟田川の川底に堆積した底質からの溶出であり，底質汚染状況も明らかになってきた．大牟田川の汚染防止のためには，汚染底質を撤去することも必要となり，その場合，撤去された汚染底質の処理が重要な問題となる．そのため大牟田川の底質の汚染状況を把握するための調査と並行して，ダイオキシン類の分解に関する処理技術の情報を収集し，大牟田川の底質に適用可能な処理技術を検討することを目的とする．	
2）調査研究の概要 ①ダイオキシン類の処理技術に関する情報収集，整理 ②ダイオキシン類土壌汚染対策地等の現地調査 ③企業が有するダイオキシン類処理技術の評価	
3）調査研究の達成度及び得られた成果（できるだけ数値化してください） ①国内のダイオキシン類処理技術を有する企業及び技術をインターネットや文献から検索，各企業が保有するダイオキシン類の処理技術に関するアンケート調査を実施し，評価した（平成14，15年度）． ②横浜市鶴見川遊水池ダイオキシン類汚染土壌対策工事現場などのダイオキシン類土壌汚染対策地を視察し，汚染対策の実態を調査した（平成14年度）． ③間接熱脱着工法やDCR脱ハロゲン化無害化工法などの汚染処理技術を現地調査した（平成15年度）．	
4）県民の健康の保持又は環境の保全への貢献 大牟田川のダイオキシン類による汚染底質の処理は，地域住民の健康被害防止，地域環境の保全の観点から重要であり，汚染対策を実施するに当たっての処理工法検討の基礎資料になる．	
5）調査研究結果の独創性，新規性 ダイオキシン類による底質・土壌汚染に関して，無害化処理まで実施している例は全国的にほとんどない．ダイオキシン類の無害化処理に関してどのような処理技術があり，また，どの処理技術が大牟田川の汚染底質の処理に適用できるのか検討，評価した．	
6）成果の活用状況（技術移転・活用の可能性） 大牟田川の底質の汚染状況を把握するための調査が進行し，汚染の状況が明らかになってきた．今後，ダイオキシン類汚染対策が必要となるが，大牟田川中流域ダイオキシン類対策工法の検討に利用できる．	

終了報告論文を143頁～144頁に掲載しています．

調査研究終了報告書

研究分野：廃棄物の安全性と有効利用に関する研究

調 査 研 究 名	廃棄物埋立処分場の適正管理に関する研究
研究者名（所属） ※ ○印：研究代表者	○高橋浩司・宇都宮彬・永瀬誠・鳥羽峰樹・土田大輔（廃棄物課）， 石黒靖尚・堀川和美・濱崎光宏（病理細菌課），世良暢之（ウイルス課）
本 庁 関 係 部 ・ 課	監視指導課，廃棄物対策課
調 査 研 究 期 間	平成13年度 — 15年度 （3年間）
調 査 研 究 種 目	1. ☒ 行政研究 ☐ 課題研究 ☒ 共同研究（共同機関名：産業医科大学，九州大学 他） ☐ 受託研究（委託機関名： ） 2. ☐ 基礎研究 ☒ 応用研究 ☐ 開発研究 3. ☐ 重点研究 ☐ 推奨研究 ☒ I S O推進研究
ふくおか新世紀計画 第2次実施計画	大項目：快適で潤いのある循環型社会づくり 中項目：資源循環型社会の構築 小項目：廃棄物の適正処理の確保
福岡県環境総合基本計画	柱：循環型社会の形成 テーマ：産業廃棄物の適正処理の推進
キ ー ワ ー ド	①廃棄物処分場 ②硫化水素 ③メタン ④リモートセンシング ⑤土壌微生物
研 究 の 概 要	
1）調査研究の目的及び必要性 近年，廃棄物埋立処分場において，硫化水素ガスの発生や火災などの事故が相次いでいる．県内の処分場においてもいくつかの事故事例が報告されているが，その原因の解明がほとんどなされていない．したがって，事故に至る要因を検討し，さらに処分場の新たな管理手法を確立し，処分場における事故を未然に防止することを目的とする．	
2）調査研究の概要 処分場の状況を実験室レベルで再現し，処分場における事故について，その要因等の検討を行った．また，処分場の管理手法として，熱赤外面像装置を用いたリモートセンシング法及び微生物の解析による方法の有効性について検討した．	
3）調査研究の達成度及び得られた成果（できるだけ数値化してください） ①埋立処分場における硫化水素の発生の主要な原因の一つと推定されている石膏ボードについて，その溶出試験を行った結果，石膏ボードからは，硫酸イオンが高い濃度で溶出し，同時に有機物も溶出することが分かった．石膏ボードや有機物等をバイアル瓶に入れて嫌気的条件下で放置し，約1か月後に硫化水素を測定した結果，石膏ボードが原因となって硫化水素が発生することが確認できた． ②熱赤外面像装置による処分場地表温度の測定を行い，廃棄物処分場の適正管理手法への有効性を検討した．県内の安定型産業廃棄物処分場で地上又は上空から地表面温度の調査を行った結果，埋立区画の温度が高温になっている部分が確認され，この温度上昇は微生物による有機物分解や埋立物の燃焼等に起因することが確認された． ③微生物による管理手法の有効性の検討のため，処分場の土壌中の硫酸還元菌及びメタン生成菌数を測定するための最適培養条件を調査し，効率の良い測定方法を確立した．また，不法投棄現場や一般廃棄物最終処分場の土壌の微生物解析の結果，硫酸還元菌，メタン菌とも菌数及びその種類は深さや埋立物等により異なることが分かった．	
4）県民の健康の保持又は環境の保全への貢献 廃棄物処分場からの環境汚染や事故の問題については近年注目されており，これらの問題の解決のためリモートセンシングによる手法や微生物解析による手法を提案することにより，処分場の安全性の評価や環境汚染の防止に貢献できると考えられる．	
5）調査研究結果の独創性，新規性 従来，処分場の検査は，有害化学物質の分析により行われているが，埋立層内では微生物反応が起きており，事故防止のためには微生物反応に対する検査も重要であると考えられる．しかし，これまでこのような検査が行われた例は少なく，その方法も確立されていない．従って，熱赤外面像装置や微生物解析による調査手法の提案には新規性があると考えられる．	
6）成果の活用状況（技術移転・活用の可能性） 熱赤外面像装置を用いたリモートセンシング法については，県内の安定型最終処分場において実際に活用しており，水蒸気が発生していた処分場において熱赤外面像装置を用いて地表面温度を測定し，その発熱原因が埋立層内の廃棄物の燃焼に伴うことを発見できたため，適切な指導を行うことができ，火災などの事故を未然に防止することができた．	

終了報告論文を145頁～148頁に掲載しています．

調査研究終了報告書

研究分野：理学的要因による環境影響とその対策に関する研究

調 査 研 究 名	生活環境中のラドン等の動態と低減化に関する調査研究
研究者名（所属） ※ ○印：研究代表者	○植崎 幸範，石橋 融子，松尾 宏（水質課） 床次 眞司（放射線医学総合研究所）
本庁関係部・課	環境政策課
調 査 研 究 期 間	平成14年度 — 15年度 （2年間）
調 査 研 究 種 目	1. ☐ 行政研究 ☐ 課題研究 ■共同研究（共同機関名：放射線医学総合研究所） ☐ 受託研究（委託機関名： ） 2. ■基礎研究 ☐ 応用研究 ☐ 開発研究 3. ☐ 重点研究 ☐ 推奨研究 ☐ ISO推進研究
ふくおか新世紀計画 第2次実施計画	大項目：安心してはつらつと暮らせる心豊かな社会づくり 中項目：子どもや高齢者と生き生き暮らす健康社会作り 小項目：県民の健康的な暮らしづくりの推進
福岡県環境総合基本計画	柱：生活環境の保全 テーマ：水環境の保全
キ ー ワ ー ド	①放射能 ②放射線 ③ラドン濃度 ④低減化 ⑤線量評価
研 究 の 概 要	
1）調査研究の目的及び必要性 ラドンは一般公衆が1年間に受ける被ばく線量の50%（1.2mSv）を占め、肺ガンや胃ガン等の健康影響が懸念されている。地下水を飲用する地域では、米国環境保護庁の飲料水基準値（11Bq/l）をはるかに超えている地点も県内には多数見受けられている。その為生活環境中におけるラドン濃度の把握と水中ラドン濃度の低減化を計る。	
2）調査研究の概要 県内の地下水中ラドン濃度の実態とその分布を調べるとともに、水中から屋内への移行過程と空間分布からラドンの動態とヒトに与える線量評価を行った。さらに、ラドンの除去方法についても検討した。	
3）調査研究の達成度及び得られた成果（できるだけ数値化してください） ①福岡県下の地下水中ラドン濃度は1～1,130Bq/kg、対数正規分布を示し、幾何平均値 39Bq/kg であった。ラドン濃度は北部で高く、南部で低い傾向にあった。すなわち、花崗閃緑岩の地質である筑豊地域及び糸島地域に高く、沖積層や洪積層の堆積物である筑後地域では低濃度であった。 ②4種類のラドン濃度測定装置を用いて水中のラドン濃度に関する比較実験を行った。「温泉法」に指定されているIM 泉効計を用いた結果では他の分析法に対して22～47%過大に評価される傾向にあり、校正方法の検討を含めた測定法の見直しが必要であることを指摘した。 ③ラドンを含む井戸水を使用する家屋における屋内ラドンの挙動及び線量評価から、井戸水中ラドンが屋内ラドン濃度を高める要因となっていることを示した。また、ラドンによる在宅時の平均的な年間実効線量は0.88 mSv/y と安全性が確認されたが、井戸水使用時には米国での屋内ラドンの基準値150 Bq/m ³ を超えることもわかった。 ④飲料水として摂取したラドンは胃での半減期が60～240分であった。これは、線量評価モデルで利用されている値20分より3～12倍長いことがわかった。 ⑤水中のラドンについて物理的除去方法を検討した。水中のラドンを効率的に除去するには激しく界面が乱れ、水中から気泡と共に揮散しやすい状態にすることがラドンの低減化に有効であることを示した。	
4）県民の健康の保持又は環境の保全への貢献 文部科学省において屋内ラドンに対する対策レベルの設定が予定されている。なかでも、発生源となる生活用水中のラドンに対する規制も検討されており、水中ラドン濃度に対する安全管理、保健物理的なリスクの解消、放射能摂取による公衆の健康影響評価に貢献する。	
5）調査研究結果の独創性、新規性 福岡県内における水中ラドン濃度の分布、IM 線効計による測定値の過大評価、水中ラドンによる屋内ラドン濃度への寄与、胃でのラドンの滞留半減期及びラドンの除去に関する報告はいずれも今までに発表されていない新しい知見である。	
6）成果の活用状況（技術移転・活用の可能性） ①温泉法におけるラドン濃度の測定法改訂の資料となる。 ②屋内ラドンあるいは水中ラドンに対する対策レベル設定のためのデータとなる。	

終了報告論文を149頁～151頁に掲載しています。

第3回 福岡県保健環境研究所研究終了報告会

(平成15年度研究終了課題)

講演要旨集

目 次

1	ノロウイルスを原因とするウイルス性食中毒の高感度検出法の開発	119
2	エイズ予防対策としての福岡県における HIV-1分離株の解析	123
3	インフルエンザウイルスの流行株の解析	127
4	油症及びダイオキシンに関する研究	131
5	ダイオキシン類の排泄促進に関する研究 ダイオキシンの人体汚染防止及び食生活指針に関する研究	135
6	大気中ダイオキシン類関連化合物の植物葉への沈着状況解明のための モデル植物葉試作と大気長期計測法の開発	139
7	底質中のダイオキシン類の処理に関する研究	143
8	廃棄物埋立処分場の適正管理に関する研究	145
9	生活環境中のラドン等の動態と低減化に関する調査研究	149

ノロウイルスを原因とするウイルス性食中毒の高感度検出法の開発

研究期間（平成13年度～15年度）

濱崎光宏^{*1}，長野英俊^{*2}，梶原淳睦^{*1}，江藤良樹^{*1}，世良暢之^{*1}，石黒靖尚^{*1}，千々和勝己^{*1}

要 旨

ウイルス性食中毒の主な原因ウイルスであるノロウイルスの検出効率の向上と検査時間の短縮を目的として、新たなプライマーのデザインおよび PCR 条件の検討を行った。まず、新たなプライマーをデザインするために、福岡県で流行しているノロウイルスの遺伝子型を調査した。69株のウイルスについて RNA ポリメラーゼ領域の塩基配列を比較した結果、G1型が3株、G2型が66株であり、ほとんどが G2 型であった。これらのウイルス遺伝子を元に新たなプライマーをデザインした。このプライマーを使用した場合、ノロウイルスの検出率は、現在使用している NV 系プライマーと同程度であった。次に、PCR 条件の検討を行った。熱変性、再結合、伸長のそれぞれの反応温度は変更せず、反応時間を30秒に変更すると、PCR の反応時間を1.5時間に短縮でき、検出効率も16倍向上させることができた。また、ノロウイルスの食品からの検出方法について、陽電化フィルターを用いたウイルス濃縮方法を応用し添加実験を行った。その結果、ウイルスの回収量は30%以上であり、実際のウイルス検査業務に十分使用できるものと考えられる。以上の研究結果をノロウイルスの検査に応用することにより、検出効率の向上と検査時間の短縮および感染源の特定が期待でき、いち早く検査結果を行政の施策に反映できると考えられる。

[キーワード：Norovirus，ウイルス性食中毒，SRSV，食品衛生，Norwalk like virus]

1 はじめに

冬季に発生する食中毒は、ウイルスに起因する 경우가多く、ノロウイルスが主な原因ウイルスとされている。ノロウイルスは、現在、動物や培養細胞を用いた培養方法が確立されていないため、その検出は電子顕微鏡法および PCR 法の2つの方法で行っている。しかし、前者は検出効率が低く、後者は検出効率は高いが、特異性が高いためプライマーが一致しない変異ウイルスを検出することは難しい。また、検体搬入から確認試験終了まで4～5日要しているが、検査結果を行政施策にいち早く反映させるためには、検査時間の短縮は必要不可欠である。さらに、食品からの検出方法も確立されていないため、食中毒事例において、汚染原因を特定できない場合が多く問題になっている。以上の問題を解決するために、我々は、福岡県下で流行しているノロウイルスの遺伝子型を調査し、新たなプライマーの設計、PCR 条件の検討および食材からノロウイルスの検出方法の検討を行った。

2 研究方法

2・1 福岡県で流行しているノロウイルスの調査

平成11年6月から平成14年3月にかけて食中毒行政依頼検査および感染症発生動向調査で搬入された便211件について PCR 法でウイルス遺伝子を増幅を試みた。遺伝子の増幅が確認された検体について、ダイターミネーター法でサイクルシーケンスを行い塩基配列を決定した。決定した塩基配列をクラスタル法で多重整列を行い、分子系統樹を作成した。標準株として比較に用いたノロウイルスを表1に示す。作成した分子系統樹より、分離株の遺伝子型を決定した。

2・2 PCR条件の検討

PCR 法でノロウイルスが検出された平成13年11月27日に搬入された検体（FC1）について、ウイルス RNA を抽出し、ランダムプライマーおよび逆転写酵素を用いて cDNA を合成した。得られた cDNA を2倍段階希釈し、PCR 条件の検討を行った。PCR 産物は、アガロースゲル電気泳動で確認した。

*1 福岡県保健環境研究所

(〒818-0135 福岡県太宰府市大字向佐野39)

*2 田川保健福祉環境事務所

(〒825-8577 福岡県田川市大字伊田松原通り3292-2)

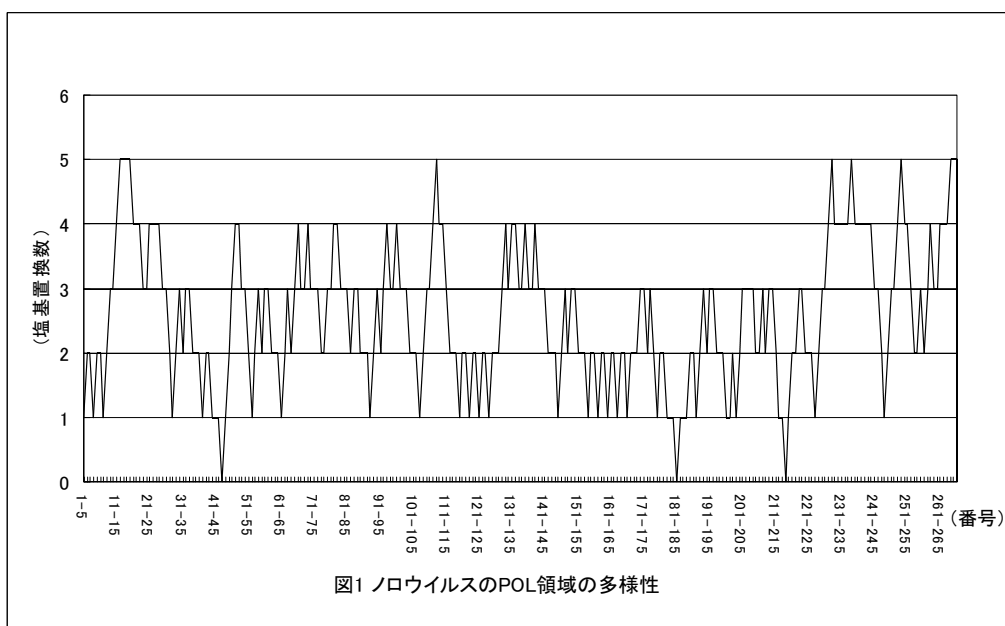


表1. 比較したノロウイルスの標準株

株名	GenBank登録番号
Norwalk virus	M87661
Lordsdale virus	X86557
Camberwell virus	U46500
Mexico virus	U22498
Hawaii virus	U07611
Snow Mountain virus	U70059
Melksham virus	X81879
Yuri virus	AB009876

表2. 検出されたノロウイルスの遺伝子型

グループ	遺伝子型	検出数
G1	Norwalk virus	3
	Lordsdale virus	1
	Camberwell virus	7
G2	Mexico virus	13
	Hawaii virus	15
	Snow Mountain virus	12
	Melksham virus	4
	Yuri virus	6
	その他	8

2・3 食材からノロウイルスの検出方法の検討

市販の野菜サラダおよび自家製おにぎりの2品目について、それぞれ FC1を高濃度 (2.2×10^7 copy/g) および低濃度 (2.2×10^5 copy/g) になるように添加した。1～2時間室温に放置し、陽電化フィルター (Cuno 社, USA) を用いてウイルスの濃縮を行った。回収したウイルス量は、サイバークリーン法を用いて測定した。

3 結果及び考察

3・1 福岡県で流行したノロウイルスの調査

平成11年6月から平成14年3月に福岡県で流行したノロウイルスの遺伝子型を表2に示す。ノロウイルスは、G1型および G2型の2つの遺伝子型に分類されている。検出された69株は、G1型が3株、G2型が66株であった。G2型のうち、Hawaii 型が15株と最も多く、次に Mexico 型、

Snow Mountain 型の順であった。また、G2型には分類されるが、標準株と異なる遺伝子型を持つウイルスが8株検出された。このように福岡県において多様なノロウイルスによる流行が発生しているが、インフルエンザウイルスやエンテロウイルスのように分離された時期による遺伝子型の変化は観察されなかった。

3・2 プライマーのデザインおよび評価

検出した69株のノロウイルスについて、RNA ポリメラーゼ領域270bp の塩基配列を比較した。塩基配列の5塩基ごとに69株間の塩基置換数を比較したものを図1に示す。その結果、ノロウイルスは多様性に富んでいるが、39塩基付近と224塩基付近に塩基置換数が少ない箇所がある。この領域について、我々は新たな検出用のプライマー (SRSV4625-SRSV4809) をデザインした。このプ

ライマーと現在使用している RNA ポリメラーゼ領域に設定された NV 系プライマー¹⁾(NV81, NV82, SM82)およびカプシド領域に設定されたカプシド系プライマー²⁾(COG1F-G1SKR, COG2F-G2SKR)についてノロウイルスの検出率を比較した。平成11年から12年にかけて搬入された検体より任意に50検体選び、それぞれのプライマーを用いて PCR を行った。その結果を図2に示す。50検体中26件は、いずれのプライマーを用いても検出することができなかった。3種類全てのプライマーで検出できたのは11件、カプシド系プライマーと NV 系プライマーで検出できたのは2件、カプシド系プライマーのみで検出されたのが1件、NV 系プライマーのみで検出されたのは4件であった。カプシド系プライマーと SRSV4625-SRSV4809プライマーで検出できたのは、6件であった。カプシド系プライマーで検出できた総数は20件、SRSV4625-SRSV4809プライマーおよび NV 系プライマーで検出できたのは17件であった。カプシド系プライマーが最も検出数が多かったが、これは、設定している領域がカプシド領域と RNA ポリメラーゼ領域で違うためと考えられる。RNA ポリメラーゼ領域の NV 系プライマーと SRSV4625-SRSV4809プライマーを比較すると、NV 系プライマーは、Nested PCR が必要なため検査時間が SRSV4625-SRSV4809プライマーと比較して2倍要する。このことを考慮すると、我々がデザインした SRSV4625-SRSV4809プライマーは、NV 系プライマーより優れていると考えられる。

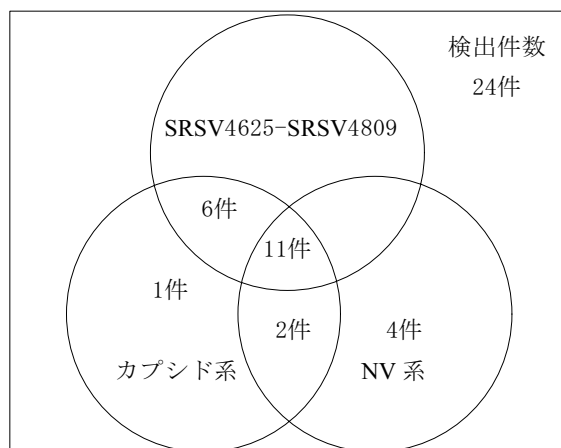


図2. 新たにデザインしたプライマーの評価

検査件数：50件、いずれかのプライマーで検出された件数：24件、
いずれのプライマーでも検出されなかった件数：26件

3・3 PCR条件の検討

検査時間を短縮するために PCR の反応時間について検討を行った。反応温度については、変更せずに反応時間のみを検討した。その結果を表3に示す。従来法の場合

合は、cDNA の希釈倍率が4倍までしか DNA を検出することができなかったが、方法1の場合は、64倍希釈まで検出することができ従来法と比較して検出効率が16倍向上した。さらに、反応時間は、従来法の約50%に短縮することができた。また、方法2および方法3においても従来法より検出効率が4倍以上向上していた。この原因は、従来法において、使用している TaqDNA ポリメラーゼが長時間の反応で不活化したため、検出効率が低下していると考えられる。このため、反応時間を最適なものに設定すると検出効率が向上したと考えられる。

表3. PCR条件の検討

	熱変性	再結合	伸長	反応時間	最大希釈率
従来法	60秒	60秒	60秒	約3時間	4倍
方法1	30秒	30秒	30秒	約1.5時間	64倍
方法2	10秒	10秒	10秒	約0.5時間	8倍
方法3	10秒	10秒	30秒	約1時間	16倍

3・4 食品からノロウイルス検出方法の確立

ノロウイルスは、食品中では増殖しないと考えられており、調理の際に手指がふれる可能性がある食品が汚染原因になる可能性が高いと考えられる。そこで、我々は、野菜サラダとおにぎりについて添加実験を行った。その結果を表4に示す。添加したウイルス数は、 2.2×10^7 copy/g および 2.2×10^5 copy/g の濃度で食品20g に添加しウイル

表4. ノロウイルスの食品への添加実験

	添加量 (copy)	回収量 (copy)	回収率 (%)
野菜サラダ	4.4×10^8	$1.9 (\pm 0.58) \times 10^8$	30~52
	4.4×10^6	$2.2 (\pm 0.42) \times 10^6$	44~56
おにぎり	4.4×10^8	$1.3 (\pm 0.42) \times 10^8$	24~36
	4.4×10^6	$1.5 (\pm 0.28) \times 10^6$	30~38
コントロール	4.4×10^8	$3.8 (\pm 0.35) \times 10^8$	80~90
	4.4×10^6	$3.9 (\pm 0.21) \times 10^6$	84~90

スの回収量を調査した。その結果を表4に示す。表より、コントロールとして食品を加えずに陽電化フィルターのみのノロウイルス回収率は、80%以上あり添加したウイルスのほとんどが回収できたと考えられる。食品に添加したほとんどの検体から30%以上のウイルスを回収することができた。また、自家製おにぎりから回収率が低かったのは、多糖類が多く含まれているため、ウイルスが多糖類に吸着し陽電化フィルターで回収ができなかったと考えられる。我々が行った食品からのノロウイルス検出方法を図3に示す。実際の食品中に付着したウイルス量は、非常に微量であると考えられたため、検出できるウ

ウイルス量を得るためには、できるだけ多量の食品からウイルスを濃縮する方法が必要である。図3に示した方法は、20g から100g 程度の食品から付着したウイルスを濃縮することができるため、非常に有用であると考えられる。

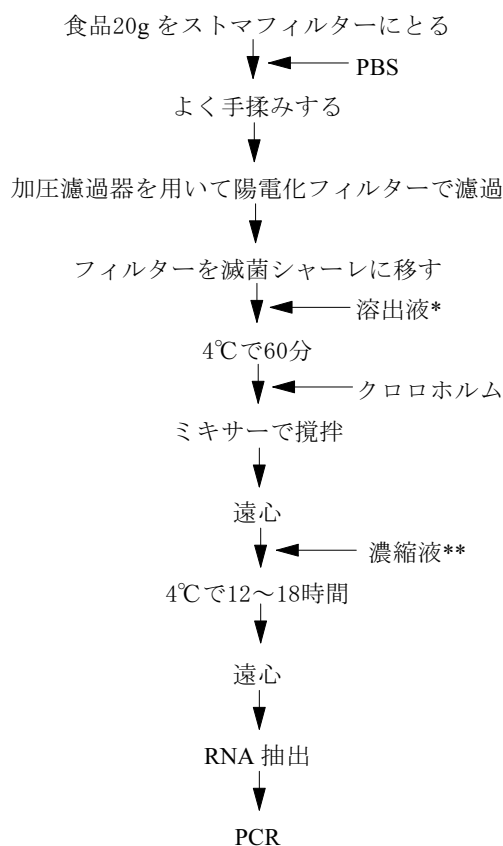


図3. 食品からのノロウイルス検出方法

*溶出液 (3%肉エキス, 1%塩化ナトリウム, 15%硝酸ナトリウム),
 **濃縮液 (16%ポリエチレングリコール, 0.8M塩化ナトリウム)

4 まとめ

平成11年から平成14年にかけて福岡県で流行したノロウイルスは、主に G2型のウイルスであり G1型は希であった。検出されたノロウイルスの塩基配列を元に本研究でデザインしたプライマー (SRSV4625, SRSV4809) は、NV 系プライマーと同程度の検出効率であったが、Nested PCR の必要がなく First PCR で判定可能であるため検査時間を短縮することができる。また、PCR 条件の検討を行った結果、反応時間を短縮した方が検出効率が向上し、検査時間も短縮できることが確認された。さらに食品からのノロウイルスの検出方法も確立することができた。以上のことから、今後のウイルス性食中毒検査において、迅速な検査が可能となり、感染源の特定が可能になると考えられる。

5 行政的意義, 貢献

行政処分が伴う食中毒検査において、迅速で高感度なノロウイルスの検査が可能となった。また、原因食品の特定も可能となり、今後の食品衛生行政に貢献できると考えられる。

謝辞

この研究にご指導, ご協力を賜った当所病理細菌課の堀川和美専門研究員, 村上光一専門研究員に感謝致します。

文献

- 1) Ando, T., S. S. Monroe, J. R. Gentesch, Q. Jin, D. C. Lewis, and R. I. Glass. 1995. Detection and differentiation of antigenically distinct small round-structured viruses by reverse transcription-PCR and southern hybridization. J. Clin. Microbiol. 33:64-71.
- 2) Kojima, S., T. Kageyama, S. Fukushi, F. B. Hoshino, M. Shinohara, K. Uchida, K. Natori, N. Takeda, and K. Katayama. 2002. Genogroup-specific PCR primers for detection of Norwalk-like viruses. J. Virol. Methods 100:107-114.

エイズ予防対策としての福岡県におけるHIV-1分離株の解析

研究期間（平成13年度～15年度）

千々和勝己^{*1}，江藤良樹^{*1}，林純^{*2}，柏木征三郎^{*3}

要 旨

HIV-1感染者の血液からウイルス RNA を抽出し、RT-PCR 法で増幅した後、逆転写酵素・プロテアーゼ領域の遺伝子の塩基配列を決定した。その結果から、薬剤耐性変異の有無を検討し、またサブタイプを決定した。過去に採取し保存していたものも含めた、治療開始前と思われる検体について、逆転写酵素領域の薬剤耐性変異を調べたが、23件全てに耐性変異が見られなかった。しかし、プロテアーゼ領域の薬剤耐性変異は9件中6件に見られた。治療中の4名の感染者については、逆転写酵素とプロテアーゼ遺伝子上の薬剤耐性変異の経時的変化を観察することができた。また、これまでに通算60名の日本人感染者についてサブタイプを決定することができ、依然サブタイプ B が56名と大半を占めるが、サブタイプ E が3名、サブタイプ C も1名見られ、B 以外のサブタイプの増加が見られた。これらのことから、薬剤耐性株や、現在はまだ少数である B 以外のサブタイプの株が、今後流行する可能性があり、監視を強める必要がある。

[キーワード：HIV，AIDS，薬剤耐性，サブタイプ]

1 はじめに

HIV 感染者には抗ウイルス剤の投与が一般的となり、発症予防という点ではかなりの効果をあげている。しかし、使用する薬剤も多種となってきたことに伴い、多様な薬剤耐性株の出現が確認され、治療上大きな問題となっている。そこで、県内での薬剤耐性株の流行の実態を把握することと、各感染者については、治療上有益な情報を提供することを目的として本研究を行った。また、HIV-1の場合はサブタイプ（亜型）により感染経路等に特徴があることが多い。そこで、県内のウイルスのサブタイプを決定し、分子疫学的な情報を得て、予防対策立案の参考とすることも目的とした。

2 研究方法

2・1 対象

対象は、九州大学医学部附属病院を受診した HIV-1感染者で、血液から末梢血リンパ球と血漿を分離し、血漿を検体とした。未治療と考えられる感染者の検体は、1991年から2002年までに47名から、また、治療中の感染

者の検体は2002年7～12月に16名から採取した。なお、経時的な変化を解析した感染者については、過去に採取し、凍結保存していた検体も用いた。また、以前に行ったサブタイプの解析には、国立病院九州医療センターにおいて採取された検体も含まれる。

2・2 薬剤耐性変異の解析

血清からの HIV RNA の抽出は、QIAamp Viral RNA Mini Kit (QIAGEN 社)を用いて行った。抽出した RNA について AMV one step RNA PCR kit (宝酒造)で RT-PCR を行い、さらに PyroBest DNA Polymerase (宝酒造)を用いて nested PCR を行った。逆転写酵素(RT)領域の PCR に用いたプライマーは、平成11年度の国立感染症研究所における HIV 検査法技術講習会で示された、DRRT16・DRRT17(1st)，及び DRRT7・DRRT10(2nd)，または森らの方法¹⁾に示されたプライマーであった。また、プロテアーゼ(Pro)領域の PCR には同じく研修会で紹介された、DRPR01・DRPR02(1st)，及び DRPR03・DRPR04(2nd)，または森らの方法¹⁾に示されたものを用いた。得られた PCR 産物を精製し、dye terminator 法で塩基配

*1 福岡県保健環境研究所 (〒818-0135 福岡県太宰府市大字向佐野39)

*2 九州大学医学部 (〒812-8582 福岡市東区馬出3-1-1)

*3 元九州大学医学部，元国立病院九州医療センター，
現福岡県赤十字血液センター (〒818-8588 福岡県筑紫野市上古賀1丁目2番1号)

表1 未治療感染者における薬剤耐性変異

解析領域	採取時期	件数	解析可能例数	1次変異	2次変異
逆転写酵素	1991-2002	47	23	0	0
プロテアーゼ	1996-2002	20	9	2(1)	5(1)

()は、1次変異、2次変異の両方を持つもの

列を決定し、それを基に各領域のアミノ酸配列を明らかにし、薬剤耐性に関与する変異の有無を検討した。

血中 HIV-1 RNA の定量は、アンプリコア HIV-1 モニター v1.5 (ロシュ社) を用いて行った。

2・3 分子系統樹解析によるHIV-1のサブタイプの決定

薬剤耐性変異を解析するために塩基配列を決定した pol 遺伝子上の約580塩基に相当する各サブタイプのシーケンスを NCBI (National Center for Biotechnology Information) から収集し、遺伝子解析ソフトの Laser Gene (DNA STAR 社製) を用いて分子系統樹を作成し、それに、検体のシーケンスを加え、どのクラスターに入るかにより、サブタイプを決定した。

3 結果及び考察

3・1 薬剤耐性変異の解析

県内で実際に薬剤耐性株が感染を引き起こしている可能性を検討するため、過去に採取した未治療であると考えられる感染者の血中ウイルスについて解析を試みた (表1)。まず、RT 阻害剤に対する薬剤耐性を調べるために、RT 領域を RT-PCR 法で増幅を行ったが、47名の血清のうち、23件について増幅することができ、塩基配列を決定することができた。それを基に明らかにしたアミノ酸配列のうち、逆転写酵素阻害剤に対する耐性に関与する29カ所のアミノ酸について、変異の有無を検討した。その結果、23名の感染ウイルスには全く耐性変異を認めなかった。一方、Pro 領域については、Pro 阻害剤

が使用され始めた1996年以降に採取された、初診と思われる感染者20名を対象に検討を行った。そのうち、9件について Pro 領域を増幅することができ、塩基配列から耐性変異に関わる20カ所のアミノ酸を決定した。その結果、6件について耐性変異が見られ、そのうちの2件には耐性を単独で誘導する1次変異 (M46L, または G48V) が認められた。プロテアーゼ阻害剤に対する耐性変異は、遺伝子多型として、薬剤投与と関係なく出現しやすいことが知られているが、今回変異が見られた株が、実際に治療中の人から感染したかどうかは確認できなかった。

次に、治療中の感染者16名について血中ウイルスの解析を試みたところ、PCR 法で RT・Pro 領域を増幅できたのは、僅かに6名だけであった。その理由を探るため、16名の血中 HIV-1 RNA 量の定量を行った。その結果、PCR 法で増幅できなかった感染者の血中 RNA 量は、いずれも検出感度以下であった。従って、解析できなかったのは、PCR におけるプライマーが不適当であったためではなく、治療効果により血中 RNA が減少していたためと考えられる。

解析が可能であった6名のうち、耐性変異が見られなかったのは1名だけであり、あとの5名には複数の耐性変異が見られ、さらにそのうちの3名には1次変異が見られた (表2)。なお、薬剤の種類別に見ると、非ヌクレオシド系 RT 阻害剤に対しては、耐性変異は見られなかった。さらに個別の薬剤に対する、耐性変異の数を表3に示す。

表2 治療中のHIV感染者における薬剤耐性変異

番号	ヌクレオシド系RT阻害剤	非ヌクレオシド系RT阻害剤	Pro阻害剤
FA15	D67N, K70R	—	解析不能
FA31	M41L, A62V, V75T , V118I L210W, T215F	—	L10I, M36I, M46I , L63P, A71V, V77I, L90M
FA32	—	—	L63P, V77I
FA47	—	—	M36I, V77I
FA48	—	—	—
FA51	解析不能	—	D30N , L63P, A71T, V77I

太字は1次変異

表3. 各薬剤に対する耐性変異の数

No. (FA)	AZT	3TC	ddC	ddI	d4T	Aba	multi	Nev	Efa	Del	Ind	Rit	Saq	Nel	Anp
15	<u>2</u>					1									
31	<u>3</u>	1	1		<u>1</u>	3	2				<u>5</u>	5	4	6	3
32											1	1	1	2	
47												1		2	
48															
51											2	2	2	<u>4</u>	

塗りつぶしは、1 次変異を含む。

FA31は、すでに多くの薬剤に対して耐性を獲得していることが明らかになった。さらに、この6名中、過去に検体を採取し、冷凍保存していた3名について、経時的な耐性変異の変化を観察した（表4）。FA15については8年間の変化を見たが、ヌクレオシド系 RT 阻害剤と Pro 阻害剤に対する耐性変異の増加が観察された。FA31では、97年にはヌクレオシド系 RT 阻害剤に全く耐性変異が見られなかったが、5年後には多数の変異が確認された。さらに、No. 32では、ヌクレオシド系 RT 阻害剤に対する耐性変異が短期間に変化していることが明らかになった。なお、非ヌクレオシド系 RT 阻害剤に対する、耐性変異はいずれの時期にも見られなかった。

表4. 薬剤耐性変異の経時的变化

No.	採血時期	RT阻害剤	Pro阻害剤
FA15	1994年1月	—	解析不能
	1997年1月	—	L63P, V77I
	2000年8月	D67N, K70R	L10V, M46I, L63P V77I, N88S
FA31	2002年11月	D67N, K70R	解析不能
	1997年3月	—	L10I, M36I, G48V, L63P, L90M
	2002年7月	M41L, A62V, V75T, V118I, L210W, T215F	L10I, M36I, M46I, L63P, A71V, V77I, L90M
FA32	1996年11月	—	L63P, V77I
	1997年2月	—	L63P, V77I
	1997年6月	V75I	L63P
	1997年12月	M184V	L63P, V77I
	1998年3月	D67N, L210W	L63P, V77I
	2002年12月	—	L63P, V77I

3・2 分子系統樹解析によるHIV-1のサブタイプの決定

これまで、HIV-1サブタイプの決定は、env や gag 遺伝子の塩基配列を基に行ってきた。しかし、薬剤耐性変異について解析する際は、RT や Pro をコードしている

pol 遺伝子上の塩基配列を決定する。そこで、pol 遺伝子の約 580塩基について分子系統樹解析を行うことにより、耐性変異の解析と同時にサブタイプを決定できるかを検討した。NCBI から、サブタイプ A～F の pol 遺伝子の相当する部分の塩基配列を収集し、分子系統樹を作成した。その結果、各サブタイプごとにクラスターを作ることが確認できた。そこで、すでにサブタイプがわかっているウイルス16株のシークエンスを加えて解析したところ、いずれも env や gag 遺伝子で決めた場合と同じ結果であった。そこで、サブタイプが未知の8株のシークエンスを加えて解析を行ったところ、7株はサブタイプ B で、1株のみがサブタイプ C であった。この結果を、以前の研究で行った県内の日本人のサブタイプの解析結果とあわせ、初診時期で分けると表5のとおりである。

表5 福岡県におけるサブタイプの分布

初診時期	サブタイプB	サブタイプE	サブタイプC
1990-1994年	22	0	0
1995-1998年	14	1	0
1999-2002年	20	2	1
合計	56	3	1

1990年から1994年では、22名全てがサブタイプ B であった。この時期は、感染経路で見ると血液製剤と男性同性間性的接触によるものが約半数ずつであった。1995年から1998年について見ると、サブタイプ B が14名、サブタイプ E が1名であった。この時期は、異性間性的接触による感染者が福岡県でも見られ始めた時期で、サブタイプ E の例も異性間性的接触による感染例であった。さらに、1999年から2002年についてみると、サブタイプ B が20名、サブタイプ E が2名、サブタイプ C が1名であった。サブタイプ E と C の3名は異性間性的接触による感染例であった。

現在、国内のサブタイプの分布状況は、男性同性間性的接触による感染者はサブタイプ B が大半を占め、異性間性的接触による感染者ではサブタイプ B に代わり、関東を中心にサブタイプ E が主流になってきている²⁾。本県の場合、サブタイプ E の増加は関東地区のように顕著ではないように思われる。また、サブタイプ C のように国内ではかなり少ないサブタイプが、本県の日本人に見られたことは、今後の動向に注意する必要がある。

4 まとめ

この研究では、福岡県内における HIV-1 感染の実態を、ウイルスの性状の面から明らかにした。実際に Pro 阻害剤の投与で生じたものが感染を引き起こしたのかは確認できなかったが、治療前の感染者から薬剤耐性変異が検出されたことから、今後もこのような監視が必要であると考えられる。

治療中の感染者については、薬剤耐性変異の出現パターンが多様性に富み、また治療の進行に伴い耐性変異に変化が見られることが確認された。従って、適正な薬剤の選択を行い、効率的な治療を進めるためには、定期的な薬剤耐性変異のモニターを行うことが重要である。

また、本県の感染者におけるサブタイプの分布は、未だサブタイプ B が主流であり、関東地区のようなサブタイプ E の急増は見られなかった。しかしながら、国内では少ないサブタイプ C が見られたことから、今後の動向に注意する必要がある。

5 行政的意義、貢献

福岡県内の HIV-1 感染状況については、患者・感染症の数は報告されているが、さらに詳しいウイルス学的な情報については、当研究所の研究以外には実施されていない。この研究で得られた結果は、本県のエイズ予防対策立案に有益な資料となり、さらに厚生労働科学研究の報告として、厚生労働省にも提供され、国のエイズ予防対策にも、資料として提供されている。

文献

- 1) 森治代, 小島洋子, 川畑拓也, 大竹徹, 大石功「薬剤耐性 HIV-1 の検出および検出法の評価」感染症学雑誌, 74 : 450-457 (2000)
- 2) 近藤真規子, 嶋貴子, 今井光信, 伊藤章, 川田かおる, 相楽裕子, 岩本愛吉, 野口有三, 宇宿秀三「HIV サブタイプと HIV 検査体制の確立に関する研究①日本における HIV-1 サブタイプの解析」厚生労働科学研究費補助金エイズ対策研究事業「HIV の検査法と検査体制を確立するための研究」総合研究報告書 (平成12-14年度) 292-298 (2003)

インフルエンザウイルスの流行株の解析

研究期間（平成13年度～15年度）

梶原淳睦*, 世良暢之*, 江藤良樹*, 千々和勝己*

要 旨

福岡県におけるインフルエンザウイルス流行株の薬剤耐性や抗原変異についてウイルス遺伝子の解析を行った。その結果、平成13～15年度には本県ではアマンタジン耐性株は流行していないものと考えられた。また、流行株の抗原性の経年変異を調べた結果、B型はワクチン株である B/山東/ 7/97株類似で、抗原性の変異も少なかった。一方、A/H3N2型はワクチン株の A/パナマ/2007/99株に比べ平成14年度の流行株で13、平成15年度の流行株で17アミノ酸が変異しており、抗原性の変異と遺伝子変異の関連を明らかにすることができた。インフルエンザウイルスは毎年遺伝子変異を起こし流行を繰り返しており、今後も変異株に対する監視は続けていく必要がある。また、ウイルス検出に遺伝子解析の手法を導入することにより検出感度の向上や迅速な診断、新型インフルエンザの検出にも応用が期待できた。

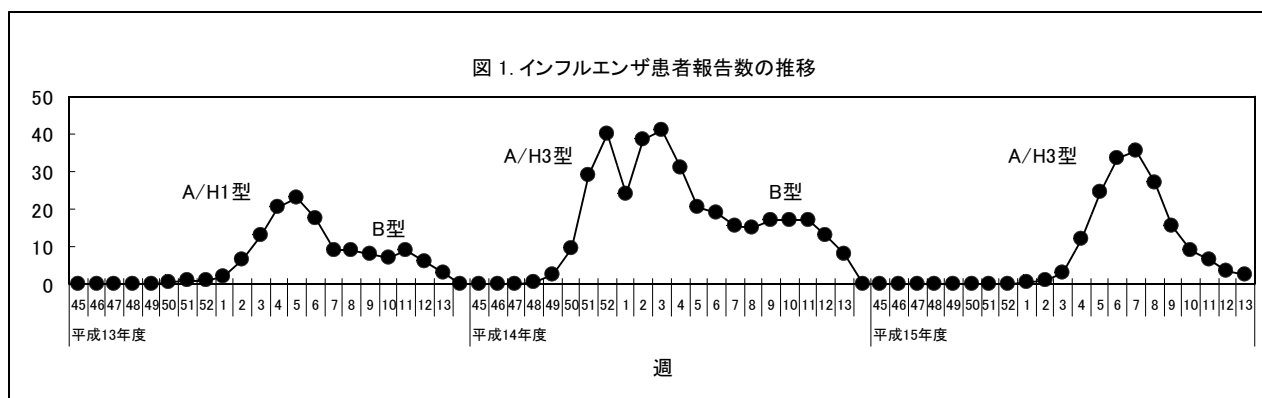
[キーワード： インフルエンザウイルス、遺伝子解析、薬剤耐性、抗原変異]

1 はじめに

インフルエンザウイルスは遺伝子変異が頻繁に起こり、抗原性が変異するため毎年のように流行を繰り返している。また、インフルエンザ治療薬に対する薬剤耐性ウイルスが出現し、インフルエンザ治療を困難にする可能性がある。そこで、これら抗原変異や薬剤耐性ウイルス等の変異株の出現や福岡県における流行状況に対する監視体制の整備及び変異株の解析を行い、変異株に対し迅速に対応するための情報提供を行うことを目的として本研究を開始した。

福岡県における平成13～15年度のインフルエンザの流

行状況を図1に示した。感染症発生動向調査事業で報告されたインフルエンザ患者の各週の報告数を折れ線グラフで、分離されたインフルエンザウイルスを図中に示した。例年インフルエンザは12月中旬に患者報告が始まり、2月初旬に A 型インフルエンザによる患者報告のピークを迎え、その後 B 型による患者が続くパターンを示している。この間のインフルエンザの流行期に分離されたインフルエンザウイルスの遺伝子を解析し、抗原性や薬剤耐性の変異の有無を検証し、変異株については変異の程度や他の変異株と相互比較を行い、変異株の性質や起源を解析した。



* 福岡県保健環境研究所

(〒818-0135 福岡県太宰府市大字向佐野39)

2 研究方法

感染症発生動向調査事業及び集団発生事例より採取されたインフルエンザ患者の咽頭ぬぐい液等から、発育鶏卵及びMDCK細胞を用いてインフルエンザウイルス152株（A/H1N1型23株、A/H3N2型111株、B型18株）を分離した。ウイルスの培養上清より市販キットを用いてウイルスRNAを抽出し、RT-PCR法によってインフルエンザウイルスの遺伝子を増幅し、抗原性や薬剤耐性の変異の有無を解析した。

2・1 薬剤耐性

平成13～15年度に分離されたA型インフルエンザウイルス46株（A/H1N1型23株、A/H3N2型23株）について解析した。平成13年度はA型インフルエンザウイルスの分離株の全て、平成14、15年度はA型分離株の内から10株ずつを抽出し遺伝子解析を行った。抗インフルエンザ薬のアマンタジンの標的蛋白質であるM2蛋白質の活性部位をコードする遺伝子領域をPCR法により増幅し、増幅産物を制限酵素（Hha I, Sca I）を用いて切断し、切断部位が消失している場合にはアマンタジン耐性を獲得している。そのため制限酵素の切断断片のパターン解析（RFLP）により薬剤耐性変異の有無を検討した（図2）¹⁾。

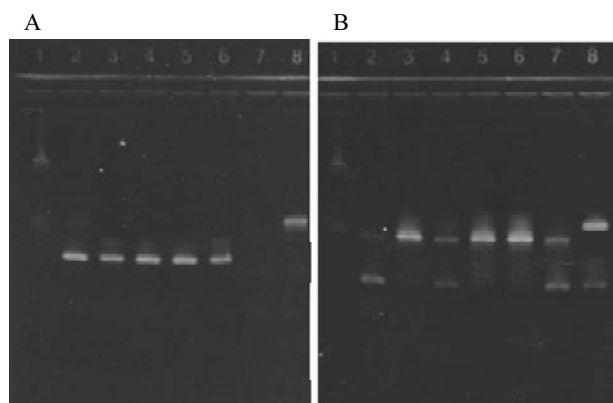


図2 RFLPによるアマンタジン耐性の解析

(A) Hha I, (B) Sca I

1: マーカ、2～7: 流行株、8: 未消化コントロール

2・2 抗原性変異

インフルエンザウイルスの抗原性を決定しているヘマグルチニン（H）蛋白質の変異を遺伝子解析の手法により解析した。平成14、15年に分離したインフルエンザウイルスA/H3N2型72株、B型14株のH蛋白質の遺伝子領域をPCR法により増幅し²⁾、増幅産物の塩基配列を決定した。その結果とワクチン株等の過去の分離株の塩基配列とを比較することにより、流行株の遺伝子変異を解析した。また、塩基配列の解析結果からアミノ酸の配列を予測し、H分子上の抗原決定部位（エピトープ）部

位のアミノ酸変異を解析した³⁾。

3 結果及び考察

3・1 薬剤耐性

平成13～15年の福岡県でのA型インフルエンザウイルスの流行株46株を解析した結果、アマンタジンに対する薬剤耐性変異を起こしている株は検出されなかった。従って、福岡県ではアマンタジン耐性株の流行は一般的にはないと考えられた。アマンタジンは平成12年に初めてA型インフルエンザ治療薬として認可され、使用されている。すでにアマンタジンを日常的に使用している病院内等で薬剤耐性株が検出されている⁴⁾ため、一般でのアマンタジン耐性株の流行状況を監視したが、これまでのところ本県下ではアマンタジン耐性株の流行はないと考えられた。しかし、薬剤の使用が多くなれば薬剤耐性株が出現する危険性が高まるため、今後も定期的な監視の必要があるし、薬剤の使用に対する啓発に努める必要がある⁵⁾。インフルエンザ治療薬としてこの他にタフミル等のノイラミニダーゼ阻害剤も使用されており、これらに対する耐性株にも今後注意する必要がある。

3・2 抗原性変異

平成14、15年度に分離されたA/H3N2型とB型のインフルエンザウイルス85株（A/H3N2型72株、B型13株）についてH遺伝子の解析を行った。その結果、B型はワクチン株であるB/山東/7/97類似であり（図3）、抗原性に関与するアミノ酸の変異も少なかった（表1）。B型は山形系統とビクトリア系統に分けられるが、平成12年

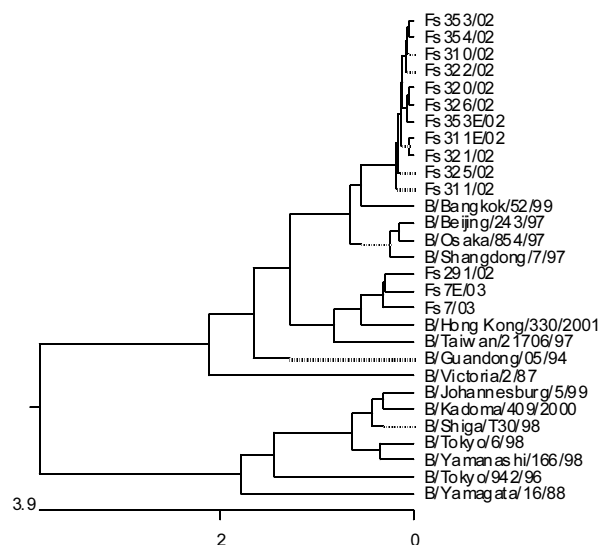


図3 B型インフルエンザウイルス流行株のH遺伝子領域の分子系統樹

表 1 B型インフルエンザウイルス流行株のアミノ酸変

AA No.	AA変異	NA変異
25	Tyr → Asn	TAT → AAT
48	Lys → Glu	AAA → GAA
121	Ile → Thr	ATT → ACT
199	Asn → Thr	AAC → ACC

度に流行の主流がビクトリア系統に移り⁶⁾、平成15年度まで同系統の流行株が主流を占めていることが明らかになった。従って、B型インフルエンザは今後大きな抗原変異が起こるまで流行規模は大きくならないものと推測される。

一方、A/H3N2型ではH遺伝子領域の分子系統樹解析の結果(図4)、分離年度ごとに遺伝子変異が蓄積し、年度ごとに分枝を生じていた。アミノ酸変異はワクチン株のA/パナマ/2007/99に対し、平成14年度の流行株で13アミノ酸が、平成15年度の流行株では17アミノ酸が変異していた⁷⁾(図5)。エポトープ部位のアミノ酸変異を見ると平成14年度分離株では5部位中4部位が、平成15年度分離株では5部位全てでアミノ酸が変異が生じていた。標準抗血清の赤血球凝集阻止(HI)抗体価の比較でも

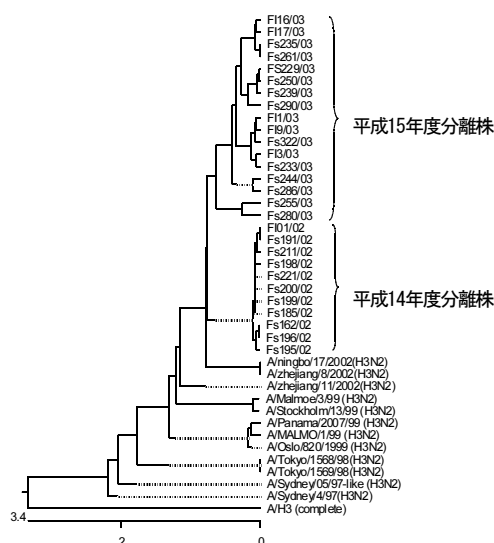


図 4 A/H3N2型インフルエンザウイルス流行株のH遺伝子領域の分子系統樹

平成14年度分離株では2倍以下の変異であったが、平成15年度分離株では4倍程度に変異が拡大していた。A/H3N2型のワクチン株はこれまで2~3年で変異が蓄積し変更されている⁶⁾。現在のワクチン株、A/パナマ/2007/99株(平成12年度採用)も流行株が変異していることから新たなワクチン株の検討が必要である。

また、A/H3N2型流行株の一部は鶏やモルモットの赤血球に対する凝集活性が弱く、通常インフルエンザウイルスの検出や同定に用いられる赤血球凝集(HA)試験やHI試験でウイルスの検出や同定を行うことが困難であった。今回、RT-PCR法を用いることにより、このような流行株も容易に検出及び同定することができた。従って、これまでインフルエンザウイルスの検出ではHA試験でスクリーニングしていたが、RT-PCR法による検出も追加した。

No.	年度	AA No.	AA変異	NA変異	エポトープ
1	03	25	Leu → Ile	CTA → ATA	
2	02	50	Arg → Gly	AGA → GGA	C
3	03	75	His → Gln	CAT → CAG	E
4	02	83	Glu → Lys	GAA → AAA	E
5	02	131	Ala → Thr	GCT → ACT	A
6	03	155	His → Thr	CAC → ACC	B
7	03	156	Gln → His	CAA → CAC	B
8	04	159	Tyr → Phe	TAC → TTC	B
9	02	183	Leu → His	ATA → CAC	
10	02	186	Ser → Gly	AGT → GGT	B
11	04	189	Ser → Asn	AGT → AAT	B
12	02	202	Val → Ile	GTC → ATC	
13	02	222	Trp → Arg	TGG → AGG	
14	02	225	Gly → Asp	GGT → GAT	
15	04	227	Ser → Pro	TCC → CCC	D
16	04	308	Tyr → Asn	TAT → AAT	C
17	04	328	Thr → Ser	ACT → TCT	

図 5 A/H3N2型インフルエンザウイルス流行株のアミノ酸変異

さらに、今回実施したRT-PCR法は、近年問題化している新型インフルエンザの検出に対してもプライマーを変更することにより応用可能であり、今後流行が発生した際にも迅速な対応が期待できる。

4 まとめ

インフルエンザウイルスの遺伝子変異について治療薬に対する薬剤耐性株と抗原変異株の出現を監視することを目的とした。その結果、平成13~15年度にはアマンタジン耐性株の流行は一般的ではないと考えられた。また、流行株の抗原性の経年変異を調べた結果、B型はワクチン株であるB/山東/7/97株類似で、抗原性の変異も少なかった。一方、A/H3N2型はワクチン株のA/パナマ/2007/99株に比べ平成14年度の流行株で13、平成15年度の流行株で17アミノ酸が変異しており、抗原性の変異と遺伝子変異の関連を明らかにすることができた。インフルエンザウイルスは毎年変異を起こし流行しており、今後も変異株に対する監視は続けていく必要がある。また、ウイルス検出に遺伝子解析の手法を導入することにより検出感度の向上や迅速な診断、新型インフルエンザの検出にも応用が期待できた。

5 行政的意義，貢献

インフルエンザウイルス流行株の遺伝子変異に対する情報を得ることにより，流行予測や予防対策の基礎的資料を得ることができた．すなわち，薬剤耐性株の流行情報は医療現場で薬剤選択の参考資料として，流行株の抗原性の変異の解析は流行規模の予測やワクチン株選択といった予防対策に寄与することができる．また，日常のインフルエンザ検査業務に応用し，検査の迅速・高感度化に寄与した．さらに，新型インフルエンザの検査にも応用が期待できた．

文献

- 1) Saito R. et al. : J. Clin. Microbiology, 40(1), 84-88, 2002.
- 2) 感染症診断マニュアル，インフルエンザ：国立感染症研究所 地方衛生研究所全国協議会，2003.
- 3) Webster R. G. et al. : Nature, 296, 115-121, 1982.
- 4) Iwahashi J. et al. : J. Clin. Microbiology, 39(4), 1652-1653, 2001.
- 5) 辻克郎他：ウイルス，51(2)，135-141，2001.
- 6) 平成13年度感染症流行予測調査報告書：厚生労働省健康局結核感染症課 国立感染症研究所感染症情報センター，2001
- 7) Hardy I. et al. : Virus Res. , 77(1), 89-96, 2001.

油症及びダイオキシンに関する研究

研究期間（平成13年度～15年度）

飯田隆雄^{*1}，戸高尊^{*2}，平川博仙^{*1}，堀就英^{*1}，中川礼子^{*1}，芦塚由紀^{*1}，飛石和大^{*1}
松枝隆彦^{*1}，片岡恭一郎^{*1}，古江増隆^{*3}，渡邊昌^{*4}，山田健人^{*5}，岸玲子^{*6}，岩本晋^{*7}

要 旨

我々は、血液5g からダイオキシン類濃度を正確に測定できる分析法を開発した。この方法は4つの大きなステップから成る。すなわち、①ヒト血液の凍結乾燥、②高速溶媒抽出器（ASE）によるヒト血液からの脂質の抽出、③従来法の1/4スケールのクリーンアップ操作、④溶媒除去大量試料注入装置（SCLV）を装備した高分解能 HRGC/HRMS による精密定量法から構成されている。前処理方法の改善によって、前処理時間及び溶媒使用量を大幅に減らすことができた。SCLV 注入システムによる GC-MS の感度は通常の方法より10倍程度向上した。同一の血液試料を用いて今回開発した方法（試料量5g）と従来法（試料量30g）の両分析法で測定したダイオキシン類濃度の測定結果はほぼ一致しており、血液5g でダイオキシン類の測定が可能であることを確認した。この方法を用いて、油症患者血中ダイオキシン類全国調査（平成13年度371件、14年度343件）、国内調査（母体血：100件、ヒト臓器80件）及び国外調査（ベトナム血液・母乳：120件、中国母乳調査：60件）を行った。

[キーワード： カネミ油症，ダイオキシン類，血液，環境ホルモン，人体臓器・組織]

1 はじめに

油症は1968年に起こったダイオキシン類による日本で唯一の食中毒事件である。事件発生当時、約14,000人が被害を届け出た。一方、1984年までに1860人が油症患者として認定され、そのうち1,500人程度が生存されており福岡県をはじめ関東以西の各都府県に居住している。治療と追跡調査のため全国で油症一斉健康診断が毎年行われ、400人近くの患者が受診している。油症の治療及び研究には患者体内に残留する油症の主要な原因毒物である PCDF をはじめとするダイオキシン類を正確に把握し追跡調査することが重要である。既に血中ダイオキシン類濃度が体内残留量を反映することは明らかにされている。また、油症診断基準に患者血中 PCDFs 濃度を取り入れて見直すという国の方針に対応するためヒト血中に極微量存在するダイオキシン類の迅速・精密分析法の

開発と実施体制の構築が必要となった。これまで、その正確な測定にはかなり多量の血液試料（50-100ml）が必要であった。事件以来35年を経過しほとんどの患者は高齢化しており、このような多量の血液を採取することは患者にとって大きな負担である。われわれはほとんどの患者から採血可能な5-10ml の血液からダイオキシン類を正確に測定するため、抽出、クリーンアップ、高感度測定の一連の分析システムを構築した。この分析方法を使用して、平成13年度は福岡県の油症患者78名について血中ダイオキシン類を追跡調査した。更に、全国の油症患者血中ダイオキシン類追跡調査に対応するため分析方法の改良と分析体制の一層の整備を行い、平成14年度371名、平成15年度343名の油症検診受診者（希望者全員）について血中ダイオキシン類調査を実施した。これらのデータは油症診断基準の基礎データとして活用されると

-
- | | |
|------------------------|--------------------------------|
| *1 福岡県保健環境研究所 | (〒818-0135 福岡県太宰府市大字向佐野39) |
| *2 (社) 食品衛生協会リサーチレジデント | (〒150-0001 東京都渋谷区神宮前2丁目6-1) |
| *3 九州大学医学部 | (〒812-8582 福岡市東区馬出3丁目1-1) |
| *4 東京農業大学農学部公衆栄養学科 | (〒156-8502 東京都世田谷区桜岡丁目1-1) |
| *5 慶應義塾大学大学医学部 | (〒160-8582 東京都新宿区信濃町35番地) |
| *6 北海道大学医学部 | (〒060-8638 札幌市北区15条西7丁目) |
| *7 徳山大学福祉情報学部 | (〒745-8566 山口県周南市久米栗ヶ迫843-4-2) |

同時に油症データベースを構築し、ダイオキシン類濃度と油症症状との関連を検討し、ダイオキシン類の人体影響解明に活用される。更に、アジア諸国ではベトナム、ラオス、韓国等でのベトナム戦争関係のダイオキシン類被害者、台湾の Yucheng（台湾油症）患者、最近の著しい工業化に伴って危惧される中国におけるダイオキシン類環境汚染等のダイオキシン類曝露によるヒト健康影響調査研究に対して技術支援が期待されている。

2 研究方法

2・1 超高感度迅速分析法の確立と分析体制の構築^{1,2)}

油症患者の血中ダイオキシン類濃度全国追跡調査と血中 PCDF 濃度等を含めた油症診断基準の再検討に対応するため、迅速で再現性の良い分析法を開発することが必要となった。また、本研究の対象の油症患者はほとんどが高齢である。そのため、患者の負担を軽減するため、少量の血液試料から正確な測定が出来る超高感度分析法確立と分析体制を構築にすることが必須である。そこで、分析法として、①ヒト血液の真空凍結乾燥、②高速溶媒抽出器（ASE）によるヒト血液からの脂質の抽出、③従来法の1/4スケールのクリーンアップ操作、④溶媒除去大量試料注入装置（SCLV）を装備した高分解能ガスクロマトグラフ/高分解能質量分析装置（HRGC/HRMS）による精密定量、の4段階で構成された分析系を検討した。一方、試料の少量化に伴って、分析操作中に混入してくる妨害物質が相対的に大きなブランク値を与え、定量限界値が高くなる。このブランク値を最小限に抑えるため実験環境整備を以下のように行った。

①血液分析実験室専用化、②実験台の上部にクリーンカステンを設置し、上部から常時クリーンエアを吹き込む、③器具保管庫の上部から常時クリーンエアを吹き込む、④試薬等の保管をクリーンベンチ中で行う、⑤ダイオキシンフリーオープンでガラス器具を450℃の高温で加熱して使用する。

クロスコンタミネーションを防止するため器具、機器を専用化した（凍結乾燥機、ASE 抽出機、溶媒濃縮装置、SCLV-GC/MS）。

また、使用する溶媒、試薬等は可能な限り高純度の製品を使用し、精製できるものは精製して用いた。また、試薬の保管・管理を徹底することにより、ブランク値低減化に努めた。

2・2 試料保存中のダイオキシン類濃度減少に関する検討

硬質プラスチック容器に4年間保存されていた血液46試料を再分析して4年前の分析値と比較した。ボランティア6名の血液を採血バッグで冷蔵保存し、採血当日、3週間後及び6週間後に血液を採取してダイオキシン類を

分析した。

2・3 精度管理・クロスチェック

①外部精度管理として血液5件について外部2機関とクロスチェックを行った。②厚生労働科学研究班のクロスチェックに参加した。③内部精度管理として分析22件につきコントロール血清1件の分析と操作ブランク試験1件を行った。

3 結果及び考察

3・1 超高感度迅速分析法の確立と分析体制の構築

3・1・1 GC/MSの高感度化

2,3,7,8-TCDD の血中濃度を1pg/g lipid（検出限界値）、血中脂質濃度を0.3%とすると5g 血液中には TCDD が0.015pg（15fg）存在する。血液からの TCDD の抽出・精製における回収率を50%、最終検液の2/3量を GC/MSへ注入するとき、機器への TCDD の注入量の絶対値は0.005pg（5fg）となる。この TCDD 量を S/N=10で定量するためには、少なくとも10fg で S/N=20が必要となる。血液から抽出精製された最終検液の大部分を GC/MS に注入できる装置はいくつか市販されているが、我々はSGE社のSCLV injection systemを用いた。この装置は最終検液の1/2から2/3を注入することができる。SCLV注入装置はプレカラムと分析カラムからなり、プレカラムで溶媒及びマトリックス成分の大部分を目的成分から分離して GC/MS の系外に排出し、目的成分を冷却された分析カラムの先端にトラップし、その後、昇温することにより分析カラムに導入する。そのため、分析カラムとMSへの負荷が非常に小さくなる。分析カラムは内径0.15mm、長さ30mというカラム内径が小さく、膜厚が薄く、比較的短いカラムを使用することができるので、極めてシャープなピークと良好な分離及び低いノイズレベルを実現できる。その結果、10fg で S/N=20から30の測定が可能である。SCLV 注入装置の使用によって血液5g中のダイオキシン類を検出できる感度が得られるようになった。

3・1・2 ASE抽出条件及び真空凍結乾燥条件の検討

① ASE 抽出溶媒の検討：ASE 抽出の溶媒をアセトン・ヘキサン(2:1)、アセトン・ヘキサン(1:4)及びヘキサンのみとして同じ血液からダイオキシン類を抽出した。血中ダイオキシン類内標準物質の添加回収率は、いずれの溶媒を用いた場合も30-150%の範囲内にあった。また、実測値も従来法と比べて大きく変わらなかったが、ヘキサンのみの場合、脂質の抽出率が低くなり、他方、アセトン：ヘキサン(2:1)抽出では OCDD が従来法の2倍となった。平均して従来法の値に近い実測値を示したアセトン：ヘキサン(1:4)を ASE 抽出溶媒として採用した。

② ASE 抽出法と従来法のバリデーション：一般人ボラ

ンティア6名の血液からダイオキシン類を、ASE 抽出法と従来法（溶媒攪拌抽出法）の2つの方法で抽出した結果を比較した。HpCDD および OCDD は平均値で ASE 抽出法が溶媒攪拌抽出法の2.19及び2.14倍であり、ASE 抽出の方が従来法の約2倍高い値を示すことが明らかになった。HpCDD および OCDD 以外は ASE 抽出法の方が従来法よりもわずかに高値を示し、また、血中脂質の抽出量も同様であった。以上の結果から ASE 抽出法は抽出効率が高いのではないかと考えられた。

③血液試料の真空凍結乾燥がダイオキシン分析値に与える影響の検討：内標準物質を凍結乾燥前と凍結乾燥後に添加した時の内標準物質の回収率および実測値比較した。凍結乾燥後に内標準物質を添加する方が凍結乾燥前に内標準物質を添加するよりも若干高い回収率を示した。一方、両者の実測値は同程度であった。以上の結果から、凍結乾燥中の内標準物質の揮散を防ぐため凍結乾燥後に内標準物質の添加を行うことにした。

3・1・3 ブランクの低減化

定量精度を保つためには、ブランク値は定量下限値の1/10以下にすることが望ましい。暫定分析法の定量下限値に準拠すると、血液5g中の4-5CDD/DF、6-7CDD/DF、OCDD/DF および Co-PCB の定量下限値の絶対量は15fg, 30fg, 60fg および150fg となり、ブランク値は1.5fg, 3fg, 6fg および15fg 以下にすることが望ましい。研究方法の項で述べたように可能な限りのブランク対策を行ったとき、10回連続のブランク試験結果（平均値）を暫定分析法の定量下限値と比較した場合、前者は後者の PCB#169 での1.6%から OCDD での152%と大きく変動した。OCDD はヒト血中濃度が高いのでブランク値はさほど問題にならない。多くは30%以下であったが、1, 2, 3, 7, 8-PeCDD (50%), 1, 2, 3, 4, 6, 7, 8-HpCDD (52%), 2, 3, 7, 8-TCDF (75%), 1, 2, 3, 7, 8-PeCDF (77%), 2, 3, 4, 7, 8-PeCDF (63%), PCB#77 (48%) はブランク値が定量下限値の50%以上となっており、分析ロットごとにブランク試験を行い、ブランク補正を行う必要があった。ブランクの低減化についてはなお検討が必要である。

3・1・4 分析操作の迅速化及び省資源化

血液試料量が5gに少量化されたことにより機器の導入・機械化・自動化、操作の省略、カラムクリーンアップのミニチュア化が可能となり、その結果、著しい省力効果が得られた。ガラス器具を洗剤で洗浄後、ダイオキシンフリーオーブンで加熱処理することによってガラス器具からの汚染が確実に低減し、更に、器具洗浄が簡便化された。血液試料を凍結乾燥した後に ASE 抽出することによって、抽出液を分液ロート中で水洗し、無水硫酸ナトリウムで乾燥する一連の操作を省略することがで

きた。硝酸銀シリカゲルカラムと活性炭カラムを直結することによって、硝酸銀カラムからの溶出液を濃縮し、活性炭カラムに移す操作を省略することができた。血液試料の少量化、操作の機械化に伴って、抽出及びクリーンアップに使用する試薬や溶媒が削減できた。これらの機械化と省力効果により1日に5件程度の分析ができるようになった。

3・2 試料保存中のダイオキシン類濃度減少に関する検討

本研究で確立した超高感度迅速分析法を用いて、1999年に採血され硬質プラスチック容器中に長期間保存されていた少量の一般人血液中のダイオキシン類濃度を再測定した。2003年の PCDDs, PCDFs 及び Non-orth-PCBs の再測定値のほとんどは1999年測定値の1/3から2/3に減少していた。この中で、HpCDD, OCDD 及び PCB#77は2から3倍に増加していた。この原因として HpCDD 及び OCDD は再測定では ASE 抽出法を用いているためにこれらの化合物が高い値となったと考えられる。PCB#77は保存中の汚染の可能性が考えられる。このように特殊な原因が考えられる3種のダイオキシン類化学物質を除いて、2003年再分析値は1999年分析値に比べて、すべて減少していた。総 TEQ 値で比べると57%に減少していた。また、脂肪含量は90%であった。保存中にダイオキシン類濃度が低下する原因として、保存中の分解、保存中の容器への吸着等が考えられる。数年前までは、血液中のダイオキシン類濃度は非常に低濃度（pg/kg）であるので精度よく測定するためには少なくとも50gの試料が必要であり、予備試料を含めると100gの採血が必要であった。これらの試料は通常採血バッグに採取され、常温もしくは冷蔵で保存される。我々は、採血バッグに採取された血液を長期間（数週間から数ヶ月）冷蔵保存するとダイオキシン類濃度にかかなりの減少が見られるという経験をした。この現象を追試確認するため、一般人ボランティア6名の血液を100gの採血バッグに採取し、4℃で冷蔵保存し、採血直後、採血から3週間後および6週間後に採血バッグから取り出した血液についてダイオキシン類を測定した。その結果、血中ダイオキシン濃度は経時的に減少し、冷蔵保存6週目では採血直後の試料中濃度と比べて1/3-2/3程度の濃度低下が見られた。硬質プラスチック容器及び軟質プラスチック容器（採血バッグ）中保存によるダイオキシン類濃度の減少は、ともに、保存状態の不備による現象と考えられる。冷暗所保存という条件下で1週間から3週間という比較的短い時間でかなり急速に濃度が減少することから分解とは考えにくい。血中ダイオキシン類が軟質及び硬質プラスチック容器に吸着する可能性を否定できない。血液試料

は暫定分析法で推奨されているテフロン容器等で冷凍保存することが重要である。一方、脂質含量は、再測定値は平均値で見ると、1999年測定値の90%であった。脂質含量の差は抽出溶媒の違いによるものと考えられる。

3・3 精度管理・クロスチェック

3・3・1 外部精度管理

実験室内変動はかなり小さいが、分析機関の間では一部にかなりの変動が見られた。

3・3・2 厚生労働科学研究班クロスチェック

血清及び母乳を対象にした精度管理では血清脂質量が他の分析機関と比べて1/2程度と低い値であった。これは ASE 抽出に起因すると考えられるがその理由是不明である。血清の場合、脂質含量の測定は他の方法で別途行わなければならない。血清重量あたりの値は他機関とほぼ良好な一致を見た。母乳は脂質含量、ダイオキシン類実測値とも良好な一致を見た。

3・3・3 コントロール血清の分析（再現性試験）

同一ロットの分析に対してコントロール血清（コンセーラ L）5g を分析した。10回のコントロール分析における内標準物質の添加回収率は58%から116%で「暫定分析法」が望ましい回収率としている"50%から120%"の範囲内であった。また、ダイオキシン類実測値の変動係数は10%以下の良好な結果であった。

4 まとめ

血液5g からダイオキシン類を迅速かつ正確に測定できる分析方法を確立できた^{1,2)}。これは大量の再現性の高いデータを必要とするヒト汚染実態把握調査、油症、Yucheng, ベトナム戦争枯れ葉剤被害者の追跡調査研究等の進展に大いに寄与すると考えられる。また、血液試料量が10g 程度の少量で調査が可能となったことから、幼児、高齢者、病弱者なども調査の対象に出来るようになった。さらに、開発途上国の交通事情が悪い地域の調査も可能となると考えられる。このように、本法の確立はダイオキシン類のヒト健康影響調査研究の対象範囲を飛躍的に拡大したと考えられる。4年間保存されていた血液のダイオキシン類濃度はを調べたところ採血直後に測定された値に比べて1/3から2/3程度の減少を示した。保存状態の不備により血中ダイオキシン類濃度が変化することが明らかになった。

5 行政的意義、貢献

血中ダイオキシン類の超高感度・迅速分析法を確立し、その分析体制を構築した。この分析法確立と分析体制構築により血液試料量は約1/10に、分析時間は約1/5になった。血液試料の少量化、分析時間短縮、データの高精度化、分析用資材の省資源化を達成した。このことによりフィールド調査の可能性を飛躍的に拡大し、ダイ

オキシン類によるヒト汚染影響研究の進展の条件を整えた。全国油症患者の PCDF 等体内残留量を明らかにすることにより適切な健康管理をサポートする。ダイオキシン類のヒト健康影響を究明することはヒトの健康保持に資するものである。①本分析法を用いて、平成13年度に福岡県の油症患者78名の血中ダイオキシン類分析を試験的に行った³⁾。この分析法を更に改良して迅速化し、平成14年度（371名）、15年度（343名）の油症患者の血中ダイオキシン類調査を全国的に実施した^{2,5)}。②ベトナムのホットスポット住民の血液、母乳、土壌、魚試料120件の調査を行った。③中国河北省住民の母乳試料60件についてダイオキシン類濃度調査を実施した⁶⁾。④平成15年度出産者母体血100件のダイオキシン類濃度調査を実施した。⑤剖検試料20例の脾臓、脾臓、腎臓、肺臓中ダイオキシン類濃度を測定した⁴⁾。⑥大学や国立研究所の職員等に血中ダイオキシン分析技術研修をした。⑦国内学会、国際学会、専門雑誌で成果を報告した。本分析法はヒト試料中ダイオキシン類の非常に有用な分析法である。本法は食品や環境試料についても応用可能であり、今後、多くの分析機関に普及すると思われる。

文献

- 1) T. Todaka, H. Hirakawa, K. Tobiishi, T. Iida: New protocol for dioxin analysis of blood. Fukuoka Acta. Med. 2003, 94, 148- 157.
- 2) T. Iida, T. Todaka: Measurement of dioxin in human blood: Improvement of analytical method. Industrial Health 2003, 41, 197-204.
- 3) 飯田隆雄, 戸高尊, 平川博仙, 飛石和大, 松枝隆彦, 堀就英, 中川礼子: 油症患者血中ダイオキシン類レベルの追跡調査 (2001年). 福岡学雑誌. 2003, 94, 148-157.
- 4) T. Iida, T. Todaka, H. Hirakawa, T. Hori, K. Tobiishi, T. Matsueda, S. Watanabe, T. Yamada: Concentration and distribution of dioxins and related compounds in various human organs. 24th International Symposium on Halogenated Environmental Organic Pollutants and POPs (Dioxin 2004). September 6-10, 2004, Berlin, Germany
- 5) T. Iida, H. Hirakawa, T. Hori, T. Matsueda, K. Tobiishi, R. Nakagawa, T. Todaka: Follow-up survey of Dioxins and Related Chemicals in the Blood of Yusho Patients in 2002. 24th International Symposium on Halogenated Environmental Organic Pollutants and POPs (Dioxin 2004). September 6-10, 2004, Berlin Germany
- 6) T. Todaka, H. Hirakawa, T. Hori, T. Iida, S. Sun, J. Zhao, F. Kayama: PCDDs, PCDFs and coplanar PCBs concentration of human breast milk in China and Japan. 第6回環境ホルモン学会2003年12月2-3日, 仙台市

ダイオキシン類の排泄促進に関する研究 ダイオキシンの人体汚染防止及び食生活指針に関する研究

研究期間（平成13年度～15年度）

森田邦正*, 飛石和大*

要 旨

ラットの体内に PCB を蓄積させた後、クロロフィル、クロレラ、わかめ、ひじき、こんぶ、のり及び緑茶が PCB の再吸収抑制に及ぼす効果について検討した。0.5%クロロフィル食及び10%クロレラ食は3, 4, 4', 5-TetraCB, 3, 3', 4, 4', 5-PentaCB, 3, 3', 4, 4', 5, 5'-HexaCB, 2, 3, 4, 4', 5-PentaCB, 2', 3, 4, 4', 5-PentaCB, 2, 3, 3', 4, 4', 5'-HexaCB 及び2, 3, 3', 4, 4', 5, 5'-HeptaCB の糞中排泄量をコントロール群と比べて2.4～3.9倍 ($p < 0.01$) 増加させる効果が認められた。10%海藻食は3, 3', 4, 4', 5-PentaCB, 3, 3', 4, 4', 5, 5'-HexaCB, 2, 3, 4, 4', 5-PentaCB 及び2, 3, 3', 4, 4', 5, 5'-HeptaCB の糞中排泄量をコントロール群と比べて1.2～2.4倍 ($p < 0.01$ or $p < 0.05$) 増加させる効果が認められた。10%緑茶食は PCB 糞中排泄量をコントロール群と比べて2.2～7.3倍 ($p < 0.01$) 増加させる効果が認められた。クロロフィル、クロレラ、わかめ、ひじき、こんぶ、のり及び緑茶は消化管壁から管内へ分泌された PCB の再吸収を抑制し、糞中へ排泄促進させる機能があることを明らかにした。これらの食品やクロロフィル及び食物繊維が多く含まれる食品は人の体内 PCB の排泄促進に有効かもしれない。

[キーワード: ダイオキシン, PCB, クロレラ, クロロフィル, 海藻, 緑茶, 食物繊維, 吸収, 排泄, ラット]

1 はじめに

人は食品経由でダイオキシン類（PCB, PCDD 及び PCDF）に暴露されていることが広く知られている。PCB は脂溶性であるため消化管からよく吸収され、その後リンパ系からキロミクロンにより移行し、体内の種々の組織に分布し、最終的に多くが脂肪組織に蓄積される。人及び実験動物において、PCB はたやすく代謝されないため長期間組織へ残留する。ラットの場合、3, 3', 4, 4'-Tetrachlorobiphenyl (3, 3', 4, 4'-TetraCB) 及び2, 2', 4, 4', 5, 5'-Hexachlorobiphenyl (2, 2', 4, 4', 5, 5'-HexaCB) の生物学的半減期は6.3～9日及び27日と報告されている。人の場合、PCB の生物学的半減期は台湾油症患者において2, 3', 4, 4', 5, -Pentachlorobiphenyl (2, 3', 4, 4', 5, -PentaCB), 2, 2', 4, 4', 5, 5'-HexaCB, 2, 2', 3, 4, 4', 5'-HexaCB, 2, 3, 3', 4, 4', 5'-HexaCB, 2, 2', 3, 3', 4, 4', 5'-Heptachlorobiphenyl (2, 2', 3, 3', 4, 4', 5'-HeptaCB) 及び2, 2', 3, 4, 4', 5, 5'-HeptaCB が1.6～6.0年、日本の油症患者において9.1～18.4年であり、これらの PCB の半減期は2, 3, 4, 7, 8-Pentachlorodibenzofuran (2, 3, 4, 7, 8-PentaCDF) 等の PCDF に比べて約2倍長いことが報告されている。このことは

糞及び尿からの1日当たりの PCB の総排泄量が極めて微量であることを示している。

クロレラは緑藻で、タンパク質55～67%、葉緑素（クロロフィル）1～4%、食物繊維 9～18%、その他ミネラル及びビタミンを含有し、日本や米国等で健康補助食品として販売されている。海藻類は食物繊維とクロロフィルが豊富な食品である。茶はツバキ科の常緑樹である。中国種は緑茶用に、アッサム種は紅茶やウーロン茶の製造に用いられ、嗜好品として世界中に広く普及し飲用されてきた。日本産の緑茶はカテキン類が8～20%、カフェインが2～4%、アミノ酸類が1～8%、食物繊維が25～50%、カリウムが1～2.5%、ビタミンCが0.1～0.5%、その他ビタミンA及びEが含まれている。また、クロロフィル a 及び b は緑茶に0.17～0.95%、生葉に0.5～1%含まれ、特に抹茶や玉露に多く含まれる。

PCB による人への健康障害を未然に防止するためには、食品経由の PCB を消化管内で吸収抑制し人体への吸収量を減少させ、さらに消化管壁から消化管内へ排泄（分泌）された PCB の再吸収を効果的に抑制することにより、体内蓄積量を減少させる方法を提示することが

* 福岡県保健環境研究所

(〒818-0135 福岡県太宰府市大字向佐野39)

重要である。この研究において、PCB の再吸収を抑制し PCB の糞中排泄に及ぼすクロロフィル、クロレラ、海藻（わかめ、ひじき、こんぶ、のり）及び緑茶の効果についてラットを用いて検討した。

2 研究方法

2・1 実験動物

Wistyar 雄ラットは1匹ずつ代謝ケージで飼育し、水と食餌は自由に与えた。

2・2 実験材料

実験材料にはクロロフィル、クロレラ、海藻（わかめ、ひじき、のり、こんぶ）及び緑茶（八女茶）の粉末を用いた。表1にコントロール食及び実験食の組成をに示す。

表1 実験食の組成

成分	食餌 (g/100g)		
	コントロール	2%実験食	10%実験食
シュクロース	65	63	55
セルロース	5	5	5
カゼイン	20	20	20
コーンオイル	5	5	5
ミネラルミックス	4	4	4
ビタミンミックス	0.85	0.85	0.85
塩化コリン	0.15	0.15	0.15
実験材料		2	10

2・3 動物実験

図1に実験食の投与方法を示す。ラットは一夜絶食後、4g のコントロール食に60ng の PCB を溶かしたコーンオイル0.2ml を添加し、実験初日に1回ラット (n=4) に与えた。引き続き PCB 無添加のコントロール食を7日間与え、投与後8日目から35日までコントロール食及び実験食を与えた (表1)。

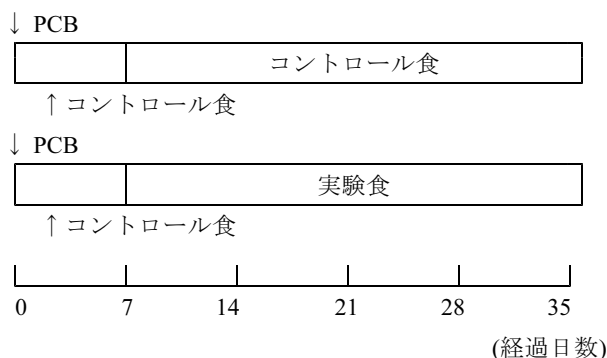


図1. 実験食の投与方法

2・4 PCBの分析法

約5g の糞及びホモジネートを50ml の遠沈管に入れ、¹³C ラベルした PCB 400~800pg を加えた。これに1.0M KOH / エタノール (1:1, v/v) 溶液10ml を加え、80℃で30分間

加水分解した。PCB は GC/MS (AutoSpec-Ultima; Micromass) にキャピラリーカラム (0.25mm 60m, BPX 5) を装着し、分解能10,000で測定し、selected ion monitoring (SIM) 法で定量した。

3 結果

3・1 PCBの糞中排泄状況及び生物学的半減期

ラット (n=5) の糞を群毎に毎日採取し、PCB 投与後35日間の糞中排泄状況を調べた (図2)。PCB をコントロール食に添加して1回経口投与すると、8種類の PCB の平均排泄量は1日目に投与量の0.60%、2日目に1.16%であった。この2日間の排泄量の大部分は未吸収分と考えられた。投与後2日間の PCB 排泄量を未吸収量とした場合、食餌経路の消化管吸収率は3, 4, 4', 5-TetraCB が99.1%、3, 3', 4, 4'-TetraCB が99.1%、3, 3', 4, 4', 5-PentaCB が98.5%、3, 3', 4, 4', 5, 5'-HexaCB が97.4%、2, 3, 4, 4', 5-PentaCB が98.7%、2', 3, 4, 4', 5-PentaCB が98.6%、2, 3, 3', 4, 4', 5'-HexaCB が98.2%、2, 3, 3', 4, 4', 5, 5'-HeptaCB が96.4%であった。ラットの PCB 吸収率は96%以上であることが分かった。3日目から7日目の排泄量は0.25%から0.05%に低下し、その後8~9日目の0.05%から35日目の0.02%に推移した。体内から消化管壁経由で糞中に排泄される8日目以降の PCB 量は投与量の0.02~0.05%と極めて少量であった。

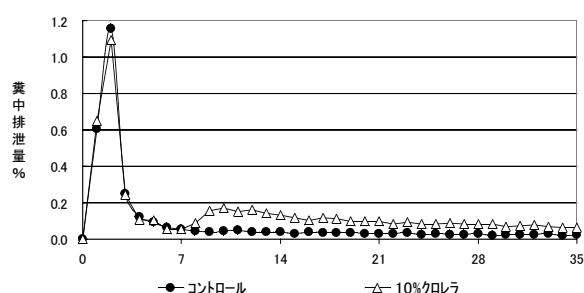


図2. PCBの排泄状況

8日目にコントロール食から10%クロレラ食に交換すると、PCB の平均排泄量は8日目に投与量の0.09%、9日目に0.16%とコントロール群と比べて排泄の増加が認められた。9日目から35日目までの毎日の排泄量はコントロール群の2.5~3.9倍となり、その比率は時間の経過及び体重の増加とともに大幅な変化は示さなかった。

表2にコントロール群及びクロレラ群における PCB 投与後8日目と35日目の体内蓄積量の平均値から1-コンパートメントモデルを用いて計算した PCB の生物学的半減期を示す。ラットにおける PCB の生物学的半減期は3, 3', 4, 4'-TetraCB を除いて極めて長く、人と同じく残留

性が極めて高いことが分かった。クロレラ群の半減期は2, 3, 3', 4, 4', 5'-HexaCB を除いてコントロール群より1.4～2.8倍短縮された。

表2. PCBの生物学的半減期に及ぼすクロレラの効果

PCB	生物学的半減期 (日)	
	コントロール食	10%クロレラ食
3, 4, 4', 5-TetraCB	170	60
3, 3', 4, 4'-TetraCB	19	12
3, 3', 4, 4', 5-PentaCB	496	199
3, 3', 4, 4', 5, 5'-HexaCB	615	236
2, 3, 4, 4', 5-PentaCB	310	221
2', 3, 4, 4', 5-PentaCB	384	149
2, 3, 3', 4, 4', 5'-HexaCB	989	989
2, 3, 3', 4, 4', 5, 5'-HeptaCB	930	506

3・2 PCBの糞中排泄に及ぼす実験食の効果

PCB 投与後8日目から35日目まで、クロロフィル食及びクロレラ食を投与し、PCB の再吸収抑制に及ぼす効果を検討した。0.1, 0.2及び0.5%クロロフィル群において、PCB 排泄量は3, 3', 4, 4'-TetraCBを除いてコントロール群と比べてそれぞれ1.5～1.9倍, 1.6～2.1倍, 2.5～3.9倍増加した ($p<0.01$ or $p<0.05$)。クロロフィル投与量を0.1%から0.5%に増加するに伴い、PCB の糞中排泄量は増加する傾向が認められた。2%クロレラ群のPCB 排泄量は3, 4, 4', 5-TetraCB 及び 3, 3', 4, 4'-TetraCBを除いてコントロール群と比べて1.6～1.9倍 ($p<0.01$ or $p<0.05$) 増加した。10%クロレラ群の8種類のPCB 排泄量はコントロール群と比べて2.4～3.6倍 ($p<0.01$ or $p<0.05$) 増加した。クロレラ投与量を2%から10%に増加するに伴い、PCB の糞中排泄量は増加する傾向が認められた。

海藻類の場合、わかめ群の8種類のPCB 排泄量はコントロール群と比べて1.8～2.2倍 ($p<0.01$ or $p<0.05$) の増加が認められた。ひじき群のPCB 排泄量は3, 3', 4, 4'-TetraCBを除いてコントロール群と比べて2.1～2.9倍 ($p<0.01$ or $p<0.05$) 増加した。こんぶ群のPCB 排泄量は3, 4, 4', 5-TetraCB, 3, 3', 4, 4'-TetraCB 及び2', 3, 4, 4', 5-PentaCBを除いてコントロール群と比べて1.3～1.5倍 ($p<0.01$ or $p<0.05$) 増加した。のり群のPCB 排泄量は3, 4, 4', 5-TetraCB, 3, 3', 4, 4'-TetraCB, 3, 3', 4, 4', 5-PentaCB 及び2, 3, 3', 4, 4', 5'-HexaCBを除いてコントロール群と比べて1.1～1.3倍 ($p<0.01$ or $p<0.05$) の増加が認められた。またさらに、10%緑茶食の8種類のPCB 糞中排泄量はコントロール群と比べて2.2～7.3倍 ($p<0.01$) の増加が認められた。これらの結果から、クロロフィル、わかめ、ひじき、こんぶ、のり及び緑茶は消化管壁から消化管内へ分泌されたPCB の再吸収を抑制し、糞中へ

の排泄を助長する効果があることが分かった。

3・3 PCBの体内蓄積に及ぼす実験食の効果

PCB 投与後35日目の3, 3', 4, 4', 5, 5'-HexaCB 体内蓄積量は2及び10%クロレラ群がコントロール群と比べてそれぞれ6.5及び9.8% ($p<0.05$) 減少していたが、その他のPCB の体内蓄積量には有意な差はみられなかった。また、0.1, 0.2及び0.5%クロロフィル群及び4種類の海藻群とコントロール群間のPCB 体内蓄積量においても有意な差は認められなかった。海藻はラット体内のPCB を大幅に減少させる効果は認められなかった。その理由として、我々は次のように考えた。海藻は消化管内でPCB の再吸収を抑制し、糞中排泄を増加させる効果が認められたが、PCB 投与後8日目から35日までの短期間のPCB の糞中排泄レベルはコントロール群で0.05～1.2%と少なく、海藻群がコントロール群に比べてPCB の糞中排泄レベルを1.1～2.4倍増加させても、その体外への排泄量は投与量のわずか2.8%以下であったためと考えられた。10%緑茶群における3, 3', 4, 4', 5-PentaCB, 2, 3, 4, 4', 5-PentaCB, 2', 3, 4, 4', 5-PentaCB, 2, 3, 3', 4, 4', 5'-HexaCB 及び2, 3, 3', 4, 4', 5, 5'-HeptaCB の体内蓄積量はコントロール群と比べて7.3～28.8% ($p<0.01$ or $p<0.05$) の低下が認められた。

4 考察

PCB はかなり長い生物学的半減期を持っているため、消化管壁から消化管内へ分泌されたPCB を効果的に再吸収抑制し排泄促進させることが重要である。我々はこの研究でクロレラ、クロロフィル、わかめ、ひじき、こんぶ、のり及び緑茶がPCB の再吸収を抑制し、糞中への排泄を助長する機能があることを明らかにした。以前、我々はクロレラがPCDD及びPCDFの糞中排泄を促進することを報告した。10%クロレラ食を投与したラットにおいて、毒性が高いTCDD, 1, 2, 3, 7, 8-Pentachlorodibenzo-*p*-dioxin (1, 2, 3, 7, 8-PentaCDD) 及び2, 3, 4, 7, 8-PentaCDFの糞中排泄量はコントロール群と比べて、それぞれ4.4, 2.8及び3.4倍 ($p<0.01$) 増加した。この実験でクロレラは消化管で食品経由のPCDD及びPCDFの吸収を抑制する効果と、体内から消化管内へ分泌されたPCDD及びPCDFの再吸収を抑制する効果があることを明らかにした。クロレラ及びクロロフィルによるPCB, PCDD及びPCDFの排泄促進機構は明白ではないが、その要因として、次のことが考えられた。クロロフィル誘導体のクロロフィリンは、ヘテロサイクリックアミンと複合体を形成することが知られている。消化管でほとんど吸収されないクロロフィルが、平面構造を持つPCB, PCDD及びPCDFと複合体を形成し、その消化管吸収を阻害したことに由来していると考えた。

またさらに我々は数種類の食物繊維を用いて、ラット体内の PCDD 及び PCDF の糞中排泄に及ぼす効果を報告した。10%の米ぬか繊維、ごぼう繊維、コーン繊維及び大豆繊維を投与した群の PCDD 及び PCDF の糞中排泄量は食物繊維が含まれていないコントロール群と比べて、1, 2, 3, 7, 8-PentaCDD が1.6～4.3倍 ($p<0.01$)、2, 3, 4, 7, 8-PentaCDF が1.5～4.5倍 ($p<0.01$) 増加した。このことから、クロレラに含まれる食物繊維が PCB, PCDD 及び PCDF を吸着し、その消化管吸収を抑制したことに由来していると考えられた。わかめ、ひじき、こんぶ、のり及び緑茶にも食物繊維及びクロロフィルが多く含まれることから、その再吸収抑制機構はクロレラと同様の機能であると考えられる。

人の PCB 吸収排泄機構はまだ明白ではない。ラットにおける PCB の排泄促進に及ぼすクロレラ及びクロロフィル等の効果を人に当てはめる決め手は、人における生物学的半減期、代謝及び排泄である。人の場合、PCB の生物学的半減期は台湾油症患者が1.6～6.0年、日本の油症患者が9.1～18.4年と報告されている。半減期9.1～18.4年とは PCB の総排泄量が体内蓄積量の0.01～0.02% /日に相当し、PCB の代謝物 (OH-PCB, MeSO₂-PCB) 及び未変化体が尿及び糞から排泄される量が極めて少ないことを示している。

ラットの場合、PCB は極性の代謝物が尿及び糞から、未変化体が消化管壁から消化管内へ分泌され糞から排泄される。我々の研究結果から、PCB 投与後8日目から35日までの総排泄量に対する糞中排泄量 (未変化体) の比率を計算した結果、3, 3', 4, 4'-TetraCB はほとんどが代謝物として、反対に3, 3', 4, 4', 5, 5'-HexaCB は大部分が未変化体として排泄されていることが示唆された。

人の TCDD 投与実験において、TCDD は87%以上が腸管から吸収され、尿からでなく総排泄量として体内量の0.0327%/日が糞から排泄される。TCDD の生物学的半減期は5.8～9.2年、糞中の未変化体量は約50%であると報告されている。また、TCDD の血中濃度が極めて高い2名の患者にオレストラ (Olestra; sucrose polyester) を66g /日投与した実験において、オレストラは TCDD の糞中排泄量を8～10倍に増加させたと報告されている。また、PCDD 及び PCDF の総排泄量に対する未変化体の糞中排泄量の比率は37～90%であり、未変化体の糞中排泄が人における PCDD 及び PCDF 排泄の主要なルートであると報告されている。我々の研究において、0.5%クロロフィル食及び10%クロレラ食はコントロール群と比べて PCB の糞中排泄量を2.4～3.9倍増加させた。人の PCB 総排泄量に対する糞中の未変化体の比率が90%であるならば、0.5%クロロフィル食及び10%クロレラ

食は台湾油症患者の半減期6.0年を1.7～2.7年へ、日本の油症患者の半減期18.4年を4.9～7.8年へ短縮する効果があることが示唆される。

日本人の食品の摂取量は乾燥重量当たり約426g /日である。2～10%実験食は人の摂取量として8.5～42.6g /日、0.1～0.5%クロロフィル食は人の摂取量として426～2100mg /日と計算される。このクロロフィル摂取量はほうれん草に換算すると416～2051g /日 (生鮮食品)、クロレラに換算すると19～94g /日に相当する。このことから、単独でなく、種々の食品を日々摂取することが大切と思われる。

(ダイオキシンから身を守る食生活指針) : ダイオキシンによる健康障害を防止するためには、体内に蓄積したダイオキシンを排泄促進することが重要である。クロロフィルと食物繊維はダイオキシンの吸収及び再吸収を抑制し、糞中排泄を促進する機能があることが分かった。クロロフィルと食物繊維が多く含まれる様々な食品 (緑茶、緑色野菜、クロレラ、海藻類) を日々摂取する食生活を心掛けることが大切である。

5 行政的意義、貢献

ダイオキシンから身を守る食生活の方法を提示することは、県民 (国民) の健康維持と不安の解消に役立つ。

文献

- 1) Morita K. *et al.*, Increasing effect of Nori on the fecal excretion of dioxin by rats. Biosci, Biotechnol. Biochem. 66(11), 2306-2313 (2002).
- 2) Morita K. *et al.*, Seaweed accelerates the excretion of dioxin stored in rats. J. Agric Food Chem., 50: 910-917 (2002).
- 3) Morita, K. *et al.*, Chlorophyll derived from Chlorella inhibits dioxin absorption from the gastrointestinal tract and accelerates dioxin excretion in rats. Environ. Health Perspect., 109, 289-294 (2001)
- 4) Morita K. *et al.*, Chlorella accelerates dioxin excretion in rats. J. Nutr., 129, 1731-1736 (1999)
- 5) Morita K. *et al.*, Effect of dietary fiber on fecal excretion and distribution of PCDF in rats. Fukuoka Igaku Zasshi 86: 218-225 (1995).
- 6) Morita K. *et al.*, Effect of green vegetable on digestive tract absorption of polychlorinated dibenzo-*p*-dioxins and polychlorinated dibenzofurans in rats. Fukuoka Igaku Zasshi 90: 171-183 (1999).
- 7) Haraguchi, K. *et al.*, Comparative study on formation of hydroxy and sulfur-containing metabolites from different chlorinated biphenyls with 2, 5-substitution in rats. Drug. Metab. Dispos. 25: 845-852 (1997).

大気中ダイオキシン類関連化合物の植物葉への沈着状況解明 のためのモデル植物葉試作と大気長期計測法の開発

研究期間（平成14年度～15年度）

黒川陽一^{*1}，大石興弘^{*1}，飛石和大^{*1}，宗伸明^{*2}，今任稔彦^{*2}

要 旨

植物葉への代理表面としてミネラルオイル，ポリウレタンフォーム，長炭素鎖の疎水性表面を用い大気中のダイオキシン類の移行を調査した．これらの表面は大気中のガス状ダイオキシン類への大きな親和性を示し植物葉と同様な吸着特性を示した．またダイオキシン類汚染土壌の植物葉への影響は蒸散によるよりも土壌粒子の葉表面への吸着あるいは気孔等を通した内部への取り込み等の機構がより影響することが推察された．次に代理表面による大気中ダイオキシン類の汚染指標化及び長期計測法への応用を検討した．ポリウレタン熱処理加工品（スコットフィルター）は，大気中ダイオキシン類の捕集量が大きく溶媒洗浄及び抽出が可能でかつ取り扱い及び設置が容易な特徴があることから実際上大気中の微量のダイオキシン類の捕集に適していることが判明した．これについて大気中濃度と捕集量との関係性についての調査及び考察を行った．

[キーワード： ダイオキシン類，代理表面，大気長期モニタリング]

1 はじめに

植物の葉は大気中のダイオキシン類を取り込むことが知られており，表面のワックス層やクチクラ層，気孔の内部への移行によるものとされている．葉に取り込まれたダイオキシン類は最終的に人に取り込まれる食物連鎖における最初の段階に位置することからその機構を明らかにすることは重要である．また植物葉は長期的な大気汚染を知る生物モニターとして大気汚染の指標としても利用されている．近年，植物葉へのダイオキシン類の移行は大気経由が主であり，粒子状沈着よりも乾性のガス状沈着が主要な取り込み経路として報告されている¹⁾．日本において過去に調査された植物葉では，多くのガス状のパターンが観測されている²⁾．しかし過去に大量に使用されたクロロニトロフェン（Chlornitrofen, CNP）等の除草剤を含む土壌で育成された野菜の葉では，大気中ダイオキシン類とは異なるパターンが得られ³⁾，新たな取込機構を考察する必要性が生じた．取り込みのプロセスは，植物葉表面の様々な性質や生育条件等に制約されることから，移行経路を単純化することを目的として代理表面を植物葉の代わりに使用した．

また代理表面によるダイオキシン類の取り込みの機序

を明らかにした上で，代理表面を植物葉に代わる地域的な汚染の長期的かつ簡易なモニタリング手法として応用することを検討した．微量な大気中ダイオキシン類を捕集するのに適した表面積を持つ代理表面を使用し大気長期モニタリング手法に適用するための沈着速度や沈着パターン等の基礎的データを収集した．

2 研究方法

2・1 大気中ダイオキシン類の代理表面への移行

内側をミネラルオイルで塗布したペトリ皿，ポリウレタンフォーム及び ODS ディスク（オクタデシルシリカを含むポリ四フッ化エチレン円板）を，3週間，高さ15mのビルの屋上にて大気と接触する状態に置いた．同時に一般大気中ダイオキシン類をローボリウムエアースンプラーにより採取した．

2・2 土壌中ダイオキシン類の代理表面への移行

フライアッシュとダイオキシン類汚染土壌をビーカーの内側に広げ，ODS ディスクを接触した状態でフライアッシュ及び汚染土壌上に置いた．ODS ディスク上の残留粒子はエアージェル及び蒸留水で除去し，これらの ODS ディスクは，トルエンソックスレー抽出に供した．また

*1 福岡県保健環境研究所 (〒818-0135 福岡県太宰府市大字向佐野39)

*2 九州大学大学院工学研究院 (〒812-8581 福岡県福岡市東区箱崎6-10-1)

他の表面としてパラフィン及びポリスチレンについて同様な検討を行った。次に ODS ディスクを1cm の間隙においてフライアッシュと汚染土壌の上方に置き、3週間20℃の恒温に保ち ODS ディスクへの移行を調査した。さらに5 μ m の孔径を持つテフロンフィルターを ODS ディスク上部に乗せ、フライアッシュと汚染土壌を広げ、1週間後の ODS ディスクを分析した。

2・3 代理表面による大気長期計測法への応用

アセトン洗浄後のスコットフィルター（HR-13、15cm×30cm 厚さ5mm）を高さ15m のビルの屋上に設置し、経時的なダイオキシン類の捕集量変化を測定した。またスコットフィルター（HR-13、30cm×90cm 厚さ5mm）を、福岡県内の D 市（農村部）と K 市（中小都市部）の2カ所に設置し、同時に両地点にてローボリウムエアースンプラーにて大気中ダイオキシン類を採取した。試料採取後のスコットフィルターは、全てアセトンによりソックスレー抽出に供した。

2・4 前処理

全ての採取抽出液にカーボン13ラベル化体の17種ダイオキシン類の内部標準を加え、濃硫酸処理、硝酸銀-シリカゲル混合カラム、活性炭カラムで精製しダイオキシン類の分析に用いた。

2・5 GC/MS分析

前処理後の試料をノナンに溶解し、分解能10,000以上でガスクロマトグラフィー・質量分析計によりダイオキシン類の測定を行った。

3 結果及び考察

3・1・1 代理表面への大気中ダイオキシン類の沈着

様々な樹木葉中のダイオキシン類（ポリ塩化ダイベンゾ-*p*-ジオキシン（PCDDs）及びポリ塩化ダイベンゾフラン（PCDFs））の測定結果¹⁾によると、ダイオキシン類濃度は低塩素数になるほど増加し木の種類によらず PCDDs の同族体パターンは、PCDFs のそれに類似していた。これらの同族体パターンから大気中のガス状ダイオキシン類への大きな吸着性が見いだされている。ダイオキシン類を含む多くの化学物質は、一般に疎水性を持ち同じ疎水性表面への親和性を持つことより植物葉のダイオキシン類の吸着性は疎水-疎水結合によるものと推測される。よって植物葉による大気中ダイオキシン類の取り込み機構を明らかにする目的で疎水性表面を検討することとした。疎水性代理表面は樹木の葉を想定して高さ15m のビルの屋上に設置された。ミネラルオイルへ沈着した大気中ダイオキシン類（図1）は、塩素数の減少と共に増加するガス状パターンを示した。これはミネ

ラルオイルへのガス状ダイオキシン類と粒子状と比較してのより大きな分配を示すものである。同時期に測定されたローボリウムエアースンプラーの大気中ダイオキシン類濃度測定結果よりミネラルオイルへのダイオキシン

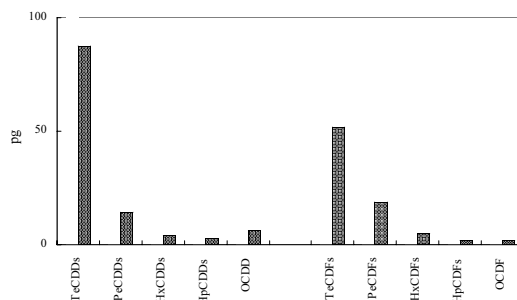


図1 ミネラルオイル中のダイオキシン類

類の沈着速度を計算したところダイオキシン類の沈着速度は、0.01から0.49cm/s の範囲であった。4-5塩素化のダイオキシン類と7-8塩素化ダイオキシン類の沈着速度の間に5倍程の差があることから2種類の沈着（すなわちガス状ダイオキシン類の沈着と粒子状ダイオキシン類の沈着）が違う速度で進行していることが考察された。ポリウレタンフォームと ODS ディスク上のダイオキシン類のパターンは同じようなガス状パターンを示し、この調査で使用された3つの代理表面（ミネラルオイル、ポリウレタンフォームと ODS ディスク）は全て、植物の葉と同様なガス状パターンであった。これらのことより植物葉への大気中ガス状ダイオキシン類の沈着は主に疎水性物質間の親和性によるものであり、ここで使用した疎水性代理表面は多くの植物葉と同様な吸着特性を有していることが示唆された。

3・1・2 汚染土壌からのODSディスク上へのダイオキシン類の移行

除草剤によって汚染された土壌で栽培されたジャガイモとキャベツの葉においては高濃度の4塩化ダイベンゾ-*p*-ジオキシン（TCDD）が検出される現象が見いだされている³⁾。野菜の葉におけるダイオキシン類パターンは、生育地に依存し除草剤によって汚染された土壌ではその影響を受けていると推察される。当初その機構はダイオキシン類の土壌からの揮散によるものと推定されたが、その詳細は検討されておらずダイオキシン類と結合した土壌粒子そのものの影響も否定できていない。実際の葉を用いた実験系では影響要素が多く特定が難しいことから代理表面を用いた単純化した幾つかのモデル実験を検討することとした。フライアッシュ及び除草剤 CNP によって汚染された土壌を使用し ODS ディスクを直接、接触させる、あるいは非接触の状態からのダイオキシン

類の移行を検討した。比較的高濃度のフライアッシュ及び汚染土壌を使用しコントロールと比較した。直接接触した状態ではフライアッシュ中のダイオキシン類の一部は ODS ディスク上へ移行し、移行したダイオキシン類パターンはフライアッシュと同様のパターンを示した。また非接触状態で1cm のエアギャップがある場合には、フライアッシュ中のダイオキシン類の有意量の ODS ディスクへの移行は見られなかった。汚染土壌でも同様に非接触でダイオキシン類の有意な移行は見られなかつ

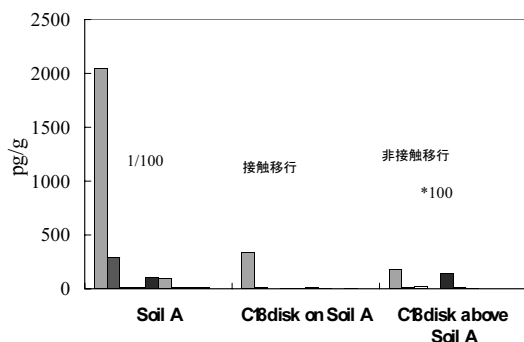


図2 ODSディスクへの土壌中ダイオキシン類の移行

た (図2)。しかし直接接触の場合に元の汚染土壌が示すような4塩素化ダイオキシンについて ODS ディスクへのかなりの量の移行が見られた。ODS ディスクの他にヒストパラフィンやポリスチレン表面での検討も行ったがダイオキシン類の微量が検出され、これらは表面に吸着残留したものと考えられた。直接接触ではこれらの表面上の残留物は除去されているものの肉眼で視認出来ない微細粒子が表面への吸着や内部へ取り込まれたものとして存在する可能性が推察された。実際の植物葉においては数 μm -数10 μm の気孔が1 cm^2 に数百から数万個存在する。よってさらに5 μm の細孔を持つテフロンフィルター上から細孔を通しての土壌粒子中のダイオキシン類の ODS ディスクへの移行も検討した。移行量の順は

直接接触>5 μm の細孔>1cm のエアギャップ

となり、汚染土壌からのダイオキシン類の移行は蒸散によるよりも土壌粒子自体の巻き上げ等に伴う葉表面への吸着あるいは気孔等を通した内部への取り込み等の機構がより影響することが考察された。

3・2 ダイオキシン類の長期計測法の開発

植物葉は、地域の長期間にわたるダイオキシン類汚染を相対的に表す指標として有効性があるとされているが、葉の個体差や測定場所が限定されること等の欠点もまた有している。代理表面を植物葉の代わりに用いることにより欠点を補い機動性を付加することが可能にな

る。そこで代理表面を汚染指標及び長期計測に応用することを検討した。ポリウレタン熱処理加工品であるスコットフィルターは、溶媒洗浄が可能であり本来のポリウレタンフォームに比べても通気性が高い3次元構造のため大気への接触表面積が大きくかつ粉塵保持容量も大きい。これらの点は長期計測法に用いるのに適していることからスコットフィルターについて大気中ダイオキシン類の吸着性に関する試験検討を行った。福岡県内の2地点にスコットフィルターを設置し、同時にローボリウムエアサンプラーにより大気中のダイオキシン類を採取し比較を行った。表1に示したように15×30cm サイズに換算したスコットフィルターへの沈着量は、ローボリウムエアサンプラーの6L/min での同期間の吸引採取法と比較して毒性等量換算量 (TEQ) で2倍以上の採取量を示した。また沈着量は D 市において12 pg-TEQ/ m^2 /day, K 市において22 pg-TEQ/ m^2 /day であり大気中ダイ

表1 ローボリウムサンプラーとスコットフィルターの比較

	ローボリウムエアサンプラー		スコットフィルター
	総量 (pg, pg-TEQ)	濃度 (pg/ m^3 , pg-TEQ/ m^3)	総量 (pg, pg-TEQ)
D地点	778 pg 4.8 pg-TEQ	4.7 pg 0.072 pg-TEQ	5791 pg 19 pg-TEQ
K地点	520 pg 4.1 pg-TEQ	4.1 pg 0.047 pg-TEQ	3035 pg 9.47 pg-TEQ

オキシン類濃度が反映されたと見られる。また沈着速度はスコットフィルターの大気中ガス状ダイオキシン類への強い親和性を示した。スコットフィルターへの捕集粉塵量は経時的に増えたが、15×30cm サイズのフィルターで約0.12g/月であった。また図3に示したように42日間の調査の結果、スコットフィルターの大気暴露期間と大気中ダイオキシン類の捕集量との間に、降雨の影響を受けるもののほぼ直線的な関係性があることが分かった。

植物葉や代理表面によるダイオキシン類大気汚染の指標性は長期間の相対的な汚染状況を把握するのには適しているが吸着量から正確な大気中濃度を知ることには問題点が存在する。それは表面の吸着特性が粒子状に対するよりも、より強くガス状態への吸着性を示すことから季節の変化に伴う気温の影響を受けガス状及び粒子状を含めた全体の大気中ダイオキシン類濃度を反映しない点があるからである。しかし全体のダイオキシン類の毒性濃度を数種の異性体を用いて代表し指標化する手法が大

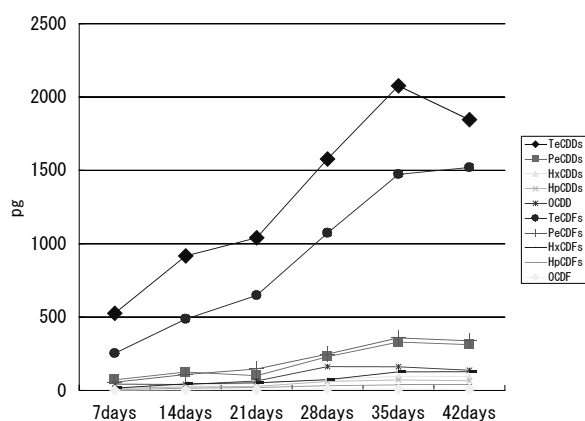


図3 ダイオキシン類沈着量の変化

気中ダイオキシン類にも適用可能であることが近年、提案されている⁴⁾。よって代理表面へ沈着した毒性濃度を代表する異性体沈着量のみから全毒性濃度を算出することにより大気中ダイオキシン類濃度をより正確に推定できる可能性がある。例えば大気中ダイオキシン類毒性濃度 (pg-TEQ/m²) は、スコットフィルターへの沈着量 (Amount) 及び沈着速度 (Deposition. rate), 表面積 (Area) と暴露期間 (Period) より大気中ダイオキシン類毒性濃度と相関性が高い^{2, 3, 4, 7, 8- PeCDF} との回帰係数1.67⁴⁾を用いると以下の式より簡易的に表される。

$$\begin{aligned} \text{TEQ} &= \text{Factor} \times \text{TEF} \times \text{Concentration of 2, 3, 4, 7, 8-PeCDF} \\ &\quad (\text{TEF}=0.5, \text{ Factor, 回帰係数} = 1.67) \\ &= 1.67 \times 0.5 \times \text{Deposition. rate of 5F} \\ &\quad \times \text{Amount of 2, 3, 4, 7, 8-PeCDF} \times \text{Area} \times \text{Period} \end{aligned}$$

5塩化ダイベンゾフランのスコットフィルターへの平均的沈着速度を実験結果から確定すれば、大気暴露時間と面積及び沈着量から大気中ダイオキシン類の毒性濃度が推定されることが期待される。

また沈着量に影響を及ぼす因子として雨水の影響を検討した。ダイオキシン類が雨水により洗い落とされる効果を捕集後のフィルターを水洗したもの和水洗しなかったものについて比較した (図4) と、TEQ で約30%の損失が見られた。風速の吸着量への影響はガス状ダイオキシン類の割合が大きいことより風速の変化を極力少なくすることが効果的であると考えられる。シェルターは、これらの雨水及び風速の影響を排除するのに有効であり、簡易性は損なわれるもののより高い大気中濃度との相関性の確保に寄与すると推察される。また今後スコットフィルターによる捕集データと実際の大気中濃度の比較データを蓄積していくことが重要と考えられた。

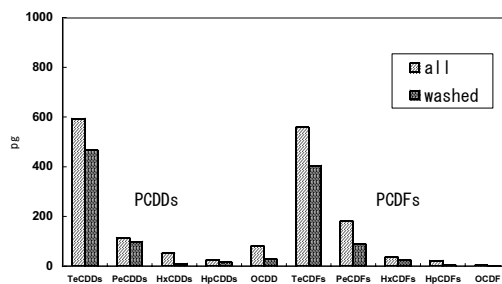


図4 水洗前と水洗後の比較

4 まとめ

大気中のダイオキシン類の植物葉への主要な移行経路であるガス状沈着は、いくつかの疎水性表面で再現されることが分かった。汚染土壌からの影響は、蒸散によるものより植物葉表面への吸着や取り込みの影響が大きいことが推察された。またスコットフィルターの大気中ダイオキシン類の長期計測法への応用を検討した結果、大気中ダイオキシン類の吸着性が大きく、大気中ダイオキシン類濃度を反映する有効な簡易的手法となる可能性が示された。

5 行政的意義、貢献

大気中ダイオキシン類の測定は、ハイボリウムエアースンプラーを用い年4回一週間の測定が公定法として行われているが、代理表面による長期計測法は、より長期的なダイオキシン類の傾向の把握及び電源や機器を必要としないどこでも簡易的に汚染傾向を知る手法として、より多くの地域でハイボリウムエアースンプラー法を補間するものとしての効果が期待される。

文献

- 1) Welsch-Pausch K., Mclachlan M. S., and Umlauf G. . Environ. Sci. Technol. 29. 1090-1098. 1995
- 2) 松枝隆彦, 平川博仙, 飯田隆雄, 黒川陽一, 須田隆一, 第32回大気汚染学会講演要旨集, 476, 1991
- 3) Nakamura M., Matsueda T., Kurokawa Y., Takada S. and Fukamachi K. Organohalogen Compounds. 20. 103-106, 1994
- 4) 松枝隆彦, 黒川陽一, 大野健治, 飛石和大, 馬場義輝, 石黒靖尚, 第12回環境化学討論会講演要旨集, 392-393, 2003

底質中のダイオキシン類の処理に関する研究

研究期間（平成14年度～15年度）

大野健治*, 松枝隆彦*, 黒川陽一*, 飛石和大*, 北直子*, 桜木建治*,
馬場義輝*, 石黒靖尚*

要 旨

平成12年5月に大牟田川下流域の河川水から環境基準を超える濃度のダイオキシン類が検出された。その後の調査で大牟田川中流域の河床から滲出している黒色油状物質が汚染の原因物質であることが明らかとなった。底質の汚染状況を把握するため、平成14年8月及び平成15年5月に川底ボーリング調査、平成16年1月に補足ボーリング調査が実施された。その結果、ダイオキシン類による底質の汚染範囲は、ほぼ川底に限定されていることが判明した。底質のダイオキシン類による汚染状況が明らかになり、汚染底質のダイオキシン類対策が重要な課題となってきた。そこで、ダイオキシン類の処理技術の情報を収集し、底質の処理技術を整理し、大牟田川底質に適用可能と考えられる処理技術の評価を行った。

[キーワード：ダイオキシン類，分解，底質，処理技術]

1 はじめに

平成12年5月に大牟田川下流域の河川水から環境基準(1pg-TEQ/L)をはるかに超える濃度(五月橋:93pg-TEQ/L)のダイオキシン類が検出された。その後の調査で大牟田川中流域の河床から滲出している39万 pg-TEQ/g の高濃度のダイオキシン類を含有する黒色油状物質が、汚染の原因物質であることが判明した。そこで、川底のコンクリート目地止めの応急補修工事が行われ、工事後は大牟田川の水質中ダイオキシン類濃度は低濃度で推移している。平成14年8月及び平成15年5月に底質の汚染状況を把握するため川底のボーリング調査が実施され、川底から深度6m の底質中で最高49,000 pg-TEQ/g(底質の環境基準 150pg-TEQ/g)の高濃度のダイオキシン類による汚染が存在することが明らかとなった。大牟田川中流域にダイオキシン類による底質汚染が広がっていることが推定されたため、平成16年1月に補足ボーリング調査が実施された。その結果、ダイオキシン類による汚染は横方向にはほとんど広がっておらず、汚染範囲はほぼ川底に限定されていることが判明した。今後、抜本的汚染対策として大牟田川川底の高濃度汚染底質の封じ込めあるいは除去、分解処理を実施する場合を想定し、処理技術の情報の収集及び検討、評価を行った。

2 研究方法

ダイオキシン類処理技術に関する情報をインターネットや文献から収集し、企業が保有する処理技術のアンケート調査を実施し、処理技術の内容を整理・検討した。また、横浜市鶴見川などのダイオキシン類土壌汚染対策地の現地調査及び稼働している実証プラントやダイオキシン類の分解処理施設の現地調査を行い、評価の資料とした。

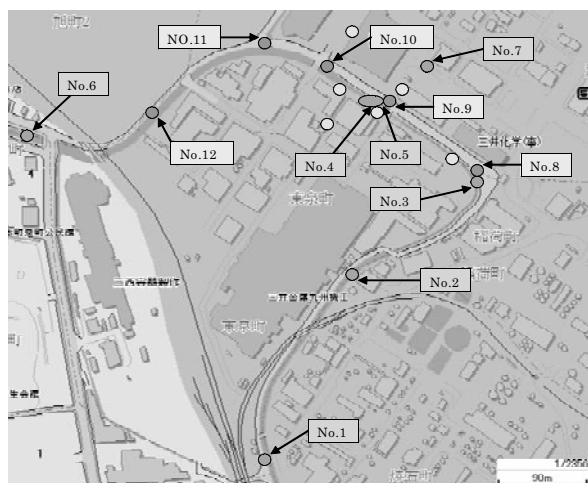


図1 大牟田川ボーリング調査位置

* 福岡県保健環境研究所

(〒818-0135 福岡県太宰府市大字向佐野39)

3 結果及び考察

ダイオキシン類の対策手法としては、汚染底質を掘削除去せず原位置で封じ込める手法と、掘削除去しダイオキシン類を処理する手法がある。また、ダイオキシン類の処理技術には大別すると物理化学的処理法と微生物的処理法がある。物理化学的処理法には土壌、飛灰などに適用された事例が見られるが、微生物的処理法は技術的に確立されておらず、実証事例がないため処理技術の検討から除いた。

大牟田川中流域での処理対象となる底質量は、10,000m³（含水率：10-50%）を超えると推定される。また、底質はダイオキシン類の他、ポリ塩化ビフェニール（PCB）、クロロベンゼン類（CB）及び多環芳香族化合物（PAH）により高濃度に汚染されており、この底質の処理について検討した。

表1 ダイオキシン類処理技術

処理方法	処理技術	特長・問題点	適用性
溶融固化法	プラズマ溶融炉法	①設置に1年間 ②飛灰の処理が必要	△
	間接熱脱着法＋ジオメルト法	①低コスト ②処理物の利用可能 ③可搬式	◎
	直接ガス化溶融法	①高コスト ②処理期間が長い ③飛灰の処理が必要	△
	溶融処理法	①高コスト ②処理期間が長い ③飛灰の処理が必要	△
高温焼却法	セメント焼成法	①高コスト ②DXNsの処理実績なし ③大量処理可能 ④移動不可	△
	キルン熱処理法	①設置に1年間 ②処理期間は短い ③低コスト ④大量処理可能	○
低温熱分解法	間接加熱法＋直接加熱法（ハイセック工法）	①低コスト ②大量処理可能 ③分解率は改善の余地あり ④可搬式	◎
	気相水素還元法（還元熱化学分解法）	①分解率は良好 ②処理期間が長い ③高コスト	△
化学分解法	還元加熱法＋金属Na分散法（RH-SPプロセス）	①DXNsの処理実績あり ②処理能力が小さい ③可搬式	◎
	アルカリ触媒分解法（BCD法）	①PCBでの処理実績多数 ②DXNsの処理実績は少ない	◎
	低温加熱熱化学処理法（ダイオカット法）	①分解率が低い ②高濃度汚染物に未対応 ③可搬式	○
	DCR脱ハロゲン化法	①乾燥必要 ②処理後は粉体 ③大量処理は不向き	○
溶媒抽出法	溶媒抽出法＋金属Na分散法（SP法）	①分解率が低い ②溶媒の揮散 ③可搬式	△

適用性：処理コスト、処理期間、分解率などを考慮して評価した

◎：適用は可能 ○：条件によっては可能 △：適用はかなり困難

企業が保有するダイオキシン類処理技術を、アンケート調査により収集、整理した結果を表1に示す。溶融固化法や高温焼却法のように一段階で処理を行う方法と間接熱脱着法や溶媒抽出法などでダイオキシン類をあらかじめ分離した後、分解処理する方法がある。各処理方法

の特徴は、次のようである。溶融固化法は、ダイオキシン類を完全に処理できるが、エネルギー消費量が大きくコストが高くなることから高濃度・小規模処理に適している。高温焼却法は排ガス処理量が多く装置が大型化するが、連続大量処理が可能な方法である。低温熱分解法及び化学分解法は、コスト的に有利な処理方法であるが、処理規模が小さいものが多く、また、高濃度汚染物では分解率が低下する可能性がある。溶媒抽出法では、溶媒の揮散の恐れや分解率が低いため、直ちに適用することは難しいと考えられる。また、比較的低温で処理する間接熱脱着法、間接加熱法は、処理物の再利用が可能となるメリットがある。処理作業は汚染現場近くで実施されることが望ましく、そのため可搬式の処理施設が開発されている処理技術もある。対策手法によっては、除去した底質の一時保管施設や水分調整・異物除去等の前処理施設の用地の確保が必要となる。このため、処理技術の優劣だけでなく付随する用地の確保等の課題も含めて、総合的に判断する必要がある。

国内のダイオキシン類汚染土壌等の対策事例としては、和歌山県橋本市では汚染土壌をジオメルト法で、鹿児島県川辺町では焼却飛灰を DCR 脱ハロゲン化法で処理を行っている。しかしながら、横浜市鶴見川、東京都大田区などでは、汚染拡大防止のため汚染土壌は一時保管され、現在、処理技術の選定が行われているように、国内でのダイオキシン類対策の実施例は少数にとどまっているのが現状である。

4 まとめ

大牟田川中流域の底質はダイオキシン類の他、ポリ塩化ビフェニール、クロロベンゼン類等に複合汚染されている。また、既存の汚染例と比較して広範囲・高濃度であり、参考となる処理実施例はほとんどない状況にある。大牟田川ダイオキシン類汚染底質の処理技術の選定に当たっては、対策に要する期間、費用、周辺地域への安全性等を考慮し、慎重な判断が必要と考えられる。

5 行政的意義、貢献

汚染対策が実施されるうえで、現在まで得られた大牟田川底質のデータや処理技術情報に基づき、適切な処理が実施され、周辺地域の環境が保全されることが期待される。

文献

- 1) 細見正明：PCB の処理技術，廃棄物学会誌，197-209，2000
- 2) 車田佳範：汚染底質の処理対策技術，環境技術，314-317，2003
- 3) 国土交通省：港湾における底質ダイオキシン類対策技術指針，2003

廃棄物埋立処分場の適正管理に関する研究

研究期間（平成13年度～15年度）

高橋浩司^{*1}，宇都宮彬^{*1}，永瀬誠^{*1}，鳥羽峰樹^{*1}，土田大輔^{*1}，
石黒靖尚^{*1}，堀川和美^{*1}，濱崎光宏^{*1}，世良暢之^{*1}，島岡隆行^{*2}，谷口初美^{*3}

要 旨

産業廃棄物最終処分場における事故や環境汚染事例が発生していることから、その原因解明及び事故防止のための新たな管理手法の確立のための研究を行った。埋立処分場からの硫化水素の発生原因の一つとされている石膏ボードについて、その発生メカニズムを検討した。また、処分場の新たな管理手法として熱赤外線画像装置によるリモートセンシング法及び微生物解析による方法を検討した。熱赤外線画像装置による地表面温度調査を行った結果、有機物分解反応や埋立物の燃焼等に起因する埋立地の温度上昇を確認できた。また、微生物解析では、硫酸還元菌及びメタン生成菌について適切な培養方法を明らかにし、さらにそれらの微生物群集を塩基配列により同定した。このことから、処分場の管理手法として、熱赤外線による地表面温度の測定や微生物解析の有効性が示唆された。

〔キーワード： 廃棄物処分場，硫化水素，メタン，リモートセンシング，土壌微生物〕

1 はじめに

近年、廃棄物埋立処分場において、硫化水素ガスの発生や火災などの事故が相次いで発生している。県内の処分場においてもいくつかの事故の事例が報告されているが、その原因の解明がほとんどなされていない。したがって、処分場における事故に至る要因を検討した。また、事故を未然に防止するため、処分場の新たな管理手法について検討を行った。

2 研究方法

2・1 石膏ボードからの硫化水素発生メカニズムの検討

埋立処分場における硫化水素の発生の主要な原因の一つと推定されている石膏ボードについて、その溶出試験を行い、石膏ボードから溶出する成分を測定した。また、石膏ボード、有機物、緩衝液、及び土壌抽出液をバイアル瓶に入れ、空気を入れないように密栓した後嫌気的条件下で放置し、約1か月後に硫化水素を測定した。

2・2 熱赤外線による管理手法の検討

処分場に有機性の廃棄物が混入して埋め立てられた場合、この有機性廃棄物が微生物により分解され、硫化水素やメタンが発生する。この微生物分解には発熱を伴うため、地表面温度を測定することにより、高温となっている部分を発見し、発熱原因を調査することで、有機物やガスなどによる汚染を未然に防止することが可能になると考えられる。そこで、熱赤外線画像装置を使用して地表面温度の調査を行い、熱赤外線による管理手法の有効性を検討した。

熱赤外線画像装置には CPA7000(チノー)を用いた。また、調査は県内の安定型最終処分場を対象に行い、地上からの調査と上空からの調査を行った。地上からの調査は、処分場内の埋立区画全体を見渡せる位置から熱赤外線画像と写真を撮影して行った。上空からの調査は、県庁環境部監視指導課が県警と合同で年4回行っているヘリコプターによる県内処分場の巡視に同行し、上空約300mの位置から熱赤外線画像を撮影して行った。

*1 福岡県保健環境研究所 (〒818-0135 福岡県太宰府市大字向佐野39)
*2 九州大学大学院工学研究院 (〒812-8581 福岡県福岡市東区箱崎6-10-1)
*3 産業医科大学大学医学部 (〒807-8555 福岡県北九州市八幡西区医生ヶ丘1-1)

2・3 微生物解析による管理手法の検討

処分場の埋立層内では微生物による有機物の分解が起きており、これが層内の酸素濃度、pH や温度などに影響し、最終的に埋立地から流出する浸出水や発生するガスの質、量に大きな影響を与える。したがって、処分場内の土壌の微生物群集を解析することにより、処分場の安全性や安定化の評価が可能になると考えられる。そこで、処分場内の土壌を採取し、培養及び遺伝学的手法を用いて土壌中の微生物群集の解析を行い、微生物解析による管理手法の有効性を検討した。

調査は、産業医科大学が採取した一般廃棄物最終処分場、産業廃棄物最終処分場、不法投棄現場及び対照となる土壌について行った。当研究所では、重金属やダイオキシン類などの理化学試験、硫酸還元菌及びメタン生成菌の培養、培養した菌の16SrDNA 塩基配列決定による微生物群集解析を行った。

3 結果及び考察

3・1 石膏ボードからの硫化水素発生メカニズムの検討

石膏ボードは、主に硫酸カルシウムと紙でできており、用いた石膏ボードの硫酸カルシウムの含有量は81%であった。石膏ボードの溶出試験を行った結果、溶出液には硫酸カルシウムに起因する硫酸イオンが1540mg/l と高い濃度で含まれていた。さらに、BOD が49mg/l であり、有機物も溶出することが分かった。このことは、石膏ボードは硫酸イオンの供給源だけでなく、有機物の供給源にもなることを示している。

硫化水素発生実験の結果、石膏ボードを加えた場合は硫化水素が6.5mg/l 検出され、石膏ボードが硫化水素発生の原因となることが分かった。この硫化水素の発生について、さらに詳細な条件を調べるために、有機物濃度、硫酸塩の濃度及び pH を変えて実験を行った。有機物の影響の結果を図1に示す。溶液中の BOD が上昇するにつれて、発生する硫化水素濃度が大きくなることが分かった。このことは、有機物濃度が高い溶液中ほど微生物の活動が活発になり、硫化水素が多く発生することを示しており、溶液中に硫酸イオンが存在する場合、有機物として BOD が20mg/l 以上あれば、高濃度の硫化水素が発生する危険性があると考えられる。さらに、硫化水素の濃度は、溶液中の硫酸イオン濃度が大きくなるにつれて高く、pH は6～7.6の間で高いことが分かった。

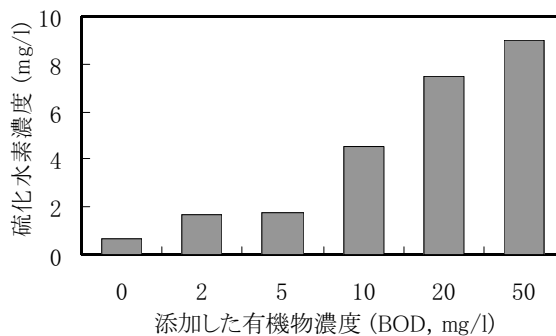


図1 有機物の影響

3・2 熱赤外線による監視手法の検討

3・2・1 地上からの調査

調査を行った処分場Aの法面の写真及び熱赤外線画像を図2に示す。この処分場では、以前から水蒸気が発生していることが確認されており、今回の温度調査の際も水蒸気の発生は継続していた。熱赤外線画像より、法面上に廃棄物表面温度が20～40℃となっている高温部分が確認された。埋立区画の影響を受けない場所の地表面温度は11℃であり、廃棄物表面の最高温度との差は29℃であった。高温部から発生しているガスを測定した結果、メタン11%、アンモニア24ppm が検出され、埋立地内部で微生物による有機物の嫌気性分解反応が起きていると推測された。さらに、地表面の掘削を行ったところ、土壌と廃棄物が黒色に変化しており、嫌気的な状態であることが分かった。また、掘削部から発生するガスの温度は76℃に達しており、さらに一酸化炭素1%が検出された。観測された温度は、微生物生育条件の上限温度である80℃に近く、さらに発生ガス中に一酸化炭素が検出されたことから、廃棄物層内部で埋立廃棄物が燃焼している可能性が考えられた。メタン等の可燃性のガスが発生しており危険であったため、熱赤外線画像により特定された高温部分を要注意箇所とし、地下の廃棄物を除去して、埋立区画に放水するよう管理者に指導した。その結果、一週間経過後には地表面温度の最高温度は30℃前後に低下した。

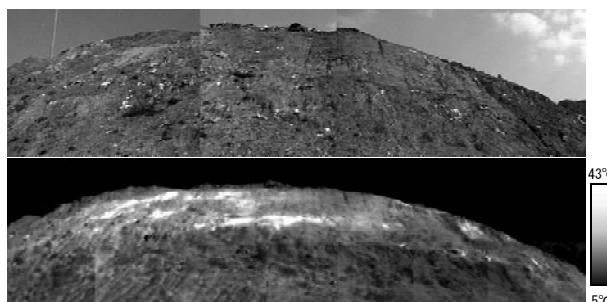


図2 処分場Aの写真(上)及び熱赤外線画像(下)

3・2・2 上空からの調査

調査は、県内の安定型最終処分場6箇所について行った。この6箇所の処分場A～Fの埋立区画及び対照地とした裸地について、それぞれ平均温度を算出して比較した。その結果、覆土のある処分場D～Fの平均温度は21℃であり、裸地の平均温度22℃とほぼ同じであった。一方、覆土のない処分場A～Cの平均温度は30℃であり、裸地の平均温度との差は8℃となった。このうち、処分場Bの上空からの撮影結果を図3に示す。熱赤外線画像から、埋立区画の温度が30～35℃となっていることがわかる。裸地に比べて高温となった処分場A～Cの地表面には、廃プラスチックが露出しており、プラスチックは土壤に比べ比熱が小さいため、太陽光により温まりやすい。調査を行ったのは、晴天日の10～12時という日射の強い時間帯であったことから、地表面の廃プラスチックが太陽光により温められたため、埋立区画の温度が上昇したと考えられた。このように、太陽光により埋立区画が30℃前後に温められている状態では、仮に有機物分解によって発熱している部分があったとしても、その位置を特定することは困難であると考えられる。

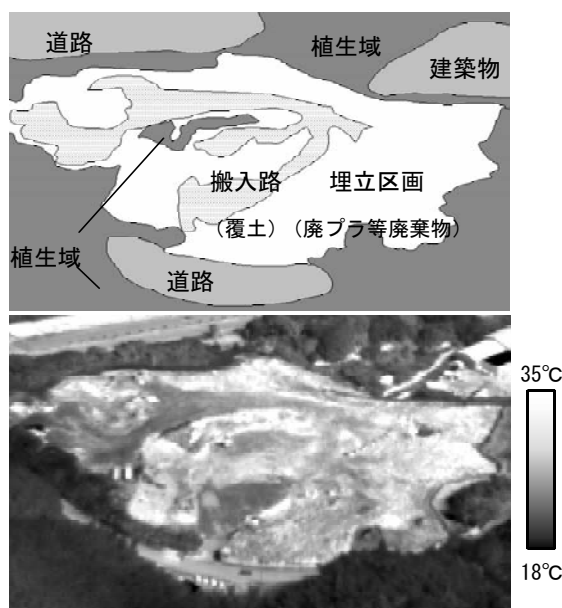


図3 処分場Bの土地被覆(上)と熱赤外線画像(下)

3・3 微生物解析による管理手法の検討

3・3・1 理化学試験

理化学試験として、pH、電気伝導率、重金属、イオン成分及びダイオキシン類等の分析を行った。その結果、硫化水素の発生が問題となっている不法投棄現場や産業廃棄物処分場の土壤では、表層からの深さが深い土壤で硫酸イオンが多く含まれる傾向が見られ、深層の嫌気的な雰囲気の中で硫酸還元菌の活動により硫化水素が発生していることが示唆された。一方、焼却灰が多く処分されて

いる一般廃棄物処分場では、pHが高く、微生物が生育しにくい環境にあると考えられた。ダイオキシン類については、廃棄物処分場の土壤のほうが対照の土壤よりも含有量が高く、焼却灰の影響が考えられた。

3・3・2 硫酸還元菌の培養

硫酸還元菌の土壤中での挙動を把握することを目的として、硫酸還元菌の計数のための培養を行った。用いた培地は、上水道試験方法に掲載されている Postgate の F 培地に乳酸ナトリウムを増やした mISA 培地及び下水道試験方法(1997年版)に掲載されている Postgate の E より乳酸ナトリウムが少なく、チオグリコール酸ナトリウム、アスコルビン酸及びレサズリンを加えた DSMZ medium 63 に酢酸ナトリウムを加えた培地(mDSMZ)を用いた。硫酸還元菌数の測定方法は、液体培地を用いた最確数(MPN)3本法と寒天培地を用いたパウチ法の2法で実施した。測定対象土壤は、不法投棄現場、一般廃棄物最終処分場、産業廃棄物最終処分場及び対照地点の土壤の合計24検体について実施した。

MPN法で測定した硫酸還元菌数の結果を図4に示す。廃棄物による汚染のある土壤では mDSMZ 培地で培養した場合のほうが菌数が高く、対照土壤では mISA 培地での菌数が多かった。採取地点の深さと菌数の関係は、埋立物や土壤の違いのため明確にはならなかった。また、硫酸還元菌数と培養日数の関係は、mISA 培地では24検体中23検体が3、7及び21日培養後の菌数はほぼ同じであったが、mDSMZ 培地ではすべての検体で3日目では培地の黒変は見られず7日目から黒変が観察され、検体の50%は21日目に菌の増殖は平衡に達していたが、50%は21日までは平衡状態の確認はできなかった。

パウチ法での硫酸還元菌数の測定は、培養時間が長くなるとコロニーが大きくなり硫化鉄の黒色反応が広がり培地全体が黒色となるため長期間の培養には不向きであるが、MPN法での菌数とパウチ法での菌数を比べた場合、遜色ない結果が得られ、短期間に簡易的に硫酸還元菌を計測する方法としては有用であることが分かった。

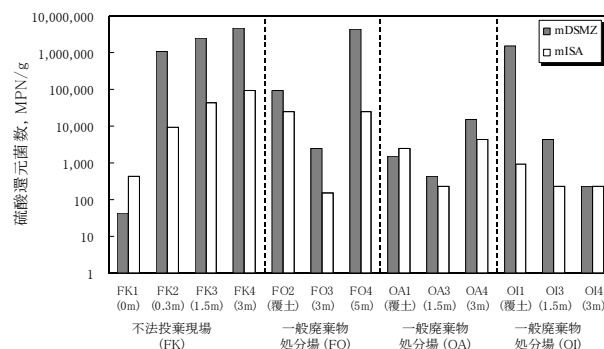


図4 土壤中の硫酸還元菌数

3・3・3 メタン生成菌の培養

土壌中のメタン生成菌を計測することを目的とし、まず土壌中に生息するメタン生成菌数を測定するための培養条件(培地、温度及び期間)について検討を行った。次に、この条件を用いて、7箇所の土壌及び水中に生息するメタン生成菌数の測定を行った。

4箇所の土壌(一般廃棄物処分場2箇所、産業廃棄物処分場及1箇所、不法投棄現場1箇所)を用いて、メタン生成菌を培養する最適条件を求めた。その結果、メタン生成菌数を測定するには、Balch 培地にギ酸、酢酸、メタノール、塩酸トリメチルアミン、塩化カリウム、塩化マグネシウム、塩化アンモニウム、硫酸アンモニウム鉄などを添加した Balch 変法培地で、30℃8週間培養するのが適切であると考えられた。

次に、この条件を用いて7箇所の土壌及び水中に生息するメタン生成菌数を測定した。このうち、不法投棄現場 FK 及び一般廃棄物処分場 FO のメタン生成菌の測定結果を図5に示す。メタン生成菌数は ND ~240,000 MPN/g であり、処分場によって大きな差があることが分かった。さらに、同じ場所の土壌でも、深さによってメタン生成菌数が大きく異なることが明らかとなった。さらに、50℃培養でしかメタン生成菌が計測できない土壌があること、40℃培養のほうが高い値を示す土壌もあることなども明らかとなった。以上のことから、処分場に生息するメタン生成菌数の測定は上記で設定した条件でほぼ測定できるものと考えられるが、処分場の特性を考慮して、組成を少しずつ変える必要性もあることも示唆された。

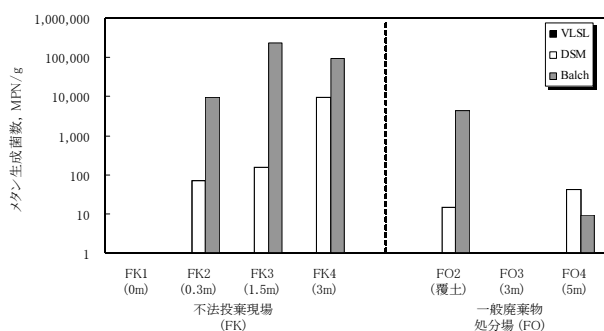


図5 土壌中のメタン生成菌数

3・3・4 16SrDNA塩基配列決定による微生物群集解析

硫酸還元菌及びメタン生成菌の培養を行った液体培地中の微生物群集解析を行った。

硫酸還元菌は、mISA 培地と DSMZ63培地で培養した検体について DNA 抽出を行い、PCR で16SrDNA 領域を

増幅し、その塩基配列から菌種の同定を行った。その結果、土壌から検出された硫酸還元菌は、*Desulfosporosinus* 属及び *Desulfotomaculum* 属の2属のみであった。水からは、*Desulfovibrio* 属、*Desulfomicrobium* 属、*Desulfosporosinus* 属及び *Desulfotomaculum* 属の4属が検出された。DSMZ63培地と mISA 培地で検出効率を比較すると、DSMZ63培地では培養したほとんどの検体から硫酸還元菌を検出することができたが、mISA 培地では培養したいくつかの検体からは硫酸還元菌を検出することができなかった。また、mISA 培地では、DSMZ63培地より *Clostridium* 属の検出率が高い傾向が認められた。以上のことから DSMZ63培地の方が硫酸還元菌の検出に適していると考えられる。

メタン生成菌については、Balch 培地及び DSM 培地を用いて培養し、メタンガスの発生が確認された検体について、その16SrDNA の塩基配列から菌種の同定を行った。その結果、いくつかの検体から *Methanobacterium* 属等4属のメタン生成菌が検出された。しかし、その検出率は、1.5%~6.5%と低いものであった。検出効率を上昇させるために DNA 抽出方法や PCR プライマーの検討が必要と考えられる。

4 まとめ

産業廃棄物最終処分場における事故や環境汚染事例が発生していることから、その原因解明及び事故防止のための新たな管理手法の確立のための研究を行った。硫化水素の発生原因の一つとされている石膏ボードについて、硫化水素発生メカニズムを検討した。また、処分場の新たな管理手法として熱赤外線画像装置によるリモートセンシング法及び微生物解析による方法を検討した。熱赤外線画像装置による地表面温度調査を行った結果、有機物分解反応や埋立物の燃焼等に起因する埋立地の温度上昇を確認できた。また、微生物解析では、硫酸還元菌及びメタン生成菌について適切な培養方法を明らかにし、さらにそれらの微生物群集を塩基配列により同定した。このことから、処分場の管理手法として、熱赤外線による地表面温度の測定や微生物解析の有効性が示唆された。

5 行政的意義、貢献

産業廃棄物処分場における事故防止のための新たな管理手法として、熱赤外線画像装置及び微生物解析による調査方法を提案した。現在実施されている有害物質等の調査に加え、これらの手法を利用することにより、処分場の事故防止のための監視指導や事故時の迅速な対応に寄与できると考えられる。

生活環境中のラドン等の動態と低減化に関する調査研究

研究期間（平成14年度～15年度）

榑崎幸範^{*1}，石橋融子^{*1}，松尾宏^{*1}，床次眞司^{*2}

要 旨

福岡県下の地下水中ラドン濃度は幾何平均値39 Bq/kgであり，北部で高く，南部で低い傾向にあった．温泉の判定に用いられているIM泉効計で測定したラドン濃度は，液体シンチレーションカウンタによる測定値に対して過大に評価される傾向にあることがわかった．一方，ラドンを含む井戸水を使用する家屋における屋内ラドンの分布及び線量評価を行い，井戸水中ラドンが屋内ラドン濃度を高める要因となっていることを示した．また，水中のラドンを効率的に除去するには激しく界面が乱れ，水中から気泡と共に揮散しやすい状態にすることがラドンの低減化に有効であった．

〔キーワード：放射能，放射線，ラドン濃度，線量評価，低減化〕

1 はじめに

ラドンは一般公衆が1年間に受ける被ばく線量の50%（1.2mSv）を占め，肺ガンや胃ガン等の健康影響が懸念されている¹⁾．国内には，鉱泉あるいは療養泉等の医治効果を期待した温泉法上の基準（下限値）がある一方で，生活環境中のラドン被ばくによるリスクという観点での基準値はない．しかし，地下水を飲料する地域の中では，米国環境保護庁の飲料水基準値（11Bq/l）をはるかに超えている地点も認められている²⁾．

本研究は，県内の地下水中ラドン濃度の実態とその分布を調べるとともに，保健物理学的な観点に基づき水中から屋内への移行と空間分布及びラドンの動態とヒトに与える線量評価を行った．さらに，水中ラドン濃度の低減化をはかる目的でラドンの除去方法についても検討を行った．

2 研究方法

（1）1996～2001年にかけて，福岡県下の温泉分析に伴い測定された分析結果（63か所）をもとに，ラドンの地域分布及び地質や地下水中の物理化学的成分との関係について解析した．

（2）水中ラドン濃度測定装置の信頼性確認のために，同一水源から採取したサンプルを用いて，「鉱泉分析法指針」に指定されている2つのラドン分析装置（IM 泉効計，液体シンチレーションカウンタ）及びバブリング装置と電離箱式モニタ（Pulse ionization chamber），バブリング装置と静電捕集式ラドンモニタ（Radon monitor）に

よる比較実験を行った．

（3）ラドン濃度の高い井戸水を使用する家庭における屋内でのラドンの暴露及び線量評価を行うため，パッシブ型ラドン濃度測定器（ラドポット）等を用いて屋内のラドン濃度を測定した．

（4）飲料水中におけるラドンの除去方法として家庭用浄水器，加熱，曝気及びくみ置きによる物理的処理方法を検討した．

3 結果及び考察

（1）福岡県下の地下水中ラドン濃度は1～1,130Bq/kg，対数正規分布を示し，幾何平均値 39Bq/kg であった．ラドン濃度は花崗閃緑岩の地質である筑豊地方及び糸島地方に高く，沖積層や洪積層の堆積物である筑後地方では低濃度であった（図 1）．



図1 IM-泉効計によるラドン濃度の分布と採取場所

ラドン濃度が 10 - 100 Bq/kg (△) , 100 Bq/kg - 300 Bq/kg (○) , 300 Bq/kg - 600 Bq/kg (□) , 600 Bq/kg 以上 (◇) .

*1 福岡県保健環境研究所

(〒818-0135 福岡県太宰府市大字向佐野39)

*2 放射線医学総合研究所

(〒263-8555 千葉県千葉市稲毛区穴川4丁目9番1号)

地下水中ラドン濃度と地下水の湧出量、水温、陽イオン濃度、陰イオン濃度等の物理化学的成分との間に有意な関係はみられなかった。

(2) 4種類のラドン濃度測定装置を用いて、水中のラドン濃度に関する比較実験を行った。液体シンチレーションカウンタの測定値に対する各装置の測定値の比を表1に示す。試料A、Bのいずれでも、IM 泉効計を除くと3種類の装置の差は±3%以内であった。しかし、IM 泉効計は液体シンチレーションカウンタに対し過大に評価される傾向にあり、校正方法の検討を含めた測定法の見直しが必要であると思われる。

表 1 異なる装置で測定された水中ラドン濃度の比較

Sample	Liquid scintillation counter	IM-fontactoscope		Pulse ionization chamber		Radon monitor	
	Measured value (Bq/l)	Measured value (Bq/l)	Ratio	Measured value (Bq/l)	Ratio	Measured value (Bq/l)	Ratio
A	231 ± 4	339	1.47	231 ± 7	1.00	223 ± 7	0.97
B	908 ± 7	1110	1.22	928 ± 6	1.02	—	—

(3) ラドン濃度353 Bq/l を含む井戸水を、主として風呂場で使用している木造モルタル平屋造りの屋内ラドン濃度、水中ラドン濃度及び土壤中核種濃度等を測定し、屋内ラドン濃度を高める要因を検討するとともにラドン濃度の分布並びに線量評価を行った。

調査家屋の間取り及び年間を通して測定した各部屋のラドン濃度を図2、表2に示す。

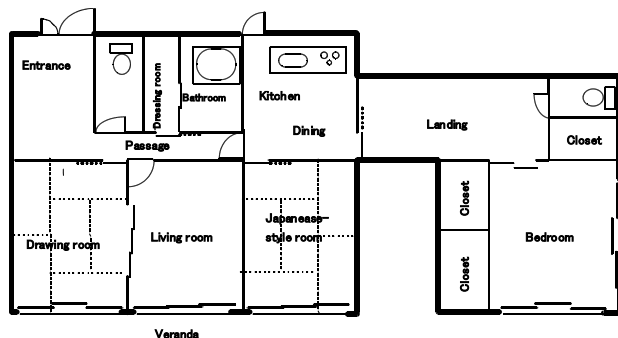


図 2 調査家屋の間取り

表 2 年間ラドン濃度及びラドン濃度の長期変動と空間分布

Installation place	Start	End	Radon concentration (Bq/m³)									
			Nov-2001	Jan-2002	Mar-2002	May-2002	Jul-2002	Sep-2002	Nov-2002	Jan-2003		
Investigated house	Bath room	42	65	184	64	53	98	36				
	Dressing room	46	33	169	39	61	68	52				
	Living	24	25	36	23	22	14	20				
	Kitchen	33	52	46	18	26	43	27				
	Bed room	14	21	24	31	28	27	25				
Control house-1	Post	5	7	5	8	2	7	13				
	1 Bath room	24	17	23	15	17	23	20				
	Living	39	45	37	24	37	47	36				
	Bed room	30	32	32	30	25	34	37				
	Post	12	23	25	2	17	7	8				
Control house-2	2 Bath room	22	9	10	9	7	14	15				
	Living	11	10	13	7	2	14	13				
	Bed room	10	12	6	12	10	8	10				
	Post	20	15	15	10	3	8	10				
	3 Bath room	14	6	18	9	6	19	14				
Control house-3	Living	7	23	6	14	13	21	15				
	Bed room	9	10	10	23	12	12	14				
	Post	5	6	6	7	4	10	12				

ラドン濃度の空間的な分布は大きく、年間の算術平均濃度は45±37 Bq/m³であった。年間のラドン濃度から求めた調査家屋における在宅時の平均的な実効線量は0.88 mSv/yと見積もられた。

この値はわが国のラドンによる年間実効線量0.46mSvに対し約2倍の線量に相当した。

屋内生活の大部分を占める居間及び寝室でのラドン濃度は諸外国の規制値よりも低い値であったが、浴室でのラドン濃度は最高184Bq/m³であったほか、脱衣所内のラドン濃度は井戸水使用時に964 Bq/m³を検出した。

(4) 飲料水中におけるラドンの除去方法として家庭用浄水器、加熱、曝気及びくみ置きによる物理的处理方法を検討した。ろ過材に粒状活性炭(370g)を使用した浄水器ではラドンの除去効果が認められたが、その効果は通水量に従い徐々に低下した。希ガスであるラドンは温度の上昇とともに溶解度は低下し、水中の濃度は減少した。しかし、加熱操作だけでは十分な除去効果は得られなかった。ラドンを完全に除去するには沸騰や曝気することが有効であった(図3,4)。

したがって、一般的には使用前に沸騰させることで米
国環境保護庁の飲料水基準値(11 Bq/l)以下に除去できるものと思われる。

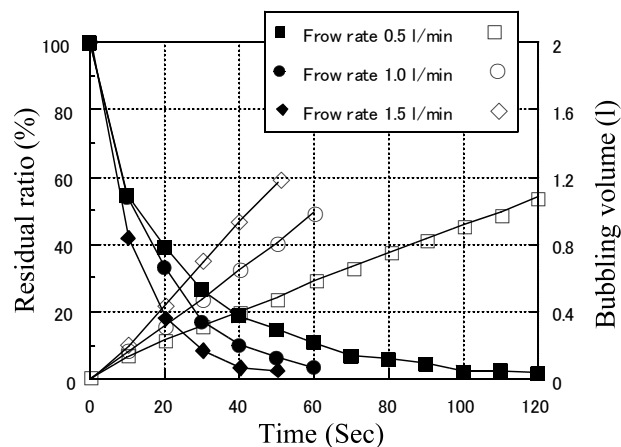


図 3 加熱によるラドンの除去

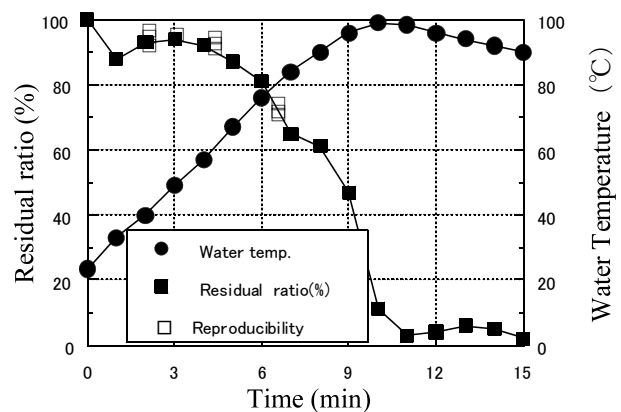


図 4 曝気によるラドンの除去

4 まとめ

(1) 福岡県下の地下水中ラドン濃度は花崗閃緑岩の地質である北部で高く、沖積層や洪積層の堆積物である南部で低い傾向が認められた。

(2) IM 泉効計で測定したラドン濃度は過大評価される傾向にあるため、液体シンチレーションカウンタ等への変更が望まれる。

(3) 水中ラドン濃度の高い井戸水を使用する家屋では、在宅時の実効線量が増加する可能性があることを示した。

(4) 水中のラドンを効率的に除去するには激しく界面が乱れ、水中から気泡と共に揮散しやすい状態にすることがラドンの低減化に効果的であることがわかった。

5 行政的意義, 貢献

文部科学省において、生活環境中のラドンに対するガイドラインが検討されている。本研究は、福岡県内におけるラドンによる被ばく線量の現状を明らかにし、ガイドライン作成の資料となるものである。また、生活環境中の濃度レベル、変動及び挙動等の実態を解明し、実効線量を推定することを可能とした。さらに、除去方法を提示することによって県民の安全と健康に寄与する。

文献

- 1) United Nations Scientific Committee on the Effectsof Atomic Radiation;Sources and effects of ionizingradiation, United Nations, New York (1993).
- 2) Y. YASUOKA and M. SHINOI; Determination of Radon concentrations in natural water in the Rokko area and evaluation of its effective dose, Radioisotopes, 49, 551 - 557 (2000).

3 論文・学会等への発表

(1) 論文等発表一覧

論 文 名	執 筆 者	掲 載 誌	抄録掲載頁
防音壁の遮音性能に及ぼす音源指向性の影響	松本源生, 藤原恭司* * 九州大学	超音波テクノ, Vol. 15, No. 5, 93-97, 2003.	P 155
Uptake of polychlorinated dibenzo- <i>p</i> -dioxins and furans in plant leaves	Takahiko Matsueda, Yoichi Kurokawa, Hironori Hirakawa, Ryuichi Suda and Takao Iida	福岡県保健環境研究所年報 第30号, 103-108, 2003.	P 155
A Longitudinal Analysis on the Association of Serum Lipids and Lipoproteins Concentrations with Blood Polychlorinated Biphenyls level in Chronic "Yusho" Patients	Shoji Tokunaga * and Kyoichiro Kataoka * 九州大学	福岡医学雑誌 94(5), 110-117, 2003.	P 155
殺菌効力試験用検査材料として提出された消毒薬に混入していたセラチア菌	堀川和美	日本防菌防黴学会雑誌, Vol. 31, 39-40, 2003.	P 155
<i>Vibrio cholerae</i> O8感染事例ー福岡県	堀川和美, 村上光一, 長野英俊, 濱崎光宏, 石黒靖尚, 荒川英二 ^{*1} , 渡邊治雄 ^{*1} , 近藤正治 ^{*2} , 森田繁 ^{*2} , 原一美 ^{*2} , 江崎泰之 ^{*3} *1 国立感染症研究所 *2 久留米臨床検査センター *3 えさき小児科・内科医院	病原微生物検出情報, Vol. 25, No. 287, 8, 2004.	P 156
Structure activity relationship between Salmonella-mutagenicity and nitro-orientation of nitroazaphenanthrenes	Hiroshi Tokiwa ^{*1} , Nobuyuki Sera, Kiyoshi Fukuhara ^{*2} , Hideo Utsumi ^{*3} , Shigeki Sasaki ^{*3} and Naoki Miyata ^{*4} *1 Kyushu Women's University *2 National Institute of Health Sciences *3 Kyushu University *4 Nagoya City University	Chemico-Biological Interactions, Vol. 146, 19-25, 2003.	P 156
GC/MS による農作物中残留農薬の一斉分析法の検討	芦塚由紀, 中川礼子	福岡県保健環境研究所年報 第30号, 109-116, 2003.	P 156
油症患者血中ダイオキシン類レベルの追跡調査 (2001年)	飯田隆雄, 戸高尊 ^{*1} , 平川博仙, 飛石和大, 松枝隆彦, 堀就英, 中川礼子, 古江増隆 ^{*2} *1 日本食品衛生協会, *2 九州大学	福岡医学雑誌 94(5), 126-135, 2003.	P 156
血中 PCB パターン判定における従来法と異性体別分析法の同等性について	中川礼子, 芦塚由紀, 堀就英, 平川博仙, 飛石和大, 飯田隆雄	福岡医学雑誌 94(5), 144-147, 2003.	P 157
Measurement of blood dioxin in human blood : Improvement of analytical Method	Takao iida and Takashi Todaka * * Japan Food Hygiene Association	Industrial Health Vol. 41 No. 3, 197-204, 2003.	P 157

論文名	執筆者	掲載誌	抄録掲載頁
New protocol of Dioxins analysis in human blood	Takashi Todaka *, Hironori Hirakawa, Kazuhiro Tobiishi and Takao Iida * Japan Food Hygiene Association	福岡医学雑誌 94(5), 148-157, 2003.	P 157
Frequency of SCEs in Japanese Infants Lactationally Exposed to Organochlorine Pesticides	Junya Nagayama * ¹ , Mayumi Nagayama * ¹ , Reiko Nakagawa, Hironori Hirakawa, Takahiro Matsueda Takao Iida and Jun'ichiro Fukushima * ² *1 Kyushu University *2 Fukuoka Children's Hospital	福岡医学雑誌 94(5), 166-173, 2003.	P 157
SO ₂ , NO _x を除去できる新しい高活性炭素繊維	下原孝章	「図解 エコマテリアルのすべて」ー環境新材料研究会編ー, 工業調査会	P 158
福岡県における室内化学物質の実態調査	力寿雄, 柳川正男, 濱村研吾, 大石興弘, 岩本眞二, 中村又善	福岡県保健環境研究所年報 第30号, 117-124, 2003.	P 158
Mutagenic activity in roadside soils	Hiroko Tsukatani, Yoshito Tanaka, Nobuyuki Sera, Nobuhiro Shimizu, Shigeji Kitamori and Naohide Inoue * * Kyushu University	The Journal of Toxicological Sciences, Vol. 27, No. 3, 183-189, 2002.	P 158
Validity of mutagenic activity as an indicator of river water pollution	Hiroko Tsukatani, Yoshito Tanaka, Nobuyuki Sera, Nobuhiro Shimizu, Shigeji Kitamori, Naohide Inoue * * Kyushu University	Environmental Health and Preventive Medicine, Vol. 8, No. 4, 133-138, 2003.	P 158
博多湾におけるホトトギスガイが貧酸素水塊に与える影響	熊谷博史, 山崎惟義* ¹ , 渡辺亮一* ¹ , 藤田健一* ² *1 福岡大学, *2 九州環境管理協会	環境工学研究論文集, Vol. 40, 595-606, 2003.	P 159
工場排水処理施設に関する技術相談事例 ー味噌製造事業場の活性汚泥の管理と全リンの関係ー	熊谷博史, 志水信弘, 永淵義孝, 松尾宏, 中村又善, 若松美知子* * 山門保健福祉環境事務所	福岡県保健環境研究所年報 第30号, 142-147, 2003.	P 159
Seasonal variation of ⁷ Be deposition in Japan	Yukinori Narazaki, Kazunobu Fujitaka * ¹ , Shuichi Igarashi * ² , Yoichi Ishikawa * ³ , Naoto Fujinami * ⁴ *1 National Institute of Radiological Sciences *2 Fukui Prefectural Environmental Radiation Monitoring Center *3 Environmental Radioactivity Research Institute of Miyagi *4 Kyoto Prefectural Institute of Hygienic and Environmental Sciences	Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 256, 489-496, 2003.	P 159
福岡県における ⁹⁰ Sr 及び ¹³⁷ Cs の濃度分布と推移 (1989~2000年)	檜崎幸範, 田上四郎	保健物理, 38, 148-153, 2003.	P 159

論文名	執筆者	掲載誌	抄録掲載頁
降下物中の放射能測定における大陸起源エアロゾルの影響（第2報）	石川陽一 ^{*1} , 木立博 ^{*1} , 伊藤節男 ^{*1} , 佐々木俊行 ^{*1} , 檜崎幸範, 田上四郎, 鈴木利孝 ^{*2} *1 宮城県原子力センター, *2 山形大学	宮城県原子力センター年報, 第20巻, 5-9, 2004.	P 160
Bio-kinetics of radon ingested from drinking water	Tetsuo Ishikawa ^{*1} , Yukinori Narazaki, Yumi Yasuoka ^{*2} , Shinji Tokonami ^{*1} , Yuji Yamada ^{*1} *1 National Institute of Radiological Sciences *2 Kobe Pharmaceutical University	Radiation Protection Dosimetry, 105, 65-70, 2003.	P 160
地下水中ラドン濃度測定装置の比較ー液体シンチレーションカウンタ, IM 泉効計, 電離箱, ラドンモニタで得られた結果ー	石川徹夫 ^{*1} , 安岡由美 ^{*2} , 檜崎幸範, 床次眞司 ^{*1} , 石井忠 ^{*3} , 須田博文 ^{*4} , 山田裕司 ^{*1} *1 放射線医学総合研究所 *2 神戸薬科大学 *3 山梨大学 *4 香川大学	Radioisotopes, 53, 21-28, 2004.	P 160
電解法による地下水中の硝酸性窒素の基礎的除去実験	松尾宏, 笹尾敦子, 永淵義孝, 石橋融子, 西川雅高	福岡県保健環境研究所年報 第30号, 131-136, 2003.	P 160
電気透析装置と生物脱窒装置による硝酸性窒素汚染地下水のオンサイト浄化	馬場義輝, 松尾宏, 石橋融子, 永淵義孝, 高橋洋子, 野中信一, 平田健正, 西川雅高	水環境学会誌 26 (6), 361-367, 2003.	P 161
福岡県における林地からの BOD, COD, 全窒素及び全リンの流出負荷	永淵義孝, 松尾宏, 佐々木重行	福岡県保健環境研究所年報 第30号, 125-130, 2003.	P 161
The mutagenicity of amino-derivatives of diphenyl ether herbicides in new Salmonella typhimurium YG tester strains	Yoshito Tanaka, Nobuhiro Shimizu, Hiroko Tsukatani, Nobuyuki Sera and Shigeji Kitamori	Water Science and Technology, 46(11-12), 395-400, 2002.	P 161
Estimation of organophosphoric acid triesters in soft polyurethane foam using a concentrated sulfuric acid dissolution technique and gas chromatography with flame photometric detection	Makoto Nagase, Mineki Toba, Hiroyuki Kondo, Akio Yasuhara ^{*1} and Kiyoshi Hasebe ^{*2} *1 National Institute for Environmental Studies, *2 Fuji Women's University	Analytical Sciences, Vol. 19, No. 12, 1617-1620, 2003.	P 161
福岡県内小河川の大型底生動物相	山崎正敏, 緒方健, 杉泰昭	福岡県保健環境研究所年報 第30号, 148-158, 2003.	P 162
福岡県下の河川源流部の大型底生動物相	緒方健, 杉泰昭, 山崎正敏	福岡県保健環境研究所年報 第30号, 159-166, 2003.	P 162
中・小型の水生カメムシ目を用いた生態影響評価試験	緒方健	日本環境毒性学会（編）, 生態影響試験ハンドブック, 朝倉書店, pp163-170, 2003.	P 162
計（論文等発表一覧）	31 件		

(2) 発表論文抄録

1 防音壁の遮音性能に及ぼす音源指向性の影響

松本源生, 藤原恭司*: 超音波テクノ, Vol. 15, No. 5, 93-97, 2003.

防音壁の挿入損失を音源の指向性を考慮して検討した。まず, 大きさを無視できない指向性音源の例として, 建物からの外壁透過音を取り上げた。内部を拡散音場と仮定し, 透過音を外部音場への音源として境界要素法を適用する2次元音場モデルにより, 防音壁の挿入損失が精度良く再現できることを示した。

また, 厚みが十分薄く剛な障壁に関して, 音源指向性が防音壁の遮音効果に及ぼす影響について検討した。その結果, 大きさが十分小さく, しかもエッジまでの距離で指向性が安定する音源に対しては, 無指向性音源と比較した挿入損失の差が, 指向性音圧レベル差により近似されることを示し, 簡易導出式を提案した。近似の精度は, 仰角が大きくなるほど小さくなるが, 地面近傍では問題ない精度であることを確認した。

* 九州大学

2 Uptake of polychlorinated dibenzo-*p*-dioxins and furans in plant leaves

Takahiko Matsueda, Yoichi Kurokawa, Hironori Hirakawa, Ryuichi Suda and Takao Iida: 福岡県保健環境研究所年報, 第30号, 103-108, 2003.

樹木の葉への PCDDs と PCDFs の蓄積のメカニズムを明らかにするため, 2種類の落葉樹 (イチョウとアメリカフウ) について, PCDDs と PCDFs の濃度の経時変化を調べた。発芽直後の新芽に比較的高濃度の PCDDs 及び PCDFs が検出された。イチョウは出芽後27日まで, アメリカフウは55日まで濃度の減少が見られたが, その後, 濃度の上昇が観察された。この濃度変化は短枝の外皮から芽へのダイオキシンの移動とその後の葉の急成長による希釈及び大気からの沈着によるものと考えられた。

新芽の大気への暴露期間が短いため, 新芽中のダイオキシンは大気由来とは考えられない。この見解の妥当性を評価するために, 短枝部位の冬芽, 茎及び表皮に分割して, 各々の部分の PCDDs 及び PCDFs の濃度と同属体パターンを解析した。その結果, 新芽に含まれる PCDDs 及び PCDFs の由来は表皮からの移行と推定された。土壌中の PCDDs 及び PCDFs は根を経由して葉に濃縮されないと考えられていることから, 表皮に含まれる PCDDs 及び PCDFs は葉に蓄積されたものが落葉前に移行したのと考えられた。

3 A Longitudinal Analysis on the Association of Serum Lipids and Lipoproteins Concentrations with Blood Polychlorinated Biphenyls level in Chronic "Yusho" Patients

Shoji Tokunaga *, Kyoichiro Kataoka: 福岡医学雑誌, 94(5), 110-117, 2003.

1986年から2000年までの15年間の全国油症患者追跡検診の結果をもとに, 福岡県と長崎県で観察期間中5回以上受診した認定患者について, 経時的に繰り返し測定された血中 PCB 濃度と総コレステロール, HDL コレステロール及び中性脂肪との関連を統計学的に考察した。その結果, 血中 PCB 濃度が10倍になると血清コレステロール濃度が男で18.4mg/dl, 女で19.7mg/dl 上昇し, 血清中性脂肪濃度が男性で43.4%, 女で42.8%上昇すると推定された。

* 九州大学

4 殺菌効力試験用検査材料として提出された消毒薬に混入していたセラチア菌

堀川和美: 日本防菌防黴学会雑誌, 31, 39-40, 2003.

1988年殺菌効力試験用検査材料として提出された塩化ベンザルコニウム10%液に, 開封前から細菌によって汚染していた事例があった。被検材料の汚染菌は腸内細菌科に属するグラム陰性のセラチア菌で, 汚染菌数は, 9×10^3 cfu/ml であった。セラチア菌は院内感染症の原因菌としても重要である。また本菌は抗生物質や消毒薬に対して耐性を示すことでも知られている。分離菌は市販塩化ベンザルコニウム液の8%液 (最終濃度0.8%液) でも殺菌効力がみられなかった。

5 *Vibrio cholerae* O8感染事例－福岡県

堀川和美，村上光一，長野英俊，濱崎光宏，石黒靖尚，荒川英二^{*1}，渡邊治雄^{*1}，近藤正治^{*2}，森田繁^{*2}，原一美^{*2}，江崎泰之^{*3}：病原微生物検出情報，25（287），8，2004

2003年8月21日に *Vibrio cholerae* O8感染患者が発生し，当該菌はコレラ毒素産生遺伝子を保有していた．現在，感染症法2類感染症として取り扱っているコレラは *Vibrio cholerae* O1及び139型の2型である．しかし，これら2型以外の *Vibrio cholerae* にもコレラ毒素産生遺伝子保有株があり，今後2類感染症としての取り扱いについて検討する必要があると考えられた．

*1 国立感染症研究所

*2 久留米臨床検査センター

*3 さえき小児科・内科医院

6 Structure activity relationship between Salmonella-mutagenicity and nitro-orientation of nitroazaphenanthrenes

Hiroshi Tokiwa ^{*1}，Nobuyuki Sera，Kiyoshi Fukuhara ^{*2}，Hideo Utsumi ^{*3}，Shigeki Sasaki ^{*3}，Naoki Miyata ^{*4}：Chemico-Biological Interactions，146，19-25，2003．

ニトロアザフェナンスレン誘導体7種類，ニトロアザフェナンスレンオキシド誘導体12種類について，変異原性（TA98，TA100，TA98NR，TA98/18DNP₆，YG1021，YG1024，YG1026，YG1029）を測定し，物理化学的性状との関連について検討した．その結果，変異原性は母骨格に置換する置換基の置換角度と関連することが明らかとなった．

*1 Kyushu Women's University

*2 National Institute of Health Sciences

*3 Kyushu University

*4 Nagoya City University

7 GC/MSによる農作物中残留農薬の一斉分析法の検討

芦塚由紀，中川礼子：福岡県保健環境研究所年報，第30号，109-116，2003．

農作物中の残留農薬スクリーニング法として，アセトニトリル／水抽出及び固相抽出管精製によるGC/MSの一斉分析法を検討した．リン系，塩素系，カーバメート系，ピレスロイド系等の計97農薬について，オレンジ，キュウリ，玄米を用いた添加回収試験（n=5）をそれぞれ2段階の濃度で行った．その結果，72農薬で，残留農薬分析法の標準的目安である70%－120%の良好な回収率が得られ，スクリーニング法としての有用性が示された．また，本法を用いて，県内で購入した果実7検体，野菜15検体を調査した結果，果実ではブドウ1検体とイチゴ3検体から，野菜では，ナス，ピーマン，白菜の各1検体から農薬が検出された．検出された農薬は，アセタミプリド，ピリダベン，フェナリモル，フルバリネート，アセフェート，ジエトフェンカルブ，イプロジオン，フェンバレーレートで，いずれも農薬の残留基準値以下の濃度であった．

8 油症患者血中ダイオキシン類レベルの追跡調査（2001年）

飯田隆雄，戸高尊^{*1}，平川博仙，飛石和大，松枝隆彦，堀就英，中川礼子，古江増隆^{*2}：福岡医学雑誌，94（5），126-135，2003．

平成13年度に油症患者78名からインフォームドコンセントを得て採取された血液からダイオキシン類を測定した．この分析は，我々が開発した5mlの血液からダイオキシン類を検出測定する超微量高感度迅速分析法で行った．PCBのガスクロマトグラムパターン（GC-パターン）がAタイプを示す20名の総TEQ濃度の平均値は370pg TEQ/g lipid，Bタイプを示す31名は370pg TEQ/g lipid，Cタイプを示す25名は66pg TEQ/g lipidは29pg TEQ/g lipidであった．GCパターンがAおよびBタイプの患者は一般人と比べて血中ダイオキシン類濃度がかなり高いが，Cタイプの患者は一般人と同程度の値であった．血中ダイオキシン類TEQ濃度の内訳（PCDDs：PCDFs：non-ortho PCBs：mono-ortho PCBs）はAタイプ及びBタイプの内訳はほとんど同じで，これは一般人のそれとは大きく異なっていた．他方，Cタイプの内訳は一般人のそれに類似していた．

*1 社団法人 日本食品衛生協会

*2 九州大学

9 血中PCBパターン判定における従来法と異性体別分析法の同等性について

中川礼子, 芦塚由紀, 堀就英, 平川博仙, 飛石和大, 飯田隆雄: 福岡医学雑誌, 94(5), 144-147, 2003.

油症患者の血中 PCB のパターン判定について, 従来法であるパックドカラム-電子捕獲型検出器 (ECD) 付きガスクロマトグラフ (GC) (標準品として KC-500:KC-600=1:1の混合溶液を用いたパターン合わせ法) とキャピラリーカラム-GC/高分解能質量分析計 (HRGC/HRMS) による異性体別分析法との同等性について検証した. パターン判定は, A 又は B パターンについては98.2%, C パターンについては94.3%の一致率を示し, 両者の方法で同等性が認められた. これにより, より毒性評価が正確にできる異性体別分析法への移行が可能であることが示された.

10 Measurement of blood dioxin in human blood : Improvement of analytical Method

Takao iida and Takashi Todaka *: Industrial Health, Vol. 41 No. 3, 197-204, 2003.

日本全国の油症患者の血中ダイオキシン濃度を迅速に測定するため, 高速溶媒抽出法, 大量溶媒注入装置付き GC/MS 及びカラムクリーンアップ系のダウンサイジングによる超微量迅速底療法を確立した. 現在, 油症患者約400名の血中ダイオキシンをこの方法によって分析中である.

* Japan Food Hygiene Association

11 New protocol of Dioxins analysis in human blood

Takashi Todaka *, Hironori Hirakawa, Kazuhiro Tobiishi and Takao iida: 福岡医学雑誌, 94(5), 148-157, 2003.

5g の血液量でダイオキシン類分析を可能にする測定系および血液試料の前処理法を検討した. すなわち, 高速溶媒抽出装置による血液試料からの脂質の抽出法, 従来法の1/4スケールでのカラムクリーンアップ法および大量溶媒注入装置 (SCLV InjectionSystem) を装備した HRGC/HRMS を用いて高感度測定の一連の分析方法について検討し, 超高感度迅速分析法を確立した. 大量溶媒注入装置の装備により HRGC/HRMS の相対感度は10倍程度向上した. 同一の血液を用いて行った従来法との比較検討結果から, 5g の血液量でダイオキシン類濃度が十分測定可能であることが確認された. さらに, 従来法に比べ血液試料の前処理段階で費やす時間を大幅に短縮することができた. 本法は5g程度の少量の血液量でダイオキシン類を測定できるだけでなく, 多数のサンプルを効率よく, かつ迅速に処理するのに効果的な方法である.

* Japan Food Hygiene Association

12 Frequency of SCEs in Japanese Infants Lactationally Exposed to Organochlorine Pesticides

Junya Nagayama *¹, Mayumi Nagayama *¹, Reiko Nakagawa, Hironori Hirakawa, Takahiro Matsueda Takao Iida and Jun'ichiro Fukushima *²: 福岡医学雑誌, 94(5), 166-173, 2003.

ヒト母乳中には様々な化学汚染物質が残留していることがわかっている. 今回, 健康な母親から採取した母乳中に残留する DDT, HCH 等の農薬濃度と授乳を受けた乳児の血液中 SCE の105組について, その相関を調べた. その結果, DDT や HCH の増加によって, SCE が影響を受けており, 何らかの遺伝毒性があることが示唆された.

*¹ Kyushu University

*² Fukuoka Children's Hospital

13 SO₂, NO_xを除去できる新しい高活性炭素繊維

下原孝章：「図解 エコマテリアルのすべて」－環境新材料研究会編－，工業調査会，p.230-235，2003.

高活性炭素繊維は光照射を必要とせず，室温付近の温度で，環境空気中の窒素酸化物，二酸化硫黄，微量化学物質などを吸着，除去する優れた能力をもっている．また，最近になって，高活性炭素繊維は窒素酸化物を無害な窒素ガスと水に分解できる触媒的な作用をもつことが分かってきた．現在，独立行政法人 環境再生保全機構（旧「公害健康被害補償予防協会」）からの受託研究として，九州大学との共同研究によりその浄化機能を向上させるための技術改良，実証化に向けた調査研究を行っている．

14 福岡県における室内化学物質の実態調査

力 寿雄，柳川正男，濱村研吾，大石興弘，岩本眞二，中村又善：福岡県保健環境研究所年報，第30号，117-124，2003.

新築住宅における総揮発性有機物(TVOC; Total volatile organic compounds)を様々な分析方法で測定することにより，TVOCについて，測定方法の確立，実態の把握を目的とした調査を福岡県内の全15戸の住宅において実施した．揮発性有機化合物(VOC; Volatile organic compounds)については，アクティブ法により116成分が定量可能であったが，テルペン類の定量には2種類の捕集管の併用が必要であった．また，パッシブ法によりハロゲン化炭化水素類やエステル類の空气中濃度を推測することが可能であった．本調査結果から，TVOC値の高い住宅は築3ヶ月以内の新築住宅が中心であったが，石油系暖房器具の使用の影響もあると推察された．また，室内空气中主要物質について，人の1日吸入暴露量の推定を行った．

15 Mutagenic activity in roadside soils

Hiroko Tsukatani, Yoshito Tanaka, Nobuyuki Sera, Nobuhiro Shimizu, Shigeji Kitamori, Naohide Inoue* : The Journal of Toxicological Sciences, Vol. 27, No. 3, 183-189, 2002.

久留米市内幹線道路の中央分離帯，歩道及び道路沿い公園内の土砂試料の変異原活性を Ames テストにより調査した．また，多環芳香族炭化水素類 (PAHs) 及び重金属濃度も調べた．その結果，ネズミチフス菌 TA98, TA100株に対して変異原活性が認められ，変異原活性が高いものほど PAHs, 重金属濃度も高くなる傾向がみられた．また，YG 株でより高い活性を示したことから，ニトロアレーン，ヒドロキシルアミンの存在が示唆された．さらに，中央分離帯，歩道，公園内の順に変異原活性，PAHs 及び重金属濃度が低くなる傾向がみられ，樹木による影響あるいは距離による減衰が考えられた．

* Kyushu University

16 Validity of mutagenic activity as an indicator of river water pollution

Hiroko Tsukatani, Yoshito Tanaka, Nobuyuki Sera, Nobuhiro Shimizu, Shigeji Kitamori, Naohide Inoue* : Environmental Health and Preventive Medicine, Vol. 8, No. 4, 133-138, 2003.

変異原性試験の水質汚濁指標としての重要性を明らかにするために，九州北部地域の河川で採取したブルーレーヨン抽出物の変異原活性を調べ，従来の水質汚濁指標の値との比較を行った．試料抽出物の中でネズミチフス菌 YG1024, YG1041株に対して他の試料よりも高い変異原活性を示すものが確認された．今回の試料について，変異原活性と従来の水質汚濁指標との間には特に相関はみられなかったことから，従来の水質汚濁指標により変異原活性を予測することは困難であることが示唆された．これらの結果から，変異原性試験のような生物試験による評価は水質汚濁指標として重要であると考えられた．

* Kyushu University

17 博多湾におけるホトトギスガイが貧酸素水塊に与える影響

熊谷博史, 山崎惟義^{*1}, 渡辺亮一^{*1}, 藤田健一^{*2}:

環境工学研究論文集, 40, 595-606, 2003.

博多湾におけるホトトギスガイの消長の挙動を知るため, その分布を調査した. ホトトギスガイは貧酸素水塊の発生しない条件下で年間9割近くが死亡していた. また, 得られた殻長-個体数分布をもとに個体数の数値計算を行い, おおむねその季節変化を再現できた. さらに, 殻長-乾燥身質量のアロメトリー式を用いて, 各地点・各月のホトトギスガイの死亡数・乾燥死亡質量を算定したうえで, ホトトギスガイの CNP 含有量を用いて, それらを好氣的に分解する上で必要な酸素量を推定した. その結果, 晩秋に起こる貧酸素水塊によるホトトギスガイの絶滅は貧酸素水塊の二次的被害を拡大することが想定された.

*1 福岡大学

*2 九州環境管理協会

18 工場排水処理施設に関する技術相談事例-味噌製造事業場の活性汚泥の管理と全リンの関係-

熊谷博史, 志水信弘, 永淵義孝, 松尾宏, 中村又善, 若松美知子*: 福岡県保健環境研究所年報, 第30号, 142-147, 2003.

全リンの排水基準値を超過した味噌製造業者の原因究明を行うために排水処理調査を行った. 各工程の排水及び排水処理施設の活性汚泥を分析した. その結果, 調査した各工程排水・活性汚泥の物理的性状に問題はなかった. 一方, 曝気槽の活性汚泥中のリン含有量は一般の値より低く, 曝気槽中の溶存酸素も不足する傾向にあった. 原因は高濃度に存在していた曝気槽内の活性汚泥が, 間欠曝気の採用・曝気装置の不具合等の原因により嫌氣的条件下におかれた為に, 高濃度の活性汚泥から水中への大量のリンの放出が起こったためと推察された. 曝気量増加・汚泥の引き抜き等の提案を行ったところ, 活性汚泥中のリン含有量も増加し, 放流水中の全リン濃度も大幅に低下した.

* 山門保健福祉環境事務所

19 Seasonal variation of ⁷Be deposition in Japan

Yukinori Narazaki, Kazunobu Fujitaka^{*1}, Shuichi Igarashi^{*2}, Yoichi Ishikawa^{*3}, Naoto Fujinami^{*4}: Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 256, 489-496, 2003.

1989-1995年において日本の45都道府県(26° 18'N, 127° 54'E-43° 04'N, 141° 27'E)に降下した⁷Beの長期変動から地域ごとの季節変動を明らかにした. 北陸を中心とした日本海側の地域は冬にピークを示す Winter peak, 太平洋側の東日本では Spring peak と9月にピークを示す Double peaks, 西日本では Spring peak だけを示す Single peak, 内陸中央帯では Non peak の形を示した. 4タイプの季節変動は大気中の⁷Be濃度に必ずしも支配されず, 四季の変化による大気の流れ等の気象学的因子や局地的な地形によって相違が生じ, 一部では降水量との関係も認められた.

*1 National Institute of Radiological Sciences

*2 Fukui Prefectural Environmental Radiation Monitoring Center

*3 Environmental Radioactivity Research Institute of Miyagi

*4 Kyoto Prefectural Institute of Hygienic and Environmental Sciences

20 福岡県における⁹⁰Sr及び¹³⁷Csの濃度分布と推移(1989-2000年)

榑崎幸範, 田上四郎: 保健物理, 38, 148-153, 2003.

1989-2000年の環境(降下物, 土壌, 日常食, 陸水, 海水及び海底土)中⁹⁰Sr, ¹³⁷Csの分析結果を対象に環境中での濃度分布と特徴を解析した. 各試料中の⁹⁰Sr, ¹³⁷Csは緩やかな経年減少傾向が認められる. 降下物中の⁹⁰Srは1997年以降検出されず, ¹³⁷Csも希であった. 土壌中の⁹⁰Sr, ¹³⁷Csは長期に残留していた. 表層土壌中の⁹⁰Sr, ¹³⁷Cs濃度は平均5.3Bq/kg 乾土及び平均6.0Bq/kg 乾土であった. 都市部と漁村部の日常食中の⁹⁰Sr, ¹³⁷Cs濃度の有意な差は食事内容や食事が原因と考えられた. 陸水及び海水中の⁹⁰Sr濃度に有意差はなかった. 海水中に検出される¹³⁷Csは陸水中には検出されなかった. 一方, 海底土中に⁹⁰Srは検出されないが, ¹³⁷Csは検出され, 両核種の挙動には著しい差異が認められた.

21 降下物中の放射能測定における大陸起源エアロゾルの影響（第2報）

石川陽一^{*1}，木立博^{*1}，伊藤節男^{*1}，佐々木俊行^{*1}，植崎幸範，田上四郎，鈴木利孝^{*2}：宮城県原子力センター年報，第20巻，5-9，2004.

2000年以降の春期を中心として，アジア大陸からのエアロゾル（黄砂）にともなう降下物試料中には¹³⁷Csが検出される．その起源及び発生メカニズムの解明のため，東北地方を横断する緯度上で降下物を採取した．その結果，¹³⁷Cs 降下量は日本海側地域で高い傾向が見られた．また，宮城県と福岡県で大気浮遊じんを採取して¹³⁷Cs を測定したところ，¹³⁷Cs 濃度は大陸起源エアロゾル飛来時に高い値を示した．

*1 宮城県原子力センター

*2 山形大学

22 Bio-kinetics of radon ingested from drinking water

Tetsuo Ishikawa^{*1}，Yukinori Narazaki，Yumi Yasuoka^{*2}，Shinji Tokonami^{*1}，Yuji Yamada^{*1}：Radiation Protection Dosimetry，105，65-70，2003.

ホールボディカウンタを用いてラドンの胃からの消失速度を評価した．ラドンを飲料水として摂取した二人の被験者について，胃の上にNaI 検出器を固定して測定を行った．²¹⁴Pb と²¹⁴Bi から放出されるガンマ線の計数率を摂取後の時間とともに記録した．ラドン及びその子孫核種に関する体内動態を表現したコンパートメントモデルを用いて，これらの計数率データの解析を行った．すなわち，モデルが実験データにフィッティングするように，胃からのラドンの消失速度などのパラメータを変化させた．従来，ラドンの胃からの排出は水の排出速度と同等であると考えられており，胃からの排出に関する半減期は20分というのが典型的な値である．しかしながら本研究では，以前のモデルで考えられていたよりも長く胃の中に留まっていることが示唆された．

*1 National Institute of Radiological Sciences

*2 Kobe Pharmaceutical University

23 地下水中ラドン濃度測定装置の比較 ―液体シンチレーションカウンタ，IM 泉効計，電離箱，ラドンモニタで得られた結果―

石川徹夫^{*1}，安岡由美^{*2}，植崎幸範，床次眞司^{*1}，石井忠^{*3}，須田博文^{*4}，山田裕司^{*1}：Radioisotopes，53，21-28，2004.

水中ラドン濃度測定装置の信頼性確認のために，同一水源から採取したサンプルを用いて，4種類の装置による比較実験を行った．液体シンチレーションカウンタに対する他の装置の測定値との比較では，IM 泉効計以外の2種類の装置（バブリング装置＋電離箱式，静電捕集式ラドンモニタ）では±3%以内であった．一方，IM 泉効計は試料 A について47%，試料 B については22%の差が生じた．IM 泉効計は「鉱泉分析法指針」に指定されている分析装置であり，従来から温泉水の分析に用いられており，校正方法等の検討が必要である．

*1 放射線医学総合研究所

*2 神戸薬科大学

*3 山梨大学

*4 香川大学

24 電解法による地下水中の硝酸性窒素の基礎的除去実験

松尾宏，笹尾敦子，永淵義孝，石橋融子，西川雅高^{*}：福岡県保健環境研究所年報，第30号，131-136，2003.

水の電気分解によって生ずる強酸性電解水は殺菌作用があることから，殺菌剤として農業分野で電解装置を導入する事例もみられる．電解装置は原理的に硝酸性窒素も濃縮・分離できると考えられ，畑地周辺の硝酸性窒素汚染井戸水から窒素成分を除去し，肥料として再利用することが可能となる．基礎的実験を行うため，電解槽の分離膜に多孔質膜を用い，電極はチタン板に白金をコーティングした電解装置を試作した．44mg/l の硝酸性窒素で汚染された地下水を試料として用い，電解装置の電極に印加電圧0 - 20V で5時間通電し，硝酸性窒素の分離・濃縮に関する検討を行った．その結果，印加電圧20V，2時間の通電で，陰極槽の硝酸性窒素濃度は1.7mg/l まで減少し，陽極槽で pH2.2，硝酸性窒素86mg/l の強酸性濃縮水が得られた．電解装置による硝酸性窒素の分離・濃縮が可能であることがわかった．

* 独立行政法人国立環境研究所

25 電気透析装置と生物脱窒装置による硝酸性窒素汚染地下水のオンサイト浄化

馬場義輝, 松尾宏, 石橋融子, 永淵義孝, 高橋洋子, 野中信一, 平田健正, 西川雅高: 水環境学会誌, 26 (6), 361-367, 2003.

硝酸性窒素汚染地域で浄化システムを14ヶ月間運転し, その窒素除去効果及び周辺環境への影響を調べる実証試験を実施した. 浄化システムは電気透析装置と生物脱窒装置から構成され, 1年間の浄化システムの運転により, 試験地において96kgの窒素が地下水から除去された.

窒素除去効果を評価するために試験地域の窒素収支及び水収支を計算した結果, 試験地における1年間の窒素成分の地下浸透量は769kgとなり, 浄化システムにより試験地の地下浸透窒素量の12.5%が除去されたと評価された.

浄化システムの運転により処理水の放流先の溜池の富栄養化について調査したところ, 溜池水質への影響は少ないと推定された.

26 福岡県における林地からのBOD, COD, 全窒素及び全リンの流出負荷

永淵義孝, 松尾宏, 佐々木重行*: 福岡県保健環境研究所年報, 第30号, 125-130, 2003.

福岡県添田町の県営林内から流出する溪流水の水質及びその流出負荷について1999年から2001年の3年間にわたり検討した. 調査対象とした3流域(W-1, W-4及びE-4)におけるBODの平均濃度は, 河川の環境基準AA類型(1mg/l)をいずれも下回っていた. 3流域の溪流水ともBODとCODの間には相関はなかった. 調査結果から算出した3流域におけるBODの年間平均流出負荷量は, 4.6-6.5kg/ha・年であり, CODは16.9-28.5kg/ha・年であった. 一方, T-Nは2.9-8.9kg/ha・年であり, T-Pは0.20-0.62kg/ha・年であった. これらの数値は, 降下物から供給される負荷量と比較して, ほぼ同程度かそれより低いと推定された.

* 福岡県森林林業技術センター

27 The mutagenicity of amino-derivatives of diphenyl ether herbicides in new Salmonella typhimurium YG tester strains

Yoshito Tanaka, Nobuhiro Shimizu, Hiroko Tsukatani, Nobuyuki Sera and Shigeji Kitamori: Water Science and Technology, 46(11-12), 395-400, 2002.

4種のジフェニルエーテル系除草剤と環境中での分解過程で生じるアミノ誘導体の変異原性を従来のSalmonella typhimurium TA株と新たに開発されたYG株を用いて測定した. 今回使用したYG株はニトロアレーン類やヒドロキシアミンの変異原性を高感度に検出するために開発された4株と酸化型変異原やアルキル化剤に選択的に検出する株を用いた. その結果, YG株では従来のTA株より高感度に変異原性が検出されることが明らかになり, その有用性が示唆された. また, ジフェニルエーテル系除草剤は原体よりアミノ体の方が変異原性が高いこと及び水中では微生物分解により容易にアミノ体に還元分解されることを実験的に明らかにした.

28 Estimation of organophosphoric acid triesters in soft polyurethane foam using a concentrated sulfuric acid dissolution technique and gas chromatography with flame photometric detection

Makoto Nagase, Mineki Toba, Hiroyuki Kondo, Akio Yasuhara^{*1}, and Kiyoshi Hasebe^{*2}: Analytical Sciences, 19(12), 1617-1620, 2003.

硫酸溶解法及びガスクロマトグラフィーを用いた, 軟質ポリウレタンフォーム中の有機リン酸トリエステル類{リン酸トリブチル, リン酸トリス(2-クロロエチル), リン酸トリス(2-クロロプロピル), リン酸トリス(1,3-ジクロロ-2-プロピル), リン酸トリフェニル及びリン酸トリス(ブトキシエチル)}の分析法を開発した. この分析法の検出限界は0.3-0.9 µg/gであり, 実試料から5種の有機リン酸トリエステル類がND-23.3 µg/g検出された.

*1 National Institute for Environmental Studies

*2 Fuji Women's University

29 福岡県内小河川の大型底生動物相

山崎正敏，緒方健，杉泰昭：福岡県保健環境研究所年報，第30号，148-158，2003.

福岡県内15の小河川の大型底生動物の生息状況を調査した．調査は30地点で行ったが，これらのうち7地点は，優占種及び優占種以外とも，汚濁した水域や，やや汚濁した水域に生息する種類であり，ASPT 値も低かった．これら以外に地点では，やや汚濁した水域や清涼な水域に生息している種類が混在しており，ASPT 値による評価でも極端に不良な水環境はなく，やや良好な水環境から良好な水環境といえ，今後，水質の改善や周辺環境の改善が進めば，清涼な水域に生息する種類が増加し，生物学的に良好な環境になっていくものと思われた．また，絶滅危惧種や特殊な環境に生息する希少種，未記録種も生息しており，河川水環境の保全は河川本線のみではなく小河川の保全も重要と思われた．

30 福岡県下の河川源流部の大型底生動物相

緒方健，杉泰昭，山崎正敏：福岡県保健環境研究所年報，第30号，159-166，2003.

福岡県下の5河川源流部の大型底生動物相を調べた．主要な生物群のうちカゲロウ目，カワゲラ目の個体数の差は河川源流部周囲の日射量の影響が大きいように思われた．また，他の源流部と比べて古処山源流部において甲殻類及び貝類が特に多かったのは，石灰岩の地層と関連があるものと思われた．福岡県下の河川源流部に生息する大型底生動物の生息状況からは酸性降下物の影響を示唆するような結果は得られなかった．しかし，河川源流部の生物相は温暖化等の地球規模の環境変動の影響を受けやすいものと思われ，今後も定期的なモニタリング調査が望まれる．

31 中・小型の水生カメムシ目を用いた生態影響評価試験

緒方健：日本環境毒性学会（編），生態影響試験ハンドブック，朝倉書店，pp163-170，2003.

化学物質の水生昆虫に対する生態影響評価試験の対象生物としての水生カメムシ目の飼育法・試験法について解説した．使用した生物は，ナベブタムシ，アサヒナコミズムシ，マルミズムシの3種で，それぞれ，ユスリカ幼虫，乾燥酵母＋藻類，オオミジンコを餌とすることで累代飼育が可能であった．毒性試験の方法はオオミジンコを用いた急性毒性試験方法と同様に50ml ビーカーを用いた方法で可能であったが，ナベブタムシについては人口底質として小型ガラス玉を数個，アサヒナコミズムシとマルミズムシについては水草の代わりにテフロンネットを入れてやることで行動が安定しより良好な結果が得られた．

(3) 学会等口頭発表一覧

①国際学会

演 題 名	発 表 者	学会名 (場所), 年月日
Deposition of atomospheric dioxins to the surrogate surfaces to elucidate the uptake pathway by plant leaves and the application of a surrogate surface to long term monitoring	Yoichi Kurokawa, Okihiro Ohishi, Kazuhiro Tobiishi, Nobuaki Soh and Toshihiko Imato	23rd International Symposium on Halogenated Environmental Organic pollutants and POPs (Boston, USA), August 24-29, 2003.
Thermo-desorption analysis of dioxins and related compounds	Takahiko Matsueda, Yoshifumi Hanada ^{*1} , Yuan Yao ^{*2} , Teiji Tanizaki ^{*1} , Takeshi Kuroiwa ^{*2} , Makoto Moriguchi ^{*3} and Kazuhiro Tobiishi *1 Kitakyusyu City Institute of Environmental Sciences *2 Kyushu Techno Research INC. *3 BC Techno Research Kyusyu Co.	23rd International Symposium on Halogenated Environmental Organic pollutants and POPs (Boston, USA), August 24-29, 2003.
Improvement of solvent cut large volume (SCLV) injection system using narrow-bore column in dioxins analysis by HRGC-HRMS	Kazuhiro Tobiishi, Tsuguhide Hori, Yasuhisa Ishiguro and Takao Iida	23rd International Symposium on Halogenated Environmental Organic pollutants and POPs (Boston, USA), August 24-29, 2003.
Structure activity relationship between chemical properties and 8-hydroxyguanine formation of nitrophenanthrenes and their related compounds in the fresh rat hepatocytes	Nobuyuki Sera, Kiyoshi Fukuhara ^{*1} , Naoki Miyata ^{*2} , Hiroshi Tokiwa ^{*3} , Shigeki Sasaki ^{*4} and Hideo Utsumi ^{*5} *1 National Institute of Health Sciences *2 Nagoya City University *3 Kyushu Women's University *4 Kyushu University	19th International symposium on polycyclic aromatic hydrocarbons -exposure, health effects and risk assessment-, (Netherland), September 21-25, 2003.
Study Regarding the Technique to Reduce Toxic Atmospheric Substances — Technique to Remove Nitrogen Oxides by Activated Carbon Fibers —	Takaaki Shimohara, Hisao Chikara, Naruyasu Itagaki, Masuski Shirahama ^{*1} , Takashi Enjoji ^{*2} and Isao Mochida ^{*1} *1 Kyushu University *2 Industrial Technology Center of SAGA	JSPS-MOE「都市環境」学術交流国際セミナー, 中国 (上海市), 平成15年10月30—31日 (招待, 講演)
Scavenging technology of air pollutants using activated carbon fiber and its prospect for the future	Takaaki Shimohara, Hisao Chikara, Naruyasu Itagaki, Masuski Shirahama ^{*1} , Takashi Enjoji ^{*1} and Isao Mochida ^{*1} *1 Kyushu University *2 Industrial Technology Center of SAGA	The Ninth International Joint Seminar on the Regional Deposition Processes in the Atmosphere, Bangkok, Thailand, Dec. 1-4. 2003.
Real time, continuous determination of NOx concentration in atmospheric environments	Naruyasu Itagaki, Hisao Chikara, Takaaki Shimohara, Takashi Enjoji ^{*1} and Isao Mochida ^{*2} *1 Industrial Technology Center of SAGA *2 Kyushu University	The Ninth International Joint Seminar on the Regional Deposition Processes in the Atmosphere, Bangkok, Thailand, Dec. 1-4. 2003.
計 (国際学会)	7 件	

②国内学会（全国）

演 題 名	発 表 者	学会名（場所），年月日
油症患者追跡検診の平成13年度全国集計結果報告	片岡恭一郎	平成15年度全国油症研究班会議（福岡市），平成14年6月18日
共鳴器構造を有する防音壁による低周波音の制御	松本源生，藤原恭司* *九州大学	日本音響学会（名古屋市），平成15年9月19日
共鳴器構造を有する防音壁による低周波音の制御(その2)	松本源生，藤原恭司* *九州大学	日本音響学会（厚木市），平成16年3月18日
大気中ダイオキシン類の TEQ 指標異性体の検索と簡易分析への応用	松枝隆彦，黒川陽一，大野健治，飛石和大，馬場義輝，石黒靖尚	第12回環境化学討論会(新潟市)，平成15年6月25－27日
2検体の食品残品からO157が分離された食中毒事例について	堀川和美，長野英俊，濱崎光宏，村上光一，高田智，梅崎誠治，高田則子* ¹ ，多田俊助* ² *1 生活衛生課，*2 嘉穂保健福祉環境事務所	第8回腸管出血性大腸菌感染症シンポジウム(東京)，平成16年3月5日
ウェルシュ菌を原因とする食中毒事例について	濱崎光宏，村上光一，長野英俊，堀川和美，高田智	第62回日本公衆衛生学会(京都)，平成15年10月22日
酸化油脂摂取による肝の腫瘍発生と酸化的 DNA 傷害	市瀬孝道* ¹ ，高野祐久* ² ，定金香里* ³ ，世良暢之，若林敬二* ³ ，超知宏倫* ⁴ ，柴本高行* ⁵ *1 大分県立看護科学大学，*2 京都府立医科大学，*3 国立がんセンター，*4 日本老化制御研究所，*5 カリフォルニア大学	第62回日本癌学会総会（名古屋市），平成15年9月26日
酸化油脂摂取による肝組織の酸化的 DNA 傷害と修復酵素 m-RNA 発現のマウス系統差	定金香里* ¹ ，市瀬孝道* ¹ ，高野祐久* ² ，世良暢之，若林敬二* ³ ，超知宏倫* ⁴ ，柴本高行* ⁵ (所属は前項と同じ)	第62回日本癌学会総会（名古屋市），平成15年9月26日
ニトロフェナンスレン及びニトロアザフェナンスレンの物理化学的性状と変異原性，8-oxo-Gua 生成能との構造活性相関について	世良暢之，福原潔* ¹ ，常盤寛* ² ，内海英雄* ³ ，佐々木茂木* ³ ，宮田直樹* ⁴ *1 国立医薬品食品衛生研究所，*2 九州女子大学，*3 九州大学，*4 名古屋市立大学	日本環境変異原学会第32回大会（津市），平成15年11月27日
DNA 損傷を抑制する成分の探索及び応用－大気浮遊粉塵及びインフルエンザウイルスを用いて－	世良暢之，福原潔* ¹ ，佐々木茂木* ² ，内海英雄* ² ，常盤寛* ³ ，宮田直樹* ⁴ ，若林敬二* ⁵ *1 国立医薬品食品衛生研究所，*2 九州大学，*3 九州女子大学，*4 名古屋市立大学，*5 国立がんセンター	第4回大気環境学会九州支部研究発表会及び第16回九州支部総会（福岡市），平成16年1月30日

演 題 名	発 表 者	学会名（場所），年月日
動物実験に用いた黄砂試料の特徴	西川雅高 ^{*1} ，市瀬孝道 ^{*2} ，森育子 ^{*1} ，柳沢利枝 ^{*1} ，高野祐久 ^{*1} ，世良暢之，定金香里 ^{*2} ，日吉孝子 ^{*3} ，金浩 ^{*5} ，薫旭輝 ^{*5} ，若林敬二 ^{*6} *1 国立環境研究所，*2 大分県立看護科学大学，*3 筑波大学，*4 大分医科大学，*5 中日友好環境中心，*6 国立がんセンター	第44回大気環境学会（京都市），平成15年9月25日
黄砂の肺毒性Ⅱ肺胞洗浄液中の炎症細胞の変化と8-OH-Guaの形成	定金香里 ^{*1} ，世良暢之，市瀬孝道 ^{*1} ，高野祐久 ^{*2} ，西川雅高 ^{*2} ，森育子 ^{*2} ，吉田成一 ^{*1} ，柳沢利枝 ^{*2} ，日吉孝子 ^{*3} ，川里浩明 ^{*4} ，安田愛子 ^{*4} ，金浩 ^{*5} ，薫旭輝 ^{*5} ，若林敬二 ^{*6} （所属は前項と同じ）	第44回大気環境学会（京都市），平成15年9月25日
黄砂の肺毒性Ⅰ肺の病理と肺胞洗浄液中の炎症細胞の変化	市瀬孝道 ^{*1} ，西川雅高 ^{*2} ，高野祐久 ^{*2} ，世良暢之，定金香里 ^{*1} ，森育子 ^{*2} ，吉田成一 ^{*1} ，柳沢利枝 ^{*2} ，日吉孝子 ^{*3} ，川里浩明 ^{*4} ，安田愛子 ^{*4} ，金浩 ^{*5} ，薫旭輝 ^{*5} ，若林敬二 ^{*6} （所属は前項と同じ）	第44回大気環境学会（京都市），平成15年9月26日
HIV の薬剤耐性	千々和勝己，江藤良樹	衛生微生物技術協議会第24回研究会（福岡市），平成15年7月11日
すり身加工技術による魚肉中PCBsの削減	大島雄治 ^{*1} ，佐伯宏樹 ^{*2} ，堀就英，本城凡夫 ^{*1} *1 九州大学，*2 北海道大学	第12回環境化学討論会（新潟市），平成15年6月25－26日
高活性炭素繊維を用いた環境大気浄化に関する研究(5)－NOの酸化反応，HNO ₃ としての回収－	力寿雄，下原孝章，円城寺隆志 [*] * 佐賀県工業センター	第44回大気環境学会年会（京都市），平成15年9月24－26日
高活性炭素繊維を用いた環境大気浄化に関する研究－窒素酸化物の吸着及び酸化・還元反応－	力寿雄，下原孝章，円城寺隆志 ^{*1} ，持田勲 ^{*2} *1 佐賀県工業センター，*2 九州大学	第30回環境保全・公害防止研究発表会（徳島市），平成15年10月30－31日
高活性炭素繊維を用いた環境大気浄化に関する研究(6)－還元剤を用いたNO _x の還元，無害化の試み－	下原孝章，力寿雄，円城寺隆志 [*] * 佐賀県工業センター	第44回大気環境学会年会（京都市），平成15年9月24－26日
九州北部地域における春期の大气汚染物質の観測－九州北部地域における煙霧の発生について－	下原孝章，力寿雄，板垣成泰，村野健太郎 [*] * 国立環境研究所	第44回大気環境学会年会（京都市），平成15年9月24－26日

演 題 名	発 表 者	学会名（場所），年月日
大陸からの移流に伴う大気汚染物質の観測－黄砂砂じんによるサンプリング時のアーティファクトの影響について－	板垣成泰，下原孝章，村野健太郎* * 国立環境研究所	第44回大気環境学会年会（京都市），平成15年9月24－26日
高活性炭素繊維を用いた沿道排ガス削減技術に関する調査	下原孝章	環境改善調査研究成果発表会（東京都）平成15年6月13日
博多湾におけるホトトギスガイが貧酸素水塊に与える影響	熊谷博史，山崎惟義* ¹ ，渡辺亮一* ¹ ，藤田健一* ² *1 福岡大学，*2 九州環境管理協会	第40回環境工学研究フォーラム（和歌山市），平成15年11月14日
底面ろ床法による湖沼の浄化シミュレーション	山崎惟義* ¹ ，渡辺亮一* ¹ ，熊谷博史，北野義則* ² *1 福岡大学，*2 関東学院大学	第40回環境工学研究フォーラム（和歌山市），平成15年11月14日
底泥中の酸揮発性硫化物（AVS）と酸化還元電位（ORP）の変動特性に関する研究	渡辺亮一* ¹ ，山崎惟義* ¹ ，熊谷博史，藤井暁彦* ² ，堤敬* ¹ *1 福岡大学，*2 九州環境管理協会	第40回環境工学研究フォーラム（和歌山市），平成15年11月14日
最近の降下物中に検出される ¹³⁷ Cs と大陸起源エアロゾルとの関連	石川陽一* ¹ ，佐々木俊行* ¹ ，榑崎幸範，田上四郎，鈴木利孝* ² *1 宮城県原子力センター，*2 山形大学	第5回環境放射能専門研究会（つくば市），平成16年3月2－4日
焼却飛灰を原料としたコンクリート骨材に含まれる重金属類及びダイオキシン類の評価	石橋融子，土田大輔，永淵義孝，坂本雄三* * 住友金属鉱山（株）	平成15年度日本水環境学会九州支部研究発表会（北九州市），平成16年2月20日
RDF 焼却灰等の水和反応による鉛溶出抑制機構について	鳥羽峰樹，土田大輔，高橋浩司，永瀬誠，宇都宮彬，齊藤義明* ¹ ，福元貴司* ² ，櫻井隆喜* ³ ，三宅淳一* ³ ，小松夢子* ⁴ ，阪本尚孝* ⁴ ，前田和紀* ⁵ *1 三井鉱山，*2 三井鉱山セメント，*3 電源開発，*4 工技センター，*5 リサイクル推進室	廃棄物学会研究発表会（つくば市），平成15年10月22日－24日
安定型産業廃棄物最終処分場の熱赤外線画像装置による監視手法の検討	土田大輔，高橋浩司，宇都宮彬，島岡隆行*，中山裕文*，小宮哲平* * 九州大学	廃棄物学会研究発表会（つくば市），平成15年10月22日－24日
福岡県下で発見されたセマルヒメドロムシ属（ヒメドロムシ科）とその生息場所	緒方健，中島淳* * 九州大学	日本陸水学会第68回大会（岡山市），平成14年9月15日
湿原植生復元手法としてのかき起こし処理の効果－平尾台広谷湿原の事例－	須田隆一，真鍋徹* * 北九州市立自然史・歴史博物館	日本景観生態学会第14回大会（東広島市），平成16年3月20日
計（国内学会（全国））	30 件	

③国内学会（地方）

演 題 名	発 表 者	学会名（場所），年月日
不法投棄現場土壌中の硫酸還元菌について	堀川和美，濱崎光宏，高橋浩司， 世良暢之，谷口初美* *産業医科大学	第56回日本細菌学会九州支部総会 （宮崎），平成15年9月13日
不法投棄現場の土壌から検出された硫酸還元菌とメタン生成菌の16SrDNAによる菌種の同定	濱崎光宏，堀川和美，世良暢之， 高橋浩司，谷口初美* *産業医科大学	第56回日本細菌学会九州支部総会 （宮崎），平成15年9月13日
ウェルシュ菌を原因とする食中毒事例について	濱崎光宏，村上光一，長野英俊， 堀川和美，高田智，浜崎伸一， 松永しのぶ，高田則子，梅崎誠治	福岡県公衆衛生学会（福岡市） 平成15年5月21日
浴場施設におけるアメーバ分布調査の一例	村上光一，長野英俊，濱崎光宏，堀川和美， 石黒靖尚，山崎知絵，梅崎みどり	九州衛生環境技術協議会（那覇市） 平成15年10月9日
土壌中のメタン生成菌の培養法の検討について	世良暢之，濱崎光宏，高橋浩司， 堀川和美，谷口初美* *産業医科大学	第56回日本細菌学会 第40回日本 ウイルス学会 九州支部総会 （宮崎市），平成15年9月13日
2002/03シーズンのインフルエンザ流行株の遺伝子解析	梶原淳睦，江藤良樹，世良暢之， 千々和勝己	第29回九州衛生環境技術協議会 （那覇市），平成15年10月9日
高速溶媒抽出と大量試料注入を用いた食品中ダイオキシン類の分析方法について	堀就英，飛石和大，芦塚由紀， 中川礼子，飯田隆雄	第29回九州衛生環境技術協議会 （那覇市），平成15年10月9日－10日
食品中臭素化ダイオキシン及びその関連化合物の分析	中川礼子，芦塚由紀，飛石和大， 堀就英，飯田隆雄	第29回九州衛生環境技術協議会 （那覇市），平成15年10月9日－10日
福岡県における健康食品・無承認無許可医薬品の分析事例	森田邦正，毛利隆美，芦塚由紀， 中川礼子	第50回福岡県公衆衛生学会 （福岡市），平成15年5月21日
食品中の臭素化ダイオキシン類及びその関連化合物の分析（第2報）	芦塚由紀，中川礼子，堀就英， 飛石和大，飯田隆雄	第40回全国衛生化学技術協議会年会 （和歌山市），平成15年11月13日－14日
食品における臭素化ジフェニルエーテルの汚染実態	芦塚由紀，中川礼子，飛石和大， 堀就英，飯田隆雄	環境ホルモン学会第6回研究発表会 （仙台市），平成15年12月2日－3日
採水器に由来する鉛の汚染事例	石橋融子，松尾宏，笹尾敦子， 中村又善，上田修* *環境保全課	第29回九州衛生環境技術協議会 （那覇市），平成15年10月9－10日

演 題 名	発 表 者	学会名（場所），年月日
博多湾において貧酸素水塊により斃死するホトトギスガイの定量化	熊谷博史，山崎惟義 ^{*1} ，渡辺亮一 ^{*1} ， 藤田健一 ^{*2} *1 福岡大学，*2 九州環境管理協会	平成15年度水環境学会九州支部研究発表会(北九州市)，平成16年2月20日
底生動物から見た流量増加の評価	山崎正敏，緒方健，杉泰昭	大山川・三隈川の環境について考えるシンポジウム(日田市)，平成16年1月25日
福岡県下河川におけるヒメドロムシ科の分布とその特徴	緒方健	第29回九州衛生環境技術協議会（那覇市），平成14年10月9日
福岡県におけるハンノキ群落の分布と生育立地	六田宗一郎*，須田隆一，薛孝夫* * 九州大学	日本造園学会九州支部平成15年度大会（別府市），平成15年6月7日
計（国内学会（地方））	16 件	

(4) 報告書一覧

委託事業名	報告書名	執筆者	発行年月
平成15年度厚生労働科学研究費補助金 がん予防等健康科学総合研究事業	(分担研究報告書) 健康危機管理事例のデータベース化とその利用に関する研究	織田肇*(分担研究者), 加藤元博, 梶原淳睦他 *大阪府公衆衛生研究所	平成16年3月
平成15年度厚生労働科学研究補助金 健康科学総合研究事業	(分担研究報告書) 健康危機管理情報ネットワーク構築に関する研究	金田麻理子*(分担研究者), 加藤元博, 篠原志郎, 甲原隆矢他 *東京都健康安全研究センター	平成16年3月
平成15年度厚生労働科学研究費補助金 食品安全確保研究事業	(分担研究報告書) 熱媒体の人体影響とその治療法等に関する研究 ―油症一斉検診の全国集計結果及び油症患者データベースの構築―	片岡恭一郎, 甲原隆矢	平成16年3月
平成15年度市町村地域保健活動支援事業	平成15年度市町村地域保健活動支援事業(地域診断)報告書	市町村地域保健活動支援事業検討委員会(片岡恭一郎, 甲原隆矢)	平成16年3月
環境省委託業務	平成15年度化学物質環境汚染実態調査(初期環境調査)報告書	北直子, 飛石和大, 黒川陽一, 大野健治, 松枝隆彦, 桜木建治, 柳川正男, 岩本眞二, 小林徹*, 玉井洋子* *福岡県環境部環境保全課	平成16年3月
	平成15年度化学物質環境汚染実態調査(暴露量調査)報告書	北直子, 飛石和大, 黒川陽一, 大野健治, 松枝隆彦, 桜木建治, 柳川正男, 岩本眞二, 小林徹*, 玉井洋子* *福岡県環境部環境保全課	平成16年3月
	平成15年度化学物質環境汚染実態調査(モニタリング調査)報告書	北直子, 飛石和大, 黒川陽一, 大野健治, 松枝隆彦, 桜木建治, 柳川正男, 岩本眞二, 小林徹*, 玉井洋子* *福岡県環境部環境保全課	平成16年3月
平成14年度厚生労働科学研究費補助金 健康科学総合研究事業	(総括・分担研究報告書) 温泉・公衆浴場, その他の温水環境におけるアメーバ性髄膜脳炎の病原体 <i>Naegleria fowleri</i> の疫学と病原性に関する研究	遠藤卓郎*(主任研究者) 村上光一 *国立感染症研究所	平成15年4月

委託事業名	報 告 書 名	執 筆 者	発行年月
平成14年度厚生労働科学研究費補助金 食品・化学物質安全総合研究事業	(総括・分担研究報告書) 容器包装詰低酸性食品のボツリヌス食中毒に対するリスク評価	小熊恵二* (主任研究者), 堀川和美, 村上光一, 長野英俊, 濱崎光宏, 高田智他 * 岡山大学	平成15年3月
平成15年度厚生科学研究費補助金 食品・化学物質安全総合研究事業	(総括・分担研究報告書) 容器包装詰低酸性食品のボツリヌス食中毒に対するリスク評価	小熊恵二* (主任研究者), 堀川和美, 濱崎光宏, 村上光一, 長野英俊, 石黒靖尚他 * 岡山大学	平成16年3月
平成14年度廃棄物処理等科学研究事業	(総括・分担研究報告書) 廃棄物処分場のバイオ評価に関する研究 (硫酸還元菌の培養)	谷口初美* (代表研究者) 堀川和美, 濱崎光宏, 世良暢之, 高橋浩司他 * 産業医科大学	平成15年5月
	(総括・分担研究報告書) 廃棄物処分場のバイオ評価に関する研究 (嫌気性細菌の16SrDNA 塩基配列決定による微生物群集解析)	谷口初美* (代表研究者) 濱崎光宏, 堀川和美, 石黒靖尚 * 産業医科大学	平成15年5月
	(総括・分担研究報告書) 廃棄物処分場のバイオ評価に関する研究 (メタン産生菌の培養)	谷口初美* (代表研究者), 世良暢之, 高橋浩司, 濱崎光宏, 堀川和美, 高田智, 宇都宮彬 * 産業医科大学	平成15年5月
平成15年度厚生労働科学研究費補助金 新興・再興感染症研究事業	(総括・分担研究報告書) パルスフィールドゲル電気泳動法 (PFGE) の標準化及び画像診断を基盤とした分散型システムの有効性に関する研究	渡辺治雄* (主任研究者), 堀川和美, 村上光一他 * 国立感染症研究所	平成16年3月
	(総括・分割研究報告書) 百日咳菌, ジフテリア菌, マイコプラズマ等の臨床分離菌の収集と分子疫学的解析に関する研究	佐々木次雄* (主任研究者), 堀川和美, 村上光一他 * 国立感染症研究所	平成16年3月
平成15年度厚生労働科学研究費補助金 エイズ対策研究事業	(分担研究報告書) HIV の検査体制の構築に関する研究	千々和勝己, 江藤良樹, 鍋島茂樹*, 古庄憲浩*, 林純* * 九州大学医学部	平成16年3月

委託事業名	報 告 書 名	執 筆 者	発行年月
厚生労働省委嘱事業	医療用医薬品の品質再評価に係る公的溶出試験（案）の妥当性検証等報告書（平成15年度）	毛利隆美，森田邦正，中川礼子，飯田隆雄	平成16年3月
平成14年度厚生労働科学研究費補助金 食品・化学物質安全総合研究事業	（分担研究報告書） ダイオキシンの汚染実態把握及び摂取低減化に関する研究	佐々木久美子* ¹ ，米谷民雄* ¹ ，飯田隆雄，豊田正武* ² ，天倉吉章* ¹ *1 国立医薬品食品衛生研究所 *2 実践女子大学	平成15年4月
	（総括・分担研究報告書） 食品中臭素化ダイオキシン及びその関連化合物の汚染実態の解明に関する研究	中川礼子，堀就英	平成15年4月
公害健康被害補償予防協会委託業務	高活性炭素繊維を用いた沿道排ガス削減技術に関する調査報告書	下原孝章，新谷俊二，力寿雄，板垣成泰	平成16年3月
平成15年度独立行政法人水産総合研究センター委託業務	水中有機及び無機化学物質の吸着能に関する検討	櫻井利彦，下原孝章，力寿雄，板垣成泰	平成16年3月
平成14年度厚生労働科学研究費補助金 生活科学安全総合研究事業	（分担研究報告書） 全国における室内空气中化学物質の実態に関する研究（福岡県）	力寿雄，柳川正男，大石興弘，岩本真二	平成15年4月
行政依頼	水質環境基準類型見直し調査業務報告書－豊前海流入河川（南部）編－	熊谷博史，志水信弘，田中義人，松尾宏，中村又善	平成15年12月
－	筑後川上流河川環境特性検討会（底生動物調査）2003年度底生動物調査結果報告書	山崎正敏，緒方健，杉泰昭	平成16年3月
環境省委託業務	平成15年度環境省委託業務結果報告書 酸性雨モニタリング（土壌・植生）調査	須田隆一，山崎正敏	平成16年3月
彦山川流域生活排水対策推進計画策定業務	彦山川流域生活排水対策推進計画	梅崎幸範，石橋融子，緒方健，須田隆一	平成16年3月

委託事業名	報 告 書 名	執 筆 者	発行年月
平成15年度リサイクル総合研究センター共同研究プロジェクト	「都市ゴミ焼却灰を利用したエコレンガ製造技術の開発プロジェクト研究に係る安全性試験業務」報告書	宇都宮彬，永瀬誠，鳥羽峰樹，高橋浩司，土田大輔	平成16年3月
	「産業廃棄物系廃プラスチックの高効率油化装置の開発プロジェクト研究（生成油の分析）」報告書	宇都宮彬，永瀬誠，鳥羽峰樹，高橋浩司，土田大輔	平成16年3月
平成15年度リサイクル総合研究センター研究会	焼却灰の有効利用に関する研究会報告書	宇都宮彬，永瀬誠，鳥羽峰樹，高橋浩司，土田大輔	平成16年3月
	ポリ塩化ビニル系廃プラスチックによる環境浄化技術に関する研究 報告書	下原孝章，櫻井利彦，板垣成泰	平成16年3月
	樹皮の有効利用研究会 報告書 －砂場における樹皮の細菌に対する効果－	濱崎光宏	平成16年3月
	建設廃材のリサイクル研究会 報告書	櫻井利彦，田上四郎	平成16年3月
	汚泥等のリサイクル研究会 報告書	宇都宮彬，永瀬誠，鳥羽峰樹，高橋浩司，土田大輔	平成16年3月
計（報告書一覧）	33 件		

外部評価委員会報告

平成16年3月30日

福岡県保健福祉部長 狩野 俊秀 }
〃 環境部長 原 明輝 } 殿

福岡県保健環境関係試験研究外部評価委員会
会長 井上 尚英

平成15年度福岡県保健環境関係試験研究外部評価報告書

1 はじめに

本評価委員会は、「福岡県保健環境研究所における試験研究の効率的・効果的な実施と活性化及び透明性の確保」を図るため、平成14年12月に設置されたものである。

今回、平成15年度評価委員会が平成16年2月23日(月)に県庁行政棟において開催され、平成14年度終了課題・平成16年度新規課題について評価するとともに、研究所業務全般に対する意見を提出した。

今回の評価結果・意見を参考に、福岡県保健環境研究所が「保健・環境行政を科学的・技術的側面から支える中核機関」として、今後とも大きく成長されることを期待する。

2 評価委員会の評価結果

(1) 調査研究業務について

ア 平成14年度終了課題

参考資料2に示す22課題(保健関係6課題, 環境関係16課題)について評価を行った。

概ね良好な成果が得られていたが、一部課題に関し「今後の成果活用に検討の余地がある」「行政への還元を検討する必要がある」「既存技術との違い(有用性)を明確にする必要がある」などの意見を提出した。

イ 平成16年度新規課題

参考資料2に示す8課題(保健関係5課題, 環境関係3課題)について評価を行った。

課題設定に関しては概ね適当であったが、一部研究に関し「研究を効率的に推進するためには分析機器等ハード面の環境整備が必要」「外部機関等との連携が必要」などの意見を提出した。

ウ 各研究分野全般について

保健環境研究所において実施されている8研究分野に関し意見を提出した。
その概要は下記のとおりである。

	分 野	主 な 意 見
保健 関係	感染症の発生・拡大防止及び食品の安全性確保に関する研究	社会の要請に応える的確で幅広い課題が選定されており、また成果も十分に得られている。
	ダイオキシン類及び有害化学物質による健康被害の防止とその対策に関する研究	健康リスク削減のために欠かせない研究が実施されており、今後の展開が大いに期待される。
	地域保健情報の解析・評価及びその活用に関する研究	地味ではあるが、総体的な把握を可能にする研究である。成果を得るのに時間を要するものであるので継続的に実施されたい。
環境 関係	ダイオキシン類、有害化学物質に関する研究	行政にとって非常に有用な研究である。成果が得られるまで継続的に実施されたい。
	大気環境汚染とその対策に関する研究	黄砂や酸性雨などの広域的な課題については、中国や韓国などとの国際共同事業として観測ネットワークを構築することを検討されたい。
	水環境汚染とその対策に関する研究	広域的な水域(有明海等)の問題解決に向けて、関係他県との共同作業や情報交換が必要である。 科学的な立場から、課題解明と解決方策の提示について努力してもらいたい。
	廃棄物の安全性と有効利用に関する研究	地域住民が安心して安全な生活をおくるためには、迅速な原因究明と対策方法の提案が必要である。そのための検査技術開発などについて努力してもらいたい。
	福岡県の自然環境と生物多様性の保全に関する研究	息の長い研究が求められる分野であるが、その意味でも貴重な成果を上げている。今後は復元目標の設定・達成に向けた研究について積極的に取り組んでももらいたい。 また、成果を環境学習に積極的に活用するよう努力してもらいたい。
	理学的要因による環境影響とその対策に関する研究	目立たないが大事な研究分野である。最低限、現状維持の調査研究を継続してほしい。

(2) 研究所業務全般について

保健環境研究所の業務全般に関し意見を提出した。

その概要は下記のとおりである。

項 目	意 見 等
調査研究業務	予算・人事など制約の多い中、水準以上の研究が行われていることは評価できる。 今後は、予算・人事を含めた長期計画の具体化及び県域で特徴のある研究テーマの抽出と絞り込みを行ってもらいたい。 また、外部研究機関等との共同研究・成果の実用化などについても検討されたい。
試験検査業務	緊急時に対応できる体制を常々保っておく必要があるが、その点で努力がなされており高く評価される。 今後、若手研究者の確保と育成についても積極的に取り組んでももらいたい。 また、労働集約的な検査業務についてはアウトソーシングすることも検討されたい。
教育研修・情報提供業務	研究所業務・研究成果の継続的・積極的なPRを行ってもらいたい。 また、研究所OBを教育研修に活用する方策など、研究者の負担を軽減することを検討されたい。
その他業務全般	行政支援業務を担いながら、研究が活発に行われており評価できる。 今後は、行政の要請だけでなく県民からの依頼にも応えるような体制を構築するとともに、研究業務を更に活性化するため、人事・予算面などの制度の改善に関し行政と研究所が協力して取り組んでももらいたい。 また、外部研究機関等との交流の活性化などについても検討してもらいたい。

3 おわりに

本評価委員会では上記のとおり評価を行ったが、評価に要する時間が限られており、また業務が専門的すぎることから、評価に不十分な点もあるものと考えられる。

保健環境研究所の業務を活性化の一助とするため、また、各委員が責任ある評価をするためにも、本評価委員会の運営方法などについて検討を行う必要がある。

福岡県保健環境関係試験研究外部評価委員会委員名簿

役 職	氏 名	現 職 名
会 長	いのうえなおひで 井上 尚英	九州大学大学院 医学研究院 名誉教授
副会長	くすだてつや 楠田 哲也	九州大学大学院 工学研究院 教授
	いけだとしひこ 池田 俊彦	(社)福岡県医師会 副会長
	たにぐちはつみ 谷口 初美	産業医科大学 医学部 教授
	まつふじやすし 松藤 康司	福岡大学 工学部 教授
	じんないかずひこ 陣内 和彦	九州大学 知的財産本部 アドバイザー
	とりまるさとし 鳥丸 聡	(財)九州経済調査協会 情報研究部 部長
	むらやまひろとし 村山 博俊	福岡県弁護士会

平成14年度終了課題一覧

	研 究 課 題 名	研究期間
保健 関係	パルスフィールドゲル電気泳動法（P F G E）標準化及び画像診断を基盤とした分散型システムの有効性に関する研究	H13-14
	新型腸チフス菌及び新型サルモネラの検出のための新しい検出用培地の開発	H13-14
	ビブリオ・バルニフィカスの海水中及び魚介類中の汚染実態調査	H13-14
	新しい DNA 損傷試験法による DNA 損傷を抑制する化学物質の検索	H13-14
	福岡県における低死亡率死因に関する疫学的研究	H12-14
	担子菌類によるダイオキシン汚染された環境の修復に関する研究	H13-14
環境 関係	固相検出法による内分泌攪乱物質の迅速・高感度簡易計測法の開発	H14
	ダイオキシンのオンライン・リアルタイム計測装置の開発	H13-14
	大気有害物質削減技術に関する研究	H12-14
	環境水質のバイオアッセイによる評価に関する研究	H13-14
	水環境における汚濁機構の究明と保全施策効果に関する研究 ①水環境における面源負荷の発現機構とその対策についての研究	H12-14
	水環境における汚濁機構の究明と保全施策効果に関する研究 ②公共用水域の汚濁解析のモデル化	H10-14
	再生資源を利用した環境保全型ブロックの開発	H14
	土地利用形態が影響を及ぼす流域の窒素フラックスの機構解明とその制御に関する研究	H12-14
	プラスチック廃棄物における有害化学物質の定量法と溶出防止対策の確立	H12-14
	使用済み紙おむつの再利用及び再資源化システムに関する研究	H13-14
	県内河川の自然環境特性把握に関する研究 ①河川周辺環境と水生生物の分布との関係	H12-14
	県内河川の自然環境特性把握に関する研究 ②水域環境の動物多様性に関する研究	H12-14
	生物多様性とその保全に関する研究 ①湿原植生の保全に関する調査研究	H12-14
	生物多様性とその保全に関する研究 ②里山植生の多様性とその保全技術に関する調査研究	H12-14
	光化学オキシダント高濃度予測手法の開発	H14
	衛星リモートセンシングによる二酸化炭素吸収源評価法の開発	H11-14

平成16年度新規課題一覧

	研 究 課 題 名	研究期間
保健 関係	食品由来感染症の細菌学的疫学指標のデータベース化に関する研究	H16-17
	遺伝情報に基づく流行ウイルスの生物学的、分子疫学的解析	H16-17
	呼吸器系感染症におけるウイルス検査システムの開発	H16-17
	医薬品成分を含有した健康食品の検査法の開発	H16-17
	ダイオキシン類のヒト健康影響に関する調査研究 ー油症患者ダイオキシン類追跡調査を中心としてー	H16-18
環境 関係	有明海に対する陸域からの汚濁物質解析とその挙動の解明	H16-18
	土壌汚染に係る化学物質の処理に関する研究	H16-18
	廃棄物処分場の管理手法に関する研究	H16-18

平成15年度外部評価結果を受けて

福岡県保健環境研究所 所長 吉村 健清

1 はじめに

一昨年度（平成14年12月）、「福岡県保健環境研究所における試験研究の効率的・効果的な実施と活性化及び透明性の確保」を図るため、「福岡県保健環境関係試験研究外部評価委員会（会長：井上 尚英^{いのうえなおひで} 九州大学大学院名誉教授）」が設置されました。

今回、第2回の委員会が平成16年2月23日（月）に開催され、平成14年度終了課題・平成16年度新規課題について評価が行われるとともに、研究所業務全般に対する意見が提出されました。

今回の委員会では、「研究を効率的かつ効果的に推進するための体制作り」「研究成果の活用」「外部機関との連携」など、数多くの貴重な御指摘・御助言をいただいております。

当所が「保健・環境行政を科学的・技術的側面から支える中核機関」として貢献するためにも、今後これらの御指摘・御助言を業務遂行に十分に反映させ、業務の活性化に取り組んでいきます。

2 主な評価結果、指摘・助言事項、及び保健環境研究所における対応

(1) 調査研究業務について

（指摘・助言事項）

- ・ 予算・人事など制約の多い中、水準以上の研究が行われていることは評価できる。
- ・ 予算・人事を含めた長期計画の具体化が必要
- ・ 研究を効率的に推進するための環境整備が必要
- ・ 県域で特徴のある研究テーマの抽出と絞り込みが必要
- ・ 外部研究機関等との連携が必要
- ・ 成果の活用、行政への還元に検討の余地あり

（保健環境研究所における対応）

- ・ 予算・人事を含めた環境整備については、今後とも改善に努めます
- ・ 研究テーマの設定にあたっては、福岡県として行うべきテーマの選定に努めています。
今後とも、県民ニーズを踏まえた特徴のある研究テーマの選定を心がけます。
- ・ 外部研究機関等との交流については、積極的に取り組んでいきます。
- ・ 成果の活用、行政への貢献については、研究者の意識改革などを含め、積極的に取り組んでいきます。

(2) 試験検査業務について

(評価結果, 指摘・助言事項)

- ・緊急時に対応できる体制を常々保っておく必要があるが、その点で努力がなされており高く評価される。
- ・若手研究者の確保と育成について積極的に取り組んでもらいたい。
- ・労働集約的な検査業務についてはアウトソーシングすることも検討されたい。

(保健環境研究所における対応)

- ・職員定数等の問題もありますが、若手職員の確保・育成については可能な範囲で積極的に取り組んでいきます。
- ・業務のアウトソーシングについては、県民サービスの低下を招かないことを基本にしつつ、今後検討を行います。

(3) 教育研修・情報提供業務について

(評価結果, 指摘・助言事項)

- ・研究所業務・研究成果の継続的・積極的なPRを行ってほしい。
- ・研究所OBを教育研修に活用する方策など、研究者の負担を軽減することを検討されたい。

(保健環境研究所における対応)

- ・現在も、インターネット、印刷物(年報、保環研ニュース)、成果報告会の開催、見学の受入等によりPRを行っておりますので、これらの充実に努めます。
- ・研究所OBの活用などについては、今後検討を行います。

(4) その他業務全般について

(評価結果, 指摘・助言事項)

- ・行政支援業務を担いながら、研究が活発に行われており評価できる。
- ・行政の要請だけでなく県民からの依頼にも応えるような体制を構築してほしい。
- ・人事・予算面などの制度の改善に関し、行政と研究所が協力して取り組んでもらいたい。
- ・外部研究機関等との交流の活性化などについても検討してほしい。

(保健環境研究所における対応)

- ・研修会への講師派遣など、県民からの依頼にも積極的に対応していきます。
- ・予算・人事を含めた環境整備については、今後とも改善に努めます。(再掲)
- ・外部研究機関等との交流については、積極的に取り組んでいきます。(再掲)

編 集 委 員

委員長	渡 辺 章	委 員	濱 崎 光 宏
委 員	飯 田 隆 雄	〃	世 良 暢 之
〃	木 本 行 雄	〃	森 田 邦 正
〃	梶 原 淳 睦	〃	大 石 興 弘
〃	澄 川 恵美香	〃	松 尾 宏
〃	坂 口 憲 治	〃	黒 川 陽 一
〃	片 岡 恭一郎	〃	中 村 朋 史
〃	飛 石 和 大		

福岡県保健環境研究所年報 第31号

(平成15年度)

平成16年12月28日 発行

編集・発行 福岡県保健環境研究所
〒818-0135 福岡県太宰府市大字向佐野39
TEL 092-921-9940 FAX 092-928-1203

印刷 株式会社福田印刷
〒800-0037 福岡県北九州市門司区原町別院3-5
TEL 093-371-3231 FAX 093-371-5735