

# 研 究 報 告 編

# 1 論 文

## 原著論文

### 健康食品中の脱N-ジメチルシブトラミン及びシブトラミンの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、健康食品中の脱N-ジメチルシブトラミン及びシブトラミンの分析法を検討した。健康食品中の脱N-ジメチルシブトラミン及びシブトラミンはメタノールを用いて抽出し、Bond Elut Certify カートリッジ(固相抽出法)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LiChrosorb RP18 (4.6 x 150mm, 5microns)を、移動相にpH7の0.02mol/Lリン酸塩緩衝液/メタノール(15:85, v/v)を用い、測定波長225nmで分析した。本法による健康食品からの脱N-ジメチルシブトラミン及びシブトラミンの回収率はそれぞれ88–96%及び87–91%, 定量下限値はそれぞれ0.001mg/gであった。

[キーワード：脱N-ジメチルシブトラミン, シブトラミン, HPLC, 固相抽出法, 健康食品, 食欲抑制剤]

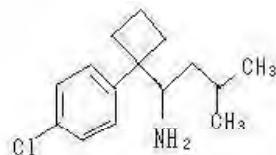
#### 1 はじめに

平成15年11月、福岡県内の2業者が納豆菌ダイエットと称してインターネット販売した、いわゆる健康食品から脱N-ジメチルシブトラミンあるいはシブトラミンのいずれかが検出された。厚生労働省、宮崎県、富山県及び福岡県の調査で、該当品は中国産原材料を輸入し国内で錠剤化したものであり、一物多名称で多種類の製品があることが判明した。

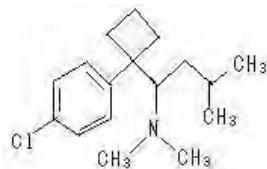
シブトラミンは肥満症の治療薬として用いられる食欲抑制剤である<sup>1), 2), 3), 4)</sup>。1997年に米国において承認されたMeridia(商品名)には、シブトラミンの塩酸塩が1カプセル当たり5, 10及び15mg含まれている。Meridiaの投与量は初回毎朝10mgから開始し、数週間後に15mgまで增量する。日本では、エーザイ(株)とドイツのクノールAG社が共同で臨床開発を行い、2005年の発売が予定されている。シブトラミンとその代謝物はノルアドレナリンとセロトニンの再吸収を阻害することにより食欲調節系の中核に作用し、満腹感を亢進させる。シブトラミンの副作用として血圧上昇、心拍数増加、頭痛、口渴、便秘、鼻炎等がみられるが、食欲抑制剤のデックスフェンフルラミンにみられるような肺高血圧症や心臓弁膜症の副作用は認められない<sup>5)</sup>。脱N-ジメチルシブトラミンはシブトラミンの主要な代謝物の1つであるが、国内外で医薬品として承認されていない。

図1に脱N-ジメチルシブトラミン及びシブトラミンの化学構造式を示す。化学式は脱N-ジメチルシブトラミンがC<sub>15</sub>H<sub>22</sub>ClN(m.w. 251.79), シブトラミンが

C<sub>17</sub>H<sub>26</sub>ClN(m.w. 279.85)である。



脱N-ジメチルシブトラミン



シブトラミン

図1 脱N-ジメチルシブトラミン及びシブトラミンの化学構造式

シブトラミンに関する試験法として、血中のシブトラミン代謝物を逆相カラムと0.1%トリプロロ酢酸・アセトニトリル/0.1%トリプロロ酢酸(55:45, v/v)の移動相を用いてLC/MS/MSで測定する方法<sup>6)</sup>と、健康食品中の脱N-ジメチルシブトラミン<sup>7)</sup>及びシブトラミン<sup>8)</sup>を逆相カラムと0.1%ギ酸アセトニトリルの移動相を用いてLC/MSで測定する方法が報告されている。近年、国民の健康志向に伴っていわゆる健康食品に医薬品が添加されたものが、店頭や通信販売で流通するようになった。

このような無承認無許可医薬品あるいは健康被害が発生するおそれがある製品について、著者らは健康被害を未然に防ぐため、医薬品等の成分検査を実施している。しかし、健康食品中の脱N-ジメチルシブトラミン及びシブトラミンをHPLCで測定する方法は報告されていない。市販の健康食品には多種類の妨害成分が存在するため、HPLCを用いて分析するには精製が必要である。そこで、固相抽出法でクリーンアップし、HPLCで分析する方法を検討した。

## 2 実験方法

### 2・1 試薬

シブトラミン標準品は Alexis 製のシブトラミン塩酸塩（一水和物）を用いた。脱N-ジメチルシブトラミンの標準品は市販されていないため、納豆菌ダイエットの該当品（商品名：美的身源）から精製した。脱N-ジメチルシブトラミンは図1に示したシブトラミンの脱N-ジメチル体の化学構造で塩基性物質である。このことから、美的身源を粉碎し、その 8g に 10 % アンモニア水 25ml を加えて塩基性とし、エーテル 10ml で 3 回超音波抽出を行った。64g の美的身源から抽出したエーテル溶液を合わせ濃縮乾固した後、乾固物中の脱N-ジメチルシブトラミンを 20ml のメタノールで 2 回抽出した。抽出液を濃縮乾固後、10ml のエーテルに溶かし、2N 水酸化ナトリウム溶液 30ml で軽く洗浄した。エーテル層を分取後、水層はエーテル 10ml で 2 回抽出した。抽出液を濃縮乾固後、メタノール 6ml を加えて溶かし、0.1 % 酢酸 12ml を加えた。この溶液をそれぞれ 10ml のメタノール、水及び 0.1 % 酢酸を流してコンデショニングした Varian 製の Mega Bond Elut SCX カートリッジ（5g, 20ml）に流し込み脱N-ジメチルシブトラミンを保持させた。カートリッジを水 10ml、メタノール 30ml で洗った後、4 % アンモニア水-メタノール溶液 30ml で脱N-ジメチルシブトラミンを溶出した。溶出液は濃縮乾固後、少量のエーテルに溶かしろ紙を用いてろ過した。そのろ液を濃縮乾燥して美的身源 64g から 29.2mg を得た。HPLCで測定した結果、クロマトグラム上に单一ピークが得られたことから、以後、二次標準品として本標準品を用いた。

脱N-ジメチルシブトラミンを 10.0mg、シブトラミン塩酸塩を 11.9mg 秤量し、メタノールを加えて 50ml とし冷暗所に保存した。用時、メタノールを加えて希釈し 20 - 50 μ g/ml の標準溶液を調製した。

陽イオン交換体ミニカラムは Varian 製の Bond Elut Certify カートリッジ (LRC, 300mg, 10ml) 及び Mega Bond Elut SCX カートリッジ (5g, 20ml) を用いた。メ

タノールは和光純薬工業（株）製の HPLC 分析用を用いた。

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 LiChrosorb RP18 (4.6×150mm, 5 μ m) を使用した。

### 2・3 実験操作

#### 2・3・1 脱N-ジメチルシブトラミン及びシブトラミンの分析法

健康食品 0.2g を 10ml の試験管に秤量し、メタノール 2ml で 2 回、10 分間振とう抽出した。遠心分離 (2500 rpm) した後メタノール層を採取し、0.1 % 酢酸を加えて 10ml とした。Bond Elut Certify カートリッジにメタノール 2ml、水 2ml、0.1 % 酢酸 2ml を順次流しコンデショニングした。これに抽出溶液 10ml を流し込み、脱N-ジメチルシブトラミン及びシブトラミンを保持させた後、水 2ml 及びメタノール 2ml で洗浄した。2 % アンモニア水-メタノール溶液 4ml を流し脱N-ジメチルシブトラミン及びシブトラミンを溶出した。溶出液は窒素ガス気流下 40 - 50 °C で 2ml 以下まで濃縮後、メタノールを加えて HPLC 用溶液を調製した。

#### 2・3・2 脱N-ジメチルシブトラミン及びシブトラミンの HPLC 測定条件

カラム	LiChrosorb RP18 (4.6×150mm, 5 μ m)
カラム温度	45 °C
移動相	pH7 の 0.02mol/L リン酸塩緩衝液／メタノール (15:85, v/v)
流量	1.2ml / 分
注入量	10 μ l
測定波長	225nm
保持時間	脱N-ジメチルシブトラミン : 5.6 分 シブトラミン : 12.5 分

## 3 結果及び考察

### 3・1 脱N-ジメチルシブトラミン及びシブトラミンの HPLC 測定条件の検討

LiChrosorb RP18 のカラムを用いて脱N-ジメチルシブトラミン及びシブトラミンの HPLC の移動相を 2・3・2 の測定条件で同様に検討した（図 2）。0.6 % ギ酸・0.5 % トリエチルアミン溶液／アセトニトリル (20:80, v/v)、

pH7 の 0.02mol/L リン酸塩緩衝液／メタノール（15:85, v/v）及び 0.04mol/L 酢酸アンモニウム／メタノール／トリエチルアミン（20:80:0.05, v/v）の 3 種類の移動相いずれも、良好な分離が得られた。トリエチルアミンを使用した移動相はカラムの平衡化に時間がかかるため、本試験法では、図 2b に示した HPLC クロマトグラムの pH7 の 0.02mol/L リン酸塩緩衝液／メタノールを用いた。

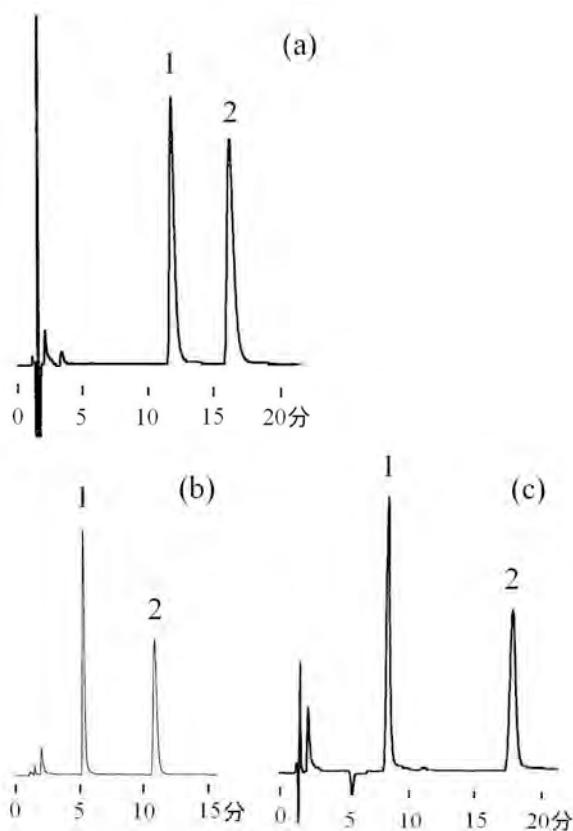


図 2 3 種類の移動相；0.6 % ギ酸・0.5 % トリエチルアミン溶液／アセトニトリル（20:80）(a), pH7 の 0.02mol/L リン酸塩緩衝液／メタノール（15:85）(b), 0.04mol/L 酢酸アンモニウム／メタノール／トリエチルアミン（20:80:0.05）(c) で測定した標準溶液（各々 250ng）の HPLC クロマトグラム

1, 脱N-ジメチルシブトラミン； 2, シブトラミン

### 3・2 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クリーンアップする方法を検討した。脱N-ジメチルシブトラミン及びシブトラミンそれぞれ 40  $\mu$ g を Bond Elut Certify カートリッジに保持させ、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 では脱N-ジメチルシブトラミン及びシブトラミン溶出量

は添加量のそれぞれ 0 %, 1 – 2ml の溶出量は添加量の 1.1 及び 0 %, 2 – 3ml の溶出量は添加量の 90.8 及び 91.3 %, 3 – 4ml の溶出量は添加量の 6.0 及び 5.6 %, 4 – 5ml の溶出量は添加量の 0 % であった。このことからクリーンアップ操作時において、2 % アンモニア水-メタノール溶液量は 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 2ml 以下まで濃縮後、メタノールを加え 2ml にした。添加回収試験で得られた健康食品 A 及び B のクリーンアップ前のクロマトグラムを図 3a 及び図 3c に示す。図 3b 及び図 3d にクリーンアップ後のクロマトグラムを示す。このクリーンアップ操作によって健康食品中の共存物質を効果的に除去することができた。

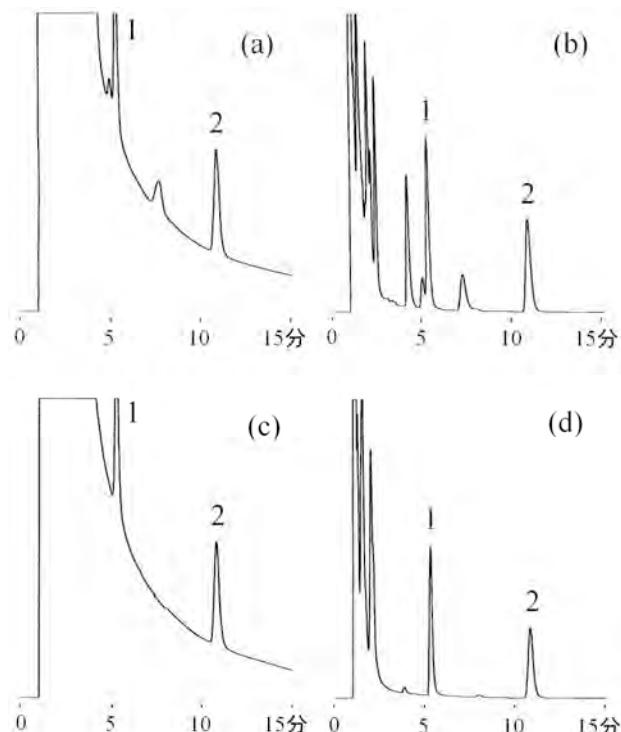


図 3 健康食品 A のクリーンアップ前 (a) とクリーンアップ後 (b) 及び健康食品 B のクリーンアップ前 (c) とクリーンアップ後 (d) の HPLC クロマトグラム

1, 脱N-ジメチルシブトラミン； 2, シブトラミン

### 3・3 脱N-ジメチルシブトラミン及びシブトラミンの回収率と再現性

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）を用いて添加回収実験を行った。健康食品 0.2g に脱N-ジメチルシブトラミン及びシブトラミンをそれぞれ 50  $\mu$ g 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 回を行い、その結果を表 1

に示す。

健康食品Aの回収率は脱N-ジメチルシブトラミンが96.4% (89.8 – 99.5%), シブトラミンが91.4% (84.2 – 95.7%) であった。健康食品Bの回収率は脱N-ジメチルシブトラミンが88.4% (83.1 – 91.1%), シブトラミンが87.4% (83.7 – 94.0%) 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。本法による脱N-ジメチルシブトラミン及びシブトラミン定量下限値はそれぞれ0.001mg/g であった。

**表1 健康食品からの脱N-ジメチルシブトラミン及びシブトラミンの添加回収試験結果**

	脱N-ジメチルシブトラミン	シブトラミン
	回収率±標準偏差**	
健康食品A*	96.4 ± 3.9	91.4 ± 4.5
健康食品B*	88.4 ± 4.8	87.4 ± 4.2

\*健康食品A及びBにおいて脱N-ジメチルシブトラミン及びシブトラミンは不検出であった。

\*\*健康食品0.2gに脱N-ジメチルシブトラミン及びシブトラミンをそれぞれ50μg添加した。実験回数(n=5)

本法を納豆菌ダイエットと称してインターネット販売された6種類の健康食品に応用した結果、脱N-ジメチルシブトラミンあるいはシブトラミンのいずれかが検出された。6種類のHPLCクロマトグラムは図4a及び図4bに示す爽健美人あるいは軽身美人のクロマトグラムと類似していた。脱N-ジメチルシブトラミンの含有量は爽健美人、美的身源、美姿宝及びスリムデルプロがそれぞれ1.1, 0.7, 1.1及び1.3mg/g であった。シブトラミンの含有量は軽身美人及び貴宝美健がそれぞれ1.7及び2.0mg/g であった。

#### 4.まとめ

健康食品中の脱N-ジメチルシブトラミン及びシブトラミンの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、回収率、再現性ともにほぼ満足する結果を得た。

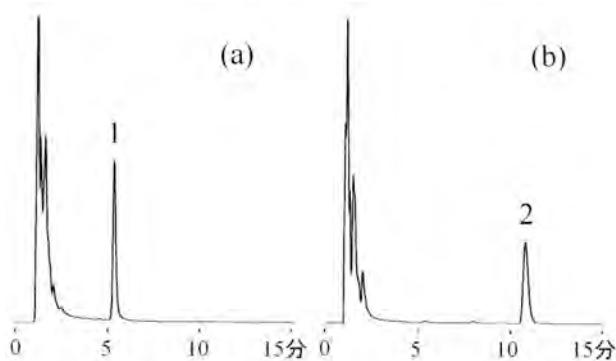


図4 脱N-ジメチルシブトラミン及びシブトラミンが検出された爽健美人(a) 及び軽身美人(b) のHPLCクロマトグラム

1. 脱N-ジメチルシブトラミン； 2. シブトラミン

#### 文献

- 1) C. Gundlah et al. : J. Pharmacol. Exp. Ther., 283, 581-591, 1997.
- 2) F. McMahon et al. : Arch. Intern. Med., 160, 2185-2191, 2000.
- 3) A. Ruiz et al. : Obes. Res., 8, 71-82, 2000.
- 4) R. Berkowitz et al. : JAMA, 289, 1805-1812, 2003.
- 5) 深川光司・坂田利家：日薬理誌, 118, 303-308, 2001.
- 6) J. Chen et al. : J. Chromatogr. B, 785, 197-203, 2003.
- 7) 厚生労働省医薬食品局、薬食監麻発第1203002号脱N-ジメチルシブトラミン
- 8) 厚生労働省医薬食品局、医薬監麻発第0411004号、第041101号シブトラミン

# **Analysis of Des-N-dimethylsibutramine and Sibutramine in Health Foods by HPLC**

**Kunimasa MORITA, Takami MOHRI, Reiko NAKAGAWA**

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

A reverse-phase HPLC method for determining des-N-dimethylsibutramine and sibutramine in health foods is described. Des-N-dimethylsibutramine and sibutramine in health foods was extracted with methanol. The sample solution for HPLC was applied to Bond Elut Certify (solid phase extractions) with 2% ammonium hydroxide in methanol as the mobile phase. The HPLC analysis was carried out on a column of LiChrosorb RP18 (4.6 x 150 mm, 5 microns) with 0.02 mol/L phosphate buffer pH 7.0 /methanol (15:85, v/v) as the mobile phase and the eluate was monitored by UV detection at 225 nm. The average recovery of des-N-dimethylsibutramine and sibutramine from health food was 88—96 and 87—91%, respectively. The quantitation limit of this method was 0.001mg/g, respectively.

[Key words; des-N-dimethylsibutramine, Sibutramine, HPLC, Solid phase extractions, Health Food]



## 原著論文

## 健康食品中のビサコジルの 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、健康食品中のビサコジルの分析法を検討した。健康食品中のビサコジルは0.1%酢酸メタノールを用いて抽出し、Bond Elut C18 及び Bond Elut Certify カートリッジ(固相抽出法)を用いてそれぞれ0.1%酢酸メタノール及び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LiChrosorb RP18 (4.6 x 150 mm, 5 microns)を、移動相にpH7の0.02 mol/Lリン酸塩緩衝液/アセトニトリル(55:45, v/v)を用い、測定波長260 nmで分析した。本法による健康食品からのビサコジルの回収率は73-97%, 定量下限値は0.02 mg/gであった。

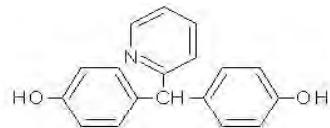
[キーワード : ビサコジル, HPLC, 固相抽出法, 健康食品, 下剤]

## 1 はじめに

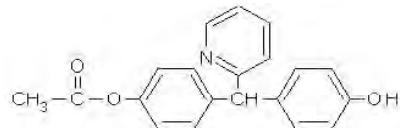
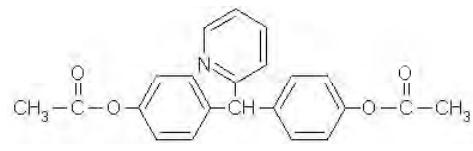
平成14年12月-平成17年9月、タイから個人輸入により入手した「ホスピタルダイエット」などと称される製品を服用したことによる健康被害4例(内1例が急性心不全で死亡)が厚生労働省から発表された。該当品にはビサコジルをはじめとする4-7種類の無承認無許可医薬品が混入され、5種類の該当品に合計11成分の医薬品が検出された。

ビサコジルは白色粉末で冰酢酸に溶けやすく、アセトンにやや溶けやすく、エタノール又はエーテルに溶けにくく、水にほとんど溶けない。希塩酸に溶けるが速やかに分解し、4,4'-(2-ヒドロキシメチレン)ビスフェノール(desacetyl bisacodyl)及び4,4'-(2-アセチルメチレン)ビスフェノールモノアセテート(monoacetyl bisacodyl)を生成することが日本薬局方に記載されている<sup>1)</sup>。化学式はビサコジルがC<sub>22</sub>H<sub>19</sub>NO<sub>4</sub>(m.w. 361.4)である。

ビサコジルは坐剤用緩下薬である。結腸、直腸粘膜の副交感神経末端に作用してぜん動を高め、また腸粘膜への直接作用により排便反射を刺激する。さらに結腸腔内における水分や電解質の吸収を抑制する。直腸坐剤とすれば15-60分以内に作用が現れる。便秘症、消化管検査時又は手術前後における消化管内容物の排除に適応される。ビサコジルは1回10mg、1日1-2回肛門内に挿入する<sup>1)</sup>。ビサコジルは1個2mg及び10mg含まれる坐薬が販売されているが<sup>2)</sup>、肥満の治療のために使用される医薬品ではない。ビサコジルの副作用として、直腸刺激感、直腸炎、またときに腹部不快感、腹痛、肛

門部痛などの症状が現れることがある<sup>1), 2)</sup>。

4,4'-(2-ヒドロキシメチレン)ビスフェノール (desacetyl bisacodyl)

4,4'-(2-アセチルメチレン)ビスフェノールモノアセテート  
(monoacetyl bisacodyl)

ビサコジル

図1 desacetyl bisacodyl, monoacetyl bisacodyl 及びビサコジルの化学構造式

ビサコジルの測定方法として逆相カラムと移動相に0.01 mol/L クエン酸/アセトニトリル/メタノール(20:10:10, v/v)<sup>1), 3)</sup>, 0.05 mol/L リン酸二水素カリウム/アセトニトリル(45:55, v/v)<sup>4)</sup>を用いたHPLC法が報告されている。近年、国民の健康志向に伴っていわゆる健康食品に医薬品が添加されたものが、店頭や通信販売

で流通するようになった。このような無承認無許可医薬品あるいは健康被害が発生するおそれがある製品について、著者らは健康被害を未然に防ぐため、医薬品等の成分検査を実施している。

これまでに報告されたビサコジルの HPLC 分析法<sup>1), 3)</sup>は腸溶性錠剤及び坐薬の試験法であり、健康食品の試験法ではない。多種類の妨害成分が存在する健康食品に適用するには精製が必要である。そこで、固相抽出法でクリーンアップし、HPLC で分析する方法を検討した。

## 2 実験方法

### 2・1 試薬

ビサコジル標準原液はビサコジル (Sigma 製) を 20 mg 秤量し、0.1 % 酢酸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 5 ml をとり 0.1 % 酢酸メタノールを加えて 50 ml としたものを標準溶液とした。

固相抽出には Varian 製の Bond Elut C18 カートリッジ (LRC, 500 mg, 10 ml) 及び陽イオン交換体ミニカラムの Bond Elut Certify カートリッジ (LRC, 300 mg, 10 ml) を用いた。メタノールは和光純薬工業 (株) 製の HPLC 分析用を用いた。

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 LiChrosorb RP18 (4.6×150 mm, 5  $\mu$  m) を使用した。

### 2・3 実験操作

#### 2・3・1 ビサコジルの分析法

Bond Elut C18 カートリッジ法 健康食品 0.2 g を 10 ml の試験管に秤量し、0.1 % 酢酸メタノール 2 ml を加え振とう抽出した。2500 rpm で遠心分離した後、0.1 % 酢酸メタノール層を採取した。残渣は 0.1 % 酢酸メタノール 2 ml でさらに 1 回抽出した。抽出液を合わせ、窒素ガス気流下 40–50 °C で約 1 ml まで濃縮し、0.1 % 酢酸を加えて 5 ml とした。Bond Elut C18 カートリッジはメタノール 2 ml、水 2 ml を順次流しコンデンショニングした。5 ml の試料液を Bond Elut C18 カートリッジに流し込み、ビサコジルを保持させた後、0.1 % 酢酸 2 ml 及び 50 % メタノール 3 ml で洗浄した。0.1 % 酢酸メタノール 5 ml でビサコジルを溶出し試料溶液とした。

Bond Elut Certify カートリッジ法 健康食品 0.2 g を 10 ml の試験管に秤量し、0.1 % 酢酸メタノール 2 ml を加え振とう抽出した。2500 rpm で遠心分離した後、0.1

% 酢酸メタノール層を採取した。残渣は 0.1 % 酢酸メタノール 2 ml でさらに 1 回抽出した。抽出液を合わせ、0.1 % 酢酸を加えて 10 ml とした。Bond Elut Certify カートリッジはメタノール 2 ml、水 2 ml、0.1 % 酢酸 2 ml を順次流しコンデンショニングした。10 ml の試料液を Bond Elut Certify カートリッジに流し込みビサコジルを保持させた後、水 2 ml 及びメタノール 2 ml で洗浄した。受器に 50 % 酢酸メタノール 1 ml を入れ、2 % アンモニア水-メタノール溶液 3 ml でビサコジルを溶出し試料溶液とした。

#### 2・3・2 ビサコジルの HPLC 測定条件

カラム	LiChrosorb RP18 (4.6×150 mm, 5 $\mu$ m)
移動相	pH7 の 0.02 mol/L リン酸塩緩衝液／アセトニトリル (55 : 45, v/v)
流量	1.0 ml/min
カラム温度	45 °C
注入量	10 $\mu$ l
測定波長	260 nm
保持時間	ビサコジル : 9.5 分

## 3 結果及び考察

### 3・1 ビサコジルの分解性

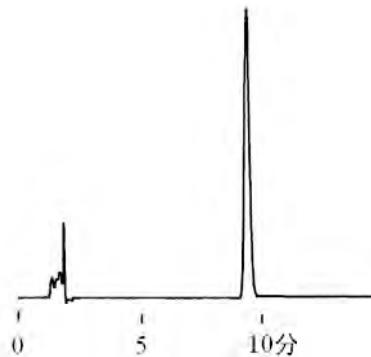


図2 ビサコジル標準溶液の HPLC クロマトグラム

図2に2・3・2の条件で測定した 20  $\mu$  g/ml のビサコジル標準溶液の HPLC クロマトグラムを示す。ビサコジルは希塩酸に溶けるが速やかに分解すると日本薬局方に報告されている<sup>1)</sup>。ビサコジルの標準溶液の調製及び試料からの抽出に適した溶剤を選択するため、数種類の溶剤を用いてビサコジル濃度 20  $\mu$  g/ml におけるその分解性について検討した。

ビサコジル 20  $\mu$  g/ml の 0.01 N 塩酸メタノール溶液では、標準溶液調製 10 分後、図3に示すピーク3(保持時間 9.5 分)のビサコジルと monoacetyl bisacodyl と考えられる小さなピーク2(保持時間 4.7 分)の 2 つのピ

ークが検出された。さらに24時間後(図3a), desacetyl bisacodylと考えられるピーク1(保持時間2.8分)が検出された。ビサコジル20 $\mu$ g/mlのメタノール及びアセトニトリル溶液では、標準溶液調製6時間後ビサコジルのみが検出されたが、メタノール溶液では24時間後(図3b)小さなピーク2が検出され、その後ピーク2は日々高くなった。0.1%酢酸メタノール溶液では、図2に示したように調製後1ヶ月までピーク1及び2の分解ピークは全く検出されなかった。

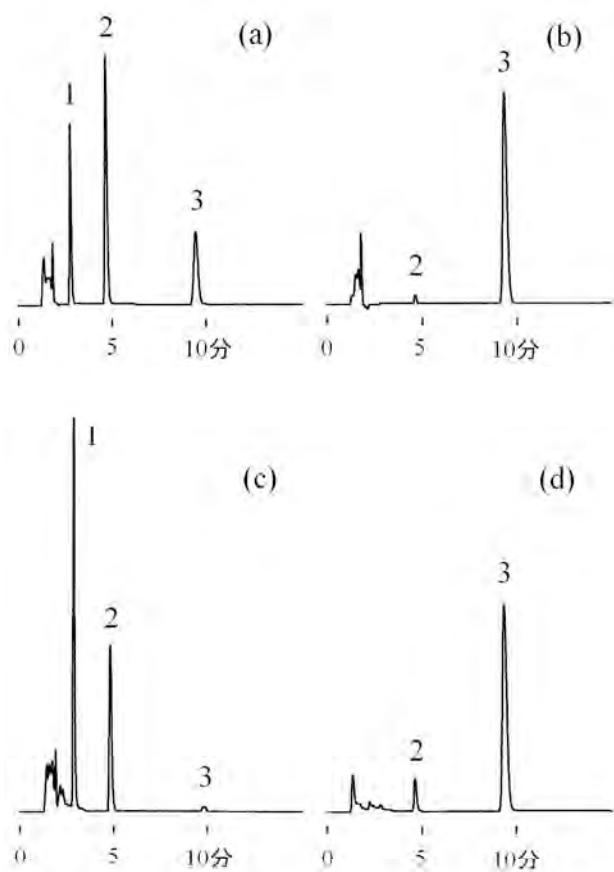


図3 ビサコジル20 $\mu$ g/mlの0.01N塩酸メタノール溶液(a)、メタノール溶液(b)、2%アンモニア水-メタノール溶液(c)及び2%アンモニア水-アセトニトリル溶液(d)のHPLCクロマトグラム

\*(a)及び(b)：標準溶液調製24時間後測定、(c)及び(d)：標準溶液調製10分後測定。ピーク1；desacetyl bisacodyl、ピーク2；monoacetyl bisacodyl、ピーク3；ビサコジル。

塩基性溶液での分解性について検討した結果、ビサコジル20 $\mu$ g/mlの2%アンモニア水-メタノール溶液では、標準溶液調製10分後、ピーク1及び2が検出された(図3c)。2%アンモニア水-アセトニトリル溶液では、10分経過後小さなピーク2が検出され(図3d)、さらに24時間後図3cと類似したHPLCクロマトグラムが得ら

れた。このことからビサコジルは塩酸酸性及びアンモニア塩基性では徐々に分解され、日本薬局方に記載されているmonoacetyl bisacodyl及びdesacetyl bisacodylが生成されることが分かった。本試験法では、標準溶液の溶剤及び抽出溶剤には標準溶液調製後1ヶ月まで分解ピークが全く検出されなかつた0.1%酢酸メタノールを用いた。

### 3・2 共存物質の除去

Bond Elut C18及びBond Elut Certifyカートリッジを用いて試料抽出液中の共存物質を除去する方法を検討した。ビサコジル200 $\mu$ gをBond Elut C18カートリッジに保持させ、2・3・1の操作に従って0.1%酢酸メタノールの溶出液量を検討した。0-4mlの溶出量は添加量の約100%であったことから、クリーンアップ操作における0.1%酢酸メタノールの溶出液量は5mlとした。

さらに、ビサコジル200 $\mu$ gをBond Elut Certifyカートリッジに保持させ、2・3・1の操作に従って2%アンモニア水-メタノール溶液の溶出液量を検討した。0-2mlの溶出量は添加量の約100%であったことから、クリーンアップ操作における2%アンモニア水-メタノール溶液の溶出液量は3mlとした。

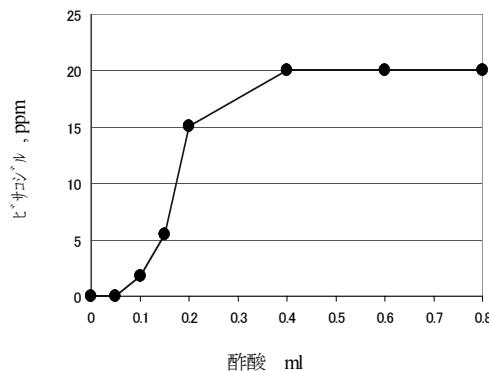


図4 ビサコジルの分解性

\*2%アンモニア水-メタノール溶液3mlに酢酸0-0.8mlを加えた液に、ビサコジルをそれぞれ200 $\mu$ gを添加しメタノールで10mlとした溶液を調製した。6時間経過後、ビサコジル濃度を測定した。実験回数1回

しかし、2%アンモニア水-メタノール溶液を溶出液に用いることにより、HPLCクロマトグラムに図3に示したピーク1及び2の分解生成物が出現した。そこで、ビサコジルの分解を抑制するため受器にあらかじめ入れて置く酢酸量について検討した。2%アンモニア水-メタノール溶液3mlと酢酸0-0.8mlの混合溶液にビサコジルをそれぞれ200 $\mu$ g添加し、メタノールを加えて

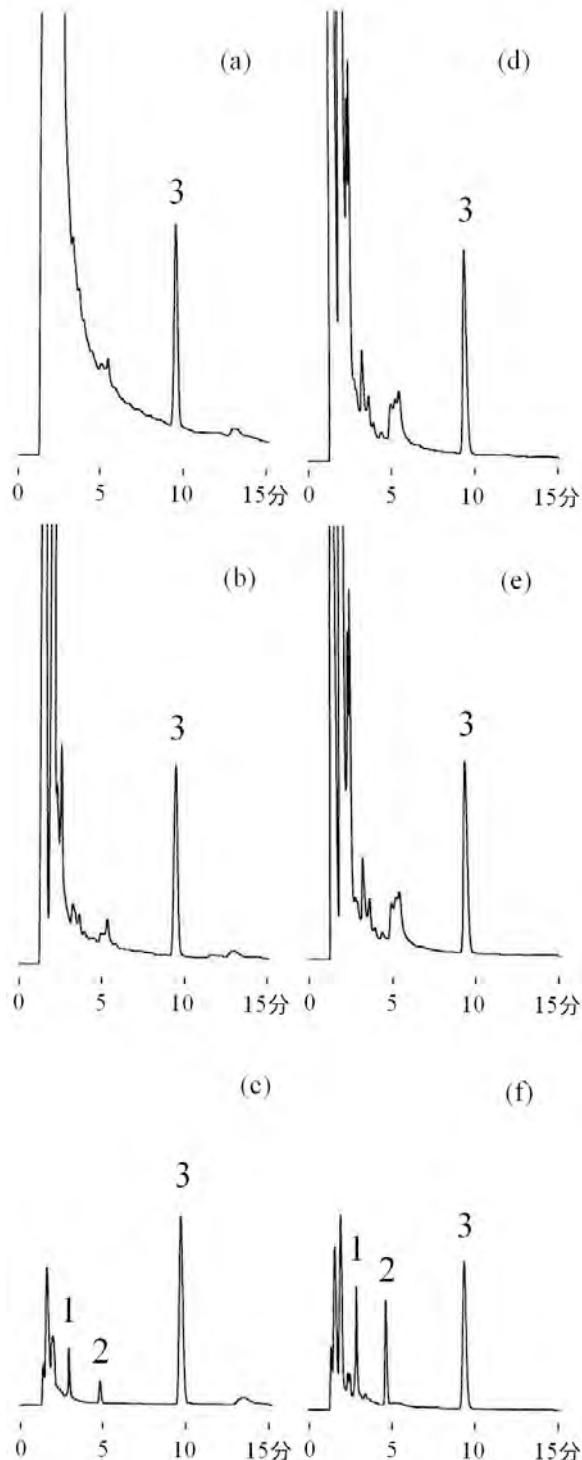


図5 健康食品A及びBのクリーンアップ前後のHPLCクロマトグラム

\*健康食品Aのクリーンアップ前(a), Bond Elut C18 カートリッジ処理後(b)及びBond Elut Certify カートリッジ処理後(c).

\*\*健康食品Bのクリーンアップ前(d), Bond Elut C18 カートリッジ処理後(e)及びBond Elut Certify カートリッジ処理後(f).

ピーク1; desacetyl bisacojil, ピーク2; monoacetyl bisacojil, ピーク3; ビサコジル.

10 mlとした $20 \mu\text{g}/\text{ml}$ のビサコジル溶液を調製した。標準溶液調製6時間経過後HPLCでビサコジル濃度を測定した結果(図4), 2%アンモニア水-メタノール溶液3 mlに対して酢酸0-0.05 mlの混合溶液では、ビサコジルは $0 \mu\text{g}/\text{ml}$ で図3に示したピーク1のみが検出され、ビサコジルはすべて分解されていた。酢酸0.1-0.2 mlの混合溶液では、ビサコジル濃度は $1.8-15.1 \mu\text{g}/\text{ml}$ で図3に示したピーク1及び2の分解生成物が検出された。酢酸0.4-0.8 mlの混合溶液では、ビサコジル濃度は $20 \mu\text{g}/\text{ml}$ で、ビサコジルは全く分解されなかった。本試験法では、受器に入れる酢酸量は0.5 ml、すなわち50%酢酸メタノール1 mlとした。

図5に添加回収試験で得られた健康食品A及びBのクリーンアップ前後のHPLCクロマトグラムを示す。健康食品Aの場合、クリーンアップ前のクロマトグラム(図5a)は共存物質の影響を受けビサコジルのピークにテーリングが認められたが、Bond Elut C18 カートリッジで処理した後(図5b)かなり改善された。Bond Elut Certify カートリッジで処理した場合(図5c) Bond Elut C18 カートリッジよりさらに効果的に共存物質を除去することができたが、クロマトグラムにピーク1及び2の分解生成物が認められた。これらのピークは2%アンモニア水-メタノール溶出液がBond Elut Certify カートリッジを通過する際、ビサコジルが分解し生成したものと考えられた。健康食品Bの場合、クリーンアップ前のクロマトグラム(図5d)は保持時間1-6分に大きなピークがあるが、ビサコジルのピークに極端なテーリングがみられないため、カートリッジ未処理で定量できる試料と考えられた。Bond Elut C18 カートリッジ処理後(図5e)においても保持時間1-6分の共存物質は除去できなかったが、Bond Elut Certify カートリッジで処理した場合(図5f)共存物質を効果的に除去することができた。しかし、健康食品Aの場合と同様にピーク1及び2の分解生成物が認められた。共存物質の除去を検討するために用いた健康食品A及びBのクロマトグラム上に、ビサコジルの分析を妨害するような成分は認められなかつたが、もしビサコジルの保持時間前後に共存物質が存在する健康食品があれば、図5a及び図5dに示したように共存物質をほとんど除去できたBond Elut Certify カートリッジを用いた方が良いと思われた。またBond Elut Certify カートリッジで処理した後の分解生成物のピークの有無はビサコジルの確認試験として使用できると思われた。

### 3・3 ビサコジルの回収率と再現性

市販されている健康食品A及びBを用いて添加回収試験を行った。健康食品0.2 gにビサコジルをそれぞれ200

$\mu\text{ g}$ 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に示す。

表1 健康食品からのビサコジルの添加回収試験結果

ビサコジル	
	回収率±標準偏差**
クリーンアップ処理前	
健康食品A*	99.5 ± 0.9
健康食品B*	99.9 ± 0.6
Bond Elut C18 カートリッジ処理後	
健康食品A	96.9 ± 0.4
健康食品B	97.4 ± 0.7
Bond Elut Certify カートリッジ処理後	
健康食品A	92.3 ± 3.3
健康食品B	73.0 ± 2.3

\*健康食品A及びBにおいてビサコジルは不検出であった。

\*\*健康食品0.2 gを採り、ビサコジルをそれぞれ200  $\mu\text{ g}$  添加した。実験回数(n=5)。

健康食品Aの場合、クリーンアップ処理前のビサコジルの回収率は99.5% (98.8 – 100.7%)、Bond Elut C18 カートリッジ処理後の回収率は96.9% (96.4 – 97.5%)、Bond Elut Certify カートリッジ処理後の回収率は92.3% (89.7 – 97.8%) であった。健康食品Bの場合、クリ

ーンアップ処理前のビサコジルの回収率は99.9% (99.0 – 100.6%)、Bond Elut C18 カートリッジ処理後の回収率は97.4% (96.7 – 98.6%)、Bond Elut Certify カートリッジ処理後の回収率は73.0% (70.7 – 76.5%) 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。本法によるビサコジルの定量下限値は0.02 mg/g であった。

#### 4 まとめ

健康食品中のビサコジルのHPLC分析法を検討した。その結果、Bond Elut C18 及び 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) 鈴木郁生ら：第13改正日本薬局方解説書、(日本薬局方解説書編集委員会編), C2000-2005, 東京, 廣川書店, 1998.
- 2) 長尾清ら：日本医薬品集、(日本医薬情報センター編) 1293-1295, 東京都, 薬業時報社, 2000.
- 3) L. Valenti & C. Lau-Cam : J. Assoc. Off. Anal. Chem., 68, 529-532, 1985.
- 4) K. Bradshaw et al. : J. Pharm. Biomed. Anal., 13, 1355-1362, 1995.

## Analysis of Bisacodyl in Health Foods by HPLC

Kunimasa MORITA, Takami MOHRI, Reiko NAKAGAWA

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

A reverse-phase HPLC method for determining bisacodyl in health foods is described. Bisacodyl in health foods was extracted with 0.1% acetic acid in methanol. The sample solution for HPLC was applied to Bond Elut C18 and Bond Elut Certify (solid phase extractions) with 0.1% acetic acid in methanol and 2% ammonium hydroxide in methanol as the mobile phase, respectively. The HPLC analysis was carried out on a column of LiChrosorb RP18 (4.6 x 150 mm, 5 microns) with 0.02 mol / L phosphate buffer pH 7.0 /acetonitrile (55:45, v/v) as the mobile phase and the eluate was monitored by UV detection at 260 nm. The average recovery of bisacodyl from health food was 73 – 97%. The quantitation limit of this method was 0.02 mg/g.

[Key words; Bisacodyl, HPLC, Solid phase extractions, Health Food, Cathartics]



## 溪流水のトリハロメタン生成能

永淵義孝<sup>\*1</sup>, 松尾 宏<sup>\*1</sup>, 佐々木重行<sup>\*2</sup>

福岡県内の県営林内から流出する溪流水のトリハロメタン生成能について検討した。調査流域のW-1, W-4及びE-4におけるトリハロメタン生成能の平均値は、それぞれ0.019, 0.022, 0.023 mg/Lであった。トリハロメタン生成能は季節変動がみられた。トリハロメタン生成能と不飽和結合を有する有機物の指標となる紫外線吸光度( $E_{260}$ )との間には正の相関があった。W-1及びE-4におけるトリハロメタン生成能の年間流出負荷量は、220-340 g/haであった。

[キーワード：溪流水，トリハロメタン生成能，トリハロメタン生成能流出負荷]

### 1 はじめに

トリハロメタン（THM）の生成に関する有機物は、点源とされる家庭<sup>1)</sup>や工場・事業場<sup>1), 2)</sup>、下水<sup>3)</sup>及びし尿処理場<sup>1), 4)</sup>あるいは面源とされる森林<sup>1)</sup>、田畠<sup>1)</sup>、路面堆積物<sup>3)</sup>等の流出水さらに水中のある種の藻類<sup>5), 6)</sup>に由来している。

水道の水質基準項目においてTHMの基準値は0.1 mg/Lとなっており、水道水源域ではこの水質基準を超えないような水道原水水質保全対策が求められている。点源ではその発生源が明確に把握できるため、平成6年3月に「特定水道利水障害防止のための水道水源水域の水質保全に関する特別措置法」が公布され、指定地域内では一定規模以上の事業場については、排出水のトリハロメタン生成能（試水がある条件下で

塩素処理したときに生成するTHM濃度のことである。以後はTHMFPと略す。)の規制が行われることとなつた。

面源では発生源が明確でなかつたり、その把握に困難さを伴うことが多い。特に森林に係るデータの収集・蓄積が十分ではなく、THMFP負荷量等の見積もりが立てにくいのが現状である。このため、THMFPのバックグラウンドと考えられる森林域からのデータを収集・蓄積することは、水質保全対策を考慮するうえで重要と考えられる。

ここでは、福岡県内のスギ・ヒノキを中心とする人工林から流出する溪流水を対象に約3年間にわたって水質調査を行い、森林由来の有機物に起因するTHMFPのレベルや流出負荷量を検討した。

### 2 調査方法

#### 2・1 調査流域とその概要

福岡県内の県営林内にあるW-1, W-4及びE-4を調査流域とした(図1)。その流域の概要を表1に示す。

表1 調査流域の概要

流域名	流域面積 (ha)	複層林面積 (ha)	採水地点標高 (m)
W-1	15.3	7.2	420
W-4	23.3	11.9	460
E-4	21.8	0	380

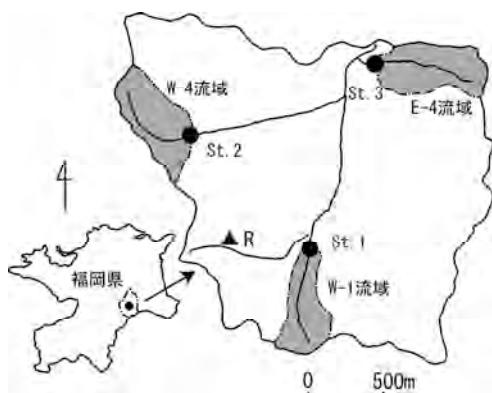


図1 調査流域と試料採取地点

●：試料採取地点, ▲：降水採取地点

\*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 福岡県森林林業技術センター (〒839-0827 福岡県久留米市山本町豊田1438-2)

調査流域はスギとヒノキを主とした人工林からなり、W - 1 では、複層林（下木の林齢は 15 年、上木は 45 - 60 年）が流域面積のほぼ半分である 7.2 ha を、また、W - 4 では、複層林（下木の林齢は 15 年、上木は 35 - 45 年）が流域面積の半分である 11.9 ha を占めている。一方、E - 4 は、W - 1 及び W - 4 とは異なり、単層林（林齢は 20 - 30 年）である。また、調査流域の基岩は全て結晶片岩である<sup>7)</sup>。

## 2・2 調査期間

1998 年 4 月 - 2000 年 12 月

## 2・3 採水方法

図 1 に示す各流域の流末にある量水ダム（水位計が設置されている）の St. 1, St. 2 及び St. 3 において、原則として毎月末の降雨時を除く流況が安定したときに渓流水を採水した。月末に採水できない場合には、翌月のできるだけ早い時期に行った。降水については、図 1 に示す樹冠の影響がない地点 R において、デポジット法により 30 cm ロートを用いて 20 L のポリタンクに貯留した。

## 2・4 調査水質項目の測定方法

### 2・4・1 THMFP

THMFP の測定方法は、「THM に関する対策について」の総 THMFP 試験方法<sup>8)</sup>に準じた。すなわち、試水に適当量の次亜塩素酸ナトリウム溶液を添加して塩素処理（pH 7.0, 20 °C, 24 時間）し、その結果、残留塩素量が 1 - 2 mg/L となるものについて、THM をヘッドスペース - GC/MS 法で測定した。

### 2・4・2 その他の水質項目の測定方法

pH、電気伝導率（EC）、浮遊物質（SS）、生物化学的酸素消費量（BOD）、化学的酸素消費量（COD）、全有機炭素（TOC）の測定については工場排水試験法

<sup>9)</sup>に準拠した。紫外線吸光度は、試水を 0.45 μm のメンブランフィルターでろ過したろ液について、5 cm セルを用いて吸光度（波長 260 nm）を測定した。

## 2・5 流量及び流出負荷量等の算定方法

流量については自記水位計の水位から計算により求めた。また、年間ヘクタール（ha）あたりの THMFP の流出負荷量の計算は次のようにして行った。すなわち、採水日毎の THMFP (C g/m<sup>3</sup>) と流量 (Q m<sup>3</sup>/日) とを乗じて THMFP 負荷量 (L g/日) を算出した。次に、L と Q との関係の散布図を作成し、この散布図から L - Q の回帰式を求めた。この L - Q 回帰式に日毎の流量を代入して日毎の THMFP 負荷量を算出した。日毎の負荷量を合計して月の負荷量とし、さらに、月毎の値を合計して年間の総流出負荷量とした。年間総負荷量を流域面積で除して年間 ha あたりの値を算出した。

## 3 結果及び考察

### 3・1 游水の水質

1998 年 4 月 - 2000 年 3 月の W - 1, W - 4 及び E - 4 において調査した水質項目の平均値及び標準偏差を表 2 に、また、有機物の指標とされる TOC 及び E<sub>260</sub> の推移を図 2 に示す。

表 2 から明らかなように、BOD の平均値は、河川の環境基準 AA 類型 (1 mg/L) をいずれも下回っており、その水質は非常に良好であった。次に、有機物の指標とされる TOC 及び E<sub>260</sub> をみると、前者については流域間で差はみられなかった。一方、後者では平均 0.050 - 0.077 であり、流域間で差がみられた。さらに、TOC 及び E<sub>260</sub> の推移（図 2）をみると夏季に高く、冬季に低くなる傾向にあった。

表2 各水質項目の平均値、標準偏差、最大値及び最小値

流域名	pH	EC (mS/m)	SS (mg/L)	BOD (mg/L)	COD (mg/L)	TOC (mg/L)	E <sub>260</sub>
W-1	平均値	7.5	7.2	2	0.5	1.1	1.0
	標準偏差	0.2	1.3	1	<0.5	<0.5	0.016
	最大値	7.8	8.7	5	0.9	1.9	1.2
	最小値	7.1	4.8	<1	<0.5	<0.5	0.027
W-4	平均値	7.5	5.9	6	<0.5	2.0	0.9
	標準偏差	0.1	0.9	7	<0.5	1.0	0.2
	最大値	7.7	7.6	32	0.7	4.6	1.3
	最小値	7.1	4.3	<1	<0.5	0.7	0.6
E-4	平均値	7.4	7.2	3	0.7	1.6	1.0
	標準偏差	0.1	1.0	2	<0.5	0.7	2.0
	最大値	7.7	8.7	8	1.7	3.0	1.3
	最小値	7.2	5.2	<1	<0.5	0.7	0.048

注) pH, EC, SS, TOC, E<sub>260</sub>, T-N および T-P は n=23, BOD および COD は n=12, E<sub>260</sub> は 5 cm のセルを使用

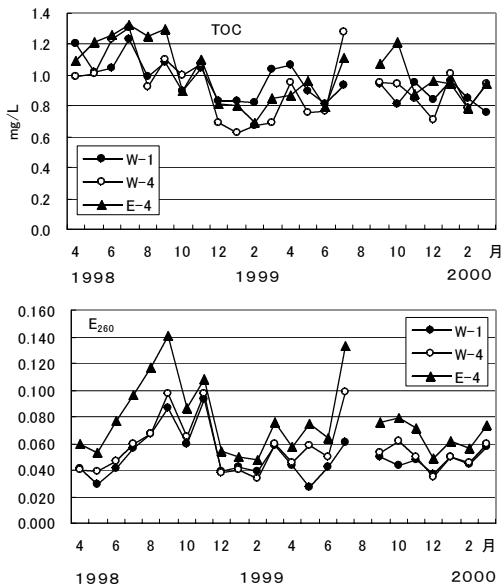


図2 TOC 及び  $E_{260}$  の推移

### 3・2 THMFP

#### 3・2・1 降水のTHMFP

1999年4月 - 2000年3月における降水のTHMFPの推移を図3に示す。降水のTHMFPは0.005 - 0.013 mg/Lで推移しており、後述する(3・2・2項における)溪流水の推移(同時期)と比較すると低値であった。なお、季節変動等については1年間だけのデータのため明らかでなく、これについては今後の課題である。

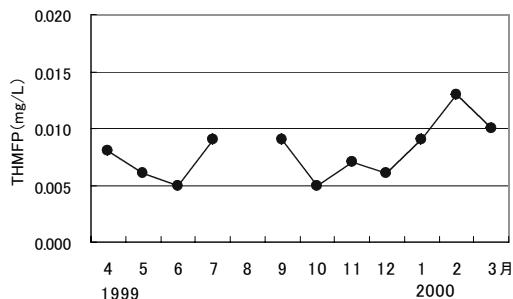


図3 降水の THMFP の推移

次に、これらのデータを用いて降水のTHMFP 降水重み付け平均値を求めた。すなわち、その時の降水量と濃度を乗じて降水量中に存在する物質量を出し、その総和を総降水量で除して値を算出したところ、0.007 mg/Lが得られた。この値は、浦野ら<sup>3)</sup>が報告した値(0.022 mg/L)と比較すると三分の一程度であり、かなり低かった。この数値の違いについては、浦野らの調査が横浜市という都市域の降水を対象としていたのに対して、当該調査では、山間部の降水を対

象としており、調査対象地域の違いが数値に大きく反映しているものと推察される。

#### 3・2・2 溪流水のTHMFP

W-1, W-4及びE-4のTHMFPを表3に示す。

表3 各流域の THMFP

	W-1	W-4	E-4
平均値 (n=23)	0.019	0.022	0.023
標準偏差	0.005	0.008	0.009
最大値	0.026	0.036	0.036
最小値	0.011	0.008	0.010

注) 単位 : mg/L

W-1, W-4及びE-4におけるTHMFPの平均値は、それぞれ0.019, 0.022及び0.023 mg/Lであり、単層林と複層林との違いによる差はみられなかった。また、3流域のTHMFPは0.019 - 0.023 mg/L、平均値0.021 mg/Lであった。過去の調査事例では河川最上流域の人為活動の影響が全くない河川水のTHMFPは0.003 - 0.006 mg/Lと報告されている<sup>1)</sup>。報告値と今回の数値を比べると、今回の調査では一桁高い数値が得られた。

今回の調査結果は2年間にわたる継続調査に基づいて得られたものであり、人為活動の影響がほとんどないスギ・ヒノキの人工林域からの自然由来の有機物に起因するTHMFPの平均的なレベルを表しているものと推測される。また、この値は、人為活動等に由来する有機物に起因するTHMFPを評価するうえでのバックグラウンド値として利用できると考えられる。

次に、流域別におけるTHMFPの推移(図4)をみると、各流域とも、THMFPは夏季に高く、冬季に低くなっていること、季節変動のあることが分かった。

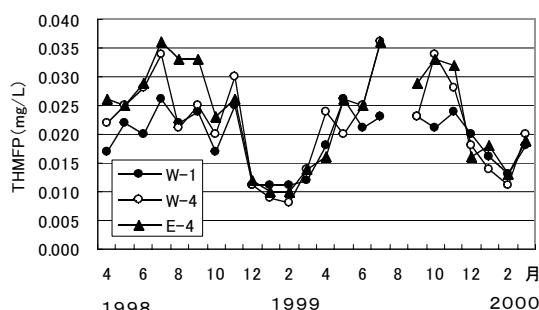


図4 溪流水の THMFP の推移

一方、生物では分解されにくくそして不飽和結合を有する THMFP に関する有機物（生物難分解性有機物）の指標となる  $E_{260}$  の季節変動は、前述したように THMFP と同様に夏季に高く冬季に低くなる傾向にあった（図2）。 $E_{260}$  の季節変動については、金子<sup>10)</sup> も同様に夏季に高く冬季に低くなる傾向にあることを指摘し、その理由として、夏季に渓流水中における粗大有機物（森林流域から流出するもので落葉や落枝が大半を占める）の分解が進行するためと考えられると報告している。

次に、THMFP と他の項目（水温、 $E_{260}$ 、TOC）との関係を検討したところ、表4に示す結果が得られ、THMFP と他の項目との間にはいずれも 1 % の危険率で有意な相関があることが分かった。

これらのことから、流域に存在している有機物の分解が夏季に盛んに行われ、その結果、夏季には THMFP に関する生物難分解性有機物が冬季に比べて多量に渓流水中に存在していると推察される。

表4 THMFP と他の項目との関係

	THMFP	水温	$E_{260}$	TOC
THMFP	1.000			
水温	0.743*	1.000		
$E_{260}$	0.603*	0.450*	1.000	
TOC	0.711*	0.630*	0.540*	1.000

注) n=69 (1998年4月-2000年3月のデータ)

\*は1%で有意

### 3・3 降水量、流出量及び流出率

W - 1 及び E - 4 における1999 - 2000 年の降水量、流出量及び流出率を表5に示す。

表5 降水量、流出量及び流出率

流域名	年	降水量 (mm)	流出量 (mm)	流出率 (%)
W-1	1999	2609	1625	62.3
	2000	2016	1119	55.5
E-4	1999	2172	—	—
	2000	1846	1069	57.9

当該流域の平均降水量は、約 2350 mm である<sup>11)</sup>。平均降水量と比較して、1999 年の降水量は、W - 1 で多雨傾向にあり、また、2000 年の降水量は、両流域とも少雨傾向にあった。次に、W - 1 及び E - 4 の流出率を求めた。表5 から明らかなように両流域のそれは 55.5 - 62.3 % にあり、降水量の約 6 割前

後が流出することが分かった。なお、1999 年の E - 4 と 1999 年及び 2000 年の W - 4 については、水位計の不具合で流出量に欠測等が生じたため、流出率は算出できなかった。

### 3・4 渓流水の流出負荷量

1999 年 1 月 - 2000 年 3 月の THMFP と日流量のデータから 2・5 項に示す方法により、W - 1 及び E - 4 における日流量 (Q) と THMFP 負荷量 (L) との関係を示す回帰式 ( $L = aQ^b$ ) を求めた。その結果を表6 に示す。

表6 THMFP の回帰式の定数と相関係数

流域名	n	$L = a \times Q^b$		
		a	b	r
W-1	14	0.0112	1.0827	0.964
E-4	12	0.0046	1.2569	0.989

注) n : データ数, L : g/日, Q : m<sup>3</sup>/日, r : 相関係数

W - 1 及び E - 4 における L と Q の間には  $t$  検定の結果から、1 % の危険率で有意に相関のあることが分かった。

この L - Q 式に 1999 年 1 月から 2000 年 12 月の日流量を代入して月別の負荷量を算出した。月別の THMFP 流出負荷量の変化を図5 に示す。

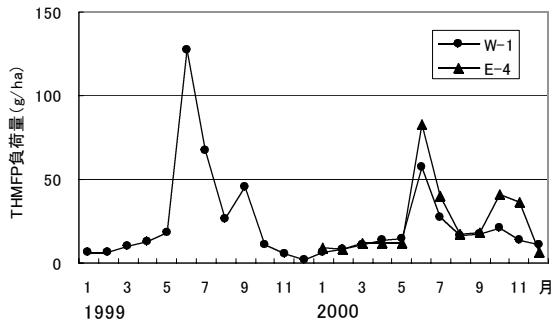


図5 月別の THMFP 流出負荷量の変化

図5 から明らかなように、渓流水の月別 THMFP 流出負荷量は、1999 年及び 2000 年とも 6 月が最大となった。

次に、月別の負荷量を合計して年間の総流出負荷量とし、年間の総負荷量を流域面積で除して年間 haあたりの流出負荷量を試算した。年間 ha あたりの流出負荷量を表7 に示す。

なお、1999 年の E - 4 と 1999 年及び 2000 年の W - 4 については、水位計の不具合で流出量に欠測

等が生じたため、流出負荷量は算出できなかった。

表7から明らかなように、THMFPの年間流出量は、1999年のW-1で340 g/ha、また、2000年のW-1及びE-4でそれぞれ220及び290 g/haであり、ほぼ近似した数値が得られた。しかし、これらの数値の精度を高めるには、更なるデータの収集・蓄積が必要であると考えられる。

表7 THMFPの流出負荷量 (g/ha・年)

流域名	THMFP (g/ha・年)	
	1999年	2000年
W-1	340	220
E-4	—	290

#### 4 まとめ

スギ・ヒノキの人工林を主とする森林域から流出する溪流水を対象に約3年間にわたってTHMFP等に係る水質調査を行ったところ、以下のことが明らかとなった。

- 1) W-1, W-4及びE-4における溪流水のTHMFP平均値は、それぞれ0.019, 0.022及び0.023 mg/Lであり、調査流域間での差はみられなかった。
- 2) 溪流水のTHMFPは、最大で0.036 mg/Lを示した。
- 3) 調査流域における降水のTHMFP平均値（降水重み付け）は、0.007 mg/Lであった。
- 4) 溪流水のTHMFPは夏季に高く、冬季に低くなつており、季節変動がみられた。
- 5) 溪流水のトリハロメタン生成能と不飽和結合を有する有機物の指標となる紫外線吸光度( $E_{260}$ )との間には正の相関があった。
- 6) 溪流水の月別THMFP流出負荷量は、1999年及び2000年とも6月が最大となった。
- 7) 調査年（1999年及び2000年）でのW-1及びE-4におけるTHMFPの年間流出負荷量は、220-340 g/haであった。

#### 文献

- 1) 合田健ら：昭和57年度環境保全研究成果集（I）12-1 - 12-18, 1983.
- 2) 永淵義孝ら：用水と廃水, 31(6), 524-530, 1989.
- 3) 浦野紘平ら：水道協会雑誌, 56(8), 37-47, 1983.
- 4) 相沢貴子ら：水質汚濁研究, 5(5), 277-285, 1982.
- 5) 福島博ら：水質汚濁研究, 4(5), 229-235, 1981.
- 6) 稲森悠平ら：水環境学会誌, 19(11), 885-890, 1996.
- 7) 佐々木重行ら：福岡県林業試験場時報, 第38号, 1991.
- 8) 厚生省環境衛生局：水道環境部長通知（環水第46号）, 1981.
- 9) 日本規格協会：JIS K 0102 工場排水試験方法, 東京, 1993.
- 10) 金子真司：湖沼での有機物の動態解析手法の開発に関する研究, 農林水産省農林水産技術会事務局, 2000.
- 11) 竹下敬司ら：福岡県林業試験場時報, 第18号, 1966.

## **Trihalomethane formation potentials in stream waters from forested mountains**

Yoshitaka NAGAFUCHI \*<sup>1</sup>, Hiroshi MATSUO \*<sup>1</sup> and Shigeyuki SASAKI \*<sup>2</sup>

\*<sup>1</sup> *Fukuoka Institute Health and Environmental Sciences*

*Mukaizano 39, Dazaifu, Fukuoka 818 - 0135, Japan*

\*<sup>2</sup> *Fukuoka Forest Research and Technology Center*

*Yamamoto - machi 1438 - 2, Kurume, Fukuoka 839 - 0827, Japan*

An investigation on water quality was conducted using stream waters from three basins (W - 1, W - 4 and E - 4) on a forested mountain. Water quality and runoff loads of trihalomethane formation potential (THMFP) were estimated. THMFP in W - 1, W - 4 and E - 4 were 0.019, 0.022 and 0.023 mg/L, respectively. It was observed that THMFP in stream waters from 3 basins varied with the seasons. There was a positive correlation between THMFP and ultraviolet absorbance at 260 nm ( $E_{260}$ ) as an indicator of organic matter containing an unsaturated bond. The annual runoff loads of THMFP were estimated in the range of 220 - 340 g/ha in two basins (W - 1 and E - 4).

[Key words : Stream waters, Trihalomethane formation potential, Runoff loads]

## 原著論文

# RDF焼却灰を利用した地盤材料の環境影響

鳥羽峰樹, 土田大輔, 高橋浩司, 黒川陽一, 永瀬誠, 宇都宮彬

地盤材料であるポゾテックRは、RDF焼却灰、石炭灰及び排煙脱硫スラッジを原料とし、固化が十分に進行した1ヶ月後には、強度基準及び重金属類の土壤環境基準を満足し、道路等の地盤材料としての性能を有することが確認されている。本研究では、本材料が固化によって重金属類の溶出を抑制することを確認するため、pH2-13の範囲での重金属類の溶出量を調査し、それらのpH範囲ではほとんどの場合、RDF焼却灰と比較して低く抑えられていることを確認した。また、製造後初期に鉛が溶出したことから、鉛溶出量を経日的に追跡した結果、製造後徐々に溶出量が減少し1週間程度で土壤環境基準値を満足することが分かった。このときのX線回折分析結果から、カルシウムアルミニネートが、鉛溶出抑制に関与していることが明らかとなった。更に、製造後初期の鉛溶出を抑制する方法を検討した結果、硫酸アルミニウムを添加し、溶出試験液のpHを12.3以下となるように管理すれば、出荷時(製造1日後)の鉛溶出量を土壤環境基準値以下に抑制できた。

[キーワード : RDF焼却灰, 有効利用, ポゾテックR, 安全性評価, 鉛]

## 1 はじめに

現在の廃棄物処理においては廃棄物焼却時のダイオキシン類の対策や最終処分場の不足といった課題に取り組んでいるところである。平成14年12月のダイオキシン類規制強化への対応として、高温で安定的な連続燃焼が可能な施設整備が必要であった。しかし、小規模市町村単独では、この施設整備が難しいのが現状であったことから、福岡県では、小規模市町村のごみ焼却に伴うダイオキシン類対策及びごみの熱回収を図るため、平成11年1月、大牟田市、電源開発㈱とともに、大牟田リサイクル発電株式会社を設立し、RDF発電事業を推進している。更に、RDF発電所の稼働に伴って排出される焼却灰については、埋立処分量の減容化及び資源節約のために、有効利用方法として、焼却灰を路盤材等に利用するポゾテックRの実用化試験を行った。

ポゾテックRは、石炭灰、RDF焼却灰、排煙脱硫スラッジ(亜硫酸カルシウム)及びセメントに、適量の水を加えて粉状体として、現場で転圧施工するものであり、材料の主成分であるカルシウム、アルミニウム及びケイ素等が水和反応によって固化することを利用したものである。また、本研究のなかで原料の配合割合の検討、強度

測定及び土壤環境基準に準じた重金属類の溶出試験による環境安全性評価を行った結果、強度及び環境安全性において道路等の地盤材料としての性能を有することが確認され、平成14年6月に福岡県建設技術情報センターの民間開発技術審査証明を得た<sup>1)</sup>。

ポゾテックRは施工後徐々に固化が進み、強度が発現するとともに重金属類の溶出も抑制されると考えられている。このため、通常のコンクリートが安定化すると考えられている1ヶ月後の溶出試験による環境影響評価で、重金属類の溶出が土壤環境基準値以下となることが確認されていた。本論文では、ポゾテックRの環境影響に関する検討のなかで、重金属類の溶出についてのpH依存性試験<sup>2)</sup>、初期の鉛溶出についての経日変化及び溶出抑制方法の検討<sup>3)</sup>について記述した。

## 2 試験方法

### 2・1 pH依存性試験

ポゾテックRとその原料のうちRDF焼却灰(富山県南砺リサイクルセンター産出のRDFを実証試験設備で燃焼して得られたもの)及び石炭灰(九州電力港発電所から排出されたもの)について、pH依存性試験を行った。これら試験対象物の重金属類含有量を表1に示す。

表1 ポゾテックR及びその原料の重金属類含有量

	T-Hg (mg/kg)	Cd (mg/kg)	Pb (mg/kg)	T-Cr (mg/kg)	As (mg/kg)	Se (mg/kg)
ポゾテックR	0.15	2.9	120	130	0.7	3.5
RDF焼却灰	0.12	11	600	440	1.7	0.33
石炭灰	0.18	2.1	24	30	11	11.1

RDF焼却灰及び石炭灰については有姿のまま使用し、ポゾテックRについては、強度試験のために作成される直径5 cm、高さ10 cm程度の円柱状の供試体を強度試験後に破碎し、ふるいにかけて直径2 mm以下として使用し

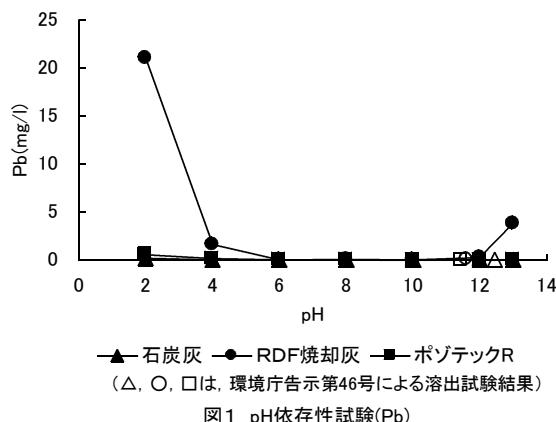


図1 pH依存性試験(Pb)

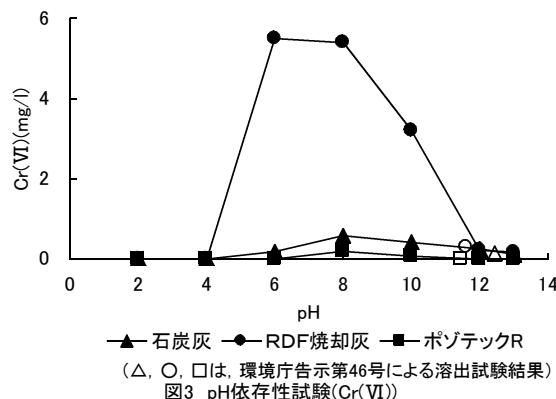


図3 pH依存性試験(Cr(VI))

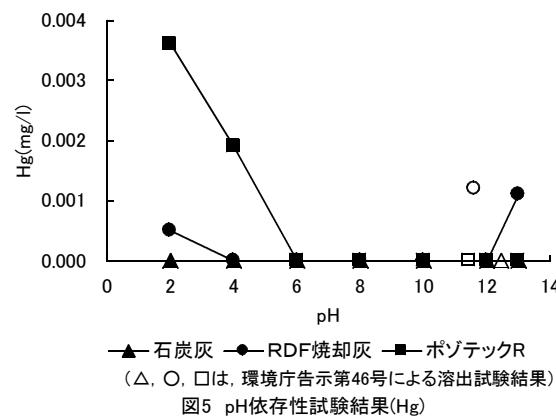


図5 pH依存性試験結果(Hg)

た。これらの試料50 gに蒸留水500 mlを加え、硝酸及び水酸化ナトリウム溶液を用いて、pHコントローラーでpH 2, 4, 6, 8, 10, 12及び13に調整し、マグネチックスターラーで6時間攪拌した。その後、孔径0.45 μmのメンブランフィルターでろ過して重金属類分析試料とした。また、環境庁告示第46号による溶出試験を同時に行った。

## 2・2 鉛溶出量の経日変化及び鉛溶出抑制方法の検討

製造後初期の固化が十分に進んでいない状態では、鉛の溶出が見られたことから、溶出傾向を明らかにするため経日変化を調べた。試料には、実際の製品と同じ配合

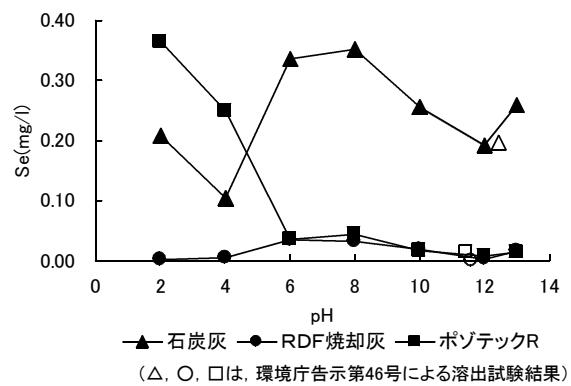


図2 pH依存性試験(Se)

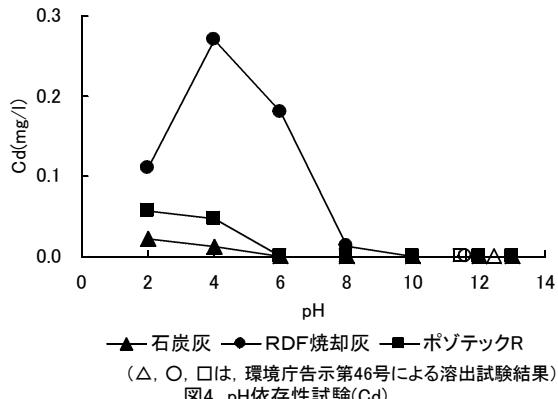


図4 pH依存性試験(Cd)

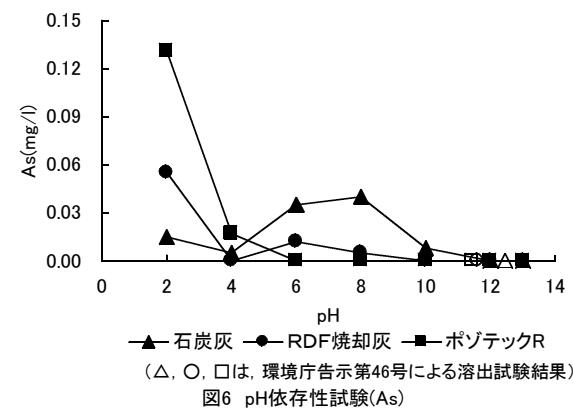


図6 pH依存性試験(As)

割合で作成した供試体を準備し、試験日まで20 °Cの恒温室に置いた養生箱（乾燥を防ぐため、下に水をはって、その上部に網を張り供試体を保存するもの）中に保存した。これを、試験日ごとに取り出して粉碎し、2 mmのメッシュを通過したものを環境庁告示第46号にしたがって溶出試験を実施した。また、このとき並行してX線回折分析を行い、鉛溶出抑制メカニズムの解明を試みた。

また、鉛の溶出抑制方法の検討として、①pHを低下させて鉛の溶出を抑制させるため、セメント添加量を通常の3 %に対して、0 %、1 %に減少させる実験、②ジチオカルバミン酸系のキレート剤をRDF焼却灰に対して、0 %、1 %、2 %及び5 %添加する実験、③硫酸アルミニウム等を添加して、pHを11-12程度に低下させ、鉛の溶出を抑制する実験を実施した。添加物として硫酸アルミニウム等を選んだ理由は、成分としてポゾテックRにもともと含有され、pH以外の影響が少ないと考えられたためである。（②及び③の実験では、試料は、供試体を作成せず、粉状体のまま室温で放置した。）

③の実験では、標準配合のポゾテックR（石炭灰、RDF焼却灰及び排煙脱硫スラッジの割合（重量比）が60:15:25で、セメントを外割で3%添加したもの）を対照として、硫酸アルミニウムを添加したもの、また、これに加えて、強度を増すためにセメント添加量を増加して5%としたもの、RDF焼却灰の割合を増やしたもの、更に、硫酸のみ添加したものについて、1日後に溶出試験を行った。

### 3 結果及び考察

#### 3・1 pH依存性試験

試験結果を図1-6に示し、同一試料で実施した環境庁告示第46号による溶出試験結果を白抜きのマーカーで併記した。鉛は、図1に示すように、全ての試料においてpH6-12では溶出量は<0.01-0.26 mg/lであり、顕著な溶出は見られなかった。しかし、上記以外のpH範囲では、RDF焼却灰から鉛が溶出し、その溶出量は、pH2, 4及び13でそれぞれ、21 mg/l, 1.6 mg/l及び3.8 mg/lであった。ポゾテックRの標準的配合量では、RDF焼却灰は重量比で全体の約11.5 %となるため、配合割合から計算すると、pH2, 4及び13でそれぞれ2.4 mg/l, 0.18 mg/l及び0.44 mg/lとなるはずであるが、実際は、それぞれ0.56 mg/l, 0.17 mg/l及び0.043 mg/lであり、計算値をかなり下回っている。このことは、ポゾテックRが水和反応によって固化し、このとき、鉛を水和固化物の中に封じ込めることによって溶出を抑制していると考えられる。

セレンは、石炭灰中の含有量が高いため、石炭灰からの溶出量は、pH2-13の範囲で高く、0.10-0.35 mg/lであった。また、RDF焼却灰は、pH6-10の範囲で比較的高い溶出傾向が見られた。六価クロムとしての溶出量は、pH 6-10の範囲で比較的高く、特にRDF焼却灰で3.2-5.5 mg/l

であった。しかし、ポゾテックRは、水和固化による効果が見られ、pH6以下及びpH12以上では<0.04 mg/l、pH8で0.19 mg/l、pH10で0.07 mg/lであった。カドミウムについては、全試料においてpH10以上では<0.01 mg/lであったが、RDF焼却灰では、pH2-8の範囲で溶出が見られ、特にpH2-6では0.11-0.27 mg/lの高濃度の溶出が見られた。ポゾテックRについてはpH6以上では0.01 mg/l以下であった。水銀については、pH4以下及びpH13で高濃度の溶出傾向が見られた。ポゾテックRについては、pH6以上では<0.0005 mg/lであった。ヒ素は、石炭灰及びRDF焼却灰のpH2とpH6-8で比較的高い溶出傾向があった。鉛以外の重金属類についても、ほとんどの場合固化することによって溶出抑制効果がみられた。

#### 3・2 鉛溶出量の経日変化

ポゾテックRからの鉛の溶出量は、図7に示すように、0日目に0.087 mg/lであったが、順次暫減して7日目に土壤環境基準（0.010 mg/l）を下回った。また、10日目には、検出限界値の0.005 mg/l未満となった。

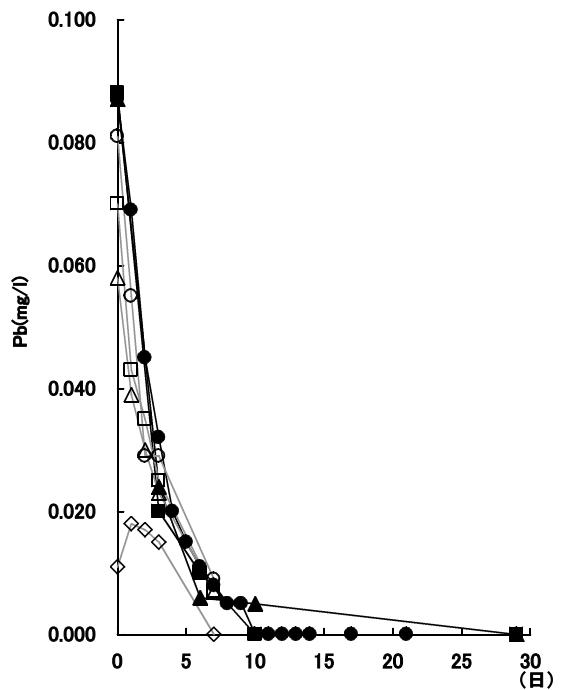


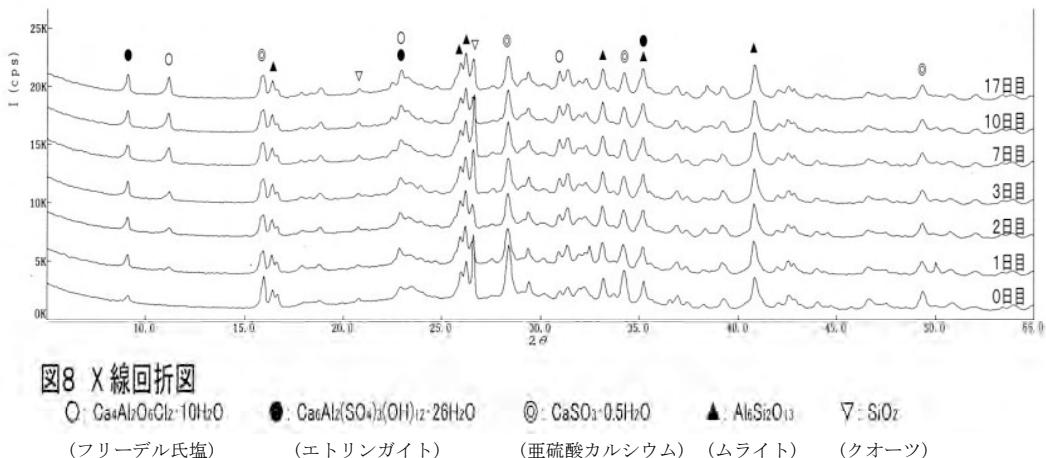
図7 鉛溶出量経日変化

—●—セメント3% —■—セメント1% —▲—セメント0% —○—キレート剤0%  
—□—キレート剤1% —△—キレート剤2% —◇—キレート剤5%

また、鉛の溶出抑制機構を解明するため、ポゾテックRの主成分であるカルシウム、アルミニウム及びケイ素を含む化合物の結晶構造の変化をX線回折で分析した。主なピークをライブリから検索した結果、 $\text{Ca}_4\text{Al}_2\text{O}_6\text{Cl}_2 \cdot 10\text{H}_2\text{O}$ （フリーデル氏塩）、 $\text{Ca}_6\text{Al}_{12}(\text{SO}_4)_3(\text{OH})_{12} \cdot 26\text{H}_2\text{O}$ （エトリンガイト）、 $\text{Ca}_3\text{Si}_4\text{O}_{10} \cdot 0.5\text{H}_2\text{O}$ （亜硫酸カルシウム）、 $\text{Al}_6\text{Si}_2\text{O}_{13}$ （ムライト）及び $\text{SiO}_2$ （クオーツ）が存在していると

考えられた。図8より、 $2\theta=9.1^\circ$  のエトリンガイトと思われるピークと $2\theta=11.2^\circ$  のフリーデル氏塩と思われるピークが日を追って成長していることが明らかであり、鉛の溶出抑制機構にこれらの化合物の関与が示唆される。また、亜硫酸カルシウムは、排煙脱硫スラッジに由来するものであるため、水和反応によって結晶構造が変

化しなかった。また、ムライト及びクオーツは、元来安定な化合物であり、水和反応によって結晶構造が変化しないと考えられる。 $2\theta=26.6^\circ$  のクオーツと思われるピークが変動しているが、規則性はなく、試料のばらつきであると考えられる。



### 3・3 鉛溶出抑制方法の検討

図7に示した経日変化の結果より、製造後1週間は鉛が溶出することが分かったため、セメント、キレート剤及び硫酸アルミニウムの添加による溶出抑制についての実験を行った。図7に示すとおり初期の鉛溶出抑制に関して、セメント添加量の差による違いはほとんどなかった。また、キレート剤の添加による鉛の溶出抑制は、製造後初期にキレート剤添加量が多いほど鉛の溶出が抑制される傾向が見られたが、7日目ではキレート剤を添加しなかったものと大きな差はなかった。このことより、キレート剤は即効性があり、初期には鉛の溶出を抑える効果が高いが、土壤環境基準を満足するためには、大量のキ

レート剤を必要とし、7日後の抑制効果は、キレート剤を添加しない場合と同じであることが分かった。

次に、硫酸アルミニウムの添加による鉛溶出抑制の検討を行った。その結果、図9に示すように、溶出試験液のpHが12.3以下の場合、土壤環境基準値(0.01 mg/l)を満足することが分かった。これらの実験から、標準配合のポゾテックRに硫酸アルミニウムを適量添加することで、製造1日後に鉛の溶出を押さえることが可能で、強度的にも基準を満たすことができた。硫酸アルミニウムの添加量は、少なすぎるとpHが下がらず、多すぎてpHが下がりすぎると強度が落ちるため、pHが11.5-12.0の範囲になるように前試験により確認して決定した。標準配合のポゾテックRの場合、3 %が適当であった。また、RDF焼却灰の割合を増やしても、硫酸アルミニウムの添加量を増やせば、基準を満たすことが可能であった。

### 4まとめ

pH依存性試験では、原料のRDF焼却灰は、pHによっては鉛等重金属類の高濃度の溶出が見られたが、ポゾテックRからの鉛の溶出量はpH2-13の範囲において低かった。このことから、水和固化によって重金属類が、固化物中に取り込まれ、溶出しにくくなる事が分かった。また、ポゾテックRを経日的にX線回折分析した結果、エトリンガイトやフリーデル氏塩等のカルシウムアルミネートが、鉛溶出抑制に関与していることが分かった。

鉛溶出量の経日変化から、ポゾテックRは、製造後一週間程度は鉛溶出量が土壤環境基準値を超えることが分

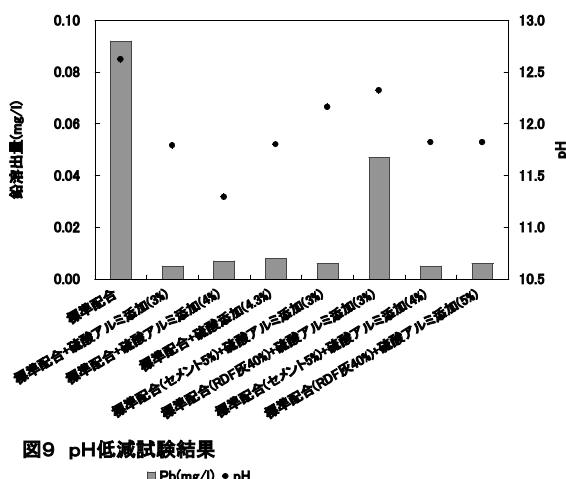


図9 pH低減試験結果

■ Pb(mg/l) • pH

かった。

このため、初期の鉛溶出を抑制する方法を検討した結果、硫酸アルミニウムを添加し、溶出試験液のpHを12.3以下となるように管理すれば、出荷時の鉛溶出量を土壤環境基準値以下に抑制できることが分かった。

#### 謝辞

本研究は、リサイクル総合研究センターのプロジェクト研究において、三井鉱山㈱、電源開発㈱、九州大学及び保健環境研究所が共同で実施したものであり、ポゾテックRの製造及び強度試験等に関することは三井鉱山㈱で行っている。ここに、関係各位に感謝の意を表する。

(英文要旨)

### **Environmental Impact of Road Bed Material Containing Fly Ash Generated from Refuse-Derived Fuel Incinerator**

**Mineki TOBA, Daisuke TSUCHIDA, Koji TAKAHASHI, Youichi KUROKAWA, Makoto NAGASE and Akira UTSUNOMIYA**

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

Road bed material “Poz-O-Tec R”, which contains fly ash generated from Refuse-Derived Fuel (RDF) incinerator, is manufactured to promote the recycling of RDF fly ash. The properties of the material were investigated by the pH-dependent leaching test conducted in the range of pH2-13 using the batch type leaching test (Japanese Leaching Test No.46; JLT46) to evaluate the environmental impact on groundwater when this material is used as road bed. The result of pH-dependent leaching test shows that the concentrations of leached heavy metals from the road bed material are relatively smaller than those leached from its components, such as coal fly ash and RDF fly ash. And the amounts of heavy metals released from the material during JLT46 meet the environmental standards for all heavy metals except lead. It is confirmed that the concentration of lead by JLT46 decreases with consolidation of the road bed material and meets the environmental standards within 7 days after construction using this material. X-ray analysis indicates that calcium aluminate inhibit the leaching of lead. It is found that the initial high concentration of lead within 7 days can be controlled by adding aluminum sulfate which lowers the pH of the material to 12.3 or less.

[Key words; RDF incinerated ash, Effective utilization, Poz-O-Tec R, Safety evaluation, Lead]

#### 文献

- 1) 財団法人福岡県建設技術情報センター：RDFの流動床燃焼による灰を混入した地盤材料「ポゾテックR」，民間開発技術・審査証明事業に基づく民間開発技術審査証明報告書，2002.
- 2) 鳥羽峰樹ら：RDF焼却灰とその水和固化物からの重金属類溶出特性，第12回廃棄物学会研究発表会講演論文集，863-865，2001.
- 3) 鳥羽峰樹ら：RDF焼却灰等の水和反応による鉛溶出抑制機構について，第14回廃棄物学会研究発表会講演論文集，497-499，2003.



## 資料

### 平成16年度の食中毒（疑いを含む）事例について

堀川和美, 野田多美枝, 濱崎光宏, 村上光一, 竹中重幸, 石黒靖尚,  
世良暢之, 石橋哲也, 江藤良樹, 千々和勝己

福岡県において平成16年度に発生した食中毒（疑いを含む）37事例（552検体）について、主として病原物質の観点から事例をまとめた。本年度は、春季から秋季においては腸炎ビブリオ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。病原微生物が検出された事例は37事例中25事例（68%）であった。病原微生物別に見ると、腸炎ビブリオによるものが5事例（14%）、サルモネラによるものが3事例（8%）、セレウス菌によるものが3事例（8%）及びノロウイルスによるものが10事例（27%）であった。その他に腸管出血性大腸菌O157、ビブリオ・ミミカス、黄色ブドウ球菌及びノロウイルスと下痢原性大腸菌との混合感染などによる食中毒（疑いを含む）事例があった。しかし、病原物質が判明しない事例が12事例（32%）あり、今後の検討課題も多い。一方、年度当初に発生したノロウイルスと下痢原性大腸菌との混合感染事例は、当県内の同一施設で宿泊ないし食事あるいは入浴をしたことを共通とし、患者が九州4県にまたがる大規模食中毒であった。

[キーワード：食中毒、腸炎ビブリオ、サルモネラ、ノロウイルス、混合感染]

#### 1 はじめに

病原微生物による感染症は、医療や公衆衛生の向上にもかかわらず、減少傾向は認められない。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、多様化し広域かつ大規模化している。腸管出血性大腸菌O157による食中毒は、平成8年を契機に集団事例が多発し、集団及び散発事例ともに増加の傾向にある。また、腸炎ビブリオの食中毒では、赤痢菌などと同様輸入食品に起因するものも多い。一方で、食中毒原因菌とは断定し難いセレウス菌のような土壌由来菌や環境に広く分布する黄色ブドウ球菌などの食中毒も後を絶たない。これらの原因としては、正規従業員が少なく、継続的な衛生責任が欠如しているなど社会的問題が背景にあることも否めない。一方、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、福岡県で発生し詳細に検査した事例ごとに検証することも重要である。今回、平成16年度に県域で発生した食中毒（疑いを含む）事例について、病原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16年度は、37事例、552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、ラバポート・バ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、3000 rpmで10分間遠心後、その上清を10000rpmで20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で增幅し、增幅産物を電気泳動で確認した。增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增幅産物の塩基配列を決定し、ノロウイルスの最終確認及び遺伝子型の決定を行った。また、一部については、上記上清を超遠心分離（40000

表1 平成16年度の食中毒（疑いを含む）事例の概要

検体搬入年月日	所轄事務所	検査件数 (ウイルス検査件数)	患者数	検出された病原微生物	血清型別等	原因食品	事件の概要
H16.4.29	久留米、八女	48 (27)	209	不明	-	不明	長崎県から筑後方面に旅行
4.29	鞍手	6 (16)	42	ノロウイルス	G II	不明	老人福祉施設での発生
5.08	八女、久留米、筑紫	93 (93)	93	ノロウイルス、腸管凝集性大腸菌	G II, 086a:H- (agg R)	不明	筑後市内の施設に関する調査
5.13	嘉穂	3 -	3	セレウス菌	-	スパゲティ	キノコを使ったスパゲティを食して
5.20	筑紫	4 (3)	4	不明（腸管凝集性大腸菌）	O111:H- (agg R)	不明	筑後市内の施設に関する調査
5.31	柏屋	79 (17)	155	不明（セレウス菌）	-	不明	糟屋郡内で老人を招待し、弁当を提供
6.05	糸島	13 -	2	腸炎ビブリオ	O3:K6 (TDH+)	(すし)	スーパーで購入した寿司を購入し家庭で摂食
6.08	筑紫	3 (3)	3	不明	-	不明	県内の女性が佐賀県内で宿泊して
6.22	筑紫、糸島	2 -	13	不明	-	弁当	福岡市で開催されたイベントで提供された弁当を食して
6.24	筑紫、久留米	2 -	6	不明	-	不明	県内の家族が下関市を訪ね、結納後の食事が提供された
6.25	筑紫	22 -	3	腸管出血性大腸菌	O157 : H7 (VT2)	不明	筑紫野市内の焼肉店で焼き肉等を摂食して
7.16	筑紫	17 -	10	サルモネラ	S. Enteritidis (PT1)	自家製マヨネーズ	公共団体施設で販売されているサンドイッチを食して
7.31	宗像	23 -	4	不明	-	不明	宗像市内勤務の職場同僚が弁当を食して
8.16	京築、遠賀	4 -	38	不明（腸炎ビブリオ）	-	(仕出し)	中津市内で製造された仕出しを初益会の後に食して
8.20	田川	1 -	3	腸炎ビブリオ	O3:K6 (TDH+)	(仕出し)	田川市内で製造された仕出しを初益会の後に食して
8.21	京築	6 -	10	腸炎ビブリオ	O3:K6 (TDH+)	たいらぎの貝柱	中津市で仕入れた輸入貝柱を食して
8.23	糸島	12 -	2	黄色ブドウ球菌	エンテロトキシンA型	不明	ファミリーレストランで定食を摂食して
8.23	遠賀、宗像	11 -	6	腸炎ビブリオ	O3:K6 (TDH+)	ゆでエビ	民宿に宿泊し、刺身などを摂食して
8.27	久留米	20 -	4	サルモネラ	S. Enteritidis	シュークリーム	大分県内のヒトが久留米市内で製造されたシュークリームを食して
9.09	嘉穂	32 -	7	セレウス菌	嘔吐毒産生遺伝子+	(仕出し)	嘉穂郡内の家族が飯塚市内の飲食店で会食
9.27	宗像	4 -	1	不明	-	不明	家庭内事例
10.01	京築	3 -	2	腸炎ビブリオ	O3:K6 (TDH+)	不明	家庭内事例
10.07	柏屋	2 -	4	ビブリオ・ミミカス	-	不明	博磨郡内と北九州市内のヒトが福岡市内で会食
10.22	嘉穂	3 -	3	サルモネラ	S. Enteritidis (PT14b)	不明	家庭内事例
11.09	柏屋、宗像	24 (8)	8	セレウス菌	-	不明	古賀市団体の職員が福津市内で会食
11.24	糸島	2 (2)	11	不明（セレウス菌）	-	不明	県内の3家族6名が大分県内で宿泊して
11.24	遠賀	8 (3)	5	不明	-	不明	北九州市内の家族が中間市内の飲食店で会食
11.28	京築	2 (2)	2	不明	-	不明	行橋市内に勤務の職場同僚が久山町で会食
12.07	嘉穂、鞍手	35 (29)	47	ノロウイルス	G II	不明	鞍手郡内の家族が飯塚市内の結婚式場で会食
12.21	久留米	13 (14)	30	ノロウイルス	G II	不明	佐賀県のグループが久留米市の飲食店で会食
H17.1.04	柏屋	29 (7)	3	ノロウイルス	G II	不明	家族が焼肉店で焼き肉等を摂食
1.14	八女、久留米	3 (3)	16	ノロウイルス	G I	不明	久留米市内の職場団体が新年会
1.21	筑紫	- (1)	10	ノロウイルス	G II	不明	高校生修学旅行
1.27	柏屋	22 (12)	4	ノロウイルス	G I, G II	不明	古賀市内の職場団体が飲食店で会食
2.17	久留米	- (8)	4	ノロウイルス	G I	不明	久留米市、佐賀県内在住の職場同僚が久留米市内会食
2.23	筑紫	- (4)	3	ノロウイルス	G I, G II	不明	2家族5名が大野城市内の飲食店で会食
3.02	八女	1 (1)	9	ノロウイルス	G II	不明	筑後市内の家族が福岡市内で会食
	計	552 (253)					

患者数は一部未確定を含む

rpm, 90分間) により濃縮精製後、リン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。

### 3 食中毒検査結果

平成16年度は、病原微生物が検出された事例は37事例中25事例（68%）であった。病原微生物別に見ると、ノロウイルスによるものが10事例（27%）、腸炎ビブリオによるものが5事例（14%）、サルモネラによるものが3事例（8%）、セレウス菌によるものが3事例（8%）であった。その他に腸管出血性大腸菌O157、ビブリオ・ミミカス、黄色ブドウ球菌及びノロウイルスと下痢原性大腸菌との混合感染による食中毒（疑いを含む）が各1事例あった（表1、図1）。しかし、原因物質が特定できない事例が12事例（32%）で、搬入検査材料の精査や検査方法についても今後検討すべきであると考えられた。

腸炎ビブリオによる食中毒は、5事例いずれも平成8年から全国的に増加傾向が見られている血清型 O3 : K6 を原因菌としていた。これらの株はすべて腸炎ビブリオの病原因子である耐熱性溶血毒素（TDH）を产生した。また、5事例の原因食品は、1事例が輸入タイラギ貝、他の4事例は刺身などの含まれる仕出しだった。

サルモネラによる食中毒は、3事例いずれも血清型 *Salmonella* Enteritidis を原因菌としていた。3事例のうち2事例の *S. Enteritidis*（当研究所分離分）について国立感染症研究所にファージ型別（PT）を依頼した結果、サンドイッチの事例の *S. Enteritidis* は PT1 で、原因食品が判明しなかった事例分は PT14 b であった。

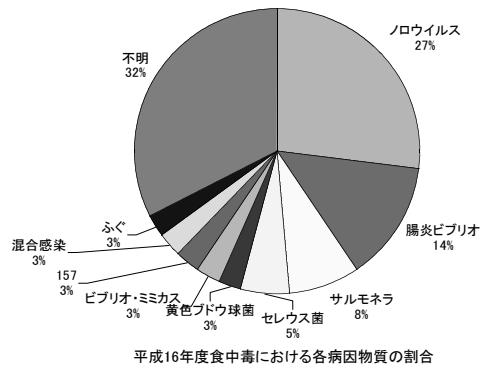
ノロウイルスによる食中毒は、4月および12–3月に発生した10事例で認められた。ノロウイルスは遺伝子型で、グループI（G I）とグループII（G II）に分けること

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、6事例がG II単独、2事例がG I単独、2事例がG I及びG IIであった。

#### 4 事例紹介

平成16年度は、4月から5月同一施設で宿泊ないし食事や入浴をしたことを共通とした九州4県にまたがる大規模食中毒疑い事例が発生した。平成16年4月23日に筑後市方面を旅行した長崎市の農協グループ101名中53名が2日から腹痛、嘔吐、下痢の症状を呈した旨、4月28日長崎県の管轄保健所に届出があり、長崎県から当県生活衛生課に調査依頼があった。福岡県では団体が立ち寄って飲食した施設A及び施設Bについて関連調査をしたが、ノロウイルス及び食中毒細菌は検出されなかった。一方、同年5月7日、北九州市から当県に、施設Bに宿泊した少年野球チーム関係者が、嘔吐、下痢、腹痛の症状を呈して病院を受診している旨の連絡があった。その後の調査で4月から5月上旬における施設Bでの宿泊者に嘔吐、下痢、腹痛を主徴とした食中毒様の患者が発生していることが分かった。患者は、福岡県、長崎県、佐賀県、宮崎県など広域にわたって発生していた。患者、施設従業員の便、食品、水及び拭き取り材料について、福岡県を含めた関係自治体で食中毒細菌検査及びノロウイルスの検査を実施した。他自治体で検査した患者便からノロウイルス(G Iのみ、G IIのみ、G I及びG II)及び大腸菌O86a(病原因子aggR保有)が検出された。ノロウイルスと大腸菌O86aは、それぞれ単独あるいは両方検出された。施設Bの関係者便からは、3名からノロウイルス(G Iのみ、G IIのみ)が、8名から大腸菌O86a(aggR保有)が検出されたが、その他材料からはノロ

ウイルス及び大腸菌O86a(aggR保有)は検出されなかった。関係自治体の協力を得て、患者18名及び施設従業者8名から検出された大腸菌O86a(aggR保有)26株について、パルスフィールドゲル電気泳動法によるDNA解析を行なった。その結果、施設関係者2名及び患者1名を除く23名から検出された大腸菌O86a(aggR保有)株は、100%の近似度を示し、これら24株は同一の由来であることが強く示唆された。これらのことから本事例の原因物質は、ノロウイルス及び大腸菌O86a(aggR保有)であると考えられたが、原因については特定できなかった。



#### 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、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、中央法規、2001。



## 資料

# 平成16年度収去食品中の食中毒細菌検査

村上光一, 野田多美枝, 濱崎光宏, 堀川和美, 竹中重幸, 石黒靖尚

県内で市販されている食品について、食品の安全確保の立場から食中毒の予防、汚染食品の排除、流通食品の汚染実態の把握を目的として食品収去検査を行った。検査対象は牛肉、豚肉、鶏肉、魚介類、魚介類乾燥品および野菜の合計95検体である。その結果、大腸菌群83件、黄色ブドウ球菌11件、セレウス菌9件、サルモネラ20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件を、一般細菌数、大腸菌最確数、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

福岡県では、県政の将来指針である「ふくおか新世紀計画」の序文に、今の時代について「県民の生活様式の変化や志向の多様化など、大きな時代の転換期に直面して」といっている。生活様式は、日々多様化し、その中でも食文化の多様化は、その代表格であると考えられる。外食産業の発展と、輸入食料の増加などが、その要因と考えられるが、このような状況の中、国では食品安全委員会の設置等を柱とした食品安全基本法（平成15年法律第48号）を公布し、新時代における食品の安全性の確保を図っている。県でも、この法律に呼応してさまざまな施策を実施している。食品の安全確保については、食中毒、食品添加物、食品残留農薬、食品中の化学物質（水銀、カドミウム、ダイオキシンなど）、器具・容器包装・おもちゃ・洗浄剤、牛海綿状脳症、遺伝子組み換え食品、健康食品、食品表示、輸入食品監視、その他（高病原性鳥インフルエンザなど）の諸項目に大別されるが、食中毒はその発生頻度から考えても、食品衛生施策の柱となるものと考えられる。当課でも、食品の安全確保の中で、食中毒予防の観点から、食品中の食中毒細菌あるいは、その指標となる汚染指標菌の検査に力を入れている。このような状況の中、当年度は、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、大腸菌最確数、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16年5月から12月にかけて、県生活衛生課を通じ県内13保健福祉環境事務所で収去した牛肉12件、豚肉16件、鶏肉31件、魚介類23件、魚介類乾燥品4件、野菜9件および生食用カキ5件合計100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）<sup>①</sup>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<sup>②</sup>および検査課微生物マニュアル<sup>③</sup>および福岡県保健環境研究所病理細菌課食品検査業務管理マニュアルに従った。

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25 g にリン酸緩衝ペプトン水を225 ml 加えストマッキングし、エルシニア増菌培地、プレ斯顿培地、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 寒天培地や SIM 寒天培地等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。腸管出血性大腸菌 O157の検査方法は、検体25 g にノボビオシン加変法 EC 培地 (modified *Escherichia coli* broth with noboviocin, N-mEC) を225 ml 加えストマッキングした。37°C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。CHROMagar O157寒天培地および cefixime、亜テルル酸カリウム添加ソルビトールマッコンキー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 寒天培地、SIM 寒天培地及びリシン脱炭酸確認培地等で生化学性状を確認した。必要に応じて血清型別試験や志賀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25 g に Buffered peptone water (BPW) を225 ml 加えストマッキングし、37°Cで24時間培養後、Rappaport - Vassiliadis サルモネラ増菌ブイヨンおよびテトラチオニ酸塩培地で培養し、XTL4寒天培地および SM-ID 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 寒天培地、SIM 寒天培地およびリシン脱炭酸確認培地等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25 g に BPW を225 ml 加えストマッキングし、37°C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°Cで20時間嫌気的に培養した。DHL 寒天培地、SS 寒天培地および CHROMagar O157TAM 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に替えて、厚生労働省医薬局食品保健部基準課長通知(平成13年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、公定法により行った。

#### 2・4 畜水産食品の残留物質モニタリング検査方法

牛肉12件、豚肉16件、魚介類23件の、合計51件について、残留抗生物質等 (ペニシリノ系、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83件が陽性を示し、黄色ブドウ球菌は11件から検出された。また、鶏肉2件からカンピロバクターが検出されうち1件は *Campylobacter jejuni* のみ、もう一件からは *C. jejuni* 及び *C. coli* が検出された。その血清型は、Penner の D 及び型別不能であった。セレウス菌は豚肉1件、鶏肉1件、魚介類3件、野菜4件、合計9件から検出された。サルモネラは鶏肉12件から検出され、*Salmonella* 血清型 Infantis が9件、*Salmonella* 血清型 Yovokome が1件、*Salmonella* 血清型 Manhattan が1件、及び *Salmonella* 血清型 Enteritidis が1件検出された。ウエルシュ菌は、鶏肉6件、魚介類1件及び魚介類乾燥品1件から検出された。全ての生食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。

#### 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、野菜及び鶏肉が100% と最も高く、魚介類が91.3%であった。黄色ブドウ球菌については、魚介類が21.7%と高く、セレウス菌については、野菜で44.4%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38.7%および6.5%の検出率であり注意を要する。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<sup>4)</sup>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、両菌種とも大きな変化はないが、カンピロバクター及びサルモネラは、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、消費者への注意喚起が必要と考えられる。

汚染指標菌である大腸菌群は、ほとんどの食品から検出されており、流通過程で何らかの汚染が生じた可能性がある。特に、今回調査を行った野菜からの大腸菌群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。本県の基本構想である「健やかで心豊かな県民生活の確保」を実現し戦略的プロジェクトの柱の一つである「福祉共創立県」を実現するためにも、食品衛生行政に貢献する検査のあり方とデータのフィードバックが必要であると考えられる。

## 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						赤痢菌
		カンピロ	腸炎ビブ	セレウス菌	ウエルシ	サルモネラ	ユ菌	
牛肉	12	10	0	0	0	0	0	検査せず
豚肉	16	12	2	0	0	1	0	0
鶏肉	31	31	4	2	0	1	6	12
魚介類	23	21	5	0	1	3	1	0
魚介類乾燥品	4	0	0	0	0	0	1	0
野菜	9	9	0	0	0	4	0	0
生食用カキ	5	0	検査せず	検査せず	0	検査せず	0	検査せず
計	100	83	11	2	1	9	8	20
								0



## 資料

# 平成16年度食品の食中毒菌汚染実態調査

濱崎光宏, 村上光一, 堀川和美, 野田多美枝, 竹中重幸, 石黒靖尚

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。野菜、ステーキ用牛肉、ミンチ肉および生食用肉の合計130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46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、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、食中毒細菌、汚染実態調査]

## 1 はじめに

近年、一般の流通食品を原因とする食中毒事件がしばしば発生し問題になっている。これらの食中毒は、食品の流通範囲が広いため、患者も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11年の乾燥イカ菓子を原因とするサルモネラの食中毒事件、平成13年の輸入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。これらの事件は、一般的に市販流通食品を原因とする diffuse outbreak であった。今後、このような食中毒を未然に防止するためにも食品安全性確保は、行政の重要な役割である。

福岡県では、食中毒発生の未然防止対策、汚染食品の排除、流通食品の汚染実態を把握を目的とし、平成16年7月1日付け食安発第0701002号厚生労働省医薬食品局食品安全部長通知による平成16年度食品の食中毒菌の汚染実態調査の実施概要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の検査を行っている。

## 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、平成13年の輸入カキを原因とする赤痢菌の食中毒事件の発生を受け、生食用カキについては、赤痢菌および規格基準（一般細

菌数、大腸菌数）の検査を実施した。

### 2・2 検体

平成16年8月23日から12月6日にかけて、県生活衛生課を通じ県内13保健福祉環境事務所で収去した野菜類（カイワレ、アルファルファ、レタス、みつば、モヤシ、キュウリ、カット野菜）60件、ステーキ用牛肉22件、ミンチ肉20件、生食用肉類として牛肉類7件、鶏肉類1件、馬肉類10件および生食用カキ10件、合計130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）<sup>①</sup>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<sup>②</sup>および検査課微生物マニュアル<sup>③</sup>に従い実施した。腸管出血性大腸菌 O157の検査は、検体25 g にノボビオシン加 mEC 培地（modified escherichia coli broth with noboviciocin, 以下 N-mEC と略す）を225 ml 加えストマッキングした。37°Cで24時間培養後、免疫磁気ビーズで O 157を集菌し、クロモアガーチ 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ベロ毒素産生試験を行い同定した。大腸菌の検査は、検体25 g に N-mEC 225ml 加え、ストマッキングした後、37°C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、クロモアガーチ ECC 寒天培地で検出した。サルモネラの検査は、検体25 g に緩衝ペプトン水を225 ml 加えストマッ

キングした。37°Cで24時間培養後、ラバポートブイヨンおよびハートテトラチオニン増菌培地で培養し、XTL4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25 gに緩衝ペプトン水を225 ml加えストマッキングし、37°C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°Cで20時間嫌気的に培養した。DHLおよびクロモアガーノ 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）に準拠して行った。

### 3 検査結果

検査結果を表1に示す。大腸菌は130検体中46件（35.4%）から検出された。サルモネラは、ミンチ肉から1件（血清型別不能）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なかつたが、同時に実施した成分規格において、1件のみ一般細菌数が660,000/gと基準（50,000/g以下）を超えるものがあつた。

### 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85.0%と最も高く、ステーキ用牛肉が50.0%，生食用馬肉が30.0%，生野菜および生食用カキが20.0%，生食用牛肉が14.3%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。野菜から検出された大腸菌は、土壤から、食肉およびミンチ肉から検出された大腸菌は、食肉処理の過程で汚染されたと推

察される。以上の結果から、特に大腸菌の検出率が高かったミンチ肉を家庭で調理する際には、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る。また、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、ミンチ肉から1件検出されたが、腸管出血性大腸菌 O157は検出されなかつた。サルモネラの検出率も比較的低く、適切な管理がなされていると考えられる。

生食用カキから赤痢菌は検出されなかつたが、成分規格基準の一般細菌数で基準を超えるものがあつた。搬入されたカキはむき身であったため、加工段階で汚染があつたと考えられる。

### 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		赤痢菌
			O157		
野菜	60	12	0	0	検査せず
ステーキ用 牛肉	22	11	0	0	検査せず
ミンチ肉	20	17	1 (血清型別不能)	0	検査せず
生食用鶏肉	1	0	0	0	検査せず
生食用牛肉	7	1	0	0	検査せず
生食用馬肉	10	3	0	0	検査せず
生食用カキ	10	2	検査せず	検査せず	0
計	130	46	1	0	0

## 平成16年度感染症細菌検査概要

村上光一, 堀川和美, 野田多美枝, 濱崎光宏, 竹中重幸, 石黒靖尚

平成16年度に当課で実施した感染症細菌検査項目は、ソンネ赤痢菌コリシン型別、バンコマイシン耐性腸球菌の型別検査、コレラ菌検査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16年度の特記事項は、バンコマイシン耐性腸球菌感染症に関する検査であった。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：赤痢菌、コリシン型別、コレラ菌、バンコマイシン耐性腸球菌、DNA 解析、腸管出血性大腸菌、]

### 1 細菌検査（腸管出血性大腸菌を除く）

当年度は、赤痢、バンコマイシン耐性腸球菌、コレラ及び毒素原性大腸菌の10事例、19検体について検査を実施した（表1）。

#### 1・1 ソンネ赤痢菌コリシン型別検査及び赤痢菌型別検査

ソンネ赤痢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<sup>1)</sup>。その結果中国を旅行した患者由来1株はコリシン型O型、1株は6型、メキシコ及びフィリピン渡航歴のある患者由来株はO型であった。

#### 1・2 バンコマイシン耐性腸球菌検査

H16年4月及び7月、バンコマイシン耐性腸球菌（VRE）が検出された。当所では搬入された菌株が、真に VRE であるか否か、VRE であればどの型か、そして分子疫学的に、各患者由来の株が関連があるか否か検査した。その結果、搬入された6名の患者由来の7株は、いずれも、van B 遺伝子を有する van B 型 VRE と同定された。また、パルスフィールド・ゲル電気泳動を用いた分子疫学検査においても、同一のパターンを示したことから、互いに近縁の株であることが明らかとなった。

#### 1・4 コレラ菌検査

当年6月宗像保健福祉環境事務所管内でフィリピンからの帰国者に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<sup>1)</sup>。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、血清型は O1 であった。

### 2 腸管出血性大腸菌検査

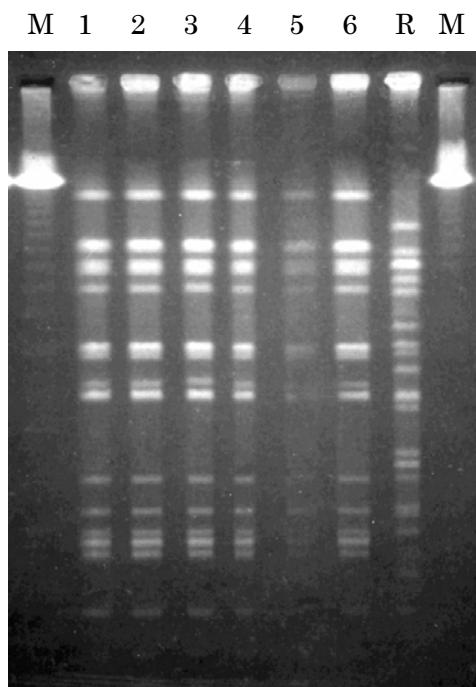
当研究所に搬入された腸管出血性大腸菌は、O157が95株、O1が10株、O26が4株、O111が4株、O91が2株及び OUT:H-が1株の計116株であった（表3）。また、搬入された菌株は、諸性状及びベロ毒素の確認を行なった。この結果、O1の9株及び O111の1株はベロ毒素陰性であった。95株の O157 のうち、79株(83.2%)が H7 でこのうち39株がベロ毒素（VT）2単独産生株、38株が VT1及び2産生株、1株が VT1 単独産生株、16株 (16.8%) が O157:H- 株ですべて VT1 及び2産生株であった。4株の O26 は、すべて H 血清型は11で VT1 産生株であった。3株の O111 は、H- 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2株の血清型別を行った結果、O91 : H14 (VT1) 及び O91:H21 (VT1) であった。VT 産生株106株は、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。当研究所でDNA解析を行なった事例は、焼き肉関連で発生したO157事例1件(6株)であった。DNA解析の結果、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。一方、感染症研究所で実施したDNA解析の結果から、家族で焼き肉を摂食し感染したと考えられる6家族、キャンプ場で焼き肉をした2事例4家族、託児所及び保育所での集団感染事例は、いずれも同一DNAパターンを示すことが分かった。

## 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16年度感染症細菌検査

No.	保健福祉環境事務所	搬入年月日	病原菌	検体数	備考
1	久留米	16.4.27	VRE	6	分子疫学検査を実施
2	宗像	16.6.28	コレラ	2	コレラ菌株1, 便1、フィリピンへ旅行
3	久留米	16.7.13	VRE	1	分子疫学検査を実施
4	筑紫	16.7.22	ゾンネ赤痢菌	1	コリシン型別不能、メキシコ、パナマへ旅行
5	粕屋	16.8.27	コレラ疑い	1	コレラ菌ではなかった
6	田川	16.8.27	毒素原性大腸菌	4	陰性
7	田川	16.8.27	ゾンネ赤痢菌	1	コリシン0型、中国へ旅行
8	筑紫	16.11.18	ゾンネ赤痢菌	1	コリシン6型、中国へ旅行
9	遠賀	17.3.15	ゾンネ赤痢菌	1	コリシン型別不能、フィリピンへ旅行
10	粕屋	17.3.25	ゾンネ赤痢菌	1	コリシン6型、インドネシアバリ島へ旅行
		計		19	



M: マーカー

- 1 : 患者 A 検体番号 54
- 2 : 患者 A 検体番号 104
- 3 : 患者 B 検体番号 106
- 4 : 患者 C 検体番号 138
- 5 : 患者 D 検体番号 143
- 6 : 患者 E 検体番号 130
- R : 標準菌株 *Enterococcus faecalis* V583

図2 平成16年4月 VRE 分離菌株のパルスフィールド・ゲル電気泳動法による遺伝子型別結果。パルスフィールド・ゲル電気泳動による遺伝子型別検査では、検査した菌株は、標準菌株 *Enterococcus faecalis* V583 とは異なるパターンを示した。加えて、それらの搬入された株は、互いに同一の泳動パターンを示した。よって、6菌株は、互いに同一、またはそれに近い起源を有する菌株であると考えられた。

表3-1 平成16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			PFGEタイプ名	備考
						<100bp	100~200bp	>200bp		
04E001	柏屋	H16.3.25	H16.3.30	O157:H7	2	III k	ND	ND	230	
04E002	山門	H16.5.3	H16.5.14	O26:H11	1	ND	ND	ND	38	
04E003	八女	H16.5.21	H16.5.26	O157:H7	1+2	II a	II a	I	238	
04E004	八女 (保菌者)	H16.5.29	O157:H7	1+2	II a	II a	I	238	04E003と同じ	
04E005	八女 (保菌者)	H16.5.29	O157:H7	1+2	II a	II a	I	238	04E003と同じ	
04E006	八女 (保菌者)	H16.5.29	O157:H7	1+2	II a	II a	I	238	04E003と同じ	
04E007	八女	H16.5.24	H16.5.29	O157:H7	1+2	II a	II a	I	238	04E003と同じ
04E008	八女 (保菌者)	H16.5.29	O157:H7	1+2	II a	II a	I	238	04E003と同じ	
04E009	鞍手	H16.6.3	H16.6.10	O157:H7	1+2	II a	II a	I	239	04E003とは異なる
04E010	嘉穂	H16.6.4	H16.6.11	O157:H7	2	III b	ND	III	251	
04E011	柏屋	H16.6.1	H16.6.15	O157:H7	2	III b	ND	ND	229	
04E012	鞍手 (保菌者)	H16.6.17	O157:H7	1+2	II a	II a	I	239	04E009と同じ	
04E013	嘉穂 (保菌者)		O157:H7	2	III b	ND	III	251	04E010と同じ	
04E014	柏屋	H16.6.6	H16.6.21	O91	1	ND	ND	ND		
04E015	筑紫	H16.6.23	H16.6.25	O157:H7	2	ND	ND	III	249	
04E018	筑紫 (保菌者)	H16.6.29	O157:H7	2	ND	ND	III	249	04E015と同じ	
04E019	筑紫 (保菌者)	H16.6.29	O157:H7	2	ND	ND	III	249	04E015と同じ	
04E020	筑紫 (保菌者)	H16.7.5	O111	1	ND	ND	ND			
04E021	筑紫 (保菌者)	H16.7.5	O111	1	ND	ND	ND		04E020と同じ	
04E023	筑紫	H16.6.21	H16.6.30	O111	1	ND	ND	ND		04E020と同じ
04E024	筑紫	H16.7.16	H16.7.17	O157:H7	2	ND	IV	ND	498	
04E025	筑紫 (保菌者)	H16.7.17	O157:H7	2	ND	IV	ND	498	04E024と同じ	
04E026	久留米	H16.7.11	H16.7.15	O157:H7	2	ND	ND	III	519	
04E027	柏屋	H16.7.31	H16.8.4	O157:H7	1+2	II a	ND	I	509	
04E028	柏屋	H16.7.31	H16.8.4	O157:H7	1+2	II a	ND	I	509	04E027と同じ
04E029	柏屋	H16.8.3	H16.8.7	O157:H7	1+2	II a	ND	I	509	04E027と同じ
04E030	宗像	H16.7.29	H16.8.9	O157:H7	1+2	II a	ND	I	509	04E027と同じ
04E031	筑紫	H16.8.7	H16.8.10	O157:H7	2	ND	ND	III	523	
04E032	柏屋	H16.7.29	O157:H7	1+2	ND	ND	ND	544		
04E033	柏屋 (保菌者)	H16.8.16	O157:H7	1+2	ND	ND	ND	543	04E032と1バンド違い	
04E034	筑紫 (保菌者)	H16.8.13	O157:H7	2	ND	ND	III	523	04E031と同じ	
04E035	嘉穂	H16.7.31	H16.8.9	O157:H7	1+2	II a	ND	ND	542	
04E036	久留米 (保菌者)	H16.8.9	O157:H7	1	II a	ND	ND	542	04E035と同じ	
04E037	鞍手	H16.8.6	H16.8.9	O157:H7	2	ND	ND	ND	528	
04E038	鞍手	H16.8.9	H16.8.9	O157:H7	2	ND	ND	ND	528	04E037と同じ
04E039	柏屋	H16.7.29	H16.8.7	O157:H7	2	III a	ND	ND	531	
04E040	久留米	H16.7.22	H16.7.26	O157:H7	2	ND	ND	III	524	04E031と1バンド違い
04E041	久留米 (保菌者)	H16.7.27	O157:H7	2	III b	ND	ND	530		
04E042	久留米	H16.7.23	H16.7.28	O157:H7	1+2	ND	II a	ND	292	
04E043	久留米	H16.7.26	H16.7.29	O157:H7	1+2	ND	II a	I	534	
04E044	久留米	H16.7.28	H16.8.2	O157:H7	1+2	ND	II c	ND	538	
04E045	久留米	H16.8.1	H16.8.7	O157:H7	1+2	II c	II b	ND	537	
04E046	嘉穂	H16.7.31	H16.8.2	O157:H7	1+2	ND	ND	ND	307	
04E047	柏屋	H16.8.12	H16.8.17	O157:H7	1+2	ND	II a	ND	292	04E042と同じ
04E048	糸島	H16.5.23	H16.5.27	O157:H7	1+2	ND	II c	ND	541	
04E049	筑紫	H16.8.9	H16.8.16	O157:H7	1+2	II c	II b	ND	533	
04E050	八女	H16.7.2	H16.7.6	O157:H7	1+2	ND	II b	ND	269	
04E051	久留米	H16.8.14	H16.8.19	O157:H7	1+2	II a	ND	ND	539	
04E052	柏屋	H16.8.22	H16.8.26	O157:H7	1+2	ND	II a	ND	292	04E042と同じ
04E053	柏屋	H16.8.21	H16.8.26	O157:H7	1+2	ND	V'	III	485	
04E054	柏屋 (保菌者)	H16.8.30	O157:H7	1+2	ND	V'	III	485	04E053と同じ	
04E055	柏屋 (保菌者)	H16.8.30	O157:H7	1+2	ND	V'	III	485	04E053と同じ	
04E056	柏屋 (保菌者)	H16.8.30	O157:H7	1	ND	V'	III	527	04E053と1バンド違い	
04E057	柏屋	H16.8.28	H16.8.30	O157:H7	1+2	ND	V'	III	485	04E053と同じ
04E058	遠賀	H16.8.22	H16.8.27	O157:H7	1+2	II a	ND	ND	540	
04E059	遠賀 (保菌者)	H16.9.6	O157:H7	1+2	ND	V'	III	485	04E053と同じ	
04E060	遠賀 (保菌者)	H16.9.6	O157:H7	1+2	ND	V'	III	485	04E053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			PFGEタイプ名	備考
						<100bp	100-200bp	>200bp		
04E061	遠賀	(保菌者)	H16.9.6	O157:H7	1+2	ND	V'	III	485	04E053と同じ
04E062	遠賀	(保菌者)	H16.9.6	O157:H7	1+2	ND	V'	III	485	04E053と同じ
04E063	遠賀	(保菌者)	H16.9.6	O157:H7	1+2	ND	V'	III	485	04E053と同じ
04E064	遠賀	(保菌者)	H16.9.6	O157:H7	1+2	ND	V'	III	485	04E053と同じ
04E065	遠賀	(保菌者)	H16.9.6	O157:H7	1+2	ND	V'	III	485	04E053と同じ
04E066	遠賀	(保菌者)	H16.9.6	O157:H7	1+2	ND	V'	III	485	04E053と同じ
04E067	遠賀	(保菌者)	H16.9.6	O157:H7	1+2	ND	V'	III	485	04E053と同じ
04E068	遠賀	(保菌者)	H16.9.6	O157:H7	1+2	ND	V'	III	485	04E053と同じ
04E069	柏屋	(保菌者)	H16.9.6	O157:H7	1+2	ND	V'	III	526	04E053と1バンド違い
04E070	柏屋	(保菌者)	H16.9.6	O157:H7	1+2	ND	V'	III	485	04E053と同じ
04E071	柏屋	(保菌者)	H16.9.6	O157:H7	1+2	ND	V'	III	485	04E053と同じ
04E072	久留米		H16.8.19	H16.8.25	O157:H7	2	II k	IV	ND	525
04E073	久留米	(保菌者)	H16.8.26	O157:H7	2	II k	IV	ND	525	04E072と同じ
04E074	久留米	(保菌者)	H16.8.26	O157:H7	2	II k	IV	ND	525	04E072と同じ
04E075	久留米	(保菌者)	H16.8.26	O157:H7	2	II k	IV	ND	525	04E072と同じ
04E076	久留米	(保菌者)	H16.8.26	O157:H7	2	II k	IV	ND	525	04E072と同じ
04E077	筑紫		H16.8.27	H16.9.3	OUT:H-	2	ND	ND	ND	
04E078	柏屋		H16.9.3	H16.9.10	O1	1	ND	ND	ND	
04E079	糸島		H16.8.21	H16.8.27	O157:H7	2	II n	ND	III	834
04E089	筑紫		H16.9.11	H16.9.15	O157:H7	1+2	ND	II a	ND	292
04E090	筑紫		H16.9.11	H16.9.15	O157:H7	1+2	ND	II a	ND	292
04E091	八女		H16.8.30	H16.9.5	O26:H11	1	ND	ND	ND	26
04E092	八女	(保菌者)	H16.9.10	O26:H11	1	ND	ND	ND	ND	04E091と同じ
04E093	八女	(保菌者)	H16.9.10	O26:H11	1	ND	ND	ND	ND	04E091と同じ
04E094	筑紫		H16.9.18	H16.9.25	O157:H7	2	ND	ND	III	966
04E095	久留米		H16.8.27	H16.9.8	O157:H7	2	III a	ND	III	965
04E096	久留米	(保菌者)	H16.9.12	O157:H7	2	III a	ND	III	965	04E095と同じ
04E097	鞍手	(保菌者)	H16.10.10	O157:H7	2	II a	II b	I	960	
04E098	鞍手		H16.10.5	H16.10.11	O157:H7	2	II a	II b	I	960
04E099	鞍手		H16.10.6	H16.10.11	O157:H7	2	II a	II b	I	960
04E100	鞍手		H16.10.5	H16.10.9	O157:H7	2	II a	II b	I	960
04E101	鞍手		H16.9.20	H16.10.12	O157:H7	2	II a	II b	I	960
04E102	鞍手		H16.10.7	H16.10.11	O157:H7	2	II a	II b	I	960
04E103	鞍手		H16.9.28	H16.10.7	O157:H7	2	II a	II b	I	960
04E104	鞍手		H16.10.7	H16.10.12	O157:H7	2	II a	II b	I	961
04E105	鞍手	(保菌者)	H16.10.12	O157:H7	2	II a	II b	I	960	04E097と同じ
04E106	鞍手		H16.10.4	H16.10.8	O157:H7	2	II a	II b	I	962
04E107	鞍手		H16.10.4	H16.10.8	O157:H7	2	II a	II b	I	960
04E108	京築		H16.10.1	H16.10.7	O157:H7	2	II a	II b	I	963
04E109	鞍手		H16.10.18	H16.10.21	O157:H7	2	II a	II b	I	960
04E110	柏屋		H16.10.25	H16.11.1	O157:H7	2	II a	ND	III	341
04E111	久留米		H16.10.1	H16.10.5	O157:H7	1	ND	ND	III	956
04E112	遠賀	(保菌者)	H16.11.1	O157:H7	1+2	II a	II a	I	112	"577"と同じ
04E113	久留米	(保菌者)	H16.12.20	O91:H21	1	ND	ND	ND	ND	
04E114	柏屋		H17.1.17	H17.1.22	O157:H7	1+2			828	
04E115	柏屋	(保菌者)	H17.1.22	O157:H7	1+2				a10	
04E116	久留米		H17.1.19	H17.1.26	O157:H-	1			a9	
04E117	久留米	(保菌者)	H17.2.2	O157:H-	1				a9	04E116と同じ
04E118	久留米	(保菌者)	H17.2.2	O157:H-	1				a9	04E116と同じ
04E119	久留米		H17.2.21	H17.2.25	O157:H7	2			823	

\* 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。また、DNA 解析結果の表記方法は、2004年はパターン名と番号で表され、2005年からは番号のみとなった。

<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

## 平成15、16年度性器クラミジア (*Chlamydia trachomatis*) 抗体検査結果の概要

竹中重幸, 濱崎光宏, 野田多美枝, 村上光一, 堀川和美, 石黒靖尚

福岡県では、平成15年3月より性器クラミジア抗体検査を実施している。平成17年3月までに当課に検査依頼された総数は872件（男性490名、女性382名）であった。そのうち、クラミジア抗体陽性者は、189名（男性77名、女性112名）で、陽性率は23.1%であった。陽性者の年齢構成をみると、20歳代が最も多く、男性では20-30歳代に、女性では20歳代に大きなピークがみられた。

[キーワード：性器クラミジア, *Chlamydia trachomatis*, Ig A, Ig G, ELISA]

### 1 はじめに

性器クラミジア感染症は日本で最も多い性感染症（STD）である。感染症法では、5類感染症として性感染症定点からの報告が義務づけられている。低年齢層の女性に多く、成人では性行為によって感染する。最近では、初交年齢の低下に伴って10代女性の感染率の高さが、将来の不妊に繋がるのではないかと憂慮されている。女性の場合、感染していても自覚症状が乏しいため診断・治療に至らない場合が多く、自覚のないままに男性パートナーや出産児に感染させることがある。妊娠検診において、正常妊娠の3-5%にクラミジア保有者が見出されることから、自覚症状のない感染者はかなりあるものと推測されている<sup>1)</sup>。

福岡県では、平成15年3月より性器クラミジア感染症について、*Chlamydia trachomatis* (Ct) の抗体検査を県内13ヶ所の保健福祉環境事務所で、HIV抗体検査、梅毒検査と共に、無料で実施している。当研究所では、これらの保健福祉環境事務所から週に一度搬入される検体について抗体検査を実施している。本稿では、平成15年3月から平成17年3月までの検査結果の概要について報告する。

### 2 方法

#### 2・1 検体

平成15年3月から平成17年3月にかけて、週に一度、県内13ヶ所の保健福祉環境事務所で採血され、分離された血清を用いた。

#### 2・2 検査項目

血清中の抗クラミジア抗体（Ig AおよびIg G）について検査を実施した。

#### 2・3 試薬及び機器

抗クラミジア抗体の検査には、日立化成工業㈱製のキット、ヒタザイム クラミジアを用いた、その他に、96穴マイクロプレート（ナルジェヌンク社製）、プレートシール（住友ベークライト社製）、エッペンドルフピペットおよびチップ（Eppendorff社製）、ミリQ水（Milli Q SP-UF, Millipore社製）を用いて、電気抵抗 18.3 MΩ・cm以上の水を用いた。マイクロプレート用洗浄器（オートミニウォッシャー AMW-8, BioTec社製）、マイクロプレートリーダー（MTP-120, 日立製作所製）、インキュベーター（PCI-300, 井内盛栄堂製）、プレートミキサー（Monoshake, Labortechnik AG社製）およびミキサー（Vortex-Genez, Scientific Industries社製）を用いた。

#### 2・4 検査方法

キット内の試薬とプレート、ならびに検体を室温にまで戻し、Ig A抗体測定の場合は検体を希釈用緩衝液（洗浄液に同じ）で21倍に希釈し、Ig G抗体測定の場合には検体を希釈用緩衝液で210倍に希釈した。その後、プランク用として希釈用緩衝液を1ウェル、陰性対照血清を2ウェル、陽性対照血清を2ウェルに各100 μLずつ分注し、以降、Ig A抗体測定用希釈検体をそれぞれ、100 μLずつ分注した。Ig G抗体測定の場合にも同様に、プランク用として希釈用緩衝液を1ウェル、陰性対照血清を2ウェル、陽性対照血清を2ウェルに各100 μLずつ分注し、以降、Ig G抗体測定用希釈検体をそれぞれ、100 μLずつ分注した。

次に、プレートシールを貼り、37°Cで60分間インキュベートした。その後、プレートシールを剥がし、マイクロプレート用洗浄器で洗浄液を各ウェル300 μLずつ

つ分注し、3回洗浄した。次に、酵素（アルカリフェオヌアターゼ）標識抗ヒト Ig A 抗体 100 μL を Ig A 抗体測定用ウェルに、酵素標識抗ヒト Ig G 抗体 100 μL を Ig G 抗体測定用ウェルにそれぞれ加え、プレートシールを貼り、37℃で60分間インキュベートした。その後、同様に洗浄を3回行った。

最後に、各ウェルに基質液 (*p*-ニトロフェニルリン酸溶液) を 100 μL ずつ加え、室温で10分間反応させた。反応終了後、直ちに停止液 (3N 水酸化ナトリウム含アジ化ナトリウム) を 25 μL ずつ各ウェルに加え、プレートミキサーで10秒混和した。その後、マイクロプレートリーダーを用い、405 nm の吸光度を測定した。測

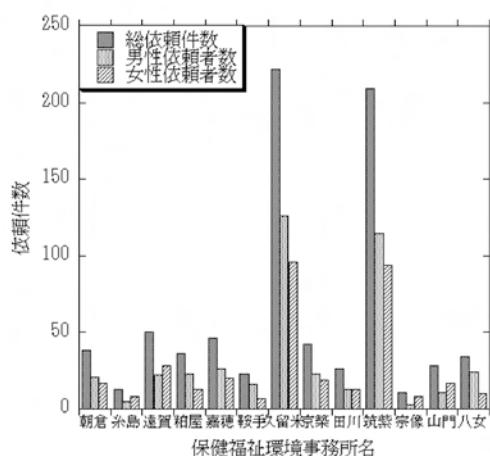


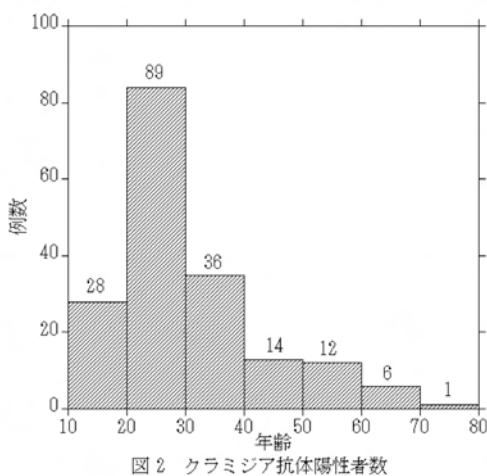
図 1 クラミジア抗体検査依頼者数

定の際のリファレンスには 630 nm の吸光度を用いた。

測定結果は、キットに添付された説明書に記載された

計算式を用いてカットオフインデックスを計算し、陰性（-）、陽性（+）、または擬陽性（±）を判定した。

### 3 結果



平成 15 年 3 月から平成 17 年 3 月までの Ct 抗体検査依頼件数を図 1 に示す。総依頼件数は 872 件で、その内、男性は 490 件、女性は 382 件であった。Ct 抗体陽性者は、男性 77 名、女性 112 名であり、その陽性率は男性 15.7%，女性 29.3% であった。全体では 23.1% が陽性であった。Ct 抗体陽性者の年齢構成を見ると、図 2 に示すように、20 代に最も多く集中していた。図 3 に男女別の Ct 抗体陽性者の年齢構成を示す。男性の場合 20 代から 30 代にかけてピークが見られ、女性の場合は 20 代に大きなピークが見られた。さらに、Ig G 抗体陽性

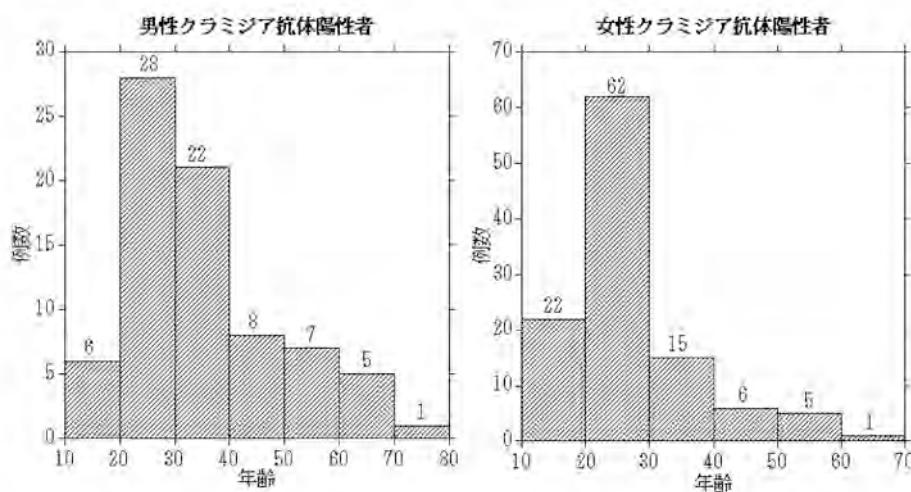


図 3 年代別クラミジア抗体陽性者数

が示す Ct に既往歴のある者は 165 名で、全陽性者数の 87.3% であった。

#### 4 考察

性器クラミジア感染症は現在、最も拡大している STD であり、特に、16 - 25 才までの若年女性に圧倒的に多く見られる。しかも女性の場合、自覚症状に乏しいことが、将来の不妊症や子宮外妊娠に繋がる危険性を孕んでいる。厚生労働省の感染症発生動向調査によると、最近、ティーンエージャー（15 - 19 才）の性器クラミジア感染症への罹患率が増加傾向にあり、患者の若年化の傾向が益々、顕著になってきている<sup>1)</sup>。性器クラミジア感染者根絶のためには若年者対策が重要とされる所以である。

平成 16 年度福岡県結核・感染症発生動向調査事業資料集<sup>2)</sup>によると、福岡県でも依然、STD に占める性器クラミジアの罹患率は高い。このデータは定点報告から上がってきたデータで、Ct の抗原検査陽性数が挙げられている。当研究所で実施した検査は、Ct 抗体保有の有無を判定しているだけで Ct 抗原を検出しているわけではない。しかも、Ct 抗体陽性者の多くはクラミジア症の既往者（Ig G 抗体陽性者）である。女性の場合は、自覚症状に乏しいこともあり、無症候感染者が隠れている可能性<sup>3)</sup>も指摘されている。さらに、持続性感染も問題となつておらず、治療が不十分な場合はもちろんのこと、十分な治療を行ったにも関わらず持続性感染が問題となる症例<sup>4)</sup>もある。これらの問題点を踏まえた新たな検査態勢構築が望まれる。最近は、オーラルセックスがごく日常的な性行動になり、その結果、クラミジア咽頭感染が増え、感染拡大の一因となっている<sup>5)</sup>。したがって、性器クラミジア感染が見つかった場合、積極的に咽頭感染状況も検査すべきであると報告されている<sup>5)</sup>。Ct の投薬治療については、例えば、アジスロマイシン 1000 mg 単回投与を実施した場合、治癒率は子宮頸管では 100% だったが、咽頭では 86% に過ぎなかった。これは、7 人に 1 人が除菌に失敗する計算である。それだけ除菌しにくいわけであるが、このような症例では抗体価の下降が不十分な事が多く、注意が必要である<sup>4)</sup>。

STD はエイズウィルス（HIV）の感染率を 2 - 4 倍高めるとされているが<sup>6)</sup>、日本では HIV 感染者と患者の合計が 1 万人を突破した中、若年者を中心に爆発的な HIV 感染の増加が懸念されている。STD が HIV の感染率を高めることからも、若年層への緊急な STD 対策の必要性を意味している。STD の罹患率は、欧米の女子高生が 1 - 4% であるのに対し、日本では 13.1 % で、罹患率を比べても日本は際だって高い<sup>4)</sup>。最近、厚生労働省の調査<sup>7)</sup>により、性体験のある高校生のうち約 1 割が Ct に感染していた

ことが報告され、全国高等学校 PTA 連合会のアンケート調査でも、STD に対する知識の低さが明らかになっており<sup>8)</sup>、今後の学校での性教育のあり方も考え直さねばならないだろう。

#### 文献

- 1) 厚生労働省：感染症発生動向調査、第8週号、平成16年2月16-22日。
- 2) 福岡県結核・感染症発生動向調査委員会：平成16年度福岡県結核・感染症発生動向調査事業資料集。
- 3) 熊本悦明：HIV 感染症の疫学研究－STD 症例における HIV 及び STD 関連抗体に関する血清疫学的調査－、平成9年度厚生科学研究報告書。
- 4) WHO : Global Prevalence and Incidence of Selected Curable Sexually Transmitted Infections Overview and Estimates. (2001).
- 5) 三鷹廣繁ら：病原微生物検出情報 月報、平成16年8月号。
- 6) 熊本悦明：性感染症の効果的な発生動向調査に関する研究、平成 12 年度厚生科学研究報告書。
- 7) 厚生労働省ホームページ、  
<http://www.mhlw.go.jp/shingi/2005/03/txt/s0307-1.txt>.
- 8) 全国高等学校 PTA 連合会：(社) 全高 P 連会報、第 51 号、平成 17 年 4 月 15 日。



## 資料

### 感染症発生動向調査事業におけるウイルス検査結果（2004年）

石橋哲也, 江藤良樹, 梶原淳睦, 世良暢之, 千々和勝己

感染症発生動向調査事業における病原体情報の一環として, 2004年は県内16カ所の病原体定点医療機関から305件の検査材料が搬入された。主な疾患は, インフルエンザ様疾患, 感染性胃腸炎, 無菌性髄膜炎, 手足口病, ヘルパンギーナであり, それぞれの検体について検査を行ったところ各種ウイルスが分離された。

[キーワード : 感染症発生動向調査事業, 病原体情報, ウイルス分離]

#### 1 はじめに

感染症発生動向調査事業は、「感染症の予防及び感染症の患者に対する医療に関する法律」に基づき, 感染症の発生を予防し, そのまん延の防止を図ることを目的に実施されている。当課では, 同事業のうち、病原体情報の提供を担当して, 県内（福岡市, 北九州市を除く）の病原体定点医療機関において採取された検査材料について, ウィルス検査を行っている。ここでは、2004年の検査結果について示す。

#### 2 方法

県内16カ所の病原体定点医療機関で採取され, 保健福祉環境事務所により搬入された糞便, 咽頭ぬぐい液, 髄液等の検体305件をウィルス検査材料とした。ウィルス分離は, Vero, FL, RD18s, HEp-2, MDCKの5種類の培養細胞と, 生後48時間内の乳のみマウスを用いて行った。分離ウイルスは, 中和血清を用いた同定を行ったが, 同定困難な場合にはRT-PCR法及び塩基配列の決定による同定も試みた。また, 感染性胃腸炎に関しては, 市販イムノクロマト法キットによるロタ・アデノウイルス抗原の検出とRT-PCR法によるノロウイルス遺伝子の検出を行った。

#### 3 結果及び考察

搬入検体とそのウイルス分離状況を表1に示した。搬入された検体は11疾患305件で搬入検体数は昨年の293件とほぼ同等であった。臨床診断名ごとにみると, インフルエンザ様疾患が118検体で最も多く, 前年に比べ約1.5倍に増加した。次いで感染性胃腸炎が38件搬入された。

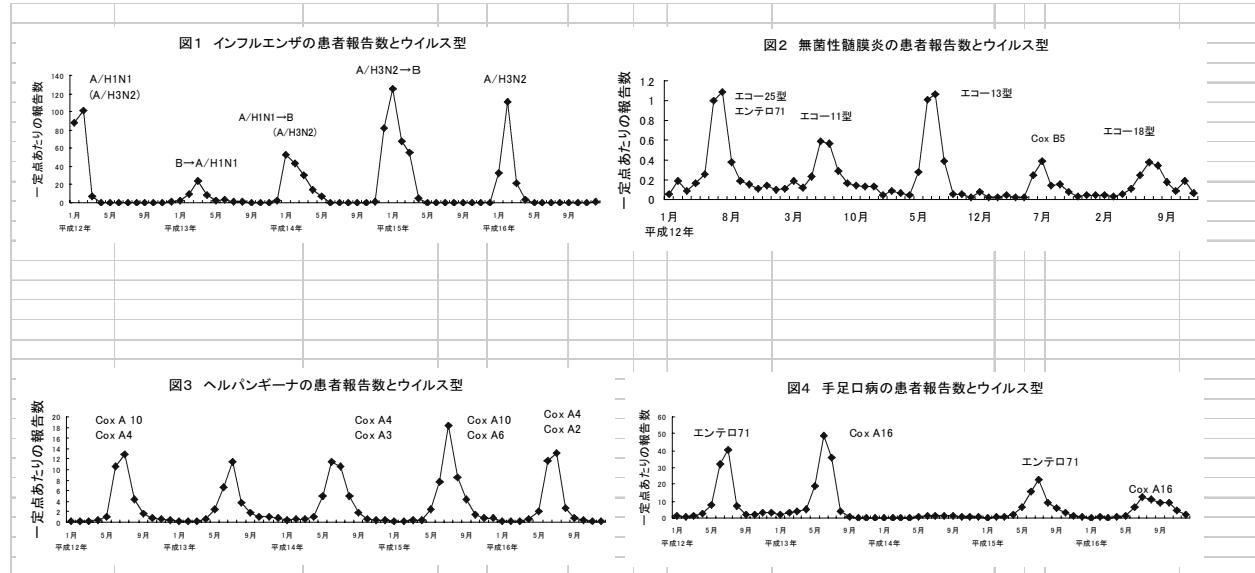
過去5年間の主な疾患ごとの定点あたりの患者報告数とウイルス型を図1-4に示した。患者報告数は、福岡県結核・感染症発生動向調査事業資料集平成16年（2004年）に基づいて図示した。2004年の特徴を示すと, インフルエンザ様疾患の46件からA/H3型が分離され, B型は1件からのみであった。また, 無菌性髄膜炎の病原ウイルスは, 前シーズンのコクサッキー(Cox)B群ウイルスからエコーウイルス18型, 7型に変化していた。しかし, 患者発生数は前年と同じく小規模であった。ヘルパンギーナからは, CoxA4型が主に分離され, 前年のCoxA10型から主流行株が変化していた。手足口病については, 平年並みの流行ではあったが, 通常流行のピークが6-7月にはつきり現れるのに対し, 本年は6月に患者報告数が上昇した後、ほぼ一定のレベルで10月まで維持されたことが特徴としてあげられる。分離されたのは, CoxA16型のみで、前年分離されたエンテロウイルス71型は分離されなかった。

表 1 感染症発生動向調査検査結果

疾病名	採取月	件数	検査材料	検査結果	検査材料	分離ウイルス	株数
インフルエンザ	1~3, 12月	118	NP105	陽性 54 FC2 陰性 64 SF1 SF1, PS3 PS10	(NP47, PS7) (NP58, FC2, SF1, PS3)	インフルエンザ A/H3型 インフルエンザ B型 インフルエンザ A/H3型	46 件 (NP46) 1 件 (NP1) 7 件 (PS7)
咽頭結膜熱	8月	1	FC1	陰性 1	(FC1)		
感染性胃腸炎	1~4, 6, 7, 9~12月	38	FC37 SF1	陽性 22 陰性 16	(FC22) (FC15, SF1)	ノロウイルス コクサッキー A4 コクサッキー A2 ボリオ 1 ボリオ 2 アデノ型別不明 同定不能	10 件 (FC10) 6 件 (FC6) 1 株 (FC1)* 1 株 (FC1)* 1 株 (FC1)* 1 件 (FC1) 3 株 (FC3)
手足口病	6~12月	19	NP17 FC1 SF1	陽性 6 陰性 13	(NP5, FC1) (NP12, SF1)	コクサッキー A16 コクサッキー 18 同定不能	3 株 (NP3) 1 株 (FC1) 2 株 (NP2)
ヘルパンギーナ	5~8月	14	NP13 SF1	陽性 12 陰性 2	(NP12) (NP1, SF1)	コクサッキー A4 コクサッキー A2 ボリオ 3 同定不能	9 株 (NP9) 1 株 (NP1)* 1 株 (NP1)* 2 株 (NP2)
麻疹(小児科定点)	5月	1	NP1	陰性 1	(NP1)		
流行性耳下腺炎	4, 5, 7~9月	5	SF5	陽性 1 陰性 4	(SF1) (SF4)	同定不能	1 株 (SF1)
急性脳炎	1, 3, 4, 8, 10月	6	SF5 NP1	陰性 6	(SF5, NP1)		
無菌性髄膜炎	4~9, 11月	30	SF26 FC4	陽性 7 陰性 23	(SF5, FC2) (SF21, FC2)	エコ一 18 エコ一 7	5 株 (SF3, FC2) 2 株 (SF2)
流行性角結膜炎	10月	1	ES1	陰性 1	(ES1)		
その他の疾患	1~12月	72	SF28 FC24 NP16 UR2 EX2	陽性 20 NP4) 陰性 52 (SF21, NP12, FC15, UR2, EX2)	(FC9, SF7, エコ一 18 エコ一 7 アデノ 3 コクサッキー A4 ヘルペス 1 ボリオ 3 同定不能	ノロウイルス エコ一 18 エコ一 7 アデノ 3 コクサッキー A4 ヘルペス 1 ボリオ 3 同定不能	6 件 (FC6) 5 株 (SF4, FC1) 3 株 (SF2, FC1) 1 株 (NP1) 1 株 (NP1) 1 株 (NP1) 1 株 (FC1) 2 株 (SF1, NP1)

検体数； 305 件

FC:糞便, NP:咽頭ぬぐい液及びうがい液, SF:齶液, ES:結膜ぬぐい液, UR:尿, PS:尿血清, EX:その他(水疱内容液等)



## **2 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
関節腔内注射による黄色ブドウ球菌集団感染事例－福岡県	財津裕一 <sup>*1</sup> , 堀川和美, 野田多美枝, 田代律子 <sup>*2</sup> *1 宗像保健福祉環境事務所 *2 田川保健福祉環境事務所	病原微生物検出情報, Vol. 25, No. 10 (2004. 10)	P 99
Evaluation of Clastogenicity of Isoprothiolane and Pyroquilon Using The Mouse Micronuclei Test	O. Nagafuchi <sup>*1</sup> , K. Murakami, M. Ukita <sup>*2</sup> *1 千葉科学大学 *2 山口大学	Toxicol. Environ. Chem., 86, 99-102, 2004.	P 99
Association between chemical properties and oxidative damage due to nitorophenanthrenes and their related compounds in primary rat hepatocytes	Nobuyuki Sera, Hiroshi Tokiwa <sup>*1</sup> , Hideo Utsumi <sup>*2</sup> , Shigeki Sasaki <sup>*2</sup> , Kiyoshi Fukuhara <sup>*3</sup> and Naoki Miyata <sup>*4</sup> * 1 Kyushu Women's University * 2 Kyushu University * 3 National Institute of Health Science * 4 Naogoya City Uiverstiy	Polycyclic aromatic compounds, 24(4-5), 487-500, 2004.	P 99
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	福岡県保健環境研究所年報, 第31号, 61-65, 2004.	P 99
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ンナトリウムのHPLC分析法	森田邦正, 毛利隆美, 中川礼子	福岡県保健環境研究所年報, 第31号, 66-68, 2004.	P 100
ダイキシン類データベースの構築と汚染状況の解析	岩本真二, 松枝隆彦, 黒川陽一, 大野健治, 飛石和大, 桜木建治	環境化学, Vol. 14, No. 4, 805-815	P 100
Preparation of activated carbon fibers from polyvinyl chloride.	W.M.Qiao <sup>*1</sup> , S.H.Yoon <sup>*1</sup> , Y.Korai <sup>*1</sup> , I.Mochida <sup>*1</sup> , S.Inoue <sup>*1</sup> , T.Sakurai <sup>*2</sup> , T.Shimohara *1 九州大学 *2 リサイクル総合研究センター	Carbon, 42, 1327-1331, 2004.	P 100
Reaction of NO <sub>2</sub> in air at room temperature with urea supported on pitch based activated carbon fiber.	N.Shirahama <sup>*1</sup> , I.Mochida <sup>*1</sup> , Y.Korai <sup>*1</sup> , K.H.Choi <sup>*1</sup> , T.Enjoji <sup>*2</sup> , T.Shimohara, A.Yasutake <sup>*3</sup> *1 九州大学 *2 佐賀県工業技術センター *3 三菱重工 長崎研究所	Applied Catalysis B: Environmental, 52, 173-179 , 2004.	P 100
採水用器材に由来する鉛汚染事例	石橋融子, 松尾 宏, 中村又善, 笹尾敦子, 上田 修* * 福岡県筑紫保健福祉環境事務所	福岡県保健環境研究所年報第31号, 69-73, 2004.	P 101

論文名	執筆者	掲載誌	抄録掲載頁
Radon and Thoron Exposures for Cave Residents in Shanxi and Shaanxi Provinces	S.Tokonami * <sup>1</sup> , Q.Sun * <sup>2</sup> , S.Akiba * <sup>3</sup> , W.Zhuo * <sup>1</sup> , M.Furukawa * <sup>1</sup> , T.Ishikawa * <sup>1</sup> , C.Hou * <sup>2</sup> , S.Zhang * <sup>2</sup> , Y.Narazaki, B.Ohji * <sup>1</sup> , H.Yonehara * <sup>1</sup> and Y.Yamada * <sup>1</sup> *1 放射線医学総合研究所 *2 放射線防護研究所 *3 鹿児島大学	Radiation Research, 162, 390-396, 2004.	P 101
Association of manganese effluent with the application of fertilizer and manure on tea field	Yuko Ishibashi, Hiroshi Matsuo, Yoshiteru Baba, Yoshitaka Nagafuchi, Toshihiko Imato * <sup>1</sup> , Tatemasu Hirata * <sup>2</sup> * 1 Kyushu University * 2 Wakayama University	Water Research, 38, 2821-2826, 2004.	P 101
博多湾におけるマクロベントスを考慮した水質解析	熊谷博史, 山崎惟義* <sup>1</sup> , 渡辺亮一* <sup>1</sup> , 藤田健一* <sup>2</sup> *1 福岡大学 *2 九州環境管理協会	環境工学研究論文集, 第41巻, 437-446, 2004.	P 101
安定型産業廃棄物最終処分場の熱赤外線による監視手法の検討	土田大輔, 小宮哲平*, 中山裕文*, 高橋浩司, 宇都宮彬, 島岡隆行* * 九州大学	都市清掃, Vol. 57, No. 262, pp. 588-595, 2004.	P 102
竹炭を混合したコンクリートの水質浄化特性	土田大輔, 石橋融子, 徳永隆司* <sup>1</sup> , 世利桂一* <sup>2</sup> , 倉富伸一* <sup>3</sup> *1 福岡県リサイクル総合研究センター *2 福岡県工業技術センターインテリア研究所 *3 くら有限会社	全国環境研会誌, Vol. 29, No. 2, pp. 102-106, 2004.	P 102
土壤細菌叢評価法の構築－廃棄物処分場の硫化水素ガス発生対策のために－	谷口初美* <sup>1</sup> , 福田和正* <sup>1</sup> , 王 岩* <sup>1</sup> , 山内和紀* <sup>1</sup> , 市原剛志* <sup>1</sup> , 水野康平* <sup>2</sup> , 石松維世* <sup>1</sup> , 世良暢之, 濱崎光宏, 高橋浩司, 堀川和美 *1 産業医科大学 *2 北九州工業高等専門学校	産業医科大学雑誌, 26 (3), 349-367, 2004.	P 102
計（論文等発表一覧）	15 件		

## (2) 発表論文抄録

### 1 関節腔内注射による黄色ブドウ球菌集団感染事例－福岡県

財津裕一<sup>\*1</sup>, 堀川和美, 野田多美枝, 田代律子<sup>\*2</sup>: 病原微生物検出情報, 25(10), 8-10, 2004.

2004年3月福岡県内の病院で、変形性関節症患者に対する関節腔内注射により、黄色ブドウ球菌の集団感染が発生した。注射の準備及び施術に関与した医師及び看護師について調査した結果、2名の看護師が準備した注射液を使用した患者のみが発症していることが判明した。さらに関係者の鼻腔、手指等から検出された黄色ブドウ球菌と患者から検出された黄色ブドウ球菌についてパルスフィールドゲル電気泳動によるDNA解析を行なった。その結果、2名の看護師がそれぞれ関与した患者とDNAパターンが一致していた。疫学及び細菌学的調査の結果から、関節腔内注射調整時に黄色ブドウ球菌が汚染したことが判明した。この治療は一般医療機関で広く行なわれており、対象者も多く、再発防止の参考とするため概要を報告した。

\*1 宗像保健福祉環境事務所

\*2 田川保健福祉環境事務所

### 2 Evaluation of Clastogenicity of Isoprothiolane and Pyroquilon Using The Mouse Micronuclei Test

O. Nagafuchi<sup>\*1</sup>, K. Murakami, M. Ukita<sup>\*2</sup>: Toxicol. Environ. Chem., 86, 99-102, 2004.

マウス末梢血小核試験を用いて、Isoprothiolane 及び Pyroquilon の遺伝子損傷性の有無を検討した。用いた試料はこれらの化学物質の市販試薬、およびそれらを精製したものである。その結果、市販試薬を投与したマウスでは、末梢血中の小核を有する網状赤血球数が、コントロールと比較し有意に増加したのに対し、精製した試料では、小核を有する網状赤血球の増加は認められなかった。このことから、Isoprothiolane 及び Pyroquilon の遺伝子損傷性に関しては、この試験系では陰性であり、毒性試験に用いる試料の純度は、できる限り高純度のものを用いなければならないことが再確認された。

\*1 千葉科学大学

\*2 山口大学

### 3 Association between chemical properties and oxidative damage due to nitorophenanthrenes and their related compounds in primary rat hepatocytes

Nobuyuki Sera, Hiroshi Tokiwa<sup>\*1</sup>, Hideo Utsumi<sup>\*2</sup>, Shigeki Sasaki<sup>\*2</sup>, Kiyoshi Fukuhara<sup>\*3</sup> and Naoki Miyata<sup>\*4</sup>: Polycyclic aromatic compounds, 24(4-5), 487-500, 2004.

標的臓器が肺であることが明らかとなっている発がん物質ニトロフェナスレン及びその誘導体をラット初代肝臓細胞に接種して酸化的損傷度を測定した。その結果、フェナスレン誘導体による酸化的損傷度の指標の1つである8-hydroxydeoxyguanosine(8-OH-dG)の生成は、1電子還元電位、最低空軌道(LUMO)などの化学的データと関連を示した。このことから、フェナスレン誘導体による8-OH-dGは置換しているニトロ基の還元的代謝のされやすさと相關することが示唆された。

\*1 九州女子大学

\*2 九州大学

\*3 国立医薬品食品衛生研究所

\*4 名古屋市立大学

### 4 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: 福岡県保健環境研究所年報, 第31号, 61-65, 2004.

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InertsilODS-3(4.6 x 150 mm, 5 μm)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。試料をメタノール及び水/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、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。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 μg/g、チロキシンが1.4 μg/gであった。

## 5 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ンナトリウムのHPLC分析法

森田邦正, 毛利隆美, 中川礼子: 福岡県保健環境研究所年報, 第31号, 66-68, 2004.

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 InertsilODS-3 (4.6 x 150 mm, 5  $\mu\text{m}$ )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. 試料抽出液を Bond Elut Certify カートリッジ処理することにより効果的に共存物質を除去することができた. 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  $\mu\text{g/g}$ , レボチロキシンナトリウムが 0.7  $\mu\text{g/g}$  であった.

## 6 ダイオキシン類データベースの構築と汚染状況の解析

岩本真二, 松枝隆彦, 黒川陽一, 大野健治, 飛石和大, 桜木建治: 環境化学, Vol. 14, No. 4, 805-815, 2004.

ダイオキシン類のデータを集約し, 解析するためにデータベースを構築した. データベースは, 採取地点, 採取日時などの付帯項目, 118異性体項目, 同族体項目, TEQ 異性体濃度などで構成されており, 過去の調査で分析された700サンプル以上が収められている. このデータベースから解析したいグループを抜き出し, 異性体パターン, 同族体パターン, 選択した成分のレーダーチャート, TEQ 構成などのグラフを作成する. また, ダイオキシン類の土壤, 大気などの汚染地域分布をみるために県地図の上に円グラフで表示し, その違いを観察する. また, 統計ソフト, ケミカルマスバランス(CMB)計算ソフトを使い, 発生源種の推定や寄与率の予測計算を行う. このデータベースを基に, 重回帰分析, CMB 法で発生源の予測を行ったところ, おおむね似た結果となり, 大気では廃棄物焼却炉が60%以上, 土壤・河川水では CNP, PCP の農薬が60%以上寄与していることが推定できた.

## 7 Preparation of activated carbon fibers from polyvinyl chloride

W. M. Qiao \*<sup>1</sup>, S. H. Yoon \*<sup>1</sup>, Y. Korai \*<sup>1</sup>, I. Mochida \*<sup>1</sup>, S. Inoue \*<sup>1</sup>, T. Sakurai \*<sup>2</sup>, T. Shimohara: Carbon, 42, 1327-1331, 2004.

廃ポリ塩化ビニル(PVC)プラスチックは塩素成分を含むため, 焼却時にダイオキシンを発生すると言われている. 本研究では, PVC を 2 段階加熱処理することで, ピッチから効果的に脱塩素化する方法を検討した. その結果, 脱塩素化した軟化点 218 °C のピッチを調整した. 調整したピッチは紡糸し, 炭化, 賦活の処理を経て, 高活性炭素繊維(ACF)を製造した. 製造した ACF について SO<sub>2</sub> の浄化能について予備試験した結果, 従来の ACF に匹敵する浄化能を有することが分かった.

\*1 九州大学

\*2 リサイクル総合研究センター

## 8 Reaction of NO<sub>2</sub> in air at room temperature with urea supported on pitch based activated carbon fiber.

N. Shirahama \*<sup>1</sup>, I. Mochida \*<sup>1</sup>, Y. Korai \*<sup>1</sup>, K. H. Choi \*<sup>1</sup>, T. Enjoji \*<sup>2</sup>, T. Shimohara, A. Yasutake \*<sup>3</sup>: Applied Catalysis B: Environmental, 52, 173-179, 2004.

戸外大気における NO<sub>2</sub> の還元反応について検討するため, 室温で, 尿素を担持した ACF に 50 ~ 1000ppm の NO<sub>2</sub> を通気する実験を行なった. その結果, NO<sub>2</sub> は還元, 分解され, 窒素ガスに変換されることが確認できた. ACF 上に担持した尿素は, 僅かに消費される反応であることが分かった. この時, 導入するガス中の酸素濃度は, NO<sub>2</sub> の還元, 分解能に影響を及ぼしていなかった. 相対湿度の上昇は, ACF 上で NO<sub>2</sub> を硝酸に酸化させやすくするため, NO<sub>2</sub> の還元, 分解の寿命を低下させることが分かった.

\*1 九州大学

\*2 佐賀県工業技術センター

\*3 三菱重工 長崎研究所

## 9 採水用器材に由来する鉛汚染事例

石橋融子, 松尾 宏, 中村又善, 笹尾敦子, 上田修\*: 福岡県保健環境研究所年報第31号, 69-73, 2004.

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の台座の中のおもり（鉛が使用されていた）が汚染源であることがわかった。

\* 福岡県筑紫保健福祉環境事務所

## 10 Radon and Thoron Exposures for Cave Residents in Shanxi and Shaanxi Provinces

S. Tokonami \*<sup>1</sup>, Q. Sun \*<sup>2</sup>, S. Akiba \*<sup>33</sup>, W. Zhuo \*<sup>1</sup>, M. Furukawa \*<sup>1</sup>, T. Ishikawa \*<sup>1</sup>, C. Hou \*<sup>2</sup>, S. Zhang \*<sup>2</sup>, Y. Narazaki, B. Ohji \*<sup>1</sup>, H. Yonehara \*<sup>1</sup> and Y. Yamada \*<sup>1</sup>; , Radiation Research, 162, 390-396, 2004.

高放射線地域である中国Shanxi及び Shaanxi省にある黄土台地の202戸の洞窟住居にて自然放射能の測定を行った。室内ラドン濃度は19~195 Bq m<sup>-3</sup>で、幾何平均値は64 Bq m<sup>-3</sup>、室内トロン濃度は10 ~ 865 Bq m<sup>-3</sup>で、幾何平均値は153 Bq m<sup>-3</sup>であった。室内の平衡等価トロン濃度は0.3 ~ 4.9 Bq m<sup>-3</sup>で、幾何平均値は1.6 Bq m<sup>-3</sup>であった。空間γ線線量率の平均値は、室内で140nGy h<sup>-1</sup>、室外で110nGy h<sup>-1</sup>であった。米国National Cancer Instituteの調査では当地の肺ガンリスクをトロンは測定せずに、ラドンレベルの上昇に伴い増加したと結論付けているが、今回の研究からトロンの影響が大きく、その重要性が軽く見積もられた可能性を指摘した。

\*1 放射線医学総合研究所

\*2 放射線防護研究所

\*3 鹿児島大学

## 11 Association of manganese effluent with the application of fertilizer and manure on tea field

Yuko Ishibashi, Hiroshi Matsuo, Yoshiteru Baba, Yoshitaka Nagafuchi, Toshihiko Imato \*<sup>1</sup> and Tatemasa Hirata \*<sup>2</sup>: Water Research 38, 2821-2826, 2004.

茶畠を起源とする湧水でマンガン濃度が1.1-3.5 mg/lと高い値を示した。茶畠からのマンガン流出量は、38,000g/ha (1997年6月-1998年5月), 4100g/ha (1998年6月-1999年5月)と推計された。また、梅雨期にマンガン流出量が多かった理由は、梅雨期前に肥料を施肥することにより土壤が酸性化し、土壤中の溶解性マンガンが増加するためであると考えられた。

\*1 九州大学

\*2 和歌山大学

## 12 博多湾におけるマクロベントスを考慮した水質解析

熊谷博史, 山崎惟義 \*<sup>1</sup>, 渡辺亮一 \*<sup>1</sup>, 藤田健一 \*<sup>2</sup>

博多湾湾奥で優占種であるホトトギスガイをマクロベントスコンパートメントとして組み込んだ生態系モデルを作成した。本モデルはマクロベントスを関数のみとして扱っている従来のモデルよりも、貧酸素水塊の挙動を詳細に把握することが可能であった。このことは、底質中に生息しているマクロベントスは、貧酸素水塊の挙動を予測する生態系モデルを構築する際の無視できない重要な因子であることを示唆していた。

\*1 福岡大学

\*2 九州環境管理協会

### 13 安定型産業廃棄物最終処分場の熱赤外線による監視手法の検討

土田大輔, 小宮哲平\*, 中山裕文\*, 高橋浩司, 宇都宮彬, 島岡隆行\*: 都市清掃, Vol. 57, No. 262, pp. 588-595, 2004.

安定型産業廃棄物最終処分場において、混入した有機物に起因する発熱現象を検出することを目的として、熱赤外線画像装置を用いた地表面温度調査を行った。まず、屋外予備実験を行い、熱赤外線画像の撮影条件を検討した結果、地表面温度の調査に適した時間帯は夜明け前であることが明らかになった。次に、安定型処分場に立ち入り、熱赤外線画像の撮影を行った結果、埋立地内部の有機物分解反応による発熱箇所を、地表面温度分布から推測することが可能であった。また、ヘリコプターにより処分場全体を上空から撮影する上空調査を行ったが、日射の影響が大きかった。これらの結果から、熱赤外線画像装置による調査方法が、処分場における有機物分解を監視する方法として有効であることが明らかとなった。

\* 九州大学

### 14 竹炭を混合したコンクリートの水質浄化特性

土田大輔, 石橋融子, 徳永隆司\*, 世利桂一\*, 倉富伸一\*: 全国環境研会誌, Vol. 29, No. 2, pp. 102-106, 2004.

竹炭を混合した河川護岸用コンクリートブロックを作製した。このコンクリートブロックの水質浄化特性を、コンクリートブロックから溶出する溶解性物質と、コンクリートブロック表面に付着した微生物による有機物分解能の両面から考察した。コンクリート試験片による室内での浸漬実験の結果、竹炭混合コンクリートからは、竹炭由来のカリウムイオンや、使用した特殊セメント由来のアルミニウムイオンなどが、竹炭の入っていない普通コンクリートに比べて多く溶出した。また竹炭混合コンクリートは、普通コンクリートに比べ、六価クロムの溶出が少なく、吸着実験の結果、竹炭に吸着されたことがわかった。試験片を酸化池に3ヶ月間沈めて微生物を付着させた結果、普通コンクリートの約3倍量の微生物が付着した。この付着微生物量の違いにより、竹炭混合コンクリートのBOD除去速度は、普通コンクリートより大きかった。

\*1 福岡県リサイクル総合研究センター

\*2 福岡県工業技術センターインテリア研究所

\*3 くら有限会社

### 15 土壌細菌叢評価法の構築－廃棄物処分場の硫化水素ガス発生対策のために－

谷口初美\*, 福田和正\*, 王 岩\*, 山内和紀\*, 市原剛志\*, 水野康平\*, 石松維世\*, 世良暢之, 濱崎光宏, 高橋浩司, 堀川和美: 産業医科大学雑誌, 26 (3), 349-367, 2004.

廃棄物処分場や不法投棄現場においてガス発生が多発している。硫化水素ガス発生予測の基礎となる土壌細菌叢の動態を量的、質的に評価するための遺伝子工学的検査法を構築することを目的に、従来の染色法、培養法による検証とともに、実験手法の確立を行った。硫化水素ガス発生に関与するイオウの酸化または還元菌群の頻度を調べた結果、不法投棄現場では無芽胞硫酸還元菌とイオウ酸化細菌群が高頻度に検出され、廃棄物処分場では有芽胞硫酸還元菌や *Clostridium* 属菌が多く検出された。遺伝子工学的検査法が土壌の微生物叢評価および処分場のガス発生予知に有用であることが示唆された。

\*1 産業医科大学

\*2 北九州工業高等専門学校

(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
Application of solvent cut large volume (SCLV) injection system using narrow-bore column to dioxins analysis in human blood	Kazuhiro Tobiishi, Takashi Todaka, Hironori Hirakawa, Tsuguhide Hori and Takao Iida	24 <sup>th</sup> International Symposium on Halogenated Environmental Organic Pollutants and POPs (Berlin, Germany), September 6-10, 2004.
Development of database system for dioxins and its application to pollution analysis of dioxins in the environment	Takahiko Matsueda, Shinji Iwamoto, Naoko Kita, Kenji Ohno, Youichi Kurokawa, Kazuhiro Tobiishi, Daisuke Yasutake and Kenji Sakuragi	China-Japan Joint symposium on Environmental Chemistry (Beijing, China), October 21-23, 2004.
Comparison of accelerated solvent extraction and standard shaking extraction for determination of dioxins in foods	Tsuguhide Hori, Kazuhiro Tobiishi, Reiko Nakagawa, Takao Iida, Tomoaki Tsutsumi*, Kumiko Sasaki* * National Institute of Health Sciences	24 <sup>th</sup> International Symposium on Halogenated Environmental Organic Pollutants and POPs (Berlin, Germany), September 6-10, 2004.
Levels of Polybrominated Diphenyl-Ethers and Polybrominated Dioxins in Fish, Total Diet Study Food Groups and Japanese Meals	Yuki Ashizuka, Reiko Nakagawa, Tsuguhide Hori, Kazuhiro Tobiishi and Takao Iida	24 <sup>th</sup> International Symposium on Halogenated Environmental Organic Pollutants and POPs(Berlin, Germany), September 6-10, 2004.
Follow-up survey of dioxins and related chemicals in the blood of Yusho patients in 2002	Takao Iida, Hironori Hirakawa, Tsuguhide Hori, Takahiko Matsueda, Kazuhiro Tobiishi, Reiko Nakagawa, Takashi Todaka * <sup>1</sup> and Masataka Furue * <sup>2</sup> *1 Japan Food Hygiene Association *2 Kyushu University	24 <sup>th</sup> International Symposium on Halogenated Environmental Organic Pollutants and POPs(Berlin, Germany), September 6-10, 2004.
Concentration and distribution of dioxins and related compounds in various human organs	Takao Iida, Takashi Todaka * <sup>1</sup> , Hironori Hirakawa, Tsuguhide Hori, Kazuhiro Tobiishi, Takahiko Matsueda, Shau Watanabe * <sup>2</sup> and Taketo Yamada * <sup>3</sup> *1 Japan Food Hygiene Association *2 Tokyo University of Agriculture *3 Keio University	24 <sup>th</sup> International Symposium on Halogenated Environmental Organic Pollutants and POPs(Berlin, Germany), September 6-10, 2004.
Inter-laboratory calibration study of dioxins in human blood samples	Takao Iida, Takashi Todaka *, Hironori Hirakawa, Tsuguhide Hori, Kazuhiro Tobiishi, Reiko Nakagawa and Takahiko Matsueda * Japan Food Hygiene Association	China-Japan Joint Symposium on Environmental Chemistry(Beijing,China) October 20-22, 2004.
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14年度全国集計結果報告及び油症患者データベース CD の配付について	片岡恭一郎、甲原隆矢、小野塚大介、高山浩樹	平成16年度厚生労働省全国油症治療研究班会議（福岡市），平成16年6月18日
福岡県の高死亡率地域と低死亡率地域における生活習慣等調査結果について	片岡恭一郎、小野塚大介、吉村健清	第18回公衆衛生情報研究協議会研究会（和光市），平成17年2月18日
公衆衛生医師の確保方策と公衆衛生の向上に向けてーよりよき公衆衛生医師の養成ー	吉村健清	第63回日本公衆衛生学会総会（松江市），平成16年10月28日
最近話題の新興・再興感染症における衛生学・公衆衛生学者の果たす役割「県からの視点より」	吉村健清、小野塚大介、片岡恭一郎	第75回日本衛生学会（新潟市），平成17年3月29日
高活性炭素纖維を用いた環境大気浄化に関する研究（9）道路沿道における NO、NO <sub>2</sub> 浄化試験—ACF 種、採気流速、温湿度との関係—	新谷俊二、板垣成泰、下原孝章	第45回大気環境学会年会（秋田市），平成16年10月20-22日
廃棄物処分場における硫酸還元菌の検出培地の検討	濱崎光宏、堀川和美、世良暢之、高橋浩司、石黒靖尚、宇都宮彬	第56回水環境学会（千葉市），平成17年3月18日
eaeA 遺伝子を検出した大腸菌O20による食中毒事例	村上光一、長野英俊 <sup>1</sup> 、濱崎光宏、堀川和美、石黒靖尚、高田則子 <sup>2</sup> 、梅崎誠治 <sup>2</sup> *1 田川保健福祉環境事務所 *2 生活衛生課	第63回日本公衆衛生学会総会（松江市），平成16年10月29日
緑黄色野菜による8-OH-dG の抑制効果	世良暢之、福原 潔 <sup>1</sup> 、常盤 寛 <sup>2</sup> 、内海英雄 <sup>3</sup> 、佐々木茂貴 <sup>3</sup> 、中西洋一 <sup>3</sup> 、宮田直樹 <sup>4</sup> 、嵯峨井勝 <sup>5</sup> *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 *5 青森県立保健大学	日本環境変異原学会第33回大会及び日本動物実験代替法学会第18回大会（長崎市），平成16年12月1日

演題名	発表者	学会名(場所), 年月日
人体臓器中のダイオキシン類の分布	戸高 尊 <sup>*1</sup> , 平川博仙, 堀 就英, 飛石和大, 松枝隆彦, 渡辺 昌 <sup>*2</sup> , 山田健人 <sup>*3</sup> *1 日本食品衛生協会 *2 東京農業大学 *3 慶應義塾大学	第13回日本環境化学討論会(静岡市), 平成16年7月7日-9日
食品中のテトラブロモビスフェノール A(TBBPA) 分析法の検討	芦塚由紀, 中川礼子, 堀 就英, 飛石和大, 飯田 隆雄	第41回全国衛生化学技術協議会年会(甲府市), 平成16年11月18日-19日
食品における臭素系難燃剤の分析	芦塚由紀, 中川礼子, 堀 就英, 飛石和大, 飯田 隆雄	環境ホルモン学会第7回研究発表会(名古屋市), 平成16年12月14日-15日
Follow-up survey of dioxins concentration in the blood of Yusho patients in 2002-2003	戸高 尊 <sup>*1</sup> , 平川博仙, 堀 就英, 飛石和大, 飯田隆雄, 古江増隆 <sup>*2</sup> *1 日本食品衛生協会 *2 九州大学	環境ホルモン学会第7回研究発表会(名古屋市), 平成16年12月14日-15日
The levels of PCDDs, PCDFs, Non-ortho PCBs and Mono-ortho PCBs in the blood of pregnant women	平川博仙, 戸高 尊 <sup>*1</sup> , 堀 就英, 飛石和大, 飯田隆雄, 岸 玲子 <sup>*2</sup> , 佐田文宏 <sup>*2</sup> , 西条泰明 <sup>*2</sup> , 加藤静恵 <sup>*2</sup> , 中島そのみ <sup>*2</sup> , 佐々木成子 <sup>*2</sup> , 鵜野 安希子 <sup>*2</sup> , 近藤朋子 <sup>*2</sup> , 森ゆうこ <sup>*2</sup> *1 日本食品衛生協会 *2 北海道大学	環境ホルモン学会第7回研究発表会(名古屋市), 平成16年12月14日-15日
食品における臭素化ジフェニルエーテル及び臭素化ダイオキシン分析	中川礼子, 芦塚由紀, 堀 就英, 飛石和大, 飯田 隆雄	日本食品衛生学会第88回学術講演会(広島市), 平成16年11月11-12日
高活性炭素纖維を導入した通気性遮音壁の窒素酸化物除去効果について—数値モデルによる検討—	東海林孝幸*, 北田敏廣*, 下原孝章 * 豊橋技術科学大学	土木学会第12回地球環境シンポジウム(名古屋市), 平成16年8月2日-3日
高活性炭素纖維を用いた環境大気浄化に関する研究(8) —還元剤担持法による NO 済化技術—	下原孝章, 力 寿雄, 板垣成泰, 新谷俊二	第45回大気環境学会年会(秋田市), 平成16年10月20日-22日
高活性炭素纖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(新宿区), 平成16年6月28日

演題名	発表者	学会名(場所), 年月日
高活性炭素繊維を用いた環境大気浄化に関する研究（10）－地下駐車場におけるNO <sub>x</sub> 浄化のための実証化予備試験－	板垣成泰, 力寿雄, 新谷俊二, 下原孝章, 高橋洋子	第45回大気環境学会年会(秋田市), 平成16年10月20日-22日
有明海に流入する筑後川及び矢部川の降雨時負荷量調査	田中義人, 熊谷博史, 松尾宏, 中村又善, 玉井洋子, 上田修, 野中正浩* * 環境保全課	第39回日本水環境学会(千葉市), 平成17年3月17日-19日
地下水へのリン酸イオンの高濃度溶出に関する研究	石橋融子, 松尾宏, 中村又善, 平田美由紀* * 九州大学	第39回日本水環境学会(千葉市), 平成17年3月17日-19日
博多湾におけるマクロベントスを考慮した水質解析	熊谷博史, 山崎惟義 <sup>*1</sup> , 渡辺亮一 <sup>*1</sup> , 藤田健一 <sup>*2</sup> *1 福岡大学 *2 九州環境管理協会	第41回環境工学研究フォーラム(宮崎市), 平成17年11月25日-26日
埋立廃棄物の理化学的性状と微生物叢との関係	高橋浩司, 堀川和美, 世良暢之, 濱崎光宏, 石黒靖尚, 土田大輔, 鳥羽峰樹, 永瀬誠, 宇都宮彬	第15回廃棄物学会研究発表会(高松市), 平成16年11月18日
焼却灰を原料に用いたレンガの製造時における含有成分の挙動	高橋浩司, 土田大輔, 鳥羽峰樹, 永瀬誠, 宇都宮彬, 小松夢子 <sup>*1</sup> , 中野辰博 <sup>*2</sup> , 田中浩 <sup>*2</sup> *1 福岡県工業技術センター *2 荒木窯業	第15回廃棄物学会研究発表会(高松市), 平成16年11月18日
安定型産業廃棄物処分場の水量調査	高橋浩司, 土田大輔, 鳥羽峰樹, 永瀬誠, 宇都宮彬	全国環境研協議会企画部会 廃棄物小委員会廃棄物研究発表会(千代田区), 平成17年1月25日
ヒメドロムシ科に見られる短翅型とその生息環境	緒方健, 中島淳* * 九州大学	日本陸水学会第69回大会(新潟市), 平成16年9月18-20日
福岡県下の河川源流部の大型底生動物相－酸性雨森林生態系影響調査より－	緒方健, 山崎正敏	第20回全国環境研究所交流シンポジウム(つくば市), 平成17年2月16日
市民参加による湿原モニタリング調査－平尾台広谷湿原の事例－	須田隆一	第7回自然系調査研究機関連絡会議(富士吉田市), 平成16年11月29日
計 (国内学会(全国))	27件	

③国内学会（地方）

演題名	発表者	学会名（場所）、年月日
油症検診受診者データベースの構築について	片岡恭一郎、甲原隆矢、高山浩樹、小野塚大介、飯田隆雄、吉村健清、上ノ土武、古江増隆	第30回九州衛生環境技術協議会（熊本市）、平成16年10月7日
EAST1産生大腸菌を原因とする食中毒事例	濱崎光宏、村上光一、堀川和美、長野英俊*、石黒靖尚 * 田川保健福祉環境事務所	九州衛生環境技術協議会（熊本市）、平成16年10月7日
海面埋立て処分場土壤及び浸出水中の硫酸還元菌	堀川和美、濱崎光宏、高橋浩司、世良暢之、石黒靖尚、宇都宮彬、谷口初美* * 産業医科大学医学部	第57回日本細菌学会九州支部総会（福岡市）、平成16年9月3日
eaeA 遺伝子を検出した大腸菌 O20による食中毒事例	村上光一、長野英俊* <sup>1</sup> 、濱崎光宏、堀川和美、石黒靖尚、高田則子* <sup>2</sup> 、梅崎誠治* <sup>2</sup> *1 田川保健福祉環境事務所 *2 生活衛生課	第51回福岡県公衆衛生学会（福岡市）、平成16年5月19日
甲状腺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	第30回九州衛生環境技術協議会（熊本市）、平成16年10月7日
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ンナトリウムのHPLC分析法	森田邦正、毛利隆美、中川礼子	第30回九州衛生環境技術協議会（熊本市）、平成16年10月7日
カゲロウの分布状況から見た福岡県下の河川	緒方 健、山崎正敏	第30回九州衛生環境技術協議会（熊本市）、平成16年10月7-8日
北九州市における絶滅危惧種ガシャモクの生育状況と生育環境	真鍋 徹* <sup>1</sup> 、須田隆一、大野睦子* <sup>2</sup> 、笛尾敦子 *1 北九州市立自然史・歴史博物館 *2 水草研究会	日本生態学会九州地区第49回大会（福岡市）、平成16年5月15日
絶滅危惧植物ガシャモクの生育状況と生育環境	須田隆一、真鍋 徹* <sup>1</sup> 、大野睦子* <sup>2</sup> 、笛尾敦子 *1 北九州市立自然史・歴史博物館 *2 水草研究会	第11回アクア研究センター研究発表会（北九州市）、平成16年8月27日
計（国内学会（地方））	9 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16年度厚生労働科学研究費補助金 食品の安全性高度化推進研究事業	(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（総括）	吉村健清, 金子聰*, 高山浩樹, 片岡恭一郎, 小野塚大介 * 国立がんセンター	平成17年3月
平成16年度厚生労働科学研究費補助金 食品の安全性高度化推進研究事業	(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－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, 小野塚大介, 高尾佳子, 高山浩樹	平成17年3月
環境省委託業務	平成16年度化学物質環境実態調査 (初期環境調査) 報告書	北直子, 安武大輔, 飛石和大, 大野健治, 松枝隆彦, 桜木建治, 柳川正男, 岩本眞二, 井上尊行*, 下濱正承* * 環境保全課	平成17年3月
	平成16年度化学物質環境実態調査 (暴露量調査) 報告書	北直子, 安武大輔, 飛石和大, 大野健治, 松枝隆彦, 桜木建治, 井上尊行*, 下濱正承* * 環境保全課	平成17年3月
	平成16年度化学物質環境実態調査 (モニタリング調査) 報告書	北直子, 安武大輔, 飛石和大, 大野健治, 松枝隆彦, 桜木建治, 井上尊行*, 下濱正承* * 環境保全課	平成17年3月
厚生労働科学研究補助金がん予防等健康科学総合研究事業	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> の疫学と病原性発現に関する研究 報告書	遠藤卓郎* (主任研究者) 村上光一他 * 国立感染症研究所	平成16年4月
平成15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（廃棄物処分場等の土壤の理化学試験）	谷口初美* (代表研究者) 高橋浩司, 土田大輔, 鳥羽峰樹, 永瀬誠, 宇都宮彬, 石黒靖尚, 堀川和美, 世良暢之, 濱崎光宏 * 産業医科大学	平成16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（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, 石黒靖尚, 宇都宮彬 * 産業医科大学	平成16年5月

委託事業名	報告書名	執筆者	発行年月
平成15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(メタン生成菌の培養)	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, 千々和勝己, 石黒靖 尚, 永瀬 誠, 宇都宮彬 * 産業医科大学	平成16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, 世良暢之, 高橋浩司, 石黒靖尚, 宇都宮彬 * 産業医科大学	平成16年5月
平成16年度厚生科学研究費補 助金 食品の安全性高度化推 進研究事業	(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, 野田多美枝, 石黒靖尚他 * 岡山大学	平成17年3月
平成14-16年度厚生科学研究 費補助金 食品の安全性高度 化推進研究事業	(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, 野田多美枝, 竹中重幸, 石黒靖 尚他 * 岡山大学	平成17年3月
平成16年度福岡県リサイクル 総合研究センター研究会	「環境に優しい紙おむつ開発研究」 報告書	石橋哲也, 江藤良樹, 世良暢之, 千々和勝己, 村上光一, 野田多 美枝, 濱崎光宏, 竹中重幸, 堀 川和美, 石黒靖尚	平成17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	(平成15年度総括・分担研究報告書) 食品中臭素化ダイオキシン及びその 関連化合物質の汚染実態の解明に關 する研究	中川礼子, 芦塚由紀, 堀 就英, 飛石和大, 飯田隆雄	平成16年3月
	(平成13-15年度総合研究報告書) 食品中臭素化ダイオキシン及びその 関連化合物質の汚染実態の解明に關 する研究	中川礼子, 芦塚由紀, 堀 就英, 飛石和大, 飯田隆雄	平成16年3月
	(研究報告書) ダイオキシンの汚染実態把握及び摸 取低減化に関する研究	佐々木久美子*, 米谷民雄*, 飯 田隆雄, 堤 智昭*, 天倉吉章* * 国立医薬品食品衛生研究所	平成16年12月

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 食品安全確保研究事業	(平成13-15年度総合研究報告書) 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	豊田正武*, 佐々木久美子*, 米谷民雄*, 堀 智昭*, 天倉吉章*, 飯田隆雄 * 国立医薬品食品衛生研究所	平成17年1月
	(熱媒体に関する研究・分担研究報告書) 油症患者血中 PCB 等追跡調査における分析法の改良およびその評価に関する研究	飯田隆雄, 中川礼子, 芦塚由紀, 堀 就英, 片岡恭一郎	平成16年5月
平成16年度厚生労働科学研究費補助金 食品の安全性高度化推進研究事業	(熱媒体の人体影響とその治療法に関する研究 平成16年度総括・分担研究報告書) 油症患者および健常人体内の PCDF 類実態調査	飯田隆雄, 中川礼子, 片岡恭一郎, 松枝隆彦, 平川博仙, 堀就英, 飛石和大, 芦塚由紀, 小野塚大介, 戸高 尊* * 日本食品衛生協会	平成17年3月
	(熱媒体の人体影響とその治療法に関する研究 平成16年度総括・分担研究報告書) ゲル浸透クロマトグラフィー(GPC) 及び高分解能ガスクロマトグラフィー / 高 分 解 能 質 量 分 析 法 (HRGC/HRMS) による油症患者の血中 PCB 同族体分離分析	飯田隆雄, 中川礼子, 片岡恭一郎, 松枝隆彦, 平川博仙, 堀就英, 飛石和大, 芦塚由紀, 小野塚大介, 戸高 尊* * 日本食品衛生協会	平成17年3月
平成16年度厚生労働科学研究費補助金 健康安全確保総合研究 化学物質リスク研究事業	(前向きコホート研究による先天異常モニタリング、特に尿道下裂、停留精巣のリスク要因と内分泌かく乱物質に対する感受性の解明 分担研究報告書) 妊娠(200人)の血中 PCDDs, PCDFs, ノンオルゾ Co-PCBs およびモノオルゾ Co-PCBs 濃度(2003-2004年)	飯田隆雄, 中川礼子, 松枝隆彦, 平川博仙, 堀 就英, 飛石和大, 芦塚由紀, 戸高 尊* * 日本食品衛生協会	平成17年3月
	(内分泌かく乱物質・ダイオキシン類の小児、成人の汚染実態及び暴露に関する調査研究 平成14年-16年 総合分担研究報告書)	山田健人 <sup>*1</sup> , 飯田隆雄, 戸高 尊 <sup>*2</sup> , 平川博仙, 中川礼子, 松枝隆彦, 堀 就英, 飛石和大 *1 慶應義塾大学 *2 日本食品衛生協会	平成17年3月

委託事業名	報告書名	執筆者	発行年月
平成16年度厚生労働科学研究費補助金 健康安全確保総合研究 化学物質リスク研究事業	(内分泌かく乱物質・ダイオキシン類の小児、成人の汚染実態及び暴露に関する調査研究 平成16年度分担研究報告書) ヒト剖検試料中のダイオキシン類( PCDD/DFs, Non-ortho-PCBs, Mono-ortho-PCBs) 調査	飯田隆雄, 戸高 尊*, 平川博仙, 中川礼子, 松枝隆彦, 堀 就英, 飛石和大 * 日本食品衛生協会	平成17年3月
平成16年度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16年度）	毛利隆美, 森田邦正, 中川礼子, 飯田隆雄	平成17年3月
2002年~2003年日韓海峡沿岸県市道環境技術交流事業	日韓都市間大気汚染度比較評価報告書	日韓海峡沿岸県市道環境技術交流会議（大石興弘）	平成16年12月
2002年~2003年日韓海峡沿岸県市道環境技術交流事業	九州北部3県及び山口県における浮遊粒子状物質成分調査報告書	日韓海峡沿岸県市道環境技術交流会議（大石興弘）	平成16年12月
平成15年度環境放射能水準事業	第46回環境放射能調査研究成果論文抄録集（平成15年度）	文部科学省（田上四郎, 櫻井利彦, 岩本眞二）	平成16年12月
2003年度公害健康被害補償予防協会	高活性炭素纖維を用いた沿道排ガス削減技術に関する調査報告書	福岡県（下原孝章）	平成16年3月
平成16年度厚生労働科学研究費補助金 健康科学総合研究事業	全国規模の疫学研究によるシックハウスの実態と原因の解明 北九州におけるシックハウス症候群の実態調査	力 寿雄, 岩本眞二, 吉村健清	平成16年3月
平成16年度厚生労働科学研究費補助金 厚生労働科学特別研究事業	室内空気質の健康影響に係る医学的知見の整理 シックハウス症候群の自覚症状と要因について	力 寿雄, 岩本眞二, 吉村健清	平成16年3月
有明海流域汚濁負荷対策調査	有明海流域における汚濁負荷量把握調査報告書	田中義人, 熊谷博史, 松尾 宏, 中村又善	平成17年2月
有明海流域汚濁負荷対策調査	有明海流域負荷量対策調査：降雨時調査報告書	田中義人, 熊谷博史, 松尾宏, 中村又善	平成17年3月
生活排水対策事業	彦山川流域生活排水対策推進計画	石橋融子, 楠崎幸範, 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
瀬戸内海環境情報基本調査	平成15年度環境省委託業務結果報告書 瀬戸内海環境情報基本調査－大阪湾・広島湾・伊予灘・響灘－(資料編)	熊谷博史, 永淵義孝, 中村又善	平成16年3月
平成16年度福岡県リサイクル総合研究センター研究会	「焼却灰ペレットの資源化研究」報告書	石橋融子, 楠崎幸範	平成17年3月
平成16年度福岡県リサイクル総合研究センター共同研究プロジェクト	「都市ゴミ焼却灰を活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, 黒川陽一, 鳥羽峰樹, 高橋浩司, 土田大輔	平成17年3月
平成16年度福岡県リサイクル総合研究センター研究会	「環境持続型の焼却残渣循環資源化研究」報告書	永瀬 誠, 黒川陽一, 鳥羽峰樹, 高橋浩司, 土田大輔	平成17年3月
平成16年度福岡県リサイクル総合研究センター研究会	「環境共生型下水汚泥処理・利用システムの構築に関する研究」報告書	永瀬 誠, 黒川陽一, 鳥羽峰樹, 高橋浩司, 土田大輔	平成17年3月
環境省委託業務	平成16年度環境省委託業務結果報告書 酸性雨モニタリング(土壤・植生)調査	須田隆一, 山崎正敏	平成17年3月
環境省委託業務	第6回自然環境保全基礎調査 生物多様性調査種の多様性調査(福岡県)報告書	須田隆一, 緒方 健, 中村朋史, 山崎正敏, 松尾 宏, 松井誠一 <sup>*1</sup> , 中島 淳 <sup>*1</sup> , 鬼倉徳雄 <sup>*1</sup> , 宇都宮靖士 <sup>*1</sup> , 木原直人 <sup>*2</sup> , 吉田 功 <sup>*2</sup> *1 九州大学 *2 日本野鳥の会筑後支部	平成17年3月
計(報告書一覧)	40 件		

### **3 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	レジオネラ宿主アメーバの公衆浴場等での分布と生態に関する研究	
研究者名（所属） ※印:研究代表者	○村上光一, 野田多美枝, 濱崎光宏, 堀川和美, 石黒靖尚 (病理細菌課), 遠藤卓郎 (国立感染症研究所)	
本庁関係部・課	生活衛生課	
調査研究期間	平成15年度 - 16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: 子どもや高齢者と生き生き暮らす健康社会づくり 中項目: 県民の健康的な暮らしづくりの推進 小項目: 疾病・予防対策の充実 (感染症対策の推進)	
福岡県環境総合基本計画 (P20, 21) ※環境関係のみ	柱: テーマ:	
キーワード	①アメーバ ②レジオネラ ③アメーバ対策 ④浴場 ⑤衛生管理	
研究の概要		
<b>1) 調査研究の目的及び必要性</b> 近年、公衆浴場（普通浴場、ヘルスセンター、スーパー銭湯およびサウナ風呂などの施設）における、レジオネラ感染症が問題となっている。レジオネラは、これら浴場の温湯の中で、アメーバ等を宿主として存在すると考えられている。このため、本研究は今まであまり報告の無い浴場のアメーバの分布や生態について明らかにし次いでアメーバを制御することを目的とする。本研究を推進することはレジオネラの制御にもつながり、必要性が高いと考えられる。		
<b>2) 調査研究の概要</b> 県内の公衆浴場のアメーバ汚染状況について把握するため、公衆浴場の試料を検査した。具体的には、浴場の設備の違い、水質の違い、管理方法の違い等を考慮して試料を採取し、培養法によりアメーバを検出した。検出したアメーバは遺伝子検査で種を同定した。設備、水質、あるいは管理方法でアメーバの汚染状況に相違があるか検討した。同時に試料のレジオネラ検査を実施し、アメーバとレジオネラとの関係について検討した。検討結果を基にアメーバの制御方法について模索するとともに、浴場のレジオネラ汚染対策方法についても模索した。		
<b>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）</b> 達成度: 90%以上 得られた成果: 県内38施設のアメーバ汚染状況、レジオネラ汚染状況が判明した。 これらの汚染が起こる設備あるいは運営上の問題点を把握した。		
<b>4) 県民の健康の保持又は環境の保全への貢献</b> アメーバ、レジオネラ汚染があった施設の内、3箇所について実際に現地に赴き、保健福祉環境事務所担当者とともに対策について考え、提案し、事業者に実行していただいた。これにより、当該事業者はもとより、保健福祉環境事務所担当者の見聞も広がり、間接的に県民の健康保持に役立ったと考えられる。 このほか、保健福祉環境事務所検査課職員への研修を通して、技術と知識を伝達し、これにより保健福祉環境事務所における浴場の衛生管理事業ひいては県民の健康保持に役立った。		
<b>5) 調査研究結果の独創性、新規性</b> アメーバの調査は報告数が少なく、新規性が高い。特にアメーバの同定にポリメラーゼ連鎖反応を用いた遺伝子診断を用いる技術は、最新のものである。		
<b>6) 成果の活用状況（技術移転・活用の可能性）</b> 保健福祉環境事務所検査課職員の研修時に、アメーバの分離法、レジオネラの検出法について技術移転している。		

## 調査研究終了報告書

研究分野：ダイオキシン類、有機化学物質に関する研究

調査研究名	食品中のダイオキシン類及びその関連化合物に関する調査研究	
研究者名（所属） ※印:研究代表者	○飯田隆雄（保健科学部長）、堀就英、芦塚由紀、中川礼子、平川博仙（生活化学課）、飛石和大（計測技術課）、佐々木久美子（国立医薬品食品衛生研究所）	
本庁関係部・課	保健福祉部企画課、生活衛生課	
調査研究期間	平成14年度～16年度（3年間）	
調査研究種目	1. <input type="checkbox"/> 行政研究 <input type="checkbox"/> 課題研究 <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究 (共同機関名: ) <input type="checkbox"/> 受託研究 (委託機関名: ) 2. <input type="checkbox"/> 基礎研究 <input checked="" type="checkbox"/> 応用研究 <input type="checkbox"/> 開発研究 3. <input type="checkbox"/> 重点研究 <input type="checkbox"/> 推奨研究 <input type="checkbox"/> ISO推進研究	
ふくおか新世紀計画 第2次実施計画	大項目：安全で安心して暮らせる生活の確保 中項目：平穏で安全な県民生活の確保 小項目：豊かで安心できる消費生活の確保	
福岡県環境総合基本計画 (P20,21) ※環境関係のみ	柱： テーマ：	
キーワード	①食品 ②ダイオキシン類 ③大量試料注入法 ④高速溶媒抽出法	

### 研究の概要

#### 1) 調査研究の目的及び必要性

食品中のダイオキシン類分析で要求される検出下限値は 0.01 ~ 1pg/g である。これらの検出下限を達成するためには、従前の測定機器の感度から勘案すると、一回の抽出に 100g 以上の試料が必要である。これは食品のダイオキシン分析が多くの労力と時間を必要とする所以であり、すなわち測定機器の高感度化は分析工程の迅速・効率化に最も効果的な手段といえる。また、食品中に見いだされるダイオキシン類は専ら環境媒体より低濃度であり、ほとんどの異性体が検出限界以下、実測されても検出限界付近であることがしばしばである。検出限界に近づくほど定量精度は悪化するため、検出感度の改善を図り測定値の精密性及び信頼性を向上するための検討が必要である。

#### 2) 調査研究の概要

高分解能 GC/MS におけるダイオキシン類測定の高感度化を目的として、「溶媒除去・大量試料注入法」(以下 SCLV) の適用性と最適条件を検討する。さらに、抽出操作の自動（機械）化・迅速化を目的とし、「高速溶媒抽出法」(以下 ASE) の適用性を検討する。これらを組み合わせ、食品中ダイオキシン類の第二世代の高感度迅速微量分析方法として確立する。確立した分析方法を用いて、食品中のダイオキシン類汚染度調査を実施する。

#### 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）

①食品中ダイオキシン類の高感度迅速分析方法の開発  
SCLV と長さ 40m の高極性 Rtx-2330 カラムを組み合わせて、最適な計測条件を検討したところ、従来の方法より優れたピーク分離と感度が得られ、検出感度は全異性体に亘り 5 ~ 10 倍向上した。そこで ASE の検討では試料採取量を 20g (従来比 5 分の 1) に設定し、SCLV と ASE による「改良法」と「従来法」とで実測値を比較する同等性試験 (バリデーション) を、植物性 (乾海苔) 及び動物性食品 (魚可食部) を用いて実施した。その結果、改良法で得られる実測値は従来法よりも全般に高い傾向を示した。このことは ASE における抽出効率の高さを反映したものと考えられた。本法におけるダイオキシン類の添加回収率を種々の食品試料で調べたところ、従来の溶媒振とう抽出法と同等以上であり、「食品中のダイオキシン類分析方法ガイドライン」に記載されている信頼性保証値 (40 ~ 120 %) の範囲内であった。以上の結果から本方法は食品中ダイオキシン類の分析法として適用可能であることが実証された。

②国内流通食品のダイオキシン類汚染度調査

国立医薬品食品衛生研究所と共同で国内流通食品のサンプリング調査を実施した。調査試料数は、平成 14 年度 209 (当研究所分析数 77)、平成 15 年度 170 (52) である。

#### 4) 県民の健康の保持又は環境の保全への貢献

食品中の有害物質を精密に計測してデータを蓄積すること、さらに迅速に分析するための方法を開発することは、県民の健康被害を未然に防ぐことに繋がり、食品の汚染問題が発生した場合の円滑で速やかな行政対応に寄与する。

#### 5) 調査研究結果の独創性、新規性

僅か 20 グラムの食品から高感度に食品中ダイオキシン類の検出を可能とした点に最大の新規性がある。迅速性が向上したほか、環境面・コスト面では抽出溶媒量の約 60 %削減を達成している。

#### 6) 成果の活用状況（技術移転・活用の可能性）

開発された方法は本研究所における食品中のダイオキシン類分析法として既に運用されている。国内外の分析機関等への技術移転が期待される。

## 調査研究終了報告書

研究分野：ダイオキシン類、有機化学物質に関する研究

調査研究名	食品中有害臭素化合物の汚染実態の解明に関する研究			
研究者名（所属） ※印:研究代表者	○中川礼子、芦塚由紀、堀就英、飛石和大、平川博仙、竹中重幸（生活化学課）、飯田隆雄（保健科学部長）			
本庁関係部・課	保健福祉部企画課、生活衛生課			
調査研究期間	平成14年度～16年度（3年間）			
調査研究種目	1. <input type="checkbox"/> 行政研究 <input type="checkbox"/> 課題研究 <input type="checkbox"/> 共同研究 (共同機関名: ) <input checked="" type="checkbox"/> 受託研究 (委託機関名: ) 2. <input checked="" type="checkbox"/> 基礎研究 <input type="checkbox"/> 応用研究 <input type="checkbox"/> 開発研究 3. <input type="checkbox"/> 重点研究 <input type="checkbox"/> 推奨研究 <input type="checkbox"/> ISO推進研究			
ふくおか新世紀計画 第2次実施計画	大項目：安全で安心して暮らせる生活の確保 中項目：平穏で安全な県民生活の確保 小項目：豊かで安心できる消費生活の確保			
福岡県環境総合基本計画 (P20,21) ※環境関係のみ	柱： テーマ：			
キーワード	①臭素化ダイオキシン ②臭素化ジフェニルエーテル ③食品 ④摂取量 ⑤評価			
研究の概要				
<b>1) 調査研究の目的及び必要性</b>				
プラスチックの難燃剤として添加される臭素系化合物については、その製造過程やそれらを含むプラスチックの焼却過程により臭素化ダイオキシンが生成すること明らかにされているが、臭素化ダイオキシン及びその臭素系難燃剤特に臭素化ジフェニルエーテルによる食品汚染に関して今までに得られているデータは少ない。そこで、これらの化学物質の高感度で高精度の微量分析法を確立し、汚染の実態を明らかにし、ヒトへの曝露量について評価することが食品の安全確保施策の上で急務となっている。				
<b>2) 調査研究の概要</b>				
本研究は、①微量分析法の確立、②本分析法を用いた実際の食品試料における臭素化ダイオキシン及び臭素化ジフェニルエーテルの汚染実態調査からなる。調査対象の食品試料は個別・模擬食事試料・陰膳食事試料などである。これらのデータを基にヒトへの曝露量を推定し、リスク評価を行い、食品の安全確保施策に資する。				
<b>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）</b>				
①食品における臭素化ダイオキシン(PBDD/Fs)及びその関連化合物である臭素化ジフェニルエーテル(PBDEs)の同時前処理による迅速かつ微量分析を確立し、学術誌に投稿した。 ②確立した方法により、生鮮魚介類及びその加工品を主とした個別食品35試料、及びマーケットバスケット(MB)食品群試料1～13群計16試料、また、6名のボランティアから集めた2～3日分の食事試料を分析した。前者の個別食品の分析結果からは、PBDD/Fs及びPBDEsによる環境汚染度が、後者のMB試料や食事試料の分析結果からは、ヒトの1日摂取量（曝露量）を推定することができた。 ③本研究の結果、個別食品の数例からのみ検出された臭素系ダイオキシンの濃度は平成14年度厚生労働科学研究で報告された生鮮魚介中塩素系ダイオキシンの平均濃度1.862pgTEQ/gに比べ1/60以下と低かった。 ④臭素化ジフェニルエーテルは、カワハギ以外の生鮮魚介に最高で1254pg/g、海草及び魚介加工食品は3.7～562 pg/g検出された。MB食品群試料は第6群（果実）以外のすべての試料に検出され、摂取量は114ng/日と推定された。一方、ボランティアの食事試料についてもすべてから検出されたが、最小毒性量LOAEL(1mg/kg体重/日)を超えたなかった。				
<b>4) 県民の健康の保持又は環境の保全への貢献</b>				
本研究の対象である臭素化物は、プラスチック製品の難燃性を高めるために添加されるもので、残留性・蓄積性が高いものがある。これらによる食品への汚染を防止するための、早い段階からの監視は、本物質による様々な環境汚染などの社会問題に即応することができ、行政上有益となる。				
<b>5) 調査研究結果の独創性、新規性</b>				
本研究は高分解能質量分析計を有し、ダイオキシンで高い技術が保証された当研究所で初めて可能となるテーマであり、臭素化物を分析対象にしている機関は地衛研、公害研、大学の中でも少なく、専門性の点で、全国レベルで優位に位置している。このことからも内容的に独創性・新奇性が高い。				
<b>6) 成果の活用状況（技術移転・活用の可能性）</b>				
現段階ではモニタリングが主であるため、分析技術が技術移転などの対象となる。				

## 調査研究終了報告書

研究分野 :

調査研究名	福岡県における主要死因分析（1973年から2002年の30年間のまとめ）	
研究者名（所属） ※印:研究代表者	○片岡恭一郎、小野塚大介、高尾佳子、高山浩樹（情報管理課）、 保健福祉部企画課情報統計係	
本庁関係部・課	保健福祉部企画課	
調査研究期間	平成15年度～16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：子どもや高齢者と生き生き暮らす健康社会づくり 中項目：県民の健康的な暮らしづくりの推進 小項目：自主的健康づくりの推進	
福岡県環境総合基本計画 (P20, 21) ※環境関係のみ	柱： テーマ：	
キーワード	①コンピュータシステム ②EBSMR ③死因 ④年齢調整死亡率	
<b>研究の概要</b>		
<b>1) 調査研究の目的及び必要性</b>	<p>昭和48年（1973）から平成14年（2002）までの30年間にわたる本県の人口動態（死亡）統計から死亡率を地理的（市区町村別）、時系列的に求め、地域差と年次変化を分析し、本県の死亡構造を明らかにする。</p> <p>本県においても21世紀は少子高齢化が急速に進む。そのような状況の中で、乳幼児や青壮年期の死亡を抑制し、また、高齢者がいきいきと豊かな生活を送れる社会環境の構築はこれからの保健福祉行政の根幹である。この死因分析研究は県内市区町村の乳幼児から高齢者までの死亡状況を評価するものであり、生活習慣病等の健康対策を推進する上で基礎的な資料を得るために必要不可欠な研究である。</p>	
<b>2) 調査研究の概要</b>	<p><b>【保健統計年報システムの再構築】</b> この研究の死亡データは本県の保健統計年報（人口動態統計）を作成する過程で得られる資料を基に把握してきた。現在その保健統計年報作成処理は汎用コンピュータシステムを用いて行われており、その出力形態は専用様式への印刷物としての提供のみである。ファイル出力等の最近の行政要望に対応するために、従来の処理システムから新たな言語での処理システムを構築する。</p> <p><b>【30年間における福岡県の主要死因分析】</b> 新システムに30年間の死亡データベースを構築し、30年間を1973-1977年、1978-1982年、1983-1987年、1988-1992、1993-1997年及び1998-2002年の6期に分類し、年齢調整と地域の人口規模を考慮したベイズ推定によるSMR指標を用いて死因分析を行い、本県の死因構造の変化と全体像を考察する。</p>	
<b>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）</b>	<p><b>【保健統計年報システムの再構築】</b> Windowsでシステムを構築した。データベースは、複数の者が同時にデータの参照を行えるようにSQLServerで構築した。データの参照および印刷には、ほとんどのコンピュータにインストールされているエクセルを利用した。作成可能となった人口動態統計表は総覧1種類、出生が4種類、死亡が8種類、死産・周産期が6種類、婚姻・離婚が4種類である。</p> <p><b>【30年間における福岡県の主要死因分析】</b> 福岡県における1973年から2002年までの30年間の死亡数は974,377人だった（男527,877人、女446,500人）。年平均32,479人（男17,596人、女14,883人）になる。</p> <p>年齢調整死亡率（間接法）の結果、死亡総数、悪性新生物や肺炎及び気管支炎は漸増傾向を示した、脳血管疾患、高血圧性疾患、全結核は減少傾向を示した。EBSMRによる地域評価の結果、悪性新生物総数が110以上の市町村が遠賀川流域と筑後川・有明沿岸地域に集積傾向があった。</p>	
<b>4) 県民の健康の保持又は環境の保全への貢献</b>	<p>保健統計年報は保健行政を推進していくための基礎資料として不可欠なものである。このデータベースを構築することにより、多角的に、正確に、迅速に福岡県の市町村別に詳細な統計表が作成可能になり、そのデータを分析することにより健康施策への提言につながり、政策に生かすことにより県民の健康の保持に貢献できる。</p>	
<b>5) 調査研究結果の独創性、新規性</b>	<p>SQLサーバー上でのデータベースの構築は広く行われているが、その応用として本県において初めて保健統計年報システムが構築された。そのデータを用いた死亡率に関する地域評価については従来のSMR指標に比べて、新たにEBSMR(Empirical bayes SMR)を採用した。この指標は1999年頃から丹後らを中心にBayes統計学を応用したSMRの計算手法である。年齢調整に加え、人口規模を調整できるところに特徴がある。</p>	
<b>6) 成果の活用状況（技術移転・活用の可能性）</b>	<p>保健統計年報システムは本県の保健統計年報作成に活用された。EBSMRは保健所職員の情報処理に活用できる。</p>	

## 調査研究終了報告書

研究分野：大気環境汚染とその対策に関する研究

調査研究名	揮発性有機化合物(VOC)汚染解析に対するパッシブサンプリング法の実証化研究	
研究者名（所属） ※印：研究代表者	○柳川正男、大石興弘、力寿雄、岩本真二（大気課）	
本庁関係部・課	環境保全課	
調査研究期間	平成14年度～16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 3. □重点研究 □推奨研究	
ふくおか新世紀計画 第2次実施計画	大項目：地球的視野に立った快適環境の保全と創造 中項目：快適な生活環境の保全 小項目：きれいな空気と静かな環境の保全	
福岡県環境総合基本計画 (P20,21) ※環境関係のみ	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揮発性有機化合物 ②パッシブサンプリング法 ③有害化学物質 ④室内空気汚染	
研究の概要		
<b>1) 調査研究の目的及び必要性</b>	<p>最近、PRTR の法制化等、化学物質の適正管理に向けた取り組みが進められている。また、揮発性有機化合物(VOC)等の有害大気汚染物質(HAPs)による発がん性等の低濃度長期間暴露の人体影響が懸念され、全国的なモニタリング調査が行われている。HAPs の重要成分である VOC については、県内に、ベンゼン、トリクロロエチレン、ジクロロメタン等の高濃度地域があり、それらの発生源周辺環境等における、できるだけ長期間の詳細な汚染状況の把握が求められている。更に、VOC については室内汚染等の問題も注目されている。そのため、本研究では、VOC に関して、一般生活環境、発生源周辺から室内汚染の問題まで、県内における汚染実態を総合的に明らかにし、同時に簡易な測定方法として、1か月間程度の長期間の捕集が可能なパッシブサンプリング法(PS 法)の実証化を推進することを目的とする。</p>	
<b>2) 調査研究の概要</b>	<p>県内の VOC 汚染問題について、発生源（工場）周辺から一般環境および居住室内まで広範囲の調査を行った。また、環境大気中の VOC による汚染実態を把握する手法として、長期間捕集用の PS 法等の実用化、実証化のための研究を行った。さらに、PS 法を用いて県内各地域の環境大気中の VOC による汚染実態調査等を行った。</p>	
<b>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）</b>	<p>大牟田市内及び久留米市内の発生源周辺環境、及び本県内の一般生活環境において、長期間（2週間～1か月間）捕集用の PS 法の実証試験及び、拡散シミュレーションソフトを用いた PS 法との比較検討等を行い、良好な結果が得られた。この PS を用いて、バックグラウンド地域を含む県内18地点において、約1か月間の長期間捕集を行い、15種類の VOC の汚染状況を明らかにした。また、室内環境については、築3年以内の新築住宅（全15戸）における室内汚染調査の結果のとりまとめを行い、室内 VOC による汚染の実態及び市販の PS 法の適用可能範囲等を明らかにした。</p>	
<b>4) 県民の健康の保持又は環境の保全への貢献</b>	<p>低濃度長期間の VOC による発がん性等の県民への健康リスクを低減し、環境保全対策の基礎資料を収集するための簡便な測定手法として PS 法を活用できる。</p>	
<b>5) 調査研究結果の独創性、新規性</b>	<p>この PS 法を使用して県内各地域の、一般環境における多数地点での長期間（約1ヶ月間）の VOC のスクリーニング的な測定調査を安価に実施することが可能である。また、本法は、VOC 発生源周辺環境においても、汚染の程度によるが、1～2週間程度の平均的な VOC の汚染状況を把握するための測定にも使用可能と考えられる。</p>	
<b>6) 成果の活用状況（技術移転・活用の可能性）</b>	<p>今回検討、開発した PS 法は特許ではないので、公定法に比べて安価（サンプラー1個約2,000円）に誰でも簡単に多数を、市販品を組み合わせて自作可能である。市販の屋外用シェルター（1個7,500円）を使用して、屋外での気温や湿度の変化、風雨等の気象条件のもとで約1か月間の長期間の VOC サンプリングが可能である。また、このサンプラーは使い捨てではなく、一部の材料（フィルター部分）を除き全て再利用可能であり、環境にも優しい特長がある。今後簡便な VOC 捕集法として各種 VOC のスクリーニング調査への活用が期待できる。</p>	

## 調査研究終了報告書

研究分野：大気環境汚染とその対策に関する研究

調査研究名	浮遊粒子状物質（SPM）による大気汚染について －自動車排出ガスの影響を中心にして－	
研究者名（所属） ※ 印: 研究代表者	○板垣成泰, 大石興弘, 岩本眞二（大気課）	
本庁関係部・課	環境保全課	
調査研究期間	平成14年度～16年度（3年間）	
調査研究種目	1. ■行政研究 <input type="checkbox"/> 課題研究 <input type="checkbox"/> 共同研究 (共同機関名: ) <input type="checkbox"/> 受託研究 (委託機関名: ) 2. □基礎研究 <input type="checkbox"/> 応用研究 <input type="checkbox"/> 開発研究 3. □重点研究 <input type="checkbox"/> 推奨研究 <input type="checkbox"/> ISO推進研究	
ふくおか新世紀計画 第2次実施計画	大項目：地球的視野に立った快適環境の保全と創造 中項目：快適な生活環境の保全 小項目：きれいな空気と静かな環境の保全	
福岡県環境総合基本計画 (P20,21) ※環境関係のみ	柱：生活環境の保全 テーマ：きれいな空気の確保	
キーワード	①自動車排出ガス ②浮遊粒子状物質 ③二酸化窒素 ④Caline4 ⑤CMB	

### 研究の概要

#### 1) 調査研究の目的及び必要性

近年ディーゼル車排出ガスを原因としたSPMによる汚染が問題となっているが、福岡県において二酸化窒素（NO<sub>x</sub>）及びSPMの環境基準適合率はなかなか改善されていない。これまで自動車排出ガスに関する調査は行われているが、汚染物質濃度は気象等に強く影響されるため、大気汚染状況と自動車走行の関係は十分には把握されていない。特にSPMの発生源は自動車排ガス以外に土壤の巻上げ、海塩粒子の移流、及び二次生成粒子など多様であることから解析が困難であった。そこで本研究では、福岡県内での自動車交通量の分布を検討してこの中から自動車排気ガスの影響を受けやすい道路近傍地域を抽出し、気象条件が変化する中で自動車排出ガスの影響を明らかにすることを目的とした。

#### 2) 調査研究の概要

まず、福岡県全体の交通量の状態を把握するため、交通センサ等のデータを整理し、多々良浄水場の他数地点を抽出した。SPMに関して、ハボリュームエアサンプラーを用いて道路近傍のSPMを採取し、SPM中の炭素成分、金属成分、および水溶性成分を測定して成分組成を求め、CMB法(CMB8:Caltrans, USA)によって自動車排気ガスの寄与を求めた。また、ガス状汚染物質であるNO<sub>x</sub>に関して、大気汚染測定車（さわやか号）により1時間毎の汚染物質濃度を測定し、NO<sub>x</sub>拡散シミュレーションソフト(Caline4:EPA)による計算値と比較することで、高濃度イベントが起こる条件の把握及び予測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

(1)Caline4による解析の結果、NO<sub>x</sub>高濃度時において、1時間毎の濃度推移を予測することができた。また、NO<sub>x</sub>の距離減衰を予測することで、道路周辺のNO<sub>x</sub>濃度分布を把握することができた。(2)CMB8による解析の結果、ディーゼル車の寄与を数量化することができた。具体的には、多々良浄水場において、SPMが60ug/m<sup>3</sup>と高濃度であった日のディーゼル車の寄与は23ug/m<sup>3</sup>(44%)であった。これは後背地の12ug/m<sup>3</sup>と比べるとおよそ2倍にあたり、道路近傍におけるディーゼル車からの直接の影響が示唆された。また、多々良浄水場における土壤からの寄与は、28ug/m<sup>3</sup>(47%)と後背地のそれよりも9ug/m<sup>3</sup>高く、自動車走行による土壤の巻き上げの影響が示唆された。

#### 4) 県民の健康の保持又は環境の保全への貢献

当該地域での自動車の走行と汚染物質の因果関係を明らかにすることによって、上記手法を用いて他の交通量の多い道路においても調査及び対策の対象とすることができる。また、行政のより迅速な対応に有効であると考えられる。

#### 5) 調査研究結果の独創性、新規性

これまでディーゼル車の影響について、ディーゼル車から主に排出される粒子である元素状炭素（EC）のみの濃度で評価を行っていた。今回、適切な計算ファクターを選定することで、ディーゼル車の影響を数量化（濃度及び%）することが可能になった。また、気象条件を加味した当該地域での1時間毎のNO<sub>x</sub>濃度の予測、及び道路周辺におけるNO<sub>x</sub>濃度分布の把握が可能になった。

#### 6) 成果の活用状況（技術移転・活用の可能性）

活用の可能性に関して、上記4の内容の他、今回の計算手法を用いることで、自動車排出ガス削減目標のための自動車削減台数の設定に利用できると考えられる。

技術移転に関して、ソフ、ファクター、及びその他必要データを当研究所が提供を行うことで、他の出先機関でも計算が可能になる。

## 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	低周波音を制御する防音壁の開発				
研究者名（所属） ※印:研究代表者	○松本源生（情報管理課） 藤原恭司（九州大学芸術工学研究員）				
本庁関係部・課	環境保全課				
調査研究期間	平成14度～16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：循環に配慮した生活環境の保全 中項目：公害防止対策の推進 小項目：自動車交通公害対策の推進				
福岡県環境総合基本計画 (P20,21) ※環境関係のみ	柱：生活環境の保全 テーマ：静かな居住環境の確保				
キーワード	①低周波音 ②可聴・非可聴音 ③防音壁 ④数値計算 ⑤模型実験				
研究の概要					
<b>1) 調査研究の目的及び必要性</b>	<p>騒音の制御には、音源側、伝搬経路上、さらに受音側での対策がある。自動車騒音に対しては、これら3つの場所での騒音低減技術が開発され、有効な手段として定着している。しかし、周波数80Hz以下の低周波音に関しては、音源側での制御技術しか確立されておらず対策が不十分であり、ここ数年苦情件数が増加している。そこで、本研究では低周波音対策への寄与を目指し、伝搬経路上で有効に機能する防音壁の開発を行う。</p>				
<b>2) 調査研究の概要</b>	<p>共鳴器の頸部の位置や空洞部の形状の工夫、更には防音壁スロープ面の有効な活用方法を考案し、広帯域に及び大きな遮音効果を有する防音壁の設計・開発を行う。研究の実施方法は以下の通りである。</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>①共鳴器を配列構造とするなど効果がある配置や形状について、音響理論に基づいて2次元音場を想定した数値シミュレーションを行う。そこで、小サイズでしかも遮音効果が大きい防音壁形状を設計する。</li> <li>②上記?により得られた防音壁形状に関して遮音効果を確認するため、1/10サイズの縮尺模型を作成し、無響室にて3次元音場での遮音量の測定を行う。</li> </ul> <p>防音壁を構成するコンクリートに関して、厚みが薄くしかも低周波音を透過しない成分・厚さを検討する。</p>				
<b>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）</b>	<p>模型実験の段階には達成できなかった。しかしながら、数値シミュレーションを活用することにより2/3オクターブバンドの広い帯域において5-9dB減音することが可能である防音壁形状を得ることができた。</p>				
<b>4) 県民の健康の保持又は環境の保全への貢献</b>	<p>低周波音は心理的・生理的な影響、例えば睡眠障害や頭痛などが生じる。本研究成果で得られた防音壁を活用すれば、このような心理的・生理的な影響が低減され県民の健康の保持が可能となる。</p>				
<b>5) 調査研究結果の独創性、新規性</b>	<p>本研究は、特許出願(特願2002-058294)を行った保有技術を活用する。これは、防音壁の壁面を緩やかなスロープとし壁面を音響的にソフトとすることにより、低周波音に対しても有効な遮音効果を持つ防音壁を開発する技術であり九州大学と共同開発した。音響的にソフトな表面を実現するため、ヘルムホルツ共鳴器の集合体を防音壁の壁面に配置し、低周波音を伝搬経路上で大きく低減することを可能とした先端的技術である。</p>				
<b>6) 成果の活用状況（技術移転・活用の可能性）</b>	<p>成果物は原材料費だけでも高価(16万円/m)であり、コスト対効果を考慮すると実用化は難しい。しかしながら、コンクリート製品に関する高精度な加工技術を有する福岡県内のコンクリート加工企業の協力があれば、将来的にはコストを抑制した実用化が可能と判断している。これら企業からは、研究費が調達できれば協力を得る確約を取り付けていたが、当研究において必要な研究費が調達できなかつたため実用化は実現しなかった。</p>				