

B 調 查 研 究

I 論 文

酵素を用いたカキからのノロウイルス濃縮法の検討

Recovery of *Norovirus* from oysters utilizing enzymatic digestion

高橋 由理 阿部 美和 植木 洋
佐藤 由紀 菅原 優子 沖村 容子
野田 衛*1 真砂 佳史*2 大村 達夫*2

Yuri TAKAHASHI, Miwa ABE, Yo UEKI
Yuki SATO, Yuko SUGAWARA, Yoko OKIMURA
Mamoru NODA, Yoshifumi MASAGO, Tatsuo OMURA

カキを対象としたノロウイルス (NoV) 検査では、カキ中腸腺やその周辺に付着しているグリコーゲンや脂肪などが、ウイルス濃縮や RNA 抽出を阻害すると報告されており、遺伝子の定量結果が過小評価されることがある。そこで、我々は高感度な NoV 検出法の開発を目的として、ウイルス濃縮行程において α -アミラーゼ (AM), リパーゼ (LP), パンクレリパーゼ (PL) を用いた酵素による消化及び乳剤調製用緩衝液の pH の違いによる NoV 遺伝子検出効果の比較検討を行った。その結果、AM によるカキ中腸腺の酵素処理と、従来のポリエチレングリコール (PEG) 濃縮法を組み合わせた系が他の系と比較し NoV 遺伝子の検出率、検出値 (実測値) 共に良好な結果が認められた。一方、LP 及び PL 処理群の検出率は酵素処理を行わなかった系よりも低かった。

キーワード：ノロウイルス； α -アミラーゼ；リパーゼ；パンクレリパーゼ；カキ

Key words: Norovirus; α -amylase; Lipase; Pancrelipase; oyster

1 はじめに

2009 年度生食用カキが原因と推定される食中毒が、宮城県をはじめ全国的に増加した。当センターでは、2003 年 11 月に定量 PCR によるノロウイルス (NoV) 遺伝子検出が公定法に追加されて以来、同法で市販生食用カキを対象に NoV 遺伝子検出検査を行っている。

公定法である定量 PCR 法では実測値 10 コピーを超える、すなわちカキ 1 個あたりのウイルス量が 214 個以上存在する場合を陽性と判定する。また NoV は、10~100 個程度でヒトに対して感染が成立することが報告されている。これらのことから、定量 PCR 検査において陰性とされたカキであっても、健康被害を起こす可能性が危惧される²⁾。NoV 遺伝子の検出感度を向上させることは、カキを原因とする食中毒のリスクを低減させる上で重要である。

カキを対象とした NoV 検査では、カキ中腸腺に含まれるグリコーゲン及び脂肪などが、ウイルス濃縮や RNA 抽出を阻害すると報告されている。野田ら³⁾は α -アミラーゼ (AM) を用いてカキからのウイルス濃縮を行い、従来法よりも濃縮効果が高かったことを報告している。一方、奥村ら⁴⁾はリパーゼ (LP) に着目し、LP を用いた濃縮がその他の酵素よりも効果があったことを確認している。今回、我々は高感度な NoV 検出法の開発を目的として、ウイルス濃縮行程において、AM と LP さらにパンクレリパーゼ (PL) も加えて、カキ中腸腺からのウイルス濃縮を検討したので報告する。

2 対象および検査方法

2.1 対象

他県産冷凍カキ 69 個 (ロット 1: 35 個, ロット 2: 34 個) 及び県内産加熱用カキ 40 個を使用した。

2.2 試薬

2.2.1 酵素の違いによる比較

糖質を分解する AM (枯草菌由来, 20units/mg 以上, 和光純薬), 脂質を分解する LP (ブタ膵臓由来, 25.9USP units/mg, 和光純薬) 及び糖質, たん白質, 脂質を分解する PL (ブタ膵臓由来, 和光純薬) を用いた。PL はアミラーゼ, リパーゼ, プロテアーゼを含有する酵素であり, 各々の酵素活性はアミラーゼ: 100units/mg, リパーゼ: 24units/mg, プロテアーゼ: 100units/mg である。

2.2.2 乳剤調製用緩衝液の pH の違いによる比較

AM の至適 pH7.45 リン酸緩衝液, LP と PL の至適 pH9.0 グリシン緩衝液を作製し, それぞれの緩衝液と供試酵素を加え比較検討した。

2.3 操作

カキは 1 個体ずつ無菌的にハサミで中腸腺を摘出し, 中腸腺 2 個を 1 検体とした。検体重量の 9 倍量の緩衝液を加え, ストマッキングにより 10% 乳剤を作製した。AM は 2.5mg/ml, LP と PL は 10mg/ml となるように酵素を添加した。37°C, 1 時間消化後, 8,000×g, 20 分遠心した上清を分取し, ポリエチレングリコール (PEG) と NaCl をそれぞれ最終濃度 0.12g/ml, 0.058g/ml となるように加え完全に溶解させた。次に, 8,000×g, 30

*1 国立医薬品食品衛生研究所

*2 東北大学大学院工学研究科

分遠心分離後、沈渣を 400µl の 0.5% Zwittergent で再浮遊させ RNA 抽出材料とした。遺伝子検査は、公定法に従い定量 PCR 法により行った。すなわち、1 検体に付き G1 群 2 穴、G2 群 2 穴を用いて定量を行った。

3 結果および考察

3.1 他県産冷凍カキ

表 1-1 に他県産冷凍カキの NoV 遺伝子検出結果を、表 1-2 にカキ中腸腺 1g あたりの NoV 遺伝子数を示した。乳剤調製用緩衝液は、pH9.0 グリシン緩衝液及び AM 処理においてのみ pH7.45 リン酸緩衝液を使用した。網掛けは、2 穴共に遺伝子が検出されたことを示す。

AM 処理では、ロット 1 及び 2 において 13 件中 NoV 遺伝子 G1 群が 5 件(38%)、G2 群が 5 件(38%)検出された。

緩衝液の pH の違いによる比較では、pH9.0 グリシン緩衝液で 8 件中 G1 群が 3 件(38%)、G2 群が 2 件(25%)、pH7.45 リン酸緩衝液 5 件中 G1 群が 2 件(40%)、G2 群が 3 件(60%) 検出された。また、pH7.45 においては 2 穴共に遺伝子が検出された検体が 2 件あった。

酵素非処理、LP 処理、PL 処理では NoV 遺伝子が検出されなかった。

表 1-1 NoV 遺伝子検出結果 (実測値)

ロット	検体番号	pH	酵素処理なし (copies/µl)		AM処理 (copies/µl)		LP処理 (copies/µl)		PL処理 (copies/µl)	
			G1	G2	G1	G2	G1	G2	G1	G2
			1	1	-	-	-	-	-	-
1	2	9.0	-	-	0.52	1.5	-	-	-	-
	3		-	-	-	-	-	-	-	-
	4		-	-	0.53	-	-	-	-	-
	5		-	-	-	-	-	-	-	-
	6	7.45			0.58	1.1				
	7				-	0.24				
	2	1	9.0	-	-	-	-	-	-	-
2		-		-	-	-	-	-	-	
3		-		-	0.43	1.2	-	-	-	-
4		-		-	-	-	-	-	-	-
5		7.45			-	0.36				
6					0.46	-				

表 1-2 中腸腺 1g あたりの NoV 遺伝子数

ロット	検体番号	pH	酵素処理なし (copies/g)		AM処理 (copies/g)		LP処理 (copies/g)		PL処理 (copies/g)	
			G1	G2	G1	G2	G1	G2	G1	G2
			1	1	-	-	-	-	-	-
1	2	9.0	-	-	63	183	-	-	-	-
	3		-	-	-	-	-	-	-	-
	4		-	-	68	-	-	-	-	-
	5		-	-	-	-	-	-	-	-
	6	7.45			88	167				
	7				-	36				
	2	1	9.0	-	-	-	-	-	-	-
2		-		-	-	-	-	-	-	
3		-		-	53	149	-	-	-	-
4		-		-	-	-	-	-	-	-
5		7.45			-	53				
6					69	-				

3.2 県内産加熱用カキ

表 2-1 に県内産加熱用カキの NoV 遺伝子検出結果を示した。網掛けは 2 穴共に遺伝子が検出されたことを示す。乳剤調製用緩衝液は pH7.45 リン酸緩衝液を使用した。AM 処理では、NoV 遺伝子 G1 群は 5 件中 2 件(40%)、G2 群が 5 件(100%)全てで検出された。酵素非処理では、NoV 遺伝子 G1 群は 5 件とも検出されなかったが、G2

群は AM 処理と同様 5 件(100%) 全てで検出された。

LP 処理、PL 処理では G1 群遺伝子は検出されなかったが、LP 処理では 5 件中 1 件(20%) から G2 群が検出された。

表 2-1 NoV 遺伝子検出結果 (実測値)

検体番号	pH	酵素処理なし (copies/µl)		AM処理 (copies/µl)		LP処理 (copies/µl)		PL処理 (copies/µl)	
		G1	G2	G1	G2	G1	G2	G1	G2
		1	-	3.7	-	19	-	-	-
2	-	1.6	-	13	-	-	-	-	
3	7.45	-	2.8	-	17	-	-	-	-
4		-	1.3	13	30	-	0.77	-	-
5		-	1.2	15	23	-	-	-	-

さらに、表 2-2 にカキ中腸腺 1g あたりの NoV 遺伝子数を示した。G2 群において、酵素非処理で中腸腺 1g あたりの平均遺伝子数は 248 コピー、AM 処理で 2496 コピーであった。平均値で比較すると AM 処理が酵素非処理に対して約 10 倍の値であった。

表 2-2 中腸腺 1g あたりの NoV 遺伝子数

検体番号	pH	酵素処理なし (copies/g)		AM処理 (copies/g)		LP処理 (copies/g)		PL処理 (copies/g)	
		G1	G2	G1	G2	G1	G2	G1	G2
		1	-	436	-	2278	-	-	-
2	-	178	-	1615	-	-	-	-	
3	7.45	-	318	-	2039	-	-	-	-
4		-	170	1642	3790	-	106	-	-
5		-	139	1799	2758	-	-	-	-

4 まとめ

今回の実験の結果、使用した緩衝液の pH に依存せず、NoV 遺伝子の検出率、検出値(実測値)共に AM 処理が最も高かった。一方、LP 処理、PL 処理は酵素非処理と比較しても検出率が低く、LP 処理、PL 処理が PEG による濃縮もしくは RNA 抽出にマイナスの影響を与えたことが示唆された。また、NoV 粒子はアルカリ側 pH 下において急速に粒子が崩壊するため、そのことが影響した可能性が考えられる。

一方、奥村ら⁴⁾は pH4.4 酢酸緩衝液を使用し LP 処理を行ったところ、カキからのウイルス濃縮に効果的であったこと、及び pH4.4 酢酸緩衝液を使用した場合、非酵素処理でも良好なウイルス回収率が得られたことを報告している。特に放精放卵期の夏季に向けて脂肪が蓄積傾向にある春季のカキでは、効果が高いことを確認している。

今回の実験では、AM 処理と LP 処理及び PL 処理の間に、顕著な検出率の差が出たことについては不明である。今後これらの原因を解明し、検出感度の向上に繋げたい。

5 参考文献

- 1) 厚生労働省医薬食品局食品安全部監視安全課長通知 “ノロウイルスの検出法について”平成 15 年 11 月 5 日、

食安監発 1105001号 (2003)

- 2) 食品安全委員会：食品健康影響評価のためのリスクプロファイル及び今後の課題～食品中のノロウイルス～，
(2010)
- 3) 野田衛，岡本玲子，有田知子，伊藤文明，池田義文，西尾治：第55回日本ウイルス学会学術集会抄録，161
(2007)
- 4) 奥村千恵，真砂佳史，佐野大輔，植木洋，大村達夫：環境工学研究論文集，45，179-186 (2008)

2010年手足口病・ヘルパンギーナから検出された エンテロウイルスについて

Enterovirus detected from HFM and herpangina at the surveillance in 2010

阿部 美和 高橋 由理 植木 洋
佐藤 由紀 菅原 優子 沖村 容子
Miwa ABE, Yuri TAKAHASHI, Yo UEKI
Yuki SATO, Yuko SUGAWARA, Yoko OKIMURA

2010年宮城県では手足口病・ヘルパンギーナ患者が過去5年間で最も多く報告された。それぞれの患者検体から病原体検査を行ったところ、手足口病患者ではエンテロウイルス71型(EV71)が、ヘルパンギーナ患者ではA群コクサッキーウイルス4型(CA4)が最も多く検出され、全国で検出されたウイルスと同様の結果であった。

キーワード：手足口病；ヘルパンギーナ；エンテロウイルス71型

Key words : HFM;herpangina;enterovirus71

1 はじめに

手足口病及びヘルパンギーナはともにエンテロウイルスを原因とし、例年5月から9月(第20週から第40週)に主に小児の間で流行する感染症である。手足口病の主な原因ウイルスはエンテロウイルス71型(EV71)とA群コクサッキーウイルス16型(CA16)で、症状は口腔粘膜及び四肢末端の水疱性発疹等¹⁾である。ヘルパンギーナの主な原因ウイルスはA群コクサッキーウイルス4型(CA4)、6型(CA6)、10型(CA10)で、症状は突然の発熱と口腔粘膜の水疱性発疹等²⁾であり、両疾患は発熱の有無、手足発疹の有無、口腔内発疹の位置などで鑑別診断される³⁾。どちらの疾患も症状からのみでは原因ウイルスを特定することはできない。また、両疾患とも一般に予後は良好であるが、EV71による手足口病が流行した年には無菌性髄膜炎などの中枢神経合併症の頻度が多くなることが報告されている⁴⁾。2010年の宮城県における両疾患の定点あたりの患者報告数は2006年からの5年間で最も多く、ピーク時の第28週には、手足口病が6.17人、ヘルパンギーナが12.04人であった⁵⁾。

当センターでは感染症発生動向調査事業に基づき両疾患の病原体検査を行ったので、検出されたエンテロウイルスについて報告する。

2 方法

検体採取は各保健所を通して医療機関に依頼した。検体は咽頭を拭った綿棒を培地に入れた状態で、冷蔵もしくは冷凍で搬入された。綿棒を十分に攪拌して取り除き、抗生剤を添加混和後(冷凍の検体は溶解後に)、氷冷で20分間静置した。3000rpm、20分間冷却遠心分離した上清を細胞接種液とした。この細胞接種液をHEp-2、

RD18s, Vero9013, Caco-2の各細胞に接種継代し、3代目まで形態の観察を行った。CPE(細胞変性効果)が現れた細胞上清を用いてエンテロウイルスVP1領域の増幅を目的としたPCRを行い、陽性の検体についてダイレクトシーケンスを実施した。また、CPE陰性の検体が多かったため、シーズン途中よりCPE陰性の検体について細胞接種液(咽頭ぬぐい液)を用いて同様にPCR、ダイレクトシーケンスを行った。得られた塩基配列についてDDBJ(DNA Data Bank of Japan)のBLASTによる相同性の検索を行った。

3 結果

3.1 手足口病患者検体ウイルス検出結果

手足口病と診断された患者検体のウイルス検出結果を表1に示す。検体17件中ウイルス分離陽性であったものは11件でEV71が9件、CA6が2件であった。細胞接種液から遺伝子検出を行ったのは2件で、そのうち1件からCA6の遺伝子を検出した。

表1 ウイルス検出結果(手足口病)

検出方法	検出ウイルス		計
	EV71	CA6	
分離	9	2	11
遺伝子検出のみ (実施2件)		1	1
計	9	3	12

検体17件中

3.2 ヘルパンギーナ患者検体ウイルス検出結果

ヘルパンギーナと診断された患者検体のウイルス検出結果を表2に示す。検体36件中ウイルス分離陽性であったものは14件、細胞接種液からPCRを行った20件中遺伝子を検出したものは16件で、内訳は表2のとおりである。

表2 ウイルス検出結果（ヘルパンギーナ）

検出方法	検出ウイルス				計
	CA2	CA4	CA6	型不明	
分離	1	9	4		14
遺伝子検出のみ (実施20件)	3	4	8	1	16
計	4	13	12	1	30

検体36件中

3.3 細胞別分離状況

細胞別のウイルス分離状況を表3に示す。EV71はVero9013とCaco-2で、CA2はRD18sで分離され、CA4は主にRD18sとCaco-2であるがVero9013でも1件分離されている。CA6はRD18sとCaco-2で分離された。HEp-2はB群コクサッキーウイルスに感受性が高く、今回分離されたウイルスはなかった。一方、Vero9013とRD18sはA群コクサッキーウイルスに感受性が高く、主にこの2種類で分離されたが、最も多く分離されたのは幅広い感受性を持つCaco-2であった。細胞の組み合わせ別の分離状況を表4に示す。2種類の細胞で分離されたウイルスは10件、1種類の細胞のみで分離されたウイルスは15件であった。今回B群コクサッキーウイルスの分離はなかったが、4種類の細胞を併用することでそれぞれの感受性をいかし、より多くのウイルス分離が可能と思われた。

表3 細胞別ウイルス分離状況1

分離ウイルス	培養細胞				計
	HEp-2	Vero9013	RD18s	Caco-2	
EV71	0	9	0	8	17
CA2	0	0	1	0	1
CA4	0	1	6	4	11
CA6	0	0	5	1	6
計	0	10	12	13	35

数字はのべ件数

表4 細胞別ウイルス分離状況2

分離ウイルス	培養細胞							計
	HEp-2	Vero9013	RD18s	Caco-2	V+C	R+C		
EV71	0	1	0	0	8	0	9	
CA2	0	0	1	0	0	0	1	
CA4	0	0	5	2	1	1	9	
CA6	0	0	5	1	0	0	6	
計	0	1	11	3	9	1	25	

*V+C: Vero9013とCaco-2 R+C: RD18sとCaco-2

4 考察

4.1 手足口病患者検体からのウイルス検出割合

手足口病患者検体からのウイルス検出割合を図1に示す。比較対象として国立感染症研究所感染症情報センターでまとめた2010年のデータ（病原体検出情報IASR2011年1月31日現在）も示した。宮城県では2010年はEV71が最も多く75.0%であった。全国的にも2010年はEV71が流行の主流であった。手足口病は年によって流行するウイルスが異なるが2009年は宮城県で大きな流行はなく、検体4件からもウイルスは分離されなかった。また全国では、突出して検出頻度の高いウイルスは確認されなかった。一方、2008年は全国的にCA16

が最も多く検出され、宮城県でも検体7件中2件のCA16が分離された。

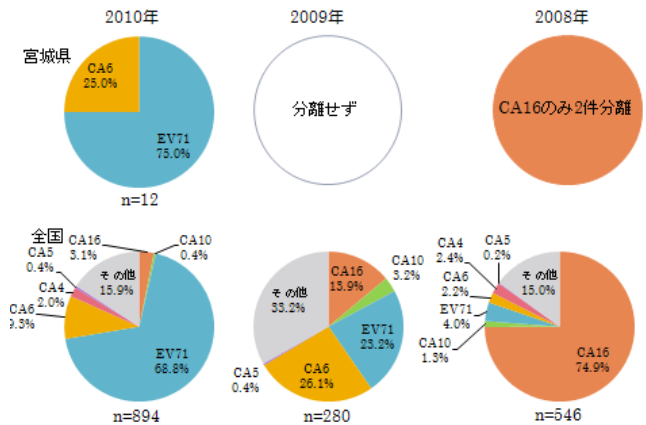


図1 ウイルス検出割合（手足口病）

4.2 ヘルパンギーナ患者検体からのウイルス検出割合

ヘルパンギーナ患者検体からのウイルス検出割合とIASRのデータのグラフを図2に示す。2010年に宮城県で最も多く検出されているウイルスはCA4で全国と同じであるが、全国ではCA2、CA6の順に検出されているのに対し宮城県ではCA6、CA2の順に検出され、CA6の割合もCA4とほぼ同じであった。一般的にヘルパンギーナの原因ウイルスはCA4が最も多く、次いでCA10、CA6であるとされるが、手足口病と同様に検出されるウイルスは年によって異なっている。2009年は宮城県では検体13件中3件でB群コクサッキーウイルス3型(CB3)が分離されたが、全国のデータではCA10、CA6が多く検出されている。また、2008年は検体14件中3件のCA4と2件のCA10が分離されたが、全国ではCA4、CA2が多く検出された。

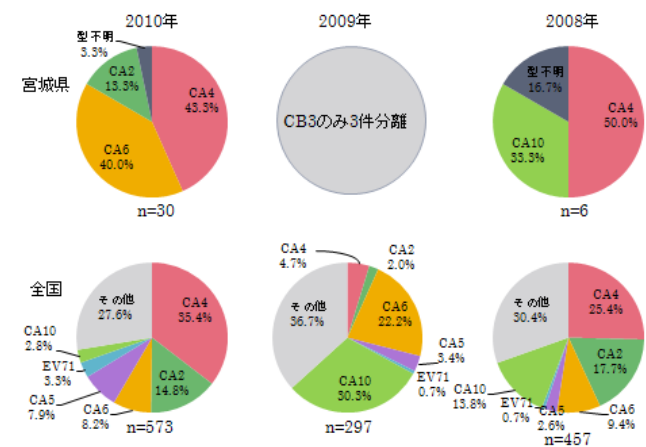


図2 ウイルス検出割合（ヘルパンギーナ）

5 まとめ

2010年度における手足口病，ヘルパンギーナのエンテロウイルスは RD18s, Vero9013, Caco-2 で分離された。手足口病では EV71 が，ヘルパンギーナでは CA4 が最も多く検出され，全国のデータと同様の結果であった。また，両疾患とも症状のみでは原因ウイルスを特定できないことから，病原体検査を継続することは重要である。2010年に宮城県での無菌性髄膜炎の増加は確認されなかったが，今回多く検出された EV71 による手足口病の流行時には無菌性髄膜炎等の中枢神経合併症の頻度が高くなることが報告されており，その発生動向も監視する必要がある。

6 参考文献

- 1) 国立感染症研究所感染症情報センター：疾患別情報 手足口病
- 2) 国立感染症研究所感染症情報センター：感染症の話 ヘルパンギーナ（2003）
- 3) 「ウイルス検査法」臨床とウイルス増刊号，**23**，146-151（1995）
- 4) 清水博之：病原微生物検出情報月報（IASR），**30**，9-10（2009）
- 5) 宮城県保健環境センター：宮城県結核・感染症情報センター
<http://www.ihe.pref.miyagi.jp/~kansen-center/>

夏季に発生する腸炎ビブリオおよびサルモネラの動態について

Investigation of *Vibrio parahaemolyticus* and *Salmonella* detected in food poisoning or gastroenteritis

後藤 郁男 中居 真代 宮崎 麻由
木村 葉子 矢崎 知子 高橋 恵美
有田 富和 那須 務 畠山 敬
渡邊 節 沖村 容子

Ikuo GOTO, Masayo NAKAI, Mayu MIYAZAKI
Yoko KIMURA, Tomoko YAZAKI, Emi TAKAHASHI
Tomikazu ARITA, Tsutomu NASU, Takashi HATAKEYAMA
Setsu WATANABE, Yoko OKIMURA

平成17年から平成22年までの6年間に、協力検査機関等から提供された情報を解析した結果、夏季の食中毒・胃腸炎の原因とされる腸炎ビブリオの罹患者数は年々減少が続いているものの、相変わらず6月から10月までの期間に発生が認められた。環境調査でも同時期の汽水域海泥中で腸炎ビブリオが活発に増殖しており、そのピーク時には耐熱性溶血毒(TDH)耐熱性毒素関連溶血毒(TRH)等毒素産生株の存在が確認された。一方、サルモネラ菌による胃腸炎件数は腸炎ビブリオより多く、7月から9月までの期間に集中的に発生する傾向があった。そこで、宮城県で夏季に実施している「魚介類による腸炎ビブリオ食中毒注意報・警報」の警報発令基準に、環境中の腸炎ビブリオの動態とサルモネラ菌検出数をファクターとして加え過去のデータを再評価したところ、食中毒や胃腸炎の好発時期をより明確に示すことが可能であった。

キーワード：腸炎ビブリオ；サルモネラ；食中毒；胃腸炎

Key words : *Vibrio parahaemolyticus* ; *Salmonella* ; food poisoning ; gastroenteritis

1 はじめに

宮城県では夏季の食中毒予防の一環として、昭和49年に「魚介類による腸炎ビブリオ食中毒注意報発令要領」を定めた。また、平成17年に腸炎ビブリオによる食中毒警報の発令を目的とした要領の一部改正を行い「魚介類による腸炎ビブリオ食中毒注意報・警報発令要領（以下、これにより発令される注意報と警報をそれぞれ注意報、警報とする）」として、県民へのさらなる注意喚起と食品衛生指導の徹底を図ってきた。当保健環境センター微生物部ではこの要領の一部改正を受けて、従来からの近海海水温と環境中の腸炎ビブリオ調査¹⁾に加えて、発生危険度評価のための広域海水温と気温変動のモニタリングを開始し、警報発令のための評価値を算出して情報提供を行ってきた。また、食中毒菌等の検出状況を評価値に反映させるため宮城県医師会健康センター（協力検査機関）から分与された菌株の精査を並行して行った結果、夏季には腸炎ビブリオはもちろんのこと、サルモネラの検出率が高いという実態が明らかとなった。本報告ではそれら食中毒菌の動態について報告するとともに、平成17年の要領改正以来の食中毒警報発令状況を振り返り、新たな評価値の設定を想定した検討を行ったので合わせて報告する。

2 方法

2.1 注意報・警報発令のための評価値の算出

注意報は石巻湾海水温の旬平均が19℃を超えた場合に本庁担当課が発令した。警報の発令基準となる評価値は、表1に示したように、仙台市の予想最高気温（気象庁発表）、青森県・宮城県・千葉県の上三県沖の平均海水温（北東アジア地域GOOSデータベース²⁾）、腸炎ビブリオ検出件数（当部と協力検査機関で検出された菌株数）、県内の腸炎ビブリオ食中毒発生件数の4項目とし、それぞれを点数化して加算方式で求めた。警報はこの評価値が10点以上の日の連続3日目をもって発令した。

表1 評価値の算出方法

評価項目	評価の条件	点数
最高気温	当日を含め4日間で仙台市の最高気温が28度以上の日が3日以上予想される場合	3
海水温度	青森・宮城・千葉沖の3地点の旬平均海水温が19度を超えた場合	3
検査機関からのビブリオ検出件数	1週間前からのビブリオ検出件数の累計が4件まで	2
	1週間前からのビブリオ検出件数の累計が9件まで	4
	1週間前からのビブリオ検出件数の累計が10件まで	6
腸炎ビブリオ食中毒集団発生件数	本事例発生1件につき4点を一週間継続。以降、事例発生ごとに同様に4点を一週間加算	4

2.2 腸炎ビブリオ菌株の精査

協力検査機関から提供された腸炎ビブリオ菌株は生化学性状試験と耐塩試験、O抗原・K抗原の血清型別を行

った。また、TDH を検出するラテックス凝集反応試験と、TRH 遺伝子を検出する PCR を実施した。

2.3 サルモネラ菌株の精査

同じく協力検査機関から提供されたサルモネラ菌株は生化学性状試験と O 抗原・H 抗原の血清型別を決定して同定した。

2.4 海水と海泥の調査

5月～12月の毎月1回、名取川河口汽水域の海水と海泥を採取して腸炎ビブリオの検出に供した。腸炎ビブリオの検出は常法による分離培養とレシチン依存性溶血毒素の遺伝子を検出する PCR を実施して PCR 最確数 (PCR-MPN 値) を求めた。また、分離した菌株は協力検査機関から提供された菌株と同様に、O 抗原・H 抗原の血清型試験、TDH、TRH を検出する試験を行った。

3 結果

3.1 評価値と注意報・警報の発令状況

評価値 10 点以上の日が 3 日以上継続して警報が発令されたのは平成 17 年と平成 20 年の 8 月中旬であった。その一例として平成 17 年の石巻湾の海水温と評価値の推移、さらに食中毒発生日およびビブリオ検出日を図 1 に示した。平成 17 年は 6 月 26 日に海水温の旬平均が 19℃を超えたため注意報が発令され、海水温の旬平均が 19℃を下回った 10 月 25 日に解除された。その間、評価値の合計が 10 点以上となる日が 3 日間続いたため、8 月 12 日に警報が発令され、評価値が 10 点未満の日の継続 3 日目にあたる 8 月 31 日に解除された。この推移は平成 20 年もほぼ同様であった。

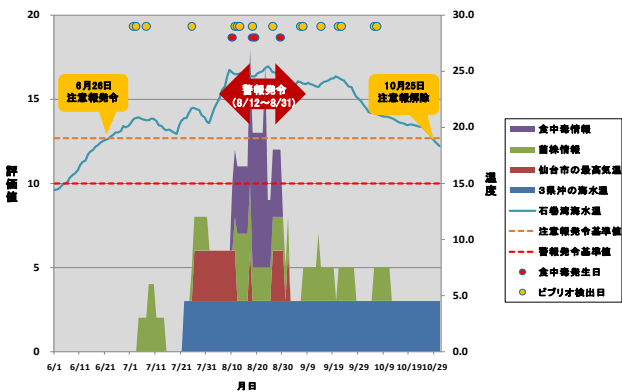


図 1 平成 17 年の評価値の推移

一方、平成 18 年と平成 21 年は石巻湾の海水温旬平均により注意報が発令・解除されたが、評価値 10 点以上の日が継続せず警報は発令されなかった。一例として平成 18 年の推移を図 2 に示した。

平成 19 年と平成 22 年は注意報が発令・解除され、また評価値が警報発令基準を超えた日があったが、警報は発令されなかった (図示していない)。

3.2 腸炎ビブリオ菌株精査

協力検査機関より提供された腸炎ビブリオ菌株は 6 年間で合計 103 株となり、その年別検出数と胃腸炎の原因

となる TDH 保有率を表 1 に示した。腸炎ビブリオ検出数は平成 17 年に 34 件と最も多かったが、以後減少し平

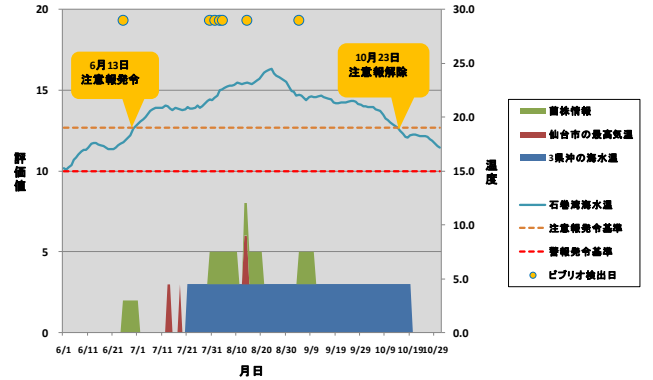


図 2 平成 18 年の評価値の推移

成 21 年は 5 件に留まった。しかしながら、TDH 陽性株の割合は 80%以上と多かった。

表 2 腸炎ビブリオ菌株精査の結果

年(平成)	17年	18年	19年	20年	21年	22年	合計
精査数	34	18	22	9	5	15	103
TDH陽性率(%)	94.1	83.3	87.5	88.9	80.0	86.7	86.8

3.3 サルモネラ菌株精査

協力検査機関から提供されたサルモネラ菌は 6 年間で合計 267 株となり (表 3)、検出された月別で見ると年間を通じて検出されるものの、7～9 月に集中していた (図 3)。

表 3 サルモネラ菌株精査数

年(平成)	17年	18年	19年	20年	21年	22年	合計
精査数	62	41	46	46	27	45	267

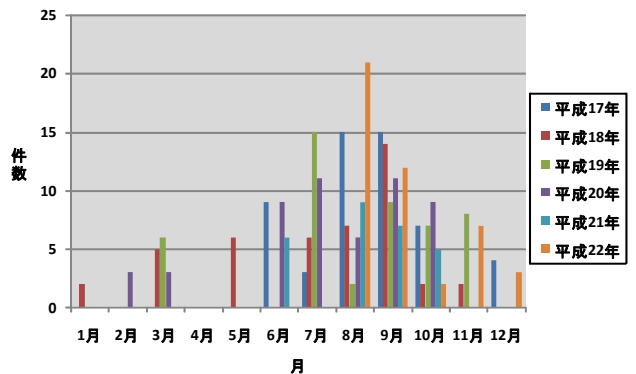


図 3 サルモネラの月別検出状況

3.4 海泥の腸炎ビブリオ調査

平成 17 年から平成 22 年の間に、汽水域の海水・海泥からの腸炎ビブリオ PCR-MPN 値が最高となったのは、いずれの年も 8 月あるいは 9 月で、表 4 に当該月の海水・海泥の PCR-MPN 値を示した。海泥の PCR-MPN 値は年によって開きがみられたが、平成 20 年には 11,000 を示すなど、腸炎ビブリオの活発な活動状況が示された。さらに平成 22 年には TDH 陽性・TRH 陽性株と TDH 陰性・TRH 陽性株が検出された (データは示していな

い)。

表4 腸炎ビブリオ PCR-MPN 値

年 (平成)	17年	18年	19年	20年	21年	22年
PCR-MPNが最高となった月	9	9	8	8	9	8
海水	43	240	14	1,100	9	23
泥	9,300	4,300	1,100	11,000	4,600	9,300

3.5 評価値の再検討

平成18年と平成21年は評価値10点以上の日が継続することなく警報は発令されなかったが、一つの試みとして環境調査で得られた海泥の腸炎ビブリオPCR-MPN値を図4のようにその数値によって点数化し、平成18年の評価値の推移に加えたところ、図5の矢印の期間に評価値が10点に達する日が現れた。

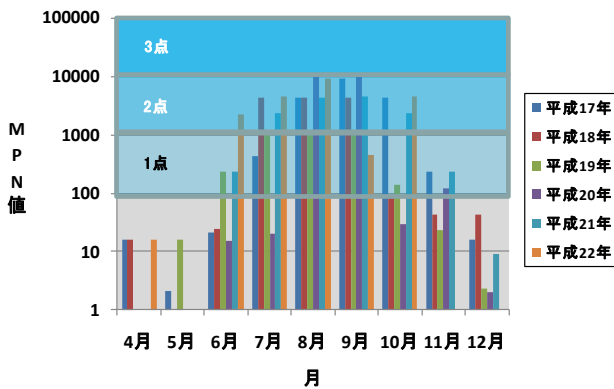


図4 海泥の腸炎ビブリオPCR-MPN値の点数化

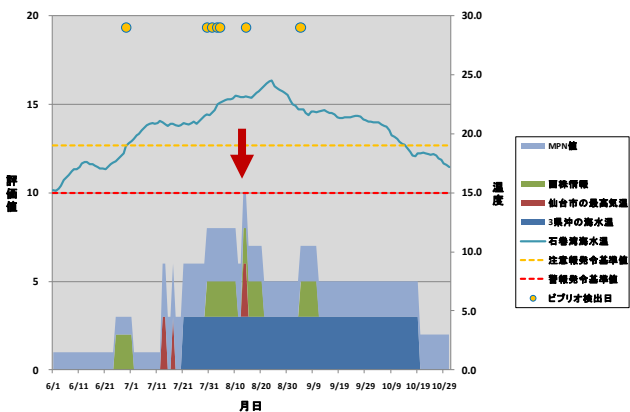


図5 平成18年の評価値の再検討1

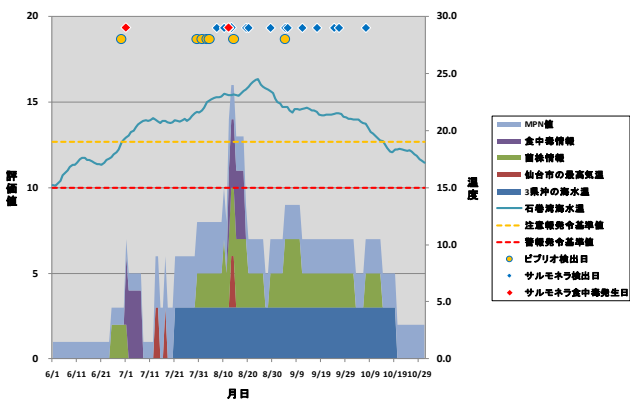


図6 平成18年の評価値の再検討2

さらに、サルモネラの検出数を腸炎ビブリオ検出数と同様に点数化し、図5のデータにさらに加算したところ、図6のように、平成18年8月中旬に評価値が警報発令基準値を大きく超える期間が出現した。

4 考察

腸炎ビブリオによる食中毒は1992、1993年頃を境として全国的に増加に転じ、1997、1998年には発生数・患者数ともにピークを示したが最近では再び大きく減少している³⁾。これは宮城県においても同様で、宮城県食中毒事件録⁴⁾によれば、1998年に県内で発生した食中毒の68.6%(24件)、1999年は63.3%(19件)、2000年は46.9%(15件)が腸炎ビブリオを原因とするものであったが、2001~2010年の10年間の発生数は合計14件と大きく減少した。腸炎ビブリオ事件数の減少は、本論文の調査結果からも明らかで、協力検査機関から提供された腸炎ビブリオ菌株数も年々減少し、すでに腸炎ビブリオが夏季の食中毒や胃腸炎の主因では無くなりつつあるものと思われる。

しかしながら、環境調査では海水温の上昇に伴い海泥の腸炎ビブリオPCR-MPN値が大きく上昇し、病原因子遺伝子が検出されること、さらに胃腸炎患者から検出される腸炎ビブリオの多くがこの因子を持つことなど、依然として海産物が腸炎ビブリオ食中毒の発生原因であることには変わりはなく、今後もその動態を注視していく必要がある。一方、協力検査機関で検出されたサルモネラの分離株数は年間でおおよそ45株と腸炎ビブリオの分離数より多く、検出時期もほとんどが7月から9月の夏季に集中していた。そこで、警報発令の基準となる評価値に、環境動態の指標となる海泥の腸炎ビブリオPCR-MPN値とサルモネラ検出数を新たなファクターとして点数化して加えた結果、大変興味深いことに従来では警報発令基準値に満たなかった平成18年と21年においても評価値の高い期間が新たに出現した(図5、図6)。

夏季の食中毒予防対策は、従来「腸炎ビブリオ」による被害防止を中心に指導・啓発が行われてきた。しかし、腸炎ビブリオの環境動態や、新たに明らかになったサルモネラの検出実態等を加味して評価基準を見直すことにより、「夏季の食中毒予防」全般にわたる注意喚起が可能になることを示しているものと考えられる。

5 謝辞

貴重な菌株と患者情報を提供いただきました宮城県医師会健康センターに深謝します。

6 まとめ

「魚介類による腸炎ビブリオ食中毒注意報・警報発令要領」における評価値に、環境中の腸炎ビブリオの動態と夏季に検出されるサルモネラの件数を新しいファクターとして加えて解析することで、平成17年から平成22

年の食中毒発生状況の実態をより詳細に把握することができた。これにより、警報発令のために、評価基準を見直す必要性が示された。

7 参考文献

- 1) 畠山敬，山口友美，斎藤紀行，秋山和夫，白石廣行，小笠原久夫：宮城県保健環境センター年報，18，56-60，（2000）
- 2) NEAR-GOOS 地域遅延モードデータベース（RDMDB）
http://near-goos1.jodc.go.jp/index_j.html
- 3) 感染症の話，IDWR，10（2004）
- 4) 宮城県環境生活部食と暮らしの安全推進課：宮城県食中毒事件録，（1998-2010）

大気中の揮発性有機化合物調査

Study on Volatile Organic Compounds in Atmospheric Samples

佐久間 隆 小川 武 小泉 俊一
北村 洋子 木戸 一博

Takashi SAKUMA, Takeshi OGAWA, Syun-ichi KOIZUMI,
Yoko KITAMURA, Kazuhiro KIDO

キーワード：有害大気汚染物質；揮発性有機化合物（VOCs）

Key words : hazardous air pollutants ; volatile organic compounds (VOCs)

1 はじめに

平成 8 年 5 月の大気汚染防止法の改正に伴い、地方公共団体は有害大気汚染物質による大気汚染状況の把握に努めなければならないと定められ、本県では平成 9 年 10 月から県内 4 地点において有害大気汚染物質のモニタリング調査を開始した。

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

2 方法

2.1 調査地点

調査は次の 3 地点で行い、調査区分を括弧内に示した。なお、前年度調査地点であった大崎市（一般環境）について 21 年度は休止とした。

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

2.2 調査期間、測定頻度

平成 21 年 4 月から平成 22 年 3 月までの一年間、月 1 回 24 時間試料採取を実施した。

2.3 調査対象物質

優先取組物質 9 物質を含む VOCs 合計 38 物質を対象とした。

2.4 試料採取及び測定方法

「有害大気汚染物質測定方法マニュアル¹⁾」に従い実施した。大気試料は真空化した 6L キャニスター容器を用い 24 時間採取、大気試料濃縮装置（Tekmar 社製 AUTOCan）により試料を導入し、GC/MS（HP 社製 HP6890+日本電子社製 JEOL JMS-AM II 15）で分析を行った。

3 結果

VOCs の測定結果（年平均値）を表 1 に示した。年平均値は原則として 12 回の測定結果を算術平均して算出した。なお、平均値の算出にあたり検出下限値未満の場合は検出下限値の 1/2 値を用い、検出下限値以上で定量下限値未満の場合は測定値を用いた。優先取組物質 9 物質のうち環境基準の定められているベンゼン、トリクロロエチレン、テトラクロロエチレン及びジクロロベンゼンの 4 物質について、環境基準を超える物質は無かった。さらに、優先取組物質について平成 20 年度地方公共団体等における有害大気汚染物質モニタリング調査結果²⁾と比較したところ、塩竈市のジクロロメタン及びアクリロニトリルが高めであったが、その他の物質は同程度か低めであった。

優先取組物質以外の物質について各調査地点の年平均値を比較したところ、前年度同様にフロン類 4 物質、四塩化炭素及び 1,1,1-トリクロロエタンは調査地点による差は小さかった。また、トルエンは塩竈市で高い濃度を示した。

4 まとめ

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

5 参考文献

- 1) 環境庁大気保全局大気規制課：有害大気汚染物質測定方法マニュアル，平成 20 年 10 月
- 2) 環境省報道発表資料：平成 20 年度大気汚染状況について（有害大気汚染物質モニタリング調査結果），平成 21 年 12 月 11 日

表1 VOCsの測定結果(年平均値;平成21年度)

No.	物質名	大河原町 (一般環境)	名取市 (道路沿道)	塩竈市 (発生源周辺)	大崎市 (一般環境)	全体平均	最低濃度	最大濃度	検出下限値(3σ)		定量下限値 (10σ)平均	環境基準等	単位: μg/m ³ 全国平均 ²⁾ (平成20年度)
									最小	最大			
1	Freon12	2.5	2.5	2.5	—	2.5	2.4	2.6	0.005	0.009	0.024		
2	Freon114	0.11	0.11	0.12	—	0.12	0.10	0.14	0.004	0.010	0.023		
3	Chloromethane	1.1	1.1	1.3	—	1.2	0.97	2.9	0.001	0.004	0.008		
4	Chloroethene	0.013	0.013	0.012	—	0.013	ND	0.034	0.002	0.005	0.010	10	0.053
5	1,3-Butadiene	0.078	0.17	0.069	—	0.11	0.018	0.29	0.002	0.004	0.009	2.5	0.18
6	Bromomethane	0.051	0.072	0.079	—	0.067	0.024	0.42	0.001	0.013	0.019		
7	Chloroethane	0.059	0.075	0.069	—	0.068	0.013	0.34	0.003	0.006	0.013		
8	Freon11	1.3	1.4	1.4	—	1.4	1.2	1.6	0.003	0.016	0.030		
9	Freon113	0.57	0.57	0.58	—	0.57	0.54	0.62	0.009	0.017	0.042		
10	1,1-Dichloroethene	0.005	0.005	0.005	—	0.005	ND	ND	0.001	0.016	0.030		
11	Dichloromethane	2.3	2.8	5.7	—	3.6	0.73	10	0.003	0.013	0.027	150	2.3
12	Acrylonitrile	0.056	0.037	0.18	—	0.092	ND	0.34	0.002	0.004	0.010	2	0.093
13	1,1-Dichloroethane	0.006	0.006	0.006	—	0.006	ND	ND	0.006	0.017	0.039		
14	c-1,2-Dichloroethane	0.002	0.002	0.002	—	0.002	ND	ND	0.002	0.006	0.012		
15	Chloroform	0.17	0.13	0.15	—	0.15	0.070	0.49	0.002	0.009	0.016	18	0.22
16	1,1,1-Trichloroethane	0.054	0.052	0.055	—	0.054	0.039	0.083	0.005	0.010	0.024		
17	Tetrachloromethane	0.59	0.61	0.62	—	0.60	0.56	0.64	0.005	0.009	0.024		
18	1,2-Dichloroethane	0.096	0.10	0.12	—	0.10	0.041	0.24	0.002	0.008	0.018	1.6	0.16
19	Benzene	0.92	1.2	0.86	—	0.98	0.32	2.3	0.004	0.009	0.016	3	1.4
20	Trichloroethylene	0.32	0.30	0.46	—	0.13	ND	1.6	0.006	0.008	0.023	200	0.65
21	1,2-Dichloropropane	0.038	0.047	0.060	—	0.048	0.024	0.13	0.001	0.008	0.015		
22	c-1,3-Dichloropropene	0.018	0.014	0.004	—	0.012	ND	0.17	0.003	0.013	0.026		
23	Toluene	3.6	5.7	35	—	15	1.0	98	0.004	0.007	0.017		
24	t-1,3-Dichloropropene	0.010	0.008	0.003	—	0.007	ND	0.088	0.004	0.007	0.017		
25	1,1,2-Trichloroethane	0.003	0.003	0.003	—	0.003	ND	ND	0.004	0.008	0.019		
26	Tetrachloroethylene	0.11	0.069	0.077	—	0.086	0.014	0.35	0.003	0.012	0.023	200	0.23
27	1,2-Dibromoethane	0.004	0.004	0.004	—	0.004	ND	ND	0.005	0.011	0.026		
28	Chlorobenzene	0.041	0.040	0.040	—	0.041	0.023	0.061	0.002	0.008	0.016		
29	Ethylbenzene	5.3	6.9	3.1	—	5.1	0.84	23	0.003	0.006	0.014		
30	m-&p-Xylene	3.2	4.6	3.0	—	3.6	0.95	12	0.006	0.008	0.021		
31	o-Xylene	1.0	1.4	1.1	—	1.1	0.34	3.4	0.003	0.006	0.015		
32	Styrene	0.25	0.39	1.5	—	0.72	0.013	3.2	0.006	0.009	0.025		
33	1,1,2,2-Tetrachloroethane	0.007	0.007	0.007	—	0.007	ND	ND	0.008	0.019	0.045		
34	1,3,5-Trimethylbenzene	0.22	0.42	0.48	—	0.37	0.085	0.81	0.003	0.007	0.017		
35	1,2,4-Trimethylbenzene	0.84	1.7	1.9	—	1.5	0.33	3.5	0.004	0.014	0.025		
36	m-Dichlorobenzene	0.003	0.003	0.003	—	0.003	ND	ND	0.002	0.009	0.018		
37	p-Dichlorobenzene	0.28	0.35	0.48	—	0.37	0.031	0.81	0.006	0.013	0.030		
38	o-Dichlorobenzene	0.024	0.027	0.023	—	0.025	ND	0.067	0.003	0.009	0.020		

注: 平均濃度の算出にあたり, 検出下限値未満の値は検出下限値の1/2を平均値算出に用いた。「ND」は, 検出下限値未満を示す。
は優先取組物質を示す。

生食用鮮魚介類等におけるヒスタミン産生菌に関する調査（第2報）

Study of histamine producing bacteria in fresh seafoods to eat raw (The 2nd. report)

宮崎 麻由 中居 真代 有田 富和
那須 務 渡邊 節 沖村 容子
Mayu MIYAZAKI, Masayo NAKAI, Tomikazu ARITA
Tsutomu NASU, Setsu WATANABE, Yoko OKIMURA

平成21年度の調査で生食用鮮魚介類等から分離した代表的なヒスタミン産生菌である *Morganella morganii* および *Klebsiella oxytoca* について、発育至適温度を確認するとともに大型魚が流通する際に凍結と融解が何度も繰り返されると仮定した凍結融解実験を行った。*M.morganii* および *K.oxytoca* の培養温度と菌数、および培養温度とヒスタミン産生量、さらに細菌数とヒスタミン産生量には大きな関連性があり、0℃から25℃の間では25℃に近いほどより短時間で細菌数およびヒスタミン産生量が増加する傾向があった。また、凍結保存していても融解する回数の増加に伴い再び菌が増殖して、ヒスタミンが産生されることを確認した。

キーワード：ヒスタミン；ヒスタミン産生菌；鮮魚介類

Key words : Histamine ; Histamine producing bacteria ; Fresh seafoods

1 はじめに

魚介類を摂食する機会の多い我が国では、ヒスタミンによる食中毒は年間数例～数十例発生し¹⁾、さらに1件あたりの患者数が他の食中毒と比較して多く、大規模な食中毒になることもあるため問題となっている。例えば、宮城県で平成21年に発生した2件のヒスタミンによる食中毒事件のうち、1件は患者数が100名を超えるものであったが²⁾、その理由としてヒスタミンは加熱によっても減少しないため一般的な加熱による食中毒予防対策が有効ではないことがあげられる。

我々は平成21年度に、県内に流通する刺身用マグロなど生食用鮮魚介類等のヒスタミン産生菌による汚染の実態を知るために調査を行った。その結果、78件中22件(28%)から *M.morganii* をはじめとするヒスタミン産生菌12菌種を分離し、生食用生鮮魚介類に高率にヒスタミン産生菌が存在することを確認した³⁾。

また、ヒスタミンによる食中毒の主な原因食品となる大型赤身魚は水揚げ、解体、加工、流通、販売等の流通過程で凍結融解が繰り返されることでヒスタミン産生菌に汚染される機会が多いと考えられているが⁴⁾、これまで、市販される鮮魚の保存温度とヒスタミン産生量やヒスタミン産生菌に関する報告はあるが^{5)~8)}、実際の食品から分離されたヒスタミン産生菌を用いた魚介類の流通から加工までの一連の過程を想定した実験はなされていない。そこで今回、平成21年の調査で分離したヒスタミン産生菌の発育至適温度を特定し、その条件下で凍結融解を繰り返した場合のヒスタミン産生菌の増殖とヒスタミン産生量を測定したので報告する。

2 方法

2.1 発育至適条件の検討とヒスタミン産生量の測定
平成21年の調査で検出された代表的なヒスタミン産生菌である *M.morganii* と *K.oxytoca* を指標菌とし、Histidine Broth に各々最終濃度 10^3 cfu/ml になるように調整し、0℃から25℃まで5℃間隔で培養した。細菌数は経時的に混積平板培養法によって測定し、また、ヒスタミン産生量はキット(チェックカラーHistamine:キッコーマン)を用いて測定した。

2.2 凍結融解実験

0.3%Agar と 10%Glycerine を加えた HistidineBroth を調製し、*M.morganii* と *K.oxytoca* をそれぞれ最終濃度が 10^9 cfu/ml になるように添加した。この培養液をヒスタミン産生菌で汚染された魚介類のモデルとした。2.1 で得られた発育至適条件および一般的な加工室の室温と処理時間から、培養温度を25℃、培養時間を1時間と設定した。さらに食品の保管・流通時の温度を-80℃と仮定して、培養と凍結を50回繰り返した。このサイクルを5回繰り返すごとに、2.1と同様の方法で菌数とヒスタミン産生量を測定した。

3 結果

3.1 発育至適条件及びヒスタミン産生量

細菌数の測定において、*M.morganii* と *K.oxytoca* の両菌とも0℃ではほとんど増加は認められなかったが、室温に近い25℃培養では6時間から増加がみられ、12時間から24時間にかけて最大値に達した。また、10℃の低温であっても約48時間後から増加し、1週間後には両菌とも 10^8 cfu/ml 以上と25℃培養とほぼ同じレベル

に達した (図 1)。

ヒスタミン産生は *M.morganii* では 10℃以上, *K.oxytoca* では 5℃以上の各培養温度でみられ, その産生量は菌数の増加と共に増加する傾向を示した。*M.morganii* は各培養温度のうち 25℃で最も早く最高値に達し, 12 時間後から 24 時間までの間に 10³mg/L レベルに達した。一方, *K.oxytoca* は低温である 5℃でも 1 週間後からヒスタミンの産生が認められ, 2 週間後には 25℃の場合と同様の 10³mg/L レベルに達した (図 2)。

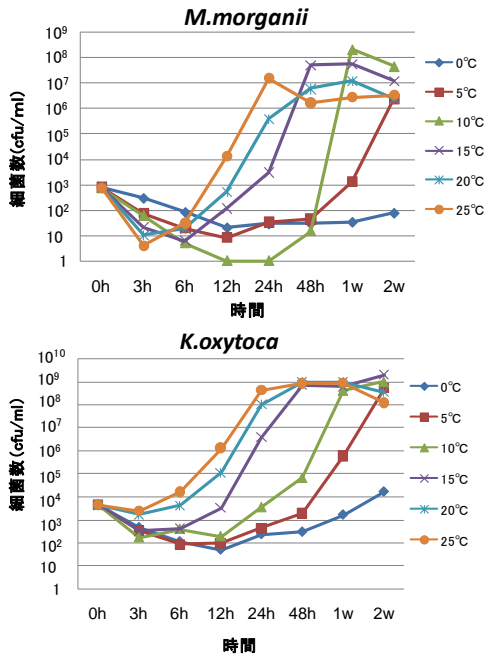


図 1 温度別経時変化 (細菌数)

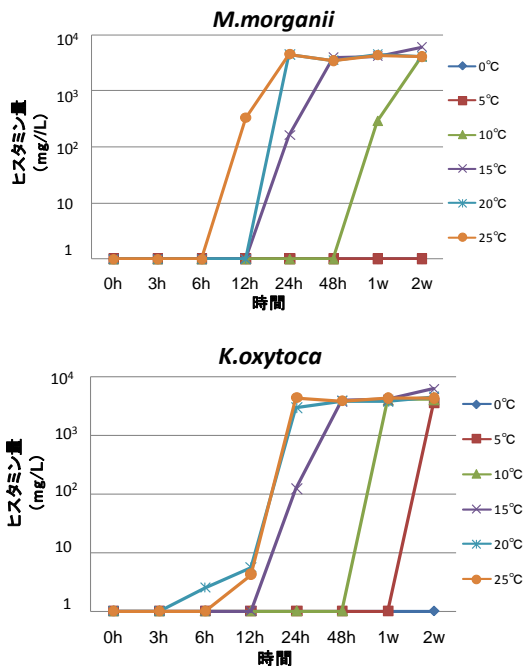


図 2 温度別経時変化 (ヒスタミン産生量)

3.2 凍結融解実験

細菌数は, 両菌ともに凍結融解を繰り返すことによって一旦減少した後, 緩やかな上昇に転じた (図 3)。また, ヒスタミン産生量は培養時間の累積に伴って増加し, *K.oxytoca* は約 35 回で 1,000mg/L (100ppm) を超えた。それに対し *M.morganii* は 40 回以上でヒスタミンの産生が始まり, その産生量は最高でも 100mg/L レベルにとどまった (図 4)。

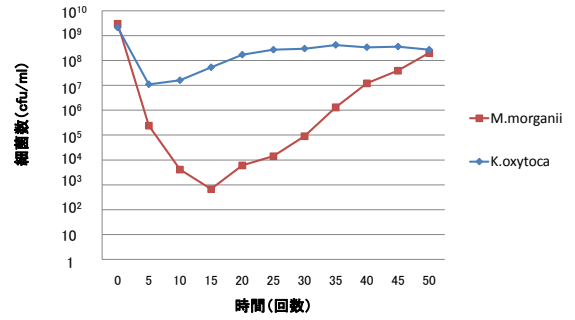


図 3 凍結融解実験 (細菌数)

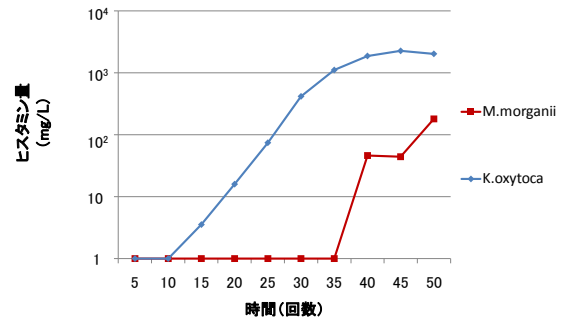


図 4 凍結融解実験 (ヒスタミン産生量)

4 考察

代表的なヒスタミン産生菌であり, 我々が実際に生食用鮮魚介類から分離した *M.morganii* および *K.oxytoca* は, 培養温度と細菌数, 培養温度とヒスタミン産生量, さらに細菌数とヒスタミン産生量に大きな関連性があり, 特に培養温度が 25℃に近いほど, 細菌数とヒスタミン産生量の両者とも短時間で増加する傾向にあった。また, ヒスタミンの生成には 10⁷cfu/g 以上のヒスタミン産生菌の存在が必要であることが報告されている 9)~11)。本実験における 25℃培養の *K.oxytoca* ではそれらと同様に 10⁶~10⁸ cfu/ml で顕著なヒスタミンの産生を示したが, さらに 10⁴~10⁶ cfu/ml でもヒスタミンの産生が認められた。*M.morganii* ではさらに少ない 10~10⁴cfu/ml でもヒスタミンの産生が認められた。このことは, *M.morganii* と *K.oxytoca* の両菌とも室温程度で容易に増殖してヒスタミンを産生した結果であり, 環境常在菌である他のヒスタミン産生菌でも同様の結果が得

られると推察されることから、魚介類の室温での処理はヒスタミン産生のリスクが高いことを強く示している。

次に、処理や流通過程を想定した菌液の凍結と解凍を繰り返すモデル実験では、*M.morganii*と*K.oxytoca*では細菌数とヒスタミン産生量の経時的変化で異なる挙動を示し、*M.morganii*では培養回数を重ねてもヒスタミンの産生量は*K.oxytoca*に及ばなかった。これは凍結と融解の繰り返しに対する両菌株の耐性の違いに起因すると考えられる。しかし*K.oxytoca*は、一般的にヒスタミンによる食中毒が発生すると言われる1,000mg/L(100ppm)を超える産生量を示したこと、さらに我々の第一報の結果のように実際の生鮮魚介類には複数種のヒスタミン産生細菌が付着していたことを考慮すると、生鮮魚介類の処理や流通過程を重ねることによってヒスタミンによる食中毒が発生するリスクがより高くなると考えられる。ヒスタミンの食中毒の主な原因食品は大型の赤身魚が圧倒的に多く、その代表的なマグロは遠洋で漁獲され、解体、流通するまでの間に多くの加工施設や加工工程を必要とするため、その間の温度や衛生管理の徹底が重要である。

ヒスタミンによる食中毒の防止は、家庭においても生食用であることを過信せずに、鮮魚介類は低温保存し早めに摂食する等、十分注意することが必要である。また藤井らは、ヒスタミンによる食中毒は一般的に化学物質の食中毒やその他の食中毒に分類されているがその防止には他の食中毒と同様に微生物制御という観点が非常に重要である¹²⁾としているが、我々の結果もこのことを強く支持するものである。

5 参考文献

- 1) 平成22年食中毒発生状況：厚生労働省食中毒統計
- 2) 宮城県環境生活部食と暮らしの安全推進課：平成21年宮城県食中毒事件録，10-12（2010）
- 3) 宮崎麻由，平本都香，山口友美，有田富和，加藤浩之，那須務，渡邊節，沖村容子，御代田恭子：宮城県保健環境センター年報，**28**，36-38（2010）
- 4) 伊達佳美，古川一郎，相川勝弘，浅井良夫，尾上洋一：神奈川県衛生研究所研究報告，**38**，19-22（2008）
- 5) 鮫島陽人，鶴木隆文，下野かおり，間世田春作：鹿児島県工業技術センター研究報告，**14**，35-38（2000）
- 6) 新井輝義，池内容子，岸本泰子，石崎直人，柴田幹良，観公子，下井俊子，牛山博文，立田真弓，白石典太，甲斐明美，矢野一好：東京都健康安全研究センター研究年報，**58**，別冊（2007）
- 7) Kim SH,Field KG,Morrissey MT,Price RJ,Wei CI,An H:J Food Prot,**64(7)**,1035-1044(2001)
- 8) Tsai YH,Kung HF Lee TM,Lin GT,Hwang DF:J Food Prot,**67(2)**,407-412(2004)
- 9) H Yamanaka,K Shiomi,T Kikuchi,M Okuzumi: Bull Japan Soc of Sci Fish,**50(4)**,695-701（1984）
- 10) M Okuzumi,S Okuda,M Awano: Bull Japan Soc of Sci Fish,**48**,99-804（1982）
- 11) H Yamanaka,K Shiomi,T Kikuchi,M Okuzumi: Bull Japan Soc of Sci Fish,**48**,685-689（1982）
- 12) 藤井建夫：ヒスタミン食中毒の現状と対策（2009）

廃棄物分析情報迅速検索システム活用最終処分場等水質の状況

Water Quality of Final Disposal Site and others using Rapid Search System for Data base of Solid Waste

秋野 正造*¹ 藤原 秀一

Shozo AKINO, Shuich FUJIWARARA

キーワード：最終処分場；不法投棄；不適正処理；硫黄酸化細菌；鉄酸化細菌

Key words : Final Disposal Site ; Unlawful Dumpig ; Failse Treatment ; Thiobacillus thioxydans ; Thiobacillus ferrooxidans

1 はじめに

現在、最終処分場や不法投棄現場等に関する水質データ等は台帳等に記載、保管されており、探し出すのに膨大な時間を要す。昨年度は一部電子化を行い3秒/回で検索できるシステムの構築を行った。今年度は、平成元年度まで遡って電子化を行い、更にこれを利用して分析物質の基準超過状況及び検出状況並びに BOD 値との関係を調べた。

2 方法(電子ファイルの作成及び検索)

2.1 個別ファイルの作成

昨年度作成した最終処分場、不法投棄等の水質検査結果のデータベースに平成元年までのデータを加え、636個のエクセルファイルにした。

写真及び緯度経度情報は平成 22 年度分を追加しそれぞれ JPEG 等画像ファイル及びエクセルに記載した。

2.2 検索コンビニオン使用

「基準超過」、「検出」と「基準項目」を AND 検索で検索し、「最終処分場」と「不法投棄・不適正処理」別に計数した。検索には Windows の検索コンビニオンを使用した。

2.3 ファイル統合

最終処分場毎に検索した水質データファイルを1つのエクセルファイルに統合し、経過を一覧にした。

3 結果及び考察

3.1 水質基準超過、検出状況

毎年立入検査をほぼ定期的に行っている最終処分場(一般廃棄物+産業廃棄物)と不法投棄・不適正処理の2通りに分けて、表1-A,Bに「基準超過」、「検出」の状況を頻度が多い順に整理した。

最終処分場では基準超過した頻度の内訳は、砒素の基準超過、検出の97%が産業廃棄物処分場で、鉛については7-8割が産業廃棄物処分場で残りが一般廃棄物処分場であった。最終処分場、不法投棄・不適正処理いずれの場合も廃棄物に含有されているか付着している金属類が多く検出されており、テトラクロロエチレンやトリクロロエチレンの様な有機溶剤や洗剤は鉛、砒素等の金属類に比べて少ない状況であった。また、平成7年度の「ジクロロメタン」*1(欄セイスイ

ロメタン以下追加13項目」の検出は更に少ない状況であった。

表1-A 最終処分場における放流水・浸透水等の検査結果

最終処分場	基準超過	最終処分場	検出
As	11	溶解性Mn	34
Pb	4	As	34
pH	2	溶解性Fe	25
Cr ⁶⁺	1	Pb	23
T-Hg	1	Cu	8
1,2-ジクロロエタン	1	Cr ⁶⁺	5
BOD	1	テトラクロロエチレン	4
n-Hex錫油	1	B	3
延べ項目数	22	F	2
		1,2-ジクロロエタン	1
		Zn	1
		T-Cr	1
		Se	1
		ジクロロメタン	1
		ベンゼン	1
		n-Hex錫油	1
		延べ項目数	145
		総検査件数	385

表1-B 不法投棄、不適正処理地における水の水質・廃棄物溶出試験・含有量

緊急(不法投棄、不適正処理)	基準超過	緊急(不法投棄、不適正処理)	検出
Pb	6	Pb	25
As	5	As	11
pH	2	T-Hg	2
ジクロロメタン	1	トリクロロエチレン	2
延べ項目数	14	ジクロロメタン	1
		PCB	1
		延べ項目数	42

3.2 最終処分場の水質の変遷

表2はA市の産業廃棄物処分場(安定型)を検索システムで検索した個々のエクセルファイルを1つのファイルに統合し、時系列に並べたものであるが BOD 値が数 mg/L 以上と大きい期間を中心に砒素及び1,2-ジクロロエタンが基準を超過し、鉛及びジクロロメタンを検出する傾向があった。

表2 最終処分場における浸透水の検査結果

所在地	A市	A市	A市	A市	A市	A市	A市
施設名称	A処分場	A処分場	A処分場	A処分場	A処分場	A処分場	A処分場
施設区分①(一廃・産廃)	産廃	産廃	産廃	産廃	産廃	産廃	産廃
施設区分②(安定型・管理型)	安定型	安定型	安定型	安定型	安定型	安定型	安定型
採水種別	浸出水	浸透水	浸透水	浸透水	浸透水	浸透水	浸透水
採水年	1999	2002	2003	2004	2005	2006	2007
水温(℃)	25.8	18.6	19.3	21	19.4	18.5	20
透視度(度)	30以上	7.4	22	50以上	24	50以上	50以上
pH	8.1	7.5	7.7	7.5	7.6	7.8	7.9
BOD(mg/l)	0.9	220	14.0	18	18	2.4	0.6
Pb(mg/l)	0.01未満	0.001未満	0.001未満	0.001未満	0.007	0.003	0.001未満
As(mg/l)	0.001未満	0.01	0.005	0.006	0.034	0.004	0.002
ジクロロメタン(mg/l)	0.02未満	0.004	0.002未満	0.002未満	0.002未満	0.002未満	0.002未満
1,2-ジクロロエタン(mg/l)	0.004未満	0.0037	0.0004未満	0.027	0.0005	0.0004	0.0004

同様の傾向が他にも、一般廃棄物処分場(管理型)を含めて散見されていた。

同時に何項目も検出されることから、廃棄物自体の問題で水質が基準超過するのではない場合でも、有機物が混入又は含有する廃棄物の腐敗等により流動化し、BOD 値が

上昇すると固着していた砒素等が溶出する可能性が考えられる。原因の可能性として、酸素の供給で硫黄酸化細菌や鉄酸化細菌が活性化し硫酸や鉄(Ⅲ)が生成し、酸の働きで金属が可溶化し、例えば鉄(Ⅲ)の作用で硫化銅が硫酸第二銅となり可溶化していることが想定される。¹⁾

- (1) $S + 3/2O_2 + H_2O \rightarrow SO_4^{2-} + 2H^+$ (硫黄酸化細菌)
 (2) $S^2- + 2O_2 \rightarrow SO_4^{2-}$ (硫黄酸化細菌)
 (3) $Fe^{2+} + 1/4O_2 + H^+ \rightarrow Fe^{3+} + 1/2H_2O$ (鉄酸化細菌)
 (4) $CuS + Fe_2(SO_4)_3 \rightarrow CuSO_4 + 2FeSO_4 + S$

4 まとめ

最終処分場、不法投棄等の水質検査結果(平成元～21年

度)等を電子化し、容易に検索可能とした。

最終処分場、不法投棄・不適正処理毎の2通りに分けて基準超過及び検出頻度が多い順に整理した。

一部の最終処分場でBOD値が数mg/L以上と大きい期間を中心に砒素及び1,2-ジクロロエタンが基準を超過し鉛及びジクロロメタンを検出する傾向があった。

5 参考文献

- 1) 鎌田樹志, 浅野孝幸, 三津橋浩行: バクテリアリーチング処理による廃棄物の有効利用支援技術, 北海道立工業試験場報告, No.293(1994)

黄色ブドウ球菌を原因とする食中毒事件の概要および 市販ソフトクリーム of 細菌汚染状況調査

A Case of Food Poisoning caused by *Staphylococcus aureus* and Study on Contamination of Soft Serve ice cream

有田 富和 中居 真代
宮崎 麻由 那須 務
渡邊 節 沖村 容子
Tomikazu ARITA, Masayo NAKAI
Mayu MIYAZAKI, Tsutomu NASU
Setsu WATANABE, Yoko OKIMURA

県内飲食店で発生した食中毒事件の原因を調査した結果、ソフトクリームから多量の黄色ブドウ球菌が検出された。この事件を受けて県内の飲食店で提供されているソフトクリームについて細菌学的調査を行ったところ、一般細菌数はいずれも基準値内であったが、大腸菌群は 26 検体中 5 件で陽性となり、黄色ブドウ球菌は増菌培養で 1 件が陽性となった。

キーワード：ソフトクリーム；黄色ブドウ球菌；大腸菌群；食中毒

Key words : soft serve ice cream ; *Staphylococcus aureus* ; coli form group bacteria ; food poisoning

1 はじめに

県内飲食店で食中毒事件が発生し、喫食した 6 グループ 13 名が嘔吐などの症状を呈し、一部は救急搬送される事態となった。調査の結果、原因は黄色ブドウ球菌に汚染されたソフトクリームであることが判明した。宮城県では大量に製造、販売されているアイスクリーム類については定期的に収去検査を実施しているが、黄色ブドウ球菌に関しては基準が定められておらず、検査を行っていない。また、飲食店等で提供されるソフトクリームについてはあまり収去検査の対象としてこなかった。

そこで今回の食中毒事件の検査結果について概説するとともに、県内飲食店で提供されているソフトクリームについて、保健所の協力のもと黄色ブドウ球菌を含めた細菌学的汚染の実態を調査したので報告する。

2 対象および検査方法

2.1 対象

2.1.1 食中毒検体

食中毒患者便、患者吐物、ソフトクリームを含む食品残品および従事者便を材料とした。

2.1.2 汚染実態調査

県内の飲食店で提供されているソフトクリーム 26 件を今回の調査で検出された黄色ブドウ球菌 1 株、当該食中試料とした。

2.1.3 薬剤感受性試験

毒事件で検出された黄色ブドウ球菌 1 株、過去の食中毒事件由来 8 株および食品収去検査で検出された 6 株、合

計 16 株の黄色ブドウ球菌を材料とした。

2.2 方法

2.2.1 食中毒原因菌検査

当センターの「食中毒検査業務管理要領」¹⁾に従い食中毒検査を実施した。さらに食品残品については一般細菌数は標準寒天培地（栄研化学）、黄色ブドウ球菌は酵素基質培地 X-SA 培地（日水製薬）を用いた混積平板培養法で定量し、市販のキット（エンテロトックス F「生研」：デンカ生研）を用いてエンテロトキシン量の定量を行った。

2.2.2 飲食店提供のソフトクリーム検査

一般細菌数の測定および大腸菌群の検出は、当センターで実施している食品収去検査の標準作業書記載の方法²⁾で実施した。概略を以下に示す。

検体を滅菌生理食塩水で段階希釈し、一般細菌数は標準寒天培地（栄研化学）を用いた混積平板培養法で出現集落数を計測した。大腸菌群の検出は 10 倍希釈液をデソキシコーレイト培地（栄研化学）に混積培養し、大腸菌群陽性となった検体は簡易同定キット（BBL クリスタル：日本 BD）を用いて菌種を同定した。

黄色ブドウ球菌の検査は 10 倍希釈液を卵黄加マンニット食塩培地（栄研化学）および X-SA 培地に直接塗抹すると同時に、5%NaCl 加 1%マンニットトリプトソイブイオン（自家調製以下 5ST）で増菌し上記 2 種の培地に塗抹した。陽性となった検体は簡易同定キットで菌種を再確認し、市販キット（SET-RPLA デンカ生研）を用いて毒素型別試験を実施した。

2.2.3 黄色ブドウ球菌の薬剤感受性試験

ドライプレート'栄研'(栄研化学)の記載の方法に従って薬剤感受性試験を実施した。

3 結果

3.1 食中毒菌検査

標準的な食中毒細菌検査を実施したところ、発症者の吐物とソフトクリームの残品より大量の黄色ブドウ球菌が検出された。ソフトクリームでは 8.1×10^8 cfu/g の黄色ブドウ球菌が確認された。

検出された黄色ブドウ球菌はすべてがエンテロトキシンA・Bともに陽性でソフトクリーム残品から検出されたエンテロトキシン量はエンテロトキシンA型が 3.2ng/g, B型が 0.4ng/g であった。

黄色ブドウ球菌による食中毒は、菌によって産生される食品中に蓄積された耐熱性の毒素であるエンテロトキシンを摂取することによって引き起こされる。黄色ブドウ球菌食中毒は、以前は主要な食中毒原因菌であったが、近年では全細菌性食中毒に占める割合は数%と少なくなっていた³⁾。しかしながら、適切な温度管理や衛生管理がなされない場合は毒素が容易に蓄積し、戦後最大の食中毒事件である雪印事件のような大規模な事件に発展するケースもあることから、依然として重要な食中毒原因菌である⁴⁾。黄色ブドウ球菌食中毒の原因となる食品は、おにぎりや弁当などの穀類加工品や生クリームなど様々であるが、アイスクリームなどの低温で製造され冷凍保存される食品の場合、原料が既に多量の毒素によって汚染されている場合を除き、少量の菌混入があったとしても菌が増殖して嘔吐症状を示す程度まで毒素が産生、蓄積される可能性はきわめて低いと考えられる。

実際にこれまで報告されているアイスクリーム類を原因とする食中毒の大半は、汚染された鶏卵や生乳などを介した腸管出血性大腸菌やサルモネラ菌によるものであり⁵⁾⁶⁾、今回のように黄色ブドウ球菌が原因となった事例はきわめて稀である。

保健所の調査の結果⁷⁾によると、今回の事件はソフトクリーム製造装置の自動殺菌機能が故障したまま14日間運転を続けたことにより、黄色ブドウ球菌が増殖して毒素を産生したことが原因と推定された。当初はソフトクリーム提供数が多かったため、汚染ソフトクリームに新しいソフトクリームミックスが継ぎ足され、黄色ブドウ球菌が発症菌量に達することはなかったが、徐々に菌が増殖し、上記のようにソフトクリーム残品1gあたり8億個を超える黄色ブドウ球菌量となり、産生されたエンテロトキシン量も当該食品を数g~数十g摂食することで嘔吐を発症しうる濃度になったと推察される。

3.2 飲食店提供のソフトクリーム検査

黄色ブドウ球菌食中毒の潜在的リスクを明らかにする

ために県下で販売されているソフトクリームを対象とした調査を実施した結果(表1)、一般細菌数は全26件中22件が300cfu/g以下、4件が630~2,100cfu/gで、すべての検体が成分規格に定める基準(10万cfu/g以下)を大きく下回っており、温度管理は適切であることが推定された。

一方、大腸菌群は5件で陽性(違反)となり、分離された菌について簡易キットによる菌種同定を行ったところ、*Kluyvera ascorbata*, *Enterobacter sakazaki*, *E. cloacae*, *E. gergoviae*, *Aeromonas hydrophila*, *Klebsiella oxytoca*, *K. pneumoniae*, *Pantoea agglomerans*と同定された。約20%の製品で大腸菌群が陽性となったことから、原料由来あるいは製造工程で外界から大腸菌群が高い頻度で混入していることが示唆された。

表1 ソフトクリーム検査結果

No	大腸菌群	細菌数 (cfu/g)	黄色ブドウ球菌	
			直接塗抹	増菌培養
1	陰性	10	陰性	陰性
2	陰性	10	陰性	陰性
3	陰性	150	陰性	陰性
4	陰性	150	陰性	陰性
5	陰性	0	陰性	陰性
6	陽性	1,810	陰性	陰性
7	陰性	0	陰性	陰性
8	陽性	2,060	陰性	陰性
9	陽性	1,310	陰性	陰性
10	陰性	0	陰性	陰性
11	陰性	30	陰性	陰性
12	陰性	0	陰性	陰性
13	陽性	10	陰性	陰性
14	陽性	630	陰性	陰性
15	陰性	10	陰性	陰性
16	陰性	10	陰性	陰性
17	陰性	0	陰性	陰性
18	陰性	290	陰性	陰性
19	陰性	120	陰性	陰性
20	陰性	30	陰性	陽性
21	陰性	10	陰性	陰性
22	陰性	10	陰性	陰性
23	陰性	0	陰性	陰性
24	陰性	0	陰性	陰性
25	陰性	40	陰性	陰性
26	陰性	0	陰性	陰性

黄色ブドウ球菌は直接塗抹検査ではすべての検体で陰性であったが、5ST液体培地による増菌培養を試みたところ、1件から検出された。この他に5件からは*S. epidermidis*(表皮ブドウ球菌)、*S. saprophyticus*, *S. haemolyticus*, *S. sciuri*が検出された。

これらの結果は、ソフトクリーム製造過程で微量の黄

色ブドウ球菌や表皮ブドウ球菌などの混入が生じていることを示すものである。

これらの製品は低温で適切に保管されれば健康被害に結びつく可能性は低いと思われるが、製造者に対しては原料の殺菌と製造装置の洗浄、冷凍状態の維持を徹底するよう啓発する必要があるものと思われた。

3.3 黄色ブドウ球菌の薬剤感受性試験

黄色ブドウ球菌は臨床的には院内感染の重要な原因菌でもあることから、今回の調査で検出された1株および過去の食中毒事件由来9株（食品由来7株、患者由来2株）、食品収去検査で分離された黄色ブドウ球菌6株についてドライプレートを用いた薬剤感受性試験を実施した。その結果、ABPC（アンピシリン）に耐性を示すものが4株（うち1株はEM（エリスロマイシン）にも耐性）が見つかったが、MPIPC（オキサシリン）に耐性を示す株はなく、MRSAのような临床上重要な薬剤耐性菌は認められなかった（表2）。

表2 黄色ブドウ球菌の薬剤感受性試験結果

由来	株数	耐性株数		
		MPIPC	ABPC	EM
飲食店のソフトクリーム	食品	1	0	0
食中毒	食品	7	0	2
食中毒	患者	2	0	1
収去検査	食品	6	0	1
計		16	0	4

4 まとめ

県内飲食店で発生した嘔吐を主訴とする食中毒事件の原因を調査した結果、飲食店で提供されたソフトクリームから8億個/gを超えるきわめて多量の黄色ブドウ球菌と同じく3.2ng/gのエンテロトキシンA、0.4ng/gのエンテロトキシンBを検出した。

この事件を受けて県内の飲食店で提供されているソフトクリームについて細菌学的調査を行ったところ、一般細菌数はいずれも基準値内であったが、大腸菌群は26検体中5件で陽性、黄色ブドウ球菌は増菌培養で1件が陽性となり、原料あるいは製造工程で汚染が生じていることが明らかとなり、原料の殺菌や製造工程での衛生・温度管理が重要であることが再認識された。

当センターで分離された黄色ブドウ球菌のうち16株について試験的に薬剤感受性試験を実施したところ、ABPC耐性3株、ABPC・EM耐性株1株を確認したが、临床上重要な薬剤耐性菌であるメチシリン耐性株（MRSA）は確認されなかった。

5 参考文献

- 1) 宮城県保健環境センター“宮城県保健環境センターにおける食中毒業務管理要領”平成18年7月4日(2006)
- 2) 宮城県保健環境センター“宮城県保健環境センターにおける食品等試験検査業務管理要領”平成17年2月24日(2005)
- 3) 病原微生物検出情報：22, 185-186(2001)
- 4) 病原微生物検出情報：22, 188-190(2001)
- 5) Seo K.H., Valentin-Bon I.E. and Brackett R.E : J Food Prot, 69, 639-643(2006)
- 6) De shrijver K., Buvens G., Posse B., Van den Branden D., Oosterlynck O., De Zutter L., Eilers K., Pierard D., Dierick K., Van Damme-Lombaerts R., Auwers C. and Jacobs R., Euro Surveill : 13, 8041(2008)
- 7) 宮城県環境生活部食と暮らしの安全推進課：平成22年宮城県食中毒事件録, 10-12(2010)

伊豆沼・内沼浄化対策としての堰操作と底質の巻上の検討

The Examination of Sluice Gate Operation and Resuspension Phenomenon for Water Pollution Control of Izunuma & Uchinuma

渡部 正弘 鈴木 壽雄 福地 信一 藤原 秀一
Masahiro WATANABE, Toshio SUZUKI, Shinichi FUKUCHI, Shuichi FUJIWARA

キーワード：伊豆沼・内沼；湖沼；堰操作；巻上；水質浄化

Key Words: Izunuma & Uchinuma; lake & marshes; sluice gate operation; resuspension; water pollution control

1 はじめに

伊豆沼・内沼は環境省が公表した「COD が高い水域」において平成 20、21 年度と 2 年連続湖沼の全国ワースト 1 位となっており水質の改善が急務とされている。沼の水質浄化対策として、下流堰操作による底質の系外排出が提案されており、堰操作のみで沼から底質が排出されるかどうか試験を行った。また、風が吹いた時の底質の巻上を利用した底質除去も提案されているので、伊豆沼中央に濁度計を設置して巻上の発生条件について調査した。

2 方法

〔堰操作試験〕伊豆沼下流の荒川の飯土井水門の可倒堰を倒し 2 日間沼出口と荒川沼口橋で採水調査を行った。

（開始日）平成 22 年 9 月 22 日（堰下 1.27m）、
平成 22 年 12 月 15 日（堰下 0.37m）

〔濁度連続観測〕伊豆沼中央に濁度計を設置し測定。

（期間）平成 20 年 9 月から 1 年間

〔気象データ〕伊豆沼近傍の気象庁築館アメダスデータによる。

3 結果及び考察

3.1 堰操作による底質排出の有無

平成 22 年 9 月及び 12 月の試験では自動採水器を用いて沼出口とその 400m 程下流の沼口橋で採水し、SS を測定した結果を図 1、図 2 に示す。それぞれの期間中に雨は降ったものの強い風は吹かず、沼では風による大きな巻上はなかった。図 1 では沼口橋で堰を倒した後数時間は SS が高くなった。これは河川に堆積していた底泥が河川の流速の上昇に伴い巻上がったためと考えられる。一方、沼出口における SS は堰操作の前後で変化はなかった。図 2 においても沼口橋で SS の若干の上昇が認められたが沼出口では堰操作の前後で変化はなかった。堰操作のみでは沼の底質の巻上は認められず沼から底質は排出されないことがわかった。

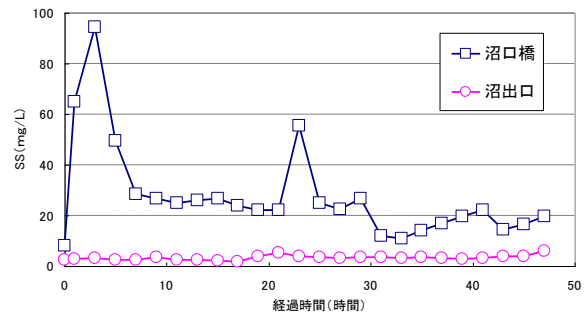


図 1 堰操作による SS 変化 (H22.9.22~24)

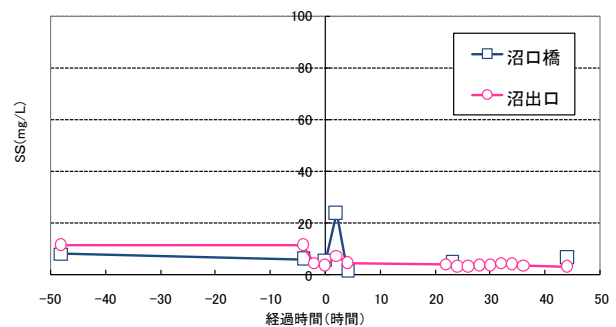


図 2 堰操作による SS 変化 (H22.12.15~17)

3.2 巻上の発生条件

伊豆沼中央における平成 20 年 9 月より 1 年間の濁度データから、底質の大きな巻上の月別の発生回数を抽出し図 3 に示す。巻上回数のおおよそは濁度ピークが上昇してから下降するまでを 1 回としている。1 年間だけの伊豆沼中央の濁度データからではあるが、12 月から 3 月にかけて巻上が多く発生する傾向があることがわかった。大きな巻上はほぼ最大瞬間風速 15m/s 以上の強風が継続する時に発生しており、この期間での築館アメダスデータでの 15m/s 以上の強風の月別の日数を図 4 に示す。強風時でも巻上が発生しない場合があったが、春から秋にかけてはハスが、厳寒期には氷がそれぞれ沼の水面を覆ったため巻上までには至らなかったものと考えられる。

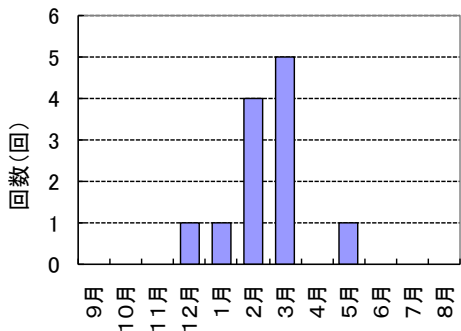


図3 伊豆沼中央での巻上回数 (H20.9~H21.8)

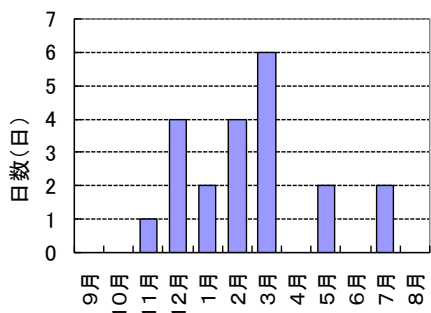


図4 築館アメダスでの最大瞬間風速 15m/s 以上の日数 (H20.9~H21.8)

3.3 堰操作と巻上を利用した底質排出

伊豆沼は下流域との水位差がほとんどないという地形的な制約から堰操作を行わなければ大きく沼水を排出することができないが、巻上時に堰操作をすれば、沼水と共に沼の底質を排出できると考えられる。近年は沼でハスが繁茂しているので春から秋までは巻上はほとんど期待できず、12月から3月頃であれば巻上時の堰操作の実施による底質の排出が可能と考えられる。この時期は沼への流入水量が少ない時期ではあるが、導水により流入水量を増やせば堰操作による水位低下を数週間で回復可能で、巻上を利用した底質排出が何度も実施できると考えられる。

4 まとめ

伊豆沼下流の堰操作のみでは沼から底質が排出されないことがわかった。また、沼底質の巻上は12月から3月にかけて多く発生する傾向があるので、この巻上時に堰操作を行えば効果的に沼から底質の排出ができ伊豆沼・内沼水質浄化対策に役立つと考えられる。

5 謝辞

堰操作の調査でご協力をいただいた登米市及び伊豆沼・内沼環境保全財団の方々に深謝いたします。

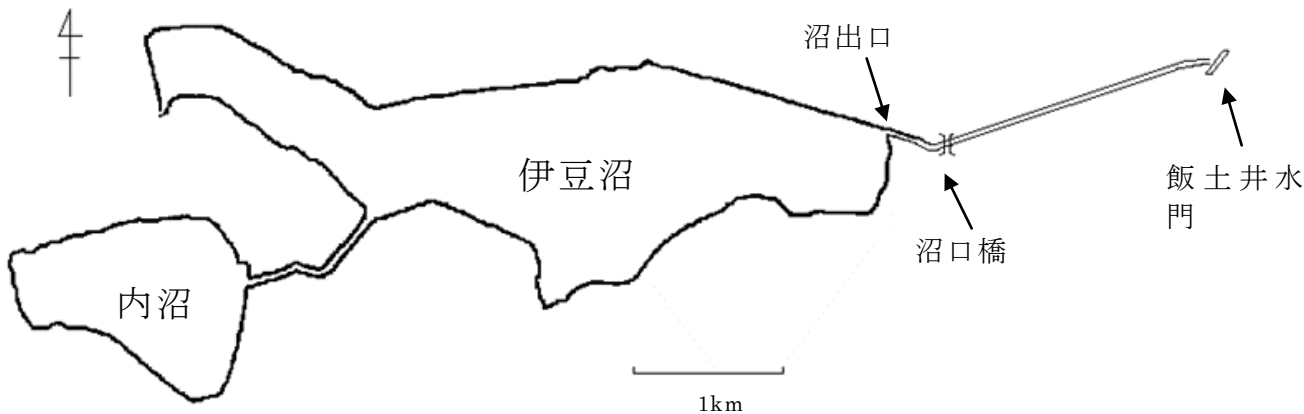


図5 伊豆沼・内沼調査地点

布巾の殺菌効果の検討

The Effect of Disinfection on Dish towel

那須 務 中居 真代 宮崎 麻由
有田 富和 渡邊 節 沖村 容子

Tsutomu NASU, Masayo NAKAI, Mayu MIYAZAKI
Tomikazu ARITA, Setsu WATANABE, Yoko OKIMURA

平成 21 年度に小規模菓子製造施設について実態調査を行ったところ、手指や製品に大腸菌群汚染を拡大した要因のひとつとして布巾が推定された。このことから今回は厚生省通知に従った洗浄・殺菌方法の検証を行ったところ通知法では完全に大腸菌が殺菌されることが分かった。また、小規模菓子製造施設における布巾の殺菌には煮沸、次亜塩素酸ナトリウム溶液への浸漬の他マイクロ波照射が有効であった。

キーワード：殺菌；布巾；大腸菌群；次亜塩素酸ナトリウム；マイクロ波照射

Key words : Dish towel ; Coliform bacteria ; Sodium hypochlorite ; Microwave irradiation

1 はじめに

洋生菓子は水分含量および栄養分が多いことから微生物が増殖しやすい食品である。そのため洋生菓子は厚生省通知の衛生規範¹⁾により大腸菌群陰性と定められている食品である。宮城県で平成 16～21 年度に実施した食品収去検査における大腸菌群の陽性率は和生菓子では 13.5% (87/643 件) であるのに対し洋生菓子では 26.2% (219/835 件) と高い陽性率を示している²⁾。

この状況を改善するために平成 21 年度に環境衛生技術職員研修の食品衛生部会調査として小規模の洋生菓子製造施設について実態調査を行った。その結果、大腸菌群が布巾 1 枚当たり約 $10^{5\sim7}$ cfu 検出された事および手指洗浄後に布巾で拭いた手指から洗浄前の手指よりも多い大腸菌群が検出された事から、大腸菌群汚染を拡大させた原因のひとつが布巾にあると推定された³⁾。

また、洋生菓子等から検出された大腸菌群について同定したところ、主な菌はクレブシエラやエンテロバクターであることが判明した¹⁾²⁾。

布巾の洗浄・煮沸方法については厚生省通知「大量調理施設衛生管理マニュアル」⁴⁾の方法（以下、通知法。）があり、今回はこの方法に従ってこれら大腸菌を付着させた布巾の洗浄・煮沸殺菌方法の検証を行った。さらに、煮沸、薬剤のほか、電子レンジを用いたマイクロ波照射⁵⁾による布巾の殺菌が考えられることから、大腸菌等を汚染させた布巾を用いて殺菌方法の比較検討を行った。若干の知見が得られたので報告する。

2 対象および検査方法

2.1 対象

市販の綿製の布巾を 10 平方 cm に切断して高圧蒸気滅菌したものを対象とした。（以下、布巾とする。）

供試菌株は *Escherichia coli* (ATCC25922 株 以下、

大腸菌。)、*Klebsiella pneumoniae* (洋生菓子分離株。以下、クレブシエラ。)、*Enterobacter cloacae* (布巾分離株。以下、エンテロバクター。)を使用した。以下、これらの 3 菌種のことを大腸菌等と省略する。ブレインハートインヒュージョンブイヨン(日水製薬製)に供試菌株を接種して 35℃で 24 時間培養した菌液を 3.3×10^6 cfu/ml の濃度に調整し、布巾に添加して汚染布巾を作成した。

2.2 方法

2.2.1 通知法による布巾の洗浄・殺菌方法の検証

布巾の洗浄・殺菌方法は通知法および一部を省略した 6 種類のケース(図 1)で行った。すなわち通知法は 40℃の微温水による水洗い 3 回、1%の中性洗剤での洗浄、40℃の微温水によるすすぎ 2 回の後、100℃で 5 分間の煮沸を行う方法である。布巾 1 枚をバットに入れて約 3L の流水を使用して洗浄を行うことを想定し、各工程では約 1/20 のモデルとし洗浄・煮沸を行い、その最終工程の処理液の 1ml をシャーレ 2 枚に分注し標準寒天培地(栄研化学製)に混釈し、35℃で 48 時間培養して出現コロニー数を算定した。

2.2.2 大腸菌等で汚染させた布巾に対する殺菌方法の検討

2.1 で示した方法で大腸菌等を付着させた汚染布巾を作成し、表 1 に示した下記の 7 ケースを設定し殺菌した。(ケース 7～13) 殺菌後はそれぞれの最終工程の処理液の各 1ml をシャーレ 2 枚に分注し標準寒天培地に混釈し、35℃で 48 時間培養して出現コロニー数を算定した。

処理工程	通知法	ケース1	ケース2	ケース3	ケース4	ケース5	ケース6
微温水 (40℃) 水洗い	↓		↓	↓	↓		
微温水 (40℃) 水洗い	↓			↓			
微温水 (40℃) 水洗い	↓			↓			
中性洗剤液 (1%) で洗浄	↓				↓	↓	↓
微温水 (40℃) 流水ですすぎ	↓				↓	↓	
微温水 (40℃) 流水ですすぎ	↓						↓
煮沸 (100℃ 5分間)	↓	↓					

図1 洗浄・殺菌方法

表1 殺菌方法・時間別検討内容

方法	殺菌方法	殺菌時間
ケース7	煮沸	5分間
ケース8	次亜塩素酸 Na 浸漬	20mg/l・5分間
ケース9	次亜塩素酸 Na 浸漬	10mg/l・5分間
ケース10	次亜塩素酸 Na 浸漬	1mg/l・5分間
ケース11	マイクロ波照射	2分間
ケース12	マイクロ波照射	1分間
ケース13	マイクロ波照射	30秒間

3 結果

3.1 通知法による布巾の洗浄・殺菌方法の検証

通知法およびケース1～6についての出現コロニー数を図2に示す。通知法およびケース1では完全に殺菌されたが、殺菌工程を省いたケース2～6では $1.2 \times 10^4 \sim 5.5 \times 10^5$ cfu/ml の大腸菌が検出された。

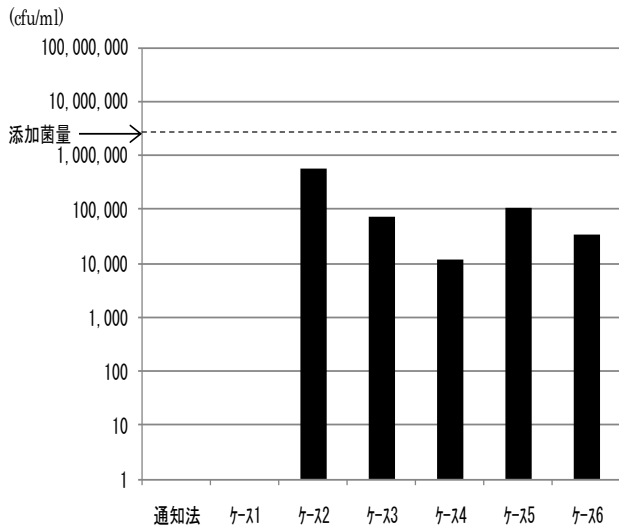


図2 通知法の布巾を洗浄・殺菌方法の検証

3.2 大腸菌等で汚染させた布巾に対する殺菌方法の検討

2.2.2 で示した7ケースで殺菌した時の出現コロニー数について図3に示す。

煮沸, 次亜塩素酸ナトリウム溶液への浸漬および1～2

分間のマイクロ波照射では大腸菌等は完全に殺菌されたが、30秒間のマイクロ波照射ではエンテロバクターが 3.5×10 cfu/ml 残存した。

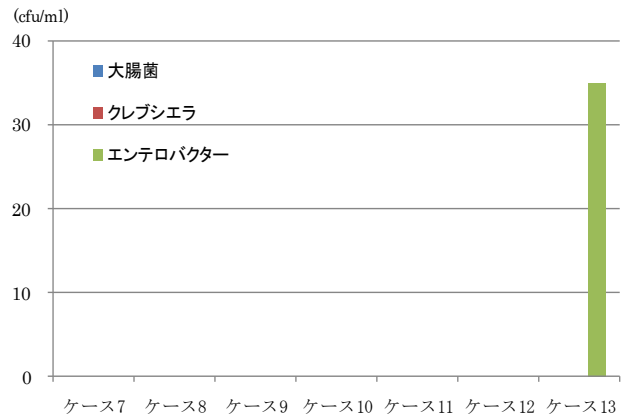


図3 大腸菌等で汚染させた布巾に対する殺菌効果

4 まとめと考察

今回の結果から以下のことが分かった。

- ・大腸菌で汚染させた布巾を通知法に従って洗浄および殺菌すると布巾は完全に殺菌されることを検証した。
- ・洗浄することによって大腸菌の大部分が除去された場合でも、煮沸殺菌を省略すると布巾には菌が残存していた。
- ・通知法で示された100℃で5分間の煮沸の代替となる殺菌方法について検討を行ったところ、1mg/l以上の濃度の次亜塩素酸ナトリウム溶液への5分間浸漬および1分間以上のマイクロ波照射では大腸菌等が完全に殺菌された。
- ・このことから今回検討した殺菌方法のうちではマイクロ波照射が最も短時間に殺菌できる方法であることが確認された。
- ・30秒間のマイクロ波照射でエンテロバクターが残存した理由としては、菌種による違いも考えられるが、30秒間照射では布巾の温度が60～70℃程度の温度上昇段階にあり十分な殺菌効果が得られなかったことが挙げられる。1分間以上の照射では80～90℃程度の温度がほぼ安定した状態になることから、照射時間の設定は1分間以上であることが必要であることが判明した。

布巾による施設や洋生菓子の汚染を防止するためには通知法の方法を励行することは基本であるが、ごく小規模の洋生菓子製造施設において布巾を衛生的に管理するために煮沸, 次亜塩素酸ナトリウム溶液への浸漬又はマイクロ波照射による殺菌を日常的に随時行うことが必要であると思われる。

ただし、次亜塩素酸ナトリウム溶液への浸漬は食品への塩素の残留が考えられ高濃度の薬剤使用は控えられる

べきであろう。また、マイクロ波照射では布巾のサイズや汚染の度合い、水分の含量によって照射時間を調整する必要がある。ここには示さないが1%アルコール、3%クエン酸、1%グリシンを殺菌に応用してみたが良好な結果は得られなかった。これらのことから、布巾の殺菌は再沸騰してから5分間加熱するものが最良であると思われる。

5 参考文献

- 1) 厚生省環境衛生局食品衛生課長通知“洋生菓子の衛生規範について”昭和58年3月31日、環食第54号(1983)
- 2) 佐々木ひとえ、菅原直子、加藤浩之、小林妙子、渡

邊節、山田わか、谷津壽郎、齋藤紀行：宮城県保健環境センター年報，**25**，115（2007）

- 3) 加藤 潤：小規模菓子製造施設における衛生指導，平成21年度宮城県環境衛生技術職員研修「全体研修会」発表抄録，4（2009）
- 4) 厚生省生活衛生局長通知“大量調理施設衛生管理マニュアル”平成9年3月24日，衛食第85号(1997)，最終改正平成20年6月18日，食安発第0618005号(2008)
- 5) 国府島泉，山本洋，山本マリリア明美，中村知明，長町栄子，寺坂昌子，金政泰弘：岡山医学会雑誌，**96**，385（1984）

宮城県内で鶏肉と散発下痢症患者から分離された サルモネラ菌の血清型，薬剤感受性試験および PFGE 解析

Serovars , Drug Susceptibility I and PFGE of *Salmonella*
from Chicken and Sporadic diarrhea in Miyagi

渡邊 節 中居 真代 宮崎 麻由
有田 富和 那須 務 沖村 容子

Setsu WATANABE, Masayo NAKAI, Mayu MIYAZAKI
Tomikazu ARITA, Tsutomu NASU, Yoko OKIMURA

2010年，県内に流通している鶏肉および食鳥処理場への搬入用ゲージのサルモネラ汚染を調査したところ 20株のサルモネラ属菌が検出された。血清型別は *Salmonella* *Infantis* (以下 SI) が 18株 (90%) を占めた。薬剤耐性試験の結果，薬剤別ではテトラサイクリンに耐性を示した株の検出率が高かった。2005年から2010年の6年間に宮城県内で分離された散発下痢症由来サルモネラ感染者株 (以下散発下痢症株) 268株を同定したところ，血清型別は 44種類に型別され，血清型では *S. Enteritidis* (以下 SE) 47株，*S. Typhimurium* (以下 ST) 34株，SI が 22株であった。鶏由来株，2008～2010年分離された散発下痢症由来株および 2009年食中毒由来の SI 株のパルスフィールドゲル電気泳動 (PFGE) 法による遺伝子解析の結果，鶏由来株と散発下痢症由来株に同一パターンが認められた。

キーワード：サルモネラ；鶏肉；散発下痢症；薬剤感受性；PFGE

Key words : *Salmonella* ; Chicken ; Sporadic Diarrhea ; Drug Susceptibility ; PFGE

1 はじめに

わが国におけるサルモネラ食中毒は 1989年以降増加していたが，1999年の 825件をピークにその後は減少傾向を示している。しかし，依然として食中毒原因細菌としてはカンピロバクターに次いで第 2位を占める¹⁾。近年の食品流通の広域化に伴ない食中毒事件は大規模化し，過去 10年間の患者数 500人以上の食中毒事例 27件のうち 5件がサルモネラによる事例である²⁾。また，統計上処理される食中毒による患者の他に，市中では散発的下痢症患者としてサルモネラ感染者が存在している。また，検出される菌種も従来のパンデミック型である SE 以外に多くの血清型分離され，薬剤耐性菌の増加も指摘されている。当所では食中毒や diffuse outbreak を早期に探知する目的で 2005年から散発下痢症株の分与を受け，菌の同定および薬剤耐性を調査してきた³⁾。2010年はこれに加えて，市販鶏肉および食鳥処理場への鶏搬入用ゲージのふきとりを実施し，散発下痢症株と比較したので報告する。

2 対象および検査方法

2.1 対象

2010年6月から11月まで宮城県内で購入した国産鶏肉 50件を対象としサルモネラ菌を分離した。また 2010年9月，食鳥処理場に搬入されるゲージのふきとりを 20検体実施した。

2005年から2010年までに宮城県医師会健康センタ

ーより分与された散発下痢症 268株を分析した。また，PFGE は，2010年検出の鶏関連検出株 8株，2008～2010年の散発下痢症株 7株および 2009年発生した食中毒由来 1株の合計 16株の SI 株について実施した。

2.2 方法

鶏肉は BPW 培地 (栄研化学) 225ml に 25g を無菌的に量り取り 35°C±1°C, 22±2 時間前培養後，培養液 0.1ml を RV 培地 (MERCK) 10ml に接種し 42±0.5°C, 22±2 時間培養し，MLCB 寒天培地 (日水製薬)，DHL 寒天培地 (栄研化学) および XSAL (日水製薬) に塗抹した。疑わしい集落は TSI 寒天培地 (栄研化学)，LIM 培地 (栄研化学)，VP 半流動培地 (栄研化学) に接種して生化学性状を確認後，サルモネラ免疫血清 (デンカ生研) を用いてスライド凝集法により O 抗原を，試験管凝集法により H 抗原を決定した。

鶏搬入用ゲージ 20 件はふきふきチェック III (栄研器材) でふきとり，付属のリン酸緩衝生理食塩水 (以下 PBS) 10ml に希釈した。混和後 BPW に 1ml 接種し，鶏肉同様に検査した。

分与された散発下痢症株は，SS 寒天培地 (栄研化学) で再分離し生化学性状を確認後鶏肉等と同様に O 抗原と H 抗原を決定し，菌を同定した。

SI 分離株の薬剤感受性試験は，NCCLS 法規格に準拠した一濃度ディスク拡散法 (KB ディスク「栄研」：栄研化学) を用いた。すなわち，菌株をトリプトソイブイヨンで 35°C で培養し McFarland 0.5 になるよう滅菌生

理食塩水で調整したものを被検菌液とし、厚さ4mmに作成したミュラーヒントン寒天培地(OXOID)に滅菌綿棒で塗抹した。アンピシリン(ABP:10 μ g)、フォスホマイシン(FOM:50 μ g)、ノロフロキサシン(NFX:10 μ g)、トスフロキサシン(TEX:5 μ g)、レボフロキサシン(LVX:5 μ g)、セファロチン(CET:30 μ g)、セフォタキシム(CTX:30 μ g)、セフトジジム(CAZ:30 μ g)、セフェピム(CFP:30 μ g)、セフォキシチン(CFX:30 μ g)、カナマイシン(KM:30 μ g)、テトラサイクリン(TC:30 μ g)、イミペネム(IPM:10 μ g)の13剤のディスクを各シャーレ4剤ずつ置き、35 $^{\circ}$ Cで16~18時間培養し、添付文書記載の基準に従って判定を行った。

PFGEによる遺伝子解析はハートインヒュージョンブイオン培地(栄研化学)で一夜培養し、Ribotら⁴⁾の方法に準じてプラグを作成し、35UのXba IおよびBlu Iで37 $^{\circ}$ C一晚処理した。電気泳動条件は0.5 \times TBEbuffer, 1%SeaKemGold アガロースゲル、泳動条件は電圧6.0V/cm, パルスタイム2.2~63.8sec, 泳動時間19hで、CHFF Mapped (BIO RAD社)を用いて行った。泳動後、エチジウムブロマイドで染色し、切断パターンを比較した。系統樹解析はFinger-Printing II, Dice係数によった。

3 結果および考察

3.1 サルモネラ汚染状況

2010年県内で購入した市販鶏肉15件(30.0%)から16株のサルモネラ菌が、鶏搬入用ゲージふきとり検体4検体(20.0%)から4株のサルモネラ菌が分離された。両者からの検出は19検体(27.1%)であった。分離株の血清型はSIが18株(90.0%)STとS.Virchowが各1株(5.0%)であった(表1)。

3.2 散発下痢症サルモネラ感染者の血清型

2005年から2010年の6年間に分与を受けた散発下痢症株は268株でそのうち血清型が判明した44菌種254株の中では、SEが最も多く47株(18.5%)、次いでST34株(13.4%)、SI22株(8.6%)でこの3菌種で全体の40.5%を占めた。SEは概ね毎年高頻度に検出されたが、他は年によって検出された血清型に特徴があり、2007年はST、2008年はSTとS.Bareilly、2009年はSI、2010年はS.RissenとSIが多かった(表2)。

3.3 薬剤感受性試験

鶏肉から分離された菌株および2005~2010年散発下痢症サルモネラ感染者株の薬剤耐性出現状況と各薬剤に対する薬剤耐性率を表3、表4に示した。鶏肉と鶏搬入用ゲージのふきとりから検出された20株のサルモネラ分離株のうち薬剤感受性菌は14株(70%)でABP, CET, CFX, KM, TCいずれかの薬剤に耐性を示した。鶏肉

はTCやKMに耐性を示し、搬入用ゲージは加えてABPやCFXに耐性を示した。鶏関連株で1剤耐性株は5株、2剤耐性株は4株、4剤耐性株は5株であった。薬剤別にみるとTCに耐性がある株は12株、KM耐性が6株、ABP耐性とCET耐性は各5株、CFX耐性株は4株であった。鶏搬入用ゲージから分離した株はすべてABP, CET, CFX, TC4剤の4剤に耐性があった。散発下痢症株はいずれかの薬剤に耐性をもつものは54株であった。1剤耐性株が39株、2剤耐性株が14株で、3剤耐性菌も1株あった。薬剤別にはTCに耐性をもつ株が40、ABP耐性が12、FOM耐性10、KM耐性が8であった。

3.4 PFGEによる遺伝子解析

制限酵素Xba Iで処理し、Dice係数で解析した結果を示す(図1)。検出された菌株は散発下痢症由来の1株を除き(レーン16:グループE)80%以上の相同性を示した。ふきとり検体由来2株(レーン1, 2)、2010年散発下痢症由来1株(レーン3)と鶏肉由来株(レーン4)がAグループに入り、鶏肉由来2株(レーン5, 6)と2008年(レーン7)および2010年散発下痢症株(レーン8)がBグループとなった。さらに、鶏肉3株(レーン9~11)がグループCに、2009年2月発生の食中毒由来株(レーン12)と2009年散発下痢症由来株(レーン13~15)がグループDになった。

4 まとめ

サルモネラ食中毒発生病数は減少傾向にはあるが、7~9月の夏季を中心に多発しており、本県のサルモネラ食中毒事例や散発下痢症感染者発生も同時期に集中している。今回県内で購入した国産鶏肉からは30%の高率でサルモネラが分離され、検出された菌種はほとんどがSIであった。これは他の各報告^{5)~8)}と同様であった。

本県の過去6年間の散発下痢症由来株はSE, ST, SIで全体の38.4%を占めている。その内訳は、国立感染症研究所感染症情報センターの2007年から2010年の全国集計でSEは33.8%であるのに対し、本県は17.5%で、SEの全体に占める割合は少なかった。一方、STは全国の倍で12.7%、SIは全国とほぼ同じ8.2%であった。SEの検出率の低下に伴って、SE以外の血清型が分離されるようになっているが、多くのサルモネラが鶏を宿主としていることから、農場でのサルモネラ排除が重要な食品衛生対策となると思われる。

薬剤耐性パターンは血清型によって特徴があった。散発下痢症由来SEは2.2%、STは32.4%、SIは40.9%で竹田ら⁹⁾の報告60.3%、100%、83.3%とは大きく異なった。鶏由来SI薬剤耐性株は72.2%であった。竹田らの報告ではブロイラー腸管内容物から分離SI株は100%耐性菌で、同様の結果が得られた。サルモネラの治療薬として臨床的に有効性があると認められている

ABPC, FOM に耐性をもつものが、散発下痢症由来株 22 株、鶏由来 5 株あり、また、耐性薬剤数も散発下痢症由来株より鶏由来株が多かったのは、農場での飼育中に疾病予防や発育促進の目的で投与された抗生剤の使用歴がそのまま反映されたものと考えた。今後の動向を注視することが必要である。ニューキノロン系薬剤 NFX, TEX, LVX に耐性の株はなかった。

PFGE による遺伝子解析の結果、制限酵素 Xba I では大きく 5 グループに分けられた。2010 年散発下痢症由来の 1 株 (レーン 16 : E) を除き 4 グループ (A~D) は 80 数%以上の相同性となった。A, B および C のグループ内には、鶏肉由来株と散発下痢症由来株が含まれ、D グループには 2009 年発生した食中毒由来株と散発下痢症株が入った。分離の由来、散発下痢症の場合は採材された地域、時期が異なるにもかかわらず、類似のパターンを示す株による汚染が示唆された。特定の菌株が広く環境を汚染し、食品を介した diffuse outbreak があると思われる。

SI が鶏肉を高濃度に汚染し、散発下痢症由来の株と遺伝子パターンが一致することは、鶏肉の不適正な取扱いによって下痢症や食中毒が発生していることを示唆した。SE では鶏卵、鶏卵加工品の取扱いや製品の規格基準、表示などを策定し様々な分野で汚染の減少化に力を注いだことが食中毒防止に有効に働いている。SI や ST についても同様の鶏に特化した政策が必要で、農場の清浄化から流通、販売、家庭での取扱いを含めた対策が必要で

あろう。また、他の食肉の SI 汚染状況も確認し、総合的な体系で衛生行政を推進していくことが重要と考える。

5 参考文献

- 1) 国立感染症研究所：病原微生物検出情報，**30**，203 (2009)
- 2) 食品衛生研究：**60**，9，90 (2010)
- 3) 小林妙子，高橋恵美，谷津壽郎，齋藤紀行：宮城県保健環境センター年報，**26**，44-47 (2008)
- 4) Original Article : N Engl J Med, **341**，1420-1425 (1999)
- 5) 厚生労働省医薬食品局食品安全部監視安全課長通知 “平成 22 年度食品の食中毒菌汚染実態調査について” 平成 23 年 3 月 30 日，食安監発 0330 第 1 号 (2011)
- 6) 久高潤，近藤海和，嘉数浩，中村正治，平良勝也，糸数清正，安里龍二：沖縄県衛生環境研究所年報，**40**，65-70 (2006)
- 7) 中嶋洋，狩屋英明，大島律子，国富泰二：岡山県環境保健センター年報，**28**，63-67 (2004)
- 8) 山崎史子，永田暁洋，石畝史，浅田恒夫：福井県衛生環境研究センター年報，**6**，137 (2008)
- 9) 竹田義弘，東久保靖，小川博美：広島県保健環境センター研究報告，**10**，19-27 (2002)
- 10) 山田万希子，原信行，白木豊，松川洋子，野田伸司：岐阜県保健環境研究所報，**14**，23-27 (2006)

表 1 市販鶏肉及び食鳥処理場搬入ゲージのサルモネラ汚染状況 (株数)

検体	検体数		検出株数	
	検体数	検出数 (%)	血清型	検出数 (%)
市販鶏肉	50	15(30.0)	Infantis	14(87.4)
			Typhimurium	1(6.3)
			Virchow	1(6.3)
搬入用ゲージ	20	4(20.0)	Infantis	4(100.0)
鶏肉全体	70	19(27.1)	Infantis	18(90.0)
			Typhimurium	1(5.0)
			Virchow	1(5.0)

表 2 市中サルモネラ感染者由来血清型別

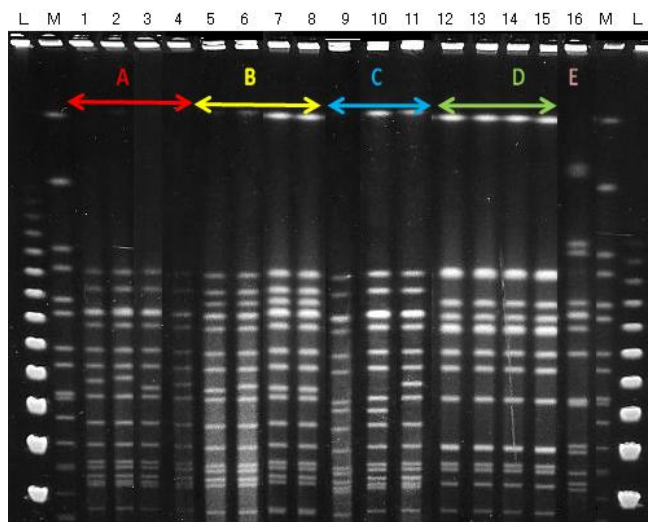
合計	2005年		2006年		2007年		2008年		2009年		2010年	
Enteritidis 47	Enteritidis 12	Enteritidis 9	Typhimurium 8	Typhimurium 13	Enteritidis 14	Rissen 15						
Typhimurium 34	Istanbul 12	Typhimurium 5	Istanbul 7	Bareilly 7	Infantis 3	Enteritidis 8						
Infantis 22	Typhimurium 6	Infantis 4	Infantis 5	Braenderup 6	Typhimurium 2	Infantis 5						
Istanbul 19	Saintpaul 5	Agona 3	Saintpaul 4	Infantis 4	Saintpaul 2	Nagoya 3						
Rissen 15	London 3	Saintpaul 2	Hader 4	Virchow 2	その他 6	Agona 2						
Saintpaul 14	Agona 3	Stanly 2	Bareilly 3	Carvallis 2		Thompson 2						
Bareilly 11	Braenderup 3	Virchow 2	Montevideo 2	Kottbus 2		その他 10						
Braenderup 11	Montevideo 3	その他 14	Thompson 2	Nagoya 2								
Agona 8	その他 16		Enteritidis 2	Enteritidis 2								
Virchow 7			その他 9	その他 6								
その他 80												
計 268	63	41	46	46	27	45						

表3 鶏肉由来株の薬剤耐性パターン

血清型	耐性株 (%)	耐性パターン			耐性株数
		1剤	2剤	4剤	
Infantis	4(22.2)	TC			4
	1(5.5)	KM			1
	4(22.2)		KM,TC		4
	4(22.2)			ABP,CET,CFX,TC	4
Typhimurium	1(100.0)			ABP,CET,KM,TC	1
		5	4	5	14

表4 散発下痢症由来株の薬剤耐性パターン (2005~2010年)

血清型	耐性株 (%)	耐性パターン			耐性株数
		1剤	2剤	3剤	
Enteritidis	1(2.2)	ABP			1
Typhimurium	6(17.6)	TC			6
	3(8.8)		ABP,TC		3
	1(2.9)		FOM,TC		1
Infantis	1(2.9)			ABP,KM,TC	1
	5(22.7)	TC			5
	1(4.5)	KM			1
Agona	3(13.6)		KM,TC		3
	2(25.0)	FOM			2
Bareilly	7(63.6)	FOM			7
Braenderup	1(9.1)	ABP			1
Hader	4(100.0)	TC			4
Heidelberg	1(50.0)		ABP,TC		1
Istanbul	7(36.8)	TC			7
Isangi	1(100.0)		KM,TC		1
Kottbus	1(50.0)	ABP			1
Neumuenster	1(100.0)	TC			1
Saintpaul	3(21.4)	TC			3
Schwarzengrun	1(50.0)		KM,TC		1
Yovokome	1(100.0)	TC			1
04:i-	1(10.0)		ABP,KM		1
	3(30.0)		ABP,TC		3
		40	14	1	55



L: Lambda Ladder
M.S. Braenderup
レ-1: 鶏糞入用サ-ツ(A農場) レ-9: 鶏肉(2010年/6月)
レ-2: 鶏糞入用サ-ツ(B農場) レ-10~11: 鶏肉(2010年/11月)
レ-3: 散発下痢症由来株(2010/大崎) レ-12: 食中毒(2009年2月/気仙沼)
レ-4: 鶏肉(2010/6) レ-13: 散発下痢症由来株(2009/仙南)
レ-5~6: 鶏肉(2010/3) レ-14: 散発下痢症由来株(2009/加美)
レ-7: 散発下痢症由来株(2008/岩沼) レ-15: 散発下痢症由来株(2009/蔵王)
レ-8: 散発下痢症由来株(2010/蔵王) レ-16: 散発下痢症由来株(2010/青葉区)

図1 Salmonella Infantis の PFGE パターン (Xba I 処理)

うなぎ中のマラカイトグリーン分析における脂質精製と 溶解溶媒の違いによる標準溶液の安定性の検討

Study of Lipid Clean-up on Malachite green Analysis in Eels and of Stability of Standard Solutions with Difference of Solvents

千葉 美子 吉田 直人 高橋 祐介 氏家 愛子
Yoshiko CHIBA, Naoto YOSHIDA, Yusuke TAKAHASHI, Aiko UJIIE

うなぎ中のマラカイトグリーン検査のための試験溶液調製法について検討した。試験溶液の調製溶媒をマラカイトグリーンは0.2%ギ酸/アセトニトリル、ロイコマラカイトグリーンはアセトニトリルとすることにより、マラカイトグリーンからロイコマラカイトグリーンへの変換およびロイコマラカイトグリーンからのメチル基脱離を抑制できた。また、脱脂操作による、ロイコマラカイトグリーンのヘキサンへの移行を抑制するため、ヘキサン/アセトニトリル分配に代え、精製用ミニカラム InertSep C18 を用いることにより脱脂効果を得た。この方法によりマラカイトグリーン、ロイコマラカイトグリーンとそれらのサロゲートとの回収率も一致し、サロゲートの回収率も40%以上を確保できた。

キーワード：うなぎ；マラカイトグリーン；ロイコマラカイトグリーン；変換；安定同位元素標識標準品

Key words：eel；Malachite green；Leucomalachite green；conversion；surrogate

1 はじめに

動物用医薬品マラカイトグリーン(以下 MG と略す、図1参照)は、食品衛生法により、食品において「不検出」とされる農薬等の成分である物質として規定されている。MGの告示による試験法¹⁾²⁾は、分析対象をMGおよびその代謝物であるロイコマラカイトグリーン(以下 LMG と略す)とし、うなぎを試験に供する場合には、安定同位元素標識標準品(以下サロゲートと略す)を用いた内標準法又は標準添加法により試験を行うことと改正されている。しかし、この検査法は、脱脂に用いるヘキサンに、LMGが移行するということが指摘されており³⁾、当所の検査においても、LMGとそのサロゲートの回収率が一致せず、サロゲートの回収率が40%を下回る結果となった。さらに、試験溶液の溶解溶媒を告示法によりアセトニトリルとすると、MGからLMGへの変換が起こることなどが問題となり、大熊らは代替法の検討結果を報告⁴⁾した。

しかし、その後の検討により大熊らの方法は、ミニカラムの担体容量が小さいため、試験品の含脂質量によっては脱脂が不十分な試料があること、また、サロゲートを使用しない方法であるため、絶対検量線から求めた平均回収率が70%であり、「食品中に残留する農薬等に関する試験法の妥当性評価ガイドライン⁵⁾」(以下ガイドラインと略す)の真度(回収率)の目標値70~120%の範囲内にあるものの、必ずしも満足できる結果ではなかった。

そこで、LMGとそのサロゲートの回収率が一致しない原因を明らかにし、ミニカラム精製による脱脂の検討

を行ったところ、良好な結果が得られたので報告する。

2 試料および検査方法

2.1 試料

試料は、2010年度買上検査試験品のうなぎ蒲焼を、フードプロセッサーにより細切、均一化後凍結保存したものを使用した。

2.2 試薬等

2.2.1 標準品および標準原液

MG標準原液は、マラカイトグリーンしゅう酸塩1,000 μ g/mLアセトニトリル溶液、マラカイトグリーン-d5(以下MG-d5と略す)標準品は、マラカイトグリーンしゅう酸塩-d5、LMG標準品およびロイコマラカイトグリーン-d6(以下LMG-d6と略す)標準品はいずれも、林純薬工業(株)製を用いた。MG以外の標準原液は、告示法に則り、それぞれ100 μ g/mLになるようにメタノールを用いて調製し、LMG、LMG-d6はアセトニトリルで、MG、MG-d5は0.2%ギ酸/アセトニトリルを用いて所定の濃度に希釈した。

2.2.2 試薬

ギ酸は、和光純薬工業(株)LC/MS用を、その他の試薬類は、関東化学(株)残留農薬試験・PCB試験用(300倍濃縮)および高速液体クロマトグラフィー用を用いた。

2.2.3 精製用ミニカラム

Bond Elut Jr. SCX(500mg, Varian)
Sep-pak Vac C18(1g, Waters)
InertSep C18(1g, GL Sciences)
Empore C18 Extraction Disks(3M)

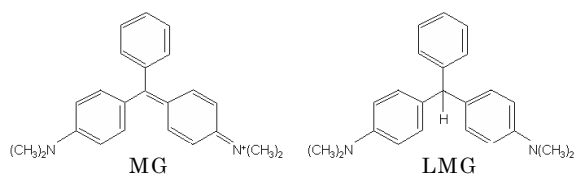


図1 MG および LMG の構造

表1 LC 測定条件

カラム :	Inertsil ODS-3(GL Sciences) 2.1×150mm
移動相 :	A : 10mMギ酸アンモニウム B : アセトニトリル A/B : 90/10(0min) → 0/100(12min) → 0/100(17min)
流速 :	0.3mL/min
カラム温度 :	40°C
注入量 :	5μL

表2 MS 条件と測定イオン

イオン化法 :	化合物	m/z	フラグメンター電圧(V)
ESI(Positive)	MG	329	200
キャピラリー電圧 : 1,500V	MG-d5	334	200
ネブライザーガス : 窒素 50psi	LMG	331	190
乾燥ガス流量 : 窒素 12.0L/min	LMG-d6	337	190
乾燥ガス流量 : 350°C			

表3 LC 測定条件

カラム :	TSK-GEL Super-ODS(東ソー) 2.1×100mm
移動相 :	A : 10mMギ酸アンモニウム B : アセトニトリル A/B : 70/30(0min) → 0/100(8min) → 0/100(15min)
流速 :	0.2mL/min
カラム温度 :	40°C
注入量 :	5μL

表4 MS/MS 条件と測定イオン

イオン化法 :	化合物	Q1>Q3(m/z)	DP(V)	CE(V)
ESI(Positive)	MG	329>208	56	47
測定 : MRM	MG	429>239	56	113
イオン源温度 : 500°C	MG-d5	334>213	61	47
ネブライザーガス流量 : 15L/min	MG-d5	334>244	61	101
カーテンガス流量 : 8L/min	LMG	331>239	56	47
コリジョンガス流量 : 6L/min	LMG	331>223	56	75
	LMG-d6	337>240	61	45
	LMG-d6	337>224	61	75

2.3 装置および測定条件

LC/MS : Agilent Technologies 製

1100 シリーズ LC/MSD

LC/MS/MS : AB Sciex 製 API3000

LC/MS 測定条件を表1および表2に示した。また、LC/MS/MS 測定条件を表3および表4に示した。

2.4 試験溶液の調製

試験溶液の調製方法について、詳細を図2に示した。試験溶液は、アセトニトリルにより調製したものを LMG および LMG-d6 の試験溶液とした。また、その半量の 500μL に 10%ギ酸を 10μL 添加し、0.2%ギ酸/アセトニトリル溶液に調製したものを MG および MG-d5 の試験溶液とした。

3 結果および考察

3.1 希釈溶媒の検討

MG は生体内で酵素により還元され、LMG に代謝さ

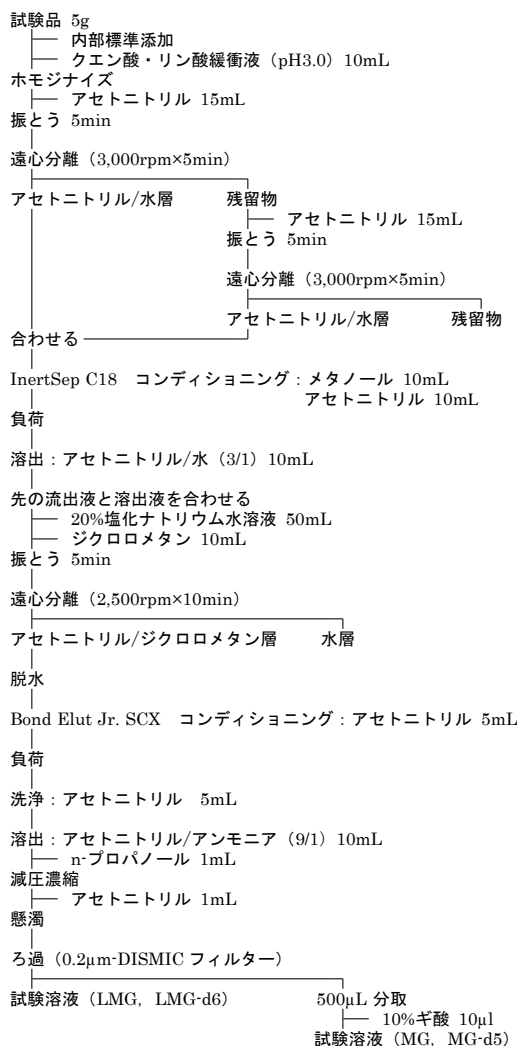


図2 試験溶液の調製法

れるが、アセトニトリルで調製した標準液に同様の現象が見られたため、MG、MG-d5、LMG および LMG-d6 標準液をそれぞれアセトニトリルおよび 0.2%ギ酸/アセトニトリルで調製し、経時変化を LC/MS により測定した。アセトニトリルで調製した各標準溶液の経時変化について、調製直後の測定アバンダンスを 100%として、その増減率の結果を図3に示した。時間の経過とともに MG の濃度が減少し、それに伴い MG が変換して生成されたと思われる LMG の濃度が上昇した。同様に MG-d5 でも MG と同じような減少傾向を示したが、生成した LMG-d6 の増加率は、LMG に比べて小さいものとなり、この増加率の差が分析中における LMG とそのサロゲートの回収率が一致しない原因と推測された。

一方、LMG および LMG-d6 アセトニトリル標準溶液では、8 時間後まで減少は認められず、また、MG、MG-d5 も検出されなかった。

次に MG および MG-d5 の LMG および LMG-d6 への変換を抑制する目的で、0.2%ギ酸/アセトニトリルを用いて標準溶液を調製し、経時変化を測定した。その結果を図4に示した。溶媒を酸性にすることにより、8 時間後まで MG および MG-d5 は安定で、LMG および

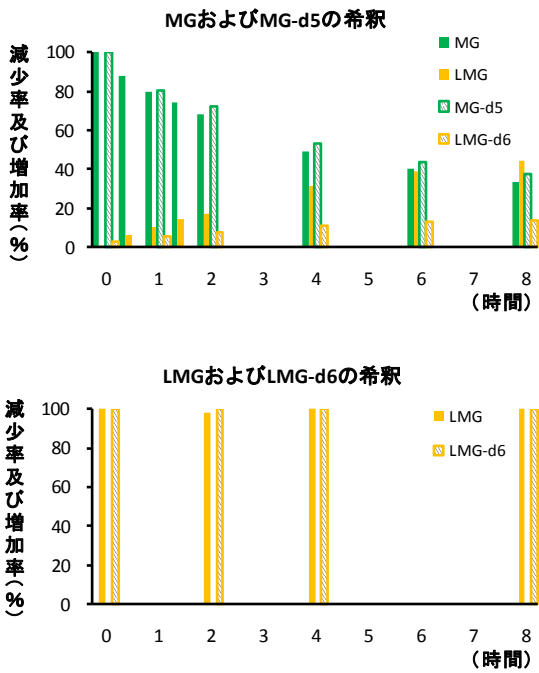


図3 標準溶液のアセトニトリル調製による経時変化

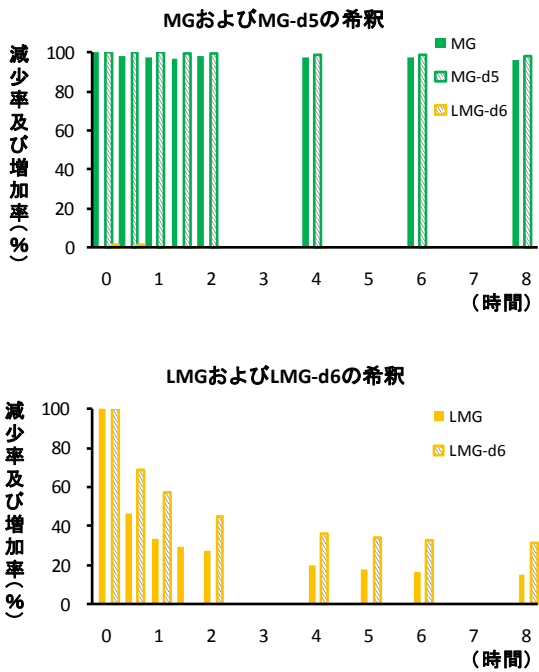


図4 0.2%ギ酸/アセトニトリル調製による経時変化

LMG-d6 への変換は起こらなかった。

一方、LMG および LMG-d6 は、時間の経過とともにアブダンスの低下が認められ、両者の低下傾向は一致しなかった。また、MG および MG-d5 は検出されなかった。

以上の結果より、MG および LMG の測定では、Bond Elut Jr. SCX による精製後、濃縮乾固した残留物にアセトニトリル 1ml を加え、溶解・ろ過したものを LMG および LMG-d6 の試験溶液に、この溶液の半量に 0.2% の濃度になるように 10%ギ酸を添加して 0.2%ギ酸/アセトニトリル溶液に調製したものを MG および MG-d5

の試験溶液とすることとした。

3.2 0.2%ギ酸/アセトニトリル溶液中での LMG 経時変化の原因

0.2%ギ酸/アセトニトリルで調製した LMG および LMG-d6 のアブダンス低下が、HPLC 分析カラム内で生じている可能性を検討するため、一般的な ODS 系カラムについて 4 社の製品を抽出し、それらを用いて LC/MS により LMG および LMG-d6 の標準溶液測定を行った。その結果を図 5 に示した。すべての分析カラムで LMG および LMG-d6 におけるアブダンスの低下が認められたが、その低下率は分析カラムによって大きく

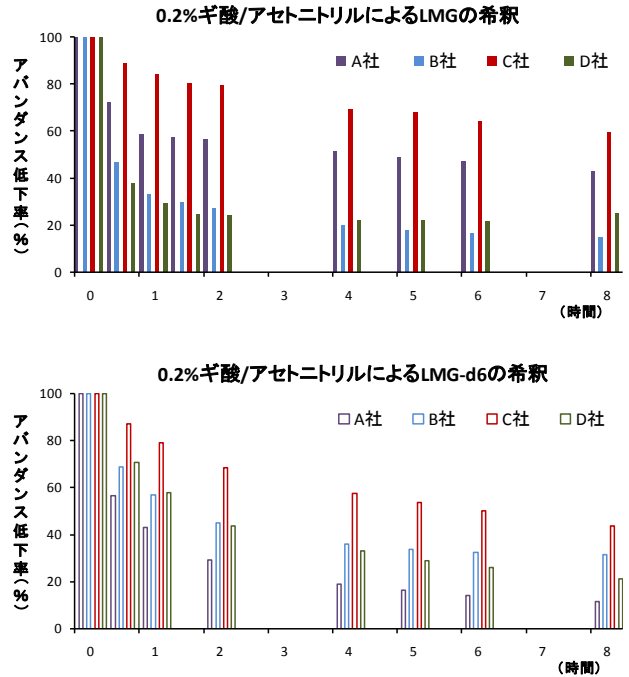


図5 HPLC 分析用カラムによる経時変化

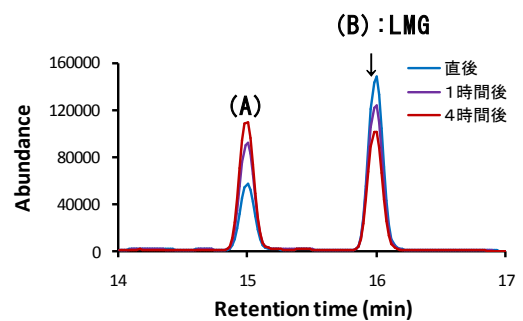


図6 LMG 標準液の LC/MS スキャン分析によるトータルイオンクロマトグラム

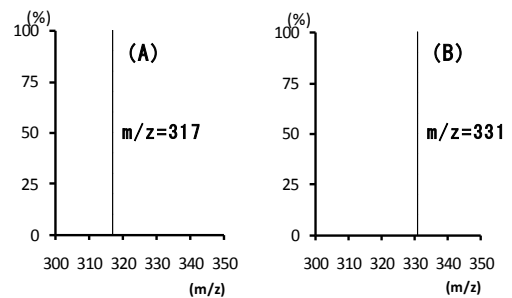


図7 各ピークの MS スペクトル

異なり、同じ分析カラムでの LMG および LMG-d6 の減少率の差も、各社のカラム間で大きな差があった。そこで、LMG が減少する原因究明のため、LMG のスキャン分析を実施したところ、LMG のピークの前に未知のピークが検出され(図 6 参照)、これが時間の経過とともに増大した。スペクトル解析をした結果、LMG の測定イオン 331 に対して、メチル基が一つ取れたと推測される 317 のイオンが検出された(図 7 参照)。この現象は、LMG-d6 でも同様に起こっていることが確認できた。分析カラムを使用しないフローインジェクション分析

(FIA) で検出されたイオンは、LMG では 331 のみ、LMG-d6 では 337 のみであったことから、分析カラムを通過する際にメチル基の脱離が起きていると推定された。

3.3 ミニカラムによる脱脂方法の検討

ヘキサンによる脱脂に代わる方法として、脂質の除去に有効と考えられる C18 系ミニカラムの検討を、添加回収試験を用いて行った。添加量は、告示法規定のとおり検出下限値の 2 倍量、試料換算にして 0.004ppm とし、LC/MS/MS により測定した。図 2 により分取したアセトニトリル/水層をミニカラムに負荷し、流出液を採取、その後、アセトニトリル/水 (3/1) で溶出し、採取した溶出液と先の流出液を合わせてジクロロメタンに転溶する方法を用いた。また、脱脂効果を高めるため、ミニカラムへの負荷前に C18 系ディスクカラムを通過させる方法も合わせて検討した。各ミニカラムによる脱脂を行い、絶対検量線法により算出した MG, MG-d5, LMG および LMG-d6 の回収率の結果を表 5 に示した。使用した 3 種の精製カラムの中で、ガイドラインの真度 70 ~120%, 併行精度 25%未滿を満足するものはなかった。サロゲートとして用いた MG-d5 および LMG-d6 の回収率についてみると、InertSep C18 を単独で用いたものでは、MG-d5 では 61%, LMG-d6 では 45%の回収率が得られ、ガイドラインに示されているサロゲートの回収率 40%以上という条件を満たした。さらに、絶対検量線から求めた MG と LMG の回収率が、MG-d5 と LMG-d6 の回収率とほぼ一致していた。そこで、サロゲート補正を行って回収率を算出した結果を表 6 に示した。Sep-pak C18 を除き、回収率、変動係数ともに良好な結果が得られた。これらの結果から、脱脂に使用するミニカラムは、InertSep C18 が適当であると考えられた。

4 まとめ

うなぎ中の MG 分析法について、試験溶液の調製溶媒およびヘキサン/アセトニトリル分配を使用しない脱脂法について検討を行った。試験溶液の調製溶媒については、MG, MG-d5 は、0.2%ギ酸/アセトニトリルを用いて、LMG, LMG-d6 は、アセトニトリルを用いて調製することにより、MG から LMG への変換および LMG からのメチル基脱離を抑制することができ、安定した測定を行うことができた。また、ヘキサン/アセトニトリ

表 5 ミニカラム脱脂法での回収率 (絶対検量線法)

		MG	MG-d5	LMG	LMG-d6
		平均回収率 (%)	平均回収率 (%)	平均回収率 (%)	平均回収率 (%)
Sep-pak C18(1g)	n=5	110 (31)	67 (20)	26 (110)	58 (9.7)
InertSep C18(1g)	n=5	64 (15)	61 (14)	44 (11)	45 (12)
Empore-InertSep C18(1g)	n=5	54 (4.2)	52 (9.4)	31 (11)	31 (12)

() 内数字 : 相対標準偏差(%)

表 6 サロゲートの回収率

		MG		LMG	
		平均回収率 (%)	CV%	平均回収率 (%)	CV%
Sep-pak C18(1g)	n=4	160	15	110	70
InertSep C18(1g)	n=5	101	7.4	99	3.7
Empore-InertSep C18(1g)	n=5	98	5.1	100	1.2

ル分配を使用しない脱脂法については、C18 系のミニカラムを用いることにより脱脂効果は得られたが、Sep-pak C18 では MG と LMG およびそれらのサロゲートとの回収率に大きな差が認められた。一方、InertSep C18 では MG と LMG およびそれらのサロゲートとの回収率が一致し、サロゲートの回収率については 40%以上を確保することができた。平成 22 年 12 月にガイドラインの一部が改正⁶⁾⁷⁾され、告示試験法についても同等以上の性能を有すると認められる試験法による試験が可能となったことから、今後は、本法の妥当性の評価を実施していき、日常業務に適用していく予定である。

5 参考文献

- 1) 厚生省告示第 370 号(1959) “食品、添加物等の規格基準” 昭和 34 年 12 月 28 日
- 2) 厚生労働省医薬食品局食品安全部長通知 “食品、添加物等の規格基準の一部を改正する件について” 平成 18 年 11 月 30 日、食安発第 1130001 号(2006)
- 3) 平成 20 年度地方衛生研究所北海道・東北・新潟ブロック専門家会議資料
- 4) 大熊紀子、氏家愛子、千葉美子、吉田直人、濱名徹 : 宮城県保健環境センター年報, 28, 101-102(2010)
- 5) 厚生労働省医薬食品局食品安全部長通知 “食品に残留する農薬等に関する試験法の妥当性評価ガイドラインについて” 平成 19 年 11 月 15 日、食安発第 1115001 号(2007)
- 6) 厚生労働省医薬食品局食品安全部長通知 “食品衛生法施行規則の一部を改正する省令及び食品、添加物等の規格基準の一部を改正する件について” 平成 22 年 12 月 13 日、食安発 1213 第 1 号(2010)
- 7) 厚生労働省医薬食品局食品安全部長通知 “食品中に残留する農薬等に関する試験法の妥当性評価ガイドラインの一部改正について” 平成 22 年 12 月 24 日、食安発 1224 第 1 号(2010)

トータルダイエツトスタディ試料を用いた 魚介類由来残留農薬の一日摂取量調査

A Survey of Daily Intake of Pesticide Residues from Seafood Using Total Diet Study Samples

高橋 祐介 千葉 美子 吉田 直人 氏家 愛子
Yusuke TAKAHASHI, Yoshiko CHIBA, Naoto YOSHIDA, Aiko UJIIE

2002年から2010年にかけて調製したトータルダイエツトスタディ試料(TDS試料)第X群を用いた魚介類由来農薬摂取量調査を実施し、19農薬を試料より検出した。検出された農薬の一日摂取量を算出したところ、農薬摂取量は、検出された全ての農薬で一日摂取許容量(ADI)に達しておらず、対ADI比が最大のものでADの40分の1程度であった。検出された農薬のうち、難分解性、生物濃縮性を示すDDT類およびBHC類は、全ての試料から検出されていたが、生物濃縮性の低い農薬は検出にバラツキがみられた。魚介類からの農薬摂取量の推移では多くの農薬が減少傾向を示していることが分かった。DDT類およびBHC類の摂取量について1980年代に実施した調査と比較すると、いずれの農薬も長期的には減少傾向にあることが分かった。

キーワード：魚介類；残留農薬；一斉分析；トータルダイエツトスタディ

Key words : Seafood ; Pesticide residue ; Simultaneous analysis ; Total diet study

1 はじめに

近年、輸入食品の残留農薬など食の安全性に係わる問題が多発しており、当所での県民からの苦情食品検査も増加している。このような状況下、当所での残留農薬検査では、野菜や果実等の一斉分析法について検討し、妥当性評価を行い¹⁾²⁾行政検査を実施している。我が国では難分解性で、生物濃縮性が高いDDT類およびヘキサクロロベンゼンなどの農薬は、既に使用が禁止されているが、過去に使用した農薬が現在でも土壌や海洋から検出されており、長期間の汚染が問題となっている。このような難分解性であり、生物濃縮性が高く、毒性の強い農薬は、POPs (Persistent Organic Pollutants) 条約により加盟各国での規制がなされているが、未だ使用している国もあり、水環境や輸入魚介類の汚染が懸念されている。また、水田等にて多くの農薬が使用されており、これらの農薬が降雨等により河川・海域へ流出することによる沿岸回遊魚等の汚染も懸念される。我々は畜水産物中の残留農薬一斉分析について、厚生労働省の通知法³⁾に代わる抽出法の検討を行い、残留農薬の一斉分析が可能であることを報告した⁴⁾。本研究では、食品摂取量調査に基づいてマーケットバスケット方式により調製したトータルダイエツトスタディ試料(以下、TDS試料)第X群を用いて魚介類からの残留農薬摂取量について調査を行ったので報告する。

2 方法

2.1 試料

試料は、2002年、2004年、2006年、2008年、2010年の各年に調製したTDS試料第X群(魚介類)を用い

た。TDS試料第X群は、国民栄養調査に基づいたマーケットバスケット方式により食品群を採取・調理・混合し、フードプロセッサーによる均一化後に冷凍保存した。試料は、各年ごとに構成する食品の種類を変えたものを3種類用意し(X-1, X-2, X-3)、それぞれについて残留農薬量を測定した。表1にTDS試料第X群の採取例、調理例を示す。

2.2 装置

GC/MS/MS ; Varian 社製 1200

LC/MS/MS ; AB Sciex 社製 API3000

2.3 試料液調製方法

TDS試料第X群からの農薬摂取量の調査は、均一化した試料10gを用いて行った。また、添加回収試験は、試料10gに検査対象332農薬混合標準溶液1 μ g/mlを

表1 TDS試料第X群 調製例

X-1群	食品名	1日摂取量 (g)	採取量 (g)	調理	調理後 重量(g)
	あじ・いわし類：まいわし	11.2	112.0	焼く	89.1
	さけ・ます：秋さけ切り身解凍	6.8	68.0	焼く	64.1
	たい：かれい類：まだら	9.8	98.7	煮る	76.4
	まぐろ・かじき類： めばちまぐろ(解凍)刺身用	7.3	73.2	そのまま	73.2
	その他の生魚：赤魚	9.1	91.4	煮る	78.9
	貝類：はまぐり(殻付き)	4.9	49.5	茹でる	36.2
	いか：たこ類：するめいか刺身用	9.3	93.4	そのまま	93.4
	えび・かに類：有頭甘えび 刺身用	5.0	50.0	そのまま	50.0
	魚介(塩蔵、生干し、乾物)：				
	からふとししゃも	25.9	259.0	焼く	221.5
	魚介(缶詰)：さば水煮缶詰	1.7	17.1	そのまま	17.1
	魚介(佃煮)：かつお角煮	0.5	5.0	そのまま	5.0
	魚介(練り製品)：				
	かにかまぼこ(サラダスティック)	9.1	91.1	そのまま	91.1
	魚肉ハム、ソーセージ：				
	フィッシュソーセージ	0.5	5.0	そのまま	5.0
合計		101.1	1013.4		901.0

200 μl 添加 (試料換算 0.02ppm) して 30 分室温放置した後、試験を実施した。抽出は既報⁴⁾のとおり実施した。すなわち、測定試料または添加回収試料に硫酸マグネシウム 2.5g およびアセトン/ヘキサン(1/1)25ml を加え、ポリトロンミキサーで 1 分間抽出後、2500rpm で 5 分遠心分離を行った。溶媒層をろ過分取して、残さにアセトン/ヘキサン(1/1)15ml を加え、10 分間振とう後、2500rpm で 5 分遠心分離を行った。溶媒層をろ過し、先の溶媒層と合わせて 50ml に定容した。20ml を採り濃縮乾固後、アセトニトリル(以下 CH₃CN とする)飽和ヘキサン 5ml で溶解し、ヘキサン飽和 CH₃CN 10ml を加えて 5 分振とうした。CH₃CN 層をとり、同操作を更に 2 回繰り返して、CH₃CN 層を合わせ約 5ml に濃縮して RomerLabs 社 MultisepPR カラムに負荷した。流出液を採取し CH₃CN 5ml、CH₃CN/トルエン(3/1)5ml、メタノール 5ml の順で溶出したのち、濃縮乾固後、アセトン 1ml で溶解して GC/MS/MS 用試料液とした。

LC/MS/MS 用試験液は、窒素パーズにより溶媒を除去後、メタノールに転溶(5 倍希釈)して調製した。

2.5 測定条件

GC/MS/MS および LC/MS/MS による農薬の測定条件は、既報⁵⁾⁶⁾に準じた。

3 結果および考察

3.1 TDS 試料における農薬標準添加回収試験

GC/MS/MS 対象 252 農薬, LC/MS/MS 対象 80 農薬, 計 332 農薬を対象に、2010 年度 TDS 試料第 X 群への添加回収試験(n=3)を実施した。本研究では魚介類からの農薬摂取リスクを広く調査する目的からスクリーニング検査として実施し、添加回収試験の回収率許容範囲を 50-150%と通常実施している行政検査の許容範囲 (70-120%) よりも広く設定した。この結果、回収率 50%~150%および変動係数 15%未満であった農薬は 272 農薬

であり、TDS 試料においても良好な回収率を示した。

3.2 TDS 試料から検出された農薬

添加回収試験の結果、回収率 50%~150%および変動係数 15%未満であった 272 農薬のうち、TDS 試料第 X 群のいずれかから検出下限値を超えるピークが検出された農薬は、23 項目 19 農薬であった (表 2,3)。検出された農薬は、用途別に殺虫剤 8 種、防ダニ剤 1 種、殺菌剤 7 種、除草剤 3 種であった。このうち、総 BHC は、α-, β-, γ-, δ-BHC の4つの異性体の総和として報告されるが、全ての検体で δ-BHC は検出されなかった。また、検出された農薬のうち、半数は日本国内での農薬登録がされていないか、登録が失効しているものであり、当該農薬の水環境への長期残留や国外で使用された農薬による広域な汚染の可能性が考えられた。検出された農薬のうち難分解性であり、生物濃縮性が高い総 DDT, 総 BHC, クロルデン, ヘキサクロロベンゼンおよび除草剤のトリフルラリンは、測定した全ての検体で検出された。また、殺菌剤として使用されているオルトフェニルフェノール, ジフェニルアミン, イソプロチオラン, イプロベンホスも、高い割合で検出された。オルトフェニルフェノール, イソプロチオランは、環境中で分解されやすく、生物濃縮性も低い農薬であるが、今回の調査で多くの検体から検出され、また、他の調査により魚介類からの検出が報告されている農薬である⁷⁾。その他、生物濃縮性が高くないとされるテブフェンピラド, トリアゾホス, フェニトロチオン, メチオカルブ, クロルベンジレート等は、低い検出率であった (表 3)。このことから、水環境における難分解性農薬や生物濃縮性が高い農薬は、魚種や漁獲された時期に左右されず、魚介類中に含まれていることが推測される。また、分解性、生物濃縮性に関わらず農薬を魚介類から摂取する可能性があることが分かった。

表 2 検出された農薬

	用途	農薬登録	特徴 ⁷⁾⁸⁾	食品からの検出事例 ⁷⁾⁸⁾
γ-BHC	殺虫剤	失効	有機塩素系・長期残留	あり (マーケットバスケット方式)
総 BHC	殺虫剤	失効	有機塩素系・長期残留	あり (マーケットバスケット方式)
総 DDT	殺虫剤	失効	有機塩素系・長期残留	あり (マーケットバスケット方式)
クロルデン	殺虫剤	失効	有機塩素系・長期残留	あり
テブフェンピラド	殺虫剤	あり	ピラゾール系	なし
トリアゾホス	殺虫剤	なし	有機リン系	なし
フェニトロチオン	殺虫剤	あり	有機リン系・有機硫黄	あり (シジミ, コイ)
メチオカルブ	殺虫剤	なし	カーバメート系	なし
クロルベンジレート	防ダニ	失効	有機塩素系・DDT 類似構造	なし
イソプロチオラン	殺菌剤	あり	合成殺菌剤	あり (コイ, ポラ)
イプロベンホス	殺菌剤	あり	有機リン系	なし
o-フェニルフェノール	殺菌剤	失効	食品添加物として使用	あり (魚類)
ジフェニルアミン	殺菌剤	あり		なし
フサライド	殺菌剤	あり	有機塩素系	なし (土壌残留, 水系汚染事例有り)
フルトラニル	殺菌剤	あり	酸アミド系	なし (水系汚染事例有り)
ヘキサクロロベンゼン	殺菌剤	なし	有機塩素系・長期残留	あり (ウグイ, フナ)
クミルロン	除草剤	あり	尿素系	あり (シジミ)
チオベンカルブ	除草剤	あり	カーバメート系	あり (シジミ)
トリフルラリン	除草剤	あり	複合剤・生物濃縮性	あり (ワタリガニ)

表3 各検体における残留農薬検出状況

農薬名	2002			2004			2006			2008			2010			検出率
	1	2	3	1	2	3	1	2	3	1	2	3	1	2	3	
α-BHC	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	15/15
β-BHC	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	15/15
γ-BHC	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	15/15
δ-BHC	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0/15
総 BHC	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	15/15
p,p'-DDD	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	15/15
p,p'-DDE	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	15/15
o,p'-DDT	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	15/15
p,p'-DDT	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	15/15
総 DDT	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	15/15
クロルデン	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	15/15
テブフェンピラド	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	+	-	1/15
トリアゾホス	-	+	-	-	+	-	-	-	-	-	-	-	-	+	-	4/15
フェニトロチオン	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	+	-	1/15
メチオカルブ	-	-	-	-	-	+	-	-	-	-	-	-	-	-	-	1/15
クロルベンジレート	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	+	-	1/15
イソプロチオラン	+	+	+	+	+	+	+	-	-	+	-	+	+	+	+	12/15
イプロベンホス	+	+	+	-	+	+	+	+	+	-	-	-	-	+	+	9/15
o-フェニルフェノール	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	15/15
ジフェニルアミン	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	15/15
フサライド	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	+	-	1/15
フルトラニル	+	-	-	-	-	+	-	-	-	-	-	+	-	+	-	3/15
ヘキサクロロベンゼン	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	15/15
クミロン	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	+	-	1/15
チオベンカルブ	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	+	-	1/15
トリフルラリン	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	15/15

3.3 検出農薬の一日摂取量

TDS 試料より検出された農薬の濃度および東北地方における魚介類の一日平均摂取量から農薬の一日摂取量を算出し、表4に示した。2002年から2010年の全ての試料について最大一日摂取量および平均一日摂取量を算出し、体重50kgにおける一日摂取許容量(ADI)との比較を行った(図1)。検出された農薬の一日摂取量は、総DDTおよびオルトフェニルフェノールが高値を示したが、対ADI比では測定した農薬の中ではクロルデン、トリアゾホスが高い値を示した。2002年から2010年の

それぞれ3検体のうち、最大の値を示した試料における農薬一日摂取量対ADI比は、クロルデンが1.7%、トリアゾホスが2.7%程度であった。また、多くの農薬の検出量はADIの1%未満であり、全ての農薬でADIよりも大幅に低いことが確認された。

3.4 農薬摂取量の年次変化

2002年から2010年までの農薬摂取量について、3試料の平均値を算出し、一日摂取量の推移を調べた(図2)。総DDT、オルトフェニルフェノールは調査期間内での大

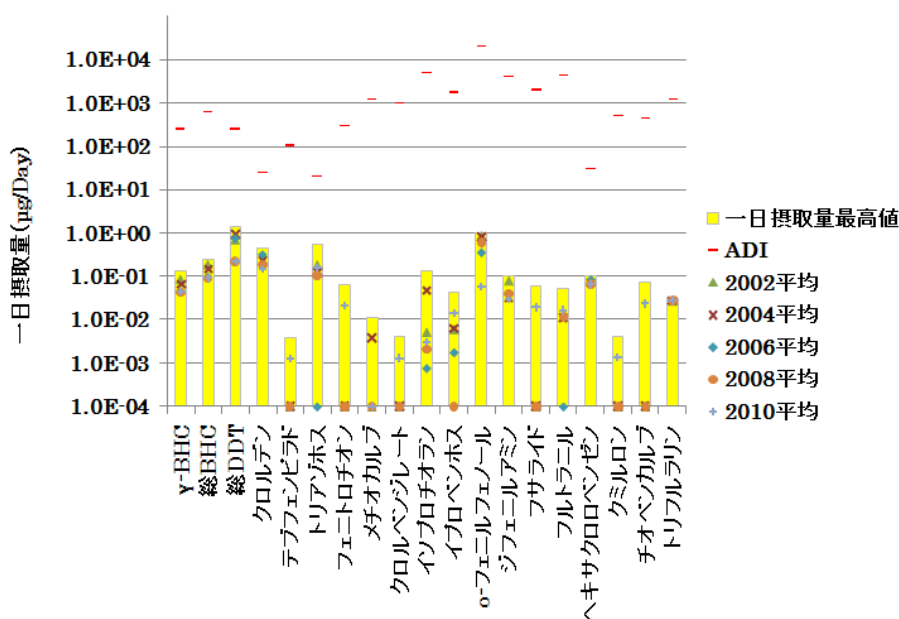


図1 各農薬一日摂取量とADIとの比較

きな減少を示した。その他、難分解性である BHC 類やクロルデン等も減少傾向にあることを確認した。このことは水環境中での農薬分解等により汚染状況が改善されつつあることを示唆するものであると考えられる。また、2002年から2010年までの間に継続的に検出されている農薬の摂取量は、いずれも減少傾向にあるか、低いレベル (0.2µg/Day 未満) を維持していることを確認した。

3.5 BHC 類, DDT 類摂取量の長期的変化

BHC 類, DDT 類の摂取量について TDS 試料を用いて 1981 年から 1983 年に菊地らが実施した過去の摂取量調査⁹⁾と比較した。図 3 に示す BHC 類のうち、 δ -BHC は、本調査においても、菊地らの調査においても検出されていないことが確認された。また、BHC 類のうち α -BHC は、1980 年代に比べて大きく減少しているが、 β -BHC, γ -BHC の減少は緩やかであった。図 4 に示す DDT 類では、全ての代謝物および異性体が同様の減少向を示した。BHC 類, DDT 類の摂取量は菊地らの調査に比べ、総 BHC では 1/10 程度、総 DDT では 1/5 程度まで減少していることが分かった。

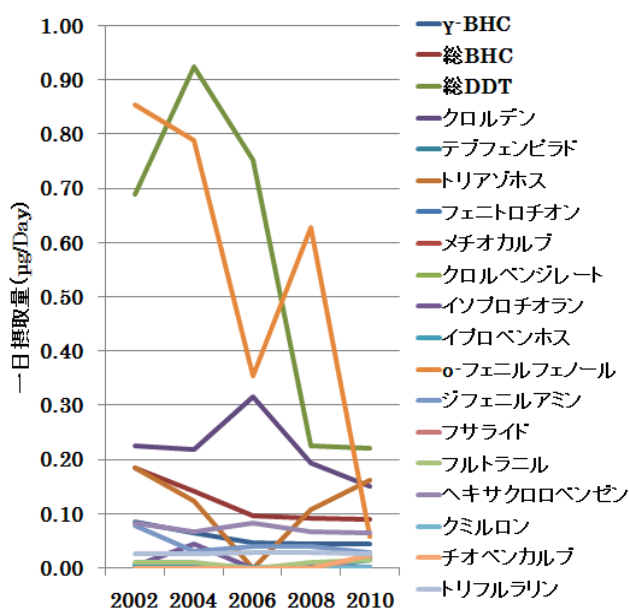


図 2 農薬摂取量の年次変化

表 4 残留農薬の平均摂取量 (2002 年度～2010 年度)

農薬名	ADI (µg)	一日摂取量平均値(µg)						ADI 比(%)					
		最大値	2002	2004	2006	2008	2010	最大値	2002	2004	2006	2008	2010
γ-BHC	250	0.13	0.085	0.065	0.046	0.044	0.045	0.052	0.034	0.026	0.018	0.018	0.018
総 BHC	625	0.24	0.19	0.14	0.098	0.092	0.091	0.038	0.030	0.023	0.016	0.015	0.015
総 DDT	250	1.4	0.69	0.92	0.75	0.23	0.22	0.56	0.28	0.37	0.30	0.090	0.088
クロルデン	25	0.43	0.23	0.22	0.32	0.19	0.15	1.7	0.90	0.88	1.3	0.78	0.61
テブフェンピラド	105	0.0038	0	0	0	0	0.001	0.0036	0	0	0	0	0.001
トリアゾホス	20.5	0.55	0.18	0.12	0	0.11	0.16	2.7	0.90	0.60	0	0.52	0.79
フェニトロチオン	300	0.063	0	0	0	0	0.021	0.021	0	0	0	0	0.007
メチオカルブ	1200	0.011	0	0.004	0	0	0	0.0009	0	0	0	0	0
クロルベンジレート	1000	0.0039	0	0	0	0	0.001	0.0004	0	0	0	0	0
イソプロチオラン	5000	0.13	0.005	0.046	0.001	0.002	0.003	0.0026	0	0	0	0	0
イプロベンホス	1750	0.042	0.006	0.006	0.002	0	0.014	0.0024	0	0	0	0	0
o-フェニルフェノール	20000	0.96	0.86	0.79	0.35	0.63	0.058	0.0048	0.004	0.004	0.002	0.003	0
ジフェニルアミン	4000	0.10	0.079	0.032	0.040	0.041	0.030	0.0025	0.002	0	0.001	0.001	0
フサライド	2000	0.059	0	0	0	0	0.020	0.0029	0	0	0	0	0
フルトラニル	4350	0.050	0.012	0.011	0	0.012	0.017	0.0011	0	0	0	0	0
ヘキサクロロベンゼン	30	0.10	0.084	0.068	0.083	0.068	0.065	0.34	0.28	0.23	0.28	0.23	0.22
クミルロン	500	0.0041	0	0	0	0	0.001	0.0008	0	0	0	0	0
チオベンカルブ	450	0.072	0	0	0	0	0.024	0.016	0	0	0	0	0.005
トリフルラリン	1200	0.031	0.027	0.027	0.028	0.028	0.028	0.0026	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002

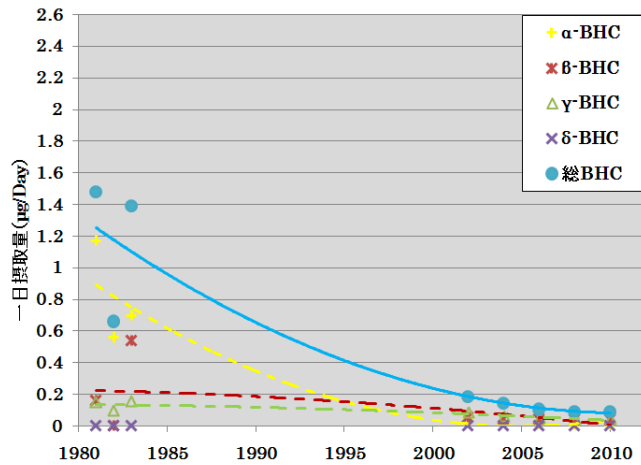


図3 BHC類化合物の摂取量推移

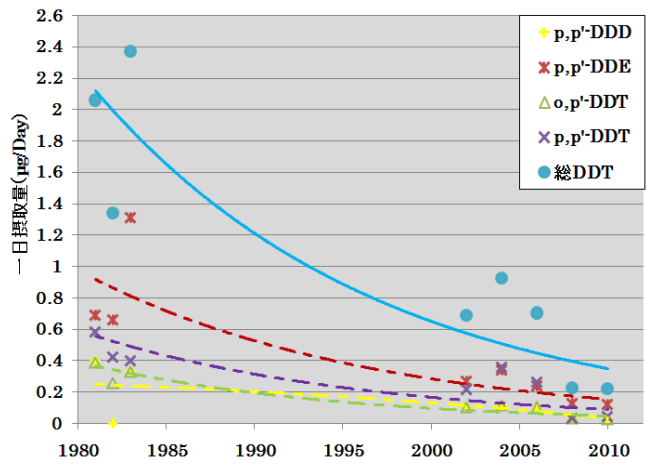


図4 DDT類化合物の摂取量推移

4 まとめ

宮城県民の魚介類由来農薬摂取量調査を行うために2002年から2010年にかけて調製したトータルダイエツトスタディ試料（TDS 試料）第 X 群を用いた残留農薬含有量分析を実施した。調査はスクリーニング調査として実施し、添加回収試験（n=3）において回収率50-150%、変動係数15%未満であった272農薬のうち、19農薬を試料より検出した。検出された濃度から一日摂取量を算出したところ、一日あたりの魚介類由来農薬摂取量は、検出された全ての農薬でADIに達しておらず、対ADI比が最大のものでADの3%未満であった。検出された農薬のうち、BHC類、DDT類といった難分解性であり、生物濃縮性の高い農薬は、全ての試料から検出されたが、環境中で分解されやすく、生物濃縮性が低いとされているものは検出にバラツキがみられ、検出状況に違いがあることが分かった。魚介類からの農薬摂取量の年次推移では、全ての農薬で減少傾向を示すか低値を維持しており、摂取量の増加を示す農薬は確認されなかった。BHC類、DDT類の摂取量について1980年代に実施した調査と比較すると、BHC類、DDT類は全ての異性体、代謝物で減少傾向を示し、総BHCでは1/10、総DDTでは約1/5程度に減少しており、長期的にも減少傾向にあることが分かった。

本研究は魚介類からの農薬摂取量について調査したものであるが、今後は食品からの農薬摂取総量について、TDS試料を使用した調査が必要である。また、土壌や水

環境の汚染実態なども視野に入れた農薬摂取リスクについて明らかにすることが必要である。

5 参考文献

- 1) 氏家愛子，佐藤信俊：宮城県保健環境センター年報，23，55-59(2005)
- 2) 氏家愛子，長谷部洋，福原郁子，濱名徹：宮城県保健環境センター年報，27，107-112(2009)
- 3) 厚生労働省医薬食品局食品安全部長通知 “食品に残留する農薬，飼料添加物又は動物用医薬品の成分である物質の試験法について” 平成17年1月24日，食安発第0124001号(2005)
- 4) 氏家愛子，千葉美子，大熊紀子，吉田直人，濱名徹：宮城県保健環境センター年報28，45-49(2010)
- 5) 氏家愛子，柳田則明：宮城県保健環境センター年報，24，58-62(2006)
- 6) 氏家愛子，長谷部洋，柳田則明：宮城県保健環境センター年報，25，58-61(2005)
- 7) 植村振作，河村宏，辻万千子，富田重行，前田静夫：農薬毒性の事典，三省堂，(2002)
- 8) 植村振作，河村宏，辻万千子，富田重行，前田静夫：残留農薬データブック，三省堂，(1992)
- 9) 菊地秀明，鈴木滋，百川和子，佐藤信俊，山田わか，高槻圭悟，中根ミワ子，加茂えり子，小野研一，百川滉，牛沢勇，堺敬一：宮城県保健環境センター年報，2，93-99，(1984)

平成22年11月12日の黄砂飛来によるSPM高濃度

A Highly SPM Pollution caused by Asian Dust on 12 November 2010

仁平 明 佐藤 直樹 中村 栄一 菊地 秀夫
Akira NIDAIRA, Naoki SATO, Eiichi NAKAMURA, Hideo KIKUCHI

平成22年11月12日に飛来した黄砂は寒冷前線に伴う雨域が通過した後に到達し、移動性高気圧下の沈降性逆転層で鉛直拡散を押え込まれ、高度約2000m以下の大気下層を移動しているとみられた。到達が日没後など地表付近の大気が安定化している場合には黄砂は接地安定層より上を通過し、安定層内には侵入していなかった。なお、若狭湾岸において黄砂気塊が南下する様子が認められ、類似現象が発生した平成19年5月9日の大規模なOx越境汚染を解明する上で一つの手掛かりを得た。CFORSによる黄砂予測に関しては、一部課題があるもののSPM観測値をかなり良く再現していた。特に平成22年3月21日の黄砂では周辺海域の観測値が得られない沖縄のSPM濃度状況をよく説明しており、モニタリングに対して有用な情報が提供されると思われた。

キーワード：SPM；黄砂；寒冷前線；CFORS

Key words：SPM；asian dust；cold front；CFORS

1 はじめに

黄砂が飛来すると国内の広範な地域でSPM環境基準を超過することがあり¹⁾、その実態を把握しておくことが必要である。加えて黄砂は越境汚染である。大規模な黄砂は現象として比較的明瞭で、その際に生じる大気事象はOx等、他の汚染物質の越境汚染解明に繋がる。因みに輸送中に大陸の大気汚染物質排出域を通過した黄砂は人為起源の汚染物質を含む「汚れた黄砂」となる報告もなされている²⁾。更に、現在は膨大な計算資源を必要とする数値モデルの予測結果がWeb上で公開され、モデルの専門家でなくとも容易に活用できるようになってきた。予測精度の検証も試みられており²⁾、モデルの再現性が高ければ観測値を解釈する上で有用な情報が期待されることから、様々な場合について検証事例を増やすことは有意義と思われる。

従来から黄砂の観測は気象庁による東アジア域の目視観測網⁴⁾によって行われている。一方で都道府県・大気汚染防止法政令市が行う大気汚染常時監視のSPM観測値を用いた解析も報告されている¹⁾²⁾⁵⁾。特に後者の観測値は各自治体個々に管理されているが、国立環境研究所と地方環境研究所によるC型(現II型)共同研究⁶⁾においては、これに参加する自治体が保有する観測値を統一するデータベースの整備を進め、ほぼ全国を網羅するに至っている。本報ではこれを利用し、本県に飛来した黄砂時のSPM高濃度事例を全国規模で解析する。解析に際しては上述の背景を踏まえ、越境汚染の指標的観点から、また、数値モデルの妥当性を検証するデータ同化⁷⁾的観点からの考察をねらいとした。

2 解析方法

2.1 対象日

気象庁の観測によれば、平成22年に仙台で観測された黄砂は表1の4日である。表1には黄砂観測日に県内で観測されたSPM最大濃度とその測定局を併せて示した。3月21日は県北端部を除く全域でSPM濃度が増大し、環境基準200 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を大幅に超過した。また、環境局、自排局を含め経年的にSPMを測定している35局中15局において測定開始以来の最大値を更新するなど大規模な汚染を引き起こしたものであり、東北地方における状況については既に報告している⁸⁾。5月5日及び5月21日の黄砂では県内でSPM環境基準超過は生じなかったことから、ここでは11月12日の高濃度事例を中心に解析する。

表1 平成22年の仙台における黄砂観測日

黄砂観測日	SPM最大濃度	
	($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	測定局
3月21日	878	柴田
5月5日	118	古川2
5月21日	107	高砂
11月12日	214	古川2

2.2 解析データ

- 1) 大気汚染常時監視データ
上記データベース(速報値)を使用
- 2) 気象データ
気象庁ホームページ(<http://www.jma.go.jp/jp/g3>)から引用
- 3) CFORS(化学天気予報システム)データ
国立環境研究所ホームページ(<http://www-cfors.nies.go.jp/~cfors/index-j.html>)から引用
- 4) ライダーデータ
国立環境研究所ホームページ(<http://www-lidar.nies.go.jp/>)から引用

3 結果および考察

3.1 SPM 濃度状況

黄砂が飛来した平成 22 年 11 月 12 日の状況として、SPM 分布図、CFORS 黄砂予測図、地上天気図及び降水量分布図を図 1 に示す。12 日 3 時に長崎県離島の対馬、壱岐で SPM が $100\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上となった。CFORS による黄砂高濃度域は九州・中国地方の日本海沿岸に接近している。SPM $100\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上の領域に着目すると、9 時には九州北部から中国地方に拡大し、15 時は九州中部から瀬戸内地域まで南下するとともに、北は佐渡島まで日本海沿岸を北上している。この間の CFORS は黄砂高濃度域が弓状の形態を保ちながら北東に移動しており、SPM 観測値をよく再現している。ただし、15 時に黄砂を予測した東北北部の日本海側では SPM 高濃度はみられなかった。

21 時以降も弓状の CFORS 黄砂高濃度域は更に北東進を続け、北側の領域が東北地方を横断して太平洋に達するとともに、南側の領域は東北南部以南以西の地域をすっかり覆っている。SPM はこれらの地域で $100\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上が観測されている。ただし、中部山岳地域では $100\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上にならず、このことについては後に考察する。

図 1 で天気図及び降水量分布図と見比べると、12 日 3 時から 15 時の間は黄砂の高濃度域が寒冷前線の背後で前線に伴う降水域の後ろに形成され、寒冷前線の移動に伴って高濃度域も北東進している。21 時～翌日 9 時は寒冷前線が太平洋上に抜け、北海道・東北地方の日本海側で寒気の吹出しによる地形性の降水があった。この降水域では SPM 濃度の増加はみられない。

以上のとおり、平成 22 年 11 月 12 日に飛来した黄砂は、低気圧からのびる寒冷前線が日本列島を通過した際にその後方で発現しており、3 月 21 日の場合⁸⁾と同様な事例であった。

3.2 気象要素と大気質濃度の推移

黄砂飛来時の新潟地方気象台及び仙台管区気象台の気象要素と当該気象台近傍の大気汚染測定局における大気質濃度の時系列を図 1 に示す。左側の新潟の場合、寒冷前線が通過した 12 日 9 時前後に降水があり、前線が抜けた 15 時以降は雨が止んで西風になり、SPM 濃度が急増している。このとき NO_x 、NMHC 濃度は低く、PO は約 40ppb でほぼ一定であった。SPM はその後減少したが、13 日 10 時に再び極大を示した。このときは NO_x 、NMHC も同様に増加していることから、移動性高気圧下で安定層が形成され地域汚染が生じたとみられる。

図 2 右側の仙台では、気象台近傍の榴岡にお

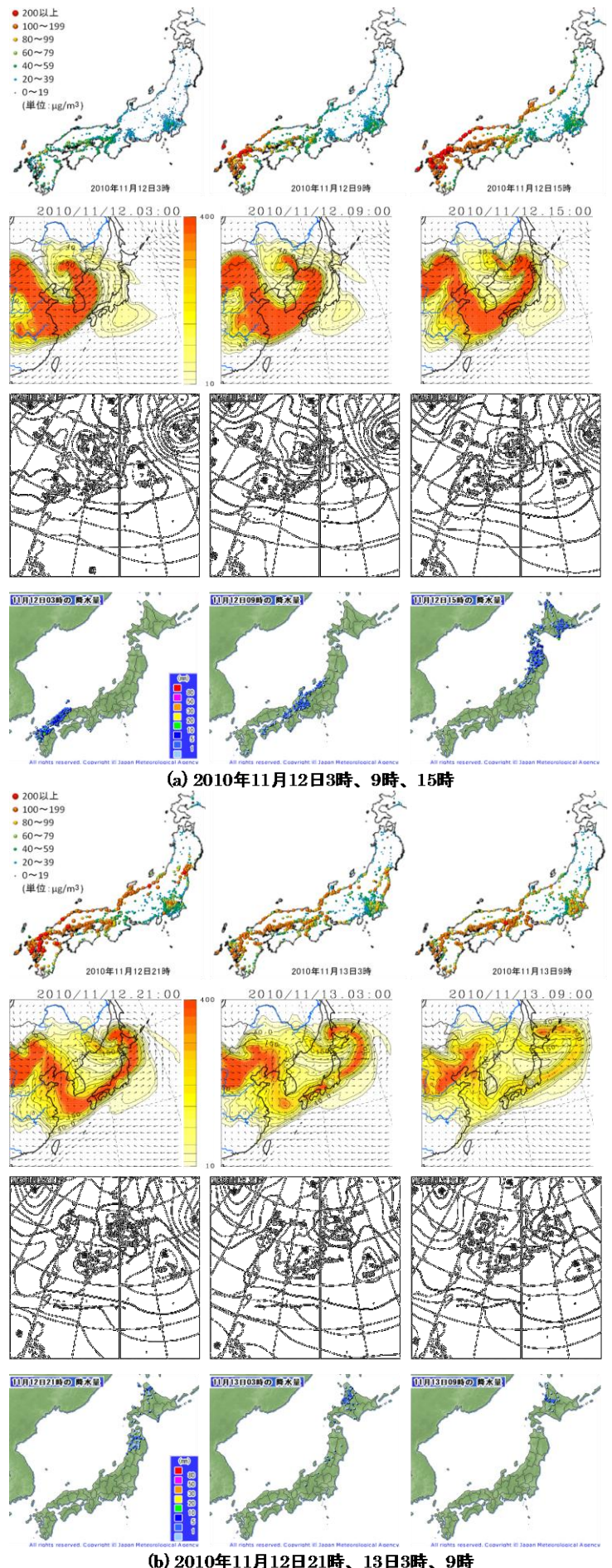


図 1 SPM 分布図と気象図
1 段目：SPM 分布図、2 段目：CFORS 予測図
3 段目：地上天気図、4 段目：アメダス降水量分布

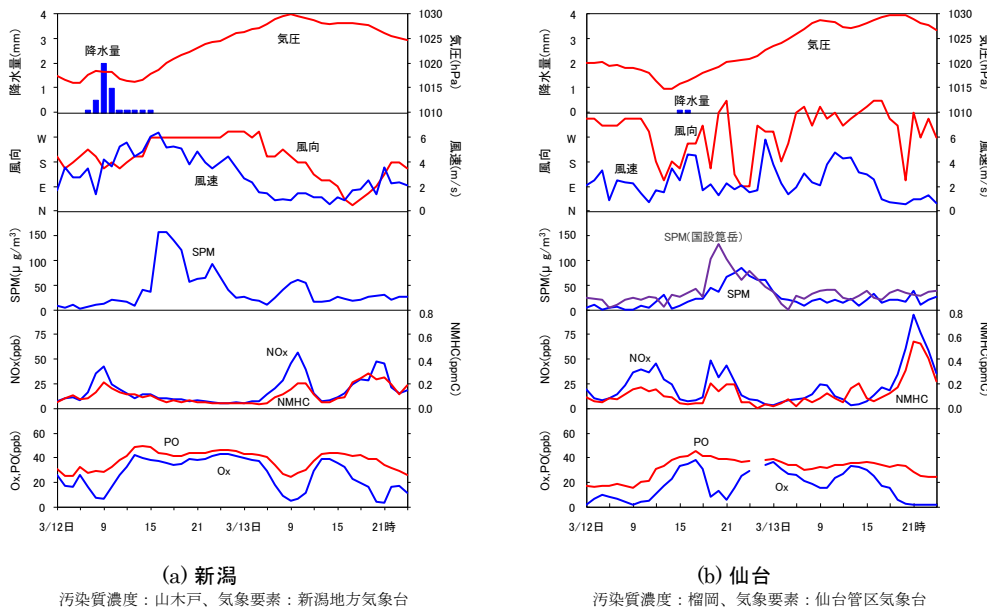


図2 黄沙飛来時の気象要素と大気質濃度変化図 (2010年11月)
 (注) 降水量0.1mmは0.5mm未満の感雨を表す

図3 エマグラム(館野)
 2010年11月12日21時
 青線は乾燥断熱直線

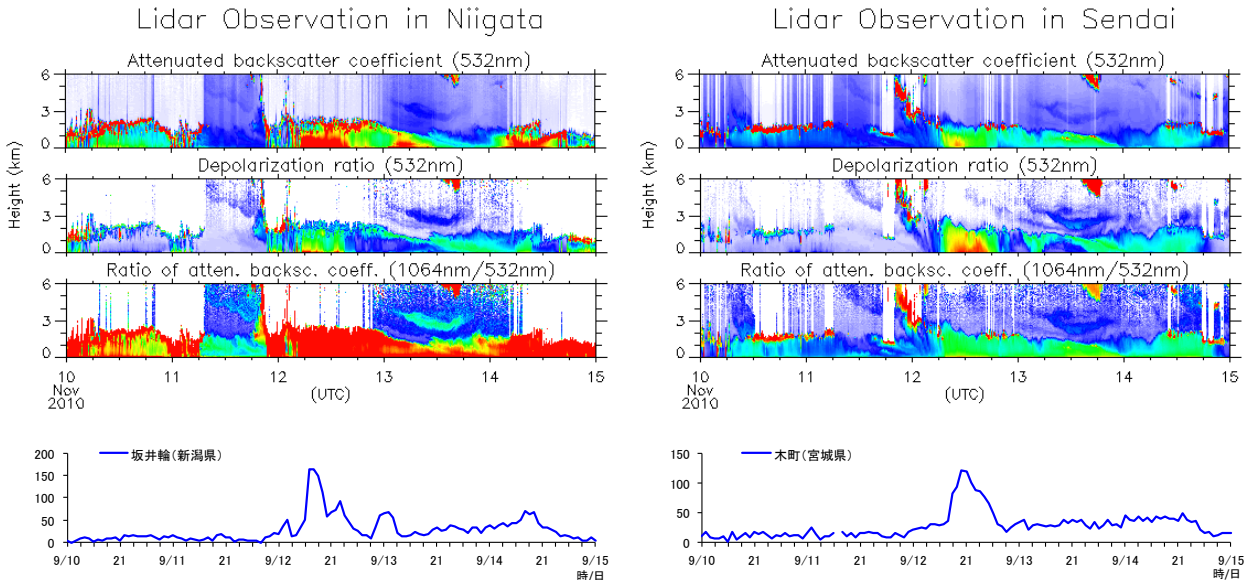


図4 ライダー観測とSPM濃度変化 (2010年11月、新潟、仙台)
 図の説明は本文参照

る SPM は新潟のように急激には増加していない。これに対し併せて示した標高 170m に位置する国設箕岳では SPM の急増が起きている。黄沙の到達は日没後の 18 時以降である。箕岳の SPM が増加したときに榴岡では風が弱まって NO_x、NMHC 濃度は増加しており、地表付近の大气は安定化していたとみられる。NO_x、NMHC 濃度が減少し安定層は解消したとみられる 23 時以降は、榴岡と箕岳の SPM は同様な推移をしていることから、黄沙が到達したときに地表付近に安定層が形成されている場合は、箕岳のように安定層より上を通過し、榴岡のように安定層内には侵入しないと解される。

因みに、茨城県館野においては図 3 のとおり 21 時に地上 130m までの強い接地逆転層が観測されている。

3.2 ライダー観測と SPM 濃度変化

図 4 に新潟と仙台におけるライダー観測結果を示す。ライダーはレーザー光線によるレーダーで、上空に浮遊する粒子状物質の鉛直分布を観測する。図の縦軸は高度、横軸は時間 (UTC:世界標準時) で、一番上の図は散乱強度、水色から赤になるにしたがってエアロゾルが多く、青の部分は少ないことを表す。2 番目の図は偏光解消度で、水色から赤は土壌性の非球形粒子、青は大気汚染性の球形粒子、3 番目の図は粒子の大きさで、青が小さく、赤は大きい粒子を示す。また、下にはライダー観測地点近傍の大気汚染測定局における SPM 濃度変化 (時間軸は JST:日本標準時) を示した。

左の新潟では SPM 濃度が増加した 15 時~翌日 3 時までの間、ライダー観測で地表から高度約 2000m まで黄沙粒子が認められる。この間は大陸由来の大气に置換

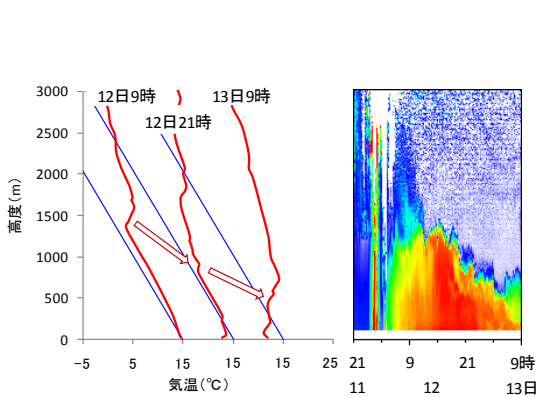


図5 福岡管区気象台高層観測と長崎ライダー観測結果

エマグラムは2010年11月12日9時、21時及び13日9時を表示。青線はそれぞれ地上気温15℃の乾燥断熱直線。ライダーは2010年11月11日21時～13日9時の偏光解消度。

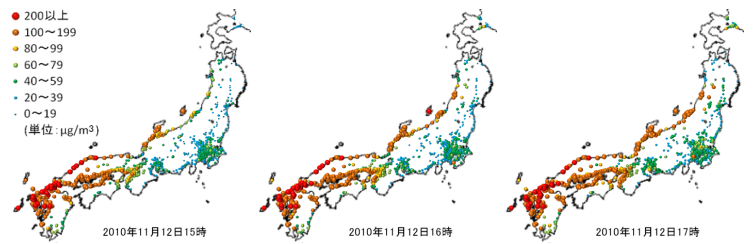
されていたのであり、図2のとおりNO_x、NMHC濃度は低く、POは約40ppbでほぼ一定であった。黄砂気塊が通過した後にSPMが極大を示した13日10時は地表付近で球形の大気汚染性エアロゾルを観測しており、図2の検討は妥当であると確認できる。

仙台のライダー観測は標高158mの東北大学青葉山キャンパスで行われている。近傍測定局として北東に約3Km離れた木町のSPMを示した。図2の榴岡の西方約3Kmに位置する分、黄砂の飛来時間が早く濃度の急増がみられる。更に西側の青葉山のライダー観測では木町より少し前から黄砂が確認され、その高度は概ね2000mであった。なお、県内において木町のような急増は内陸部の他の大気汚染測定局でも観測されている。

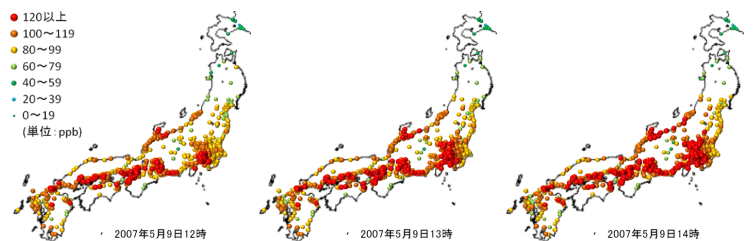
3.4 黄砂層の厚さ

九州北部は図1に示したようにいち早く黄砂が到達し、その後地表付近では継続して黄砂に覆われていた。図5の長崎におけるライダー観測の偏光解消度によれば、水色から赤で示される土壌性非球形粒子の層は12日9時頃に地表から1500m程度であったものが、次第にその厚さは減少し、13日9時には約700mになっている。この間は図1の地上天気図のとおり寒冷前線が通過した後、大陸からの移動性高気圧の圏内に入ったときである。図5に示した福岡管区気象台におけるエマグラムをみると、沈降性の逆転層が黄砂層の上端部分に形成され、その高度は時間の推移に伴って下降している。逆転層より上は沈降した清浄大気であり、黄砂は沈降性の逆転層によって大気下層に押え込まれている⁵⁾。この押え込みが働いて鉛直拡散を阻害するため、図1のCFORSの弓状の黄砂高濃度域はその形態を維持しながら移動すると考えられる。

ところで、図1(b)の中部山岳地域ではSPM100 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上の地点がみられなかった。図4で新潟及び仙台における黄砂層の厚さは約2000mである。2000m超の山々が連なる飛騨山脈の東側に位置する長野、山梨及び群馬



(a) 2010年11月12日黄砂 (SPM分布)



(b) 2007年5月9日Ox越境汚染 (PO分布)

図6 若狭湾における汚染気塊の南下

県では、黄砂層が飛騨山脈を越えられずに影響は生じなかったと理解され、CFORSでもそのような状況は表現されているといえる。

3.5 若狭湾における汚染気塊の南下

図6(a)のSPM分布を詳しくみると、12日15時に若狭湾入口では左岸以西の地域で、また、右岸から能登半島及び佐渡島で100 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上となっていたのに対し、湾の奥では80 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ に達していない。16時は北陸から山形県までの日本海沿岸で100 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上となり、佐渡島では200 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上に濃度が増加した。若狭湾では入口の両岸から少し入った地点で濃度増加がみられるものの、湾奥部は80 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 未満の状態が続いている。17時に湾奥部でも100 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上となり、濃度増加時間が湾の入口で早く、湾の奥では遅れ、南下の様子が認められる。CFORSによると黄砂気塊の形状は北東から南西方向に続く弓状のものであった。その形状によりこのような時間差が生じたと考えられる。

平成19年5月9日に発生した大規模なOx越境汚染^{9)~11)}の際にも、図6(b)のように同様なことが起きており、類似現象として説明の手掛かりを得た。なお、このときは琵琶湖南岸まで南下する様子が観測されている。

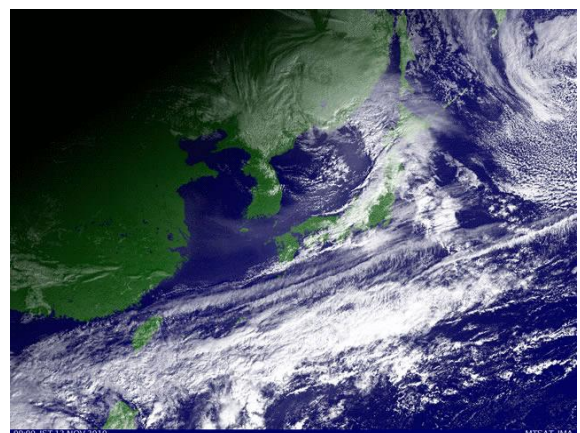


図7 気象衛星可視画像 (2010年11月12日9時)

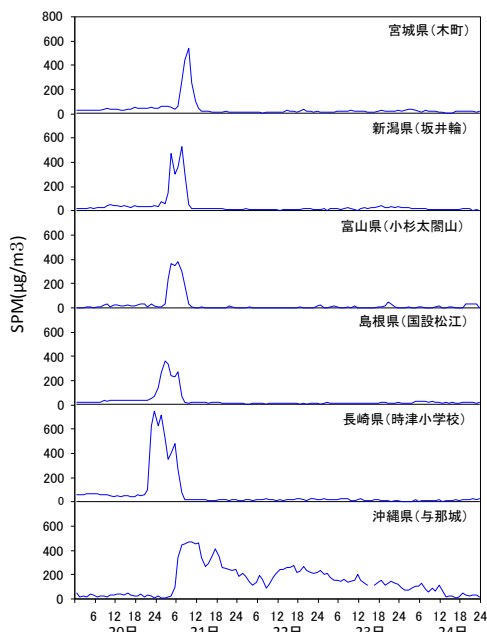


図8 黄砂時のSPM濃度変化
2010年3月20日～24日

3.6 CFORSの再現性

図1で検討したようにCFORS黄砂予測図の高濃度域は濃度値に差異はあるもののその形状はSPM観測値とほぼ対応していた。また、図7の12日9時の気象衛星可視画像には寒冷前線背後の日本海東部から朝鮮半島の南を経て東シナ海に通じる海上にベール状の半透明の領域が写っている。これは黄砂をとらえたもの¹²⁾で、図1(a)に示した同時刻のCFORS高濃度域の形状に相当していることから、CFORSの再現性は概ね妥当であるといえる。ただし、15時に高濃度黄砂を予測した東北北部の日本海側では降水がありSPMの増加はなかった。同じ状況は3月21日の黄砂でも生じており⁸⁾、降水の予測や降水による除去過程等の課題が残っていると思われる。

図8は大規模な黄砂に見舞われた3月21日前後の全国数地点におけるSPM濃度時系列である。長崎以北では10時間程度継続した急激な濃度増加が北の地域ほど遅れて発現し、黄砂の北上する様子が明瞭に現われている。これに対し沖縄では長崎の濃度が減少し始めた頃から増加し、環境基準を超える状態が数日間に及ぶなど、長崎以北とは様相が全く異なっている。ライダー観測によれば、沖縄の21日6時頃からの濃度増加は土壌性粒子によるものであった。図9のSPM分布をみると、20日24時に九州北部にあった高濃度域は、21日6時には九州・中四国全域から東北地方日本海側の地域まで広く拡大している。このとき沖縄では通常よりも濃度が増加し始めた。21日15時になると、環境基準を超える高濃度は房総半島付近と沖縄だけで、その他の地域はほぼ通常の状態に戻っている。

このようなSPM高濃度出現の状態を同図下段のCFORS黄砂予測図はよく再現している。11月12日の

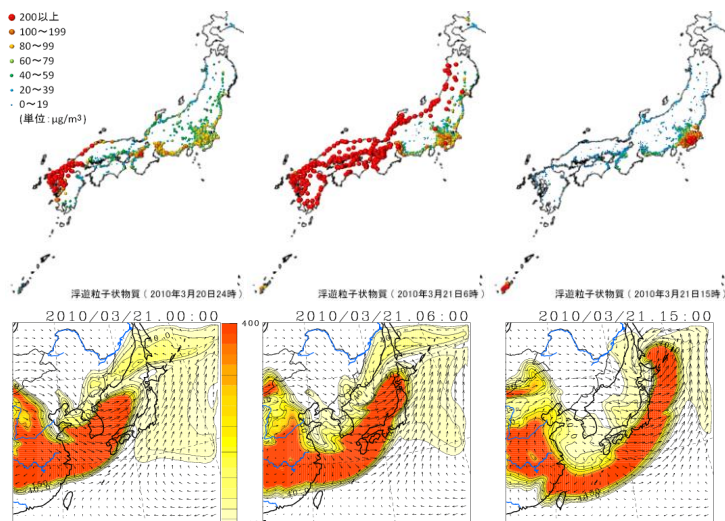


図9 SPM分布図とCFORS黄砂予測図
2010年3月20日24時、21日6時、15時

場合と同様に黄砂気塊が寒冷前線後面を移動したもので、その形状は寒冷前線に沿う弓状であった⁸⁾。図1との違いは、黄砂高濃度域の南端が沖縄にかかり、拡散されずに高濃度を保持していることである。そして、沖縄付近では高濃度域が東西にのびているため長時間に渡って沖縄上空を覆い、図8の濃度変化が現れたと解釈できる。海域に観測値がなく、いわんや図8のように沖縄と長崎以北で挙動が異なる現象を観測値のみで推察するのはなかなか困難であり、CFORS予測図を援用することにより、合理的な解釈が可能になった事例といえる。

4 まとめ

平成22年11月12日の黄砂事例を解析した結果、SPM広域汚染の把握の観点からは、①寒冷前線に伴う雨域が通過した後に黄砂が到達してSPMを高濃度化した。②黄砂層は寒冷前線後面の移動性高気圧下における沈降性逆転層で鉛直拡散を押え込まれ、高度約2000m以下の大気下層を移動しているとみられる。③このため2000m超の山々が連なる中部山岳地域では黄砂層がブロックされ、その直下流には影響が及ばない。④黄砂の到達が日没後など地表付近の大気が安定化している場合には黄砂は接地安定層より上を通過し、安定層内には侵入しない。

越境汚染の指標的観点に関しては、若狭湾岸において黄砂気塊が南下する様子が認められ、平成19年5月9日に発生した大規模なOx越境汚染を解明する上で一つの手掛かりを得た。

データ同化的観点については、①CFORSによる黄砂予測はSPM観測値をかなり良く再現しており、モニタリングに対して有用な情報が提供されると思われる。②特に平成22年3月21日の黄砂では、周辺海域の観測値

が得られない沖縄の SPM 濃度状況をよく説明していた。
③ただし、高濃度予測域通過時に降水のあった地域では観測値と大きく異なり、改善が必要と思われた。

5 謝 辞

本解析では国立環境研究所と地方環境研究所による C 型（現 II 型）共同研究において整備した大気時間値データベースを使用した。原データを提供いただいた共同研究構成自治体の皆様，並びにデータベースを構築された国立環境研究所の皆様に深謝します。

6 参考文献

- 1) 早崎将光，菅田誠治，大原利眞，若松伸司，宮下七重：大気環境学会誌，**42**，3，188（2007）
- 2) 早崎将光：第 51 回大気環境学会年会講演要旨集，74（2010）
- 3) 菅田誠治，大原利眞，黒川純一，早崎将光：大気環境学会誌，**46**，1，49（2011）
- 4) 木下篤哉，眞木貴史：天気，**56**，9，71（2009）
- 5) 西郷雅典：天気，**58**，1，63（2011）
- 6) 大原利眞編：国立環境研究所研究報告，203，4（2010）
- 7) 三好建正：天気，**57**，4，18（2010）
- 8) 仁平 明，高橋誠幸，中村栄一，木戸 一博：宮城県保健環境センター年報，**28**，103（2010）
- 9) 大原利眞，鶴野伊津志，黒川純一，早崎将光，清水厚：大気環境学会誌，**43**，4，198（2008）
- 10) 黒川純一，大原利眞，早崎将光，鶴野伊津志：大気環境学会誌，**43**，4，209（2008）
- 11) 早崎将光，大原利眞，黒川純一，鶴野伊津志，清水厚：大気環境学会誌，**43**，4，225（2008）
- 12) 西村修司：天気，**55**，5，66（2008）

北東部太平洋側における降水中の鉛安定同位体比測定

The lead isotope ratio in rain depositions collected in northeastern Pacific ocean side of Japan

北村 洋子 小川 武 佐久間 隆 小泉 俊一 菊地 秀夫 向井 人史*¹
 Yoko KITAMURA, Takeshi OGAWA, Takashi SAKUMA, Syun-ichi KOIZUMI,
 Hideo KIKUCHI, Hitoshi MUKAI

宮城県は東北の太平洋側に位置しており、東アジア大陸からの汚染物質の影響が少ない地域とされている。しかし、宮城県内では依然として酸性雨が観測されており、酸性雨をもたらす原因を解明する必要がある。今回、国設箕岳局で捕集された降水試料について鉛安定同位体比を測定するなどし、宮城県にもたらされる汚染質の起源の解明を試みた。結果として、汚染質が宮城県に達するまでに日本国内を通過してくるなど、なかなか明快な結論を得るのは困難であった。アジア大陸からの影響が懸念されている昨今、降水中の汚染質の起源・由来については今後とも継続して観測していく必要があると思われる。

キーワード：降水；鉛安定同位体比；太平洋側

Key words : rain depositions ; stable lead isotope ratio ; northeastern Pacific ocean side of Japan

1 はじめに

宮城県は東アジア大陸からの汚染物質の影響が少ないとされている東北の太平洋側に位置しているが、依然として酸性雨が観測されており、酸性雨をもたらす汚染質の起源について解明する必要がある。宮城県では、環境省の酸性雨対策調査の一環として、国設箕岳局で平成10年から現在に至るまで、降水試料自動捕集装置により1日毎の降水試料を捕集し降水成分の測定を行ってきた。当地周辺には大きな発生源がないことから、発地域に固有の値をとるとされている鉛安定同位体比の測定をおこない、降水中の汚染質の起源の推定を試みた。

2 対象および検査方法

2.1 測定地点

国設箕岳局は宮城県遠田郡涌谷町箕岳山(標高222m)の中腹の標高165mに位置し、周辺10km以内には大規模発生源はない。

2.2 方法

2.2.1 捕集装置

局舎屋上に設置してある小笠原計器降水試料自動捕集装置US-420型(分離型)を使用し、局舎内の冷蔵庫でポリ容器に保存。

2.2.2 分析装置

平成20年度の試料及び平成19年度の一部の試料について国環研のAgilent 7500 Series ICP/MSおよびASX-500 Series ICP/MS Autosamplerを借用し測定した。分析条件は積分2sec×10回、装置内で5繰り返し測定した。

2.2.3 鉛安定同位体比測定用標準試料

NIST(National Institute of Standards and

Technology, 米国)のSRM981

2.2.4 測定試料

捕集した降水試料を「湿性沈着モニタリング手引き書(第2版)」に従い通常の10項目(pH, EC, Cl⁻, SO₄²⁻, NO₃⁻, Na⁺, K⁺, Ca²⁺, Mg²⁺, NH₄⁺)を測定した後、冷蔵保存したものについて、2%硝酸酸性試料に調整し、鉛濃度および鉛安定同位体比の測定用に供した。128試料について実施した。

2.2.5 解析方法

NOAAの後方流跡線解析等

3 結果および考察

3.1 鉛濃度について

128試料中の鉛濃度分布を図1に示す。鉛濃度の最高値は15.8ppbでH20.7.22の試料であった。春期および夏期に高い濃度の試料が多く見られた。

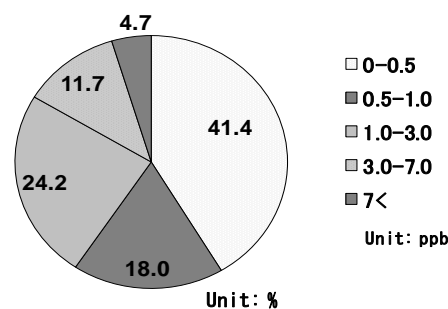


図1 降水中の鉛濃度

*1 (独) 国立環境研究所

3.2 Pb 濃度と他のイオン成分との関係

Pb が他のイオン成分とどのような関係があるのかを調べるために、主成分分析を行った。その結果、第 1 主成分と第 2 主成分の因子負荷量の散点図を図 2 に示す。これから、鉛濃度変動は人為汚染質と考えられている $nss-SO_4^{2-}$, NO_3^- , NH_4^+ 等のイオン成分と極めて良く連動している。

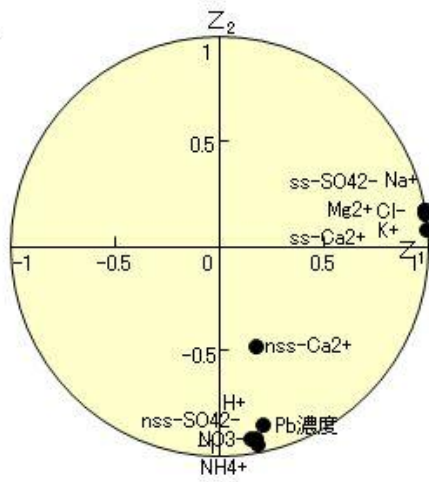


図 2 Z_1 と Z_2 の負荷量散点図

図 2 鉛およびイオン成分の主成分分析結果

3.3 鉛安定同位体比測定結果

鉛安定同位体比測定の結果を表 1 に示す。また、鉛安定同位体比測定時の標準偏差と鉛濃度との関係から鉛濃度 0.5ppb 以上の試料について、鉛安定同位体比を論じるのが有効であると考えられる。(図 3)

図 4 に鉛安定同位体比分布を鉛成長曲線と共に示す。これによると、ほとんどの試料は鉛成長曲線に沿って、 Pb^{207}/Pb^{206} が 0.84~0.88 の間に分布している。

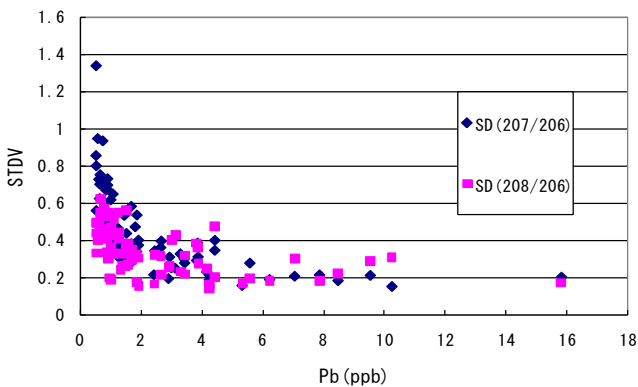


図 3 鉛安定同位体測定時の標準偏差と鉛濃度との関係 (鉛濃度 0.5ppm 以上)

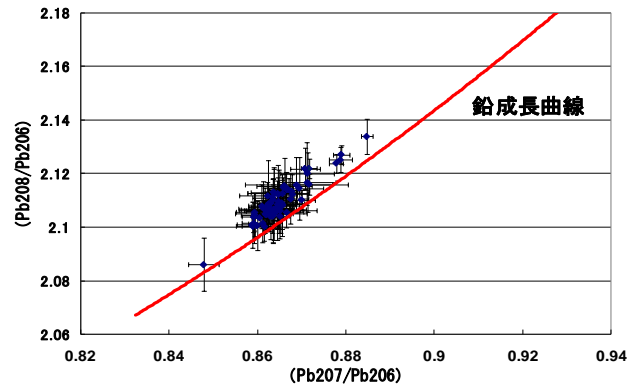


図 4 鉛安定同位体比分布

3.4 後方流跡線解析の結果

後方流跡線解析の結果を、経路別に示す。日本周辺を経由してきたもの 35 例 (図 5)、中国大陸から朝鮮半島以北は 21 例 (図 6)、朝鮮半島付近は 15 例 (図 7)、朝鮮半島以南を経由してきたものが 3 例 (図 8) であった。中国大陸からのものであっても、太平洋側に位置する宮城県へは日本周辺を通過してきているなど、発生源推定には複雑な要因がからんでおり、明確な推定は困難であると思われる。

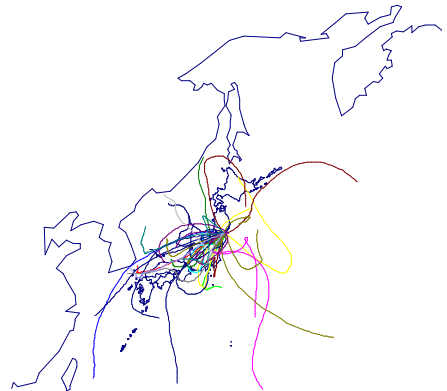


図 5 日本周辺を経由

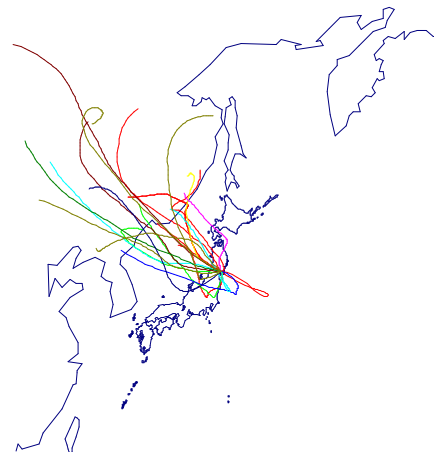


図 6 朝鮮半島以北を経由

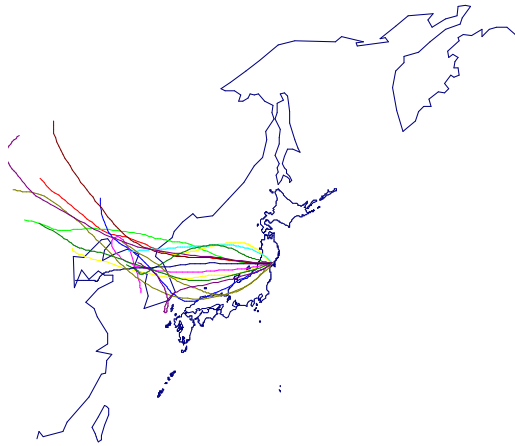


図 7 朝鮮半島経由



図 8 朝鮮半島以南経由

3.5 後方流跡線別の鉛安定同位体比分布および鉛濃度について

後方流跡線別の鉛安定同位体比の分布を図 9 に示す。これによると向井等の研究によるエリア区分では日本、北京、ソウル、ジャカルタ等の地域に分類されたが、ほとんどは日本のエリア区分内であった。

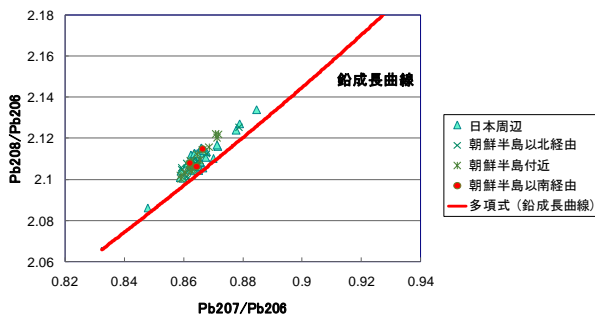


図 9 後方流跡線別鉛安定同位体比の分布

後方流跡線別の鉛濃度を図 10 に示す。これによると降水中の他の汚染物質と変動を同じくしている鉛濃度が一番高かったのは朝鮮半島経由のものであった。

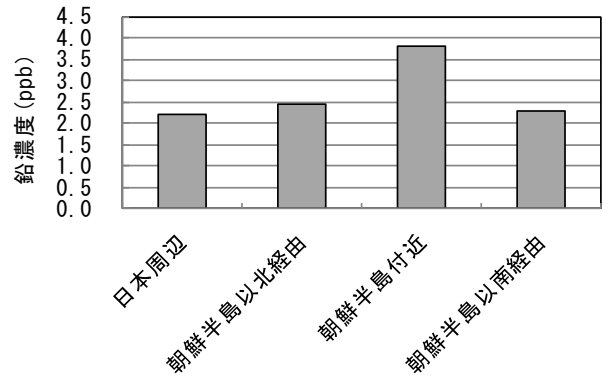


図 10 後方流跡線別鉛濃度

4 まとめ

今回は、国環研の ICP/MS を使用することにより、より信頼度の高い鉛安定同位体比の値が得られ、解析に供することができた。

しかし、昨今のエネルギー事情が反映されている鉛安定同位体比の地域分布の研究・報告等がないなどの理由により、より正確な地域区分の判断が困難であった。

しかしながら、依然としてアジア大陸からの影響が懸念される現状では、箕岳局で捕集された降水中の汚染物質の起源について継続して観測し、その変化に注目していく必要がある。

5 謝辞

本研究は、平成 21 年度地方公共団体研究機関と国立環境研究所との共同研究として行われた。国環研での ICP/MS 借用にあたり、多大なるお力添えを頂きました田中敦氏に深謝いたします。

6 参考文献

Hitoshi Mukai et al: characterization of Sources of Lead in the Urban Air of Asia Using Ratios of Stable Lead Isotopes, Environ. Sce. Technol., 1993,27,1993,27,1347-1356

表 1 鉛濃度および鉛安定同位体比（鉛濃度が 0.5pp 以上の試料のみ）

捕集開始 年/月/日	捕集終了 年/月/日	^{208}Pb 濃度 (ppb)	鉛安定同位体比		
			$^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$	$^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$	$^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$
2007/4/8	2007/4/9	2.99	0.865	2.104	18.036
2007/4/21	2007/4/22	3.82	0.861	2.108	18.185
2007/4/24	2007/4/25	4.16	0.862	2.105	18.041
2007/4/26	2007/4/27	9.53	0.865	2.112	18.053
2007/5/2	2007/5/3	2.90	0.866	2.115	17.974
2007/5/19	2007/5/20	3.11	0.862	2.108	18.052
2007/5/25	2007/5/26	4.42	0.848	2.086	18.380
2007/8/6	2007/8/7	2.42	0.879	2.127	17.666
2008/1/6	2008/1/7	3.85	0.871	2.122	17.813
2008/4/3	2008/4/4	7.86	0.862	2.109	18.113
2008/4/8	2008/4/9	8.47	0.863	2.109	18.075
2008/4/13	2008/4/14	0.90	0.862	2.106	18.012
2008/4/17	2008/4/18	1.46	0.863	2.107	17.999
2008/4/18	2008/4/19	0.99	0.861	2.107	17.994
2008/4/24	2008/4/25	1.22	0.866	2.108	17.964
2008/4/26	2008/4/27	3.29	0.863	2.106	17.983
2008/5/5	2008/5/6	0.93	0.867	2.114	17.862
2008/5/14	2008/5/15	0.52	0.860	2.100	18.115
2008/5/16	2008/5/17	1.68	0.865	2.107	18.029
2008/5/17	2008/5/18	4.42	0.866	2.108	18.057
2008/5/19	2008/5/20	0.64	0.864	2.113	18.007
2008/5/28	2008/5/29	5.32	0.866	2.115	17.961
2008/5/29	2008/5/30	0.84	0.859	2.106	18.176
2008/5/30	2008/5/31	1.44	0.864	2.111	18.001
2008/6/3	2008/6/4	1.80	0.865	2.108	18.018
2008/6/19	2008/6/20	1.91	0.866	2.113	18.026
2008/6/29	2008/6/30	0.52	0.865	2.113	17.852
2008/7/3	2008/7/4	1.67	0.865	2.108	17.850
2008/7/5	2008/7/6	4.24	0.861	2.103	18.129
2008/7/10	2008/7/11	2.64	0.865	2.108	18.108
2008/7/11	2008/7/12	10.24	0.885	2.134	17.516
2008/7/13	2008/7/14	3.41	0.879	2.125	17.681
2008/7/17	2008/7/18	4.24	0.878	2.124	17.718
2008/7/18	2008/7/19	1.00	0.872	2.116	17.703
2008/7/21	2008/7/22	15.82	0.872	2.122	17.861
2008/7/23	2008/7/24	1.24	0.868	2.111	17.897
2008/7/24	2008/7/25	1.54	0.859	2.104	18.118
2008/7/24	2008/7/25	1.24	0.859	2.101	18.145
2008/7/27	2008/7/28	6.22	0.862	2.105	18.090
2008/7/28	2008/7/29	0.66	0.871	2.117	17.720
2008/8/14	2008/8/15	1.85	0.870	2.110	17.888
2008/8/18	2008/8/19	2.66	0.868	2.112	17.945
2008/8/19	2008/8/20	0.94	0.864	2.105	18.175
2008/8/20	2008/8/21	0.74	0.863	2.105	17.979
2008/8/23	2008/8/24	1.69	0.863	2.104	18.004
2008/8/25	2008/8/26	1.35	0.867	2.106	17.919
2008/8/29	2008/8/30	7.04	0.868	2.113	17.989
2008/9/14	2008/9/15	0.89	0.871	2.120	17.832
2008/9/20	2008/9/21	1.51	0.865	2.110	17.934
2008/9/21	2008/9/22	0.61	0.866	2.115	17.766
2008/9/22	2008/9/23	1.11	0.866	2.108	17.934
2008/10/4	2008/10/5	0.99	0.864	2.110	17.865
2008/10/5	2008/10/6	1.10	0.864	2.105	18.035
2008/10/7	2008/10/8	0.77	0.864	2.113	18.059
2008/10/23	2008/10/24	0.51	0.864	2.107	18.168
2008/10/29	2008/10/30	0.52	0.869	2.116	17.727
2008/11/17	2008/11/18	3.43	0.867	2.114	17.966
2008/11/18	2008/11/19	1.91	0.865	2.109	17.994
2008/11/27	2008/11/28	0.65	0.862	2.112	18.134
2008/12/5	2008/12/6	1.53	0.864	2.107	18.007
2008/12/21	2008/12/22	0.84	0.864	2.106	17.868
2008/12/23	2008/12/24	1.86	0.863	2.108	17.919
2008/12/28	2008/12/29	2.93	0.862	2.100	18.033

2008/12/30	2008/12/31	0.89	0.862	2.107	18.038
2009/1/12	2009/1/13	0.86	0.862	2.106	18.093
2009/1/21	2009/1/22	5.57	0.864	2.107	17.999
2009/1/21	2009/1/23	3.87	0.863	2.104	17.976
2009/1/30	2009/1/31	0.57	0.865	2.106	18.016
2009/2/13	2009/2/14	1.54	0.859	2.105	18.163
2009/2/16	2009/2/17	1.31	0.859	2.100	18.048
2009/2/25	2009/2/26	1.51	0.859	2.101	18.086
2009/3/1	2009/3/2	1.07	0.865	2.109	17.956
2009/3/5	2009/3/6	1.33	0.861	2.101	18.077
2009/3/11	2009/3/12	0.76	0.864	2.106	17.994
2009/3/13	2009/3/14	2.44	0.865	2.106	17.969

防衛施設の飛行場周辺における $WECPNL$ から L_{den} への換算方法

Conversion Method of L_{den} from $WECPNL$ Around the Airport in Defense Facilities

菊地 英男
Hideo KIKUCHI

新たな航空機騒音に係る環境基準が平成 25 年 4 月から施行されるに伴い、評価指標についても変更され時間帯補正等価騒音レベル (L_{den}) が使用されることになる。既存の指標である $WECPNL$ と L_{den} の関係は、航空機 1 機毎の単発騒音曝露レベル (L_{AE}) を算出したのち L_{den} を求めて検討した結果によると、現在の環境基準値の範囲では $L_{den} \approx WECPNL - 15$ が成り立つことが判明している。今回は、 $WECPNL$ に補正をすることにより L_{den} を算出方法について検討した。その結果、 $WECPNL$ の補正項として平均継続時間を用いた L_{den} 換算式を作成し、当該飛行場周辺における短期測定地点に適用した結果、 L_{den} は約 30~66dB の範囲にあり、 $WECPNL$ と L_{den} の差は約 17dB であった。

キーワード：航空機騒音；環境基準； $WECPNL$ ；時間帯補正等価騒音レベル； L_{den} 換算式

Key words : Aircraft Noise ; Environmental Quality Standards ; $WECPNL$; L_{den}

Conversion Method of L_{den}

1 はじめに

航空機騒音に係る環境基準の一部改正により、これまで使用してきた評価指標である $WECPNL$ から時間帯補正等価騒音レベル (L_{den}) に変更され、平成 25 年 4 月から施行されることになった。このことにより、データの継続性が問題となるだけでなく、データの有効活用という観点からも、 $WECPNL$ を L_{den} に換算する必要がある。そこで、これまで常時監視により得られているデータを用いた L_{den} の換算式について検討した結果を報告する。

2 調査方法

検討は、防衛施設である航空自衛隊松島飛行場の周辺地域を対象とした。騒音レベルの測定は、図 1 に示す地点において、騒音計の周波数重み特性 A、時間重み特性 S (緩) とし、通年測定点 (A~D) では、閾値 70dB~76dB を 3sec 以上継続した場合の航空機騒音について、1 機ごとに最大騒音レベル ($L_{A,Smax}$)、継続時間 (最大騒音レベルから 10dB 低いレベルを超過している時間) を用いて単発騒音曝露レベル (L_{AE}) を算出した。又、実測調査地点 (No.1~5、以下「実測地点」と言う。) においては、マイクロホン高さを約 2.3m、サンプリングタイム 0.1 秒で 4~8 日間連続測定し、データ処理ソフトを用いて、航空機 1 機ごとに $L_{A,Smax}$ 、継続時間、 L_{AE} を求めた。更に、通年測定点及び実測地点とも日単位の $WECPNL$ 及び L_{den} を算出したのち、通常訓練を行っている日を抽出して検討対象とした。

3 調査・検討結果

3.1 $WECPNL$ と L_{den} の関係

$WECPNL$ と L_{den} の関係が、環境基準値である

$WECPNL70 \sim 75$ の区間では $L_{den} \approx WECPNL - 15$ の関係にあることは既に報告しているが、この関係は一樣ではなく、図 2 に示すように、 $WECPNL$ が小さくなるほど、 $WECPNL$ と L_{den} の差が小さくなっている。これは、航空機と測定点の位置関係が遠くなるほど航空機騒音の $L_{A,Smax}$ が小さくなり、かつ継続時間が長くなるためと推察される。

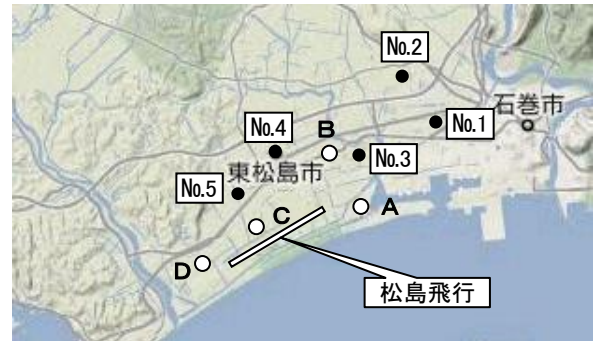


図1 測定地点の配置図

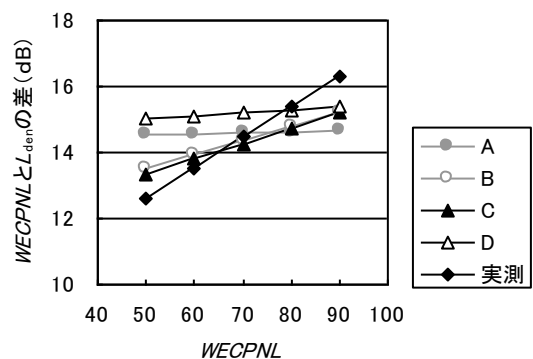


図2 $WECPNL$ に対する $WECPNL$ と L_{den} の差

3.2 L_{den} 換算式の作成

3.1 で述べたように、 $WECPNL$ と L_{den} の関係は地点により傾きが異なることから、 $WECPNL$ から L_{den} に直接換算することは難しい。しかし、これまで航空機騒音に係る常時監視データとして 1 日単位の $WECPNL$ 、飛行回数、平均継続時間（1 日における飛行機 1 機あたりの継続時間の平均値。）などを算出しており、多くの蓄積がある。これらの蓄積されたデータを有効に活用するためには、新評価指標である L_{den} に換算する必要がある。ここでは、実測地点で得られたデータを用いて、 L_{den} へ換算する方法として $WECPNL$ に補正する下式を仮定した。言うならば、(1)式の補正項は $WECPNL$ と L_{den} の差であり、この差を算出する方法を検討することになる。

$$L_{den} = WECPNL - \Delta \dots\dots\dots (1)$$

Δ : 補正項

$WECPNL$ と L_{den} を関連付ける要因は種々あると思われるが、ここでは同一のデータにより両方の評価量を測定しているため、周辺の環境要因はおなじであることから、 $WECPNL$ と L_{den} の差を説明する因子として平均継続時間を考えた。

初めに、平均継続時間と $WECPNL$ と L_{den} の差の関係を理論的に調べるために、 $WECPNL$ と L_{den} を計算により算出することとした。計算条件は $L_{A,Smax}$ 及び飛行回数を一定値とする。平均継続時間を 10, 20, 40, 80, 100sec と変化させて L_{AE} を算出し、更に飛行回数を加味して L_{den} を求めた。

また、 $L_{A,Smax}$ と飛行回数が一定であるため $WECPNL$ も一定値となる。この様にして求めた $WECPNL$ と L_{den} の理論的な差を算出した結果を表 1 に示す。

表1 平均継続時間に対する $WECPNL$ と L_{den} の差の算出結果

区分	項目	平均継続時間 (sec)				
		10	20	40	80	100
計算条件	$L_{A,Smax}$ 平均値 (dB)	80.0	80.0	80.0	80.0	80.0
	飛行回数 (回)	50	50	50	50	50
	L_{AE} 平均値 (dB)	85.9	88.9	91.9	94.9	95.9
算出値	L_{den} (dB)	53.5	56.5	59.5	62.6	63.5
	$WECPNL$ (dB)	70.0	70.0	70.0	70.0	70.0
$WECPNL - L_{den}$ の差 (dB)		16.5	13.5	10.4	7.4	6.9

この表から平均継続時間に対する $WECPNL$ と L_{den} の理論差を図 3 に示す。この図から、平均継続時間が長くなるに従って $WECPNL$ と L_{den} の差は小さくなり、平均継続時間が 2 倍になると L_{den} が 3dB 低下し、その差は平均継続時間の対数と直線関係にあることが判明した。そこで、実測地点のデータを用いて求めた平均継続時間に対する $WECPNL$ と L_{den} の差の関係を図 4 に示すが、理論差と実測値から求めた差の関係はほぼ同じであり、データ数が 29 個と少ないが、相関係数 $R = -0.825$ と強い相関があることから、傾きと切片を求めて作成した回帰式を次に示す。

$$\Delta = -10.1 \log_{10}(T_{dur}) + 27.2 \dots\dots\dots (2)$$

T_{dur} : 平均継続時間 (sec)

これらの結果から、(2)式に(1)式を代入することにより、 $WECPNL$ と平均継続時間を用いて L_{den} に換算する(3)式が得られた。

$$L_{den} = WECPNL - \Delta \doteq WECPNL + 10.1 \log_{10}(T_{dur}) - 27.2 \dots\dots\dots (3)$$

T_{dur} : 継続時間の日平均値

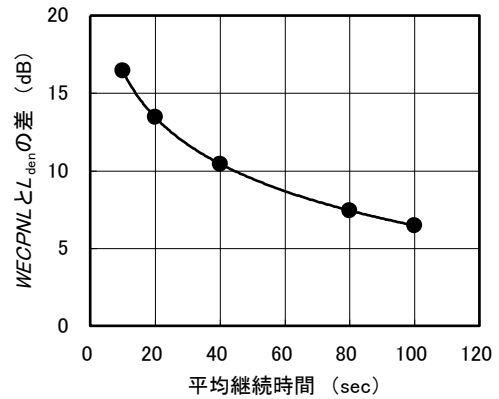


図3 平均継続時間に対する $WECPNL$ と L_{den} の理論差

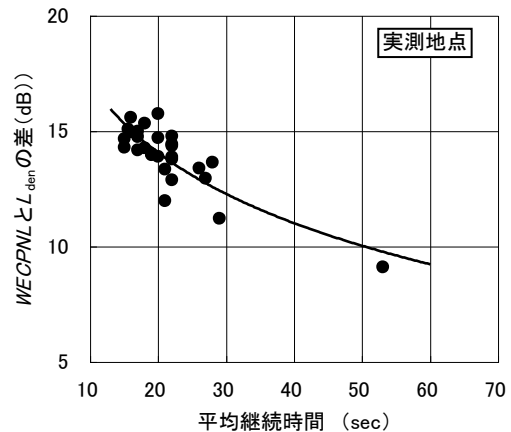


図4 平均継続時間に対する $WECPNL$ と L_{den} の差

3.3 L_{den} 換算式の有効性の検討

3.2 で作成した L_{den} 換算式の有効性を確認するために、航空機 1 機ごとの L_{AE} から算出した L_{den} (以下「 L_{den} 実測値」と言う。)と(3)式を用いて換算した L_{den} (以下「 L_{den} 換算値」と言う。)について、通年測定点 A～D のそれぞれについて算出した相関係数等を表 2 に示す。

表2 L_{den} の実測値と換算値の関係

地点	相関係数	傾き	切片	データ数
A	0.996	0.975	0.734	255
B	0.995	0.999	0.029	211
C	0.997	1.007	-0.800	262
D	0.998	0.997	-0.555	265

また、最も飛行場から離れているB地点と飛行場直近のC地点における L_{den} の実測値と換算値の関係を図5及び図6に示す。A~Dのいずれの地点においても、 L_{den} 実測値と換算値は直線性を示しており、傾きはほぼ1対1の関係であり、相関係数も0.99を超えていることから、実測値と換算値は良く一致していることが判る。これらの結果から、 L_{den} は $WECPNL$ と平均継続時間を用いて精度良く換算できることが判明した。

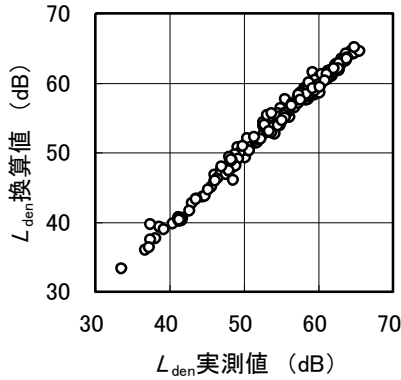


図5 L_{den} の実測値と換算値の関係(B地点)

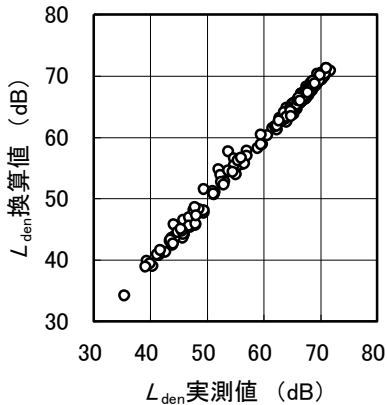


図6 L_{den} の実測値と換算値の関係(C地点)

4 L_{den} 換算式の適用

検討対象とした松島飛行場は、航空自衛隊の一般飛行やブルーインパルス等の訓練飛行が主であることから、土日祭日、盆暮れや霧などによる視界不良時には飛行を行わないため、飛行機数が日によって大きくばらついている。本県では、当該飛行場の周辺地域について1地点あたり14日間の連続測定を行うために14地点を設定し常時監視を行っている。これらの常時監視地点(平成20年度)と今回の解析対象とした通年測定点(平成19年度、A~Dの4地点)を図7に示す。これらの地点に(3)式を適用し、測定期間中の L_{den} 換算値及び $WECPNL$ を算出した結果は表3に示すとおり、飛行場周辺の $WECPNL$ は47.8~80.9、 L_{den} は29.9~65.6dBの範囲にあり、 $WECPNL$ と L_{den} のレベル差は13.7~19.2dBであることが判明した。又、両評価値の関係をX軸に $WECPNL$ 、Y軸に L_{den} としてプロットしたのが図8であり、 $WECPNL$ と L_{den} の関係は相関係数が0.988と強い相関があり、傾きが約1、切片が-16.8で

あり、 $WECPNL$ と L_{den} の差が約17dBであった。これまでの検討結果では、 $WECPNL$ と L_{den} の差が環境基準値である $WECPNL70\sim75$ の間では15dBであったが、今回の結果ではその差よりも大きくなっている。その原因として、解析対象範囲よりも換算式の適用範囲が広範囲に及んでいることや評価値の算出を1日単位ではなく測定期間の平均にしたためと思われる。

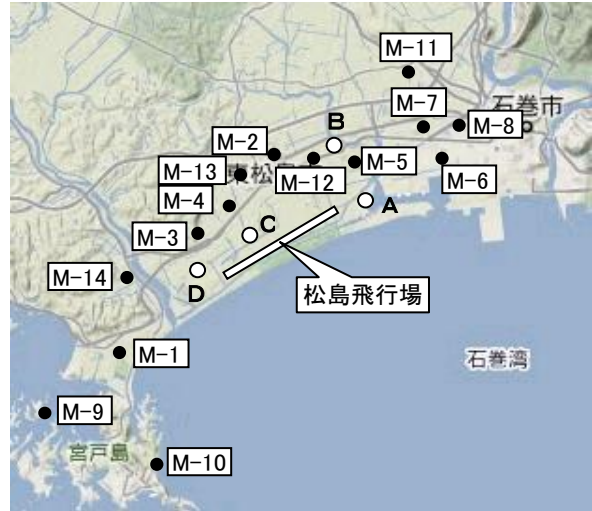


図7 L_{den} の検証に用いた測定地点

表3 $WECPNL$ と L_{den} 換算値及びレベル差

地点番号	$WECPNL$	L_{den}	レベル差	環境基準
M-1	65.4	48.4	17.0	II類型
M-2	56.8	41.9	14.9	I類型
M-3	59.8	41.2	18.6	II類型
M-4	68.0	50.9	17.1	II類型
M-5	67.6	49.7	17.9	II類型
M-6	63.8	44.6	19.2	II類型
M-7	57.2	42.2	15.0	I類型
M-8	59.3	44.0	15.3	—
M-9	50.0	36.3	13.7	—
M-10	47.8	29.9	17.9	—
M-11	58.1	42.2	15.9	—
M-12	67.9	51.8	16.1	II類型
M-13	68.1	52.1	16.0	—
M-14	62.5	45.2	17.3	—
A	80.9	65.6	15.3	II類型
B	70.8	56.3	14.5	II類型
C	79.5	64.3	15.2	II類型
D	80.5	64.5	16.0	II類型

※レベル差とは、 $WECPNL$ と L_{den} のレベル差である。

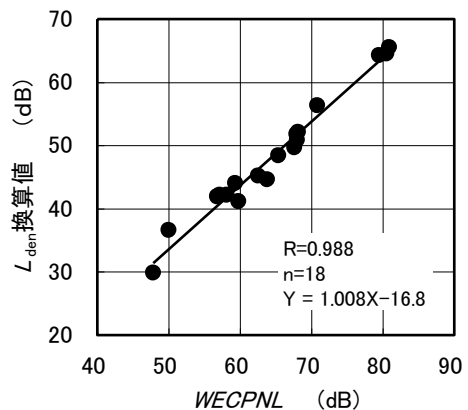


図8 $WECPNL$ と L_{den} 換算値の関係

5 まとめ

平成 19 年 12 月の「航空機騒音に係る環境基準」改正によって評価指標及び基準値が変更になり、平成 25 年 4 月から施行されることになった。これに伴い、これまで蓄積されたデータの継続性の確保と航空機騒音に係る環境基準の類型指定見直しを行う必要が生じた。今回の検討により、*WECPNL* と平均継続時間を用いた L_{den} 換算式を作成し、飛行場周辺の短期測定地点に適用したところ、 L_{den} は約 30~66dB となった。また、*WECPNL* と L_{den} の差については、これまでの検討結果よりも大きく約 17dB となった。今回作成した換算式は、精度良く L_{den} に換算できることが判明したことから、これまで蓄積してきた常時監視データの継続性を確保することがで

きる。また、飛行場周辺における環境基準の類型指定を新環境基準値に変更する場合においても、容易に *WECPNL* から L_{den} に換算できるため、これまでのデータを活用して現況を適切に把握することが可能となった。

なお、今回は防衛施設の飛行場を対象にしたものであり、これらの検討結果を一般の飛行場へ適用するに当たっては更に検討する必要がある。

6 参考文献

- 1) 菊地英男：航空機騒音の L_{AE} 算出方法及び *WECPNL* と L_{den} の関係について，日本騒音制御工学会平成 21 年秋季研究発表会講演論文集，81-84(2009.9)

宮城県沿岸域における表層水温のトレンド

— ダミー変数を用いた重回帰分析による推定 —

Trend of Surface Water Temperature
at the Coastal Area in Miyagi Prefecture
- Estimation of Trend by using Multiple Regression Analysis
Containing Dummy Variables -

福地 信一 阿部 郁子
佐々木久雄*1 藤原 秀一
Shinichi FUKUCHI, Ikuko ABE
Hisao SASAKI, Syuuichi FUJIWARA

季節変動を有する時系列データの解析手法としてダミー変数を用いた重回帰分析の適用が有効であることから、県内沿岸域の表層水温に当該手法を適用したところ、松島湾桂島西において危険率 1%で有意な結果が得られ、トレンドは 0.0033 (°C/月) で年間 0.0396°C となり、観測が始まって以来 34 年間で約 1.35°C 上昇という結果が得られた。

また、12 ヶ月移動平均法や Web-decomp による解析でも同様の結果が得られ、松島湾桂島西では明確な表層水温の上昇トレンドが確認された。

キーワード：トレンド；水温；重回帰分析；ダミー変数

Key words：Trend；Water temperature；

Multiple regression analysis；Dummy variables

1 はじめに

地球温暖化が沿岸域の水環境に及ぼす影響を把握するためには、海水温の上昇率を正確に評価することが重要と考えられる。

沿岸域における水温については、公共用水域水質測定計画に基づき観測しているデータが昭和 40 年代から 30 年以上にわたり集積されている。しかし、観測頻度が月 1 回であり、採水日や採水時刻が不規則であるため、そのまま解析し水温上昇率を求めると、偏りの発生が懸念される。

平成 20 年度から行われている、国立環境研究所と地方公共団体環境研究機関との C 型共同研究「地球温暖化がもたらす日本沿岸域の水質変化とその適応策に関する研究」において、これらの問題を解決すべく季節変動を有する時系列データの解析手法を種々検討したところ、ダミー変数を用いた重回帰分析の適用が最も有効であるとの検討結果が得られたことから、全国規模で海水温上昇率の調査を実施することになった。

本報告は、宮城県沿岸域における海水温上昇率の結果を取りまとめたものである。

2 解析方法

2.1 使用データ

表 1 に示すとおり、公共用水域環境基準点及び補助点から、気仙沼湾大島北沖（河口に近い）、鮎川湾御番所崎沖（外洋に面している）及び松島湾桂島西（内湾）の 3 地点を選定し、毎月観測している表層水温（海面下 0.5m）のデータを使用し解析を行った。

なお、気仙沼湾及び松島湾は、環境省が定めた閉鎖性海域 88 海域に含まれている。

表 1 使用したデータ一覧

地点名 データ	気仙沼湾 大島北沖 (河口)	鮎川湾 御番所崎沖 (外洋)	松島湾 桂島西 (内湾)
基準点番号	606-01	624-01	603-55
水深 (m)	30	25	5
観測期間	1979.4～ 2010.11	1980.5～ 2010.11	1977.4～ 2010.11
観測数	379	307	404

*1 現 東北大学大学院工学研究科

図1に観測地点を示す。



図1 観測地点

2.2 解析方法

2.2.1 ダミー変数を用いた重回帰分析

表2に示すとおり、目的変数と説明変数の表を作成し、エクセル2007に付属しているデータ分析ツールの回帰分析により解析した。

傾き効果には連番を入力する。御番所崎沖については3月及び4月は欠測月となっており、このような場合は欠番とする。季節効果に該当する月に1を入力し、それ以外の月に0を入力する。また、年度末に-1を入力し、年度毎の季節成分の和を0とする。

$$(Y = \text{トレンド成分} + \text{季節変動成分} + \text{残差})^{1)}$$

表2 目的変数と説明変数（桂島西の例）

測定年月	目的変数		説明変数												
	水温実測値	傾き効果	季節効果												
			4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月		
1977.04	10.9	1	1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
1977.05	13.0	2	0	1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
1977.06	17.0	3	0	0	1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
1977.07	25.9	4	0	0	0	0	1	0	0	0	0	0	0	0	0
1977.08	23.8	5	0	0	0	0	0	1	0	0	0	0	0	0	0
1977.09	21.0	6	0	0	0	0	0	0	1	0	0	0	0	0	0
1977.10	16.8	7	0	0	0	0	0	0	0	1	0	0	0	0	0
1977.11	18.0	8	0	0	0	0	0	0	0	0	1	0	0	0	0
1977.12	8.0	9	0	0	0	0	0	0	0	0	0	1	0	0	0
1978.01	4.3	10	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	1	0
1978.02	3.2	11	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	1
1978.03	4.7	12	-1	-1	-1	-1	-1	-1	-1	-1	-1	-1	-1	-1	-1
1978.04	11.6	13	1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
.
.
.
2010.11	14.8	404	0	0	0	0	0	0	0	0	1	0	0	0	0

2.2.2 12ヶ月移動平均法

季節調整の一般的な手法である12ヶ月移動平均法による解析を行った。

2.2.3 Web-decompによる解析

Web-decompとは、統計数理研究所が開発した、季節変動を含む時系列データの解析に使用するツールである。

下記HPにアクセスし、データをWeb上で直接入力することにより、統計数理研究所のコンピュータが解析し、結果を返してくれるシステムである。

$$(Y = \text{トレンド成分} + \text{季節変動成分} + \text{短期循環変動} + \text{曜日効果} + \text{ノイズ})^{2)}$$

<http://ssnt.ism.ac.jp/inets2/japaneseVersion/title.html>

2.2.4 気温のトレンド

C型共同研究では、参考として沿岸域近傍の気温トレンドを把握することとしているため、気象庁気象統計情報により宮城県女川町江ノ島を選定し、気温の解析を行った。

2.2.5 公共用水域データと連続測定データの比較

月1回の公共用水域水温データ（桂島西）と、2010年6月に設置した24時間連続測定データ（水温ロガー）の比較検討を行った。

図2に水温ロガー（HOBO Pendant Temperature Logger）の写真を示すが、5cmx3cmx1cmで30m耐圧性を有し、光通信によりパソコンへデータ転送を行うものである。



図2 水温ロガー

図3に松島湾における水温ロガーの設置地点を示す。

（桂島西：N38°20'18"， E141°04'19"）

（水温ロガー：N38°19'48"， E141°03'20"）

24時間連続測定用の水温ロガーは、環境基準補助点である桂島西から西へ1km離れた地点に、塩釜市漁業協同組合が設置した航路表示用ブイを借用し取り付けたものである。水深は5mで、表層から1m地点と底層から1m地点の2カ所で1時間に1回の頻度で連続測定を実施している。

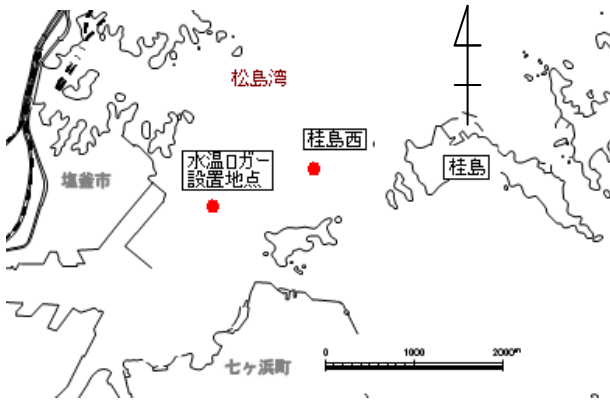


図3 松島湾における水温ロガー設置地点

2.2.6 水温連続測定結果の推移

水温ロガー設置地点における 2010 年 6 月から 12 月までの、水温連続測定結果の推移をまとめた。

3 結果および考察

3.1 ダミー変数を用いた重回帰分析結果

表3にダミー変数を用いた重回帰分析結果を示す。傾き効果(°C/月)は、月あたりの水温上昇率を示し、各月の値は、重回帰分析で得られた季節効果の係数である。

気仙沼湾大島北沖は統計的に有意な結果は得られず、海水温のトレンドはみられなかった。この基準点は、大川の河口に近いことから、陸水の影響を直接受けていることが原因と考えられる。

外洋に面している鮎川湾御番所崎沖は、3月と4月は毎年欠測となっており、10ヶ月分の解析結果となっている。有意な値ではないが、0.0012(°C/月)という僅かなトレンドが得られた。

松島湾桂島西における傾き効果については、危険率1%で有意な結果が得られ、トレンドは0.0033(°C/月)で年間0.0396°Cとなり、観測が始まって以来34年間で約1.35°C上昇という結果が得られた。内湾のため気温の影響を受けやすいことが原因と考えられる。

表2 ダミー変数を用いた重回帰分析結果

地点名	気仙沼湾 大島北沖	鮎川湾 御番所崎沖	松島湾 桂島西
傾き効果 (°C/月)	-0.0003	0.0012	0.0033**
4月(°C)	-4.0086	-	-3.1360
5月(°C)	-1.1365	-3.4822	0.6695
6月(°C)	2.9481	0.1715	4.7456
7月(°C)	5.0046	4.1929	8.3953
8月(°C)	8.3736	6.6660	11.0449
9月(°C)	7.5052	6.6970	8.6681
10月(°C)	4.1835	3.5894	4.0795
11月(°C)	0.8403	0.0463	-1.1032
12月(°C)	-2.8304	-2.7247	-5.7693
1月(°C)	-6.4463	-7.0626	-9.5878
2月(°C)	-7.2654	-	-9.1911

**危険率1%で有意

3.2 12ヶ月移動平均法による解析結果

図4-1~3に、12ヶ月移動平均法により季節調整を行った単回帰分析結果を示す。

緑線は過去30数年間における水温実測値を示しており、季節変動の振幅が顕著に確認できる。

青線は季節調整として12ヶ月移動平均した値を示しており、その線形分析(単回帰分析)結果を赤線で示した。その結果、

大島北沖: $Y=7E-05X+13.694$

御番所崎沖: $Y=0.0011X+15.376$

桂島西: $Y=0.0032X+13.593$

となり、重回帰分析とほぼ同様の結果が得られた。

桂島西の水温トレンドは0.0032(°C/月)であり、重回帰分析結果の0.0033(°C/月)とほぼ同様の値を示した。ただし、季節変動を含む時系列データに単回帰分析を適用すると、季節変動が誤ってトレンドと認識されることがあるため、避けた方が望ましい³⁾との報告がある。

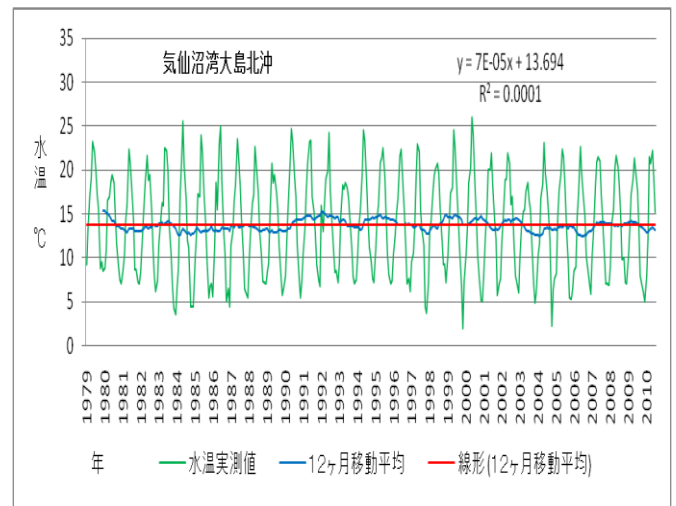


図 4-1 12 ヶ月移動平均(大島北沖)

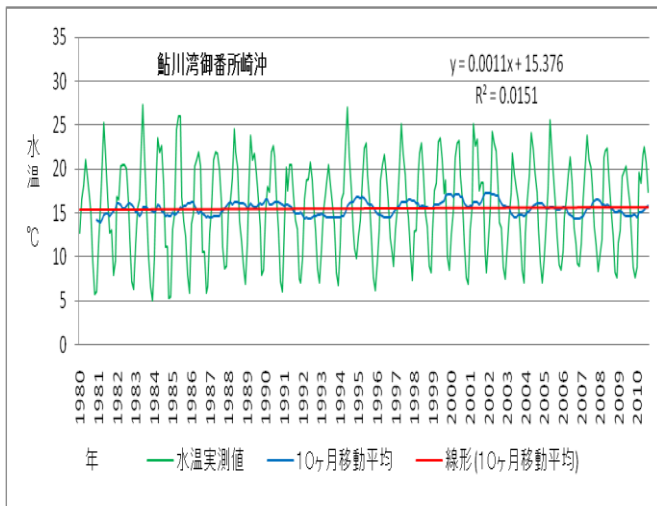


図 4-2 12 ヶ月移動平均(御番所崎沖)

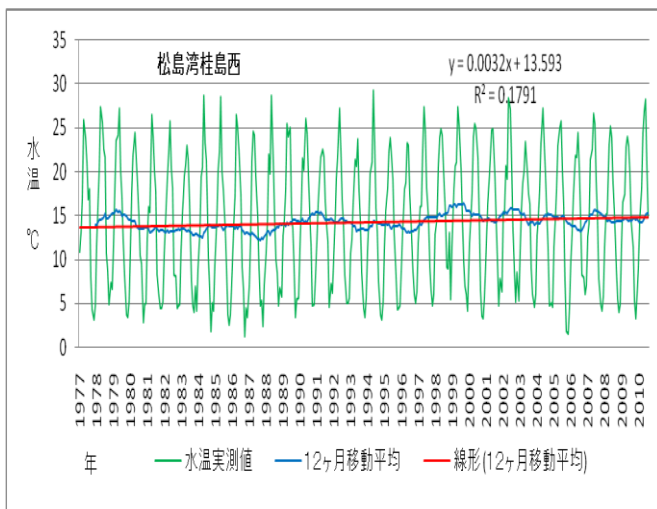


図 4-3 12 ヶ月移動平均(桂島西)

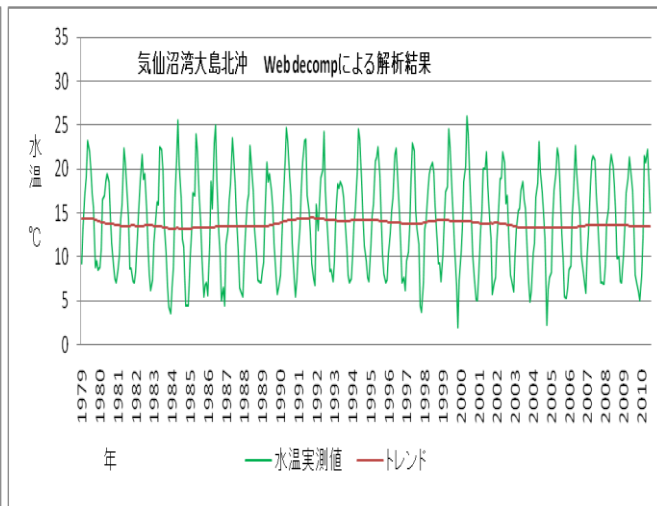


図 5-1 Web-decomp(大島北沖)

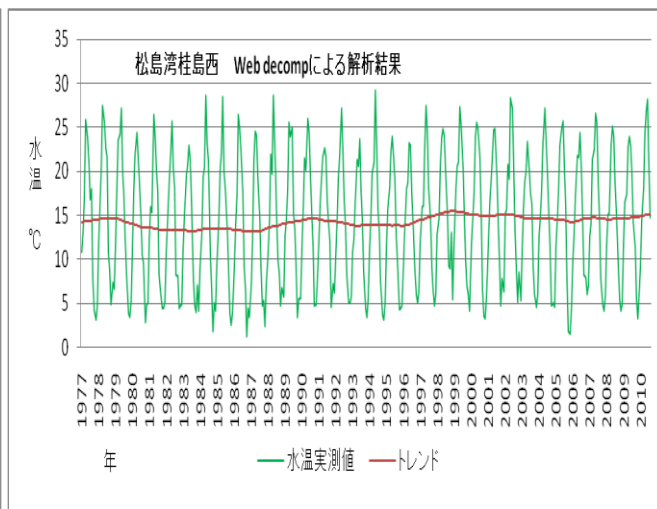


図 5-2 Web-decomp(桂島西)

3.3 Web-decomp による解析結果

図 5-1～2 に統計数理研究所の Web-decomp による海水温トレンドの解析結果を示す。

緑線は水温実測値で、振幅は季節変動である。赤線が解析結果であり、大島北沖についてはトレンドがほぼ水平であるが、桂島西では 1980 年代は 13℃、2000 年代では 15℃をキープしており、明確な海水温度の上昇トレンドが確認できる。

なお、御番所崎沖については欠測月を有しているため解析対象から除外した。

3.4 気温のトレンド

図 6 に江ノ島における年平均気温の推移を示す。

気象庁気象統計情報のデータによると、江ノ島における年平均気温のトレンドは、0.0348(℃/年)であり、最近 27 年間で 0.94℃上昇という結果が得られた。⁴⁾

なお、仙台管区气象台では、東北地方の年平均気温は 100 年あたりで 1.64℃上昇したと報告している。⁵⁾

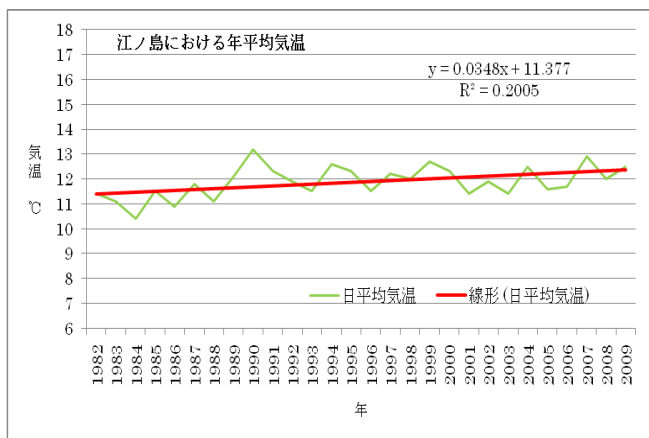


図6 江ノ島における年平均気温（気象統計情報）

3.5 公共用水域データと連続測定データの比較

表4に、公共用水域データと連続測定データの比較結果を示す。

公共用水域データは松島湾桂島西のデータで、月1回測定した瞬時値であり、連続測定データは水温ロガーデータで1日24時間毎正時のデータである。比較には月1回の採水測定時間に最も近いロガーの正時データを使用した。

データは5件であるが、両地点では平均0.38℃の水温差があるという結果が得られた。相関係数は0.999と非常に高く、1km離れていることを考慮しても、ほぼ同様の測定結果が得られたものと考えられる。

表4 公共用水域データと連続測定データの比較

測定日	公共用水域 (桂島西)		連続測定 (水温ロガー)		水温差 (℃)
	測定時間	水温(℃)	測定時間	水温(℃)	
2010/7/5	6:22	24.4	6:00	25.1	0.7
2010/8/4	5:54	26.9	6:00	27.3	0.4
2010/9/6	9:05	28.2	9:00	28.2	0.0
2010/10/6	11:07	20.8	11:00	21.4	0.6
2010/11/8	6:56	14.8	7:00	15.0	0.2

相関係数=0.999

水温差平均=0.38

3.6 水温連続測定結果の推移

図7に松島湾における2010年6月24日から12月21日までの水温連続測定結果(1時間値)の推移を示す。赤線は表層水温、青線は底層水温で、短い振幅は日変動である。

2010年の夏は猛暑に見舞われ、松島湾の表層水温は30℃を超える日もあった。5m程度の水深でも夏期は表層と底層に温度差が出現し成層を確認できるが、10月以降は対流期に入り温度差が消滅している。

9月下旬に台風12号が通過し、それ以降海水温は5℃低下している。

水温ロガーは連続データが収集可能なので、詳細な温度変化の解析には有用な測定機器であることから、C型共同研究参加機関に広く設置を呼びかけ、データは国環研に集約しHPにより公開する予定となっている。

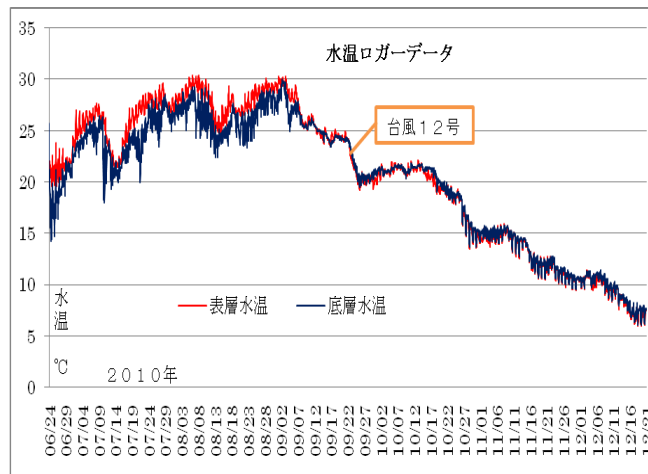


図7 水温連続測定結果の推移

4 まとめ

宮城県内の沿岸域3地点において、30年以上にわたり集積された公共用水域水質測定結果を使用し、海水温の解析を行ったところ、以下の結果が得られた。

①ダミー変数を用いた重回帰分析結果によると、松島湾桂島西については、危険率1%で有意な結果が得られ、トレンドは0.0033(℃/月)で年間0.0396℃となり、観測が始まって以来34年間で約1.35℃上昇という結果が得られた。なお、大島北沖、御番所崎沖については有意な結果は得られなかった。

②12ヶ月移動平均法により季節調整を行った単重回帰分析結果についても、重回帰分析結果と同様の結果が得られた。

③統計数理研究所のWeb-decompにより解析したところ、大島北沖についてはトレンドが明確ではないが、桂島西では明確な海水温上昇トレンドが確認された。

④江ノ島における年平均気温のトレンドは、0.0348(℃/年)であり、最近27年間で0.94℃上昇という結果が得られた。

⑤環境基準補助点である桂島西における月1回の測定データと、近隣に設置した24時間連続測定データ5件分を比較したところ、両地点では平均0.38℃の水温差があるという結果が得られた。相関係数は0.999と非常に高く、1km離れていることを考慮しても、ほぼ同様の測定結果が得られたものと考えられる。

⑥松島湾における2010年6月から12月までの水温連続測定結果によると、9月下旬に台風が通過し、それ以降海水温が5℃低下し、その後対流期に入ったものと考えられる。

本報告は県内沿岸域3地点のみの解析結果であるが、C型共同研究に参加している26機関により、全国規模で海水温のトレンドを把握することとしており、今後全国的な傾向が明らかになる予定となっている。

5 参考文献

1) 二宮勝幸, 柏木宣久他: 東京湾生部海域における

表層水温のトレンド: 横浜市環境科学研究所所報第34号2010

2) Web-decomp: 統計数理研究所 HP

<http://ssnt.ism.ac.jp/inets2/japaneseVersion/title.html>

3) 二宮勝幸, 柏木宣久: 単回帰分析による季節時系列のトレンド推定の問題点: 横浜市環境科学研究所所報第34号2010

4) 宮城県江ノ島の気温: 気象庁気象統計情報

5) 地球温暖化による東北地方の気候への影響: 仙台管区气象台