

# 青森県環境保健センター研究報告

Bulletin

of

Aomori Prefectural Institute of Public Health and Environment

No.22 2011

青森県環境保健センター

青森県環境保健センターは、公害の防止その他の環境の保全上必要な調査・試験研究及び保健衛生上必要な試験研究・技術指導を所掌し、具体的には、公害部関係として、環境大気監視、有害大気汚染物質調査、酸性雨調査、十和田湖に係る水質調査、航空機及び新幹線騒音調査、ダイオキシン類調査など、微生物部関係として、感染症流行予測調査、感染症発生動向調査、ウイルス性食中毒検査、病原微生物検出情報収集活動、感染症情報センター活動など、理化学部関係として、農産物残留農薬検査、魚介類中のPCB等検査、アレルギー物質検査、対EU輸出ホタテガイ生産海域のモニタリング検査、食中毒理化学検査などを実施し、得られた科学的根拠に基づくデータの提供を行い、環境行政、保健衛生行政の推進に重要な役割を果たしてきています。

このような日常実施している試験検査や調査で得られた知見を記録として残し 公表することは研究機関としての与えられた重大な務めです。また、この活動は技 術レベルの維持向上や人材育成の面から不可欠であり、健康危機管理などに迅速に 対応することのできる能力の醸成につながります。

そのためにも、学会への参加、大学等との共同研究、学位の取得への支援などを 推し進め職員の意欲を高めることが肝要です。このことを関係者全員が常に意識し ながら日常の業務を進めていきたいと思っています。

ここに平成23年度研究報告(第22号)を取りまとめました。御高覧のうえ忌憚のない御意見をいただければ幸いです。

今後とも御指導、御支援を賜りますようよろしくお願いいたします。

平成24年 3月

青森県環境保健センター 所 長 齋藤 稔

I 報文

#### ウイルス性集団胃腸炎事例の発生動向(2010/11シーズン) 筒井理華 井上 治 三上稔之 吉田綾子 八戸地域における環境大気中の重金属成分モニタリング - ローボリウムエアサンプラー法による濃度調査-対馬典子 工藤香織 神 正志 11 八戸地域における有害大気汚染物質の発生源推定について - 多元素分析に焦点を当てて-花石竜治 対馬典子 工藤香織 23 十和田湖における汚濁源の負荷について-平成21年度まで-野澤久志 一戸卓也 花石竜治 工藤幾代 工藤隆治 28 奥入瀬渓流における泡出現の原因の考察 花石竜治 野澤直史 工藤香織 齋藤輝夫 34 Ⅱ ノート 県内で散発分離されたカンピロバクター属菌の PFGE 法等による解析検討 武沼浩子 大川郁子 野呂キョウ 三上稔之 41 アレルギー物質(卵、乳、小麦、そば、落花生)の検査結果 - 平成 19 年度から平成 23 年度まで-楢山宝孝 木村淳子 工藤志保 増田幸保 45 食品苦情事例(平成22年度) 櫻庭麻恵 楢山宝孝 増田幸保 木村淳子 山本明美 49 水道水質外部精度管理調査結果(平成22年度) 木村淳子 楢山宝孝 増田幸保 52 環境大気中重金属類の ICP-MS 法による定量分析に関する留意点 一八戸地域の調査における内標準元素についての一考察 対馬典子 神 正志 ..... 56 パッシブサンプラー法による環境大気中ガス状酸性化成分等濃度調査結果 工藤香織 対馬典子 渡部陽一 60 Ⅲ 学会等発表抄録 65

## Contents

| 1 | Original Afficies  |
|---|--|
|   | Trend Survey of Pathogen Groups Responsible for Viral Gastroenteritis Outbreaks (Season 2010/11)   |
|   | Ayako Yoshida, Rika Tsutsui, Osamu Inoue, Toshiyuki Mikami   |
|   | Monitoring of Heavy Metal Concentration in Environmental Atmosphere in Hachinohe Area - Investigation of Pollutant with the Low Volume Air Sampler - |
|   | Noriko Tsushima, Kaori Kudo, Masashi Jin   |
|   | Estimation of Emission Source of Hazardous Air Pollutants in Hachinohe Area  |
|   | - A Focus on Multi-Elemental Analysis -  |
|   | Ryuji Hanaishi, Noriko Tsushima, Kaori Kudo  |
|   | Loading of Pollution Source at Lake Towada   |
|   | - for the Period up to Fiscal 2009 -   |
|   | Ryuji Hanaishi, Hisashi Nozawa, Takuya Ichinohe, Ikuyo Kudo, Ryuji Kudo  |
|   | Discussion on the Cause of Foam in the Oirase River  |
|   | Ryuji Hanaishi, Naofumi Nozawa, Kaori Kudo, Teruo Saito  |
| Π | Notes  |
|   | Analysis of Campylobacter Isolated from Sporadic Cases in Aomori Prefecture  |
|   | Using Pulse Field Gel Electrophoresis (PFGE)   |
|   | Hiroko Takenuma, Ikuko Okawa, Kyo Noro, Toshiyuki Mikami   |
|   | Examination of Allergenic Substances (Eggs, Milk, Wheat, Buckwheat and Peanuts)  |
|   | in Processed Foods   |
|   | - From Fiscal 2009 to 2011-  |
|   | Takatoshi Narayama, Junko Kimura, Shiho Kudo, Yukiyasu Masuda  |
|   | Investigation of Food complaints (Fiscal 2010)   |
|   | Junko Kimura, Akemi Yamamoto, Asae Sakuraba,  Takatoshi Narayama, Yukiyasu Masuda  |
|   | Takatoshi Narayama, Yukiyasu Masuda  |
|   | Results of External Quality Control for Tap Water Quality (Fiscal 2010)  |
|   | Junko Kimura, Takatoshi Narayama, Yukiyasu Masuda  |
|   | Aspects to Consider During ICP-MS Analysis of Heavy Metals in Environmental Atmosphere   |
|   | - Discussion Based on Internal Standard Elements Used in an Investigation in the Hachinohe Area-   |
|   | Noriko Tsushima, Masashi Jin   |

|   | Results of Monitoring Survey of Gaseous Acidifying Compo | onents |    |  |
|---|--|--------|----|--|
|   | in Environmental Air Using the Passive Sampler Method    |        |    |  |
|   | Kaori Kudo, Noriko Tsushima, Yoichi Watanabe             |        | 60 |  |
|   |  |        |    |  |
|   |  |        |    |  |
|   |  |        |    |  |
| Ш | Abstracts of Presentations in Society Meetings           |        | 65 |  |

## I 報 文

#### ウイルス性集団胃腸炎事例の発生動向(2010/11 シーズン)

吉田綾子 筒井理華 井上 治 三上稔之

2010/11 シーズンの食中毒(疑い)及び感染症集団胃腸炎事例について、原因ウイルスの検索を行った結果、ノロウイルス(NV)が 34 事例から検出され、そのうち 31 事例から NVG II が、3 事例から G I 及び G II の両遺伝子群が検出された。

流行の主流となった遺伝子型は、NV Genogroup II /2(NVG II /2)で、2006/07 シーズンから主流行型であった NVG II /4 は検出数が減少した。また、NVG II /2 は小児や学生での検出例が多く、保育所・幼稚園での集団発生事例が増加傾向にあることから、当該施設等において感染予防や感染拡大防止対策をより重視する必要性が考えられた。

複数種類のウイルス遺伝子型が検出された事例があり、食中毒の原因究明においては、発症者と調理従事者のウイルスが一致しない場合を考慮して対応する必要があると考えられた。

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

#### 1. はじめに

ノロウイルス(Norovirus:以下 NV)及びサポウイルス(Sapovirus:以下 SV)は、嘔吐、下痢を主症状とする感染性胃腸炎の原因ウイルスであり、食中毒やヒトからヒトへの感染の集団胃腸炎事例を引き起こすことから、保健衛生において注意を要するウイルスである。

NV 及び SV は、カリシウイルス科に属し、直径  $30\sim38$  nm、約 7500 塩基の 1 本鎖(+)RNA ウイルスである。NV は、genogroup(遺伝子群:以下G)I  $\sim$ Vに大別され、NVG I と NVG II が主にヒトに感染し、少なくとも NVG I は 15 種類、NVG II は 19 種類の遺伝子型が存在する  $^{1-3}$ 。本県では、2006/07 シーズンから 2009/10 シーズンまで NVG II /4 が主流行型であった  $^{1,4}$ 。

また、冬季を中心に流行し、糞便及び吐物中に 大量に排出され、感染力が強い。症状消失後も長 期に糞便中への排出が続き<sup>2,5)</sup>、ヒトを介して NV 等に汚染された食品の摂取による食中毒や、ヒト からヒトへの感染で生じる感染症集団事例が主に 冬季に頻発する<sup>1)</sup>。

今回、青森県における 2010/11 シーズンのウイルス性集団胃腸炎事例について、ウイルスの遺伝子解析を行い、発生動向及び流行型等を分子疫学

的に検討した。

#### 2. 材料と方法

#### 2.1 検査材料

18 事例から得られた 413 検体(糞便 233、吐物 10、食品 51、ふきとり 119)を用いた(表 1)。また、青森市保健所から表 2 のとおり情報提供を得たNV検出の 16 事例について、148 検体(糞便 116、食品 3、ふきとり 29)のうちNV陽性 68 検体のcDNAの分与を受け、遺伝子解析に用いた。

#### 2.2 検査方法

検体処理、RNA抽出、PCR及び遺伝子解析は、 既報に準じて実施した <sup>4、6</sup>。

#### 3. 結果

#### 3.1 2010/11 シーズンの NV 遺伝子解析結果

2010/11 シーズンの集団事例の概要を表 1 及び表 2 に示す。

食中毒と行政判断がなされた事例は7事例で、 NVが検出された(表1:事例番号6、8、10、13、 14、15、表2:A10)。

検体からのウイルス遺伝子検出では、発症者便 及び調理従事者便349検体中154、吐物10検体 中4、食品54検体中1、ふきとり148検体中1か

表 1 青森県内(青森市保健所管内以外)で発生したウイルス性集団胃腸炎事例(2010/11 シーズン)

|                   |            | TANK TE PICIALITY |            |              |    | ふん       |   | *1      |    |   |   |         |    |         |  |
|-------------------|------------|-------------------|------------|--------------|----|----------|---|---------|----|---|---|---------|----|---------|--|
| 事例                | 発 生        | 3V, 11_+(-=0.66   | 発症         | 喫食者数<br>又は団体 |    | 定者<br>の他 |   | 理事者     | 吐  | 物 | 食 | 品       | ふき | きとり     | <b>₩</b>   |
| 番号                | 年月日        | 発生施設等             | 者数<br>(職員) | 母数           |    | 生数       |   | 生数      | 陽性 | 数 |   | 生数      |    | 生数      | 検査結果   |
|                   |            |                   | (1985)     | (職員)         |    | /<br>查数  |   | /<br>查数 | 検査 | 数 |   | /<br>查数 |    | /<br>查数 |  |
| 1                 | 2010.11.25 | 保育所               | 28(1)      | 77(17)       | 5  | 6        | 4 | 5       | 1  | 2 |   |         |    |         | NVG II /2  |
| 2                 | 2010.11.29 | 保育所               | 35         | 217(31)      | 6  | 7        | 1 | 4       |    |   |   |         |    |         | NVG II /2(発症<br>者 5 名)、<br>NVG II /4(発症<br>者 1 名、調理従                         |
|                   |            |                   |            |              |    |          |   |         |    |   |   |         |    |         | 事者 1 名)  |
| 3                 | 2010.12.18 | 高校寮               | 18(3)      | 68           | 2  | 5        | 1 | 19      |    |   |   |         |    |         | NVG II /13   |
| 4                 | 2010.12.6  | 保育所及び<br>デイサービス   | 48(4)      | 113(17)      | 10 | 10       | 1 | 3       |    |   | 0 | 4       | 1  | 7       | NVG II /2(発症<br>者 9 名、調理従<br>事者 1 名)、<br>NVG II /4(発症<br>者 1 名)              |
| 5                 | 2010.12.25 | 保育所               | 16         | 72(12)       | 1  | 7        | 0 | 1       | 3  | 7 | 0 | 10      | 0  | 12      | NVG II /3  |
| 6                 | 2011.1.6   | 飲食店               | 7          | 14(3)        | 2  | 3        | 2 | 3       |    |   |   |         | 0  | 5       | NVG II /4  |
| 7                 | 2011.1.1   | グループホー<br>ム       | 6(1)       | 35(17)       | 3  | 3        |   |         |    |   |   |         |    |         | NVG II /4  |
| 8                 | 2011.1.8   | 家庭                | 2          | 2            | 2  | 2        |   |         |    |   | 1 | 2       | 0  | 1       | NVGⅡ/2(食<br>品)、発症者は<br>遺伝子解析不可<br>能。   |
| 9                 | 2011.1.18  | 家庭                | 10         | 14           | 3  | 4        |   |         |    |   |   |         | 0  | 7       | NVGII/2(発症<br>者 1 名)、<br>NVGII/13(発症<br>者 1 名)、<br>NVGI/9·GII/2<br>(発症者 1 名) |
| 10                | 2011.1.10  | 飲食店               | 12         | 58           | 5  | 6        | 0 | 3       |    |   | 0 | 1       | 0  | 8       | NVG II /2  |
| 11*1              | 2011.2.5   | 小学生(スポ<br>一ツ合宿)   | 37         | 81(16)       | 10 | 11       | 0 | 4       |    |   |   |         | 0  | 8       | NVG II /2  |
| 12                | 2011.1.18  | 家庭                | 21         | 69           | 5  | 9        | 2 | 42      |    |   | 0 | 27      | 0  | 11      | NVG II /4(発症<br>者 5 名)、G II /13<br>(調理従事者 1<br>名)                            |
| 13                | 2011.2.19  | 飲食店               | 6          | 10           | 3  | 6        | 2 | 4       |    |   | 0 | 1       | 0  | 16      | NVG II /2  |
| 14                | 2011.2.17  | ホテル               | 8          | 不明           | 2  | 4        | 1 | 14      |    |   |   |         | 0  | 16      | NVG II /13   |
| 15                | 2011.5.28  | 飲食店               | 4          | 581          | 4  | 4        | 1 | 22      | 0  | 1 |   |         | 0  | 14      | NVG <b>I</b> /12   |
| 16 <sup>**2</sup> | 2011.6.5   | 高校(スポー<br>ツ大会)    | 6          | 25(4)        | 1  | 1        | 0 | 4       |    |   | 0 | 4       | 0  | 9       | NVG II /12   |
| 17                | 2011.6.22  | 福祉施設              | 30(1)      | 101(41)      | 4  | 8        |   |         |    |   |   |         |    |         | NVG II /4  |
| 18                | 2011.7.7   | 保育所               | 4(1)       | 6(1)         | 4  | 6        | 0 | 3       |    |   | 0 | 2       | 0  | 5       | NVG II /2  |
| - 表中σ             |            | <br>は、食中毒事        | 何をテす       |              |    |          |   |         |    |   |   |         |    |         |  |

表中のは、食中毒事例を示す。

※1; 事例番号 11 と事例番号 A5 は発生場所が同一の事例。 ※2; 事例番号 16 と事例番号 A16 は発生場所が同一の事例。

表 2 青森市保健所管内で発生したウイルス性集団胃腸炎事例 (2010/11 シーズン)

| 事例                | 発 生        | 旧的で元工                     | 発症         | 型食者数<br>又は団体 | 発症 |           | し便 | 理  | 吐  | 食  |         |    | راع     |  |
|-------------------|------------|---------------------------|------------|--------------|----|-----------|----|----|----|----|---------|----|---------|--|
| 番号                | 年月日        | 発生施設等                     | 者数<br>(職員) | 母数           | 陽性 | 生数        | 陽性 | 生数 | 陽性 |    | 生数<br>⁄ |    | 生数<br>⁄ | 検査結果   |
|                   |            |                           |            | (職員)         |    | <b>查数</b> | 検査 |    | 検査 | 検査 |         | 検査 |         |  |
| A1                | 2010.12.14 | 保育所                       | 12         | 51           | 1  | 2         |    |    |    |    |         |    |         | NVG <b>I</b> /4  |
| A2                | 2010.12.11 | 飲食店                       | 38         | 55           | 21 | 23        | 0  | 10 |    | 0  | 3       | 0  | 12      | NVG II /4  |
| A3                | 2010.12.13 | 保育所                       | 56         | 110(27)      | 3  | 3         | 0  | 2  |    |    |         |    |         | NVG II /3  |
| A4                | 2011.1.10  | 飲食店                       | 5          | 9            | 4  | 4         |    |    |    |    |         |    |         | NVG II /2  |
| A5 <sup>**1</sup> | 2011.2.6   | 小学校 (ス<br>ポーツ合宿)          | 37         | 81(16)       | 5  | 5         |    |    |    |    |         |    |         | NVG II /2  |
| A6                | 2011.2.20  | 小学校                       | 51         | 173(16)      | 3  | 5         |    |    |    |    |         |    |         | NVG II /2  |
| A7                | 2011.2.22  | 保育所                       | 13(1)      | 91(16)       | 4  | 4         | 0  | 2  |    |    |         |    |         | NVG II /2  |
| A8                | 2011.2.24  | 保育所                       | 13         | 68(15)       | 2  | 2         | 0  | 1  |    |    |         |    |         | NVG II /2  |
| A9                | 2011.2.25  | 老人福祉施 設                   | 33(9)      | 136(45)      | 1  | 1         | 0  | 9  |    |    |         |    |         | NVG II /4  |
| A10               | 2011.3.6   | 飲食店                       | 30         | 62           | 1  | 1         |    |    |    |    |         |    |         | NVG II (シークエ<br>ンス不可能)   |
| A11               | 2011.3.28  | 家庭                        | 5          | 6            | 1  | 1         |    |    |    |    |         |    |         | NVG II /2  |
| A12               | 2011.4.5   | 飲食店                       | 9          | 23           | 6  | 9         | 0  | 3  |    |    |         | 0  | 8       | NVG I (シークエ<br>ンス不可能)、<br>NVG II /3(発症者<br>1 名)、<br>NVG II /13(発症<br>者 4 名)                    |
| A13               | 2011.4.17  | 病院                        | 38<br>(16) | 不明           | 1  | 1         |    |    |    |    |         |    |         | NVG II /4  |
| A14               | 2011.5.6   | 家庭                        | 2          | 不明           | 1  | 1         |    |    |    |    |         |    |         | NVG II /2  |
| A15               | 2011.5.28  | 飲食店                       | 10         | 213          | 7  | 10        | 0  | 9  |    |    |         | 0  | 9       | NVG I /8(発症者<br>1名)、<br>NVG I /9(発症者<br>1名)、<br>NVG II /6(発症者<br>2名)、<br>NVG II /13(発症<br>者3名) |
| A16 <sup>※2</sup> | 2011.6.5   | 高校 (スポ<br>ーツ大会)<br>ナ 食中毒事 | 6          | 25(4)        | 6  | 8         |    |    |    |    |         |    |         | NVG II /12   |

表中のは、食中毒事例を示す。

※1;事例番号 11 と事例番号 A5 は発生場所が同一の事例。 ※2;事例番号 16と事例番号 A16 は発生場所が同一の事例。

 G2/4/Bristol/93/UK X76716 G1/7/AJ277609Winchester/94/UK G1/13/AB112132SaitamaT35aG1/01 G1/14/AB112100SaitamaT25G1/01/ G1/12/AB058525SaitamaKU19aG1/0 369 G1/3/U04469DeserShieldDSV395 555 G1/10/AF538679Boxer/2001/US 386 334 G1/11/AB058547SaitamaKU8G1/99/ G1/2/L07418Southampton/91/UK - G1/1/M87661Norwalk/68/US G1/6/AF093797BS5/98/CE 919 A15- 発症者(1) 183 G1/8/AB081723WUG1/00/JP - G1/4/AB042808Chiba407/1987/JP 439 G1/5/AJ277614Musgrove/89/UK 903 G1/9/AB039774SaitamaSzUG1/99/J

図 1 2010/11 シーズン集団事例から検出された NVG I (capsid 領域 260 nt) 系統樹 (NJ 法、数字): bootstrap 値 (bootstrap1000 回)、\*:食中毒事例、数字:表 1 及び表 2 の事例番号、(数字):検体数)

0.1

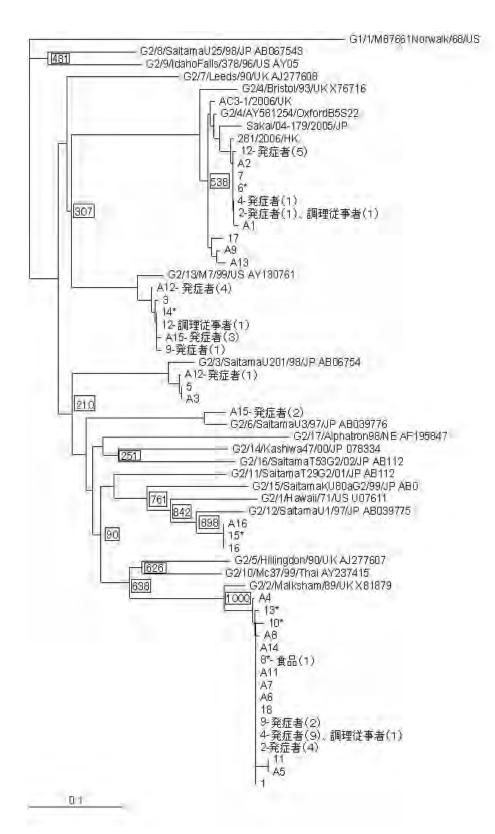


図 2 2010/11 シーズン集団事例から検出された NVG II (capsid 領域 279 nt) 系統樹 (NJ 法、数字): bootstrap 値 (bootstrap1000回)、\*:食中毒事例、数字:表1及び表2の事例番号、(数字):検体数)

らNVが検出された(表 1、表 2)。(青森市保健 所実施分を含む。)

NVの遺伝子群別では、GI 及びGII の両遺伝子群の検出が 3 事例で、他の 31 事例はすべてGII であった。GI のみが検出された事例はなかった。

事例番号2及び4では、NVGⅡ/2及びGⅡ/4が、 事例番号12では、NVGⅡ/2及びGⅡ/13が検出されるなど、事例番号2、4、9、12、A12、A15では、 それぞれの事例において複数種類のウイルス遺伝 子型が検出された(表1、表2)。

上述の34事例について、144株 (NVG I:3株、NVG I:140株、NVG I及びNVG II:1株)のCapsid 領域の塩基配列を決定し、系統樹を作成して比較した。また、複数遺伝子型が確認された事例については、系統樹で事例番号に枝番を付し、系統ごとに検体数を表記した(図1、図2)。

系統樹解析の結果、NVG I が検出された事例番号A15の1名は、G I /8/AB081723WUG1/00/JP類似株、事例番号9及びA15の1名は、G I /9/AB039774SaitamaSz-UG1/99/J類似株であった(図1)。

NVGII は、食中毒事例である事例番号 8、10、13 を含む 16 事例がGII /2/Malksham/89/UK 類似株であった。また、食中毒事例である事例番号 6 を含む 10 事例がGII /4/Bristol/93/UK類似株で、そのほか、GII /3/SaitamaU201/98/JP類似株、GII /6/SaitamaU3/97/JP類似株、GII /12/SaitamaU1/97/JP類似株、GII /13 /M7/99/US類似株が検出された(図 2)。

### 3.2 シーズン別の月別集団事例数、集団発生施設 等、検出遺伝子型の比較

2010/11 シーズンのNVについて、月別集団事例数、集団発生施設等、検出遺伝子型を過去5シーズンと比較検討した。

まず、月別集団事例数を図 3 に示す。2010/11シーズンは10月から集団事例の発生が始まり、12月、1月、2月の発生が多く、2月が8件と最大であった。その後7月まで発生が続き、例年と比較して終息時期は遅かった。

次に、集団発生施設を図4に示す。事例番号11 とA5 の小学生スポーツ大会及び事例番号16 とA16 の高校生スポーツ大会は、発生場所がそれぞれ同一と推定されることから、発生施設としては各1事例として計上した。2010/11 シーズンは、飲食店及び保育所・幼稚園がそれぞれ9事例と発生が多かったが、高齢者施設では2事例と、減少傾向を示した。また、その他には家庭内での発生を

計上し、5事例であった。

検出遺伝子型は、2010/11 シーズンはNVG II/2 が 16 事例と最多で、GII/4 は 10 事例であった。 そのほか、NVG I/8、GI/9、GII/3、GII/6、GII/12、GII/13 が検出され、全部で 8 種類の遺伝子型が確認された(図 5)。

#### 4. 考察

2010/11 シーズンのNVの集団発生事例について、遺伝子解析を行った結果、NVG II /2 が最多で検出され、2009/10 シーズンまで主流であったG II /4 の検出数が減少した。

2006/07 シーズンは、G II/4 が世界的に大流行し $^{3}$ 、本県においても高齢者施設や福祉養護施設などで集団事例が多く発生した $^{4}$ 。一方、昨シーズンは、G II/4 の検出が最多であったものの、その検出割合が減少し、それに代わってG II/2 やG II/12 等の検出が増加し、NVの主流行型がG II/4 から他の遺伝子型に置き換わる傾向がみられた $^{1}$ 。

全国的にも、NVによる集団発生事例での検出遺伝子型は、2006/07~ 2008/09 シーズンに比較して、2009/10 シーズンはGII/2 の検出割合が増加した(図 6)。また、感染症発生動向調査の散発事例においても、GII/2 は 2009/10 シーズンに検出数が大幅に増加し、流行拡大の兆候が見られた(図 7)。

青森県における 2010/11 シーズンの検出NVは、 昨シーズンや全国の傾向から、さらにGII/2 の流 行が拡大して流行の主流であったことが推察され、 今後の発生動向に注意が必要と考える。

GII/2 は、GII/4 に比較して 3~19 歳の小児や学生での検出割合が大きいことが報告されており<sup>2)</sup>、国内では 2009/10 シーズンに保育所での発生が増加するなど<sup>2)</sup>、GII/2 の流行に関連して保育所等での発生例が増加することが推察される。本県においても、2010/11 シーズンは保育所・幼稚園での発生が増加しており、当該施設や小学校等において、感染予防や感染拡大防止対策をより重視する必要があると考えられた。

また、大会・集会やイベント等に関連して発生した集団事例や、家庭内における感染が推定される事例があり、NV等の流行期には、家庭内や外出先に関わらず、手洗いなどの感染予防対策の実施が重要である。

食中毒と行政判断された事例において、調理従事者と発症者から検出されたウイルスが一致したものがあった。NVやSVは、症状消失後にもウイルスの排出が続き、調理従事者のNV陰性確認調査

では、陰性化まで 1 か月以上を要した者が 17 % 認められたなど <sup>5)</sup>、自覚症状がなくてもウイルスを保有している可能性があることから、食品を取り扱う調理従事者等は、自らの感染予防対策とともに、日常の徹底した衛生管理が必要と考えられた。

一方、事例番号2では、5名からGII/2が、2名からGII/4が、事例番号4では、10名からGII/2が、1名からGII/4が検出されるなど、1事例内で複数のウイルス遺伝子型が検出された例が、2010/11シーズンは6事例認められた。このことから、食中毒の原因究明においては、発症者と調理従事者のウイルスが一致しない場合を考慮する必要があり、遺伝子解析により検出ウイルスを確認することは重要と考えられた。また、遺伝子解析には時間を要することから、迅速性が求められる行政対応においては、疫学調査とともに原因ウイルス不一致の可能性を視野に入れた判断が必要と考えられた。

今後も、NV等による食中毒の原因究明や感染予防につながる科学的知見を得るため、NV等の発生動向の監視を進めるとともに、分子疫学的情報を蓄積したい。

#### 5. まとめ

1)2010/11 シーズンは、34 事例から NV が検出され、そのうち 31 事例から NVG II が、3 事例から G I 及び G II の両遺伝子群が検出された。

2)検出ウイルスの遺伝子型は、NVG II/2 が最多で、2006/07 シーズンから主流型であった GII/4 の検出数は減少した。

3)NVG II /2 は小児や学生での検出例が多く、保育所・幼稚園での集団発生事例が増加傾向にあることから、当該施設等における感染予防や感染拡大防止対策の重要性が考えられた。

4)複数種類のウイルス遺伝子型が検出された例が 6事例あり、食中毒の原因究明においては、発症 者と調理従事者のウイルスが一致しない可能性を 視野に入れて対応する必要があると考えられた。

#### 謝 辞

本研究を進める上で、青森市保健所の方々に検体分与及び情報提供のご協力をいただきました。 ここに深謝いたします。

また、疫学調査資料を提供していただきました 保健所各位に謝意を表します。

本研究費の一部は、平成 20~22 年度厚生労働 科学研究費補助金、食品の安心・安全確保推進事業「食品中のウイルスの制御に関する研究」により実施した。

#### 文 献

1)吉田綾子ほか: 2008/09~2009/10 シーズンの集 団胃腸炎事例原因ウイルスの分子疫学解析. 青森 県環境保健センター研究報告,**21**,6-19,2010

2)国立感染症研究所感染症情報センター: ノロウイルスの流行 2006/07~2009/10 シーズン. 病原 微生物検出情報, **31**,312-314,2010

3)片山和彦: ノロウイルスの遺伝子型. 感染症情報センターホームページ

4)石川和子ほか: ノロウイルス分子疫学解析 (2006  $\sim$  2008 ). 青森県環境保健センター研究報告,19,8-14,2008

5)林志直ほか: ノロウイルス陽性となった調理従事者の陰性確認検査—東京都. 病原微生物検出情報,**31**,319-320,2010

6)吉田綾子ほか: 2008/09 シーズンに散発及び集団 事例から検出されたサポウイルスの分子疫学解析. 青森県環境保健センター研究報告, **20**, 10-17, 2009 7)本村和嗣ほか: ノロウイルス GII/4 の新たな単 系統群の発生とゲノム組換え体の同定. 食品中の ウイルスの制御に関する研究平成 21 年度総括・研 究分担報告書,65-70,2010.3

8)田村務ほか: ノロウイルス GII/4 の 2008a 亜株の動向とイムノクロマト法の改良. 病原微生物検出情報,**31**,316-317,2010

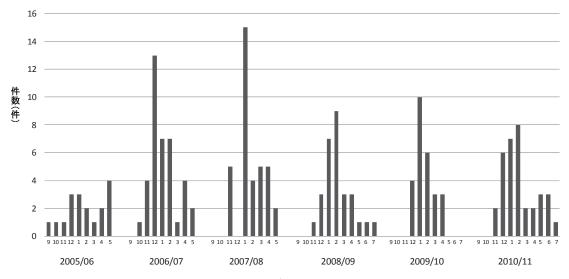


図3 シーズン別・月別集団事例数

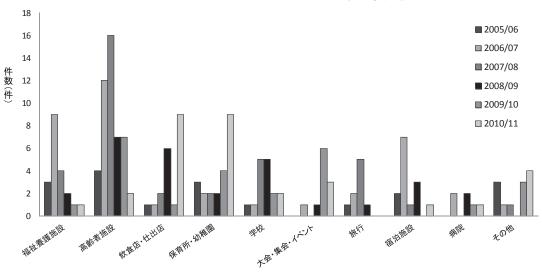


図 4 シーズン別・集団発生施設数等

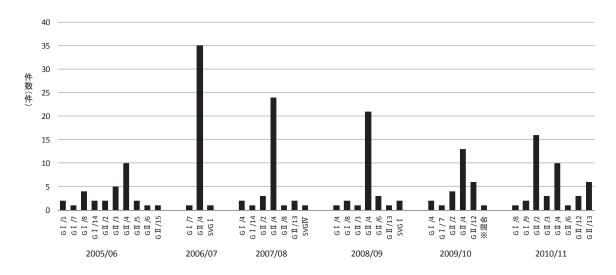


図 5 シーズン別・検出遺伝子型 (※混合: NVG I /1・2・4・7、NVG II /2・4・12・14、SVG I)

|            |       | シーズ  | V*** |      |       |       | 感染経路  |     |      |       |        |      | GHO   | 主な進  | 任子   | 型      |      |       |       |
|------------|-------|------|------|------|-------|-------|-------|-----|------|-------|--------|------|-------|------|------|--------|------|-------|-------|
| 推定感染場所     | 2006  | 2007 | 2008 | 2009 | 合 計   | 26. D | 4. DY |     | 200  | 6/07- | 2008/0 | タシー  | ズン    | 1    | 2    | 009/10 | シーフ  | ベン    |       |
|            | 107   | /08  | /09  | /10  | 40.00 | 食品    | 丫→丫   | 不明  | 11/2 | 11/3  | 11/4   | II/6 | II/13 | 11/2 | 11/3 | II/4   | II/6 | II/12 | II/13 |
| 家庭         | 25    | 21   | 11   | 9    | 66    | 23    | .20   | 23  | 1    | 1     | 18     | 17   |       | 2    | 100  | 1      | 1    |       | -     |
| 飲食店        | 98    | 110  | 60   | 65   | 333   | 238   | 19    | 76  | 2    | 4     | 73     | 5    | 6     | 3    | 2    | 13     | -    | 1     | 1     |
| 宴会場        | 37    | 17   | 12   | 16   | 82    | 53    | 14    | 15  | 1    | 1     | 21     | 1    | - 2   | 1 3  | 8    | 4      | 1    | -     | -     |
| ホテル・旅館。    | 53    | 41   | 28   | 20   | 142   | 73    | 32    | 37  | - 25 | -     | 32     | 1.9  | 9     | 1    | ~    | 5      | 1    |       |       |
| 福祉・養護施設    | 96    | 47   | 43   | 36   | 222   | 7     | 192   | 23  | 2    | 1     | 82     | 3    | 1 4   | 10   | 18   | 19     | 1    |       | 1     |
| 老人ホーム・・    | 464   | 205  | 114  | 79   | 862   | 20    | 751   | 91  | -    | 1     | 303    | ) la | - 4   | 2    | 1    | 45     |      |       |       |
| 病院         | 101   | 35   | 14   | 13   | 163   | 5     | 144   | 14  |      | į.    | 59     | 100  |       |      | 1    | 6      |      |       | 9     |
| 小学校        | 54    | 80   | 65   | 71   | 270   | 7     | 233   | 30  | 11   | 1     | 25     | 11   | 10    | 35   | 1    | 3      |      | 2     | 2     |
| 中学校        | 3     | 6    | 2    | 2    | 13    | 1     | 11    | 1   | -    | 1 3   | 4      | 1    | -     | 1    | 18   | 1.5    | 1.5  |       | . 3   |
| 高校         | 4     | 1    | 3    | 2    | .10   | 3     | 6     | 1   |      | 1     | 1      | 1.5  |       | 134  |      | 1      |      |       |       |
| 大学         | 3     | 1.6  | 1    | 1    | - 5   | 3     | 2     |     | 5    | 1 =   | 1      | 1,8  | +     | 1.4  | - 20 | *      | 1    |       |       |
| 保育所        | 88    | 78   | 63   | 104  | 333   | 2     | 312   | 19  | 9    | 14    | 72     | 15   | 11    | 43   | 9    | 30     | 3    | 3     | 2     |
| 幼稚園        | 16    | 8    | 12   | 17   | 53    | 2     | 44    | 7   | 1    | 2     | 7      | 5    | 1     | 10   | 3    | 4      | 1    | 1     |       |
| <b>事業所</b> | 11    | 12   | 10   | 10   | 48    | 37    | 2     | 4   | 1 4  | 1     | 15     | 1, 2 | 1     | 1    |      | 3      | +    |       | -     |
| 宿舎・寮       | 13    | 6    | 5    | 5    | 29    | 13    | 9     | 7   | 18   | ! -   | 9      | 1 3  |       | 1    | 1    |        | -    | -     |       |
| 国内ツアー      | 11    | 11   | 7    | 1    | 30    | 2     | 7     | 21  | 100  |       | 11     | ( 0  | -     | 1.43 | 100  |        | -    | -     | -     |
| その他        | 39    | 50   | 30   | 36   | 155   | 56    | 31    | 68  | 2    | 1     | 28     | 1    | 3     | 2    | 1    | 1      |      | 1     |       |
| 不明・記載なし    | 272   | 121  | 123  | 76   | 592   | 153   | 167   | 272 | 3    | 1 4   | 98     | 6    | 2     | 8    | 1    | 12     | 5    |       | 1     |
| 合 計        | 1,388 | 849  | 603  | 563  | 3,403 | 698   | 1,996 | 709 | 32   | 29    | 858    | 47   | 34    | 119  | 20   | 142    | 4    | 8     | 8     |
| 食品媒介の疑い    | 262   | 182  | 138  | 116  | 698   |       |       |     |      | ,     |        |      |       | _    | ,    | _      |      |       |       |
| 人→人伝播の疑い   | 861   | 474  | 362  | 299  | 1,996 |       |       |     |      |       |        |      |       |      |      |        |      |       |       |
| 不明         | 265   | 193  | 103  | 148  | 709   |       |       |     |      |       |        |      |       |      |      |        |      |       |       |

<sup>\*</sup>宴会場を除く、\*\*介護施設を含む、\*\*\*各シーズンは当年9月~翌年8月

図 6 NV 感染集団発生事例の推定感染場所と推定感染経路、2006/07~2009/10 シーズン (出典:国立感染症研究所ホームページ、病原微生物検出情報)

| 松川岸區學                       |         | 検体採取る   | /ーズン*   |         | - × = N |
|-----------------------------|---------|---------|---------|---------|---------|
| 検出病原体                       | 2006/07 | 2007/08 | 2008/09 | 2009/10 | 合計      |
| Norovirus genogroup unknown | 181     | 96      | 262     | 247     | 1,087   |
| Norovirus genogroup I       | 66      | 164     | 105     | 83      | 638     |
| Norovirus genogroup II      | 2,012   | 1,537   | 1,282   | 1,387   | 8,898   |
| Sapovirus genogroup unknown | 113     | 138     | 163     | 104     | 681     |
| Sapovirus genogroup I       | .5      | 11      | 22      | 33      | 92      |
| Sapovirus genogroup II      | 4       | 8       | 13      | 12      | 33      |
| Sapovirus genogroup IV      | 6       | 89      | 3-      | 3       | 95      |
| Sapovirus genogroup V       | .3      | 1       |         | 2       | - 5     |
| Norovirusの遺伝子型(再掲)          |         |         |         |         |         |
| Norovirus GI not typed      | 46      | 101     | 67      | 53      | 474     |
| Morovirus GI/1              |         | 4       | 1       | -       | ě       |
| Norovirus GI/2              | -       | -       | -       | 1       | 2       |
| Norovirus GI/S              | 3.      | 2       | 5       |         | 14      |
| Norovirus GI/4              | 7       | 48      | 22      | 13      | 90      |
| Norovirus GI/7              | 1       | 1.      | 3       | 9       | 14      |
| Norovirus GI/8              | 7       | 6       | 7       | 6       | 3:      |
| Norovirus GI/12             | 1       |         | -       | 1       | 5       |
| Norovirus GI/14             | 1       | 2       |         |         |         |
| Norovirus GII not typed     | 1,552   | 1,214   | 1,003   | 813     | 7,170   |
| Norovirus GII/1             | 1       | 2       | 1.7     | 2       |         |
| Norovirus GII/2             | 3.      | 26      | .13     | 220     | 278     |
| Norovirus GII/8             | 10      | 54      | 11      | 48      | 150     |
| Norovirus GII/4             | 409     | 212     | 175     | 255     | 1,074   |
| Norovirus GII/5             | 100     | .1.     | - 22    |         | 1       |
| Norovirus GII/6             | 9       | 3       | 74      | 15      | 118     |
| Norovirus GII/7             | -       | 4.      |         | 3       | 14      |
| Norovirus GII/8             |         | -       | -       | 9       | 5       |
| Norovirus GII/9             | 4       | .1.     | -       | -       | 1.5     |
| Norovirus GII/11            | 16.     | - 1     | 1       | -       | - 6     |
| Norovirus GII/12            | -       | -       | 4       | 10      | 14      |
| Norovirus GII/13            | 25      | 22      | 1       | 16      | 65      |
| Norovirus GII/14            |         |         |         | 5       | 1       |
| Norovirus GII/16            |         | 1.      | 100     |         | - 1     |

<sup>\*9</sup>月~翌年8月

図7 小児の感染性胃腸炎患者(0~15歳)からの NV 及び SV 検出状況 2006/07~2009/10 シーズン(出典:国立感染症研究所ホームページ、病原微生物検出情報)

地方衛生研究所からの「集団発生病原体票」による事例報告数(病原微生物検出情報:2010年10月18日現在報告数)

病原体個票での報告(病原微生物検出情報:2010年10月18日現在報告数)

Trend Survey of Pathogen Groups Responsible for Viral Gastroenteritis Outbreaks

(Season 2010/11)

Ayako Yoshida, Rika Tsutsui, Osamu Inoue, Toshiyuki Mikami

A survey of the viruses responsible for food poisoning (including suspected cases) and infectious diseases in

gastroenteritis outbreaks during the 2010/11 season detected Norovirus (NV) in 34 cases, of which NVGII was

detected in 31 cases and both GI and GII genogroups were detected in 3 cases.

The predominant genotype for these outbreaks was NV genogroup II/2 (NVGII/2), and the number of cases of

NVGII/4, which has been the predominant genotype since 2006/07, has decreased. Since NVGII/2 was detected in

many cases involving children and students, and there is an increase in outbreaks at nurseries and kindergartens, it is

necessary to further emphasize the importance of infection prevention and preventing the spread of infection in such

sites.

Because multiple genotypes were detected in one case, the possibility that the genotypes of the sick patient and

food handler may not be the same needs to be considered when searching for the source of food poisoning.

Key words: Norovirus, NVGII/2, Molecular epidemiology

-10 -

## 八戸地域における環境大気中の重金属成分モニタリング -ローボリウムエアサンプラー法による濃度調査-

対馬典子 工藤香織 神 正志1

環境大気中重金属 7 項目、171 サンプルについて主成分分析を行った結果、第 1 主成分(Z1)は総合的な影響の指標、第 2 主成分(Z2)は発生源に関連する指標と推察された。根岸小学校、八戸小学校においてはヤマセの吹く春~夏に Z1 の度合いが高い傾向にあり、Z1 の高い季節(ヤマセの時期)に、Z2 は 4 地点で正領域と負領域に分かれ、根岸小学校では B 社から、八戸小学校では D、E 社からの影響を主に受けていることが推察された。

東日本大震災後、主な発生源とされる工場の施設が稼働停止となった3月中旬から6月上旬のモニタリングデータに着目したところ、非ヤマセ時に比べヤマセ時にはZ1スコアに若干増加傾向が見られ、程度は低いものの原料鉱石や製品などの堆積場からの飛散が推察された。

Key words: low volume air sampler, environmental air, monitoring, heavy metal, East Japan Great Earthquake

#### 1. はじめに

本県では、平成11年度から重金属類に係る有害大気汚染物質モニタリング調査<sup>1-5)</sup>を実施しており、加えて平成18年7月からは八戸地域における詳細な濃度情報を得るため、ローボリウムエアサンプラー法を用い、年間を通じた濃度調査を実施している。

今回、近年の八戸地域の環境大気中重金属成分の実態、特性把握を目的として、全粒子捕集を行った平成21年度以降のデータを解析対象として、重金属成分の実態について多変量解析による考察を行った。

また、東日本大震災後、主な発生源とされる工場の施設が稼働停止となった平成23年3月中旬から6月上旬のモニタリングデータに着目した検討を行ったので報告する。

#### 2. 方法

#### 2.1 調査地点及び重金属排出主要事業場

調査地点及び重金属排出主要事業場を図1に示す。調査地点は21年度までは4地点(桔梗野小学校、根岸小学校、八戸小学校、第二魚市場)、22

#### 1 八戸環境管理事務所

年度より2地点(根岸小学校、八戸小学校)である。

#### 2.2 試料

ローボリウムエアサンプラー (LV) の分粒装置  $(10 \mu m \mu n)$  を取り外し、(20 L/min) を立て全粒子  $(4 \mu n)$  を2週間連続採取した。

#### 2.3 前処理

ダスト捕集後のろ紙を圧力容器法(フッ化水素酸・硝酸・過酸化水素水)により全分解を行った。

#### 2.4 定量分析

ダスト中のAs、Pb、Zn、Cd、Mn、Cr、Niについて、ICP-MS (誘導結合プラズマ質量分析装置) 法 (内標準元素Rh) によりICP-MS法による多元素同時定量を行った。



図1 調査地点及び重金属排出主要事業場

表 1 PRTR 届出データに基づく大気への排出量

(kg/year)

(kg/year)

| 項目            | 平成21年度 |      |     |     | 項目            | 平成22年度 |     |     |     |  |  |
|---------------|--------|------|-----|-----|---------------|--------|-----|-----|-----|--|--|
| <b>切口</b>     | A社     | B社   | D社  | E社  | <b>块口</b>     | A社     | B社  | D社  | E社  |  |  |
| 鉛及びその化合物      |        | 1100 |     |     | 鉛及びその化合物      | 1.5    | 680 | 7   |     |  |  |
| 亜鉛の水溶性化合物     | 56     | 560  |     |     | 亜鉛の水溶性化合物     | 56     | 400 | 150 |     |  |  |
| カドミウム及びその化合物  |        | 13   |     |     | カドミウム及びその化合物  |        | 7.7 |     |     |  |  |
| ニッケル          |        |      |     | 17  | ニッケル          |        |     |     | 17  |  |  |
| ニッケル化合物       |        | 0.7  | 450 |     | ニッケル化合物       |        | 0.2 | 520 |     |  |  |
| クロム及び三価クロム化合物 |        | 0.1  | 140 | 68  | クロム及び三価クロム化合物 |        | 1.5 | 170 | 71  |  |  |
| 砒素及びその化合物     |        | 12   |     |     | 砒素及びその化合物     |        | 6.9 |     |     |  |  |
| マンガン及びその化合物   |        | 1.7  | 57  | 440 | マンガン及びその化合物   |        | 3   | 82  | 480 |  |  |

表 2 環境大気中重金属濃度の年平均値(平成 18~22 年度)

 $(ng/m^3)$ 

22年度

1.5

23

97

0.82 7.9

21年度

1.3

18

76

0.53

5.2

22 4.9

| , | 40 | ш. | 1. 224 1 1 1 |
|---|----|----|--------------|
|   | 根  | 库/ | /学校)         |

| 112771 0 2 | 1777 |      |      |      |      |
|------------|------|------|------|------|------|
| 項目         | 18年度 | 19年度 | 20年度 | 21年度 | 22年度 |
| As         | 6.1  | 1.8  | 1.5  | 1.5  | 1.7  |
| Pb         | 22   | 22   | 27   | 38   | 35   |
| Zn         | 120  | 100  | 140  | 120  | 130  |
| Cd         | 1.3  | 0.98 | 0.87 | 0.82 | 1.1  |
| Ni         | 2.6  | 2.8  | 6.7  | 6.7  | 7.5  |
| Mn         | _    | _    | -    | 18   | 16   |
| Cr         | _    | _    | _    | 3.3  | 4.2  |
|            |      |      |      |      |      |

|    | _ | _ |       |   |
|----|---|---|-------|---|
| (生 | _ | ム | $\pm$ | 坦 |

Mn

(八戸小学校)

18年度

2.5

13

65

0.98

2.0

項目

As

Pb

Zn

Cd

Ni

| ivin  | _    | _    | _    | 1 /  | 10   |
|-------|------|------|------|------|------|
| Cr    | -    | _    | _    | 3.6  | 4.9  |
| (第二魚市 | ī場)  |      |      |      |      |
| 項目    | 18年度 | 19年度 | 20年度 | 21年度 | 22年度 |
| As    | 3.0  | 1.5  | 1.3  | 1.3  | -    |
| Pb    | 19   | 16   | 13   | 19   | -    |
| Zn    | 220  | 150  | 100  | 93   | -    |
| Cd    | 1.3  | 0.93 | 0.62 | 0.61 | -    |
| Ni    | 4.2  | 4.8  | 7.2  | 9.5  | -    |
|       |      |      |      |      |      |

19年度

1.5

14

76

0.75

1.8

20年度

1.3

15

87

0.77

5.4

(桔梗野小学校)

| 項目 | 18年度 | 19年度 | 20年度 | 21年度 | 22年度 |
|----|------|------|------|------|------|
| As | 5.3  | 2.2  | 1.6  | 1.6  | -    |
| Pb | 24   | 28   | 24   | 33   | -    |
| Zn | 100  | 80   | 80   | 97   | -    |
| Cd | 1.0  | 1.1  | 0.74 | 0.67 | -    |
| Ni | 1.2  | 1.4  | 2.8  | 2.7  | _    |
| Mn | -    | _    | _    | 14   | -    |
| Cr | -    |      | -    | 2.0  | -    |

注) -:調査対象外

#### 2.5 多変量解析 6)

多変量とは、3 つ以上の項目を測定したデータ の集まりのことであり、多変量解析とは、項目間 の相関を利用した分析法の総称である。今回、平 成21年3月31日~23年7月19日の期間の171 試料から得られた環境中の重金属濃度データを対 象とし、多変量解析(主成分分析、クラスター分 析)を行った。

#### 3 PRTR 届出データに基づく排出量

八戸地域における重金属排出主要事業場の PRTR届出データに基づく大気への排出量を表 1 に示した。

A社は金属製品製造業、B社は非鉄金属製造業、 C及びD社は鉄鋼業、E社は船舶製造・修理業であ る。なお、C社における 7 項目に関する届出はな かった。

#### 4 結果と考察

#### 4.1 環境大気中の重金属濃度年平均値

定量分析により得られた平成18年度から22年 度までのダスト中の重金属量及び大気吸引量から 環境大気中の重金属濃度を求め、年平均値を表 2 に示した。なお、平成18年度は7月から3月まで の平均値である。

ニッケル化合物の指針値(25 ng/m³) は平成 15 年に、ヒ素及び無機ヒ素化合物の指針値(6 ng/m³) は平成22年に設定されているが、いずれも4地点 における年平均値は指針値を下回った。

ヒ素については、平成18年度に発生源と推定さ れた事業者と行政が連携して排出抑制対策を実施 し 7)、平成 20 年度には八戸地域のヒ素濃度は全国 平均値と同レベルまで低減され、以降、横ばいで 推移している。鉛、亜鉛、カドミウムについては、 年度や地点により多少の増減はあるものの、概ね 横ばいで推移している。

#### 4.2 季節変動

平成22年度の調査地点である根岸小学校、八戸小学校における環境大気中重金属濃度の推移を図2に示した。全体的に秋、冬に比べ、ヤマセ(太平洋側で梅雨期から盛夏期にかけて吹く北東風)の吹く春、夏にかけて高めに推移している。

#### (1) P b 、 Z n 、 C d

2 地点で同様の推移をしている。八戸小学校が やや低めの濃度レベルであった。春、夏と比べ、 秋、冬に低下している。

#### (2) A s

2 地点ともほぼ同様の濃度で推移しており、春、 夏にかけて高めに推移し、秋に一時的に低下し、 以後同様の濃度で推移している。

#### (3) N i 、C r

2 地点とも春、夏が高く、以後漸減している。 (4) M n

2 地点とも春から初夏にかけてやや高めであり、 その後漸減し、2月頃から増加している。

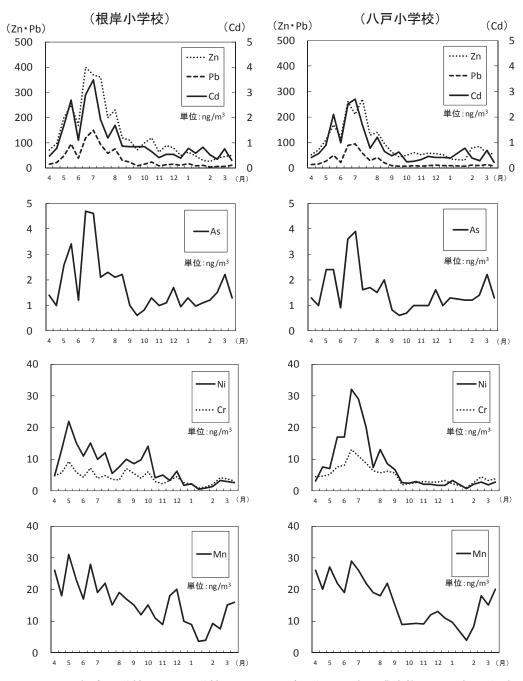


図 2 根岸小学校、八戸小学校における環境大気中重金属濃度推移(平成22年度)

#### 4.3 ダスト濃度と重金属濃度

1 0.5

LVで捕集したダスト量から求めた大気中のダスト濃度  $(ng/m^3)$  とダスト中に含まれる重金属量から求めた大気中の重金属濃度  $(ng/m^3)$  について平成 21 年 3 月 31 日  $\sim$  23 年 7 月 19 日 0 期間の 171 試料 (サンプル) から得られたデータをプロット

し、図 3 に示した。Mnについては両者の相関の決定係数  $(R^2)$  は 0.6 と高く、気象条件によらずダスト中にほぼ一定割合のMnが含まれていることを示すものであり、鉄鋼工業などの由来とあわせて土壌の舞い上がりなどによるものと推察された。

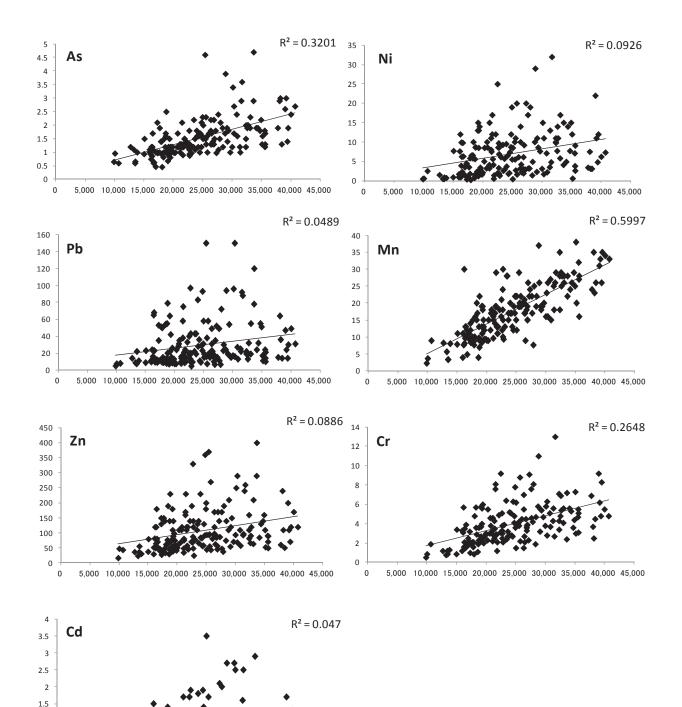


図3 ダスト濃度(横軸:ng/m³)と重金属濃度(縦軸:ng/m³)

5,000 10,000 15,000 20,000 25,000 30,000 35,000 40,000 45,000

#### 4.4 環境大気中重金属濃度統計量

ダスト 171 サンプル (桔梗野小: 26、第二魚市場: 26、根岸小: 60、八戸小: 59) から求めた環境大気中重金属濃度の統計量を表 3 に示す。

変動係数は 44~89 %で、大きい順にPb、Ni、Cd、Zn、Cr、As、Mnとなっており、前述した季節変動傾向を反映している。

#### 4.5 単相関解析

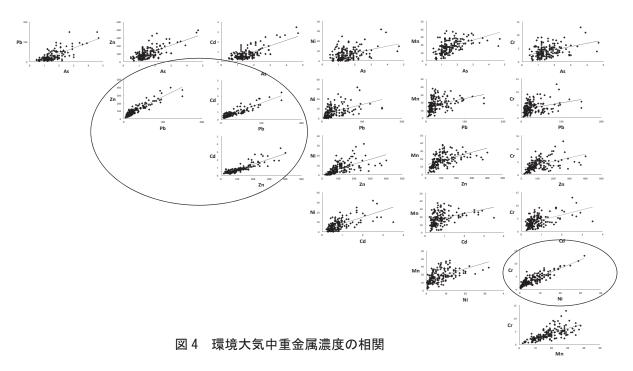
As、Pb、Zn、Cd、Ni、Mn、Crについてそれぞれの単相関解析を行い、表 4 及び図 4 に示した。Pb、Zn、Cdのそれぞれについて相関係数 (R) が  $0.880\sim0.919$  であり、決定係数  $(R^2)$  が 0.6 を超えて高い。また、NiとCrについてもRは 0.857 であり  $R^2$  が 0.6 を超えて高い。

| 表 3  | 環境大気中重金属濃度統計量        | /171 ++ ヽ プェハ |
|------|----------------------|---------------|
| 1X U | <b>垛块八刈中里亚禹辰茂剂引里</b> |               |

| 項目 | 平均(ng/m³) | 最大(ng/m³) | 最小(ng/m³) | 標準偏差(ng/m³) | 変動係数(%) |
|----|-----------|-----------|-----------|-------------|---------|
| As | 1.5       | 4.7       | 0.46      | 0.70        | 45      |
| Pb | 29        | 150       | 4.7       | 26.1        | 89      |
| Zn | 110       | 400       | 17        | 70.7        | 66      |
| Cd | 0.78      | 3.5       | 0.21      | 0.55        | 70      |
| Ni | 6.9       | 32        | 0.20      | 5.7         | 83      |
| Mn | 18        | 38        | 2.2       | 7.9         | 44      |
| Cr | 3.9       | 13        | 0.52      | 2.1         | 54      |

表 4 環境大気中重金属濃度の相関係数(R)

|           | As    | Pb    | Zn    | Cd    | Ni    | Mn    | Cr    |
|-----------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|
| As        | 1.000 | 0.728 | 0.688 | 0.718 | 0.401 | 0.517 | 0.396 |
| Pb        |       | 1.000 | 0.919 | 0.902 | 0.475 | 0.350 | 0.321 |
| Zn        |       |       | 1.000 | 0.880 | 0.597 | 0.491 | 0.469 |
| Cd        |       |       | ·     | 1.000 | 0.654 | 0.372 | 0.514 |
| Ni        |       |       |       |       | 1.000 | 0.532 | 0.857 |
| Mn        |       |       |       |       |       | 1.000 | 0.685 |
| <u>Cr</u> |       |       |       |       |       |       | 1.000 |



#### 4.6 主成分分析 (PCA)

#### (1) 全地点における主成分分析

主成分分析とは、互いに相関のある多種類の特 性値の情報を少数個の総合的な特性値に集約する 方法として用いられている手法である。今回、八 戸地域の環境大気中重金属データの特性を指標化 する目的で、7項目、171サンプルについて主成分 分析を適用した。その結果を表 5-1~表 5-3 及 び図5に示す。

第 1 主成分(Z1)の寄与率は 66 %、第 2 主成分 (Z2)の寄与率は18%、第3主成分(Z3)の寄与率は 9 %であった。Z3 までの累積寄与率は93 %である。

Z1 については、すべての変量の因子負荷量が正 の符号をもつことから、総合的な影響の程度を示 す指標(総合的影響指標)と推察された。

Z2 については、B社(非鉄金属製錬)が主な発 生源と推察される As、Pb、Zn、Cd の因子負荷量 が正符号であり、D社やE社が主な発生源と推察 される Mn、Cr、そして D 社が主な発生源と推察 される Ni の因子負荷量が負の符号であることか ら発生源に関連する指標と推察された。

Z3 については、As、Mnの因子負荷量が正符号 であり、Pb、Zn、Cd、Ni、Cr の因子負荷量が負 の符号である。前述のとおり、As、Mn は変動係 数が低く、また、Mn はダスト濃度と高い相関関 係が見られ(ダスト中にほぼ一定割合で含まれて いる)、鉄鋼業などの工業に由来するほか、周辺 土壌の舞い上がりに起因すると考えられたことか ら、Z3 はバックグラウンドあるいは工業活動とい った由来に関連する指標と推察された。

#### (2) 地点による考察

主成分分析を行った結果について、地点ごとに、 全スコア(171)についてプロットし、図6に示し た。

Z1 スコアについては、根岸小、八戸小が高い。 Z2 スコアについては、桔梗野小、根岸小は正領域 に、第二魚市場、八戸小では Z1 スコアが正領域 においては負領域に位置していた。これらのこと は、風向により桔梗野小、根岸小においてはB工 場の影響を、第二魚市場、八戸小においてはDI 場の影響を主に受けていることを示唆している。

表5-1 固有值·寄与率表

|          | 第1主成分 | 第2主成分 | 第3主成分 |
|----------|-------|-------|-------|
| 一        | Z1    | Z2    | Z3    |
| 固有値      | 4.6   | 1.262 | 0.62  |
| 寄与率(%)   | 65.72 | 18.03 | 8.86  |
| 累積寄与率(%) | 65.72 | 83.74 | 92.6  |

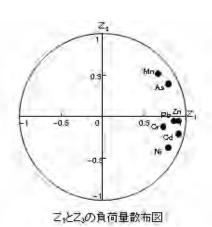
表5-2 固有ベクトル

| 投りと 固有・ハル |       |        |        |  |  |  |
|-----------|-------|--------|--------|--|--|--|
| <br>成 分   | 第1主成分 | 第2主成分  | 第3主成分  |  |  |  |
|           | Z1    | Z2     | Z3     |  |  |  |
| As        | 0.369 | 0.233  | 0.499  |  |  |  |
| Pb        | 0.398 | 0.421  | -0.065 |  |  |  |
| Zn        | 0.423 | 0.248  | -0.068 |  |  |  |
| Cd        | 0.424 | 0.25   | -0.259 |  |  |  |
| Ni        | 0.367 | -0.388 | -0.471 |  |  |  |
| Mn        | 0.312 | -0.42  | 0.656  |  |  |  |
| Cr        | 0.339 | -0.564 | -0.152 |  |  |  |

表5-3 主成分負荷量

|     | ₹     |        |        |  |  |  |
|-----|-------|--------|--------|--|--|--|
| 成 分 | 第1主成分 | 第2主成分  | 第3主成分  |  |  |  |
| 一   | Z1    | Z2     | Z3     |  |  |  |
| As  | 0.791 | 0.261  | 0.393  |  |  |  |
| Pb  | 0.853 | 0.473  | -0.051 |  |  |  |
| Zn  | 0.908 | 0.278  | -0.053 |  |  |  |
| Cd  | 0.909 | 0.281  | -0.204 |  |  |  |
| Ni  | 0.788 | -0.436 | -0.371 |  |  |  |
| Mn  | 0.669 | -0.472 | 0.517  |  |  |  |
| Cr  | 0.726 | -0.633 | -0.119 |  |  |  |





·45 ZとZ<sub>3</sub>の負荷量散布図

図 5 主成分分析の因子負荷量散布図

#### (3)季節区分による考察

主成分分析を行った結果について、地点ごとに、 主成分スコアについて『春』『夏』『秋』『冬』 の 4 区分によりプロットし、図 7-1~図 7-3 に 示した。季節区分については、春 (3~5~月)、夏 (6~8~月)、秋 (9~11~月)、冬 (12~2~月) と した。

また、八戸地域における平成 22 年度の風配図を図 8 に示した(出典:気象庁電子閲覧室データ(八戸特別地域気象観測所))。

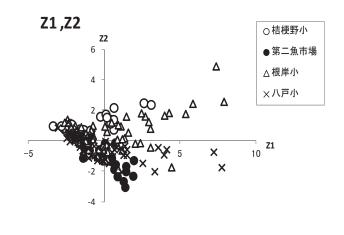
根岸小、桔梗野小、八戸小では秋冬においてZ1 スコアが概ね負の領域に分布しており、総合的影響度は低い一方、図7に示すとおりヤマセの吹く春夏においてはZ1スコアが正の領域に広範囲に分布しており、総合的影響の度合いが高い傾向にあった。第二魚市場においては主風向が南西系となる冬に総合的影響の度合いが高い傾向にあった。

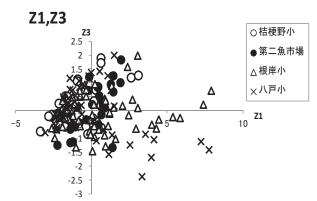
図7-1に示すZ1,Z2散布図については、根岸小、 桔梗野小では春夏にZ2 スコアが正領域の右上が りの分布であるが、このことは濃度の上昇する春 夏にB社からの影響を主に受けていると推察された。

一方、第二魚市場と八戸小では似通った右下がりの分布ではあるが、第二魚市場では冬に、そして八戸小では春夏に Z2 スコアが負領域に分布し、第二魚市場においては冬春にかけて、八戸小では夏に D、E 社側からの影響を主に受けていると推察された。

図 7-2 に示す Z1,Z3 散布図については、根岸小では Z3 スコアの変動範囲は狭く、八戸小では夏にやや右下がりであり、総合的影響度の高い夏に排出由来の度合いが高いことを示していた。 桔梗野小、第二魚市場は軸交差付近を中心として比較的狭い範囲でバラツキが見られた。

図 7-3 に示す Z2,Z3 散布図については、Z1,Z2 散布図、Z1,Z3 散布図と比較して季節による有意な傾向は見受けられなかったが、八戸小において春と夏にそれぞれ群を形成しており、春に Mn による影響、そして夏に Ni、Cr による影響の傾向が顕著なことが表現された。





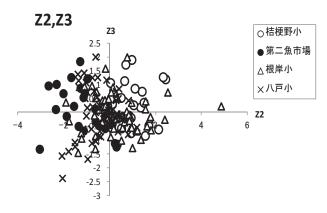


図 6 地点区分によるスコア散布図

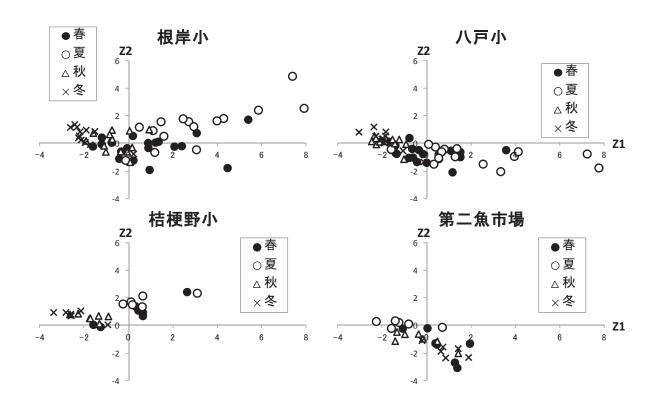


図 7-1 季節区分によるスコア散布図(Z1, Z2)

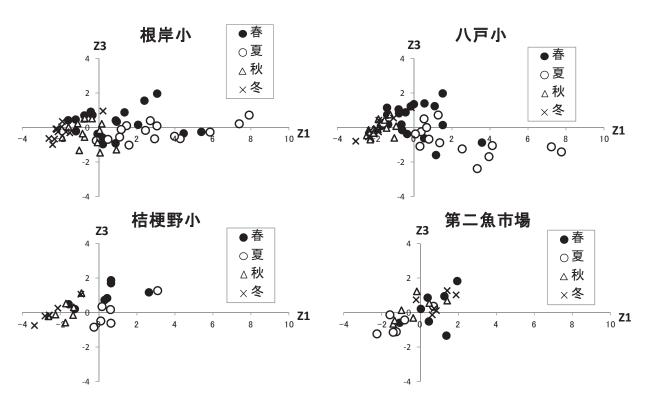


図 7-2 季節区分によるスコア散布図(Z1, Z3)

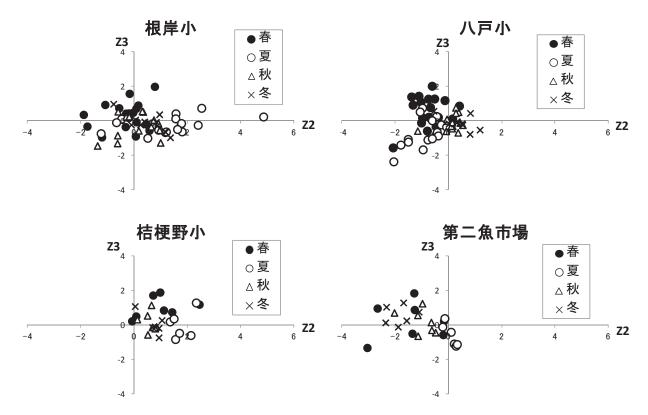


図 7-3 季節区分によるスコア散布図(Z2, Z3)

#### 4.7 クラスター分析

2 つ以上のデータがあるとき、これらをいくつかのグループに分類し、集団の特徴を簡潔に説明する方法をクラスター分析といい、個々のサンプルについて測定されたデータを用いて、データの値が近いサンプル同士を集める分類方法をサンプルクラスターという。これに対し、個々の変数をいくつかのグループに分類する方法を、変数クラスターという。

今回、変数(項目)間の類似性について、171 サンプルを対象として、距離の測定には

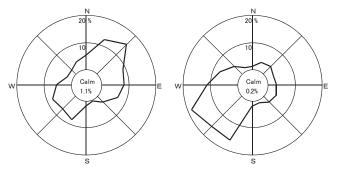
#### (1- | 相関係数 | )

を、距離の定義としてはウォード法を用いてクラスター分析を行い、樹形図を作成し、図9に示した。

クラスターとしては、大きく次の2つに分類された。

- ①As、Pb、Zn、Cdからなるクラスター
- ②Ni、Cr、Mnからなるクラスター

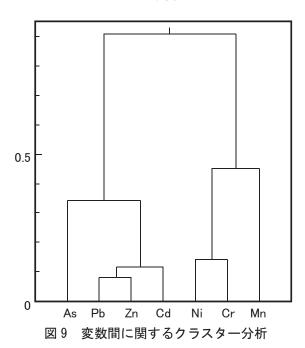
前述の主成分分析結果のZ2 において表現されて いる「発生源に関連する指標」の正領域、負領域 と同様の結果となった。



(ヤマセ時期:5~7月)

(非ヤマセ時期:その他の時期)

図8 平成22年度の風配図



#### 4.8 東日本大震災後のデータ

平成23年3月11日の東日本大震災後、主な発生源とされる工場の施設が稼働停止となった本年3月中旬から6月上旬のモニタリングデータに着目し、主成分分析結果を用いて検討した。

平成22年3月29日~23年7月19日の期間の主成分スコアについて、『操業時(ヤマセ時)』『操業時(非ヤマセ時)』『稼働停止(ヤマセ時)』『稼働停止(非ヤマセ時)』の4区分によりZ1,Z2スコアをプロットし、図10に示した。また、当該期間における風配図を図11に示した。「ヤマセ時」「その他(非ヤマセ時)」のマーキング判断につ

いては、その期間における風配図により NE~E 系の割合で判断した。

平成23年3月14日~6月6日の稼働停止時データ(6イベント)に関し、平成23年4月11日~4月25日及び平成23年5月23日~6月6日の2イベントについてヤマセ時と判断した。

2 地点とも、非ヤマセ時には操業時、稼働停止時とも同様の分布であり、総合的影響度は低かった。稼働停止時に着目した場合、非ヤマセ時に比べヤマセ時には Z1 スコアが若干高く、程度は低いものの事業場における原料鉱石や製品などの堆積場からの飛散が推察された。

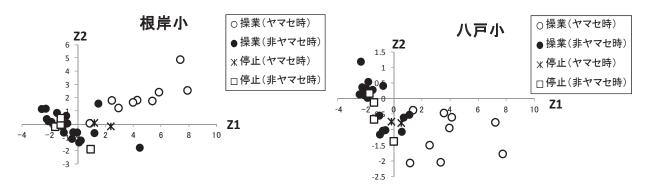


図 10 稼働時と停止時の主成分スコアによる比較 (平成 22 年度~23 年 7 月半ば)

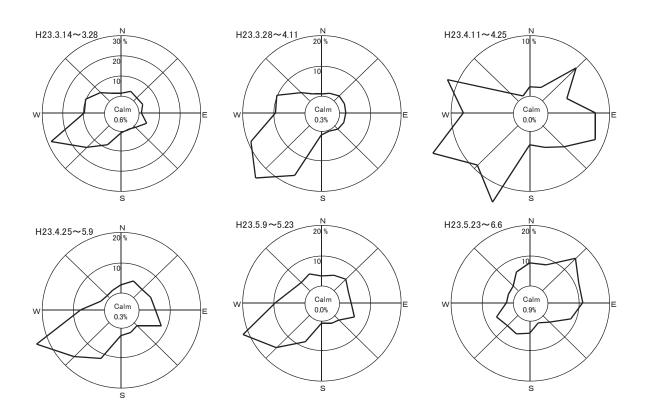


図 11 施設稼働停止時におけるモニタリングイベント毎の風配図 (出典:気象庁電子閲覧室データ(八戸特別地域気象観測所))

#### 5. まとめ

今回、八戸地域における平成 21 年 3 月 31 日~23 年 7 月 19 日の期間の 171 試料から得られた環境中の重金属濃度データについて主成分分析を行った結果、以下の知見が得られた。

1)環境大気中重金属 7 項目、171 サンプルについて主成分分析を行った結果、第 1 主成分 (Z1) は総合的な影響の指標と考えられた。根岸小、八戸小、桔梗野小の 3 地点についてはヤマセの吹く春夏に総合的な影響の度合いが高い傾向にあった。第 2 主成分 (Z2) は発生源に関連する指標と考えられた。Z1 スコアの高い時期に Z2 スコアは正領域と負領域に分かれ、根岸小、桔梗野小では B 社から、八戸小、第二魚市場では D、E 社からの影響を主に受けていることが推察された。

2)第二魚市場では他の3地点と異なり、冬~春に総合的な影響の度合いが高い傾向にあった。

3)7 項目間の変数クラスター分析により、大きく As、Pb、Zn、Cd からなるクラスター、Ni、Cr、Mn からなるクラスターの 2 つに分類され、主成 分分析での Z2「発生源に関する指標」の正領域、 負領域と同様の結果となった。

4)震災後、主な発生源とされる工場の施設が稼働 停止となった3月中旬から6月上旬のモニタリン グデータに着目したところ、非ヤマセ時に比べヤ マセ時には Z1 スコアに若干増加傾向が見られ、 程度は低いものの原料鉱石や製品などの堆積場か らの飛散が推察された。

#### 文 献

1)花石竜治ほか: 八戸市内における有害大気汚染物質(重金属類)の発生源の推定. 青森県環境保健センター研究報告.12,31-41,2001.

2)花石竜治ほか: 八戸市内の金属関係工場周辺地域での浮遊粉じんの粒径分布-アンダーセンエアーサンプラーによる測定結果-. 青森県環境保健センター研究報告,14,81-83,2003.

3)宮野裕文ほか:線形回帰を用いた危険風向に対する大気中のニッケル・ヒ素濃度の推定. 青森県環境保健センター研究報告.14.37-50.2003.

4)宮野裕文ほか: 八戸市内における大気中のヒ素 ・ニッケル濃度の推定計算-拡散計算値と実測値 の適合性の検討-. 青森県環境保健センター研究 報告,14,51-61,2003.

5)花石竜治ほか: 八戸地域における有害大気汚染物質としてのニッケルの形態別分析結果. 青森県環境保健センター研究報告.21.42-45.2010.

6)早狩進:「クラスター分析アドイン」「主成分 分析アドイン」

URL:http//www.jomon.ne.jp/~hayakari/(2012.1.10 現在アクセス可能)

7)工藤香織:有害大気汚染物質排出抑制対策の取組みについて.第56回全国大気汚染防止連絡協議会,平成22年11月2日(愛媛県松山市)

Monitoring of Heavy Metal Concentration in Environmental Atmosphere in Hachinohe Area

Investigation of Pollutant with the Low Volume Air Sampler

Noriko Tsushima, Kaori Kudo, Masashi Jin

According to the results of principal component analysis on seven heavy metals in environmental atmosphere using 171 samples, the first principal component (Z1) and second principal component (Z2) were suggested to be indicators related to general pollution and the pollution source, respectively. A trend towards a relatively higher Z1 was found at Negishi Elementary School and Hachinohe Elementary School during spring and summer, the period affected by the Yamase seasonal winds. During the period when Z1 was high (Yamase season), Z2 was divided into positive and negative regions at 4 sampling points, suggesting that Negishi Elementary School is generally affected

by Company B and Hachinohe Elementary School is affected by Companies D and E.

Focusing on the monitoring data obtained during mid-March to early June when the factory facilities assumed to be the major source were closed down after the East Japan Great Earthquake, a slight increase in Z1 score was observed during the Yamase season compared to the non-Yamase season, suggesting dispersion from accumulation grounds of raw ore and products, although the contribution may be small.

Key words: low volume air sampler, environmental air, monitoring, heavy metal, East Japan Great Earthquake

## 八戸地域における有害大気汚染物質の発生源推定について - 多元素分析に焦点を当てて-

花石竜治 対馬典子 工藤香織

八戸地域の有害大気汚染物質モニタリングで調査を実施している大気浮遊粉じん中ニッケルに関連して、ニッケルの高濃度事例となった平成21年8月及び平成22年6月の大気浮遊粉じん検体並びに発生源と推定されている工場の使用鉱石やスラグ中の金属元素の多元素分析をICP-MS法等により行い、得られた結果にCMB法による解析を実施した。その結果、発生源と推定される工場において主に使用されていると推定される鉱石が大気浮遊粉じん中成分に寄与していることが示唆された。

Key words: Hachinohe, nickel, ICP-MS, multi-elemental analysis

#### 1. はじめに

八戸地域の有害大気汚染物質としてのニッケル化合物の発生源推定調査は平成 11 年度に始められ、翌々年の平成 13 年度にA工場と推定がなされた 1)。以後、アンダーセンエアサンプラーによる大気浮遊粉じんの粒径分布調査が実施され、粗大粒子にニッケルが比較的多く含まれていることが明らかとなった。粗大粒子は製錬を起源とするものではなく、機械的粉砕や汚染土壌の巻き上げなどによるものであり、A工場で野積みしている鉱石の粉じんによる可能性が示唆された 2)。

筆者らは、昨年度、ニッケルの形態別分析を試み、環境試料としてのハイボリウムエアサンプラー検体中のニッケル形態を明らかにし、また、粉じんの発生源と考えられている鉱石等の形態別分析を試みた<sup>3)</sup>。その結果、大気浮遊粉じん中のニッケルの起源についてはこれまでの推定を裏付ける結果となった。

一方、近年、誘導結合プラズマ質量分析法 (ICP-MS)の発達で、有害大気汚染物質モニタリングの重金属類分析の公定法となった。この方法の長所は、金属類多元素を同時に分析できることであり、またその高感度性から微量元素分析が可能であることである。

発生源と推定されているA工場はフェロニッケル製造工場であって製錬を行っている。製錬前後

の金属元素濃度と環境中の濃度とを比較することにより、環境に影響を与えている発生源を推定できる可能性がある。解析方法としては、一つは、微量元素を指標元素とする方法で、もう一つは多元素組成比を発生源と環境で比較するCMB(ケミカルマスバランス)法がある。

今回、大気浮遊粉じん試料及び発生源と推定されている工場で採取した鉱石類について、多元素分析を行い、特にCMB法によって発生源推定を行ったので報告する。

#### 2. 方法

#### 2.1 試料

大気浮遊粉じん試料は、平成21年8月5日から6日にかけて、及び22年6月2日から3日にかけて、定例の有害大気汚染物質モニタリングとして、ハイボリウムエアサンプラーにより、24時間吸引し、石英繊維ろ紙上に捕集したものとした。それぞれの検体は、大気中の全ニッケルが38 ng/m³、60 ng/m³とそれぞれの年度で最高値を示しており、多元素分析により有意な結果を得られると判断した。

A 工場の鉱石及びスラグ(鉱さい)は平成 22 年4月に採取したものを用いた。

図1に採取地点である八戸小学校、A工場及び 近傍のB工場を示した。

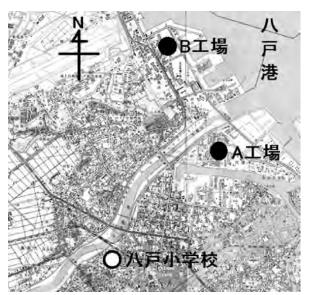


図1 大気浮遊粉じん試料採取地点と工場

#### 2.2 分析法

大気浮遊粉じん試料は、有害大気汚染物質モニタリングの公定法(以後、環境省マニュアルとする)である圧力容器法での酸分解、ICP-MS法により分析した。鉄は検体分取の際に鉄製のベルトポンチを使用すること、アルミニウムは検体保護のためにその箔を使用することから、分析対象から除外した。

A工場の鉱石及びスラグは、全ニッケル、全クロムについては既報<sup>1)</sup>の分析値を採用し、それら以外の高濃度元素(マンガン、鉄、銅及び亜鉛)は、硝酸・過塩素酸・フッ化水素分解し、フレーム原子吸光法により分析した。カルシウム及びマグネシウムは前述の酸分解法で得られた溶液を希釈し、塩酸酸性後、塩化ランタンを添加し、フレーム原子吸光法により分析した。それ以外の微量元素は、環境省マニュアルのICP-MS法によった。

#### 3. 結果及び考察

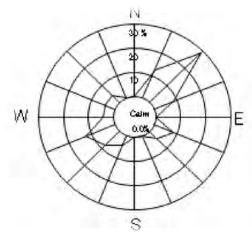
#### 3.1 大気浮遊粉じん採取時の気象

図 2 に大気浮遊粉じん採取時の風配図を示した。いずれも、北東の風が卓越していた。大気中浮遊粉じん採取地点である八戸小学校の北東には、A 工場が立地している。

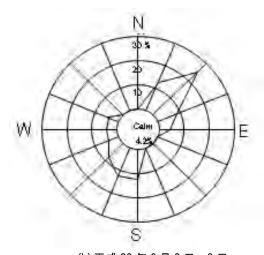
#### 3.2 大気浮遊粉じんの元素分析結果

大気浮遊粉じんの元素分析結果を表1に「本調査」として示す。あわせて有害大気汚染物質モニタリングとして測定した結果を「定例調査」として示した。

「本調査」と「定例調査」の結果は30%の範囲内でほぼ一致する結果であった。



(a) 平成 21 年 8 月 5 日~6 日



(b) 平成 22 年 6 月 2 日~3 日 図 2 大気浮遊粉じん採取時の風配図

#### 3.3 A工場のスラグ及び鉱石の元素分析結果

A 工場のスラグ及び鉱石の元素分析結果を表 2 に示す。

鉱石については、マグネシウムが  $14\sim18\%$ 、鉄 が  $16\sim22\%$ 、ニッケルが  $1.8\sim2.0\%$ であり、フェロニッケルの製造に用いられる南洋産の鉱石同様の含有量であった $^{4}$ 。

スラグは鉱石に比べて、鉄、コバルト、ニッケル及び銅の含有量が低くなっていた。

#### 3.4 СМВ法による発生源寄与解析

表 1 で特徴的な亜鉛、鉛、カドミウムについて表 2 の結果と比べると明らかな違いが見られる。これらの元素についてはB工場が発生源と推定されている $^{8}$ 。

CMB 法とは、リセプターモデルの一種で、発生源から排出される元素や化学種が、組成を変えずに環境側に到達することを仮定した解析手法であり、発生源と環境において、複数の元素や化学種

表1 大気浮遊粉じんの元素分析結果

 $(ng/m^3)$ 

|    | <del></del>      |       | ,     |       |
|----|------------------|-------|-------|-------|
| 二丰 | H21 <sup>左</sup> | ₣8月   | H22   | 年6月   |
| 元素 | 本調査              | 定例調査  | 本調査   | 定例調査  |
| Li | 0.23             |       | 0.67  |       |
| Be | 0.012            | 0.008 | 0.030 | 0.039 |
| V  | 13               |       | 12    |       |
| Cr | 19               | 18    | 34    | 38    |
| Mn | 34               | 31    | 56    | 62    |
| Co | 1.6              |       | 2.3   |       |
| Ni | 41               | 38    | 53    | 60    |
| Cu | 26               |       | 17    |       |
| Zn | 190              |       | 180   |       |
| Ga | 1.7              |       | 1.6   |       |
| As | 2.3              | 1.9   | 1.7   | 1.7   |
| Rb | 1.1              |       | 2.1   |       |
| Sr | 5.3              |       | 7.0   |       |
| Ag | 0.091            |       | 0.23  |       |
| Cd | 1.9              |       | 2.0   |       |
| Cs | 0.055            |       | 0.11  |       |
| Ba | 21               |       | 18    |       |
| T1 | 1.0              |       | 0.76  |       |
| Pb | 42               |       | 65    |       |
| Bi | 2.0              |       | 1.6   |       |
| Th | 0.02             |       | 0.06  |       |
| U  | 0.036            |       | 0.021 |       |
|    |                  |       |       |       |

の組成比をもとに発生源の寄与を求める手法である。その数学的手法として有効分散最小二乗法があり、発生源と環境の両方における測定誤差を考慮できる<sup>5)</sup>。

そこで、CMB 法の最初のステップとして、発生源に A 工場の鉱石 4種及びスラグ、B 工場の中の発生源として、従来、発生源寄与が高いと推定されてきた集塵機ダスト及び原料鉱石の総計 7種類の発生源を仮定して、その寄与を算出し、表 3 の(a) Case I として示した。

その結果、A工場の5種の発生源のうち、鉱石①だけが寄与を与える結果であったので、次の段階として、A工場関係では鉱石①の1種類、B工場関係では5種の集塵機ダストと2種類の原料鉱石の総計8種類を仮定してCMB計算を試み、表4の(b) Case II として示した。B工場の集塵機ダスト類及び原料鉱石の分析値については、筆者らの既報<sup>1)</sup>から引用した。ICP-MSの半定量分析で、既報<sup>1)</sup>で定量されている元素以外、すなわち、クロム、

表 2 A工場のスラグ及び鉱石の元素分析結果

(%

|    |          |          |          |          | (%)      |
|----|----------|----------|----------|----------|----------|
| 元素 | スラグ      | 鉱石①      | 鉱石②      | 鉱石③      | 鉱石④      |
| Li | < 0.005  | < 0.005  | < 0.005  | < 0.005  | < 0.005  |
| Mg | 23       | 14       | 18       | 16       | 15       |
| Al | 0.18     | 0.14     | 0.18     | 0.23     | 0.15     |
| Ca | 1.2      | <0.5     | <0.5     | <0.5     | <0.5     |
| V  | 0.0049   | 0.0033   | 0.0042   | 0.0045   | 0.0049   |
| Cr | 0.68     | 0.91     | 0.87     | 0.65     | 0.85     |
| Mn | 5.0      | 4.2      | 5.5      | 4.5      | 8.0      |
| Fe | 4.4      | 16       | 19       | 16       | 22       |
| Co | 0.0023   | 0.047    | 0.083    | 0.044    | 0.088    |
| Ni | 0.049    | 1.8      | 2.0      | 2.1      | 1.8      |
| Cu | < 0.0004 | 0.0032   | 0.0059   | 0.0072   | 0.0059   |
| Zn | 0.022    | 0.016    | 0.018    | 0.015    | 0.019    |
| Ga | 0.0001   | 0.0001   | 0.0001   | 0.0002   | 0.0001   |
| As | < 0.0006 | < 0.0006 | < 0.0006 | < 0.0006 | < 0.0006 |
| Rb | < 0.0002 | < 0.0002 | < 0.0002 | < 0.0002 | < 0.0002 |
| Sr | 0.0017   | 0.0005   | 0.0001   | 0.0001   | 0.0001   |
| Ag | < 0.0002 | < 0.0002 | < 0.0002 | < 0.0002 | 0.0004   |
| Cd | < 0.0001 | < 0.0001 | < 0.0001 | < 0.0001 | < 0.0001 |
| Cs | < 0.0001 | < 0.0001 | < 0.0001 | < 0.0001 | < 0.0001 |
| Ba | 0.0010   | 0.0007   | 0.0004   | 0.0027   | 0.0002   |
| Tl | < 0.0002 | < 0.0002 | < 0.0002 | < 0.0002 | < 0.0002 |
| Pb | < 0.002  | < 0.002  | < 0.002  | < 0.002  | < 0.002  |
| Bi | < 0.001  | < 0.001  | < 0.001  | < 0.001  | < 0.001  |
| Th | < 0.001  | < 0.001  | < 0.001  | < 0.001  | < 0.001  |
| U  | < 0.0001 | < 0.0001 | < 0.0001 | < 0.0001 | < 0.0001 |
|    |          |          |          |          |          |

マンガン、ニッケル、銅、亜鉛、ヒ素、カドミウム及び鉛以外の元素で、表1及び表2に示した元素は、B工場の原料鉱石ではほとんど不検出であったため、CMB計算に用いる元素を、既報と共通のクロム、マンガン、ニッケル、銅、亜鉛、ヒ素、カドミウム及び鉛に限定した。CMB計算は負の寄与を与える発生源の除去機能で行った。有効分散最小二乗法を用いるCMB計算の際に与える測定データの誤差の標準偏差は、測定値の5%とした。

発生源を変えた Case I と Case II の両方で同様の傾向が出ており、A 工場鉱石①の寄与率が 3.4%であった。その他には、Case II で B 工場の脱銅炉バグフィルターダスト、粉砕工程バグフィルターダストもわずかながら寄与を示したが、A 工場鉱石①に比べて寄与は小さい。

A 工場で主に用いる鉱石は鉱石①であり、CMB 法の結果とあわせれば環境への影響の主要因は同

#### 表3 CMB計算結果

#### (a) Case I

| H21年8月            |  | H22 年   | H22年6月    |  |
|-------------------|--|---|-----------|--|
| 寄与                | 寄与率  | 寄与  | 寄与率       |  |
| $((\mu g/m^3)$    |  | $((\mu g/m^3)$  |           |  |
| /(mg/kg))         | (%)  | /(mg/kg))   | (%)       |  |
| 0                 | 0  | 0   | 0         |  |
| 1.4               |  |   | 2.4       |  |
| $\times 10^{-6}$  | 3.4  | $\times 10^{-6}$  | 3.4       |  |
| 0                 | 0  | 0   | 0         |  |
| 0                 | 0  | 0   | 0         |  |
| 0                 | 0  | 0   | 0         |  |
| 2.0               |  | 2.4   |           |  |
|                   | 0.48   |   | 0.52      |  |
| ×10 <sup>-7</sup> |  | × 10 ′  |           |  |
| 1.7               | 0.42   | 8.1   | 0.12      |  |
| $\times 10^{-7}$  | 0.42   | $\times 10^{-8}$  | 0.12      |  |
|                   | 寄与 ((µg/m³) /(mg/kg))  0  1.4 ×10 <sup>-6</sup> 0 0  2.0 ×10 <sup>-7</sup> | 寄与 寄与率 ((µg/m³) /(mg/kg)) (%) 0 0 1.4 ×10⁻⁶ 3.4  0 0 0 0 0 2.0 ×10⁻⁷ 0.48 | 寄与 寄与率 寄与 |  |

#### (b) Case II

| (2) 0400 11 |                         |       |                        |        |  |
|-------------|-------------------------|-------|------------------------|--------|--|
|             | H21 年                   | 8月    | H22 年                  | H22年6月 |  |
| 水 小酒 夕 孙    | 寄与                      | 寄与率   | 寄与                     | 寄与率    |  |
| 発生源名称       | $((\mu \text{ g/m}^3)$  |       | $((\mu \text{ g/m}^3)$ |        |  |
|             | /(mg/kg))               | (%)   | /(mg/kg))              | (%)    |  |
| A工場鉱石①      | 1.4                     | 3.4   | 2.2                    | 3.4    |  |
| A工物弧石①      | .場弧石① ×10 <sup>-6</sup> |       | $\times 10^{-6}$       | 3.4    |  |
| B工場脱銅炉      | 2.7                     |       | 7.7                    |        |  |
| バグフィルター     | $\times 10^{-8}$        | 0.067 | ×10 <sup>-8</sup>      | 0.12   |  |
| ダスト         | × 10                    |       | ×10                    |        |  |
| B工場粉砕工程     | 1.5                     |       | 1.7                    |        |  |
| バグフィルター     | $\times 10^{-7}$        | 0.37  | ×10 <sup>-7</sup>      | 0.26   |  |
| ダスト         | ×10                     |       | ×10                    |        |  |
| B工場団塊製造炉    |                         |       |                        | 0      |  |
| バグフィルター     | 0                       | 0     | 0                      |        |  |
| ダスト         |                         |       |                        |        |  |
| B工場精製炉      |                         |       |                        |        |  |
| バグフィルター     | 0                       | 0 0   |                        | 0      |  |
| ダスト         |                         |       |                        |        |  |
| B工場硫化       | 0                       | 0     | 0                      | 0      |  |
| 鉛鉱          | 0                       | 0     |                        | 0      |  |
| B工場溶鉱炉      |                         |       | 6.6                    | _      |  |
| バグフィルター     | - 0                     | 0     | ×10 <sup>-8</sup>      | 0.10   |  |
| ダスト         |                         |       | ^10                    |        |  |
| B工場硫化       | 2.1                     | 0.52  | 1.5                    | 0.22   |  |
| 亜鉛鉱         | $\times 10^{-7}$        | 0.32  | $\times 10^{-7}$       | 0.22   |  |
| -           | •                       |       | -                      |        |  |

鉱石と推定される。

A 工場鉱石①の寄与が 3.4%で B 工場の各種発生源の寄与を加えても 4%程度であり、96%以上が未知発生源となった。今回は有害重金属で CMB 法を行い、ケイ素や鉄、元素状炭素、アルカリ土類金属を考慮に入れなかったこと、非汚染土壌や石油燃焼、自動車排ガス等の評価をしなかったことによるものと考えられる。

#### 4. 結論

八戸地域の有害大気汚染物質モニタリング調査として実施している大気浮遊粉じん中ニッケルに 関連した、八戸市内の環境測定地点で得られた大 気浮遊粉じん検体及び発生源と推定されている工 場の使用鉱石やスラグ中の金属元素の多元素分析 を中心に行い、得られた結果に CMB 法での解析 を実施したところ、発生源と推定される工場にお いて主に使用されていると推定される鉱石が大気 浮遊粉じん中成分に寄与していることが示唆され た。

#### 文 献

- 1)R. Hanaishi et al.:The estimation of emission sources of heavy metals of hazardous air pollutant in Hachinohe city.青森県環境保健センター研究報告,12,31-41,2001
- 2)花石竜治ほか: 八戸市内の金属関係工場周辺地域での浮遊粉じんの粒径分布—アンダーセンエアーサンプラーによる測定結果—.青森県環境保健センター研究報告.14.81-83.2003
- 3)花石竜治ほか: 八戸地域における有害大気汚染物質としてのニッケルの形態別分析結果.青森県環境保健センター研究報告,21,42-46,2010
- 4)吾妻潔ほか編:金属工学講座 製錬編 I 3 非 鉄製錬.朝倉書店,東京,1963
- 5)早狩進ほか:環境データ解析用表計算マクロの 紹介と解析例(II)—CMB法解析マクロ—.大気環 境学会誌,**36**,39-45,2001

Estimation of Emission Source of Hazardous Air Pollutants in Hachinohe Area

- a Focus on Multi-Elemental Analysis -

Ryuji Hanaishi, Noriko Tsushima, Kaori Kudo

In relation to the survey of nickel in airborne dust conducted as a part of the hazardous air pollutant monitoring

in Hachinohe area, multi-elemental analyses by utilizing ICP-MS etc.were made on metal elements in airborne

dust samples containing high concentrations of nickel collected in August 2009 and June 2010, and ores and slag

used at a smelter that is suspected to be the emission source, and the obtained results were analyzed using the

CMB method. The results suggest that the ore, mainly used in the smelter suspected of being the emission source,

contributes to components in airborne dust.

Key words: Hachinohe, nickel, ICP-MS, multi-elemental analysis

-27 -

#### 十和田湖における汚濁源の負荷について—平成21年度まで—

花石竜治 野澤久志1 一戸卓也2 工藤幾代 工藤隆治3

十和田湖における汚濁源の負荷について、要因別に試算したところ、降水の湖面に対する直接的な負荷及び降水時の流入河川の負荷の割合が大きいという結果を得た。CODと全リンで降水時の流入河川が、全窒素で湖面に対する直接的な負荷が大きい。また、逆送水の影響は負荷量全体では相対的に小さく、下水道未接続家屋からの生活排水の影響は無視できるほど小さいと試算された。十和田湖においては、自然要因による負荷が大部分を占めていた。

Key words: Lake Towada, loading, rainfall

#### 1. はじめに

十和田湖の水質については、平成7年度から国立環境研究所との共同研究<sup>1-3)</sup>が始まり、三上らは流出入負荷量の算定<sup>4)</sup>を行い、その後の平成17年度に、青森・秋田両県の研究で、降水時流入河川の汚濁量推定が行われた<sup>5,6)</sup>。

筆者らは、平成 19 年には逆送水の調査を行い、時間ごとの採水によって、その汚濁特性を報告した <sup>7)</sup>。また、既報 <sup>4)</sup>から、十和田湖に与える負荷量として、降水の影響が大きいことに着目し、平成 20 年度の夏から秋にかけて、定期的に降水を採取し、分析を行った。

十和田湖への汚濁負荷の推定は環境保全施策に とって重要である。

筆者らは平成21年度に、十和田湖の水質についての調査結果を取りまとめ、今回は、前報に引き続き、十和田湖の負荷量調査について検討を行ったので報告する。

#### 2. 汚濁負荷量の試算

#### 2.1 降水の直接的な影響

#### (1) 降水調査

図1に示す降水採取装置は、遮光できる茶褐色 のポリ瓶に、鳥類が接近しないように洗浄ブラシ の羽根を装着した合成樹脂製の漏斗を付け、漏斗 の出口にグラスウールを詰めて、降水を採取でき

1 むつ環境管理事務所 2 原子力安全対策課 3 環境政策課

るようにしたものであった。これに 2 mol/L 硫酸を 10 mL 添加し、微生物による生分解を防止した。この採取装置を、十和田湖畔の浄化センター屋上に設置し、約4週間に1回の頻度でボトルを交換して、降水を持ち帰った。

試料量は限られていることから、採取した試料の量に応じて、分析項目に優先順位を付け、COD、全窒素、全リン、リン酸性リン、硝酸性窒素、亜硝酸性窒素の順番に分析を行った。



図1 降水採取器

#### (2) 降水調査結果

浄化センター屋上の降水量は、表1のとおり、 休屋のアメダス観測値より10%程度多かった。

平成 20 年の休屋におけるアメダスの年間降水量は、1251.5 mm であった(気象庁ウェブサイトによる)。

表2に示すように、浄化センター屋上で採取した降水には、十和田湖湖水水質中の濃度を上回るCOD値、全窒素、全リンが含まれており、COD値は湖水の2~3倍程度、全窒素は4~10倍程度、全リンは最大で9倍以上の濃度であった。

なお、三上らは冬季の降雪中のCOD値が低いことを挙げて、粉じん等の巻上げによって、春から秋の降水中にCODが高いと推定している<sup>4)</sup>。

#### (3) 湖面への直接的な負荷量

表2に示した平成20年度の浄化センター屋上に おける降水の測定結果(採取降水量と汚濁物質濃 度)、十和田湖の湖面積 61.06 km²、降水検体採 取に用いた漏斗の採取面積 165.1 cm²から、降水 の負荷量を計算した結果を表3に示した。 負荷量は採取期間におけるものを合計し、この値に、雨水を採取した期間の降水量積算値(休屋アメダス観測値 687.0 mm)と 5 月から 11 月までの降水量積算値(同 970.0 mm)の比率 (970.0/687.0 =1.41 を乗じた)から、5 月から 11 月までの負荷量を試算した。

#### 2.2 流入河川の影響

#### (1) 晴天時の負荷量

非降水時(晴天時)における流入河川からの負荷量については、「平成17年度十和田湖流入河川降雨時負荷量調査報告書」ので秋田県健康環境センターが試算した結果をもとに、冬期間を除く5月から11月までの7ヶ月間の負荷量を表4に示した。降水時については後述するが、降水があった場合の日数を除外して算出している。

なお、三上らの平成 11 年 7 月から平成 12 年 6 月までの調査 <sup>4)</sup>では、湖に流入する小さな沢水までを負荷量試算の対象としており、本報告では、沢水等の負荷量は含まれていない。

| 表 1 | 平成 20 年度の降水採取 | Q器とアメダス観測 | 側値の降水量比較 | (mm)  |
|-----|---------------|-----------|----------|-------|
|     | 7月11日         | 8月1日      | 8月25日    | 9月30日 |

| 測定場所         | 7月11日 | 8月1日   | 8月25日  | 9月30日   |
|--------------|-------|--------|--------|---------|
| 侧足物 <u></u>  | ~8月1日 | ~8月25日 | ~9月30日 | ~11月10日 |
| 浄化センター屋上     | 199   | 204    | 172    | 202     |
| 休屋 (アメダス観測値) | 168.5 | 193    | 164    | 161.5   |

表 2 平成 20 年度の浄化センター屋上における降水の測定結果

| 項目     | 単位   | 7月11日<br>~8月1日 | 8月1日<br>~8月25日 | 8月25日<br>~9月30日 | 9月30日<br>~11月10日 | H20 湖水<br>8層平均値 |
|--------|------|----------------|----------------|-----------------|------------------|-----------------|
| 採取量    | mL   | 3300           | 3377           | 2852            | 3336             | _               |
| COD    | mg/L | 3.7            | 2.6            | 2.7             | 3.2              | 1.1             |
| 全窒素    | mg/L | 0.84           | 0.43           | 0.52            | 1.2              | 0.11            |
| 硝酸性窒素  | mg/L | _              | 0.049          | _               | 0.070            | 0.011           |
| 亜硝酸性窒素 | mg/L | _              | < 0.003        | _               | < 0.003          | < 0.003         |
| 全リン    | mg/L | 0.038          | 0.006          | 0.010           | 0.010            | 0.004           |
| リン酸性リン | mg/L | 0.027          | 0.006          | 0.005           | 0.009            | < 0.003         |

| 項     | 目   | 7月11日<br>~8月1日 | 8月1日 ~8月25日 | 8月25日<br>~9月30日 | 9月30日<br>~11月10日 | 合計   | 5~11月<br>(試算) |
|-------|-----|----------------|-------------|-----------------|------------------|------|---------------|
| COD 1 | 負荷量 | 45             | 32          | 28              | 39               | 140  | 190           |
| 全窒素   | 負荷量 | 10             | 5.3         | 5.4             | 14               | 34   | 47            |
| 全リン   | 負荷量 | 0.46           | 0.074       | 0.10            | 0.12             | 0.75 | 1.0           |

| 項目  | 宇樽部川 | 神田川  | 鉛山沢川 | 大川岱川 | 銀山川  | 滝ノ沢川 | 6河川合計 |
|-----|------|------|------|------|------|------|-------|
| COD | 21   | 7.2  | 1.7  | 10   | 5.2  | 2.5  | 47    |
| 全窒素 | 1.9  | 0.68 | 0.28 | 0.91 | 0.42 | 0.13 | 4.3   |
| 全リン | 0.22 | 0.15 | 0.01 | 0.19 | 0.07 | 0.02 | 0.66  |

## (2) 降水時の負荷量

「平成17年度十和田湖流入河川降雨時負荷量調 査報告書」では、秋田県が3段タンクモデルによ って非降雪期の降水時流入河川負荷量を推定して いる。降水時の流量と項目濃度とを1次直線で回 帰し、流量とこの1次式で与えられた推定項目濃 度との積から汚濁負荷量を計算した結果、青森県 側の河川である宇樽部川及び神田川の負荷量の寄 与が、他の河川に比べて大きいとしている。

一方、一般的に河川では、流量の対数と負荷量 の対数とに直線関係があるとされており<sup>10)</sup>、これ を用いた河川汚濁の評価をL-O式による方法と呼 んでいる。

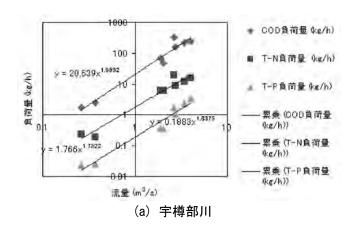
そこで、L-Q 式による負荷量と流量の関係推定 の結果と、平成17年度の非降雪期における降水イ ベントに対して秋田県が行った3段タンクモデル での流量の計算結果とを組み合わせて、新たに、 降水時の負荷量の推計を行った。なお、宇樽部川 と神田川以外の秋田県側の河川では、流速と水質 の同時調査を行ったかが明瞭でないので、L-O 式 による評価の対象外とした。

宇樽部川及び神田川に適用したL-O式プロット の回帰式から流量と負荷量の関係式の指数は 1.5 ~2.0 の間であった(図2)。

L-O 式により、降雨時負荷量を算出した結果は 表5のとおりである。宇樽部川及び神田川以外の 河川の負荷量については、秋田県分担執筆分の報 告 6から抜粋した。また、表の宇樽部川及び神田 川には、従来、秋田県が行った負荷量推定の結果

をカッコ内に併記した。

6 河川合計の降水時の負荷量は、COD、全窒素 及び全リンはそれぞれ晴天時の13倍、6倍、9倍 であった。



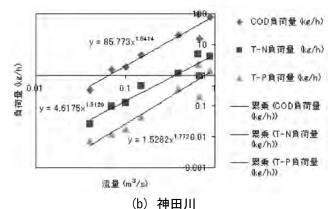


図 2 宇樽部川及び神田川における L-Q 式のプロット (平成17年7月及び10月)

表 5 降水時における流入河川の負荷量(5~11月)

(トン)

| 項目  | 宇樽部川             | 神田川              | 鉛山沢川 | 大川岱川 | 銀山川  | 滝ノ沢川 | 6 河川合計 |
|-----|------------------|------------------|------|------|------|------|--------|
| COD | <b>380</b> (360) | <b>93</b> (170)  | 23   | 37   | 48   | 56   | 630    |
| 全窒素 | <b>18</b> (18)   | <b>4.3</b> (7.4) | 0.57 | 0.29 | 0.84 | 0.35 | 24     |
| 全リン | <b>2.4</b> (2.5) | <b>1.9</b> (2.9) | 0.11 | 0.38 | 0.47 | 0.61 | 5.8    |

※( )は秋田県推定

#### 2.3 逆送水の影響

通常の十和田発電所での発電は、湖水面より上位にある渓流水取水口から、湖水面より下位にある発電所へ、不足であれば湖水も利用して行うが、逆送とは、発電容量を制限し、発電所へ流れる渓流水の一部を十和田湖に流すものである。

逆送水の水質については、唯一、降水の影響も含めて7日間観測した花石らの調査結果がある<sup>7)</sup>。 この調査は融雪期の4月に行われた。COD値、全窒素、全リン濃度から年間における汚濁負荷を推定する。

降水がなかったときの逆送水の COD 値は約 1 mg/L で、湖水の濃度とほぼ同程度である。一方、全窒素は、約 0.2 mg/L であり、湖水の平均的な 0.1 mg/L の 2 倍程度であった。全リンは 0.008 mg/L 前後で、湖水の 0.003 mg/L の約 3 倍である。したがって、逆送水は、湖水に対する窒素リンの供給源であると考えられる。

文献  $^{1,11)}$ により、逆送水の年間流入量は  $3.7\times10^7$  t/年と推定されている。以上の値をもとに 5 月から 11 月までの 7 ヵ月分を推定した結果を表 6 に示す。算出にあたっては、流入量は年間の 12 分の 7 とし、降水日については考慮しなかった。

花石らの平成19年度の調査結果<sup>7</sup>では、降水時には逆送水のCOD値などの上昇が認められている。

表 6 逆送水の汚濁負荷量(晴天時、5~11月)

| 項目  | 負荷量 (トン) |
|-----|----------|
| COD | 23       |
| 全窒素 | 4.3      |
| 全リン | 0.16     |

この結果をもとに、降水時に逆送水の COD 値が 3mg/L に上昇し、年間の降水イベントが 20 回、それぞれ 24 時間にわたりこの値が継続すると仮定すると、COD の負荷は 6 トン/年程度となる。また、降水時に全窒素が 0.4 mg/L、全リンが 0.02 mg/L になるとすれば、降水時における全窒素、全リンの負荷量はそれぞれ 0.8 トン/年、0.04 トン/年となる。これらの値は、前述した降水時の流入河川の負荷量の試算結果よりも極めて小さい。以上から逆送水による負荷量は、降水時については無視できる程度であり、晴天時として試算した表6 の量としてみなすことができる。一方でその量は表4及び表5に示す流入河川の負荷量に比べると小さい。

#### 2.4 生活排水の影響

図3に、十和田湖畔の青森・秋田両県における下水道接続率の状況を示した。また十和田湖の「中央」におけるCOD75%値の推移を示した。下水道接続率は年々増加し、現在約90%である。CODについては、昭和59年度頃から上昇し、昭和62年度以降は、平成16年度の一時的な上昇を除けば、ほぼ同様の値で推移している。

公開されている原単位を用いて、下水道未接続家屋から生活排水のCOD等の負荷量を推定する。平成20年度末では未接続戸数49戸のうち、青森県側の17戸については平成20年度に現地調査を実施し居住しているのは13戸であったことから、両県合わせた未接続戸数を45戸とする。また、1戸には4人が生活し、原単位として表7に記載した値12とし、単独処理浄化槽が設置されているものとして、文献12の除去率等を用いると、COD、全窒素及び全リンの負荷量は、表7に示した試算結果となり、極めて小さい値であった。

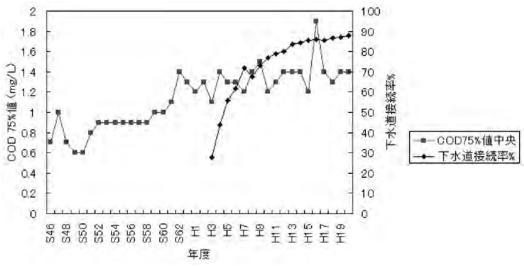


図3 十和田湖畔における下水道接続率と「中央」における COD75%値の推移

| ± 7            | 下水道未接続家屋からの生活排水の負荷量 |
|----------------|---------------------|
| <del>天</del> / | ト水油未送続多皮からの生活地水の油荷南 |
|                |                     |

|     | 原単位       | 単独処理   | 浄化槽処理     | 戸数  | 一戸あた | 負荷量    | 5~11月の |
|-----|-----------|--------|-----------|-----|------|--------|--------|
| 項目  |           | 浄化槽    | 後負荷量      |     | りの人数 |        | 負荷量    |
|     | (g/(人・目)) | 除去率(%) | (g/(人・目)) | (戸) | (人)  | (トン/年) | (トン)   |
| COD | 1.5       | 50     | 0.5       | 4.5 | 4    | ^      |        |
| COD | 17        | 50     | 8.5       | 45  | 4    | 0.55   | 0.32   |
| 全窒素 | 2.0       | 0      | 2.0       | 45  | 4    | 0.55   | 0.32   |

表 8 各汚濁源の全体の負荷量に占める割合

|              | COD  |       | 全窒    | 全窒素   |       | ン    |
|--------------|------|-------|-------|-------|-------|------|
| 汚 濁 源        | 負荷量  | 割合    | 負荷量   | 割合    | 負荷量   | 割合   |
|              | (トン) | (%)   | (トン)  | (%)   | (トン)  | (%)  |
| 生活排水(下水道未接続) | 0.32 | 0.035 | 0.076 | 0.096 | 0.015 | 0.19 |
| 湖面に対する直接的降水  | 190  | 21    | 47    | 59    | 1.0   | 13   |
| 流入河川 (晴天時)   | 47   | 5.2   | 4.3   | 5.4   | 0.66  | 8.6  |
| 流入河川 (降水時)   | 630  | 70    | 24    | 30    | 5.8   | 76   |
| 逆 送 水 (晴天時)  | 23   | 2.5   | 4.3   | 5.4   | 0.16  | 2.1  |
| 流入負荷量の総和     | 890  | _     | 79    | _     | 7.6   | _    |

#### 3. 汚濁源負荷量の考察

#### 3.1 汚濁源の寄与率

これまで試算した負荷量の結果を取りまとめ、 また、それぞれの割合を算出し、表8及び図4に 示した。

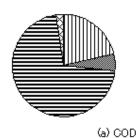
汚濁源として、CODと全リンについては降水時 の流入河川の割合が大きく、全窒素については湖 面に対する直接的な降水の割合が大きいなど、自 然要因による負荷が大部分を占めている。

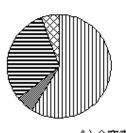
# 4. 結論

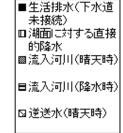
十和田湖における汚濁源の負荷について要因別 に試算した。その結果、次の点が明らかになった。 1)COD、全窒素及び全リンは、それぞれ降水に湖 水の 2~3 倍、4~10 倍、9 倍以上の程度の濃度で 含まれており、これらの項目で、降水の湖面に対 する直接的影響が大きいと試算される。

- 2)降水時の流入河川による汚濁負荷は、CODと全 リンで大きい。
- 3)発電所に流れる渓流水の一部を十和田湖に流す 逆送水の影響は、全体の汚濁負荷から見て相対的 に小さい。
- 4)下水道未接続家屋からの影響は、負荷量全体か ら見て、無視できるほど小さい。

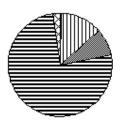
以上のとおり、十和田湖における汚濁源につい ては、自然要因による負荷が大部分を占めていた。







(b) 全窒素



(c) 全リン

図 4 各項目についての汚濁源の寄与の割合

#### 文 献

- 1)青森県編:十和田湖水質汚濁機構解明調査報告書 (平成7~9年度). 1998年11月
- 2)高村典子編:十和田湖の生態系管理に向けて.国立環境研究所研究報告,146,1999
- 3)高村典子編:十和田湖の生態系管理に向けてⅡ. 国立環境研究所研究報告,167,2001
- 4)三上一ほか: 十和田湖の負荷量調査(1999~2000)
- . 青森県環境保健センター研究報告,11,21-36,2000 5)三上一: 非積雪期における十和田湖流入河川の降 雨時負荷量調査. 青森県環境保健センター研究報

告,17,20-31,2006

6)青森県環境保健センター編:平成17年度十和田 湖流入河川降雨時負荷量調査報告書.2007年5月 7)花石竜治ほか:平成19年春季の十和田湖におけ る逆送水の水質調査結果.青森県環境保健センタ

- 一研究報告,18,22-25,2007
- 8)青森県環境保健センター編:十和田湖の水質に関する報告書-公共用水域水質調査結果、定点における調査結果、共同研究の成果及び負荷量の考察-. 2011 年 5 月
- 9)花石竜治ほか:十和田湖の水質調査結果—公共用 水域水質調査及び定点層別採水による調査.青森 県環境保健センター研究報告,20,22-29,2009
- 10)國松孝男ほか:河川汚濁のモデル解析. 技報堂出版,東京,1989
- 11)吉田毅ほか:十和田湖における鉱山廃水、下水 道処理による水質の将来予測.青森県環境保健セ ンター研究報告,13,32-45,2003
- 12)流域別下水道整備総合計画制度設計会議編:流域別下水道整備総合計画調査指針と解説. 2009

# Loading of Pollution Source at Lake Towada - for the Period up to Fiscal 2009 -

Ryuji Hanaishi, Hisashi Nozawa, Takuya Ichinohe, Ikuyo Kudo, Ryuji Kudo

A factorial analysis of loading of the pollution source at Lake Towada suggests that the contribution of direct loading due to rainfall on the lake surface and loading from inflowing rivers during rainfall were high. Inflowing rivers during rainfall contributed to COD and total phosphorus, and direct loading on the lake surface made a major contribution to total nitrogen. In addition, the effect of inter-catchment transfer of water was relatively small compared to the total loading, and it was calculated that the effect of domestic wastewater from houses that were not connected to the sewage system was negligible. Loading due to natural causes was the main factor at Lake Towada.

Key words: Lake Towada, loading, rainfall

# 奥入瀬渓流における泡出現の原因の考察

花石竜治 野澤直史 工藤香織 齋藤輝夫1

平成22年7月に発生が確認された十和田湖の流出河川である奥入瀬川における泡について、渓流水及び泡の採取を行い、分析を行った。渓流水は、メチレンブルー活性物質は不検出で、全リンや鉄、アルミニウム等は湖水に比較して高濃度ではなかった。糖類が渓流水の一部で検出され、泡では濃度が高く、限外ろ過膜法により分子量分画を行った結果、糖類の7割以上が多糖類であった。平成22年度の十和田湖の水質についてはこれまでと異なった傾向で変動していた。我が国における河川湖沼の泡発生の事例を踏まえ、自然に発生した糖類が泡発生の原因と推定された。

Key words: Oirase-River, bubble, polysaccharide

#### 1. はじめに

十和田八幡平国立公園の中で、十和田湖からの 唯一の流出河川である奥入瀬渓流は、観光の一大 スポットであり、その清流美は毎年多くの観光客 の目を楽しませている。

平成22年7月13日の地元紙<sup>1)</sup>に、「奥入瀬渓流で泡が発生している」ことが報じられた。その報道によれば、泡の発生は同年5月頃からとのことであった。

渓流に泡とあっては、美観を損なうことはもとより、渓流の水質悪化さらには源流の十和田湖の湖水の水質悪化が危惧されたため、早速調査を行った。

本報告では、新聞報道があった直後に実施した 調査と、当該年度の十和田湖の水質とあわせて検 討を行った。

#### 2. 方法

# 2.1 検体採取

平成22年7月14日に、奥入瀬川3地点の泡を 合成樹脂製袋に採取した(銚子大滝の1地点分は 泡を冷凍保存)。渓流水4地点分(1地点は十和 田湖流出口の子ノ口での採水)は、同日に表層水 を採取した。図1に採取地点を示した。

#### 2.2 無機成分の分析

#### 1 八戸環境管理事務所

pH、電気伝導度、全リン、鉄、アルミニウムは JIS K0102 (工場排水の分析方法) によって分析し た。

微量金属元素はICP-MS法によって分析した。このうち渓流水については超純粋硝酸を添加してICP-MS測定を行った。泡は固形分があったため、テフロンビーカー内で超純粋硝酸及び超純粋フッ化水素酸を添加して熱板上で酸分解を行い、ICP-MS法による分析を行った。標準溶液はSPEX社の市販品を用いた。

泡に含まれる乾燥後固形物の重量は、緩やかに 加熱、乾固した後、デシケータ内で放置後測定し た。

# 2.3 有機成分の分析

メチレンブルー活性物質はJIS K0102 によって 分析をした。

糖類は、衛生試験法<sup>2)</sup>に準拠してアントロン硫酸法で分析した。この方法では、各種の糖類に対する発色反応の強度差があって、大雑把な糖類の濃度の目安となるものであり、グルコース(ブドウ糖)換算の濃度として示す。

分子量分画は、ADVANTEC社のウルトラフィルターユニットを用いて、分子量1万、5万、20万の分画を限外ろ過膜法によって行い、これとアントロン硫酸法を組み合わせて、分子量分画による糖類の分画試験を行った。なお、ウルトラフィルターユニットには膜保護のため、市販のままでは

膜にグリセリンが浸潤されていたので、超純水で3回洗浄し、直ちに分析に供することにより、その影響を除いた。



図1 奥入瀬川及び十和田湖における検体採取地点



図2 石ヶ戸・馬門岩間の泡(中央の無色の塊)

#### 3. 結果と考察

#### 3.1 泡出現の様子

図2に石ヶ戸・馬門岩間(図1では「泡採取地 点②」の近傍)の奥入瀬川に出現した泡の写真を 示した。 図2は一例であるが、泡は図1の泡採取地点① から③までの奥入瀬川において、目視で確認でき た。泡は無色であった。

#### 3.2 水質の分析結果

奥入瀬渓流水質の分析結果を表1に示した。泡の要因となる陰イオン界面活性剤については、メチレンブルー活性物質として渓流水では不検出であった。また、三上らが報告している青森県内の堤川における泡発生<sup>3,4)</sup>で要因として疑われた全リンや鉄、アルミニウムは下流ほど高濃度になっていたが、十和田湖の湖水のこれまでの分析結果からは、著しく高濃度ではなかった。

表 2 に泡の分析結果を示した。泡には渓流水の約 100 倍程度の濃度で、全リンや鉄、アルミニウムが含まれていた。

表1 奥入瀬渓流水質の分析結果

|         |        |             |         | • •     |  |
|---------|--------|-------------|---------|---------|--|
| 項目      | -      | 十和田湖        |         |         |  |
| -       | 地点 A   | 地点 B        | 地点 C    | 地点 D    |  |
| pН      | 7.8    | 7.9         | 8.0     | 8.1     |  |
| 電気伝導度   | 130    | 160         | 100     | 180     |  |
| (µS/cm) | 130    | 160 180     |         | 100     |  |
| 全リン     | 0.016  | 0.009       | < 0.003 | <0.002  |  |
| (mg/L)  | 0.016  | 0.009       | <0.003  | < 0.003 |  |
| アルミニウム  | 0.051  | 0.010       | 0.009   | 0.008   |  |
| (mg/L)  | 0.031  | 0.051 0.019 |         | 0.008   |  |
| 鉄(mg/L) | 0.066  | 0.051       | 0.045   | 0.043   |  |
| メチレンブ   |        |             | •       |         |  |
| ルー活性物質  | < 0.02 | < 0.02      | < 0.02  | < 0.02  |  |
| (mg/L)  |        |             |         |         |  |

|     | 表 2 | 泡の分析結果 |     | (mg/L) |
|-----|-----|--------|-----|--------|
| 項   | 目   | 地点①    | 地点② | 地点③    |
| 全   | リン  | 6.9    | 3.4 | 2.1    |
| アルミ | ニウム | 6.4    | 2.8 | 1.6    |
| Ś   | 跌   | 4.7    | 2.1 | 0.1    |
|     |     |        |     |        |

# 3.3 糖類の分析結果

分子量分画を含めた糖類の分析結果を渓流水については表3及び泡については表4に示した。

渓流水では、採取地点C(銚子大滝)が定量下限を上回って糖類が検出された。泡ではすべての検体で糖類が25~37 mg/Lであった。これらについて分子量分画を行った結果、分画分子量20万以上の高分子、すなわち多糖類が、糖類全体の76~95%であった。多糖類を含めた糖類の泡中の濃度

は、上流側の地点③から下流側の地点①までほぼ 同様の濃度であり、表 1、2 に示した全リン、鉄及 びアルミニウムが下流ほど高濃度となる傾向とは 異なっていた。

泡中の乾燥重量は表 5 に示すとおりで、0.70~ 1.5 g/Lであり、グルコース換算された糖類の重量比は 2.5~3.6 %であった。

表 3 渓流水の糖類分析結果

 (mg/L)

 異入瀬川 十和田湖

 地点A 地点B 地点C 地点D

 糖類
 <1</td>
 <1</td>
 3
 <1</td>

表 4 泡の糖類分析結果(分子量分画の結果を含む)

(mg/L)

|          | 項目   | 地点①   | 地点②   | 地点③   |
|----------|--|-------|-------|-------|
|          | 全 糖 類  | 33    | 37    | 25    |
|          | MW<1 万   | 4     | <1    | <1    |
| $\wedge$ | 1 万 <mw<5 td="" 万<=""><td>&lt;1</td><td>2</td><td>9</td></mw<5>    | <1    | 2     | 9     |
| 分<br>画   | 5万 <mw<20万< td=""><td>4</td><td>&lt;1</td><td>&lt;1</td></mw<20万<> | 4     | <1    | <1    |
| 四        | 20 万 <mw< td=""><td>26</td><td>35</td><td>19</td></mw<>            | 26    | 35    | 19    |
|          |  | (79%) | (95%) | (76%) |

※WW:分子量

表 5 泡の乾燥重量とグルコース換算糖類の割合

| 項     | Ħ     | 地点① | 地点② | 地点③  |
|-------|-------|-----|-----|------|
| 乾燥重量  | (g/L) | 1.3 | 1.5 | 0.70 |
| 糖類の含有 | 量(%)  | 2.5 | 2.5 | 3.6  |

表 6 渓流水の微量元素分析結果

 $(\mu g/L)$ 

| 元素 | 地点 A   | 地点 B   | 地点 C   | 地点 D   |
|----|--------|--------|--------|--------|
| Cr | < 0.1  | < 0.1  | 0.1    | 0.2    |
| Mn | 1.7    | 1.0    | 4.2    | 1.7    |
| Ni | 0.7    | 0.2    | 0.4    | 0.5    |
| Cu | 1.0    | 0.8    | 0.9    | 1.1    |
| Zn | 1      | 2      | 5      | 5      |
| As | 3      | 4      | 4      | 5      |
| Se | < 0.1  | < 0.1  | < 0.1  | <0.1   |
| Mo | < 0.7  | < 0.7  | < 0.7  | < 0.7  |
| Cd | < 0.1  | < 0.1  | < 0.1  | < 0.1  |
| Sb | 0.2    | 0.3    | 0.4    | 0.4    |
| Pb | < 0.1  | < 0.1  | < 0.1  | 0.1    |
| U  | < 0.02 | < 0.02 | < 0.02 | < 0.02 |

表 7 泡の微量元素分析結果

 $(\mu g/L)$ 

|    |       |       | ( M 8/ L/ |
|----|-------|-------|-----------|
| 元素 | 地点①   | 地点②   | 地点③       |
| Cr | 4.0   | 3.2   | 1.8       |
| Mn | 630   | 380   | 320       |
| Ni | 7.7   | 5.8   | 4.9       |
| Cu | 120   | 120   | 80        |
| Zn | 760   | 530   | 470       |
| As | 22    | 19    | 16        |
| Se | 3.0   | 2.6   | 1.5       |
| Mo | < 0.7 | < 0.7 | < 0.7     |
| Cd | 2.9   | 2.9   | 1.8       |
| Sb | 0.5   | 0.3   | 0.3       |
| Pb | 35    | 33    | 26        |
| U  | 0.41  | 0.28  | 0.15      |
|    |       |       |           |

#### 3.4 微量元素の分析結果

- 表 6、表 7 にICP-MS法で分析した渓流水及び泡 - の微量金属元素分析結果を示した。

泡では、Mo (モリブデン) 以外については、渓流水の約10倍から100倍程度の濃度で微量金属が含まれていた。また下流になるほどおおむね濃度が高くなる傾向であった。

#### 3.5 平成 22 年度の十和田湖の水質の特徴 5)

十和田湖の今回の事例では、泡の出現は報道によると平成22年の5月頃とのことであった。青森県及び秋田県では、毎年4月から11月までの各月に公共用水域水質調査を実施しており、表8に環境基準点となっている「中央」及び「子ノロ」におけるCOD75%値を、図2にその推移を示した。環境基準は湖沼AA類型1mg/Lであり達成している場合を○とし、1mg/Lを超過している場合を×とした。

また平成 22 年度の 9 地点の表層におけるCOD値の推移を図 3 に、クロロフィル-aの濃度の推移を図 4 に示した。「中央」及び「子ノロ」における表層のCOD値及びクロロフィル-a濃度の推移については、平成 13 年度から 22 年度までをそれぞれ図 5、図 6 に示した。

平成22年度は「子ノ口」において、COD75% 値が平成16年度に次いで高い値であった。

平成22年度内のCOD値は6月から高くなり、 クロロフィル-a濃度は7月から上昇していた。

表層におけるCOD値はおおむね春季に低く、その後上昇し、秋季に若干低下する季節変動傾向があるが、平成22年度は年度前半から上昇し、秋季

まで継続しており、これまでとは異なった傾向となっていた。

一方、平成 22 年度は春季から十和田湖の中湖 (なかのうみ) 近傍で赤潮が発生したとの連絡 <sup>6)</sup> があり、植物プランクトンが増殖した可能性が疑われる。

クロロフィル-aについては、図 6 に示すとおり 高濃度であった平成 16 年度の翌年の 17 年度以降 はおおむね春季 (4 月) に前年の秋の濃度より高 くなり、夏季にかけて低下し、秋季に若干上昇する季節変動が認められる。一方、平成22年度は過去5年間とは異なり、春季の濃度が前年の秋季と同程度であったこと、夏季から秋季に上昇傾向が続いたことなど、平成17年度の季節変動に類似していた。

以上のとおり、平成 22 年度は、COD値とクロロフィル-aの濃度推移はこれまでと異なった傾向で変動していた。

表 8 十和田湖 COD75%値の推移及び環境基準達成状況

|     | 地点     | 京 名    |      |           | 地点     | 京 名    |      |
|-----|--------|--------|------|-----------|--------|--------|------|
| 年度  | 中央     | 子ノ口    | 達成状況 | 年度        | 中 央    | 子ノ口    | 達成状況 |
|     | (mg/L) | (mg/L) |      |           | (mg/L) | (mg/L) |      |
| S46 | 0.7    | 0.7    | 0    | Н3        | 1.1    | 1.1    | X    |
| S47 | 1.0    | 1.0    | 0    | H4        | 1.4    | 1.3    | ×    |
| S48 | 0.7    | 0.6    | 0    | Н5        | 1.3    | 1.3    | ×    |
| S49 | 0.6    | 0.5    | 0    | Н6        | 1.3    | 1.2    | ×    |
| S50 | 0.6    | 0.8    | 0    | <u>H7</u> | 1.2    | 1.1    | X    |
| S51 | 0.8    | 0.8    | 0    | H8        | 1.4    | 1.3    | X    |
| S52 | 0.9    | 0.9    | 0    | H9        | 1.5    | 1.5    | ×    |
| S53 | 0.9    | 0.8    | 0    | H10       | 1.2    | 1.3    | X    |
| S54 | 0.9    | 0.9    | 0    | H11       | 1.3    | 1.2    | ×    |
| S55 | 0.9    | 1.0    | 0    | H12       | 1.4    | 1.5    | ×    |
| S56 | 0.9    | 1.0    | 0    | H13       | 1.4    | 1.5    | X    |
| S57 | 0.9    | 0.8    | 0    | H14       | 1.4    | 1.4    | X    |
| S58 | 0.9    | 1.0    | 0    | H15       | 1.2    | 1.3    | X    |
| S59 | 1.0    | 1.1    | ×    | H16       | 1.9    | 2.0    | X    |
| S60 | 1.0    | 1.0    | 0    | H17       | 1.4    | 1.4    | ×    |
| S61 | 1.1    | 1.1    | ×    | H18       | 1.3    | 1.3    | ×    |
| S62 | 1.4    | 1.3    | ×    | H19       | 1.4    | 1.4    | ×    |
| S63 | 1.3    | 1.3    | ×    | H20       | 1.4    | 1.3    | ×    |
| H1  | 1.2    | 1.3    | ×    | H21       | 1.3    | 1.1    | ×    |
| H2  | 1.3    | 1.2    | ×    | H22       | 1.4    | 1.6    | X    |

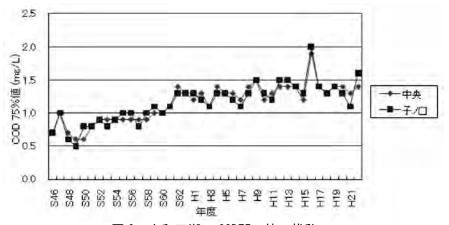


図2 十和田湖の COD75%値の推移

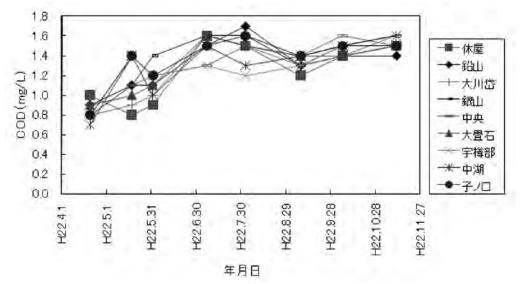


図3 十和田湖表層の COD 値の推移 (平成 22 年度)

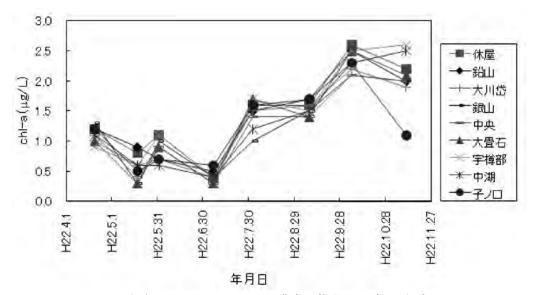


図4 十和田湖表層のクロロフィル-a濃度の推移(平成22年度)

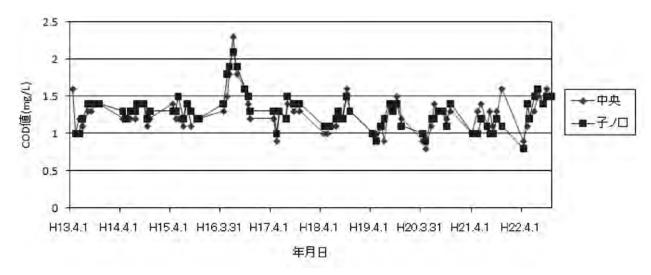


図5 十和田湖表層の COD 値の推移 (10 年間)

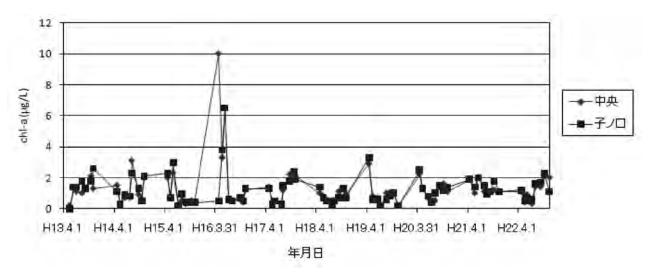


図 6 十和田湖表層のクロロフィル-a 濃度の推移(10年間)

#### 3.6 泡発生原因の推定

前述のとおり、渓流水中の糖類については低かったが、泡中の糖類は約30 mg/Lで70%以上が多糖類であった。

我が国の河川湖沼における泡出現の事例については、高知県四万十川<sup>7)</sup>、京都府宇治川<sup>8)</sup>、栃木県中禅寺湖<sup>9、10)</sup>などがあり、いずれも原因は多糖類に起因すると推定されている。

四万十川の例では、フェーリング反応、薄層クロマトグラフィーによる分離と定性試験などによって泡に多糖類が含まれていることを定性的に確認し、さらに多糖類の界面活性的性質を物理学的に評価している。

また中禅寺湖の例では、泡に含まれる多糖類を酸で分解し、誘導化してガスクロマトグラフで分析し、糖類の組成から、水生植物や落葉の分泌・分解物が起源として推定している。中禅寺湖において泡が発生したときの溶存糖類の最も高い濃度は、フェノール硫酸法で、湖水の水深 10 m 層で2.25 mg/L であり、今回の奥入瀬川の銚子大滝でのアントロン硫酸法での観測値3 mg/L はそれと同程度であった。

以上のことと、平成 22 年度の十和田湖の水質が COD 値及びクロロフィル-a がこれまでと異なった傾向であったこと、陰イオン界面活性剤の指標となるメチレンブルー活性物質が不検出であったこと、微量金属元素や全リンが川の上流から下流で高くなる傾向を示し、濃度が極めて低いこと、また国内における同様の事例を踏まえれば、今回の泡の原因は自然に発生した多糖類と推定することが妥当と考えられる。

# 3.7 微量元素の挙動

表 6、表 7 に示したように、微量金属元素は、 渓流水に比べて 2~3 桁の高い濃度となっている。 これは、選鉱製錬の分野で知られる浮遊選鉱の 原理が働き、泡で生じた界面に疎水性の金属類元 素含有物が濃縮したと考えられる。

#### 4. 結論

奥入瀬渓流で泡が発生した 22 年度の湖水の水質はこれまでと異なった変動をしており、また泡から糖類が検出され、70%以上が分子量 20 万以上の多糖類であることから、自然に発生した糖類が原因と推定された。

#### 文 献

1)デーリー東北,2010年7月13日

2)日本薬学会編:衛生試験法・注解 2005. 金原出版,東京,2005

3)三上一ほか:堤川水系における泡の発生機構解析(I)—水質特性—. 青森県環境保健センター研究報告,4,72-80,1993

4)三上一ほか:堤川水系における泡の発生機構解析(II)—泡の構成成分—. 青森県環境保健センター研究報告,**9**,31-35,1998

5)青森県·秋田県: 平成22年度公共用水域水質調査結果.

6)秋田県鹿角郡小坂町鉛山 住民からの私信.

7)藤村茂夫ほか:四万十川あわ発生機構解析調査 結果. 高知県環境研究センター所報,**16**,15-57,1999 8)国土交通省近畿地方整備局のウェブサイト資料 による。

http://www.kkr.mlit.go.jp/yodoto/pdf/tounoshima/2kai/siryo1 2.pdf (2011年5月6日現在アクセス可能)

9)世取山守ほか:中禅寺湖のアワ発生機構(1)ア ワ成分とその起源についての検討.水質汚濁研 究,**10**,31-38,1987 10)小山次朗ほか: 中禅寺湖の湖水中糖類の起源 - アワ発生に関連して-水質汚濁研究,12, 353-357,1989

#### Discussion on the Cause of Foam in the Oirase River

Ryuji Hanaishi, Naofumi Nozawa, Kaori Kudo, Teruo Saito

Because foaming was observed in July 2010 in the Oirase River, which flows out of Lake Towada, samples of river water and foam were collected and analyzed. No methylene blue-active substances were detected in the river water and the concentrations of total phosphorus, iron and aluminum were not high compared to lake water. Saccharides were detected in some samples of river water and were found at high concentrations in foam. After fractional separation by molecular weight using ultrafiltration method, it was found that over 70% of the saccharides were polysaccharides. The water quality of Lake Towada for fiscal 2010 showed a different trend compared to previous years. Taking cases of foaming in other rivers and lakes in Japan into consideration, the cause of foaming is presumed to be naturally occurring saccharides.

Key words: Oirase-River, foam, polysaccharide

# II / - ト

# 県内で散発分離されたカンピロバクター属菌の PFGE 法等による解析検討

武沼浩子 大川郁子 野呂キョウ 三上稔之

青森県内における細菌性下痢症の動向を把握するため、10 か所の細菌検査施設が分離した3 菌種(サルモネラ、腸炎ビブリオ、カンピロバクター)の検出状況を週単位で収集している。このうち、カンピロバクター属菌が最も多く、月別では8月が最も多かった。性別では男性が多く、年齢別では30歳以下が多い傾向にあった。地域別では弘前地域が最も多かった。2010年に収集した散発事例のカンピロバクター122株についてパルスフィールドゲル電気泳動を行った結果、異なる2地域から遺伝子パターンが一致する例が認められた。血清型別が同一であった菌株からは2種類の遺伝子パターンが確認された。

Key words: Campylobacter, drug susceptibility testing, PFGE

#### 1. はじめに

カンピロバクター感染症の主症状は下痢、腹痛、 発熱、悪心、嘔吐などを伴う腸炎であり、感染は 少量菌でも成立し発症には 2~5 日の潜伏期間を 要する。ヒトの下痢症から分離される菌種には、 Campylobacter jejuni (以下C.jejuni) 、Campylobacter coli (以下C. coli)、Campylobacter fetus (以下C. fetus) があるが原因菌の多くはC.jejuniである。カンピロ バクター属菌は、国内の食中毒原因菌として最も 発生件数が多く(図 1、2)、青森県の 2009 年から 2011 年までの食中毒事件においても、2010 年が 19事件中4例、2011年が14事件中5例と細菌性 食中毒事例の中で最も多い原因病原体であった 2) (図2)。環境保健センターにおいて10か所の医療 機関及び民間臨床検査センターから収集した散発 カンピロバクターの年別検出数は、2006年(594株) が最も多く、次いで、2005年(560株)、2004年(545 株) であり、年々増加傾向にあり、2010年は534 株であった。今回、収集した散発カンピロバクタ 一属菌 141 株について菌の特性の有無を調べるた めPFGE (pulsed-field gel electrophoresis) 法及び薬 剤感受性試験、血清型別試験を行い検討したので 報告する。

#### 2. 方法

# 2.1 定点機関からの病原体検出情報

医療機関及び民間臨床検査センターのうち地域

別 10 か所の定点機関から週単位で主な細菌性下 痢症の分離情報を収集した。

#### 2.2 PFGE 法による遺伝子解析

2010 年に収集したカンピロバクター分離菌 122 株について PFGE を行った。制限酵素は Sma I を用い,プラグ用アガロースは 1 % Seakem Gold Agarose、PFGE 装置は Bio-Rad 社 CHEFF DRIII,泳動条件は 6.0V、 $6.76\sim35.38$  sec、18 hr、buffer  $0.5\times$ TBE、バッファー温度は 14°Cにより実施した。

#### 2.3 薬剤感受性試験

2010 年に収集したカンピロバクター分離菌 122 株のうち 114 株について薬剤感受性試験を行った。MIC はシスメックス・ビオメリュー社製 E テストにより、 $42^{\circ}$ C、72 時間でミュラーヒントン+5%血液寒天培地を用い測定した。薬剤はマクロライド系であるエリスロマイシン(EM)、テトラサイクリン(TC)、アミカシン(AK)、キノロン系であるナリジキス酸(NA)、ホスホマイシン(FM)、ニューキノロン系薬剤であるレボフロキサシン(LE)を使用した。

# 2.4 Penner の血清型別試験

菌株を感作血球調整試薬(デンカ生研)で処理 し、カンピロバクター免疫血清(デンカ生研)を 使用した。

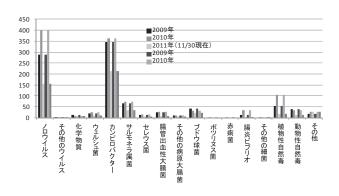


図1 全国食中毒発生数(統計データ:厚生労働省)

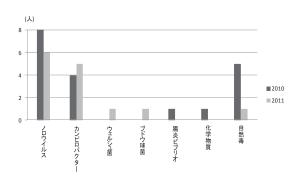


図2 青森県食中毒発生数(統計データ:厚生労働省)

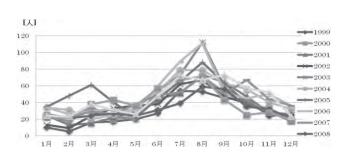


図3 カンピロバクター属菌の月別年次推移

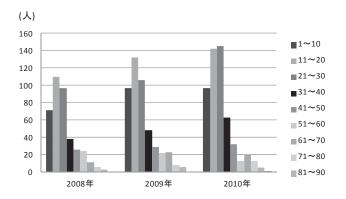


図 4 カンピロバクター属菌の年齢別構成(2008-2010年)

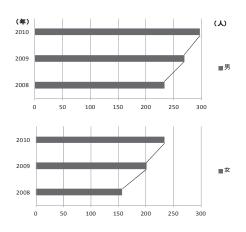


図 5 カンピロバクター属菌の性別比

#### 3. 結果及び考察

2008 年から 2010 年までの食中毒起因菌サルモネラ、腸炎ビブリオ、カンピロバクターの検出数推移(患者発生状況)では、常にカンピロバクター属菌が最も多い検出数であった。カンピロバクター属菌の年齢別では、2008 年、2009 年が 11~20 歳で最も多く、2010 年は 21~30 歳次いで 11~20 歳が最も多い人数であった。このように近年の好発年齢は常に 30 歳代以下、性別では男性に多い傾向にあった (図 4、5)。青森県が報告している食中毒の詳細情報からカンピロバクターは不明 1 例を除いては飲食店で提供された食品による食中毒であることが明らかとなっている 50。

県内で発生したカンピロバクター食中毒は1月、3月、8月、9月に $1\sim2$ 件(患者数では1事件あたり $2\sim9$ 人)の発生がみられているが、当所が収集している情報では毎年8月に最も多い検出数となっている(図3)。地域別では弘前地域が最も多い分離数であった(図6)。

C.jejuni 122 株のうち地域及び血清型を考慮して 57 分離株についてPFGEを行った結果を図 7、図 8、図 9、図 10 に示した。図には遺伝子泳動パターンが一致したレーンにa、b、c、d、e、fグループとして示した。図 7のレーンNo3 (8/19,K市)とレーンNo10 (8/23,H市)が同じ遺伝子泳動パターンで、aグループとした。レーンNo11 (8/23,K市)とレーンNo12 (9/24/,H市)が同じ泳動パターンでbグループとした。レーンNo13 (8/24,K市)とレーンNo15 (10/1,H市)が同じ泳動パターンでcグループとした。図 9のレーンNo38 (9/7,H市)、No43 (9/9,H市)、No48 (9/13,H市)の3株は遺伝子泳動パターンが一致し、fグループとした。

図 10 に示したPFGEでは、血清型がC型である 9

表 1 薬剤感受性試験結果 (C. je juni と C. coli)

|      |               |       |       |       |       |       | MIC(μg | /ml)  |      |      |      |     |      |   |     |
|------|---------------|-------|-------|-------|-------|-------|--------|-------|------|------|------|-----|------|---|-----|
|      |               | 0.016 | 0.023 | 0.032 | 0.047 | 0.064 | 0.094  | 0.125 | 0.19 | 0.25 | 0.38 | 0.5 | 0.75 | 1 | 1.5 |
| EM   | C.jejuni(114) | -     | -     | _     | 7     | 3     | 5      | 24    | 23   | 23   | 13   | 10  | 5    | 1 | _   |
| ⊏IVI | C.coli(15)    | -     | -     | -     | _     | -     | -      | 2     | 1    | 2    | 2    | _   | 1    | 3 | -   |
| TO   | C.jejuni(114) | -     | 1     | 6     | 17    | 16    | 23     | 16    | 4    | 2    | 1    | _   | -    | - | _   |
| TC   | C.coli(15)    | _     | _     | _     | _     | _     | 1      | 1     | 1    | _    | _    | _   | 1    | _ | 1   |

|      |               |   |   |   |   |    | MIC(μg | /ml) |    |    |    |    |     |     |      |
|------|---------------|---|---|---|---|----|--------|------|----|----|----|----|-----|-----|------|
|      |               | 3 | 4 | 6 | 8 | 12 | 16     | 24   | 32 | 48 | 64 | 96 | 128 | 192 | >256 |
| EM   | C.jejuni(114) | _ | - | - | _ | -  | -      | -    | -  | -  | -  | _  | -   | _   | -    |
| LIVI | C.coli(15)    | _ | - | - | _ | -  | _      | -    | -  | -  | -  | _  | -   | _   | 4    |
| TC   | C.jejuni(114) | _ | - | - | _ | 1  | -      | 2    | 3  | -  | 2  | 1  | 1   | 1   | 17   |
| 10   | C.coli (15)   | _ | _ | 1 | _ | _  | 2      | _    | 2  | _  | _  | _  | _   | _   | 5    |

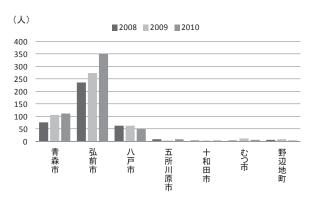


図6 カンピロバクター属菌の地域別検出数

# 表 2 PFGE 泳動遺伝子パターンの一致菌株

| レーンNo | タイプ | 検体搬入年月日  | 性別 | 年齢 | 地域 | 血清型 | EM | TC |
|-------|-----|----------|----|----|----|-----|----|----|
| 3     | а   | H22.8.19 | 女  | 56 | K市 | O型  | S  | S  |
| 10    | а   | H22.8.23 | 男  | 39 | Η市 | UT  | S  | S  |
| 11    | b   | H22.8.23 | 女  | 62 | K市 | UT  | S  | S  |
| 12    | b   | H22.9.24 | 男  | 54 | H市 | A型  | S  | S  |
| 13    | С   | H22.8.24 | 男  | 18 | K市 | UT  | S  | R  |
| 15    | С   | H22.10.1 | 男  | 5  | H市 | D型  | S  | R  |
| 20    | d   | H22.8.25 | 男  | 37 | K市 | C型  | S  | S  |
| 22    | d   | H22.8.25 | 男  | 22 | H市 | UT  | S  | S  |
| 49    | d   | H22.7.3  | 男  | 55 | H市 | C型  | S  | S  |
| 51    | d   | H22.7.6  | 男  | 30 | H市 | C型  | S  | S  |
| 52    | d   | H22.7.6  | 男  | 33 | K市 | C型  | S  | S  |
| 57    | d   | H22.7.26 | 女  | 19 | H市 | C型  | S  | R  |
| 50    | е   | H22.7.5  | 男  | 75 | K市 | C型  | S  | S  |
| 53    | е   | H22.7.7  | 女  | 19 | H市 | C型  | S  | S  |
| 54    | е   | H22.7.7  | 女  | 18 | K市 | C型  | S  | S  |
| 55    | е   | H22.7.7  | 女  | 90 | H市 | C型  | S  | S  |
| 56    | е   | H22.7.9  | 女  | 50 | K市 | C型  | S  | S  |
| 38    | f   | H22.9.7  | 男  | 14 | H市 | UT  | S  | S  |
| 43    | f   | H22.9.9  | 女  | 46 | H市 | UT  | S  | S  |
| 48    | f   | H22.9.13 | 男  | 48 | H市 | UT  | S  | S  |

 $a \quad b \quad b \quad c$ 

M 17 18 19 20 21 22 23 24 25 26 27 28 29 30 31 32 M

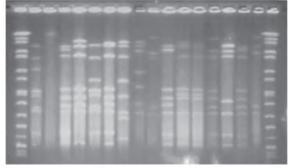


図7 C. je juni PFGE 像  $\mathsf{M} \quad 33 \quad 34 \quad 35 \quad 36 \quad 37 \quad 38 \quad 39 \quad 40 \quad 41 \quad 42 \quad 43 \quad 44 \quad 45 \quad 46 \quad 47 \quad 48 \quad \mathsf{M}$ 

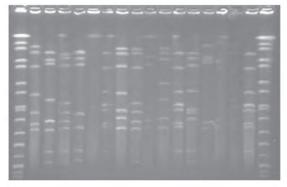


図 9 C. je juni PFGE 像

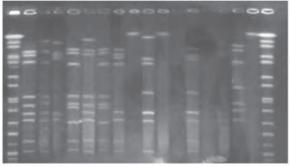


図8 C. je juni PFGE像  $e \quad d \quad d \quad e \quad e \quad e \quad d$ 50 51 52 53 54 55 56 57 M

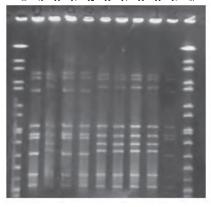


図 10 C. je juni 血清 C型の PFGE 像

株において 2 つの異なるdグループ、eグループの遺伝子泳動パターンが確認され、レーンNo50 (7/5,K 市)、No53 (7/7,H 市)、No54 (7/7,K 市)、No55 (7/7,H市)、No56 (7/9,K市)をeグループとした。

図 8 のレーンのNo20(7/3,K市)、No22(8/25,H市)、図 10 のレーンNo49(7/3,H市)、No51(7/6,H市)、No52(7/6,K市)、No57(7/26,H市)の 6 株はdグループとして、同じ遺伝子泳動パターンであることが確認された。

これらの結果から、血清型が同一であるK市、H 市において数か所の医療機関から散発的に検出された下痢症患者の菌株はdグループとeグループに 分類され複数株が確認された。

薬剤感受性試験は表 1 に示したとおりカンピロバクターの第一選択剤であるエリスロマイシンの MICは 114 株すべてが 8  $\mu$ g/mlを下回っていた。テトラサイクリンについては、C.jejuniが 24 %(27 /114)、C.coliでは 60 %(9/15)においてMICが 16  $\mu$ g/ml以上であった。

遺伝子パターンの一致した菌株における薬剤感 受性に関する結果は、レーンNo12 がNA、No.13 がTC、NAに、レーンNo.15 がTCに耐性であった。

血清型別試験では 122 株のうち最も多い型がC型の11 株であり、次いでD型が5株、F型、Y型が4株、型別不明(UT)が71株であった。型別不明株についてはLior法等を使用した方法により検討する必要があると思われた。

表 2 に遺伝子泳動パターンが一致した性別、年齢、地域別、血清型別、薬剤感受性結果を示した。 遺伝子泳動パターンが一致した複数のグループは 同じ原因物質である可能性が高いことが判明した が、その感染源や感染経路については詳細な疫学 調査が必要と思われた。

#### 4. まとめ

1)2008 年から 2010 年まで当所が収集した食中毒起因菌(サルモネラ、腸炎ビブリオ、カンピロバクター)のうち、カンピロバクター属菌が最も多く、月別では8月が最も多かった。

2)カンピロバクターの患者属性では男性が多く、年齢別では30歳以下が多い傾向にあった。

3)2010年に収集した散発事例のカンピロバクター 122株についてPFGEを行った結果、異なる2地域 からPFGEパターンが一致する例が認められた。

4)血清型別が同一であった菌株PFGEの結果から2種類の遺伝子パターンが確認された。

#### 謝 辞

本稿を終えるにあたりご協力をいただいた,青森県立中央病院,三菱化学メディエンス株式会社 青森医師会ラボ,弘前市医師会検診センター,弘 前市立病院,八戸市医師会臨床検査センター,八 戸市立市民病院,十和田市中央病院,むつ総合病院,五所川原市立西北中央病院,公立野辺地病院の細菌検査担当者に深謝いたします。

#### 文 献

- 1)国立感染症研究所感染症情報センター:病原微生物検出情報.27,167-177,2006
- 2)厚生労働省食中毒統計資料: URL: http://www.mhlw.go.jp/topics/syokuchu/
- 4)高山貞男ほか:ヒトの下痢便から分離された Campylobacter jejuniと Campylobacter coli の抗菌 薬感受性,感染症学雑誌,**79**,169-175,第 3 号
- 5)青森県の食中毒発生状況 : URL: http://www.pref.aomori.lg.jp/life/shoku/20shokuchudoku.html

# アレルギー物質(卵、乳、小麦、そば、落花生)の検査結果 - 平成 19 年度から平成 23 年度まで-

楢山宝孝 木村淳子 工藤志保 増田幸保

平成 19 年度から平成 23 年度までに県内に流通する加工食品を対象としてアレルギー物質(卵、乳、小麦、そば、落花生)の検査を行った結果、特定原材料の表示が無く、スクリーニング試験による結果が 10 μg/gを超えたものは、卵 34 検体中 4 検体、乳 34 検体中 1 検体、小麦 45 検体中 2 検体であった。そのうち、卵 1 検体、乳 1 検体、小麦 2 検体について確認試験を行った結果、卵については陽性、乳については陰性、小麦については 2 検体とも陽性であった。

Key words: food allergy, ELISA, PCR, western blotting

#### 1. はじめに

食物アレルギー患者の増加に伴い、アレルギー物質を含む食品に起因する健康被害を未然に防止するため、厚生労働省は平成13年4月から小麦、そば、卵、乳及び落花生の5品目を特定原材料として全ての流通段階での表示を義務付けた。また、通知で定める特定原材料に準ずる20品目については表示を推奨した1,2)。平成20年6月には省令が改正され、えび、かにの2品目が新たに特定原材料となり、これまでの推奨表示品目から義務表示となった。それに伴い、推奨表示品目は20品目から18品目となった3)。

検査方法については、平成 14 年 11 月の通知以降(以下通知検査法)、数回改正されている <sup>4-6</sup>。 当所では、青森県食品衛生監視指導計画に基づき、平成 19 年度から県内に流通される加工食品の

アレルギー物質の検査を行ってきた。今回、平成19年度から平成23年度に行った卵、乳、小麦、そば及び落花生に係る収去検査の結果について報告する。

# 2. 方法

#### 2.1 検体

県内に流通されている収去した加工食品として、平成19年度は41検体、平成20年度は39検体、平成21年度は36検体、平成22年度は40検

体、平成 23 年度は 37 検体。

#### 2.2 検査項目

卵、乳、小麦、そば、落花生

#### 2.3 試薬

#### (1)スクリーニング試験(以下ELISA法)

㈱森永生科学研究所 モリナガFASPEK特定原 材料測定キット(卵白アルブミン、カゼイン、小 麦グリアジン、そば、落花生)(以下Mキット)

日本ハム㈱ FASTKITエライザVer. II シリーズ (卵、牛乳、小麦、そば、落花生) (以下Nキット)

#### (2) 卵の確認試験(ウエスタンブロット法)

#### (3)乳の確認試験(ウエスタンブロット法)

㈱森永生科学研究所 乳ウエスタンブロットキット・カゼイン及びβ-ラクトグロブリン

# (4) 小麦の確認試験 (PCR法)

(株QIAGEN製Genomic-Tip 20/G、オリエンタル酵母工業㈱アレルゲンチェッカー®小麦

# 2.4 検査方法

ELISA法及び確認試験は、通知検査法に従って行った。

#### 3. 結果及び考察

平成19年度から平成23年度までの検査結果を表1~表5に示した。

表1 平成19年度アレルギー物質検査結果

表2 平成20年度アレルギー物質検査結果

| No.      | 検査<br>項目 | 試料               | 表示**1   | ELISA法 Mキット  | (μg/g) <sup>※2</sup><br>Nキット | 確認 <sup>※3</sup><br>試験 | No.        | 検査<br>項目 | 試料                     | 表示   |
|----------|----------|------------------|---------|--------------|------------------------------|------------------------|------------|----------|------------------------|------|
| 1        | 卵        | 煎餅               |         | <0.3         | 0.9                          | -                      | 1          | 戼        | リンゴゼリー                 |      |
| 2        |          | ブルーベリー           |         | <0.2         | <0.2                         |                        | 2          |          | かりんとう                  |      |
|          |          | ようかん             |         | < 0.3        | < 0.3                        | _                      |            |          | くるみ焼き                  |      |
| 3        |          | 焼菓子              |         | < 0.3        | < 0.3                        | -                      | 3          |          | せんべい                   |      |
| 4        |          | 和生菓子             |         | < 0.3        | < 0.3                        | -                      | 4          |          | 白ごま煎餅                  |      |
| 5        |          | 和生菓子             | 0       | 4561         | 10544                        | -                      | 5          | 201      | サブレ                    |      |
| 6        | 乳        | 揚せんべい            |         | < 0.3        | < 0.3                        | -                      | 6          | 乳        | 笹餅                     |      |
| 7        |          | スナック菓子           |         | < 0.3        | < 0.3                        | -                      | 7          |          | ラクガン                   |      |
| 8        |          | 焼菓子              | 0       | < 0.3        | < 0.3                        | -                      | 8          |          | 和生菓子                   |      |
| 9        |          | 半生菓子             |         | 13.6         | 4.1                          | 陰性 <sup>※4</sup>       | 9          | .1 #     | パインゼリー                 |      |
| 10       |          | だんご              |         | < 0.3        | 0.6                          | _                      | 10         | 小麦       | 味付しなたけ                 | C    |
|          |          | (つぶあん)           |         |              |                              |                        | 11         |          | 山菜にしん                  | С    |
| 11       | .1 ==    | せんべい             |         | <0.3         | <0.3                         |                        | 12         |          | しょうゆこんぶ                | C    |
| 12       | 小麦       | フランクフルト          |         | 0.4          | < 0.3                        | -                      | 13         |          | ふきの佃煮                  | С    |
| 13       |          | サラミソーセージ         | 0       | 1.3          | 0.7                          | _                      | 14<br>15   |          | とろしめさば                 |      |
| 14       |          | スモークチキン          |         | < 0.3        | < 0.3                        | - W5                   |            |          | 炙りしめさば<br>鯉の甘露煮        |      |
| 15       |          | 燻製サラミ            |         | 118.9        | 172.9                        | 陽性※5                   | 16<br>17   |          |                        | C    |
| 16       |          | 生ハムロース           |         | <0.3<br><0.3 | <0.3<br><0.3                 | _                      | 18         |          | わかさぎ佃煮<br>いか寿し         | C    |
| 17       |          | 馬肉みそ煮            | 0       |              |                              | - **6                  | 19         |          |                        |      |
| 18       |          | 馬肉くんせい           |         | 65.2         | 52.4                         | 陽性※6                   | 20         | そば       | <u>いかわさび漬</u><br>干しうどん |      |
| 19       |          | フランクフルト<br>ソーセージ | $\circ$ | 11708        | 11812                        | -                      | 21         | -C 14    | 生中華めん                  | С    |
| 20       |          | ウィンナー            |         |              |                              |                        | 22         |          | 生中華めんゆでうどん             | C    |
| 20       |          | ソーセージ            |         | < 0.3        | < 0.3                        | -                      | 23         |          | 中華めん                   |      |
| 21       |          | ポークソーセージ         |         | < 0.3        | 1.2                          | -                      | 24         |          | うどん                    | С    |
| 22       | そば       | スパゲッティ           |         | < 0.3        | < 0.3                        | -                      | 25         |          | 中華めん                   | C    |
| 23       |          | ひやむぎ             |         | 0.8          | 0.8                          | -                      | 26         |          | ゆでうどん                  |      |
| 24       |          | マカロニ             |         | < 0.3        | < 0.3                        | -                      | 27         |          | ゆでうどん                  |      |
| 25       |          | ゆでうどん            |         | 2.3          | 3.3                          | -                      | 28         |          | ゆでうどん                  |      |
| 26       |          | ゆでうどん            |         | < 0.3        | < 0.3                        | -                      | 29         |          | 中華そば                   |      |
| 27       |          | 生うどん             |         | < 0.3        | < 0.3                        | -                      |            | 落花生      | ゴマせんべい                 |      |
| 28       |          | 食パン              |         | < 0.3        | < 0.3                        | -                      | 31         |          | アーモンド                  |      |
| 29       |          | クッキー             |         | < 0.3        | < 0.3                        | -                      |            |          | せんべい                   |      |
| 30       |          | 長いもかりんとう         |         | < 0.3        | < 0.3                        | -                      | 32         |          | ごま煎餅                   | С    |
| 31       |          | 牛蒡めん             |         | 0.5          | 3.5                          | -                      | 33         |          | 栗まんじゅう                 |      |
| 32       |          | ほうれん草うどん         |         | 0.7          | 0.4                          | -                      | 34         |          | ごま煎餅                   | С    |
| 33       |          | アピオスうどん          |         | < 0.3        | < 0.3                        | -                      | 35         |          | ごま煎餅                   |      |
| 34       |          | 生ゆでうどん           |         | < 0.3        | < 0.3                        | -                      | 36         |          | 焼菓子                    |      |
| 35       |          | ゆでうどん            |         | < 0.3        | < 0.3                        | -                      | 37         |          | 焼菓子                    |      |
| 36       |          | なま中華そば           |         | < 0.3        | < 0.3                        | -                      | 38         |          | ごませんべい                 |      |
|          | 落花生      | せんべい             |         | < 0.3        | < 0.3                        | -                      | 39         |          | 天ぷらせんべい                |      |
| 38       |          | ブルーベリー大福         |         | < 0.3        | < 0.3                        | -                      | <b>※</b> 1 | '○       | 'は、特定原材料               | 4の表示 |
| 39       |          | バターケーキ           |         | < 0.3        | < 0.3                        | -                      | <b>※</b> 2 |          | .3' は、0.3 μg/g         |      |
|          |          |                  |         |              |                              |                        |            |          |                        |      |
| 40<br>41 |          | まんじゅう<br>油菓子     |         | <0.3<br><0.3 | <0.3<br><0.3                 | -                      | <b>※</b> 3 |          | については、確                |      |

- (○) は、特定原材料の表示があったものを示す。
- '<0.3' は、0.3 μg/g未満を示す。
- '-'については、確認試験をしなかったことを示す。 **※** 3
- ※4 ウェスタンブロット法による乳の確認試験を行った結果を示す。 ※5.6 PCR法による小麦の確認試験を行った結果を示す。

検査結果の判定については、特定原材料の表示 がなく、2 種類のELISA法による検査のうち、少 なくともどちらか一方で 10 μg/g以上を検出した 場合に、製造記録の確認を行い、記載がない場合 に確認検査を行った。なお、1回目の測定値が、8 ~12 µg/gの範囲内にある場合は、再度同じ調製試 料から 2 回目の測定を行い、1 回目の測定値と 2 回目の測定値の平均値を検査結果とした。

#### 3.1 平成 19 年度

# (1)乳

No.9「半生菓子」について、Mキット、Nキッ トでの測定値がそれぞれ 13.3 μg/g、4.3 μg/g であ

| No. | 検査  | 試料            | + | *1      | ELISA法(<br>Mキット | (μg/g) <sup>*2</sup> | 確認*   |
|-----|-----|---------------|---|---------|-----------------|----------------------|-------|
| NO. | 項目  | 武作            | 表 | 示"      | Mキット            | Nキット                 | 試験    |
| 1   | 到   | リンゴゼリー        |   |         | < 0.3           | < 0.3                | -     |
| 2   |     | かりんとう         |   |         | < 0.3           | 0.8                  | _     |
| 3   |     | くるみ焼き<br>せんべい |   |         | < 0.3           | < 0.3                | _     |
| 4   |     | 白ごま煎餅         |   |         | 185.7           | 254.1                | 陽性**4 |
| 5   |     | サブレ           |   |         | < 0.3           | 0.5                  | 一 一   |
| 6   | 乳   | 笹餅            |   |         | <0.3            | 0.5                  | _     |
| 7   |     | ラクガン          |   |         | < 0.3           | < 0.3                | -     |
| 8   |     | 和生菓子          |   |         | 0.5             | < 0.3                | _     |
| 9   |     | パインゼリー        |   |         | < 0.3           | < 0.3                | -     |
| 10  | 小麦  | 味付しなたけ        |   | 0       | < 0.3           | < 0.3                | -     |
| 11  |     | 山菜にしん         |   | 0       | < 0.3           | < 0.3                | -     |
| 12  |     | しょうゆこんぶ       |   | 0       | 0.4             | < 0.3                | -     |
| 13  |     | ふきの佃煮         |   | 0       | < 0.3           | < 0.3                | -     |
| 14  |     | とろしめさば        |   |         | < 0.3           | < 0.3                | -     |
| 15  |     | 炙りしめさば        |   |         | < 0.3           | < 0.3                | -     |
| 16  |     | 鯉の甘露煮         |   | 0       | 0.4             | < 0.3                | -     |
| 17  |     | わかさぎ佃煮        |   | 0       | 2.7             | 0.4                  | -     |
| 18  |     | いか寿し          |   | 0       | < 0.3           | < 0.3                | -     |
| 19  |     | いかわさび漬        |   |         | < 0.3           | < 0.3                | -     |
| 20  | そば  | 干しうどん         |   |         | < 0.3           | < 0.3                | -     |
| 21  |     | 生中華めん         |   | 0       | < 0.3           | < 0.3                | -     |
| 22  |     | ゆでうどん         |   | $\circ$ | < 0.3           | < 0.3                | -     |
| 23  |     | 中華めん          |   |         | < 0.3           | 0.4                  | -     |
| 24  |     | うどん           |   | 0       | < 0.3           | < 0.3                | -     |
| 25  |     | 中華めん          |   | 0       | 1.0             | 1.6                  | -     |
| 26  |     | ゆでうどん         |   |         | 0.6             | 0.9                  | -     |
| 27  |     | ゆでうどん         |   |         | 0.9             | 1.3                  | -     |
| 28  |     | ゆでうどん         |   |         | 0.4             | 0.6                  | -     |
| 29  |     | 中華そば          |   |         | 0.3             | < 0.3                | _     |
|     | 落花生 |               |   |         | < 0.3           | < 0.3                | -     |
| 31  |     | アーモンド<br>せんべい |   |         | 0.6             | 1.5                  | -     |
| 32  |     | ごま煎餅          |   | 0       | < 0.3           | < 0.3                | -     |
| 33  |     | 栗まんじゅう        |   |         | < 0.3           | < 0.3                | -     |
| 34  |     | ごま煎餅          |   | 0       | < 0.3           | < 0.3                | _     |
| 35  |     | ごま煎餅          |   |         | < 0.3           | < 0.3                | -     |
| 36  |     | 焼菓子           |   |         | < 0.3           | < 0.3                | -     |
| 37  |     | 焼菓子           |   |         | < 0.3           | < 0.3                | -     |
| 38  |     | ごませんべい        |   |         | < 0.3           | < 0.3                | -     |
| 39  |     | 天ぷらせんべい       |   |         | < 0.3           | < 0.3                | _     |

- 示す。
  - をしなかったことを示す。
- る卵の確認試験を行った結果を 示す。

た。両キットで再検査を行い、2回の平均値を求 めたところ、それぞれ  $13.6 \mu g/g$ 、 $4.1 \mu g/g$ であった。 乳の混入が疑われ、ウェスタンブロット法による 確認検査を行ったところ、カゼイン、β-ラクトグ ロブリンともに陰性であった。

#### (2) 小麦

No.15「燻製サラミ」について、Mキット、Nキ ットでの測定値がそれぞれ 118.9 μg/g、172.9 μg/g であった。小麦の混入が疑われ、PCR法による確 認検査を行ったところ、陽性であった。保健所で 調査したところ、製造工程等からの微量混入の可 能性が示唆された。

No.18「馬肉くんせい」について、Mキット、N キットでの測定値がそれぞれ 65.2 μg/g、52.4 μg/g

|      |     | <b>我</b> 3        | 2,0,0   | 1 1000    | 五响水                 |       |
|------|-----|-------------------|---------|-----------|---------------------|-------|
| No.  | 検査  | 試料                | ±=*1    | ELISA法(   | μg/g) <sup>※2</sup> | 確認**3 |
| 110. | 項目  |                   | <b></b> | IVI~ > 1. | Nキット                | 試験    |
| 1    | 卵   | ラクガン              |         | < 0.3     | < 0.3               | -     |
| 2    |     | 練り切り              |         | < 0.3     | < 0.3               | -     |
| 3    |     | フランス食パン           |         | 2.1       | 2.6                 | -     |
| 4    |     | ソフトバター焼           |         | < 0.3     | < 0.3               | _     |
| _    |     | (せんべい)            |         |           |                     |       |
| 5    |     | チーズせんべい           |         | <0.3      | <0.3                | -     |
| 6    |     | 洋菓子               |         | <0.3      | <0.3                | -     |
| 7    |     | 蒟蒻                |         | <0.3      | < 0.3               | _     |
| - 8  |     | 最中                |         | <0.3      | <0.3                | -     |
| 9    | 乳   | ラクガン              |         | <0.3      | <0.3                | _     |
| 10   |     | 練り切り              |         | <0.3      | <0.3                | _     |
| 11   |     | おにぎり (梅)          |         | <0.3      | < 0.3               | -     |
| 12   |     | つゆせんべい            |         | < 0.3     | < 0.3               | -     |
| 13   |     | 梅せんべい             |         | 0.8       | < 0.3               | -     |
| 14   |     | 切干し大根             |         | < 0.3     | < 0.3               | -     |
| 15   |     | 油菓子               |         | < 0.3     | < 0.3               | -     |
| 16   |     | 最中                |         | < 0.3     | < 0.3               | -     |
| 17   | 小麦  | ぼたんちくわ            |         | 5.9       | 8.4                 | -     |
| 18   |     | 練り切り              |         | 0.4       | 0.9                 | -     |
| 19   |     | 豆こごり              |         | < 0.3     | < 0.3               | -     |
| 20   |     | りんごソース            |         | < 0.3     | < 0.3               | -     |
| 21   | そば  | ゆでうどん             |         | 0.6       | 0.4                 | -     |
| 22   |     | 中華そば              |         | 0.7       | 0.3                 | -     |
| 23   |     | なまうどん             |         | < 0.3     | < 0.3               | -     |
| 24   |     | ゆでうどん             |         | < 0.3     | < 0.3               | -     |
| 25   |     | ゆでうどん             |         | < 0.3     | < 0.3               | -     |
| 26   |     | ゆでうどん             |         | < 0.3     | < 0.3               | -     |
| 27   |     | ゆでめん              |         | < 0.3     | < 0.3               | -     |
| 28   |     | むし中華そば            |         | 0.3       | 0.4                 | -     |
| 29   | 落花生 | : 手焼きせんべい<br>(胡麻) |         | < 0.3     | < 0.3               | -     |
| 30   |     | 食パン               |         | < 0.3     | < 0.3               | -     |
| 31   |     | せんべい (みみ)         |         | < 0.3     | < 0.3               | -     |
| 32   |     | つゆせんべい            |         | 3.3       | 4.5                 | -     |
| 33   |     | ごませんべい            |         | < 0.3     | < 0.3               | -     |
| 34   |     | ごませんべい            |         | < 0.3     | 0.4                 | -     |
| 35   |     | せんべい (みみ)         |         | < 0.3     | < 0.3               | -     |
| 36   |     | フライボール            |         | < 0.3     | < 0.3               | _     |
|      |     | (油菓子)             |         | ~0.5      | <b>~0.</b> 3        |       |

※1 '○'は、特定原材料の表示があったものを示す。

※2 '<0.3'は、0.3 μg/g未満を示す。

※3 '-' については、確認試験をしなかったことを示す。

であった。小麦の混入が疑われ、PCR法による確認検査を行ったところ、陽性であった。保健所で調査したところ、調味液の原材料の一部に小麦が含まれていた。

#### 3.2 平成20年度

#### (1) 卵

No.4「白ごま煎餅」について、Mキット、Nキットでの測定値がそれぞれ 185.7 µg/g、254.1 µg/g であった。卵の混入が疑われ、ウェスタンブロット法による確認検査を行ったところ、卵白アルブミン、オボムコイドともに陽性であった。保健所で調査したところ、製造工程等からの微量混入の可能性が示唆された。

#### 3.3 平成21年度

# (1) 小麦

No.17「ぼたんちくわ」について、M キット、N キットでの測定値がそれぞれ  $5.9 \mu g/g$ 、 $11.6 \mu g/g$ 

|          |               | 衣4 十八人24年月          |                  |                 |                             |                        |
|----------|---------------|---------------------|------------------|-----------------|-----------------------------|------------------------|
| No.      | 検査<br>項目      | 試料                  | 表示**1            | ELISA法(<br>Mキット | μg/g) <sup>※2</sup><br>Nキット | 確認 <sup>※3</sup><br>試験 |
| 1        | 卵             | ラスク                 |                  | 37.7            | 31.5                        | <u>一</u>               |
| 2        | <i>&gt;</i> 1 | レーズンクッキー            | 0                | >20             | >20                         | _                      |
| 3        |               | くるみゆべし              |                  | < 0.3           | < 0.3                       | _                      |
| 4        |               | せんべい                |                  | < 0.3           | <0.3                        | _                      |
| 5        |               | 煎餅                  |                  | < 0.3           | 0.7                         | _                      |
| 6        |               | 食パン                 |                  | 0.3             | 0.4                         | _                      |
| 7        |               | えびフライ               |                  | 5887            | 6576                        | _                      |
| 8        |               | ぎょうざの皮              |                  | 0.4             | 0.6                         | -                      |
| 9        | 乳             | せんべい                |                  | < 0.3           | < 0.3                       | -                      |
| 10       |               | ゴマクッキー              | 0                | >20             | >20                         | -                      |
| 11       |               | 麦まんじゅう              |                  | < 0.3           | < 0.3                       | -                      |
| 12       |               | せんべい (みみ)           |                  | < 0.3           | < 0.3                       | -                      |
| 13       |               | せんべい                |                  | < 0.3           | < 0.3                       | -                      |
| 14       |               | 最中                  |                  | < 0.3           | < 0.3                       | -                      |
| 15       |               | 焼き菓子                |                  | < 0.3           | < 0.3                       | -                      |
| 16       |               | どら焼き                |                  | 1.9             | 2.0                         | -                      |
| 17       | 小麦            | 帆立といかの<br>大根サラダ     | 0                | >20             | >20                         | -                      |
| 18       |               | きりぼし大根              |                  | < 0.3           | < 0.3                       | _                      |
| 19       |               | おはぎ                 |                  | < 0.3           | < 0.3                       | _                      |
| 20       |               | カステラ                | 0                | >20             | >20                         | -                      |
| 21       |               | バナナ最中               |                  | 0.4             | < 0.3                       | -                      |
| 22       |               | 焼竹輪                 |                  | < 0.3           | < 0.3                       | -                      |
| 23       |               | しめさば                |                  | < 0.3           | < 0.3                       | -                      |
| 24       |               | ぼたんちくわ              | 0                | >20             | >20                         | -                      |
| 25       | そば            | 生めん                 |                  | < 0.3           | < 0.3                       | -                      |
| 26       |               | うどん                 |                  | < 0.3           | < 0.3                       | -                      |
| 27       |               | なまうどん               |                  | < 0.3           | 0.4                         | -                      |
| 28       |               | ゆでうどん               |                  | < 0.3           | < 0.3                       | -                      |
| 29       |               | ゆでめん                |                  | 3.2             | 2.7                         | -                      |
| 30       |               | なまラーメン              |                  | 6.7             | 7.2                         | -                      |
| 31       |               | うどん                 |                  | 2.9             | 1.6                         | -                      |
| 32       | -111111       | ゆでうどん               |                  | <0.3            | <0.3                        | -                      |
|          | 洛花生           | 胡麻せんべい              |                  | 0.4             | <0.3                        | -                      |
| 34       |               | 煎餅                  |                  | 0.4             | <0.3                        | -                      |
| 35       |               | せんべい(みみ)            |                  | <0.3            | <0.3                        | -                      |
| 36       |               | うすごませんべい            |                  | 3.0             | 1.6                         | -                      |
| 37       |               | ごま煎餅                |                  | 0.5             | <0.3                        | _                      |
| 38       |               | サブレ                 |                  | <0.3            | <0.3                        | -                      |
| 39       |               | ごませんべい              | - ×4             | <0.3            | <0.3                        | -                      |
| 40<br>※1 | , -           | ごませんべい<br>'は、特定原材料の | O <sup>**4</sup> | 6.4             | 7.1                         | -                      |

※1 '○'は、特定原材料の表示があったものを示す。

※2 '<0.3' は、0.3 μg/g未満を示す。

※3 '-' については、確認試験をしなかったことを示す。

※4 「本品製造工場は、卵、乳、小麦、そば、えび、落花生を含む製品を製造しております。」との注意喚起の記載あり。

であった。Nキットで再検査を行い、2回の平均値 を求めたところ、8.4 μg/gであった。

#### 3.4 平成22年度

## (1)卵

No.1「ラスク」について、Mキット、Nキットでの測定値がそれぞれ 37.7 μg/g、31.5 μg/gであった。卵の混入が疑われ、保健所で調査したところ、原因を断定するまでには至らなかったが、製造工程からの微量混入の可能性、卵が使用されたパンの誤使用の可能性が示唆された。

No.7「えびフライ」について、Mキット、Nキットでの測定値がそれぞれ  $5887 \mu g/g$ 、 $6576 \mu g/g$  であった。卵の混入が疑われ、保健所で調査したところ、卵の使用が認められた。

表5 平成23年度アレルギー物質検査結果

|     |    | 衣3 千成23年8      | とアレルヤー初貝快!    |                     |       |
|-----|----|----------------|---------------|---------------------|-------|
| No. | 検査 | 試料             | 表示**1 ELISA法( | μg/g) <sup>*2</sup> | 確認**3 |
| NO. | 項目 |                | Mキット          | Nキット                | 試験    |
| 1   | 卵  | バターせんべい        | < 0.3         | < 0.3               | -     |
| 2   |    | ゆでうどん          | < 0.3         | < 0.3               | -     |
| 3   |    | ゆで焼きそば         | 3.7           | 3.7                 | -     |
| 4   |    | かりん糖           | < 0.3         | 1.2                 | -     |
| 5   |    | つゆせんべい         | < 0.3         | 0.3                 | -     |
| 6   |    | カニクリーム<br>コロッケ | < 0.3         | < 0.3               | -     |
| 7   |    | 麦まんじゅう         | >200          | >200                | -     |
| 8   |    | 餡入りらくがん        | 0.7           | 0.3                 | -     |
| 9   | 乳  | ほたてせんべい        | ○ <0.3        | < 0.3               | -     |
| 10  |    | 生菓子            | < 0.3         | < 0.3               | -     |
| 11  |    | 洋菓子            | < 0.3         | < 0.3               | -     |
| 12  |    | きなこねじり         | < 0.3         | 0.4                 | -     |
| 13  |    | せんべい (まめ)      | < 0.3         | < 0.3               | -     |
| 14  |    | どら焼き           | < 0.3         | < 0.3               | -     |
| 15  |    | くるみゆべし         | < 0.3         | < 0.3               | -     |
| 16  |    | ゆべしもち          | < 0.3         | < 0.3               | _     |
|     |    | (胡麻くるみ)        |               | <0.5                |       |
| 17  | 小麦 | 絹ごし豆腐          | < 0.3         | < 0.3               | -     |
| 18  |    | 板こんにゃく         | < 0.3         | < 0.3               | -     |
| 19  |    | 大学いも           | < 0.3         | < 0.3               | -     |
| 20  |    | 米菓子            | 1.1           | 1.0                 | -     |
| 21  |    | イチゴ大福          | < 0.3         | < 0.3               | -     |
| 22  |    | チョコ            | < 0.3         | < 0.3               | -     |
| 23  |    | コーヒーゼリー        | < 0.3         | < 0.3               | -     |
| 24  |    | 水羊羹            | 0.6           | 1.6                 | -     |
| 25  |    | ところてん          | < 0.3         | < 0.3               | -     |
| 26  |    | 干しもち           | < 0.3         | < 0.3               | -     |
| 27  |    | 和菓子            | 3.8           | 3.3                 | -     |
| 28  |    | 練り切り           | 0.8           | 0.4                 | -     |
| 29  |    | もち菓子           | 0.5           | 0.4                 | -     |
| 30  | そば | ゆでうどん          | < 0.3         | < 0.3               | -     |
| 31  |    | ゆでうどん          | 2.3           | 3.1                 | -     |
| 32  |    | なまめん           | 1.4           | 1.0                 | -     |
| 33  |    | ゆでうどん          | < 0.3         | < 0.3               | -     |
| 34  |    | 生中華めん          | < 0.3         | 0.4                 | -     |
| 35  |    | ゆでうどん          | 1.7           | 2.4                 | -     |
| 36  |    | ゆでうどん          | < 0.3         | < 0.3               | _     |
| 37  |    | うどん            | 0.6           | 2.0                 | -     |

※1 '○'は、特定原材料の表示があったものを示す。

※2 '<0.3' は、0.3 μg/g未満を示す。

'>200' は、200 μg/g以上を示す。

※3 '-' については、確認試験をしなかったことを示す。

#### (2) そば

No.30「なまラーメン」について、Mキット、Nキットでの測定値がそれぞれ 7.5  $\mu$ g/g、7.5  $\mu$ g/gであった。再検査を行い、2回の平均値を求めたところ、それぞれ 6.7  $\mu$ g/g、7.2  $\mu$ g/gであった。

# 3.5 平成 23 年度

#### (1) 卵

No.7「麦まんじゅう」について、両キットで測

定値が 200 μg/gを越え、卵の混入が疑われた。保健所で調査したところ、焼成前に製品表面に卵白を使用していた。

#### 4. まとめ

平成19年度から平成23年度までに県内に流通する加工品を対象として、アレルギー物質(卵、乳、小麦、そば、落花生)の検査を行った結果は以下のとおりであった。

- 2)そのうち、卵1検体、乳1検体、小麦2検体について確認試験を行った結果、卵については陽性、乳については陰性、小麦については2検体とも陽性であった。

#### 文 献

1)厚生労働省:食品衛生法施行規則及び乳及び乳 製品の成分規格等に関する省令の一部を改正する 省令の施行について 食発第79号 平成13年3月 15日

2)厚生労働省:アレルギー物質を含む食品に関する表示について 食監発第46号 食企発第2号 平成13年3月21日

4)厚生労働省:アレルギー物質を含む食品の検査 方法について 食発第 1106001 号 平成 14 年 11 月 6 日

5)厚生労働省:「アレルギー物質を含む食品の検査 方法について」の一部改正について 食安発第 0122001 号 平成21年1月22日

6)消費者庁:アレルギー物質を含む食品の検査方 法について 消食表第286号 平成22年9月10日

# 食品苦情事例 (平成 22 年度)

木村淳子 山本明美 櫻庭麻恵1 楢山宝孝 増田幸保

平成22年度に発生した化学物質・自然毒によると推測された食中毒事件4事例について原因検索を行ったので報告する。原因食品としてさば味噌煮、マグロ刺身、えびフライを各々摂食しアレルギー様症状を呈したヒスタミン中毒(疑を含む)事例3件、フグ卵巣を喫食し呼吸困難、全身麻痺症状を呈したフグ中毒事例1件について報告する。

Key words: foreign substance, histamine, globefish poisoning, tetrodotoxin

#### 1. はじめに

平成 22 年度に青森県内で発生した化学物質によると疑われる食中毒発生事例について報告する。食後アレルギー症状が現れ保健所に届出され、聞き取り調査の結果ヒスタミン食中毒が疑われ、原因と推測される食品のヒスタミン含有量検査を行った3事例及び塩漬けしたフグ卵巣を食べて呼吸困難、全身麻痺症状を呈したフグ中毒1事例についてフグ毒検査を行ったので報告する。

#### 2. ヒスタミンが原因と疑われる食中毒

#### 2.1事例1

# (1)事件の概要

平成22年6月23日、さば味噌煮缶詰を喫食したところ、15分後に背中、両腕にかゆみを訴え、その後、全身に発疹の症状を示したため医療機関を受診し、診察した医師から上十三保健所に届出があった。喫食調査によりさば味噌煮缶詰を原因とするヒスタミン中毒を疑い保健所から当所にヒスタミンを含む化学物質の原因究明のための検査依頼があった。アレルギー様食中毒ではヒスタミンを原因とすることが知られているがヒスタミンの摂取量が100 mg/100 g程度であっても食中毒様症状を示すのはカダベリンなどアミン類の共存が一因とされている「し、そこでヒスタミン以外の不揮発性腐敗アミン類のプトレシン、カダベリン、チラミン、スペルミジンについても同時に分析を

#### 1 弘前環境管理事務所

#### 行った。

# (2)方法

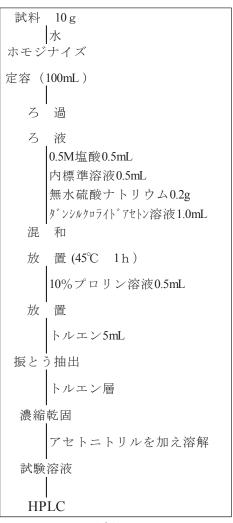


図1 分析フロー

#### ア 試料

患者の喫食したさば味噌煮缶詰の残食及び同一 ロット品のさば味噌煮缶詰2検体

#### イ 試験方法

図1に示すように試料の前処理を行い試験溶液 についてHPLCによる定量を行った<sup>1)</sup>。

#### (3) 結果及び考察

ヒスタミンの含量はさば味噌煮缶詰の残品が 1.1 mg/100 gであり当該品同一ロット品 2 検体は どちらも 0.9 mg/100 gであった。また不揮発性腐 敗アミン類は検出されなかった。登田ら<sup>2)</sup> は食中毒を引き起こす食品中のヒスタミン濃度を検討した結果、中毒症状と食品中のヒスタミン濃度の関係について、5 mg/100 g以下は安全域であるとしており、また我が国では食品中のヒスタミン濃度が 10~20 mg/100 gを超える場合に食中毒が誘発される可能性が生じると考えられるとしている。このことから今回の事例は食品中のヒスタミン濃度が発症に達していないことを確認した。

# 2.2 事例 2

#### (1)事件の概要

平成22年7月18日八戸保健所管内でマグロ刺身を購入し喫食した家族4名中3名が喫食時に舌のしびれ、喉の腫れ、かゆみ、頭痛、発赤、嘔吐等の症状を訴えた。しかし、喫食当日で回復したため医療機関受診はしなかったものの患者家族から保健所に連絡がありヒスタミン中毒を疑い当所に原因究明の依頼をした。

# (2)方法

#### ア 試料

まぐろ刺身(苦情品の残品)2検体

#### イ 試験方法

図 1 に示すように試料の前処理を行いHPLC による定量を行った  $^{1)}$ 。

#### ゥ 測定条件

事例1に同じ

#### (3) 結果及び考察

まぐろ刺身残品からヒスタミンがそれぞれ 315 mg/100 g、289 mg/100 gが検出された。他の不揮発性腐敗アミン類は定量下限未満であった。ヒスタミンは、遊離のヒスチジン含有量の高い赤身の魚類にモルガン菌(Morganella morganii)などのヒスチジン脱炭酸酵素を有する細菌の増殖に伴い生成される<sup>2)</sup>。また、ヒスタミン濃度が 100 mg/100 g以上で食中毒を生じる可能性が高く、重篤な症状を呈するとしている。本事例はそれを上回るヒスタミンを含有しているものを喫食したことにより

発症したと考えられる1)。

#### 2-3 事例 3

#### (1)事件の概要

平成23年3月14日学校給食センターで調理された給食後生徒5名に蕁麻疹等の皮膚の腫脹を呈した。そのうち1名が呼吸困難を訴えたため救急搬送されたとの連絡が入り、当センターにヒスタミン検査依頼があった。

#### (2)試験方法

#### ア 試料

えび天ぷら (加熱前食品) えび天ぷら (加熱済食品)

#### イ 試験方法

RIDAスクリーンヒスタミン分析法(ELISA法)による定量分析(図2) (r-Biopharm社製)

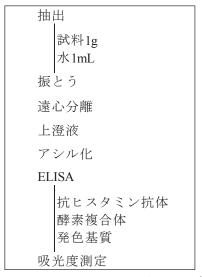


図2 RIDAスクリーンヒスタミン分析法

#### (3) 結果及び考察

試料のヒスタミン濃度はえび天ぷらの加熱前食品は定量下限未満、加熱後食品は 0.31 mg/100 gと含有量が低いことから事例 1 と同様にヒスタミンによる発症とは考えられなかった。

# 3. フグが原因と疑われる食中毒事件

#### (1)事件の概要

平成22年12月6日、塩漬したフグ卵巣を喫食した男性が嘔吐、呼吸困難、全身麻痺を引き起こし医療機関を受診したところフグ中毒と診断され保健所に届けられた。原因究明のため当所に対しテトロドトキシン含有量検査依頼を行った。

#### (2)方法

#### 7 試 料

残品はなかったので事件発生数日前に患者が釣

ったフグの卵巣及び筋肉部位を試料とした。

#### イ 試験方法

食品衛生検査指針・理化学編 2005 A. 動物毒によるマウス検定法(図3)及びLC/MS/MSによる定量 $^{3}$ (図4)により行った。

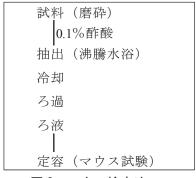


図3 マウス検定法

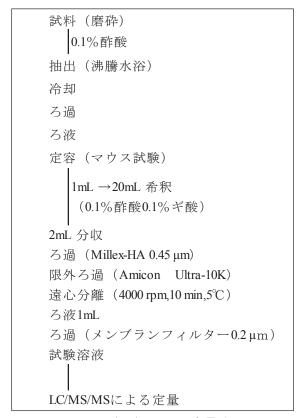


図 4 LC/MS/MSによる定量法

#### (3) 結果及び考察

分析結果を表1に示す。

フグ毒は体重 20 gのマウスを 30 分間で死亡させる毒量を 1 マウスユニット (MU) と定義されテトロドトキシン換算量は  $0.22~\mu$ gに相当する。また、フグ組織 1 g当たり 10 MU以下の場合は食用に供しても健康を害するおそれがないとされている  $^{4)}$ 。一方フグ毒の致死量はテトロドトキシン換算で  $1\sim2~m$ gとされている  $^{5)}$ 。食中毒事件の原因

となった塩漬けしたフグ卵巣の残品がなかったため患者が別に調理したフグ卵巣を分析した結果、テトロドトキシンとして 441 µg/g (2000 MU/g) 含有していた。従ってフグ卵巣を 3g以上喫食することにより致死量に達すると考えられフグ調理には細心の注意と正しい技術が必要である。

表 1 テトロドトキシン含有量

|        | マウス試験     | LC/MS/MS法 |
|--------|-----------|-----------|
| フグ卵巣   | 2000 MU/g | 441 μg/g  |
| フグ筋肉部位 | 定量下限术満*   | 定量下限未満**  |

\* : 5 MU/g  $* * : 1 \mu g/g$ 

#### 4. まとめ

平成22年度に発生した化学物質・自然毒による と推測された食中毒事件4事例について原因検索 を行った。

1)原因食品としてさば味噌煮、マグロ刺身、えびフライを各々摂食しアレルギー様症状を呈した食中毒事例についてヒスタミン検査を行った結果、マグロ刺身を喫食した事例でヒスタミン中毒を引き起こすとされる100 mg/100 gの3倍量が検出されヒスタミン中毒として処理された。また、さば味噌煮、えびフライを喫食した事例では、ヒスタミン含有量が低く当該物質を原因とする食中毒は否定された。

2)フグ卵巣を摂食し呼吸困難、全身麻痺症状を呈したフグ中毒事例において病因物質確認のためマウス試験及びLC/MS/MSにより分析した結果、フグ卵巣にはテトロドトキシンが、441 μg/g(2000 MU/g)含有されていることを確認した。

#### 対 文 献

- 1)衛生試験法・注解.199-201,日本薬学会編,2010
- 2)登田美桜ほか: 国内外におけるヒスタミン中毒. 国立衛研報,**127**,31-38,2009
- 3)秦野真澄ほか:フグ食中毒事例における LC/MS/MSによるテトロドトキシンの分析. 愛媛 県立衛生環境研究所報,**10**,14-17,2007
- 4)食品衛生検査指針・理化学編. 661-666,社団法人 日本食品衛生協会,2005
- 5)厚生労働省:自然毒のリスクプロファイル. 魚類フグ毒

# 水道水質外部精度管理調査結果(平成22年度)

木村淳子 楢山宝孝 増田幸保

県内6水道水質検査施設を対象に、測定値の信頼性確保及び分析技術の向上を目的として銅およびマンガンについて水道水質外部精度管理調査を実施し、 $\overline{X}$ -R管理図を基に各施設の評価を行った。銅およびマンガンいずれも管理限界内であった。

Key words: external quality control,  $\overline{X}$ -R control, copper, manganese

#### 1. はじめに

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

平成  $11\sim21$  年度調査結果は既報  $^{1)-9)}$  に報告済みであることから、今回は平成 22 年度の調査結果を報告する。

#### 2. 方法

#### 2.1 実施対象

県内6検査施設

#### 2.2 実施期間

平成 22 年 11 月 8 日~11 月 30 日

#### 2.3 実施項目

銅、マンガン

# 2.4 実施方法

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

#### 2.5 試料

#### (1)添加用標準液

銅およびマンガン: 和光純薬製 1 mg/mL 標準溶液を使用した。

#### (2) 試料作製及び配布方法

ポリ容器に銅標準溶液 10.0 mL、マンガン標準溶液 0.6 mLを正確にとり超純水で20 Lとし分析試料とした。これを 1 Lポリタンクに分配しクール宅急便で送付または直接配布した。

#### (3) 試料の最終濃度及び目標値

最終濃度は銅が 0.5 mg/L、マンガンが 0.03 mg/L であり、これを目標値とした。

#### (4) 試料の均一性の確認

作成した試料10個を無作為に選びn=2で各容器の濃度を測定し一元配置分散分析(F検定)により調査試料の確認を行った。結果を表1に示す。

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

表1 作製試料の均一性

|             | 銅      | マンガン    |
|-------------|--------|---------|
| 平均値         | 0.502  | 0.0316  |
| 標準偏差        | 0.0024 | 0.00094 |
| 変動係数        | 0.47   | 2.98    |
| F比          | 2.2237 | 2.2127  |
| 上の値に対する有意確率 | 0.1145 | 0.1159  |
| 有意水準5%点     | 3.02   | 3.02    |

表2 作製試料の安定性

|      | 作製日濃度<br>(mg/L) | 作製6週間後濃度<br>(mg/L) | 安定性の基準<br>(作製日濃度±10%) |
|------|-----------------|--------------------|-----------------------|
| 銅    | 0.496           | 0.501              | 0.447~0.546           |
| マンガン | 0.0307          | 0.0322             | $0.0277 \sim 0.0338$  |

#### (5) 試料の安定性

調査試料中の銅及びマンガンの安定性について 作製当日および6週間目に濃度測定し結果を比較 することにより行った。その結果、表2に示すと おり銅およびマンガンどちらも安定していること を確認した。

#### 2.6 統計処理の方法

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

# 3. 結果及び考察

#### 3.1 銅

#### (1) 測定結果

分析方法はICP-MS法が2施設、フレームレス原子吸光法が2施設、フレーム原子吸光法が1施設であった。

測定結果を表 3 及び図 1 に示した。平均値は  $0.495\sim0.510$  mg/Lであった。標準偏差は  $0.0012\sim0.0053$  mg/L、変動係数は  $0.25\sim1.06$  %であった。全データの最大値は 0.512 mg/L、最小値は 0.491 mg/L、平均値は 0.502 mg/L、標準偏差は 0.0034 mg/L、変動係数は 0.68 %であった。

#### (2)解析結果

 $\overline{X}$ 管理図及びR管理図を図 2、図 3 に示した。

 $\overline{X}$ 管理図では上部管理限界、下部管理限界はそれぞれ目標値の 110% (0.55 mg/L)、 90% (0.45 mg/L) とした。全ての施設が管理限界内にあった。

R 管理図では測定値の範囲の平均値は 0.008 mg/L、上部管理限界は 0.015 mg/Lで全ての施設が 管理限界内であった。

#### 3.2マンガン

#### (1) 測定結果

分析方法はICP-MS法が3施設、フレームレス原子吸光法が3施設であった。

各施設の測定結果を表4及び図4に示した。

平均値は  $0.0298\sim0.0321$  mg/Lであった。標準偏差は  $0.0001\sim0.0009$  mg/L、変動係数は  $0.41\sim2.93$  %であった。全データの最大値は 0.0335 mg/L、最小値は 0.0292 mg/L、平均値は 0.0311 mg/L、標準

偏差は 0.0005 mg/L、変動係数は 1.65%であった。 (2) 解析結果

 $\overline{X}$ 管理図及びR管理図を図 5、図 6 に示した。

 $\overline{X}$ 管理図で平均値の平均は 0.031 mg/Lで目標値とほぼ同じ値であった。上部管理限界と下部管理限界をそれぞれ目標値の 110 %値 (0.033 mg/L)、 90 %値 (0.027 mg/L) とした。全ての施設が管理限界内にあった。

R管理図においては範囲の平均は 0.0012 mg/L で上部管理限界は 0.0021 mg/Lであり、No.6 が管理限界を超えていた。

# 4. まとめ

県内 6 検査施設を対象として、銅およびマンガンについて水道水質外部精度管理調査を行い $\overline{X}$  - R管理図およびZ スコアを基に解析を行なった。 1)銅については、 $\overline{X}$  - R管理図は全ての施設で、管理限界内であった。

2)マンガンについては、1 施設がR管理図の上部 管理限界を超えていた。

3)Zスコアについては、銅、マンガンいずれも 2未満であった。

# 文 献

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

3)村上淳子ほか:水質精度管理実施状況(平成 15 年 度). 青森県環境保健センター研究報告,**15**,51-54, 2004

4)村上淳子ほか:水道水質外部精度管理調査結果 (平成 16 年度). 青森県環境保健センター研究報 告,16,62-65,2005

5)村上淳子ほか:水道水質外部精度管理調査結果 (平成 17 年度). 青森県環境保健センター研究報 告,17,44-48.2006

6)村上淳子ほか:水道水質外部精度管理調査結果 (平成 18 年度). 青森県環境保健センター研究報

# 告,18,46-49,2007

7)村上淳子ほか:水道水質外部精度管理調査結果 (平成 19 年度). 青森県環境保健センター研究報告,19,51-54,2008

8)木村淳子ほか:水道水質外部精度管理調査結果

(平成 20 年度). 青森県環境保健センター研究報告,**20**,38-40,2009

9) 木村淳子ほか:水道水質外部精度管理調査結果 (平成 20 年度). 青森県環境保健センター研究報 告,**21**,47-50,2010

表3 銅解析結果

|       |             |             |             | 18.71.       |       |            |      |
|-------|-------------|-------------|-------------|--------------|-------|------------|------|
| 施設No. | 最大値<br>mg/L | 最小値<br>mg/L | 平均値<br>mg/L | 標準偏差<br>mg/L | 変動係数% | 範囲<br>mg/L | Zスコア |
| 1     | 0.512       | 0.508       | 0.510       | 0.0022       | 0.43  | 0.004      | 1.1  |
| 3     | 0.496       | 0.493       | 0.495       | 0.0012       | 0.25  | 0.003      | -1.1 |
| 4     | 0.501       | 0.491       | 0.496       | 0.0036       | 0.72  | 0.010      | -0.9 |
| 5     | 0.511       | 0.499       | 0.503       | 0.0053       | 1.06  | 0.012      | 0.1  |
| 6     | 0.512       | 0.500       | 0.507       | 0.0047       | 0.93  | 0.012      | 0.7  |
| 平均    | 0.506       | 0.498       | 0.502       | 0.0034       | 0.68  | 0.008      |      |

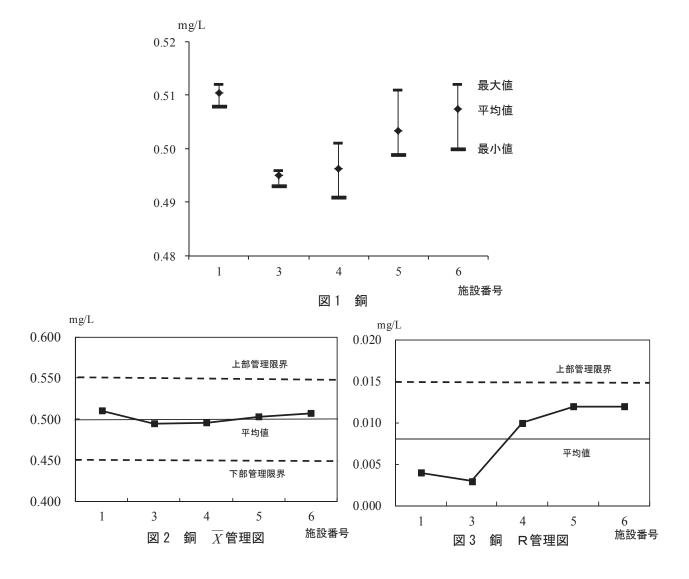
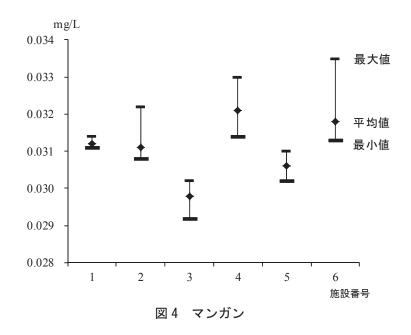
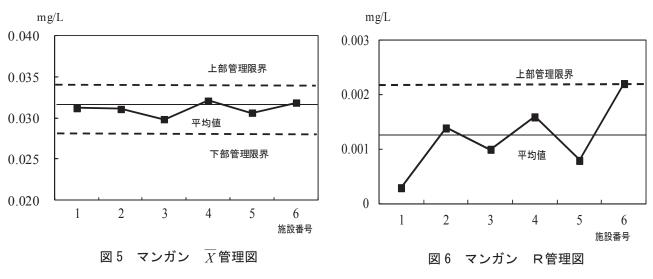


表4 マンガン解析結果

| 施設No. | 最大値<br>mg/L | 最小値<br>mg/L | 平均値<br>mg/L | 標準偏差<br>mg/L | 変動係数% | 範囲<br>mg/L | Zスコア |
|-------|-------------|-------------|-------------|--------------|-------|------------|------|
| 1     | 0.0314      | 0.0311      | 0.0312      | 0.0001       | 0.41  | 0.0003     | 0.1  |
| 2     | 0.0322      | 0.0308      | 0.0311      | 0.0006       | 2.06  | 0.0014     | 0.0  |
| 3     | 0.0302      | 0.0292      | 0.0298      | 0.0004       | 1.25  | 0.0010     | -1.6 |
| 4     | 0.0330      | 0.0314      | 0.0321      | 0.0007       | 2.08  | 0.0016     | 1.2  |
| 5     | 0.0310      | 0.0302      | 0.0306      | 0.0004       | 1.19  | 0.0008     | -0.6 |
| 6     | 0.0335      | 0.0313      | 0.0318      | 0.0009       | 2.93  | 0.0022     | 0.8  |
| 平均    | 0.0319      | 0.0307      | 0.0311      | 0.0005       | 1.65  | 0.0012     |      |





# 環境大気中重金属類の ICP-MS 法による定量分析に関する留意点 —八戸地域の調査における内標準元素についての一考察—

対馬典子 神 正志1

八戸地域での大気モニタリングにおいて、ヤマセ時(春・夏期)に臨海工業地帯方向からの影響と考えられる質量数 115 カウント値の顕著な増加が見られた。このことから、八戸地域での大気モニタリング検体の ICP-MS 法における定量分析においては、内標準元素として 103 Rh が適切と判断された。

Key words: ICP-MS, environmental air, indium, rhodium, tin, isobaric interference, Rare metal

#### 1. はじめに

通常、ICP-MS(誘導結合プラズマ質量分析装置) 法による定量分析のための濃度と測定強度との関係線として、標準試料と未知試料の両方に加えられた元素(内標準元素)で、測定元素の信号の変化を補正する内標準法を用いている。

ICP-MS 法では長時間連続運転をしている場合に感度がドリフトすることがあり、その補正のために内標準法が用いられるが、測定元素の信号がマトリックス効果や機器のドリフトによって変化すれば、内標準元素も同様に変化するので、測定元素と内標準元素の比をとることにより感度変化は相殺される<sup>1)</sup>。

当所においては平成20年度にICP-MS法を導入し、通常業務(水・大気)では内標準元素として質量数115Inを用いていたが、平成22年度ローボリウムエアサンプラー(以下、LV)法による通年調査の一部の検体において測定質量数115のカウント値に干渉と思われる増大が見られた。仮に、感度変動による増大ではなく、115Inへの干渉カウントであれば最終的な定量結果を過少評価する懸念があることから、今回、八戸地域の大気モニタリングにおける内標準元素の見直しを行ったので報告する。

# 2. 方法

#### 2.1 器具

酸分解におけるテフロン製器具、検液の定容、標準溶液調製及び ICP-MS 用バイアルについては、洗浄後、(5+95)硝酸に一昼夜以上浸した後、超純水で洗浄、乾燥し使用した。

#### 2.2 試薬

内標準元素として使用した Rh の標準原液は、 和光純薬㈱製、原子吸光分析用標準液 (1000 ppm) を用いた。最終調製濃度は 100 ppb である。

また、酸分解及び検液調製に用いた酸類(フッ 化水素酸、硝酸、過酸化水素水)は、関東化学㈱ 製の超高純度試薬を用いた。

#### 2.3 試料前処理

ハイボリウムエアサンプラー (以下、HV) 法により 900 L/min、24 時間吸引採取した浮遊粉じんの前処理方法は全分解を基本とした。試料採取後の石英繊維ろ紙(東京ダイレック㈱PALLFLEX Membrane Filters, TYPE TISSUQUARTZ 2500QAT-UP) については、4.7 cm 径 3 枚を圧力容器法(フッ化水素酸 3 ml、硝酸 5 ml、過酸化水素水 1 ml)により全分解、25 ml 定容し、検液とした。

また、20 L/min、2 週間連続吸引後の LV ろ紙(東京ダイレック㈱TYPE 2500QAT-UP) については、ろ紙全量(4.7 cm 径、1 枚)をハイボリろ紙同様処理し、検液とした。

#### 1 八戸環境管理事務所

|          | 7      | 9     | 45      | 53      | 59      | 60        | 69      | 72      | 85      |
|----------|--------|-------|---------|---------|---------|-----------|---------|---------|---------|
| 検体区分     | Li     | Be    | Sc      | Cr      | Co      | Ni        | Ga      | Ge      | Rb      |
| std0ppb  | 3,290  | 80    | 10,273  | 1,300   | 640     | 3,730     | 250     | 810     | 290     |
| トラベルブランク | 26,992 | 690   | 89,617  | 98,086  | 18,591  | 285,320   | 107,259 | 142,308 | 9,633   |
| 根岸小学校局   | 58,472 | 1,700 | 95,508  | 433,789 | 293,273 | 1,738,744 | 291,824 | 160,298 | 267,134 |
| 八戸小学校局   | 62,507 | 1,580 | 237,524 | 805,840 | 418,649 | 2,592,903 | 352,254 | 161,872 | 314,006 |

|          | 89      | 103   | 115     | 118     | 133    | 140     | 205     | 209     |
|----------|---------|-------|---------|---------|--------|---------|---------|---------|
| 区分       | Υ       | Rh    | In      | Sn      | Cs     | Ce      | TI      | Bi      |
| std0ppb  | 0       | 0     | 110     | 80      | 50     | 0       | 10      | 80      |
| トラベルブランク | 436,523 | 130   | 300     | 10,634  | 570    | 379,366 | 830     | 2,150   |
| 根岸小学校局   | 491,790 | 5,601 | 211,926 | 325,429 | 26,723 | 560,638 | 691,250 | 443,893 |
| 八戸小学校局   | 494,662 | 1,490 | 258,957 | 175,578 | 26,443 | 682,258 | 175,009 | 549,555 |

注) 115In については質量数 115 すべてのカウント数を含む。

#### 2.4 測定

測定に用いた ICP-MS は、Agilent 7500cx である。

#### 2.5 感度チェック

標準濃度系列の中から中間程度の濃度(10 ppb もしくは50 ppb)のものを選び、概ね10 試料に1 回程度の頻度で感度の変動を確認した。判定は、検量線作成時の測定値からの変動が20 %以内とした。

#### 2.6 内標準元素の選択

内標準元素の選択の基本的な考え方については、 測定試料中に含まれていない、あるいは含まれていても無視できるレベル(内標準元素に対して1%以下)の元素、測定元素とよく似た性質の元素(質量数、イオン化ポテンシャル、沸点、同族、など)、測定質量数に分子イオンの干渉がない元素、また、添加濃度は一般に10~50 ppb 程度(数万 cps 程度のシグナルが必要)であるが、安定した信号が得られれば必ずしも測定元素の濃度に合わせる必要はない、などとされている。

質量数 115 への干渉が顕著であった平成 22 年 7 月の HV 調査の検体に関し、定性分析を行い適切な内標準元素を検索した。

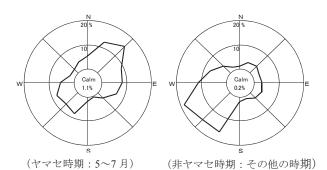


図1 平成22年度の風配図

# 2.7 115 カウント値の補正

平成22年度のLV検体の質量数115のカウントの季節推移をみる目的で一定濃度の103Rhを添加しカウント測定後、感度変動の補正及び大気吸引量による補正を行うため、次の補正式(※)により算出した。

# (\*) A/B/C

A: 質量数 115 カウント値 B: 質量数 103Rh カウント値

C:20℃、1013 hPa 補正後の大気吸引量 m³

#### 3. 結果および考察

# 3.1 適切な内標準元素の選択結果

平成22年7月のHV法による調査の検体について、通常、内標準元素として用いられている7Li、9Be、45Sc、59Co、69Ga、72Ge、85Rb、89Y、103Rh、質量数115、133Cs、140Ce、205Tl、209Bi及び参考として53Cr、60Ni、118Snのカウント数(cps)を表1に示した。

添加する内標準元素の濃度は全ての測定試料と標準溶液を一致させる必要があり、通常 100 ppb



図 2 調査地点及び重金属排出主要事業場

に調製した内標準溶液をペリポンプでオンライン 同時添加しているが、その場合、導入時の内標準 元素のカウント数は数十万~百万 cps 程度となる。よって、内標準元素のカウント値のシグナルに対し1%以下と見なされた9Beと103Rhが干渉回避 の点で適切とみなされたが、Beは大気モニタリング調査の対象項目でもあるため、添加する内標元素として103Rhを採用することとした。

#### 3.2 115 カウント補正値推移

ヤマセ時期と非ヤマセ時期の風配図を図1に、 平成22年度LV通年調査における根岸小学校及び 八戸小学校(図2)の51検体の115カウント値の 補正後の値の推移を図3に示した。

2 地点ともヤマセの吹く春~夏の時期に値が増大していた。

#### 3.3 115 カウント補正値と風向頻度の相関

地点毎に115カウント値と風向頻度の相関を図4に示した。いずれもNE系を中心に正の相関を示し、ヤマセの吹く時期に115カウント値が上昇することを示していた。

#### 3.4 115 カウントの由来

ICP-MS 法は高感度(検出下限値が ppt から ppq レベル)、多元素同時分析が可能、迅速な定性、定量分析、ダイナミックレンジが広い(8 桁)など優れた特長を有し、現在、広く普及されているが、その一方、アルゴン起因の分子イオンなどのスペクトル干渉がある。その回避方法としては、コリジョン・リアクションによる多原子イオンの分解、干渉補正式による補正などがある。

また、分子イオン干渉のほかに、質量数が高い元素でも、スペクトル干渉<sup>2)</sup> が見られることがある。

Sn は主に鉄板、銅線などの防食メッキに、また各種合金に使用されるが、今回の干渉に関し、115Sn による 115In への同重体干渉も可能性のひとつとして考えられた。

また、近年、注目を集めているレアメタルの一つである In については、亜鉛鉱石中に ppm レベルで含まれており、含有量が 1%にも達することがあるとの報告がある。そしてフラットパネル式のテレビの液晶パネルの透明電極に使われるよう

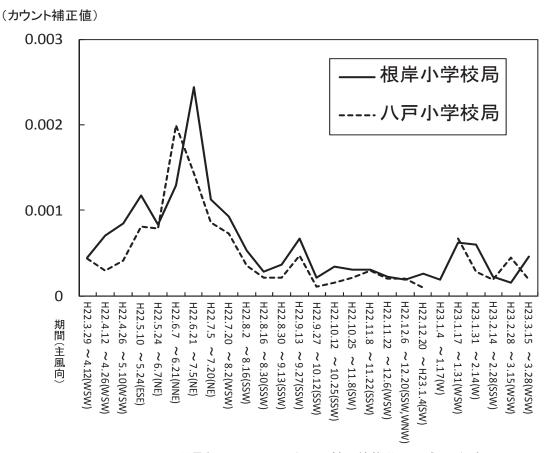


図 3 質量数 115/103 カウント補正値推移 (平成 22 年度)

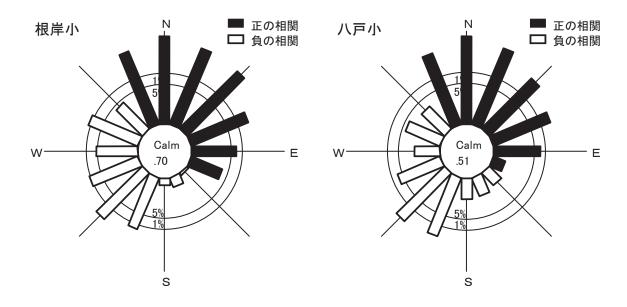


図 4 質量数 115 カウント補正値と風向頻度の相関

になったことから、その使用量も急激な増加傾向 にある。

LV 検体における質量数 115 カウントについては、In が検体に含まれていたのか、あるいは 115Sn による 115In への同重体干渉であるのか、また、その影響の割合などについては明らかではないが、平成 22 年度のローボリ調査において、2 地点ともヤマセの吹く春~夏の時期に 115 カウントが増大していた。

# 4. まとめ

長時間にわたり測定を行う場合、信号がドリフトする可能性があり、その回避方法として内標準元素による補正を行うが、今回、八戸地域での大

気モニタリングにおいて、ヤマセ時に臨海工業地帯方向からの影響と考えられる質量数 115 カウント値の顕著な増加が見られたことから、内標準元素の見直しの検討を行った結果、八戸地域での大気モニタリングの ICP-MS 法における内標準元素として、115In から 103Rh への切り替えが適切であるものと判断された。

#### 文 献

1)大畑昌輝:入門講座「不確かさ評価(原子スペクトル編)」. ぶんせき,266-272,2010 年 6 月 2)井田巌ほか:入門講座「原子スペクトル法」. ぶんせき,206-214,2008 年 5 月

# パッシブサンプラー法による環境大気中ガス状酸性化成分等濃度調査結果

工藤香織 対馬典子 渡部陽一

平成  $18\sim22$  年度に青森県内 2 地点(青森東造道、鰺ヶ沢舞戸)で実施したパッシブサンプラー法による環境大気中ガス状酸性化成分等( $NO_2$ 、 $NO_X$ 、 $O_3$ 、 $NH_3$ )濃度について考察した結果、 $NO_2$ 、 $NO_X$ については、都市活動的要素を有する青森東造道では秋季から冬季に濃度の上昇がみられ、一方、森林地域の要素を有する鰺ヶ沢舞戸では年間を通して低濃度で推移し、季節変動はみられなかった。また、 $O_3$ については青森東造道では春季に、鰺ヶ沢舞戸では冬季から春季にかけて濃度が高くなる傾向がみられ、鰺ヶ沢舞戸の方が青森東造道よりも年平均で 10 ppbv 程度高い値となっていた。 $NH_3$ については、両地点とも夏季において高くなる傾向がみられた。

Key words: passive sampler, nitrogen oxide, ozone, ammonia

#### 1. はじめに

パッシブサンプラー法(以下、「パッシブ法」と略す。)は、測定のための電源設備等が不要、取り扱いが比較的簡便で安価であり、山間部などに手軽に設置できる利便性がある。本県では、平成 15 年度からパッシブ法による環境大気中のガス状酸性化成分等の濃度調査を実施しており、地点の変更や項目の見直し等を経て、現在は県内 2地点(青森東造道、鰺ヶ沢舞戸)において、 $NO_2$ 、 $NO_X$ 、 $O_3$ 、 $NH_3$  の調査を実施している。また、鰺ヶ沢舞戸地点においては、平成 22 年度から自動測定機による $O_3$ 濃度の測定を開始した。

今回、県内 2 地点(青森東造道:平成 18 年度から調査開始、鰺ヶ沢舞戸:平成 19 年度から調査開始)におけるガス状酸性化成分等濃度に関する考察及び自動測定機とパッシブ法によるO<sub>3</sub> 濃度の比較等を行ったので報告する。

#### 2. 方 法

# 2.1 調査地点及び調査概要

調査地点を図1に、調査概要を表1に示した。

# 2.2 測定方法

試料の捕集には市販の「横浜市環境科学研究所 方式短期暴露用拡散型サンプラー」を用いた。ま た、NO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub> 濃度は比色分析法((株)日立ハイ テクノロジーズU-2900 形分光光度計使用)、O<sub>3</sub>、 NH<sub>3</sub> 濃度はイオンクロマト分析法(日本ダイオネクス(株)DX-500 使用)により測定し、各成分の大気中濃度は、サンプラーのマニュアルに示されている換算係数を用いて捕集量から算出した。



#### 3. 結果と考察

#### 3.1 ガス状酸性化成分等濃度について

#### (1)NO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>濃度

 $NO_2$ 濃度の年度別経月変化を図 2 に、 $NO_X$  濃度の年度別経月変化を図 3 に示した。

NO2、NOx濃度ともに、都市活動的要素を有す

表 1 調査概要

| No. | 調査地点名 (市町村)     | 区分  | 標高(m) | 海岸からの<br>距離(km) | 地上からのサンプ<br>ラー設置位置(m) | 捕集間隔 | パッシブ法調査項目<br>(実施年度)   |
|-----|-----------------|-----|-------|-----------------|-----------------------|------|---|
| 1)  | 青森東造道<br>(青森市)  | 市街地 | 3     | 0.7             | 20                    | 1ヶ月  | $NO_2(H21\sim22)$<br>$NO_X(H21\sim22)$<br>$O_3(H18\sim22)$<br>$NH_3(H22)$ |
| 2   | 鰺ヶ沢舞戸<br>(鯵ヶ沢町) | 森林  | 30    | 0.4             | 13                    | 1ヶ月  | $NO_2(H21\sim22)$<br>$NO_X(H21\sim22)$<br>$O_3(H19\sim22)$<br>$NH_3(H22)$ |

※鰺ヶ沢舞戸では、平成22年度から自動測定機による03濃度の測定を開始

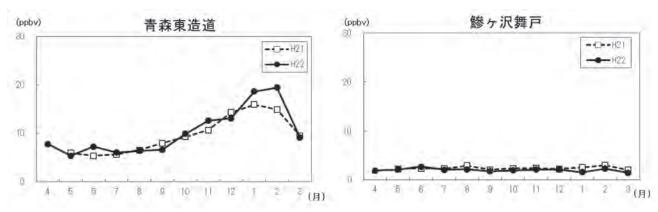


図 2 NO<sub>2</sub> 濃度の年度別経月変化

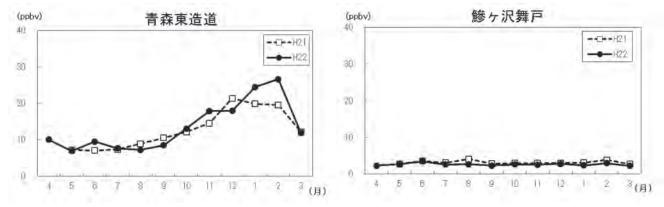


図3 NO<sub>x</sub>濃度の年度別経月変化

る青森東造道(以下、「都市地区」として分類) において秋季から冬季に顕著な濃度上昇がみられ た。

一方、森林地域の要素を有する鰺ヶ沢舞戸(以下、「森林地区」として分類)においては、青森東造道と比べ $NO_2$ 、 $NO_X$ 濃度ともに年間を通して低濃度で推移していた。このことは、全環研北海道・東北支部共同調査とりまとめ<sup>1)</sup> における「都

市地区では森林等地区と比べ窒素酸化物濃度が高く、秋季から冬季にかけて濃度上昇がみられ、特に北海道・青森地域では濃度の上昇が著しい。」との報告と一致していた。

都市地区における秋季から冬季にかけての $NO_2$ 、 $NO_X$ 濃度の上昇は、化石燃料等の燃焼による人為的影響が考えられ、森林地区よりも暖房施設や自動車等の発生源が多いためであると推察される。

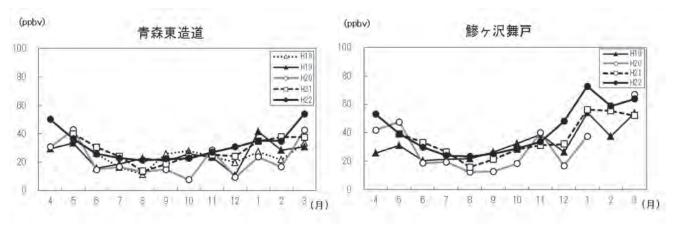


図 4 03 濃度の年度別経月変化

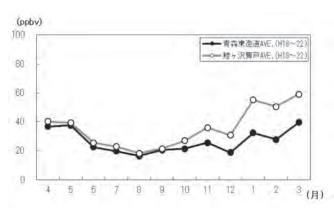


図 5 03濃度の地点別経月変化

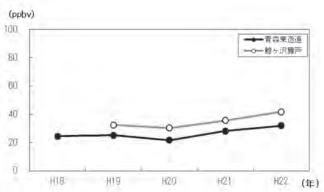


図 6 03 濃度の地点別年平均値

#### (2) O3 濃度

O<sub>3</sub>濃度の年度別経月変化を図4に、地点別経月変化を図5に、地点別年平均値を図6に示した。

青森東造道における  $O_3$  濃度は春季に、鰺ヶ沢舞戸における  $O_3$  濃度は冬季から春季にかけて濃度が高くなる傾向がみられた。春先には成層圏  $O_3$  の降下や季節風による大陸からの移流等の影響により  $O_3$  濃度が高くなることが知られており、これらの影響を受けたものと考える。

また、両地点の  $O_3$  濃度を比較すると、青森東造道よりも鰺ヶ沢舞戸の方が年平均で 10 ppbv 程度高い値となっており、経月変化では冬季において 20 ppbv 程度の差がみられた。冬季における窒素酸化物濃度の顕著な上昇がみられる青森東造道においては、 $O_3$  が窒素酸化物との反応で消費され、 $O_3$  濃度が低下したものと推察される。

#### (3) NH<sub>3</sub> 濃度

NH<sub>3</sub>濃度の地点別経月変化を図7に示した。両地点とも、夏季において高くなる傾向がみられた。また、青森東造道の方が鰺ヶ沢舞戸よりも年間を通して高い値となっており、このことは、支部共

同調査  $^{1)}$  における「都市地区が森林等地区よりも高い濃度を示す傾向があった。」との考察と一致していた。 $NH_3$  の多くは、人間活動に伴って発生することから、都市地区の方がより人為的影響を受けているものと考える。

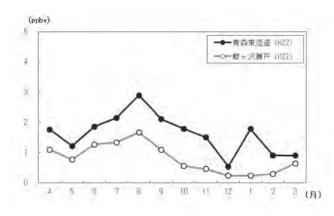


図 7 NH<sub>3</sub> 濃度の地点別経月変化

3.2 自動測定機とパッシブ法による $O_3$ 濃度の比較 鰺ヶ沢舞戸における自動測定機とパッシブ法に よる  $O_3$ 濃度を図 8 に、両測定法による相関を図 9 に示した。 両測定法による  $O_3$  濃度を比較すると、春季から 秋季( $4\sim11$  月)にかけては同程度の値となって おり、相関係数 0.94、傾き 1.1 と良好な結果であ ったが、冬季においてはパッシブ法が高い値を示 した。

これは平成 22 年度 1 年間の結果であり、今後も データを蓄積したうえで、両測定法による比較・ 検討を行う必要があるものと考える。

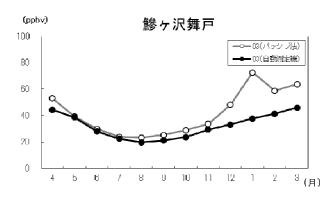


図8 自動測定機とパッシブ法による03濃度

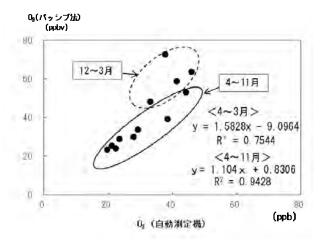


図9 自動測定機とパッシブ法の相関

#### 4. まとめ

青森県内2地点における平成18~22年度のパッシブ法による環境大気中ガス状酸性化成分等濃度について考察した結果、以下のことがわかった。1)NO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub> 濃度は、都市地区の青森東造道において秋季から冬季に顕著な濃度上昇がみられ、森林地区の鰺ヶ沢舞戸においては、NO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub> 濃度ともに年間を通して低濃度で推移していた。都市地区における秋季から冬季にかけてのNO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub> 濃度の上昇は、化石燃料等の燃焼による人為的影響が考えられ、森林地区よりも暖房施設や自動車等の発生源が多いためであると推察された。

2)O<sub>3</sub>濃度は、青森東造道では春季に、鰺ヶ沢舞戸では冬季から春季にかけて濃度が高くなる傾向がみられた。また、両地点の O<sub>3</sub>濃度を比較すると、青森東造道よりも鰺ヶ沢舞戸の方が高く、特に冬季においては 20 ppbv 程度の差がみられ、冬季における窒素酸化物濃度の顕著な上昇がみられる青森東造道においては、O<sub>3</sub>が窒素酸化物との反応で消費され、O<sub>3</sub>濃度が低下したものと推察された。3)NH<sub>3</sub>濃度は、青森東造道、鰺ヶ沢舞戸の両地点ともに夏季において高くなる傾向がみられた。また、都市地区の青森東造道が森林地区の鰺ヶ沢舞戸よりも年間を通して高い値となっており、NH<sub>3</sub>の多くは、人間活動に伴って発生することから、都市地区の方がより人為的影響を受けているものと考えられた。

4)自動測定機とパッシブ法による O<sub>3</sub> 濃度を比較すると、春季から秋季にかけてはよい相関がみられたものの、冬季においてはパッシブ法が高い値を示し、差がみられた。このことについては、今後もデータを蓄積したうえで、両測定法による比較・検討を行う必要があるものと考える。

#### 文 献

1)北海道・東北におけるガス状酸性化成分等の濃度分布調査3年間のまとめ、全国環境研協議会北海道・東北支部酸性雨調査研究専門部会(平成20年3月)

2)対馬典子ほか:青森県内における酸性沈着による汚染実態(Ⅱ)—平成15~17年度の調査結果より—.青森県環境保健センター研究報告,**18**,26-32,2007

3)対馬典子ほか: パッシブサンプラー法による $SO_2$ 、 $O_3$ 濃度調査結果. 青森県環境保健センター研究報告, 20, 42-46, 20. 42-46, 20. 42-46, 42-

4)平野耕一郎(横浜市環境科学研究所),前田裕行(横浜市環境科学研究所),斉藤勝美(秋田県環境センター):(改訂版)短期暴露用拡散型サンプラーを用いた環境大気中のNO,NO<sub>2</sub>,SO<sub>2</sub>,O<sub>3</sub> およびNH<sub>3</sub>濃度の測定方法(平成22年8月)

5)高橋雅昭ほか:パッシブ法を用いた新潟県内に おける大気汚染物質濃度観測.新潟県保健環境科 学研究所年報,23,75-81,2008

6)全国環境研協議会:第4次酸性雨全国調査報告書(平成20年度)(1).全国環境研会誌,**35**,No.3,88-137,2010

# Ⅲ 学会等発表抄録

# 学会等発表抄録

食中毒及び感染症集団事例で検出の胃腸炎原因ウイルスの発生動向と分子疫学解析(2008/09 シーズンから 2009/10 シーズン)

吉田綾子, 筒井理華, 井上治, 葛西宏介 $^{1}$ , 石川和子 $^{2}$ , 三上稔之:第 31 回青森感染症研究会, 2011.7.23 (青森市)

食中毒(疑い)及び感染症集団胃腸炎事例について、2008/09 シーズンと 2009/10 シーズンの原因ウイルスの検索を行った。その結果、2008/09 シーズンはノロウイルス(NV)が 27 事例、サポウイルス(SV)が 2 事例から検出された。また、2009/10 シーズンは、NV が 25 事例、NV・SV が混合で 1 事例から検出された。

検出ウイルスの遺伝子解析の結果、2 シーズン ともに主流は、NV Genogroup II/4 (NVGII/4) で、2006/07 シーズンから主流が続いていた。

また、同一事例内において異なる遺伝子型が検 出された例が複数認められ、NV 等の流行期には 集団事例の中に感染源の異なる発症者が紛れてい る可能性が推察された。

- 1 弘前大学大学院保健学研究科
- 2 元青森県東青地域県民局健康福祉部

# 青森県における 2008/09~2010/11 シーズンの集団胃腸炎事例原因ウイルスの分子疫学解析

吉田綾子, 筒井理華, 井上治, 葛西宏介<sup>1</sup>, 三上 稔之:第102回日本食品衛生学会, 2011.9.29~30 (秋田市)

青森県における 2008/09 から 2010/11 シーズン のウイルス性集団胃腸炎事例について、検出ウイルスの流行型及び類似性、発生動向を明らかにし、感染経路の究明等を目的として、ウイルスの遺伝子解析を行い、分子疫学的に検討した。

その結果、2006/07 シーズンから主流行型として継続していた NVGII/4 は、 $2008/09\sim2010/11$  シーズンにおいては検出割合が減少して NVGII/2 や GII/12 等が増加し、NV の流行型が GII/4 から他の遺伝子型に置き換わる傾向がみられた。

また、疫学調査とウイルス検出の状況から、カキの喫食が原因と推定された食中毒事例では、混合感染が認められ、ダイレクトシークエンス法およびクローニング法を用いたシークエンスを実施した結果、9種類のNV・SVが確認された。二枚貝の中腸腺には様々なウイルスが蓄積することか

ら、その喫食が原因と推察されるウイルス性食中 毒事例では、複数種類のウイルスによる混合感染 が考えられ、ダイレクトシークエンス法では解析 不可能な場合があることから、時間を要するもの の、クローニング法を用いたウイルス遺伝子解析 を行うことは、食中毒等の原因究明や感染拡大予 防のための科学的根拠を得る有効な手段と考えら れた。

1 弘前大学大学院保健学研究科

# 奥入瀬渓流における泡沫出現の原因の考察

花石竜治:第37回全国環境研協議会北海道・東北 支部研究連絡会議,2011.10.13~14(盛岡市)

平成22年7月に発生が確認された十和田湖の流出河川である奥入瀬川における泡について、渓流水及び泡の採取を行い、分析を行った。渓流水は、メチレンブルー活性物質は不検出で、全リンや鉄、アルミニウム等は湖水に比較して高濃度ではなかった。糖類が渓流水の一部で検出され、泡では濃度が高く、限外ろ過膜法により分子量分画を行った結果、糖類の7割以上が多糖類であった。平成22年度の十和田湖の水質についてはこれまでと異なった傾向で変動していた。我が国における河川湖沼の泡発生の事例を踏まえ、自然に発生した糖類が泡発生の原因と推定された。

陸奥湾東部海域におけるホタテガイ中の重金属濃度について-平成12年度から平成22年度まで-楢山宝孝,木村淳子,工藤志保,増田幸保:第48 回全国衛生化学技術協議会年会,2011.11.10~11 (長野市)

青森県では「対EU輸出ホタテガイ等二枚貝の取扱い要領」(厚生労働省)等に基づき、生産海域である陸奥湾東部海域5定点で、年2回(6月及び11月)環境汚染物質モニタリング検査を実施している。

平成12年から平成22年までの重金属(総水銀、カドミウム、鉛、ニッケル、クロム、銅、亜鉛、銀、ヒ素)の検査結果について取りまとめ、重金属濃度の推移、地点別・養殖形態別の重金属濃度を報告した。

総水銀については魚介類の暫定規制値 0.4 μg/g を超えるものはなかった。

カドミウム及びヒ素が平成 18 年 11 月から平成 19 年 11 月に、鉛は平成 20 年 6 月から平成 21 年 6

月に濃度が高い傾向が認められた。

いずれの地点でも籠、耳吊りの養殖形態による差は認められなかった。

# 八戸地域における環境大気中の重金属成分モニタ リング

対馬典子,神正志<sup>1</sup>:全国大気汚染防止連絡協議会第57回全国大会,2011.11.11(大分市)

大気中重金属成分 7 項目、171 サンプルについて主成分分析を行った結果、第 1 主成分 (Z1) は総合汚染の指標そして第 2 主成分 (Z2) は汚染起源に関連する指標と推察された。根岸小、八戸小においてはヤマセの吹く春~夏に Z1 の度合いが高い傾向にあり、Z1 の高い季節(ヤマセの時期)に、Z2 は 2 地点で正と負に分かれ、根岸小では B社から、八戸小では D、E 社からの影響を主に受けていることが推察された。

震災後、主な発生源とされる工場の施設が稼働 停止となった3月中旬から6月上旬のモニタリン グデータに着目したところ、非ヤマセ時に比べヤ マセ時には Z1 スコアに若干増加傾向が見られ、 程度は低いものの原料鉱石や製品などの堆積場か らの飛散が推察された。

1 八戸環境管理事務所

# 十和田湖の水質に与える大気降下物の影響

花石竜治:全国大気汚染防止連絡協議会第57回全国大会,2011.11.11(大分市)

十和田湖における汚濁源の負荷について、要因別に試算したところ、降水の湖面に対する直接的な負荷及び降水時の流入河川の負荷の割合が大きいという結果を得た。CODと全リンで降水時の流入河川が、全窒素で湖面に対する直接的な負荷が大きい。また、逆送水の影響は負荷量全体では相対的に小さく、下水道未接続家屋からの生活排水の影響は無視できるほど小さいと試算された。十和田湖においては、自然要因による負荷が大部分を占めていた。

# 八戸地域における環境大気中の重金属成分モニタ リング

対馬典子,神正志<sup>1</sup>:第38回環境保全・公害防止研究発表会,2011.11.28~29(青森市)

学会等発表抄録「全国大気汚染防止連絡協議会

第57回全国大会」参照1八戸環境管理事務所

# 分解物を生成する農薬の残留農薬試験における分 解傾向の確認

工藤志保,山本明美,增田幸保:2011年度青森県保健医療福祉研究発表会,2012.2.18(青森市)

残留農薬検査では、添加回収試験を実施し、規定の回収率が得られない農薬については、報告しないこととしており、分解物を含む形で残留農薬基準値が設定されている農薬項目では、分解物を含む全ての農薬の回収率が規定の範囲内に入った場合だけ報告することとしている。平成23年度の添加回収試験の結果、農産物により、「チオジカルブ及びメソミル」の項目で分解物を含む全ての農薬の回収率が規定の範囲内に収まり報告できるもの、一部の農薬の回収率が悪く報告できないものがあったことから、「チオジカルブ及びメソミル」について、農産物による分解傾向の違いについて検討した。

チオジカルブからメソミル及びメソミルオキシムへの分解傾向については、農産物により違いが見られた。メソミルからメソミルオキシムへの分解傾向については、すべての農産物で一部分解が進んでいることが確認された。

# アセフェート-d6を用いた定量法の検討

山本明美,工藤志保,工藤翔,增田幸保:2011年度青森県保健医療福祉研究発表会,2012.2.18(青森市)

残留農薬のモニタリング一斉分析において分解等のため問題となっているアセフェートについて、サロゲート物質であるアセフェート-d6を用い、通知法と畠山らの限外ろ過法を用いたLC/MS/MSによる農産物中の残留農薬一斉分析法で検討を行った。

その結果、測定装置に LC/MS/MS を用いるほうが併行精度は小さく、限外ろ過法での併行精度は一律基準値レベルでも 10%程度と良好であった。また、アセフェート-d6回収率もすべてサロゲートの目標値の 40%以上であり、アセフェート-d6を使用した限外ろ過-LC/MS/MS 法はモニタリングに有用であると考えられる。

# 下水におけるノロウイルス等の汚染実態と散発及 び集団事例について

筒井理華,吉田綾子,井上治,三上稔之:2011年度青森県保健医療福祉研究発表会,2012.2.18(青森市)

感染者の腸管内で増殖するノロウイルス(NV)やサポウイルス(SV)等は、糞便とともに排泄され下水道に流入する。このことから下水処理施設に流入する処理前の下水のウイルス検出を実施した。結果、ノロウイルスGI及びⅡ型が検出され、ヒト由来ウイルスと遺伝子比較解析したところ類似性が認められた。

集者

齋藤 稔 根岸勝信 (研究報告部会長) 小野 晃

三上稔之 増田幸保 米谷康治

野呂キョウ 対馬典子 工藤志保 工藤 翔

# 青森県環境保健センター研究報告

(平成 23 年度) 平成24年3月発行

#### 編 集 青森県環境保健センター



認定範囲 【化学試験】

水産毒: サンプリング・麻痺性貝毒

下痢性貝毒・記憶喪失性貝毒

ホタテガイのサルモネラ属菌検査 ホタテガイの大腸菌検査

発 行 〒030-8566 青森市東造道 1-1-1

電 話(017)736-5411 FAX(017)736-5419

メールアドレス KANKYOSENTA@pref.aomori.lg.jp

ホームページ http://www.pref.aomori.lg.jp/soshiki/kankyo/

kankyosenta/center-home.html

印 刷 〒030-0803 青森市安方 2-17-3

> 会社名 ワタナベサービス (株)

電 話 (017) 777-1388

当センターの研究報告は上記ホームページでご覧になれます。 (環境保護のため、再生紙を使用しています。)