

和歌山県環境衛生研究センター年報

第 58 卷

(平成23年度)

和歌山県環境衛生研究センター

Annual Report
of
Wakayama Prefectural Research Center
of Environment and Public Health

No.58

2012

Wakayama Prefectural Research Center
of Environment and Public Health
3-3-45, Sunayama-Minami, Wakayama, 640-8272, Japan

はじめに

昨年は、東日本大震災という未曾有の災害が発生し、多くの尊い命が失われました。亡くなられた方々のご冥福をお祈りするとともに被災地の一日も早い復旧復興を心から願っております。

平成23年度当センターでは、東京電力福島第1原子力発電所事故による文部科学省依頼の環境放射能水準調査のモニタリング強化や、行政や一般の方々からの依頼による食品中の放射能測定業務にも対応してまいりました。さらに、放射能検査について学ぼうとされる方々の見学も増加しており、県民の皆様の放射能に対する不安、関心の高さが伺えます。当センターとしましても県民の皆様の安心・安全を確保するため、放射能はもちろんのこと各種検査において正確、迅速にデータを提供できますよう職員の技術力の更なる向上を図りながら、精度の高い検査体制を維持したいと考えております。

さてこの度、平成23年度和歌山県環境衛生研究センター年報（第58巻）を刊行する運びとなりました。当誌は、当センターが行った行政・一般依頼を主とする衛生・環境分野の測定・検査事業の概要や調査研究、資料等の成果をまとめたものです。

この年報は昨年度から「電子版」のみとなりました。諸般の事情があるにせよ、どのくらいの方がご覧になり、業務内容等を正確にお伝えすることができているのか、忸怩たる思いがいたします。

昨今の厳しい財政状況から人員と予算の削減が進み、高度な知識と技術を伝承できる人材の継続的な育成や、高額な分析機器の整備更新がままならない事態となっていることは、当センターのみならず、全国の環境・衛生研究所の共通の課題です。

そんな中でも、当センターといたしましては、関係各位の御協力を得て、職員一同切磋琢磨し、「保健衛生の向上と増進」並びに「環境保全の確保と創造」のための調査研究が真に県民益となりますよう、更なる研鑽に努める所存ですので、なお一層のご協力を賜り、ご指導・ご鞭撻のほどよろしくお願い申し上げます。

平成24年11月

和歌山県環境衛生研究センター

所長 山本 康 司

目 次

(業 務 編)

I 環境衛生研究センターの概要

1. 沿 革	1
2. 組 織	2
3. 事業費・施設等	4

II 事業概要

1. 測定検査等事業	
1) 微生物グループ	9
2) 衛生グループ	15
3) 大気環境グループ	23
4) 水質環境グループ	29
2. 研修指導及び施設見学の実績	35

(調 査 研 究 編)

III 調査研究

1. 県内におけるノイラミニダーゼ阻害剤耐性インフルエンザウイルスの動向について 寺杣文男, 仲浩臣, 青木一人	37
2. 無承認無許可医薬品の分析法の検討 ― 瘦身用医薬品の分析 ― 中岡加陽子, 高木文徳, 高井靖智, 久野恵子	41
3. 和歌山県地場農産物に対応した残留農薬の新規多成分分析法の開発 I ― 高吸水性樹脂を用いた残留農薬の迅速一斉分析法の検討 ― 高井靖智・久野恵子・大畑木の実・中岡加陽子・橋爪崇・山東英幸	48
4. 和歌山県地場農産物に対応した残留農薬の新規多成分分析法の開発 II ― 残留農薬の簡易迅速分析法を用いたドリフト調査について ― 高井靖智・久野恵子・大畑木の実・中岡加陽子・橋爪崇・山東英幸・橋本真穂 林恭弘・森下年起・安井洋子・森本涼子・南方高志・井上博仁	53
5. 黄砂影響調査 木野恵太, 桶谷嘉一, 浴口智行, 大谷一夫	60
6. 梅の生産および梅干し製造を主要産業とする南部川水系古川水域の実態調査 山中典子, 畠中哲也, 河島眞由美, 大畑木の実, 大谷 寛	69

(資 料 編)

IV 資 料

1. 県内における温泉水中のラドン濃度調査

畠中哲也, 山中典子, 大畑木の実, 河島眞由美, 大谷寛…………… 77

V 発 表 業 績

誌上・学会・研究会等の発表 …………… 83

VI 研 究 課 題

平成23年度研究課題一覧 …………… 87

CONTENTS

【Originals】

1. Surveillance for Neuraminidase inhibitor resistance among influenza virus
in Wakayama Prefecture
Fumio Terasoma, Hiroomi Naka and **Kazuto Aoki** 37

2. Examination of Analysis Methods for Approval Unlicensed Drugs
- Analysis of **Slimming** Drugs -
Kayoko Nakaoka, Huminori Takagi, Yasutomo Takai, and Keiko Kuno 41

3. Development of Simultaneous Determination Method of Pesticide Residues
in Agricultural Products in Wakayama
- Studies on Rapid and Simultaneous Determination Method
using Super Absorbent Polymer of Pesticide Residues -
Yasutomo Takai, Keiko Kuno, Konomi Ohata, Kayoko Nakaoka, Takashi Hashizume
and Hideyuki Sando 48

4. Development of Simultaneous Determination Method of Pesticide Residues
in Agricultural Products in Wakayama
- Investigation of Drift by Rapid and
Simultaneous Determination Method of Pesticides -
Yasutomo Takai, Keiko Kuno, Konomi Ohata, Kayoko Nakaoka, Takashi Hashizume,
Hideyuki Sando, Maho Hashimoto, Yasuhiro Hayashi, Toshiki Morishita,
Yoko Yasui, Ryoko Morimoto, Takashi Minakata and Hirohito Inoue 53

5. Survey of Yellow Dust in Wakayama Prefecture
Keita Kino, Yoshikazu Oketani, Tomoyuki Sakoguchi, and Kazuo Otani..... 60

6. Surveys of the Furu River where main industry is the production of plums and pickeld plums	
Noriko Yamanaka, Tetsuya Hatanaka, Mayumi Kawashima, Konomi Ohata and Hiroshi Otani	69

【Notes】

1. An Investigation of Radon Concentration in Hot Springs in Wakayama Prefecture	
Tetsuya Hatanaka, Noriko Yamanaka, Konomi Ohata, Mayumi Kawashima and Hiroshi Otani	77

I 環境衛生研究センターの概要

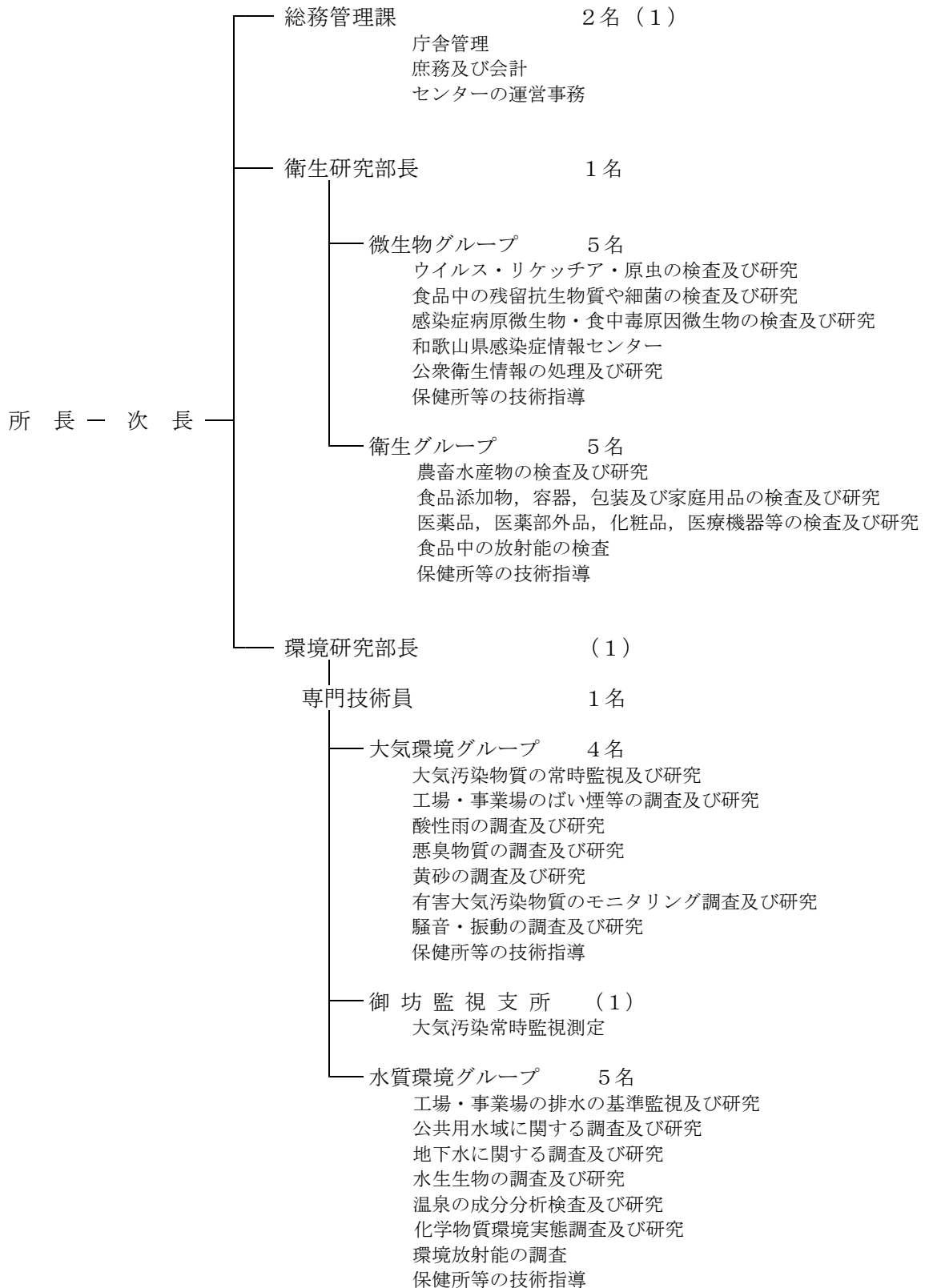
1 沿革

明治13年4月	県警察本署（現警察本部）に衛生課が設置され、和歌山市西汀丁の県庁内に化学を主とする衛生試験所を設置、業務開始。
明治36年1月	衛生試験所（木造平屋建12坪）を建築。
明治36年3月	細菌検査室（木造平屋建36坪）、動物飼育室（木造平屋建8坪）を建築。
昭和13年8月	和歌山市小松原通1丁目1番地（現県庁）に、衛生試験所（木造平屋建135坪）を新築し西汀丁より移転。
昭和14年1月	動物舎（木造平屋建9坪）を併設。
昭和17年11月	官制改正により内政部に移管。
昭和20年7月	戦災による施設全焼のため化学試験室は県工業指導所に、細菌検査室は住友病院内において急場の業務をとる。
昭和21年2月	教育民政部に移管。
昭和22年10月	県庁構内に衛生試験所（木造平屋建162坪）を建築。
昭和23年1月	衛生部創設により細菌検査室は予防課に、化学試験室は薬務課に、乳肉栄養検査室は公衆衛生課にそれぞれ移管。
昭和23年7月	動物舎（木造平屋建9坪）竣工。
昭和24年5月	衛生試験所（木造平屋建70坪）増築。
昭和25年9月	県衛生試験所設置規則により全施設を総合して、県衛生研究所として発足。
昭和40年6月	和歌山市美園町5丁目25番地へ一時移転。
昭和41年10月	東和歌山駅拡大建設に伴い和歌山市徒町1番地に総務課及び化学部、細菌部の内、ウイルス室は市内友田町3丁目21番地の和歌山市医師会成人病センターに、細菌室は友田町3丁目1番地の和歌山市中央保健所に、それぞれ移転。
昭和41年12月	和歌山県衛生研究所設置規則を改正し、総務課を庶務係、経理係に、細菌部を微生物部として、細菌室、ウイルス室、疫学室に、化学部を理化学部として、化学室、食品室、薬品室に分け、公害部を新設し、水質室、大気室、環境室を設置。
昭和42年8月	和歌山県立高等看護学院の庁舎新築移転により、和歌山市医師会成人病センターの微生物部ウイルス室及び和歌山市中央保健所の微生物部細菌室を、それぞれ和歌山市徒町1番地旧県立高等看護学院に移転。
昭和44年2月	和歌山市湊東の坪271の2番地に県衛生研究所（鉄筋3階建延1,198.55m ² ）が竣工し移転。
昭和45年12月	衛生研究所公害部が独立して、公害研究所を設置。
昭和46年2月	公害研究所に県公害対策室直轄の大気汚染常時監視設備を設置。
昭和46年4月	県衛生研究所設置規則を改正して、理化学部を食品薬化学部とし、食品室、薬品化学室を、又生活環境部を設置して、環境室、病理室を設置。
昭和47年1月	大気汚染常時監視設備が県企画部生活環境局公害対策室の直轄となる。
昭和47年11月	公害研究所を廃止して、県公害技術センターを設置。庶務課、大気部、水質部及び騒音振動部に、併せて公害対策室から大気汚染常時監視設備とその業務を引継ぎ、和歌山市湊東の坪271の3番地に竣工した新庁舎に移転。
昭和50年7月	公害技術センターの大気部の一部と騒音振動部を監視騒音部に改組。
昭和51年1月	住居表示変更により、衛生研究所は、和歌山市砂山南3丁目3番47号。公害技術センターは、和歌山市砂山南3丁目3番45号となる。
昭和53年7月	公害行政の一元化に伴い産業廃棄物関連の調査研究業務は、公害技術センター水質部の業務となる。
昭和57年6月	公害技術センターは、県民局から衛生部に移管。
昭和58年4月	御坊市菌字円津255-4に御坊監視支所を開設。
昭和58年6月	機構改革により衛生研究所と公害技術センターを統合、衛生公害研究センターとなり、総務課、保健情報部、微生物部、生活理化学部、大気環境部、水質環境部及び御坊監視支所を置く。
昭和62年4月	保健環境部に移管。
平成2年1月	御坊監視支所を無人化とする。
平成8年4月	生活文化部に移管。
平成12年4月	環境生活部に移管。
平成15年4月	衛生公害研究センターの名称を環境衛生研究センターに改め、総務管理課、衛生研究部、環境研究部及び御坊監視所を置く。衛生研究部に疫学グループ、微生物グループ、衛生グループを、環境研究部に大気環境グループ、水質環境グループを置く。
平成18年4月	微生物グループに疫学グループを統合し、衛生研究部を2グループとする。

2 組 織

(1) 機構と事務分掌

H24. 4. 1現在



※ () 内は兼務職員を示す。

(2) 職員構成

H24.4.5 現在

採用区分	事務	医師	獣医師	薬剤師	環境技師	臨床技師	計
所長					1		1
次長	1						1
研究部長				1	(1)		1 (1)
専門技術員				1			1
総務管理課	2 (1)						2 (1)
微生物グループ				2	2	1	5
衛生グループ				2	2	1	5
大気環境グループ					4		4
(御坊監視支所)					(1)		(1)
水質環境グループ				1	4		5
計	3 (1)			7	13 (2)	2	25 (3)

注 ()内は、兼務職員

(3) 職員名簿

H24.4.5 現在

職名	氏名	職名	氏名	職名	氏名
所長	山本 康司	衛生研究部長	山下 善樹	環境研究部長	(所長)
次長	山本 眞司			専門技術員	内原 弘恵
総務管理課 課長	(次長)	微生物グループ		大気環境グループ 総括主任研究員	大谷 一夫
副主査	上田 祥子*	主任研究員	田中 敬子	副主査研究員	桶谷 嘉一
副主査	羽賀 明	主査研究員	寺杣 文男	研究員	浴口 智行
主事	富永 紗季** *育休 **代替職員	主査研究員	仲 浩臣	研究員	木野 恵太
		副主査研究員	中岡 加陽子	(御坊監視支所) 支所長	(所長)
		副主査研究員	桑田 昭	水質環境グループ 総括主任研究員	畠中 哲也
		衛生グループ 主任研究員	久野 恵子	研究員	大畑 木の実
		主査研究員	河島 眞由美	研究員	山中 典子
		副主査研究員	高良 浩司	研究員	樋下 勝彦
		副主査研究員	上田 幸右	研究員	奥村 幸恵
		研究員	高木 文徳	研究員	

3 事業費・施設等

(1) 事業費等 (H23)

(千円)

事業名	決算額
環境衛生研究センター運営事業	5,703
センター機器整備事業	3,855
試験検査事業	1,727
健康と環境を守る調査研究事業	2,697
環境放射能水準調査事業	59,570
化学物質環境実態調査事業	2,209
温泉等入浴施設におけるレジオネラ属菌の衛生管理に関する研究事業	4,847
行政依頼分等	10,000
計	90,608

(2) 依頼検査収入 (H23)

項目	件数(件)	金額(円)
水質試験	55	405,920
温泉試験	11	981,090
食品・添加物・容器及び包装試験	649	1,958,230
計	715	3,345,240

(3) 施設

東館	所在地	和歌山市砂山南3丁目3番45号
	敷地面積	1,042.60㎡
	建物	
	○本館	
	構造	鉄筋コンクリート造 3階建 屋上一部4階
	建築面積	建築面積 440.48㎡ 延面積 1,352.53㎡
	附帯設備	電気, 都市ガス, 給排水, 空調
	竣工	昭和47年10月
	総工費	91,782千円
	○排水処理棟	
	構造	コンクリートブロック造 平屋建 地下水槽
	建築面積	31.40㎡
	水槽容量	40kℓ, 10kℓ 各1
附帯設備	電気, 給排水	
竣工	昭和50年11月	
総工費	19,900千円	
○車庫		
構造	鉄骨造 平屋造	
建築面積	45.0㎡	
竣工	昭和53年7月	
総工費	1,859千円	
○試料調整棟・図書室		
構造	コンクリートブロック造 2階建	
延面積	59.68㎡	
竣工	昭和56年3月	
総工費	3,622千円	
西館	所在地	和歌山市砂山南3丁目3番47号
	敷地面積	950.51㎡
	建物	
	構造	鉄筋コンクリート造 3階建
	建築面積	建築面積 373.54㎡ 動物舎(屋上) 48㎡ 延面積 1,198.55㎡
	附帯設備	電気, 都市ガス, 給排水, 空調
	竣工	昭和44年1月
総工費	57,600千円	

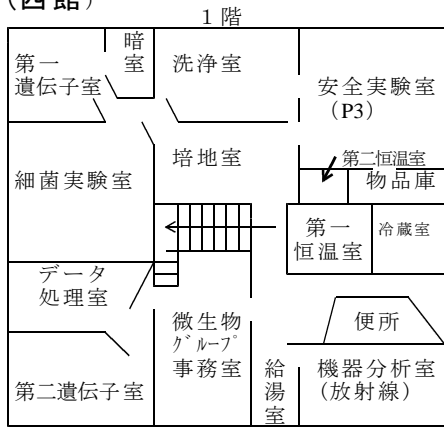


御坊監視支所	所在地	御坊市藪字円津255-4
	敷地面積	632.77㎡
	建物	
	構造	鉄筋コンクリート造 平屋建
	建築面積	243.95㎡
	附帯設備	電気, LPガス, 給排水, 空調
	竣工	昭和57年3月
総工費	44,488千円	

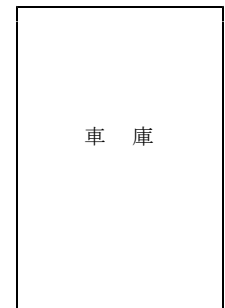
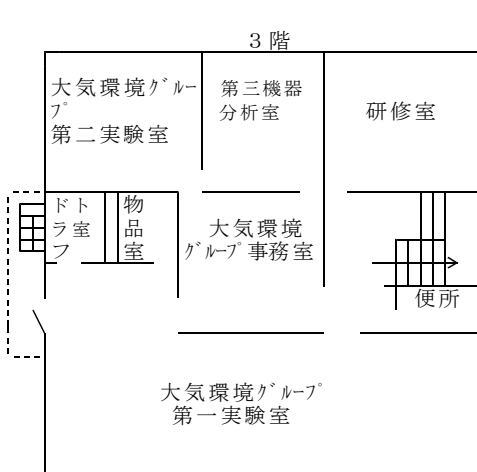
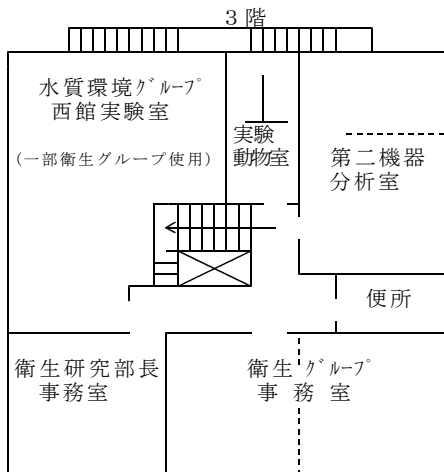
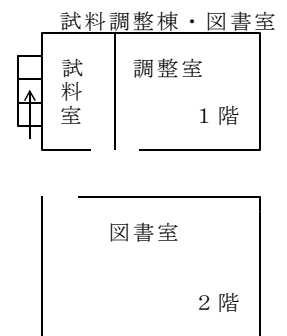
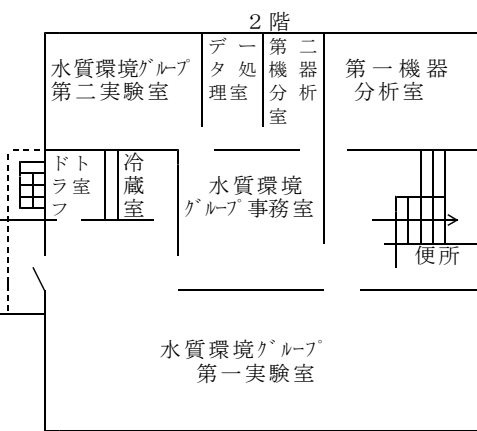
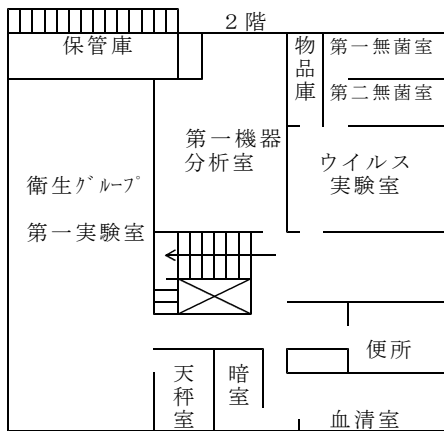
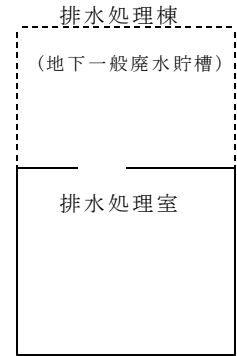
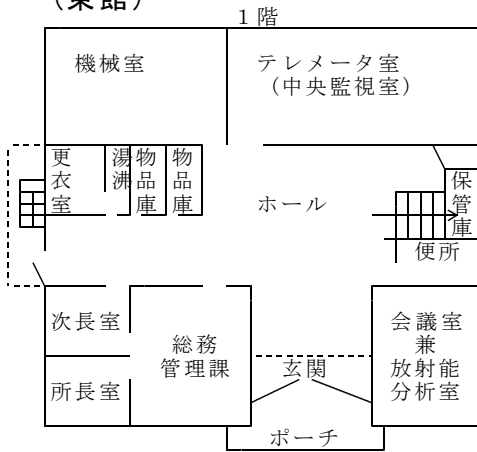
建物平面図

〈和歌山県環境衛生研究センター〉

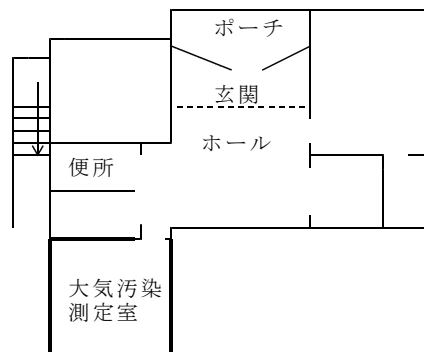
(西館)



(東館)



〈御坊監視支所〉



(4) 主要機器一覧 (H24.3.31現在)

【微生物グループ】

機器名	型 式	数量	設置年月
リアルタイムPCR装置	Applied Biosystems 7900 HT Sequence Detection System	1	H14. 2
DNAシーケンサー	Applied Biosystems 310 Genetic Analyzer	1	H14. 8
超遠心機	日立工機 himac CP70MX	1	H14. 8
陰圧施設	日本医化機械 BH-P3-4A	1	H15.12
高圧蒸気滅菌装置	サクラ精機 ΣⅢ YRZ-O 06S	1	H18. 9
リアルタイムPCR装置	Applied Biosystems 7900 HT Fast Real-Time PCR System	1	H21. 9
DNAシーケンサー	Applied Biosystems 3130 Genetic Analyzer	1	H22. 3
リアルタイム濁度測定装置	栄研化学 2A-320C	1	H22. 7

【衛生グループ】

機器名	型 式	数量	設置年月
TOC計	TELEDYNE TEKMAR Apollo9000HS	1	H16. 3
高速溶媒抽出装置	ダイオネクス ASE-100	1	H16. 3
液体クロマトグラフタンデム質量分析装置	マイクロマス Quattro Ultima Pt	1	H16. 8
ポストカラム法HPLCシステム	日立 L-2130	1	H16. 8
過酸化水素計	ゼネラル科学 オレクターモデル5	1	H17. 8
凍結乾燥機	LABCONCO FreeZone6	1	H17. 8
ガスクロマトグラフ質量分析装置	アジレント・テクノロジー 5975	1	H18. 1
GPC装置	ジーエルサイエンス G-Prep GPC 8100	1	H21. 2
多検体自動濃縮装置	ビュッヒ Syncore Q-101	1	H22. 2
試料粉碎装置	ビュッヒ Mixer B-400	1	H22. 3
ガスクロマトグラフ (ECD FID FPD)	シマズ製作所 GC-2014	1	H22. 3
ガスクロマトグラフタンデム質量分析装置	アジレント・テクノロジー 7000B	1	H22. 3
高速液体クロマトグラフ	ウォータース Acquity UPLC H-Class	1	H22. 9
ゲルマニウム半導体核種分析装置	セイコーイージーアンドジー ORTEC GEM20-70	1	H23. 9

【大気環境グループ】

機器名	型 式	数量	設置年月
ガスクロマトグラフ質量分析装置	日本電子 JMS-AMⅡ15	1	H 8. 3
ガスクロマトグラフ質量分析装置	アジレント・テクノロジー 5973	1	H16. 3
試料導入装置	エンテック 7100A	1	H16. 3
イオンクロマトグラフ	ダイオネクス ICS-2000	1	H20. 9
ICP質量分析装置	パーキン・エルマー ELAN DRC-e	1	H22. 3

【水質環境グループ】

機器名	型 式	数量	設置年月
微量全窒素分析装置	三菱化学 TN-100	1	H10. 9
ヘッドスペースサンプラー付ガスクロマトグラフ質量分析装置	アジレント・テクノロジー 5973N	1	H14. 3
高速液体クロマトグラフ	アジレント・テクノロジー 1100	1	H14.10
ゲルマニウム半導体核種分析装置	セイコーイージーアンドジー ORTEC GEM-20P4-X	1	H16. 1
全窒素・全りん自動分析装置	B Lテック QuAAtro 2-HR	1	H20. 1
原子吸光分析装置	日立 Z-2010	1	H22. 2
低バックグラウンド放射能自動測定装置	アロカ LBC-4202B	1	H22. 3
ゲルマニウム半導体核種分析装置	セイコーイージーアンドジー ORTEC GEM25-70	1	H24. 3

Ⅱ 事業概要

1. 測定検査等事業

1) 微生物グループ

(1) 感染症発生動向調査（患者情報）

感染症発生動向調査は、平成11年4月1日に施行された「感染症の予防及び感染症の患者に対する医療に関する法律」（以下、感染症法）の第三章「感染症に関する情報の収集と公表」の第12条から第16条に基づいて実施される事業であり、詳細については「感染症発生動向調査事業実施要綱」に定められている。和歌山県では、これを受けて「和歌山県感染症発生動向調査事業実施要綱」を策定しこの事業を実施している。この要綱において当センターは感染症の患者報告数集計とその解析を担当している。

この調査の対象となる感染症については、平成23年2月1日の感染症施行令及び施行規則の一部改正によりチクングニア熱が4類感染症に、薬剤耐性アシネトバクター感染症が5類感染症（定点把握対象）に追加され、105疾病（一～五類感染症、新型インフルエンザ等感染症、感染症法14条第1項に規定する厚生労働省令で定める疑似症）となった。

平成23年（1月～12月）の感染症発生動向調査による感染症別保健所別報告数は表1-1のとおりであった。

表1-1. 疾病別保健所別報告数（平成23年）

感染症名	保健所	和歌山市	海南	岩出	橋本	湯浅	御坊	田辺	新宮	新宮 (串本支所)	県計
二類 結核		239	40	35	29	36	26	31	22	3	461
三類 細菌性赤痢				1							1
腸管出血性大腸菌感染症		5			1				1		7
四類 E型肝炎		1									1
A型肝炎		1									1
つつが虫病							1	5			6
日本紅斑熱		1		1				5	8	6	21
レジオネラ症		1	1								2
五類 アメーバ赤痢		2		1	1						4
クロイツフェルト・ヤコブ病		2									2
劇症型溶血性レンサ球菌感染症		2						1			3
後天性免疫不全症候群		4		1	1		1	1			8
ジアルジア症		1									1
梅毒		3				1					4
破傷風		2									2
計		264	41	39	32	37	28	43	31	9	524
定点把握・週報											
インフルエンザ (鳥インフルエンザ及び新型インフルエンザ等感染症を 除く)	(15)	2367	(3) 254	(6) 1270	(6) 1060	(5) 759	(3) 283	(7) 1089	(3) 271	(2) 104	(50) 7457
RSウイルス感染症	(9)	207	(2) 13	(4) 222	(4) 49	(3) 14	(2) 100	(4) 90	(2) 33	(1) 0	(31) 728
咽頭結膜熱	(9)	94	(2) 5	(4) 221	(4) 11	(3) 7	(2) 68	(4) 83	(2) 0	(1) 0	(31) 489
A群溶血性レンサ球菌咽頭炎	(9)	243	(2) 56	(4) 201	(4) 111	(3) 54	(2) 155	(4) 291	(2) 85	(1) 0	(31) 1196
感染性胃腸炎	(9)	3059	(2) 673	(4) 939	(4) 330	(3) 222	(2) 187	(4) 412	(2) 526	(1) 6	(31) 6354
水痘	(9)	760	(2) 81	(4) 271	(4) 176	(3) 230	(2) 64	(4) 306	(2) 88	(1) 2	(31) 1978
手足口病	(9)	1083	(2) 190	(4) 329	(4) 196	(3) 377	(2) 152	(4) 487	(2) 161	(1) 6	(31) 2981
伝染性紅斑	(9)	486	(2) 44	(4) 138	(4) 44	(3) 205	(2) 15	(4) 66	(2) 26	(1) 0	(31) 1024
突発性発疹	(9)	300	(2) 46	(4) 199	(4) 34	(3) 122	(2) 28	(4) 100	(2) 28	(1) 0	(31) 857
百日咳	(9)	7	(2) 3	(4) 2	(4) 2	(3) 0	(2) 6	(4) 2	(2) 0	(1) 0	(31) 22
ヘルパンギーナ	(9)	216	(2) 87	(4) 270	(4) 49	(3) 208	(2) 34	(4) 166	(2) 155	(1) 0	(31) 1185
流行性耳下腺炎	(9)	443	(2) 39	(4) 231	(4) 136	(3) 142	(2) 115	(4) 57	(2) 9	(1) 1	(31) 1173
急性出血性結膜炎	(3)	1						(1) 0			(4) 1
流行性角結膜炎	(3)	62						(1) 0			(4) 62
細菌性髄膜炎	(3)	3		(1) 0	(2) 4	(1) 0	(1) 0	(2) 3	(1) 0		(11) 10
無菌性髄膜炎	(3)	8		(1) 2	(2) 2	(1) 0	(1) 1	(2) 2	(1) 0		(11) 15
マイコプラズマ肺炎	(3)	28		(1) 29	(2) 6	(1) 0	(1) 53	(2) 49	(1) 12		(11) 177
クラミジア肺炎(オウム病を除く。)	(3)	0		(1) 0	(2) 6	(1) 0	(1) 0	(2) 2	(1) 0		(11) 8
計		9367	1491	4324	2216	2340	1261	3205	1394	119	25717
定点把握・月報											
性器クラミジア感染症	(4)	67		(1) 65	(1) 9	(1) 2		(1) 20			(8) 163
性器ヘルペスウイルス感染症	(4)	41		(1) 6	(1) 8	(1) 1		(1) 2			(8) 58
尖圭コンジローマ	(4)	35		(1) 3	(1) 4	(1) 0		(1) 4			(8) 46
淋菌感染症	(4)	48		(1) 4	(1) 10	(1) 0		(1) 11			(8) 73
メチシリン耐性黄色ブドウ球菌感染症	(3)	160		(1) 15	(2) 29	(1) 16	(1) 53	(2) 21	(1) 0		(11) 294
ペニシリン耐性肺炎球菌感染症	(3)	24		(1) 0	(2) 0	(1) 0	(1) 1	(2) 0	(1) 0		(11) 25
薬剤耐性緑膿菌感染症	(3)	1		(1) 0	(2) 1	(1) 1	(1) 0	(2) 2	(1) 0		(11) 5
薬剤耐性アシネトバクター感染症 (2011年2月～)	(3)	0		(1) 0	(2) 0	(1) 0	(1) 0	(2) 0	(1) 0		(11) 0
計		376		93	61	20	54	60	0		664

()は定点医療機関数

平成23年においては、二類感染症1疾病、三類感染症2疾病、四類感染症5疾病、五類感染症（全数把握対象）7疾病、五類感染症（定点把握対象）25疾病、計40疾病について報告があった。

二類から五類（全数把握対象）感染症の患者報告数については、二類感染症461名（結核のみ）、三類感染症8名（細菌性赤痢1名、腸管出血性大腸菌感染症7名）、四類感染症31名（E型肝炎1名、A型肝炎1名、つつが虫病6名、日本紅斑熱21名、レジオネラ症2名）、五類感染症（全数把握対象）24名（アメーバ赤痢4名、クロイツフェルト・ヤコブ病2名、劇症型溶血性レンサ球菌感染症3名、後天性免疫不全症候群8名、ジアルジア症1名、梅毒4名、破傷風2名）であった。二類から五類（全数把握対象）感染症の報告数合計は平成22年は360名であったが、平成23年は524名となっており、報告数は大きく増加した。これは、結核が平成22年は262名であったが、平成23年は461名と大幅に増加したとことが影響している。その他、三類感染症の腸管出血性大腸菌感染症や四類感染症のつつが虫病は大きく患者報告数が減少した。

五類感染症（定点把握・週報）については、平成22年より874名多い計25,717名の患者報告があった。平成22年と比較し大幅に増加（1.5倍以上かつ50名以上の増加）した疾病はインフルエンザ、咽頭結膜熱、手足口病、伝染性紅斑、マイコプラズマ肺炎であり、大幅に減少（50%以下かつ50名以上の減少）した疾病は流行性耳下腺炎であった。

五類感染症（定点把握・月報）については平成22年より47名少ない計664名の患者報告があり、大幅に増加または減少した疾病はなかった。STD定点把握では性器クラミジア感染症が、基幹定点把握ではメチシリン耐性黄色ブドウ球菌感染症が最も患者報告数が多かった。

(2) 行政検査

平成23年度に実施した行政検査の内容及び検査数は表1-2のとおりであった。

表1-2. 行政検査の内容及び検査数

依頼者	内 容	検 体 数	延検査数
難病・感染症対策課	感染症流行予測調査事業		
	ポリオ感染源調査(ヒトからのウイルス分離)	60	60
	感染症発生動向調査事業		
	病原体の検出	357	1071
	腸管出血性大腸菌の検査	4	4
食品・生活衛生課	つつが虫病及び日本紅斑熱診断検査	33	95
	食中毒(疑いを含む)発生に伴う病原体の検査	130	244
	第62回全国植樹祭・行幸啓に係る検便検査	50	200
	畜水産物中の残留抗生物質の検査	120	360
	流通食品の腸管出血性大腸菌O157・O26の検査	60	120
	流通食品の腸炎ビブリオの検査	8	8
	流通食品のサルモネラ・エンテリティディスの検査	40	40
	流通食品のカンピロバクターの検査	40	40
	流通食品のリステリアの検査	10	10
	生食用かきの成分規格試験および汚染実態調査	20	40
	生めん類の汚染実態調査	20	60
	アイスクリーム類の汚染実態調査	20	40
	食鳥処理場の汚染実態調査	114	114
	野生鳥獣肉(ジビエ肉)の汚染実態調査	44	132
	井戸水の検査	9	18
	マダニ類の紅斑熱群リケッチア保有実態調査	82	328
	第62回全国植樹祭に係る施設のレジオネラ属菌の検査	58	58
	一般公衆浴場の浴槽水検査	2	2
台風12号被災に係る温泉のレジオネラ属菌の検査	4	4	
	計	1285	3048

a) 感染症流行予測調査事業

感染症流行予測調査では、「ポリオ感染源調査」として8月に採取された1歳から6歳児の便60検体からウイルスの検出を行ったが、ポリオウイルスは検出されなかった。

ポリオ感染源調査結果については表1-3および表1-4のとおりであった。

表1-3. ポリオ感染源調査結果票(年齢別・性別・型別 集計結果)

年 齢	男						女					
	分離陰性	I型	II型	III型	ポリオ以外	計	分離陰性	I型	II型	III型	ポリオ以外	計
0歳					1	1						0
1歳	1				8	9	2				4	6
2歳	2				2	4	4				1	5
3歳	8					8	3				3	6
4歳					4	4	4					4
5歳	4					4	7					7
6歳	1					1	1					1
計	16				15	31	21				8	29

表1-4. ポリオ感染源調査ウイルス分離結果

	0歳	1歳	2歳	3歳	4歳	5歳	6歳	合計
Parechovirus 1	1	2						3
Parechovirus 3				2	1			3
Echovirus 25		10	2	1	3			16
Adenovirus 2			1					1

b) 感染症発生動向調査事業

(a) 病原ウイルスの検出(表1-5)

臨床材料357検体からウイルス検出を行い、8種類250株のウイルスを検出した。

表1-5. 感染症発生動向調査病原体検出状況(H23年度受付分)

	H23年										H24年			合 計
	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月	3月		
感 染 性 胃 腸 炎	7	25								22		10	64	
Norovirus GI													0	
Norovirus GII	6	7								17		3	33	
Rotavirus A											4		4	
イ ン フ ル エ ン ザ	9	2	1					3	13	156	3	5	192	
Influenza virus A(H1pdm)													0	
Influenza virus A(H3)	1		1					1	11	121	2	4	141	
Influenza virus B	6	2								3	1		12	
手 足 口 病		6	44	21	6								77	
Coxsackievirus A6		3	34	15	3								55	
Coxsackievirus A16					2								2	
Echovirus25				1									1	
Parechovirus3				2									2	
無 菌 性 髄 膜 炎						1	2						3	
そ の 他	3	6	2		3						3	3	21	
合 計													0	
検 体 数	19	39	47	21	9	1	2	3	35	159	16	6	357	
検 出 病 原 体 数	13	12	35	18	5	0	0	1	28	124	10	4	250	

(b) 腸管出血性大腸菌の検査

便4検体の検査を実施したが、すべて腸管出血性大腸菌陰性であった。

(c) つつが虫病および日本紅斑熱診断検査(表1-6)

依頼のあった33症例について検査を行った。日本紅斑熱について20例でPCR法による*R.japonica*遺伝子の増幅、または間接蛍光抗体法による抗体価の有意な上昇を確認した。なお、つつが虫病については検出されなかった。

表1-6. つつが虫病および日本紅斑熱診断結果

No	疾病名	保健所	年齢	性別	発病日	診断方法
1	日本紅斑熱	田辺保健所	77	女	H23.5.7	遺伝子検出
2	日本紅斑熱	岩出保健所	68	男	H23.5.31	遺伝子検出
3	日本紅斑熱	田辺保健所	64	女	H23.6.11	遺伝子検出
4	日本紅斑熱	田辺保健所	60	女	H23.6.19	遺伝子検出
6	日本紅斑熱	田辺保健所	67	女	H23.7.5	遺伝子検出
5	日本紅斑熱	田辺保健所	90	女	H23.7.13	血清診断法
7	日本紅斑熱	新宮保健所	74	女	H23.7.24	遺伝子検出
8	日本紅斑熱	新宮保健所	76	女	H23.8.7	遺伝子検出
9	日本紅斑熱	新宮保健所	70	女	H23.8.7	血清診断法
10	日本紅斑熱	新宮保健所	70	男	H23.8.12	遺伝子検出
11	日本紅斑熱	新宮保健所	65	女	H23.8.30	遺伝子検出
12	日本紅斑熱	新宮保健所串本支所	81	女	H23.9.5	遺伝子検出
13	日本紅斑熱	新宮保健所串本支所	71	女	H23.9.13	血清診断法
14	日本紅斑熱	新宮保健所	73	女	H23.9.17	遺伝子検出
15	日本紅斑熱	新宮保健所串本支所	83	女	H23.9.19	血清診断法
16	日本紅斑熱	和歌山市保健所	40	女	H23.10.3	遺伝子検出
17	日本紅斑熱	新宮保健所串本支所	77	女	H23.10.18	血清診断法
18	日本紅斑熱	新宮保健所	71	男	H23.10.24	遺伝子検出
19	日本紅斑熱	新宮保健所串本支所	58	男	H23.11.12	血清診断法
20	日本紅斑熱	新宮保健所	46	男	H23.11.24	遺伝子検出

c) 食中毒(疑いを含む)発生に伴う病原体の検査(表1-7)

*Campylobacter jejuni*2例を検出した。ノロウイルスについてはリアルタイムPCR法によりG I 14例、G II 7例の遺伝子を検出した。

表1-7. 食中毒(疑い)発生事例

番号	保健所	依頼日	原因施設	検体種別	検体数	原因病原体	備考	
1	岩出, 橋本	H23.4.21	不明	便(喫食者)	2	Norovirus G II (1/2)	他府県発生事例	
2	岩出	H23.5.26	飲食店	便(喫食者)	2	<i>Campylobacter jejuni</i> (2/2)		
				便(調理従事者)	3			陰性
				拭き取り	6			陰性
3	橋本	H23.7.18	不明	便(喫食者)	5	陰性		
				便(調理従事者)	2	陰性		
4	田辺	H23.7.21 H23.7.22	飲食店	便(喫食者)	5	陰性		
				便(調理従事者)	2	陰性		
				食材	1	陰性		
5	田辺	H23.7.22 H23.7.23	飲食店	便(喫食者)	4	陰性		
				便(調理従事者)	3	陰性		
				拭き取り	10	陰性		
				食材	2	陰性		
6	御坊	H23.8.12	不明	便(喫食者)	2	陰性	他府県発生事例	
7	湯浅	H23.10.13	不明	便(喫食者)	1	陰性	他府県発生事例	
8	岩出, 橋本, 海南	H23.12.20	飲食店	便(喫食者)	13	Norovirus G I (13/13)及びNorovirus G II (6/13)		
				便(調理従事者)	8	Norovirus G I (1/8)		
9	橋本	H23.12.28 H24.1.10	飲食店	便(喫食者)	18	Norovirus G II (11/18)		
				嘔吐物(喫食者)	1	Norovirus G II (1/1)		
				便(調理従事者)	16	Norovirus G II (3/16)		
10	田辺	H24.1.19	不明	便(調理従事者)	3	陰性		
				拭き取り	15	Norovirus G II (1/15)		
11	岩出	H24.1.27	飲食店	便(喫食者)	2	Norovirus G II (2/2)		
12	湯浅	H24.3.12	飲食店	便(喫食者)	2	Norovirus G II (1/2)		
13	田辺	H24.3.31	飲食店	便(喫食者)	2	Norovirus G II (1/2)		

d) 第62回全国植樹祭・行幸啓に係る検便検査

関係者50名について赤痢菌, サルモネラ菌, 腸管出血性大腸菌およびノロウイルスの検査を行った結

果、すべての検査項目について陰性であった。

e) 畜水産物中の残留抗生物質の検査

食肉、鶏卵、養殖魚介類および蜂蜜合計120検体の検査を行った結果、すべてにおいて抗生物質(テトラサイクリン系、マクロライド系、アミノグリコシド系)は検出されなかった。

f) 流通食品の腸管出血性大腸菌O157およびO26の検査

食肉および食肉製品合計60検体の検査を行った結果、すべてにおいて腸管出血性大腸菌O157およびO26は検出されなかった。

g) 流通食品の腸炎ビブリオの検査

生食用鮮魚介類8検体の検査を行った結果、すべて成分規格に適合していた。

h) 流通食品の *Salmonella* Enteritidis の検査

食肉、鶏卵および生洋菓子合計40検体の検査を行った結果、すべてにおいて *Salmonella* Enteritidis は検出されなかった。

i) 流通食品のカンピロバクターの検査

鶏肉40検体の検査を行った結果、22検体から *Campylobacter jejuni* が検出された。

j) 流通食品のリステリアの検査

生乳および乳製品10検体の検査を行った結果、すべてにおいて *Listeria monocytogenes* は検出されなかった。

k) 生食用かきの成分規格試験および汚染実態調査

20検体のうち10検体について成分規格検査(生菌数、大腸菌、腸炎ビブリオ)、残り10検体についてノロウイルスの検査を行った。

検査結果は成分規格検査についてはすべて適合した。ノロウイルスについては、2検体からG II が検出された。

l) 生めん類の汚染実態調査

20検体について生菌数、大腸菌(ゆでめんの場合は大腸菌群)、黄色ブドウ球菌の検査を行った結果、すべて衛生規範の基準値内であった。

m) アイスクリーム類の汚染実態調査

20検体について生菌数、大腸菌群の検査を行った結果、1検体が大腸菌群陽性で衛生規範の基準値に該当しなかった。

n) 食鳥処理場の汚染実態調査

11カ所の食鳥処理場の食鳥拭き取り物114検体についてカンピロバクターの検査を行った結果、87検体から *Campylobacter jejuni* が検出された。

o) 野生鳥獣肉(ジビエ肉)の汚染実態調査

44検体についてE型肝炎ウイルス、カンピロバクター、腸管出血性大腸菌O157の検査を行った結果、すべて陰性であった。

p) 井戸水の検査

9検体について一般細菌、大腸菌の検査を行った結果、3検体が水質基準に不適合であった。

q) マダニ類の紅斑熱群リケッチア保有状況調査(表1-8)

表1-8. マダニ類の紅斑熱群リケッチア保有状況調査

保健所	種	検査数	Rickettsia spp.
串本	フタトゲチマダニ	62	41
	ツノチマダニ	9	0
	タカサゴチマダニ	9	0
	タイワンカクマダニ	1	0
	オオトゲチマダニ	1	0
	計		82

県内で採取されたマダニ類、5種計82個体についてリケッチア遺伝子の保有状況を調べた。41個体で紅斑熱群リケッチア遺伝子が確認されたが、日本紅斑熱の病原体である*R.japonica*は検出されなかった。

r) 第62回全国植樹祭に係る施設のレジオネラ属菌の検査

浴槽水47検体の検査を行った結果、4検体から*Legionella pneumophila*が検出された。

なお、レジオネラ属菌が検出された施設については、再検査(11検体)を行い基準値内であることを確認した。

s) 一般公衆浴場の浴槽水検査

22年度に実施したレジオネラ属菌検査で基準値を超えた2検体について再検査を行った結果、2検体とも基準値内であった。

t) 台風12号による被害状況調査に係る温泉水の水質検査

4検体についてレジオネラ属菌検査を行った結果、2検体が基準値をこえた。

(3) 依頼検査

平成23年度に実施した依頼検査は表1-9のとおりであった。

(4) GLP（業務管理基準）の実施

外部精度管理

(財)食品薬品安全センターが実施する外部精度管理調査に参加し、大腸菌群および黄色ブドウ球菌判定検査の精度管理を実施したところ、結果はすべて良好であった。

表1-9. 依頼検査

種別	検体数	検査項目	検査数
食 品	180	一般生菌数	178
		大腸菌群(定性)	166
		真菌数	146
		サルモネラ	13
		黄色ブドウ球菌	22
		クロストリジウム	13
		芽胞数	97
		大腸菌(定性)	15
		セレウス菌	13
		腸炎ビブリオ	4
その他	6	一般生菌数	5
		大腸菌群(定性)	5
		大腸菌群(定量)	1
計	186		678

2) 衛生グループ

(1) 行政検査

平成23年度に行った食品、医薬品等の行政検査は644検体(延検査項目数27,583)で、その内容

表2-1. 行政検査

区分	内容	検体数	延検査数
食品・生活衛生課	食品関係		
	食品添加物検査(過酸化水素、ソルビン酸等)	341	2,276
	残留農薬検査(農産物中の有機リン系農薬等)	110	23,000
	残留動物用医薬品検査(畜水産物中の合成抗菌剤)	110	1,980
	おもちゃ検査(乳幼児用おもちゃ塗膜の鉛、カドミウム)	10	26
	鯨類・マグロ類等のメチル水銀調査	10	10
	牛肉の放射能検査	15	30
	外部精度管理(GLPに関する業務)	6	30
	衛生関係苦情処理(吐瀉物)	1	115
	家庭用品等		
	家庭用品検査(乳幼児用衣類中のホルムアルデヒド)	10	15
水質関係			
	井戸水の水質検査	10	80
薬務課	医薬品等検査(定量試験)	1	1
	外部精度管理	20	20
	計	644	27,583

は表2-1のとおりであった。

a) 食品関係

(a) 食品添加物検査(表2-2)

i) 殺菌料(過酸化水素)

しらす6検体について過酸化水素の定量試験を行った。

その結果、すべての検体から過酸化水素(0.2~0.7mg/kg)を検出したが、いずれも天然由来のものと判断した。

また、しらす34検体について、食品衛生監視員が行う過酸化水素簡易試験キットを作成し、指導を行った。その内の1検体において過酸化水素の使用が疑われ、当センターで定量試験を行った結果、過酸化水素5.5 mg/kgを検出した。

ii) 保存料(ソルビン酸、安息香酸、デヒドロ酢酸、パラオキシ安息香酸、パラオキシ安息香酸メチル)

醤油、清涼飲料水、食肉製品、魚肉ハム・ソーセージ、魚肉ねり製品、菓子、低塩梅干各10検体、油脂・バター・マーガリン7検体、魚介乾製品13検体合計90検体について、延べ570項目の定量試験を行った。

その結果、食肉製品5検体、魚肉ねり製品6検体及び魚介乾製品1検体からソルビン酸(0.29~1.7 g/kg)、醤油3検体からパラオキシ安息香酸ブチル(パラオキシ安息香酸として0.032~0.041g/kg)を検出したが、いずれも使用基準値以下であり、他はすべて定量下限値未満であった。

また、低塩梅干10検体から安息香酸(2.4~9.4mg/kg)を検出したが、いずれも天然由来のものと判断した。

iii) 発色剤(亜硝酸根)

食肉製品、魚肉ハム・ソーセージ各10検体合計20検体について、亜硝酸根の定量試験を行った。

その結果、食肉製品10検体及び魚肉ハム・ソーセージ1検体から亜硝酸根(0.001~0.023g/kg)を

検出したが、いずれも使用基準値以下であり、他はすべて定量下限値未満であった。

表2-2. 食品添加物検査

項目名	品名	検体数	検出数	検出値		
殺菌科	過酸化水素 (mg/kg)	釜揚げしらす	6	6	0.2~0.7	
	過酸化水素 (簡易試験)	釜揚げしらす	34	1	5.5 mg/kg(酸素電極法にて確認)	
保存料	ソルビン酸 (g/kg)	醤油	10	0	0.75~1.6	
		清涼飲料水	10	0		
		食肉製品	10	5		
		魚肉ハム・ソーセージ	10	0		
		魚肉ねり製品	10	6		
		菓子	10	0	0.71~1.7	
		油脂、バター、マーガリン	7	0		
		魚介乾製品	13	1		
		低塩梅干	10	0		
		0.29				
	安息香酸 (g/kg)	醤油	10	0	2.4~9.4 mg/kg(天然由来)	
		清涼飲料水	10	0		
		食肉製品	10	0		
		魚肉ハム・ソーセージ	10	0		
		魚肉ねり製品	10	0		
菓子		10	0			
油脂、バター、マーガリン		7	0			
魚介乾製品		13	0			
低塩梅干		10	10			
0.29						
デヒドロ酢酸 (g/kg)	菓子	10	0			
	油脂、バター、マーガリン	7	0			
	魚介乾製品	13	0			
	低塩梅干	10	0			
パラオキシ安息香酸 (g/kg)	醤油	10	3	0.032~0.041 (パラオキシ安息香酸βチル)		
	清涼飲料水	10	0			
	食肉製品	10	0			
	魚肉ハム・ソーセージ	10	0			
	魚肉ねり製品	10	0			
パラオキシ安息香酸メチル (g/kg)	醤油	10	0			
	清涼飲料水	10	0			
	食肉製品	10	0			
	魚肉ハム・ソーセージ	10	0			
	魚肉ねり製品	10	0			
発色剤	亜硝酸根 (g/kg)	食肉製品	10	10	0.003~0.023	
		魚肉ハム・ソーセージ	10	1	0.001	
防かび剤	イマザリル (g/kg)	レモン	5	5	0.0009~0.0016	
		グレープフルーツ	5	5	0.0006~0.0024	
		オレンジ類	4	4	0.0011~0.0023	
		バナナ	6	0		
	チアベンダゾール (g/kg)	レモン	5	0	0.001	
		グレープフルーツ	5	0		
		オレンジ類	4	2		
		バナナ	6	0		
	オルトフェニルフェノール (g/kg)	レモン	5	0	0.001~0.002	
		グレープフルーツ	5	2		
オレンジ類		4	0			
バナナ		6	0			
ジフェニル (g/kg)	レモン	5	0			
	グレープフルーツ	5	0			
	オレンジ類	4	0			
	バナナ	6	0			
甘味料	サッカリンナトリウム (g/kg)	醤油	10	1	0.28 (サッカリンナトリウム)	
	アセスルファムカリウム (g/kg)	清涼飲料水	10	0		
	アスパルテーム (g/kg)	魚肉ねり製品	10	0		
	ズルチン (g/kg)	アイスクリーム	5	0		
		氷菓	5	0		
酸化防止剤	BHA, BHT, PG, OG, DG, TBHQ, NDGA, HMBP (各g/kg)	菓子	10	0	0.038 (BHA)	
		油脂、バター、マーガリン	7	0		
		魚介乾製品	13	1		
着色料	食用赤色2号, 食用赤色3号, 食用赤色40号, 食用赤色102号, 食用赤色104号, 食用赤色105号, 食用赤色106号, 食用黄色4号, 食用黄色5号, 食用緑色3号, 食用青色1号, 食用青色2号, 旧食用赤色1号, 旧食用赤色4号, 旧食用赤色101号, 旧食用赤色103号, 旧食用黄色1号, 旧食用橙色1号, 旧食用紫色1号, アシッドブルー1, アシッドブルー3 ナトリウム, アシッドレッド1, アゾルビン, アミドブラック10B, オレンジII, オレンジG, キシレンイエロー, キノリンイエロー, グリーンS, クロセインオレンジG, トロペオリンO, パテントグリーン, ファーストレッドE, ブラックPN	醤油	10	0	食用赤色102号 食用赤色102号	
		清涼飲料水	10	0		
		氷菓 ※1	5	0		
		魚介乾製品 ※2	4	3		
		低塩梅干 ※3	6	2		
		※1 食用赤色105号, ブラックPNを除く				
		※2 食用赤色105号, 食用青色2号を除く				
※3 食用青色2号を除く						

iv) 防かび剤(イマザリル, チアベンダゾール, オルトフェニルフェノール, ジフェニル)

レモン, グレープフルーツ各5検体, オレンジ類4検体, バナナ6検体合計20検体について, 延べ80項目の定量試験を行った。

その結果, バナナを除くすべての検体からイマザリル(0.0006~0.0024g/kg), グレープフルーツ2検体からオルトフェニルフェノール(0.001~0.002g/kg), オレンジ類2検体からチアベンダゾール(0.001g/kg)を検出したが, いずれも使用基準値以下であり, 他はすべて定量下限値未満であった。

v) 甘味料(サッカリンナトリウム, アセスルファムカリウム, アスパルテーム, ズルチン)

醤油, 清涼飲料水, 魚肉ねり製品各10検体, アイスクリーム, 氷菓各5検体合計40検体について, 延べ160項目の定量試験を行った。

その結果, 醤油1検体からサッカリンナトリウム(0.28g/kg)検出したが, 使用基準値未満であり, 他はすべて定量下限値未満であった。

vi) 酸化防止剤(BHA, BHT, PG, OG, DG, TBHQ, NDGA, HMBP)

菓子10検体, 油脂・バター・マーガリン7検体, 魚介乾製品13検体合計30検体について, 延べ240項目の定量試験を行った。

その結果, 魚介乾製品1検体からBHA(0.038g/kg)を検出したが, 使用基準値以下であり, 他はすべて定量下限値未満であった。

vii) 着色料(食用赤色2号, 同3号, 同40号, 同102号, 同104号, 同105号, 同106号, 食用黄色4号, 同5号, 食用緑色3号, 食用青色1号, 同2号, 旧食用赤色1号, 同4号, 同101号, 同103号, 旧食用黄色1号, 旧食用橙色1号, 旧食用紫色1号, アシッドブルー1, アシッドブルー3ナトリウム, アシッドレッド1, アズルピン, アミドブラック10B, オレンジII, オレンジG, キシレンイエロー, キノリンイエロー, グリーンS, クロセインオレンジG, トロペオリンO, パテントグリーン, ファーストレッドE, ブラックPN, 合計34項目)

醤油, 清涼飲料水各10検体, 氷菓5検体, 魚介乾製品4検体, 低塩梅干6検体合計35検体について, 延べ1,166項目の定性試験を行った。

その結果, 魚介乾製品3検体と低塩梅干2検体から食用赤色102号を検出したが, いずれも使用基準に適合していた。その他の検体からはいずれも検出されなかった。

(b) 残留農薬検査(227項目)

県内産農産物69検体, 県外産農産物18検体, 輸入農産物23検体合計110検体(表2-3)について, 227項目の農薬成分(表2-4)延べ23,000項目の試験を行った。

その結果, 表2-5のとおり24項目の農薬成分を検出したが, いずれも残留基準値未満であり, 他はすべて定量下限値未満であった。

表2-3. 残留農薬検査の農産物と検体数

農作物名	検体数	県内産	県外産	輸入品
レモン	5	0	0	5
グレープフルーツ	5	0	0	5
オレンジ	4	0	0	4
バナナ	6	0	0	6
ぶどう	11	10	1	0
トマト	5	3	2	0
きゅうり	11	9	2	0
ピーマン	12	9	3	0
かき	13	13	0	0
なす	12	6	6	0
キウイ	11	8	1	2
ブロッコリー	15	11	3	1
計	110	69	18	23

表2-4. 残留農薬検査項目

農薬名	農薬名	農薬名	農薬名
1 α-BHC	58 クロマゾン	115 トリアゾホス	172 フルアクリピリム
2 β-BHC	59 クロルピリホス	116 トリアレート	173 フルキンコナゾール
3 γ-BHC	60 クロルピリホスメチル	117 トリクロルホン ²⁾	174 フルジオキシニル
4 δ-BHC	61 クロルフェナピル	118 トリブホス	175 フルシトリネート
5 p,p'-DDD	62 クロルフェンビンホス (E体)	119 トリフルラリン	176 フルシラゾール
6 p,p'-DDE	63 クロルフェンビンホス (Z体)	120 トリフロキシストロピン	177 フルトラニル
7 o,p'-DDT	64 クロルブファム ^{3,4)}	121 トルクロホスメチル	178 フルトリアホール
8 p,p'-DDT	65 クロルプロファム	122 トルフェンピラド	179 フルパリネート ^{1,2,3)}
9 EPN	66 クロロベンジレート	123 ナプロパミド	180 フルミオキサジン
10 EPTC ^{1,2)}	67 シアナジン	124 ニトロタールイソプロピル ⁴⁾	181 プレチラクロール
11 TCMTB ⁴⁾	68 シアノホス ^{3,4)}	125 ノルフルラゾン	182 プロシミドン
12 XMC	69 ジェトフェンカルブ	126 パクロブトラゾール	183 プロチオホス
13 アクリナトリン ^{1,2,3)}	70 ジクロフェンチオン	127 パラチオン	184 プロパクロール
14 アザコナゾール	71 ジクロフルアニド	128 パラチオンメチル	185 プロパジン
15 アジンホスメチル	72 ジクロホップメチル	129 ハルフェンブロックス	186 プロパニル
16 アセタミプリド	73 ジクロラン	130 ビテルタノール	187 プロバルギット
17 アセトクロール	74 ジノテフラン ^{1,2,3)}	131 ビフェノックス	188 プロピコナゾール
18 アゾキシストロピン	75 γ-シハロトリン	132 ビフェントリン	189 プロピザミド
19 アトラジン	76 λ-シハロトリン	133 ピペロホス	190 プロヒドロキサモン ⁴⁾
20 アニロホス	77 シハロホップブチル ⁴⁾	134 ピラクロホス	191 プロフェノホス
21 アメトリン	78 ジフェナミド	135 ピラゾホス ^{1,2,3)}	192 プロポキシル
22 アラクロール	79 ジフェノコナゾール	136 ピラフルフェンエチル	193 プロメトリン
23 イサゾホス	80 シフルトリン	137 ピリダフェンチオン	194 プロモブチド ⁴⁾
24 イソキサチオン ^{1,2,3)}	81 シプロコナゾール	138 ピリダベン	195 プロモプロピレート
25 イソフェンホス	82 シペルメトリン	139 ピリフェノックス (E体)	196 プロモホス
26 イソフェンホスオキシソン	83 シマジン	140 ピリフェノックス (Z体)	197 ヘキサコナゾール
27 イソプロカルブ	84 ジメタメトリン	141 ピリブチカルブ	198 ヘキサジノン
28 イソプロチオラン	85 ジメチピン	142 ピリブプロキシフェン	199 ベナラキシル
29 イブロジオン ^{2,3,4)}	86 ジメチルビンホス (E体) ⁴⁾	143 ピリミカーブ	200 ベノキサコール
30 イブレンホス	87 ジメチルビンホス (Z体) ⁴⁾	144 ピリミジフェン ^{1,2)}	201 ベルメトリン (cis体)
31 イマザリル ⁴⁾	88 ジメテナミド ⁴⁾	145 ピリミノバクメチル (E体)	202 ベルメトリン (trans体)
32 イミダクロプリド ^{1,2,3)}	89 ジメトエート ^{3,4)}	146 ピリミノバクメチル (Z体)	203 ベンコナゾール
33 エスプロカルブ	90 シメトリン	147 ピリミホスメチル	204 ベンダイオカルブ
34 エタルフルラリン	91 ジメピペレート	148 ピリメタニル ^{1,2,3)}	205 ベンディメタリン
35 エチオフェンカルブ ^{1,2)}	92 シモキサニル ^{1,2,3)}	149 ピンクロゾリン	206 ベンフルラリン
36 エチオン	93 シラフルオフエン	150 フィプロニル	207 ベンフレセート
37 エディフェンホス	94 スピノシンA	151 フェナリモル	208 ホサロン
38 エトキサゾール	95 スピノシンD	152 フェントロチオン	209 ホスチアゼート
39 エトフェンブロックス	96 スピロキサミン	153 フェノキサニル	210 ホスマット
40 エトフメセート	97 スピロジクロフェン ^{1,2,3)}	154 フェノチオカルブ	211 ホレート
41 エトプロホス	98 ゾキサミド	155 フェトリン	212 マラチオン
42 エトリムホス	99 ターバシル	156 フェノブカルブ	213 ミクロブタニル
43 α-エンドスルファン	100 ダイアジノン	157 フェンアミドン	214 メタミドホス ^{2,3,4)}
44 β-エンドスルファン	101 チオベンカルブ	158 フェンスルホチオン ⁴⁾	215 メチダチオン ^{1,2,3)}
45 オキサジアゾン	102 チフルザミド	159 フェンチオン	216 メキシクロール ^{1,2,3)}
46 オキサジキシル	103 テクナゼン	160 フェントエート	217 メブレン
47 オキシフルオルフェン	104 テトラクロルピンホス	161 フェンパレレート ^{2,3,4)}	218 メミノストロピン (E体)
48 カズサホス	105 テトラジホス	162 フェンピロキシメート	219 メミノストロピン (Z体)
49 カルバリル	106 テニルクロール	163 フェンブコナゾール	220 メトラクロール ⁴⁾
50 カルフェントラゾンエチル	107 テブコナゾール	164 フェンプロバトリン	221 メビンホス ^{3,4)}
51 カルボフラン ^{2,3,4)}	108 テブフェンピラド	165 フェンプロピモルフ	222 メフェナセット
52 キナルホス	109 テフルトリン	166 フサライド ^{1,2,3)}	223 メフェンビルジエチル
53 キノキシフェン	110 テルブカルブ ⁴⁾	167 ブタクロール	224 メブロニル
54 キャプタン ^{1,2,3)}	111 テルブトリン	168 ブタミホス	225 リンデン (γ-BHC)
55 キントゼン	112 テルブホス	169 ブピリメート	226 ルフェヌロン
56 クレソキシムメチル	113 トリアジメノール	170 ブプロフェジン	227 レナシル
57 クロタールジメチル TCTP ⁴⁾	114 トリアジメホス	171 フラムプロップメチル	

1) レモン、グレープフルーツ、オレンジ類、バナナ のみ
 3) きゅうり、ピーマン、かき、なす のみ

2) ぶどう、トマト のみ
 4) キウイ、ブロッコリー のみ

表2-5. 農産物検出結果

検出農薬	作物名	検体数	検出数	検出値(ppm)	残留基準値(ppm)
アセタミプリド	ぶどう	11	5	0.02~0.18	5
	トマト	5	2	0.02~0.17	2
	かき	13	5	0.02~0.17	1
	きゅうり	11	1	0.09	2
	なす	12	1	0.04	2
	ピーマン	12	2	0.04~0.19	1
	ブロッコリー	15	1	0.11	2
アゾキシストロビン	ぶどう	11	5	0.03~0.08	10
イプロジオン	ぶどう	11	2	0.04~0.27	25
	ピーマン	12	1	0.2	10
	キウイ	11	6	0.01~0.14	5.0
	ブロッコリー	15	1	0.01	25
イミダクロプリド	ぶどう	11	3	0.02~0.10	3
	なす	12	3	0.01~0.04	2
クレソキシムメチル	ぶどう	11	3	0.02~0.14	15
	きゅうり	11	1	0.03	0.5
クロルビリホス	レモン	5	3	0.03~0.19	1
	グレープフルーツ	5	2	0.01~0.04	1
	オレンジ	4	1	0.01	1
	バナナ	6	2	0.01~0.03	3
クロルフェナピル	バナナ	6	1	0.02	2
	ぶどう	11	3	0.02~0.04	5
ジノテフラン	ぶどう	11	1	0.33	10
	かき	13	2	0.01~0.11	2
	きゅうり	11	2	0.01~0.04	2
	なす	12	3	0.11~0.21	2
	ピーマン	12	1	0.26	3
	ジフェノコナゾール	かき	13	1	0.01
シペルメトリン	ぶどう	11	3	0.03~0.06	2.0
	かき	13	6	0.01~0.04	2.0
シラフルオフェン	かき	13	1	0.06	2
テブコナゾール	ぶどう	11	1	0.10	10
	かき	13	2	0.01~0.05	0.7
トルフェンピラド	ブロッコリー	15	1	0.09	1
ピリダベン	トマト	5	1	0.13	1.0
フェナリモル	トマト	5	1	0.03	0.5
フェンバレレート	かき	13	1	0.04	1.0
フェンプロパトリン	ピーマン	12	1	0.05	2
フルジオキシニル	ぶどう	11	3	0.01~0.08	5
プロシミドン	きゅうり	11	3	0.05~0.15	5
ペルメトリンcis	ぶどう	11	2	0.01~0.03	5.0
	ピーマン	12	1	0.97	3.0
ペルメトリンtrans	ぶどう	11	2	0.01~0.03	5.0
	ピーマン	12	1	0.86	3.0
ミクロブタニル	なす	12	1	0.01	1.0
メタミドホス	ぶどう	11	2	0.02~0.05	3
	かき	13	1	0.03	1
ルフエヌロン	トマト	5	1	0.02	0.5

(c) 残留動物用医薬品検査(エトパベート, オキシリニック酸, スルファキノキサリン, スルファクロルピリダゾン, スルファジアジン, スルファジミジン, スルファジメトキシシ, スルファドキシシ, スルファニトラン, スルファピリジン, スルファメトキサゾール, スルファメトキシピリダジン, スルファメラジン, スルファモノメトキシシ, スルフィソゾール, チアベンダゾール, ナリジクス酸, フルベンダゾール, 合計18項目)

県内産畜水産物61検体, 県外産畜水産物19検体, 輸入畜水産物30検体合計110検体(表2-6)について, モニタリング検査として延べ1,980項目の定量試験を行った。

その結果, すべての検体において, いずれの項目も定量下限値未満であった。

表2-6. 残留動物用医薬品検査

畜水産物名	検体数	県内産	県外産	輸入品
養殖川魚 鮎, アマゴ	11	11		
養殖魚介類 サーモン, エビ, 鯛, 赤魚 ブリ, カンパチ, シマアジ	25	9	5	11
牛肉	12	3	2	7
豚肉	17		6	11
鶏肉	24	20	3	1
鶏卵	21	18	3	
計	110	61	19	30

(d) 有害物質検査

鯨類8検体, 金目鯛1検体, マグロ類1検体合計10検体について, メチル水銀の定量試験を行った(表2-7)。

その結果, すべての検体からメチル水銀(0.24~5.5ppm)を検出した。

表2-7. 有害物質検査

項目名	品名	検体数	検出数	検出値
メチル水銀	鯨類	8	8	0.30~5.5 ppm
	金目鯛	1	1	0.24 ppm
	マグロ類	1	1	0.96 ppm
	計	10	10	

(e) おもちゃ検査

乳幼児用おもちゃ10検体(13部位)の塗膜について, 鉛及びカドミウム含有量検査を行った(表2-8)。

その結果, すべて規格基準に適合していた。

表2-8. おもちゃ検査

項目名	品名	検体数	結果
鉛	がらがら等	2	適合
	積み木等	2	適合
カドミウム	知育がん具等	4	適合
	乗り物がん具等	2	適合
	計	10	

(f) 牛肉の放射性物質検査

放射性セシウムを含む稲わらを餌として与えていた可能性のある牛肉15検体についてヨウ素-131, セシウム-134, セシウム-137の測定を行った。

その結果, ヨウ素-131は検出されなかったが, セシウム(Cs134+Cs137)が14検体から検出された。(44~880Bq/kg)

放射性セシウムの暫定規制値の500Bq/kgを超過した牛肉は1検体のみであった。

(g) 食品衛生関係の苦情処理等

食中毒(疑い)発生に伴う検査として, 吐瀉物1検体について115項目の農薬成分(表2-9)の測定を行った。

その結果, いずれの農薬成分も検出されなかった。

表2-9. 食中毒(疑い)発生に伴う検査項目

1	EPTC	31	クロマゾン	61	テルブホス	91	プロヒドロジャスモン
2	XMC	32	クロルピリホス	62	トリアゾホス	92	プロボキシル
3	アセフェート	33	クロルピリホスメチル	63	トリアレート	93	プロトリン
4	アトラジン	34	クロルフェナピル	64	トリフルラリン	94	プロモブチド
5	アトリン	35	クロルプロファム	65	ニトロターールールイソプロピル	95	プロモホスメチル
6	アラクロール	36	クロルプロファム	66	パラチオン	96	ヘキサコナゾール
7	アレスリン	37	クロロベンジレート	67	パラチオンメチル	97	ベナラキシル
8	イサゾホス	38	シアンホス	68	ピリフェノックス(E体)	98	ベノキサコール
9	イソプロカルブ	39	ジクロフェンチオン	69	ピリフェノックス(Z体)	99	ベンコナゾール
10	イプロベンホス	40	シクロフルアニド	70	ピリミカーブ	100	ベンダイオカルブ
11	エスプロカルブ	41	ジクロラン	71	ピリミノバックメチル(E体)	101	ペンディメタリン
12	エタルフルラリン	42	シクロルボス	72	ピリミノバックメチル(Z体)	102	ベンフルラリン
13	エチオン	43	ジフェナミド	73	ピリミホスメチル	103	ベンフレセート
14	エディフェンホス	44	シマジン	74	ピリメタニル	104	ホスチアセート
15	エトキサゾール	45	ジメタトリン	75	ピロキロン	105	ホレート
16	エトフェセート	46	ジメチピン	76	ピンクロソリン	106	ミクロブタニル
17	エトプロホス	47	ジメエート	77	フェニトロチオン	107	メタミドホス
18	エトリムホス	48	シメリン	78	フェノチオカルブ	108	メタラキシル
19	α -エンドスルファン	49	ジメピベレート	79	フェノブカルブ	109	メチダチオン
20	β -エンドスルファン	50	スピロキサミン	80	フェンアミドン	110	メキシクロール
21	カズサホス	51	スピロジクロフェン	81	フェンチオン	111	メブレン
22	カルバリル	52	ターバシル	82	フェントエート	112	メトラクロール
23	カルボフラン	53	ダイアジノン	83	フェンプロピモルフ	113	メビホス
24	キャプタン	54	チオベンカルブ	84	フサライド	114	メフェンピルジエチル
25	キナルホス	55	チオメトン	85	ブタクロール	115	リンデン(γ -BHC)
26	キノキシフェン	56	テクナゼン	86	プロシミドン		
27	キノメチオネート	57	テトラクロルピンホス	87	プロチオホス		
28	キントゼン	58	テブフェンピラド	88	プロバクロール		
29	クレソキシムメチル	59	デメトン-S-メチル	89	プロバジン		
30	クロターールジメチル	60	テルブトリン	90	プロピザミド		

検査方法:SPME(固相マイクロ抽出)-GSMS法による定性

(h)外部精度管理

(財)食品薬品安全センターが実施する外部精度管理調査に参加し、食品添加物(ソルビン酸の定量)、残留農薬(チオベンカルブ、マラチオン、クロルピルホス、テルブホス、フルシトリネート及びフルトラニルの6種農薬中3種農薬の定性と定量)、動物用医薬品(スルファジミジンの定量)の試験について精度管理を実施したところ、結果はすべて良好であった。

b) 家庭用品等検査

乳幼児用衣類10検体(15部位)について、遊離残留ホルムアルデヒドの検査を行った(表2-10)。

その結果、すべての検体が家庭用品の基準に適合していた。

表2-10. 家庭用品等検査

項目名	品名	検体数	検体部位	結果
ホルムアルデヒド	ベビードレス	1	3	適合
	ハンカチ	1	1	適合
	おしめ	1	1	適合
	おくるみ	1	1	適合
	おむつカバー	1	2	適合
	よだれかけ	1	2	適合
	くつした	1	1	適合
	ミトン	1	2	適合
	肌着	2	2	適合
	計		10	15

c) 飲用水試験(一般細菌数と大腸菌を除く)

災害時における井戸水活用のための基礎資料を得るため、井戸水9検体について飲用水試験(硝酸態

窒素及び亜硝酸態窒素, 塩化物イオン, 全有機炭素, pH値, 味, 臭気, 色度, 濁度)を行った。

その結果, 5検体が水道法に基づく水質基準に不適合であった。

また, 災害時における生活用水等としての井戸水の安全性確認のために, 井戸水1検体について飲用水試験(同)を行った。

その結果, 水道法に基づく水質基準に適合していた。

d) 医薬品等検査

(a) 医薬品等一斉監視指導に伴う検査として, 鼻炎用薬1検体についてd-クロルフェニラミンマレイン酸塩の定量試験を行った。

その結果, 規格基準に適合していた。

(b) 外部精度管理

国立医薬品食品衛生研究所が実施する外部精度管理調査に参加し, アセトアミノフェンの試験について精度管理を実施したところ, 結果は良好であった。

(2) 依頼検査

水道原水12検体について, ゴルフ場使用農薬延べ48項目の試験を行った。

放射性物質検査を28検体(きのこ2検体, 果実2検体, 穀類3検体, 加工食品11検体, 牛乳4検体, 乳児用食品2検体, その他4検体)について放射性ヨウ素, 放射性セシウム延べ40項目の測定を行った。

3) 大気環境グループ

大気環境グループの業務は、主として機器分析を中心とする大気関係分析業務及び自動測定機を主とした大気汚染常時監視測定業務に大別される。

(1) 大気関係分析業務

平成23年度の大気関係分析業務実績は、表3-1のとおりであった。

a) 悪臭物質の測定

公害防止協定工場における悪臭に係る協定値の遵守状況を把握するため測定を実施した。

b) 煙道排ガス測定

大気汚染防止法等に規定するばい煙発生施設等から排出される排ガス中の窒素酸化物、ばいじん、塩化水素の濃度に係る基準値の遵守状況を把握するため測定を実施した。

c) 重油等燃料中のいおう分含有率測定

大気汚染防止法に規定するばい煙発生施設で使用する燃料中のいおう分含有率に係る基準値及び届出値の遵守状況を把握するため測定を実施した。

d) 国設潮岬酸性雨測定所管理運営

環境省の委託により、本州最南端の国設潮岬酸性雨測定所における酸性雨の実態を把握するため、降雨水等の調査を実施した。

e) 有害大気汚染物質モニタリング

大気汚染防止法に基づき、環境汚染に係る有害大気汚染物質（234物質）がリストアップされている。このうち優先取組物質22物質中18物質について、海南市（一般環境）、有田市（発生源周辺）、岩出市（沿道）の3地点で測定を実施した。

f) 化学物質環境実態調査

環境省の委託を受けて、化学物質環境調査（大気）を行った。

(2) 大気汚染常時監視測定業務

平成23年度の大気汚染常時監視実績は表3-2のとおりであった。

テレメーターシステムによる大気汚染常時監視は、県内の6市6町の13地点で測定を実施した。また、上記測定の補完調査及び自動車排ガスの実態調査のため、環境測定車による測定を実施した。

表3-1. 大気関係分析業務各種測定の実施状況

依頼者	事業名	試料数	測定延項目数	
環境 管 理 課	悪臭物質の測定	7	14	
	煙道排ガス測定	(窒素酸化物)	20	40
		(ばいじん)	6	12
		(塩化水素)	8	16
	重油等燃料中のいおう分含有率測定		29	29
	国設潮岬測定局酸性雨調査		101	1,097
	有害大気汚染物質調査	(アルデヒド)	36	72
		(VOCs)	36	324
		(金属)	35	83
		(水銀)	35	35
		(酸化エチレン)	12	12
	化学物質環境実態調査	8	8	
	合 計	333	1,742	

〔測定項目内訳〕

悪臭物質：メチルメルカプタン，硫化水素

煙道排ガス

(窒素酸化物)：窒素酸化物，残存酸素

(ばいじん)：ばいじん量，残存酸素

(塩化水素)；塩化水素，残存酸素

重油等燃料中のいおう分：いおう分

国設潮岬測定所酸性雨

降水量，水素イオン濃度，電気伝導率，硫酸イオン，硝酸イオン，塩化物イオン，アンモニウムイオン，カルシウムイオン，マグネシウムイオン，カリウムイオン，ナトリウムイオン

有害大気汚染物質

(アルデヒド類)：ホルムアルデヒド，アセトアルデヒド

(VOCs)：アクリロニトリル，クロロホルム，塩化ビニルモノマー，ベンゼン，トリクロロエチレン，テトラクロロエチレン，1,3-ブタジエン，ジクロロメタン，1,2-ジクロロエタン

(金属)：ひ素，ベリリウム，マンガン，全クロム，ニッケル

(水銀)：総水銀

(酸化エチレン)：酸化エチレン

化学物質環境実態調査：1,3-ジクロロ-2-プロパノール

表3-2. 大気汚染常時監視測定の実施状況

事業名	試料数	総項目数	欠測数	測定率(%)
大気汚染常時監視	114,192	825,696	65,490	92
環境測定車による監視	2,976	26,784	193	99

測定項目：二酸化いおう，一酸化窒素，二酸化窒素，窒素酸化物，一酸化炭素，非メタン炭化水素，メタン，全炭化水素，浮遊粒子状物質，オキシダント（オゾン），風向，風速，温度湿度，日射，放射

(3) 環境基準達成状況

有害大気汚染物質モニタリングにおける，環境基準達成状況は3地点とも全ての物質（ベンゼン，トリクロロエチレン，テトラクロロエチレン，ジクロロメタン）が環境基準以下であった。

大気汚染常時監視については表3-3～6に示すとおりであり，二酸化いおう，二酸化窒素については全ての測定局で環境基準を達成していた。光化学オキシダントについては，全ての測定局で環境基準を超える時間があった。浮遊粒子状物質については，短期的評価では日平均値が0.10mg/m³を超えた日のある測定局が8局，長期的評価では日平均値が0.10mg/m³を超えた日が2日以上連続したことの有無により，7局が環境基準を満足できていなかった。原因については，5月に発生した黄砂によるものである。

環境測定車による測定結果については表3-7～9のとおりであり，光化学オキシダントについては串本町，岩出市で環境基準を満足できていなかった。その他については環境基準を満足していた。

表3-3 二酸化いおうの年間測定結果

所在地	測定局名	有効測定日数	測定時間	年平均値	1時間値が0.1ppmを超えた時間数とその割合		日平均値が0.04ppmを超えた日数とその割合		1時間値の最高値	日平均値の2%除外値	日平均値が0.04ppmを超えた日が2日以上連続したことの有無	環境基準の長期的評価による日平均値が0.04ppmを超えた日数
					(時間)	(%)	(日)	(%)				
海南市	海南市役所	174	4,171	0.002	0	0	0	0	0.013	0.004	○	0
海南市	加茂郷	363	8,686	0.003	0	0	0	0	0.026	0.005	○	0
有田市	初島公民館	364	8,715	0.006	0	0	0	0	0.065	0.015	○	0
紀美野町	野上小学校	361	8,703	0.003	0	0	0	0	0.018	0.005	○	0
紀の川市	粉河支所	366	8,744	0.001	0	0	0	0	0.011	0.003	○	0
田辺市	田辺会津公園	364	8,742	0.003	0	0	0	0	0.016	0.005	○	0
御坊市	御坊支所	366	8,766	0.001	0	0	0	0	0.010	0.003	○	0
湯浅町	耐久高校	366	8,756	0.001	0	0	0	0	0.011	0.003	○	0
美浜町	三尾小学校	366	8,750	0.004	0	0	0	0	0.014	0.007	○	0
日高川町	小熊広場	355	8,512	0.003	0	0	0	0	0.021	0.006	○	0
印南町	印南原	267	6,413	0.004	0	0	0	0	0.015	0.009	○	0
みなべ町	みなべ町晩稲	363	8,740	0.003	0	0	0	0	0.015	0.005	○	0

表3-4 二酸化窒素の年間測定結果

所在地	測定局名	有効測定日数	測定時間	年平均値	1時間値の最高値	1時間値が0.2ppmを超えた時間数とその割合		1時間値が0.1ppm以上0.2ppm以下の時間数とその割合		日平均値が0.06ppmを超えた日数とその割合		日平均値が0.04ppm以上0.06ppm以下の日数とその割合		日平均値の年間98%値	98%値評価による日平均値が0.06ppmを超えた日数
		(日)	(時間)	(ppm)	(ppm)	(時間)	(%)	(時間)	(%)	(日)	(%)	(日)	(%)	(ppm)	(日)
和歌山市	環衛研	335	8,043	0.012	0.063	0	0	0	0	0	0	0	0	0.024	0
海南市	海南市役所	361	8,643	0.008	0.046	0	0	0	0	0	0	0	0	0.017	0
海南市	加茂郷	365	8,759	0.008	0.049	0	0	0	0	0	0	0	0	0.020	0
有田市	初島公民館	366	8,756	0.009	0.057	0	0	0	0	0	0	0	0	0.024	0
御坊市	御坊支所	365	8,763	0.006	0.041	0	0	0	0	0	0	0	0	0.014	0
湯浅町	耐久高校	366	8,760	0.006	0.039	0	0	0	0	0	0	0	0	0.015	0
美浜町	三尾小学校	365	8,748	0.004	0.043	0	0	0	0	0	0	0	0	0.013	0
日高川町	小熊広場	360	8,621	0.004	0.040	0	0	0	0	0	0	0	0	0.010	0
印南町	印南原	57	1,388	0.003	0.013	0	0	0	0	0	0	0	0	0.005	0
みなべ町	みなべ町晩稲	365	8,762	0.004	0.033	0	0	0	0	0	0	0	0	0.006	0

表3-5 浮遊粒子状物質の年間測定結果

所在地	測定局名	有効測定日数	測定時間	年平均値	1時間値が0.2mg/m3を超えた時間数とその割合		日平均値が0.10mg/m3を超えた日数とその割合		1時間値の最高値	日平均値の2%除外値	日平均値が0.10mg/m3を超えた日数が2日以上連続したことの有無	環境基準の長期的評価による日平均値が0.10mg/m3を超えた日数
		(日)	(時間)	(mg/m3)	(時間)	(%)	(日)	(%)	(mg/m3)	(mg/m3)	(有×・無○)	(日)
和歌山市	環衛研	359	8,650	0.022	0	0	2	0.6	0.152	0.046	×	2
海南市	海南市役所	362	8,705	0.020	0	0	1	0.3	0.151	0.040	○	0
海南市	加茂郷	363	8,723	0.012	0	0	0	0	0.125	0.025	○	0
有田市	初島公民館	362	8,669	0.023	0	0	2	0.6	0.156	0.041	×	2
紀美野町	野上小学校	357	8,618	0.023	0	0	0	0	0.131	0.042	○	0
紀の川市	粉河支所	362	8,686	0.015	0	0	2	0.6	0.147	0.039	×	2
田辺市	田辺会津公園	362	8,682	0.024	0	0	2	0.6	0.164	0.048	×	2
御坊市	御坊支所	364	8,740	0.020	0	0	2	0.6	0.134	0.048	×	2
湯浅町	耐久高校	364	8,731	0.015	0	0	0	0	0.155	0.034	○	0
美浜町	三尾小学校	361	8,698	0.018	0	0	2	0.6	0.144	0.045	×	2
日高川町	小熊広場	353	8,501	0.012	0	0	0	0	0.132	0.033	○	0
印南町	印南原	354	8,506	0.022	0	0	2	0.6	0.137	0.038	×	2
みなべ町	みなべ町晩稲	360	8,660	0.015	0	0	0	0	0.141	0.038	○	0

表3-6 光化学オキシダント年間測定結果

所在地	測定局名	昼間測定日数	昼間測定時間	昼間の1時間値の最高値	昼間の1時間値が0.06ppmを超えた日数とその時間数		昼間の1時間値が0.12ppm以上の日数とその時間数		昼間の1時間値最高値	昼間の日最高1時間値年平均値
		(日)	(時間)	(ppm)	(日)	(時間)	(日)	(時間)	(ppm)	(ppm)
和歌山市	環衛研	365	5,449	0.028	56	274	0	0	0.102	0.040
海南市	海南市役所	366	5,480	0.030	55	287	0	0	0.104	0.043
海南市	加茂郷	366	5,472	0.030	30	127	0	0	0.092	0.040
有田市	初島公民館	366	5,468	0.032	55	269	0	0	0.109	0.043

表 3-7. 新宮市蜂伏（県立なぎ看護学校）における測定結果(H23. 6. 20～8. 20)

測定項目 項目		二酸化いおう (ppm)	二酸化窒素 (ppm)	一酸化炭素 (ppm)	浮遊粒子状物質 (mg/m ³)	光化学オキシダント (ppm)
期間平均値		0.000	0.002	0.13	0.023	0.008
1時間値	最高値	0.003	0.015	0.36	0.116	0.037
日平均値	最高値	0.001	0.005	0.21	0.076	0.025
	最低値	0.000	0.000	0.05	0.012	0.002
その他の項目		1時間値が 0.1ppmを 超えた時間数	日平均値が 0.06ppmを 超えた日数	8時間値が 20ppmを 超えた回数	1時間値が 0.20mg/m ³ を 超えた時間数	昼間の時間 の中で1時 値が0.06ppm 超えた時間数
		0/1486時間	0/62日	0回	0/1485時間	0/990時間
		日平均値が 0.04ppmを 超えた日数	日平均値が 0.04ppmを 超えた日数	日平均値が 10ppmを 超えた日数	日平均値が 0.10mg/m ³ を 超えた日数	昼間の時間 の中で1時 値が0.12ppm 超えた時間
		0/62日	0/62日	0/62日	0/62日	0/990時間

表 3-8. 串本町サンゴ台（串本町B&G海洋センター）における測定結果(H23. 8. 25～9. 24)

測定項目 項目		二酸化いおう (ppm)	二酸化窒素 (ppm)	一酸化炭素 (ppm)	浮遊粒子状物質 (mg/m ³)	光化学オキシダント (ppm)
期間平均値		0.001	0.002	0.12	0.029	0.025
1時間値	最高値	0.006	0.013	0.27	0.121	0.076
日平均値	最高値	0.002	0.005	0.18	0.085	0.052
	最低値	0.000	0.000	0.07	0.010	0.009
その他の項目		1時間値が 0.1ppmを 超えた時間数	日平均値が 0.06ppmを 超えた日数	8時間値が 20ppmを 超えた回数	1時間値が 0.20mg/m ³ を 超えた時間数	昼間の時間帯 の中で1時間 値が0.06ppmを 超えた時間数
		0/712時間	0/31日	0回	0/710時間	15/495時間
		日平均値が 0.04ppmを 超えた日数	日平均値が 0.04ppmを 超えた日数	日平均値が 10ppmを 超えた日数	日平均値が 0.10mg/m ³ を 超えた日数	昼間の時間帯 の中で1時間 値が0.12ppmを 超えた時間数
		0/31日	0/31日	0/31日	0/31日	0/495時間

表 3 - 9 . 岩出市高塚 (R 2 4 沿い) における測定結果 (H23. 10. 1 ~ 10. 31)

測定項目 項目		二酸化いおう (ppm)	二酸化窒素 (ppm)	一酸化炭素 (ppm)	浮遊粒子状物質 (mg/m ³)	光化学オキシダント (ppm)
期間平均値		0.001	0.011	0.36	0.026	0.023
1時間値	最高値	0.009	0.039	1.00	0.127	0.066
日平均値	最高値	0.002	0.014	0.55	0.050	0.036
	最低値	0.000	0.007	0.22	0.014	0.011
その他の項目		1時間値が 0.1ppmを超 えた時間数	日平均値が 0.06ppmを 超えた日数	8時間値が 20ppmを 超えた回数	1時間値が 0.20mg/m ³ を 超えた時間数	昼間の時間帯 の中で1時間 値が0.06ppmを 超えた時間数
		0/744時間	0/31日	0回	0/733時間	8/495時間
		日平均値が 0.04ppmを 超えた日数	日平均値が 0.04ppmを 超えた日数	日平均値が 10ppmを 超えた日数	日平均値が 0.10mg/m ³ を 超えた日数	昼間の時間帯 の中で1時間 値が0.12ppmを 超えた時間数
		0/31日	0/31日	0/31日	0/31日	0/495時間

4) 水質環境グループ

平成23年度に実施した行政検査等の業務実績表は表4-1のとおりである。

表4-1. 行政検査

依頼者	内容	検体数	延検査数
環境管理課	工場・事業場の排水基準監視	363	2,927
	クロスチェック等精度管理調査	4	7
	化学物質環境汚染実態調査	5	23
	苦情等による水質分析	12	138
	地下水の汚染範囲確定調査	13	13
循環型社会推進課	最終処分場の水質検査	15	58
	埋め立て用土砂の土壌検査	4	44
環境生活総務課	温泉経年変化調査(鉱泉分析試験)	5	195
	環境放射能水準調査	1,152	2,278
その他	排水処理施設等の管理調査	9	214
	計	1,582	5,897

(1) 行政検査等

a) 工場・事業場排水基準監視

水質汚濁防止法及び県公害防止条例に基づく排水基準監視事業としては224工場・事業場に立入調査し、242検体、延2,453項目の水質調査を行った。

分析項目は水質汚濁防止法施行令第2条に定める有害物質(カドミウム及びその化合物、シアン化合物、鉛及びその化合物、六価クロム化合物、砒素及びその化合物、水銀及びアルキル水銀その他の水銀化合物、トリクロロエチレン、テトラクロロエチレン、ジクロロメタン、四塩化炭素、1,2-ジクロロエタン、1,1-ジクロロエチレン、シス-1,2-ジクロロエチレン、1,1,1-トリクロロエタン、1,1,2-トリクロロエタン、1,3-ジクロロプロペン、ベンゼン、ほう素及びその化合物、ふっ素及びその化合物)及び同第3条に定める項目(水素イオン濃度(pH)、生物化学的酸素要求量(BOD)及び化学的酸素要求量(COD)、浮遊物質(S)、ノルマルヘキサン抽出物質含有量、銅含有量、亜鉛含有量、溶解性鉄含有量、溶解性マンガン含有量、クロム含有量、窒素又はりん含有量)である。

工場・事業所の排水基準超過件数は18件で、項目別では、水素イオン濃度11件、生物化学的酸素要求量4件、化学的酸素要求量1件、浮遊物質2件であった。

上記工場・事業所以外に、古川流域の工場・事業所からの採水試料が121検体、延474項目の水質調査を行った。

b) クロスチェック等精度管理調査

県は公共用水域等の水質調査を民間業者に委託しているため、これら分析業者の分析結果の信頼性の確保及び分析精度の向上を目的として、本年度はCOD、硝酸性窒素及び亜硝酸性窒素及びほう素についてクロスチェック分析を実施した。なお環境省主催の環境測定分析精度統一管理調査にも参加し、BOD、COD、ふっ素及びTOCについて実施し、その結果は良好であった。

c) 化学物質環境汚染実態調査

環境省の委託を受けて、初期環境調査(水質、底質)を5試料23項目について行った。なおモニタリング調査(水質、底質)については4試料の採取を行い、環境省指定の分析機関に送付した。

d) 苦情等による水質分析

苦情等により搬入された河川水、地下水、排水等は12試料で、延138項目の水質検査を実施した。

e) 地下水の汚染範囲確定調査

県が実施している地下水の常時監視調査において硝酸性窒素及び亜硝酸性窒素が環境基準を上回った井戸があり、汚染範囲を確定するために周辺13井戸で延べ13項目の調査を実施した。

f) 最終処分場の水質検査及び埋め立て用土砂の土壌検査

安定型産業廃棄物最終処分場の水質検査として、浸透水及び排水等で、15試料58項目の検査を実施及び埋め立て用土砂の土壌検査は4試料44項目の検査を実施した。

g) 温泉経年変化調査

環境生活総務課から依頼があり、温泉保護対策事業の一環として実施している経年変化調査を湯峯温泉・川湯温泉とその周辺地域の5源泉について実施した。その結果前回調査(平成19年度)と比べ、泉温、湧出量及び成分などに特に変化はなかった。

h) 環境放射能測定調査

文部科学省委託事業に基づき、定時降水中の全β放射能測定、大気浮遊塵、降下物、蛇口水、土壌、各種食品(大根、白菜、茶)のゲルマニウム半導体検出器による核種分析及び空間放射線量率測定を実施し、県内の自然放射能および人工放射能分布状況を調査した。全β放射能、放射能核種分析、空間放射線量率の測定結果はそれぞれ表4-2、表4-3、表4-4のとおりである。

また、福島第一原子力発電所事故をうけ、平成23年3月18日から12月27日まで1日1回、和歌山市における蛇口水及び定時降下物の測定を行った。また、県内10ヶ所及び平成23年6月13日から12月27日まで和歌山市において、サーベイメータによる空間線量率の測定を行った。これらの結果については、表4-5、表4-6、表4-7に示す。

なお、大気浮遊塵(4~6月分)及び降下物(4, 5, 6, 7月分)の核種分析について、福島第一原子力発電所事故以前は検出されていない人工放射性物質が検出されたが、微量の検出であること、空間放射線量率が平常時(事故以前)の範囲内であることより、健康に影響のあるレベルではなかった。

(2) その他の事業

a) 排水処理施設等の管理

センターの排水処理施設の運転管理及び処理水等の最終放流水の水質分析を行った。分析項目は、下水道法に基づきpH, BOD, SS, 全りん, 全窒素, 揮発性有機物質, カドミウム, 鉛等であり、9試料について延べ214項目の検査を実施した。

表4-2. 定時降水試料中の全β放射能測定結果

(測定場所 和歌山市)

採取年月	降水量 (mm)	降水の定時採取(定時降水)			月間降下量 (MBq/km ²)
		放射能濃度(Bq/L)			
		測定数	最低値	最高値	
平成24年1月	34.0	2	N.D	N.D	N.D
2月	96.0	6	N.D	0.63	19.19
3月	117.0	7	N.D	0.62	1.86
年間値	247.0	15	N.D	0.63	N.D~19.19
前年までの過去3年間の値		235	N.D	1.77	N.D~108.35

注)N.D: 検出限界値未満

※ 平成23年4月から12月までの期間、福島第一原子力発電所事故対応のため、定時降水に代わり定時降下物の測定を行った。

表4-3. ゲルマニウム半導体検出器による核種分析測定結果

試料名	採取場所	採取年月	検体数	セシウム137 (¹³⁷ Cs)		前年度までの 過去3年間の値		その他検出された 人工放射性核種	単位	
				最低値	最高値	最低値	最高値			
大気浮遊塵	和歌山市	3ヶ月毎	4	N.D	0.16	N.D	0.015	Cs-134 0.18	mBq/m ³	
降下物	和歌山市	毎月	12	N.D	8.13	N.D	N.D	I-131 15.4 Cs-134 8.67	MBq/km ²	
陸水(蛇口水)	新宮市	'12/1	1	N.D		N.D	N.D	なし	mBq/L	
土 壤	深さ0~5cm	新宮市	'12/1	1	1.53		0.92	2.3	なし	Bq/kg乾土
					81.8		44	180	なし	MBq/km ²
	深さ5~20cm	新宮市	'12/1	1	N.D		N.D	N.D	なし	Bq/kg乾土
					N.D		N.D	N.D	なし	MBq/km ²
野菜	大根	新宮市	'12/1	1	N.D		N.D	N.D	なし	Bq/kg生
	白菜	新宮市	'12/1	1	N.D		N.D	0.04	なし	
茶	那智勝浦町	'11/5	1	2.5		0.21	0.36	Cs-134 2.3	Bq/kg乾	

注)N.D: 検出限界値未満

表4-4. 空間放射線量率測定結果

(測定場所 和歌山市)

測定年月	モニタリングポスト(nGy/h)		
	最低値	最高値	平均値
平成23年4月	30	47	32
5月	30	48	32
6月	30	48	32
7月	30	54	32
8月	30	51	32
9月	30	45	32
10月	30	47	33
11月	31	42	33
12月	31	53	33
平成24年1月	31	43	33
2月	31	47	33
3月	31	54	33
年間値	30	54	32
前年までの 過去3年間の値	30	62	34

最大、最小の数値は1時間毎の平均値。

表4-5 福島第一原子力発電所事故対応(定時降下物及び蛇口水)

測定年月	降下物(和歌山市)				陸水(和歌山市における蛇口水)			
	検体数	セシウム137(¹³⁷ Cs) 最低値	セシウム137(¹³⁷ Cs) 最高値	その他検出された 人工放射能核種	検体数	セシウム137(¹³⁷ Cs) 最低値	セシウム137(¹³⁷ Cs) 最高値	人工放射能核種
平成23年3月	14	N.D	N.D	なし	15	N.D	N.D	なし
4月	30	N.D	N.D	I-131(24.8MBq/km ²)	30	N.D	N.D	なし
5月	31	N.D	N.D	なし	31	N.D	N.D	なし
6月	30	N.D	N.D	なし	30	N.D	N.D	なし
7月	31	N.D	N.D	なし	31	N.D	N.D	なし
8月	31	N.D	N.D	なし	31	N.D	N.D	なし
9月	30	N.D	N.D	なし	30	N.D	N.D	なし
10月	31	N.D	N.D	なし	31	N.D	N.D	なし
11月	30	N.D	N.D	なし	30	N.D	N.D	なし
12月	27	N.D	N.D	なし	27	N.D	N.D	なし

注)N.D:検出限界値未満
但し、12月27日までの測定結果

表4-6 福島第一原子力発電所事故対応
(県内10ヶ所におけるサーベイメータ測定)

測定年月	測定場所	線量率 (μ Sv/h)
6月22日	那賀振興局	0.074
6月22日	青州の里(紀の川市)	0.076
6月22日	伊都振興局	0.074
6月23日	有田市役所	0.080
6月23日	御坊監視支所	0.078
6月23日	カッパーク(海南市)	0.074
6月23日	白浜浄化センター	0.082
6月23日	海南保健所 駐車場	0.078
6月24日	水産試験場 駐車場(串本町)	0.070
6月24日	東牟婁振興局 駐車場	0.068

表4-7 福島第一原子力発電所事故対応(サーベイメータ測定)

測定年月	検体数	サーベイメータ(和歌山市) (nSv/h)		
		最低値	最大値	平均値
平成23年6月	18	71	86	76
7月	31	71	82	77
8月	31	68	82	76
9月	30	73	84	77
10月	31	71	80	76
11月	30	73	82	77
12月	27	74	86	78

但し、12月27日までの測定結果

(参考)

放射能の単位

ベクレル(Bq) :放射能の単位(国際単位)で1秒間に壊変する原子核の数。かつては、キュリー(Ci)という単位が用いられていた。 $1\text{Bq}=2.7\times 10^{-11}\text{Ci}$

グレイ(Gy) :放射線の強さの単位(国際単位)で、物質に吸収された放射線のエネルギーを表したもの。(吸収線量) $1\text{Gy} = 1\text{J/kg}$

シーベルト(Sv) :シーベルトは実効線量、等価線量等の量を示す単位。

実効線量 :人への影響を評価するにあたって被ばくした部位を考慮したもの。組織・臓器の等価線量に組織荷重係数を乗じ、全身について合計して算出する。平常時は $1\text{Gy}=0.8\text{Sv}$ 、緊急時は $1\text{Gy}=1\text{Sv}$ にて換算。

等価線量 :人への影響を評価するにあたって放射線の種類及びエネルギーを考慮したもの。組織・臓器の吸収線量に放射線荷重係数を乗じて組織・臓器毎に算出する。

(3) 依頼検査(鉱泉試験)

平成23年度に実施した鉱泉の依頼検査は11検体(延検査数403)で、その内容については表4-8のとおりであった。

a) 温泉小分析

1検体について鉱泉小分析の試験(13項目)を行ったところ、温泉に該当した。

表4-8. 依頼検査

区分	検査目的	検体数	延検査数
鉱泉試験	温泉小分析	1	13
	温泉中分析	10	390
計		11	403

b) 温泉中分析

10検体について鉱泉中分析の試験(39項目)を行ったところ、全ての源泉が温泉(療養泉)に該当した。

2. 研修指導及び施設見学の実績

平成23年度における研修指導及び施設見学については、下表のとおりであった。

平成23年度研修指導及び施設見学

来所目的	期日	対象者	テーマ・内容等	担当グループ
紀の国 ふれあいバス 施設見学	23. 5. 31	日高地方住民29名 振興局職員2名	センターの業務について 施設を見学し、学習する。	微生物グループ 衛生グループ 大気環境グループ 水質環境グループ
和歌山大学 附属小学校 施設見学	23. 6. 9	小学4年生30名 引率教諭1名	井戸水についての学習	水質環境グループ
日本共産党 和歌山県議 和歌山市議 海南市議 施設見学	23. 8. 10	議員14名	放射線測定関係の 施設見学及び質疑	水質環境グループ
県立盲学校 施設見学	23. 10. 25	盲学校生徒10名 引率教員5名	公衆衛生等に係る施設見学	微生物グループ 衛生グループ 大気環境グループ 水質環境グループ
県立和歌山 工業高校 インターン シップ	24. 1. 25 ～1. 27	1年生 生徒1名	労働体験	微生物グループ 衛生グループ 大気環境グループ 水質環境グループ

Ⅲ 調 査 研 究

県内におけるノイラミニダーゼ阻害剤耐性インフルエンザウイルスの動向について

寺杣文男, 仲浩臣, 青木一人*

Surveillance for Neuraminidase inhibitor resistance among influenza virus in Wakayama Prefecture

Fumio terasoma, Hiroomi Naka, Kazuto Aoki

キーワード：インフルエンザ，ノイラミニダーゼ阻害剤，耐性，和歌山県

Key Words : Influenza, Neuraminidase inhibitor, resistance, Wakayama Prefecture

はじめに

近年、インフルエンザの治療に際して、一般的に抗インフルエンザウイルス薬(表1)が用いられている。特にオセルタミビルは、経口内服が可能な唯一のノイラミニダーゼ阻害剤である¹⁾が、一方で耐性ウイルスの出現が見られ問題視されている^{2, 3)}。県内における過去4シーズンの耐性ウイルス発生状況について、当センターのインフルエンザウイルス分離株を用いた調査を行った。

表1. 国内で用いられている抗インフルエンザ薬

名称 (商品名)	承認日	備考
アマンタジン (シンメトレル)	1998年11月27日 (効能・効果の追加承認)	抗A型インフルエンザ薬 経口投与
ザナミビル (リレンザ)	2001年2月2日 (2000年12月販売開始)	抗A・B型インフルエンザ薬 吸入投与
オセルタミビル (タミフル)	2001年2月2日	抗A・B型インフルエンザ薬 経口投与
ベラミビル (ラピアクタ)	2010年1月13日	抗A・B型インフルエンザ薬 点滴静注投与
ラニナミビル (イナビル)	2010年9月10日	抗A・B型インフルエンザ薬 吸入投与

材料と方法

2008年12月から2012年2月にかけて厚生労働省の感染症発生動向調査事業により、県内の医療機関で採取されたインフルエンザ患者の臨床材料から得られたウイルス分離株を用いた。
微生物グループ * 現薬務課

内訳は、A(H1N1)型26株、2009年に発生したA(H1N1)pdm09型204株、A(H3N2)型183株、及びB型23株の、計436株であった。

各分離株についてウイルス遺伝子を抽出し、RT-PCR法によりNA遺伝子を増幅後、その一部塩基配列をダイレクトシーケンス法により解析し、アミノ酸に翻訳後、表2に示す耐性変異マーカの有無を調べた。

各インフルエンザシーズンの患者発生状況については、感染症発生動向調査事業により県内50の定点医療機関から報告された患者数を集計した。

表2. 今回検索した耐性変異マーカの一覧

Type A			Type B
(H1N1)	(H1N1)pdm09	(H3N2)	
H275Y	Q136K	E119V	R150K
	Y155H	R292K	D197N/Y/E
	I223R	N294S	I221T
	H275Y		S249G
			G407S

結果

1. 2008-2009シーズン

患者報告数の推移、及びウイルス分離結果を図1に示した。流行前半はA(H3N2)型が主流で、年明け頃から次第にA(H1N1)型に置き換わり、

最後にB型の割合が増加した。得られたウイルス分離株の内、A(H1N1)型23株、A(H3N2)型42株、及びB型10株について遺伝子解析を行ったところ、A(H3N2)型とB型では耐性変異はみられなかったが、A(H1N1)型では全ての株にH275Y耐性変異が認められ、耐性ウイルスの蔓延が明らかになった(表3)。

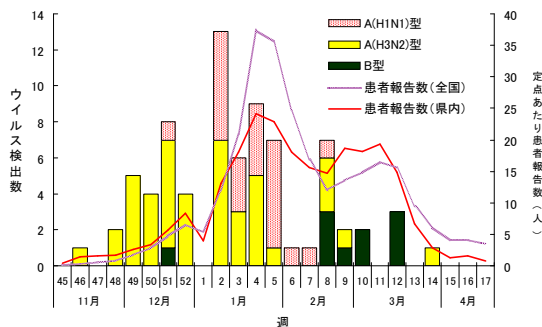


図1. 県内のインフルエンザ流行状況 (2008-2009シーズン)

表3. インフルエンザウイルス分離株の耐性変異

亜型	解析株数 ()内は耐性変異株数				合計
	2008-2009 シーズン	2009-2010 シーズン	2010-2011 シーズン	2011-2012 シーズン	
A(H1N1)	23 (23)	3 (3)	—	—	26 (26)
A(H1N1) pdm09	—	137 (2)	67 (1)	—	204 (3)
A(H3N2)	42 (0)	1 (0)	7 (0)	133 (0)	183 (0)
B	10 (0)	2 (0)	7 (0)	4 (0)	23 (0)

2. 2009-2010シーズン

新型インフルエンザウイルスとして春に発生したA(H1N1)pdm09型が流行の主流であった(図2)。全分離株の内、A(H1N1)pdm09型137株と、流行初期に分離されたA(H1N1)型3株、A(H3N2)型1株、及び2010年4月に分離されたB型2株について遺伝子解析を行ったところ、A(H1N1)pdm09型分離株では2株にH275Y耐性変異がみられた。これらはいずれも早期にオセルタミビルが処方され、且つ発症5日後(表4)に採取された咽頭拭い液からの分離株であった。これら2株は国立感染症研究所において薬剤感受性試験を実施して頂き、いずれもオセルタミビルに対して耐性、ザナミビルに対して感受性であることが確認された(表5, 6)。A(H1N1)型3

株は全てH275Y耐性変異株で、A(H3N2)型、及びB型インフルエンザウイルス分離株ではいずれも耐性変異はみられなかった(表3)。

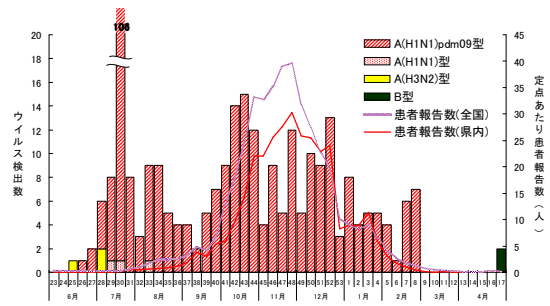


図2. 県内のインフルエンザ流行状況 (2009-2010シーズン)

表4. 2009-2010シーズンにA(H1N1)pdm09ウイルスのH275Y耐性変異が確認された症例

症例1: 8才・男性		症例2: 2才・男性	
2009年		2009年	
11月14日	発症(発熱・咳) 簡易キットA(-) タミフル処方	12月5日	発症(発熱) 簡易キットA(-)
11月19日	症状改善なく入院 検査材料の採取 リレンザ処方	12月6日	簡易キットA(+) タミフル処方
11月23日	回復し、退院	12月10日	症状改善なく入院 検査材料の採取 リレンザ処方
		12月15日	回復し、退院

表5. 症例1由来ウイルス分離株の薬剤感受性試験結果

ウイルス株名	亜型名	耐性 マーカー	IC50(nM)	
			オセルタミビル	ザナミビル
A/WAKAYAMA/291/2009 (症例1由来ウイルス分離株)	H1N1pdm	275Y	29.80	0.30
A/DENMARK/528/2009pdm (H275Y耐性参照株)	H1N1pdm	275Y	35.30	-
A/DENMARK/524/2009pdm (H275感受性参照株)	H1N1pdm	275H	0.10	-
IC 50 平均値 (A/H1N1pdm感受性株)			0.09±0.01	0.28±0.05

(国立感染症研究所により実施)

表6. 症例2由来ウイルス分離株の薬剤感受性試験結果

ウイルス株名	亜型名	耐性 マーカー	IC50(nM)	
			オセルタミビル	ザナミビル
A/WAKAYAMA/318/2009 (症例2由来ウイルス分離株)	H1N1pdm	275Y	21.31	0.40
A/DENMARK/528/2009pdm (H275Y耐性参照株)	H1N1pdm	275Y	30.03	-
A/DENMARK/524/2009pdm (H275感受性参照株)	H1N1pdm	275H	0.13	-
IC 50 平均値 (A/H1N1pdm感受性株)			0.09±0.01	0.28±0.05

(国立感染症研究所により実施)

3. 2010-2011シーズン

県内の定点当たり患者報告数のピークは第4週の約15.2人で、今回調べた4シーズンの中では最も少なく、流行規模は小さかった。ウイル

ス分離の結果から、流行の前半はA(H1N1)pdm09型が主流で、2月の後半頃からA(H3N2)型とB型インフルエンザによる小さな流行があったと考えられた(図3)。全分離株の内、A(H1N1)pdm09型67株、A(H3N2)型7株、及びB型7株について遺伝子解析を行ったところ、A(H1N1)pdm09型の1株でH275Y耐性変異がみられた。患者は1才の女性(表7)で、発症翌日に採取された咽頭拭い液からウイルスが分離された。また国立感染症研究所の薬剤感受性試験により、オセルタミビル及びペラミビルに対して耐性、ザナミビル及びラニナミビルに対して感受性であることが確認された(表8)。A(H3N2)型、及びB型インフルエンザウイルス分離株では耐性変異はみられなかった(表3)。

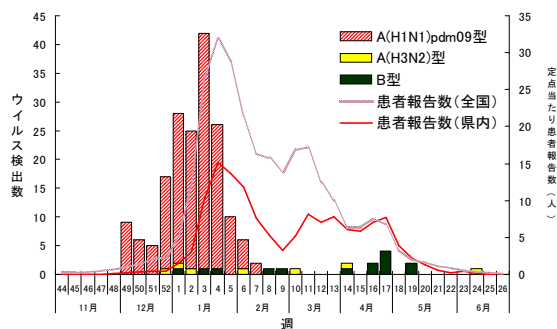


図3. 県内のインフルエンザ流行状況 (2010-2011シーズン)

表7. 2010-2011シーズンにA(H1N1)pdm09ウイルスのH275Y耐性変異が確認された症例

症例3 : 1才・女性	
2011年1月24日 発症(39.3°C)	
1月25日	簡易キットA(+) タミフル処方 検査材料の採取
1月26日	再診(37.4°C)
その後、経過良好	

表8. 症例3由来ウイルス分離株の薬剤感受性試験結果

ウイルス株名	亜型名	耐性マーカー	IC50 (nM)			
			オセルタミビル	ペラミビル	ザナミビル	ラニナミビル
A/WAKAYAMA/23/2011 (症例3由来ウイルス分離株)	AH1pdm	275Y	73.67	8.40	0.48	0.95
A/CHIBA/1017/2009 (H275Y耐性参照株)	AH1pdm	275Y	94.23	9.35	0.41	0.74
A/CHIBA/1016/2009 (H275感受性参照株)	AH1pdm	275H	0.26	0.10	0.35	0.38
2010/2011シーズンIC50平均値 (A/H1N1pdm感受性株)			0.30±0.07	0.14±0.04	0.43±0.09	0.47±0.10

(国立感染症研究所により実施)

4. 2011-2012シーズン

定点当たり患者数のピークは第4週の約48.3人で、近年では2002-2011シーズンの約49.6人に次いで高い値であった。ウイルス分離の結果、流行の前半期ではA(H3N2)型が主流で、散発的にB型の検出がみられた(図4)。分離株の内、A(H3N2)型133株、及びB型4株について遺伝子解析を行ったが、いずれも耐性変異は確認され

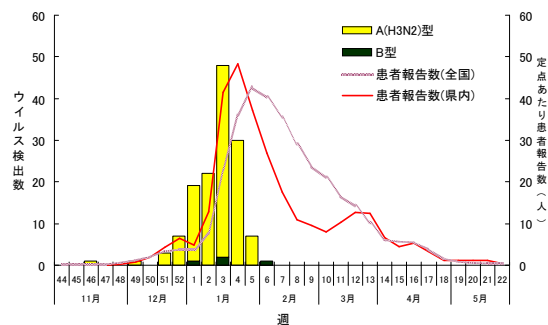


図4. 県内のインフルエンザ流行状況 (2011-2012シーズン)

なかった(表3)。

考察

A(H1N1)型インフルエンザウイルスについては2008-2009シーズン以降、全ての分離株でH275Y耐性変異が確認された。僅か1年足らず前のシーズンには国内外である程度確認される程度^{2, 3)}であったこの変異ウイルスの蔓延は、同時期に海外^{4, 5)}でも確認され、まさに予想外の激変であった。WHOが公開しているデータ⁶⁾によれば、A(H1N1)pdm09型発生以降、世界におけるA(H1N1)型の検出数は激減しており、WHOのワクチン推奨株⁷⁾からも外れ、その耐性株の蔓延自体は最早過去の一事象となりつつある。しかしながら、今後は他の亜型ウイルスにおいても同様に耐性ウイルスの蔓延が起こり得るものとしてサーベイランス体制を維持して行くことが必要であろう。特に2009年に発生したA(H1N1)pdm09型におけるH275Y変異は、今回の調査でも3株で確認された。その中で2009-2010シーズンにみられた2症例ではオセルタミビルの服用から数日後にウイルス検査用の咽頭拭い液が採取されており、オセルタミビルの服用によりウイ

ルスが耐性を獲得した可能性が考えられるのに対し、2010-2011シーズンにみられた症例では発症直後にウイルス分離用の咽頭拭い液が採取されていることから、患者の体内でウイルスが耐性を獲得したとは考え難く、耐性ウイルスのヒト-ヒト感染事例であったと推測される。いずれの症例でも同時期・同地域内で耐性ウイルスは確認されておらず、地域内での蔓延はなかったと考えられるが、今後もA(H1N1)pdm09型のH275Y変異は、最も監視の必要な耐性マーカーとして注視すべきと考えられた。また今回分離株で耐性変異は認められなかったA(H3N2)型及びB型インフルエンザウイルスについては、過去の同様の調査⁸⁾やWHOの報告⁷⁾等でも、H1N1亜型におけるH275Y変異と比較して耐性ウイルスの出現は少なく、現時点で蔓延の可能性は低いものと考えられた。

抗インフルエンザウイルス薬については2010年に新たに2剤が承認され、今後も新たな薬剤の登場が期待される⁹⁾。耐性ウイルスの蔓延抑制の観点から、今後は患者の状況等に応じて作用機序の異なる薬剤を使い分け、集団として薬剤による選択圧を偏らせないことが必要と考えられる。

謝辞

インフルエンザウイルスのNA遺伝子解析に際し、プライマー及び耐性マーカーに関する情報の提供を頂いた、国立感染症研究所ウイルス第3部インフルエンザウイルス室（現インフルエンザウイルス研究センター）の諸先生方に深謝します。

文献

1) 厚生労働省医政局経済課長及び健康局結核感染症課長連名通知（平成23年11月21日付け医政経発1121第1号及び健感発1121第1号）、抗インフルエンザウイルス薬の安定供給等につい

て

2) インフルエンザA/H1N1オセルタミビル耐性株H275Yの国内発生状況 [第1報]，病原微生物検出情報 月報，29，155-159，2008

3) インフルエンザ（A/H1N1）オセルタミビル耐性株（H275Y*）の国内発生状況 [第2報]，病原微生物検出情報 月報，29，334-339，2008

4) <速報> 2008/09インフルエンザシーズンにおけるインフルエンザ（A/H1N1）オセルタミビル耐性株（H275Y*）の国内発生状況 [第1報]，病原微生物検出情報 月報，30，49-53，2009

5) 2008/09インフルエンザシーズンにおけるインフルエンザ（A/H1N1）オセルタミビル耐性株（H275Y）の国内発生状況 [第2報]，病原微生物検出情報 月報，30，101-106，2009

6) FluNet, http://www.who.int/influenza/gisrs_laboratory/flunet/en/

7) 2012/13北半球インフルエンザシーズンに推奨されるワクチン株—WHO，病原微生物検出情報 月報，33，105-106，2012

8) M.Tashiro et al.: Surveillance for neuraminidase-inhibitor-resistant influenza viruses in Japan, 1996-2007, Antiviral Therapy 2009, 14, 751-761

9) Y.Furuta et al.: In Vitro and In Vivo Activities of Anti-Influenza Virus Compound T-705, Antimicrobial Agents and Chemotherapy, 46, 977-981, 2002

無承認無許可医薬品の分析法の検討

— 瘦身用医薬品の分析 —

中岡加陽子^{*1}, 高木文徳, 高井靖智^{*2}, 久野恵子

Examination of Analysis Methods for Approval Unlicensed Drugs — Analysis of Slimming Drugs —

Kayoko Nakaoka^{*1}, Huminori Takagi, Yasutomo Takai^{*2} and Keiko Kuno

キーワード：健康食品，瘦身用医薬品，TLC，HPLC，LC/MS/MS

Key Words：Dietary Supplement，Slimming Drugs，TLC，HPLC，LC/MS/MS

はじめに

近年，健康志向の高まりとして，いわゆる健康食品が多種多様に流通している．これらの中には，効果を高めようと医薬品の承認を受けずに医薬品成分を添加したものもあり，無承認無許可医薬品として薬事法における規制の対象となる．中でも強壮効果や瘦身効果を謳った健康食品から医薬品成分が検出された事例が多く，シルデナフィルおよびその類似物質^{1, 2)}や食欲抑制剤³⁾，緩下剤⁴⁾，経口血糖降下剤⁵⁾等が検出されている．

無承認無許可医薬品を摂取したことによる健康被害事例は数多く報告されており，最近の事例では，向精神作用や利尿作用等のある複数の医薬品成分が添加された「ホスピタルダイエット」と称する製品を服用したことによる健康被害が報告されている⁶⁾．

このような無承認無許可医薬品による健康被害に対応するため，前報⁷⁾で強壮用医薬品成分8成分の分析法について報告したが，今回は瘦身用医薬品成分12成分の分析法について検討を行った．

方 法

1. 試料

ティーバッグの茶葉（烏龍茶）を用いた．

2. 試薬

1) 標準品

マジンドール (Maz)，トルブタミド (Tol)，グリクラジド (Glic)，グリベンクラミド (Glib)，ヒドロクロロチアジド (Hyd)，ビスコジル (Bis)，フロセミド (Fur) はSigma-Aldrich社製，フェノールフタレイン (PP) は和光純薬工業製，フェンフルラミン塩酸塩 (Fen)，シブトラミン塩酸塩一水和物 (Sib)，N-ニトロソフェンフルラミン (N-Fen)，オリスタット (Ori) は国立医薬品食品衛生研究所からの分与品を用いた．標準品の純度は100%と仮定した．

2) 標準溶液の調製

(1) 標準原液

各成分10mgを精密に量り，Bisは0.1%酢酸メタノール溶液⁸⁾，その他の成分はメタノールに

衛生グループ *1 現微生物グループ *2 現湯浅保健所衛生環境課

溶解し、正確に10mLとしたものを標準原液とした(1000 μ g/mL)。また、N-Fenは光に不安定であるとの報告⁹⁾から、調製および保存の際には褐色器具を使用した。

(2) 標準溶液

TLC分析では、標準原液を標準溶液として用いた。HPLC分析およびLC/MS/MS分析では、標準原液を適宜70%メタノールで希釈し標準溶液を調製した。HPLC分析では、Oriは5~100 μ g/mL, Hydは2.5~100 μ g/mL, その他は0.5~10 μ g/mL, LC/MS/MS分析では、HydおよびFurは2~100 ng/mL, その他は1~100ng/mLに調製した。

3) その他試薬

酢酸エチルは残留農薬試験用、アセトニトリルはHPLC用およびLC/MS用、メタノールは残留農薬試験用、HPLC用およびLC/MS用、酢酸はLC/MS用、リン酸はHPLC用(いずれも和光純薬工業(株)製)を用いた。その他は特級を用いた。フィルターはMerck社製Millex-LH(0.45 μ m, 0.2 μ m)を使用した。

3. TLC分析条件

薄層板: Silicagel 70F₂₅₄ Plate-Wako

展開溶媒:

A 酢酸エチル/ヘキサン混液(17:3)

B 酢酸エチル/メタノール/25%アンモニア水混液(90:10:1)

C 1-プロパノール/酢酸エチル/8%アンモニア水混液(11:7:2)

検出方法:

① 紫外線(254nm)照射

② ドラージェンドルフ試薬噴霧後、10%硫酸噴霧
スポット量: 標準溶液5~15 μ L, 試料溶液20 μ L
展開距離: 10cm

4. HPLC分析条件

装置: HP1100シリーズ

カラム: YMC-Pack ODS-AM 4.6 \times 150mm, 5 μ m

カラム温度: 40 $^{\circ}$ C

流速: 1.0mL/min

注入量: 10 μ L

検出器: PDA

(1) スクリーニング条件

移動相: A液 0.1%リン酸水溶液

B液 アセトニトリル

グラジエント条件: A液87%(2分) \rightarrow (14分)
 \rightarrow A液60%(3分) \rightarrow (4分) \rightarrow A液30%(2分)
 \rightarrow (3分) \rightarrow A液10%(12分)

検出波長: 190-400nm

(2) 定量条件

① Ori

移動相: アセトニトリル/0.1%リン酸水溶液混液(9:1)

測定波長: 205nm

② Ori以外の成分

移動相: スクリーニング条件と同じ

測定波長: 210nm (Hydのみ325nm)

3) LC/MS/MS分析条件

(1) HPLC条件

装置: Waters 2795

カラム: Waters Symmetry[®]C18 2.1 \times 150mm, 5 μ m

カラム温度: 40 $^{\circ}$ C

移動相: A液 0.05%酢酸水溶液

B液 0.05%酢酸アセトニトリル溶液

グラジエント条件: A液80%(2分) \rightarrow (28分)
 \rightarrow A液10%(7分)

流速: 0.2mL/min

注入量: 5 μ L

(2) MS/MS条件

装置: Micromass Quattro Ultima Pt

イオン化法：ESI法，イオン源温度：650℃

トグラムを図1に示した。

展開溶媒として，酢酸エチル/ヘキサン混液

5. 試料溶液の調製

粉末化した試料0.1gを量り，70%メタノール10mLを加え，15分間超音波抽出し，遠心分離後（3000rpm，5分），上澄液を適宜濃縮したものをTLC用試料溶液とした。また，上澄液を適宜希釈後，0.45μmメンブランフィルターでろ過したものをHPLC用，0.2μmメンブランフィルターでろ過したものをLC/MS/MS用試料溶液とした。

結果 および 考察

1. TLC分析

各成分の標準溶液の検出結果を表1，クロマ

表1. TLC分析結果

成分名	R _f 値			検出	
	A	B	C	①	②
Sib	0.69	0.81	0.85	+	+
Maz	0.01	0.44	0.77	+	+
Fen	0.00	0.36	0.58	+	+
N-fen	0.70	0.76	0.85	+	+
Ori	0.76	0.83	0.91	-	+
Hyd	0.16	0.43	0.65	+	-
Fur	0.06	0.04	0.32	+	-
Glic	0.47	0.09	0.38	+	+
Glib	0.23	0.09	0.53	+	+
Tol	0.53	0.13	0.43	+	-
Bis	0.57	0.71	0.84	+	+
PP	0.49	0.64	0.79	+	-

-:未検出

展開溶媒A: 酢酸エチル/ヘキサン混液(17:3)

展開溶媒B: 酢酸エチル/メタノール/25%アンモニア水混液(90:10:1)

展開溶媒C: 1-プロパノール/酢酸エチル/8%アンモニア水混液(11:7:2)

検出方法①: 紫外線(254nm)照射

検出方法②: ドラーゲンドルフ試薬噴霧後，10%硫酸噴霧

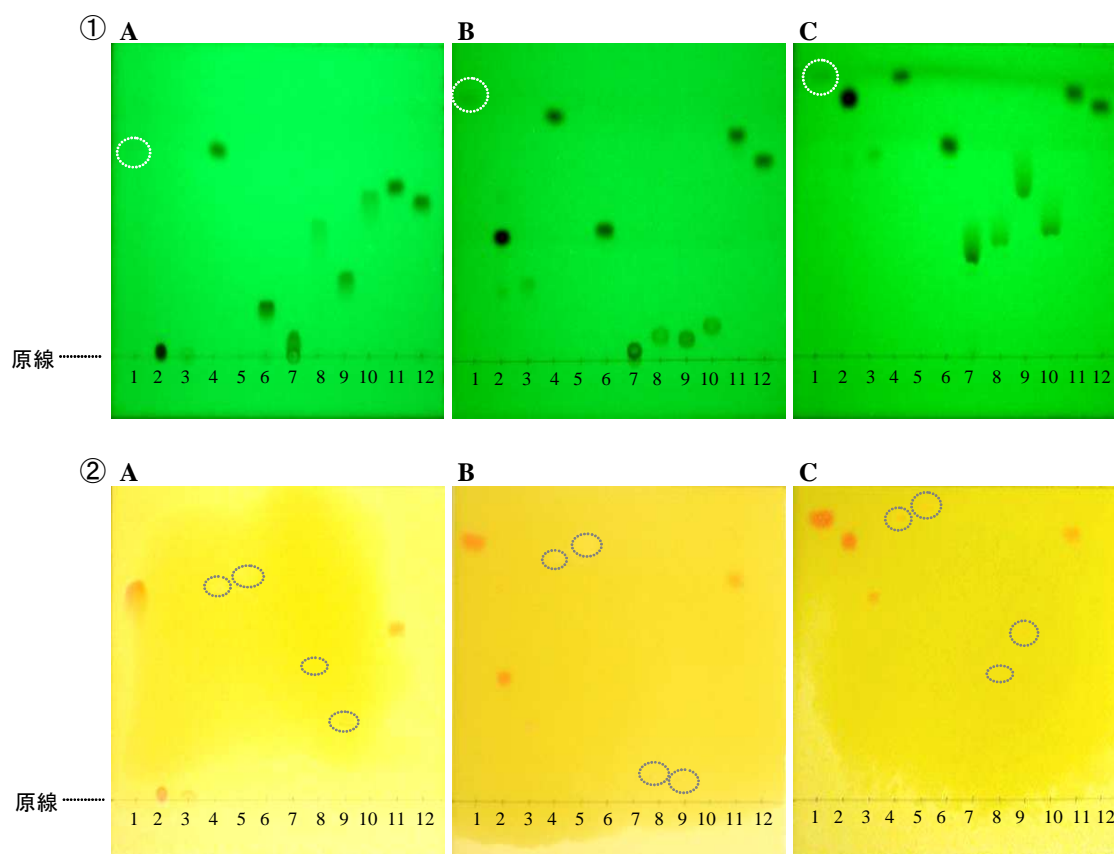


図1. 標準溶液のTLCクロマトグラム

A: 酢酸エチル/ヘキサン混液(17:3)で展開，B: 酢酸エチル/メタノール/25%アンモニア水混液(90:10:1)で展開

C: 1-プロパノール/酢酸エチル/8%アンモニア水混液(11:7:2)で展開

検出: ①紫外線(254nm)照射，②ドラーゲンドルフ試薬噴霧後，10%硫酸噴霧

1: Sib, 2: Maz, 3: Fen, 4: N-Fen, 5: Ori, 6: Hyd, 7: Fur, 8: Glic, 9: Glib, 10: Tol, 11: Bis, 12: PP

(17 : 3) を用いたところ, Furの R 値が0.06と小さく, Maz, Fenは原点からほとんど移動しなかった. また, SibとN-fen, GlicとPPは分離できなかった. 次に, 酢酸エチル/メタノール/25%アンモニア水混液(90 : 10 : 1)で展開したところ, Maz, Fenの R 値が0.44および0.36に改善したが, Furがほとんど移動しなかった. なお, SibとN-fen, GlicとPPについては, 分離できた. さらに, 1-プロパノール/酢酸エチル/8%アンモニア水混液(11 : 7 : 2)で展開したところ, Furの R 値が0.32に改善した.

検出方法として, 紫外線(254nm)を照射したところ, 構造中に共役二重結合をもたないOriは検出できなかったが, 他の成分は検出できた. また, Oriを含めほとんどの成分は構造中に窒素を持つため, ドラゲンドルフ試薬噴霧による検出を行った. なお, 色調を強めるため, さらに10%硫酸を噴霧した¹⁰⁾. この方法では, Maz,

Glic, Glib, Bis, Fen, Sib, N-Fen, Oriを検出することができた.

以上の結果から, 3種類の展開溶媒と2種類の検出方法を組み合わせることにより, 全ての成分を判別することが可能となった. また, 試料に標準品を添加し, 各成分が十分に分離する条件で試験したところ, R 値および色調は含有成分の標準溶液と一致した.

2. HPLCによるスクリーニング分析

スクリーニング分析については, 伊達らの報告¹¹⁾を基に, 0.1%リン酸水溶液とアセトニトリルのグラジエントで検討を行った. 試料溶媒に100%メタノールを用いたところ, 図2に示すように, Hyd, Maz, Fenのピークが割れたため, 試料溶媒を70%メタノールに変更し, ピー

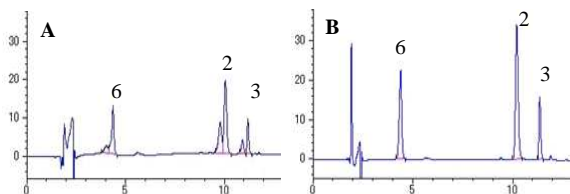


図2. 試料溶媒によるピーク形状の違い

A: 100%メタノール, B: 70%メタノール
2: Maz, 3: Fen, 6: Hyd

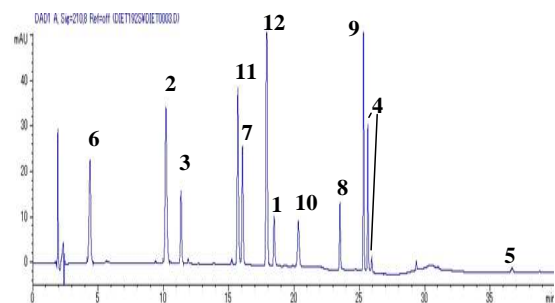


図3. 標準溶液のHPLCクロマトグラム

210nmで測定

1: Sib, 2: Maz, 3: Fen, 4: N-Fen, 5: Ori, 6: Hyd, 7: Fur, 8: Glic, 9: Glib, 10: Tol, 11: Bis, 12: PP

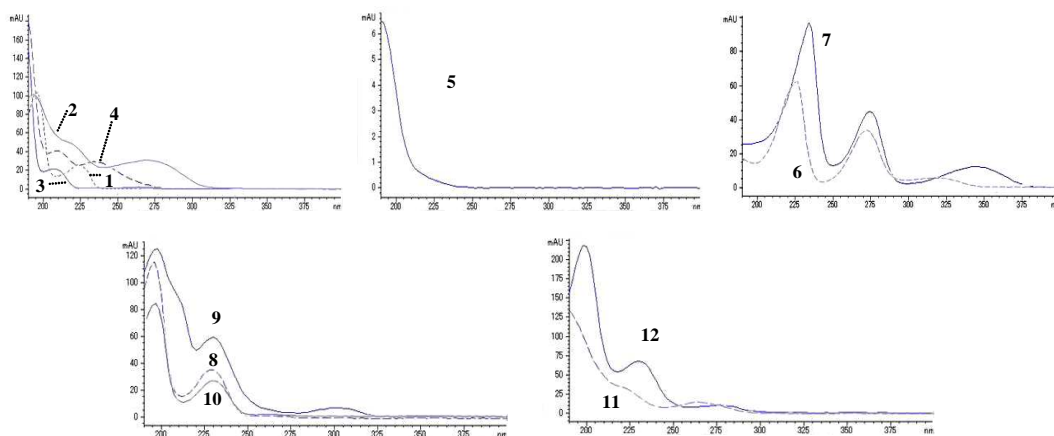


図4. 標準溶液のUVスペクトル

1: Sib, 2: Maz, 3: Fen, 4: N-Fen, 5: Ori, 6: Hyd, 7: Fur, 8: Glic, 9: Glib, 10: Tol, 11: Bis, 12: PP

ク形状を改善した。この条件で4分から37分の間にすべての成分が分離した。クロマトグラムを図3に示した。

各成分のUVスペクトルを図4に示した。それぞれ特徴的な吸収スペクトルを示し、定性の上

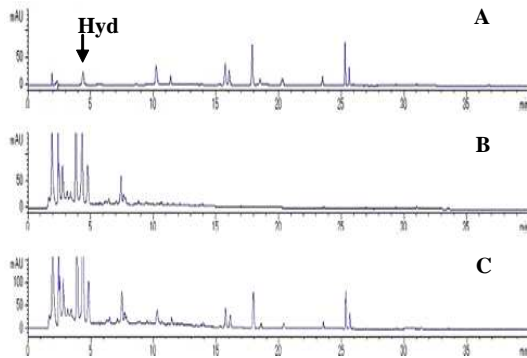


図5. 標準混合溶液及び試料のクロマトグラム

210nmで測定

A: 混合標準溶液(12成分, 各10 μ g/mL), B: 試料, C: 試料+混合標準溶液

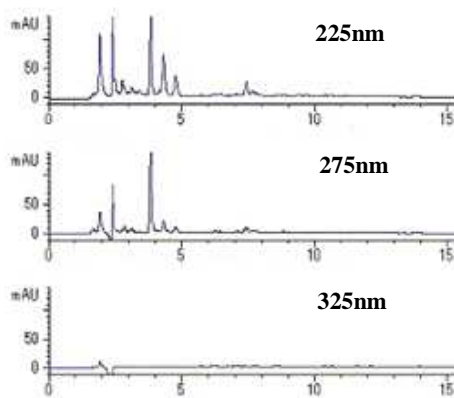


図6. 波長による試料中の夾雑物質の影響

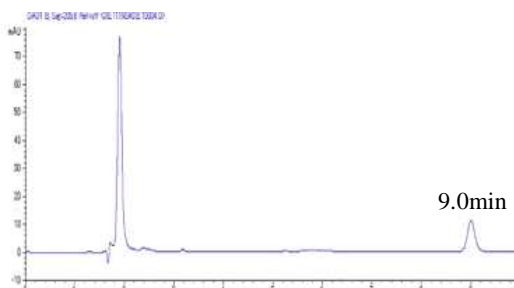


図7. OriのHPLCクロマトグラム

移動相: 0.1%リン酸水溶液/アセトニトリル(1:9)

測定波長: 205nm

その他は本文参照

で有用であった。

3. HPLCによる定量分析

スクリーニング分析条件と同条件で定量分析が可能か検討した。試料に標準品を添加し測定

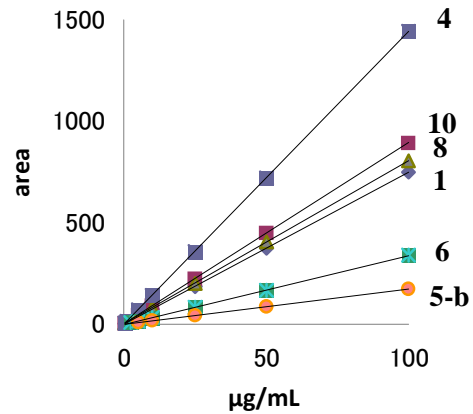
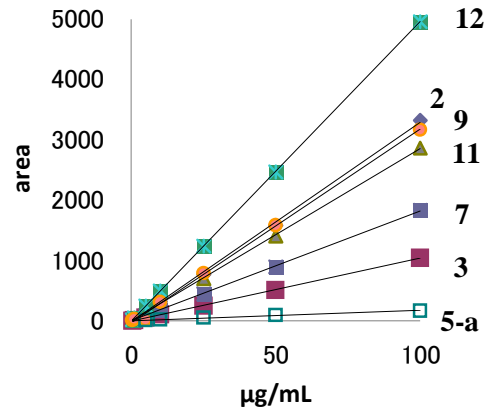


図8. 検量線

1: Sib($r=1.0000$), 2: Maz($r=0.9997$), 3: Fen($r=0.9999$), 4: N-Fen($r=1.0000$), 5-a: Ori-グラジエント($r=0.9982$), 5-b: Ori-アイソクラティック($r=1.0000$), 6: Hyd-325nm($r=1.0000$), 7: Fur($r=1.0000$), 8: Glic($r=1.0000$), 9: Glib($r=0.9990$), 10: Tol($r=1.0000$), 11: Bis($r=0.9999$), 12: PP($r=1.0000$)

表2. 添加回収試験結果

成分名	回収率(%)
Hyd	95.1 \pm 1.64
Maz	95.8 \pm 3.36
Fen	98.3 \pm 1.82
Bis	105.2 \pm 1.41
Fur	104.8 \pm 2.44
PP	105.1 \pm 0.90
Sib	97.8 \pm 2.56
Tol	104.3 \pm 0.62
Glic	106.4 \pm 0.98
Glib	104.9 \pm 1.21
N-Fen	108.5 \pm 5.12
Ori	94.4 \pm 6.93

($n=3$)

波長210nmで分析したところ、図5に示すように、Hydのピークと試料の夾雑物質が重なった。夾雑物質の影響を除くため、測定波長をHydのUV吸収極大波長付近の225nm, 275nm, 325nmに変えて試料を分析したところ、図6に示すように、325nmでは夾雑成分由来のピークがほとんどみられず、夾雑成分の影響を受けずにHydを測定することができた。以上の結果から、Hydの測定波長を325nmに設定した。

保持時間が長いOriについては、Souriらの報告¹²⁾を基に、移動相がアセトニトリル/0.1%リ

ン酸水溶液混液（9：1）のアイソクラティックによる方法（測定波長：205nm）を検討した。この条件におけるOriの保持時間は9.0分であった。クロマトグラムを図7に示した。検量線について、スクリーニング条件では、Oriが5～100 $\mu\text{g/mL}$ で $r=0.9982$ 、Hydが2.5～100 $\mu\text{g/mL}$ で $r=0.9999$ 以上、その他が0.5～100 $\mu\text{g/mL}$ で $r=0.999$ 以上と良好な直線性が得られた。Oriのアイソクラティック分析条件においても、5～100 $\mu\text{g/mL}$ で $r=0.9999$ 以上の良好な直線性が得られた。検量線を図8に示した。

表3. LC/MS/MS分析条件

	Precursor ion	Product ion (Quantity)	Product ion (Quality)	ESI	Collision (eV)	Cone (V)	Capillary (kV)
Hyd	295.8	268.9	204.9	—	16.0	50.0	2.0
Maz	284.9	241.9	255.8	+	17.0	45.0	1.5
Fen	232.0	158.8	186.8	+	17.0	45.0	1.2
Bis	362.3	183.8	225.9	+	20.0	50.0	1.2
Fur	328.9	284.8	204.9	—	13.0	35.0	2.8
PP	319.2	224.9		+	18.0	60.0	1.8
	319.2		197.0	+	27.0	60.0	1.8
Sib	280.1	124.8	138.7	+	18.0	50.0	1.0
Tol	271.0	73.9	171.8	+	10.0	35.0	2.0
Glic	324.0	126.9	110.0	+	18.0	50.0	2.0
Glib	494.0	368.9	168.8	+	14.0	50.0	3.0
N-Fen	261.2	158.8	186.8	+	16.0	35.0	1.2
Ori	496.5	319.0	159.9	+	13.0	45.0	2.5

+ : positive mode, — : negative mode

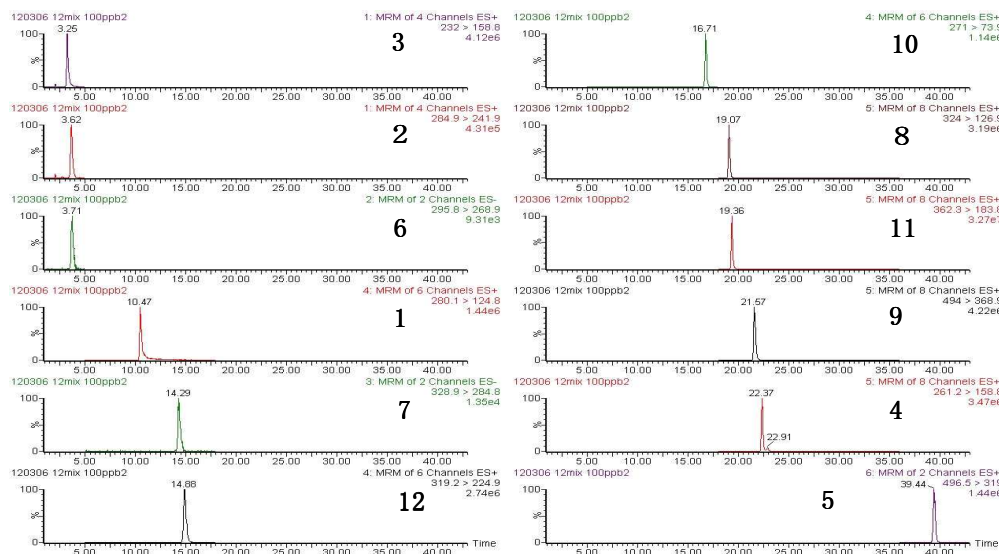


図9. 標準溶液のMRMクロマトグラム

1: Sib, 2: Maz, 3: Fen, 4: N-Fen, 5: Ori, 6: Hyd, 7: Fur, 8: Glic, 9: Glib, 10: Tol, 11: Bis, 12: PP

これらの結果から、夾雑ピークが標準物質のピークと重なる場合、検討に用いた試料については、Hydの測定波長を325nmに変更すれば、定量が可能であった。その他の成分は、スクリーニング条件で定量が可能であった。また、Oriについては、分析時間が短いアイソクラティックによる分析で行うことにした。これらの条件で添加回収試験を行ったところ、表2に示したとおりの良好な結果を得た。

3. LC/MS/MS分析

イオン化はESI法とし、フローインジェクション法によりパラメーターの最適化を行った。その結果決定した各成分のMS/MS測定条件を表3に示した。0.05%酢酸水溶液と0.05%酢酸アセトニトリル溶液のグラジエントによりMultiple Reaction Monitoring (MRM) モードで一斉分析を行ったところ、3分から40分の間ですべての成分を確認することができた。標準溶液のMRMクロマトグラムを図9に示した。試料に標準品を添加して分析したところ、全ての成分の確認が可能であった。

ま と め

健康食品中の痩身用医薬品成分12成分の分析法を検討したところ、TLC、HPLCおよびLC/MS/MSを組み合わせるにより、12成分の確認および定量方法を確立できた。今後、これらの医薬品を含有する健康食品による健康被害発生の防止および発生時の対応に役立てることが可能となった。

文 献

1) 西條雅明, 他: 「いわゆる健康食品」中の医薬品成分分析について (第2報), 千葉県衛生研究所年報, 56, 55-59, 2007
2) 伊達英代, 他: 健康食品中のシルデナフィル, タダラフィルの検出事例, 広島県立総合技

術研究所保健環境センター研究報告, 17, 37-42, 2009

3) 熊坂謙一, 他: 有症苦情に係るダイエット用健康食品の検査結果について, 神奈川県衛生研究所研究報告, 33, 114-116, 2003

4) 西條雅明, 他: 「いわゆる健康食品」中の医薬品成分分析について, 千葉県衛生研究所年報, 55, 74-78, 2006

5) 熊坂謙一, 他: 健康食品に添加されていた経口血糖降下薬グリベンクラミドの検出事例, 薬学雑誌, 123(12), 1049-1054, 2003

6) 厚生労働省医薬食品局監視指導・麻薬対策課報道発表資料: タイから輸入された「ホスピタルダイエット」と称される無承認無許可医薬品による健康被害(疑い)事例について, 平成21年10月9日

7) 中岡加陽子, 他: 無承認無許可医薬品の分析法の検討-強壯用医薬品の分析-, 和歌山県環境衛生研究センター年報, 57, 37-59, 2011

8) 森田邦正, 他: 健康食品中のピサコジルのHPLC分析法, 福岡県保健環境研究所年報, 32, 64-48, 2005

9) 守安貴子, 他: 健康被害を起こした中国製ダイエット健康食品における検査結果, 東京都立衛生研究所年報, 54, 69-73, 2003

10) 守安貴子, 他: ダイエット健康食品中に含有される医薬品の検索法と健康被害を起こした「天天素清脂胶囊」への適用, 東京都立衛生研究所年報, 56, 81-86, 2005

11) 伊達英代, 他: ダイエットを目的とした健康食品中に含まれる医薬品成分の同時分析法について, 第42回全国衛生化学技術協議会年会講演集, 212-213, 2005

12) Souri E., et al: HPLC Analysis of Orlistat and Its Application to Drug Quality Control Studies, Chem. Pharm. Bull., 55(2), 251-254, 2007

和歌山県地場農産物に対応した残留農薬の新規多成分分析法の開発 I

— 高吸水性樹脂を用いた残留農薬の迅速一斉分析法の検討 —

高井靖智¹⁾・久野恵子・大畑木の実・中岡加陽子・橋爪崇²⁾・山東英幸³⁾

Development of Simultaneous Determination Method of Pesticide Residues in Agricultural Products in Wakayama

— Studies on Rapid and Simultaneous Determination Method
using Super Absorbent Polymer of Pesticide Residues —

Yasutomo Takai, Keiko Kuno, Konomi Ohata, Kayoko Nakaoka, Takashi Hashizume
and Hideyuki Sando

キーワード：残留農薬，迅速一斉分析法，高吸水性樹脂，GC/MS/MS，LC/MS/MS

Key Words：pesticide residue, rapid and simultaneous determination, super absorbent polymer, GC/MS/MS, LC/MS/MS

はじめに

平成18年に食品中の残留農薬等の規制にポジティブリスト制度が導入され，全ての農産物において全ての農薬が規制の対象となり，残留基準値が設定されていない農薬については非常に厳しい一律基準（0.01ppm）が適用されるようになった。そのため，分析機関においては，従来より効率よく効果的な一斉分析法が必要不可欠となってきている。

そこで，本研究では，吸水剤として高吸水性樹脂であるアクアパールA3（アクアパール）を用いた簡便で高精度の簡易一斉分析法（カラム法）について検討したので報告する¹⁾。

方 法

1. 試料

和歌山県内で流通していた市販の野菜ジュース，ハウレンソウ及び平成18年度外部精度管理用試料（かぼちゃペースト）を検査対象とした。

2. 対象農薬

GC/MS/MS測定農薬193種，LC/MS/MS測定農薬27種の計220農薬について調査した。なお，農薬標準品は関東化学社製農薬混合標準溶液22，63，31，48を用い，これらを混合後，アセトンで希釈したものをGC/MS/MS標準液とし，また，50%アセトニトリルで希釈したものをLC/MS/MS標準液とした。

3. 試薬

- 1) 吸水剤：三菱化学製アクアパールA3
- 2) 固相カラム：SUPELCO社製ENVI-carb/LC-NH₂カラム6 mL（500mg/500mg），あらかじめアセトニトリル5 mL，酢酸エチル20 mLでコンデューションした後，使用した。
- 3) 充填剤：VARIAN社製ハイドロマトリック
- 4) アセトン，アセトニトリル，酢酸エチル

衛生グループ *1) 現 湯浅保健所 *2) 県工業技術センター *3) 信愛女子短期大学

ルは残留農薬分析用を用いた。

4. 装置条件

1) GC/MS/MS装置条件

GC装置：Agilent社製 7890A

カラム：DB-5MS (0.25mm i.d. × 30m, 0.25 μm)

オープン温度：50°C (1min) - 25°C/min - 125°C (0min) - 10°C/min - 300°C (10min)

キャリアガス：ヘリウム

キャリアガス流量：1.2793mL/min (リテンションタイムロッキング機能でパラチオンメチルのRTを13.8minに設定)

注入口温度：250°C

注入量：2 μL (スプリットレス法)

MS/MS装置：Agilent社製 7000

インターフェース温度：280°C

イオン源温度：280°C

四重極温度：150°C

測定モード：MRM

2) LC/MS/MS装置条件

LC装置：Waters社製 LC2795

カラム：Waters Symmetry C18
(2.1mm i.d. × 150mm, 5 μm)

移動相：A液；0.05% CH₃COOH

B液；0.05% CH₃COOH/CH₃CN

グラジエント条件：A液% (分)；80%(0-13)
→50%(43)→10%(63-65)

流量：0.2mL/min

注入量：5 μL

カラム温度：40°C

MS/MS装置：JASCO International社製

Micromass Quattro™ Pt

コリジョンガス：アルゴン

イオン化：ESI

イオンソース温度：250°C

検出器電圧：650V

測定モード：MRM

5. 試験溶液の調製

試験溶液の調製方法を図1に示した。60mLのカートリッジリザーバに1gのハイドロマトリックスを乾式充填し、あらかじめ細切した試料10gとアクアパール3gをよく混合したものを充填する。さらに、その上から再びハイドロマトリックス1gを加えた後、ENVI-Carb/LC-NH₂カラムに装着し、酢酸エチルーアセトニトリル(8:2)70mLで抽出し、これを抽出液とした。得られた抽出液を減圧濃縮し、適宜アセトンで希釈した溶液をGC/MS/MS用試験溶液とし、50%アセトニトリルで希釈した溶液をLC/MS/MS用試験溶液とした。

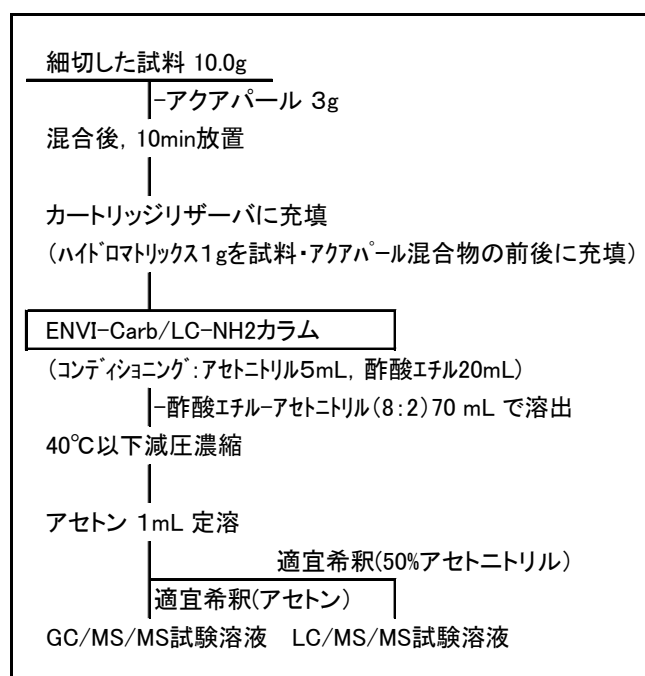


図1. 分析法

結果及び考察

1. アクアパール量の検討

アクアパール0.1g, 0.2g, 0.5g, 1.0g, 2.0gを各試験管に取りそれぞれ蒸留水10mLを加え、水10mLを吸収するために必要なアクアパール量について検討した。その結果、アクアパール0.5g以上で蒸留水10mLを完全に吸収できることがわかった。

また、試料からの脱水及び抽出を効果的に行

うため、試料をアクアパール中に均一に分散させることに必要なアクアパール量について検討した。その結果、試料5gに対しアクアパール1～2g程度を加えることで試料を均一に分散させることができた。

以上のことから、一斉分析に使用するアクアパールの量を試料10gに対し3gとした。

2. 抽出溶媒の検討

水分除去と抽出の効果をより上げるため、アクアパールの吸水効果と抽出溶媒の関係について検討した。アクアパール0.3gを入れた各試験管に、それぞれ酢酸エチル、アセトニトリル及びその混合溶媒（3種）10mLを加えた後、蒸留水7mLを添加したときのアクアパールの膨張率の結果を図2に示した（抽出溶媒が酢酸エチルのときの膨張率を100%とする）。酢酸エチル：アセトニトリルの混合比が80：20のときの膨張率は100%で、70：30、50：50及び0：100のときは、それぞれ96.3%、92.6%及び11.1%とアセトニトリルの割合が増加するに従って膨張率は減少した。また、混合比80：20（膨張率100%）と50：50（膨張率92.6%）について濃縮乾固を行ったところ、混合比50：50では水が残り、水分除去が完全ではなかった。

以上のことから、水分除去の効率と抽出効果を考え、抽出溶媒として、極性溶媒であるアセトニトリルを含んだ酢酸エチル：アセトニトリル混合比が80：20の溶媒を用いることとした。

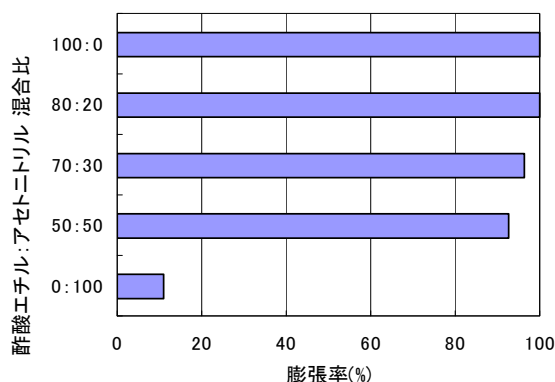


図2. アクアパールの膨張率

3. 標準添加回収実験

あらかじめ農薬が含有していないことを確認した市販の野菜ジュース10gに0.05 $\mu\text{g/g}$ 及び0.01 $\mu\text{g/g}$ の濃度となるように農薬混合標準液を添加し、本法に従って分析したときの標準添加回収率及び併行精度を表1に示した。添加濃度が0.05 $\mu\text{g/g}$ での回収率は、今回検討した220種類の農薬全てが70%～120%となり、併行精度はフルジオキサニル、ピリミジフェン、イミベンコナゾール以外は15%未満となった。また、添加濃度が0.01 $\mu\text{g/g}$ での回収率は、EPTCが52.6%であったがその他の農薬は全て70%～120%となり、併行精度はオキシフルオフェン、クロルフェナピル以外は25%未満となった。

4. 外部精度管理用試料及び農薬が検出された農産物(ホウレンソウ)での比較

平成18年度外部精度管理用試料（試料：かぼちゃペースト、検査項目：クロルピリホス、EPN）を本法で分析した結果を表2に示し、EPNが残留していたホウレンソウについて本法とEPN個別分析法で比較した結果を表3に示した。外部精度管理用試料については、クロルピリホス、EPNともに全国平均の変動範囲内であり、良好な値を示した。また、EPNが残留していたホウレンソウについても、二法でほぼ同程度の値となった。

表2. 外部精度管理用試料を分析した結果

	平均 ± 標準偏差 ($\mu\text{g/g}$)	
	クロルピリホス	EPN
本法 (n = 3)	0.0173 ± 0.00037	0.1540 ± 0.00163
全国 (189機関) 平均	0.0193 ± 0.00226	0.1661 ± 0.02877

表3. EPN が残留していたホウレンソウの分析結果

本法	0.22 $\mu\text{g/g}$
EPN個別分析法	0.21 $\mu\text{g/g}$

表 1. 添加回収率及び平行精度 (n = 5)

農薬成分名	添加濃度 0.05ug/g		添加濃度 0.01ug/g		農薬成分名	添加濃度 0.05ug/g		添加濃度 0.01ug/g			
	回収率 (%)	併行精度 (RSD%)	回収率 (%)	併行精度 (RSD%)		回収率 (%)	併行精度 (RSD%)	回収率 (%)	併行精度 (RSD%)		
1	EPTC	75.6	12.6	52.6	20.8	112	フルシラゾール	100.0	7.3	102.4	15.1
2	メビンホス	102.4	6.7	95.7	8.5	113	フルジオキシソニル	101.5	16.7	91.3	10.0
3	テクナゼン	76.5	12.2	91.5	10.7	114	メトミノストロピン (Z)	97.1	6.9	100.9	5.7
4	プロバクロール	93.2	7.6	95.7	14.4	115	アザナゾール	100.3	5.5	93.3	10.3
5	エトプロホス	102.3	5.3	93.4	11.8	116	クロルフェナビル	93.5	4.8	86.2	26.9
6	エタルフルラリン	94.6	14.1	95.3	15.6	117	カルボキシシン	90.4	10.0	89.7	16.5
7	トリフルラリン	93.9	8.1	93.3	11.9	118	シプロロキサゾール	102.2	5.2	99.4	5.1
8	ペンフルラリン	95.9	7.2	95.0	6.0	119	フェノキサニル	98.4	1.9	96.1	12.2
9	クロルプロファム	98.0	9.2	96.5	11.0	120	ビリミノバックメチル (E)	98.0	5.6	92.6	10.7
10	カズサホス	99.2	7.9	93.7	10.1	121	クロロベンジレート	100.0	5.4	95.2	4.9
11	ホレート	94.0	8.2	89.2	14.6	122	エンドスルファン (β)	97.3	4.5	97.4	7.4
12	ジクロラン	102.1	10.0	96.8	10.8	123	エチオン	98.8	5.9	92.9	4.7
13	シマジン	93.3	7.0	88.5	8.0	124	オキサジキシル	96.9	3.9	93.9	10.8
14	アトラジン	99.3	5.7	96.2	7.9	125	DDD (4,4')	99.7	6.2	93.2	8.1
15	クロマゾン	102.7	7.8	96.5	6.8	126	フェンシルホチオン	93.1	12.4	93.8	8.0
16	キントゼン	97.5	6.6	88.0	14.2	127	フルアグリピリム	102.0	6.1	94.5	8.8
17	プロバジン	96.0	9.2	96.6	3.9	128	トリアゾホス	93.4	5.9	96.5	8.2
18	ジメチピビン	101.8	6.2	94.6	8.7	129	メブロンル	99.4	5.4	94.0	2.3
19	BHC (γ)	97.1	3.7	93.4	10.9	130	カルフェントラゾンエチル	94.4	10.3	89.4	11.7
20	テルブホス	94.0	11.4	90.8	17.9	131	ペナラキシル	101.4	5.2	99.0	7.1
21	ダイアジン	97.4	7.7	99.3	8.1	132	トリフロキシストロピン	97.2	9.1	93.4	11.5
22	ビリタニル	100.0	7.1	92.0	14.3	133	ビリミノバックメチル (Z)	95.7	5.4	97.5	8.2
23	プロピドロジャスモン	98.1	8.4	97.1	7.8	134	エディフェンホス	96.2	8.8	97.8	10.2
24	テフルトリン	97.7	6.1	93.9	6.4	135	キノキシフェン	95.3	3.5	92.6	9.6
25	イサゾホス	101.4	8.2	95.2	8.5	136	ビラフルフェンエチル	100.4	3.4	101.4	9.6
26	エトリムホス	97.8	6.9	92.8	11.1	137	プロピコナゾール	89.3	12.4	94.5	6.3
27	トリアレート	98.8	9.7	94.4	9.9	138	ナルフルラゾン	99.3	5.4	96.5	10.9
28	ターバシル	103.6	4.2	94.3	14.1	139	レナシル	96.8	8.5	93.5	14.2
29	BHC (δ)	96.2	5.2	97.0	4.4	140	テニルクロール	100.0	4.7	94.6	10.5
30	イプロベンホス	101.2	3.7	95.6	6.0	141	ヘキサジノン	98.5	6.7	96.8	5.6
31	ペノキサコール	98.6	6.5	95.9	11.5	142	プロバルギット	96.4	5.7	100.3	13.4
32	ジクロフェンチオン	95.1	5.5	93.4	9.3	143	ジクロホップメチル	94.9	7.4	99.4	8.1
33	ペンフレセート	99.8	3.5	97.2	8.0	144	メフェンビルジエチル	96.0	2.5	94.2	3.8
34	ジメタナミド	99.9	7.7	95.7	7.3	145	ゾキサミド	98.8	8.4	99.4	15.3
35	アセトクロール	96.3	6.4	95.0	13.3	146	ビリダフェンチオン	92.0	6.3	90.9	15.5
36	プロモプチド	98.1	4.6	97.6	4.0	147	イプロジオン	99.2	6.3	102.1	7.9
37	クロルピリホスメチル	101.0	7.0	94.8	7.0	148	ビフェントリン	98.2	6.0	95.4	6.0
38	ピンクロゾリン	101.0	10.0	100.7	11.3	149	ビベロホス	94.2	9.2	92.9	8.9
39	スピロキサミン	93.7	5.4	94.7	9.0	150	プロモプロピレート	96.8	5.6	94.8	10.1
40	アラクロール	102.2	6.0	94.7	6.0	151	EPN	95.8	3.3	95.4	6.1
41	トルクロホスメチル	103.2	5.6	91.1	9.4	152	エトキサゾール	94.3	8.8	103.2	8.5
42	パラチオンメチル	97.5	5.1	92.2	12.8	153	ホスメット	94.7	10.1	96.6	6.9
43	シメトリン	97.0	6.1	94.0	10.9	154	メキシクロール	98.0	7.0	97.4	11.3
44	プロバニル	89.0	14.3	105.9	11.7	155	フェンプロバトリン	98.0	5.0	99.3	9.2
45	メタラキシル	98.6	5.8	99.7	3.1	156	フェンアミド	97.8	4.4	99.2	11.3
46	アトリン	94.4	7.9	95.4	8.3	157	デブフェンピラド	95.7	5.1	98.3	10.8
47	プロメリン	99.5	10.3	89.5	14.3	158	アニコホス	100.3	4.5	92.8	11.4
48	ビリホスメチル	99.0	5.7	94.2	10.0	159	ビフェノックス	103.0	7.2	94.0	16.4
49	テルブリン	103.2	6.1	95.5	6.1	160	フェトリン	96.4	3.9	98.7	14.6
50	フェニトロチオン	96.6	10.0	97.5	11.6	161	テトラジホソ	97.8	6.1	96.9	5.2
51	エトフメセート	95.4	5.3	94.5	8.2	162	ホサロン	93.5	11.9	99.6	9.0
52	ジクロルアエド	98.8	8.5	96.9	10.3	163	シハロリン (γ)	96.5	2.5	101.6	8.1
53	マラチオン	100.1	7.2	91.5	11.8	164	アジンホスメチル	90.8	12.7	99.2	9.4
54	メラクロール	101.3	6.1	95.3	6.3	165	ビリプロキシフェン	97.5	4.5	100.5	3.2
55	クロルピリホス	100.2	5.9	91.2	9.4	166	シハロホップブチル	94.0	9.2	98.6	6.9
56	ジメチルピホス (E)	98.1	5.2	94.5	6.3	167	シハロリン (α)	94.5	4.3	98.1	9.6
57	ジメチルピホス (Z)	100.3	10.0	93.4	8.2	168	メフェナセート	100.5	6.1	98.0	7.0
58	クロルタージメチル	98.3	6.8	95.1	10.0	169	アクリナリン	95.3	3.4	99.2	7.8
59	フェンチオン	105.0	5.9	94.2	5.8	170	ビラフホス	95.0	4.8	97.5	11.4
60	フェンプロピキルフ	100.3	8.0	94.5	8.3	171	フェナリホス	94.6	6.9	97.9	4.3
61	バラチオン	100.4	8.0	98.4	10.7	172	ビラクロホス	98.9	1.5	100.3	4.3
62	シアナジン	89.8	11.3	96.1	10.7	173	スピロジクロフェン	91.1	5.2	94.6	4.7
63	イソフェンホスオキシソ	99.5	3.0	101.2	4.8	174	ベルメトリン (trans)	86.4	14.6	95.4	16.9
64	トリアジメホソ	99.4	9.3	95.9	7.7	175	ベルメトリン (cis)	86.1	9.1	96.4	7.1
65	ニトタールイソプロピル	97.3	9.5	91.4	10.8	176	ビリダペン	96.1	6.8	97.1	6.3
66	プロモホス	101.3	8.1	91.4	10.5	177	フルキシコナゾール	94.9	7.7	96.1	11.9
67	ジフェナミド	99.3	7.8	94.5	12.7	178	カブフェンストール	91.6	6.1	78.5	8.1
68	フサライド	96.6	5.2	93.2	10.2	179	シフルトリン	96.1	6.5	94.3	7.3
69	ホスチアゼート	97.2	4.4	96.1	11.4	180	フェンプロナゾール	98.0	3.5	94.7	7.2
70	メブレン	104.0	7.7	90.3	21.5	181	ハルフェンプロックス	96.0	4.6	100.6	15.2
71	クロルフェンピホス (E)	92.4	11.6	91.1	12.1	182	フルントリネート	94.4	9.6	99.2	9.2
72	ペンディメタリン	96.5	9.0	90.4	13.4	183	シベルメトリン	96.2	4.2	96.7	4.6
73	ジメタメトリン	96.6	8.3	95.8	7.9	184	エトフェンプロックス	95.3	5.9	96.9	2.9
74	イソニル	93.5	5.9	93.5	18.4	185	シラフルオフェン	95.2	4.8	95.5	10.2
75	イソフェンホス	97.2	7.8	93.5	7.8	186	ビリミジフェン	87.6	15.1	85.8	16.0
76	ペンコナゾール	100.5	6.5	94.6	8.9	187	フルミオキサジン	99.9	5.2	103.2	6.7
77	クロルフェンピホス (Z)	96.6	7.4	96.0	6.4	188	フェンバレート	99.1	7.7	96.9	5.4
78	ビリフェノックス (Z)	103.0	3.0	93.9	15.2	189	フルバリネート	97.9	8.7	92.1	10.3
79	アレズリン	94.0	12.3	93.9	3.9	190	デルタメトリン	94.6	7.5	92.0	10.0
80	フェントエート	102.5	7.2	96.7	6.1	191	フルミクロラックベンチル	91.7	4.0	95.4	8.9
81	キナルホス	105.4	6.8	89.4	11.6	192	フルチアセトメチル	93.8	9.6	92.8	10.7
82	ジクロシメット	100.2	5.8	88.5	12.0	193	メタミドホス	102.7	10.3	92.8	10.3
83	プロシミドン	97.2	7.2	95.5	6.8	194	アセタミプリド	103.8	7.7	93.0	8.2
84	キャブタン	101.4	9.9	92.8	10.7	195	ビリミカープ	104.2	6.1	99.4	6.5
85	ジメビレート	100.5	6.6	95.0	11.7	196	ジクロルボス	79.5	10.2	90.5	16.3
86	トリアジメノール	107.1	8.4	101.5	8.2	197	プロボキスル	108.5	6.9	93.2	6.5
87	ビリフェノックス (E)	97.8	14.0	101.8	6.3	198	ペンダイオカルブ	110.9	6.4	96.9	9.3
88	テトラクロルピホス	100.4	7.4	99.4	5.9	199	カルボフラン	106.5	9.7	94.5	8.1
89	ブタクロール	96.6	7.0	93.4	9.0	200	カルバリル	104.2	5.9	99.1	10.2
90	バクプロトラゾール	97.9	4.9	99.0	7.8	201	XMC	105.0	4.5	97.7	5.1
91	エンドスルファン (α)	92.1	8.4	91.0	9.8	202	エチオフェンカルブ	99.5	5.1	79.1	8.2
92	フェノチオカルブ	97.7	12.0	91.3	10.2	203	イソプロカルブ	106.8	4.4	92.0	6.5
93	ブタミホス	100.2	7.4	99.6	8.5	204	メチダチオン	109.6	4.9	95.4	4.0
94	フルトリアホル	100.3	5.7	91.6	9.9	205	メチオカルブ	107.2	5.4	92.6	5.3
95	ナプロパミド	95.3	5.9	97.1	8.2	206	フェノカルブ	102.5	6.4	94.0	7.6
96	メトミノストロピン (E)	98.8	7.8	94.7	5.5	207	ジエトフェンカルブ	111.9	5.5	90.3	11.5
97	プロチオホス	99.2	6.5	94.4	9.0	208	ミクロブタニル	104.4	3.5	99.7	5.2
98	ブレチラクロール	96.1	8.2	99.5	8.7	209	プロビザミド	102.3	10.1	92.6	12.8
99	フルトラニル	97.9	6.8	94.1	8.4	210	テブコナゾール	110.4	2.0	96.6	9.2
100	ヘキサコナゾール	97.2	8.2	105.5	11.7	211	イソプロチオラン	99.8	8.9	95.6	12.5
101	プロフェノホス	97.0	15.1	90.3	5.6	212	ビテルタニル	108.3	2.0	94.7	5.3
102	オキサジアゾン	105.1	4.1	96.7	8.0	213	クレソキシムメチル	113.6	4.7	89.2	10.6
103	DDE (4,4')	99.3	5.7	94.6	8.5	214	ジフェノコナゾール	112.5	4.5	92.1	6.0
104	フラムプロップメチル	78.7	13.2	93.9	11.9	215	チオペンカルブ	108.5	5.6	83.9	10.5
105	トリブホス	100.4	6.6	100.4	8.9	216	イソキサチオン	95.8	3.6	96.3	22.7
106	チフルザミド	101.9	6.6	87.6	13.9	217	イミペンコナゾール	89.0	16.8	75.8	11.3
107	ウニコナゾール p	101.8	7.7	103.4	4.9	218	トルフェンピラド	112.5	3.1	90.5	7.5
108	TCMTB	84.8	18.3	89.9	8.5	219	エスプロカルブ	111.5	2.3	92.5	8.5
109	ブピリメート	98.8	7.3	96.6	10.7	220	ビリブチカルブ	119.8	5.6	98.1	9.3
110	ブプロフェジン	98.2	10.1	94.5	11.6		</				

ま と め

今回、吸水剤としてアクアパールを用いた簡便で高精度の残留農薬の多成分分析法について検討した。本法では、アクアパールを用いて農薬抽出段階の前に脱水操作を行うことで、水による影響を無視できるため複雑なpH調整等が不要となった。また、あらかじめ脱水することにより、農薬の抽出効率も上がるため、振とう等の操作をしなくても抽出溶媒を脱水した試料に通すだけで農薬を抽出することが可能となっ

た。さらに、抽出した液をそのまま精製カラムへ導入することにより抽出と精製を同時に行えるため、農薬成分のロスの削減や大幅な簡便・迅速化が実現できた。

文 献

1) 高井靖智, 他: 高吸水性樹脂を用いた混合脱水による残留農薬の簡易一斉分析法の検討, 第44回全国衛生化学技術協議会年会講演要旨集, 97-98, 2007

和歌山県地場農産物に対応した残留農薬の新規多成分分析法の開発Ⅱ

－ 残留農薬の簡易迅速分析法を用いたドリフト調査について －

高井靖智¹⁾・久野恵子・大畑木の実・中岡加陽子・橋爪崇²⁾・山東英幸³⁾・橋本真穂⁴⁾
・林恭弘⁴⁾・森下年起⁵⁾・安井洋子⁴⁾・森本涼子⁶⁾・南方高志⁷⁾・井上博仁⁸⁾

Development of Simultaneous Determination Method of Pesticide Residues in Agricultural Products in Wakayama

－ Investigation of Drift by Rapid and Simultaneous Determination Method of Pesticides －

Yasutomo Takai, Keiko Kuno, Konomi Ohata, Kayoko Nakaoka, Takashi Hashizume,
Hideyuki Sando, Maho Hashimoto, Yasuhiro Hayashi, Toshiki Morishita,
Yoko Yasui, Ryoko Morimoto, Takashi Minakata and Hirohito Inoue

キーワード：残留農薬，迅速一斉分析法，ドリフト

Key Words：pesticide residue, rapid and simultaneous determination, drift

はじめに

平成18年に食品中の残留農薬等の規制にポジティブリスト制が導入され、従来より効率よく効果的な残留農薬分析法が必要となってきた。このような状況に対応するため、当センターでは、前報¹⁾で報告したとおり、吸水剤として高吸水性樹脂であるアクアパールA3（アクアパール）を用いた簡便で高精度な簡易一斉分析法を検討してきた。一方、生産者の現場でも、ポジティブリスト制施行により、ドリフト（農薬の目的外農産物への飛散）による基準値違反という新たな問題が出てきている。しかし、実際に農薬を用いてのドリフト調査は、大量の検体を速やかに測定することが求められるため、ほとんど行われていないのが実態である。

そこで、迅速性と正確性を有する本法の特徴を活かすことで、ドリフトの実態把握を効率的に行えるのではないかと考え、様々な条件下でドリフト調査を実施した。今回、①果樹園（ももからうめ）での調査、②畑（レタスからハウレンソウ）での調査、および③ドリフトを前提とした調査（かき使用農薬のももへの影響調査）を実施した^{2) 3)}ので、報告する。

方 法

1. 試料

①：うめ，②：ハウレンソウ，③：もも

2. 分析対象農薬

①：イミベンコナゾール，②：クロルフェナ

衛生グループ *1) 現 湯浅保健所 *2) 県工業技術センター *3) 信愛女子短期大学
*4) 県農業試験場 *5) 県果樹試験場 *6) 県果樹試験場かきもも研究所
*7) 県農業大学校 *8) 経営支援課

ピル, アゾキシストロビン, ③ : プロチオホス,
メチダチオン, アセタミプリド

3. 試薬

1) 吸水剤 : 三菱化学製アクアパールA3

2) 固相カラム : SUPELCO社製ENVI-carb/ LC-NH₂カラム 6 mL (500mg/500mg), あらかじめアセトニトリル 5 mL, 酢酸エチル20mLでコンデ
イションングした後, 使用した。

3) 充填剤 : VARIAN社製ハイドロマトリック
ス

4) アセトン, アセトニトリル, 酢酸エチ
ルは残留農薬分析用を用いた。

4. 装置条件

1) GC/MS装置条件 (クロルフェナピル, アゾ
キシストロビン)

装置 : Agilent社製6890N/5975

カラム : Rtx-5MS (0.25mm i. d. × 30m, 0.25
μ m)

オープン温度 : 70°C (3min) → 30°C/min → 170
°C (0min) → 2°C/min → 200°C (0min) → 6°C/min →
280°C (8min)

キャリアガス : ヘリウム

注入口温度 : 250°C

インターフェース温度 : 280°C

注入量 : 1 μ L

2) LC/MS/MS装置条件 (イミベンコナゾール,
アセタミプリド)

LC装置 : Waters社製 LC2795

カラム : Waters Symmetry C18

(2.1mm i. d. × 150mm, 5 μ m)

移動相 : A液 ; 0.05% CH₃COOH

B液 ; 0.05% CH₃COOH/CH₃CN

グラジエント条件 : A液% (分) ;

80% (0-13) → 50% (43) → 10% (63-65)

流量 : 0.2mL/min

注入量 : 5 μ L

カラム温度 : 40°C

MS/MS装置 : JASCO International社製

Micromass Quattro™ Pt

コリジョンガス : アルゴン

イオン化 : ESI

イオンソース温度 : 250°C

検出器電圧 : 650V

測定モード : MRM

3) GC/FPD装置条件 (プロチオホス, メチダ
チオン)

装置 : shimadzu社製GC-2014

カラム : Rtx-1 (0.53mm i. d. × 30m, 0.25 μ
m)

カラム温度 : 105°C (4min) → 5°C/min

→ 180°C (5min) → 10°C/min → 200°C (min)

→ 20°C/min → 250°C (7.5min)

注入口温度 : 230°C

検出器温度 : 260°C

AUX温度 : 260°C

注入量 : 2 μ L (全量注入)

4. 試験溶液の調製

1) 農産物

60mLのカートリッジリザーバに1gのハイド
ロマトリックスを乾式充填し, あらかじめ細切
した試料10gとアクアパール3gをよく混合した
ものを充填する。さらに, その上から再びハイ
ドロマトリックス1gを加えた後, ENVI-Carb/L
C-NH₂カラムに装着し, 酢酸エチルーアセトニ
トリル (8:2) 70mLで溶出した。これを濃縮し
てアセトン1mLに定容したものをGC/MS (GC/FPD)
試験溶液とし, またこの溶液を50%アセトニ
トリルで適宜希釈し調製したものをLC/MS/MS試験
溶液とした。

2) シャーレ内に落下した農薬

シャーレ内をアセトンでよく洗浄した後, そ

の洗浄液を1mLまで減圧濃縮したものをGC/MS試験溶液とした。またLC/MS/MS試験溶液は、GC/MS試験溶液を50%アセトニトリルで適宜希釈し調製した。

5. ドリフト調査方法

1) 果樹園での調査

うめの収穫時期である平成20年5月下旬に、うめ園に隣接するもも園に農薬を散布し、うめ園へのドリフト量について調査した。その条件を表1に、調査した果樹園の模式図を図1に示した。農薬散布機には、果樹園で一般的に用いられるスピードスプレーヤ（以下、SS）を用いた。散布する農薬の種類及び濃度は、防除暦例に準拠し、2000倍希釈したマネージ(イミベンコナゾール15%)水和剤等を使用した。また、SSがうめ園ともも園の境界（以下、境界）を通る際は、もも園側のみに散布した。調査方法とし

て、以下の3方法を実施した。

(1) 感水紙による調査

うめ園側に、境界から0, 7, 12.5mの3地点で、高さ1, 2, 3mの位置に感水紙を各々3枚ずつ設置した（計27枚）。散布終了後、感水紙の変色度合いを付着度標準表（大畑ら(1964), 園芸試験場報告B第5号）に基づき速やかに判定した。

(2) ドリフト率^{*}の調査

ドリフト率を算出するために、ガラスシャーレ（直径9cm）を感水紙と同地点に配置し、シャーレ内に落下した農薬量を調べた。散布終了後シャーレを回収し、その日のうちに処理を行い、イミベンコナゾールの分析を行った。

※ドリフト率とは、散布区域内の理論上の散布量に対して散布区域外の特定地点にドリフトした農薬量の割合をいう。

(3) うめへの残留量の調査

農薬散布前、直後、1, 3, 7日後に境界から1, 7, 8.5, 12mの4地点で、高さ1, 2, 3mの位置のうめを採取した。採取したうめについては、その日のうちに処理を行い、イミベンコナゾールの分析を行った。

2) 畑での調査

平成20年11月上旬に和歌山県農業試験場にて、ハウレンソウを植

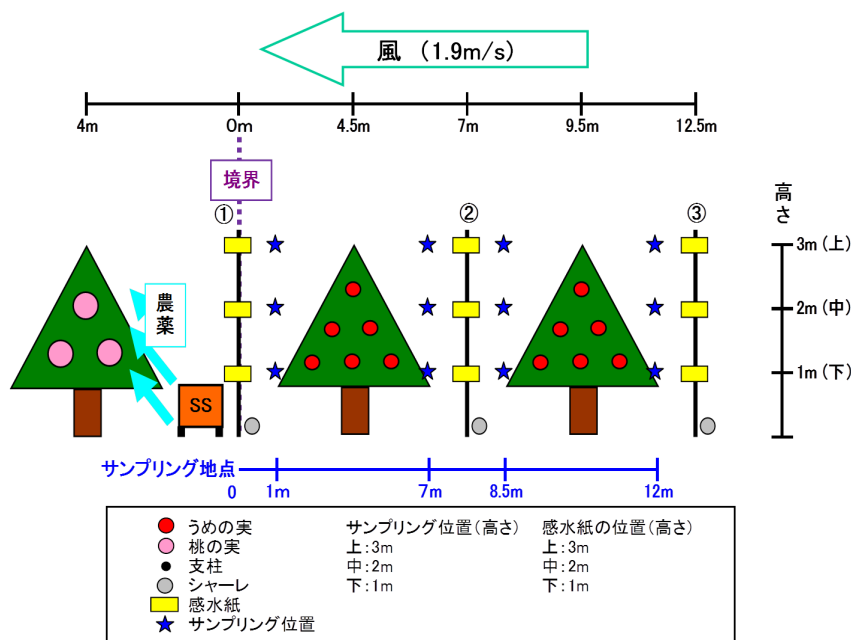


図1. 調査果樹園の模式図

表1. 果樹園での調査条件

実施日	平成20年5月27日(火) 7時40分~8時30分 (晴)
実施場所	うめ園ともも園が隣接した農場(紀の川市)
気温	平均気温24.6°C
風向風速	東北東~北, 平均風速1.9m/s, 最高風速4m/s
散布農薬	マネージ2000倍(イミベンコナゾール), パリダシン500倍(パリダマイシン), パリアード3000倍(チアクロブリド)
散布機	スピードスプレーヤ(丸山製作所製 SSA F 501)
分析対象農薬	イミベンコナゾール

えたプランターをレタス畑の周囲15カ所に設置し、レタス畑への農薬散布による周辺に植えたホウレンソウへのドリフト量について調査した。その条件を表2に、調査圃場の模式図を図2に示した。農薬散布機には、畑作農家で一般的に使用される動力噴霧機を用いた。散布する農薬は、2000倍希釈したコテツ(クロルフェナピル10%),アミスター(アゾキシストロビン20%)を使用した。また、調査に用いたホウレンソウは、ビニールハウス内でドリフト調査に使用した農薬を使わずに栽培したものを用いた。

(1) ホウレンソウへの残留量の調査

農薬散布前、直後、2日後にホウレンソウ及びレタスを採取したが、2日後のサンプルについては、直後の分析で農薬が検出されたプラン

ターのホウレンソウのみを採取した。採取した検体については、その日のうちに2農薬の分析を行った。

(2) ドリフト率の調査

ドリフト率を算出するために、ガラスシャーレ(直径9cm)をホウレンソウのプランターと同地点に設置し、シャーレ内に落下した農薬量を調べた。散布終了後シャーレを回収し、その日のうちに2農薬の分析を行った。

3) ドリフトを前提とした調査

(1) かき使用農薬のももへの影響調査

かきに散布した農薬がももにドリフトしたと仮定し、本来かきに散布する農薬のももへの直接散布(過酷な条件を想定)を、時期をずらして5回実施した後、散布時期の異なるもも果実

の収穫・分析を行い、収穫果実に農薬が残留する散布時期及びその残留量について調査した(n=1~3)。その条件を表3に示した。

調査対象農薬として、トクチオン(収穫75日前まで使用可能、主要成分プロチオホス)、スプラサイド(収穫30日前まで使用可能、主要成分メチダチオン)、モスピラン(収穫7日前まで使用可能、主要成分アセタミプリド)のそれぞれ使

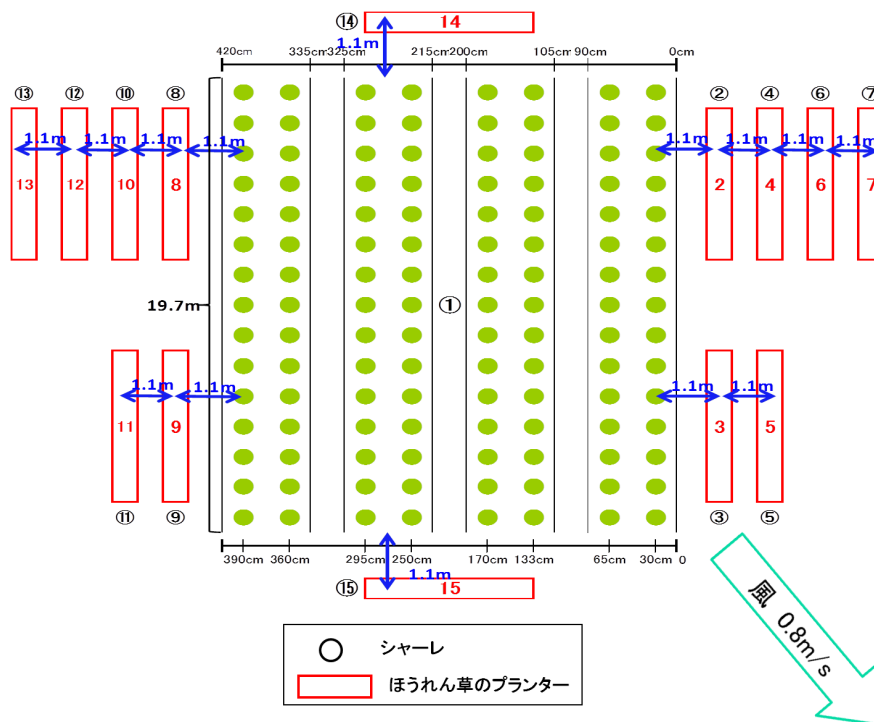


図2. 調査圃場の模式図

表2. 畑での調査条件

実施日	平成20年11月5日(水) 13時00分~15時00分(晴)
	農薬散布時間: 14時09分~14時14分
実施場所	和歌山県農業試験場(紀の川市)
気温	平均気温 21.5°C
風向風速	北北西~西 平均風速0.8m/s, 最高風速1.8m/s
散布農薬	コテツフロアブル2000倍(クロルフェナピル), アミスター2000倍(アゾキシストロビン)
散布機	ハッタ社製 YS-211
ノズル	ヤマホ社製 新広角強カズズラン境口7頭口(竿全長: 3.2m, 圧力: 1.0MPa)
分析対象農薬	クロルフェナピル, アゾキシストロビン

用期限の異なる殺虫剤3種を選択した。また、農薬3種を混合した時と単剤で散布した時の違いについても検討した。

(2) 葉から果実への転流試験

葉や枝等から果実への農薬の転流による残留量の変化も考えられたので、収穫1.5ヶ月前に果実以外の部分に農薬を散布し、1週間間隔でもも果実の収穫・分析を行い、葉及び枝から果実への転流の有無、果実に転流するまでの時間を調べた。条件を表4に示した。

結果及び考察

1. 果樹園での調査

果樹園での調査結果を表5～7に示した。

表3. ドリフトを前提としたかき使用農薬のももへの影響調査条件

農薬散布日	平成21年4月16日(収穫3ヶ月前) 5月11日(収穫2ヶ月前) 6月1日(収穫1.5ヶ月) 6月18日(収穫1ヶ月前) 7月7日(収穫1週間前)
実施場所	和歌山県 果樹試験場かき・もも研究所(紀の川市)
散布農薬	トクチオン800倍希釈(プロチオホス)…収穫75日前まで使用可能 スプラサイド1500倍(メチダチオン)…収穫30日前まで使用可能 モスピラン2000倍(アセタミプリド)…収穫7日前まで使用可能
散布方法	蓄圧式散布機でももに各種単剤、3種混合農薬を柿に使用する濃度で十分散布した。※3カ所に散布。
収穫日	7月13日、14日
栽培方法	無袋栽培、通常摘果
分析対象農薬	プロチオホス、メチダチオン、アセタミプリド

表4. 転流試験条件

農薬散布日	平成21年5月26日
実施場所	和歌山県 果樹試験場かき・もも研究所(紀の川市)
散布農薬	トクチオン800倍希釈(プロチオホス)
散布方法	薬剤が果実にかからないように袋をかけて、葉及び幹に十分散布した。
収穫日	6/2, 6/9, 6/18, 6/23, 6/30, 7/7, 7/14(散布後1週間間隔)
分析対象農薬	プロチオホス

表5. 感水紙結果(n=3)

境界からの距離	高さ	表側	裏側
0m	3m	9.3	6.7
	2m	10.0	9.3
	1m	3	4
7m	3m	0	0
	2m	0	0
	1m	0	0
12.5m	3m	0	0
	2m	0	0
	1m	0	0

※農薬飛散量を10段階で評価。10(飛散量大)～0(飛散量無)

表6. ドリフト率(シャレ内のイミベンコナゾール量)の調査結果(n=3)

境界からの距離	農薬量	cm ² 当り農薬量	ドリフト率
0m	2.17 μg	0.034 μg	1.12%
7m	0 μg	0 μg	0
12.5m	0 μg	0 μg	0

平均1.9m/sのうめ園からもも園への微風であったため、3方法の調査全てで、もも園から最も近い1列目への農薬の飛散は確認できたが、2列目以降は農薬の飛散は見られなかった。その中でも残留量については、低い位置(1m)のうめからイミベンコナゾールが0.2ppm(基準値2ppm)検出されたが、他の部位からは農薬は検出されなかった。また、唯一検出された部位のうめについても、1日後には農薬の残留が確認できなかった。農薬がほとんど検出されなかった原因として風向き以外にも、うめの実が葉に隠れてしまうため実に直接かかる農薬が少なくなった事などが考えられた。

表7. うめへの残留量(イミベンコナゾール)

境界からの距離	高さ	散布直後	散布1日後	散布3日後
1m (1本目の木表側)	3m	ND	ND	-
	2m	ND	ND	-
	1m	0.2ppm	ND	ND
7m (1本目の木裏側)	3m	ND	ND	-
	2m	ND	ND	-
	1m	ND	ND	-
8.5m (2本目の木表側)	3m	ND	ND	-
	2m	ND	ND	-
	1m	ND	ND	-
12m (2本目の木裏側)	3m	ND	ND	-
	2m	ND	ND	-
	1m	ND	ND	-

NDは0.01ppm未満、-は未測定
基準値:2ppm

2. 畑での調査

畑での調査結果を表8に示した。

レタス畑の風下側（平均0.8m/sの微風）に配置したハウレンソウがドリフトを受け、一方、風上側へのドリフトは全く確認できず、風の影響を大きく受けた結果となった。農薬散布直後では、最も残留量が高いハウレンソウからは、クロルフェナピルで1.87ppm、アゾキシストロビンで3.56ppmが検出され、2日後でも、減少していたものの農薬の残留（最大でクロルフェナピルで0.40ppm、アゾキシストロビンで0.28ppm）が確認された。今回の調査では、ハウレンソウの基準値がクロルフェナピルで3ppm、アゾキシストロビンで30ppmと比較的高めであったため、散布直後でも基準値超過のサンプルはなかった。しかし、散布する農薬とドリフトを受ける農産物の組み合わせによっては、基準超過になる可能性も考えられ、農薬散布時には、周辺に植えられている農産物や風向・風速などの気象条件に注意が必要であると考えられた。

3. ドリフトを前提とした調査

ももへの残留量の結果を表9に示した。最も残留量が高かったのはアセタミプリドで、約2ヶ月前に散布したサンプル(5/11散布)からも農薬が0.03~0.10ppm検出された。また、メチダ

表8. 畑での調査結果

	クロルフェナピル 残留量(ppm)			アゾキシストロビン 残留量(ppm)		
	散布直後	散布2日後	ドリフト率(%)	散布直後	散布2日後	ドリフト率(%)
(レタス)						
BL	0.10	-	-	ND	-	-
1	4.99	1.12	66.14	6.92	0.55	69.32
(ハウレンソウ)						
BL	ND	-	-	ND	-	-
2	0.35	0.10	0.83	0.64	0.03	0.74
3	0.22	0.05	0.31	0.41	0.02	0.33
4	0.09	0.02	0.26	0.22	0.01	0.22
5	0.05	0.02	0.16	0.10	0.005	0.13
6	0.03	ND	ND	0.06	ND	0.04
7	ND	ND	ND	0.02	ND	0.02
8	ND	-	ND	ND	-	ND
9	ND	-	ND	ND	-	ND
10	ND	-	ND	ND	-	ND
11	ND	-	ND	ND	-	ND
12	ND	-	-	ND	-	-
13	ND	-	ND	ND	-	ND
14	1.87	0.40	7.29	3.56	0.28	5.94
15	0.76	0.17	3.41	1.04	0.05	2.69

NDは0.01ppm未満、-は未測定
基準値(ハウレンソウ):クロルフェナピル 3ppm, アゾキシストロビン 30ppm

チオンについては、アセタミプリドよりも残留量は少なかったものの、1週間前に農薬散布したサンプル(7/7散布)から0.01ppm以上の農薬が検出された。これらのサンプルについては、基準値超過のものはなかった。一方、最も残留性が高いと予想された使用期限が最も長いプロチオホスは、ほとんど残留していなかったものの、基準値に一律基準(0.01ppm)が適用されるため、1検体(3種混合区)が基準違反となった。これらの結果から、ドリフトの危険性がある農薬散布には、農薬の散布時期よりもドリフトを受ける農産物の基準値に注意することが重要であると思われた。単剤散布と3種混合で散布した場合の比較では、混合で散布した方が残留量が若干高めであり、各農薬を混合することによる展着剤の増加の影響などが示唆された。

また、プロチオホスの転流試験については、どのサンプルからも農薬が検出されず転流は確認できなかった。

ま と め

今回、当センターで開発した残留農薬の簡易迅速分析法を用いてドリフト調査を行った。その結果、果樹園での調査では、風向きがドリフトの被害が予想される方向と逆であったためか

表9. ももへの残留量

農薬散布日	単剤散布			3種混合散布		
	プロチオホス	メチダチオン	アセタミプリド	プロチオホス	メチダチオン	アセタミプリド
4/16	I	ND	ND	ND	ND	ND
	II	ND	ND	-	ND	ND
	III	ND	ND	ND	ND	ND
5/11	I	ND	-	0.03	ND	ND
	II	ND	ND	0.04	0.02	ND
	III	ND	ND	0.04	-	-
6/1	I	-	ND	-	ND	ND
	II	-	ND	0.23	ND	ND
	III	ND	ND	0.18	ND	ND
6/18	I	ND	-	0.29	ND	ND
	II	0.01	ND	0.30	ND	ND
	III	ND	ND	0.44	ND	ND
7/7	I	ND	0.04	0.21	-	-
	II	ND	0.08	0.20	ND	0.09
	III	ND	0.04	0.25	ND	0.14

NDは0.01ppm未満、-はサンプル採取不可のため未測定
基準値(もも):プロチオホス 0.01ppm(一律基準), メチダチオン 0.2ppm, アセタミプリド 5ppm

ほとんどドリフトは見られなかったが、畑での調査では、風下側へのドリフトが見られた。また、ドリフトを前提とした調査からは、時間が経っても、農薬によっては微量に残る可能性が示唆された。

以上の事から、ドリフトによる違反を防ぐためには、ドリフトを起こさない対策も確かに重要であるが、万が一ドリフトした時でも違反とならないよう、ドリフトをうける可能性がある農産物にも使用できる農薬(基準値が高い農薬)を選択する等、二重の対策も必要であると思われる。

文 献

- 1) 高井靖智, 他: 和歌山県地場農産物に対応した残留農薬の新規多成分分析法の開発 I, 和環衛研年報, 58, 48-52, 2012
- 2) 高井靖智, 他: 残留農薬の簡易迅速分析法を用いたドリフト調査について, 第46回全国衛生化学技術協議会年会講演要旨集, 62-63, 2009
- 3) 高井靖智, 他: 残留農薬の簡易迅速分析法を用いた調査についてードリフトを前提としたかき使用農薬のももへの影響ー, 第47回全国衛生化学技術協議会年会講演要旨集, 56-57, 2010

黄砂影響調査について

木野恵太，桶谷嘉一，浴口智行，大谷一夫

Survey of Yellow Dust in Wakayama Prefecture

Keita Kino, Yoshikazu Oketani, Tomoyuki Sakoguchi and Kazuo Otani

キーワード：黄砂，エアロゾル，和歌山県

Key Words : yellow dust, aerosol, Wakayama Prefecture

はじめに

和歌山県は、近畿ブロック6府県の地方環境研究所との黄砂に関する共同研究に参加しており、輸送メカニズムの解明や広域的な調査による地域影響の把握等を目指している。

今回、平成23年度に採取したエアロゾル粒子に含まれた人為起源物質などについて若干の知見が得られたので報告する。

調査方法

1. 調査地点

和歌山県環境衛生研究センター屋上（地上約10m 和歌山市砂山南3-3-45：北緯34度21分，東経135度16分）（図1）



図1 調査地点

2. 調査期間

化学天気予報システム(CFORS)¹⁾の土壌性ダスト(黄砂粒子)の予想分布を用い、平成23年度中に黄砂の飛来が確認された日(黄砂日)、および飛来が確認されなかった日(非黄砂日)にサンプリングを行った。

調査日における、CFORSおよび和歌山地方気象台の黄砂情報²⁾を表1に示す。(気象台の情報はサンプリング後に確認)なお、CFORSでは地上から上空1000mまでの平均濃度、気象台の情報では地上付近での黄砂の飛来状況を知ることができる。5月2日から5日は地上付近で大規模な黄砂が観測された。5月13日は気象台の情報では黄砂飛来が確認されなかったが、この日は全国的に大規模な黄砂が観測され、CFORSでも和歌山県上空に高濃度の土壌性ダストが確認されたため、黄砂日とした。6月14日と11月14日は、日本上空に土壌性ダストの飛来が確認されたが、濃度が低く、地上付近ではどの地方気象台からも観測されなかったため、非黄砂日とした。

表1 サンプルング日と黄砂日、非黄砂日判定(○:黄砂観測, ×:黄砂観測無し)

採取日	5/2	5/3	5/13	6/8	6/14	7/31	8/18	9/27	10/27	11/14	11/29	12/26	1/25	2/27
CFORS	○	○	○	×	○	×	×	×	×	○	×	×	×	×
気象台情報	○	○	×	×	×	×	×	×	×	×	×	×	×	×
判定	黄砂日	黄砂日	黄砂日	非黄砂日	非黄砂日	非黄砂日	非黄砂日	非黄砂日	非黄砂日	非黄砂日	非黄砂日	非黄砂日	非黄砂日	非黄砂日

3. 試料採取方法

マルチカスケードインパクトサンプラー(MCIサンプラー 東京ダイレック)をロウボリウムエアサンプラー(LV-40BR 柴田科学)に接続し、20L/minで9時から翌朝9時までの24時間、エアロゾル粒子を採取した。MCIサンプラーの分級特性を表2に示す。

表2 MCIサンプラーの分級特性

位置	ろ紙材質	捕集粒径	呼称
1段目	フッ素樹脂処理 ガラス繊維	10 μm以上	PMBT10
2段目	PTFE	2.5 ~ 10 μm	PM10-2.5
3段目	PTFE	2.5 μm以下	PM2.5

4. 測定項目、測定方法および測定機器

1) 和歌山県への黄砂飛来状況

昭和42年以降の和歌山県および日本への黄砂飛来日数を確認するために、気象庁の黄砂データバンクを用いた。

2) エアロゾル粒子濃度の解析

PMBT10, PM10-2.5, PM2.5粒子および総粉塵(TSP)の大気濃度を算出した。和歌山県へ流れ込む気塊の経路推定のため、後方流跡線解析(アメリカ海洋大気局のHYSPILTモデル³⁾)を使用し、高度500mの気塊をサンプルング日の21時から72~120時間遡って検討

した。土壌性エアロゾル粒子、硫酸塩エアロゾルの大気濃度確認にCFORSを使用した。

3) エアロゾル粒子中のイオン成分濃度

PM2.5測定マニュアルに従い、イオンクロマトグラフ法により測定した。⁴⁾

使用機器: DIONEX ICS-2000, IC-25

測定項目: Na⁺, K⁺, NH₄⁺, Mg²⁺, Ca²⁺, F⁻, Cl⁻, NO₃⁻, SO₄²⁻

4) エアロゾル粒子中の金属成分濃度

PM2.5測定マニュアルに従い、酸分解によるICP-MS法により測定した。

使用機器: Perkin Elmer ELAN DRC-e

測定項目: Ni, Cr, Mn, Al, Fe, Zn, Pb, Cd, Cu, V

5) エアロゾル粒子に含まれた微生物

コロニーカウント法⁵⁾によりエアロゾル粒子に含まれた微生物数を定量した。培地はSCD寒天培地を使用し、好気条件下、37℃で24時間以上培養を行った。

結果と考察

1. 和歌山県への黄砂飛来状況

和歌山県および日本に黄砂が飛来した日数の経年変化を図2に示す。黄砂の飛来日数は和歌山県および全国で増加傾向にあった。

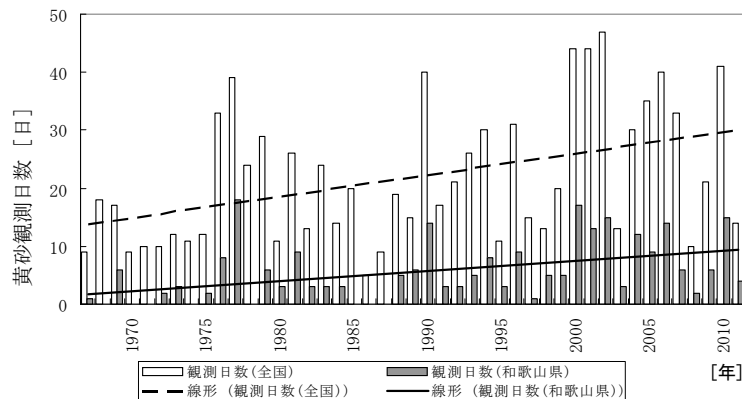


図2 和歌山県および日本への黄砂飛来日数の経年変化

2. エアロゾル粒子濃度について

エアロゾル粒子の大気濃度を図3に示す。特に大規模な黄砂が観測された5月2日と3日には、それぞれ630 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、568 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ のエアロゾル粒子（TSP）が観測された。

各粒径のエアロゾル粒子が全粒子に占める割合を図4に示す。5月2日と3日のPM10-

2.5の割合は、それぞれ38%、70%であり、非黄砂日の平均（19%）を大きく上回っていた。黄砂日にPM10-2.5粒子の大気濃度が増加する結果は、黄砂粒子の代表粒径が4 μm 付近という環境省の黄砂影響調査書⁶⁾と合致した。

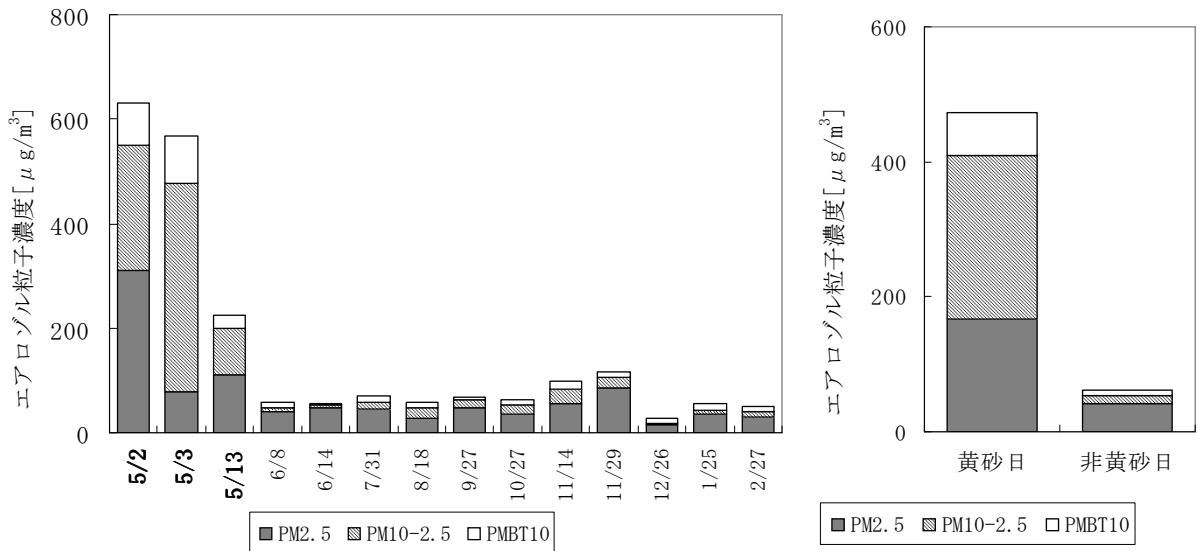


図3 エアロゾル粒子の大気濃度（左：日別（太字：黄砂日） 右：黄砂日，非黄砂日別平均）

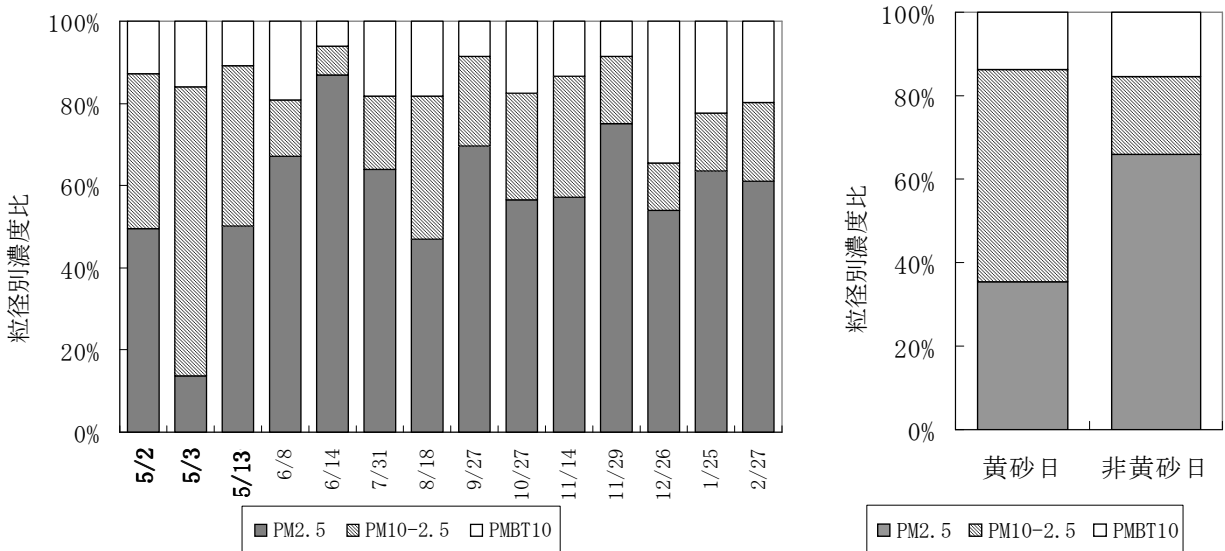


図4 エアロゾル粒子の粒径別濃度比（左：日別（太字：黄砂日） 右：黄砂日，非黄砂日別平均）

3. エアロゾル粒子中のイオン成分濃度

エアロゾル粒子中の各イオン成分の濃度を表3, 図5および図6に示す. カルシウムイオンと硫酸イオンについては, 試料中のナトリウムイオン濃度と海水中でのモル濃度比を用い, 以下の式1, 式2により非海塩 (non sea salt: nss-)由来成分濃度を算出した.

$$[nss-Ca^{2+}] = [Ca^{2+}] - 0.022 \times [Na^+] \quad (\text{式1})$$

$$[nss-SO_4^{2-}] = [SO_4^{2-}] - 0.060 \times [Na^+] \quad (\text{式2})$$

フッ素イオンについては今回採取したどの試料からも検出されなかった.

1) 各イオン成分濃度比較

各成分の濃度は採取した時期によって大きく変動しており, 非黄砂日に採取したエアロゾル粒子中の総イオン濃度の方が黄砂日のものより高くなる事例も見られた.

黄砂日に採取したエアロゾル粒子の非海塩性カルシウムイオン平均濃度(TSP)は非黄砂

日の14倍であり, 特にPM10-2.5粒子においては, 21倍と差が顕著であった. よって, 黄砂粒子は通常の土壌性エアロゾル粒子や人為起源エアロゾル粒子よりカルシウムイオンリッチであることが分かった. また, 塩化物イオンは8月18日に特に高濃度(1,302nmol/m³)で, 後方流跡線から海塩の影響を受けたと考えられた.(図7)

大気汚染物質の一つである硫酸イオンは, 11月から翌年2月にかけて多く観測された. 特に11月14日の総粉塵量(TSP: 97 μg/m³)は5月の黄砂日より低かったにも関わらず, 高濃度のアンモニウムイオン(152nmol/m³)と非海塩性硫酸イオン(143nmol/m³)が検出された. この高濃度事例は, 11月14日までに中国大陸で発生したと思われる硫酸塩エアロゾルが移動したことが原因の一つと考えられた.

(図8, 9)

表3 エアロゾル粒子中の粒径別イオン成分濃度

(単位: nmol/m ³)		Na ⁺	NH ₄ ⁺	K ⁺	Mg ²⁺	nss-Ca ²⁺	F ⁻	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	nss-SO ₄	
PMBT10	黄砂日	平均	12	1.6	1.1	0.59	5.1	<0.13	100	2.2	0.032
		最大	15	3.2	1.5	0.66	6.2	<0.13	200	3.6	0.097
		最小	9.8	<0.034	0.77	0.46	4.3	<0.13	18	0.62	<0.013
	非黄砂日	平均	15	0.42	0.36	0.60	1.4	<0.13	90	5.5	0.19
		最大	39	2.0	0.91	2.1	3.0	<0.13	214	31	0.88
		最小	3.0	<0.034	<0.014	<0.013	<0.003	<0.13	<0.039	<0.023	<0.013
PM10-2.5	黄砂日	平均	7.0	8.4	1.2	3.7	28	<0.13	129	22	2.3
		最大	12	20	1.9	5.5	40	<0.13	165	31	4.8
		最小	3.0	<0.034	0.49	2.7	13	<0.13	109	4.3	<0.013
	非黄砂日	平均	25	2.8	0.067	1.9	2.1	<0.13	176	17	1.3
		最大	62	11	0.35	6.1	10	<0.13	1084	65	3.3
		最小	<0.019	<0.034	<0.014	<0.013	0.13	<0.13	3.2	<0.023	<0.013
PM2.5	黄砂日	平均	5.9	<0.034	2.3	3.2	26	<0.13	10	7.4	<0.013
		最大	7.9	<0.034	3.6	5.2	43	<0.13	30	12	<0.013
		最小	3.0	<0.034	0.48	1.4	12	<0.13	<0.039	<0.023	<0.013
	非黄砂日	平均	3.2	34	0.45	0.50	1.8	<0.13	8.3	4.5	30
		最大	18	142	4.0	2.3	8.4	<0.13	47	24	139
		最小	<0.019	<0.034	<0.014	<0.013	<0.003	<0.13	<0.039	<0.023	<0.013
TSP	黄砂日	平均	25	10	4.5	7.5	59	<0.13	239	31	2.4
		最大	33	20	6.3	9.2	77	<0.13	314	46	4.8
		最小	19	3.2	2.0	4.8	29	<0.13	183	7.9	<0.013
	非黄砂日	平均	44	37	0.87	2.9	5.2	<0.13	275	27	32
		最大	96	152	4.2	10	15	<0.13	1302	95	143
		最小	9.1	0.36	<0.014	0.19	0.58	<0.13	4.6	3.7	0.036

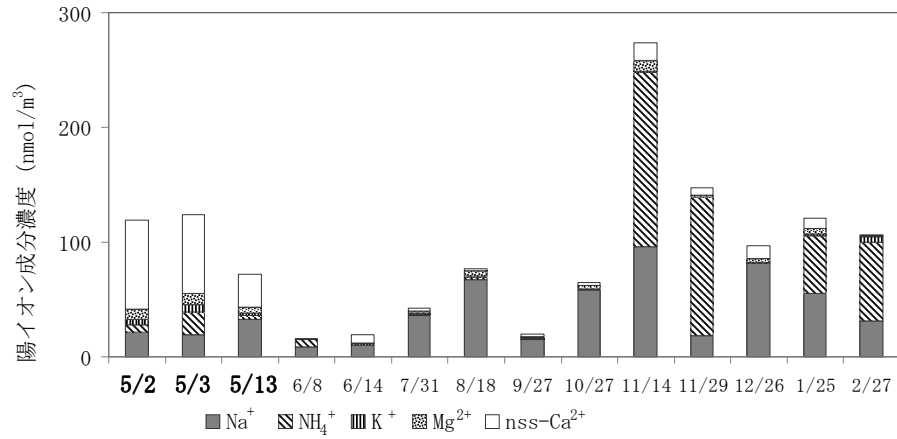


図5 エアロゾル粒子中の陽イオン成分濃度 (太字: 黄砂日)

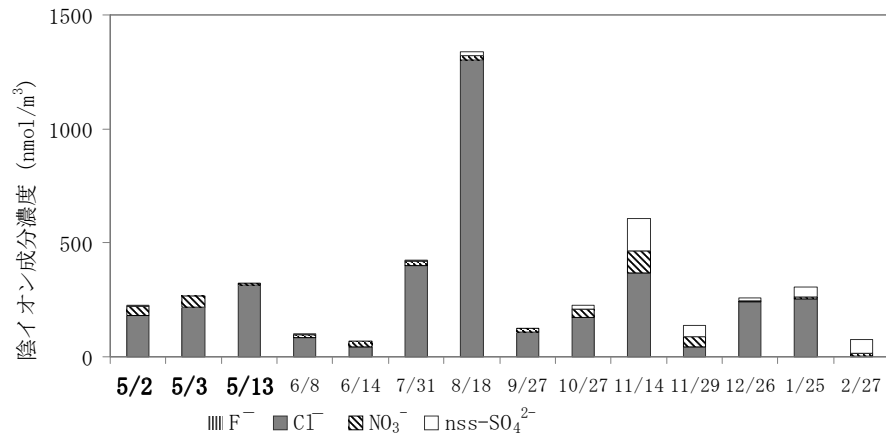


図6 エアロゾル粒子中の陰イオン成分濃度 (太字: 黄砂日)

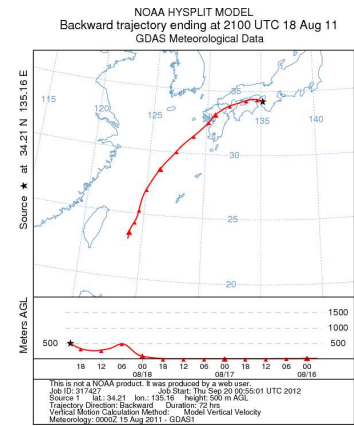


図7 8月18日の後方流跡線

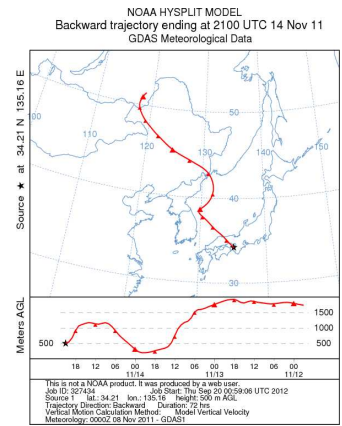
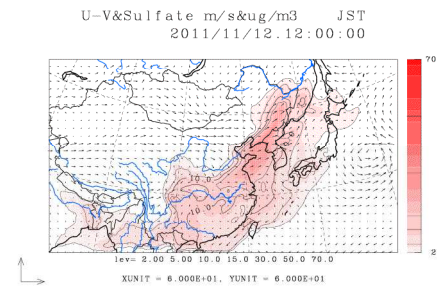
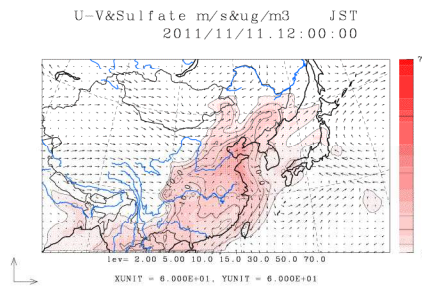


図8 11月14日の後方流跡線



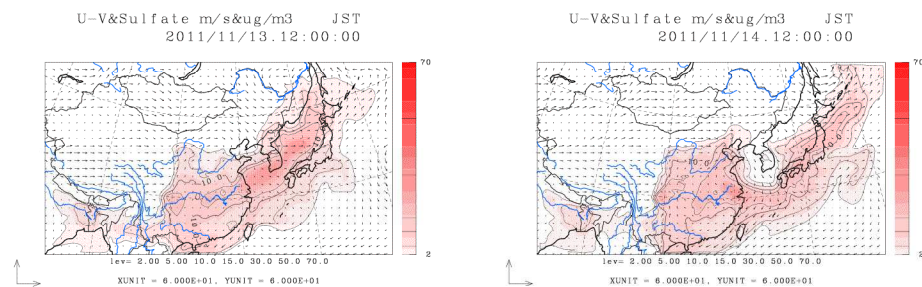


図9 11月14日以前の硫酸塩エアロゾルの大気分布推移

2) 陽イオンと陰イオンの相関

エアロゾル粒子中から検出した陽イオン成分と陰イオン成分の相関を表4に示す。ナトリウムイオンと塩化物イオンは、黄砂日、非黄砂日共にPMBT10において高い正の相関がみられ、海塩のエアロゾル粒子は粗大粒子側に粒径のピークを持つことが分かった。

PM10-2.5およびPM2.5粒子におけるカリウムイオンと硝酸イオンの相関は、黄砂日では正で高かったが、非黄砂日では低かった。この事例は、中国内陸部等の乾燥地帯の地表に析出し、日本では天然に殆ど存在しない硝石（硝酸カリウム）⁷⁾が、黄砂により長距離輸送されたことに起因する可能性が高い。

また、非黄砂日のPM2.5において、アンモニウムイオンと非海塩性硫酸イオンに高い正の相関がみられ、PM2.5粒子に硫酸のアンモニウム塩（硫酸アンモニウムや硫酸水素アンモニウム等）が含まれていたことが示唆された。なお、硫酸アンモニウムはアンモニアと硫酸の二次生成粒子で、粒径2 μ m程度の人為起源物質⁸⁾である。非黄砂日のTSPにおけるアンモニウムイオンと非海塩性硫酸イオンの相関もPM2.5粒子と同様に高かったが、黄砂日では低かった。一方、黄砂日のTSPにおいてカルシウムイオンおよびマグネシウムイオンと非海塩性硫酸イオンには特に高い正の相関があった。以上から、硫酸のアンモニウム塩は黄砂粒子が混在すると、黄砂粒子に多いカルシウムイオンやマグネシウムイオンと反応することが示唆された。

表4 陽イオンと陰イオン成分の粒径別相

		Cl ⁻	NO ₃ ⁻	nss-SO ₄ ²⁻
黄砂日	Na ⁺	0.88	0.72	-0.61
	NH ₄ ⁺	0.65	0.42	-0.86
	K ⁺	-0.54	-0.75	-0.73
	Mg ²⁺	0.75	0.90	0.52
	nss-Ca ²⁺	-0.42	-0.16	0.97
非黄砂日	Na ⁺	0.83	0.69	0.23
	NH ₄ ⁺	0.06	-0.29	-0.40
	K ⁺	0.43	-0.06	-0.23
	Mg ²⁺	0.83	0.80	0.38
	nss-Ca ²⁺	0.27	0.48	0.36
黄砂日	Na ⁺	-0.73	-0.89	-0.98
	NH ₄ ⁺	-0.37	0.75	0.19
	K ⁺	-0.19	0.86	0.37
	Mg ²⁺	-0.56	0.59	-0.03
	nss-Ca ²⁺	0.04	0.95	0.57
非黄砂日	Na ⁺	0.35	0.47	-0.12
	NH ₄ ⁺	-0.21	0.73	0.46
	K ⁺	0.77	0.14	0.30
	Mg ²⁺	0.36	0.81	0.15
	nss-Ca ²⁺	-0.12	0.85	0.11
黄砂日	Na ⁺	-0.97	-0.42	-
	NH ₄ ⁺	-	-	-
	K ⁺	0.74	0.99	-
	Mg ²⁺	-0.09	0.73	-
	nss-Ca ²⁺	-0.17	0.67	-
非黄砂日	Na ⁺	0.12	0.13	0.05
	NH ₄ ⁺	-0.37	-0.05	0.91
	K ⁺	-0.21	0.16	0.26
	Mg ²⁺	0.02	-0.32	0.67
	nss-Ca ²⁺	-0.34	-0.18	0.08
黄砂日	Na ⁺	0.91	-1.00	-0.77
	NH ₄ ⁺	-0.42	0.76	0.16
	K ⁺	-0.87	1.00	0.70
	Mg ²⁺	-0.90	1.00	0.76
	nss-Ca ²⁺	-0.99	0.95	0.92
非黄砂日	Na ⁺	0.54	-0.35	0.13
	NH ₄ ⁺	-0.31	0.38	0.85
	K ⁺	0.00	-0.35	0.56
	Mg ²⁺	0.63	-0.24	0.32
	nss-Ca ²⁺	-0.17	-0.16	0.08

4. エアロゾル粒子の金属成分濃度

エアロゾル粒子中の各金属成分濃度を表5、図11および図12に示す。黄砂日には鉄、アルミニウムの土壌由来成分に加え、ニッケル、クロム等の大気汚染物質の濃度上昇が見られた。

また、エアロゾル粒子に対する人為起源の寄与を示す指標として、濃縮計数 (Enrichment Factor, EF) がある。(式3) 今回は、日本より中国都市域のエアロゾル粒子で高濃度である鉛について濃縮計数を算出⁹⁾し、

大気汚染物質の長距離輸送のトレーサーとして用いた。なお、地殻成分濃度はWedepohlらの値を用いた。¹⁰⁾

$$EF = \frac{[Pb]_{大気}/[Al]_{大気}}{[Pb]_{地殻}/[Al]_{地殻}} \quad (式3)$$

算出した鉛の濃縮計数を図13に示す。5月13日に観測された黄砂粒子は、2日と3日のものより人為起源物質によって汚染されていることが分かった。また、6月14日と11月14日のエアロゾル粒子は、特に長距離輸送された人為起源物質の寄与が高いことも分かった。

表5 エアロゾル粒子中の粒径別金属成分濃度

(単位: ng/m ³)		Al	Fe	Ni	Cr	Mn	Zn	Pb	Cd	Cu	V	
PMBT10	平均	136	1090	37	64	30	<27	17	1.4	23	3.7	
	黄砂日	最大	407	1596	96	167	63	<27	34	4.1	30	5.7
	最小	<15	686	<0.023	5.8	10	<27	6.7	<0.0026	11	1.7	
	非黄砂日	平均	<15	51	0.57	1.8	4.3	<27	0.94	0.24	5.0	0.55
	最大	<15	231	1.7	6.5	18	<27	5.5	1.4	14	2.6	
	最小	<15	<6.8	<0.023	<0.019	<0.15	<27	<0.17	<0.0026	<0.030	<0.018	
PM10-2.5	平均	3705	2302	<0.010	26	67	246	18	8.7	15	9.0	
	黄砂日	最大	6563	3896	<0.010	55	127	320	29	14	24	17
	最小	1047	1014	<0.010	6.7	22	189	12	0.38	<0.11	3.9	
	非黄砂日	平均	213	224	5.5	2.8	5.4	198	6.1	3.2	13	2.0
	最大	945	725	56	17	22	547	22	13	87	4.9	
	最小	<2.4	<0.73	<0.010	<0.025	<0.12	<0.24	<0.018	<0.0046	<0.11	<0.0054	
PM2.5	平均	5978	4667	89	57	60	826	77	27	84	22	
	黄砂日	最大	6745	5418	266	85	77	1345	109	60	171	30
	最小	5154	3778	<0.010	36	38	423	39	6.4	10	17	
	非黄砂日	平均	608	542	10	14	17	167	22	3.8	13	6.8
	最大	2144	2048	42	53	63	678	54	13	64	20	
	最小	<2.3	<0.73	<0.010	<0.025	<0.12	<0.24	<0.018	<0.0046	<0.11	<0.0054	
TSP	平均	9819	8059	126	146	156	1072	113	37	122	34	
	黄砂日	最大	12600	9688	362	231	215	1665	147	76	201	50
	最小	6202	5479	<0.023	48	102	612	63	6.8	61	24	
	非黄砂日	平均	822	818	16	19	27	363	29	7.3	31	10
	最大	3089	2263	56	57	103	1127	62	22	164	27	
	最小	<15	<6.8	<0.023	<0.025	<0.15	<27	<0.17	<0.0046	<0.11	<0.018	

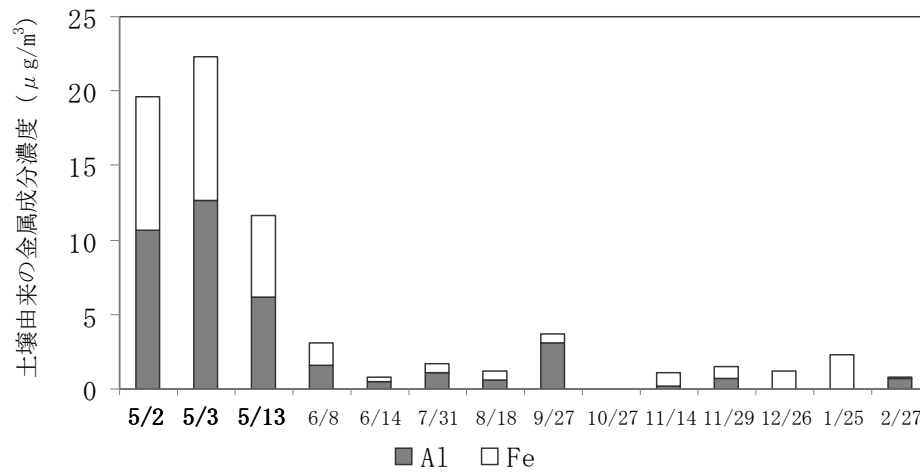


図 11 土壌由来の金属成分濃度(太字：黄砂日)

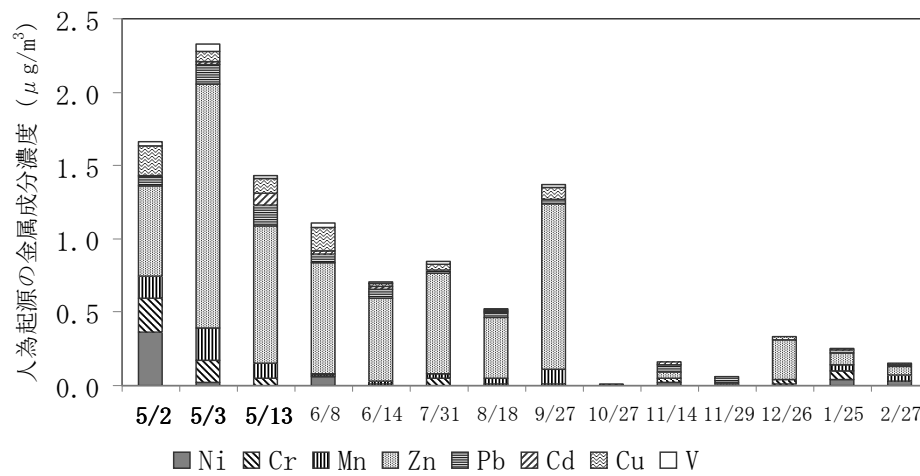


図 12 人為起源の金属成分濃度(太字：黄砂日)

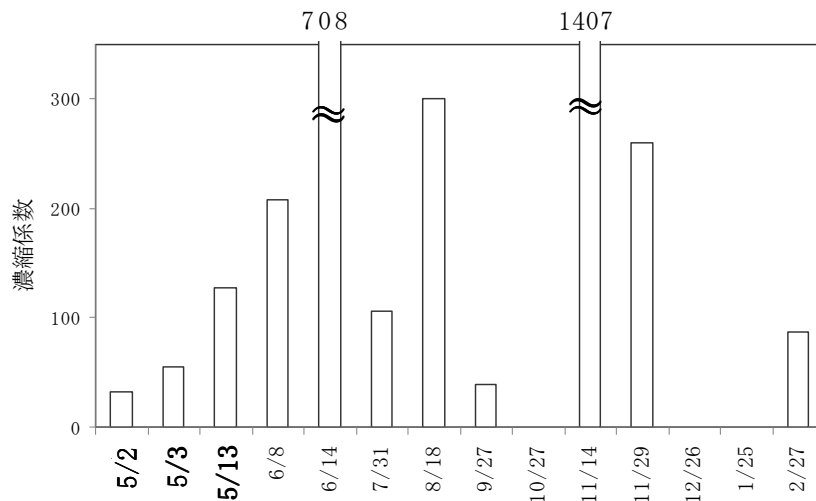


図 13 濃縮係数 (太字：黄砂日)

(10月27日、12月26日および1月25日はアルミニウムが検出されず、濃縮計数を算出できなかった)

5. エアロゾル粒子中の微生物

試料のエアロゾル粒子を1mLの生理食塩水に懸濁した後、寒天培地に塗抹した。生育したコロニーは0~4cfuの範囲で、コロニーカウント法に使用できる十分な数(30~300cfu)が得られなかった。今回の試料は分析時まで冷凍保存していたため、菌が死滅したことが考えられる。エアロゾル中の微生物定量のためには採取条件や培養条件等を検討する必要と考えられた。

一方、試料水をSCD液体培地に添加し、37℃で24時間培養したところ、一部の試料から増菌が確認され、液体培地表面にバイオフィルムの構成が確認された。液面にバイオフィルムが形成される微生物には*Bacillus*属等があり、日本上空を浮遊するエアロゾルから分離された知見もある。^{11), 12)} よって今後、測定条件を検討し、エアロゾル中の微生物種の特定も行う必要があると考えた。

ま と め

1. 和歌山県への黄砂飛来日数は、年々増加傾向にあることが分かった。
2. 黄砂粒子は非黄砂日のエアロゾル粒子に比べ、PM10-2.5の割合が高かった。
3. 黄砂粒子は通常のエアロゾル粒子よりカルシウムイオンリッチで、大気中の硫酸イオン(硫酸アンモニウム等)との反応が示唆された。
4. 5月13日に観測された黄砂粒子は、特に大規模な黄砂が観測された2日と3日のものより、人為起源エアロゾルによって汚染されていた。

文 献

1) 九州大学, 国立環境研究所: 化学天気予報システム <<http://www-cfors.nies.go.jp/~cfors/index-j.html>>

2) 気象庁: [地球環境のデータバンク]黄砂 <http://www.data.kishou.go.jp/obs-env/kosahp/kosa_data_index.html>

3) NOAA: HYSPLIT Trajectory Model <<http://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT.php>>

4) 環境省: 大気中微小粒子状物質(PM2.5)測定方法 暫定マニュアル, 平成19年7月

5) 厚生労働省: 食品衛生検査指針微生物編, 116-123, 2004

6) 環境省: 黄砂実態解明調査, 平成21年3月

7) 日本大百科全書12, 8, 小学館, 1986

国立天文台: 理科年表 第81冊(平成20年), 641, 丸善, 2007

8) 環境省: 中央環境審議会大気環境部会 微小粒子状物質環境基準専門委員会報告, 平成21年9月

9) 日置正, 他: 日本海沿岸で粒子別連続採取したエアロゾル中の水可溶性イオン種および微量金属成分による長距離輸送現象の解析—2002年春の黄砂イベントを中心に—, エアロゾル研究 第21巻 第2号, 160-175, 日本エアロゾル学会, 2006

10) Wedepohl, K.H., The composition of the continental crust, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, Volume 59, Issue 7, 1217-1232, 1995

11) 牧輝弥, 他: 立山積雪層に保存される黄砂バイオエアロゾルの集積培養と系統分類学的解析, エアロゾル研究 第26巻 第4号, 332-340, 日本エアロゾル学会, 2011

12) 小林史尚, 他: 黄砂発生源におけるバイオエアロゾル拡散に関する研究, エアロゾル研究 第22巻 第3号 pp. 218-227 日本エアロゾル学会, 2007

13) 岩坂泰信: 黄砂その謎を追う, 11-222, 紀伊國屋書店, 2006

梅の生産および梅干し製造を主要産業とする 南部川水系古川水域の実態調査

山中典子, 畠中哲也, 河島眞由美*¹, 大畑木の実, 大谷 寛*²

Surveys of the Furu River where main industry is the production of plums and pickled plums .

Noriko Yamanaka, Tetsuya Hatanaka, Mayumi Kawashima, Konomi Ohata and Hiroshi Otani

キーワード：古川, 梅, 汚濁負荷量, 環境基準

Key Words : the Furu River, plum, pollution loading amount, environmental standard

はじめに

古川（全長約4.5km, 流域面積約 10 km²）は、南高梅の生産地として有名なみなべ町を流れており、南部川の支流である。昭和51年に水域類型の指定をして以降、水質はBODによる環境基準（B類型：3 mg/L）を超過し、平成18年度には全国ワースト1位、平成22年度には全国ワースト2位であった。

古川には流域の住民からの生活排水や約40の事業場からの産業排水が流入するが、現在まで古川流域に関する調査報告はなく、当該河川水域の対策を考える上で、詳細なデータの蓄積が必要とされている。そのため、平成21年度より、汚濁負荷要因の現状把握を目的とし、水質現状調査および流域の排出源別汚濁負荷量調査を実施したので、結果を報告する。

調査内容および結果・考察

1. 水質現状調査（平成21～23年度）

1) 概要

古川全体の水質特性を把握するため、上流から下流までの5地点（St 1～5）および人口密度の高い地域の生活排水路1地点（St

6) の水質調査を実施した。

2) 調査地点（図1）

St 1：事業場排水の影響がないと考えられる地点

St 2：事業場排水の影響があると考えられる地点

St 3：用水路合流前の地点

St 4：用水路合流後の地点

St 5：環境基準点（古川橋）

St 6：St 4とSt 5間に流れ込む支流

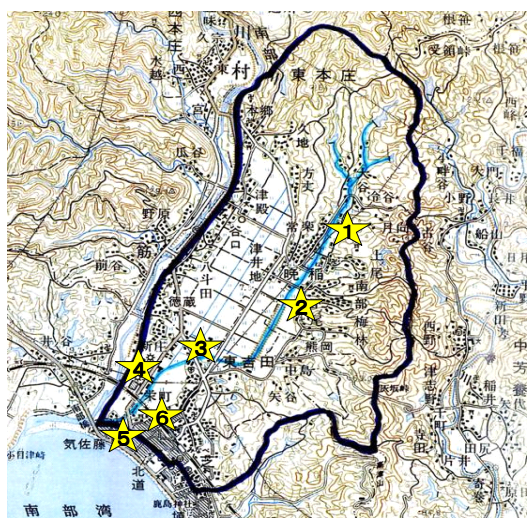


図1：調査地点

3) 日時

平成21年度：奇数月 に 1 回

平成22, 23年度：月に 1 回

(環境基準点は汽水域であるため、潮の干満を考慮して調査日を選定し、干潮時刻に採水)

4) 項目

pH, BOD, COD, SS, 電気伝導率

5) 方法

「水質汚濁に係る環境基準について」(昭和46年環境庁告示第59号)に掲げる方法、または日本工業規格K0102に定める方法

6) 結果および考察

各地点のBODの結果を図2～7に示す。

全ての地点において、最小値と最大値の差が25倍以上であり、水質が安定していない河川であることがわかった。

また、用水路合流後の地点であるSt4とSt5では、非灌漑期の冬場にBODが高くなる傾向がみられた。

次に、各地点におけるBOD75%値の結果を図8に示す。

支流であるSt6が最も高く、水質が非常に悪い状況である。環境基準点であるSt5は、環境基準値3.0 mg/Lの3倍以上の結果であった。

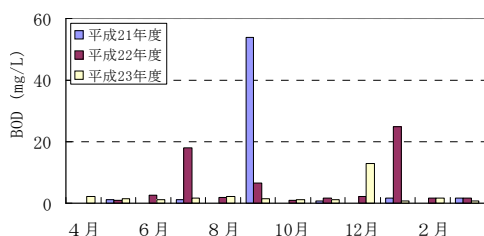


図 2. St 1 のBOD値

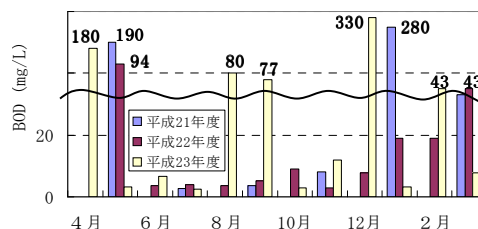


図 3. St 2 のBOD値

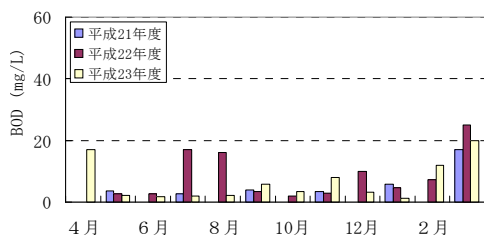


図 4. St 3 のBOD値

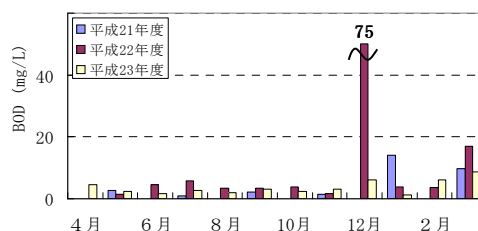


図 5. St 4 のBOD値

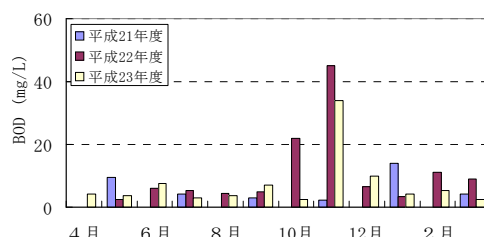


図 6. St 5 のBOD値

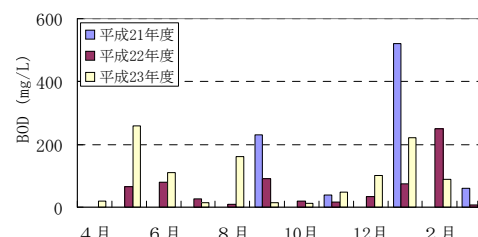


図 7. St 6 のBOD値

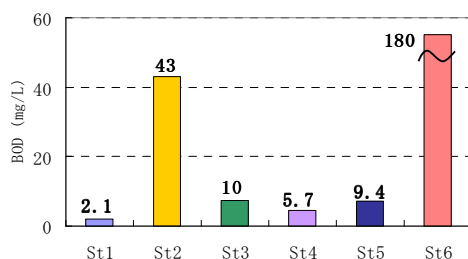


図 8. 各地点のBOD75%値

2. 流量調査（平成22, 23年度）

1) 概要

環境基準点における流量および、その季節変動を把握するため、調査を実施した。

2) 調査地点

環境基準点（St 5）付近

3) 日時

表1のとおり（干潮時刻）

4) 方法等

水深：1m間隔

流速：2m間隔の浮子法（浮子流下区間5.0mまたは2.5m）

5) 結果および考察

環境基準点において測定した調査時の流量および、この流量とBODを乗じて算出したBOD負荷量の結果を図9に示す。

平成23年8月分は同日の2回調査の平均値を用いた。

灌漑期（5～9月）の流量の平均値は、568,000 m³/日で、非灌漑期（10～4月）の流量の平均値は、25,500 m³/日であった。

また、年間を通した汚濁負荷量の平均値は321 kg/日であった。

3. 流入水路調査

1) 概要

古川の水質に大きな影響を与えている区域等を推定するため、古川に流入する水路の汚濁負荷量を調査した。

2) 調査地点

古川に流入する水路（32ヶ所、うち流量調査可能であったのが、16ヶ所）について、古川に流入する直前の位置で調査

3) 日時

平成23年8月2日

4) 項目

水質現状調査と同項目、また流量測定可能な場所においては流量調査も実施

5) 方法

水質：水質現状調査と同一の方法

流量：流量調査と同一の方法。ただし、一部の水路については、日本工業規格K0094.8.2の容器による測定で実施

6) 結果および考察

流量測定が可能であった16ヶ所について、BOD値と流量を用いてBOD負荷量を算出したところ、St 1とSt 2の間から流入する、梅加工事業場がある地域を流れる水路（以下St 1-2）が1,900 kg/日で最大であった。このことより、「1. 水質現状調査」の結果において、最もBOD75%値が低いSt1の後、St 2で急に水質が悪くなるのは、この水路から流入する汚濁が原因であることが考えられた。

次いで、St 6である支流が210 kg/日と高く、その他の地点は15 kg/日以下であったことより、この2地点からの流入負荷量が多いことが示唆された。

表1. 流量調査日

H22. 5. 13	H23. 3. 8	H23. 10. 25
H22. 6. 10	H23. 4. 6	H23. 11. 25
H22. 7. 28	H23. 5. 19	H23. 12. 15
H22. 8. 24	H23. 6. 2	H24. 1. 25
H22. 10. 7	H23. 7. 14	H24. 2. 9
H22. 11. 4	H23. 8. 2	H24. 3. 28
H23. 1. 25	H23. 8. 31	
H23. 2. 22	H23. 9. 13	

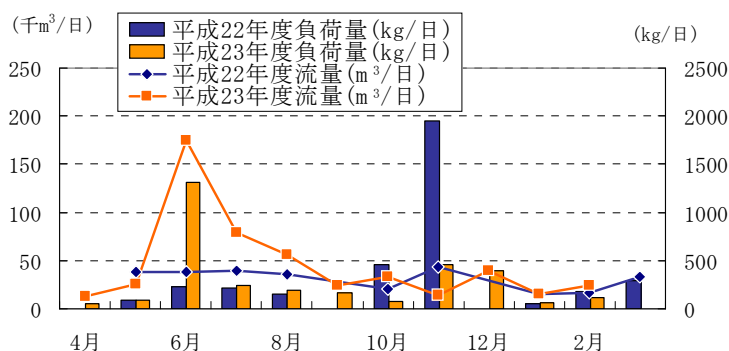


図9. 環境基準点における調査時点での流量およびBOD負荷量

4. 流域事業場の排水濃度等実態調査

1) 概要

古川流域は南高梅の生産地であり、梅干し製造が主要な産業である。一般的な梅干し製造工程および生じる排水について図10に示す。

流域には約30の梅加工事業場があり、水質汚濁防止法に定める特定施設があれば、同法の規制を受ける。また、梅加工事業場以外にも水質汚濁防止法の特定施設を有する事業場が約10事業場ある。

水量別では、日平均排水量50m³以上の事業場が4事業場（うち、梅加工事業場3事業場）ある。

また、排水処理施設設置事業場（微生物処理に限る。）については、日平均排水量50m³以上は全事業場が、同50m³未満の事業場は3事業場（全て梅加工事業場）が設置している状況である（平成23年12月末時点）。また、古川流域の一部は公共下水道のエリアとなっており、5事業場が公共下水道（うち、梅加工事業場4事業場）に接続している。

これら事業場の排水特性を把握するため、ヒアリング及び排水水質・排水量調査を実施した。

2) 調査対象

古川流域の約40事業場（うち、梅加工事業場が約30事業場）

※梅加工事業場においては可能な限り製造工程別の排水を採水

3) 日時

梅加工事業場は、平成21年度および平成23年度の各年度1回以上立ち入りを実施。

梅加工以外の事業場は平成22年度に1回立ち入りを実施。

4) 項目

pH, SS, COD, BOD, 排水量

5) 方法

水質：水質現状調査と同一の方法

排水量：水道使用量（地下水を使用する場合はヒアリングによる調査）

6) 結果および考察

梅加工事業場の製造工程別排水の結果を表2に示す。

各結果共にばらつきが多く、同じ工程排水（例えば洗浄水）でも事業場間や、採水のタイミングによって大きな差があることが分かった。

いずれの工程排水もpHが低く、有機汚濁が大きい。特に、調味廃液は非常に有機汚濁が高く、各事業場共にリサイクルや産業廃棄物として処理しているもの（一部の事業場については、自己の排水処理施設にて処理している。）、調味樽を洗浄する排水等については非常に高濃度の有機汚濁が生じることが示唆された。

排水処理施設を設置している事業場については、日平均排水量50m³以上の事業場は、法的な規制も適用されることから、処理水の

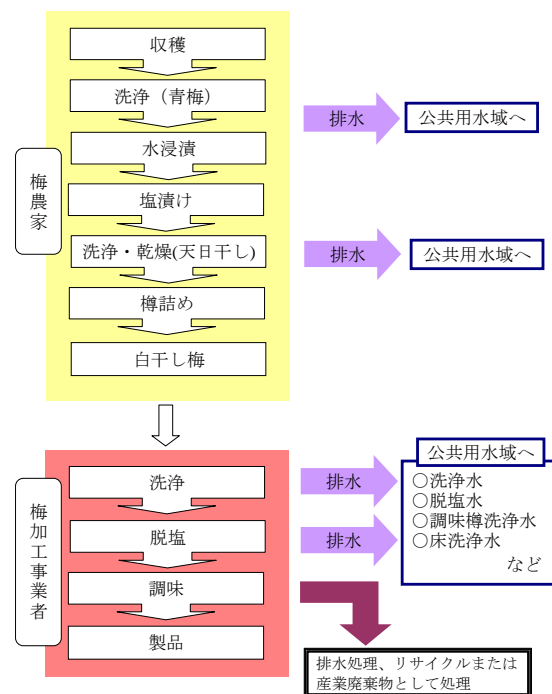


図10. 一般的な梅干し製造工程

質は安定している。しかし、日平均排水量50 m³未満の事業場は、排水処理施設を設置しているものの、排水処理後の水質（BOD）が一律排水基準（BOD：許容限度160 mg/L）に比べ高濃度であるものも見られた。

梅加工以外の事業場については、BODが0.8～3,600 mg/Lと業種により異なる結果であった。

表2. 製造工程別排水の結果（mg/L）

① 洗浄水	項目	pH	SS	COD	BOD
	平均	4.0	190	1,500	1,800
	最大	7.1	2,300	6,800	7,500
	最小	2.6	1	9	7
	標準偏差	1.4	520	1,900	2,200
検体数	19	19	19	19	
② 脱塩水	項目	pH	SS	COD	BOD
	平均	3.5	37	1,100	2,300
	最大	7.3	120	2,100	3,900
	最小	2.5	2	360	470
	標準偏差	1.7	44	730	1,200
検体数	7	7	7	7	
③ 排水水 (未処理)	項目	pH	SS	COD	BOD
	平均	3.9	140	1,100	1,500
	最大	7.3	2,300	6,800	7,500
	最小	2.4	1	9	7
	標準偏差	1.4	430	1,400	1,800
検体数	61	43	61	61	
④ 排水処理 原水 (調味廃液 無し)	項目	pH	SS	COD	BOD
	平均	3.2	140	1,900	2,400
	最大	3.9	260	4,500	3,900
	最小	2.9	19	1,000	800
	標準偏差	0.3	91	1,100	1,200
検体数	9	9	9	9	
⑤ 排水処理 原水 (調味廃液 有り)	項目	pH	SS	COD	BOD
	平均	3.3	230	3,500	4,200
	最大	4.0	310	6,200	11,000
	最小	2.9	58	2,000	2,200
	標準偏差	0.5	87	1,600	3,200
検体数	7	7	7	7	
⑥ 排水処理後 (日平均 排水量 50m ³ 以上)	項目	pH	SS	COD	BOD
	平均	7.5	56	48	9
	最大	7.9	250	390	98
	最小	6.9	1	6	1
	標準偏差	0.3	58	76	18
検体数	41	24	41	41	
⑦ 排水処理後 (日平均 排水量 50m ³ 未満)	項目	pH	SS	COD	BOD
	平均	7.7	83	200	190
	最大	8.5	910	1,000	1,100
	最小	7.2	1	13	2
	標準偏差	0.3	190	230	300
検体数	28	26	28	26	
⑧調味廃液 (n=1)	項目	pH	SS	COD	BOD
-	2.3	15	160,000	170,000	

5. 梅農家に対するヒアリング等調査

1) 概要

流域の梅農家は、収穫した梅を1ヶ月以上塩漬けにした後、水で洗浄、天日干しを行い、白干し梅として出荷している。（図10）

この洗浄による排水が古川へ与える影響を調査するため、ヒアリングおよび排水調査を実施した。

2) 調査対象

流域内の4農家

3) 日時

平成22年8月24日

4) 項目

pH, SS, COD, BOD, 排水量

5) 方法

水質：水質現状調査と同一の方法

排水量：流域内の、大半が梅農家である地域の水道水使用量について調査し、梅洗浄繁忙期とそれ以外の時期の差より、梅農家1戸あたりの梅洗浄による日排水量を算出した。

6) 結果および考察

流域内の梅農家は516戸（平成22年度末時点）である。梅洗浄の繁忙期は7月～9月であり、年間35日程度実施されていることがヒアリングよりわかった。また、1戸あたりの平均日排水量が0.5m³であった。

梅農家の塩漬け梅洗浄排水の結果を表3に示す。

事業場排水と同様、pHが非常に低く、有機汚濁が大きい排水であった。また、梅農家間のばらつきも大きかった。

表3. 梅農家の塩漬け梅洗浄排水の水質結果（mg/L）

梅農家	項目	pH	SS	COD	BOD
	平均	3.1	16	1,200	1,300
	最大	3.5	42	2,100	2,300
	最小	2.8	2	360	340
	標準偏差	0.3	18	840	940
	検体数	4	4	4	4

6. 排出源別汚濁負荷量調査

1) 概要

排出源別のBOD排出負荷量 (kg/日) を算出し、古川汚濁に寄与する排出源を推定した。

2) 方法

生活系、産業系、畜産系、自然系に区分し、表4の方法を用いて算出した。

生活系の処理人口および事業場の排水処理施設設置状況は平成23年12月末時点とした。

排水処理を行っていない梅加工事業場の排水 (未処理排水) については、排水処理施設を設置する事業場の排水処理源水 (調味廃液を含まない) の平均値を、平均的な水質とした。(表2④)

また、公共下水道に接続または合併浄化槽を設置している事業場は生活系負荷量に含まれた。その他の事業場については、河川汚濁に大きな影響を及ぼすと考えられる事業場が流域にはないため、対象外とした。

3) 結果および考察

(1) 生活系

流域には公共下水道と3ヶ所の農業集落排水施設が設置されている。処理形態別の利用人口内訳と負荷量の内訳を図11に示す。生活系での汚濁負荷量は110 kg/日であり、生活雑排水が未処理である単独浄化槽およびくみとりの利用による負荷が90%以上占めており、生活系汚濁の主たる要因である。

表4. 汚濁負荷量算出方法

区分	調査対象	算出方法
生活系	公共下水道および農業集落排水	処理施設排水量×実測放流水質
	合併および単独浄化槽、くみとり	排出形態別原単位 ¹⁾ ×処理人口
産業系	水質汚濁防止法特定事業場	使用水量×実測平均排水水質
	日排水量50m ³ 以上の事業場	
	日排水量50m ³ 未満の事業場	使用水量×2,400
	梅加工事業場(排水処理有り)	
	梅加工事業場(排水処理無し)	
梅加工以外の事業場	使用水量(一部届出値)×実測排水水質	
梅農家(洗浄水) 年間日平均	実測平均水質×0.5×軒数×35÷365	
畜産系	家畜頭羽数	(流域内に対象なし)
自然系	集水域面積	集水域面積×原単位 ¹⁾

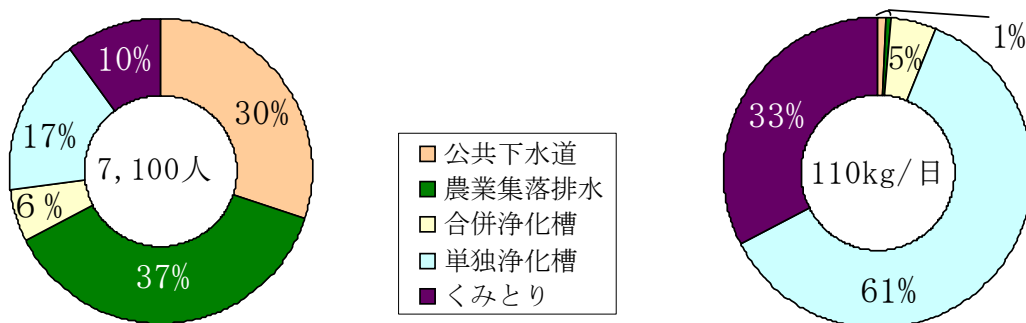


図11. 生活系における処理形態別の利用人口の内訳 (左) および負荷量の内訳 (右)

(2) 産業系

流域には事業場は約40あり、うち4事業場が日排水量50 m³以上であるため、水質汚濁防止法の生活環境項目 (pH, BOD等)の排水規制を受ける。

産業系での汚濁負荷量は134 kg/日であり、内訳を図12に示す。梅産業で産業系負荷量の約90%を占める。

(3) 自然系

流域面積は10 km²であり、汚濁負荷量は8 kg/日である。

(4) 全体

流域内の1日あたりの汚濁負荷量は252 kg/日であり、各系の内訳を図13に示す。

生活系が44%、産業系の梅産業による汚濁が49%を占めており、汚濁負荷の主要因である。

7. シミュレーション

算出した排出負荷量 252 kg/日 (6. 排出源別汚濁負荷量調査) より、環境基準点での平均実測負荷量321 kg/日 (2. 流量調査) の方が高い結果であったため、流域内で排出された汚濁が、環境基準点に達するまでの間に自然浄化などがおこらないと仮定する。

水量が少ない非灌漑期の平均流量 (25, 500 m³/日) を用いて、環境基準を達成するためのBOD許容負荷量を算出すると、BODの環境基準が3.0 mg/Lであるため、77 kg/日となる。このこ

とより、環境基準を達成するためには、現在より排出負荷量を約7割削減し、77 kg/日以下にしなければならない。

生活系、産業系別に削減をシミュレーションした。

1) 生活系

接続率が80%未満である公共下水道および1つの農業集落排水共用区域について、接続率が80%になると仮定する (残りの20%については同率で合併浄化槽、単独浄化槽、くみとり利用とする。) と、62 kg/日が削減される。

現に、平成21年度12月と平成23年度12月の各時点での負荷量を比較すると2年間で24 kg/日削減されており、流域内は公共下水道事業が進んでいるため、今後の削減が期待される。

2) 産業系

排水処理施設が設置されていない事業場において、公共下水道共用区域内の事業場は、接続すると仮定する。また、それ以外の事業場については排水処理施設が設置され、水質汚濁防止法の一律排水基準値 (BOD:日平均120mg/L) で排水されるようになると仮定すると、85 kg/日が削減される。

3) 全体

1)、2) で仮定したとおり未処理の生活雑排水および未処理の事業場排水の処理が進めば、合計で147 kg/日削減され、環境基準達成に近づくことができると考えられる。

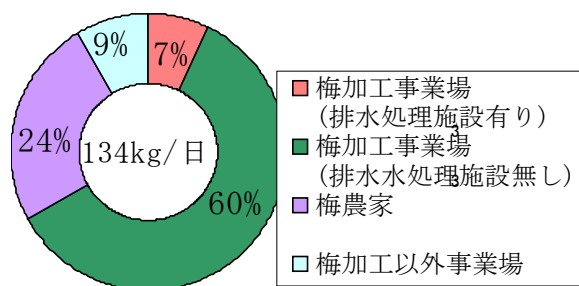


図12. 産業系負荷量の内訳

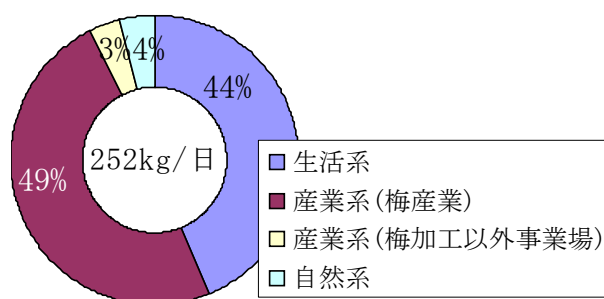


図13. 流域内発生負荷量の内訳

9. まとめ

南部川水系古川水域において水質調査を行い、データを蓄積した。

古川に流入する汚濁負荷量は、生活系と産業系がほぼ同量であった。

また、排出源別に負荷量を調査した結果、未処理の生活雑排水や未処理の事業場排水が古川流域における汚濁の要因と判明した。

これらの結果は、関係事業者や地域住民への啓発材料となっており、今後も環境基準達成に向け、水質の状況を把握していく必要がある。

なお、この研究は、県環境管理課、田辺保健所、みなべ町役場との共同研究である。

文 献

1) 和歌山県：田辺湾流域別下水道整備総合計画，平成12年4月

IV 資 料

県内における温泉水中のラドン濃度調査

畠中哲也, 山中典子, 大畑木の実, 河島眞由美^{*1}, 大谷寛^{*2}

An Investigation of Radon Concentration in Hot Springs in Wakayama Prefecture

Tetsuya Hatanaka, Noriko Yamanaka, Konomi Ohata, Mayumi Kawashima and Hiroshi Otani

キーワード：温泉，ラドン，和歌山県

Key Words：Hot Springs, Radon, Wakayama Prefecture

はじめに

ラドンは土壌や岩石中に存在する放射性物質で、含有成分としてラドンを一定量以上含む温泉水は、鉱泉又は療養泉に分類される。国内では三朝温泉や有馬温泉などが有名で、ラドンを一定量以上含有する源泉は火成岩地質特に花崗岩地質帯が多い西日本に多く点在している。

和歌山県には関西でも有数の温泉地があり、様々な泉質の源泉が湧出しているが、ラドンの療養泉に該当する源泉の報告はされていない。鉱泉として認定されていた源泉が、紀南に一カ所存在していただけで、現在はその源泉も確認できていない。

ラドン温泉には様々な浴用及び飲用の効用が示されているが(表 1)、欧州及び北米では飲用又は呼吸器から吸入することで¹⁾、内部被ばくを受け、健康被害が起きる論文が多数報告されている。

和歌山県での温泉水中のラドン濃度及びその分布について不明な点が多く、測定機会を得られた42源泉のラドン濃度を測定し、和歌山県内でのラドン温泉の可能性及び濃度分布について考察した。

水質環境グループ *1衛生グループ *2退職

表1. ラドン温泉の適応症

浴 用	飲 用
痛風，動脈硬化症，高血圧症，慢性胆嚢炎，胆石症，慢性皮膚病，慢性婦人病（療養泉の一般的適応症）神経痛，筋肉痛，関節痛，五十肩，運動麻痺，関節のこわばり，うちみ，くじき，慢性消化器病，痔疾，冷え症，病後回復期，疲労回復，健康増進	痛風，慢性消化器病，慢性胆嚢炎，胆石症，神経痛，筋肉痛，関節痛

温泉必携 社団法人日本温泉協会より

調 査 方 法

1. サンプルング地点

白浜温泉，串本温泉及び勝浦温泉など源泉が集中している地点を中心に選んだ。またラドンの気散が少ない源泉に絞るため，泉温は40℃以下でかつ，炭酸ガスなどのガス発生が少ない源泉を選んだ。さらに湧出地の地層が火成岩地質，特に花崗岩を含んでいると考えられる地質帯（堆積岩に火成岩を含む場合も同様）もしくは，

表2. 源泉の測定結果

No	所在地	ラドン濃度 Bq/kg	pH値	泉温 ℃	Naイオン mg/kg	Clイオン mg/kg	溶存物質質量 mg/kg	掘削深度 m	泉質名
1	和歌山市	7.5	7.6	13.9	20	30	100	10	温泉に該当せず
2	紀美野町	14.1	7.3	15.9	22	4	180	300	温泉に該当せず
3	有田川町	5.6	7.7	19.0	221	263	1578	500	ナトリウム-塩化物-炭酸水素塩泉
4	有田川町	4.9	9.2	15.0	95	8	352	600	温泉法による温泉
5	有田川町	2.2	7.0	11.0	171	265	623	800	温泉法による温泉
6	湯浅町	4.6	8.9	21.0	256	9	935	100	アルカリ性単純硫黄泉
7	湯浅町	5.1	10.0	32.0	56	5	212	1000	アルカリ性単純温泉
8	広川町	6.6	8.5	15.5	47	10	237	100	温泉法による温泉
9	広川町	4.9	9.1	20.0	67	9	271	100	温泉法による温泉
10	広川町	6.5	9.5	19.0	117	7	413	300	温泉法による温泉
11	中辺路町	2.6	8.3	22.0	1595	887	5403	500	ナトリウム-炭酸水素塩-塩化物泉
12	白浜町	6.8	7.7	29.6	42	20	405	500	単純温泉
13	白浜町	0.8	8.5	30.2	103	31	408	500	アルカリ性単純温泉
14	白浜町	1.3	7.0	31.7	1352	1372	5135	500	ナトリウム-塩化物-炭酸水素塩泉
15	白浜町	3.2	8.2	26.8	276	65	1135	500	ナトリウム-炭酸水素塩泉
16	白浜町	3.1	8.3	33.8	517	136	1972	500	ナトリウム-炭酸水素塩泉
17	白浜町	4.7	8.0	31.1	441	171	1796	300	ナトリウム-炭酸水素塩-塩化物泉
18	すさみ町	5.5	10.0	23.8	51	21	240	1000	単純温泉
19	すさみ町	10.5	7.4	25.1	39	12	151	500	アルカリ性単純温泉
20	すさみ町	6.1	10.0	24.8	40	10	152	400	温泉法による温泉
21	串本町	4.8	6.5	33.5	1294	7608	12371	600	カルシウム・ナトリウム-塩化物泉
22	串本町	5.6	7.2	28.4	1291	2984	4934	500	ナトリウム・カルシウム-塩化物泉
23	串本町	7.8	9.5	23.0	42	19	170	200	アルカリ性単純温泉
24	串本町	3.1	7.7	30.0	593	2538	4096	300	ナトリウム・カルシウム-塩化物泉
25	串本町	2.8	7.7	27.4	1378	3919	6439	500	ナトリウム・カルシウム-塩化物泉
26	太地町	1.6	7.9	32.2	532	830	1582	500	ナトリウム-塩化物泉
27	太地町	7.8	7.6	25.0	10250	19650	34934	600	ナトリウム-塩化物泉
28	熊野川町	28.5	8.3	26.3	135	209	434	1000	単純温泉
29	新宮市	31.4	8.1	26.4	126	190	410	800	単純温泉
30	新宮市	7.1	9.7	30.5	109	138	342	1500	アルカリ性単純温泉
31	新宮市	0.2	7.3	45.5	5825	10430	18690	500	ナトリウム-塩化物泉
32	那智勝浦町	4.0	7.3	23.5	2920	5690	10270	200	ナトリウム-塩化物泉
33	那智勝浦町	1.7	10.0	33.5	72	65	228	1000	アルカリ性単純温泉
34	那智勝浦町	4.2	9.0	36.0	65	59	210	300	アルカリ性単純温泉
35	那智勝浦町	26.1	7.0	27.6	74	154	443	500	温泉に該当せず
36	那智勝浦町	0.9	8.4	24.6	301	445	1006	500	ナトリウム-塩化物泉
37	那智勝浦町	20.6	8.3	27.8	85	161	410	100	アルカリ性単純温泉
38	那智勝浦町	1.6	8.4	28.0	57	69	285	500	単純温泉
39	那智勝浦町	3.4	8.8	31.0	76	100	275	500	アルカリ性単純温泉
40	那智勝浦町	0.7	8.5	34.3	90	146	319	300	アルカリ性単純温泉
41	那智勝浦町	8.4	9.8	37.8	71	35	217	200	アルカリ性単純温泉
42	本宮町	21.8	6.7	37.2	266	129	1156	300	ナトリウム-炭酸水素塩-塩化物泉

1&21-25. 沖積層 2. 日高川層群 3-10. 秩父帯 11&42. 音無川層群 12-17. 田辺層群 18-20. 牟呂層群 26-34&38-41. 熊野層群 35-37. 熊野酸性岩類

その近辺の源泉を選んだ。

調査の途中でエアリフトポンプで汲み上げる源泉でのラドン濃度が低い傾向が出た。エアリフトポンプで温泉水を汲み上げる場合、井戸中に高压の空気を送り込み、温泉水を泡立て泡と水が混ざり合った状態にさせて地上に吹き上げてくみ出す。このような汲み上げ方のため、温泉中の成分が気散しラドン濃度測定値低下につながると思われる。今回の調査では、エアリフトポンプで汲み上げる源泉からの採水は行わなかった。

2. 測定方法

ラドン濃度測定は、簡易型ラドン測定器(トリアスラー)を用い、トルエンシンチレーターによる直接法²⁾で行った。現地で源泉を採取する操作では、源泉湧出口から空気が入らないよう注射器で静かに10mL採水し、予めトルエンシンチレーター10mLを入れたバイアルビンに泡立てないように注入し密封した後、30秒間激しく振とうする。

トルエンシンチレーターは2,5-ジフェニルオキサゾール 4 g/L, 1,4-ビス-2-(5-フェニルオキサゾリン)ベンゼン0.1g/L, の濃度でトルエン溶液になるよう調製した。振とうした後、トルエン層のラドンとその子核種が平衡に達するまで4時間以上放置した後、トリアスラーで測定を行った。気相と液相との平衡計算は野口-斉藤³⁾の式を用い、水温及び半減期補正を行ってラドン濃度を算出した。

結果と考察

図1に和歌山県の地質図(URBAN KUBOTA引用)、図2に今回測定を行った源泉の位置を示した。表2に測定した源泉のラドン濃度及び泉温などの液性を示した。表2の下に各源泉の地質帯を示した。

図3に今回測定を行った源泉のラドン濃度分



図1. 和歌山県の地質図(URBAN KUBOTA引用)

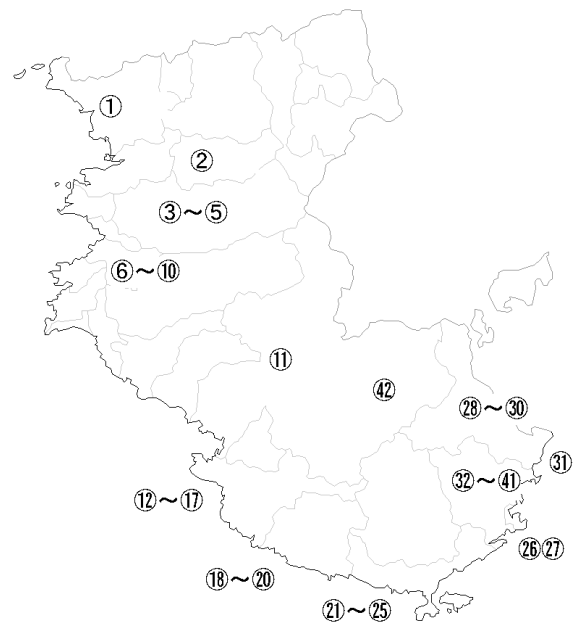


図2. 測定した源泉の位置

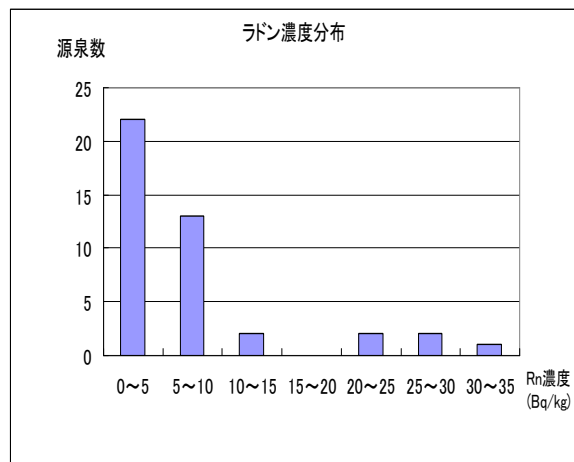


図3. 測定した源泉のラドン濃度分布をヒストグラムで示した。

源泉のラドン濃度は、5.0Bq/kg未満が22源泉、5.0以上10Bq/kg未満が13源泉、10以上15Bq/kg未満が2源泉、15以上20Bq/kg未満が0源泉、20以上25Bq/kg未満が2源泉、25以上30Bq/kg未満が2源泉、30以上35Bq/kg未満が1源泉で、測定を行ったほとんどの源泉が10Bq/kg未満であった。この結果からラドン温泉の鉱泉基準に達する源泉は見当たらなかった。

図4に源泉の主要な陽イオン成分(Na⁺)とラドン濃度分布をヒストグラムに示した。

ラドン濃度とNa⁺の相関係数は $r=-0.13$ で、両者の間に数字上相関は見られないが、図からはナトリウムイオン濃度が高い源泉は、ラドン濃度が低くなる傾向がみられる。

図5に源泉の主要な陰イオン成分(Cl⁻)とラドン濃度分布をヒストグラムに示した。

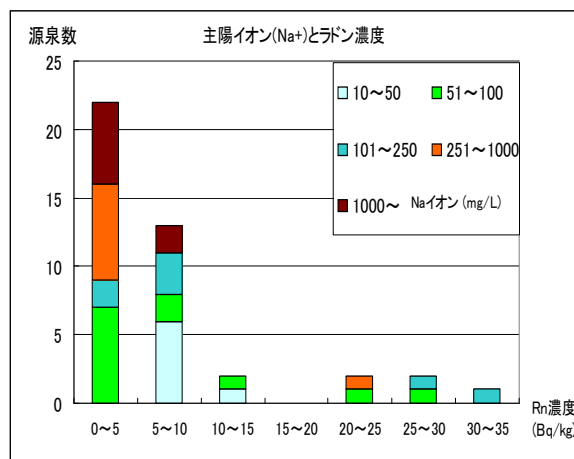


図4. 主要陽イオン(Na)とラドン濃度

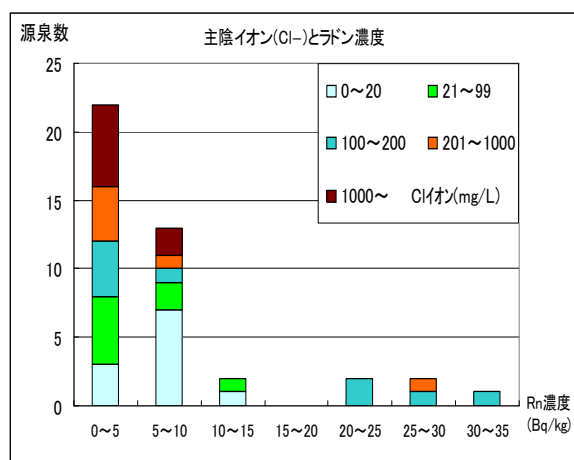


図5. 主要陰イオン(Cl)とラドン濃度

ラドン濃度とCl⁻の相関係数は $r=-0.12$ で、両者の間に数字上相関はみられないが、図からは塩素イオン濃度が高い源泉及び低い源泉では、ラドン濃度が低くなる傾向がみられる。

図6に源泉中の溶存物質質量とラドン濃度分布をヒストグラムに示した。

ラドン濃度と溶存物質の相関係数は $r=-0.14$ で、両者の間に数字上相関は見られないが、図からはナトリウムイオン及び塩素イオンの場合と同様に、溶存物質質量が多い源泉でラドン濃度が低くなる傾向がみられる。

図7に源泉の掘削深度とラドン濃度分布をヒストグラムに示した。掘削深度とラドン濃度の相関係数は $r=0.11$ で、両者の間に数字上の相関はみられない。また、図からも掘削深度が深いほどラドン濃度が高くなるような相関はみられ

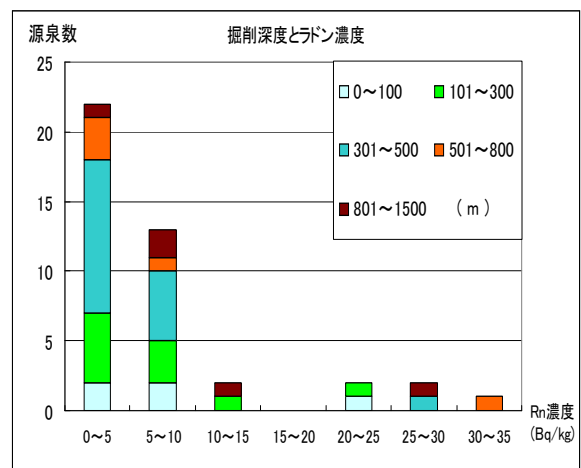


図6. 溶存物質質量とラドン濃度

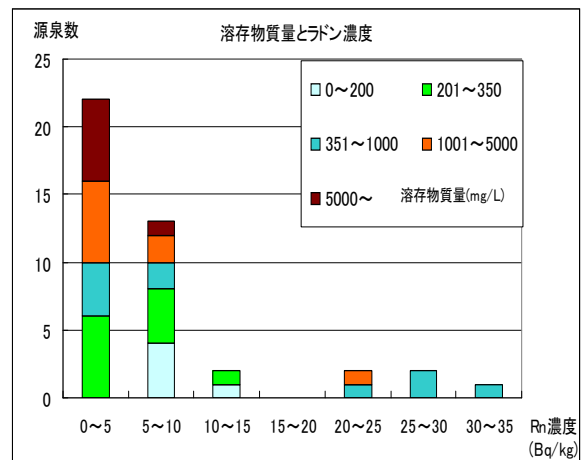


図7. 掘削深度とラドン濃度

ない。今回の調査では掘削深度は判っているが、源泉を取水しているストレイナー位置のデータが明確になっていないため、湧出深度とラドン濃度との解析はできなかった。

図8にpH値とラドン濃度分布をヒストグラムに示した。ラドン濃度とpH値との相関係数は $r=-0.17$ で、両者の間に数字上の相関はみられないが、図からはpH値が高い源泉でラドン濃度が低くなり、pH8前後にラドン濃度が高い源泉が集中している傾向がみられる。

次にラドンは気体のため、泉温とラドン濃度との相関がみられるのではないかと考え、図9に泉温とラドン濃度分布をヒストグラムに示した。ラドン濃度と泉温との相関係数は $r=-0.06$ で、両者の間に数字上の相関はみられない。

ヒストグラムから30℃以下の泉温が低い源泉

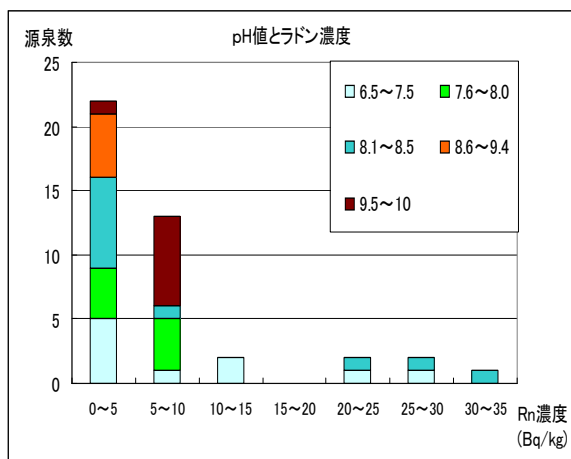


図8. pH値とラドン濃度

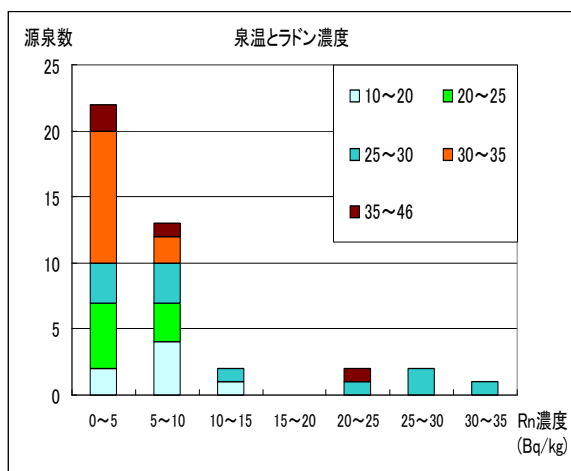


図9. 泉温とラドン濃度

でラドン濃度が高く、30℃以上の泉温ではラドン濃度が低くなる傾向がみられるが一方で、35℃以上の源泉でもラドン濃度が高い場合もみられることから、相関係数も低くなると考えられる。

図10に泉質とラドン濃度分布をヒストグラムに示した。両者を相関係数で表すことができないが、ヒストグラムから単純温泉ではラドン濃度が低い源泉から高い源泉までまんべんなく分布している。その他の源泉では、Naイオンを含む源泉のラドン濃度が低くなる傾向がみられる。泉質による濃度との強い相関はみられなかった。

以上のことから項目によっては、ラドン濃度との傾向がみられる項目もあるが、相関係数からは有意な相関はみられなかった。

次に地質とラドン濃度について図1. から和歌山県の地質は北部に中央構造線が東西に伸び、その南側には大きく分けると5つの地質帯があり、さらに細かく分けると9つの地質帯に分かれている。和歌山県内の主な温泉地は、龍神温泉が日高川層群、白浜温泉が田辺層群、勝浦温泉・湯川温泉が熊野層群に及び川湯・湯峯・渡瀬温泉が音無川層群で湧出している。これらの源泉が集中した源泉地での測定を考慮しながらサンプリングを行い、比較的ラドン濃度が高かった源泉はNo. 28, 29(熊野層群), No. 42(音無

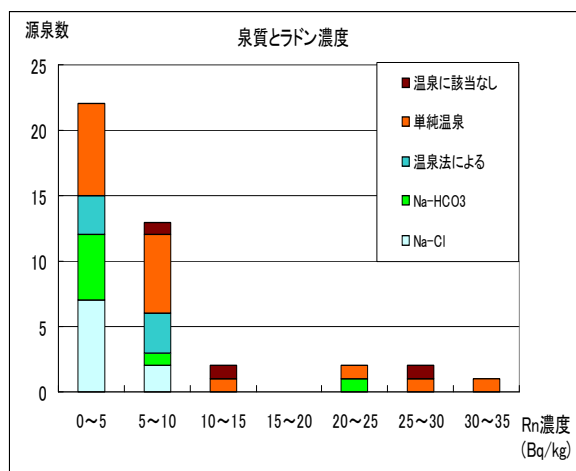


図10. 泉質とラドン濃度

川層群)及びNo. 35, 37(熊野酸性岩類)であった。

No. 35, 37以外の源泉は、三源泉共に熊野層群と音無川層群の境界に近い場所に位置していることから、地質帯の境界付近ではラドン濃度が比較的高い源泉が存在することが示唆される。No. 35, 37の源泉は、火成岩層上(熊野酸性岩類)から湧出していることから、比較的ラドン濃度が高いサンプルが得られたと考えられる。

今回の調査でサンプリングを行うとき、エアリーフトで源泉を汲み上げる井戸を途中からはずした。エアリーフトでの源泉の汲み上げ方は調査方法でも述べたが、具体的な例としてNo. 2の源泉では、通常は水中ポンプで源泉を汲み上げている。温泉の現地調査を行ったとき、水中ポンプを停止し掘削口から自噴する源泉を採取できる機会が得られた。掘削口から自噴する源泉のラドン濃度は15.8Bq/kgで、採水した後水中ポンプを作動させた場合のラドン濃度は8.9Bq/kgで、水中ポンプを作動させたことによると考えられるラドン濃度の減少がみられた。

以上のことから、水中ポンプによる汲み上げできえラドンの気散がみられたことから、エアリーフトでの汲み上げ方では水中ポンプ以上の気散が考えられる。

ま と め

今回の調査では、ラドン濃度が鉱泉基準に達する源泉を見つけることはできなかった。

調査から、火成岩層もしくは火成岩を含む堆積岩層及び各地質帯の境界付近にラドン濃度が比較的高い源泉が存在することがわかった。

また概略であるが、県内温泉地の濃度分布を把握することができた。

文 献

- 1) 国際保健機関：屋内ラドンハンドブック 公衆衛生的大局観，1-58，2009
- 2) 安岡由美，他：水中ラドン濃度測定における通常型液体シンチレーションカウンタと簡易型測定器との比較，温泉科学，59(1)，11-21，2009
- 3) 安岡由美，他：水中ラドン標準測定法の検討〈直接法〉，水中ラドンに関する専門研究会活動報告書(日本保健物理学会)，44-51，2004

V 発表業績

1. 誌上発表

1) 加工食品中の残留農薬分析及び放射線照射検知の精度管理体制の構築に関する研究

尾花裕孝^{*1}, 永村桂一^{*2}, 上野英二^{*3}, 山下浩一^{*4}, 新藤正則^{*5}, 久野恵子,
佐々木珠生^{*6}, 宅間範雄^{*7}, 山口理香^{*8}

厚生労働科学研究費補助金（食品の安全確保推進研究事業）検査機関の信頼性確保に関する研究，
平成23年度総括・分担報告書，35～108，2011

食品衛生法において，加工食品中の農薬等の残留基準は，一部の加工食品を除いて一律基準（0.01ppm）が適用される。同時に加工食品の原材料が食品規格に適合していれば，食品規格に適合するものとして扱われるとされている。このため，加工食品で食品規格への適否を判定するためには，加工食品全体のみならず，原材料ごとに農薬等の残留値を評価することが求められる。上記の法の運用趣旨に適する精度管理試料が考案され，外部精度管理試験が実施された。

参加した各機関は，加工食品中の農薬検査を行い，その結果に基づいて原材料ごとの食品規格への適合性を判定する能力を有することが認められた。

*1：大阪府立公衆衛生研究所，*2：岩手県環境保健研究センター，*3：愛知県衛生研究所，*4：奈良県保健環境研究センター，*5：堺市衛生研究所，*6：広島市衛生研究所，*7：高知県衛生研究所，*8：北九州市環境科学研究所

2. 学会・研究会等発表

1) 和歌山県におけるコクサッキーウイルスA 6型の流行について，第29回和歌山県公衆衛生学会，和歌山市，2011，11月，仲 浩臣，寺杣文男，青木一人

2) 強壯用医薬品成分の分析法について，第29回和歌山県公衆衛生学会，和歌山市，2011，11月，中岡加陽子，高井靖智，久野恵子，橋爪 崇*（*和歌山県工業技術センター）

3) 健康危機管理に対応した自然毒一斉分析法の検討—有毒植物および毒きのこ19成分—，第48回全国衛生化学技術協議会年会，長野市，2011，11月，久野恵子，高井靖智，橋爪 崇^{*1}，山東英幸^{*2}（*¹和歌山県工業技術センター，*²和歌山信愛女子短期大学）

4) 高吸水性樹脂を用いた残留農薬迅速分析法による調査—かきに使用する農薬のかきの葉への影響—，第48回全国衛生化学技術協議会年会，長野市，2011，11月，高井靖智，久野恵子，中岡加陽子，橋爪 崇*（*和歌山県工業技術センター）

5) 和歌山県におけるレジオネラ属菌実態調査について，平成23年度地研近畿支部細菌部会研究会，神戸市，2011，11月，桑田昭，田中敬子，寺杣文男，仲浩臣，青木一人

6) 発色剤無添加食肉製品からの亜硝酸根検出事例について，平成23年度地研近畿支部理化学部

会研修会，和歌山市，2011，12月，高木文徳，高井靖智，中岡加陽子，上田幸右，久野恵子

7) メイチダイの異臭事例について，平成23年度地研近畿支部理化学部会研修会，和歌山市，2011，12月，高井靖智，久野恵子，橋爪崇*（*和歌山県工業技術センター）

8) 和歌山県における酸性雨調査，第26回全国環境研協議会東海・近畿・北陸支部研究会，京都市，2012，2月，浴口智行，桶谷嘉一，黒平智行*（*循環型社会推進課）

3. 所内研究発表会

場 所 和歌山県環境衛生研究センター研修室

開催日 平成24年 3月19日

- 1) ノイラミニダーゼ阻害剤耐性インフルエンザウイルスの動向に関する研究,
寺杣文男, 仲 浩臣, 青木一人
- 2) 手足口病患者からのウイルス分離及び遺伝子解析について,
仲 浩臣, 寺杣文男, 青木一人
- 3) 温泉等入浴施設におけるレジオネラ属菌の衛生管理に関する研究,
桑田 昭, 田中敬子, 寺杣文男, 仲 浩臣, 青木一人
- 4) 食の安全と健康に関する研究～カエデドコロ、オニドコロ等の成分に関する研究～,
久野恵子, 高井靖智, 上田幸右
- 5) 無承認無許可医薬品分析法の検討,
中岡加陽子, 高木文徳, 高井靖智, 久野恵子
- 6) 残留農薬の小スケール化に関する研究,
高井靖智, 高木文徳, 中岡加陽子, 上田幸右, 久野恵子
- 7) 風力発電機周辺における低周波音の実態調査,
桶谷嘉一, 浴口智行, 木野恵太, 大谷一夫
- 8) 酸性雨調査及び光化学オキシダント実態調査,
浴口智行, 桶谷嘉一, 木野恵太, 大谷一夫
- 9) 黄砂影響調査,
木野恵太, 桶谷嘉一, 浴口智行, 大谷一夫
- 10) 県内における温泉水中のラドン濃度調査,
畠中哲也, 山中典子, 大畑木の実, 河島眞由美, 大谷 寛
- 10) 梅の生産及び梅干し製造を主要産業とする南部川水系古川水域の実態調査,
山中典子, 畠中哲也, 河島眞由美, 大畑木の実, 大谷 寛
- 12) 水質中のジメチルスズ化合物及びモノブチルスズ化合物の分析法の検討(途中経過),
大畑木の実, 山中典子, 畠中哲也, 河島眞由美, 大谷 寛

VI 研究 課 題

平成23年度 調査研究成果一覧

題	ノイラミニダーゼ阻害剤耐性インフルエンザウイルスの動向に関する研究		
研究期間	H21～23（終了）	担当課（主担当）	微生物グループ（寺杣）
過去4シーズンに患者から分離されたインフルエンザウイルス株を用い、ノイラミニダーゼ阻害剤耐性を示すNA遺伝子の変異マーカーの有無について調べた。2008-2009シーズンには解析したA/ソ連型インフルエンザウイルス分離株の全て(23株)に耐性変異が認められた。2009年に発生した新型インフルエンザウイルスについては2010-2011シーズンまでに耐性変異が3株で認められた。A/香港型及びB型インフルエンザウイルスでは耐性変異は認められなかった。			
題	手足口病患者からのウイルス分離及び遺伝子解析について		
研究期間	H22～24（継続）	担当課（主担当）	微生物グループ（仲）
手足口病の患者発生状況及び原因ウイルスの調査を実施した。56株のkokサッキーウイルスA6型(CA6)を検出し、それらが手足口病の主要原因であったことが明らかとなった。また、患者発生動向と病原体検出状況、手足口病Q&A等について情報発信を行い、本疾病の予防・啓発に努めた。			
題	温泉等入浴施設におけるレジオネラ属菌の衛生管理に関する研究		
研究期間	H22～24（継続）	担当課（主担当）	微生物グループ（桑田）
レジオネラ属菌迅速検査法としてEMA処理とLAMP法を組み合わせた検査法を確立した。また、紫外線及び銀イオンによる殺菌効果の確認を様々な泉質に対して行い、泉質ごとの適用の可否について知見を得た。			
題	食の安全と健康に関する研究～加工ドコロ、ホドコロ等の成分に関する研究～		
研究期間	H23（終了）	担当課（主担当）	衛生グループ（久野）
ヤマノイモ属根茎に含まれている有毒成分ジオスシンは、メタノールを用いて超音波1回抽出後、超高速液体クロマトグラフで分析することにより、約1時間と迅速に分析することができた。また根茎をまるごと冷凍保存するとジオスシン含有量が減少するが、細切してから冷凍保存すると減少が防げることが判明したことから、採取後はすぐに分析することが望ましいが、もし分析できない時は根茎を細切してから冷凍保存すると良いことが明らかになった。			
題	無承認無許可医薬品分析法の検討		
研究期間	H22～23（終了）	担当課（主担当）	衛生グループ（中岡）
痩身用医薬品成分12成分、肥満治療薬（マジンドール、フェンフルラミン、シブトラミン、N-ニトロソフェンフルラミン、オリスタット）、糖尿病治療薬（トルブタミド、グリクラジド、グリベンクラミド）、利尿薬（ヒドロクロロチアジド、フロセミド）、緩下薬（ピサコジル、フェノールフタレイン）について、TLC、HPLC及びLC/MS/MSによる分析法を確立した。			
題	残留農薬分析の小スケール化に関する研究		
研究期間	H23（終了）	担当課（主担当）	衛生グループ（高井）
迅速な分析法の開発を目標にカラム法（従来法）の小スケール化を検討した。サンプル量を10gから5gへ、抽出溶媒量は70mLから50mLへと小スケール化することにより、1時間40分（12検体）要していた濃縮時間が、1時間15分（12検体）に短縮できることがわかった。			

題	風力発電機周辺における低周波音の実態調査		
研究期間	H22～23（終了）	担当課（主担当）	大気グループ（ 桶谷 ）
<p>本県内に設置されている風力発電設備（風車）付近における騒音および低周波音の測定を実施した。その結果から、任意地点における音圧レベルは距離減衰式により予測できること、風車の軸方向の方が横方向よりも音が伝わりやすいことが示唆された。また、風車音として聞こえる周波数は100 ～ 800 Hzの範囲に含まれていることが考えられた。</p>			
題	酸性雨調査及び光化学オキシダント実態調査		
研究期間	H22～23（終了）	担当課（主担当）	大気グループ（ 浴口 ）
<p>全国環境研協議会の全国調査の一環として、酸性雨調査（湿性沈着調査及び乾性沈着調査）を海南市役所屋上にて行った。調査の結果、昨年度の雨水のpH加重平均値は4.9であった。また、雨水によるイオン成分総沈着量を月別で比較したところ、春に沈着量が多い傾向があった。インフレンシヤル法を用いて乾性沈着量を推計したところ、ガス状硝酸の沈着量がアンモニアや硫酸に比べて多いことが分かった。また、酸性雨調査で用いている手法（0式パンプ法）を活用して県内の光化学オキシダント実態調査も行った。5月から9月の調査期間において、全ての調査地点で光化学オキシダント濃度は5月に最も大きな値を示した。</p>			
題	黄砂影響調査		
研究期間	H22～23（終了）	担当課（主担当）	大気グループ（ 木野 ）
<p>黄砂飛来日及び飛来が確認されない日にエアロゾル粒子を捕集し、成分分析を行った。その結果、黄砂日に和歌山市まで飛来したエアロゾル粒子には、Pb等の人為起源物質が多く含まれていた。また、黄砂飛来経路より、黄砂の成分濃度は飛来するまでの大気環境に影響を受けることが分かった。</p>			
題	県内における温泉水中のラドン濃度調査		
研究期間	H22～23（終了）	担当課（主担当）	水質グループ（ 畠中 ）
<p>源泉のラドン濃度と温泉成分分析を行った。源泉の主要な項目（Naイオン、Clイオン、pHなど）とラドン濃度には、ヒストグラムで表すと傾向が見られること、またラドン濃度が比較的高い源泉は地質帯の境界付近か火成岩帯に湧出することなどが分かった。</p> <p>また、県内源泉のラドン濃度の分布について概略であるが分かった。</p>			
題	梅の生産及び梅干し製造を主要産業とする南部川水系古川水域の実態調査		
研究期間	H21～23（終了）	担当課（主担当）	水質グループ（ 山中 ）
<p>古川流域のにおける水質や、環境基準点における流量について、データを蓄積し、実態を把握した。また、排出源別の汚濁負荷量調査を実施し、汚濁の主要因を解明した。これらの結果が、汚濁負荷削減施策を考えるための基礎資料となった。</p>			

年 報 編 集 委 員

委員長	山 本 康 司
副委員長	山 下 善 樹
委 員	山 本 眞 司
〃	内 原 弘 恵
〃	田 中 敬 子
〃	久 野 恵 子
〃	大 谷 一 夫
〃	畠 中 哲 也

発行年月	平成 24 年 11 月
編集・発行	和歌山県環境衛生研究センター
〒640-8272	和歌山市砂山南3-3-45
	TEL (073)423-9570
	FAX (073)423-8798
