長 崎 県 衛 生 公 害 研 究 所 報

ANNUAL REPORT OF NAGASAKI PREFECTURAL INSTITUTE
OF PUBLIC HEALTH AND ENVIRONMENTAL SCIENCES

－ ２００４ －

（平成１６年度業績集）

第５０号

長 崎 県 衛 生 公 害 研 究 所
NAGASAKI-KEN EISEI KOGAI KENKYUSHO

ま　え　が　き

本巻は、初巻から数えてちょうど区切りのよい第５０巻目にあたります。
初巻を紐解いて見ますと、長崎県衛生研究所報（Ｉ）昭和２８、２９年の併版になっており、その巻頭言には、戦後の復興もままならぬ昭和２６年、被爆県の様々な困難に逢着しながらも組織を拡充させ、より高度の試験検査を行うための機関として設置したという当時の所長（県衛生部長兼任）の強い意気込みが伝わってまいります。
爾来、半世紀、所掌する業務もその間、環境公害部門への対応が加わり時代の変遷と歩みを一にしながら、今日に至っておりますが、長い経緯の中で、長崎県衛生公害研究所がこれまでに本県の保健衛生行政及び環境公害行政に対する科学的、技術的な中核機関として重要な役割を果たしてきたこともまた事実であります。
２１世紀の今日、当所は、今また新たな時代に向かって自身を変革すべく「県民に、より身近で、民間・大学・他公設試と連携した、開かれた研究所づくり」の理念実現を目指して、平成１９年４月の「長崎県環境保健研究センター（仮称）」の改組移転・（大村市）に向け新たな出立準備を重ねているところです。
今後、長崎県長期総合計画、新衛生公害研究所整備計画などと整合を図りながら、具体的には、次の４点を特徴にしつつ、その理念の実現を図ってまいりたいと考えております。

１．調査研究の重点化を図ります。
環境分野では、循環型社会づくり、閉鎖性水域の環境浄化、地球規模の環境問題への対応を想定した豊かで健全な環境の確保に資する調査研究に取り組みます。
保健衛生分野では、食の安全・安心の確保、新興感染症などの究明・拡大防止に資する調査研究に取り組みます。
更に、これらの分野を包含し地域振興に寄与する産学官連携による共同研究と新事業、新技術開発等他の分野技術が融合した新産業興しに資する研究に取り組みます。

２．試験検査の見直し・効率化を図ります。
行政的措置を伴うなど、法体系上で公的検査機関の関与が必要な場合やプライバシーの保護を要する場合、感染症や環境放射能などに係る健康危機管理への迅速な対応を求められる場合等を業務の柱の一つに位置づけて、効率的な試験検査を行います。

３．情報発信・教育研修の充実強化を図ります。
特に、電磁的な環境・感染症情報の提供システムを整備し、それらの情報を積極的に発信するとともに環境・保健学習支援プログラムの作成、実行により、地域指導者等に対して学習支援を行いつつ、これらの関係人材の育成に資する取り組みを推進します。

４．推進体制の整備と研究成果の活用に努めます。
地域課題の解決を目指した調査研究等を推進するためには県民、事業者等からの要望、意見の的確な把握に努め、それへの調査研究の反映、民間・大学・他公設研究機関等との研究の積極的な連携、研究人材の育成、確保による研究体制の強化、研究成果への適正な外部評価制度の反映などを行います。
また、得られた研究成果に関しては、知的財産権の取得の可能性も勘案しながら、迅速、的確に県民等に情報を発信しその成果の普及、活用についても積極的に努めます。
以上のような考え方のもとに職員一同精励してまいりますので、今後ともご支援、ご鞭撻をよろしくお願いいたします。

本誌は、平成１６年度の研究成果等を取りまとめたものです。
ご高覧いただき、ご指導ご教示を賜れば誠に幸甚に存じます。

平成１８年１月　長崎県衛生公害研究所長
仁位　敏明

目　次

Ⅰ 報文
1．長崎県に飛来した黄砂の実態
－最近のトピックスと成分組成－ ---------- 1
2．ダイオキシン類分析における妨害物質であるポリ塩素化ジフェニルエーテル類の
除去方法の検討 ---------- 10
3．農産物中の残留農薬 ---------- 18
4．農産物中のクロロタロニル、キャプタン、カプタホール、ジクロフルアニド及び
ホルペットの分析法の検討 ---------- 24
Ⅱ 資料
1．長崎県における大気汚染常時測定局の測定結果（200４年度） ---------- 29
2．長崎県における酸性雨調査（200４年度） ---------- 38
3．長崎県地域防災計画に係る環境放射能調査（200４年度） ---------- 44
4．長崎県悪臭防止指導要綱の指導基準の再調査報告 ---------- 47
5．大村湾の水質変動 ---------- 55
6．養殖カキを用いた内湾環境修復に関する研究（その3） ---------- 58
7．自然エネルギーの有効利用法について ---------- 64
8．大村湾の浄化・生態系回復に関する研究（2004年度） ---------- 72
9．藻場による水環境改善に関する研究 ---------- 76
10．諫早湾干拓調整池の植物プランクトン及び底生生物調査結果（2004年度） ---------- 79
11．イボニシに関する有機スズ化合物の影響調査 ---------- 83
12．農産物中残留農薬の簡易スクリーニング法の検討 ---------- 88
13．農産物中のアセフェート、メタミドホス、ジクロルボス及びトリクロルホンの
分析法の検討 ---------- 93
14．長崎県における日本脳炎の疫学調査（ 2004 年度） ---------- 96
15．長崎県におけるインフルエンザの疫学調査（ 2004 年度） ---------- 99
16．感染症サーベイランスにおけるウイルス分離（2004年度） ---------- 104
17．長崎県下における食中毒（ノロウイルス）の検出状況（2004年度） ---------- 107
Ⅲ 資料（データ）
1．長崎県における放射能調査結果(2004年度) ---------- 110
2．産業廃棄物最終処分場における浸透水等調査結果(2004年度) ---------- 112
3．工場・事業場排水調査結果（2004年度） ---------- 113
4．環境中ダイオキシン類測定結果 ---------- 115
5．発生源ダイオキシン類測定結果 ---------- 115
6．食品中残留農薬調査結果 ---------- 116
7．油症検診者の血液中PCB、PCQ濃度 ---------- 116
8．食品、陶磁器などの収去検査結果 ---------- 117
9．畜水産食品中の合成抗菌剤などの検査結果 ---------- 117
Ⅳ 学会等発表・他誌掲載論文抄録
1．学会等発表 ---------- 119
2．他誌掲載論文 ---------- 120
3．他誌掲載論文抄録 ---------- 121

CONTENTS

Ⅰ RESEACHES AND STUDIES

1. Recent Dust Event and Atmospheric Quality in Nagasaki Prefecture ---------- 1
2. The Removal of Polychlorinated Diphenyl Ethers(PCDEs) as the Interference in Dioxin Analysis by HRGC-HRMS ---------- 10
3. Pesticide Residues in Agricultural Products ---------- 18
4. Studies on Determination of Chlorothalonil,Captan,Captafol,Dichlofluanid and Folpet in Agricultural Products ---------- 24

Ⅱ TECHNICAL REPORTS

1. Measurement of Air Pollution by Monitoring Stations in 2004 ---------- 29
2. Acidity and Ion Concentrations in Rain Water (2004) ---------- 38
3. Radioactivity Survey Data in Nagasaki Prefectural Disaster Prevention Plan (2004) -------- 44
4. Investigation of Stench in Nagasaki ---------- 47
5. Water Quality Transition of Omura-Bay ---------- 53
6. Inner Bay Environmental Restoration by Oyster Culture(No.4) ---------- 55
7. The Effective Utilization of Natural Energy ---------- 58
8. Research on the Purification and the Ecosystem Restoration of the Omura-Bay ---------- 64
9. Research on an Improvement of the Water Environment by the Alga-place ---------- 72
10. Phytoplankton and Benthos of The Detention Pond Originated from Isahaya-bay Land from Isahaya-bay Land Reclamation ---------- 76
11. Effects of Organotin Compounds in Thais clavigera ---------- 79
12. The Study of Simple Method for Pesticide Residue in Agricultural Products ---------- 83
13. Studies on Determination of Acephate, Methamidophos, Dichorvos and Trichlorhon in Agricultural Products ---------- 88
14. Epidemic of Japanese Encephalitis in Nagasaki Prefecture(2004) ---------- 93
15. Epidemic of Influenza in Nagasaki Prefecture(2004) ---------- 96
16. Virus Isolation on Surveillance of Infection Disease(2004) ---------- 99
17. Food Poisoning (Noro Virus) in Nagasaki Prefecture (2004) ---------- 104

Ⅲ TECHNICAL REPORTS(DATA)

1. Radioactivity Survey Data in Nagasaki Prefecture (2004) ---------- 107
2. Results of an Investigation,as Osmosis Water in the Waste Reclamation last Disposal Place (2004) ---------- 110
3. Effluent Qaulities of Factories and Establishments (2004) ---------- 112
4. Survey Data of Dioxins in Environmental Media (2004) ---------- 113
5. Survey Data of Dioxins in Stationaey Sorurce Emisson and Waste Water(2004) ---------- 115
6. Survey Data of Medical Supply in Helth Foods (2004) ---------- 115
7. Pesticide Residues in Foods(2004) ---------- 116
8. PCB and PCQ Concentration in Human blood on Yusho Examinations(2004) ---------- 116
9. Survey Data on Random Examination of Foods and Porcelains(2004) ---------- 117
10. Survey Data of Synthetic Antibacterials in Livestock and Marine Products(2004) --------- 117

Ⅳ ABSTRACTS IN OTHER PUBLICATIONS ---------- 119

Ⅰ　報　文

長崎に飛来した黄砂の実態
－最近のトピックスと成分組成－

森 淳子 ・ 横瀬 健 ・ 石崎修造 ・ 香月 幸一郎 ・ 八並 誠 ・ 白井 玄爾

Recent Dust Event and Atmospheric Quality in Nagasaki Prefecture

Atsuko MORI, Takeshi YOKOSE, Shuzo ISHIZAKI,
Koichiro KATSUKI Makoto YATSUNAMI and Genji SHIRAI

We brought the excess of environmental standards of SPM in the past three years based on the result of Nagasaki Prefectural Air Pollution Monitoring System. The following were clarified by the supplementation data by an original investigation.

1. The SPM concentration of most monitoring station in the prefecture exceeded the environmental standards value at the large-scale Asian Dust phenomenon in the spring of 2002.

2. When the Asian Dust in autumn was observed in November, 2002, the rise of Ox concentration was observed before the rise of SPM concentration.

3. There was no large-scale Asian Dust phenomenon in 2004 2003, and the haze phenomenon was confirmed on the day when SPM exceeded environmental standards.

4. We found the case when the sulfate particles were a principal ingredient as a composition of SPM besides the case when the soil particles were a principal ingredient, by the componential analysis on a particulate material in April, 2005.

Key words: Asian Dust Suspended Particle Material
キーワード: 黄砂、浮遊粒子状物質

はじめに

長崎県における大気環境調査は、大気汚染防止法に基づき1971年度に開始されており、2004年度の概要については本所報資料編に掲載している。観測開始以来の長期変動について解析を行った[1]ところ、固定発生源関連の汚染物質については長期的に減少傾向が認められたが、移動発生源に関連して、都市部の二酸化窒素や非メタン炭化水素濃度が増加傾向にあった。また、光化学オキシダント濃度が特に1990年代以降増加傾向にあり、2002年度以来注意報発令基準以上の値が観測されている。更に、大規模な黄砂飛来時に浮遊粒子状物質の環境基準超過が認められている。

荒生ら[2]は長崎海洋気象台が観測した1914年から2001年までの黄砂現象の経年変化を取りまとめている。2000年及び2001年は年間の黄砂日数が15～16日と最近20年では最高を示している。また3，4月は黄砂の観測日数が増加しているのに対し、5月は減少傾向にあり、地球温暖化との関連を示唆している。

このようなことから、環境省は平成14年度から黄砂実態解明調査事業を開始している。本県は、北海道ほか全国6自治体とともにこの事業を受託しており、黄砂期に6回の試料採取を行っている。

ここでは、大気環境常時監視システムによって得られたデータと、独自に実施した観測から最近長崎に飛来した黄砂の実態を明らかにする。

方　法

1　大気環境常時監視データ

観測体制の概要は本所報資料編のほか、行政による報告書[3]にまとめられている。黄砂と関連が深い浮遊粒子状物質（SPM）は長崎県下（本土）49地点で1時間毎にデータを得ている。

2　粒子状物質

2－1　二段ろ紙法

2005年3月25日から5月30日までの間、長崎県衛生公害研究所屋上(北緯32度48分26秒，東経129度50分59秒)にて10ﾗｲﾝｸﾞﾛｰﾊﾞﾙｻﾝﾌﾟﾗｰ（東京ダイレック製GS－10DP）で粒子状物質の連続採取を行った。

NILU製ろ紙ホルダーの一段目に2.5μmインパクタ

ーと47×20mmφの石英ろ紙(Pallflex 25000QAT-UP)、二段目に47mmφの石英ろ紙(Pallflex 25000QAT-UP)をセットし、2.5μmを超える粒径の粒子と2.5μm以下の粒子を分粒して採取した。サンプラーは約10L/minの流速で吸引し、毎日16:00にホルダーを切り替えた。

回収したろ紙は純水で抽出し、イオンクロマトグラフにてSO_4^{2-},NO_3^-,Cl^-,NH_4^+,Ca^{2+},Mg^{2+},K^+,Na^+を分析し液中濃度を求めた後、吸引流量から大気中濃度を求めた。

2－2 アンダーセンサンプリング

2005年4月15日15:00～16日15:00と2005年4月21日15:00～22日15:00、同地点にて、柴田科学株式会社製ローボリウム・エアサンプラー アンダーセンタイプAN-200型を用いて採取を行った。市販の食品フィルムを80mmφに切り取ったものを9枚セットし0.43μm以下から11.0μm以上まで粒径別に採取した。回収したろ紙は1枚ごとに秤量し、専用アプリケーション・ソフトにて粒径分布を計算した。また走査型電子顕微鏡(JEOL JSM-5310)によって、形状を観察した。

3 湿性沈着物

長崎市向町 式見ダム管理棟横(北緯32度47分26秒，東経129度48分10秒)にて雨水自動サンプリング装置㈱旺計社ORS-100を用いて1降雨毎に自動採取を行っている。採取された試料の分析項目などは表1のとおり。

表1 湿性沈着物分析項目と方法

分析項目	分析方法	定量（検出）下限値
pH	ガラス電極法	0.01
EC	導電率計を用いる方法	0.01μS/cm
SO_4^{2-}	イオンクロマトグラフ	0.055mg/L
NO_3^-	〃	0.034mg/L
Cl^-	〃	0.008mg/L
NH_4^+	〃	0.05mg/L
Ca^{2+}	〃	0.08mg/L
Mg^{2+}	〃	0.005mg/L
K^+	〃	0.02mg/L
Na^+	〃	0.03mg/L

結 果 と 考 察

1 大気環境常時監視データにおける環境基準超過状況

表2に、過去10年のSPM環境基準超過状況を示した。2002年3月から2002年4月にかけて出現した大規模な黄砂現象によって、環境基準達成率が一桁以下まで低下したが2003，2004年度の長期的評価における環境基準達成率はほぼ100%に近い値まで回復している。このように、年によって黄砂の規模が異なる要因について原ら[4]は、2001年、2002年のゴビ砂漠付近の積雪被覆率が極めて低かったこと、700hPa高度におけるジオポテンシャル高度の平年値との偏差の解析から、2001年、2002年は発生源付近で低気圧活動が活発であるために強風発生頻度が高まり、ダストの発生量が増加することをあげている。

表2 過去10年間のＳＰＭ環境基準超過状況

年度	有効測定局数	短期的評価 達成局数	短期的評価 非達成局数	短期的評価 達成率(%)	長期的評価 達成局数	長期的評価 非達成局数	長期的評価 達成率(%)
1994	48	3	45	7	48	0	100
1995	48	22	26	45.8	44	3	93.6
1996	45	18	27	40	44	0	100
1997	45	9	36	20	42	3	93.3
1998	45	5	40	11.1	26	19	57.8
1999	46	7	39	18.4	46	0	100
2000	47	5	42	11.1	32	15	68
2001	48	2	46	4.4	2	46	4.1
2002	49	0	49	0	1	49	2
2003	49	12	37	24.4	46	3	93.9
2004	49	36	13	73.5	48	1	98

2　SPM環境基準超過と黄砂現象

表2～4に2002～2004年度のSPM環境基準超過と黄砂現象等の出現日を示した。

2002年度（表3）は、大規模な黄砂現象が前年度の3月から引き続き4月にも13日観測された。そのうち8～10日にかけては、SPM濃度も最高517μg/m^{3}に達し、ほとんどの局で日平均値の環境基準値を超過した。

11月には6年ぶりと言われた秋の黄砂が観測された。年度途中で環境省委託業務の受託を開始したが、第一回の採取として2003年3月25日～翌4月1日まで黄砂の採取を行った。長崎ではこのときの大気現象は「煙霧」であるとされた。

2004年3～4月に数回気象官署によって「黄砂」現象が確認された。この間環境省調査として5回黄砂の採取を行った。しかしSPM濃度が環境基準を超過することはなく、比較的小規模であった。

なお、2002年6月3～6日に「煙霧」が観測された際、複数の局で日平均値が100μg/m^{3}を上回った。2003年9月15～17日及び2004年5月7日に日平均値が100μg/m^{3}を上回った日にも、「煙霧」が観測されていた。この内、2004年5月7～8日には環境省調査として黄砂の採取を行った。

表3　2002年度の黄砂関連大気現象とSPM基準超過状況

			環境省指示による黄砂採取（ハイボリ試料濃度 mg/m^3）	長崎海洋気象台による大気現象	SPM1時間値の最高濃度（mg/m^3）	日平均値が0.10mg/m^{3}を超えた局数
2002年	4月	1日		黄砂	0.159	1
		2日		黄砂	0.126	0
		3日		黄砂	0.144	0
		7日		黄砂	0.182	0
		8日		黄砂	0.517	47
		9日		黄砂	0.269	49
		10日		黄砂	0.324	42
		11日		黄砂	0.172	0
		12日		黄砂	0.133	0
		13日		黄砂	0.154	3
		14日		黄砂	0.190	0
		17日		黄砂	0.379	6
	5月	23日		黄砂	0.110	0
	6月	3日		もや、煙霧	0.215	15
		4日		もや、煙霧	0.155	2
		5日		もや、煙霧	0.165	4
		6日		もや、煙霧	0.164	3
	8月	27日			0.164	1
	11日	12日		黄砂	0.297	26
		13日		黄砂	0.146	0
2003年	2月	19日		煙霧	0.194	8
	3月	25日	0.070		0.159	0
		26日		もや、煙霧	0.134	1
		30日	0.068		0.137	0
		31日	0.063		0.225	0

3　大規模黄砂現象

2002年4月8～10日の黄砂現象によって、8日にはSPM1時間値が最大517μg/m^{3}に達し、ほとんどの局で1時間値の環境基準値（200μg/m^3）を大きく上回った。9日には県内全局で日平均値が環境基準値の100μg/m^{3}を上回るなど、大規模な現象であった。図1に4月8～10日の長崎県管理15局のSPM1時間値の変化を示した。4月8日は、島原半島をのぞく県下の広範囲が一斉にSPM濃度が上昇している。9日は島原半島を含め県下の広範囲でSPM濃度がなだらかに上昇している。10日は県の北部から南部にかけて順次濃度が上昇している。地上天気図をみると、8日9時対馬海峡にあった寒冷前線が9日9時には九州南部まで南下している。替わって大陸東岸付近から東進した高気圧が10日9時には黄海に達している。今回の事例では、寒冷前線に伴う移送はすばやく、高気圧に伴う移送は比較的ゆっくり黄砂をもたらしたと考えられる。

表4　2003年度の黄砂関連大気現象とSPM基準超過状況

			環境省指示による黄砂採取（ハイボリ試料濃度 mg/m^3）	長崎海洋気象台による大気現象	SPM1時間値の最高濃度（mg/m^3）	日平均値が0.10mg/m^{3}を超えた局数
2003年	4月	1日			0.094	0
		13日		黄砂	0.107	0
	9月	15日		もや、煙霧	0.165	**4**
		16日		もや、煙霧	0.170	**4**
		17日		もや、煙霧	0.154	**2**
2004年	3月	10日	0.043		0.143	0
		11日	0.098	黄砂	0.139	0
		12日		黄砂	0.108	0
		15日		黄砂	0.114	0
		16日		黄砂	0.098	0
		30日	0.062	黄砂	0.081	0
		31日		黄砂	0.077	0

表5　2004年度の黄砂関連大気現象とSPM基準超過状況

			環境省指示による黄砂採取（ハイボリ試料濃度 mg/m^3）	長崎海洋気象台による大気現象	SPM1時間値の最高濃度（mg/m^3）	日平均値が0.10mg/m^{3}を超えた局数
2004年	4月	2日		黄砂	0.079	0
		3日		黄砂	0.144	0
		21日		黄砂	0.109	0
		22日		黄砂	0.102	0
		23日	0.123	黄砂	0.120	0
		24日	0.066		0.082	0
		25日			0.062	0
	5月	7日	0.074	もや、煙霧	0.149	**2**
		8日		もや、煙霧	0.153	0
	6月	23日		もや、煙霧	0.173	**3**
2005年	3月	18日	0.067		0.158	0
		19日			0.158	0
		29日	0.063		0.077	0
		30日	0.060		0.084	0
		31日			0.107	0

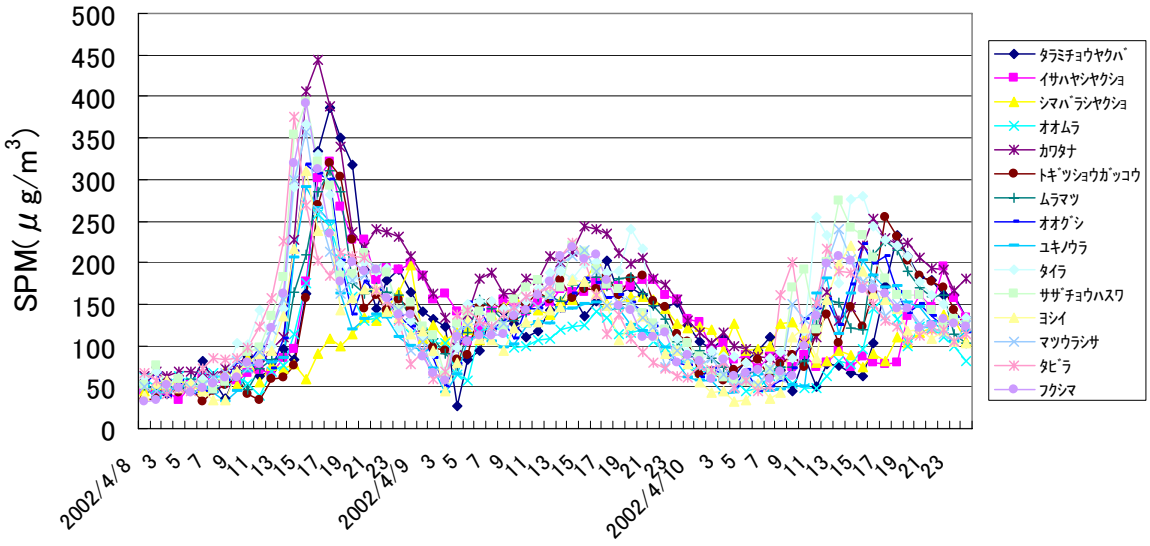


図1　2002年4月8～10日における長崎県内15局におけるSPM濃度の時間変化

図2　2002年4月8～10日における地上天気図[5)]

4　秋の黄砂

2002年11月に「秋の黄砂」が観測された。日韓海峡沿岸県市道環境技術交流会議が実施した共同研究[6)]によると、2002年11月12日前後において、宇部市、福岡市、佐賀市、長崎市、全羅南道木甫市、済州道西甫市で黄砂現象が確認されている。又11月12日には韓国側の二市に加え釜山市においてPM_{10}の環境基準を超過している。11月12日に観測された県内大気常時観測局におけるSPMとOx濃度の経時変化を図3に示した。SPMの最大値は午前6時に現れた。これに先立つようにOx濃度の最大値が午前4時に出現している。同様にSPMに先立ちOxが高濃度となる現象は福岡市、佐賀市でも確認されている。しかし山口市、韓国側都市では明瞭ではなかったことから、九州北西部に現れた現象であったと考えられる。

5　黄砂と煙霧現象

環境省委託による第一回採取は2003年3月25日～翌4月1日に行われた。長崎ではこのときの大気現象は「煙霧」であるとされた。3月25～26日には、北部九州および山口県で実施された調査によって、高濃度の硫酸エアロゾルが観測されている[7)8)]。この後3月27日に黄砂採取地点と同じ地点で採取された湿性沈着物は硫酸イオン濃度が7.43 ml/Lと比較的高い濃度を示した。

2に記述したように2003，2004年度は、煙霧現象の際にSPMの環境基準超過が認められている。大気環境保全の観点からSPMの成分を明らかにするために、2005年春季に2段ろ紙法による粒子状物質の連続採取を行った。

図4に2005年4月の粒子状物質成分濃度の日変化を示した。この月長崎海洋気象台によると、13～16日、20～22日に黄砂が確認されている。図中に示す県管理14局のSPM濃度平均値も同時期に極大値を示している。

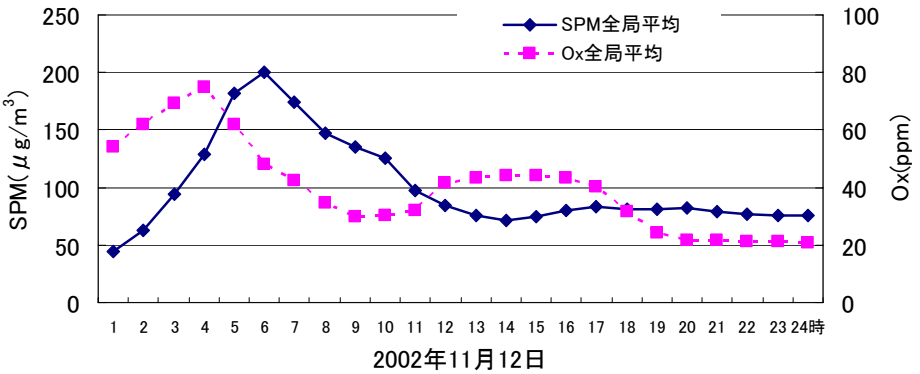


図3　2002年11月12日のSPMとOxの時間変化

図4において成分をより詳細にみると、15～16日および20～21日には粗大粒子側のCa^{2+}濃度が高く、黄砂によって土壌粒子が運ばれたことを反映していると考えられる。しかし13～15日は微小粒子濃度が極大を示している。一般に粒径2.5μm以下の微小粒子は二次生成粒子などから成るが、今回の観測でも微小粒子の主成分はSO_4^{2-},とNH_4^+であった。また、4月1～2日、8～9日においてSPM濃度がピークを示しているが、成分的には粗大粒子ではなく、微小粒子が同日にピークを示している。

4月15～16日にｱﾝﾀﾞｰｾﾝｻﾝﾌﾟﾗｰで採取された試料と21～22日に採取された試料の粒径分布図と走査型電子顕微鏡による画像を図5，6に示した。21～22日に採取された試料は粒径分布において2.1μm以上にピークを示した(図5)。また走査型電子顕微鏡による観察によると、7.0～11.0μmのステージに不定形の土壌粒子が観測された(図6(c))。これに対し、15～16日に採取された試料は0.65～1.1μmに最大値を示す粒径分布を示した(図5)。さらに同じステージを走査型電子顕微鏡によって観察した結果、球形の物質が確認され(図6(c))、4.7～7.0μmの粗大粒子のステージには海塩成分が観察された(図6(a))。成分分析の結果と併せ、15～16日に観察された“黄砂”には相当量の硫酸塩が含まれていたことが明らかとなった。

Unoら[9]は化学天気予報（数値シミュレーション）を用いて2001年4月の東アジア域における黄砂ダストと硫酸塩の濃度コンターを時系列で示し、利尻、八丈島で得られた観測値とよく一致することからその妥当性を示した。

Kamayaら[10]は2001年3月に観測された粒子状物質の観測結果から、気塊の起源によって硫酸塩優位の組成を示す場合と土壌粒子優位の組成を示す場合があることを示した。さらにSugimotoら[11]はライダーを用いた観測で、2004年4月、北京において非球形の黄砂ダストと球形の大気汚染物質の鉛直分布を時系列で解析し、それらが化学天気予報とよく一致することを示し

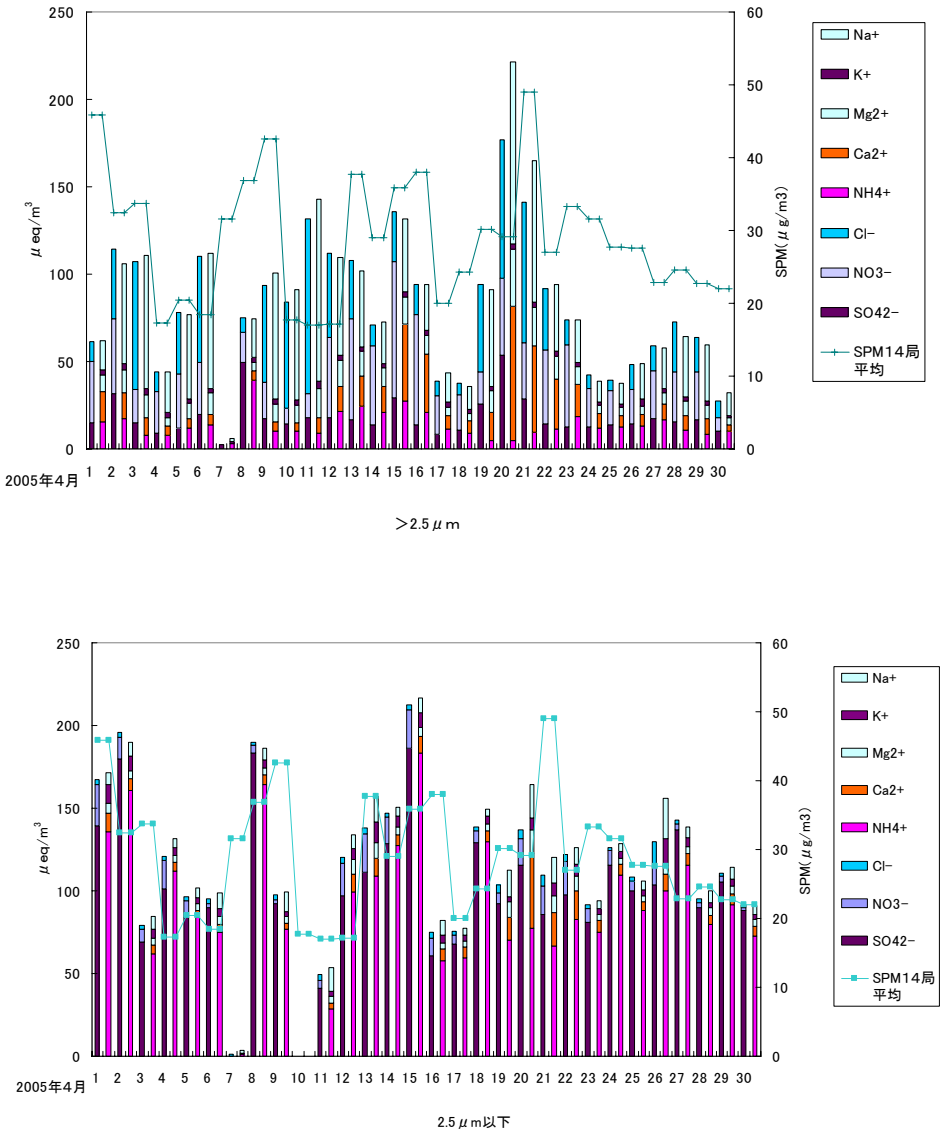
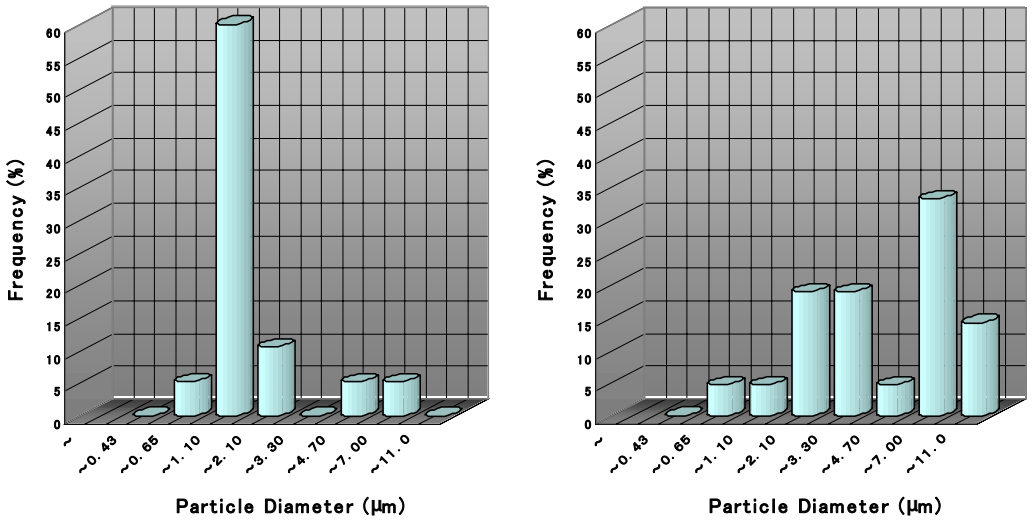
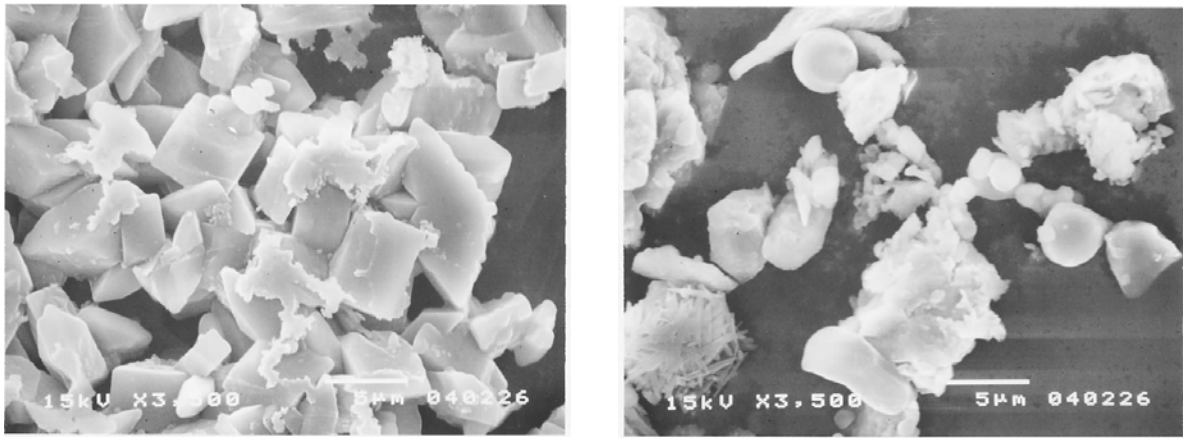


図4　粒子状物質成分濃度の日変化（上段粒径2.5μm超、下段2.5μm以下）



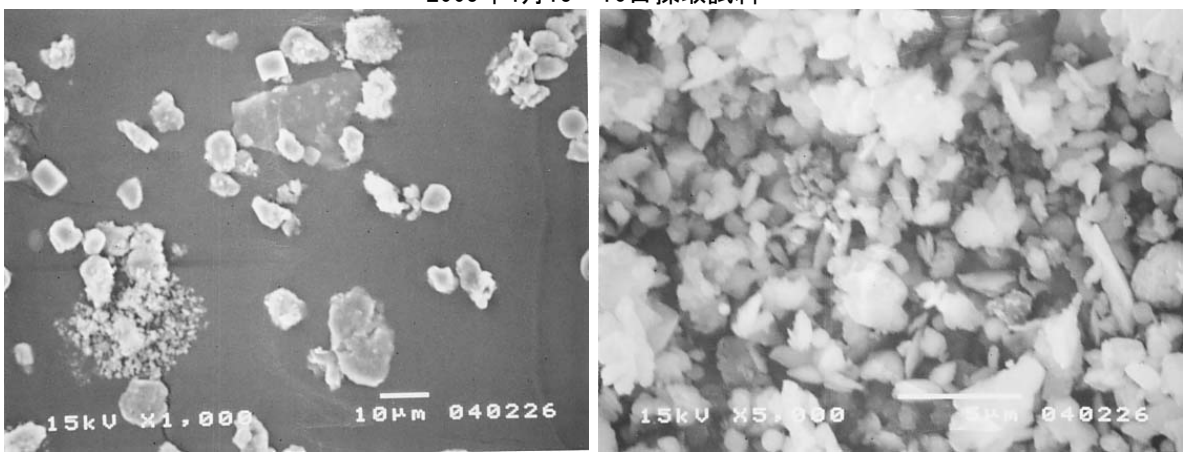
(a)2005年4月15～16日採取試料　　(b)2005年4月21～22日採取試料

図5　アンダーセンサンプラーで採取された試料の粒径分布



(a)2段目 [4.70--7.00 μm]　　(b)6段目 [0.65--1.10 μm]

2005年4月15～16日採取試料



(c)1段目[7.00--11.0 μm]　　(d)5段目[1.10--2.10 μm]

2005年4月21～22日採取試料

図6　アンダーセンサンプラーで採取された試料の走査型電子顕微鏡画像

た。このように、黄砂ダストと硫酸塩が同時にまたは交互に移流する実態が次第に明らかになっている。大気汚染物質としての硫酸塩は硫黄酸化物が大気中で酸化を受けることによって二次的に生成する。東アジア域で観測される硫酸塩の起源は主に石炭燃焼由来の硫黄酸化物であると推定されている[12)]。硫酸塩に代表される微小粒子は、呼吸器への影響が大きいと言われている。わが国では現在SPM（粒径10μm以下の粒子）の環境基準が設定されている。米国は粒径2μm以下の浮遊粒子状物質の影響で死亡率が増えているという報告に基づき、1997年PM2.5（粒径2.5μm以下の粒子）について環境基準が設定された。技術的にはPM2.5の連続自動測定は可能であり、わが国でも環境省によって暫定マニュアルが示されている。SPMの成分をろ紙から抽出して逐一分析する方法は、労力と時間を要するが、PM2.5の環境基準が設定された上で連続自動測定が導入されれば、即座に住民と情報を共有することができる。黄砂とともに、健康に影響が大きいといわれている微小粒子が飛来している事実が次第に明らかになりつつあることから、早急な取組が望まれる。

ま と め

長崎県大気汚染常時監視システムの観測結果を基に過去3年間のSPMの環境基準超過状況をまとめた。独自調査による補完データによって、下記が明らかになった。

1．2002年春の大規模黄砂現象で、県下のほとんどの観測局でSPMの環境基準値を超過した。2002年4月8，9日、寒冷前線によって黄砂がもたらされた際には、県下全域が一斉に濃度が上昇する傾向があったが、2002年4月10日高気圧に伴って黄砂がもたらされる場合は、県北部から南部にかけてなだらかに濃度が上昇した。

2．2002年11月に観測された秋の黄砂では、SPMの上昇に先立って、Oxの上昇が観測された。この時期実施されていた日韓共同研究によると、Oxの上昇は九州北西海岸にわたって確認された。

3．過去3カ年、黄砂であるのか煙霧であるのか紛らわしい現象が何度か観測された。2003年、2004年は大規模な黄砂現象はなく、SPMが環境基準を超過した日には、煙霧現象が確認されていた。

4．2005年4月の粒子状物質の成分分析によって、SPMの組成として、土壌粒子優位の場合と、硫酸塩優位の場合があることが判明した。硫酸塩粒子は粒径が小さく健康への影響が大きいことから今後もより詳細な実態把握が望まれる。

謝　辞

電子顕微鏡による黄砂調査方法に関してご助言いただいた福岡県保健環境研究所下原孝章博士に感謝します。

粒子状物質の分析業務に尽力いただいた嘱託職員、松本健吾さん、データ整理にご協力いただいた委託職員、大村公子さんに感謝します。

参 考 文 献

1）森　淳子、竹野大志、香月幸一郎、白井玄爾：長崎県における大気環境の特徴－平成14年度大気汚染常時監視結果の解析と長期変動解析－，長崎県衛生公害研究所報，**48**，1-17(2002)

2）荒生公雄、伊藤和博、古謝　愛：長崎地方における1914年から2001年までの黄砂現象の経年変化，長崎大学総合環境研究,5(1),1-10(2003)

3）長崎県県民生活環境部環境政策課：平成15年度大気環境調査結果(2003)

4）原　由香里、佐竹晋輔、鵜野伊津志、竹村俊彦：領域ダスト輸送モデルを用いた黄砂現象の年々変動シミュレーション，天気，51,10.719-728(2004)

5）（株）ウェザーマップ社 『気象人』ホームページ E-mail info@weathermap.co.jp

6）日韓海峡沿岸環境技術交流協議会　福岡県・佐賀県・長崎県・山口県：九州北部三県及び山口県における浮遊粒子状物質成分調査報告書2004年12月（2004）

7）大石興弘、森　淳子：九州北部三県及び山口県における浮遊粒子状物質成分調査結果について－粒子状物質成分の性状及び硫酸イオンの高濃度事例－，第46回大気環境学会年会講演要旨集，569(2005)

8）日韓海峡沿岸県市道環境技術交流会議　日本国（福岡県　佐賀県　長崎県　山口県）大韓民国（釜山広域市　全羅南道　慶尚南道　済州道）：2002年～2003年　日韓海峡沿岸県市道環境技術交流事業「日韓都市間大気汚染度比較評価」報告書2004年11月（2004）

9）I.Uno,G.R.Carmichael,D.G.Streets,Y.Tang,J.J. Yienger,S.Satake,Z.Wang,Jung-Hun Woo, S.Guttinkunda,M.Uematsu,K.Matsumoto,H.Tanimoto,K.Yoshioka and T.Iida : Regional chemical weather forecasting system CFORS:Model descriptions and analysis of surface observations at Japanese island stations during the ACE-Asia experiment,JGeophys. Res., 108(D23),8636,doi :

10.1029/2002JD00325(2003)
10)T.Kamaya, A.Mori,K.Arao,T.Ohara,N.Sugimoto, H.Mukai and K.Murano : Continuous Monitoring of Gas and Aerosol in the Vicinity of Nagasaki City –Gaseous and Ionic Composition at Yellow Sand Event-, Proceedings of Fourth ADEC workshop (26-28 January 2005,Nagasaki,Japan)(2005)
11) N.Sugimoto,A.Shimizu,I.Matsui,X.Dong, S.Xhao, J.Zhou,C-H,Lee and I.Uno : Network Observations of Asian Dust and Air Pollution Aerosols Using Polarization Lidars, Proceedings of Fourth ADEC Workshop(26-28 January 2005,Nagasaki,Japan) (2005)
12）S.K.Guttikunda,T.M.Johnson,F.Liu,J.J.Shah : Sulfur pollution control programs in China, Abstracts of Acid Rain 2005 7th International Conference on Acid Deposition, Prague,Czech Republic June12-17,2005,713,(2005)

ダイオキシン類分析における妨害物質である ポリ塩素化ジフェニルエーテル類の除去方法の検討

本多 隆・植野康成・馬場強三・益田宣弘

The Removal of Polychlorinated Diphenyl Ethers(PCDEs) as the Interference in Dioxin Analysis by HRGC-HRMS

Takashi HONDA, Yasunari UENO, Tsuyomi BABA and Nobuhiro MASUDA

The pre-treatment process for analysis of Dioxins by Japanese Industrial Standard(JIS) method and others is very long. But the interfering peak is frequently observed on SIM chromatogram of poly-chlorinated dibenzofurans(PCDFs).

It turned out that a lot of interfering substances are poly-chlorinated diphenylethers(PCDEs). The base peak of PCDEs is the fragment ion peak eliminated 2 chlorines. The chemical composition and mass number of molecular ion of PnCDF is the same as that of base peak ion of P(n+2)CDE.

Because PnCDF is influenced by P(n+2)CDE, it's necessary to remove PCDEs by pre-treatment(cleanup). As compared with various cleanup methods, it was found that active carbon silica gel clomn chromatography is superior to others (multi layer silica gel column chromatography and alumina column chromatography).

Key words：PCDEs, Interference, Analysis of Dioxins
キーワード：ポリ塩素化ジフェニルエーテル類, 妨害物質, ダイオキシン類分析

は じ め に

ダイオキシン類分析は最終的に高分解能GC/MS-SIMによる測定を行うが，測定の妨害となる夾雑物を除去するために長い前処理工程（クリーンアップ）が必要となってくる。しかし，様々なクリーンアップを行っても，完全にダイオキシン類だけの最終検液にはならず，そのSIMクロマトグラム上に妨害成分がみられることがある。特にポリ塩化ジベンゾフラン類（PCDFs）のSIMクロマトグラム上に妨害成分が出現する場合が多い。

また，臭素化ダイオキシン類（PBDFs）分析において，臭素化ジフェニルエーテル類（PBDEs）が妨害となることが報告されているが[1~3]，今回，PBDFs 測定へのPBDEsの妨害と同様にPCDFs測定への塩素化ジフェニルエーテル類（PCDEs）による妨害が判明し，その除去方法等について検討を行ったので報告する。

方 法

PCDEs 標準物質：PCDE 混合標準液（Cambridge Isotope Laboratory）

前処理用カラム

シリカゲルカラム：ガラス製多層シリカゲルカラム（Supelco）

アルミナカラム ：ダイオキシン類分析用活性アルミナ（ICN）

活性炭シリカゲルカラム：活性炭分散シリカゲルリバースカラム（関東化学）

GC/MS 装置 ：HP6890 GC System PLUS /JEOL JMS-700

キャピラリーカラム

4-6CDDs/DFs

Restek Rtx-2330(60m×0.25mm×0.10μm)

Oven：130 ℃ (1min)-20 ℃ /min-190 ℃ -1 ℃ /min-225℃-3℃/min-275℃(5min)

Flow： Constant flow 1.0ml/min

7-8CDDs/DFs

Agilent DB-17HT(30m×0.25mm×0.15μm)

Oven：130 ℃ (1min)-20 ℃ /min-240 ℃ -3 ℃ /min-280℃(4min)

Flow： Constant flow 1.0ml/min

また，測定対象PCDEsのモニター質量数は表1に示した。

表１．測定対象 PCDEs のモニター質量数

Congener	Formula	Exact Mass (Relative Abundance)	
HxCDEs	$C_{12}H_4Cl_6O$	375.8364	377.8335
		(100)	(80.54)
HpCDEs	$C_{12}H_3Cl_7O$	409.7975	411.7946
		(100)	(96.52)
OCDEs	$C_{12}H_2Cl_8O$	443.7585	445.7556
		(88.89)	(100)
N_9CDEs	$C_{12}H_1Cl_9O$	477.7195	479.7166
		(77.83)	(100)
D_{10}CDE	$C_{12}Cl_{10}O$	513.6776	515.6747
		(100)	(85.69)

結　果

1．PCDEs 標準液のマススペクトル

PCDEs 標準液の一例として D_{10}CDE と OCDF のマススペクトルを比較したものを図 1 に示した。これによると， D_{10}CDE のベースピークと OCDF の分子イオンピークの質量数は一致することがわかった。そのため，D_{10}CDE は OCDF 測定時の妨害となる可能性がある。これは，他の PCDEs 同族体においても同様であった。したがって，P(n+2)CDE は分子イオンから 2 塩素脱離したものが，ベースイオンピークであり，これが PnCDF 測定時のモニター質量数と一致するため， 妨害ピークとなることが示唆された。

2．PCDEs 標準液の SIM クロマトグラム

これは，図 2 に示すとおり，PCDEs 標準液中に含まれる Hx-D_{10}CDE（但し，標準混合液に N_9CDE は含まれていない）の SIM クロマトグラムの結果によっても明らかとなった。P(n+2)CDE の分子イオンピークよりも 2~ 3 倍ピーク強度が高い PnCDF のピーク（本来 PCDEs 標準液には含まれていない）となって出現していた。

P(n+2)CDE のベースピークと PnCDF の分子イオンピーク（モニターイオン）の質量数は一致するため，MS による分離は不可能であり，精度良く PCDFs の定量を行うためには，前処理によって P(n+2)CDE を除去する必要があることがわかった。

3．排ガス試料における PCDEs の除去方法の検討

JIS 等のダイオキシン類測定マニュアル [4~ 8] には各種クリーンアップ方法が記載されているが，今回，排ガス試料を用いて，多層シリカゲルカラム処理，アルミナカラム処理及び活性炭シリカゲルカラム処理における P(n+2)CDE の除去状況と PnCDF への影響について比較検討を行った。

ダイオキシン類として測定対象となる PnCDF（Te（tetra）~ O（octa）CDF）それぞれの溶出時間の SIM クロマトグラムとその溶出時間内の P(n+2)CDE の SIM クロマトグラフを図 3~ 7 に示した。

図 3~ 7 のダイオキシン類（PCDD/Fs）測定画分以外であるアルミナカラムの 2%ジクロロメタン/ヘキサン（DCM/Hx）100ml，活性炭シリカゲルカラムのヘキサン（Hx）50ml 及び 25%DCM/Hx 40ml においては，図 2 に示す標準液と同様に，P(n+2)CDE のピークの殆どはそのまま PnCDF のピークとしても出現し，しかもその強度は P(n+2)CDE の分子イオンピーク強度よりも 2~ 3 倍高くなっていた。

したがって，精度良く定量を行うために，前処理において PCDEs を除去し，PCDD/Fs 測定画分にできるだけ PCDEs を残さないことが重要である。図 3~ 7 から各前処理による PCDEs の除去状況を表 2 にまとめた。これによると，多層シリカゲルカラム処理のみでは PCDEs の除去はできず，活性炭シリカゲルカラ

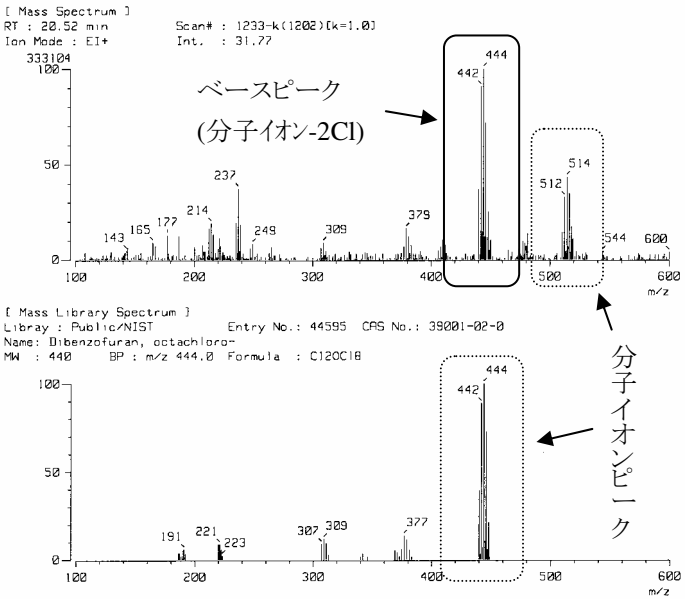


図 1．D_{10}CDE（上段）と OCDF（下段）のマススペクトル

ム処理及びアルミナカラム処理のいずれかが必要となってくる。両者を比較すると，活性炭カラムの方が PCDEs 除去にはより有効であることがわかった。

考　察

今回，環境試料中には PCDEs が含まれており，ダイオキシン類測定の最終検液中に混在している場合は，PCDFs の妨害ピークとなることがわかり，これらは MS による分離は不可能であるため，前処理によって PCDEs を除去することが必要であった。

検討の結果，活性炭シリカゲルカラム処理によって，mono-ortho 体の Co-PCBs と PCDD/DFs（non-ortho 体の Co-PCBs を含む）とを分画する方法が最も有効であった。しかし，完全除去は不可能であったため，mono-ortho 体の Co-PCBs の溶出画分である 25％ DCM/Hx 溶出量の検討を行ったが，PCDEs の完全除去はやはり不可能であった。これは，PCDEs の異性体は PCBs と同数の 209 異性体が存在し，non-ortho 体の Co-PCBs と同様に，前処理において PCDD/Fsと同じ挙動をする異性体が存在するものと考えられる。

したがって，前処理によって除去不可能な PCDEs の異性体が，毒性等価係数（TEF）を持つダイオキシン類異性体測定の妨害とならないように GC 条件設定等には注意が必要である。

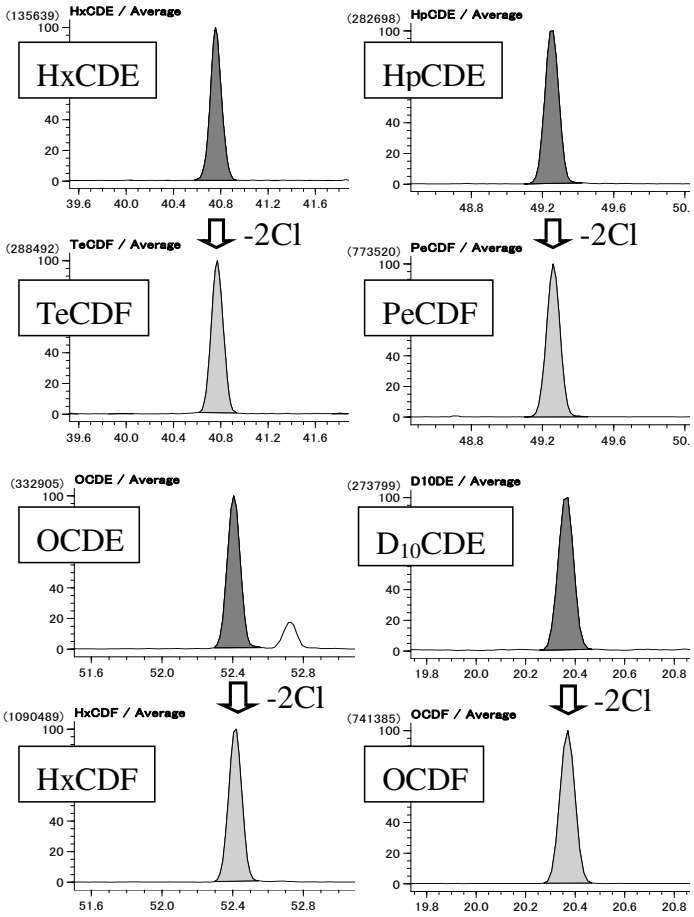


図 2. PCDEs 標準液の SIM クラマトグラム

参　考　文　献　等

1) 小野寺潤　他：分析化学，Vol.52，No.3，pp.205-213（2003）
2) 高菅卓三　他：第 10 回環境化学討論会講演要旨集，pp.112-113（2001）
3) 崔宰源　他：第 10 回環境化学討論会講演要旨集，pp.452-453（2001）
4) 日本工業規格 JIS K 0311：排ガス中のダイオキシン類及びコプラナーPCB の測定方法(平成 11 年 9 月)
5) 日本工業規格 JIS K 0312：工業用水・工場排水中のダイオキシン類及びコプラナーPCB の測定方法(平成 11 年 9 月)
6) 環境省環境管理局　総務課ダイオキシン対策室大気環境課，ダイオキシン類に係る大気環境調査マニュアル(平成 13 年 8 月)
7) 環境庁水質保全局水質管理課，ダイオキシン類に係る底質調査測定マニュアル(平成 12 年 3 月)
8) 環境庁水質保全局土壌農薬課，ダイオキシン類に係る土壌調査測定マニュアル(平成 12 年 1 月)

表 2. 各前処理による PCDEs の除去状況一覧

	多層 シリカゲルカラム	アルミナカラム	活性炭 シリカゲルカラム
HxCDEs	×	×	△
HpCDEs	×	△	△
OCDEs	×	△	△
N_9CDEs	×	○	○
D_{10}CDE	×	○	○

注）×：除去不能　△：ほぼ除去可能　○：除去可能

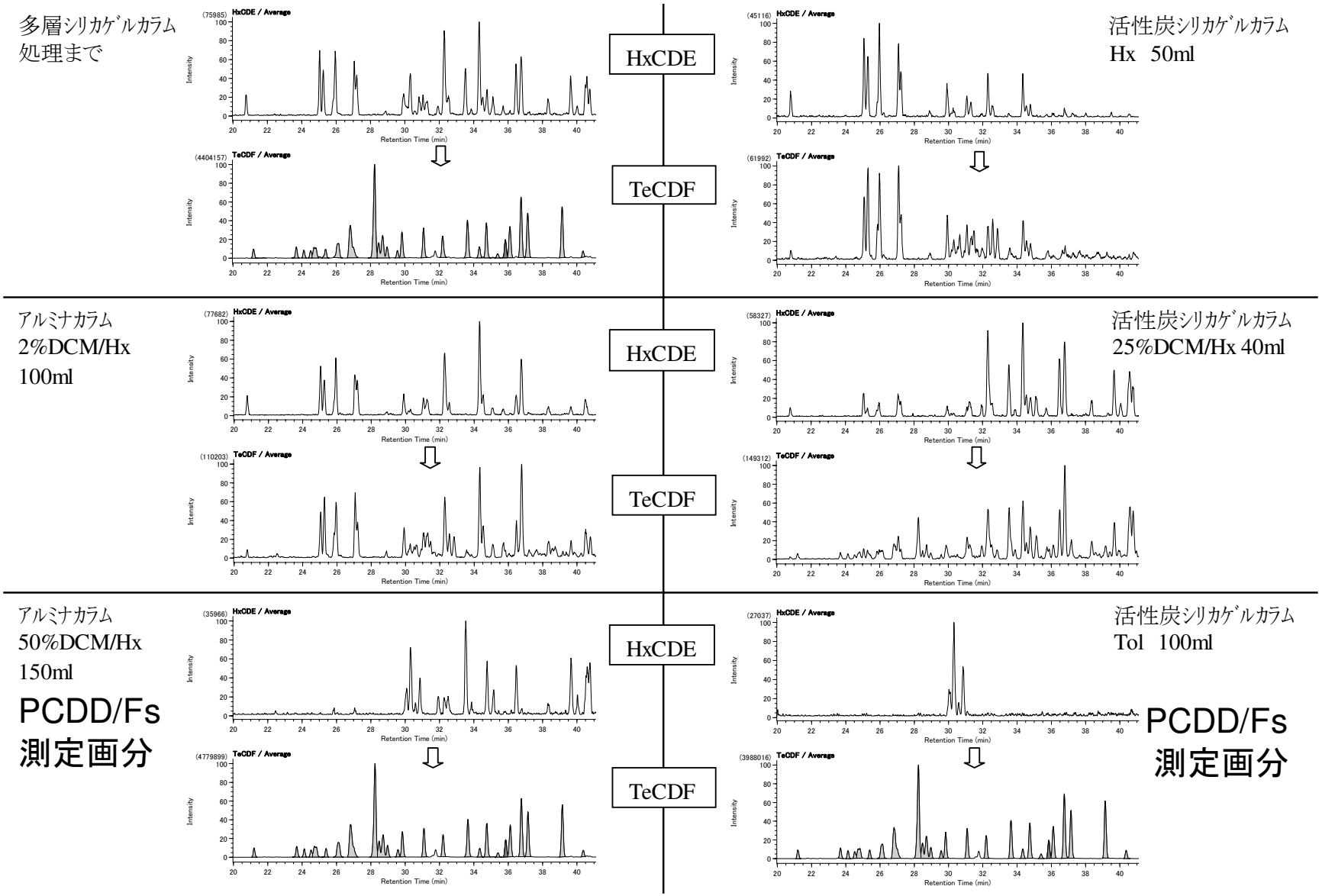


図3．各前処理による HxCDEsの除去状況と TeCDFsへの妨害（排ガス試料）

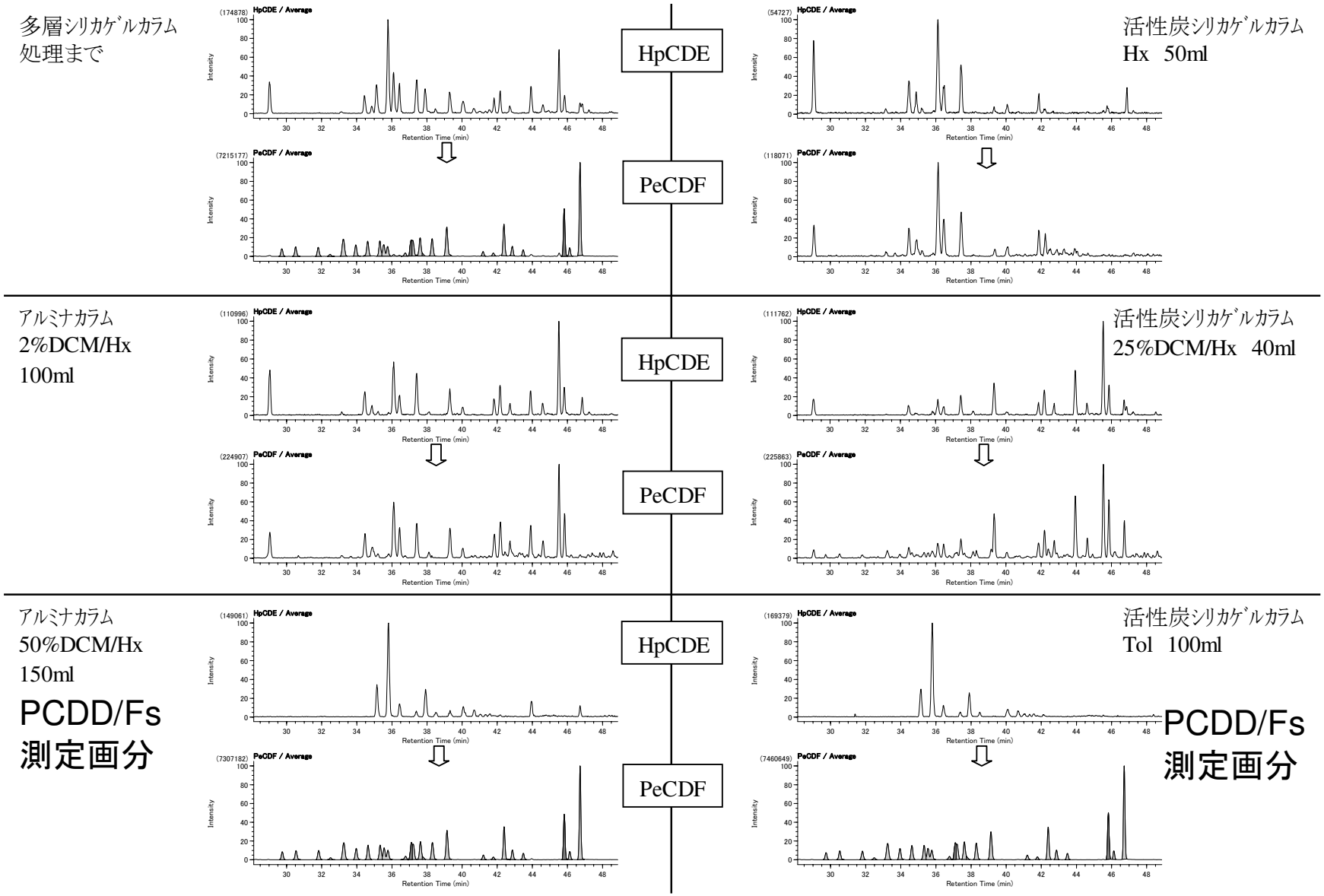


図4. 各前処理によるHpCDEsの除去状況PeCDFsへの妨害（排ガス試料）

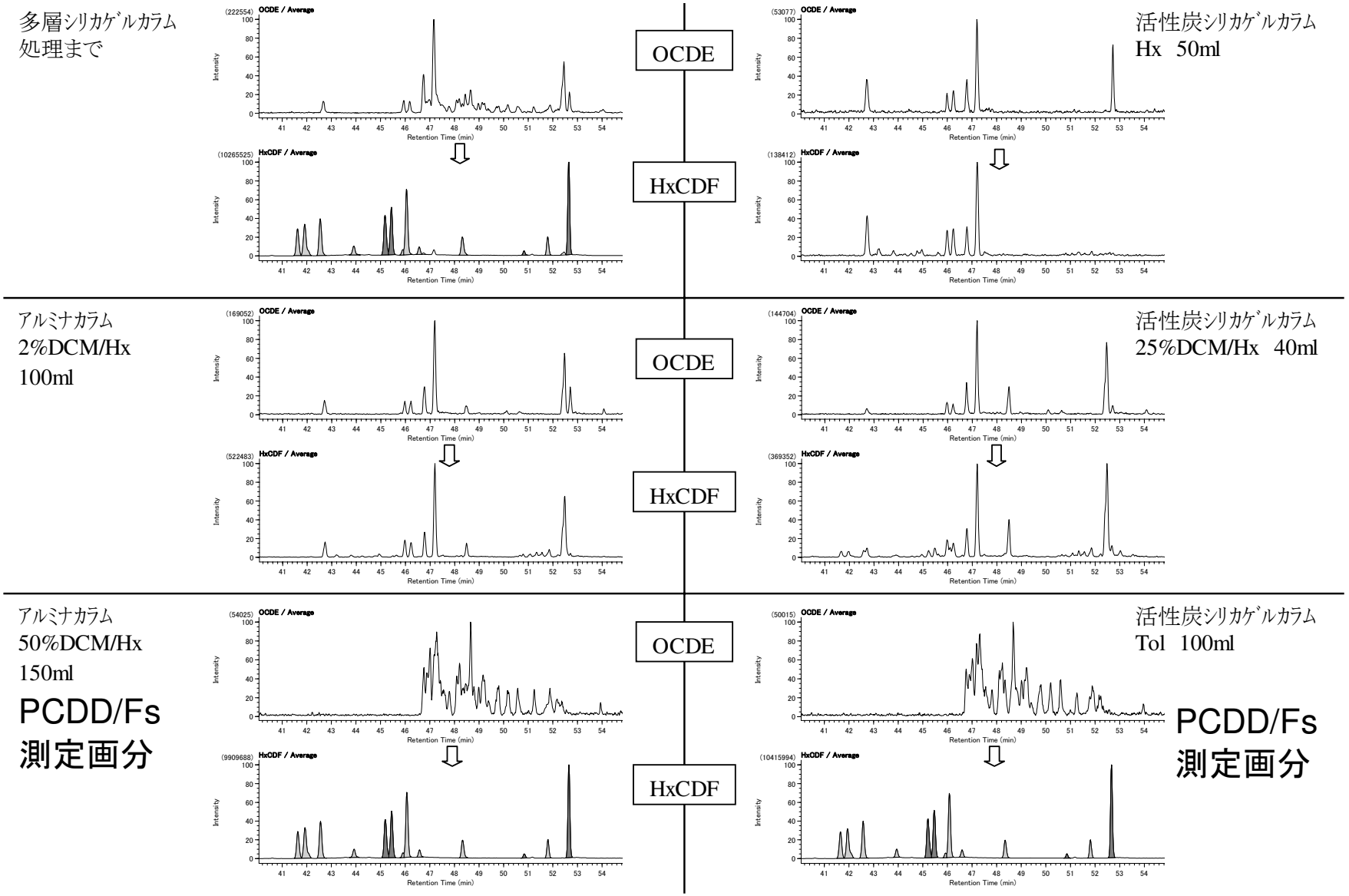


図5．各前処理によるOCDEsの除去状況とHxCDFsへの妨害（排ガス試料）

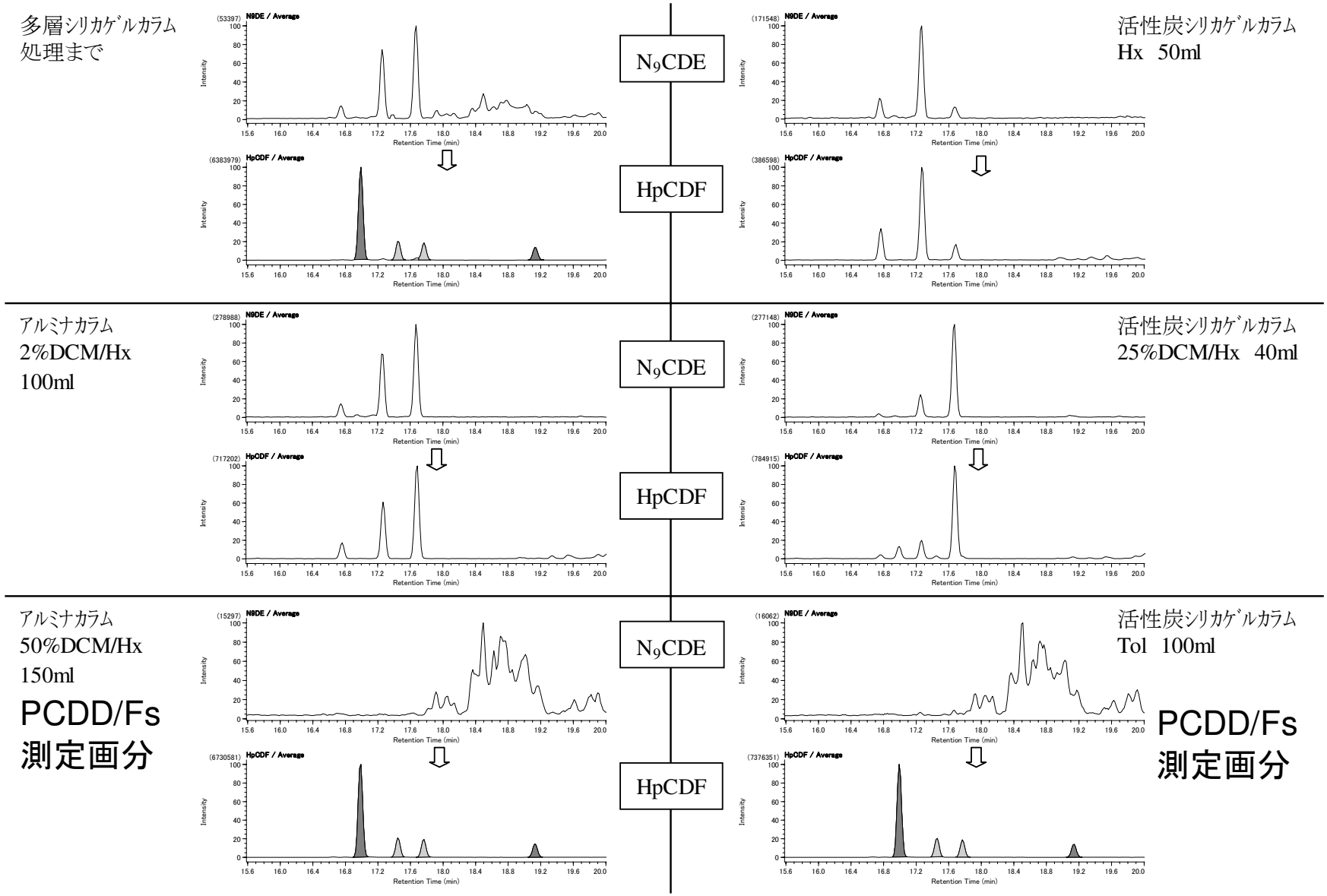


図6．各前処理によるN_9CDEsの除去状況とHpCDFsへの妨害（排ガス試料）

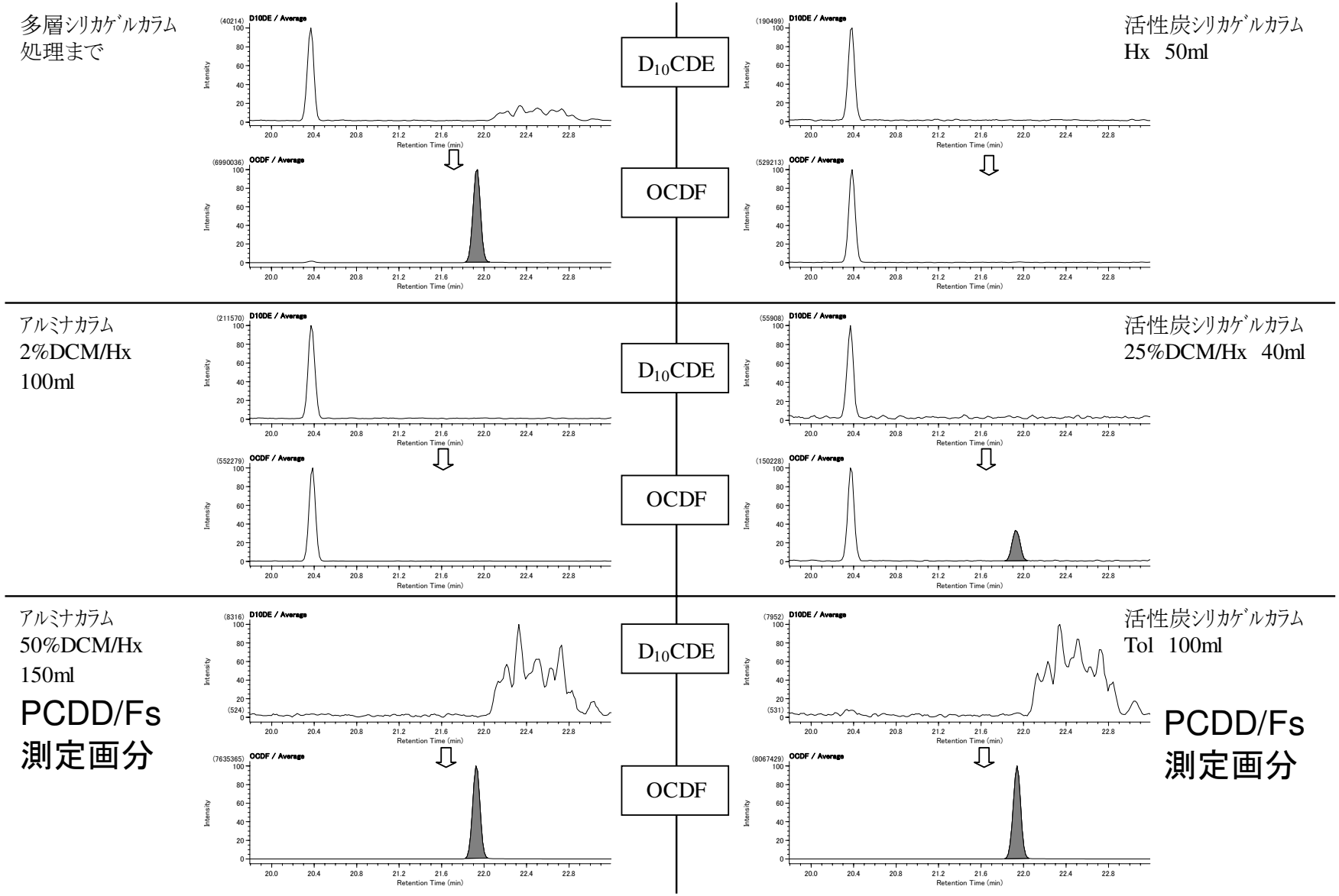


図7．各前処理によるD_{10}CDEsの除去状況とOCDFへの妨害（排ガス試料）

農産物中の残留農薬

本村　秀章 ・ 西川　徹 ・ 馬場　強三 ・ 益田　宣弘

Pesticide Residues in Agricultural Products

Hideaki MOTOMURA, Toru NISIKAWA,Tsuyomi BABA and Nobuhiro MASUDA

120 pesticide residues in 60 agricultural products were investigated. Those pesticides were extracted with acetone and re-extracted with ethyl acetate －n-hexane (1:4). Organophosphorus and organonitrogen pesticides were purified with an ENVI-Carb mini-column, and analyzed by FPD-GC and FTD-GC. Organochlorine pesticides were purified with an ENVI-Carb and a florisil mini-column, and analyzed by ECD-GC. The detected pesticide residues were confirmed by GC-MS(SCAN).

The results were as follows;

1. 2 organophosphorus pestcides (isoxathion, EPN) and 2 organonitrogen (myclobutanil, kresoxim-methyl) were detected. Their concentrations were 0.01~0.09 and 0.06~0.19 μg/g,respectively.

2. 6 organochlorine pestcides (procymidone, cypermethrin, fenvalerate, bromopropylate,dicofol, chlorfenapyr) were detected. Their concentrations were 0.01~0.11, 0.04~0.76, 0.08~0.09, 0.01, 0.02 and 0.20μg/g, respectively.

3. Pesticide residues were detected in 13 agricultural products, and in 5 agricultural products, 2 kinds of pesticides were detected.

Key words : pesticide residues, agricultural products

キーワード:残留農薬,農産物

は　じ　め　に

平成 14 年度に輸入冷凍食品から基準値を超える農薬が相次いで検出され，また，国内農産物への無登録農薬の使用が明らかになった。厚生労働省では遅くとも平成 17 年 11 月までに暫定基準値を告示し，平成 18 年 5 月までに基準値のない農薬が残留する食品の流通を禁止する措置(ポジティブリスト制)を導入することとしている。また、長崎県においては，平成 15 年 2 月「長崎県における食品の安全・安心確保基本指針」を公表し、その中で，残留農薬対策として，県内産，県外産及び輸入農産物の残留農薬検査の強化を図ることとしており、食の安心・安全の観点から，益々監視体制の強化が重要となっている。当所においては，平成 5 年度より一斉分析法の検討を開始し，検査対象農薬の追加，分析法の改良を行っており，この基本指針の中でも多項目一斉分析法等の技術開発を課題としている。今回は，この一斉分析法により行った農産物中の残留農薬の調査結果について報告する。

調　査　方　法

1．試料

有機塩素系農薬の添加回収実験には，長崎県内で購入したばれいしょ，トマトを使用した。

実態調査については，平成 16 年 5 月～ 11 月に当所に搬入された 60 農産物を使用した。(表1)

なお，ねぎ，たまねぎ，大根は電子レンジで前処理したものを用いた。[1)]

2．検査対象農薬

有機リン系農薬(45 種)，有機窒素系農薬(41 種)，有機塩素系農薬(34 種)の表2に示す合計 120 種の農薬を検査対象とした。

3．試薬等

標準品は市販の農薬標準品を用い，有機溶媒等

表1．検査対象農産物

(5 月)
国内産：ばれいしょ(2)，レタス(5)，いちご(4)，びわ(2)，セロリ(2)
(7 月)
国内産：キャベツ(2)，アスパラガス(2)，ねぎ(2)
輸入品：ブロッコリー(2)，アスパラガス(2)，さといも(2)，いんげん(2)
(9 月)
国内産：トマト(3)，きゅうり(2)，たまねぎ(2)，みかん(4)
輸入品：ねぎ(2)，えだまめ(1)，にんにくの芽(1)
(11 月)
国内産：にんじん(2)，はくさい(3)，大根(2)，キャベツ(2)，ほうれん草(5)，ブロッコリー(2)

*( )内は検体数を示す

表2．検査対象農薬

有機リン系農薬(45 種)
ｼﾞｸﾛﾙﾎﾞｽ,ｼﾞﾒﾄｴｰﾄ,ﾀﾞｲｱｼﾞﾉﾝ,IBP,ｸﾛﾙﾋﾟﾘﾎｽﾒﾁﾙ,ﾌｪﾆﾄﾛﾁｵﾝ,ｸﾛﾙﾋﾟﾘﾎｽ,ﾌｪﾝﾄｴｰﾄ,ﾒﾁﾀﾞﾁｵﾝ,
ﾌﾟﾛﾁｵﾎｽ,ｲｿｷｻﾁｵﾝ,ｴﾁｵﾝ,EPN,ﾎｻﾛﾝ,ﾒﾀｸﾘﾎｽ,ｴﾄﾌﾟﾛﾎｽ,ｻﾘﾁｵﾝ,ﾃﾙﾌﾞﾎｽ,ｴﾄﾘﾑﾎｽ,ﾎﾙﾓﾁｵﾝ,
ﾋﾟﾘﾐﾎｽﾒﾁﾙ,ﾏﾗｿﾝ,ｼﾞﾒﾁﾙﾋﾞﾝﾎｽ,ｷﾅﾙﾎｽ,ﾌﾟﾛﾊﾟﾎｽ,ﾃﾄﾗｸﾛﾛﾋﾞﾝﾎｽ,ﾌﾞﾀﾐﾎｽ,ﾌﾟﾛﾌｪﾉﾎｽ,ﾄﾘｱｿﾞﾎｽ,
ｴﾃﾞｨﾌｪﾝﾎｽ,ﾋﾟﾘﾀﾞﾌｪﾝﾁｵﾝ,ﾅﾚｯﾄﾞ,ｼｱﾉﾎｽ,ｼﾞｸﾛﾌｪﾝﾁｵﾝ,ﾌｪﾝﾁｵﾝ,ｸﾛﾙﾌｪﾝﾋﾞﾝﾎｽ,ﾌｪﾝｽﾙﾎﾁｵﾝ,
ｼｱﾉﾌｪﾝﾎｽ,ﾎﾚｰﾄ,ｼﾞｵｷｻﾁｵﾝ,ﾎﾉﾎｽ,ﾌﾞﾛﾓﾎｽ,ﾌﾞﾛﾓﾎｽﾒﾁﾙ,ﾋﾟﾗｿﾞﾎｽ,ｸｰﾏﾎｽ
有機窒素系農薬(41 種)
ｲｿﾌﾟﾛｶﾙﾌﾞ,ﾌｪﾉﾌﾞｶﾙﾌﾞ,ｸﾛﾛﾌﾟﾛﾌｧﾑ,ﾋﾟﾛｷﾛﾝ,ｴｽﾌﾟﾛｶﾙﾌﾞ,ﾍﾟﾝﾃﾞｨﾒﾀﾘﾝ,ﾌﾟﾚﾁﾗｸﾛｰﾙ,ﾚﾅｼﾙ,
ﾌｪﾝﾌﾟﾛﾊﾟﾄﾘﾝ,ﾋﾟﾘﾀﾞﾍﾟﾝ,ﾋﾞﾝｸﾛｿﾞﾘﾝ,ｼﾞｴﾄﾌｪﾝｶﾙﾌﾞ,ﾄﾘｱｼﾞﾒﾎﾝ,ﾄﾘｱｼﾞﾒﾉｰﾙ,ﾌﾙﾄﾗﾆﾙ,ﾐｸﾛﾌﾞﾀﾆﾙ,
ﾒﾌﾟﾛﾆﾙ,ﾒﾌｪﾅｾｯﾄ,ﾋﾞﾃﾙﾀﾉｰﾙ,ﾍﾞﾝﾀﾞｲｵｶﾙﾌﾞ,ﾒﾁｵｶﾙﾌﾞ,ﾌﾟﾛﾋﾟｺﾅｿﾞｰﾙ,ｷｼﾘｶﾙﾌﾞ,ﾄﾘﾌﾙﾗﾘﾝ,ｼﾏｼﾞﾝ,
ｱﾗｸﾛｰﾙ,ﾊﾟｸﾛﾌﾞﾄﾗｿﾞｰﾙ,ﾌﾙｼﾗｿﾞｰﾙ,ﾃﾆﾙｸﾛｰﾙ,ﾃﾌﾞﾌｪﾝﾋﾟﾗﾄﾞ,ﾌﾟﾛﾎﾟｷｻｰ,ﾌﾟﾛﾒﾄﾘﾝ,ﾒﾄﾗｸﾛｰﾙ,
ｼﾞﾒﾀﾒﾄﾘﾝ,ｼﾞﾒﾋﾟﾍﾟﾚｰﾄ,ﾌﾞﾌﾟﾛﾌｪｼﾞﾝ,ｵｷｻｼﾞｷｼﾙ,ﾌｪﾅﾘﾓﾙ,ﾄﾙｸﾛﾎｽﾒﾁﾙ,ﾌｨﾌﾟﾛﾆﾙ,ｱｼﾞﾝﾎｽﾒﾁﾙ
有機塩素系農薬(34 種)
ｼﾞｸﾛﾗﾝ,ﾌﾞﾛﾓﾌﾞﾁﾄﾞ,ｸﾛﾒﾄｷｼﾆﾙ,ｽｳｪｯﾌﾟ,ｼﾞｸﾛﾌﾙｱﾆﾄﾞ,ｸﾛﾙﾌｪﾝｿﾝ,ﾋﾞﾌｪﾉｯｸｽ,ｼﾌﾙﾄﾘﾝ,ﾌﾙｼﾄﾘﾈｰﾄ,
ﾌﾙﾊﾞﾘﾈｰﾄ,ﾌｪﾝﾊﾞﾚﾚｰﾄ,ﾃﾌﾙﾄﾘﾝ,ﾌﾟﾛﾋﾟｻﾞﾐﾄﾞ,ｼﾞｺﾎｰﾙ,ﾋﾞﾅﾊﾟｸﾘﾙ,ｸﾛﾙﾍﾞﾝｼﾞﾚｰﾄ,ｼﾊﾛﾄﾘﾝ,ﾍﾟﾙﾒﾄﾘﾝ,
ｼﾍﾟﾙﾒﾄﾘﾝ,ﾃﾞﾙﾀﾒﾄﾘﾝ,ｷﾝﾄｾﾞﾝ,ｴﾝﾄﾞｽﾌｧﾝ,ﾌﾟﾛｼﾐﾄﾞﾝ,ｸﾛﾙﾌﾟﾛﾋﾟﾚｰﾄ,ﾌﾞﾛﾓﾌﾟﾛﾋﾟﾚｰﾄ,ﾃﾄﾗｼﾞﾎﾝ,
ﾊﾙﾌｪﾝﾌﾟﾛｯｸｽ,ﾌﾙｵﾛｲﾐﾄﾞ,ｸﾛﾛﾌｪﾈﾄｰﾙ,ﾎﾙﾍﾟｯﾄ,ｴﾝﾄﾞﾘﾝ,ﾋﾞﾌｪﾝﾄﾘﾝ,ｴｽﾌｪﾝﾊﾞﾚﾚｰﾄ,ﾄﾗﾛﾒﾄﾘﾝ

の試薬は残留農薬分析用を用いた。

4．装置及び測定条件

ｶﾞｽｸﾛﾏﾄｸﾞﾗﾌ：㈱島津製作所 GC-17A(FPD,FTD)
㈱島津製作所 2010(ECD)

ｶﾞｽｸﾛﾏﾄｸﾞﾗﾌ質量分析装置：㈱島津製作所 GC-17A+5050A

GC-FPD，GC-FTD の測定条件は前報による。[2]

GC-ECD の測定条件は次のとおり行った。

カラム：DB-17（内径 0.32mm,長さ 15m,膜厚 0.25 μm,J&W 社製）

カラム温度：100 ℃(2min)-5 ℃/min-250 ℃(5min)-10 ℃/min-280 ℃(10min)

注入口温度：200 ℃，検出器温度：300 ℃

キャリヤーガス：ヘリウム,80kpa(定圧ﾓｰﾄﾞ)

ミニカラム：ENVI-Carb(250mg,3mL)，ENVI-Carb(500mg,6mL)（スペルコ社製） Sep-pak plus florisil(Waters 社製)

5．ENVI-Carb(500mg,6mL)によるクリーンアップの検討

図1に示す方法により作成したトマトの抽出液に，アセトン―n-ヘキサン(1：1)で 2 倍希釈した抽出液になるように混合標準液を添加後，ENVI-Carb(500mg,6mL)へ負荷し，有機リン系農薬及び有機窒素系農薬の回収率を測定した。また，有機塩素系農薬については，更に，Sep-pak plus florisil で精製し回収率を測定した。

6．実態調査

図1に示す方法により行った。

なお，有機塩素系農薬は前報[2),3)]では，ﾌﾛﾘｼﾞﾙ PR で精製を行っていたが，今回は，ENVI-Carb で精製を行った後、更に、Sep-pak plus florisil で精製を行ったものを試験液とした。対象農薬は，ばれいしょ，トマトの添加回収実験で，回収率が 70 ～ 120 %の範囲であったものを対象とした。

また，GC で農薬が検出された時は，Sep-pak

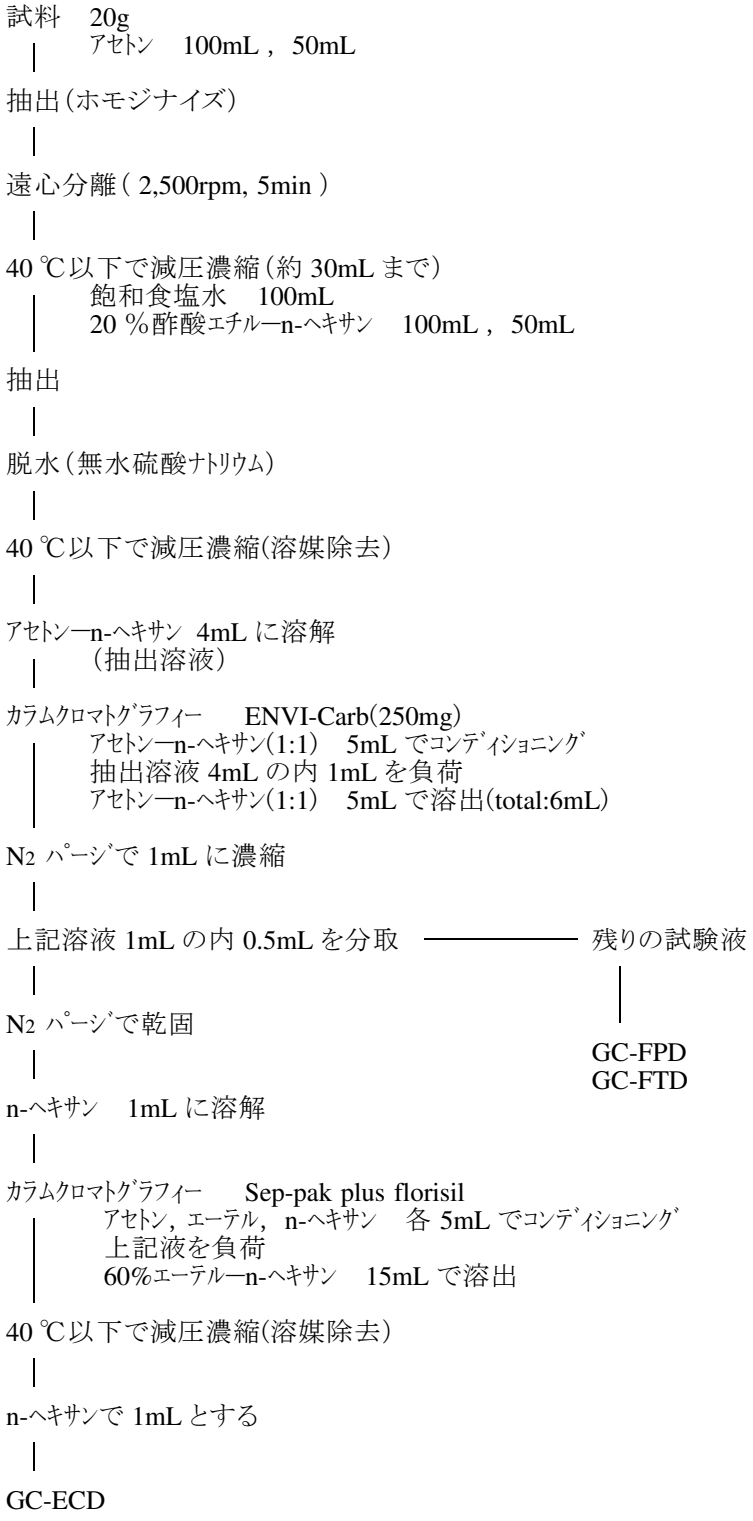

試料　20g
アセトン　100mL，50mL
抽出(ホモジナイズ)
遠心分離(2,500rpm, 5min)
40℃以下で減圧濃縮(約 30mL まで)
飽和食塩水　100mL
20 %酢酸エチル—n-ヘキサン　100mL，50mL
抽出
脱水(無水硫酸ナトリウム)
40℃以下で減圧濃縮(溶媒除去)
アセトン—n-ヘキサン 4mL に溶解
(抽出溶液)
カラムクロマトグラフィー　ENVI-Carb(250mg)
アセトン—n-ヘキサン(1:1)　5mL でコンディショニング
抽出溶液 4mL の内 1mL を負荷
アセトン—n-ヘキサン(1:1)　5mL で溶出(total:6mL)
N2 パージで 1mL に濃縮
上記溶液 1mL の内 0.5mL を分取
残りの試験液
GC-FPD
GC-FTD
N2 パージで乾固
n-ヘキサン　1mL に溶解
カラムクロマトグラフィー　Sep-pak plus florisil
アセトン，エーテル，n-ヘキサン　各 5mL でコンディショニング
上記液を負荷
60%エーテル—n-ヘキサン　15mL で溶出
40℃以下で減圧濃縮(溶媒除去)
n-ヘキサンで 1mL とする
GC-ECD

図1．分析方法

表3．ENVI-Carb(500mg)における各農薬の回収実験結果

(%)

No.	有機リン系農薬	回収率	有機窒素系農薬	回収率	有機塩素系農薬	回収率
1	ｼﾞｸﾛﾙﾎﾞｽ	98	ｲｿﾌﾟﾛｶﾙﾌﾞ	95	ｼﾞｸﾛﾗﾝ	66
2	ｼﾞﾒﾄｴｰﾄ	101	ﾌｪﾉﾌﾞｶﾙﾌﾞ	88	ﾌﾞﾛﾓﾌﾞﾁﾄﾞ	98
3	ﾀﾞｲｱｼﾞﾉﾝ	99	ｸﾛﾛﾌﾟﾛﾌｧﾑ	90	ｸﾛﾒﾄｷｼﾆﾙ	96
4	IBP	126	ﾋﾟﾛｷﾛﾝ	89	ｽｳｪｯﾌﾟ	87
5	ｸﾛﾙﾋﾟﾘﾎｽﾒﾁﾙ	98	ｴｽﾌﾟﾛｶﾙﾌﾞ	97	ｼﾞｸﾛﾌﾙｱﾆﾄﾞ	85
6	ﾌｪﾆﾄﾛﾁｵﾝ	94	ﾍﾟﾝﾃﾞｨﾒﾀﾘﾝ	85	ｸﾛﾙﾌｪﾝｿﾝ	87
7	ｸﾛﾙﾋﾟﾘﾎｽ	97	ﾌﾟﾚﾁﾗｸﾛｰﾙ	90	ﾋﾞﾌｪﾉｯｸｽ	87
8	ﾌｪﾝﾄｴｰﾄ	98	ﾚﾅｼﾙ	92	ｼﾌﾙﾄﾘﾝ	87
9	ﾒﾁﾀﾞﾁｵﾝ	102	ﾌｪﾝﾌﾟﾛﾊﾟﾄﾘﾝ	94	ﾌﾙｼﾄﾘﾈｰﾄ	88
10	ﾌﾟﾛﾁｵﾎｽ	98	ﾋﾟﾘﾀﾞﾍﾞﾝ	87	ﾌﾙﾊﾞﾘﾈｰﾄ	90
11	ｲｿｷｻﾁｵﾝ	113	ﾋﾞﾝｸﾛｿﾞﾘﾝ	92	ﾌｪﾝﾊﾞﾚﾚｰﾄ	90
12	ｴﾁｵﾝ	98	ｼﾞｴﾄﾌｪﾝｶﾙﾌﾞ	93	ﾃﾌﾙﾄﾘﾝ	95
13	EPN	83	ﾄﾘｱｼﾞﾒﾎﾝ	93	ﾌﾟﾛﾋﾟｻﾞﾐﾄﾞ	93
14	ﾎｻﾛﾝ	101	ﾄﾘｱｼﾞﾉｰﾙ	92	ﾋﾞﾅﾊﾟｸﾘﾙ	93
15	ﾒﾀｸﾘﾎｽ	85	ﾌﾙﾄﾗﾆﾙ	94	ｸﾛﾛﾍﾞﾝｼﾞﾚｰﾄ	91
16	ｴﾄﾌﾟﾛﾎｽ	89	ﾐｸﾛﾌﾞﾀﾆﾙ	93	ｼﾞｺﾎｰﾙ	106
17	ｻﾘﾁｵﾝ	88	ﾒﾌﾟﾛﾆﾙ	92	ｼﾊﾛﾄﾘﾝ	99
18	ﾃﾙﾌﾞﾎｽ	89	ﾒﾌｪﾅｾｯﾄ	94	ﾍﾟﾙﾒﾄﾘﾝ	94
19	ｴﾄﾘﾑﾎｽ	89	ﾋﾞﾃﾙﾀﾉｰﾙ	97	ｼﾍﾟﾙﾒﾄﾘﾝ	98
20	ﾎﾙﾓﾁｵﾝ	93	ﾍﾞﾝﾀﾞｲｵｶﾙﾌﾞ	122	ﾃﾞﾙﾀﾒﾄﾘﾝ	97
21	ﾋﾟﾘﾐﾎｽﾒﾁﾙ	87	ﾒﾁｵｶﾙﾌﾞ	150	ｷﾝﾄｾﾞﾝ	78
22	ﾏﾗｿﾝ	92	ﾌﾟﾛﾋﾟｺﾅｿﾞｰﾙ	89	ｴﾝﾄﾞｽﾙﾌｧﾝ(α)	99
23	ｼﾞﾒﾁﾙﾋﾞﾝﾎｽ	89	ｷｼﾘｶﾙﾌﾞ	93	ｴﾝﾄﾞｽﾙﾌｧﾝ(β)	101
24	ｷﾅﾙﾎｽ	90	ﾄﾘﾌﾙﾗﾘﾝ	82	ｴﾝﾄﾞｽﾙﾌｧﾝｽﾙﾎﾝ	101
25	ﾌﾟﾛﾊﾟﾎｽ	89	ｼﾏｼﾞﾝ	80	ﾌﾟﾛｼﾐﾄﾞﾝ	74
26	ﾃﾄﾗｸﾛﾛﾋﾞﾝﾎｽ	94	ｱﾗｸﾛｰﾙ	79	ｸﾛﾙﾌﾟﾛﾋﾟﾚｰﾄ	99
27	ﾌﾞﾀﾐﾎｽ	86	ﾊﾟｸﾛﾌﾞﾄﾗｿﾞｰﾙ	81	ﾌﾞﾛﾓﾌﾟﾛﾋﾟﾚｰﾄ	90
28	ﾌﾟﾛﾌｪﾉﾎｽ	92	ﾌﾙｼﾗｿﾞｰﾙ	80	ﾃﾄﾗｼﾞﾎﾝ	101
29	ﾄﾘｱｿﾞﾎｽ	97	ﾃﾆﾙｸﾛｰﾙ	81	ﾊﾙﾌｪﾝﾌﾟﾛｯｸｽ	97
30	ｴﾃﾞｨﾌｪﾝﾎｽ	97	ﾃﾌﾞﾌｪﾝﾋﾞﾗﾄﾞ	86	ﾌﾙｵﾛｲﾐﾄﾞ	70
31	ﾋﾟﾘﾀﾞﾌｪﾝﾁｵﾝ	97	ﾌﾟﾛﾎﾟｷｻｰ	102	ｸﾛﾛﾌｪﾈﾄｰﾙ	88
32	ﾅﾚｯﾄﾞ	88	ﾌﾟﾛﾒﾄﾘﾝ	87	ﾎﾙﾍﾟｯﾄ	89
33	ｼｱﾉﾎｽ	94	ﾒﾄﾗｸﾛｰﾙ	85	ｴﾝﾄﾞﾘﾝ	100
34	ｼﾞｸﾛﾌｪﾝﾁｵﾝ	93	ｼﾞﾒﾀﾒﾄﾘﾝ	88	ﾋﾞﾌｪﾝﾄﾘﾝ	89
35	ﾌｪﾝﾁｵﾝ	92	ｼﾞﾒﾋﾟﾍﾟﾚｰﾄ	88	ｴｽﾌｪﾝﾊﾞﾚﾚｰﾄ	89
36	ｸﾛﾙﾌｪﾝﾋﾞﾝﾎｽ	92	ﾌﾞﾌﾟﾛﾌｪｼﾞﾝ	85	ﾄﾗﾛﾒﾄﾘﾝ	83
37	ﾌｪﾝｽﾙﾎﾁｵﾝ	105	ｵｷｻｼﾞｷｼﾙ	88		
38	ｼｱﾉﾌｪﾝﾎｽ	91	ﾌｪﾅﾘﾓﾙ	89		
39	ﾎﾚｰﾄ	109	ﾄﾘｸﾛﾎｽﾒﾁﾙ	92		
40	ｼﾞｵｷｻﾁｵﾝ	104	ﾌｨﾌﾟﾛﾆﾙ	99		
41	ﾎﾉﾎｽ	109	ｱｼﾞﾝﾎｽﾒﾁﾙ	122		
42	ﾌﾞﾛﾓﾎｽ	112				
43	ﾌﾞﾛﾓﾎｽﾒﾁﾙ	111				
44	ﾋﾟﾗｿﾞﾎｽ	113				
45	ｸｰﾏﾎｽ	75				

表4．農産物中の残留農薬調査結果

農産物名	産地	検体数	検出数	検出農薬名	検出値(μg/g)	検出農薬名	検出値(μg/g)
セロリ	国内産	2	2	プロシミドン	0.01，0.03		
いちご	国内産	4	2	ミクロブタニル	0.19	イソキサチオン	0.01
				シペルメトリン	0.04	クレソキシムメチル	0.06
キャベツ	国内産	4	1	フェンバレレート	0.08		
ねぎ	国内産	2	1	EPN	0.09	シペルメトリン	0.43
きゅうり	国内産	2	1	プロシミドン	0.11		
みかん	国内産	4	1	ブロモプロピレート	0.01		
トマト	国内産	3	1	ジコホール	0.02		
えだまめ	中国産	1	1	シペルメトリン	0.07		
はくさい	国内産	3	1	フェンバレレート	0.09	クロルフェナピル	0.20
ほうれん草	国内産	5	2	シペルメトリン	0.76，0.62		

plus　florisil 等のミニカラムで再クリーンアップを行い，GC/MS(SCAN)で確認を行った。

実　験　結　果　及　び　考　察

1．ENVI-Carb(500mg,6mL)によるクリーンアップの検討

前報[2),3)]では ENVI-Carb(250mg,3mL)での精製の前に，GPCにより精製を行っていたが，精製効果及び分析時間と労力の問題で，今回はGPC操作を省略した。そのため，ほうれん草等色素を多く含む農産物の場合，色素の除去が不十分であった。そこで，追加精製等に利用するため，トマトの抽出物を用いて各農薬の ENVI-Carb(500mg,6mL)における回収率の測定を行った。有機リン系農薬の内，溶出が遅いホサロンで 8 ～ 12mL に，クーマホスで 6 ～ 12mL に溶出したので，アセトン－ n-ヘキサン(1 : 1)の溶出量を 12mL として回収率の測定を行った。その結果を表3に示した。一部の農薬で回収率が 120 %を超えているものもあるが，概ね 70 ～ 120 %の回収率であった。今回の実態調査において，ほうれん草等色素を多く含む農産物の場合，適宜，追加のクリーンアップ等に ENVI-Carb(500mg,6mL)を利用した。

2．実態調査

調査結果を表4に示した。

(1)有機リン系農薬

イソキサチオンがいちごから 0.01μg/g，EPN がねぎから 0.09μg/g 検出された。

(2)有機窒素系農薬

ミクロブタニルが 0.19μg/g，クレソキシムメチルが 0.06μg/g いちごから検出した。なお，クレソキシムメチルは検査対象農薬ではなかったが，未知ピークを GC/MS(SCAN)で測定したところ，クレソキシムメチルが確認できた。また，本法を用いて添加回収実験を行ったところ良好な回収率であったので検出農薬とした。

(3)有機塩素系農薬

2 種類の農産物からプロシミドンが 0.01 ～ 0.11μg/g，フェンバレレートが 0.08μg/g ～ 0.09μg/g，3 種類の農産物からシペルメトリンが 0.04μg/g ～ 0.76μg/g 検出された。また，ブロモプロピレートが 0.01μg/g，ジコホールが 0.02μg/g，クロルフェナピルが 0.20μg/g，各々 1 農産物より検出された。なお，クロルフェナピルは検査対象農薬ではなかったが，クレソキシムメチルと同様に，未知ピークを GC/MS(SCAN)で確認し，添加回収実験で良好な結果であったので検出農薬とした。

以上 60 検体の内 13 検体で農薬が検出され，検出率は約 20 %であった。食品衛生法の基準値を超えて検出された農薬はなく，基準値に一番近い値で検出された農薬はほうれん草から検出されたシペルメトリンで検出値は基準値の約 1/3 の値であった。

セロリ 2 検体でプロシミドンが検出されているが，内 1 検体で，別法でクロロタロニルも検出されており，農薬の検出があった 13 検体の内，5 検体で 2 種類の農薬が検出された。

ま　と　め

当所の農産物中の一斉分析法は，有機溶媒による抽出，活性炭やフロリジル PR のオープンカラムによる精製法の検討等から開始し，その後，検査対象農薬を拡大しながら、GPC やミニカラムを用いた精

製法の検討を行ってきたところである。

今回は, 精製に ENVI-Carb と Sep-pak plus florisil のミニカラムを用いた分析法の検討を行い, 平成 16 年度に搬入された農産物 60 検体について, 残留農薬の調査を行った。その結果, 13 検体から農薬が検出された。

精製法として, ミニカラムを使用した場合, 分析時間の短縮, 省溶媒化が可能で, 現在, 多種のミニカラムが開発されている。今後は, 更にミニカラムによる精製法等に検討を加え, 精製効果の向上, 検査対象農薬の拡大を図り, ポジティブリスト制に対応していく必要があると思われる。

参　考　文　献

1) 起橋雅浩, 他 : 食衛誌, 37, 43 ～ 47, (1996)
2) 本村秀章, 他 : 長崎県衛生公害研究所報,43, 33 ～ 37 , (1997)
3) 山之内公子, 他 : 長崎県衛生公害研究所報, 45,16 ～ 21 , (1999)

農産物中のクロロタロニル，キャプタン，カプタホール，ジクロフルアニド及びホルペットの分析法の検討

本村　秀章・西川　徹・馬場　強三・益田宣弘

Studies on Determination of Chlorothalonil, Captan, Captafol, Dichlofluanid and Folpet in Agricultural Products

Hideaki MOTOMURA, Toru NISIKAWA, Tsuyomi BABA and Nobuhiro MASUDA

A method for the determination of chlorothalonil, captan, captafol, dichlofluanid and folpet in agricultural products was studied. These pesticides were extracted with acetone under the acid condition which was made by adding phosphoric acid, re-extracted with ethyl acetate−n-hexane (1:4), purified with an ENVI-Carb/LCNH2 mini-column and analyzed by GC-ECD. Recoveries of chlorothalonil, captan, captafol, dichlofluanid and folpet from samples spiked at 0.02~0.04 μg/g were 85.1~98.3, 93.8 ~95.6 , 85.7~101.6, 86.3~94.8 and 57.7~64.1%, respectively. These pesticide residues in 61 agricultural products were investiged by this method, and as the result, chlorothalonil was detected in celery (0.13μg/g).

Key words : chlorothalonil, captan, captafol, dichlofluanid, folpet, agricultural products

キーワード:クロロタロニル，キャプタン，カプタホール，ジクロフルアニド，ホルペット，農産物

はじめに

クロロタロニル，キャプタン及びカプタホールは，ホモジナイズする際，植物成分によって分解することが知られており，[1)〜5)] リン酸を加えたものを検体としているため，当所の一斉分析法とは、別系統で検査を行っている。また，検査方法についても，当所の一斉分析法では，精製に ENVI-Carb を用いアセトン−n-ヘキサン(1:1)で溶出を行っているため，クロロタロニルが溶出されにくい。溶出溶媒をトルエン−アセトニトリル(1:3)で行うとクロロタロニルが溶出されやすくなることから[6)]，今回，精製に ENVI-Carb/LCNH2 を用い溶出溶媒をトルエン−アセトニトリル(1:3)で行う方法について検討したので報告する。

また、ジクロフルアニド及びホルペットについては，当所の一斉分析法によるばれいしょとトマトへの添加回収実験では良好な結果であったので，有機塩素系農薬の対象農薬としているが，これらの農薬も植物中の成分によっては分解することが知られている。そこで，この 2 農薬についても併せて検討を行ったので報告する。

調査方法

1．試料

添加回収実験には，長崎県内で購入したばれいしょ，ほうれん草，キャベツ，みかん及び玄米を使用した。実態調査に用いた試料は，平成 16 年 5 月〜 11 月に当所に搬入された国内産 48 検体，輸入品 12 検体の農産物と当所で購入した玄米 1 検体の合計 61 検体を用いた。(表1)

2．試薬等

標準品は市販の農薬標準品を用い、有機溶媒等の試薬は残留農薬分析用を，リン酸は特級を使用した。

ミニカラム： ENVI-Carb/LC-NH2 6ml Tube (500mg/500mg)(スペルコ社製)，Sep-Pak Plus florisil 及び Sep-Pak Plus silica(Waters 社製)

3．装置及び測定条件

GC-ECD :㈱島津製作所製 GC-2010

カラム: DB-17（内径 0.32mm,長さ 15 m,膜厚 0.25 μm,J & W 社製）

カラム温度: 100 ℃(2min)-5 ℃/min-250 ℃(5min)-10 ℃/min-280 ℃(10min)

表1．検査対象農産物

(国内産)
ばれいしょ(2), レタス(5), いちご(4), びわ(2), セロリ(2), キャベツ(4), アスパラガス(2), ねぎ(2), トマト(3)
きゅうり(2), たまねぎ(2), みかん(4), にんじん(2), はくさい(3), 大根(2), ほうれん草(5), ブロッコリー(2)
玄米(1)
(輸入品)
ブロッコリー(2), アスパラガス(2), さといも(2), いんげん(2), ネギ(2), えだまめ(1), にんにくの芽(1)

*( )内は検体数を示す

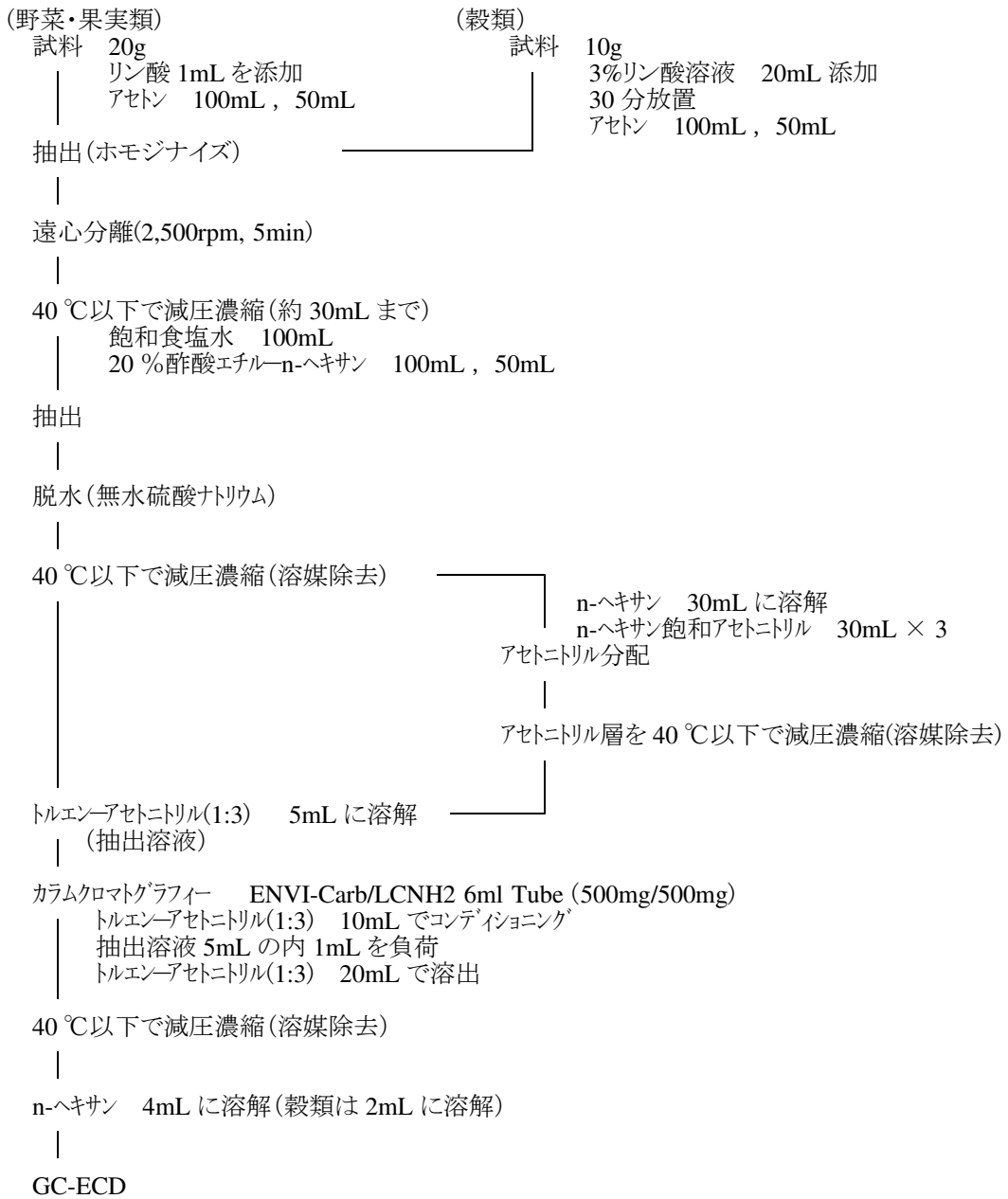


図1．分析方法

注入口温度: 200 ℃　検出器温度: 300 ℃
キャリヤーガス: ヘリウム, 80kpa(定圧ﾓｰﾄﾞ)
カラム: DB-5 (内径 0.25mm,長さ 30 m,膜厚 0.25 μm,J & W 社製)
カラム温度: 50 ℃(1min)-25 ℃/min-125 ℃-10 ℃/min-300 ℃ (6.5min)
注入口温度: 200 ℃　検出器温度: 300 ℃
キャリヤーガス: ヘリウム, 120kpa(定圧ﾓｰﾄﾞ)

4. 検量線

各農薬 0.01 ～ 0.5μg/mL の標準溶液を調整し，検量線標準液とした。

5. 添加回収実験

分析方法を図1に示した。

添加濃度は，クロロタロニル，キャプタン及びカプタホールは 0.02μg/g，ジクロフルアニド及びホルペットは 0.04μg/g とし，いずれも添加 30 分後分析を開始した。

6. 実態調査

図1に示す方法により調査を行った。なお，農薬が検出された場合には，再ｸﾘｰﾝｱｯﾌﾟを行った後 GC/MS(SCAN)で確認を行った。

調　査　結　果　及　び　考　察

1. 検量線

いずれの農薬も相関係数は 0.997 以上で良好な直線性を示した。

2. 添加回収実験

表2に添加回収実験結果を示した。クロロタロニルは 85.1 ～ 98.3 %，キャプタンは 93.8 ～ 95.6 % ，カプタホールは 85.7 %～ 101.6 %，ジクロフルアニドは 86.3 ～ 94.8 %の回収率で，相対標準偏差(RSD)は 10 %以下で良好な結果であった。

ホルペットは 57.7 ～ 64.1 %の回収率であったが，通知法での検出限界は 0.01μg/g であり，スクリーニング

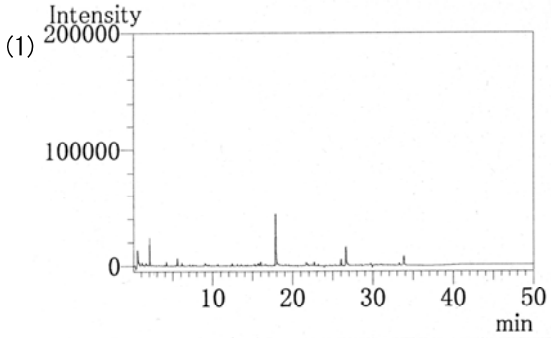
抽出溶液　5mL (ｱｾﾄﾝ:n-ﾍｷｻﾝ(1:1)溶液)
|
ｶﾗﾑｸﾛﾏﾄｸﾞﾗﾌｨｰ　ENVI-Carb(250mg)
| ｱｾﾄﾝ―n-ﾍｷｻﾝ(1:1)　5mL でｺﾝﾃﾞｨｼｮﾆﾝｸﾞ
| 抽出溶液 5mL の内 1mL を負荷
| ｱｾﾄﾝ―n-ﾍｷｻﾝ (1:1)　5mL で溶出(total:6mL)
|
濃縮・乾固 (N_2 ﾊﾟｰｼﾞ)
|
n-ﾍｷｻﾝ　1mL に溶解
|
ｶﾗﾑｸﾛﾏﾄｸﾞﾗﾌｨｰ　Sep-Pak Plus florisil
| ｱｾﾄﾝ,ｴｰﾃﾙ,n-ﾍｷｻﾝ　各 5mL でﾝﾃﾞｨｼｮﾆﾝｸﾞ
| 上記液負荷
| 60%ｴｰﾃﾙ―n-ﾍｷｻﾝ　15mL で溶出
|
40 ℃以下で減圧濃縮(乾固)
|
n-ﾍｷｻﾝ　4mL に溶解
|
GC-ECD

図2. 精製方法

法として本法を用いる場合，感度的には特に問題ないと思われる。なお，ジクロフルアニド及びホルペットの混合標準液(0.04μg/mL)1mL を ENVI-Carb/LCNH2 に負荷し，回収率を測定したところ，ジクロフルアニド 85%に対して，ホルペットは 57 %であった。添加回収実験でホルペットの回収率が 60 %前後であった主な原因は，ENVI-Carb/LCNH2 への吸着によるもと思われたため，キャベツを用いて ENVI-Carb/LCNH2 におけるトルエン―アセトニトリル(1:3)の溶出量を 25mL にして添加回収実験を行ったが，回収率は 63.7 %で改善されなかった。ばれいしょ，トマトでの当所の一斉

表2　添加回収実験結果

農 薬 名	添加量 (μg/g)	回収率(n=3)(RSD) , (%) ばれいしょ	ほうれん草	キャベツ	みかん	玄米
クロロタロニル	0.02	85.1(0.5)	91.7(5.3)	87.6(3.2)	87.1(7.4)	98.3(1.5)
キャプタン	0.02	94.8(4.9)	95.5(3.0)	95.6(2.7)	94.6(9.5)	93.8(2.2)
カプタホール	0.02	85.7(2.7)	94.7(1.9)	88.6(3.0)	101.6(4.5)	90.5(4.5)
ジクロフルアニド	0.04	92.9(2.8)	91.9(7.1)	90.4(3.9)	94.8(4.0)	86.3(0.6)
ホルペット	0.04	57.7(2.6)	64.1(5.7)	60.7(2.3)	62.3(4.8)	59.0(3.5)



(1)ばれいしょ(無添加)
(2)標準溶液(0.02μg/mL)　①ｸﾛﾛﾀﾛﾆﾙ
②ｷｬﾌﾟﾀﾝ　③ｶﾌﾟﾀﾎｰﾙ
(3)標準溶液(0.04μg/mL)　④ｼﾞｸﾛﾌﾙｱﾆﾄﾞ
⑤ﾎﾙﾍﾟｯﾄ
(4)ばれいしょ(①～③　各 0.02μg/g 添加)
(5)ばれいしょ(④，⑤　各 0.04μg/g 添加)

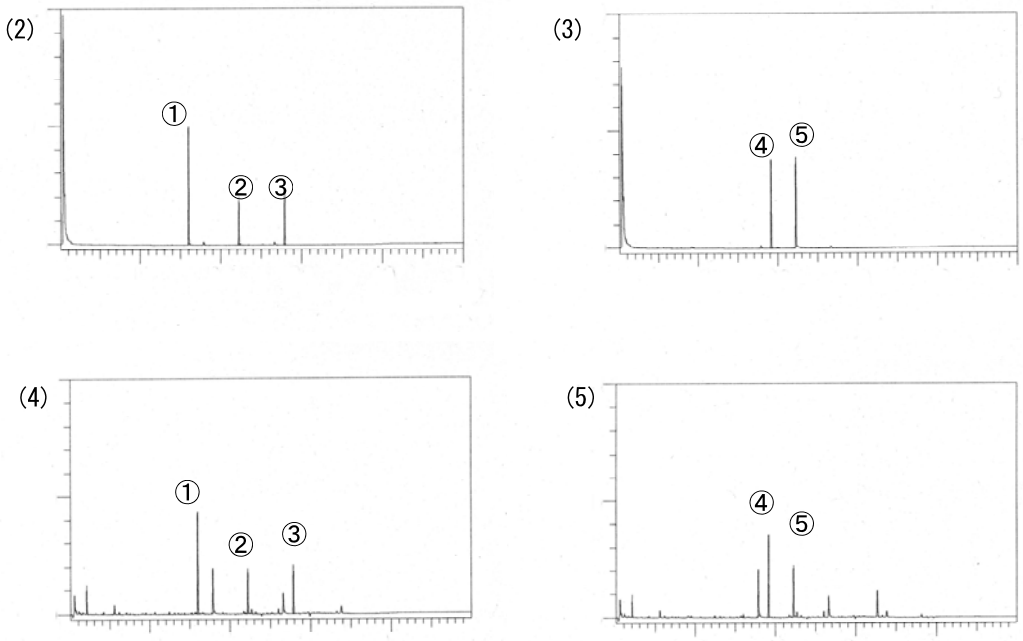
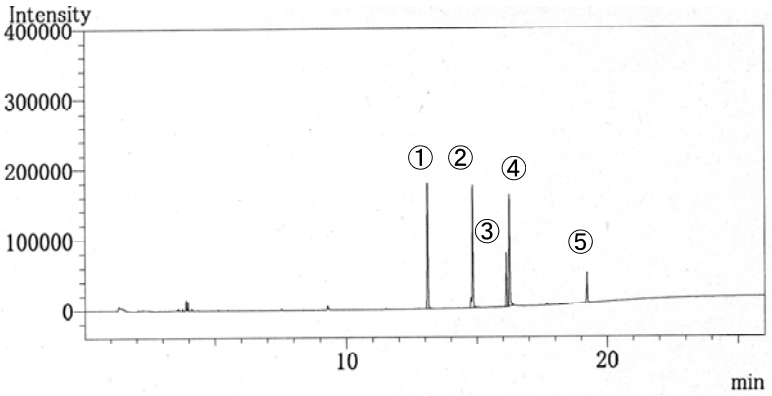


図３．混合標準溶液及び添加回収実験で得られたｶﾞｽｸﾛﾏﾄｸﾞﾗﾑ例



①ｸﾛﾛﾀﾛﾆﾙ
②ｼﾞｸﾛﾌﾙｱﾆﾄﾞ
③ｷｬﾌﾟﾀﾝ
④ﾎﾙﾍﾟｯﾄ
⑤ｶﾌﾟﾀﾎｰﾙ

①,③,⑤ 0.02μg/mL
②,④　0.04μg/mL

図4．混合標準溶液（5農薬）のｶﾞｽｸﾛﾏﾄｸﾞﾗﾑ

分析法の添加回収実験では，回収率は良好であったので，図2に示す一斉分析法と同じ精製法で，キャベツを用いて添加回収実験を行った。その結果を表3に示した。ホルペットの回収率は 92.2 %と良好な結果であり，回収率が 70 ～ 120 %の範囲であることが必要な場合等は，この精製法の応用が可能であると思われた。なお，この場合， ENVI-Carb の溶出にアセトン―n-ヘキサン(1 : 1)を使用したため，表3に示すとおりクロロタロニルの回収は nd となった。

なお，混合標準溶液とばれいしょの添加回収実験で得られたガスクロマトグラフ例を図3に示した。

GC-ECD における分離カラムは，当所の一斉分析法で DB-17 （内径 0.32mm,長さ 15 m）を使用しており，カラム等を交換することなく，引き続き 3 農薬（クロロタロニル，キャプタン及びカプタホール）の分析を行っている。この条件で 2 農薬（ジクロフルアニド,ホルペット）の分析を行うと，キャプタンとホルペットのピークが重なってしまう。農薬が検出された場合，確認は GC/MS で行うので分析上支障はないが， GC 上，キャプタンとホルペットのピークを分離する必要がある場合は，DB-5 （内径 0.25mm , 長さ 30m ）を使用すれば，図 4 のクロマトグラフに示すとおり両農薬の分離は可能であった。

表3 キャベツにおける添加回収実験結果

農薬名	添加量 (μg/g)	回収率(n=3)(RSD) (%)
クロロタロニル	0.02	nd
キャプタン	0.02	84.9(5.3)
カプタホール	0.02	90.5(2.7)
ジクロフルアニド	0.04	87.0(4.0)
ホルペット	0.04	92.2(4.1)

3. 実態調査

調査を行った 61 検体中，国内産のセロリからクロロタロニルが 0.13μg/g の濃度で検出されたが，基準値以下であった。

なお， Sep-Pak Plus silica で再クリーンアップを行った後， GC/MS(SCAN)で確認を行った。

ま と め

今回、精製に ENVI-Carb/LC-NH2 6ml Tube (500mg/500mg)を使用しクロロタロニル，キャプタン及びカプタホールの検討を行い，併せてジクロフルアニド及びホルペットについても，本法の適応を検討した。

クロロタロニル，キャプタン及カプタホールについては，添加回収実験において良好な結果を得た。また，ジクロフルアニドについても良好な結果が得られたが，ホルペットについては， 60 %前後の回収率であった。しかしながら，スクリーニング法として考えた場合は，感度的には問題ないと思われた。

本法を用い 61 検体について調査を行ったところ，国内産のセロリからクロロタロニル 0.13μg/g 検出されたが，基準値以下であった。

参 考 文 献

1) 農薬残留分析法研究班編：最新農薬の残留分析法,中央法規出版 (1995)

2) 残留農薬迅速分析法開発検討委員会,食品衛生研究, 47(6), 27 ～ 41(1997)

3) 根本了　他：国立医薬品食品衛生研究所報告, 117, 155 ～ 162 (1999)

4) 小林裕子：食衛誌, 42, J-331 ～ J-336 (2001)

5) 永山敏廣　他：食衛誌, 44, 126 ～ 131(2003)

6) 柴田吉有　他：食衛誌, 39, 241 ～ 250(1998)

II　資　料

長崎県における大気汚染常時測定局の測定結果（2004年度）

森　淳子　横瀬　健　香月幸一郎　白井玄爾

Measurement of Air Pollution by Monitoring Stations in 2004

Atsuko MORI, Takeshi YOKOSE, Koichiro KATSUKI and Genji SHIRAI

Key words: Air pollution, Monitoring station

は　じ　め　に

本県では、大気汚染防止法に基づき1970年度から自動測定機による大気汚染の常時観測を開始している。その後、大型火力発電所の立地等に伴い、順次観測体制を充実し今日に至っている。表 1に主な経緯を示した。

2004年度の大気汚染常時監視測定局は、一般環境大気測定局（以下：一般環境局）45局、自動車排出ガス測定局（以下：自排局） 5局、煙源観測局 7局、気象局 １局、計58局である。このうち県が管理する測定局は15局、長崎市7局（内自排局3局）、佐世保市6局（内自排局2局）、九州電力、電源開発が管理する局は合計23局である。本報では、2004年度の測定結果について報告する。

表１　長崎県大気汚染テレメータシステムにかかる主な経緯

西暦年度	内容
1970	自動測定機による大気汚染の常時観測を開始
1973	九州電力相浦発電所１号機発電開始（37.5万KW）
1976	九州電力相浦発電所２号機発電開始（50万KW）
	佐世保市大気汚染監視網がテレメータ化される
1979	長崎県、長崎市大気汚染監視網がテレメータ化される
	九州電力相浦発電所、佐世保市「俵ヶ浦」局他５局で大気常時監視開始
	電源開発松島火力発電所周辺局11局で大気常時監視開始（県局４、企業局７）
1981	電源開発松島火力発電所１号機発電開始（50万KW）
	電源開発松島火力発電所２号機発電開始（50万KW）
1987	中央監視センター設置機器等の全面的な更新（汎用機）
	松浦火力発電所周辺局として、10局が新設され測定開始（県局２、企業局８）
1989	九州電力松浦発電所１号機発電開始（70万KW）
1990	電源開発松浦火力発電所１号機発電開始（100万KW）
1991	雲仙普賢岳災害　移動測定車による測定、国設「雲仙北」、「雲仙南」局設置
1993	環境基本法（平成５年11月19日法律第91号）
	九州電力苓北発電所設置に伴い、九州電力「口之津」局新設
	国設「雲仙北」、「雲仙南」局廃止
1996	長崎県、長崎市大気汚染常時監視テレメータシステム更新
～1997	汎用機からワークステーションへ、無線通信からISDN回線使用へ
1997	電源開発松浦火力発電所２号機発電開始（100万KW）
1998	県管理局へ乾式測定装置導入
2003	佐世保市大気汚染常時監視テレメータシステム更新

測　定　結　果

項目別の有効測定局及び環境基準の長期的評価を表 2に、大気の汚染に係る環境基準を表 3、非メタン炭化水素に係る濃度指針を表 4に示した。年間の測定結果は、大気環境測定局を表5-1、一般環境局（非メタン炭化水素）を表5-2に、自動車排出ガス測定局を表 6-1、表6-2に、経年変化の状況は、大気環境測定局を表7-1、表7-2に、自動車排出ガス測定局を表8-1、表8-2に示した。測定結果の状況は、以下のとおりである。

１　二酸化硫黄（SO_2）

すべての局で短期的評価、長期的評価ともに環境基準を達成した。各測定局の年平均値は0.001～0.006ppmの範囲にあった（表5-1）。

２　二酸化窒素（NO_2）

一般環境局ではすべての局で環境基準を達成した。年平均値は、0.002～0.017ppmの範囲にあり、1時間値の最高値は0.019～0.135ppmの範囲であった。環境基準の長期的評価における年間の日平均値の98%値は、0.005～0.035ppmの範囲であった（表5-1）。

自動車排出ガス測定局 5局では、年平均値は0.023～0.044ppmの範囲にあり、1時間値の最高値は0.078～0.129ppmの範囲であった。年間の日平均値の98％値では、環境基準の0.04～0.06ppmを超えた局が 1局、ゾーン内の局が 4局であった（表6-1）。

３　浮遊粒子状物質（SPM）

一般環境局の年平均値は、0.014～0.040mg/m^{3}の範囲にあり、1時間値の最高値は、0.129～0.456mg/m^{3}の範囲にあった。環境基準の長期的評価において、日平均値が0.10mg/m^{3}を超えた日が2日以上連続した局は 1局あった。短期的評価では9局で1時間値の最高値が0.20mg/m^{3}を超えた（表5-1）。

自動車排出ガスでは、短期的評価で中央橋局で環境基準を満足しなかったが、長期的評価においては環境基準を満足していた（表6-2）。

４　光化学オキシダント(Ox)

各測定局の1時間値の最高値は、0.078～0.121ppmの範囲にあり、全ての局において環境基準 0.06ppmを超過した。また、1局で合計 6時間注意報発令基準値（１時間値 0.120ppm）を超えた。

1時間値の最高値が0.10ppm以上になった局が14局、0.08ppm以上0.10ppm未満の局が14局、0.06ppm以上0.08ppm未満の局が 2局あり、環境基準を超過した日数が100日以上になった局が 10局、50日以上100日未満の局が13局、50日未満の局が7局あった（表5-1）。

５　一酸化炭素（CO）

自動車排出ガス測定局で測定している一酸化炭素の年平均値は0.7～1.0ppmの範囲にあった。1時間値の最高値は、3.0～9.7ppmの範囲にあったが、環境基準を超過することはなかった(表6-1)。

６　非メタン炭化水素（NMHC）

一般環境局（2局）の年平均値は0.10、0.12ppmC、自動車排出ガス測定局（4局）の年平均値は0.24～0.33ppmCの範囲にあった（表5-2、6-1）。６～９時における年平均値は一般環境大気測定局0.12～0.13ppmC、自動車排出ガス測定局0.32～0.44ppmCであった。すべての局で6～9時の３時間平均値が指針値の上限を超えたが、超過日数は一般環境局では1日（松浦志佐）14日（村松）であったのに対し、自動車排出ガス測定局では149（日宇）～231（福石）日であった。

７　煙源観測局の測定結果（表 9）

(1) 九州電力松浦発電所（ 1号機）

硫黄酸化物排出量及び濃度、窒素酸化物排出量及び濃度におけるすべての環境保全協定値を超過することはなかった。

(2) 電源開発松浦火力発電所（ 1、2号機）

硫黄酸化物排出量及び濃度、窒素酸化物排出量及び濃度におけるすべての環境保全協定値を超過することはなかった。

(3) 電源開発松島火力発電所（1、2号機）

1号、2号機合計の硫黄酸化物排出量は1時間値の最高値が526Nm^3/h、1号、2号機の窒素酸化物濃度（換算値）は日平均値の最高値が264ppm、255ppmであり、それぞれ環境保全協定値の804Nm^3/h、300ppm、300ppmを超えることはなかった。

(4) 九州電力相浦発電所（ 1、2号機）

1号、2号機の合計の硫黄酸化物排出量は1時間値の最高値が288Nm^3/h、窒素酸化物濃度(換算値)については 1時間値の最高値がそれぞれ、154ppm、133ppmであり、環境保全協定値の828Nm^3/h 、170ppm、150ppm を超えることはなかった。

表2　有効測定局及び環境基準の達成状況（2004年度）

測定項目	測定局数	有効局数[1]	環境基準の達成状況			
			達成局数		非達成局数	
			長期的評価	短期的評価	長期的評価	短期的評価
二酸化硫黄	46	46	46	46	0	0
浮遊粒子状物質	49	49	48	36	1	13
一酸化炭素	5	5	5	5	0	0
二酸化窒素	48	48	47		1	
オキシダント	30	30	0		30	
炭化水素	6	6	―		―	

表3　大気汚染に係る環境基準

物　質	環境基準	環境基準による評価方法	
二酸化硫黄	１時間値の１日平均値が0.04ppm以下であり、かつ１時間値が0.1ppmであること	短期的評価	１時間値、日平均値のどちらか一方が基準を超えれば環境基準非達成
		長期的評価	年間の日平均値の２％除外値[2]が0.04ppm以下 年間の日平均値が0.04ppmを超える日が２日以上連続したときは上記に関係なく環境基準非達成
浮遊粒子状物質	１時間値の１日平均値が0.10mg/m^{3}以下であり、かつ１時間値が0.20mg/m^{3}以下であること	短期的評価	１時間値、日平均値のどちらか一方が基準を超えれば環境基準非達成
		長期的評価	年間の日平均値の２％除外値が0.10mg/m^{3}以下 年間の日平均値が0.10mg/m^{3}を超える日が２日以上連続したときは上記に関係なく環境基準非達成
一酸化炭素	１時間値の１日平均値が10ppm以下であり、かつ１時間値の８時間平均値が20ppm以下であること	短期的評価	平均値、８時間のどちらか一方が基準を超えれば環境基準超過
		長期的評価	年間の日平均値の２％除外値が10ppm以下であれば環境基準達成 年間の日平均値の２％除外値が10ppmを超える日が２日以上連続したときは上記に関係なく環境基準非達成
二酸化窒素	１時間値の１日平均値が0.04ppmから0.06ppmまでのゾーン内又はそれ以下であること	日平均値の年間98％値[3]が0.06ppmを超えれば環境基準非達成	
光化学オキシダント	１時間値が0.06ppm以下であること	昼間（５時～20時）の時間帯において、１時間値が0.06ppm以下であれば環境基準達成	

表4　大気汚染物資に係る濃度指針[4]

物　質	濃度指針
非メタン炭化水素	午前６時から９時までの非メタン炭化水素の３時間平均値は0.20ppmCから0.31ppmCの範囲にあること

[1] **有効測定局数**：年間測定時間が6、000時間以上に達した局

[2] **2%除外値**：１年間に得られた日平均値を整理し、数値の高い方から２%の範囲にあるもの（365日分の日平均値が得られた場合は365×0.02≒7日分）を除外した残りの日平均値の最高値をいう。

[3] **98%値**：１年間の日平均値を数値の低い方から並べて98%に相当するものをいう。（365日分の日平均値が得られた場合は、365×0.98≒358番目の値）

[4] **非メタン炭化水素の濃度指針**：非メタン炭化水素は光化学オキシダントの生成に関与している。環境省は光化学オキシダント濃度を環境基準である日最高１時間値0.06ppmにするための非メタン炭化水素の指針値を定めている。

表5-1　大気環境測定局測定結果(年間値)

市町村	測定局	用途地域	二酸化硫黄 (SO_2)			一酸化窒素 (NO)			二酸化窒素 (NO_2)		
			年平均値	1時間値の最高値	日平均値の2%除外値	年平均値	1時間値の最高値	日平均値の年間98%値	年平均値	1時間値の最高値	日平均値の年間98%値
			ppm	ppm	ppm	ppm	ppm	ppm	ppm	ppm	ppm
長崎市	小ヶ倉支所	工	0.002	0.032	0.005	0.006	0.105	0.018	0.011	0.065	0.023
	稲佐小学校	住	0.002	0.028	0.005	0.002	0.074	0.010	0.011	0.060	0.024
	北消防署	商	0.002	0.039	0.004	0.006	0.187	0.024	0.017	0.074	0.035
	東長崎支所	商	0.004	0.021	0.007	0.004	0.122	0.016	0.009	0.042	0.017
	三重樫山	未	0.001	0.017	0.003	0.001	0.013	0.001	0.002	0.032	0.006
佐世保市	相浦	商	0.004	0.021	0.006	0.007	0.121	0.019	0.008	0.042	0.017
	大野	商	0.005	0.020	0.009	0.008	0.133	0.024	0.010	0.054	0.022
	早岐	商	0.004	0.046	0.007	0.006	0.107	0.022	0.010	0.063	0.020
	大塔	準	0.004	0.024	0.008	0.009	0.166	0.035	0.015	0.056	0.027
	俵ヶ浦	未	0.002	0.018	0.004	0.000	0.027	0.002	0.006	0.036	0.013
	石岳	未	0.002	0.026	0.005	-	-	-	-	-	-
	柚木	未	0.001	0.014	0.003	0.000	0.079	0.002	0.003	0.033	0.007
諫早市	諫早市役所	商	0.006	0.081	0.011	0.008	0.136	0.026	0.015	0.059	0.026
島原市	島原市役所	商	0.005	0.050	0.010	0.003	0.093	0.010	0.012	0.051	0.023
平戸市	平戸	未	0.001	0.023	0.004	0.002	0.019	0.003	0.003	0.027	0.011
	紐差	未	0.001	0.018	0.003	0.001	0.014	0.002	0.002	0.020	0.008
松浦市	松浦志佐	住	0.002	0.023	0.006	0.001	0.033	0.004	0.005	0.048	0.013
	御厨	未	0.001	0.015	0.003	0.000	0.005	0.001	0.003	0.022	0.007
	上志佐	未	0.001	0.024	0.003	0.001	0.020	0.002	0.002	0.025	0.006
	今福	住	0.001	0.015	0.004	0.001	0.051	0.002	0.004	0.024	0.009
多良見町	多良見町役場	準	0.004	0.035	0.007	0.009	0.440	0.043	0.015	0.135	0.033
川棚町	川棚	住	0.002	0.016	0.004	0.002	0.053	0.007	0.006	0.030	0.013
時津町	時津小学校	住	0.003	0.024	0.006	0.003	0.146	0.017	0.011	0.111	0.026
琴海町	村松	未	0.001	0.024	0.003	0.003	0.099	0.012	0.006	0.040	0.013
西彼町	大串	未	0.001	0.020	0.003	0.003	0.093	0.012	0.005	0.033	0.011
	伊佐浦	未	0.002	0.016	0.006	0.000	0.021	0.001	0.002	0.019	0.006
	面高	未	0.001	0.012	0.002	0.001	0.020	0.002	0.003	0.033	0.008
大島町	大小島	未	0.002	0.013	0.005	0.000	0.022	0.001	0.003	0.027	0.009
大瀬戸町	雪浦	未	0.001	0.024	0.002	0.000	0.041	0.001	0.002	0.024	0.005
	多以良	未	0.001	0.020	0.006	0.000	0.063	0.002	0.004	0.036	0.008
	遠見岳	未	0.001	0.029	0.004	0.001	0.019	0.002	0.002	0.042	0.005
外海町	黒崎中学校	未	0.002	0.019	0.006	0.001	0.018	0.001	0.003	0.044	0.006
	神浦	未	0.003	0.012	0.005	0.001	0.009	0.002	0.002	0.027	0.006
大村市	大村	商	0.001	0.017	0.003	0.003	0.105	0.013	0.006	0.040	0.014
口之津町	口之津	未	0.004	0.023	0.008	0.001	0.012	0.002	0.003	0.021	0.008
田平町	田平	未	0.002	0.024	0.005	0.001	0.017	0.003	0.005	0.039	0.012
福島町	福島	未	0.003	0.012	0.006	0.001	0.015	0.002	0.004	0.032	0.010
鷹島町	鷹島	未	0.001	0.016	0.004	0.001	0.017	0.002	0.004	0.028	0.011
江迎町	江迎	未	0.001	0.020	0.003	0.001	0.023	0.003	0.003	0.021	0.007
鹿町町	鹿町	未	0.001	0.029	0.005	0.001	0.007	0.002	0.003	0.022	0.007
小佐々町	小佐々	未	0.001	0.023	0.004	0.001	0.039	0.006	0.005	0.041	0.011
佐々町	羽須和	未	0.004	0.021	0.008	0.003	0.084	0.011	0.008	0.046	0.016
	木場	未	0.001	0.037	0.004	-	-	-	-	-	-
吉井町	吉井	未	0.002	0.034	0.005	0.001	0.054	0.004	0.005	0.037	0.011
世知原町	世知原	未	0.001	0.021	0.003	0.001	0.029	0.002	0.003	0.026	0.007
環境基準値			-	0.100	0.040	-	-	-	-	-	0.060

窒素酸化物（$NO+NO_2$）				浮遊粒子状物質（SPM）			オキシダント			設置主体
年平均値	1時間値の最高値	日平均値の年間98％値	年平均値 NO_2 $NO+NO_2$	年平均値	1時間値の最高値	日平均値の2％除外値	昼間の1時間値			
							基準超過日数	最高値	最高値年平均	
ppm	ppm	ppm	%	mg／m^3	mg／m^3	mg／m^3	日	ppm	ppm	
0.017	0.141	0.034	65.2	0.025	0.205	0.055	23	0.078	0.037	長崎市
0.013	0.129	0.031	82.8	0.024	0.140	0.053	78	0.107	0.049	〃
0.024	0.225	0.056	73.6	0.026	0.165	0.060	18	0.077	0.036	〃
0.013	0.136	0.031	69.1	0.025	0.172	0.056	105	0.097	0.052	〃
0.003	0.037	0.007	76.7	0.028	0.164	0.055	－	－	－	電源開発松島
0.015	0.147	0.036	55.3	0.030	0.143	0.056	39	0.087	0.043	佐世保市
0.018	0.179	0.045	54.5	0.028	0.456	0.056	44	0.098	0.041	〃
0.016	0.134	0.041	64.4	0.031	0.129	0.061	47	0.093	0.043	〃
0.024	0.202	0.058	62.2	0.032	0.201	0.071	19	0.089	0.037	九州電力松浦
0.006	0.045	0.014	95.1	0.024	0.136	0.057	153	0.117	0.058	〃
－	－	－	－	0.025	0.201	0.057	140	0.121	0.058	〃
0.004	0.112	0.008	89.1	0.023	0.175	0.052	149	0.118	0.059	〃
0.023	0.162	0.049	66.9	0.030	0.173	0.062	70	0.096	0.047	県
0.015	0.129	0.032	79.3	0.030	0.152	0.064	－	－	－	〃
0.005	0.042	0.014	66.5	0.036	0.157	0.065	－	－	－	九州電力松浦
0.003	0.031	0.009	78.1	0.030	0.175	0.055	97	0.109	0.053	〃
0.007	0.081	0.015	79.3	0.025	0.170	0.053	63	0.095	0.047	県
0.003	0.024	0.008	88.0	0.025	0.140	0.052	－	－	－	九州電力松浦
0.003	0.031	0.008	63.7	0.029	0.186	0.056	103	0.110	0.053	〃
0.005	0.073	0.010	80.9	0.028	0.132	0.054	－	－	－	〃
0.023	0.575	0.077	62.4	0.028	0.181	0.063	－	－	－	県
0.009	0.074	0.019	72.6	0.040	0.160	0.082	60	0.097	0.045	〃
0.014	0.191	0.044	75.8	0.021	0.220	0.048	－	－	－	〃
0.009	0.117	0.025	71.3	0.031	0.287	0.062	78	0.099	0.051	〃
0.008	0.126	0.020	60.1	0.025	0.357	0.056	82	0.114	0.048	〃
0.003	0.034	0.007	89.2	0.025	0.251	0.053	103	0.108	0.053	電源開発松島
0.004	0.042	0.010	81.7	0.029	0.197	0.057	88	0.109	0.050	〃
0.004	0.049	0.010	86.9	0.029	0.193	0.061	－	－	－	〃
0.002	0.051	0.006	91.0	0.024	0.156	0.052	128	0.116	0.055	県
0.004	0.099	0.011	88.3	0.023	0.206	0.054	97	0.106	0.052	〃
0.003	0.046	0.006	74.9	0.025	0.141	0.051	－	－	－	電源開発松島
0.004	0.053	0.007	81.2	0.027	0.146	0.062	114	0.113	0.054	〃
0.003	0.032	0.007	78.3	0.024	0.140	0.052	－	－	－	〃
0.009	0.126	0.026	63.7	0.028	0.183	0.061	83	0.099	0.048	県
0.004	0.024	0.009	79.2	0.026	0.134	0.064	－	－	－	九州電力苓北
0.006	0.055	0.014	78.4	0.024	0.195	0.056	51	0.089	0.046	県
0.004	0.037	0.012	79.4	0.014	0.135	0.042	58	0.091	0.046	〃
0.005	0.033	0.013	80.8	0.027	0.184	0.051	－	－	－	電源開発松浦
0.004	0.041	0.009	71.1	0.024	0.177	0.050	－	－	－	〃
0.003	0.026	0.009	80.0	0.028	0.185	0.058	108	0.112	0.053	〃
0.006	0.062	0.016	82.2	0.023	0.152	0.055	139	0.120	0.058	九州電力相浦
0.011	0.107	0.027	74.3	0.020	0.159	0.044	29	0.085	0.037	県
－	－	－	－	0.027	0.133	0.051	－	－	－	九州電力相浦
0.006	0.072	0.016	78.8	0.020	0.180	0.049	51	0.094	0.046	県
0.003	0.044	0.009	75.3	0.025	0.133	0.053	－	－	－	九州電力相浦
－	－	－	－	－	0.20	0.10	－	0.060	－	

表5-2　一般環境大気測定局測定結果（2004年度）

市　町	測定局名	用途地域	非メタン炭化水素（NMHC）			
			年平均値	6～9時3時間平均値		
				年平均値	最 高 値	最 低 値
			(ppmC)	(ppmC)	(ppmC)	(ppmC)
琴 海 町	村　松	未	0.10	0.13	1.41	0.02
松 浦 市	松浦志佐	住	0.12	0.12	0.34	0.04

表6-1　自動車排出ガス測定局測定結果（2004年度）

市　町	測定局名	用途地域	一酸化窒素（NO）			二酸化窒素（NO_2）			窒素酸化物（NO＋NO_2）				一酸化炭素（CO）			非メタン炭化水素（NMHC）			
			年平均値	1時間値の最高値	日平均値の年間98%値	年平均値	1時間値の最高値	日平均値の年間98%値	年平均値	1時間値の最高値	日平均値の年間98%値	年平均 NO_2/NO+NO_2	年平均値	1時間値の最高値	日平均値の2%除外値	6～9時3時間平均値			年平均値
																年平均値	最高値	最低値	
			(ppm)	(ppm)	(ppm)	(ppm)	(ppm)	(ppm)	(ppm)	(ppm)	(ppm)	%	(ppm)	(ppm)	(ppm)	(ppmC)	(ppmC)	(ppmC)	(ppmC)
長崎市	長崎駅前	商	0.068	0.496	0.145	0.044	0.129	0.073	0.111	0.613	0.205	35.4	0.90	5.30	1.70	0.41	2.67	0.04	0.33
	中央橋	商	0.034	0.403	0.085	0.033	0.097	0.049	0.067	0.452	0.126	49.1	0.80	9.70	1.30				
	長崎市役所	商	0.056	0.492	0.112	0.031	0.113	0.049	0.087	0.569	0.151	33.3	1.00	5.70	1.70	0.44	1.3	0.08	0.33
佐世保市	福石	商	0.026	0.185	0.052	0.023	0.078	0.038	0.049	0.223	0.082	50.9	0.70	3.00	1.10	0.37	1.79	0.12	0.31
	日宇	商	0.026	0.334	0.085	0.024	0.092	0.050	0.050	0.406	0.126	48.9	1.00	4.20	1.60	0.32	0.87	0	0.24

表6-2　自動車排出ガス測定局測定結果（2004年度）

市　町	測定局名	用途地域	浮遊粒子状物質（SPM）		
			年平均値	1時間値の最高値	日平均値の2%除外値
			mg／m^3	mg／m^3	mg／m^3
長崎市	長崎駅前	商	0.040	0.164	0.073
	長崎市役所	商	0.042	0.151	0.076
	中央橋	商	0.040	0.205	0.070
佐世保市	福石	商	0.035	0.179	0.069

表7-1　大気環境測定局経年変化

市町村	測定局	用途地域	二酸化硫黄（ppm）					二酸化窒素（ppm）					浮遊粒子状物質（mg／m^3）				
			2000年度	2001年度	2002年度	2003年度	2004年度	2000年度	2001年度	2002年度	2003年度	2004年度	2000年度	2001年度	2002年度	2003年度	2004年度
長崎市	小ヶ倉支所	工	0.004	0.003	0.002	0.002	0.002	0.015	0.017	0.016	0.014	0.011	0.046	0.036	0.031	0.029	0.025
	稲佐小学校	住	0.004	0.003	0.004	0.004	0.002	0.012	0.011	0.010	0.011	0.011	0.028	0.029	0.028	0.025	0.024
	北消防署	商	0.004	0.002	0.002	0.002	0.002	0.017	0.018	0.020	0.018	0.017	0.024	0.031	0.028	0.039	0.026
	東長崎支所	商	0.003	0.003	0.004	0.004	0.004	0.011	0.011	0.009	0.011	0.009	0.032	0.032	0.029	0.025	0.025
	三重樫山	未	0.003	0.003	0.003	0.001	0.001	0.003	0.003	0.003	0.003	0.002	0.033	0.031	0.032	0.028	0.028
佐世保市	相浦	商	0.003	0.003	0.003	0.003	0.004	0.012	0.011	0.012	0.008	0.008	0.023	0.027	0.031	0.035	0.030
	大野	商	0.004	0.004	0.003	0.003	0.005	0.012	0.012	0.011	0.012	0.010	0.024	0.022	0.023	0.024	0.028
	早岐	商	0.005	0.004	0.006	0.004	0.004	0.010	0.013	0.014	0.013	0.010	0.029	0.028	0.027	0.026	0.031
	大塔	準	0.004	0.004	0.004	0.004	0.004	0.017	0.017	0.015	0.016	0.015	0.033	0.034	0.032	0.029	0.032
	俵ヶ浦	未	0.001	0.002	0.001	0.002	0.002	0.005	0.005	0.005	0.005	0.006	0.026	0.028	0.026	0.022	0.024
	石岳	未	0.001	0.002	0.001	0.002	0.002	－	－	－	－	－	0.028	0.029	0.027	0.022	0.025
	柚木	未	0.001	0.001	0.001	0.001	0.001	0.003	0.003	0.003	0.002	0.003	0.025	0.027	0.024	0.022	0.023
諫早市	諫早市役所	商	0.005	0.006	0.005	0.005	0.006	0.015	0.015	0.015	0.016	0.015	0.030	0.033	0.032	0.028	0.030
島原市	島原市役所	商	0.004	0.005	0.005	0.005	0.005	0.014	0.014	0.012	0.013	0.012	0.035	0.037	0.034	0.033	0.030
平戸市	平戸	未	0.004	0.004	0.001	0.002	0.001	0.004	0.003	0.003	0.003	0.003	0.027	0.028	0.032	0.033	0.036
	紐差	未	0.003	0.003	0.000	0.001	0.001	0.003	0.003	0.003	0.003	0.002	0.023	0.023	0.028	0.029	0.030
松浦市	松浦志佐	住	0.002	0.003	0.002	0.003	0.002	0.006	0.006	0.006	0.006	0.005	0.024	0.025	0.023	0.022	0.025
	御厨	未	0.003	0.003	0.001	0.001	0.001	0.003	0.003	0.003	0.003	0.003	0.024	0.026	0.027	0.023	0.025
	上志佐	未	0.003	0.003	0.001	0.001	0.001	0.003	0.003	0.003	0.002	0.002	0.024	0.026	0.027	0.027	0.029
	今福	住	0.004	0.003	0.001	0.001	0.001	0.005	0.005	0.005	0.004	0.004	0.026	0.027	0.028	0.026	0.028
多良見町	多良見町役場	準	0.004	0.004	0.003	0.004	0.004	0.014	0.013	0.013	0.013	0.015	0.030	0.030	0.031	0.027	0.028
川棚町	川棚	住	0.003	0.003	0.003	0.002	0.002	0.007	0.008	0.009	0.007	0.006	0.028	0.032	0.035	0.038	0.040
時津町	時津小学校	住	0.003	0.003	0.002	0.003	0.003	0.011	0.011	0.010	0.011	0.011	0.028	0.030	0.024	0.020	0.021
琴海町	村松	未	0.002	0.000	0.000	0.001	0.001	0.007	0.007	0.007	0.006	0.006	0.031	0.036	0.033	0.028	0.031
西彼町	大串	未	0.000	0.001	0.001	0.001	0.001	0.005	0.005	0.004	0.005	0.005	0.024	0.024	0.024	0.021	0.025
西海町	伊佐浦	未	0.003	0.003	0.003	0.003	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.023	0.026	0.025	0.022	0.025
	面高	未	0.003	0.003	0.003	0.001	0.001	0.004	0.005	0.004	0.003	0.003	0.030	0.033	0.031	0.029	0.029
大島町	大小島	未	0.003	0.003	0.002	0.003	0.002	0.003	0.003	0.003	0.003	0.003	0.028	0.031	0.029	0.028	0.029
大瀬戸町	雪浦	未	0.002	0.002	0.002	0.002	0.001	0.003	0.003	0.002	0.003	0.002	0.027	0.026	0.020	0.023	0.024
	多以良	未	0.001	0.001	0.001	0.001	0.001	0.004	0.004	0.003	0.003	0.004	0.027	0.027	0.025	0.023	0.023
	遠見岳	未	0.003	0.003	0.003	0.002	0.001	0.003	0.003	0.003	0.003	0.002	0.025	0.032	0.027	0.024	0.025
外海町	黒崎中学校	未	0.003	0.003	0.003	0.003	0.002	0.003	0.003	0.003	0.002	0.003	0.026	0.029	0.028	0.025	0.027
	神浦	未	0.002	0.003	0.002	0.003	0.003	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.026	0.028	0.029	0.026	0.024

大村市	大村	商	0.001	0.000	0.000	0.001	0.001	0.008	0.010	0.010	0.008	0.006	0.022	0.026	0.025	0.028	0.028
口之津町	口之津	未	0.004	0.004	0.004	0.004	0.004	0.003	0.003	0.003	0.003	0.003	0.031	0.032	0.029	0.028	0.026
田平町	田平町	未	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.004	0.004	0.004	0.004	0.005	0.025	0.023	0.023	0.022	0.024
福島町	福島	未	0.002	0.002	0.002	0.003	0.003	0.004	0.003	0.003	0.004	0.004	0.016	0.019	0.018	0.017	0.014
鷹島町	鷹島	未	0.004	0.004	0.001	0.001	0.001	0.004	0.004	0.004	0.004	0.004	0.027	0.029	0.032	0.031	0.027
江迎町	江迎	未	0.003	0.003	0.001	0.001	0.001	0.003	0.003	0.003	0.003	0.003	0.023	0.025	0.030	0.023	0.024
鹿町町	鹿町	未	0.004	0.003	0.001	0.001	0.001	0.003	0.003	0.003	0.003	0.003	0.025	0.025	0.028	0.027	0.028
小佐々町	小佐々	未	0.001	0.001	0.001	0.001	0.001	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.022	0.027	0.028	0.023	0.023
佐々町	羽須和	未	0.003	0.003	0.003	0.003	0.004	0.008	0.009	0.008	0.009	0.008	0.019	0.018	0.023	0.019	0.020
	木場	未	0.003	0.003	0.001	0.001	0.001	－	－	－	－	－	0.025	0.027	0.028	0.027	0.027
吉井町	吉井	未	0.002	0.002	0.002	0.003	0.002	0.006	0.005	0.005	0.006	0.005	0.021	0.021	0.020	0.019	0.020
世知原町	世知原	未	0.003	0.003	0.001	0.001	0.001	0.004	0.004	0.003	0.003	0.003	0.024	0.024	0.025	0.024	0.025

表7－2　一般環境大気測定局経年変化

市町村	測定局	用途地域	非メタン炭化水素　（NMHC）										測定方法
			年平均値（ppmC）					6～9時3時間平均値（ppmC）					
			2000年度	2001年度	2002年度	2003年度	2004年度	2000年度	2001年度	2002年度	2003年度	2004年度	
琴海町	村松	未	0.12	0.10	0.09	0.10	0.10	0.17	0.15	0.13	0.14	0.13	直
松浦市	松浦志佐	住	0.10	0.17	0.06	0.13	0.12	0.10	0.06	0.07	0.13	0.12	直

直：直接法測定方式

表8－1　自動車排出ガス測定局経年変化

市町村	測定局	用途地域	二酸化窒素（ppm）										一酸化炭素　（ppm）				
			年平均値					日平均値の年間98%値					年平均値				
			2000年度	2001年度	2002年度	2003年度	2004年度	2000年度	2001年度	2002年度	2003年度	2004年度	2000年度	2001年度	2002年度	2003年度	2004年度
長崎市	長崎駅	商	0.042	0.048	0.045	0.043	0.044	0.065	0.073	0.073	0.070	0.073	1.1	1.2	1.0	1.0	0.9
	中央橋	商	0.034	0.037	0.035	0.033	0.033	0.051	0.052	0.052	0.052	0.049	1.0	1.0	0.9	0.9	0.8
	長崎市役所	商	0.035	0.036	0.031	0.029	0.031	0.053	0.054	0.051	0.049	0.049	1.3	1.3	1.1	1.1	1.0
佐世保市	福石	商	0.031	0.033	0.038	0.033	0.023	0.045	0.049	0.061	0.063	0.038	1.0	1.0	0.9	0.8	0.7
	日宇	商	0.030	0.031	0.021	0.029	0.024	0.047	0.047	0.037	0.052	0.050	1.2	1.3	1.1	1.1	1.0

表8－2　自動車排出ガス測定局経年変化

市町村	測定局	用途地域	非メタン炭化水素（NMHC）										測定方法
			年平均値（ppmC）					6～9時3時間平均値（ppmC）					
			2000年度	2001年度	2002年度	2003年度	2004年度	2000年度	2001年度	2002年度	2003年度	2004年度	
長崎市	長崎駅前	商	0.41	0.44	0.37	0.36	0.33	0.53	0.56	0.43	0.44	0.41	直
	長崎市役所	商	0.41	0.41	0.37	0.36	0.33	0.53	0.54	0.47	0.48	0.44	直
佐世保市	福石	商	0.33	0.55	0.38	0.32	0.31	0.42	0.69	0.42	0.37	0.37	直
	日宇	商	0.70	0.26	0.38	0.22	0.24	0.80	0.34	0.44	0.29	0.32	直

直：直接法測定方式

表９　火力発電所煙源排出基準対比表(2004年度)

事業所名	硫黄酸化物排出量（$_{N}m^3/h$）		硫黄酸化物濃度（ppm）		窒素酸化物排出量（$_{N}m^3/h$）		窒素酸化物濃度（ppm）	
	1時間値最高値	環境保全協定値	1時間値最高値	環境保全協定値	1時間値最高値	環境保全協定値	最高値	環境保全協定値
九州電力相浦1号機							154（1時間値）	170（1時間値）
九州電力相浦2号機							133（1時間値）	150（1時間値）
九州電力相浦合計値	288	828						
電源開発松島1号機							264（日平均値）	300（日平均値）
電源開発松島2号機							255（日平均値）	300（日平均値）
電源開発松島合計値	526	804						
九州電力松浦1号機	122	221	57	100	118	139	53（1時間値）	60（1時間値）
九州電力松浦2号機	－	123	－	42	－	111	－	36（1時間値）
電源開発松浦1号機	191	305	66	100	156	191	51（1時間値）	60（1時間値）
電源開発松浦2号機	181	235	67	80	161	186	52（1時間値）	60（1時間値）

長崎県における酸性雨調査(2004 年度)

横瀬 健・森 淳子

Acidity and Ion Concentrations in Rain Water (2004)

Takeshi Yokose and Atsuko MORI

Key words: acid rain, pH, non sea salt sulfate
キーワード: 酸性雨, pH, 非海塩性硫酸イオン

はじめに

化石燃料の燃焼により大気中に排出された硫黄酸化物や窒素酸化物は直接大気汚染の原因となるばかりでなく、それらの一部は大気中で硫酸および硝酸等の二次生成物質に酸化される。これらの二次生成物質(ガス, エアロゾル)は雨滴生成過程中で核として捕捉された後、レインアウトやウォシュアウト等により降水に取り込まれ、酸性雨の原因となっている。

このような酸性雨問題に対処するため、長崎県においては昭和 58 年から長崎市式見及び旧大村保健所で酸性雨調査を開始した[1)~9)]。

平成 9 年度からは旧大村保健所の測定点は、諫早市の県央保健所に移動して調査を継続している。

また、環境省の委託を受けて離島の国設対馬酸性雨測定所及び国設五島酸性雨測定所においても酸性雨調査を実施している。

本報告では、長崎県が実施した長崎市式見及び県央保健所における平成 16 年度の調査結果について報告する。

調査地点の概要

県内の酸性雨測定地点を図 1 に示す。各測定地点の概要は以下に示すとおりである。

1,長崎市式見

長崎市の中心部から北西の郊外に位置し、周囲は山林及び田園地帯であり、測定地点の北東3㎞及び南東約 4 ㎞には住宅地が存在する。Na^+や Cl^-等の海塩粒子濃度の大きな要因となる海岸までの距離は西方約 1 ㎞である。

2,県央保健所

平成10 年 1 月から測定を開始した。諫早市中心部の北方に位置し、調査地点の西側は住宅地が広がっている。東側は 12 時間交通量が約 13, 000 台である国道 34 号線を経て田園地帯となっている。

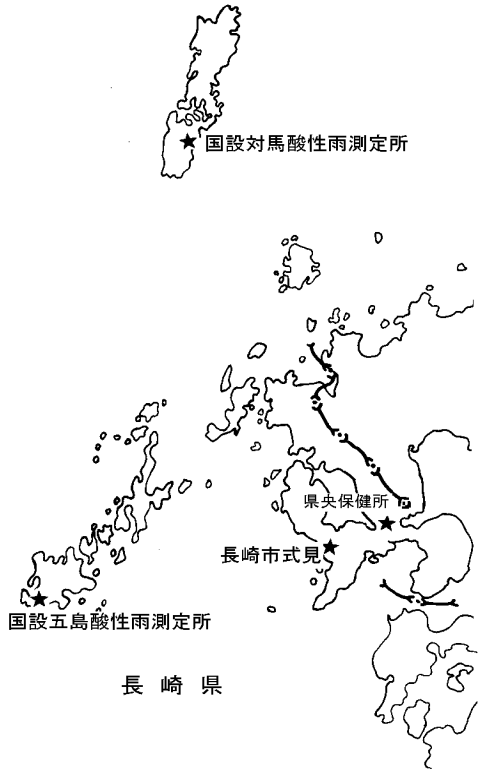


図 1 酸性雨測定地点

調査方法

雨水の採取は小笠原計器(株)製US-400をベースとして、10 検体の一降雨試料が連続して採取できるように改造した雨水採取器により実施した。

測定項目は貯水量, pH, 電気伝導率(EC), SO_4^{2-}, NO_3^-, Cl^-, NH_4^+, Ca^{2+}, Mg^{2+}, K^+, Na^+の 11 項目であり、測定方法及び定量下限値等は表 1 に示すとおりである。なお、降水量については、貯水量から計算した。

調 査 結 果

pH及び各イオン濃度の平均値は、貯水量により重み付けを行って計算した(加重平均値)。

また沈着量は、加重平均値に貯水量を乗じて求めた。

式見においては、雨水捕集装置の作動が一時的に異常な状態が見られた。その特記事項を以下に示す。

・9/6 23:59～9/7 18:47 までの雨でOFがあり、全量補修できなかった。また、降水量はアメダス(長崎)より求めた。

・9/16 17:52～9/17 00:07 までの雨と 9/23 15:00～9/24 13:00 までの雨が混合し捕集された。全量捕集はしているので、月ごとの計算には支障ない。降雨時間はアメダス(長崎)より求めた。

・10/18 15:30～10/21 00:32 までの雨で機器の不良のためOFあり。降水量はアメダス(長崎)より求めた。

(1)pH及び酸性雨出現頻度

pHの出現頻度及び便宜上、酸性雨の定義をpH5.6以下とした酸性雨出現率を表 2 に示す。式見における平成 16 年度の酸性雨出現率は 97.8%, 県央保健所では 100%であった。なお、15 年度は式見で 95.9%、県央保健所で 98.6%であった。

平成 16 年度pHの年平均値は式見 4.69、県央保健所 4.80 であり、15 年度とほぼ同様の値であった。

また、降水を中和する要因となる黄砂について、平成15,16年度における黄砂観測日を表3に示す。平成16 年度は 5 日間、15 年度は 7 日間観測された。

(2)pHの経月変化

平成16年度の降水量の経月変化を図2に、pHの月別平均値の経月変化を図 3 に示す。例年、pHの平均値は雨の多い夏季に高く、雨の少ない冬季には低い傾向を示すが、平成 16 年度も式見、県央ともに降水量の多い月はpHが高く、少ない月はpHが低い傾向がみられた。

(3)イオン成分濃度

表 4 にイオン成分年平均値を示す。平成 16 年度の年降水量は式見 1,528mm で県央保健所 2,059mm であった。

イオン成分濃度をみると、海岸に近い式見においては Cl^-及び Na^+, SO_4^{2-}, Ca^{2+}が県央保健所に比べ高い結果となっている。また、NO_3^-,Mg^{2+},K^+についても同様に式見の値が高く、NH_4^+については式見と県央保健所における結果はあまり変わらなかった。

15年度と16年度の値を比較すると、式見、県央保健所ともに16年度はNa^+, Cl^-の濃度が15年度に比べ高く、海塩由来成分の影響が示唆された。また、式見においてNO_3^-の値が16年度は増加しており、県央保健所においては、NH_4^+の値が16年度は減少していた。

次に, Na^+のすべてが海塩由来であると仮定し、海水中の濃度比を用いてnss- SO_4^{2-}及びnss- Ca^{2+}を計算してSO_4^{2-}及びCa^{2+}に占める非海塩性成分の割合を求めると各々、16 年度は式見 73%, 66%, 県央保健所 76%, 64%であり、15 年度に比べ低くなっていた。

表 1 測定方法及び検出下限値

項目	測定方法	検出下限値	定量下限値
pH	ガラス電極法	0.01(測定限界)	
EC	導電率計による方法	0.01 μs/cm	
SO_4^{2-}	イオンクロマトグラフ法	0.017 μg/ml	0.055 μg/ml
NO_3^-	”	0.010 μg/ml	0.034 μg/ml
Cl^-	”	0.003 μg/ml	0.008 μg/ml
NH_4^+	”	0.015 μg/ml	0.05 μg/ml
Na^+	”	0.009 μg/ml	0.03 μg/ml
K^+	”	0.006 μg/ml	0.02 μg/ml
Ca^{2+}	”	0.023 μg/ml	0.08 μg/ml
Mg^{2+}	”	0.002 μg/ml	0.005 μg/ml

表 2 pHの出現頻度及び酸性雨出現率

pH階級	式見		県央保健所	
	H15	H16	H15	H16
2.61～2.99	0	0	0	0
3.00～3.59	0	0	0	0
3.60～3.99	6	9	1	4
4.00～4.59	38	38	26	16
4.60～4.99	31	23	26	26
5.00～5.60	19	19	16	17
5.61～5.99	2	2	1	0
6.00～6.59	2	0	0	0
6.60～6.99	0	0	0	0
7.00～	0	0	0	0
ｻﾝﾌﾟﾙ数	98	91	70	63
酸性雨出現率(%)	95.9	97.8	98.6	100
pH＜4.00(%)	6.1	9.9	1.4	6.3
最低pH	3.64	3.69	3.97	3.72
最高pH	6.25	5.70	5.96	5.44
加重平均pH	4.73	4.69	4.78	4.80

表 3 平成 15,16 年度の黄砂観測日

年度	平成15年度	平成16年度
黄砂発生日	4月13日	4月2日
	3月11日	4月3日
	3月12日	4月21日
	3月15日	4月22日
	3月16日	4月23日
	3月30日	
	3月31日	
合計	7日間	5日間

※長崎海洋気象台調べ

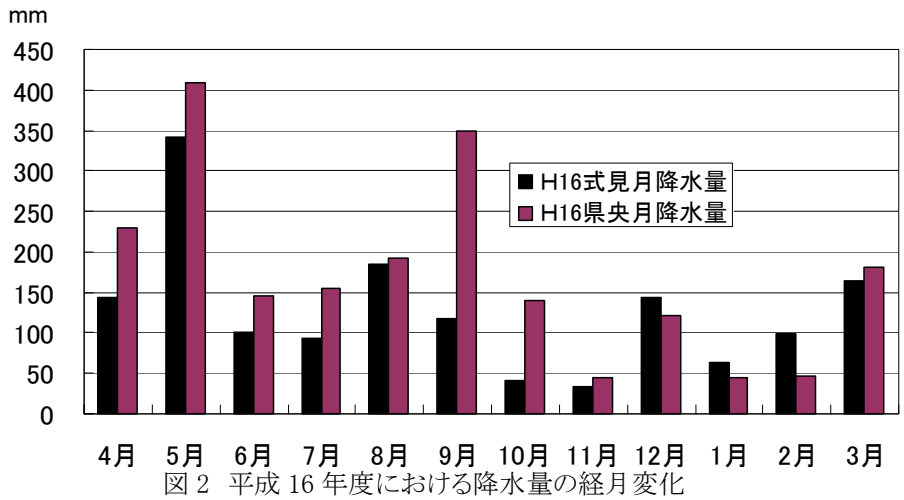


図 2　平成 16 年度における降水量の経月変化

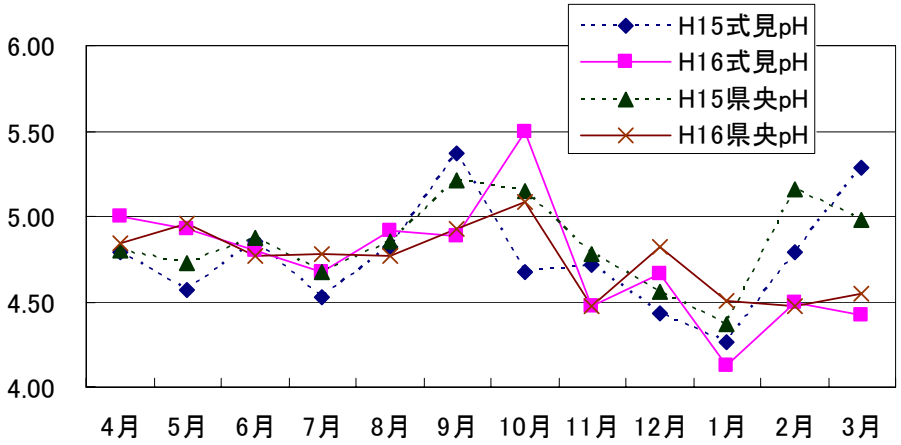


図 3　平成 15, 16 年度におけるpHの経月変化

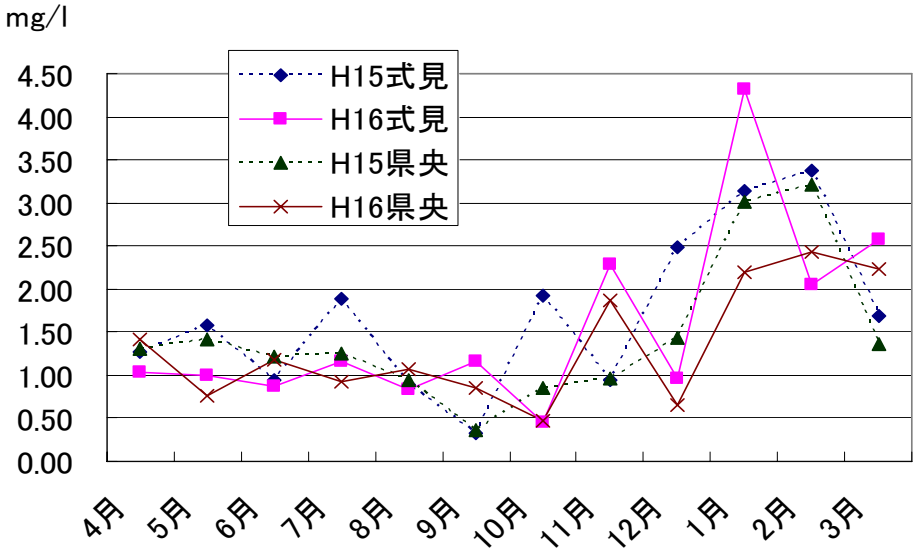


図 4　平成 15, 16 年度における nss− SO_4^{2-}濃度の経月変化

表 5 にイオン成分月平均値を示す。また図4には、表 5 において、人為的汚染の指標とされる nss- SO_4^{2-}の月変化を示す。nss- SO_4^{2-}濃度は夏季に低く、冬季に高い傾向がみられ、15 年度においては県央,式見ともに大きな差はみられなかったが、16 年度は式見において、県央よりも高い値となった。

(4)イオン成分沈着量

表 6 にイオン成分年沈着量を示す。式見では海塩粒子の影響を受け Cl^-が最も多く、次いで Na^+,SO_4^{2-}の順であった。県央保健所では、Cl^-, SO_4^{2-}, Na^+の順であった。表 7 に月別のイオン成分沈着量を示す。

ま と め

(1)平成 16 年度における酸性雨の出現頻度は 95%以上であり、12 年度のような黄砂の影響は認められなかった。

(2)pHの平均値は式見で 4.69、県央保健所で 4.80 であり、両測定地点で近い値が得られた。全国の降水のpHは 4.4 と 5.0 の間に集中している[9]ことと照らし合わせると、いずれも全国の降水pHの範囲内であった。

(3)pH4.00 以下の強酸性雨の出現頻度は、式見における結果が県央保健所に比べ高くなっていた。

(4)トータル SO_4^{2-}及びトータル Ca^{2+}濃度に占める海塩以外の発生源に起因するものの割合は、式見,県央とも 15 年度と比べ大きな差はみられなかった。

参 考 文 献

1) 吉村 賢一郎, 他:酸性雨調査(第 1 報), 長崎県衛生公害研究所報, 25, 91～96(1983)
2) 吉村 賢一郎, 他:酸性雨調査(第 2 報), 長崎県衛生公害研究所報, 26, 130～134(1984)
3) 吉村 賢一郎, 他:酸性雨調査(第 3 報), 長崎県衛生公害研究所報, 27, 29～36(1985)
4) 吉村 賢一郎, 他:酸性雨調査(第 4 報), 長崎県衛生公害研究所報, 28, 15～24(1986)
5) 釜谷 剛, 他:長崎県における酸性雨調査(1999 年度), 長崎県衛生公害研究所報, 45, 37～39(1999)
6) 釜谷 剛, 他:長崎県における酸性雨調査(2000 年度), 長崎県衛生公害研究所報, 46, 32～36(2000)
7) 山口 顕徳, 他:長崎県における酸性雨調査(2001 年度), 長崎県衛生公害研究所報, 47, 41～46(2001)
8) 山口 顕徳, 他:長崎県における酸性雨調査(2002 年度), 長崎県衛生公害研究所報, 48, 66～70(2002)
9) 山口 顕徳, 他:長崎県における酸性雨調査(2003 年度), 長崎県衛生公害研究所報, 49, 52～57(2003)
10) 酸性雨対策検討会:総合とりまとめ結果の評価と残された課題, 酸性雨対策調査総合とりまとめ, 202～215(2004 年 6 月)

表 4 平成 15,16 年度におけるイオン成分年平均値

調査地点	年度	年降水量 (mm)	pH	SO_4^{2-} (a)	nss-SO_4^{2-} (b)	b/a*100 (%)	NO_3^-	Cl^-	NH_4^+	Ca^{2+} (c)	nss-Ca^{2+} (d)	d/c*100 (%)	Na^+	Mg^{2+}	K^+	H^+
式見	H15	1755	4.73	1.80	1.38	77	0.86	2.92	0.27	0.23	0.16	72	1.68	0.21	0.14	0.019
	H16	1528	4.69	1.89	1.38	73	1.01	3.56	0.22	0.22	0.15	66	2.04	0.25	0.13	0.021
県央保健所	H15	2024	4.78	1.50	1.28	85	0.80	1.48	0.34	0.16	0.12	79	0.87	0.11	0.08	0.017
	H16	2059	4.80	1.47	1.12	76	0.71	2.45	0.21	0.15	0.09	64	1.41	0.18	0.09	0.016

表 5 平成 15,16 年度におけるイオン成分月平均値

単位:mg/l

調査地点	年度	項目	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月	3月	イオン成分年平均値及び年降水量
式見	H15	SO_4^{2-}	1.43	1.67	1.38	2.24	1.03	0.96	2.50	1.06	4.65	4.80	4.54	2.35	1.80
		nss-SO_4^{2-}	1.27	1.58	0.93	1.89	0.89	0.32	1.93	0.94	2.49	3.14	3.37	1.68	1.38
		NO_3^-	0.67	0.80	0.63	1.40	0.64	0.15	1.49	0.54	1.61	1.89	1.92	0.86	0.86
		Cl^-	1.02	0.67	2.96	2.03	0.94	5.07	3.94	0.81	16.61	12.04	7.90	4.99	2.92
		NH_4^+	0.23	0.27	0.25	0.48	0.22	0.11	0.36	0.09	0.28	0.39	0.63	0.21	0.27
		Ca^{2+}	0.16	0.12	0.13	0.14	0.06	0.14	0.44	0.09	0.56	0.50	1.08	0.73	0.23
		nss-Ca^{2+}	0.13	0.11	0.06	0.09	0.04	0.05	0.35	0.07	0.23	0.25	0.90	0.63	0.16
		Na^+	0.64	0.39	1.78	1.38	0.56	2.54	2.28	0.48	8.63	6.61	4.67	2.66	1.68
		Mg^{2+}	0.10	0.06	0.21	0.15	0.07	0.29	0.31	0.07	1.06	0.83	0.63	0.36	0.21
		K^+	0.11	0.09	0.12	0.13	0.07	0.13	0.23	0.06	0.40	0.40	0.38	0.19	0.14
		H^+	0.016	0.027	0.014	0.030	0.015	0.004	0.021	0.019	0.037	0.054	0.016	0.005	0.019
		降水量mm	238	103	288	229	303	93	19	196	46	41	89	109	1755
	H16	SO_4^{2-}	1.45	1.13	1.09	1.62	2.13	1.35	0.52	2.56	1.13	7.52	2.27	3.10	1.89
		nss-SO_4^{2-}	1.03	1.00	0.88	1.16	0.83	1.17	0.44	2.29	0.97	4.32	2.04	2.58	1.38
		NO_3^-	0.58	0.70	1.08	0.95	0.62	0.57	0.47	1.16	1.08	3.30	1.05	1.95	1.01
		Cl^-	2.79	0.92	1.34	2.98	9.07	1.37	0.61	1.99	1.16	22.11	1.55	3.97	3.56
		NH_4^+	0.16	0.19	0.25	0.23	0.18	0.12	0.06	0.19	0.11	0.55	0.22	0.43	0.22
		Ca^{2+}	0.22	0.15	0.15	0.18	0.26	0.13	0.08	0.23	0.15	0.78	0.23	0.37	0.22
		nss-Ca^{2+}	0.16	0.13	0.12	0.11	0.07	0.11	0.07	0.19	0.13	0.29	0.19	0.29	0.15
		Na^+	1.70	0.54	0.84	1.83	5.18	0.71	0.30	1.08	0.62	12.78	0.91	2.09	2.04
		Mg^{2+}	0.21	0.09	0.13	0.24	0.56	0.13	0.05	0.17	0.09	1.43	0.14	0.25	0.25
		K^+	0.13	0.09	0.10	0.12	0.18	0.22	0.06	0.09	0.04	0.50	0.07	0.09	0.13
		H^+	0.010	0.012	0.016	0.021	0.012	0.013	0.003	0.034	0.022	0.074	0.032	0.038	0.021
		降水量mm	144	343	101	94	185	118	40	33	144	64	98	164	1528
県央保健所	H15	SO_4^{2-}	1.41	1.47	1.43	1.45	1.01	1.15	0.94	1.03	1.54	3.79	4.12	1.68	1.50
		nss-SO_4^{2-}	1.30	1.41	1.21	1.26	0.94	0.37	0.85	0.96	1.43	3.01	3.22	1.36	1.28
		NO_3^-	0.93	0.74	0.77	0.97	0.51	0.23	0.77	0.49	0.84	1.67	1.87	0.71	0.80
		Cl^-	0.66	0.53	1.40	1.26	0.44	5.97	0.70	0.54	0.86	5.19	5.92	2.12	1.48
		NH_4^+	0.44	0.45	0.50	0.30	0.25	0.10	0.32	0.20	0.23	0.59	0.59	0.21	0.34
		Ca^{2+}	0.15	0.08	0.09	0.07	0.07	0.17	0.15	0.10	0.11	0.34	1.04	0.39	0.16
		nss-Ca^{2+}	0.13	0.07	0.05	0.04	0.06	0.05	0.14	0.08	0.09	0.22	0.91	0.34	0.12
		Na^+	0.44	0.22	0.86	0.76	0.25	3.13	0.37	0.30	0.46	3.11	3.61	1.28	0.87
		Mg^{2+}	0.06	0.03	0.10	0.09	0.04	0.38	0.07	0.05	0.06	0.39	0.51	0.19	0.11
		K^+	0.07	0.06	0.08	0.05	0.05	0.15	0.07	0.06	0.12	0.26	0.28	0.13	0.08
		H^+	0.016	0.019	0.014	0.021	0.014	0.006	0.007	0.017	0.027	0.043	0.007	0.010	0.017
		降水量mm	145	132	314	495	346	68	13	211	33	47	91	128	2024
	H16	SO_4^{2-}	1.56	0.84	1.27	1.13	1.66	1.71	0.48	2.11	0.73	5.13	2.73	2.47	1.47
		nss-SO_4^{2-}	1.42	0.77	1.17	0.93	1.08	0.85	0.46	1.87	0.66	2.20	2.43	2.23	1.12
		NO_3^-	0.59	0.68	0.64	0.89	0.66	0.39	0.26	1.05	0.72	1.85	1.70	1.19	0.71
		Cl^-	1.05	0.42	0.66	1.38	4.03	6.08	0.30	1.76	0.55	19.05	1.98	1.69	2.45
		NH_4^+	0.24	0.17	0.22	0.17	0.26	0.16	0.09	0.24	0.11	0.36	0.53	0.36	0.21
		Ca^{2+}	0.21	0.10	0.10	0.10	0.12	0.16	0.06	0.15	0.10	0.60	0.23	0.23	0.15
		nss-Ca^{2+}	0.19	0.09	0.09	0.07	0.03	0.03	0.05	0.11	0.09	0.15	0.18	0.19	0.09
		Na^+	0.56	0.27	0.38	0.81	2.32	3.44	0.07	0.99	0.29	11.68	1.22	0.97	1.41
		Mg^{2+}	0.09	0.06	0.06	0.11	0.28	0.41	0.03	0.13	0.05	1.30	0.16	0.14	0.18
		K^+	0.09	0.07	0.08	0.10	0.09	0.12	0.01	0.04	0.02	0.47	0.12	0.08	0.09
		H^+	0.014	0.011	0.017	0.017	0.017	0.012	0.008	0.034	0.015	0.031	0.034	0.028	0.016
		降水量mm	229	409	146	156	192	349	140	45	122	44	47	180	2059

表 6 平成 15,16 年度におけるイオン成分年沈着量

単位:mg/m²/年

調査地点	年度	年降水量 (mm)	SO_4^{2-}	nss-SO_4^{2-}	NO_3^-	Cl^-	NH_4^+	Ca^{2+}	nss-Ca^{2+}	Na^+	Mg^{2+}	K^+	H^+
式見	H15	1755	3155	2417	1504	5131	474	401	289	2944	369	238	32.6
	H16	1528	2895	2113	1551	5447	333	344	225	3117	383	198	31.5
県央保健所	H15	2024	3043	2600	1629	2998	686	319	252	1766	232	168	33.5
	H16	2059	3031	2303	1458	5041	432	304	193	2900	375	185	32.9

表 7 平成 15,16 年度におけるイオン成分月別沈着量

単位:mg/m²/月

調査地点	年度	項目	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月	3月	イオン成分年沈着量及び年降水量
式見	H15	SO_4^{2-}	340	173	398	514	312	89	49	207	214	198	406	255	3155
		nss-SO_4^{2-}	302	163	269	435	269	30	37	184	114	130	301	183	2417
		NO_3^-	158	82	182	322	194	14	29	106	74	78	172	94	1504
		Cl^-	243	69	854	465	283	474	76	159	762	496	707	542	5131
		NH_4^+	54	28	71	111	67	11	7	18	13	16	57	23	474
		Ca^{2+}	37	12	37	33	19	14	8	18	26	21	96	79	401
		nss-Ca^{2+}	31	11	17	21	13	4	7	14	11	10	81	68	289
		Na^+	152	40	512	316	171	238	44	95	396	272	418	289	2944
		Mg^{2+}	23	6	61	34	20	27	6	14	49	34	57	39	369
		K^+	27	10	35	29	21	12	4	11	18	16	34	21	238
		H^+	3.83	2.80	4.02	6.78	4.60	0.40	0.42	3.79	1.70	2.24	1.47	0.57	32.6
		降水量mm	238	103	288	229	303	93	19	196	46	41	89	109	1755
	H16	SO_4^{2-}	210	389	110	151	393	158	21	85	163	482	223	509	2895
		nss-SO_4^{2-}	148	342	89	108	153	137	18	76	140	276	201	423	2113
		NO_3^-	83	240	109	88	115	67	19	39	157	212	103	320	1551
		Cl^-	402	315	136	279	1675	161	24	66	168	1415	152	651	5447
		NH_4^+	22	64	26	22	32	14	2	6	16	35	22	71	333
		Ca^{2+}	32	50	15	17	49	16	3	8	22	50	23	60	344
		nss-Ca^{2+}	22	43	12	10	12	12	3	6	19	19	19	47	225
		Na^+	246	186	85	172	957	84	12	36	90	818	89	343	3117
		Mg^{2+}	30	30	13	22	104	15	2	6	14	92	14	41	383
		K^+	19	31	10	11	33	26	2	3	6	32	7	16	198
		H^+	1.43	4.09	1.60	2.00	2.25	1.55	0.13	1.13	3.12	4.77	3.18	6.28	31.5
		降水量mm	144	343	101	94	185	118	40	33	144	64	98	164	1528
県央保健所	H15	SO_4^{2-}	204	194	449	717	349	79	13	218	51	179	376	215	3043
		nss-SO_4^{2-}	188	187	381	623	327	25	11	202	47	143	293	174	2600
		NO_3^-	135	97	243	478	178	16	10	104	27	79	170	90	1629
		Cl^-	96	69	439	625	153	409	9	113	28	246	540	271	2998
		NH_4^+	64	60	156	150	87	7	4	42	8	28	54	27	686
		Ca^{2+}	21	10	27	36	26	11	2	20	4	16	95	50	319
		nss-Ca^{2+}	19	9	17	22	22	3	2	18	3	10	83	44	252
		Na^+	64	29	271	377	86	215	5	63	15	147	330	164	1766
		Mg^{2+}	9	4	31	45	13	26	1	12	2	19	47	24	232
		K^+	10	8	24	24	19	10	1	13	4	12	26	16	168
		H^+	2.27	2.50	4.25	10.53	4.92	0.42	0.09	3.55	0.90	2.04	0.637	1.33	33.5
		降水量mm	145	132	314	495	346	68	13	211	33	47	91	128	2024
	H16	SO_4^{2-}	358	343	185	176	319	597	67	96	89	225	129	447	3031
		nss-SO_4^{2-}	326	316	171	144	207	296	65	84	80	96	115	403	2303
		NO_3^-	134	278	93	139	128	137	37	47	89	81	80	215	1458
		Cl^-	240	170	97	214	775	2121	42	79	67	837	94	304	5041
		NH_4^+	56	71	33	26	50	54	13	11	13	16	25	65	432
		Ca^{2+}	48	40	15	16	23	56	8	7	13	26	11	41	304
		nss-Ca^{2+}	43	36	12	11	6	10	8	5	11	7	8	35	193
		Na^+	129	109	56	126	446	1199	9	45	36	513	58	174	2900
		Mg^{2+}	20	25	9	17	54	145	4	6	6	57	8	26	375
		K^+	21	30	12	16	18	42	1	2	3	21	6	14	185
		H^+	3.30	4.50	2.50	2.58	3.30	4.15	1.15	1.53	1.85	1.38	1.599	5.09	32.9
		降水量mm	229	409	146	156	192	349	140	45	122	44	47	180	2059

長崎県地域防災計画に係る環境放射能調査（2004 年度）

平 良 文 亨 ・ 谷 村 義 則

Radioactivity Survey Data in Nagasaki Prefectural Disaster Prevention Plan (2004)

Yasuyuki TAIRA and Yoshinori TANIMURA

Key Words: radioactivity, air dose rate, γ -ray spectrometer
キーワード: 放射能，空間線量率，γ線スペクトロメータ

は じ め に

「長崎県地域防災計画（原子力災害対策編）」（平成 13 年５月策定、平成１６年５月修正）に基づき原子力施設からの放射性物質又は放射線の放出による周辺環境への影響評価に資する観点から、平成 13 年度より平常時の環境放射能(線)モニタリング（平成 14 年度から積算線量測定を追加）を開始した。

本報では、平成１６年度の調査結果について報告する。

調 査 内 容 及 び 測 定 方 法

１　調査内容

調査内容について表１に示す。

表１　調査内容について

測定区分	試料名	試料数	採 取 場 所
空間線量率		70	鷹島町阿翁、阿翁浦、日比地区
積算線量		12	鷹島町阿翁、阿翁浦、日比地区
Ge 半導体検出器による核種分析	浮遊じん	2	鷹島町阿翁地区
	蛇口水	1	鷹島町阿翁浦地区
	原水	1	鷹島町日比地区
	土壌	1	鷹島町阿翁地区
	精米	1	鷹島町里免
	トラフグ	1	鷹島町阿翁浦地区(購入地)
	カジメ	1	鷹島町阿翁浦地区(購入地)

２　試料の調製及び測定方法

積算線量測定に用いるガラス素子は、400℃、１時間加熱処理し（再生処理）、設置前に 70℃、１時間乾燥後、室温で初期値を登録した。

核種分析に用いる浮遊じんは、ﾊｲﾎﾞﾘｳﾑｴｱｻﾝﾌﾟﾗｰでろ紙上に採取し、Ｕ－８容器の底の内径に合わせて切り取り、浮遊じん付着面を底に向けて詰め、測定用試料とした。

蛇口水は阿翁浦漁協の水道水を、原水は鷹島ダムから各々約 20ℓ採取し、濃縮してＵ－８容器に詰め、測定用試料とした。

土壌は、上層（0～5cm）について採取し、乾燥後篩にかけて Ｕ－８容器に詰め、測定用試料とした。

精米は、2ℓのマリネリ容器に詰め、測定用試料とした。

トラフグ、カジメは可食部を灰化して Ｕ－８容器に詰め、測定用試料とした。

測 定 条 件

１　空間放射線測定

サーベイメータ（下記）により測定

ｼﾝﾁﾚｰｼｮﾝｻｰﾍﾞｲﾒｰﾀ：ALOKA 製 TCS-171
検出器：NaI(Tl)ｼﾝﾁﾚｰﾀ 25.4φ×25.4mm
基準線源：Cs-137 No.2591, Ba-133 No.452

２　積算線量測定

蛍光ガラス線量計リーダ（下記）により測定

蛍光ｶﾞﾗｽ線量計ｼｽﾃﾑ：旭ﾃｸﾉｸﾞﾗｽ製 FGD-201
ｶﾞﾗｽ線量計：SC-1
線量表示範囲：1μGy～10Gy/1μSv～10Sv

３　核種分析

ゲルマニウム半導体検出器（下記）により測定

多重波高分析装置 ： SEIKO EG&G 製 MCA7800
Ge 半導体検出器 ： ORTEC 製 GEM-15180-P
遮蔽体 ： 鉛ブロック製 検出部 115mm
分解能 ： FWHM=1.65keV

調 査 結 果

平成１６年度の調査結果を表２～表８に示す。

１　空間線量率

鷹島町（阿翁、阿翁浦、日比地区）の１０地点における線量率範囲は 26～70nGy/h、年間平均値は 35～59nGy/h で過去の測定値と同じ水準であった（図１、表２）。

２　積算線量

監視調査地域内の３地点（阿翁地区集会所、阿翁浦地区集会所、鷹島ダム）における測定値は 0.13～0.17mGy/92 日であった（表３）。

3　核種（^{131}I、^{137}Cs）分析

(1)　浮遊じん

阿翁地区で年２回採取し測定したが、人工核種の ^{131}I と ^{137}Cs は検出されなかった(表４)。

(2)　陸水

阿翁浦漁協蛇口水と鷹島ダムの原水をそれぞれ約 20ℓを採取し測定したが、人工核種の ^{131}I と ^{137}Cs は検出されなかった（表５）。

(3)　土壌

阿翁地区モンゴル村の丘の頂上で上層（0～5cm）を採取し測定したが、人工核種の ^{137}Cs が 1100mBq/kg 乾土検出されたが、^{131}I は検出されなかった（表６）。

(4)　精米

鷹島町里免で収穫されたものを購入し測定したが、人工核種の ^{131}I と ^{137}Cs は検出されなかった（表７）。

(5)　水産生物

阿翁浦漁協で購入したフグとカジメを測定したが、フグでは ^{137}Cs が 0.15Bq/kg 生検出されたが、^{131}I は検出されなかった。カジメは、いずれの人工核種も検出されなかった(表８)。

ま と め

平成 13 年度から実施している長崎県地域防災計画に基づく平常時環境放射能(線)モニタリングの平成 16 年度結果は、いずれも昨年度と同程度の濃度レベルであった。

図１　長崎県北松浦郡鷹島町の測定地点

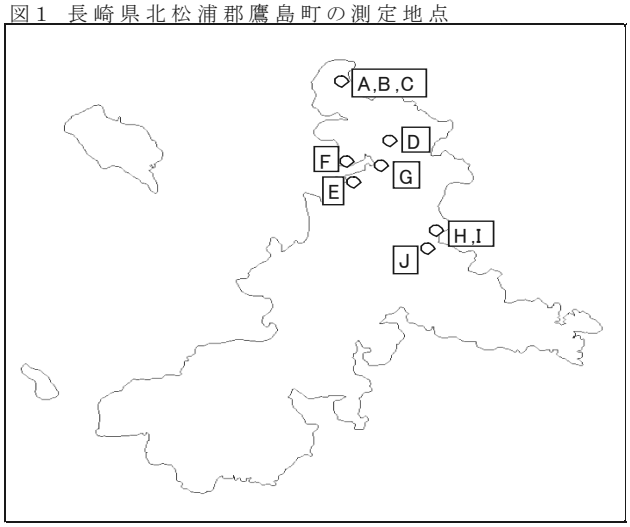


表２　空間線量率測定結果(nGy/h)

地点名	測　定　値							平均値	線量率範囲	平成 15 年度の範囲
	6 月	9 月	11 月	12 月	1 月	2 月	3 月			
A	48	34	42	36	30	42	40	39	30～48	42～50
B	54	42	44	46	44	46	38	45	38～54	48～62
C	60	46	48	52	54	56	48	52	46～60	50～66
D	60	40	50	56	52	52	52	52	40～60	48～58
E	62	60	62	56	60	54	62	59	54～62	64～74
F	42	26	32	34	38	38	34	35	26～42	34～52
G	70	56	50	66	58	56	50	58	50～70	60～86
H	50	38	36	38	44	38	40	41	36～50	42～56
I	46	36	36	32	40	38	40	38	32～46	44～52
J	56	58	42	48	48	50	58	51	42～58	52～70
線量率範　囲	42～70	26～60	32～62	32～66	30～60	38～56	34～62	35～59	26～70	34～86

※地点：A(モンゴル村芝生頂上) B(モンゴル村上段駐車場) C(モンゴル村下段駐車場)
D(阿翁地区集会所) E(阿翁浦漁協) F(阿翁浦漁協対岸) G(阿翁浦地区集会所)
H(日比漁協先船揚場) I(日比地区集会所前) J(鷹島ダム)

表３　蛍光ガラス線量計による測定結果　　単位:mGy

測定点	積算線量(92 日換算値)				年平均積算値
	4～6 月	7～9 月	10～12 月	1～3 月	
阿翁地区集会所	0.13	0.14	0.14	0.14	0.14
阿翁浦地区集会所	0.16	0.17	0.17	0.16	0.17
鷹島ダム	0.13	0.14	0.14	0.14	0.14

表４　浮遊じんの Ge 半導体検出器を用いた核種分析結果

採取年月日	採取場所	採取量 (g)	測定重量 (g)	測定時間 (sec)	測定年月日	^{131}I (mBq/m^3)			^{137}Cs (mBq/m^3)		
2004/9/30～10/1	モンゴル村	0.0013	2.8874	70000	2004/10/7	ND	±	ND	ND	±	ND
2005/2/28～3/1	モンゴル村	0.0205	2.9778	70000	2005/3/8	ND	±	ND	ND	±	ND

表５　陸水(蛇口水、原水)の Ge 半導体検出器を用いた核種分析結果

検体名	採取年月日	採取場所	気温 (℃)	水温 (℃)	採取量 (L)	蒸発残留物 (mg/L)	測定時間 (sec)	測定年月日	^{131}I (mBq/L)			^{137}Cs (mBq/L)		
蛇口水	2004/11/30	阿翁浦漁協	13.5	17.5	20	282.7	70000	2004/12/7	ND	±	ND	ND	±	ND
原　水	2004/11/30	鷹島ダム	15.5	13.0	20	137.3	70000	2004/12/20	ND	±	ND	ND	±	ND

表６　土壌の Ge 半導体検出器を用いた核種分析結果

採取年月日	採取場所 (状況)	深さ (cm)	採取面積 (cm^2)	採取量 (g)	乾燥細土 <2mm(g)	測定重量 (g)	測定時間 (sec)	測定年月日	^{131}I(mBq/kg 乾土)			^{137}Cs(mBq/kg 乾土)		
2004/9/30	モンゴル村 (芝生)	0～5	465	4,055	1,946	122.5	70000	2004/10/13	ND	±	ND	1100	±	240

表７　精米の Ge 半導体検出器を用いた核種分析結果

検体名	採取年月日	採取場所	測定試料の重量 (kg)	測定時間 (sec)	測定年月日	^{131}I (Bq/kg 生)			^{137}Cs (Bq/kg 生)		
穀類(精米)	2004/11/29	鷹島町里免	2.001	70000	2004/11/30	ND	±	ND	ND	±	ND

表８　水産生物(魚貝藻類)の Ge 半導体検出器を用いた核種分析結果

検体名	採取年月日	採取場所	除去部位	測定供試料重量 (g)	灰分 (%)	測定時間 (sec)	測定年月日	^{131}I (Bq/kg 生)			^{137}Cs (Bq/kg 生)		
トラフグ	2005/3/1	阿翁浦漁協	頭・骨・内臓 ｴﾗ･ﾋﾚ･ｳﾛｺ	34.5173	1.86	70000	2005/3/9	ND	±	ND	0.15	±	0.015
カジメ	2005/2/1	阿翁浦漁協	根・茎	45.2434	4.72	70000	2005/2/10	ND	±	ND	ND	±	ND

長崎県悪臭防止指導要綱の指導基準の再調査報告

横瀬 健・竹野 大志

Investigation of Stench in Nagasaki

Takeshi Yokose and Taiji Takeno

Key words: a bad smell,the sense of smell,
a restaurant
キーワード: 悪臭,嗅覚,飲食店

はじめに

長崎県における臭気濃度の指導基準は、[1)]昭和 58 年当時の主な悪臭発生事業場(飼料製造業、畜産業等)を対象に調査して、その調査結果と他県の状況等を勘案し、臭気強度 2.5 及び 3.0 に対応する臭気濃度の基準を昭和 59 年 5 月より長崎県悪臭防止指導要綱として施行した。平成 8 年には悪臭防止法が改正され、嗅覚測定法による規制が導入されたところである。これを受け、長崎県では、平成 16 年 4 月から時津町が、10 月からは大村市が嗅覚測定法による規制を整備したところである。この背景には、近年、都市部の飲食店業からの複合臭気による悪臭苦情が増加している事がある。このため、悪臭防止指導要綱制定時に調査が行われていなかった飲食店業から発生する臭気強度と臭気濃度の関係について調査を行った。

調査方法

1,調査年月日

平成 16 年 12 月 14 日(火)
～平成 16 年 12 月 16 日(木)

2,調査実施機関

長崎県環境政策課、長崎県西彼保健所、
長崎県衛生公害研究所

3,調査対象事業場

・飲食店業の臭気(中華料理店、焼き鳥店、
焼き肉店排気口からの臭気)

4,調査手順

①飲食店の排気ダクトから原臭気を採取

↓

②原臭気の臭気濃度を 3 点比較式におい袋法(下降法)により測定

↓

③原臭気を希釈し、各段階の臭気濃度を調節

↓

④各調節臭気について 6 段階臭気強度表示法の区分による臭気強度を 0.5 刻みの数値で判定(ただし、臭気強度 0.5 は検知閾値以下、1.5 は検知閾値と認知閾値の間に相当し、判定はあり得ないと思われるため今回の判定基準から除いた。)

↓

⑤各臭気について③,④の繰り返し

↓

⑥得られた結果より、臭気強度と臭気濃度の関係式を求め、その式から各臭気強度に対応する臭気濃度を算出

調査結果及び考察

今回調査した飲食店業における原臭気の臭気濃度測定結果を表1に示した。飲食店ごとの原臭気の臭気濃度は、焼き鳥店臭と焼き肉店臭が 980、中華料理店臭は 230 であった。

表 2 に、この結果から求めた臭気強度と臭気濃度の関係を示した。焼き鳥店臭については、臭気強度 2.5 に対応する臭気濃度が 12、臭気強度 3.0 に対応する臭気濃度が 26 であった。焼き肉店臭は、臭気強度 2.5

に対応する臭気濃度が 9.2、臭気強度 3.0 に対応する臭気濃度が 17 であった。原臭気の臭気濃度が最も低かった中華料理店臭は、臭気強度 2.5 に対応する臭気濃度が8.9、臭気強度3.0に対応する臭気濃度が15であった。これらの飲食店臭の臭気濃度の平均値は、臭気強度2.5に対応する臭気濃度が10、臭気強度3.0に対応する臭気濃度が 19 であった。

昭和 58 年の要綱制定当時の調査結果と今回新たに調査した飲食店臭の調査結果を加えた臭気強度と臭気濃度の関係を表 3 に示した。また、これらの結果から得られる回帰直線を図 1 に示した。

[2)]昭和 58 年から平成 4 年までの各自治体が調査した結果を環境庁が取りまとめた業種別悪臭の臭気強度と臭気指数の関係より作成した臭気濃度との関係を表4に示した。環境庁の示す飲食店業の臭気強度2.5に対応する臭気濃度は 25、臭気強度 3.0 に対応する臭気濃度は50であるので、今回の調査結果値は環境庁の示す値より低い値であった。

図 2 に環境庁から示されている各臭気強度に対応する臭気濃度パターンと今回調査した結果を照らし合わせたものを示した。これから判るとおり、今回調査した飲食店業における調査結果は、環境庁の示す各臭気強度に対応する臭気濃度の範囲内であった。

ま と め

・今回の調査結果値は環境庁の示す値より低い値であったが、環境庁の示す各臭気強度に対応する臭気濃度の範囲内であった。

・今後も悪臭防止指導要綱制定時に調査が行われていなかった業種について、再調査していく予定である。

参 考 文 献

1) 長崎県環境部公害規制課,他:悪臭官能試験法(三点比較式臭袋法)調査報告書,(1984 年 1 月)

2) 環境省環境管理局大気活環境室:臭気指数の測定精度と精度管理,嗅覚測定法マニュアル,88(2001 年 8 月 8 日)

3) 悪臭法令研究会:ハンドブック悪臭防止法 四訂版,(平成 13 年 8 月 22 日)

表 1 飲食店業における原臭気の臭気濃度測定結果

事業所名	臭気濃度	臭気指数
飲食店排気ダクト（中華料理店）	230	24
飲食店排気ダクト（焼き鳥店）	980	30
飲食店排気ダクト（焼き肉店）	980	30

表 2 飲食店業の臭気強度と臭気濃度の関係

事業所名	臭気強度(Y)と臭気濃度(X)の関係式	各臭気強度(Y)に対応する臭気濃度(X)					
		1	2	2.5	3	3.5	4
飲食店排気ダクト（中華料理店）	Y=2.313log x + 0.307	2.0	5.4	8.9	15	24	40
飲食店排気ダクト（焼き鳥店）	Y=1.466log x + 0.926	1.1	5.4	12	26	57	130
飲食店排気ダクト（焼き肉店）	Y=1.900log x + 0.665	1.5	5.0	9.2	17	31	57
平均値		1.5	5.3	10	19	37	75
標準偏差		0.4	0.2	1.3	4.9	14.2	39.2
変動係数 %		23.1	3.2	13.3	25.6	38.0	51.9
臭気指数(平均値)		1.9	7.2	10	13	16	19

表 3 各業種臭気における臭気強度と臭気濃度の関係(長崎県調査)

	事業所名	臭気強度(Y)と臭気濃度(X)の関係式	各臭気強度(Y)に対応する臭気濃度(X)					
			1	2	2.5	3	3.5	4
要綱制定当時	魚腸骨処理場（原料臭）	Y=1.926log X − 0.084	3.7	12	22	40	73	132
	魚腸骨処理場（汚水処理施設原臭）	Y=1.303log X + 1.054	0.9	5.3	13	31	75	182
	魚腸骨処理場（プラント原臭）	Y=1.538log X + 0.498	2.1	9.5	20	42	90	189
	化製場（フェザー処理）	Y=2.630log X + 0.051	2.3	5.5	8.5	13	20	32
	化製場（獣骨油脂処理）	Y=2.174log X − 0.409	4.4	13	22	37	63	107
	食用油脂製造工場	Y=1.771log X + 0.197	2.8	10	20	38	73	140
	飼肥料製造工場	Y=2.246log X − 1.099	8.6	24	40	67	112	186
	生し尿臭	Y=1.948log X − 0.124	3.8	12	22	40	73	131
	し尿処理場（消化タンク付近）	Y=1.678log X + 0.463	2.0	7.9	16	31	62	123
	下水処理場	Y=1.764log X + 0.044	3.5	13	25	47	91	175
	養豚場	Y=1.371log X + 0.782	1.4	7.7	18	41	96	222
	塗装工場	Y=1.848log X + 0.477	1.9	6.7	12	23	43	81
	プロパン取扱所	Y=1.395log X + 1.441	0.5	2.5	5.7	13	30	68
	平均値(13臭気)		2.9	9.9	19	36	69	136
追加	飲食店		1.5	5.3	10	19	37	75
全体	平均値(14臭気)		2.8	9.6	18	34	67	132
	標準偏差		1.9	4.9	8.0	13.4	24.8	51.2
	変動係数 %		66.9	51.1	44.0	39.1	37.0	38.9
	臭気指数(14臭気平均値)		4.5	9.8	13	15	18	21

表 4 業種別悪臭の臭気強度と臭気濃度、臭気指数の関係

業種		各臭気強度に対応する臭気指数と臭気濃度					
	臭気強度	2.5		3.0		3.5	
		臭気濃度	臭気指数	臭気濃度	臭気指数	臭気濃度	臭気指数
畜産農業	養豚場	16	12	32	15	63	18
	養牛場	13	11	40	16	100	20
	養鶏場	13	11	25	14	50	17
飼料・肥料製造業	魚腸骨処理場	20	13	32	15	63	18
	獣骨処理場	20	13	32	15	50	17
	複合肥料製造工場	13	11	20	13	32	15
食料品製造工場	水産食料品製造工場	20	13	32	15	63	18
	油脂系食料品製造工場	25	14	63	18	126	21
	でんぷん製造工場	32	15	50	17	79	19
	調理食料品製造工場	20	13	32	15	50	17
	コーヒー製造工場	32	15	63	18	126	21
	その他	16	12	25	14	50	17
化学工場	化学肥料製造工場	13	11	25	14	50	17
	無機化学工業製品製造工場	10	10	16	12	25	14
	プラスチック工場	16	12	25	14	50	17
	石油化学工場	25	14	40	16	63	18
	油脂加工品製造工場	13	11	40	16	100	20
	アスファルト製造工場	16	12	40	16	79	19
	クラフトパルプ製造工場	25	14	40	16	50	17
	その他のパイプ・紙工場	13	11	25	14	40	16
	その他	25	14	40	16	63	18
その他の製造工場	繊維工場	13	11	40	16	100	20
	印刷工場	16	12	20	13	32	15
	塗装工場	25	14	40	16	79	19
	窯業・土石製品製造工場	25	14	50	17	126	21
	鋳物工場	13	11	25	14	40	16
	輸送用機械器具製造工場	10	10	20	13	32	15
	その他	25	14	50	17	100	20
サービス業・その他	廃棄物最終処分場	25	14	50	17	100	20
	ごみ焼却場	10	10	20	13	32	15
	下水処理場	13	11	20	13	40	16
	し尿処理場	16	12	25	14	50	17
	クリーニング店・洗濯工場	20	13	50	17	126	21
	飲食店	25	14	50	17	126	21
	その他	20	13	32	15	63	18
最大値		32	15	63	18	126	21
最小値		10	10	16	12	25	14

※(臭気指数)=10 x log(臭気濃度)

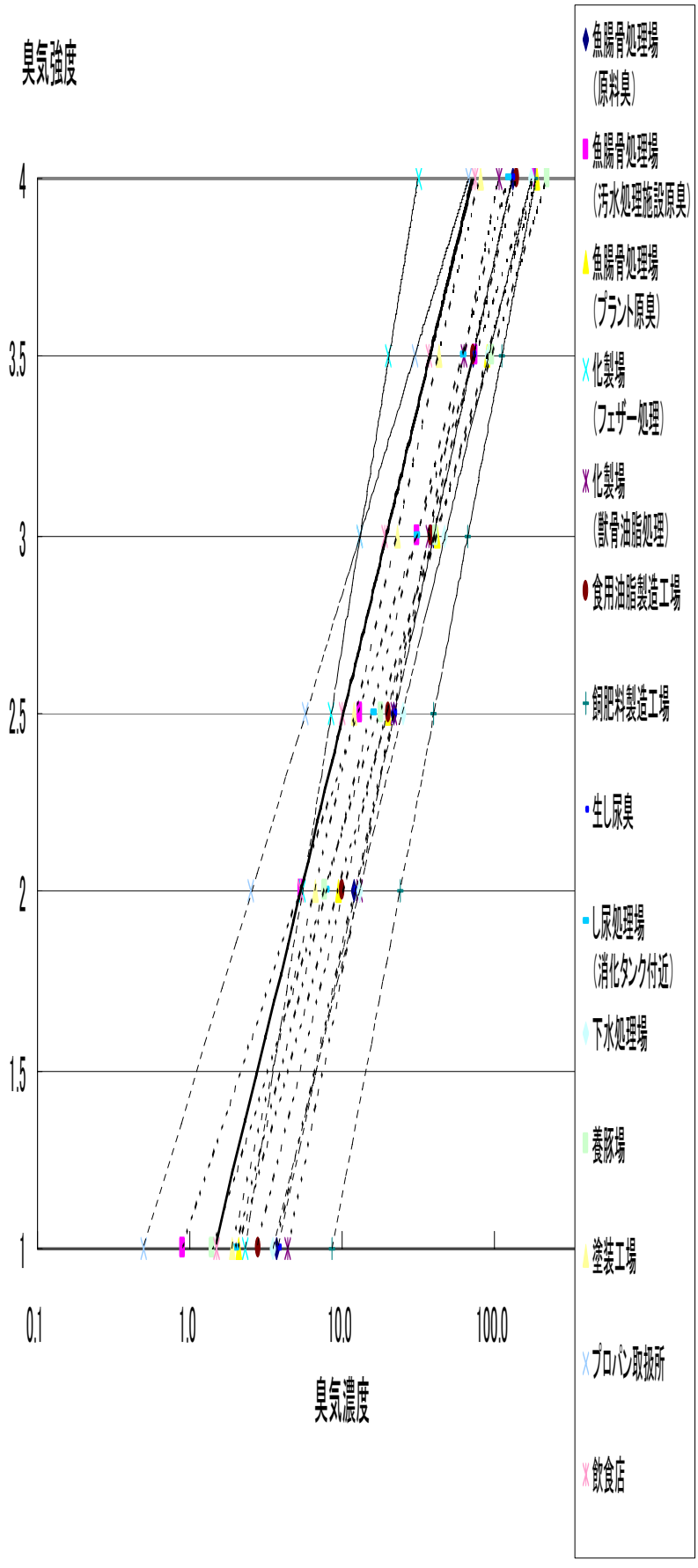


図1　各業種別臭気強度と臭気濃度の関係(長崎県調査)

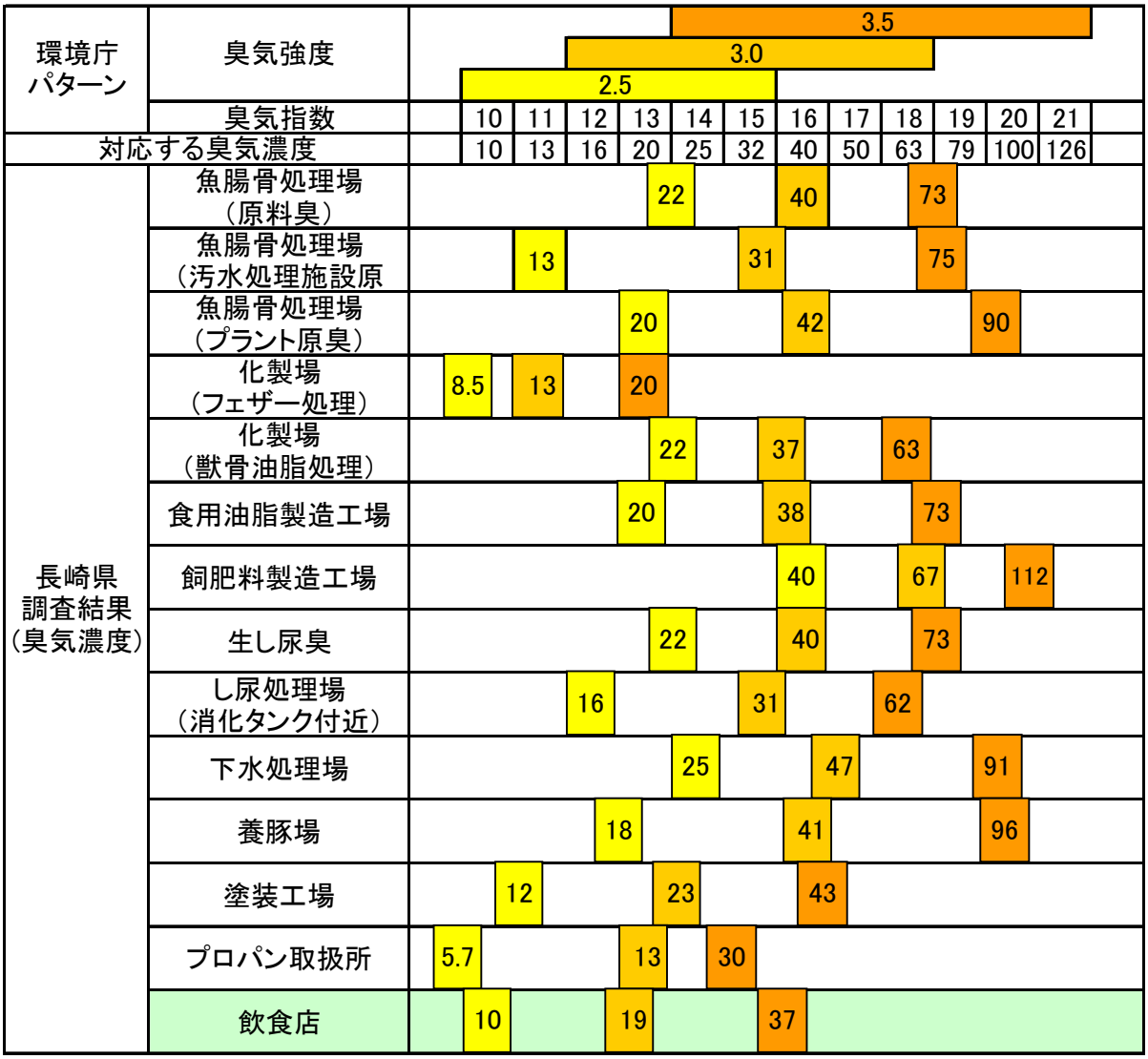


図２　各臭気強度に対応する臭気濃度パターン

大村湾の水質変動

浜辺　聖

Water Quality Transition of Omura-Bay

Masashi HAMABE

Key Words : Omura-Bay, COD, DO, T-N, T-P
キーワード:大村湾，化学的酸素要求量，溶存酸素，総窒素，総リン

は　じ　め　に

大村湾の水質調査については、昭和 46 年度から開始し、平成 15 年度まで当所で行ってきたが、平成 16 年度から外部委託となり、民間分析機関が実施することとなった。そこで、当所で実施してきた平成 15 年度までのデータの整理を行うこととした。

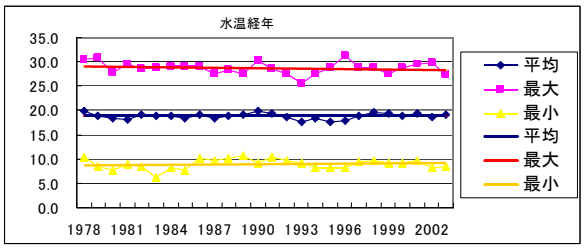
なお、データの整理にあたっては、年 12 回以上の調査を始めた昭和 53 年度からの結果(26 年間)を用いた。

また、今回は取りまとめの途中段階であり、今後も継続していく必要がある。

調　査　結　果

1. 水温

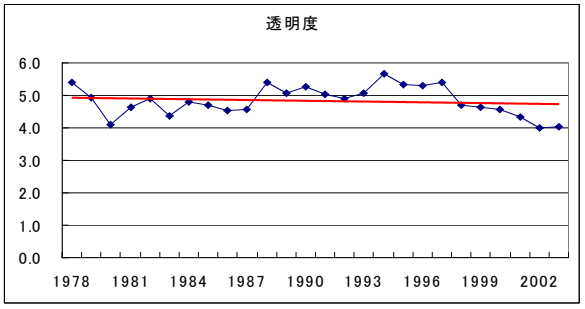
大村湾の水温(表層と中層の平均値)は横這い結果であった。



平均水温は 18.8 ℃で、各年度の最大値の平均は 28.7 ℃、最小値の平均は 9.0 ℃であった。

また、表層は 18.9 ℃、中層は 18.7 ℃であった。

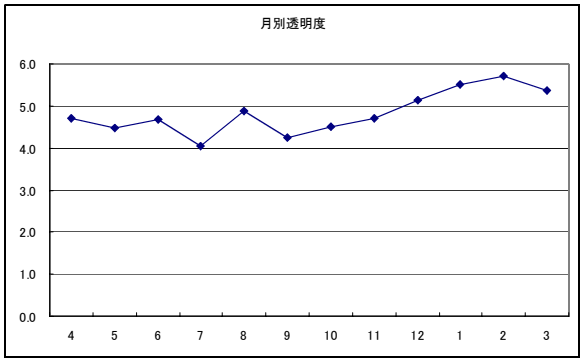
2. 透明度



透明度は横這いから下降傾向にある。特に、14,15 年度は低くなっている。

月別では、春から夏にかけて低くなり、冬になると高くなっている。

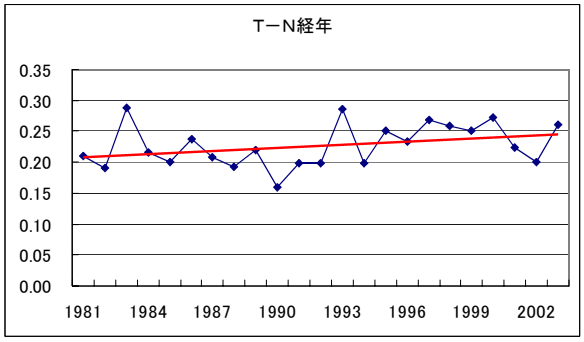
特に、2 月が一番高く、後述する COD と同じような傾向であった。

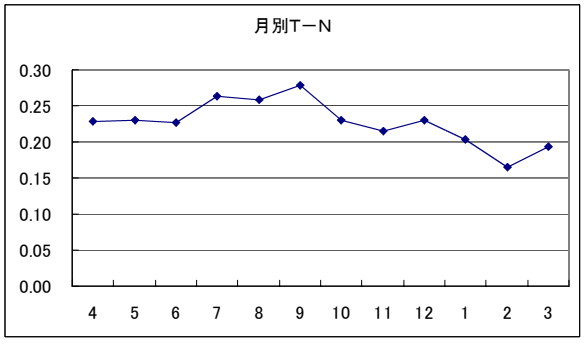


3. 栄養塩類

①総窒素

総窒素(表層と中層の平均値)は、経年的に見ると上昇傾向にあり、0.04 mg/l 程度増加している。



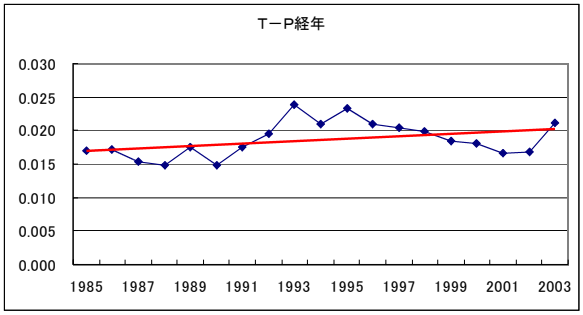


月別に見ると夏場に高く、9月に小さいピークが見られるが、これは、成層の消滅に伴う底層水の影響と推察される。ただ、7月8月も高く、降雨の影

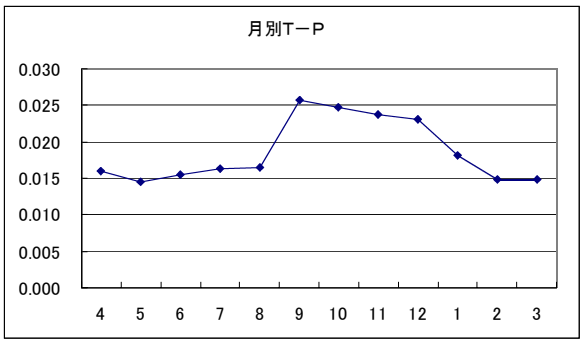
響も考えられる。

②総りん

総りん(表層と中層の平均値)は、経年的に見るとやや上昇傾向にあるが、1993年度、1995年度をピークにやや減少傾向にある。



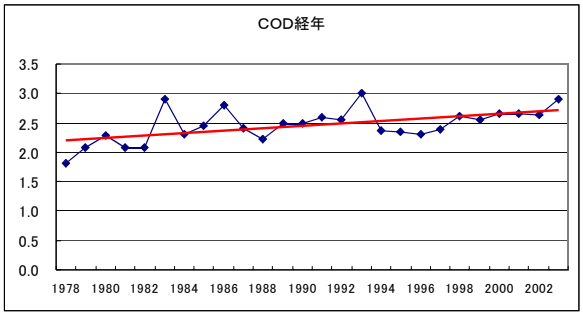
月別にみると、9月にピークがあり、1月まで減少傾向で推移し、2月から8月までは大きな変化は見られない。9月のピークは底層の貧酸素化に伴い底質から溶出したリンが成層の消滅に伴い表層等へ拡散したものと考えられる。



栄養塩類の変動について、窒素は陸域からの負荷の影響が大きいが、りんについては陸域からの負荷の影響は小さい。

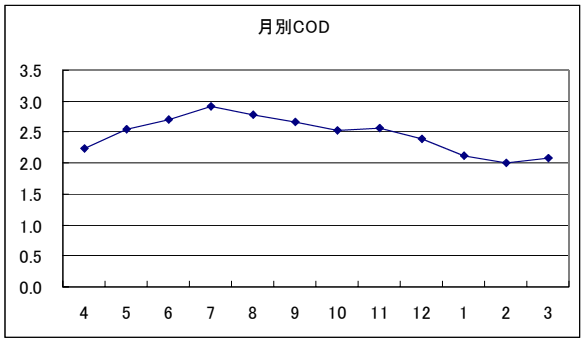
4　COD

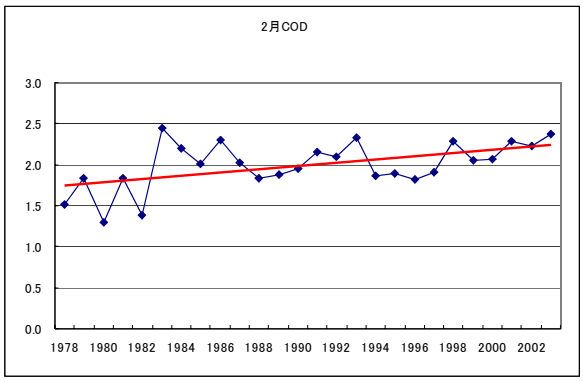
CODについては、増加傾向にあり、26年間で約0．5 mg/l 程度の増加である。



COD を月別にみると、春から夏にかけて高めに推移し、最も内部生産が低い2月に最小値を示している。

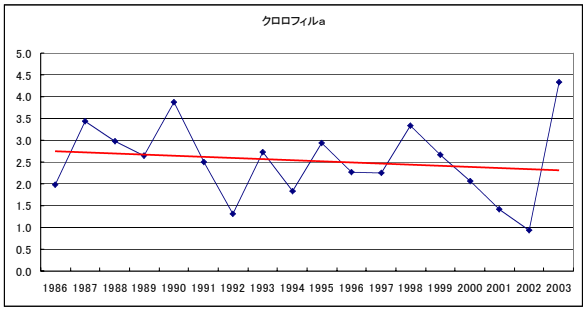
そこで、2月の COD の経年変化を見てみると、2月の COD も26年間で約0．5 mg/l 程度の増加である。このことは、大村湾の COD の増加は栄養塩類等による内部生産での増加でなく、 COD のベースそのものが上昇しているのではないかとの仮説も成立し、難分解性 COD といわれる溶存有機物の影響も考慮する必要性が生じているのではないかと思われる





5　クロロフィルa

クロロフィルaは変動が大きく、コメントしにくいが強引に近似直線を引くと、やや下降気味に引ける。



ま　と　め

これだけで、全ての解析が出来たとはいえないが、COD が高くなっていることは間違いない。その原因としてこれまで考えてきたN、Pの増加→富栄養化→内部生産→CODの増加という一般的な汚濁のメカニズムだけでは説明できない部分が多い。特に、無機態の栄養塩類の存在が非常に少ない大村湾において富栄養化だけでCODを論じるのでなく、多方面からのアプローチが必要である。

養殖カキを用いた内湾環境修復の研究(その４)

浜辺　聖・赤澤　貴光・白井　玄爾

Inner Bay Environmental Restoration by Oyster Culture(No.4)

Masashi HAMABE,Takamitsu AKAZAWA,and Gennji SIRAI

Key Words : Katagami-Bay, DO, T-N, T-P, Oyster
キーワード：形上湾，溶存酸素, 総窒素，総リン，カキ

は　じ　め　に

大村湾をはじめとする閉鎖性海域の環境保全については、陸域でのＮ・Ｐ除去、海域での藻場や干潟再生等の各種調査研究が行われている。

当所では海洋開発研究機構（旧海洋科学技術センター）との共同研究事業として、曝気をカキ養殖に用い、カキによるＮ・Ｐ吸着の実証試験を形上湾で平成１３年度からの５カ年事業で実施中である。

○平成１３，１４年度
- ・形上湾の環境事前調査及び背景調査
- ・水槽（メソコスム）による予備実験

○平成１４～１７年度
- ・養殖カキイカダによる本実験
  （年１回の３カ年実施予定）
- ・水質浄化効果判定のための環境調査
- ・事業化に向けてのコスト試算

また、海洋開発研究機構との役割分担で、環境調査を当所が実施することとしており、ここでは平成１３年度～１６年度に実施した現況の形上湾の水質調査結果について報告する。

調 査 地 点 及 び 調 査 項 目 等

１．調査地点

湾内に 17 の調査地点を設定。16 年度からは実験イカダ及び対照養殖いかだ 2 ヶ所の 3 地点を追加した。(図 1)

２．調査回数及び調査項目

①毎月調査
- ・St.1,8,9,実験イカダ, 対照①, 対照②の表層、中層（2.0 m）及び底層（底上１m）
- ・pH、水温、透明度、溶存酸素、COD、TOC、総窒素、総リン、NH_4－N、NO_2－N、NO_3－N、PO_4－P
- ｸﾛﾛﾌｨﾙｰ a 等

②四季調査（5,8,11,2 月）
- ・全 17 地点で項目は毎月調査項目に同じ

③底質調査（5,8,11,2 月）
- ・St1,8,9,実験イカダ，対照①，対照②の６地点
- ・底質…総窒素、総リン、硫化物、強熱減量

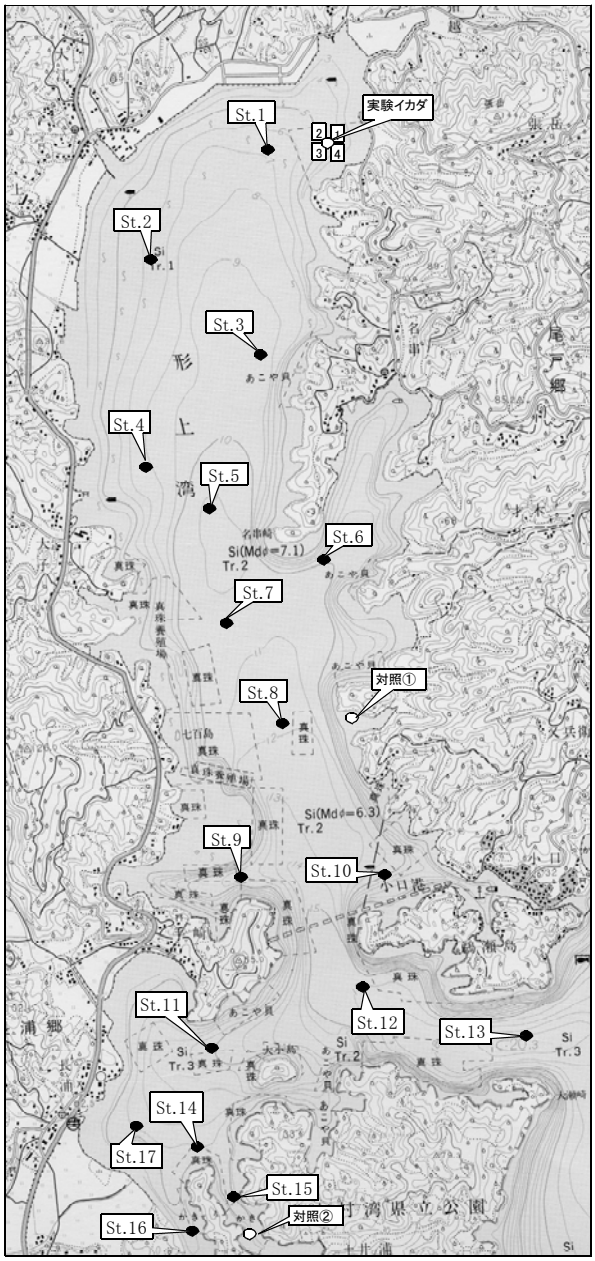


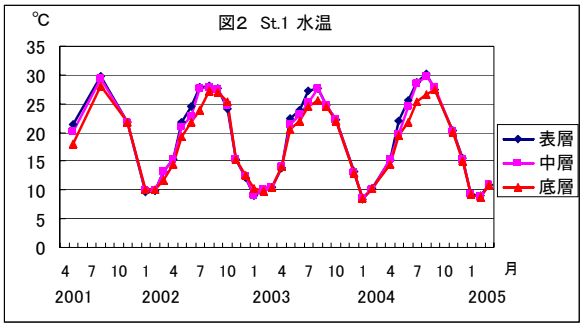
図１．調査地点

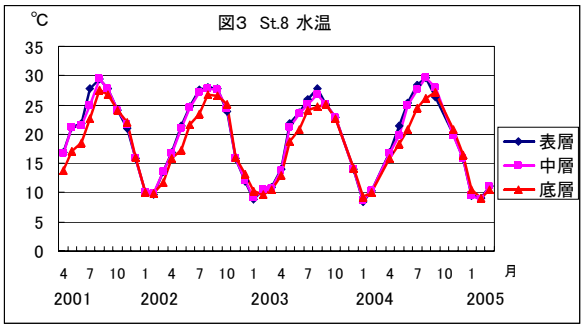
水　質　調　査　結　果

１．水温

実験イカダを設置した湾北部でイカダに最も近い St.1 と湾を代表する地点として設定した St.8 の月別変化を図２,３に示した。表層と底層の水温差は４カ年とも７、８月に大きく４℃から５℃の差があった。　９月以降は表層底層の差がなくなり、全層同じ程度の水温となっている。St.8 では５月頃から再び差が見られ始めており、既に水温躍層の形成がうかがえる。

４カ年ともほぼ同じ傾向であった。

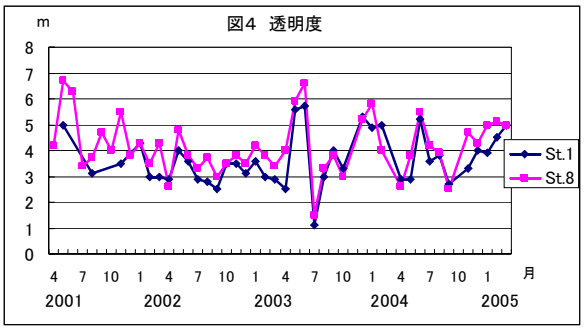




２．透明度

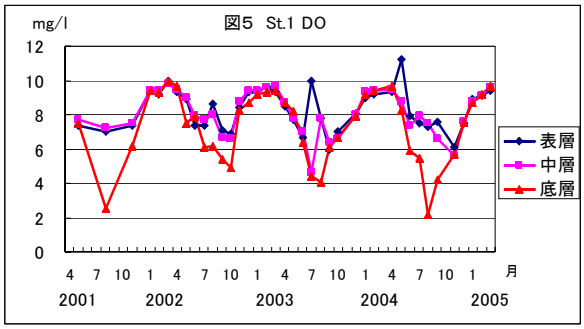
透明度の St1,8,9 での月別変化を図４に示したが、平成１３年度に比べ１４年度の方がやや低く、１５年度は７月に赤潮に近い状態が確認され低くなっているが全体的には１４年度より高くなっていた。１６年度も１５年度とほぼ同様であった。

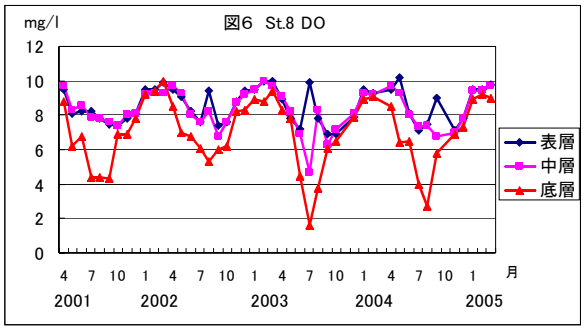
地点的にはやや湾央部が高いが大きな差はみられない。



３．溶存酸素

St.1 と St.8 での溶存酸素の月別変化を図５,６に示したが、両地点とも表層と中層はほぼ同じ程度であったが、底層の溶存酸素は５月頃から低く

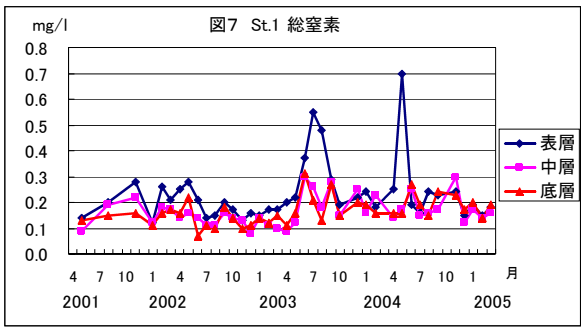


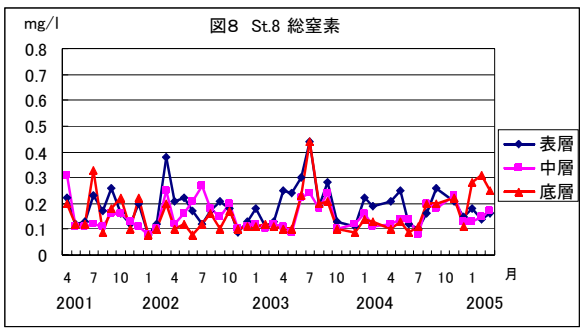


なり始め、８月、９月に最小となり、１０月以降になると一挙に高くなっている。平成１６年度の底層の溶存酸素は前年度と比べると貧酸素の状況がはっきりと観測できた。また、湾央部の St.8 では５月頃から差が出ており水温躍層の形成と同じ傾向であった。

４．総窒素

St.1 と St.8 での総窒素の月別変化を図７,８に示した。１６年度は St.1 で４月に大きなピークがあったが、これは降雨による陸域からの流入によるものと推察される。



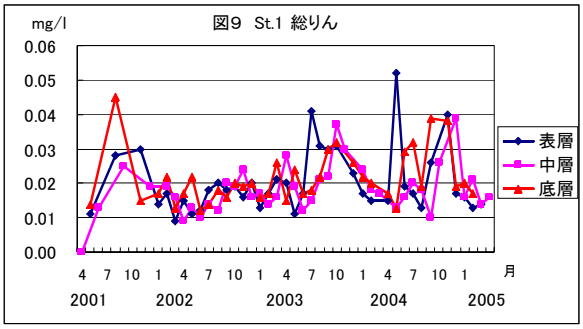


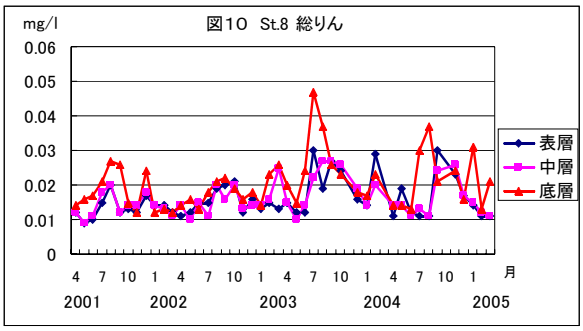
形上湾においては、成層時に生じる底層の濃度上昇も確認できず、逆に表層の総窒素が高いことが多く、特に St.1 でその傾向が強く、平成１６

年度も同様に底層より表層の濃度が高く、これは窒素がすでに植物プランクトン等に取り込まれたものと思われる。底質からの溶出形態であるアンモニア態窒素は底層部で夏場に検出されているが、他の月はほとんど検出されていない。

５．総リン

St.1 と St.8 での総リンの月別変化を図９,10 に示したが、平成１３年度は春から夏場にかけて底層部が高く、底泥からの溶出が確認できたが、平成１４年度は、その傾向は見られず、１５年度は窒素と同様特に７月に St.1 で表層に、St.8 は底層に大きなピークがあり、底質からの溶出と生産によるピークであると思われる。１６年度は変動が大きく７月８月には底泥から溶出によるピークが確認できたが、秋以降も底層が高い月があった。これは、１６年度に多かった台風による巻き上げがあったものではないかと推察される。





底　質　調　査　結　果

前年度までの調査結果から湾奥部の方がやや有機汚濁が進んでいることが分かった。また、底質は季節的には冬場に若干低くなる傾向が見られるが、水質ほど大きい季節変動は見られなかった。

今回は、１６年度から実施した実験イカダ、対照①、対照②と St.1 の調査結果を表１に示した。なお、対照①は水深が１０ｍ程度で、底泥も砂混じりの底質であり、対照②は水深５ｍで継続的に養殖が行われている地点である。

１６年度の調査結果からは、養殖イカダの底質は近接の St.1 と比べ窒素、リンはほぼ同じ値であったが、有機物量の指標である強熱減量がやや高く、硫化物濃度は約２倍程度となっていた。単年度の結果であり、今後の推移を見る必要が生じている。

表１．底質調査結果

		５月	８月	１１月	２月	平均
強熱減量	St.1	14.1	14.4	15.3	14.0	14.4
	実験筏	15.5	15.3	14.7	15.0	15.1
	対照①	7.1	8.8	7.0	9.5	8.1
	対照②	14.2	11.8	11.8	12.1	12.5
窒素	St.1	3.20	3.77	3.62	3.62	3.55
	実験筏	3.98	3.92	2.64	4.25	3.70
	対照①	1.44	1.64	1.05	2.13	1.56
	対照②	3.63	2.60	1.62	3.50	2.84
リン	St.1	0.54	0.53	0.56	0.54	0.54
	実験筏	0.62	0.56	0.56	0.63	0.59
	対照①	0.38	0.45	0.39	0.51	0.43
	対照②	0.58	0.44	0.60	0.66	0.57
硫化物	St.1	0.17	0.49	0.16	0.25	0.26
	実験筏	0.65	0.45	0.38	0.42	0.47
	対照①	0.15	0.19	0.11	0.20	0.16
	対照②	1.17	0.54	0.91	0.61	0.81

ま　と　め

本研究は、現況水質等について把握の途中段階であることから結果の全体的な考察は困難であるが、形上湾は大村湾よりも流動が小さく湾奥部の水質はより悪化している。また、４カ年の変動をみると貧酸素の状況が大きく異なっており、水質にも大きな影響を与えていた。

また、平成１５年１月から海洋開発研究機構が主体となって湾北部で開始した養殖実験（３回実施予定）は現在、第３回目の養殖実験を実施中であり、前２回の結果は生存率、生育率とも良好な結果が得られている。

次年度は、当所が実施している環境調査をはじめ本研究に参加されている各大学等で実施されている牡蛎の生育結果、物質循環等の調査結果を海洋開発研究機構で総合的に取りまとめを行うこととしている。

自然エネルギーの有効利用について

浜辺　聖・赤澤　貴光・大橋　智志*

The Effective Utilization of Natural Energy

Masashi HAMABE,Takamitsu AKAZAWA,and Satoshi OHASHI

Key Words：Natural Energy,DO
キーワード：自然エネルギー，溶存酸素

はじめに

平成１６年度の分野融合研究として当所と総合水産試験場で自然エネルギー等を利用した環境修復手法および漁業への応用に関する研究を行ったので、その結果を報告する。

平成１６年度分野融合研究報告書

研究の背景

近年閉鎖的海域（大村湾等）における水質、底質環境の悪化は、下水道施設等の普及推進にもかかわらず悪化の傾向を続けている。また、同様の閉鎖的海域である諫早湾では、タイラギ等の主産生物の激減によりカキ養殖等への産業構造の転換を余儀なくされているが夏場の斃死により不安定な生産となっている。

平成１５年までに衛生公害研究所が共同研究によって開発した海中曝気によるカキの夏場の生残、成長の向上技術は、貝類養殖による海中の富栄養物質（リン、窒素）の取り上げと、夏場の斃死対策を検討する諫早湾等のカキ養殖の課題に対して有効な手法となりうると考えられた。

このため､衛生公害研究所と総合水産試験場による共同研究として本研究会で検討することなった。

分野融合研究提案に際しては、環境修復面からの自然エネルギー活用の検討と、漁業生産現場の実情（陸上電源利用の困難）を併せて検討し、風光力を用いたエネルギー源を利用しての同手法の利用を提言し、採択後はその可能性を検討した。

調査内容

まず､同様の構想を持ち､検討を行っている水産工学研究所において情報の収集を行った結果、考えられる自然エネルギー技術（過去に試験された技術等）としては、

①　風力
②　波浪
③　太陽光

等が挙げられる。これらのうち、風力と太陽光については実用的な実験や実用型発電が行われているが、以下の理由から自然エネルギーの海域での利用は多くの課題を有している。

１．安定出力の問題

電気は積分値としては計算されず、安定した部分のみでの利用となる。このため、風力等の不安定要素の多いエネルギーでは、実用可能な部分が非常に小さくなる傾向がある。

光力はその点安定しているが、夜間利用できないという欠点がある。

２．オーダーメイドとなる配電基盤

自然エネルギーは各地で利用できる内容（風力、風向、日照量等）が異なり、発電装置から動力駆動に至る回路が独自に必要でこの設計に多額の費用が必要になる。

３．塩害の問題

現在あるモーターあるいはコンプレッサー等の機器は塩害に弱い。これらの塩害対策については別途考えなければならない。

＊）総合水産試験場　介藻類科

４．装置設置場所の課題

上記のような条件を整えると相当の重量あるいは規模の施設が想定される。この場合設置する筏あるいは土台等の耐久力の問題が発生する。

情報収集の結果

１．風光力は不安定なエネルギー源であり（特に風力）大きな出力は望めない。

参考

①風速および発電量の変動

大村湾における過去 8 年間の平均風速の変動は± 4.7 %、発電量に換算すると、変動幅は 86 %～ 115 %となる。

これは、大村湾アメダスサイトにおける 8 年間の平均風速（下表）より算出されたものである。

年間の風速のバラツキは 4.42 ± 0.2 m / s 、率では± 4.7 %である。

観測年	1997	1998	1999	2000	2001	2002	2003	2004
年間平均風速(m/s)	4.4	4.1	4.3	4.1	4.1	4.4	4.3	4.2

実際の発電量計算は、平均風速より、ワイブル分布（またはレーレ分布）で風速分布の確率を求め、これより、風力発電機の特性（カットイン、カットアウト、風力係数など）を考慮して月別の予想発電量を算出している。

②日射量の変動

長崎における過去 12 年間の年々の全天日射量（∝発電量）の変動係数（別紙参照）は以下のとおりである。従って、発電量の変動幅は 95 %～ 105 %程度となる。

7 月± 14 %、10 月、± 8 %、

通年± 4 ～ 5 %

上記データは NEDO 事業による「太陽光発電システム実用化技術開発・発電量基礎調査」(日本気象協会/NEDO、全国 225 地点、12 年間)による。

２．塩害、耐水性、蓄電池等の重量等の課題を有する

３．現況の技術では相当に高価となる

４．光力発電装置および風力発電装置の土台はひねりに弱く、波をたわみで緩衝している養殖筏に直接積載することは難しい

等の課題が抽出された。

課題に基づく検討内容の整理

上記の課題に基づき、本研究会で検討する曝気装置の条件について検討し、

①限定された電力を蓄積して使用する（夏場の無風日を想定）

夜間の風力発電での電力供給は困難で、蓄電池のみの電力で稼働させる。

②使用時間を限定する（夏場の夜間小潮時の貧酸素水塊を想定）

蓄電力には限界があり終日の稼働は困難。また、蓄電能力等の試算から筏 1 台程度に供給する能力が限界。

③曝気装置は養殖筏とは別体とする。

養殖筏と異なり、曝気装置筏には堅牢性が求められ、相反する部分が多い。

を考慮し以下のように条件を設定した。

①作動期間は６月から１０月までの５ヶ月（夏期のみ）

②作動方法は、日中の光力、風力による蓄電により夜間約６時間以上の曝気を行う。

③曝気については潮汐を考慮したタイマー運転とする。

④装置は養殖筏とは別体とする。

⑤概ね 20m × 10m の筏一台を対象とする。

そのうえで、実際に実用的な装置の作成が可能かどうか検討を行った。

下記の内容で理論的には曝気装置が制作可能であることが判った。

カキ筏用風力/ソーラ発電装置&エアーレーション装置のシステム案

1）発電装置仕様案

・風力発電機　：垂直軸直線翼風車　WK18-20　× 1 基　(定格 1070W、風速 13m/s 時)
風車寸法Φ 1.8 × 2.0 m、風車部重量 140 k g（支柱除く）

・ソーラパネル　：多結晶太陽電池　120W × 8 枚＝ 960W
パネル 1 枚当り 1.2 × 0.8 m、13kg/枚× 8 ＝ 104kg

・蓄電池　：密閉式鉛蓄電池　48V250A h
（単電池 12V50Ah × 4 直× 5 並=20 個）
単電池　170 × 260 × 240mm、23kg/個× 20 個＝ 460kg
総重量 704 k g(ケース込み)＋ α（支柱など）

2）風力&ソーラ発電量の試算

上記１．の装置で、夏場の 6 月から 10 月の 5 か月分を対象の場合の予想発電量を下表に示す。

場所：長崎県大村市　（単位：kWh）

	6 月	7 月	8 月	9 月	10 月	合計	月平均	日平均
風力(定格 1070W)	48.4	110.1	100.1	64.8	71.9	395.3	79.1	2.58
ソーラ(定格 960W)	90.8	106.8	112.8	87.6	77.2	475.2	95.0	3.10
合計）	139.2	216.9	212.9	152.4	149.1	870.5	174.1	5.69

∴蓄電池への充電量は、発電量にシステム充電効率風力 72 %、ソーラ 90 %を見込むと、1 日当り平均充電量は風力 1.8+ソーラ 2.8 ＝ 4.6kWh/日　と試算された。

3）負荷条件

負荷　：①案）DCエアーポンプ（DC24V､60W/台）× 3 台
②案）AC小型コンプレッサー（AC100V､400W）×1台

使用条件　：夏限定　6 月～１０月の５ヶ月間の夜間のみ
①案は毎夜12ｈ　また　②案は毎夜６ｈ以上　の連続運転、タイマー制御による

変換効率　：①案の場合コンバータ効率（DC48V→DC24V）　80%
②案の場合インバータ効率（DC48V→AC100V、60Hz）　80%

無充電日　：日照なしまたは無風が 2 日間程度、連続稼動出来る蓄電池容量とし、保守率 80 %含む

4）負荷使用に関する試算結果

上記２），３）の場合、エアー発生装置別に使用台数/時間などの試算結果を下表に示す。

但し、使用水深2～3m（水圧0.02～0.03 Mpa）

負荷種類	①案）	②案）
負荷名	DC エアーポンプ	AC 小型コンプレッサー
入力	DC24	AC100V
出力	60W	400W
消費電力	85W	500 ～ 600W
最高圧力	0.1MPa	0.05MPa
吐出量(定格)	30 ﾘｯﾄﾙ/min	160 ﾘｯﾄﾙ/min
連続稼動時間（h/日）	35.3 h / 日	5.46 h / 日
使用台数	3 台	1 台
使用時間	11.8 h / 日	5.46 h / 日
全吐出量(1 日当り)	30 ﾘｯﾄﾙ/min × 3 × 11.8 h ＝ 63.7 m^3	160 ﾘｯﾄﾙ/min × 5.46 h ＝ 52.4 m^3

注１）使用可能電力は、4600 W h/日のうち制御器の自己消費とバッテリ自己消費を引いたもの、

即ち

使用可能電力＝ 4600 － 307 － 120 ＝ 4173Wh/日

注２）制御器にて充/放電制御を行います。その消費電力は、307 W h/日です。

注３）バッテリの自己放電は、最大容量の１%/日なので、120 W h /日です。

注４）DC の場合：連続使用時間＝ 4173Wh/日 × 0.9 × 0.8 ÷消費電力

（0.9 は放電効率、0.8 は DC / DC のコンバータ効率）

AC の場合：連続使用時間＝ 4173Wh/日 × 0.9 × 0.8 ÷消費電力

（0.9 は放電効率、0.8 は DC / AC のインバータ効率）

注５）使用台数＝連続稼動時間÷ 12 h(夜間) の端数切捨てで算出。

注６）吐出量には、管路長さ、屈曲、オリフィス効果など流体損失は含んでいない。

注７）上表のエアー発生装置は海上用でない（メーカより)。よって、海で使用した場合の耐久性は不明。

物品コスト表（概算）

＜単位：千円＞

構造方式		ブイ式		イカダ式	
エアー装置種類		エアーポンプ	コンプレッサ	エアーポンプ	コンプレッサ
1	風力発電機	4,000	4,000	4,000	4,000
2	ソーラパネル	1,600	1,600	1,600	1,600
3	蓄電池	1,000	1,000	1,000	1,000
4	エアー発生装置	500	300	500	300
5	制御装置	1,000	1,000	1,000	1,000
6	標識灯	250	250	250	250
7	浮体構造物	14,000	14,000	8,000	8,000
8	係留装置	—	—	—	—
合計）		22,350	22,150	16,350	16,150

注１）　係留装置についは、含んでいません。

注２）　予備品,付属品、運賃および現地立会い費は含んでいません。

検討結果

以上の結果から

①理論値として実用的な運行が可能である。

②台風等については理論上耐えうると考えられる。

③耐水、耐塩害については、メンテナンス等により解決できると考えられる。

④価格帯については 1500 ～ 2500 万円程度の高額なものとなり、組み合わせ技術である点から汎用化しても価格の低減化はあまり望めない。

⑤１機の装置で筏１台相当の出力となる。

⑥メンテナンス費用

風力発電機はメンテナンスが必須

コンプレッサーの寿命は約半年と想定される。

蓄電池は３年程度の寿命

等の結果が得られた。

なお、曝気方法の選択枝としてはマイクロバブル技術等が開発される中で、曝気装置の選択肢が増えているが、限られた電源で必要な作動時間を得られるのかは今後開発中の企業等の検討の必要があると考えられた。

費用対効果の検討

現行技術で実稼働する機器が作成できることは判ったが、コストの面での検討の必要があると考えられた。

諫早湾におけるカキ筏からの水揚げは、現在 20m × 10m 筏１台で１～４トンの範囲にあり、これは金額に換算すると 500 千円～ 2,000 千円に相当する。この生産量は現状の夏場の斃死を織り込んだものであるため、斃死が軽減されたと想定（現行の生残率が 10 ～ 40%これが 80%になったと想定）して試算し、最大で筏１台から８トン前後のカキの収穫があったとしても水揚げ金額は 4,000 千円程度に留まり、今回の試算で得られた機器の価格および維持運営費を賄うことは難しいと考えられた。

小長井町漁協のカキ養殖業者数と生産量、生産金額の推移

年	業者数	生産		筏１台あたりの推定生産	
		Kg	千円	Kg	千円
1999	2	985	444	493	222
2000	3	4,061	2,017	1354	672
2001	5	21,722	9,113	4344	1823
2002	24	28,038	10,811	1168	450

検討結果に対する研究会参加メンバー等の助言・指導等

３月１６日に上記の結果をもとに検討会を開催した。

参加者	水産工学研究所	高木儀昌	漁場施設研究室長
	長崎総合科学大学	山中孝友	客員教授
	衛生公害研究所	渡部哲郎	所長
		白井玄爾	公害研究部長
	総合水産試験場	藤井明彦	介藻類科長
報告者	衛生公害研究所	浜辺　聖	専門研究員
	総合水産試験場	大橋智志	研究員

長崎総合科学大学　山中孝友　客員教授

・蓄電池については、リチウム・イオン電池が実用化されつつあり軽量小型で短時間の充電が可能である等、調査で利用を検討した鉛蓄電池より有利な点を多く持つ。寿命も長く１０年程度である。しかし、現状の価格では３倍程度かかり鉛蓄電池とコストは同等程度となる。

近未来については、２層コンデンサー電池があり、これはさらに小型軽量となる。しかし、大型のものは未開発であること、価格が高いことから実用化は携帯電話等に限定されている。今後中韓製造の安価なものが増産され、容量もあがると考えられる。また、太陽電池も薄く柔軟な素材のものができており、ひねりに対しても強い可能性がある。

これらの新技術を用いて風光力船を検討しているところであり、成功すればその技術の転用も可能と考えている。将来的には筏に小型軽量の装置として搭載し、たわみに破損しない太陽電池でエネルギーを集めることは不可能ではない。ただ、数年内の実用化が難しいことは理解できる。

水産工学研究所　　高木儀昌　漁場施設研究室長

・すべての計算が費用対効果の面から検討されていることは、このような施設の利用意義からすると正しくない。現在は確かに商業電力が安価で、自然エネルギーを利用した電力の 1/10 程度の価格であるから、当然費用対効果でより有利なものが現存する状況にある。しかし、化石燃料や原子力に限界があることが明白である以上、今後はハイコストでも自然エネルギーのようなものにシフトせざるを得ないというのも共通した認識である。そのような中でどこまで先駆的に投資するか、あるいは試験するかは直近の価値判断では決めにくい部分がある。

今回の報告については、現存の企業が想定されるメンテナンスの安全性まで見込んで出した金額と考えられ、実際の 1.5 倍程度になっているのではないかと考えられる。また、実際に漁業者が負担できる部分を再度検討するとさらに必要な経費は減額されると考えられる。

ただ、それでもカキ養殖の利益率は低く、現在の環境に対する経済的負担に対する認識がまだ低いことも事実であり、数年内の実用化が難しいことは理解できる。それでも、近未来に対して今回の試算結果のみで実用的でないとの判断を残すのはいかがかと考える。近未来には、技術開発の進展とともにこのような理論の受け入れも進むものと考えられるので、その点を考慮にいれた結論として欲しい。

プロジェクト研究としての将来性

現行技術で実稼働する機器が製作できることは判ったが、現状ではコストの面で課題があると考えられた。従って、プロジェクト研究テーマとして数年内の実用化技術開発を成果目標とする場合は達成は困難と考えられた。

しかし、技術面における革新が進んでおり、今回の検討で断念した小型軽量で筏にも搭載できるような素材での検討ができれば、将来的には実用化の可能性を残していると考えられた。特に長崎総合科学大学で検討しているソーラー駆動船等に用いられる技術（太陽電池、蓄電池、防水技術、駆動機器等）は相当の部分で応用可能と考えられた。

また、今後の自然エネルギーや環境修復に対する理解の進展も期待でき、かつ、コストという考え方にも変化があるものと考えられることから、今後近未来において再度検討を行うべき実用的な課題であると結論づけた。

大村湾の浄化・生態系回復に関する研究(2004年度)

赤澤貴光・川井仁・浜辺聖・石崎修造・白井玄爾

Research on the Purification and the Ecosystem Restoration of the Omura-Bay

Takamitsu AKAZAWA,Hitoshi KAWAI,Masashi HAMABE,Syuzo ISHIZAKI,and Genji SHIRAI

Key Words : Omura-bay, Purification, Ecosystem Restroration
キーワード: 大村湾, 浄化、生態系回復

はじめに

生態系がもつ自己再生能力を引き出すことで、大村湾の水質及び底質の浄化や生態系の回復を目指す研究が、大村湾水質浄化対策事業の一つとして、2001年度(平成13年度)から5ヶ年計画で開始され、平成13年度に全湾調査[1]、平成14～15年度に津水湾を重点的に調査[2),3)]したところである。

平成16年度は、平成15年度事業のなかで選定した津水湾で実施可能と考えられる環境修復技法のうち、①現存干潟・海浜における浄化能等 ②磯場・護岸による効果 ③浮棚藻場による効果の検証の3つについて実証実験を行った。

調査の概要

1. 現存干潟・海浜における浄化能等の検証

(1) 生残調査

図1のようなプラスチック製かご(50cm×36cm×18cm)にアサリを入れ、津水湾内外3地点の干潟及び海浜に埋設し、アサリの生残状況を調査した。

一干潟(海浜)には3基ずつかごを設置し、一基につきそれぞれ30、50、70個と生育密度を変えて放流した。なお、全ての網かごには、鳥類による被害を防ぐためのふたを取り付けて設置した。

生残調査はほぼ月に1回干潮時に実施した。また、アサリの生育環境には底質等の影響も考えられることから、年に4回(実験開始時、7月、10月(又は11月)及び1月)各かご内の底質の理化学調査を行うとともに、対照区としてかご近傍の底質調査(理化学調査及び生物調査)も行った。

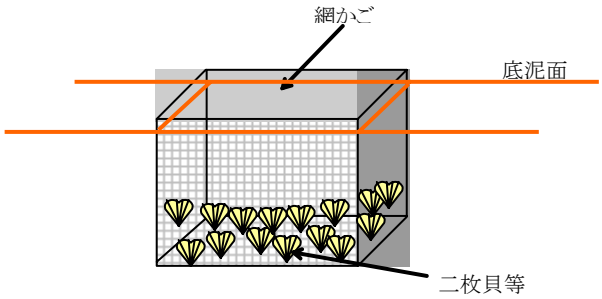


図1 アサリ生残試験模式図

a) 実験地点

図2に示す津水湾内2地点(木床船津、名切川河口)及び津水湾外1地点(伊木力漁港)。

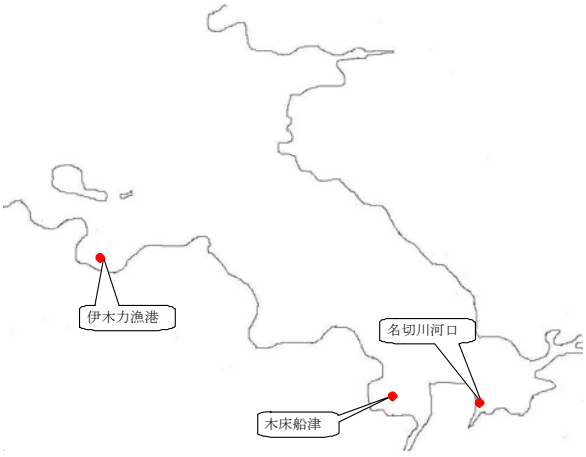


図2 実験地点

b) 実験開始日

3地点とも、平成16年5月6日夕刻に実験を開始した。なお、実験には同日小長井漁協で採捕されたアサリを購入し、使用した。

c)調査項目

生残調査、底質調査の調査項目は以下のとおりである。なお、名切川河口の30個投入区及び50個投入区については、アサリが夏期に全滅したため、9月以降は欠測とした。

生残調査:投入アサリの殻長及び総湿重量。

底質調査:強熱減量、COD、TOC、硫化物、クロロフィルa、T-N、T-P、粒度組成、底生生物(粒度組成と底生生物は対照区のみ)。なお、TOCの分析については、民間業者に委託した。

(2) 干潟及び海浜における二枚貝等による浄化能に関する評価

図3に示すメソコスム実験を行うことにより、干潟、海浜の浄化能について検証を行った。

実験は、干潟を底板のないプラスチック筒で覆い、現場海水を導入後、30分ごとに筒内の水を採取した。実験は3区画行い、干潟上にアサリを50g(湿重量)投入した区画(A)、干潟上にアサリを投入しない区画(B)、底面をビニールで覆った対照区画(C)とした。

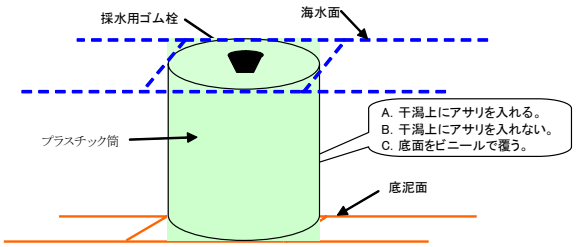


図3 浄化能メソコスム実験

a)実験地点

木床船津

b)実験日時

第1回:平成16年9月28日 13:47～15:47

c)調査項目

水質:DO、TOC、懸濁態TOC、懸濁態窒素(=PON)、NH_4-N、PO_4-P、クロロフィルa

底質:強熱減量、COD、硫化物、クロロフィルa、底生生物

水質については、調査開始時及び30分ごとに採水、底質については実験終了時のみ採取し、分析を行った。また、PONについては、T-Nと溶存態窒素(GF/B濾紙で濾過したもの)の差とした。なお、実験時の水温は、1回目が29.0℃、2回目が9.4℃であった。

2. 磯場・護岸による効果の検証

磯場や護岸の有する水質等の浄化能を検証するため、図4に示す津水湾内4地点の護岸の付着生物等の調査を実施した。

a)調査地点

木床、喜々津、溝陸、溝陸北

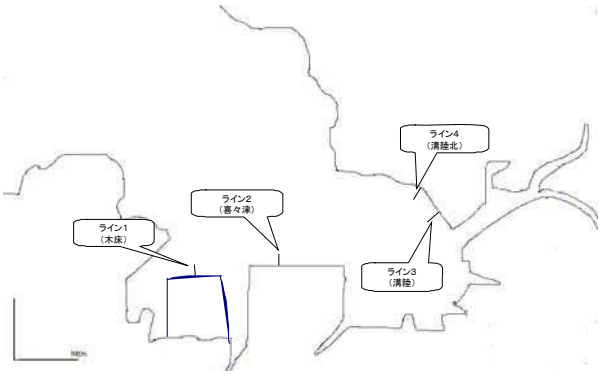


図4 護岸(磯場)調査地点図

b)調査日

第1回:平成16年6月28日

第2回:平成16年9月14日

第3回:平成16年12月22日

第4回:平成17年3月7日(木床のみ平成17年3月22日)

c)調査項目

水質:水温、pH、DO、COD、懸濁態COD、TOC、懸濁態TOC、T-N、懸濁態窒素、T-P、懸濁態リン、クロロフィルa

草体:磯場周辺の海藻類の着生状況

生物:底生生物、護岸(磯場)付着動物類の棲息状況

水質については、各護岸(磯場)の沖方向0m地点と50m地点を採水した。草体については、各護岸(磯場)の中央部から沖側50mのライン調査を、ダイバーによる目視確認により実施した。付着生物は、各護岸(磯場)3地点において枠取りを行い、これを合わせて1検体とした。底生生物については、ダイバーによるライン調査(メガベントス)の他、生物の地域性を考慮し、沖方向0m及び50m地点においてエックマンバージ採泥器による採取もおこない、これをマクロベントスとした。

3. 浮棚藻場による効果の検証

実験にあたっては、生育が早い褐藻アカモクを対象種として選定した。海藻の着生基質としては、サ

カイオーベックス株式会社(旧社名:水産増殖施設株式会社)により製造された海藻プレートを用いた。また、アカモクは同社により採苗、中間育成されたものを使用した。

a)実験地点

喜々津シーサイド沖(図5)

b)実験開始日

第1回沖出し:平成16年7月7日

第2回沖出し:平成16年10月26日

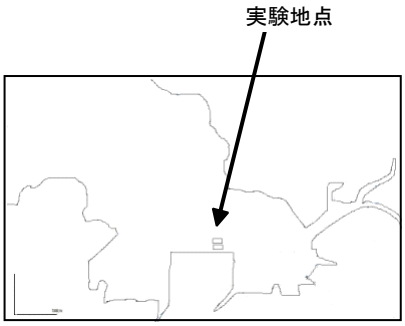


図5 実験地点

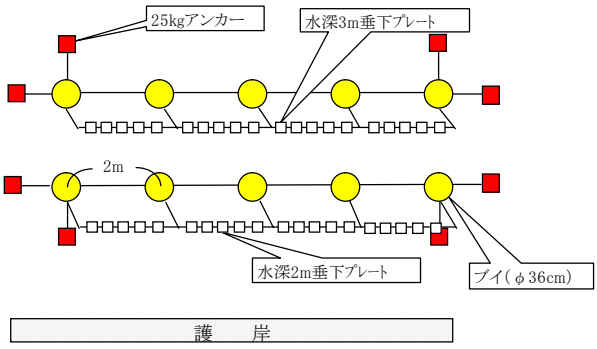


図6 実験模式図

c)実験方法

第1回沖出しでは、海藻プレートが1.5m、2m、2.5m及び3mに垂下するように設置し、第2回沖出しでは、海藻プレートが2m及び3mに垂下するように設置した。第2回沖出し分の見取図を図6に示す。

調 査 結 果

1. 現存干潟・海浜における浄化能等の検証

(1) 生残調査

アサリの生残個数及び生残率と総湿重量の変動を図7に示す。

木床船津では、6月から7月にかけて70個投入区でアサリが激減した。しかし、9月以降はどの区画においても斃死するアサリは少なかった。このことは、夏～秋期の高水温期を乗り越えることができたアサリは、年間を通じて生活できることを示している。一方、3つの区画間で7月調査時の底質の理化学的な相違はあまりみられないことから、70個投入区で夏期にアサリが大量死した原因としては高水温やアサリの密集による餌不足が考えられる。

伊木力漁港では、7月から9月にかけて50個投入区でアサリが激減した。他の2区画でも漸次減少しているが、その減少率は木床船津ほど大きくなく、木床船津よりは生育環境が良好であったと考えられる。また、木床船津同様、9月以降はどの区画においても斃死するアサリは少なかった。50個投入区で夏期に激減した原因としては、この区画のクロロフィルa濃度が定量下限値未満(<0.5μg/g・dry)であっ

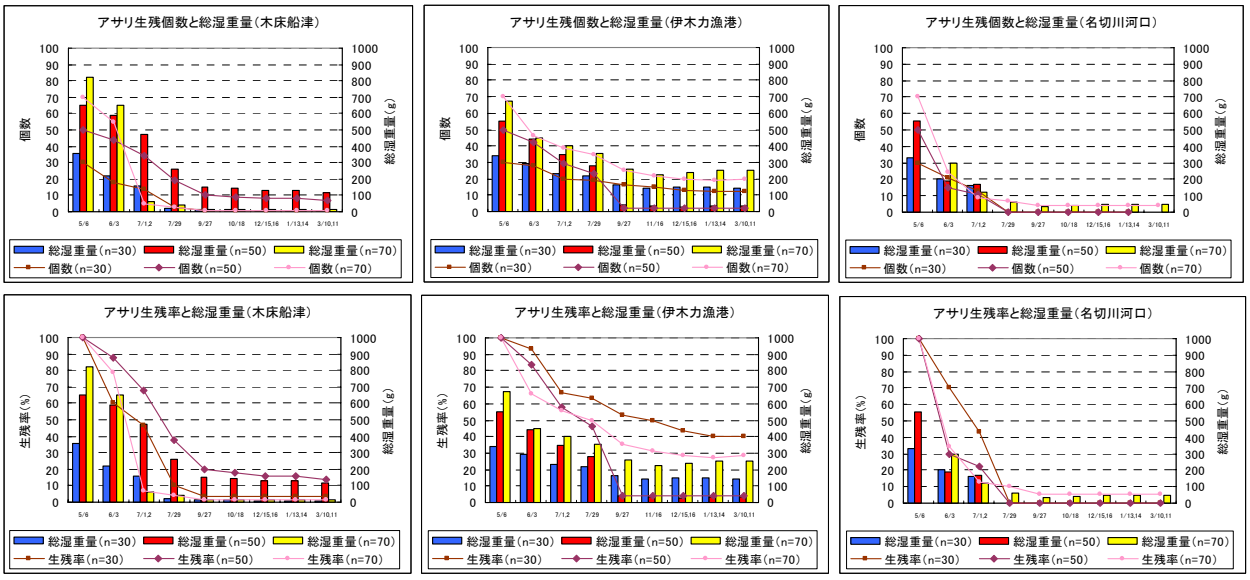


図7 アサリの生残個数及び生残率と総湿重量の変動

たことから、プランクトン等の餌不足が考えられる。また、木床船津同様10月以降は斃死個体数が少なく、水温がアサリの斃死に影響していることが示唆された。名切川河口では、すべての区画において夏期に激減し、30個投入区と50個投入区では7月末までに全滅した。70個投入区のうち、夏期を乗り越えたアサリは翌年の3月まですべて生残した。夏期に激減した理由としては、干潟域に大量に打ち上げられたアオサの腐敗・分解により酸素濃度が減少したこと、さらに底質の硫化物濃度を高めたことが考えられる(図8)。

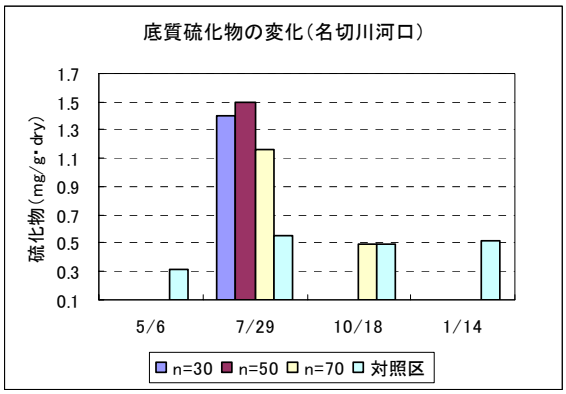


図8 底質硫化物濃度の変化(名切川河口)

(2) 各干潟・海浜の底生生物の季節変化

各干潟(海浜)の対照区における底生生物の種数等の季節変化を図9に示す。

木床船津での底生生物は、秋期(10月)に貧弱化する傾向がみられ、環形動物以外の生物は全く出現しなかった。これは、木床船津では秋期に硫化物濃度が0.92mg/g・dryと非常に高く、軟体動物や甲殻類の生物に影響を与えたためと考えられ、夏期～秋期が最も生物生息に厳しいものとみられる。また、冬期には全個体数の9割以上をホトトギスガイが占めているが、ホトトギスガイによるマット形成がアサリの生存に影響することも報告されている[4]ことから、ホトトギスガイの優占化を防止する対策が必要と考えられる。

名切川河口では、夏期(7月)に底生生物が激減し、平成16年度の秋期(10月)においては軟体動物以外の生物は全く出現しないという現象がみられた。夏期にはアオサの蓄積・腐敗等によるものとみられるシルト・粘土分の増加(31.1%)がみられており、このことが底生生物に影響を及ぼしたものとみられる。冬期(1月)には再び生物多様化の傾向がみられており、名切川河口においても夏期～秋期が最も生物生息に厳しい底質環境といえる。

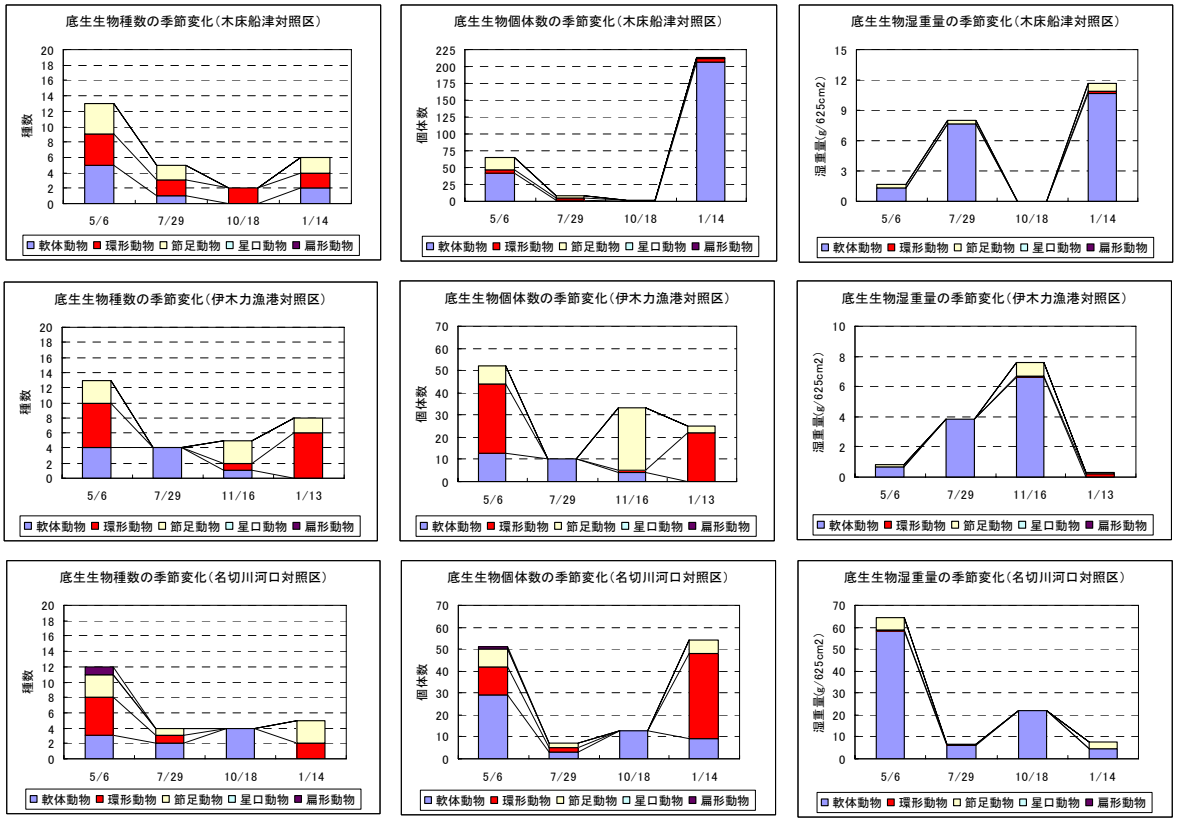


図9 底生生物の季節変化

一方、津水湾外の伊木力漁港の底生生物は、夏期（7月、8月）に貧弱化し、軟体動物のみで占められる現象がみられた。秋期（10月）には再び甲殻類等が出現し、個体数も増加していることから、伊木力漁港では、夏期が最も生物生息環境に厳しいといえる。

(3) 干潟及び海浜における二枚貝等による浄化能に関する評価

メソコスム実験において、実験区画Aは、底生生物の大部分は投入したアサリによるものであり、アサリによる浄化能とみなすことができ、実験区画Bは、現存干潟の浄化能とみなすことができる。また、底面にビニールを付けた対照区画Cは自然沈降によるものとみなすことができる。

各区画内の浄化速度（懸濁物質濾過速度）は、文献[5]より次の(1)式で得られる。

$$F = -(a - a_B) \cdot V / W \qquad (1)$$

ここで、Fは単位重量あたりの濾過速度、Vは実験水量、Wは実験区における底生生物の重量、aは実験区画におけるクロロフィルa又はPONの濃度（C）と実験時間（t）の近似式（$C = b \cdot e^{at}$）係数、a_Bは対照区画におけるクロロフィルa又はPONの濃度（C）と実験時間（t）の近似式（$C = b \cdot e^{a_B t}$）係数である。

また、排泄速度は、次の(2)式で得られる。

$$F = -(x - x_B) \cdot V / W \qquad (2)$$

ここで、xは実験区画におけるNH_4-N濃度（C）と実験時間（t）の近似式（C=a・t＋b）の係数、x_Bは対照区画におけるNH_4-N濃度（C）と実験時間（t）の近似式（C=a・t＋b）の係数である。

各実験区画で得られた物質濃度と時間の関係を図10に示す。なお、浄化速度の算出にあたっては、クロロフィルaの近似式係数を使用した。

実験結果から、9月の高水温期では、アサリが存在する干潟の濾水速度は0.369ℓ/g殻付湿重/hr、排泄速度は2.885μg-NH_4-N/g殻付湿重/hrとなった。底生生物の湿重量50.224gのうち、99%以上をアサリが占めているため、この濾水速度及び排泄速度は、アサリによるものとみなすことができる。現存干潟では、底生生物が貧弱であるため（1.701g-wet）、濾過速度は負の値を示しており、アサリを放流することにより、干潟が活性化されることが示唆された。

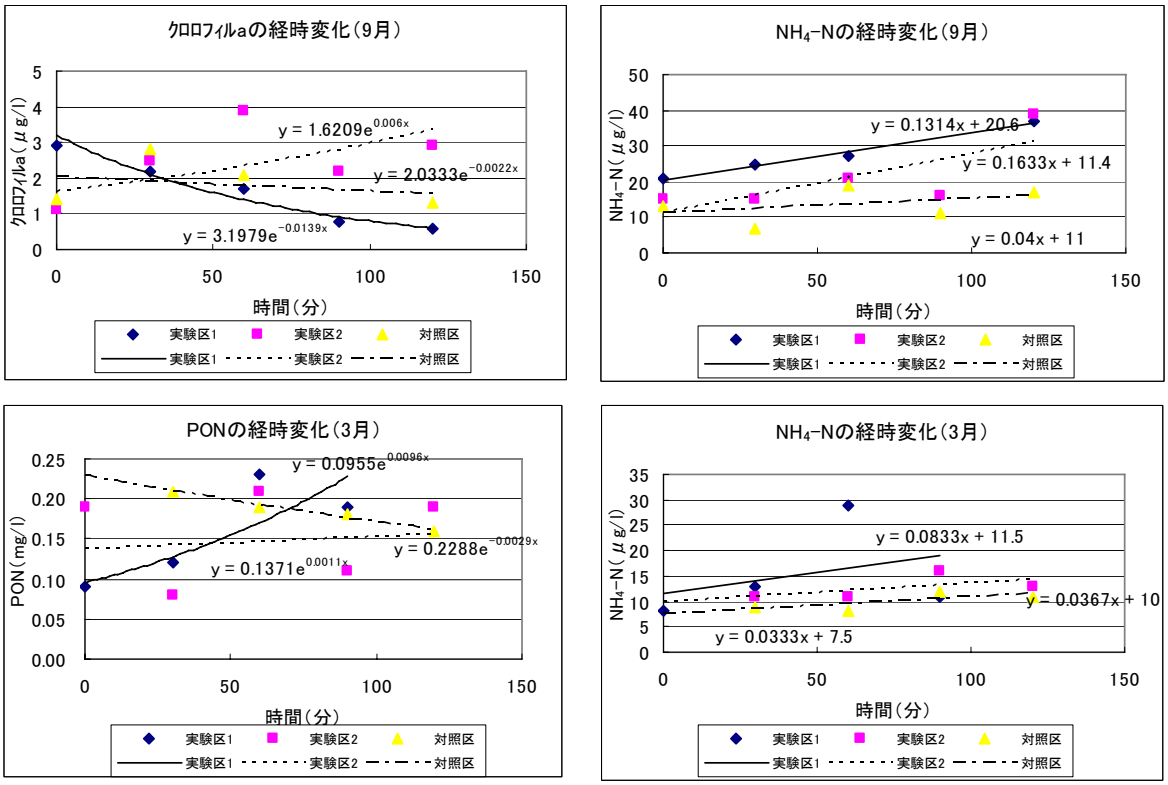


図10 干潟メソコスム実験結果

2. 磯場・護岸による効果の検証

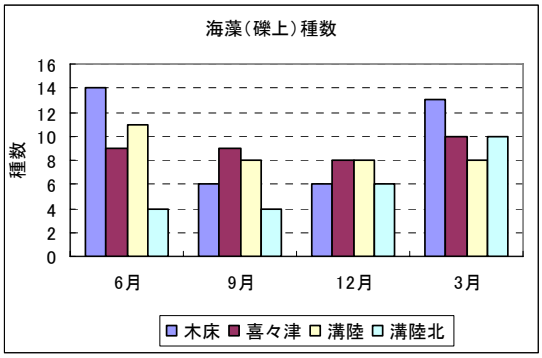
(1) 水質

水質は、0m地点と50m地点間で護岸別に特異的な物質濃度差は得られなかった。

(2) 海藻

海藻着生種数の季節変化を図11に示す。

海藻類は3月を除いて垂直護岸(溝陸北)よりも他の護岸の方の海藻種数が多かった。また、いずれの地点においても軟泥上よりも護岸近くの礫上の方が多く着生していた。このことから、護岸近くに投石等を行うことが海藻着生に有効であることが示唆された。



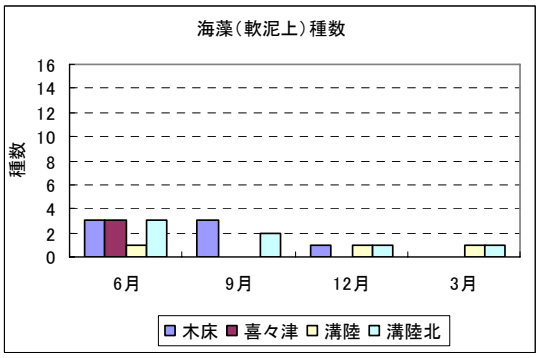


図11 海藻着生種数の季節変化

(3) 付着生物

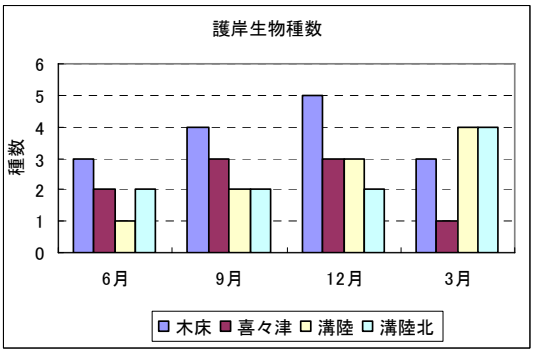
護岸付着生物種数及び湿重量の季節変化を図12に示す。

護岸生物の種数は、垂直護岸(溝陸北)を除いて、海藻着生種数と反比例する傾向がみられた。浦賀湾においても同様な傾向が報告されており[6]、基質に対する優占度によるものと考えられる。

(4) 魚類

魚類種数の季節変化を図13に示す。

魚類種数は、海藻着生種数の季節変化とよく似た傾向を示しており、多種にわたる海藻が着生することが沿岸域の魚類の多様性をもたらすものと考えられる。



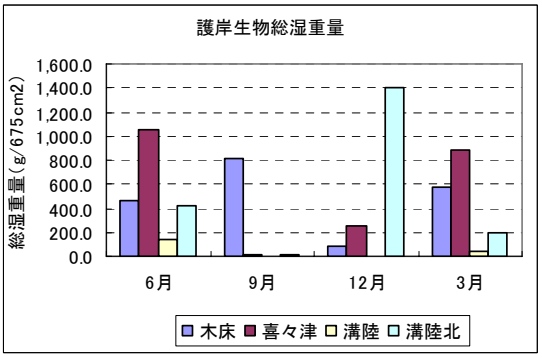


図12 護岸付着生物の種数及び湿重量

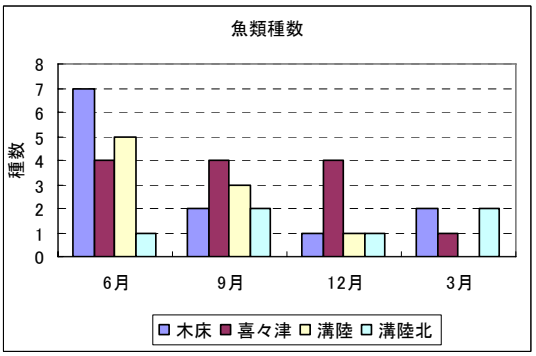


図13 魚類種数の季節変化

(5) 底生動物

ダイバーの目視によるメガベントスの季節変化を図14に示す。

各地点とも、沖側よりも投石がある岸側に多く生物がみられた。特に磯場が築かれている溝陸では、沖側ではほとんど生物がみられなかったのに対し、磯近くでは多様な生物層が出現していた。一方、垂直護岸である溝陸北では、沖側よりも岸側で生物種数が多かったが、オオヘビガイを主とする軟体動物及びフジツボ類を主とする節足動物で占められており、他地点のような多様性はみられなかった。

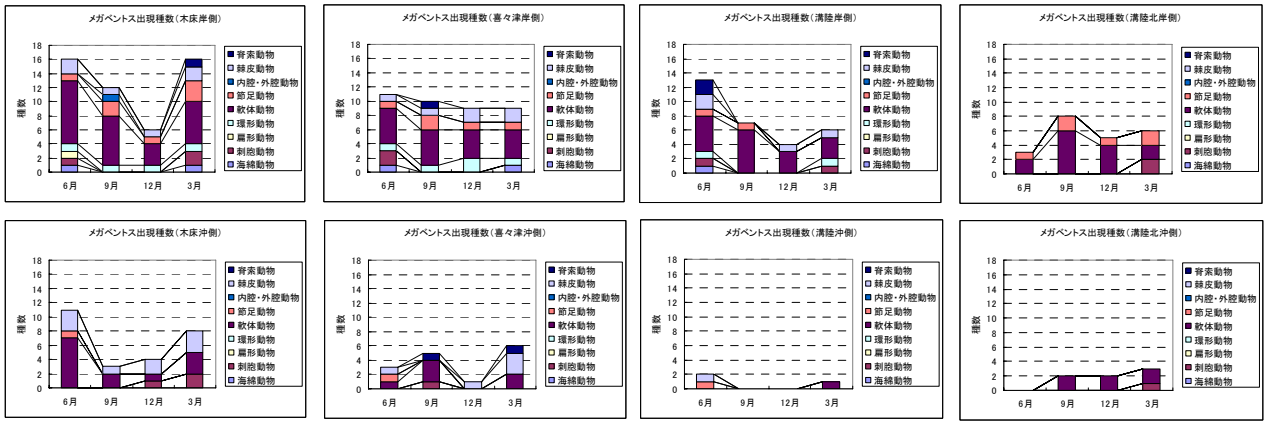


図14 メガベントスの季節変化

3. 浮棚藻場による効果の検証

(1) 褐藻アカモクの成長度

夏期に沖出ししたものについては、2週間程度でフジツボ類の着生が激しくなり、2ヵ月後にはプレート全体を覆うようになった。また、付着生物も大量に発生し、実験の継続が困難であったことから、10月に撤収した。

秋期に沖出ししたものについての各層のアカモクの成長の経時変化及び写真を、それぞれ図15及び図16に示す。

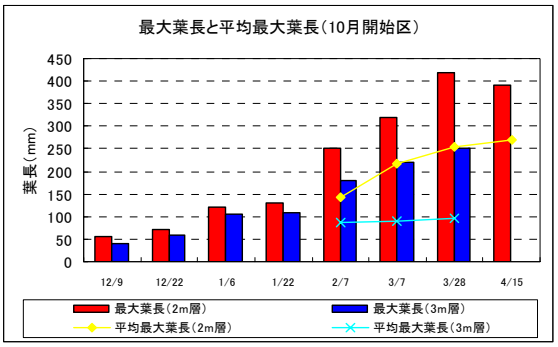


図15 浮棚藻場(アカモク)の成長の経時変化

10月に設置した筏は、2m層ではほぼ順調に成長し、3月下旬で最大42cm(各プレートの平均最大葉長25cm)まで成長したが、3m層では最大25cm(各プレートの平均最大葉長9.6cm)までしか成長せず、相違がみられた。

実験開始171日目(平成17年4月15日)に回収したアカモクの湿重量は、2m層で1プレートあたり218.3g・wet、3m層で1プレートあたり42.2g・wetと5倍の差が生じた。このような差異は、3m層に生育に十分な光量がないことによるものと考えられ、津水湾奥部での浮棚藻場は水面下2mまでが限界であると推定される。いずれの層のアカモクとも5月初旬には流出しており、3～4月が最も成熟する時期であった。

また、12月から1月にかけて、ロープに大量のアオサが付着しているのが確認された。1月6日に採取したアオサは緑褐色で、ロープ1連(ブイとブイの間:2m)あたり387.17g(湿重量)であった。

(2) 浄化能の推定

平成17年3月7日に採取したアカモクの窒素・リン含有量は表1のとおりであった。表には12月から1月にかけて筏に付着したアオサの窒素・リン含有量も合わせて示した。

図16 第2回沖出し時のアカモク(左:設置時、中央:2m層5ヵ月後、右:3m層5ヵ月後)

表1 アカモク・アオサの窒素・リン含有量

	窒素含有量（%）	リン含有量（μg/g・dry）
アカモク	2.51	760
アオサ	4.52	2,460

アカモクが、沖出しから採取日までの132日間に全窒素及びリンを取り込んだものとした場合、その吸収能は、窒素：190μg/g・dry/日、リン：5.8μg/g・dry/日となる。松島湾でのアカモクによる水質浄化試験では窒素で19μg/g/日という報告がある[7]が、大村湾での結果も湿重量換算では17.4μg/g・wet/日となり、ほぼ同程度であった。

また、冬期に増加したアオサは非常に生育が早く、発生後約1ヶ月程度で表1のような含有量に達していた。アカモクと同様に吸収能を算出すると、窒素1,460μg/g・dry/日、リン79.3μg/g・dry/日となり、栄養塩類吸収能は非常に高いと考えられる。また、干潟等に打ち上げられたアオサに比べて色合いも濃く、浮棚藻場によるアオサの育成及び回収の有効性が示唆された。

ま と め

1．現存干潟・海浜における浄化能等の検証

アサリの生残実験では、アサリが斃死する原因として夏期の高水温、餌料不足、アオサの堆積によるダメージ等が示唆された。各干潟・海浜の底生生物の季節変動から夏～秋期は厳しい生息環境にあると思われることや、この時期を乗り越えたアサリはほぼ年間を通じて生残したことなどから、夏～秋期の生息環境の整備が重要であると考えられる。また冬期においても底質の攪拌（耕うん）等、ホトトギスガイの優占化を防止する対策が必要であると考えられる。

干潟におけるメソコスム実験から、9月におけるアサリの濾過速度は0.369l/ g殻付湿重/hrと推定され、アサリの放流や育成が海域の浄化に貢献するものと考えられる。

2．磯場・護岸による効果の検証

護岸前面に磯場等の石積みを設けることで、海藻類や底生動物が増加する傾向がみられた。また、海藻類の種数は、魚類出現種数と似た傾向がみられた一方で、護岸付着動物の種数と反比例する傾向がみられた。

3．浮棚藻場による効果の検証

秋期に沖出しした褐藻アカモクは、2m層では最大42cmまで成長したが、3m層では最大25cmまでしか成長しなかったことから、津水湾奥部における浮棚藻場は垂下水深2mが限界であると考えられる。また、アカモクによる栄養塩類固定量は、窒素：190μg/g・dry/日、リン：5.8μg/g・dry/日と推定される。

浮棚藻場に付着したアオサによる栄養塩類固定量は、窒素1,460μg/g・dry/日、リン79.3μg/g・dry/日と推定され、栄養塩類吸収能が非常に高いことが示唆された。

参 考 文 献

1） 森淳子他 衛生公害研究所報 **47**, 55～58（2001）

2） 赤澤貴光他 衛生公害研究所報 **48**, 83～90（2002）

3） 赤澤貴光他 衛生公害研究所報 **49**, 72～79（2003）

4） 宮崎一他：富栄養化における環境悪化と二枚貝の生残率の関係 用水と廃水 **47(2)**, p.54-61（2005）

5） （財）地球・人間環境フォーラム：浅海域の水質浄化における底生生物寄与に関する調査研究報告書 平成11年3月

6） 細川恭史他：浦賀湾防波堤の付着生物調査 港湾技研資料 No.962（2000）

7） 佐々木久雄他：模擬藻場における水質浄化試験 第38回水環境学会年会講演集 平成16年3月

藻場による水環境の改善に関する研究

赤澤貴光・川井仁・浜辺聖・石崎修造・桐山隆哉*・白井玄爾

Research on an Improvement of the Water Environment by the Alga-place

Takamitsu AKAZAWA ,Hitoshi KAWAI,Masashi HAMABE,Syuzou ISHIZAKI ,
Takanari KIRIYAMA,and Genji SHIRAI

Key Words : Omura-bay, Water Environment, Alga-place, Zostera marina
キーワード: 大村湾，水環境，藻場，アマモ

はじめに

藻場を創出することにより、大村湾の水環境を改善する研究が、大村湾水質浄化対策事業の一つとして、2001年度（平成13年度）から5ヶ年計画で開始された。

2004年度（平成16年度）は、2003年度のアマモ場分布状況調査の結果から、アマモ場及び非アマモ場を数地点ずつ選出し、底質等の生育環境調査を行ったので報告する。

調査の概要

アマモ場分布状況調査の結果、アマモ場の存在が認められた海域4地点及び非アマモ場4地点を対象に、年3～4回調査を実施した。

(1) 調査地点（図1）

アマモ場：木床、鈴田、形上、江上浦（江上浦は浅所と中間点の平均値により解析）

非アマモ場：大草、競艇場北、久留里、西彼横浦

(2) 調査時期

平成16年5月～6月（成熟期）、7月～9月（衰退期）、10月～12月（回復期）、1月～3月（生長期）

(3) 調査項目

・水質（表層及び底層）：透明度、水温、pH、DO、COD、TOC、T-N、NH_4-N、NO_2-N、NO_3-N、T-P、PO_4-P

・底質：乾燥減量、強熱減量、T-N、T-P、粒度組成

・流向流速・塩分・水温・光量

流向流速の連続測定には、アレック社製メモリー小型流速計COMPACT-EM、塩分・水温の連続測定には、アレック社製メモリー小型塩分計COMPACT-CT）を使用した。計測器は、底土上1mに流向流速計を係留し、底土上1.5mに塩分・水温計を係留した。流向流速は、1秒間隔で30秒連続測定を1時間おきに計測し、塩分・水温の測定は、10分間隔に計測した。また、光量子量の測定には盟和商事製LI-193水中用光量子センサーを使用し、数地点の海面から底土までを0.5mおきに測定をおこなった。

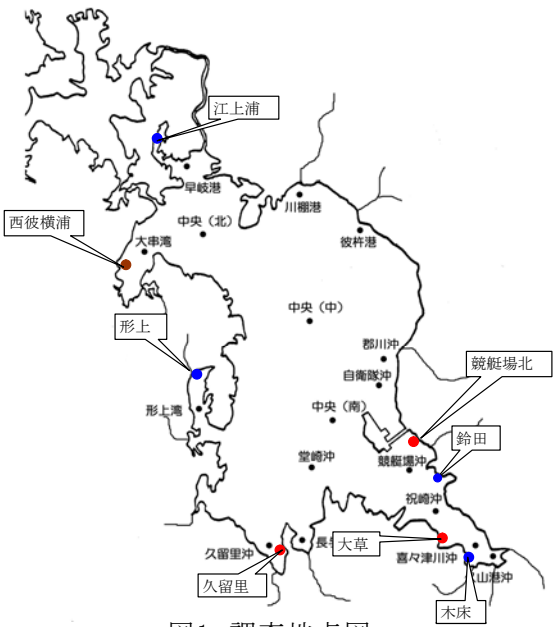


図1 調査地点図

* 長崎県総合水産試験場

調 査 結 果

(1) 水質

平成16年度の水質の年間変動を図2に示す。

DOは全地点で年間平均値が8mg/l前後であり、アマモ場と非アマモ場で有意差はみられなかった。CODについても全地点で年間平均値が表層で3.0mg/l前後、底層が2.5～3.0mg/lであり、アマモ場と非アマモ場とのあいだに有意差はみられなかった。

T-N及びT-Pは、各地点とも表層では変動が大きいが、底層では安定しており、アマモ場と非アマモ場で有意差はみられなかった。DIN（NH_4-N、NO_2-N及びNO_3-Nの総計）は、各地点とも表層では変動が大きいが、底層では全地点で年間平均値は0.02mg/l以下であった。PO_4-Pは、各地点とも表層では変動が大きいが、底層ではほとんどの地点で年間平均値が0.005mg/l以下であり、アマモ場と非アマモ場で有意差はみられなかった。

(2) 底質

平成16年度の底質の年間変動を図3に示す。

乾燥減量は、アマモ場では年間平均60%以上、非アマモ場では年間平均60%未満であり、有意差がみられた。強熱減量は、アマモ場では年間平均10%以上であり、比較的高い傾向があるが、大草のように10%を超過する地点もあった。

T-Nは、アマモ場では年間平均2.0mg/g･dry以上、非アマモ場では年間平均2.0mg/g･dry未満と有意差がみられたが、T-Pについてはアマモ場と非アマモ場との間に有意差はみられなかった。

中央粒径は、アマモ場では年間平均Md φが5.2以上、非アマモ場では年間平均Md φが5.2未満であり、有意差がみられた。土密度においても、アマモ場では年間平均2.55g/cm^{3}未満、非アマモ場では年間平均2.55g/cm^{3}以上であり、両者のあいだに有意差がみられた。

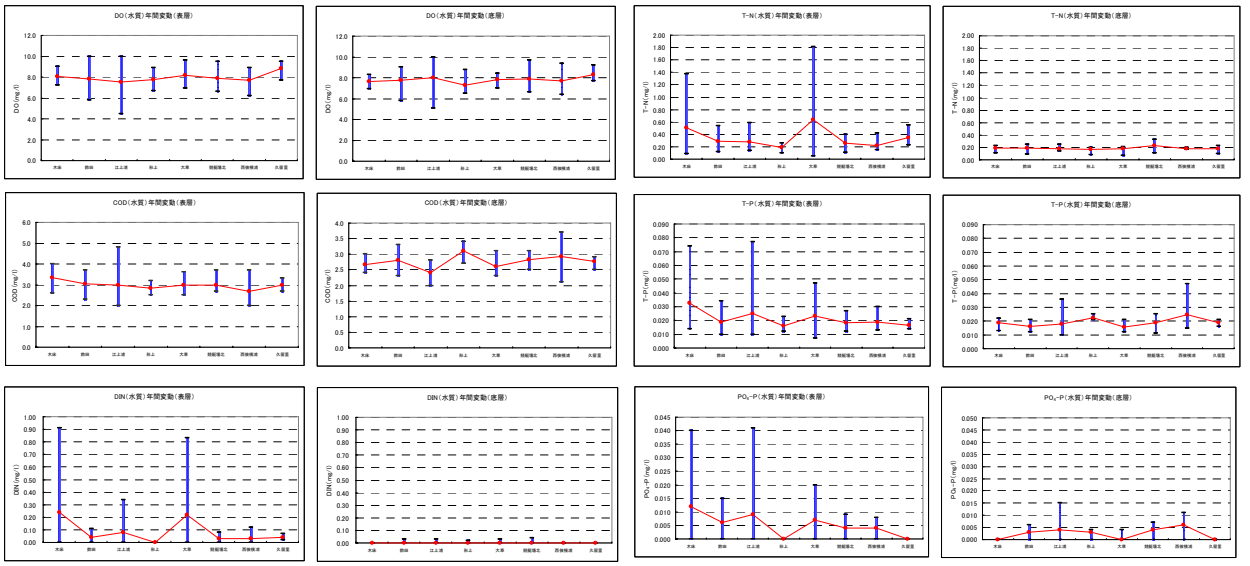


図2 水質の季節変化

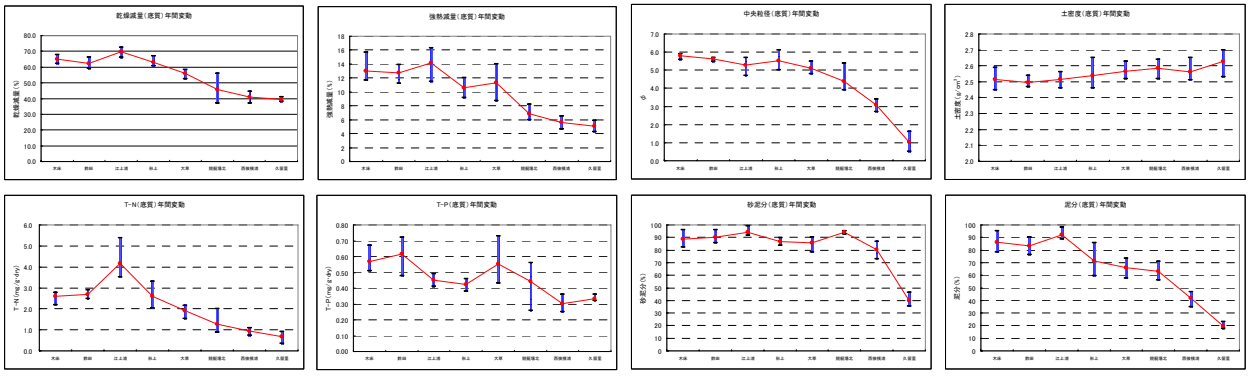


図3 底質の季節変化

(3) 底層流速

成熟期及び衰退期は、各地点で変動幅が大きかったが、最大でも25cm/s以下であった。また、四季を通じてアマモ場と非アマモ場との間に有意差はみられなかった。また、各地点とも風速が長時間10m/sを超えると底層流速に影響を与える傾向がみられた。

(4) 塩分

回復期及び生長期に塩分が低くなる地点もみられたが、全地点とも四季を通じて概ね25～34‰の範囲内にあり、アマモの生育に影響を及ぼす程度ではないものと考えられる。

(5) 光量

海面の光量子量C_o（μmol･photons/m^2/s）と、海面下ℓmの光量子量C_ℓ（μmol･photons/m^2/s）の間には次の相関が成立する。

$$C_\ell = Co \times \exp(-\alpha \times \ell)$$

ここでαは光量子消散係数である。

各地点とも回復期の光量子消散係数は、他の時期に比べて高い傾向がみられたが、アマモ場と非アマモ場との間に有意差はみられなかった。

光量に関しては、既往の文献ではアマモの補償点光量（光合成量と呼吸量が等しくなる量）は30μmol･photons/m^2/sとされ[1]、この点が生育限界水深になるものと考えられる。

そこで、平成16年度に全地点で観測された光量子量のうち、100μmol･photons/m^2/s以下の光量子量と水深の相関図を図4に示す。

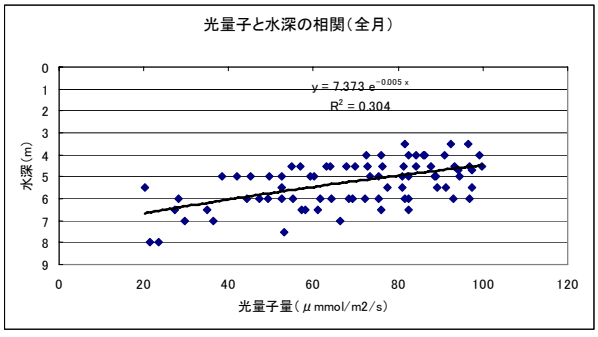


図4 光量子量と水深の相関

図4から、補償点光量（30μmol･photons/m^2/s）となる水深は、6.3mと推定され、大村湾でのアマモの生育限界水深は6.3mであると考えられる。

(6) 気象

平成14年度から平成16年度に気象庁長崎観測所で観測された平均日照時間を図5に、大村観測所で観測された降水量及び気温をそれぞれ図6及び図7に示す。

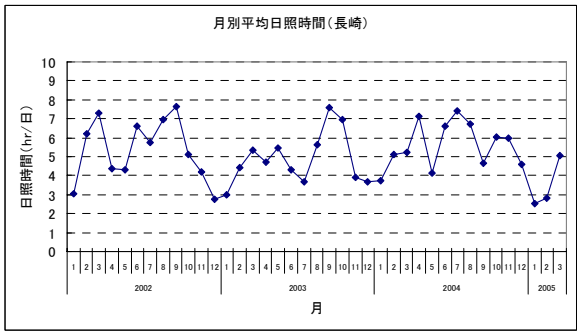


図5 月別平均日照時間

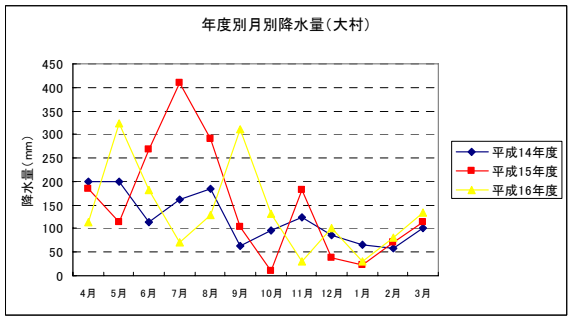


図6 月別降水量

9月の日照時間は、平成14年度及び平成15年度では7時間以上あったのに対し、平成16年度は4時間程度しかなかった。これは平成16年9月には台風が上陸し、降雨量が多かったことにも関連しており、アマモの発芽に対して影響を及ぼした可能性がある。江上浦では平成16年11月の浅所において、アマモよりも粒径が大きい底質に生育しやすいホンダワラ類が優占種になったが、こうした台風等の自然的要因で、底土上の軟泥が流出したか又は底質そのものが攪拌されたことにより、底質の粒径が大きくなったためと考えられる。台風によるアマモ場減少については、岩国地先でも報告[2]されており、こうした自然的要因も大きな影響を及ぼすものと考えられる。また、アマモの密生が認められた平成15年度は、生長期である冬期（1月～2月）に3時間以上の日照時間があったのに対し、平成16年度は3時間以下であり、アマモの生育にも影響を与えた可能性がある。

平成15年度及び平成16年度の気温は、平成14年度に比べて秋期の下降速度が緩やかであり、4～5℃程度高かった。これに伴い秋期の海水温も平成15年度及び平成16年度の方が平成14年度より高くなっているが、アマモの発達度には違いが生じており、秋期

の気温や海水温が生育環境条件に影響を及ぼしているわけではないと考えられる。しかし、平成16年度の夏期の気温は平成15年度よりも最大で1.8℃、平均で1.4℃高く、種子を腐敗させるなどの影響を及ぼした可能性はある。

以上のことから、アマモが順調に発芽し、生育するためには、

① 夏期に高温にならないこと
② アマモが発芽する秋期に大きな台風や、大雨などによる底質の攪拌がおこらないこと
③ 生長期である冬期には十分な日照時間があること

が必要な条件と考えられる。

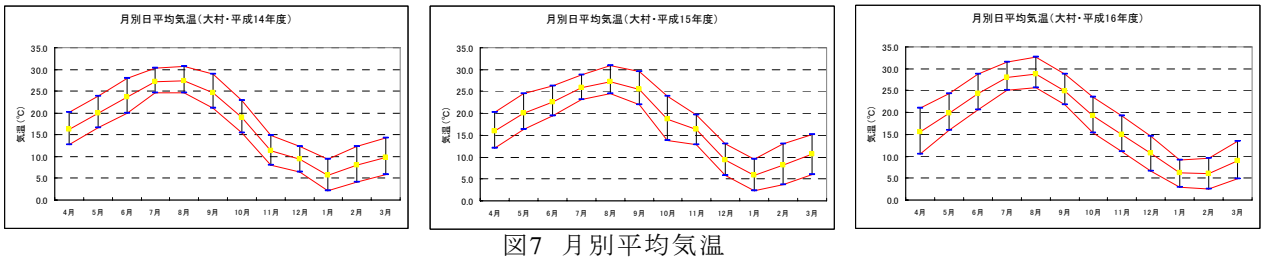


図7 月別平均気温

ま と め

これまでの調査結果から、大村湾におけるアマモの生育環境条件(地理的条件)は表1のとおりである。また、大村湾でアマモが生育するために望ましい環境条件は表2のとおりである。

大村湾内でアマモが生育するためには、底質が安定していることが最も重要な条件であり、不安定な海域にアマモ場を造成する場合は、適当な生育基質の選択や底質窒素濃度の改善が必要と考えられる。

表1 大村湾内でアマモが生育するための環境条件(地理的条件)

項目		条件
水深		1m以上6.3m以下であること。
底質	乾燥減量	年間平均60%以上であること。
	土密度	年間平均2.55g/cm^{3}未満であること。
	粒度組成	生殖株ではMdφの年間平均値が5.2以上(26.4μm以下)であること。栄養株では中央粒径0.1～0.2mm程度であること。
	T-N含有量	年間平均2.0mg/g･dry以上であること。

表2 大村湾内でアマモが生育するために望ましい環境条件

項目	条件
水温	夏期に高水温にならないこと。
塩分	低くなり過ぎないこと。
シールズ数	シールズ数が高い時は、適当な基質を選択すること。
風速	10m/sを超えても底層流速に影響を及ぼさないこと。
日照時間	冬期に十分な日照時間があること。
競合生物	アオサ等が繁茂しないこと。

参 考 文 献

1) 平岡喜代典他 「葉上浮泥と葉上付着物によるアマモの分布下限深度への影響」 第38回日本水環境学会年会講演集 p158(2004)

2) 杉本憲司他 「自然的要因による環境攪乱がアマモの分布に及ぼす影響について」 第39回日本水環境学会年会講演集 p118(2005)

諫早湾干拓調整池の植物プランクトン及び底生生物調査結果(2004年度)

石　崎　修　造　・　白　井　玄　爾

Phytoplankton and Benthos of The Detention Pond Originated from Isahaya-bay Land Reclamation

Syuzo ISHIZAKI , Genji SHIRAI

Key word ; Isahaya Bay , Detention Pond , Phytoplankton , Benthos
諫早湾, 調整池, 植物プランクトン, 底生生物

はじめに

諫早湾は平成９年４月に淡水化を目的として締め切られが、その後の水環境の変化について調査を継続している。ここでは平成16年度の生物相について報告する。

調査方法

(1)調査地点

図1に示す７地点で調査を行ったが、植物プランクトンについては、 P2及びS6、S7は表層のみ、S1～S3及びS5は表層、底層の2層について調査を行った。なお、S5～S7地点は昨年度から追加した調査地点である。

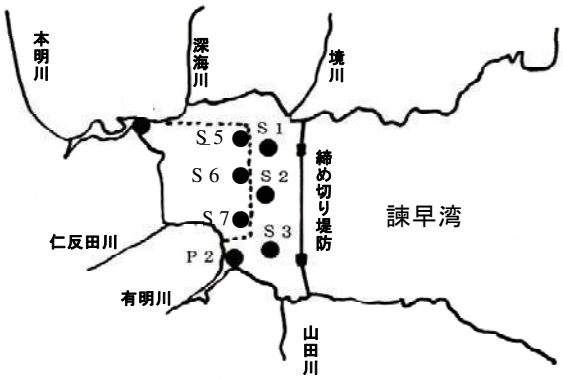


図１　調査地点

(2)サンプリング方法

ｱ)植物プランクトン

バンドン採水器を用いて採水し、グルタルアルデヒドで固定し、検鏡用サンプルとした。なお、動物プランクトンについても同定し、個体数を算定した。

ｲ)底生生物

エックマンバージ採泥器を用い、1地点につき3ケ所で採泥し､3検体を合わせて1サンプルとした。泥は1mmメッシュの網かごを用いて現場で篩い、メッシュ上に残ったものを検鏡用サンプルとした。

(3)調査頻度（平成１６年度）

プランクトン：5月、8月、11月、2月の年間4回。
底生生物　　：8月及び2月の年間 2回。

調査結果

(1) 植物プランクトン調査

平成9年4月以降8年間の各地点の植物プランクトン出現種類数及び総個体数の変化を図２、図３に示す。

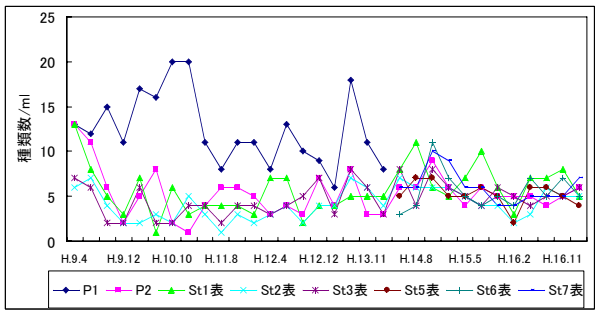


図２　種類数の変化

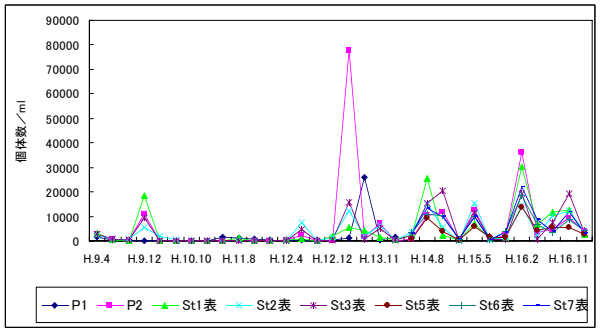


図３　個体数の変化

平成 16 年度も出現種数が各地点とも 5 ～ 10 種程度で推移し、大きな変化は認められなかった。

個体数については 8 月及び 11 月に赤潮状態に近いレベルにまで増加している。この間の優占種は珪藻類の *Skeletonema potamos* であった。本種は比較的小型であるので極端な着色は認められないが、茶褐色の水色であり、平成 12 年度以降の優占種はほとんどこの種が原因となっている。アオコの原因となる藍藻類については、これまではあまりみられなかったが、本年 8 月に各地点で２～３種類出現し、*Phormidium* の個体数は 200 ～ 300 個体に達していた。

平成 14 年度までに 5 ～ 6 回、個体数の増加が認められているが、その頻度は平成 12 年度以降に多くなっており、有機汚濁の進行が懸念される。なお、淡水化の進行もプランクトン個体数増加の一因となっていることが考えられる。

なお、調査個表は表 1-1 ～表 1-4 に示す。

(2)底生生物調査

平成16年度の調査結果を表2-1～2-2に示すが、依然として各地点とも貧弱で、2～3 種類しかみられず、イトミミズやドロクダムシ等が優占種となっている状況は昨年度と同様である。また、イトミミズやセスジユスリカといった淡水有機汚濁域の指標種の出現頻度が増していることは淡水化の進行を示唆しているものと思われる。

表１－１ プランクトン調査結果

調査年月日：平成16年5月11日
採集方法：バンドン採水器(2l)
単位：細胞/ml

調査地点		P2	S1-S	S1-B	S2-S	S2-B	S3-S	S3-B	S5-S	S5-B	S6-S	S7-S
種名												
有色植物門　珪藻綱	*Cyclotera* sp.	350	150	50		50	50	150		50		
	Skeletonema potamos.	2,850	6,000	3,700	2,400	3,200	600	700	3700	2700	6450	8200
	Nitzschia longissima	50	150		100	50			150	150	100	100
	Nitzschia sp. *1*	150							50	50		
	Nitzschia acicularis											
	Nitzschia holsatica									50	100	150
	Navicula sp.		50				50		150			
	Melosira sp.		50								50	
	Synedra sp.		50							100	50	
	Amphiprara sp.	250		200	50	100	200	200	150	100	50	250
	Gyrosigma sp.										50	
緑藻植物門　緑藻綱	*Scenedesmus sp.*											50
ミドリムシ植物門	*Euglena* sp.		50						100	100		
出現種数		5	7	3	3	4	4	3	6	8	7	5
出現細胞数		3,650	6,500	3,950	2,550	3,400	900	1,050	4,300	3,300	6,850	8,750

空欄は検出せず。

表１－２ プランクトン調査結果

調査年月日：平成16年8月10日
採集方法：バンドン採水器(2l)
単位：細胞/ml

調査地点		P2	S1-S	S1-B	S2-S	S2-B	S3-S	S3-B	S5-S	S5-B	S6-S	S7-S
種名												
藍藻植物門　ラン藻綱	*Phormidium tenue*	250	300	150	200	100	250	50	250	300	350	200
	Oscillatoria sp.		2	50	1	1		50	50		150	50
	Anabaena sp.			50								
有色植物門　珪藻綱	*Cyclotera* sp.		100	50						50		
	Skeletonema potamos	3,400	11,200	7,550	9,750	8,700	6,800	7,050	4650	5850	2200	2750
	Melossira distance					50	50					
	Nitzschia longissima	300	150		100			200	100	100	200	150
	Nitzschia holsarica.		50									
	Diploneis sp.											
	Navicula sp.				50							
	Amphiprara sp.	750	150	150	50	150	150	200	250	500	450	600
	Ankistrodesmus sp.						50					
緑藻類	*Eudorina* sp.								50	100		
出現種数		4	7	6	6	5	5	5	6	6	5	5
出現細胞数		4,700	11,952	8,000	10,151	9,001	7,300	7,550	5,350	6,900	3,350	3,750

空欄は検出せず。

表１－３ プランクトン調査結果

調査年月日：平成16年11月16日
採集方法：バンドン採水器(2l)
単位：細胞/ml

調査地点		P2	S1-S	S1-B	S2-S	S2-B	S3-S	S3-B	S5-S	S5-B	S6-S	S7-S
種名												
有色植物門　珪藻綱	*Cyclotera* sterligea.	850	300	300	500	400	700	600	550	600	700	1200
	Skeletonema potamos	7,750	11,050	11,750	10,850	12,350	17,650	15,600	4550	5650	7350	10050
	Skeletonema costatum											50
	Melossira distans	50	100									
	Nitzschia sp.		50							100	50	
	Nitzschia longissima		400	50	100		100		100	150	100	
	Synedra ulna		100	50								
	Diploneis sp.							50				
	Navicula sp.		200					50			50	
	Amphiprora sp.	700	300	150	600	600	800	1,250	250	300	400	400
緑藻植物門　緑藻綱	*Scenedesmus sp.*	50			50		50		50		100	50
出現種数		5	8	5	5	3	5	5	5	5	7	5
出現細胞数		9,400	12,500	12,300	12,100	13,350	19,300	17,550	5,500	6,800	8,750	11,750

空欄は検出せず。

表1－4 プランクトン調査結果

調査年月日：平成17年2月 22日
採集方法：バンドン採水器(2l)
単位：細胞/ml

調査地点		P2	S1-S	S1-B	S2-S	S2-B	S3-S	S3-B	S5-S	S5-B	S6-S	S7-S
	種名											
有色植物門　珪藻綱	*Cyclotera* stelligera	300	50		50	150	50	150	150	300	250	150
	Skeletonema potamos	3,100	2,400	2,250	3,150	4,150	2,750	2,400	2300	3800	3650	2750
	Skeletonema costatum									100		
	Melossira distance		50		50		50					
	Nitzschia sp.	150	100	100	50	50		150	100	50	50	150
	Navicula sp.			50		200	50			100	50	50
	Surirella angustata						50					100
	Amphiprora alata	50	50	50					50	50	200	50
	Gyrosigma sp.	50										
	Stephanodiscus sp.	100					50					
緑色植物門　緑藻綱	*Schroederia* sp.			100	150							50
	Euglena sp.			50								
	出現種数	6	5	6	5	4	6	3	4	6	5	7
	出現細胞数	3,750	2,650	2,600	3,450	4,550	3,000	2,700	2,600	4,400	4,200	3,300

空欄は検出せず。

底生生物の密度（平成１６年８月　１０日）　　（ 個体数／m^2）

		Ｐ２	Ｓ１	Ｓ２	Ｓ３	Ｓ５	Ｓ６	Ｓ７
節足動物	ヒメトビイロカゲロウ				15			
	ドロクダムシ	577		163	59		59	
	セスジユスリカ		15			44		15
環形動物	イトミミズ	44	15	75	355	44	15	30
	イトゴカイ	30						
貝　類	マシジミ							15
計		651	30	238	429	88	74	60

底生生物の密度（平成１７年２月２２日）　　（ 個体数／m^2）

		Ｐ２	Ｓ１	Ｓ２	Ｓ３	Ｓ５	Ｓ６	Ｓ７
節足動物	ドロクダムシ	118	148	15	178	15	15	
	セスジユスリカ	15						
環形動物	イトミミズ	15	30	59	44	104		89
計		148	178	74	222	119	15	89

イボニシに関する有機スズ化合物の影響調査

浦　伸孝・石崎　修造

Effects of Organotin Compounds in *Thais clavigera*

Nobutaka URA, Syuzo ISHIZAKI

Key Words : *Thais clavigera*, imposex, Organotin Compounds
キーワード: イボニシ, インポセックス, 有機スズ化合物

はじめに

1960 年代から、環境ホルモンの一種である有機スズ化合物が、船底防汚塗料や、漁網防汚塗料として世界中で広く用いられてきた。そのため近年、この有機スズ化合物（トリブチルスズ（TBT）等）の影響により、イボニシ（*Thais clavigera*（海産巻き貝の一種））のメスがオス化する（インポセックス）現象が全国的に報告されている。

本県における形態調査（平成 13 ～ 14 年度実施）でも、高い割合でイボニシのインポセックスが確認された。本研究では、このインポセックスを指標として、県内の有機スズ化合物による汚染の現況把握及び原因の推定を行うことを目的としている。

平成 13 ～ 14 年度に、形態調査と同時に水中の有機スズ濃度を調査したが、インポセックス出現率との関係は明瞭にならなかった[1)]。

そこで、平成 15 年度に、平成 13 ～ 14 年度の形態調査でインポセックス出現率の高かった地点近傍のイボニシについて、インポセックス発生の要因と考えられる、イボニシ体内の有機スズ濃度調査を実施した[2)]。その結果、他の報告[3)]と同様に、イボニシ体内の有機スズ濃度は、インポセックス出現率と正相関の関係にあることが確認された。

平成 16 年度は、インポセックスが高率に発生した地点の底質の有機スズ濃度を測定し、インポセックス出現率との関係を調査したので報告する。

調査内容

１．調査対象

新腹足目アクキガイ科

イボニシ（*Thais clavigera*）

２．調査地点

平成 15 年度に実施した詳細調査地点の近傍で、壱岐市、対馬市、新上五島町、松浦市内に計 9 ヶ所、対照地点として長崎市（旧野母崎町）に 2 ヶ所、合計 11 ヶ所で底質を採取。（図 1）

３．調査項目

底質有機スズ濃度

ジブチルスズ（DBT）、トリブチルスズ（TBT）、　ジフェニルスズ（DPT）、トリフェニルスズ（TPT）

４．調査方法

（1）底質採取方法

船上より、エクマンバージ採泥器を用いて底質を採取した。

（2）底質有機スズ濃度分析方法

底質（湿泥）　約 5g
↓← 1MHCl･MeOH：酢酸エチル=1:1　20ml
振とう抽出（10 分間）
↓　（2 回繰り返し）
遠心分離（2,200rpm、10 分間）
↓
抽出液（50ml メスフラスコ）
↓
1MHCl･MeOH：酢酸エチル=1:1 で全量 50ml
↓
10ml 分取（25mlKD 濃縮管）
↓←サロゲート 100 μ l（TBT-d、DBT-d、TPT-d、DPT-d　各 0.1mg/l in acetone）
混　合
↓

窒素パージ（40 ℃）
酢酸エチル臭がなくなるまで（約 2 ～ 3ml）
↓ ←酢酸 Buffer　10ml
↓ ←塩化ナトリウム　1g
↓ ← 2%$NaBEt_4$　1ml
1 分間振とう、10 分間静置（誘導体化）
↓←ヘキサン　4ml ←┐（2 回繰り返し）
振とう抽出（1 分間）┘
↓ （ヘキサン層をパスツールピペットで分取、
↓ 受器　10ml KD 濃縮管）
ヘキサン層
↓←飽和 NaCl 水 2ml でヘキサン層洗浄
フロリジルカラムクロマトグラフィー
（未活性フロリジル 2g、Na_2SO_4 重層）
ヘキサン層を負荷し、2%エーテル･ヘキサン
25ml で溶出（受器 100ml ナス型フラスコ）
↓
濃縮（約 2ml　ロータリエバポレータ、40 ℃、
↓ 240hPa）
WHEATON 濃縮管
↓
窒素パージ（約 0.1ml）
↓ ←内部標準 20 μ l
↓ （TeBT-d、TePT-d　各 1mg/l in hexane）
全量 0.2ml
↓
GC/MS（HP5890-JEOL AX505）

調 査 結 果 及 び 考 察

平成 15 年度までの形態調査の結果、インポセックスが高率で発生し、有機スズ化合物汚染が顕著と思われる地域の近傍 9 地点と、対照となる 2 地点の計 11 地点（図 1）で底質を採取し、前述の分析方法により底質の有機スズ濃度を調査した。このうち、平成 15 年度実施の詳細調査地点と底質採取地点が離れているため、インポセックス出現率との関係が考察出来ない地点を除いた 5 地点（地点 1、5、7、8、10）について解析を行った。

底質有機スズ濃度の調査結果は表 1 のとおりで、インポセックス出現率との関係は図 2 ～図 6 のようになった。図 3 から、インポセックスに関係しているとされる TBT 濃度とインポセックス出現率の間には、正の相関があることが確認された。また図 4 より、DPT とインポセックス出現率の間にも同様に正の相関が見られた。しかし、図 2、図 5 を見ると、DBT や TPT とインポセックス出現率との間には、このような関係は見られなかった。この原因としては、調査地点が 5 地点と少なくなってしまったこと、地点ごとの検体の性状の違い（砂状、泥状）等が考えられる。図 6 より全体的な傾向としては、底質有機スズ濃度の合計とインポセックス出現率の間にも正の相関が見られるので、地点数を増やす等の改善を行うことで、より精度の高い結果が得られると思われる。

今回の底質有機スズ濃度調査により、底質有機スズ（TBT）濃度とインポセックス出現率との間に、イボニシ体内有機スズ（TBT）濃度とインポセックス出現率との関係と同様な傾向が見られたことで、底質を含めた調査地域の有機スズ汚染を、イボニシの形態調査により確認出来ることがわかった。しかし、インポセックス発生に関与していると思われる、イボニシ体内への有機スズの蓄積経路を、より詳細に考察するためには、前述したように調査地点を増加させると共に、イボニシの餌とされているムラサキイガイやマガキ等を介した、食物連鎖・濃縮についても考える必要があると思われる。

1990 年に、14 種類ある TBT 化合物の一つﾋﾞｽｰﾄﾘﾌﾞﾁﾙｽｽﾞｰｵｷｼﾄﾞ（TBTO）は化審法（化学物質の審査及び製造等の規制に関する法律）で第 1 種特定化学物質に指定され、国内での製造・輸入・使用が禁止されている。しかし、その他の 13 種類の TBT 化合物と 7 種類の TPT 化合物は 2 種指定で、製造、輸入の事前届出までの規制である。また、長崎県との交流が多い東南アジア等の国々では、近年、有機スズ塗料の需要が高まっているが、規制が存在しない国・地域が多い。表 1 の結果を見ても、規制開始から 15 年経過した現在でも、底質には、なお有機スズが存在していることがわかる。

このような現況も踏まえ、平成 17 年度には、県内のイボニシのインポセックスの状況が、本調査開始当初（平成 13 ～ 14 年度）から、どのように変化しているかを、形態調査により明らかにしていく計画である。

参 考 文 献

1）田中良徳, 他 (2002) : イボニシに関する環境ホルモンの影響調査, 長崎県衛生公害研究所報, 48, pp.18-22
2）浦伸孝, 他 (2003) : イボニシに関する有機スズ化合物の影響調査, 長崎県衛生公害研究所報, 49, pp.92-96
3）Horiguchi, T. *et al* (1997) : Effects of triphenyltin

chloride and five other organotin compounds on the development of imposex in the rock shell, *Thais clavigera*. Environ Pollut., 95, 85-91.

表 1　底質有機スズ濃度調査結果

地点名	DBT (ng/g･dry)	TBT (ng/g･dry)	DPT (ng/g･dry)	TPT (ng/g･dry)	有機スズ合計 (ng/g･dry)	インポセックス出現率（%）
1	225	44	10	10	289	90.5
5	4	1	2	62	69	38.1
7	19	29	1	2	51	100
8	6	2	N.D.	N.D.	8	56.3
10	9	1	N.D.	N.D.	10	0

N.D.は不検出

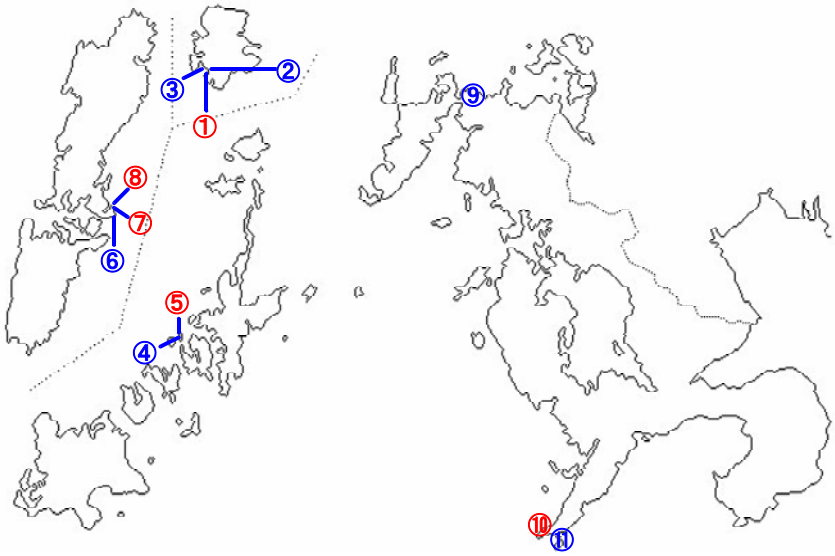


図 1　底質採取地点

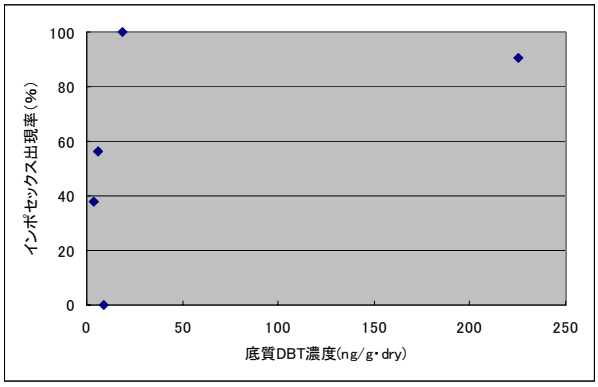


図 2　底質 DBT 濃度とインポセックス出現率の関係

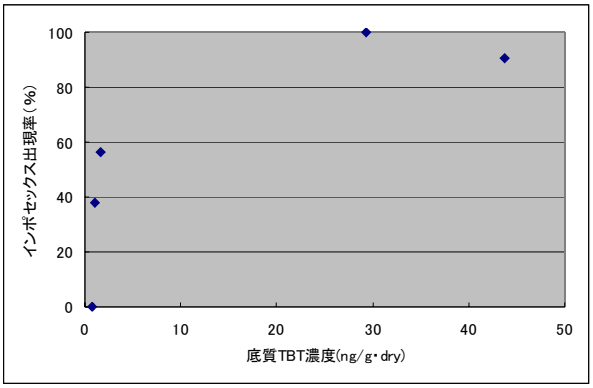


図 3　底質 TBT 濃度とインポセックス出現率の関係

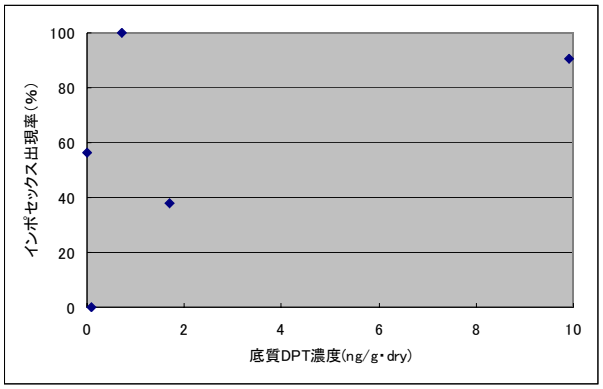


図 4　底質 DPT 濃度とインポセックス出現率の関係

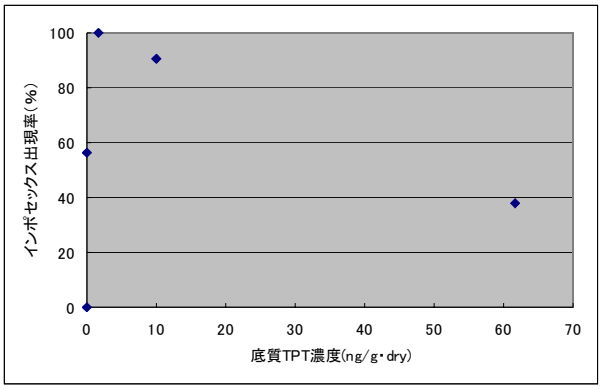


図 5　底質 TPT 濃度とインポセックス出現率の関係

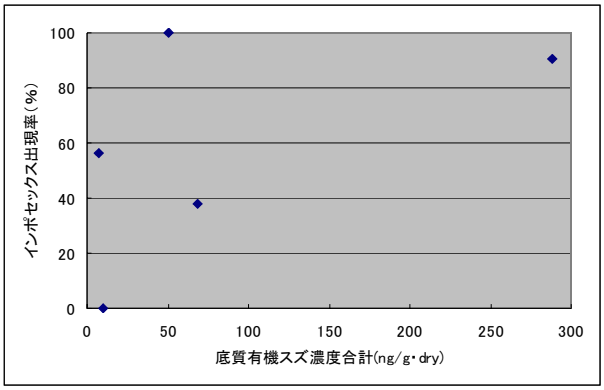


図 6　底質有機スズ濃度合計とインポセックス出現率の関係

農産物中残留農薬の簡易スクリーニング法の検討

西川 徹・本村 秀章・馬場 強三

The Study of Simple Screening Method for Pesticide Residue in Agricultural Products (green vegetables and fruits)

Toru NISHIKAWA, Hideaki MOTOMURA and Tsuyomi BABA

Key words: green vegetable, fruit, pesticide residue, simple screening method, ultra sound
キーワード:葉菜、果実、残留農薬、簡易スクリーニング法、超音波

はじめに

近年、農産物の生産性向上を目的として、多種多様な農薬が使用されていることから、一般消費者の食品中残留農薬には大きな関心が寄せられている。

一方、食品衛生法に定められている残留農薬基準も順次拡大され、平成18年5月には「食品中に残留する農薬等のポジティブリスト制」の施行が予定されている。これによって現在まで使用基準が設定されていない農薬等についても一部の農薬を除いて基準値が設定される予定である[1]。

しかし、これらの農薬を個別に分析することは不可能なため、残留農薬の一斉分析法が汎用されているが、一度に分析できる農薬の数にも限度があり、また複雑で時間がかかり、農薬の種類によって分析機器も異なってくるので,多くの検体を短期間で分析するのは困難である。また検体に含まれる酵素や夾雑物の影響により分析が困難になることもある。

そこで今回、葉菜類や小さい果実及びそれに類するものについては、外葉や外皮に農薬の多くが残留していると考えられることから、それらの部位を採取し簡易かつ迅速に残留農薬を分析する方法について検討したので報告する。

調査方法

1. 調査対象農薬

今回のスクリーニング法で用いた ENVI-carb 及び Sep-pak plus Florisil による精製法において、70～120%と良好な回収率が認められる次の125農薬について分析を行った。

（1）有機リン系（38種類）

ｼﾞｸﾛﾙﾎﾞｽ、ｼﾞﾒﾄｴｰﾄ、ﾀﾞｲｱｼﾞﾉﾝ、IBP、ｸﾛﾙﾋﾟﾘﾎｽﾒﾁﾙ、ﾌｪﾆﾄﾛﾁｵﾝ、ｸﾛﾙﾋﾟﾘﾎｽ、ﾌｪﾝﾄｴｰﾄ、ﾒﾁﾀﾞﾁｵﾝ、ﾌﾟﾛﾁｵﾎｽ、ｲｿｷｻﾁｵﾝ、ｴﾁｵﾝ、EPN、ﾎｻﾛﾝ、ﾒﾀｸﾘﾎｽ、ｴﾄﾌﾟﾛﾎｽ、ｻﾘﾁｵﾝ、ﾃﾙﾌﾞﾎｽ、ｴﾄﾘﾑﾎｽ、ﾎﾙﾓﾁｵﾝ、ﾋﾟﾘﾐﾎｽﾒﾁﾙ、ﾏﾗﾁｵﾝ、ｼﾞﾒﾁﾙﾋﾞﾝﾎｽ、ｷﾅﾙﾎｽ、ﾌﾟﾛﾊﾟﾎｽ、ﾃﾄﾗｸﾛﾛﾋﾞﾝﾎｽ、ﾌﾞﾀﾐﾎｽ、ﾌﾟﾛﾌｪﾉﾎｽ、ﾄﾘｿﾞﾎｽ、ｴﾃﾞｨﾌｨﾝﾎｽ、ﾋﾟﾘﾀﾞﾌｪﾝﾁｵﾝ、ﾅﾚｯﾄﾞ、ｼｱﾉﾎｽ、ｼﾞｸﾛﾌｪﾝﾁｵﾝ、ｸﾛﾙﾌｪﾝﾋﾞﾝﾎｽ、ﾌｪﾝｽﾙﾎﾁｵﾝ、ｱｾﾌｪｰﾄ、ｼｱﾉﾌｪﾝﾎｽ

（2）有機窒素系（43種類）

ｲｿﾌﾟﾛｶﾙﾌﾞ、ﾌｪﾉﾌﾞｶﾙﾌﾞ、ｸﾛﾛﾌﾟﾛﾌｧﾑ、ﾋﾟﾛｷﾉﾝ、ｴｽﾌﾟﾛｶﾙﾌﾞ、ﾍﾟﾝﾃﾞｨﾒﾀﾘﾝ、ﾌﾟﾚﾁﾗｸﾛｰﾙ、ﾌｪﾝﾌﾟﾛﾊﾟﾄﾘﾝ、ﾚﾅｼﾙ、ﾋﾟﾘﾀﾞﾍﾞﾝ、ﾋﾞﾝｸﾛｿﾞﾘﾝ、ｼﾞｴﾄﾌｪﾝｶﾙﾌﾞ、ﾄﾘｱｼﾞﾒﾎﾝ、ﾄﾘｱｼﾞﾒﾉｰﾙ、ﾌﾙﾄﾗﾆﾙ、ﾐｸﾛﾌﾞﾀﾆﾙ、ﾒﾌﾟﾛﾆﾙ、ﾒﾌｪﾅｾｯﾄ、ﾋﾞﾃﾙﾀﾉｰﾙ、ﾍﾞﾝﾀﾞｲｵｶﾙﾌﾞ、ﾒﾁｵｶﾙﾌﾞ、ﾌﾟﾛﾋﾟｺﾅｿﾞｰﾙ、ｷｼﾘｶﾙﾌﾞ、ﾄﾘﾌﾙﾗﾘﾝ、ｼﾏｼﾞﾝ、ｱﾗｸﾛｰﾙ、ﾊﾟｸﾛﾌﾞﾄﾗｿﾞｰﾙ、ﾌﾙｼﾗｿﾞｰﾙ、ﾃﾆﾙｸﾛｰﾙ、ﾃﾞﾌﾞﾌｪﾝﾋﾟﾗﾄﾞ、ﾌﾟﾛﾎﾟｷｻｰ、ﾌﾟﾛﾒﾄﾘﾝ、ﾒﾄﾗｸﾛｰﾙ、ｼﾞﾒﾀﾒﾄﾘﾝ、ｼﾞﾒﾋﾟﾍﾟﾚｰﾄ、ﾌﾞﾌﾟﾛﾌｪｼﾞﾝ、ｵｷｻｼﾞｷｼﾙ、ﾌｪﾅﾘﾓﾙ、ﾄﾘｸﾛﾎｽﾒﾁﾙ、ﾌｨﾌﾟﾛﾆﾙ、ｱｼﾞﾝﾎｽﾒﾁﾙ、ﾌﾙｼﾞｵｷｿﾆﾙ、ｸﾚｿｷｼﾑﾒﾁﾙ、

(3)有機塩素系（44種類）

ｼﾞｸﾛﾗﾝ、ﾌﾞﾛﾓﾌﾞﾁﾄﾞ、ｸﾛﾙﾒﾄｷｼﾆﾙ、ﾄﾘﾌﾙﾗﾘﾝ、ｽｴｯﾌﾟ、ﾒﾄﾘﾌﾞｼﾞﾝ、ｼﾞｸﾛﾌﾙｱﾆﾄﾞ、ｸﾛﾙﾌｪﾝｿﾝ、ﾋﾞﾌｪﾉｯｸｽ、ﾋﾟﾘﾀﾞﾍﾞﾝ、ｼﾌﾙﾄﾘﾝ、ﾌﾙｼﾄﾘﾈｰﾄ、ﾌﾙﾊﾞﾘﾈｰﾄ、ﾌｪﾝﾊﾞﾚﾚｰﾄ、ﾃﾌﾙﾄﾘﾝ、ﾌﾟﾛﾋﾟｻﾞﾐﾄﾞ、ｼﾞｺﾎｰﾙ、ﾋﾞﾅﾊﾟｸﾘﾙ、ｸﾛﾙﾍﾟﾝｼﾞﾚｰﾄ、ｼﾊﾛﾄﾘﾝ、ﾍﾟﾙﾒﾄﾘﾝ、ｼﾍﾟﾙﾒﾄﾘﾝ、ﾃﾞﾙﾀﾒﾄﾘﾝ、ｷﾝﾄｾﾞﾝ、ｼﾞｸﾛﾍﾟﾝｿﾞﾌｪﾉﾝ、ｴﾝﾄﾞｽﾙﾌｧﾝ、ﾌﾟﾛｼﾐﾄﾞﾝ、ｷｬﾌﾟﾀﾝ、ｸﾛﾛﾌﾟﾛﾋﾟﾚｰﾄ、ﾌﾞﾛﾙﾌﾟﾛﾋﾟﾚｰﾄ、ｶﾌﾟﾀﾎｰﾙ、ﾃﾄﾗｼﾞﾎﾝ、ﾊﾙﾌｪﾝﾌﾟﾛｯｸｽ、HCB,ﾌﾙｵﾛｲﾐﾄﾞ、ｸﾛﾛﾀﾛﾆﾙ(TPN)、ｸﾛﾙﾌｪﾈﾄｰﾙ、ﾎﾙﾍﾟｯﾄ、ｴﾝﾄﾞﾘﾝ、ﾋﾞﾌｪﾝﾄﾘﾝ、ｴｽﾌｪﾝﾊﾞﾚﾚｰﾄ、ﾄﾗﾛﾒﾄﾘﾝ、ｸﾛﾙﾌｪﾅﾋﾟﾙ、ｲﾌﾟﾛｼﾞｵﾝ

表1 使用した検体と採取部位

検体（数）	採取部位
キャベツ(6)、レタス(7)、白菜(5)	一番外側の葉の部分
トマト(5)、びわ(2)	外側の皮のみ
セロリ(3)、ブロッコリー(7)	茎を除いた部分
イチゴ（5）、えだまめ(2)、インゲン(3)、さやえんどう(2)、アスパラガス(5) ナス(1)、キュウリ(2)、にんにく芽（1）、ほうれんそう(10)	全体
ネギ類(6)、ニラ(2)	根を除いた部分

2．試 料

今回の検討に用いた農産物と、その採取部位及び検体数について表1に示す。ナス、キュウリについては約20gになるように切り取り、それ以外の農産物についてはそれぞれの部位について約10g程度を採取した。

3. 分析方法

（1）簡易スクリーニング法

図1に示す方法で行った。②の有機塩素系の精製では２つのフラクションについて溶出を行い、F1のフラクションで TPN 以外を、F2 のフラクションで TPN を測定した。図 1 に示した精製法で色素の除去が不十分なサンプルについては、ENVI-Carb（250mg 又は500mg）を用いて再度クリーンアップを行った。また、超音波による抽出後の残さについてもアセトン 50ml を加えてホモジナイズ法により抽出し、脱水・濃縮後に一斉分析法と同様のクリーンアップを行い、残さにどの程度農薬が残留しているかを調査した。農薬の確認は GC-MS（SCAN）で行った。

（2）一斉分析法

アセフェートを除く対象農薬については図２に示す方法で分析を行なった。試料はミキサーで均等に粉砕し、その20g用いた。また、TPN、キャプタン、カプタホールの3農薬については、抽出液を乾固させた後、25%トルエン・アセトニトリル溶液に溶解し、ENVI-Carb / LCNH2（500mg)を用いて精製を行った。

（3）アセフェート分析法

ネギから簡易スクリーニング法においてアセフェートが検出されたが、アセフェートは当所の一斉分析法の対象農薬ではないので、根本らの方法[2)]を参考にして図3のとおり分析を行った。また、検体処理の際に妨害ピークを減少させる目的で、ミキサーで粉砕する前に5分間の電子レンジ処理を行った。

（抽出）
試料を採取し、ｱｾﾄﾝ:ﾍｷｻﾝ(1:1)を試料が完全に浸るまで加える
↓
超音波処理（10min）
↓
抽出液 → 残さ → 一斉分析法へ
↓
分液ロートを用いて水層を捨てる
↓
脱水・濃縮
↓
ｱｾﾄﾝ:ﾍｷｻﾝ(1:1)で10ml にメスアップ

（精製）
①有機リン系、有機窒素系農薬

上記抽出液1ml
↓
ENVI-Carb（250mg）
↓ｱｾﾄﾝ:ﾍｷｻﾝ(1:1) 5mlで溶出
濃縮し、アセトンで 0.5ml にメスアップ
↓
GC-FPD、GC-FTD

②有機塩素系

上記抽出液1mlをﾍｷｻﾝで置換
↓
Sep-Pak Plus Florisil
↓F1: 60%ｴｰﾃﾙ・ﾍｷｻﾝ 15ml で溶出
↓F2: 5%ｱｾﾄﾝ・ﾍｷｻﾝ 10ml で溶出
濃縮し、ヘキサンで 1mlにメスアップ
↓
GC-ECD

図1 簡易スクリーニング法フロー

ミキサー等で均一化した試料20g
↓
抽出（アセトン 100ml、50ml）
↓
遠心分離後、脱水・濃縮
↓
飽和食塩水 100ml、20%酢酸エチル/ヘキサン溶液 100ml （2 回目は 50ml）を加えて抽出
↓
脱水・濃縮（乾固）
↓
アセトン:ヘキサン(1:1)溶液 5mlに溶解
↓
ENVI-Carb(250mg)に 1mlを負荷
↓アセトン:ヘキサン(1:1)溶液 5mlで溶出
濃縮し、1mlにメスアップ
↓
そのうちの 0.5ml → 残りの 0.5ml
↓
GC-FPD、GC-FTD で測定

乾固させてヘキサン1mlに溶解
↓
Sep-Pak Plus Florisil に負荷
↓アセトン、ヘキサン、エーテル各 5mlでコンディショニング
↓60%エーテル/ヘキサン溶液 15mlで溶出
濃縮（乾固）
↓
ヘキサンで 1mlにメスアップし、GC-ECD で測定

（TPN・キャプタン・カプタホール）

20%酢酸エチル・ヘキサン溶液抽出液
↓
濃縮・乾固
↓
25%トルエン/アセトニトリルで5mlにメスアップ
↓
ENVI-Carb/LCNH2(500mg)に1mlを負荷
↓25%トルエン・アセトニトリル溶液20mlで溶出
濃縮・乾固
↓
ヘキサンで 4mlにメスアップし、GC-ECD で測定

図2 一斉分析法のフロー

4. 分析条件

次に示す条件で行なった。なお、注入モードは全てスプリットレスで行った。

試料 20g（電子レンジ処理、5min）
↓
アセトニトリル抽出（50ml、30ml）
↓NaCl 7g、1mol/l リン酸 buffer 10ml
抽出
↓
濃縮・乾固
↓
酢酸エチル 30ml を加え、無水硫酸ナトリウムを適量加えて脱水
↓
濃縮・乾固し、アセトン・ヘキサン（1:1）で 10ml にメスアップ
↓
ENVI-Carb(500mg)に1mlを負荷
↓アセトン:ヘキサン(1:1)溶液5mlで溶出
濃縮し、アセトンで1mlにメスアップ
↓
GC-FPD

図3 アセフェートの分析法

(FPD-GC)
装置：島津 GC-17A
カラム：DB-5（0.32mm φ ×30m）
注入口温度：250℃
注入量：2μl
検出器温度：300℃
温度：100℃(2min)→20℃/min→190℃(10min)→
3℃/min→220℃(0min)→20℃/min→280℃(5min)

(FTD-GC)
装置：島津 GC-17A
カラム：DB-5MS（0.32mm φ ×30m）
注入口温度：250℃
注入量：1μl
検出器温度：285℃
温度：100℃(2min)→20℃/min→190℃(5min)→
5℃/min→220℃(0)→20℃/min→280℃(10min)

(ECD-GC)
装置：島津 GC－14A、GC- 2010
カラム：DB-17（0.32mm φ ×15m）
注入口温度：200℃
注入量：1μl
検出器温度：300℃
温度：100℃(2min)→5℃/min→250℃(5min)→
10℃/min→280℃(10min)

（GC-MS）
装置：島津 GC-17A＋QP5050
カラム：DB-5MS（0.25mm φ ×30m）
注入口温度：250℃
注入量：1 μl
温度：100℃(2min)→20℃/min→190℃(10min)→
20℃/min→280℃(10min)
インターフェイス温度：230℃
検出器電圧：1.3 k
測定質量数：60～400（SCAN モード）

結 果 及 び 考 察

（1）農産物中の残留農薬の検出状況

今回の簡易スクリーニング法と一斉分析法による検査結果及び超音波抽出後の残さの検査結果について表2に示す。今回の簡易スクリーニング法の検討で用いた 74検体の農産物中、29 検体から残留農薬が検出された。残留農薬が検出された農産物は、ネギが6検体すべて、セロリが3検体すべて、キャベツが 6検体中5検体と高確率で検出された。農薬別にみるとシペルメトリンが8検体から、クロロタロニルが6検体から、プロシミドンが4検体から検出された。

（2）一斉分析法との比較

今回検討したスクリーニング法は一斉分析法と比べて検体処理の手間がかからず、また抽出の際にホモジナイズを行なわないことで、農産物中の夾雑物の溶出を抑えられるため、精製操作などを簡略化できるというメリットがある。一斉分析法との検査結果と比較したところ、29検体中23検体はスクリーニング法の方が高い濃度を示し、逆に29検体中6検体は一斉分析法のほうが高い濃度であった。一斉分析法での検出濃度よりもスクリーニング法による濃度が低い例については、農薬が均等に付着していないため採取箇所によって濃度の差がでたと考えられる。しかし、一斉分析法で検出された農薬がスクリーニング法で検出されなかったという事例はなかった。以上より、今回検討したスクリーニング法は一斉分析法に比べると操作が容易で、残留農薬の濃度も高めに検出される傾向がみられた。

（3）超音波抽出後の残さからの検出状況

アセトン/ヘキサン（1：1）溶液による超音波抽出により、どの程度農薬が抽出できているかについて調査したところ、約半数の検体から全体濃度（超音波溶出液中の濃度と残さ中の濃度の和）の1％～50%の範囲で農薬が検出された。農薬毎にみてみると、プロシミドンで4例中4例、シペルメトリンで8例中4例と高い頻度で検出された。また、クロロタロニルは6例中1例と検出頻度は低かった。これは各農薬の物理・化学的性質や、植物組織の構成成分、農薬散布後の経過時間や保存方法など多くの要因の関与によりアセトン/ヘキサン(1:1)の超音波抽出では完全には溶出できてないことが考えられるが、残さの方の濃度が高くなった例はなかった。

（4）アセフェートの検出

簡易スクリーニング法のアセトン/ヘキサン（1：1）溶液による超音波抽出によりネギからアセフェートが検出されたが、アセフェートは水溶性が非常に高く、20％酢酸エチル/ヘキサンでは抽出効率が悪いので当所の一斉分析法の対象農薬ではない。そこで、根本らの方法[2)]を参考にして図3のとおりアセフェートの分析を行ったところ、アセフェートのピークを妨害するピークはなく、回収率も 71％（n=3）であった。

簡易スクリーニング法との値と比較してみると、スクリーニング法ではアセフェートの濃度が 0.57ppm だったのに対し、根本らの方法での結果は 2.1ppm であった。これはアセフェートの水溶性が高く、ネギの根から吸収されて組織内に残留しているため[3)]、超音波による抽出では十分に抽出されなかったと考えられる。しかし、今回の結果により、簡易スクリーニング法はアセフェートのような水溶性の高い農薬にも適用できるという可能性が示された。

ま と め

今回検討した簡易スクリーニング法は当所の一斉分析法と比較して検体処理の手間がかからず、また抽出の際にホモジナイズを行なわないことにより農産物中の夾雑物の溶出を抑えられるため、精製操作などを簡略化できるなどのメリットがある。また、簡易スクリーニング法は一斉分析法で検出された濃度よりも高い濃度で農薬が検出される傾向を示し、アセフェートなどの水溶性が高い農薬についても検出が可能であった。一方で採取する部位により濃度がばらつくというデメリットもあったが、一斉分析法で検出された農薬を本法で検出できなかった事例はなかった。

今後検査する農薬が増え、検体数も増えることが予想されることから、今回検討した簡易スクリーニング法は農産物に農薬が残留していないかどうかを素早く調べるのに有用な方法であると考えられる。

表2 農産物からの検出農薬及びその濃度（単位：ppm ）

検体名	検出農薬	簡易スクリーニング法		一斉分析法	備考
		溶出液	溶出後の残渣		
レタス1	プロシミドン	0.23	0.03 (11.5%)※1	0.06	ECD/FTD
さやえんどう1	フルジオキソニル	1.2	N.D.	0.80	FTD
	クロロタロニル	0.18	N.D.	0.60	ECD/FTD
ナス1	クロルフェナピル	0.09	N.D.	0.04	ECD/FTD
ニラ1	クレソキシムメチル	0.83	N.D.	2.3	FTD
セロリ1	クロロタロニル	4.3	N.D.	0.20	ECD/FTD
セロリ2	クロロタロニル	21.7	0.63 (1.4%)	0.13	ECD/FTD
	プロシミドン	0.04	0.04 (50%)	0.01	ECD
セロリ3	プロシミドン	0.06	0.02 (25%)	0.03	ECD
イチゴ1	ミクロブタニル	0.28	0.08 (22.2%)	0.19	FTD
	イソキサチオン	0.02	0.008 (28.6%)	0.01	FPD
イチゴ2	シペルメトリン	0.10	N.D.	0.04	ECD
	クレソキシムメチル	0.16	N.D.	0.06	ECD/FTD
キャベツ1	イプロジオン	0.32	0.07 (17.9%)	N.D.	ECD
キャベツ2	プロチオホス	0.08	0.06 (42.9%)	N.D.	FPD/ECD
キャベツ3	トルクロホスメチル	0.41	0.08 (16.3%)	N.D.	FTD
	フェンバレレート	9.0	0.55 (5.8%)	0.08	FTD/ECD
	マラチオン	0.31	0.04 (11.4%)	N.D.	FPD
キャベツ4	クロロタロニル	0.03	N.D.	N.D.	ECD
キャベツ5	トルクロホスメチル	0.08	0.04 (33.3%)	N.D.	ECD/FTD
ネギ1	シペルメトリン	0.24	0.03 (11.1%)	0.10	ECD
ネギ2	シペルメトリン	0.14	N.D.	0.05	ECD
ネギ3	シペルメトリン	0.38	N.D.	0.43	ECD
	EPN	0.13	N.D.	0.09	FPD
ネギ4	クロロタロニル	0.17	N.D.	N.D.	ECD/FTD
ネギ5	シペルメトリン	0.13	N.D.	0.11	ECD
ネギ6	アセフェート	0.57	N.D.	2.1※2	FPD
トマト	ジコホール	0.42	N.D.	0.02	ECD
キュウリ	プロシミドン	0.10	0.04 (28.6%)	0.01	ECD
白菜1	クロルフェナピル	8.7	1.2 (12.1%)	0.20	ECD/FTD
	フェンバレレート	0.34	N.D.	0.09	ECD/FTD
白菜2	クロロタロニル	1.7	N.D.	N.D.	ECD/FTD
	プロフェノホス	2.3	0.98 (29.9%)	N.D.	FPD
ホウレンソウ1	シペルメトリン	0.46	0.19 (29.2%)	0.60	ECD
	キャプタン	0.09	N.D.	0.09	ECD
ホウレンソウ2	シペルメトリン	0.55	0.16 (22.5%)	0.76	ECD
ホウレンソウ3	シペルメトリン	0.05	N.D.	N.D.	ECD
ホウレンソウ4	シペルメトリン	1.7	0.22 (11.5%)	0.62	ECD
えだまめ1	シペルメトリン	0.17	N.D.	0.07	ECD

※1：()内は残留農薬の割合（%）

※2：根本らの方法による

参 考 文 献

1）林 祐造：食品衛生研究，55(1)，35～39 (2005)

2）根本 了、他：食衛誌，41，233～241(2000)

3）佐藤 正幸、他：農産物への残留農薬迅速分析法の適用性について（第2報），北海道衛生研究所報，50，32～40(2000)

4）上野 英二、他：食品衛生研究，54(5)，39～45 (2004)

農産物中のアセフェート，メタミドホス，ジクロルボス及びトリクロルホンの分析法の検討

本村　秀章・馬場　強三・益田　宣弘

Studies on Determination of Acephate, Methamidophos, Dichorvos and Trichlorhon in Agricultural Products

Hideaki MOTOMURA, Tsuyomi BABA and Nobuhiro MASUDA

Key words: acephate,methamidophos,dichlorvos,trichlorfon, agricultural products

ｷｰﾜｰﾄﾞ:アセフェート, メタミドホス, ジクロルボス, トリクロルホン, 農産物

はじめに

当所では,平成 5 年度より農産物中の残留農薬の一斉分析法の検討を進めているが，厚生労働省では平成 18 年 5 月までにポジティブリスト制を導入することとしており，今後，益々一斉分析法の整備が重要となってくると思われる。

一方，農薬の中には分析法として一斉分析法では不向きな農薬も有り，基準違反等があった場合にも迅速に対応できるよう個別分析法の検討も重要であると思われる。そこで，今回通知法のアセフェート及びメタミドホス試験法及びジクロルボス(DDVP)及びトリクロルホン(DEP)試験法を基に， 4 種の農薬の試験法の検討を行ったので報告する。なお，検討に当たっては，日常的に行われている一斉分析から，迅速に個別分析法に移行できるように， GC における分離カラムを DB-5 ，クリーンアップにはグラファイトカーボンミニカラム(ENVI-Carb)を使用する等，なるべく一斉分析法の条件を採用するよう考慮した。

調査方法

1．試料

添加回収実験には，長崎県内で購入したばれいしょ，トマト，たまねぎ，ねぎ，ほうれん草，みかん，いちご，玄米を使用した。なお，たまねぎ、ねぎは電子レンジで前処理したものを用いた。[1)]

2．試薬等

標準品は市販の農薬標準品を用い，有機溶媒等の試薬は残留農薬分析用を用いた。また， DEP の誘導体化剤である N-メチルビストリフルオロアセトアミド(MBTFA)は和光純薬工業㈱製のガスクロマトグラフを用いた。

ミニカラム： ENVI-Carb(500mg,6mL)(スペルコ社製)，Sep-pak plus silica (Waters 社製)

ケイソウ土カラム: Extrelut NT20(Waters 社製)

3．装置及び測定条件

ｶﾞｽｸﾛﾏﾄｸﾞﾗﾌ:㈱島津製作所 GC-17A(FPD)

ｶﾞｽｸﾛﾏﾄｸﾞﾗﾌ質量分析装置:㈱島津製作所 GC-17 A+5050 A

3-1．アセフェート及びメタミドホス

(GC-FPD)

カラム: DB-5(内径 0.32mm，長さ 30m，膜厚 0.25μm，J&W 社製)

カラム温度: 80 ℃(1min)-10 ℃/min-180 ℃-20 ℃/min-280 ℃(10min)

注入口温度: 250 ℃　検出器温度: 285 ℃

キャリアーガス:ヘリウム，80kpa(定圧ﾓｰﾄﾞ)

カラム: DB-210(内径 0.53mm，長さ 15m，膜厚 1.0 μm，J&W 社製)

カラム温度: 80 ℃(1min)-10 ℃/min-180 ℃(5min)

注入口温度: 250 ℃　検出器温度: 250 ℃

キャリアーガス:ヘリウム，53kpa(定圧ﾓｰﾄﾞ)

3-2．DDVP 及び DEP

(GC-FPD)

カラム: DB-5(内径 0.32mm，長さ 30m，膜厚 0.25μm，J&W 社製)

カラム温度: 50 ℃(1min)-20 ℃/min-280 ℃(5min)

注入口温度: 200 ℃　検出器温度: 285 ℃

キャリアーガス:ヘリウム，80kpa(定圧ﾓｰﾄﾞ)

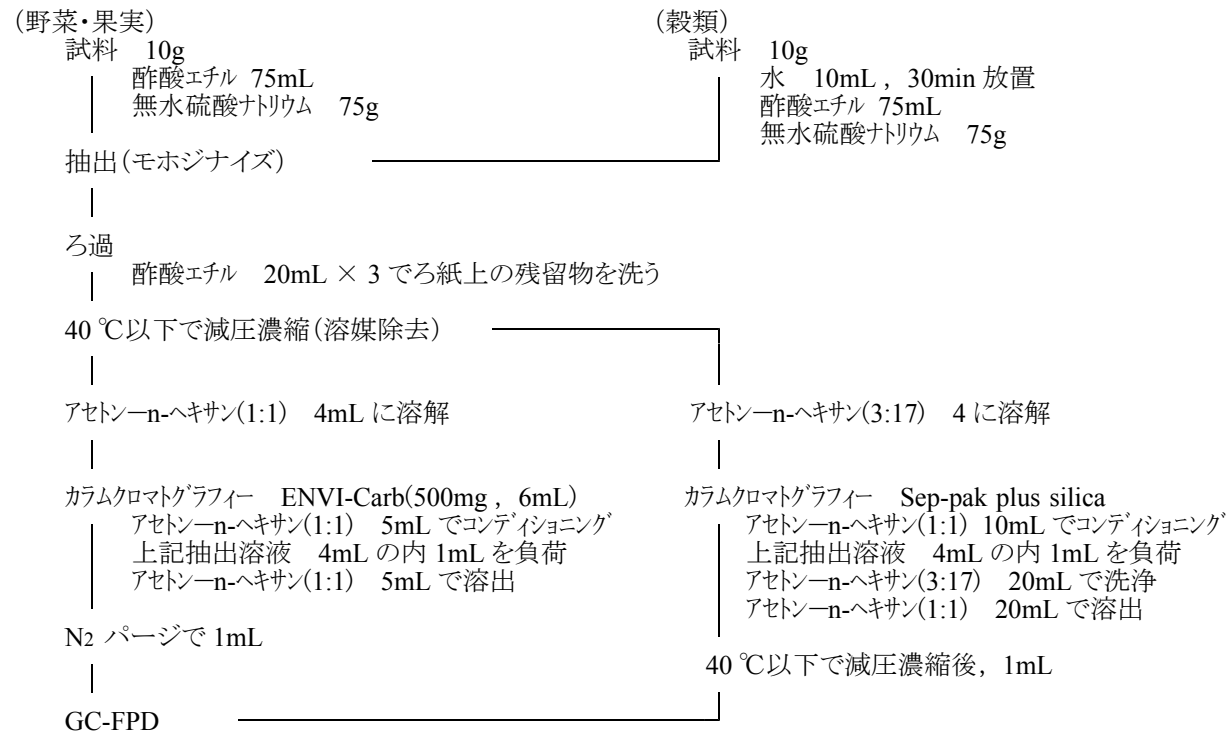


図1．アセフェート及びメタミドホスの分析方法

(GC/MS)

カラム：DB-5ms(内径 0.25mm，長さ 30m，膜厚 0.25μm，J&W 社製)

カラム温度：50 ℃(1min)-20 ℃/min-280 ℃(5min)

注入口温度：250 ℃　検出器温度：250 ℃

キャリアーガス：ヘリウム，100kpa(定圧モード)

4，添加回収実験

4-1．アセフェート及びメタミドホス

分析方法を図1に示した。通知法どおり，試料から無水硫酸ナトリウムで脱水しながら，酢酸エチルで抽出した。なお，通知法では試料 20g に対して，無水硫酸ナトリウム 150g，酢酸エチル 150mL でホモジナイズしているが，当所のホモジナイザーでは負荷が大きいため，各々通知法の半量でホモジナイズを行った。精製は，野菜・果実は ENVI-Carb で，玄米は Sep-pak plus silica を使用し，GC の測定時の分離カラムは，DB-5 を用いた。また，標準溶液の添加濃度は 0.2μg/g とし，添加 30 分後分析を開始した。

アセフェート及びメタミドホスはマトリックスの影響を受けやすく，測定値を過大に評価する可能性がある。そのため，標準溶液は，ブランク試験液 200μL をとり，N_2 パージで乾固し，それに標準溶液(溶媒 STD)を 200μL 加えたものを添加回収実験用の標準溶液とした。(Matrix STD)

4-2．DDVP 及び DEP

分析方法を図2に示した。抽出と DEP の誘導体化は通知法とほぼ同様な方法を，精製は ENVI-Carb を用いた。なお，標準溶液の添加濃度は 0.1μg/g とし，添加 30 分後分析を開始した。

結　果　及　び　考　察

1．アセフェート及びメタミドホス

当所では，試料をアセトニトリルで抽出し，抽出液に塩化ナトリウムとリン酸緩衝液を添加し，水層を除いた抽出液を，ENVI-Carb で精製を行う方法で対応していた。[2] しかしながら，一部農産物によっては，回収率が低かったので検討を行った。。

最初の検討段階では，アセトンで抽出後，塩化ナトリウムを添加し，Extrelut に負荷，10min 放置後，酢酸エチル 150mL で溶出し，溶出液を濃縮後，ENVI-Carb で精製を行う方法で検討を行った。[3] トマトとねぎを用いて，添加回収実験を行ったところ，トマトでは両農薬とも回収率は 70%以上，ねぎではメタミドホスの回収率が 70 %以上であったが，アセフェートは 62 %であった。Extrelut における酢酸エチルの溶出量を 200mL で行ったが，回収率に大きな差はなかった。そこで，今回は，通知法による酢酸エチル抽出法で検討を行った。(図1)

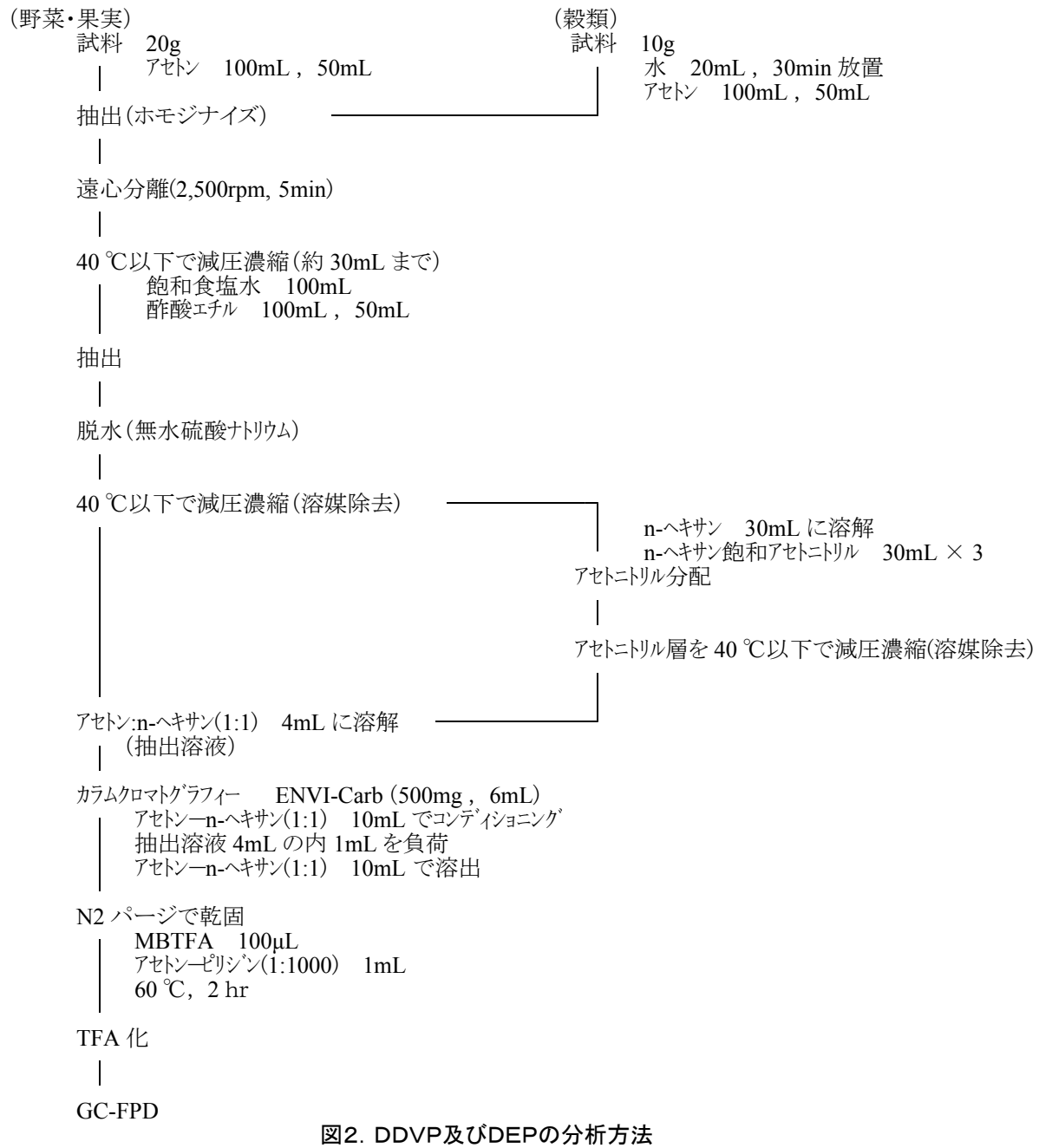


図2．DDVP及びDEPの分析方法

表1．アセフェート及びメタミドホス添加回収実験結果

農 薬 名	添加量 (μg/g)	回収率(n=3)(RSD), (%) ばれいしょ	トマト	たまねぎ	ねぎ	みかん	玄米
アセフェート	0.2	94.2(5.5)	91.6(2.7)	88.0(5.7)	90.7(1.5)	84.3(3.0)	83.0(5.6)
メタミドホス	0.2	88.1(5.9)	86.9(3.4)	86.2(6.3)	89.2(1.3)	82.1(1.5)	82.5(7.0)

表2．Matrix STDの希釈倍率によるMatrix STD/溶媒STDの比

農 薬 名	原液	× 5 倍液	× 10 倍液	× 25 倍液	× 50 倍液
アセフェート	1.9	1.5	1.4	1.3	1.2
メタミドホス	1.7	1.4	1.3	1.2	1.0

表3　DDVP及びDEP添加回収実験結果

農 薬 名	添加量 (μg/g)	回収率(n=3)(RSD), (%) ばれいしょ	トマト	たまねぎ	ほうれん草	みかん	いちご	玄米
ＤＤＶＰ	0.2	101.9(2.8)	94.9(3.7)	75.0(1.7)	101.4 (1.2)	83.7(4.9)	83.2(3.5)	88.7(5.5)
DEP	0.2	88.8(8.6)	90.4(3.5)	86.2(0.9)	92.9(0.5)	83.0(2.0)	84.8(5.0)	90.0(5.7)

図1に示す方法による添加回収実験結果を表1に示した。回収率はアセフェートで 83.0 ～ 94.2 %，メタミドホスで 82.5 ～ 89.2 %，両農薬とも相対標準偏差(RSD)は 7 %以下で良好な結果を得た。また，図3にトマトによる Matrix STD での検量線を示した。0.025 ～ 1μg/mL の間で相関係数 0.999 以上の良好な直線性を得た。しかしながら， Matrix STD/溶媒 STD の比は，アセフェートで 1.5 ～ 2.4，メタミドホスで 1.2 ～ 1.7 で，特にアセフェートでマトリックスの影響を大きく受けていた。みかんの Matrix STD を 5 倍～ 50 倍希釈した時の Matrix STD/溶媒 STD の比を求めた結果を表2に示した。希釈倍率が大きくなるに従いマトリックスの影響が小さくなっており，このことから，測定値を求める場合は，試験液と同じ希釈倍率の Matrix STD を使用することが必要であると思われる。また， DB-5 でみかんの試験液を測定後，カラムのみ DB-210 に交換し，再度，みかんの試験液の測定を行った。その結果，Matrix STD/溶媒 STD の比は，DB-5 ではアセフェートで 1.9，メタミドホスで 1.7 に対して， DB-210 ではアセフェート及びメタミドホスとも 1.1 で，マトリックスの影響が小さかった。また，回収率についても， DB-5 でアセフェートが 84.3%，メタミドホスが 82.1%に対して，DB-210 ではアセフェートが 87.7%，メタミドホスが 82.6 %で， RSD も 3 %以下で良好な結果であった。

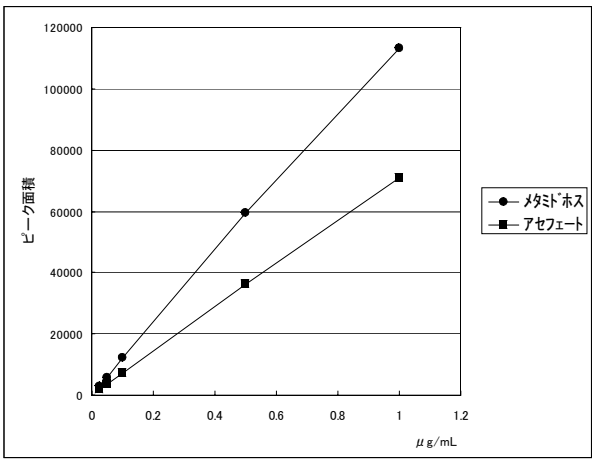


図3. トマトにおけるMatrix STDの検量線

2．DDVP 及び DEP

当所では，無水トリフルオロ酢酸(TFAA)によるアセチル化による方法で対応してきたが [4),5)]，通知法が MBTFA によるアセチル化の方法であったので，今回この方法で検討を行った。[6)]

転溶溶媒については，当所の一斉分析で用いている 20%酢酸エチルーn-ヘキサンでは DEP の回収率が

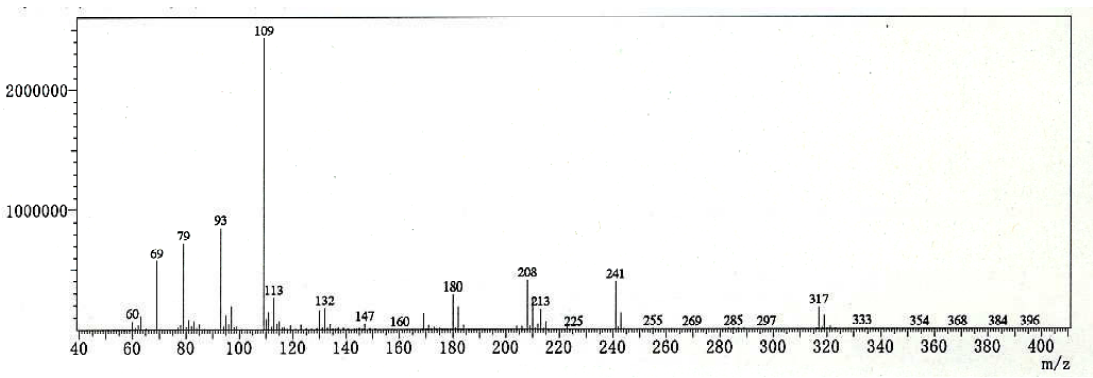


図4．DEPのTFA化体のマススペクトル

悪かったので，通知法どおり，酢酸エチルで行うこととした。

図2による方法で行った添加回収実験結果を表3に示した。回収率はDDVPで75.0 ～ 101.9 %，DEPで86.2 ～ 92.9 %，RSDは両農薬とも9 %以下と良な結果を得た。また、DEPのTFA化体の検量線も，0.05 ～ 2μg/mLの間で，相関係数0.999以上の良好な直線性を示した。

DEPのTFA化体をGC/MSで測定し得られたマススペクトルを図4に示した。 m/z=109 が主で、その他93 ， 180 ， 208 ， 241 等が観察され，TFA化されたDEPのマススペクトルと一致した。[6),7)]

ま と め

今回通知法のアセフェート及びメタミドホス試験法及びDDVP及びDEP試験法を基に，4種の農薬の試験法の検討を行った。

アセフェートとメタミドホスについては，一斉分析法の検査体制から，緊急時も迅速に対応可能であると思われるが，GCの分離カラムについて，DB-5を使用した場合，マトリックスの影響が大きく，Matrix STDを使う必要があった。なお，通知法に示されるDB-210を使用すると，マトリックスの影響は小さかった。

DDVPとDEPについては，MBTFAを準備することで，一斉分析法の検査体制から，緊急時も迅速に対応可能であると思われた。

参 考 文 献

1）起橋雅浩， 他：食衛誌，37 ， 43 ～ 47 , (1996)
2）根本了， 他：食衛誌，41 ， 233 ～ 241 , (2000)
3）残留農薬迅速分析法開発検討委員会，食品衛生研究，47(5)，27 ～ 41(1997)
4）本村秀章， 他：長崎県衛生公害研究所報， 40 ， 110 ～ 112 , (1994)
5）本村秀章， 他：長崎県衛生公害研究所報， 41 ， 58 ～ 60 , (1995)
6）山田信之， 他：食衛誌，43 ， 196 ～ 201 , (2002)
7）本村秀章， 他：平成 6 年度長崎県衛生公害研究所研究発表会講演要旨集，33 ～ 34

長崎県における日本脳炎の疫学調査(2004 年度)

吉川　亮・中村　まき子・平野　学・原　健志・益田　宣弘

Epidemic of Japanese Encephalitis in Nagasaki Prefecture(2004)

Akira　YOSHIKAWA, Makiko　NAKAMURA, Manabu　HIRANO, Kenshi　HARA
and　Nobuhiro　MASUDA

Key　words　:　Japanese Encephalitis,Swine Infection, HI Antibody Positive Rate
キーワード　:　日本脳炎、豚感染、HI抗体陽性率

はじめに

日本脳炎ウイルスは、Flavivirus 属に属し、コガタアカイエカが媒介するアルボウイルスである。その生態環は、蚊→豚（時にトリ）→蚊のサイクルを形成しており、ヒトは日本脳炎ウイルス感染の終末宿主である。従って、ウイルス増殖動物としての豚の感染状況が、ヒトの感染状況に関与していると考えられる。

現在、日本脳炎の流行地は、東アジア、東南アジア、南アジアからオーストラリアにまで拡大し、年間数百万人の日本脳炎患者が発生している。症状は、定型的な脳炎で、1～2日で 40℃以上の高熱となる。頭痛、嘔吐、頚部硬直などの髄膜刺激症状が現れ、次いで意識障害、筋強剛、けいれん等の脳症状が現れる。

近年、本邦での日本脳炎確認患者は、1965 年以前と比べ激減しているが、その患者発生の強力な抑制因子としては、ヒトに対するワクチン接種による免疫賦与、コガタアカイエカの減少、豚飼育環境の変化の3点がその大きな役割を担っていると考えられる。[1)]

本県では、厚生労働省の定めた感染症流行予測調査実施要領に基づいて、毎年、豚の感染源調査を実施している。また、本年も昨年同様、豚の血清から日本脳炎ウイルス分離を併行して実施したので、その概要について報告する。

調査方法

1.　感染源調査

①調査時期及び回数

7月中旬～9月中旬の各旬1回ずつ計7回

②調査客体及び検体

調査客体は、県央地区の生後5～6ヶ月の肥育豚 133 頭、検体は調査客体の血清とした。

③調査事項

感染症流行予測調査事業検査術式により

・日本脳炎赤血球凝集抑制（HI）抗体の測定

・2-ME（2-Mercaptoethnol）感受性抗体の測定

④採血場所

日本フードパッカー（株）諫早工場と畜場

2.　日本脳炎ウイルスの分離

①検査材料

HI 抗体陰性（HI 抗体価＜10）の豚血清 57 頭

②検査手順

豚　血　清

↓

12,000r.p.m で 20 分間遠心、上清を採取

↓

24 穴プレートに培養した Vero（9013 株）細胞を滅菌 PBS（－）で2回洗浄後、細胞培養液（2% Eagle's MEM）を1穴に 900 μl 分注し、豚血清の上清 100 μl をプレート2穴に接種。36℃、7日間炭酸ガス培養器で培養。

（1代目）

↓

倒立型顕微鏡で細胞変性効果（CPE）を7日間観察。

↓

7日間観察して明らかな CPE が確認されない場合、細胞培養液を回収（ハーベスト）して、3,000r.p.m で 20 分間遠心後、上清を採取して、1代目と同じ操作を行う。

（2 代目）

表１　平成16年度豚HI抗体検査結果

採血月日	採血頭数	HI抗体価（倍）								HI抗体陽性率(%)	2-ME抗体陽性率(%)
		＜10	10	20	40	80	160	320	≧640		
7/20	20	9	1	3	5	2				55.0	28.6
7/27	17	5	4	3	4	1				70.6	20.0
8/6	20	12	3	4			1			40.0	100
8/10	20	12	2	2	2		2			40.0	50.0
8/17	19	15		1		1			2	21.0	100
8/24	17	4	2	1	1			2	7	76.5	90.0
9/14	20								20	100	15.0

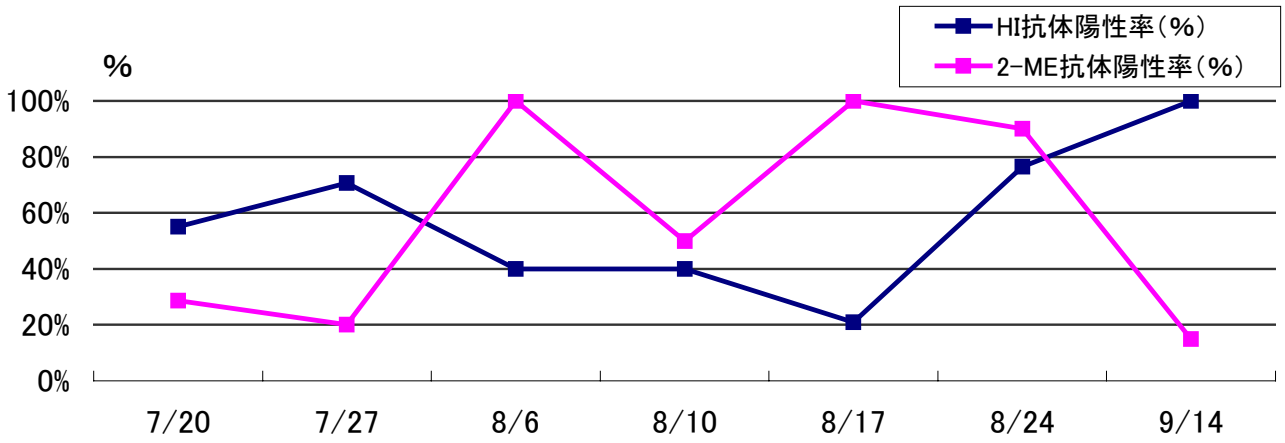


図1　HI抗体価陽性率及び2-ME感受性抗体陽性率の推移

3.　日本脳炎ウイルス遺伝子検査（RT-PCR 法）

①RNA の抽出

RNA 抽出キット（QIAamp Viral RNA Mini Kit :QIAGEN）で RNA 抽出後、DNase 処理及び cDNA の作製は、ノロウイルスの検査法に準じた。

②使用 Primer(5'to3')　　Product:142ｂｐ

JE－NS3－1S：

AGAGCGGGGAAAAAGGTCAT

JE－NS3－4R：

TTTCACGCTCTTTCTACAGT

③反応条件

92℃　2 分

92℃　1 分

53℃　1 分　　35 サイクル

72℃　1 分

72℃　5 分

4℃　　∞（保存）

④電気泳動

PCR product は、3%アガロースゲルで電気泳動後、エチジウムブロマイド染色を行い、142bp の位置にバンドが確認されたものを陽性とした。

調　査　結　果　及　び　考　察

1. 感染源調査結果

豚 HI 抗体検査結果を表１に、HI 抗体陽性率及び 2-ME 感受性抗体陽性率の推移を図１に示した。

7 月 20 日に採血した豚 20 のうち 11 頭が HI 抗体陽性（陽性率 55%）、そのうち HI 抗体価 40 倍以上７頭のうち２頭から豚感染開始の指標となる 2-ME 感受性抗体陽性（陽性率 28.6%）が確認された。

ウイルス保有蚊が生後 4～６ヶ月の免疫のない豚を吸血すると豚は感染し、2～3 日の潜伏期を経て約 3 日間持続するウイルス血症を起こす。このウイルス血症時に吸血した蚊がウイルスに感染し、10～13 日の潜伏期を経てウイルスを媒介するようになる[2)]。このことから今回の調査結果では、日本脳炎ウイルスを保有した蚊が７月中旬頃には活動を既に開始しており、9 月中旬頃まで豚を吸血しながらウイルスを媒介し感染を広めたことが推察される。

また、ウイルス保有蚊の活動開始時期は例年どおり[3)]にも関わらず、例年[3)]に比べ HI 抗体陽性率の立ち上がりが８月中旬まで鈍ったのは、調査客体の飼育された豚舎が、比較的高所にあったことが原因として推察される。

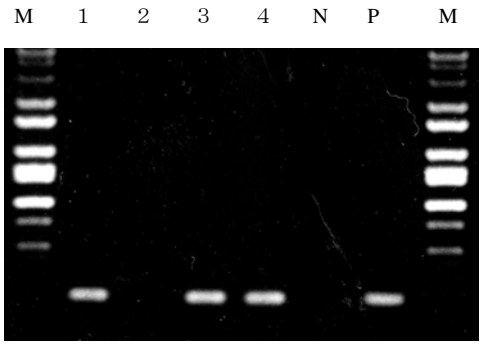


図２　（DNA fragments by RT-PCR ）

M	: Marker (50～10,000 bp)
1	: 豚血清から分離したウイルス（8/6 採血）
2	: 〃 （8/10 採血）
3	: 〃 （8/10 採血）
4	: 〃 （8/24 採血）
N	: Negative Control
P	: Positive Control（JaGA r ＃01 株）

２．日本脳炎ウイルス分離結果

HI 抗体陰性の豚血清 57 頭について日本脳炎ウイルスの分離を行ったところ、8 月 6 日に採血した豚 1 頭、8 月 10 日に採血した豚 2 頭、8 月 24 日に採血した豚 1 頭の計 4 頭からウイルスが分離された。

ウイルスの発育状態を示す CPE は、1 代目から確認された。

CPE が確認された検体については、日本脳炎ウイルスを確認するため 0.33%ガチョウ血球を用いて赤血球凝集（HA）試験を行い、その後、凝集反応が認められた検体については、RT-PCR 法による遺伝子検査を行った。

HA 試験では、HA 価は 2～4 倍と低かったが、4 頭の豚血清から分離したウイルスでいずれも凝集反応を示した。

しかしながら、遺伝子検査については図２に示すとおり、3 頭の豚血清から分離したウイルスの遺伝子は、日本脳炎ウイルスの標準株である JaGAr＃01 株の遺伝子と同じ 142ｂｐの目的とする位置にバンドが認められたが、残りの 1 頭(8 月 10 日に採血分)については確認できなかった。

従って、CPE と HA 試験で凝集反応が確認でき、かつ RT-PCR も陽性であった 3 頭の豚血清から分離されたウイルスについては、日本脳炎ウイルスと判定した。

ま と め

1. 7 月 20 日に採血した豚 11 頭から豚 HI 抗体が、そのうちの 2 頭から豚感染開始の指標となる 2-ME 感受性抗体陽性（陽性率 28.6%）が最初に確認された。
2. 豚 HI 抗体陰性の 57 頭の豚からウイルス分離を行ったところ 8 月 6 日、8 月 10 日及び 8 月 24 日に採血した豚それぞれ 1 頭（計 3 頭）から日本脳炎ウイルスが分離された。
3. 日本脳炎確認患者は、1965 年以前と比べ激減しているが、HI 抗体価の上昇並びに 2-ME 感受性抗体陽性確認及び日本脳炎ウイルスが分離されたことから、現在も生活環境中に日本脳炎ウイルスは保持されており、県民に対する日本脳炎の注意喚起は今後も必要である。

謝辞: 日本脳炎流行予測調査事業に御協力頂いた、富岡雄二（生産者）様、日本フードパッカー（株）諫早工場長及び諫早食肉衛生検査所長他職員一同様に深謝します。

参　考　文　献

1）厚生労働省健康局結核感染症課,感染症流行予測調査事業検査術式,2004
2）厚生省保健医療局結核感染症課,改定・感染症マニュアル,1999
3）原　健志，他：長崎県衛生公害研究所報,47, 88～90,2001

長崎県におけるインフルエンザの疫学調査（2004 年度）

吉川　亮・中村　まき子・平野　学・原　健志・益田　宣弘

Epidemic of Influenza in Nagasaki Prefecture（2004）

Akira YOSHIKAWA, Makiko NAKAMURA, Manabu HIRANO, Kenshi HARA
And Nobuhiro MASUDA

Key word：Influenza, Epidemic, Nagasaki Prefecture
キーワード：インフルエンザ，流行，長崎県

はじめに

インフルエンザは、インフルエンザウイルスA型、B型及びC型のウイルスが鼻咽頭粘膜に感染増殖した結果生じる呼吸器系感染症である。A型は流行をおこしやすく、特に世界的な大流行の原因となる。B型はA型と同じく、流行を起こしやすいが、その流行の範囲は地域的あるいはそれ以上の広範なものの場合が多い。C型は、散発例の原因としてよく知られ、流行を起こしてもきわめて限局的な範囲に留まることが多い。[1)]

今年度もこれまでと同様、厚生労働省の感染症流行予測事業に併せて、本県におけるインフルエンザ流行予測調査の一環として、流行状況を把握する目的で疫学調査を実施したので、その状況を報告する。

調査方法

1．流行予測感染源調査

1）散発事例

インフルエンザ流行予測調査の一環として、2004 年 11 月～2005 年 4 月の期間において長崎市内の内科医療機関の2定点で採取されたインフルエンザ様疾患患者の咽頭ぬぐい液、及び感染症発生動向調査事業の一環として、県内の小児科医療機関 11 定点等から採取された咽頭ぬぐい液について、ウイルス分離を実施した。

2）集団発生事例

学校施設等におけるインフルエンザが原因と疑われる集団事例のうち、県内各保健所管内の初発事例について、有症者のうがい水を採取し、ウイルス分離を実施した。

2．ウイルス分離の方法

既報[2)]に従って実施した。

3．分離したウイルス株の同定

1）赤血球凝集抑制（以下「HI」と略す）試験

国立感染症研究所（以下「感染研」と略す）より分与された 2004/2005 シーズン用インフルエンザウイルス同定キットを用いてHI試験を実施した。

Aソ連（H1N1）型（以下「Aソ連」と略す）

・A/Moscow/13/98 （フェレット感染血清）

・A/New Caledonia/20/99 （フェレット感染血清）

A香港（H3N2）型（以下「A香港」と略す）

・A/Wyoming/03/2003 （フェレット感染血清）

B型

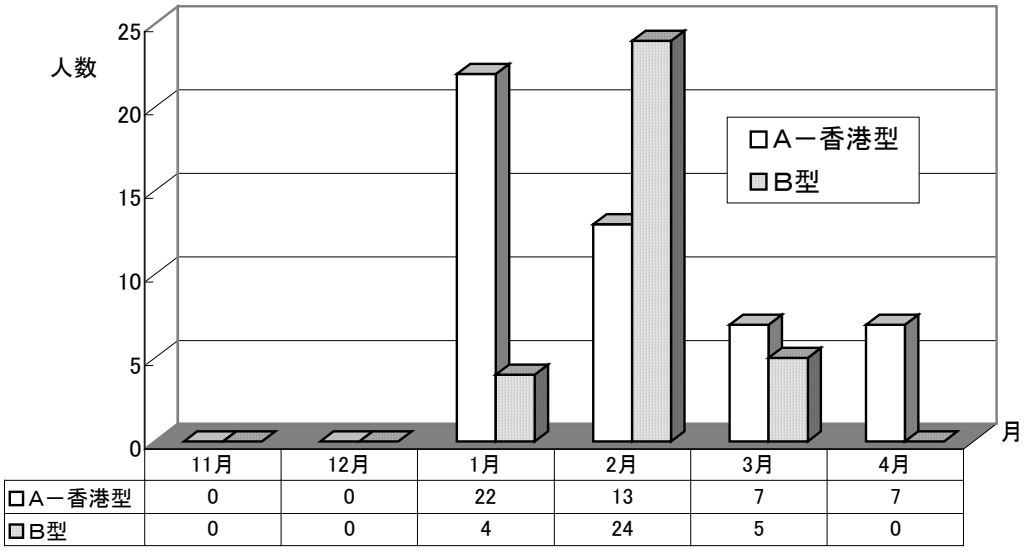
・B/Brisbane/32/2002 （羊高度免疫血清）

・B/Johannesburug/5/99 （羊高度免疫血清）

また、HI試験に使用した血球は、0.75％モルモット血球浮遊液を用いた。

表 1　2004/2005 シーズン月別検体数及びウイルス分離状況　　（ウイルス分離数／検体数）

	11 月	12 月	1 月	2 月	3 月	4 月	合計
長崎市	0/2	0/1	11/21	27/53	12/23	6/6	56/106
佐世保市			2/2	0/8		1/1	3/11
県央地区				0/10			0/10
県南地区			13/13	8/10			21/23
対馬地区				2/10			2/10
合計	0/2	0/1	26/36	37/91	12/23	7/7	82/160



	11月	12月	1月	2月	3月	4月
□A－香港型	0	0	22	13	7	7
□B型	0	0	4	24	5	0

図 1　県内のウイルス分離状況（2004/2005 シーズン）

表 2　集団発生施設における検査成績（2004/2005 シーズン）

施設名	発生日	分離数/検体数	血清型
諫早市：北諫早中学校	2005/2/8	0/10	－
長崎市：横尾小学校	2005/2/8	1/5	B 型
佐世保市：桜の聖母幼稚園	2005/2/22	0/8	－
対馬市：大調小学校	2005/2/28	2/10	B 型

結 果 及 び 考 察

表 1 に散発事例及び集団発生事例を合わせた検査検体数及びウイルス分離成績を、図 1 に県内のウルスの分離状況（2004/2005 シーズン）を示した。

2004/2005 シーズンにインフルエンザウイルスが最初に分離されたのは、2005 年 1 月 21 日に佐世保市内の医療機関を受診した患者から分離された B 型ウイルスであった。また、翌 1 月 22 日に同医療機関を受診した患者から A 香港型ウイルスも分離された。

インフルエンザ様疾患の疑いで搬入された検体は 160 検体で、そのうちA香港型 49 株、B型 33 株が分離された（分離率 51.3%）。

本県における 2004/2005 シーズンの流行は、図1に示すように 1 月をピークに 4 月まで流行が継続したA香港型と2月をピークとしたB型の2種類の混合型と推察された。3月には検体数も減少し、主流行は2月でほぼ終息したと推測された。

表 2 に 2004/2005 シーズンの県内の学校施設等における集団発生事例の検査成績を示した。

本県では、2 月初旬から 2 月末にかけ集団発生の初発例が報告され、分離されたインフルエンザウイルスがB型のみであったこととB型が 2 月に流行のピークを迎えていることから本県の集団発生事例は、B型によるものと推察される。また、例年に比べ非常に分離率の低い結果(3/33;9.1%)となったが、これは抗ウイルス薬投与後の患者から検体採取を行うなど採取した検体に原因があったと推察された。

ま と め

1．2004/2005 シーズン中に、インフルエンザ様疾患の疑いで当所に搬入された検体は 160 検体で、それらの検体からＡ香港型 49 株、Ｂ型 33 株が分離された。集団発生事例は 4 施設（33 検体）を検査し、Ｂ型が 3 名から分離された。

2．本県でのインフルエンザの流行は、ウイルスの分離比が、Ａ香港型 59.8%、Ｂ型 40.2%で 2 種類のウイルスの混合型であった。集団発生事例はB型によるものと推察された。

参 考 文 献

1)特集インフルエンザ:第 55 巻,1997,日本臨床,

2)原　健志:長崎県におけるインフルエンザ疫学調査(2000 年度)、長崎県衛生公害研究所報、46、110～114(2000)

感染症サーベイランスにおけるウイルス分離(2004年度)

平野 学 ・ 中村 まき子 ・ 吉川 亮 ・ 原 健志

Virus Isolation on Surveillance of Infection Disease (2004)

Manabu HIRANO　Makiko NAKAMURA　Akira YOSHIKAWA　and Kenshi HARA

key word : Surveillance、Virus isolation and identification
キーワード: サーベイランス、エンテロ及びエコーウイルス分離及び同定

はじめに

感染症サーベイランスの目的は、医療機関の協力を得て、細菌及びウイルス等による感染症の患者発生状況、病原体検索結果等により流行実態を早期、且つ的確に把握することにより、必要な情報を速やかに各地域に還元することによって、予防接種、衛生教育等の適切な予防処置を講ずることにある。小児におけるウイルス感染症は、主にエンテロウイルスに起因するものが多く、毎年、夏季を中心に幾つかのウイルスが同時に流行する。しかも、その流行の原因となるウイルスは年ごとに異なる型が出現しており様々な流行を引き起こし、その規模や消長はウイルスあるいは宿主側の要因に左右されている。

今年度も小児のウイルス感染症の実態究明を目的に、感染症サーベイランスにおいてエンテロウイルスを中心とした原因ウイルスの分離を実施したので、その概要を報告する。

調査方法

1. 定点医療機関からの検査材料

長崎県感染症発生動向調査事業において定点医療機関とは、政令市及び県立保健所管轄の10地域で指定された医療機関のことである。これらの定点医療機関は、毎週管轄保健所へ指定された疾患ごとに発生件数等を届出て、各保健所は管内分をまとめて長崎県感染症情報センターへ報告する。長崎県感染症情報センターでは、長崎県の情報として集約し厚生労働省へ報告している。

さらに、10地域の病原体定点及び基幹定点の医療機関等で採取し依頼された検体(咽頭ぬぐい液、髄液、糞便及び眼ぬぐい液他等)について病原体検索を当所で実施している。今年度は、長崎市4定点、県央地区3定点、県南地区3定点、佐世保市3定点で採取し、検査依頼があった患者224名分の総数252検体についてウイルス検索を実施した。

2. 調査方法

患者材料、細胞培養、ウイルス分離・同定等については既報[1]に従って実施した。 また、感染性胃腸炎(乳児嘔吐下痢症を含む)の患者便についても、既報[2]「ノロウイルスの検出法について」に従って、RT－PCR法を用いて実施した。

調査結果及び考察

1. 疾病別による調査結果

表1に4類及び5類定点把握対象疾病別検査数、表2に疾病別・血清型別ウイルス分離成績、表3にウイルスの血清型別・月別ウイルス分離数を示す。また、図1で感染性胃腸炎(乳児嘔吐下痢症を含む、以下「感染性胃腸炎」と略す)、図2にインフルエンザ様疾患、図3に無菌性髄膜炎、図4に手足口病をそれぞれ全国と長崎県の定点あたりの患者発生数で示す。平成16年度の依頼検査による患者数は224名であり、依頼された252検体についてウイルス検査を実施した。その結果について、依頼検査が多かった疾病別について報告する。

(1)感染性胃腸炎

検体数が最も多かったは感染性胃腸炎の60名で全患者数の26.8%であり、全体のおよそ約1/3を占めていた。表2のウイルス分離数でみた場合、RT-PCR 法でノロウイルス遺伝子群の Geno-groupGⅡが一番多く検出され、その次に多かったのがA群ロタウイルス3型であった。

表3の月別ウイルス分離数でみると、感染性胃腸炎の原因ウイルスとされるノロウイルスは11月から翌1月に検出

表１　感染症発生動向調査事業　４類及び5類定点把握対象疾病別検査数

対象疾病名	患者数	検体数	検体名			
			咽頭ぬぐい液	髄液	糞便	その他
ツツガムシ病・リケッチア	2	2				2
急性脳症（ウエストナイル脳炎及び日本脳炎を除く）	2	4	2		2	
RSウイルス感染症						
咽頭結膜熱	1	1	1			
A群溶血性レンサ球菌咽頭炎						
感染性胃腸炎（乳児嘔吐下痢症を含む）	60	60	1	1	58	
水痘						
手足口病	8	8	6		2	
伝染性紅斑						
突発性発疹	1	2		1	1	
百日咳						
風疹	1	1	1			
ヘルパンギーナ	1	2	1	1		
麻疹（成人麻疹を除く）						
流行性耳下腺炎						
インフルエンザ（高病原性鳥インフルエンザを除く）	55	58	56	1		1
急性出血性結膜炎						
流行性角結膜炎						
細菌性髄膜炎						
成人麻疹						
無菌性髄膜炎	55	64	1	53	10	
その他の疾患	38	50	25	12	8	5
合　計	224	252	94	69	81	8

表2　疾病別・血清型別ウイルス分離成績

4類及び5類定点把握対象疾病名	検査	検体	Inf-A	Inf-B	Ad	Ad	Ad	Ad	Ad	Echo	Echo	Echo	Echo	Echo	Echo	Echo	CA	CB	CB	CB	CB	A群ロタウイルス	Noro	ツツガムシ	型別	合計
	患者数	総数	香港型	B型	1型	2型	3型	6型	8型	3型	6型	7型	14型	16型	18型	25型	16型	1型	2型	3型	6型	3型	GⅡ	リケッチア	不明	
急性脳炎（ウエストナイル脳炎・日本脳炎を除く）	2	4										1														1
RSウイルス感染症																										
咽頭結膜熱	1	1					1																			1
インフルエンザ様疾患	55	58	31	16	1																					48
感染性胃腸炎（乳幼児嘔吐下痢症を含む）	60	60								1												9	25		1	36
水痘																										
成人麻疹																										
手足口病	8	8															2	1			1					4
突発性発疹	1	2																								
風疹	1	1																								
ヘルパンギーナ	1	2																								
麻疹																										
無菌性髄膜炎	55	64							1		5		3	1	2	2		3		1	1				1	20
流行性角結膜炎																										
流行性耳下腺炎																										
その他対象外疾病	40	52				2	3	1							2			1	1					2	1	13
総　合　計	224	252	31	16	1	2	4	1	1	1	5	1	3	1	4	2	2	5	1	1	2	9	25	2	3	123

注1）Inf-Aソ連型：インフルエンザAソ連型　Inf-A香港型：インフルエンザA香港型　Inf-B型：インフルエンザB型　PA-Inf：パラインフルエンザ　Ad：アデノ
CA：コクサッキーA群ウイルス　CB：コクサッキーB群ウイルス　Mumps：ムンプスウイルス　Noro：ノロウイルス

され、特に11月が多かった。同様にロタウイルスは4月にのみ検出された。さらに、図1で定点あたりの患者数の変化を全国と長崎県とを比較すると、本県の患者数の立ち上がりは全国と比較した場合に1～2週間程度遅れたが、12月中旬ごろから下旬にかけて急速に立ち上がって1月上旬にピークとなり、その後は徐々に患者が減少し、2月に再度、増加して2峰性を示したのち減少した。

(2)インフルエンザ様疾患

2番目に患者数の多かった疾患は表1で示すとおりインフルエンザ様疾患と無菌性髄膜炎の55名であった。

インフルエンザ様疾病の検体総数は58検体であり、その内分離されたウイルスは48株で、分離株全体の 39.0%を占めた。インフルエンザ04／05シーズンの前半では暖冬の影響もあって、インフルエンザの流行期は平年よりも遅かった。表3月別ウイルス分離状況でみた場合、インフルエンザウイルスが多く分離されたのは1月で、その殆どがインフルエンザウイルスーA香港型(H3N2)(以下、「A香港型」と略す)であり、分離数は20株であった。その他は、インフルエンザB型(以下、「B 型」と略す)の3株であった。2月には、B型が12株と多く分離され、次にA香港型の7株が分離された。ひと月という短期間に分離されるウイルス型が入れ替わるのは、例年と同様にインフルエンザの流行を示唆している。また、インフルエンザウイルスーAソ連型(H1N1)(以下、「Aソ連型」と略す)は、今年度も長崎県からは検出されず、九州では唯一宮崎県の1例のみであった。図2のとおり、今シーズンのインフルエンザ様疾患の流行時期は遅く、1月下旬第5週より患者数が増え始め、その後、第7週より急激に増加したが流行する期間が短く、4月中旬の第9週目までに減少して終息した。また、インフルエンザ様疾患の患者数は定点あたり 69.0 と全国よりも高く、今シーズンは短期間ながら一気にインフルエンザの流行が広がっていったことが推測された。

(3)無菌性髄膜炎について

無菌性髄膜炎の総検体数が64検体と一番多かったが、分離されたウイルスは20株で全検体数の 16.3%であった。表2の血清型別ウイルス分離成績では、アデノウイルス(以下、「Ad」と略す)が1株検出されたほかは、すべてエンテロウイルスであった。エコーウイルス6型(以下、「E－6」と略す)が5株とE－14型とコクサッキーB群(以下、「CB」と略す)1型を3株分離した。表3の月別ウイルス分離数では、例年どおり初夏から真夏にかけてウイルスが分離されている。しかし、無菌性髄膜炎は図3に示すとおり、本県を定点あたりでみると、春に患者発生がみられたあとは、散発事例があるだけであった。全国的には夏季に流行がみられており、本県で流行がみられないのは、無菌性髄膜炎の発生報告が基幹定点のみのであるため、地域流行がうまく捉えられないことを示しているのではないか推測された。このことは、今後、感染症発生動向調査事業の問題点として検討すべき事項であると思われる。

(4)手足口病

手足口病の患者数は8名であった。分離されたウイルスはコクサッキーA群(以下、「CA」と略す)16型の2株とCB－1型と6型の1株ずつであった。依頼検査件数は大変少なかったが、図4. に示すとおり全国では、初夏から秋にかけて例年と同じような小規模な流行がみられた。

表3　ウイルスの血清型別・月別ウイルス分離数

	ウイルス血清型別	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月	3月	合 計
	アデノウイルス1型			1										1
	アデノウイルス2型			2										2
	アデノウイルス3型			2	2									4
	アデノウイルス6型								1					1
	アデノウイルス8型		1											1
	エコーウイルス3型										1			1
	エコーウイルス6型			2	3									5
	エコーウイルス7型				1									1
	エコーウイルス14型				1	2								3
	エコーウイルス16型					1								1
	エコーウイルス18型			1	1	1	1							4
型	エコーウイルス25型				1			1						2
	エコーウイルス30型													
	エンテロウイルス71型													
別	コクサッキーA群ウイルス16型							1	1					2
	コクサッキーB群ウイルス1型				1	3	1							5
	コクサッキーB群ウイルス2型				1									1
数	コクサッキーB群ウイルス3型					1								1
	コクサッキーB群ウイルス4型													
	コクサッキーB群ウイルス5型													
	コクサッキーB群ウイルス6型				2									2
	ムンプスウイルス													
	ノロウイルス								17	2	6			25
	インフルエンザ　Aソ連型													
	インフルエンザ　A香港型										20	7	4	31
	インフルエンザ　B型	1									3	12		16
	A群ロタウイルス3型(RT-PCR)	9												9
	ツツガムシ・リケッチア					1			1					2
	型別不明							1	1		1			3
	総　合　計	10	1	8	13	9	2	3	21	2	31	19	4	123

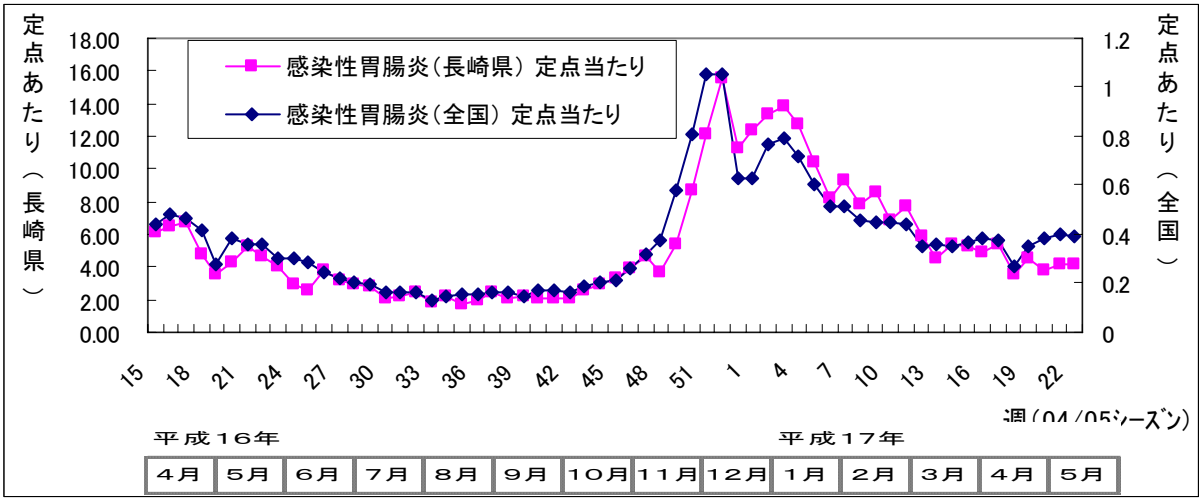


図１　感染性胃腸炎（乳児嘔吐下痢症を含む）

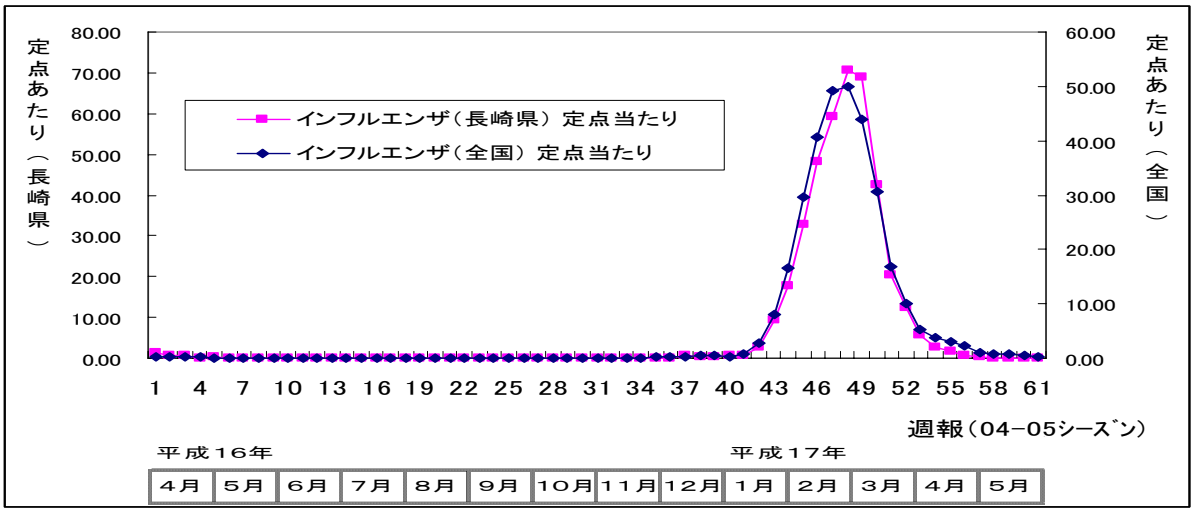


図２　インフルエンザ様疾患

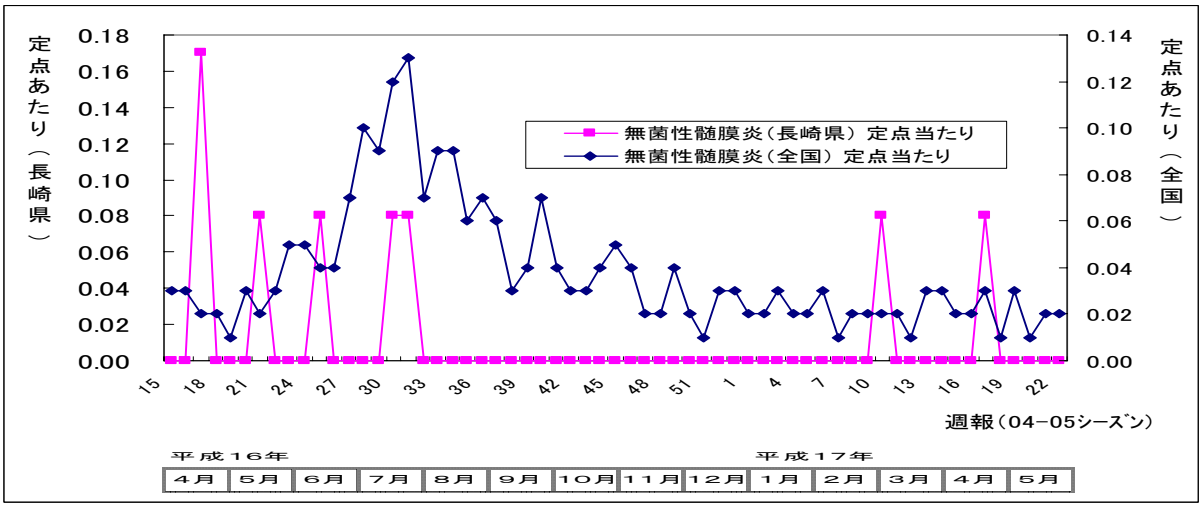


図３　無菌性髄膜炎

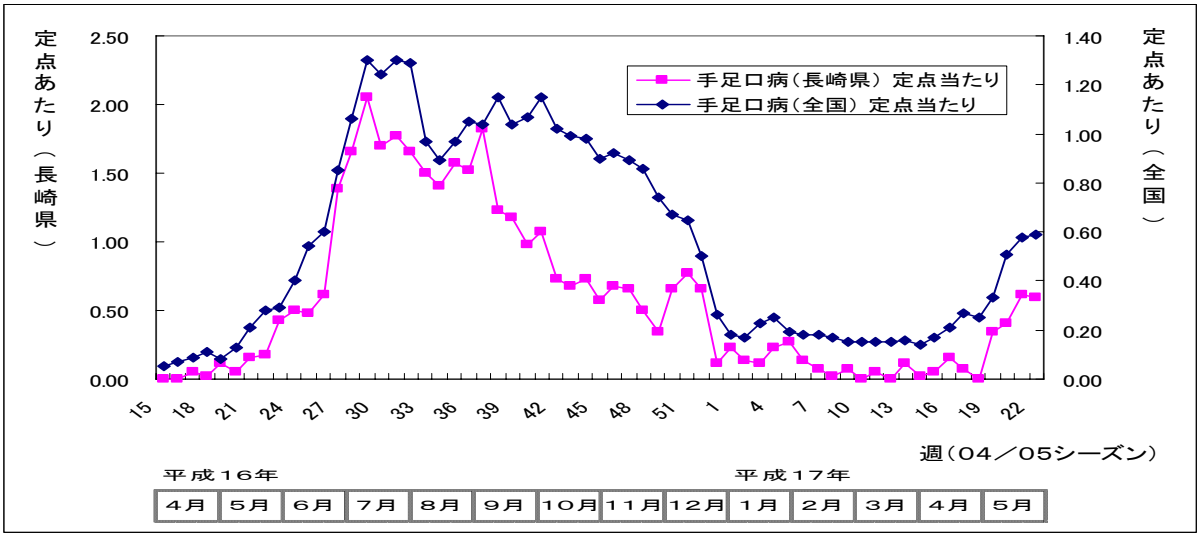


図４　手足口病

2. 考 察

今年度のサーベイランスにおけるウイルスの検索結果としては、小児における感染症は、様々な血清型のエンテロウイルスによって引き起こされているものと示唆された。しかし、その流行規模は、検体数及びウイルス分離数の状況から小規模で散発的なものであったことが推定された。小児ウイルス感染症の起因ウイルスは、年毎に変化しており、様々のエンテロウイルスがウイルス感染症の原因ウイルスとして分離されていることから、感染症発生動向調査によるウイルスの流行状況を継続して調査・解析することは、困難な流行予測の一助となる。

今後も小児ウイルス感染症に対する監視及び予防対策の一環として本調査を継続し、その役割の一端を担っていきたいと考えている。

参 考 文 献

1) 平野 学、他 ： 長崎県衛生公害研究所所報、47、95－98、2001
2) 厚生労働省通知 ： 平成 13 年 11 月「ノーウォーク用ウイルス（ＮＬＶ）のＲＴ－ＰＣＲ法について」及び平成 15 年 11 月「ノロウイルスの検出法について」
3) 国立感染症研究所　感染症情報センター ： IDWR 2003. 11 月号掲載

長崎県下における食中毒（ノロウイルス）の検出状況（2004）

平野　学　・中村　まき子　・　吉川　亮　・　原　健志

Food Poisoning　(Noro Virus) in Nagasaki Prefecture(2004)

Manabu　HIRANO, Makiko　NAKAMURA,　Akira　YOSIKAWA　and　Kenshi　HARA

Key words : Food Poisoning, Noro Virus, RT-PCR
キーワード　: 食中毒, ノロウイルス, RT－PCR

はじめに

ノロウイルスはウイルス性胃腸炎の原因主要ウイルスの1つであり、乳幼児から高齢者に至る幅広い年齢層にわたって食品・水等を介して、さまざまな規模の急性胃腸炎を引き起こしている。しかし、いまだにこのウイルスの培養細胞による増殖法は確立されていない。

平成17年1月広島県福山市の特別養護老人ホームにおいて入所者7名が、発熱、嘔吐、下痢の症状を訴えて死亡するという事例があり、その集団感染の原因がノロウイルスであることが判明した。

このような事例もあったため、長崎県では、探知した食中毒事例はもとより老人施設等においてノロウイルスを原因とする下痢等の集団感染が疑われた場合には、原因究明のため行政検査を実施することにしている。

今回、年度当初において長崎県内で発生したノロウイルスを原因とする食中毒事例等の概要について報告する。

調査方法

検査方法及び患者材料等は、「ノロウイルスの検査法」[1]に準じて行った。RT－PCR法については、記載してある既報[2]に従って実施した。

なお、「ノロウイルス」の名称については、2002年の夏、国際ウイルス命名委員会[3]によって「ノロウイルス」という正式名称が決定され、世界で統一されて用いられるようになったため、本稿でも「ノロウイルス」を使用している。

調査結果及び考察

1．感染性胃腸炎の流行状況

全国及び長崎県の感染性胃腸炎の患者発生については図1のとおりである[4]。感染性胃腸炎の病因物質[5]としては、ノロウイルス、サポウイルス、ロタウイルス等があるが、県内では春先から夏にかけてロタウイルスが検出された。患者数は夏季になると減少するが、各地で途切れることなく届出は報告されている。その後、初冬である11月下旬から12月にかけて感染性胃腸炎の患者数は急激に増加し12月下旬頃をピークとして、その後は減少した。しかし、1月から2月にかけて再度増加したのち、少しずつ減少していった。ノロウイルスについては感染症発生動向調査事業に基づき医療機関から感染性胃腸炎と診断され、検査依頼のあった検体からノロウイルスの遺伝子群 Geno-groupGⅡが25株検出された。検出された年齢のほとんどが5歳以下の乳幼児であり、このことは、保育園等の施設内でヒトーヒト感染により広がっていることも推察された。

2．長崎県内でのノロウイルスの検出状況

表1「平成16年度　ノロウイルスの検出状況」では、保健所管内で発生した食中毒事例の中で、特にノロウイルスが原因と疑われた事例についてノロウイルスの検出状況を示す。平成16年度では、特に西彼、県央及び県南保健所管内で多く発生しており、行政依頼件数が多かった。その中で2つの事例に報告する。

事例1.

①概要について

平成16年5月上旬にA老人介護施設より入所者と介護職員の数名が食中毒症状を呈している旨の連絡がB保健所の調査の結果では、嘔吐下痢、発熱の症状を

表1　平成16年度　長崎県内でのノロウイルスの検出状況

	依頼件数	検体数	陽性検体数	geno-group	
				GⅠ	GⅡ
西彼地区	10	95	27		27
県央地区	11	77	23	1	22
県南地区	9	98	33		33
県北地区	2	17	3		3
五島地区	1	2	1		1
上五島地区					
壱岐地区					
対馬地区	1	18	6		6
合　計	34	307	93	1	92

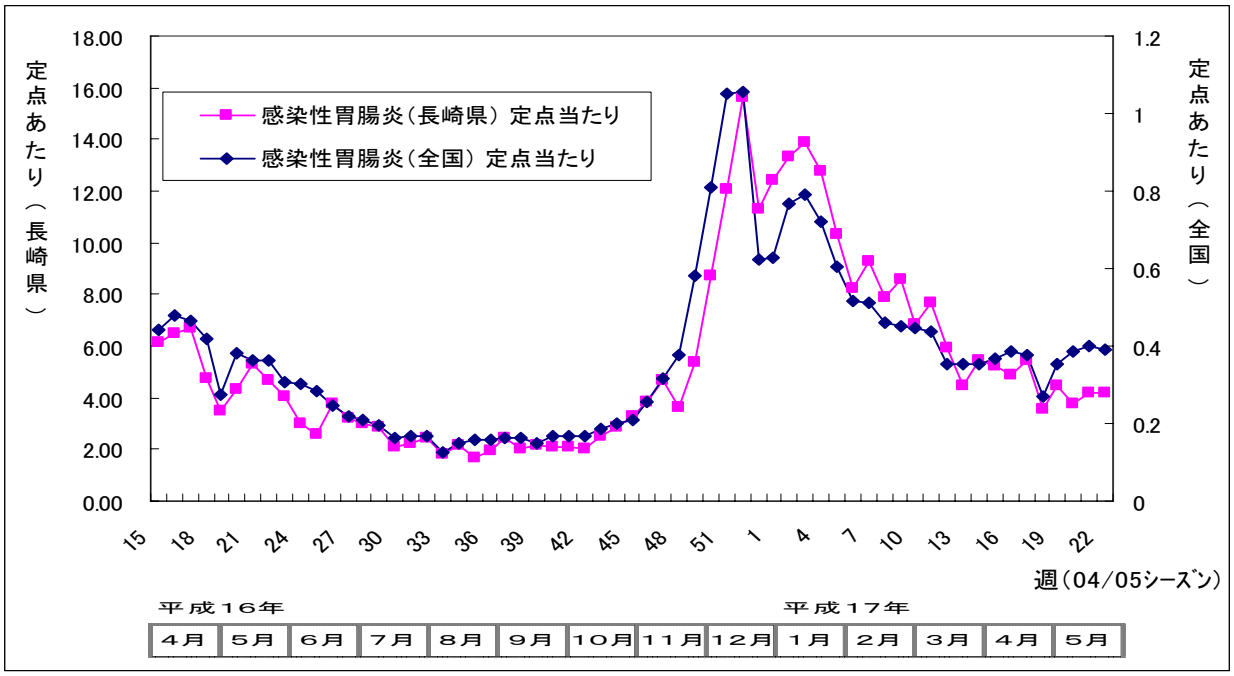


図1　感染性胃腸炎（乳児嘔吐下痢症を含む）の患者発生状況

呈する発病者は23名であった。有症者の入所者及び入所者の介護や汚物等の処理をした介護人10名の糞便についてB保健所から当所に行政依頼があり、ノロウイルスについて検査を実施した。

②検査結果について

有症者10名の糞便検体のうち、9名の検体からノロウイルス遺伝子が検出された。検出された9名とも遺伝子群は Geno-groupGⅡであった。しかし、原因食等については、特定することはできなかった。また、検出されたノロウイルス遺伝子の PCR 産物について、シークエンスは未実施であったため、原因ウイルスの遺伝子型が同一であるのか確認していない。また、この事例では、共通食を摂取していないにもかかわらず有症者の介護や汚物等の処理をした介護者に食中毒様症状を呈する人がおり、感染症として2次感染が強く疑われたがそれに関する疫学調査は実施していない。

事例2.

①概要について

平成16年4月下旬、老人会で宿泊旅行をした101名中61名が嘔吐、下痢、腹痛を呈し、数人が医療機関を受診した。また、有症者の家族からも2次感染を疑われる症状も確認されており、有症者9名の糞便についてA保健所から当所に行政依頼があり、ノロウイルスについて検査を実施した。

②検査結果について

有症者10名の糞便検体のうち、9名の検体からノロウイルス遺伝子が検出された。9名とも遺伝子群はGeno-groupGⅡであった。今回の事例については、他県の宿泊施設で発生しており、ノロウイルスを原因とした九州・山口県を含む広域的な食中毒事件となった。ノロウイルス遺伝子の PCR 産物については、発生原因となった県においてシークエンスを実施しているが、原因が同一のウイルス型、あるいは遺伝子型については不明であった。

３．考察

症例2. のような大規模食中毒の発生事例においては、特に患者及び食材からノロウイルス遺伝子を検出し、シークエンスすることで、同一若しくはいくつかの遺伝子型のウイルス株が原因であると確認し、感染経路を解明することが重要である。

以上のようなことから、ノロウイルスを原因とする食中毒事例では、2次感染へと広がる危険性を含んでおり、今後、食中毒と同時に感染症における2次感染対策として積極的な疫学調査を進める体制づくりを構築していく必要があると思われる。

参 考 文 献

1) ノロウイルスの検出法について（食品衛生法の一部改正）、厚生労働省医薬食品局食品安全部監視安全課長通知食安監発第 1105001 号、(2003)
2) 中村まき子、他 ： 長崎県衛生公害研究所所報、49、125－128、2003
3) IDSR. No. 12（No. 285）December2003
4) 長崎県感染症情報センター資料
5) 病原微生物検出情報　週別 SRSV（ﾉﾛｳｲﾙｽ、ｻﾎﾟｳｲﾙｽ）＆ﾛﾀｳｲﾙｽ 2004/05 ｼｰｽﾞﾝ

III　資料（データ）

1. 長崎県における放射能調査結果(2004 年度)

表1　定時降水試料中の全β放射能調査結果(平成 16年度)

採取年月日	降水量 (mm)	降水の定時採取 (定時降水)			
		放射能濃度　(Bq/L)			月間降下量 (MBq/Km^2)
		測定数	最低値	最高値	
平成１６年　４月	158.0	7	ND	ND	ND
５月	321.0	8	ND	ND	ND
６月	86.0	6	ND	ND	ND
７月	82.5	5	ND	ND	ND
８月	133.0	6	ND	ND	ND
９月	273.0	10	ND	ND	ND
１０月	187.0	5	ND	ND	ND
１１月	35.0	5	ND	0.36	1.3
１２月	112.0	6	ND	0.95	2.1
平成１７年　１月	64.0	9	ND	1.3	11
２月	113.0	14	ND	0.49	6.0
３月	133.0	10	ND	1.8	2.2
年間値	1,697.5	91	ND	1.8	ND～11
前年度までの過去３年間の値		264	ND	2.0	ND～49

（注１）ND:測定値が測定誤差の３倍未満。

表2　牛乳中の ^{131}I の分析結果(平成 16年度)

採取場所	諫早市	前年度まで過去３年間の値	
採取年月日	H16.5.21	最低値	最高値
放射能濃度 (Bq/L)	ND	ND	ND

（注１）牛乳の取扱区分は、生産地（原乳）である

（注２）放射能測定は、ゲルマニウム半導体検出器によるγ線スペクトロメーターで測定した。

（注３）ND:測定値が測定誤差の３倍未満。

表3　ゲルマニウム半導体検出器による核種分析測定調査結果(平成 16年度)

試料名		採取場所	採取年月	検体数	^{137}Cs		前年度まで過去３年間の値		その他の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		
大気浮遊じん		長崎市	16年　4月～17年3月	4	ND	ND	ND	ND	ND	mBq/m^3
降下物		長崎市	16年　4月～17年3月	12	ND	ND	ND	0.080	ND	MBq/km^2
陸水	蛇口水	長崎市	16年6月	1	ND	ND	ND	ND	ND	mBq/L
土壌	0～5cm	小浜町（雲仙）	16年　7月	1	29		29	42	ND	Bq/kg 乾土
					750		540	1500	ND	MBq/km^2
	5～20cm	小浜町（雲仙）		1	10		16	22	ND	Bq/kg 乾土
					700		610	1300	ND	MBq/km^2
精米		長崎市	17年　1月	1	ND		ND	ND	ND	Bq/kg 精米
野菜	大根	長崎市	17年　1月	1	ND		ND	ND	ND	Bq/kg 生
	ホウレン草	長崎市	17年　1月	1	ND		ND	ND	ND	
牛　乳		長崎市	16年8月	1	ND	ND	ND	ND	ND	Bq/L
日常食		長崎市	16年6月及び10月	1	ND	ND	ND	0.065	ND	Bq/人・日
				1	ND	ND	ND	0.069	ND	
海産生物	アサリ	小長井町	16年　5月	1	ND		ND	ND	ND	Bq/kg 生
	アマダイ	長崎市	16年 11月	1	0.12		0.086	0.12	ND	
	ワカメ	島原市	17年　2月	1	ND		ND	ND	ND	

(注１)食品試料のうち海産生物は生産地、牛乳（市販乳）・野菜及び精米は消費地としての取扱いである。

(注２)ND:測定値が測定誤差の３倍未満

表４　空間放射線量率測定結果（平成 16年度）

測　定　年　月	モニタリングポスト　(nGy/h)			サーベイメーター
	最低値	最高値	平均値	(nGy/h)
平成１６年 ４月	31	74	33	62
５月	30	49	33	58
６月	32	46	33	62
７月	32	52	33	62
８月	33	49	34	64
９月	32	52	34	64
１０月	32	43	34	64
１１月	33	45	34	64
１２月	33	49	34	62
平成１７年　１月	32	52	34	60
２月	32	56	35	60
３月	32	78	35	62
年　間　値	30	78	34	56～64

(注) サーベイメーターの値は、宇宙線の影響 30nGy/h を含む。

２．産業廃棄物最終処分場における浸透水等調査結果（2004 年度）

表１　2004 度　産業廃棄物最終処分場調査結果（生活環境項目）

種　別		項　目	pH	BOD (mg/l)	COD (mg/l)	SS (mg/l)	大腸菌群数 (個/ml)
管理型	放流水	検体数	8	5	8	8	8
		最小～最大	6.8 ～ 9.2	<0.5 ～ 39	2.5 ～ 84	<1 ～ 63	<30 ～ 77
		平均値	7.9	9.9	19	9	＊ 54 (2)
安定型	浸透水	検体数	13	13	13	13	13
		最小～最大	6.8 ～ 7.6	<0.5 ～ 5.3	1.6 ～ 22	<1 ～ 30	<30 ～ 650
		平均値	7.2	1.1	7.3	6.7	＊ 270 (4)

＊:検出数のみの平均
() :検出数

表２　2004 年度 産業廃棄物最終処分場調査結果（重金属等）　単位：mg/l

種　別		施設数	検体数	項　目	Ｃｄ	ＣＮ	Ｐｂ	Ｃｒ (6+)	Ａｓ	T-Hg	Ｓｅ
管理型	放流水	8	8	検出数	0	0	0	0	1	0	0
				検出施設数					1		
				基準超過施設数							
				最大値					0.01		
	溶出試験	2	2	検出数	0	0	0	0	0		0
				検出施設数							
				基準超過施設数							
				最大値							
安定型	浸透水	13	13	検出数	0	0	0	0	0		0
				検出施設数							
				基準超過施設数							
				最大値							
	溶出試験	1	1	検出数	0	0	0	0	0		0
				検出施設数							
				基準超過施設数							
				最大値							
報告下限値					0.01	0.1	0.01	0.05	0.01	0.0005	0.01

表３　2004 年度 産業廃棄物最終処分場調査結果（揮発性物質及び農薬等）　単位：mg/l

種　別		施設数	検体数	項　目	ﾄﾘｸﾛﾛｴﾁﾚﾝ	ﾃﾄﾗｸﾛﾛｴﾁﾚﾝ	ｼﾞｸﾛﾛﾒﾀﾝ	四塩化炭素	1,2-ｼﾞｸﾛﾛｴﾀﾝ	1,1-ｼﾞｸﾛﾛｴﾁﾚﾝ	ｼｽ-1,2-ｼﾞｸﾛﾛｴﾁﾚﾝ
管理型	放流水	8	8	検出数	0	0	0	0	0	0	0
				最大値							
	溶出試験	2	2	検出数	0	0	0	0	0	0	0
				最大値							
安定型	浸透水	13	13	検出数	0	0	0	0	0	0	0
				最大値							
	溶出試験	1	1	検出数	0	0	0	0	0	0	0
				最大値							
報告下限値					0.03	0.01	0.02	0.002	0.004	0.02	0.04

2．産業廃棄物最終処分場における浸透水等調査結果（2004 年度）

種別		施設数	検体数	項目	1,1,1-ﾄﾘｸﾛﾛｴﾀﾝ	1,1,2-ﾄﾘｸﾛﾛｴﾀﾝ	1,3-ｼﾞｸﾛﾛﾌﾟﾛﾍﾟﾝ	ﾍﾞﾝｾﾞﾝ	ﾁｳﾗﾑ	ｼﾏｼﾞﾝ	ﾁｵﾍﾞﾝｶﾙﾌﾞ
管理型	放流水	8	8	検出数	0	0	0	0	0	0	0
				最大値							
	溶出試験	2	2	検出数	0	0	0	0	0	0	0
				最大値							
安定型	浸透水	13	13	検出数	0	0	0	0	0	0	0
				最大値							
	溶出試験	1	1	検出数	0	0	0	0	0	0	0
				最大値							
報告下限値					0.3	0.006	0.002	0.01	0.006	0.003	0.02

表 4　2004 年度 産業廃棄物最終処分場周辺地下水調査結果　　単位：mg/l

施設数	検体数	項目	Ｃｄ	ＣＮ	Ｐｂ	Ｃｒ(6+)	Ａｓ	T-Hg	Ｓｅ
22	37	検出数	0	0	0	0	1	0	0
		最大値					0.006		
報告下限値			0.005	0.1	0.005	0.05	0.005	0.0005	0.005

施設数	検体数	項目	ﾄﾘｸﾛﾛｴﾁﾚﾝ	ﾃﾄﾗｸﾛﾛｴﾁﾚﾝ	ｼﾞｸﾛﾛﾒﾀﾝ	四塩化炭素	1,2-ｼﾞｸﾛﾛｴﾀﾝ	1,1-ｼﾞｸﾛﾛｴﾁﾚﾝ	ｼｽ-1,2-ｼﾞｸﾛﾛｴﾁﾚﾝ
22	37	検出数	0	0	0	0	0	0	0
		最大値							
報告下限値			0.03	0.01	0.02	0.002	0.004	0.02	0.04

施設数	検体数	項目	1,1,1-ﾄﾘｸﾛﾛｴﾀﾝ	1,1,2-ﾄﾘｸﾛﾛｴﾀﾝ	1,3-ｼﾞｸﾛﾛﾌﾟﾛﾍﾟﾝ	ﾍﾞﾝｾﾞﾝ	ﾁｳﾗﾑ	ｼﾏｼﾞﾝ	ﾁｵﾍﾞﾝｶﾙﾌﾞ
22	40	検出数	0	0	0	0			
		最大値							
報告下限値			0.3	0.006	0.002	0.01	0.006	0.003	0.02

＊：ﾁｳﾗﾑ,ｼﾏｼﾞﾝ,ﾁｵﾍﾞﾝｶﾙﾌﾞについては、放流水検出時のみ測定

３．工場・事業場排水調査結果(2004 年度)

表１ 2004年度工場・事業場排水調査結果（重金属関係） 単位:mg/l

業種	事業場数	検体数	項目	カドミウム	シアン	鉛	6価クロム	ヒ素	総水銀
金属製品製造業	1	1	検出件数	0	0	0	0	0	0
			最大値						
酸・アルカリ表面処理業	6	11	検出件数	0	0	6	0	0	0
			最大値			0.08			
工業・農業関係専門学校	1	1	検出件数	0	0	0	0	0	0
			最大値						
国公立試験研究機関	7	8	検出件数	0	0	0	0	0	0
			最大値						
保健所臨床検査機関	5	9	検出件数	0	0	0	0	0	0
			最大値						
その他	15	18	検出件数	0	0	0	1	0	0
			最大値				0.07		
			定量下限値	0.002	0.1	0.01	0.05	0.005	0.0005
合計	35	48	検出件数	0	0	6	1	0	0
			最大値			0.08	0.07		

表２ 工場・事業場排水調査結果（揮発性有機化合物関係） 単位:mg/l

業種	事業場数	検体数	項目	ﾄﾘｸﾛﾛｴﾁﾚﾝ	ﾃﾄﾗｸﾛﾛｴﾁﾚﾝ	1,1,1-ﾄﾘｸﾛﾛｴﾀﾝ	ｼﾞｸﾛﾛﾒﾀﾝ	四塩化炭素	ﾍﾞﾝｾﾞﾝ
印刷業	1	2	検出件数	0	0	0	0	0	0
			最大値						
酸・アルカリ表面処理業	1	1	検出件数	0	0	0	0	0	0
			最大値						
洗濯業	12	16	検出件数	0	4	2	0	0	0
			最大値		0.15	9.5			
下水道終末施設	15	21	検出件数	0	0	0	0	0	0
			最大値						
その他	4	4	検出件数	0	0	0	0	0	0
			最大値						
			定量下限値	0.03	0.01	0.3	0.02	0.002	0.01
合計	33	44+	検出件数	0	4	2	0	0	0
			最大値		0.15	9.5			

４．環境中ダイオキシン類測定結果

表１．平成１６年度環境大気中ダイオキシン類分析結果

測定地点名	季節	実測濃度(pg/m^3(at20℃))			毒性等量
		PCDDs	PCDFs	ｺﾌﾟﾗﾅPCB	(pg-TEQ/m^3)
時津小学校大気測定局	春	1.5	0.85	1.4	0.025
	夏	1.2	1.9	6.4	0.044
	秋	0.65	1.2	2.8	0.019
	冬	0.92	1.0	0.49	0.034
西諫早観測所	春	0.64	0.71	0.66	0.017
	夏	0.69	0.87	1.8	0.017
	秋	0.81	0.80	1.2	0.022
	冬	1.1	1.0	0.35	0.029
大村大気測定局	春	0.87	0.95	1.7	0.025
	夏	1.9	2.5	4.2	0.056
	秋	1.2	1.8	2.5	0.036
	冬	1.4	1.7	0.75	0.043
島原農業改良普及センター	春	0.94	1.6	1.8	0.038
	夏	2.9	4.0	4.3	0.11
	秋	1.6	1.7	3.1	0.034
	冬	1.7	2.3	0.96	0.055
島原市北門町集合避難施設	春	2.0	1.6	1.8	0.043
	夏	1.9	1.5	3.3	0.050
	秋	3.3	2.6	2.8	0.058
	冬	2.5	3.7	1.5	0.096
佐世保市保健所	春	0.25	0.66	3.5	0.018
	夏	0.40	0.52	7.4	0.017
	秋	0.36	0.51	4.2	0.013
	冬	1.0	1.0	1.1	0.029
佐世保市大塔大気測定局	春	1.0	1.7	1.4	0.036
	夏	1.1	1.4	3.3	0.035
	秋	0.68	0.77	1.9	0.019
	冬	1.2	1.5	0.55	0.042
松浦市役所	春	0.55	0.61	0.68	0.014
	夏	0.82	0.41	1.3	0.012
	秋	0.48	0.66	1.3	0.014
	冬	1.2	0.74	0.38	0.020
五島保健所	春	0.58	0.98	1.4	0.026
	夏	0.50	0.30	6.0	0.012
	秋	0.28	0.35	5.0	0.011
	冬	0.75	0.50	1.8	0.017

表２．平成１６年度底質中ダイオキシン類分析結果

地点名	採取年月日	実測濃度(pg/g(dry))			毒性等量
		PCDDs	PCDFs	ｺﾌﾟﾗﾅPCB	(pg-TEQ/g(dry))
西彼海域　野母漁港	H16.11.1	3600	920	10000	37
大村湾　祝崎沖	H16.5.28	6800	310	260	10
有明海　口之津港	H16.6.8	7100	220	200	8.4
佐世保湾　干尽沖	H16.10.7	5100	340	11000	15
五島海域　福江港	H16.6.14	8100	220	26000	17
壱岐海域　郷ノ浦港	H16.4.26	3400	300	9800	13
対馬海域　厳原港	H16.5.25	3300	100	2000	4.7
長与川　岩淵堰	H16.6.7	1300	110	690	4.0
西海川　大川橋上堰	H16.7.13	1900	310	330	9.2
川棚川　山道橋	H16.6.23	130	8.8	30	0.34
土黒川　浜田橋	H16.6.7	640	19	41	0.76
小森川　小森橋	H16.6.23	5300	330	670	9.1

表３．平成１６年度土壌中ダイオキシン類分析結果

地点名	採取年月日	実測濃度(pg/g(dry))			毒性等量
		PCDDs	PCDFs	ｺﾌﾟﾗﾅPCB	(pg-TEQ/g(dry))
佐世保市　広田町	H16.10.6	2000	120	9.0	1.1
佐世保市　川下町	H16.10.6	78	4.6	650	0.46
佐世保市　瀬戸越３丁目	H16.10.6	3300	3.4	73	0.55
諫早市　久山台	H16.11.5	29	N.D.	3.7	0.0030
諫早市　宗方町	H16.11.5	17	N.D.	1.9	0.0018
諫早市　長田町	H16.11.5	1300	1.6	410	0.50
大村市　岩松町	H16.11.5	97	N.D.	3.8	0.0096
大村市　溝陸町	H16.11.5	12	N.D.	1.5	0.0013
小浜町　北本町	H16.10.21	560	2.5	37	0.12
加津佐町　戊	H16.10.21	150	N.D.	1.1	0.044
西有家町　須川	H16.10.21	360	0.4	1.7	0.094
有家町　小川	H16.10.21	2000	42	17	0.53
深江町　戊	H16.10.21	130	N.D.	0.6	0.013
福江市　木場町	H16.6.14	330	N.D.	0.9	0.032
福江市　栄町	H16.6.14	910	N.D.	7.9	0.14
富江町　富江郷	H16.6.15	550	N.D.	1.2	0.055
上五島町　奈摩郷	H16.10.15	1100	N.D.	1.4	0.17
有川町　有川郷	H16.10.15	22	N.D.	0.6	0.0022
崎戸町　蛎浦郷	H16.11.2	1700	110	28	0.30
多良見町　木床名	H16.11.5	710	82	160	0.31
深江町　丙	H16.10.21	200	N.D.	0.6	0.020
有明町　大字大野名字	H16.10.21	13000	23	8.5	2.1
松浦市　今福町	H16.12.1	340	N.D.	0.5	0.034
平戸市　紐差町	H16.12.1	490	1.1	0.9	0.092
富江町　狩立郷	H16.6.15	47	N.D.	2.2	0.0048
上五島町　網上郷	H16.10.15	8100	0.9	2.8	1.2
芦辺町　中野郷	H16.4.26	93	N.D.	2.6	0.0090
厳原町　安神	H16.5.26	5800	330	5.0	1.8

５．発生源ダイオキシン類測定結果

表１．平成１６年度煙道排ガス中ダイオキシン類分析結果

事業所所在地	施設種類	採取年月日	実測濃度(ng/m^{3}N)			毒性等量
			PCDDs	PCDFs	ｺﾌﾟﾗﾅPCB	(ng-TEQ/m^{3}N)
富江町	一般廃棄物処理施設	H16.5.11	3.5	6.0	0.35	0.30
三井楽町	一般廃棄物処理施設	H16.5.12	120	110	9.5	8.8
大村市	一般廃棄物処理施設	H16.5.13	24	15	2.3	0.53
石田町	一般廃棄物処理施設	H16.5.19	1.4	0.52	0.080	0.012
芦辺町	一般廃棄物処理施設	H16.5.20	7.6	22	2.4	1.2
佐世保市	その他	H16.5.25	0.11	0.090	0.041	0.0000019
琴海町	産業廃棄物処理施設	H16.6.2	7.5	18	1.5	0.78
佐々町	一般廃棄物処理施設	H16.6.8	1.2	0.69	0.18	0.011
諫早市	小型廃棄物焼却炉	H16.6.10	0.27	0.25	0.16	0.000029
波佐見町	小型廃棄物焼却炉	H16.10.13	30	58	4.3	4.6
大村市	産業廃棄物処理施設	H16.10.14	0.97	3.1	0.10	0.054
西海市	産業廃棄物処理施設	H16.10.14	0.58	0.16	0.044	0.0000028
国見町	産業廃棄物処理施設	H16.10.18	140	300	15	16
小浜町	産業廃棄物処理施設	H16.10.27	17	38	4.1	0.96
大島町	一般廃棄物処理施設	H16.10.29	180	350	34	11
南有馬町	一般廃棄物処理施設	H16.11.2	10	4.0	0.42	0.39
川棚町	一般廃棄物処理施設	H16.11.8	4.6	1.6	0.39	0.079
有明町	小型廃棄物焼却炉	H16.11.12	860	4700	95	85
新上五島町	一般廃棄物処理施設	H16.12.9	0.62	1.0	0.81	0.021
大村市	産業廃棄物処理施設	H16.12.22	1300	3100	190	120

表２．平成１６年度排水中ダイオキシン類分析結果

事業所所在地	施設種類	採取年月日	実測濃度(pg/L)			毒性等量
			PCDDs	PCDFs	ｺﾌﾟﾗﾅPCB	(pg-TEQ/L)
大村市	排水	H16.10.6	N.D.	N.D.	4.2	0.00030

６．健康食品中医薬品検査結果

検査項目	検出数/検体数	備考
シブトラミン	0 / 10	錠剤 3検体 顆粒剤 3検体 カプセル剤 4検体
フェンフルラミン	0 / 10	
N-ニトロソフェンフルラミン	0 / 10	
マジンドール	0 / 10	
フェンテルミン	0 / 10	
ジアゼパム	0 / 10	
ビサコジル	0 / 10	

7. 食品中残留農薬調査結果

（単位:ppm）

時期	産地	農産物名	検体数	検出数	検　出　値	基準値
5月	県内	ばれいしょ	4	0		
		びわ	2	0		
		レタス	2	1	ﾌﾟﾛｼﾐﾄﾞﾝ(0.06)	5
		いちご	2	0		
		たまねぎ	3	0		
	県外	セロリ	2	2	ｸﾛﾛﾀﾛﾆﾙ(0.03, 0.20)	10
7月	県内	カボチャ	2	0		
	県外	さといも	1	0		
		しょうが	2	0		
	輸入	ブロッコリー	1	0		
		しょうが	1	0		
		アスパラガス	4	0		
		えだまめ	1	0		
		さといも	1	0		
9月	県内	みかん	4	0		
	県外	キャベツ	2	0		
		トマト	2	0		
		なす	2	0		
		ほうれん草	2	1	ｼﾍﾟﾙﾒﾄﾘﾝ(0.60)	2.0
					ｷｬﾌﾟﾀﾝ(0.09)	−
		小ねぎ	2	2	ｼﾍﾟﾙﾒﾄﾘﾝ(0.05, 0.10)	5.0
		さといも	1	0		
	輸入	いんげん	2	0		
11月	県内	にんじん	1	0		
		はくさい	2	0		
		だいこん	2	0		
		ほうれんそう	3	0		
	県外	にんじん	1	0		
		にら	2	1	ｸﾚｿｷｼﾑﾒﾁﾙ(2.3)	−
		ブロッコリー	2	0		
		さやえんどう	2	1	ｸﾛﾛﾀﾛﾆﾙ(0.60)	2
					ﾌﾙｼﾞｵｷｿﾆﾙ(0.08)	0.50
		合計	60	8		

8. 油症検診者の血液中PCB、PCQ濃度

		検診者数	ＰＣＢ（ppb）		ＰＣＱ（ppb）	
			最低～最高	平　均	最低～最高	平　均
玉之浦町	認 定 者	２９	<1 ～ 13	4.3	<0.02 ～ 1.5	0.57
	未認定者	６	3 ～ 7	4.6	<0.02 ～ 0.18	0.10
	計	３５	<1 ～ 13	4.4	<0.02 ～ 1.5	0.50
奈留町	認 定 者	２２	<1 ～ 6	3.2	<0.02 ～ 1.2	0.47
	未認定者	４	<1 ～ 4	2.3	<0.02 ～ 0.46	0.30
	計	２６	<1 ～ 6	3.1	<0.02 ～ 1.2	0.45
長崎市	認 定 者	１４	<1 ～ 5	2.6	<0.02 ～ 1.5	0.74
	未認定者	１２	<1 ～ 2	1.5	<0.02 ～ 0.24	0.11
	計	２６	<1 ～ 5	2.4	<0.02 ～ 1.5	0.60
計	認 定 者	６５	<1 ～ 13	3.6	<0.02 ～ 1.5	0.57
	未認定者	２２	<1 ～ 5	3.2	<0.02 ～ 0.46	0.16
	計	８７	<1 ～ 13	3.6	<0.02 ～ 1.5	0.51

注：平均は PCB または PCQ の検出値の平均

９．食品、陶磁器などの収去検査結果

(1)

①魚肉練り製品

検査項目	基準値	検出の有無	表示あり	表示なし	総 計
サッカリンナトリウム	0.3g/kg以下	検出する	2 (0.06~0.19)	0	2
		検出しない	0	18	18

②漬物

検査項目	基準値	検出の有無	表示あり	表示なし	総 計
サッカリンナトリウム	*1.2g/kg~2.0g/kg	検出する	3 (0.46~0.71)	1 (0.10)	4
		検出しない	0	16	16

*こうじ漬・酢漬・たくあん漬：2.0g/kg、かす漬・みそ漬・しょう油漬：1.2g/kg

(2)陶磁器

検査項目	深さ及び容量	基準値	検査数	検出数
鉛	≧2.5cm, <1100ml	5.0μg/ml	26	0
	≧2.5cm, ≧1100ml	2.5μg/ml	0	0
	<2.5cm	17μg/cm²	4	2(基準超過1)

１０．畜水産食品中の合成抗菌剤などの検査結果

(μg/g)

	ぶり	まだい	ひらめ	ﾄﾗﾌｸﾞ	車エビ	うなぎ	乳	牛肉	豚肉	鶏肉	定量下限
(抗生物質)											
ｵｷｼﾃﾄﾗｻｲｸﾘﾝ	0/9	0/10	0/2	0/5	0/2	0/2	0/10				<0.02
ｽﾋﾟﾗﾏｲｼﾝ	0/9	0/10		0/5			0/5				<0.05
ﾍﾞﾝｼﾞﾙﾍﾟﾆｼﾘﾝ							0/5				<0.001
(合成抗菌剤)											
ｽﾙﾌｧﾒﾗｼﾞﾝ	0/9	0/10				0/2					<0.02
ｽﾙﾌｧｼﾞﾐｼﾞﾝ	0/9	0/10				0/2	0/10				*<0.02
ｽﾙﾌｧﾓﾉﾒﾄｷｼﾝ	0/9	0/10				0/2					<0.03
ｽﾙﾌｧｼﾞﾒﾄｷｼﾝ	0/9	0/10				0/2					<0.03
ｽﾙﾌｧｷﾉｷｻﾘﾝ	0/9	0/10				0/2					<0.03
ｵｷｿﾘﾝ酸	0/9	0/10			0/2	0/2					<0.02
ﾁｱﾝﾌｪﾆｺｰﾙ	0/9	0/10									<0.05
ｵﾙﾒﾄﾌﾟﾘﾑ						0/2					<0.05
(内部寄生虫剤)											
ﾁｱﾍﾞﾝﾀﾞｿﾞｰﾙ							0/10				<0.005
(農薬)											
DDT								0/5	0/5	0/5	<0.5
ﾃﾞｨﾙﾄﾞﾘﾝ								0/5	0/5	0/5	<0.02
ﾍﾌﾟﾀｸﾛﾙ								0/5	0/5	0/5	<0.02

表内の数字: 検出数/検査数

＊ 乳は<0.005μg/g

Ⅳ　学会発表・他誌掲載論文抄録

1. 学会等発表

演題	学会名	会期	場所	発表者
循環浴槽水に対する管理指標としての清浄度検査の応用	日本防菌防黴学会	2004. 5.27	東京都	○田栗利紹
Rtx-2330 によるダイオキシン類分析の検討	第13回環境化学討論会	2004. 7. 7～9	静岡市	○本多 隆 植野康成 馬場強三
ウェルシュ菌食中毒一事例の細菌及び遺伝子疫学的考察	獣医公衆衛生学会	2004.10. 2	大分市	○山崎省吾
レジオネラ浴槽水の新規評価法	九州衛生環境技術協議会	2004.10. 7	熊本市	○田栗利紹
植物を用いた水質浄化について	〃	〃	〃	○本多雅幸
イボニシのインポセックス現象に対する有機スズ化合物の影響	〃	〃	〃	○浦 伸孝
GC-ECD を用いた甲状腺ホルモンのスクリーニング法の検討	〃	〃	〃	○西川 徹 馬場強三
長崎県における高濃度オキシダント出現の特徴	大気環境学会	2004.10.20	秋田市	○森 淳子
生ごみと牛ふんの混合割合が堆肥化に及ぼす影響	平成１６年度廃棄物研究発表会	2005. 1.25	東京都	○竹野大志
Continual Investigation on gas and aerosol in the Nagasaki suburbs-Ⅰon Composition at the time of yellow sand coming (長崎市郊外におけるガス・エアロゾルの通年調査と黄砂飛来時のイオン組成)	4th ＡＤＥＣ(アジア起源の風送ダストの気候への影響に関する日中共同研究) 国際ワークショップ	2005. 1.27	長崎市	○森 淳子 他
長崎県北部の水稲被害と大気汚染環境調査	大気環境学会九州支部第５回研究発表会	2005. 1.28	福岡市	○森 淳子 他
長崎県衛生公害研究所・国立環境研究所の共同研究	第１７回酸性雨東京講演会	2005. 3. 3	東京都	○森 淳子 他
長崎県における越境大気汚染研究～霧氷調査と水稲被害調査～	国立環境研究所ミニシンポジウム	2005. 3. 4	東京都	○森 淳子 他

２．他誌掲載論文

１．マルチプレックスＰＣＲを用いた食中毒起因菌一括検出法の検討

田栗　利紹、野口英太郎、平山　文俊

第 30 回日本防菌黴学会要旨集 P.168(2003)

２．マルチプレックスＰＣＲ用プライマー対の選抜方法とそれらを用いた乳製品関連細菌検出用試薬の検討

田栗　利紹、山崎　省吾、原　健志

第 24 回日本食品微生物学術講演要旨集 P.82(2004)

３．マルチプレックスＰＣＲに用いるホットスタート用 TaqＤＮＡポリメラーゼの検討

田栗　利紹、山崎　省吾

平成 15 年度日本獣医師三学会（九州）一般講演要旨集 P.144(2004)

４．マルチプレックスＰＣＲを用いた鶏、牛及び豚におけるカンピロバクターの検出

山崎　省吾、松尾　保雄、上田　竜夫、田栗　利紹、原　健志

第 24 回日本食品微生物学術講演要旨集(2004)

５．ダイオキシン類分析におけるフタル酸エステル類の妨害

本多　隆、植野　康成、馬場　強三

第 12 回環境化学討論会講演要旨集(2003)

６．Daily Concentration Variation of Air Collected Onshore Area Faced Asian Continent

K.Murano, A.Mori,T.Kamaya,T.Ohara,N.Sugimoto,H.Mukai

Processese in the Atomosuphere(2003,Bangkok,Thailand)77-82

７．ウェルシュ菌食中毒一事例における細菌及び遺伝子疫学的考察

山崎　省吾、田栗　利紹、原　健志

平成 16 年度日本獣医公衆衛生学会（九州）講演要旨集 P.148(2004)

３．他誌掲載論文抄録

■ 論文（レフェリー制）

Proceedings of Fourth ADEC Workshop Aeolian Dust Experiment on Climate Impact
Date:Jan 27, 2005 Venue: ANA HOTEL NAGASAKI GLOVERHILL

Continual Investigation on gas and aerosol in the Nagasaki suburbs - Ion composition at the time of yellow sand coming flying-

T. Kamaya , A. Mori
Nagasaki Prefectural Institute for Public Health and Environmental sciences, Nagasaki Japan
K.Arao
Nagasaki University, Nagasaki, Japan
T. Ohara, N. Sugimoto, H. Mukai , K. Murano
National Institute for Environmental Studies, Tsukuba, Japan

Abstract

We conducted daily air pollutants collection and chemical analysis at onshore area faced to Asian continent from January 2001 through February 2002 to understand trans-boundary transport of air pollutants from the Asian continent to Japan. Monthly averaged concentration of total anion and cation in aerosol stayed approximately constant level(100-200 neq/m^3) except for the samples collected in Yellow Sand season(January-April). High concentrations were observed in March 2001 and anion concentration reached up to about 350 neq/m^3. Very big Yellow Sand event was observed from 22nd through 24th March 2001. Concentrations and fraction of Ca^{2+} and nss-SO_4^{2-}+NO_3^- concentrations in aerosol are very high from 21st through 24th March. First the air mass brought the air pollutants from Chinese anthropogenic emissions in 21st March, so the concentrations of NO_3^-, nss-SO_4^{2-} and NH_4^+ were very high. Later, Yellow Sand was transported from inland of China to Japan, which brought the high concentration of Ca^{2+}. However, on the way to Japan, air pollutants are added to the air mass.

■ 口頭発表

第45回大気環境学会年会 講演要旨 平成 16 年 10 月 20 日 秋田市

長崎県における高濃度オキシダント出現の特徴

○ 森 淳子，香月幸一郎（長崎県衛生公害研究所）

要 旨

長崎県では、かつてオキシダント注意報が発令された経過がなかったが、長期的にオキシダント濃度が上昇する傾向にあり、2002 年5月に初めて注意報発令基準に達するオキシダント濃度を観測した。

平成 14 年度を対象に、毎日の気圧配置図を分類し、月ごとに出現日数を算出した。移動性高気圧の出現日数に着目すると、平成 14 年7月、8月は、0～2日であった。一方南高北低型の気圧配置や台風など、太平洋の清浄な気塊をもたらす気象条件であったことがわかった。逆に春、秋は移動性高気圧が、大陸起源の気塊をもたらすことによって、オキシダントが比較的高濃度となること、さらに5～6月は十分な日射量による光化学オキシダントとオゾン層起源のオキシダントが加わり特に高濃度となることが推定された。

120ppb を超える濃度のオキシダントが、18 時から 20 時にかけて北松浦半島を南下するように観測された 2003 年6月4日について、窒素酸化物とオキシダントの等濃度線を1～2時間ごとに描いた。9時の時点で長崎市、佐世保市の周辺において、オキシダント濃度がやや高い気塊が発生した。時間を追う毎にそれらが高濃度化し、またコンター同士が繋がり、17 時には、北松浦半島から長崎市に至る規模で 80ppb をこえる塊が発生していることが確認

された。18時に突然平戸島周辺に出現した100ppbを超えるオキシダントの気塊は北西風に乗って徐々に南下し、20時には西彼杵半島に達した。これらから、地域的影響に加え、平戸以北からの影響も示唆された。

地方公共団体環境研究機関と国立環境研究所とのC型共同研究　平成16年度第2回研究会
平成17年1月22日　京都市

高濃度オキシダント出現季節の早期化
～大陸からの移流または成層圏オゾンからの流れ込みと光化学反応～

○ 森　淳子（長崎県衛生公害研究所：解析グループリーダー）
グループメンバー　宮城県、富山県、京都府、香川県、福岡県、福岡市、佐賀県、長崎県

要　旨

近年全国的にオキシダントが高濃度化している要因として、成層圏オゾンからの降下や大陸からの移流を想定して解析を行った。

成層圏オゾン降下の指標となる7Beの大気中濃度とオキシダント濃度の関係を検討したところ、春と秋にピークをもつ点など両者の挙動は一致していた。

国立環境研究所地球環境研究センターで開発された後方流跡線解析 METEX(METeolorogical Data Explorer)を利用して、上空5kmから気塊が降下した事例を13年間にわたって抽出した。その結果、季節的に春と秋に降下日がピークを示し、気圧の谷の発生による成層圏からの降下を示唆する結果が得られた。しかし、年度毎の解析では、最近2年間、春の降下事例がほとんど認められなかった。このことは最近春にオキシダントが高濃度化している現象と一致しなかった。

大陸からの移流については、光化学反応の影響が少ないと思われる夜間にオキシダント濃度が上昇した事例を抽出し、報告された数値解析モデルと比較した。たとえば2004年2月26日の事例では、深夜九州北西部においてオキシダントが高濃度化した。この結果は地球フロンティア研究システムによるGlobal chemical weather forecast system及び九州大学/国立環境研究所による　化学天気予報システム　CFORSとよく一致した。

大気環境学会九州支部講演要旨　平成17年1月28日　福岡市

長崎県北部の水稲被害と大気環境調査

○森　淳子，横瀬　健，香月幸一郎（長崎県衛生公害研究所）
渡邉大治（長崎県壱岐農業改良普及センター），市原泰博，藤山正史（長崎県農業経営課）
土谷大輔（長崎県総合農林試験場），舩場　貢（長崎県科学技術振興課）
向井人史，村野健太郎（国立環境研究所）

要　旨

県北の高地水田では特徴的な水稲被害が発症し、県農林部においては、昭和40年代から課題となっている。平成15年度に出現した大規模被害の際、被害が甚大であった葉から検出された硫黄分が、被害が少なかった葉の硫黄分に比べ高濃度であったことなどから、大気汚染の影響が原因の一つとしてクローズアップされた。酸性霧の文献値から調整した人工酸性霧を用いたチャンバー実験で、水稲被害が再現されたことなどから、平成16年度に現地大気調査を行った。

稲の生育期間を通じて現地で霧が採取されたのは6月25日のみで，その成分はpH 約6，EC：50 μS/cm，SO_4^{2-}:4.7 μg/ml と通常の雨の成分と大差なかった。一方稲の被害は9月6日に発生した。その直前、9月2～3日に浮遊粒子状物質がやや高濃度となった。九州大学などによる化学天気予報によると、期間を通じて硫酸塩濃度がSPMの約20%を占めていた。また現地における粒子状物質の観測結果においても，硫酸成分を検出し、稲の被害とアジア規模のSPM高濃度現象との関係も示唆されたが、更に多方面からの検討が必要と考えた。

国立環境研究所 ミニシンポジウムー越境大気汚染研究ー 平成 17 年3月4日 つくば市

長崎県における越境大気汚染研究

森 淳子(長崎県衛生公害研究所)

要 旨

本邦西端に位置する長崎県は、地域的影響に加え、火山や大陸の影響など、複雑な大気環境下にある。県南部の島原半島の中央部にそびえる雲仙岳(標高 1,360m)では冬季に霧氷が観測される。霧氷は生成過程から、地表の影響が少なく、長距離輸送される気団の化学的組成を反映していると思われる。冬型の気圧配置または低気圧の影響を受けた時期に採取された霧氷は電気伝導度で 100～920 μS/cm という高い濃度であった。このなかでも pH<4 及び NO_3^->100mg/L と高度に汚染された霧氷の出現日についてバックトラジェクトリー解析をおこなったところ、硫黄系及び窒素系汚染物質の排出量が多いとされる渤海沿岸及び朝鮮半島を経由した気塊によるものであることがわかった。

日本獣医公衆衛生学会(九州)講演要旨 平成16年10月2日 大分市

ウェルシュ菌食中毒―事例における細菌及び遺伝子疫学的考察

○山崎 省吾, 田栗 利紹, 原 健志(長崎県衛生公害研究所)

要 旨

ウェルシュ菌食中毒は, 全国で通年9～27件の報告があるが, 長崎県では過去27年間(昭和51～平成14年)で2件のみの報告である稀な食中毒の一つである。

平成15年11月, 飲食店で調理された仕出し弁当が原因と推定されたウェルシュ菌食中毒事例を経験し, 本事例について細菌学及び遺伝子疫学的に調査した。

本事例の患者39名中33名及び調理者6名中2名からエンテロトキシン産生性ウェルシュ菌が分離され, 血清型は市販血清Hobbs 血清型が型別不明で, TW28(東京都健康安全研究センターにて実施)であった。

ウェルシュ菌食中毒では, 市販血清型で型別不明になることが少なくなく、本事例でも型別不明であった為、PFGE 法を応用し、疫学解析を試みた。その結果、本法は食中毒の疫学解析に有用であることが判明した。ウェルシュ菌食中毒における PFGE 法の解析事例数が少ないため、今後も継続して応用する必要がある。

論 文

Antimicrobial Acyivity of 10 Differentplant Polyphenols against Bacteria Causing Food-Borne Disease

T .Taguri, T. Tanaka, and I. Kouno

BIOLOGICAL & PHARMACEUTICAL BULLETIN, 27(12), 1965-1969(2004)

10 種の異なる植物性ポリフェノール化合物の抗菌活性を,食中毒起因細菌に対する最小発育阻止濃度(MICs)で比較することにより評価した。供試菌株は黄色ブドウ球菌 20 株,サルモネラ属菌 26 株,大腸菌 23 株,そしてビブリオ属菌 27 株を用いた。ポリフェノールは, エピガロカテキン(1), エポガロカテキンガレート(2), プニカラジン(3), タンニン酸(4),カスタラジン(5),プロデルフィニジン(6),ゲラニイン(7),およびプロシアニジン(8)からなる化合物, 並びに紅茶色素のテアフラビン混合物(9)および緑茶のビワ酸化酵素処理化合物(10)を供試した。黄色ブドウ球菌とビブリオ属菌に対する MICs 平均値はそれぞれ 192 ± 91 と 162 ± 165 μg/ml であり, サルモネラ属菌や大腸菌の平均値(795± 590 and 1519 ± 949 μg/ml,respectively)よりも低かった(P<0.01)。黄色ブドウ球菌とビブリオ属菌の植物ポリフェノールに対する全体的な感受性は共に高かったが, 前者の MICs における変動係数は最も低く, 後者のそれは最も高い値を示した。1, 2, 5, および 6 の構造学的特徴と MICs の比較から 3, 4, 5-trihydroxyphenyl 基の抗菌活性に及ぼす影響が強く示唆された。