

近年の長崎県におけるノロウイルスの検出状況

山下 綾香、三浦 佳奈、松本 文昭、吉川 亮、田栗 利紹

ノロウイルスは、主に感染性胃腸炎や食中毒の原因となる病原体として本邦で最も報告数の多いウイルスのひとつである。平成 26 年 3 月に、これまで世界的に流行していたウイルス株と遺伝子型が異なる新型 GII.P17-GII.17 の流行が神奈川県川崎市で発見されたことを受けて、過去 5 年間に長崎県で発生したノロウイルスの遺伝子型を調査したので、その結果を報告する。過去に検出保存されていた流行株の再検査を実施した結果、新型ノロウイルスに分類される株が長崎県でも確認され、神奈川県での発見から数ヶ月遅れで侵入していたことが明らかとなった。したがって、今後は、ノロウイルスの変異にも注目しながら、流行状況を監視していくことが重要であることがわかった。

キーワード：食中毒、感染性胃腸炎、遺伝子型別、ノロウイルス GII.17

はじめに

近年、これまで世界的に流行していたノロウイルスと遺伝子型が異なる新型が神奈川県で発見されたことを受けて、長崎県で過去 5 年間に検出保存されていたノロウイルス検体の再検査を実施することにより、本県で流行しているノロウイルス株の遺伝子型を調査した。その結果、新型ノロウイルスに分類される株が本県でも確認され、神奈川県での発見から数ヶ月遅れで侵入していたことが明らかとなったので報告する。

ノロウイルスは冬季に多発する感染性胃腸炎の主要な病原体の一つとして知られているが、平成 26 年 3 月にはこれまで世界的に流行していたウイルス株と遺伝子型が異なる新型が神奈川県で発見された。この新型ノロウイルスに対しては、一般的には免疫を持たないヒトが多いことから大きな流行につながる懸念されている。

ノロウイルスは、当初、カキに代表される二枚貝との関係が強かったことから、食品衛生法において、平成 9 年から食中毒の原因物質として追加・集計されてきた。過去 10 年間の食中毒統計において他の病因物質と比較すると、事件数はカンピロバクターと首位を争っており、患者数はその他の病因物質と大きく差をつけて第 1 位である(図 1)。また、本ウイルスは感染性胃腸炎の病原体としても知られており、感染症法において 5 類感染症という疾患に分類されている。本疾患は全国約 3,000 か所の医療機関から報告されており、その患者数の動向はノロウイルスによる食中毒患者数の動向とよく一致することが知られている。そのためノロ

ウイルスを予防するためには、食中毒だけでなく感染性胃腸炎の発生動向を把握しておく必要がある。感染性胃腸炎の患者数は、10 月から増加しはじめ、11 月に急増し、12 月をピークとして 3 月頃まで多発し、1 年をとおして発生している(図 2)。

ノロウイルスはエンベロープを持たない正 20 面体構造をもち、直径 35~40 nm と非常に小さい。遺伝子として 1 本鎖 RNA をもち、そのまわりはカプシドと呼ばれる構造タンパク質で覆われて多くの小突起が認められる(図 3)。本ウイルスの RNA 合成酵素(図 3, RNA dependent RNA polymerase: RdRp)は遺伝子複製の校正機能をもたないことから、特に変異がおこりやすいと考えられており²⁾、場合によっては、その遺伝子からつくられるアミノ酸までもが置換してしまうことから、ウイルスの構造や性質が変化する。前述した新型ノロウイルスは構造タンパク質に加えてこの RdRp に変異が認められており、本ウイルスと特定するためには構造タンパク質の遺伝子(図 3, P ドメイン)だけでなく RdRp を支配する遺伝子の塩基配列を決定しなければならない。

さらに、平成 28 年 4 月 1 日には、厚生労働省より、患者、調理従事者、食品等から検出されたノロウイルスについて、これまで PCR 検査により判定が可能であった遺伝子群の区別(GI, GII 等)だけではなく、遺伝子の塩基配列を決定する遺伝子型(GII.4 等)の検査まで行い、食品衛生法に基づく報告を行う旨の通知があった。

以上のことから、今回、長崎県内のノロウイルスを原因とする食中毒および感染性胃腸炎について、最近 5

年間の発生状況を調査した。加えて、ノロウイルスと同等された検体のうち新型が疑われたウイルス株については、新型ノロウイルス遺伝子の検査方法を新たに導入し、本ウイルスの長崎県への侵淫状況を調査した。新型ノロウイルスは危険性が懸念されていることから、本検査体制の整備および県内流行状況の把握は県民生活における安全な暮らしを守ることに直結し、食品衛生監視などの行政施策とあわせて、ノロウイルス予防への有効な情報として公衆衛生の向上に貢献できる。

調査方法

1 供試したノロウイルス株

平成 23 年 4 月から平成 28 年 3 月までに、ノロウイルスによる食中毒および感染症胃腸炎の疑いで環境保健研究センターに検査依頼された事例を調査した。搬入された便、嘔吐物および食品について、標準法³⁾により RNA を抽出し、RT-PCR を行った。さらに、ノロウイルス陽性と判定された 213 株を用いて、増幅核酸領域の塩基配列を決定し、ノロウイルス型の解析を行った。

2 検体からの RNA 抽出方法、RT-PCR およびシーケンシング

検体を PBS (-) で約 10% 懸濁液とし、10,000 rpm で 15 分間遠心分離した上清から RNA 抽出キット (QIAamp Viral RNA Mini Kit, QIAGEN) を用いてウイルス RNA の抽出を行った。抽出した RNA は DNA 分解酵素で処理した後、RNA 用 PCR 検査キット (QIAGEN OneStep RT-PCR Kit, QIAGEN) を用いてノロウイルス遺伝子の構造タンパク質遺伝子 (図 3, P ドメイン) を増幅した。PCR 増幅用のプライマーとして、GI 群ノロウイルスの検出には GI 検出用プライマー対 (COG1F/G1SKR, 標準法で指定) を GII 群ノロウイルスの検出には GII 検出用プライマー対 (COG2F/G2SKR, 標準法で指定) を用いた。食品検体に関しては超遠心法を用いて濃縮し RNA 抽出後、DNA 分解酵素処理、および RNA 用 PCR 検査を行った。PCR を行った後、アガロースゲル電気泳動により増幅バンドが確認されたものについてダイレクトシーケンスを行い、ノロウイルス型別決定用ソフト (Norovirus genotyping tool) を用いて遺伝子型別した。

ノロウイルスの型別標記方法はノロウイルス専門委員会により開発された新たな遺伝子型分類法によった。

新規分類法はノロウイルスの流行様式の探求のために、これまで一般的であった構造タンパク質の遺伝子配列に基づいて型別するだけでなく、ウイルス染色体上に位置する非構造タンパク質の遺伝子配列を反映させたことに特徴がある。このことにより、本方法は、これまで型別が不能であったノロウイルスの遺伝子組換えによる変異にも対応することができ、H18/H19 シーズンと H24/H25 シーズンに大流行したノロウイルス GII.4 の亜型株を分別することができる。この遺伝子型分類方法は、国際ノロウイルスワーキンググループに継承され、Koopmans らのノロウイルス遺伝子型別用ソフトによって Web 上で提供されている。なお、本分類法によるウイルス型の標記はグループごとの RNA 酵素遺伝子型を前に頭文字 P をつけて記載し、グループごとの P ドメイン遺伝子型を後につけてハイフンでつなぐ。例えば新型ノロウイルスは GII グループの RdRp が 17 型、GII グループの P ドメインが 17 型と同等され、GII.P17-GII.17 のように標記する (図 3)。

3 RNA 合成酵素の遺伝子型別解析

今回、GII.17 と同等された検体に関してはより詳細に解析した。抽出 RNA を相補的 DNA (cDNA) に置換し、DNA ポリメラーゼ (Ex Taq Hot Start Version, TaKaRa) を用いてノロウイルス遺伝子の RNA 合成酵素 (RdRp) 遺伝子を増幅した。PCR 増幅用のプライマーとして Yuri22F/G2SKR を用いた³⁾。PCR を行った後、アガロースゲル電気泳動により増幅バンドが確認されたものについてダイレクトシーケンスを行い、ノロウイルス遺伝子型別用ソフトを用いて遺伝子型別したのち系統樹解析を実施した。系統樹推定は近隣結合法 (NJ 法) で行った。

結果及び考察

1 ノロウイルスの流行状況

平成 23 年から平成 27 年にわたるノロウイルスの遺伝子型別ごとの発生動向を図 4 に示す。長崎県において平成 26 年までは GII.4 が主に検出されていたが、同年末から翌年にかけて GII.17 が検出されはじめた。平成 27 年には GII.17 の占める割合が増えていたが、GII.4 の検出もやや減少傾向にあるものの続いており、全国と比較において大きな違いは認められなかった (図 4)。

2 新型ノロウイルスの流行状況

新分類法に基づくノロウイルスの遺伝子型別解析を行ったところ、標準法により構造蛋白質の遺伝子型が GII.17 に分類された株は全て新型ノロウイルス GII.P17-GII.17 に分類された。また、事例ごとに 1 検体選出し、系統樹を作成したものを図 5 に示した。拡大図は、長崎県において検出された新型ノロウイルスが属しているグループを示すが、これらのウイルスは、全て、川崎市にて平成 26 年と平成 27 年に検出された新型ノロウイルスと同じグループを形成していたことが明らかとなった(図 5 拡大図)。

国内では、H26/H27 シーズンに長野県、埼玉県、栃木県など関東近隣で新型ノロウイルスが流行していたことが確認されたほか⁴⁾、三重県でも検出されており⁵⁾、全国的に流行していることが推察される。また、世界的な動向を見ても、平成 26 年 12 月まで世界の主流であった GII.4 が減少に転じ、GII.17 は、我国だけでなく、中国の広東省⁶⁾、欧州や米国でも散発的に検出されており⁷⁾、世界的な広がりを見せている。

今後、本ウイルスが国内において主要な流行株となる可能性があることから、来シーズン以降においても新型ノロウイルスの動向には十分な注意が必要と考えられる。

謝 辞

本調査を遂行するにあたり、種々の情報を提供していただいた長崎県生活衛生課、長崎市保健環境試験所、長崎市、佐世保市及び長崎県立各保健所の関係

各位に深謝する。

参 考 文 献

- 1) 牛島廣治ら, カリシウイルス. ウイルス, 61, 193-204, 2011.
- 2) 野田衛, ノロウイルス食中毒・感染症からまもる, 公益社団法人日本食品衛生協会.
- 3) 厚生労働省通知, ノロウイルスの検出法について, 平成 19 年 5 月 14 日食安監発第 0514004 号.
- 4) 新規遺伝子型ノロウイルス GII.P17-GII.17 の流行, IASR, 36, 175-178, 2015.
- 5) ノロウイルス GII.17 型の流行とその特徴について - 三重県, IASR, 36, 91-92, 2015.
- 6) Jing Lu *et al* : Gastroenteritis Outbreaks Caused by Norovirus GII.17, Guangdong Province, China, 2014-2015, Emerg Infect Dis, 21, 1240-1242, 2015.
- 7) Gabriel I Parra *et al* : Genome of Emerging Norovirus GII.17, United States, 2014, Emerg Infect Dis, 21, 1477-1479, 2015.
- 8) M de Graaf *et al* : Emergence of a novel GII.17 norovirus - End of the GII.4 era? Eurosurveillance, 20, Issue 26, 2015.

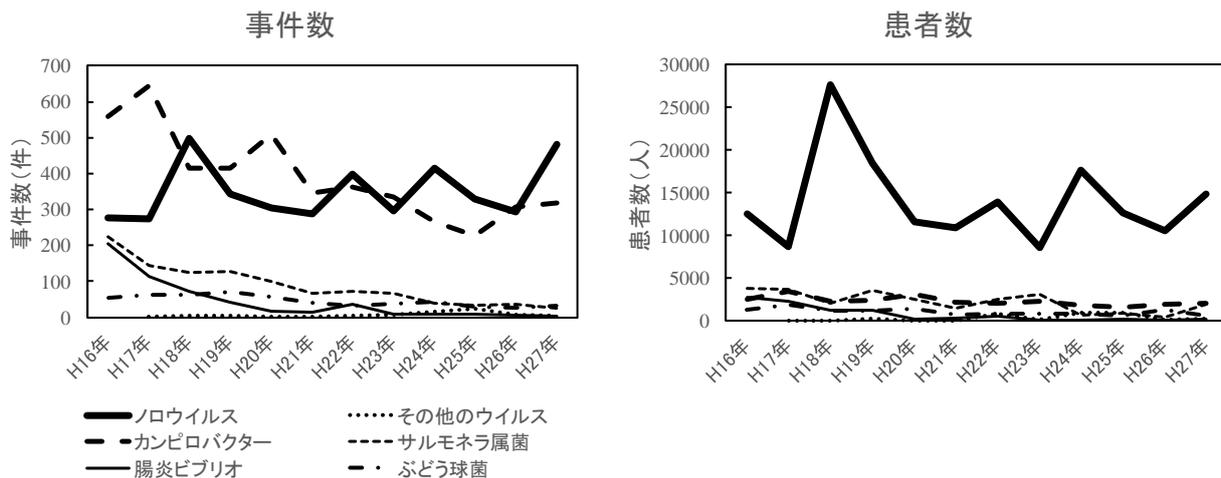


図1 病因物質別食中毒事件の年次別の事件数と患者数
厚生労働省食中毒統計を基に集計。

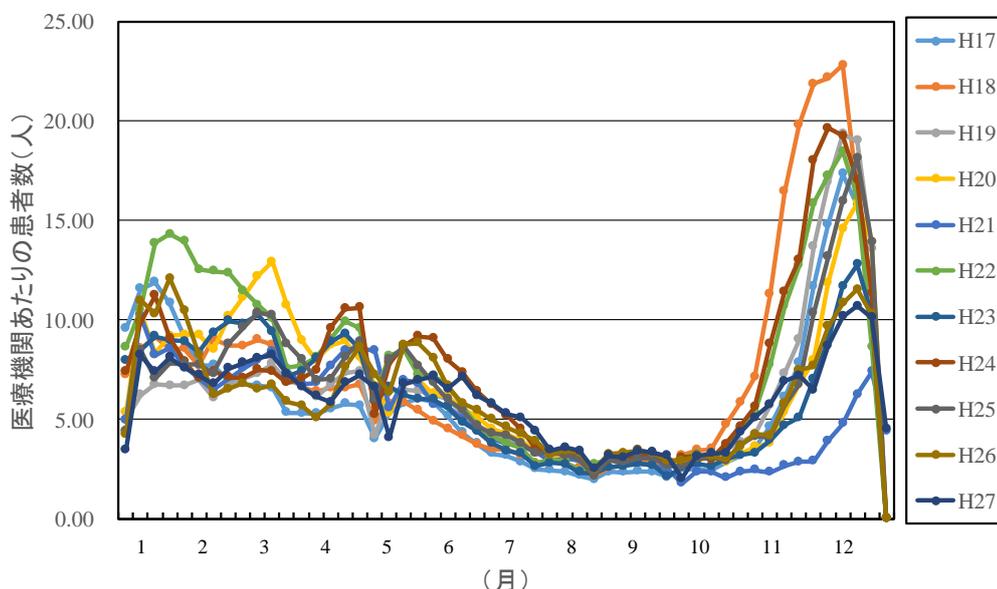


図2 感染性胃腸炎の発生動向
全国約 3000 の医療機関から得られた感染性胃腸炎患者数の推移。
感染症発生動向調査のデータを一部改変。

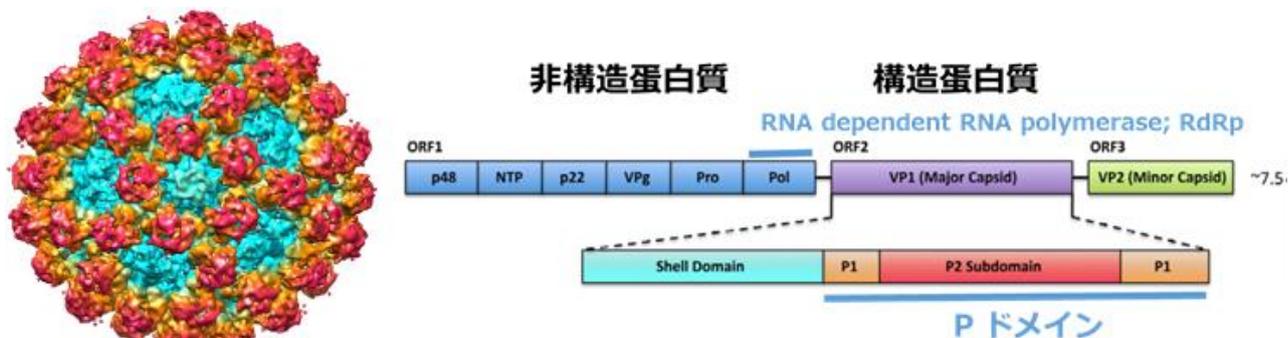


図3 ノロウイルス カプシドの構造と遺伝子地図

カプシドは非構造タンパク質(S)と構造タンパク質(P1、P2)の 3 つの領域から構成されている。右図は対応する遺伝子地図を示す。新型ノロウイルスを同定するためには、構造タンパク質の遺伝子配列(P1、P2)だけでなく非構造タンパク質に含まれる RNA ポリメラーゼ (RdRp) の遺伝子配列を決定する必要がある。牛島らの論文から引用。¹⁾

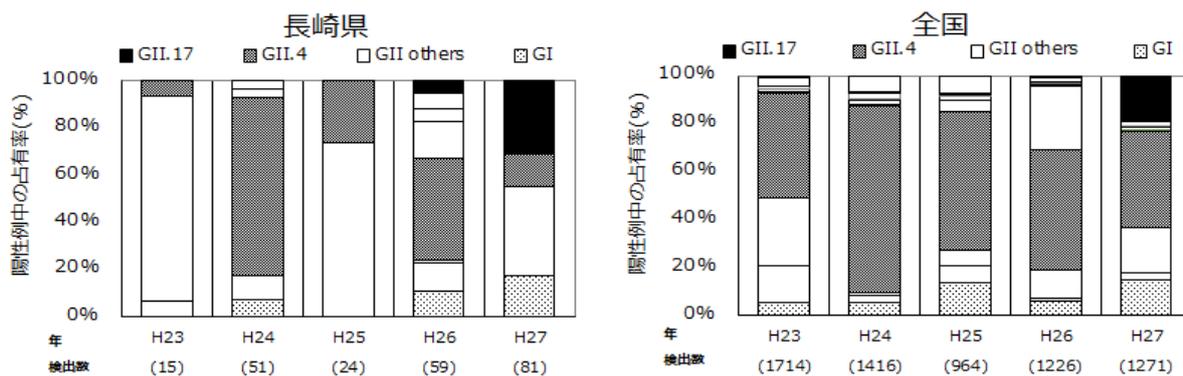


図4 ノロウイルスの遺伝子型別の推移

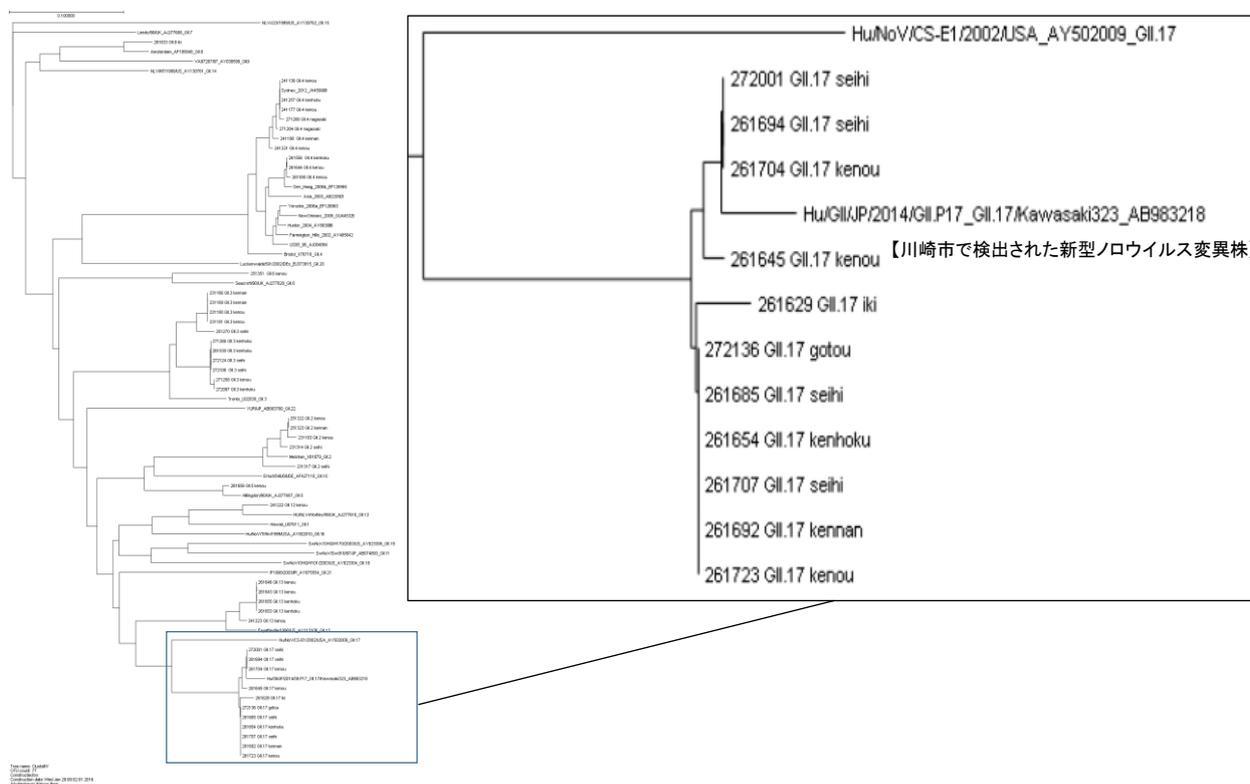


図5 長崎県内で検出されたノロウイルスの系統樹解析
 拡大図は新型ノロウイルス(GII.P17- GII.17)に分類される部分, 近隣結合法(NJ法)

Detection and Molecular Characterization of Norovirus during Past Five Years in Nagasaki, Japan

Ayaka YAMASHITA, Kana MIURA, Fumiaki MATSUMOTO, Akira YOSHIKAWA and
Toshitsugu TAGURI

Norovirus is one of the most commonly reported viruses causing food poisoning or infectious gastroenteritis in Japan. In March 2014, the emergence of new strains of Norovirus GII.P17-GII.17 was reported in Kawasaki, Kanagawa prefecture. Therefore, we investigated genotype of the Norovirus strains detected in Nagasaki prefecture during the past 5 years. As a result of the retrospective study, the Norovirus GII.P17-GII.17 strains were also emerged and identified in Nagasaki, and it suggests that the new type Norovirus invaded Nagasaki prefecture in a few months after occurrence in Kanagawa. Therefore, we found out that it is important to be monitoring the epidemic situation while also focusing on norovirus mutation from now on.

Key words: Food poisoning, Infectious gastroenteritis, Genotyping, Norovirus GII.17

長崎県で発生した *Kudoa septempunctata* を原因とする食中毒事例

高木 由美香、田栗 利紹

ヒラメに寄生する粘液胞子虫の一種である *Kudoa septempunctata* (以下、クドア) は、喫食後数時間以内に一過性の下痢・嘔吐を引き起こす食中毒の原因となる。平成 23 年にクドアが食中毒原因物質に指定されて以降、長崎県内で発生した食中毒疑い事例 5 件のうち、検査によりクドアが原因とされた 3 事例について、概要と検査結果を報告する。また、これまでの検査結果における、便検体採取時期とクドア遺伝子陽性率の関係について調査したところ、大阪府の報告¹⁾と同じく、喫食から検体採取までの期間が遺伝子陽性率に大きく影響しており、クドアを原因とする食中毒が疑われる場合には、可能な限り迅速な便検体の採取が重要であることが明らかとなった。

キーワード: クドア・セプトンクタータ、ヒラメ、リアルタイム PCR

はじめに

Kudoa septempunctata (以下、クドア) は、ヒラメの筋肉に寄生する粘液胞子虫の一種である。クドアが多数寄生したヒラメを刺身または加熱不十分な調理物として喫食すると、数時間(約 2 時間~20 時間)以内に一過性の下痢、嘔吐を起こすことがあり、平成 23 年に食中毒原因物質として指定された(平成 23 年 6 月 17 日付厚労省医薬食品局食品安全部長通知)。当該通知以降に全国では年に 20~40 件発生しており(表1)、長崎県では 5 件検査対応し、3 件からクドアが検出されている。ここでは県内の事例について、概要を報告する。

食中毒事例におけるクドアの検査は、ヒラメを検体とする公定法(平成 28 年 4 月 27 日 厚労省医薬食品局食品安全部監視安全課長通知「クドアの検査法について」)、および有症者便を検体とする参考法²⁾(平成 26 年 5 月 26 日 食中毒患者便からのクドア遺伝子検査法(参考)について、以下通知法という)があり、当センターにおいてもこれらの方法により、食中毒疑いの事例について搬入された検体の検査を行っている。

また、大阪府衛研の久米田らは、有症者便を用いた検査において、発症から検体採取までの期間が遺伝子検査陽性率に大きく影響すると報告している¹⁾。本報では、当センターでこれまでに実施した 5 件の検査について、発症から検体採取までの期間と遺伝子陽性率について考察する。

方法と材料

ヒラメは公定法に基づき、顕微鏡検査とリアルタイム PCR 法による検査を実施した。

表 1 食中毒発生状況

	全国		長崎県	
	事件数	患者数	事件数	患者数
平成23年 ^{※1}	33	473	0	0
平成24年	41	418	0	0
平成25年	21	244	0	0
平成26年	43	429	1 (2)	4 (6)
平成27年	17	169	0	0
平成28年	22	259	2	20

※1 平成23年6月~12月

顕微鏡検査法では、ヒラメ 0.5 g の上に目開き 200 μm のメッシュをおき、PBS を加えて軽く潰し、その溶液を 100 μm のメッシュに通した後遠心(1,500 rpm、10 分、10°C)する。沈渣に PBS 0.5 mL を正確に加えて懸濁したものを 10 μL とり、同量のトリパンブルー溶液と混合して、白血球用血球計算盤で 6~7 個の極嚢を有するクドア胞子を計測する。計測の結果、 10^5 copies/g 以上を顕微鏡検査陽性と判定した。

リアルタイム PCR 法では、QIAamp DNA Mini Kit (キアゲン社)を用い、「組織からのプロトコール」に準じてヒラメ検体 35~50 mg から DNA を抽出した。公定法のプライマー、プローブ(図 2)を用いて、検体および段階希釈した陽性対照をリアルタイム PCR 反応に供した。陽性対照のコピー数を縦軸に、Ct 値(Threshold Cycle: 閾値と増殖曲線が交わるサイクル数)を横軸にプロットし、検量線を作成し、そこから検体のコピー数を算出した。コピー数が 10^7 copies/g を陽性と判定した。

ヒラメの検査において、リアルタイム PCR 法は、スクリーニング検査として実施するものであり、顕微鏡検査

で陽性となった検体を最終的にクドア陽性とする。また、顕微鏡検査で陽性となった場合でも、リアルタイム PCR 法等により、定性的に確認することが望ましいとされている。

便検体では、通知法に準じて、生便 300 mg 以上を検体とし、リアルタイム PCR 法により検査を実施した。FastDNA SPIN Kit for Feces (MP biomedical)を用い、

キット付属のマニュアルに従って DNA を抽出した。通知法のプライマー、プローブ(図 1)を用いて、検体をリアルタイム PCR 反応に供した。Ct 値が 41 以下を示した検体を陽性と判定した。

調査対象を下記の 3 事例とし、各事例において、採取されたヒラメおよび便検体を材料とした(表 3)。

表 2 公定法および通知法におけるプライマー、プローブ一覧

ヒラメ (公定法)	
Forward primer	CATGGGATTAGCCCCGTTTA
Reverse primer	ACTCTCCCAAAGCCGAAA
Probe	FAM-TCCAGGTTGGGCCCTCAGTGAAAA-TAMRA
患者便 (通知法)	
Forward primer	CGGTCATATCAGCCATGGATAAC
Reverse primer	CTATCGACAAATTAATGTTTCGATATGC
Probe	FAM-TCACCATGTAAATGGTGGGAGCATT-Iowa Black FQ



図 1 公定法と通知法における PCR 標的部位

【事例 1】

平成 26 年 9 月 27 日、飲食店で会食した 1 グループ 9 名のうち 4 名が、喫食後数時間で嘔吐、下痢を発症した。患者らはヒラメ刺身を喫食しており、有症者便からクドアの遺伝子を検出した。

【事例 2】

平成 28 年 8 月 19 日に飲食店を利用した 17 グループ 79 名中、2 グループ 7 名が喫食から 3~15 時間後に嘔吐、下痢の症状を呈した。メニューにはヒラメの薄造りが含まれており、有症者便からクドア遺伝子を検出した。

【事例 3】

平成 28 年 10 月 23 日に飲食店を利用した 43 名のうち 13 名が、食事から平均 3.7 時間のうちに下痢、嘔気・嘔吐、腹痛等の食中毒症状を呈した。ヒラメの刺身の提供があり、残品のヒラメおよび有症者便からクドアの遺伝子が検出された。

表 3 3 事例における調査検体数

	ヒラメ	便検体	
		有症者(うち無症状者)	従事者
事例1	3	2	3
事例2	2	4(1)	0
事例3	2*	9	0

※長崎市保健環境試験所で検査を実施

結果

【事例 1】

ヒラメ 3 検体は、リアルタイム PCR によるスクリーニング検査陰性であった。従事者便 3 検体からクドア遺伝子は検出されず、有症者便 2 検体(発症後 3 日以内に採取)では、クドア遺伝子陽性であった。

表 4 事例 1 における検査結果

検体	喫食から採取までの時間(hr)	判定	コピー数もしくはCt値
ヒラメ1		陰性	No Ct
ヒラメ2		陰性	No Ct
ヒラメ3		陰性	No Ct
有症者1	61	陽性	Ct=37.71
有症者2		陽性	Ct=39.66
従事者1~3		陰性	No Ct

【事例 2】

ヒラメ 2 検体はともに顕微鏡検査陰性であった。便検体では、有症者 1 検体および無症状喫食者便 1 検体において、クドア遺伝子陽性であった。同じ有症者から、喫食後 3 日目に採取された検体(有症者 2)から遺伝子は検出されなかった。

表 5 事例 2 における検査結果

検体	喫食から採取までの時間(hr)	判定	コピー数もしくはCt値
ヒラメ1、2		陰性	検出せず(顕微鏡検査)
有症者1	16	陽性	Ct=32.97
有症者2	~65 (喫食後3日目)	陰性	No Ct
有症者3		陰性	No Ct
無症状者1		陽性	Ct=38.70

※有症者検体1、2は同一人物由来

【事例 3】

有症者便 9 検体のうち、7 検体がクドア遺伝子陽性であり、当該検査における陽性率は 77.8%であった。

また、長崎市保健環境試験所で実施されたヒラメの残品(えんがわ、切り身)の検査において、えんがわは顕微鏡検査および遺伝子検査両方で陽性の結果であった。

さらに、長崎市ではヒラメの遡り調査を実施しており、同一ロットのヒラメ 21 枚が長崎市保健環境試験所および国立医薬品食品衛生検査所において検査されたが、すべて陰性であった。

表 6 事例 3 における検査結果

検体	喫食から採取までの時間(hr)	判定	コピー数もしくはCt値
有症者1	42.5	陽性	Ct=31.31
有症者2		陽性	Ct=33.94
有症者3		陰性	No Ct
有症者4		陽性	Ct=37.04
有症者5	45.5	陽性	Ct=36.16
有症者6		陽性	Ct=37.24
有症者7		陰性	No Ct
有症者8		陽性	Ct=38.49
有症者9		陽性	Ct=32.98
ヒラメ(えんがわ)		陽性	5.2×10 ⁵ copies/g (顕微鏡検査)
ヒラメ(切り身)		陰性	検出せず(顕微鏡検査)

※ヒラメの検査は長崎市保健環境試験所

考察

久米田らは、クドアはヒトの腸管内で増殖しないため、有症者便の検査においては、喫食から検体採取までの期間が遺伝子陽性率に大きく影響すると報告している(図 2)。当センターで実施したクドアによる食中毒疑い事例 5 件(表 1)、計 21 検体の便検体において、喫食から検体採取までの期間と遺伝子検査陽性率の関係を図 3 に示す。大阪府と同様に検体採取までの期間が長くなるほど陽性率が低下する傾向が認められた。これらの結果より、クドア食中毒を疑う事例においては、便検体を採取するタイミングが重要であることが確認された。

また、ヒラメの検査に関して、事例 3 においては有症者に提供されたものの残品からクドア胞子を検出したが、事例 1、2 および事例 3 の遡り調査における同一ロットと推定されるヒラメは、すべてクドア陰性であった。このことから、ヒラメにおけるクドアの寄生状況は同一ロットであっても個体差が大きいことが示唆された。

まとめ

これまで当センターで実施した検査事例から、クドアを原因とする食中毒を疑う場合には、検体の確保が最重要であると考えられる。ヒラメでは、有症者に提供した同

じ個体の残品を可能な限り入手すること、有症者便では事例が発生したら迅速に検体採取に努める必要がある。これらの2点について、情報を周知していかねばならない。

さらに近年、*K.septempunctata* 以外のクドア属や粘液胞子虫が寄生した魚介類による食中毒事例の報告があり、検査体制の構築および関係機関への情報提供は、今後も取り組んでいかねばならない。

謝辞

種々の情報を提供していただいた長崎県生活衛生課、長崎市保健所および保健環境試験所、長崎県立各保健所の関係各位に深謝する。

参考文献

- 1) 久米田, 大阪府衛研「食中毒患者便からの *Kudoa septempunctata* 遺伝子検出法と開発の経緯」を一部改変, 平成 26 年度食品衛生検査施設信頼性確保部門責任者等研修会 (2014.10)
- 2) Harada, *et al*: Detection of *Kudoa septempunctata* 18S Ribosomal DNA in Patient Fecal Samples from Novel Food-Borne Outbreaks Caused by Consumption of Raw Olive Flounder (*Paralichthys olivaceus*). *J. Clin. Microbiol.* **50**, 2963-2968 (2012)

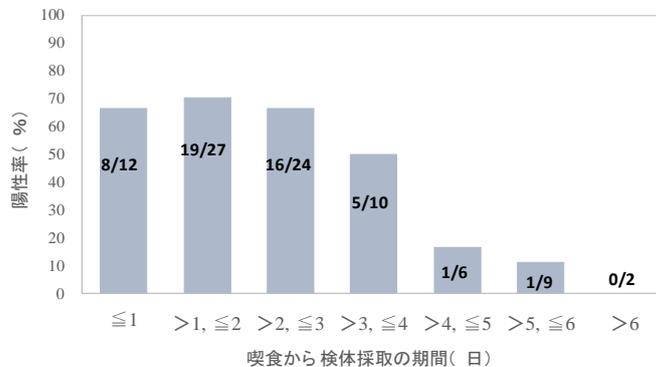


図 2 糞便採取時期と陽性率の関係(大阪府)¹⁾

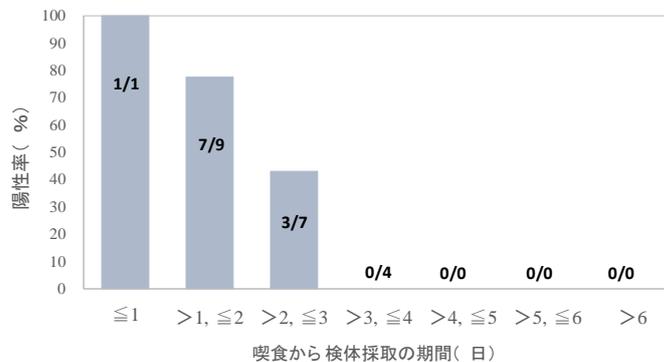


図 3 糞便採取時期と陽性率の関係(長崎県)

Food Poisoning cases caused by *Kudoa septempunctata* in Nagasaki prefecture

Yumika TAKAKI and Toshitugu TAGAURI

Kudoa septempunctata (*Kudoa*), one of myxosporean parasites of fishes such as an olive flounder, causes human diarrhea and emesis within a few hours after eating. In this study, we report the outline of the examination of five suspected food poisoning incidents in Nagasaki since *Kudoa* designated as a causative agent of food poisoning by the Food Sanitation Act in 2011. We also analyzed the relationship between *Kudoa* positive rate and fecal sampling time. As a result, we confirmed that the fecal identification rate depends on the period from ingestion to examination as in Osaka. We recognize that it is important to collect feces as soon as possible.

Key words: *Kudoa septempunctata*, olive flounder, real-time PCR

対馬における日本脳炎患者発生に伴う疫学調査

— 媒介蚊およびイノシシの日本脳炎ウイルス感染状況調査 —

吉川 亮、山下 綾香、三浦 佳奈、松本 文昭、田栗 利紹

2016年8月から9月にかけて対馬で日本脳炎患者が4名続発する事例が発生した。その原因究明のため媒介蚊およびウイルス増幅動物と考えられるイノシシについて調査を行ったが、媒介蚊およびイノシシのサンプルから日本脳炎ウイルスを検出することができず、有用な証拠は得られなかった。しかしながら、患者発生防止の観点から、次年度以降も原因究明に向けた調査を継続する必要がある。

キーワード：日本脳炎、アルボウイルス、コガタアカイエカ、イノシシ、対馬

はじめに

日本脳炎は日本脳炎ウイルス(以下、JEV)の感染により引き起こされる急性ウイルス性脳炎である。感染した場合、多くは不顕性感染となるが、発症すると1~2日で高熱(40°C以上)、頭痛、嘔吐、頸部硬直などの髄膜炎症状が現れ、次いで意識障害、筋硬直、けいれん等の脳炎症状が出現する。発症時の死亡率は20~40%とされ、回復しても重篤な後遺症を残すことが多い公衆衛生上留意すべき疾患である¹⁾。

また、本疾患は主にコガタアカイエカが媒介するアルボウイルス感染症としても知られており、「蚊→豚(時に野鳥)→蚊」の感染サイクルを形成している²⁾。豚は主なJEVのウイルス増幅動物とされ、豚の感染状況により各地域のJEV侵淫状況を探知できると考えられている³⁾。

1990年代以降、本邦での日本脳炎患者報告数は、10名以下で推移しており、本県でも2001年から2009

年までの9年間患者報告がない時期が続いた。しかしながら本県では2010年に1名、2011年に2名と患者報告が続き、2013年には1997年以来16年ぶりに死亡例1名が報告された。

このようななか患者報告こそ少数であるが重篤な事例の多い日本脳炎において、2016年8月中旬から9月中旬にかけて対馬市内で4名の日本脳炎患者(表1)が続発するという稀有な事例が発生した。

今回、対馬市にはウイルス増幅動物となる豚が飼育されておらず、1991年以降患者発生報告もなく、さらには対馬市における媒介蚊に関する継続的な調査データもなかったことから、日本脳炎患者続発事例の原因究明を目的に媒介蚊および新たな増幅動物として可能性のあるイノシシについてJEVの感染状況、特にJEVのウイルス分離を主とした調査を行ったので、その概要を報告する。

表1 日本脳炎患者情報

	患者1	患者2	患者3	患者4
発症日	2016.8.31	2016.8.20	2016.8.31	2016.9.15
発生場所	対馬市	対馬市	対馬市	対馬市
年齢	80歳代	70歳代	80歳代	70歳代
性別	男性	男性	女性	男性
症状	発熱、髄膜炎、 脳神経麻痺、 運動失調	発熱、髄膜炎、 意識障害、脳炎、 脳症	発熱、頭痛、嘔吐、 髄膜炎、意識障 害、脳症	発熱、頭痛、 髄膜炎、意識障 害、脳炎、運動失調
検査日(国立感染症研究所確認検査日)および検査結果	2016.9.23 (2016.9.29) RT-PCR(-) IgM抗体(+)	2016.2.23 (2016.9.29) RT-PCR(-) IgM抗体(+)	2016.2.23 (2016.9.29) RT-PCR(-) IgM抗体(+)	2016.2.23 (2016.9.29) RT-PCR(-) IgM抗体(+)
予後	入院治療中	死亡	入院治療中	入院治療中

調査方法

1 媒介蚊調査

(1) 調査時期および場所

2016年10月6日夕方～7日朝にかけて対馬市内患者宅周辺4箇所および牛舎・鶏舎3箇所、2016年10月7日夕方～8日朝にかけて患者宅周辺1箇所および牛舎・鶏舎2箇所の計2日間、のべ10箇所を実施した。

(2) 調査対象およびトラップ設置

調査対象はUVライトトラップおよびドライアイスCDCトラップにて捕集された蚊とした。

トラップ設置は長崎大学熱帯医学研究所病害動物学分野の蚊の専門家の意見を参考に、患者宅周辺では対馬保健所(対馬振興局保健部)、牛舎・鶏舎では対馬家畜保健衛生所(対馬振興局家畜衛生課)、それぞれ立会いのもと行った。

牛舎・鶏舎への設置は、あらかじめ対馬家畜保健衛生所にて家畜防疫に関する講習を受け、現地(牛舎・鶏舎)では対馬家畜保健衛生所の指示に従って行った。

設置したトラップは翌朝速やかに回収し、トラップ中の捕集蚊は分類・同定を行うまでドライアイス下で保存した。

(3) 調査事項および分類・同定

分類・同定した蚊を調査日、調査場所、蚊の種類および雌雄ごとに集計し、各調査場所の媒介蚊捕集状況を把握するとともに、捕集したすべての蚊について JEV 遺伝子検索およびウイルス分

離を行った。

捕集された蚊の分類・同定は長崎大学熱帯医学研究所病害動物学分野助教の砂原俊彦先生、比嘉由紀子先生および二見恭子先生の3名により行われた。分類・同定後の捕集蚊はホモジネイト作製までドライアイス下もしくは凍結(-80°C)状態で保存された。

捕集された媒介蚊は最大20匹を1プールとして調査日、調査場所、蚊の種類および雌雄ごとにプール作製を行った。

捕集媒介蚊のホモジネイトの作製方法は図1に示す。

2 イノシシ調査

(1) 調査時期および場所

2016年10月～11月に対馬市で行なった。

(2) 調査対象および検体

調査対象は対馬市内で捕獲されたイノシシ19頭とした。検体はイノシシ解体処理時に採取された血液を対馬保健所にて遠心分離してえられた血清とした。

採取されたイノシシ血清は当センター送付まで対馬保健所で凍結(-30°C)保存された。

(3) 調査事項

捕獲されたイノシシについてJEVに対する血中抗体(抗JEV-IgMおよび抗JEV-IgG)価測定、JEV遺伝子検索およびウイルス分離を行った。

< 捕集蚊のビーズ式破碎法 >

- 1) 2 mL スクリューキャップチューブにビーズ(Garnet Matrix および 1/4" Ceramic Sphere)を適量入れる
- 2) 2 mL ビーズ入り破碎チューブに MEM / 2HI-FBS を 1.0 mL 分注する
- 3) 2 mL ビーズ入り破碎チューブに調査日・地点、蚊の種類ごとに捕集した蚊を最大 20 匹ずつ入れる
- 4) 最大 20 匹/1pool として捕集蚊のプールを作製する
- 5) ビーズ式破碎機にかけ、蚊を破碎(5,000 rpm、20 sec)
- 6) 破碎後、速やかに 2 mL ビーズ入り破碎チューブを冷却遠心(12,000 rpm、3 min、4°C)
- 7) 遠心中に保存用 2 mL スクリューキャップチューブに MEM / 2HI-FBS を 0.5 mL 分注しておく
- 8) フィルター(0.45 μm)をつけた注射筒に滅菌スポイトで遠心上清をすべて移す
- 9) 上清をフィルター濾過し、保存用 2 ml スクリューキャップチューブに移し、転倒混和
- 10) RNA 抽出に 140 μL、ウイルス分離に 200 μL 使用し、残りは凍結保存(-80°C)

※ 作業は可能な限りドライアイス上もしくは氷冷中で行う

図1 媒介蚊のホモジネイト作製方法

3 JEV 遺伝子検索

捕集された媒介蚊 245 プール(調査日、調査場所、蚊の種類および雌雄別に最大 20 匹を 1 プールとして作製)のホモジネイトおよび採取されたイノシシ 19 頭の血清より QIAamp Viral RNA Mini Kit (QIAGEN) を用いて RNA を抽出し、既報⁴⁾に基づき遺伝子検索を実施した。

4 JEV の分離

捕集された媒介蚊 246 プールのホモジネイトおよび捕獲されたイノシシ 19 頭の血清について、Vero 9013 細胞に接種して JEV の分離を既報⁴⁾に基づき行った。

ウイルス分離の確認は上記検体を接種した感染細胞の培養上清から RNA を抽出し、既報⁴⁾に基づき PCR により JEV 遺伝子を確認した。

5 JEV に対する抗体価測定

(1) 抗 JEV-IgM 抗体価

捕獲されたイノシシ 19 頭の血清を用いて抗 JEV-IgM capture ELISA によりイノシシ血清中の抗 JEV-IgM 抗体を測定した。ELISA の条件および抗 JEV-IgM 抗体陽性の判定基準等は既報⁴⁾に準じた。

(2) 抗 JEV-IgG 抗体価

捕獲されたイノシシ 19 頭の血清を用いて抗 JEV-IgG indirect ELISA によりイノシシ血清中の抗

JEV-IgG 抗体を測定した。ELISA の条件等は図 2 に示す。

抗 JEV-IgG 抗体陽性は、陰性コントロール血清の抗体価を 100 倍とし、サンプルの抗体価が 300 倍以上を示した場合、陽性とした。抗体価は陽性コントロールの 2 倍段階希釈(100 倍から 102,400 倍まで)により検量線を作成し、サンプル抗体価を算出した。

調査結果及び考察

1 捕集媒介蚊調査結果

2016 年 10 月 6 日夕方～7 日朝にかけて患者宅周辺 4 箇所および牛舎・鶏舎 3 箇所、2016 年 10 月 7 日夕方～8 日朝にかけて患者宅周辺 1 箇所および牛舎・鶏舎 2 箇所の計 2 日間、のべ 10 箇所で実施した媒介蚊の捕集結果を表 2 に示す。

コガタアカイエカは、2016 年 10 月 6 日夕方～7 日朝にかけて患者宅周辺 4 箇所および牛舎・鶏舎 3 箇所、2016 年 10 月 7 日夕方～8 日朝にかけて患者宅周辺 1 箇所および牛舎・鶏舎 2 箇所で 2,546 匹捕集された蚊のうち 53 匹の合計 4,155 匹中 152 匹であった。

捕集時期が 10 月であり、コガタアカイエカ発生のピークから外れているためコガタアカイエカの捕集数が少なかったと考えられた。

< anti JEV-IgG indirect ELISA >

- 1) Dilute JEV inactivated antigen to 1:10 in coating buffer.
- 2) Add 100 μL of diluted JEV inactivated antigen to each well.
- 3) Incubate overnight at 4°C
- 4) Wash wells 3 times with PBS- T
- 5) Add 100 μL of Blackace to each well.
- 6) Incubate at 37°C for 2 hrs.
- 7) Wash wells 3 times with PBS-T
- 8) Dilute positive control sera, negative control sera and samples to 1:100 in PBS-T-10% Blockace
- 9) Add 100 μL of diluted sera to each well.
- 10) Incubate at 37°C for 1 hr.
- 11) Wash wells 3 times with PBS-T
- 12) Add 100 μL of detecting antibody (Anti-IgG(H+L), Swine, Goat-Poly, HRP) to each well
- 13) Incubate at 37°C for 1 hr.
- 14) Wash wells 3 times with PBS-T
- 15) Add 100 μL of substrate (OPD) to each well
- 16) Incubate at RT for 20 min under dark condition.
- 17) Add 100μL of stop solution (1N H₂SO₄) to each well
- 18) Read OD 450 nm and calculate.

サンプルの抗 JEV-IgG 抗体価は陽性コントロールの希釈系列より得られる検量線より陰性コントロールの抗体価を 100 倍として算出する
算出されたサンプルの抗 JEV-IgG 抗体価が 300 倍以上となった場合を陽性とした

図 2 抗 JEV-IgG 抗体測定条件

2 捕集媒介蚊の JEV 遺伝子検索及び分離結果

捕集媒介蚊 246 プール中の JEV 遺伝子検索およびウイルス分離を実施したところ、JEV 遺伝子検出およびウイルス分離はできなかった。

コガタアカイエカ以外からの媒介も想定し、すべての捕集蚊を調査したが、今回の調査では JEV 遺伝子検出およびウイルス分離ができず、対馬で侵淫している JEV について把握することができなかった。

今後は媒介蚊調査を継続し、患者発生の要因である媒介蚊の発生消長を把握するとともに対馬において侵淫している JEV を探知し、ウイルス性状を解析していく必要がある。

3 捕獲イノシシの JEV 遺伝子検索及び分離結果

捕獲イノシシ 19 頭の血清中の JEV 遺伝子検索

およびウイルス分離を実施したところ、JEV 遺伝子検出およびウイルス分離はできなかった。

本県では 2007 年から 2016 年までに約 500 頭の捕獲イノシシを調査してきたが、これまで JEV 遺伝子を確認できた個体はいなかった。その理由としては約 60%のイノシシが JEV に既感染であり抗体を保有していたことや捕獲時期が冬季(11 月～翌年 3 月)中心で蚊の活動と外れていることなどが考えられる。しかしながら、2008 年 12 月に兵庫県で捕獲されたイノシシから JEV が分離された事例などが報告されており、特に豚の飼育がない対馬においては今後も JEV の媒介動物として調査を継続する必要がある。

また、イノシシ以外にも JEV の増幅動物として知られる野鳥の調査についても今後検討を要する。

表 2 捕集蚊の分類・同定結果ならびに遺伝子検索およびウイルス分離結果

調査場所	同定・分類結果	10月6日夜～7日朝				10月7日夜～8日朝			
		捕集数	作製 プール数	調査結果		捕集数	作製 プール数	調査結果	
				PCR	分離			PCR	分離
家1	シロハシイエカ	1	1	-	-	0	-	-	-
	キンイロヤブカ	1	1	-	-	2	1	-	-
	カラツイエカ	0	-	-	-	1	1	-	-
	ハマダラナガスネカ	0	-	-	-	1	1	-	-
	ハマダラカ属(同定不能)	0	-	-	-	2	1	-	-
家2	オオクロヤブカ	4	1	-	-	実施せず			
	リバースシマカ	2	1	-	-	実施せず			
家3	コガタアカイエカ	1	1	-	-	実施せず			
	オオクロヤブカ	1	1	-	-	実施せず			
家4	コガタアカイエカ	2	1	-	-	実施せず			
農1	コガタアカイエカ	2	1	-	-	実施せず			
	オオクロヤブカ	2	1	-	-	実施せず			
農2	コガタアカイエカ	0	-	-	-	1	1	-	-
	オオクロヤブカ	2	1	-	-	3	2	-	-
	イエカ属(同定不能)	4	1	-	-	0	-	-	-
	蚊(同定不能)	4	2	-	-	0	-	-	-
	キンイロヤブカ	0	-	-	-	10	2	-	-
	ハマダラカ属(同定不能)	0	-	-	-	1	1	-	-
	シマカ(同定不能)	0	-	-	-	4	2	-	-
	合計	1,609	100			2,546	146		
農3	コガタアカイエカ	94	7	-	-	52	3	-	-
	キンイロヤブカ	1,462	74	-	-	2,429	123	-	-
	シナハマダラカ	2	1	-	-	0	-	-	-
	ハマダラカ属(同定不能)	19	2	-	-	16	3	-	-
	シマカ(同定不能)	2	1	-	-	0	-	-	-
	ヤブカ族(同定不能)	3	1	-	-	8	2	-	-
	オオクロヤブカ	1	1	-	-	0	-	-	-
	チョウセンハマダラカ	0	-	-	-	1	1	-	-
	ミナミハマダライエカ種群	0	-	-	-	1	1	-	-
	蚊(同定不能)	0	-	-	-	14	1	-	-

※(PCR)-:JEV 遺伝子検出せず、(分離)-:ウイルス分離せず

4 抗 JEV-IgM 抗体測定結果

捕獲イノシシの抗 JEV-IgM 抗体の有無を表 3 に示す。初感染の指標である抗 JEV-IgM 抗体陽性の個体は確認できなかったことから捕獲直近の 10 月～11 月ではイノシシ～蚊の感染サイクルは確認されなかった。

5 抗 JEV-IgG 抗体測定結果

捕獲イノシシの抗 JEV-IgM 抗体の有無を表 3 に示す。感染歴の指標となる抗 JEV-IgG 抗体陽性の個体は 19 頭中 6 頭 (31.6%) であった。

以前の調査では県内で捕獲されたイノシシ約 300 頭のうち約 60% の個体が抗 JEV-IgM 抗体要請であり、対馬で捕獲されたイノシシでも 13 頭中 9 頭 (69.2%) の個体が陽性であったことに比べると、今回の事例においてイノシシが積極的に関与したとは言いがたかった。

しかしながら今回調査した個体は比較的若年が多く含まれていることから感染率が低い結果となったことも考えられ、今後も引き続き調査が必要である。

ま と め

- 2016 年 10 月 6 日～8 日の 2 日間で患者宅周辺および牛舎・鶏舎で実施した媒介蚊調査で合計 4,155 匹を捕集した。そのうちコガタアカイエカ 152 匹であった。
- 媒介蚊調査で捕集された蚊から JEV 遺伝子は検出されず、ウイルス分離もできなかった。
- 2016 年 10 月～11 月の間に対馬市内で捕獲されたイノシシから JEV 遺伝子は検出されず、ウイルス分離もできなかった。
- 初感染の指標である抗 JEV-IgM 抗体陽性のイノシシは確認できず、感染歴の指標となる抗 JEV-IgG 抗体陽性のイノシシは 19 頭中 6 頭 (31.6%) であったイノシシの抗体調査から、今回の日本脳炎続発事例に積極的に関与した証拠は得られなかった。
- 県内の患者発生報告は 2010 年に 1 名、2011 年に 2 名、2013 年の 1 名 (死亡例) に続き 3 年ぶりとなった。ただし、対馬市での患者発生は 1960 年代以来であり、4 名の患者が続発したことは近年非常に珍しく、感染経路、感染源等の原因究明が求められた。

表 3 捕獲イノシシの JEV 遺伝子検索、ウイルス分離および抗体価測定結果

番号	採取日	年齢	性別	体重	検査項目			
					PCR	分離	IgM 抗体	IgG 抗体価
1	2016.10.14	2 才ぐらい	♀	36 kg	検出せず	分離せず	陰性	<100
2	2016.10.17	2 才ぐらい	♂	28 kg	検出せず	分離せず	陰性	<100
3	2016.10.18	2 才ぐらい	♀	20 kg	検出せず	分離せず	陰性	<100
4	2016.10.18	2 才ぐらい	♂	22 kg	検出せず	分離せず	陰性	<100
5	2016.10.19	2 才ぐらい	♀	30 kg	検出せず	分離せず	陰性	<100
6	2016.10.25	2 才ぐらい	♀	18 kg	検出せず	分離せず	陰性	<100
7	2016.10.25	2 才ぐらい	♂	39 kg	検出せず	分離せず	陰性	<100
8	2016.10.26	2 才ぐらい	♀	20 kg	検出せず	分離せず	陰性	陽性
9	2016.11.1	2 才ぐらい	♀	29 kg	検出せず	分離せず	陰性	<100
10	2016.11.1	2 才ぐらい	♂	36 kg	検出せず	分離せず	陰性	陽性
11	2016.11.2	2 才ぐらい	♂	19 kg	検出せず	分離せず	陰性	陽性
12	2016.11.2	2 才ぐらい	♀	36 kg	検出せず	分離せず	陰性	<100
13	2016.11.4	2 才ぐらい	♂	20 kg	検出せず	分離せず	陰性	<100
14	2016.11.4	2 才ぐらい	♂	49 kg	検出せず	分離せず	陰性	陽性
15	2016.11.11	2 才ぐらい	♀	28 kg	検出せず	分離せず	陰性	<100
16	2016.11.11	2 才ぐらい	♂	64 kg	検出せず	分離せず	陰性	<100
17	2016.11.14	2 才ぐらい	♂	36 kg	検出せず	分離せず	陰性	<100
18	2016.11.24	2 才ぐらい	♂	32 kg	検出せず	分離せず	陰性	陽性
19	2016.11.28	2 才ぐらい	♂	26 kg	検出せず	分離せず	陰性	陽性

6 今回の媒介蚊調査およびイノシシ調査からは感染経路、感染源等の原因究明につながる結果はえられなかったが、次年度以降、再発防止に向けた日本脳炎に関する調査を実施する必要がある。

7 日本脳炎確認患者は、1965年以前と比べ激減しているものの、2010年度1名、2011年度2名、2013年度1名(死亡例)の患者発生に続き、2016年度は4名の患者(1名死亡例)が確認された。さらに豚では依然 JEV に対する抗体保有が確認されたことから、現在も生活環境中に JEV は確実に維持されており、新たな患者発生を防止するためにも県民に対する日本脳炎の注意喚起を行うとともに、高齢者および小児(3歳未満)への積極的なワクチン接種の奨励について必要であることが再確認された。

謝 辞

媒介蚊捕集調査にご協力いただいた長崎大学熱帯医学研究所の森田公一所長、同研究所病害動物学分野の砂原俊彦先生、比嘉由紀子先生、二見恭

子先生、現地蚊捕集に協力いただいた畜産農家および対馬振興局、イノシシ血清サンプル採取に協力いただいた対馬市役所および対馬保健所の関係各位に感謝する。

参 考 文 献

- 1) World Health Organization (WHO). Fact sheet No. 386. In: Japanese encephalitis. World Health Organization (WHO). 2015.
<http://www.who.int/mediacentre/factsheets/fs386/en/>. Accessed 10 Jan 2016.
- 2) Morita K, Nabeshima T and Buerano C.C.: Japanese encephalitis. Rev. Sci. Tech. Off. Int. Epiz, 34(2), 441-452 (2015)
- 3) 厚生労働省健康局結核感染症課、国立感染症研究所感染症疫学センター:平成26年度(2014年度)感染症流行予測調査報告書、120-129 (2014)
- 4) 吉川 亮、三浦 佳奈、松本 文昭、田栗 利紹:長崎県環境保健研究センター所報 61、125-130 (2015)

Epidemiological Study of Japanese Encephalitis in Tsushima Islands — Surveillance of vector mosquitoes and wild boars infected by Japanese Encephalitis Virus —

Akira YOSHIKAWA, Ayaka YAMASHITA, Kana MIURA, Fumiaki MATSUMOTO
and Toshitsugu TAGURI

From August to September 2016, four Japanese encephalitis cases occurred frequently in Tsushima Islands. In order to clarify the cause of these cases, we epidemiologically investigated vector mosquitoes and wild boars considered to be animal reservoirs, but we could not detect Japanese encephalitis virus, and no useful evidence was obtained. However, on the viewpoint of prevention and control of Japanese encephalitis, it is necessary to continue doing epidemiological study of vector mosquitoes and wild boars for clarification of the cause.

Key words : Japanese Encephalitis, Arbovirus, *Culex tritaeniorhynchus*, Wild boar, Tsushima Islands

II 資 料

長崎県における酸性雨調査 (2016 年度)

古賀 康裕、古賀 恵実

Acid Rain Survey in Nagasaki Prefecture (2016)

Yasuhiro KOGA, Megumi KOGA

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

酸性雨は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の一部が大気中で硫酸および硝酸等の二次生成物質に酸化され、これらの二次生成物質が雨滴生成過程で核として捕捉され降水に取り込まれることによって起こる。また、酸性雨の原因となる物質は、国内からの発生に加え大陸からの移流も指摘されている¹⁾。

このような酸性雨問題に対処するため、長崎県は1983年から長崎市式見及び旧大村保健所(大村市西三城町12番地)で酸性雨調査を開始した^{2~11)}。2005年度からは長崎市式見及び県央保健所での機器保守管理、酸性雨分析は民間委託されており、2008年度からは長崎市式見における調査を終了し、県央保健所1箇所での調査を継続している。また、長崎県内には2箇所の国設酸性雨局があり、環境省の委託を受けて国設対馬酸性雨測定所では酸性雨調査を継続している。国設五島酸性雨測定所においては2008年度をもって酸性雨調査を終了し、現在は大気関係の測定を継続している。

本報告では、県央保健所における2016年度の酸性雨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及び国設局(五島酸性雨測定所を含む)を図1に示す。本調査結果に関わる測定地点の概要は次に示すとおりである。

県央保健所においては、1998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。東側は交通量が多い旧国道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。

雨水の採取、分析は民間委託されており、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項目である。測定方法は湿性沈着モニタリング手引き書(第2版)¹²⁾に準じた。なお、降水量については、貯水量から計算した。

調査結果

1 pH 及び酸性雨出現頻度

pH の出現頻度及び酸性雨の定義を pH5.6 以下とした場合の酸性雨出現率を表 1 に示す。県央保健所における 2016 年度における酸性雨出現率は 100% であり、2015 年度と比較してほとんど変化は無かった。降水の pH は 3.89 ～ 5.45 であり、年平均値は 4.73 であった。

降水を中和する要因やイオン濃度などに影響を与える黄砂について、2015、2016 年度における観測日を表 2 に示す。気象庁 HP によれば、2016 年度に長崎県で黄砂が観測された日数は 2015 年度と同じく 3 日間であった。

2 pH の経月変化

2015、2016 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。2016 年度の月別降水量は、6 月、9 月、10 月の降水量が例年に比べて多く、6 月は年間でも最も多い月となった。また、年間降水量は過去 5 年間で最も少なかった。

例年 pH の加重平均値は、雨の多い夏季に高く、雨の少ない冬季に低い傾向を示す。2016 年度の結果においてもおおむねそのような傾向を示していたが、2016 年度は、4 月および 8 月の加重平均値が低くなっていた。4 月および 8 月に加重平均値が低くなっていたのは、降水量が極端に少なかったことが影響していたと推測される。

3 イオン成分濃度

2015、2016 年度におけるイオン成分濃度年平均値を表 3 に、イオン成分濃度月平均値を表 4 に示す。“nss-”は「非海塩性(nss:non sea salt)」を表し、海塩性イオン(Na^+ をすべて海塩由来として海塩組成比から算出)を差し引いた残りであることを示している。

降水中の非海塩性硫酸イオン(nss-SO_4^{2-})成分及び非海塩性カルシウムイオン(nss-Ca^{2+})成分の割合を求めると、2016 年度の年平均値はそれぞれ 85%、77% であり、2015 年度の年平均値と比較すると、それぞれ割合が低くなった。

nss-Ca^{2+} 濃度、 nss-SO_4^{2-} 濃度及び NO_3^- 濃度の経月変化を図 4、5、6 に示す。一般的にイオン成分濃度は雨の多い夏季に低く、雨の少ない冬季に高い傾向を示す。2016 年度に長崎県で黄砂が観測されたのは 4 月及び 5 月であるが、 nss-Ca^{2+} 濃度が黄砂観測日の前後で特徴的である事例はなかった。 nss-SO_4^{2-} 濃度及

び NO_3^- 濃度は、雨量が少ない 4 月、8 月及び冬季に高く、おおむね例年の傾向を示していた。

表 1 pH の出現頻度及び酸性雨出現率

pH 階級	県央保健所	
	2015 年度	2016 年度
2.61～2.99	0	0
3.00～3.59	0	0
3.60～3.99	3	1
4.00～4.59	36	24
4.60～4.99	31	31
5.00～5.60	10	13
5.61～5.99	0	0
6.00～6.59	1	0
6.60～6.99	0	0
7.00～	0	0
サンプル数	81	69
酸性雨出現率 (%)	98.8	100.0
pH<4.00 (%)	3.7	1.4
最低 pH	3.62	3.89
最高 pH	6.54	5.45
加重平均 pH	4.69	4.73

表 2 黄砂観測日

	2015 年度	2016 年度
黄砂観測日	5 月 5 日 6 月 12 日 6 月 13 日	4 月 14 日 4 月 15 日 5 月 7 日
合計	3 日間	3 日間

※気象庁 HP より

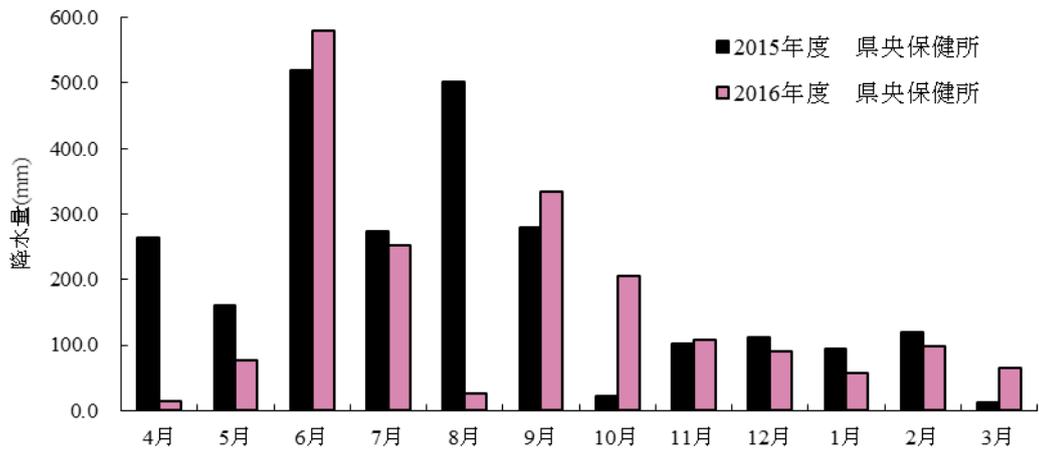


図2 降水量の経月変化

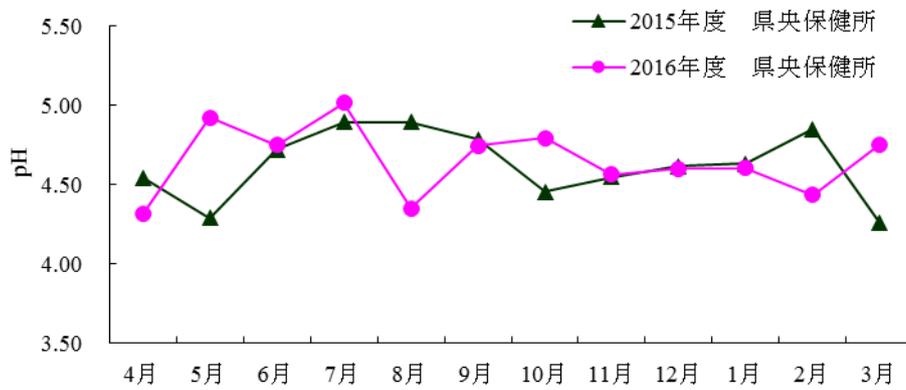


図3 pHの経月変化

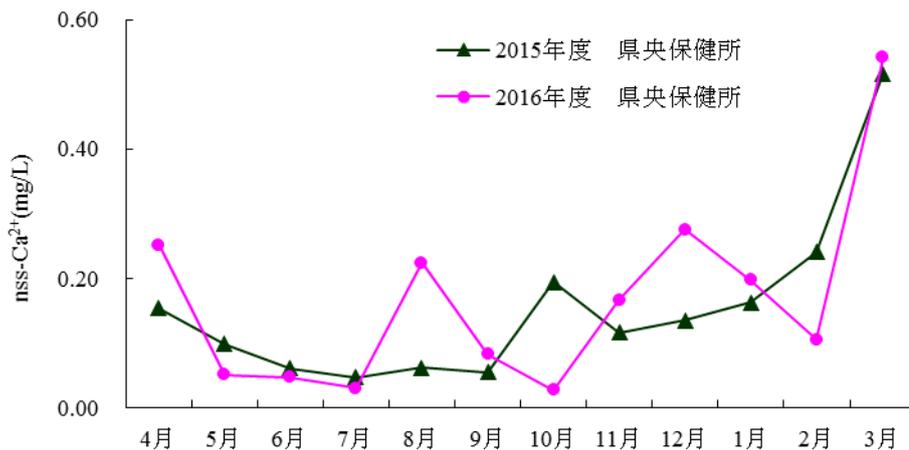


図4 nss-Ca²⁺濃度の経月変化

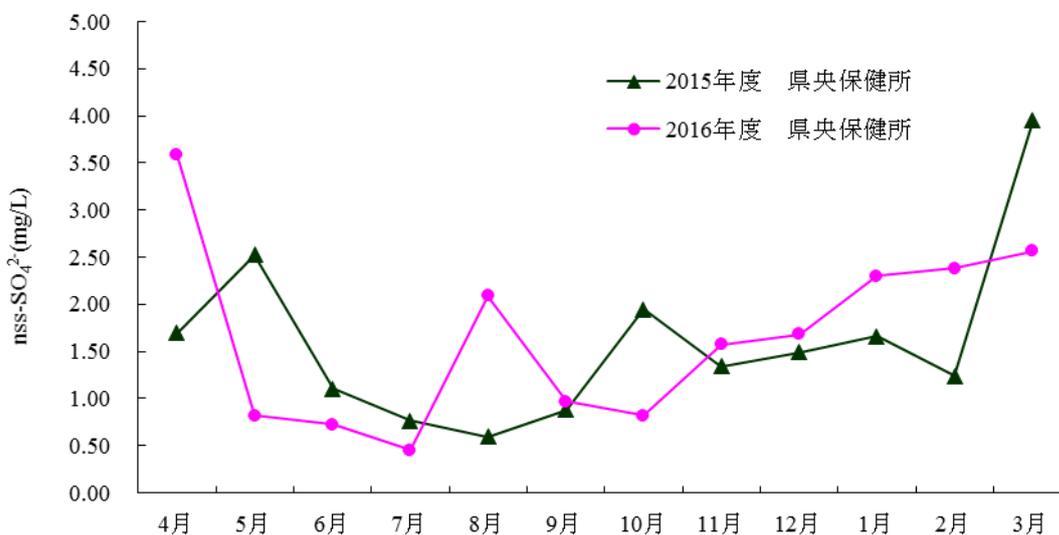


図5 nss-SO₄²⁻濃度の経月変化

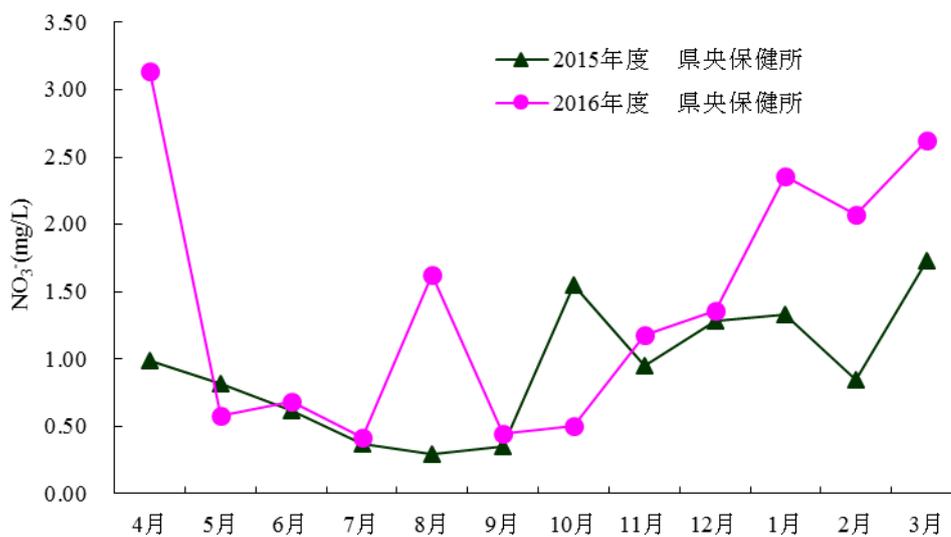


図6 NO₃⁻濃度の経月変化

4 イオン成分沈着量

表 5 にイオン成分年沈着量を、表 6 にイオン成分月別沈着量を示した。2016年度の年沈着量は SO_4^{2-} が最も多く、次いで Cl^- 、 NO_3^- という結果であり、2015年度と比べ大きな変化はなかった。

一般的に降水量が多ければ沈着量も増加する。2015年度においてもほぼそのような傾向を示していたが、2月及び3月は降水量を考慮しても nss-SO_4^{2-} 及び NO_3^- の沈着量が多かった。

まとめ

県央保健所における2016年度の酸性雨の出現率は2015年度と大きな差はなく例年並みであった。2016年度における降水のpHは3.89～5.45、加重平均値は4.73であり、2015年度とほとんど変わらなかった。2015年度の全国のpHの地点別年平均値は4.65～5.21、全地点の年平均値は4.83であるので¹³⁾、県央保健所における2016年度の降水のpHは、全国の降水のpHの範囲内であったと言える。イオン成分濃度については、 nss-SO_4^{2-} 濃度及び NO_3^- 濃度は、雨量が少ない4月、8月及び冬季に高く、おおむね例年の傾向を示していた。イオン沈着量については、降水量の多い時期に高い傾向を示したが、2月及び3月は降水量を考慮しても nss-SO_4^{2-} 及び NO_3^- の沈着量が多かった。

降水量が測定値に影響を与えていることは明らかであるが、今後はpHやイオン沈着量とその他の気象イベント等との関連について長期的に解析をする必要がある。

参考文献

- 1) 環境省:酸性雨長期モニタリング報告書(平成15～19年度),101～128(2009)
- 2) 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)
- 3) 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)
- 4) 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)
- 5) 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)
- 6) 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)
- 7) 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)
- 8) 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)
- 9) 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)
- 10) 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)
- 11) 横瀬 健,他:長崎県における酸性雨調査(2004年度),長崎県衛生公害研究所報,50,38～43(2004)
- 12) 環境省地球環境局環境保全対策課酸性雨研究センター:第2章 各論,湿性沈着モニタリング手引き書(第2版),28～53(2001)
- 13) 環境省:平成27年度酸性雨調査結果(湿性沈着モニタリング結果)

表 3 イオン成分濃度年平均値

単位:mg/L

調査地点	年度	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 ⁺
県央保健所	2015	1.31	1.17	90	0.64	0.99	0.24	0.11	0.09	82	0.54	0.08	0.03	0.021
	2016	1.26	1.07	85	0.86	1.36	0.28	0.12	0.09	77	0.75	0.12	0.04	0.019

表 4 イオン成分濃度月平均値

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		
県央保健所	2015	SO ₄ ²⁻	1.82	2.56	1.12	0.84	0.70	0.94	2.37	1.70	1.95	2.20	1.66	4.01	1.31		
		nss-SO ₄ ²⁻	1.70	2.52	1.10	0.77	0.60	0.88	1.94	1.34	1.49	1.66	1.24	3.95	1.17		
		NO ₃ ⁻	0.99	0.82	0.62	0.37	0.29	0.35	1.55	0.95	1.29	1.33	0.85	1.73	0.64		
		Cl ⁻	0.84	0.42	0.16	0.54	0.70	0.42	3.09	2.51	3.34	3.98	2.91	0.90	0.99		
		NH ₄ ⁺	0.39	0.33	0.25	0.21	0.10	0.17	0.44	0.29	0.36	0.39	0.27	0.75	0.24		
		Ca ²⁺	0.17	0.10	0.06	0.06	0.08	0.06	0.26	0.17	0.20	0.24	0.24	0.30	0.53	0.11	
		nss-Ca ²⁺	0.15	0.10	0.06	0.05	0.06	0.05	0.19	0.12	0.13	0.16	0.24	0.52	0.09		
		Na ⁺	0.47	0.15	0.08	0.30	0.41	0.24	1.71	1.42	1.84	2.14	1.66	0.27	0.54		
		Mg ²⁺	0.08	0.03	0.03	0.05	0.06	0.04	0.27	0.20	0.25	0.33	0.23	0.14	0.08		
		K ⁺	0.04	0.02	0.01	0.02	0.02	0.01	0.10	0.06	0.08	0.09	0.06	0.05	0.03		
		H ⁺	0.028	0.051	0.019	0.013	0.013	0.016	0.035	0.028	0.024	0.023	0.014	0.055	0.021		
		降水量mm	264	161	519	273	502	280	23	103	112	94	120	13	2463		
		県央保健所	2016	SO ₄ ²⁻	3.82	0.83	0.76	0.62	2.22	1.04	1.00	1.70	2.22	3.21	3.33	2.87	1.26
				nss-SO ₄ ²⁻	3.58	0.82	0.72	0.45	2.09	0.97	0.82	1.58	1.68	2.30	2.38	2.56	1.07
				NO ₃ ⁻	3.14	0.58	0.68	0.41	1.63	0.45	0.50	1.18	1.36	2.36	2.08	2.63	0.86
Cl ⁻	1.83			0.11	0.32	1.09	0.93	0.74	1.36	0.83	3.69	6.50	6.09	2.17	1.36		
NH ₄ ⁺	1.55			0.32	0.18	0.11	0.53	0.20	0.19	0.32	0.34	0.61	0.75	0.83	0.28		
Ca ²⁺	0.29			0.05	0.05	0.06	0.24	0.09	0.06	0.19	0.36	0.34	0.25	0.59	0.12		
nss-Ca ²⁺	0.25			0.05	0.05	0.03	0.22	0.08	0.03	0.17	0.28	0.20	0.11	0.54	0.09		
Na ⁺	0.93			0.04	0.14	0.66	0.51	0.26	0.74	0.51	2.14	3.63	3.78	1.25	0.75		
Mg ²⁺	0.16			0.02	0.04	0.09	0.11	0.05	0.10	0.09	0.34	0.48	0.50	0.26	0.12		
K ⁺	0.20			0.02	0.02	0.03	0.05	0.01	0.03	0.02	0.11	0.17	0.21	0.09	0.04		
H ⁺	0.049			0.012	0.018	0.010	0.045	0.018	0.016	0.027	0.025	0.025	0.037	0.018	0.019		
降水量mm	14			76	579	252	27	334	205	107	91	58	98	65	1907		

表 5 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 ⁺
県央保健所	2015	2463	3222	2886	1585	2428	600	280	229	1338	209	71	51.1
	2016	1907	2408	2048	1643	2588	526	235	181	1432	225	84	36.2

表 6 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		
県央保健所	2015	SO ₄ ²⁻	478.7	411.1	582.6	230.9	351.2	262.8	54.1	174.3	218.8	207.9	198.8	51.0	3222.2		
		nss-SO ₄ ²⁻	447.5	405.2	572.6	210.1	299.6	246.2	44.3	137.7	167.0	157.2	148.9	50.1	2886.3		
		NO ₃ ⁻	259.7	131.4	322.2	100.2	146.4	98.7	35.3	97.6	144.0	125.7	101.7	22.0	1584.9		
		Cl ⁻	222.3	67.4	82.2	146.4	353.4	117.2	70.4	257.2	374.1	376.0	349.5	11.4	2427.5		
		NH ₄ ⁺	103.7	53.8	127.6	56.4	51.0	48.2	10.0	29.9	40.0	37.0	33.0	9.5	600.1		
		Ca ²⁺	45.3	16.7	33.3	16.0	38.6	17.8	5.9	17.4	22.9	23.0	36.5	6.7	280.1		
		nss-Ca ²⁺	40.6	15.8	31.8	12.9	30.8	15.3	4.4	11.9	15.1	15.3	28.9	6.6	229.3		
		Na ⁺	124.3	23.7	40.0	82.8	205.6	66.2	38.9	145.7	206.5	202.1	198.9	3.4	1338.1		
		Mg ²⁺	20.1	5.2	13.6	12.7	31.0	11.7	6.2	20.0	28.1	31.0	27.5	1.8	208.9		
		K ⁺	9.5	3.0	5.5	5.6	9.6	2.7	2.2	6.5	9.0	8.8	7.5	0.6	70.5		
		H ⁺	7.5	8.2	9.9	3.5	6.4	4.6	0.8	2.9	2.7	2.2	1.7	0.7	51.1		
		降水量mm	264	161	519	273	502	280	23	103	112	94	120	13	2463		
		県央保健所	2016	SO ₄ ²⁻	51.9	63.0	440.2	155.7	59.2	346.5	206.3	182.6	202.4	186.6	325.9	187.4	2408.0
				nss-SO ₄ ²⁻	48.8	62.2	419.6	113.6	55.8	324.4	168.1	169.0	153.3	133.7	233.1	167.0	2048.4
				NO ₃ ⁻	42.7	43.9	393.5	104.4	43.4	148.9	103.5	126.1	124.4	137.3	203.1	171.4	1642.6
Cl ⁻	24.9			8.5	185.3	274.7	24.8	248.3	280.1	89.4	336.7	377.9	595.8	141.3	2587.6		
NH ₄ ⁺	21.1			24.1	106.3	27.1	14.3	65.4	39.0	34.3	31.4	35.4	73.2	53.9	525.6		
Ca ²⁺	3.9			4.0	30.2	13.9	6.5	30.8	11.3	19.9	32.6	19.5	24.3	38.4	235.5		
nss-Ca ²⁺	3.4			3.9	27.1	7.5	6.0	27.5	5.5	17.9	25.2	11.5	10.3	35.3	181.1		
Na ⁺	12.7			3.1	82.3	167.8	13.5	88.0	152.4	54.5	195.8	210.9	369.9	81.4	1432.3		
Mg ²⁺	2.2			1.5	25.1	21.9	2.8	16.1	19.6	10.0	31.4	27.7	49.2	17.0	224.6		
K ⁺	2.8			1.3	11.2	7.0	1.4	4.9	6.6	2.5	10.0	9.7	20.8	5.7	83.9		
H ⁺	0.7			0.9	10.3	2.4	1.2	6.0	3.3	2.9	2.3	1.5	3.6	1.1	36.2		
降水量mm	14			76	579	252	27	334	205	107	91	58	98	65	1907		

長崎県における環境放射能水準調査結果 (2016 年度)

田中 雄規、古賀 康裕、林田 彩

Environmental Radioactivity Level Research Data in Nagasaki Prefecture (2016)

Yuki TANAKA, Yasuhiro KOGA, Aya HAYASHIDA

Key words: radioactivity, fall-out, gross β , air dose rate, γ -ray spectrometer

キーワード: 放射能、フォールアウト、全 β 、空間線量率、 γ 線スペクトロメータ

はじめに

2016 年度に本県で実施した環境放射能水準調査の結果を報告する。なお、本調査は、原子力規制庁の委託で実施したものである。

調査方法

1 調査内容

調査内容について表1に示す。

2 試料の調製及び測定方法

試料の採取、前処理及び測定方法は「環境放射能水準調査委託実施計画書(原子力規制庁、平成 28 年度)及び文部科学省編の各種放射能測定法シリーズに基づいて行った。

測定条件

1 全 β 放射能測定

以下の β 線自動測定装置により測定

- β 線自動測定装置:
キャンベラジャパン(株)製 S5XLB
- 放射能比較試料: U_3O_8 500 dps

2 γ 線核種分析

以下のゲルマニウム半導体検出器により測定

- 多重波高分析装置: SEIKO EG&G 製 MCA7600
- Ge 半導体検出器: ORTEC 製 GEM 35-70
- 遮蔽体: 鉛ブロック製 厚さ 115 mm
- 分解能: FWHM=1.73 keV (1.33 MeV において)

3 空間放射線量率測定

以下のモニタリングポストにより測定

- モニタリングポスト: ALOKA 製 MAR-22

• 検出器: NaI(Tl)シンチレータ

• 基準線源: Cs-137

• 測定地点: 環境保健研究センター、県北保健所、
県南保健所、壱岐保健所、西彼保健所、松浦市役所

調査結果

2016 年度の調査結果を表2~表4及び図1に示す。

1 全 β 放射能測定

定時降水の全 β 放射能測定結果を表2に示した。定時降水 108 件中 74 件で検出され、1 月には最高値 2.5 Bq/L が検出された。

2 γ 線核種分析

ゲルマニウム半導体検出器による γ 線核種分析結果を表3に示した。環境及び食品の 26 試料について分析を実施した。このうち、土壌、農産物(ほうれん草)及び水産生物(アマダイ)から ^{137}Cs が検出されたが、例年と比較して特に異常な値は認められず、 ^{131}I などの他の人工放射性核種については検出されなかった。

3 空間放射線量率測定

測定結果を表4に、月平均値の推移を図1に示した。全6地点の空間放射線量率の最大値は 107 nGy/h(松浦市役所 12 月)、平均値は 29~58 nGy/h であった。最大値を記録した 12 月 27 日は雨であり、降雨による自然現象と考えられる。

まとめ

2016 年度に実施した環境放射能水準調査の結果、一部の環境試料から極微量の ^{137}Cs が検出されたが、

その濃度は例年と同レベルであった。

また、空間放射線量率測定においても異常値は観測されなかった。

表1 調査内容(2016年度)

測定区分	試料名	試料数	採取場所
全 β 放射能測定	定時降水	108	大村市
	大気浮遊じん	4	大村市
γ 線 核種分析	降下物	12	大村市
	蛇口水	1	佐世保市
	土壌	2	佐世保市
	精米	1	佐世保市
	野菜	2	佐世保市
	牛乳	1	佐世保市
	水産生物	3	諫早市、長崎市、島原市

表2 定時降水試料中(採取量 50 mL 以上)の全 β 放射能測定結果(2016年度)

採取年月	降水量 (mm)	測定数	降下量 (Bq/L)		降下量 (MBq/km ²)	
			最大値	平均値	最大値	平均値
2016.4	236.2	12	1.3	0.6	30	12
5	288.4	8	0.8	0.3	63	12
6	449.7	14	2.1	0.8	68	19
7	318.4	10	1.7	1.2	71	22
8	73.2	4	2.1	1.2	63	25
9	398.2	9	1.3	0.4	60	14
10	294.1	11	0.5	0.1	1.0	0.1
11	140.4	9	0.7	0.3	19	3.8
12	122.3	12	1.8	0.8	9.2	2.7
2017.1	73.6	7	2.5	1.3	6.0	2.1
2	91.5	8	1.4	0.7	11	3.4
3	75.9	11	1.5	0.8	8.9	1.6
年間	2561.8	115	2.5	0.7	71	9.4
前年度データ	2314.5	108	3.2	1.5	140	26

表3 ゲルマニウム半導体検出器による γ 線核種分析結果(2016年度)

試料名	採取場所	採取年月	検体数	^{137}Cs		^{137}Cs 過去3年間の値		単位
				最低値	最高値	最低値	最高値	
大気浮遊じん	大村市	2016.4	4	N.D	N.D	N.D	N.D	mBq/m ³
		~2017.3						
降下物	大村市	2016.4	12	N.D	N.D	N.D	N.D	MBq/km ²
		~2017.3						
陸水	蛇口水	佐世保市	2016.6	1	N.D	N.D	N.D	mBq/L
	0~5cm	佐世保市	2016.7	1	16	4.1	18	Bq/kg乾土
土壌	5~20cm	佐世保市		1	1100	170	650	MBq/km ²
	農産物	精米	佐世保市	2017.1	1	N.D	N.D	N.D
大根		佐世保市	2017.1	1	N.D	N.D	N.D	
ほうれん草		佐世保市	2017.1	1	0.082	N.D	0.25	
牛乳	佐世保市	2016.8	1	N.D	N.D	N.D	Bq/L	
水産生物	アサリ	諫早市	2016.5	1	N.D	N.D	0.19	Bq/kg生
	アマダイ	長崎市	2016.11	1	0.13	0.12	0.16	
	ワカメ	島原市	2017.2	1	N.D	N.D	N.D	

N.D:測定値が測定誤差の3倍未満

表4 モニタリングポストによる空間放射線量率測定結果(2016年度)

	最大 最小 平均			最大 最小 平均			最大 最小 平均					
	4月	5月	6月	4月	5月	6月	4月	5月	6月			
環境保健研究センター	4月	54	28	31	4月	78	39	44	4月	73	39	44
	5月	57	28	30	5月	77	41	44	5月	86	40	44
	6月	60	27	31	6月	74	40	44	6月	82	40	45
	7月	55	27	29	7月	79	40	42	7月	60	40	43
	8月	47	29	31	8月	72	40	43	8月	60	41	44
	9月	51	28	31	9月	66	37	40	9月	65	40	44
	10月	63	28	30	10月	69	37	41	10月	85	40	44
	11月	53	28	30	11月	70	39	43	11月	82	40	44
	12月	60	27	30	12月	75	37	42	12月	82	41	44
	1月	44	27	29	1月	59	38	41	1月	71	40	44
	2月	59	27	30	2月	73	40	43	2月	68	40	43
	3月	45	28	30	3月	72	39	43	3月	68	39	44
	年間	63	27	30	年間	79	37	43	年間	86	39	44
杵岐保健所	4月	94	50	57	4月	79	36	39	4月	86	41	45
	5月	80	52	57	5月	68	36	39	5月	80	41	44
	6月	80	53	57	6月	78	36	39	6月	80	41	44
	7月	87	53	56	7月	70	35	37	7月	78	40	43
	8月	89	54	58	8月	53	36	38	8月	81	42	47
	9月	70	53	57	9月	62	36	38	9月	72	41	45
	10月	77	53	57	10月	78	35	38	10月	75	41	44
	11月	85	53	57	11月	62	36	39	11月	87	41	44
	12月	85	53	57	12月	75	36	39	12月	107	41	45
	1月	75	54	57	1月	65	36	38	1月	60	41	44
	2月	81	51	57	2月	78	35	38	2月	80	41	44
	3月	72	53	57	3月	60	36	39	3月	73	42	44
	年間	94	50	57	年間	79	35	38	年間	107	40	44

単位:nGy/h

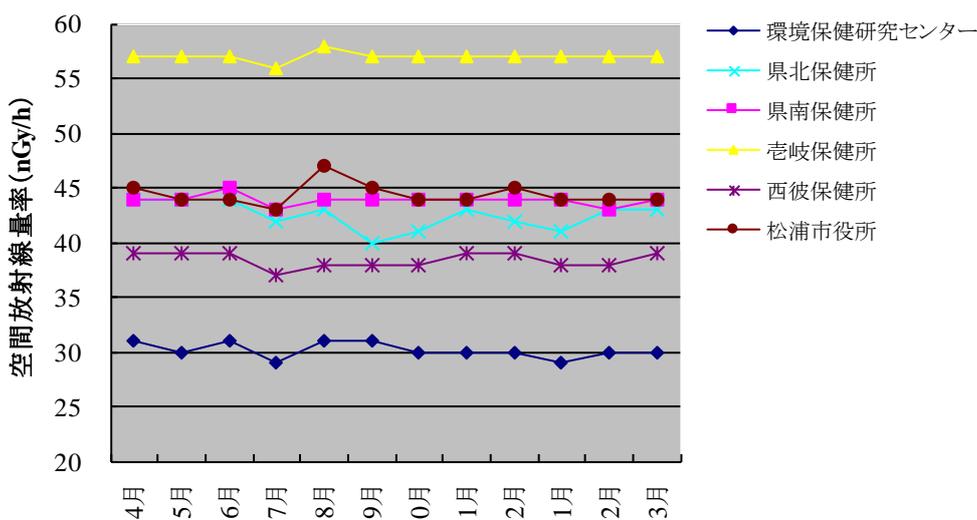


図1 空間放射線量率の月平均値の推移(2016年度)

長崎県地域防災計画に係る環境放射能調査 (2016 年度)

田中 雄規、古賀 康裕

Radioactivity Survey Data in Nagasaki Prefectural Disaster Prevention Plan (2016)

Yuuki TANAKA, Yasuhiro KOGA

Key words: environmental radiation, radiation dose rate, nuclides analysis

キーワード: 環境放射能、放射線量率、核種分析

はじめに

当センターでは「長崎県地域防災計画(原子力災害対策編)」(2001年5月策定、2015年6月修正)に係る「長崎県環境放射線モニタリング方針」に基づき、九州電力(株)玄海原子力発電所(以下、玄海原発という)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、玄海原発半径10 km圏内を「防災対策を重点的に充実すべき地域の範囲(Emergency Planning Zone)」として定め、2001年度から平常時の環境放射線(能)モニタリング調査(以下、「モニタリング調査」という)を実施してきた。

原子力規制委員会は、東京電力(株)福島第一原子力発電所事故後に原子力災害対策指針(2012年10月31日)を制定し、原発から半径30 km圏内を緊急防護措置準備区域(Urgent Protective Action Planning Zone(以下、UPZ という))と定め、平常時レベルの把

握および緊急時の体制整備などを目的とした平常時モニタリング調査を実施する必要があるとしている。このため、長崎県においても2013年度からは調査範囲をUPZに拡大してモニタリング調査を実施しているところである(図1)。

本報では、2016年度の調査結果について報告する。

調査項目

調査項目を表1に、調査地点を図2～5に示す。

調査方法

- 1 空間放射線量率測定(4回/年)
 - (1) 使用機器
 - ・NaI(Tl)シンチレーション式サーベイメータ
(日立アロカメディカル製 TCS-171B)
 - (2) 測定方法
 - ・時定数 : 30
 - ・測定回数 : 5回(平均値を測定値とする)
- 2 積算線量測定(四半期毎)
 - (1) 使用機器
 - ・蛍光ガラス線量計リーダー
(旭テクノガラス製 FGD-201)
 - ・ガラス素子(千代田テクノ製 SC-1)
 - (2) 測定方法
 - ・ガラス素子再生処理条件 : 400°C、1時間
 - ・環境場設置期間 : 約90日間
 - ・ガラス素子ビルドアップ条件 : 70°C、1時間
- 3 ガンマ線核種分析
 - (1) 使用機器
 - (a) 多重波高分析装置



図1 モニタリング調査エリア全体図

(SEIKO EG&G 製 MCA7600)
 ゲルマニウム半導体検出器
 (ORTEC 製 GEM 35-70)
 (b) 多重波高分析装置
 (CANBERRA 製 DSA1000)
 ゲルマニウム半導体検出器
 (CANBERRA 製 3520-7500SL/CC-VD)

(2) 測定方法

- ・分析対象核種 : ^{131}I 、 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs
- ・測定時間 : 80,000 秒

(3) 環境試料採取および前処理方法

放射能測定法シリーズ(文部科学省編)に準拠して以下のとおり実施した。

・大気浮遊じん

松浦市役所鷹島支所にてハイボリュウムエアサンプラーを設置し、積算流量約 1440 m³ をろ紙(HE-40T)で採取した。採取後のろ紙をポンチ(58 mm φ)で打ち抜き、U-8 容器に集塵面を下に向けて充填し測定に供した。

松浦市役所鷹島支所以外の採取地点では可搬型ダストサンプラーを設置し、活性炭カートリッジ(CHC-50-A20)、活性炭ろ紙(CP-20)及びろ紙(HE-40T, 60 mm φ)で採取後、カートリッジ及びろ紙を一まとめにし測定に供した。

- ・蛇口水、原水
各採取地点にて蛇口水及び原水 20 L を採取した。それぞれを蒸発濃縮後、U-8 容器に充填し測定に供した。
- ・土壌
各採取地点にて表層(0~5 cm)を採取し、105°Cで24時間乾燥後、2 mm 篩で分級し、U-8 容器に充填し測定に供した。
- ・精米
各採取地点にて約 3 kg を購入し、450°Cで24時間灰化後、U-8 容器に充填し測定に供した。
- ・海水
日比漁港海岸にて約 20 L を採取し、リンモリブデン酸アンモニウム-二酸化マンガン吸着捕集法で傾斜分離後、U-8 容器に充填し測定に供した。
- ・トラフグ
新松浦漁業協同組合にて約 5 kg を購入し、可食部を 450°Cで24時間灰化後、U-8 容器に充填し測定に供した。
- ・カジメ
新松浦漁業協同組合にて約 5 kg を購入し、可食部を 450°Cで24時間灰化後、U-8 容器に充填し測定に供した。

表1 調査項目

項目	試料名	試料数	調査地点 ^{※4}
空間放射線量率	—	96 ^{※1}	松浦市(12 地点) 佐世保市(4 地点) 平戸市(3 地点) 壱岐市(4 地点) 環境保健研究センター(大村市:比較対照)
積算線量	—	180 ^{※2}	松浦市(5 地点) 佐世保市(1 地点) 平戸市(1 地点) 壱岐市(1 地点) 環境保健研究センター(大村市:比較対照)
ガンマ線核種分析	大気浮遊じん	7 ^{※3}	
	蛇口水	6	松浦市(3 地点)
	原水	6	佐世保市(1 地点)
	土壌	6	平戸市(1 地点)
	精米	6	壱岐市(1 地点)
	海水	1	
	トラフグ	1	松浦市鷹島町
	カジメ	1	
合計		310	

※1 (環境場 23 地点 + 比較対照 1 地点) × 年 4 回
 ※2 (環境場 8 地点 + 比較対照 1 地点) × ガラス素子 5 個 × 年 4 回(四半期毎に交換)
 ※3 松浦市鷹島町の調査地点のみ年 2 回試料採取している
 ※4 調査地点の位置は図 2~5 のとおり



図2 調査地点詳細 松浦市鷹島町

空間放射線量率測定地点(4回/年)

- A 鷹島モンゴル村駐車場
- B 松浦市役所鷹島支所
- C 道の駅 鷹ら島
- D 三里地区生活改善センター

積算線量計設置地点(四半期毎に交換)

- 1 阿翁浦地区集会所
- 2 阿翁地区公民館
- 3 鷹島ダム

環境試料採取地点(大気浮遊じんのみ2回/年、その他は1回/年)

- ・松浦市役所鷹島支所(大気浮遊じん)
- ・新松浦漁業協同組合(蛇口水、精米、トラフグ、カジメ)
- ・鷹島ダム(原水)
- ・鷹島モンゴル村(土壌)
- ・日比漁港海岸(海水)

モニタリングステーション

- ア 鷹島町局



図3 調査地点詳細 松浦市福島町

空間放射線量率測定地点(4回/年)

- E 初崎公園駐車場
- F 初の浦バス停
- G 松浦市役所福島支所
- H 海の駅

積算線量計設置地点(四半期毎に交換)

- 4 松浦市役所福島支所

環境試料採取地点(1回/年)

- ・松浦市役所福島支所(大気浮遊じん、精米)
- ・福島浄水場(蛇口水、原水)
- ・大山公園(土壌)

モニタリングステーション

- イ 福島局



図4 調査地点詳細 松浦市・佐世保市・平戸市

空間放射線量率測定地点(4回/年)

- I 今福交差点
- J 松浦市役所
- K 星鹿小学校
- L 志佐川池成橋
- M 松浦病院
- N 吉井北小学校
- O 猪調小学校
- P 江迎小学校
- Q 西田平駅
- R 平戸市役所
- S 田助小学校

環境試料採取地点(1回/年)

- ・松浦市志佐地区(大気浮遊じん、土壌)
- ・松浦市役所(蛇口水)
- ・志佐川(原水)
- ・松浦市上志佐地区(精米)
- ・佐世保市役所江迎支所(大気浮遊じん、蛇口水)
- ・嘉例川(原水)
- ・吉井北部運動広場(土壌)
- ・佐世保市吉井地区(精米)
- ・平戸市役所田平支所(大気浮遊じん、蛇口水、土壌)
- ・久吹ダム(原水)
- ・平戸市田平地区(精米)

積算線量計設置地点(四半期毎に交換)

- 5 松浦市役所上志佐出張所
- 6 佐世保市役所江迎支所
- 7 平戸市役所田平支所

モニタリングステーション及びモニタリングポスト

- | | |
|---------|---------|
| ウ 松浦市役所 | カ 県北保健所 |
| エ 世知原局 | キ 大久保局 |
| オ 江迎局 | ク 大島局 |



図5 調査地点詳細 壱岐市

空間放射線量率測定地点(4回/年)

- T 壱岐保健所
- U 釘山触農作業環境改善センター
- V 田河小学校
- W 勝本町ふれあいセンターかざはや

積算線量計設置地点(四半期毎に交換)

- 8 壱岐保健所

環境試料採取地点(1回/年)

- ・壱岐保健所(大気浮遊じん、蛇口水)
- ・幡鉢川(原水)
- ・釘山触農作業環境改善センター(土壌)
- ・壱岐市石田町(精米)

モニタリングステーション及びモニタリングポスト

- ケ 壱岐空港局
- コ 壱岐保健所

調査結果

2016年度の調査結果を以下に示す(表2~4)。

1 空間放射線量率

全24地点(環境場23地点、比較対照1地点)の空間放射線量率の測定値は32~78 nGy/hの範囲であり、前年度までと同程度の平常時レベルで推移していた(表2)。

2 積算線量(92日換算値)

全9地点(環境場8地点、比較対照1地点)の積算線量は129.4~177.9 μGy/92日であり、前年度までと同程度の平常時レベルで推移していた(表3)。

3 ガンマ線核種分析

(分析対象核種 : ¹³¹I、¹³⁴Cs、¹³⁷Cs)

・大気浮遊じん

人工放射性核種は検出されなかった(表4)。

・蛇口水、原水

人工放射性核種は検出されなかった(表4)。

・土壌

全6地点のうち4地点において、¹³⁷Csが最

高で5.50 ± 0.35 (Bq/kg 乾土) 検出されたが、前年度までと同水準であった(表4)。

・精米

全6地点のうち1地点において、¹³⁷Csが0.0325 ± 0.0076 (Bq/kg 乾土) 検出されたが、前年度までと同水準であった(表4)。

・海水

¹³⁷Csが0.00181 ± 0.00048 (Bq/L) 検出されたが、前年度までと同水準であった(表4)。

・トラフグ

¹³⁷Csが0.184 ± 0.013 (Bq/kg 生) 検出されたが、前年度までと同水準であった(表4)。

・カジメ

人工放射性核種は検出されなかった(表4)。

まとめ

2013年度から空間放射線量率測定をUPZ圏に拡大して実施しているが、2014年度からは積算線量測定および環境試料中のガンマ線核種分析についてもUPZ圏に拡大して実施している。

空間放射線量率測定(環境場23地点、比較対照1地点)の結果、全地点とも平常時レベルで推移していた。

また、積算線量測定(環境場8地点、比較対照1地点)及び環境試料中のガンマ線核種分析(8種34試料)の結果、いずれも前年度までと同程度のレベルで推移し

ていた。

2017年度以降も、UPZ圏での調査を継続実施する予定である。

表2 空間放射線量率の測定結果 (単位:nGy/h)

測定地点	第1四半期		第2四半期		第3四半期		第4四半期		年平均測定値
	測定日	測定値	測定日	測定値	測定日	測定値	測定日	測定値	
鷹島モンゴル村駐車場		74		48		46		60	57
松浦市 松浦市役所鷹島支所		66		48		40	H29.3.17	58	53
鷹島町 道の駅 鷹ら島		52		48		50		58	52
三里地区生活改善センター		58		44		44		52	50
松浦市 初崎公園駐車場	H28.6.22	56	H28.10.12	44	H28.12.21	46		42	47
松浦市 福島町 粕の浦バス停		60		46		48	H29.3.17	50	51
松浦市 福島町 松浦市役所福島支所		48		46		46		46	47
海の駅		52		48		58		50	52
松浦市 今福交差点		56	H28.10.4	46		62		56	55
松浦市 松浦市役所		44		46		56	H29.3.30	54	50
星鹿小学校		42	H28.10.3	32		50		46	43
志佐川池成橋		40	H28.10.4	42		52		50	46
松浦病院		46		40		62		58	52
佐世保市 吉井北小学校	H28.6.21	34		34	H28.12.13	42		50	40
猪調小学校		54		50		62		64	58
江迎小学校		46	H28.10.3	40		60	H29.3.29	52	50
平戸市 西田平駅		48		40		58		52	50
平戸市 平戸市役所		66		70		78		76	73
田助小学校		40		40		58		54	48
壱岐保健所		60		50		56		50	54
壱岐市 釘山触農作業環境改善センター	H28.6.14	50	H28.10.31	36	H28.12.16	42	H29.3.17	38	42
田河小学校		50		42		40		42	44
勝本町ふれあいセンターかざはや		50		42		40		46	45
大村市 環境保健研究センター	H28.6.23	50	H28.10.3	40	H28.12.28	52	H29.3.30	54	49

(測定値は5回測定の平均値)

表3 積算線量測定結果 (単位:μGy/92日)

測定地点	積算線量(92日換算値)				積算線量範囲	【参考】 前年度データ
	第1四半期	第2四半期	第3四半期	第4四半期		
阿翁浦地区集会所	170.5	167.4	173.5	177.9	167.9~177.9	162.3~169.8
阿翁地区公民館	140.5	141.4	144.6	150.5	140.5~150.5	134.5~142.1
鷹島ダム	143.9	144.8	150.2	153.1	143.9~153.1	138.9~144.0
松浦市役所福島支所	145.6	140.3	149.2	148.3	140.3~149.2	140.7~143.4
松浦市役所上志佐出張所	144.5	150.9	141.9	143.8	141.9~150.9	142.6~152.1
佐世保市役所江迎支所	138.1	147.0	139.8	141.2	138.1~147.0	136.9~144.2
平戸市役所田平支所	145.1	149.3	145.1	145.2	145.1~149.3	144.6~150.5
壱岐保健所	166.3	168.1	170.0	170.5	166.3~170.5	163.8~170.8
環境保健研究センター (大村市:比較対照)	129.4	137.8	136.9	144.1	129.4~144.1	129.9~135.5

表4 ガンマ線核種分析結果

試料名	採取(購入)地点	採取年月日	測定対象核種			濃度単位
			¹³¹ I	¹³⁴ Cs	¹³⁷ Cs	
大気浮遊じん	松浦市役所鷹島支所	2016年6月22日 ~6月23日	N.D.	N.D.	N.D.	mBq/m ³
		2016年12月21日 ~12月22日	N.D.	N.D.	N.D.	
	松浦市役所福島支所	2016年10月12日	N.D.	N.D.	N.D.	
	松浦市志佐地区	2016年12月12日	N.D.	N.D.	N.D.	
	佐世保市役所江迎支所	2016年10月3日	N.D.	N.D.	N.D.	
	平戸市役所田平支所	2016年6月21日	N.D.	N.D.	N.D.	
	壱岐保健所	2016年6月14日	N.D.	N.D.	N.D.	
蛇口水	新松浦漁業協同組合	2016年10月12日	N.D.	N.D.	N.D.	Bq/L
	福島浄水場	2016年12月21日	N.D.	N.D.	N.D.	
	松浦市役所	2016年12月13日	N.D.	N.D.	N.D.	
	佐世保市役所江迎支所	2016年10月3日	N.D.	N.D.	N.D.	
	平戸市役所田平支所	2016年6月21日	N.D.	N.D.	N.D.	
	壱岐保健所	2016年6月14日	N.D.	N.D.	N.D.	
	鷹島ダム	2016年6月22日	N.D.	N.D.	N.D.	
原水	福島浄水場着水井	2016年12月21日	N.D.	N.D.	N.D.	Bq/L
	志佐川	2016年6月21日	N.D.	N.D.	N.D.	
	嘉例川	2016年10月3日	N.D.	N.D.	N.D.	
	久吹ダム	2016年6月21日	N.D.	N.D.	N.D.	
	幡鉢川	2016年6月14日	N.D.	N.D.	N.D.	
	鷹島モンゴル村	2016年10月12日	N.D.	N.D.	1.12 ±0.28	
土壌	大山公園	2016年10月12日	N.D.	N.D.	5.50 ±0.35	Bq/Kg乾土
	松浦市志佐地区	2016年12月12日	N.D.	N.D.	1.04 ±0.28	
	佐世保市吉井地区	2016年12月12日	N.D.	N.D.	N.D.	
	平戸市役所田平支所	2016年6月21日	N.D.	N.D.	N.D.	
	釘山触農作業環境改善センター	2016年6月14日	N.D.	N.D.	0.591 ±0.179	
	新松浦漁業協同組合	2016年10月12日	N.D.	N.D.	N.D.	
精米	松浦市福島町内	2016年12月21日	N.D.	N.D.	N.D.	Bq/Kg生
	松浦市上志佐地区	2016年12月13日	N.D.	N.D.	0.0325 ±0.0076	
	佐世保市吉井地区	2016年12月12日	N.D.	N.D.	N.D.	
	平戸市田平町	2016年12月12日	N.D.	N.D.	N.D.	
	壱岐市内	2016年12月16日	N.D.	N.D.	N.D.	
	海水	日比地区	2017年3月16日	N.D.	N.D.	
トラフグ	新松浦漁業協同組合	2016年12月22日	N.D.	N.D.	0.184 ±0.013	Bq/Kg生
カジメ	新松浦漁業協同組合	2016年12月22日	N.D.	N.D.	N.D.	Bq/Kg生

N.D.=不検出

バイオメタノール活用 BDF 製造の検討 (その 3)

富永 勇太、船越 章裕、古賀 康裕、國光 健一

Examination of promotion the BDF using Biomethanol (3)

Yuta TOMINAGA, Akihiro FUNAGOSHI, Yasuhiro KOGA, Kenichi KUNIMITSU

Key words: biodiesel fuel, biomethanol, glycerin

キーワード：バイオディーゼル燃料、バイオメタノール、グリセリン

はじめに

長崎県環境保健研究センターでは、産業廃棄物税収活用事業「バイオメタノールを活用した BDF 製造技術の検討」において、2015 年度までにバイオメタノールを用いた BDF 製造試験を実施し、バイオメタノール量と触媒 (KOH) 量を従来の製造時より増やすことで、良好な品質の BDF を製造できることを見出した¹⁾²⁾。しかしながら、2016 年度はバイオメタノールが入手困難となり、BDF 製造試験が実施できなかったため、本報告では、BDF 製造の際に副生するグリセリンの有効活用の手法の検討結果について述べる。

副生グリセリンの利活用検討

(1) 堆肥化

BDF 製造時に副生するグリセリンについては、あまり活用されず、産業廃棄物として処理されているため、利活用手法として堆肥化を検討した。ここでは、製品として販売できる堆肥を製造するのに、適切な副生グリセリンの混合割合の上限を調査した。

発酵途中の原料に、副生グリセリンを混合し、定期的に切返しを行いながら 2 ヶ月間発酵させた。副生グリセリンの混合割合は 0.5%、5%、10%、15% (原料を 10 m³ として、副生グリセリンを 50 L、500 L、1000 L、1500 L) とし、堆肥化試験を行った。

試験の結果、副生グリセリンの混合割合 10% までは発酵が進行したが、15% では発酵が進行しなかった。したがって、副生グリセリンを堆肥化するときの原料への混合割合の上限は 10% となった。

また、副生グリセリン中には、BDF 製造時に使用する水酸化カリウムが含まれており、堆肥化することでカリウム全量の向上が期待される。そこで、得られた堆肥については、肥料分析により主要成分の測定を行った。

分析の結果、期待した通り堆肥のカリウム全量は、副生グリセリンを混合していない堆肥よりも 2 倍程度向上し (図 1)、良好な品質の堆肥が製造できることを確認できた。

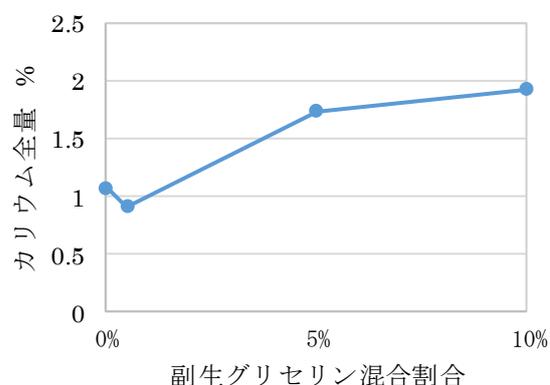


図 1 副生グリセリン混合によるカリウム全量の推移

(2) グリセリンの発熱量測定

副生グリセリンをボイラー燃料として使用することを想定し、発熱量の測定を行った。測定の結果、発熱量は 25780 J/g で、灯油の半分程度であった。

副生グリセリンを液体燃料として利用するため、一定量の灯油とアルコールを混合し、低粘性化したという研究³⁾も行われており、今後、副生グリセリンの燃料利用も期待される。

(3) その他の利活用手法

副生グリセリンの利活用手法について、上記のもの以外に、副生グリセリンを原料として脱窒剤を精製し、脱窒性能を評価した研究事例⁴⁾や、副生グリセリンからグリセリン酸を生産し、その機能性を評価した研究⁵⁾も行われており、今後さらなる利活用手法の拡大が期待される。

ま と め

BDF 製造時に副生するグリセリンの利活用手法について検討を行った。堆肥化では、原料に対して10%まで混合が可能であること、混合することによりカリウム全量が向上することを確認した。

参 考 文 献

- 1) 富永勇太,他:バイオメタノール活用 BDF 製造の検討,長崎県環境保研研究センター所報,60,105~108,(2014)
- 2) 富永勇太,他:バイオメタノールを活用したバイオディーゼル燃料製造の検討(その2),長崎県環境保研研究センター所報,61,93~96,(2015)
- 3) 小笠原正剛,馬淵悠樹,野村正幸,加藤純雄,中田真一:BDF 製造時に排出される含グリセリン副生物の燃料油への利活用に関する基礎的研究,廃棄物循環学会論文誌,

Vol.24,No.4,pp.63-69,(2013)

- 4) 武下俊宏,村田真理,樋口壮太郎,井上芳樹,大塚芳夫,安部剛,橘峰生:バイオディーゼル燃料(BDF)製造副生グリセリンを原料とする脱窒剤の精製と脱窒素性能評価,廃棄物循環学会論文誌,Vol.27,pp.61-70,(2016)
- 5) 佐藤俊:グリセリンを原料とする機能性化学品の生産および利用技術の開発,オレオサイエンス,第14巻第4号,(2014)

表1 副生グリセリン堆肥化の結果および主要成分分析結果

副生グリセリン 混合割合	0%	0.5%	5%	10%	15%
発酵	○	○	○	○	×
窒素全量 %	1.4	0.96	0.85	0.84	-
りん酸全量 %	0.91	0.86	0.91	0.96	-
カリウム全量 %	1.1	0.91	1.7	1.9	-
炭素窒素比	19	25	16	23	-
銅全量 mg/kg	18	12	21	24	-
亜鉛全量 mg/kg	93	61	95	98	-
石灰全量 %	1.0	1.3	2.3	2.4	-
水分全量 %	35	49	46	43	-
pH	8.6	9.0	7.1	9.1	-
EC mS/cm	0.87	1.8	4.8	3.2	-

バイオディーゼル燃料の品質確認分析結果(2016年度)

船越 章裕、富永 勇太、國光 健一

Survey Report for the Quality Check of Biodiesel fuel (2016)

Akihiro FUNAGOSHI, Yuta TOMINAGA, Kenichi KUNIMITSU

Key words: biodiesel fuel, quality, fatty acid methyl esters

キーワード: バイオディーゼル燃料、品質、脂肪酸メチルエステル

はじめに

廃食用油を原料とするバイオディーゼル燃料(以下、「BDF」という。)の製造は、県内全域で民間企業や団体が積極的に取り組まれており、自家消費や契約販売により、ディーゼルエンジンを有する自動車や重機、農業用機械の燃料として利用、また一部の自治体の公用車で利用されている。

長崎県環境保健研究センターでは、2012年3月に「長崎県におけるバイオディーゼル燃料の普及促進に向けた手引き」¹⁾を発行し、2012年度には「BDF 地域活用推進事業」²⁾によりBDFの普及促進に取り組んできたが、県内で排出される廃食用油のリサイクルはまだ不十分である。

そこで、長崎県では「BDF 利活用推進事業」³⁾を実施し、廃食用油をBDFに再生利用し、利用者へ流れる仕組みづくりを検討している。当センターでは、本事業の一環として、県内で製造されたBDFの継続的な活用を促すため、2015年に引き続き、品質確認分析を実施した。

事業内容

1 品質確認分析の実施

概要は以下に示すとおりである。

(1) 対象

県内で発生する廃食用油を主に原料として、BDFを製造している県内の企業、法人、団体、自治体とした。

(2) 回数及び試料数

年2回(7月、1月)とし、1対象あたり、原則1回につき2試料までとした。

分析した試料の数は、第1回目は6製造所12試料、第2回目は4製造所8試料であった。

(3) 試料の受入れ

対象者に案内を送付し、分析を希望する者から試料提供を受け、分析後、結果は通知した。

(4) 分析項目

全国バイオディーゼル燃料利用推進協議会が作成したガイドライン⁴⁾において、最低限遵守すべき規格項目とされている、動粘度、水分、メタノール、モノグリセリド、ジグリセリド、トリグリセリド、遊離グリセリンの7項目(協議会モニタリング規格、表1)と、BDFの主成分である脂肪酸メチルエステル(Fatty Acid Methyl Esters, FAME)を分析した。

これら以外に、当センターで分析可能な項目(密度、酸価、ヨウ素価など)についても分析した。

表1 協議会モニタリング規格について

項目	設定された理由など
動粘度 (3.5~5.0mm ² /s)	(意義) 動粘度が高いと、メチルエステル交換反応が不十分である可能性。 (車両への影響) 未反応の原料油脂の残留が、エンジン始動性の悪化、エンジントラブルの原因となる。 (対策) メタノールと十分に反応させる。
水分 (500ppm以下)	(意義) 水分の混入は、BDFの腐食性や加水分解を促す。 (車両への影響) 金属腐食 (対策) 減圧加熱による脱水を十分行う。
メタノール (0.20質量%以下)	(意義) メタノールは金属に対して攻撃性を持つ。 (車両への影響) 金属腐食 (対策) 減圧加熱による脱メタノールを十分行う。
モノグリセリド (0.80質量%以下)	(意義) 反応工程で生じる中間生成物で、噴射ノズル内のやデポジション積層原因となる。 (車両への影響) 低温流動性の悪化、エンジン停止 (対策) 十分にメタノールと反応させる。
ジグリセリド (0.20質量%以下)	(意義) 反応工程で最初生じる中間生成物で、反応が完結していない場合に残留。 (車両への影響) フィルターの目詰まり (対策) 十分にメタノールと反応させる。
トリグリセリド (0.20質量%以下)	(意義) 原料油脂そのもので、不純物程度の濃度でも噴射ノズル先端や燃焼室内にカーボンデポジションを形成しやすい。 (車両への影響) 出力低下 (対策) 十分にメタノールと反応させる。
遊離グリセリン (0.02質量%以下)	(意義) フィルターの目詰まりや噴射ポンプ内のタイミング制御弁などに付着する。 (車両への影響) 誤作動、エンジンストール (対策) エステルとの分離を十分に行う。

(5) 分析方法

① 動粘度

JIS K2283「原油及び石油製品-動粘度試験方法及び粘度指数算出方法」に基づいて、キャノン-フェンスケ粘度計(粘度計番号 75)を用いて測定した。試料は恒温槽で 40°Cに保持し、一定量の試料が粘度計の毛細管を流出する時間を測定し、これに粘度計定数を乗じて動粘度を求めた。

② 水分

JIS K2275「原油及び石油製品-水分試験方法」に基づいて、カールフィッシャー水分計(京都電子工業株式会社、MKC-501)を用いて、カールフィッシャー式電量滴定法により測定した。

③ メタノール

EN14110「Fatty Acid Methyl Esters (FAME) - Determination of methanol content」に基づいて、ガスクロマトグラフ(株式会社島津製作所、GC-2010Plus、FID)を用いて行なった。内部標準物質として2-プロパノールを添加した試料を 80°Cの恒温槽にて保持し、気相部分を、60°Cで保温したガスタイトシリンジを用いたマニュアル注入により分析した。分析条件は次のとおり。

カラム:BD-EN14110(内径 0.32 mm、長さ 30 m 膜厚 1.80 µm、Agilent 社製)
カラム温度:50°C(1 min)→10°C/min→130°C(0.5 min)
注入口温度:150°C、検出器温度:250°C
キャリアガス:ヘリウム
注入量:500 L(ヘッドスペースガス)

④ グリセリド類、遊離グリセリン、全グリセリン

EN14105「Fatty Acid Methyl Esters (FAME) - Determination of free and total glycerol and mono-, di-, triglyceride contents」に基づいて、ガスクロマトグラフ(株式会社島津製作所、GC-2010Plus、FID)を用いて行なった。試料に 2 種類の内部標準物質、1,2,4-butanetriol、1,2,3-tricaproylglycerol を添加し、N-Methyl-N-trimethylsilyltrifluoroacetamide(MSTFA)を用いて誘導体化して分析を行った。

全グリセリンは、モノ、ジ、トリグリセリド、遊離グリセリンの結果をグリセリン量に換算して計算した。分析条件は次のとおり。

カラム:BD-ASTMD6584(内径 0.32 mm、長さ 15 m、膜厚 0.10 µm、Agilent 社製)

カラム温度:50°C(1 min)→15°C/min→180°C(0 min)→7°C/min→230°C(0 min)→10°C/min→370°C(10 min)

注入口温度:50°C(初期)、検出器温度:380°C

キャリアガス:ヘリウム、注入量:1 µL

⑤ FAME、リノレン酸メチルエステル

EN14103「Fatty Acid Methyl Esters (FAME) - Determination of ester and linolenic acid methyl ester contents」に基づいて、ガスクロマトグラフ(株式会社島津製作所、GC-2010Plus、FID)を用いて行なった。試料に内部標準物質としてヘプタデカン酸メチルのヘプタン溶液(10 mg/mL)を添加して分析を行った。FAME は、炭素数 14 から 24 までの FAME 成分の面積値の合計より求めた。リノレン酸メチルは、これら合計値に対する割合より算出した。分析条件は次のとおり。

カラム:BD-EN14103(内径 0.32 mm、長さ 30 m、膜厚 0.25 µm、Agilent 社製)
カラム温度:150°C(1 min)→5°C/min→240°C(6 min)
注入口温度:250°C、検出器温度:250°C
キャリアガス:ヘリウム、注入量:1 µL

⑥ 密度

JIS K2249「原油及び石油製品-密度試験方法」に基づいて、浮ひょうを用いて測定した。15°Cでの密度は、測定時の温度での値から JIS K2249 の付表 II 表 IB(燃料油の温度に対する密度換算表)を用いて換算した。

⑦ 酸価

JIS K0070「化学製品の酸価、けん化価、エステル価、よう素価、水酸基価及び不けん化物の試験方法」に基づき、中和滴定法で行った。試料 20 g を、2-プロパノールとジエチルエーテルを1:1で混合させた溶剤 100 mL に溶解させ、フェノールフタレイン溶液を数滴加えて、0.1 mol/L 水酸化カリウムエタノール溶液で滴定した。

⑧ ヨウ素価

JIS K0070「化学製品の酸価、けん化価、エステル価、よう素価、水酸基価及び不けん化物の試験方法」に基づき、ウィイス-シクロヘキサン法で行った。試料 0.3 g をシクロヘキサンで溶解後、ウィイス液 25 mL を 30 分間作用させ、ヨウ化カリウム溶液(100 g/L)20 mL と水 100 mL を加えて、0.1 mol/L チオ硫酸ナトリウム溶液で滴定した。

(6) 分析結果及び現地指導

分析結果の評価にあたり、JIS K2390⁵⁾を参考規格とした。協議会モニタリング規格の7項目とFAMEの結果は表2に、その他の項目については表3に、参考規格を満たした試料数を表4に示した。

廃食用油の由来となる成分であるトリグリセリドが参考規格を満たした試料は、第1回目に83%、第2回目に63%、ジグリセリドは、第1回目に50%、第2回目に75%で参考規格を満たしていた。

水分の参考規格を満たしたのは、第1回目に1試料のみの8%であったが、第2回目は4試料の50%と品質が改善されていた。

BDFの主成分であるFAMEは、第1回目には参考規格を満たした試料はなく、平均濃度が92.3%、第2回目では2試料で参考規格を満たしており、平均濃度が96.4%となっていた。

なお、第1回目の分析結果を受けて、トリグリセリド濃度が高かった製造所には、反応工程等の改善策について、現地指導を行った。

表2 協議会モニタリング項目とFAMEの分析結果

項目	分析結果		参考規格 (JIS K2390)	
	第1回	第2回		
FAME量 (質量%)	平均	92.3	96.4	96.5以上
	最大	95.7	99.6	
	最小	90.3	94.5	
動粘度(40℃) (mm ² /s)	平均	4.500	4.437	3.5~5.0
	最大	4.750	4.544	
	最小	4.216	4.174	
水分 (mg/kg)	平均	843	483	500以下
	最大	1221	946	
	最小	231	118	
メタノール (質量%)	平均	0.01以下	0.01以下	0.20以下
	最大	0.01以下	0.01以下	
	最小	0.01以下	0.01以下	
モノグリセリド (質量%)	平均	0.46	0.46	0.80以下
	最大	0.72	0.53	
	最小	0.01以下	0.07	
ジグリセリド (質量%)	平均	0.18	0.18	0.20以下
	最大	0.32	0.27	
	最小	0.01以下	0.02	
トリグリセリド (質量%)	平均	0.25	0.16	0.20以下
	最大	1.60	0.35	
	最小	0.01	0.01以下	
遊離グリセリン (質量%)	平均	0.01以下	0.01以下	0.02以下
	最大	0.01以下	0.01以下	
	最小	0.01以下	0.01以下	
試料数	12	8	-	

表3 その他の項目の分析結果

項目	分析結果		参考規格 (JIS K2390)	
	第1回	第2回		
密度 (mm ² /s)	平均	0.8825	0.8821	0.86~0.90
	最大	0.8836	0.8839	
	最小	0.8803	0.8797	
酸価 (mgKOH/g)	平均	0.24	0.25	0.50以下
	最大	0.40	0.40	
	最小	0.15	0.16	
ヨウ素価	平均	112	114	120以下
	最大	114	117	
	最小	109	110	
リノレン酸 メチルエステル (質量%)	平均	7.0	7.1	12.0以下
	最大	8.3	8.1	
	最小	5.7	6.1	
全グリセリン (質量%)	平均	0.18	0.15	0.25以下
	最大	0.32	0.21	
	最小	0.01	0.03	
試料数	12	8	-	

表4 参考規格を満たした試料数

項目	第1回		第2回	
	参考規格を 満たした試料数	割合 (%)	参考規格を 満たした試料数	割合 (%)
FAME量	0/12	0	2/8	25
動粘度(40℃)	12/12	100	8/8	100
水分	1/12	8	4/8	50
メタノール	12/12	100	8/8	100
モノグリセリド	12/12	100	8/8	100
ジグリセリド	6/12	50	6/8	75
トリグリセリド	10/12	83	5/8	63
遊離グリセリン	12/12	100	8/8	100
密度	12/12	100	8/8	100
酸価	12/12	100	8/8	100
ヨウ素価	12/12	100	8/8	100
リノレン酸メチルエステル	12/12	100	8/8	100
全グリセリン	10/12	83	8/8	100

まとめ

BDFの継続的な活用及び利活用推進のため、BDFの品質確認分析を実施した。また、反応工程の改善の指導等により、良質なBDFが製造されるためのサポートを実施した。

参考文献

- 1) 長崎県バイオディーゼル燃料普及促進研究会:長崎県におけるバイオディーゼル燃料の普及促進に向けた手引き,(2012年3月)
- 2) 東川圭吾,他:バイオディーゼル燃料地域活用推進事業(2012年度),長崎県環境保健研究センター所報,58,102~105,(2012)

- 3) 船越章裕,他:バイオディーゼル燃料の品質確認分析結果(2015 年度),長崎県環境保健研究センター所報,61,97~100,(2015)
- 4) 全国バイオディーゼル燃料利用推進協議会:バイオディーゼル燃料の製造・利用に係るガイドライン(平成 28 年 5 月 9 日修正),(2016)
- 5) 日本工業標準調査会:自動車燃料-混合用脂肪酸メチルエステル(FAME) JIS K2390,(2008)

壱岐島におけるペットボトルを用いた海岸漂着ごみの 定期モニタリング(2016年度)

田川 康平¹、矢野 博巳

Periodical monitoring of marine debris with PET bottles in Iki-island (2016)

Kohei TAGAWA ,Hiromi YANO

Key words: Iki-island, PET bottles, marine debris

キーワード: 壱岐島、PET ボトル、海岸漂着ごみ

はじめに

壱岐島内の海岸には、毎年多くのごみが漂着している。これら海岸に漂着するごみは、景観、自然環境、水産資源、観光などへの影響が懸念されており、深刻な問題となっている。

しかし、海岸漂着ごみの発生源などについては、解明できておらず発生源対策に苦慮している。

そこで、発生源対策の一助とするために、壱岐振興局保健部において、海岸漂着ごみの中でも製造国がわかりやすいペットボトルを用いて、年間調査を行ったので、その結果を取りまとめた。

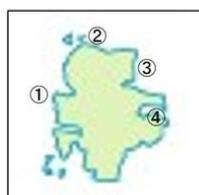


図1 調査対象地区

¹ 壱岐振興局保健部衛生環境課

調査内容

1 調査対象

ラベルのある飲料用ペットボトル（1ℓ以下）を調査対象地点で各 25 個ずつ（4 地点で計 100 個）回収し、ラベルやふたに記載してある文字、バーコードをもとに製造国（国内、韓国、中国、台湾など）を分類・集計した。

ただし、ラベルがない場合でもふたなどに記載してある文字が判断できる場合は回収の対象とした。

2 製造国の分類

製造国を国内、韓国、北朝鮮、中国、台湾、ロシア、その他に分類し、以下の基準で集計を行った。

【製造国の判断方法】

- ①国内：ラベルがない場合でもふたなどに記載してある文字のみで判断した。
- ②韓国、北朝鮮：ラベルやふたなどに記載してある文字のみでは、製造国が韓国であるか北朝鮮であるかの判断が難しいため、バーコードによって判断した。

調査方法

1 調査日

4月19日、5月24日、6月30日、7月21日、
8月2日、9月27日、10月18日、11月21日、
12月28日、1月25日、2月27日、3月13日
(調査期間:平成28年4月～平成29年3月)

2 調査対象地点

- ① 郷ノ浦地区、② 勝本地区
- ③ 芦辺地区、④ 石田地区



- ③中国、台湾：ラベルやふたなどに記載してある文字のみでは、製造国が中国であるか台湾であるかの判断が難しいため、バーコードによって判断した。
 - ④ロシア：バーコードによって判断した。
 - ⑤その他：ラベルやふたに記載してある文字、バーコードによって製造国の判断が難しい場合は、全てその他に分類した。
- ※ただし、調査の中でバーコードが判断できるペットボトルと形状やふたに記載している文字などにより明らかに同種類のペットボトルであると判断ができる場合は、バーコードが判断できない場合でも製造国(韓国、北朝鮮、中国、台湾、ロシア)を判断した。

	個数	割合(%)
国内	505	43.1
韓国	172	14.7
中国	307	26.2
台湾	25	2.1
北朝鮮	0	0.0
ロシア	0	0.0
その他	163	13.9
(うち韓国または北朝鮮のもの)	65	(5.5)
(うち中国または台湾のもの)	75	(6.4)
(不明)	23	(2.0)
合計	1,172	100.0

調査結果

1 回収個数

平成28年4月から平成29年3月に実施した12回の調査のうち9回は、4地点で漂着しているペットボトルを100個回収できたが、12月、1月、2月に実施した調査では、漂着しているペットボトルを100個回収できなかったため、12回の調査でのペットボトルの回収個数は合計で1,172個となった。

※12月調査の回収個数

(①郷ノ浦地区:25個、②勝本地区:6個、③芦辺地区:25個、④石田地区:23個)

※1月調査の回収個数

(①郷ノ浦地区:25個、②勝本地区:22個、③芦辺地区:25個、④石田地区:25個)

※2月調査の回収個数

(①郷ノ浦地区:25個、②勝本地区:21個、③芦辺地区:25個、④石田地区:25個)

2 国籍割合

平成28年4月から平成29年3月に実施した12回の調査にて回収したペットボトルの国籍割合(4地点全体)を表1及び図2に示す。

調査結果、国内が43.1%、韓国が14.7%、中国が26.2%、台湾が2.1%、その他が13.9%であった。

また、その他に分類したペットボトルのうち、文字により明らかに外国由来であることがわかるものが11.9%であり、それらを含むと外国由来のものが54.9%であった。

表1 国籍割合(全島)

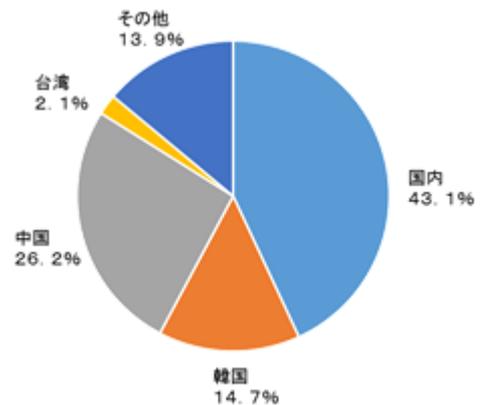


図2 国籍割合(全島)

また、国籍割合の四半期ごとの変動を図3に示す。夏から秋にかけて中国製のペットボトルが増え、冬から春にかけては韓国製のペットボトルが増えている。

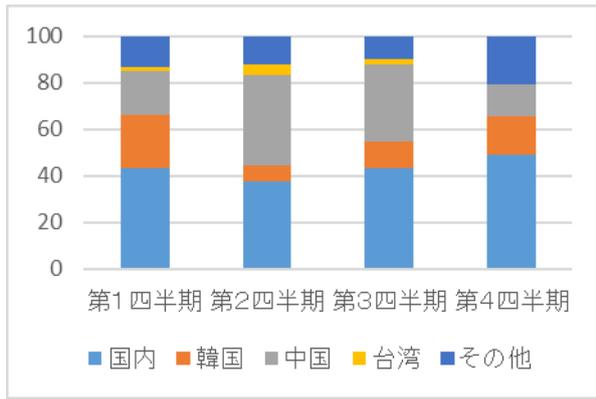


図3 四半期ごとの国籍割合の変動 (全島)

次に、各調査地点での国籍割合を図4~7に示す。
 (四捨五入により合計が一致しないものがある。)
 各地点で国籍割合は異なっているが、どの地点においても国内、中国、韓国、台湾の順(その他を除く)に割合が高かった。

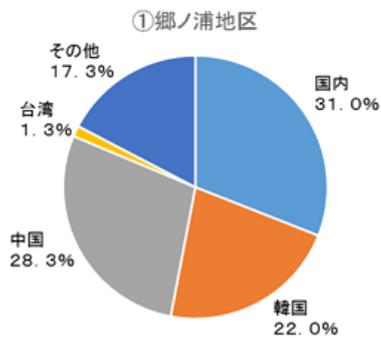


図4 郷ノ浦地区の国籍割合

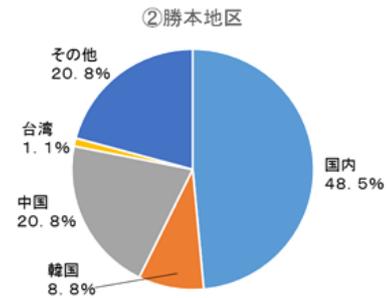


図5 勝本地区の国籍割合

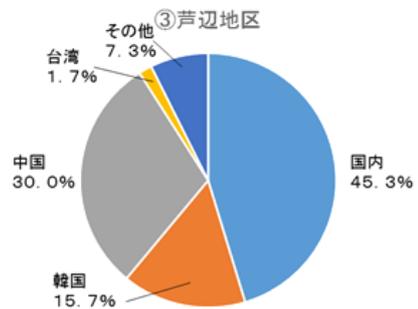


図6 芦辺地区の国籍割合

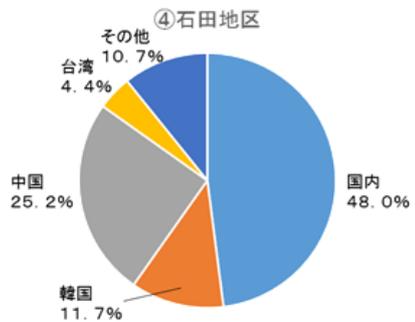


図7 石田地区の国籍割合

各地点別の四半期ごとの変動は図8~11に示すとおりであった。

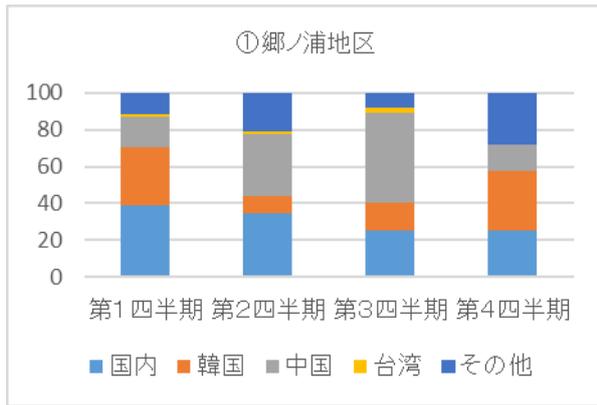


図8 四半期ごとの国籍割合の変動 (郷ノ浦地区)

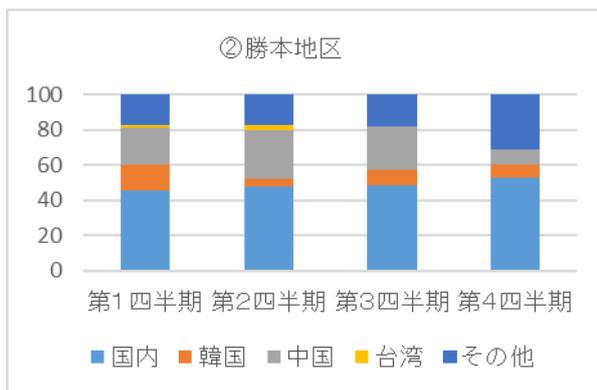


図9 四半期ごとの国籍割合の変動 (勝本地区)

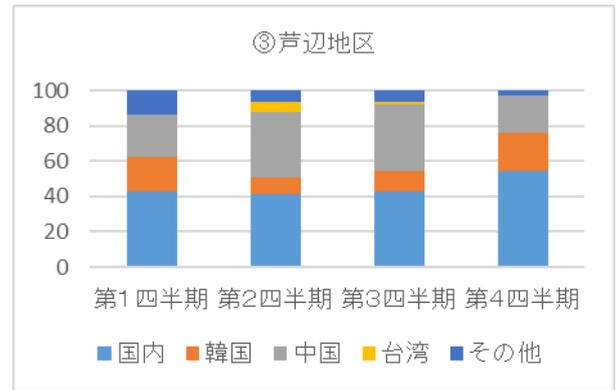


図10 四半期ごとの国籍割合の変動 (芦辺地区)

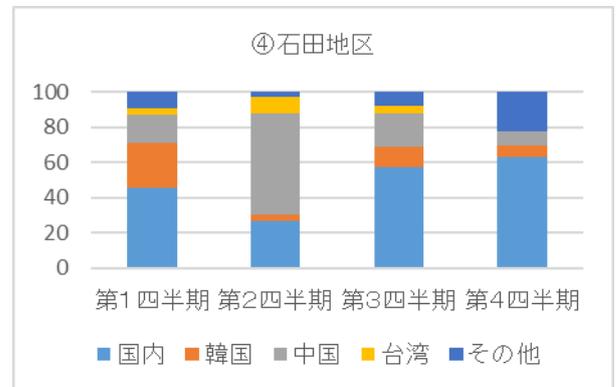


図11 四半期ごとの国籍割合の変動 (石田地区)

西海岸の郷ノ浦地区では秋に、東海岸の石田地区では夏に、顕著に中国製のペットボトルが増えている。また、すべての地点で韓国製のペットボトルが冬から春にかけて増えていることがわかった。

考 察

平成22～26年度の5年間に環境省が行った海洋ごみの実態把握調査の「漂着したペットボトルの製造国別割合」によると、対馬では国内が16%、韓国が51%、中国が28%、台湾が3%、その他が2%となっており、場所は壱岐と対馬と異なっているが、今回の調査で中国製のペットボトルが増えていることが伺えた。

特に今回の調査では、3地点（勝本地区、芦辺地

区、石田地区)において中国製のペットボトルが韓国製の2倍程度回収されており、今後も中国製の漂着ペットボトルが増えることが懸念される。

また、夏場には中国製のペットボトルが、冬場には韓国製のペットボトルが多く漂着していることから、季節風による影響が考えられたが、図12～13に示すように、冬場は西北西の風が主であることから風の影響は考えられるものの、夏場は北東の風が主であり風の影響というよりも海流の影響が大きいことが伺われた。

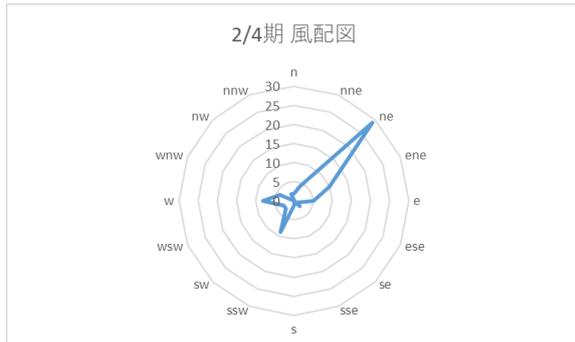


図12 2016.6～9の壱岐(芦辺)の風配図

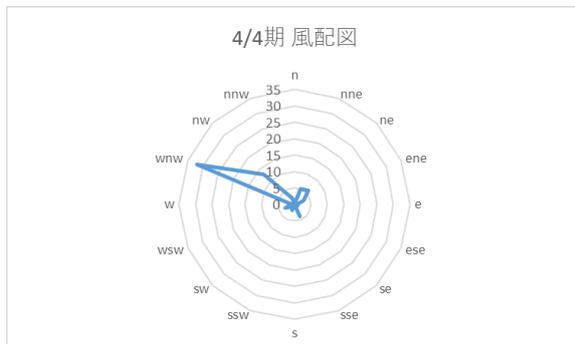


図13 2016.12～2017.2の壱岐(芦辺)の風配図

ま と め

- 1 漂着ごみのペットボトルの製造国別割合では、国内、中国、韓国、台湾の順となっており、国内(島内)におけるごみのポイ捨て防止対策が必要と考えられる。
- 2 外国由来のペットボトルでは、中国製のものが増えてきていると考えられる。
- 3 夏場に中国製のペットボトルが、冬場に韓国製のペットボトルが多く漂着している。
- 4 冬場のペットボトルの漂着は季節風の影響を受けていると考えられるが、夏場の漂着は海流の影響が大きいと考えられる。

謝 辞

ペットボトルの回収や分類に協力いただいた壱岐振興局保健部衛生環境課の関係各位に感謝する。

参考文献

- 1) 環境省平成26年度漂着ごみ対策総合検討業務

エアレーション技術(散気)による環境改善効果(2016年度)

元山芳謹、田中良徳、粕谷智之、山内康生、山口仁士

The environmental restoration effect by the aeration (2016)

Yoshinori MOTOYAMA, Yoshinori TANAKA, Tomoyuki KASUYA,
Yasuo YAMAUCHI, Hitoshi YAMAGUCHI

Key words: Omura Bay, oxygen-deficient water mass, aeration

キーワード: 大村湾、貧酸素水塊、エアレーション

はじめに

大村湾では毎年晩春から夏季にかけて底層水の溶存酸素(DO)濃度が低くなる貧酸素水塊が発生している。そこで、海底に敷設した散気管から空気を送り込むこと(散気)によって、図1のとおり上昇流を誘起し、底層と表層の混合を促すことを目的に、2014年、2015年の2ヵ年、散気効果の検証を実施した。

2014年度の検証結果では、上昇流に呼応するように下降流が生じることにより、散気地点周辺の水深15mのDO濃度を最大0.6~0.7 mg/L程度上昇させることが示唆された。

2015年度は、コンプレッサーの不具合により散気量は2014年度より少なくなり、混合は生じたが、上昇流の影響が表層まで達したか確認できず、十分な混合とまでは至らなかった。

そこで、本年度はコンプレッサー2台による送気を行うこととし、併せて散気地点周辺の調査地点を増やすこと(緯度)

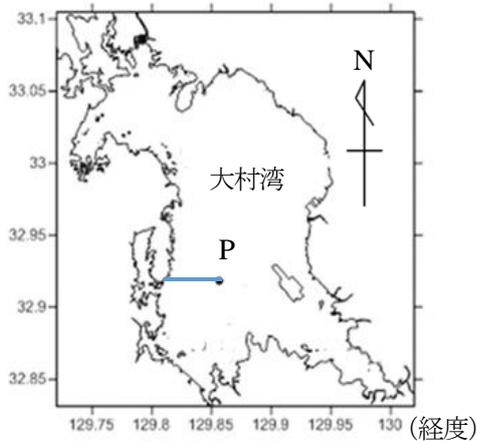


図2 散気管配置図(青線)
P:散気地点

とで、より詳細に底層DOの状況を調べ、上昇流と下降流の状況から散気効果を把握することを目的とする。

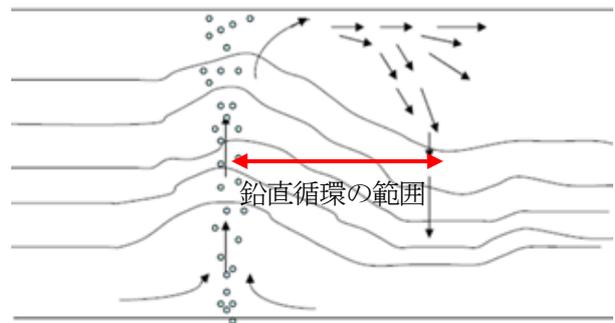


図1 エアリフトによる上昇流と下降流による底層水と表層水の混合(模式図)

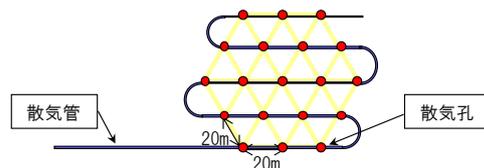


図3 散気地点における散気孔配置平面図

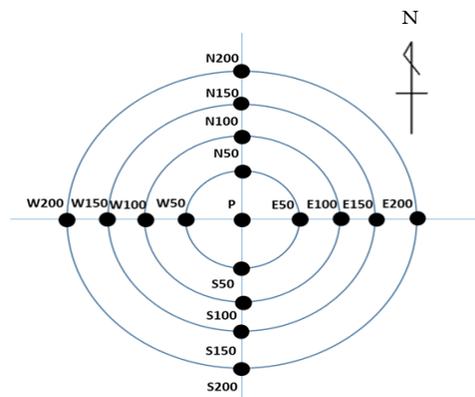


図4 観測地点

調査方法

1 散気施設の概要

2016年度は、2014年度、2015年度と同様に図2に示すとおり大村湾中央部のP(水深約20m)を散気地点とし、長崎市琴海尾戸町又兵衛港から散気地点までの全長約4kmを内径30mmのポリエチレン二層管(以降、散気管)で敷設し、陸上のコンプレッサーから送気した。散気管は漁業の障害とならないように海底下20cmに埋設した。送気には、コンプレッサー(アネスト岩田製TFP110BB-10、定格出力11kW)2台を用いた。散気地点では散気管を設置し、直径4mmの散気孔を19個配置し散気を行った。なお、散気条件は表1のとおりである。

表1 散気条件

	H26	H27	H28
送気量(m ³ /min.)	2.3	0.9	1.7
コンプレッサー稼働台数	2	1	2

2 調査内容

(1) 散気実施期間 2016年5月26日～9月9日

(2) 観測日

第1期観測(貧酸素発生初期)

5月26日、5月31日、6月3日、6月6日

第2期観測(貧酸素発達期)

8月17日、8月24日(東西方向のみ)、8月26日

(3) 観測地点

散気地点(P)及び散気地点から東西南北にそれぞれ50m、100m、150m、200mの16地点(N200～S200、W200～E200)の計17地点(図4)

表2 等値線の盛り上がりが見られた観測日の南北方向の表層(0m)と底層(19m)の水温差(°C)

年	月日	N200	N150	N100	N50	P	S50	S100	S150	S200	平均	標準偏差
2015	7/24	—	1.6	1.7	—	2.1	—	2.0	2.0	—	1.9	0.2
2016	6/3	4.3	4.4	4.2	3.8	3.8	4.1	3.5	3.9	4.6	4.1	0.3
	6/6	4.8	4.8	4.7	4.7	4.7	4.7	4.8	4.7	4.5	4.7	0.1
	8/17	8.8	8.9	7.8	8.3	7.9	7.4	8.1	8.2	8.5	8.2	0.5
	8/24	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—

表3 等値線の盛り上がりが見られた観測日の東西方向の表層(0m)と底層(19m)の水温差(°C)

年	月日	W200	W150	W100	W50	P	E50	E100	E150	E200	平均	標準偏差
2015	7/24	—	2.0	2.0	—	2.1	—	2.2	2.2	—	2.1	0.1
2016	6/3	4.2	4.8	4.4	3.8	3.8	4.4	4.7	4.4	3.9	4.3	0.4
	6/6	4.7	4.8	4.7	4.7	4.7	4.6	4.7	4.8	4.8	4.7	0.1
	8/17	7.3	7.6	6.9	6.8	7.9	7.0	7.0	7.3	8.1	7.3	0.4
	8/24	6.1	5.9	5.4	5.7	5.9	6.3	5.9	6.3	6.3	6.0	0.3

(4) 観測方法

多項目水質計(JFEアドバンテック株製AAQ-RINKO(AAQ171))を用いて水温、塩分、密度、DOを測定した。

結果

多項目水質計にて測定したDO濃度(mg/L)の鉛直断面図を図5、図6に示す。2016年6月3日、6月6日、8月17日、8月24日において、散気地点で上昇流による等値線の上方向への盛り上がりが見られ、特に8月17日は顕著であり、上昇流により底層が表層まで達していることが確認できた。

また、調査時の成層の強弱について、表層と底層の水温差をみると、表2、表3に示すとおり、2016年8月17日は、他と比べ強い成層が形成していた。2015年度の観測では成層が弱い状態であった7月24日の調査においてのみ上昇流が確認された。一方、2016年度観測では、成層が強かった8月17日においても、強い上昇流が生じ、表層部まで混合されていたことが確認された。これは送気量を1.7m³/min.と増大させたことによるものと考えられる。

散気による鉛直循環の範囲は、図1、図5、及び図6のとおり散気地点から50m～100m程度と推測され、2014年度、2015年度とはほぼ同様であった。

まとめ

- 1 上昇流が確認され、鉛直混合している。
- 2 コンプレッサーの送気量を上げると、強い成層形成時期(8/17)においても上昇流が表層部まで到達していた。
- 3 鉛直循環の範囲は散気中心から 50 m から 100 m 程度の範囲であった。

参考文献

- 1)長崎県:第2期大村湾環境保全・活性化行動計画(2009年3月)
- 2)田中良徳 他:大村湾における夏季貧酸素水塊観測結果について(2013年度),長崎県環境保健研究センター所報 **59**, 77~79, (2013)
- 3)田中良徳 他:エアレーション技術(散気)による環境改善効果の検証(2014年度),長崎県環境保健研究センター所報 **60**, 100~104, (2014)
- 4) 田中良徳 他:エアレーション技術(散気)による環境改善効果の検証(2015年度),長崎県環境保健研究センター所報 **61**, 88~92, (2015)

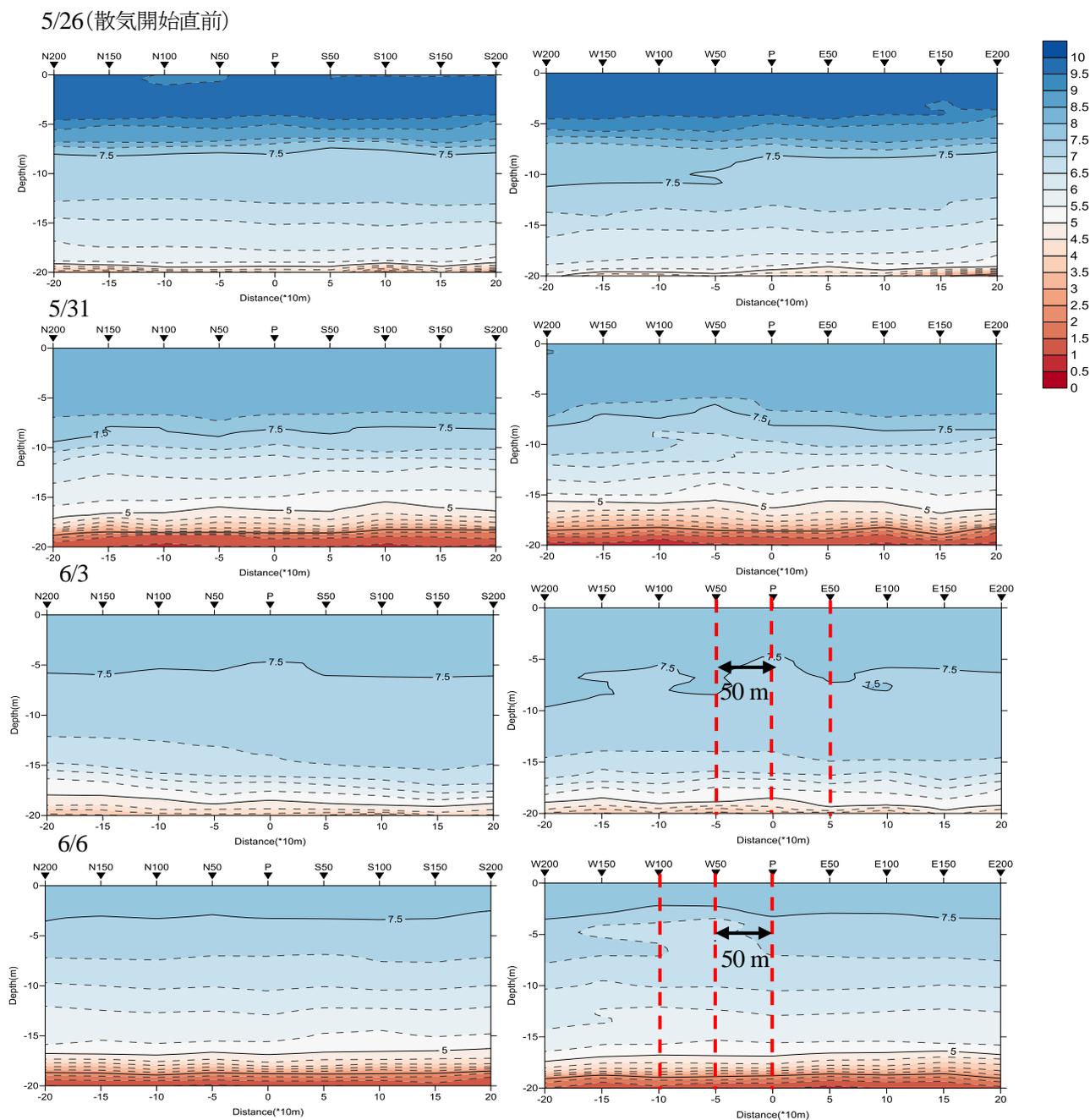


図5 DO(mg/L)の鉛直断面図(左:南北方向、右:東西方向)

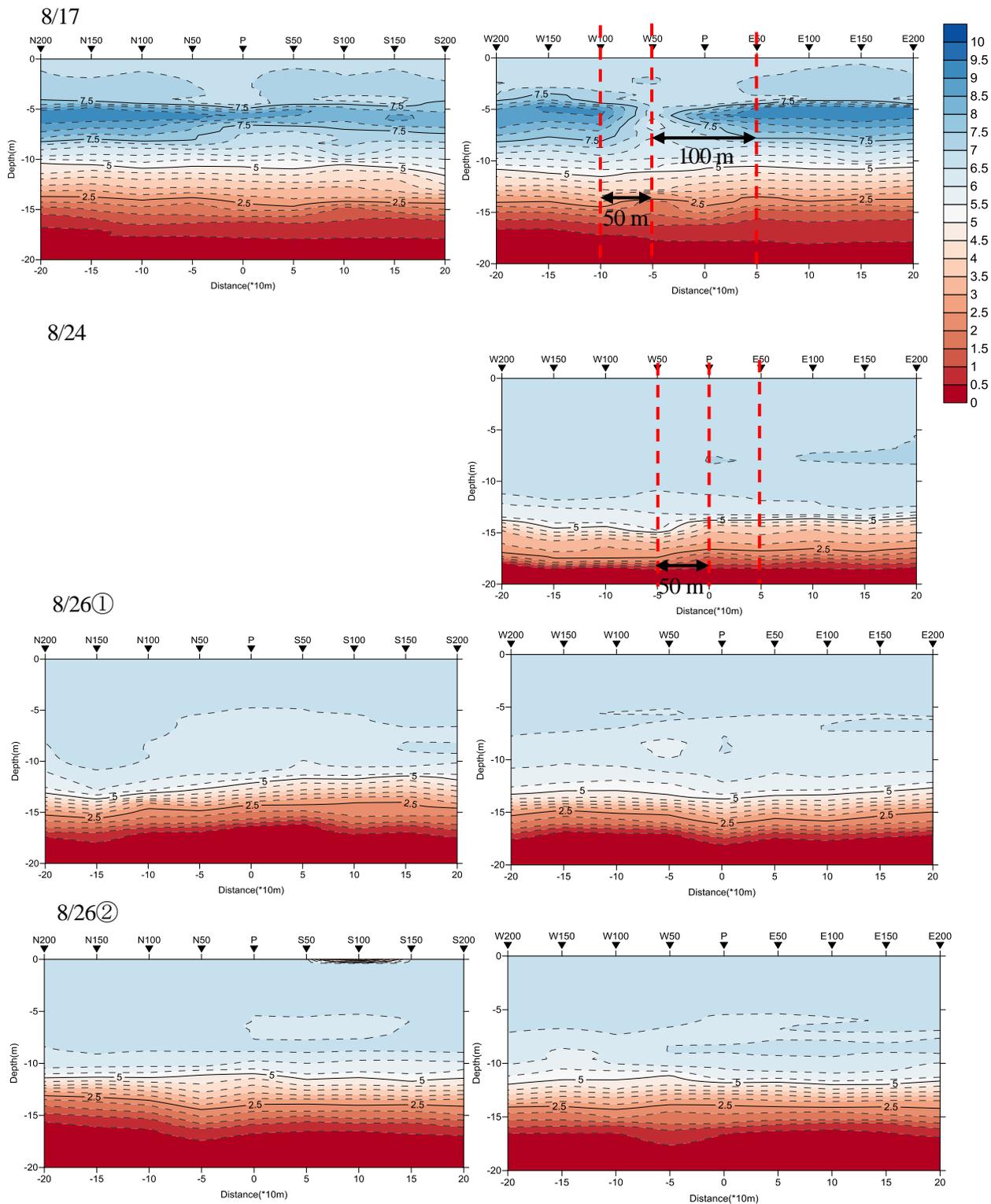


図6 DO(mg/L)の鉛直断面図(左:南北方向、右:東西方向)

ツシマヤマネコの糞等の DNA 分析(2016 年度)

林田 彩、斎藤 佳子、吉川 亮

Fecal and Tissue DNA Analysis of Tsushima leopard cats (2016)

Aya HAYASHIDA, Yoshiko SAITO and Akira YOSHIKAWA

Key words: Tsushima leopard cats, fecal DNA analysis, Identification of species and sex, Microsatellite, Diversity

キーワード: ツシマヤマネコ、糞の DNA 分析、動物種と雌雄の判別、マイクロサテライト、多様性

はじめに

ツシマヤマネコは、対馬にのみ生息する野生のネコで、その生息数は減少傾向にあり 1994 年に絶滅のおそれのある野生動植物の種の保存に関する法律に基づく国内希少野生動植物種に指定された。1995 年にはツシマヤマネコ保護増殖事業計画が策定され、ツシマヤマネコが自然状態で安定的に存続できる状態になることを目指し、様々な取り組みが行われている。当センターでは、2006 年度から、環境省からの委託を受けて、痕跡調査で採取された糞等の DNA 分析を行っている。

今回は、2016 年度に実施した糞等の DNA 分析結果について報告する。

調査方法

1 材料

(1) 動物種の判別

痕跡調査において、ツシマヤマネコのものである可能性が高いとして採取された糞のうち、196 検体を被検材料とした。

(2) 雌雄の判別

動物種の判別を実施した検体のうち、ツシマヤマネコの DNA が検出された糞(動物種の判別に使用した DNA) 155 検体を被検材料とした。

(3) 個体識別

動物種の判別を実施した検体のうち、ツシマヤマネコの DNA が検出された糞(動物種の判別に使用した DNA)、過去に死亡した個体の筋肉及び保護個体の糞と血餅のうち、70 検体を被検材料とした。

(4) 鶏咬傷事故にかかる動物種の判別

鶏咬傷事故 4 件について、鶏を襲った動物種を明らかにするため、咬傷部位を含む鶏の組織片を被検材料とした。

2 方法

ツシマヤマネコの糞等の DNA 分析(2005-2015)¹⁾ に準じて行った。

調査結果

1 動物種の判別結果

分析結果を表 1 に示す。196 検体を分析した結果、190 検体について動物種を判別することができた(判別率 97%)。その内訳は、ツシマヤマネコが 154 検体、ツシマヤマネコとテン両方が検出されたものが 1 検体、テンが 19 検体、イエネコが 16 検体であった。

2 雌雄の判別結果

分析結果を表 2 に示す。155 検体を分析した結果、85 検体について雌雄を判別することができた(判別率 55%)。その内訳は雄が 48 検体、雌が 37 検体であった。

3 個体識別結果

70 検体を分析した結果、60 検体(86%)で遺伝子座を概ね決定することができ、57 個体が識別できた。

4 鶏咬傷事故にかかる動物種の判別結果

1 件についてはイヌと判別できた。残り 3 件については動物種の判別はできなかった。

表 1 動物種の判別結果(2016 年度)

動物種	検体数
ツシマヤマネコ	154
ツシマヤマネコとテン	1
テン	19
イエネコ	16
イタチ	0
イヌ	0
不明	6
計	196

表 2 雄雌の判別結果(2016 年度)

性別	検体数
雄	48
雌	37
不明	70
計	155

参 考 文 献

- 1) 吉川 亮, 他:ツシマヤマネコの糞等の DNA 分析 (2005-2015), 長崎県環境保健研究センター所報, 62, 133~138(2016)

ツシマヤマネコの糞等の DNA 分析 (2005-2015)

吉川 亮、斎藤 佳子、三浦 佳奈

Fecal and Tissue DNA Analysis of Tsushima leopard cats (2005-2015)

Akira YOSHIKAWA, Yoshiko SAITO and Kana MIURA

Key words : Tsushima leopard cats, fecal DNA analysis, Identification of species and sex, Microsatellite, Diversity

キーワード : ツシマヤマネコ、糞のDNA分析、動物種と雌雄の判別、マイクロサテライト、多様性

はじめに

ツシマヤマネコ (学名: *Prionailurus bengalensis euptilurus*) は、対馬にのみ生息する野生のネコで、ベンガルヤマネコの亜種とされている¹⁾。ツシマヤマネコの推定生息頭数は、1960年代の調査では250~300頭¹⁾であったが、2010年代前半の調査では70頭又は100頭¹⁾で、環境省レッドリストでは絶滅危惧IA類(ごく近い将来における野生での絶滅の危険性が極めて高いもの)に選定されている。ツシマヤマネコの生息阻害要因としては、環境変化による生息地の減少、交通事故、錯誤捕獲、イヌによる咬傷、イエネコ由来の感染症などが挙げられている¹⁾。

ツシマヤマネコは1994年に絶滅のおそれのある野生動植物の種の保存に関する法律に基づく国内希少野生動植物種に指定された。1995年にはツシマヤマネコ保護増殖事業計画が策定され、ツシマヤマネコが自然状態で安定的に存続できる状態になることを目指し、生息調査、生息環境の改善、飼育下での繁殖、普及啓発など様々な取り組みが行われている¹⁾(表1)。

長崎県は、環境省からの委託を受けてツシマヤマネコの生息状況の動向を的確に把握するための痕跡調査を行っている。痕跡調査は、あらかじめ設定した調査ルート(60ルート程度)をおよそ1ヶ月に1回踏査し、ツシマヤマネコの痕跡(主に糞)を調査するものである。糞がツシマヤマネコのものであるかどうかは、糞の大きさや内容物により判断しているが、より信頼性の高い生息情報とするため、発見された糞の一部についてはDNA

分析を行い、ツシマヤマネコの糞であるかを確認している。さらに、ツシマヤマネコの糞であると判別されたものについては、性判別を実施している。

このような糞のDNA分析による動物種の判別及び性判別は、2002年度から、環境省からの依頼を受け北海道大学が実施していた。2006年度からは、北海道大学から技術的なアドバイスをうけた当センターが、環境省から委託を受けて分析を実施している。さらに、2014年度からは、北海道大学において開発された手法を用いて個体識別も開始しており、今後、データの蓄積が進むことにより、ツシマヤマネコの生息域内での動向や遺伝的關係等について知見が得られることが期待できる。

今回、2006年度(2005年度に採取されたサンプルを含む)から2015年度までに実施した分析結果を取りまとめたので報告する。

表1 ツシマヤマネコ保護の取り組み(環境省)年

1985	生息環境等調査(第一次調査)(~1987年)
1994	国内希少野生動植物種に指定 第二次生息特別調査(第二次調査)(~1996年)
1995	保護増殖事業計画策定
1997	対馬野生生物保護センター開所
2002	生息調査(第三次調査)(~2004年)
2004	再導入基本構想発表
2010	生息調査(第四次調査)(~2012年)
2013	ツシマヤマネコ野生順化ステーション開所

調査方法

1 動物種の判別

(1) 材料

環境省からの委託を受けて分析を行うことになった2005年から2015年3月までに環境省対馬野生生物保護センターおよび対馬振興局から当センターへ送付された糞サンプル計2,039検体(年度別のサンプル数は表2参照)を被検材料とした。

(2) 方法

ミトコンドリア DNA の cytochrome b 遺伝子をターゲットとした primer sets によりツシマヤマネコ (FE1、FE2)、イエネコ (FC1、FC2)、テン (MM1、MM2)、イタチ (MS1、MS2) およびイヌ (Dog) の特異的遺伝子を増幅する PCR を用いた Kurose らの報告²⁾に準じて行った。

分析にあたって、使用機器および試薬等が異なるため、PCR のアニーリング温度の検討を行った結果、各 primer sets のアニーリング温度は FE1、FE2、FC1、MS1、MM1 および MM2 で 58 °C、MS2 で 52 °C、Dog で 55 °C が特異性、収量の観点から最適と判断した(図1)。また、FC2 は、他の動物種の DNA でも増幅産物が確認されるため、当センターでは使用しないこととした。

(3) 判定

各検体で、すべての primer sets について PCR をかけた後、電気泳動にて増幅産物が確認できた primer sets を陽性とし、糞をした動物種と判別した。

PCR は検体ごとに 3~5 回繰り返し分析を行い、コンタミネーションがないこと、および再現性があることを確認した。すべての動物種で遺伝子が検出されなかった場合は、再度 DNA を抽出し、再分析を行った。また、複数の動物種の DNA が検出される場合は、再分析もしくは DNA を再抽出するなどによりコンタミネーションがないことを確認した。再分析後も複数の動物種が検出された場合は、両方の動物種の糞と判別した。

特にテンは、他の動物の糞上に糞をすることが知られており、このような検体を数例分析した結果、2種類の動物種(テンとツシマヤマネコなど)が検出されたことから複数の動物種が検出される可能性があることが判明した。

2 雌雄の判別

(1) 材料

動物種を決定後、ツシマヤマネコの DNA が検出

された糞サンプル(動物種の判別に使用した DNA)を用いた(年度別のサンプル数は表3参照)。

(2) 方法

核 DNA をターゲットとした primer sets (XY-1、XY-2)により X 染色体および Y 染色体の特異的 DNA 領域を増幅する Semi-Nested PCR を用いた北海道大学の増田教授らの分析方法に準じて行った。

分析にあたって、使用機器および試薬等が異なるため、PCR のアニーリング温度の検討を行った結果、両 primer sets のアニーリング温度は 55 °C が特異性、収量の観点から最適と判断した(図2)。

(3) 判定

各検体で、Semi-Nested PCR をかけた後、電気泳動にて増幅産物が確認できた場合を陽性とし、増幅産物の大きさ等から雌雄を判別した。また、シークエンサーを活用し、増幅産物の塩基配列を決定した後、BLAST 検索により X 染色体および Y 染色体上の DNA であることを確認し、雌雄を判別することも併用した。判定が困難な場合は、再度 DNA を抽出し、再分析を行った。

PCR は検体ごとに 3~10 回繰り返し分析を行い、コンタミネーションがないこと、および再現性があることを確認した。

3 個体識別

(1) 材料

環境省からの委託を受けて分析を行うことになった2014年に対馬市役所にて採取された21検体および下島、舟志地区周辺で採取された29検体の計50検体の糞サンプル、2015年に対馬市役所にて採取された23検体および下島、舟志地区周辺で採取された27検体の計50検体の糞サンプルとした。

(2) 方法

ツシマヤマネコの集団の多様性をみるために Menotti-Raymond & O'Brien³⁾によって報告された Microsatellite をマーカーにしてその遺伝子型を決定した。

(3) 判定

設定した遺伝子座を可能な限り決定し(3~10 回程繰り返し分析を行い、再現性のある結果のみを採用)、各遺伝子座のアリルの組み合わせにより個体識別を行うこととしているが、現状では、サンプル数が少なく、限られた地域のみでの調査であることから、データの蓄積を主眼において実施した。

< primer sets > ツシマヤマネコ (FE1、FE2)、イエネコ (FC1)、イタチ (MS1、MS2)、テン (MM1、MM2)、イヌ (Dog)

< PCR products (bp) > FE1:316、FE2:230、FC1:212、MS1・MM1:317、MS2・MM2:328、Dog:258

< 組成 >

	volume	final conc.
10× EX Taq Buffer	2.0 μL	
dNTP mixture (2.5 mM each)	1.6 μL	
Forward primer (25 μM)	0.2 μL	0.25 μM
Reverse primer (25 μM)	0.2 μL	0.25 μM
BSA (20mg/ml)	0.4 μL	
DW (DNase/RNase free)	14.0 μL	
TaKaRa EX Taq HS	0.1 μL	
extract DNA	1.5 μL	
total	20 μL	

< 反応条件 >

temp.	time	cycles
94°C	3 min.	1
94°C	30 sec.	35
58°C	30 sec.	
72°C	1 min.	
72°C	10 min.	1
4°C	∞	1

*:MS2 (52 °C)、Dog (55 °C)

図 1 動物種の判別

① 1次増幅反応 (1st PCR) < primer set > XY-1

< 組成 >

	volume	final conc.
10× EX Taq Buffer	2.0 μL	
dNTP mixture (2.5 mM each)	1.6 μL	
Forward primer (25 μM)	0.2 μL	0.25 μM
Reverse primer (25 μM)	0.2 μL	0.25 μM
BSA (20mg/ml)	0.4 μL	
DW (DNase/RNase free)	10.5 μL	
TaKaRa EX Taq HS	0.1 μL	
extract DNA	5.0 μL	
Total	20 μL	

< 反応条件 >

temp.	time	cycles
94°C	3 min.	1
94°C	30 sec.	45
55°C	30 sec.	
72°C	1 min.	
72°C	10 min.	1
4°C	∞	1

② 2次増幅反応 (2nd PCR) < primer set > XY-2

< 組成 >

	volume	final conc.
10× EX Taq Buffer	2.0 μL	
dNTP mixture (2.5 mM each)	1.6 μL	
Forward primer (25μM)	0.2 μL	0.25 μM
Reverse primer (25μM)	0.2 μL	0.25 μM
DW (DNase/RNase free)	14.4 μL	
TaKaRa EX Taq HS	0.1 μL	
1 st PCR products	1.5 μL	
total	20 μL	

< 反応条件 >

temp.	time	cycles
94°C	3 min.	1
94°C	30 sec.	30
55°C	30 sec.	
72°C	1 min.	
72°C	10 min.	1
4°C	∞	1

図 2 雌雄の判別

表 2 糞の DNA 分析結果 (2005~2015 年)

	2005	2006	2007	2008	2009	2010	2011	2012	2013	2014	2015	total
ヤマネコ	7 31.8%	81 52.9%	56 37.3%	87 60.8%	80 39.4%	60 39.7%	248 68.7%	234 64.6%	63 75.0%	118 69.8%	175 72.6%	1,209 59.3%
ヤマネコ イエネコ	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
ヤマネコ イタチ	0	0	2 1.3%	0	0	0	0	0	0	0	0	2 0.1%
ヤマネコ テン	0	0	2 1.3%	2 1.4%	0	1 0.7%	11 3.0%	8 2.2%	2 2.4%	5 3.0%	4 1.7%	35 1.7%
ヤマネコ イヌ	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
イエネコ	9 40.9%	18 11.8%	17 11.3%	20 14.0%	30 14.8%	15 9.9%	47 13.0%	64 17.7%	3 3.6%	4 2.4%	9 3.7%	236 11.6%
イエネコ テン	0	0	0	1 0.7%	1 0.5%	2 1.3%	3 0.8%	0	0	0	0	7 0.3%
イタチ	0	2 1.3%	1 0.7%	1 0.7%	4 2.0%	2 1.3%	0	0	0	2 1.2%	0	12 0.6%
テン	1 4.5%	32 20.9%	65 43.3%	30 21.0%	74 36.5%	57 37.7%	24 6.6%	29 8.0%	12 14.3%	34 20.1%	44 18.3%	402 19.7%
テン イヌ	0	0	0	0	1 0.5%	0	0	0	0	1 0.6%	0	2 0.1%
イヌ	0	0	0	0	7 3.4%	11 7.3%	6 1.7%	15 4.1%	1 1.2%	3 1.8%	4 1.7%	47 2.3%
不明	5 22.7%	20 13.1%	7 4.7%	2 1.4%	6 3.0%	3 2.0%	22 6.1%	12 3.3%	3 3.6%	2 1.2%	5 2.1%	87 4.3%
total	22 100%	153 100%	150 100%	143 100%	203 100%	151 100%	361 100%	362 100%	84 100%	169 100%	241 100%	2,039 100%
種判別率	17/22 =77.3%	133/153 =86.9%	143/150 =95.3%	141/143 =98.6%	197/203 =97.0%	148/151 =98.0%	339/361 =93.9%	350/362 =96.7%	81/84 =96.4%	167/169 =98.8%	236/241 =97.9%	1,952/2,039 =95.7%

表3 DNA分析による性判別の結果(2005~2015年)

	2005	2006	2007	2008	2009	2010	2011	2012	2013	2014	2015	total
♂	5 71.4%	20 24.7%	22 36.7%	14 15.7%	13 16.3%	6 9.8%	35 13.5%	31 12.8%	13 20.0%	41 33.3%	51 28.5%	251 20.1%
♀	1 14.3%	9 11.1%	7 11.6%	24 27.0%	15 18.7%	11 18.0%	32 12.4%	52 21.5%	24 36.9%	34 27.6%	44 24.6%	253 20.3%
不明	1 14.3%	52 64.2%	31 51.7%	51 57.3%	52 65.0%	44 72.1%	192 74.1%	159 65.7%	28 43.1%	48 39.0%	84 46.9%	742 59.6%
total	7 100%	81 100%	60 100%	89 100%	80 100%	61 100%	259 100%	242 100%	65 100%	123 100%	179 100%	1246 100%
性判別率	6/7 =85.7%	29/81 =35.8%	29/60 =48.3%	38/89 =42.7%	28/80 =35.0%	17/61 =27.9%	67/259 =25.9%	83/242 =34.3%	37/65 =56.9%	75/123 =61.0%	95/179 =53.1%	504/1,246 =40.4%

4 交通事故および咬傷事故等のDNA分析

(1) 材料

2011年からは交通事故被害動物(動物種不明)1検体および咬傷部位が確認されたツシマヤマネコの死亡個体10事例49検体(年度別の詳細は表4参照)について、交通事故の場合は、被害動物がツシマヤマネコであるかどうかを、咬傷事故の場合は、咬傷相手の動物種を明らかにするために、環境省からの委託を受けてDNA分析を行った。

交通事故の場合は、被害動物の組織片を、咬傷事故の場合は、咬傷部位を含むツシマヤマネコの組織片や口腔内残毛等を被検サンプルとした。

(2) 方法

交通事故被害動物の組織片及び咬傷部位を含むツシマヤマネコの組織片等より抽出したDNAを用いて、動物種の判別に使用したprimer setsにより動物種の判別を行った。咬傷事故の場合、可能な限り多くの被検サンプルを用いてDNA分析を行った。

(3) 判定

動物種の判別と同様に行い、交通事故では、検出した動物種を交通事故にあった動物とし、咬傷事故の場合は、ヤマネコ以外の動物が検出された場合は、その動物を咬傷相手の動物種と特定し、検出されない場合は不明とした。

表4 交通事故および咬傷事故におけるDNA分析結果(2011~2015年)

	2011	2012	2013	2014	2015	Total
咬傷事故	事例1	イヌ 6	不明 3	イエネコ 5	イエネコ 2	49
	事例2	イエネコ 2	イエネコ 2			
	事例3	不明 2	テン 15			
	事例4	イエネコ 6	テン 6			
交通事故	事例1	イエネコ 1				1
total	17	26	5	2	0	50

調査結果及び考察

1 動物種の判別結果

過去11年間(2005~2015年)の分析結果を表2に示す。

DNA分析を開始した当初、動物種を特定できた割合(動物種の判別率)は77.3%であったが、年々改善され、2007年以降は95%前後の判別率となった。

判別率向上の理由としては、DNA分析に従事する職員の技術向上、分析方法の改善ならびに平準化(マニュアル化)および多検体処理方法の確立などが考えら

れた。

送付されたサンプルがツシマヤマネコだった割合は、採取年によりバラツキがあるが、ここ数年は70%前後であった。

このバラツキの原因については、サンプル採取者の交代、分析サンプルの選定方針など種々の要因が考えられ、特定の要因のみではなく、複数の要因の積み重なった結果と考えられた。

2 雌雄の判別結果

過去11年間(2005~2015年)の分析結果を表3に

示す。

北海道大学では、3~4 割程度の雌雄判別率であり、当センターも同様(40.4%)の結果であった。

2013 年以降は、判別率が 50%を超えており、繰り返し分析を行ったことと、シーケンサーを併用した成果と考えられる。

3 個体識別結果

Microsatellite による個体識別は、痕跡調査で得られたサンプルであるため DNA の状態が悪いものも含まれ、判定の難しさがあるものの、当センターでも対応可能であった。

2014 年は 50 検体中 47 検体(94%)、2015 年は 50 検体中 44 検体(88%)について、概ね遺伝子座を決定することができた。

現在、環境省対馬野生生物保護センターにて当該分析結果の蓄積、整理を行っている。

4 交通事故および咬傷事故等の DNA 分析結果

過去 5 年間(2011~2015 年)の分析結果を表 4 に示す。

交通事故のサンプルは、イエネコであった。

咬傷事故 10 事例のうち 8 事例で咬傷相手が特定できた。内訳は、イエネコが 5 事例、テンが 2 事例およびイヌが 1 事例であった。

まとめ

- 1 2,039 サンプルを分析した結果、1,952 サンプルについて動物種を判別できた(判別率 95.7%)。
- 2 ツシマヤマネコと判別されたサンプルは、1,209 サンプル(59.3%)であった。他の動物と併せて判別されたサンプルを合わせると 1,246 サンプル(61.1%)であった。
- 3 動物種の判別によりツシマヤマネコと判明した 1,246 サンプルのうち 504(オス:251、メス:253)サンプルについて雌雄判別ができた(40.4%)。
- 4 近年、分析方法の改善により雌雄判別の割合が 50%を超えている。
- 5 当センターでも Microsatellite による個体識別は、実施可能であった。
- 6 2014~2015 年の 2 年間で実施した個体識別において、100 検体中 91 検体(91%)で遺伝子座を概ね決定できた。
- 7 糞の DNA 分析を応用した咬傷部組織片等の動物種判別は、概ね分析可能であった。

謝辞

ツシマヤマネコの糞の DNA 分析に関して、技術的アドバイスをくれた北海道大学大学院理学研究院生物科学部門多様性生物学分野の増田隆一教授ならびに研究室の皆様に深謝いたします。

参考文献

- 1) 対馬野生生物保護センターホームページ
- 2) Kurose N., Masuda R. and Tataru M.: Fecal DNA Analysis for Identifying Species and Sex of Sympatric Carnivores: A Noninvasive Method for Conservation on the Tsushima Islands, Japan, *Journal of Heredity*, 96 (6), 688-697, (2005)
- 3) Menotti-Raymond M.A. and O'Brien S.J.: Evolutionary Conservation of Ten Microsatellite Loci in Four Species of Felidae. *Journal of Heredity*, 86 (4), 319-322, (1995)

農産物中の残留農薬の検査結果 (2016 年度)

吉村 裕紀、本村 秀章

Survey of Pesticide Residues in Agricultural Products (2016)

Hiroki YOSHIMURA and Hideaki MOTOMURA

Key words: Pesticide residues, Simultaneous determination, Agricultural products

キーワード: 残留農薬、一斉分析、農産物

はじめに

長崎県食品衛生監視指導計画に基づき、県内で流通する農産物中の残留農薬検査を実施した。

調査方法

1 試料及び試薬

表 1 に示す 75 試料について検査を行った。

農薬標準溶液は、関東化学製農薬混合標準溶液 48、53、54、58、61、63 及び 70 を使用した。試薬に関しては、超純水及びメタノールは関東化学製の LC/MS 用、試料の前処理に用いたアセトニトリル、アセトン、ヘキサン及びトルエンは関東化学製の残留農薬試験・PCB 試験用(5000 倍濃縮)、その他の試薬は残留農薬分析用又は特級を用いた。検体の前処理における精製には、スペルコ製 ENVI-Carb/LCNH2 (500 mg/500 mg、6 mL)を用いた。

2 検査対象農薬

検査対象農薬は、表 2 に示す 200 農薬とした。なお、表中の番号 1 から 170 はガスクロマトグラフタンデム質量分析法(GC/MS/MS)対象、171 から 200 は液体クロマトグラフタンデム質量分析法(LC/MS/MS)対象農薬とした。

3 装置及び測定条件

(1) GC/MS/MS

バリアン・テクノロジー・ジャパン・リミテッド(現ブルカーダルトニクス)製 450GC/300MS を使用した。

(2) LC/MS/MS

LC 部は島津製作所製 LC-10ADvp システム、MS/MS 部はエービーサイエックス製 API2000 を使用した。

4 分析方法

分析は、厚生労働省通知¹⁾「GC/MS による農薬等の一斉分析法(農産物)」及び「LC/MS による農薬等の一斉分析法 I(農産物)」に準じて行った。

検査結果

2016 年度における残留農薬検査の結果(表 3)、全 75 検体のうち 25 検体から報告下限値(0.01 ppm)以上の農薬が検出されたが、いずれも残留基準値以下であった。

参考文献

- 1) 厚生労働省医薬食品局食品安全部長通知“食品に残留する農薬、飼料添加物又は動物用医薬品の成分である物質の試験法について(一部改正)”平成 17 年 11 月 29 日、食安発第 1129002 号

表 1 検査対象農産物

区分	農作物名	検体数	区分	農作物名	検体数	
県内産	かぼちゃ	1	県外産	かぼちゃ	1	
	きゅうり	7		キャベツ	1	
	さつまいも	2		トマト	1	
	じゃがいも	8		にんじん	2	
	スイートスプリング	2		みずな	1	
	だいこん	1		輸入品	オレンジ	3
	トマト	1	グレープフルーツ		1	
	なし	2	セロリ		1	
	なす	4	ダブルマーコット		1	
	にがうり	1	バナナ		6	
	にんじん	5	りんご		1	
	はっさく	1	輸入加工品		アスパラガス	1
	ぼんかん	1			いちご	1
	みかん	7			いんげん	1
	野菜うり	1			えだまめ	2
	りんご	1		さといも	5	
			ブロッコリー	1		

表2 検査対象農薬

No.	農薬名	No.	農薬名	No.	農薬名	No.	農薬名
1	EPN	51	シマジン	101	ピンクロゾリン	151	ベンコナゾール
2	XMC	52	ジメタトリン	102	フェナミホス	152	ベンディメタリン
3	アクリナトリン	53	ジメチルピホス	103	フェナリモル	153	ベンフルラリン
4	アザコナゾール	54	ジメエート	104	フェニトロチオン	154	ベンフレセート
5	アジンホスメチル	55	シトリン	105	フェノキサニル	155	ホサロン
6	アトラジン	56	ジメピペレート	106	フェノチオカルブ	156	ホスファミン
7	アニコホス	57	シラフルオフェン	107	フェトリン	157	ホスメット
8	アトリン	58	スピロキサミン	108	フェンアミト	158	ホレート
9	イソキサチオン	59	ターバシル	109	フェンスルホチオン	159	マラチオン
10	イソフェンホス	60	ダイアジノン	110	フェントエート	160	ミクロブタニル
11	イソフェンホスオキソン	61	チオベンカルブ	111	フェンハレレート	161	メタラキシル
12	イソプロカルブ	62	チフルサミド	112	フェンブコナゾール	162	メチオカルブ
13	イソプロチオラン	63	テトラクロロピホス	113	フェンプロハトリン	163	メチダチオン
14	イプロベンホス	64	テニルクロール	114	フェンプロピモルフ	164	メキシクロール
15	ウニコナゾール P	65	テブコナゾール	115	フサライド	165	メブレン
16	エスプロカルブ	66	テブフェンピラト	116	ブタミホス	166	メトラクロール
17	エタルフルラリン	67	テフルトリン	117	ブピリメート	167	メフェナセツ
18	エチオン	68	テメソ-S-メチル	118	ブプロフェジン	168	メフェンピルジエチル
19	エディフェンホス	69	テルタトリン	119	フラムプロップメチル	169	モノクロトホス
20	エトキサゾール	70	テルブトリン	120	フルアクリピリム	170	レナシル
21	エトフェンブロックス	71	トリアジメノール	121	フルキンコナゾール	171	アゾキシストロビン
22	エトフメセート	72	トリアジメホ	122	フルジメオキソニル	172	アラマイト
23	エトプロホス	73	トリアレート	123	フルジトリネート	173	イプロバリカルブ
24	エトムホス	74	トリシクラゾール	124	フルシラゾール	174	イマザリル
25	オキサジアゾン	75	トリフルラリン	125	フルトラニル	175	エボキシコナゾール
26	オキサジキシル	76	トリフロキシストロビン	126	フルトリアホル	176	オキサジクロメホ
27	オキシフルオルフェン	77	トルフェンピラト	127	フルハリネート	177	オキシカルボキシ
28	カルフェントラジンエチル	78	ナプロパミド	128	フルミオキサジン	178	カルボフラン
29	キナルホス	79	ニトロタールイソプロピル	129	プレチラクロール	179	クロチアニジン
30	キノキシフェン	80	ノルフルラジン	130	プロシミト	180	クロマフェノジト
31	キノクラミン	81	パクロブトラゾール	131	プロチオホス	181	クロロクソロン
32	キノメチオナート	82	パラチオン	132	プロパクロール	182	ジウロン
33	キントゼン	83	パラチオンメチル	133	プロハジン	183	シフルフェナミド
34	クレソキシムメチル	84	ハルフェンブロックス	134	プロハニル	184	シメコナゾール
35	クロマジン	85	ピコリナフェン	135	プロハルギット	185	ジメトモルフ
36	クロルピリホス	86	ピテルタノール	136	プロピコナゾール	186	チアクロプリト
37	クロルフェンピホス	87	ピフェノックス	137	プロピサミド	187	チアベンダゾール
38	クロルブファム	88	ピフェントリン	138	プロピトロシキスモン	188	テブフェノジト
39	クロロベンジレート	89	ピペロホス	139	プロフェノホス	189	トリデモルフ
40	シアノホス	90	ピラクロホス	140	プロホキスル	190	ピラクロストロビン
41	ジエトフェンカルブ	91	ピラゾホス	141	プロマシル	191	フェンメディファム
42	ジクロシメット	92	ピリダフェンチオン	142	プロメトリン	192	フラチオカルブ
43	ジクロフェンチオン	93	ピリダベン	143	プロモフチド	193	フラトピル
44	ジクロホップメチル	94	ピリフェノックス	144	プロモプロピレート	194	フルリト
45	ジクロラン	95	ピリプチカルブ	145	プロモホスメチル	195	ヘキシチアゾクス
46	シハロホップチル	96	ピリプロキシフェン	146	ヘキサコナゾール	196	ホスカリド
47	ジフェナミド	97	ピリミノバックメチル	147	ヘキサジン	197	メミル
48	ジフェノコナゾール	98	ピリホスメチル	148	ヘナラキシル	198	メタヘンズチアズロン
49	ジフルフェニカン	99	ピリメタニル	149	ヘノキサコール	199	メキシフェノジト
50	シプロコナゾール	100	ピロキロン	150	ヘルメトリン	200	メハニピリム

表3 残留農薬検査結果

農産物名	検出数/検体数	区分	検出農薬	検出値 ppm	分析値 ppm	基準値 ppm
いんげん	1/1	輸入加工品	アゾキシストロビン	0.01	0	3
			メソミル	0.12	0	1
オレンジ	3/3	輸入品	クロルピリホス	0.11	0	1
			イマザリル	0.90	0.9	5.0
			チアベンダゾール	0.09	0	10
		輸入品	イマザリル	0.68	0.7	5.0
		輸入品	イマザリル	0.96	1.0	5.0
		チアベンダゾール	0.56	1	10	
かぼちゃ	1/1	県内産	トリフルラリン	0.01	0.01	0.05
キャベツ	1/1	県外産	ボスカリド	0.02	0	5
グレープフルーツ	1/1	輸入品	ピリメタニル	1.01	1	10
			ブプロフェジシ	0.02	0	3
			イマザリル	1.56	1.6	5.0
			チアベンダゾール	0.79	1	10
			ピラクロストロビン	0.02	0	2
			メチダチオン	0.02	0	5
スイートスプリング	1/2	県内産	メチダチオン	0.02	0	5
セロリ	1/1	輸入品	プロピコナゾール	0.01	0	5
			ペルメトリン	0.02	0.0	2.0
ダブルマーコット	1/1	輸入品	フルジオキシニル	0.36	0	10
			アゾキシストロビン	0.52	1	10
			イマザリル	0.86	0.9	5.0
			チアベンダゾール	0.88	1	10
トマト	1/1	県内産	ジエトフェンカルブ	0.02	0	5
	1/1	県外産	ボスカリド	0.31	0	5
なし	2/2	県内産	クレソキシムメチル	0.01	0	5
			ビフェントリン	0.01	0.0	0.5
			ペルメトリン	0.02	0.0	2.0
		県内産	クレソキシムメチル	0.22	0	5
		クロルピリホス	0.10	0.1	1	
		ボスカリド	0.01	0	3	
なす	3/4	県内産	エトフェンプロックス	0.01	0	2
		県内産	クロチアニジン	0.09	0	1
		ピラクロストロビン	0.01	0.0	0.5	
		ボスカリド	0.12	0	3	
		県内産	ペルメトリン	0.01	0.0	1.0
にんじん	2/5	県内産	ボスカリド	0.01	0	2
		県内産	トリフルラリン	0.01	0	1
バナナ	4/6	輸入品	クロルピリホス	0.03	0	3
		輸入品	クロルピリホス	0.01	0	3
		輸入品	ビフェントリン	0.01	0.0	0.1
		輸入品	クロルピリホス	0.03	0	3
		ビフェントリン	0.01	0.0	0.1	
ぼんかん	1/1	県内産	シラフルオフェン	0.05	0	3
			ピリダベン	0.02	0	1
			メチダチオン	0.02	0	5
りんご	1/1	県内産	ピラクロストロビン	0.01	0	1
			ボスカリド	0.01	0	2

食品・陶磁器製食器の一斉収去検査結果(2016年度)

橋田 真幸、吉村 裕紀、本村 秀章

Survey Report of Oxidative Deterioration Degree in Deep-Fried Noodles and Lead Concentrations Released from Ceramic Wares (2016)

Masayuki HASHIDA, Hiroki YOSHIMURA and Hideaki MOTOMURA

Key words: deep-fried noodles, acid value, peroxide value, ceramic ware, lead

キーワード: 揚げ麺、酸価、過酸化値、陶磁器、鉛

はじめに

2016年度食品・添加物の一斉収去検査において、即席めん類の規格基準試験(酸価、過酸化値)および陶磁器製食器からの鉛の溶出試験を行ったので報告する。

調査方法

1 即席めん類(揚げ麺)の規格基準試験(酸価、過酸化値)

県内に流通する揚げ麺のうち、県内産を中心に 24 検体を試料とした。

検査は、試料より石油エーテルで抽出した油脂を用いて行った。抽出した油脂を 0.1 mol/L 水酸化カリウム溶液で滴定して酸価を、同様に 0.01 mol/L チオ硫酸ナトリウム溶液で滴定して過酸化値を求めた¹⁻³⁾。

2 陶磁器製食器の溶出試験(鉛)

県内に流通する陶磁器製食器のうち、県内産 16 検体を試料とした。

検査は、陶磁器に含まれる鉛を暗所で常温の条件下において、4%酢酸溶液で 24 時間溶出した後、原子吸光分析装置(島津製作所株式会社 AA-6200)を用いて、原子吸光光度法により測定した¹⁻³⁾。

規格基準

1 揚げ麺(酸価、過酸化値)

即席めん類の成分規格基準は含有油脂の酸価が 3 以下、または過酸化値が 30 以下である。

2 陶磁器製食器(鉛)

表 1 に示すとおり、陶磁器の深さや容量、用途により異なる。なお、定量下限は 0.5 µg/mL である。

表 1 陶磁器の鉛溶出規格

陶磁器の区分		溶出規格
深さ 2.5 cm 以上	容量 1.1 L 未満	2 µg/mL
	容量 1.1 L 以上 3 L 未満	1 µg/mL
	容量 3 L 以上	0.5 µg/mL
	加熱調理用器具	0.5 µg/mL
深さ 2.5 cm 未満		8 µg/cm ²

検査結果

1 揚げ麺の規格基準試験(酸価、過酸化値)

検査した試料は全て規格基準に適合していた。

2 陶磁器製食器の溶出試験(鉛)

検査した試料は全て規格基準に適合していた。

参考文献

- 1) 食品衛生法(昭和 22 年法律第 233 号)
- 2) 日本食品衛生協会編: 食品衛生検査指針(理化学編) 2015
- 3) 日本薬学会編: 衛生試験法・注解 2015

畜水産食品中の残留動物用医薬品の検査結果(2016年度)

辻村 和也、高木 由美香、田栗 利紹、本村 秀章

Survey Report of Veterinary Drug Residues in Livestock Products and Sea foods (2016)

Kazunari TSUJIMURA, Yumika TAKAGI, Toshitsugu TAGURI
and Hideaki MOTOMURA

Key words: Livestock products and Sea foods, veterinary drug residues, liquid chromatography-tandem mass spectrometry (LC-MS/MS)

キーワード: 畜水産食品、動物用医薬品、高速液体クロマトグラフータンデム質量分析装置(LC-MS/MS)

はじめに

2015年度厚生労働省畜水産食品の残留有害物質モニタリング検査の一環として、県内産の畜水産食品(養殖魚介類、乳、食肉)中の、抗生物質、合成抗菌剤、内寄生虫用剤、農薬の検査を行ったので報告する。

調査方法

1 試料及び試薬

検査に供した試料は、表1に示す。

標準品に関しては、和光純薬工業㈱のものを使用した。

試薬に関しては、アセトニトリル及びメタノールは関東化学㈱製のLC/MS用を、抽出に用いたアセトニトリル。その他は、残留農薬用及び特級品以上のものを使用した。

2 検査項目及び残留基準

検査項目及び残留基準は、表2に示す。

3 検査方法

(1) 抗生物質

1959年12月厚生省告示第370号「食品、添加物等の規格基準」及び1951年12月厚生省令第52号「乳及び乳製品の成分規格等に関する省令」に準じた。

(2) 合成抗菌剤及び内寄生虫用剤

厚生労働省通知試験法 HPLC による動物用医薬品等の一斉試験法Ⅲ(畜水産物)及び文献 4)を参考に、分析法を検討し、「食品中に残留する農薬等に関

する試験法の妥当性評価ガイドラインについて」(2007年11月15日付け食安発第1115001号)及び「食品中に残留する農薬等に関する試験法の妥当性評価ガイドラインの一部改正について」(2010年12月24日付け食安発1224第1号)に従い、試験法の妥当性を評価し、標準操作手順書を作成し、その方法を適用した。

4 分析装置

高速液体クロマトグラフータンデム質量分析装置(LC-MS/MS)

アジレントテクノロジー株式会社製 1290Infinity LC/6460を使用した。

検査結果及び考察

養殖魚介類 31 検体、乳 10 検体の検査を行った。結果、抗生物質、合成抗菌剤、内寄生虫用剤について基準値を超える検体は無かった。

参 考 文 献

- 1) 西川徹、他： LC/MS/MS を用いた動物用医薬品の一斉分析法の検討, 長崎県衛生公害研究所報, **51**, 18-22, (2005)
- 2) 厚生労働省ホームページ： 畜水産食品の残留有害物質モニタリング検査
- 3) 吉田絵美子、他： 加工食品動物用医薬品迅速一斉試験法の検討, 食品衛生学会誌, February, 59-65, (2011)
- 4) 食安発第 1115001 号厚生労働省医薬食品局食品安全部長通知「食品中に残留する農薬等に関する試験法の妥当性評価ガイドラインについて」(2007年11月15日)
- 5) 食安発 1224 第1号厚生労働省医薬食品局食品安全部長通知「食品中に残留する農薬等に関する試験法の妥当性評価ガイドラインの一部改正について」(2010年12月24日)

表1 試 料

搬入機関	養 殖 魚 介 類					乳
	ぶり (はまち)	まだい	ひらめ	トラフグ ^a	車エビ ^b	
西彼保健所	1	1				1
県央保健所						8
県南保健所	3	3		1	1	
県北保健所	1	2	2	5	1	
五島保健所	1	3				1
上五島保健所	2	1				
対馬保健所	2	1				
合 計	10	11	2	6	2	10

表2 検査項目及び残留基準 (単位：ppm)

検査項目	養殖魚介類					乳
	ぶり (はまち)	まだい	ひらめ	トラフグ	車エビ	
(抗生物質)						
テトラサイクリン類	0.2*1	0.2*1	0.2*1	0.2*1	0.2*1	0.1*2
スピラマイシン類*3	0.2	0.2		0.2		0.2
ペンシルペニシリン (合成抗菌剤)						0.004
スルファメラジン	0.01	0.01				
スルファジミジン	0.01	0.01				0.025
スルファモトキシム	0.1	0.1				
スルファジメキシム	0.1	0.1				
スルファキノキサリン	0.01	0.01				
オキシリン酸	0.06	0.06			0.03	
チアンフェニコール	0.02	0.02				
(内寄生虫用剤)						
チアベンタゾール類*4						0.10

*1: 魚介類におけるオキシテトラサイクリンのみの値を記載。

検査においてテトラサイクリン、クルテトラサイクリンに、一律基準 (0.01 ppm) を適用した。

*2: オキシテトラサイクリン、テトラサイクリン、クルテトラサイクリンの和

*3: スピラマイシン、ネオスピラマイシンの和

*4: チアベンタゾール、5-ヒドロキシチアベンタゾールの和

*5: 残留基準の設定されていないものは、一律基準を記載

繊維製品中のホルムアルデヒドの検査結果(2016年度)

大坂 智香子、橋田 真幸、本村 秀章

Survey Report of Formaldehyde in Textile Goods (2016)

Chikako OSAKA, Masayuki HASHIDA and Hideaki MOTOMURA

Key words: formaldehyde, textile goods

キーワード: ホルムアルデヒド、繊維製品

はじめに

例年、「有害物質を含有する家庭用品の規制に関する法律」に基づき県内の各地域において販売されている衣料品等の検査を行なっている。平成 28 年度は杵岐地区において販売されている衣料品等に含まれるホルムアルデヒドの検査を実施したので報告する。

調査方法

1 検体及び試薬

24 月以内の乳幼児用の衣料品 15 検体及びそれ以外のもの 4 検体の計 19 検体の検査を行なった(表 1)。

ホルムアルデヒド標準品は関東化学株式会社製、アセチルアセトン(2,4-ペンタンジオン)は和光純薬株式会社製のものを使用した。

吸光光度計は日本分光株式会社製 V-530 を用いた。

表 1 検体一覧

	検体数
24 月以内のもの	15 検体
おしめ	1
よだれ掛け	3
下着	1
寝衣	1
手袋	1
くつした	2
中衣	4
帽子	1
寝具	1
24 月を超えるもの	4 検体
下着	1
寝衣	3
合計	19 検体

2 分析方法

試験は、「有害物質を含有する家庭用品の規制に

関する法律」に規定する方法に準じて行なった。

身体と接触する部分を細かく切り、24 月以内のものは 2.5 g、それ以外のは 1 g を正確に量りとり、精製水 100 mL を正確に加えて 40°C で 1 時間抽出を行なった。これをガラスろ過器 G2 によりろ過し、試験溶液とした。

試験溶液 5 mL を正確にとり、アセチルアセトン試薬を 5 mL 加え、40°C で 30 分加温後、30 分室温にて放置し、波長 412~415 nm で吸光度を測定した(A)。同様に試験溶液にアセチルアセトンの代わりに酢酸・酢酸アンモニウム緩衝液 5 mL を加えた対象サンプルを用意し、吸光度を測定した (Ao)。

検査結果

表 1 に示した検体について検査したところ、全ての検体は基準値以下であり、ホルムアルデヒドは検出されなかった。

(参考) 家庭用品中のホルムアルデヒド基準値

(1) 繊維製品のうち、おしめ、おしめカバー、よだれ掛け、下着、寝衣、手袋、くつした、中衣、外衣、帽子、寝具であって、出生後 24 月以内の乳幼児用のもの

A-Ao の値が 0.05 以下

又は下式により計算する試料 1 g についてのホルムアルデヒド溶出量が 16 µg 以下でなければならない。

(2) 繊維製品のうち、下着、寝衣、手袋及びくつした(出生後 24 月以内の乳幼児用のものを除く。)、たび並びにかつら、つけまつげ、つけひげ又はくつしたどめに使用される接着剤

下式により計算する試料 1 g についてのホルムアルデヒド溶出量は 75 µg 以下でなければならない。

ホルムアルデヒド溶出量(µg)

$$= C (\mu\text{g/ml}) \times (A - A_o) / A_s \times 100 \times 1 / \text{試料採取量(g)}$$

C: ホルムアルデヒド標準液の濃度

As: ホルムアルデヒド標準液の吸光度