

Shizuoka-Ken Kankyō Eisei Kagaku  
Kenkyūsho Hōkoku 43 (2000)  
ISSN 1343-246X

# 静岡県環境衛生科学研究所報告

平成12年度

Bulletin  
of  
Shizuoka Institute of  
Environment and Hygiene

No.43 2000

静岡県環境衛生科学研究所

# は し が き

当研究所は、県民の健康や安全、また、環境を保全するための各種調査や研究に取り組んでいます。

近年、物質的豊かさの源泉であった大量生産、大量消費、大量廃棄の社会システムから持続可能な発展をキーワードとした循環型社会を構築することが強く求められています。

また、身近な問題として、腸管出血性大腸菌O157やレジオネラ症など環境汚染細菌、RSV（小型球形ウイルス）による食中毒、外因性内分泌攪乱物質による生態系への影響の危惧、様々な公害問題など課題が山積しています。

こうした中であって研究者に寄せられる期待は大きなものがあります。平成12年3月の県内の温泉レジャー施設に於けるレジオネラ症の集団発生時において、迅速に病原菌や感染源を特定し感染拡大を最小限に食い止めることが出来たことなどは、日ごろの研究の成果であると考えています。

我々の取り組む研究は、県民の生活に密着した問題や将来問題化しそうな課題について、一歩ずつ着実に成果を出してゆくことを基本としております。研究を進めるにあたっては、研究資源を有効に活用し技術の高度化に対応できるよう研究機関相互の連携を深めるとともに、外部評価を行い研究のレベルアップを図っているところです。

ここに、平成12年度の職員の調査研究成果を「研究所報告」第43号として取りまとめました。本誌を御高覧のうえ、御批判、御指導を戴ければ幸いです。

平成13年 6月

静岡県環境衛生科学研究所長 久保田昭彦

# 目 次

## 論 文

### 微生物部

- 1 生活環境水のレジオネラ汚染およびレジオネラ症患者調査  
—循環濾過式浴槽水を感染源とするレジオネラ症集団感染事例と検査—  
……………杉山 寛治, 西尾 智裕, 郷田 淑明  
張 凡非, 増田 教子, 秋山 真人  
宮本 秀樹 ……………1
- 2 小型球形ウイルス (SRSV) の感染経路に関する研究  
—カキ処理場従事者におけるSRSVの調査—  
……………杉枝 正明, 佐原 啓二, 長岡 宏美  
秋山 真人 ……………5
- 3 新型インフルエンザウイルスの出現予測に関するウイルス学的研究  
—野鳥におけるインフルエンザウイルスの保有状況調査—  
……………佐原 啓二, 杉枝 正明, 長岡 宏美  
秋山 真人 ……………9
- 4 サルモネラ食中毒予防対策に関する研究  
……………増田 高志, 有田 世乃, 川森 文彦  
秋山 真人, 宮本 秀樹, 川村 朝子  
寺井 克哉, 三輪 憲永 ……………13

### 医薬品生活部

- 5 医薬品等の規格試験法に関する問題点 (第三報)  
……………小和田和宏, 堀池あずさ, 馬淵 博  
山口善三郎, 永野隆夫 ……………21
- 6 医薬品等の試験検査結果の信頼性を確保するために (第四報)  
—システム適合性による評価—  
……………小和田和宏, 堀池あずさ, 馬淵 博  
山口善三郎, 永野 隆夫 ……………25
- 7 医薬品溶出試験の信頼性に関する研究  
—医薬品の処方, 製剤設計の評価—  
……………馬淵 博, 堀池あずさ, 小和田和宏  
山口善三郎, 永野 隆夫 ……………29
- 8 医薬品製造所における分析法のバリデーシヨンの標準的モデルの作成に関する研究  
—その3 分析法の変動要因に関する検討—  
……………堀池あずさ, 馬淵 博, 小和田和宏  
山口善三郎, 永野 隆夫 ……………33

9	ソース（ウスターソース類）の品質等に関する調査・研究	39
	……………渡辺 武明, 影山 知子, 菅野 尚子 永野 隆夫 ……………	
10	足に優しい靴に関する調査・研究	45
	……………菅野 尚子, 影山 知子, 渡辺 武明 永野 隆夫 ……………	
11	マグロ油漬缶詰（いわゆるツナ缶）に関する調査・研究	51
	……………影山 知子, 菅野 尚子, 渡辺 武明 永野隆夫 ……………	

## 大気・水質部

12	西駿河湾海域における植物プランクトンの変動機構に関する基礎的研究 I	55
	……………平井 一行 ……………	
13	環境臭気と快適さの研究	61
	— 静岡県内のおい環境について —	
	……………永田 嘉七, 太田良和弘, 篠原英二郎 萱沼 広行, 竹下 昭二, 味岡 嘉輝 ……………	
14	三宅島噴火と静岡県下の大気汚染	67
	— 常時監視局がとらえた火山性ガスの影響 —	
	……………篠原英二郎, 村上 篤司 ……………	
15	静岡県内の有害大気汚染物質調査	73
	……………太田良和弘, 田端 孝光, 萱沼 広行 篠原英二郎, 永田 嘉七, 竹下 昭二 味岡 嘉輝 ……………	
16	河川における環境負荷流出特性について	81
	……………瀧本 俊晴, 田口 弘道, 鈴木 孝雄 杉本 勝臣, 平井 一行, 室伏 由紀 味岡 嘉輝 ……………	

## 東部支所

17	排水中の非イオン界面活性剤の処理方法の検討	89
	……………斉藤 将人, 山下 晶平, 中村 和光 鈴木 守正, 志村 修 ……………	



**西部支所**

**18 地下水の要監視項目などによる汚染実態の解明**

……………中島 二夫, 河合 渉, 小池 明  
永谷 隆行, 梅原 鎬市, 西川 雅高  
井伊 博行, 田中 豊和 ……………

95

**他誌に発表した論文 ……………99**

**学会・研究会等の報告 ……………102**

**表彰等 ……………109**

# Contents

## PARERS

### Department of Microbiology

- 1 Relationship between *Legionella* Contamination of Environmental Water and Occurrence of Legionellosis  
— An Outbreak of Legionellosis Linked to Bath Water Circulating through a Filter and Examinations —  
.....K. Sugiyama, T. Nishio, Y. Gouda,  
Zhang F., K. Masuda, M. Akiyama,  
and H. Miyamoto .....1
- 2 Survey on Infection Route of Small Round Structured Virus at Oyster Treating Facilities  
.....M. Sugieda, K. Sahara, H. Nagaoka,  
and M. Akiyama .....5
- 3 Surveillance of Avian Influenza Virus Isolated from Migratory Waterfowls  
.....K. Sahara, M. Sugieda, H. Nagaoka,  
and M. Akiyama .....9
- 4 Study on Prevention of *Salmonella* Food Poisoning  
.....T. Masuda, Y. Arita, F. Kawamori,  
M. Akiyama, H. Miyamoto, A. Kawamura  
K. Terai, and N. Miwa .....13

### Department of Pharmaceutics and Consumer Science

- 5 Study on the Specifications and Test Methods of Drugs etc. III  
.....K. Owada, A. Horiike, H. Mabuchi,  
Z. Yamaguchi, and T. Nagano .....21
- 6 Guarantee of Reliability for Test Results of Drugs etc. IV  
— Evaluation of Results by System Suitability Testing —  
.....K. Owada, A. Horiike, H. Mabuchi,  
Z. Yamaguchi, and T. Nagano .....25
- 7 Study on the Reliability in Drug Dissolution Test  
— Estimation for Prescription and Pharmaceutical Design —  
.....H. Mabuchi, A. Horiike, K. Owada,  
Z. Yamaguchi, and T. Nagano .....29

8	Study for Standard Model of Validation of Analytical Procedures at Drug Manufactures — Step 3 Investigation of Variations in Analytical Conditions — .....A. Horiike, H. Mabuchi, K. Owada, Z. Yamaguchi, and T. Nagano .....	33
9	Study on Quality of Worcester Sauces .....T. Watanabe, T. Kageyama, N. Kanno, and T. Nagano .....	39
10	Practical Test of Comfortable Shoes for Walking .....N. Kanno, T. Kageyama, T. Watanabe, and T. Nagano .....	45
11	Study on Nutrient Substances of Canned Tuna in Oil or Water .....T. Kageyama, N. Kanno, T. Watanabe, and T. Nagano .....	51
<b>Department of Pollution Control</b>		
12	Fundamental Studies on the Changing Mechanism of Phytoplankton in the Western Coastal Region of the Suruga Bay ( I ) .....K. Hirai .....	55
13	Study on Relationship between Amenity and Environmental Odor — Environmental odor in Shizuoka Prefecture — .....K. Nagata, K. Ohtara, E. Shinohara, H. Kayanuma, S. Takeshita, and Y. Ajioka .....	61
14	Eruption of MIYAKEJIMA and Air Pollution in Shizuoka Prefecture — The Effect of Volcanic Gas on the Monitoring Station for Air Pollution — .....E. Shinohara, and A. Murakami .....	67
15	Research on Hazardous Air Pollutants in Shizuoka Prefecture .....K. Ohtara, T. Tabata, H. Kayanuma, E. Shinohara, K. Nagata, S. Takeshita, and Y. Ajioka .....	73
16	Characteristics of Environmental Load Runoff in Rivers .....T. Takimoto, H. Taguchi, T. Suzui K. Sugimoto, K. Hirai, Y. Murofushi, and Y. Ajioka .....	81

**Eastern Branch**

17 Study on Waste Water Treatment for Nonionic Surfactants  
.....M. Saito, S. Yamashita, K. Nakamura,  
M. Suzuki, and O. Shimura.....89

**Western Branch**

18 Survey on Contamination of Metals in Groundwater  
.....T. Nakajima, W. Kawai, A. Koike,  
T. Nagatani, K. Umehara, M. Nishikawa,  
H. Ii, and T. Tanaka.....95

**SUMMARIES OF PAPERS IN OTHER PUBLICATIONS.....99**

**PRESENTATIONS AT CONFERENCES AND/OR SOCIETY MEETINGS .....102**

**COMMENDATION .....109**



## 生活環境水のレジオネラ汚染およびレジオネラ症患者調査 — 循環濾過式浴槽水を感染源とするレジオネラ症集団感染事例と検査 —

微生物部 環境微生物スタッフ 杉山寛治, 西尾智裕, 郷田淑明  
張凡非, 増田教子, 秋山真人  
宮本秀樹

Relationship between *Legionella* Contamination of Environmental Water  
and Occurrence of Legionellosis

— An Outbreak of Legionellosis Linked to Bath Water Circulating through a Filter and  
Examinations —

Kanji SUGIYAMA, Tomohiro NISHIO, Yoshiaki GOUDA,  
ZHANG Fanfei, Kyoko MASUDA, Masato AKIYAMA,  
and Hideki MIYAMOTO

レジオネラ症の感染源はレジオネラ属菌の増殖を許した人工環境水であり、その感染源対策がなされない場合、本症の患者の続発、発生の拡大をまねくことになる。患者の迅速な確定診断と感染源の迅速な特定が本感染症の予防対策上非常に重要である。私共はそのような観点から、患者や環境水からのレジオネラ属菌の迅速検査法の検討を行ってきたが、それらの検査法が全国的にも例がない、温泉入浴施設を原因とする県内の大規模な集団発生時に活用され、患者の早期発見や治療に役立ち、早い段階での感染源の特定と汚染除去を可能とし、さらなる感染の拡大を防ぎ得た。ここではレジオネラ症の集団発生時に、危機管理の面から当所が行った検査業務についてまとめた。

Key words : レジオネラ, 集団感染, 浴槽水, 感染源, 尿中抗原

*Legionella*, Outbreak, Bath water, Source of infection, Urinary antigen

### はじめに

菌を含んだエアロゾル（空气中に浮遊した微小な液体の粒子）を吸入して起こる呼吸器感染症のレジオネラ症は、多臓器障害を伴う肺炎型と、インフルエンザ様の熱性疾患であるポンティアック熱型の2つの病型に分けられる。前者は経過が速く、有効な抗菌薬（マクロライド系抗生物質など）の投与がなされない場合死亡するケースもあるので、早期診断が重要である。本症は平成11年4月1日から施行された「感染症の予防及び感染症の患

者に対する医療に関する法律」（感染症新法）で4類感染症に指定され、診断した医師には保健所への届出義務が課せられている。

また、感染症新法にかかわる業務のなかに感染症発生動向調査がある。これは感染症の患者発生状況、病原体の検査結果等の流行実態を早期かつ的確に把握し、その情報を速やかに地域や医療機関に還元するとともに、流行の拡大を未然に防止する措置を講ずるものである。今回、私どもは感染症発生動向調査が端緒となったレジオネラ症の集団事例を経験したので、公衆衛生上の危機管理の面から当所が行った検査業務について報告する。

静岡県環境衛生科学研究所

(〒420-8637, 静岡市北安東4-27-2)

Shizuoka Institute of Environment and Hygiene

(4-27-2, Kita-andō, Shizuoka, 420-8637, Japan)

### 集団発生の概要と検査

平成12年3月下旬、県西部の複数の病院からレジオネラ肺炎を疑う患者の検体が送付され、当所で菌の培養や

尿中抗原等の検査を行い、4名をレジオネラ症と確定診断した。これらの患者は、いずれも掛川市内のS温泉施設に入浴していた。そこで、当所は保健所にその施設への立入り検査を依頼するとともに、同行して浴槽水等14か所の採水を行った。浴槽水の9,000 rpm, 30分間の遠心沈渣を再浮遊させた2,000倍濃縮液を使用したPCR法<sup>1)</sup>で、同一循環濾過装置を使用している2か所の浴槽水(露天気泡湯, 内湯)から、*Legionella* 属菌および *Legionella pneumophila* 菌種のそれぞれに特異的な遺伝子の増幅断片が検出された(図1)。さらに、浴槽水の

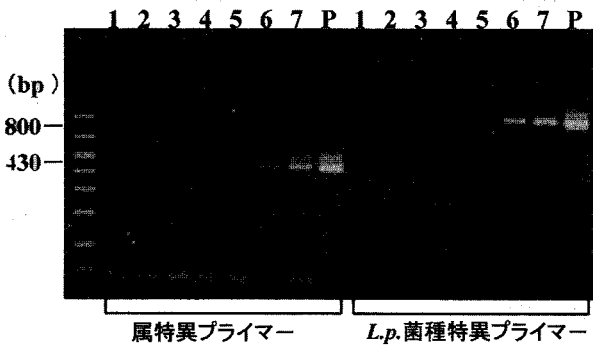
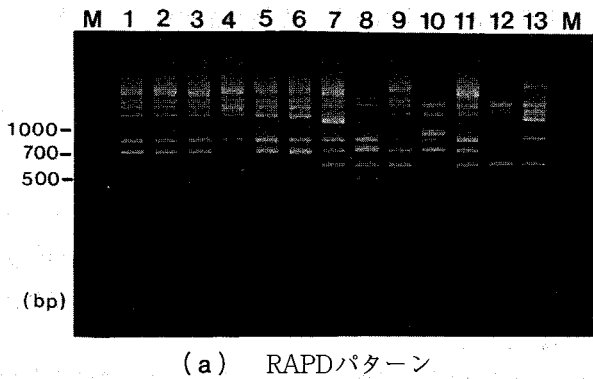


図1 S施設浴槽水(2,000倍濃縮液, 10 $\mu$ l)のPCR増幅産物  
Lane1: うたせ湯; Lane2: 大浴場; Lane3: 桜風呂; Lane4: 高温湯; Lane5: 歩行湯; Lane6: 露天気泡湯; Lane7: 内湯  
(57,000CFU/100ml) (88,000CFU/100ml)

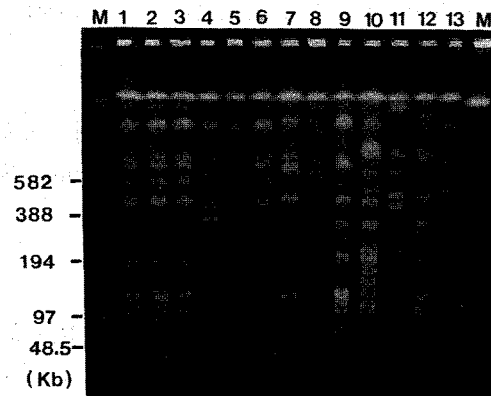
培養検査<sup>2)</sup>では、PCR法陽性であった2か所の浴槽水(露天気泡湯: 菌数 57,000 CFU/100ml, 内湯: 菌数 88,000 CFU/100ml)から患者と同型菌(*Legionella pneumophila* 血清群1)が検出された。浴槽水分離株と患者分離株のRAPD解析(即日判明, 図2a)および制限酵素切断によるパルスフィールド・ゲル電気泳動パターン(5日目に判明, 図2b)が一致したことから、同施設のレジオネラが検出された浴槽水をレジオネラ症患者の感染源と特定した。

本施設は2月11日にオープンした後、営業を停止するまでの約50日間で57,000人の利用客があった。ナトリウム-塩化物温泉を使用した27種類の浴槽をもち、5基の塩素殺菌機付きの砂濾過装置で浴槽水を循環濾過し、部分的な換水が1~2週間毎に行われていた。後日、レジオネラ属菌の検出された浴槽水の系統の塩素殺菌装置の薬液添加ノズルが目詰まりしていたことがわかり、塩素殺菌の不備がレジオネラ属菌の増殖をまねいたと推察された。汚染浴槽水、特にエアロゾルを発生させやすい気泡湯から入浴者へのレジオネラ属菌の暴露が、患者の発生のみられる3月上旬から営業を停止するまで約1か月にわたって続いていたと考えられた。

S施設は1日平均約1,000名の入浴者があったことから、当所では、今後起こりうるレジオネラ症患者の検査にそなえ、レジオネラ尿中抗原等の検査を実施可能な旨



(a) RAPDパターン



(b) PFGEパターン

図2 患者、浴槽水等分離 *Legionella pneumophila* 血清群1

- |                      |              |
|----------------------|--------------|
| lanes: 1, S施設入浴患者-1; | 8, 散発患者A;    |
| 2, S施設入浴患者-2;        | 9, 散発患者B;    |
| 3, S施設入浴患者-3;        | 10, 散発患者C;   |
| 4, S施設入浴患者-4;        | 11, 他温泉源泉;   |
| 5, S施設露天気泡湯;         | 12, 他施設浴槽水;  |
| 6, S施設内湯;            | 13, 他施設冷却塔水; |
| 7, S施設周辺池;           | M, 分子量マーカー   |

表1 レジオネラ症集団感染症例の検査成績

患者No	年 令	性 別	尿中抗原		培 養	血清抗体価 (IFA) L.p.SG 1 に対し
			Biotest	Bina×		
1	72才	男	+	+	+BALF L.p.SG 1	.
2	86才	男	+	+	-BALF	+ (×512~×1024)
3	55才	男	+	+	-BALF	+ (×512~×512)
4	70才	女	+	+	-BALF	+ (×1024~×1024)
5	82才	男	+	+	-気管支分泌物	- (×32~×32)
6	68才	男	+	+	-喀痰	+ (×128~×512)
7	72才	男	+	+	.	- (×16~×32)
8	50才	男	+	+	.	+ (×32~×256)
9	69才	男	+	+	+BALF L.p.SG 1	+ (×16~×256)
10	73才	男	+	+	.	.
11	70才	男	+	+	.	- (<16~×64)
12	72才	男	-	-	.	+ (×1024)
13	76才	男	+	+	-喀痰	.

Biotest: Legionella pneumophila SG 1~14に反応

Binax: Legionella pneumophila SG 1に反応

BALF: 気管支肺胞洗浄液

を、県感染症対策室を介して、医師会あてに情報提供した。私共はその後、患者の検体(尿、血清、気管支肺胞洗浄液、喀痰)約250件のレジオネラ検査を実施し、計13名の患者を確定診断した(表1)。

S設内の温泉入浴後に発症した4類感染症として届出られた患者の総数は23名(男21,女2)で、年齢は50才~86才までと高齢者が多かった。病型は肺炎型:21名,ポンティアック熱型:2名で、うち肺炎型の2名が死亡した。患者の発生は3月2日~4月4日までの約1か月間にわたっており、潜伏期間(入浴日から発症日までの期間)は1日~10日(平均5.2日)であった。

レジオネラ感染症の確定診断法のうち、レジオネラの可溶性抗原をEIA法によって検出する尿中抗原検査(Biotest尿中抗原測定キット, Binax尿中抗原測定キットの両法を使用)は、感染初期から陽性反応が得られるなど感度も高く、短時間(約3時間)で判定できる優れた検査法であった。図3に、レジオネラ症患者13名のレジオネラ尿中抗原の経時(日)的推移を示した。治癒した患者の尿中抗原値(検体の吸光度値/陰性対照の吸光度値)は治療の経過とともに右肩下がり値を示すのに対し、死亡例(症例1および2)の患者の尿中抗原値は、他の患者に比べ相対的に高く、治療にもかかわらず抗原値の減少はみられなかった。レジオネラの尿中抗原値を定量的に測定することで、レジオネラ症の病勢の推移、治療効果を確認できる可能性があり、尿中抗原測定法の有用性を示唆すると思われる。また、本症の治療にあつ

ては早期診断が重要なことから、病院、医療機関などの医療現場での尿中抗原検査法の早期の導入が望まれる。

私共は、レジオネラの調査研究事業の一環として、患者や環境水からのレジオネラ属菌の迅速検査法の検討を行い、短期日に結果が得られる検査法について報告<sup>1,3,4)</sup>してきた。それらの検査法は今回の全国的にも例がない、県内の温泉入浴施設を原因とする大規模な集団発生時に活用され、患者の早期発見や治療に役立った。また、早い段階での感染源の特定と汚染除去を可能とし、さらなる感染の拡大を防ぎ得て、地方衛生研究所の役割のひとつである公衆衛生上の危機管理の面でも役立ったと考える。

本事例の発生が明らかになって以降、全国各地で循環

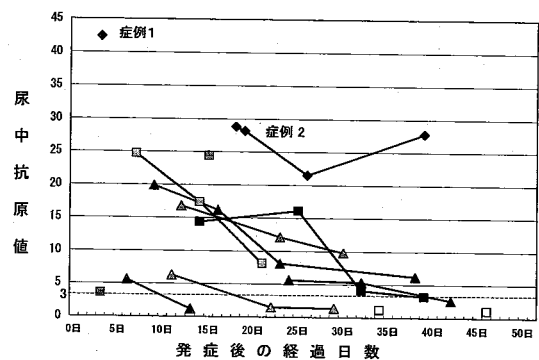


図3 レジオネラ症集団事例患者の尿中抗原値の推移

濾過式浴槽水を原因とする死亡例を伴うレジオネラ症の報告<sup>5, 6)</sup>が相次いでいる。本事例等を契機として、厚生労働省は平成12年12月に公衆浴場の水質基準<sup>7)</sup>にレジオネラ属菌に関する数値を新たに盛り込み、浴槽水のレジオネラ属菌を10 CFU/100mL未満と定めた。併せて「公衆浴場、旅館業における衛生管理要領」<sup>7)</sup>を改正し、循環濾過式浴槽水等の消毒を義務づけている。

本症はヒトからヒトへ感染する疾患ではなく、感染源はレジオネラの増殖が著しい人工の環境水(温水)であり、その衛生管理さえ徹底すれば本疾患は充分、予防可能といえる。今後は、循環濾過式浴槽水を使用している公衆浴場、老人福祉施設、病院などに対して、濾過装置を含めた浴槽水の殺菌やエアロゾルを発生させる装置の使用を避けるなどの指導が必要であろう。当所では循環濾過式浴槽水のレジオネラ除菌法について塩素<sup>3)</sup>および加熱<sup>3, 8)</sup>殺菌の両法を検討し、それらの効果を確認している。これらの成果を実際に使用されている装置に応用し、県民の誰もが安心して健康な温泉を楽しめるようにしていきたい。

なお、本報の要旨は第75回日本感染症学会(2001, 3)、第83回日本細菌学会関東支部総会(2000, 11)で報告した。

## 文 献

- 1) 杉山寛治他：生活環境水のレジオネラ汚染およびレジオネラ症患者調査—レジオネラ症患者の検査と疫学調査—, 静岡県環境衛生科学研究所報告, 42, 11-14 (1999)
- 2) 厚生省生活衛生局企画課監修：新版レジオネラ症防止指針, 85-94, (財)ビル管理教育センター, 東京(1999)
- 3) 杉山寛治他：循環濾過式浴槽水のレジオネラ汚染と殺菌法, 静岡県環境衛生科学研究所報告, 39, 47-52 (1996)
- 4) 杉山寛治他：複合レジャー施設の循環濾過式浴槽水を感染源とするレジオネラ症集団発生事例と検査, 第83回日本細菌学会関東支部総会講演抄録集, 57 (2000)
- 5) 増子京子：茨城県における入浴施設を原因としたレジオネラによる集団発生事例, 第83回日本細菌学会関東支部総会講演抄録集, 58 (2000)
- 6) 飯沼由嗣：病院の風呂が感染源と推定されたレジオネラ肺炎の1例, 病原微生物検出情報, 21, 191-192 (2000)
- 7) 厚生省生活衛生局長：公衆浴場における衛生等管理要領等について, 生衛発第1811号, 平成12年12月15日
- 8) 杉山寛治他：循環濾過式浴槽水とレジオネラとの関係に関する研究—モデル浴槽水を使用したレジオネラ加熱殺菌法の検討—, 静岡県環境衛生科学研究所報告, 40, 5-8 (1997)



## 小型球形ウイルス (SRSV) の感染経路に関する研究 — カキ処理場従事者における SRSV の調査 —

微生物部 ウイルススタッフ

杉枝正明, 佐原啓二, 長岡宏美  
秋山真人

Survey on Infection Route of Small Round Structured Virus at Oyster Treating Facilities

Masaaki SUGIEDA, Keiji SAHARA, Hiromi NAGAOKA,  
and Masato AKIYAMA

2000年4月～2001年3月の期間に、Sカキ施設の養殖海域で生産される生カキおよびその処理施設の従事者を対象にSRSV保有の有無について調査し、以下の成績が得られた。

①2000年8月および12月に、生カキを製造するSカキ処理場従事者（健康人）の糞便を調査し、12月に採取した16検体中1検体（6%）からSRSV遺伝子が検出された。このSRSV遺伝子は、Genogroup Iに属し、系統樹解析からSouthampton/91/UKに類似していた。

②2000年4月～2001年3月の期間に、Sカキ処理場の養殖海域で採取された一部のカキを定期的に毎月採取し、SRSV遺伝子の検出を試みたがSRSV遺伝子は検出さなかった。

Key words：小型球形ウイルス (SRSV), 感染経路, カキ処理場, 逆転写遺伝子増幅法 (RT-PCR法)

Small round structured virus, Infection route, Oyster treating Facilities, RT-PCR method

### はじめに

市販生食用カキは、毎年、10月から翌年の3月の期間にかけて流通しているが、この一部がSRSVに汚染され、しばしばウイルス性食中毒の発生原因になっていることが確認されている。このウイルス性食中毒の感染様式を解明するためには、食品中における汚染実態の把握と共に汚染源の拡大を防止するための調査が必要とされている。

これまで、生カキの汚染調査の報告は多いが、食品を取り扱う従事者からのSRSVの存在を調査した知見は報告されていない。

そこで今回、生食用カキを製造するS処理場の海域から搬入されるカキの一部を毎月定期的に採取し、SRSVの汚染実態を把握すると共に、製造過程での従事者への

伝播の有無について調査したので報告する。

### 材料および方法

#### 1 検査材料

2000年8月、12月の期間に、検体採取が可能であったSカキ処理施設の従事者（健康人）の糞便計26検体を用いた。また、2000年4月～2001年3月の期間に、製造に使用された生食用カキの一部を、毎月1回～2回採取した計16検体を用いた。

#### 2 RT-PCR法 (SRSV遺伝子の検出法)

糞便および生カキからのSRSV-RNAの抽出、RT-PCR法によるSRSV遺伝子の検出は、1998年<sup>1)</sup>に報告した方法で実施した。また、SRSV遺伝子が検出された一部のPCR産物については国立公衆衛生院に依頼し、ダイレクトシーケンシング法により、塩基配列を決定し、UPGMA法による系統樹解析により、これまでに国内外で報告されているSRSV遺伝子との比較を行った。

静岡県環境衛生科学研究所

(〒420-8637, 静岡市北安東4-27-2)

Shizuoka Institute of Environment and Hygiene

(4-27-2, Kita-andō, Shizuoka, 420-8637, Japan)

## 結 果

### 1 カキ処理従事者糞便からのSRSV遺伝子の検出状況

2000年8月、12月に生食用カキの製造に従事するSカキ処理施設の従事者（健康人）の糞便からSV遺伝子の検出を試みた。

8月（生食用カキの製造が行われていない）の10検体からは、SRSV遺伝子が検出されなかったが12月（生食用カキの製造が行われている）の16検体中1検体（6%）からSRSV遺伝子保有者が確認された（表1）。

### 2 製造に使用される生カキからのSRSV遺伝子の検出状況

2000年4月～2001年3月の期間に、S処理場で使用する生カキの一部を毎月定期的に採取し、SRSV遺伝子の検出を試みた。

2000年4月～9月の期間（生食用カキを製造しない期間）に6検体、10月～翌年3月の期間（生食用カキを製造する期間）の10検体、計16検体を調査したがSRSV遺伝子は検出されなかった（表1、2）。

表1 カキ処理場従事者および製造に使用された生カキからのSRSV遺伝子の検出状況

検査材料	4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3月
処理場従事者糞便 (陽性数)					10				16			
					(0)				(1)			
養殖カキ (陽性数)	1	1	1	1	1	1	1	1	2	2	2	2
	(0)	(0)	(0)	(0)	(0)	(0)	(0)	(0)	(0)	(0)	(0)	(0)

### 3 S生カキ処理場従業員糞便から検出されたSRSV遺伝子の解析

生食用カキの製造がおこなわれている12月、製造ラインに従事する1名から35/36系(Nested: 330bpでSRSV遺伝子が検出された。また、ダイレクトシークエンス法によりPCR産物（ポリメラーゼ領域）の300bpの塩基配列を決定し、UPGMA法による系統樹解析からGenogroup Iに属し、Genogroup Iに位置するSouthampton/91/UKに85.7%の相同性を示した（表2、図）

## 考 察

毎年、冬季にSRSVが原因で発生する食中毒事例の原因食品および推定食品の約半数が生カキのSRSV汚染に起因しており、その感染源として重要であることを報告してきた。しかし、他の食品などについては原材料中のSRSV汚染を特定した知見も少なく、製造、調理段階での汚染状況等食品からヒト、ヒトから食品への二次汚染等を調査することが求められている。

今回、我々は毎年、10月から翌年の3月にかけて国内

表2 SRSV遺伝子の検出状況

検査材料	検体数	SRSV遺伝子検出(陽性数/検体数)			
		35系		Yuri系	
		(1st)	(Nest)	(1st)	(Nest)
処理場従事者糞便	26	0/26	1/26	0/26	0/26
養 殖 カ キ	16	0/16	0/16	0/16	0/16

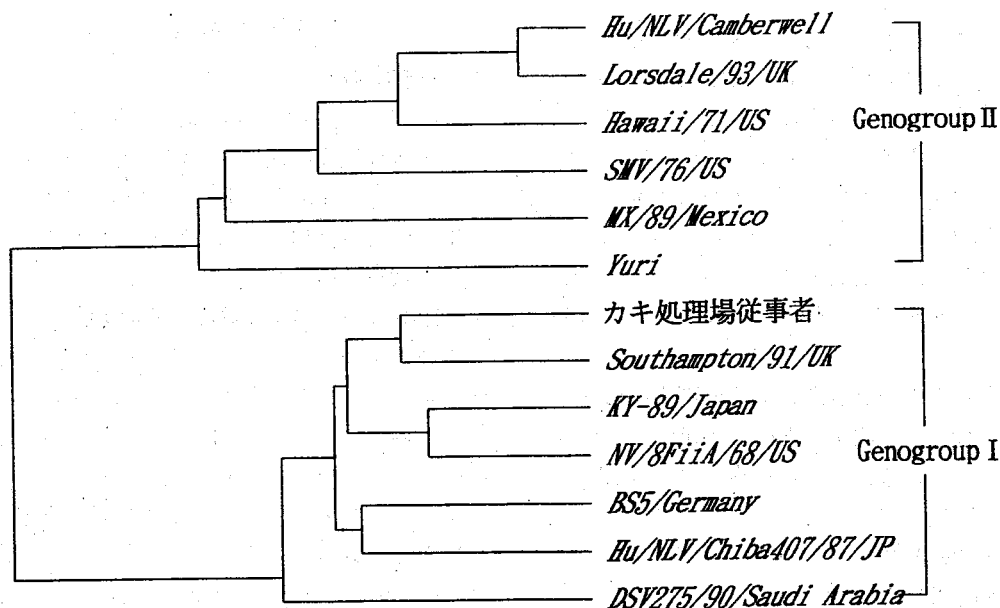


図 カキ処理場従事者糞便から検出されたSRSV遺伝子の系統樹解析（UPGMA法によるポリメラーゼ領域300塩基）

に流通する生食用カキを製造する施設の協力を得て、製造に使用される養殖海域の生カキを毎月定期的に採取し、養殖海域およびその生食用カキの製造に従事する従事者のSRSV汚染について調査した。

2000年4月～2001年3月の期間に、養殖海域から毎月定期的に採取した16検体からはSRSV遺伝子は検出されず、SRSV汚染は確認されなかった。

1997年1月～1998年12月の2年間に、今回と同一養殖海域から毎月採取した生カキからのSRSV遺伝子の検索を実施し、11月～翌年3月の期間にSRSV遺伝子を確認し、2年間の年次別検出状況では差が認められなかったが<sup>1)</sup>、今回同一海域での調査にもかかわらずSRSV遺伝子は確認されなかった。この原因として海域浄化が反映した可能性も考えられるが、その詳細は不明である。

Sカキ処理場は、毎年、10月1日～翌年3月31日の期間に生カキを養殖海域から2.5t/日に搬入し、約35,000パック/日を出荷している施設である。カキ処理に従事する期間は約5カ月間で、SRSV感染を受けやすい環境下で作業していることが考えられることから、カキ処理に従事していない期間と従事期間に区別してカキ処理場従業員の糞便を採取し、SRSV遺伝子の保有状況を調査したところ、12月に採取した16検体中1検体(6%)からSRSV遺伝子が検出された。これは柿島ら<sup>2)</sup>が学校給食施設調理従事者糞便(健康人)を対象に調査した保有率(1%)と大きな差は認められなかった。従って、生カキとの接触が直接SRSV保有につながるとは考えにくい。

カキ処理場従業員の糞便からのSRSV遺伝子の検出は、NV遺伝子のポリメラーゼ領域で構築されたプライマー35系およびYuri系で行った。

35系のNested PCRによりSRSV遺伝子を確認し、そのPCR産物を遺伝子解析したところ、Genogroup Iに属し、Genogroup Iに位置する *Southampton/91/UK* に最も類似していた。

以上の成績から養殖海域のSRSV汚染が生食用カキの生産段階におけるヒトへの伝播となりうるかどうかは明

らかにすることはできなかった。しかし、2000年4月～2001年3月の期間、静岡県内で生食用カキが原因食品で発生したウイルス性食中毒の一部患者糞便からも同一遺伝子型が確認されていることから感染防御、汚染拡大を解明していくためにこれらの継続的な調査を実施していくことが必要と思われる。

## ま と め

2000年4月～2001年3月の期間に、生カキを製造するSカキ施設の養殖海域で生産されるカキを毎月採取し、SRSV汚染の実態およびその処理に従事する従事者におけるSRSV保有の有無についてRT-PCR法による検出を試み、食品からヒトへのウイルス伝播経路について検討し、以下の結果を得た。

- 1) 2000年4月～2001年3月の期間に、S処理場で使用する生カキの一部を毎月定期的に採取し、16検体からの検出を試みたが、SRSV遺伝子は検出されなかった。しかし、生カキを処理する従事者糞便26検体中1検体(6%)からSRSV遺伝子の保有者が確認された。
- 2) 生カキを処理する従事者糞便から検出されたSRSV遺伝子はGenogroup Iに属しGenogroup Iに属する *Southampton/91/UK* に類似していた。

## 謝 辞

遺伝子解析を実施していただいた国立公衆衛生院の中島節子博士、西尾治博士に深謝致します。

## 文 献

- 1) 杉枝正明他：市販生食用カキ中腸腺におけるSRSV遺伝子の検出，静岡県環衛研報告，39：1～6 (1996)
- 2) 柿島安博他：学校給食施設調理従事者糞便からのSRSV遺伝子の検出，日本食微生物学会誌，16(3)，193-196 (1999)

## 新型インフルエンザウイルスの出現予測に関するウイルス学的研究 —野鳥におけるインフルエンザウイルスの保有状況調査—

微生物部 ウイルススタッフ

佐原啓二, 杉枝正明, 長岡宏美  
秋山真人

Surveillance of Avian Influenza Virus  
Isolated from Migratory Waterfowls

Keiji SAHARA, Masaaki SUGIEDA, Hiromi NAGAOKA,  
and Masato AKIYAMA

新型インフルエンザ出現予測に役立てるため、2000年冬に静岡県内に飛来した渡り鳥についてインフルエンザウイルスの保有状況を調べた。カモ類の糞便67検体中11検体からウイルスが分離されたが、これらはHA試験、A型インフルエンザウイルス抗原試験および電子顕微鏡像からパラインフルエンザウイルスと推定され、インフルエンザウイルスは分離されなかった。この結果は、調査したカモ類はインフルエンザウイルスを保有していなかったか又は極めて少なかったことに起因するものと考えられ、2000年冬において静岡県に飛来した渡り鳥の間にトリ型インフルエンザウイルスの浸淫は少なく、トリ型インフルエンザ出現の可能性は低いと推察された。

Key words: トリ型インフルエンザウイルス, 渡り鳥, 監視  
Avian influenza virus, Migratory waterfowl, Surveillance

### はじめに

1997年香港で発生した、トリ型の強毒タイプA (H5N1) 型インフルエンザの再来など、近い将来、ヒトに大流行を起こす新型インフルエンザウイルスの出現の可能性が指摘されている。ヒトで流行するインフルエンザウイルスの起源は、水鳥などの渡り鳥とされており、野鳥、家禽、ブタのインフルエンザ感染状況を疫学的に調査することにより、新型インフルエンザの出現を予測できる可能性がある。そこで今回は、新型インフルエンザ出現予測に役立てるため、静岡県内に飛来した渡り鳥におけるインフルエンザウイルスの保有状況を調べた。

### 材料および方法

#### 1 材料

鳥類がトリ型インフルエンザウイルスに経口感染した

静岡県環境衛生科学研究所  
(〒420-8637, 静岡市北安東4-27-2)  
Shizuoka Institute of Environment and Hygiene  
(4-27-2, Kita-andō, Shizuoka, 420-8637, Japan)

場合、ウイルスは大腸の上皮細胞で増殖し糞便と共に排泄されるので、糞便をウイルス分離の検査材料とした。2000年10月18日から11月29日の期間に毎週1回の頻度で計7回、静岡市内の渡り鳥の飛来池において、池周辺に排泄されたカモ類（マガモ、オナガガモ等）の糞便3～5gを1検体としてスピッツ管に採取し、1回あたり7～10検体、計67検体を採材し、当日ウイルス分離に供した。

#### 2 発育鶏卵培養法によるウイルス分離

##### 1) 検体の前処理

糞便検体に3倍量のMEM培地（100mlあたりペニシリン5000単位、ストレプトマイシン100mg、ファンギソン3mg、ゲンタマイシン6mg、グリセリン2ml含有）を加え混合し、3,000rpm 20分間遠心後の上清を前処理検体とした。

##### 2) ウイルス分離

9～12日齢の発育鶏卵の羊膜腔内および漿尿膜腔内に前処理検体0.2mlを接種し、34℃の孵卵器で3日間培養した。2代まで継代し、培養液として羊漿尿液を採取した。



表1 渡り鳥の糞便から分離されたHA陽性ウイルスの検出状況

No	採材日	検体数	シチメンチョウ赤血球に対するHA陽性数	
			発育鶏卵初代培養	発育鶏卵2代培養
1	2000年10月18日	10	0	0
2	2000年10月25日	10	0	1
3	2000年11月1日	10	0	0
4	2000年11月8日	10	0	3
5	2000年11月15日	10	3	7
6	2000年11月22日	10	0	0
7	2000年11月29日	7	0	0
計		67	3	11

3 ウイルスの同定

1) HAおよびHI試験

採取した培養液について、シチメンチョウ赤血球に対する凝集(HA)活性の有無を調べた。HA陽性の培養液について、国立感染症研究所呼吸器系ウイルス室から分与された1999/2000シーズン用フェレット抗血清を用いた血球凝集抑制(HI)試験をマイクロプレート法により実施した。

2) 酵素抗体法によるA型インフルエンザウイルス抗原試験

HA陽性の培養液について、酵素抗体法による検査キットDirectigen Flu A (ベクトンディッキンソン)を用いてA型インフルエンザウイルス抗原の有無を調べた。

3) 電子顕微鏡によるウイルス粒子観察

HA陽性の培養液の一部については、電子顕微鏡に

よるウイルス粒子の観察を行った。培養液に等量のHCFC-141bを加え、振とうした後、3,000rpm 20分間遠心した。上清を30%ショ糖液8mlに重層し、40,000rpm、2時間超遠心した後、沈さに蒸留水100μlを加え浮遊させ、電子顕微鏡用試料とした。試料を2%リンタングステン酸ナトリウム(pH7.0)でネガティブ染色した後、透過型電子顕微鏡(100S, 日本電子)を用いて3万倍にて観察した。

結 果

1 HAおよびHI試験

発育鶏卵培養液のシチメンチョウ赤血球に対するHA活性は、初代培養で3検体、2代培養では初代陽性の3検体を含む11検体が陽性であった。HA陽性検体は、2000年10月25日採材の1検体、11月8日採材の3検体、11月15日採材の7検体であった(表1)。

HA陽性培養液のHA価は8~128/50μlを示し(表2)、これを抗原として行ったHI試験では、供試した4種のインフルエンザウイルス抗血清に対してHI価は全て10未満であった。

2 酵素抗体法によるA型インフルエンザウイルス抗原試験

Directigen Flu AによるA型インフルエンザウイルス抗原試験は、全て陰性であった(表2)。

3 電子顕微鏡によるウイルス粒子観察

電子顕微鏡下では、外被をもった大型ウイルスが観察され、ウイルス表面には無数のスパイクが配列しており、ウイルスの形状は、円形からフィラメント状のものまで不均一であり、インフルエンザウイルスの形状とは異なっていた。

考 察

日本に飛来する渡り鳥のインフルエンザウイルス保有調査は、1980年前半に北海道<sup>1)</sup>および山陰地方<sup>2) 3)</sup>において精力的に行われた。それによると、ハクチョウ類、

表2 渡り鳥の糞便から検出されたHA陽性ウイルスの性状

No	検体番号	培養継代数	シチメンチョウ赤血球に対するHA価	Directigen Flu A
1	17	2	>8	陰性
2	38	2	64	陰性
3	39	2	64	陰性
4	40	2	8	陰性
5	42	2	64	陰性
6	45	1	64	陰性
7	45	2	64	陰性
8	46	2	64	陰性
9	47	1	128	陰性
10	47	2	32	陰性
11	48	1	128	陰性
12	48	2	8	陰性
13	49	2	32	陰性
14	50	2	64	陰性

ウミネコ、カモ類の糞便からA型インフルエンザウイルスが分離されているが、ウイルスの分離頻度は691検体中5株(0.7%)<sup>3)</sup>、1156検体中17株(1.5%)<sup>2)</sup>であり分離率は低い。今回静岡県において、カモ類の糞便67検体を調査したが、インフルエンザウイルスは全く分離されなかった。この結果は、調査したカモ類はインフルエンザウイルスを保有していなかったか又は極めて少なかったことに起因しており、2000年冬において静岡県に飛来した渡り鳥の間にトリ型インフルエンザウイルスの浸淫は少なかったと考えられる。渡り鳥のインフルエンザウイルス保有調査が地球規模のトリ型インフルエンザウイルスの流行実態を反映している可能性のあることが指摘されており<sup>4)</sup>、今回の調査からすると、現時点においてはトリ型インフルエンザ出現の可能性は低いと推察された。

カモ類の糞便中からインフルエンザウイルス以外にパラインフルエンザウイルスが分離される場合のあることが報告されている<sup>5)</sup>。今回の調査で、67検体のうち11株のウイルスが分離されたが、これらはHA試験、A型インフルエンザウイルス抗原試験および電子顕微鏡像からパラインフルエンザウイルスと推定された。鳥の糞便を検査材料してウイルスが分離できたことから、ウイルス分離手法として今回採用した方法は適切であったと考え

られる。今後は、厚生労働省「新型インフルエンザウイルス系統調査・保存」事業に協力して、継続的に調査する予定である。

## 文 献

- 1) Kida, H. et al.: Isolation and characterization of influenza A viruses from wild free-flying ducks in Hokkaido, Japan, *Zbl. Bakt. Hyg., A* 244, 135-143 (1979)
- 2) Otsuki, K. et al.: Isolation of Influenza A viruses from migratory waterfowls in San-in district, western Japan in winters of 1980-1982, *Zbl. Bakt. Hyg., A* 265, 235-242 (1987)
- 3) Otsuki, K. et al.: Isolation of Influenza A viruses from migratory waterfowls in San-in district of Japan in the winter of 1984-1985, *Jpn J. Vet. Sci.*, 49, 721-723 (1987)
- 4) 西藤岳彦他：動物インフルエンザと人間、臨床と微生物, 25, 675-685 (1998)
- 5) Webster, R.G. et al.: Ortho- and paramyxoviruses from migratory feral ducks: characterization of a new group of influenza A viruses, *J. Gen. Virol.*, 32, 217-225 (1976)

## サルモネラ食中毒予防対策に関する研究

微生物部 食品微生物スタッフ

増田高志, 有田世乃, 川森文彦  
秋山真人, 宮本秀樹, 川村朝子\*<sup>1</sup>  
寺井克哉\*<sup>2</sup>, 三輪憲永\*<sup>2</sup>

Study on Prevention of *Salmonella* Food Poisoning

Takashi MASUDA, Yono ARITA, Fumihiko KAWAMORI,  
Masato AKIYAMA, Hideki MIYAMOTO, Asako KAWAMURA\*<sup>1</sup>,  
Katsuya TERAI\*<sup>2</sup>, and Norinaga MIWA\*<sup>2</sup>

サルモネラはヒトの食中毒起因菌の一つとして重要視され、近年、サルモネラ食中毒は増加傾向を示しており、その発生予防のための基礎的研究が求められている。そこで、発生原因の追及や発生予防対策のために県内に流通している食品などのサルモネラ汚染実態を調査するとともに検査法など基礎的実験を実施した結果、以下の成績が得られた。

①県内の食肉類 189検体、液卵24検体、野菜類169検体および野菜洗浄水50検体について検査したところ、食肉類26検体 (13.8%) および液卵9検体 (37.5%) からサルモネラが検出された。しかし、野菜類およびその洗浄水からは全く検出されず、市販野菜類のサルモネラ汚染は極めて低率であった。

②液卵および食肉のサルモネラ検査法としてFSIS法が食衛法に比べてやや優れていることが判明した。

③食品の保存温度、pH、塩分濃度など物理的条件を考慮することによりサルモネラの制御が可能と考えられた。

したがって、今回検討し、得られた結果を十分活用すればサルモネラ食中毒予防の一助とすることが可能と考えられた。

Key words : サルモネラ食中毒, 予防対策

*Salmonella* food poisoning, Prevention

### はじめに

サルモネラ (*Salmonella*: 以下S.) はヒトや動物などの腸管内に生息し、飲食物 (食品, 水) を介して、あるいはヒトからヒトに感染する代表的な人獣共通感染症の起因菌であり、特に、ヒトの食中毒起因菌の一つとして重要視されている。

静岡県におけるサルモネラ食中毒の歴史をみると、昭

和11年、浜松市内の菓子店で製造された大福餅を喫食し、2,201名 (うち死者46名) が患者となった食中毒事件 (病因物質-S. Enteritidis) の発生があり、わが国の食品衛生史上最大の惨事となった。また、昭和50年代には、地場産品のウナギの白焼や削り節を原因食品とする事件も発生し、県食品衛生課 (現: 食品衛生室) や保健所 (現: 健康福祉センター) を中心として様々な防止対策が講じられてきた<sup>1,2)</sup>

近年、サルモネラ食中毒は全国的に増加傾向を示しており、特に、サルモネラに汚染された鶏卵を原因とする食中毒が多発している<sup>3-5)</sup>。そこで、サルモネラ食中毒の発生予防対策に役立てる基礎資料を得ることを目的として調査研究を実施したので、その概要を報告する。

静岡県環境衛生科学研究所

(〒420-8637, 静岡市北安東4-27-2)

Shizuoka Institute of Environment and Hygiene

(4-27-2, Kita-andō, Shizuoka, 420-8637, Japan)

\*<sup>1</sup> 静岡県中部健康福祉センター

\*<sup>2</sup> 静岡県西部食肉衛生検査所

## 調査研究内容

### 1 液卵および食肉のサルモネラ検査法の検討

食品からのサルモネラ検出は食中毒事件における原因食品の追及や流通食品の汚染実態を把握するために重要であり、特に、液卵や食肉から効率的にサルモネラを検出する方法の検討が望まれている。そこで、従来行っている食品衛生検査指針（微生物編）に示されているサルモネラ検査法<sup>6)</sup>（以下、食衛法）とFSIS（USDA）法によるサルモネラ検査法<sup>7)</sup>（以下、FSIS法）について比較検討を行った。

#### 1) 材料および方法

- ① サルモネラ添加液卵および食肉検体の作製

サルモネラ添加液卵は、サルモネラ陰性を確認した殺菌液卵（一般細菌数 $10^3$ /g、大腸菌群 $<10$ /g）にS. Enteritidisを5.8cfu/25g添加したもの-a、殺菌液卵（一般細菌数 $10^3$ /g、大腸菌群 $10$ /g）にS. Enteritidisを9.2cfu/25g添加したもの-bおよび未殺菌液卵（一般細菌数 $10^8$ /g、大腸菌群数 $10^6$ /g）にS. Enteritidisを8.8cfu/25g添加したものの各々25gを検体とした。なお、サルモネラ添加液卵は、液卵にS. EnteritidisをHI（Heart Infusion Broth）で2～3回継代培養後、さらにHIで4時間培養した菌液の $10^8$ 倍希釈したものを添加し作製した。また、添加菌数測定は添加菌液 $100\mu\text{l}$ ずつを10枚のMLCBにコンラージ後、 $36\pm 1^\circ\text{C}\cdot 22\pm 2$ 時間培養し発育した

表1 液卵のサルモネラ検査法の比較

- ① 殺菌液卵 (a:一般細菌数 $10^3$ /g, 大腸菌群数 $<10$ /g, サルモネラ5.8/25g  
b:一般細菌数 $10^3$ /g, 大腸菌群数 $10$ /g, サルモネラ9.2/25g)

検体	増菌培地	分離培地							計
		DHL	BGA	MLCB	XLD	BGM	CHROM	SMID	
a	EEM→SBG	6/6	6/6	6/6	6/6				24/24
b				10/10	10/10	10/10	10/10	10/10	50/50
a	EEM→SBG+Beads	6/6	6/6	6/6	6/6				24/24
a	EEM→SC	5/6	5/6	5/6	6/6				21/24
b				10/10	10/10	4/10	10/10	10/10	44/50
a	EEM→SC+Beads	6/6	6/6	5/6	6/6				23/24
a	BPW→TT	6/6	6/6	6/6	6/6				24/24
b				10/10	10/10	10/10	10/10	10/10	50/50
a	BPW→TT+Beads	6/6	6/6	6/6	6/6				24/24
a	BPW→RV	6/6	6/6	6/6	5/6				23/24
b				10/10	10/10	10/10	10/10	10/10	50/50
a	BPW→RV+Beads	5/6	6/6	6/6	4/6				21/24
計		46/48	47/48	86/88	85/88	34/40	40/40	40/40	378/392

- ②未殺菌液卵（一般細菌数 $10^8$ /g, 大腸菌群数 $10^6$ /g, サルモネラ8.8/25g）

増菌培地	分離培地								計
	DHL	BGS	MLCB	XLD	BGM	CHROM	Rambach	SMID	
EEM→SBG	3/6	2/6	4/6	6/6	4/6	4/6	5/6	5/6	33/48
EEM→SBG+Beads	3/6	0/6	4/6	5/6	5/6	6/6	3/6	4/6	30/48
EEM→SC	2/6	0/6	2/6	2/6	0/6	1/6	2/6	2/6	11/48
EEM→SC+Beads	1/6	0/6	1/6	0/6	3/6	1/6	1/6	1/6	8/48
BPW→TT	5/6	6/6	5/6	5/6	6/6	5/6	5/6	5/6	42/48
BPW→TT+Beads	5/6	6/6	6/6	5/6	6/6	5/6	5/6	6/6	44/48
BPW→RV	3/6	0/6	2/6	1/6	4/6	3/6	4/6	5/6	22/48
BPW→RV+Beads	2/6	0/6	2/6	1/6	2/6	3/6	0/6	3/6	13/48
計		24/48	14/48	26/48	25/48	30/48	28/48	25/48	203/384

+Beads：免疫磁気ビーズ処理



集落数により算出した。サルモネラ添加食肉は、サルモネラ陰性を確認した豚肉ブロック (15×15×2 cm) および豚挽肉25gに硫化水素 (H<sub>2</sub>S) 産生および非産生 *S. Typhimurium* をHIで2~3回継代培養後、さらにHIで4時間培養した菌液の10<sup>7</sup>倍希釈したもの (多数菌数: H<sub>2</sub>S産生菌13.5~16.9cfu/100 μl) と10<sup>8</sup>倍希釈したもの (少数菌数: H<sub>2</sub>S産生菌4.2cfu/100 μl およびH<sub>2</sub>S非産生菌1.7~4.8cfu/100 μl) を100 μlずつ添加したものを検体とした。なお、豚肉ブロックについては表面100cm<sup>2</sup>を拭取った滅菌スポンジを検体とした。また、添加菌数測定は添加菌液100 μlずつをH<sub>2</sub>S産生菌は10枚のMLCB, H<sub>2</sub>S非産生菌は10枚のBGSにコンラージ後、36±1℃・22±2時間培養し発育した集落数により算出した。

② 検査方法

液卵および食肉からのサルモネラ検出は食衛法、FSIS法で行った。

食衛法は、一次増菌培地としてEEM Broth (EEM) を用い、液卵および豚挽肉25gに225ml、豚肉ブロック表面拭取スポンジに50mlずつに加え、35℃・18時間培養した。続いて二次増菌培地としてSBG Broth (SBG) とSelenite Cystine Broth (SC) を用い、これらにEEM増菌液の1.5mlを接種し、43℃・18時間培養した。さらに、分離培養にはMLCBとDHLを用い、SBG, SC培養液 (液卵の一部は免疫磁気Beads処理液) を塗抹し、35℃・18時間培養後、発育したH<sub>2</sub>S産生の定型的集落について確認検査を行った。FSIS法は、一次増菌培地としてBuffered Peptone Water (BPW)、二次増菌培地としてTetrathionate Broth (TT), Rappaport Vassiliadis Broth (RV) を用い、食衛法と同様な方法で培養した。ただし、培養条件はBPWが36±1℃・22±2時間、TT, RVが42±1℃・22±2時間、二次増菌培地への接種量が0.5mlと異なった。

また、分離培養には、H<sub>2</sub>S産生を判定基準とする培地 (MLCB, DHL, XLD) とH<sub>2</sub>S産生を判定基準としない培地 (BGS, BGM, CHROM, SMID) の両方に塗抹し、36±1℃・22±2時間培養後、発育した定型的集落について同様に確認検査を行った。なお、確認検査はそれぞれが示した検査手順に従って行った。

2) 結果および考察

① 液卵のサルモネラ検査法 (表1)

殺菌液卵からのサルモネラの検出では、食衛法 (EEM→SBG→分離培地) およびFSIS法 (BPW→TT→分離培地) は直接塗抹、免疫磁気Beads処理後塗抹とも検出率に大きな差はなかった。また、食衛法 (EEM→SC→分離培地) およびFSIS法 (BPW→RV→分離培地) は前の二つの方法に比べてやや検出率が劣っていた。また、分離培地による検出に差はほとんど見られなかった。

未殺菌液卵からのサルモネラの検出では、検出率はFSIS法 (BPW→TT→分離培地)、食衛法 (EEM→SBG→分離培地)、FSIS法 (BPW→RV→分離培地)、食衛法 (EEM→SC→分離培地) の順であり、食衛法 (EEM→SC→分離培地) では検出はやや低率であった。また、増菌培地と分離培地の組み合わせによっては検出率が低くなるものがあり、分離培地の選択に配慮する必要が考えられた。

以上のことから、鶏卵のサルモネラ検査においては、FSIS法 (BPW→TT→分離培地) および食衛法 (EEM→SBG→分離培地) が優れていた。しかし、免疫磁気Beads処理による検出率の上昇は期待できなかった。この原因としては、鶏卵の持つ粘調性に妨害されて、免疫磁気Beadsの吸着機能が十分に発揮されなかったものと考えられた。

② 食肉などのサルモネラ検査法 (表2)

豚肉ブロック表面拭取および豚挽肉からのサルモネラの検出では、FSIS法 (BPW→TT, RV→BGS)

表2 食肉などのサルモネラ検査法の比較

検 体 [ <i>S. Typhimurium</i> 数]	検体数	検 査 法					
		食品衛生検査指針法				FSIS (USDA) 法	
		SBG→MLCB	SBG→DHL	SC→MLCB	SC→DHL	TT→BGS	RV→BGS
豚肉表面拭取 [4.2,H <sub>2</sub> S+]	12	4 (33)	5 (42)	6 (50)	6 (50)	8 (67)	8 (67)
豚肉表面拭取 [1.7~4.8,H <sub>2</sub> S-]	4	0	0	0	0	4 (100)	4 (100)
豚肉表面拭取 [13.5~16.9,H <sub>2</sub> S+]	8	7 (88)	7 (88)	7 (88)	7 (88)	8 (100)	8 (100)
豚挽肉 [4.2,H <sub>2</sub> S+]	12	6 (50)	6 (50)	7 (58)	6 (50)	12 (100)	11 (92)
豚挽肉 [1.7~4.8,H <sub>2</sub> S-]	4	0	0	0	0	4 (100)	4 (100)
豚挽肉 [13.5~16.9,H <sub>2</sub> S+]	8	4 (50)	4 (50)	6 (75)	4 (50)	8 (100)	7 (100)

(%)

は豚肉ブロック表面拭取の少数菌添加で67%とやや検出率が低かったが、その他ではほぼ100%の検出率であった。これに対して食衛法（SBG, SC→MLCB, DHL）は豚肉ブロック表面拭取および豚挽肉の少数菌添加で33~58%の検出率、多数菌添加で50~88%の検出率でFSIS法より劣っていた。また、食衛法ではH<sub>2</sub>S産生を判定基準としない培地を使用していないためH<sub>2</sub>S非産生菌は当然の事ながら検出することはできなかった。

したがって、食肉からのサルモネラ検査法においてはFSIS法は食衛法より優れていると考えられた。また、H<sub>2</sub>S非産生菌が検出されることは少ないがH<sub>2</sub>S産生を判定基準としない培地（特徴のある集落を形成する培地）を併用することにより検出率が上昇するものと考えられた。

## 2 畜産食品、野菜などのサルモネラ汚染実態調査

わが国で発生したサルモネラ食中毒事件の原因食品としては畜産食品、特に鶏卵による事件が多く報告されている<sup>5)</sup>。また、近年、諸外国においてアルファルファモヤシ、トマト、オレンジジュース（非加熱）、メロン、スイカなどによるサルモネラ食中毒の発生報告が散見され、諸外国からの野菜・果物の輸入の急増に伴い、今まであまり問題にされていなかった農産物についても危険性が指摘されている<sup>8-10)</sup>。そこで、県内に流通している畜産食品（食肉類、鶏液卵：以下液卵）、野菜類および集団給食施設における野菜洗浄水についてサルモネラ汚染実態を調査した。

## 1) 材料および方法

### ① 検査材料

1998年~2000年の間に静岡市およびその周辺の市町にあるスーパーマーケットなどの販売店で購入した食肉類（牛：81, 豚：55, 鶏：53）189検体、県内で製造されている液卵（殺菌液卵：12, 未殺菌液卵：12）24検体、同地区の市場や販売店で購入した野菜類169検体および静岡市内の集団給食施設において採取した野菜洗浄水50検体（1施設10検体を5施設）計432検体を供試した。

### ② 検査方法

食肉類、液卵および野菜類はその25g、野菜洗浄水は3lをメンブランフィルター（0.45μm）で濾過し、そのメンブランフィルターを検体とした。

食肉類、液卵および野菜類には225ml、メンブランフィルターには100mlのBPWを加えて36±1℃・22±2時間培養後、培養液0.5mlをTTに接種し、42±1℃・22±2時間培養した。次に、この培養液をH<sub>2</sub>S産生を判定基準とする培地（MLCB, XLD）とH<sub>2</sub>S産生を判定基準としない培地（BGS, CHROM）の両方に塗抹する直接培養法を行った。これらの培地を36±1℃・22±2時間培養後、それぞれの培地に発育した疑わしいについて確認検査を行った。この検査方法はFSIS法に準じた方法で、厚生省通知（液卵のサルモネラ検査法）<sup>11)</sup>とほぼ同様の検査方法である。

なお、液卵については検体25gにBPW225mlを加

表3 畜産食品、野菜類などのサルモネラ汚染状況（1998~2000年）

食品の種類	品名	検体数	サルモネラ陽性数
食肉類	牛肉（挽肉44, 細切肉など27）	71	
	牛レバー, ホルモン, タン	8	
	牛・豚肉（挽肉）	2	
	豚肉（挽肉39, 細切肉など12）	51	3 (5.9%)
	豚レバー	4	
	鶏肉（挽肉19, 細切肉など33）	52	23 (44.2%)
	鶏レバー	1	
小計		189	26 (13.8%)
液卵	殺菌	12	
	未殺菌	12	9 (75.0%)
小計		24	9 (37.5%)
野菜類	(33種類)	169	0
野菜洗浄水	(17種類)	50	0
合計		432	35 (8.1%)

えたものを用いて、スパイラル法による一般細菌数の測定とBGLB培地のMPN3本法による大腸菌群数の測定を行った。

2) 結果および考察

食肉類189検体において、豚肉の51検体中3検体(5.9%)および鶏肉の52検体中23検体(44.2%)からサルモネラが検出された。また、液卵24検体において、9検体(37.5%)からサルモネラが検出された。しかし、野菜類169検体(33種類)および野菜洗浄水50検体(17種類)の計219検体からサルモネラは全く検出されなかった(表3)。

これらのことから県内で販売されている野菜類のサルモネラ汚染は極めて低率であり、食中毒や散発下痢症の原因食品として食肉や鶏卵を重要視する必要があると考えられた。

今回調査した液卵(24検体)の細菌汚染状況は、殺菌液卵では、一般細菌数 $<10^2$ cfu/g、大腸菌群数 $<30$ /g、未殺菌液卵では、一般細菌数 $<10^3 \sim 10^4$ cfu/g、大腸菌群数 $10^3 \sim 10^4$ cfu/gであり、未殺菌液卵12検体中9検体(75.0%)のみからサルモネラが検出された。また、食肉および液卵から検出されたサルモネラの血清型は、鶏肉ではS. Infantis、液卵ではS. Enteritidisが多く、これらは食中毒や散発下痢症患者から検出されるおもな血清型と概ね共通していた(表4)。

表4 食肉および液卵から検出されたサルモネラの血清型

検体	血清型	分離数
鶏肉	S. Infantis	18
	S. Schwarzengrund	4
	S. Hadar	2
	S. Typhimurium	1
	型別不能	1
小計		26
豚肉	S. Brandenbrug	1
	型別不能	2
小計		3
液卵(未殺菌)	S. Enteritidis	7
	S. Cerro	2
	S. Infantis, Montevide	
	Braenderup, Ressen	各々 1
小計		13
合計		42

したがって、サルモネラ食中毒の予防対策として、鶏肉、鶏卵の取扱いや調理には十分注意することや、液卵を使用した食品の製造には必ず殺菌液卵を使用することが重要と考えられた。

3 物理的条件下におけるサルモネラの増殖性

食中毒の原因食品の追及や予防対策上、種々の物理的条件下における細菌の増殖性を検討する必要がある。そこで、培地の培養温度、pHおよび塩分濃度といった物理的条件の違いによって食中毒や散発下痢症患者由来9血清型(S. Enteritidis, S. Typhimurium, S. Thompson, S. Nagoya, S. Oranienburg, S. Infantis, S. Hadar, S. Virchow, S. Tennessee)のサルモネラの増殖性に差があるかを検討した。

1) 材料および方法

- ① 培地の培養温度—中試験管に10mlのTSB培地を分注し滅菌後、急冷した。これに前記の9血清型のサルモネラを接種し、10, 25, 35, 44, 44.5, 45, 45.5, 46, 46.5, 47℃の各温度で24時間培養した。
- ② 培地のpH—TSB培地のpHを2.0~13.0まで1.0刻みで調整後、中試験管に10ml分注し滅菌した。これに同様の9血清型のサルモネラを接種し、35℃24時間培養した。
- ③ 培地の塩分濃度—市販のTSB培地は通常塩分濃度が0.5%であり、これにNaCl(試薬特級)を加え、塩分濃度を2.0~9.0%まで1.0%刻みで調整後、中試験管に10ml分注し滅菌した。これに同様の9血清型のサルモネラを接種し、35℃24時間培養した。

なお、菌の増殖性(—~+++ )は培地の濁りにより判定した。

2) 結果および考察

- ① 培地の培養温度—培養温度が10.0℃以下では9血清型のサルモネラにおいて菌の発育は見られなかったが、25.0~45.0℃の間では全ての菌株において菌の発育は活発(+++)であった。S. Oranienburgは46.5℃でも発育(+)が見られたが、その他の血清型では発育は見られなかった(表5-①)。サルモネラ検査において二次増菌培地の培養温度は43.0℃と規定されているが、この温度ではTSB培地など抑制力のない培地ではサルモネラ以外の菌も十分に増殖する。したがって、選択的にサルモネラを増殖させるためには、使用する増菌培地が重要となる。現在、食品からのサルモネラ検査における二次増菌法として、一般的に行われている他の細菌の発育を抑制する培地(SBG, SC, TT, RV)と培養温度43.0℃を組合わせた検査法は適当であると考えられた。
- ② 培地のpH—全ての血清型のサルモネラは、pH5.0~10.0において++以上の菌発育が見られ、特にpH7.0~9.0間でその発育は活発(+++)であった(表5-②)。このことはpH4.0以下の酸性食品やpH10.5以上のアルカリ性の状態はサルモネラの増殖

表5 物理的条件下におけるサルモネラの増殖性

① 培地の培養温度

血清型\℃	10.0	25.0	35.0	44.0	44.5	45.0	45.5	46.0	46.5	47.0
S. Enteritidis	-	+++	+++	+++	+++	+++	+	±	-	-
S. Typhimurium	-	+++	+++	+++	+++	+++	++	±	-	-
S. Thompson	-	+++	+++	+++	+++	+++	+	±	-	-
S. Nagoya	-	+++	+++	+++	+++	+++	±	-	-	-
S. Oranienburg	-	+++	+++	+++	+++	+++	+++	+	+	-
S. Infantis	-	+++	+++	+++	+++	+++	+++	±	-	-
S. Hadar	-	+++	+++	+++	+++	+++	+	±	-	-
S. Virchow	-	+++	+++	+++	+++	+++	+++	+	-	-
S. Tennessee	-	+++	+++	+++	+++	+++	+++	+	-	-

② 培地のpH

血清型\pH	2.0	3.0	4.0	5.0	6.0	7.0	8.0	9.0	10.0	11.0	12.0	13.0
S. Enteritidis	-	-	-	++	++	+++	+++	+++	+++	-	-	-
S. Typhimurium	-	-	-	++	++	+++	+++	+++	++	-	-	-
S. Thompson	-	-	-	++	+++	+++	+++	+++	+++	-	-	-
S. Nagoya	-	-	-	++	+++	+++	+++	+++	+++	-	-	-
S. Oranienburg	-	-	-	++	+++	+++	+++	+++	+++	-	-	-
S. Infantis	-	-	-	++	+++	+++	+++	+++	++	-	-	-
S. Hadar	-	-	-	++	+++	+++	+++	+++	+++	-	-	-
S. Virchow	-	-	-	++	+++	+++	+++	+++	++	-	-	-
S. Tennessee	-	-	-	++	+++	+++	+++	+++	+++	-	-	-

③ 培地の塩分濃度

血清型\%	2.0	3.0	4.0	5.0	6.0	7.0	7.5	8.0	9.0
S. Enteritidis	+++	+++	+++	+++	+++	+++	++	-	-
S. Typhimurium	+++	+++	+++	+++	+++	++	+	-	-
S. Thompson	+++	+++	+++	+++	+++	++	+	-	-
S. Nagoya	+++	+++	+++	+++	+++	++	+	-	-
S. Oranienburg	+++	+++	+++	+++	+++	+++	++	+	-
S. Infantis	+++	+++	+++	+++	+	±	-	-	-
S. Hadar	+++	+++	+++	+++	+++	+++	++	+	-
S. Virchow	+++	+++	+++	+++	+++	++	+	-	-
S. Tennessee	+++	+++	+++	+++	+++	++	+	-	-

が抑制されることを示すものであり、食品の持つ特徴を失わない程度に有機酸等を活用することにより、食品の安全性、食中毒予防を確保できるものと考えられる。

③ 培地の塩分濃度—塩分が濃い食品中では微生物は水分を奪われて増殖が阻害される。NaClを添加した培地でのサルモネラ増殖性は、S. Oranienburgが5.0%、S. Enteritidis、S. Nagoya、S. Hadarが7.0%、これら以外の5血清型が6.0%まで活発(+++)

発育が見られた(表5-③)。このことはサルモネラは腸炎ビブリオや腸管出血性大腸菌O157など下痢症起因菌と同様に海水中でも十分生存できることを示すものであり、イカ菓子によるS.Oranienburg食中毒事件の発生<sup>12, 13)</sup>でもわかるように、他の水産食品によっても食中毒が発生する可能性が示唆された。したがって、食肉や鶏卵以外のこれらの食品の取扱いについて業者や消費者に注意を喚起することが予防対策上重要と考えられた。

## ま と め

平成10年～12年度の調査研究テーマとして、「サルモネラ食中毒予防対策に関する研究」を取り上げ、サルモネラ食中毒予防対策に役立つ基礎的な資料を得ることを目的として調査研究を行った結果、次のような知見を得た。

- 1 液卵および食肉からのサルモネラ検出法は、検討の結果、FSIS法が食衛法に比べてやや優れていた。また、使用する培地の組み合わせより検出率に差があり、分離培地の選択に配慮する必要がある。さらに、H<sub>2</sub>S産生を判定基準としない培地を併用することが重要と考えられた。なお、これらの成績の一部は厚生省の検査法に関する基準作りに活用された。
- 2 県内の食肉類189検体、液卵24検体、野菜類169検体および集団給食施設において採取した野菜洗浄水50検体の計432検体を検査したところ、食肉類26検体（鶏肉23検体、豚肉3検体）および液卵（未殺菌）9検体からサルモネラが検出されたが、野菜類および野菜洗浄水からサルモネラは全く検出されなかった。これらのことから県内で発生する食中毒の原因食品として食肉や鶏卵が疑われ、これらの食品の取扱いや使用について配慮することにより食中毒が予防が可能と考えられた。
- 3 供試した9血清型のサルモネラは培養温度25.0～45.0℃、pH6.0～9.0、塩分濃度2.0～5.0%の間で活発な増殖が確認された。その塩分濃度から考えると多くの水産食品により食中毒が発生する可能性が示唆された。したがって、食肉や鶏卵以外のこれらの食品の取扱いについて業者や消費者に注意を喚起することが食中毒予防対策上重要と考えられた。

以上のことから、本研究では確実なサルモネラ予防対策の確立はできなかったが、今回検討し、得られた結果を活用すれば、サルモネラ食中毒が予防できるものと考えられた。今後具体的な方法の検討を行いたい。サルモネラ食中毒に限らず、食中毒予防には生産段階では安全な食品の生産、流通および消費段階では食品の正しい調理・取扱いが重要である。これら根本的な問題が解決することにより安全な食品が提供でき、食中毒予防が可能

となる。そのためには、それぞれの段階での努力が重要と考えられる。

## 文 献

- 1) 浅川豊他：うなぎ白焼によるサルモネラ食中毒と感染源の調査，静岡県衛生研究所報告，23，37-40（1980）
- 2) 静岡県保健衛生部：静岡県のサルモネラ食中毒，平成3年静岡県の食中毒，80-99（1992. 3）
- 3) 国立感染症研究所：サルモネラ症，病原微生物検出情報，21，162-163（2000）
- 4) 丸山務：わが国における食中毒発生の現状，モダンメディア，46，1-8（2000）
- 5) 品川邦汎：卵及び卵加工品におけるサルモネラエンテリティディスの汚染とその対策，食衛誌，40，7-18（1999）
- 6) 厚生省生活衛生局監修：食品衛生検査指針微生物編，118-126，社団法人食品衛生協会，東京（1990）
- 7) Federal Register/Rules and Regulations：Appendix E-FSIS Sample Collection Guidance and Procedure for Isolation and Identification of *Salmonella* from Raw meat and Poultry Products，61，38917-38927（1996）
- 8) 金子賢一：生食用野菜及び果物が媒介となる感染症，食衛誌，40，417-425（1999）
- 9) 一色賢司：生産農場から食卓までの微生物学的安全性の確保，日食微誌，17，31-35（2000）
- 10) 小沼博隆：野菜における微生物汚染状況とその対策，日食微誌，17，37-41（2000）
- 11) 厚生省生活衛生局長通知：食品衛生法施行規則及び食品，添加物等の規格基準の一部改正について，生衛発第1674号（1998. 11. 25）
- 12) サルモネラ・オラニエンブルグ食中毒事件原因究明検討委員会：サルモネラ・オラニエンブルグ食中毒事件原因究明検討委員会報告書（1999. 6. 21）
- 13) 品川邦汎：イカ乾燥品によるサルモネラ食中毒の広域発生—その問題点と予防—，食品衛生研究，50，7-17（2000）

## 医薬品等の規格試験法に関する問題点 (第三報)

医薬品生活部 医薬食品スタッフ 小和田和宏, 堀池あずさ, 馬 瀨 博  
山口善三郎, 永野隆夫

Study on the Specifications and Test Methods of Drugs etc. III

Kazuhiro OWADA, Azusa HORIIKE, Hiroshi MABUCHI,  
Zenzaburo YAMAGUCHI, and Takao NAGANO

著者らは県内で製造(輸入)される医薬品等の試験検査を業務のひとつとしている。試験検査を行っているが、規格及び試験方法が規定されている製造承認書どおり試験検査を行っても、期待された結果が得られないことがある。それらは多くの場合、製品そのものが悪いというよりも、試験検査方法や製造承認書への記載方法の不備である。

本年度も収去検査等を実施している中で、いくつかの問題事例に遭遇した。今回の主な内容は、吸収スペクトルの極大波長を用いた確認試験における「波長範囲」の解釈と、同じく薄層クロマトグラフィー(TLC)による確認試験の操作法及び検出結果判定の難しさであった。本年度の収去検査を実施するにあたり、県内製造所の育成指導、品質管理技術の向上を念頭におき、試験検査を実施して気がついた点は、指摘事項としてコメントすることとした。本年度の収去検査等を実施した結果と指摘事例を紹介し、指摘の内容や指導の方向性などについて考察する。

Key words : 医薬品, 試験検査, 規格試験法, 製造承認書, GMP

Drugs, Analysis and testing, Specifications and test methods,  
Manufacturing approval, Good manufacturing practice (GMP)

### はじめに

医薬品は人の生命に大きく関わることから、その有効性や安全性、品質の確保が重要である。医薬品等製造業者は品質の良い医薬品を供給するため、厚生省の定めた「医薬品の製造管理及び品質管理規則(GMPソフト)」<sup>1)</sup>に沿って独自のGMPを定め、製造管理や品質管理を行っている。また、「GMPソフト」は薬事法において許可の要件にもなっている<sup>2)</sup>。

ところで、著者らは県内で製造(輸入)または流通する医薬品等の試験検査を業務のひとつとしている。これ

らの試験検査は、原則として、製造承認書の規格及び試験方法に従って行うが、規定されている方法に従って試験検査を行っても、期待された結果が得られないことがある。それらの多くは製品そのものが悪いというよりも、試験検査方法や製造承認書への記載方法の不備が原因である<sup>3, 4)</sup>。

本年度も医薬品等の収去検査等を実施している中で、いくつかの問題事例に遭遇した。本年度の収去検査を実施するにあたり、県の方針として県内製造所の育成指導、品質管理技術の向上を念頭に、試験検査を実施して気がついた点があったら指摘事項としてコメントすることを確認した。今回は、本年度の収去検査等を実施した結果と指摘事例を紹介し、指摘の内容や指導の方向性などを考えていきたい。

静岡県環境衛生科学研究所

(〒420-8637, 静岡市北安東4-27-2)

Shizuoka Institute of Environment and Hygiene

(4-27-2, Kita-andō, Shizuoka, 420-8637, Japan)

## 本年度の収去検査の概要

### 1 検体数

県内製造（輸入）医薬品	20検体
県内流通医薬品	14検体
県内製造医薬部外品	15検体
国一斉に伴う医薬品	3検体
国一斉に伴う医療用具	8検体

### 2 試験方法

各品目の製造承認書に記載された項目（原則として全項目）のほか、日本薬局方<sup>5)</sup>、日本薬局方外医薬品成分規格（局外規）<sup>6)</sup>、医療用具規格基準<sup>7)</sup>、医薬品等製造所の製品標準書等に従って実施した。

## 結果及び考察

医薬品等試験検査の結果、主な指導事例及び「規格」や「試験方法の設定」に関する問題点などを紹介する。

### 事例1 確認試験におけるUVスペクトルの極大波長の波長範囲

昭和59年に製造承認を受けた錠剤の例である。確認試験のひとつに「UVスペクトルの極大波長」を用いた項目があり、波長範囲244～248nm、278～282nmで吸収の極大が設定されていた。しかし、添付された製造所の試験成績書の規格範囲は242～246nm、277～281nmとなっていた。

製造所にこの点を確認したところ、承認申請時は波長範囲として原薬（別紙規格）の波長範囲をそのまま引用して244～248nm、278～282nmで設定した。その後、平成5年、同原薬が局外規（1993）に記載された際、波長範囲が242～246nm、277～281nmと規定された。これを受け、製造所では局外規の波長範囲で管理することにしたが、「一部変更承認」を受けておらず、社内標準書で対応していた。その後、平成7年、10年に一部変更しているが、この部分については変更を見送っていた。

今回の測定結果は「245nm及び278nm」で双方の規格を満たしていた。

### 事例2 確認試験におけるUVスペクトルの極大波長の波長範囲

昭和52年に製造承認を受けた注射剤の例である。確認試験のひとつに事例1と同様「極大波長」を用いた項目があり、波長範囲279～281nmで吸収の極大が設定されていた。しかし、添付された製造所の製品標準書及び試験成績書の規格範囲は278～282nmであった。

平成5年、同製剤が局外規（1993）に記載され、278～282nmの波長範囲で規定された。これを受け、製造所では社内標準書で局外規の波長範囲で管理しは

じめたが、やはり「一部変更承認」を受けないでの対応であった。平成元年以後、当該製造所は一部変更していない。当所での試験検査結果は「280nm」であった。

事例1及び事例2は同様なケースと考えられる。県としてはこのように公定書（局方、局外規等）へ収載された場合には、その規格を合わせるように「折をみて一部変更承認申請」する指導をしている。なお、一部変更までの間は、承認規格と局外規の規格両方を満たすよう留意することが必要である。

### 事例3 確認試験方法（手順）の相違

内用液剤中のマグネシウムの確認試験の事例である。確認試験の方法をチェックしたところ、製造承認書と添付された製品標準書の記載（手順）に違いがあった（図1）。

承認書	標準書
ろ液10mL	ろ液10mL
↓ NH <sub>4</sub> Cl試液	↓ (NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> 試液
(NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> 試液	白色沈殿
↓ Na <sub>2</sub> HPO <sub>4</sub> 試液	↓ NH <sub>4</sub> Cl試液
白色結晶性沈殿	沈殿溶ける
↓ アンモニア試液	↓ Na <sub>2</sub> HPO <sub>4</sub> 試液
沈殿は溶けない	白色結晶性沈殿

図1 承認書と製品標準書の試験方法の違い

製品標準書の方法は日本薬局方・定性反応・マグネシウム塩の記載そのままであり、メーカーは現在、この標準書（局方）の方法で確認試験を実施している。

両者を比較すると、試薬の種類、加える順序などが異なっており、実際に確認試験に用いている製品標準書の方法を承認書に規定するのが望ましい。

### 事例4 純度試験（ヒ素）の限度値

製品の純度試験には、多くの場合、試料採取量（本品の場合2.0g）が記載され、以下、日局・ヒ素試験法に準じて試験を行う旨の記載がある。また、試験法の最後に括弧内に○ppm以下（本品の場合10ppm以下）と限度値が設定されている。ヒ素試験法の場合、通常、標準色の調製にヒ素標準液（1μg/mL）を2mL用いるので、この製品の場合の限度値は1ppm以下となる。

従って、本製品の場合は試験方法と限度値の表示が異なっており、どちらが正しいのか判断に困った。製造所では標準溶液に10倍濃い溶液を用い、10ppm以下の規格で管理しているとのことであった。

当所における試験検査の結果、10ppmでも検査がで

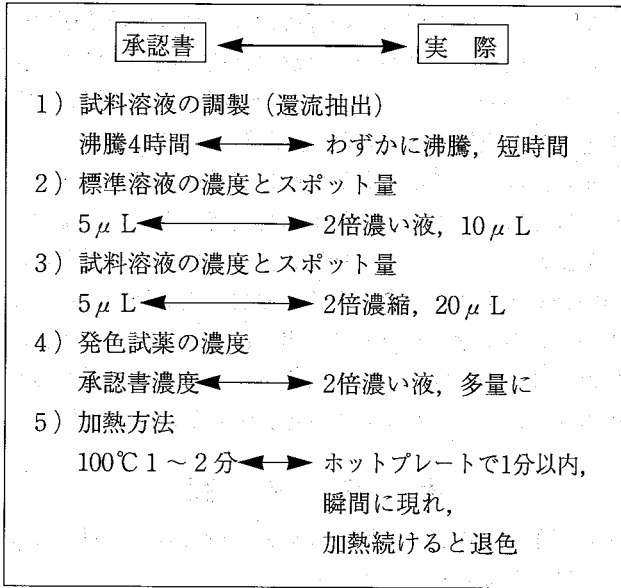


図2 承認書と実際の試験方法の相違点 (TLC)

きることは確認できたので、機会があれば標準溶液としてのヒ素標準液の添加量などを実際に合わせた形で「一部変更」するのが望ましいのではないかと思われた。また、実際に標準溶液の調製方法を変えて管理しているの、その点に関する標準書の記載を明記しておく必要がある。

事例5 薄層クロマトグラフィー (TLC) を用いた確認試験

本製品は外用剤で、主成分の確認試験は薄層クロマトグラフ (TLC) 法によるスポットの検出 (色調及び Rf 値の一致) であった。しかし、承認書記載の手順で実施したところ、標準溶液、試料溶液から主成分のスポットが検出できなかった。

製造所に確認手法の細部について確認したところ、下記のように、この確認試験を行う上でいくつかの操作に問題点があった (図2)。

このように、現在の承認書 (及び製品標準書) の記載方法ではこの成分の TLC による確認は非常に困難であり、試料溶液の抽出操作、試料溶液及び標準溶液の濃度とスポット量、発色試薬 (噴霧試薬) の濃度と量及び検出のための加熱方法など再検討が必要であることがわかった。さらに、それらの検討結果によって社内製品標準書を改訂し、この検査の担当者 (熟練者) だけでなく、品質管理部門の誰が試験しても結果が出せる手法にすることが重要である。これも機会があれば承認書の一部変更をしておくのが望ましいと考える。

なお、薄層板の種類も承認書には「薄層クロマトグラフ用シリカゲル」と記載されていたが、実際に用いるのは「薄層クロマトグラフ用オクタデシルシリル化

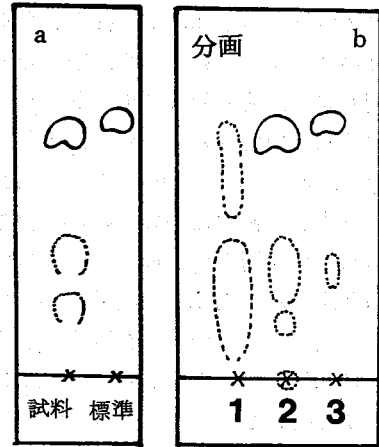


図3 Rf 値が一致しないと思われた TLC  
a ; 検査結果,  
b ; カラム留出液を分画した場合の TLC  
1 ; 第1分画 (初流出液0.5mL),  
2 ; 第2分画 (次の0.5mL),  
3 ; 第3分画 (最終分画0.5mL)

したシリカゲル」であり、製品標準書を改訂しておくよう指摘した。

事例6 TLC による確認試験での Rf 値の相違

TLC による確認試験は、標準溶液及び試料溶液を展開して検出した「スポットの Rf 値及び色調が等しい」ことで判定する。TLC の試験操作において、TLC 板のメーカーや乾燥度、展開溶媒のグレードや飽和方法及び時間など多くの要因によってメーカーの設定した Rf 値と著者らが測定した Rf 値とが一致しないことは多々ある<sup>8)</sup>。しかし、この錠剤の場合は同じ TLC 板上の試料溶液と標準溶液の Rf 値が一致しないと思われた事例である (図3 a)。本製品の標準溶液及び試料溶液の調製方法は以下のとおりである。標準溶液は主成分をエタノール (95) に溶解したものであり、試料溶液は粉碎した錠剤を水で抽出後、遠心分離し、得た上澄液を固相カラム (C18カートリッジ) を通し、エタノール (95) で溶出させた液である。

この事例の場合、試料溶液からのスポットが違う成分のスポットであるのではなく、該当スポットの下部に見られる大きな長いスポットに該当スポットが引きずられているような印象を受ける。すなわち、抽出し、カートリッジカラムによる前処理をしたにもかかわらず、カラムで処理できない水で抽出される他成分、またはカラムを前洗浄した水分などが影響しているのではないかと考えられた。

これらを確認するため、カラムからの溶出液を分画してスポットした。その結果、図3 b に示したように、溶出液を分画した場合、最初の分画は該当スポットが



薄く、該当スポットの下部に水で抽出されると思われる大きな長いスポットが見られた。第2分画は該当スポットが最も濃く、他成分のスポットはやや薄くなった。最後の分画は他成分のスポットはほとんど検出されなかったが、該当スポットが逆に薄かった。しかし、該当スポットのRf値は最終分画のほうが標準溶液のスポットのRf値に明らかに近くなり、両者を比較するには適当と思われた。以上の結果から、試料溶液の調製において固相カラムからの初留液を捨てるなどの工夫により標準溶液のRf値との一致の度合いが増すのではないかと推察された。

Rf値の一致度については、両者のRf値が±何%以内であれば良いという明確な規定はない。この製造所では、この製品についてRf値がやや異なるような感じを抱く場合もあるが、Rf値の判定は±5%を社内の基準としており、「適」と判定したとのことであった。

## ま と め

医薬品の品質確保はきわめて重要であり、製造承認書の規格及び試験方法はそれを規定するためのものである。著者らは医薬品等が適正に製造管理、品質管理されているか、製造承認書に従って最終製品を試験検査する立場にある。本年度も収去検査等を実施している中で、試験操作が良好に実施できないとか、結果判定に迷ういくつかの事例があった。それらは製品そのものが悪いというより、それを評価するための試験検査方法や承認規格設定が適当でない場合が多かった。

本年度の事例の多くは吸収スペクトルの極大波長の範囲やTLC操作など確認試験の指摘事項が6事例中5事例

と多かった。県内製造所の育成指導、品質管理技術の向上という面から、気がついた点は指摘事項としてコメントしたが、誰が検査しても同じ結果が得られる試験方法、判定方法（規格の設定を含む）が望まれる。

また、収去者である各保健所に試験成績書に指摘事項をつけて報告したが、現状では担当者にそれらを説明する体制ができておらず、指導方法について保健所からの問い合わせも多かった。今後は収去検査実施にあたってのいろいろな検討を有効に活用し、メーカーの品質管理に対してよい方向につながるよう、保健所担当者への報告方法等についても検討する必要があると思われた。

## 参 考 文 献

- 1) 厚生省令第3号：医薬品の製造管理及び品質管理規則（平成6年1月27日）
- 2) 薬事法：昭和35年8月10日法律第145号，平成5年4月薬事法一部改正
- 3) 山本政利他：医薬品等の規格試験法に関する問題点，静岡県衛生環境センター報告，31，97-101（1988）
- 4) 小和田和宏他：医薬品等の規格試験法に関する問題点（第2報），静岡県衛生環境センター報告，38，71～77（1995）
- 5) 厚生省：第十三改正日本薬局方（1996）
- 6) 厚生省審査課：日本薬局方外医薬品成分規格1997（1997）
- 7) 医療用具研究会編：医療用具の規格基準解説1993，薬業時報社，東京（1993）
- 8) 小和田和宏他：TLCのRf値に変動を及ぼす因子，静岡県衛生環境センター報告，34，63-67（1991）

## 医薬品等の試験検査結果の信頼性を確保するために (第四報) — システム適合性による評価 —

医薬品生活部 医薬食品スタッフ 小和田和宏, 堀池あずさ, 馬淵 博  
山口善三郎, 永野隆夫

Guarantee of Reliability for Test Results of Drugs etc. IV  
— Evaluation of Results by System Suitability Testing —

Kazuhiro OWADA, Azusa HORIIKE, Hiroshi MABUCHI,  
Zenzaburo YAMAGUCHI, and Takao NAGANO

平成11年7月、静岡県では「医薬品等試験検査業務管理要領」を定め、医薬品の収去検査における試験検査結果の信頼性確保に取り組んできた。その概要は、試験品や標準品、試薬・試液、試験検査機器の管理方法及び試験検査実施方法等に関する各標準作業書を作成し、試験品の受け取り、試験検査の実施、試験成績書の発行までの各作業を手順どおり行い、それらの結果を記録し、各段階におけるダブルチェック体制をしきシステム作りを目指したものである。また、内部、外部精度管理にも取り組み、試験検査結果の信頼性向上を図ってきた。

今回はさらに試験検査を保証する方法として「システム適合性試験」に着目し、HPLCなどクロマト手法における分離度や試験の再現性の評価方法を検討した。また、クロマト以外の手法についても、標準品や標準物質を有効に活用することにより、試験検査機器の分析中の確実な作動を評価し、「システム適合性」を検証できることがわかった。

Key words : 医薬品, 試験検査, 信頼性, 業務管理, システム適合性

Drugs, Analysis and testing, Reliability, Practice control system, System suitability

### はじめに

当所では医薬品等の試験検査結果の信頼性を確保するため、平成7年度から独自に業務管理方法を検討し、これまでに試験品の受入れから試験成績書の発行に至る各作業の記録類<sup>1)</sup>、試験検査に用いる計器や機器の校正手順書及び報告書<sup>2, 3)</sup>及び製造承認書等の内容を検討するための議事録様式<sup>4)</sup>を作成した。さらに、平成11年7月、静岡県は「医薬品等試験検査業務管理要領」<sup>5)</sup>を定め、試験品や標準品、試薬・試液、試験検査機器の管理方法、試験検査実施方法等に関する各標準手順書を作成した。これらにより、試験品の受け取り、試験検査の実実施、試験成績書の発行までの各段階においてダブルチェックをかけ、試験検査結果の信頼性を保証するシステム作り

を行ってきた。平成11年度からはこの試験品や試験検査機器などを取扱う試験検査担当者を対象とした内部精度管理にも取り組んでいる<sup>6)</sup>。

今回はさらに試験検査結果の信頼性を保証することを目的に、試験検査機器が分析期間中確かに正しく作動していたことを、試験検査で得られた各種の生データを用いて検証することを試みた。

### システム適合性

日局における「システム適合性試験」の概念は明確ではない。日局技術情報・HPLC法においては「分析前(中)にその分析システムが、期待する真度と精度をもって稼働していることを確認するために実施する」<sup>7)</sup>と記載され、USP23 System Suitabilityにおいては、「クロマトシステムの分離状態と再現性を確認する」ことと謳われている。このUSPの記載に照らし合わせると、日局における分離状態は「カラムの選定」(溶出順序、分離度、理論段数、シンメトリー係数)、再現性は「試験の再現性」(ピーク面積(高さ)の相対標準偏差)と考えるこ

静岡県環境衛生科学研究所

(〒420-8637, 静岡市北安東4-27-2)

Shizuoka Institute of Environment and Hygiene

(4-27-2, Kita-andō, Shizuoka, 420-8637, Japan)

とができる<sup>8)</sup>。

クロマト手法以外での「システム適合性」は論じられていないが、「システム適合性」を、試験検査実施中分析機器が正しく機能していることを確認することと考えれば、その他の機器でも何らかの手法があると考えられた。

### 1 HPLCのシステム適合性

#### 1) 溶出順序, 分離度, 理論段数, シンメトリー係数

HPLCのカラムの選定における溶出順序, 分離度, 理論段数, シンメトリー係数は, これから試験を実施してもよいカラムであるかのチェックであり, 分析開始前には検証が必要である。内標準法では溶出順序及び分離度, 絶対検量線法では理論段数及びシンメトリー係数が必須の項目と考えられている。我々の試験検査においては, 必ずこれらを確認してから試験を開始するよう徹底しているが, 試験結果の打ち出し様式にこれらの項目を含ませることにより, 分析期間中これらの数値に変動がないことを検証することができる。

#### 2) 試験の再現性のチェック

日局一般試験法・液体クロマトグラフ法の「試験の再現性」は標準溶液を繰り返し注入し, ピーク高さ(面積)の相対標準偏差をチェックする。これも試験を実施してもよい分析状態であるかの確認であり, 絶対検量線法においては設定すべき項目と考えられている。通常, 試験の開始時に標準溶液を5回(または6回)注入し, 面積値の相対標準偏差が規定以内であれば試料溶液を分析してよいと判断される(表1)。

表1 HPLCにおける試験の再現性

注入回数	ピーク面積値
1	195,532
2	195,184
3	195,079
4	194,983
5	195,572
6	194,974
平均	195,220
標準偏差	268
相対標準偏差	0.14%

当所においては, 試験期間中のシステムの稼働状況を見るため, 試料溶液を注入する前後に標準溶液を挟んで注入し, ピーク面積(高さ)の再現性を評価するのがよいとも考えている(表2)。

また, 試験品も試験条件も全く同じである場合には, 表3のように試験日が異なることによるピーク面積値の変動をチェックすることにより, 試験の再現性を評

表2 HPLCにおける試験の再現性

注入順	ピーク面積値
1	195,532
2	195,184
3	195,079
試料注入	
4	194,983
5	195,572
試料注入	
6	194,974
標準平均	195,220
標準偏差	268
相対標準偏差	0.14%

表3 異なる日間のHPLC面積値の再現性

月・日	平均面積	標準偏差	相対標準偏差
11・15	388,077	1,274	0.33
11・16	383,268	1,099	0.29
11・17	384,275	2,848	0.74
11・18	388,048	2,003	0.52

価することも可能と思われる。

#### 3) 保持時間変動の有無の確認

HPLCシステムが適切に稼働していることを確認するためには, 保持時間の確認も大切な項目のひとつである。試験開始から終了までの各保持時間が分析期間中, 変動していないことを常に確認する必要がある(表4)。

表4 HPLCにおける保持時間の変動

注入回数	STD保持時間	TEST保持時間
1	6.13	6.12
2	6.12	6.12
3	6.12	6.13
4	6.14	6.13
5	6.13	6.14
6	6.13	6.13
7	6.14	6.14

#### 4) 内標準物質の面積値を用いた前処理操作の評価

HPLCに注入する前段階として標準溶液や試料溶液の調製が必要である。内標準法は試料や標準溶液に同量の内標準物質を加え定量する。HPLCクロマトグラムから得られた両液の内標準物質の面積値を比較することによって, 前処理操作, 特に希釈方法やピペット操作が正しかったことを検証できる場合がある(表5)。

表5 標準溶液と試料溶液中の内標準物質の面積値

標準溶液の内標準物質の面積	74534 ± 433
試料溶液の内標準物質の面積	75115 ± 531
内標準物質の面積比較T/S	100.8%

2 クロマト手法以外のシステム適合性

クロマト手法以外での「システム適合性」を、試験検査実施中に分析機器が正しく機能していることを確認することと考え、システムの検証方法を検討した。

1) 分光光度計のシステム適合性

分光光度計を用いたシステムの確認はHPLCと同様、試料溶液の測定の前後に標準溶液の吸光度測定をばさむことにより可能と思われる。また、同じ試験品を同じ手法で測定する場合には、標準品の秤量値あたりの吸光度を比較することで、測定状態が適切であったか評価できる(表6)。

表6 異なる日間の吸光度の再現性

月 日	秤量値mg	吸光度	Abs/mg	%
1・1	15.0	0.4379	0.02919	100
1・2	15.9	0.4632	0.02913	99.8
1・3	15.6	0.4501	0.02885	98.8
1・4	14.1	0.4054	0.02875	98.5
1・5	14.0	0.4083	0.02916	99.9

2) 滴定による定量におけるシステム適合性

滴定法の場合、通常、空試験が必要であれば行い、試料溶液を滴定する。このとき、標準品を用いて試験を行うことにより滴定のシステムが適切であったか確認することができる(表7)。

表7 滴定におけるシステム適合性

	定量値%	平均±標準偏差
標準品	①99.5②102.5③101.2	101.1 ± 1.5%
試料	①102.3②99.7③100.7	100.9 ± 1.3%

表8 pH計におけるシステム適合性

測定順序	pH指示値
pH6.86校正	6.876
pH4.01校正	4.003
pH6.86確認	6.85
試料測定	4.69
pH6.86確認	6.86

3) pH測定におけるシステム適合性

pH測定は、標準溶液でpH計を校正し、試料溶液

の測定を行う。試料溶液の測定前や測定後に標準溶液を再測定することでシステムの確認ができる(表8)。

4) 化学はかりのシステム適合性

化学はかりは全ての試験検査の原点とも言うべき重要な機器のひとつである。この測定値が正しくないと全ての検査工程が無意味になってしまう。秤量値が正しかったことは標準分銅及び化学はかりの風袋差し引き機能を用いて確認することができる(表9)。

表9 化学はかりにおけるシステム適合性

測定順序	指示値
標準分銅による校正	
ゼロ確認	0.0000
風袋	57.9103
風袋差し引き	0.0000
試料秤量	1.0042
試料撤去	-57.9104

5) 水分計のシステム適合性

カールフィッシャー水分測定装置を用いて試料中の水分含量を測定する場合、滴定試薬の力価確認の後、水を用いて100%の確認を行うとよい(表10)。

表10 水分測定装置におけるシステム適合性

測定順序	定量値%
KF試薬の力価測定	
水で確認	①99.6 ②97.7 ③100.1
試料測定	①4.82 ②4.76 ③4.75
水で確認	④97.0 ⑤99.1

6) 浸透圧計のシステム適合性

浸透圧計は、通常、標準溶液による浸透圧の校正の後、生理食塩液や試料溶液の測定に入る。ここで、試料溶液の測定の前後に標準溶液を用いることによりシステムの確認が可能となる(表11)。

表11 浸透圧計におけるシステム適合性

測定順序	測定値 (mOsm)
50mOsm校正	51, 51
850mOsm校正	847, 846, 849
290mOsm確認	289, 290
生理食塩液	281, 281, 285
試料測定	200, 199, 198
290mOsm確認	290, 290

また、生理食塩液の浸透圧値を比較することによって、測定日が異なった場合のシステム検証も可能である。

## ま と め

我々の業務である医薬品等の収去検査は、製造所とのクロスチェック、室間再現性の評価ともいえる。収去検査を行い、試験成績書を発行する立場上、試験検査結果の信頼性を常に追及して行くことは重要である。

日常、業務管理要領に基づいた試験検査の実施、クロスチェックによる内部での精度管理、国が主体となって実施している外部精度管理への参加など実施しているが、今回、試験検査機器が分析期間中確かに正しく作動していたことを検証することも必要ではないかと考えた。

HPLCのシステム適合性に関しては、医薬品等製造所では日常点検の一環として捕らえ、承認書に規定されていなくても分離度、理論段数、シンメトリー係数や試験の再現性は分析ごとに評価している。それも、単に実施しているだけではなく、独自に社内規格（基準）を定めて試験検査結果の保証の一助としているという。

今回は、HPLCの再現性評価の実施時期や日間変動のチェック、保持時間の変動のないことの確認などHPLCを用いる上で重要なパラメーターについて検討した。

また、HPLCなどクロマトシステム以外の分析手法においての「システム適合性」の評価方法について検討した結果、それらの手法においても何らかの標準品や標準物質を用い、試験検査機器から得られる各種生データを有効に活用してシステムチェックを行うことが可能であることがわかった。

今後も地方衛生研究所の収去検査結果の信頼性を常に

確保できるよう努力していきたい。

## 参 考 文 献

- 1) 小和田和宏他：医薬品等の試験検査結果の信頼性を確保するために(第一報)－1st STEP 記録類の作成－静岡県環境衛生科学研究所報告, 39, 81-85 (1997)
- 2) 内海 恵他：医薬品等の試験検査結果の信頼性を確保するために(第二報)－2nd STEP－校正検査手順書及び報告書の作成, 静岡県環境衛生科学研究所報告, 39, 87-91 (1997)
- 3) 内田 恵他：医薬品(製剤)に特有な試験検査機器の点検・校正方法の検討, 静岡県環境衛生科学研究所報告, 40, 31-33 (1998)
- 4) 内海 恵他：医薬品等の試験検査結果の信頼性を確保するために(第三報)－製造承認書等内容検討様式の作成, 第34回静岡県公衆衛生研究会抄録集, 3-4-3-5, 静岡(1998)
- 5) 静岡県健康福祉部長通知：医薬品等試験検査施設における試験検査等の業務管理について, 平成11年3月31日薬第1097号(1999)
- 6) 小和田和宏他：医薬品等の試験検査結果の信頼性を確保するために(第三報)－業務管理と内部クロスチェック－静岡県環境衛生科学研究所報告, 42, 53-56 (1999)
- 7) 日本公定書協会：日本薬局方技術情報1998, P45, 薬業時報社, 東京(1998)
- 8) 廣川書店：第十三改正日本薬局方解説書, B-11-B-39, 東京(1996)

## 医薬品溶出試験の信頼性に関する研究 — 医薬品の処方, 製剤設計の評価 —

医薬品生活部 医薬食品スタッフ 馬 渕 博, 堀池あずさ, 小和田和宏  
山口善三郎, 永野隆夫

### Study on the Reliability in Drug Dissolution Test — Estimation for Prescription and Pharmaceutical Design —

Hiroshi MABUCHI, Azusa HORIIKE, Kazuhiro OWADA,  
Zenzaburo YAMAGUCHI, and Takao NAGANO

溶出試験は結果に影響を及ぼす変動要因の多いことで知られており, 我々は昨年度の研究報告において, バラツキが少なく再現性の良い測定結果を得るためには, 個々の医薬品の有効性, 安全性, 製剤特性の観点から, その医薬品に則した試験条件を設定することが必要であるとの考え方を示した。

今年度, 特に製剤の処方や製剤設計等に焦点を当て, 賦形剤等の処方等が溶出試験結果に及ぼす影響を検討した。その結果, 成分・含量が同一の医薬品であっても賦形剤等の種類によって溶出挙動が異なることが明らかとなった。つまり, 医薬品の成分・含量別に一括して試験条件を設定するのではなく, 個々の医薬品に対応した試験条件を設定することの必要性を改めて確認することができた。また, 新たに医薬品の処方を検討する際には, 溶出性にも配慮した上で賦形剤等の医薬品添加物の種類やその量を選択することが必要なことも明らかとなった。

Key words : 溶出試験, 製剤処方, 製剤設計, 賦形剤

Dissolution tests, Prescription for preparation, Pharmaceutical design, Filters

### はじめに

溶出試験は内用固形製剤からの主成分の溶出を試験する方法で, 内用固形製剤の品質を一定水準に確保し, 併せて生物学的同等性が著しく損なわれるのを防ぐことを目的としている<sup>1)</sup>。溶出試験は結果に影響を及ぼす変動要因の多いことで知られており<sup>2)</sup>, 我々は平成11年度の所報において, バラツキが少なく再現性の良い測定結果を得るためには, 個々の医薬品の有効性, 安全性, 製剤特性の観点から, その医薬品に則した試験条件を設定することが必要であるとの考え方を示した<sup>3)</sup>。一方, 現行の試験条件設定は<sup>4)</sup>, メーカーの如何を問わず, 医薬品の成分・含量別に一括してなされることが多いため, 各メーカーでの試験条件の設定に関する裁量は多くはないと

考えられる。

メーカーが異なれば, 医薬品の製造方法や賦形剤等の医薬品添加物の処方は異なるものと考えられる。そこで今回, 賦形剤等の医薬品添加物の種類や量の異なる医薬品を用いて溶出試験を行い, 製剤処方に起因する溶出性への影響を検討した。その上で, すでに流通している医療用医薬品に対して新たに溶出試験を追加設定する際の留意点や, 新薬の製剤処方検討時の必要事項を考察した。

### 実験方法

内服固形製剤の一つである錠剤には, 薬効が期待される主成分の他に, 錠剤を一定の大きさとするための賦形剤, 分散性を調節する崩壊剤及び服薬時の苦味をマスキングするためなどに用いる糖衣, フィルムコート剤等種々の医薬品添加物が処方されている。今回, 賦形剤の種類やフィルムの種類・量による溶出性への影響を検討した。

#### 1 賦形剤の検討

##### 1) 試料

静岡県環境衛生科学研究所

(〒420-8637, 静岡市北安東4-27-2)

Shizuoka Institute of Environment and Hygiene

(4-27-2, Kita-andō, Shizuoka, 420-8637, Japan)

- ① 賦形剤として主にコーンスターチを処方したケトプロフェン錠 (以下, コーンスターチ錠)
- ② 賦形剤として主に乳糖を処方したケトプロフェン錠 (以下, 乳糖錠)

### 2) 試験方法

日本薬局方一般試験法・溶出試験第2法(パドル法)により, 試験液に水900mLを用いて試験した. なお, パドルの回転数は50,60及び75回転とした.

## 2 フィルムコート量の検討

### 1) 試料

- ① チクロピジンを主成分とする素錠及びその素錠に重量比で10%フィルムコートした錠剤
- ② ケトプロフェンを主成分とする素錠とその素錠に重量比で1.5%, 3.0%並びに5.0%の割合でフィルムコートした錠剤

### 2) 試験方法

日本薬局方一般試験法・溶出試験第2法(パドル法)で行い, 試験液には水900mLを用い, パドル回転数は50回転とした.

## 結果及び考察

### 1 賦形剤について

乳糖錠とコーンスターチ錠を用いて溶出挙動を比較した. 乳糖錠は試験開始3時間後に溶出率が100%となったが, コーンスターチ錠は同じ測定時刻で比較すると溶出率が100%に達しなかった(図1).

この結果から主成分の種類や量が同じであっても賦形剤の種類によって溶出挙動が異なることが示された. バラツキが少なく再現性の良い測定結果を得るためには, 個々の医薬品ごとにその医薬品に則した試験条件を設定することが必要であることが改めて確認できた.

また, 試験開始3時間後に溶出率が100%とならなかったコーンスターチ錠についてパドル回転数を60及び75回転として試験したところ, 溶出率は100%となった. この現象は高回転では攪拌力が強く試験液の流速が増加することにより溶出率が向上するものの, 低回転(50回転)では攪拌力が劣り試験液の流速が低く, ベッセル底部に賦形剤が堆積するため溶出率が向上しないものと推測された(図2). 現在, 市場に流通している医療用医薬品の一部については生物学的同等性が確保されておらず, 品質が一定していないのではないかと指摘がなされている. これは医薬品承認申請時には臨床試験によって有効性及安全性が確認されているが, 承認後の実生産段階では恒常的な生物学的同等性を保証するのは難しいと考えられるからである. これを受けて国では既に流通している医薬品に対して溶出試験を追加設定する事業を進め溶出試験の抱えている問題点の一つに医薬品の溶出率

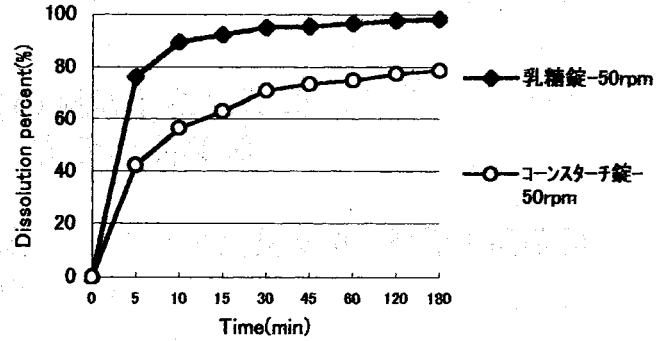


図1 賦形剤の違いによる溶出挙動の変化

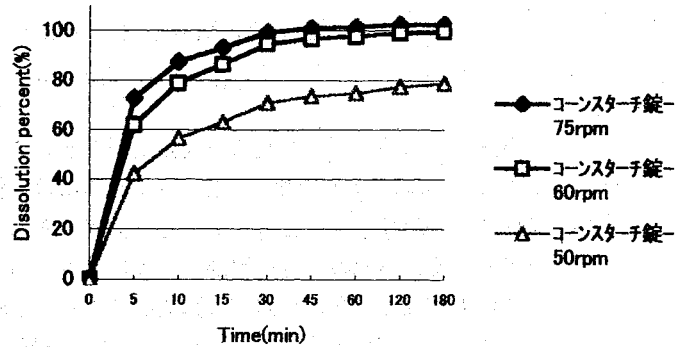


図2 パドル回転数による溶出性への影響

が85%に満たない事例があげられる. 後発医薬品の生物学的同等性試験ガイドライン<sup>6)</sup>にも示されているように, 一般的に医薬品の溶出率は溶出がプラトーに達した段階で85%以上となることが通例であり, 何らかの理由によって溶出率が85%に満たない場合は溶出率を向上させる手立てを講じることとなる. その手順としては, 第一に臨床試験に用いた医薬品の製造条件と対比させて現行の製造条件について見直し, かぎりなく臨床試験に用いた医薬品に近い条件を設定する. 第二として溶出試験の条件の見直しがあり, 例えば, 今回のようにパドル回転数を増加させることが考えられる. なお, なるべく溶出が緩和な条件の方が製剤間の差が検出されやすいので<sup>6)</sup>, 溶出率が85%以上となる試験条件の中で最も緩和な条件を設定すべきである.

一方, 新薬において溶出率を向上させる手段としては, 「製造条件の見直し」, 「試験条件の見直し」や「処方の見直し」などいずれの方法も採用可能と考えられる. ただし, 医薬品の処方を見直す場合は, コーンスターチ錠がパドル回転数50回転では溶出率100%に達しなかった今回の事例を参考として, 医薬品の製剤化にあたり, 十分な溶出性の得られる賦形剤を選択することが必要と考えられる.

### 2 フィルムコートについて

内用医薬品では主成分の安定性保持や服用時の苦味の

表1 錠剤のフィルムコーティング量による溶出率への影響  
(Apparatus; Paddle-50rpm, Test-Liquid; Water, Time; 10min)

Subjects	Mean- Dissolution Percent(n=6)	S.D.
Ticlopidine T (Film-coated)	33.9	9.1
Ticlopidine T (No-Film coated)	56.7	3.4
Ketoprofen T (1.5%Film-coated)	65.5	4.3
Ketoprofen T (3 %Film-coated)	66.6	6.0
Ketoprofen T (5 %Film-coated)	64.1	4.7
Ketoprofen T (No-coated)	62.2	3.6

マスキングのため、また、医薬品の生体への放出速度を制御する目的で、フィルムにより剤皮を施すことが多い。チクロピジン錠とケトプロフェン錠を用いて、フィルムコート処理による溶出率の変化を検討した。

苦味のマスキングを目的として10%と高い割合でフィルムコートが施された医薬品であるチクロピジン錠は素錠に比べて溶出性が劣っており、フィルムコート処理は医薬品の溶出性に関与することが示された。一方、ケトプロフェン錠についてはコーティングの有無やコート量による溶出率の差は見られなかった(表1)。これらの結果から用いるフィルムの種類によって溶出への影響が異なるものと思われた。新薬の処方検討の際には、この点に留意してフィルムの種類を決定することが必要である。

次にフィルムコート処理を製造管理の観点から検討した。現在、医薬品の重量偏差を規格内にとどめるような均一なフィルムコート技術は確立されていないため(剤皮を施した錠剤の重量偏差試験は適用を免除されている。)<sup>7)</sup>、未熟なフィルムコート処理は溶出性に影響を与えることが考えられる。今回のケトプロフェン錠の場合は、医薬品の製造管理上フィルムコートの上限值として5%程度までは許容できるものと思われる。なお具体的には個々の医薬品ごとにフィルムコート量と溶出率との関係を求めた上で、製造管理幅を決定することが望ましい。

## ま と め

1 賦形剤の違いにより医薬品の溶出挙動が異なることから、溶出試験条件を設定するためには、試験法の科

学的妥当性を得た上で、個々の医薬品の製剤特性を考慮し、有効性や安全性の評価ができる条件設定が重要であると思われる。

- すでに流通している医薬品に対して溶出試験を追加設定する際には、その医薬品に則した適切な試験条件を設定することが適当であると思われる。
- 医薬品のフィルムコート処理は溶出性に影響を及ぼす可能性がある。ただし、適切な製造管理を行うことにより目的とする溶出性は確保できるものと思われる。

## 参 考 文 献

- 第十三改正日本薬局方第二追補：平成11年12月21日付厚生省告示第248号
- 鹿庭なほ子：医薬品研究，28，(7)，505-511 (1997)
- 馬淵博他：医薬品溶出試験の規格等に関する検討(第一報)，静岡県環境衛生科学研究所報告，42，69-72 (2000)
- 厚生省医薬安全局長通知：医療用医薬品の品質に係る再評価の実施等について，平成10年7月15日付医薬発第634号
- 厚生省医薬安全局審査管理課長通知：後発医薬品の生物学的同等性試験ガイドラインについて，平成9年12月22日付医薬審発第487号
- 青柳伸男：日本薬局方における溶出試験の目的，適用製剤及び試験条件，医薬品研究，24 (10)，1031-1041 (1993)
- 日本薬局方解説書編集委員会：第十三改正日本薬局方解説書，97-104，廣川書店，東京 (1996)



## 医薬品製造所における分析法のバリデーシヨンの標準的モデルの作成に関する研究 — その3 分析法の変動要因に関する検討 —

医薬品生活部 医薬食品スタッフ 堀池あずさ, 馬 渕 博, 小和田和宏  
山口善三郎, 永野隆夫

Study for Standard Model of Validation of Analytical Procedures at Drug Manufactures  
— Step 3 Investigation of Variations in Analytical Conditions —

Azusa HORIIKE, Hiroshi MABUCHI, Kazuhiro OWADA,  
Zenzaburo YAMAGUCHI, and Takao NAGANO

当所では、これまでに県内医薬品製造所を対象とした分析法のバリデーシヨンの取組状況に関するアンケート調査を実施し、標準的モデルの提示を要望する声が多かった調査結果を受けて作成した分析法バリデーシヨン事例集を示すことにより、各製造所における分析法バリデーシヨンシステム作成の一助としてきた。分析法バリデーシヨンで重要なパラメータとされる「室内再現精度」の実施に際しては、試験結果に影響を及ぼす変動要因について検討することが不可欠である。一方、当所では、医薬品等の取去検査を実施する過程で、試験結果にばらつきを生じたり、再現性の乏しい事例に遭遇することがある。そこで、医薬品製造所における分析法のバリデーシヨンの実施に役立てることを目的とし、このようなばらつきの原因について、分析法の変動要因という点から検討を行った。

Key words : 分析条件, 変動要因, 室内再現精度, 室間再現精度, 頑健性  
Analytical conditions, Variations, Intermediate precision,  
Reproducibility, Robustness

### はじめに

分析法の評価をする上で最も重要なパラメータである「室内再現精度」の検討は、各試験室の実際の分析環境を考慮して変動要因を決定し、それらをランダムに割り振って影響を見積もることになる<sup>1), 2)</sup>。代表的な変動要因としては、「試験日」「試験者」「装置」「試薬・カラム」等があげられる。また、分析法を開発する段階において、分析条件を故意に変動させたときの分析法の信頼性を表す指標である「頑健性」を検討しておかなければならない<sup>3), 4)</sup>。

一方、地方衛生研究所において、医薬品等の品質確保に対する取り組みとして実施している取去検査は、医薬

品製造所とのクロスチェック、あるいは「室間再現精度」の確認といえる。年間約80検体700項目に及ぶ取去検査を行う中で、時に試験結果にばらつきを生じる事例に遭遇し、それが製品の品質によるものか、分析法によるものかは判断に苦慮するところである。

今回、このようなばらつきの原因を考察するため、試験方法の変動要因という点から検討を行ったところ、いくつかの問題点が明らかになったので報告する。

### 変動要因の検討方法

試験結果に差が出やすいと思われる試験項目を選び、曖昧な表現や複数の手法が考えられる操作について、承認書から逸脱しない範囲内で条件を変動させ、検査員4名で試験を行った。結果に差が出た場合は、その原因を究明できるよう再度条件を変えて検討した。表1に、検討した試験項目と主な変動要因を示した。

表1 検討した試験項目及び変動要因

試験項目	変動要因
1 エキス含量	
1) 水浴上還流 (無水エタノール)	還流温度, 水槽への浸け方, 蒸発皿, 抽出溶媒, 振り混ぜ方法・頻度 等
2) 水浴上還流 (メタノール)	
3) 水浴上還流 (50%アセトン)	
4) 振り混ぜて浸出 (メタノール)	
2 定量法 (滴定)	粉末化, 振り混ぜ方法・時間 等
3 軟カプセル剤の内容物重量	洗浄溶媒, 洗浄方法, 放置時間, 作業環境 (温度・湿度) 等

試験項目1及び2については3回繰り返し (n=3), 試験項目3については10カプセルで行った。

## 結 果

### 1 エキス含量

表2に, エキス含量の試験方法, 規格幅, 当所の試験結果, 製造所の成績及び規格の中央値を示した。天然物由来の漢方製剤に特有の本試験法は, 規格幅も検体により異なり, また, 主成分の量が明らかである化学合成品の定量法のように必ずしも規格の中央付近の値になるとも限らないため, 異なる試験室において良好な再現精度を得ることは, 非常に難しいと考えられる。

過去に当所で試験を実施した検体Aは, 当所の結果が上限ぎりぎりの25.2%となり, 製造所とも大きな差があった。この原因について検討した結果, 抽出に用いた無水エタノール中の水分がエキス含量に影響を及ぼすことが示唆された (表3)。この経験から, 抽出溶媒の保管管理に十分留意する必要性を痛感するとともに, 工程の長いエキス含量試験法について, その他にも多くの変動要因があるのではないかと考え, 今回, 検体B~Eについて検討を行った。抽出溶媒の種類は無水エタノール, メタノール及び50%アセトン, また, 抽出は「水浴上還流」と「振り混ぜて浸出, 放置」の2つの方法で行った。

### 1) 無水エタノールでの還流抽出 (検体B)

承認書におけるエキスの抽出方法は, 日局一般試験法の生薬試験法の方法に従った形で<sup>5)</sup>, 「水浴上, 穏やかに還流 (2時間)」とだけ記載されていた。還流時の温度及び試料の状態, 蒸発皿の種類等を考慮し検討を行った (表4)。エキス含量はいずれも規格内ではあったが, 含量と温度との相関関係が示唆された。また, 条件C以外では相対標準偏差 (CV値) が10%以上と大きかった原因として, 用いた恒温水槽が小さく, 試料の浸かり方が不均一であったことが考えられた。(条件A, B及びD)。蒸発皿の種類 (磁製, アルミ) による差は認められなかった。

表3 エタノール中の水分量による影響 (検体A)

エタノール含量	エキス含量 (%)
99.5% (無水エタノール)	12.4
97.5% (当所で調製)	26.4
95.0% (局方エタノール)	29.2

表2 エキス含量の比較

検体	抽出溶媒 抽出方法	規 格 幅 (%)	当所結果	製造所	中央値
A	無水エタノール 水浴上穏やかに還流2時間	8.5~25.5% (17.0)	25.2	13.0	17.0
B	無水エタノール 水浴上穏やかに還流2時間	5.0~20.0% (15.0)	7.9	8.0	12.5
C	メタノール 水浴上穏やかに還流2時間	43.6~81.0% (37.4)	57.5	56.1	62.3
D	50%アセトン 水浴上還流 穏やかに煮沸1時間	56.0~85.0% (29.0)	68.5	68.9	70.5
E	メタノール 8時間時々振り混ぜ浸出, 16時間放置	0.7~1.3 g / 6 g (10.0)	0.97	0.9	1.0

そこで、大きな恒温水槽を用い、同時に「穏やかな」温度であった80~85℃で、水浴への浸け方を変えて行ったところ、試料部を完全に浸ける「水浴中」で製造所とほぼ同じ結果が得られ、CV値はともに10%以下で良好であった(表5)。これらのことから、エキス含量試験法においては、還流時の温度と均等な試料の浸かり方が重要な要因であることが考えられた。

表4 還流抽出条件の検討(検体B)

条件	A	B	C	D
水槽台数	1台 水浴中,上	2台 水浴中	2台 水浴中	2台 水浴中
温度(℃)	70~75	80	90	100
試料の様子	殆ど攪拌 されない	穏やかに 動く	やや激 しい	激しい
蒸発皿	アルミ	アルミ	磁製	磁製
含量(%) (cv%)	6.7 (13.4)	8.9 (10.2)	7.9 (2.2)	9.7 (14.7)
製造所	8.0			
規格	5.0~20.0			

表5 同一水槽での還流抽出(検体B)

条件	E	F	製造所 (SOP)
フラスコ位置	水浴上	水浴中	水浴中
温度(℃)	同一水槽(80~85)		80~85
試料の様子	殆ど攪拌 されない	穏やかに 動く	穏やかに
含量(%) (cv%)	7.1 (1.5)	8.1 (6.1)	8.0 (1.9)

## 2) メタノールでの還流抽出(検体C)

1)の検討においては抽出の適温は80~85℃であった(エタノールの沸点:78.3℃)が、抽出溶媒の種類により最適な還流条件は変わってくると考えられる。そこで検体Cについて、メタノールによる還流抽出(メタノールの沸点:64.6℃)を検討した。還流温度を65~75℃の範囲で行った条件A,B及びDで得られたエキス含量は、製造所の成績の±2%以内の値であった。温度が高かった条件Cではエキス含量が高めとなったが、規格幅(43.6~81.0%)から見て問題ないと考えられる。また、CV値はいずれも1.5%以下で、各試験者が溶媒の沸点等を考慮した温度設定を行ったことが良好な結果をもたらしたと考えられる(表6)。

表6 メタノールによる抽出(検体C)

条件	A	B	C	D
温度(℃) (平均)	66~72 (69)	65~75 (70)	68~80 (74)	67~75 (71)
含量(%) (cv%)	58.1 (1.3)	55.5 (0.13)	61.3 (0.76)	54.8 (1.3)
製造所	56.1			
規格	43.6~81.0			

## 3) 50%アセトンでの還流抽出(検体D)

検体Dでは50%アセトンを抽出溶媒として用いている。アセトンの沸点(56.5℃)を考慮して、60~80℃の範囲で温度を変動させてエキス含量を測定したところ、65℃の条件Cで得られた値は他の条件に比べて約10%低く、ばらつきも大きかった(表7)。

表7 50%アセトンによる抽出(検体D)

条件	A	B	C	D
温度(℃) (平均)	77~83 (80)	65~75 (70)	61~69 (65)	57~63 (60)
アセトン	未開封 500ml	未開封 500ml	開封 3L	未開封 500ml
蒸発皿	55g	70g	105g	70g
重さ,直径	90mm	100mm	120mm	100mm
含量(%) (cv%)	68.9 (0.08)	68.8 (1.2)	57.9 (5.8)	67.9 (0.67)
製造所	68.9			
規格	56.0~85.0			

条件Cよりも低い温度で行った条件Dで良好な結果が得られていることから、温度以外の要因(アセトンや蒸発皿の違い)について検討を行ったが、3~4%ほどの差が認められたにとどまった(表8)。

そこで、この試料は、抽出溶媒を加えて振り混ぜるに従い液の色が濃くなることに着目し、試料の攪拌状況による違いを検討した。60℃の穏やかな温度では、還流前の攪拌の有無でエキス含量に約10%の差が生じた(表9)。70℃では攪拌の有無による差は見られなかったが、この温度では還流中に試料の動きが激しくなるため、抽出効率の差はなくなるものと考えられる。このように検体Dについては、「穏やかな」条件よりも、むしろ高い温度で還流を行ったほうが、測定結果の再現性が良くなることが推察される。

表8 アセトン保管状況及び蒸発皿の大きさ

温度(°C)	57~63	
アセトン	開封, 3L	未開封, 500mL
蒸発皿(磁製)	70g, 100mm	105g, 120mm
含量(%)	66.5	64.3

表9 試料の攪拌状況(検体D)

温度(°C)	57~63		67~73	
試料の様子	穏やか		やや激しい	
還流前の攪拌	有	無	有	無
含量(%)	67.8	56.5	67.0	66.5

4) 浸出(振り混ぜ方)の検討

「8時間時々振り混ぜて浸出, 16時間放置」という試験方法を採用している検体Eについて, 振り混ぜ方法とその頻度を変えて検討を行った。その結果, エキス含量に大きな差は見られず, いずれのばらつきもCV値1%以下と良好であった(表10)。この検体については緩やかな振り混ぜ条件(手振り, 2時間毎)においてもエキスが十分浸出したものと思われるが, 振り混ぜる頻度を決めたことにより非常に精度が向上した事例の報告もあることから<sup>6)</sup>, 変動要因を考慮し, 常に同じ条件で行うことが重要であると考えられる。

表10 振り混ぜ方法を変動させた事例(検体E)

条件	A	B	C	D
方法	手	手	振とう機	振とう機
頻度	30分毎 1分	2時間毎 1分	2時間毎 10分	30分毎 10分
含量(%)	0.99	0.97	1.0	0.92
(cv%)	(0.9)	(0.9)	(0.6)	(0.69)
製造所	0.9 (g/6g)			
規格	0.7~1.3			

検体B, C及びDは抽出溶媒がそれぞれ異なるにも関わらず, 抽出方法は, いずれも「穏やかに還流」とあるだけで, 具体的な温度は記載されていない。また, 検体Eの振り混ぜ方についても, 8時間中の「時々」では, あまりにも漠然としている。このように「試験者」の解釈の仕方によって何通りにも考えられる分析条件では, ばらつきが大きくなる可能性がある。各製造所では, SOP等に最適な還流温度を設定していると思われるが, 重要な条件については承認書にも記載されるのが望ましいと考えられる。

2 定量法(滴定法)

錠剤を粉末化し, エタノールを加えて振り混ぜ, 水酸化ナトリウム液で滴定を行う定量法の変動要因について検討を行った。承認書には, 局方に収載されている原薬の定量法<sup>9)</sup>に準じて「…を加えて振り混ぜた後, 滴定する」としか記載されていないため, 粉末化, 振り混ぜ方法(時間, 手振り又は機械による振とう)等について条件を変動させた(表11)。

条件Aは, n=3のうち1つで規格外になり, CV値も約3%あった。これは, 水平振とう機を用いて振り混ぜたため, 容器(三角フラスコ)の栓を固定できない構造上, 激しく振とうできなかつたことが原因と考えられる。また, 条件Aのように粉末化に粉碎機を使う場合には, 粉末試料の上部と下部で堆積状況が異なることが考えられるので, 粉碎後, 再度, 乳鉢等で均一にしてからサンプリングするほうが良いと考えられる。手で振り混ぜた条件C, D(20秒~2分)においても定量値は低かった。縦型振とう機で5分振とうすることによりほぼ100%の定量値が得られた(条件B)ことから, この分析法においては, 振とう条件が重要であると考えられた。

表11 変動させた操作条件

条件	A	B	C	D
粉末化	粉碎機	乳鉢	乳鉢	乳鉢
振り混ぜ方法	水平振とう機	縦型振とう機	手	手
時間	2分	5分	10秒	3分
定量値(%)	96.3	100.9	95.8	97.0
(cv%)	(2.9)	(1.3)	(0.7)	(0.1)
製造所	100.0			
規格	95~105			

表12 振とう条件(強度, 時間)の影響

振とう強度	振とうの様子	時間(分)	含量(%)
手振り	時々, 上下転倒	2	97.6
		5	98.9
振とう機(強度5)	内壁に沿って上下に波打つ	2	96.2
		5	95.8
振とう機(強度8)	全体が激しく混ざり合う	2	99.4
		5	101.4

そこで, 手振りと縦型振とう機の強度を変化させて, それぞれ2分と5分で振とうしたところ, 手振りでもしっかり混合させるように振れば時間経過と共に定量値が高くなる一方, 振とう機を用いても弱い強度では定量値が低いままであった(表12)。

振とう機の強度等、「装置」の条件による影響を検討する必要があるとともに、この検体では規格幅（95～105%）からみても、弱い振とう条件では規格下限を下回る可能性もあることから、原薬とは異なる製剤（錠剤）特性を十分に把握して分析法に反映させることが望まれる。

### 3 軟カプセル剤の内容物重量

内容物重量は、規格及び試験方法に定められた試験項目ではないが定量値を求める際に必要となる。カプセル全体を秤量した後、内容物をエーテル等で洗浄して空カプセルを秤量し、前後を差し引いて内容物重量とするため、内容物を完全に除去することと、空カプセルを秤量するまでの間、カプセルの吸湿と乾燥に留意することが重要であると考えられる。

表13 変動させた操作条件

条 件	A	B	C	D
作業室	検査室 (28℃, 80%)			
温度・湿度				
洗浄溶媒	エーテル	ヘキサン	エーテル	エーテル
洗浄方法	超音波	超音波	手洗い	超音波
放置時間	30分	1時間	2時間	30分
内容物重量(mg)	248.2	244.6	242.7	245.0
(cv%)	(1.2)	(1.1)	(1.0)	(0.7)
平均値	245.1 (定量値97.7%)			
作業室	天秤室 (20℃, 50%)			
温度・湿度				
洗浄溶媒	エーテル	ヘキサン	ヘキサン	ヘキサン
洗浄方法	超音波	手洗い	手洗い	手洗い
放置時間	30分	30分	1時間	3時間
内容物重量(mg)	251.5	250.3	251.2	249.8
(cv%)	(0.9)	(0.6)	(0.9)	(0.7)
平均値	250.7 (定量値99.9%)			
製造所	251.9 (定量値100.4%)			
理論値	250.0			

洗浄溶媒の種類（ヘキサン、エーテル）、洗浄方法（手、超音波）の違いで内容物重量には大きな差はなかったが、検査室の環境により平均重量に差が認められた。すなわち、検査室（夏期：28℃, 80%）では平均重量245.1 mgであったのに対し、天秤室（通年：20℃, 50%）では250.7 mgと向上し、定量値で約2%の差が生じた（表13）。このことから、夏期では特に湿度の影響が大きく、放置時間が長いほど空カプセルの重量が高くなることが明らかにわかった。

次に、乾燥による影響を検討するため、冬期に検査室で行ったところ、温度・湿度はほぼ天秤室と同じで、2時間放置しても、定量値はほとんど変化しなかった（表14）。

表14 冬期の乾燥の影響

条 件	検査室 (20℃, 60%)	天秤室 (20℃, 50%)
全カプセル (mg)	337.3	340.1
内 容 物 (mg)	251.1	252.3
空カプセル (mg)	86.2	87.8
15分放置後	(100.00)	(100.00)
1時間放置後	86.0 (100.08)	87.3 (100.20)
2時間放置後	85.4 (100.24)	86.3 (100.59)

( )は15分放置後を100%とした定量値の相対比

局方一般試験法の重量偏差試験法軟カプセル剤の項5)では、「・・・室温に放置してカプセルに含まれている溶媒を蒸発させる。このとき、カプセルが特に吸湿又は乾燥することを避ける。」という表現で、温度・湿度の明確な基準はないが、季節間すなわち「試験日」の変動を最小限に抑えるために、適切な作業環境を検討する必要があると思われる。

## ま と め

以上の検討内容から、エキス含量試験法では還流抽出条件（温度、水槽への浸け方）、滴定による定量法では振り混ぜ方法（強度、時間）、また、軟カプセルの内容物重量測定では作業環境（温度、湿度）等が変動要因として考えられた。すなわち、承認書等に詳細な情報が記載されていないことによる「試験者」の解釈や手法の違い、また「装置」や「試験日」による差が分析結果にばらつきを生じる原因になったと考えられる。分析条件の変動による影響は、分析法の開発時に、「頑健性」として検討されているべきであり、例えば少しの温度の差で分析結果が変わってくるのであれば、抽象的な表現ではなく「〇〇度で抽出」と規定するのが望ましい。このような品質を評価する上で大きな影響を及ぼす試験条件については、各試験室においては、SOP等に明確に規定し、「室内再現精度」をしっかりと把握することが重要である。

地衛研で行う収去検査は単に規格への適否を判断するだけでなく、承認書の試験方法の品質評価における適切性を確認したり、「頑健性」や「室間再現精度」といった点から試験法を見直すことに大きな意義があると考えられる。頑健性に富んだ分析法であれば、試験室が異なる

っても良好に再現できるであろうし、両者で差が生じた場合には、それぞれでは気づかなかった落とし穴があることになり、SOPや承認書の整備に役立つとともに、よりよいバリデーションを実施するためのデータになると考えられる。

分析法の正確性を確保するために、また、医薬品全体の品質向上のためにも、今後もこのような検討を行っていきたいと考えている。

### 参 考 文 献

- 1) 鹿庭なほ子他：医薬品の分析法の真度および精度を評価するための実験計画①, PHARM TECH JAPAN, 16 (2), 7-15 (2000)
- 2) 鹿庭なほ子他：医薬品の分析法の真度および精度を評価するための実験計画②, PHARM TECH JAPAN, 16 (3), 33-57 (2000)
- 3) 分析法バリデーションに関するテキスト (実施項目) について：厚生省薬務局審査課長通知, 薬審第755号 (1995)
- 4) 分析法バリデーションに関するテキスト (実施方法) について：厚生省医薬安全局審査管理課長通知, 医薬審第338号 (1997)
- 5) 廣川書店：第十三改正日本薬局方解説書, 東京 (1996)
- 6) 山本藤輔：漢方製剤の分析法バリデーションについての一考察, 防菌防黴学会誌, 26 (9), 487-494 (1998)

## ソース（ウスターソース類）の品質等に関する調査・研究

医薬品生活部 生活科学スタッフ 渡辺武明, 影山知子, 菅野尚子  
永野隆夫

### Study on Quality of Worcester Sauces

Takeaki WATANABE, Tomoko KAGEYAMA, Naoko KANNO,  
and Takao NAGANO

市販されているウスターソース類(ウスターソース, 中濃ソース, 濃厚ソース, 焼そばソース等)について, 酸度, 食塩相当量, 糖類等の成分測定と容器包装の表示内容の確認を行い, その成分的特徴や品質等について調査した. 銘柄によって, 酸度は3倍, 食塩相当量は3倍以上, 糖類量は約1.5倍の差が認められた. 平均値で見た場合, ソースの種類によってかなり明確な成分的特徴が認められた. 一方, 同じ種類であっても, 他銘柄と成分的特徴が大きく異なる銘柄が散見され, 想像以上にバラエティーに富んでいて, 消費者需要の多様性を反映していた. また, 保存方法の表示について調査したところ, 一部, 改善が望まれる銘柄があった.

Key words : ウスターソース類, 酸度, 食塩相当量, 糖類  
Worcester sauce, Acidity, NaCl deduced from Na content,  
Monosaccharides and disaccharides

### はじめに

ソースという名称は, もともとは, 西洋料理の味付けに使われる液体調味料の総称で, 肉類主体で比較的素材が少なかった西洋料理では, 味付けで料理に変化を与えるという背景から, 多種多様なソースが生まれてきたと言われる.

ウスターソースは, 19世紀の初めにイギリスのウスター市で誕生し, わが国では明治初期の洋食文化の導入で普及が始まったと言われる. 第二次世界大戦後, 中濃ソース, 濃厚ソース(とんかつソース)が加わり, 近年, 更に, 焼そばソースやお好みソース等も仲間入りして, ウスターソース類と総称されている.

マヨネーズソース, トマトソース, フレンチソース(フレンチドレッシング)等々, 他にいろいろソースがあるなかで, ただ単にソースといえば, 普通, ウスターソ

ース類を指すほど私達の食卓に馴染み深い調味料となっている.

ところで, 当所で行ったアンケート調査によれば, ウスターソース類のことは, 身近な割に, あまりよく知られていない様子であった.

そこで, 消費者に提供する資料を作成するため, 市販されているウスターソース類(以下「ソース」と略す)について, 成分の特徴や品質ならびに表示内容等について調査したので報告する.

### 調査方法

#### 1 実施時期

平成12年12月~平成13年3月

#### 2 テスト対象商品

静岡市及び富士市のスーパーマーケットで販売されていた各種ソースから, 表1に示した9社28銘柄を購入してテスト対象商品とした.

#### 3 テスト項目及び方法

##### 1) 比重

20℃の恒温室で, ソース25mLの重量を測定して比重(g/mL)を求めた.

静岡県環境衛生科学研究所

(〒420-8637, 静岡市北安東4-27-2)

Shizuoka Institute of Environment and Hygiene

(4-27-2, Kita-andō, Shizuoka, 420-8637, Japan)

2) 酸 度

ウスターソース類の旧JAS規格で定めていた方法で測定した。ただし、試料採取はすべて重量で行った。

3) 食塩相当量

栄養成分等の分析方法（平成8年5月厚生省告示第146号栄養表示基準別表第1の第3欄に掲げる方法）の10.ナトリウム(1)原子吸光光度法（灰化法）でナトリウム量を測定し、換算係数2.54を乗じて食塩相当量を算出した。

4) 糖 類

栄養成分等の分析方法（同上）の6.糖類(2)高速液体クロマトグラフ法で測定した。定量下限は、0.5g/100gである。

5) 無塩可溶性固形分

ウスターソース類のJAS規格で定める方法で測定した。

結 果 及 び 考 察

1 比重について

テスト対象商品9社28銘柄のうち6社23銘柄（表1）

表1 テスト対象商品

銘柄	種類 注 <sup>1)</sup>	品名 (名称)	会社	JAS マーク	内容量	定価 (円)	栄養成分表示 注 <sup>2)</sup>	甘味料 添加表示 注 <sup>3)</sup>	でん粉 添加表示 注 <sup>4)</sup>	増粘剤 添加表示 注 <sup>5)</sup>	色素添加 表示	特 徴
1	ウス	同左	A	JAS特級	500mL	269	あり	無	無	無	カラメル	
2	ウス	同左	A	JAS特級	170mL	298	あり	無	無	無	カラメル	ガラスビン入り
3	ウス	同左	A	JAS特級	170mL	139	あり	無	無	無	無	減塩タイプ
4	ウス	同左	B	JAS特級	500mL	188	あり	甘草	無	無	カラメル	
5	ウス	同左	C	JAS特級	300mL	188	無	甘草	無	無	カラメル	
6	ウス	同左	D	—	300mL	398	無	無	無	無	カラメル	県内産、ガラスビン
7	中濃	同左	A	JAS特級	500mL	269	あり	無	あり	あり	カラメル	
8	中濃	同左	A	JAS特級	170mL	298	あり	無	無	無	無	ガラスビン入り
9	中濃	同左	A	JAS特級	10g×10	108	あり	無	あり	あり	カラメル	アルミパック入り
10	中濃	同左	A	JAS特級	170mL	139	あり	無	無	無	無	減塩タイプ
11	中濃	同左	B	JAS特級	500mL	188	あり	甘草	あり	あり	カラメル	
12	中濃	同左	C	JAS特級	300mL	188	無	無	あり	あり	カラメル	
13	中濃	同左	E	JAS特級	500mL	188	あり	甘草他	あり	あり	カラメル	
14	中濃	同左	F	JAS特級	170mL	148	あり	無	無	無	無	減塩タイプ
15	濃厚	同左	A	JAS特級	500mL	269	あり	無	無	無	カラメル	
16	濃厚	同左	A	JAS特級	170mL	298	あり	無	無	無	無	ガラスビン入り
17	濃厚	同左	A	JAS特級	300mL	248	あり	無	無	無	無	
18	濃厚	同左	A	—	400g	278	あり	無	あり	あり	カラメル	
19	濃厚	同左	B	JAS特級	500mL	238	あり	甘草	あり	あり	カラメル	
20	濃厚	同左	C	JAS特級	300mL	188	無	甘草	あり	あり	カラメル	
21	濃厚	同左	E	JAS特級	500mL	188	あり	甘草	あり	あり	カラメル	
22	濃厚	同左	G	—	310mL	348	無	無	無	無	カラメル	
23	焼そ	中濃	B	—	300g	168	あり	甘草	あり	あり	カラメル	
24	焼そ	濃厚	H	—	500g	268	あり	無	あり	あり	カラメル	
25	焼そ	(同左)	I	—	300mL	185	あり	無	無	無	カラメル	
26	お好	濃厚	B	—	300g	168	あり	甘草	あり	あり	カラメル	
27	お好	濃厚	H	—	500g	268	あり	無	あり	あり	カラメル	
28	たこ	濃厚	H	—	300g	218	あり	無	あり	あり	カラメル	

注1) ウス：ウスターソース，中濃：中濃ソース，濃厚：濃厚ソース，焼そ：焼そばソース，お好：お好みソース，たこ：たこ焼ソース

注2) エネルギー，たんぱく質，脂質，糖質，ナトリウムの5項目

注3) No13の他は，ステビア

注4) コーンスターチ又はでんぷん

注5) 増粘多糖類，タマリンド又はキサントラン



には栄養改善法に基づく栄養成分表示があり、エネルギー、たんぱく質、脂質、糖質、ナトリウムの量が表示されているが、ソースの容量当たりか、それとも重量当たりかが、統一されていない。換算できるように比重を測定した。比重は、1.14から1.20の範囲で、銘柄による差は小さかった(表2)。比重と粘性には特に相関は認められなかった。

## 2 酸度

ソースの酸味の主な要素は、食酢、原料の野菜や果実に含まれるクエン酸、リンゴ酸などで、食酢の主成分である酢酸は刺激臭があり、加熱すると揮散して酸味が

やわらぎ、クエン酸は穏やかで爽快な酸味を呈し、リンゴ酸は爽快で、かすかに苦みを有する酸味を有する<sup>2)</sup>など、それぞれの特色を持っている。酸度は、アルカリ滴定で求めたソース中の酸の量を酢酸量に換算して表したもので、酸味を規定している<sup>3)</sup>。旧JAS規格には酸度の基準があったが、消費者需要の多様化に伴って市場に酸度の低い商品が数多く出回るようになり、流通実態に合わせて平成8年のJAS改正で基準が削除された<sup>4)</sup>。

全28銘柄の酸度は0.7%~2.1%(平均値は1.4%)で、銘柄によって最大3倍もの大きな差が認められた(図1, 表2)。全体的にみて、酸度は同種類のソースであっても、銘柄間の違いが大きい傾向がみられるが、平均値で比べるとウスターソース(1.4%~2.1%, 平均値1.7%)は、他のソースに比べて高めであった。以下、中濃ソース(1.3%~2.1%, 平均値1.5%)、濃厚ソース(1.0%~1.6%, 平均値1.4%)、焼そばソース(1.2%~1.6%, 平均値1.3%)の順に低くなり、お好みソース(0.8%)、たこ焼ソース(1銘柄0.8%)は、多くのソースに比べて明らかに低い結果であった。

個別にみてゆくと、同じ種類のソースであっても、会社の違いや、同じ会社でタイプの異なる銘柄を販売している等の理由で、銘柄によってかなりの差が認められ、なかには、成分の特徴が、同種類のソースよりも他の種類のソースに近い銘柄があった。No2は、同じ会社のNo1と比べて酸度が明らかに高かった。値段はNo1に比べて割高であった。No3, 10は、同種類のソースのなかで酸度が高い部類に属しているが、いずれも「塩分50%カット」の銘柄であり、食塩相当量との関係が推測される。No6は、ウスターソース中で最も酸度が低く、多くの中濃ソースと同程度であった。濃厚ソースで、「まろやか味」の表示があったNo17と、ゴマ入りのNo18は、他銘柄に比べて明確に酸度が低い特徴が認められた。焼そばソースのNo25は他社2銘柄と異なり、酸度が高く(28銘柄中唯一酸味料表示があった)、さらりとして粘度は低く、

表2 テスト結果

銘柄	種類	会社	比重 g/mL	酸度 %	食塩 g/100g	糖類 g/100g	無塩可 溶性物 %
1	ウス	A	1.18	1.6	8.4	23.3	30.4
2	ウス	A	1.18	2.1	8.5	22.2	30.0
3	ウス	A	1.14	1.9	3.9	23.2	29.4
4	ウス	B	1.18	1.6	8.5	22.4	30.3
5	ウス	C	1.18	1.6	8.9	23.1	29.9
6	ウス	D	1.19	1.4	8.3	27.6	31.7
7	中濃	A	1.18	1.4	5.8	25.3	33.1
8	中濃	A	1.18	1.5	5.8	26.0	33.0
9	中濃	A	1.18	1.4	5.6	25.2	31.7
10	中濃	A	1.16	2.1	2.5	27.5	35.0
11	中濃	B	1.18	1.6	6.0	24.2	32.4
12	中濃	C	1.17	1.3	6.1	24.0	31.4
13	中濃	E	1.19	1.4	6.0	27.9	33.4
14	中濃	F	1.16	1.4	3.8	24.1	32.5
15	濃厚	A	1.17	1.4	5.3	25.3	32.2
16	濃厚	A	1.17	1.6	5.3	25.2	30.8
17	濃厚	A	1.19	1.0	5.5	30.2	32.3
18	濃厚	A	1.17	1.1	4.6	24.3	33.8
19	濃厚	B	1.18	1.6	5.9	24.7	35.7
20	濃厚	C	1.17	1.5	5.5	23.3	31.5
21	濃厚	E	1.18	1.6	5.9	24.8	31.3
22	濃厚	G	1.20	1.2	5.6	27.9	31.9
23	焼そ	B	1.20	1.2	9.4	20.4	31.8
24	焼そ	H	1.18	1.2	7.7	21.1	30.4
25	焼そ	I	1.20	1.6	9.4	23.1	32.6
26	お好	B	1.18	0.8	4.7	25.5	31.5
27	お好	H	1.16	0.7	4.9	22.7	35.0
28	たこ	H	1.16	0.8	5.0	23.0	33.7

(注1) ウスターソース, 中濃ソース, 濃厚ソース  
焼そばソース, お好みソース, たこ焼ソース

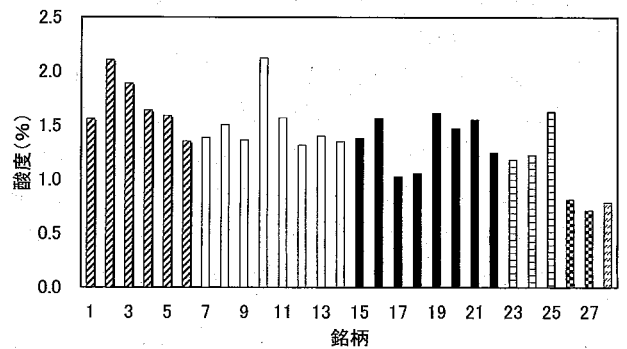


図1 酸度

後で述べるように食塩相当量，糖類量の面でもウスターソースに似ている特徴があった。

### 3 食塩相当量について

塩分の摂りすぎは成人病の引き金にもなりかねないといわれ，食塩分に対する消費者の関心は高い。日本人の食塩分の目標摂取量は1日10g以下とされ，最近の消費者の健康志向を反映して，減塩をうたった食品が数多く出回っている。また，ソースはしょうゆに比べて塩分が少ないと言われているが，当所で行ったアンケート調査によれば，このことは，意外と知られていなかった。

#### 1) 測定結果

##### ① ソースの種類と食塩相当量の関係

食塩相当量（ソース100g当たり，以下同じ。）のテスト結果は2.5g～9.4g（平均値6.2g）で，銘柄によって3倍以上の大きな差があり，ソースの種類等によって特徴ある傾向が認められた（図2，表2）。

全体的に見た場合，No3，10，14の食塩相当量は4g未満で，他の銘柄に比べて塩分が特に少なかった。これらの銘柄は，いわゆる「減塩タイプ」で，それぞれ「自社ウスターソース（今回はNo1，2）に比べ塩分50%カット」，「自社中濃ソース（今回はNo7，8，9）に比べ塩分50%カット」，「一般市販品（食塩分5.8%w/w）に比べ，食塩分30%カット」の表示があった。測定して確認した結果，カットされた比率はそれぞれ53%以上，55%以上，34%以上であり，表示は全て適正であった。

減塩タイプを除いた銘柄について特徴をみると，お好みソースとたこ焼ソースの食塩相当量はいずれも5g以下で，他のソースに比べて明確に低い結果であった。一方，ウスターソースと焼そばソースの食塩相当量は，それぞれ8.3g～8.9g（平均値8.5g），7.7g～9.4g（平均値8.8g）で，他のソース（4.6g～6.1g）より明らかに多い結果であった。中濃ソースと濃厚ソースの食塩相当量は，それぞれ5.6g～6.1g（平均値5.9g），4.6g～5.9g（平均値5.4g）で，平均値でみると，中濃ソースは中程度，濃厚ソースはやや少ない結果であった。

個別にみた場合，No18の食塩相当量（4.6g）は，濃厚ソースのなかで段違いに少なく，お好みソースやたこ焼ソースに比べても同等以下と少なかった。この銘柄は前述したようにゴマ入りの特色があり，酸度も低い特色があった。No24の食塩相当量は他の焼そばソースと比べてやや低い特色が認められた。

今回テストしたウスターソース，中濃ソース，濃厚ソース（減塩タイプ及びゴマ入りを除く）の食塩相当量を，五訂日本食品標準成分表（科学技術庁資

源調査会編，以下「五訂食品成分表」と略す。）の値（それぞれ8.4g，5.8g，5.6g）と比較すると，銘柄による差があるため，五訂食品成分表の値を超えた銘柄もあるが，平均値はそれぞれ，8.5g，5.9g，5.6gで，五訂食品成分表の値との差は0.1g以下であり，ほぼ同等に近い結果であった。いずれにしても，テストした各種ソース28銘柄中で最多の焼そばソース（No23，No25，いずれも9.4g）でも，五訂食品成分表のこいくちしょうゆ及びうすくちしょうゆ（しょうゆの全国生産量の大半を占めている。）の食塩相当量（14.5g，16.0g）に比べると，61%，65%の量であり，ソースはしょうゆに比べてはるかに少ない結果であった。

##### ② JASマークの付いた銘柄の食塩相当量について

JASマークの付いた品（以下「JAS品」と略す）19銘柄の食塩相当量（JAS規格での呼称は食塩分）をJAS規格の試験方法（塩素量から換算する方法）で測定した結果，ウスターソースは4.1%～8.9%，中濃ソースは2.8%～6.1%，濃厚ソースは5.5%～6.1%で，全てJAS規格の基準（ウスターソースは11%以下，中濃及び濃厚ソースは10%以下）に適合していた。中濃及び濃厚ソースは，最高濃度の銘柄でも基準上限値の61%と低めであった。

#### 2) 食塩分の表示量について

今回テストした9社28銘柄のうち6社23銘柄には栄養改善法に基づく栄養成分表示があり（表1），ナトリウム量が表示されていた。表示量と測定値の比は91.3%～108.4%で，栄養表示基準（厚生省告示第146号）に定められた誤差の許容範囲内（±20%）の値であり，適正に表示されていた。食塩相当量（ナトリウム量に2.54を乗じて算出する）の表示があったのは全体の半数であった。食塩相当量に対する消費者の関心は高いので，すべての銘柄に食塩相当量の表示が望まれる。

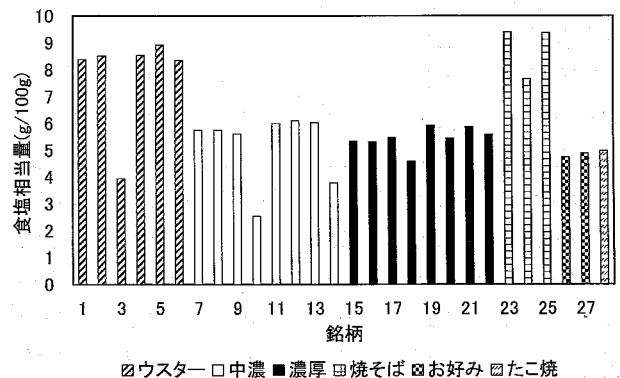


図2 食塩相当量

また、栄養成分等の表示に当たっては、他銘柄との比較に便利のように、統一単位（現在は100mL、15mL、100g、40g、5g等まちまちである）当たりの量を併記する等、より消費者に分かりやすい配慮が望まれる。

#### 4 無塩可溶性固形分

無塩可溶性固形分は、食塩分を除いたソースに溶けている成分の多少を示す指数で、野菜・果実、その他原材料からの旨味、甘味などの成分の量の多寡を示す目安として用いられている<sup>4)</sup>。

無塩可溶性固形分の測定結果は29.4%～35.7%（平均値32.1%）で、JAS品は、すべてJAS規格の基準（ウスターソース特級品は26%以上、中濃及び濃厚ソースの特級品は28%以上）に適合していた。また、非JAS品の無塩可溶性固形分は、9銘柄全て、JAS規格の基準を超える30%以上であった（図3、表2）。

#### 5 糖 類

ソースの甘味成分として糖分と甘味料があるが、今回は、糖分のうちの糖類（栄養表示基準で規定する糖、つまり、単糖類及び二糖類であって糖アルコールを除いたもの。以下同じ。）を測定した。

##### 1) 糖類組成の測定結果

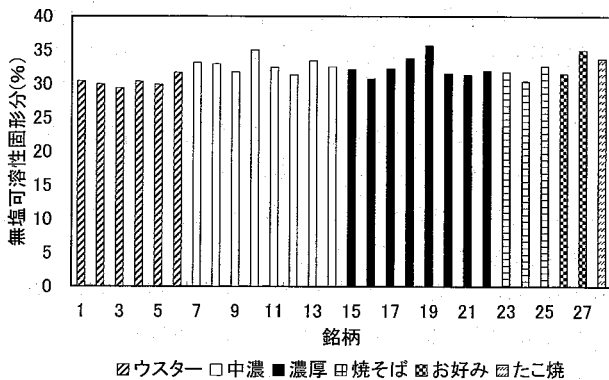


図3 無塩可溶性固形分

全銘柄から果糖とブドウ糖が検出された。果糖とブドウ糖は、ソースの原料である野菜・果実に天然に含まれているが、9社28銘柄中4社6銘柄（No.5, No.6, No.12, No.14, No.20, No.22）以外は、野菜・果実の他に、これらの糖自体（ブドウ糖、果糖、ブドウ糖果糖液糖又は果糖ぶどう糖液糖）を添加していることが表示されていた。他に検出された糖類は、No.18を除く27銘柄から蔗糖、2銘柄（No.3, No.25）から麦芽糖であった。この結果、大半の銘柄の糖類組成は、蔗糖、果糖、ぶどう糖等であった（図4）。麦芽糖は「水あめ」のかたちで添加されていた。

##### 2) 糖類量の測定結果

各ソース100g当たりの糖類の合計値は、20.4g～30.2g（平均値24.6g）で、銘柄によって約1.5倍の差が認められた（図4、表2）。全体的にみた場合は、中濃ソース（No.7～14）（24.0g～27.9g、平均値25.5g）と濃厚ソース（No.15～22）（23.3g～30.2g、平均値25.7g）は他のソースに比べてわずかに糖類量が多く、焼そばソース（No.23～No.25）がわずかに少なめの傾向が見られた。個別にみると、ウスターソース中で酸度が最低であったNo.6は、糖類量はウスターソース中で最多で、他社の殆どの中濃ソース、濃厚ソースよりも多かった。減塩タイプのNo.10は、中濃ソースで唯一ウスターソース以上に酸度が高い特徴があったが、糖類量

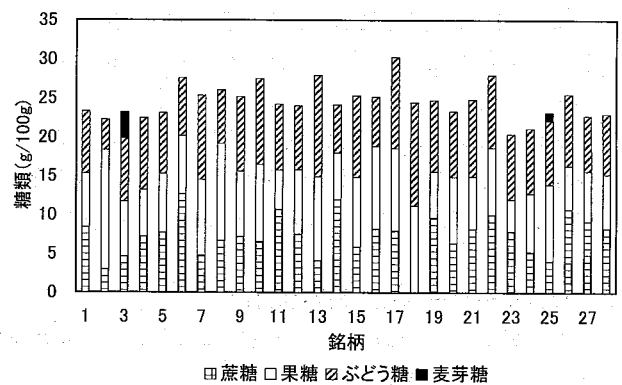


図4 糖類量と組成

表3 ウスターソース類の種類別特徴

	テ ス ト 結 果			一 般 的 な 評 価
	食塩分	酸 度	糖 分	
ウスターソース	多	高	中程度	さらりとして辛口
中濃ソース	中程度	やや高	わずかに多	ウスターソースと濃厚ソースの中間的なもの
濃厚ソース	やや少	中程度	わずかに多	とろりとして甘くソフト
焼そばソース	多	やや低	わずかに少	ウスターソースの味の旨味を強くしたもの
お好みソース	少	低	中程度	酸味と塩味を控え、とろみを増したもの
たこ焼ソース	少	低	中程度	

も中濃ソースで2番目に多い特徴がみられた。他の成分であまり目立たなかったNo13とNo22は、糖類量が多めという特徴がみられた。「まろやか味」の表示があった濃厚ソースNo17は、酸度では、お好みソース、たこ焼ソースに次いで低かったが、糖類量は全銘柄中最多であった。焼そばソースの中で酸度が一番高かったNo25は、糖類量も焼そばソースの中で最多であった。お好みソース (No26, 27) は銘柄間で少し差が認められた。

### 3) 糖類量と糖質量について

今回テストした9社28銘柄のうち6社23銘柄には、糖類量の表示はなかったが、糖質量 (又は炭水化物) の表示はあった。糖質 (又は炭水化物) 量は、糖類の他にでん粉、糖アルコール等を含めた値である。糖質量の表示された銘柄について、糖質量と糖類量 (実測値) との差を調べたところ、 $-0.3\text{g}\sim 7.5\text{g}$ と銘柄によって大きな差が認められた。E社品 (No13は $-0.3\text{g}$ , No21は $1.5\text{g}$ ) は他社品 ( $3.0\text{g}\sim 7.5\text{g}$ ) と比べて差が少ない特徴がみられ、表示量の誤差が少ないならば、糖類以外の糖質 (特にでん粉) が少ないと判断される。

また、テストした28銘柄のうち9銘柄には、天然添加物の甘味料 (9銘柄とも甘草、うちNo13にはステビアも併用) の表示があった。甘味料の使用状況は会社によって異なり、9社中6社は使わず、2社は使用し、1社は部分的 (3銘柄中2銘柄) に使用していた。

なお、甘味料使用表示の有無と糖類量を比較すると、個々の銘柄でも、平均値 (表示有り:  $24.0\text{g}$ , 無し:  $24.8\text{g}$ ) でも、明らかな差は認められなかった。

また、果糖、ぶどう糖の原材料として野菜・果実のみ使用している銘柄と糖自体を添加している銘柄を比べた場合も糖類量に明確な差は認められなかった。

## 6 ウスターソース類の種類別特徴

テスト結果 (平均値) は、一般的に言われている評価とはほぼ一致した (表3)。

## 7 表示

### 1) 増粘剤について

ソースの粘度は、原料の野菜・果実に含まれるパルプ質 (繊維質) によって生じるが、中濃ソースや濃厚ソース等ではさらに粘度を高めるために、コーンスターチやタマリンド、グアガム等の天然ガム類を加える。濃厚ソースの方が果菜類と増粘類の量が多く、高級品ほど果菜類が多く含まれているといわれる<sup>5)</sup>。

テスト対象品では、ウスターソース以外の8社22銘柄のうち、5社14銘柄に増粘多糖類、タマリンド、キサントラン等の表示があった (表1)。会社別にみると、使っていない3社、使っている4社、部分的に使って

いる1社であった。粘度を高める働きのあるでん粉は、ウスターソース以外で、増粘剤以上の比率 (7社20銘柄) で使われていた。使っていなかった2銘柄は、同じ会社の他の銘柄に比べて割高の商品であった。

### 2) 着色料について

カラメル色素は、どの種類のソースにも使用され、合計22銘柄で使われていた (表1)。使用状況は会社で異なり、1社 (1銘柄) は使わず、1社は一部の銘柄にのみ使用していた。他社はすべて使用していた。

### 3) ソースの保存方法について

表示で気にかかったのは保存法である。すべての銘柄には、「開栓 (開封) 後は、冷所、冷暗所、冷蔵庫等に保存 (保管) し、早めに使う」旨表示されていた。しかし、この表示とは別に、「開栓前」という断り書きなしで、開栓前の保存方法 (大半は直射日光を避け常温保存) を表示した銘柄が19あった。この表示は開栓後の保存方法と混同される恐れがあるので改善が望まれる。

### 4) インターネットのホームページアドレスを表示し、ソース関連情報を提供している会社があった。

## ま と め

- 1) 平均値でみた場合、ソースの種類によって、食塩相当量、酸度、糖類量などの成分に特徴が認められた。
- 2) その一方で、同じ種類のソースであっても、食塩相当量、酸度等が他の銘柄と大きく異なる個性の強い銘柄が散見され、想像以上にバラエティーに富んでいた。
- 3) ナトリウム表示量及び減塩タイプの塩分50%カット等の表示は、すべて適正であった。
- 4) JAS品の食塩分と無塩可溶性固形分は、すべてJAS規格の基準に適合していた。
- 5) 開栓後の保存方法について、誤解されやすいと思われる表示の銘柄があったので、改善が望まれる。

## 文 献

- 1) 榎恒信社編：ソースの知識，43，国際出版研究所 東京 (1998)
- 2) 井坂洋司：ウスターソース類の実態調査，食の科学，108，57-68 (1987)
- 3) 昭和49年6月27日農林省告示第565号，同566号[解説]ウスターソース類のJAS規格及び品質表示基準
- 4) 平成10年度農林水産消費技術センター市販品検査結果「ウスターソース類」，東京農林水産消費技術センター報告書，23，136-139 (1999)
- 5) 鷲仁子：しょくひん館，月刊消費者，403，20-23 (1993)

## 足に優しい靴に関する調査・研究

医薬品生活部 生活科学スタッフ 菅野尚子, 影山知子, 渡辺武明  
永野隆夫

### Practical Test of Comfortable Shoes for Walking

Naoko KANNO, Tomoko KAGEYAMA, Takeaki WATANABE,  
and Takao NAGANO

コンフォートシューズと呼ばれる靴の性能, 品質及び使用感について調査を行った。靴底の硬さは底材により異なるが, かかとの磨耗を補強するため, 硬度の高いブロックを設けている銘柄もみられた。靴底の滑り難さについては, 靴底のパターンが何らかの影響を与えていると思われる銘柄があった。また, 靴底の衝撃吸収性については全ての銘柄で良好であったが, かかるとに十分な厚みがある銘柄は, 衝撃吸収性も相対的に良好であった。甲皮の染色摩擦堅ろう度は, 全ての銘柄がJISの規定に適合しており, 水ぬれ時の耐水性を補うため甲皮には水性を付与した銘柄が多くみられた。なお, 甲皮のはっ水性については, 表示のない1銘柄を除き表示どおりの効果が認められた。さらに, 使用テストの結果から靴を選ぶ場合には, サイズだけでなく実際に履いてみて, 可能であればしばらく歩いてみる必要があると思われた。

Key words : 硬さ, 滑り難さ, 衝撃吸収性, はっ水性, 快適性

Hardness, Preventability of slipping, Shock absorbability, Resistance to surface wetting,  
Comfortability

### はじめに

日本人が日常生活で靴を履くようになったのは戦後のことで, 靴についての歴史は欧米に比べ浅い。そのため, 靴選びについては軽視されてきた傾向があり, 足に合わない靴を履き続けていたために, 外反母趾等の足の病気や体調不良に悩まされている人もいる。このような中で, 歩きやすく外出用としても利用できる「コンフォートシューズ」と呼ばれる靴が, 婦人靴メーカー及びスポーツシューズメーカー等から売り出されている。この種の靴について特に明確な基準はないが, 足にかかる負担をできるだけ減らし, 快適な歩行を実現することを目的とした靴であると考えられる。そこで, これらの靴の特徴を知るため性能及び品質等を調査し, 消費者に対し靴選び

の際の参考となる情報を提供することとした。

### 調査方法

#### 1 実施時期

2000年7月から2001年2月

#### 2 試買品目

静岡市内及び清水市内のデパート等で販売されている, 「歩きやすさ」を強調した婦人靴6銘柄及び比較品として室内履き用の靴1銘柄とした。

#### 3 テスト品目及び方法

##### 1) 品質テスト

##### ① 表示

##### ② 重量

サイズが23.5cmの各銘柄について, 左右それぞれの重量を測定した。

##### ③ 構造調査<sup>1)</sup>

構造の簡易試験を以下の3項目について行った。なお, 判定は各項目に関し◎(十分満足), ○(満足)及び×(不十分)の3段階で行った。

静岡県環境衛生科学研究所

(〒420-8637, 静岡市北安東4-27-2)

Shizuoka Institute of Environment and Hygiene

(4-27-2, Kita-andō, Shizuoka, 420-8637, Japan)

- ア) 指の付け根で曲がるか
- イ) 土踏まずが伸びないか
- ウ) かかとがしっかりしているか

④ 靴底の厚さ

各銘柄の靴からはぎ取った本底を試験片とし、ノギス（Mitutoyo製，JIS 1級）を用いてかかと，土踏まず及びつま先をそれぞれ測定した。なお，かかとはその最も厚い部分とし，土踏まずは最も薄い部分の厚さとした。つま先は先端部分の厚さとした。

⑤ 靴底の硬さ

各銘柄の靴からはぎ取った本底を試験片とし，JIS K 6253 5.（デュロメータ硬さ試験）に規定するタイプAデュロメータにより，表底の硬さを測定した。なお，測定点数は10点とし，その中央値を試験値とした。

⑥ 靴底の滑り難さ

平成4年度に当所が行った商品テスト「子供用運動靴」の方法<sup>2)</sup>を参考に行った。すなわち，各銘柄の靴のかかと部分に5kgのおもりをのせ，つま先方向からバネばかりを水平方向に引っ張り，靴が動き始める力を測定した。また，床がぬれた状態（1m<sup>2</sup>あたり50mlの水をこぼす）の場合においても同様に測定した。なお，バネばかりは試料の周りに巻きつけた針金に掛けて使用し，床材はビニル床シートとした。

⑦ 靴底の衝撃吸収性

F-SCAN（足圧分布測定システム）により，比較品に対する各銘柄の靴底の衝撃吸収性を測定した。F-SCANとは，足形にカットされたセンサーシート

（中敷き状のもの）を靴の中にセットし，被検者の歩行等の動きに応じて発生する圧力の分布を計測，記録する機器である。被検者は，踏み台（高さ19cm，階段約1段分）より片足を20cm先に引いたライン上にかかとから降ろし，他方の足をそろえて着地する。被検者の一連の動きは，各回ともできるだけ同一となるようにし，先に着地する足のかかと部分の最大足圧を測定した。測定は左右の足とも5回ずつ計10回行い，その平均値を試験値として下記（1）式により比較品に対する衝撃吸収率を求めた。

$$\text{衝撃吸収率}(\%) = \frac{\text{比較品の最大足圧}(\text{mmHg}) - \text{各銘柄の最大足圧}(\text{mmHg})}{\text{比較品の最大足圧}(\text{mmHg})} \times 100 \cdots (1)$$

⑧ 甲皮（布）のはっ水性

各銘柄の靴から切り取った甲皮を試験片として，JIS L 1092 6.2 [はっ水度試験（スプレー試験）]により行った。

⑨ 甲皮の染色摩擦堅ろう度

比較品を除く各銘柄の靴から切り取った甲皮を試験片として，JIS K 6547（革の染色摩擦堅ろう度試験方法）に準じ，摩擦試験機Ⅱ形（㈱大栄科学精器製作所製）により乾燥試験及び湿潤試験を行った。なお，判定は色差計（CM-2002 ミノルタ（株）製）を用いて行った。

2) 使用テスト

① 試し履きテスト

各銘柄の靴について，女性8名（当所職員等）に短時間の試し履きをしてもらい，着脱のしやすさ，デザイン，足によくフィットするか，歩きやすさ，

表1 試買商品一覧

※はカタログ等からの情報

No	使用材料		足 囲	価格 (税抜, 円)	取扱上 注意の記載	連絡先 の記載	その他の特徴
	甲 皮	底 材					
1	天然皮革※	合成ゴム＋ EVA※	EEE	13,800	有	無	撥水加工※
2	天然皮革	特殊軽量 ポリウレタン	EEE	9,800	有	有	撥水レザー
3	天然皮革※	VESTEC (エーテル系ポリウレタン)※	EEE	9,800	有	有	反射マーク有※，むれ防止用 インソール※，撥水素材
4	天然皮革	不明	EEE	15,800	有	無	撥水加工
5	合成皮革	ゴム	EEE	4,900	有	有	撥水， 衝撃吸収インソール
6	天然皮革	ゴムスポンジ	EEE	16,500	有	有	クッション性及びグリップ性を さらに高めたソール※
比較品	布※	ビニル	EE	880	有	有	サニタイズ（衛生）加工

底の滑りにくさ及び総合評価の6項目についてそれぞれ5段階で評価をしてもらった。

② 長期間の使用テスト

比較品を除く各銘柄の靴に1名ずつを割り当て(計6名)、平成12年10月初旬から12月末までの約3ヶ月間、靴を使用してもらい、使用感等についてのアンケート調査を行った(浜北市消費者グループ「たんぽぽの会」会員に依頼)。

結果及び考察

1 品質テスト

1) 表示(表1)

「取扱上の注意」は全ての銘柄に記載されていたが、甲皮及び底材の材料についてともに記載があるのは、No.2及びNo.6と家庭用品品質表示法の適用があるNo.5だけであった。ウレタン底の靴の経年劣化が問題となった経緯<sup>3)</sup>もあるため、底材の材料については消費者が簡単に識別できるよう、製造者による自主的な表示が望まれる<sup>4)</sup>。なお、靴のサイズは全ての銘柄で、JIS S 5037 4.(靴のサイズ)に従い足長(cm)と足囲(記号)により表示されていた。また、その他の特徴として、比較品とNo.6を除く全ての銘柄に「はっ水」加工等の表示(カタログを含む)があった。

2) 重量(表2)

1足の重量は全て550g以下であり、極端に重すぎる靴はなかった。また、最も軽い銘柄と最も重い銘柄とでは1足分の重量で1.5倍近くの開きがあったが、価格との関係は見られなかった。左右の重量差については、ほとんど差のない銘柄(No.2及びNo.3)と、10g以上の差のある銘柄(No.1)とがあった。

3) 構造調査(表3)

比較品及びNo.5を除く全ての銘柄がア)~ウ)を満たしていた。No.5についてはア)及びイ)が十分ではなかったが、他に比べ低価格であることが構造に影響しているものと思われた。ウ)については、全銘柄が満足しており、No.2、No.3及びNo.6は、かかと部分が特に強固な構造になっていた。

表2 重量

銘柄	右(g)	左(g)	和(g)	差(g)
No.1	253.7	267.4	521.1	13.9
No.2	237.5	237.2	474.7	0.3
No.3	268.4	268.6	537.0	0.2
No.4	242.9	244.2	487.1	1.3
No.5	234.2	235.0	469.2	0.8
No.6	180.2	182.6	362.8	2.4
比較品	163.5	165.3	328.8	1.8

表3 構造調査

銘柄	ア) 指の付け根で曲がるか	イ) 土ふまずが伸びないか	ウ) かかとがしっかりとっているか
No.1	○	○	○
No.2	○	○	◎
No.3	○	○	◎
No.4	○	○	○
No.5	×	×	○
No.6	○	○	◎
比較品	×	×	×

◎十分満足 ○満足 ×不十分

4) 靴底の厚さ(図1)

かかとについてはどの銘柄も2cm以上であり、特にNo.2、No.3及びNo.4が厚いという結果であった。

5) 靴底の硬さ(図2)

靴底に十分な厚さがある場合には、やわらかくなるにつれ衝撃吸収性はよくなるが、あるところから「底付き」と呼ばれる現象が起こり、逆に衝撃吸収性が悪くなる。また、硬さが一定の場合、あるところより薄くなると「底付き」が起こり衝撃吸収性は悪くなる。したがって、靴底には適度な硬さと厚さが必要であ

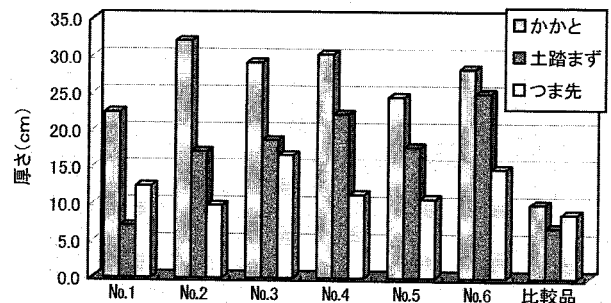


図1 靴底の厚さ

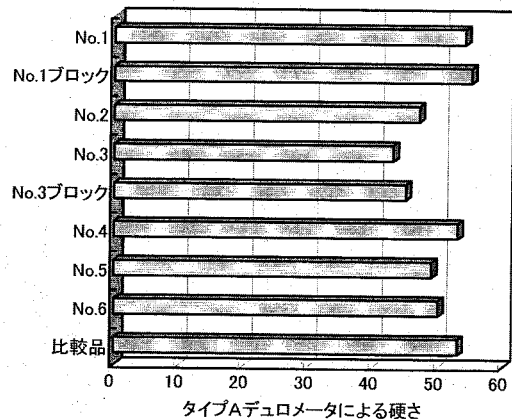


図2 靴底の硬さ

る<sup>5)</sup>。なお、本方法は材料としての評価方法<sup>6)</sup>ではあるが、銘柄間の硬さの比較を行うため実施した。

今回調査した銘柄は40~60であり、発泡していないゴム（通常70以上）等と比較するとやわらかいといえるが、靴底の硬さとしては許容できる範囲であった。中でも、No.2及びNo.3が、他の銘柄に比べてやわらかいという結果であった。これらはともに、底材がポリウレタンであり、かかとの厚さも厚かった。なお、ポリウレタンは、軽くて耐磨耗性に優れ、弾性的な材料である。反対に、硬いのはNo.1、No.4及び比較品であった。

No.1及びNo.3は、かかとに材質の異なるブロックが存在するが、この部分は他の部分に比べ硬いという結果であった。製造者の話によると、かかとは最も力がかかり、磨耗しやすいところであるため、減りにくい材料を使用したブロックを設け、強化してあるとのことである。

6) 靴底の滑り難さ (図3)

現在、JIS等をはじめとする各種の規格には、靴の滑りについて材料としての試験方法はあるが、実際に履いた状態と同等の評価が可能な試験方法はない<sup>7)</sup>。そこで、本テストでは上述した方法による力学的試験と使用テストを併用し、滑りについての評価を行った。この方法において、滑り始める力が大きければ滑りにくく、小さければ

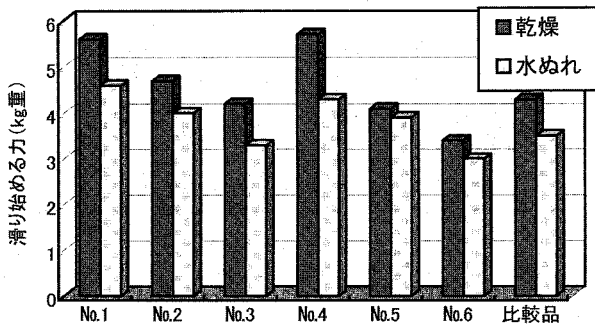


図3 靴底の滑り難さ

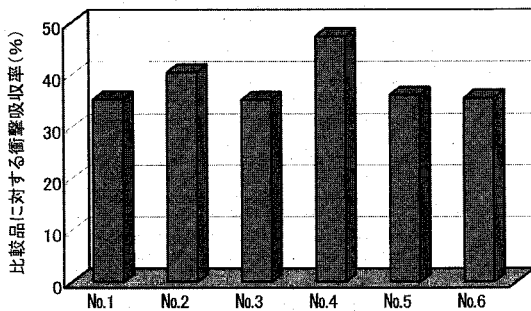


図4 靴底の衝撃吸収性

れば滑り易いものと判定した。なお、本方法は靴の上に荷重をかけ、静止状態から動き始める力を測定しているため、使用テストの結果との相違も考えられる。

乾燥状態ではNo.1及びNo.4が滑り難いという結果であり、これは使用テスト（試し履き及び長期間）の結果とも一致していた。靴底の滑り難さは、底材及び靴底のパターン（模様）の双方に起因すると言われている。No.1及びNo.4は、靴底のパターンがいくつかのエリアに分割され、かつそのエリア内に凹部や波線等が施され、相対的に多様な配置となっていた。他の銘柄については、使用テストの結果と多少の相違がみられた。なお、水ぬれ状態では乾燥状態に比べ、いずれの銘柄も滑り易くなっていた。

7) 靴底の衝撃吸収性 (図4)

靴を実際に履いた場合の靴底の衝撃吸収性を評価する方法としては、下肢等に固定した加速度計の出力特性を評価する方法や、床面反力計において歩行の状態を評価する方法等がある<sup>10)</sup>が、本テストでは実使用状態にできるだけ近づけた条件で測定し、かつ単純な手法で評価を行うため、中敷き状のセンサーシートで足圧を測定する方法を採用した。

結果は、全ての銘柄で35%以上の衝撃吸収率が得られた。これらは底材として、衝撃吸収性の良好なEVA（エチレンビニルアセテート）、ポリウレタン及びゴム発泡体を用いているものが多かった。また、かかと部分に十分な厚みがあるNo.2及びNo.4が良好であった。

8) 甲皮（布）のはっ水性 (表4)

「はっ水」の表示のないNo.6を除く全ての銘柄のはっ水度が4以上であり、はっ水性を付与した繊維製品（レインコート、防水シューズ等）に適用される規格の値を満たしていた。

表4 甲皮（布）のはっ水性

銘柄	No.1	No.2	No.3	No.4	No.5	No.6	比較品
はっ水度	5	5	5	4	5	3	1

表5 甲皮の染色摩擦堅ろう度

銘柄	乾燥試験		湿潤試験	
	変退色 (級)	汚染 (級)	変退色 (級)	汚染 (級)
No.1	4-5	2	4	0-1
No.2	4	2	3-4	0-1
No.3	5	4	5	3-4
No.4	5	4-5	5	1-2
No.5	5	3	5	1-2
No.6	4-5	4	3-4	0-1



表6 試し履きテスト結果

※5段階による評価点の平均値

銘柄		着脱の しやすさ	デザイン	足によくフイ ットするか	歩きやすさ	底の滑り にくさ	総合評価	合計
No 1	平均値※	2.5	4.3	4.0	4.0	4.5	4.1	23.4
	標準偏差	0.8	0.7	0.8	1.1	0.5	0.8	2.7
No 2	平均値※	4.1	3.8	3.5	3.5	3.4	3.6	21.9
	標準偏差	0.8	1.0	1.4	1.2	0.9	1.2	4.5
No 3	平均値※	1.8	3.4	3.5	3.4	3.9	3.4	19.3
	標準偏差	0.5	0.5	0.8	1.1	1.0	0.5	2.0
No 4	平均値※	4.4	3.1	4.0	3.6	4.5	3.6	23.3
	標準偏差	0.7	1.1	0.9	1.1	0.8	0.9	4.7
No 5	平均値※	4.8	4.0	4.0	3.8	3.9	3.8	24.1
	標準偏差	0.7	0.8	1.3	1.0	1.1	1.0	4.5
No 6	平均値※	4.5	2.9	3.0	2.9	3.8	2.9	19.9
	標準偏差	0.8	1.5	1.4	1.2	0.7	1.2	5.2
比較品	平均値※	4.1	1.8	3.5	2.4	2.9	2.3	16.9
	標準偏差	0.8	1.0	1.3	0.9	1.0	1.0	3.3

9) 甲皮の染色摩擦堅ろう度 (表5)

乾燥試験では、各銘柄とも変退色4級~5級、汚染2級~4-5級であった。くつ用革 (JIS K 6551) の規定<sup>1)</sup>によると、甲皮は汚染2級以上となっているが、いずれの銘柄も適合していた。また、はっ水加工されていないNo 6は汚染4級であり、比較的高い堅ろう度を示していた。

湿潤試験では、変退色3-4級~5級、汚染0-1級~3-4級であった。水ぬれと摩擦が加わった場合には、多少の色移りは避けられないと思われる。

2 使用テスト

1) 試し履きテスト (表6)

No 1, No 4 及びNo 5で6項目の合計の評価が高かった。ひも靴であるNo 1 及びNo 3は「着脱のしやすさ」で評価が低かったが、ひも靴は足囲の調節ができ、甲をしっかりと固定することができるという利点もある。また、「滑り難さ」については、No 1 及びNo 4の評価が高かった。さらに、No 2 及びNo 6については評価点のばらつきが大きく、モニター間で評価が割れた。

2) 長期間の使用テスト

No 5は試し履き、長期間の両テストにおいて全体的に良い評価が得られた。反対に、No 3は試し履きでは不評であったが、長期間テストでは非常に高い評価であり、No 4は試し履きでは比較的良好だが、長期間テストでは「長時間履くと疲れた」、「形崩れがした」等の評価が挙げられた。No 6はつま先部分が広くゆった

りとした設計になっているため、普段履くサイズより大きめに感じられたとのことであるが、長時間履いても疲れず楽であり、評価としては良好であった。No 2は、片足がモニターの足に合っていなかったこともあり、評価がやや低めであった。

各評価については、「甲のしめつけ」がきつい場合、長時間履くと疲れるという評価であり、靴を購入する際は、足長のサイズだけでなく、実際に履いてみて足囲を確認することが重要であると考えられた。また、「色落ち、色移り」は全銘柄とも無く、品質テストの結果とも一致していた。さらに、「滑り易いことの有無」についてはNo 2, No 6がほとんど、No 1, No 3, No 4, No 5が全くなかったという結果であった。

テスト終了後の各銘柄の靴を観察すると、どの銘柄もかかとの外側部分の減りが特に大きかった。No 5は使用日数の多い割には形崩れが少なく、No 1 及びNo 4はカウンター部分 (かかとを包み込む部分) の崩れが見られた。

ま と め

- 1 靴底の硬さについては、底材がポリウレタンの銘柄がやわらかいという結果であった。かかとの磨耗を補強するため、硬度の高いブロック部分を設けている銘柄もあった。
- 2 靴底の滑りにについては、靴底のパターンが滑り難さに影響を与えていると思われる銘柄がみられた。また、一部の銘柄において、力学的テストと使用テストとの間に結果の相違がみられた。

- 3 靴底の衝撃吸収性については全ての銘柄で良好であった。靴底に衝撃吸収性の良い材料を使用したり、かかとに十分な厚みを持たせることによって、その効果を向上させているものと思われた。
  - 4 甲皮の染色摩擦堅ろう度は、全ての銘柄がJISの規定に適合していたが、天然皮革は素材の性格上、水にぬれた場合の色移りが避けられないため、甲皮には防水性を付与し耐水性を補っている銘柄が多かった。なお、甲皮のはっ水性については、表示のない1銘柄を除き表示どおりの効果が認められた。
  - 5 試し履き及び長期間の使用テストでは、両テストにおいて良い評価の銘柄と、両者で評価が異なる銘柄とがあり、また甲のしめつけがきつい場合、長時間の装着は疲れるという結果であった。靴を選ぶ場合には、サイズだけでなく実際に履いてみて、可能であればしばらく歩いてみる必要があると考えられた。
- 最後に、本調査の実施にあたり、多大な御協力を頂いた県静岡工業技術センター田村久恵研究主幹、佐野禎彦主任研究員、並びに田村克浩副主任に深謝致します。

## 文 献

- 1) 暮らしの手帖 77, 18-21, 暮らしの手帖社 (1998)
- 2) 静岡県衛生環境センター：子供用運動靴, 商品テストレポート, 1-25 (1992)
- 3) (社)全国消費生活相談員協会：くつ これでいいの？あなたの靴えらび (1996)
- 4) 通商産業省通商産業検査所：家庭用品品質表示基準調査テスト報告書 (くつ) (1993)
- 5) 奈迫光男：衝撃吸収材, 日本義肢装具学会誌, 4, 123-126 (1988)
- 6) (財)日本規格協会：JIS K 6253 加硫ゴム及び熱可塑性ゴムの硬さ試験方法 (1997)
- 7) (財)日本規格協会：JIS S 5050 革靴(1995)
- 8) たしかな目 43, 29, 国民生活センター (1988)
- 9) 東京都消費生活総合センター商品テスト課：靴のすべり (2000)
- 10) 勝眞理他, 歩行時のシューズの衝撃緩衝性評価方法の検討, 靴の医学, 10, 82-85 (1996)
- 11) (財)日本規格協会：JIS K 6551 くつ用革 (1977)

## マグロ油漬缶詰 (いわゆるツナ缶) に関する調査・研究

医薬品生活部 生活科学スタッフ 影山知子, 菅野尚子, 渡辺武明  
永野隆夫

Study on Nutrient Substances of Canned Tuna in Oil or Water

Tomoko KAGEYAMA, Naoko KANNO, Takeaki WATANABE,  
and Takao NAGANO

いわゆるツナ缶について、漬け汁や固形部の形態の違いによって成分にどのような差があるのか調査を行った。フレークタイプは、他の形態より同じ重量当たりのたんぱく質が少なく、またそのなかでも油漬缶は油切りをしても残存する粗脂肪量が多いため、漬け汁中の油が固形部にかなり染み込んでいることが分かった。見た目や食感があまり油漬缶と変わらないとされる油入り水煮缶は、油漬缶に比較して、粗脂肪量は半分程度であり水分量は多く、漬け汁中の油の割合が半量程度に減っていることが分かった。脂肪酸組成は、油漬缶と油入り水煮缶は漬け汁中の油である植物油の脂肪酸がほとんどを占めていたが、水煮缶は原料の魚の脂肪酸組成が保持されていた。

Key words : ツナ缶, 粗たんぱく質, 粗脂肪, 脂肪酸組成

Canned tuna, Crude protein, Crude fat, Fatty acids composition

### はじめに

マグロ油漬缶詰 (いわゆるツナ缶) は家庭で最も多く利用されている水産缶詰であり、その9割近くが静岡県内で生産されている。いろいろな料理に応用できるため常備している家庭が多い一方、その油の多さを気にする人も多い。このため最近では油を減らしたタイプ (油入り水煮缶) やノンオイルタイプ (水煮缶) も数多く販売されている。

このような製品には、どのような違いがあるのか、消費者に情報提供を行うことを目的として、実際に家庭で使用する状態で比較テストを行った。

### 調査方法

#### 1 実施時期

2000年10月～2001年3月

静岡県環境衛生科学研究所

(〒420-8637, 静岡市北安東4-27-2)

Shizuoka Institute of Environment and Hygiene

(4-27-2, Kita-andō, Shizuoka, 420-8637, Japan)

#### 2 検体

静岡市内でいわゆるツナ缶として販売されている缶詰 (マグロ油入り水煮缶, マグロ水煮缶およびカツオ油漬缶を含む。以下ツナ缶とする) 15銘柄 (表1) を使用した。

家庭での使用時を想定して、検体をざるにのせて、10秒間漬け汁を切ったものを試料としてテストに用いた。

#### 3 テスト項目及び方法

##### 1) 水分

衛生試験法注解 (2000) 2.1.1.1 (1) - 1 常圧加熱乾燥法に準じ、試料をアルミニウム製秤量皿に取り、98℃で4時間加熱し、乾燥減量を水分とした。

##### 2) 粗たんぱく質量

セミマイクロケルダール法で測定した。なお、たんぱく換算係数は6.25を用いた。

##### 3) 粗脂肪量

メタノール・クロロホルム抽出法<sup>1)</sup>により測定した。

##### 4) 脂肪酸組成 (県水産試験場に測定依頼)

No. 7, 10および14の3) 粗脂肪量の測定で抽出した脂肪をヘキサンに溶解し、簡易法<sup>1)</sup>によりメチルエステル化し、ガスクロマトグラフィーで測定した。

表1 検体一覧表

No	漬け方	固形部の形態	原料魚*	使用油
1	油漬	ソリッド	ビンナガ	綿実サラダ油
2	油漬	チャンク	ビンナガ	綿実サラダ油
3	油漬	チャンク	キハダ	大豆サラダ油
4	油漬	フレーク	ビンナガ	綿実サラダ油
5	油漬	フレーク	キハダ	大豆サラダ油
6	油漬	フレーク	キハダ	大豆油
7	油漬	フレーク	キハダ	大豆油
8	油漬	フレーク	カツオ	大豆サラダ油
9	油入り水煮	フレーク	メバチ	大豆油
10	油入り水煮	フレーク	キハダ	大豆油
11	水煮	チャンク	ビンナガ	-
12	水煮	フレーク	キハダ	-
13	水煮	フレーク	キハダ	-
14	水煮	フレーク	キハダ	-
15	水煮	フレーク	キハダ	-

\*ビンナガはビンナガマグロ、メバチはメバチマグロ、キハダはキハダマグロを示す。

ガスクロマトグラフィー条件

装置：島津14A (検出器FID)  
 カラム：TC-WAX (0.25mmi.d.×30m)  
 カラム温度：170℃～225℃ (1℃/min, 昇温)  
 注入口温度：250℃  
 検出器温度：270℃  
 キャリアガスおよび流量：He, 2ml/min  
 スプリット比：1/50

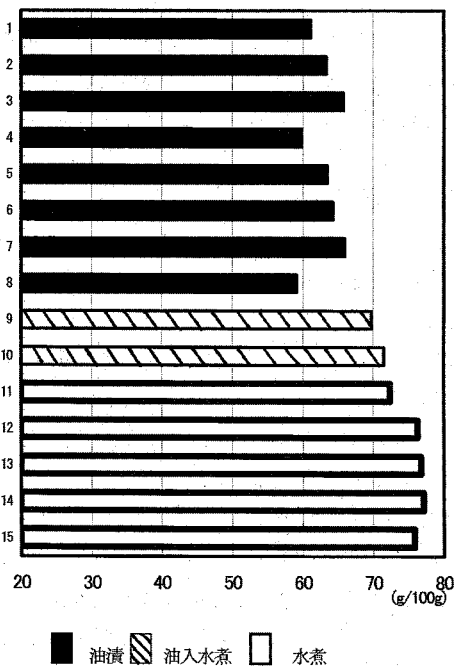


図1 水分量

結果及び考察

1 水分量

試料100g当たりの水分量を図1に示した。油漬缶の平均は62.9%、油入り水煮缶は70.6%、水煮缶は75.7%で、油漬缶と比較すると、油入り水煮缶と水煮缶は水分量が多かった。JASの水産物缶詰の規定では、漬け汁中の油分が50%以上のものを油漬缶詰という。また、水煮缶のうち漬け汁中の油分が15%以上50%未満のものを油入り水煮と表記することができるとされている。実際に食べるときのように漬け汁を切った状態では、油入り水煮缶の水分量は、水煮缶より若干少ない程度であった。

2 粗たんぱく質量

試料100g当たりの粗たんぱく質量を図2に示した。粗たんぱく質量は、形態による違いが大きく、フレークタイプ11検体の平均が19.8g、チャンクタイプ3検体の平均が23.2gであった。検体中唯一のソリッドタイプのNo.1のたんぱく質量が25.9gであり最も多かった。漬け汁の種類に関係なく、フレークタイプのたんぱく質含量は他の形態に比べ少なかった。

セミマイクロケルダール法では、実際には食品中の総窒素量を測定しているが、ツナ缶中における窒素分は、ほとんどが固形部の原料中の魚のたんぱく質から由来するものである。このため、たんぱく質量が多いということは、それだけ魚肉が多いことを示す。フレークタイプは同じ量のソリッドタイプおよびチャンクタイプに比べ

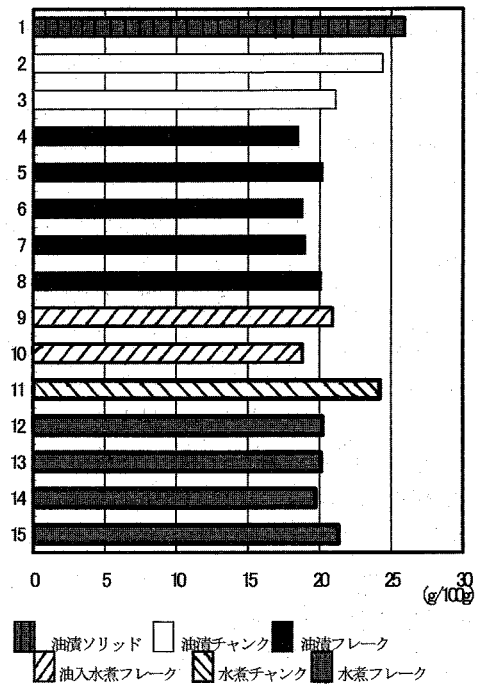


図2 粗たんぱく質量

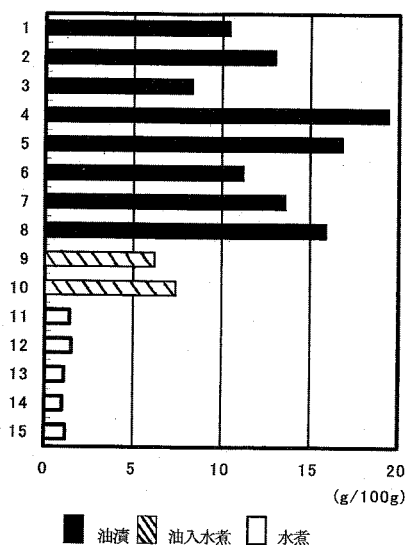


図3 粗脂肪量

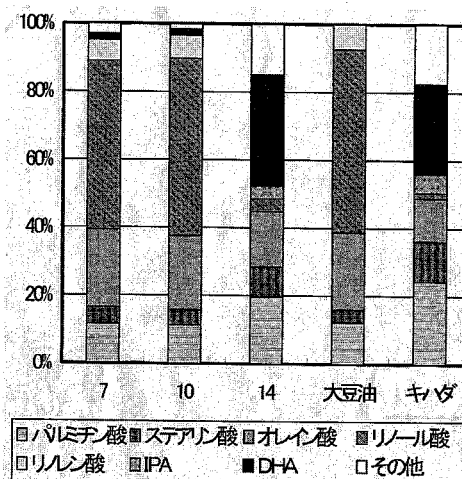


図4 脂肪酸組成

て、魚肉部分が少ないといえる。

### 3 粗脂肪量

試料100g当たりの粗脂肪量を図3に示す。油漬缶の平均は13.8%、油入水煮缶は6.8%、水煮缶は1.3%であった。

油入水煮缶は「カロリーカット」等の謳い文句で販売されていることが多いが、あまり油分が減っているように感じられないとの意見もある。

今回の測定から、粗脂肪量は油漬缶に比べ半分程度減っていることが分かった。

また、油漬の場合、フレークタイプはざるで油きりをして粗脂肪がソリッドタイプより多いものがあり、固形部に漬け油が染み込んでいることが分かった。

### 4 脂肪酸組成

脂肪酸組成の結果を図4に示す。なお、参考に大豆油と生のキハダマグロの脂肪酸組成の文献値<sup>2)</sup>も図中に示した。

油漬缶のNo.7および油入水煮のNo.10の脂肪酸の組成はDHA（ドコサヘキサエン酸）を除けば、漬け汁中の大豆油の脂肪酸組成とほぼ一致する傾向が認められた。一方、漬け汁に油が入っていない水煮缶のNo.14の脂肪酸は原料のマグロの脂肪酸組成に近いことが分かった。

水煮缶の組成比から、製造工程で加熱が加えられても、DHA等の不飽和脂肪酸もそのまま保持されることが推測された。

## ま と め

いわゆるツナ缶として販売されている缶詰について、

漬け汁や固形部の形態の違いでどのような差があるか調べ、次のことが分かった。

- 1 フレークタイプは、粗たんぱく質量が最も少なく、同じ量の他の形態より、固形部が少ないことが示唆された。また、油漬缶のフレークタイプでは、ざるで油切りをしても、残存する粗脂肪量が多いものがあり、漬け汁中の油が固形部に染み込んでいることがわかった。
- 2 見た目や食感があまり油漬缶と変わらないとされる油入水煮缶は、同じ形態の油漬缶に比べ、粗脂肪量が半量程度で、水分量は約8%多く、明らかに油漬缶に比べ漬け汁中の油は減っていると考えられた。
- 3 脂肪酸組成は、油漬缶および油入水煮缶は漬け汁中の油である植物油の脂肪酸が占めていた。一方、水煮缶は原料の魚の脂肪酸組成とほぼ同じであった。

## 謝 辞

脂肪酸の抽出および組成分析にご協力いただきました静岡県水産試験場利用普及部の長谷川薫研究主幹及び高木毅主任に深謝いたします。

## 文 献

- 1) 水産庁：分析マニュアル，昭和59年度魚介類有効栄養成分利用技術研究成果の概要，379-422（1985）
- 2) 食品成分研究会：食品の食物繊維・無機質・コレステロール・脂肪酸含有量表，44，75，医歯薬出版株式会社，東京（1985）

## 西駿河湾海域における植物プランクトンの変動機構に関する基礎的研究 I

大気・水質部 水質環境スタッフ 平井一行

### Fundamental Studies on the Changing Mechanism of Phytoplankton in the Western Coastal Region of the Suruga Bay (I)

Kazuyuki HIRAI

The Suruga bay is located in Shizuoka Prefecture and open to the Pacific Ocean. Sea water quality in the Suruga bay was almost clarified in comparison with environmental quality. But recently in western coastal region of Suruga Bay, water quality based on COD has been in excess of administrative guideline. It was considered that sea water quality was influenced by outflow from the rivers, and the changes of biomass of phytoplankton having relation to COD were caused by changing amount of nitrogen, phosphate and silica. By the statistical analysis,  $\text{NO}_3\text{-N}$ ,  $\text{PO}_4\text{-P}$  and  $\text{SiO}_2\text{-Si}$  were important dissolved ingredients for the increasing of phytoplankton and effect by  $\text{SiO}_2\text{-Si}$  was remarkable.

Key words : 西駿河湾海域, 植物プランクトン, 栄養塩

Western coastal region of Suruga Bay, Phytoplankton, Nutrient salts

### はじめに

水質汚濁防止法の制定以降, 静岡県では駿河湾などに環境基準点を設け, DO, CODなどの水質項目について測定してきた。その結果, 本県の海域では水質汚濁の指標とされるCODについては, 測定開始当初から90%の環境基準点で基準値を達成し, 全国平均を10~15%上回る水質と評価されている<sup>1)</sup>。

しかし, 近年では西駿河湾海域でCODの基準超過がみられる傾向があり<sup>2) 3) 4)</sup>, その原因の究明と汚濁防止の対策を講ずる必要が生じている。CODの変動は植物プランクトンの増殖に起因することが多く<sup>5)</sup>, N, Pなどの栄養塩の負荷量を低減させて植物プランクトンの増殖を抑制することがCODの環境基準の達成に有効である<sup>6)</sup>と考

えられている。そこで, CODに大きな影響を及ぼすと考えられる植物プランクトンの変動メカニズムについて西駿河湾海域のほぼ中央部である焼津沖で調査したので報告する。

### 材料及び方法

平成12年9月から平成13年2月にかけて概ね旬ごとに瀬戸川河口域および焼津沖の田尻北定置海域(図1)で, 表層水を採水した。水温(W. T)は採水時にガラス製棒状温度計により測定し, その他の水質項目については, 実験室に持ち帰った後, ただちに, GF/Bフィルター(Whatman社)によりろ過し, ろ液を表1の方法によって分析して求めた。

なお, 田尻北定置海域では採取した水5ℓを目合い30 $\mu\text{m}$ のステンレスメッシュを用いて, ろ過し, ろ過残存物を4時間105℃で乾燥させた後に重量を測定し, 30 $\mu\text{m}$ 以上のSSとした(以下SS30と記す)。また, 植物プランクトンの現存量の指標であるクロロフィルa(Chl-a)は採取した水200mℓをGF/Bフィルター(Whatman社)

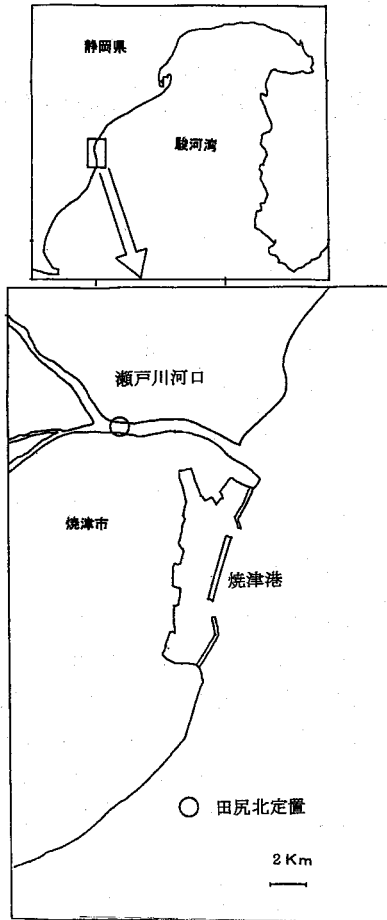


図1 調査点図

表1 水質項目と分析方法

水質項目	分析方法
塩分(S)	Digital Salinometer
NH <sub>4</sub> -N	JIS K0102 42.2 インドフェノール青吸光光度法
NO <sub>2</sub> -N	JIS K0102 43.1.1 ナフチルエチレンジアミン吸光光度法
NO <sub>3</sub> -N	JIS K0102 43.2.3 銅カドミウムカラム還元ナフチルエチレンジアミン吸光光度法
PO <sub>4</sub> -P	JIS K0102 46.1.1 モリブデン青吸光光度法
SiO <sub>2</sub> -Si	JIS K0101 44.1.1 モリブデン黄吸光光度法

でろ過し、DMFにより抽出した後に蛍光光度計により測定した。

また、同期間において瀬戸川河口域と田尻北定置海域の水質の相関を水質項目別に検討した。さらに、クロロフィルaを目的変数に水温、塩分、NH<sub>4</sub>-N、NO<sub>2</sub>-N、NO<sub>3</sub>-N、PO<sub>4</sub>-P、SiO<sub>2</sub>-Si、SS30を説明変数として重回帰分析を行った。

## 結 果

平成12年9月から平成13年2月にかけての田尻北定置海域の水温と塩分の推移を図2に示した。水温は9月上旬には約28℃であったが、徐々に低下し、2月下旬には約14℃となった。塩分は概ね32~34 (psu) の範囲であったが、9月13日には20 (psu) 以下に、11月24日や1月12日には約30 (psu) にまで低下した。

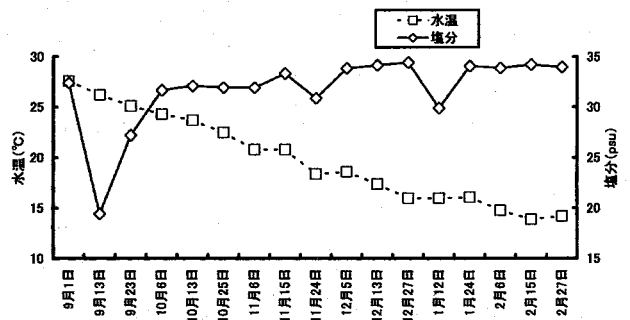


図2 田尻北定置海域における水温と塩分の推移

田尻北定置海域におけるNO<sub>3</sub>-Nの濃度はNH<sub>4</sub>-N、NO<sub>2</sub>-Nに比べて高く、また、塩分が低下した9月13日、11月24日には増加する傾向がみられた(図3)。NH<sub>4</sub>-Nはほとんどみられなかった。

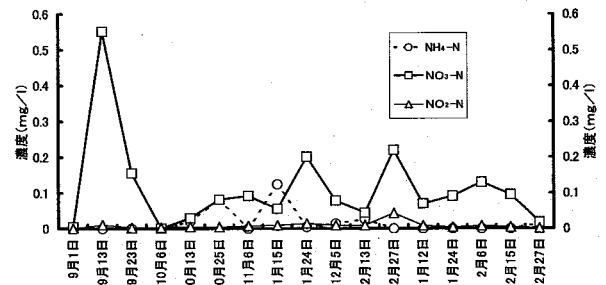


図3 田尻北定置海域におけるNH<sub>4</sub>-N、NO<sub>2</sub>-N、NO<sub>3</sub>-Nの推移

PO<sub>4</sub>-Pは塩分が低下した9月13日に0.02mg/l以上の濃度となったが、それ以降は減少し、概ね0.01mg/l以下で推移した。しかし、12月13日以降、再び増加し、12月27日から翌年2月15日にかけて0.015mg/l以上の濃度となった(図4)。

SiO<sub>2</sub>-SiはPO<sub>4</sub>-Pと同様に塩分が低下した9月13日に3 mg/l以上の濃度となったが、10日後の9月23日にも高濃度を維持し、PO<sub>4</sub>-Pとは異なった減少過程を示した。また、その後も概ね1mg/l以下推移し、12月27日から翌年2月15日にかけても濃度は増加せず、PO<sub>4</sub>-Pとは異なる推移を示した(図4)。

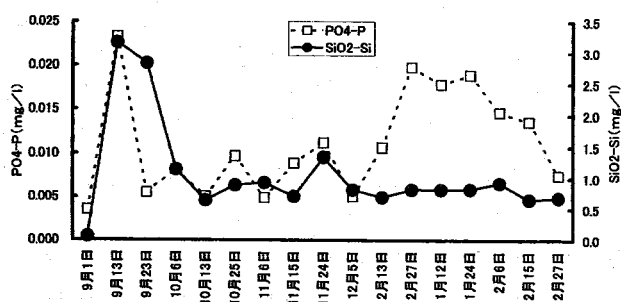


図4 田尻北定置海域におけるPO<sub>4</sub>-P, SiO<sub>2</sub>-Siの推移

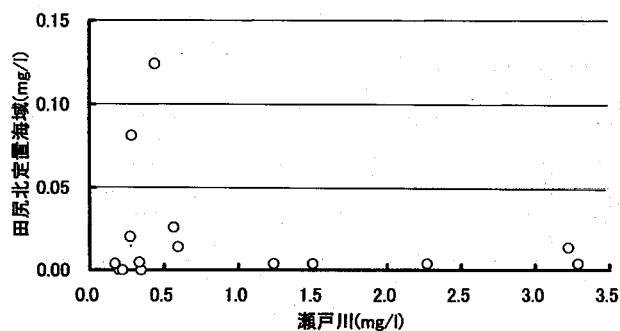


図6-1 瀬戸川と田尻北定置海域におけるNH<sub>4</sub>-Nの相関

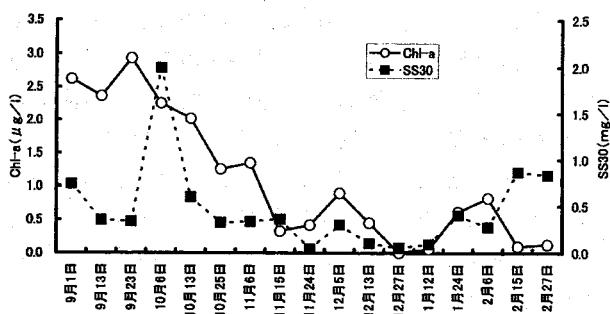


図5 田尻北定置海域におけるChl-aとSS30の推移

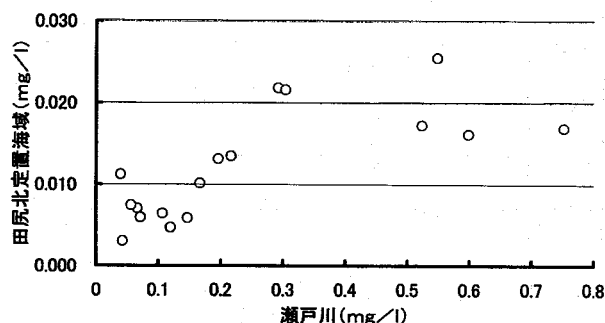


図6-2 瀬戸川と田尻北定置海域におけるNO<sub>2</sub>-Nの相関

クロロフィルaとSS30の推移を図5に示した。クロロフィルaは9月23日、12月5日2月6日にわずかな増加がみられるものの、概ね9月から翌年2月にかけて減少し、水温の変化と良く似た推移を示した。SS30は概ね1mg/l以下で推移したが、クロロフィルaの増加から概ね10日後の10月6日、12月5日2月15日にわずかに増加した。

NH<sub>4</sub>-N, NO<sub>2</sub>-N, NO<sub>3</sub>-N, PO<sub>4</sub>-P, SiO<sub>2</sub>-Si, について瀬戸川河口域と田尻北定置海域との相関を図6-1～図6-5に示した。NH<sub>4</sub>-Nでは瀬戸川と田尻北定置海域の間では明らかではなかったが、NO<sub>2</sub>-N, NO<sub>3</sub>-N, PO<sub>4</sub>-P, SiO<sub>2</sub>-Si, については正の相関関係がみられた。また、NO<sub>2</sub>-N, NO<sub>3</sub>-N, PO<sub>4</sub>-P, SiO<sub>2</sub>-Siの田尻北定置海域の濃度は瀬戸川のその1/10程であった。

クロロフィルaをW, T, S, NH<sub>4</sub>-N, NO<sub>2</sub>-N, NO<sub>3</sub>-N, PO<sub>4</sub>-P, SiO<sub>2</sub>-Si, SS30を説明変数として重回帰分析を行った結果、次の回帰式を得た。

$$\text{Chl-a} = 0.23 (\text{W.T}) + 0.15 (\text{S}) - 8.78 (\text{NH}_4\text{-N}) - 25.73 (\text{NO}_2\text{-N}) + 0.26 (\text{NO}_3\text{-N}) + 15.15 (\text{PO}_4\text{-P}) + 0.56 (\text{SiO}_2\text{-Si}) - 0.06 (\text{SS30}) - 8.63$$

$$R^2 = 0.97$$

### 考 察

西駿河湾海域のほぼ中央部に位置する田尻北定置海

域の表面水の塩分は概ね32～34 (psu) の範囲であったが、20～30 (psu) にまで低下することもあり、河川水の影響を受ける海域であると考えられる。

NO<sub>2</sub>-N, NO<sub>3</sub>-N, PO<sub>4</sub>-P, SiO<sub>2</sub>-Siなどの栄養塩の濃度は瀬戸川と田尻北定置海域間では正の相関関係がみられ、また、田尻北定置海域の栄養塩濃度が瀬戸川のその1/10程であったこと、さらに、駿河湾では反時計回りの沿岸流が卓越することなどを考えあわせると田尻北定置海域の栄養塩は瀬戸川からの流出に影響を受けるものと考えられる。

NH<sub>4</sub>-Nは瀬戸川には比較的多く含まれるものの田尻北定置漁場海域ではほとんどなく、これは拡散する過程で酸化されたものと考えられる。

植物プランクトンの増殖は、好適な光、水温、塩分条件下ではN-P比<sup>8)</sup>、N-P-Si比<sup>9)</sup>などN, P, Siの相対的割合と絶対量で制限されると考えられている。9月13日から9月23日にかけてPO<sub>4</sub>-Pの濃度がSiO<sub>2</sub>-Siのそれと異なり、速やかに減少したのは植物プランクトンの増殖のためにPO<sub>4</sub>-PがSiO<sub>2</sub>-Siに比べ多く吸収されたためとも考えられる。海域では、光、水温、塩分や栄養塩などの海況の変動が著しく、一時点だけをみれば、植物プランクトンの増殖を制限する因子を特定できると考えられるが、長期的にみれば、その制限因子は常に変化しているものと考えられる。



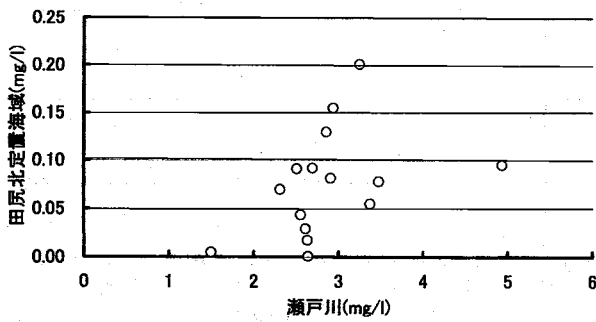


図 6-3 瀬戸川と田尻北定置海域におけるNO<sub>3</sub>-Nの相関

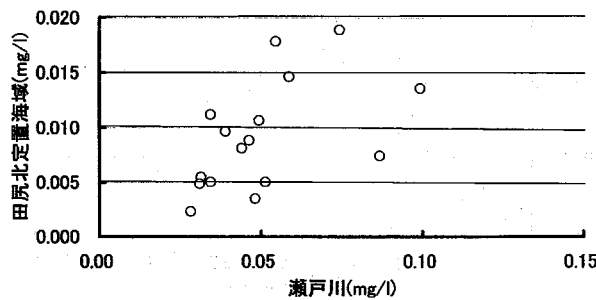


図 6-4 瀬戸川と田尻北定置海域におけるPO<sub>4</sub>-Pの相関

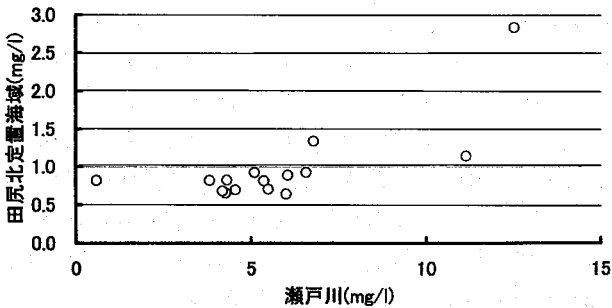


図 6-5 瀬戸川と田尻北定置海域におけるSiO<sub>2</sub>-Siとの相関

水温をとっても、これまでの観測結果と同様に、9月上旬に最高を2月下旬に最低を示し<sup>10)</sup>、その期間にも約14℃の変動があった。この水温下降期間におけるクロロフィルaの変動を説明するものとして重回帰式が与えられたものとする。その偏回帰係数は水温 (W.T)、塩分 (S)、NO<sub>3</sub>-N、PO<sub>4</sub>-P、SiO<sub>2</sub>-Siが正の値で、それらの水質項目の濃度が増加するとクロロフィルaが増加することを示している。SS30の偏回帰係数は負であり、また、その推移はクロロフィルaの増加から概ね10日後にわずかであるが増加していた。これらのことは、SS30が30μm以上の動物プランクトンを中心とする浮遊物量を反映し、植物プランクトンを捕食しながら増重している結果とも考えられる。従って、SS30を増加させれば

表 2 水質項目ごとのクロロフィルaの増加への寄与

水質項目	寄与平均値	寄与較差
NO <sub>3</sub> -N	0.029	0.143
PO <sub>4</sub> -P	0.167	0.300
SiO <sub>2</sub> -Si	0.593	1.742

植物プランクトンを抑制することが可能と考えられるが、その管理は水温、塩分と同様に人為的には不可能であると考えられる。

水質的にクロロフィルaの増加要因であり、また、人的な管理が可能と考えられるNO<sub>3</sub>-N、PO<sub>4</sub>-P、SiO<sub>2</sub>-Siについてそれぞれの偏回帰係数に調査期間におけるそれぞれの平均濃度と濃度の最大値と最小値の差(較差)を乗じてクロロフィルaの増加への寄与を推定した(表2)。寄与平均値と寄与較差はNO<sub>3</sub>-N、PO<sub>4</sub>-Pに比べて、いずれもSiO<sub>2</sub>-Siが高く、水温下降期間における西駿河湾海域ではNO<sub>3</sub>-N、PO<sub>4</sub>-Pの制限も有効であるが、中でもSiO<sub>2</sub>-Siの制限にクロロフィルaの増加の抑制効果が高いことが推定された。

## ま と め

- 1) 西駿河湾海域の中央海域は河川水の影響を受けると考えられた。
- 2) NO<sub>2</sub>-N、NO<sub>3</sub>-N、PO<sub>4</sub>-P、SiO<sub>2</sub>-Siなどの栄養塩は瀬戸川と田尻北定置海域間では正の相関関係がみられ、また、田尻北定置海域の栄養塩濃度が瀬戸川のその1/10程であった。
- 3) 水温下降期間における植物プランクトンの現存量の指標であるクロロフィルaの変動を説明するものとし  $Chl-a = 0.23 (W.T) + 0.15 (S) - 8.78 (NH_4-N) - 25.73 (NO_2-N) + 0.26 (NO_3-N) + 15.15 (PO_4-P) + 0.56 (SiO_2-Si) - 0.06 (SS30) - 8.63$  が得られた。
- 4) 水温下降期間における西駿河湾海域ではNO<sub>3</sub>-N、PO<sub>4</sub>-Pの制限がクロロフィルaの抑制に有効と考えられたが、その中でSiO<sub>2</sub>-Siの制限が特に抑制効果が高いことが推定された。

## 謝 辞

この研究は駿河湾深層水プロジェクト研究の一部として行い、採水などに御協力された長谷川漁業実践各位に深謝の意を表します。

## 文 献

- 1) 静岡県環境部環境政策室：平成11年度版環境白書、1-347 (1999)
- 2) 静岡県環境衛生科学研究所：平成9年度静岡県公共

- 用水域及び地下水の水質測定結果, 1-375 (1998)
- 3) 静岡県環境衛生科学研究所：平成10年度静岡県公共用水域及び地下水の水質測定結果, 1-369 (1999)
  - 4) 静岡県環境衛生科学研究所：平成11年度静岡県公共用水域及び地下水の水質測定結果, 1-377 (2000)
  - 5) 日本水環境学会：日本の水環境行政, ぎょうせい, 1-51 (1999)
  - 6) 藤田健一他：水-底質相互作用モデルによる博多湾のリン循環の数値予測, 水環境学会誌, 24, 48-57 (2001)
  - 7) 中村保昭：水産海洋学的見地からみた駿河湾の海洋構造について, 静岡県水産試験場研究報告, 17, 1-153 (1982)
  - 8) A.C.Redfield, B.H.Ketchum and F.A. Richard : The influence of organisms on the composition of seawater, Wiley Interscience, 2, 26-77 (1963)
  - 9) 渡辺正孝：沿岸域における赤潮の発生機構, 用水と排水, 28, 45-53 (1986)
  - 10) 東海大学海洋学部編：新版・駿河湾の自然, 1-343, 静岡新聞社, 静岡 (1996)

## 環境臭気と快適さの研究 — 静岡県内における環境について —

大気・水質部 大気・騒音環境スタッフ 永田嘉七, 太田良和弘, 篠原英二郎  
萱沼広行, 竹下昭二, 味岡嘉輝

Study on Relationship between Amenity and Environmental Odor  
— Environmental odor in Shizuoka Prefecture —

Kashichi NAGATA, Kazuhiro OHTARA, Eijiro SHINOHARA,  
Hiroyuki KAYANUMA, Shoji TAKESHITA,  
and Yoshiteru AJIOKA

生活環境の快適さの一つとしてにおいが注目されている。環境省により、におい環境指針が平成12年に制定され、悪臭防止行政が規制だけでなく、におい環境の整備も含めたものになろうとしている。そこで、本県におい環境の快適さを検討するため、においに特徴がある県内地域で環境臭気の測定を実施し、併せてその地域の住民に空気の快適さの意識調査（アンケート調査）を行った。その結果、県内の特徴的なにおい環境の実態が把握できた。また、住民が望ましいと感じている臭気レベルを推定した。

Key words : 環境臭気, 快適さ  
Environmental odor, Amenity

### はじめに

近年、生活環境における快適性を求める傾向がますます強くなり、においについても、それを構成する一つの要素として注目されるようになってきた。環境省においては2000年6月、におい環境指針<sup>1)</sup>を策定した。この指針は地域住民のよりよい生活環境の確保を図るため、「臭気環境目標」と「かおり環境目標」を設定し、これにより身近にある良いかおりを再発見し、かおりに気づくことを通して身の回りにあるさまざまなにおいを意識し、不快なおいへの改善に取り組むこととしている。

「臭気環境目標」は、不快なおいを低減し、臭気に関して維持・達成することが望ましい一般環境中の目標を定めるものであり、定量的な目標として、地域別の状況を表す実態調査結果の値として一応示されている。しかし、これらの目標値と人の感覚との関係は十分検討されていない。

県内で、それぞれに特徴的なにおい環境と思われる18地域について、低濃度臭気指数測定法による環境臭気の測定（臭気濃度、臭気指数）を行い、それらの地域の環境臭気を把握し、併せてそれらの地域にすむ住民540人が感じている空気の快適さや被害感等に関する意識調査（アンケート調査）を行い、生活環境の一つとしてのにおい環境の快適さを考察した。

### 調査方法

#### 1 調査期間

2000年6月～10月 各地域1回

#### 2 調査地域

調査の対象地域は、県内の主要幹線道路周辺、悪臭発生があると考えられる工場が多い地域、住宅地域、農業地域及び自然が多く快適な環境と考えられる山間の地域等18ヶ所で実施した。（図1）

#### 3 臭気濃度等調査

一般環境の臭気濃度等の測定地点はその地域の臭気を代表すると考えられる場所で、周囲の影響を直接受けにくい大気測定局などで行った。

#### 1) 試料の採取方法

試料の採取方法は、低濃度臭気指数測定法<sup>1) 2)</sup>に基

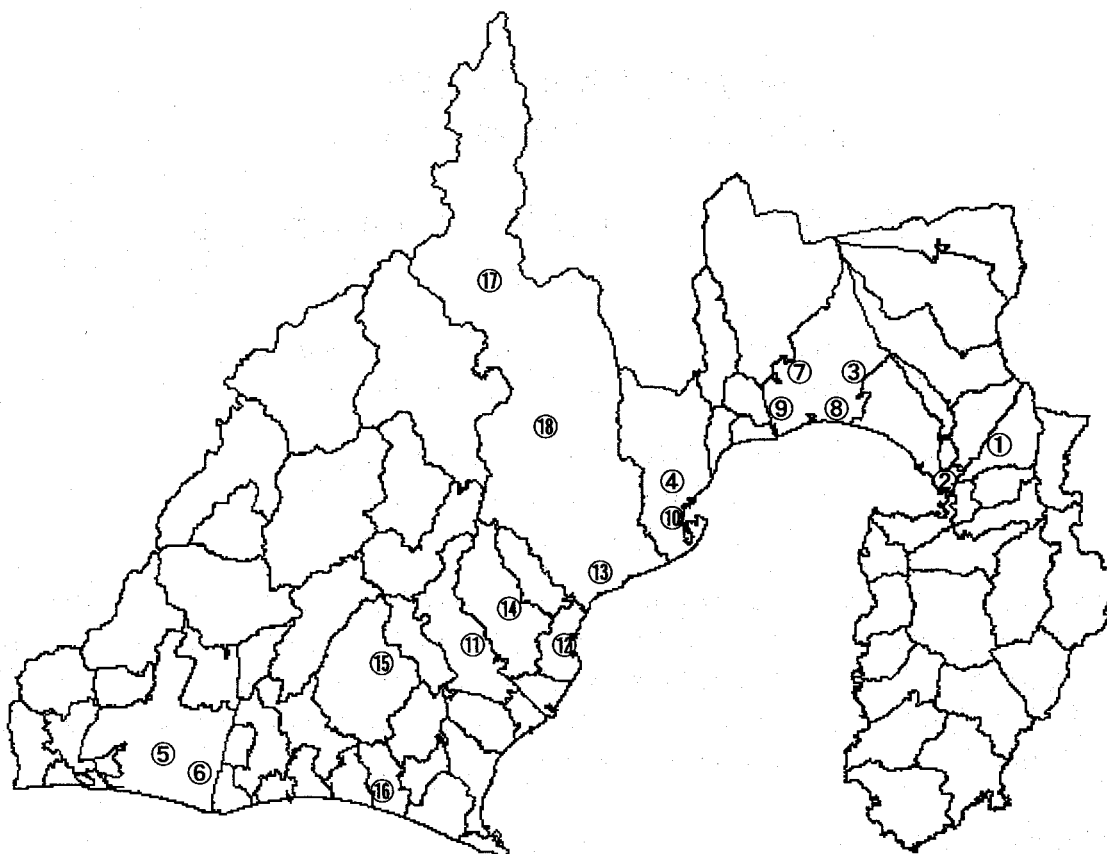


図1 調査地点図

づき、調査地点で空気を吸着管に吸着（採取流量0.7L/分24時間連続：約1m<sup>3</sup>採取）し、密封後、冷暗所に保管し、できる限り速やかに測定した。

## 2) 測定方法

低濃度臭気の測定方法は、低濃度臭気指数測定法によった。試料を吸着した吸着管から2Lバッグに窒素ガスを用いて200℃、0.1L/分の流速で加熱脱着後、嗅覚測定法（告示法）の排出口の測定方法により臭気濃度、臭気指数を測定した。

## 4 アンケート調査の方法

アンケート調査は各調査地域で、2000年6月から10月にかけて、図2に示すアンケート調査用紙により行った。アンケート調査の範囲は、各調査地点ともその調査地点を中心に約100m程度の範囲に居住する住民30名に直接面接して行った（全サンプル540）。住居の選定については調査地点との整合性を配慮し、偏りのないようにしたが、山間地等、住居が散在しているところは、アンケート調査範囲を広くした。

## 調査結果及び考察

### 1 臭気濃度等調査結果

各測定地点の臭気濃度等の測定結果を表1に示す。

この臭気濃度等の結果は、一昼夜の平均値である。主要幹線道路沿道の調査地点の臭気濃度（臭気指数）は、1.0（0）～2.7（4.3）、工業地域が0.4（-3.6）～1.9（2.8）、住居地域が0.4（-3.8）～1.0（0）、農業地域は0.3（-4.7）～1.1（0.4）、バックグラウンドとみなされる山間地域が0.4（-3.9）～0.5（-3.4）であった。これらの値は、表1に示す臭気環境目標の地域別実態調査結果と比較すると、それぞれの地域別数値の範囲内で低い値であった。主要幹線道路沿道や工業地域の一部は、県内では臭気が強いところとなっている。

静岡県のおい環境は、東京都のおい環境<sup>3)</sup>及び千葉県のおい環境<sup>4)</sup>と比較するとすべてにわたり低濃度であった。

### 2 アンケート調査結果

各地域ごと30戸に面接調査し、18地域すべて30の回答（全サンプル540）を得た。

質問6「お宅の周辺の空気をどのように感じていますか」に対し、住民の（1 快適）、（2 少し快適）、（3 特に感じない）の合計回答数を快適数とし、全回答数30に対する割合を快適率とした。また、質問7の空気のきたなさが（2 多少きたない）、（3 かなりきたない）の合計回答数をきたなさ数とし、全回答数30に対する割合

- 質問6 普段生活してお宅の周辺の空気をどのように感じていますか  
 1 快適 2 少し快適 3 特に感じない 4 多少よくないと感じる 5 よくない
- 質問7 空気のきれいなところ（山間地など）から帰られたとき、お宅の周辺の空気をどう思いますか。  
 1 特に差は感じない 2 多少きたない 3 かなりきたない
- 質問8 お宅の周辺の空気によって、日常生活に支障がありますか  
 1 ない 2 すこしある 3 かなりある
- 質問9 空気がきたないと感じる場合、どんなものが原因と思われますか  
 1 におい 2 浮遊物質（ほこり） 3 湿気 4 その他（ ）
- 質問10 あなたのお宅の周辺で、次のようなにおいが感じられますか、感じられる場合はにおいの程度等について該当する番号に○をつけてください。

においの種類	<気になる程度>			<においの強さ>			<気になる頻度>		
	1 非常に気になる	2 気になる	3 少し気になる	1 強い	2 はっきり	3 弱い	1 しょっちゅう	2 ときどき	3 たまに
1 パルプ工場のおい	1	2	3	1	2	3	1	2	3
2 食料品工場のおい	1	2	3	1	2	3	1	2	3
3 シンナーのようなにおい	1	2	3	1	2	3	1	2	3
4 ガソリンのおい	1	2	3	1	2	3	1	2	3
5 ゴムの焼けるようなにおい	1	2	3	1	2	3	1	2	3
6 油 臭	1	2	3	1	2	3	1	2	3
7 化学薬品のようなにおい	1	2	3	1	2	3	1	2	3
8 こげ臭	1	2	3	1	2	3	1	2	3
9 煙 臭	1	2	3	1	2	3	1	2	3
10 動物小屋（糞便）のようなにおい	1	2	3	1	2	3	1	2	3
11 魚の腐ったようなにおい	1	2	3	1	2	3	1	2	3
12 魚の缶詰のようなにおい	1	2	3	1	2	3	1	2	3
13 木材加工工場のおい	1	2	3	1	2	3	1	2	3
14 堆肥工場のおい	1	2	3	1	2	3	1	2	3
15 自動車の排気ガスのおい	1	2	3	1	2	3	1	2	3
16 コールタールやアスファルトのおい	1	2	3	1	2	3	1	2	3
17 野菜のおい	1	2	3	1	2	3	1	2	3
18 草を刈るときのにおい	1	2	3	1	2	3	1	2	3
19 果実香	1	2	3	1	2	3	1	2	3
20 花香	1	2	3	1	2	3	1	2	3
その他*2（ ）	1	2	3	1	2	3	1	2	3

- 質問13 空気がきたなくなる原因（発生源）は、おおまかに何であるとお考えですか  
 1 自動車の排気ガス 2 工場の排出ガス 3 その他（ ）

図2 アンケート調査用紙（抜粋）

をきたなさ率とした。さらに、質問8の日常生活に支障が（2 すこしある）、（3 かなりある）の合計回答数を支障者数とし、全回答数30に対する割合を被害率とした。

また、空気の快適性の程度等を次のようにして表した。

アンケートの質問6を5段階（空気の快適性の程度）、質問7を3段階（きたなさの程度）、質問8を3段階（被害の程度）に分けて、点数化し平均したものをそれぞれ不快適指数、きたなさ指数、被害指数とした。

快適率と不快適指数との間には $R=0.94$ の負の相関が

表1 地域別実態調査結果

地域分類	臭気濃度 (臭気指数)
自然地域	0.2~0.6 (-7.7~-2.1)
住宅・田園地域	0.2~1.6 (-6.8~ 2.1)
商業地域	0.4~2.4 (-3.9~ 3.8)
工業地域	0.6~5.4 (-1.9~ 7.4)

被害率では、浜松市国道152号周辺、富士市県道の周辺など自動車排ガスの影響によると思われる地点で、市街地であるところが被害率50%以上と高くなっていた。山間地域、農業地域及び住居地域は、快適率が60%以上(不快指数3以下)、きたなさは40%以下、被害率も7%以下で低かった。特に静岡市井川は空気の快適さが

表2 調査結果の概要

調査No	調査対象	調査地点	環境調査				アンケート調査					
			臭気濃度	臭気指数	快適率	不快指数	きたなさは	きたなさ指数	被害率	被害指数	悪臭率	自動車率
1	道路	三島市国1	1.9	2.8	30	3.8	83	2.1	40	1.5	94	82
2		沼津市国1	1.0	0.2	33	4.0	70	2.0	43	1.7	100	86
3		富士市県道	2.0	3.0	20	4.1	77	2.2	55	1.8	100	47
4	沿道	清水市国1	2.7	4.3	27	3.9	93	2.3	50	1.6	100	83
5		浜松市国152	1.5	1.8	43	3.7	80	2.2	53	1.6	100	93
6		浜松市国1	1.9	2.8	50	3.7	57	1.8	27	1.4	100	93
7	工業地域	富士市荒田島	0.6	-2.1	43	3.7	77	1.9	27	1.3	96	38
8		富士市依田橋	0.4	-3.7	30	3.9	80	2	33	1.4	100	33
9		富士市横割	1.9	2.8	47	3.6	93	2.1	7	1.1	100	4
10		清水市旭町	0.6	-2.2	40	3.8	70	2.0	33	1.4	100	38
11		島田市横井	0.4	-3.6	40	3.6	80	2.0	27	1.4	100	43
12		焼津市本町	0.7	-1.5	83	1.6	53	1.1	10	1.4	100	60
13	住居地域	静岡市みずほ	1.0	0	63	3.1	40	1.4	7	1.1	87	32
14		藤枝市茶町	0.4	-3.8	93	2.3	23	1.3	7	1.1	88	86
15	農業	菊川町東富田	1.1	0.41	100	1.4	0	1.0	0	1.0	55	0
16	地域	大東町国浜	0.3	-4.7	87	2.3	13	1.1	7	1.1	100	36
17	山間	静岡市井川	0.5	-3.4	100	1.4	0	1.0	0	1.0	13	0
18	地域	静岡市玉川	0.4	-3.9	93	1.5	3	1.0	0	1.0	10	0

あり、きたなさはきたなさ指数との間にはR=0.95の正の相関があった。快適率などの加工した数値を表2に示した。

表2により快適率が低く不快指数が高かったのは、富士市県道の周辺、清水市国1バイパス周辺、三島市国1バイパス周辺、沼津市国1バイパス周辺で、快適率30%前後(不快指数で4前後)であり、自動車排気ガスの影響によると思われる地点であった。次に富士市等の工場の排ガスの影響による地点が快適率(不快指数3.8前後)が低かった。

きたなさは大きききたなさ指数の大ききところは、清水市国1バイパス周辺や三島市国1バイパス周辺の自動車排ガスの影響によると思われる地点や富士市等工場による影響のある地点であった。

群を抜いていた。

また質問10「お宅の周辺でどのようなにおいが感じられるか」の問に対し、(17 野菜のにおい)(18 草を刈る時のにおい)(19 果実香)(20 花香)(その他記入の良い香り)を良いかおりとしてそれ以外を悪臭と分類した時に悪臭を全体数で割った割合を悪臭率とした。山間地域や農業地域は悪臭率が低かった。図3に快適率と悪臭率の関係を表したが、快適率が90%を超えると急速に悪臭率が減少することがわかった。快適率の低い地域でも良いかおりを積極的に感じるにより、においに敏感になり、不快なにおいの改善につながる可能性があると思われる。

不快指数ときたなさ指数及び被害指数との関係を図4に示す。不快指数が3.5をすぎるときたなさ指数及

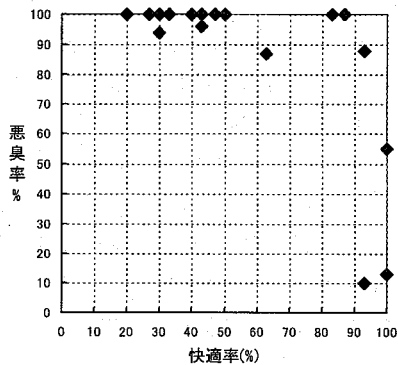


図3 快適率と悪臭率の関係

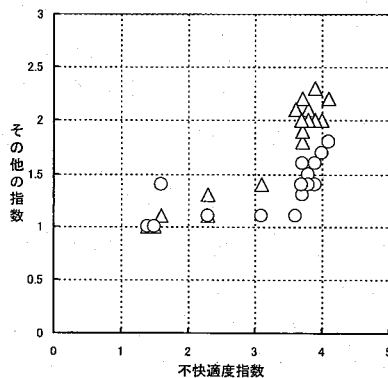


図4 不快適度指数と他の指数との関係  
△きたなさ度指数 ○被害度指数

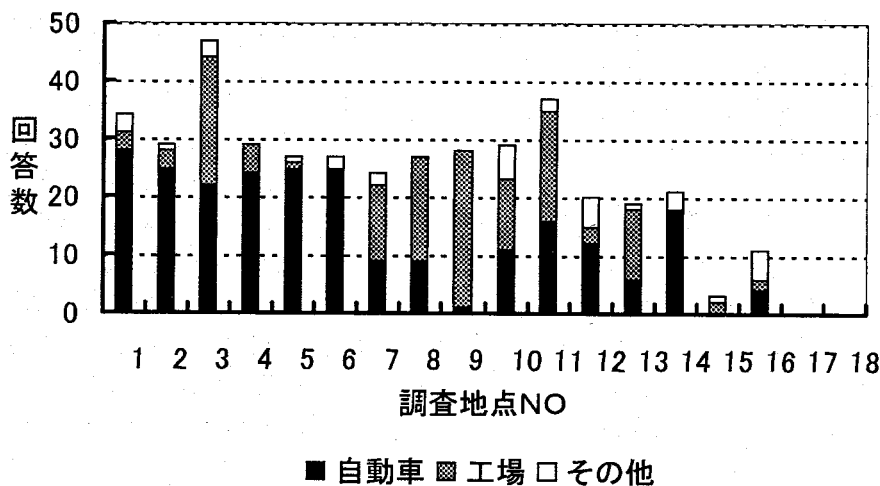


図5 快各地点の空気を汚くする原因

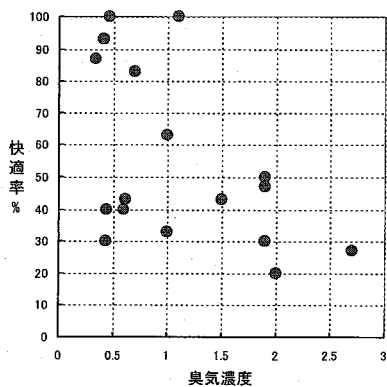


図6 臭気濃度と快適率の関係

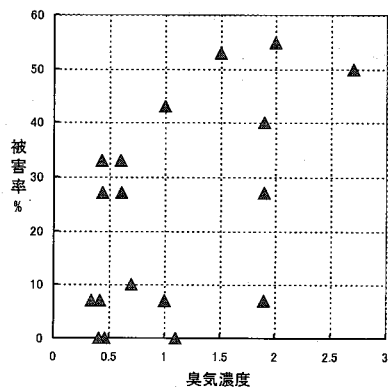


図7 臭気濃度と被害率の関係

び被害指数が急に上昇した。不快適指数3.5は（3 特別に感じない）と（4 多少よくないと感じる）の間であり、この感覚程度をすぎると大幅に空気のきたなさ及び被害感を感じるようになった。

質問13で空気をきたなくする原因を自動車排ガス、工場の排ガス、その他に分けて図5に示した。また表2の自動車率とは空気を汚くする原因が自動車とする回答の合計が全回答に占める割合をいう。表2や図5より、大部分の地点は、自動車排ガスが空気をきたなくする主原

因であった。工業地域の5地点はそれと異なり、工場排ガスが主な原因であった。静岡市の北部の山間の2地点は空気がきれいであり、空気を汚す原因の回答はなかった。

その他の空気をきたなくする原因としては、トイレ（浄化槽）のにおい、ゴミの集積のにおい、焼却炉からでるけむりのにおい、川又は下水のにおい、飲食店からでるにおい等日常生活によるものが大部分であった。

### 3 臭気濃度とアンケート調査結果の関係

各地点の臭気濃度と快適率(%)との関係を図6に示した。臭気濃度及び快適率も低い4地点のデータを除くと、ほぼ傾きがマイナスの比例関係にあることがわかる。快適率50%の臭気濃度は1.8程度となっていた。臭気濃度並びに快適率も低い4地点のデータは、工業地域の地点のデータであり、臭気(空気)のサンプリング時のサンプリング位置が風下にあらず、においを完全に捕集できなかったためと考えられる。

また、臭気濃度と被害率の関係を図7に示した。この図からこれらの関係は明確ではないが、住民の被害感の把握の方法を工夫すれば一定の関係が得られると思われる。

臭気濃度と快適率の関係から、静岡県内の住民が一般環境として許容できる1日の平均的な臭気濃度は1.8程度と推定された。この数字は、東京都の一般環境の許容臭気濃度の値2.5程度<sup>3)</sup>と比べて低かった。

## ま と め

静岡県内のおい環境の状況を把握するため、一般環境を道路沿道、工業地域、住居地域、農業地域及び山間地域に分けて、18調査地域で低濃度臭気の測定を行い、併せて住民の空気に関する快適さなどの意識調査(アンケート調査)を行ったところ、以下の知見が得られた。

1 県内の一般環境臭気は、臭気濃度(臭気指数)で0.3(-4.7)~2.7(4.3)で、国のおい環境指針に示された地域別の実態調査結果の範囲内であった。臭気濃度は、測定地点のうち主要幹線道路沿道や一部の工業地域で高かった。

- 2 アンケート調査結果によれば、道路沿道や工業地域の大部分が快適率20~50%であり、住居地域は60~90%、農業地域、山間地域は90%以上であった。また、きたなさ率及び被害率は概ね快適率で推定された。
- 3 アンケート調査から空気を汚くしている原因は、工業地域を除くと自動車排ガスが主と考えられた。
- 4 アンケート調査と臭気濃度等調査より、快適率が50%の臭気濃度は1.8程度であり、望ましい臭気レベルは臭気濃度で1.8程度と推定された。

## 謝 辞

この研究を実施するにあたり関係市町村の皆様がたにご協力をいただきました。ここに深く感謝いたします。

## 文 献

- 1) 快適なおい環境づくりにむけて—おい環境指針策定の考え方—環境庁大気保全局(2000)
- 2) 辰市祐久他:一般環境臭気の臭気濃度測定法の検討, 臭気の研究, 31, 149-156(2000)
- 3) 辰市祐久他:東京都内の臭気環境について, 東京都環境科学研究所年報1997, 205-215(1997)
- 4) 吉井直美他:石油コンビナート周辺地域の環境臭気, 千葉県環境研究所研究報告, 30, 9-14(1998)



## 三宅島噴火と静岡県下の大気汚染 — 常時監視局がとらえた火山性ガスの影響 —

大気・水質部 大気騒音・環境スタッフ 篠原英二郎  
富士常葉大学 環境防災学部 村上篤司

Eruption of MIYAKEJIMA and Air Pollution in Shizuoka Prefecture  
— The Effect of Volcanic Gas on the Monitoring Station for Air Pollution —

Eijirou SHINOHARA, and Atusi MURAKAMI

2000年8月中旬頃から噴火活動が活発化した三宅島では、現在でも世界的にも類を見ない1日あたり4万トンを超える二酸化硫黄 ( $\text{SO}_2$ ) を含む大量の火山性ガスが放出されている<sup>1)</sup>。この火山性ガスの影響と考えられた大気汚染が、8月から9月にかけて関東、東海、北陸、近畿地方にわたり広域的に現れ、静岡県内においても  $\text{SO}_2$  が 0.59ppm (590ppb)、SPMが  $0.57\text{mg}/\text{m}^3$  ( $570\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) という高濃度が測定された。

そこで、常時監視局の測定結果からコンター図を作成し、高濃度汚染時の全県的な広がりや県内各地への到達時間の推定を試みた。

また、得られたコンター図が、分かりやすい画像情報として県民に提供可能であることがわかった。

Key words : 三宅島, 火山性ガス, 広域大気汚染, 高層風

Miyakejima, Volcanic gas, Wide spread air pollution, Upper layers wind

### はじめに

静岡県内に設置された大気常時監視局の1時間値は、2000年8月25日以降、通常時をはるかに上回る高濃度の二酸化硫黄 ( $\text{SO}_2$ ) や浮遊粒子状物質 (SPM) をとらえていた。これは8月中旬から活発化した三宅島雄山の噴火活動による火山性ガスの影響と考えられた。そこで、静岡県大気テレメータシステムに接続されている  $\text{SO}_2$  59局 (県有21, その他38) とSPM 62局 (県有22, その他40) の8月と9月のオンラインデータを用い、この間に高濃度を示した8月25, 28日と9月13から6日について時系列で濃度補間計算を行い、コンター図を作成し汚染の広がりを推定した。

また、静岡県上空と三宅島上空の高層風の風向・風速

データから、汚染物質の到達時間の推定を試みた。

### 調査方法

#### 1 大気自動測定器による測定

##### 1) 二酸化硫黄 ( $\text{SO}_2$ )

JISB7952に定める溶液導電率法または紫外線蛍光法による。

##### 2) 浮遊粒子状物質 (SPM)

JISB7954に定める  $\beta$ 線吸収法による。

#### 2 汚染の広がりの推定

##### 1) 濃度の補間計算

静岡県を総理府が定める三次メッシュに分割し、三次メッシュコード51377307の地点を原点とし、東西方向140メッシュ、南北方向110メッシュを補間範囲とした。

実測値があるメッシュは実測値で固定、同一メッシュに複数の実測値がある場合は、最大値をメッシュ濃度として単純差分法<sup>2)</sup>により収束条件  $\epsilon=0.01$  を満たすまで繰り返し計算を行い、補間範囲すべてに実測値を含む補

静岡県環境衛生科学研究所

(〒420-8637, 静岡市北安東4-27-2)

Shizuoka Institute of Environment and Hygiene

(4-27-2, Kita-andō, Shizuoka, 420-8637, Japan)

完濃度を与えた。

2) SO<sub>2</sub>とSPMの1時間値で補間計算を行い、得られた補間データ15,400にそれぞれ三次メッシュ番号を付与し、市販の地図表示ソフト(ESRI社, ArcView GIS)を使用してコンター図を作成した。

### 3 高層風の風向・風速

1) 静岡県上空750mおよび1500m付近の風向風速は静岡地方気象台浜松測候所のパイロットバルーンによる測定結果を使用した。

2) 三宅島雄山上空1000m付近の風向風速は、気象庁地震火山部・三宅島測候所発表の火山観測情報を使用した。

## 結果および考察

### 1 大気自動測定器による測定結果

8, 9月のSO<sub>2</sub>およびSPM濃度の短期的評価による環境基準適合状況を表1に、SO<sub>2</sub>濃度の日最大値の推移を図1、SPM濃度の日最大値の推移を図2に示す。

表1 8, 9月におけるSO<sub>2</sub>とSPMの短期的評価  
(環境基準値を超えた時間数と局数)

項目	2000年8月		2000年9月		1999年度	
	局数	時間数	局数	時間数	局数	時間数
SO <sub>2</sub> *	39/59	321	26/59	92	0/68	0
SPM*	43/61	269	7/61	31	12/63	64

\*SO<sub>2</sub>短期的評価環境基準値: 0.1ppm (100ppb)  
SPM短期的評価環境基準値: 0.2mg/m<sup>3</sup> (200 μg/m<sup>3</sup>)

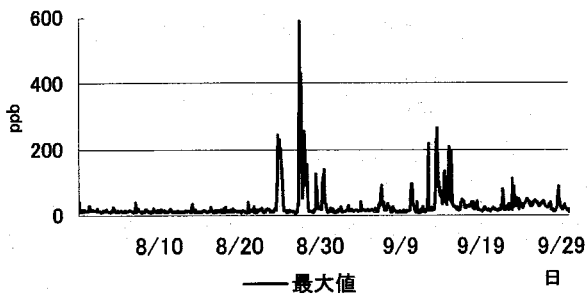


図1 SO<sub>2</sub>の日最大値の推移

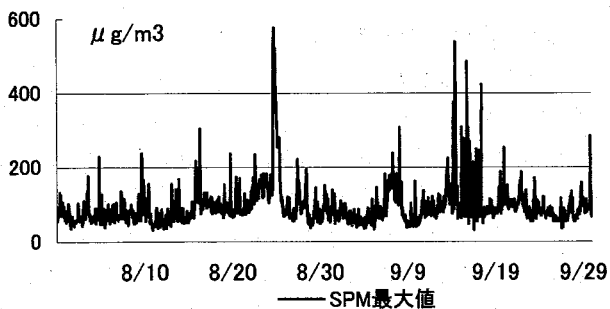


図2 SPMの日最大値の推移

8, 9月におけるSO<sub>2</sub>の1時間値は、短期的環境基準評価値である0.1ppmを413時間超え、SPMの1時間値も、短期的環境基準評価値である0.2mg/m<sup>3</sup>を300時間超え、過去の大気常時監視観測史上最も多い時間数であった。

これらの高濃度は大部分が8月25~31日に集中しており、この間だけでSO<sub>2</sub>はオンライン測定局59局中39局、SPMが61局中43局で観測されていた。

また、この間の1時間値の最高濃度は、SO<sub>2</sub>が8月28日の0.59ppm(自排三島局)、SPMが8月25日の0.57mg/m<sup>3</sup>(焼津市役所局)であった。

### 2 汚染の広がりの推定

SO<sub>2</sub>の1時間値が最も高濃度を示した8月28~29日の間のコンター図を図3~図9に示す。

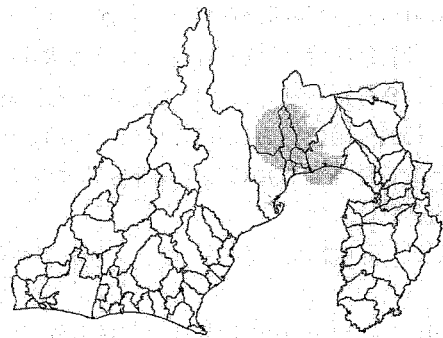


図3 8月28日8時

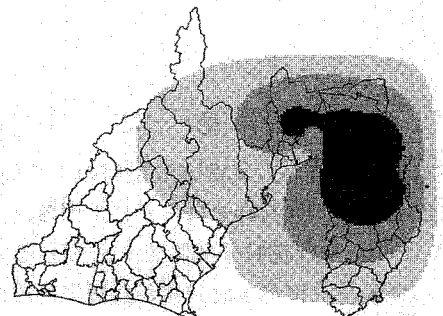


図4 8月28日12時

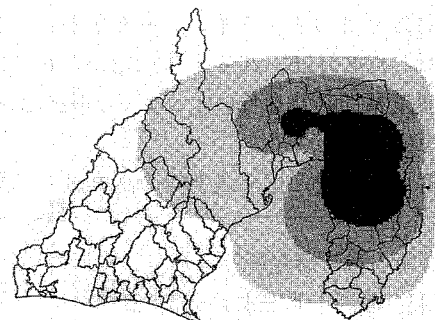


図5 8月28日16時

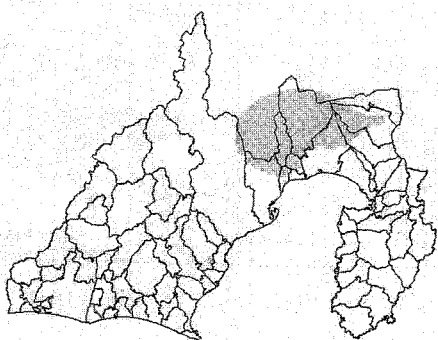


図6 8月28日21時

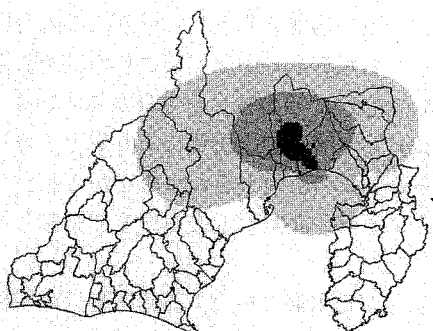


図7 8月29日3時

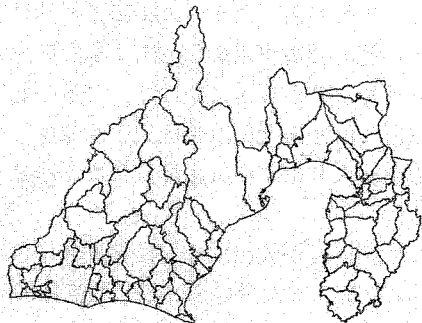


図8 8月29日15時

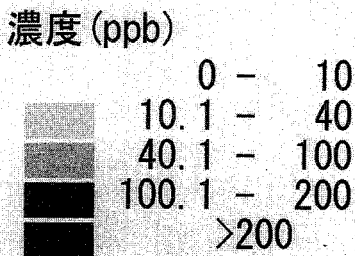


図9 SO<sub>2</sub>コンター凡例

8月28日8時頃、富士市を中心としてSO<sub>2</sub>濃度が10ppbを超え始め、10時には県東部全域で濃度が上昇し、函南町付近では既に100ppbを超えていた。

12時になると、沼津市、三島市全域で200ppbを超え、自排三島局では今回の最高濃度である590ppbを記録していた。この県東部を中心とした汚染は、静岡市以東の県全域に渡る広範囲なものとなり、高濃度広域汚染は20時まで継続し、21時ようやく100ppbを超える地域が消滅した。

しかし、翌29日3時に再び富士市で100ppbを超え、汚染が完全に消滅したのは15時であり、観測史上初めてといえる高濃度汚染は24時間以上にわたるものであった。

図10は日本気象協会による8月28日13時の関東地方の実測濃度分布図である。

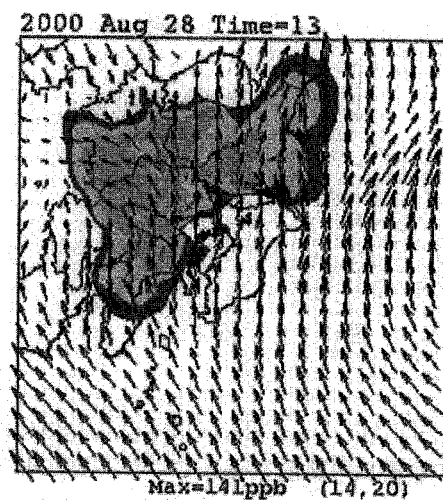
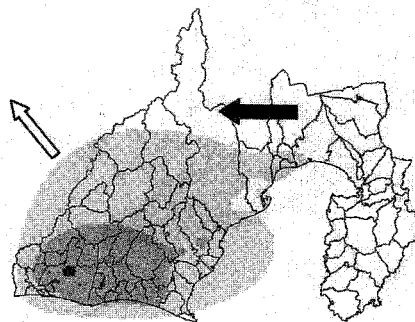


図10 2001年8月28日の実測濃度分布図<sup>3)</sup>

この実測図は、そらまめ君のデータから作成されたものであり、静岡県は空白で表示されている。これに図4のコンター図を併せると、この時の汚染の全体像が見えてくる。

三宅島から放出されたSO<sub>2</sub>が北上し、静岡県中・東部を經由し、関東一円に広がっていたことが明らかになった。

その後も断続的に広域汚染が繰り返され、9月の最高濃度が出現した13～16日について図11～図13に示す。



高層風の風向 (白矢印：上空1500m 黒矢印：750m)

図11 9月13日12時

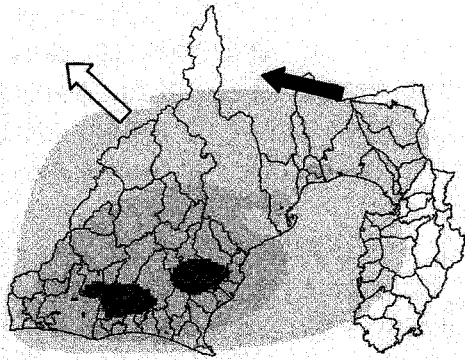


図12 9月14日15時

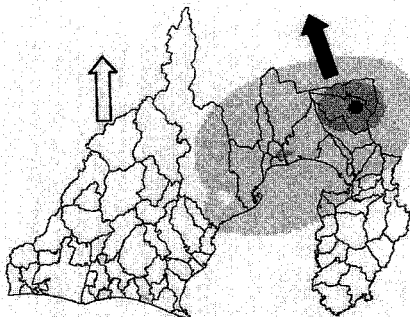


図13 9月16日19時

図中の白矢印は静岡県上空1500m付近，黒矢印は上空750m付近の高層風の風向を表している。高層風の風向が東を示している13日12時に，県西部地区で突然100ppbを超えるSO<sub>2</sub>が出現し，14日の18時まで濃度の増減を繰り返しながら県中部から西部にかけて広域汚染が継続した。

その後上層風が南寄りになるに従い，汚染の中心は県東部に移動し，16日の12時ようやく消滅した。この広域汚染に酷似した10月20日の現象を日本原子力研究所がシミュレーションしているので図14にその結果を示す。

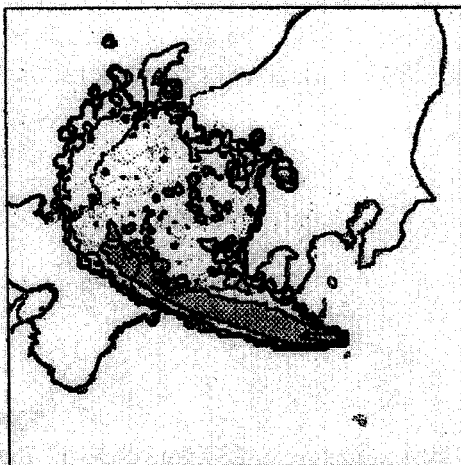


図14 SO<sub>2</sub>分布図 (10月20日9時) 4)

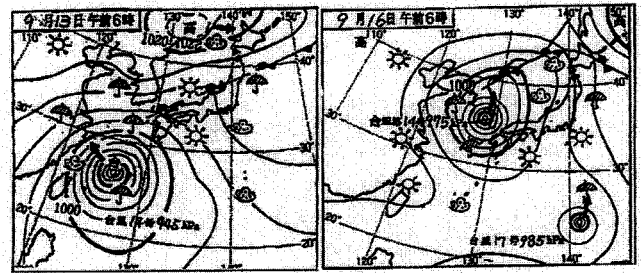


図15 天気図 9月13日 9月16日

また，9月13と16日の天気図を図15に示す。

9月13から15日まで，日本の南西海上には大型の台風14号が非常に遅い速度で北上しており，この台風の影響により関東から西日本にかけて東よりの風が吹きやすい状態が続いていた。その時，三宅島から排出されたSO<sub>2</sub>は図11，12に示す東風の上層風により海上を西進し，遠州灘沖から静岡県西部地方をかすめながら北上し，図14に示すように東海，北陸，近畿地方まで拡散していったと考えられた。

16日に台風が日本海に抜け，静岡県付近は南風に支配され，SO<sub>2</sub>は西進せず8月28日と同様に北上し，汚染の中心を静岡県東部方面に移していたことが図13に示されていた。

これまで述べてきたように，2000年8月以降，静岡県を含む広い範囲で高濃度のSO<sub>2</sub>による大気汚染がしばしば観測された。夏から秋にかけて，日本の北東海上に移動性高気圧，南西海上に熱帯低気圧が発生し，南または東よりの風が入りやすい気圧配置になるパターンが多く見られる。

ここに，三宅島が放出する火山性ガスに含まれる日量40000トンを超える大量のSO<sub>2</sub>が，上空1000～2000m付近まで吹き上げられ，南あるいは東よりの上層風により海上を渡り陸地上空に達し，日射による上昇気流により大気混合・拡散が起こり，広域的な高濃度汚染になったと考えられた。

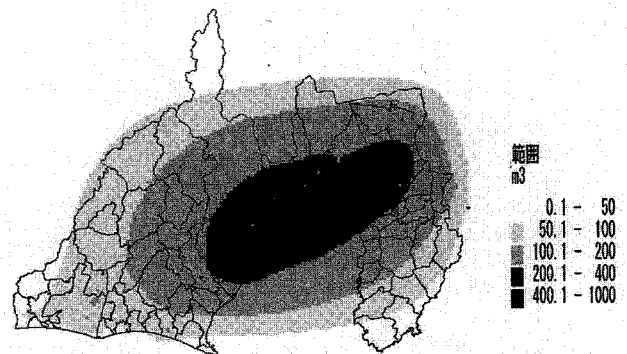


図16 SPMコンター (8月25日21時)

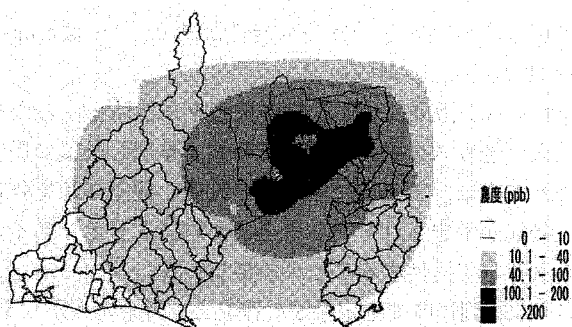


図17 SO<sub>2</sub>コンター（8月25日21時）

一方、SPMもSO<sub>2</sub>と同様、広域的な高濃度汚染が観測されていたが、その現れ方がSO<sub>2</sub>と少し異なっていた。この間にSPMが最大値を示した8月25日21時のコンター図を図16に示す。

SPMが200 μg/m<sup>3</sup>を超える地域は焼津市から沼津市までの広範囲に現れ、特に焼津市ではSPMの最大値570 μg/m<sup>3</sup>が観測されていた。しかしSO<sub>2</sub>は、図17に示すように同時刻の汚染の中心が富士市付近にあり、濃度もSPMほど高くなく100~200ppb程度であった。

一方、県西部でSO<sub>2</sub>が上昇した9月13~16日にSPM濃度の上昇はほとんど見られず、SO<sub>2</sub>とは極めて対照的であった。この時、汚染の中心は遠州灘沖にあったこと、また、台風14号の影響により二次生成反応が起こりにくかったためSPMが上昇しなかったとも考えられるが、SO<sub>2</sub>とSPMの現れ方の相違についての原因究明は今後の課題である。

### 3 大気汚染物質の到達時間の推定

三宅島の火山性ガスに含まれるSO<sub>2</sub>は、南東の風により伊豆半島を通過し、県中・東部に達するパターンと、東の風により遠州灘沖から県西部に達するパターンがあることがわかった。

図18、19に臨時的に設置した下田市のSO<sub>2</sub>計の測定値を使用して作成した9月11日のコンターを示す。

9月11日9時に下田市で60ppbを超えるSO<sub>2</sub>が観測さ

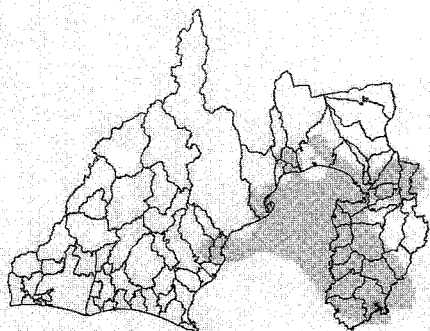


図18 SO<sub>2</sub>コンター（9月11日9時）

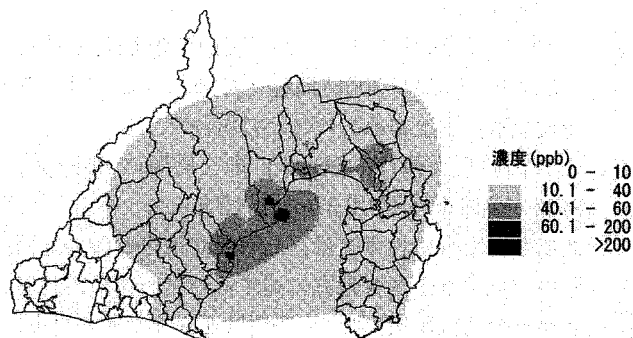


図19 SO<sub>2</sub>コンター（9月11日12時）

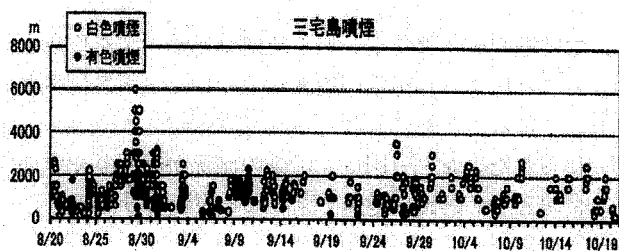


図20 三宅島火山活動経過図（10月20日）<sup>5)</sup>

れ、3時間後の12時に伊豆半島対岸の焼津市から清水市に到達していたことがわかる。この時、風向は南東、風速は時速約20km（5~6 m/秒）程度と推測された。

噴煙の高さは、図20に示すように気象庁地震火山部の火山情報で得られる。噴火当初、噴煙の高度は8000mを越えた時も見られたが、その後は1000~2000m程度で落ち着いている。

雄山上空1000mの高層風の情報は火山情報で得ら

表2 下田市からの距離 (km)

三島市	御殿場市	清水市	静岡市	焼津市	浜松市
50	72	60	67	73	144

れ、静岡県上空の高層風は気象協会より得られるので、SO<sub>2</sub>が伊豆半島を通過下した場合は、これらの風向、風速と表2に示す下田市からの距離でおおよその到達時間が推定できることになる。

これらのことから、上層風が南東方向で風速が5~10mの時は、下田市で高濃度が観測されてからおおよそ2~3時間、10~20mの時は1~2時間で県内の各市に到達すると推定された。

## ま と め

- 2000年8、9月に静岡県を含む東海、北陸、関東、近畿地方でSO<sub>2</sub>やSPMの高濃度、広域汚染がみられ、これは、三宅島から放出された火山性ガスの影響と

考えられた。

2. この間、静岡県では、SO<sub>2</sub>が短期的環境基準値を413時間、SPMは300時間超えていた。これは、常時監視観測史上初めてのことであった。
3. この間の最大値は、SO<sub>2</sub>が自排三島局の0.59ppb、SPMが焼津市役所の0.57mg/m<sup>3</sup>であった。
4. 放出された火山性ガスは、高層風が南東の時、静岡県中・東部から関東地方に達するパターンと、高層風が東の時、遠州灘沖から静岡県西部をかすめ東海、北陸、近畿地方に達するパターンがみられた。
5. 高層風データを取り込むことにより、下田市から県内各地域への到達時間が推定できることが示唆された。
6. 常時監視データを用いた1時間コンター図を作成することにより、汚染の範囲を目で見える画像情報として得ることができた。
7. 得られたコンター図は、汚染の状況が分かりやすい情報として県民に提供できることがわかった。

### 今後の課題

2000年8月以来活発化している三宅島の噴火活動は、2001年3月になっても沈静化の兆しがみられていない。

三宅島村民がいまだに帰島できないのは、火山性ガス中に含まれる有毒ガスであるSO<sub>2</sub>が世界的にも類を見ないほど大量に放出され続けているからである。

この半年間に放出されたSO<sub>2</sub>は、約1000万トンと算出されるが、今後いつまで、どれくらいの量のSO<sub>2</sub>が放出されるのかは今のところ推定できない状態である。

このことから、西風が卓越する冬型の気圧配置が緩む4月以降、再びSO<sub>2</sub>の高濃度・広域汚染が出現することは避けられない情勢である。

特に静岡県は、三宅島から近いこと、風向によっては汚染塊中心の直撃を受ける可能性があり、1～数ppmのSO<sub>2</sub>の出現も考えられる。

県民のSO<sub>2</sub>汚染に対する健康被害を未然防止するために、火山性ガスに関する情報を収集、整理し県民に提供するとともに、下田市に測定器を設置し観測体制を強化し、接続が予定されているそらまめ君によりオンラインデータとして提供することが必要である。

さらに、到達時間推定手法の確立と、汚染の広がり、県民が目で見えてわかり易い情報として提供できるコンター図作成の自動化の開発が必要である。

最後に、三宅島の噴火活動が速やかに沈静化し、一刻も早く三宅島村民の方々が帰島できることを願ってやみません。

### 文 献

- 1) 風早康平：三宅島噴火における火山性ガスの噴出量、三宅島噴火と広域大気汚染、17-25、(社)大気環境学会、東京都(2001)
- 2) 数理計画(株)：大気汚染物質の地区代表濃度検討調査、平成9年度環境庁委託業務結果報告書、16-17、数理計画(株)、東京都(1998)
- 3) 鈴木基雄：三宅島噴火と噴出ガスの拡散、三宅島噴火と広域大気汚染、37-44、(社)大気環境学会、東京都(2001)
- 4) 茅野政道：三宅島火山性ガスの広域拡散シミュレーション、三宅島噴火と広域大気汚染、27-36、(社)大気環境学会、東京都(2001)
- 5) 気象庁地震火山部：三宅島火山活動経過図、火山観測情報第303号、気象庁、東京都(2000)

## 静岡県内の有害大気汚染物質調査

大気・水質部 大気・騒音環境スタッフ 太田良和弘, 田端孝光<sup>\*1</sup>, 萱沼広行  
篠原英二郎, 永田嘉七, 竹下昭二  
味岡嘉輝

Research on Hazardous Air Pollutants in Shizuoka Prefecture

Kazuhiro OHTARA, Takamitsu TABATA\*, Hiroyuki KAYANUMA,  
Eijiro SHINOHARA, Kashichi NAGATA, Shoji TAKESHITA,  
and Yoshiteru AJIOKA

1998年から2000年の3年間、静岡県内の有害大気汚染物質の環境濃度を調査した結果、トリクロロエチレン、テトラクロロエチレンは環境基準を達成しているが、ベンゼンはモニタリングを実施した4測点中、2測点で環境基準値以上であった。ベンゼン濃度は、モニタリング開始当初は全測点で環境基準を超過していたが、年々減少傾向を示しており、これは他の有害大気汚染物質についてもほぼ同様の傾向である。環境基準等を依然として超過しているベンゼンについて、汚染負荷の低減を目的として汚染の状況を統計的に解析しその要因を検討した結果、地点毎の移動発生源による寄与を数値化することができた。

Key words : 有害大気汚染物質, 揮発性有機化合物, クラスタ分析, 因子分析, ベンゼン  
Hazardous air pollutants (HAPs), Volatile organic compounds (VOCs), Cluster analysis,  
Factor analysis, Benzene

### はじめに

優先的に対策に取り組むべき有害大気汚染物質として国が示した22物質の内、本県ではベンゼン等揮発性有機化合物(以下VOCsという)9物質について1997年からモニタリングを開始した。1998年にはモニタリング手法<sup>1)</sup>が定められたアルデヒド類、重金属類等9物質を加え18物質、1999年からは酸化エチレンを加え19物質をモニタリング対象とした。これらの結果については既報で報告した。<sup>2)~5)</sup>

また、有害大気汚染物質のモニタリング対象の拡充と、汚染負荷の推定を行う補足因子の確保を目的として、より多成分のVOCsの同時定量手法を確立した。<sup>6)</sup>

優先取組物質については現在も継続してモニタリング

を行っており、今回、2000年の状況と共に、1998年から3年間の結果を基にその経年的な傾向を把握した。さらに、大気環境基準値を超過しているベンゼンの汚染負荷の推定を目的として、多成分のVOCsの同時モニタリングを実施し、その結果を基に各測点ごとに汚染の状況を統計的に解析したので併せて報告する。

### 調査方法

#### 1 調査期間

2000年1月~12月の期間で、VOCsは毎月1回、アルデヒド類、重金属類等は年4回モニタリングを行った。

#### 2 調査地点及び測定回数

調査地点は既報<sup>5)</sup>と同様に以下のA~Dである。

- A 自排三島局 VOCs(1回/月)
- B 鷹岡公民館 VOCs(1回/月)その他(4回/年)
- C 島田市役所 VOCs(1回/月)その他(4回/年)
- D 磐田市役所 VOCs(1回/月)

ここで、その他とは、アルデヒド類、重金属類、水銀、ベンゾ(a)ピレン、酸化エチレンの計10物質を示す。

静岡県環境衛生科学研究所  
(〒420-8637, 静岡市北安東4-27-2)  
Shizuoka Institute of Environment and Hygiene  
(4-27-2, Kita-andō, Shizuoka, 420-8637, Japan)

\*静岡県浜松工業技術センター

### 3 調査対象項目

- 1) VOCs: 塩化ビニルモノマー, 1,3-ブタジエン  
 アクリロニトリル, ジクロロメタン  
 クロロホルム, 1,2-ジクロロエタン  
 ベンゼン, トリクロロエチレン  
 テトラクロロエチレンの優先取組9物質  
 及び同時定量可能な他のVOCs34物質<sup>6)</sup>
  - 2) アルデヒド類: アセトアルデヒド  
 ホルムアルデヒドの2物質
  - 3) 重金属類: ニッケル, ヒ素, ベリリウム, マンガン  
 クロムの5物質
  - 4) 水 銀
  - 5) ベンゾ (a) ピレン
  - 6) 酸化エチレン
- #### 4 分析方法<sup>1)~7)</sup>

有害大気汚染物質測定方法マニュアル<sup>1)</sup> (以下マニュアルという) による方法を採用した。

- 1) : キャニスターによる減圧採取法を採用し, 分析方法は既報<sup>6)</sup>と同様である。
- 2) ~ 6) : 既報<sup>2)~5)</sup>と同様である。

## 調査結果及び考察

### 1 環境基準等の評価

静岡県内4測点におけるVOCs(9物質)の2000年の年平均値等の結果を表1に, B, C測点におけるアルデヒド類等(10物質)の結果を表2に示した。

環境基準が定められている4物質の濃度を年平均値で見ると, ベンゼン濃度は, C, D測点を除いて環境基準( $3\mu\text{g}/\text{m}^3$ )を超過していた。トリクロロエチレンとテトラクロロエチレンの濃度は, 全て基準( $200\mu\text{g}/\text{m}^3$ )の1/100以下で全国平均より低い傾向であった。ジクロロメタンの濃度は, 全て基準( $150\mu\text{g}/\text{m}^3$ )の1/40以下で全国平均並みであった。

環境基準が定められていない15物質について, EPA発ガン性 $10^{-5}$ リスク濃度, WHO欧州事務局ガイドラインによる基準等の参考値と比較すると, 表1より1,3-ブタジエン濃度が全測点で, アクリロニトリル(以下ANという), クロロホルム(以下CFという)濃度がB測点で参考値を超過していた。これらは, 1999年と同様の傾向であった。<sup>5)</sup>

また, 表2よりホルムアルデヒド, ベンゾ(a)ピレン(以下BaPという)濃度がB, C測点で, ヒ素濃度がC測点で参考値を超過していた。

酸化エチレンに関しては比較すべき参考値が設定されていない。濃度範囲は2測点含めて $0.03\sim 0.28\mu\text{g}/\text{m}^3$ で, 前年及び1999年度の全国の結果と同程度であった。<sup>5)</sup>

道路沿道のA測点及び一般環境のB~D測点全ての

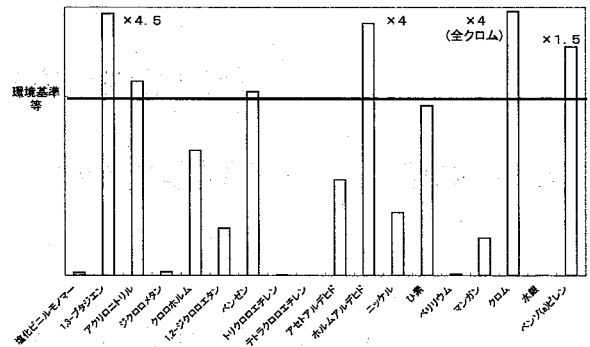


図1 環境基準等の達成状況(静岡県平均'00)

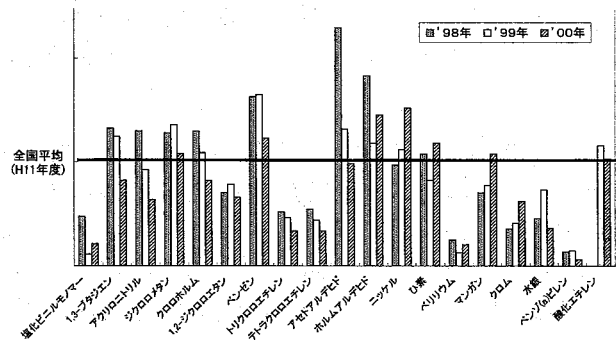


図2 有害大気汚染の経年変化(静岡県平均)

2000年の結果を平均し, 静岡県全体の有害大気汚染の状況として, 環境基準等の達成状況を図1に示した。図中では基準等を1としたときの県平均の相対割合を表している。

基準等を超過しているのは, 1,3-ブタジエン, AN, ベンゼン, ホルムアルデヒド, クロム, BaPであり, これらについては環境負荷を低減する必要がある。なお, クロムは全クロムとしての値であり, 本来の参考値が6価のクロムで定められているため, 基準等への適否は正確には判断できない。

### 2 経年変化

1998年から2000年の静岡県全体の優先取組物質の年平均値の推移(経年変化)を図2に示した。図中では1999年度全国平均を1としたときの県平均の相対割合を表している。経年変化として明らかに増加傾向を示しているのはニッケル, マンガン, クロムのみであり, その他はほとんどが減少傾向, 一部横ばいである。増加傾向を示す物質については環境が悪化しているという観点からは問題であるが, 基準等の達成状況を考えれば深刻な状況ではない。

一方, 増加傾向が見られない物質でも, 基準等を達成しておらず, かつ全国水準よりも汚染レベルの高い物質については特に注目する必要がある。これらに該当するのは図1, 2よりベンゼン及びホルムアルデヒドである。ホルムアルデヒドについては, 調査回数が年4回と少な



表1 各測点におけるVOCs (9物質) の年間測定結果 (2000年1月~2000年12月)

単位:  $\mu\text{g}/\text{m}^3$

汚染物質名	A		B		C		D		基準値等	全国平均	B.G.
塩化ビニルモノマー	0.025	70	0.024	67	0.021	79	0.074	181	2.3 *1	0.17	0.035
	0.007ND~ 0.047		0.008ND~ 0.053		0.007ND~ 0.057		0.007ND~ 0.46			0.008~7.0	
1,3-ブタジエン	0.44	41	0.30	36	0.16	46	0.16	34	0.04 *1	0.32	0.049
	0.12 ~ 0.74		0.15 ~ 0.53		0.076 ~ 0.27		0.081 ~ 0.27			0.002~2.6	
アクリロニトリル	0.073	96	0.30	65	0.030	41	0.028	53	0.1 *1	0.17	0.050
	0.025 ~ 0.28		0.093 ~ 0.72		0.008ND~ 0.048		0.008ND~ 0.048			0.003~2.5	
ジクロロメタン	3.6	46	3.0	28	2.4	36	3.2	34	150	2.8	0.89
	1.8 ~ 7.9		1.4 ~ 4.2		1.2 ~ 4.2		1.9 ~ 5.5			0.10~16	
クロロホルム	0.18	42	0.48	28	0.21	59	0.24	60	0.4 *1	0.34	0.19
	0.02ND ~ 0.31		0.31 ~ 0.71		0.07< ~ 0.46		0.09< ~ 0.55			0.04~4.8	
1,2-ジクロロエタン	0.12	44	0.12	62	0.09	54	0.10	69	0.4 *1	0.16	0.13
	0.02ND ~ 0.19		0.02ND ~ 0.24		0.02ND ~ 0.18		0.02ND ~ 0.25			0.01~2.0	
ベンゼン	3.9	26	3.9	30	2.1	36	2.6	26	3	2.5	0.80
	2.1 ~ 5.5		1.8 ~ 5.8		1.1 ~ 3.7		1.7 ~ 4.3			0.44~8.3	
トリクロエチレン	0.38	54	1.0	30	0.31	47	0.72	84	200	1.8	0.082
	0.09ND ~ 0.71		0.46 ~ 1.8		0.10 ~ 0.58		0.34 ~ 2.5			0.02~60	
テトラクロエチレン	0.22	42	0.45	76	0.17	42	0.25	71	200	0.8	0.19
	0.04ND ~ 0.34		0.18 ~ 1.2		0.04ND ~ 0.26		0.04ND ~ 0.74			0.03~10	

表2 B, C測点におけるアルデヒド類等 (10物質) の年4回測定結果 (2000年1月~2000年12月)

単位:  $\text{ng}/\text{m}^3$  (アルデヒド類, 酸化エチレンは $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )

汚染物質名	B		C		基準値等	全国平均	B.G.
アセトアルデヒド	2.8	23	2.6	47	5 *1	2.7	1.4
	1.8 ~ 3.2		1.4 ~ 3.7			0.28 ~ 9.2	
ホルムアルデヒド	4.6	54	4.5	36	0.8 *1	3.1	1.5
	2.3 ~ 7.6		2.3 ~ 6.0			0.2 ~ 8.7	
ニッケル	10	25	8.1	75	40 *1	6	1.5
	8.6 ~ 14		3.3 ~ 17			1 ~ 43	
ヒ素	1.5	78	2.3	121	2 *1	1.6	1.8
	0.52 ~ 3.1		0.91 ~ 6.6			0.1 ~ 17	
ベリリウム	0.035	85	0.034	122	4 *1	0.17	-
	0.011 ~ 0.076		0.0076 ~ 0.097			0.006 ~ 2	
マンガン	40	58	23	100	1000 *2	29	9.0
	17 ~ 62		5.9 ~ 57			4.6 ~ 190	
全クロム	4.3	21	5.2	60	0.8 *1	7.6	1.6
	3.4 ~ 5.5		2.5 ~ 8.4		(6価)	0.43 ~ 140	
水銀	0.98	39	1.1	43	1000 *2	2.9	-
	0.62 ~ 1.5		0.74 ~ 1.8			0.05 ~ 50	
ベンゾ (a) ピレン	0.35	59	0.22	73	0.1 *2	0.46	-
	0.12 ~ 0.61		0.040 ~ 0.42			0.02 ~ 2.8	
酸化エチレン	0.18	49	0.064	63	-	0.12	-
	0.074 ~ 0.28		0.029 ~ 0.11			0.034 ~ 0.62	

ND: 検出下限値未満

<: 定量下限値未満 (数値は実測値を参考値として示した)

\*1: EPA発ガン性 $10^{-5}$ 乗リスク濃度を用いた (参考値)

\*2: WHO欧州地域事務局のガイドライン値を用いた

B.G.: バックグラウンド地域の年平均濃度<sup>9)</sup>

注<sup>1)</sup> 上段の左に平均値・右に変動係数 (CV%) を下段に最小・最大値を示した。

注<sup>2)</sup> 測定値の平均値は, 定量下限値未満はその実測値を, 検出下限値未満の場合検出下限値の1/2として計算した。

注<sup>3)</sup> 平均値が基準値等を超過したものは下線を記した。

いため、年平均値としての妥当性に問題がある。<sup>5)</sup> これらの物質については、より詳細に大気環境の状況を把握すると共に、環境負荷を低減するための施策を検討する必要がある。

### 3 ベンゼンの状況について

静岡県内のベンゼンの状況は、調査4測点中、2測点で環境基準を非達成である。

表1よりA測点でのベンゼン濃度は、2.1~5.5 (以下、単位  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) の範囲に分布しており、他の測点より高い値を示した。測点は道路沿道にあり、自動車排気ガスの影響が考えられる。1999年度の道路沿道測点の全国平均濃度は3.3であり<sup>8)</sup>、道路沿道としては全国水準よりやや高めである。

B測点の2000年平均値3.9は、全国の一般環境測点(年平均値2.1)<sup>8)</sup> 中で汚染レベルが高い結果となった。

C, D測点は、2000年平均値が環境基準を達成しており、基準を超過する測定値も稀になり環境が改善されている傾向が見られる。

大気中ベンゼン濃度については、「事業者による有害大気汚染物質の自主管理促進のための指針」(1996年9

月告示)<sup>10)</sup> による事業者の自主管理施策や、「指定物質抑制基準を定める告示」(1997年2月告示)<sup>11)</sup> により、1997年4月からの法規制化の形で固定発生源からの環境負荷を低減化する施策が行われた。また、「今後の自動車排ガス低減対策のあり方について(中間答申)」(1999年10月)<sup>12)</sup> により、1999年末を目標として、ガソリン中の低ベンゼン化等の移動発生源からの環境負荷を低減化する施策が行われた。これらの施策によりベンゼンの大気中への排出インベントリーは、1997年度から1999年度にかけて固定発生源では約43%、移動発生源では25%の減少と試算されている。<sup>13)</sup>

これらの施策の効果を確認するため、1998年から2000年の3年間のベンゼンの濃度推移を図3に示した。図中では1998年1月~1999年6月を上半期、1999年7月~2000年12月を下半期に分け、濃度推移の様子を1次近似曲線で表した。図より、全測点について、上半期のベンゼン濃度はほぼ横ばいで、下半期は減少傾向であることがわかる。固定発生源についての施策は、1997年4月から既に法規制化されているため、1998年からのモニタリングでは低減化後の状況しか確認できない。そのため、上半期の状況は固定発生源に対する施策後の濃度安定期

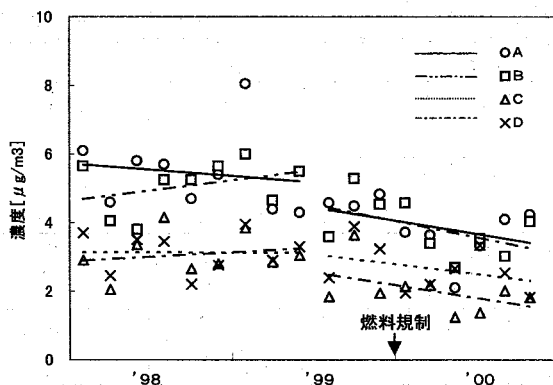


図3 ベンゼンの濃度推移

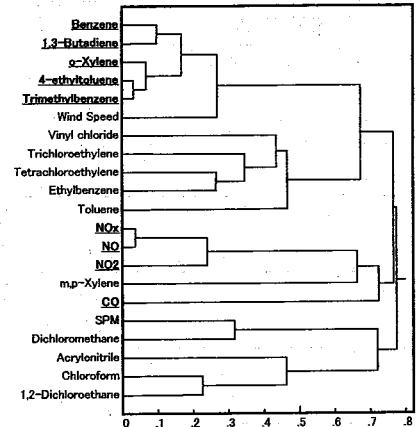


図4 デンドログラム (A測点)

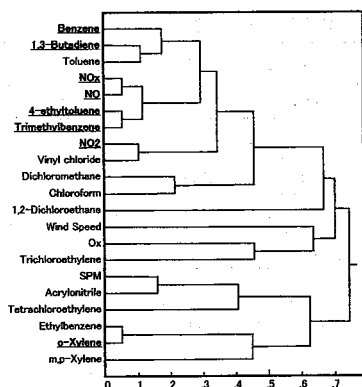


図5 デンドログラム (B測点)

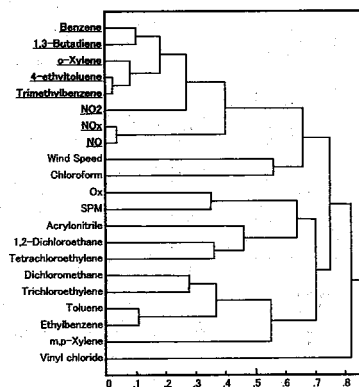


図6 デンドログラム (C測点)

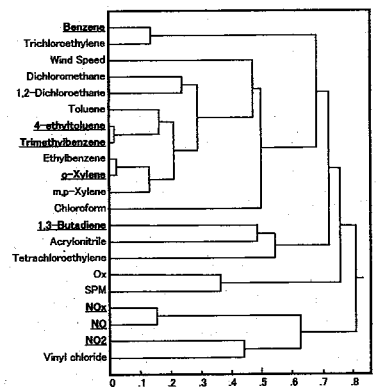


図7 デンドログラム (D測点)

間であり、下半期は新たな施策の効果による濃度減少期間であると考えられる。石油連盟によるガソリン中のベンゼン含有率調査によれば、上半期のベンゼン含有率は1.1~1.0%であるのに対し、2000年1月からの規制化目前の下半期からは0.7%と3割程度減少している。<sup>14)</sup>

ここで、各測点のベンゼン濃度の年平均値の推移をみると、1998年から1999年はほぼ横ばいであるのに対し、1999年から2000年にかけて全測点で約22~28%減少しており、燃料中のベンゼン含有率の低下割合とほぼ一致している。これらのことから、過去3年間のモニタリングにより、移動発生源のベンゼン環境負荷の状況を確認できたと考えられる。

#### 4 統計的手法による汚染状況の分類

各測点の汚染要因を詳細に推定するために、統計的

法により汚染状況を分類した。はじめにクラスター分析により大気汚染物質間の関連性を視覚的に把握する。次に因子分析を施し、因子負荷行列から汚染負荷の潜在的因子を数値化し、測点毎の汚染由来を推定する。

解析に用いるVOCsは、キャニスター法で定量可能なベンゼンを含む43成分の内、測定値が定量下限値より十分大きく定量精度が確保され<sup>6)</sup>、かつ測定値の変動係数が20~100%の適度なばらつきをもつものとして15成分を選定した。これに、各測点の大気常時監視6項目を加えた21項目、2000年1月から12月の各12個、合計252データにより解析を行った。なお、大気常時監視測定データは、キャニスターによるサンプリング時間に対応する1時間値データから算出した平均値を用いた。

##### 1) クラスタ分析による分類

表3 因子分析による各測定点の特徴

No	要素	分類*1			地点 A			B			C			D		
		自動車	工場*2	他*3	第1因子	第2因子	第3因子	第1因子	第2因子	第3因子	第1因子	第2因子	第3因子	第1因子	第2因子	第3因子
1	Benzene	○	△		0.91	0.27	-0.15	0.57	0.51	0.39	0.88	-0.06	0.19	0.46	0.84	0.10
2	Wind Speed				-0.83	-0.32	0.26	-0.19	-0.04	-0.01	-0.54	0.05	0.05	-0.71	0.08	-0.16
3	NOx	○	△		0.96	-0.08	-0.19	0.89	-0.15	0.21	0.71	-0.52	0.09	0.09	-0.08	0.11
4	NO	○	△		0.94	-0.14	-0.17	0.94	-0.14	0.12	0.58	-0.65	-0.03	0.06	0.03	-0.07
5	NO2	△	△		0.78	0.15	-0.17	0.69	-0.17	0.39	0.84	-0.09	0.32	0.06	-0.22	0.34
6	Ox(A地点のみCO)	○*		○	0.97	0.10	-0.19	-0.81	0.24	-0.03	-0.58	0.34	0.48	0.02	-0.03	0.92
7	SPM	△	△	○	-0.24	0.77	0.27	-0.43	0.79	0.28	-0.10	0.78	0.26	0.38	0.41	0.72
8	Viny chloride	○			0.68	-0.10	0.19	0.53	-0.21	0.61	-0.11	-0.01	0.52	-0.25	-0.01	-0.20
9	1,3-Butadiene	○	△		0.95	0.10	-0.19	0.82	0.05	0.13	0.84	-0.34	-0.10	0.30	-0.34	-0.63
10	Acrylonitrile	○	△		0.06	0.64	0.03	-0.11	0.91	0.07	0.44	0.69	0.17	0.37	0.31	-0.08
11	Dichloromethane	○	△		-0.65	0.41	0.24	0.37	0.13	0.79	0.36	0.64	-0.10	0.73	0.21	-0.13
12	Chloroform	○	△		-0.31	0.76	0.14	0.56	0.00	0.65	-0.38	0.48	-0.47	0.89	0.07	0.24
13	1,2-Dichloroethane	○	△		0.32	0.73	-0.28	-0.02	0.03	0.80	-0.13	0.63	0.36	0.77	0.14	0.19
14	Trichloroethylene	○	△		0.80	0.10	0.55	0.56	0.03	-0.03	0.48	0.73	-0.14	0.10	0.95	0.12
15	Toluene	○	△	○	0.38	-0.60	0.60	0.72	0.02	0.55	0.71	0.40	0.32	0.80	0.50	0.13
16	Tetrachloroethylene	○	△		0.43	0.36	0.75	-0.01	0.89	-0.18	0.15	0.73	-0.33	0.08	-0.20	-0.09
17	Ethylbenzene	○	△	○	0.34	-0.24	0.81	0.24	-0.33	0.02	0.76	0.53	0.21	0.96	-0.06	-0.06
18	m,p-Xylene	○	△	○	-0.07	0.77	0.18	0.05	-0.01	0.04	0.27	0.72	-0.43	0.88	0.12	0.11
19	o-Xylene	○	△		0.93	0.09	0.23	0.45	-0.44	0.10	0.95	0.16	-0.09	0.98	0.01	-0.08
20	4-ethyltoluene	○	△		0.89	-0.04	-0.06	0.77	-0.30	0.30	0.96	-0.14	-0.15	0.92	0.32	-0.02
21	1,3,5-Trimethylbenzene	○	△		0.94	-0.06	0.00	0.78	-0.12	0.32	0.93	-0.17	-0.11	0.92	0.28	-0.14
	寄与率				0.50	0.18	0.12	0.34	0.15	0.15	0.39	0.25	0.08	0.38	0.12	0.10
	推定因子(空間イメージ)				狭域・移動	固定	固定	移動	広域・固定	広域・固定	狭域・移動	広域・固定	広域	狭域・移動	広域	?
	(具体イメージ)				自動車	工場	他	自動車	工場	工場	自動車	工場	?	自動車	?	他

\*1: ○ (寄与大), △ (寄与小), 無記入 (寄与無し); 文献等の排出割合及び空間的な距離激衰を考慮した相対的な尺度

\*2: 存在が確認できる工場, 事業場等の固定発生源であり, その業種により寄与の大きさは異なる

\*3: 特定な汚染源のない大規模汚染物質や, 地下水, 塗装等の小規模で不確定な要因を含む

\*4: COは自動車寄与大, Oxは2次生成のため大規模汚染物質と考える

各測点毎にクラスター分析を行った結果をそれぞれ図4～7に示した。なお、クラスター分析には青森県環境保健センター 早狩 進氏作成・提供の解析ソフトを用い、群平均法による結合、類似度計算にはピアソンの相関係数を用いた。<sup>15)</sup>

この分類では、ベンゼン、1,3-ブタジエン、NO等、移動発生源（ここでは自動車とする）から典型的に排出される物質<sup>16), 17)</sup>（以下、自動車因子）を図中に下線で示し、その測点での自動車排出ガスの影響の度合いを視覚的に表現するものである。ただし、この自動車因子では、トルエン、エチルベンゼン、m,p-キシレンのように、自動車排ガスだけでなく、塗料・溶剤にも多量に含まれる物質は除外してある。<sup>17)</sup>

図4、図6よりA、C測点は自動車因子の類似度が高く、主たる汚染由来が移動発生源であると推定できる。

これに対し、図5、図7よりB、D測点では比較的自動車因子の類似度は低く、自動車排ガスも汚染要因の一つではあるが、そのみでは汚染由来が説明できない。

## 2) 因子分析による分類<sup>15), 18)</sup>

因子分析による各測点の大気汚染の特徴づけを表3に示した。

表中の分類は、文献等の排出割合及び測点からの距離減衰を考慮して汚染寄与の程度を設定したものであり、固定発生源から大量に排出される物質であっても、主要道路と比較して遠距離に位置する場合は、相対的に移動発生源を「寄与大」とした。トリクロロエチレンのように、自動車排ガスにほとんど含まれないものは、距離は無関係に固定発生源を「寄与小」とし、地下水等の不明確な他の汚染由来は「寄与小」とした。また、推定因子の空間イメージは、風速との相関性と測定値の変動係数から推定した分類<sup>5)</sup>である。

この解析によると、全測点とも一般的な大気汚染という観点から、移動発生源の汚染寄与が高いと推定された。

しかし、ベンゼンに限定して考えると、汚染寄与の程度は異なり、A、C測点については、ベンゼンの汚染由来はほぼ移動発生源と断定できるが、B測点は固定発生源由来の寄与も無視できないことがわかる。また、D測点では移動発生源に匹敵する汚染由来があるもののその存在は不明である。表3より、移動発生源由来のベンゼンを各測点毎に試算してみるとA(46%)、B(19%)、C(34%)、D(17%)である。さらに、B測点については、ベンゼンの由来として8%及び6%を占める固定発生源の存在が推定される。

以上のことから、ベンゼンの環境負荷を低減する有効な施策としては、A、C測点については、燃料のさらなる質の向上や自動車等の性能向上等、移動発生源の改善であると考えられる。B測点については、上記の施策に加え、固定発生源からの排出の抑制が考えられる。D測点については、移動発生源の改善以外の施策は提案できないが、現状で大気環境基準を達成しているため、新たな環境負荷の出現をコントロールすることが重要であると考えられる。

## ま と め

- 1) ベンゼン濃度は、4測点中、2測点で環境基準を超過していた。トリクロロエチレンとテトラクロロエチレンの濃度は、全て基準の1/100以下で全国平均より低い傾向であった。ジクロロメタンの濃度は、全て指針の1/40以下で全国平均並みであった。
- 2) 1, 3-ブタジエンは全測点で、アクリロニトリル、クロロホルムはB測点で、ホルムアルデヒド、ベンゾ(a)ピレンはB,C測点で、ヒ素はC測点で大気環境濃度が参考値を超過していた。
- 3) 3年間の経年変化及び全国水準との比較から、静岡県ではベンゼン及びホルムアルデヒドについて大気環境を重点的に改善する必要があると考えられた。
- 4) A、C測点での主たる大気汚染要因は移動発生源であると推定された。
- 5) 各測点毎の移動発生源由来のベンゼンの割合は、A(46%)、B(19%)、C(34%)、D(17%)と試算され、移動発生源の改善が有効な施策であると考えられた。
- 6) B測点については、ベンゼンの環境負荷低減施策として、移動発生源に加え、固定発生源の改善も有効であると考えられた。

## 文 献

- 1) 環境庁：有害大気汚染物質測定方法マニュアル 平成9年2月制定、平成9年8月、平成10年3月、平成11年3月改訂
- 2) 田端孝光他：静岡県内の有害大気汚染物質調査－1,3-ブタジエンとベンゼンについて－、静岡県環境衛生科学研究所報告、39、161-163(1996)
- 3) 田端孝光他：静岡県内の有害大気汚染物質調査－揮発性有機化合物(VOCs)について－、静岡県環境衛生科学研究所報告、40、99-102(1997)
- 4) 田端孝光他：静岡県内の有害大気汚染物質調査－優先取組物質(18物質)の状況について－、静岡県環境衛生科学研究所報告、41、85-89(1998)
- 5) 太田良和弘他：静岡県内の有害大気汚染物質調査－

- 優先取組物質（19物質）の状況について，静岡県環境衛生科学研究所報告，42，129-133（1999）
- 6) 太田良和弘他：大気中揮発性有機化合物の測定方法の検討，静岡県環境衛生科学研究所報告，42，5-10（1999）
  - 7) 有害大気汚染物質測定の実際編集委員会編：有害大気汚染物質測定の実際，日本環境衛生センター（1997）
  - 8) 平成11年度有害大気汚染物質モニタリング調査結果について，大気保全局大気規制課まとめ（平成12年8月）
  - 9) 平成9年度有害大気汚染物質モニタリング調査結果について，大気保全局大気規制課まとめ（平成10年7月）
  - 10) 「事業者による有害大気汚染物質の自主管理促進のための指針」環境庁（平成8年9月告示）
  - 11) 「指定物質抑制基準を定める告示」環境庁（平成9年2月告示）
  - 12) 「今後の自動車排ガス低減対策のあり方について（中間答申）」環境庁（平成8年10月）
  - 13) 「今後の有害大気汚染物質対策のあり方について（第六次答申）」環境庁（平成12年12月）
  - 14) 梶原秀夫他：都市大気中ベンゼン濃度の連続測定～ガソリンに対する規制の効果～，第9回環境化学討論会講演要旨集，500-501（1999）
  - 15) 田中豊他：統計解析ハンドブック多変量解析，共立出版，東京（1995）
  - 16) 桜井健郎他：市街地の車道トンネルにおける自動車起源揮発性有機化合物の組成，大気環境学会誌，35，343-354（2000）
  - 17) 田中敏之：環境大気中の揮発性有機化合物の発生源キャラクターゼーションと化学反応過程，資源と環境，5，27-35（1996）
  - 18) 片谷教孝：大気中有害化学物質測定データの統計的分析，大気環境学会年会講演要旨集，41，506（2000）

## 河川における環境負荷流出特性について

大気・水質部 水質環境スタッフ 瀧本俊晴, 田口弘道, 鈴木孝雄  
杉本勝臣, 平井一行, 室伏由紀  
味岡嘉輝

### Characteristics of Environmental Load Runoff in Rivers

Toshiharu TAKIMOTO, Hiromichi TAGUCHI, Takao SUZUI,  
Katsuomi SUGIMOTO, Kazuyuki HIRAI, Yuki MUROFUSHI,  
and Yoshiteru AJIOKA

土地利用形態が茶畑, 山林等の非特定汚染源が大部分を占める朝比奈川について水質調査した結果, 1日を通して安定かつ良好な水質であったが, 栄養塩類が降雨等により大量に流出していることが判明した. 降雨時調査において, ウォッシュアウトがおこる降雨では, 大部分の項目(溶解性の項目を除く)が流量最大時に最大濃度を示すとともに, クラスタ分析により大きく4グループに分かれそれぞれの水質変動の型を示した. ウォッシュアウトがおこらない降雨では, COD, SS, T-P, Fe等が流量最大時に最大濃度を示したがその増加幅は小さく, 逆にT-N, Kなどは流量の増加とともに減少する傾向にあるとともに, クラスタ分析では明確なグループ分けはなされなかった. 栄養塩類については, 降雨により大量に流出することが判明した.

Key words: 降水増加, 流出, 降雨

Precipitation enhancement, Run-off, Rainfall

## はじめに

河川や湖沼等の公共用水域の水質保全のため, 水質汚濁防止法等により工場・事業場の排水規制, 下水道整備の推進等特定汚染源からの汚濁に対する対策が行われてきた. しかしながら, 河川の水質管理を適正に行うためには, 特定汚染源のみならず農地, 山林等の非特定汚染源からの汚濁物質の流出状況を的確に把握することが必要であり, 場合によってはその対策も必要となるが, その調査事例が少ないのが現状である. このため, 土地利用形態が茶畑, 山林等の非特定汚染源が大部分を占める朝比奈川について, 各種汚濁物質の現状と気象状況等による汚濁物質流出変動等の特性について調査した.

## 調査方法

### 1 調査内容

県中部地方を流れる瀬戸川支流である朝比奈川の榎橋(岡部町)において次の調査を行った.

- 1) 経月調査: 2000年4月から2001年3月までの間月1回の調査を行った.
- 2) 通日調査: 2~3時間間隔での通日調査を行った.
- 3) 降雨時調査: 降雨前後の水質調査を適時行った.

### 2 調査項目及び分析方法

調査項目及び分析方法は表1のとおりである. なお, 調査内容により測定項目は異なっている. また, 溶解性については, Watman GF/B でろ過したろ液を用いるとともに, イオンクロマトグラフ法の分析では口径0.45 $\mu$ mのメンブランフィルター(ADVANTEC)でろ過したろ液を用いた.

降水量については静岡県土木部の岡部町宮島観測所で測定した雨量データを用いた.

静岡県環境衛生科学研究所

(〒420-8637, 静岡市北安東4-27-2)

Shizuoka Institute of Environment and Hygiene

(4-27-2, Kita-andō, Shizuoka, 420-8637, Japan)

表1 調査項目及び分析方法

調査項目	分析方法
pH	ガラス電極法
DO	JISK0102 32 ウンクラージ化ナトリウム変法
BOD	JISK0102 21 生物化学的酸素要求量
COD	JISK0102 17 100℃におけるKMNO <sub>4</sub> 酸消費量
TOC	T O C分析計 (島津製TOC-5000)
SS	環境庁告示第59号付表8
T-N	JISK0102 45.2 紫外線吸光度法
NO <sub>3</sub> -N	JISK0102 43.2.5 銅・カドミウム還元法
T-P	JISK0102 46.3.1 ペルオキソ二硫酸カリウム分解法
PO <sub>4</sub> -P	JISK0102 46.1.1 モリブデン青吸光度法
SO <sub>4</sub> , Cl	イオンクロマトグラフ法
Na, K, Ca	◇
Mg, Fe	原子吸光法
Mn, Al	◇

調査結果

1 経月調査結果

年間(2000年4月~2001年3月)の水質調査結果(経月変化)を表2に示した。なお、調査は天候の状況を考慮せず実施した。

1) 水質について

朝比奈川には、環境基本法に基づき生活環境の保全に関する環境基準河川B類型の指定がなされているが、調査結果はいずれの項目(pH, DO, BOD, SS)も基準を下まわり良好な水質であった。

COD, SS, T-N, NO<sub>3</sub>-N, T-P, PO<sub>4</sub>-Pの最大値は4月であったが、これは調査直前に53mmの降雨があり、SSの増加によるものと思われる。

また、10月、1月、3月にみられように、朝比奈川の水質は、調査数日前に降雨があっても数日で元の水質にもどることがうかがわれる。

2) 栄養塩類について

図1にT-N, T-Pの負荷量の推移を示した。なお、負荷量算定に当たり4, 6月の流量は増水により測定不能であったため、今調査で測定可能であった最大流量2.39 m<sup>3</sup>/s(降雨時調査)とした。

T-N濃度は、4月5.58 mg/lと最も高い値を示したが、他の月はおおむね2.3mg/l前後であった。4月を除き他の月の濃度が同程度であることから、T-N負荷量は、4月を除き流量に左右されることとなるが、4, 6月が高い負荷量であり、流量が多かったことがうかがわれる。負荷量の最小月(5月)と最大月(4月)を比較すると43倍以上の違いがあり、流量等の条件により負荷量が大きく変動することが判明した。

T-P濃度は、T-N濃度と同様に4月0.055 mg/lと最も高い値を示し、次は6月0.047 mg/lで、他の月はおおむね0.013mg/l前後であった。T-P負荷量もT-Nと同様4,

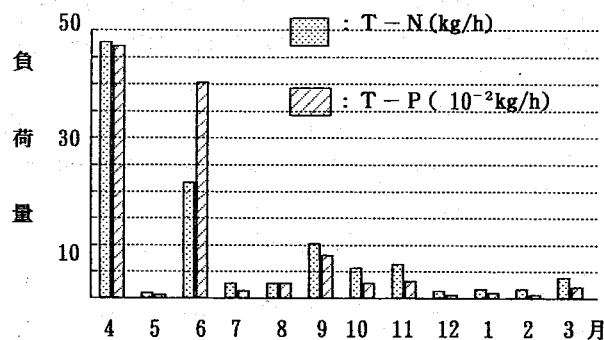


図1 T-N, T-Pの負荷量の推移

表2 水質調査結果(経月変化)

単位: mg/l

	4月20日	5月17日	6月14日	7月12日	8月17日	9月20日	10月11日	11月8日	12月7日	1月24日	2月14日	3月7日	最大	最小	平均
流量(m <sup>3</sup> /s)	-	0.16	-	0.33	0.33	1.09	0.63	0.65	0.15	0.23	0.19	0.52	1.09	0.15	0.43
pH	6.9	7.7	6.8	6.7	7.0	7.2	6.7	7.1	6.7	7.6	8.1	7.7	8.1	6.7	7.2
DO	10.6	10.2	8.5	9.0	8.8	9.3	9.4	9.7	12.1	13.2	12.9	11.5	13.2	8.5	10.4
BOD	0.9	1.1	<0.5	<0.5	0.7	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	1.1	<0.5	0.6
COD	4.0	1.3	2.0	0.8	1.9	0.8	1.1	0.6	0.5	0.8	0.7	0.9	4.0	0.5	1.3
TOC	3.4	4.3	-	0.3	1.0	0.5	0.5	0.2	0.2	0.4	0.4	0.5	4.3	0.2	1.1
SS	24	1	10	<1	<1	3	1	<1	<1	<1	<1	<1	24	<1	4
T-N	5.58	1.92	2.55	2.33	2.37	2.62	2.55	2.72	2.55	2.14	2.78	2.16	5.58	1.51	2.33
NO <sub>3</sub> -N	4.73	1.58	2.42	2.07	2.26	2.32	2.40	2.60	2.35	1.99	2.22	2.03	4.73	1.28	2.13
T-P	0.055	0.013	0.047	0.013	0.023	0.021	0.012	0.014	0.012	0.013	0.011	0.012	0.055	0.011	0.021
PO <sub>4</sub> -P	0.045	0.008	0.037	0.008	0.019	0.018	0.010	0.012	0.007	0.007	0.007	0.010	0.045	0.007	0.016
降雨状況	調査直前	53	4/22以後	8日から約2	7,8日に	14~16日	11日186	9日48mm	1~2日に	11/22以	20日	22	7日	134日	41
	mmの降雨	大方降雨なし	20mm降雨	13mm降雨	60mm降雨	mmの降雨	の降雨	25mm降雨	後大方降雨無	mmの降雨	mmの降雨	mmの降雨			

6月が高く、負荷量の最小月（5月）と最大月（4月）を比較すると67倍以上の違いがあり、T-N同様大きく変動することが判明した。

## 2 通日調査結果

5, 6, 9, 10月に実施した4回の通日調査結果の概要を表3に示した。通日調査は12時から調査を開始し、24時までは2時間間隔で、24時から翌日の6時までは3時間間隔で、また6時から2時間間隔で12時までの計12回の採水を行った。

### 1) 5月17～18日の通日調査結果

4月20～21日に70mmの降雨の後、26～27日に22mm、5月2日に6mm、13日に9mmと4月20日の調査以後この通日調査までの降水量は少なかった。このため、流量が0.21 m/sと4回の通日調査中最も少なかった。

各調査項目をみると、変動は少なく1日を通して安定した水質であった。他の3回の通日調査結果と比較すると、BOD、CODは同程度であったが、栄養塩類であるN、Pは低く、逆にK、SO<sub>4</sub>、Mgイオンは高い値であった。これは、流量の減少に伴い栄養塩類であるN、P濃度は低くなるが、逆にK、SO<sub>4</sub>、Mgイオン濃度は高くなることうかがわれる。

### 2) 6月14～15日の通日調査結果

調査前の6月8～13日の間209mmの降水量があり、中でも9日には131mmの降水量があった。また、調査当日にも14mmの降雨があったが11時までには雨は上がった。このため、水量が多く調査1日目は流量の測定が不能であり、翌日の測定値のみではあるが平均1.97m<sup>3</sup>

/sと4回の調査中最も高い値であった。

各調査項目をみると、調査前に大量の降雨があったにもかかわらず変動は少なく1日を通して安定した水質であるとともに、SSが最大10mg/lとあまり高くならなかったことから、朝比奈川流域がもつ緩衝作用の高さがうかがわれる。また、流量が多かったためかK、SO<sub>4</sub>、Mgイオン濃度は5回の調査中最も低い値であった。

### 3) 9月20～21日の通日調査結果

調査前の9月11～12日の間265mmの降水量があり、さらに調査3日前の16～17日に51mmの降雨があったため流量は経月調査の平均流量の2倍程度であった。

各調査項目をみると、6月と同様調査前に降雨があったにもかかわらず変動は少なく1日を通して安定した水質であった。Feイオン濃度が10月の通日調査に比較し高い値であった。

### 4) 10月11～12日の通日調査結果

調査前の9月29～10月3日の間81mmの降水量があり、さらに調査22日前の9日に48mmの降雨があったが、流量は0.55m<sup>3</sup>/sと経月調査の平均流量より少し多めであった。

各調査項目をみると、6, 9月と同様調査前に降雨があったにもかかわらず変動は少なく1日を通じて安定した水質であった。

## 3 降雨時調査結果

降雨開始前後から降雨終了後にかけて2～3時間ごと、降雨終了後は時間間隔を広げて調査を行った。第1回目は11月20日から、第2回目は2月28日から実施し

表3 水質調査結果（通日調査）

単位：mg/l

	5月17～18日		6月14～15日		9月20～21日		10月11～12日	
	範囲	平均値	範囲	平均値	範囲	平均値	範囲	平均値
流量(m/s)	0.19～0.21	0.21	1.89～2.06	1.97	0.63～1.09	0.79	0.49～0.63	0.55
BOD	<0.5～0.7	0.5	<0.5～<0.5	<0.5	<0.5～<0.5	<0.5	<0.5～<0.5	<0.5
CODD	1.3～1.7	1.5	1.3～2.0	1.5	1.3～1.7	1.5	0.7～1.4	1.0
TOC	—	—	—	—	0.06～0.58	0.25	0.06～0.59	0.32
SS	<1～1	1	1～10	3	1～3	2	<1～	11
T-N	1.85～2.10	1.98	2.37～2.63	2.46	2.34～2.62	2.43	2.51～2.59	2.54
NO <sub>3</sub> -N	1.58～1.82	1.69	2.27～2.42	2.34	2.32～2.40	2.36	2.37～2.47	2.41
T-P	0.013～0.019	0.015	0.016～0.047	0.026	0.018～0.024	0.021	0.011～0.014	0.012
PO <sub>4</sub> -P	0.008～0.013	0.012	0.016～0.037	0.023	0.018～0.020	0.019	0.009～0.012	0.010
Kイオン	2.0～2.3	2.1	1.2～1.7	1.4	1.5～1.6	1.5	1.6～1.7	1.7
Mgイオン	5.6～6.0	5.7	3.4～3.93.6	4.1～4.3	4.3	4.4～4.7	4.5	
SO <sub>4</sub> イオン	32.2～36.3	33.4	19.4～21.9	20.8	21.5～21.8	21.6	23.6～24.7	24.1
Feイオン	—	—	—	—	0.07～0.16	0.11	<0.02～0.04	0.03
Mnイオン	—	—	<0.01～0.01	0.01	<0.01～<0.01	<0.01	<0.01～<0.01	<0.01
Alイオン	—	—	—	—	<0.1～0.12	0.11	<0.1～<0.1	<0.1



た。

1) 11月20日からの降雨時調査結果

11月20日から行った降雨時調査結果を表4に示した。

11月20日の9時頃から降り始めた雨は、翌日の4時頃まで約19時間降り続け、この間の雨量は152mmであった。中でも19~20時には30mm/hの雨量を記録し、21時の調査時には水量が川幅一杯に広がり最大の流量であった。

① 水質について

溶解性の項目を除く大部分の項目は、流量の増加とともに濃度も上昇し流量最大時に最大濃度を示した。なお、この時のSS濃度は1,660mg/lであり溶解性と懸濁態との濃度比較を行うと大部分がSSに起因することがわかる。

溶解性以外の大部分の調査項目は、20日21時の流量最大時に最大濃度を示した後濃度は低下し、23日にはほぼ降雨前の水質にもどった。このわずか2日間での元の水質にもどったことは、山林、畑、水田が多いという朝比奈河流域の土地利用等に関係していると思われる。

② 栄養塩類の負荷量について

表5に調査当初と流量最大時のT-N、T-Pの負荷量等を示した。なお、負荷量算定に当たり20日18時~21日12時の流量は増水により測定不能であったため、今調査

表5 T-N, T-Pの負荷量

	①20日9時	②流量最大時	②/①
流量 (m <sup>3</sup> /s)	0.28	2.39	8.5
T-N濃度(mg/l)	2.79	29.47	10.6
負荷量(Kg/h)	2.77	253.56	91.5
T-P濃度(mg/l)	0.009	0.318	35.3
負荷量(Kg/h)	0.0089	2.74	307.8

で測定可能であった最大流量 2.39m<sup>3</sup>/sとした。

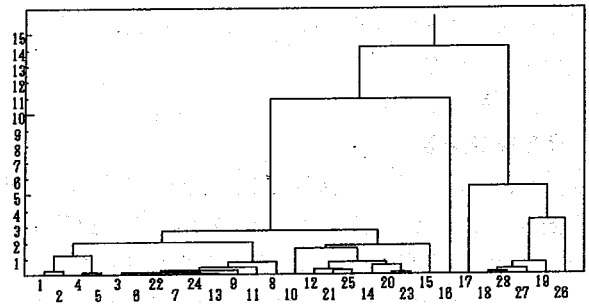
T-N、P濃度は流量最大時に最大となり、降雨前に比較し、T-Nで10倍以上、T-Pで35倍以上であった。時間当たりの負荷量は、T-Nで約90倍以上、T-Pで約300倍以上であった。

また、T-N、P濃度が降水前の水質と同程度となる20日9時から23日12時までの累積負荷量は、T-Nで3,355kg、T-Pで36.1kgとなり、降水前の水質が23日まで続いたと仮定しての負荷量と比較するとT-Nで約16倍、T-Pで約54倍となり、降雨により大量の栄養塩類が流出することが判明した。

③ クラスタ分析について

測定した項目(流量を除く)についてクラスタ分析を行った。図2に測定項目のデンドログラムを示した。

クラスタ分析を行った結果大きく4グループに分か



- 1:BOD    2:D-BOD    3:COD    4:D-COD    5:TOC
- 6:SS    7:T-N    8:D-T-N    9:NO3-N    10:D-NO3-N
- 11:T-P    12:D-T-P    13:PO4-P    14:D-PO4-P    15:K
- 16:D-K    17:Mg    18:D-Mg    19:SO4    20:Fe
- 21:D-Fe    22:Mn    23:D-Mn    24:Al    25:D-Al
- 26:cl    27:Na    28:Ca

図2 測定項目デンドログラム

れた。表6にクラスタ分析によるグループ分けを、図3にそのグループの代表的な項目の経時変化を示した。

①グループはBOD等にもみられるように、流量の増加に伴い濃度の上昇はあるものの、その上昇の割合が低く変動幅が小さいグループである。

②グループはSS等にもみられるように、流量の増加に伴い大幅な濃度上昇を示し、SSの減少に伴って濃度も下がるグループである。このグループはSSが大きく関与していると思われ、SSとの相関係数は0.946以上で

表6 クラスタ分析によるグループ分け

グループ	項目
①グループ	BOD, D-BOD, D-COD, TOC,
②グループ	COD, SS, T-N, D-T-N, NO3-N, D-NO3-N, T-P, PO4-P, Mn, Al
③グループ	D-T-P, D-PO4-P, Fe, D-Fe, D-Mn, D-Al
④グループ	D-Mg, SO4, Na, Ca

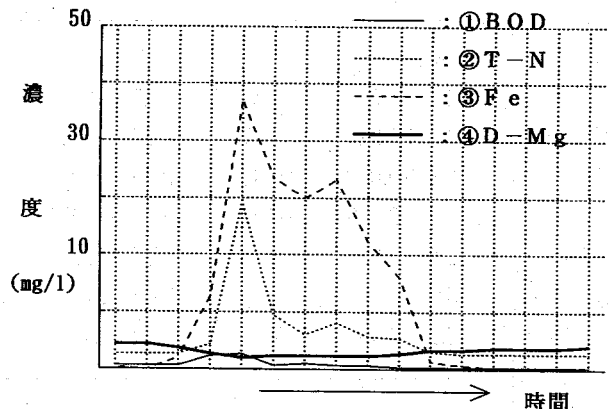


図3 グループの代表的な項目の経時変化



た。

③グループはFe等にみられるように、②グループと同様に流量の増加に伴い大幅な濃度上昇を示すが、濃度減少は緩やかなグループである。このグループもSSが大きく関与していると思われるが、SSとの相関係数は0.670~0.915であった。

④グループはD-Mg等に見られるように、流量の増加に伴いその濃度が減少するタイプで<sup>2)</sup>、逆に流量の減少に伴い濃度は高くなるがその変動幅は小さい。このグループは流量の影響を受けるタイプであるが、分析方法

がイオンクロマトグラフ法のため、分析前のろ過することも影響していると思われる。

2) 2月28日からの降雨時調査結果

2月28日から行った降雨時調査結果を表7に示した。

2月28日の12時ごろから降り始めた雨は、翌日の3月1日の19時頃まで約29時間降り続け、この間の雨量は54mmであった。時間最大雨量は28日17時頃の5mmであり、あまり激しい雨ではなかった。

① 水質について

前回の調査では溶解性の項目を除き、大部分の項目で

表7 降雨時調査結果 (2月28日~)

	2月28			3月1日				3月2日		3月3日		最大	最小	平均	
	12:00	15:00	18:00	21:00	24:00	3:00	6:00	9:00	12:00	15:00	9:42				9:31
流量(m <sup>3</sup> /s)	0.19	0.25	0.76	1.38	1.60	2.05	1.46	1.66	1.50	1.50	1.05	0.52	2.05	0.19	1.16
BOD(mg/l)	0.8	0.9	1.8	1.3	0.9	1.3	0.9	0.8	0.8	0.7	<0.5	<0.5	1.8	<0.5	0.9
D-BOD(%)	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5
COD(%)	1.1	1.4	1.8	2.2	2.5	2.6	2.6	2.6	1.8	1.6	1.0	<0.5	2.6	<0.5	1.8
D-COD(%)	0.9	1.2	1.4	1.6	1.8	2.1	2.1	2.0	1.5	1.2	0.8	0.6	2.1	0.6	1.4
TOC(%)	0.7	0.7	1.4	1.5	1.3	1.6	1.7	1.4	1.8	0.9	1.0	0.5	1.8	0.5	1.2
SS(%)	<1	1	7	6	5	8	7	5	3	2	1	<1	8	<1	4
T-N(%)	2.07	2.04	2.03	1.91	1.75	1.88	1.91	1.84	1.97	1.96	2.01	2.10	2.10	1.75	1.98
D-T-N(%)	2.00	1.99	1.82	1.63	1.69	1.74	1.75	1.84	1.88	1.95	2.00	2.04	2.04	1.63	1.86
NO <sub>3</sub> -N(%)	1.84	1.87	1.80	1.73	1.69	1.76	1.81	1.83	1.98	1.85	1.91	1.99	1.99	1.69	1.84
D-NO <sub>3</sub> -N(%)	1.83	1.82	1.71	1.62	1.60	1.62	1.68	1.70	1.77	1.78	1.87	1.94	1.94	1.60	1.75
T-P(%)	0.011	0.018	0.035	0.032	0.030	0.037	0.035	0.028	0.023	0.018	0.016	0.012	0.037	0.011	0.025
D-T-P(%)	0.009	0.011	0.012	0.012	0.012	0.012	0.014	0.012	0.009	0.011	0.009	0.009	0.014	0.009	0.011
PO <sub>4</sub> -P(%)	0.006	0.010	0.012	0.019	0.016	0.021	0.022	0.012	0.010	0.010	0.009	0.009	0.022	0.006	0.013
D-PO <sub>4</sub> -P(%)	0.006	0.009	0.007	0.009	0.007	0.009	0.007	0.007	0.009	0.007	0.007	0.007	0.009	0.006	0.008
K(%)	1.7	1.7	1.7	1.6	1.5	1.5	1.5	1.6	1.6	1.6	1.5	1.6	1.7	1.5	1.6
D-K(%)	1.5	1.6	1.5	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.5	1.5	1.5	1.6	1.4	1.5
Mg(%)	5.0	4.6	4.3	4.0	4.0	3.8	3.7	3.7	3.8	4.0	4.1	4.2	5.0	3.7	4.1
D-Mg(%)	5.0	4.6	4.3	4.0	4.0	3.7	3.7	3.7	3.8	3.8	3.8	4.1	5.0	3.7	4.0
D-SO <sub>4</sub> (%)	31.2	30.0	37.2	25.7	24.1	22.2	21.5	21.8	23.1	23.1	23.4	25.8	37.2	21.5	25.8
Fe(%)	0.03	0.05	0.11	0.13	0.15	0.26	0.22	0.17	0.14	0.13	0.12	0.12	0.26	0.03	0.14
D-Fe(%)	0.02	0.02	0.02	0.02	0.04	0.06	0.07	0.07	0.08	0.05	0.05	0.05	0.08	0.02	0.05
Mn(%)	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01
D-Mn(%)	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01
Al(%)	0.3	0.1	0.2	0.2	0.3	0.4	0.2	0.1	0.3	0.1	0.1	0.2	0.4	0.1	0.2
D-Al(%)	0.2	0.1	0.1	<0.1	0.1	0.2	0.1	<0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.2	<0.1	0.1
D-cl(%)	3.2	3.1	2.9	2.8	2.5	2.4	2.4	2.4	2.6	2.6	2.8	2.7	3.2	2.4	2.7
D-Na(%)	6.8	6.6	6.2	6.1	5.8	5.3	5.2	5.3	5.6	5.5	5.8	6.0	6.8	5.2	5.9
D-Ca(%)	13.6	13.1	12.2	11.6	11.1	10.2	9.9	10.1	10.4	10.4	10.4	11.6	13.6	9.9	11.2
降雨状況	調査直前2	8	11	7	9	7	3	0	2	3					
( )は類型	mmの降雨	(10)	(22)	(29)	(38)	(45)	(48)	(48)	(50)	(53)					

D-は溶解性を示す

流量の増加とともに濃度も上昇し流量最大時に最大濃度を示したが、今回はCOD, SS, T-P, Fe等でその傾向がみられたがその上昇幅は小さく、逆にT-N, K, Mgなどは流量の増加とともに減少する傾向にあった。これは、今回の調査でのSS最大値は8 mg/lであり、降雨により大量のSSが流出するウォッシュアウトがなかったことによると思われる。朝比奈川では29時間の54mm(時間最大5 mm)の雨量での水質変動は小さいものであり、この流域がもつ雨量に対する緩衝作用の高さがうかがわれる。

溶解性の大部分の項目については、流量の増加に反して濃度は減少する傾向にあった。

② 栄養塩類の負荷量について

表8に調査当初と流量最大時のT-N, T-Pの負荷量等を示した。

T-P濃度は流量最大時に最大となったが、T-N濃度は

表8 T-N, T-Pの負荷量

	①8日12時	②流量最大時	②/①
流量 (m <sup>3</sup> /s)	0.19	2.05	10.8
T-N濃度(mg/l)	2.07	1.88	0.91
〃 負荷量(Kg/h)	1.39	13.87	9.98
T-P濃度(mg/l)	0.011	0.037	3.36
〃 負荷量(Kg/h)	0.007	0.273	39.0

わずかに減少した。時間当たりの負荷量は、T-Nで約10倍、T-Pで39倍であった。

また、T-N, P濃度が降水前の水質と同程度となる28日12時から3日12時までの累積負荷量は、T-N:614kg, T-P:6.95kgとなり、降水前の水質が3日まで続いたと仮定しての負荷量と比較するとT-Nで約6倍、T-Pで約13倍となり、やはり降雨により大量の栄養塩類が流出することが判明した。

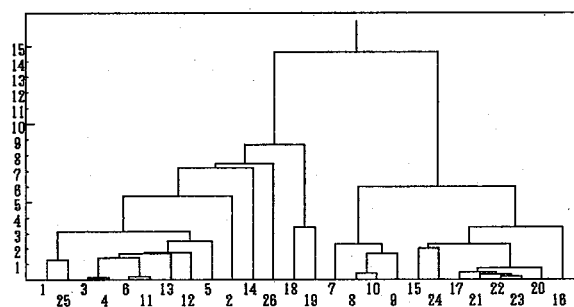
③ クラスタ分析について

測定した項目(流量を含む。ただし、D-BOD, Mn, D-Mnは報告下限値未満のため除く)についてクラスタ分析を行った。図4に測定項目のデンドログラムを示した。

クラスタ分析を行った結果大きく明確なグループ分けはなされなかった。

ま と め

1 経月調査結果では、朝比奈川には環境基本法に基づき環境基準河川B類型の指定がなされているが、調査結果はいずれの項目も基準を下まわる良好な水質であったが、栄養塩類の負荷量が月により大きく異なるこ



- 1:流量 2:BOD 3:COD 4:D-COD 5:TOC
- 6:SS 7:T-N 8:D-T-N 9:NO3-N 10:D-NO3-N
- 11:T-P 12:D-T-P 13:PO4-P 14:D-PO4-P 15:K
- 16:D-K 17:Mg 18:D-Mg 19:SO4 20:Fe
- 21:D-Fe 22:Al 23:D-Al 24:cl 25:Na
- 26:Ca

図4 測定項目デンドログラム

とが判明した。

2 4回の通日調査結果では、各調査項目は変動は少なく1日を通じて安定した水質であった。流量の減少に伴い栄養塩類であるN, P濃度は低くなるが、逆にK, SO<sub>4</sub>, Mgイオン濃度は高くなることうかがわれた。また、調査前に大量の降雨があっても水質変動は少なく1日を通じて安定した水質であったことから、朝比奈川流域がもつ緩衝作用の高さがうかがわれた。

3 2回の降雨時調査結果では、ウォッシュアウトがおこると、溶解性以外の大部分の調査項目は、流量の増加とともに濃度も上昇し流量最大時に最大濃度を示すとともに、降雨により大量の栄養塩類が流出することが判明した。また、クラスタ分析を行った結果大きく4グループに別れ、それぞれの水質変動の型を示した。ウォッシュアウトがおこらない降雨では、COD, SS, T-P, Fe等で流量最大時に最大濃度を示したがその上昇幅は小さく、逆にT-N, K, Mgなどは流量の増加とともに減少する傾向にあった。栄養塩類については、ウォッシュアウトがおこらない降雨でも大量に流出することが判明した。なお、クラスタ分析を行った結果明確なグループ分けはなされなかった。

参 考 文 献

- 1) 梅本 論他：山林域小河川における栄養塩類の降雨時流出について、第2回日本水環境学会シンポジウム講演集, 75, (1999)
- 2) 駒井 幸雄他：降雨時における谷川水質の変化について、第33回日本水環境学会年会講演集, 97, (1999)

## 排水中の非イオン界面活性剤の処理方法の検討

東部支所

齊藤 将人, 山下 晶平, 中村 和光  
鈴木 守正\*, 志村 修

Study on Waste Water Treatment for Nonionic Surfactants

Masato SAITO, Shohei YAMASHITA, Kazumitsu NAKAMURA,  
Morimasa SUZUKI, and Osamu SHIMURA

1998年度に行った『非イオン系界面活性剤のBODに与える影響』の研究の結果、金属製品製造業において非イオン界面活性剤が広く使用されていることが確認され、また、非イオン界面活性剤の代表的な物質であるヘプタオキシエチレンドデシルエーテルがBODに与える影響は小さくなく、排水のBODを上昇させる要因ともなり得ると考えられた。さらに、排水中の非イオン界面活性剤の処理方法として、生物処理が有効であることが推察された。そこで、今回、排水中の非イオン界面活性剤の処理方法として、生物処理の一種である回分式活性汚泥法について検討することとした。

模擬排水中の非イオン界面活性剤の回分式活性汚泥法による処理効果を調べた結果、回分式活性汚泥法の有効性が確認でき、汚泥にかなりの吸着力があると考えられた。さらに、繰り返し試験においても99%の処理効率を示し、非イオン界面活性剤の処理が十分行われていた。また、実廃水中の非イオン界面活性剤の処理効果を調べた結果、実廃水にも対応できると考えられ、実機レベルでの回分式活性汚泥法の有効性が示唆された。

Key words : 非イオン界面活性剤, 排水処理, 回分式活性汚泥法

Nonionic Surfactants (NS), Waste water treatment, Sequencing Batch Reactor

### はじめに

界面活性剤は、水に溶けたときに、親水基が陰イオンに解離するのか、陽イオンに解離するのか、pHによって両性に解離するのか、イオンに解離しないのかによって、陰イオン界面活性剤、陽イオン界面活性剤、両性界面活性剤、非イオン界面活性剤に分類される<sup>1)</sup>。

この中で、最も生産量が多いのは、陰イオン界面活性剤であるが、その生産量は減少傾向にある。それに対して、非イオン界面活性剤は、近年、生産量が伸びてきており、界面活性剤全体の約4割を占めている<sup>2)</sup>。そして、

その多くは、家庭用の洗剤、産業用の脱脂剤、乳化剤などに用いられている。

一方、最近、水質汚濁防止法による排水基準違反の中で、金属製品製造業のBOD違反が目につくようになり、その原因として、非イオン界面活性剤を含む脱脂剤の影響が考えられた。そのため、当所では、1998年度に、『非イオン系界面活性剤のBODに与える影響』<sup>3)</sup>について研究を行い、その結果、金属製品製造業において非イオン界面活性剤が広く使用されていることが確認され、また、非イオン界面活性剤の代表的な物質であるヘプタオキシエチレンドデシルエーテルがBODに与える影響は小さくなく、排水のBODを上昇させる要因ともなり得ると考えられた。さらに、排水中の非イオン界面活性剤の処理方法として、生物処理が有効であることが推察された。そこで、今回、排水中の非イオン界面活性剤の処理方法として、生物処理の一種である回分式活性汚泥法について検討することとした。

静岡県環境衛生科学研究所東部支所

(〒410-0055, 沼津市高島本町1-3)

Eastern Branch Office of Shizuoka Institute of  
Environment and Hygiene

(1-3, Takashimahoncho, Numazu, 410-0055, Japan)

\*静岡県沼津工業技術センター

## 測定方法

### 1 標準品として用いた非イオン界面活性剤

非イオン界面活性剤は、通常、エーテル型、エステル型、エステルエーテル型、アルカノールアミド型およびその他に分類されている。

エーテル型の非イオン界面活性剤は、非イオン界面活性剤の生産量の60%以上を占めており、ポリオキシエチレンアルキルエーテル (POE・R, AE) とポリオキシエチレンアルキルフェニルエーテル (POE・P, APE) がその大部分である<sup>4)</sup>。

また、JIS K 0102 (工場排水試験方法) における非イオン界面活性剤の測定では、POE型の非イオン界面活性剤を測定対象とし、標準物質として、POE型の一種であるヘプタオキシエチレンドデシルエーテル (C<sub>12</sub>H<sub>25</sub>-O-(CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>-O)<sub>7</sub>-H, 以下、C<sub>12</sub>POE<sub>7</sub>とする) を使用している。

そこで、本法でも、C<sub>12</sub>POE<sub>7</sub> (和光純薬、製品名ヘプタオキシエチレンドデシルエーテル) を標準品として使用した。

### 2 非イオン界面活性剤の測定方法

今回の調査研究では、トリプロモフェノールフタレインエチルエステル (TBPE) による吸光光度法<sup>5)</sup>を採用し、若干の改良をして用いた。この方法は、試料をアルカリ性にし、塩化カリウムを加えて塩化カリウムと非イオン界面活性剤の錯陽イオンを生成させた後、発色試薬であるTBPEを加えて生成したイオン対を水層からトルエン層に抽出分離して、その吸光度を測定する方法である。

なお、吸光度の測定には、日立150-20形ダブルビーム分光光度計を用いた。

#### 1) 水層中の非イオン界面活性剤の測定方法

50ml ガラス製遠心沈殿管に、検水30ml 程度

↓  
遠心分離 2500rpm, 5 min

↓  
\* 100ml 袷付培養瓶に、水層の適量+水→30ml  
(C<sub>12</sub>POE<sub>7</sub>として45μg以下となる量)

↓  
←0.2M EDTA・2Na 0.5ml  
←pH10緩衝溶液 3ml  
←KCl 10g  
←0.001M TBPE (エタノール) 0.5ml  
↓  
←トルエン 5ml

振とう10min

↓  
遠心分離 2500rpm, 5 min

↓  
←塩酸 0.1ml

↓  
トルエン層の578nmにおける吸光度測定

#### 2) 汚泥中の非イオン界面活性剤の測定方法

50ml ガラス製遠心沈殿管に、検水30ml 程度

↓  
遠心分離 2500rpm, 5 min

↓  
水層を除去 (汚泥分のみにする)

←メタノール 5ml

↓  
←合計30ml になる量の水

↓  
遠心分離 2500rpm, 5 min

↓  
以下、1) \* から同様の操作を行う

(なお、トルエンの量については10ml とする)

## 実験方法

### 1 回分式活性汚泥法による非イオン界面活性剤の処理効果 (1 サイクル)

50 l の円筒型タンクに、下水処理場の返送汚泥15 l と非イオン界面活性剤濃度20mg/l の水溶液15 l を投入し、この汚泥と非イオン界面活性剤溶液の混合液30 l を2時間曝気して、30分毎に試料約30ml を採取し、非イオン界面活性剤濃度の経時変化を調べた。

また、10mg/l, 20mg/l, 50mg/l, 100mg/l, 200mg/l の非イオン界面活性剤溶液100 ml と汚泥100ml を混合し、30秒攪拌後、その非イオン界面活性剤濃度を測定し、吸着効果を調べた。さらに、MLSSの異なる汚泥についても同様の操作を行った。MLSS 4450mg/l の汚泥については吸着が飽和になる濃度を調べるため、500mg/l, 1000mg/l の非イオン界面活性剤溶液についても同様の操作を行った。

### 2 回分式活性汚泥法による非イオン界面活性剤の処理効果 (繰り返し試験)

次に、処理を繰り返すことにより、汚泥の非イオン界面活性剤処理能力がどのように変化するかを調べた。

50l の円筒型タンクに、下水処理場の返送汚泥15l を入れ、まず汚泥を馴養するために、栄養源として、L-グルタミン酸ナトリウム2.25g, D(+)-グルコース2.25g, リン酸一カリウム0.14g を蒸留水15 l に溶かした水溶液をタンクに投入し、間欠曝気しながら1日経過した上澄水15 l を取り除き、再び栄養源15 l を投入し、曝気を行う。操作を1週間続けた。その後、栄養源の非イオン界面活性剤濃度が20mg/l になる量の非イオン界面活性剤を栄養源に加えた水溶液をタンクに投入し、同様に、間欠曝気しながら1日経過した上澄水15 l を取り除き、再び、栄養源15 l を投入し、曝気を行うことを続け、6時間曝気

1時間沈殿の上澄水と1日処理後の上澄水の非イオン界面活性剤濃度を測定し、その非イオン界面活性剤濃度を比較し、処理効果を調べた。

また、栄養源のBODと汚泥培養中の1日処理後の上澄水のBODおよび非イオン界面活性剤の処理を始めた後の処理水のBODを測定し、BODの処理効率を調べた。

その後、曝気時間を6時間から4時間に変更し、同様な操作を行いながら、1日処理後の上澄水の非イオン界面活性剤濃度を測定することを33日間続け、処理効果の変化を調べた。また、栄養源を投入し曝気開始後、0min, 15min, 30min, 45min, 60min, 90min, 120min, 180min, 240min毎に、試料を約30ml採取し、非イオン界面活性剤濃度の経時変化を調べた。

さらに、汚泥から非イオン界面活性剤を抽出する方法を検討した。その方法を用いて、汚泥中の非イオン界面活性剤の濃度を測定し、汚泥中の非イオン界面活性剤濃度の経時変化も調べた。

### 3 実工場廃水中の非イオン界面活性剤の処理効果

金属製品製造工場の排水処理施設のpH調整槽から廃水を採取し、その廃水を用いて、実際の工場廃水に含まれる非イオン界面活性剤の生物処理法による処理効果を調べた。

まず、汚泥を馴養するため、栄養源として、L-グルタミン酸ナトリウム2.25g, D(+)-グルコース2.25g, リン酸一カリウム0.14gを実廃水15lに溶かした溶液をタンクに投入し、同様な操作を8日間続けた。

そして、実廃水を投入し曝気開始後、前述と同様な時間毎に、上澄水中と汚泥中の非イオン界面活性剤濃度の経時変化を調べた。

## 結果と考察

### 1 回分式活性汚泥法による非イオン界面活性剤の処理効果 (1サイクル)

回分式活性汚泥法により、どの程度非イオン界面活性剤が処理できるか調べるため、汚泥と非イオン界面活性剤の混合液を2時間曝気しながら、30分毎に試料を採取し、非イオン界面活性剤濃度の経時変化を調べた。その結果を図1に示す。

タンク内の初期非イオン界面活性剤濃度が10mg/lであったものが、2時間の曝気により非イオン界面活性剤濃度が0.1mg/l以下に低下することから、回分式活性汚泥法の有効性が改めて確認された。

また、非イオン界面活性剤溶液を汚泥に投入して攪拌した直後に、非イオン界面活性剤濃度が10mg/lから2.5mg/l程度まで減少していることから、汚泥にはかなりの吸着力があるのではないかと考え、吸着効果を調べた。その結果を図2、図3に示す。

MLSSが大きいほど吸着率が高くなること、および初期非イオン界面活性剤濃度が高くなると吸着率は大きく減少している。このことは、やはり汚泥の非イオン界面活性剤の吸着力には限界があることを示している。また、MLSSが4450mg/lの汚泥について、吸着率の飽和点を調べた結果、混合後の初期非イオン界面活性剤濃度がおよそ300mg/lになると、汚泥の非イオン界面活性剤の吸着率は27%前後の一定になってしまうことがわかった。

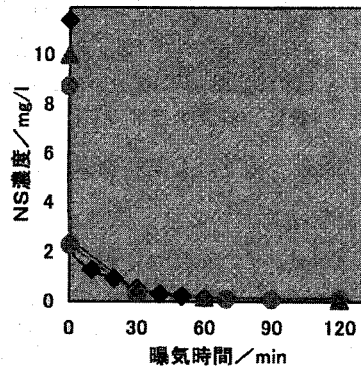


図1 NS濃度の経時変化

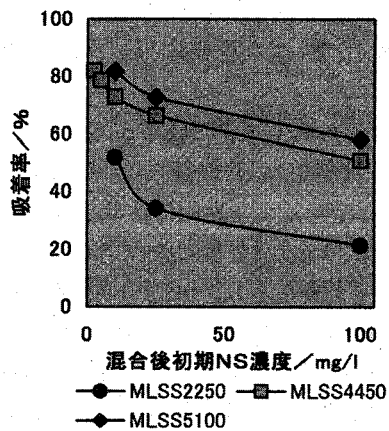


図2 吸着率 (MLSSによる違い)

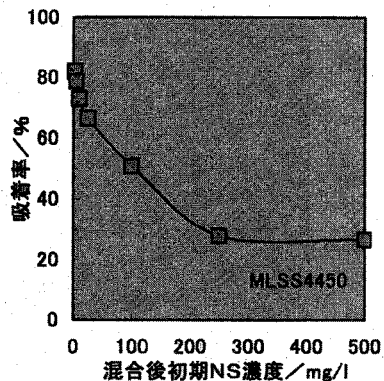


図3 吸着率 (吸着率の飽和点)

## 2 回分式活性汚泥法による非イオン界面活性剤の処理効果（繰り返し試験）

繰り返し試験における処理水中の非イオン界面活性剤濃度の変化を図4に示す。

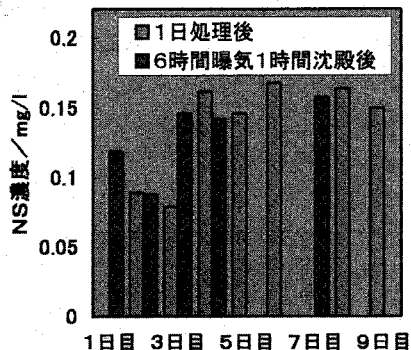


図4 繰り返し試験結果1

この結果、9日後においても、処理水の非イオン界面活性剤濃度は初期において10mg/lであったものが0.1mg/l程度になっており、およそ99%の処理効率を示した。初めの2日間に比べ、その非イオン界面活性剤濃度はやや上昇するものの、8日後も十分に処理が行われていることが確認された。また、6時間曝気1時間沈殿後と1日処理後の上澄水の非イオン界面活性剤濃度にほとんど差が見られないことから、6時間曝気を行うことで十分に非イオン界面活性剤の処理が可能であることが示唆された。

また、栄養源のみを加えた時のBODは283 mg/lの値を示し、汚泥培養中の1日処理後の上澄水のBODは8.2 mg/lであった。非イオン界面活性剤を加えてからの処理水のBODは20 mg/l程度とやや大きくなるものの、92%以上の処理効率を示し、BODの面からも回分式活性汚泥法がよく機能していることがわかった。

DOとともに亜硝酸濃度を一定時間毎に測定しながら実験を行った結果、4時間の曝気で処理が行われていることが示唆されたので、曝気時間を変更し、また風量を3.0~3.5l/minに変更して、同様の操作を33日間行った。その結果を図5に示す。

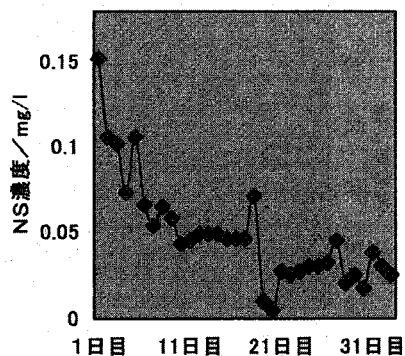


図5 繰り返し試験結果2

次に、ほぼ1週間おきに、栄養源を投入し曝気開始後の一定時間毎の水中の非イオン界面活性剤濃度の経時変化を調べた結果を図6に示す。この結果、非イオン界面

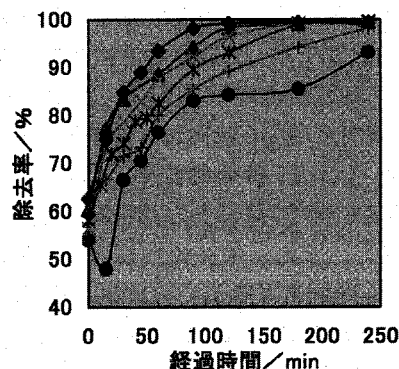


図6 NS除去率の経時変化

活性剤が曝気開始後、速やかに処理されていると考えられ、また、繰り返し処理を行うことにより、やや処理水中の濃度は上昇するものの、非イオン界面活性剤の処理は十分行えることが示唆された。

ここで、汚泥に非イオン界面活性剤の吸着力がかなりあるということ、曝気開始後非イオン界面活性剤の濃度があまりに急激に下がることから、非イオン界面活性剤は直ちに分解しているのか、汚泥に吸着しているのか、汚泥に吸着された非イオン界面活性剤がどのように減少していくか、また、汚泥から吸着した非イオン界面活性剤が脱離するようなことがないのかを検討する必要が生じた。このため、汚泥中の非イオン界面活性剤を抽出する方法を検討し、メタノールを用いた、測定法2、2)の方法で汚泥中の非イオン界面活性剤濃度を測定することとした。汚泥中の非イオン界面活性剤について、その濃度の経時変化を調べた結果を図7に示す。曝気開始直後の汚泥と上澄水の非イオン界面活性剤濃度を合わせると、初期濃度とほぼ一致した。そして、上澄水の非イオン界面活性剤濃度は急激に減少していき、汚泥中の非イ

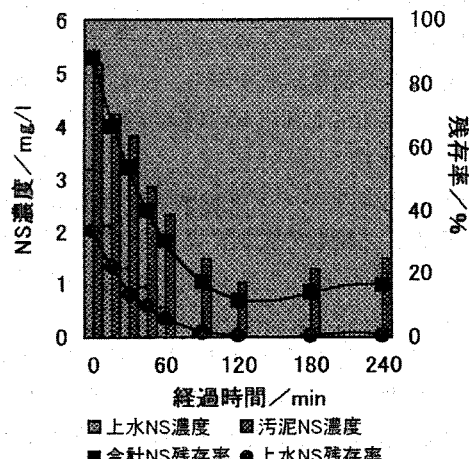


図7 汚泥と上水のNS濃度の経時変化



オン界面活性剤濃度は徐々に減少している。このことより、投入された非イオン界面活性剤はまず汚泥に吸着し、非イオン界面活性剤の分解はその後に徐々に進むと考えられる。なお、1日処理後の上澄水及び汚泥中の非イオン界面活性剤濃度はそれぞれ、0.02mg/l、0.2mg/l程度になっており、最終的には非イオン界面活性剤の分解も十分に行われていることが推察され、連続運転にも対応できることが示唆された。

### 3 実工場廃水中の非イオン界面活性剤の処理効果

実工場廃水を用いて、非イオン界面活性剤の回分式活性汚泥法による処理効果を調べた結果を図8に示す。こ

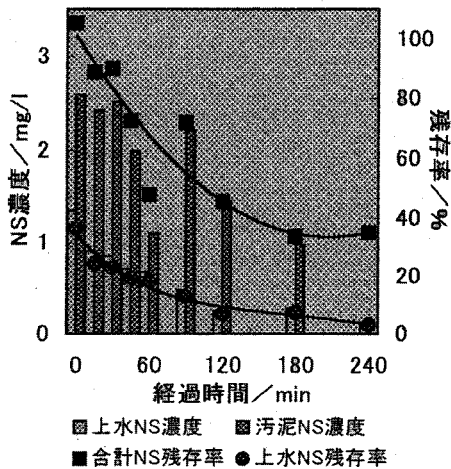


図8 汚泥と上水のNS濃度の経時変化 (実廃水)

の結果、実廃水であっても、その処理水の非イオン界面活性剤濃度は0.11mg/lとなっており、十分処理が行われていると考えられた。また、汚泥中の非イオン界面活性剤濃度は、4時間曝気後の段階では1.2mg/lとやや高い値ではあるが、翌日には0.25mg/lとなっており、汚泥に吸着された非イオン界面活性剤が徐々に分解されており、最終的には十分分解が進んでいると考えられた。また、連続運転も可能であることが示唆された。

### ま と め

排水中の非イオン界面活性剤の処理方法について検討

した結果、次のような結論が得られた。

- 1) 回分式活性汚泥法の非イオン界面活性剤に対する有効性が確認された。また、汚泥には非イオン界面活性剤に対して相当な吸着力があると考えられた。
- 2) 回分式活性汚泥法により、非イオン界面活性剤の連続的な処理が可能であることが示唆された。
- 3) 汚泥中に投入された非イオン界面活性剤は、汚泥に直ちに吸着し、その後、徐々に分解が進んでいることが推察された。
- 4) 実廃水を用いても、非イオン界面活性剤の処理が行えると考えられ、実機レベルでの非イオン界面活性剤の処理方法として、回分式活性汚泥法が有効であることが示唆された。

### 参 考 文 献

- 1) 日本工業規格：JIS K 3211界面活性剤用語，解説，代表的な分類と名称，23-25 (1990)
- 2) 中村好伸：非イオン界面活性剤－歴史，種類と性質，用途，水環境学会誌，21，4，2-6 (1998)
- 3) 斉藤将人他：非イオン系界面活性剤のBODに与える影響，静岡県環境衛生科学研究所報告，41，109-112 (1998)
- 4) 日本水環境学会編：非イオン界面活性剤と水環境，2-10，技報堂出版，東京 (2000)
- 5) K.Inaba：Determination of Trace Levels of Polyoxyethylene-Type Nonionic Surfactants in Environmental Waters，Intern. J. Environ. Anal. Chem.，31，63-73 (1987)
- 6) 菊地幹夫他：東京都内河川中の非イオン界面活性剤濃度，東京都環境科学研究所年報，71-74 (1994)
- 7) 石井重光他：神奈川県内主要河川水中の非イオン界面活性剤の実態調査，日本水処理生物学会誌，別巻18，32 (1998)
- 8) 笠原一世他：水中のポリオキシエチレン型非イオン界面活性剤のイオン対抽出／吸光光度定量，第6回環境化学討論会要旨集，129-130 (1997)

## 地下水の要監視項目などによる汚染実態の解明

西部支所 中島二夫, 河合 渉\*, 小池 明  
永谷隆行\*\*, 梅原 鎬市  
国立環境研究所 西川雅高  
和歌山大学 井伊博行, 田中豊和

### Survey on Contamination of Metals in Groundwater

Tsugio NAKAJIMA, Wataru KAWAI, Akira KOIKE,  
Takayuki NAGATANI, Kohichi UMEHARA, Masataka NISHIKAWA,  
Hiroyuki I I, and Toyokazu TANAKA

K町およびO町の地下水(井戸水)の調査結果から, 硝酸性窒素による汚染が認められた。さらに, 硝酸性窒素および硫酸の濃度が高く, pHが低い井戸水から要監視項目のニッケルが検出された。

Key words : 地下水, 硝酸, 硫酸, 金属  
Groundwater, Nitrate, Sulfate, Metal

### はじめに

地下水に含まれる硝酸性窒素は, 地下水を酸性化するするとともに, 地層から金属等を溶出する可能性がある。

このため, 硝酸性窒素とともにニッケルなどの金属成分について調査した。

### 調査方法

#### 1 調査期間

1998年4月から1999年12月

1999年度は, 4月から12月までの各月一回合計9回調査した。

#### 2 調査地点

1999年度は, 静岡県のK町とO町内の井戸14地点(K1, K2, K3, K4, K5, K6, K7, K8, K9, K10, K11, K12, O1, O2)を調査した。

#### 3 調査項目および分析方法

pH, 酸化還元電位(ORP), 電気伝導度(EC)は, それぞれpHメーター(ガラス電極法), ORP計, ECメーターを用いて現地で測定した。

その他の項目は, 検水をポリ瓶等に採水し, 実験室に持ち帰り分析した。

その他の項目は, 溶存酸素(DO), 硝酸性窒素( $\text{NO}_3\text{-N}$ ), アンモニウムイオン( $\text{NH}_4^+$ ), 亜硝酸性窒素( $\text{NO}_2\text{-N}$ ), 硫酸イオン( $\text{SO}_4^{2-}$ ), ニッケル(Ni), ホウ素(B), コバルト(Co), アルミニウム(Al), 塩素イオン( $\text{Cl}^-$ ), ナトリウムイオン( $\text{Na}^+$ ), カリウムイオン( $\text{K}^+$ ), カルシウムイオン( $\text{Ca}^{2+}$ ), マグネシウムイオン( $\text{Mg}^{2+}$ ), マンガンイオン( $\text{Mn}^{2+}$ ), 炭酸イオン( $\text{HCO}_3^-$ )であり, 分析方法は, 表1によった。

静岡県環境衛生科学研究所 西部支所

(〒430-0915, 浜松市東田町87)

Shizuoka Institute of Environment and Hygiene,  
Western Branch Office

(87, Higasitamati, Hamamatsu, 430-0915, Japan)

\*静岡県林業技術センター

\*\*静岡県水産試験場 浜名湖分場

### 調査結果および考察

#### 1 pH

平成10~11年度のpHの調査結果を図1に示した。

各測定地点のpHの平均値は, いずれもpH7以下であり, 地下水の酸性化が認められた。

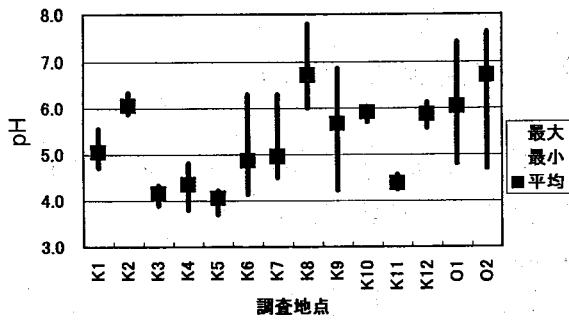


図1 井戸水のpH

## 2 硝酸性窒素

平成10～11年度の硝酸性窒素の調査結果を図2に示した。

調査した14地点のうち10地点が、硝酸性窒素の地下水の環境基準(10mg/l)を超えていた。すなわち、調査した地域の地下水は、硝酸性窒素により汚染されていた。

## 3 硫酸

平成10～11年度の硫酸の調査結果を図3に示した。調査した14地点のうち大半の井戸で、硫酸が検出された。なかでも、2つの井戸(K4, K5)は、他の井戸に比べ高い濃度の硫酸が検出された。

## 4 ニッケル(要監視項目)

ニッケルの調査結果を図4に示した。

ニッケルは、調査した14地点の井戸のうち12地点で検出され、なかでも2つの井戸(K4, K5)から、他の井戸に比べ高濃度のニッケルが検出された。井戸水のpHとニッケル濃度の関係を図5に示した。ニッケルは、

表1 分析方法

項目	分析方法
pH	ガラス電極法
EC	電気伝導度計
ORP	ORP計
DO	ウインクラー・アジ化ナトリウム変法
NO <sub>3</sub> -N	イオンクロマトグラフィー
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	〃
NO <sub>2</sub> <sup>-</sup>	〃
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	〃
Cl <sup>-</sup>	〃
Ni, B	ICP発光分析法
Co, Al	〃
Mn <sup>2+</sup>	〃
Na <sup>+</sup> , K <sup>+</sup>	イオンクロマトグラフィー
Ca <sup>2+</sup> , Mg <sup>2+</sup>	〃
HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	硫酸滴定法

pHが6以下の井戸水で検出された。さらにpHが下がるとに従ってニッケル濃度が、高くなる傾向が認められた。

また、ニッケルが検出された井戸水の硝酸濃度、硫酸濃度およびニッケル濃度について、回帰分析<sup>1)</sup>を行った。その結果を表2～4に示した。

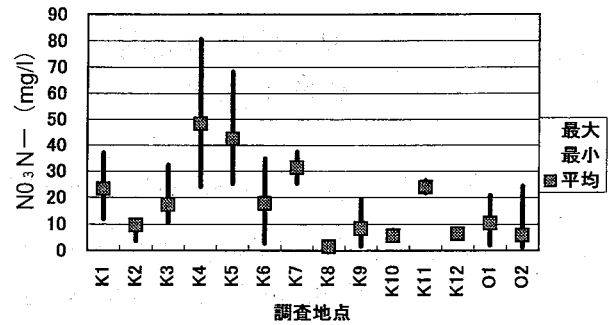


図2 井戸水の硝酸性窒素濃度

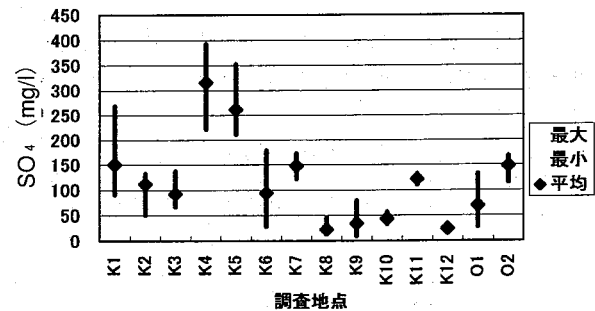


図3 井戸水の硫酸濃度

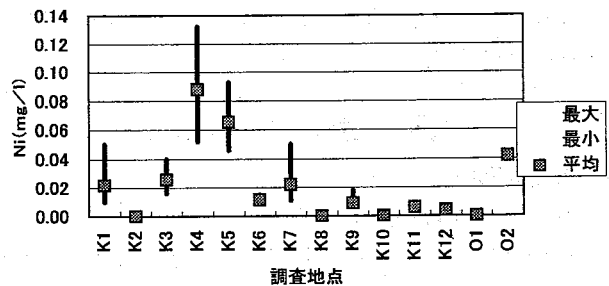


図4 井戸水のニッケル濃度

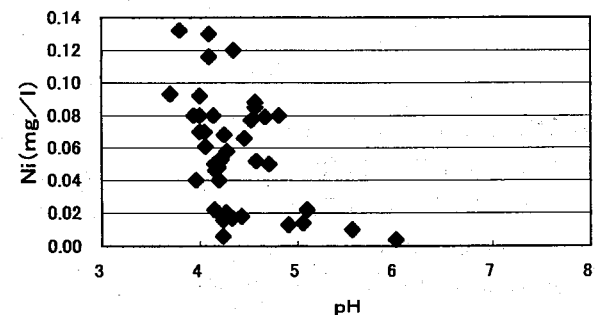


図5 pHとニッケル濃度の関係

表2 3成分の濃度相関

	NO <sub>3</sub>	SO <sub>4</sub>	Ni
NO <sub>3</sub>	1		
SO <sub>4</sub>	0.813319	1	
Ni	0.861036	0.887389	1

表3 回帰統計

重相関R	0.919122
重決定R <sup>2</sup>	0.844786
補正R <sup>2</sup>	0.838319
標準誤差	0.013881
観測数	51

表4 分散分析表

自由度	変動	分散	有意F	
回帰	2	0.05034	0.02517	3.82E-20
残差	48	0.009249	0.000193	
合計	50	0.059589		

これらの結果から、井戸水の硝酸と硫酸の濃度が高くなるにつれてニッケルの濃度が、上昇する傾向が認められた。

5 コバルト

コバルトの調査結果を図6に示した。

コバルトは、主にK4とK5の2つの井戸で検出され、その他の井戸では、ほとんど検出されなかった。

また、コバルトが検出された井戸水（全試料数 n=27）について、pHとコバルト濃度の関係、水質組成およびコバルトとニッケルの単相関を、それぞれ図7、表5および図8に示した。これらの結果から、pHが低く、硝酸および硫酸濃度が高い井戸水には、コバルトとニッケルが含まれており、さらに、これらの金属の濃度間に、高い相関が認められた

6 その他の金属（アルミニウム、マンガン、亜鉛）

アルミニウム、マンガンおよび亜鉛の調査結果（平成10～11年度における14地点の平均値）およびpHとアルミニウムの関係を、それぞれ表6、図9、図10および図11に示した。

表5 コバルトが検出された井戸の水質組成

	pH	NO <sub>3</sub>	SO <sub>4</sub>	Co	Ni
最大	4.87	356	384	0.083	0.132
最小	3.70	49.7	66.5	0.003	0.006
平均	4.22	187	268	0.034	0.069
標準偏差	0.26	85.3	81.2	0.021	0.034

単位、pH：log[H<sup>+</sup>]、その他：mg/l

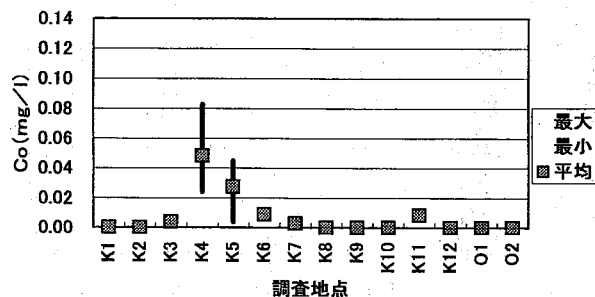


図6 井戸水の钴濃度

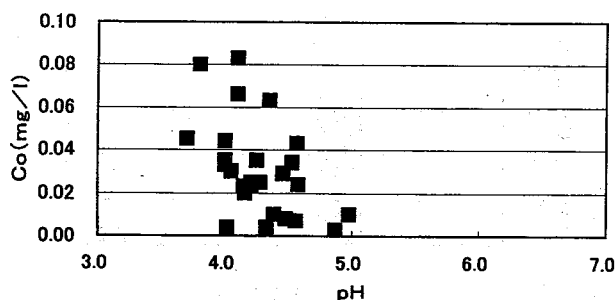


図7 pHと钴イオンの関係

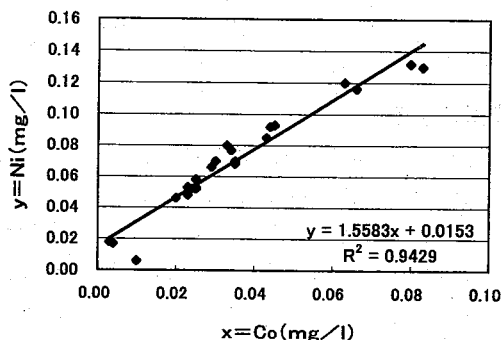


図8 CoとNiの単相関 (n=27)

表6 Al, MnおよびZn等の調査結果 (単位：mg/l)

調査項目	Al	Co	Mn	Ni	Zn
最大	48.7	0.083	2.42	0.132	0.380
最小	0.003	0.003	0.001	0.001	0.003
平均	7.85	0.030	0.644	0.051	0.073
標準偏差	10.4	0.022	0.574	0.035	0.072
n	97	27	118	51	116

注) n = 各金属が検出された試料数 (分析した全試料数：149)

アルミニウム、マンガンおよび亜鉛は、微アルカリ性、中性および酸性のいずれ井戸水からも検出された。また、これら3種類の金属は、今回調査した大半の井戸で検出された。なお、調査した5種類の金属の濃度を比較すると、Al ≫ Mn ≫ Zn > Ni > Coの順であった。なかでも、

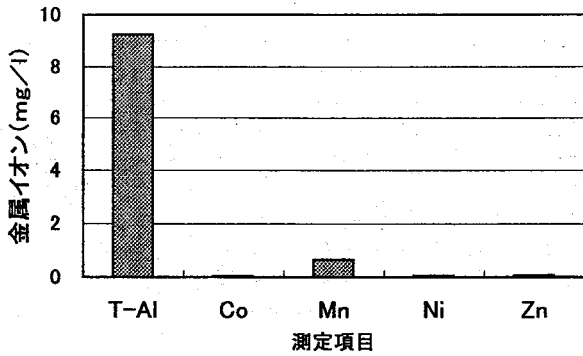


図9 井戸水の金属イオン (平均値)

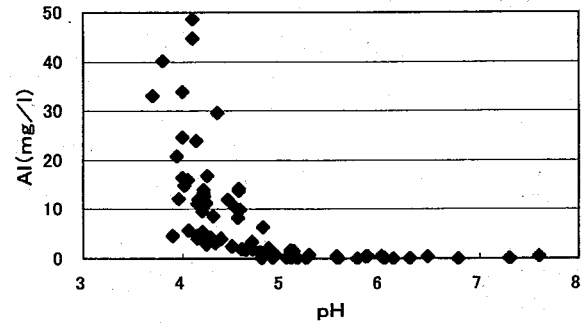


図11 pHとアルミニウム濃度の関係

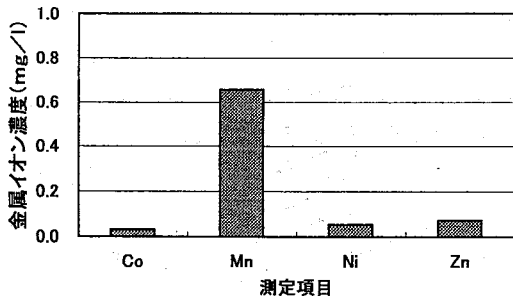


図10 井戸水の金属イオン (平均値)

## ま と め

調査した地域の大半の井戸水は、酸性化するとともに、硝酸性窒素により汚染されていた。なかでも、pHが低く、硝酸および硫酸濃度が高い井戸水からニッケルとコバルトが検出され、さらに、他の井戸に比べて高濃度のアルミニウム、マンガンおよび亜鉛も検出された。これらの金属は、健康被害を生ずるおそれがあるので、発生源と地下水への溶出機構を解明するとともに、低減化技術を開発する必要があると思われる。

## 文 献

- 1) 内田治：すぐわかるEXCELによる多変量解析, 25-62, 東京図書, 東京 (1998)
- 2) 山形登：微量元素—環境科学特論—, 156-157, 産業図書, 東京 (1979)
- 3) 化学工業日報社：10889の化学商品, 16-19, 化学工業日報社, 東京 (1989)
- 4) 中村融子他：茶畑におけるマンガン収支の推定, 第35回日本水環境学会講演集, 350 (2001)
- 5) 玉虫文一他：岩波理化学事典, 3, 55, 岩波書店, 東京 (1982)

アルミニウムは、pH 4 以下の 井戸水で極めて高濃度で検出された。

### 7 汚染源の推定

文献から、NiおよびCoに富む蛇紋岩<sup>2)</sup>が、りん酸肥料の原料<sup>3)</sup>として用いられ、有機肥料にはMn<sup>4)</sup>が含まれ、AlとZnは、地殻に広く分布している<sup>5)</sup>こと等から、これら5種類の金属の発生源は、肥料および土壌であると推定される。

今後、現地で使用されている肥料および耕作土壌の分析を行い金属の含有量を把握するとともに、溶出機構の解明と金属成分の低減化技術を開発する必要があると思われる。

## 他誌に発表した論文

### 微生物部

#### 1) *Yersinia enterocolitica*

杉山 寛治

食水系感染症と細菌性食中毒、中央法規出版  
298~320 (2000)

分子・遺伝子レベルでの解明が進む食中毒菌のなかで、*Yersinia enterocolitica* の病原因子・発病機序、疫学・生態学的特徴や試験法などについて、新しい知見を含め解説した。

#### 2) 多臓器不全を呈したレジオネラ肺炎の1例

吉富 淳, 水嶋久乃, 長濱貴彦  
寺田総一郎, 森下鉄夫, 杉山寛治  
千田金吾, 中村浩淑

静岡赤十字病院研究報告 20: 54~57 (2000)

症例は50歳, 男性の喫煙者で, 道路標識工事に従事, 意識障害, 高熱, 下痢を主訴に当科入院となった。温泉などの入浴歴はなく, 家族や職場の同僚の発症はない。43歳より慢性関節リウマチのためパラメタゾン 2 mg を内服していた。胸部の画像では右下葉の浸潤影と少量の両側胸水を認めた。肺炎による呼吸不全に精神症状, 腎機能障害, 肝機能障害, 横紋筋融解, DICを合併していたが, エリスロマイシン, レボフロキサシン投与とステロイドパルス療法にて治癒した。後日, 尿中レジオネラ抗原陽性からレジオネラ肺炎と診断, 慢性関節リウマチによる免疫異常やステロイドであるパラメタゾン内服による細胞性免疫の低下がレジオネラ感染の成立に関与したと推定された。レジオネラ肺炎では早期のエリスロマイシン, レボフロキサシン投与が重要であり, 起炎菌の明らかでない重症肺炎では一般抗生剤にいずれかを併用することが望ましい。

#### 3) A comparison of *Escherichia coli* O157 isolates from cattle in Japan and the USA by molecular biological methods

M. Akiba, D. H. Rice, M. A. Davis, T. Masuda, T. Sameshima, M. Nakazawa and D. D. Hancock  
*Epidemiology & Infection* 125: 221-224 (2000)

*Escherichia coli* O157 isolates from cattle in Japan (n=91) and in the USA (n=415) were compared by pulsed-field gel electrophoresis of endonuclease-cleaved genomic DNA, location of the *stx* genes and bacteriophage typing. Three isolates from cattle in Japan with high similarity to isolates from cattle in the

USA were found. Isolates from cattle farms in Japan and the USA may share a common source.

#### 4) 静岡県で1998年の非流行期と次期流行シーズンに分離されたB/Victoria/2/87系統に属するB型インフルエンザウイルスの疫学的解析

佐原啓二, 杉枝正明, 長岡宏美  
三輪好伸, 宮本秀樹, 秋山真人  
中島節子, 根路銘令子

感染症学雑誌 74(5): 481~485 (2000)

1998年6~7月のインフルエンザ非流行期に, 静岡県内の学校でB/Victoria/2/87系統に属するB型インフルエンザウイルスによる集団発生があり, その後の流行期においても同系統のB型ウイルスによる流行が主流を占めた。この流行要因として, 学童年齢において同系統のB型ウイルスに対する抗体保有率が極めて低かったことが考えられた。

また, 非流行期に分離されたヘルドウイルスとそれに続く流行期に分離された流行ウイルスとの関係を調べた。抗原解析では両者の抗原性がほとんど一致し, ヘルド株が次シーズンの流行ウイルスの親株となったように推察された。しかし, 遺伝子解析の結果からヘルド株は次シーズンの流行ウイルスの親株ではないことが明らかとなり, ヘルドウイルスが必ずしも次シーズンの流行ウイルスの親ウイルスになり得ない場合もあることを示した。

#### 5) 食中毒事例の患者らにおける糞便中のSRSVの消長

杉枝正明, 佐原啓二, 長岡宏美  
三輪好伸, 宮本秀樹, 秋山真人  
新美 洋, 樽林富雄, 石神勝幸  
漆畑 健, 中澤美歌乃, 藤井正司  
池端昭男

食品衛生研究 50(6): 113~118 (2000)

小型球形ウイルス (SRSV) 食中毒は主に生ガキの喫食に起因していることが明らかにされているが, 貝類が関連しない事例の感染源や感染経路については, 未だ不明のままであり, その実態を把握し, 原因を究明することが急務となっている。そこで今回, SRSVの排泄期間を明らかにするため, SRSV食中毒事例の患者と調理従事者の糞便を経時的に採取し, 高感度の逆転写-遺伝子増幅 (RT-PCR) 法を用いてSRSVの特異的遺伝子の検出を行った。その結果, SRSV患者は発症後14日目まで, 4人全員からSRSVが検出されるなど, 一旦SRSVに感

染すると、症状回復後も2~3週間にわたり、糞便中へウイルス排泄が持続することが明らかとなった。食中毒防止の観点からすると、症状の有無にかかわらず、SRSV感染者の糞便については、その後2~3週間にわたり、その取扱い、特に汚物処理等には十分に注意する必要があるものと考えられる。

#### 6) 食肉のサルモネラモニタリング

後藤 公吉, 渡 昭博, 瀬ノ口 芳文  
春口 真一, 増田 高志, 塚本 定三  
小沼 博隆, 品川 邦汎

日本獣医師会雑誌 53: 473~477 (2000)

わが国の対米輸出食肉用と畜場では米国農務省規則の改正により、サルモネラのモニタリングを行なうことが義務づけられた。このサルモネラの検査法は、米国農務省の食品安全検査局 (FSIS) により検出感度97%以上、検出特異性96%以上の方法であることが規定されている。今回、サルモネラの検査として、わが国で通常おこなわれている食品衛生検査指針に示されている方法 (食衛法) とFSISの方法 (FSIS法) について比較検討した。その結果、硫化水素 (H<sub>2</sub>S) 産生サルモネラの検出ではFSIS法と同等の成績であった。しかしH<sub>2</sub>S非産生サルモネラでは食衛法はFSIS法に比べ明らかに低い検出率であった。

#### 7) An outbreak of food poisoning due to egg yolk reaction-negative *Staphylococcus aureus*

Norinaga Miwa, Asako Kawamura, Takashi Masuda, and Masato Akiyama

*International Journal of Food Microbiology* 64 : 361-366 (2001)

An outbreak of staphylococcal food poisoning due to an egg yolk (EY) reaction-negative strain occurred in Japan. Twenty-one of 53 dam construction workers who ate boxed lunches prepared at their company cafeteria became ill, and eight required hospital treatment. The outbreak showed a typical incubation time (1.5-4 h with a median time of 2.7 h) and symptoms (vomiting and diarrhea) of staphylococcal food poisoning. *Staphylococcus aureus*, which produces staphylococcal enterotoxin (SE) A, was isolated from four fecal specimens of eight patients tested. Scrambled egg in the boxed lunches contained 20-40 ng/g of SEA, and 3.0 × 10<sup>9</sup> /g of viable *S. aureus* cells that produced this toxin. All isolates from patients and the food were EY reaction-negative, coagulase type II, and showed the same restriction fragment length polymorphism (RFLP) pattern. We concluded that the outbreak was caused by

scrambled egg contaminated with EY reaction-negative *S. aureus*. In Japan, outbreak of staphylococcal food poisoning are mainly caused by EY reaction-positive *S. aureus*, and EY reaction-negative colonies grown on agar plates containing EY are usually not analyzed further for detection of *S. aureus*. The present outbreak suggested that EY reaction-negative isolates should be subjected to further analysis to detect the causative agents of staphylococcal food poisoning.

#### 8) Detection of *Salmonella enteritidis* in shell and liquid eggs using enrichment and plating

Yukiko Hara-Kudo, Susumu Kumagai, Takashi Masuda, Koukichi Goto, Kayoko Ohtsuka, Hiroyuki Masaki, Hiroyuki Tanaka, Kenji Tanno, Michiko Miyahara and Hirota Konuma

*International Journal of Food Microbiology* 64 : 395-399 (2001)

Detection methods using various enrichment and plating media and immunoconcentration for *Salmonella enteritidis* in shell and liquid eggs were evaluated. For liquid egg samples naturally contaminated with *S. enteritidis*, pre-enrichment in 225 ml of buffered peptone water with cysteine followed by selective enrichment in 10 ml of tetrathionate broth was the superior, resulting in the detection of *S. enteritidis* in all samples on six of the seven types of selective agar substrate investigated. The enrichment procedure also enabled detection of *S. enteritidis* in most of artificially inoculated shell egg and pasteurized liquid egg samples.

#### 環境科学部

#### 1) Chlorination of harman and norharman with sodium hypochlorite and co-mutagenicity of the chlorinated products

Koji Nakano, Kayoko Suyama, Hitoshi Fukazawa, Mitsuo Uchida, Keiji Wakabayashi, Tatsushi Shiozawa, Yoshiyasu Terao

*Mutation Research* 470 : 141-146 (2000)

Harman and norharman are widely distributed in the environment and consequently contaminate in domestic waste-water. It has been reported that they have co-mutagenic activity in the presence of non-mutagenic aromatic amines such as aniline and o-toluidine with S9 mix. When these β-carbolines were treated with sodium hypochlorite under mild conditions, chlorinated derivatives were produced. Among them, 6-

chloroharman and 6-chloronorharman showed much more potent co-mutagenic activities than harman and norharman in the presence of o-toluidine toward *Salmonella typhimurium* TA98 with S9 mix. These

results suggest that the chlorination of harman and norharman occurs during disinfection at the sewage plant to produce potent co-mutagens that contaminate river water.



## 学会・研究会の報告

### 管理部

- 1) 静岡県及び全国の感染症発生動向分析  
宮本秀樹  
第46回東海公衆衛生学会  
2000.7. (岐阜)
- 2) 静岡県における寄生虫・原虫疾患の発生動向  
宮本秀樹  
静岡県寄生虫症研究会 第5回研究会  
2000.9. (浜松)
- 3) 静岡県及び全国の感染症発生動向分析  
宮本秀樹  
第59回日本公衆衛生学会  
2000.10. (前橋)
- 4) Molecular & Epidemiological Analyses of STEC Infection in Shizuoka Prefecture and All Japan  
Hideki MIYAMOTO  
4<sup>th</sup> International Symposium and Workshop on "Shiga Toxin (Verocytotoxin)-Producing *Escherichia coli*" Infection  
2000.10. (京都)
- 5) 静岡県及び全国のSTEC感染症等の統計・分子疫学的解析  
宮本秀樹  
第37回静岡県公衆衛生研究会  
2001.2. (静岡)
- 6) 生活環境水中におけるヒト腸管感染ウイルスの検出  
杉枝正明, 佐原啓二, 三輪好伸  
長岡宏美, 宮本秀樹, 宇田川悦子  
川本尋義  
第41回日本臨床ウイルス学会  
2000.5. (広島)
- 7) 静岡県で1998年の非流行期と次期流行シーズンに分離されたB/Victoria/2/87系統に属するB型インフルエンザウイルスの疫学的解析  
佐原啓二, 杉枝正明, 長岡宏美  
三輪好伸, 中島節子, 根路銘令子  
第41回日本臨床ウイルス学会  
2000.5. (広島)
- 8) 家畜および食肉から分離した腸管出血性大腸菌O157およびサルモネラの薬剤感受性  
増田高志, 三輪憲永, 秋山真人  
第27回日本防菌防黴学会  
2000.5. (東京)
- 9) *C. burnetii* 感染者の呈する症状についての一考察  
長岡宏美, 杉枝正明, 佐原啓二  
秋山真人, 原元彦, 平井克哉  
第46回東海公衆衛生学会  
2000.7. (岐阜)

### 微生物部

- 1) 食品中での腸管出血性大腸菌O157の凍結損傷菌とその検出方法の検討  
中川 弘, 小島 禎, 池戸正成  
小高秀正, 増田高志, 小沼博隆  
工藤由起子, 熊谷 進  
第129回日本獣医学会  
2001.4. (東京)
- 2) 卵からの *Salmonella Enteritidis* の検出方法の検討  
工藤由起子, 熊谷 進, 田中廣行  
丹野憲二, 後藤公吉, 増田高志  
大塚佳代子, 正木宏幸, 宮原美知子  
小沼博隆
- 3) 腸炎ビブリオの疫学と検査  
杉山寛治  
衛生微生物技術協議会 第21回研究会  
2000.7. (郡山)
- 4) 市販チーズにおける *C. burnetii* 汚染の実態調査  
長岡宏美, 佐原啓二, 秋山真人  
平成12年度日本獣医公衆衛生学会 (中部)  
2000.9. (名古屋)

- 9) ペロ毒素産生性大腸菌 [O103:H2] による家族内感染例とその疫学的検討  
増田高志, 川村朝子, 三輪憲永  
秋山真人  
全国食品衛生監視員研修会  
第40回関東ブロック研修大会  
2000.9. (千葉)
- 10) 静岡県のブタにおけるインフルエンザ感染状況  
佐原啓二, 細矢佳行, 杉枝正明  
長岡宏美, 秋山真人  
第15回地研全国協議会関東甲信静支部  
ウイルス研究部会  
2000.9. (千葉)
- 11) 下水処理施設から検出されたNV遺伝子の解析  
杉枝正明, 佐原啓二, 長岡宏美  
秋山真人, 西尾 治  
第15回地研全国協議会関東甲信静支部  
ウイルス研究部会  
2000.9. (千葉)
- 12) 静岡県におけるカンピロバクター感染症発生状況とその血清型  
増田高志, 秋山真人, 川村朝子  
寺井克哉, 三輪憲永  
第21回日本食品微生物学会  
2000.10. (東京)
- 13) 食品従事者, 食品等から検出されたサルモネラの血清型 (1997.1~2000.6.)  
小澤一弘, 富川ゆりこ, 仁科和子  
紅林理香, 赤羽荘資, 浅川 豊  
増田高志, 川森文彦, 仁科徳啓  
田村和満  
第21回日本食品微生物学会  
2000.10. (東京)
- 14) 腸炎ビブリオ食中毒の現状と今後  
杉山寛治  
第21回日本食品微生物学会  
2000.10. (東京)
- 15) 慢性疲労症候群患者からの *C. burnetii* 遺伝子の検出  
長岡宏美, 杉枝正明, 秋山真人  
原 元彦, 山本茂貴, 平井克哉  
第48回日本ウイルス学会学術集会  
2000.10. (津)
- 16) 静岡県におけるインフルエンザ流行 (1999/2000) のウイルス学的検索  
佐原啓二, 杉枝正明, 長岡宏美  
秋山真人  
第59回日本公衆衛生学会  
2000.10. (前橋)
- 17) 慢性Q熱と診断された患者の5年間の追跡調査  
長岡宏美, 秋山真人, 塩崎裕士  
三竹啓敏, 小林健司, 山本茂貴  
第7回リケッチア研究会  
2000.10. (千葉)
- 18) 海水・海泥からの耐熱性溶血毒産生腸炎ビブリオの検出  
張 凡非, 杉山寛治, 西尾智裕  
増田教子, 川村朝子, 郷田淑明  
秋山真人  
日本食品衛生学会 第80回学術講演会  
2000.11. (郡山)
- 19) 複合レジャー施設の循環濾過式浴槽水を感染源とするレジオネラ症集団発生事例と検査  
杉山寛治, 西尾智裕, 郷田淑明  
増田教子, 張 凡非, 秋山真人  
宮本秀樹  
第83回日本細菌学会関東支部総会  
2000.12. (東京)
- 20) アマンタジンに対する薬剤耐性を獲得したA型インフルエンザウイルスの出現  
佐原啓二, 杉枝正明, 長岡宏美  
秋山真人  
第37回静岡県公衆衛生研究会  
2001.2. (静岡)
- 21) インフルエンザウイルスのサンプリング溶液の比較検討  
辻 昌志, 清水浩司郎, 北条圀生  
山本 桂, 佐原啓二, 長岡宏美  
杉枝正明, 秋山真人  
第37回静岡県公衆衛生研究会  
2001.2. (静岡)

- 22) 腸管出血性大腸菌O26感染症発生状況および分離株の解析  
川森文彦, 有田世乃, 増田高志  
秋山真人  
第37回静岡県公衆衛生研究会  
2001.2.(静岡)
- 23) 環境・食品からの腸炎ビブリオ病原株の効率的な検出法  
張凡非, 杉山寛治, 西尾智裕  
郷田淑明, 秋山真人  
第37回静岡県公衆衛生研究会  
2001.2.(静岡)
- 24) 静岡県のブタにおけるインフルエンザウイルス感染状況  
細矢佳行, 池ヶ谷朝香, 金丸明  
加藤秀夫, 竹内常雄, 佐原啓二  
第37回静岡県公衆衛生研究会  
2001.2.(静岡)
- 25) イヌ, ネコおよびヒトにおける薬剤投与による *Coxiella burnetii* の消長  
長岡宏美, 佐原啓二, 杉枝正明  
秋山真人  
第37回静岡県公衆衛生研究会  
2001.2.(静岡)
- 26) 小型球形ウイルス (SRSV) による食中毒防止に関する調査  
杉枝正明, 佐原啓二, 長岡宏美  
秋山真人, 藤井正司, 朝比奈正敏  
渡邊茂廣, 内藤博敬, 森田全  
第37回静岡県公衆衛生研究会  
2001.2.(静岡)
- 27) 牛乳中の黄色ブドウ球菌エンテロトキシンの検出法およびエンテロトキシン産生能の検討  
有田世乃, 川森文彦, 増田高志  
秋山真人  
第37回静岡県公衆衛生研究会  
2001.2.(静岡)
- 28) 食品従事者, 食品等から検出されたサルモネラの血清型 (1997.1~2000.10.)  
小澤一弘, 富川ゆりこ, 仁科和子  
紅林理香, 内田芳彦, 赤羽荘資  
浅川豊, 増田高志, 川森文彦  
仁科徳啓, 田村和満  
第37回静岡県公衆衛生研究会  
2001.2.(静岡)
- 29) レジオネラ症集団感染事例と検査  
杉山寛治, 西尾智裕, 郷田淑明  
張凡非, 増田教子, 秋山真人  
宮本秀樹  
第37回静岡県公衆衛生研究会  
2001.2.(静岡)
- 30) 市販チーズからの *C. burnetii* 検出の試み  
長岡宏美, 秋山真人, 山本茂貴  
平成12年度日本獣医公衆衛生学会年次大会  
2001.2.(奈良)
- 31) 複合レジャー施設の循環濾過式浴槽水を感染源とするレジオネラ症集団発生事例  
杉山寛治, 西尾智裕, 郷田淑明  
張凡非, 増田教子, 秋山真人  
宮本秀樹  
第13回地研全国協議会関東甲信静支部  
細菌研究部会  
2001.2.(東京)
- 32) 細菌検査の現状と問題点—腸炎ビブリオ—  
杉山寛治  
第13回地研全国協議会関東甲信静支部  
細菌研究部会  
2001.2.(東京)
- 33) 病院給食が原因となった *Salmonella Nagoya* による集団食中毒の細菌学的検討  
川森文彦, 有田世乃, 増田高志  
秋山真人  
第13回地研全国協議会関東甲信静支部  
細菌研究部会  
2001.2.(東京)
- 34) 静岡県温泉レジャー施設におけるレジオネラ症集団発生—検査面から—  
杉山寛治, 西尾智裕, 郷田淑明  
張凡非, 増田教子, 秋山真人  
宮本秀樹  
第75回日本感染症学会  
2001.3.(奈良)

医薬品生活部

- 1) 県内流通農産物中の残留農薬について  
坂根弓子, 上村慎子, 高橋 真  
佐野智子, 堀池あずさ, 馬淵 博  
小和田和宏, 永野隆夫  
全国食品衛生監視員研修会  
第40回関東ブロック研修大会  
2000.9. (千葉)
- 2) 医薬品等の試験検査における有害試薬の使用状況と有害試薬の低減化の試み  
小和田和宏, 堀池あずさ, 馬淵 博  
山口善三郎, 永野隆夫, 久保田昭彦  
佐野智子  
第37回全国衛生化学技術協議会年会  
2000.10. (岐阜)
- 3) 自動溶出試験装置における適格性の検討  
馬淵 博, 堀池あずさ, 小和田和宏  
山口善三郎, 永野隆夫, 久保田昭彦  
第37回全国衛生化学技術協議会年会  
2000.10. (岐阜)
- 4) 分析法のバリデーション事例集の作成について  
堀池あずさ, 馬淵 博, 小和田和宏  
山口善三郎, 上村慎子, 高橋 真  
坂根弓子, 佐野智子, 永野隆夫  
久保田昭彦  
第37回全国衛生化学技術協議会年会  
2000.10. (岐阜)
- 5) 農産食品中の残留農薬スクリーニング法の検討  
(第2報)  
坂根弓子, 増田教子, 上村慎子  
高橋 真, 山口善三郎, 佐野智子  
永野隆夫, 久保田昭彦  
第37回全国衛生化学技術協議会年会  
2000.10. (岐阜)
- 6) 医薬品の試験検査結果の信頼性を確保するために  
小和田和宏, 堀池あずさ, 馬淵 博  
山口善三郎, 永野隆夫, 久保田昭彦  
第33回東海薬剤師学術大会  
2000.11. (名古屋)
- 7) 県内医薬品製造所からの相談事例とその対応について  
小和田和宏, 堀池あずさ, 馬淵 博  
山口善三郎, 永野隆夫, 佐野智子  
第37回全国薬事指導協議会  
2000.11. (名古屋)
- 8) 再生紙製トイレットペーパーについて  
影山知子, 山口善三郎  
第30回関東甲信越静岡商品テスト機関  
ブロック連絡会議  
2000.11. (前橋)
- 9) 医薬品収去検査における試験法の問題点  
堀池あずさ, 馬淵 博, 小和田和宏  
山口善三郎, 永野隆夫, 久保田昭彦  
第12回生薬漢方製剤の微生物および異物汚染対策  
ならびに品質管理に関するシンポジウム  
2000.12. (大阪)
- 10) 分析法バリデーション事例集の作成について  
堀池あずさ, 馬淵 博, 小和田和宏  
山口善三郎, 永野隆夫  
第37回静岡県公衆衛生研究会  
2001.2. (静岡)
- 11) 医薬品等の試験検査における問題事例  
小和田和宏, 堀池あずさ, 馬淵 博  
山口善三郎, 永野隆夫  
第37回静岡県公衆衛生研究会  
2001.2. (静岡)
- 12) 溶出試験をモデルとしたスキップテストの実施に関する検討  
馬淵 博, 堀池あずさ, 小和田和宏  
山口善三郎, 永野隆夫  
第37回静岡県公衆衛生研究会  
2001.2. (静岡)
- 13) 医薬品等の試験検査結果の信頼性を確保するために  
一試験検査におけるシステム適合性の確認一  
小和田和宏, 堀池あずさ, 馬淵 博  
山口善三郎, 永野隆夫  
第37回静岡県公衆衛生研究会  
2001.2. (静岡)

14) 医薬品溶出試験における問題点の把握とその対応

馬 淵 博, 堀池あずさ, 小和田和宏  
山口善三郎, 永野隆夫  
第37回静岡県公衆衛生研究会  
2001.2. (静岡)

15) 漢方製剤におけるエキス含量試験法の変動要因について

堀池あずさ, 馬 淵 博, 小和田和宏  
山口善三郎, 永野隆夫  
第37回静岡県公衆衛生研究会  
2001.2. (静岡)

16) 静岡県残留農薬分析法検討会における精度管理に関する取組み—農薬標準溶液を中心として—

増田教子, 高橋 真, 坂根弓子  
山口善三郎, 永野隆夫, 阿部勇治  
杉山直子, 前林公男, 田中伸明  
伊東聡子, 木俣智香子, 進士一男  
小杉国宏  
第37回静岡県公衆衛生研究会  
2001.2. (静岡)

17) 桜えびの栄養成分及び鮮度保持等について

菅野尚子, 山口善三郎, 永野隆夫  
第37回静岡県公衆衛生研究会  
2001.2. (静岡)

18) 医薬品等の試験検査における問題事例

小和田和宏, 堀池あずさ, 馬 淵 博  
山口善三郎, 永野隆夫  
平成12年度地方衛生研究所全国協議会  
関東甲信静支部理化学部会  
2001.2. (水戸)

19) 最近の収去検査結果について

小和田和宏  
平成12年度第2回医薬品等製造業者品質  
管理講習会  
2001.2. (静岡)

環境科学部

1) 静岡県富士市における大気汚染実態調査結果

(その1) 多環芳香族炭化水素  
大浦 健, 杉山智彦, 雨谷敬史  
房家正博, 篠原英二郎, 村上篤司  
松下秀鶴  
第9回環境化学討論会  
2000.6. (札幌)

2) 静岡県富士市における大気汚染実態調査結果

(その2) ベンゼン及びその誘導体  
雨谷敬史, 大浦 健, 杉山智彦  
房家正博, 篠原英二郎, 村上篤司  
松下秀鶴  
第9回環境化学討論会  
2000.6. (札幌)

3) 静岡県富士市における大気汚染実態調査結果

(その3) アルデヒド類と有機ハロゲン化合物  
房家正博, 杉崎 充, 雨谷敬史  
大浦 健, 杉山智彦, 篠原英二郎  
村上篤司, 松下秀鶴  
第9回環境化学討論会  
2000.6. (札幌)

4) 富士市における一般家庭の室内外空気中のアルデヒド及び有機ハロゲン化合物濃度調査 (1999年夏季)

房家正博, 雨谷敬史, 大浦 健  
杉山智彦, 杉崎 充, 松下秀鶴  
第41回大気環境学会  
2000.9. (浦和)

5) 富士市における一般家庭の室内外空気中のベンゼン及びその誘導体の濃度調査 (1999年夏季)

雨谷敬史, 大浦 健, 杉山智彦  
房家正博, 松下秀鶴  
第41回大気環境学会  
2000.9. (浦和)

6) 富士市における一般家庭の室内外空気中の多環芳香族炭化水素濃度調査 (1999年夏季)

大浦 健, 杉山智彦, 雨谷敬史  
房家正博, 松下秀鶴  
第41回大気環境学会  
2000.9. (浦和)

- 7) 水溶液中のホルマンと次亜塩素酸との反応生成物及び下水処理水の実態  
深澤 均, 寺尾良保  
第37回全国衛生化学技術協議会年会  
2000.10. (岐阜)
- 8) 富士地域の有害大気汚染物質の濃度分布について  
房家正博, 横山玲子, 渡辺雅之  
篠原英二郎, 太田良和弘, 雨谷敬史  
大浦 健, 杉山智彦, 杉崎 充  
村上篤司, 松下秀鶴  
第27回環境保全公害防止研究発表会  
2000.11. (静岡)
- 9) 塩素処理による塩素化ビスフェノールAの生成  
深澤 均, 星野健太郎, 塩沢竜志  
寺尾良保  
平成12年度日本薬学会東海支部例会  
2000.12. (静岡)
- 10) 富士市における一般家庭の室内外空気中のアルデヒド及び有機ハロゲン化合物濃度調査 (夏季・冬季)  
雨谷敬史, 杉崎 充, 大浦 健  
房家正博, 松下秀鶴  
平成12年度室内環境学会  
2000.12. (東京)
- 11) 富士市における一般家庭の室内外空気中のベンゼン及びその誘導体の濃度調査 (夏季・冬季)  
雨谷敬史, 大浦 健, 房家正博  
松下秀鶴  
平成12年度室内環境学会  
2000.12. (東京)
- 12) 富士市における一般家庭の室内外空気中の多環芳香族炭化水素濃度調査 (夏季・冬季)  
杉山智彦, 大浦 健, 雨谷敬史  
房家正博, 松下秀鶴  
平成12年度室内環境学会  
2000.12. (東京)
- 13) 田子の浦港のビスフェノールAによる汚染実態の追跡調査  
三好広志  
平成12年度東海地区公害試験研究機関会議化学物質分科会  
2001.1. (四日市)
- 14) 下水・排水処理場における塩素処理の副生成物  
星野健太郎, 深澤 均, 塩沢竜志  
寺尾良保  
日本化学会第79春季年会  
2001.3. (神戸)
- 大気・水質部**
- 1) 多湿時における大気中アルデヒド類の測定方法について  
太田良和弘  
全公研関東甲信静支部大気部会  
2000.6. (川崎)
- 2) 静岡県における魚類へい死事故の現状と対応  
平井一行  
東海地区公害試験研究機関会議  
第50回水質分科会  
2000.7. (愛知)
- 3) 1999年度の常時監視における浮遊粒子状物質の動向  
篠原英二郎  
第52回東海地区公害試験研究機関会議  
大気分科会  
2000.7. (静岡)
- 4) 道路交通騒音における異常音の除外例の検討  
萱沼広行  
全国公害研協議会関東甲信静支部  
騒音振動専門部会  
2000.7. (千葉)
- 5) 多湿時における大気中アルデヒド類の測定について  
太田良和弘  
第41回大気環境学会年会  
2000.9. (浦和)
- 6) 大気常時監視測定局のグループ化に関する研究  
篠原英二郎, 村上篤志, 松下秀鶴  
第27回環境保全・公害防止研究発表会  
2000.11. (静岡)
- 7) 三宅島噴火に伴う静岡県下の大気汚染実態  
篠原英二郎, 村上篤志  
第27回環境保全・公害防止研究発表会  
2000.11. (静岡)

8) LA<sub>eq</sub>換算式の環境騒音除外音処理への応用について

萱沼広行  
東海地区公害試験研究機関会議  
騒音・振動分科会  
2000.12. (名古屋)

9) 常時監視局がとらえた三宅島噴火による高濃度大気汚染

篠原英二郎, 村上篤志, 松下秀鶴  
環境研究交流しずおか集会  
2001.3. (静岡)

10) 「大規模小売店舗立地法」に係る騒音評価等について

萱沼広行  
全国公害研協議会関東甲信静支部  
騒音振動専門部会研究連絡会  
2001.3. (市川)

西部支所

1) 地下水の硝酸性窒素による汚染について (第2報)

中島二夫, 河合 渉, 小池 明  
永谷隆行, 梅原 鎬市, 井伊博行  
第46回東海公衆衛生学会  
2000.7. (岐阜)

2) 硝酸性窒素による地下水汚染について (第2報)

中島二夫, 河合 渉, 小池 明  
永谷隆行, 梅原 鎬市, 井伊博行  
田中豊和  
第37回静岡県公衆衛生研究会  
2001.2. (静岡)

## 表 彰 等

### 微生物部

- 1) 大同生命地域保健福祉研究助成  
「レジオネラ感染症調査および浴槽水のレジオネラ防除対策」  
平成12年10月27日  
杉山寛治, 西尾智裕, 郷田淑明  
秋山真人, 張凡非, 宮本秀樹

- 2) 静岡県知事表彰(平成12年度 職員表彰)  
「レジオネラ属菌の検査法と予防策に関する研究」  
平成12年11月29日  
杉山寛治

- 3) 静岡県公衆衛生研究会 会長表彰(優秀演題)  
「牛乳中の黄色ブドウ球菌エンテロトキシンの検出法およびエンテロトキシン産生能の検討」  
平成13年2月9日  
有田世乃, 川森文彦, 増田高志  
秋山真人

- 4) 静岡県公衆衛生研究会 会長表彰(優秀演題)  
「レジオネラ症集団感染事例と検査」  
平成13年2月9日  
杉山寛治, 西尾智裕, 郷田淑明  
張凡非, 増田教子, 秋山真人  
宮本秀樹

### 医薬品生活部

- 1) 静岡県公衆衛生研究会 会長表彰(優秀演題)  
「医薬品等の試験検査における問題事例」  
平成13年2月9日  
小和田和宏, 堀池あずさ, 馬淵博  
山口善三郎, 永野隆夫

## 学 位 取 得

### 環境科学部

- 1) 博士(環境科学) 静岡県立大学  
「下水・排水処理場の塩素処理に起因する有機ハロゲン化合物による水質汚染」  
平成13年3月  
深澤均



編集委員

池谷清貴（管理部）

上村慎子（有機性廃棄物プロジェクト）

佐原啓二（微生物部）

菅野尚子（医薬品生活部）

西野宏治（環境科学部）

三好廣志（大気・水質部）

竹下昭二（東部支所）

杉浦秀治（西部支所）

静岡県環境衛生科学研究所報告

（第43号）

平成13年10月1日発行

---

編集発行 静岡県環境衛生科学研究所  
静岡市北安東4丁目27-2  
電話（054）245-0201（代）

E-mailアドレス

eikanctr@shizuokanet.ne.jp

インターネットホームページ

<http://www2.shizuokanet.ne.jp/eikanctr>

印刷所 東洋印刷(株) 静岡支社  
静岡市中村町217 静和ビル2F  
電話（054）282-4764（代）