

# 広島県衛生研究所研究報告

## 第 30 号

1983 年 12 月

### 目 次

#### 原 著

- 高速液体クロマトグラフィーによる魚肉中のサルファ剤  
及びニトロフラン製剤の同時定量  
納池昭二三…………… 1
- 高速液体クロマトグラフィーによるイワシ中の不飽和脂肪酸の分析  
穂下 誠彦…………… 7
- 清涼飲料水中のステビア配糖体の定量  
坂本 征則…………… 11
- 医薬品の分析法に関する研究 (V)  
化学イオン化マススペクトロメトリーによるかぜ薬中の有効成分の同時定量  
金森 久幸…………… 15

#### 資 料

- ブタ Nephroblastoma の発生状況  
妹尾正登, 河重 豪, 田中 聖, 寺地弘行, 久保 滋…………… 21
- 先天性代謝異常症等マス・スクリーニング:  
広島県における過去 5 年間の成績について  
水田満里, 中富美津江, 妹尾正登, 海佐裕幸…………… 25
- 広島県で発生した細菌性食中毒 (1961—1980年)  
得能弘志, 岸本敬之, 小川博美, 佐々木実己子, 福田伸治…………… 31
- 野菜および漬物中の T P N の残留実態調査  
兄玉陽太郎, 穂下誠彦, 桑原知子, 藤元さとみ…………… 45
- 広島県における雨水中 (降雨毎) の全  $\beta$  放射能年間降下量について  
中富 文雄…………… 49
- 広島県北西部の井戸水の水質について  
住川博紀, 頼光彰子, 金廣美智子, 中村寿夫, 兄玉陽太郎…………… 51
- 他誌載掲論文要約 (1982年11月~1983年10月)…………… 58

広島県衛生研究所

[734] 広島市南区宇品神田 1 丁目 5—70

# 高速液体クロマトグラフィーによる魚肉中のサルファ剤 及びニトロフラン製剤の同時定量

藥 池 昭 二 三\*

## Simultaneous Determination of Sulfanilamides and Nitrofurans in Fish Meat by High Performance Liquid Chromatography

AKIHUMI MOCHIIKE

(Received Sept. 6, 1983)

A new, simple and rapid analytical method using ion-pair high performance liquid chromatography was developed for simultaneous determination of sulfamonomethoxine (MM), sulfadimethoxine (DM), sulfaquinoxaline (QX), furazolidone (FZ), furamizole (FM) and panazon (PZ) in fish meat. A reversed-phase system consisting of an ODS chemically bonded silica gel column and a mixture of water and methanol (60:40) containing 0.01M tetra-n-butylammonium bromide (TBA-Br) and 0.04M sodium phosphate as the mobile phase were used. The six synthetic antibacterials could be completely separated. The extraction and purification of these compounds were also investigated. The recoveries of MM, DM, QX, FZ, FM and PZ added to various fish meat samples were 90—96, 90—96, 90—96, 82—88, 86 and 64—72%, respectively. The detection limits were 0.05ppm for MM, DM, QX, FZ and 0.1ppm for FM, PZ.

*Key words: Ion-pair high performance liquid chromatography, Sulfamonomethoxine, Sulfadimethoxine, Sulfaquinoxaline, Furazolidone, Furamizole, Panazon, Fish meat.*

### 緒 言

種々の化学物質が畜水産物の疾病予防と治療の目的で動物薬あるいは飼料添加物として用いられ、生産性の向上に大きく貢献している。しかし、一方では薬漬食品という批判も受け、これら薬剤の食品中への残留が懸念されている。食品衛生法では昭和54年4月に「食品一般の成分規格」において“含有してはならない”と規定された。この基準が遵守されるためには、飼養者の適正な使用と監視体制の充実が必要不可欠なところである。これら薬剤の試験法については、厚生省環境衛生局乳肉衛生

課編「畜水産食品中の残留物質検査法」に記載されている。しかしながら、この方法によれば、個々の薬剤を別々に分析しなければならず、そのために多くの検体量及びかなりの検査期間が必要であり、食品の性格上、流通が早く、結果が出るところはその食品はすでに消費されており、現実にそぐわないという難点がある。したがって、検査結果を短期間で出せるように、簡便な系統的分析法の確立が望まれている。

そこで、著者は近年養殖魚などに繁用されているサルファ剤〔スルファモノメトキシン、スルファジメトキシン、スルファキノキサリン〕及びニトロフラン製剤〔フ

\* 広島県衛生研究所: Hiroshima Prefectural Institute of Public Health.

ラゾリドン、フラミゾール、パナゾン]について、簡便かつ迅速に分析できる高速液体クロマトグラフィー(HPLC)による同時定量法を確立したので報告する。

## 実験方法

### 1. 試料

県内魚市場で入手したウナギ、ハマチ、マダイ及びアユを用い、筋肉部を試料とした。

### 2. 試薬

#### (1) 標準品

スルファモノメトキシシン (MM)：第一製薬特製

スルアジメトキシシン (DM)：第一製薬特製

スルファキノキサリン (QX)：マルビー・メルクン  
グループアンドドーム特製

フラゾリドン (FZ)：上野製薬特製

フラミゾール (FM)：上野製薬特製

パナゾン (PZ)：台糖ファイザー特製

標準液：いずれも20mgを精秤し、ジメチルホルムアミドに溶解して、200 $\mu$ g/mlの原液を作製。この原液をメタノールで適宜希釈して用いた。

#### (2) その他の試薬

メタノール、n-ヘキサン、酢酸エチル、アセトニトリル及び無水硫酸ナトリウム：片山化学工業特製、残留農薬分析用品

ジメチルホルムアミド (DMF)：和光純薬工業特製、吸収スペクトル用品

リン酸塩緩衝液：リン酸二ナトリウム ( $\text{Na}_2\text{HPO}_4 \cdot 12\text{H}_2\text{O}$ ) 71.64g、リン酸一ナトリウム ( $\text{NaH}_2\text{PO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ ) 31.21g 及び塩化ナトリウム10.0gに蒸留水を加えて溶かし、1ℓとする。なお、ここで用いた試薬はいずれも和光純薬工業特製、特級である。

ハイフロスパーセル：和光純薬工業特製

セップパックC<sub>18</sub>：ウォーターズ社製

### 3. 装置

高速液体クロマトグラフ (HPLC)：東洋曹達工業特製、HLC-803D型

検出器：東洋曹達工業特製、UV-model II 紫外可視分光検出器

ホモジナイザー：スイス、バイオトロナ社製、バイオトロン

### 4. 試験溶液の調製

試料10gを100ml容量の遠心管にとり、ハイフロスパーセル1g及び抽出溶媒メタノール・DMF (49:1) 50mlを加え、ホモジナイズした後、3000 r.p.m. で10分間遠心分離する。上澄液はハイフロスパーセル1gを層積したガラスろ過器 (細孔記号G-4) により吸引ろ過する。残渣に50mlの抽出溶媒を加え、同様に処理した後、残渣を50mlのメタノールでろ過器に洗い込み吸引ろ過する。ろ液は減圧濃縮した後、リン酸塩緩衝液30mlを加えよくふりまぜ、溶液のpHが6.5から7.0の範囲にない場合は1N水酸化ナトリウム又は10%リン酸溶液で調整する。この溶液を酢酸エチル40mlで3回振とう抽出し、無水硫酸ナトリウムで脱水後、酢酸エチルを減圧留去する。残渣をn-ヘキサン・アセトニトリル (30:60) で3回分配抽出し、分取したアセトニトリル層を減圧濃縮する。残渣にメタノール10mlを加えよくふりまぜた後、セップパックC<sub>18</sub>を取り付けたシリンジ (あらかじめメタノール、次いで蒸留水をセップパックに湿潤しておく) に流しこみ、ブランジャーを戻し、シリンジ内の溶液を25ml容ナシ型フラスコに溶出する。メタノール減圧留去後、再びメタノールで2mlにメスアップし、HPLC試験溶液とする。以上の操作はかっ色のガラス器具を用い、できるだけ暗室で行った。

### 5. HPLC条件

カラム：TSKgel ODS-120T (4.6mm×25cm)

移動相：メタノール/水 (40:60) に0.01M TBA-Brと0.04M  $\text{NaH}_2\text{PO}_4$  を含む。pH5.2

流速：0.8ml/分

圧力：118~119kg/cm<sup>2</sup>

カラム温度：室温

検出器波長：UV, 260nm

感度：0.02 A.U.F.S

試料注入量：5 $\mu$ l

### 6. 検量線の作成

各々3 $\mu$ g/mlから10 $\mu$ g/mlの範囲で濃度を変えた標準液を調製し、検量線を作成したところ、Fig.1に示すような良好な直線性が得られた。

## 結果及び考察

### 1. HPLC測定条件の検討

#### (1) カラム及び移動相

固定相として、日立ゲル#3011, LiChrosorb RP-

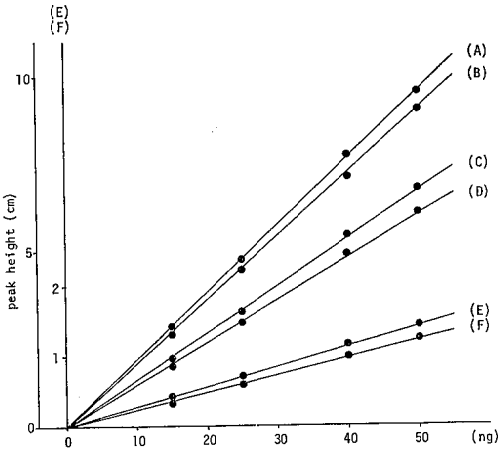


Fig. 1. Calibration Curves of Nitrofurans and Sulfanilamides.  
 (A): sulfamonomethoxine, (B): furazolidone,  
 (C): sulfadimethoxine, (D): sulfaquinoxaline,  
 (E): panazon, (F): furamizole.

18, TSKgel ODS-120Tを用い、移動相としてアセトニトリル-水系、メタノール-水系を用いて検討を行った。いずれの組合せを用いても、必要な分離条件を得ることはできなかった。そこで、Fig. 2に示すようにF Zを除くいずれの合成抗菌剤もSO<sub>2</sub>基、NH<sub>2</sub>基などを有する弱電解質であることから、メタノール-水系溶離液にカウンターイオンを添加してイオン対クロマトグラフィーによる検討を行った。カウンターイオンとして、過塩素酸 [1]、アンモニア [2]、テトラブチルアンモニウムブロミド (TBA-Br) [3]、トリエタノールアミン [4] を用いて種々検討したところ、40% メタノールに0.01M TBA-Br 及び0.04Mリン酸ナトリウムを含む溶離液と TSKgel ODS-120Tの組合せが最も良好な結果を得た。カウンターイオン濃度を0.01~0.04Mに変化させたところ、大きな影響はなく、カラムの寿命を考慮して0.01Mとした。又、リン酸ナトリウムにより、pHを5~8に変化させたところ、pH 5~6で良い結果を得たのでリン酸ナトリウム濃度は0.04Mとした。

(2) 測定波長の選択

検出器の波長選択はFig. 3に示すUV吸収曲線からサルファ剤は260nm付近で、ニトロフラン製剤は370nm付近で測定することが最も望ましい。しかしながら、Fig. 1の検量線でも明らかなように感度を多少犠牲にすれば、260nmで6物質の同時定量が可能であった。本実験

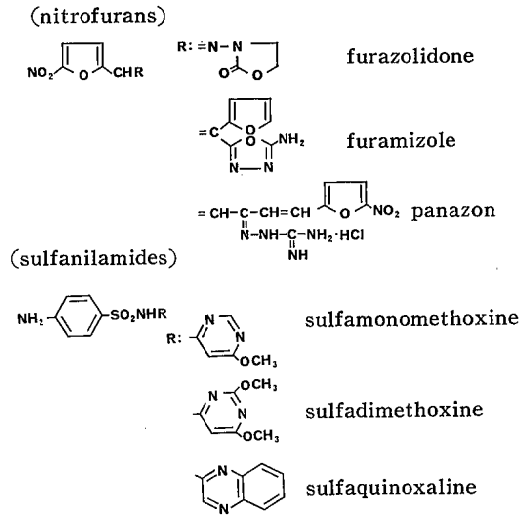


Fig. 2. Chemical Structures of Synthetic Antibacterials.

は260nmで行い、Fig. 4に各標準物質のクロマトグラムを示した。最小検出量はF Z, MM, DM, Q Xが5 ng, FM, P Zが10ngであった。

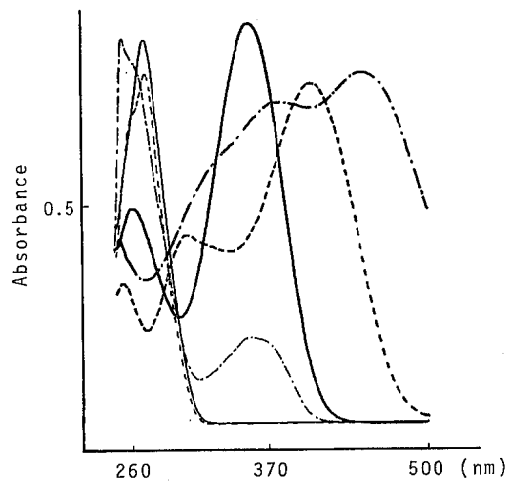


Fig. 3. Absorption Spectra of Nitrofurans and Sulfanilamides (10 μg/ml).

- : furazolidone
- : furamizole
- · - · - ·: panazon
- : sulfamonomethoxine
- : sulfadimethoxine
- · - · - ·: sulfaquinoxaline

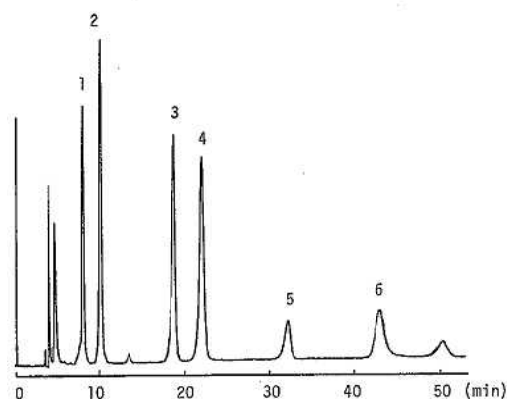


Fig. 4. High performance Liquid Chromatogram of mixed Standards.

1: furazolidone, 2: sulfamonomethoxine, 3: sulfadimethoxine, 4: sulfaquinoxaline, 5: furamizole, 6: panazon.

Conditions: column, TSKgel ODS-120T (2.6 mm i.d. × 250mm); mobile phase, 0.01M TBA-Br and 0.04M NaH<sub>2</sub>PO<sub>4</sub> in methanol-water (40:60); flow rate, 0.8ml/min; detector, UV 260nm; sensitivity, 0.02 AUFS.

## 2. 抽出条件の検討

試料に6種類の合成抗菌剤を添加し、抽出方法を種々検討したが、メタノール/DMFの混合溶媒による方法が操作も簡単で良い結果を得た。DMFの量を2%、4%、6%と変化させても抽出率に大きな違いはなく、DMF量の増加に伴い脂肪移行量が増え、後のクリーンアップを妨害したので2%とした。続く酢酸エチル抽出では、酸性及びアルカリ性領域でサルファ剤の抽出率が低下するため〔5〕、リン酸塩緩衝液を加えpH6.5~7.0に調整して行うこととした。なお、ニトロフラン製剤はpHの影響をほとんど受けなかった。

## 3. クリーンアップの検討

メタノール/DMF (49:1) 抽出液を濃縮後、セップパック C<sub>18</sub> をとおし HPLC に供したが、妨害ピークのため分離が悪く定量が困難であった。この妨害ピークは酢酸エチルに移行後、液液抽出及びセップパック C<sub>18</sub> によるクリーンアップ操作で除去でき、Fig. 5 に示すようなクロマトグラムを得た。シリカゲルカラムクロマトによってもクリーンアップが可能であったが、ニトロフラン製剤、特に P Z の回収率が著しく低下した。

## 4. 添加回収実験及び応用

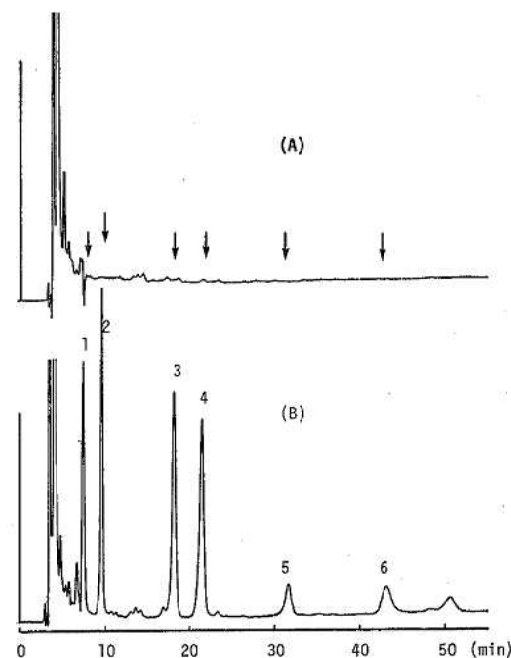


Fig. 5. Chromatograms of Synthetic Antibacterials extracted from a spiked Sample. (A): control (eel), (B): added at 1.0ppm. HPLC conditions are same as in Fig. 4.

試料10gに各合成抗菌剤を1ppmの濃度になるように添加し、前述定量操作に従って回収実験を行った。その結果をTable 1に示した。

また、この方法により県内魚市場で入手したタイ、ハマチ、アユ、ウナギ各4検体について残留試験を行ったところ、いずれの検体からもMM, DM, QX, F Z, FM及びP Zは検出されなかった。

Table 1. Recoveries of Synthetic Antibacterials added to Various Samples

Sample	Recovery (%)					
	F Z	MM	DM	QX	FM	P Z
Eel	84	96	96	96	86	72
Red Sea-Bream	88	90	90	90	86	64
Yellowtail	82	92	94	94	86	70
Sweet Smelt	84	90	94	94	86	71

added; 10μg/10g

## ま と め

本実験で確立した HPLC によるサルファ剤及びニトロフラン製剤の同時定量法は、P Z の64~72%を除き他

はいずれも80%以上の回収率を示し、操作も簡便であり短期間で分析できるので、日常のスクリーニング法として広く適用できるものとする。本法の検出限界は、FZ, MM, DM, QXが0.05ppm, FM, PZが0.1ppmであった。

文 献

- [1] J.L. Meek: Anal. Chem., **48**, 375 (1976).
- [2] C. De Marco, P. Cossu, A. Rinaldi and S. Dernini: J. Chromatog., **115**, 621—624(1975).
- [3] R.S. Ersser: J. Chromatog., **115**, 612—615 (1975).
- [4] 永田知子, 宮本文夫, 佐伯政信: 食衛誌, **23**, 278—282 (1982).
- [5] 能勢憲英, 菊池好則, 山田文子, 渡辺昭宣: 食衛誌, **20**, 115—119 (1979).

# 高速液体クロマトグラフィーによる イワシ中の不飽和脂肪酸の分析

穂 下 誠 彦\*

## Analysis of Monounsaturated Fatty Acids in Sardine (*Sardinops melanosticta*) by High Performance Liquid Chromatography

NOBUHIKO HOSHITA

(Received Spet. 27, 1983)

A high performance liquid chromatography (HPLC) method for the determination of phenyl boronates derived from monounsaturated fatty acid methyl esters in sardine (*Sardinops melanosticta*) is described. HPLC analysis using LiChrosorb RP-18 column was able to adequately separated the positional isomers, oleic (18:1 $\omega$ 9) and petroselinic (18:1 $\omega$ 12) acid, but not oleic and vaccenic (18:1 $\omega$ 7) acid. The chromatogram of monounsaturated fatty acids in sardine muscle showed C<sub>16:1</sub>, C<sub>18:1</sub>, C<sub>20:1</sub> and C<sub>22:1</sub> acid. These acids were identified by the mass spectra as follows: C<sub>16:1</sub> region was only palmitoleic (16:1 $\omega$ 7) and C<sub>18:1</sub> region was oleic (18:1 $\omega$ 9) and vaccenic (18:1 $\omega$ 7), which isomers were inseparable. The other two regions, C<sub>20:1</sub> and C<sub>22:1</sub>, showed insufficient-inseparable two peaks. C<sub>20:1</sub> region was 20:1 $\omega$ 9, 20:1 $\omega$ 11, 20:1 $\omega$ 13 and 20:1 $\omega$ 15 acid, and C<sub>22:1</sub> region was 22:1 $\omega$ 13 and 22:1 $\omega$ 15 acid.

*Key words:* Monounsaturated fatty acids, Phenyl boronates, Sardine (*Sardinops melanosticta*),  
High performance liquid chromatography, LiChrosorb RP-18.

## はじめに

現在まで70種以上の脂肪酸が様々な生体中より分離されているが〔1, 2〕, 生体中の脂肪酸は遊離の状態ではほとんど見られず, リン脂質や中性脂肪等各種脂質の構築単位として存在し, 生体膜の構成やエネルギー貯蔵などの生理的役割を果たしている. 自然界における脂肪酸のほとんどは偶数の炭素鎖を有し, 特に炭素数16と18の脂肪酸が極めて多く, また, 飽和脂肪酸より不飽和脂肪酸が多い〔1, 2〕. 一方, 脂肪族炭化水素も自然界に広

く存在し, 炭素数13から33の奇数の炭素鎖のものが多く〔2〕, スクワレン (C<sub>30</sub>) やフィタン (C<sub>20</sub>) のような枝炭化水素を除けば, 魚類では炭素数15から21の炭化水素が多い〔3, 4, 5, 6〕.

このように, 自然界の脂肪酸は偶数の, また, 炭化水素は奇数の炭素鎖を有するものが多く, 両者には生体内で深く関りのあることを示唆する質的, 量的な関係があることが明らかにされている〔2, 3, 7〕. このことは, 細菌や藍藻により飽和脂肪酸 (C<sub>16</sub>とC<sub>18</sub>) の脱炭酸反応により炭素数の一個少ない炭化水素 (C<sub>15</sub>とC<sub>17</sub>) が生成

\* 広島県衛生研究所: Hiroshima Prefectural Institute of Public Health.

するという実験結果 [8, 9] により支持されている。

著者はさきに、海洋の石油汚染と炭化水素との関連を明らかにするため、各種魚介類中の炭化水素の分析を行ってきたが、イワシとコノシロの2種の魚肉中より、自然界には希な位置に二重結合1個を有する炭素数17と19 (*cis*-6-*n*-Heptadecene と *cis*-8-*n*-Nonadecene) の不飽和炭化水素を見出した [10]。今回は、これらの炭化水素と不飽和脂肪酸との関係を明らかにするため、イワシ中の不飽和脂肪酸をフェニルボロネイト誘導体とした後、高速液体クロマトグラフィー (HPLC) により分析を行い、ガスクロマトグラフィー (GC) では分離の困難であった炭素数16から22の不飽和脂肪酸の異性体を一部分離したので報告する。

### 実験方法

イワシの可食部10gを2N-KOH(エタノール溶液) 50mlと2時間煮沸し、放冷後ヘキサン (100ml×2) で中性物質を除去した後、水層を塩酸々性とし100mlのエーテルで3回抽出した。エーテル層を水洗し芒硝で脱水後、減圧乾固し、少量のクロロホルムに溶解し、酸処理したフロリジルカラム [11] に展開した。150mlのクロロホルムで溶出された脂肪酸画分を減圧乾固し、ジアゾメタンでメチルエステルとした。得られた脂肪酸メチルエステル約1mgをMcCloskeyらの方法 [12] に従い、オスミウム酸々化後、2mgのPhenyl boric acid(PBA) のピリジン溶液を加え、15分間室温に放置した後、減圧乾固し、アセトニトリルに溶解した。

HPLCによる分析は次のような条件で行った；JASCOのTri-Rotor, カラムはLiChrosorb RP-18 (250mm×4mm i.d.)、検出器 (JASCO UVIDEIC-100-II) の波長は225nm, 溶出溶媒はアセトニトリル 0.5ml/min. 紫外線吸収スペクトルは日立 557 型二波長分光々度計で測定した。マススペクトルは、JEOL JMS D-300 を使用し、イオン化電圧 70eV, 加速電圧 3.0kV, イオン源温度 200°C の条件で直接導入法により測定した。

### 実験結果及び考察

脂肪酸は紫外部に吸収や蛍光を持たないので、HPLCによる分析は各種誘導体として行われている [13, 14, 15, 16, 17, 18]。しかし、これらの方法はいずれもカルボニル基をラベル化する方法であり、不飽和脂肪酸のみの分析には不適である。このため、不飽和脂肪酸の二重結合をオスミウム酸で酸化 [12] し、得られたジオールをPBAと脱水縮合させ Phenyl boronate (PhB) 誘

導体とした後、HPLCによる分析を試みた。

オレイン酸 (18:1ω9) の PhB 誘導体の紫外線吸収スペクトルはFig.1 (B)に示すように、225nm, 268nm, 274nmに吸収極大を有し、225nmと268nmの吸光度の比は、前者は後者の約2倍の強度を有している。他のモノエン酸の誘導体も同様のスペクトルを示したので、HPLCの検出器の波長は225nmとした。

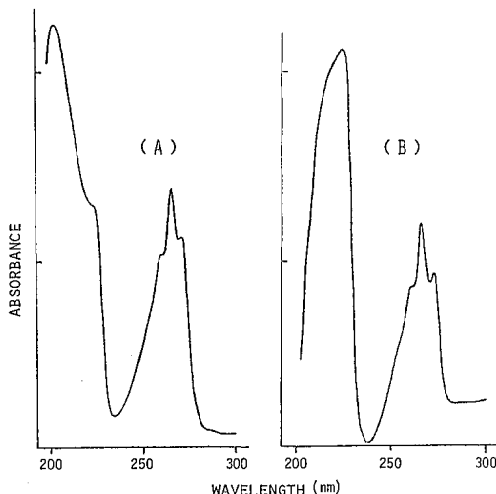


Fig. 1. Absorption Spectra of Phenyl Boric Acid (A) and Phenyl Boronate of Methyl 9, 10-dihydroxystearate (B) in Acetonitrile.

パルミトオレイン酸 (16:1ω7), オレイン酸 (18:1ω9), ベトロセリン酸 (18:1ω12) 及びエイコセン酸 (20:1ω9) の四種の *cis* 型不飽和脂肪酸メチルの PhB 誘導体の保持時間( $t_R$ )は、Fig.2に示すように、それぞれ13.0min, 17.0min, 18.2min 及び23.1minであった。炭素数18の2種の異性体 (*cis*-6 と *cis*-9) は LiChrosorb RP-18 カラムで十分分離したが、Unisil QPH カラムでは分離せず、 $\mu$ -Bondapak C<sub>18</sub> では分離が不十分であった。

イワシ中の不飽和脂肪酸メチルのPhBの誘導体のクロマトグラムは、Fig.3に示すように、C<sub>16:1</sub> 及び C<sub>18:1</sub> 領域では単一ピークで  $t_R$  は、それぞれ13.2min 及び16.9minであった。また、C<sub>20:1</sub> 及び C<sub>22:1</sub> 領域ではそれぞれ不分離ピークが見られ、 $t_R$  は C<sub>20:1</sub> 領域で 22.8min と 23.2min, C<sub>22:1</sub> 領域で 32.2min と 33.6min であった。

これらの画分を分取し、マススペクトロメトリーによる同定を行い、すべての画分に、Phenyl boronates に特徴的なフラグメントイオンである M<sup>+</sup> (親イオン)、



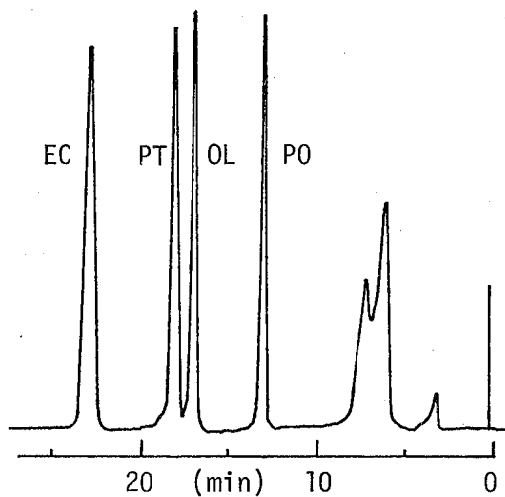


Fig. 2. HPLC of Phenyl Boronates derived from Methyl Esters of Palmitoleic (PO) Oleic (OL), Petroselinic (PT) and *cis*-11-Eicosenoic (EC) Acid. Column: LiChrosorb RP-18, Mobile phase: acetonitrile, flow rate: 0.5ml/min, detector wavelength: 225nm.

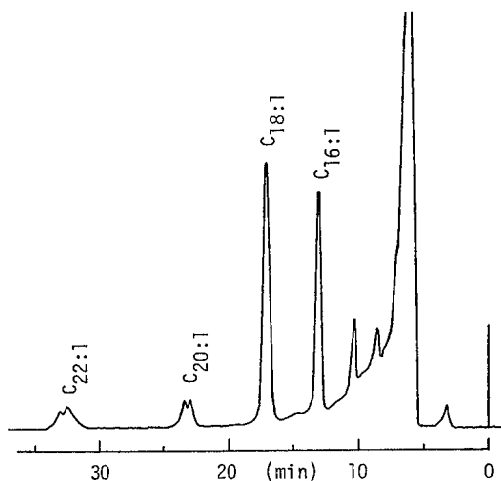


Fig. 3. HPLC of Phenyl Boronate Derivatives of Unsaturated Fatty Acid Methyl Esters extracted from Sardine Sample. Conditions see Text and Fig. 2.

$M^+-31(C_6H_5O)$ ,  $M^+-77(C_6H_5)$ , 及び  $M^+-104(C_6H_5BO)$  が認められた。これら以外の cyclic boronate に隣接するアルキル基の脱離したフラグメントイオンにより不飽和脂肪酸の二重結合の位置が決定され [12], Fig. 3 の 4 領域は次のようであった: 1)  $C_{16:1}$  画分はパルミト

オレイン酸 ( $16:1\omega7$ ) のみ, 2)  $C_{18:1}$  画分はオレイン酸 ( $18:1\omega9$ ) とバクセン酸 ( $18:1\omega7$ ) の 2 種の不飽和脂肪酸の不分離ピークであった。Fig. 2 に示したように, 6 位と 9 位に二重結合を持つ 2 種類の不飽和脂肪酸は, LiChrosorb RP-18 カラムで分離したが, 9 位と 11 位に二重結合のあるそれらは分離しなかった。3)  $C_{20:1}$  画分から  $20:1\omega13$ ,  $20:1\omega11$ ,  $20:1\omega9$  及び  $20:1\omega7$  の 4 種の, 4)  $C_{22:1}$  画分から  $22:1\omega11$  と  $22:1\omega13$  の 2 種のそれぞれ不飽和脂肪酸が同定された。これら 2 画分の前部から  $20:1\omega13$  及び  $22:1\omega13$  は検出されず,  $C_{20:1}$  画分の後部は 7 位に二重結合を有する  $20:1\omega13$ , また,  $C_{22:1}$  画分の前部は 11 位に二重結合を有する  $22:1\omega11$  であろうと推察される。しかし, この 2 画分は不分離ピークであり,  $C_{18:1}$  画分の不分離ピークとあわせ, これらの異性体の分離条件を現在検討中である。

著者が先に, イワシ魚肉中より見出した 2 種の不飽和炭化水素 (*cis*-6- $C_{17:1}$  と *cis*-8- $C_{19:1}$ ) [10] の前駆体と考えられる炭素鎖 18 と 20 の不飽和脂肪酸のうち  $C_{20:1}$  画分に  $20:1\omega11$  は見られたが,  $C_{18:1}$  画分には  $18:1\omega11$  は見い出せなかった。オレイン酸 ( $18:1\omega9$ ) は動物体に広く存在し, 脂肪酸含量の主成分であることが多い [1, 2]。伊予田と野口 [19] によれば, イワシ中の脂肪酸の主成分はパルミチン酸 ( $C_{16}$ ) で,  $C_{18:1}$  の不飽和脂肪酸がほぼ同程度でこれに次ぎ,  $C_{20:1}$  のそれは微量成分であると報告している。この  $C_{18:1}$  の大部分はオレイン酸 ( $18:1\omega9$ ) であり,  $18:1\omega11$  は微量成分で検出されなかったものと思われる。

脂肪酸の脱炭酸により対応する炭化水素が生成すること [8, 9], また, 炭酸ガスより炭素数 17 の炭化水素が生成される [20] という実験結果は, 生体内の炭化水素の前駆物質が脂肪酸であることを強く示唆している。今回の実験でイワシ魚肉中には炭素鎖 16 から 22 の不飽和脂肪酸が 9 種類存在することが明らかとなった。しかしながら, それぞれに対応する炭化水素は現在のところ検出されていない [10]。生体内ではいろいろな代謝系が複雑に絡みあい, 代謝速度も様々であるため, 成分々析の面から, 脂肪酸と炭化水素の関係を直接的に見出すことには限界はあるが, 両者の関連を推論するための一助としては必要な  $\times$  ことであり, 更に詳細な分析法を検討中である。

## 文 献

- [1] 加藤秋男: 脂質 I, 舟橋三郎, 原一郎, 山川民夫 (編), p. 23 (1970), 共立出版。

- [2] Chemistry and Biochemistry of Natural Waxes, ed. by P.E. Kolattukudy (1976), Elsevier, Amsterdam.
- [3] G. Lambertsen and R.T. Holman : Acta Chem. Scand., **17**, 281 (1963).
- [4] 西島基弘, 井部明広, 斉藤和夫, 高橋尚子, 上村尚, 落合節子, 直井家寿夫, 木村康夫 : 東京都衛生研究所年報, **28**, 116 (1977).
- [5] R.F. Law : Mar. Pollut. Bull., **9**, 321 (1978).
- [6] Y. Saito, M. Takeda, and M. Uchiyama : J. Am. Offic. Anal. Chem., **62**, 1327 (1979).
- [7] B. Nagy, V.E. Modzeleski, and W.M. Scott : Biochem. J., **114**, 645 (1969).
- [8] J. Han, H.W.-S. Chan, and M. Calvin : J. Am. Chem. Soc., **91**, 5156 (1969).
- [9] A.G. McInnes, J.A. Walter, and J.L.C. Wright : Lipid, **15**, 609 (1980).
- [10] N. Hoshita and Y. Kodama : Lipid, **17**, 390 (1982).
- [11] K.K. Carroll, J.H. Cutts, and G.D. Murray : Can. J. Biochem., **46**, 899 (1968).
- [12] J.A. McCloskey and M.J. McClelland : J. Am. Chem. Soc., **87**, 5090 (1965).
- [13] M.J. Cooper and M.W. Anders : Anal. Chem., **46**, 1849 (1974).
- [14] H.D. Dunst, M. Milano, E.J. Kitka, S.A. Connelly, and E. Gruska : Anal. Chem., **47**, 1797 (1975).
- [15] R.F. Borch : Anal. Chem., **47**, 2437 (1975).
- [16] P-T.S. Pei, W.C. Kossa, S. Ramachandran, and R.H. Henly : Lipid, **11**, 814 (1976).
- [17] R.A. Miller, N.E. Bussel, and C. Ricketts : J. Liquid Chromatogr., **1**, 291 (1978).
- [18] M. Ikeda, K. Shimada, and T. Sakaguchi : J. Chromatogr., **272**, 251 (1983).
- [19] 伊予田潤子, 野口 駿 : 家政学雑誌, **23**, 452 (1972).
- [20] J. Murray, A.B. Thomson, A. Stagg, R. Hardy, K.J. Whittle, and P.R. Mackie : Rapp. P.V. Réunion. Cons. Int. Explor. Mer., **171**, 84 (1977).

## 清涼飲料水中のステビア配糖体の定量

坂 本 征 則\*

Quantitative Determination of Stevia  
Glycosides in a Soft Drink

IKUNORI SAKAMOTO

(Received Sept. 27, 1983)

A simple analytical method using gas chromatography (GLC) was developed for determination of diterpene stevia glycosides of *Stevia rebaudiana* used as a natural sweetener. The analytical result of stevia glycosides in a food additive by the GLC method was compared with that by high performance liquid chromatographic method. The results of the two methods agreed well. The present method revealed that stevia glycosides were added at the concentration of 0.01mg/ml [calculated for stevioside (1)] in a soft drink.

*Key words:* Gas chromatography, Stevia glycosides, Stevia rebaudiana, Natural sweetener, Food additive, Soft drink.

南米パラグアイを原産地とするキク科の *Stevia rebaudiana* の葉に主として含有される甘味ジテルペン配糖体 (ステビア配糖体) は、合成甘味料の毒性、しじ糖の摂取過多による有害性が問題となっている現在、これらに代る低カロリーの天然甘味料として食品工業における広範な分野で利用されている。

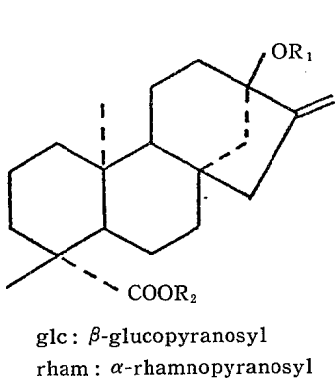
ステビア配糖体としては主成分であり甘味の本体とされていた stevioside (1) [1]、後に神田らにより単離構造決定された rebaudioside-A (2) [2] が報告されていたが、著者は配糖体分析法開発研究の一環として酵素粗ヘスペリジナーゼを用いる 1 の選択的定量法 [3] を開発中、新たに rebaudioside-C (3) [4]、-D(4)、-E(5) [5] と命名した三種の甘味配糖体を単離し、それらの構造を決定するとともに 4、5 は少量ではあるが甘味の強さ、質ともに従来の 1 よりすぐれていることを明らかにした [6]。

一方、北海道大学的小林らによっても同植物中に存在

する dulcoside-A (6)、-B の甘味配糖体が報告されているが [7]、このうち B は 3 と同一物質である。

これらの配糖体の分析法に関しては、先の酵素法による他最近では比較的含有量の多い配糖体 (例えば 1, 2, 3 など) については高速液体クロマトグラフィー (HPLC) を用いる方法が繁用されるが、同時に全ての甘味配糖体を分析することは困難である。総配糖の分析法としては宮崎ら [8] および三橋ら [9] の方法が報告されているが、今回、著者の開発した分析手法としては一般化しているガスクロマトグラフィー (GLC) による再現性のよい総配糖体の簡易定量法を、県内 T 食品会社製のステビア配糖体添加の清涼飲料水およびそこで使用されていたステビア配糖体原末の分析に応用し、天然物であるということが表示の義務がなく不明であったステビア配糖体の使用実態を明らかにすることができた。また、ステビア配糖体原末について、HPLC による分析を行い両法の結果を比較したのであわせて報告する。

\* 広島県衛生研究所 : Hiroshima Prefectural Institute of Public Health.



	R <sub>1</sub>	R <sub>2</sub>
stevioside (1)	glc <sup>2</sup> -glc	glc
rebaudioside-A (2)	glc <sup>3</sup> <math>\begin{cases} \text{glc} \\ \text{glc} \end{cases}</math>	glc
rebaudioside-C (3) (dulcoside-B)	glc <sup>3</sup> <math>\begin{cases} \text{rham} \\ \text{glc} \end{cases}</math>	glc
rebaudioside-D (4)	glc <sup>3</sup> <math>\begin{cases} \text{glc} \\ \text{glc} \end{cases}</math>	glc <sup>2</sup> -glc
rebaudioside-E (5)	glc <sup>2</sup> -glc	glc <sup>2</sup> -glc
dulcoside-A (6)	glc <sup>2</sup> -rham	glc
steviol (7)	H	H

Chart 1

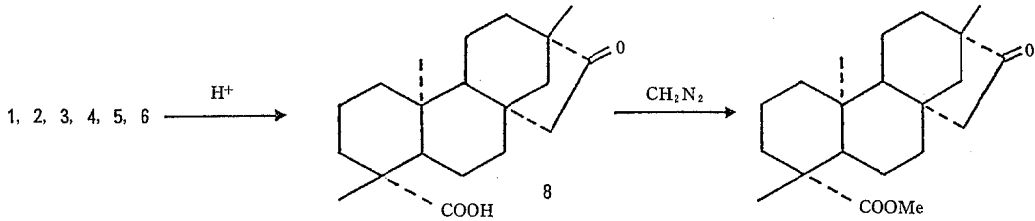


Chart 2

GLCによる定量

現在までに明らかにされているステビア配糖体は Chart 1 に示す如く全て steviol (7) を骨格とするものであるが、これらを鉱酸で加水分解すると 7 ではなく変形したアグリコン isosteviol (8) [10] が得られる。この 8 を測定することにより総配糖体の定量が可能である。そこで多量の試料を同時に処理できる簡易定量法ということも考慮して加水分解条件を検討した結果、室温における臭化水素酸による方法が最も簡単で再現性もよいことが明らかになった。生成した 8 の分析はジアゾメタンでメチル化 (Chart 2) 後、内部標準にアンドロステロンを用いる GLC 法によって行った。この場合、原末のガスクロマトグラムは Fig. 1 の様であり、1 を標準品に用いた場合の検量線は Fig. 2 の様な原点を通る良好な直線を示した。なお、本法による定量値は標準品に主成分の 1 を用いるため総配糖体量は 1 の量に換算して表わされることになる。上記の方法によりステビア配糖体原末および清涼飲料水中のステビア配糖体を測定したところ原末については 1 の量に換算して 79.0%、清涼飲料水については 0.01mg/ml の値が得られた。

HPLC による定量

ステビア配糖体原末の薄層クロマトグラムを Fig. 3 に

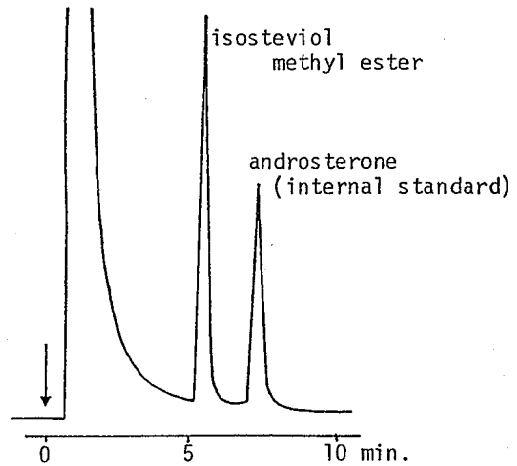


Fig. 1. Gas Chromatogram of Isosteviol methyl ester.

Column: OV-17<sub>2</sub> (4mm x 1m). Column temp.: 240°. Detector temp.: 270°. Carrier gas: N<sub>2</sub>, 40ml/min.

示す。多少他の配糖体らしきものの混在も認められるが、ほとんどが 1, 2, 3 であることが明らかになった。この三種の化合物は HPLC での分離定量が可能であるので、本法による原末および清涼飲料水についての定量を試みた。Fig. 4 は原末の高速液体クロマトグラムである。1, 2, 3 それぞれについて検量線を作成し、

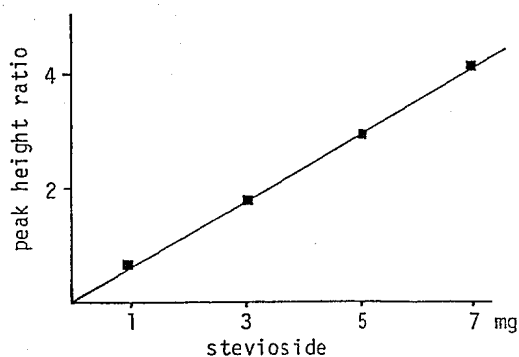


Fig. 2. Calibration Curve of Isosteviol methyl ester from Stevioside

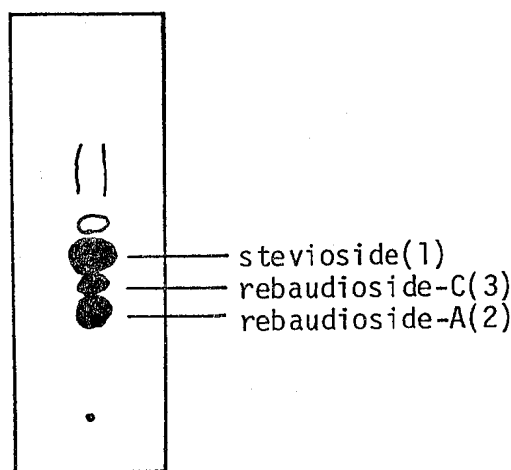


Fig. 3. Thin Layer Chromatogram of Stevia Glycosides in a Food Additive  
 $\text{CHCl}_3\text{-MeOH-H}_2\text{O}(15:6:1)$ . Si gel.  
 Detection:  $\text{H}_2\text{SO}_4$ .

各々の含量を求めると 1 49.8%, 2 25.0%, 3 8.8% で合計 83.6% であった。一方、清涼飲料水については 1 に保持時間の一致する大きなピークが観察されたが、このピークは Fig. 4 に示すような 2, 3 に相当するピークを伴っていないため 1 のピークとは考えられず、また GC 分析の結果より添加量も少ないことから一般的に用いられるステビア配糖体の分離分析の条件では今回の清涼飲料水の分析は不可能であることが明らかになった。

以上ステビア配糖体原末および清涼飲料水中のステビア配糖体を新たに開発した GLC 法、最近一般的に常用

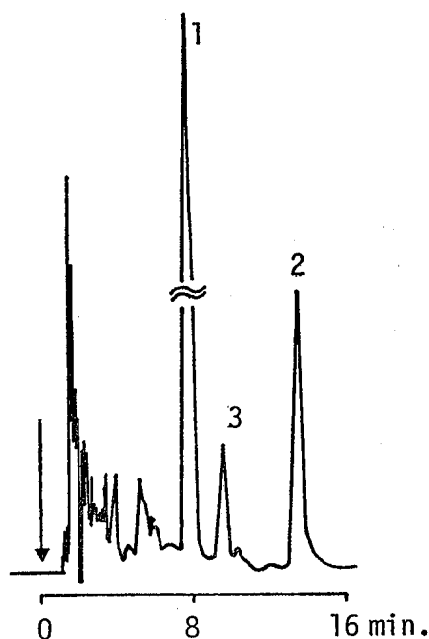


Fig. 4. High Performance Liquid Chromatogram of Stevia Glycosides in a Food Additive.

Column: TSK LS-450K (4mm×30cm). Mobile phase:  $\text{CH}_3\text{CN-H}_2\text{O}(8:2)$ . Flow rate: 2.0 ml/min. Temp.: room temperature. Detector: UV 21nm (range 0.16).

1: stevioside (1), 2: rebaudioside-A (2), 3: rebaudioside-C(3).

されている HPLC 法によって定量した。原末の定量値は GLC 法では 79.0%, HPLC 法では 83.6% と異なり、HPLC 法が高い値を示したが、これは GLC 法では 1, 2, 3 のうちで最も分子量の小さい 1 を標準物質として使用したことと主として起因するものと考えられる。上記の如く両法には測定値に若干の差異が認められたが、GLC 法は原末だけでなく食品に微量添加された場合の HPLC 法では妨害をうける試料を対象とする簡便な方法として十分実用的であると思われる。

食品添加物としてのステビア配糖体は一般に 75~85% (HPLC 定量値) のものが良質と言われており、今回分析対象とした原末は、無色で一見してかなり精製されているものであることがうかがえたが、その分析値からも品質のよいものであることが明らかになった。また、清涼飲料水中には 0.01 mg/ml 前後の割合で添加されていることも判明したが、これは今回の新しい分析法によってはじめて明らかにされ得た事実である。

実験の部

GLC法による定量

1の3~5mgに相当する量の試料をとり(試料が溶液の場合は溶媒を留去する), 48% 臭化水素酸1mlを加えて一夜放置。反応液に水20mlを加え, Et<sub>2</sub>Oで抽出(20ml×3)。Et<sub>2</sub>Oを留去後, 残渣にCH<sub>2</sub>N<sub>2</sub>のEt<sub>2</sub>O溶液を加えてメチル化を行う。反応後, Et<sub>2</sub>Oを留去し, 残渣をandrosterone 0.8mgを含むCHCl<sub>3</sub> 20mlに溶解してGLCを行いピーク高さ比を比べ, 同様に1の1~7mgについて処理し作成した検量線を用いて定量を行う。

GLC条件; YANACOG-80 (FID)。カラム: ガラスカラム (1m×4mm), 1.5% OV-17 on Chromosorb W (AW, DMCS)。N<sub>2</sub>: 35ml/min。カラム温度: 240°。注入口, 検出器温度: 275°。保持時間: isosteviol methyl ester 5.0min, androsterone (内部標準) 7.5min。

HPLCによる定量

ステビア配糖体原末50.0mgをMeOH 20.0mlに溶解し, 0.45m $\mu$ のフィルターで濾過後, 10.0 $\mu$ についてHPLCを行い1 2 3のピーク高さを求めた。別に1 (5, 10, 15mg/10ml), 2 (2.5, 5, 7.5mg/10ml), 3 (0.9, 1.8, 2.7mg/10ml)の各標準液10mlにつきHPLCを行い, ピーク高さによって作成した検量線を用いて1, 2, 3を定量した。清涼飲料水について0.45m $\mu$ のフィルターで濾過後直接そのままをHPLCに付した。

HPLC条件; ポンプ: Waters model M-6000A。インジェクター: Waters model U 6K。カラム: TSK-GEL LS-450K (30cm×3mm)。移動相: CH<sub>3</sub>CN-H<sub>2</sub>O (8:2)。流速: 2.0ml/min。検出: 210nm (JASCO UVIDEC 100-II)。保持時間: 1 8.0min, 3 9.3min, 2 12.5

min。

本研究は著者が行っている配糖体の分析法開発研究の一環としてなされたものである。これら一連の配糖体研究に関し終始御指導, 御鞭撻を賜りました広島大学医学部総合薬学科田中治教授に, また, 試料につきまして御配慮戴きました廿日市保健所環境衛生課ならびに試験検査室の方々に深謝致します。

文 献

- [1] E. Mosettig, U. Beglinger, F. Dolder, H. Lichti, P. Quitt and J.A. Waters: *J. Am. Chem. Soc.*, **85**, 2305 (1963).
- [2] H. Kohda, R. Kasai, K. Yamasaki, K. Murakami and O. Tanaka: *Phytochem.*, **15**, 981 (1976).
- [3] 坂本征則, 神田博史, 村上国子, 田中 治: 薬誌, **95**, 1570 (1975).
- [4] I. Sakamoto, K. Yamasaki and O. Tanaka: *Chem. Pharm. Bull.*, **25**, 844 (1977).
- [5] I. Sakamoto, K. Yamasaki and O. Tanaka: *ibid.*, **25**, 3437 (1977).
- [6] 笠井良次, 金田 宣, 田中 治, 山崎和男, 坂本征則, 森本一義, 岡田茂孝, 北畑寿美雄, 古川秀子: 日本化学会誌, **5**, 726 (1981).
- [7] M. Kobayashi, S. Horikawa, I.H. Degrandi, J. Ueno and H. Mitsuhashi: *Phytochem.*, **16**, 1405 (1977).
- [8] 宮崎幸男, 渡辺宏之: 熱帯農業, **17**, 154 (1974).
- [9] 三橋 博, 上野純子, 住田哲也: 薬誌, **95**, 127 (1975).
- [10] C. Djerassi, E. Mosettig, R.C. Cambie, P.S. Rutledge and L.H. Briggs: *J. Am. Chem. Soc.*, **83**, 3720 (1961).

医薬品の分析法に関する研究(IV)  
化学イオン化マスペクトロメトリーに  
よるかぜ薬中の有効成分の同時定量

金 森 久 幸\*

Analysis of Drugs (IV)  
Quantitative Analysis of the Effective Components in Anti-cold  
Drugs by Chemical Ionization Mass Spectrometry

HISAYUKI KANAMORI

(Received Sept. 27, 1983)

A new, simple and rapid analytical method using direct-inlet chemical ionization mass spectrometry (CI-MS) was developed for simultaneous determination of acetaminophen, *o*-ethoxybenzamide, phenacetin, caffeine, diphenhydramine, dextromethorphan and chlorphenylamine in anti-cold drugs. These effective components in anti-cold drugs were detected as quasi-molecular ions by CI-MS and quantitated by using an accumulation-program. The recoveries of them were 97.9–100.8% and the standard deviations were 0.1–3.2%.

*Key words: Chemical ionization mass spectrometry, Anti-cold drug, Acetaminophen, o-Ethoxybenzamide, Phenacetin, Caffeine, Diphenhydramine, Dextromethorphan, Chlorphenylamine.*

緒 言

医薬品の分析法としては、比色法、ガスクロマトグラフ法、高速液体クロマトグラフ法などが用いられているが、いずれも、目的成分によって種々の条件を変化させねばならない。そこで、いずれの成分も同一の方法で行え、同定も可能な分析法として、化学イオン化マスペクトロメトリー (CI-MS) [1] について検討し、その有用性を前報で報告した [2]。今回さらに、CI-MS の定量分析への応用を試みた。質量分析装置を用いる定量分析は、主としてマスフラグメントグラフィー [3] により行われているが、最近では、マスキンググラフィーの応用も報告されている [4]。著者は、CI-MS がほとんどフラグメンテーションを起こさないことを利用して、定められた測定質量範囲をくり返しスキャン

し、得られるデータを積算するプログラムを用いることにより、かぜ薬の有効成分の同時定量を、簡単な前処理をするだけで行うことができることを見出したので報告する。

実 験 の 部

1. 装 置 日本電子製 JMS D-300 EI/CI 共用イオン源, JMA-2000 データ処理システム。
2. 試 料 かぜ薬の主成分の標準品としては局方品を、微量成分の標準品は、塩酸ジフェンヒドラミン (東京化成製), 臭化水素酸デキストロメトトルファン (日本ロッシュ製), マレイン酸クロルフェニラミン (興和製) を用いた。市販のかぜ薬は、薬局で購入あるいは取去したものを用いた。
3. 標準溶液および試料溶液の調製

\* 広島県衛生研究所: Hiroshima Prefectural Institute of Public Health.

1) 標準溶液の調製 標準品の一定量を取り、クロロホルム-メタノール(1:1) 50mlを加えて標準原液とする。この液を段階的に希釈し、一定量の内部標準溶液を加えて、主成分は50~500ng/μl、微量成分は5~50ng/μlの濃度になるようにしたものを標準溶液とする。

2) 試料溶液の調製 目的成分の一定量に対応する量の試料を精秤し、クロロホルム-メタノール(1:1)10mlを加えてよく振りまぜたのち、超音波をかけて抽出したものを遠心分離し、上澄液に、一定量の内部標準溶液を加えて、目的成分の濃度が5~500ng/μlとなるように希釈したものを試料溶液とする。

3) 内部標準溶液の調製 p-フェニルフェノール 200mgおよび塩酸プロカイン10mgをクロロホルム-メタノール(1:1) 100mlに溶解する。標準溶液および試料溶液に添加する場合には、p-フェニルフェノールの濃度が200ng/μlとなるようにする。

4. 実験操作 標準溶液あるいは試料溶液1μlをmicro tubeに入れ、直接導入口よりイオン源に装着する。直接導入 prove の温度を室温から150°あるいは230°まで10分間で昇温する。反応ガスにはイソブタン、アンモニアを用いた。マス chromatogラフィーは、m/z 100~300を5秒間隔でくり返しスキャンすることにより行った。定量分析は、磁場及び電場スキャンにより、主成分はm/z 148~200を、微量成分はm/z 230~280を1秒以内のくり返しスキャンを行い、積算プログラムにより、得られたスペクトル強度の積算処理を行い、内部標準物質との強度比を求めることにより行った。

実験結果および考察

目的成分として、主成分ではアセトアミノフェン、o-エトキシベンズアミド、フェナセチン、カフェインの4種、微量成分ではジフェンヒドラミン、デキストロメトルファン、クロルフェニラミンの3種を選んで実験を行った。この3種の微量成分は通常、塩の形のものを用いられるが、本法では塩がはずれるため、どのような塩を用いても同一のものとして分析できる。

1. 測定条件の検討

1) 昇温速度 本定量法は、減圧下で気化した各成分を、反応ガスと反応させイオン化して測定する方法であるから、各成分をすべて気化させねばならない。そのためには、除々に micro tube を加熱することが必要で、その昇温速度を検討するため、昇温速度を変化させて、各成分の擬似親イオン(QM+)のマス chromatogラムを測定した。その結果、主成分4種はFig. 1に示すように、150°まで10分間で昇温すれば、最も気化が遅いア

セトアミノフェンでも7分までにはすべて気化することがわかった。また、微量成分は、主成分に比較して沸点が高いが、Fig. 2のように、230°まで10分間で昇温すればすべて気化することがわかった。したがって、主成分の定量は150°まで、微量成分の定量は230°まで10分間で昇温することにした。

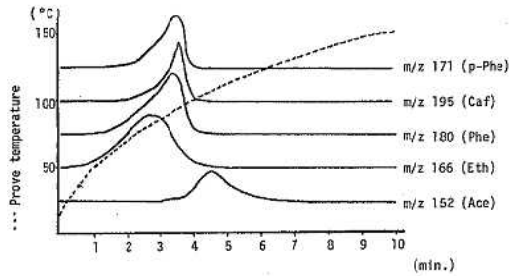


Fig. 1. Mass Chromatograms of Acetaminophen (Ace), o-Ethoxybenzamide (Eth), Phenacetin (Phe), Caffeine (Caf) and p-Phenylphenol (p-Phe).

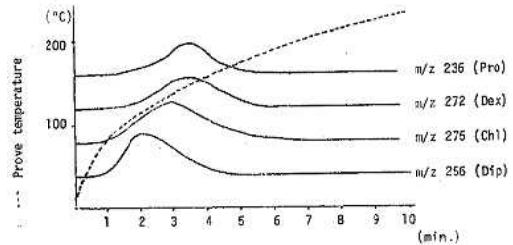


Fig. 2. Mass Chromatograms of Diphenhydramine (Dip), Chlorphenylamine (Chl), Dextromethorphan (Dex) and Procaine (Pro).

2) スキャンング 本法で用いた積算プログラムでは、磁場、電場スキャンの選択、測定質量範囲、スキャンスピードの設定が可能である。磁場・電場の選択については、電場の方が早いスキャンができるが、測定質量範囲が初期設定質量の2倍までとせまく、加速電圧を変化させるため、ピーク強度が質量の増加と共に減少する。そこで、広範囲の質量領域で同一のピーク強度が得られる磁場スキャン法を採用した。また、測定質量範囲およびスキャンスピードは、主成分の場合がm/z 148~200を1秒で、微量成分の場合は m/z 230~280を0.65秒で行うこととした。

2. 内部標準物質の検討 本法は、注入量が少く、micro tube を加熱して成分を気化させるため、絶対検量線法



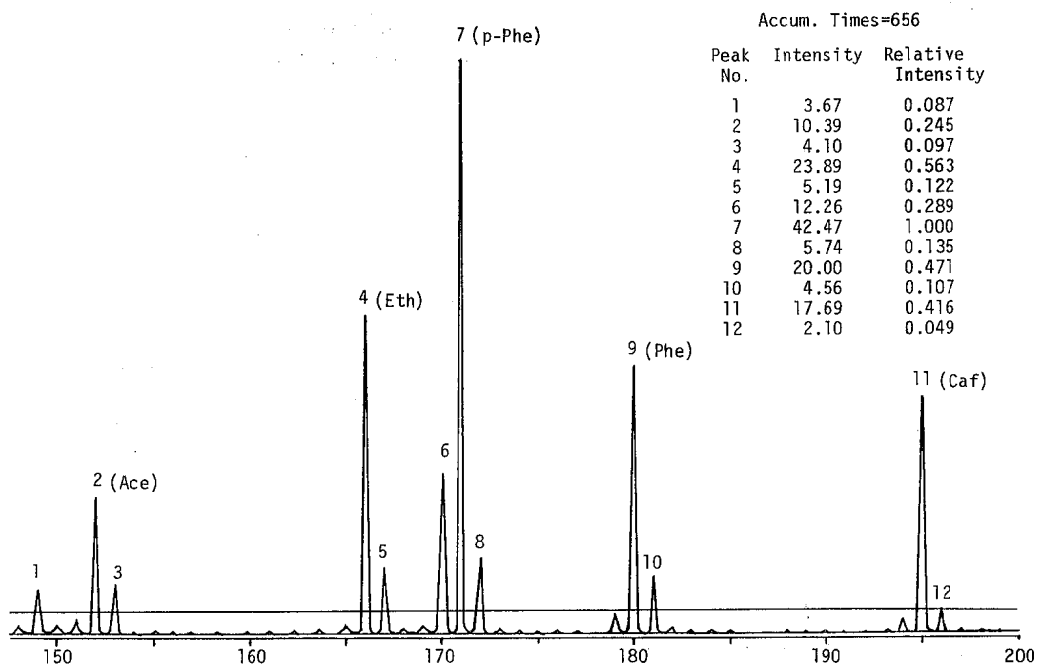


Fig. 3. Accumulated Mass Spectrum of Acetaminophen (Ace), o-Ethoxybenzamide (Eth), p-Phenylphenol (p-Phe), Phenacetin (Phe) and Caffeine (Caf).

では誤差が大きくなってしまふ。そこで、内部標準法を検討した。通常、マスフラグメントグラフィーで用いる内部標準物質は、目的成分のd置換体が多い[5]。しかし、本法は多成分の同時定量であるので、入手のむずかしいd体を用いることはせず、容易に入手でき、できるだけ構造の類似しているもので代用を試みた。また、内部標準物質はQM<sup>+</sup>が測定質量範囲内にあり、CI-MSによるピークが目的成分のQM<sup>+</sup>に影響せず、同じ昇温速度ですべて気化するような物質でなければならない。以上のような条件を満たす物質を探した結果、主成分の定量には分子量170のp-フェニルフェノールを、微量成分の定量には分子量230のプロカイン(塩酸プロカインを用いる)を用いることにした。

3. 検量線の作製 各濃度の標準溶液1μlをmicro tubeに入れ、各実験操作に基づいて操作し、積算スペクトルを得る。主成分各100ngの時のスペクトルをFig. 3に示した。反応ガスにはイソブタンを用いたが、m/z 152にアセトアミノフェン、m/z 166にo-エトキシベンズアミド、m/z 171に内部標準のp-フェニルフェノール、m/z 180にフェナセチン、m/z 195にカフェインのQM<sup>+</sup>が観察され、それぞれのピーク強度およびp-フェニルフェノールのQM<sup>+</sup>のピーク強度を1.0とした時の相対強度が計算される(Fig. 3右上)。この各成分の

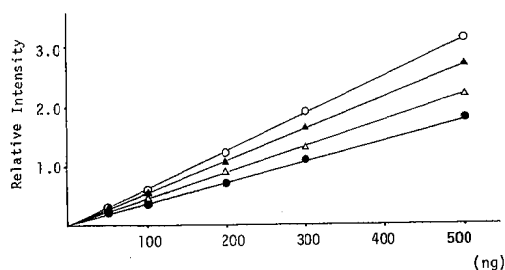


Fig. 4. Calibration Curves of Acetaminophen (●), Phenacetin (▲), Caffeine (△) and o-Ethoxybenzamide (○).

QM<sup>+</sup>のp-フェニルフェノールのQM<sup>+</sup>に対する相対強度と注入量から検量線を作製した。その結果、Fig. 4に示すように50~500ngの範囲で原点を通る直線を得た。

一方、微量成分の含有量は、主成分の1/5~1/50程度であるので、さらに高感度の測定が必要である。そこで、反応ガスにはフラグメンテーションの最も少ないアンモニアを用い、スキャンスピードを高速にして行った。Fig. 5に各成分10ngの時のスペクトルを示したが、微量であるので、主成分の場合と比較してバックグラウンドが大きくなっているが、各成分のQM<sup>+</sup>は十分に観察される。主成分と同様に、各成分のQM<sup>+</sup>のプロカインの

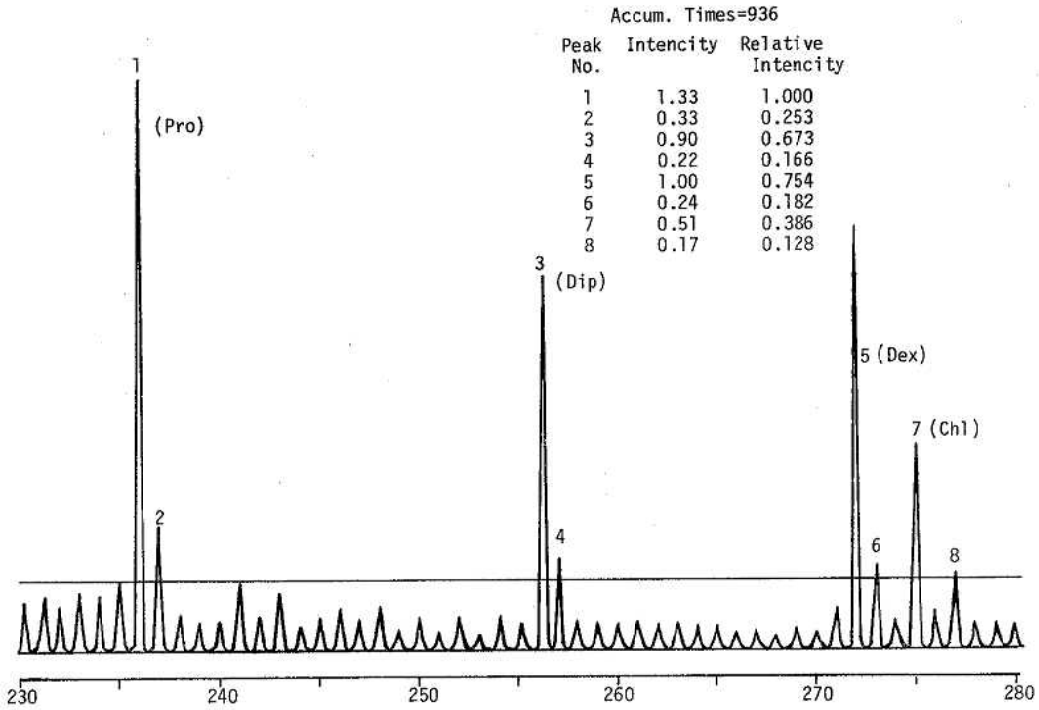


Fig. 5. Accumulated Mass Spectrum of Procaine (Pro), Diphenhydramine (Dip), Dextromethorphan (Dex) and Chlorphenylamine (Chl).

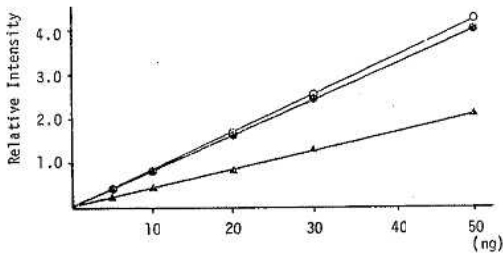


Fig. 6. Calibration Curves of Diphenhydramine (●), Chlorphenylamine (▲) and Dextromethorphan (○).

QM<sup>+</sup>に対する相対強度比を濃度を変えて測定し、5~50ngの範囲で原点を通る直線を得た (Fig. 6).

4. 調製試料および市販製剤の定量 以上確立された定量法を用い、Table Iに示す調製試料中の各成分の定量を行ったところ、回収率97.9-100.8%、標準偏差0.1-3.2%であった。また、市販製剤中の各成分の定量を行った結果をTable II, IIIに示した。Table IIの上段は、各々の製剤の製造承認書に記載された定量法による値、下段が本法による定量値で、表示量に対する%で示した

Table I. Determination of Sedatives and Antipyretics in Mixed Sample

	Recovery (%) (n=6)	Standard deviation
Acetaminophen	97.9	2.0
o-Ethoxybenzamide	99.8	0.1
Phenacetine	100.1	0.3
Caffeine	100.8	0.6
Diphenhydramine	98.6	1.8
Dextromethorphan	99.2	1.5
Chlorphenylamine	98.9	3.2

acetaminophen 150mg, o-ethoxybenzamide 200mg, phenacetin 200mg, caffeine 300mg, diphenhydramine 20mg, dextromethorphan 20mg, chlorphenylamine 10mg and starch 370mg.

が、いずれもほぼ一致した値が得られた。Table IIIは、比色法によるマスキングの結果、表示量の90-110%の範囲に入らなかった製剤について行ったもので、上段が比色法による定量値、中段が製造承認書記載の方法による定量値、下段が本法による定量値である。

Table II. Determination of Sedatives and Antipyretics in Commercial Drugs.

Compounds	A	B	C	D	E	F	G	H
Acetaminophen	98.7 99.5	98.0 98.3	99.2 99.2	96.8 95.7	—	—	—	—
o-Ethoxybenzamide	101.8 100.3	97.5 98.0	—	—	102.1 101.5	—	93.1 93.6	99.5 98.4
Phenacetin	—	—	98.8 100.4	—	96.5 97.6	107.3 105.1	94.5 97.4	—
Caffeine	97.6 99.0	103.0 101.2	100.7 99.8	97.7 98.9	94.8 96.6	106.5 105.8	92.2 91.5	102.4 99.3
Diphenhydramine	—	—	97.0 97.3	—	—	97.2 96.7	—	—
Dextromethorphan	98.6 101.2	—	—	—	—	—	—	—
Chlorphenylamine	—	—	—	102.3 101.4	—	—	—	100.2 99.5

All values are expressed as percents against the indicated contents.

The upper values were measured by the methods described in their application for manufacturing drugs.

The under values were measured by this method.

Table III. Determination of Sedatives and Antipyretics of Commercial Drugs.

Compounds	I	J	K	L	M
Acetaminophen	—	—	153.1 103.9 99.7	83.3 93.3 82.4	2.0 1.4 1.0
o-Ethoxybenzamide	—	132.0 109.5 107.2	97.2 95.0	99.0 97.2	—
Phenacetin	84.6 100.2 98.8	—	—	—	56.8 57.9
Caffeine	98.1 97.0	105.3 107.1	95.3 97.3	98.1 98.7	61.0 60.2
Diphenhydramine	—	102.0 103.4	—	—	—
Dextromethorphan	99.8 99.6	—	—	97.2 96.4	—
Chlorphenylamine	106.9 105.8	—	—	—	—

All values are expressed as percents against the indicated contents.

The upper values were measured by the screening method.

The middle values were measured by the method described in their application for manufacturing drugs.

The under values were measured by this method.

I～Lは製造承認書の方法では許容範囲に入っており、I, J, Kは本法でもほぼ一致した値が得られた。しかし、Lは比色法と本法の定量値はほぼ一致していたが、製造承認書の方法より10%程度低い値で許容範囲からはずれており、製造承認書の定量法に問題があることが示唆された。Mは全くの不良品で、アセトアミノフェンはほとんど含まれておらず、フェナセチン、カフェインも表示量の半分程度しかなかった。

### 結 語

直接導入 C I-MS と積算プログラムを組み合わせ、かぜ薬の多成分同時定量法を確立した。主成分、微量成分とも溶媒で抽出するだけの前処理で、分析操作もマスフラグメントグラフィーのようなはん雑な調整を必要とせず、すべて同一の操作で定量できた。本法の原理からすると、抽出操作もいらず、すべての成分が一度の分析で定量可能なのであるが、試料を粉末としたものを微量秤取した時の誤差が大きいことと、微量成分を精度よく

分析するために、成分を抽出し、主成分と微量成分の定量を別々に行うものとして、市販製剤の定量分析に応用し、本法の定量値と製造承認書記載の方法による定量値がよく一致した結果が得られ、行政サイドのマススクリーニングの分析法として、あるいはメーカーの品質管理のための分析法として十分使用できることが示された。

### 文 献

- [1] Munson, B.: Anal. Chem., **43**, (13) 28A (1971).
- [2] 金森久幸: 広島県衛生研究所研究報告, **29**, 31 (1982).
- [3] Hammar, C.G., B. Holmstedt and R. Ryhage: Anal. Biochem., **25**, 532 (1968).
- [4] Van T. and F.P. Abramson: Biomed. Mass Spectrom., **5**, 686 (1978).
- [5] 立松 晃, 宮崎 浩, 鈴木真悟: 医学と薬学のためのマスペクトロメトリー, 講談社, 233 (1975).

## ブタ Nephroblastoma の発生状況

妹尾正登\* 河重 豪\*\* 田中 聖\*\*\*  
寺地弘行\*\*\* 久保 滋\*\*\*

### A Survey of Nephroblastoma Occurring in Swine

MASATO SENO, TSUYOSHI KAWASHIGE, KIYOSHI TANAKA,  
HIROYUKI TERACHI AND SHIGERU KUBO

(Received Sept. 30, 1983)

#### 序 文

胎生期の腎組織から発生すると考えられている腎臓の中胚葉性混合腫瘍である腎芽腫は、ヒトでは大部分が6歳以前に発現し、幼小児期における主要な腹部悪性腫瘍である〔1〕。ブタにおいても、食用獣であるため1~2歳時までに大多数がと殺される状況もあって、ブタに発生する全腫瘍中ではリンパ腫と並ぶ主要な座を占めている〔2-4, 7, 9, 11, 12〕。また腎芽腫はニワトリに好発するが、その他の家畜ではまれな腫瘍である〔5, 6, 10〕。

米国での腫瘍発現調査により、一部特定地域において極めて高頻度にブタの腎芽腫が発生することが指摘され〔8〕、注目されている。食用に供する家畜の疾病発生状況を明らかにすることは、食品衛生および公衆衛生上重要な課題である。そこでブタの腫瘍発生状況の実態を明らかにする目的で、三次食肉衛生検査所において見出された腫瘍性疾患について病理形態学的に調査を行ったところ、6例の腎芽腫が認められた。その病理組織学的所見について概略を記載し、本腫瘍の発生状況について若干の文献的考察を加えて報告する。

#### 材料および方法

三次食肉衛生検査所においては、過去3年間にわたって約15万頭のブタのと畜検査が実施されて来たが、その

際に肉眼的に腫瘍性疾患を疑われる病渠はこれを選択し、ホルマリン固定を行い、常法によりH.E.染色を施し病理組織学的検査に供した。

#### 成 績

##### 1. 腎芽腫6例の発生概要

6症例の概要は次の通りである。

(症例1) 雑種、オス、推定年齢6ヶ月~1歳、体重115kg、産地比婆郡西城町。

(症例2) 雑種、性別不詳、推定年齢6ヶ月~1歳、体重115kg、産地世羅郡甲山町。

(症例3) 雑種、オス、推定年齢6ヶ月~1歳、体重105kg、産地比婆郡西城町。

(症例4) 雑種、メス、推定年齢6ヶ月~1歳、体重120kg、産地世羅郡甲山町。

(症例5) 雑種、メス、推定年齢6ヶ月~1歳、体重115kg、産地高田郡高宮町。

(症例6) 雑種、性別不詳、推定年齢6ヶ月~1歳、体重110kg、産地不明。

病理組織学的に腎芽腫と診断されたこれら6例のブタは、いずれも臨床的には著変を示さず、剖検時に腎臓における大小の軟らかい灰白色腫瘤として認められた。

腎芽腫の発現頻度は、と畜検査頭数約15万頭中6例の発現であり、10万頭に対し4頭の割合であった。

\* 広島県衛生研究所：Hiroshima Prefectural Institute of Public Health.

\*\* 広島県可部保健所：Kabe Health Center, Hiroshima Prefecture.

\*\*\* 広島県三次食肉衛生検査所：Miyoshi Meat Inspection Center, Hiroshima Prefecture.

## 2. 病理組織学的所見

いずれの症例も上皮性腫瘍細胞と非上皮性腫瘍細胞とが種々の程度に混在した腺肉腫像と腎尿管および腎糸球体類似構造形成能が特徴である。上皮性成分、非上皮性成分の混成割合をみると、上皮性成分が優性(Fig. 1)なものの3例(症例1, 2, 5)、ほとんど肉腫様増殖像のみ(Fig. 2)が占め一部に管腔形成能を認め得る(Fig. 3)もの1例(症例4)、および両者が中等度に混在しているもの2例(症例3, 6)である。

円形ないし卵円形の核をもつ上皮性腫瘍細胞は、単層または部位により重層の管状、腺房状の組織形態を示し、管腔が拡張しノウ胞状を示す部位では、扁平上皮化が見られる。分化した腫瘍細胞は腎尿管をよく模倣している。やや小型の卵円形または多角形の非上皮性腫瘍細胞は、び慢性の増殖様式を示す。これらの腫瘍細胞は一部で、腺房状構造の内部一側に集まり、管腔内に突出しているものも見られる。分裂像は全症例共少ない。腎糸球体類似構造は、未分化で腎糸球体形成能のみうかがえるものから腎糸球体を模倣しかなり分化したもの(Fig. 4)まで各分化段階のものが認められた。しかし、よく分化した腎糸球体類似構造においても毛細血管は認められない。

以上の所見より病理組織学的に6症例共、Nephroblastoma [11]と診断し得る。

## 考 察

腎芽腫は、2歳時までに92%が発現し、その内77%までが1歳時以下に発現している[15]。ブタは食用獣であり5、6ヶ月齢から2歳時までに大多数がと殺されるという特殊性もあり、1歳以下での発現が93%を占めるとする報告[8]もある。本腫瘍の発現に性差があったとする報告[15]があるが、ヒトの場合[1]と同様に一般に性差は認められないようである[8, 13]。今回の6例は、いずれも発現年齢1歳以下であり、明確な性差は認められずこれらの報告とほぼ同様であった。

組織学的には、上皮性非上皮性成分の種々の程度の混在による腺肉腫像と、腎尿管および腎糸球体の模倣を特徴としていた。Sullivanら[15]は、反すう獣であるウシ、ヤギでは非上皮性成分が優性であり、ブタでは125例を検索し、上皮性成分が優性であるもの93例、非上皮性成分が優性であるもの17例、両者が中等度のもの15例であったことから、上皮性成分が優性であると述べている。この観点から今回の6例を見ると、上皮性成分が優性なもの3例、非上皮性成分が優性なもの1例、両者が中等度に混在したもの2例で、やや上皮性成分が優性で

あり、Sullivanら[15]の報告を裏づける結果であった。

英国では全と畜頭数の約3分の1に当たる370万頭について調査を行い、139の腫瘍例中13例の腎芽腫が認められた[2, 13]。これは10万頭当り0.35頭の発現頻度であったことを示している。米国では、Monluxら[9]が2年間で約100万頭を調査し、その結果から10万頭当り約1.3頭の出現頻度であったとしている。その後、Migakiら[8]は1ヶ月間で470万頭におよぶ全米調査を行い、10万頭当り4.3頭の出現頻度であった。しかし、一部の特定地域では、全調査対象頭数の1割にもかかわらず、全地域での腎芽腫総数の45%を占め、10万頭当り20頭の高頻度を示しており、その一部特定地域以外での発現頻度は、10万頭当り2.6頭の割合となる。我国では、全国でと殺されるブタの約1割を扱う芝浦と場において3ヶ年間に渡って調査されている。検査頭数160万頭で腎芽腫4例が見出され、10万頭に対し0.25頭の発現頻度であった[7]。今回の我々の調査では、10万頭に対し4例の発現頻度であり、前述の一部特定地域を除き過去の報告と比較してやや高頻度の腎芽腫の発現と思われる。

腎芽腫はリンパ肉腫と並ぶブタの好発腫瘍であり、両者の発現頻度はよく比較される。Sullivanら[15]の調査では、リンパ肉腫473例、腎芽腫220例とリンパ肉腫が圧倒的に多く発現している。同様にリンパ肉腫が腎芽腫より多く発現することを示す報告[2-4, 7, 12, 13]は多い。しかし、腎芽腫の方がリンパ肉腫よりやや多く発現した調査成績もある[8, 9]。今回の調査期間中のリンパ肉腫の発現は1例[14]であった。腎芽腫6例の発現は、リンパ肉腫の発現との比較においても高頻度の傾向を示した。

以上の如く三次食肉衛生検査所におけるブタの腎芽腫の発現頻度は、高い傾向を示すものと思われる。しかし、調査頭数約15万頭と少なく不明な点も多い。さらに調査を続け食用獣の腫瘍発生状況を明らかにする必要がある。

## 要 約

三次食肉衛生検査所におけるブタの腫瘍発生状況調査において、検査頭数約15万頭中6例の腎芽腫が見出された。6症例は、いずれも年齢6ヶ月～1歳、体重105～120kgの雑種のブタで、腫瘍発現に明らかな性差は認められなかった。6症例共臨床的には著変を示さず、肉眼的に腎臓における大小の軟らかい灰白色腫瘍として認められた。組織学的には、上皮性非上皮性腫瘍細胞の混在による腺肉腫像と、腎尿管および腎糸球体構造の模倣

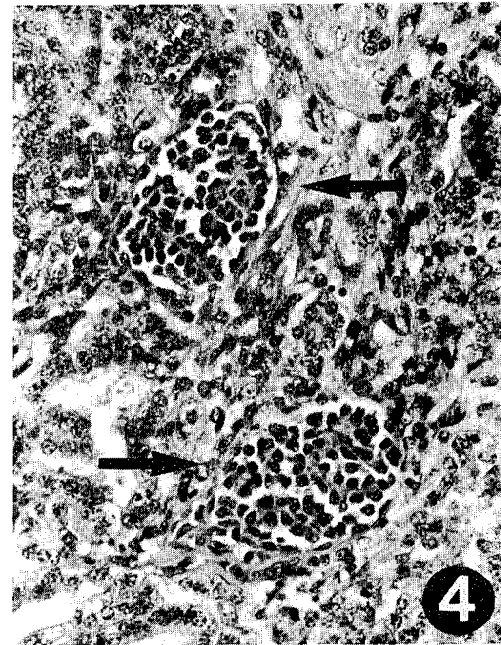
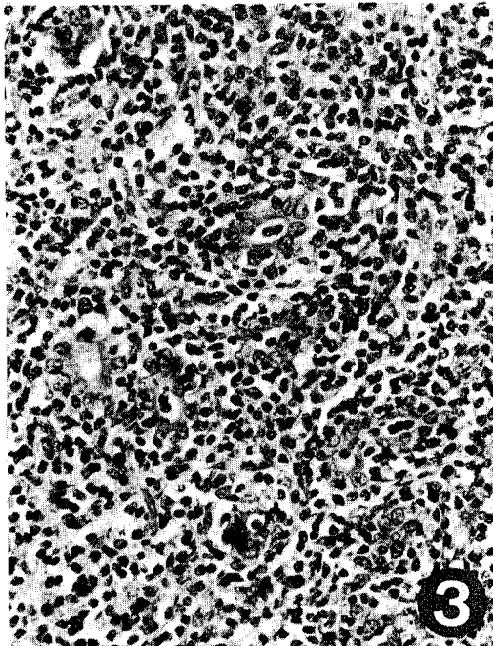
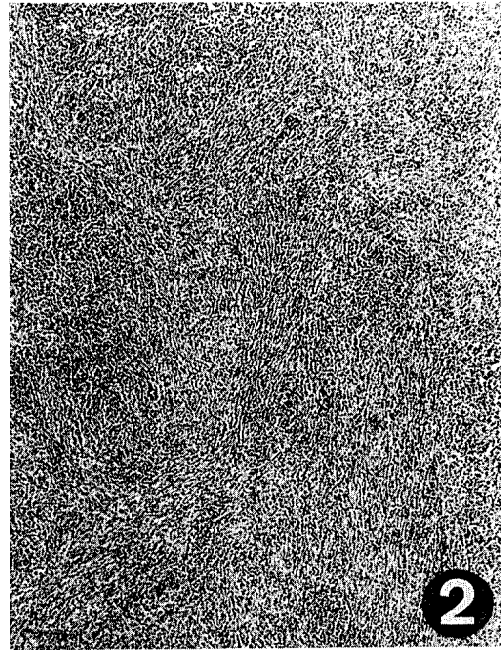


Fig.1. 症例1. 上皮性腫瘍細胞による腺房状ノウ胞状構造を示す. H.E.,  $\times 60$ .

Fig.2. 症例4. 腫瘍細胞の慢性肉腫様増殖像を示す. H.E.,  $\times 60$ .

Fig.3. 症例4. 上皮性腫瘍細胞による管腔形成を示す. H.E.,  $\times 300$ .

Fig.4. 症例5. 分化した腫瘍細胞による腎糸球体類似構造(矢印)を示す. H.E.,  $\times 300$ .

を特徴としていた。上皮性腫瘍細胞が優性なもの3例、非上皮性腫瘍細胞が優性なもの1例、両者が中等度に混在するもの2例であり、上皮性腫瘍細胞が優性である傾向を示した。腎芽腫発現頻度は、10万頭に対し4例の割合でリンパ腫の発現よりも多く、文献的に比較しやや高い傾向にあった。

謝 辞

稿を終えるにあたり、御指導御校閲を賜りました広島県衛生研究所所長海佐裕幸博士に深謝いたします。

文 献

- [1] Anderson, W.A.D. and Kissane, J.M. (1977) : Pathology. 7th ed., Vol. 1, p. 971—972, Saint Louis, The C.V. Mosby Company.
- [2] Anderson, L.J., Sandison, A.T. and Jarrett, W.F.H. (1969) : A British abattoir survey of tumours in cattle, sheep and pigs. *Vet. Rec.*, 84, 547—551.
- [3] Brandly, P.J. and Migaki, G. (1963) : Types of tumors found by federal meat inspectors in an eight-year survey. *Ann. New York Acad. Sci.*, 108, 872—879.
- [4] Cotchin, E. (1960) : Tumours of farm animals : A survey of tumours examined at the Royal Veterinary College, London, during 1950—60. *Vet. Rec.*, 72, 816—822.
- [5] Jones, T.C. and Hunt, R.D. (1983) : *Veterinary Pathology*. 5th ed., p. 1490—1492, Philadelphia, Lea & Febiger.
- [6] Jubb, K.V.F. and Kennedy, P.C. (1970) : *Pathology of domestic Animals*. 2nd ed., Vol. 2, p. 316—318, New York, Academic Press.
- [7] 小林和雄 (1967) : 家畜腫瘍の研究. II) 豚の腫瘍について. *東京獣医学畜産学雑誌*, 16, 7—13.
- [8] Migaki, G., Nelson, L.W. and Todd, G.C. (1971) : Prevalence of embryonal nephroma in slaughtered swine. *J. Am. Vet. Med. Assoc.*, 159, 441—442.
- [9] Monlux, A.W., Anderson, W.A. and Davis, C.L. (1956) : A survey of tumors occurring in cattle, sheep, and swine. *Am. J. Vet. Res.*, 17, 646—677.
- [10] Moulton, J.E. (1978) : *Tumors in domestic animals*. 2nd ed., p. 291—295. Los Angeles, Univ. California Press.
- [11] Nielsen, S.W., Mackey, L.J. and Misdorp, W. (1976) : International histological classification of tumours of domestic animals. XVIII. Tumours of the kidney. *Bull. WHO*, 53, 237—245.
- [12] Plummer, P.J.G. (1956) : A survey of six hundred and thirty six tumours from domesticated animals. *Can. J. Comp. Med. Vet. Sci.*, 20, 239—251.
- [13] Sandison, A.T. and Anderson, L.J. (1968) : Tumors of the kidney in cattle, sheep and pigs. *Cancer*, 21, 727—742.
- [14] Seno, M., Umisa, H., Yamane, H., Fukuda, S. and Chiba, G. (1980) : A case of malignant nodular lymphosarcoma in swine. *Jpn. J. Vet. Sci.*, 42, 259—263.
- [15] Sullivan, D.J. and Anderson, W.A. (1959) : Embryonal nephroma in swine. *Am. J. Vet. Res.*, 20, 324—332.



## 先天性代謝異常症等マス・スクリーニング： 広島県における過去5年間の成績について

水 田 満 里\*      中 富 美 津 江\*  
妹 尾 正 登\*      海 佐 裕 幸\*

### Mass Screening for Inborn Errors of Metabolism and Congenital Hypothyroidism: Mass Examination of 6 Diseases in Hiroshima, 1977—1982

MARI MIZUTA, MITSUE NAKATOMI, MASATO SENO  
AND HIROYUKI UMISA

(Received Oct. 11, 1983)

#### はじめに

先天性代謝異常症による精神薄弱あるいはその他の疾患の発現を防止するために、早期発見、早期治療を目的とした新生児のマス・スクリーニングの事業が昭和52年10月1日から厚生省によって全国的な行政レベルで開始された。

広島県においても広島市地区の新生児を広島市医師会臨床検査センターが担当し、広島市を除く郡、市の新生児を当所で担当し、フェニールケトン尿症等の5種の疾患についてのマス・スクリーニングを県下の医療機関の協力を得て実施してきた。その後、昭和54年10月からは新たに、先天性甲状腺機能障害によるクレチン症のスクリーニングも加わり、この事業も一段と充実してきた。

ここに開始当初より5年半を経過した現在、当所における実施状況とその成績、および問題点についてのまとめを報告する。

#### 実施対象及び方法

1. 検査対象疾患：フェニールケトン尿症、ホモシスチン尿症、ヒスチジン血症、楓糖尿症、ガラクトース血症、先天性甲状腺機能低下症（クレチン症）。

2. 対象者：広島県内（広島市およびその周辺地区を

除く）で生まれた新生児のうち、保護者が希望するもの。

3. 検査材料：医療機関が広島県先天性代謝異常等検査要領〔1〕に基づいて採血したる紙。

#### 4. マス・スクリーニング法

厚生省の先天性代謝異常検査実施要綱に基づき日本公衆衛生協会〔2〕の指定する方法によって検査を実施した。すなわちフェニールケトン尿症などのアミノ酸の代謝異常による疾病についてはガスリー法でアミノ酸値を測定し、ガラクトース血症についてはポイトラー法によるガラクトース-1-リン酸ウリジルトランスフェラーゼの酵素活性を測定した。クレチン症についてはRIA法でのTSHの測定を広島市医師会臨床検査センターに依頼した。

表1. 判定基準

代謝異常物質	カット オフ ポイント
フェニールアラニン	4 mg/dl
メチオニン	2 mg/dl
ヒスチジン	6 mg/dl
ロイシン	4 mg/dl

\* 広島県衛生研究所：Hiroshima Prefectural Institute of Public Health.

広島県衛生研究所研究報告 No.30 (1983)

表2. 年度別受付検体数

期 間	52年度	53年度	54年度	55年度	56年度	57年度	
	52.10.1 53.3.31	53.4.1 54.3.31	54.4.1 55.3.31	55.4.1 56.3.31	56.4.1 57.3.31	57.4.1 58.3.31	
受付初回検体数	6236	15617	15201	15111	14307	14679	81151
再採血数 (%)	181 (2.9)	457 (2.9)	370 (2.4)	388 (2.6)	333 (2.3)	316 (2.2)	2045 (2.5)
計	6417	16074	15571	15499	14640	14995	83196
出生児数*	7987	16278	14953	14719	14340		
受診率(%)	78	95.9	101.6	102.7	99.8		

\* 広島県人口動態統計年報(3).

表3. 再採血依頼件数の内訳およびその回収について

理 由	52年度		53年度		54年度		55年度		56年度		57年度		総 計	
	依頼	回収	依頼	回収	依頼	回収	依頼	回収	依頼	回収	依頼	回収	依頼	回収
疑陽性のため (%)	69	51 (74)	382	305 (80)	285	213 (75)	263	243 (92)	226	217 (96)	170	168 (92)	1395	1197 (86)
検体不備のため (%)	146	68 (47)	128	53 (41)	90	46 (51)	88	68 (77)	69	56 (81)	34	25 (74)	555	316 (57)
阻害作用による検査不能のため (%)	51	30 (59)	80	49 (61)	52	40 (77)	60	51 (85)	44	39 (89)	55	47 (86)	342	256 (75)
計 (%)	266	149 (56)	590	407 (69)	427	299 (70)	411	362 (88)	339	312 (92)	259	240 (93)	2292	1769 (77)
その他														
低体重哺乳不良のため	22	6	42	16	36	14	12	8	10	5	2	1	124	50
阻害作用が僅少のもの	97	35	86	24	77	38	36	17	32	11	39	21	367	146
計	119	41 (34)	128	40 (31)	113	52 (46)	48	25 (52)	42	16 (38)	41	22 (54)	491	196 (40)

( ) 内は回収率.

5. 判定基準

血中アミノ酸測定用標準血液ろ紙は富士臓器のものを使用し、カットオフポイントは表1の基準に従って判定した。

ポイトラー法によるガラクトース血症の検査はガラクトセミア・テスト(ペーリンガーマンハイム)を用い、ガラクトースー1ーリン酸ウリジルトランスフェラーゼ

の活性の著しい低下または欠除したものを疑陽性と判定した。

初回検査で疑陽性のものは採血機関に再検査のための再採血を依頼し、その結果が疑陽性、または陽性であれば精密検査機関である広島大学医学部小児科で精密検査を受けるように依頼通知を出した。

## 実施結果とその考察

### 1. 検査実施状況について

昭和52年10月から昭和58年3月末までに当所に検体を送付してきた医療機関は109施設であり、その内訳は総合病院20施設、個人病院73施設、その他16施設であった。

送付された検体についての年度別の検体受付状況は表2に示した。

検査開始当初から58年3月末までの初回受付検体数(実施人員数)は81,151人であり、年平均約1万5千人であった。そのうち何らかの理由により再検査を必要として、再採血されて送付されてきた検体は2,045検体であり、初回検査の2.5%であった。出生児数に対する実施人員数の割合を受診率としてみると、この事業の開始当初の52年度は78%の受診率であったが次年度の53年は96%、54年度からは100%を越えた。受診率が数字上100%を越えた理由は担当地区以外からの里帰り分娩による増加が含まれているためと推定される。

いづれにしても受診率が100%に近いことは間違いなく、この事業が軌道にのり、理解されたものと解釈でき喜ばしいことである。

### 2. 再採血依頼件数とその回収率について

初回検査後、再検査のために再採血を依頼した内訳は表3に示した。再採血依頼の理由は大きくは3つに分類される。すなわち、初回の検査で疑陽性となったもの、検体不良のため検査不能なもの、およびガスリー法における枯草菌の発育阻害物質含有のため判定不可能なものである。その他に低体重で哺乳不良の場合と、上記の阻害物質の影響が若干推定させられるが判定は可能な場合の2項目については、再検査した方が望ましい旨の添書を送付した。

再採血依頼件数の最も多いのは疑陽性のためによるもので初回検査数に対して1.7%あった。ついで検体不備によるものが0.7%であり、阻害物質含有のため判定不能によるものが0.4%であった。その他の項目のものは0.6%あった。

再採血依頼件数について5年半の年度別の推移をみると、いづれの項目も年度を経過するにつれて再採血依頼件数は減少した。とくに検体不備による依頼件数の減少が顕著であった。

再採血依頼に対する全体の回収率は77%であるが、依頼理由別の回収率をみると疑陽性の場合が85%と一番良

好であり、ついで阻害物質による判定不能の場合が75%、検体不備のもの57%であった。その他の項目の回収率は40%と低かった。

年度別の回収率の推移をみると、いづれの依頼理由の場合も年度を経過するにつれて、回収率は良好となった。とくに疑陽性については55年度からは90%以上の回収率となった。検体不備によるものの回収率が検査開始当初の52年度から54年度まで悪いのが目立つが55年度からは70%を越えるようになった。しかしながらこのような回収率では再採血が出来ずに未検査となっている例が多いことでもあるので、この様な事態は出来るだけ避けねばならない。

これら回収率が良好とはいえない理由として考えられることは先天性代謝異常症の発生率の低さと再採血時点でのベビーの正常発育や、不在で採血出来ないこと等が考えられるが、今後回収率を100%に近づけるべき何らかの対策と努力が必要であることを痛感している。

### 3. 不備検体について

送付された検体のうち表4に示した不備内容のそれぞれに該当することにより検査できなかった検体の内訳は図1に示した。

表4. 検体不備による再採血依頼の要項

検体不備の理由	
1	ろ紙の○印中に血液が十分にしみこんでいない。
2	採血が生後4日以前である。
3	「ほ乳極めて不良」の新生児では、患者でも「正常」となる怖れがあるので、ほ乳が充分になるまで、5日毎に反復する。
4	血液が古い。
5	採血ろ紙郵送の遅延。
6	採血ろ紙が汚染している。
7	ろ紙に必要な事項が記載されていない。

不備検体は555件で送付された総検体数の0.7%を占めた。内訳は採血液量不足によるものが一番多く、57%と半分以上を占めた。ついで生後4日以前の採血、血液が古いそれぞれ16%、15%、哺乳極めて不良が7.2%、ろ紙の汚染3.4%の順であった。同じくそれぞれの回収率は60%、41%、60%、60%、53%であった。

年度別に不備検体の内訳をみると、採血量の不足と生後4日以前の採血によるものが年度を経過するにつれて減少した。このことは本事業の開始された当初は医療機関等でも初めてであり、不馴、未経験によるやむを得な

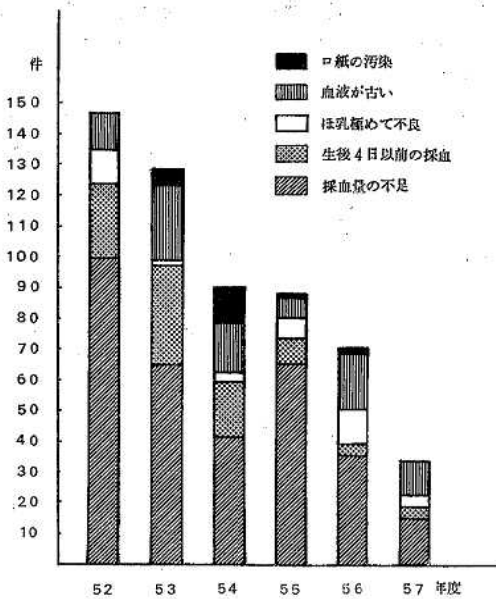


図1. 不備検体の内訳

い現象であったと思われるが、再三の連絡を取ることに  
より年度を経過する毎に減少したものと推定される。し  
かしながら送付ミスによると思われる古い検体が依然と  
して減少したとは言えないのは残念なことである。今

後、さらに医療機関との連絡を密にして、この減少に向  
けて努力したい。

#### 4. 検査結果について

総検体数81,151件のうち、カット・オフ値により初回  
で疑陽性として判定された検体について検査項目別にみ  
た内訳は表5に示した。

疑陽性者はヒスタジンを極立って多く、56.7%を占  
め、次にガラクトースが17.4%であった。逆に一番少  
なかったのはロイシンで1.8%にすぎない。全国的にみ  
ても初回検査でのヒスタジンの疑陽性者数は多い傾向に  
あり、このことは血中ヒスタジン値の平均値が高いた  
めに、重ね塗り等による採血量の多少や、採血時期〔4〕  
(哺乳直後)等による変動によって、カットオフ値に近  
づくためではないかと推定される。

これらの疑陽性者数の年度別の推移についてみると、  
53年度のガラクトースの疑陽性者数が特に多い。この理  
由は当初が担当した検体が郡部であるために郵送による  
検体送付という手段しか得られず、日数経過による酵素  
活性の低下が見かけ上の疑陽性となってあらわれたもの  
である。とくに梅雨期の高温多湿の季候での酵素活性の  
劣下が著しかったので医療機関に対して再三にわたり、  
早急の検体送付を依頼した結果、54年度からは疑陽性者  
数が激減した。

表5. 検査項目別疑陽性者数および精密検査者数の内訳

	52年度	53年度	54年度	55年度	56年度	57年度	計
P. フェニールアラニ ン	11 (1)	33 (2)	17 (2)	7	10	6 (2)	84 (7)
M. メチオニン	7 (1)	39 (1)	37 (2)	21 (5)	35 (7)	12 (8)	151 (24)
H. ヒスタジン	33	152 (3)	200 (4)	179 (9)	157 (7)	146 (6)	867 (29)
L. ロイシン	2	7	5 (1)	6	5	2	27 (1)
G. ガラクトース	16	151 (20)	26	50 (3)	19	4	266 (23)
C. クレチン			(11)	(31)	(25)	(68)	(135)
疑陽性者数 [%] <sup>*</sup>	69 [1.1]	382 [2.4]	296 [1.9]	294 [1.9]	251 [1.9]	238 [1.6]	1530 [1.9]
精密検査者数	(2)	(26)	(20)	(48)	(39)	(84)	(219)
陽性患者数	2		2	7	4	1	16
P. 1			H. 2	H. 6	H. 3	H. 1	
M. 1				C. 1	C. 1		

\* 初回受付件数に対する疑陽性率。

( ) 内数字は精密検査依頼数。

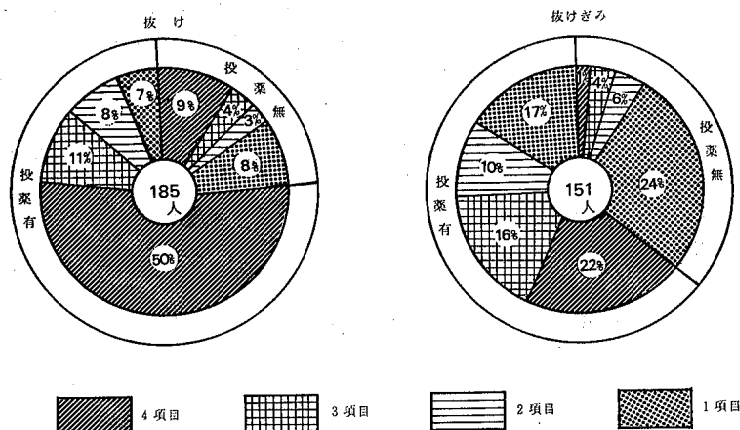


図2. 投薬と異常発育円出現の関係.

5. 精密検査結果について

初回疑陽性のため再採血による再検査をした結果、異常値を示したものについては精密検査を依頼した。ガスリー法、ポイトラー法による検査の結果、精密検査を依頼した件数は84名で初回の疑陽性者に対して6%であった。そのうち、精密検査で陽性患者、疑陽性患者として診断されたものは14名であり、内訳はフェニールケトン尿症1名、ホモシスチン尿症1名、ヒスチジン血症12名であった。

クレチン症については初回検査で疑陽性と判定されたものは再採血による再検査をしないで精密検査依頼をしていたため135名と多かったが、そのうちで2名が陽性確認患者であった。

6. 患者発見率

表6に当所の担当分について厚生省発表の全国の患者発見率とを対比させた。

楓糖尿症とガラクトース血症については患者は発見されていないが、その他のフェニールケトン尿症、ヒスチジン血症については全国平均に比して大差ない。しかしながらクレチン症の発見率が低く全国平均の3分の1であった。

7. ガスリー法の阻害作用について

ガスリー法での各種アミノ酸の測定に阻害作用を示す検体は検査不能として再採血を依頼している。この阻害作用を示す検体で、いわゆるヌケ現象と称しているものの多くが薬物投与が主原因であることはすでに報告した〔5〕。ヌケ現象による検査不能が342人あったが、その

表6. 患者発見率

	広島県 (当所担当分)		全 国*	
	発見患者数 人	発見率	発見患者数 人	発見率
P. フェニールケトン尿症	1	1/81151	112	1/69600
M. ホモシスチン尿症	1	1/81151	49	1/159200
H. ヒスチジン血症	12	1/6763	990	1/7900
L. 楓糖尿症	0	—	17	1/458800
G. ガラクトース血症	0	—	98	1/79600
C. クレチン症	2	1/25867	554	1/8100
計	16		1820	

昭和52年度から昭和57年度分 (但、クレチン症は昭和54年10月から)。

\* 昭和58年6月厚生省発表資料による。

うちの185人について投薬の有無についての回答が得られた。投薬ありが76%、投薬無しが24%であったが、投薬の有無とヌケがあらわれた検査項目数との関係を示したのが図2である。投薬のある場合はヌケのあらわれる項目数が多く、投薬の無い場合は1項目のみにヌケがあらわれる比率が高かった。

またヌケギミと称しているもので、検査結果の判定は可能であるが阻害作用の軽度のみられるものは367人あった。そのうち投薬の有無の回答が得られたものが151人あった。投薬ありが65%、投薬無しが35%であり、ヌケギミが投薬作用の薄らいだ時点での影響があらわれたものであることを確認した。

## ま と め

昭和52年10月から昭和58年3月末までに当所が実施した新生児マス・スクリーニングの成績について報告した。

1. 5年6ヶ月間の検査実施人員数は81,151人であり、出生児数に対する受診率は検査開始当初を除いてほぼ100%に近いものと推察された。

2. 検査の結果、再採血を要した検体は2,292人で全体の2.8%であった。そのうちで疑陽性によるものが1.7%、検体不備によるものが0.7%、阻害作用による検査不能が0.4%であった。それぞれの再採血による回収率は、85%、57%、75%であり、検体不備による再採血の回収率が悪いのが目立ったが、5年半の推移をみると、再採血依頼件数は年々減少し、再採血による回収率は年々上昇し、良好となった。

3. 初回の検査で疑陽性となったもののうちではヒスチジンの疑陽性率が最も高かった。次いで、ガラクトース、メチオニンに高く、逆に低かったのはフェニールアラニン、ロイシンであった。

4. 精密検査を必要としたものは84名であり、精密検査の結果14名の患者が発見された。内訳はフェニールケトン尿症1名、ホモシスチン尿症1名、ヒスチジン血症12名であった。

5. クレチン症の検査は昭和54年10月から開始された。疑陽性は135人で全体の0.26%であり、精密検査の結果、2名の確認患者が発見された。

## 参 考 文 献

- [1] 広島県環境保健部(1977)：先天性代謝異常検査実施要領。
- [2] 日本公衆衛生協会(1977)：先天性代謝異常マス・スクリーニングの理論と実際。
- [3] 広島県環境保健部(1978—1983)：人口動態統計年報第5号、6号、7号、8号、9号、10号。
- [4] 金田妙子、山根敏子(1980)：高知県衛研研究報告、26、27—53。
- [5] 中富美津江、水田満里、妹尾正登、海佐裕幸(1978)：広島県衛研研究報告、25、24—29。

## 広島県で発生した細菌性食中毒 (1961—1980年)

得能弘志\* 岸本敬之\* 小川博美\*  
佐々木実己子\* 福田伸治\*

### Bacterial Food Poisoning Outbreaks in Hiroshima Prefecture, 1961—1980

HIROSHI TOKUNO, TAKASHI KISHIMOTO, HIROMI OGAWA,  
MIKIKO SASAKI AND SHINJI FUKUDA

(Received for Publication Oct. 11, 1983)

#### 緒 言

我国における食中毒に関する統計の記録は明治19年(1886年)に始まり、以後昭和23年(1948年)までは衛生年報に取り纏められている。その記載では、化学物質や自然毒による事件は詳細に分類収録されているものの、細菌性食中毒については明確な記録はなく、単に“飲食物による中毒”の欄が見られるのみであり、明治、大正、昭和の初期における実態を知ることは困難である。その後旧来の食品衛生法規は昭和22年(1947年)に廃止され、昭和23年(1948年)から現在の食品衛生法が施行され、食中毒の届出制と食品衛生監視が義務付けられた。このことにより、昭和24年(1949年)以降の“衛生年報”と“伝染病及び食中毒精密統計”には細菌性食中毒の欄が設けられ、原因菌も区別して示されるようになった〔1—2〕。

さらに昭和27年(1952年)には現在の食中毒統計様式が採用となり、その集計結果は厚生省環境衛生局食品衛生課により、“全国食中毒事件録”として刊行されるようになった。この食中毒統計は当初、細菌性食中毒の原因菌として3菌種(サルモネラ、ブドウ球菌、ボツリヌス菌)にその他の細菌を加えた4項目の分類でスタートしたが、細菌性食中毒検査法の進歩に伴い、昭和37年(1962年)に腸炎ビブリオ(以下、腸ビ)が登場し、その翌年には病原大腸菌(以下、病大)が加わり、以来5

菌種6項目の分類で報告されるようになった。さらに今日では、昭和57年(1982年)3月、ナグビブリオ、カンピロバクター等6菌種が新たに食中毒菌として追加されたことにより〔3〕、分類は11項目の多きに達してきた。これら分類に若干の相異があるものの、これらデータを利用して多くの研究者により検討が加えられ、全国的な食中毒発生の推移についての報告〔4—9〕が見られる。

ところで近年の食生活様式の多様化やコールドチェーン等の食品流通様式の発展はめざましく、年々、新しい食品形態の開発が進み、市場に流通する食品は、ますます多種多様化の傾向を示してきた。ために食品衛生行政面における対応がせまられ、折にふれ、新しい食品の成分規格基準等の設定が行われ、併せ幅広い監視指導体制の確立により、これら食品による危害発生を未然に防止するよう配慮されてきた。

広島県においても、これら新しい食品形態を含め幅広い監視指導を推進し、食中毒発生防止に努めているところであるが、食中毒発生の原因物質をみると、細菌性のものが大半であり、温度と湿度に密接な関連性のあることから、気象要素を利用して食中毒の発生し易い日予測する予測式の検討を行い、その成績にもとづき食中毒警報発令要領を作成し、昭和44年(1969年)からこれを実施に移した。以来食中毒原因菌究明のための検査体制の整備、検査技術の向上等と相まって、食品衛生行政推進に一定の成果を上げてきた。しかしながら、食中毒

\* 広島県衛生研究所：Hiroshima Prefectural Institute of Public Health.

発生の現状は、その原因物質等に若干の様変りがみられるにせよ、末だ年々相当数の発生がみられる。

そこで、われわれは、食中毒発生防止対策のむずかしさを認識しながら何んらかの要因を見出すべく、過去20年間（昭和36年～55年）の広島県下での発生事例について、全国の発生状況と対比しつつ検討を加えたので、ここにまとめ報告する。

調査資料

昭和36年から55年までの広島県における食中毒発生事例数、患者数、その病因物質および原因食品、摂取場所、原因施設についての数値は広島県環境保健部環境衛生課によりまとめられた“食品衛生、乳肉衛生、水産衛生業務概況”、“環境衛生課業務概況”より、また、全国発生状況は厚生省環境衛生局より刊行されている“全国食中毒事件録”（昭和36年～55年）[10]により収録した。ついで、県内発生の具体的事例については広島県衛生研究所業務年報および試験検査成績書（昭和42年度～56年度）から集計した。

集計結果

I. 食中毒発生の全体状況

1. 概要

昭和36年から55年までの20年間の広島県における食中毒発生状況は表1に示すように、発生事例数、患者数、死者数及び罹患率、死亡率共に全国平均に比し高い数値を示している。年次別推移については図1に示す。食中毒発生事例数について、広島県において昭和30年代には年平均約45事例の発生をみていたが、40年代は約35事例、50年代は約21事例となり、約半数に漸減している。このことは全国集計の30年代は年間2,000事例前後の発生がみられていたものが、40年代に入ってほぼ1,200事例前後となり、55年には1,000事例と約半数に漸減している傾向とよく一致している。また、食中毒警報発令事業が実施された昭和44年度以降とそれ以前を比較すると実施前8年間の平均発生事例数は44.3事例で、実施以降12ヶ年の平均は32.1事例となり、実施前の3/4に減少している。ついで罹患率（人口10万人対）では、広島県における30年代のそれは63.0人、40年代41.2人、50年代28.1人となり、全国のそれは各々、44.6人、33.4人、28.1人でほぼ同様の漸減傾向をたどっている。なお、1事例当りの患者数（表1）については、年次により増減があるが、この20年間の年平均でみると、広島県27.4人、全国平均24.8人でほぼ似通った数値を示している。

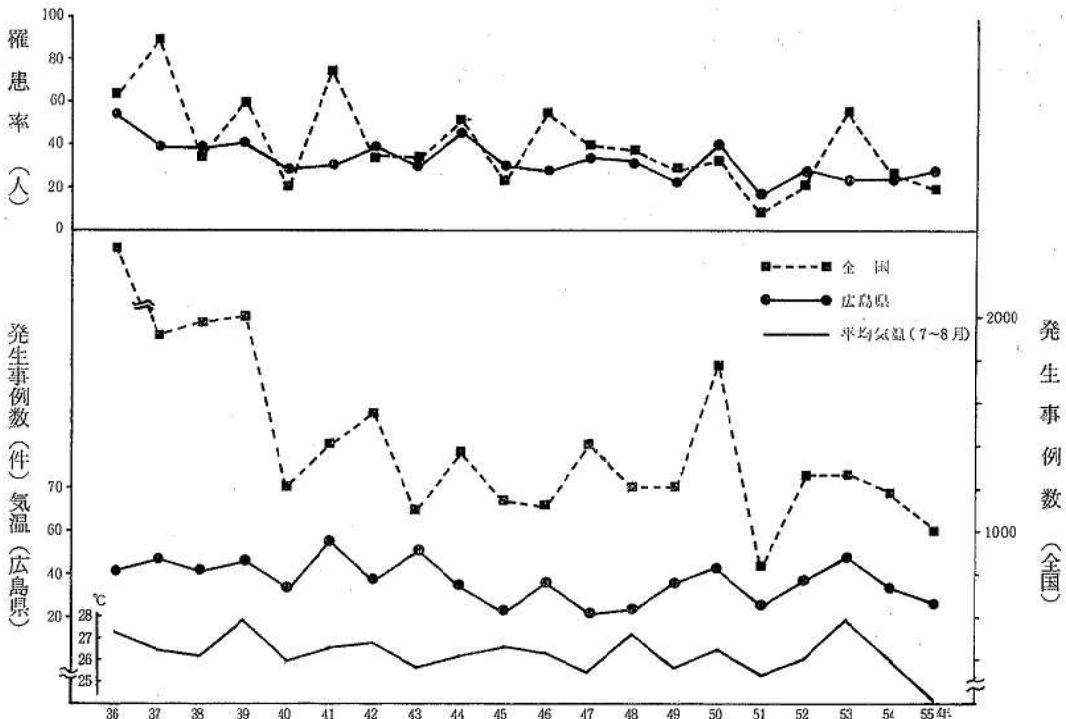


図1. 年次別発生事例数及び罹患率の推移。



表1. 昭和36年～56年までの20年間の広島県  
および全国の食中毒発生状況

	広島県		全 国	
	総 数	年平均	総 数	年平均 (県単位)
発生事例数	738	36.9	28,584	1,429.2 ( 30.4)
患者 数	20,239	1,012.0	710,091	35,504.6 ( 755.4)
死者 数	144	7.2	1,693	84.7 ( 1.8)
罹患率*	—	41.6	—	34.1 —
死亡率*	—	0.29	—	0.083 —
一事例当り患者数	—	27.4	—	24.8 —

\*罹患率および死亡率は人口10万人当りを示す。  
( ) 全国47都道府県の平均を示す。

### 2. 月別食中毒発生

月別に集計した結果を図2に示す。食中毒発生事例数は8月(177事例)、患者数は7月(3,948人)をピークとする夏期に集中し、気温の推移と同様のパターンを示している。又、冬期の12月～2月に小さなピークがみられ、これは広島県に比較的多いフグ中毒事例(図3)の発生によるものであり、死者数の多い月が10月～1月の冬場にみられることから窺知される。

### 3. 病因物質

病因物質別に月毎の発生状況を図3に示した。細菌による事例は249例(33.7%)、化学物質による事例はわずか2例で、5月(スパゲティー中の過酸化水素)、6月(天ぷらかす中の過酸化物質)にそれぞれ1事例ずつ発生している。自然毒によるものは発生総数の22%を占め、その内訳は植物性自然毒が3月、10月、12月にわずかにみられるのみで、その大半(97.6%)は動物性自然毒で占められており、その発生頻度は冬場に集中し、11月をピークに、11月～1月に多発を見る。そして、その傾向は、図2に示すように死者数の月別分布と非常によく一致し、致死的中毒の大部分(98.0%)はフグ毒によるものである。次に20年間の細菌性食中毒と判明した事例についての病因菌種別発生頻度をみると、腸ビが109事例で最も多く、ついで黄色ブドウ球菌(以下、ブ菌)の83例、サルモネラ35例、病大11例の順で、その他の細菌は11例であった。また、それぞれの原因菌別発生状況をみると、腸ビは8月(51事例)をピークに7月～9月に集中して発生がみられ、ブ菌は7月(26事例)をピークに6月～9月に多発をみ、腸ビによる事例に比し山はややゆるやかなカーブを描いている。サルモネラによる事

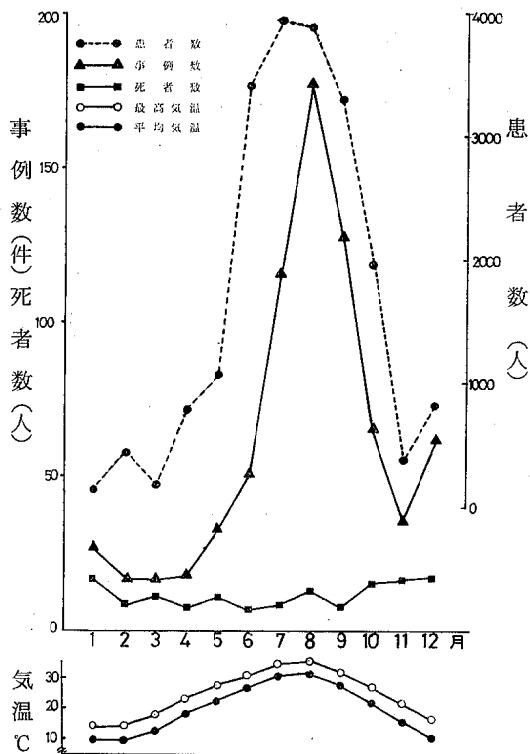


図2. 月別食中毒発生状況.

例の山はさらにゆるやかとなり6月(9事例)をピークに5月～9月にかけ各月ほぼ同頻度で発生がみられている。

### 4. 原因究明率

原因究明率は昭和36年までは36%前後であったが、37年の腸ビの追加により50%まで高まり、ついで病大の追加もあり、昭和40年代(52.8%)に入ってからさらに上昇し、昭和50年代には74.2%となった(表2)。

### 5. 原因食品

原因食品別発生状況は図4に示すように原因食品の究明された事例は70%で、原品食品別にみると、魚介類およびその加工品が最も多く、事例数304例(41.1%)、患者数3,673人(18.0%)であった。なお、1事例当りの患者数の多い食品をみると、表3に示すように肉、卵、乳類とその加工品で92.6人を示し、ついで、複合調理食品の56.2人で、魚介類およびその加工品は最少の12.1人であった。

### 6. 摂取場所

摂取場所別発生状況は図5に示す。発生事例数の最も多いのは家庭で330例(44.7%)。ついで給食の161例(22.6

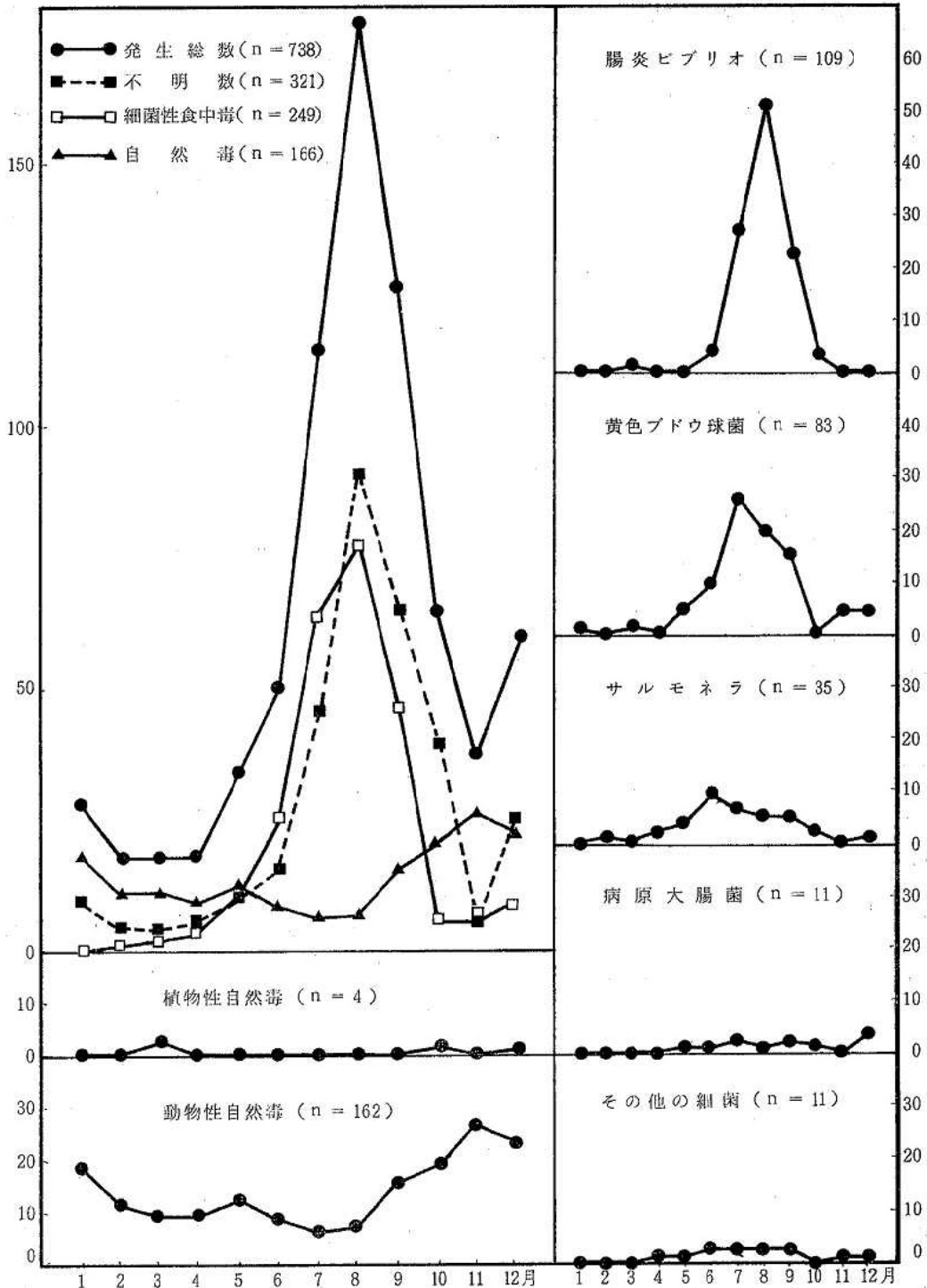


図3. 月別病因物質別食中毒発生状況 (事例数).

表2. 細菌性食中毒原因菌別事例数・患者数の推移

年次	細菌性食中毒 判明総数	原因菌別事例数・患者数					原因不明	原因物質 究明率(%)
		腸炎ビブリオ	ブドウ球菌	サルモネラ	病原大腸菌	その他の細菌		
36	4 (259)	1 (12)	2 (239)	—	—	1 (8)	27 (1136)	35.7
37	9 (1356)	3 (539)	4 (38)	1 (439)	—	1 (340)	29 (642)	39.6
38	9 (381)	6 (334)	—	2 (42)	1 (5)	—	21 (392)	50.0
39	11 (617)	8 (360)	2 (225)	1 (32)	—	—	25 (725)	45.6
40	6 (321)	5 (238)	—	1 (83)	—	—	15 (349)	54.5
41	9 (840)	2 (64)	4 (55)	—	2 (27)	1 (694)	34 (943)	38.2
42	5 (584)	2 (548)	2 (28)	1 (8)	—	—	18 (275)	51.4
43	12 (272)	9 (170)	2 (3)	—	—	1 (99)	28 (483)	45.1
44	14 (646)	9 (321)	2 (4)	—	1 (102)	2 (219)	12 (620)	64.7
45	11 (400)	4 (75)	3 (75)	2 (34)	—	2 (216)	8 (206)	65.2
46	15 (1079)	9 (527)	6 (552)	—	—	—	13 (169)	62.9
47	11 (665)	3 (267)	7 (102)	—	1 (296)	—	8 (261)	63.6
48	8 (929)	2 (30)	6 (899)	—	—	—	12 (70)	47.8
49	12 (332)	6 (185)	4 (93)	1 (28)	1 (26)	—	16 (421)	54.3
50	21 (654)	8 (444)	7 (177)	5 (11)	1 (22)	—	14 (256)	67.4
51	12 (230)	2 (53)	9 (176)	1 (1)	—	—	3 (7)	87.5
52	19 (435)	5 (197)	5 (87)	6 (125)	3 (26)	—	8 (122)	78.4
53	32 (1459)	11 (297)	9 (474)	9 (553)	1 (5)	2 (130)	8 (48)	83.7
54	11 (492)	5 (69)	3 (187)	2 (20)	—	1 (216)	18 (245)	47.1
55	18 (322)	9 (128)	6 (185)	3 (9)	—	—	4 (186)	84.6
平均/年	12.5(613.7)	5.5(242.9)	4.2(179.9)	1.8(69.2)	0.6(25.5)	0.6(101.8)	16.1(377.8)	52.8
合計	449(12273)	109(4858)	83 (3599)	35 (1385)	11 (509)	11 (1922)	321(7556)	—

( ) : 患者数.

表3. 1事例当り患者数

原因食品別	場 所	摂取場所別	原因施設別	原因菌別
魚介類およびその加工品 12.1人	家 庭	6.9人	3.0人	腸炎ビブリオ 44.6
肉卵乳類とその加工品 92.6	給食(事業所・学校)	73.1	65.6	ブドウ球菌 43.4
野菜穀類とその加工品 28.9	旅館・飲食店	27.2	26.2	サルモネラ 39.6
複 合 食 品 56.2	仕 出 し 屋	—	71.4	病原大腸菌 46.3
そ の 他* 63.1	そ の 他	35.0	5.0	その他の細菌 174.7
不 明 20.9	不 明	3.2	7.2	不 明 23.5

\* 原因食品別のその他は菓子類を含む.

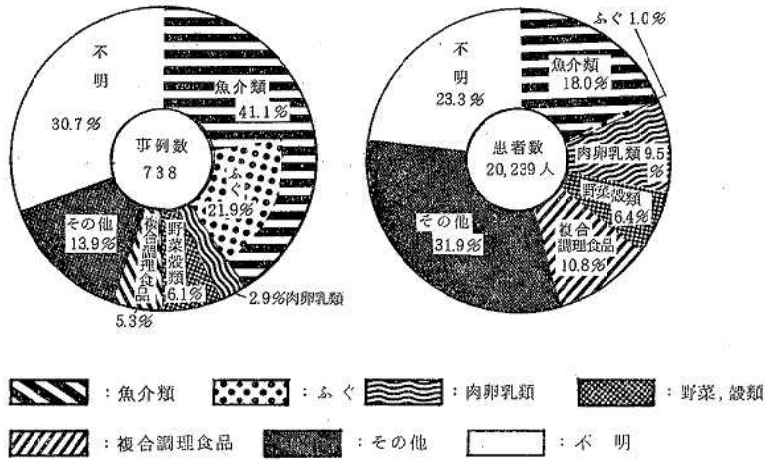


図4. 原因食品別食中毒発生状況 (広島県) 昭和36~55年.

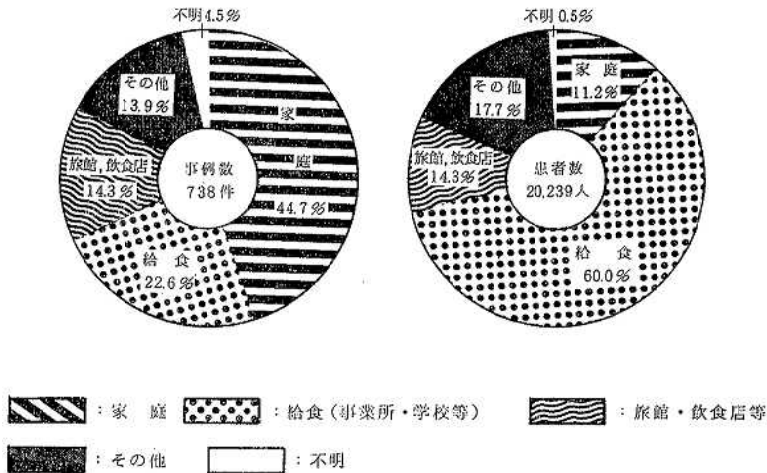


図5. 摂取場所別食中毒発生状況 (広島県) 昭和36~55年.

%), 旅館・飲食店106例 (14.3%) となっている。患者数では給食によるものが12,206人 (60.0%) で最も多く、ついで家庭の2,285人 (11.2%), 旅館・飲食店の2,147人 (10.5%) である。なお、1事例当りの患者数についてみると、表3に示すように、最も多いのは給食の73.1人、ついで旅館・飲食店27.2人で、最も少ないのは家庭の6.9人であった。

### 7. 原因施設

原因施設別食中毒発生状況を図6に示す。前項と同様、家庭を原因施設とする事例が最も多く37.2%を占

め、ついで旅館・飲食店26.3%、仕出し屋16.5%の順となっている。一方、患者数についてみると仕出し屋が最も多く42.8%を占め、ついで給食29.3%、旅館・飲食店21.7%で、家庭は4.1%の低率であった。さらに1事例当りの患者数でみると表3に示すように仕出し屋の71.4人が最も多く、学校等の給食が65.6人で、最も少ないのは家庭での3.0人である。なお、これら発生状況を20年間の推移でみると図7に示すように事例数では40~43年にかけての家庭、44年~47年での給食、仕出し屋によるものが、それぞれ他の年に比べやや多くの発生をみ

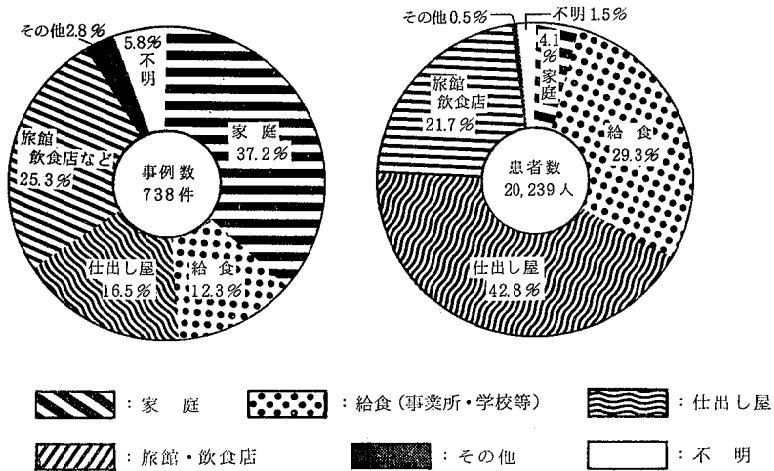


図6. 原因施設別食中毒発生状況 (広島県) 昭和36~55年.

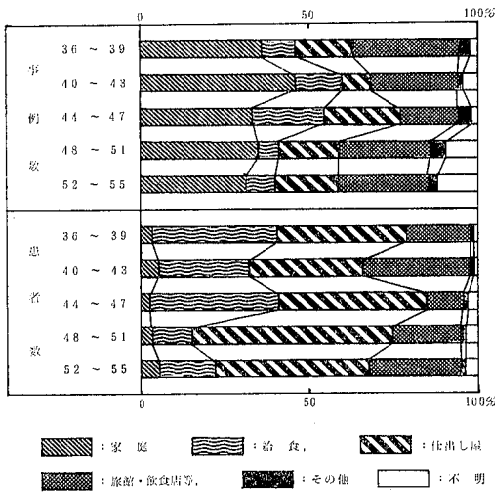


図7. 原因施設別食中毒発生推移.

ている。なお、48年以降、原因施設不明事例が増加の傾向にある。ついで、患者数の推移についてみると、仕出し屋による増加、給食による減少がめだっている。

## II. 細菌性食中毒の発生状況

昭和36年から55年までの20年間、広島県における食中毒発生総数は、738事例(年平均37事例)、患者数は20,239人(年平均1,012人)であり、そのうち原因が究明しえた細菌性食中毒総数は249事例であった。以下項目別に検討しとりまとめた。

### 1. 月別発生状況と気温との関係

20年間の広島県での細菌性食中毒の月別発生状況は図2, 3に示すごとく、8月が(32.2%)最も多く、大部分の発生は5月~9月(89.6%)に集中してみられる。そこで、多発時期の6月~10月に発生した事例について最高、平均気温(月平均)別に集計した結果を図8に示した。月別、季節別発生の特徴を裏づけるように、最高気温が27℃以上を示す月では、平均4.5~11.5事例/月の発生をみ、27℃未満の月では、平均3事例にいたっていない。また平均気温についても同様の傾向を示している。

### 2. 原因菌別発生状況

原因菌別発生事例数、患者数の推移について表2に集計した。即ち、腸ビによる事例数、患者数が最も多く、ついで、ブ菌、サルモネラ菌の順であり、全国集計にみられる傾向と一致している。

腸ビによる食中毒の原因食についてみると表4に示すように、魚介類およびその加工品によるものか約半数の49.5%、患者数も1位(36.0%)を占め、我国の食生活様式の実態がうきばりにされている。

ブ菌については、腸ビについて頻発する原因菌となっており、患者数についても2位(29.3%)の座をしめている。その原因食についてはその他の食品(菓子類を含む)が28.9%、穀類及びその加工品(主としてむすび)が24.1%で、両者で53%を占めている。

サルモネラについては、食生活様式の多種多様化を反映し、昭和50年から急激な増加の傾向を示し、昭和52年には原因菌1位となり、その後年々発生をみているものの、患者数についてみると3位の11.1%である。その原因食については、原因食品不明のものが多く、54.3%を

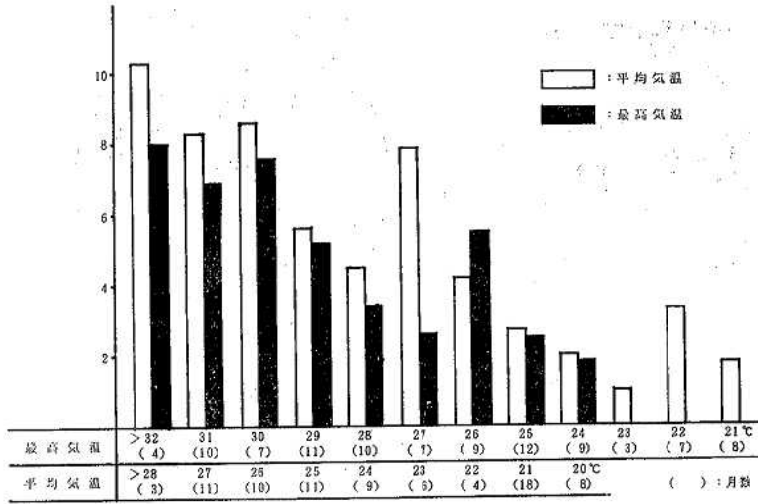


図8. 最高、平均気温別1ヶ月当りの細菌性食中毒発生状況(6月～10月).

示しているが、判明したものでは魚介類加工品及び複合調理食品がそれぞれ8.5%で、その他の食品が20.0%となっている。病大については、昭和52年3事例の発生がみられるものの、その発生頻度は少なく、20年間で11事例の発生である。

なお、その他の細菌による発生事例は11事例みられ、患者数は1,922人におよんでいる。その内訳をみると *Clostridium perfringens* が4事例、*Citrobacter freundii* が3事例、豚丹毒菌、腸球菌、プロテウス、およびモルガネラの各1事例である。これら食中毒の発生事例については、別途報告している[11-13]が、患者数でみると、ウェルシュ菌が855人(4例)、サイトロバクターが346人(3例)、豚丹毒菌が340人(1例)、プロテウス菌が205人(1例)、腸球菌が168人(1例)、モルガネラが8人(1例)で比較的大規模発生事例が多い。

### 3. 菌種別季節別発生状況

季節的発生特性を示す細菌性食中毒についても、菌種別に分析してみると、月別発生率、季節集積性の点で、原因菌種間にかかりの差異が認められ、図3に菌種、月別に発生状況を示したが、腸ビ食中毒は、8月をピークとして7月～9月に発生をみており、このことは海水温の上昇、海中でのビブリオの出現増殖期間との一致がみられる。一方ブ菌は、腸ビと異なり、7月をピークに5月～9月と発生期間がやや長く、夏期以外にも発生がみられる。サルモネラでは6月をピークに、4月～10月に発生がみられ、2月に1事例の発生をみている。病大については、12月に3例、7月、9月に各2例、ついで

5月、6月、8月、10月にそれぞれ1事例の発生をみており、年間通じて発生する様相を呈している。

### 4. 原因菌別1事例当りの患者数

発生患者数を原因菌別にみると表3に示すように、原因菌別の1事例当りの患者数(表3)をみると、その他の細菌で174.7人、病大で46人、以下腸ビ45人、ブ菌43人、サルモネラ菌40人と、その他の細菌以外は、ほぼ同様の発生患者数を示した。

### 5. 原因菌の菌型及び型別

原因菌の菌型及び型別については、この20年間食中毒原因菌の検査法の確立とともに漸次新しい菌型及び型別法の追加がなされてきたが、その年々に分離型別された結果を表5にとりまとめた。

腸ビについては25菌型にもおよび、K-8は20年間を通じて分離され、12事例を数えている。K-15は前半10年間に多く発生し、K-54, 55, 56, 57, 63は昭和48年以降に多発している。

サルモネラについては9菌型で、全期間を通じて普遍的にみられる菌型は *S. enteritidis*, *S. typhimurium* で、昭和52年以降サルモネラの発生例数の急増に伴い、多種菌型サルモネラの出現をみ、中でもめずらしい菌型としては *S. virchow* で、昭和52年、53年に集中して発生をみている。

病大については8菌型で、これらの菌型は O125:K70, O25:K1およびO44:K74を各々2事例から、さらにO128:K67, O126:K71, O148:K+, O136:K78および型別不能のものが各1事例であった。

表4. 細菌性食中毒と原因食品の関連

原因菌	原因食品		魚介類		魚介類 その他	魚介類 加工品	肉類と 加工品	卵類と 加工品	穀類と 加工品	野菜類と 加工品 その他	調理 食品	その他	不明	合計
	事例数	患者数	貝類	魚類										
腸炎ビブリオ	2(1.8)	45(41.3)	2(1.8)	7(6.4)	2(1.8)	2(1.8)	2(1.8)	3(2.8)	4(3.7)	6(5.5)	5(4.6)	33(30.3)	109(100)	
ブドウ球菌	15(0.3)	1650(34.0)	1(1.2)	82(1.7)	31(0.6)	392(8.1)	39(0.8)	631(12.9)	272(5.6)	239(4.9)	1507(31.0)	16(19.3)	4858(100)	
サルモネラ	5(0.1)	1(2.9)	1(2.9)	174(4.8)	3(8.5)	423(11.8)	330(9.2)	566(15.7)	3(8.5)	1697(47.2)	404(11.2)	19(54.3)	3599(100)	
病原大腸菌	1(9.1)	83(6.0)	1(9.1)	42(3.0)	13(0.9)	1(2.9)	3(0.2)	486(35.1)	1(9.1)	591(42.7)	167(12.1)	6(54.5)	1385(100)	
その他の細菌	12(2.4)	26(5.1)	1(9.1)	15(2.9)	2(18.2)	2(18.2)	2(18.2)	1(9.1)	102(20.0)	5(0.9)	349(68.6)	1(9.1)	509(100)	
合計	11(0.1)	47(18.8)	37(1.9)	793(41.3)	269(14.0)	340(17.7)	256(13.3)	18(7.2)	38(15.2)	216(11.2)	75(30.4)	2643(21.5)	12273(100)	

注：原因食品のその他は菓子類を含む。( )は%。

ウェルシュ菌については4菌型で、これらの菌型はHobbs 6型が2事例、3, 13型が各1事例である。

ブ菌についてみると、ファージ型別では次の4群に分類され、I+III群が4事例、III群が3事例、II+III群が2事例、型別不能が1事例であった。コアグラセ型別は4型で、そのうちVII及び型別不能が最も多く8事例、II, III型が各2事例であった。さらにトキシン型別は4型で、A型が6事例、B, A+B型が各2事例、A+C型が1事例であった。

考 察

1. 食中毒の時系列的推移

広島県における食中毒発生の推移はここ20年間に赤痢、腸チフス等の消化器系伝染病等の激減がみられたにもかかわらず、フグ毒による死亡率の減少がみられるのみで、一般的食中毒発生は横ばいの状態を示し、未だ患者数で年平均1,000人、発生事例数で37事例をみており、目だった減少傾向は認められない。このことは全国的にみても、同様の傾向である〔4-9〕。ところで、この20年間に食品衛生分野における行政、業界、消費者各段階における進展は目ざましく、行政的には食品監視、指導の強化とあわせ、各種冷凍食品等をはじめ、新しい食品形態について、その製造基準、成分規格の制定を行い〔2〕、食品の安全性確保に対処がなされ、また、業界においては、製造加工、保存技術の進展にともない、滅菌、無菌充填(包装)食品を商品化し、コールドチェーンシステムの普及、製造販売中における品質管理等と相まってより衛生的な食品供給に意が注がれてきた。しかし反面、食生活や生活環境の変化として、穀類、魚介類と肉・卵の消費構成比の変化、肉、冷凍卵等輸入食品の増加、レジャー文化の進展による外食傾向の増大、冬期の暖房生活の普及、海外渡航者の増加による原因菌の持ち込み、流通規模の大型化、消費者衛生知識の向上等による食中毒届出率の向上等がみられ、食中毒発生増にかかわる要因が急増してきた。これら要因が相まって、実質的或は統計上の発生数として、時系列推移を示したものと考えられる。

2. 細菌性食中毒の発生特性

細菌性食中毒発生の大部分は5月~9月(90%)に集中し、10月~4月の発生は少ない。このことは当然のことながら、細菌性食中毒の発生には気温が主要な因子であることを示していると考えられる。そこで、月別発生状況と気温との関係についてみると、最高気温(月平均)、平均気温(月平均)が27℃以上を示す月の食中毒発生事例数は27℃未満の3件以下/月に比し、4.5~11.5件/月

表5. 原因菌の菌型および型別

原因菌種	菌型および型別				
腸炎ビブリオ	K-8 (12)	K-3 (7)	K-15 (6)	K-10 (5)	K-7 (4)
	K-12 (4)	K-56 (4)	K-2 (3)	K-4 (3)	K-9 (3)
	K-13 (3)	K-63 (3)	K-11 (2)	K-19 (2)	K-29 (2)
	K-31 (2)	K-33 (2)	K-55 (2)	K-57 (2)	K-1 (1)
	K-6 (1)	K-18 (1)	K-28 (1)	K-54 (1)	Vibrio (9)
サルモネラ	<i>S. virchow</i> (8) <i>S. typhimurium</i> (4) <i>S. enteritidis</i> (3)				
	<i>S. infantis</i> (3) <i>S. tomson</i> (3) <i>S. london</i> (1)				
	C <sub>2</sub> (2)	B (1)	E <sub>1</sub> (1)	Salmonella (9)	
ブドウ球菌	フェージ型別 I+III (4) III (3) II+III (2) ut (1)				
	コアグララーゼ型別 VII (8) II (2) III (2) ut (8)				
	トキシン型別 A (6) B (2) A+B (2) A+C (1)				
病原大腸菌	O125:K70 (2) O25:K1 (2) O44:K74 (2) O128:K67 (1)				
	O126:K71 (1) O148:K+ (1) O136:K78 (1) EEC (1)				
ウエルシュ菌	Hobbs 6 (2) Hobbs 8 (1) Hobbs 13 (1)				

注: ( ) 内数は事例数, ut は untypable, Vibrio は未型別.

と高く、このことを裏付けていると考えられる。なお、昭和44年(1969年)から広島県は尾崎ら[14]の開発した方程式  $Z = -0.00017 \times (\text{最高気温}) + 0.00005 \times (\text{最高湿度}) - 0.0002 \times (\text{不快指数})$  に前3日間の平均値を代入し、Z値が-0.001895以下の場合食中毒警報を発令実施しているが、この方法で昭和36年~55年の20年間の6月~10月について、Zの値を計算し警報発令と食中毒発生との関係を見ると、警報発令時の1日当り食中毒発生事例数は0.21事例、解除時では0.0087事例と大差を認めた。また、昭和44年から12年間の警報発令日数(X)と年間食中毒(細菌性)事例数(Y)との相関を見ると、 $Y = 0.16X + 7.777$  ( $r = 0.58$ ) と一定の正の相関がみられた。このことから食中毒発生には気象条件が重要な要因であると考えられる。

### 3. 原因菌種別季節別発生状況

原因菌種別季節別発生状況についてみると、腸ビは8月を発生ピークに、7月~9月の3ヶ月間に限定され発生している。大城の記載する海水温20℃以上においてはじめて確認され(7月~10月)、その菌量は8月がピークであるとの成績[15]が示すように、夏期における腸ビの自然界での生態および魚介類汚染段階での急速な増殖態度が起因するものと考えられる。

一方、ブ菌は腸ビとはやや異なり、7月に発生ピークを示し、5月~9月の5ヶ月間に多発をみるが、夏期以

外にも発生をみている。このことはブ菌が人の常在菌であり、食品への汚染頻度が他の原因菌に比し高いこと、また、寺山によるブ菌の増殖及びエンテロトキシン産生は18.5℃においても可能であるとの報告[16]からも夏期以外の発生も十分考えられる。

## 4. 細菌性食中毒の本県における特徴

### (1) 腸ビ食中毒

ここ20年間の前半では、その大半は家庭を喫食場所として発生をみていたが、後半においては、原因施設として家庭が減少し営業許可施設の仕出し屋の急増がみられる。従って発生規模も大型化する傾向にあり、この傾向は全国集計においても認められている[4-9, 17]。このことは近年外食の機会が多く、仕出し屋による集団給食利用が多くなったことに起因すると考えられる。腸ビの大規模発生例としては、腸ビの発見となった「シラス事件」[18]、「枚方敬老会事件」[19]、「酒田駅弁事件」[20]、「タイラギ貝柱事件」[21]等みられるが、いずれも (i) 魚介類の低温流通の不十分さ (ii) 調理後から摂食までの長時間放置 (iii) 下請調理食品による詰合せ、販売という衛生的管理の不徹底 (iv) 大量販売、のいずれかが大きな原因となっている。魚介類を生食する日本人、とりわけ瀬戸内海に面した広島県民にはその機会が多く、腸ビによる海産魚介類の二次汚染防止、低温保持、水洗、加熱調理等、一連の防止対策の徹底を幅広く



行う必要があると考えられる。

### (2) ブ菌食中毒

近年増大の傾向にあり、その原因食品としてその他の食品（菓子類を含む）、穀類及びその加工品が大部分である。中でも、市販のむすび及び折詰弁当が主体で、最近の食生活様式の変化が、本菌食中毒の増大に起因していると考えられる。こうした傾向は、全国集計及び品川らにおいても同様の傾向として認められている〔22—25〕。

### (3) サルモネラ食中毒

サルモネラ食中毒は腸及びブ菌食中毒について3位の座を占めている。昭和50年代後半から急増がみられ、52年には原因菌の主位を占め、その後も頻発がみられる。本菌食中毒の特徴としては、原因食不明事例数が過半数を占めている点である。このことは潜伏時間が比較的長く、検食の採取が困難である反面、患者における保菌、排菌時間が比較的長く、原因菌判明率が高いことによるものと考えられる。近年サルモネラは多くの調査報告にみられるように、自然環境、家畜、ペット等高率に汚染分布がみられ〔26—29〕、本菌食中毒多発の要因となっているものと考えられる。また、鈴木ら〔30〕は一部輸入肉にサルモネラ汚染の高い事実を指摘している。Robertsら〔31〕やBryan〔32〕は英米の食中毒原因物質の約33—38%がサルモネラに起因していると報告し、依然としてサルモネラ食中毒の多発を述べている。これらを考え合せると、新型サルモネラの海外からの伝播や、食生活様式の欧米化と共に我国での汚染拡大および食中毒発生の増加傾向は今後も食品衛生上の重要な課題となる。

### 5. 原因物質究明率の推移

20年間の本県における食中毒原因究明率は前述の如く、昭和36年までは36%前後であったが、昭和37年の腸ビの追加、更に昭和38年の病大の追加もあり、20年間の後半では74.2%と究明率が高くなっている。このことは検査法の開発と共に、検査体制の確立、行政対策の対応の適切及び昭和49年以降の検食保存の義務付け等によると思われる。

### 6. 原因菌の菌型及びその変遷

ここ20年間に原因菌検査法は、格段の発展をみ、とりわけ、疫学的に重要な意味を有する菌型別法の確立、改善をみてきた。表5でふれたように、この間、判明した原因菌の型別変遷についてみると、腸ビでは、25菌型にも及び、多く分離された菌型としてはK—8、K—3、K—15の順位である。K—8、K—3は全期間を通じて分離されているが、K—15は前半に、K—54、55、

56、57、63は後半にそれぞれ分離をみている。この傾向は全国集計（1965—69年）でK—3が40%を占めているとの報告〔33〕や、K—13は東日本に、K—8、K—18は西日本に発生しているとの報告〔34〕とも一致した。一方、昭和53年（1978年）本県で発生をみたK—63〔35〕は同時期に全国各地で分離報告〔36—39〕をみた新しい抗原型であり、原因菌の年次的変遷が認められる。サルモネラについては、9菌型による発生がみられ、本菌食中毒の普遍的な菌型である*S. enteritidis* および*S. typhimurium* は全期間を通じて発生をみている。広島県における本菌食中毒は昭和50年以降発生の急増がみられ、52年には従来我国では食中毒として発生のみられなかった菌型*S. virchow*の発生事例〔40〕が県東部地区において相前後し2事例の発生がみられた。これら、新しく分離した菌型をはじめ、食中毒の発生をみた菌型は、県下の各種環境（海水、河川水、下水、カキ、野犬）からはほぼ同一時期〔26、28、41〕に分離をみており、定期的な環境汚染の把握は食中毒発生子測において、大いに意義があると考えられる。

ブ菌については各種型別方法が漸次開発され、ルーチンワークへの応用も可能となって来た。しかし第1線で採用され始めて日は浅く、それぞれの型別毎に20年間の変遷傾向をみることはできないが、それぞれ実施以降の結果をまとめると、フェージ型別ではI+III群、コアグラゼ型別ではVII、トキシン型別ではAが多い。これらの傾向は他の多くの報告〔22—23、42—47〕と一致している。なお、特異的な発生事例としてトキシンB型菌による2事例をみている。B型菌による食中毒の報告は諸外国及び国内においても数例みられるのみであり〔45—49〕、その自然界及び市販食品での分布も少ないとの報告〔24〕もあるが、今後もB型菌による食中毒発生は十分予測される。

病大やウエルシュ菌による食中毒事例数は少ないが、病大はO125:K70、O25:K1、O44:K74、などの8血清型に、ウエルシュ菌はHobbs 6、8、13の3血清型にそれぞれ分類される。これらの血清型は著者らの報告〔50—52〕の河川、海水、カキ、ヒト、豚、犬等の本県の動物や都市環境などにおいて、しばしば分離される血清型と一致し、サルモネラなどと同様自然環境における汚染分布と密接な関係があり、今後もこれら調査結果を踏まえた防止対策が必要と考えられる。

### 結 語

広島県における昭和36年から55年まで20年間の細菌性食中毒の記録を集計し以下の結果を得た。

1. 消化器伝染病の激減に比し、食中毒は漸減しているものの今なお年間20~40事例の発生をみ、罹患率は約30人である。
2. その発生時期は夏期(8月)をピークとして7月~9月に大半が発生しており、気温と密接な関係がみられるが、冬期の原因不明となる事例も見のがせない。
3. 原因食品では魚介類およびその加工品による事例が多く、日本人の食習慣によると考えられる。しかし近年、食生活様式の欧風化や外食化により、卵類、乳類、肉類による事例の増加がみられる。また、むずび、仕出し弁当による事例の増加も注目されるところである。
4. 摂取場所や、原因施設については、家庭から営業施設や給食施設へとウェイトが移る傾向がうかがえ、発生規模も大型化の傾向にある。
5. 原因菌究明率は昭和30年代の36%から50年代には74.2%となり、又昭和57年のナグビブリオ、カンピロバクター等の追加による調査および検査体制の整備、確立と相まってさらに高まると考えられる。
6. 原因菌および菌型について、腸ビの分離血清型の年次的変遷が認められると共に、サルモネラ、病原性大腸菌、ウエルシュ菌等環境や動物、或は食品の分布菌型との同一性から今後の食中毒発生防止にむけて、より詳細な疫学調査と環境等の汚染防止対策が望まれる。

終わりに、本資料をまとめるに当たり、御協力をいただいた、広島県環境保健部環境衛生課門田、恒松、川上、水羽の各氏に心より深謝いたします。

## 文 献

- [1] 辺野喜正夫, 善養寺浩〔編〕(1972): 新細菌性食中毒, p. 4—14, 東京, 南山堂.
- [2] 日本食品衛生協会 (1978): 食品衛生行政年表, 昭和22年12月~昭和53年3月. 食品衛生研究, 28, 693—732.
- [3] 厚生省環境衛生局食品衛生課長 (1982): (環, 食第59号). 食品衛生研究, 32, 481—495.
- [4] 相磯和嘉 (1979): 食品衛生研究, 29, 9—21.
- [5] 臼井竹次郎 (1974): 食品衛生研究, 24, 57—78.
- [6] 村田銀蔵 (1981): 感染症誌, 55, 129—139.
- [7] 臼井竹次郎, 金子 功 (1975): 公衆衛生院研究報告, 24, 25—34.
- [8] 稲葉 裕 (1981): 公衆衛生, 45, 253—359.
- [9] 辺野喜正夫, 坂井千三(1976): 日本公衛誌, 23, 258—267.
- [10] 厚生省環境衛生局食品衛生課 (昭和36年~昭和55年): 全国食中毒事件録.
- [11] 上田貞善, 佐々木論, 甲 充 (1958): 広島県衛研所報, 8, 56—60.
- [12] 広島市東保健所, 広島県公衆衛生課(1966): 食品衛生研究, 20, 833—838.
- [13] 岸本敬之, 得能弘志, 八木由美子, 小川博美 (1970): 第16回広島県獣医学会講演要旨集, 1970年9月, 広島市.
- [14] 尾崎 明, 渡辺嶺男, 務中昌己(1969): 食品衛生研究, 19, 104—113.
- [15] 大城俊彦 (1964): 藤野恒三郎, 福見秀雄〔編〕, 腸炎ビブリオ, p. 270—273, 東京, 一成堂.
- [16] 寺山 武, 五十嵐英夫, 潮田 弘, 善養寺浩 (1971): 東京都立衛生研究所研究報告, 23, 409.
- [17] 西尾隆昌(1979): 広島大学医誌, 27, 217—234.
- [18] Fujino, T., Okuno, Y., Nakada, D., Aoyama, A., Fukai, K., Mukai, T. and Ueho, T. (1953): Med. J. Osaka Univ., 4, 299—304.
- [19] 高宮武彦 (1970): 食品衛生研究, 20, 56—63.
- [20] 山形県衛生部環境衛生課(1976): 食品衛生研究, 26, 110—120.
- [21] 福岡県衛生部公衆衛生課(1976): 食品衛生研究, 26, 99—108.
- [22] 善養寺 浩, 寺山 武, 潮田 弘, 五十嵐英夫, 丸山 務, 坂井千三(1971): 食衛誌, 12, 311—314.
- [23] 品川邦汎, 中原正良, 加藤亮智, 国田信治, 阪口玄二, 日佐和夫(1972): 大阪府公衆衛生研究報告, 食品衛生編, 9, 37—41.
- [24] 寺山 武 (1977): 食衛誌, 18, 142—148.
- [25] 寺山 武 (1981): 公衆衛生, 45, 360—366.
- [26] 得能弘志, 岸本敬之, 小川博美, 佐々木実己子. (1975): 広島県衛研・公害研研究報告, 22, 26—34.
- [27] 上田貞善, 佐々木論, 甲 充, 品川昭士, 梶原信之, 二野宮渉(1961): 広島県衛研所報, 11, 28—33.
- [28] 宮崎佳都夫, 中森純三, 西尾隆昌(1982): 広島県衛研研究報告, 29, 1—15.
- [29] 中森純三, 上田貞善, 得能弘志, 前川政則(1968): 広島県衛研所報, 18, 9—13.
- [30] 鈴木 昭 (1980): 公衆衛生, 44, 394—404.
- [31] Roberts, D. (1982): J. Hyg., Camb., 89, 491—498.
- [32] Bryan F. L. (1978): J. Food Protect., 41, 816—827.
- [33] 藤野恒三郎 (1977): 食衛誌, 18, 131—141.
- [34] 西尾隆昌 (1970): メディヤ・サークル, 15, 533—

- 538.
- [35] 佐々木実己子, 小川博美, 得能弘志, 岸本敬之, 島田俊雄, 坂崎利一 (1979): 広島県衛研研究報告, 26, 39—42.
- [36] 竹田美文, 三輪谷俊夫 (1981): 日細菌誌, 36, 617—628.
- [37] 所 光男, 後藤喜一, 山田不二造, 岡崎秀信, 高樹正浩, 寺田友次(1979): 日細菌誌, 34, 413—415.
- [38] 石橋正憲, 木下喜雄, 宮野 啓, 新原富夫, 国田信治, 竹田美文, 三輪谷俊夫(1979): 日細菌誌, 34, 395—401.
- [39] 山崎茂一 (1979): 日細菌誌, 34, 761—762.
- [40] 岸本敬之, 得能弘志, 小川博美, 佐々木実己子, 田村和満, 坂崎利一(1979): 食品衛生研究, 29, 29—35.
- [41] 福田伸治, 岸本敬之, 得能弘志, 佐々木実己子 (1981): 広島県衛研研究報告, 28, 19—25.
- [42] 坂崎利一〔編〕 (1981): 食中毒, p. 118—142, 東京, 中央法規出版.
- [43] 庭山邦子, 五十嵐英夫, 篠原 楷, 加藤喜市, 山岸 宏, 田村 延(1981): 東京都衛研研究年報, 32—1, 137—142.
- [44] 寺山 武, 五十嵐英夫(1981): 食品衛生研究, 31, 193—201.
- [45] Mochmann, H., Richer, U., Karsch, W., Witte., W. and Meyer, W. (1976): Zbl. Bakt. Hyg., I. Abt. Orig. A234, 434—449.
- [46] Osväth-Marton, A. and Domján, J. (1974): J. Hyg. Epidemiol. Microbiol. Immunol., 18, 289—292.
- [47] Toshach, S. and Thorsteinson, S. (1972): Can. J. Publ. Hlth., 63, 58—66.
- [48] 得能弘志, 小川博美, 岸本敬之, 佐々木実己子 (1976): 広島県衛研・公害研業務年報, 53—56.
- [49] 寺山 武(1975): モダンメディア, 21, 436—440.
- [50] 小川博美, 得能弘志, 佐々木実己子, 岸本敬之 (1980): 食衛誌, 21, 5—12.
- [51] 岸本敬之, 得能弘志, 大杉豊照, 鶴村明之, 石川幸 (1967): 広島県衛研所報, 17, 23—28.
- [52] 岸本敬之, 得能弘志, 高田千賀子(1968): 広島県衛研所報, 18, 20—22.

## 野菜および漬物中のTPNの残留実態調査

児 玉 陽 太 郎\*      穂 下 誠 彦\*  
 桑 原 知 子\*\*      藤 元 さ と み\*\*

**Survey of Tetrachloroisophthalonitrile (TPN) Residue  
 in Vegetables and Japanese Pickles**

YOUTARO KODAMA, NOBUHIKO HOSHITA, TOMOKO KUWABARA  
 AND SATOMI FUJIMOTO

(Received Oct. 11, 1983)

## 緒 言

Tetrachloroisophthalonitrile (ダコニール: TPN) は近年使用量が急速に増加している有機塩素系農薬の1種であり、化学的に安定で残効性が良く、効力の強い殺菌剤であることから、べと病や疫病など、さまざまな病害の防除のために、多種類の農作物に使用されている〔1〕。

魚類に対する毒性は強く、農薬の魚毒性分類では、C類に属しており〔2〕、河川、湖沼、養殖池への流入はとくに注意を要する農薬である。また、人畜に対しては、魚類に対する毒性に比べて弱いが、皮膚に発疹等を起すといわれている〔3〕。

食品衛生法では、食品規格としての残留農薬基準は定められていないが、最近野菜中のTPN検出率の高いことが報告され〔4, 5, 6, 7, 8〕、本農薬の野菜中への残留性が問題となっている。そこで、われわれは野菜中のTPN残留状況を把握するために、キュウリ、トマトおよびナスの生鮮野菜と、キュウリ、ハクサイおよびナスの漬物中のTPN残留量の調査を行った。また環境庁の設定した登録保留基準(1.0 $\mu$ g/g)を越えるものがみられたので、キュウリを用いてTPNの洗浄による除去についても検討し、水道水のみによる洗浄で除去効果のあることが明らかとなったのであわせて報告する。

## 実 験 方 法

1. 試料野菜(キュウリ、トマト、ナス): 昭和56年6月から昭和57年8月にかけて、広島市内で購入した市販品および県内の生産地において保健所食品衛生監視員により採取されたものを用いた。

漬物(キュウリ、ハクサイ、ナス): 昭和56年10月から昭和57年1月にかけて、広島市内で購入した市販品を用いた。

2. 検液の調製 TPNの定量法は真砂らの方法〔6〕によった。すなわちスピードカッター(ナショナル電気調理器MK-132)でホモジナイズした試料50gを300ml共栓三角フラスコにとり、リン酸5mlを添加後アセトン100mlを加え、10分間振とうし、セライト545を約1cmの厚さに敷いた桐山式ロート上に注ぎ、吸引ろ過した。残渣にアセトン100mlを加え同様の操作をくり返した。ろ液中のアセトンはロータリーエバポレーターを用いて40°以下で留去した。残りの水溶液を5%食塩水200ml中に移し、石油エーテル100mlで3回抽出し、抽出液を精製水100mlで洗い、無水硫酸ナトリウムで脱水後、KD濃縮器で約5mlに濃縮した。クロマト管(1.5cm $\phi$ ×30cm)に130°で一夜活性化したシリカゲル(メルク社、70~230メッシュ)10g、その上に無水硫酸ナトリウム約5gをn-ヘキサンに懸濁したものを入れた。このカラ

\* 広島県衛生研究所: Hiroshima Prefectural Institute of Public Health

\*\* 広島女子大学家政学部: Department of Food and Nutrition, Faculty of Home Economics, Hiroshima Women's University

表1. 生鮮野菜および漬物中のTPNの分析結果

品名	検体数	検出率 (%)	残留濃度区分 ( $\mu\text{g/g}$ )					平均残留量 <sup>2)</sup> ( $\mu\text{g/g}$ )	
			ND <sup>1)</sup>	0.005~0.009	0.010~0.099	0.100~0.999	>1.000		
生鮮野菜	キュウリ	47	70.2	14	6	13	13	1	0.17
	トマト	28	78.6	6	3	11	7	1	0.18
	ナス	25	40.0	15	5	2	3	0	0.02
漬物	キュウリ	10	50.0	5	1	4	0	0	0.03
	ハクサイ	10	20.0	8	1	1	0	0	0.02
	ナス	10	0	10	0	0	0	0	—

- 1) ND: 不検出 ( $<0.005\mu\text{g/g}$ ).  
 2) 不検出 (ND) を除いた試料の平均値.

ムに上記の濃縮液を注入し、5%エーテル含有 n-ヘキサン 150ml で溶出させた後、KD濃縮器で5mlに濃縮してガスクロマトグラフィー (GC) 用検液とした。

3. キュウリの洗浄方法 市販キュウリを縦に3分割し、0.03%濃度の家庭用中性洗剤中でスポンジによるすり洗いを約10秒間行った後、流水中で手によるすり洗いを約10秒間行い、これを洗浄試料(1)とした。また、流水中で約20秒間手によるすり洗いを行いこれを洗浄試料(2)とした。残りを非洗浄試料(3)とした。

4. ガスクロマトグラフィーの条件装置: 柳本製作所 G-2800ECD-C (GC) Ni<sup>63</sup> 10mCi, カラム: (1)2%DEGS + 0.5%H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> (Chromosorb W, AW, 60-80mesh), 3mmφ×1.5m, カラム槽温度200°, キャリヤーガスN<sub>2</sub>: 40ml/min; (2)2% Silicone OV-17 (Anakrom Q, 90-100mesh), 3mmφ×2m, カラム槽温度200°, キャリヤーガスN<sub>2</sub>: 40ml/min.

### 結果および考察

#### 1. 生鮮野菜および漬物中のTPN残留量

生鮮野菜および漬物中の残留TPNの分析結果を表1に示す。生鮮野菜では、キュウリ (70%) およびトマト (78%) はナス (40%) に比べ検出率が高く、また、不検出 (ND) の試料を除いた平均残留量は、キュウリで  $0.17\mu\text{g/g}$ 、トマトで  $0.18\mu\text{g/g}$  であり、ナスで  $0.02\mu\text{g/g}$  であった。これらの値は、真砂ら [6] や小関ら [8] の調査とほぼ同様の結果であった。また、環境庁の定めた残留基準値  $1.0\mu\text{g/g}$  を上まわっているのは、キュウリ、トマトの各1検体ではあるが、それらの残留量はそれぞれ  $2.08\mu\text{g/g}$ 、 $1.80\mu\text{g/g}$  という高い値であった。上記の如く生鮮野菜中にはTPN残留量の高いものもあ

ったので、野菜の加工食品である漬物中の残留量の実態を知るために、キュウリ、ハクサイおよびナスの漬物について調査を行った。その結果は表1に示すように、キュウリ漬10検体のうち5検体、ハクサイ漬10検体のうち2検体から検出されたが、残留量は生鮮野菜に比して低い値であった。

#### 2. キュウリの部位別残留分布

市販キュウリ (平均重量:  $22.9\text{g}$ ) 4本を用いて、TPN含有量の部位別分布を調べた。家庭用皮むき器で皮部と果肉部とに分け、各部位の重量とTPN含有量を測定した。その結果は表2に示したように、皮部の重量はキュウリ全体の23%であったが、TPNはキュウリ全体の86%が同部に存在していた。キュウリに散布されたTPNは表面に大部分が付着していると思われる。

表2. キュウリ中のTPN分布 (%)

部位	重量	TPN
皮部	$22.9 \pm 3.2$	$85.8 \pm 3.1$
果肉部	$77.1 \pm 3.2$	$14.2 \pm 3.1$

試料数: 4.

#### 3. TPNの洗浄による除去効果

前項でキュウリの皮部にTPN含有量が高いことが認められたので、家庭で行われている方法 (実験方法の項3) に従い、洗浄による除去効果の検討を行った。表3に市販キュウリ (平均残留量  $0.31\mu\text{g/g}$ ) を用いて行った試験結果を示した。水道水で洗浄した場合は約81%、中性洗剤で洗浄した場合は約86%とほぼ同程度の除去率を示した。したがって、洗剤を使用しなくても、流水中で手によるすり洗いをを行うことにより、TPNの高い除去

効果が得られることがわかった。

以上の結果より、野菜の表皮に付着したTPNは水洗により容易に除去され、ヒト体内への摂取量は少ないものと思われる。

表3. キュウリ中のTPNの洗浄による除去効果

洗浄方法	除去率(%)
中性洗剤	85.8±6.1 <sup>1)</sup>
水道水	81.0±5.6 <sup>2)</sup>

試料数：3.

- 1) 洗浄試料(1)中のTPN残留量/非洗浄試料(3)中のTPN残留量.
- 2) 洗浄試料(2)中のTPN残留量/非洗浄試料(3)中のTPN残留量.

#### 4. 市販キュウリ中のTPN残留量の月別状況

昭和56年9月から昭和57年8月の1年間、広島市内の小売店とスーパーマーケットの2ヶ所でそれぞれ1検体を毎月1回継続して購入し分析を行った。図1にキュウリ中のTPN残留量の月別状況を示した。年間をとおして、TPN剤はキュウリに使用されていることが認められた。また残留量は夏期に比べて冬～春期にやや高い傾向がみられた。真砂ら〔6〕は、ハウス栽培されたキュウリ、トマトの分析結果から、ハウス内でTPNが多く使用されていることを報告しており、今回の調査結果からも、施設栽培の野菜へのTPN剤の使用が推察された。

#### ま と め

1. 生鮮野菜および漬物中のTPN残留実態調査を行った。検出率および不検出を除いた試料の平均残留量は、それぞれキュウリが70.2%、0.17μg/g、トマトが78.6%、0.18μg/g、ナスが40.0%、0.02μg/g、キュウリ漬が50%、0.03μg/g、ハクサイ漬が20%、0.02μg/gであった。またナス漬は不検出であった。
2. 市販キュウリを部位別に分析した結果、TPNは

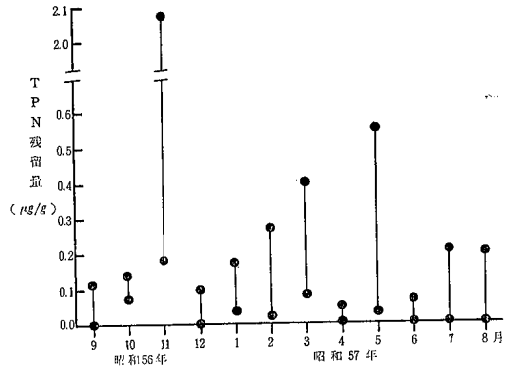


図1. 市販キュウリ中のTPN残留量の月別状況。

皮部にキュウリ全体の86%が存在していた。また、流水中で手によるすり洗いを行うことにより約81%が除去されることがわかった。

3. 市販キュウリ中のTPN残留量の月別状況を調査したところ、年間をとおして使用されていた。また夏期に比べて冬～春期に残留量の高い傾向がみられた。

#### 文 献

- 〔1〕 武田明治：食品衛生研究，27，75 (1977).
- 〔2〕 農林水産省農薬検定所：農薬の魚毒性分類一覧表 (昭和56年1月1日).
- 〔3〕 坂井弘監修：農薬公害ハンドブック，p. 218 (1974).
- 〔4〕 本間敏則，向井敏子，真保正紀，寺田 稔，榊山 健一，荒川治男：新潟市衛試年報，3，49 (1979).
- 〔5〕 食品化学研究室：千葉県衛研年報，28，71 (1979).
- 〔6〕 真砂秀夫，飯塚俊彦，氏家淳雄：群馬県衛生公害研年報，11，99 (1979).
- 〔7〕 小関正道，嶋村保洋，真木俊夫，田村行弘，直井家壽太：東京都衛研年報，31—1，170 (1980).
- 〔8〕 小関正道，田村行弘，真木俊夫，勸 公子，直井家壽太：東京都衛研年報，32—1，172 (1981).

# 広島県における雨水中（降雨毎）の 全β放射能年間降下量について

中 富 文 雄\*

## Gross β Activity of Annual Fallout in Every Rainfall in Hiroshima Prefecture

FUMIO NAKATOMI

(Received Oct. 11, 1983)

### 緒 言

これまで世界各国が大気圏核実験を実施して来たが〔1-3〕、当所では核実験により発生した放射性物質による環境汚染をモニターする目的で、1966年から1982年まで、雨水中（降雨毎）の全β放射能降下量の観測を行って来た。

核実験により発生する放射性物質は次に述べる二つに分けられる。一つは成層圏に達し、長期間滞留し全地球的に拡散した後、徐々に地上に降下する global fallout〔4-7〕であり、これは1963年に大気圏核実験禁止協定が締結された後、減少して来ていることが知られている〔5-7〕。もう一つは核実験の直後、爆発地点の周囲および風下にあたる地域に、一時的に降下する local falloutである〔4, 8, 9〕。

当所においては、中国核実験により発生し日本上空に飛来した local fallout についての観測結果は既に若干の報告を行って来たところであるが〔10-12〕、global fallout に関する詳細な報告は未だなされていない。

そこで筆者は、1966年から1982年の間の、雨水中（降雨毎）の全β放射能降下量を年度ごとに積算し、全β放射能年間降下量を求め、核実験により発生した放射性物質の降下量の推移について若干の検討を加えた。

### 測 定 方 法

雨水中（降雨毎）の全β放射能の測定は、科学技術庁編「放射能測定法1963年」（1966年—1977年）、同編「全

ベータ放射能測定法1976年」（1978年—1982年）に従って行った。

GM管は日本無線 GM 2504 A型 3710（1966年—1977年）、Aloka GM2503A型（1978年—1979年）および同 GM2503 B型（1980年—1982年）を使用した。

計数装置は日本無線DC-110型3773（1966年—1977年）および Aloka TDC 501 型（1978年—1982年）を使用した。

### 結果および考察

図1に1966年から1982年までの全β放射能年間降下量

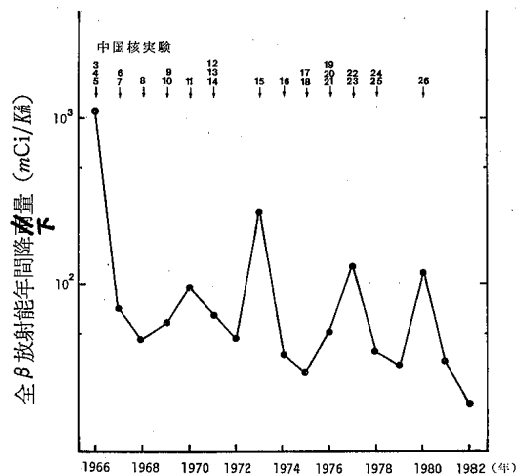


図1. 広島県における雨水中（降雨毎）の全β放射能年間降下量の推移。

\* 広島県衛生研究所：Hiroshima Prefectural Institute of Public Health

の推移を示した。

1966年, 1973年, 1977年における全β放射能年間降水量の増大が目目されるが, これは表1に示すように, 中国核実験により発生し日本上空に飛来した local fallout が観測されたものであった [10-12].

表1. 雨水中の全β放射能降下量

観測年月日	降下量 (mCi/km <sup>2</sup> )	中国核実験実施年月日
1966. 5. 11	127	1966. 5. 9 (第3回)
1967. 1. 1	846	1966. 12. 28 (第5回)
1973. 7. 2	227	1973. 6. 27 (第15回)
1977. 9. 24	71	1977. 9. 17 (第22回)

表2. 最近5ヶ年間の5月から7月の間の全β放射能降下量および降水量

年度	全β放射能降下量 (mCi/km <sup>2</sup> )	降水量 (mm)
1978	10	208
1979	18	539
1980	90	791
1981	22	522
1982	8	498

1980年も全β放射能年間降水量が多かったが, これは10月に行われた第26回中国核実験の影響によるものではなく, 表2に示すように, 例年に比較して降雨量の多かった5月から7月の間の全β放射能降下量が異常に多かったことによるものであった。核実験により発生した放射性物質は, 主として雨水とともに地上に降下するが [13], 例年に比較して降雨量の多かった5月から7月の間に, 異常に多量の放射性物質の降下を見たことの原因は不明であり, 今後の検討を予定している。

図1から, 核実験の一時的な影響により全β放射能年間降水量の特に多かった1966年, 1973年, 1977年, そして5月から7月の間に多量の放射性物質が降下したことにより全β放射能年間降水量の増大を示した1980年を除いて考えると, 全β放射能年間降水量, 換言すれば global fallout の量は, 1966年から1982年に至る間, 経年的な漸減傾向が明瞭である。これはこれまでいくつかの観測結果から得られた結論 [5-7] と一致するもの

であった。1963年の大気圏核実験禁止協定の締結後, 核実験の視模および回数が減少して来たことと, 成層圏に滞留していた放射性物質が, 拡散および降下により減少, あるいは壊変により減衰して来たこと等により, 当所における全β放射能年間降水量が, 1966年以後1982年にかけて漸減傾向を示したものと思われる。

### 要 約

核実験により発生した放射性物質は, 1966年から1982年までの間, 常に観察されたが, その量は徐々に減少していた。

1966年, 1973年, 1977年には, 中国核実験の影響によって, 一時的に多量の放射性物質が降下した。1980年には, 5月から7月の間に, 異常に多量の放射性物質が降下した。

このことについては, 原因は不明であり今後の検討を予定している。

なお, 本調査は科学技術庁の委託により実施した。

### 引 用 文 献

- [1] J.B. Wiesner, and H.F. York: 自然, 20, 21 (1965).
- [2] 放射能対策本部: 第26回中国核実験関係資料, p. 33 (1980).
- [3] 市川龍資: 環境放射能, p. 2(1978), 放射線医学総合研究所養成訓練部.
- [4] 市川龍資: 放射線科学, 21, 8 (1978).
- [5] 岩倉哲男, 新井清彦: 第24回環境放射能調査研究成果発表会要旨集, p. 9 (1981).
- [6] 大沼章子, 茶谷邦男, 清水通彦, 富田伴一, 浜村憲克: 愛知県衛生研究所報, 33, 31 (1983).
- [7] 葛城幸雄, 杉村行勇: 第18回環境放射能調査研究成果発表会要旨集, p. 18 (1975).
- [8] 岡野真治: 第15回環境放射能調査研究成果発表会要旨集, p. 144 (1972).
- [9] 滝沢行雄, 菅井隆一, 須永 寛, 西野栄作, 金田和子, 篠川至: 日本公衛誌, 16, 483 (1969).
- [10] 昭和41年度広島県衛業務年報, p. 124(1966).
- [11] 児玉陽太郎, 調枝勝幸: 第16回環境放射能調査研究成果発表会要旨集, p. 289 (1973).
- [12] 中富文雄, 中村寿夫: 第20回環境放射能調査研究成果発表会要旨集, p. 241 (1977).
- [13] 川瀬金次郎, 小林宇五郎, 小山誠太郎, 滝沢行雄: 環境と放射能, p. 13 (1971) 東海大学出版会.



## 広島県北西部の井戸水の水質について

住 川 博 紀\*      頼 光 彰 子\*      金 廣 美 智子\*  
 中 村 寿 夫\*\*      児 玉 陽 太 郎\*\*

### Studies on Well Water Quality in Yamagata and Takata Areas in Hiroshima Prefecture

HIROMICHI SUMIKAWA, AKIKO YORIMITSU, MICHIKO KANEHIRO,  
 KAZUO NAKAMURA AND YOUTARO KODAMA

(Received Oct. 11, 1983)

#### 緒 言

飲料水としての地下水の重要性は近年水道の普及によりうすれてきたかに見える。しかし所要水量は増大しているため現在もその重要度には変わりなく、とくに県内中部、北部地域においては大切な水資源として活用されている〔1〕。一般家庭の飲料用井戸水は比較的浅層のものを利用して多くの場合、下水、し尿、工場排水、肥料その他の汚物による汚染に注意しなければならない。当県における飲料適否試験項目は、pH、亜硝酸性窒素及び硝酸性窒素、塩素イオン、過マンガン酸カリウム消費量、硬度、色度、濁度、アンモニア性窒素、一般細菌数、大腸菌群であり飲用適否の判断は水道法による省令にもとづく基準を適用している。これらの項目のうち亜硝酸性窒素及び硝酸性窒素、塩素イオン等は自然地下水にも含有されており、それらの含有量は地形、地質、外部環境等の地域特性により相違するものと考えられるので、地域のバックグラウンドデータの範囲がどの程度のものかを充分把握し、水質試験結果についての正確な評価、判断をすることができるような態勢にしなければならないと考える。

われわれはこの観点から、昭和54～56年度の3年間に可部保健所で実施した山県郡と高田郡内の一般家庭用井戸水の水質試験結果のうち、化学的項目にもとづいて分散分析をおこない、若干の検討をしたので報告する。

#### 試料および方法

##### 1. 試料および試験方法

昭和54～56年度において、飲料適否試験のために一般から依頼された家庭用井戸水 930 検体の分析データを使用して統計解析をおこなった。

飲料適否試験は水道法にもとづく水質基準に関する省令〔2〕を適用した。

##### 2. 調査地域

調査地域は管内13町村のうち筒賀村を除いた高田郡、山県郡の12町63地区にわたり、表1に地区名および地質、地形的特徴〔3〕を示した。またその所在を図1に地区No.で示した。管内には太田川、可愛川(江の川)の二大河川が流れており、調査地区はこれらの河川沿に多く位置している。

##### 3. 統計解析

pH、亜硝酸及び硝酸性窒素、塩素イオン、過マンガン酸カリウム消費量、硬度の5項目について、大字名による地区別、町村別に、また、硬度について可愛川水系の上流と下流別にそれぞれ分散分析(一元配置)〔4〕をおこなった。なお統計処理は日本電気株式会社製のPC 8001型パーソナルコンピューターを使用した。

#### 結果および考察

##### 1. 地区別の水質について

\* 広島県可部保健所: Kabe Health Center, Hiroshima Prefecture

\*\* 広島県衛生研究所: Hiroshima Prefectural Institute of Public Health

表1. 調査地区名及び地質, 地形的特徴

No.	地区名	地質及び地形的特徴	No.	地区名	地質及び地形的特徴
1	高宮町 船佐	古期花崗岩類, 河川周辺	33	〃 壬生	〃 〃
2	〃 佐々部	〃 山 間	34	〃 有田	〃 〃
3	〃 船木	〃 河川周辺	35	〃 今田	〃 〃
4	〃 羽佐竹	甲立礫層, 〃	36	〃 蔵迫	〃 〃
5	〃 来女木	古期花崗岩類, 〃	37	〃 川戸	藤原層, 〃
6	〃 原田	高田流紋岩類, 〃	38	大朝町 新庄	広島花崗岩類, 〃
7	甲田町 下甲立	〃 〃	39	〃 大朝	〃 〃
8	〃 浅塚	〃 〃	40	〃 大塚	〃 〃
9	〃 上甲立	〃 〃	41	豊平町 志路原	段丘堆積物, 〃
10	〃 高田原	〃 〃	42	〃 都志見	広島花崗岩類, 〃
11	〃 下小原	〃 〃	43	〃 戸谷	広島花崗岩類, 山 間
12	向原町 戸島	〃 山 間	44	〃 阿坂	〃 〃
13	〃 坂	〃 河川周辺	45	〃 今吉田	〃 〃
14	〃 有留	古世層千枚岩及び粘板岩, 山間	46	〃 長笹	〃 〃
15	〃 長田	高田流紋岩類, 河川周辺	47	加計町 宍	古世層千枚岩及び粘板岩, 河川周辺
16	吉田町 上入江	〃 〃	48	〃 坪野	〃 〃
17	〃 竹原	〃 〃	49	〃 津浪	〃 〃
18	〃 吉田	〃 〃	50	〃 香草	〃 〃
19	〃 相合	〃 〃	51	〃 加計	〃 〃 河川周辺
20	〃 多治比	〃 〃	52	〃 下筒賀	広島花崗岩類, 〃
21	美土里町横田	〃 〃	53	〃 下殿賀内	〃 〃
22	美土里町本郷	高田流紋岩類, 河川周辺	54	戸河内町横川	高田流紋岩類, 〃
23	〃 北	段丘堆積物, 〃	55	芸北町西八幡原	段丘堆積物, 〃
24	〃 生田	〃 〃	56	〃 荒神原	〃 〃
25	八千代町土師	高田流紋岩類, 〃	57	〃 中祖	〃 〃
26	〃 勝田	〃 〃	58	〃 草安	高田流紋岩類, 山 間
27	〃 佐々井	〃 〃	59	〃 奥中原	〃 〃 河川周辺
28	〃 上根	藤原層, 〃	60	〃 細見	〃 〃 山 間
29	〃 向山	広島花崗岩類, 山 間	61	〃 小原	〃 〃
30	千代田町南方	新期花崗岩類, 〃	62	〃 移原	〃 〃
31	〃 石井谷	広島花崗岩類, 〃	63	〃 溝口	古期花崗岩類, 〃
32	〃 本地	〃 河川周辺			

調査した63地区の井戸水のサンプル数, 測定結果の平均値, 標準偏差を表2に示した。また, 分散分析の結果を下段に示した。

1) pH: 自然水において, 一般にpHは溶存する遊離炭酸と炭酸塩との濃度割合によってきまるといわれ, 弱酸性の水は主として遊離炭酸の影響によるものといわれている[5]。調査地区の全平均値と標準偏差は $6.20 \pm 0.36$ と弱酸性のものが大多数をしめた。このことから遊離炭酸の量に対応する炭酸イオンの量より多いことが推察される。しかし, pH 5 以下の水は見受けられず, 鉍酸あるいは有機酸等の影響を受けたと思われるものはなかった。

図2-1に示したように, pHのやや高い(6.4以上)地区は, 古世層千枚岩および粘板岩地帯(地区番号47~51), 広島花崗岩類地帯(2, 29, 32, 44, 45), 高田流紋岩類地帯(7, 11, 15, 22, 61)に散在している。またpHの低い(6.0以下)地区は広島花崗岩類地帯(33, 35, 36, 38, 40), 高田流紋岩類地帯(58, 59, 60, 62)であった。

2)  $\text{NO}_2$ ,  $\text{NO}_3\text{-N}$ : 硝酸性窒素はその過剰を含む地下水を摂取した乳児が, メトヘモグロビン血症を起す原因物質として知られており, 地表水および深層地下水では少く, 浅層地下水に比較的多いとされている[5]。調査地区の全平均値と標準偏差は $1.16 \pm 1.54 \text{mg/l}$ とバ

表2. 地区別平均値及び分散分析表

地区No.	検体数	pH		NO <sub>2</sub> +NO <sub>3</sub>		Cl		KMnO <sub>4</sub>		硬度	
		平均値	標準偏差	平均値	標準偏差	平均値	標準偏差	平均値	標準偏差	平均値	標準偏差
1	4	5.95±0.19		0.02±0.01		4.3±1.2		1.08±1.07		9.7±3.4	
2	17	6.40±0.32		0.46±0.59		7.5±3.8		1.68±2.65		19.0±6.1	
3	9	6.34±0.25		1.25±1.73		8.9±6.5		1.81±1.82		31.4±16.6	
4	7	6.06±0.38		2.29±3.52		11.1±8.3		2.03±1.36		29.1±28.8	
5	6	6.25±0.44		0.09±0.11		5.5±2.3		2.09±1.51		11.4±3.4	
6	4	6.08±0.22		0.57±0.72		9.8±10.2		1.38±0.95		32.6±27.7	
7	4	6.48±0.73		1.96±2.74		13.8±3.1		1.05±1.00		64.4±20.5	
8	5	6.08±0.11		1.81±0.49		8.7±3.0		1.96±0.80		40.3±13.4	
9	5	5.91±0.23		2.36±2.52		12.1±5.1		1.67±1.14		44.2±11.9	
10	9	6.07±0.35		1.71±1.25		16.6±11.5		1.87±0.34		49.2±17.4	
11	11	6.41±0.58		0.95±0.95		12.3±13.2		1.65±1.21		44.6±25.4	
12	24	6.30±0.37		0.32±0.60		4.3±2.2		1.37±1.08		19.0±11.5	
13	99	6.24±0.38		1.42±2.00		6.4±4.8		1.77±1.21		26.1±17.2	
14	4	6.27±0.23		1.56±0.91		11.1±1.8		1.20±0.48		41.3±7.8	
15	7	6.39±0.43		0.59±0.99		3.4±1.5		1.43±0.75		38.9±41.1	
16	5	6.08±0.30		1.36±0.91		8.9±2.2		1.26±0.60		33.6±5.7	
17	49	5.91±0.21		1.57±0.96		11.4±3.8		1.04±0.43		48.4±13.5	
18	37	6.17±0.31		2.67±2.28		16.6±16.4		1.55±1.22		46.5±21.2	
19	18	6.08±0.22		2.15±1.29		12.3±5.6		1.69±1.14		39.9±14.4	
20	14	6.21±0.28		0.89±0.59		7.6±1.9		1.35±0.81		37.0±19.7	
21	22	6.20±0.44		1.76±2.21		14.9±12.0		1.64±0.92		45.5±29.8	
22	17	6.43±0.49		0.51±0.79		6.1±3.8		1.53±0.80		25.3±17.6	
23	15	6.33±0.50		1.46±2.44		10.1±5.9		1.80±1.41		40.0±26.5	
24	7	6.04±0.43		0.66±0.63		7.4±3.3		1.86±1.68		21.4±14.6	
25	4	6.25±0.19		0.28±0.20		6.9±4.9		1.75±0.99		23.2±13.1	
26	6	6.21±0.35		1.14±0.86		6.6±2.3		1.16±0.85		20.0±3.3	
27	9	6.09±0.27		1.52±0.61		10.1±2.0		1.21±1.07		28.2±4.9	
28	5	6.36±0.49		0.82±0.58		8.8±4.9		1.66±0.74		22.8±12.9	
29	15	6.41±0.44		1.23±1.38		9.0±6.2		1.95±1.16		30.5±18.5	
30	15	6.20±0.71		1.63±1.29		11.0±6.0		2.07±0.34		35.8±20.8	
31	4	6.15±0.26		3.06±2.51		13.2±5.3		2.25±1.08		31.0±16.3	
32	15	6.64±0.64		1.55±1.84		8.6±4.2		1.33±1.88		40.7±15.2	
33	13	6.07±0.33		2.12±1.73		12.0±5.8		1.96±1.53		40.6±17.9	
34	23	6.17±0.27		1.74±1.63		8.7±4.6		1.81±1.34		37.0±17.3	
35	6	6.07±0.16		1.64±0.97		13.2±2.7		1.15±0.43		58.7±17.8	
36	14	6.03±0.19		1.34±1.37		8.5±3.5		1.35±0.77		27.8±9.6	
37	9	6.30±0.41		2.03±2.18		9.4±5.0		1.40±1.21		30.0±17.4	
38	13	5.88±0.19		1.72±1.29		12.7±2.0		1.67±1.31		39.1±9.5	
39	59	6.11±0.33		2.11±2.11		10.8±4.6		1.60±1.31		32.7±14.1	
40	30	5.98±0.26		1.64±1.43		9.9±2.9		1.97±0.90		21.8±11.1	
41	18	6.14±0.42		1.30±1.38		7.7±3.9		1.43±1.44		24.1±17.0	
42	14	6.24±0.43		1.15±0.91		11.1±6.1		1.75±1.61		36.7±22.5	
43	13	6.28±0.44		1.28±1.51		7.4±2.8		1.31±0.87		33.9±20.6	
44	21	6.63±0.43		1.55±1.37		6.8±2.8		1.42±0.81		36.3±18.2	
45	7	6.40±0.30		0.91±1.39		5.0±2.0		1.36±1.06		29.4±15.5	
46	4	6.23±0.29		0.45±0.46		15.3±10.2		1.40±0.36		60.3±9.9	
47	21	6.45±0.43		0.98±1.12		9.1±4.5		1.58±1.39		25.1±6.7	
48	7	6.40±0.26		0.59±0.48		6.1±2.1		1.82±2.06		20.9±6.0	
49	14	6.47±0.30		1.45±1.42		6.5±2.1		1.31±0.72		36.0±18.6	
50	9	6.41±0.29		0.29±0.09		4.7±1.0		1.36±1.04		16.8±6.0	
51	13	6.56±0.35		0.52±0.55		5.5±2.3		1.51±1.21		21.6±7.2	
52	14	6.20±0.37		1.46±0.65		8.8±1.8		1.05±0.72		31.2±7.9	
53	10	6.20±0.23		1.05±0.49		7.7±1.8		1.19±0.90		31.1±5.6	
54	14	6.10±0.35		0.22±0.14		6.1±2.6		2.58±1.91		12.1±3.9	
55	4	6.43±0.56		0.10±0.06		5.7±1.2		1.30±0.27		24.0±10.7	
56	32	5.93±0.17		0.61±1.00		7.9±3.6		1.55±1.32		17.7±14.4	
57	29	5.99±0.27		0.74±1.45		7.8±3.3		1.80±2.36		16.9±9.9	
58	5	6.00±0.33		0.78±1.37		9.7±1.6		2.36±1.56		12.2±6.0	
59	7	6.03±0.29		0.06±0.04		6.1±1.1		1.90±1.60		10.3±2.0	
60	11	6.03±0.32		0.55±0.80		6.0±2.8		1.68±1.24		11.8±4.0	
61	5	6.66±0.24		0.07±0.04		10.8±10.2		1.26±0.70		8.4±2.1	
62	12	6.03±0.36		0.69±2.08		6.4±3.4		2.58±1.89		14.1±7.0	
63	7	6.23±0.34		0.05±0.03		5.2±2.9		1.93±1.72		12.9±10.8	
計	930	6.20±0.36		1.16±1.54		8.9±5.4		1.57±1.24		30.0±15.4	

分散分析表		分散	分散比	分散	分散比	分散	分散比	分散	分散比	分散	分散比
級間	0.535	4.09**	6.044	2.55**	114.7	3.96**	1.570	1.03(→)	1680	7.07**	
級内	0.131		2.374		29.0		1.527		237.6		

注1 分散比で\*\*印は1%の危険率で地区差が有意であることを示した。  
 2 平均値はpHを除きmg/lで示した。

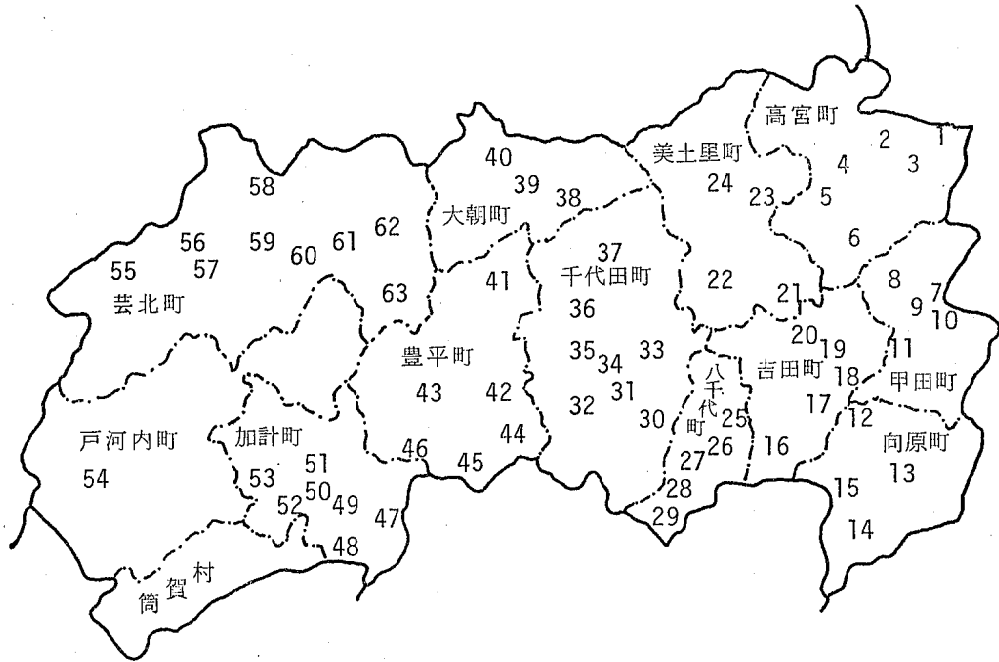


図1. 可部保健所管内採水地区図.

ラツキが大きかった。

図2-2に示したように、平均値で  $2\text{mg}/\ell$  以上の高い濃度の地区は可愛川の流域地域に特徴的にみられ、広島花崗岩類地帯 (31, 33, 37, 39) と高田流紋岩類地帯である。  $0.5\text{mg}/\ell$  以下の低い濃度の地区は加計町、芸北町、戸河内町にわたる太田川上流域 (50, 51, 54, 55, 59~61, 63) と江の川および可愛川上流の高宮町 (1, 2, 5)、美土里町 (22)、八千代町 (25)、向原町 (12) である。

3)  $\text{Cl}^-$ : 塩素イオンは  $30\text{mg}/\ell$  以下が普通とされており、下水、し尿、工場排水等の混入により増加することが多い。  $5\sim 15\text{mg}/\ell$  程度が自然水において一般的な濃度と考えられている [5, 6]。調査地区の全平均値と標準偏差は  $8.9 \pm 5.4\text{mg}/\ell$  と比較的バラツキも少く、  $5\sim 15\text{mg}/\ell$  のものが約 90% をしめており全国平均的な範囲内であった。

図2-3に示したように、平均値で  $10\text{mg}/\ell$  以上のやや高い地区は可愛川水系附近に集中しており、太田川水系周辺では  $10\text{mg}/\ell$  以下のものがほとんどである。  $5\text{mg}/\ell$  以下の低い濃度の地区は向原町 (12, 15)、加計町 (50)、高宮町 (1) の少数例であった。

4)  $\text{KMnO}_4$  消費量: これは水中の有機物の量を知ることが目的としているが、有機物の種類により  $\text{KMnO}_4$  消費量に差があること、無機還元性物質も  $\text{KMnO}_4$  を消

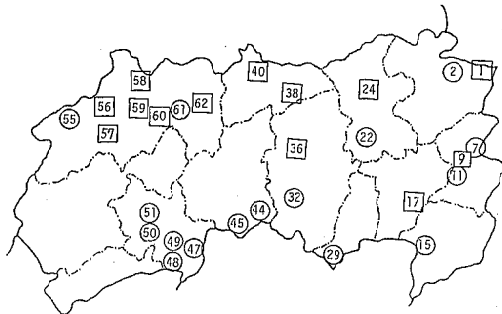


図2-1. pHの分布図.

○:  $\geq 6.4$   
□:  $\geq 6.0$

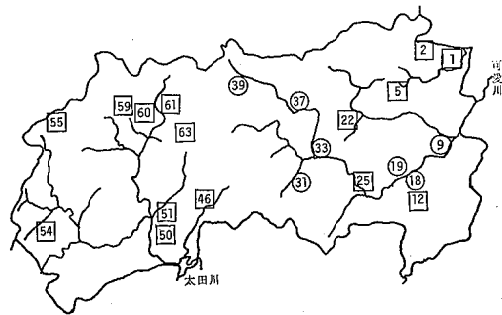


図2-2. 亜硝酸及び硝酸性窒素の分布図.

○:  $\geq 2.0\text{mg}/\ell$   
□:  $\geq 0.5\text{mg}/\ell$

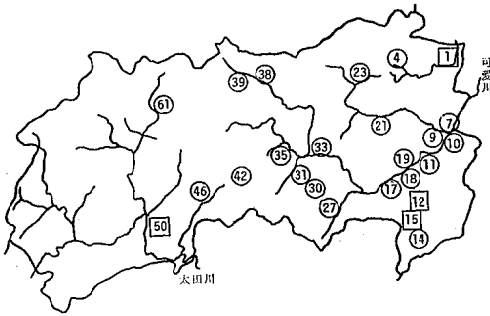


図2-3. 塩素イオンの分布図.

○ :  $\geq 10 \text{ mg/l}$   
 □ :  $\leq 5 \text{ mg/l}$

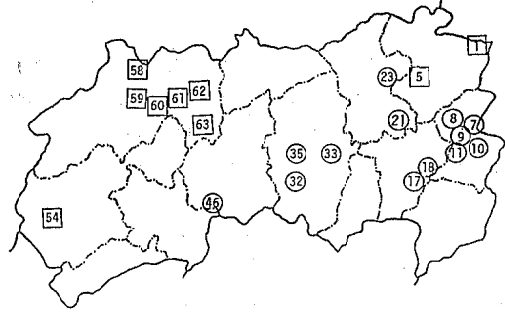


図2-4. 硬度の分布図.

○ :  $\geq 40 \text{ mg/l}$   
 □ :  $\leq 15 \text{ mg/l}$

費するために  $\text{KMnO}_4$  消費量のみで汚染を判断することはできない。しかしながら、アンモニア性窒素や  $\text{Cl}^-$  との関連でし尿汚染の有力な指標となるので重要である。調査地区の全平均値と標準偏差は  $1.15 \pm 1.24 \text{ mg/l}$  であり、いずれの地区も  $3 \text{ mg/l}$  以下であった。

5) 硬度：これは水中の  $\text{Ca}$  塩、 $\text{Mg}$  塩に支配され、海水、下水、工場排水等の汚染により増加することがあるが、主に地質からくるものとされている〔5〕。調査地区の全平均値と標準偏差は  $30.0 \pm 15.4 \text{ mg/l}$  であり、軟水〔5〕に該当する地区がほとんどをしめた。

図2-4に示したように、 $40 \text{ mg/l}$  以上の高い濃度の

地区は可愛川水系の千代田町(32, 33, 35)、吉田町(17, 18)、甲田町(7~11)、美土里町(21, 23)に多くみられ、 $15 \text{ mg/l}$  以下の比較的低い濃度の地区は芸北町(58~63)と戸河内町(54)であった。

2. 町域別の水質について

63地区を12町にまとめた場合のサンプル数、平均値、標準偏差と分散分析の結果を表3に示した。

1) pH：地区別の項で記したように管内の一般家庭用井戸水はほとんどが弱酸性であるが、そのうち比較的高いところは豊平、加計の2町であり、低いのは吉田、大朝、芸北の3町であった。分散分析をおこなった結果

表3. 町別平均値及び分散分析表

町名	検体数	pH		$\text{NO}_2 + \text{NO}_3$		Cl		$\text{KMnO}_4$		硬 度	
		平均値	標準偏差	平均値	標準偏差	平均値	標準偏差	平均値	標準偏差	平均値	標準偏差
高宮町	47	6.24	±0.32	0.82	±1.04	8.0	±5.3	1.58	±1.90	22.4	±15.8
甲田町	34	6.23	±0.44	1.73	±1.58	11.5	±8.0	1.64	±1.02	45.7	±22.9
向原町	134	6.26	±0.37	1.20	±1.31	6.6	±2.7	1.68	±1.06	24.3	±18.6
吉田町	123	6.04	±0.27	1.85	±1.78	11.5	±5.8	1.35	±0.95	44.4	±15.2
美土里町	61	6.27	±0.46	1.33	±1.81	10.5	±7.1	1.62	±1.18	34.1	±21.5
八千代町	39	6.28	±0.40	1.15	±1.09	8.7	±4.6	1.58	±1.12	26.5	±12.0
千代田町	99	6.20	±0.43	1.81	±1.96	9.9	±5.2	1.52	±1.33	36.4	±17.8
大朝町	102	6.04	±0.30	1.92	±1.97	10.7	±3.9	1.73	±1.25	30.2	±13.5
豊平町	77	6.36	±0.42	1.25	±1.39	8.1	±4.3	1.43	±1.20	32.1	±18.8
加計町	88	6.42	±0.36	0.97	±1.05	7.0	±2.5	1.33	±1.31	27.7	±10.5
戸河内町	14	6.10	±0.35	0.22	±0.14	6.1	±2.6	2.58	±1.91	12.1	± 3.9
芸北町	112	6.05	±0.27	0.55	±0.93	7.3	±3.4	1.74	±1.56	15.4	± 9.3
計	930	6.20	±0.36	1.16	±1.54	8.9	±5.4	1.57	±1.24	30.0	±15.4
分散分析表		分 散	分散比	分 散	分散比	分 散	分散比	分 散	分散比	分 散	分散比
級間		1.32	10.08**	18.23	7.68**	254.3	8.77***	2.70	1.77(←)	6163	25.94**
級内		0.131		2.374		29.0		1.527		237.6	

注1 分散比で\*\*印は1%の危険率で町差が有意であることを示した。

1%の危険率で町別においても有意の地域差がみられた。

2) NO<sub>2</sub>, NO<sub>3</sub>-N : これは平均値に比べて標準偏差が大きく、すなわち非常にバラツキの大きなことが特徴であった。高いところとしては大朝、吉田、千代田、甲田の4町があり、低いのは戸河内、芸北、高宮の3町であった。

3) Cl<sup>-</sup> : 管内の塩素イオン量は前述のように自然水の一般的濃度の範囲内と思われるが、比較的高いところは甲田、吉田、大朝、美土里の4町があり、低いのは戸河内、向原、加計、芸北の4町であった。

4) KMnO<sub>4</sub> 消費量 : 戸河内町を除く11町では2mg/ℓ以下ではほぼ同程度の濃度を示したが、戸河内町は2.58mg/ℓで他の町に比べて高い値であった。これは横川地区のみの14検体であり、例数も少く、戸河内町を代表しているとはいえない。また、後述するが、分散分析の結果有意の差は認められず町別の地域差はみられなかった。

5) 硬度 : 管内東部の甲田、吉田の2町では高く、管内西部の戸河内、芸北の2町は低い濃度であった。両地域の地質をみると(表1参照)甲田、吉田は高田流紋岩類、戸河内、芸北は高田流紋岩類を中心とし、段丘堆積物、古期花崗岩類であり大きな差とは思われない。特徴的なことは戸河内、芸北の採水地区は山間部かあるいは河川上流周辺部に位置しており、これらの地域は降水による十分な涵養を受けにくいものと思われる。

### 3. 地区別および町別の地域差

分散分析は2つ以上の平均値の間に差があるかどうかを検討するためによく使われる手法の1つである。そこで地区別および町別の水質に地域差があるかどうか検討をおこなった。地区別の分散分析結果は表2に、また町別の結果は表3に示した。両者とも、pH、亜硝酸及び硝酸性窒素、塩素イオンおよび硬度の濃度に1%の危険率で有意の差が認められ、地域間に差のあることがあきらかとなった。KMnO<sub>4</sub> 消費量は有意の差は認められず、各地区とも同程度の濃度範囲にあるものと思われる。

### 4. 可愛水系の上下流域における硬度

可愛川は大朝町→豊平町→千代田町→八千代町→吉田町→甲田町をまたがって流れ、江の川となって日本海に注いでいる河川である。この水系の上流域周辺部と下流域周辺部における採水地区を図3に、また硬度の平均濃度を比較した結果を表4に示した。この表からわかるように、下流域周辺部は上流域周辺部と比べて約1.6倍高い値を示した。また分散分析の結果1%の危険率で有意であり地域差を認めた。これは地下水が地中を涵養流下するに従って、Ca<sup>2+</sup> および Mg<sup>2+</sup> を溶出するためと推

察される。

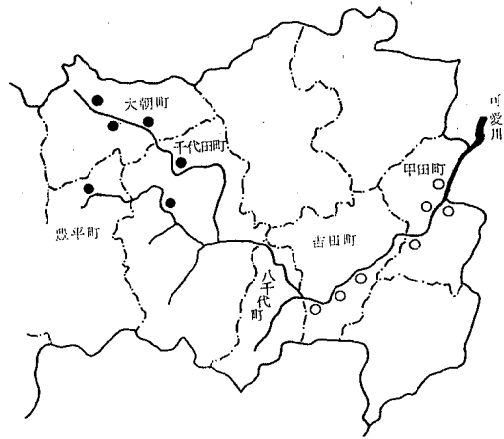


図3. 可愛川水系の上流域地区(●)と下流域地区(○)。

表4. 可愛川水系流域における硬度の平均値と分散分析表

地 区	検体数	平均値 (mg/ℓ)	標準偏差
上流域 (No.36, 37, 38) (39, 40, 41)	143	29.3±12.4	
下流域 (No. 7, 9, 10, 11) (16, 17, 18)	115	46.5±19.6	
分散分析表		分 散 18811	分散比 74.66**
	級間 級内	252	

注: 分散比で\*\*印は1%の危険率で地域差が有意であることを示した。

### ま と め

昭和54~56年度に実施した一般家庭用井戸水の飲料適否試験の測定データを使用して、広島県北西部地方の井戸水の水質の地域差について検討した。

1. 63地区の化学的項目の全体平均値±標準偏差は

pH 6.20±0.36, 亜硝酸及び硝酸性窒素 1.16±1.54mg/ℓ, Cl<sup>-</sup> 8.9±5.4mg/ℓ, KMnO<sub>4</sub> 消費量 1.57±1.24mg/ℓ, 硬度 30.0±15.4mg/ℓ であった。

2. 12町の地域別の平均値の高い町は、pH で加計、豊平、亜硝酸及び硝酸性窒素では大朝、吉田、千代田、Cl<sup>-</sup> では甲田、吉田、KMnO<sub>4</sub> 消費量では戸河内、硬度では甲田、吉田の各町であった。

3. 分散分析法により地域差について解析したところ、地区別および町域別ともに、pH、亜硝酸及び硝酸性窒素、Cl<sup>-</sup>、硬度については地域差が認められたが、KMnO<sub>4</sub>消費量は地域差がみられなかった。

4. 可愛川水系の下流域の硬度は上流域に比して約1.6倍高く、地下水の涵養、流下によると思われる硬度の変化がみられた。

稿を終えるにあたり、有益な御助言をいただいた広島県衛生研究所理化学部長坂本征則博士に深謝します。

## 文 献

- 〔1〕 広島県：広島県環境白書，p. 101 (1982).
- 〔2〕 厚生省：厚生省令第56号，(昭和53年8月31日).
- 〔3〕 広島県：広島県地質図，(1963).
- 〔4〕 古林 隆：統計解析，p. 79 (1981) 培風館.
- 〔5〕 日本薬学会編：衛生試験法・注解，p. 734(1980).
- 〔6〕 地方衛生研究所全国協議会：健康と飲料水中の無機成分に関する研究，p. 12 (1982).

## 他誌掲載論文要約 (1982年11月～1983年10月)

西尾隆昌, 宮崎佳都夫, 中森純三, 県内21医療機関臨床検査部門細菌検査担当者〔広島県臨床細菌研究会〕: 広島地方のサルモネラ症: 1978～1982年の散发患者発生状況. 臨床と細菌, 10: 227-235, 1983.

県下のサルモネラ症散发事例の実態を究明すべく, 県内の医療機関で分離された *Salmonella* 菌株および患者情報を収集し解析を続けている. 1978～1982年の5年間に総計1124名の患者が把握されたが, その52%までが10歳未満の年齢層であった. 最多発年層は1歳で, 全患者の11%を占めた. 以下2歳 (8.3%), 3歳 (6.3%), 0歳と4歳 (5.7%) が上位にあり, 加齢とともに減少した. 患者は年間を通じて発生したが最多発時期は8月で, 6～9月の夏期に72%もが集中した. 分離菌株の血清型は56を数え, 感染源の多彩な点が知られた. 例年 *S. typhimurium* が首位の座 (38%) を占め, *S. java* (13%), *S. litchfield* (7%) がこれに続いている. *S. typhimurium* と *S. litchfield* の薬剤耐性率が高く, 45～55%にも達している. *Salmonella* の分離材料はほとんどが下痢便であったが, 血液からの分離事例が19例あり, そのほとんどが乳幼児であった. 成人に比して乳幼児では赤痢や敗血症の疑われた重症例が多く認められた. 確認サルモネラ症事例については他の病原菌検出情報とともに, 毎月, 月報として医療機関, 医師会および行政分野に還元し, 県下の状況を報告している.

武井直己, 徳本静代, 瀬川和幸, 寺上正人: 高等学校生徒における日本脳炎中和抗体の維持状況について. 感染症学雑誌, 56: 1003～1011, 1982.

日本脳炎ワクチンの追加接種を免れた後の日本脳炎中和抗体の維持状況を高等学校生徒を対象に3年間追跡した. 1978年から1980年の3か年にわたって延361例の血清について JaG Ar#<sup>01</sup>株—初代鶏胎児細胞—50%ブラック減少法で中和抗体の測定を行った.

中和抗体<1:10の推移は, 1学年17.6%, 2学年24.2%, 3学年25.0%であった. これらを抗体価の累積分布からみると, 1学年はその70%前後が, 2学年では76～78%が, 3学年では約80%が1:100 (<1:10を含む) までの抗体域に分布した. 3年連続して採血しえた例では学年と共に抗体価の低下がみられ, 結果として3

年後 (3学年) には初 (1学年) めの抗体価の約 $\frac{1}{2}$ ～ $\frac{1}{3}$ に低下する例が多かった.

Ikunori Sakamoto, Takashi Tanaka, Osamu Tanaka and Tsuyoshi Tomimori: Xanthone Glucosides of *Swertia japonica* Makino and a Related Plant: Structure of a New Glucoside, Isoswertianolin and Structure Revision of Swertianolin and Norswertianolin. Chem. Pharm. Bull., 30, 4088 (1982).

センブリの有効成分である苦味配糖体の高速液体クロマトグラフィーによる分離分析の研究中, 文献未記載の新化合物を単離した. 本化合物は各種スペクトルデータより 5-O- $\beta$ -glucosylbellidifolin と構造決定した. また, この構造研究に関連してすでにセンブリより得られている swertianolin, ニイタカセンブリより得られている norswertianolin の構造の再検討を行い, それぞれの従来の構造式の誤りを指摘し, 新しい式に訂正した.

Ikunori Sakamoto, Kazuyoshi Morimoto, Osamu Tanaka and Hiroyuki Inouye: Application of High Performance Liquid Chromatography and Field Desorption Mass Spectroscopy to Separative Analysis of Bitter Secoiridoid Glucosides of *Swertiae* Herba. Chem. Pharm. Bull., 31, 25 (1983).

センブリの苦味成分としてセコイリドイド配糖体 swertiamarin, sweroside, gentiopicroside, amarogentin, amaroswerin が知られている. センブリまたはそのエキスの品質評価を目的として高速液体クロマトグラフィー (HPLC) によるこれら苦味成分の分離定量分析について検討し, 5種すべての分析が行える方法を開発した. また, これらの配糖体はきわめて不安定な化合物として知られているが, HPLCによって分離されたそれぞれのピークにつき FD-MS によって同定, 純度決定を行った. さらに, 本法を用いて市販品および広島, 山口県内の自生のセンブリ, ムラサキセンブリの分析を行い, 各配糖体の含有量は試料間で著しく差のあることを明らかにした.



広島県衛生研究所研究報告投稿規定 (1981年8月)

(目的)

この規定は広島県衛生研究所業務年報等編集委員会要項に基づいてこれを定める。

(投稿資格)

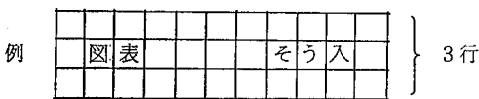
広島県衛生研究所研究報告の論文の著者は原則として広島県衛生研究所職員とする。

(掲載内容)

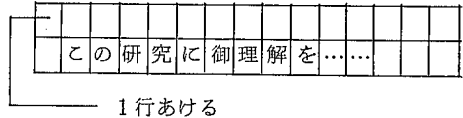
1. 本誌は原則として広島県衛生研究所において行なった研究・調査の業績を掲載する。
2. 論文は未発表のものに限り、内容は次のとおりとする。
  - (1) 総説……内容形式は自由とする。
  - (2) 原著……オリジナリティのあるものに限る。
  - (3) ノート……オリジナリティのあるもので(2)にまとめ得ないもの。
  - (4) 資料……調査結果をまとめたものとする。

(論文執筆要領)

1. 論文原稿はA4判400字詰の原稿用紙を用い表題、著者名、緒言、方法、結果、考察、結語および文献等の順序に書くものとする。表題については和文でタイトル、氏名、所属、続いて欧文でタイトル、氏名、所属の順に記すものとする。本文は表題、著者名、所属の書き終わった後に3行あけて書き始めること。原著、ノートについては250語までの欧文抄録をタイプ用紙で付すこと。
2. 図表はA4判の用紙を用い、図の場合は図の下にそれぞれの一連番号を欧文でFig.1., 表の場合は表の上に Table 1. のようにつけ表題を、また、説明が必要な場合は図、または表の下に欧文で説明等を付けるものとする。本文中の図表のそう入位置は本文中に3行をあけて2行目にそう入図表の指示を赤筆で記す。ただし原著、ノート以外のものについては図表のタイトル説明を欧文にする必要はない。



3. 謝辞は本文の次に1行あけて書きはじめる。



4. 引用文献は本文中に〔1—4〕のように表わし、引用順に末尾に一括して記載する。

文献の書き方  
理化学系

- 1) 雑誌：著者名：タイトル（略してもよい）、雑誌名、巻(号)頁、年(西暦)。
- 2) 単行本：著者名(編集者名、訳者名、監修者名)：書名(版), 編集(監修者名)母体、出版社名、発行地、発行年(西暦), 頁。

生物学系

- 1) 雑誌：著者名(西暦年)：タイトル(略してもよい)、雑誌名、巻(号)、頁(1—5)。
- 2) 単行本：著者名(編集者名、訳者名、監修者名)(西暦年)：書名(版), 頁(P.1—5), 発行地、発行書店。

5. 論文は平かな現代かな使いにより横書きとし、句読点は(.) (,)とする。以上の執筆要領のほかは日本薬学雑誌および日本細菌学雑誌等の執筆規定に準ずるものとする。
6. 原稿枚数は原則として総説40枚、原著および資料30枚、ノート10枚以内とする。

(論文の受理および採否)

1. 論文は各部の編集委員を通じて編集委員会に提出する。
2. 論文の採否は編集委員会の責任で決定する。

(校正)

校正は三校までとし、内容の変更は認めない。

(別刷)

論文1編につき50部とする。

編 集 委 員 会

西 尾 隆 昌 (生物学部) \*  
宮 崎 佳 都 夫 (生物学部)  
妹 尾 正 登 (病理学部)  
金 森 久 幸 (理化学部)  
佐 ☆ 木 実 己 子 (食品衛生部)  
谷 本 勇 二 郎 (総 務 部)  
\* 委 員 長

広島県衛生研究所研究報告

第 30 号

1983年12月発行

発行所 広島県衛生研究所  
広島市南区字品神田1丁目5-70  
〒734・電話(082)251-4371

印刷所 (株) 柳 盛 社 印 刷 所  
広島市中区東白島町8-23  
〒730・電話(082)221-2148