

資 料

海域における COD 上昇原因の究明調査

検査部 大矢学 藤原繁夫 関村照吉 田老真帆 久根崎菜穂子 長澤敦 佐藤耕二
環境科学部 奈良裕佳子 伊藤朋子 八重樫香

1 目的

近年、岩手県の公共用水域における環境基準達成率は、河川の BOD 達成率が 95%超で安定して推移しているのに対し、海域の COD 達成率は大きく変動する傾向が見られる。H18 年度には、海域の COD が上昇したため、環境基準達成率が過去最低を記録し、原因の究明が急務となった。

当該調査は、海域における COD 上昇原因の究明のための基礎データとして、報告例の少ない岩手県外洋の水質を把握することを目的とした。

2 方法

(1) 環境基準達成率の変動

岩手県水質測定計画に基づいて測定された結果をもとに、岩手県が公表した達成率を用いた。

(2) 外洋の水質調査

実施機関：岩手県水産技術センター漁業指導調査船「岩手丸」が定期海洋観測に合わせて採水（含む水温及び塩分測定）したものを測定した。

調査地点及び採水頻度：岩手県の外洋 12 地点（黒埼・鮎ヶ埼・尾埼・椿島の 0・10・50 マイル沖（図 1））において、表層を H20 年 4 月から H23 年 3 月の間に概ね月 1 回採水した。

検体数及び測定項目：採水した 408 検体について、水温、塩分、pH、化学的酸素要求量（COD）、全有機炭素量（TOC）、窒素含有量（T-N）、燐含有量（T-P）及びクロロフィル a（Chl-a）の項目を測定した。

なお、当該調査は「岩手県沿岸の化学的酸素要求量（COD）上昇の原因調査事業」で実施したものである。

3 結果

(1) 岩手県の海域における環境基準達成率の変動（図 2）

H11 年度には 80%以上を維持していたが、その後上下しながら H18 年度には 33.3%という最低の達成率（達成海域数：5/15）を記録した。その後 H21 年度には 86.7%（達成海域数：13/15）であった。

なお、本調査で外洋水質調査を実施した H20 年度から H22 年度までの 3 ヶ年における環境基準達成率は 93.3%、86.7%、86.7%であった。

また、岩手県の海域における海域環境基準（COD）達成状況の経年変化を見ると、複数年にわたり、おおむね 3 海域以上の環境基準が未達成である期間が二期（I 期 S55～S59 年度・II 期 H12～H19 年度）認められた。（表 2）

(2) 外洋の水質調査（表 1）（別添地点別個表）

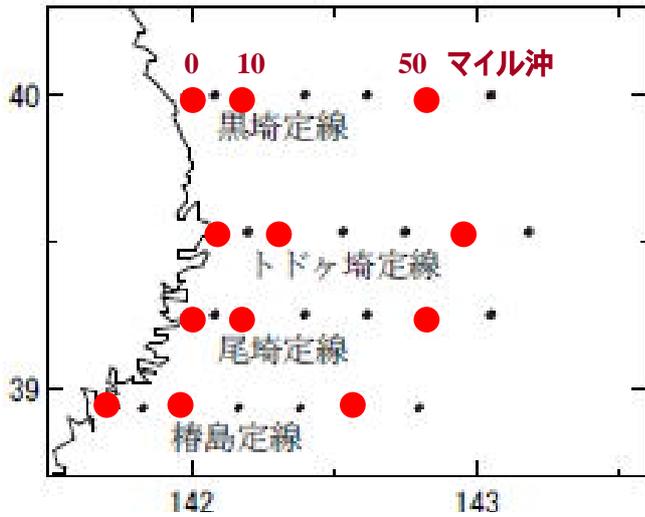
特に COD の測定結果は、春季から夏季は高値、冬季は低値となる傾向が見られた。

4 まとめ

外洋の水質調査を実施した 3 ヶ年（H20～H22 年度）の環境基準達成率がいずれも 80%以上あったことから、当該外洋の水質調査は、岩手県の海域において COD 上昇が認められない時期のものと考えられる。外洋の水質調査結果が全国において希少であるなかで、結果は、今後岩手県の海域において COD が上昇した際の原因究明に有効なデータになりうるものとする。

最後に、H23 年 3 月 11 日に発生した東日本大地震津波の発生により、岩手県の沿岸は、産業構造、流入河川の水質及び湾口形状等が変化し、水質等が著しく変化していることが想定される。

外洋をはじめとした環境基準点等の水質測定結果の蓄積が重要である。



地点名	北緯	東経
黒崎-0	40.00	141.59
黒崎-10	40.00	142.11
黒崎-50	40.00	143.03
鮫ヶ崎-0	39.32	142.06
鮫ヶ崎-10	39.32	142.19
鮫ヶ崎-50	39.32	143.11
尾崎-0	39.15	141.59
尾崎-10	39.15	142.11
尾崎-50	39.15	143.03
椿島-0	38.56	141.44
椿島-10	38.56	141.57
椿島-50	38.56	142.48

図1 外洋調査地点

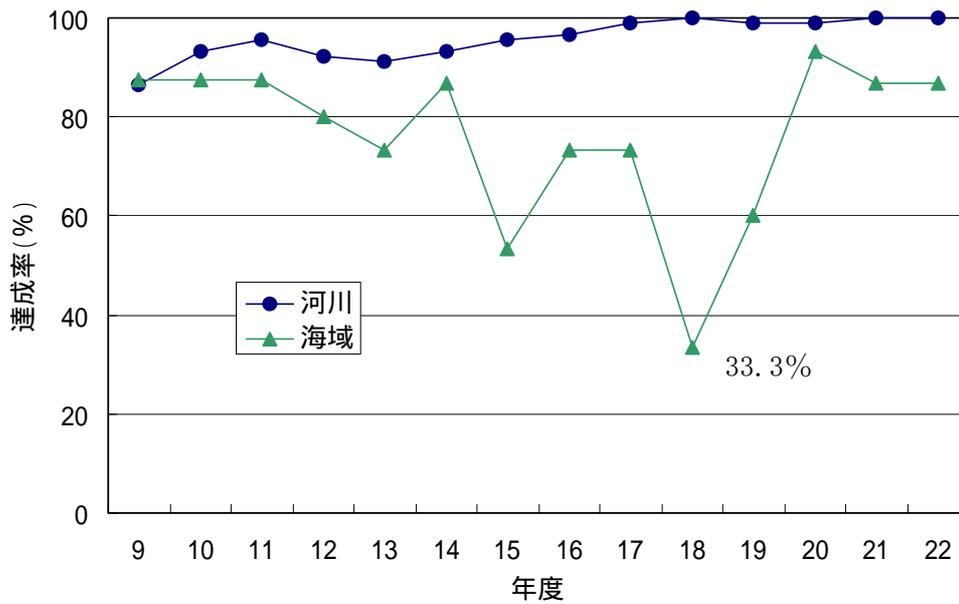


図2 岩手県における環境基準の達成率

表1 外洋調査の検体数及び範囲

項目	検体数	範囲
塩分	408	32.0~34.5
pH	408	8.2~8.5
COD (mg/l)	408	<0.5~1.7
TOC (mg/l)	408	1.00±0.257
T-N (mg/l)	396	ND~0.35
T-P (mg/l)	396	ND~0.05
Chl-a (μg/l)	408	ND~3

黒埼-0マイル沖(平成21年度)

	H21 4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	H22 1月	2月	3月
水温	8.1	10.8	12.4	19.4	19.1	20.0	17.6	16.1	12.9	10.2	-	5.0
塩分	33.860	33.821	33.589	33.586	33.344	33.729	33.655	33.706	33.843	33.848	-	33.326
pH	8.3	8.3	8.3	8.4	8.4	8.4	8.3	8.3	8.3	8.4	-	8.2
COD	0.8	1.0	0.9	1.1	1.5	1.1	0.8	0.5	0.8	0.5	-	0.8
TOC	1.08	1.04	1.03	1.06	1.21	1.04	0.93	0.95	0.90	0.83	-	1.00
T-N	0.08	0.07	0.06	0.07	0.06	0.06	0.11	0.12	0.13	0.10	-	0.08
T-P	0.007	0.005	0.003	0.007	0.008	0.007	0.018	0.012	0.018	0.020	-	0.019
Chl-a	2	1	<1	<1	2	<1	<1	<1	<1	<1	-	<1

黒埼-10マイル沖(平成21年度)

	H21 4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	H22 1月	2月	3月
水温	8.0	11.0	11.1	18.9	19.9	20.1	13.3	16.0	13.2	10.4	-	4.2
塩分	33.963	33.825	33.521	33.518	33.247	33.755	33.049	33.717	33.847	33.864	-	33.255
pH	8.3	8.4	8.4	8.4	8.4	8.4	8.3	8.4	8.3	8.4	-	8.3
COD	0.5	1.0	1.0	0.7	1.2	1.1	0.7	0.6	0.6	0.6	-	1.0
TOC	0.91	0.96	0.96	1.01	1.09	1.06	0.90	0.94	0.88	0.82	-	1.14
T-N	0.06	0.07	0.05	0.06	0.03	0.05	0.12	0.08	0.13	0.11	-	0.11
T-P	0.005	0.007	0.010	0.005	0.003	0.007	0.026	0.010	0.015	0.018	-	0.025
Chl-a	1	2	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	-	<1

黒埼-50マイル沖(平成21年度)

	H21 4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	H22 1月	2月	3月
水温	5.9	8.1	17.5	16.2	20.5	18.0	15.7	13.3	9.7	5.4	-	1.7
塩分	33.429	33.034	34.470	32.477	32.340	32.990	33.673	33.409	33.421	33.332	-	33.009
pH	8.4	8.4	8.4	8.5	8.4	8.4	8.3	8.3	8.4	8.3	-	8.2
COD	1.1	1.2	0.8	1.0	1.3	1.2	0.6	0.6	0.6	0.6	-	1.2
TOC	1.00	0.90	0.90	0.84	0.98	1.00	0.93	0.95	0.88	0.77	-	1.07
T-N	0.13	0.08	0.05	0.13	0.05	0.05	0.07	0.12	0.17	0.22	-	0.16
T-P	0.027	0.013	0.004	0.023	0.016	0.008	0.013	0.019	0.028	0.041	-	0.037
Chl-a	7	<1	1.000	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	-	<1

鮭ヶ埼-0マイル沖(平成21年度)

	H21 4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	H22 1月	2月	3月
水温	8.2	11.3	13.2	17.7	22.9	20.1	17.8	16.3	13.3	10.2	-	5.1
塩分	33.843	33.757	33.663	33.584	33.426	33.750	33.642	33.688	33.877	33.856	-	33.300
pH	8.4	8.3	8.4	8.4	8.4	8.4	8.3	8.4	8.4	8.4	-	8.3
COD	1.0	0.9	1.1	1.0	1.2	1.2	0.8	0.7	0.6	0.6	-	0.8
TOC	1.02	0.93	1.06	1.06	1.12	1.03	0.95	0.99	0.86	0.87	-	1.04
T-N	0.06	0.11	0.06	0.08	0.05	0.06	0.08	0.10	0.11	0.12	-	0.12
T-P	0.004	0.005	0.003	0.006	0.009	0.008	0.009	0.013	0.015	0.019	-	0.022
Chl-a	2	2	1	1	2	<1	<1	<1	<1	<1	-	<1

鮭ヶ埼-10マイル沖(平成21年度)

	H21 4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	H22 1月	2月	3月
水温	9.0	9.7	10.9	15.7	21.0	19.5	16.2	14.5	12.1	9.6	-	2.8
塩分	33.983	33.476	33.210	32.763	32.473	32.882	33.644	33.576	33.732	33.746	-	33.088
pH	8.4	8.4	8.4	8.4	8.4	8.4	8.3	8.4	8.4	8.4	-	8.3
COD	1.4	1.0	1.0	1.2	1.2	1.2	0.7	0.7	0.7	0.9	-	1.0
TOC	0.93	0.93	1.08	0.95	1.08	1.04	0.93	0.97	0.87	0.82	-	1.11
T-N	0.06	0.07	0.05	0.09	0.05	0.05	0.07	0.10	0.13	0.13	-	0.12
T-P	0.006	0.013	0.006	0.015	0.008	0.008	0.016	0.011	0.019	0.020	-	0.026
Chl-a	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	-	<1

鮭ヶ埼-50マイル沖(平成21年度)

	H21 4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	H22 1月	2月	3月
水温	12.1	15	16.5	13.7	20.9	20.0	15.0	13.6	15.6	11.5	-	4.2
塩分	34.361	34.381	34.375	32.281	32.553	33.027	33.261	33.429	34.071	34.154	-	33.298
pH	8.4	8.5	8.5	8.3	8.4	8.4	8.3	8.4	8.5	8.4	-	8.3
COD	0.6	1.4	0.6	0.8	1.1	1.2	0.7	0.8	0.7	<0.5	-	1.0
TOC	0.79	1.07	0.90	0.87	0.95	0.96	0.92	0.92	0.82	0.74	-	1.10
T-N	0.12	0.07	0.06	0.18	0.06	0.06	0.09	0.10	0.10	0.15	-	0.15
T-P	0.017	0.006	0.005	0.034	0.014	0.011	0.021	0.019	0.013	0.024	-	0.027
Chl-a	<1	2	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	-	<1

尾崎-0マイル沖(平成21年度)

	H21 4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	H22 1月	2月	3月
水温	7.8	10.7	12.8	16.9	20.2	19.6	17.3	16.1	12.9	10.0	-	4.4
塩分	33.813	33.608	33.611	33.388	33.543	33.582	33.641	33.722	33.608	33.783	-	33.276
pH	8.4	8.3	8.4	8.4	8.3	8.4	8.4	8.4	8.4	8.4	-	8.3
COD	0.9	1.2	1.1	0.9	0.9	1.2	0.7	0.6	0.5	0.6	-	0.9
TOC	0.98	1.00	1.05	0.97	1.01	1.04	0.94	0.90	0.87	0.84	-	0.93
T-N	0.04	0.06	0.06	0.08	0.04	0.06	0.06	0.08	0.11	0.14	-	0.11
T-P	0.005	0.004	0.004	0.006	0.008	0.008	0.011	0.011	0.017	0.019	-	0.026
Chl-a	2	1	1	1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	-	<1

尾崎-10マイル沖(平成21年度)

	H21 4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	H22 1月	2月	3月
水温	11.8	10.6	10.1	16.9	20.5	19.9	17.7	15.7	12.6	9.9	-	4.2
塩分	34.380	33.818	32.845	33.551	32.516	33.717	33.715	33.714	33.841	33.845	-	33.191
pH	8.4	8.4	8.4	8.4	8.4	8.4	8.4	8.4	8.4	8.4	-	8.3
COD	0.7	1.0	0.9	1.0	1.1	1.2	0.6	0.7	0.7	0.6	-	1.0
TOC	0.80	0.94	1.16	1.03	1.04	1.01	0.91	0.96	0.85	0.84	-	1.02
T-N	0.13	0.07	0.06	0.07	0.03	0.06	0.07	0.10	0.13	0.14	-	0.12
T-P	0.017	0.006	0.007	0.006	0.009	0.008	0.011	0.014	0.019	0.019	-	0.028
Chl-a	<1	<1	1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	-	<1

尾崎-50マイル沖(平成21年度)

	H21 4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	H22 1月	2月	3月
水温	12.3	16.1	15.9	14.1	20.5	18.8	16.4	15.1	15.5	11.9	-	4.4
塩分	34.401	34.373	34.313	32.320	32.608	32.963	33.142	33.725	34.124	34.149	-	33.264
pH	8.4	8.4	8.4	8.4	8.4	8.4	8.3	8.4	8.5	8.4	-	8.2
COD	0.5	1.0	0.7	1.1	0.9	1.1	0.7	0.7	0.6	0.5	-	0.8
TOC	0.80	0.95	0.99	0.97	0.95	0.98	0.94	1.00	0.83	0.89	-	1.08
T-N	0.11	0.04	0.06	0.11	0.07	0.05	0.05	0.10	0.10	0.16	-	0.19
T-P	0.016	<0.003	0.009	0.019	0.014	0.011	0.011	0.014	0.014	0.022	-	0.040
Chl-a	<1	3	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	-	<1

樺島-0マイル沖(平成21年度)

	H21 4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	H22 1月	2月	3月
水温	6.9	11	13.5	18.8	19.8	19.7	18.6	16.4	12.4	9.9	-	4.4
塩分	33.584	33.511	33.550	33.617	33.519	33.621	33.589	33.717	33.777	33.763	-	33.160
pH	8.3	8.3	8.4	8.4	8.4	8.4	8.4	8.4	8.4	8.4	-	8.3
COD	0.5	0.9	1.1	1.5	1.3	1.1	0.7	0.7	0.7	0.7	-	1.0
TOC	0.92	0.97	1.12	1.01	1.04	0.99	0.95	0.94	0.94	0.86	-	1.02
T-N	0.13	0.08	0.07	0.07	0.03	0.05	0.06	0.08	0.17	0.13	-	0.12
T-P	0.018	<0.003	0.003	0.003	0.008	0.010	0.010	0.011	0.018	0.019	-	0.027
Chl-a	<1	<1	1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	-	<1

樺島-10マイル沖(平成21年度)

	H21 4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	H22 1月	2月	3月
水温	6.7	10.4	11.8	18.9	20.1	19.8	17.2	15.9	13.4	9.5	-	4.5
塩分	33.716	33.799	33.320	33.659	33.548	33.650	33.463	33.683	33.820	33.775	-	33.194
pH	8.3	8.3	8.4	8.4	8.4	8.4	8.3	8.4	8.4	8.4	-	8.3
COD	0.7	0.7	1.0	1.0	1.3	1.1	0.7	0.6	0.7	0.6	-	0.9
TOC	0.92	0.95	1.12	1.06	1.05	0.99	1.02	0.90	0.87	0.87	-	1.22
T-N	0.13	0.10	0.06	0.08	0.03	0.04	0.07	0.08	0.12	0.14	-	0.14
T-P	0.018	0.005	0.003	0.005	0.009	0.007	0.011	0.011	0.016	0.020	-	0.029
Chl-a	<1	<1	1	1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	-	<1

樺島-50マイル沖(平成21年度)

	H21 4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	H22 1月	2月	3月
水温	12.2	13.5	17.9	17.8	20.6	19.5	16.5	16.7	15.5	12.0	-	2.4
塩分	34.423	34.271	34.439	32.371	32.639	33.101	33.222	33.727	34.100	34.136	-	32.915
pH	8.4	8.4	8.4	8.4	8.4	8.4	8.3	8.4	8.5	8.4	-	8.3
COD	0.5	0.7	0.8	0.9	1.2	1.1	0.9	0.6	0.5	<0.5	-	1.0
TOC	0.80	0.91	0.99	0.98	1.03	0.95	1.01	0.97	0.81	0.89	-	1.63
T-N	0.11	0.08	0.07	0.13	0.07	0.05	0.10	0.07	0.09	0.14	-	0.20
T-P	0.017	0.003	0.006	0.017	0.017	0.011	0.017	0.010	0.014	0.021	-	0.044
Chl-a	<1	3	<1	<1	2	<1	<1	<1	<1	<1	-	<1

黒埼-0マイル沖(平成22年度)

	H22 4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	H23 1月	2月	3月
水温	5.9	9.2	11.8	18.7	20.3	24.3	21.5	17.1	14.2	-	7.9	6.4
塩分	33.366	32.026	33.380	33.225	33.701	33.487	33.559	33.531	33.564	-	33.729	33.750
pH	8.4	8.4	8.3	8.4	8.2	8.3	8.4	8.3	8.3	-	8.3	8.2
COD	1.0	0.9	1.3	1.1	<0.5	1.0	1.0	0.7	0.8	-	<0.5	0.9
TOC	0.92	0.94	1.13	1.29	0.90	1.15	1.16	0.85	0.85	-	0.81	0.86
T-N	0.07	0.06	0.05	0.05	0.05	0.11	-	0.07	0.09	-	0.11	0.13
T-P	0.012	<0.003	0.005	0.002	<0.003	<0.003	-	0.004	0.008	-	0.018	0.017
Chl-a	1	1	2	1	<1	<1	<1	<1	<1	-	<1	1

黒埼-10マイル沖(平成22年度)

	H22 4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	H23 1月	2月	3月
水温	4.7	8.5	10.1	16.6	19.2	24.6	21.2	17.8	13.6	-	7.7	3.1
塩分	33.578	33.589	33.258	33.396	33.736	32.795	33.058	33.563	33.578	-	33.724	33.174
pH	8.4	8.4	8.3	8.4	8.3	8.3	8.4	8.3	8.3	-	8.3	8.2
COD	1.1	0.9	1.3	0.9	0.5	0.6	1.1	0.7	0.6	-	<0.5	0.9
TOC	0.99	0.81	0.92	0.95	0.93	0.98	1.04	0.86	0.83	-	0.87	0.83
T-N	0.12	0.08	0.05	0.06	0.06	0.05	-	0.08	0.09	-	0.10	0.17
T-P	0.023	0.007	0.013	0.003	<0.003	0.003	-	0.006	0.010	-	0.017	0.024
Chl-a	1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	1	<1	-	<1	<1

黒埼-50マイル沖(平成22年度)

	H22 4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	H23 1月	2月	3月
水温	3.4	6.6	7.6	16.6	18.6	23.8	18.6	16.5	14.8	-	4.6	7.6
塩分	32.934	32.920	33.027	32.270	32.386	32.528	33.502	33.402	33.705	-	33.331	33.822
pH	8.5	8.3	8.3	8.4	8.3	8.3	8.3	8.4	8.3	-	8.0	8.2
COD	1.5	0.8	1.1	0.9	0.6	0.7	1.1	0.9	0.7	-	0.8	0.7
TOC	1.15	0.79	0.91	0.88	0.91	0.98	1.01	0.90	0.84	-	0.78	0.82
T-N	0.18	0.13	0.11	0.07	0.06	0.05	-	0.07	0.07	-	0.22	0.16
T-P	0.036	0.023	0.022	0.020	0.009	0.006	-	0.006	0.008	-	0.044	0.026
Chl-a	10	<1	<1	<1	<1	<1	<1	2.000	<1	-	<1	<1

鮭ヶ埼-0マイル沖(平成22年度)

	H22 4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	H23 1月	2月	3月
水温	6.4	7.9	10.5	17.8	18.0	21.8	21.2	16.8	14.1	-	7.4	5.8
塩分	33.473	33.199	33.482	32.903	33.582	33.634	33.554	33.508	33.609	-	33.598	33.523
pH	8.4	8.4	8.4	8.5	8.3	8.3	8.4	8.3	8.3	-	8.3	8.2
COD	1.0	0.7	1.4	1.4	0.5	1.8	0.9	0.9	0.6	-	<0.5	0.9
TOC	0.88	0.89	1.10	1.35	0.99	0.93	1.00	0.90	0.87	-	0.87	0.85
T-N	0.10	0.11	0.04	0.07	0.05	0.05	-	0.07	0.10	-	0.08	0.13
T-P	0.017	0.009	0.006	0.003	<0.003	<0.003	-	0.013	0.010	-	0.016	0.019
Chl-a	<1	<1	3	1	<1	<1	<1	<1	<1	-	2	<1

鮭ヶ埼-10マイル沖(平成22年度)

	H22 4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	H23 1月	2月	3月
水温	4.0	7.2	11.4	16.3	20.2	23.5	20.6	15.0	13.4	-	8.1	6.9
塩分	32.919	33.282	33.391	32.480	33.709	32.574	33.535	33.365	33.642	-	33.789	33.723
pH	8.4	8.3	8.5	8.3	8.3	8.3	8.4	8.3	8.3	-	8.3	8.2
COD	1.2	1.1	1.1	0.8	<0.5	<0.5	1.1	0.9	0.6	-	<0.5	0.8
TOC	1.15	0.85	0.95	0.96	0.96	0.95	1.03	0.93	0.85	-	0.83	0.79
T-N	0.08	0.09	0.04	0.06	0.05	0.05	-	0.07	0.10	-	0.10	0.16
T-P	0.020	0.012	0.009	0.006	<0.003	0.004	-	0.008	0.011	-	0.015	0.026
Chl-a	3	<1	3	<1	<1	<1	<1	<1	<1	-	<1	<1

鮭ヶ埼-50マイル沖(平成22年度)

	H22 4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	H23 1月	2月	3月
水温	10.1	7.7	10.7	18.1	18.9	24.2	18.4	16.3	15.3	-	10.3	8.8
塩分	34.126	33.050	32.872	32.457	32.907	32.450	32.693	33.633	33.818	-	34.102	33.966
pH	8.4	8.4	8.3	8.4	8.3	8.3	8.3	8.3	8.3	-	8.2	8.2
COD	0.6	0.8	1.0	0.8	0.5	0.6	1.0	0.8	0.7	-	0.9	0.7
TOC	0.77	0.87	0.84	0.92	0.95	0.96	1.00	0.82	0.88	-	0.77	0.78
T-N	0.18	0.08	0.11	0.06	0.05	0.04	-	0.07	0.08	-	0.10	0.14
T-P	0.029	0.012	0.027	0.016	0.003	0.005	-	0.007	0.008	-	0.018	0.022
Chl-a	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	3	<1	-	<1	<1

尾崎-0マイル沖 (平成22年度)

	H22 4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	H23 1月	2月	3月
水温	6.2	9.5	10.2	16.7	20.5	22.6	20.6	16.5	14.9	-	7.9	7.1
塩分	33.294	33.191	33.156	33.232	33.560	33.574	33.554	33.539	33.485	-	33.665	33.634
pH	8.5	8.4	8.4	8.4	8.3	8.3	8.4	8.4	8.3	-	8.3	8.3
COD	0.9	0.7	1.2	0.7	0.5	0.8	1.0	0.7	0.8	-	<0.5	0.8
TOC	0.95	0.87	1.07	1.08	1.03	0.99	0.97	0.87	0.87	-	0.84	0.89
T-N	0.08	0.12	0.05	0.04	0.05	0.06	-	0.07	0.09	-	0.09	0.10
T-P	0.015	0.012	0.009	0.006	0.003	<0.003	-	0.005	0.009	-	0.016	0.014
Chl-a	1	<1	3	<1	<1	<1	<1	1	<1	-	<1	1

尾崎-10マイル沖 (平成22年度)

	H22 4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	H23 1月	2月	3月
水温	5.4	10.7	11.7	16.5	20.2	21.4	20.5	17.1	15.0	-	7.1	7.3
塩分	33.513	33.672	33.459	33.446	33.615	32.934	33.446	33.516	33.546	-	33.679	33.722
pH	8.4	8.4	8.4	8.4	8.3	8.3	8.4	8.4	8.3	-	8.3	8.2
COD	1.1	0.5	1.3	1.0	0.6	<0.5	0.9	0.6	0.6	-	<0.5	0.8
TOC	0.92	0.82	1.07	1.06	0.96	0.97	0.99	0.90	0.87	-	0.83	0.82
T-N	0.13	0.10	0.05	0.06	0.05	0.04	-	0.07	0.08	-	0.14	0.16
T-P	0.027	0.009	0.010	0.004	<0.003	<0.003	-	0.003	0.008	-	0.023	0.027
Chl-a	2	1	3	<1	<1	<1	<1	<1	<1	-	<1	<1

尾崎-50マイル沖 (平成22年度)

	H22 4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	H23 1月	2月	3月
水温	10.4	11.6	13.1	23.9	23.5	23.7	20.7	15.3	15.1	-	10.2	8.2
塩分	34.133	34.048	34.029	33.997	34.080	32.408	33.549	32.493	33.650	-	34.075	33.908
pH	8.4	8.4	8.4	8.4	8.3	8.3	8.4	8.3	8.3	-	8.3	8.2
COD	0.6	0.9	1.3	0.8	0.6	<0.5	1.0	0.6	0.8	-	0.6	0.8
TOC	0.80	0.91	1.10	0.90	0.88	0.93	1.02	0.91	0.86	-	0.77	0.89
T-N	0.18	0.10	0.04	0.03	0.04	0.04	-	0.08	0.07	-	0.10	0.16
T-P	0.029	0.009	0.010	0.002	<0.003	0.006	-	0.006	0.008	-	0.016	0.024
Chl-a	<1	3	2.000	<1	<1	<1	<1	<1	<1	-	<1	<1

椿島-0マイル沖 (平成22年度)

	H22 4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	H23 1月	2月	3月
水温	5.7	10.4	13.7	19.4	19.5	24.4	19.6	16.7	15.8	-	9.3	7.1
塩分	33.129	33.493	33.453	32.999	33.524	33.594	33.531	33.611	33.691	-	33.754	33.694
pH	8.4	8.4	8.4	8.4	8.3	8.3	8.4	8.3	8.3	-	8.3	8.3
COD	1.1	0.8	1.3	1.2	1.1	0.6	0.9	0.9	1.3	-	<0.5	0.8
TOC	1.09	0.89	0.98	0.97	1.01	1.05	0.99	0.90	0.89	-	0.85	0.86
T-N	0.15	0.10	0.03	0.05	0.09	0.14	-	0.08	0.10	-	0.09	0.13
T-P	0.029	0.009	0.009	0.005	0.003	0.007	-	0.007	0.008	-	0.017	0.020
Chl-a	5	<1	2	<1	<1	<1	<1	<1	<1	-	<1	1

椿島-10マイル沖 (平成22年度)

	H22 4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	H23 1月	2月	3月
水温	6.7	10.5	11.4	17.3	23.9	24.0	20.4	17.9	15.7	-	9.0	7.0
塩分	33.490	33.746	33.632	33.126	34.216	33.637	33.592	33.638	33.620	-	33.754	33.700
pH	8.4	8.4	8.4	8.4	8.3	8.3	8.4	8.4	8.3	-	8.3	8.2
COD	1.1	0.6	1.3	1.3	0.7	0.9	1.0	0.8	1.1	-	<0.5	0.9
TOC	1.11	0.85	1.11	0.97	0.85	1.05	1.06	0.91	0.90	-	0.82	0.84
T-N	0.13	0.10	0.04	0.06	0.04	0.14	-	0.09	0.08	-	0.09	0.15
T-P	0.027	0.011	0.008	0.003	<0.003	<0.003	-	0.008	0.008	-	0.016	0.022
Chl-a	4	<1	2	<1	<1	<1	<1	2	<1	-	<1	<1

椿島-50マイル沖 (平成22年度)

	H22 4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	H23 1月	2月	3月
水温	10.4	11.1	18.7	23.0	23.5	24.8	20.5	14.1	15.4	-	9.9	9.9
塩分	34.124	34.024	34.508	33.942	34.135	32.345	33.498	33.307	33.795	-	33.041	34.145
pH	8.4	8.4	8.5	8.4	8.3	8.3	8.3	8.3	8.3	-	8.3	8.3
COD	0.6	0.7	0.9	0.9	1.1	0.9	1.1	0.8	1.3	-	<0.5	0.9
TOC	0.83	0.85	0.85	0.85	0.95	1.02	1.05	0.90	0.88	-	0.78	0.82
T-N	0.16	0.12	0.01	0.02	0.06	0.06	-	0.08	0.07	-	0.11	0.15
T-P	0.029	0.012	0.007	0.005	<0.003	0.007	-	0.015	0.008	-	0.019	0.023
Chl-a	<1	2	<1	<1	<1	<1	1	1	<1	-	<1	<1

資 料

感染症発生動向調査事業における病原体検出状況（平成 22 年度）

高橋 知子 高橋 雅輝 山中拓哉 岩渕 香織 齋藤 幸一

平成 22 年度は、県内の病原体定点等から寄せられた 363 件について検査を実施した結果、150 の病原体（ウイルス 150 株、細菌 0 株）を検出した。

はじめに

平成 14 年 2 月に岩手県結核・感染症発生動向調査事業の実施要領が改められ、29 医療機関が病原体定点として選定された。本報では、平成 22 年度の病原体検出結果を報告する。

検査対象

5 類感染症（定点把握）及びインフルエンザ（H1N1 2009）等感染症の指定疾患に加え、対象外の上気道炎、下気道炎、アデノウイルス感染症、ヘルペスウイルス感染症、その他の消化器疾患等も検査対象とした。検体は 9 医療機関（小児科定点 4、インフルエンザ定点 3、眼科定点 2）において採取した。表 1 に診断名別検査依頼件数を示した。

検査方法

1. ウイルス検査

(1) ウイルス分離

RD-18S、HEp-2、VERO、CaCo-2、MDCK、L20B の 6 種類の培養細胞を併用してウイルス分離を行った。分離したウイルスの同定には中和試験、PCR、RT-PCR 及びダイレクトシーケンス法を併用した。MDCK 細胞はインフルエンザウイルスの分離に用い、赤血球凝集抑制試験により HA 亜型を決定した。L20B 細胞はポリオウイルスの分離に用いた。

(2) (RT-) PCR 法及びリアルタイム PCR 法

糞便検体については、PCR 法、RT-PCR 法によりノロウイルス、サポウイルス、ロタウイルス、アデノウイルス等の胃腸炎ウイルスの検出を行った。同定はリアルタイム PCR 法及びダイレクトシーケンス法を用いた。

(3) その他

必要に応じて市販キット（ELISA、RPHA、蛍光抗体法、イムノクロマトグラフィー等）を用い、ロタウイルス、アデノウイルス、単純ヘルペスウイルス等の検出を行った。

2. 細菌検査

百日咳菌の分離には Bordet-Gengou 培地及びボルデテラ CD(CMS)寒天培地を用いた。培養 4~5 日後直径約 1mm 以下の小さな集落、真珠または水銀様の光沢のある集落を選択し、PCR による同定を行った。培養検査に先立ち、LAMP 法を用いて百日咳菌の遺伝子を検出する検査を行った。

Mycoplasma pneumoniae については、PPL0 液体培地による培養と、Lamp 法および nested PCR 法による迅速検査法を実施した。また、他のマイコプラズマ種について、PCR Mycoplasma Detection Set (TAKARA) による nested PCR 法を行った。

検査結果

363 件について検査し、150 株の病原ウイルスを検出した。月別病原体検出状況を表 2 に、診断名別病原体検出状況を表 3 に示す。以下に診断名別の検出状況の概要を述べる。

1. インフルエンザ

2009/2010 シーズンは、8 月末までインフルエンザウイルス (H1N1 2009) が検出された。季節性インフルエンザウイルス (A ソ連型、A 香港型及び B 型) は検出されなかった。2010/2011 シーズンは、9 月初旬から A 香港型インフルエンザウイルスが検出されはじめ、3 月初旬まで検出された。しかし、1 月初旬からはインフルエンザウイルス (H1N1 2009) が主流を占めた。B 型インフルエンザウイルスは、2 月中旬以降検出された。平成 22 年度では、インフルエンザウイルス (H1N1 2009) 56 株が、A 香港型インフルエンザウイルス 9 株、B 型インフルエンザウイルス 2 株が検出された。分離されたインフルエンザウイルス (H1N1 2009) のほとんどでは、抗インフルエンザ薬であるオセルタミビルに耐性を示す遺伝子変異は認められなかった。

2. 感染性胃腸炎

59 検体の糞便を検査したところ、34 株のウイルスが検出された。

最も多く検出されたのはノロウイルスで、冬期 (9~3 月) を中心に、26 株 (G₁ : 0 株、G₂ : 26 株) が検出された。検出されたノロウイルスの一部について、詳細な遺伝子型を解析したところ、G_{1/4} が 9 株、G_{1/3} が 5 株、G_{1/2} が 4 株、G_{1/12} が 3 株、G_{1/6} が 1 株であった。

そのほかサポウイルスが 1 株、A 群ロタウイルスが 1 株、アデノウイルス 2 型が 1 株、アデノウイルス 3 型が 1 株、アデノウイルス 31 型が 1 株、アストロウイルス 1 型が 3 株検出された。

3. 流行性角結膜炎

89 検体の結膜ぬぐい液を検査したところ、アデノウイルス 37 型が 12 株、アデノウイルス 3 型が 4 株、アデノウイルス 2 型が 2 株、単純ヘルペスウイルス 1 型が 1 株検出された。

4. 手足口病

10 検体の咽頭ぬぐい液を検査したところ、エンテロウイルス 71 型が 1 株検出された。

5. ヘルパンギーナ

21 検体の咽頭ぬぐい液を検査したところ、アデノウイルス 3 型が 1 株、A 群コクサッキーウイルス 9 型が 3 株検出された。

6. 流行性耳下腺炎

18 検体の咽頭ぬぐい液を検査したところ、ムンプスウイルスが 2 株検出された。

7. 百日咳

1 検体の咽頭ぬぐい液を検査したところ、百日咳菌は分離、検出されなかった。

8. マイコプラズマ肺炎

1 検体の咽頭ぬぐい液を検査したところ、マイコプラズマは分離、検出されなかった。

9. 五類感染症指定疾患以外の疾患

肝炎患者の糞便 5 検体からは、アデノウイルス 1 型が 3 株、アデノウイルス 2 型が 1 株検出された。

上気道炎患者の咽頭ぬぐい液 27 検体からはエンテロウイルス 68 型、ライノウイルス、アデノウイルス 2 型、A 群コクサッキーウイルス 2 型および A 群コクサッキーウイルス 9 型が、それぞれ 1 株ずつ検出された。

下気道炎患者の咽頭ぬぐい液 8 検体からは A 香港型インフルエンザウイルスが 2 株、アデノウイルス 2 型が 1 株、アデノウイルス 3 型が 1 株、パラインフルエンザウイルス 1 型が 1 株検出された。その他の消化器疾患患者の糞便 5 検体からはアデノウイルス 1 型、アストロウイルス 1 型がそれぞれ 1 株検出された。

アデノウイルス感染症患者の糞便または咽

頭ぬぐい液3検体からはアデノウイルスが2株（2型が1株、41型が1株）検出された。

川崎病患者の糞便または咽頭ぬぐい液3検体からはヒトメタニューモウイルスが1株検出された。

その他の疾患の糞便または咽頭ぬぐい液23検体からはノロウイルスGが3株、アデノウイルス2型が1株検出された。

まとめ

1. 患者情報の収集解析によると、2010/2011シーズンの岩手県におけるインフルエンザの流行は9月末からA香港型インフルエンザウイルスから始まり、1月初旬から3月下旬にインフルエンザウイルス（H1N1 2009）によるピークを形成した。この間、当所で分離されたインフルエンザウイルスはインフルエンザウイルス（H1N1 2009）が大部分を占めており、患者のほとんどはインフルエンザウイルス（H1N1 2009）によるものと思われた（図1）。

また、分離されたインフルエンザウイルス（H1N1 2009）にオセルタミビル耐性株は確認されなかったものの、今後の抗インフルエンザ薬耐性ウイルスの動向には注意が必要である。全国的な抗インフルエンザ薬耐性株の検出情報をみると、2009/2010シーズンは、8145株が解析され、耐性株は79株（1.0%）、2010/2011シーズン（3月末現在）は、3416株が解析され、耐性株75株（2.2%）が検出されており、次シーズンの流行には十分に注意を払う必要がある。

2. 9月から3月にかけてノロウイルスによる感染性胃腸炎の流行が確認され、県内ではノロウイルスによる急性胃腸炎の集団発生も頻発した。

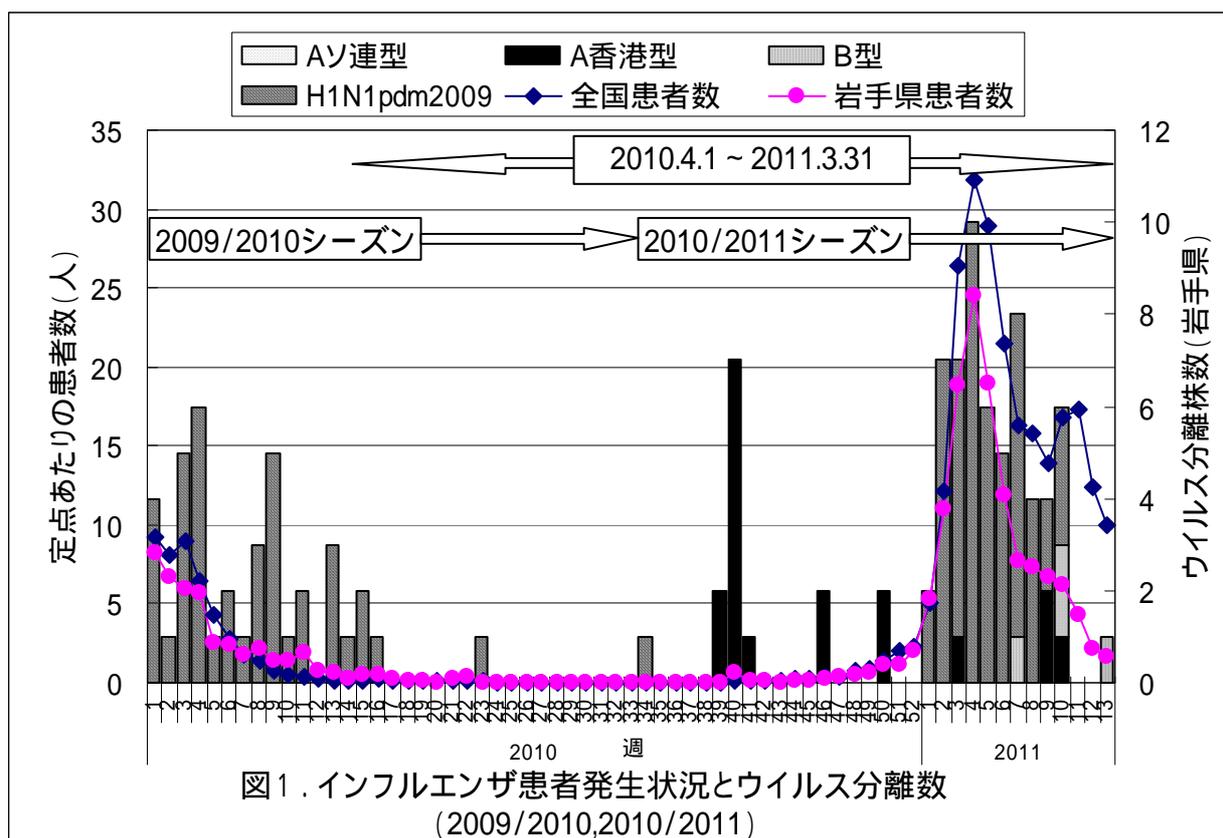


表1 診断名別検査依頼件数(平成22年4月～平成23年3月)

	診断名	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月	3月	計
五類感染症指定疾患	急性脳炎								1					1
	マイコプラズマ肺炎										1			1
	感染性胃腸炎	4		3	2		3	2	8	16	8	8	5	59
	手足口病				1	4	2	3						10
	水痘					1								1
	百日咳				1									1
	ヘルパンギーナ			3	10	3	4	1						21
	流行性耳下腺炎	10	3	4			1							18
	インフルエンザ	7		1		1	1	4		1	22	22	9	68
	咽頭結膜熱						1							1
	流行性角結膜炎	22	8	12	7	5	5	6	3	6	8	5	2	89
	無菌性髄膜炎				1	2	2				3			8
五類感染症指定疾患以外	上気道炎	1		1	3	9	6		1	2		3		26
	下気道炎		1	1	1					3	1	1		8
	口内炎				1				2					3
	肝炎					2							3	5
	その他の消化器疾患 1				1				1		2	1		5
	アデノウイルス感染症									3				3
	川崎病										3			3
	発熱性疾患 2			2					4					6
	その他 3	1	1	5	8	1				4	3	3		26
	総計	45	13	32	36	28	25	16	20	35	51	43	19	363

1:腸重積、出血性大腸炎、難治性下痢症

2:不明熱、熱性痙攣

3:不明、記載なし等

表2 月別病原体検出状況(平成22年度4月～平成23年3月)

検出病原体	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月	3月	計
インフルエンザウイルス(H1N12009)	7		1		1					21	21	5	56
A香港型インフルエンザウイルス						1	3		3	1		3	11
B型インフルエンザウイルス											1	1	2
アデノウイルス 1型					2					1		1	4
アデノウイルス 2型		1	1				1	1	3			1	8
アデノウイルス 3型	2	2			1				1	1			7
アデノウイルス 31型												1	1
アデノウイルス 37型	7		2	1		1						1	12
アデノウイルス 41型									1				1
A群コクサッキーウイルス 2型				1									1
A群コクサッキーウイルス 9型			1	1	1	1							4
エンテロウイルス68型						1							1
エンテロウイルス71型						1							1
ヒトメタニューモウイルス										1			1
ライノウイルス			1										1
単純ヘルペスウイルス 1型						1							1
パラインフルエンザウイルス1型											1		1
ムンプスウイルス	1		1										2
ノロウイルス GII	2		1			1	1	2	11	4	5	2	29
サボウイルス			1										1
A群ロタウイルスG3												1	1
アストロウイルス 1型								1	1	2			4
総 計	19	3	9	3	5	7	5	4	20	31	28	16	150

表3 診断名別病原体検出状況(平成22年4月～平成23年3月)

診断名	(検体数)	検出病原体	検出数
インフルエンザ	(68)	インフルエンザウイルス(H1N12009)	56
		A香港型インフルエンザウイルス	9
		B型インフルエンザウイルス	2
感染性胃腸炎	(59)	ノロウイルス GII	26
		サポウイルス	1
		A群ロタウイルスG3	1
		アストロウイルス1型	3
		アデノウイルス2型	1
		アデノウイルス3型	1
		アデノウイルス31型	1
		流行性角結膜炎	(89)
アデノウイルス 3型	4		
アデノウイルス 37型	12		
単純ヘルペスウイルス 1型	1		
手足口病	(10)	エンテロウイルス71型	1
ヘルパンギーナ	(21)	アデノウイルス3型	1
		A群コクサッキーウイルス9型	3
流行性耳下腺炎	(18)	ムンプスウイルス	2
肝炎	(5)	アデノウイルス1型	3
		アデノウイルス2型	1
上気道炎	(27)	エンテロウイルス68型	1
		ライノウイルス	1
		アデノウイルス 2型	1
		A群コクサッキーウイルス2型	1
		A群コクサッキーウイルス9型	1
下気道炎	(8)	A香港型インフルエンザウイルス	2
		アデノウイルス2型	1
		アデノウイルス3型	1
		パラインフルエンザウイルス1型	1
その他の消化器疾患	(5)	アデノウイルス1型	1
		アストロウイルス1型	1
アデノウイルス感染症	(3)	アデノウイルス 2型	1
		アデノウイルス 41型	1
川崎病	(3)	ヒトメタニューモウイルス	1
その他の疾患	(23)	ノロウイルス GII	3
		アデノウイルス 2型	1
総 計			150

資料

LC/MS/MS による畜水産物中の残留動物用医薬品一斉分析

畠山えり子 阿久津千寿子 青木晴美 葉澤やよい 高橋悟
(岩手県環境保健研究センター衛生科学部)

LC/MS/MS を用いて畜水産物中の動物用医薬品等 90 化合物 (ペニシリン系, セファロスポリン系, マクロライド系, キノロン系など) の一斉分析法を検討した. 分析法は, 抽出溶媒として 80%メタノールを用い畜産物中の薬剤を抽出し, メタノール/ヘキサン分配, 遠心分離後にメタノール層を分取し, 50%メタノールにて希釈した. その後, 限外ろ過膜 (30K) によりろ過し, LC/MS/MS-MRM で測定する方法とした. 牛, 豚, 鶏の筋肉, サケ, ウナギおよびエビに, 各化合物 50ng/g を添加して回収試験を行った結果, 回収率が 70~120%の範囲に入った化合物は牛筋肉で 61 成分, 豚筋肉で 52 成分, 鶏筋肉で 58 成分, ウナギで 65 成分, サケで 67 成分, エビで 56 成分であった. 回収率 50~150%の範囲の成分数は, 牛・豚筋肉で 86 成分, 鶏筋肉で 83 成分, ウナギ・サケで 82 成分, エビで 78 成分であった. これらについては, スクリーニング検査として適用可能であると考えられる.

Key words : 液体クロマトグラフィータンデム質量分析装置 LC/MS/MS, 一斉分析 simultaneous analysis, 動物用医薬品 veterinary drug, 畜産食品 livestock product, 水産物 seafood, 飼料添加物 feed additive

はじめに

動物用医薬品として用いられている抗生物質や合成抗菌剤は, 畜産物の疾病予防および治療に使用され, 畜産物の安定供給に大きく貢献している. しかし, 一方では使用した薬剤の畜産物への残留が食品衛生上問題となっており, 我が国では生産段階において「薬事法」および「飼料安全法」により適正使用を義務づけるとともに, 市場に流通する食品については, 「食品衛生法」により, 残留規制が行われている.

平成18年5月にポジティブリスト制度が施行されたことに伴い, 基準値が設定された動物用医薬品は改正前の 26 品目から 230 品目以上に大幅に増加し, 抗生物質や抗菌性物質以外の基準が設定されていないものについては一律基準 (0.01ppm) が適用された. この制度改正に対応するため, 多数の動物用医薬品等を迅速かつ精度良く分析する一斉試験法の開発が重要な課題となっている.

厚生労働省は, 新たに HPLC による一斉試験法 I, II, III および個別試験法¹⁾などを示したが, 検出された場合, LC/MS または LC/MS/MS による確認試験が必要となる.

LC/MS/MS は高感度・高選択性の機能を有するため食品中の夾雑成分から目的物質を検出する手法として有効であり, 近年, LC/MS/MS による畜産物中の一斉分析法が多数報告されている^{2~12)}. しかし, これらの報告の多くは試験溶液の調製に濃縮や固相抽出等の操作を用いており, 物性の異なる薬剤を試験する場合, 煩雑な前処理操作を必要とし, 検査に時間と労力を要している.

当所では, 試料から動物用医薬品をメタノールにより抽出したのち, 水で希釈し, 主に脂溶性の夾雑物を限外ろ過膜により除去したのち, LC/MS/MS で測定する迅速・簡便な方法⁸⁾を確立し, 畜産物中の動物用医薬品の検査に導入している. しかし, この方法による場合, 脂溶性の夾雑物を多量に含む試料ではろ過膜に目詰まりを生じてしまい, 50 倍まで希釈する必要があった. 一方, 動物用医薬品の中には基準値が 0.01ppm 以下の成分もあり, 感度的に測定が困難な成分があった.

そこで, 本研究では, 許容限度値が設定できない物質として不検出基準が設定されているクロラムフェニコール, カルバドックス (キノキサリン-2-カルボン酸) など

を含む90化合物について、希釈倍率を下げた条件で測定が可能となる前処理法について検討を行ったので報告する。

実験方法

1. 試料

試料は、岩手県内で市販されていた牛、豚、鶏の筋肉、ウナギ（蒲焼）、銀鮭（塩漬）、冷凍エビの6種類を用いた。

2. 標準品および試薬等

標準物質：ペニシリン系抗生物質6種、セファロスポリン系抗生物質4種、マクロライド系抗生物質6種、ポリペプチド系抗生物質2種、ポリエーテル系抗生物質2種、サルファ剤15種、キノロン剤7種、ベンズイミダゾール系駆虫剤12種、その他の薬剤37種の合計90成分を用いた（表1）。標準品は食品分析用、残留物質試験用または生化学用の純度表記のあるものを用いた。

標準原液および混合標準溶液：標準原液はそれぞれの溶解性に応じて、メタノール、ジメチルホルムアミド、テトラヒドロフラン、アセトニトリルを用いて溶解し、100～200 $\mu\text{g/mL}$ 標準原液を調製した。なお、キノロン系合成抗菌剤は0.01%水酸化ナトリウム：メタノール（2：98）溶液を用いて調製した。混合標準溶液は、系別の混合標準液10 $\mu\text{g/mL}$ 液を調製して保存し、使用時にメタノールで1 $\mu\text{g/mL}$ 混合標準溶液を調製して用いた。

限外ろ過膜：Millipore社製のAmicon-Ultra（0.5mL, 30K）を用いた。

その他の試薬：有機溶媒および水はLC/MS用、ギ酸はHPLC用、その他の試薬は特級品を用いた。

3. 装置

高速液体クロマトグラフ：Agilent社製 Agilent1100シリーズを使用した。

質量分析装置：AB-Sciex社製API4000を使用した。

4. HPLC条件

分析カラム；ジューエルサイエンス社製 InertSustain™（2.1*100mm, 3 μm ），移動相；A-0.1%ギ酸，B-アセトニトリル，グラジエント条件：ポジティブモード0分（A：B, 95：5），～7分（5：95），7分～17分（5：95），17.01分～25分（95：5），ネガティブモード0分，（80：20），1分～4分（10：90），4分～14分（10：

90），14.01分（80：20），14.01分～20分（80：20），カラム温度：40℃，流速：0.2mL/min，注入量：5 μL 。

5. MS条件

イオン化；エレクトロスプレーイオン化法（ESI）によるポジティブモードならびにネガティブモード，分析モード：Multiple Reaction Monitoring（MRM），イオンスプレー電圧：5.5kVならびに4.5kV，イオンソース温度：500℃，化合物ごとの条件を表1に示した

6. 検量線の作成

検量線用標準溶液は、対象動物用医薬品90成分を含有していない各試料の抽出液（以下マトリクス溶液）で混合標準液を希釈し、最終濃度0, 0.1, 0.5, 1.0, 5.0, 10.0 ng/mL となるように調製した。このマトリクス標準溶液から得られたMRMクロマトグラムよりピーク面積から検量線を作成した。

7. 試験溶液の調製

細切均一化した試料5.0gを50mLPP遠心管に採取し、80%メタノール20mL加え、ホモジナイズした。次いで、アセトニトリル飽和ヘキササン10mL加え、5分間振とうしたのち、8000rpm（4℃）で5分間遠心分離した。そのメタノール相0.4mLを分取し、50%メタノール0.6mL加えた溶液を限外ろ過膜（30K）により10,000rpm, 15分間遠心ろ過し、ろ液を試験溶液とした。

以上の本方法の各操作を図1に示した。

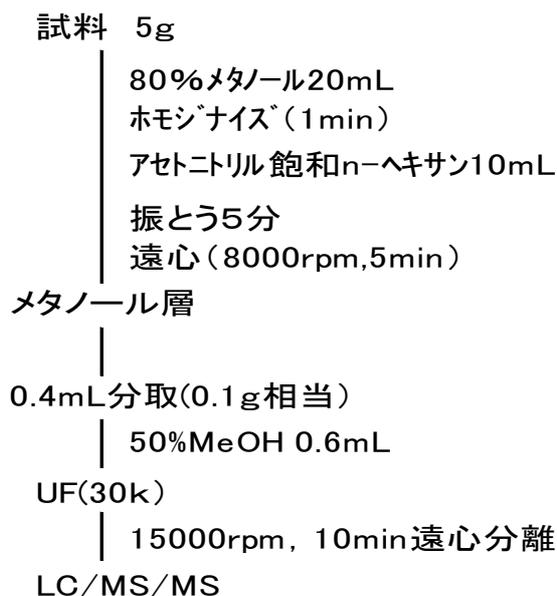


図1 試験溶液の調製（UF）

結果及び考察

1. LC/MS/MS 条件の検討

HPLC 用カラムはオクタデシルシリル化シリカゲルカラム InertSustain™ C18 を使用した。

移動相に添加する揮発性の添加剤について、ギ酸 (0.1%) およびギ酸 (0.05%) + 酢酸アンモニウム (10mmol/L) を検討したところ、ギ酸においてピーク強度が増す物質が多い傾向を示したことから、全対象化合物で概ね良好なピーク形状が得られたことからギ酸溶液を採用した。

有機溶媒は前報⁸⁾に従いアセトニトリルを用いた。LC 条件は、有機溶媒比率が高い条件でピーク強度が増す化合物が多い傾向を示したが、極性化合物の LC カラムへの保持を高めるため、0.1%ギ酸水溶液の割合を 95%から開始するグラジエント条件を作成した。

イオン化はエレクトロスプレー (ESI) により、化合物によってポジティブモードまたはネガティブモードで行い、表 1 に示した MRM 条件を用いた。

2. 前処理法の検討

著者らは、これまでに試料から薬剤をメタノール抽出したのち、水で希釈した際生じる疎水性のコロイドを限外ろ過膜により除去する方法を確立している。しかし、この方法による場合、脂溶性の夾雑物を多量に含む試料ではろ過膜に目詰まりを生じてしまい、50 倍まで希釈する必要があった。一方、通知試験法による一斉試験法 I 法においてはアセトニトリルで抽出したのち、アセトニトリル・ヘキサン分配により脱脂を行っている。しかし、アセトニトリルによる抽出では水溶性の高いサルファ剤、ペニシリン系、セファスロポリン系の抗生物質などにおいては回収率が低いことが指摘^{5, 11)}されている。そこで、水溶性の高い物質についても溶解力を持つメタノールを用い、メタノール・ヘキサン分配による脱脂操作を加える方法について検討した。実験は、マトリックスとして豚筋肉を用い、水に対してメタノールの比率をそれぞれ 80, 90, 100%の条件で、メタノール/ヘキサン分配した場合、メタノール層に最も多くの成分が抽出できる条件を回収率で比較した。回収率が 70%以上得られた成分数はメタノール濃度 80%で 78 成分、90%で 71 成分、100%で 73 成分であり、最も多くの成分で良好な回収率が得られた 80%メタノールによる抽出条件を採用した。本

抽出条件を用いることにより、アセトニトリル抽出法で回収率が低かった成分においても良好な結果が得られた。いずれの条件でも回収率が 50%以下であった化合物は、テメホスやアレスリンなどの極性の低い物質であった。これらの物質は、アセトニトリル/ヘキサン分配によっても回収率が低いことが指摘¹²⁾されているが、メタノール/ヘキサン分配においてもヘキサン層に移行していることが示唆された。一方、メタノール/ヘキサン分配による操作を加えることにより、5 倍希釈でもろ過が可能になり、脱脂効果が確認された。また、試料中の色素もヘキサン層に分配されていることが確認された。

3. 添加回収試験

あらかじめ動物用医薬品が含有していないことを確認した 6 種類の試料 (牛, 豚, 鶏の筋肉, ギンサケ, エビ, ウナギ) に対し、試料中の動物用医薬品濃度が $0.05 \mu\text{g/g}$ となるように混合標準液を添加し、対象 90 成分について添加回収試験を行った。試料別回収率の分布を表 2 に、成分別の回収試験結果を表 3 に示した。回収率が 70~120%の範囲に入った試料別成分数は牛筋肉で 61 成分、豚筋肉で 52 成分、鶏筋肉で 58 成分、ウナギで 65 成分、サケで 67 成分、エビで 56 成分であった。スクリーニング検査が可能と考える回収率 50~150%の範囲の成分数は、牛・豚筋肉で 86 成分、鶏筋肉で 83 成分、ウナギ・サケで 82 成分、エビで 78 成分であった。回収率がいずれの品目においても 50%以下であった成分はナイカルバジン、6 品目中 5 品目で 50%以下であった成分はアレスリン、テメホスであった。その他の成分については概ね良好な結果が得られた。

表 2 試料別回収率の分布

回収率の範囲	牛筋肉	豚筋肉	鶏筋肉	ウナギ	サケ	エビ
50%以下	4	4	5	5	5	8
50-70%	25	34	24	17	15	21
70-120%	61	52	58	65	67	56
120-150%			1			1
150%以上					1	
50-150%	86	86	83	82	82	78

まとめ

畜水産物中の残留動物医薬品等 90 成分の一斉試験法について検討を行った。前処理は 80%メタノール抽出、メタノール/ヘキサン分配による脱脂、限外ろ過膜によりろ過する方法を確立した。本法による定量下限値は 0.0005~0.01 $\mu\text{g/g}$ の範囲で、デキサメタゾンを除く 89 成分について基準値レベルの分析が可能であった。さらに、牛、豚、鶏の筋肉、ウナギ、サケ、エビを対象とした添加回収試験の結果、回収率が 70~120%の回収率が得られたのは 52~67 成分、50~150%回収率が得られたのは 79~86 成分であった。回収率がいずれの品目においても 50%以下であった成分はナイカルバジン、6 品目中 5 品目で 50%以下であった成分はアレスリン、テメホスのみで、その他の成分については概ね良好な結果が得られた。これらの結果から、動物用医薬品の一斉分析においてメタノール/ヘキサン分配による脱脂の汎用性が高いことが確認された。本試験法は、濃縮操作が省略できたこと、使用器具が 50mLPP 管のみであることなど、畜水産物の安全性を確保するための日常分析法として有用であると考える。

文献

- 1) 厚生労働省医薬品食品局食品安全部長通知食“食品に残留する農薬、飼料添加物または動物用医薬品の成分である物質の試験法について”平成17年1月24日食安発第0124001号(2005)
- 2) 中尾朱美, 福岡市保健環境研究所報, 29, 80-85 (2004)
- 3) 山田良司他, 生活衛生, 49, 152-160 (2005)
- 4) 橋本貴広他, 京都市衛生公害研究所報, 76, 122-130 (2006)
- 5) 遠藤美砂子他, 分析化学, 56(5), 317-326 (2007)
- 6) 甲斐茂美他, 分析化学, 56(12), 1105-1113 (2007)
- 7) 野口昭一郎他, 食衛誌, 49(3), 177-188 (2008)
- 8) 梶田弘子他, 食衛誌, 49(6), 381-389 (2008)
- 9) 吉田恵美子他, 食衛誌, 50(5), 216-222 (2009)
- 10) 田沢悌二郎他, 北海道衛生研究所報, 60, 1-10 (2010)
- 11) 影山知子他, 静岡県環境衛生科学研究所, 第46回全国衛生化学技術協議会年会, 46-47 (2009)
- 12) 下堂蘭栄子他, 鹿児島県環境保健センター所報, 10, 71-73 (2009)

表 1 化合物別MS/MS条件 (1)

No.	化合物名	R.T.(min)	Q1 (m/z)	Q3(m/z)	DP(V)	CE(V)	CXP(V)
positive ionization							
1	アンブロリウム	1.57	243	150.4	26	13	20
2	スルファセタミド	6.88	215.1	155.8	51	15	10
3	セファピリン	7.26	423.9	292	46	21	16
4	チアベンダゾール代謝物	7.47	218.1	190.8	71	35	14
5	クロピドール	7.5	192.1	101.1	76	39	6
6	リンコマイシン	7.54	407.2	126.3	61	39	10
7	レバミゾール	7.59	205.1	178	66	31	32
8	スルファジアジン	7.61	251.1	155.9	46	23	10
9	アルベンダゾール代謝物	7.67	240	132.8	61	39	8
10	アンピシリン	7.78	350	106.1	56	27	8
11	セファレキシシ	7.8	348	158	46	13	10
12	チアベンダゾール	7.81	202	175	76	35	10
13	スルファチアゾール	7.89	256	155.9	46	21	12
14	トリメプリム	7.91	291.2	230.1	61	33	12
15	ノフロキサシン	7.93	320.1	276.1	51	25	16
16	オフフロキサシン	7.94	362	318.2	76	27	8
17	スルファピリジン	7.96	250.1	155.9	46	25	26
18	ネオスピラマイシン	8.03	699.3	174.3	81	39	10
19	オルメトプリム	8.04	275.2	123.3	71	33	8
20	カルバドックス	8.07	263	231.2	46	19	6
21	ピラントール	8.09	207.1	150.1	71	39	10
22	エンフロキサシン	8.13	360.2	316.3	71	27	8
23	スルファメラジン	8.17	265.1	155.9	46	25	8
24	スピラマイシン	8.19	422	174.3	60	25	12
25	オルビフロキサシン	8.21	396.1	352	61	25	10
26	モランテル	8.23	221.1	123.2	51	47	8
27	キノキサリン-2-カルボン酸	8.23	175	128.9	31	23	8
28	セファゾリン	8.29	454.9	323	46	15	20
29	サラフロキサシン	8.32	386	368.2	66	29	10
30	キシラジン	8.33	221.2	90.1	76	31	6
31	チルミコシン	8.38	869.5	174	131	63	14
32	スルファジミジン	8.47	279.1	185.9	46	25	10
33	スルファモノメキシ	8.48	281	155.9	61	25	12
34	スルファメトキシピリダジン	8.48	281	155.9	61	25	12
35	トリベレナミン	8.55	256	211	36	19	4
36	ピリメタミン	8.58	249	177.1	81	41	14
37	オレアンドマイシン	8.7	688.3	544.6	41	23	14
38	オキシベンダゾール	8.72	250.1	217.9	56	27	12
39	オクスフェンダゾール	8.78	316.1	159	66	43	8
40	エルスロマイシン	8.82	734.5	158.1	96	41	10
41	スルファクロルピリダジン	8.84	285	155.9	56	21	12
42	セフチオフル	8.9	523.8	240.7	51	25	14
43	スルファドキシ	8.96	311	155.9	66	25	12
44	スルファジメトキシ	8.96	311	155.9	66	25	12
45	スルファメトキサゾール	8.98	254	155.9	61	21	14

表 1 化合物別MS/MS条件 (2)

No.	化合物名	R.T.(min)	Q1 (m/z)	Q3(m/z)	DP(V)	CE(V)	CXP(V)
46	ブレドニゾロン	9.06	361.1	343.1	36	15	10
47	スルフィソキサゾール	9.07	268.1	155.9	61	19	8
48	チアムリン	9.12	494.2	191.9	61	29	4
49	ヒドロコルチゾン	9.12	363.2	121.3	71	35	10
50	オキサリニック酸	9.13	262.1	243.8	46	25	14
51	エトハベート	9.24	238.1	206	46	15	12
52	スルファベンザミド	9.27	277	155.8	51	19	12
53	スルファキノキサリン	9.28	301.1	155.9	71	23	12
54	オクスフェンダゾールスルホン	9.33	332	300	71	33	18
55	ベンジルベニシリン	9.38	334.9	160	61	15	10
56	メベンダゾール	9.4	296	264	59	29	16
57	デキサメタゾン	9.45	393.1	373	41	13	10
58	フルベンダゾール	9.56	314	282.2	86	31	6
59	フェノキシメチルベニシリン	9.6	350.9	160	66	17	28
60	ナリジクス酸	9.71	233.1	214.8	46	21	12
61	バージニアマイシン	9.74	526.1	508.1	71	19	14
62	トレンボロン	9.91	271.1	253.1	71	29	14
63	フェンベンダゾール	9.93	300.1	268	46	29	14
64	クロキサシリン	9.94	436	277.2	66	19	8
65	ナフシリン	10	414.9	199.2	61	19	12
66	ケトプロフェン	10.1	255	209	51	19	4
67	ジクロキサシリン	10.2	469.8	160	66	21	10
68	トリクラベンダゾール代謝物	10.4	328.9	167.9	86	41	8
69	ファミフル	10.5	326.1	281	56	21	16
70	フルニキシム	10.5	297.1	279.1	61	31	6
71	ワルファリン	10.5	309	163	46	21	10
72	フェノバルブ	10.6	208.2	95.3	66	17	6
73	ボスカリド	10.8	343	307	56	27	8
74	フェバンテル	10.9	447.1	383	66	27	6
75	ノビオシン	10.9	613.1	188.9	56	41	10
76	ジフルベンズロン	10.9	311	157.8	91	23	10
77	イソプロチオラン	11	291.1	231	46	17	12
78	クロルマジノン	11.2	405.1	344.9	51	19	10
79	トリクラベンダゾール	11.3	359	344	71	39	10
80	テムホス	11.9	466.9	404.8	76	21	12
81	アレスリン	12.2	303.1	134.8	36	15	8
82	モネンシン	15.3	688.3	635.6	61	25	22
negative ionization							
1	チアンフェニコール	4.1	354	184.7	-60	-28	-11
2	フロルフェニコール	7.28	355.9	336	-60	-12	-9
3	クロラムフェニコール	7.4	321	152.1	-60	-22	-1
4	クロルスロン	7.51	377.8	342	-60	-16	-9
5	ゼラノール	8.15	321	277	-75	-30	-7
6	ナイカルバジン	8.55	301	136.8	-55	-16	-1
7	ジクラズリル	8.82	405	334	-60	-26	-7
8	クロサンテル	12.4	660.8	126.9	-70	-70	-7

表3 添加回収試験結果 (1)

No.	化合物名	牛筋肉		豚筋肉		鶏筋肉		ウナギ		サケ		エビ	
		回収率%	RSD%										
positive ionization													
1	アンブロリウム	92.8	15.6	81.6	16.9	120.5	10.4	103.3	22.9	100.6	6.1	48.9	22.1
2	スルファセタミド	67.9	2.9	67.3	13.3	80.0	3.5	88.7	15.3	85.1	4.8	91.8	2.7
3	セファピリン	64.7	8.0	69.5	7.2	78.3	16.3	45.8	40.9	67.3	46.3	137.5	23.4
4	チアベンダゾール代謝物	79.5	8.2	66.4	10.7	76.9	1.7	84.8	5.9	74.8	9.0	71.5	6.9
5	クロビドール	84.1	13.9	85.9	12.5	69.9	9.2	74.0	11.4	72.4	13.4	72.4	11.5
6	リンコマイシン	71.1	1.9	66.4	1.3	75.7	4.3	71.7	8.1	81.5	3.5	79.8	0.9
7	レバミゾール	77.1	6.8	78.3	5.5	81.7	3.7	84.5	7.2	86.5	2.5	78.6	5.6
8	スルファジアジン	73.7	13.7	72.6	4.6	80.2	1.8	67.3	16.9	77.5	0.5	72.8	1.5
9	アルベンダゾール代謝物	67.2	9.5	68.2	8.7	76.0	11.8	66.5	15.0	85.9	3.1	85.6	4.3
10	アンピシリン	82.5	10.1	78.7	25.2	72.6	8.3	107.8	19.6	73.6	43.9	92.3	18.8
11	セファレキシム	102.3	18.9	85.4	6.1	***	***	110.5	7.2	112.8	29.5	112.5	10.1
12	チアベンダゾール	75.6	4.5	74.9	7.7	78.4	4.2	86.8	5.4	75.4	9.6	68.3	5.2
13	スルファチアゾール	68.4	21.5	77.9	11.4	73.5	8.8	78.3	2.6	89.3	7.9	67.3	13.1
14	トリメトプリム	72.8	15.9	63.6	16.3	68.7	2.6	81.3	6.8	69.9	2.3	74.5	26.1
15	ノフロキサシン	97.6	7.7	103.8	9.0	79.3	3.0	110.8	4.7	82.8	0.9	44.3	7.2
16	オフロフロキサシン	95.3	2.9	92.0	2.8	88.7	8.0	102.0	2.9	101.4	3.7	79.9	5.1
17	スルファピリジン	74.8	6.7	75.9	3.4	67.9	10.7	89.2	4.2	85.9	2.7	87.9	3.4
18	ネオスピラマイシン	70.7	12.5	84.2	3.1	95.3	4.0	92.8	12.1	99.3	6.1	63.1	2.0
19	オルメトプリム	65.9	9.0	66.8	1.1	73.4	8.4	60.0	9.4	92.4	11.3	71.6	15.5
20	カルバドックス	68.3	10.3	70.3	7.8	68.4	12.9	101.8	9.8	66.9	5.6	65.8	11.8
21	ピランテル	80.7	16.6	83.5	6.5	85.7	13.6	72.8	21.3	71.3	1.5	59.1	1.5
22	エンロフロキサシン	82.4	2.8	85.5	11.5	74.5	8.6	105.8	10.2	90.4	2.2	62.5	5.7
23	スルファメラジン	78.9	6.7	72.7	18.2	64.1	23.4	85.7	10.1	82.1	4.1	84.8	12.1
24	スピラマイシン	86.8	21.5	83.3	23.8	70.1	12.0	78.3	4.5	93.4	11.5	88.0	5.6
25	オルビフロキサシン	68.3	4.9	80.2	22.9	72.0	11.3	46.1	35.0	100.8	5.6	47.1	11.6
26	モランテル	85.0	11.1	87.1	4.0	77.1	11.0	67.8	8.6	94.3	13.9	72.4	8.1
27	キノキサリン-2-カルボン酸	69.9	11.8	71.0	18.5	80.1	11.4	118.8	15.3	***	***	61.5	9.2
28	セファゾリン	73.3	9.2	68.5	10.8	86.4	17.6	***	***	204.0	20.8	49.9	41.5
29	サラフロキサシン	61.6	30.1	80.9	22.6	67.3	12.5	106.8	11.5	73.4	22.4	42.6	7.9
30	キシラジン	74.7	1.6	71.9	5.9	68.9	5.2	80.2	2.8	82.9	4.1	64.0	3.9
31	チルミコシン	56.6	9.8	68.1	28.4	74.5	26.9	50.5	23.3	97.3	37.4	***	***
32	スルファジミジン	85.0	3.5	73.5	11.1	79.1	12.3	70.3	17.5	75.1	2.6	80.5	1.8
33	スルファモノメトキシム	69.5	3.0	71.3	9.1	71.7	9.1	77.0	1.7	83.0	12.4	90.1	10.0
34	スルファメトキシピリダジン	69.5	3.0	71.3	9.1	71.7	9.1	80.3	2.9	77.8	1.8	63.6	16.9
35	トリベレナミン	77.9	5.3	72.1	6.6	66.5	7.8	78.8	19.0	104.1	1.9	55.5	28.7
36	ピリメタミン	71.7	6.3	63.3	13.9	60.9	21.3	85.8	6.9	75.5	5.6	83.8	2.5
37	オレアンドマイシン	71.7	17.7	62.3	12.7	67.5	13.0	73.0	21.3	80.3	33.5	76.5	6.0
38	オキシベンダゾール	86.7	9.6	80.7	10.8	74.8	10.9	75.2	6.7	86.3	11.5	68.6	2.8
39	オクスフェンダゾール	74.9	11.0	82.1	19.0	70.3	18.1	76.5	0.7	92.1	1.3	65.0	3.3
40	エリスロマイシン	85.9	11.0	77.0	3.1	80.9	2.6	70.5	3.8	68.8	9.8	82.5	6.0
41	スルファクロルピリダジン	70.9	3.1	58.9	3.9	70.2	8.1	68.7	16.1	73.8	2.9	81.0	3.9
42	セフチオフル	69.5	5.0	57.3	3.5	72.1	13.4	***	***	65.5	6.5	87.9	9.5
43	スルファドキシム	73.5	9.4	75.8	10.3	74.7	14.5	79.5	8.9	95.8	8.1	94.1	6.6
44	スルファジメトキシム	72.0	3.0	65.1	9.1	75.8	2.8	84.7	9.1	87.9	0.2	104.1	25.3
45	スルファメトキサゾール	71.9	2.9	73.9	0.9	84.0	18.6	75.8	5.9	82.8	1.3	98.0	20.2

表3 添加回収試験結果 (2)

No.	化合物名	牛筋肉		豚筋肉		鶏筋肉		ウナギ		サケ		エビ	
		回収率%	RSD%	回収率%	RSD%	回収率%	RSD%	回収率%	RSD%	回収率%	RSD%	回収率%	RSD%
46	ブレドニゾロン	68.5	21.7	68.2	17.4	95.5	24.3	72.9	43.0	75.9	47.3	104.3	11.9
47	スルフィソキサゾール	66.4	8.6	68.7	4.5	81.2	4.7	66.3	4.8	81.9	1.9	74.4	14.0
48	チアムリン	81.5	13.0	76.8	14.3	64.7	8.6	78.7	6.8	86.8	9.0	63.1	29.4
49	ヒドロコルチゾン	63.6	14.7	75.7	14.6	7.9	39.6	93.2	33.8	68.9	28.5	100.4	11.1
50	オキシリニック酸	73.5	8.0	68.6	7.5	66.1	7.7	77.7	9.4	87.0	13.8	41.8	8.5
51	エトハベート	77.9	3.9	75.9	1.7	75.2	12.5	84.2	12.2	82.1	14.0	89.5	11.5
52	スルファベンザミド	70.1	6.9	68.9	8.5	74.4	5.0	72.7	3.2	83.5	2.5	82.9	10.0
53	スルファキノキサリン	81.1	4.6	72.3	7.8	66.5	7.2	54.8	17.7	82.3	0.9	82.6	24.6
54	オクスフェンダゾールスルホン	75.8	14.5	69.5	6.2	81.7	4.1	79.3	16.8	82.6	8.8	76.5	1.4
55	ベンジルベニシリン	83.1	33.2	75.1	32.4	83.5	32.4	82.7	6.4	103.3	9.9	102.6	10.2
56	メベンダゾール	79.3	3.8	79.9	8.1	80.2	6.5	72.0	3.9	78.1	7.5	75.9	7.7
57	デキサメタゾン	76.5	10.6	74.4	11.6	69.5	1.2	85.5	18.8	86.4	10.8	101.1	9.3
58	フルベンダゾール	83.5	2.4	76.8	4.6	78.1	16.2	77.2	7.1	88.3	5.2	73.6	2.2
59	フェノキシメチルベニシリン	82.8	2.1	92.1	5.3	77.4	8.9	62.2	26.9	76.1	35.1	101.0	31.2
60	ナリジクス酸	66.3	4.1	57.3	22.8	66.5	13.0	78.0	3.9	79.5	0.0	50.4	15.8
61	パーニアマイシン	112.3	15.1	75.6	25.8	***	***	***	***	78.8	13.9	***	***
62	トレンボロン	68.3	3.5	75.3	7.7	77.1	7.1	89.5	8.9	85.0	4.2	90.0	8.6
63	フェンベンダゾール	70.0	26.0	53.3	1.2	69.7	7.2	70.2	6.4	65.5	4.3	68.5	12.9
64	クロキサシリン	71.9	26.3	58.2	36.6	96.9	29.7	75.5	35.6	69.9	17.0	114.9	1.4
65	ナフシリン	88.4	27.8	72.7	7.2	48.6	17.4	82.8	0.7	66.4	8.3	90.1	22.6
66	ケトプロフェン	74.0	7.8	73.9	8.2	78.9	3.3	66.5	9.8	83.5	25.0	76.8	6.9
67	ジクロキサシリン	80.5	9.2	79.1	7.0	82.2	14.0	66.7	32.8	***	***	***	***
68	トリクラベンダゾール代謝物	65.7	12.4	62.6	13.1	67.6	12.2	74.0	22.3	69.0	3.6	60.4	29.0
69	ファミフル	71.1	1.8	69.3	7.2	65.9	15.2	70.3	28.0	66.5	0.0	75.1	7.8
70	フルニキシリン	71.5	3.2	62.0	4.4	79.9	14.5	70.8	2.2	74.5	16.6	71.3	7.9
71	ワルファリン	71.6	6.8	61.9	6.6	84.3	19.4	78.7	6.9	70.8	7.0	83.6	0.6
72	フェノブカルブ	70.2	2.7	81.7	6.1	72.5	2.8	87.3	5.6	73.6	9.4	67.1	17.1
73	ボスカリド	63.3	12.4	74.5	5.3	50.4	18.5	97.3	12.4	72.8	27.2	***	***
74	フェバンテル	55.1	9.0	66.7	7.3	71.9	11.9	83.2	7.2	79.0	9.4	86.3	8.2
75	ノビオシン	63.4	9.9	65.5	6.1	82.5	17.7	57.2	13.0	88.4	11.4	81.5	26.9
76	ジフルベンズロン	59.7	7.2	64.5	4.0	65.3	23.0	58.5	9.4	58.1	9.4	68.4	12.2
77	イソプロチオラン	53.5	16.7	67.1	3.8	58.5	13.8	61.3	2.4	59.1	6.3	57.5	17.2
78	クオルマジノン	61.8	21.3	55.6	7.9	57.4	44.9	67.5	14.8	83.3	13.6	76.0	7.0
79	トリクラベンダゾール	50.8	8.4	40.5	19.2	66.0	15.0	44.3	24.1	48.9	6.1	70.9	1.2
80	テムホス	29.8	2.3	31.6	13.4	18.4	16.2	58.8	8.3	17.0	15.1	40.1	18.1
81	アレスリン	8.1	23.7	13.1	34.0	116.0	18.2	19.5	10.7	0.0	0.0	48.6	12.7
82	モネンシン	65.1	9.7	53.2	13.4	58.1	28.9	60.5	4.3	56.3	6.3	43.1	4.5
negative ionization													
1	チアンフェニコール	72.6	3.5	75.5	7.1	74.6	4.7	113.8	5.9	68.3	11.7	83.8	1.3
2	フロルフェニコール	72.1	7.3	72.3	8.9	72.5	3.7	74.3	0.5	80.1	10.0	83.8	5.1
3	クロラムフェニコール	71.1	5.8	69.7	5.8	74.2	6.1	97.5	0.0	72.6	5.6	79.1	0.2
4	クオルスロン	69.5	5.3	67.4	8.2	64.9	13.3	72.0	1.0	65.6	20.8	76.6	4.8
5	ゼラノール	73.6	7.2	68.7	8.9	73.6	5.7	72.5	3.9	70.6	12.0	75.6	5.4
6	ジクラズリル	57.1	6.6	55.6	6.7	56.7	6.7	93.5	1.5	55.0	16.4	74.0	5.3
7	ナイカルバジン	28.6	15.5	25.8	4.1	20.6	6.7	23.2	6.3	26.5	8.4	17.5	5.8
8	クオサンテル	33.6	24.2	19.2	24.9	38.7	10.6	88.5	4.0	28.9	15.1	59.9	13.3

資 料

ゴマシジミの保全に関する研究 —生息地の危急性評価及びチョウ類群集の比較—

新井 隆介（岩手県環境保健研究センター）、新井みゆき（ゴマシジミ監視員）

岩手県内のゴマシジミについて、その生息地分布を明らかにするために、現地踏査を行い、保護植物評価法により生息地の危急性を評価した。ゴマシジミは、盛岡市、滝沢村、久慈市及び洋野町で生息が確認されたが、県央部の生息地は、沿岸北部の生息地から距離が離れており、遺伝的な交流がないと考えられ、滝沢村春子谷地以外の滝沢村の生息地において、危急性が高く評価されたことから、特にもその保全が重要であると考えられた。また、生息地のチョウ類相を把握するため、ルートセンサス法により調査を行った。久慈市、洋野町の生息地は、種数も多く、多様度指数も高かったため、滝沢村春子谷地を除く生息地の中では、比較的良好な生息地であると評価された。

I はじめに

ゴマシジミ *Maculinea teleius* BERGATRÄSSER は、いわてレッドデータブック¹⁾でAランク、2007年に公表された環境省レッドリストで絶滅危惧Ⅱ類に指定され、絶滅の危機に瀕しているシジミチョウ科のチョウ類である。また、2002年には、「岩手県希少野生動植物の保護に関する条例」の指定希少野生動植物に指定され、捕獲等が禁止されている。

本研究では、ゴマシジミの保全を図る基礎資料とするため、岩手県における生息地分布を明らかにし、その危急性の評価を行った。また、併せて、生息地のチョウ類群集の比較を行った。

II 材料及び方法

1 生息地調査

筆者の一人新井隆が環境生活部自然保護に在籍していた2009年度、県では生息地を5か所（盛岡市1か所、滝沢村3か所、久慈市1か所）把握していた。そこで、2009年度に把握していた生息地以外にも生息地が存在するか確認するため、有識者の案内や環境保健研究センターの地理情

報システムに入力された過去の生息地情報などに基づき、2010年8月に現地踏査を行った。

なお、ゴマシジミ生息地として知られている滝沢村春子谷地は、岩手県自然環境保全地域及び滝沢村天然記念物に指定されており、立入が禁止されていることから、ゴマシジミの生息状況等は、春子谷地生物相調査報告書²⁾を参照した。

2 危急性評価

ゴマシジミ生息地の危急性を評価するために、保護植物評価法³⁾を用いた。保護植物評価法は、表-1に示すように、量に関する4項目（分布の広がり、分布地点における個体数、所属する植物群落の広さ、繁殖能力）とインパクトの程度に関する3項目（ハビタットの消失危険度、選択的採集の危険度、個体数の変動）を、それぞれ5段階に評価し、その総計によって危急性を評価するものである。

大場は千葉県の海岸植物について、保護植物評価法を用いて、海岸植物を保護対策の必要な種や一般種などのランク付けを行っている³⁾が、本研究では、ゴマシジミの食草であるナガボノシロワレモコウ群落について、その危急性を評価した。

表-2 保護植物評価法 (大場 1998)

A. 量 (稀少さ) の尺度		B. インパクトの尺度	
a. 分布の広がり (隣接している第 3 次メッシュ数)		e. ハビタットの消失危険度	
5 1~5/メッシュ		5 極めて強い	
4 6~20		4 強い	
3 21~50		3 中	
2 51~100		2 弱い	
1 101~以上		1 無い	
b. 分布地点における個体数		f. 選択的採集の危険度	
5 1~数個体		5 極めて強い	
4 10 個体未満		4 強い	
3 10 個体以上数十個体		3 中	
2 100 個体以上数百個体		2 弱い	
1 1,000 個体以上		1 無い	
c. 所属する植物群落 (生態環境) の広さ (1/25,000 地図上で)		g. 個体数の変動	
5 点状あるいは、ほとんど表現できない		5 かつては記録があるが現在消息不明	
4 班状		4 減少している	
3 散点状あるいは線状		3 変わらない	
2 帯状		2 増加している	
1 広い面状		1 激増	
d. 自然状態での繁殖能力 (環境と個体数から総合して)			
5 ほとんど増殖が認められない			
4 弱い増殖力がある			
3 中位の増殖力が認められる			
2 著しい増殖力がある			
1 強大な増殖能力がある			

危急性評価ランク		総計	危急性評価ランク		総計
危急性 A	危急性非常に高い	29,30	一般保護	保護の必要あり	20, 21
危急性 B	危急性高い	25~28	保護留意	保護に留意	18,19
危急性 C	危急性あり	22~24	一般	保護は特に必要ない	≤17

3 チョウ類群集の比較

ゴマシジミ生息地におけるチョウ類群集を調べるため、生息地の周囲や内部にルートを設定し、ルートセンサス法を用いて調査を行った。調査は、盛岡市の生息地では、2010年8月に8回、その他の生息地は、2010年8月に1回行った。なお、ルートの長さや調査回数が、調査地によって異なるので、個体数の比較は行わなかった。また、滝沢村春子谷地については、立入が禁止されているため、調査を行わなかった。

III 結果および考察

1 生息地分布

生息確認調査の結果を表-2及び図-1に示した。新たに洋野町でゴマシジミの生息を確認し、県内の生息地は6か所となった。

県央部と沿岸北部の生息環境は異なっており、県央部は標高178~462mの中標高の湿地、沿岸北部は標高21~26mの低標高の休耕田が主であった。保護体制がとられている生息地は、6か所のうち4か所で、県監視員による監視や

保全活動などが行われている。

生息地に対する脅威は、開発、遷移進行及び違法捕獲があげられた。指定希少野生動植物に指定されたことにより、捕獲等は禁止されているが、生息地には踏み跡がみられ、依然としてマニアによる違法捕獲が行われていると考えられた。

県内の生息地は、県央部と沿岸北部で隔離分布している(図-1)。沿岸北部の生息地は、青森県の太平洋沿岸から続く生息地であると考えられるが、県央部の生息地は、沿岸北部の生息地から距離が離れており、遺伝的な交流がないと考えられることから、特にその保全が重要であると考えられた。

2 危急性評価

ゴマシジミ生息地の危急性について、保護植物評価法を用いて評価した結果を表-3に示した。滝沢村A及びBが危急性B、盛岡市、久慈市及び洋野町が危急性C、滝沢村春子谷地が保護留意となり、滝沢村春子谷地以外は、危急性ありと評価された。

表-2 ゴマシジミ生息調査結果

No.	生息地	生息範囲 (ha)	標高 (m)	生息環境	保護体制等	生息地に対する脅威	備考
1	盛岡市	約0.4	178	湿地	県監視員による監視 県等による保全活動	道路工事による湿地水源への影響	
2	滝沢村A	約0.1	462	湿地	自然保護員による巡視	違法捕獲、開発、遷移 進行	埋立てにより生息地の一部が消失
3	滝沢村B	約0.1	385	湿地		違法捕獲	
4	久慈市	約1.0	26	休耕田	地元ボランティア団体 等による保全活動	圃場整備	
5	洋野町	約28.0	21	休耕田・藪		違法捕獲	広範囲に生息地が点在
6	滝沢村春子谷地*	約16.0	450	湿地	県自然環境保全地域 村天然記念物 自然保護員による巡視	遷移進行	立入禁止

※ 生息範囲及び標高は、春子谷地生物相調査報告書(春子谷地生物相調査グループ(編)2008)による。

表-3 保護植物評価法(大場1998)によるゴマシジミ生息地の危急性評価

No.	生息地	A 量の尺度				B インパクトの尺度				A+B 総計	
		a 広がり	b 個体数	c 群落面積	d 繁殖	A 合計	e 立地	f 採取	g 変動		B 合計
1	盛岡市	5	2	4	3	14	4	2	3	9	23
2	滝沢村A	5	3	5	3	16	4	3	4	11	27
3	滝沢村B	5	3	5	3	16	3	3	3	9	25
4	久慈市	5	2	4	2	13	4	3	3	10	23
5	洋野町	5	2	3	3	13	3	3	3	9	22
6	滝沢村春子谷地	5	2	2	3	12	2	2	3	7	19

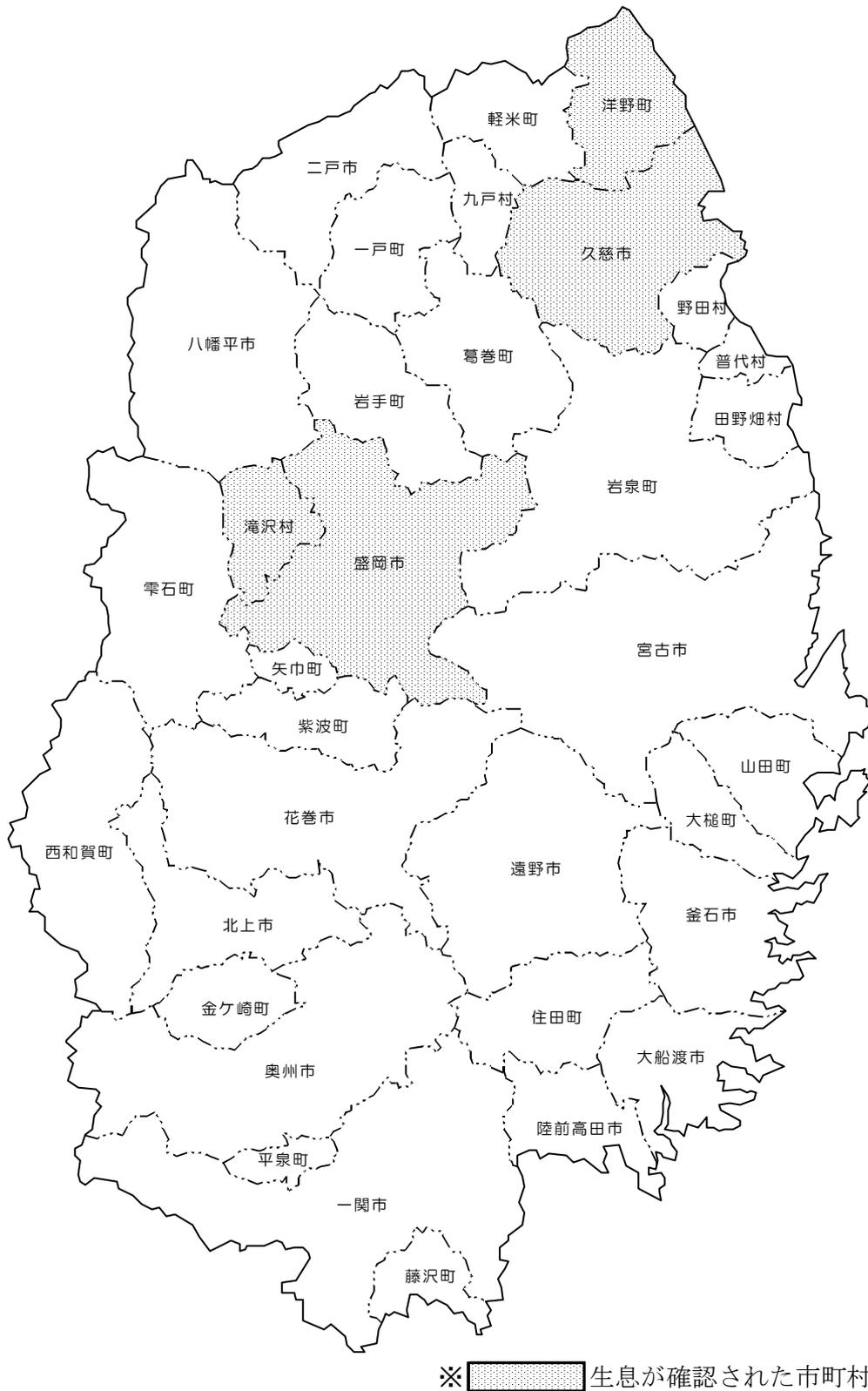


図-1 岩手県におけるゴマシジミ生息地分布

滝沢村A及びBは、生息範囲が小さいことから、特に危急性が高く評価されたと考えられた。滝沢村春子谷地は、村天然記念物などに指定され、立入が禁止されているとともに、生息範囲も広いことから、保護留意と危急性が低く評価された。しかしながら、吉田⁴⁾が指摘するように、乾燥化に伴ってヨシ群落の拡大とハンノキなどの木本の侵入が進んだため、ゴマシジミの生息環境が劣化しており、ハンノキなどを刈取る人為的な管理の導入を検討する必要があると考えられた。

3 チョウ類群集の比較

(1) 総種数

各調査地で出現したチョウ類相及び総種数を表-4に示した。

総種数は、県央部の盛岡市で14種、滝沢村Aで6種、滝沢村Bで4種、沿岸北部の久慈市で13種、洋野町で14種であった。盛岡市、久慈市、洋野町では、13~14種となり、滝沢村Aの6種、滝沢村Bの4種より多くなった。

表-4 ゴマシジミ生息地におけるチョウ類相及び総種数

生息地 調査回数	盛岡市	滝沢村A	滝沢村B	久慈市	洋野町
	8月8回の合計	1回 (2010.8.12)	1回 (2010.8.12)	1回 (2010.8.26)	1回 (2010.8.26)
種名					
ゴマシジミ	86	19	35	48	30
モンキチョウ	224			36	32
モンシロチョウ	50	2		20	15
ヒメウラナシメヤノメ	2			39	23
キタテハ	17			3	6
ジャノメチョウ	5	1		4	9
キアゲハ	14	1		3	3
イチモンジセセリ	2			1	1
ヒメアカタテハ				2	1
ツバメシジミ	4				3
キチョウ	7			2	
ベニシジミ	18				1
ヤマトシジミ	2			1	
ヒョウモンチョウ		1	1		
オチヤハネセセリ					1
コムシジ					1
スズグロチャハネセセリ ^{※1}			2		
ダイミョウセセリ				1	
キマダラセセリ		1			
ヒメシロチョウ					1
ルリシジミ	2				
クジヤクチョウ				1	
ウラナミアカシジミ			1		
イチモンジチョウ	1				
個体数	434	25	39	161	127
種数	14	6	4	13	14
※2					
アゲハチョウ科		1			
シジミチョウ科	12			7	7
シロチョウ科	11				2
ジャノメチョウ科			1		
セセリチョウ科				4	4
ヒョウモンチョウ科	4	2			
タテハチョウ科					
未同定	3				2
総個体数	464	28	40	172	142

※1 スズグロチャハネセセリorヘリグロチャハネセセリ

※2 科までしか同定できなかった個体及び未同定個体

表-5 ゴマシジミ生息地における多様度指数 β

生息地	盛岡市	滝沢村A	滝沢村B	久慈市	洋野町
多様度指数 β	3.103	1.744	1.243	4.765	5.944

総種数が 13~14 種の盛岡市、久慈市、洋野町の 3 生息地をみると、共通して出現する種としては、個体数が多い種では、モンキチョウ、モンシロチョウ、ヒメウラナミジャノメがあげられ、個体数は少ないが、キタテハ、ジャノメチョウ、キアゲハ、イチモンジセセリがあげられる。

滝沢村Aと滝沢村Bに共通する種は、ヒョウモンチョウがあげられる。ヒョウモンチョウは、ゴマシジミと同じ、ナガボノシロワレモコウを食草とし、ゴマシジミが生息するような乾いた草原、湿地に生息するチョウであり、絶滅の危機が増大していると判断され、いわてレッドデータブック¹⁾ではBランクに指定されている。

(2) 多様度指数 β

種数と、均一性を評価する森下⁵⁾による多様度指数 β を用いてチョウ類群集を比較した。

森下の β 指数

$$\beta = 1 / \lambda$$

$$\lambda = \sum_{i=1}^n n_i(n_i - 1) / N(N - 1)$$

n_i : i 番目の種の個体数 N : 総個体数

なお、指数の算出には未同定個体を除いた。

結果を表-5 に示した。

多様度指数 β の結果は、盛岡市で 3.103、滝沢村Aで 1.744、滝沢村Bで 1.243、久慈市で 4.765、洋野町で 5.944 となった。

総種数が 13~14 種の盛岡市、久慈市、洋野町の 3 生息地を比較すると、洋野町、久慈市、盛岡市の順で多様度指数が低くなった。多様度指数は、群集の均一性を評価する指数であるが、一般的に群集内で、ある一種に個体数が集中する（均一性が低くなる）と、群集として不安定な状態にあり、多様性は低いと判断される。盛岡市における多様度指数が他の 2 生息地と比較して低かったのは、モンキチョウの個体数の多さが主な要因になったと考えられた。

滝沢村Aと滝沢村Bでは、種数が少ないこと

と、ゴマシジミの個体数が他の種に比べて多いことが、多様度指数を低下させる要因になったと考えられた。

IV まとめ

岩手県内におけるゴマシジミ生息地を調査した結果、洋野町で新たに生息を確認し、岩手県のゴマシジミ生息地は、6 か所となった。県内の生息地は、県央部と沿岸北部に隔離分布していた。生息環境は県央部が中標高の湿地、沿岸北部が低標高の休耕田と異なり、特に前者の生息地の保全が重要であると考えられた。

ゴマシジミ生息地の危急性を評価した結果、滝沢村春子谷地を除く生息地において、危急性が高く評価された。生息地に対する脅威として、開発があげられたことから、種指定だけではなく、「岩手県希少野生動植物の保護に関する条例」に規定される生息地等保護区の指定を行うことも視野に入れる必要があると考えられた。

チョウ類群集調査からは、久慈市と洋野町の生息地は、種数も多く、多様度指数も高いため、滝沢村春子谷地を除く生息地の中では、比較的良好な生息地であると評価された。盛岡市は、種数は多い方ではあるが、ある 1 種（モンキチョウ）に個体数が集中しており、群集として不安定な生息地であると考えられた。滝沢村Aと滝沢村Bは、生息範囲が小さく、種数も少ないなか、ヒョウモンチョウが出現しており、また、ゴマシジミの個体数が多いことから、限られた種のみが生息できる地域ではないかと考えられた。

V 謝辞

本稿をまとめるに当たり、信州大学農学部森林科学科大窪久美子教授から御指導をいただいた。また、現地調査に当たっては、岩手大学吉田勝一名誉教授、岩手虫の会中谷充氏及び佐

藤聖準氏に御協力いただいた。ここに御礼申し上げます。

VI 文献

- 1) 岩手県生活環境部編: いわてレッドデータブック.pp414,岩手県,2001.
- 2) 春子谷地生物相調査グループ編: 春子谷地生物相調査報告書.春子谷地生物相調査グループ,2008.
- 3) 大場達之: 保護を必要とする海岸植物の評価.海洋と生物 114:13-20,1998.
- 4) 吉田勝一: 春子谷地湿原におけるゴマシジミ成虫の生息状況. 春子谷地生物相調査報告書.pp45-48,春子谷地生物相調査グループ,2008.
- 5) 森下正明: 京都近郊における蝶の季節分布. 自然－生態学的研究.pp95-132,中央公論社,1967.
- 6) 渡辺康之: 検索入門 チョウ①,②,保育社,1991.