

目 次

報 文

赤外吸収スペクトルの医薬品試験における応用 (第 16 報) 局方医薬品の polymorphism に 関する研究 (その 2)	大場琢磨・小山良子..	1
赤外吸収スペクトルの医薬品試験における応用 (第 17 報) 局方医薬品の polymorphism に 関する研究 (その 3)	大場琢磨・小山良子..	4
オートアナライザーによる医薬品の分析 (第 1 報) 解熱鎮痛剤中のスルピリンの定量	柴崎利雄・山本美代子..	7
オートアナライザーによる医薬品の分析 (第 2 報) 解熱鎮痛剤中のアセチルサリチル酸, サリ チル酸およびサリチル酸ナトリウムの定量	柴崎利雄・山本美代子..	12
オートアナライザーによる医薬品の分析 (第 3 報) 解熱鎮痛剤中のアミノピリンの定量	柴崎利雄・山本美代子..	14
鉄錯化合物を内部指示薬としたサルファ剤のジアゾ滴定 (第 1 報) ..	吉川落子・八木諄子・伊賀宗一郎..	17
チアミンジスルフィドの試験法について (第 1 報) 定量法の検討	松田静子・中路幸男・足立 透・谷村顕雄..	20
チアミンジスルフィドの試験法について (第 2 報) 確認試験の検討	足立 透・南川伝憲・松田静子・中路幸男・谷村顕雄・朝比奈正人..	22
パラオキシ安息香酸エステル類のガスクロマトグラフィー	加藤三郎..	25
昭和 37, 38 年度灯台飲料用天水中の ^{90}Sr および ^{137}Cs の定量	長沢佳熊・浦久保五郎・亀谷勝昭・城戸靖雅・池淵秀治..	29
メタノール中毒の実験的研究 (第 3 報) ウサギ体内における放射性メタノール ($^{14}\text{CH}_3\text{OH}$) の 分布と変化	長沢佳熊・竹中祐典・高崎中夫..	35
発熱性物質試験法に関する研究 (第 3 報) 電気的ウサギ体温測定法の発熱性物質試験への応用 (2)	田中 悟・桑村 司・上田瑞穂・川島邦夫・中浦慎介・大森義仁..	39
発熱性物質試験法に関する研究 (第 4 報) 電気的ウサギ体温測定法の発熱性物質試験への応用 (3)	田中 悟・桑村 司・上田瑞穂・川島邦夫・中浦慎介・大森義仁..	43
発熱性物質試験法に関する研究 (第 5 報) 注射用蒸留水の発熱性物質試験について (2)	上田瑞穂・桑村 司・田中 悟・川島邦夫・中浦慎介・大森義仁..	46

資 料

国立衛生試験所標準品 (日本薬局方標準品) 酢酸コルチゾン標準品, ヒドロコルチゾン標準品 およびシアノコバラミン標準品について	長沢佳熊・越村栄之助・川村次良・木島敬二・玉野美矢子..	51
尿中麻薬の検出について (第 5 報)	大野昌子・朝比奈晴世..	52
大麻の確認法, 顕微鏡的観察	朝比奈晴世・高橋一徳..	54
避妊薬中の酢酸フェニール水銀の改良ポーラログラフ定量法	佐藤 寿・島峯望彦..	59
衛生材料の全反射赤外スペクトル	伊東 宏・大場琢磨..	63
PVC, PP フィルムおよび避妊リングの浸漬試験	藤井正道・佐藤 寿・島峯望彦..	65
ラテックス製コンドームについて (第 2 報) 市販品の試験 ..	藤井正道・佐藤 寿・島峯望彦・篠崎 正..	67
紙綿類の基準について (第 3 報)	伊東 宏・堀部 隆・篠崎 正..	70
非吸収縫合糸の各種滅菌方法の強度に及ぼす影響について	堀部 隆・菊池 寛・伊東 宏..	73
輸入食品の人工着色料について (第 5 報)	武見和子・藤巻昌子・天野立爾・川田公平・川城 巖..	76
矩形波ポーラログラフィーによる植物体中の微量金属分析における回収率について	辰濃 隆・古橋詩子・田辺弘也・川城 巖..	78

Summary

p-Hydroxybenzoates (pHB) and some other food preservatives were separated by gas chromatography with hydrogen flame ionization detector, using silicon oil DC 550 as nonpolar column and diethyleneglycol succinate polyester (DEGS) as polar column. A variety of packing and operating conditions seems to be necessary to obtain reasonable separation of each component.

In these cases, relationships between the retention times and carbon numbers of alkyl ($C_1 \sim C_7$)

have been investigated for each series of pHB, their acetates and chloroacetates. The elution acetates succeeded by DC 550 and preceded by DEGS that of pHB.

Chloroacetates of pHB which were derivated with chloroacetylchloride provided very high sensitivity and ng amount of pHB was detected, using electron capture detector (Shimadzu ECD-1A). And relationships between the response and sample amount at variable applied voltage were studied.

(昭和 41 年 6 月 10 日受付)

昭和 37, 38 年度燈台飲料用天水中の

 ^{90}Sr および ^{137}Cs の定量

長沢佳熊・浦久保五郎・亀谷勝昭・城戸靖雅・池淵秀治

^{90}Sr and ^{137}Cs in Drinking Stock Rain Water Sampled at Beacon Light Houses During 1962, '63 and '64

Kakuma NAGASAWA, Gorō URAKUBO, Katsuaki KAMETANI,
Yasumasa KIDO and Hideharu IKEBUCHI

ま え が き

わが国では飲用水を天水に頼って生活する人口が約 10 万人をこえるといわれている。昭和 36 年秋以来開始された大型核爆発実験により、天水の放射能汚染が問題視されたので、昭和 37 年より 2 カ年間連続して全国の燈台で飲用天水について、これらに含まれる ^{90}Sr および ^{137}Cs を定量した。総放射能の測定と ^{90}Sr の定量結果については、さきに報告^{1,2)}済みであるが、本報では ^{137}Cs の定量を含め総括的に報告する。

1. 試料

天水を飲用としている全国の燈台から、初年度（昭和 37 年 4 月～昭和 38 年 3 月）は 12 カ所、第 2 年度（昭和 38 年 4 月～昭和 39 年 3 月）には 6 カ所をえらび、初年度は毎月、第 2 年度は隔月飲料用ろ過天水および末ろ過天水各 10 L をポリエチレンビンに入れて送付を受け、これについて分析を行なった。試料の送付を受けた燈台および場所は次のとおりである。

宗谷岬航路標識事務所（北海道稚内市）
根室航路標識事務所*（北海道根室市）
室蘭航路標識事務所*（北海道室蘭市）

大間崎航路標識事務所*（青森県下北郡大間町）

鵜の尾崎航路標識事務所*（福島県相馬市）

両津航路標識事務所*（新潟県両津市）

三宅島航路標識事務所（東京都三宅島）

潮岬航路標識事務所*（和歌山県西牟婁郡串本町）

長尾鼻航路標識事務所（鳥取県気高郡青谷町）

室戸航路標識事務所（高知県室戸市室戸岬町）

若宮航路標識事務所*（長崎県壱岐郡勝本町）

枕崎航路標識事務所*（鹿児島県枕崎市）

* 印の燈台では昭和 37 年度のみ試料の採取を行なった。また各燈台の地理上の位置を Fig. 1 に示す。

各燈台での試料は、毎月 1 回または 2 カ月に 1 回各燈台で定めた日に貯留槽から採取されたものである。それで試料はある一定の日に降下した雨水というわけでもなく、また厳密に正確な月間平均値を示すものでもない。

各燈台で飲用に供したのはろ過水であるが、ろ過装置は各燈台によりその構造が少しずつ異っている。いづれも砂利、砂、木炭をろ過材として用いている。ろ過装置を通った水は、貯水槽に貯えられたのち使用される。分析に使用された末ろ過天水およびろ過天水は



Fig. 1. The location of beacon light houses where the potable rain-water were collected

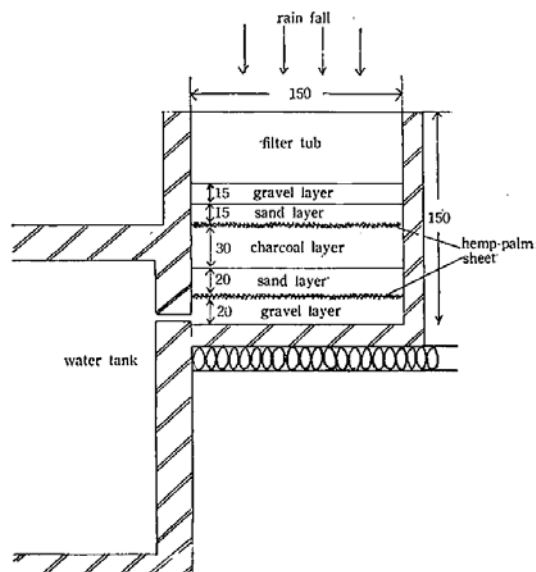


Fig. 2. A filter of rain water at a beacon light house (length unit cm)

Table 1. Radiochemical determination of ^{137}Cs

10 L of sample solution

Add 100 ml of HNO_3 .

Allow to stand for about a week.

Add 100 mg of Sr^{2+} and 50 mg of Cs^+ .

Neutralize with saturated NaOH soln.

Heat at about 80° and add 100 g of Na_2CO_3 with mechanical stirring.

Continue stirring for another 30 min or more.

Allow to stand overnight.

Siphon the supernatant.

Supernatant

Add 100 mg of P as NaH_2PO_4 and 900 ml of HNO_3 .

Heat gently to 50° , add 130 g of $(\text{NH}_4)_6\text{Mo}_7\text{O}_{24}\cdot 4\text{H}_2\text{O}$ with mechanical stirring and continue stirring for another 30 min or more.

Allow to stand overnight.

Siphon supernatant.

Precipitate

Dissolve in 100 ml of NH_4OH (1→2).

Add HNO_3 until precipitating begins and add more 10 ml of excess HNO_3 .

Stir for 30 min or more.

Allow to stand overnight.

Filter through a micro Büchner funnel.

Precipitate

Dissolve in 5 ml of 0.5 N NaOH soln.

Add 5 ml of 2.5% sodium dipicrylamine soln.

Allow to stand for 1 hr.

Centrifuge at 2000 rpm.

Precipitate

Count by low back ground counter.

Precipitate

Determination of ^{90}Sr

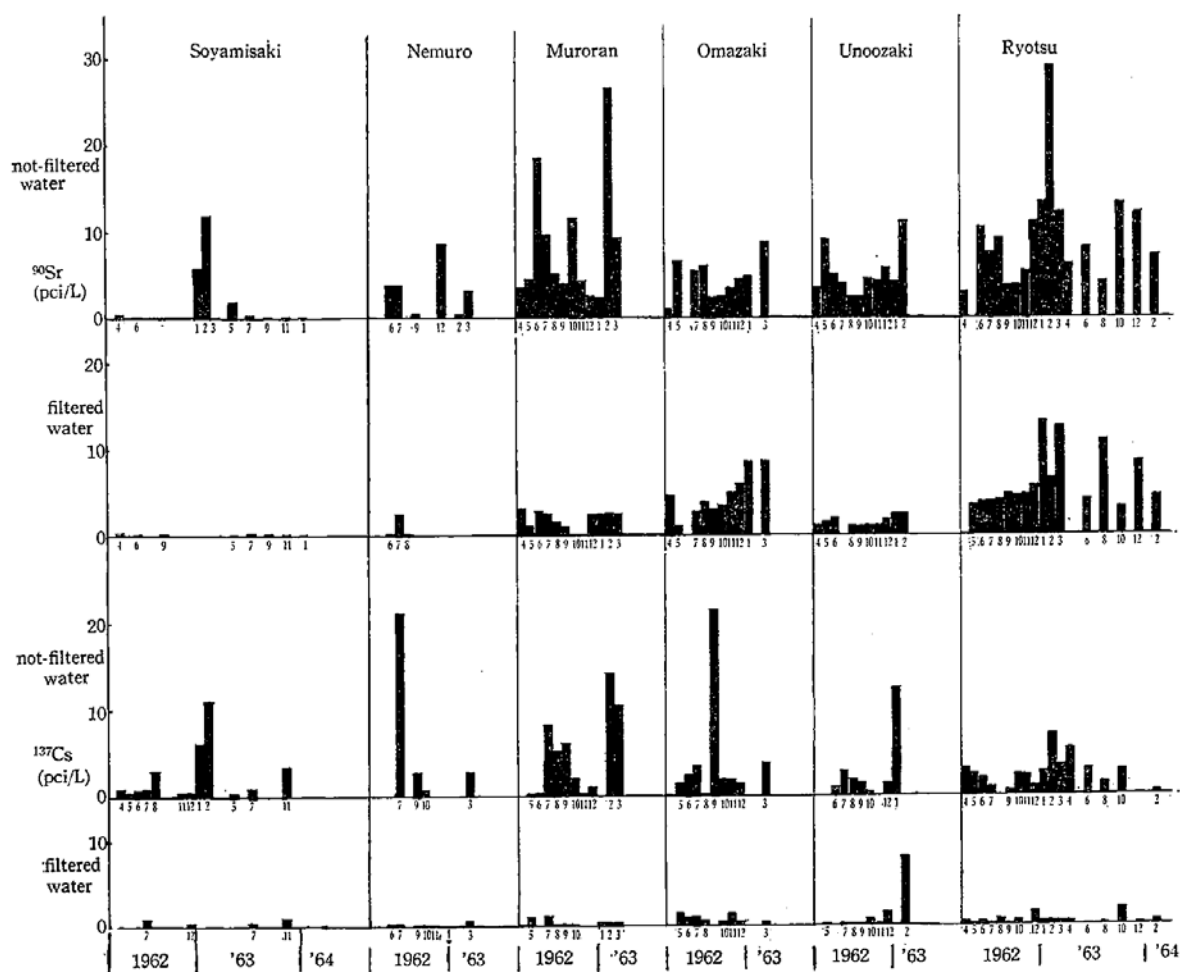


Fig. 3. Concentration of ^{90}Sr and ^{137}Cs in rain-water collected at 12 beacon light houses during the period from April, 1962 to March, 1964

いずれも降雨の日からどの程度の期間経過したものかは明らかでない。またろ過槽の砂利、砂、木炭の厚みなどは各燈台ごとに若干の差異があり、中には木炭層のないものもあるが、その代表的な一例として Fig. 2 にその構造を示す。

2. 定量方法

1) 計測器

低バックグラウンド計数装置（日本無線医理学研究所製 LBC-1 型）を用いて計測した。

2) ^{90}Sr の定量

前報¹⁾に報告した。

3) ^{137}Cs の定量

^{137}Cs の定量方法については、リンモリブデン酸アンモニウム^{3,4,5)}、リンタングステン酸、ケイモリブデン酸⁶⁾、亜硝酸コバルト⁷⁾、ジピクリルアミン⁸⁾、テトラフェニルボロン⁹⁾を用いる方法の他に、イオン交換樹脂による方法¹⁰⁾、ニッケルとフェロシアン酸による共沈法¹¹⁾、リンモリブデン酸とアスベストによる方法¹²⁾などがあるが、われわれは、リンモリブデン酸法

にしたがって行なった。その操作は Table 1 のとおりである。

3. 定量結果

Fig. 3 に示すような結果を得た。また各燈台における両核種含有量の年間平均値を Table 2 に示す。

4. 考 察

1) 汚染の年別、地域別の状況について

昭和 36 年秋ソ連が大型核実験を始めて以来アメリカも核実験を再開し、昭和 37 年 12 月の核実験中止までに百数十回の原水爆実験が行なわれた。昭和 37 年 4 月以来の燈台天水中の ^{90}Sr 、 ^{137}Cs の測定結果 (Fig. 3) からわかるように実験が終ったのちもかなり汚染が続いている。また 3 カ所の燈台における未ろ過天水中の ^{90}Sr 定量値に昭和 39, 40 年度の分析化学研究所の結果¹³⁾を加えたものを Fig. 4 に示すが、この結果からもわかるように昭和 39 年においてさえも汚染の度合は大きい。しかし昭和 40 年は次第に汚染の度合は小さくなってきている。今後核実験が行なわれなければ、天水の汚染はさらに小さくなってゆくで

あろう。

また従来から知られ、Fig. 3 から明らかなように

本邦北部に位する燈台の天水は本邦中部および南部に比較して ^{90}Sr および ^{137}Cs 含有量は少なくなってい

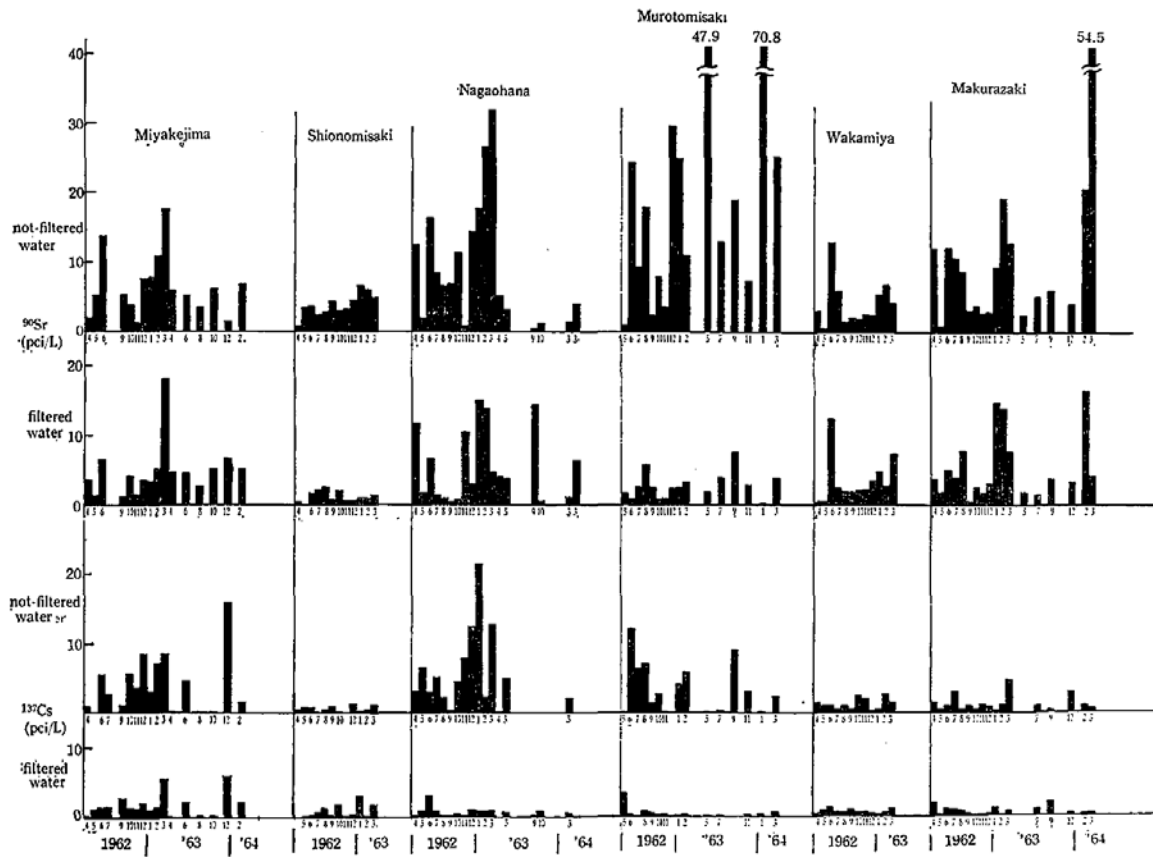


Fig. 3. Continued

Table 3. Annual mean values of ^{90}Sr and ^{137}Cs concentration of potable rain Water (pci/L)

sampling location	filtered (F) or not filtered (NF)	1962		1963		sampling location	filtered (F) or not filtered (NF)	1962		1963	
		^{90}Sr	^{137}Cs	^{90}Sr	^{137}Cs			^{90}Sr	^{137}Cs	^{90}Sr	^{137}Cs
Soyamisaki	F	0.17	0.28	0.19	0.57	Shionomisaki	F	1.50	0.95		
	NF	1.67	1.72	0.60	1.27		NF	3.89	0.63		
Nemuro	F	0.34	0.18			Nagaohana	F	5.97	0.85	5.00	0.59
	NF	1.90	2.90				NF	13.07	2.60	2.66	2.60
Muroran	F	1.88	0.44			Murotomisaki	F	2.45	0.77	3.54	0.33
	NF	8.49	2.97				NF	13.49	4.48	30.70	2.55
Omazaki	F	4.64	0.95			Wakamiya	F	3.69	0.70		
	NF	4.60	3.90				NF	4.15	1.18		
Unoozaki	F	1.68	1.38			Makurazaki	F	5.63	0.63	5.27	0.95
	NF	5.18	2.18				NF	8.38	1.35	15.61	1.13
Ryotsu	F	5.62	0.46	6.31	0.69	mean value of F		3.18	0.79	4.06	0.76
	NF	9.17	2.64	8.67	2.29	mean value of NF		6.80	2.65	10.52	2.32
Miyakejima	F	4.93	1.94	4.05	1.32	F/NF (%)		46.8	30.0	38.6	31.9
	NF	7.59	5.26	4.88	4.09	removal rate of ^{90}Sr & ^{137}Cs (%)		53.2	70.0	61.4	68.1

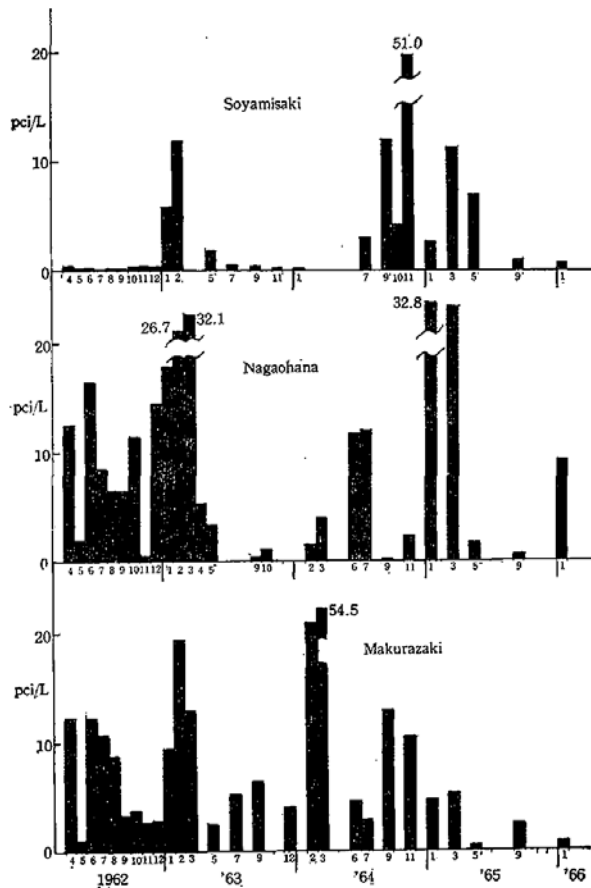


Fig. 4. Concentration of ^{90}Sr in not-filtered rain water collected at 3 beacon light houses during the period from April, 1963 to January, 1966

る。また中部、南部の燈台天水中の汚染の度合は採水場所によってかなり異った値を示している。

2) ^{90}Sr と ^{137}Cs の比較およびろ過槽のろ過について

定量結果をみると ^{90}Sr 汚染は宗谷岬を除いて、 ^{137}Cs 汚染より常に大きい値を示している。核分裂収率から考えれば ^{235}U , ^{232}Th の核分裂によりほぼ同じ程度に ^{90}Sr , ^{137}Cs が生成されるし、また ^{238}U , ^{239}Pu の核分裂の場合には ^{90}Sr は殆んど生成しないから、天水中の汚染の場合にも ^{90}Sr と ^{137}Cs とがほぼ等しいか、あるいはむしろ ^{90}Sr の方が少ない程度に含まれなければならない。しかしいずれの天水中の場合にも ^{90}Sr の汚染が大きく、Table 2 によれば昭和 37 年度では ^{90}Sr は ^{137}Cs に比べて 2.6 倍高く、昭和 38 年度では 4.5 倍の高い濃度を示している。この比率については、天水中の採集、貯留時における ^{90}Sr , ^{137}Cs の吸着の差によるのではないかと考えられる。ろ過、未ろ過天水中の ^{90}Sr および ^{137}Cs 汚染の関係については Table 2 から明らかなように、それぞれの核種が除去される率は、 ^{90}Sr では 50~60%, ^{137}Cs では 60~

70% でわずかなではあるが、 ^{137}Cs の方が除去されやすいようである。個々の燈台により前述するように、ろ過装置の構造、あるいは天水中の貯留状態が異なるので、核種の吸着の度合も異なっているようにみえる。

3) 天水中の ^{90}Sr 体内摂取について

天水中を利用している人はろ過天水をすべての飲食用に用いているのであるが、ろ過天水中の ^{90}Sr 汚染は Table 2 の結果から昭和 37 年度では年間平均 3.13 pci/L, 昭和 38 年度では年間平均 4.06 pci/L を示している。それでこの数字は天水中の ^{90}Sr 体内摂取量を考えるために、大きな factor になると思われる。日本人の総合的な日常食から摂取する ^{90}Sr の昭和 37, 昭和 38 年における定量結果を文献¹⁴⁾から求めると Table 3 のような数字が報告されている。この成績から都市成人は、大まかにいえば食品からの ^{90}Sr の体内摂取量は昭和 37, 昭和 38 年度にそれぞれ平均 1 人 1 日 9.85, 13.28 pci であったといえる。

Table 3. Daily intake of ^{90}Sr from total diet for urban adult (pci/day/person)

year & sampling place	1962			1963		
	2	6~7	10~12	2	6~8	10~12
Hokkaidō		8.0	8.6	11.7	13.8	
Aomori						20.1
Miyagi		3.6	8.0		10.8	10.0
Akita		20.2	19.5	15.7	42.6	32.6
Ibaragi					7.4	6.8
Saitama	4.3				6.9	13.2
Tokyo		5.6	6.1	4.1		
Kanagawa					10.9	22.2
Niigata	8.5					
Ishikawa		13.5	17.5		6.3	16.2
Fukui					6.3	14.7
Shizuoka					8.7	12.1
Aichi		5.5	7.0		9.8	10.2
Kyoto					19.8	13.1
Ōsaka		4.0	8.0			
Hyogo					6.8	8.3
Wakayama					4.4	8.4
Tottori		16.2	19.1		23.1	38.2
Okayama					9.4	10.5
Hiroshima					12.3	10.6
Kōchi				7.8	14.5	12.5
Fukuoka		5.4	8.4			
Nagasaki					9.4	3.7
Kagoshima					9.2	22.5
Annual mean value		9.85			13.28	

ここで天水飲用者が都市に住む人とはほぼ同じような食事を毎日とっており、都市水道水の ^{90}Sr 含量がきわめて微量であり、また飲料用として用いる天水の量を 1 日 2.2L とすると、両年度の天水飲用者の 1 人 1 日当りの ^{90}Sr 体内摂取量は、大まかにいえば、それぞれ $(9.85 \pm 7.0) \text{ pci}$, $(13.28 \pm 8.93) \text{ pci}$ であったと考えられる。すなわち天水飲用者は、一般の都市に住む人達より、昭和 37 年度、昭和 38 年度にそれぞれ 70% 程度多く ^{90}Sr を摂取していることになる。

む す び

昭和 37 年 4 月 (1962.4) から昭和 39 年 3 月 (1964.3) まで各地燈台天水中の ^{90}Sr および ^{137}Cs を分析した。北海道では本邦中部、南部に比べて汚染の度合は少なかった。飲料用として用いるろ過天水の ^{90}Sr の年間平均汚染濃度は昭和 37 年度では 3.18 pci/L 、昭和 38 年度では 4.06 pci/L を示し、 ^{137}Cs については昭和 37 年度では 0.79 、昭和 38 年度では 0.76 pci/L を示した。この値から ^{90}Sr の体内摂取についてみると、燈台天水利用者は都市に住む成人に比べて 70% 程度多くを摂取していることが推察された。

この調査を行なうため天水を送付された各燈台の方々に感謝する。

文 献

- 1) 長沢佳熊, 城戸靖雅, 池淵秀治: 衛生試報, **81**, 62 (1963)
- 2) 長沢佳熊, 浦久保五郎, 城戸靖雅, 池淵秀治: 衛生試報, **82**, 107 (1964)
- 3) B. Kahn, D. K. Smith, C. P. Straub: *Anal. Chem.*, **29**, 1210 (1957)
- 4) N. Yamagata, T. Yamagata: *Bull. Chem. Soc. Japan*, **31**, 1063 (1958)
- 5) Y. Miyake, K. Saruhashi, Y. Katsuragi, T. Kanazawa: *J. Radiation Research Japan*, **2**, 25 (1961)
- 6) N. Yamagata, S. Matsuda: *Bull. Chem. Soc. Japan*, **32**, 497 (1959)
- 7) N. Yamagata: *Japan Analyst*, **5**, 37 (1956)
- 8) N. Yamagata, T. Yamagata: *Analyst*, **85**, 282 (1960)
- 9) T. H. Handley, C. L. Burros: *Anal. Chem.*, **31**, 332 (1959)
- 10) H. L. Caron, T. T. Sugihara: *Anal. Chem.*, **34**, 1082 (1962)
- 11) G. J. Mohanrao, T. R. Folson: *Analyst*, **88**, 106 (1963)
- 12) 長沢佳熊, 亀谷勝昭: 衛生試報, **81**, 77 (1963)
- 13) 分析化学研究所: 各種食品, 陸水, 雨水, ちり等の放射能調査, (昭和 39, 40 年度)
- 14) 科学技術庁原子力局放射能課: 放射能調査資料, 昭和 40, p. 10, 28, 36

Summary

Potable rain-water samples used by the residents of beacon light houses were collected once a month during the period from April, 1962 to March, 1963 and once every other month during the period from April, 1963 to March, 1964, and analysis of ^{90}Sr and ^{137}Cs were carried out (results, Fig. 3).

The annual mean value of the nuclides concentration in filtered water in 1962 and 1963 were 3.18 and 4.06 pci/L for ^{90}Sr , 0.79 and 0.76 pci/L for ^{137}Cs , respectively (Table 2. Fig. 3). In reference report, it was reported that the annual mean value of daily intake of ^{90}Sr from total diet for urban adult in 1962 and 1963 were 9.85 and $13.28 \text{ pci/day/person}$ (Table 3). So, the calculated daily intake of ^{90}Sr of the people who were using the filtered rain-water was supposed to be roughly 70% more than the urban adults.

(昭和 41 年 6 月 10 日受付)

メタノール中毒の実験的研究 (第3報)

ウサギ体内における放射性メタノール
($^{14}\text{CH}_3\text{OH}$) の分布と変化

長沢佳熊・竹中祐典・高崎中夫*

Experimental Study of Methanol Poisoning. III
Distribution and Conversion of ^{14}C -Methanol in Rabbit.

Kakuma NAGASAWA, Yusuke TAKENAKA and Atsuo TAKASAKI

著者らは前報¹⁾においてメタノールのウサギでの経皮吸収について報告した。今回は、放射性メタノール($^{14}\text{CH}_3\text{OH}$)をウサギに静脈注射した場合の体内変化について報告する。

実験方法および結果

(1) 実験動物: 体重約 3 kg の健康な雄または雌ウ

サギ。

(2) 方法: i) 組織中の ^{14}C の計測: 20% ^{14}C メタノール/生理食塩液 (約 560,000 cpm) 0.3 ml/kg をウサギ耳静脈に注射し, 30 分, 1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 17, 20 時間後に心臓から採血後, 直ちに静脈内空気注入によって殺し, 肝, 腎, 心臓, 筋肉, 脳を取り出し, 肝, 腎については生理食塩液を灌流して血液をでき

Table 1. Radioactivity found in tissues of rabbits at various intervals after intravenous injection of ^{14}C -methanol

Each value is the mean of the values obtained from two rabbits.

0.3 ml (168,000 cpm) of 20% ^{14}C methanol in saline was injected per kg body weight.

tissues	30 min after inj.		1 hr after inj.		2 hr after inj.		3 hr after inj.		4 hr after inj.	
	cpm per g of tissue	%*	cpm per g of tissue	%*	cpm per g of tissue	%*	cpm per g of tissue	%*	cpm per g of tissue	%*
blood	131	—	130	—	103	—	29	—	0	—
liver	168	4.07	160	2.38	144	3.42	224	5.22	272	4.79
kidney	232	0.4	136	0.2	160	0.3	184	0.3	256	0.4
heart	96	0.22	168	0.26	104	0.22	128	0.27	136	0.25
muscle	120	—	120	—	80	—	136	—	144	—
brain	120	0.3	180	0.4	120	0.4	184	0.5	224	0.5

5 hr after inj.		6 hr after inj.		7 hr after inj.		17 hr after inj.		20 hr after inj.	
cpm per g of tissue	%*	cpm per g of tissue	%*	cpm per g of tissue	%*	cpm per g of tissue	%*	cpm per g of tissue	%*
0	—	—	—	—	—	—	—	—	—
368	6.9	328	5.44	320	5.8	128	2.4	112	2.17
344	0.5	150	0.2	312	0.5	152	0.2	80	0.1
104	0.2	96	0.16	72	0.13	56	0.11	40	0.08
128	—	88	—	80	—	16	11	24	—
160	0.4	112	0.3	160	0.4	40	0.1	40	0.1

* (cpm of total tissue)/(cpm of administered ^{14}C -methanol) $\times 100$

* 昭和薬科大学学生

るだけ除く。組織中の全 ^{14}C については、Tye ら²⁾の全組織中の ^{14}C の液体シンチレーションによる計数法により、また血液および臓器中の揮発性 ^{14}C については蒸留法¹⁾で得られる留液を Langham ら³⁾の方法により、Packard Tricarb 314 EX シンチレーションスペクトロメーターを用いて cpm を計測した。

ii) 肝臓のアセトン分画中の ^{14}C の計測: i) の条件で、注射の5時間後に肝臓を摘出し、その10gにアセトン約50mlを加えアセトン乾燥粉末を作り、アセトンを汙過して全量を100mlとした。このアセトンを減圧蒸留(25~32°, 250 mm Hg)して留液(a)と残留物(b)とに分けた。アセトン乾燥粉末1gをエーテル約100mlでソックスレー抽出器を用いて20回還流し、エーテルを減圧濃縮して残留物(c)を得、抽出残留物はデシケーター(五酸化リン)で減圧乾燥して粉末(d)とした。(a)および(b)はLangham ら³⁾の方法により、また(c)および(d)はTye ら²⁾の方法により前述の液体シンチレーション法でそのcpmを計測した。

(3) 実験結果 Table 1参照. 投与した放射能(cpm)

に対する組織全量当りの放射能のパーセントは、注射後30分, 1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 17, 20時間の結果は、常に肝に最も高く、腎、脳および心臓ではそれぞれ肝の平均 $7.36 \pm 0.64\%$, $8.29 \pm 1.24\%$ および $4.62 \pm 0.9\%$ であった。注射後30分から20時間までの、各時間における組織単位量あたりのcpmの分布を見ると、30分後では腎、肝にやや高く、血液、心臓、筋肉、脳はほぼ等しい。1および2時間後では、各組織間の差が小さくなり、3および4時間後では血液が非常に低くなり、4時間後にはほとんど認められない。肝は最も高く、続いて腎および脳に高く、心臓および筋肉に低い。5, 6および7時間後では、肝、腎に特に高く、脳がこれにつぎ、心臓、筋肉は肝、腎の平均 $31.71 \pm 4.19\%$ となった。17時間後では肝、腎に高く、脳、心臓がこれにつぎ、筋肉はかなり低くなった。20時間後も同様であるが腎がやや減少した。

各組織単位量あたりのcpmの経時変化を図示するとFig. 1-1~1-6のようになる。すなわち、血液では投与後急速に減少し、4時間後には消失するのに対し、肝および腎では5時間後に最高値に達し、脳、心

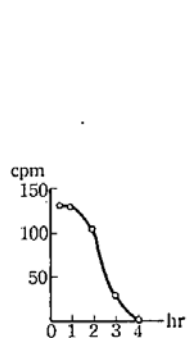


Fig. 1-1 blood

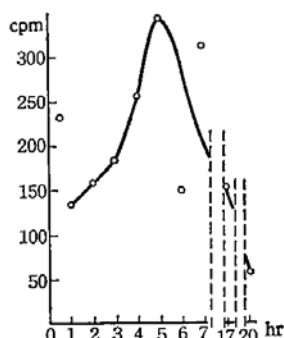


Fig. 1-3 kidney

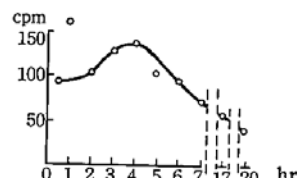


Fig. 1-5 heart

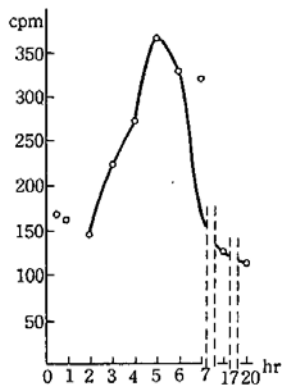


Fig. 1-2 liver

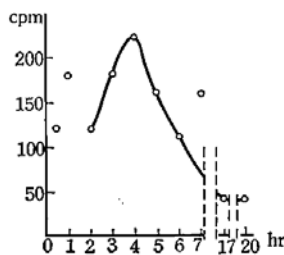


Fig. 1-4 brain

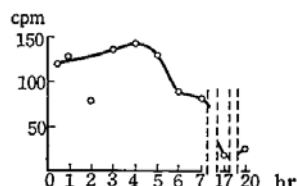


Fig. 1-6 muscle

Fig. 1. Radioactivity found in g of tissue of rabbits at various intervals after injection of ^{14}C -methanol

Curves obtained from data in the 1, 3, 5, 7, 9, 11, 13, 15, 17, 19th columns of Table 1. Each value is the mean from two rabbits.

0.3 ml (168,000 cpm) per kg body weight of 20% ^{14}C methanol in saline was injected.

臓および筋肉では4時間後に最高値に達している。

上にみられた関係が、蒸留以外の方法で分けた組織の分画にもみられるかを確かめるために、 ^{14}C メタノールを注射して5時間後に摘出した肝をアセトン乾燥粉末とし、そのアセトン部分を減圧蒸留して得られる留液と残留物、およびアセトン乾燥粉末についてそれぞれ ^{14}C の放射線を計測した (Table 3)。アセトン層には乾燥粉末よりやや多量の ^{14}C がみられるが、このアセトンを減圧蒸留して留液と残留物に分けると、留液中には肝 1g あたりの ^{14}C の約 7% がみられるに過ぎず、大部分は脂肪および乾燥粉末中に沈着しており、蒸留法で得られた関係を裏づけている。

なお、以上の実験で、肝、腎、心臓、脳、筋肉中の

^{14}C の計測効率は約 60% であった。

考 察

ウサギに ^{14}C メタノールを静脈注射するとき、注射後 30 分から 20 時間にわたり、組織 g 当りの放射能については肝が最も高く、腎がこれにつぐのは、これらの器官でメタノールが代謝されるからであろう。これに次いで脳に高いのはメタノールの中樞作用と関連して興味深い。

時間の経過による組織 g 当りの cpm の最高値は、肝と腎では5時間、脳では4時間、心臓と筋肉では4時間にやや高くなりその後は急速に減少する。血液では投与直後から急速に減少し4時間後には0となる。

Table 2. Radioactivity found in g of tissue (A) and in distillate from g of tissue (B), and its ratio (B/A) at various intervals after intravenous injection of ^{14}C -methanol

Each value is the mean of the values obtained from two rabbits.

0.3 ml (168,000 cpm) of 20% ^{14}C -methanol in saline was injected per kg body weight.

tissues	30 min after injection			1 hr after injection			2 hr after injection			3 hr after injection		
	cpm per g of tissue (A)	cpm of distillate from g of tissue (B)	(B)/(A)	cpm per g of tissue (A)	cpm of distillate from g of tissue (B)	(B)/(A)	cpm per g of tissue (A)	cpm of distillate from g of tissue (B)	(B)/(A)	cpm per g of tissue (A)	cpm of distillate from g of tissue (B)	(B)/(A)
liver	168	8	0.05	160	10	0.06	144	11	0.08	224	14	0.06
kidney	232	28	0.12	136	10	0.07	160	11	0.07	184	10	0.05
muscle	120	14	0.12	128	13	0.1	80	17	0.2	136	17	0.13

4 hr after injection			5 hr after injection			6 hr after injection			7 hr after injection		
cpm per g of tissue (A)	cpm of distillate from g of tissue (B)	(B)/(A)	cpm per g of tissue (A)	cpm of distillate from g of tissue (B)	(B)/(A)	cpm per g of tissue (A)	cpm of distillate from g of tissue (B)	(B)/(A)	cpm per g of tissue (A)	cpm of distillate from g of tissue (B)	(B)/(A)
272	3	0.01	368	3	0.008	328	3	0.009	320	2	0.06
256	16	0.06	344	10	0.03	150	7	0.05	312	0	0
144	21	0.15	128	20	0.16	88	20	0.25	80	17	0.2

17 hr after injection			20 hr after injection		
cpm per g of tissue (A)	cpm of distillate from g of tissue (B)	(B)/(A)	cpm per g of tissue (A)	cpm of distillate from g of tissue (B)	(B)/(A)
128	0	0	112	0	0
152	0	0	80	0	0
16	0	0	24	0	0

Table 3. Radioactivity found in each fraction of rabbit liver, isolated 5 hours after intravenous injection of 20% ^{14}C -methanol in saline and treated with acetone and ether

Each value is the mean of the values obtained from two rabbits.

0.3 ml (168,000 cpm) of 20% ^{14}C -methanol in saline was injected per kg body weight.

	cpm per g of liver	cpm of acetone soluble fraction from 1 g of liver			cpm of acetone insoluble, ether soluble fraction from 1 g of liver (%)*	cpm of acetone (ether) insoluble fraction from 1 g of liver (%)*	recovery (%)
		total (%)*	distillate** (%)*	residue*** (%)*			
1	224	120 (54)	10 (4)	48 (21)	14 (6)	76 (34)	94
					(40)		
2	224	110 (49)	20 (9)	50 (22)	17.5 (8)	60 (27)	84
					(35)		
3	168	60 (36)	10 (6)	30 (18)	16 (10)	50 (30)	76
					(40)		
4	100	—	10 (10)	40 (40)	(48)		98
mean		(46.33 ± 5.36)	(7.25 ± 1.38)	(25.25 ± 4.99)	(40.75 ± 3.17)		

* (cpm per g of liver found in each fraction)/(cpm per g of liver) × 100

** cpm per g of liver found in the distillate from acetone extract by distillation

*** cpm per g of liver found in the residue from acetone extract by distillation

肝、腎および筋肉についてメタノールの蒸留法を用いて得た留液中の ^{14}C と蒸留しない組織中の ^{14}C の比の経時変化をみると、組織中に揮発性の形で存在するメタノールは投与直後から非常に少なく、大部分は不揮発性物質に変化すると考えられる。肝および腎の場合は、留液中の ^{14}C はおおむね時間の経過とともに減少し、17~20 時間後には完全に消失している。筋肉の場合は若干の変動があるが、17~20 時間後にはやはり留液中に ^{14}C はみられなくなる。この関係は、注射後5時間で摘出した肝をアセトン乾燥粉末とし、そのアセトン層および乾燥粉末の ^{14}C を計測した場合にもほぼ同じで、アセトン層をさらに減圧蒸留して得た留液中の ^{14}C は、肝 1g あたりの ^{14}C の平均 7.25 ± 1.38% で、大部分は脂肪およびたんぱく質部分に沈着している。

Casier⁴⁾ は ^{14}C -エタノールのネズミ体内変化を調べ、組織中の揮発性 ^{14}C の値の経時変化を明らかにしたが、われわれの ^{14}C メタノールの場合と非常に異なっている。主要組織中の揮発性 ^{14}C の全 ^{14}C に対す

る比は、メタノールの場合、注射後1時間ですでに平均 0.077 であるのに対し、エタノールの場合は 0.87 すなわちメタノールの約 11 倍である。7時間後でもメタノールの平均 0.069 に対し、エタノールは 0.32, すなわち、メタノールの約 4.6 倍となっている。換言すれば、メタノールは、エタノールに比べて極めて速く組織に固定されと考えられるが、メタノールのこの異常な組織に対する沈着性が、メタノールの遅延性中毒を説明する一資料になると思う。

文 献

- 1) 長沢佳熊, 竹中祐典: 衛生試報, **82**, 110 (1964)
- 2) R. Tye, J. D. Engel: *Anal. Chem.*, **37**, 1255 (1965)
- 3) W. J. Langham, W. J. Eversole, F. N. Hayes, T. J. Trujillo: *J. Lab. Clin. Med.*, **47**, 819 (1956)
- 4) H. Casier: *Arch. int. Pharmacodyn.*, **100**, 175 (1954)

Summary

The distribution of radioactivity in liver, kidney, heart, muscle, brain and blood of rabbits was investigated after intravenous injection of ^{14}C -methanol.

(1) The radioactivity of ^{14}C disappeared rapidly from blood and the injected methanol seemed to be distributed in organs and tissues shortly after the injection. The highest percentage of radioactivity of total tissue of that in administered ^{14}C -methanol at various intervals from 30 minutes to 20 hours after injection was found in the liver (Table. 1). The radioactivities per gram or ml of these tissues were not so greatly different until 2 hours, however, from 3 to 20 hours after injection, the high radioactivity was found in liver and kidney, moderate, in brain and low, in heart and muscle.

(2) The ratios of radioactivity per gram of tissues of ^{14}C in the volatile fraction obtained by the distillation method¹⁾ and that in the total fresh tissues were as follows:

	liver	kidney	muscle
1 hour after injection	0.06	0.07	0.1
5 hours after injection	0.008	0.03	0.16
7 hours after injection	0.006	0	0.2
17 hours after injection	0	0	0

(3) The rabbit liver removed 5 hours after injection was extracted with acetone and the acetone was distilled off. The radioactivities of three fractions so obtained were as follows:

acetone soluble and volatile fraction	$7.25 \pm 1.38\%$
acetone soluble residue	$25.25 \pm 4.95\%$
acetone insoluble and non-volatile fraction	$40.95 \pm 3.17\%$

(4) From the two experiments above, methanol seemed to convert to non-volatile substance in the body more shortly after the injection comparing to ethanol in Casier's report⁴⁾, and such rather rapid conversion of methanol may give reason for the retarded poisoning of methanol in our future research.

(昭和41年6月10日受付)

発熱性物質試験法に関する研究 (第3報)

電気的ウサギ体温測定法の発熱性
物質試験への応用 (2)

田中 悟・桑村 司・上田瑞穂
川島邦夫・中浦慎介・大森義仁

Studies on the Pyrogen Test. III
Application of Electrical Thermometer
to the Pyrogen Test (2)

Satoru TANAKA, Tsukasa KUWAMURA, Mizuho UEDA,
Kunio KAWASHIMA, Shinsuke NAKAURA and Yoshihito OMORI

著者らは、第1報¹⁾で、横井ら²⁾が発表した新しいウサギ体温測定法が発熱性物質試験に応用可能であることを明らかにした。

今回は更に、この測定法を確立するために、固定回数、感温部の大きさ、感温部の直腸内挿入深度などの基礎的測定条件について検討したので報告する。

実験方法

実験動物

$25 \pm 1^\circ$ の恒温室で飼育した外見上健康な体重 $1.6 \sim 2.7$ kg の白色雄性ウサギを使用した。なお実験中の給餌、給水は廃した。

体温測定法

国立衛生試験所標準品（日本薬局方標準品）酢酸コルチゾン標準品、
ヒドロコルチゾン標準品およびシアノコバラミン標準品について

長 沢 佳 熊・越村榮之助・川 村 次 良
木 島 敬 二・玉野美矢子

*Japanese Pharmacopoeia Standard "Cortisone Acetate Standard",
"Hydrocortisone Standard" and "Cyanocobalamin Standard"*

Kakuma NAGASAWA, Einosuke KOSHIMURA, Jirō Kawamura,
Keiji KIJIMA and Miyako TAMANO

日本薬局方酢酸コルチゾン、同錠、水性懸濁注射液、
日本薬局方ヒドロコルチゾン、同錠の確認試験および
日本薬局方シアノコバラミン、同注射液の定量法に用
いられる標準品として、国立衛生試験所標準品酢酸コ
ルチゾン標準品、ヒドロコルチゾン標準品およびシア
ノコバラミン標準品を製造したので、それらの試験成
績を報告する。

実 験 装 置

日局 VII 融点測定装置、応用電気自動旋光計 MP-1
T 型、日立分光光度計 EPU-2 A 型、日立自記分光光
度計 EPS-2 型、日本分光赤外分光光度計 DS-301 型

酢酸コルチゾン標準品

外 観 白色結晶性の粉末

融 点 約 243° (分解) (未乾燥)

240~243° (分解) (減圧、五酸化リン、3 時間乾
燥後)

約 237° (分解) (105°, 3 時間乾燥後)

241~244° (105°, 3 時間乾燥後デシケーターに
入れないで 1 週間放置)

旋光度 $[\alpha]_{589}^{20}$: +213° (乾燥後, 0.1 g, ジオキサ
ン, 10 mL, 100 mm)

吸光度 $E_{1\text{cm}}^{1\%}$ (239 m μ): 394 (乾燥後, 0.01 g, メ
タノール, 1000 mL, 10 mm)

なお, U. S. P. 標準品の測定値は 394 であった。

乾燥減量 0.24% (0.4 g 105°, 3 時間)

ろ紙クロマトグラフ

U. S. P. XVII 酢酸コルチゾンの Related for-
eign steroids の項によって U. S. P. XVII For-
eign steroids test を行なうとき、これに適合す
る。

赤外吸収スペクトル Fig. 1. (KBr 錠剤法)

ヒドロコルチゾン標準品

外 観 白色結晶性の粉末

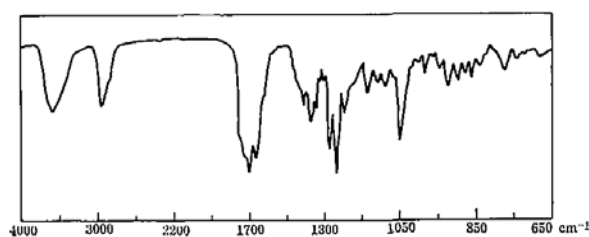


Fig. 1. Japanese Pharmacopoeia (J. P.)
Standard of Cortisone Acetate

融 点 213~220° (分解) (未乾燥)

212~215° (分解) (減圧、五酸化リン、3 時間乾
燥後)

192~194° (分解) (105°, 3 時間乾燥後)

218~220° (分解) (105°, 3 時間乾燥後デシケー
ターに入れなくて 1 週間放置)

旋光度 $[\alpha]_{589}^{20}$: +154° (乾燥後, 0.1 g, ジオキサ
ン, 10 mL, 100 mm)

吸光度 $E_{1\text{cm}}^{1\%}$ (241 m μ): 450 (乾燥後, 0.01 g, メ
タノール, 1000 mL, 10 mm)

なお, U. S. P. 標準品の測定値は 450 であった。

乾燥減量 0.13% (0.6 g, 105°, 3 時間)

ろ紙クロマトグラフ

U. S. P. XVII ヒドロコルチゾンの Related
foreign steroids の項によって U. S. P. XVII
Foreign steroids test を行なうとき、これに適
合する。

赤外吸収スペクトル Fig. 2. (KBr 錠剤法)

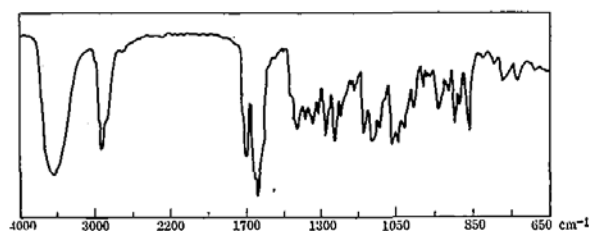


Fig. 2. J. P. Standard of Hydrocortisone

シアノコバラミン標準品

外 観 暗赤色結晶性の粉末
ブソイドシアノコバラミン

日局 VII シアノコバラミンの純度試験に適合する。

吸光度 $E_{1\text{cm}}^{1\%}$ (361 m μ): 208 (乾燥後, 0.02 g, 水, 100 ml, 10 mm)

なお, 国際標準品および U. S. P. 標準品の測定値は, とともに 206 であった。

E_{361}/E_{278} : 1.86 (同上)

E_{361}/E_{550} : 3.36 (同上)

乾燥減量 7.1% (0.02 g, 減圧, 五酸化リン, 4時

間)

赤外吸収スペクトル Fig. 3. (KBr 錠剤法)

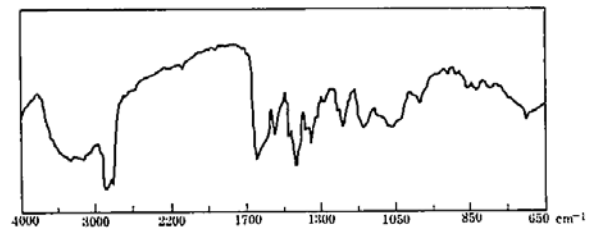


Fig. 3. J. P. Standard of Cyanocobalamin

(昭和 41 年 6 月 10 日受付)

尿中麻薬の検出について (第5報)

大野 昌子・朝比奈晴世

Detection of Narcotic Drugs in Biological Fluid. V.

Masako ŌNO and Haruyo ASAHINA

中毒者尿から麻薬を抽出し, 確認するため, ヘロイン中毒者およびあへん吸煙者の尿についてこれまでに確立した方法を用い, とくに検出, 確認法に重点をおいて追試し, 検討を加えた。

実験材料, 方法, および結果

I. 尿の前処理 中毒者尿は pH を測定したのち, 塩酸性で加水分解する¹⁾。

われわれが取扱ったヘロイン中毒者の1回の尿量は20~300 ml, pH は 5.3~9.2 の広範囲にわたり, またあへん中毒者尿では尿量 25~132 ml, pH 5.3~7.0 で, 尿量, pH いずれについても中毒者に特異性が認められなかった。新たに得られた試料の尿量, pH を第1表に示す。

第 1 表

試 料	尿 量	pH
A	101.5 ml	6.7
B	20.0	5.3
C	132.0	5.3
一般人尿	92~310	4.7~8.0.

A, B: ヘロイン中毒者尿, タバコ喫煙者

C: あへん吸煙者尿, タバコ喫煙者

前記試料 A, C 各 50 ml ずつを塩酸で加水分解し(それぞれ A-1, C-1 とする), また別に A, C 各 50

ml ずつ, B は全量を塩酸性とし(それぞれ A-2, B-2, C-2 とする), それぞれつぎの操作に移る。

II. あへんの副アルカロイドおよび妨害物質の分離と検出

(1) 試料 C-1, C-2 をクロロホルムと振り混ぜ, クロロホルム抽出物について薄層クロマトグラフィーを行なったが(クロマトグラフィーの条件は(2)の場合と同じ), テバイン, パパベリン, ノスカピンは検出されなかった。すなわちこれらあへんの副アルカロイド, とくにあへん中ではコデインよりも含量の高いノスカピンが認められず, 後述のようにコデインが検出された。

スポットの確認には, 塩化白金ヨウ化カリウム溶液を噴霧する方法のほか, この溶液を噴霧後さらにアンモニア蒸気にさらしたのち, けい光の有無を検する方法, あるいは展開後の薄層をヨウ素蒸気にさらし, けい光の有無を検する方法(後述)を用いた。ノスカピンは, このけい光反応に鋭敏である。

(2) A-1, A-2, B-2 および(1)のクロロホルム抽出操作後の C-1, C-2 を水酸化ナトリウムのアルカリ性とし, クロロホルムを用いて抽出する。

抽出物は塩化白金ヨウ化カリウム溶液によるスポットテストでいずれも呈色し, 薄層クロマトグラフィーを行なった結果は第2表のように, いずれからもニコ