

ISSN 1349-3604

石川県保健環境センター研究報告書

第 4 2 号

(平成 16 年度)

RESEARCH REPORT FROM ISHIKAWA PREFECTURAL INSTITUTE
OF PUBLIC HEALTH AND ENVIRONMENTAL SCIENCE



2 0 0 5

石川県保健環境センター

目 次

(報 文)

ISO14001に対応した電子物品発注管理システムの構築

— 石川県保健環境センターでの事例 — 横山 暢 (1—6)

糞便からの腸管出血性大腸菌 O157 の増菌培養法に関する検討 倉本 早苗ほか ... (7—12)

ノロウイルス食中毒における検出ウイルスの相同性検索について 大矢 英紀ほか ... (13—17)

石川県内で多発したノロウイルスによる集団胃腸炎の状況とウイルス学的検討

— 平成16年度の集団胃腸炎発生事例 — 大矢 英紀ほか ... (18—23)

食品中の組換え遺伝子検知法の検討 (第1報)

— 豆腐からの GMO 検出事例 — 小野 陽介ほか ... (24—30)

食品に混入した毒物等に係る迅速分析法

— 血糖降下剤について — 宮川 茂樹ほか ... (31—36)

ヨモギへの放射線核種の移行に関する研究 (第2報)

— 植物の生育と放射性核種の移行との関係 — 中山 哲彦ほか ... (37—45)

フィルターパック法による乾性沈着調査について (その3) 藤澤 明子ほか ... (46—58)

硫酸ピッチの pH 測定方法の検討 澤田 道和ほか ... (59—63)

(資 料)

毒劇物等管理システムの構築について 初瀬 裕ほか ... (64—68)

石川県H市における生活習慣に関する住民意識調査 瀬戸 正行ほか ... (69—75)

飲料水検査における大腸菌検出用特定酵素基質培地の比較検討 児玉 洋江ほか ... (76—79)

石川県におけるインフルエンザ流行状況

— 2004/2005シーズンについて — 黒崎 直子ほか ... (80—82)

平成16年度水道水等水質検査精度管理調査結果について

— 石川県年次報告書 — 橋本 潤子ほか ... (83—88)

石川県におけるフォールアウト調査 (平成16年度) 吉本 高志ほか ... (89—91)

石川県内における土壌中のダイオキシン類調査結果について 新川 晶子ほか ... (92—96)

〔報 文〕

ISO14001に対応した電子物品発注管理システムの構築

—— 石川県保健環境センターでの事例 ——

石川県保健環境センター企画情報部 横 山 暢

キーワード：ISO14001, 電子発注システム, 電子物品管理システム, 電子伝票

1 はじめに

当センターでは、平成11年度にISO14001の認証を取得し、環境マネジメントシステム（以下、「EMS」とする。）の構築・運用を開始して5年が経過した。

これまでに、EMSを推進する過程でEMSに関する各種の規程類を電子化するとともに、「職員室の適正な温度管理」、「コピー用紙使用枚数記録」及び「ゴミ搬出記録」等の日常点検に関する記録類の電子化作業を進めてきており、これまでに随時報告してきた¹⁾²⁾。

今回は、これまで電子化が未整備であった各種物品の購入（修理含む）に係る発注業務及びこれに係る環境マネジメント事務局（以下、「EMS事務局」とする。）の集計業務の簡略化と迅速化を図るため、物品発注管理システム（以下、「本システム」とする。）を構築したので、その作成手順や概要について報告する。

2 システムの構成

表1のとおり既存のハードウェア、ソフトウェアを利用することにした。

既に構築された日常点検システム等と同様の構成とし、

表1 ハードウェア機器及びソフトウェア構成

区 分	種 類	備 考
ハードウェア	富士通製サーバーマシン DUAL CPU(24h稼働)	既存
ソフトウェア	Windows NT4.0 Server	既存
開発言語	IIIS4.0 (ASP)	NT4.0付属

共通基盤上での技術共有の図り、システムの維持に係る保守管理作業等を予め軽減することとした。

表2 石川県保健環境センターでのISO分類表(インプット)

大 分 類	小 分 類
事務用品 (O)	コピー用紙 (cp) 連続用紙 (pp) 特殊用紙 (sp) 事務用品 (om) OA用品 (oa) 事務用家具 (fm)
薬品・ガス (C)	毒劇物 (po) 危険物 (da) 難燃性溶剤 (if) ダイオキシン類標準品 (do) 化審法特定化学物質 (sc) 酸 (ac) アルカリ (al) 普通薬品 (gc) 培地・血清 (me) 洗剤・洗浄剤 (dc) 消毒・消臭剤 (di) 可燃性高圧ガス (fg) 不活性高圧ガス (ig) 液化ガス (lg) 密封放射性物質 (sr) 非密封放射性物質 (is)
実験器材 (A)	ガラス製品 (gl) 金属製品 (mt) プラスチック製品 (pl) 紙、木、繊維製品 (pa) 磁製品 (po) 分析カラム (co) ろ紙・試験紙・カートリッジ (fl) 検査キット・検知管 (kl) イオン交換樹脂再生 (ex)
試料 (S)	試料 (sp) 実験動物 (an) えさ (fo)

Development of Electronic Ordering and Inventory System adjusted to ISO14001 activities.

- A case study of the Institute - by YOKOYAMA Mitsuru (Information Science

Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : ISO14001, E-ordering system, E-inventory system, E-document

大分類	小分類
図書・印刷 (B)	図書 (bo) 学術雑誌 (jo) 予稿集 (pd) 新聞 (np) 印刷 (pr) フィルム現像 (dv) 写真焼き付け・複写 (ph) 追録 (ad) ビデオ (vd) パソコンソフト (so) 電子化データ (ed)
光熱水 (E)	電力 (el) 水道 (wt) LPG (lp) ガソリン (pt) 灯油 (ko) 軽油 (lo)
その他 (M)	修理・検査 (md) 賃借 (re) 送料 (sa)

3 問題点の洗い出し

EMSにおいては、毎年環境影響評価を実施し、3月に経営者（センター所長）が環境方針等の見直しを行うこととなっている。

その際に必要となる著しい環境側面の洗い出しには、EMS事務局が、総務部門の帳簿を利用して、表2中の購入物品毎に大分類・小分類（以下、「ISO分類」とする。）へ分類し、分類毎に点数・重量等の集計を行っており、分類の完了までに、のべ3週間程度を要した。

さらに、従来行っていた用紙での発注伝票様式（以下、「現行システム」とする。）では、グリーン購入物品該当の有無及びISO分類を記載することになっているが、システム全体としては、必ずしもこれらの情報が有効に活用されていなかった。また、毎月の執行予算額の状態を、月単位・部単位・小事業名単位に集計することは従来のシステムにおいて困難であった。

4 システムの設計

現行システムで利用していたISO分類を元に、電子化処理により、リアルタイムで金額等の発注実績を集計できるように本システムのメニューを設計した。

- (1) 物品入力画面
- (2) 物品承認画面
- (3) 物品発注画面
- (4) ISO分類・グリーン購入の入力
- (5) 検索画面
- (6) 小事業別集計画面

(7) 発注履歴表示画面

（部・グループ別印刷画面を含む）

(8) 管理者画面

ア データ削除

イ データ変更

ウ 強制承認

エ 集計

（ア）小事業別集計

（イ）グループ別集計

（ウ）ISO分類別集計

オ 管理者からの連絡伝言事項作成

カ その他の管理者画面

(9) EXCELシートへのデータのインポート

ピボット集計及び抽出

ア 小事業別集計

図1 物品入力画面

図2 物品承認画面

現在の集計期間【16年4月】

品名	数量	金額	単位	備考
1	1000	10000	個	10000
2	2000	20000	個	20000
3	3000	30000	個	30000
4	4000	40000	個	40000
5	5000	50000	個	50000
6	6000	60000	個	60000
7	7000	70000	個	70000
8	8000	80000	個	80000
9	9000	90000	個	90000
10	10000	100000	個	100000

図3 物品発注画面(サンプル画面)

- イ ISO 分類別集計
- ウ グループ別集計
- エ 月別発注数及び金額の集計
- オ その他(クロス集計, EXCEL フィルタによる物品の抽出, 発注物品の検索)

これらの画面の主な例として、図1に物品入力画面(1)を、図2には物品承認申請画面(2)を、図3に、物品発注画面(3)をそれぞれ示す。

一般職員と管理者(総務部門及びシステム開発部門)の各画面を設置して、一般職員が物品の発注情報を安易に変更出来ないようにした。

また、システム全体での発注者が作成した電子伝票の一連の流れを示す電子伝票のデータフロー図を、図4に示す。

(9)については、ASP 言語を介したサーバーからクライアントパソコンの EXCEL シートへのデータ中継転送システム(以下、「中継システム」とする。)となっており、EXCEL シートを開いた時点で自動的にデータが更新され、最新の発注状況からピボットテーブル集計やフィルタ機能又は集計検索が出来るようになっている。

5 プログラム開発

試験運用時には、物品の入力、承認、発注の3つの基本的なプログラム構成とし、この基本プログラムを補完するために、総務部門及び所内意見を踏まえて、プログラムを追加していった。

最初に作成した RDBMS (リレーショナルデータベースシステム) は、従来、MSDOS (マイクロソフト社製) 上の version 3 (管理工学社製) で管理していた総務部門の旧集計システムとの互換性がとれるように WINDOWS NT (マイクロソフト社製) 上の ACCESS (マイクロソフト社製、以下、「DB」とする。)において作成し、プログラム開発後に必要なデータエリアを拡充した。

互換性は、DB からエクスポートして、テキスト

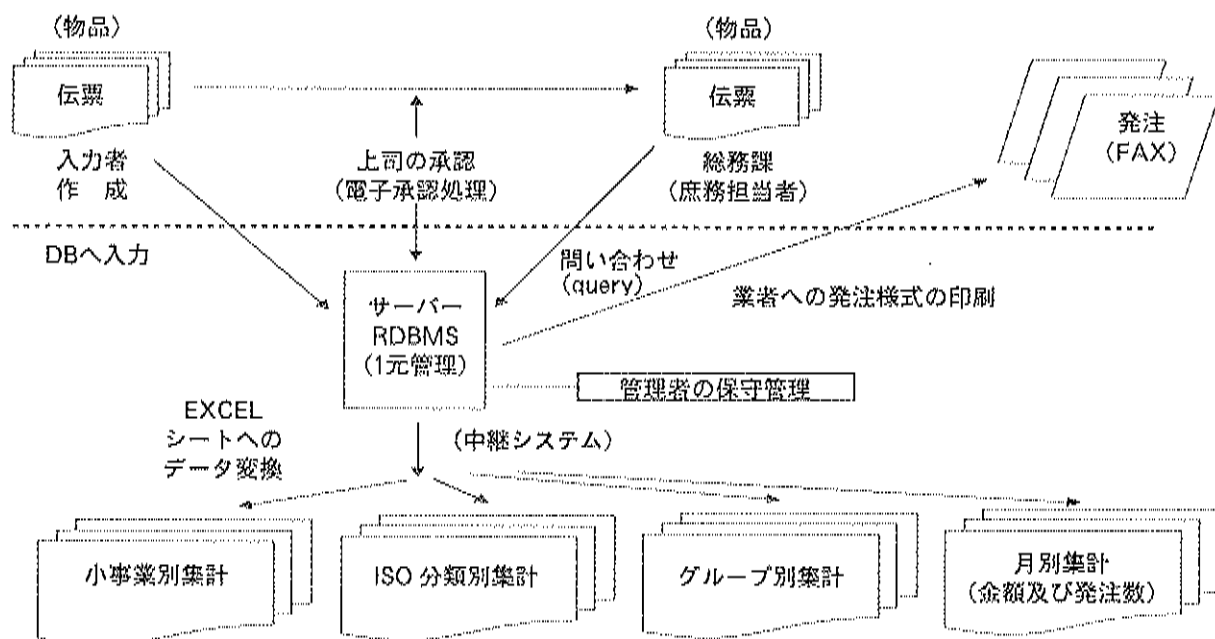


図4 電子伝票のデータフロー図

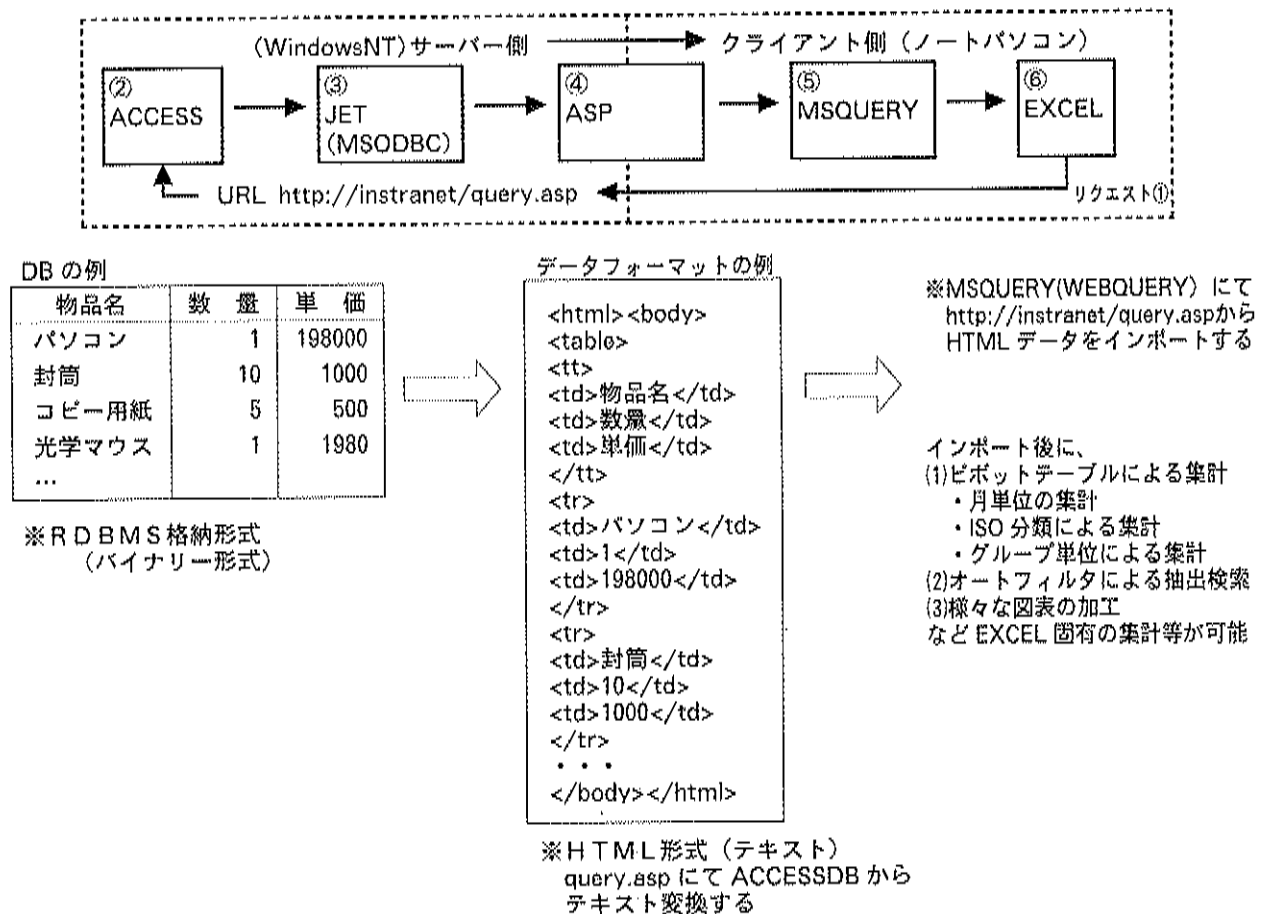


図 5 中継システムの動作フロー

CSV 形式への変換後で上位互換とした。(桐 version 3 にてテキスト CSV 形式を読むことは可能となっている。)

最初に開発した数本のプログラムにおいて本システムに必要な最大限 DB フィールド名を予め想定し、後に開発するプログラムでは、DB フィールド名等の追加を極力行わないようにした。

また、DB フィールド名を DB へ追加することは、プログラム全体にプログラム修正の影響範囲が及ぶため、設定後に必要な箇所について、個別プログラムにおいて出来る限り迂回処理を行った。

4 (1)～(3)の部分から開発を始め、職員等の意見を反映させて、4 (4)以降を順次開発した。

所内 LAN 上に、専用の会議室 (イントラネット会議室、iOfficeV3 ネオジャパン社製) を設置して、プログラムの不具合の報告や改善点を掲載していった。また、会議室では、職員の意見を受付け、逐次改善していった。

4 (6)の管理者画面は、総務部門との打ち合わせを通じ、追加していった。

このような基本的なプログラム (コア要素) を最初に開発し、問題点を洗い出した後に、必要なプログラムを

逐次追加する手法は、コンピュータプログラミングの世界では、「プロトタイププログラミング」と呼ばれる手法として普及している。

また、EXCEL への中継システムは、ASP 言語側で、DB の発注データを加工し、TABLE タグを用いた HTML 表形式に変換して、問い合わせ処理 (クエリー: MSQUERY/WEBQUERY) へと受け渡すよう、システムに実装した。得られたテーブルを EXCEL にてインポートし、EXCEL シートへ変換することとした。(図 5)

6 システムの運用

最初に、総務部門において試験運用 (平成 15 年 6 月から 10 月まで) し、システムへの理解を得た。次に、平成 15 年 11 月から所内での試行後、平成 16 年 4 月から正式に運用を開始した。

システムに必要なプログラムは、試験運用から逐次作成し、全体のシステムを補完するように、職員からの意見を積極的に取り入れ、運用と共に並行的にプログラム開発を行った。

システムへの要望・改善点数は、所内 LAN 以外にも、電子メール及び情報化推進員からの連絡を含めて100箇所以上になり、ほぼ要望どおりシステムに反映させた。

7 システム運用時の長所

従来、3週間かかった著しい環境側面集計（環境影響評価を行うためのインプット洗い出しの一部）が、3日程度で完了できるようになった。

毎月の予算執行額の概算が、一覧表と図とで示されるようになった。また、EXCELシートの高度な集計機能を用いて、予算執行額の多角的な分析が可能となった。

電子伝票記載時に逐次、ISO分類を入力しておけば、短期間に集計作業を行える。

このため ISO 分類単位での集計も可能となり、各項目での合計金額・発注数から、月別の必要な器具・試薬類の量等が把握できるようになった。

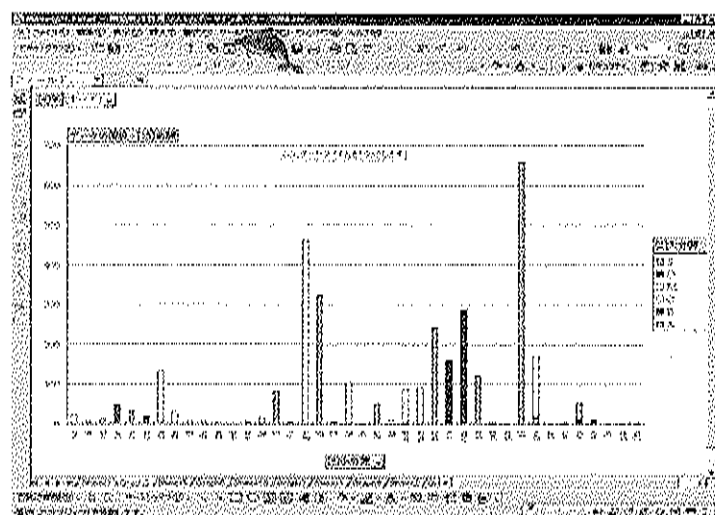


図6 ISO分類別集計画面(平成17年3月末)

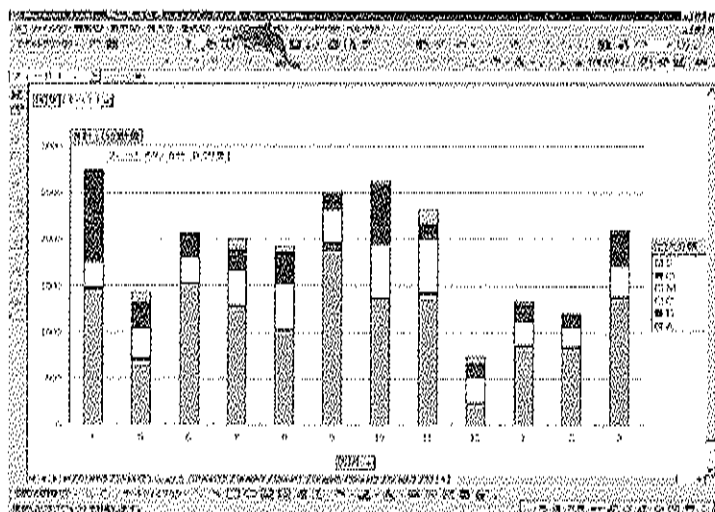


図7 月別の集計画面(平成17年3月末)

8 考 察

センターでは、県のモデル事業により始まった事務処理の電子化業務により、各種事務等の効率的運用が図られてきた。

本システムは、本来業務の利便性向上を意図し、改善のため、職員の多くの意見を取り入れ、また、EMSの事務作業を軽減するために作成され、大きな事務作業の効果をあげた。

プログラムは、職員の独自開発であったが、これまでの取組みにより、特に ASP 言語に関して技術的な蓄積があり、その技能を発揮することが出来た。その結果、プログラム開発は試行を含めて、約2年間で完了し、センター全体（特に総務部門）及び EMS 事務局の双方で納得の行く結果となった。

特に、4(9)による EXCEL シートへのインポート機能は、総務部門及び EMS 事務局として利便性の高いものとなった。

EXCEL シートの中継システムにより、リアルタイムで EXCEL のピボットテーブル集計、オートフィルタ機能等の集計機能の利用が可能とするとともに、WINDOWSNT に付属する ASP 言語による開発において、これらの高度集計に必要なプログラム開発作業（設計及びコーディング作業）を大幅に省き、全体の開発期間及び人的コストを削減出来た。

EXCEL シートの利用例として、図6に ISO 分類別集計を示す。

平成17年3月末時点での集計では、センターの発注数の順位は、ISO 分類に基づき、プラスチック製品、普通薬品、ガラス製品、OA用品、金属製品であった。

また、月変動を伴い物品数（＝発注個数）が発注されていたことが図7のとおり判明した。

これは、本庁等からの行政試験依頼のためにセンターで行った分析作業の時期と一致し、行政依頼試験の実施の進捗状況に併せて、担当者が検査に必要な物品の発注を行った（発注数及び額の増加）と考えている。

中継システムは、さらに、担当者の月末集計処理に係る時間を短縮することで、月別の発注管理及び整理が容易になった。

今後、年度更新の作業をプログラムに盛り込むことや、職員異動による DB 更新等の作業を容易に行えるためのサブプログラムを作成することを引き続き検討課題としている。

9 ま と め

職員独自で開発した本システムは、当センターのEMSの作業を軽減するとともに、総務部門の集計作業量を大幅に低減し、高度化した。

一人一台のパソコン（以下、「端末」とする。）から全ての操作が可能なことから、紙の伝票での各種短所を克服することが出来た。

発注情報はいつでも端末から閲覧できるので、各部及び総務部門とで、従来の紙の伝票のように、データの複数管理を行うことがなくなり、情報の一元管理を実現した。

当センターの情報化推進のため、EMSの記録類を電子化すること及び各種業務を簡便に処理するシステムなどを今後の課題とし、本システムの継続的改善を含め、EMSシステム全体の発展に寄与することとしている。

文 献

- 1) 竹野裕治，加藤充哉：石川保環研報，37,96－104 (2000)
- 2) 宮川茂樹：月刊 LASDEC，〈財〉地方自治情報センター，32，28－33 (2002)
- 3) 横山 暢，大西孝司，宮川茂樹：石川保環研報，41，19－22 (2004)

〔報 文〕

糞便からの腸管出血性大腸菌O157の増菌培養法に関する検討

石川県保健環境センター健康・食品安全科学部

倉本 早苗・児玉 洋江
戌亥 一朗・芹川 俊彦

キーワード：腸管出血性大腸菌，増菌培養，保菌者

1 はじめに

腸管出血性大腸菌 (Enterohemorrhagic *Escherichia coli*; EHEC) による感染症は、1999年4月から施行された「感染症の予防及び感染症の患者に対する医療に関する法律 (感染症法)」において3類感染症に位置づけられ、診断した医師は直ちに患者および健康保菌者を保健所に届け出る義務がある¹⁾。医師から届出があった場合、当該保健所は感染拡大防止対策として接触者等の健康診断 (検便検査等) を実施するが、健康保菌者の糞便中の EHEC 数は患者に比べ僅少であり、通常の検査方法では分離できない場合がある。実際に、2002年当県で発生した EHEC O157 (以下 O157) の集団感染事例²⁾において、当初の接触者検便で菌陰性であった人が、後日発病するという事例を経験した。特に O157 は少量の菌でも感染・発症させることから、感染症発生時に健康保菌者を見逃すことは感染拡大に繋がり、公衆衛生上非常に問題である。そこで、糞便中の常在菌を抑制し、かつ O157 を選択的に増菌させる有用な増菌培養法について検討を行ったので報告する。

2 材料と方法

2・1 検討増菌培地

検討に用いた培地は、大腸菌などを一般的に増菌させる汎用培地2種類、およびそれらに O157 に対する選択性が報告されている薬剤を添加した培地2種類、計4種類を使用した。以下に使用培地を示す。

- (1) Trypticase soy broth (TSB; 日水製薬)
- (2) TSB に CT (セフェキシム; 0.05 $\mu\text{g/mL}$, 亜テ

- ルル酸カリウム; 2.5 $\mu\text{g/mL}$) を添加した CT-TSB
- (3) Modified EC broth (mEC; 極東製薬)
- (4) mEC に NB (ノボピオン; 20 $\mu\text{g/mL}$) を添加した NB-mEC

2・2 供試菌株及び検討方法

- (1) 各増菌培地における O157 の発育

2002年に県内で発生した O157 による3件の集団発生事例から分離した3菌株 (A株; O157: H7, VT2 産生, B株; O157: H7, VT1+2 産生, C株; O157: H7, VT1+2 産生) を、それぞれ上記の4種類の増菌培地に一定量接種し、37°C および 42°C で 8, 12, 18, 24 時間培養した後に菌数を測定した。なお、菌数は標準寒天培地を用いた混釈平板培養法で測定した。

感受性測定用寒天培地に、対象薬剤を2倍段階希釈したものを混釈して固化する。



純培養 (2~3 代継代) した被検菌 (10^8) を、滅菌生理食塩水で 100 倍希釈 (10^6) したものを各薬剤濃度培地に塗布する。



37°C 18~20時間

接種菌の発育が完全に阻止された薬剤の最低濃度をもって MIC 値とする。

(菌の発育が5個以内の場合は、発育阻止とみなす)

図1 最少発育阻止濃度 (MIC) 測定法

Examination of Enrichment Cultures Method for Enterohemorrhagic *Escherichia coli* serovar O157 from feces. by KURAMOTO Sanae, KODAMA Hiroe, INUI Ichirou and SERIKAWA Toshihiko (Health and Food Safety Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words: Enterohemorrhagic *Escherichia coli*, Enrichment Cultures, Carrier

(2) CT および NB に対する感受性試験

当所の保存株, O157:39株 (上記3菌株を含む), O26:15株, O157, O26以外の EHEC:48株, EHEC 以外の *E.coli*:15株, *E.coli* 以外の腸内細菌:18株の計 135株について, 上記の増菌培地に選択剤として添加されている CT 及び NB に対する感受性試験を実施した。なお, 感受性試験の方法は, 寒天平板希釈法により MIC 値 (minimum inhibitory concentration; 最少発育阻止濃度) を測定することにより実施した (図1)。

(3) 各種増菌培地の増菌効果の検討

健康人の糞便約1gを50人分混合し, 等量の滅菌生理食塩水を加え混ぜたものを標準便とし, この標準便に上記(1)で使用した3株のO157を各々, $10^1 \sim 10^5$ /mL の濃度になるように添加したものを模擬便とした。

模擬便0.5mLを, 上記の4種類の増菌培地10mLにそれぞれ接種し, 37℃, 18時間培養後 CT-SMAC 培地 (O157検出用選択分離培地) に塗布し, 孤立集落を形成したO157の菌数を測定し, 各増菌培地の増菌効果を検討した。

(4) CT-TSB の増菌条件の詳細検討

(3)で検討した結果, 最も増菌効果を認めた CT-TSB について, 更に検討を加えた。即ち, CT-TSB について模擬便の接種量 (0.1mL, 0.5mL) および培養時間 (12, 15, 18, 21, 24時間) を変え, (3)と同様の方法で増菌効果を検討した。また, 培養温度を42℃にした場合, CT濃度を2倍にした2CT-TSBを用いた場合, およびO157が酸に抵抗性が高い²⁾ことを利用し, 塩酸処理 (1/8 N塩酸と30秒間等量混和) とCT-TSBを組み合わせた場合の増菌効果を同様の方法で検討した。

3 成 績

3・1 各増菌培地におけるO157の発育

4種類の増菌培地におけるO157 3菌株 (A株, B株, C株) の増殖曲線を図2に示した。

(1) TSB については, 菌株, 培養温度に関わらず 8 時間培養で菌数はピークに達し, その後24時間培養時まで菌数に変化は無かった。

(2) CT-TSB については, 菌株, 培養温度により増

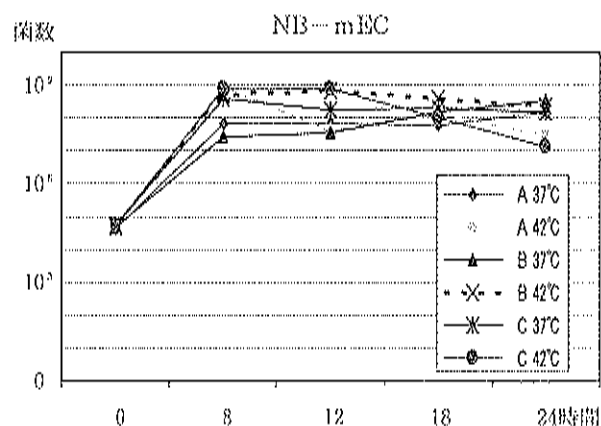
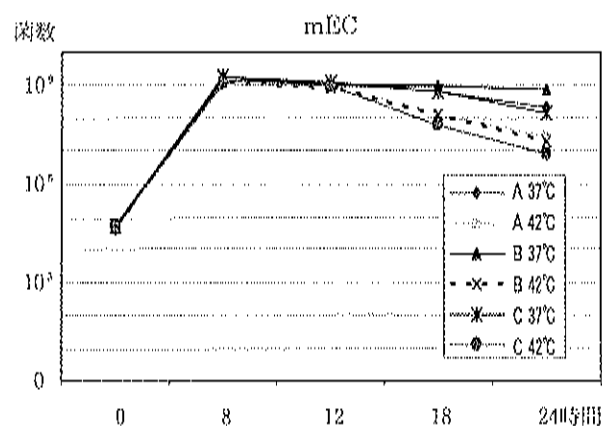
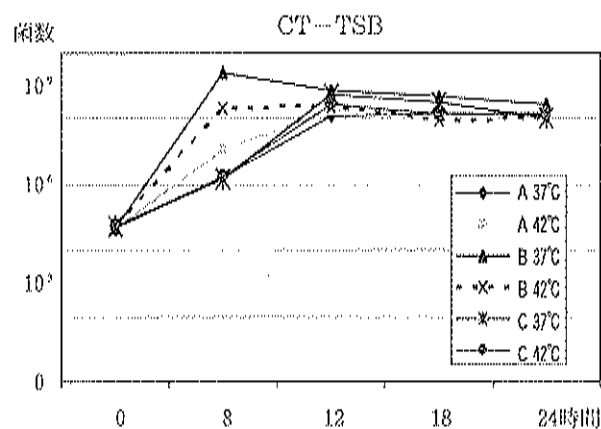
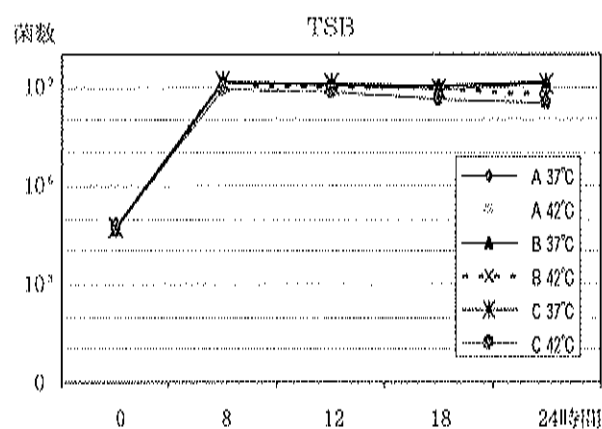


図2 各増菌培地におけるO157の発育

表1 CTに対する感受性 (MIC 値)

菌 種	被検菌株数	MIC 値率 ($\mu\text{g/mL}$)	菌株数	抑制される株 の割合 (%)
EHEC O157	39	10以上	39	0
EHEC O26	15	10以上	15	0
EHEC その他	48	10以上 0.63以下	13 35	73
EHEC 以外の <i>E.coli</i>	15	1.25~2.5 0.63以下	8 7	100
<i>E.coli</i> 以外の腸内細菌	18	10以上 1.25~2.5 0.63以下	1 10 7	94

※: PT(亜 テルル酸カリウム)濃度を表示

表2 NBに対する感受性 (MIC 値)

菌 種	被検菌株数	MIC 値 ($\mu\text{g/mL}$)	菌株数	抑制される株 の割合 (%)
EHEC O157	39	80以上	39	0
EHEC O26	15	40~80 20	9 6	40
EHEC その他	48	80以上 40 20	30 10 8	17
EHEC 以外の <i>E.coli</i>	15	80以上 40 20	9 4 2	27
<i>E.coli</i> 以外の腸内細菌	18	80以上 20 10以下	10 1 7	44

殖の速度が異なり、8時間培養時には菌数にばらつきがみられたが、12時間培養ではほぼ全てがピークに達し、その後は24時間培養時まで菌数に変化は無かった。

(3) mEC については、TSB と同様に8時間培養で全株がピークに達したが、12時間以上培養した場合、若干菌数の減少傾向がみられた。

(4) NB-mEC については、菌株、培養温度により増殖の状況が若干異なっていた。8時間培養でピークに達し、その後変化が無いもの、8時間培養でピークに達するが、その後減少傾向のあるもの、徐々に増加し24時間培養でピークに達するものなど様々であった。

3・2 CT および NB に対する感受性試験

(1) CT に対する感受性試験

EHEC 等の被検菌株135株における CT に対する MIC 値を表1に示した。CT-TSB に添加されている CT 濃度に対して O157 および O26 は全て耐性を示した。しかし、それ以外の EHEC については48株中35株 (73%) が、EHEC 以外の *E.coli* については全株 (100%)、また *E.coli* 以外の腸内細菌については18株中17株 (94%) が

感受性を示した。これにより、CT は O157 の選択剤として有効であることがわかった。

(2) NB に対する感受性試験

被検菌株135株の NB に対する MIC 値を表2に示した。NB-mEC に添加されている NB 濃度に対して O157 は全て耐性を示した。しかし、O26 については15株中6株 (40%) が、それ以外の EHEC については48株中8株 (17%)、EHEC 以外の *E.coli* については15株中4株 (27%)、*E.coli* 以外の腸内細菌については18株中8株 (44%) が感受性を示した。これにより、NB は O157 の選択剤として有効であることがわかった。

3・3 各増菌培地の増菌条件の詳細検討

模擬便を各増菌培地に接種し、37°C、18時間培養後 CT-SMAC で塗抹培養し、得られた O157 の孤立集落数を表3に示した。なお、CT-SMAC 上に O157 の孤立集落がなかった場合を ND、1~3個みられた場合を±、4~6個を+、7~11個を2+、12~20個を3+、21個以上を4+と表示した。

模擬便を増菌せずに直接 CT-SMAC

で培養した場合は菌株に関わらず糞便 1 mL 当たり 10^4 個以上の O157 が存在しないと分離できなかった。一方、増菌培地を用いた場合は、mEC では 10^3 個/mL でも全く分離できず、また TSB および NB-mEC では増菌しない場合とほぼ同様の結果であったが、CT-TSB では、用いた3菌株中2株が 10^3 個/mL でも分離することが可能となり、検出感度が増菌前に比べ約10倍高くなった。

3・4 CT-TSB の増菌効果の再検討

(1) 模擬便の接種量と培養時間の検討

CT-TSB に接種する模擬便の量 (0.1mL、0.5mL) が増殖に及ぼす影響について調べた結果、菌株および培養時間に関わらず差異を認めなかった。また、CT-TSB での各培養時間 (12、15、18、21、24時間) における O157 の増菌効果は、18時間培養が最も増菌効果が高かった (表4)。

(2) 培養温度 (42°C)、2 CT-TSB および塩酸処理による効果の検討

CT-TSB で42°C、18時間培養した場合、CT 濃度を2倍にした2 CT-TSB で37°C、18時間培養した場合、CT-

表3 各増菌培地の検討結果(37°C, 18時間培養)

	模擬便中 菌数	増菌(-)	CT-TSB	TSB	NB-mEC	mEC
菌株A	10 ¹ /mL	ND	ND	ND	ND	ND
	10 ²	ND	ND	ND	ND	ND
	10 ³	ND	±	ND	ND	ND
	10 ⁴	±	+	±	±	ND
	10 ⁵	+	2+	+	+	ND
菌株B	10 ¹	ND	ND	ND	ND	ND
	10 ²	ND	ND	ND	ND	ND
	10 ³	ND	ND	ND	ND	ND
	10 ⁴	±	±	±	±	ND
	10 ⁵	+	+	+	+	ND
菌株C	10 ¹	ND	ND	ND	ND	ND
	10 ²	ND	ND	ND	ND	ND
	10 ³	ND	±	ND	ND	ND
	10 ⁴	±	+	±	±	ND
	10 ⁵	+	2+	+	+	ND

CT-SMAC に発育した O157 の菌数 ± ; 1 ~ 3 個, + ; 4 ~ 6 個, 2 + ; 7 ~ 11 個,
ND ; Not Detected

表4 CT-TSB 培地の培養時間の検討結果(37°C培養)

	模擬便中 菌数	12hr	15hr	18hr	21hr	24hr
菌株A	10 ¹ /mL	ND	ND	ND	ND	ND
	10 ²	ND	ND	ND	ND	ND
	10 ³	ND	ND	±	±	ND
	10 ⁴	±	±	+	+	±
	10 ⁵	+	+	2+	+	+
菌株B	10 ¹	ND	ND	ND	ND	ND
	10 ²	ND	ND	ND	ND	ND
	10 ³	ND	ND	ND	ND	ND
	10 ⁴	ND	ND	±	ND	ND
	10 ⁵	+	+	+	+	±
菌株C	10 ¹	ND	ND	ND	ND	ND
	10 ²	ND	ND	ND	ND	ND
	10 ³	ND	ND	±	ND	ND
	10 ⁴	ND	±	±	±	±
	10 ⁵	ND	+	2+	+	+

CT-SMAC に発育した O157 の菌数 ± ; 1 ~ 3 個, + ; 4 ~ 6 個, 2 + ; 7 ~ 11 個,
ND ; Not Detected

TSB で 37°C, 18 時間培養後, 培地と等量の 1/8 N の塩酸で 30 秒間処理した場合および模擬便を等量の 1/8 N の塩酸で 30 秒間処理し, その後 CT-TSB で 37°C, 18 時

間培養した場合における O157 の増菌効果を表 5 に示した。結果は, 用いた 3 菌株中菌株 B において 37°C 培養より 42°C 培養において増菌効果がみられた。また, 2 CT-TSB ならびに塩酸処理による効果については, CT-TSB (37°C 培養) に比べ検出感度はあまり変わらなかったが, いずれも O157 の孤立集落数が増え, 増菌効果が認められた。

4 考 察

食品からの O157 の分離方法については, 食品中の菌数が少ないため, 様々な増菌培養法や O157 抗体を感作した免疫磁気ビーズ法などが検討されている^{1)~6)}。平成 9 年に厚生労働省(当時厚生省)は, 食品からの O157 の検出方法として NB-mEC 培地と免疫磁気ビーズを用いた増菌培養法を通知⁷⁾しており, 本法は保健所等で広く用いられている。

一方, 糞便から O157 を分離する場合には, 一般的に増菌培養せずに直接分離培養する方法がとられている。その理由は, 患者の糞便中では O157 が腸管内に定着し正常腸内細菌叢(ノーマルフローラ)を崩すため, O157 が優位に存在するためである。しかし, 稀に O157 (病原微生物側) のビルレンスとヒト(宿主側)の抵抗力が均衡した場合, ノーマルフローラを崩さずに病原微生物が腸管内に存在する状態, 即ち健康保菌者となる場合がある。この場合の病原微生物のノーマルフローラに対する割合は, 10 万分の 1 以下と推定され⁸⁾, 常在細菌を有効に抑制する培養方法を使用しない限り分離は不可能である。特に, O157 を含む EHEC の場合には, 常在菌の大腸菌との鑑別が難しいので, EHEC のみを選択的に増菌させる培地が必要となる。

今回の結果では, 各種増菌培地の中で CT-TSB が最も有用であったが, これは CT と NB に対する各種細菌の感受性試験結果からも裏付けされた。中山ら⁹⁾

の報告によれば, CT とバンコマイシンを添加した TSB (CTV-TSB) と NB-mEC を比較し, NB-mEC の方が有用であったとしているが, 彼らが用いた模擬便は, プー

表5 CT-TSB培地の検討結果

	模擬便中 菌数	37°C, 18hr	42°C, 18hr	37°C, 18hr		
				2 CT-TSB 培地+HCl	糞便+HCl	
菌株A	10 ¹ /mL	ND	ND	ND	ND	ND
	10 ²	ND	ND	ND	ND	ND
	10 ³	±	±	+	+	±
	10 ⁴	+	+	3+	+	2+
	10 ⁵	2+	2+	4+	2+	3+
菌株B	10 ¹	ND	ND	ND	ND	ND
	10 ²	ND	ND	ND	ND	ND
	10 ³	ND	±	±	ND	ND
	10 ⁴	±	+	+	±	+
	10 ⁵	+	+	3+	+	2+
菌株C	10 ¹	ND	ND	ND	ND	ND
	10 ²	ND	ND	ND	ND	ND
	10 ³	±	±	±	±	+
	10 ⁴	+	+	+	+	2+
	10 ⁵	2+	2+	3+	2+	3+

CT-SMACに発育したO157の菌数 ±: 1~3個, +: 4~6個, 2+: 7~11個,
3+: 12~20個, 4+: 21個以上,
ND: Not Detected

ルした健康人の糞便を滅菌生理食塩水と混和し、遠心(1,500rpm)した上清にO157を添加しているため常在細菌が殆ど存在せず、その影響が少なかったためと思われる。

2 CT-TSB や塩酸処理を組み合わせた方法がより有用であったが、O157感染症が発生した際の接触者検便は、特に保育園等で発生した場合には数百人に及ぶことが多いため、コストや労力を考慮すると現実的とはいえない。また、37°C培養よりも42°C培養の方が菌株によっては有用であったが、42°Cで発育しないO157の報告があることを留意すべきであろう¹⁰⁾。

5 まとめ

糞便からO157を選択的に分離するための有用な増菌培養法の検討を行った。

(1) CT および NB に対する感受性

O157以外の菌はCTおよびNBに感受性を示し、CTとNB共に、特にCTはO157に対する選択剤として有効であった。

(2) 各増菌培地における増菌効果

模擬便を用い4種類の増菌培地についての増菌効果を検討した結果、CT-TSBを用いて37°C, 18時間培養する方法が最も有用であった。なお、42°C培養においても同等以上の効果が得られたが、42°Cで発育しないO157の報告があることから注意が必要である。

(3) CT-TSB の増菌効果の再検討

2 CT-TSB を用いた方法や塩酸処理とCT-TSBの組み合わせによる方法がより増菌効果があることが示唆されたが、実際に接触者検便をする際の検体数を考慮すると現実性に欠け、これらについては更に検討が必要であろう。

以上の結果を基に検査マニュアル(図3)を作成し、平成17年3月に石川県健康福祉部により作成された「腸管出血性大腸菌感染症対応マニュアル」¹¹⁾に掲載した。

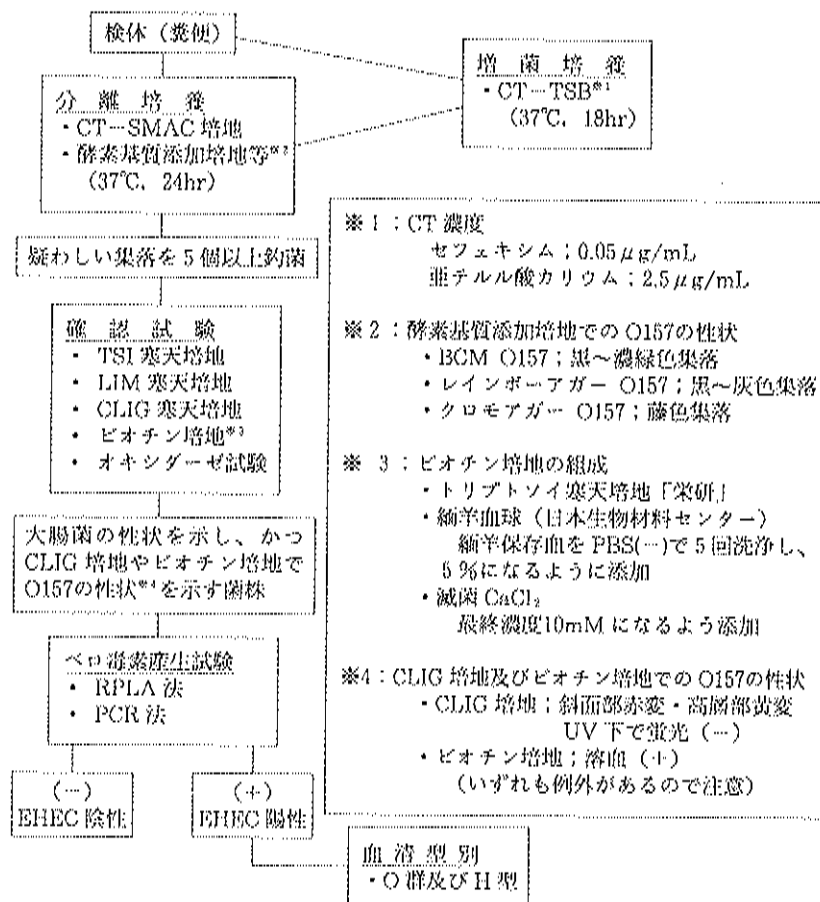


図3 腸管出血性大腸菌O157の検査法(石川県法)

文 献

- 1) 厚生省保健医療局結核感染症課監修：感染症の予防及び感染症の患者に対する医療に関する法律～法令・通知・関係資料～（1999）
- 2) 橋本喜代一，杉盛耕益，高岡菊江，木場久美子，山本正子，佐藤日出夫，倉本早苗，米澤由美子，芹川俊彦：病原微生物検出情報月報，23（7），177～178（2002）
- 3) 福島 博：衛生微生物技術協議会第20回研究会，20，43（1999）
- 4) 宮原美知子，後藤公吉，正木宏幸，小沼博隆：日本食品微生物学雑誌，19（2），47～56（2002）
- 5) 村瀬 稔，宮田 勉，木股裕子，黒川 学：日本食品微生物学雑誌，19（2），71～77（2002）
- 6) 大澤 朗，佐多 辰，藤沢倫彦，島田俊雄：第8回腸管出血性大腸菌感染症シンポジウム，5（2004）
- 7) 厚生省生活衛生局食品保健課長，乳肉衛生課長通知：腸管出血性大腸菌O157の検査法について，平成9年7月4日付
- 8) 平松啓一，山西弘一：標準微生物学第7版（1999）
- 9) 中山 宏，川端与志子，石橋邦博，堀川和美：感染症学雑誌，74（6），527～535（2000）
- 10) 岡崎則男，鈴木理恵子，佐多 辰，大澤 朗，渡辺祐子，山井志朗，和田昭仁，渡辺治雄：日本細菌学雑誌，52（2），505～511（1997）
- 11) 石川県健康福祉部監修：腸管出血性大腸菌感染症対応マニュアル，平成17年3月3日

〔報 文〕

ノロウイルス食中毒における検出ウイルスの相同性検索について

石川県保健環境センター健康・食品安全科学部 大矢 英紀・黒崎 直子・尾西 一

キーワード：ノロウイルス，相同性

1 はじめに

ノロウイルスはヒトの胃腸炎の起因ウイルスで、冬期を中心に食中毒等胃腸炎の集団発生を頻繁に起こすことで知られる。食中毒発生時には、通常原因究明のため、患者や調理従事者の糞便や食材、ふきとり等について細菌やウイルス検査が行われるが、ノロウイルスが原因の食中毒の場合、患者はもちろんのこと、これ以外の検体からもノロウイルスが検出されることが多い。この時、患者から検出されたノロウイルスとこれ以外から検出されたノロウイルスが同等のものであるか否かは、その後の行政対応上重要な要素となり、同等の場合、集団発生の直接の原因とされることが多い。

ノロウイルスによる食中毒は、カキ等の二枚貝が関与する場合と、しない場合に大別される。ノロウイルスは遺伝子的に非常に多様であることが知られ、通常カキ関連事例では複数の遺伝子タイプが関与し、非カキ関連事例では1種類の遺伝子タイプが関与している。いずれの場合においても、患者と患者以外由来のノロウイルスが同等であるかの確認は重要である。

一般にこれらの確認は、シーケンスにより塩基配列を決定し、相同性検索、系統解析で行われるが、当センターではこれらの確認を、井上・本藤らの方法および西尾らの報告^{1,2)}を参考にマイクロプレートハイブリダイゼーション法により行ってきた。

本報では、これまでに石川県で発生したノロウイルスによる食中毒事例のうち、患者と患者以外からノロウイルス遺伝子が検出された事例を対象に、これまで実施してきたマイクロプレートハイブリダイゼーション法による相同性検索の結果について報告するとともに、これら

の保存検体についてシーケンスにより解析を行ったので、それらの結果についてもあわせて報告する

2 材料と方法

2・1 材 料

平成10年から15年にかけて発生した、ノロウイルスを原因とする食中毒事例のうち、患者と患者以外からノロウイルスが検出された4事例を対象とした。内訳は、1事例はカキと患者から(事例1)、3事例はカキ等二枚貝が全く関与せず、調理従事者と患者から(事例2～4)ノロウイルスが検出された事例である。

検体はすべて、逆転写反応遺伝子増幅法(RT-PCR)でノロウイルス遺伝子の検出(検出領域は事例1～3がpolymerase領域、事例4がcapsid領域)を行ったPCR産物で、アガロースゲル電気泳動で特異バンドが確認され、G1/G2特異プローブにより遺伝子型別を行ったものである。

事例1は、カキ由来PCR産物が1検体、患者由来PCR産物が2検体であるが、遺伝子型別ではカキ由来がG1、患者由来がひとはG2、もうひとは型別不能であり、シーケンスを行っても3検体とも不可能であった検体である。本事例は、保健所の疫学調査でカキが原因食品として強く疑われたにもかかわらず、ウイルス検査結果では必ずしもカキと断定できなかった事例であった。

カキを原因とするノロウイルス食中毒は、多種タイプのノロウイルスが関与しているため、各事例相互の関連性を検討する目的で、マイクロプレートハイブリダイゼーションを行う際に、対照として、この事例とは全く関係のないカキ関連4事例のカキ由来PCR産物をそれぞれ

Study on Homology of Detected Norovirus in Food Poisoning. by OHYA Hideki, KUROSAKI Naoko and ONISHI Hajime (Health and Food Safety Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Norovirus, Homology

1 検体づつ 4 検体(患者はすべて他県で発生した事例)、同様に全く関係のないカキ関連 7 事例の患者由来 PCR 産物を、合計 29 検体(原因と推定されたカキは残されていなかった事例)についても検討材料に加えた。

事例 2～4 は、調理従事者由来 PCR 産物がそれぞれ 1 検体、1 検体、2 検体、患者由来 PCR 産物がそれぞれ 11 検体、3 検体、7 検体で、遺伝子型別ではそれぞれ G1、G2、G2 のみが検出された事例であった。

2・2 方法

(1) 事例 1

既に報告されている方法^{1) 2)}を参考に、マイクロプレートハイブリダイゼーション法により相同性の確認を行った。すなわち、事例 1 の患者由来 PCR 産物について、ノロウイルス特異バンドを精製して「患者由来 DNA」とし、平底のマイクロプレートに吸着させた。一方、この事例のカキ由来 PCR 産物について、同様に特異バンドを精製し、再度 PCR を行うと同時にビオチン標識し、その産物をエタノール沈殿させ「カキ由来 DNA プローブ」とした。つぎに、このプローブを、「患者由来 DNA」と 45℃と 55℃の反応温度で一晩反応させた。また対照として、当該事例と全く関係のないカキ関連事例の患者由来 PCR 産物 29 検体も同様に、精製して「患者由来 DNA」とし、このプローブを反応させた。

さらに、全く関係のないカキ由来 PCR 産物 4 検体についてもそれぞれ同様に「カキ由来 DNA プローブ」とし、事例 1 の「患者由来 DNA」2 検体および上記の「患者由来 DNA」29 検体と反応させた。

(2) 事例 2～4

(1)と同様の方法により、「患者由来 DNA」に対し「調理従事者由来 DNA プローブ」を反応させた。これらの事例は、カキ等の二枚貝が関与しないノロウイルス食中毒であり、通常 1 つのタイプのノロウイルスしか関与していないため、事例 1 のような当該事例と関係のない検体との反応は行わなかった。

(3) 判定

上記(1)、(2)ともに当該温度で一晩反応後、洗浄し、エライザの検出方法と同様の方法で DNA を検出した。す

なわち、洗浄後、ストレプトアビジン標識ペルオキシダーゼ(Conjugate)と 1 時間反応させ、過酸化水素を基質とし、テトラメチルベンチデン(TMB)で発色させた。判定は、4 N 硫酸で反応を停止させ、波長 450 nm で吸光度を測定し、陰性コントロールと比較して、O.D 値が 0.2 以上かつ 2 倍以上の差で陽性とした。

(4) 遺伝子解析

これらの事例で検出したノロウイルス遺伝子すべてについて、ダイターミネーター法によりダイレクトシーケンセスを実施した。得られたノロウイルスの塩基配列は、polymerase 領域については、過去に登録されている代表的な株を参考に、capsid 領域についてはカリシネット(<http://teine.cc.sapmed.ac.jp>)において公開されている参照株を参考に、日本 DNA データバンク(DDBJ)の clustalW により系統解析を行った。

3 成績

3・1 事例 1 について

事例 1 の「カキ由来 DNA プローブ」と「患者由来 DNA」との反応では、いずれの温度においても陽性 2/2 (100%)となった。また、このプローブと、他のカキ関連食中毒の「患者由来 DNA」29 検体との反応では、45℃では 12/29 (41%)、55℃では 2/29 (7%)が陽性となった(表 1)。一方、他のカキ関連食中毒の、「カキ由来 DNA プローブ」それぞれ 4 検体と、事例 1 および他のカキ関連食中毒の「患者由来 DNA」合計 31 検体との反応では、それぞれ、45℃では 7/31 (22%)、13/31 (42%)、10/31 (32%)、4/31 (13%)、55℃では 2/31 (6%)、8/31 (25%)、2/31 (6%)、3/31 (10%)となった(表 2)。

表 1 事例 1 カキ由来 DNA をプローブとした場合の陽性率

カキ由来 DNA プローブ	反応温度	
	45℃	55℃
患者由来 DNA		
事例 1 患者由来 DNA	2/2 (100%)	2/2 (100%)
他事例患者由来 DNA	12/29 (41%)	2/29 (7%)

表 2 他事例カキ由来 DNA をプローブとした場合の陽性率

他事例カキ由来 DNA プローブ	①		②		③		④	
	反応温度		反応温度		反応温度		反応温度	
	45℃	55℃	45℃	55℃	45℃	55℃	45℃	55℃
患者由来 DNA								
事例 1 患者由来 DNA	1/2 (50%)	0/2 (0%)	1/2 (50%)	1/2 (50%)	1/2 (50%)	0/2 (0%)	1/2 (50%)	0/2 (0%)
他事例患者由来 DNA	6/29 (21%)	2/29 (7%)	12/29 (41%)	7/29 (24%)	9/29 (31%)	2/29 (7%)	3/29 (10%)	3/29 (10%)
事例 1 及び他事例患者由来 DNA	7/31 (22%)	2/31 (6%)	13/31 (42%)	8/31 (25%)	10/31 (32%)	2/31 (6%)	4/31 (12%)	3/31 (10%)

表3 事例2調理従事者由来DNAをプローブとした場合の陽性率

調理従事者由来 DNA プローブ	反応温度	
	45℃	55℃
患者由来 DNA		
事例2 患者由来 DNA	11/11(100%)	11/11(100%)

表4 事例3調理従事者由来DNAをプローブとした場合の陽性率

調理従事者由来 DNA プローブ	反応温度	
	45℃	55℃
患者由来 DNA		
事例3 患者由来 DNA	3/3(100%)	3/3(100%)

表5 事例4調理従事者由来DNAをプローブとした場合の陽性率

調理従事者由来 DNA プローブ	①		②	
	反応温度		反応温度	
	45℃	55℃	45℃	55℃
患者由来 DNA				
事例4 患者由来 DNA	7/7(100%)	7/7(100%)	7/7(100%)	7/7(100%)

しかし、これらノロウイルス陽性のPCR産物について、ダイレクトシーケンスを行ったところ、塩基配列を正確に判読できなかった。

3・2 事例2～4について

同一事例内において、「調理従事者由来DNAプローブ」と、「患者由来DNA」とは、いずれの温度の反応においてもすべて陽性となり、ノロウイルスの遺伝子型(G1, G2)および検出領域(polymerase, capsid)での差はみられなかった(表3～5)。

シーケンスによる系統解析においても、同一事例内での「調理従事者由来DNA」および「患者由来DNA」の塩基配列はすべて一致し、事例2ではG1のChiba型、事例3ではG2のAsb1型、事例4ではG2のSaitama U25型に属するものであった(図1～3)。

4 考 察

(1) カキが関与したノロウイルス食中毒では、カキと患者から検出したノロウイルスの遺伝子タイプは一致しないことが多く、事例1はその典型例である。カキは中腸腺内に複数種のノロウイルスを蓄積し、それを食べた人はこれらに同時に感染し、増殖しやすいタイプが優先的に増えて発症し、一方で個人差もあると考えられる。また検査は、通常、RT-PCR法で行うため、使用するプライマーペアによって増幅される遺伝子のタイプに差が生じる。その結果、カキと患者から検出されるノロウイルスの遺伝子のタイプはほとんど一致せず、さらに、複数のタイプのノロウイルス遺伝子がひとつのサンプル中に存在するため、ダイレクトにシーケンスを行って

も良好な結果は得られない²⁾。このような場合、遺伝子をクローニングして再度シーケンスする方法があるが、ひとつひとつのDNAを調べていくのは手間と時間がかかることから、迅速さが要求される集団発生時の検査としては実際的ではない。

以上のような状況から、それを解決するため、同一事例内では、カキ由来と患者由来の両者に共通した同一タイプのノロウイルスが少なからず存在すると考え、以前よりノロウイルスの確認検査に用いていたマイクロプレートハイブリダイゼーション法を応用し、カキ由来DNAでプローブを作製して患者由来DNAとの相同性を確認することを検討した。この方法は、ハイブリの反応温度が45℃で陽性ならば塩基配列が80%以上、55℃で陽性ならば塩基配列が95%以上の相同性があるとされており⁴⁾、カキ由来のDNAで作った

プローブを55℃の反応温度で患者由来DNAと反応させて陽性となれば、このカキが原因で発症したと推定できる。

以上のことから今回この方法により検討したところ、成績3・1に述べたように同一事例内ではすべて陽性となった。しかし、先にも述べたとおり、カキ関連事例には複数のタイプのノロウイルスが関与しており、偶然の一致も当然考えられる。そこで、対照として全く違う事例どうしの「カキ由来DNAプローブ」および「患者由来DNA」と反応させたところ陽性率は極端に低下し、

G1: polymerase 領域

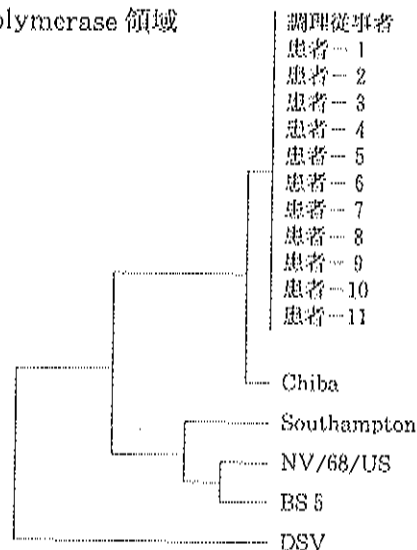


図1 系統解析（事例①）

G 2 : polymerase 領域

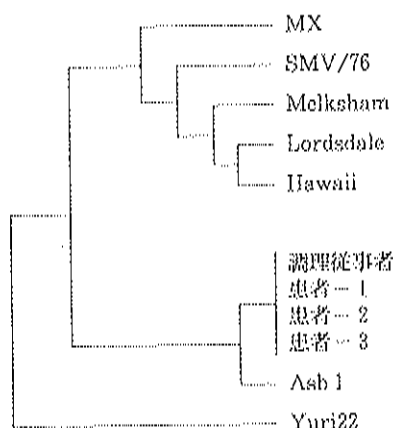


図2 系統解析 (事例②)

今回検討した中では大部分は相同性が低いと判定できた。ただ、違う事例どうしの反応でも、全体の平均で12%程度陽性となり、特に表2②の場合のように、55℃の反応でも陽性率が25%とやや高い点や、全体のサンプル数が少ない点など、検討すべき点がいくつか散見された。今後は同様の事例のサンプルを増やして検討し、より説得力のあるデータとしていきたい。また、今回シーケンスが不成功に終わった検体についても同様に詳細に解析していきたい。

(2) カキが関与しないノロウイルス食中毒では、上記の場合と異なり、検出される遺伝子タイプは通常1種類である。さらに、患者以外に調理従事者からも比較的高い頻度でノロウイルスが検出され、患者から検出されたノロウイルスの遺伝子タイプと一致する。今回例にあげた3事例(事例2~4)は、いずれも同様の事例で、行政対応においては感染源のひとつとされることが多い。

しかし、実際の食中毒発生の裏付けには、患者から検出したノロウイルス遺伝子と、これらから検出した遺伝子の塩基配列が一致することが重要であり、それを証明することは、疫学調査の重要な科学的証拠のひとつとなる。実際は、RT-PCR法においてノロウイルス特異バンドが検出された時点でシーケンスするのが一般的であるが、今回は事例1と同様、マイクロプレートハイブリダイゼーション法を用いて検討した。その結果、同一事例内の調理従事者と患者由来のDNAは55℃の厳しいハイブリの条件でもすべて陽性となり、高いDNAの相同性が示唆された。

そして、DNAシーケンサーにより全検体の塩基配列

G 2 : capsid 領域

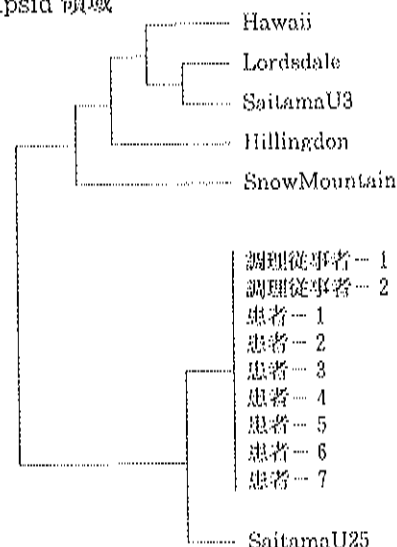


図3 解析系統 (事例③)

を決定したところ、事例ごとでは両者由来のDNAの塩基配列はすべて一致していた。

(3) 今回、相同性確認に行ったマイクロプレートハイブリダイゼーション法は、精度的にはシーケンスによる方法には及ばないと思われる。しかし、比較的簡便で、特殊な機器を必要としないため、シーケンシングできる機器が未整備で、かつ集団発生等の対応で、緊急に検出ノロウイルスの関連性を証明しなければならない時には活用できると考えられる。今後、さらに事例数や検体数を増やして検討し、有用なデータとしていきたい。

5 ま と め

ノロウイルスを原因とする食中毒について、患者と、患者以外から検出されるノロウイルスの関連性について検討を行った。

(1) カキが関与した事例について

カキが関与したノロウイルスによる食中毒において、カキおよび患者から検出されるノロウイルス遺伝子は、型が一致せず、シーケンスも不可能なことが多い。そこで、マイクロプレートハイブリダイゼーション法で遺伝子の相同性を検討したところ、同一事例内では、両者に強い関連を認めることができた。しかし、関係のない別の事例どうしても多少陽性反応がみられるため、今後も事例数と検体数を増やし、データを蓄積して精度を上げさせたい。

(2) カキが関与しない事例について

二枚貝が関与しないノロウイルスによる食中毒において、患者以外に調理従事者からノロウイルス遺伝子が高

い頻度で検出される。この場合において、両者の相同性を(1)と同様の方法で確認したところ、強い関連性を認めることができた。さらに、シーケンスを行ったところ両者の塩基配列はすべて一致していた。

本研究に多大な御指導を賜りました、国立感染症研究所 西尾治先生に深謝いたします。

文 献

- 1) 井上 栄, 本藤 良: 実験医学, 8, 102-106(1990)
- 2) 病原微生物検出情報月報, 19(1), 6(1998)
- 3) 西尾 治, 加藤由美子: 第48回日本ウイルス学会学術集会・総会プログラム・抄録集, 236(2000)
- 4) 西尾 治, 新川奈緒美: 日本医事新報, 4105, 5-13(2002)

〔報 文〕

石川県内で多発したノロウイルスによる 集団胃腸炎の状況とウイルス学的検討

—— 平成16年度の集団胃腸炎発生事例 ——

石川県保健環境センター健康・食品安全科学部 大矢 英紀・黒崎 直子・尾 西 一

キーワード：ノロウイルス，集団発生，Lordsdale

1 はじめに

平成16年末から17年の初めにかけて，広島県福山市の特別養護老人ホームでノロウイルスを原因とする集団胃腸炎が発生し，入居者7名が死亡して注目を集めた。また同時期に，全国各地で高齢者施設を中心に，同様の集団発生が相次ぎ，ノロウイルス感染症が社会的に大きな問題となった。

石川県においても冬期を中心に，ノロウイルスを原因とする食中毒や集団感染が例年に比べ多発し，特に老人保健施設等高齢者施設での発生も例年に比べて多い傾向にあった。

そこで，これらの事例について，詳細なウイルス学的検索を実施したので，その概要を感染症発生動向調査の集計結果とともに報告する。

2 材料と方法

2・1 材 料

平成16年度に石川県内で発生した胃腸炎の集団発生事例で，ノロウイルスが検出された12事例の検体（患者糞便66検体，患者吐物1検体，調理従事者糞便18検体，介護職員等糞便27検体）を検討材料とした。また，感染症発生動向調査（病原体定点）における小児の感染性胃腸炎の散発事例で，ノロウイルスが検出された患者糞便6検体についても同様に検討を行った。

2・2 方 法

(1) ノロウイルス検査

ノロウイルスの検査は，「ノロウイルスの検出法について（平成15年11月5日食安監発第1105001号）」に従い，RT-PCR法で行った。検出は，capsid領域および polymerase 領域で行い，プライマーは，capsid領域では G1とG2を個別に検出するSKF/R系を，polymerase 領域では35/36，NV81/82，NV81SM82，Yuri22F/R，P1P3を用いて行った^{1,2)}。

(2) ノロウイルスの遺伝子解析

RT-PCR法でノロウイルス特異バンドが明瞭に認められた capsid 領域の PCR 産物について，ダイレクトシーケンスを実施した。得られた塩基配列は，カリシネットに公開されている参照株を基に，日本 DNA データバンク (DDBJ) の clustalW により系統解析を行った。また必要に応じ，polymerase 領域の PCR 産物についてもシーケンスを実施し，ジーンバンクに登録されている代表的な株を基に，上記と同様，系統解析を実施した。

2・3 感染症発生動向調査について

平成16年度の石川県感染症発生動向調査の小児科定点における感染性胃腸炎の状況（患者情報）について，全県および保健所管内別に集計を行った。また前年の状況と比較するため，平成15年度についても同様に集計を行った。

3 成 績

3・1 RT-PCR法によるノロウイルス検査結果

検査した患者糞便66検体中51検体，患者吐物1検体中1検体，調理従事者糞便18検体中6検体，介護職員等糞

State of Gastroenteritis Outbreaks Caused by Norovirus Occurred Frequently in Ishikawa Prefecture and viral investigation. by OHYA Hideki, KUROSAKI Naoko and ONISIII Hajime (Health and Food Safety Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Norovirus, Outbreak, Lordsdale

便27検体中11検体からノロウイルス遺伝子が検出された。検出したノロウイルスの遺伝子型は、G2が圧倒的に多かったが、事例6と8の調理従事者糞便1名ずつからG1が、事例10の患者糞便2名からはそれぞれG2、G1+G2が、調理従事者糞便1名からはG1が検出された。なお、上記の事例6の患者からはG2のみが検出され、事例8は保健所において患者の検便は行っていない。また、事例10は生カキが関連した事例である(表1)。

検出領域およびプライマーの感度を比較すると、capsid

領域のSKF/Rおよびpolymerase領域のP1P3が同等の割合で最も良く検出でき、両者の結果は一致していた。しかし、polymerase領域の他のプライマーでは感度が下がり、特に、以前汎用されていた35'36やNV81/82では上記で陽性となった検体の7%程度しか陽性とならなかった(表2)。

3・2 遺伝子解析

G2では、カキが関与した事例10で検出したものを除き、すべて Lordsdale virus(X86557)に capsid 領域で

表 1 ノロウイルスによる集団胃腸炎と検査結果

事例 No.	発生年月日	発生地	発生施設	陽性数/検体数	患者	調理従事者	介護職員等	遺伝子型	備考
					陽性数/検体数	陽性数/検体数	陽性数/検体数		
1	16.5.16	金沢市	飲食店	7/8	7/8			G2	
2	16.5.25	七尾市	弁当屋	6/9	3/3	3/6		G2	
3	16.11.30	松任市	老人関連施設	8/18	5/10		3/8	G2	
4	16.12.28	小松市	合宿	3/4	3/4			G2	
5	17.1.10	辰白町	老人関連施設	20/22	14/16		6/6	G2	
6	17.1.12	松任市	小学校	15/17	14/16	1/1		G1, G2*	
7	17.1.15	寺井町	老人関連施設	2/8	1/4		1/4	G2	
8	17.1.20	野々市町	保育園	1/1		1/1		G1	
9	17.1.22	小松市	児童養護施設	1/2	1/2			G2	
10	17.1.31	穴水町	飲食店	3/8	2/2	1/6		G1, G2, G1+G2*	カキ関連
11	17.2.7	穴水町	老人関連施設	2/10	1/1*		1/9	G2	
12	17.2.18	尾口村	旅館	1/5	1/1	0/4		G2	

* 1 G1は調理従事者 G2は患者 * 2 G1は調理従事者 G2, G1+G2は患者 * 3 検体は吐物

表 2 各プライマーによる陽性数

事例 No.	陽性検体数	プライマー						
		G1SKF/R	G2SKF/R	35'36	NV81/82	NV81SM82	Yuri22F/R	P1P3
1	7	0	7	0	0	0	0	7
2	6	0	6	0	0	0	0	6
3	8	0	8	0	0	8	8	8
4	3	0	3	0	0	3	3	3
5	20	0	20	0	0	20	20	20
6	15	1	14	1	1	14	14	14
7	2	0	2	0	0	2	2	2
8	1	1	0	1	1	1	0	1
9	1	0	1	0	0	0	1	1
10	3	2	2	1	1	2	2	3
11	2	0	2	0	0	0	0	2
12	1	0	1	0	0	1	1	1

表 3 各事例間での相同性 (capsid 領域)

	事例 1	事例 2	事例 3	事例 4	事例 5	事例 6	事例 7	事例 9	事例 11	事例 12	Lordsdale
事例 1		99.6	99.6	96.1	95.7	95.7	95.7	96.1	97.5	95.7	96.1
事例 2	99.6		100	96.1	95.7	95.7	95.7	96.1	97.5	95.7	94.7
事例 3	99.6	100		96.1	95.7	95.7	95.7	96.1	97.5	95.7	94.7
事例 4	96.1	96.1	96.1		99.6	99.6	99.6	100	98.2	99.6	93.9
事例 5	95.7	95.7	95.7	99.6		100	100	99.6	97.9	100	93.6
事例 6	95.7	95.7	95.7	99.6	100		100	99.6	97.9	100	93.6
事例 7	95.7	95.7	95.7	99.6	100	100		99.6	97.9	100	93.6
事例 9	96.1	96.1	96.1	100	99.6	99.6	99.6		98.2	99.6	94.3
事例 11	97.5	97.5	97.5	98.2	97.9	97.9	97.9	98.2		97.9	95.7
事例 12	95.7	95.7	95.7	99.6	100	100	100	99.6	97.9		93.6
Lordsdale	96.1	94.7	94.7	93.9	93.6	93.6	93.6	94.3	95.7	93.6	

表 4 各事例間での相同性 (polymerase 領域)

	事例 1	事例 2	事例 3	事例 4	事例 5	事例 6	事例 7	事例 9	事例 11	事例 12	Lordsdale
事例 1		99.6	99.6	86.4	86.1	86.1	86.1	96.1	86.4	86.4	89.4
事例 2	99.6		100	86.1	86.1	86.1	86.1	96.1	86.4	86.4	90.1
事例 3	99.6	100		86.1	85.7	85.7	85.7	96.1	86.4	86.4	90.1
事例 4	86.4	86.1	86.1		99.6	99.6	99.6	100	96.7	99.6	91.6
事例 5	86.1	86.1	85.7	99.6		100	100	99.6	96.3	100	91.2
事例 6	86.1	86.1	85.7	99.6	100		100	99.6	96.3	100	91.2
事例 7	86.1	86.1	85.7	99.6	100	100		99.6	96.3	100	91.2
事例 9	96.1	96.1	96.1	100	99.6	99.6	99.6		98.2	99.6	90.1
事例 11	86.4	86.4	86.4	96.7	96.3	96.3	96.3	98.2		98.2	91.2
事例 12	86.4	86.4	86.4	99.6	100	100	100	99.6	98.2		91.2
Lordsdale	89.4	90.1	90.1	91.6	91.2	91.2	91.2	90.1	91.2	91.2	

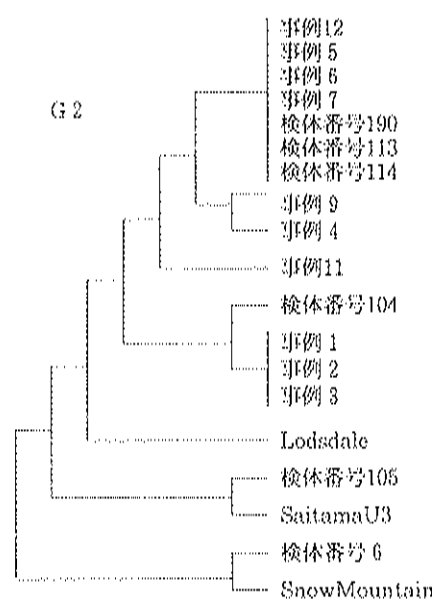


図 1 系統解析 (capsid 領域)

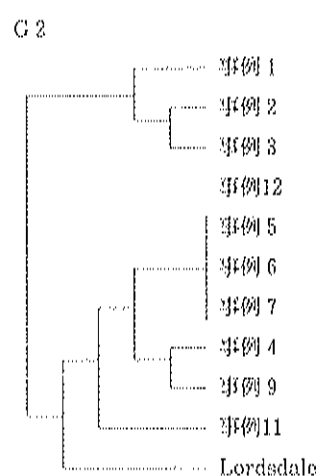


図 2 系統解析 (polymerase 領域)

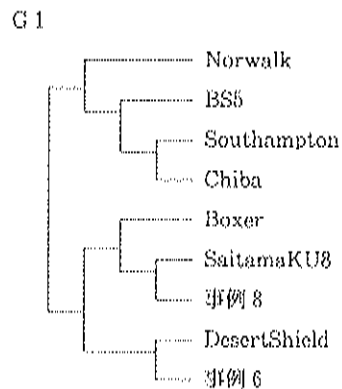


図3 系統解析 (capsid 領域)

93.6~96.1%, polymerase 領域で89.4~91.6%の相同性を持ち、同一事例内では塩基配列は100%一致していた。また、各事例の検体間での比較では、capsid 領域で95.7~100%, polymerase 領域で85.7~100%の相同性を持ち、事例ごとで比較すると、事例1, 2, 3, 事例5, 6, 7, 12, 事例4, 9ではそれぞれ相同性が99.6~100%と高く、同じタイプに属していた(表8, 4)。感染症発生動向調査(病原体定点)における検体では、6検体中4検体が上記の集団発生と同様、Lordsdaleに類似したタイプで、そのうちの3検体(検体番号113, 114, 190)が事例5, 6, 7, 12と、1検体(検体番号104)が事例1, 2, 3と同じ系統に属していた。残りの2検体では、1検体(検体番号105)は SaitamaU 3 に、1検体(検体番号6)は

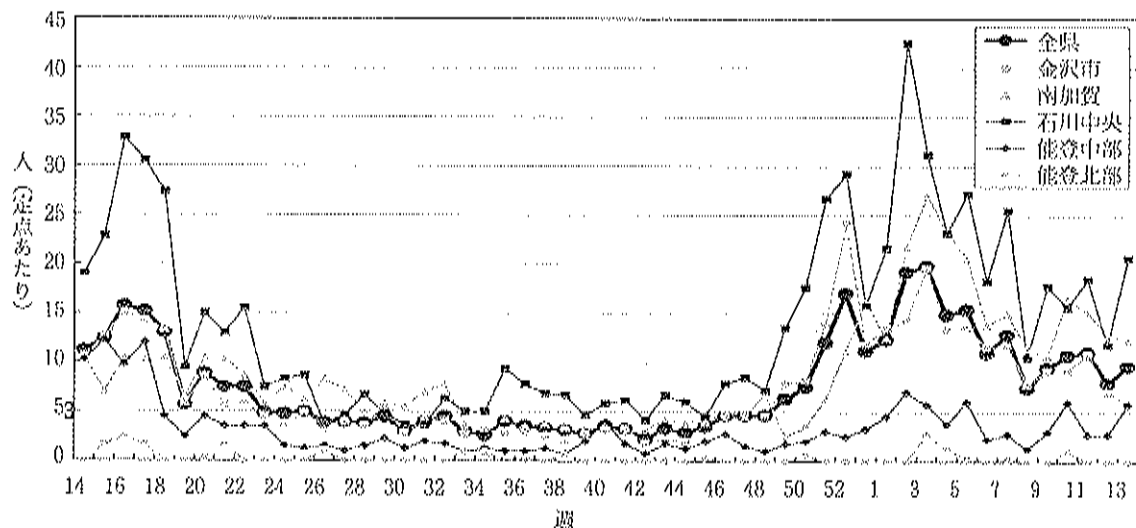


図4 感染性胃腸炎(16年度感染症発生動向調査)

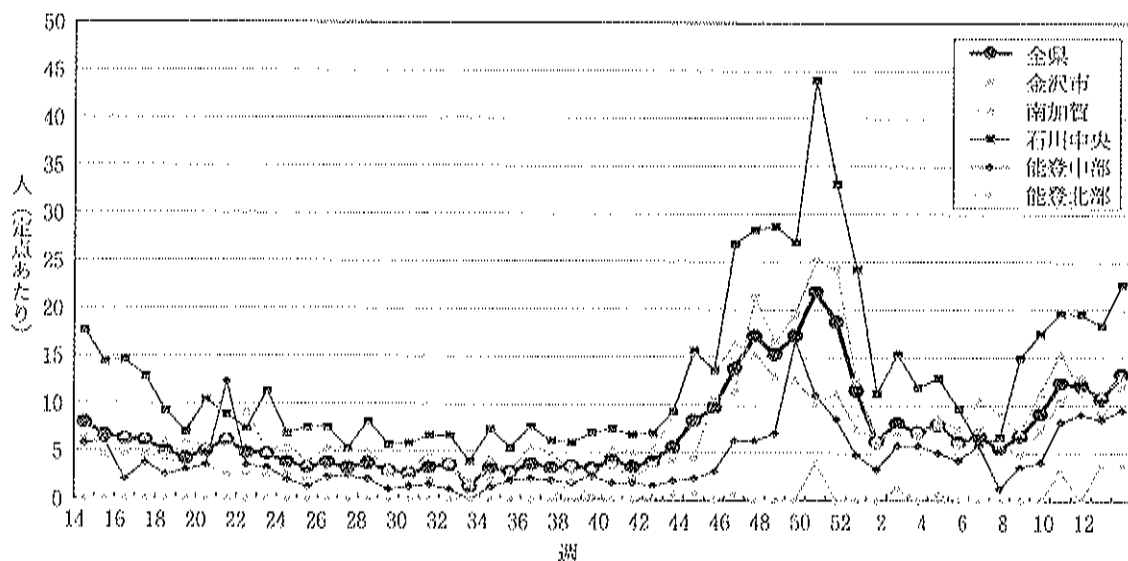


図5 感染性胃腸炎(15年度感染症発生動向調査)

SnowMountain に類似していた(図1, 2)。

G1では、事例6の調理従事者から検出したものはDesertShieldに、事例8の調理従事者から検出したものはSaitamaKU8に類似していた(図3)。

カキが関与した事例10では、3検体がノロウイルス陽性(G1, G1+G2, G2)となったが、いずれもシーケンスデータは判読不可能であった。

3・3 感染症発生動向調査(患者定点)の集計結果

平成16年度における感染性胃腸炎の状況は、年末の第52週頃に最初のピーク(定点あたり17.03人)があり、一度減少したあと翌年第2週頃から急増し始め、第3週には16年度の最高値(定点あたり19.86人)となった。

保健所管内別では、定点あたりの報告数は石川中央、南加賀、金沢市で高く推移していたが、能登中部、能登北部では低い状況であった(図4)。

また参考に、平成15年度の状況を見ると、報告数のピークは16年度に比べ時期的に多少前後にシフトしている程度であるが、全体の総報告数で約1,000人、定点あたりの総報告数で約40人程度16年度の方が上回っていた。また、保健所管内別では、16年度と同様、石川中央、南加賀、金沢市で高く推移する傾向にあった(図5)。

4 考 察

(1) ノロウイルスの検査結果について

平成16年度のノロウイルスを原因とする胃腸炎の集団発生は計12事例で、検出された遺伝子型はほとんどがG2であった。近年、G1単独の集団発生はほとんどなく、カキが関連してG2とともにG1が検出される場合を除いて、集団発生はすべてG2単独の事例である。なお、事例6では調理従事者1名からG1が検出され、一方で、患者からはすべてG2が検出されたが、直接の関係は薄いと考えられる。事例8でも、調理従事者1名からG1が検出されているが、患者の検便は行っておらず、詳細な状況は不明である。また、事例10は、生カキが関連した事例で、G1とG2の両方が検出された。

当所では、患者糞便から、RT-PCR法でノロウイルスを検出する場合、感度および時間的な問題からcapsid領域のSKF/R系のプライマーを使用しているが、今回は、事例ごとの特性を遺伝子解析で見出すため、またプライマーの感度を再検討するため、以前に実施していたpolymerase領域のプライマーも複数用いて検出を行った。その結果、polymerase領域のP1P3は、capsid領域のSKF/R系と同等の感度があることが確認された。しかし、その他のプライマーは感度が下がり、特に、以前汎用されていた35/36系やNV81/82は極端に低下した。また、NV81SM82とYuri22F/Rは、単独ではP1P3

に及ばないものの、両者を組み合わせれば同等の感度を得ることができた。従って、ノロウイルスの検出のみであれば、capsid領域のSKF/R系だけでなく、polymerase領域のP1P3の単独か、NV81SM82とYuri22F/Rの併用も有用と考えられた。

(2) 検出ノロウイルスの遺伝子解析について

平成16年度に検出されたノロウイルスは、事例10で検出したものを除きcapsid領域の解析で、すべてG2のLordsdaleタイプであった。このタイプは、以前にも、石川県内の集団発生や感染症発生動向調査で散発的に検出されていたが、年間の集団発生を通してすべてがこのタイプということは経験したことがなかった。そこで、事例ごとの分子疫学的特性を見出すため、相同性解析を実施し、あわせてpolymerase領域についても再度解析を行った。その結果、今回検出されたLordsdaleタイプは4つの細かいタイプにわけることができた。さらに感染症発生動向調査(病原体定点)における小児の胃腸炎でも同タイプが検出されており、このタイプが県内において、広範な年齢層で流行していたことが示唆された。また、これらのデータから、類似タイプの集団発生が頻発した時でも、ある程度まで事例ごとの特性を見出すことは可能と思われた。一方で、このタイプは石川県のみならず全国的に検出されているが¹⁻³⁾、近年、感染力や病原性が高まったとの証拠はまだ確認されていない。今後、ノロウイルスによる胃腸炎の集団発生時には、これらの点まで考慮し注意深く監視していきたい。

(3) 感染症発生動向調査について

平成16年度のノロウイルスによる集団胃腸炎は、合計12事例で、うち10事例は11月下旬から翌年2月にかけて発生し、特に、1月には6事例と集中していた。さらに発生施設別にみると、12事例中4事例が老人関連施設で発生しており、例年1事例前後の発生であるのと比べ多い状況であった。参考までに、平成15年度の発生状況を見ると、ノロウイルスによる集団胃腸炎は合計8事例で、老人関連施設での発生は1事例のみである。

これを平成16年度の石川県感染症発生動向調査(患者定点)と比較してみると、感染性胃腸炎の報告数は、12月下旬と1月中旬から下旬にかけての2つのピークがあり、地域的にみると石川中央、南加賀、金沢市での報告数が非常に多かった。県内でのノロウイルスによる集団胃腸炎もこの時期に集中しており、また発生施設も加賀地域の施設が多かった。なお、感染症発生動向調査の場合、感染性胃腸炎には原因がノロウイルス以外にも含まれること、また、小児科定点のみの報告であることから、ノロウイルスによる集団発生と単純に関連付けはできないが、この時期に、石川中央、南加賀、金沢市を中心に

幅広い年齢層でノロウイルスが流行していたことが推測される。

平成16年度はノロウイルスの集団感染が全国的に話題になったが、石川県における感染症発生動向調査の感染性胃腸炎の報告数を15年度と比較すると、全体の総報告数、定点あたりの総報告数ともに16年度の方が上回っていた。さらに報告数の急激な上昇があった時や、持続的に高い状態が続いている時などは、ノロウイルスによる集団胃腸炎の発生頻度が高い傾向にあり、感染予防対策を喚起するとともに、注意深く監視する必要があると考えられた。

5 ま と め

(1) ノロウイルス検査結果および遺伝子解析について

平成16年度のノロウイルスによる集団胃腸炎は12事例あり、検査に使用するプライマーをこれらの事例で検討したところ、capsid領域のSKF/R系と、polymerase領域のP1P3が感度的に最も良好であった。これらの検出遺伝子を解析したところ、12事例中10事例はG2のLodsdaleタイプによるものであり、これらはさらに4つの細かいタイプに分類することができた。

さらに、感染症発生動向調査(病原体定点)における小児の胃腸炎においても同タイプが検出されており、このタイプが県内において、広範な年齢層で流行していた

ことが示唆された。

(2) 感染症発生動向調査について

平成16年度の感染性胃腸炎発生のピークは、12月下旬と1月中旬から下旬にあり、地域的には石川中央、南加賀、金沢市で定点あたりの報告数が他地域に比べ高かった。また、ノロウイルスによる集団胃腸炎は、これと同時期に同地域を中心に発生がみられた。

なお、平成16年度はノロウイルスの集団感染が全国的に話題になったが、本県では、前年度の感染症発生動向調査と比較して、感染性胃腸炎の報告数は多い傾向がみられた。

文 献

- 1) ウイルス性下痢症診断マニュアル, 国立感染症研究所, 44-66
- 2) 山崎謙治, 大山 徹, 宇田川悦子, 川本尋義: 感染症学雑誌: 74, 470-475(2001)
- 3) 田村 努, 西川 真, 西尾 治, 鈴木 宏: 第48回日本ウイルス学会学術集会・総会プログラム・抄録集, 241(2004)
- 4) 杉枝正明, 愛木智香子, 秋山美穂, 西尾 治: 第46回日本臨床ウイルス学会プログラム
- 5) 松岡由美子, 平野敬之, 小河正雄: 第46回日本臨床ウイルス学会プログラム

〔報 文〕

食品中の組換え遺伝子検知法の検討（第1報）

—— 豆腐からの GMO 検出事例 ——

石川県保健環境センター健康・食品安全科学部 小野 陽介・山田 恵子・塚 林 裕

キーワード：遺伝子組換え食品，定性 PCR，定量 PCR，DNA 抽出

1 はじめに

わが国では平成13年4月より「農林物資の規格化及び品質表示の適正化に関する法律」（JAS 法）および食品衛生法の一部改正により遺伝子組換え（GM）食品の表示制度が施行された¹⁾²⁾。

これにより，食品として安全性審査が終了した遺伝子組換え体（GMO）及びこれらを含む加工食品においては，組換えられた DNA 又はこれによって生じたタンパク質が存在するものについて，GMO を使用している旨を表示することが必要となった。ただし大豆及びトウモロコシ穀粒では，GMO と非遺伝子組換え体（non-GMO）が混入しないように適切に分別生産流通管理（Identity Preserved Handling：IP ハンドリング）を行った non-GMO については流通の過程で意図しない混入が 5 % を超えない場合には表示の必要はない。

当県においても県内で製造されている豆腐の適正表示を確認するため，豆腐中の GM 大豆混入の調査及びその原料大豆の GM 大豆混入率の調査を行った。その結果，原料として GM 大豆を使用していない旨の表示をしている豆腐から組換え DNA を検出したことから，さらにその豆腐の原料大豆について GMO 混入率が 5 % 以下であるかの確認試験を行った。このように実際に販売されている加工食品（豆腐）とその原料の大豆について同時に試験を行った報告はなく，今回の調査からいくつかの知見が得られたので報告する。

2 材料と方法

2・1 材 料

石川県内の豆腐製造業者から平成16年10月に収去された GMO を原料として含まない旨の表示が行われている豆腐または表示がない豆腐計20検体，およびその原料大豆を用いた。原料大豆については，生産国・IP ハンドリングの実施について確認が行われており，豆腐に複数の原料大豆が使用されている場合はその使用割合も確認を行った。

2・2 検査対象 GMO

(1) 定性試験

豆腐において除草剤耐性の Roundup Ready 大豆の組換え遺伝子（RRS）を検査対象にした。なお大豆に普遍的に存在する内在性遺伝子として大豆レクチン遺伝子（Le1）を同時に検査した。

(2) 定量試験

豆腐の定性試験を行い RRS が検知されたものについては，豆腐およびその原料大豆穀粒について定量試験を行った。定量試験では内在性遺伝子としてレクチン遺伝子（Le1），組換え遺伝子として RRS を検査対象とした。

2・3 試 薬

(1) プライマー・プローブ・陽性コントロール

プライマー，プローブ，陽性コントロールに関しては，厚生労働省通知（以下通知法）³⁾に記載されているものを用いた。

(2) その他の試薬

Detection Method of Recombinant DNA in Foods. (1st Report) -A Study of Genetically Modified Organisms from TOFU-by ONO Yousuke, YAMADA Keiko and TSUKABAYASHI Hiro (Health and Food SafetyDepartment, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Genetically modified food, Qualitative PCR, Quantitative PCR, DNA extraction

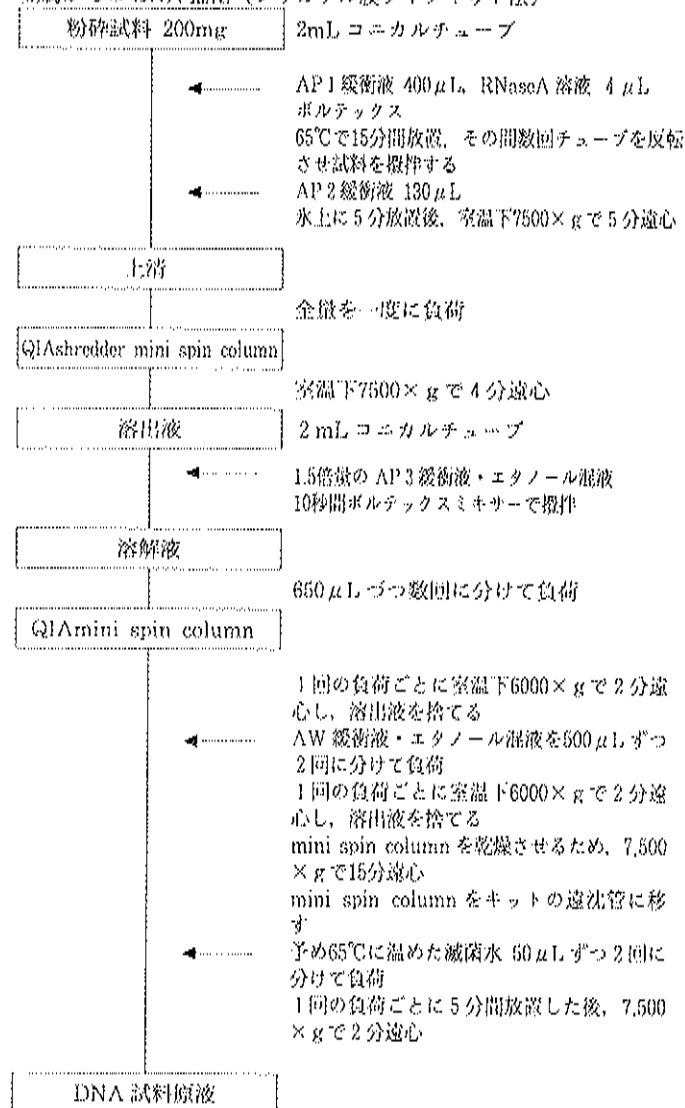
ア 豆腐の DNA 抽出に用いるシリカゲル膜タイプキットはキアゲン社の DNeasy Plant Mini Kit を用いた。キットに使用する緩衝液はキットに付属したものを用いた。

アガロースは宝酒造醸製の Agarose S, エチジウムブロマイドはニッポンジーン社製 ($10 \mu\text{g}/\text{mL}$) を用いた。

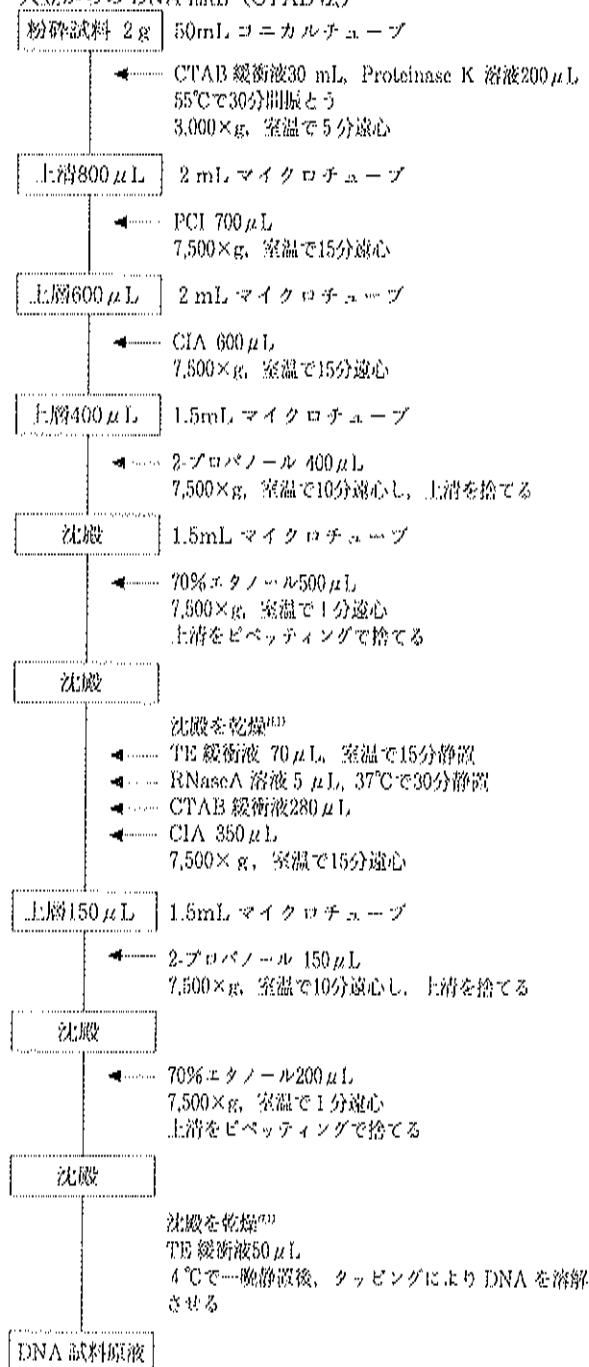
DNA ポリメラーゼは Ampli Taq Gold ($5\text{U}/\mu\text{L}$) (Applied Biosystems 社製) を用いた。PCR 緩衝液, dNTP, 塩化マグネシウムも Applied Biosystems 社のものを用いた。

イ 大豆の DNA 抽出に用いる RNase はニッポンジーン社製 ($10 \mu\text{g}/\text{mL}$) を, Proteinase K はキアゲン社製 ($20 \mu\text{g}/\text{mL}$) を用いた。

豆腐からの DNA 抽出 (シリカゲル膜タイプキット法)



大豆からの DNA 抽出 (CTAB 法)



⁶⁾ 遠心濃縮機を使用する場合, 室温で2~3分にする

図 1 豆腐および大豆からの DNA 抽出のフロー

Universal PCR Master Mix は Applied Biosystems 社のものを用いた。

ウ この他、試薬は特に断りのない限り特級試薬を用いた。また、試験全般に用いる水はすべて逆浸透膜精製した RO 水を Milli-Q で $17\text{ M}\Omega/\text{cm}$ まで精製した超純水を用いた。

2・4 装置

豆腐の粉碎、均質化にはエースホモジナイザー（日本精機）、大豆穀粒の粉碎には高速遠心型粉砕機 Z M200（Retsch）を用いた。吸光度計は分光光度計 UV-160A（島津）、PCR は GeneAmp PCR System 9700（Applied Biosystems）、ゲルイメージ解析装置はルミノ・イメージアナライザー LAS 1000 UV mini（フジ写真フィルム）を用いた。定量 PCR はリアルタイム PCR 装置 ABI PRISM 7000（Applied Biosystems）を用いた。

2・5 DNA 溶液の調整

通知法に従い豆腐からの DNA の抽出はシリカゲル膜タイプキット法を用いて行い、大豆穀粒に関してはセチルトリメチルアンモニウムブロマイド（CTAB）法で行った。試料採取量等の具体的な方法に関しては、すでに検討されている他の文献³⁾を参考にしフロー（図1）の通りとした。

2・6 DNA 溶液の濃度測定および純度確認

抽出した DNA の濃度測定および純度確認を吸光度測定により行った。ディスポーザブルのセルを使用するため、各検体測定のために 320 nm の測定を行い、その測定値をブランク値とした。通知法に従い $\text{O.D.}260\text{ nm}$ の値が1のとき DNA の濃度を $50\text{ ng}/\mu\text{L}$ として DNA 濃度を計算する。また、 $\text{O.D.}280\text{ nm}$ の測定を行い $\text{O.D.}260\text{ nm}/\text{O.D.}280\text{ nm}$ （今回はブランクを差し引いた $\text{O.D.}_{260-320}/\text{O.D.}_{280-320}$ ）を算出し純度の確認を行った。さらに、通知法に記載はないが、 $\text{O.D.}230\text{ nm}$ の測定を行い $\text{O.D.}260\text{ nm}/\text{O.D.}230\text{ nm}$ （同様にブランクを差し引いた $\text{O.D.}_{260-320}/\text{O.D.}_{230-320}$ ）も算出し純度の確認を行った。

2・7 PCR 反応条件と組換え DNA の検知

豆腐から抽出した DNA は通知法に従って定性 PCR 反応を行った。PCR 反応液濃度は、 $1\times\text{PCR}$ 緩衝液、 0.20 mmol/L dNTP、 3 mmol/L 塩化マグネシウム、 $0.2\text{ }\mu\text{mol/L}$ プライマーおよび 0.625 units の DNA ポリメラーゼになるように混合し、 $10\text{ ng}/\mu\text{L}$ に希釈した DNA 溶液を $2.5\text{ }\mu\text{L}$ および水を加え全量を $25\text{ }\mu\text{L}$ にした。PCR は 95°C に10分間保持後 95°C 30秒間、 60°C 30秒間、 72°C 30秒間を1サイクルとして40サイクルの増幅反応を PCR 装置で行った。

この PCR 反応液 $5\text{ }\mu\text{L}$ とゲルローディング緩衝液

$1\text{ }\mu\text{L}$ を混合後2.0%アガロースゲル（エチジウムブロマイド5%を含む）に負荷し、TAE 緩衝液中 100 V の定電圧で電気泳動を行った。泳動後、UV 照射装置上で 302 nm の照射により検査対象の GMO の陽性対照と同一の泳動位置にバンドが観察された場合に GMO が検知されたと判断した。

2・8 定量 PCR

Universal PCR Master Mix $37.5\text{ }\mu\text{L}$ 、プライマー $0.5\text{ }\mu\text{L}$ 、プローブ $0.2\text{ }\mu\text{L}$ を混合し、次いで $20\text{ ng}/\mu\text{L}$ に希釈調整した DNA 溶液を $7.5\text{ }\mu\text{L}$ を加え水で全量 $75\text{ }\mu\text{L}$ にした。これを $25\text{ }\mu\text{L}$ ずつ DNA 定量用の反応プレート3ウェルに分注した。PCR の反応は 50°C に2分間保った後 95°C で10分間保持した。次いで 95°C 30秒間、 50°C 1分間を1サイクルとして45サイクルの増幅反応を定量 PCR 装置で行った。

増幅反応終了後、通知に準じて大豆中の GMO 混入率を算出した。また、通知法²⁾には分析法が記載されていないが豆腐についても大豆穀粒の方法と同様に定量 PCR により定量を行い、比較した。

3 結果および考察

3・1 豆腐からの DNA の抽出

豆腐からの DNA の抽出は通知法に記載されている DNeasy Plant Mini Kit を用いた。抽出された DNA の量・純度は表1に示すように DNA 溶液の吸光度から判断される。DNA の吸収極大は 260 nm であり、 $\text{O.D.}260\text{ nm}$ の値が1のとき DNA の濃度を $50\text{ ng}/\mu\text{L}$ として DNA 濃度を計算する。また、 280 nm の吸収はタンパク質などの吸収であるとされ $\text{O.D.}260\text{ nm}/\text{O.D.}280\text{ nm}$ が $1.7\sim 2.0$ になれば DNA として十分に精製されていることを示す。同様に 230 nm 付近の吸収は多糖類等の吸収であり、 $\text{O.D.}260\text{ nm}/\text{O.D.}230\text{ nm}$ の比も DNA 純度の目安となる（ $1.6\sim 1.7$ 程度）。表より、抽出された DNA はその後の PCR に使用可能な純度のものであった。

3・2 豆腐の定性 PCR 結果

抽出された DNA について PCR 反応を行い、アガロースゲル電気泳動によって原料に RRS が含まれているかを試験した。

豆腐20検体中16検体（80%）には「原料に遺伝子組換え大豆を使用していない」と表示がされ、そのうち2検体（10%）には原料に「国産大豆」を使用している表示があった。他の4検体（20%）は GMO に関する表示はなかった。食品衛生法では原料に GMO を使用している場合はその旨表示する義務がある。また、GMO と非 GMO の区別がつかない原料を使用した場合もその

表 1 豆腐から抽出した DNA の吸光度測定結果

	O.D.320nm	O.D.280nm	O.D.260nm	O.D.230nm	O.D.200nm-320nm	O.D.320nm-350nm/O.D.280nm-320nm	O.D.320nm-350nm/O.D.260nm-320nm	DNA 濃度 (ng/ μ L)
豆腐 1	0.048	0.274	0.476	0.300	0.428	1.9	1.7	42.8
豆腐 2	0.079	0.442	0.734	0.497	0.665	1.8	1.6	65.5
豆腐 3	0.056	0.352	0.606	0.378	0.550	1.9	1.7	55.0
豆腐 4	0.065	0.391	0.662	0.444	0.597	1.8	1.6	59.7
豆腐 5	0.020	0.179	0.322	0.199	0.302	1.9	1.7	30.2
豆腐 6	0.002	0.292	0.546	0.309	0.544	1.9	1.8	54.4
豆腐 7	0.023	0.325	0.582	0.354	0.559	1.9	1.7	55.9
豆腐 8	0.028	0.289	0.512	0.325	0.484	1.9	1.6	48.4
豆腐 9	0.035	0.344	0.607	0.390	0.572	1.9	1.6	57.2
豆腐10	0.004	0.224	0.429	0.256	0.433	1.9	1.7	43.3
豆腐11	0.055	0.403	0.686	0.434	0.631	1.8	1.7	63.1
豆腐12	0.052	0.385	0.658	0.416	0.606	1.8	1.7	60.6
豆腐13	0.041	0.447	0.766	0.485	0.725	1.8	1.6	72.5
豆腐14	0.046	0.278	0.479	0.277	0.433	1.9	1.9	43.3
豆腐15	0.031	0.170	0.300	0.179	0.269	1.9	1.8	26.9
豆腐16	0.034	0.483	0.805	0.514	0.771	1.7	1.6	77.1
豆腐17	0.035	0.510	0.835	0.545	0.800	1.7	1.6	80.0
豆腐18	0.056	0.441	0.731	0.463	0.676	1.8	1.7	67.6
豆腐19	0.023	0.130	0.223	0.140	0.200	1.9	1.7	20.0
豆腐20	0.035	0.508	0.839	0.558	0.804	1.7	1.5	80.4

抽出した DNA 溶液を 2 倍に希釈して吸光度を測定した。

表 2 豆腐の組換え遺伝子の検査結果 (対象組換え遺伝子: RRS)

	表示の有無	原料大豆の内訳		判定結果
		国産大豆使用	外国産大豆使用	
豆腐 1	○		●	陽 性
豆腐 2	○		●	陽 性
豆腐 3			●	陽 性
豆腐 4	○		●	陽 性
豆腐 5	○		●	陽 性
豆腐 6	○		●	陽 性
豆腐 7	○		●	陽 性
豆腐 8			●	陽 性
豆腐 9	○	●		陰 性
豆腐10	○	●	●	陽 性
豆腐11			●	陽 性
豆腐12	○		●	陽 性
豆腐13	○		●	陽 性
豆腐14	○		●	陽 性
豆腐15	○		●	陽 性
豆腐16	○		●	陽 性
豆腐17	○		●	陽 性
豆腐18	○*	●		陽 性
豆腐19			●	陽 性
豆腐20	○**	●		陰 性

○ : 遺伝子組換え大豆使用せず ○* : 国産大豆使用
○** : 国産大豆100%使用 ● : 使用している

旨表示する義務があるが、非 GMO を原料として用いた場合の表示は任意である。したがって、検査を行った豆腐20検体すべてで原料には GMO を用いていないことになる。しかし18検体(90%)で陽性の結果となった

(表2)。これは、他の報告例よりも高い陽性率であった¹⁾。

3・3 原料大豆からの DNA の抽出

豆腐中に組換え DNA の存在が明らかになった(定性陽性)検体について、原料大豆中の組換え大豆の混入率を定量的に測定する目的で DNA の抽出を行った。

大豆からの DNA の抽出は CTAB 法を用いた。CTAB 法は公定法として採用されている方法ではあるが手技的に煩雑であり熟練を要するため、抽出された DNA の量や質に実験者の差が生じやすい抽出法とされる¹⁾。今回の抽出された DNA については表3に示したとおり、DNA の量、純度ともにこの後の定量 PCR を行うのに満足したものが得られた。

3・4 原料大豆の定量結果並びに豆腐の定量結果

抽出された原料大豆の DNA を用いて定量 PCR を行い、原料大豆に含まれる GMO の混入率を求めた(表4)。個々の大豆の混入率は0.00~0.62%となり、表示の対象となる

5%を超えた混入率の大豆は無かった。

さらに豆腐から抽出された DNA についても定量 PCR を行ってみた(表4)。なお、豆腐や納豆等の加工食品は加工され製品になる段階で加熱により DNA の分解を起

表 3 大豆穀粒から抽出した DNA の吸光度測定結果

	O.D.320nm	O.D.280nm	O.D.260nm	O.D.230nm	O.D.260nm-280nm	O.D.320nm-280nm/O.D.260nm-280nm	O.D.320nm-280nm/O.D.230nm-280nm	DNA 濃度 (ng/μL)
原料大豆 1	0.040	0.602	0.950	0.490	0.910	1.6	2.0	364
原料大豆 2	0.033	0.404	0.688	0.322	0.655	1.8	2.3	262
原料大豆 3	0.031	0.512	0.833	0.386	0.802	1.7	2.3	321
原料大豆 4	0.032	0.510	0.863	0.408	0.895	1.7	2.0	358
原料大豆 5	0.001	0.613	0.957	0.488	0.956	1.6	2.0	382
原料大豆 6	0.015	0.402	0.693	0.311	0.678	1.8	2.3	271
原料大豆 7	0.036	0.362	0.605	0.255	0.569	1.8	2.6	228
原料大豆 8	0.009	0.474	0.797	0.366	0.788	1.7	2.2	315
原料大豆 9	0.032	0.544	0.881	0.436	0.849	1.7	2.1	340
原料大豆10	0.029	0.438	0.745	0.332	0.716	1.8	2.4	286
原料大豆11	0.010	0.472	0.797	0.351	0.787	1.7	2.3	315
原料大豆12	0.004	0.521	0.864	0.406	0.860	1.7	2.1	344
原料大豆14	0.023	0.495	0.829	0.391	0.806	1.7	2.2	322
原料大豆15	0.036	0.408	0.683	0.294	0.647	1.7	2.5	259
原料大豆16	0.087	0.526	0.821	0.380	0.734	1.7	2.5	294
原料大豆17	0.011	0.405	0.688	0.261	0.677	1.7	2.7	271
原料大豆18	0.015	0.359	0.625	0.235	0.610	1.8	2.8	244
原料大豆19	0.046	0.406	0.675	0.288	0.629	1.7	2.6	252
原料大豆20	0.057	0.506	0.804	0.418	0.747	1.7	2.1	299
原料大豆21	0.071	0.400	0.653	0.268	0.582	1.8	3.0	233
原料大豆22	0.016	0.509	0.836	0.377	0.820	1.7	2.3	328
原料大豆23	0.060	0.432	0.694	0.296	0.634	1.7	2.7	254
原料大豆24	0.039	0.348	0.588	0.236	0.549	1.8	2.8	220
原料大豆25	0.010	0.326	0.573	0.202	0.563	1.8	2.9	225
原料大豆26	0.027	0.292	0.507	0.167	0.480	1.8	3.4	192

抽出した DNA 溶液を 8 倍に希釈して吸光度を測定した。

こす可能性が指摘され³¹⁻³³⁾、加工食品の定量結果をもって表示の正確性を確保できないとして通知法には加工食品の定量法が現在記載されていない。加工食品のうち豆腐については加熱の影響が比較的低いとされており今回参考に定量を行ってみた。大豆、豆腐ともに 0.00~0.62% という低い数値での比較であり、さらに抽出法が異なっているが原料大豆に比べ豆腐での混入率が低くなる傾向であった。

今回大豆穀粒からの CTAB 法を用いた DNA 抽出において内在性遺伝子のコピー数が少なくなるという問題が生じた。CTAB 法を用いて抽出された大豆穀粒由来 DNA では内在性遺伝子のコピー数は 4000~68000 (平均値 22300, n=25) となった。通知による混入率の算出式は以下のとおりであるので内在性遺伝子のコピー数が少なければ混入率の結果にも大きく影響する。

混入率 (%) =

$$\frac{(\text{各組換え体遺伝子のコピー数})}{(\text{内在性遺伝子のコピー数}) \times 0.95(\text{内標比})} \times 100$$

さらには、内在性遺伝子のコピー数の低下は定量限界値を決める上でも大きな要因となる³¹⁻³³⁾。実際に定量限界値を 0.1% にしたいとすると、検量線に用いる標準物質の組換え体の最小コピー数が 20 コピーであることから内

在性遺伝子は少なくとも 20000 コピー必要となる。このように内在性遺伝子のコピー数が少なくなる原因が抽出法にあるのか、又は大豆穀粒という検体にあるのかは今後検討していく予定である。しかしながら、前にも述べたが CTAB 法は個人差を生じやすく、有害な有機溶媒を使用する試験法であり、通知法には大豆穀粒からの DNA の抽出法に CTAB 法以外にも記載されていることから今後大豆からの DNA 抽出法の検討が必要と考えている³⁰⁾。

4 ま と め

(1) 調査した豆腐は、任意表示にもかかわらず非 GMO 表示が記されている商品がほとんどであり、消費者並びに製造業者の関心の高さが分かる。

(2) GMO 使用の表示が無くとも原料として国産大豆を使用していないものすべてにおいて定性 PCR で GMO の混入が疑われた。また国産大豆使用と表示されていても混入の疑われるものもあった。ただしこれについては単一原料の国産大豆の定量 PCR では不検出であったので、加工過程での汚染と推定される。

(3) 定性陽性となった豆腐の輸入原料大豆の GMO 混入率は 5% を明らかに下回るものであった。IP ハンド

表 4 原料大豆および豆腐に含まれる GMO 混入率の定量結果

試料番号		内在性配列コピー数	特異的配列コピー数	混入率(%)		備考
豆腐1		41591.16	8.91	0.02		
原料大豆1	使用割合50：40	5198.44	2.46	0.03	0.06	
原料大豆2		23138.00	22.11	0.12		
豆腐2		36147.50	4.07	0.01		
原料大豆3	使用割合50：50	4272.06	0.00	0.00	0.00	
原料大豆4		67872.34	0.00	0.00		
豆腐3		44560.07	11.42	0.01		
原料大豆5	使用割合100	19226.03	13.95	0.07		
豆腐4		48994.82	6.16	0.01		
原料大豆6	使用割合100	14948.06	8.23	0.06		
豆腐5		50197.68	18.49	0.04		
原料大豆7	使用割合50：50	19322.89	8.24	0.07	0.07	
原料大豆8		22573.93	15.14	0.07		
豆腐6		56681.87	56.29	0.10		
原料大豆9	使用割合100	17245.00	9.75	0.06		
豆腐7		32958.17	12.60	0.04		
原料大豆10	使用割合50：50	15932.00	35.86	0.25	0.12	
原料大豆11		26820.00	0.00	0.00		
豆腐8		55117.80	20.31	0.04		
原料大豆12	使用割合100	20452.50	9.21	0.05		
豆腐9		46380.02	0.00	0.00		定性陰性
原料大豆13	使用割合100	—	—	—		国産大豆使用
豆腐10		85925.04	2.87	0.00		残り50％は 国産大豆使用
原料大豆14	使用割合50	34617.50	4.46	0.02		
豆腐11		32339.25	41.11	0.14		
原料大豆15	使用割合50：50	24572.28	34.29	0.15	0.09	
原料大豆16		25813.94	10.71	0.04		
豆腐12		54628.33	42.70	0.08		
原料大豆17	使用割合50：50	15186.81	87.83	0.62	0.31	
原料大豆18		31305.78	0.00	0.00		
豆腐13		53161.05	14.86	0.03		
原料大豆19	使用割合100	22968.33	14.01	0.06		
豆腐14		34217.26	2.36	0.01		
原料大豆20	使用割合50：50	14563.65	9.89	0.07	0.03	
原料大豆21		22971.84	0.00	0.00		
豆腐15		36440.73	6.97	0.01		
原料大豆22	使用割合50	14757.14	0.00	0.00		
豆腐16		40007.63	12.07	0.03		
原料大豆23	使用割合100	21493.64	0.00	0.00		
豆腐17		39293.18	10.58	0.03		
原料大豆24	使用割合100	22647.26	0.00	0.00		
豆腐18		50318.75	9.89	0.02		定性陽性 原材料名国産のみ
原料大豆25	使用割合100	28498.97	0.00	0.00		
豆腐19		26210.51	2.14	0.01		
原料大豆26	使用割合100	19858.91	0.00	0.00		
豆腐20		59402.48	0.00	0.00		定性陰性 国産大豆使用
原料大豆27	使用割合100	—	—	—		

リングの効果が実証された。

(4) 定量試験において大豆穀粒と豆腐の混入率を比較すると豆腐の混入率が低い傾向にあり、製造工程での DNA の分解を示唆している。ゆえに、加工品の定量による表示の監視を行うには今後更なる検討が必要である。

(5) 大豆穀粒から CTAB 法で抽出された DNA での内在性遺伝子のコピー数が低く、通知で示された検出限界0.1%を確保できる20000コピー以上の内在性遺伝子 (Le1) が得られる抽出法の検討が必要である。

(6) 現在加工食品については JAS 法で定性試験が記

載されているが、食品衛生法では RRS のように安全性確認が終了しているような GMO を使用した加工食品における試験法は明記されていない。今回定性陽性に対応する定量値も確認し、その原料大豆との定量値の比較も行った。その結果、定性陽性と判断された豆腐で定量結果でも組換え遺伝子が検出された。定性法は十分な感度を持ち、表示のの確認のための簡易試験として有効であることが分かった。ただし定性陽性となった場合は、原料大豆に遡った定量試験等の確認が必要である。

文 献

- 1) 農林水産省食品流通局長通知「加工食品品質表示基準等の設定について」(平成12年4月4日 食流第599号)
- 2) 厚生労働省通知「組換え DNA 技術応用食品の検査法について」(平成13年3月27日 食発第110号)
- 3) 曾根美千代他：宮城県保健環境センター年報, 21, 70-74 (2003)
- 4) 門間公夫他：食品衛生学雑誌, 45 (4), 184-190 (2004)
- 5) 渡邊敬浩他：第88回日本食品衛生学会学術講演会講演要旨集, 108 (2004)
- 6) 渡邊敬浩他：第88回日本食品衛生学会学術講演会講演要旨集, 109 (2004)
- 7) 渡邊敬浩他：第89回日本食品衛生学会学術講演会講演要旨集, 54 (2005)
- 8) 杉浦義紹：第40回全国衛生化学技術協議会年会講演要旨集, 86-87 (2004)
- 9) 扇谷陽子：札幌市衛研年報, 31, 41-47 (2004)
- 10) 中間昭彦：食品衛生学雑誌, 45 (4), 184-190 (2004)

〔報 文〕

食品に混入した毒物等に係る迅速分析法

—— 血糖降下剤について ——

石川県保健環境センター健康・食品安全科学部 宮川 茂樹・中村 朋子・砺波 和子

キーワード：食品，毒物，迅速分析，血糖降下剤

1 はじめに

当センターでは平成11年度から、食品中の混入した毒物等による健康危機管理事例に対し、迅速かつ的確に原因物質を特定するため、アジ化ナトリウムやシアン化合物、農薬類等主に毒劇物を対象に迅速分析法を確立してきた^{1)~3)}。今回、これまでに未検討であった医薬品の毒薬、劇薬のうち血糖降下剤成分を対象に検討を行ったので報告する。

血糖降下剤は糖尿病の治療薬として用いられる医薬品であるが、用法用量を誤ると低血糖などの重篤な健康障害を及ぼす可能性の高い医薬品である。平成15年にはいわゆる健康食品中に含まれていた血糖降下剤のグリベンクラミドによる健康被害が石川県内でも発生している⁴⁾。

厚生労働省「平成14年 糖尿病実態調査(速報)」によると、糖尿病が強く疑われる人および糖尿病の可能性を否定できない人は約1,620万人と平成9年の同調査の約1,370万人と比較して増加している。糖尿病の治療の1つとして血糖降下剤が投与されることから、日常生活の中でそれらを容易に手にすることができ、食品中に混入することも予想される。そこで、血糖降下剤が食品中に混入した健康危機管理事例を想定し、液体クロマトグラフ質量分析装置(LC/MS)を用いた迅速分析について検討した。

2 試験方法

2・1 対象薬剤成分

表1に示す医療用の血糖降下剤(スルホニル尿素系、ビグアナイド系)の7成分を対象とした。

2・2 対象食品

市販の茶、ジュース、牛乳、ウスターソース、カレー、即席麺を対象食品とした。半固形食品のカレー及び固形食品の即席麺は細切均一化して用いた。

2・3 標準品及び試薬

(1) 標準品

グリベンクラミド、グリクラジド及び塩酸ブホルミンは和光純薬工業(株)製生化学用、クロルプロバミドはICN Biomedicals社製、塩酸メトホルミンは和光純薬

表 1 調査対象薬剤成分

成 分 名	用量 (mg/日) ^{a)}	最大用量 ^{b)}
スルホニル尿素系		
グリベンクラミド	1.25~2.5	1日10mgを超えない
グリクラジド	40~120	1日160mgを超えない
クロルプロバミド	100~125	1日最高500mg
トルブタミド	500~1,000	1日最高2,000mg
ビグアナイド系		
塩酸ブホルミン	100	1日最高150mg
塩酸メトホルミン	500	1日最高750mg
塩酸フェンホルミン	100	—

※) 財団法人 日本医薬情報センターの医薬品情報データベース
(<http://database.japic.or.jp>) より引用
塩酸フェンホルミンの最大用量については参考文献なし

Rapid Determination of Poisons added in Food — A Case of Blood Sugar Descent Medicine —
by MIYAKAWA Shigeki, NAKAMURA Tomoko and TONAMI Kazuko (Health and Food
Safety Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental
Science)

Key words : Food, Poisons, Rapid determination, Blood sugar descent medicine

工業(株)製、塩酸フェンホルミンはSIGUMA社製、トルブタミドはアベンティスファーマ(株)製日本薬局方製剤を用いた。

(2) 試薬

アセトンは和光純薬工業(株)残留農薬用試薬、アセトニトリルは和光純薬工業(株)HPLC用試薬、酢酸アンモニウムは和光純薬工業(株)試薬特級を用いた。

2・4 試験方法

(1) 標準溶液の調製

各標準品を20mg秤取り、スルホニル尿素系血糖降下剤成分はアセトンで、ビグアナイド系成分は少量の水で溶解させた後、アセトンで20mlとし、標準原液とした(1,000 $\mu\text{g/ml}$ 溶液)。食品への添加用標準溶液はそれぞれの標準原液から100 $\mu\text{g/ml}$ 混合アセトン標準溶液を調製し、これを用いた。また混合アセトン標準溶液を適量分取し、窒素気流下でアセトンを除いた後アセトニトリルに溶媒置換し、検量線作成用標準溶液とした。

(2) 試験溶液の調製

試料2gにアセトン20mlを加え、茶、ジュースは超音波抽出10分間、それ以外の食品は振とう抽出を5分間行った後超音波抽出5分間行い、次いで遠心分離してその上澄みを分取した。残査にアセトン20mlを加えて同様の操作を行い、上澄みを併せてアセトンで100mlに定容した。その抽出溶液を0.5ml分取し、窒素を吹きつけてアセトンを除き、アセトニトリル1mlに溶解させた後、0.45 μm メンブランフィルターでろ過し、試験溶液とした。

(3) 定量

液体クロマトグラフ質量分析装置(LC/MS)を用いて0.1, 0.25, 0.5, 1.0, 2.0 $\mu\text{g/ml}$ の5段階の標準溶液についてSIMモードにて測定を行い、得られた定量イオンのピークの面積から絶対検量線法により検量線を作成した。試験溶液は標準溶液と同様の条件で測定を行い、得られた各成分の定量イオンのピークの面積より、検量線を用いて試験溶液中の各成分濃度を算出した。

定量に用いた各成分の定量イオン(M/z)は表2のとおりである。

2・5 装置及び測定条件

(1) 液体クロマトグラフ(LC)の条件について

使用機器: Agilent 1100

カラム: Shimadzu VP-ODS (粒径3 μm , 内径2.0

表 2 調査対象成分の定量イオン(M/z)及びリテンションタイム(RT)

成 分 名	M/z (Positive)	RT (分)	
		移動相混合条件①	移動相混合条件②
スルホニル尿素系			
グリベンクラミド	494.2	7.7	17.9
グリクラジド	324.2	4.5	16.6
クロルプロバミド	277.1	2.4	13.2
トルブタミド	271.2	3.5	15.3
ビグアナイド系			
塩酸ブホルミン	168.2	2.3	2.3
塩酸メトホルミン	130.2	2.2	2.2
塩酸フェンホルミン	206.2	2.7	12.0

mm, 長さ150mm (株)島津製作所製)

カラム温度: 40°C

移動相: A液: 20mM 酢酸アンモニウム水溶液

B液: アセトニトリル

混合条件: 測定開始後 A:B 90:10 2分間保持, その後13分間で A:B 90:10から20:80の濃度勾配で送液後, 8分間保持。

流速: 0.2ml/min

注入量: 10 μl

(2) マスクロマトグラフ(MS)の条件について

使用機器: Agilent 1100MSD (SL)

イオン化方法: エレクトロスプレーイオン化(ESI)法 (Positive モード)

測定モード: SIM

Fragmentator: 100V

脱溶媒温度: 350°C

ドライガス (N_2): 10l/min

キャピラリー電圧: 3000V

3 結果と考察

3・1 食品への添加量

各成分の食品の添加量については、表1に示した1日の最大用量が食品100g中に混入した場合を想定し、最もその量が低いグリベンクラミドにあわせることとし、各食品2g中に各薬剤成分200 μg を添加して、その分析方法について検討した(想定混入濃度100 $\mu\text{g/g}$)。

3・2 抽出および前処理操作

抽出溶媒については、ビグアナイド系成分は塩酸塩であるため、水が最も抽出効率の良い溶媒であるが、水にほとんど溶解しないスルホニル尿素系成分は抽出されないことが予想された。そこで本法では熊坂ら¹⁰⁾が健康食品中のグリベンクラミドの抽出にアセトンを用いていること、さらに筆者らが検討してきた食品中へ農薬が混入した場合を想定した迅速分析法においてもアセトンで抽出

出溶媒として用いており、健康危機管理事例を想定した場合のスクリーニングのためには抽出溶媒を統一した方が好ましいと考え、アセトンを用いることとした。

次にアセトンを抽出溶媒に用いた場合の前処理操作について検討した。食品中には多くの夾雑物質が存在するため、一般的には機器測定の前には何らかの前処理操作が必要であるが、健康危機管理事例を想定した場合、その操作は汎用性が高く、簡便である必要がある。

対象薬剤成分を添加していない各食品をアセトンで抽出操作後、希釈操作のみを行い、クリーンアップ操作を省略した試験溶液について測定を行ったところ、カレーにおいて塩酸ブホルミンと塩酸メトホルミン、ウーロン茶において塩酸メトホルミンと同じリテンションタイム付近にピークが観察されたが、そのピーク面積は想定混入量測定時における各成分のイオンピーク面積の1/1000~4/1000であった。この結果より、アセトン抽出後希釈操作のみで機器分析前のクリーンアップ操作を行わないこととした。

3・3 LC/MSの測定条件について

(1) マスクロマトグラフ (MS) の測定条件

エレクトロスプレーイオン化 (ESI) 法 Positive モードでベースピークとして、ビグアナイド系成分は脱塩酸塩に H^+ の付加した擬分子イオン $[M-HCl+H]^+$ 、スルホニル尿素系成分は分子への H^+ の付加により生じた擬分子イオン $[M+H]^+$ を認めた。ESI 法 Negative モードではスルホニル尿素系成分は $[M-H]$ のベースピークを確認できたが、ビグアナイド系成分は強度の高いイオンは認められず、本法ではモードを Positive とした。

Fragmentator 電圧は60V から200V まで段階的に変えて測定した結果、7成分の定量イオン強度が高くなった100V を選択した。

(2) 液体クロマトグラフ (LC) の測定条件

次に対象薬剤成分7種を一斉分析するための液体クロマトグラフ (LC) の条件について、グリベンクラミドについて測定している安田ら⁹⁾や熊坂ら¹⁰⁾の報告を参考に検討した。

分離カラムについては、Wakosil-II 3C18とShimadzu VP-ODS で検討したが、前者はクロルプロパミドおよび塩酸フェンホルミンのピークが非常にブロードになったため、よりピーク形状が良かった Shimadzu VP-ODS カラムを選択した。

移動相については、20mM 酢酸アンモニウム水溶液:アセトニトリルを用いたが、安田ら⁹⁾が行った混合比60:40のアイソクラテック (混合条件①) 条件では多くの成分のリテンションタイムが重なった。測定はSIM モードを行うためリテンションタイムが重なっても定量は可

能であるが、ESI 法では一般的に生ずるイオン種は非常に少なく、定量イオン以外に物質を確認するための確認イオンを設定しにくい。あらかじめ LC で分離することが良いと思われた。移動相の混合比について検討した結果、酢酸アンモニウム水溶液:アセトニトリルを90:10~20:80のグラジェント (混合条件②) とすることにより、塩酸ブホルミンと塩酸メトホルミンは完全には分離できなかったもののそれ以外の成分を12~18分間で良好に分離することができたため、移動相の混合条件②で測定を行うこととした。

表2に各薬剤成分の定量イオンと移動相混合条件①、②でのリテンションタイムを示した。

3・4 検量線および定量下限について

検量線の例を図1に示す。各成分とも0.1~2 $\mu\text{g/ml}$ の範囲で良好な直線性を示した。

0.1 $\mu\text{g/ml}$ の濃度が測定された場合の試料1gあたりの薬剤濃度は10 μg であり、想定混入量の10分の1まで定量可能であった。

3・5 マトリックス効果について

LC/MS 測定において、試料に含まれる成分により測定対象物質のイオン化が抑制又は促進され、測定される濃度が実際の濃度と大きく異なってしまうマトリックス効果について確認を行った。

各食品のブランクの試験溶液に、標準溶液を1 $\mu\text{g/ml}$ 相当になるよう添加して測定した結果を表3に示す。ウーロン茶における塩酸ブホルミンで、標準溶液1 $\mu\text{g/ml}$ との面積比 0.79とわずかなイオン化抑制がみられたが、それ以外では 0.92~1.17と大きなマトリックス効果は確認されなかった。

3・6 添加回収試験について

想定混入量 (100 $\mu\text{g/g}$) における各食品での添加回収試験結果を表4に、カレーでのクロマトグラムの例を図2に示す。

スルホニル尿素系4成分についてはいずれの食品においても82.6%~104.4%と非常に良い回収率が得られた。一方、ビグアナイド系の3成分については回収率が低く、食品によってばらつきも多かった。最も回収率が低かったのは、即席麺における塩酸メトホルミンで、最低で11.3%、平均22.5%であった。

振とう抽出や超音波による抽出では十分抽出されないことも考えられたので、5倍量の試料量で3分間ホモジナイズして抽出を行ったが、数%程度の回収率改善しか認められなかった。

回収率向上の検討は今後の課題であるが、前述のとおり想定混入量の10分の1まで検出可能であること、さらにクリーンアップ操作を行わなくてよく、検査開始から

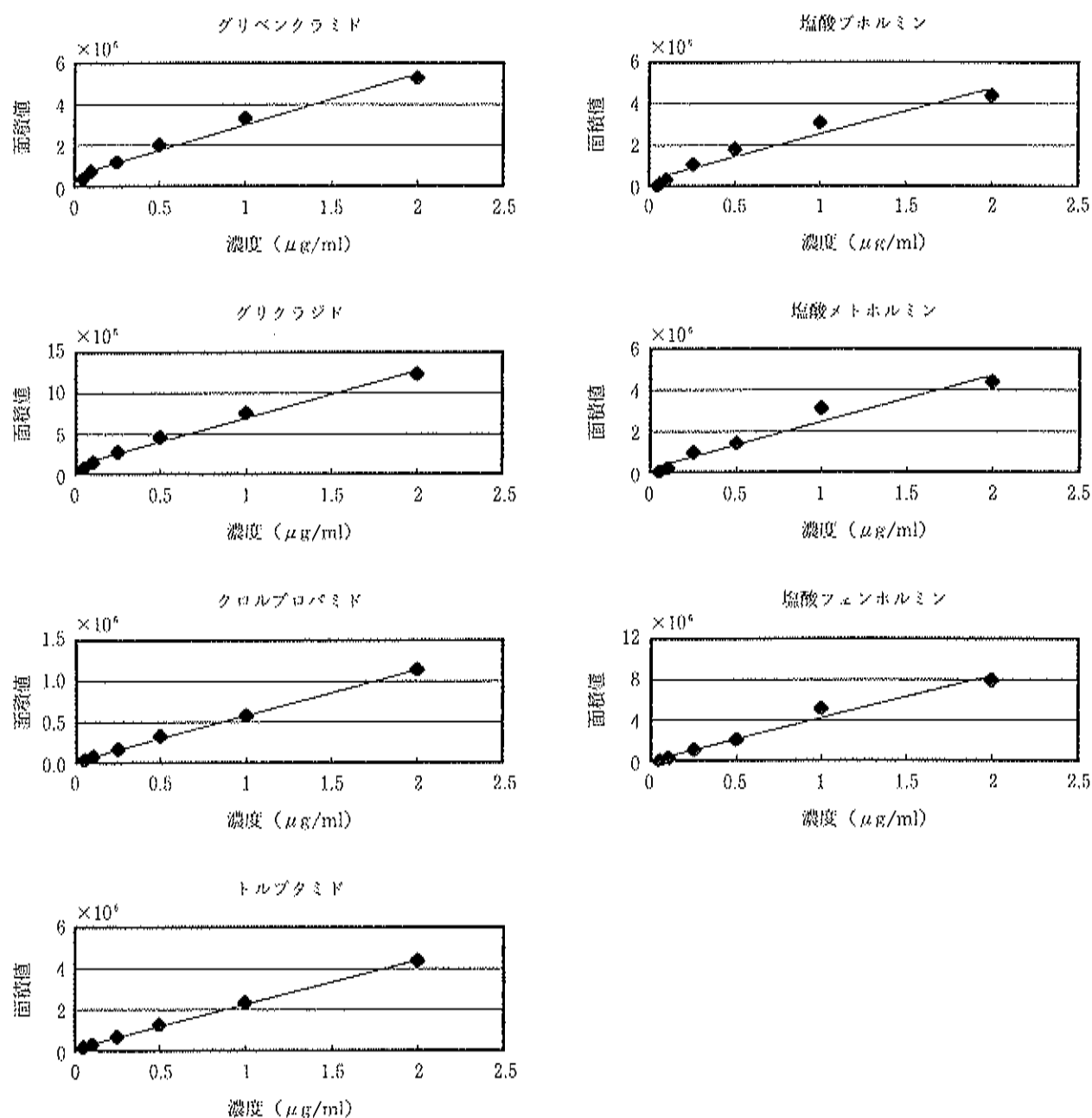


図 1 各成分の検量線例

表 3 マトリックス効果について (標準溶液 1 μg/ml との面積比)

成分名	食 品					
	即席麺	カレー	ソース	ウーロン茶	オレンジジュース	牛 乳
スルホニル尿素系						
グリベンクラミド	1.01	0.98	0.98	1.04	1.00	1.02
グリクラジド	0.97	0.96	0.94	1.04	1.03	1.04
クロルプロバミド	0.94	0.93	0.92	0.97	0.99	0.97
トルブタミド	0.99	0.96	0.97	1.02	1.02	1.01
ビグアナイド系						
塩酸ブホルミン	0.97	0.98	1.00	0.79	1.01	1.01
塩酸メトホルミン	1.00	0.97	0.97	0.92	0.94	0.98
塩酸フェンホルミン	1.05	1.03	1.11	1.15	1.04	1.17

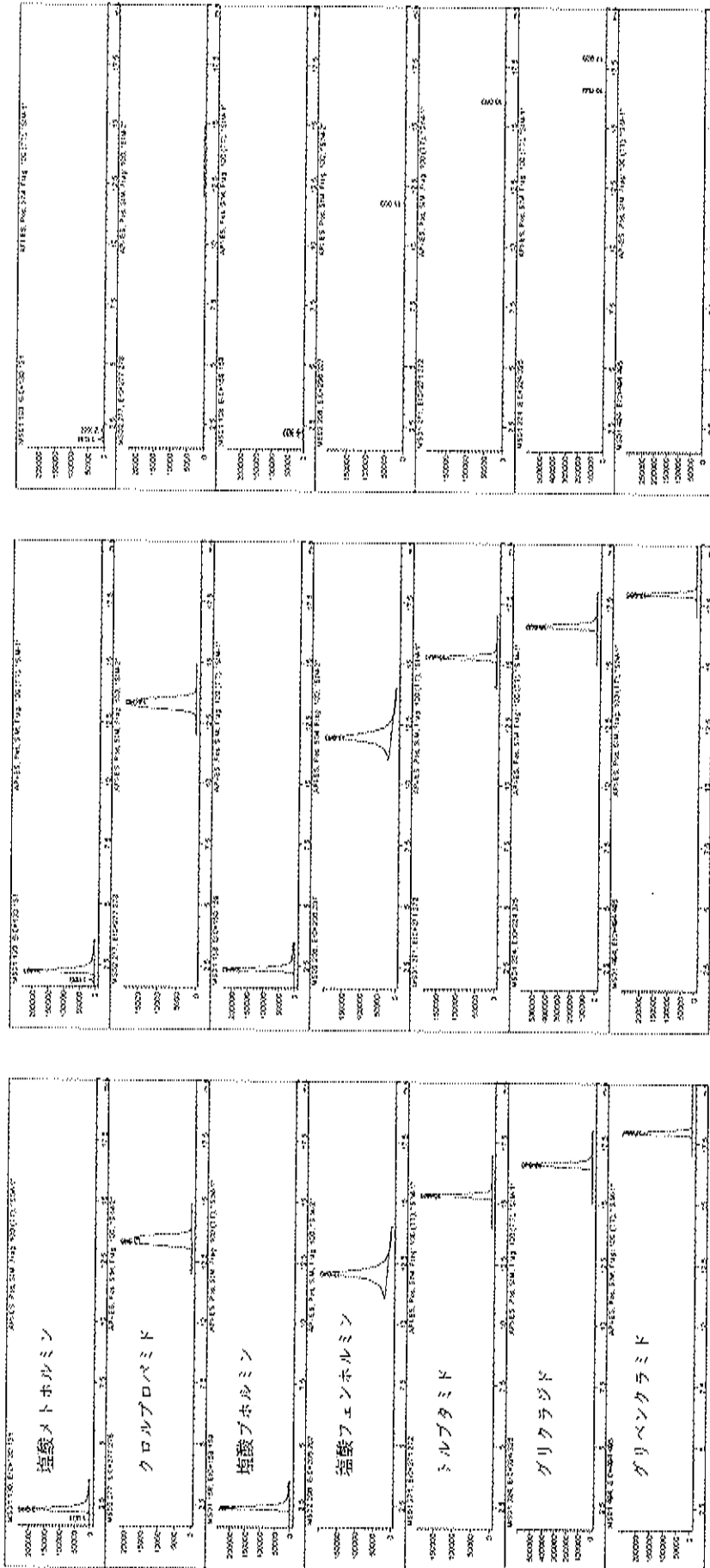


図 2 各成分のマスクロマトグラム

表 4 添加回収試験結果 (平均値±標準偏差)

(n=5, 単位: %)

成 分 名	食 品					
	即席麺	カレー	ソース	ウーロン茶	オレンジジュース	牛 乳
スルホニル尿素系						
グリベンクラミド	101.9±6.9	102.2±6.9	100.7±5.6	104.4±5.6	86.9±12.9	100.2±6.2
グリクラジド	99.5±6.4	99.8±6.6	98.3±6.2	100.3±6.2	88.5±4.1	97.0±3.7
クロロプロバミド	88.1±4.5	92.5±5.0	90.1±3.9	95.8±3.9	84.1±5.1	92.0±3.5
トルブタミド	91.6±5.2	94.2±5.2	93.2±4.8	95.7±4.8	82.6±4.9	93.3±4.5
ピグアナイド系						
塩酸ブホルミン	56.9±13.0	55.5±5.1	111.4±12.0	60.8±12.0	80.7±7.2	86.0±6.4
塩酸メトホルミン	22.5±11.7	37.2±8.5	33.8±14.7	90.9±14.7	51.0±9.1	68.6±9.2
塩酸フェンホルミン	57.6±8.2	57.2±7.6	90.9±4.8	62.1±4.8	87.9±8.0	93.1±6.5

1時間程度でスクリーニングできることから、健康危機管理事例を想定した場合、本迅速分析法は有効な方法と考えられた。

4 ま と め

(1) 血糖降下剤 7 薬剤の成分について、食品中に混入した健康危機管理事例を想定した迅速分析について検討した。

(2) 1日の最大用量が食品100ml (g) 中に混入した場合を想定し、各食品 1 ml (g) 中に各薬剤 100 μ g を添加し、その分析について検討したところ、LC/MSでの分析でその想定混入量の10分の1程度まで検出可能であった。

(3) 市販の茶、ジュース、牛乳、ウスターソース、カレー、即席麺を試料とした場合、アセトン抽出後希釈操作のみで機器分析前のクリーンアップ操作を行わなくても測定は可能であり、食品由来成分による大きなマトリックス効果は確認されなかった。

(4) 添加回収試験では、回収率が低いものもあったが、健康危機管理事例を想定した場合、本迅速測定法は原因究明には有効な方法と考えられた。

文 献

- 1) 澤田道和, 大西道代, 中村能則: 石川保環研報, 37, 1—9 (2000)
- 2) 砺波和子: 石川保環研報, 37, 10—16 (2000)
- 3) 中村朋子, 砺波和子, 泉 広栄: 石川保環研報, 37, 17—20 (2000)
- 4) 中村能則, 澤田道和, 大西道代: 石川保環研報, 37, 75—78 (2000)
- 5) 澤田道和, 大西道代, 中村能則: 石川保環研報, 38, 24—31 (2001)
- 6) 大西道代, 澤田道和, 中村能則: 石川保環研報, 38, 32—37 (2001)
- 7) 中村朋子, 泉 広栄, 砺波和子: 石川保環研報, 38, 38—43 (2001)
- 8) 砺波和子: 石川保環研報, 38, 44—48 (2001)
- 9) 安田和弘, 塚林 裕: 石川保環研報, 41, 57—60 (2004)
- 10) 熊坂謙一, 小島 尚, 土井桂代, 佐藤修二: YAKUGAKU ZASSHI, 123 (2), 1049—1054 (2003)

(報 文)

ヨモギへの放射性核種の移行に関する研究(第2報)

—— 植物の生育と放射性核種の移行との関係 ——

石川県能登中部保健福祉センター 中山 哲彦
 石川県保健環境センター環境科学部 川畑 俊之・小森 正樹

キーワード：ヨモギ、放射能濃度、OR 値、生育速度、移行比

1 はじめに

ヨモギ (*Artemisia princeps*) を環境放射能指標植物として利用する場合、ヨモギから検出される放射性核種の起源や環境中での挙動を把握することは、的確なモニタリングをする上で必要である。

前報¹⁾では、自然状態でのヨモギを用い、簡易ビニールハウスの有無の違いを比較し、人工放射性核種である Cs-137 や Sr-90 等に関して、土壌の舞い上がりやフォールアウトの影響、土壌からヨモギへの移行について検討を行った。

本報では、フォールアウトの影響が少なくなった現在、自然環境中における放射能の影響は土壌寄与が主なるものと考え、植物への放射性核種や安定同位元素の移行が生育段階によってどのように変化するかを検討し、環境放射能の移行における土壌寄与の基礎データとした。

2 調査方法

調査場所は、白山市(旧石川郡鶴来町三宮地内)の県林業試験場B地点(図1)において実施した。また、大気中の濃度を検討するため、簡易ビニールハウス及びハイボリウムエアサンプラーを平成15年4月10日に設置した。

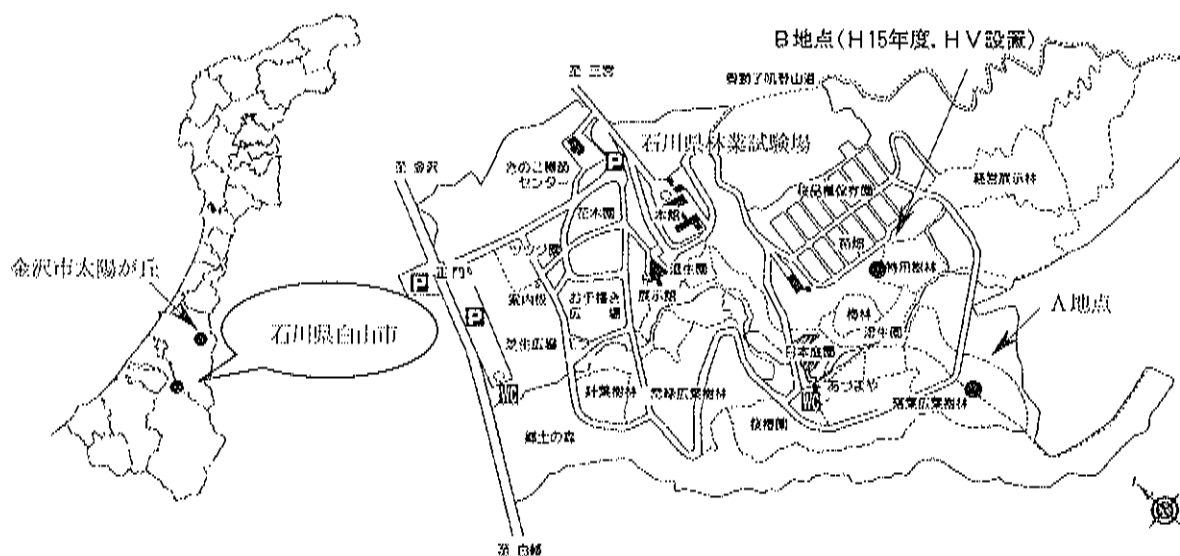


図1 調査地点図

Study on Transfer of Radionuclides in the Mugwort Field. 2. by NAKAYAMA Tetsuhiko*, KAWABATA Toshiyuki and KOMORI Masaki (Noto Chubu Health Welfare Center of Ishikawa Prefectural Government* and Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Mugwort, Radioactivity, Observation ratio, Growth rate, Transfer ratio

2・1 調査試料

(1) ヨモギ、クローバ、フキ

生育段階別の調査を実施するには、多量のヨモギが必要である。このため、生育土壌やヨモギ中の Cs-137 が含有しないことをあらかじめ放射能測定により確認したヨモギ約1000本を、平成14年度に県林業試験場へ移植して、自生するものと併せて試料とした。

植物の採取時期は、1回目が幼葉期である平成15年5月26日、2回目が生育期の7月22日、3回目が枯葉期の9月18日とした。ヨモギとの違いを検討するため、簡易ビニールハウス内外の露場周辺に棲息するクローバ (*Trifolium*) とフキ (*Petasites japonicus*) も採取した。

採取した植物は、生育状況を確認するため、植物1本当たりの長さや重量を計測した後、葉部と茎部に分け調査試料とした。なお、調査に用いた植物の葉部及び茎部の内訳は、表3に示すとおりである。

(2) 土 壌

簡易ビニールハウス内外において、0～5cmの表層（以下「表層」という。）と5～25cmの下層（以下「下層」という。）を、文部科学省放射能測定法シリーズ「環境試料採取法」に定める採土器により採取した。

2・2 測定方法

(1) 放射性核種

植物、土壌及び大気浮遊じんの核種分析は、文部科学省放射能測定法シリーズ「ゲルマニウム半導体検出器等を用いる機器分析のための試料の前処理法」に基づき前処理し、ゲルマニウム半導体検出器 (CANBERRA 製) により80,000秒間測定した。

放射性ストロンチウム分析は、前処理によって得られた灰化物及び土壌からストロンチウムをイオン交換法により分離し、放射平衡後ミルキングによって得られた Y-90 を低バックグラウンド放射能測定装置 (アロカ製 LBC-4202) で3,600秒間測定した。

(2) 安定同位元素

灰試料ではフッ化水素酸や硝酸、塩酸で加熱分解・酸抽出した後、土壌では有機物を熱分解後塩酸で分解・酸抽出し、得られた測定液から、Ca (質量数44)、Sr (質量数88)、Cs (質量数133) を ICP-MS (島津 ICPM8500) で測定し、K を原子吸光光度法 (HITACHI Z-8200) で測定した。

(3) 土壌の理化学的調査

pH 値、電気伝導度 (EC) 及び強熱減量については、土質工学会基準 (JSF T211-1990) に基づき測定した。

3 調査結果

3・1 大気浮遊じん調査

半月毎に、ハイボリウムエアサンプラー (800L/min) で採取測定した結果は、表1のとおりであった。

Cs-137 は全て ND で、Be-7 は4月10日から5月30日までは平均値3.6mBq/m³、5月30日から9月16日までは平均値1.7mBq/m³と、比較的前半の方が高かった。

表1 大気浮遊じん調査

単位: mBq/m³

採取期間	Be-7	K-40	Cs-137
15. 4.10～15. 4.30	3.58±0.02	ND	ND
15. 4.30～15. 5.15	3.80±0.03	ND	ND
15. 5.15～15. 5.30	3.41±0.02	ND	ND
15. 5.30～15. 6.16	1.61±0.02	ND	ND
15. 6.16～15. 6.30	1.81±0.02	ND	ND
15. 6.30～15. 7.15	1.21±0.02	ND	ND
15. 7.15～15. 7.31	1.34±0.02	ND	ND
15. 7.31～15. 8.14	2.13±0.02	ND	ND
15. 8.14～15. 9. 1	1.17±0.01	ND	ND
15. 9. 1～15. 9.16	1.73±0.02	ND	ND

* ND とは計数値が誤差の3倍未満をいう。

3・2 土壌の放射能測定結果等

ビニールハウス内外の土壌の理化学試験と放射能濃度の結果は、表2のとおりであった。

(1) 土壌の理化学的調査

pH 値は、ビニールハウス内外の表層で4.85～5.35、下層では4.75～5.28と Cs-137 や Sr-90 が植物に吸収されやすい酸性土壌であった。また、電気伝導度は、ビニールハウス内外の表層で334～734 μ S/cm、下層では174～541 μ S/cm であった。強熱減量は、ビニールハウス内外の表層で10.5～12.3%、下層では8.1～10.5%と、粘性土のため有機物含有量の比較的小さい土壌であった。

(2) 土壌の放射能濃度

K-40 は、ビニールハウス外の表層で平均値637Bq/kg 乾土、下層で平均値624Bq/kg 乾土、ビニールハウス内の表層で平均値597Bq/kg 乾土、下層で平均値624Bq/kg 乾土で、表層はビニールハウス外より低かった。また、Be-7 は、ビニールハウス外の2回目を除いて全て ND であった。

Cs-137 は、ビニールハウス外の表層で平均値25.2Bq/kg 乾土、下層では24.5Bq/kg 乾土と同程度であった。また、ビニールハウス内では、表層で平均値22.2Bq/kg

表 2 生育土壌の理化学試験と放射能濃度

採取場所	部 位	生育段階	採取年月日	pH 値	EC $\mu\text{S}/\text{cm}$	強熱減量 %	Be-7 Bq/kg 乾土	K-40 Bq/kg 乾土	K g/kg 乾土
ビニール ハウス外	0 ~ 5 cm	1 回目	H 15. 5.26	4.85	676	10.5	ND	571 $\pm$ 10	21.8
		2 回目	H 15. 7.22	5.12	616	11.2	13 $\pm$ 4	632 $\pm$ 12	23.5
		3 回目	H 15. 9.18	5.15	667	12.3	ND	707 $\pm$ 12	23.1
	5 ~ 25cm	1 回目	H 15. 5.26	4.75	511	8.1	ND	593 $\pm$ 11	19.9
		2 回目	H 15. 7.22	5.00	385	10.5	ND	641 $\pm$ 12	21.7
		3 回目	H 15. 9.18	4.95	464	9.3	ND	639 $\pm$ 11	22.1
ビニール ハウス内	0 ~ 5 cm	1 回目	H 15. 5.26	4.85	734	10.7	ND	614 $\pm$ 11	20.3
		2 回目	H 15. 7.22	5.35	334	11.4	ND	623 $\pm$ 12	20.9
		3 回目	H 15. 9.18	5.04	662	11.8	ND	554 $\pm$ 10	18.8
	5 ~ 25cm	1 回目	H 15. 5.26	4.87	541	8.4	ND	632 $\pm$ 11	22.3
		2 回目	H 15. 7.22	5.28	174	9.1	ND	588 $\pm$ 11	18.4
		3 回目	H 15. 9.18	5.02	454	9.6	ND	652 $\pm$ 11	23.1

採取場所	部 位	生育段階	採取年月日	Cs-137 Bq/kg 乾土	Cs mg/kg 乾土	Sr-90 Bq/kg 乾土	Sr mg/kg 乾土	Ca g/kg 乾土
ビニール ハウス外	0 ~ 5 cm	1 回目	H 15. 5.26	20.3 $\pm$ 0.5	4.0	3.3 $\pm$ 0.5	27.0	6.6
		2 回目	H 15. 7.22	26.4 $\pm$ 0.6	3.5	4.4 $\pm$ 0.9	24.1	5.6
		3 回目	H 15. 9.18	26.0 $\pm$ 0.5	2.5	4.0 $\pm$ 0.5	23.0	4.7
	5 ~ 25cm	1 回目	H 15. 5.26	23.1 $\pm$ 0.9	3.6	2.2 $\pm$ 0.5	21.9	5.9
		2 回目	H 15. 7.22	23 $\pm$ 1	4.1	2.6 $\pm$ 0.5	19.0	4.7
		3 回目	H 15. 9.18	27.4 $\pm$ 0.9	3.1	2.9 $\pm$ 0.4	19.8	5.3
ビニール ハウス内	0 ~ 5 cm	1 回目	H 15. 5.26	24.9 $\pm$ 0.6	3.5	3.4 $\pm$ 0.5	23.9	6.8
		2 回目	H 15. 7.22	20.6 $\pm$ 0.6	3.6	5 $\pm$ 1	24.0	5.4
		3 回目	H 15. 9.18	21.1 $\pm$ 0.5	3.4	2.9 $\pm$ 0.5	22.7	6.5
	5 ~ 25cm	1 回目	H 15. 5.26	16.0 $\pm$ 0.5	4.3	2.9 $\pm$ 0.6	23.5	5.8
		2 回目	H 15. 7.22	16.4 $\pm$ 0.5	4.1	2.2 $\pm$ 0.6	19.1	4.1
		3 回目	H 15. 9.18	21 $\pm$ 3	3.9	3 $\pm$ 1	21.0	4.8

乾土、下層では17.8Bq/kg 乾土とビニールハウス外に比べ若干低かった。

Sr-90は、ビニールハウス外の表層で平均値3.9Bq/kg 乾土、下層では平均値2.6Bq/kg 乾土、ビニールハウス内では表層で平均値3.8Bq/kg 乾土、下層では平均値2.7 Bq/kg 乾土であった。

3・3 ヨモギ、クローバ、フキの放射能測定結果

ビニールハウス内外の植物別、部位別の放射能濃度の結果は、表3に示すとおりであった。

(1) K-40と Be-7 について

ヨモギの K-40は、ビニールハウス内外、生育段階にかかわらず、葉部で250Bq/kg 生前後とほぼ一定であるのに対し、茎部は150~200Bq/kg 生と生育段階ととも

に減少する傾向がみられた。

Be-7は、ビニールハウス外において、葉の生育期（2回目）は120Bq/kg 生と増える傾向にあったが、枯葉期（3回目）には減少した。また、葉の表面積が大きい植物ほど大きく、葉部の方が茎部より大きい傾向がみられ、ビニールハウス内では全て低かった。このことや大気浮遊じんの測定結果から、Be-7は大気中から直接ヨモギの葉に付着沈着し、土壌からの吸収による移行は少ないものと考えられた。

クローバの K-40は、各生育段階において、茎部では150Bq/kg 生前後で葉部より高かった。また、Be-7は葉部で20Bq/kg 生前後と、茎部より高かった。

フキの K-40は、ビニールハウス外において、葉茎部

表 3 ヨモギ等植物の生育段階別放射能濃度及び移行係数

植物名	採取場所	生育 段階	採取年月日	Be-7 Bq/kg 生	K-40 Bq/kg 生	K g/kg 生	Cs-137 Bq/kg 生	Cs μg/kg 生	Sr-90 Bq/kg 生	Sr mg/kg 生	Ca g/kg 生	Cs-137 移行比	Sr-90 移行比	Cs-137 OR 値	Sr-90 OR 値
ヨモギ	ビニール ハウス外	1回目	H15. 5.26	36.2±0.4	237±3	8.1	0.04±0.03	12.7	1.54±0.07	6.3	1.2	0.0020	0.47	0.0053	2.6
		2回目	H15. 7.22	117.4±0.7	224±3	7.5	0.02±0.02	9.4	2.01±0.08	13.8	2.6	0.0008	0.46	0.0024	1.0
		3回目	H15. 9.18	92.0±0.8	250±3	9.2	0.06±0.03	10.3	3.0 ±0.1	17.0	2.9	0.0023	0.75	0.0058	1.2
	莖部	1回目	H15. 5.26	6.6±0.2	200±2	7.4	0.04±0.02	4.4	1.86±0.09	6.1	0.6	0.0020	0.56	0.0058	6.2
		2回目	H15. 7.22	33.2±0.4	154±2	5.2	ND	4.9	1.64±0.07	8.7	1.0	—	0.37	—	2.1
		3回目	H15. 9.18	30.2±0.4	170±2	5.5	0.05±0.02	6.8	1.25±0.07	15.1	1.3	0.0019	0.31	0.0080	1.1
	ビニール ハウス内	1回目	H15. 5.26	11 ±7	188±3	6.2	0.08±0.04	10.5	1.1 ±0.1	6.4	1.4	0.0032	0.32	0.010	1.6
		2回目	H15. 7.22	8.3±0.4	292±4	10.1	0.08±0.04	14.2	2.5 ±0.1	15.9	3.1	0.0039	0.50	0.0080	0.87
		3回目	H15. 9.18	2.9±0.5	270±4	8.1	0.11±0.05	10.2	4.8 ±0.3	16.1	2.6	0.0052	1.7	0.012	4.1
クローバ	莖部	1回目	H15. 5.26	2.5±0.4	226±3	9.0	ND	7.4	1.3 ±0.1	6.6	0.8	—	0.38	—	3.3
		2回目	H15. 7.22	0.8±0.2	196±2	5.8	0.03±0.02	5.0	2.16±0.08	8.8	1.1	0.0015	0.43	0.0052	2.1
		3回目	H15. 9.18	0.9±0.2	180±2	5.7	0.03±0.02	8.7	2.12±0.09	11.4	1.3	0.0036	0.73	0.013	3.7
	葉部	1回目	H15. 5.26	14.7±0.4	102±2	3.5	0.16±0.03	9.3	2.7 ±0.1	13.1	2.3	0.0079	0.82	0.049	2.3
		2回目	H15. 7.22	18.6±0.4	150±1	3.4	0.05±0.02	10.8	1.8 ±0.1	9.4	1.9	0.0019	0.41	0.013	1.2
		3回目	H15. 9.18	21.5±0.6	160±2	4.7	ND	10.2	3.0 ±0.2	15.0	2.9	—	0.75	—	1.2
	莖部	1回目	H15. 5.26	2.2±0.1	135±2	5.0	0.05±0.01	6.2	2.4 ±0.1	10.3	1.4	0.0025	0.73	0.011	3.4
		2回目	H15. 7.22	10.6±0.3	169±2	4.7	0.05±0.02	8.6	2.1 ±0.1	11.0	1.1	0.0019	0.48	0.0094	2.4
		3回目	H15. 9.18	5.8±0.3	190±2	6.4	ND	8.7	3.2 ±0.1	15.8	2.0	—	0.80	—	1.9
フキ	葉部	1回目	H15. 5.26	44.2±0.5	209±3	7.7	0.04±0.03	9.0	1.4 ±0.1	6.3	1.5	0.0020	0.42	0.0055	1.9
		2回目	H15. 7.22	142.6±0.9	227±3	7.3	0.07±0.02	12.1	2.8 ±0.1	13.4	2.5	0.0027	0.64	0.0086	1.4
		3回目	H15. 9.18	69.3±0.7	260±3	6.5	0.06±0.03	13.5	2.4 ±0.1	14.5	2.2	0.0023	0.60	0.0082	1.3
	莖部	1回目	H15. 5.26	6.5±0.3	206±3	7.1	ND	5.5	1.8 ±0.1	9.1	1.4	—	0.55	—	2.6
		2回目	H15. 7.22	30.1±0.4	225±3	7.3	0.08±0.02	7.8	2.4 ±0.1	13.6	1.6	0.0011	0.55	0.0036	1.9
		3回目	H15. 9.18	19.5±0.4	240±3	6.9	0.05±0.02	7.3	2.4 ±0.1	14.7	1.7	0.0019	0.60	0.0065	1.7
	葉部	1回目	H15. 5.26	38.5±0.6	216±3	6.6	0.09±0.03	13.2	1.6 ±0.1	9.1	2.2	0.0036	0.47	0.011	1.5
		2回目	H15. 7.22	13.6±0.5	170±3	5.1	0.10±0.04	19.1	2.5 ±0.1	16.1	3.1	0.0049	0.50	0.020	0.87
		3回目	H15. 9.18	4.2±0.3	211±3	6.5	ND	6.6	1.9 ±0.1	9.6	1.4	—	0.56	—	2.7
ヨモギ	莖部	1回目	H15. 5.26	3.0±0.2	198±3	5.7	ND	9.0	2.3 ±0.1	13.5	1.8	—	0.46	—	1.4

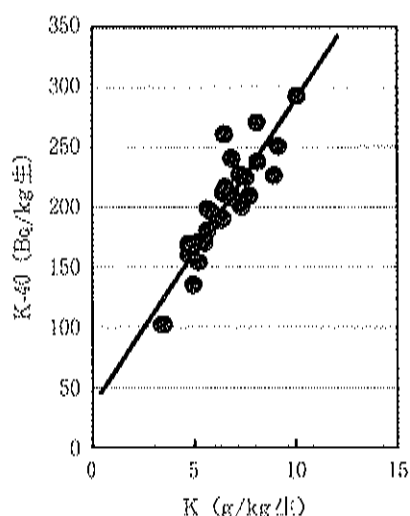


図2 各植物のKとK-40の関係

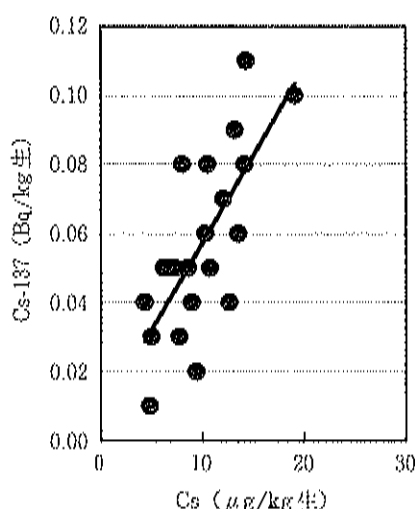


図3 各植物のCsとCs-137の関係

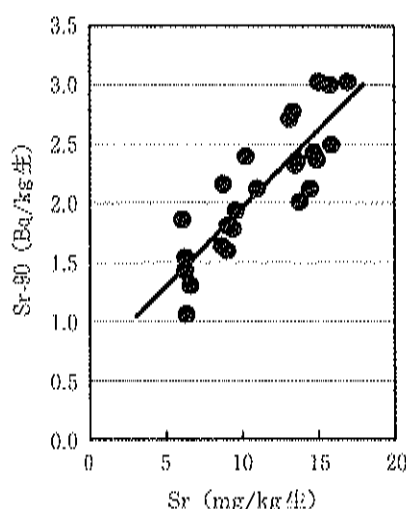


図4 各植物のSrとSr-90の関係

とも変わらず、 230Bq/kg 生前後であった。Be-7は、生育期(2回目)の葉部で 140Bq/kg 生とヨモギより高く、枯葉期(3回目)には葉が腐り始めたことと重なり低かった。また、茎部は 20Bq/kg 生前後で葉部より低かった。ビニールハウス内では、K-40は 200Bq/kg 生前後、Be-7は葉部で平均値 26Bq/kg 生でビニールハウス外より低かった。

(2) Cs-137とSr-90について

ヨモギのCs-137は、ビニールハウス内外の葉部で $0.02\sim0.11\text{Bq/kg}$ 生、茎部ではND $\sim0.08\text{Bq/kg}$ 生であり、葉部の方がわずかに高かった。また、Sr-90は、ハウス内外とも幼葉期(1回目)は茎部で、2回目以降は葉部で高く、吸収の違いがみられ、ビニールハウス内葉部(3回目)は 4.8Bq/Kg 生で最大値であった。

クローバのCs-137は、幼葉期(1回目)の葉部で 0.16Bq/kg 生とヨモギより高く、最大値であった。また、生育段階とともに生育が抑制されるのに相応し、葉茎部とも低くなる傾向が見られた。Sr-90は、葉茎部とも、2回目は1回目及び3回目より低かった。

フキのCs-137は、ビニールハウス内では全期間で葉部は茎部より高かった。Sr-90は、ビニールハウス内外の葉茎部とも、1回目は2回目及び3回目より低かった。

3・4 ヨモギ、クローバ、フキの放射能濃度と安定同位元素の関係

各植物に含まれる安定同位元素の含有量は、 $\text{K} > \text{Ca} > \text{Sr} > \text{Cs}$ の順であり、葉部と茎部におけるKとK-40、CsとCs-137及びSrとSr-90の関係は、図2から4に示すとおり正の相関がみられ、KとK-40の比は約 30Bq/g で文献⁷⁾と同程度であった。

3・5 OR値

土壌と植物間のCs-137やSr-90の移行関係を、環境汚染評価指標であるOR値³⁾を求め検討した。OR値は、(1)式により求め、結果を表3に示した。

土壌から植物(ヨモギ、クローバ、フキ)へのOR値は、葉茎部において生育段階で異なり、幼少期に大きい傾向がみられた。

$$\left. \begin{aligned} \text{Cs-137のOR値} &= \frac{\text{Cs-137/K(植物中)}}{\text{Cs-137/K(表層土壌中)}} \\ \text{Sr-90のOR値} &= \frac{\text{Sr-90/Ca(植物中)}}{\text{Sr-90/Ca(表層土壌中)}} \end{aligned} \right\} (1)\text{式}$$

3・6 ヨモギ、クローバ、フキの葉部における生育速度とアルカリ、アルカリ土類金属の日当たりの平均移行比との関係

3・5のOR値の検討から、移行比が成長段階や含有する土壌の濃度レベルによって変化することが予測されたので、アルカリ金属(K、Cs)、アルカリ土類金属(Ca、Sr)及び放射性核種(K-40、Cs-137、Sr-90)について、生育速度と1日当たりの平均移行比の関係を検討した。

今回、生育状況の良かった各植物のビニールハウス外及びヨモギのビニールハウス内について、生育速度及び平均移行比を(2)式により求めたところ、結果は表4のとおりであった。なお、発芽日は5月2日とした。

$$\left. \begin{aligned} \text{生育速度} &= \frac{\text{採取植物の平均長さ(cm)}}{\text{発芽からの経過日数(日)}} \\ \text{植物の吸収速度} &= \frac{\text{植物の濃度(安定元素又は放射能濃度)}}{\text{発芽からの経過日数(日)}} \\ \text{平均移行比} &= \frac{\text{植物の吸収速度(安定元素又は放射能濃度)}}{\text{土壌濃度(安定元素又は放射能濃度)}} \end{aligned} \right\} (2)\text{式}$$

表 4 ヨモギ、クローバ、フキの葉部の生育速度と日当たり平均移行比の関係

種 類	採取場所	経過日数	平均生育速度 cm/day	K		Cs		Sr	
				平均吸収速度 g/kg生/day	平均移行比 —/day	平均吸収速度 μg/kg生/day	平均移行比 —/day	平均吸収速度 mg/kg生/day	平均移行比 —/day
ヨモギ	ビニール ハウス外	24	0.96	3.4×10^{-1}	1.5×10^{-2}	5.3×10^{-1}	1.3×10^{-4}	2.6×10^{-1}	9.7×10^{-3}
		81	0.68	9.3×10^{-2}	3.9×10^{-3}	1.2×10^{-1}	3.3×10^{-5}	1.7×10^{-1}	7.1×10^{-3}
		139	0.44	6.6×10^{-2}	2.9×10^{-3}	7.4×10^{-2}	3.0×10^{-5}	1.2×10^{-1}	5.3×10^{-3}
	ビニール ハウス内	24	1.3	2.6×10^{-1}	1.3×10^{-2}	4.4×10^{-1}	1.3×10^{-4}	2.7×10^{-1}	1.1×10^{-2}
		81	0.84	1.2×10^{-1}	6.0×10^{-3}	1.8×10^{-1}	4.9×10^{-5}	2.0×10^{-1}	8.2×10^{-3}
		139	0.44	5.8×10^{-2}	3.1×10^{-3}	7.3×10^{-2}	2.2×10^{-5}	1.2×10^{-1}	5.1×10^{-3}
クローバ	ビニール ハウス外	24	1.1	1.5×10^{-1}	6.7×10^{-3}	3.9×10^{-1}	9.7×10^{-5}	5.5×10^{-1}	2.0×10^{-2}
		81	0.40	4.2×10^{-2}	1.8×10^{-3}	1.3×10^{-1}	3.8×10^{-5}	1.2×10^{-1}	4.8×10^{-3}
		139	0.28	3.4×10^{-2}	1.5×10^{-3}	7.3×10^{-2}	2.9×10^{-5}	1.1×10^{-1}	4.7×10^{-3}
フキ	ビニール ハウス外	24	0.93	3.2×10^{-1}	1.5×10^{-2}	3.8×10^{-1}	9.4×10^{-5}	2.6×10^{-1}	9.7×10^{-3}
		81	0.28	9.0×10^{-2}	3.8×10^{-3}	1.5×10^{-1}	4.3×10^{-5}	1.7×10^{-1}	6.9×10^{-3}
		139	0.19	4.7×10^{-2}	2.0×10^{-3}	9.7×10^{-2}	3.9×10^{-5}	1.0×10^{-1}	4.5×10^{-3}

種 類	採取場所	Ca		K-40		Cs-137		Sr-90	
		平均吸収速度 g/kg生/day	平均移行比 —/day	平均吸収速度 Bq/kg生/day	平均移行比 —/day	平均吸収速度 Bq/kg生/day	平均移行比 —/day	平均吸収速度 Bq/kg生/day	平均移行比 —/day
ヨモギ	ビニール ハウス外	5.0×10^{-2}	7.6×10^{-3}	9.9	1.7×10^{-2}	1.7×10^{-2}	8.2×10^{-5}	6.4×10^{-2}	1.9×10^{-2}
		3.2×10^{-2}	5.7×10^{-3}	2.8	4.4×10^{-3}	2.5×10^{-4}	9.4×10^{-6}	2.5×10^{-2}	5.6×10^{-3}
		2.1×10^{-2}	4.4×10^{-3}	1.8	2.5×10^{-3}	4.3×10^{-4}	1.7×10^{-5}	2.2×10^{-2}	5.4×10^{-3}
	ビニール ハウス内	5.8×10^{-2}	8.6×10^{-3}	7.8	1.3×10^{-2}	3.3×10^{-3}	1.3×10^{-4}	4.6×10^{-2}	1.3×10^{-2}
		3.8×10^{-2}	7.1×10^{-3}	3.6	5.8×10^{-3}	9.9×10^{-4}	4.8×10^{-5}	3.1×10^{-2}	6.2×10^{-3}
		1.9×10^{-2}	2.9×10^{-3}	1.9	3.5×10^{-3}	7.9×10^{-4}	3.8×10^{-5}	3.5×10^{-2}	1.2×10^{-2}
クローバ	ビニール ハウス外	9.6×10^{-2}	1.5×10^{-2}	4.3	7.4×10^{-3}	6.7×10^{-3}	3.3×10^{-4}	1.1×10^{-1}	3.4×10^{-2}
		2.3×10^{-2}	4.2×10^{-3}	1.9	2.9×10^{-3}	6.2×10^{-4}	2.3×10^{-5}	2.2×10^{-2}	5.1×10^{-3}
		2.1×10^{-2}	4.4×10^{-3}	1.2	1.6×10^{-3}	—	—	2.2×10^{-2}	5.4×10^{-3}
フキ	ビニール ハウス外	6.3×10^{-2}	9.5×10^{-3}	8.7	1.5×10^{-2}	1.7×10^{-2}	8.2×10^{-5}	5.8×10^{-2}	1.8×10^{-2}
		3.1×10^{-2}	5.5×10^{-3}	2.8	4.4×10^{-3}	8.6×10^{-4}	3.3×10^{-5}	3.5×10^{-2}	7.9×10^{-3}
		1.6×10^{-2}	3.4×10^{-3}	1.9	2.6×10^{-3}	4.3×10^{-4}	1.7×10^{-5}	1.7×10^{-2}	4.3×10^{-3}

図5から図11に、ヨモギ、クローバ、フキの葉部における生育速度と1日当たりの平均移行比との関係を示した。その結果、植物の種類によらず、いずれの金属でもほぼ生育速度と1日当たりの移行比には正の相関が認められた。

単位生育速度あたり（1 cm/day）での移行比の大きさは、安定同位元素では $\text{Ca} = \text{Sr} > \text{K} > \text{Cs}$ （移行比：Ca, Sr=0.01, K=0.007, Cs=0.0001）の順で、アルカリ土類金属はアルカリ金属より大きく、Caは土壌濃度の1%近くを吸収するものと考えられた。

当初は、それぞれの金属の存在濃度レベルにより移行

に差があると思われたが、そのような傾向は特になく、金属の種類による影響の方が大きく、アルカリ土類金属の移行が大きいことが判明した。

一方、放射性核種では、生育速度1 cm 当たり Sr-90 > K-40 > Cs-137（移行比：Sr-90=0.012, K-40=0.007, Cs-137=0.0001）の順で、Sr-90はCaやSrの移行比とほぼ同じで、K-40はKの移行比と、Cs-137はCsの移行比と同じであり、一定の割合で吸収される傾向がみられた。なお、Sr-90がCaと同様の挙動を示すことは文献⁴⁾と一致したが、Cs-137とKの間では同様の挙動はみられなかった。

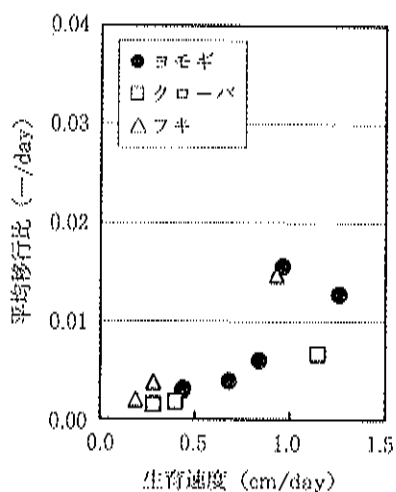


図 5 生育速度とKの平均移行比 (葉部)

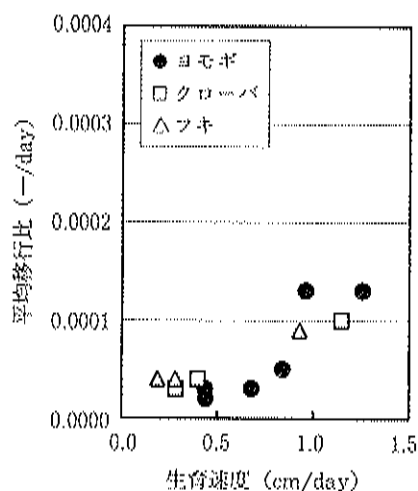


図 6 生育速度とCsの平均移行比 (葉部)

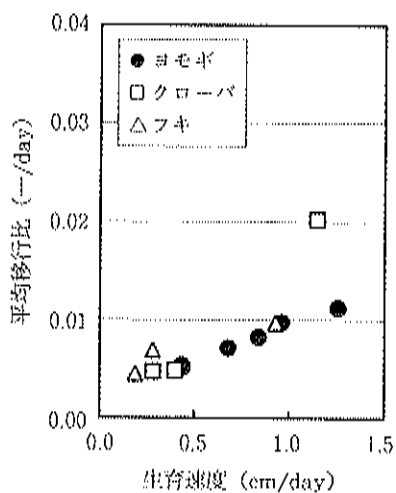


図 7 生育速度とSrの平均移行比 (葉部)

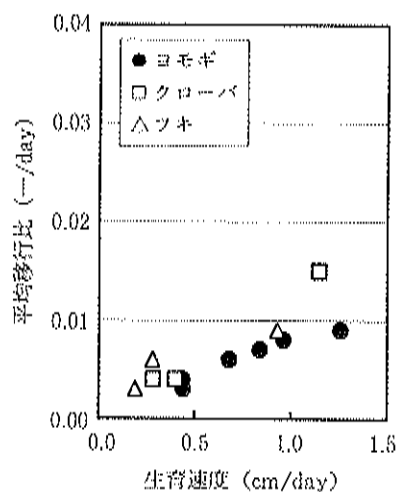


図 8 生育速度とCaの平均移行比 (葉部)

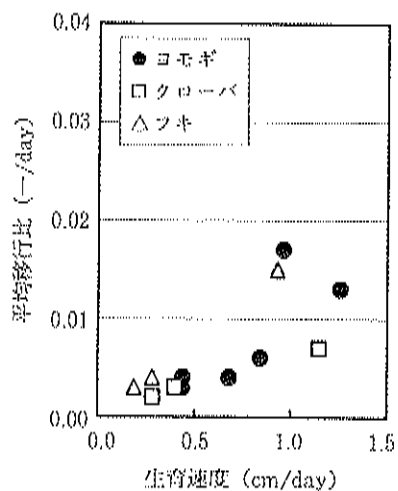


図 9 生育速度と K-40の平均移行比 (葉部)

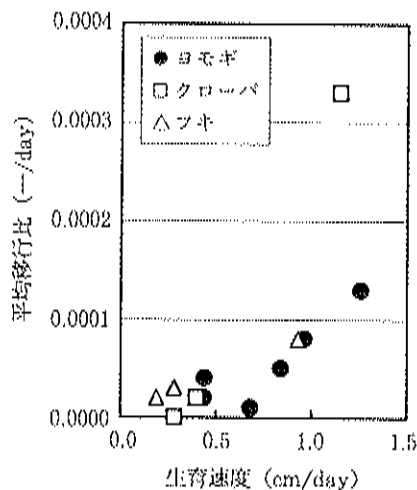


図 10 生育速度とCs-137の平均移行比 (葉部)

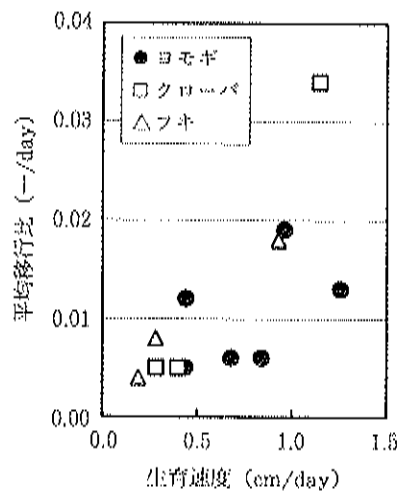


図 11 生育速度とSr-90の平均移行比 (葉部)

表 5 ヨモギ、クローバ、フキの茎部の生育速度と日当たり平均移行比の関係

種 類	採取場所	経過日数	平均生育速度 cm/day	K		Cs		Sr	
				平均吸収速度 g/kg生/day	平均移行比 —/day	平均吸収速度 μg/kg生/day	平均移行比 —/day	平均吸収速度 mg/kg生/day	平均移行比 —/day
ヨモギ	ビニール ハウス外	24	0.96	3.1×10^{-1}	1.4×10^{-2}	1.8×10^{-1}	4.6×10^{-5}	2.5×10^{-1}	9.4×10^{-3}
		81	0.68	6.4×10^{-2}	2.7×10^{-3}	6.0×10^{-2}	1.7×10^{-5}	1.1×10^{-1}	4.5×10^{-3}
		139	0.44	4.0×10^{-2}	1.7×10^{-3}	4.9×10^{-2}	2.0×10^{-5}	1.1×10^{-1}	4.7×10^{-3}
	ビニール ハウス内	24	1.3	3.8×10^{-1}	1.8×10^{-2}	3.1×10^{-1}	8.8×10^{-5}	2.8×10^{-1}	1.2×10^{-2}
		81	0.84	7.2×10^{-2}	3.4×10^{-3}	6.2×10^{-2}	1.7×10^{-5}	1.1×10^{-1}	4.5×10^{-3}
		139	0.44	4.1×10^{-2}	2.2×10^{-3}	6.3×10^{-2}	1.8×10^{-5}	8.2×10^{-2}	3.6×10^{-3}
クローバ	ビニール ハウス外	24	1.2	2.1×10^{-1}	9.6×10^{-3}	2.6×10^{-1}	6.5×10^{-5}	4.3×10^{-1}	1.6×10^{-2}
		81	0.40	5.8×10^{-2}	2.5×10^{-3}	1.1×10^{-1}	3.0×10^{-5}	1.4×10^{-1}	5.6×10^{-3}
		139	0.28	4.6×10^{-2}	2.0×10^{-3}	6.3×10^{-2}	2.5×10^{-5}	1.1×10^{-1}	4.9×10^{-3}
フキ	ビニール ハウス外	24	0.93	3.0×10^{-1}	1.4×10^{-2}	2.3×10^{-1}	5.7×10^{-5}	3.8×10^{-1}	1.4×10^{-2}
		81	0.28	9.0×10^{-2}	3.8×10^{-3}	9.6×10^{-2}	2.8×10^{-5}	1.7×10^{-1}	7.0×10^{-3}
		139	0.19	5.0×10^{-2}	2.1×10^{-3}	5.3×10^{-2}	2.1×10^{-5}	1.1×10^{-1}	4.6×10^{-3}

種 類	採取場所	Ca		K-40		Cs-137		Sr-90	
		平均吸収速度 g/kg生/day	平均移行比 —/day	平均吸収速度 Bq/kg生/day	平均移行比 —/day	平均吸収速度 Bq/kg生/day	平均移行比 —/day	平均吸収速度 Bq/kg生/day	平均移行比 —/day
ヨモギ	ビニール ハウス外	2.5×10^{-2}	3.8×10^{-3}	8.3	1.5×10^{-2}	1.7×10^{-1}	8.2×10^{-5}	7.8×10^{-2}	2.3×10^{-2}
		1.2×10^{-2}	2.2×10^{-3}	1.9	3.0×10^{-3}	—	—	2.0×10^{-2}	4.6×10^{-3}
		9.4×10^{-3}	2.0×10^{-3}	1.2	1.7×10^{-3}	3.6×10^{-4}	1.4×10^{-5}	9.0×10^{-3}	2.2×10^{-3}
	ビニール ハウス内	3.3×10^{-2}	4.9×10^{-3}	9.4	1.5×10^{-2}	—	—	5.4×10^{-2}	1.6×10^{-2}
		1.4×10^{-2}	2.5×10^{-3}	2.4	3.9×10^{-3}	3.7×10^{-4}	1.8×10^{-5}	2.7×10^{-2}	5.3×10^{-3}
		9.4×10^{-3}	1.4×10^{-3}	1.3	2.3×10^{-3}	5.8×10^{-4}	2.7×10^{-5}	1.5×10^{-2}	5.3×10^{-3}
クローバ	ビニール ハウス外	5.8×10^{-2}	8.8×10^{-3}	5.6	9.9×10^{-3}	2.1×10^{-3}	1.0×10^{-4}	1.0×10^{-1}	3.0×10^{-2}
		1.4×10^{-2}	2.4×10^{-3}	2.1	3.3×10^{-3}	6.2×10^{-4}	2.3×10^{-5}	2.6×10^{-2}	5.9×10^{-3}
		1.4×10^{-2}	3.1×10^{-3}	1.4	1.9×10^{-3}	—	—	2.3×10^{-2}	5.8×10^{-3}
フキ	ビニール ハウス外	5.8×10^{-2}	8.8×10^{-3}	8.6	1.5×10^{-2}	—	—	7.5×10^{-2}	2.3×10^{-2}
		2.0×10^{-2}	3.5×10^{-3}	2.8	4.4×10^{-3}	3.7×10^{-4}	1.4×10^{-5}	3.0×10^{-2}	6.7×10^{-3}
		1.2×10^{-2}	2.6×10^{-3}	1.7	2.4×10^{-3}	3.6×10^{-4}	1.4×10^{-5}	1.7×10^{-2}	4.3×10^{-3}

3・7 ヨモギ、クローバ、フキの茎部における生育速度とアルカリ、アルカリ土類金属の日当たりの平均移行比との関係

茎部においても同様に検討したところ、結果は表5に示すとおりであった。生育速度と平均移行比は葉部と同様の傾向がみられ、植物の種類によらず、いずれの金属も正の相関傾向にあった。

また、単位あたりの生育速度（1 cm/day）での移行比の大きさは、葉部と同様で Sr-90 は Ca や Sr の移行比と、K-40 は K の移行比と、Cs-137 は Cs の移行比と同じで、これらの安定同位元素は放射性核種とともに、

一定の割合で吸収される傾向が見られた。

4 ま と め

各生育段階におけるヨモギ等への放射性核種や安定同位元素の移行について検討し、以下のことが明らかになった。

(1) Cs-137及び Sr-90の吸収速度は、各植物とも幼葉期で高く、生育期間とともに減少する傾向がみられた。

(2) 植物の生育速度と放射性核種及び安定同位元素の1日当たりの平均移行比には、正の相関傾向がみら

れ、植物の種類や部位間の違いは特に認められなかった。

(3) 安定同位元素の生育速度当たり(1 cm/day)の移行比の大きさは、 $\text{Ca}=\text{Sr}>\text{K}>\text{Cs}$ の順であり、CaとSrは同じ挙動を示した。

(4) 放射性核種の生育速度当たり(1 cm/day)の移行比の大きさは、 $\text{Sr-90}>\text{K-40}>\text{Cs-137}$ の順であり、Sr-90はCaやSrと同比で吸収されていた。また、K-40はKと、Cs-137はCsと同比で吸収され、土壌等の濃度レベルに1日当たり平均移行比が依存しないことが分かった。

文 献

- 1) 中山哲彦, 山岸喜信, 小森正樹: 石川保環研報, 40, 73—79 (2003)
- 2) M. アイゼンバッド, 阪上正信監訳: 環境放射能, p146, 産業図書(株) (1976)
- 3) 川瀬金次郎: 環境と放射能, p341, 東海大学出版会 (1971)
- 4) 御原子力環境整備センター: 土壌から農作物の放射性物質の移行係数, 環境パラメータ・シリーズ1, R W M C—88—P—11 (1988)

〔報 文〕

フィルターパック法による乾性沈着調査について（その3）

石川県保健環境センター環境科学部

藤澤 明子・北村 守次

横 江 斉・太 田 聡

キーワード：酸性雨，湿性沈着，乾性沈着，フィルターパック法

1 はじめに

石川県では、1983年から降水（湿性沈着）を中心に酸性雨調査を実施し、データの蓄積と酸性雨発生機構の解明に取り組んできた。しかし、酸性雨現象の環境に与える影響を考慮する場合、湿性沈着のみならず、非降水時における粒子状物質やガス状物質（乾性沈着）も重要な要素であることが指摘されてきた^{1) 2)}。しかし、その測定方法が確立されていないこと、実施が困難ないしは多大な労力を要すること等のため、乾性沈着に対する取り組みは遅れていた。

この間、玉置ら³⁾、高橋ら⁴⁾、藤田ら⁵⁾並びに全国環境研協議会酸性雨調査研究部会（以下「全環研部会」という）^{6) 7)}メンバーらによって、大気中ガス状及び粒子状物質濃度の評価法及びそれらの沈着量推定法についての研究が精力的に行われ、日本国内で統一的な手法で調査を行うことによって乾性沈着量の全国的な比較が可能になった状況になってきた。

そこで、本県においても2000年9月から2001年8月にかけてフィルターパック（4段ろ紙）法による季節ごとの予備的な乾性沈着調査を行い⁸⁾、2002年度からは通年調査を開始し、その結果を前報⁹⁾で報告した。今回は、2002～2004年度の3年間の調査結果について報告する。

なお、この研究のうち2003～2004年度の2年間は全環研部会共同調査として実施した。

2 方 法

2・1 調査地点及び調査期間

調査地点：石川県保健環境センター屋上（金沢市太陽

が丘）

標高120m，地上高約14m

調査期間：2002年4月1日～2005年3月28日

2・2 調査方法

調査は、全環研部会第3次共同調査で採用された方法^{5) 6)}に準じて行った。

採取方法、含浸ろ紙の調製、試料の前処理及び分析方法は前報⁹⁾と同様である。

以下に各段に使用したろ紙の種類と採取対象物質を示す。

1 段目（F₀）：ポリテトラフロロエチレン（PTFE）ろ紙（孔径0.8μm，47mmφ，ADVANTEC社製）。粒子状物質（硫酸イオン，硝酸イオン，塩化物イオン，アンモニウムイオン，ナトリウムイオン，カリウムイオン，マグネシウムイオン，カルシウムイオン）を採取。

2 段目（F₁）：ポリアミドロ紙（孔径0.45μm，47mmφ，PALI社製）。主として硝酸ガスを採取。

3 段目（F₂）：セルロースろ紙（47mmφ，ADVANTEC社製）6%炭酸カリウム＋2%グリセリン含浸。塩化水素などの酸性ガスを採取。

4 段目（F₃）：セルロースろ紙（47mmφ，ADVANTEC社製）5%リン酸＋2%グリセリン含浸。アンモニアガスを採取。

3 調査結果及び考察

3・1 データの精度

F₀及びF₁で捕集された試料について、抽出液の一部を用いてpH及び電気伝導率（EC）の測定を行い、イオン分析結果と併せてイオンバランスを求めた（図1，2）。

Study of Dry Deposition using Filter Pack Method (Part III), by FUJISAWA Akiho, KITAMURA Moritsugu, YOKOE Hitoshi, OHTA Satoru (Department of Environmental Science, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Acid rain, Wet deposition, Dry deposition, Filter pack method

F_0 については、陰イオンの合計と陽イオンの合計は、1:1の良好な相関関係を示した。一方、 F_1 については、 F_0 に比べてややばらつきが大きかった。

3・2 乾性沈着物質（粒子状物質及びガス状物質）濃度調査結果

表1に粒子状物質、表2にガス状物質の2002～2004年度における調査結果を示す。

(1) 粒子状物質の濃度とその季節変動

2002年度に一部欠測があるが、3年間のデータを図3—1、図3—2及び図3—3に示した。

陰イオン（図3—1）では、硫酸イオン（ SO_4^{2-} ）と、硝酸イオン（ NO_3^- ）が年間を通して観測される中で、塩化物イオン（ Cl^- ）が10月から4月の冬季に濃度ピークが観察された。 SO_4^{2-} がいずれの年も5月から9月にかけて濃度ピークが見られる中で、2003年のみ、冬場にも高い濃度ピークが現れている。一方、 NO_3^- は4月に濃度ピークがあり、夏にかけて低減する傾向が見られる。

陽イオン（図3—2、図3—3）では、ナトリウムイオン（ Na^+ ）とアンモニウムイオン（ NH_4^+ ）が多くを占めており、年間のピーク濃度で見ると、 Na^+ では11

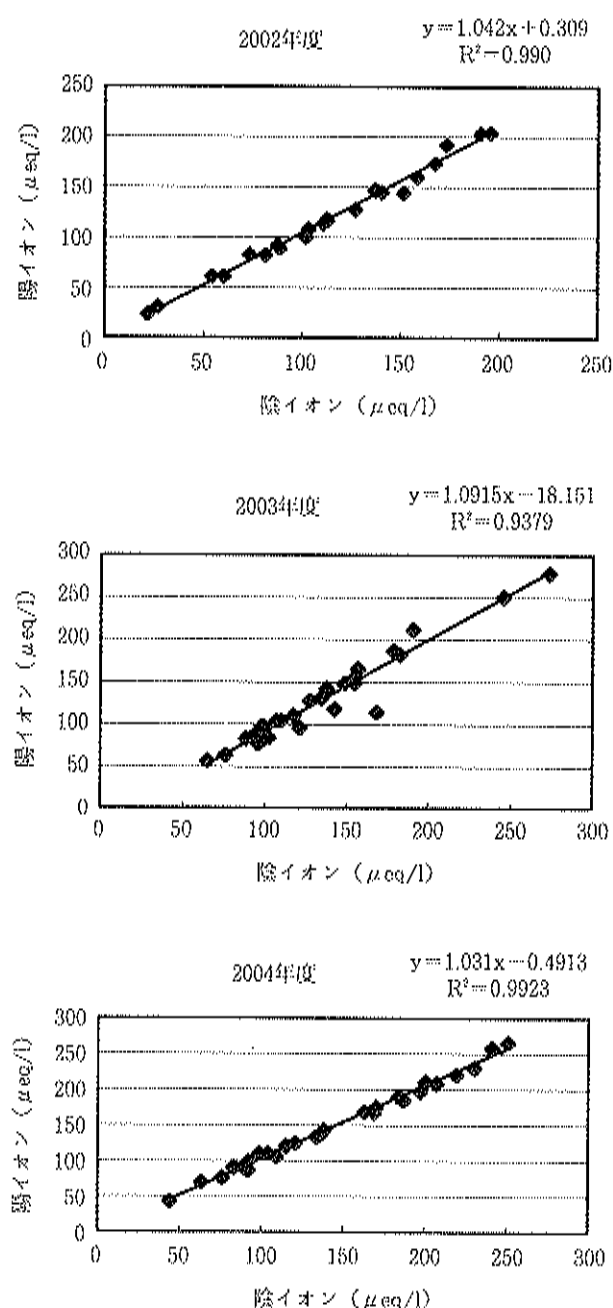


図1 F_0 のイオンバランス

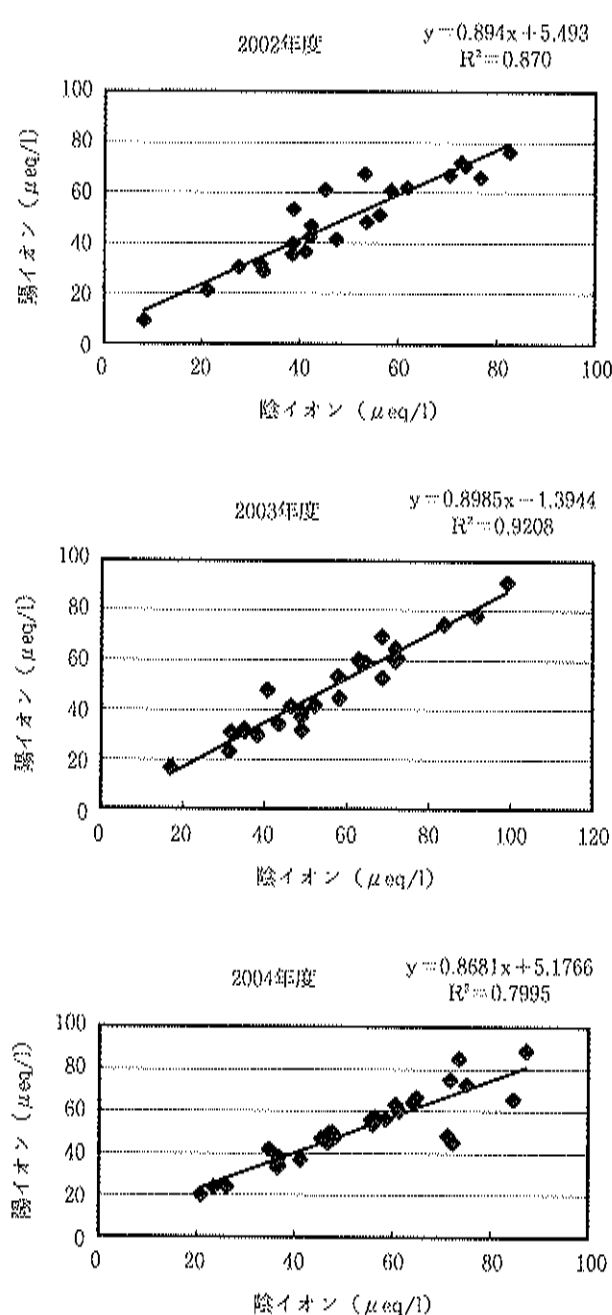


図2 F_1 のイオンバランス

表 1 環境大気中の粒子状物質濃度 (2002.4~2005.3)

(単位: nmol/m³)

開催日時	終了日時	SO ₄ ²⁻	NO ₃	Cl ⁻	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	NH ₄ ⁺
2002/ 4/ 1	2002/ 4/15	49.8	51.4	24.3	31.7	5.3	42.3	8.3	51.2
	4/15	42.2	41.9	26.8	45.1	4.6	22.5	6.2	40.5
	4/30	24.4	13.4	4.0	13.5	0.0	2.7	1.8	36.2
	5/13				(欠 側)				
	5/27	91.2	9.7	1.2	20.3	7.7	8.8	3.2	135.4
	6/10	58.1	9.1	2.0	11.6	6.2	3.8	2.3	80.6
	6/24	7/ 8	38.6	4.9	0.4	10.1	3.8	1.7	42.8
	7/ 8	7/22	42.0	6.1	0.0	17.6	6.3	2.8	38.9
	7/22	8/ 5	74.8	9.5	0.8	15.1	6.0	3.0	100.7
	8/ 5	8/19			(欠 側)				
	8/19	9/ 2	57.7	23.3	2.8	35.5	5.5	5.2	76.5
	9/ 2	9/17	27.9	12.5	1.8	10.7	4.6	2.3	47.6
	9/17	9/30	32.4	27.8	5.3	27.4	7.5	3.9	46.3
	9/30	10/15	77.9	25.4	3.6	29.6	10.2	12.0	100.0
	10/15	10/28	4.4	11.4	3.2	5.5	0.0	1.9	11.8
	10/28	11/11	22.4	18.6	37.5	41.7	5.8	3.2	31.2
	11/11	11/25	33.5	35.8	63.4	65.3	6.8	12.1	53.6
	11/25	12/ 9	12.2	17.4	11.8	14.9	4.9	2.8	28.0
	12/ 9	12/24	27.0	23.7	23.9	35.7	2.5	2.3	49.8
2002/12/24	2003/ 1/ 6				(欠 側)				
2003/ 1/ 6	1/20	7.7	10.1	1.0	2.2	1.4	0.1	0.3	20.9
	1/20	2/ 3	26.7	11.5	41.8	45.2	2.4	2.3	39.8
	2/ 3	2/17	32.9	27.7	8.7	19.7	2.2	2.4	66.7
	2/17	3/ 3	44.6	24.8	22.4	33.2	5.0	6.8	67.4
	3/ 3	3/17	31.4	18.7	29.6	33.8	3.4	3.6	50.3
	3/17	3/31	50.5	30.5	6.6	18.5	4.9	10.2	83.4
	3/31	4/28	51.1	35.9	14.6	37.7	5.1	13.9	71.8
	4/28	6/ 2	79.6	19.7	3.2	24.8	3.5	8.7	125.5
	6/ 2	6/30	61.6	13.3	2.1	3.4	4.4	5.4	100.2
	6/30	8/ 4	48.7	10.8	3.8	15.8	2.1	2.9	66.2
	8/ 4	9/ 1	58.9	11.3	35.3	28.4	3.0	4.4	79.6
	9/ 1	9/29	46.3	6.1	0.5	10.4	2.4	3.1	63.4
	9/29	10/27	27.2	18.5	21.8	24.0	3.1	3.3	32.4
	11/ 4	12/ 1	30.8	21.0	43.1	40.5	2.6	3.3	38.3
2003/12/ 1	2004/ 1/ 5	36.2	18.3	43.5	51.2	3.7	4.2	7.0	50.5
2004/ 1/ 5	1/19	27.5	10.7	66.7	68.2	2.2	3.3	8.0	37.5
	2/ 2	3/ 1	65.1	34.4	64.6	91.6	5.9	14.6	79.1
	3/ 1	3/29	46.1	30.6	23.3	35.3	4.2	16.0	68.4
	3/29	4/26	71.6	41.9	30.1	59.6	7.4	26.2	85.5
	4/26	5/31	56.5	22.6	4.2	26.9	4.9	8.6	81.4
	5/31	6/28	74.5	12.8	1.7	14.4	6.5	6.4	120.1
	6/28	8/ 2	85.2	17.4	0.4	37.0	3.8	5.7	112.6
	8/ 2	8/30	46.2	16.9	5.0	29.2	2.9	4.0	59.2
	8/30	9/27	57.3	17.6	7.7	38.7	4.3	4.2	67.4
	9/27	11/ 1	29.8	18.1	18.0	39.4	2.9	3.9	33.8
	11/ 1	11/29	55.4	17.0	38.1	58.6	4.9	5.8	75.6
	11/29	12/27	32.8	15.7	32.4	45.2	3.1	5.1	41.8
2004/12/27	2005/ 1/31	26.6	8.5	21.7	30.1	2.3	1.9	4.2	31.7
2005/ 1/31	2/28	34.4	13.6	44.0	53.1	2.7	4.0	7.1	45.0
	2/28	3/28	30.2	14.4	15.1	26.1	2.2	3.7	42.4

注：2003年度、2004年度は全国環境研協議会の酸性雨調査としてデータをとりまとめたので2002年度とデータのとりまとめ期間が異なる。2002年度データは全国環境研協議会の方式に併せ、欠測期間を除外して解析を行った。

表 2 環境大気中のガス状物質濃度 (2002.4~2005.3)

(単位: nmol/m³)

開催日時	終了日時	期間平均気温 (°C)	HNO ₃	SO ₂	HCl	NH ₃
2002/ 4/ 1	2002/ 4/15	13.4	5.2	32.4	10.5	50.9
4/15	4/30	16.3	7.8	35.0	20.5	54.3
4/30	5/13	16.1	8.4	22.5	8.2	32.7
5/13	5/27	17.0		(欠 側)		
5/27	6/10	21.1	45.6	52.1	21.2	48.3
6/10	6/24	22.0	34.1	15.3	11.0	61.3
6/24	7/ 8	23.5	26.1	20.4	11.8	25.3
7/ 8	7/22	26.1	19.7	24.4	15.9	51.7
7/22	8/ 5	28.1	37.0	26.5	18.3	33.5
8/ 5	8/19	28.9		(欠 側)		
8/19	9/ 2	26.4	19.8	24.4	37.4	68.8
9/ 2	9/17	24.3	20.5	42.2	17.1	89.0
9/17	9/30	20.8	13.4	22.5	24.6	53.5
9/30	10/15	20.1	27.4	26.4	25.6	50.7
10/15	10/28	16.4	1.6	2.7	2.4	9.6
10/28	11/11	9.9	2.9	29.5	12.5	8.8
11/11	11/25	9.7	3.0	38.0	12.1	18.5
11/25	12/ 9	8.6	1.3	79.3	7.1	33.1
12/ 9	12/24	5.6	4.1	39.9	15.9	7.9
2002/12/24	2003/ 1/ 6	3.2		(欠 側)		
2003/ 1/ 6	1/20	4.8	10.5	10.7	2.7	17.1
1/20	2/ 3	2.5	3.1	58.6	18.8	5.1
2/ 3	2/17	4.8	6.5	49.5	16.8	12.1
2/17	3/ 3	5.2	6.3	56.3	21.4	16.7
3/ 3	3/17	4.3	3.4	45.0	16.5	12.0
3/17	3/31	8.3	14.4	45.4	21.1	35.8
3/31	4/28	12.8	19.5	44.5	32.2	53.4
4/28	6/ 2	18.3	42.2	45.7	32.3	68.2
6/ 2	6/30	21.9	39.6	36.4	23.0	85.1
6/30	8/ 4	22.8	20.7	19.5	20.5	38.2
8/ 4	9/ 1	26.0	26.1	28.0	20.0	54.4
9/ 1	9/29	23.5	23.7	31.9	30.5	51.2
9/29	10/27	16.5	6.1	20.7	23.7	36.5
11/ 4	12/ 1	13.6	5.4	34.0	22.4	24.1
2003/12/ 1	2004/ 1/ 5	7.5	4.4	47.4	22.9	11.7
2004/ 1/ 5	2/ 2	3.8	3.2	51.9	17.3	6.9
2/ 2	3/ 1	5.5	9.2	98.3	35.4	28.9
3/ 1	3/29	7.8	9.7	55.4	15.7	30.9
3/29	4/26	13.4	20.2	53.1	29.9	72.4
4/26	5/31	18.6	21.5	32.8	24.3	63.6
5/31	6/28	22.5	39.2	37.6	18.5	88.2
6/28	8/ 2	27.3	38.8	29.2	35.5	82.0
8/ 2	8/30	27.4	24.9	26.6	24.7	68.1
8/30	9/27	24.2	16.4	22.5	28.2	56.0
9/27	11/ 1	17.3	8.1	26.0	26.3	39.1
11/ 1	11/29	13.8	9.8	43.7	22.2	23.9
11/29	12/27	8.2	3.9	49.0	17.3	14.5
2004/12/27	2005/ 1/31	4.2	4.8	51.8	13.0	6.2
2005/ 1/31	2/28	3.4	4.3	54.0	17.3	8.7
2/28	3/28	6.8	5.0	31.0	12.4	12.8

注: 期間平均気温は金沢地方気象台データから計算した。

注: 2003年度、2004年度は全国環境研協議会の酸性雨調査としてデータを取りまとめたので2002年度とデータのとりまとめ期間が異なる。2002年度データは全国環境研協議会の方式に併せ、欠測期間を除外して解析を行った。

月(2002), 2月(2003), 4月(2004)と冬季～春季に, また, NH_4^+ では, 6月(2002), 5月(2003), 6月(2004)と春季に出現している。日本海側における Na^+ はほとんどが海塩由来といわれており, Cl^- およびカルシウムイオン(Ca^{2+})を含め, 海塩の寄与が大きい。

(2) ガス状物質の濃度とその季節変動

図4に3年間のガス状物質データを示した。硝酸

(HNO_3)が4月から8月にかけて出現, 5月から6月にかけて高くなったが, それ以外の月は低濃度であった。二酸化硫黄(SO_2)は11月から3月にかけて高く, 7月から9月の夏場にかけて低くなった。アンモニア(NH_3)は HNO_3 と同じような傾向を示した。塩化水素(HCl)は前述の3成分に比べ低濃度であり, また, 季節による濃度変化は明らかではなかった。

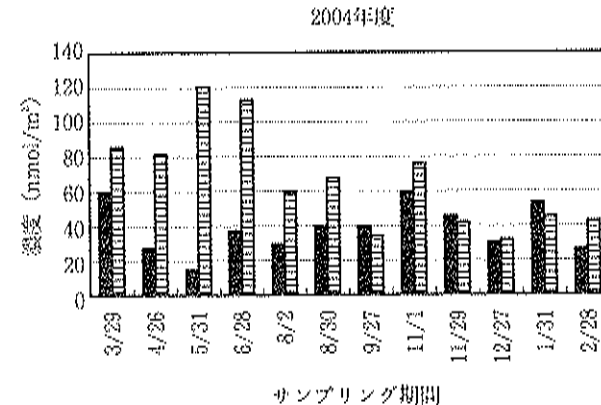
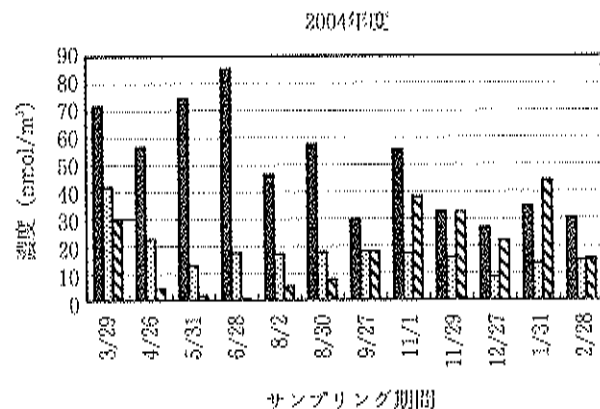
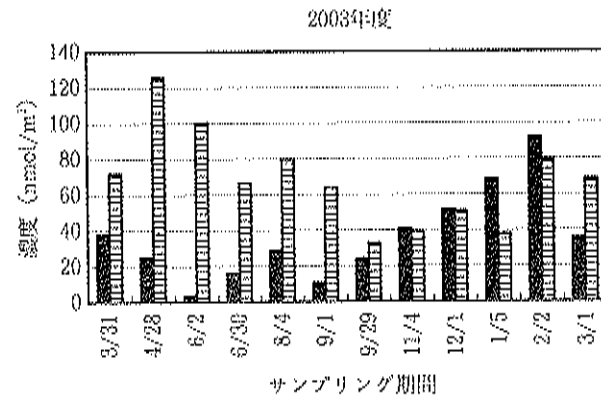
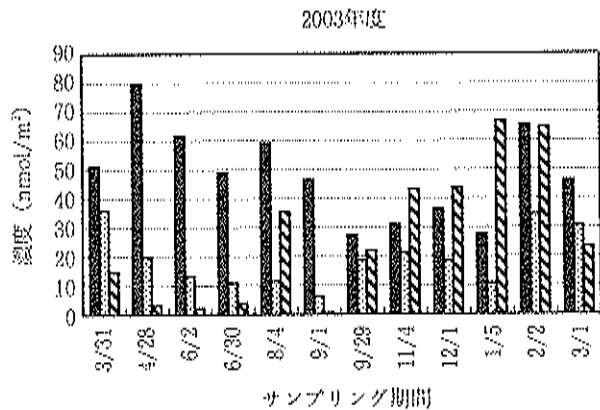
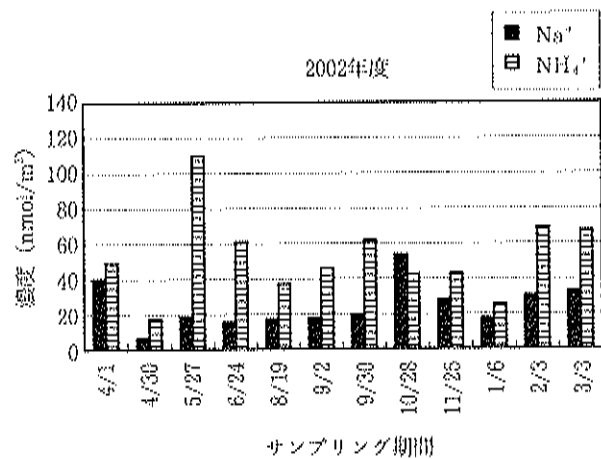
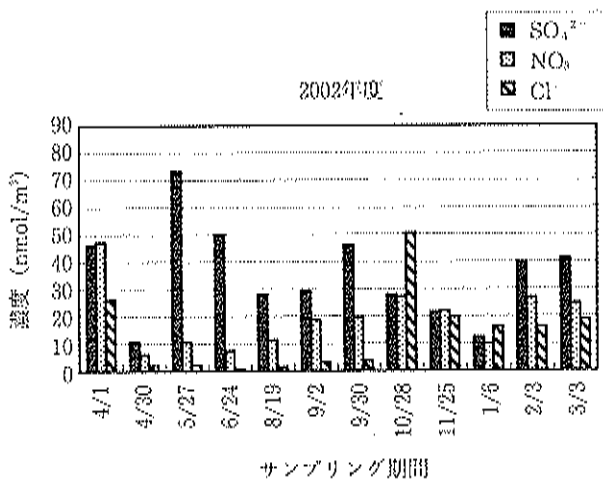


図3-1 粒子状物質の濃度(陰イオン)

図3-2 粒子状物質の濃度(陽イオン-1)

(3) 粒子状物質濃度とガス状物質濃度の関係

3年間のデータと気温を図5～図7に示す。 SO_4^{2-} (粒子) と SO_2 (ガス) についてみると、前報³⁾で2002年度について示したのと同様に、2003、2004年度も SO_4^{2-} 濃度は暖候季に高く、 SO_2 濃度は寒候季に高くなる傾向を示した。同様の傾向は全環研第3次、第4次調査結果⁶⁾⁷⁾及び松本ら⁸⁾の奈良県における調査結果で

も指摘されており、これは暖候季には SO_2 (ガス) から粒子状硫酸あるいは粒子状硫酸塩への転換が起こりやすいためと考えられている。

NO_3^- (粒子) と HNO_3 (ガス) については、 NO_3^- 濃度は夏季に低く、2～5月に高く、 HNO_3 濃度は4～10月に高く、11～3月に低かった。これは、前報³⁾で述べたように、下式で表される気相中でのアンモニアガ

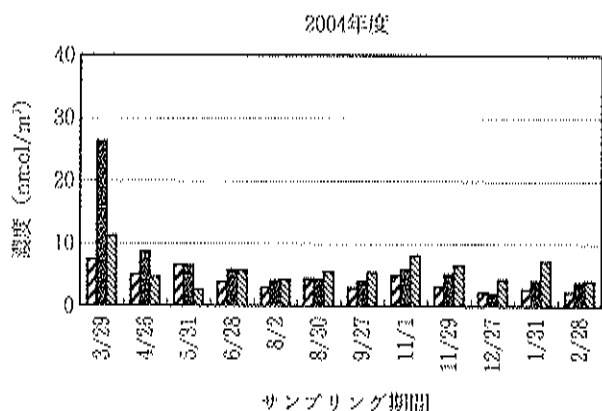
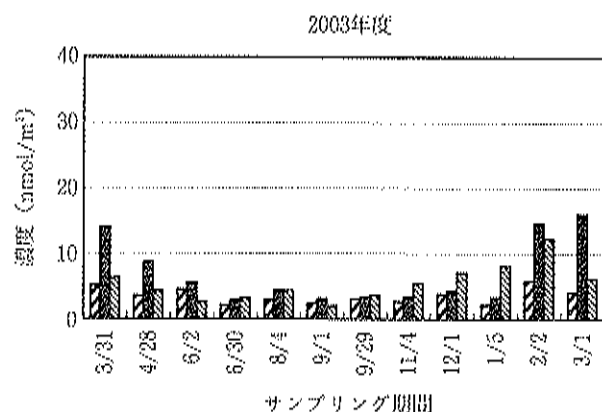
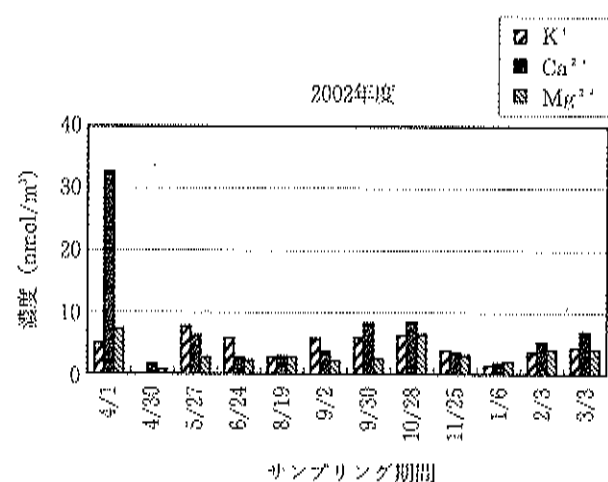


図3-3 粒子状物質の濃度(陽イオン-2)

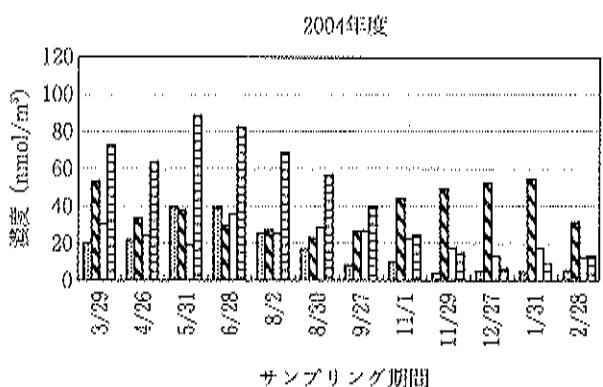
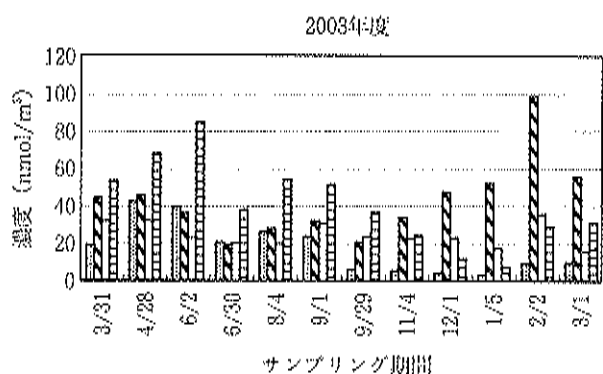
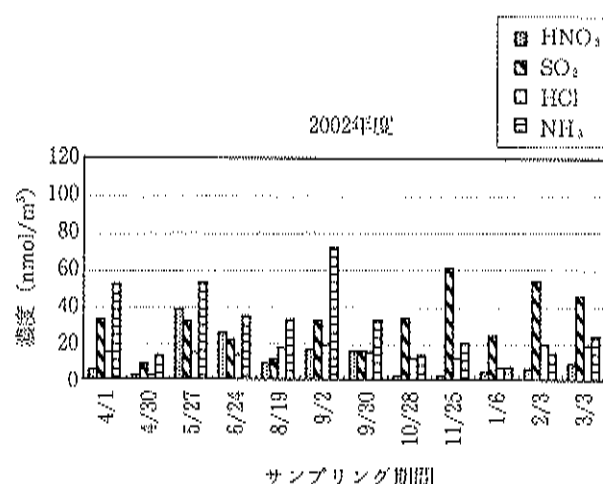


図4 ガス状物質の濃度

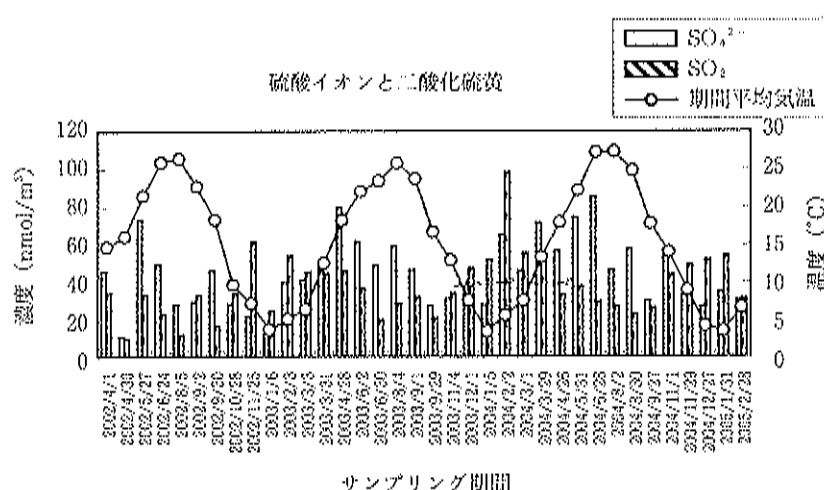


図5 粒子状物質とガス状物質の関係(1)

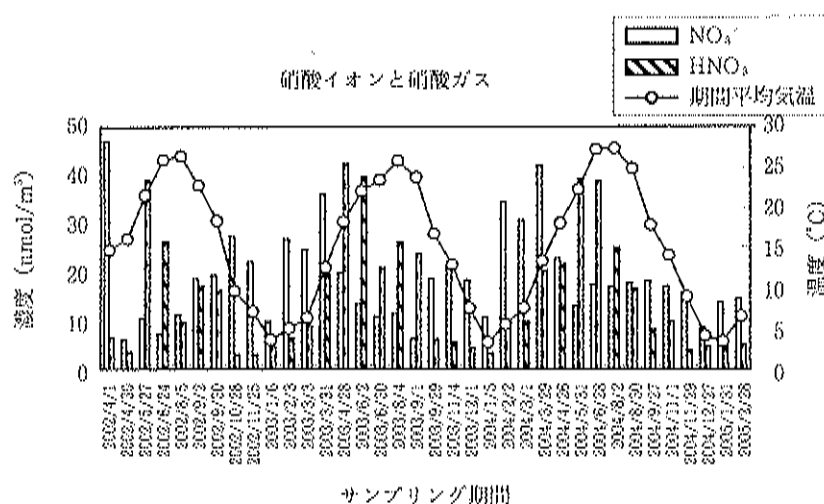


図6 粒子状物質とガス状物質の関係(2)

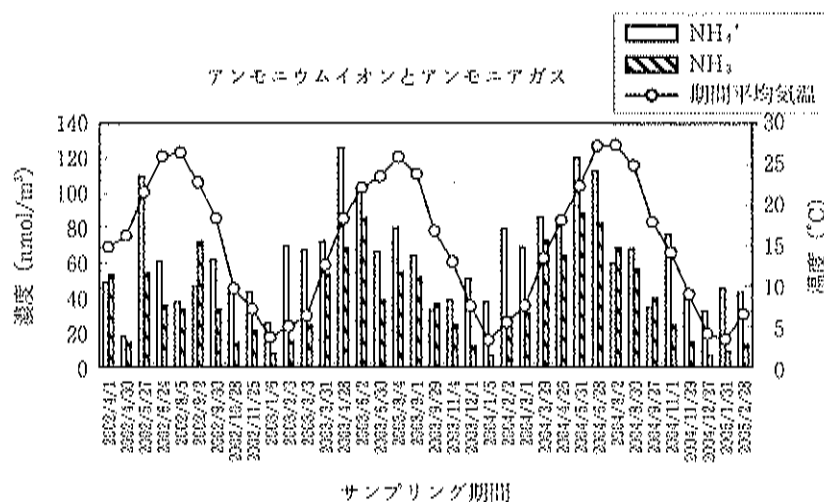
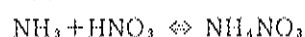


図7 粒子状物質とガス状物質の関係(3)

ス及び硝酸ガスと硝酸アンモニウム(粒子)の平衡



の温度依存性が大きく、気温が低くなると NH_4NO_3 は容易に粒子化するが、気温が 20°C 以上では、一旦生成されてもすぐに分解すること¹⁰⁾とよく一致している。

NH_4^+ (粒子) は1年を通じて観察される。2月頃から増加し、5月(2002)、4月(2003)、5月(2004)と春季に濃度ピークが現れ、9月にかけて減少傾向を示すが、冬季には特に増加減少等の傾向は見られない。一方、 NH_3 (ガス) は2003、2004年では3月から増加し、5月をピークに減少、12月に最も低くなり、暖候季に高く、寒候季に低くなる傾向が見られた。 NH_3 は前述のとおり、粒子状硫酸塩や硝酸アンモニウムの生成と関わりが指摘されており、濃度の消長はこれらとの関わりを示していると見られる。

(4) 粒子状物質濃度及びガス状物質濃度の経年変動

調査期間の気候^{10)~16)} については、2002年は春3、4月が高温、夏も高温がつづいた。秋は前半が暖かく、後半が低温で早い冬となった。2003年は平年並みの冬、春は2002年に引き続き高温であったが、夏は平均気温が10年ぶりの低温で日照不足、秋は残暑が厳しく、11月が高温となった。2004年は暖冬であったが、1月は発達した低気圧や寒気の影響で東・西日本の日本海側や北日本では暴風や大雪の大荒れとなる日があった。春は2001年から4年連続で高温となり、5月が高温、多雨、日照時間が少なかった。夏は高温、多雨、日照時間が多かった。秋も高温で特に11月が顕著であった。12月も高温が続いた。

このような状況の中、各物質濃度の経年変動について述べる(図3-1、図3-2、および図4)。

SO_4^{2-} は3年間を通じて4月から6月の暖候季に濃度ピークが見られ、寒候季には低くなる傾向が見られたが、2004年の2月は2003年および2005年2月の2倍前後に高くなった。

NO_3^- はいずれの年度も4月から6月にかけて減少し、11月にやや高くなり、1月にかけて減少、2月から4月にかけて増加するという2峰性のパターンを示し、3年間とも4月が1年のうちで最も濃度が高い。冬季のピークは2004年が最も高くなった。

Cl^- は3年間とも5月から9月にかけて濃度は低く、10月から4月にかけて出現し、各年度の最高濃度は10月(2002)、12月～1月(2004)、1月(2005)に出現している。特に2004年の12月～1月が2003年、2005年に比べて高くなった。

Na^+ も3年間、5月から6月にかけて減少傾向が見られた。2002年と2004年では10月にピークが見られたが、2003年は9月から2004年1月まで濃度は増加傾向を示し、 Cl^- と相関を示している。

2004年1月の SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 Cl^- 、 Na^+ の増加はこの時期、冬型の気圧配置の強まり、大陸からの寒気の吹き出しが強まったことによる汚染物質の大陸からの移流等による影響が考えられる¹⁰⁾。

NH_4^+ は3年間、前述のとおり、通年で観察され、春先に高く、夏にかけて低下した。

3・3 乾性沈着濃度の比較

今回は2003年度分について解析を行った。表3に粒子状、表4にガス状のフィルターバック法による2001年度、2003年度の全国の乾性沈着濃度平均値と石川県の年間平均値を示す。2002年度は全国調査が実施されなかったため、2001年度および2003年度の全国調査データを使用した。全国のガス状(SO_2)、ガス状(HCl)で2001年度と2003年度の差が大きかった。ガス状(HCl)では2001年度が2003年度の約2倍と高くなった。それ以外では粒子状およびガス状の成分の年平均値の年度差による違いは少ない。

石川県と全国平均の比較では SO_4^{2-} の濃度がほぼ全国並みであった以外は粒子状およびガス状のいずれの成分についても石川県が低く、 NH_4^+ (粒子)が84.9%、ついで Ca^{2+} (粒子)が74.9%であった。 NH_3 (ガス)が最も低く27.9%であった。

3・4 乾性沈着量の試算

(1) 乾性沈着量の求め方

乾性沈着量を求める方法としてインファレンシャル法がある。このモデルはHICKS^{17) 18)}、WESELY¹⁹⁾によって提唱されたもので、次の式で表される。

$$F = V_d \times C$$

ここで、

F：沈着面への沈着物質のフラックス(沈着量)

表 3 フィルターバック法による粒子状物質濃度年平均値

(単位：nmol/m³)

年 度	SO_4^{2-}		NO_3^-		NH_4^+		Ca^{2+}		全国測定 地点数
	石川県	全 国	石川県	全 国	石川県	全 国	石川県	全 国	
2001	39.6	49.7	20.2	30.3	56.5	73.0	6.9	10.6	28
2003	50.0	43.5	18.0	30.8	66.4	76.7	6.6	7.7	31
平 均	46.0	46.6	19.2	30.6	63.5	74.9	6.8	9.1	
石川/全国 (%)	98.8		62.8		84.9		74.9		

注：2002年度は全国調査が行われなかったためデータなし。

表 4 フィルターバック法によるガス状物質濃度年平均値

(単位：nmol/m³)

年 度	SO_2		HNO_3		HCl		NH_3		全国測定 地点数
	石川県	全 国	石川県	全 国	石川県	全 国	石川県	全 国	
2001	34.7	81.3	14.0	21.5	16.1	51.1	34.6	161.5	28
2003	38.1	63.0	16.4	26.4	22.5	25.8	44.6	135.4	31
平 均	38.6	72.2	16.0	24.0	21.1	38.4	40.0	143.4	
石川/全国 (%)	53.5		66.8		54.9		27.9		

注：2002年度は全国調査が行われなかったためデータなし。

表 5 1 Km² 当たりの土地利用状況 (%) ^{7), 24-26)}

土地利用	市 街 地		森 林	農 地		草 地	水 面	計
	建物用地	その他の用地		田	その他の農用地			
金 沢	11	29	28	16	10	3	3	100

V_d : 沈着速度

C : 沈着物質濃度

V_d は大気中から沈着表面まで 3 つの沈着過程 (①乱流境界層内の輸送過程, ②層流境界層内の輸送過程, ③表面での捕捉過程) における沈着抵抗の和の逆数として算出される。

$$V_d = (R_a + R_b + R_c)^{-1}$$

R_a : 空気力学的抵抗

R_b : 準層流層抵抗

R_c : 表面抵抗

これらの抵抗は、沈着成分の輸送されやすさ、沈着しやすさによって変化する。これを風速や気温などの気象データ、また対象成分の溶解度や地表面の被覆状況などから推定し、沈着速度を求めることとなる⁷⁾。

ERISMAN ら²⁰⁾ は、WESELY¹⁰⁾ の算出法を基に、欧州で SO_2 に関する沈着速度を検討したところ、湿潤な気候の場合は沈着速度が過小評価となることから、観測値を基にした経験式からクチクラ抵抗を求めたモデルを開発した。同様に湿潤な気候である日本においても本方法がより適していると考えられている⁷⁾。

また、WALCEK ら²¹⁾ は、WESELY のモデルを基に、粒子状物質の乾性沈着速度算出法を簡易化し、沈着速度の上限を求めたが、酸性雨対策検討会²²⁾ によって、WALCEK らと WESELY の両モデルの計算結果には大きな差がないことが確かめられている。

これらのことから、野口ら²³⁾ は上記のモデルによる乾性沈着量推計モデルを、表計算ソフト (MS Excel) のファイルとして開発し、さらに改良を加えた。本解析はこの方法により行われたものである。

(2) 金沢における乾性沈着量

前述のように乾性沈着速度が地表面の被覆状況により異なるため、乾性沈着量は、濃度が同じであっても、その場所の土地利用状況によって異なると考えられる。前報⁷⁾ では、2002年度の測定結果について全県研第 3 次全国調査報告書において採用している針葉樹 (スギ) に対するガス及び粒子の平均沈着速度⁶⁾ を用いて、石川県の針葉樹に対する沈着量を試算した。

ここでは、乾性沈着濃度測定地点 (金沢市太陽が丘) 周辺 1 km² の土地利用状況 (表 5) の割合を求め、各カテゴリー (市街地、森林地域、農地、草地、積雪、水面)

ごとに沈着速度を 1 時間ごとに算出し、月平均値を求める方法で、2003年度における調査地点周辺への沈着量を試算した。試算はそれぞれ 5 月 (春季)、8 月 (夏季) 11 月 (秋季)、2 月 (冬季) について行った。

表 6 に金沢におけるガス状及び粒子状の物質の月平均沈着速度と対応する全国平均値、表 7 に粒子状物質、表 8 にガス状物質ののカテゴリー別沈着量を示した。

表 6 から粒子状物質の月平均沈着速度はそれぞれのカテゴリー (市街地、森林、農地、草地、水面) で金沢、全国平均値とも差はそれほど大きくはなく、金沢は全国平均並である。

カテゴリー別では金沢の値を見ると、森林が高く、市街地が低かった。最大値は森林で 5 月が 0.24 cm/sec、最小値が市街地の 0.09 cm/sec と森林が市街地の約 2.7 倍であった。

SO_2 (ガス状) でも森林が高く、市街地が低くなった。最大値は 8 月の森林で 1.68 cm/sec、最小値は 5 月の市街地で 0.16 cm/sec と森林が市街地の 10 倍を超えている。また、 SO_2 (ガス状) では、前述の 8 月の森林への沈着速度以外は 2 月が全て最大となっている。

HNO_3 (ガス状) の市街地および森林への月平均沈着速度は粒子状および SO_2 (ガス状) に比較して格段に高く見積もられた。金沢の季節別、カテゴリー別の最大値は、2 月の市街地で 13.62 cm/sec であった。 HNO_3 (ガス状) は粒子状物質や SO_2 (ガス状) に比べ、土地利用によって沈着速度の差が大きく、最小値が水面の全国平均値で 8 月、11 月の 0.31 cm/sec で、金沢の 2 月の市街地の値は最小値の 44 倍に達した。また、 HNO_3 (ガス状) では森林より市街地への沈着速度が高く、粒子状および SO_2 (ガス状) とは傾向が異なった。市街地で比較すると 2 月では粒子状が 0.1 cm/sec、 SO_2 (ガス状) が 0.47 cm/sec なのに対し、 HNO_3 (ガス状) は 13.62 cm/sec と粒子状の 136 倍、 SO_2 (ガス状) の 29 倍の早さで沈着している。

沈着量は、(沈着濃度 × 沈着速度) で算出される。粒子状物質では、各物質とも森林が最も高い沈着量となった (表 7)。一方、ガス状物質については、 SO_2 は粒子状物質と同じく多いが、 HNO_3 は市街地が最も多い沈着量となっている (表 8)。

(3) 金沢における乾性沈着量と湿性沈着量の割合

表 6 金沢での粒子状物質およびガス状 SO_2 、 HNO_3 の月平均沈着速度²⁰⁾

		粒子状物質の月平均沈着速度 (cm/sec)					SO ₂ の月平均沈着速度 (cm/sec)					HNO ₃ の月平均沈着速度 (cm/sec)				
		市街地	森林	農地	草地	水面	市街地	森林	農地	草地	水面	市街地	森林	農地	草地	水面
金沢 全国	5月(春季) 平均値	0.09	0.24	0.21	0.2	0.22	0.16	0.94	0.76	0.56	0.36	9.02	5.38	1.8	1.42	0.35
	8月(夏季) 平均値	0.09	0.22	0.18	0.18	0.18	0.16	0.88	0.71	0.53	0.34	8.67	5.17	1.73	1.37	0.34
金沢 全国	8月(夏季) 平均値	0.09	0.21	0.16	0.16	0.16	0.19	1.68	0.96	0.77	0.36	9.28	5.53	1.86	1.47	0.37
	11月(秋季) 平均値	0.09	0.2	0.16	0.16	0.17	0.19	1.19	0.75	0.6	0.31	7.9	4.71	1.58	1.25	0.31
金沢 全国	11月(秋季) 平均値	0.1	0.18	0.12	0.11	0.09	0.19	1.47	0.84	0.71	0.42	10.93	6.48	2.15	1.69	0.42
	2月(冬季) 平均値	0.09	0.15	0.11	0.1	0.09	0.19	1.04	0.62	0.52	0.31	8.26	4.9	1.62	1.28	0.31
金沢 全国	2月(冬季) 平均値	0.1	0.22	0.14	0.13	0.1	0.47	1.54	1.11	0.96	0.52	13.62	8.09	2.68	2.12	0.53
		0.09	0.18	0.14	0.11	0.13	0.28	0.66	0.65	0.49	0.35	9.39	5.57	1.84	1.45	0.35

(注：全国は15地点の平均である。)

表 7 金沢での粒子状物質の沈着量²⁰⁾

	粒子状物質(SO_4^{2-})の 月間沈着量($\text{kmol}/\text{km}^2/\text{month}$)					粒子状物質(SO_4^{2-})の 月間沈着量($\text{kmol}/\text{km}^2/\text{month}$)					粒子状物質(nss-SO_4^{2-})の 月間沈着量($\text{kmol}/\text{km}^2/\text{month}$)					粒子状物質(nss-Ca^{2+})の 月間沈着量($\text{kmol}/\text{km}^2/\text{month}$)				
	市街地	森林	農地	草地	水面	市街地	森林	農地	草地	水面	市街地	森林	農地	草地	水面	市街地	森林	農地	草地	水面
金沢 5月(春季)	0.077	0.143	0.116	0.013	0.014	0.019	0.035	0.029	0.003	0.003	0.075	0.141	0.114	0.013	0.014	0.008	0.015	0.012	0.001	0.001
金沢 8月(夏季)	0.067	0.093	0.066	0.008	0.008	0.011	0.018	0.013	0.001	0.001	0.055	0.090	0.064	0.007	0.007	0.004	0.006	0.004	0.000	0.000
金沢 11月(秋季)	0.032	0.040	0.025	0.003	0.002	0.022	0.028	0.018	0.002	0.002	0.029	0.037	0.023	0.002	0.002	0.002	0.003	0.002	0.000	0.000
金沢 2月(冬季)	0.057	0.104	0.061	0.007	0.005	0.036	0.055	0.032	0.003	0.003	0.062	0.095	0.056	0.006	0.005	0.013	0.020	0.012	0.001	0.001

表 8 金沢でのガス状 SO_2 、 HNO_3 沈着量²⁰⁾

	SO ₂ 月間沈着量(kmol/km ² /month)					HNO ₃ 月間沈着量(kmol/km ² /month)				
	市街地	森林	農地	草地	水面	市街地	森林	農地	草地	水面
金沢 5月(春季)	0.078	0.322	0.242	0.021	0.013	4.078	1.703	0.529	0.048	0.012
金沢 8月(夏季)	0.057	0.353	0.187	0.017	0.008	2.585	1.082	0.388	0.031	0.008
金沢 11月(秋季)	0.067	0.363	0.192	0.019	0.011	0.612	0.254	0.078	0.007	0.002
金沢 2月(冬季)	0.479	1.098	0.735	0.073	0.040	1.299	0.540	0.166	0.015	0.004

表 9 金沢の乾性沈着量と湿性沈着量（その1）

(kmol/km²/month)

2003年度		乾性			湿性	総沈着量	乾性/湿性	乾性/総沈着量	湿性/総沈着量
		SO ₂	SO ₄ ²⁻	nss-SO ₄ ²⁻ (SO ₂ +SO ₄ ²⁻)	(SO ₄ ²⁻)		%	%	%
金沢	5月(春季)	0.676	0.363	0.356	1.04	2.77	60.1	37.5	63.5
金沢	8月(夏季)	0.622	0.230	0.224	0.853	5.46	18.5	15.6	84.4
金沢	11月(秋季)	0.652	0.102	0.094	0.754	6.44	13.3	11.7	88.3
金沢	2月(冬季)	2.43	0.253	0.224	2.68	16.0	20.1	16.8	83.2

表 10 金沢の乾性沈着量と湿性沈着量（その2）

(kmol/km²/month)

2003年度		乾性		湿性	総沈着量	乾性/湿性	乾性/総沈着量	湿性/総沈着量
		HNO ₃	NO ₃ ⁻ (HNO ₃ +NO ₃ ⁻)	(NO ₃ ⁻)		%	%	%
金沢	5月(春季)	6.37	0.090	6.46	7.95	434	81.3	18.7
金沢	8月(夏季)	4.05	0.044	4.10	9.46	76.5	43.3	56.7
金沢	11月(秋季)	0.953	0.072	1.02	5.36	23.6	19.1	80.9
金沢	2月(冬季)	2.02	0.129	2.15	10.6	25.5	20.3	79.7

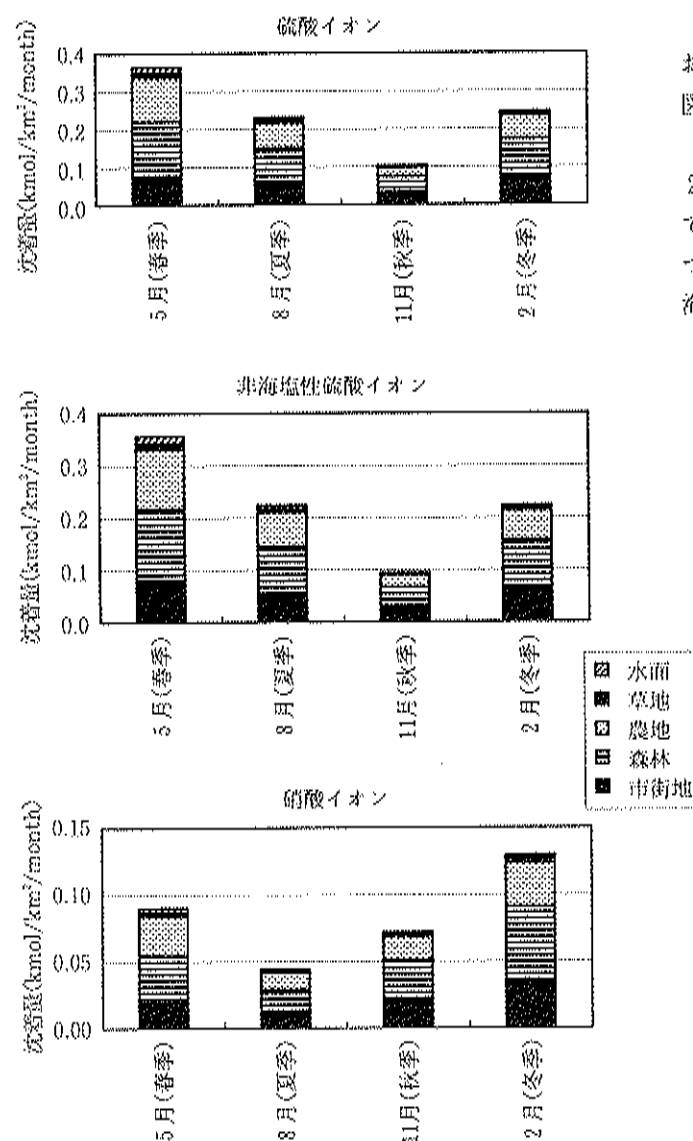


図 8-1 粒子状物質の月間沈着量（2003年度）

表9および表10に金沢における乾性沈着量の試算結果および湿性沈着との比較を示し、図8-1、図8-2、図9に図示した。

SO₄²⁻（粒子状）の月間沈着量は5月が最大、ついで2月、8月で11月が最小であった。5月は11月の3.6倍であった。いずれの季節も森林、農地の寄与が大きく、ついで市街地であった。SO₄²⁻（粒子状）にしろ、非海塩性硫酸イオン（nss-SO₄²⁻）の割合は2月が88%、

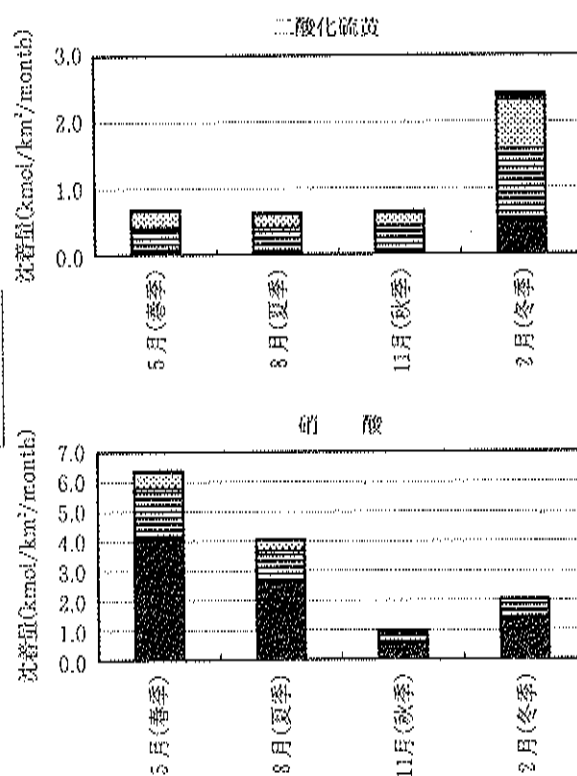


図 8-2 ガス状物質の月間沈着量（2003年度）

それ以外は90%以上をしめ、大半が非海塩性硫酸イオンで構成されている。

NO_3^- (粒子状) の月間沈着量は2月が最大、ついで5月、11月、8月となり、2月は8月の2.9倍で、冬季に高く、夏季に低くなった(図8-1)。

SO_2 (ガス状) は5月から11月は大きな変化は見られないが、2月に最大となった。2月は8月の3.9倍であった。 HNO_3 (ガス状) は5月に最大、ついで8月、2月、11月であった。5月は11月の6.7倍であった(図8-2)。

乾性沈着の SO_4^{2-} (粒子状) および SO_2 (ガス状) と湿性沈着の SO_4^{2-} を比較するといずれも湿性沈着が乾性沈着を上回る中で5月の乾性沈着量は $1.04 \text{ kmol/km}^2/\text{month}$ 、湿性沈着量が $1.73 \text{ kmol/km}^2/\text{month}$ で湿性沈着量に対する乾性沈着量の比率は60.1%で最も高く、他の月は13.3%~20.1%の範囲であった(表9)。

乾性沈着の NO_3^- (粒子状) と HNO_3 (ガス状) と湿性沈着の NO_3^- を比較すると5月は乾性沈着が $6.46 \text{ kmol/km}^2/\text{month}$ に対し、湿性沈着 $1.49 \text{ kmol/km}^2/\text{month}$ で乾性沈着が湿性沈着の4.3倍と大きかった。その他の季節、いずれも乾性沈着に対し、湿性沈着量が多くなっており、11月は乾性沈着が $1.02 \text{ kmol/km}^2/\text{month}$ 、湿性沈着が $4.34 \text{ kmol/km}^2/\text{month}$ で乾性沈着の湿性沈着に対する比率は19.1%で最も低かった(表10)。

乾性沈着の $(\text{SO}_2+\text{SO}_4^{2-})$ と $(\text{HNO}_3+\text{NO}_3^-)$ の沈着量を比較すると、5月は $(\text{HNO}_3+\text{NO}_3^-)$ が $(\text{SO}_2+\text{SO}_4^{2-})$ の6倍と乾性沈着量中の $(\text{HNO}_3+\text{NO}_3^-)$ の寄与が非常に高く、湿性と併せた総沈着量でも $(\text{HNO}_3+\text{NO}_3^-)$ は $(\text{SO}_2+\text{SO}_4^{2-})$ の2.9倍と高く、春季の硝酸成分の高値が目立った(表10)。

2003年度においては、2月は SO_4^{2-} $13.3 \text{ kmol/km}^2/\text{month}$ 、 NO_3^- $8.45 \text{ kmol/km}^2/\text{month}$ といずれの湿性沈着量も年間の最高値を示した。これに伴い、総沈着量も SO_4^{2-} で $16.0 \text{ kmol/km}^2/\text{month}$ 、 NO_3^- で $10.6 \text{ kmol/km}^2/\text{month}$ と年間の最高値となった。(図9)

(4) 全国における位置付け

平成15年度の全国データ(表11)と比較すると SO_2 (ガス状) の沈着量平均は5月、8月、11月、2月の順に0.58、0.55、0.59、 $1.22 \text{ kmol/km}^2/\text{month}$ 、金沢は

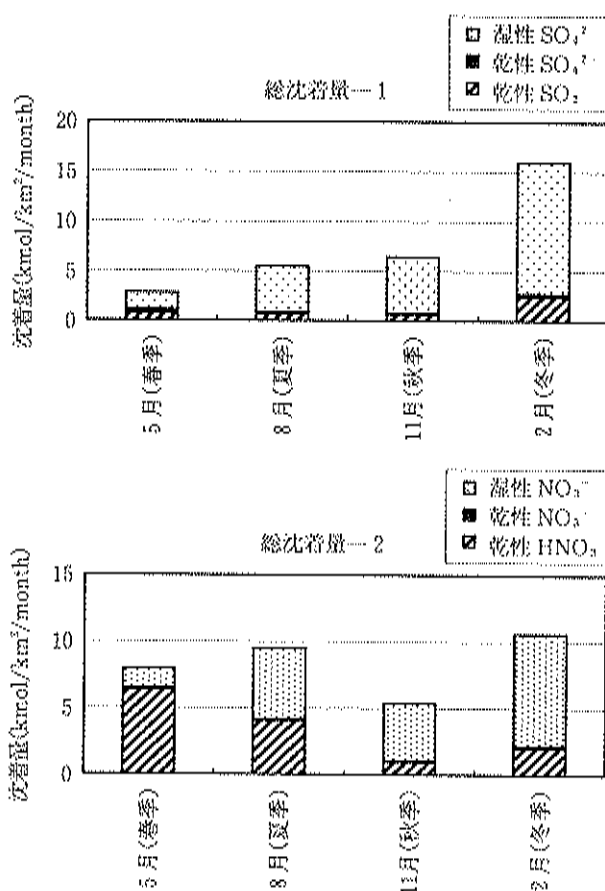


図9 月間総沈着量(2003年度)

0.68, 0.62, 0.65, $2.43 \text{ kmol/km}^2/\text{month}$ で5月から8月は全国平均よりはやや高め程度であるが、2月は平均のほぼ2倍と高い値を示している。松江も金沢と同じく2月に高くなっており、日本海側で冬季に高くなる傾向がある。 SO_4^{2-} (粒子状) の沈着量平均は5月、8月、11月、2月の順に0.21, 0.16, 0.08, $0.17 \text{ kmol/km}^2/\text{month}$ 、金沢は0.36, 0.23, 0.10, $0.25 \text{ kmol/km}^2/\text{month}$ で5月は金沢が全国の中で最も大きかった。 HNO_3 (ガス状) の沈着量平均は5月、8月、11月、2月の順に4.61, 4.29, 1.39, $1.44 \text{ kmol/km}^2/\text{month}$ 、金沢は6.37, 4.05, 0.95, $2.02 \text{ kmol/km}^2/\text{month}$ で5月、2月が全国平均より高く8月はやや低め、11月は低くなった。 NO_3^- (粒子状) の沈着量平均は5月、8月、11月、2月の順に0.12, 0.04, 0.08, $0.17 \text{ kmol/km}^2/\text{month}$ 、金沢は0.09, 0.04, 0.07, $0.13 \text{ kmol/km}^2/\text{month}$ でいずれの月も平均ないしは平均以下であった。

4 ま と め

(1) 3年間の乾性沈着物濃度の推移

2002~2004年度の3年間、フィルターバック法を用いて環境大気中の乾性沈着物の調査を行った。

表11 全国15地点の乾性沈着量平均

($\text{kmol/km}^2/\text{month}$)²⁰⁾

2003年度	乾 性			
	SO_2	SO_4^{2-}	HNO_3	NO_3^-
5月(春季)	0.58	0.21	4.61	0.12
8月(夏季)	0.55	0.16	4.29	0.04
11月(秋季)	0.59	0.09	1.39	0.08
2月(冬季)	1.22	0.17	1.44	0.17

3年間を通しての SO_4^{2-} （粒子状）は4月から8月にかけて高くなり、9月から2月にかけて低くなる傾向が見られた。 SO_2 （ガス状）は11月から2月にかけて増加し、その後8月にかけて減少する傾向を示した。 SO_4^{2-} （粒子状）のピークは5月から6月であった。

NO_3^- （粒子状）は2月から3月にかけてピークが見られその後減少し、 HNO_3 （ガス状）が4月から8月にかけて増加した。ピークは4月から6月にかけて見られた。

SO_4^{2-} （粒子状）および HNO_3 （ガス状）は平均気温が 20°C を超えると顕著に増加する傾向が見られた。 NO_3^- （粒子状）は逆に平均気温が 20°C を超えると減少する傾向が見られた。

(2) 2003年度における乾性沈着の月平均沈着速度は粒子状物質ではほぼ全国平均であったが、 SO_2 （ガス状）および HNO_3 （ガス状）では2月の市街地、森林および草地への沈着速度が高くなった。

(3) 2003年度における硫酸態乾性沈着量（ $\text{SO}_2+\text{SO}_4^{2-}$ ）と硝酸態乾性沈着量（ $\text{HNO}_3+\text{NO}_3^-$ ）を比較すると2月を除いて後者が前者より多かった。

(4) 湿性沈着に対する乾性沈着の割合

2003年度硫酸態では湿性沈着量に対する乾性沈着量の比率は8月、11月、2月では13～20%であったが5月が60%と高かった。

硝酸態では湿性沈着量に対する乾性沈着量の比率は5月が高く、湿性沈着量の434%、8月が77%、11月、2月が24～26%で差が大きかった。

(5) 前報ではスギ林に対する沈着量を試算し、乾性沈着量は総沈着量の13～16%程度と推定した。今回の試算は土地利用割合等を加味し、季節毎に計算を行っており比較はできないが、硫酸態では乾性沈着量は総沈着量の12～38%、4季平均で20%、硝酸態では乾性沈着量は総沈着量の19～81%、4季平均で41%といずれも乾性沈着量の占める比率が高くなった。

本報文のうち、2003年度の乾性沈着量の試算及び全国比較の部分は、全国環境研協議会酸性雨調査研究部会によってまとめられた「第4次酸性雨全国調査報告書」から引用させていただいた。同部会及び解析に携わられた委員諸氏に記して謝意を表する。

文 献

- 1) 玉置元則：大気環境学会誌，35，1—11（2000）
- 2) 藤田慎一：大気環境学会誌，39，107—118（2004）
- 3) 玉置元則，平木隆年，藍川昌秀，西川嘉範，田口

- 圭介，松本光弘：大気環境学会誌，36，308—317（2001）
- 4) 高橋 章，佐藤一男，若松孝志，藤田慎一，吉川邦夫：大気環境学会誌，37，192—205（2002）
- 5) 全国環境研協議会酸性雨調査研究部会：全国環境研会誌，26，66—116（2001）
- 6) 全国環境研協議会酸性雨調査研究部会：全国環境研会誌，27，68—126（2002）
- 7) 全国環境研協議会酸性雨調査研究部会：全国環境研会誌，28，2—72（2003）
- 8) 横江 斉，藤澤明子：石川保環研報，39，77—80（2002）
- 9) 横江 斉，藤澤明子：石川保環研報，40，57—65（2003）
- 10) 松本光弘，村野健太郎：日化誌，495—505（1998）
- 11) 太田幸雄：季刊化学総説，10，123—145（1990）
- 12) 金沢地方気象台：石川県気象年報 平成14年（2002年），p4
- 13) 金沢地方気象台：石川県気象年報 平成15年（2003年），p4
- 14) 金沢地方気象台：石川県気象年報 平成16年（2004年），p4
- 15) 日本気象学会：天気，51，205
- 16) 藤田慎一：大気汚染学会誌，25，155—162（1990）
- 17) HICKS, B. B., BALDOCCHI, D. D., MEYERS, T. P., HOSKER Jr, R. P.: Water, Air and Soil Pollution, 36, 311—330（1987）
- 18) HICKS, B. B., MEYERS, T. P., BALDOCCHI, D. D.: Principles of Environmental Sampling Second Ed., (Keith, L. H. ed.), p599—617（1996）
- 19) WISELY, M. L.: Atmospheric Environment, 23, 1293—1304（1989）
- 20) ERISMAN, J. W., BALDOCCHI, D. D.: Tellus, 46B, p159—171（1994）
- 21) WALCEK, M. L., COOK, D. R., HART, R. L., SPEER, R. E.: Atmospheric Environment, 20, 949—964（1986）
- 22) 酸性雨対策検討会：酸性雨対策調査総合取りまとめ報告書，2004
- 23) 野口 泉，松田和秀：北海道環境科学研究センター所報，30，23—28（2003）
- 24) 全国環境研協議会酸性雨調査研究部会：全国環境研会誌，30，58—135（2005）
- 25) 全国環境研協議会酸性雨調査研究部会：全国環境研会誌，30，177—197（2005）

〔報 文〕

硫酸ピッチのpH測定方法の検討

石川県保健環境センター環境科学部 澤田 道和・山田 肇・平尾 真規子

キーワード：硫酸ピッチ、pH、超音波抽出法

1 はじめに

硫酸ピッチは強酸性で腐食性があるため、容器のドラム缶を腐食しやすく、漏出すると油や亜硫酸ガスの発生による異臭や農業用水の汚染等により周辺生活環境の保全上の支障が生じる可能性が大きい。このため、不法投棄又は不適正保管が行われた場合、一刻も早い原状回復が求められる。

幸いにも、硫酸ピッチの全国における不法投棄及び不適正保管の件数は平成15年をピークとし、平成16年は15年の約1/3に減少している。

これは、不正軽油の製造や使用の撲滅運動とともに廃棄物の処理及び清掃に関する法律（以下、廃掃法と略す。）の一部を改正する法律が平成16年4月に公布され、不法投棄に対し厳罰がかけられることになったことが要因となっていると考えられる。

本県でも、平成13年に辰口町の建設会社敷地に不適正保管されていた硫酸ピッチのドラム缶が代執行により強制撤去された。また14年には志賀町及び門前町の山林に埋設不法投棄されていた硫酸ピッチのドラム缶やフレコンバックが撤去された。

そこで、本県では国に先駆けて京都府に次いで全国2番目となる硫酸ピッチの製造や保管を原則禁止とする事項を盛り込んだ条例「ふるさと石川の環境を守り育てる条例」を平成16年3月に公布し、同年5月施行した。

しかしながら、平成16年度末には加賀市及び羽咋市の倉庫で硫酸ピッチが不適正保管されているのが発覚し、いまだに大きな社会問題となっている。

硫酸ピッチを対象とした分析法については、適当な指針等がなく各都道府県が独自に試験項目及び試験方

法¹⁾²⁾を決めて実施してきた。当所でも、昨年ドラム缶中の内容物が硫酸ピッチかどうか判定するために、硫酸イオンの簡易分析法を検討した（以下、前報と略す。）³⁾。本年度廃掃法が一部改正され、廃硫酸と廃炭化水素油との混合物で著しい腐食性（pH 2.0以下）を有するものを硫酸ピッチと指定され試験項目も明確になったことから、今回これに対応するためにpHの分析方法について検討したのでその結果について報告する。

2 調査方法

2・1 試 薬

(1) pH標準液

ア しゅう酸塩 pH標準液第2種（pH 1.68（25℃））：和光純薬(株) JCSS 認定品

イ フタル酸塩 pH標準液第2種（pH 4.01（25℃））：和光純薬(株) JCSS 認定品

ウ 中性りん酸塩 pH標準液第2種（pH 6.86（25℃））：和光純薬(株) JCSS 認定品

エ ほう酸塩 pH標準液第2種（pH 9.18（25℃））：和光純薬(株) JCSS 認定品

オ 炭酸塩 pH標準液第2種（pH 10.01（25℃））：和光純薬(株) JCSS 認定品

(2) pH試験紙

ア ユニバーサル pHステイック（pH 0-14）：メルク社

(3) 測定機器

ア pH計 (株)堀場製作所製 F-24型（型式9621C）

イ pH電極

(7) 複合ガラス電極 (株)堀場製作所製 MODEL 6066-10C（電極型式承認 S003号）

(イ) 半導体電極（ISFET pH電極）(株)堀場製作所製 MODEL 0030-10D

Analysis of pH in Sulfate Pitch. by SAWADA Michikazu, YAMADA Hajime and HIRAO Makiko (Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Sulfate pitch, Potential of hydrogen, Sonic extraction

2・2 試料及び試験液の調製

検討に用いた試料は県内の倉庫で保管されていた5試料を用いた。

(1) 試料の分取方法

試料は強い刺激臭を発したので、実験に際して防毒マスクを着用し、ドラフトチャンバー内で実施した。

試料が柔らかい液状物の場合は駒込ビベットで、乾燥した油塊の固形物の場合ははさみで細かく裁断後スパーテルで適量をポリビンに分取した。

(2) 試験液の調製方法

ア pH試験紙用希釈液

試料約0.2gを白磁皿に分取し、2～3倍量の純水を加えガラス棒で攪拌混合して試験液を調製した。

イ pH計用希釈液

pH計で試料のpHを測定するために、試料中の油塊を細粉化し、以下の方法で水溶液状化した。

(ア) 振とう抽出法（平常時対応法）

振とう抽出液は、「産業廃棄物に含まれる金属等の検出方法（環境庁告示第13号）」に基づく溶出試験に準じ、採取した試料10gに純水100mlを加え、振とう機（振とう回数約200回/分）で6時間振とうして調製した（以下、「振とう1/10希釈液」と略す。）。

(イ) 超音波抽出法（緊急時対応法）

超音波抽出液は、採取した試料10gに純水100mlを加え、試料の溶解を促進させるため5分毎に手で振とう混合しながら超音波抽出器で30分間抽出し調製した¹⁾（以下、超音波1/10希釈液と略す。）。

2・3 pHの測定方法

(1) 簡易現地測定（pH試験紙）

pH試験紙用希釈液にユニバーサルpHステイックを浸し、変色した試験紙の色をpH試験紙の標準系列色と比較して判定した。

(2) pH計による測定

振とう1/10希釈液及び超音波1/10希釈液をそれぞれ10倍希釈して1/100希釈液を調製し、以後10倍ずつ希釈して順に1/1,000希釈液、1/10,000希釈液及び1/100,000希釈液の4種の希釈液を調製し、pH計で測定した。

3 測定結果及び考察

試料の概要を表1に示した。n-ヘキサン抽出物質、硫酸イオン及び炭化水素油類は前報²⁾の方法で試験した。試料は全て黒色を呈しており、液体を含有した柔らかい油塊、同様の固い油塊及び表面が凝潤な固い油塊の5試料であった。

n-ヘキサン抽出物質が0.7～15.3％、硫酸イオンが1.5～27.0％の試料であった。

3・1 pH試験紙による測定値

pH試験紙による測定結果を表2に示した。pH11以上のものが1試料、pH1

表 1 試 料 の 概 要

検体名	外 観	n-ヘキサン抽出物質(%)	炭 化 水 素 油 類	SO ₄ ²⁻ イオン(%)	
				振とう抽出法	超音波抽出法
R-1	黒色、柔らかい油塊、液体含有	15.3	C10～C28	1.5	0.5
R-2	黒色、固い油塊、液体含有	7.1	C10～C26、C28	21.4	17.5
R-3	黒色、固い油塊、表面凝潤	1.1	C13～C29、C31、C32	27.0	21.9
R-4	黒色、固い油塊、表面凝潤	0.7	C14～C19、C23、C25	26.0	23.1
R-5	黒色、固い油塊、表面凝潤	11.8	C10～C19、C23、C24、C25	17.9	14.9

表 2 pH 測 定 結 果

検体名	pH試験紙 (1+1)液	pH計（ガラス電極）						pH計（半導体電極（ISFET））					
		1/1,000倍希釈液 （実測値）		1/10,000倍希釈液 （実測値）		1/100,000倍希釈液 （実測値）		1/10倍希釈液 （実測値）		1/100倍希釈液 （実測値）		1/1,000倍希釈液 （実測値）	
		振とう抽出法	超音波抽出法	振とう抽出法	超音波抽出法	振とう抽出法	超音波抽出法	振とう抽出法	超音波抽出法	振とう抽出法	超音波抽出法	振とう抽出法	超音波抽出法
R-1	11以上	10.6	10.1	8.4	8.3	5.3	5.4	13	—	11.7	—	—	—
R-2	1未満	2.4	2.5	3.3	3.4	4.2	4.1	0.8	1.0	1.7	1.7	—	2.4
R-3	1未満	2.3	2.4	3.2	3.3	4.1	4.1	0.9	1.2	1.6	1.6	—	2.3
R-4	1未満	2.4	2.4	3.3	3.3	4.1	4.1	1.0	0.9	1.6	1.6	—	2.3
R-5	1未満	2.4	2.5	3.3	3.4	4.1	4.2	1.0	1.0	1.7	1.5	—	2.3

（注） —印は未測定を示す。

未満のものが4試料であった。

pH試験紙用希釈液中には油分が多量に含まれており、pH試験紙を直接浸しても油分がpH試験紙に付着し黒ずんで色の変化の判別が困難な場合には、pH試験紙に純水をかけて黒色の油を洗い流したあと標準系列と比較して判定した。

この簡易なpH試験紙による測定は、不法投棄や不適正管理現場でドラム缶等の内容物が特別管理産業廃棄物（廃酸でpHが2.0以下のもの、廃アルカリで12.5以上のもの）や硫酸ピッチかのスクリーニング法として利用できる。

3・2 pH計による測定値と計算値

平成16年9月廃掃法の一部改正により、硫酸ピッチは、廃酸と廃炭化水素油との混合物で著しい腐食性（pH2.0以下）を有するものと定義され、指定有害廃棄物になった¹⁾。この硫酸ピッチのpH検定方法は、廃酸と同様に、日本工業規格K102の12.1（ガラス電極法）に定める方法によるとされ、「固体に近い性状を有する硫酸ピッチについては、溶出操作又は固体用のガラス電極を用いて測定を行う」²⁾ことと示された。

しかし、供試試料は油分が多量に含まれた液状物や固形物の油塊であり、しかも亜硫酸ガス等の強烈な刺激臭を発する試料が多く、ガラス電極のpH計でそのまま測定することが困難であった。

そこで、pHを測定するために試料を水溶液状にする前処理について検討した。

まず、試料の水溶液状化する前段階として、試料に有機溶媒のエタノール、アセトン、ヘキサン、ベンゼン及びジクロロメタンを加え、超音波抽出又は振とう抽出での溶解を試みた。

しかし、硫酸処理された油塊は、表面に水溶液状のもので皮膜されており、それが有機溶媒に対して保護膜となり十分に溶解できなかった。

次に、試料に対して純水を重量体積比10%の割合で振とう抽出又は超音波抽出すると油塊が崩壊しほぼ均一状の水溶液が得られたので、この1/10希釈液をpH試験液の原液とした。

1/10希釈液は、まだ強い刺激臭を発し、また、油分もまだ多量に含まれており、ガラス電極に油の被膜が付着し、電極の応答が悪くし、多数の試料を連続的に測定するとガラス電極が故障する恐れもあった。

このため、1/10希釈液を100倍希釈した1/1,000希釈液でpH測定を行うことにした。予備検討として、希釈液中に含まれる油分がpHの測定に影響を及ぼしている恐れがあるので、1/1,000希釈液100mlをn-ヘキサン20mlで軽く手で振とう抽出処理後ワットマンGF/Bろ紙

でろ過処理して残存油分を除去したろ液について測定した（表3）。

n-ヘキサン処理前後の測定値についての1分布検定では5%の危険率で有意差がなく、1/1,000希釈液では含まれる油分が少量でありガラス電極によるpH測定に影響がほとんど無く、1/10,000～100,000希釈液についても同様と示唆された。

次に、振とう及び超音波希釈液の1/10,000～100,000希釈液を測定した（表2）。

振とう抽出法で調製した1/1,000希釈液のpHでは、R-1が10.6、R-2～R-5が2.3～2.4、1/10,000希釈液のR-1が8.4、R-2～R-5が3.2～3.3、1/100,000希釈液のR-1が5.3、R-2～R-5が4.1～4.2であった。超音波抽出法で調製した希釈液もほぼ同様の測定値であった。

振とう抽出法と超音波抽出法の相違を調べるために、1/1,000希釈液5試料の測定値について1分布検定を行ったが5%の危険率で両法に有意差がみられなかった。同様に、1/10,000希釈液及び1/100,000希釈液の2種類についても行ったが、いずれの希釈液についても5%の危険率で両法に有意差がみられなかった。このようなことから、試料を水溶液にしてpHを測定するための抽出方法は、振とう抽出法でも超音波抽出法でも大差が無かった。

試料が硫酸ピッチかどうか判定するには、試料そのもののpH、土壌試料の場合のように試料の2倍量の純水で水溶液にした1/2希釈液のpH値^{3)・4)}や1/10希釈液等の希釈倍数の低いpHを求める必要がある。

そこで、表2のpH測定値をY軸に、希釈倍数の対数値をX軸にとって得られる回帰式（図1、2）から外挿して1/2希釈液、1/10希釈液及び1/100希釈液のpH値を計算で求めた（表4）。

振とう抽出法によるpH計算値は、1/2希釈液のR-1が18.0、R-2～R-5が-0.1～0.0、1/10希釈液のR-1が16.1、R-2～R-5が0.5～0.6、1/100希釈液のR-1が13.4、R-2～R-5が1.4～1.5であった。このような結果から、特別管理廃棄物に該当するか否かを判定するには、試料の

表3 pH測定値
(n-ヘキサン抽出処理前後)

検体名	処理前	処理後
R-1	10.1	10.2
R-2	2.5	2.6
R-3	2.4	2.5
R-4	2.4	2.4
R-5	2.6	2.5

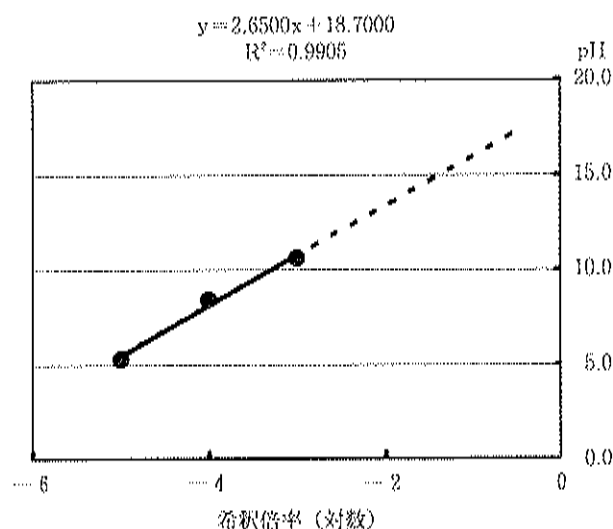


図1 R-1のpH(振とう抽出—ガラス電極法)

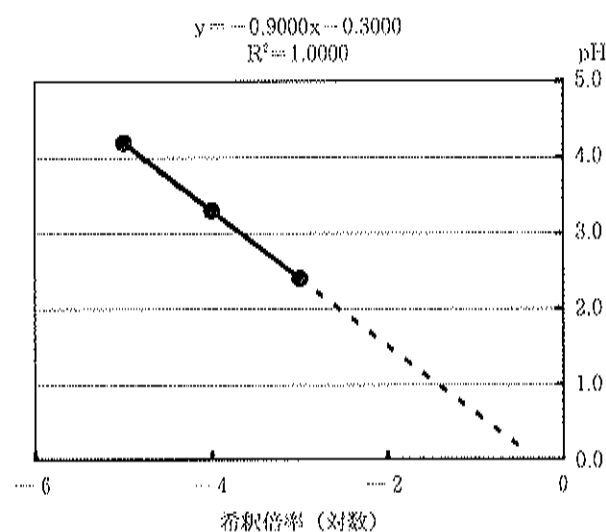


図2 R-2のpH(振とう抽出—ガラス電極法)

表4 計算値と実測値の比較

検体名	希釈液の倍数 電極の種類	1/2希釈液		1/10希釈液		1/100希釈液	
		ガラス電極法	半導体電極 (ISFET)	ガラス電極法	半導体電極 (ISFET)	ガラス電極法	半導体電極 (ISFET)
		計算値	実測値	計算値	実測値	計算値	実測値
R-1	振とう抽出法	18.0	13.9	16.1	13.0	13.4	11.7
R-2		0.0	0.2	0.6	0.8	1.5	1.7
R-3		-0.1	0.4	0.5	0.9	1.4	1.6
R-4		0.0	0.6	0.6	1.0	1.6	1.6
R-5		0.0	0.5	0.6	1.0	1.5	1.7
R-1	超音波抽出法	16.6	—	15.0	—	12.6	—
R-2		0.4	0.5	0.9	1.0	1.7	1.7
R-3		0.1	0.7	0.7	1.2	1.6	1.6
R-4		0.1	0.4	0.7	0.9	1.6	1.6
R-5		0.2	0.5	0.8	1.0	1.7	1.5

(注) —印は未測定を示す。

1/100希釈液を測定すれば判定が可能と推察された。しかしながら、R-1の1/2希釈液と1/10希釈液の計算値が理論上のpH最大値14を超えた。これらは、油分が多量に含有する試料のため希釈液中に残存する油分の影響を受けた回帰式を外挿して求めた計算値であることによると考えられる。このようなことから、1/2希釈液を実測する土壌試料とは異なるので、硫酸ビッチ状の試料については1/2希釈液より大きい希釈倍数例えば1/20希釈液のpHで判断するのがより妥当と示唆された。

1/10希釈液及び1/100希釈液のpH計算値を検証す

るために、割れにくく、取り扱いが容易で応答部が半導体センサーで構成されている半導体電極を用いて測定した実測値とガラス電極による計算値について抽出方法毎に比較した(表4)。振とう抽出法については1/10希釈液(5試料)及び1/100希釈液(5試料)共に5%の危険率(t分布検定)で有意差が見られなかった。超音波抽出法においても同様であり、ガラス電極による計算値は妥当と示唆された。

1/2希釈液については半導体電極でも実測することが困難であったので、1/10と1/100希釈液の実測値による回帰式を外挿して計算で求めた。ガラス電極と半導

体電極による1/2希釈液の計算値を比較すると、振とう抽出法(5試料)及び超音波抽出法(4試料)についても5%の危険率(t分布検定)で有意差が見られなかった。

4 ま と め

硫酸ビッチ状の試料は、黒色の油分を多量に含有した液状及び固体状であり、しかも重硫酸ガス等の強烈な刺激臭を発生しpH計でそのまま測定することが困難であった。

試料を30分間超音波抽出法又は6時間振とう抽出法で水溶液状化してpHを測定した。

(1) 試料に純水を試料の2～3倍量加え攪拌混合後pH試験紙で測定する簡易測定法は、不法投棄や不適正保管現場でpHのスクリーニング法として利用可能なことが示唆された。

(2) 試料をpH測定用の水溶液にするには、重量体積比10パーセントの割合で純水と混合した振とう抽出法又は超音波抽出法が有効で、両者の測定値には有意差がなかった。

(3) 試料の1/2希釈液及び1/10希釈液のpH値は、ガラス電極法による直接測定が困難であることから、振とう又は超音波抽出による1/1,000～100,000希釈液のpH実測値から得られた回帰式により外挿して計算で求

めた。

(4) ガラス電極による1/10希釈液及び1/100希釈液の計算値は、半導体電極による実測値と有意差がみられず、計算値は妥当と示唆された。

文 献

- 1) 備藤敏次, 星 純也, 天野冴子, 鎌滝裕樹, 笹本裕子, 占部武生, 佐藤藤治, 大場勝治: 東京都環境科学研究所年報, 21, 137—141 (2003)
- 2) 山崎康廣, 海老原昇, 矢野秀和: 千葉県環境研究センター年報, 1, 153—157 (2003)
- 3) 平尾真規子, 橋本潤子: 石川保健研報, 41, 77—80 (2004)
- 4) 平成16年10月27日環境省大臣官房廃棄物・リサイクル対策部産業廃棄物課長通知“廃掃法の一部を改正する法律の施行について”
- 5) 環境省告示第64号“指定有害廃棄物に係る基準の検定方法”平成16年10月27日 (2004)
- 6) 土質試験法(第2回改訂版): 土質工学会編, p211—219, (社)土質工学会, 東京 (1980)
- 7) 土壌養分分析法: 土壌養分測定法委員会編, p29—32, (株)養賢堂, 東京都 (1980)
- 8) 土壌環境分析法: 土壌環境分析法編集委員会編, p 195—197, (株)太洋社, 東京 (2000)

〔資 料〕

毒劇物等管理システムの構築について

石川県保健環境センター企画情報部 初瀬 裕・瀬戸 正行・竹野 裕治
 石川県保健環境センター健康・食品安全科学部 砺波 和子・塚 林 裕

キーワード：薬品管理，電子管理システム，毒物

1 はじめに

当センターでは，環境に配慮した活動を目指して1999年にISO14001の認証を取得し，日常の試験検査・調査研究に取り組んでいる¹⁾²⁾。この中で，日常業務に用いられる毒物・劇物，特定化学物質等（以下「毒劇物等」という）は，それ自体が環境へ負荷を与えるという側面を持っていることから，当センターでは当初からISO14001の環境目的の一つとして「毒劇物及び特定化学物質等の適正管理の推進」を掲げて，その環境負荷の低減に取り組んできた。

しかし，業務の多様性を反映して，当センターで取り扱う毒劇物等は非常に多種類にわたっており，適正管理に取り組む職員の負担も大きかった。そこで2001年度から環境目的の下部に位置付けられる環境目標の一つとして「毒劇物等適性管理システムの整備」を掲げ，システムの構築に取り組んできた。

その結果，2005年1月からシステムの試行運用を開始し，2005年3月末までに4月からの本格運用体制を整えたので，システムの概要を報告する。

2 システム構築の方針

システム構築以前の状況は，以下のとおりであった。当センターでは，日常の試験検査・調査研究において多種類の薬品類を使用しており，毒劇物等だけでも1,000種類を超える。薬品は薬品庫に保管し，毒物などは別の保管庫に施錠して保管されており，毒劇物・危険物等の在庫管理は紙ベースの台帳で行っていた。また，3ヶ月

毎に薬品の在庫量調査を行っていたが，この調査には各部が独自に表計算ソフトExcel等を使用して，在庫量・購入量・使用量の集計を行っており，この作業にかなりの時間を割かれていた。

そこで，購入量・使用量を入力することで，在庫量・期間内使用量などが自動で集計できるシステムを構築することとした。

システムを自作した場合，機能の変更，追加等のカスタマイズが自由に行える利点はあるが，システム作成者が人事異動によりいなくなりメンテナンスできなくなる可能性があるため，システム設計はセンターで行い，プログラム開発は業者に委託して行った。システムの開発に当たっては，できるだけデータ入力者の負担にならない様にすることを考慮した。

3 システムの概要

3・1 システム構成

システムの構成を図1に示す。

本システムは，サーバー（Web，データベース），所内LANの端末及びバーコードリーダー（入出庫のみ）から構成されているWebベースのシステムである。このシステムでは，Webブラウザを用いてデータの入力・検索・台帳等の出力を行うことが可能である。WebサーバーはWindowsNT4上のIIS（Internet Information Server）で，データベース（DB）はMS SQLServer 2000である。システム本体はASP（Active Server Pages）を使用して作成されている。

バーコードリーダー（KEYENCE BT-2000）は，無

Development of a Reagent Management System. by HATSUSE Yuh, SETO Masayuki, TAKENO Yuhji, TONAMI Kazuko* and TSUKABAYASHI Hiro* (Information Science Department and Health and Food Safety Department*, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Reagent management, Electronic management system, Toxic substance

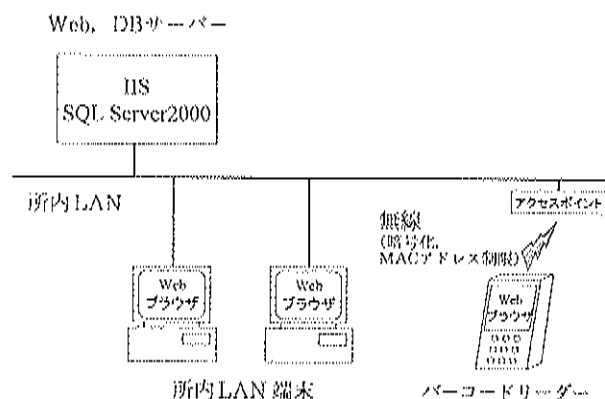


図 1 毒劇物等管理システム構成図

線 LAN 経由でシステムにアクセスする。無線 LAN ではデータ通信を行っている電波を盗聴される可能性があり、セキュリティ対策のために通信は 128bit WEP で暗号化している。また、無線 LAN アクセスポイントに無線 LAN カードの MAC アドレスを登録しておき、登録されていない MAC アドレスを持つ機器からはアクセスできないように制限をかけている。

なお、バーコードリーダーは機器が高価であるために、一部の部署にしか配備できなかったが、バーコードを利

用することでデータ入力効率的に行えた。

3・2 使用者の管理

使用者には、一般と管理者の 2 種類の設定がある。一般ユーザーは、入出庫処理、在庫検索、報告書印刷のみ使用できる。管理者は、それ以外にシステム管理メニュー（随時処理、マスター管理）が使用でき、DB に薬品やユーザーの登録等の作業が可能である。各部に 2～3 人の管理者を置いてシステムを運用している。

3・3 薬品の管理

対象となる薬品は、毒物、特定毒物、劇物、危険物、特定化学物質、ダイオキシン類である。薬品は、薬品コード及びバーコードで管理されている。薬品コードは、薬品そのものが手元にあればコードを検索する事なく入力できるように、「薬品会社コード-製品コード」と定義した。特定毒物、毒物のように個別に管理しなければならないものは、「薬品会社コード-製品コード-部の通し番号」と定義した。（図 2）

また、バーコードはタックシールへ印刷したものを薬品に貼って使用するが、一覧表から選択して使用する。

登録されている薬品の情報は、薬品名（正式名、慣用名、英語名）、CAS 番号、用途、規格、容量、会社名などである。同一薬品でも用途、規格、容量、会社が異なる

○劇物、危険物、特定化学物質、ダイオキシン類の場合

薬品コード → 会社コード + 製品コード

例：関東化学製の製品コード 1111-11 の薬品の場合

Ka1111-11

○特定毒物、毒物の場合

薬品コード → 会社コード + 製品コード + “-” + 部の通し番号

例：和光純薬製の製品コード 111-11111 で旧水質科学部の薬品の場合

Wa111-11111-M1

部室コード

部 名	旧部室名	部室コード
健康・食品安全科学部	感 染 症 部	K
	食 品 薬 品 科 学 部	S
	水 質 科 学 部	M
環 境 科 学 部	化学物質・大気科学部	T
	環 境 放 射 線 部	H

会社コード

製 薬 会 社 名	会社コード
Dr.Ehrenstorfer GmbH	DR
GLサイエンス	GL
MERCK	ME
NANOGEN	NN
Perkin Elmer Pure	PE
Reidel-de haan(RdH)	Rd
SUPELCO	SU
Wellington	We
アルドリッチ	Al
キンダ化学	Ki
関東化学	Ka
柴山	Si
西尾工業	Ni
石津製薬	Is
東京化成	TK
藤沢アストロ	Fu
同仁化学研究所	Do
ナカライテスク (旧：平井化学)	Na
米山薬品	Yo
林純薬	Ha
和光純薬	Wa
信越化学	Sh
片山科学	Ki
第一化学薬品	Da
日本酸素	NS
バックードバイオサイエンス	Pa
住化武田	ST
松浪硝子工業	Ma
三谷産業イー・シー	Mi
第一工業製薬	DK
多摩化学工業	Ta

図 2 薬品コードの付け方

表 1 毒劇物等管理システムの機能

機 能	機 能
【ログアウト】	システムからのログアウト
【入出庫管理】 入庫処理 出庫処理 棚卸処理	保管庫毎に薬品の購入量を入力 保管庫毎に薬品の使用量を入力 薬品在庫量の修正
【在庫管理】 在庫一覧	薬品の在庫検索
【報告書管理】 保管庫における毒劇物等 及び特定化学物質等の 保管状況報告書	報告書の様式作成
【報告書印刷】 毒物管理台帳 ER17-01（様式1） 劇物管理台帳 ER17-02（様式2） 特定毒物管理台帳 ER17-03（様式3） 特定化学物質等管理台帳 ER17-03-02（様式3第2号） 危険物保管庫管理台帳 ER17-04（様式4）	台帳の表示、印刷、ファイル（CSV形式）への出力
毒物在庫量の 照合結果報告書 ER17-05（様式5） 劇物在庫量の 照合結果報告書 ER17-06（様式6） 特定毒物在庫量の 照合結果報告書 ER17-07（様式7） 特定化学物質等在庫量の 照合結果報告書 ER17-07-02（様式7第2号） 危険物在庫量の 調査結果報告書 ER17-08（様式8） 毒劇物等及び特定化学 物質等在庫量等総量記録 ER17-09（様式9） 保管庫における毒劇物等 及び特定化学物質等の 保管状況報告書 ER17-10（様式10） 危険物保管庫 保管量照合結果 ER17-11（様式11）	在庫量の照合結果報告書等のISO14001関係報告書の表示、印刷、ファイル（CSV形式）への出力
【随時処理】 更新処理	DBの更新処理
【マスター管理】 部室マスター 使用者マスター 薬品庫マスター 薬品会社マスター 類別マスター 薬品マスター	部室の登録 使用者の登録 薬品庫の登録 薬品会社の登録 危険物の類別、指定数量等の登録 薬品（薬品名、英名、CAS、容量、規格等）の登録

れば、別薬品として管理している。

薬品の登録は、管理者のみが可能である。各部の管理者が、薬品マスター (DB) に登録されていない薬品を登録する。

現在、登録されている薬品数は約1,200件である。

3・4 システムの機能

主に出入庫処理、在庫検索、報告書印刷、随時処理、マスター管理の5機能がある。随時処理、マスター管理は、システム管理機能である。機能の一覧を表1に示す。

システムには、所内 LAN にアクセスできる PC、あるいはバーコードリーダーから Web ブラウザを用いてアクセスする。最初に表示されるログイン画面を図 3 に示す。

一般ユーザーか、管理者かで、ログイン後のメニューが異なり、一般ユーザーには、随時処理、マスター管理のメニューは表示されない。表1の「メニュー」と同じ内容が画面左側に表示される。

(1) 入出庫処理

入出庫管理では、入庫処理、出庫処理、棚卸処理が行える。薬品を購入した場合は入庫処理を、使用した場合は出庫処理を、在庫量の修正は棚卸処理を行う。各処理の画面は上下二段になっており、上段でデータの修正・削除を、下段でデータの登録を行う。例として、入庫処理の画面を図4に示す。

入力項目は、薬品コード、担当者コード、保管庫コード、日付、入庫・出庫・棚卸量である。担当者コードには初期値としてログインIDが入力され、日付にはログイン日が初期値として入力される。薬品コードは直接入力、一覧から選択入力、検索入力、バーコード入力のいずれかの方法で入力する。薬品の検索は、薬品名、英名やCAS番号のみでなく、薬品庫

図3 ログイン画面

名で検索が可能である。薬品名による検索では、薬品名の一部でも検索が可能であり、慣用名などが登録されていれば慣用名でも検索が可能である。例えば、ジクロロメタンを検索する場合、薬品名の一部「ジクロロ」や慣用名「塩化メチレン」で検索が可能である。また、薬品庫名で検索を実行すると、その薬品庫に在庫のある薬品名が表示される。検索した結果を図5に示す。

薬品の保管場所を移動した場合は、薬品庫移動にチェックを入れて、入庫と出庫の処理を行い、備考欄にどの保管庫からどの保管庫への移動であるかを記入するように運用している。薬品庫移動にチェックが入っている入出庫量は、購入量、使用量の集計には入らない。

また、棚卸処理のデータは、購入量、使用量の集計には入らない。

(2) 在庫検索

在庫管理の在庫一覧メニューから薬品がどの薬品庫に在庫量がどれだけあるかを検索することが可能である。薬品は、薬品コードで入力する。薬品コードの検索は、入出庫処理と同様である。

在庫検索の結果を図6に示す。

(3) 報告書印刷

薬品の台帳や在庫量照合結果報告書等 ISO14001関係の報告書の表示、印刷、ファイル出力 (CSV 形式) が可能である。在庫量照合結果報告書では、ある期間内の使用量・購入量と現時点の在庫量が自動で計算さ

図4 入庫処理の画面

薬品名	薬品名(慣用)	CAS番号	保管場所	処理モード	検索	戻る
W0163-16071	1,1-ジクロロエタン		検査用標準品	新規登録	200mg	色
W0145-00572	2,4-ジクロロフェノール		検査	新規登録	10g	色
W0113-10401	アセトニトリル		5000	検査・PCD測定用	10g	色
W0116-00631	アセトニトリル		MPIC用	新規登録	10g	色
W0115-00631	アセトニトリル		MPIC用	新規登録	20g	色
W0153-01011	エタノール		5000	検査・PCD測定用	10g	色
W01011-751	コブタン・ポリ塩化ビニル		MPIC・MPIC	ノン登録	10g	色・黄色
W0111-101	1,1,1-トリクロロエタン		GC用	標準品	10g	黄色
W0120-14101	ジメチル		5000	検査・PCD測定用	10g	色
W0120-06470	ジメチル		MPIC用	新規登録	10g	色
W0120-00475	メタノール		検査・PCD測定用	20g	10g	色
W0120-00475	メタノール		5000	検査・PCD測定用	10g	色

図5 薬品庫で薬品を検索した結果

検索用薬品コード	薬品名	慣用名	CAS番号	保管場所	処理モード	検索	戻る
W0143-26451	ジクロロメタン		5000	検査・PCD測定用	新規登録	10g	色
W0143-26451	ジクロロメタン		5000	検査・PCD測定用	新規登録	10g	色
W0143-26451	ジクロロメタン		5000	検査・PCD測定用	新規登録	10g	色
W0143-26451	ジクロロメタン		5000	検査・PCD測定用	新規登録	10g	色
W0143-26451	ジクロロメタン		5000	検査・PCD測定用	新規登録	10g	色
W0143-26451	ジクロロメタン		5000	検査・PCD測定用	新規登録	10g	色
W0143-26451	ジクロロメタン		5000	検査・PCD測定用	新規登録	10g	色
W0143-26451	ジクロロメタン		5000	検査・PCD測定用	新規登録	10g	色
W0143-26451	ジクロロメタン		5000	検査・PCD測定用	新規登録	10g	色
W0143-26451	ジクロロメタン		5000	検査・PCD測定用	新規登録	10g	色

図6 在庫検索の画面

図7 台帳

図9 報告書(例2)

図8 報告書(例1)

れる。危険物については、指定数量の倍数も計算される。期間は、任意に設定することができる。

台帳、報告書の例を図7～9に示す。

(4) システム管理

随時処理の更新処理では、DBから過去のデータを削除することができる。

マスター管理では、薬品登録、使用者登録等のデータベースの管理を行うことができる。

4 ま と め

(1) ISO14001の取り組みの一環として、所内LANの端末及びバーコードリーダーからネットワーク経由で使用できる毒劇物等管理システムを開発した。

(2) 本システムは、サーバー、所内LANの端末及びバーコードリーダーから構成されているWebベースのシステムである。

(3) システムの主な機能は入出庫処理、在庫検索、報告書印刷、随時処理、マスター管理である。システム管理機能の随時処理、マスター管理は、管理者のみが使用できる機能である。

(4) バーコードリーダーは機器が高価であるために、一部の部署のみの配備となったが、バーコードを利用することでデータ入力効率が向上した。

(5) データ入力を効率良く行えるように考慮したが、使用を開始すると不都合な点、改善を要する点が見出されてきている。今後、改良を加え、さらに効率的なシステムへとしていきたい。

文 献

- 1) 竹野裕治, 加藤充哉: 石川保環研報, 37, 96—104 (2000)
- 2) 横山 暢, 大西孝司, 宮川茂樹: 同上誌, 41, 19—22 (2004)

〔資 料〕

石川県H市における生活習慣に関する住民意識調査

石川県保健環境センター企画情報部 瀬戸 正行・初瀬 裕・竹野 裕治

・ キーワード：自己健康管理，生活習慣病

1 はじめに

我が国の医療は、公的な医療制度に支えられ国際的にも高い評価を受けているが、高齢化の進展とともに医療費が年々増大している。本県においても例外でなく、県民の医療サービスや保健サービスの今後の施策方向を求めるに当たって、県民の医療需要の動向を把握する必要がある。中でも、がん・心臓病・脳血管疾患が生活習慣病として大きな問題となり、その改善が重要な課題となってきた。

当センターでは、平成8年にH市及びH郡において生活習慣と生活習慣病に関する調査（以下、前回調査という）を実施したが、平成16年に再度、前回調査とほぼ同一と見なしうるH市において同様の調査（以下、今回調査という）を実施する機会を得たので、その年次間の推移のなかで、住民の生活習慣改善に関する意識変化を把握し地域住民の健康保持の課題を鮮明にさせることを目的としこの解析を実施した。

2 調査の内容と方法

2・1 調査方法

調査表の配付回収方法は、郵送方式とし、回答は自記式質問紙法とした。

2・2 調査対象者

前回調査は、H郡市の5市町住民の協力により2,400人を無作為抽出し個人宛に郵送した。今回はH市のみを調査地域とし電話帳から無作為抽出した1,800人に調査を実施した。対象者抽出手法と回収の比較を表1に示した。

2・3 調査項目

調査項目は、前回調査で実施した項目から住居と飲料水に関する項目を削除し、その他の下記の項目は前回と同じ内容で実施した。

- (1) 基本属性（性、年齢、就労、家族）
- (2) 身体要因（身長、体重、既往症（13症）、現病（13病）、入院歴（13病））
- (3) 主観的指標（自己健康意識、こころの健康）
- (4) 飲酒・喫煙（飲酒変化、喫煙変化）
- (5) 食生活要因（食事の取り方、食事の内容）
- (6) 運動要因（日常歩行時間、定期的運動）
- (7) 休養要因（睡眠変化、休養変化）
- (8) 検診受診要因（職場受診の有無、検診内容、非受診理由）
- (9) 改善行動要因（改善行動への取り組み）

3 アンケート回収率及び回答者の属性

3・1 回収率

前回調査の回収率は59.4%、今回調査の回収率は30.2%であった。（表1）

3・2 解析対象の検討

年次間の調査結果を精度よく比較するため両年とも年

表 1 対象者抽出手法と回収状況の比較

	平成 8 年		平成 16 年	
	対 象 者	抽 出 方 法	対 象 者	抽 出 方 法
発 送 手 段	20歳以上のH郡市住民	住基より性・年齢階級別抽出	20歳以上のH市住民	電話帳無作為抽出
発 送 数	2,400人	郵送（該当個人宛）	3,600人	郵送（電話所有者宛）
回 収 手 段	2,400人	郵送	3,600人	郵送
回 収 数 (回収率)	1,426人 (59.4%)		1,088人 (30.2%)	

Study of Resident Consciousness on the Lifestyle in H-city, Ishikawa Prefecture. by SETO Masayuki, HATSUSE Yuh and TAKENO Yuhji (Information Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Self-health management, Lifestyle disease

表2 就労率の変化

(単位: %)

就 労 率	平成8年	平成16年
男		
40歳代	98.4	91.1
50歳代	93.8	96.6
60歳代	52.5	49.7
70歳代	22.6	10.3 *
合 計	65.8	54.1 **
女		
40歳代	86.3	84.5
50歳代	62.4	61.7
60歳代	23.9	22.2
70歳代	7.4	2.0
合 計	46.0	38.2 *

検定 ** < 0.01, * < 0.05

年齢級別人数が100人以上の階級を解析対象とした。その結果、40、50、60、70歳代の4階級（平成8年該当年齢区分74.0%、平成16年該当年齢区分86.6%）を解析対象とした。性・年齢別回収率は、図1と図2に示す。

3・3 解析手法

生活習慣病罹患群と主観的指標、運動要因等のクロス集計を行い年次間に有意差検定を試みたが有意差は確認できなかった。そこで、性・年齢8階級をそれぞれ100%とし2つの母集団の比率差¹⁾の検定を行った。

3・4 回答者の属性

(1) 就 労 率

就労率は、男性女性とも低下傾向にあり、特に男性は有意（有意水準1%、以下（ ）内の数字は同様）な低下を示した。就労率の変化は表2に示す。

(2) 家族構成

男性女性共に一人暮らしが増加傾向にあり60歳代の女性に有意（5%）な増加を示した。家族構成の変化は表

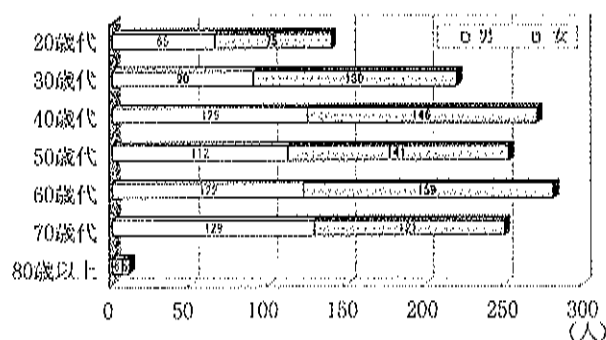


図1 平成8年 性・年齢別回収状況

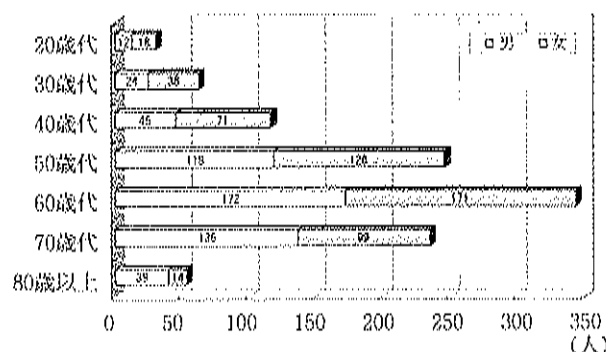


図2 平成16年 性・年齢別回収状況

3に示す。

(3) 職場検診

就労者のうち、職場検診が実施されていると回答した男性は、40、50歳代で増加を示し、女性は、40、50、60歳代で増加傾向を示したが有意差はなかった。検診が実施されている割合の変化は表4に示す。

(4) 肥満 (BMI)

肥満度を表す指標として国際的に広く用いられているBMI (Body Mass Index, 体格指数)²⁾を用いた。

表3 家族構成の変化

(単位: %)

	平成8年			平成16年		
	一人暮らし	夫婦二人暮らし	その他	一人暮らし	夫婦二人暮らし	その他
男						
40歳代	1.6	2.4	95.9	4.6	6.8	88.6
50歳代	0.0	15.5	84.5	3.4	17.2	79.3
60歳代	2.5	36.1	61.3	2.4	46.7	50.9
70歳代	1.6	39.7	58.7	3.0	63.7 *	43.3 *
合 計	1.5	23.6	74.9	3.0	37.5 **	59.4 **
女						
40歳代	1.4	9.6	89.0	1.4	5.7	92.9
50歳代	0.7	20.3	79.0	2.4	30.2	67.5 *
60歳代	4.5	37.0	58.4	11.2 *	48.8 *	40.0 **
70歳代	13.4	16.8	69.7	12.9	44.1 **	43.0 **
合 計	4.7	21.4	74.0	7.6	36.2 **	56.2 **

検定 ** < 0.01, * < 0.05

表4 検診が実施されている割合の変化

(単位: %)

	職場検診	平成8年	平成16年
男	40歳代	75.4	85.4
	50歳代	80.0	84.1
	60歳代	64.9	55.0
	70歳代	30.0	27.3
	合 計	71.9	72.0
女	40歳代	73.3	75.0
	50歳代	67.1	67.6
	60歳代	41.2	50.0
	70歳代	62.5	0.0
	合 計	66.4	66.3

なお、BMIの分類は国民栄養調査による判定基準に準じ、25以上を「肥満」、18.5未満「やせ」、18.5以上25未満を「正常」とした。男性は、加齢と共に「肥満」群が減少し、女性は増加傾向である。BMIの変化は表5に示す。

(5) 入院歴

生活習慣病の代表的疾病（がん、心臓病、糖尿病、脳卒中）の変化は、がんの女性に有意（5%）な増加を示した。入院歴の変化は表6に示す。

(6) 既往歴

脳卒中の男性とがんの女性に有意（1%）な増加を示した。既往歴の変化は表6に示す。

(7) 現病

がんは入院歴、既往歴から察せられるように女性では有意（1%）な増加を示し、男性は心臓病、糖尿病、脳卒中に有意（1%）な増加を示した。現病の変化は表6に示す。

4 調査結果の解析 及び評価

(1) 健康度自己評価

主観的健康指標である自身の健康状態の問いに対し（1 健康である、2 まあまあ健康である）としたものを「健康群」とすると今回の調査では、男性女性とも70%以上のものが「健康群」に含まれる。前回調査との変化を見ると女性に有意（1

表 5 BMI の 変 化

(単位：%)

		平成 8 年			平成 16 年		
		<18.5	18.5~25	>25	<18.5	18.5~25	>25
男	40歳代	3.4	69.7	26.9	4.4	55.6	40.0
	50歳代	1.9	74.8	23.4	0.9	68.1	31.0
	60歳代	6.8	76.7	16.5	2.4	76.2	21.4
	70歳代	12.4	76.2	11.4	4.7	77.3	18.0
	合 計	6.0	74.2	19.8	2.8*	72.4	24.7
女	40歳代	5.2	83.7	11.1	4.3	81.2	14.5
	50歳代	1.5	80.0	18.5	3.9	80.5	15.6
	60歳代	3.6	77.9	18.6	4.7	73.1	22.2
	70歳代	6.0	76.0	18.0	5.3	80.0	14.7
	合 計	3.9	79.6	16.5	4.5	77.8	17.7

検定 ** <0.01, * <0.05

表 6 入院歴・既往歴・現病の変化

(単位：%)

		入 院 歴		既 往 歴		現 病	
		平成 8 年	平成16年	平成 8 年	平成16年	平成 8 年	平成16年
が ん	40歳代	0.0	0.0	0.8	0.0	0.0	0.0
	50歳代	0.9	0.0	1.8	0.8	1.8	0.0
	60歳代	0.8	1.2	1.6	3.5	1.6	1.2
	70歳代	0.8	2.9	6.2	8.1	0.8	2.9
	合 計	0.6	1.3	2.7	3.8	1.2	1.3
女	40歳代	0.0	1.4	1.4	4.2	0.0	2.8
	50歳代	0.0	2.3	2.1	6.3	0.7	4.7
	60歳代	0.0	1.8	1.9	8.2*	0.0	2.3
	70歳代	0.0	0.0	2.5	4.0	0.0	1.0
	合 計	0.0	1.5*	1.9	6.2**	0.2	2.8**
男	40歳代	0.0	0.0	0.8	4.4	3.2	2.2
	50歳代	0.0	0.8	5.4	3.4	5.4	3.4
	60歳代	0.8	1.2	10.7	11.0	16.4	8.1*
	70歳代	4.7	6.6	24.0	18.4	23.3	14.7
	合 計	1.4	2.5	10.5	10.6	0.8	8.2**
心臓病	40歳代	0.0	0.0	2.1	1.4	6.2	0.0
	50歳代	0.7	0.8	4.3	3.1	9.2	3.9
	60歳代	0.6	0.0	8.8	4.1	16.4	1.8**
	70歳代	1.7	4.0	16.5	22.2	0.0	22.2**
	合 計	0.7	1.1	7.6	7.2	0.0	6.4**
糖尿病	40歳代	0.0	0.0	2.4	2.2	0.8	2.2
	50歳代	0.9	0.0	7.1	10.1	4.5	7.6
	60歳代	1.6	1.2	13.9	11.6	10.7	10.4
	70歳代	1.6	2.9	12.4	20.6	6.2	17.6**
	合 計	1.0	1.3	9.0	12.7	5.5	11.0**
女	40歳代	0.0	0.0	2.1	1.4	1.4	1.4
	50歳代	0.7	0.0	1.4	0.8	1.4	0.8
	60歳代	0.6	0.6	6.3	8.8	4.4	7.6
	70歳代	0.8	1.0	9.9	10.1	7.4	8.1
	合 計	0.5	0.4	4.8	5.8	3.8	4.9
男	40歳代	0.0	2.2	0.0	2.2	0.0	2.2
	50歳代	0.0	0.8	0.0	3.4	0.0	2.5
	60歳代	0.0	0.6	1.6	5.2	0.8	3.5
	70歳代	2.3	3.7	5.4	11.0	3.1	8.1
	合 計	0.6	1.7	1.8	6.1**	1.0	4.4**
脳卒中	40歳代	0.0	0.0	1.4	0.0	0.7	0.0
	50歳代	0.0	1.6	0.0	3.1	0.0	3.1
	60歳代	0.0	1.2	1.9	2.3	0.6	0.6
	70歳代	1.7	1.0	3.3	3.0	3.3	3.0
	合 計	0.4	1.1	1.6	2.3	1.1	1.7

検定 ** <0.01, * <0.05

表7 健康度自己評価の変化
(単位: %)

健康群		平成8年	平成16年
男	40歳代	88.0	71.1 *
	50歳代	82.0	78.0
	60歳代	76.0	78.5
	70歳代	66.4	68.1
	合 計	77.9	74.7
女	40歳代	88.4	88.6
	50歳代	86.5	74.0 *
	60歳代	79.7	66.5 *
	70歳代	67.8	66.0
	合 計	81.1	71.8 **

検定 ** <0.01, * <0.05

表8 喫煙・飲酒の変化
(単位: %)

		喫 煙		飲 酒	
		平成8年	平成16年	平成8年	平成16年
		吸っていたがやめた		時々飲む	
男	40歳代	8.0	22.2 *	24.0	37.8
	50歳代	13.4	27.7 *	22.5	24.4
	60歳代	24.6	24.3	23.1	24.6
	70歳代	24.8	33.1	23.8	21.6
	合 計	17.8	27.5 **	23.4	24.9
女	40歳代	3.4	8.5	36.6	29.4
	50歳代	1.4	0.8	31.4	24.8
	60歳代	2.5	2.9	21.7	16.4
	70歳代	2.5	2.0	10.8	14.3
	合 計	2.5	3.0	25.9	20.2 *
		吸 う		ほぼ毎日飲む	
男	40歳代	65.6	51.1	62.4	37.8 **
	50歳代	58.9	40.3 **	62.2	58.0
	60歳代	44.3	30.6 *	52.9	46.8
	70歳代	38.8	22.1 **	41.3	38.1
	合 計	51.6	32.6 **	54.5	46.3 *
女	40歳代	9.6	7.0	10.8	8.8
	50歳代	5.7	7.0	5.7	4.1
	60歳代	1.9	2.3	2.5	3.0
	70歳代	3.3	1.0	4.5	4.4
	合 計	5.1	4.1	5.8	4.5
		吸わない		飲まない	
男	40歳代	26.4	26.7	13.6	24.4
	50歳代	26.8	30.3	15.3	17.6
	60歳代	29.5	42.8 *	24.0	28.7 *
	70歳代	34.9	44.1	34.9	40.3
	合 計	29.5	38.5 **	22.2	28.8
女	40歳代	85.6	84.5	53.1	61.8
	50歳代	92.9	89.8	62.9	71.1
	60歳代	93.7	93.6	75.8	80.6
	70歳代	89.3	88.9	84.7	81.3
	合 計	90.5	90.2	68.4	75.3 *

検定 ** <0.01, * <0.05

%) な低下を示した。これらは、既往症、現病の変化からも裏付けられた。健康度自己評価の変化は表7に示す。

(2) 喫煙・飲酒

喫煙は、年次間の比較では男性に各年代とも有意な禁煙傾向を示した。また、飲酒は男性女性共に有意な減少を示した。喫煙・飲酒の変化は表8に示す。

(3) 運動習慣

運動習慣の変化を歩行時間の比較から検証した。歩行時間30分程度、30～60分程度群に有意(5%)な増加、90分以上群は有意(1%)な減少を示した。歩行時間の変化は表9に示す。

(4) 睡眠

睡眠については、今回調査で十分眠ることができるものが男性で60%弱、女性で50%弱となっておりいずれも有意(5%)な減少を示した。睡眠の変化は表10に示す。

(5) こころの健康

こころの健康の回答を「ストレスを感じる群」(1 よくある、2 時々ある)とし集計すると、今回調査は男性女性共に50%程度となっており、特に40、50歳代に有意な増加を示し70歳代は有意な減少を示した。こころの健康の変化は表11に示す。

表9 運動習慣の変化
(単位: %)

運動習慣 (1日歩行時間)		平成8年	平成16年	平成8年	平成16年
		30分程度		60～90分程度	
男	男	27.0	34.0 *	12.7	13.1
	女	15.3	27.1 **	16.2	14.5
		30～60分程度		90分～	
男	男	18.0	24.7 *	37.1	17.5 **
	女	19.9	25.8 *	45.9	23.0 **

検定 ** <0.01, * <0.05

表10 睡眠休養の変化
(単位: %)

睡眠状況		平成8年	平成16年
十分眠ることができる	男	65.2	58.6 *
	女	53.1	46.3 *
ときどき眠れない	男	30.3	31.5
	女	41.1	44.8
眠れないことが多い	男	3.1	5.5
	女	3.9	4.3

検定 ** <0.01, * <0.05

表11 こころの健康の変化

(単位: %)

ストレスを感じる	平成8年	平成16年
40歳代	37.6	77.3**
50歳代	45.9	65.2**
60歳代	50.0	45.7
70歳代	50.8	30.9**
合 計	46.0	49.8
40歳代	50.7	66.7*
50歳代	53.3	73.4**
60歳代	64.5	53.5
70歳代	69.2	51.2*
合 計	58.9	60.8

検定 ** < 0.01, * < 0.05

(6) 生活改善意識

生活改善が、定期的検診受診と共に必要だと思っている群は、前回調査から男性女性共に有意(1%)な増加を示した。健康だが生活改善は必要だと思っている群は、男性女性共に有意(1%)な減少を示した。この2群を「生活改善自覚群」とすると男性女性共に回答者の70%であった。生活改善意識の変化は表12に示す。生活改善自覚群と非自覚群の変化は図3に示す。

(7) 生活改善実行度

「生活改善自覚群」を「実行群」、「非実行群」の2群に分けると、「非実行群」が男性女性共に50%を超えた。

これに「生活改善を必要としない」回答群を加えると回答者全体の70%以上が男性女性とも「生活改善実行を伴わない群」であった。生活改善実行群と非実行群の変化は図4に示す。非実行群の理由としては、「めんどく

表12 生活改善意識の変化

(単位: %)

生活改善(向上意識)	平成8年	平成16年
定期的に検診などで指導を受け、改善が必要だと思っている		
40歳代	19.2	28.9
50歳代	17.0	32.8**
60歳代	24.6	26.6
70歳代	27.9	33.1
合 計	22.3	30.2**
40歳代	11.6	21.1
50歳代	22.0	31.3
60歳代	23.3	30.4
70歳代	24.8	34.3
合 計	20.3	30.1**
健康だが、今後が心配だから、改善が必要だと思っている		
40歳代	50.4	53.3
50歳代	59.8	44.5*
60歳代	58.2	45.1*
70歳代	48.8	22.1**
合 計	54.1	39.1**
40歳代	69.9	56.3
50歳代	59.6	48.4
60歳代	55.3	37.4**
70歳代	43.0	30.3
合 計	57.5	41.8**
健康なので、特に改善は必要ないと思っている		
40歳代	27.2	17.8
50歳代	22.3	21.0
60歳代	12.3	22.5*
70歳代	14.7	33.1**
合 計	19.1	24.7*
40歳代	17.8	22.5
50歳代	15.6	14.1
60歳代	15.1	18.7
70歳代	14.0	23.2
合 計	15.7	19.0

検定 ** < 0.01, * < 0.05

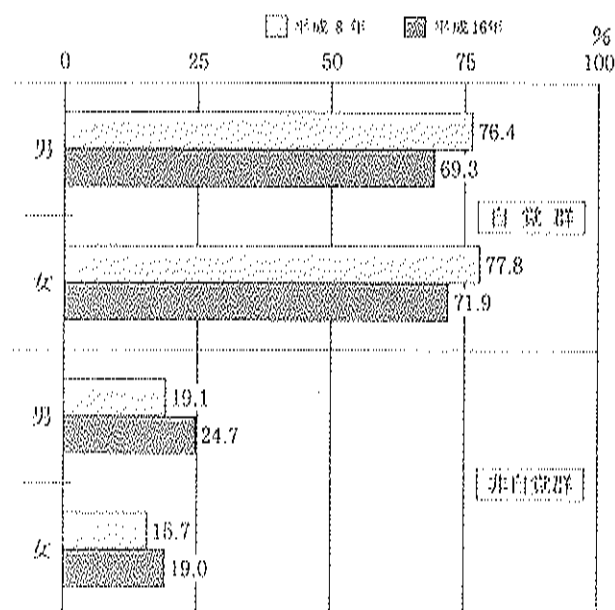


図3 生活改善自覚群と非自覚群の変化

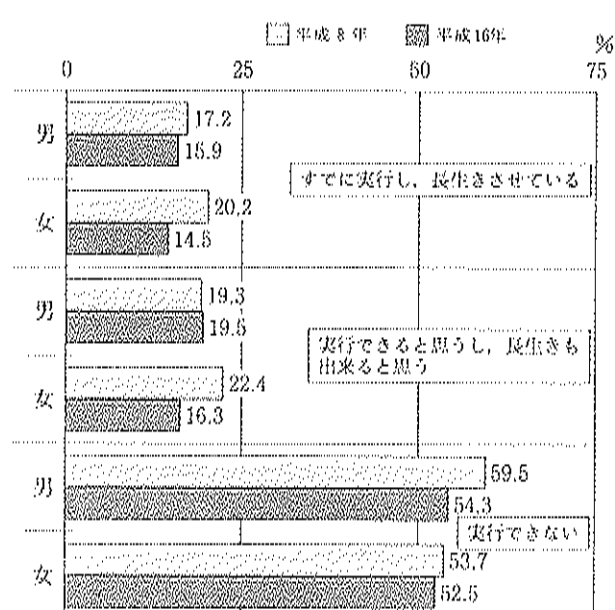


図4 生活改善実行群と非実行群の変化

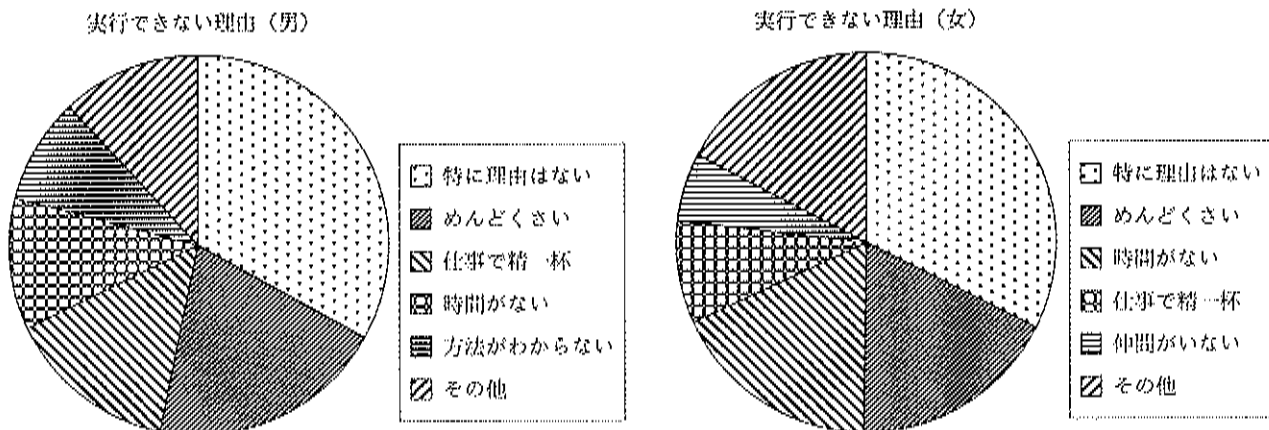


図 5 生活改善を実行できない理由

表13 検診受診の変化

(単位: %)

検 診 受 診	平成 8 年	平成16年
男	40歳代	74.2
	50歳代	82.1
	60歳代	78.5
	70歳代	86.2
女	40歳代	69.0
	50歳代	79.1
	60歳代	86.7
	70歳代	78.3

検定 ** < 0.001, * < 0.005

さい」、「仕事で精一杯」、「時間がない」が45%を占め、「めんどくさい」、「時間がない」が増加を示した。生活改善を実行できない理由の割合は図5に示す。

(8) 検診受診

男性女性共に受診率は低下し特に60、70歳代は有意（1～5%）な減少であった。検診受診率の変化は表13に示す。

(9) 検診医療機関

（1）市が開設した市民検診場、または市が指定した市民検診の医療機関の受診率は男性女性とも有意（5～1%）な減少を示した。検診医療機関の変化は表14に示す。

5 ま と め

今回調査と前回調査を比較すると、喫煙習慣や飲酒習慣に関しては明確な改善傾向を確認することができた。

また、歩行時間を指標とした運動習慣についても改善傾向がみられた。しかし、睡眠状況、ストレスを感じる度合いは悪化傾向がみられた。

運動習慣や喫煙・飲酒動向は、健康指向に推移したが、

表14 検診医療機関の変化

(単位: %)

検診医療機関	平成 8 年	平成16年
市が開設した市民検診場、または市が指定した市民検診の医療機関		
男	40歳代	19.2
	50歳代	18.8
	60歳代	38.5
	70歳代	49.6
女	40歳代	28.8
	50歳代	46.1
	60歳代	62.9
	70歳代	45.5
職場で、または職場が指定した医療機関		
男	40歳代	52.8
	50歳代	58.9
	60歳代	18.9
	70歳代	3.1
女	40歳代	46.6
	50歳代	20.6
	60歳代	1.9
	70歳代	1.7
あなたが選んだ医療機関		
男	40歳代	4.0
	50歳代	11.6
	60歳代	23.8
	70歳代	30.2
女	40歳代	10.3
	50歳代	14.9
	60歳代	24.5
	70歳代	28.9

検定 ** < 0.01, * < 0.05

検診受診や生活習慣改善意識動向は、健康度自己評価の低下が積極的な健康指向行動に結びついていない結果となった。

平成15年施行された健康増進法は、生活習慣病を防ぐため健康的な生活習慣を自分で確立することが基本となる健康増進の概念を取り入れ、一次予防策として健康な生活習慣を自分で確立することであり、二次的には、疾病を早期に発見し早期に治療する健康検診の普及・確立が中心となる。その為には、地域住民に生活習慣の重要性を喚起し健康に対する自発性を促す為の、一次予防対策を重点的に推進する施策が必要である。

このようなことから、今後地域保健対策の推進にあたり、生活習慣改善の必要性を認めているが実行できない住民への啓発・支援とメンタルヘルス保持のための支援などの分野での強化が必要と考えられる。

文 献

- 1) 福富和夫, 永井正則: 基本統計学, 第3版, p78—89, 南山堂, 東京 (2002)
- 2) 福富和夫, 橋本修二: 保健統計・疫学, 第2版 p28—29, 南山堂, 東京 (2002)

〔資 料〕

飲料水検査における大腸菌検出用 特定酵素基質培地の比較検討

石川県保健環境センター健康・食品安全科学部

 児玉 洋江・倉本 早苗
 戌亥 一朗・芹川 俊彦

キーワード：酵素基質培地法，大腸菌，飲料水

1 はじめに

水系感染症の主な原因菌が人を含む温血動物の糞便を由来とすることから，水道の微生物学的安全性確保のため，糞便汚染を検知することは極めて重要である。従来，水質基準項目では糞便汚染指標菌として「大腸菌群」が用いられてきた。しかし近年，糞便本来の汚染をより強く反映する大腸菌の迅速・簡便な培養技術が確立されたことに伴い，2004年4月1日から施行された水質基準に関する省令で，水質基準項目が「大腸菌」に改正され，それに伴い試験法は特定酵素基質培地法（4種類の特定酵素基質培地が規定されている）に定められた。

今回我々は，この特定酵素基質培地法についてそれぞれの培地の感度，特異性等を把握することを目的に，種々の比較検討を行ったので報告する。

2 材料および方法

2・1 検討培地

検討を行った特定酵素基質培地は，入手が可能であった以下の3種類（4製品）である。これらの酵素基質培地の成分組成を表1に記載する。

- (1) IPTG 添加 ONPG-MUG 培地（A 社製）
- (2) MMO-MUG 培地（B 社製）
- (3) ビルビン酸添加 XGal-MUG 培地（C 社製）
- (4) ビルビン酸添加 XGal-MUG 培地（D 社製）

2・2 使用菌株

今回検討に用いたのは以下の9種類13菌株であり，1997年から2003年に石川県内で，ヒトおよび環境から分離されたものである。

表1 各種酵素基質培地の成分組成
(単位：g/L)

成 分	培 地	A 社	B 社	C 社	D 社
ONPG		0.1	0.5		
MUG		0.05	0.075	0.1	0.1
XGal				0.1	0.1
IPTG		0.1		0.1	0.1
ペプトン				5	5
トリプトース		5			
トリプトファン		1			
NaCl		2.9	10	5	5
CaCl ₂			0.05		
(NH ₄) ₂ SO ₄		2.5	5		
MgSO ₄		0.1	0.1		
Na ₂ SO ₄			0.04		
MnSO ₄			0.0005		
ZnSO ₄			0.0005		
KNO ₃				1	1
ラウリル硫酸 Na	0.1			0.1	0.1
ソラニウム			0.5		
ビルビン酸 Na				1	1
アンフォテリシン B			0.001		
KH ₂ PO ₄				1	1
K ₂ HPO ₄				4	4

Comparison of Growth for *Escherichia coli* by Chromogenic and Fluorogenic Substrate Medium Methods in the Control of Drinking Water, by KODAMA Hiroe, KURAMOTO Sanae, INUI Ichirou and SERIKAWA Toshihiko (Health and Food safety Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Chromogenic and fluorogenic substrate medium methods, *Escherichia coli*, Drinking water

- (1) *Escherichia coli* (大腸菌) 5株 (健常者由来株2株, 患者, 牛および河川水由来株が各1株)
- (2) *Klebsiella pneumoniae*
- (3) *Citrobacter freundii*
- (4) *Enterobacter cloacae*
- (5) *Pseudomonas aeruginosa*
- (6) *Serratia marcescens*
- (7) *Salmonella* Infantis
- (8) *Aeromonas sobria*
- (9) *Acinetobacter baumannii* 各1株

2・3 方 法

特定酵素基質培地法の判定に影響を及ぼす可能性のある以下の要因について検討を行った。

(1) 大腸菌の由来

由来の異なる大腸菌5株を滅菌精製水で 10^1 CFU/100mLになるように調製した菌液を試料とし、上記の培地を用いて水質基準に関する省令に従って検査を行った。

表2 大腸菌の由来別による検討結果

大腸菌由来別(10^1 /100mL)	A社	B社	C社	D社
健常者由来株(I)	+	+	+	+
健常者由来株(II)	+	+	+	+
患者由来株	+	+	+	+
牛由来株	+	+	+	+
河川水由来株	+	+	+	+

+ : 大腸菌陽性

表3 大腸菌数による検討結果

大腸菌数(/100mL)	A社	B社	C社	D社
10^0	+	+	+	+
10^1	+	+	+	+
10^2	+	+	+	+
10^3	+	+	+	+
10^4	+	+	+	+

+ : 大腸菌陽性

表4 大腸菌以外の菌種における検討結果

	A社	B社	C社	D社
<i>Klebsiella pneumoniae</i>	—	—	—	—
<i>Citrobacter freundii</i>	—	—	—	—
<i>Enterobacter cloacae</i>	—	—	—	—
<i>Pseudomonas aeruginosa</i>	—	—	—	—
<i>Serratia marcescens</i>	—	—	—	—
<i>Salmonella</i> Infantis	—	—	—	—
<i>Aeromonas sobria</i>	—	—	—	—
<i>Acinetobacter baumannii</i>	—	—	—	—

— : 大腸菌陰性

即ち、各酵素基質培地を入れた専用容器に試料100mLを加え、 36°C 、24時間培養し、366nmの紫外線を照射し蛍光発色が確認されたものを「大腸菌陽性」として判定した。

(2) 大腸菌の菌数

健常者由来大腸菌の1株を滅菌精製水で $10^0 \sim 10^4$ CFU/100mLになるように調製した菌液を試料とし、(1)と同様に培養し判定した。

(3) 大腸菌以外の菌種

大腸菌以外の8菌種を滅菌精製水で各々 10^3 CFU/100mLになるように調製した菌液を試料とし、(1)と同様に培養し判定した。

(4) 大腸菌と他の菌種の共存

ア 大腸菌を 10^1 CFU/100mLに調製した滅菌精製水に、*K. pneumoniae*および*P. aeruginosa*を各々 $10^0 \sim 10^4$ CFU/100mLになるように添加した菌液を試料とし、(1)と同様に培養し判定した。

イ アの結果、*K. pneumoniae*との共存により、一部の酵素基質培地で「大腸菌陰性」と判定されたことから、多数の大腸菌群の共存が大腸菌の判定に与える影響について調べた。即ち、大腸菌を 10^1 CFU/100mLに調製した滅菌精製水に、*C. freundii*および*E. cloacae*を各々 10^0 CFU/100mLになるように添加した菌液を試料とし、24時間培養後に大腸菌の判定ならびに各菌の菌数測定を行った。また*K. pneumoniae*についても、同様に24時間培養後の菌数測定を行った。

3 結 果

(1) 大腸菌の由来

今回使用した大腸菌5株については、一部に蛍光発色の弱いものがあつたが、菌株の由来に関係なく、検討した4製品の特定酵素基質培地では全て「大腸菌陽性」と判定された(表2)。

(2) 大腸菌の菌数

大腸菌の菌数に関係なく、 $10^0 \sim 10^4$ CFU/100mLの全ての濃度において、検討した4製品の特定酵素基質培地では全て「大腸菌陽性」と判定された(表3)。

(3) 大腸菌以外の菌種

大腸菌以外の8菌種については、検討した4製品の特定酵素基質培地では全て「大腸菌陰性」と判定された(表4)。

(4) 大腸菌と他の菌種の共存

ア 大腸菌(10^1 CFU/100mL)に*K. pneumoniae*を混合した試料においては、*K. pneumoniae*が 10^4 CFU/100mL共存した場合にはビルビン酸添加XGal-MUG培地であるC社、D社の製品で、また 10^0 CFU/100mL

共存した場合ではC社、D社の製品および、MMO-MUG 培地であるB社の製品で特定酵素基質培地の蛍光発色が弱く「大腸菌陰性」と判定された。一方、*P. aeruginosa* が共存した場合においては、 10^6 CFU/100mL 共存した場合でも、検討した4製品の特定酵素基質培地では全て「大腸菌陽性」と判定された(表5)。

イ 大腸菌 (10^4 CFU/100mL) に *C. freundii* を 10^5 CFU/100mL 混合した試料ではピルビン酸添加 XGal-MUG 培地であるC社、D社の製品で「大腸菌陰性」と判定された。一方、*E. cloacae* を混合した試料では、検討した4製品の特定酵素基質培地では全て「大腸菌陽性」と判定された。菌数測定の結果、「大腸菌陽性」と判定された試料では大腸菌の菌数は共存している大腸菌群とほぼ同数であったが、「大腸菌陰性」と判定された試料では、大腸菌の菌数は共存している大腸菌群と比べ少なかった(表6)。

表5 大腸菌と他の菌種との共存した場合の検討結果

	<i>K. pneumoniae</i> (/100mL)					<i>P. aeruginosa</i> (/100mL)				
	10^4	10^5	10^6	10^7	10^8	10^4	10^5	10^6	10^7	10^8
A社	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+
B社	+	+	+	+	—	+	+	+	+	+
C社	+	+	+	—	—	+	+	+	+	+
D社	+	+	+	—	—	+	+	+	+	+

+ : 大腸菌陽性 — : 大腸菌陰性

表6 大腸菌と多数の大腸菌群との共存した場合の大腸菌の判定結果および24時間培養後の菌数

添加菌濃度 (/100mL)		大腸菌判定結果 24時間培養後の菌数 (/mL)			
		A社	B社	C社	D社
		大腸菌判定	大腸菌判定	大腸菌判定	大腸菌判定
<i>E. coli</i>	10^4	+	—	—	—
<i>K. pneumoniae</i>	10^6	6.2×10^7	3.2×10^6	2.5×10^6	1.8×10^6
		<i>Klebsiella</i>	1.3×10^8	1.2×10^8	2.6×10^7
<i>E. coli</i>	10^4	+	+	—	—
<i>C. freundii</i>	10^6	5.6×10^7	1.5×10^7	8.6×10^6	1.4×10^6
		<i>Citrobacter</i>	1.3×10^8	6.1×10^7	2.3×10^7
<i>E. coli</i>	10^4	+	+	+	+
<i>E. cloacae</i>	10^6	8.8×10^7	2.7×10^6	8.3×10^6	1.0×10^6
		<i>Enterobacter</i>	6.1×10^7	7.2×10^7	7.7×10^7

+ : 大腸菌陽性 — : 大腸菌陰性

4 考 察

特定酵素基質培地法は大腸菌群および大腸菌の検出を目的とした検査法であり、河川水、水道水および食品の大腸菌群検査法として広く使用され、良好な成績が得られることが既に報告されている^{2)~4)}が、培地の種類により大腸菌群の検出感度に若干の差異がみられることも報告されている²⁾。

今回我々は3種類(4製品)の特定酵素基質培地を用いて、大腸菌の判定に影響を及ぼす可能性のある種々の要因について検討した結果、大腸菌の由来や菌数が結果の判定に影響を及ぼさないこと、大腸菌以外の菌種でも正しい判定結果が得られることを確認した。

Stephen ら⁵⁾は、特定酵素基質培地において多数の従属栄養細菌が存在しても大腸菌群の発育を阻害せず、大腸菌群の判定に影響を与えないことを報告している。しかし、多数の大腸菌群の存在が大腸菌の判定に与える影響については未だ報告がない。今回の検討結果から、*K. pneumoniae* や *C. freundii* などの大腸菌群が多数($10^4 \sim 10^8$ CFU/100mL) 共存した場合、一部の特定酵素基質培地では大腸菌の判定が偽陰性になる場合があることが確認できた。

特定酵素基質培地法は、大腸菌が特異的に産生する酵素 β -グルクロニダーゼにより培地組成中の蛍光基質MUG が分解され、遊離した蛍光色素を確認することにより大腸菌の存在を判定する。

大腸菌のみを4種の酵素基質培地で培養した場合、24時間後の菌数はいずれの酵素基質培地を用いた場合でも 10^8 /mLであったのに対し、多数の大腸菌群を共存させた場合では、「大腸菌陰性」と判定された酵素基質培地における24時間培養後の大腸菌の菌数は 10^6 /mL以下であり、共存している大腸菌群数に比べ極めて少ない菌数であった。これは、各酵素基質培地に添加されている栄養素などの成分組成が異なることから、各菌の発育状況に差異が生じ、培地により大腸菌の判定が陰性となったと考えられる。以上のことから、試料中に僅かの大腸菌と特定の大腸菌群が多数共存した場合、大腸菌群が優位に増殖することにより大腸菌の発育が抑制され、その結果酵素基質の分解による蛍光色素の遊離が僅かとなり、大腸菌の判定で陰性となることが示唆された。

しかし、自然環境中において *K. pneumoniae* や *C. freundii* が大腸菌に対してこのような比率で共存することは極めて稀であると考えられることから、実際の水質

検査においては、ほとんど問題となることはないと思われる。

今回検討した4種類の特定酵素基質培地については、どの培地の性能にも大きな差異がないため、使用に際しては各検査室で培地の価格や使いやすさ等を考慮して、選択しても支障はないと考えられる。

5 ま と め

特定酵素基質培地法の判定に影響を及ぼす可能性のある種々の要因について検討を行った。

(1) 菌株の由来や菌数に関係なく、検討した4製品の特定酵素基質培地では全て「大腸菌陽性」と判定された。

(2) 大腸菌以外の菌種について調べた結果、8菌種全てが「大腸菌陰性」と判定された。

(3) 大腸菌 (10^4 CFU/100mL) に *K.pneumoniae* を混合 ($10^4 \sim 10^6$ CFU/100mL) した場合、一部の特定酵素基質培地で「大腸菌陰性」と判定された。一方、*P.aeruginosa* の場合は、 10^6 CFU/100mL 共存した場合でも、全ての特定酵素基質培地で「大腸菌陽性」と判定された。

(4) *C.freundii* を混合 (10^6 CFU/100mL) した試料では、一部の特定酵素基質で「大腸菌陰性」と判定され、*E.cloacae* を混合 (10^6 CFU/100mL) した試料では、全

ての製品において「大腸菌陽性」と判定された。

また、「大腸菌陽性」と判定された試料では、24時間培養後の大腸菌の菌数は共存している大腸菌群とほぼ同数であったが、「大腸菌陰性」と判定された試料では、大腸菌の菌数は共存している大腸菌群と比べ極めて少なかった。

(5) 検討した4種類の特定酵素基質培地については、どの培地の性能にも大きな差異がなかった。

文 献

- 1) 厚生労働省令第101号：平成15年5月30日付「水質基準に関する省令」
- 2) 村上和保，石橋 称：日本食品微生物学会雑誌，14(3)，149—154 (1997)
- 3) 中山 宏，堀川和美，牛尾剛士，松永健興，矢入正俊，竹中重幸，大津隆一：日本食品微生物学会雑誌，13(2)，63—67 (1996)
- 4) 勢力和子，田口真澄，小林一寛：日本食品微生物学会誌，13(2)，69—73 (1996)
- 5) 北原節子，櫻井四郎，石原ともえ，高橋智恵子：用水と廃水，44(8)，22—27 (2002)
- 6) Stephen C, Miriam M：THE YALE JOURNAL OF BIOLOGY AND MEDICINE，61，389—399 (1998)

〔資 料〕

石川県におけるインフルエンザ流行状況

—— 2004/2005 シーズンについて ——

石川県保健環境センター健康・食品安全科学部 黒崎 直子・大矢 英紀・尾 西 一

キーワード：インフルエンザウイルス

1 はじめに

インフルエンザは冬季に流行するウイルス性疾患で、流行規模がしばしば大きくなり、社会問題となることがある。一方、アジアでは、家禽で高病原性鳥インフルエンザ（H5N1）が流行し、人への感染事例報告が続いていることから、世界保健機構（WHO）は新型ウイルスの世界的流行に対する警戒体制を強めている。このような状況で、当センターが実施している分離ウイルスの抗原解析の重要性は、今後ますます高くなると考えられる。

ここでは、2004/2005シーズンの石川県におけるインフルエンザ流行状況と、分離ウイルスの抗原性状について報告する。

2 材料と方法

2・1 患者発生状況

(1) 集団かぜ患者発生状況

県健康推進課が、学校を対象として日単位で調査している「集団かぜ発生状況報告」で把握した。

(2) 定点医療機関におけるかぜ患者発生状況

感染症発生動向調査で指定されている、県内48定点医療機関（インフルエンザ定点19、小児科定点29）から週単位で報告される、インフルエンザ患者数で把握した。

2・2 ウイルス検査

(1) インフルエンザウイルス分離

患者の咽頭ぬぐい液または鼻汁を検体として、トリブ

シン添加 MDCK 細胞を用いて実施した。

(2) 分離ウイルスの抗原性状解析

国立感染症研究所より分与された、2004/2005シーズン抗原解析用キットの感染フェレット抗血清と、0.5%モルモット赤血球を用いて、赤血球凝集抑制（Hemagglutination inhibition:HI）試験により型別および赤血球凝集素（Hemagglutinin:HA）の抗原解析を行った。

なお、2004/2005シーズンの抗原解析用キットで使用されたウイルス株は、ワクチン株ウイルス A/NewCaledonia/20/99(H1N1)、A/Wyoming/03/2003(H3N2；今シーズンよりワクチン株変更)、および参照株ウイルス A/Moscow/13/98(H1N1)、B/Brisbane/32/2002(Victoria 系統株)、B/Johannesburg/5/99（山形系統株）の計5株であった。

3 結果と考察

3・1 集団かぜ

(1) 患者発生状況

「集団かぜ発生状況報告」によると、2004/2005シーズン初発の集団かぜは、平成17年1月17日（平成17年第3週）に金沢市の三馬小学校で発生した。その後患者数、施設数ともに増加し、第8週でピークとなり、4月25日（平成17年第17週）の鳳至小学校（輪島市）を最後に終息した。この間の発生施設数は128施設、患者数は8,914人に達した。（図1）

(2) ウイルス検査結果

ウイルス分離は、各保健所・地域センター管内（金

Report on prevalence of Influenza during the 2004—2005 influenza season in Ishikawa Prefecture, by KUROSAKI Naoko, OHYA Hideki and ONISHI Hajime (Health and Food Safety Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Influenza virus

沢市は旧保健所管轄である泉野、元町、駅西の各地区(内)で初発の11施設、54人について実施した。その結果、7施設の16人からインフルエンザウイルスが分離され、分離率は29.6%であった(表1)。

分離したインフルエンザウイルスのうち、A型は14株で、すべて香港型(H3N2)であった。そのHA抗原性状は、ワクチン株 A/Wyoming/03/2003(H3N2)のHI抗体価のホモ価160に対して、160から320とほとんど差がなく、ワクチン株と類似したウイルスと考えられた。

また、B型インフルエンザウイルスは2株で、ともに山形系統株であった。そのHA抗原性状は、参照株 B/Johannesburg/5/99(山形系統株)のHI抗体価のホモ価1280に対して、640とほとんど差がなく、参照株と類似したウイルスと考えられた。

3・2 定点医療機関におけるかぜ

(1) 患者発生状況

感染症発生動向調査のインフルエンザ患者報告は、2004年(平成16年)第43週にはじまり、集団かぜより1週遅れの2005年(平成17年)第9週が発生のピークであった。この週の定点あたり患者数は71.8人で、昨シーズンピーク時(31.8人)の2倍以上であった¹⁾。また、前2シーズンと比較すると、流行のはじまり、ピークおよび終息のいずれも遅かった(図2)。

また、患者数の総数は18,208人と前シーズン(7,898

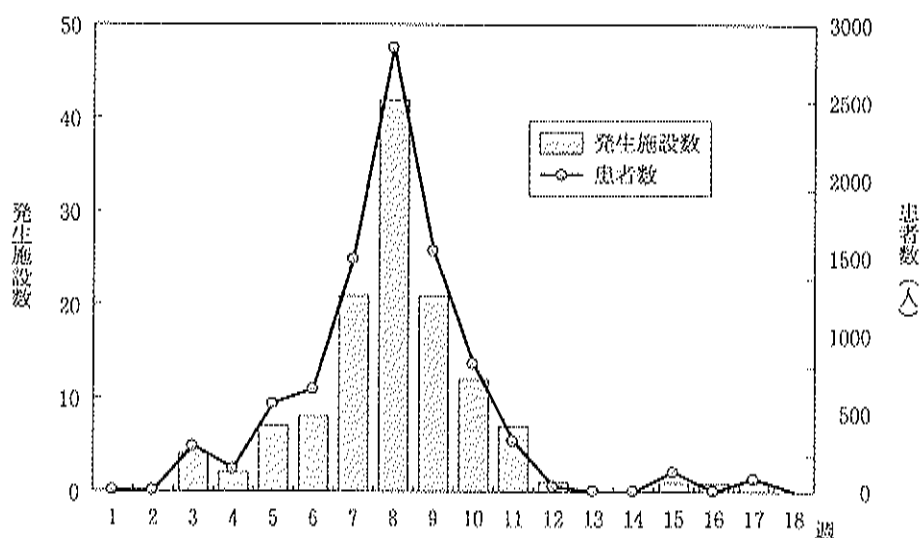


図1 集団かぜ発生状況(2004/2005シーズン)

表1 集団かぜ検査状況

発生年月日	(週)	学校名(管轄保健所、センター名)	検体数	分離数	型
2005/1/17	(3)	三馬小学校(金沢市保健所)	4	0	
"	(3)	向栗崎小学校(河北地域センター)	4	4	A(H3)
2005/1/19	(3)	安宅小学校(南加賀保健所)	5	0	
2005/1/21	(3)	栗崎小学校(金沢市保健所)	5	0	
2005/1/24	(4)	明成小学校(金沢市保健所)	5	1	A(H3)
2005/1/31	(5)	町野小学校(能登北部保健所)	5	3	A(H3)
2005/2/1	(5)	越路小学校(能登中部保健所)	6	1	A(H3)
"	(5)	蕪城小学校(石川中央保健所)	5	0	
2005/2/7	(6)	松波小学校(珠洲地域センター)	5	3	A(H3)
2005/2/10	(6)	羽咋小学校(羽咋地域センター)	8	2	A(H3)
2005/2/5	(8)	片山津小学校(加賀地域センター)	5	2	B
合 計		11施設	54	16(分離率29.6%)	

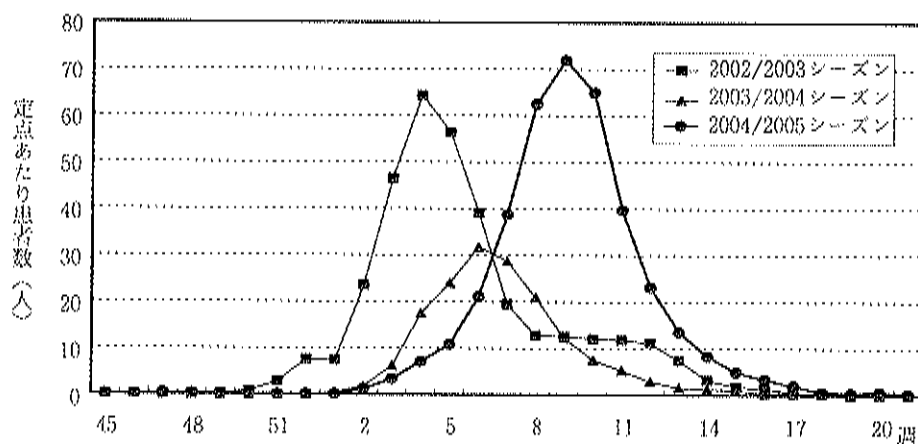


図2 定点かぜ患者発生状況

人)の2倍以上であり、最近10シーズンの中でも2002/2003シーズンの16,466人に次いで流行の規模が大きかった。

(2) ウイルス検査結果

感染症発生動向調査の定点医療機関を受診した、散発のかぜ患者のうち、140人についてウイルス分離検査を実施した。その結果130人からインフルエンザウイルスが分離され、分離率は92.9%であった。

分離したインフルエンザウイルスのうち、A型は69株で、すべて香港型(H3N2)であった。そのHA抗原性状は、67株はワクチン株A/Wyoming/03/2003(H3N2)のHI抗体価のホモ価160に対して160から320でありワクチン株とほとんど差がないウイルスと考えられた。残り2株はHI抗体価が640で、ワクチン株と類似のウイルスと考えられた。なお、この2株を分離した検体は、流行のピークである2005年(平成17年)第8週に採取されていた。

また、B型インフルエンザウイルスは61株と例年より非常に多く、すべて山形系統株であった。そのHA抗原性状は、58株は参照株B/Johannesburg/5/99(山形系統株)のHI抗体価のホモ価1280に対して、640から1280であり、参照株とほとんど差がないウイルスと考えられた。残り3株はHI抗体価が320で、参照株と類似のウイルスと考えられた。なお、この3株を分離した検体は、2検体が2005年(平成17年)第8週、1検体が第

15週と、流行のピークとそれ以降に採取されていた。

4 ま と め

(1) 2004/2005シーズンの学校を対象として調査した集団かぜは、128施設で発生し、患者数は8,914人で、前シーズン(112施設、9,389人)とほぼ同じであった。

(2) 感染症発生動向調査のインフルエンザ患者報告は全般的に遅く、特に流行のピークは遅かった。患者数の総数は18,208人で、流行の規模が比較的大きかった。

(3) 定点医療機関から分離されたインフルエンザウイルスは、A型が69株(53.1%)、B型が61株(46.9%)であり、B型が例年に比べて非常に多かった。

(4) 分離されたインフルエンザウイルスは、A型はすべて香港型で、今年度より変更されたワクチン株A/Wyoming/03/2003(H3N2)の類似株、B型はすべて山形系統株で参照株B/Johannesburg/5/99の類似株であった。

文 献

- 1) 黒崎直子, 大矢英紀, 尾西 一: 石川保環研報, 41, 31-34 (2004)

〔資 料〕

平成16年度水道水等水質検査精度管理 調査結果について

—— 石川県年次報告書 ——

石川県保健環境センター健康・食品安全科学部

橋本 潤子・小西 秀則・倉本 早苗
児玉 洋江・戌亥 一郎

キーワード：飲料水、精度管理

1 はじめに

石川県では、日常分析業務の点検、測定上の問題点の改善や解決及び測定技術の向上に役立たせることを目的として厚生労働大臣登録検査機関、水道事業体、保健所等公的機関を対象に、昭和58年度から飲料水の水質分析に関する精度管理調査を行ってきた^{1)~7)}。「石川県水道水質管理計画」には保健環境センターの役割として、県内水質検査機関の検査員の技術研修及び水質検査精度管理の実施を掲げており、当センターは当初から技術的実務を担ってきた。

以下に、平成16年度に行った精度管理調査の結果を述べる。

2 調査方法

2・1 対象機関

民間の分析機関（厚生労働大臣登録検査機関）9機関、水道事業体4機関、公的機関4機関及び保健環境センターの計18機関を対象とした。

2・2 測定項目及び測定方法

理化学試験（アルミニウム及

びその化合物、塩化物イオン、硝酸態窒素及び亜硝酸態窒素、濁度）そして微生物試験（一般細菌）の計5項目を選定した。測定方法を表1に示す。理化学試験の測定は5回の繰り返し試験とした。

2・3 配付試料

表2の内容で保健環境センターが調製を行った試料を

表1 分析項目及び分析方法

分 析 項 目	分 析 方 法	略 称
アルミニウム及びその化合物	フレイムレス-原子吸光度法	AA
	ICP-発光分光分析法	ICP-AES
	ICP-質量分析法	ICP-MS
塩化物イオン	イオンクロマトグラフ法	IC
硝酸態窒素及び亜硝酸態窒素		
濁 度	透過光測定法	AS
一般細菌	標準寒天培地による混濁培養法	

表2 配付試料の内容

名 称	分 析 項 目	内 容
試料-A	アルミニウム及びその化合物	アルミニウム 5mg/L（1%硝酸溶液）
試料-B	塩化物イオン	塩化物イオン 250mg/L
	硝酸態窒素及び亜硝酸態窒素	硝酸態窒素 40mg/L
試料-C	濁 度	濁度標準液（ポリスチレン）2.5度
試料-D	一般細菌	滅菌蒸留水に <i>Bacillus subtilis</i> の芽胞液を ・定量添加
試料-E		

Assessment of Precision in the Quality Control of Tap Water among Laboratories in 2004
—An Annual Report in Ishikawa Prefecture—, by HASHIMOTO Junko, KONISHI Hidenori,
KURAMOTO Sanae, KODAMA Hiroe and INUI Ichirou (Health and Food Safety Department,
Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Drinking water, Quality control

配付した。

測定試料は、アルミニウム及びその化合物については配付試料を100倍に、塩化物イオン、硝酸態窒素及び亜硝酸態窒素と濁度については5倍に希釈して調製するよう指定した。

3 解析方法

3・1 理化学試験

機関ごとに変動係数、設定濃度に対する測定値の割合を算出した。異常値の取り扱いについては、Grubbsの棄却検定法により検証した。また、ISO/IEC43-1 (JISQ0043-1) 及び厚生労働省の「平成15年度水道水質検査の精度管理調査結果」を参考にZスコアを計算した。さらに、測定結果のバラツキの大きさを視覚的に捉えるため、箱ひげ図⁹⁾を用いた検討も行った。箱ひげ図とは①中央値②最大値③最小値④上ヒンジ⑤下ヒンジの5つの指標(統計量)を用いて評価を行う手法で、上ヒンジとは最大値と中央値の間に位置する値で全データの75%がその値より小さく、下ヒンジとは最小値と中央値の間に位置する値で全データの25%がその値より小さくなる場所である。上ヒンジと下ヒンジとの差はヒンジ幅(ヒンジ分散度)と呼ばれ、バラツキの大きさを示す指標となる。

判定基準を以下に示す。

(1) Grubbsの方法及びZスコアを用いた検討

ア (室内) 変動係数

適正範囲は上水試験方法を参考に10%以下とした。

イ 設定濃度に対する測定値の割合

適正範囲は上水試験方法を参考に90~110%とした。

ウ Grubbsの検定

危険率5%で異常値として棄却した。

エ Zスコア

Zスコアの評価は厚生労働省の「平成15年度水道水質検査の精度管理調査結果」によると

$|Z| \leq 2$ 満足

$2 < |Z| < 3$ 疑義有り

$3 \leq |Z|$ 不満足

とされている。本調査においてもこの評価に従い、Zスコアの絶対値が3以上である場合は、改善の必要ありとした。

(2) 箱ひげ図を用いた検討

ヒンジ幅の1.5倍のところまで上下に各ヒンジから「ひげ」を引き、それぞれの線の先端(ひげ端)を上内境界点、下内境界点とした。ただし最大値が上内境界点より箱に近い場合は最大値を上内境界点とする。最小値においても同様である。そしてこれらのひげ端より大き

い、または小さいデータを外れ値とした。

3・2 微生物試験

機関を代表する測定値として報告された値を対象に実施した。暫定的に試料作成機関(保健環境センター)の測定値を用いてレンジチェックを実施し、大幅な異常値の除外を図った。次に、平均値 $\pm 2\sigma$ (標準偏差)を算出し除外操作を実施した。さらに、「 $\bar{x}-R$ 管理図を代用する比較法」による検討も行った。 $\bar{x}-R$ 管理図は平均値($\bar{x}$)と範囲(R)の管理図を組み合わせることによってバラツキ具合を管理し、品質管理上の不具合の発生を防止するために使われる手法である。また、各機関の平均値に基づくZスコアも参考とした。

判定基準を以下に示す。

(1) レンジチェックによる検討

ア 保健環境センターの測定値の100倍以上及び1/100以下を異常値とした。

イ 平均値 $\pm 2\sigma$ (標準偏差)を算出し

平均値 $\pm 2\sigma$ の外⇒疑わしい

平均値 $\pm 3\sigma$ の外⇒不合格とした。

(2) $\bar{x}$ 管理図による検討

上部管理線は300%、下部管理線は30%と設定した。

4 結果

4・1 アルミニウム及びその化合物

各機関の測定値は表3-1であった。変動係数は各機関とも10%以下で、設定濃度(0.05mg/L)に対する測定値の割合は76~101%で、90~110%の適正範囲外の機関が1機関あった。この機関はGrubbsの検定(危険率5%)で棄却され、Zスコアも-3を下回った。また、箱ひげ図による結果(図1)でも下内境界点を下回る外れ値(最小値)を示した。表3-2に棄却データを除いた場合の測定結果を示した。

4・2 塩化物イオン

各機関の測定値は表4であった。変動係数は各機関とも10%以内で、設定濃度(50.0mg/L)に対する測定値の割合も90~110%の適正範囲内であった。Grubbsの検定(危険率5%)で棄却されたデータ、Zスコアが3を超えた機関もなかった。箱ひげ図による結果(図2)でも上内~下内境界点の範囲にすべての機関が入っていた。

4・3 硝酸態窒素

各機関の測定値は表5であった。変動係数は各機関とも10%以内で、設定濃度(8.00mg/L)に対する測定値の割合も90~110%の適正範囲内であった。Grubbsの検定(危険率5%)で棄却された機関はなかったが、Zスコアが3を超えた機関は1機関(負の側)であった。

表3-1 アルミニウム及びその化合物の測定結果

機関	測定方法	濃度 (mg/L)	変動係数 (%)	設定濃度に 対する割合 (%)	Zスコア
1	ICP-MS	0.0486	1.3	97.2	-0.1
6	AA	0.0465	2.9	93.0	-1.2
7	ICP-MS	0.0462	0.8	92.5	-1.4
8	AA	0.0381*	2.2	76.1	-6.0
9	ICP-MS	0.0497	1.6	99.4	0.6
10	ICP-MS	0.0502	5.8	100.5	0.9
11	ICP-MS	0.0500	1.4	100.1	0.8
12	ICP-MS	0.0502	0.4	100.3	0.8
13	ICP-AES	0.0488	1.7	97.5	0.1
14	ICP-MS	0.0503	1.8	100.7	0.9
15	AA	0.0481	5.1	96.1	-0.3
16	ICP-AES	0.0484	1.9	96.9	-0.1
平均	—	0.0479	—	96.9	—
中央値	—	0.0487	—	—	—
最小値	—	0.0381	0.4	76.1	-6.0
最大値	—	0.0503	5.8	100.7	0.9
設定値	—	0.0500	—	—	—

* : Grubbs の検定 (危険率5%) で棄却されたデータ

表4 塩化物イオンの測定結果

機関	測定方法	濃度 (mg/L)	変動係数 (%)	設定濃度に 対する割合 (%)	Zスコア
1	IC	49.71	0.8	99.4	-0.7
2	IC	51.69	0.7	103.4	2.4
3	IC	50.52	1.9	101.0	0.6
4	IC	50.50	0.6	101.0	0.5
5	IC	50.40	1.6	100.8	0.4
6	IC	52.08	5.4	104.2	2.9
7	IC	48.38	0.4	96.8	-2.8
8	IC	50.71	0.3	101.4	0.9
9	IC	50.13	0.2	100.3	0.0
10	IC	49.92	0.2	99.8	-0.4
11	IC	49.59	0.2	99.2	-0.9
12	IC	49.78	1.4	99.6	-0.6
13	IC	51.71	1.0	103.4	2.4
14	IC	49.68	0.7	99.4	-0.7
15	IC	50.18	0.4	100.4	0.0
16	IC	49.36	0.4	98.7	-1.2
平均	—	50.27	—	100.5	—
中央値	—	50.15	—	—	—
最小値	—	48.38	0.2	96.8	-2.8
最大値	—	52.08	5.4	104.2	2.9
設定値	—	50.00	—	—	—

表3-2 アルミニウム及びその化合物の測定結果
(棄却データを除いた場合)

機関	測定方法	濃度 (mg/L)	変動係数 (%)	設定濃度に 対する割合 (%)	Zスコア
1	ICP-MS	0.0486	1.3	97.2	-0.1
6	AA	0.0465	2.9	93.0	-1.6
7	ICP-MS	0.0462	0.8	92.5	-1.8
9	ICP-MS	0.0497	1.6	99.4	0.6
10	ICP-MS	0.0502	5.8	100.5	1.1
11	ICP-MS	0.0500	1.4	100.1	0.9
12	ICP-MS	0.0502	0.4	100.3	1.0
13	ICP-AES	0.0488	1.7	97.5	0.0
14	ICP-MS	0.0503	1.8	100.7	1.2
15	AA	0.0481	5.1	96.1	-0.5
16	ICP-AES	0.0484	1.9	96.9	-0.2
平均	—	0.0488	—	97.7	—
中央値	—	0.0488	—	—	—
最小値	—	0.0462	0.4	92.5	-1.8
最大値	—	0.0503	5.8	100.7	1.2
設定値	—	0.0500	—	—	—

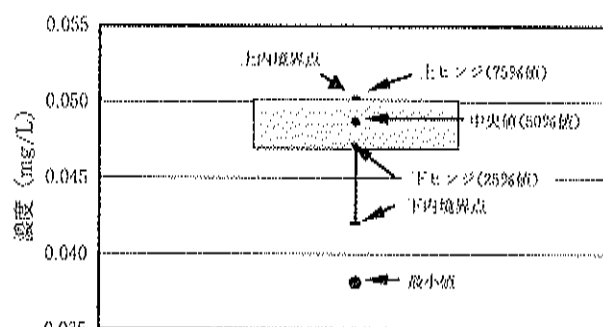


図1 箱ひげ図 (アルミニウム及びその化合物)

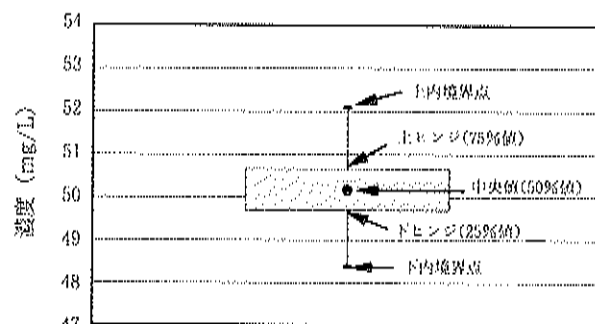


図2 箱ひげ図 (塩化物イオン)

箱ひげ図による結果 (図3) でも下内境界点よりも若干小さい外れ値 (最小値) を示した。

4・4 濁 度

各機関の測定値は表6-1であった。変動係数が19.9

表 5 硝酸態窒素の測定結果

機関	測定方法	濃度 (mg/L)	変動係数 (%)	設定濃度に 対する割合 (%)	Zスコア
1	IC	8.005	3.5	100.1	0.3
2	IC	8.070	0.7	100.9	0.7
3	IC	8.143	1.9	101.8	1.1
4	IC	7.953	0.8	99.4	-0.1
5	IC	8.076	2.6	101.0	0.7
6	IC	7.675	5.1	95.9	-1.8
7	IC	7.383	0.4	92.3	-3.6
8	IC	7.968	0.6	99.6	0.0
9	IC	7.962	0.3	99.5	0.0
10	IC	7.806	0.3	97.6	-1.0
11	IC	8.002	0.1	100.0	0.2
12	IC	8.100	1.7	101.2	0.8
13	IC	7.607	1.2	95.1	-2.2
14	IC	7.966	1.6	99.6	0.0
15	IC	7.953	0.8	99.4	-0.1
16	IC	7.799	0.5	97.5	-1.0
平均	—	7.904	—	98.8	—
中央値	—	7.964	—	—	—
最小値	—	7.383	0.1	92.3	-3.6
最大値	—	8.143	5.1	101.8	1.1
設定値	—	8.000	—	—	—

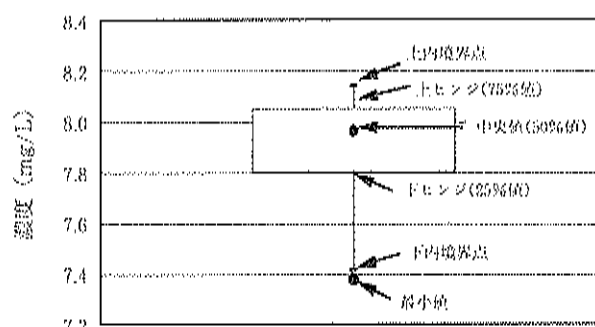


図 3 箱ひげ図 (硝酸態窒素)

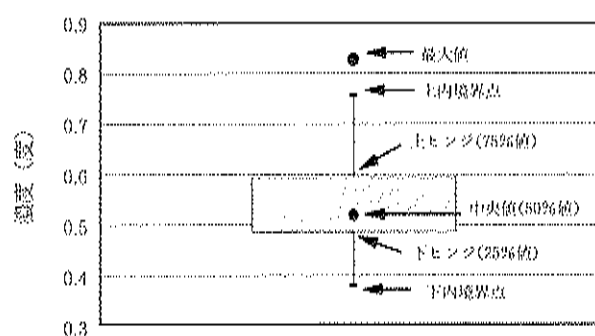


図 4 箱ひげ図 (濁度)

表 6—1 濁度の測定結果

機関	測定方法	濁度 (度)	変動係数 (%)	設定濃度に 対する割合 (%)	Zスコア
1	AS	0.517	4.0	103.3	0.0
2	AS	0.521	0.0	104.2	0.0
3	AS	0.558	5.2	111.7	0.6
4	AS	0.505	0.0	101.0	-0.2
5	AS	0.512	6.6	102.3	-0.1
6	AS	0.378	4.7	75.6	-2.0
7	AS	0.486	2.3	97.2	-0.5
8	AS	0.826*	6.0	165.2	4.4
9	AS	0.520	0.0	104.0	0.0
10	AS	0.602	3.0	120.4	1.2
11	AS	0.474	2.3	94.9	-0.6
12	AS	0.498	1.0	99.6	-0.3
13	AS	0.591	8.0	118.1	1.0
14	AS	0.540	10.1	108.0	0.3
15	AS	0.634	3.5	126.8	1.7
16	AS	0.651	19.9	130.1	1.9
17	AS	0.386	10.2	77.2	-1.9
18	AS	0.482	0.0	96.4	-0.5
平均	—	0.538	—	107.6	—
中央値	—	0.518	—	—	—
最小値	—	0.378	0.0	75.6	-2.0
最大値	—	0.826	19.9	165.2	4.4
設定値	—	0.500	—	—	—

* : Grubbs の検定 (危険率 5 %) で棄却されたデータ

表 6—2 濁度の測定結果 (棄却データを除いた場合)

機関	測定方法	濁度 (度)	変動係数 (%)	設定濃度に 対する割合 (%)	Zスコア
1	AS	0.517	4.0	103.3	0.0
2	AS	0.521	0.0	104.2	0.1
3	AS	0.558	5.2	111.7	0.8
4	AS	0.505	0.0	101.0	-0.2
5	AS	0.512	6.6	102.3	-0.1
6	AS	0.378	4.7	75.6	-2.6
7	AS	0.486	2.3	97.2	-0.6
9	AS	0.520	0.0	104.0	0.1
10	AS	0.602	3.0	120.4	1.6
11	AS	0.474	2.3	94.9	-0.8
12	AS	0.498	1.0	99.6	-0.3
13	AS	0.591	8.0	118.1	1.4
14	AS	0.540	10.1	108.0	0.4
15	AS	0.634	3.5	126.8	2.2
16	AS	0.651	19.9	130.1	2.5
17	AS	0.386	10.2	77.2	-2.4
18	AS	0.482	0.0	96.4	-0.6
平均	—	0.521	—	104.2	—
中央値	—	0.517	—	—	—
最小値	—	0.378	0.0	75.6	-2.6
最大値	—	0.651	19.9	130.1	2.5
設定値	—	0.500	—	—	—

表7 一般細菌数の測定結果

機関	試料 D		試料 E	
	測定値 (CFU/mL)	Zスコア (参考)	測定値 (CFU/mL)	Zスコア (参考)
1	607	1.0	12	0.1
2	560	0.1	9	-1.7
3	480	-1.4	10	-1.1
4	460	-1.8	12	0.1
5	540	-0.3	15	1.9
6	586	0.6	13	0.5
7	523	-0.6	12	0.1
8	630	1.4	11	1.9
9	620	1.3	13	0.5
10	460	-1.8	11	0.1
11	560	0.1	12	-0.5
12	690	0.7	11	0.7
13	550	-0.1	11	-0.5
14	560	0.1	15	1.9
15	607	1.0	13	0.7
16	520	-0.7	12	0.1
18	672	0.3	9	-1.7
平均値	554	—	12	—
最小値	460	-1.8	9	-1.7
最大値	630	1.4	15	1.9

%と適正値の10%を超えた機関が1機関あった。設定濃度(0.5mg/L)に対する割合は76~170%で、90~110%の範囲外の機関が8機関あった。Grubbsの検定(危険率5%)で棄却された機関は1機関あり、この機関はZスコアも3を超えた(正の側)。箱ひげ図の結果(図4)でも上内境界点を上回る外れ値(最大値)を示した。表6—2に棄却データを除いた場合の測定結果を示した。

4・5 一般細菌数

各機関の結果は表7および図5—1、5—2であった。データクリーニングにより大幅な異常値と判定され除外された機関はなかった。また、各機関の試料D及びEの検査報告値で、「 $\bar{x}-R$ 管理図を代用する比較法」において $\bar{x}$ 管理図の上部管理線(U)を上回る、または下部管理線(L)を下回る機関はなかった。参考としたZスコアについて2を超えるものはなかった。

5 ま と め

(1) アルミニウムの分析では、各機関とも変動係数は良好な結果であった。1機関については設定濃度に対する割合が適正範囲外でZスコアが-3を下回り、

Grubbsの検定(危険率5%)でも棄却された。

(2) 塩化物イオンの分析では、変動係数、設定濃度に対する割合、Zスコアはいずれも良好な結果であった。

(3) 硝酸態窒素の分析では、変動係数及び設定濃度に対する割合は良好な結果であったが、Zスコアについて適正範囲外の機関が1機関あった。

(4) 濁度の分析では、変動係数は1機関が適正範囲外であった。また、設定濃度に対する割合で適正範囲外

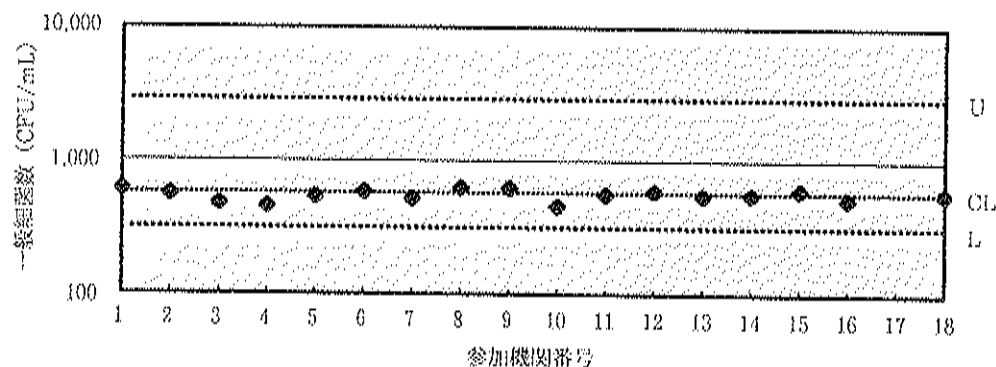


図5—1 一般細菌数(試料D)

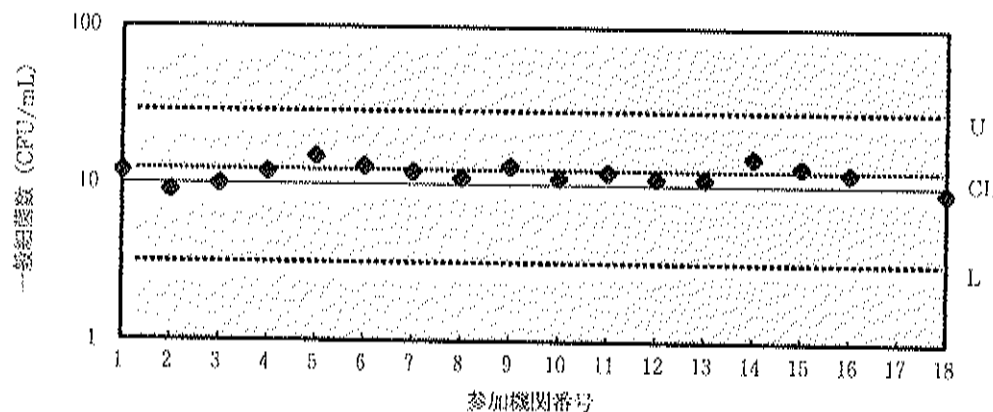


図5—2 一般細菌数(試料E)

の機関が8機関あった。Zスコアについては+3を上回った機関が1機関あり、その機関はGrubbsの検定（危険率5%）でも棄却された。この機関はアルミニウムの分析においてもZスコアが-3を下回り、Grubbsの検定（危険率5%）でも棄却された。この機関からは信頼性の確保のために不適事項の原因の検討と再発防止のための改善報告書の提出があった。

(5) 理化学試験について 1) 変動係数、設定濃度に対する割合、Grubbsの方法及びZスコアを用いた手法 2) 箱ひげ図を用いた手法の両者を用いて検討を行ったところ、Grubbsの方法により棄却された機関は箱ひげ図でも外れ値となった。硝酸態窒素については、Grubbsの方法により棄却された機関はなかったが、Zスコアが-3を下回った1機関が箱ひげ図を用いた検討結果で外れ値となった。

(6) 微生物試験では報告のあった17機関について、すべて適正範囲内の検査結果であった。

文 献

- 1) 柿本 均, 加藤充哉, 矢田峯子, 西川孝蔵, 河端芳美: 石川衛公研年報, 26, 307—319 (1989)
- 2) 澤田道和, 柴野 昭, 大西道代: 石川保環年報, 31, 226—237 (1994)
- 3) 南由美子, 初瀬 裕, 柴野 昭, 米沢由美子, 芹川俊彦: 石川保環研報, 36, 43—45 (1999)
- 4) 初瀬 裕, 南由美子, 柴野 昭, 芹川俊彦: 石川保環研報, 37, 130—132 (2000)
- 5) 初瀬 裕, 橋田哲郎, 柴野 昭, 芹川俊彦: 石川保環研報, 38, 105—111 (2001)
- 6) 初瀬 裕, 橋田哲郎, 柴野 昭, 倉本早苗: 石川保環研報, 39, 72—76 (2002)
- 7) 橋本潤子, 平尾貞規子, 柴野 昭, 倉本早苗, 成玄一朗: 石川保環研報, 41, 72—76 (2004)
- 8) 菅 民郎: Excel で学ぶ統計解析入門第2版, オーム社, 東京 (2003)

〔資 料〕

石川県におけるフォールアウト調査

(平成16年度)

石川県保健環境センター環境科学部 吉本 高志・中谷 光・小森 正樹

キーワード：フォールアウト，環境放射能

1 はじめに

全国放射能監視ネットワーク（文部科学省）の一員として、石川県におけるフォールアウト等による環境放射能の水準を把握するため、ゲルマニウム半導体検出器による核種分析を中心に放射能レベルを調査した。ここでは平成16年度の文部科学省委託放射能調査結果の概要を述べる。

2 調査方法

2・1 調査対象

調査対象は、定時（午前9時）採取の降水、大型水盤による降下物（1ヶ月毎）、陸水、土壌（0～5cm、5～20cm）、農畜産物（精米、大根、ホウレン草、牛乳）、海産生物（ワカメ、サザエ、フクラギ）、日常食、空間線量率、である。

2・2 測定方法

定時降水は全ベータ測定を、降下物、陸水、土壌、農畜産物、海産生物、日常食は核種分析を、空間線量率はサーベイメータ及びモニタリングポストによる測定を、それぞれ行った。

全ベータ測定は、文部科学省放射能測定法シリーズ「全ベータ放射能測定法」（昭和51年改訂）に基づき低バックグラウンド自動測定装置 JDC-3201（アロカ製）により行った。校正線源として科研製 U_3O_8 （500dps）を使用した。

核種分析は、文部科学省放射能測定法シリーズ「ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー」

（平成4年改訂）に基づきゲルマニウム半導体検出器（CANBERRA 製）及び波高分析器（東陽テクニカ製）により行った。

サーベイメータによる空間線量率測定には TCS-166 型シンチレーションサーベイメータ（アロカ製）を用い、DBM 方式により測定した。モニタリングポストによる空間線量率測定は、文部科学省放射能測定法シリーズ「連続モニタによる環境γ線測定法」に基づき MAR-21（アロカ製）により行った。

3 調査結果とまとめ

3・1 降水の全ベータ

表1に、調査期間（平成16年4月1日～平成17年3月31日）における定時降水中の全ベータ放射能測定結果を示す。年間降水量は2,598.5mmであった。採取試料数は112検体であり、そのうち2検体で全ベータ放射能が検出された。月間降下量の最大は3月の287.7MBq/km²であった。

3・2 核種分析

表2に、環境試料中の放射能濃度測定結果を示す。

(1) 降下物

1ヶ月毎の降下物から人工放射性核種は検出されなかった。

(2) 核種分析試料（降下物以外）

セシウム-137が土壌で28.4Bq/kg 乾土（0～5cm）、20.7Bq/kg 乾土（5～20cm）、大根で0.027Bq/kg 生、フクラギで0.17Bq/kg 生と検出された。その他の試料は検出限界未満であった。

Survey Data of Fall-out in Ishikawa Prefecture, April 2004 to March 2005. by YOSHIMOTO Takashi, NAKATANI Mitsuru and KOMORI Masaki (Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Fall-out, Environmental radioactivity

(3) 牛乳中のヨウ素-131

表3に牛乳中のヨウ素-131濃度測定の結果を示す。牛乳中のヨウ素-131はいずれも検出されなかった。

3・3 空間線量率

表4に空間放射線線量率の測定結果を示す。サーベイメータによる空間線量率は94～100 nGy/h（宇宙線寄与分の30nGy/hを含む）の範囲にあった。モニタリングポストによる空間線量率は35～119nGy/hの範囲にあり、過去3年間の変動範囲（25～115nGy/h）の最大値を上回った。最大値（119nGy/h）は1月に観測され、これは降雪によるものである。また年平均値は49nGy/hであった。

表1 定時降水中の全ベータ放射能測定結果

採取場所：金沢市太陽が丘

採取年月	降水量 (mm)	検出数/ 測定数	放射能濃度(Bq/l)		月間降水量 (Mba/km ²)
			最低値	最高値	
平成16年4月	172.0	0/ 6	—	N.D	N.D
5月	334.5	0/ 10	—	N.D	N.D
6月	174.5	0/ 9	—	N.D	N.D
7月	78.0	0/ 4	—	N.D	N.D
8月	86.5	0/ 5	—	N.D	N.D
9月	257.5	0/ 10	—	N.D	N.D
10月	312.0	0/ 9	—	N.D	N.D
11月	183.5	0/ 11	—	N.D	N.D
12月	229.0	0/ 10	—	N.D	N.D
平成17年1月	337.0	1/ 14	N.D	2.60	5.20
2月	203.5	0/ 14	—	N.D	N.D
3月	230.5	1/ 10	N.D	8.59	287.7
年間値	2,598.5	2/112	N.D	8.59	N.D～287.7
前年度までの過去3年間の値		22/340	N.D	6.28	N.D～482.7

N.D：検出されず（値が計数誤差の3倍を下回る場合）

表2 環境試料中の放射能濃度測定結果

試料名	採取場所	採取年月	検体数	¹³⁷ Cs		前年度までの過去3年間の値		その他の検出された人工放射性核種	単位
				最低値	最高値	最低値	最高値		
降下物	金沢市太陽が丘	毎月	12	—	N.D	N.D	0.53	なし	MBq/km ²
陸上水 (蛇口水)	金沢市太陽が丘	H16. 5	1	—	N.D	—	N.D	なし	mBq/l
土壌	0～5 cm	金沢市末町	H16. 7	1	—	28.4	30.2	38.0	Bq/kg乾土
					—	861	1,170	1,730	MBq/km ²
	5～20 cm	金沢市末町	H16. 7	1	—	20.7	20.7	39.3	Bq/kg乾土
					—	1,570	3,690	4,600	MBq/km ²
精米	内灘町向栗崎	H16.10	1	—	N.D	—	N.D	なし	Bq/kg精米
野菜 大根 ホウレン草	金沢市西念町	H16.10	1	—	0.027	—	N.D	なし	Bq/kg生
		H16.10	1	—	N.D	—	0.046	なし	
牛乳	羽咋郡宝達志水町坪山	H16. 8	1	—	N.D	—	N.D	なし	Bq/l
日常食	金沢市	H16. 6	2	—	N.D	N.D	0.037	なし	Bq/人・日
		H16.12							
海産生物	ワカメ	H16. 4	1	—	N.D	—	N.D	なし	Bq/kg生
	サザエ	H16. 5	1	—	N.D	—	N.D	なし	
	フクラギ	H16. 9	1	—	0.17	0.16	0.21	なし	

N.D：検出されず（値が計数誤差の3倍を下回る場合）

表 3 牛乳中¹³¹I濃度測定結果

採取場所	羽咋郡室速志水町坪山ナ部93-2 石川県畜産総合センター						前年度まで過去3年間の値	
採取年月日	H16. 5.10	H16. 7.13	H16. 9.13	H16.11.15	H17. 1.17	H17. 3.14	最低値	最高値
放射能濃度 (Bq/l)	N.D	N.D	N.D	N.D	N.D	N.D	—	N.D

N.D: 検出されず(値が計数誤差の3倍を下回る場合)

表 4 空間放射線量率モニタリング結果

測定地点: 金沢市太陽が丘

測定年月	モニタリングポスト(nGy/h)			サーベイメータ ^{*)} (nGy/h)
	最低値	最高値	平均値	
平成16年4月	45	64	48	94
5月	46	72	49	100
6月	46	71	49	98
7月	47	63	49	94
8月	48	60	50	96
9月	47	65	49	96
10月	47	74	49	98
11月	47	74	49	94
12月	44	93	50	98
平成17年1月	35	119	48	94
2月	35	76	46	94
3月	43	74	50	96
年間値	35	119	49	94~100
前年度までの 過去3年間の値	25	115	49	80~100

*) 宇宙線寄与分30nGy/hを含む。

〔資 料〕

石川県内における土壌中のダイオキシン類 調査結果について

石川県保健環境センター環境科学部

新川 晶子・岡 秀 雄
柿 本 均・久堂 寛久

キーワード：ダイオキシン類，毒性等量，ポリ塩化ジベンゾ-パラ-ジオキシン，ポリ塩化ジベンゾフラン，同族体

1 はじめに

石川県では、県内各地域の大気、水質（水底の底質を含む）及び土壌のダイオキシン類による汚染状況を把握するため、ダイオキシン類対策特別措置法（平成11年法律第105号）の規定により、ダイオキシン類測定計画を作成し、環境モニタリングを行っている。石川県保健環境センターでは、その計画に基づき、平成12年度より、環境大気、公用水域の水質及び底質、地下水、土壌の各媒体について、ダイオキシン類の測定を実施してきた。なかでも、土壌については測定開始当初より、一般及び産業廃棄物焼却施設周辺の汚染状況調査（発生源周辺調査）と、県内の一般的な環境の現状調査（一般環境調査）とを併せて行ってきており、多くのデータの蓄積がある。今回それらのデータを用いて、発生源周辺調査と一般環境調査間の差異、更に用途別、地域別の差異について検討したところ、若干の知見を得たので報告する。

2 試料と方法

2・1 試料の採取

土壌の調査は平成12年から16年にかけて、石川県内の182地点で実施しており、その内訳は、発生源周辺調査84地点、対照としての一般環境調査が98地点であった。

採取方法は、中心及び4方位の5地点混合方式により行い、直径5 cm程度、長さ5 cmの柱状試料を採取し、風乾後、2 mmメッシュのふるいを通過させたものを試料とした。

2・2 分析方法

分析は「ダイオキシン類に係る土壌調査測定マニュアル」¹⁾に準拠し行った。

試料約50gを精秤し、トルエンで16時間以上ソックスレー抽出を行った。抽出液は濃縮後、ヘキササンに転溶し、内標準物質（クリーンアップスパイク）添加後、着色が認められなくなるまで硫酸処理を行った。処理液は濃縮後、多層シリカゲルカラムに負荷し、ヘキササン200mLで展開した。次に、この溶出液を活性炭分散シリカゲルカラムに負荷し、ポリ塩化ジベンゾ-パラ-ジオキシン(PCDD)/ポリ塩化ジベンゾフラン(PDDF)とコプラナーPCB(co-PCB)に分離した。これらを適宜濃縮し内標準物質(シリンジスパイク)を添加し、50 μ Lに定容した最終検液の1 μ Lを高分解能ガスクロマトグラフ質量分析計(HRGC/HRMS)に注入した。

測定にはHRGC/HRMS(Agilent HP6890/日本電子JMS-700D)を分解能10,000以上に調整して用いた。キャピラリーカラムは、SP2331(SUPELCO社製、長さ60m内径0.25mm膜厚0.2 μ m:4~6塩素化PCDDs/PCDFs測定用)、DB-17(J&W社製、長さ30m内径0.32mm膜厚0.25 μ m:7,8塩素化PCDDs/PCDFs測定用)、HT 8-PCB(関東化学製、長さ60m内径0.25mm膜厚0.15 μ m:co-PCBs測定用)を使用した。カラムオーブン昇温条件、測定質量数等は既報²⁾によった。

ここではダイオキシン類濃度の毒性等量(TEQ)と併せて、実測濃度についても議論する。なお、毒性等量の算出については、マニュアル¹⁾によった。

Distribution of Dioxins in Soil Samples collected in Ishikawa Prefecture, by NIIKAWA Akiko, OKA Hideo, KAKIMOTO Hitoshi and KYUDOH Hirohisa (Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Dioxin, Toxicity equivalency quantity (TEQ), Polychlorinated dibenzo-*p*-dioxin (PCDD), Polychlorinated dibenzofuran (PCDF), Homologue

3 結果と考察

3・1 ダイオキシン類実測濃度及び毒性等量

全182地点でのダイオキシン類の実測結果を表1に示す。実測濃度は0.49～10,000pg/gの範囲にあり平均は540pg/gであった。また、毒性等量については全地点の平均が1.1pg-TEQ/g、最低値0.0065pg-TEQ/g、最高値9.9pg-TEQ/gであり、土壤の環境基準値1,000pg-TEQ/gを超える地点はなかった。

発生源周辺調査及び一般環境調査の比較では、実測濃度の平均は、それぞれ690pg/g、420pg/gであり、毒性等量の平均はそれぞれ1.8pg-TEQ/g、0.54pg-TEQ/gであった。図1にそのヒストグラムを示すが、発生源周辺で実測濃度、毒性等量共に高い傾向がみられ、検定の結果、実測濃度で危険率5%、毒性等量では危険率1%

で有意差があった。

調査地点を用途別に区分し、ダイオキシン類濃度を比較したものを図2に示す。実測濃度及び毒性等量の平均はそれぞれ、神社等（神社、寺）では1,100pg/g、3.4pg-TEQ/g、学校等（小中学校及び保育所）では380pg/g、0.38pg-TEQ/g、公園等（公園、グラウンド）では450pg/g、0.98pg-TEQ/g、その他は1,200pg/g、3.0pg-TEQ/gであった。学校等で他の用途地点より低い傾向が見られ、毒性等量において危険率1%で有意差があった。一方、神社等（神社、寺）では他の用途地点より高い傾向が見られ、毒性等量において危険率5%で有意差があった。

なお、用途別の『その他』はいずれのカテゴリーにも属さない地点であるが、実測濃度、毒性等量共に高い値を示す傾向がみられた。これらの多くは、長期間手入れ

表 1 土壌中のダイオキシン類調査結果

地点数	実 測 濃 度 (pg/g)				毒 性 等 量 (pg-TEQ/g)		
	範 囲	平均値	標準偏差		範 囲	平均値	標準偏差
全 地 点	182	0.49 ～ 10,000	540	1,100	0.0065 ～ 9.9	1.1	1.8
調査区分別							
一般環境調査	98	0.49 ～ 10,000	420	1,200	0.0065 ～ 5.9	0.54	0.91
発生源周辺調査	84	13 ～ 4,200	690	920	0.0076 ～ 9.9	1.8	2.4
合 計	182	0.49 ～ 10,000	540	1,100	0.0065 ～ 9.9	1.1	1.8
用 途 別							
神 社 等	19	120 ～ 4,200	1,100	950	0.24 ～ 8.8	3.4	2.7
学 校 等	99	0.49 ～ 10,000	380	1,200	0.0067 ～ 2.9	0.38	0.53
公 園 等	47	1.8 ～ 2,600	450	630	0.0076 ～ 5.9	0.98	1.2
そ の 他	17	14 ～ 4,100	1,200	1,400	0.0065 ～ 9.9	3.0	3.2
合 計	182	0.49 ～ 10,000	540	1,100	0.0065 ～ 9.9	1.1	1.8

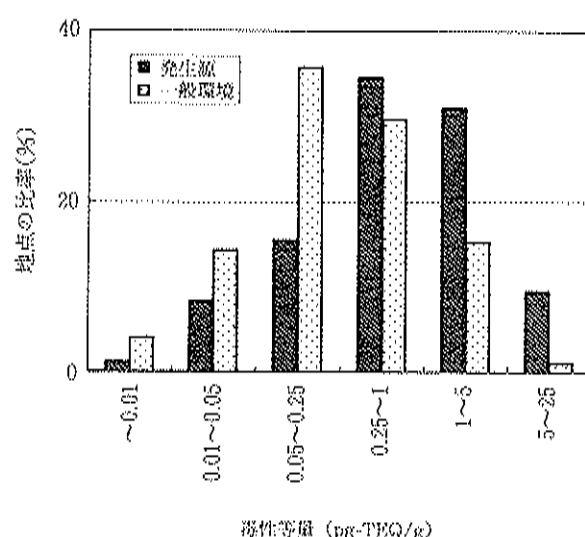
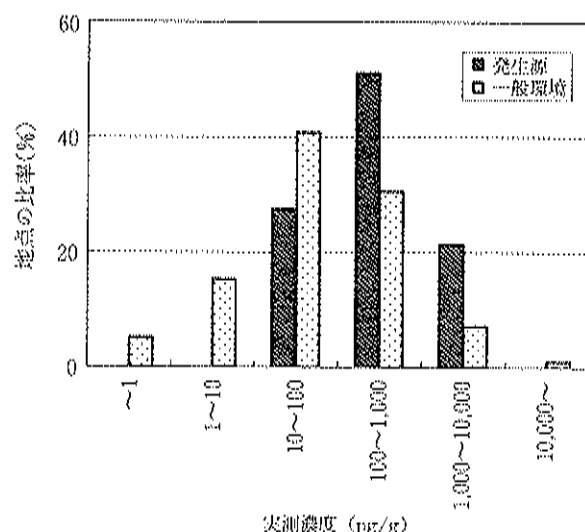


図 1 発生源周辺調査と一般環境調査における濃度のヒストグラム

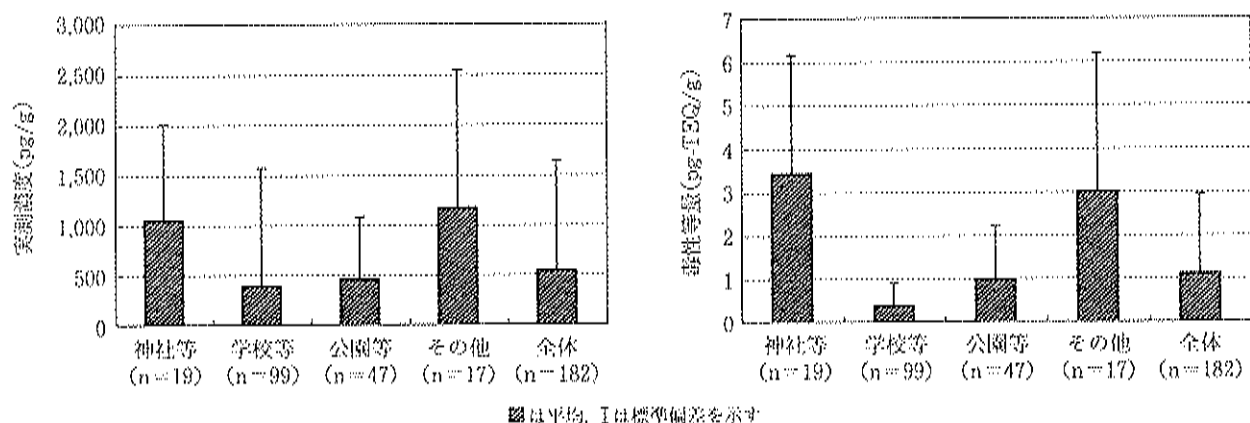


図 2 用途別ダイオキシン類濃度の比較（実測濃度，毒性等量）

がされていない様子の遺跡や遊休地などであった。

3・2 ダイオキシン類同族体組成

調査区分別の PCDDs 及び PCDFs に占める塩素置換数ごとの同族体組成比率を図 3 (a) に示した。多くの地点で 8 塩素化ジベンゾ-パラ-ジオキシン (OCDD) の占める比率が高く、1960年代から70年代初めに使用された除草剤のペンタクロロフェノール (PCP) に不純物として含まれるダイオキシン類の特徴^{3,4)}と一致する。また、一部に 4 塩素化ジベンゾ-パラ-ジオキシン (TeCDDs) の占める比率が高い地点が存在し、調査区分別にみると、発生源周辺では一般環境に比べ TeCDDs の占める比率

が高く危険率 5 % で有意差があった。

用途別の PCDDs 及び PCDFs に占める同族体組成比率を図 3 (b) に示した。神社等では、TeCDDs の組成比率が高い値となっているが有意差はなかった。

地域別の PCDDs 及び PCDFs に占める同族体組成比率を図 3 (c) に示した。県北部（内灘町以北）と県南部

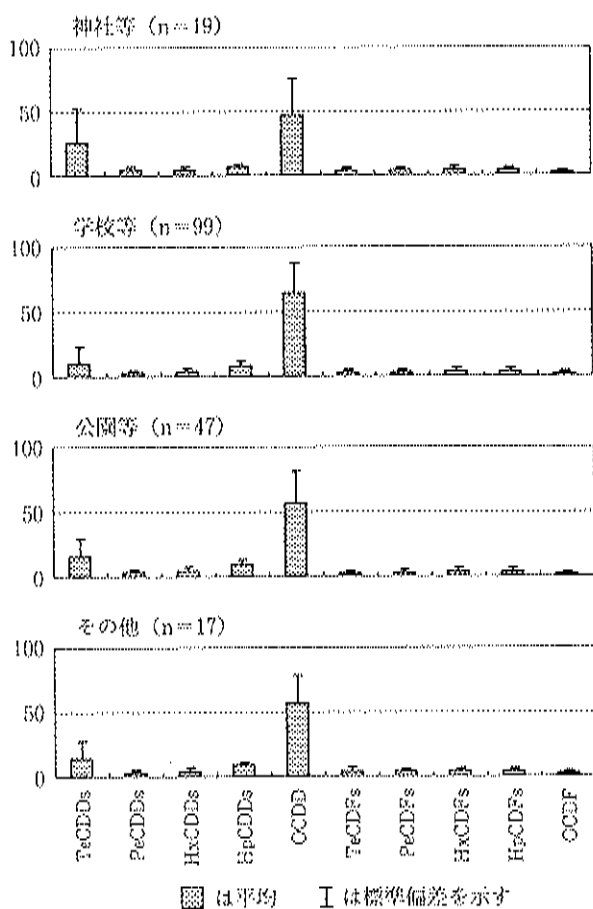
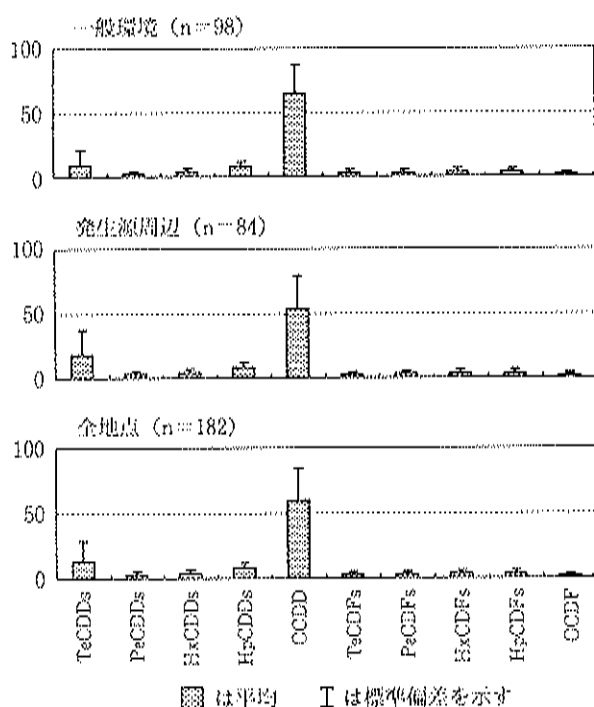


図 3 (a) PCDDs+PCDFs に占める同族体組成比率 (%) (調査区分別)

図 3 (b) PCDDs+PCDFs に占める同族体組成比率 (%) (用途別)

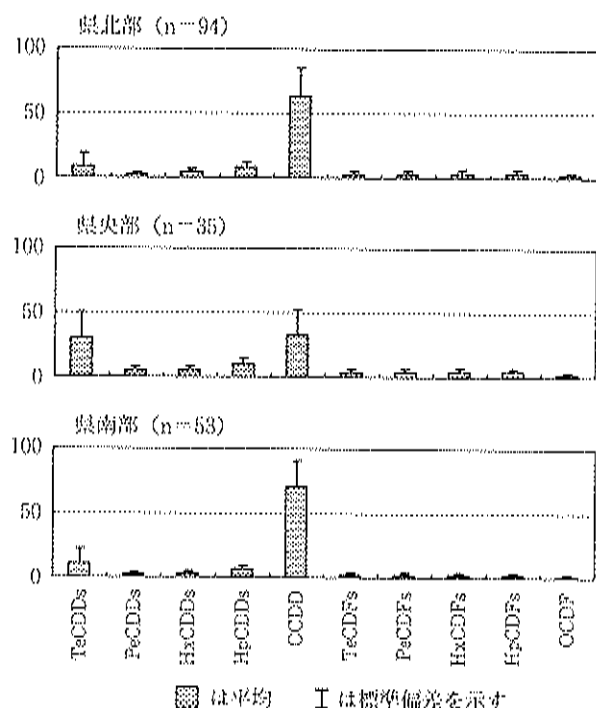


図3(c) PCDDs+PCDFsに占める同族体組成比率(%)
(地域別)

(能美市以南)においては、OCDDの占める割合が高かったが、県中部(野々市町、白山市、川北町)では、OCDDの占める比率は低く、TeCDDsが高比率となり、危険率1%で有意差があった。この傾向は県中部の中でも特に旧松任市と川北町において顕著で、TeCDDsのうち1,3,6,8-TeCDDと1,3,7,9-TeCDDが高い比

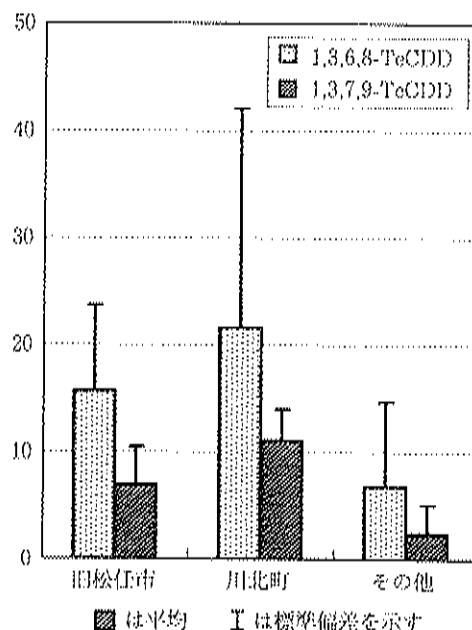


図4 PCDDs+PCDFsに占める1,3,6,8-TeCDD
と1,3,7,9-TeCDDの比率(%)

率を占めた(図4)。これは1970年代から80年代に使用された除草剤のクロロニトロフェン(CNP)に不純物として含まれるダイオキシン類の特徴^{3,4)}と一致する。地域により同族体の組成が異なる一因として、過去に使用された農薬の種類が地域により異なっていることが示唆された。

3.3 燃焼の影響について

ダイオキシン類測定データにおいて、燃焼の影響を受けた試料はPCDFs/(PCDDs+PCDFs)の比率が高くなる傾向がある³⁾。表2にこの比率を示す。本県の焼却炉の燃え殻及び排ガスの測定データでも、この比率は平均64%と高い値を示し、底質は逆に5.4%と低い値となっている。

土壌試料のPCDFs/(PCDDs+PCDFs)の比率は、全地点の平均が13.0%であった。発生源周辺調査及び一般環境調査の平均はそれぞれ13.5%と12.7%であり、差はみられなかった。用途別の比較でも特に差はなかったが、地域別に比較すると、県南部の平均8.2%に対して、県北部及び県中部ではそれぞれ14.3%、17.0%とやや高い比率を示し、危険率1%で有意差があった。

特に、旧松任市、珠洲市、穴水町、旧

表2 PCDFs/(PCDDs+PCDFs)の比率

	地点数	PCDFs/(PCDDs+PCDFs)(%)		
		範囲	平均値	標準偏差
全地点	182	0.0 ~ 64.0	13.0	10.7
調査区分別				
一般環境調査	98	0.0 ~ 37.6	12.7	10.2
発生源周辺調査	84	0.2 ~ 64.0	13.5	11.4
用途別				
神社等	19	1.3 ~ 34.8	14.6	10.6
学校等	99	0.0 ~ 64.0	12.7	11.2
公園等	47	0.2 ~ 37.4	12.5	10.0
その他	17	1.4 ~ 35.1	14.7	10.3
地域別				
県北部	94	0.0 ~ 64.0	14.3	11.5
県中部	35	0.2 ~ 37.4	17.0	9.8
県南部	53	0.2 ~ 36.4	8.2	7.8
参考				
燃え殻+排ガス	18	29.9 ~ 88.1	63.9	16.9
底質	11	2.3 ~ 8.1	5.4	1.6

田鶴浜町で高い比率を示す地点が多く、他の地域に比べ、
 燃焼の影響がやや高いことが示唆された。

4 ま と め

平成12年度から16年度に、一般環境調査98地点、発生源
 周辺調査84地点の、合計182地点において土壌のダイ
 オキシン類環境調査を実施し、すべての地点で環境基準
 値を下回った。

発生源周辺調査地点では、一般環境調査地点より実測
 濃度、毒性等量共に高い濃度を示した。

用途別にみると、神社等で高く、学校等で低い傾向が
 みられた。

PCDDs 及び PCDFs の同族体組成は、OCDD が高比
 率の地点が大部分であったが、県央部においてTeCDDs
 が高比率の地点が一部みられた。

PCDFs/(PCDDs+PCDFs) の比率は、発生源周辺、
 一般環境の別にかかわらず、旧松任市、珠洲市、穴水町、
 旧田鶴浜町で高い値を示す地点が多く、燃焼の影響が示
 唆された。

文 献

- 1) 環境省水質保全局土壌農業課：ダイオキシン類に係
 る土壌調査測定マニュアル（平成12年1月）
- 2) 岡 秀雄，柿本 均，原田由美子：石川保環研報，
 39, 101---106（2002）
- 3) MASUNAGA, Shigeki, YAO, Yuan, OGURA,
 Isamu and SAKURAI, Takeo : Proceedings
 of The 4 th International Workshop on Risk
 Evaluation and Management of Chemicals,
 Yokohama, 39---55（2001）
- 4) SEIKE, Nobuyasu and OTANI Takashi : Pro-
 ceeding of International Workshop on "Effects
 of Dioxins on Agriculture, Forestry and
 Fisheries and their Mechanisms of Action on
 Animals and Fishes", Tsukuba, 119---127（2002）
- 5) 宮田秀明：ダイオキシン，第1版，p91---92，岩波
 書店，東京（1999）