

〔報 文〕

ISO14001に対応した電子物品発注管理システムの構築 (第2報)

—— 修理・修繕等伝票に係る承認システムの機能追加 ——

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

石川県保健環境センター (以下、「センター」とする。)では、平成11年12月に ISO14001 の認証を受け、環境マネジメントシステムの運用を開始してから6年が経過した。

平成17年度は、1システム3サイトの石川県 (本庁舎等)、石川県工業試験場との統合的な認証のため、4月からセンターでも準備を進め、ISO14001活動 (以下、「新 ISO」とする) を開始した。11月に受審し、新 ISO についても認証を継続した。

これまでの ISO14001 に関しての取組みの中で^{1)~4)}、環境目的・環境目標の1つとして省資源の取組みを進めてきており、従来の紙伝票に代わる電子伝票による物品発注管理システム (以下、「物品システム」とする。) についても報告してきた⁵⁾。

物品システムは、新 ISO においても継続し、これまでと同様に、ISO14001 以外の事務作業の効率化に様々な効果を上げ、システム構築から機能を段階的に発展強化してきた。

今回、センターにおける電子物品伝票中の修理・修繕 (以下、「修理等」とする。) の発注に係る取扱いについて、事務処理の簡略化と迅速化を図るために物品システムを新たに付加 (以下、「追加システム」とする。) したので、その概要を報告する。

2 システムの構成及びソフトウェア

追加システムへ採用した技術については、次の5項目

を重点的に考慮した。

(1) 技術情報の入手

システム構築に必要なとなる豊富な解説書やインターネット上のホームページ等での情報が入手しやすいこと

(2) 採用する言語

システム記述言語として、すでに先行例として多く採用及び利用されていること

また、一人一台のクライアントパソコン (以下、「端末」とする。) の初期状態で利用でき、追加のコンポーネントのインストールを行わなくてもよいこと

(3) サーバーハードウェア

専用サーバーマシンとして、24時間365日システムダウンのない安定した環境を提供できる信頼性の高いメーカー製であること

(4) OS

所内の技術的な資源を集中活用するために、他の情報システムとの技術情報の共存・共有ができること

(5) ネットワーク (所内)

多人数で同時に利用するシステムであるため、HUB やケーブル等のネットワークシステムに信頼性のあること

(6) 端末

故障が少なく信頼できるパソコンであり、追加ソフトのインストール等の作業なしでサーバー側の資源を有効に利用できること

Development of Electronic Ordering and Inventory System adjusted to ISO14001 activities. 2.
— E-ordering System within repair configuration in 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

表 1 ハードウェア機器及びソフトウェア構成

種 類	区 分	種 類	備 考
サーバー	ハードウェア	富士通製サーバーマシン DUAL CPU (24h稼働) ハードディスク 72GB メモリ 768MB	(既存システム) INTEL 製 PenitumⅢ Xeon 1GHz×2個 RAID 5 構成 レジスタードメモリ
	ソフトウェア (OS)	マイクロソフト社製 Windows NT4.0 Server サービスパック適用 (SP6)	(既存システム)
	開発言語*	IIS 4.0 (ASP)	OS 付属
クライアント**	ハードウェア	富士通 FMV-655NU8 他 ハードディスク 6GB メモリ 128MB	(既存システム) INTEL 製 Celeron 550MHz
	ソフトウェア (OS)	マイクロソフト社製 Windows 98SE Office Personal 2000/2003	(既存システム) OS プレインストール済モデル
ネットワーク	HUB 及び幹線	富士通純正 カテゴリ 5 RJ45 Fast Ethernet (100/10Mbit)	(既存システム)

* : エディタ等は複数のフリーウェアエディタとマイクロソフト製 FrontPageEditor 等を利用している。

: ログイン画面のみ EXCEL を用いて画面設計を行い、HTML 形式に変換後、エディタで所要の編集を行っている。

** : クライアントパソコンは複数の製造会社の PC から構成されている。(上記は代表例)

(7) サポートツール

OS 上での提供されるシステムツールの他に、商用ソフトウェア及び自由に利用可能なフリーウェア等が選択可能であり複数準備 (サポート) されていること

したがって、平成16年度に構築した物品システムと同様に、表1に示す既存のハードウェア、ソフトウェアを利用し、システム保守管理等に係る技術の継承に重点を置き、修理等の機能追加への対応に際し、共通基盤としての利用の促進を図った。

3 問題点の洗い出し

有償修理として発注する修理等の電子伝票の頻度は、購入物品よりも少ないが、試験検査業務が輻輳する中で、従来の紙伝票による修理に係る申請承認手続では、確認・発注までの期間が長くなる傾向にあった。

そこで、追加システムにおける修理等への対応については、特に、迅速であり適正な予算の執行を維持するための観点から、

- (1) 承認申請の段階で電子伝票において修理等が明確に判断できること
- (2) 総務課長及び技術次長 (以下、「課長等」とする。) の承認手続を設けること

- (3) 修理等についての執行額が即時に計算出来ること (以下、「リアルタイム」とする。)

の3項目について、電子伝票を用い、追加機能として実装する必要性が生じた。

修理等については、従来からセンター独自の ISO 分類コードを入力することになっていたが、納品後の事後入力が多く、利用者からの申請の初期段階において、修理等に係る物品を明確かつ簡潔に区別する新たな追加仕様の策定を行い、物品システムへ実装することが要求された。

また、物品システム運用中の利用者からの意見として、

- (1) グループ毎に物品支出区分の小事業名の事後変更 (精算時の物品執行名目の割当)
 - (2) 利用者向けに物品申請に係る承認・発注状況の進行管理機能
 - (3) その他の補助的なシステム機能等
- の不足が指摘されていた。

4 システムの設計

追加システムにて ISO 分類及び修理等に関し電子処理を行い、リアルタイムで集計できるように表示画面を表2のとおり再設計した。

新たに設けた表2項目7について、修理等に係るリス

表 2 物品発注管理システムのメニューの一覧表

項目	区分	枝番	メニューの名称 (及び内容)	メニュー表示状況				プログラム 更新状況	メニュー管理区分 名称
				管理者	総務課	課長等	利用者		
1			物品入力画面	○	○	○	○		BN01-01
2			物品承認画面	○	○	○	○		BI01-01, BD01-01
3			物品発注画面(注文 FAX 作成)	○	○	×	×	コード追加	BT01-01
4			ISO 分類・グリーン購入の入力	○	○	○	○		BG01-01
5	(1)		物品表示画面	○	○	○	○	コード追加	BP01-01
	(2)		物品小事業名別表示画面	○	○	○	○	コード追加	BJ01-01
	(3)		物品検索画面	○	○	○	○	コード追加	BS01-01
6			小事業変更画面	○	○	○	○	新規作成	BC01-01
7			修理・修繕物品の表示及び承認画面	○	○	○	×	新規作成	BR01-01
8			納入金額入力	○	○	×	×	コード追加	BK01-01
管理者画面									
9	(1)		アクセス状況チェック表(月間の利用者アクセスランキング)	○	○	×	×		
	(2)		管理者からの利用者へのメール送信	○	○	×	×		
	(3)	ア	強制承認(全て、一部)	○	○	×	×		
		イ	強制承認(月単位)	○	○	×	×		
	(4)		環境変数ダンプ(デバック用)	○	○	×	×		
	(5)		データダンプ(DB での生データ[パルクデータ]のダンプ)	○	○	×	×		
	(6)		データの削除【1 度削除されたデータは復旧不可】	○	○	×	×		
	(7)		グループの再分類	○	○	×	×		
	(8)		発注先の変更	○	○	×	×		
	(9)		発注先の一括変更	○	○	×	×		
	(10)		発注先の登録	○	○	×	×		
	(11)	ア	発注金額まとめ[年度]	○	○	×	×		
		イ	発注金額まとめ[年度、印刷形式]	○	○	×	×		
		ウ	発注金額まとめ[G(グループ)単位、印刷形式]	○	○	×	×		
		エ	発注金額まとめ[月単位、印刷形式]	○	○	×	×		
		オ	発注金額まとめ[月単位、G(グループ)単位、印刷形式]	○	○	×	×		
		カ	発注金額まとめ[ISO 分類単位、印刷形式]	○	○	×	×		
	(12)		ISO 大分類・小分類強制正規化及びイレギュラーダンプ	○	○	×	×		
	(13)	ア	小事業名称の変更	○	○	×	×		
		イ	小事業名称の一括変更	○	○	×	×		
	(14)		小事業名分類強制正規化及びイレギュラーダンプ	○	○	×	×		
	(15)		総務課&管理者からのお知らせをトップ画面に作成する	○	○	×	×		
	(16)		発注データの変更【変更前データへの復旧不可】	◎	◎	×	×		
	(17)		小事業別の需用費執行額(≒予算)の変更	○	○	×	×		
修理・修繕関連									
	(18)	ア	強制修理・修繕手続き	○	○	×	×	新規作成	
		イ	修理・修繕情報の編集	○	○	×	×	新規作成	
		ウ	修理・修繕情報のダンプリスト	○	○	×	×	新規作成	
外部とのデータの交換プログラム									
10			マイクロソフト製 EXCEL へのデータインポート機能	○	○	×	×		

○：表示，◎：パスワード必要，×：非表示

※「新規作成」は新規にシステムへ追加した画面表示項目（プログラム）

※「コード追加」は部分的にプログラムを追加変更した画面表示項目

※ 項目 3, 5 及び 8（コード追加）については，修理・修繕物品についての表示補助機能の追加

※ 項目10は，MSquery/WEBquery を用いて EXCEL へデータをインポートする

部名:〇〇〇〇部 事業名:〔保健環境センター費〕調査研究費〔有用フランクソンの特性評価と河北湖湖水浄化への適用に関する研究〕

ID	品名	数量	単価	金額	合計	備考
7509	石川保環境センター費	1	12,000	12,000	12,000	技術次長の承認印
7510	石川保環境センター費	1	12,000	12,000	12,000	総務課長の承認印

部名:〇〇〇〇部 事業名:〔保健環境センター費〕調査研究費〔食の安全・安心確保のための検査〕

部名:〇〇〇〇部 事業名:〔保健環境センター費〕調査研究費〔試験検査費〕

図 1 修理・修繕発注の表示（画面）

トの表示と課長等の承認画面（図 1）を追加した。

課長等が承認手続きを行うと、未承認印が承認印へと更新表示され、特に、非承認の場合（却下、凍結等の措置）については、その理由を記録する機能を仕様に盛り込むことにした。

また、表 2 項目 5 の物品表示画面等には、修理等に係る承認状況を含めた一覧表（リスト表示）をリアルタイ

ムに表示することとした。

利用者には、物品の入力時に、物品の名称の前後へ「修理」若しくは「修繕」等のキーワード（以下、「キーワード」とする。）を付加する入力規則（以下、「規則」とする。）を義務付けた。

総務課承認担当者が承認手続を最終的に完了した時点で、規則に従い追加システムにより、自動的に課長等へ電子メールで通知（以下、「自動通知メール」とする。）し、修理等の承認手続きを課長等に依頼する手順とした。

課長等の承認が終了するまでは、総務課発注担当者は、修理等の物品の発注を一時停止し見合わせる手順（図 2）とした。

さらに、入力ミスにより、キーワードの付かない物品伝票の場合には、総

務課での承認の際、強制的に修理等手続き等を行うようにし、その他の必要な管理機能の拡張のため管理画面に所要の処理項目を追加した。

また、利用者の意見として提出された不足している機能として、例えば表 2 項目 6 に挙げられる物品支出区分の小事業名の変更等、必要な機能を再設計し、追加することとした。

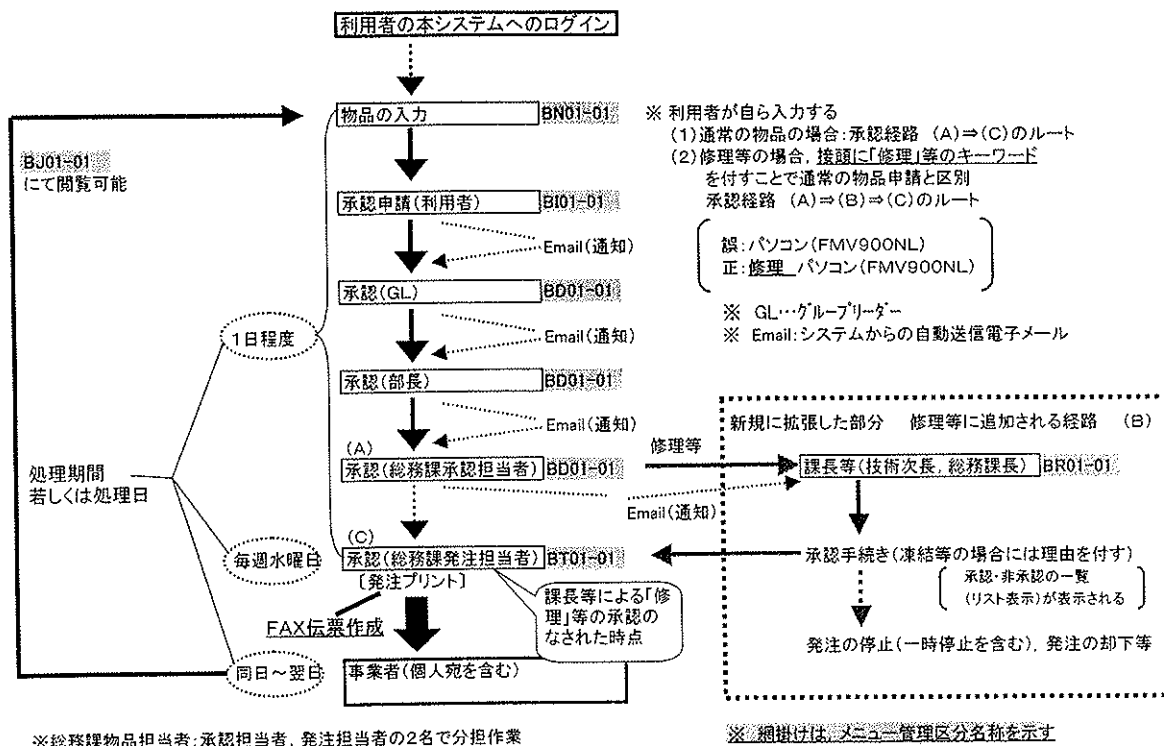


図 2 物品発注管理システムに係る物品のフロー

5 プログラム開発

5.1 準備及び運用

追加システムについては、物品システムと同様に Windows NT 4.0 Server (マイクロソフト社製、以下、「NT 4.0」とする。)に付属する ASP (IIS version 4.0) 言語 (以下、「ASP」とする。)で記述することとした。

基本設計を平成17年4月に終え、プログラミングを行った後、月末までにシステムを更新し、5月から追加システムの本格運用に入った。

完成した ASP プログラムは既存の部分を合わせると 52本となり、のべ1メガバイト (3万ライン[lines])に達した。

5.2 システムのテスト

今回の追加作業では、デバック用のため、図3に示すとおり、別途同一ソフト構成のテスト環境用のシステム (以下、「テストシステム」とする。)を用意し、予め各種テストを実施した。

デバックテスト中の利用者向けの自動通知メールは、日常業務の支障になる恐れがあり、試験的な送信を控える必要性があった。

そのため、プログラム中で、実際に稼働しているサーバーを自動的に判断し、実際の運用システムでは自動通知メールの送信を、また、テストシステムでは自動通知メールを非送信とし、内容のみを HTML (WEB 形式) として表示するようなプログラムを実装 (図4)した。

この結果、該当するプログラム関連のデバックにおいて、テストシステム上で、実際の自動通知メールの送信なしに、プログラム動作についての確認を行うことができ、追加システムの運用に影響を与えることはなかった。

5.3 データベース

データベースには、Access 2000、同2003 (マイクロソフト社製)の RDBMS (リレーショナルデータベースシステム、以下「DB」とする。)を用いているが、今回のプログラム開発では、データベース間の関連付け (以下、「リレーションシップ」

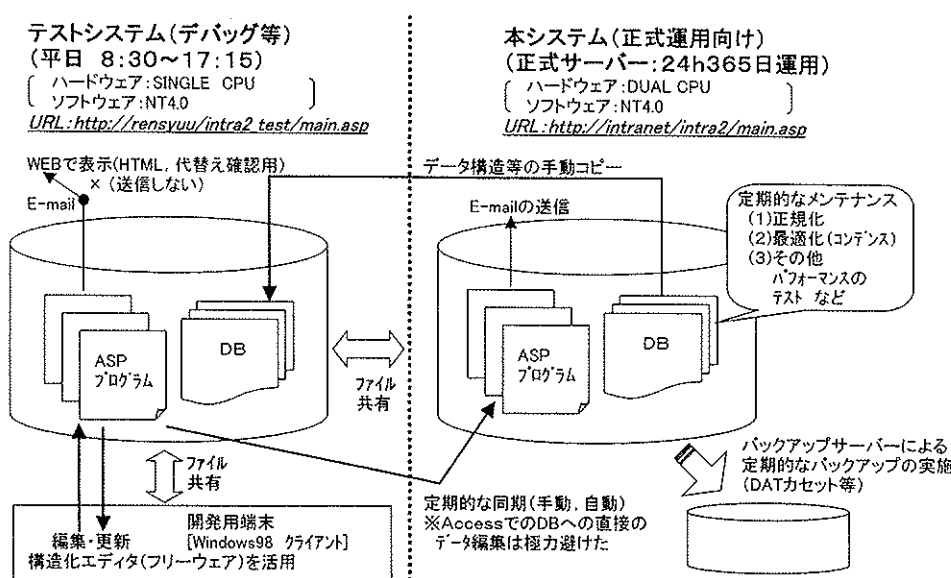


図3 テストシステムと本システムとの関係について

■サンプルソースコード

```

... (前略)
①
a=Server.MapPath("test.asp")
'サーバーパスからの実行サーバーの取得判定
②
i=Instr(1,a,"intra2")
if i>0 then
    c="本システムのサーバーです"
else
    c="テストシステムのサーバーです"
end if
... (中略)
③
if i>0 then
    '④
    '電子メールの送信
    ...
else
    '④'
    Response.Write "<br>テストシステム<br>"
    Response.Write "to: &email_to_address&"<br>"
    Response.Write "from: &email_from_address&"<br>"
    Response.Write "mail dump<br>&subj&"<br><pre>&body&"</pre><br><br>"
end if
... (後略)

```

解説

- ① "test.asp"プログラムを実行しているサーバー内のプログラムパスを取得する(フォルダ名称を含む)
- ② 本システムでのフォルダ名称が含まれているかどうかチェックする
 i>0 ... "intra2"の本システムサーバー名称が含まれるため、本システム上で動作している
 i=0 ... "intra2"が含まれないので、テストシステムで動作している
 本システム: http://intranet/intra2/main.asp
 テストシステム: http://rensyuu/intra2_test/main.asp
- ③ メール送信直前の条件判定文
- ④ 本システムはメールの送信を行う
 ④' テストシステムではWEBへの表示を行う (HTMLデータの作成)

図4 実行環境での稼働サーバーの判定について (サンプルコード)

とする。)をとった1テーブルのみをDBへ追加創成した。

テーブル内のフィールドを追加することは、プログラム等の影響が懸念されるため、今回の修理等に関する機能追加においては、修理等の管理に必要なテーブルを必要最小限の1個のみ追加することとした。

このため、既存システムへの拡張は、対象外プログラムへの影響を排除し、今回の機能拡張を容易に盛り込むことができた。

また、システム内では、符号によるリレーションシップはほとんど利用していない。

この手法では、集計やEXCEL（マイクロソフト社製）へのインポートシステム等のために、データはRDBMSシステムの特徴となるリレーションシップをDBテーブル間で数字による符号連携するのではなく、検索キーワードとなる利用者の所属グループ（部署）・氏名、ISO関係の分類、入力日時、発注日時、小事業名等を符号に置き換えずに、そのままの文字列でDBフィールドへ記録する。

このため、図5に示すとおり、利用者の氏名の属性情

報等に関するテーブルを除き、物品発注管理を行う基本的な情報を保存するテーブルは1個のみであった。

5・4 プログラムソースコード

前回の報告⁵⁾に述べたとおり、プログラムはコア要素を元に派生的に構築しているため、修理等に関する情報の拡張表示機能の既存プログラム上への追加についても、他のプログラムへプログラムソースコード（以下、「コード」とする。）をそのままの形で再利用した。

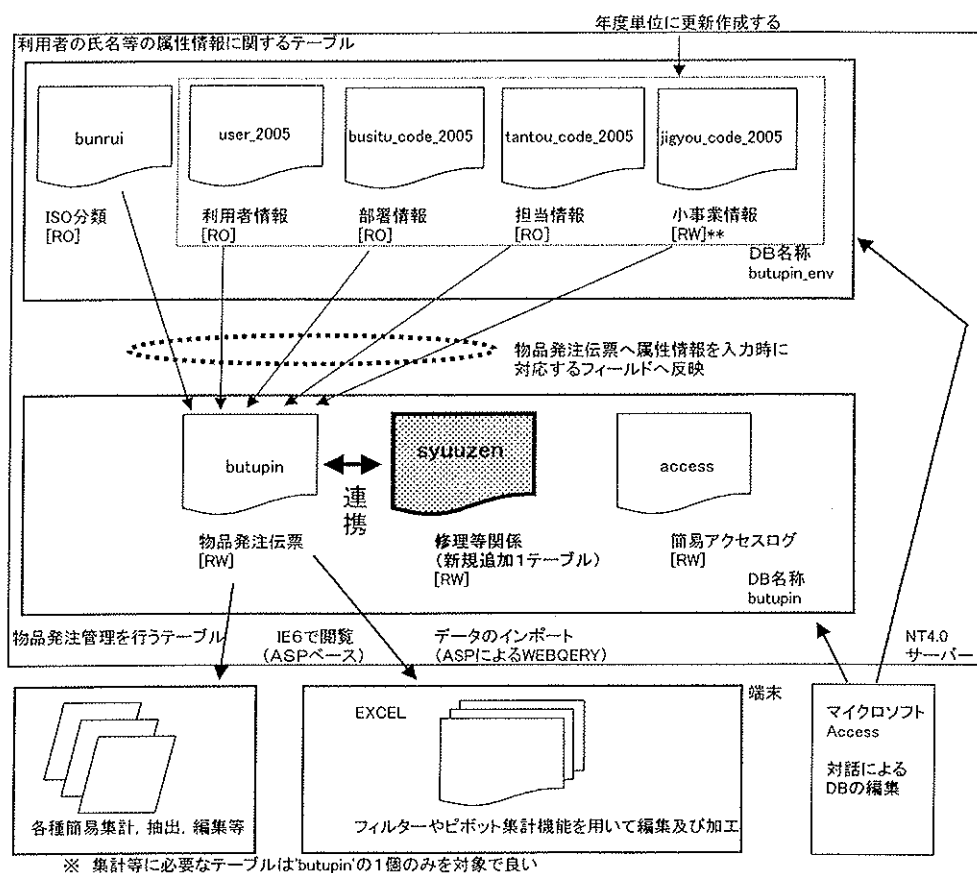
各プログラムは、各ブロック別に物品システム上での標準化されたローカルなプログラム記述仕様に基づくコード単位（以下、「コンテナ」とする。）となっており、図6に示すように、実行環境上で、各プログラム中に他に影響を与えない意味のない無駄なコード（以下、「ノンコード」とする。）を含んでいる。

しかしながら、原始的なコア要素から、各プログラム処理別及びブロック別に多段階に派生させることで、同一のコンテナの中へ新しいコードを追加する場合には、既に同様の処理コードを有する他のコンテナからコードを承継し、元のコードの改変を経ないで、そのままの形で反映させることが可能となっている。

さらに、ノンコードは最適化のために削除するのではなく、DO EXIT～LOOP 構文で事実上のREM文（リマーク文、未実行であるコードの解説部分）とし、コード中に残した。また、デバック用のコードについても同様にプログラム中に削除せずにそのまま残した。

ノンコードを含む分だけ処理速度は若干低下するが、コード全体の可読性が良くなった。

また、システム移行時（機器更新の時、以下、「移行時」とする。）には、電子化の進展と共に、将来導入されるより強力な処理能力を有するハードウェア環境で同一のコードが動作する。したがって、



※ [RO]:データ読み出しのみのテーブル、[RW]:読み書き可能なテーブル
 ※ [RO]に関しては、システム管理者が年度開始時点(4月)に一括更新
 ※ [RW]**に関しては、総務課担当者が、予算額及び本課からの転配額に応じて更新

図 5 DBの連携について（概要）

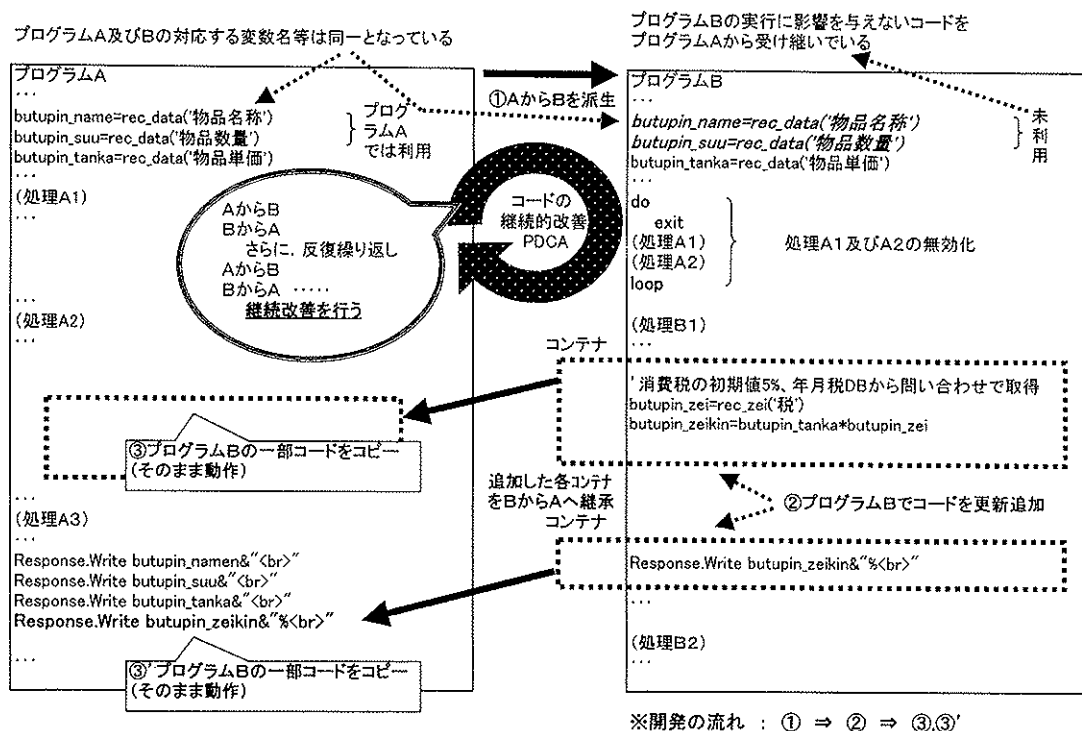


図 6 プログラム及びコードの依存関係と開発手法 (サンプル)

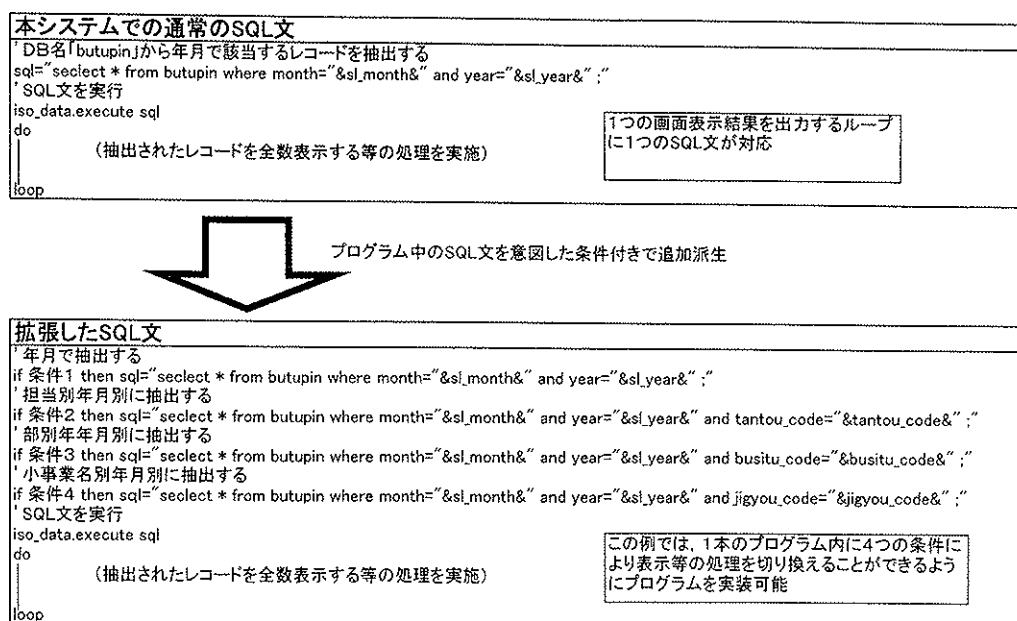


図 7 本システムで用いた SQL 文の動的構築活用概念図 (サンプル)

コードの変更及びプログラム追加並びに保守管理 (デバック等) の人的コストを前もって開発時点の最重要課題とすることは、現時点でのプログラム開発にとっての最適な選択肢の1つであった。

一般的なソフトウェアの実行速度の改善効果 (表3) は、物品システム及び追加システムでの開発時においてもアルゴリズムによる効果が大きいことが認められた。

5・5 SQL (エスクエール)

工程数を減らすために、ASP 中の SQL に関するプログラムについて工夫を凝らした。

これは、図7のようにループ外で、SQL 言語の発行を検索の範囲に応じ動的に構築 (以下、「動的構築」とする。) することで、記述するコード及びプログラムの本数を削減した。

表 3 主なプログラムの処理速度の改善効果

番号	分類	項 目	内 容	速度改善効果	備 考
1		アルゴリズムの改善による効果	処理手順、仕様等	非常に大きい	出来る限り最小の処理手順となるように設計
2	プログラムロジック	コードの吟味	ループ中のファイル操作を局在化	大きい	操作するコードを出来る限り同じ処理箇所に集中
			DB 操作を局在化 (対象 DB のオープン・クローズ内)	大きい	同上
			DB のオープン・クローズを最外部ループへ配置	大きい	処理アボート時にリスク発生の懸念あり
			表示単位及び処理単位を年度 (年) から月に限定	大きい	年間 (12カ月) の一括処理量を1/12程度に削減
			処理の分割及び分割表示 (<iframe>機能*)	少ない	DUAL CPU に合わせ、処理を2分割 (2スレッド) とする
3		不要な未実行のコードの除去	未実行の不要なコードの除去若しくはリマーク	若干	特に最内部のループで有効
4		最低限度の配列変数を確保	配列宣言の後で使用する最低限の変数を再度確保	少ない	セッション当たりの利用メモリ量の削減
5		出力HTMLコードの最適化	他の表現手法に置き換え (多重ループを削除等)	非常に大きい	データの図化 (棒グラフ) に利用
6	ASP	レスポンスバッファの活用	レスポンスバッファ指定による処理のタイムアウトを抑制	大きい	ほとんどの ASP プログラムに反映
7		並列処理数及び領域の拡大	ODBC でのスレッド数等を初期値より多く確保する	少ない	利用セッション数の多い場合の処理の円滑化
8	DB	DB 上のインデックスの活用	フィールドのほぼすべてにインデックスを付与	大きい	集計画面 (管理画面) で利用

* <iframe>により、メインの ASP に他の ASP プログラム表示画面 (処理) を含めることができ、1 画面当たり同時に2 本以上の ASP を動作及び表示することが可能となる

※ 1 及び 5 のようなアルゴリズムの高度化によるプログラムの改善効果により、実行速度は飛躍的に高まるとされている

※ 3 の最適化については、コードの可読性を維持するために、ほとんど実施していない (速度改善効果が低い)

※ セッション数≡利用者の接続数、ODBC：マイクロソフト製の DB と ASP との統合的接続提供機能、インデックス：検索を高速化するための目次領域に相当

スレッド：並列処理されるプログラム処理単位の名称であり、DUAL CPU マシンでは、2 本のスレッド (≡プログラム) を同時に実行できるため、見かけの処理時間を短縮することが可能

通常は、検索範囲別の複数のプログラムやサブルーチンでの実装が必要となるが、動的構築により、ループ内のコードを再利用する形 (以下、「共通処理コード」とする。) で、検索条件の変更に応じた処理を同一のプログラム内に実装できた。

また、この手法では、共通処理コードを用いることにより、条件分岐の変数を予めループ外で設定することができた。このため、コーディング作業削減を行うと共に、ループ内の処理に複数の処理 (意味) を含ませることができた。

6 システムの運用

5 月から追加システムの更新に基づき運用を開始し (以下、「正式運用」とする。), 利用者がシステムに円滑に慣れ親しむことを最優先課題とした。

システムへの理解のための方策として、所内 LAN 上のグループウェア等 (以下、「電子会議室」とする。) で利用者への案内や疑義等を取りまとめた資料を提示する等、利用者の理解を深める工夫を随所に取り込んだ。

また、正式運用からの利用者の問い合わせについては数件程度発生したが、総務課及びシステム管理者が電子会議室若しくは口頭で説明を行うことにより対処した。さらに、このうち一部の問い合わせについては、追加システムの改善のため仕様変更で対応した。

なお、致命的なシステムダウン等は、運用開始から現在 (平成18年3月末) まで発生しなかった。

7 システム運用時の長所

3 の問題点をすべて追加システムへ実装した結果、修理等に係る申請について、円滑にシステム上で電子化運

用できた。

伝票の一元管理により、データの散在を防止し、データを再利用可能な状態とし、承認申請から業者への注文FAX伝票作成までを週間工程(発注のタイムスケジュール)として電子化した。

課長等での承認では、案件の重要性及び見積書の修理予定価格(以下、「コスト」とする。)を綿密に比較検討することが出来るようになり、申請内容によっては延期及び取り消し等の処分を考慮し、最短1日で当該業者へ速やかに発注することができた。

8 考 察

センターでは、石川県の出先機関でのモデル事業から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。

追加システムについても、本来業務の利点を上げる改善のために職員の意見を数多く取り入れ、これまで多くの事務作業の効率化を成し遂げてきた。

プログラムは職員独自の開発であり、これまでの取組みから、特にASPに関して技術的な蓄積があり、その技能を十分に発揮することができた。

コードの保守管理等に重点を置いた開発は、現状では速度の面で不満が残るものの、後年度の再開発及び保守に係る維持等の人的コストを大幅に削減することになった。

また、ASPでのプログラム実装には、アルゴリズムの改善を初めとし、様々な工夫を行い、実体のある成果を挙げてきた。

このASP技術及び資産の長期的な活用のため、商用64ビット対応OSでの仮想ハードウェア上でNT 4.0をリホスティングすること、さらに、政府の推進するOSS(オープン・ソフトウェア・システム)の利用を検討課題として加味しながら、将来導入するシステムについて多角的に検討していくことにした。

9 ま と め

職員独自で開発し発展させた物品システムは、発注伝票等の情報の一元管理と共に、修理等を含め、職員各自が問い合わせ時点までの執行額と予算額を比較でき、効率的かつ適正な予算執行に寄与した。

センターにおける電子情報化の進展のために、新ISOの記録類を電子化及び各種業務向けシステム等を今後も引き続き課題とし、利用者からの意見を十分に尊重し、PDCAサイクルに基づき、システムの継続的発展に努めることとしている。

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)
- 4) 初瀬 裕, 瀬戸正行, 竹野裕治, 砺波和子, 塚林 裕: 石川保環研報, 42, 64—68 (2005)
- 5) 横山 暢: 石川保環研報, 42, 1—6 (2005)

〔報 文〕

石川県におけるノロウイルス GⅡ/4 変異型の流行

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，GⅡ/4，変異型

1 はじめに

2004年から2005年にかけて，石川県ではノロウイルスによる胃腸炎の集団発生が多発し，検出されたウイルスの多くは，その遺伝子解析の結果から，Open Reading Frame (ORF)2 のキャプシド領域が GⅡ/4 (Lordsdale type) であることが確認されている¹⁾。また，この型は，全国各地で発生した食中毒や施設内集団発生で多数検出されており，このシーズンの主要な流行株であった²⁾。

一方，この GⅡ/4 遺伝子型のノロウイルスで，病原性および感染力が強いとされる GⅡ/4 変異型 (ORF2 のキャプシド領域が GⅡ/4 であり，ORF1 のポリメラーゼ領域に変異が認められる株，2002型，2004型等) が 2002年以降ヨーロッパを中心に流行し³⁾，同時期に日本にも侵入していたことが近年報告され，各地の集団発生事例および小児の散発事例の多くが，この GⅡ/4 変異型であるとされた⁴⁾。

そこで，2004/2005 シーズンを中心に石川県において検出された GⅡ/4 型ノロウイルスについて，上記変異型ウイルスの浸淫状況を把握するため，遺伝子学的解析および疫学的検討を行った。

2 材料と方法

2・1 材 料

2002年4月から2006年3月にかけて発生したノロウイルスを原因とする胃腸炎の集団発生で，患者および調理従事者等から検出したノロウイルスのキャプシド領域が GⅡ/4 (Lordsdale

type) と確認された16事例 (事例1～16) の糞便132検体，吐物1検体を材料とした。また，感染症発生動向調査における小児の感染性胃腸炎の散発事例で，糞便より GⅡ/4 が検出された5検体についても同様に対象に加えた。

2・2 方 法

(1) ノロウイルス遺伝子の検出

ノロウイルス遺伝子の検出は，厚生労働省通知「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。プライマーは，ポリメラーゼ領域では P1/P3 を，キャプシド領域では G2SKF/G2SKR を使用した。

(2) 検出ノロウイルス遺伝子の解析

RT-PCR 法でノロウイルス特異バンドが明瞭に認められた検体は，その検出バンドについてダイレクトシーケンスを行った。得られた塩基配列は，ポリメラーゼ領域については，Lordsdale/93/UK (X86557) の Position 4341から4580の240bp について，キャプシド領域については Position 5085から5366の282bp について，日本 DNA データバンク (DDBJ) の ClustalW を用い，近隣結合法により系統解析を行った (図1)。さ

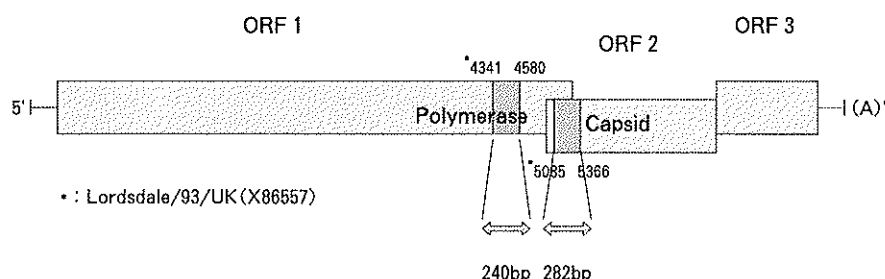


図1 ノロウイルス遺伝子の解析部位

The Prevalence of Norovirus GⅡ/4 Variant in Ishikawa Prefecture. 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, GⅡ/4, Variant

らに、塩基配列の相同性とアミノ酸配列についても解析を行った。

(3) 疫学的検討

検出したノロウイルス遺伝子について、発生時期、発生地、発生施設等について、総合的に検討を行った。

3 成 績

3・1 ウイルス検査結果

検査対象とした16事例の患者糞便132検体中90検体、吐物1検体中1検体から、また小児散発事例の患者糞便5検体中5検体(検体番号104, 113, 114, 147, 190)、合計138検体中96検体(陽性率69.5%)からノロウイルス遺伝子が検出された。また検出領域別では、ポリメラーゼ領域とキャプシド領域の両者の結果は一致した(表1)。集団発生事例の患者検体から検出したノロウイルス遺伝子の塩基配列は、ポリメラーゼおよびキャプシド領域の両方で事例ごとに100%一致していたため、それぞれ代表1株ずつ計16株を遺伝子の解析に用いることとした。

3・2 遺伝子解析結果(ポリメラーゼ領域)

プライマーP1/P3で増幅した部分のうち、Position 4341から4580の240bpについて、文献³⁾記載のGII/4変異型の塩基配列を参照株として解析を行ったところ、2事例(事例1, 11)が2002型、8事例(事例6~10, 12, 15, 16)が2004型、6事例(事例2~5, 13, 14)がSaitamaU1/97/JP(AB039775)に類似した型であり、本県においてもこれら3種の変異型ウイルスの存在

表1 ノロウイルス検査結果

事例 No.	検体数	陽 性 数	
		ポリメラーゼ領域	キャプシド領域
1	4	4	4
2	1	1	1
3	8	7	7
4	9	6	6
5	18	8	8
6	4	3	3
7	22	20	20
8	8	2	2
9	17	15	15
10	2	1	1
11	10	2	2
12	5	1	1
13	7	6	6
14	10	7	7
15	4	4	4
16	4	4	4
小児散発	5	5	5
合 計	138	96(69.5%)	96(69.5%)

が確認された(図2)。それぞれ検出株の塩基配列の相同性は、Lordsdale/93/UKと比較した場合、2002型では91.7~92.1%(19~20ヶ所の塩基置換)、2004型では90.8~91.7%(20~22ヶ所の塩基置換)、SaitamaU1型では87.9~89.2%(26~29ヶ所の塩基置換)であった(図3)。また、アミノ酸変異は、2002型で4ヶ所

(position 1456 Pro→Ser, 1463 Ile→Val 1474 Met→Val, 1480 Lys→Thr), 2004型で4ヶ所(position 1463 Ile→Val, 1474 Met→Val, 1480 Lys→Thr, 1520 Ile→Thr), SaitamaU1型で1ヶ所(Position 1463 Ile→Lys)でみられた(図4)。

感染症発生動向調査における小児散発事例では、2003年11月の1検体(検体番号147)が2002型、2004年12月の1検体(検体番号104)がSaitamaU1型、2005年1月の3検体(検体番号113, 114, 190)が2004型であった(図2)。塩基配列の相同性は、上記と同様に比較した場合、2002型で91.7%(20ヶ所の塩基置換)、

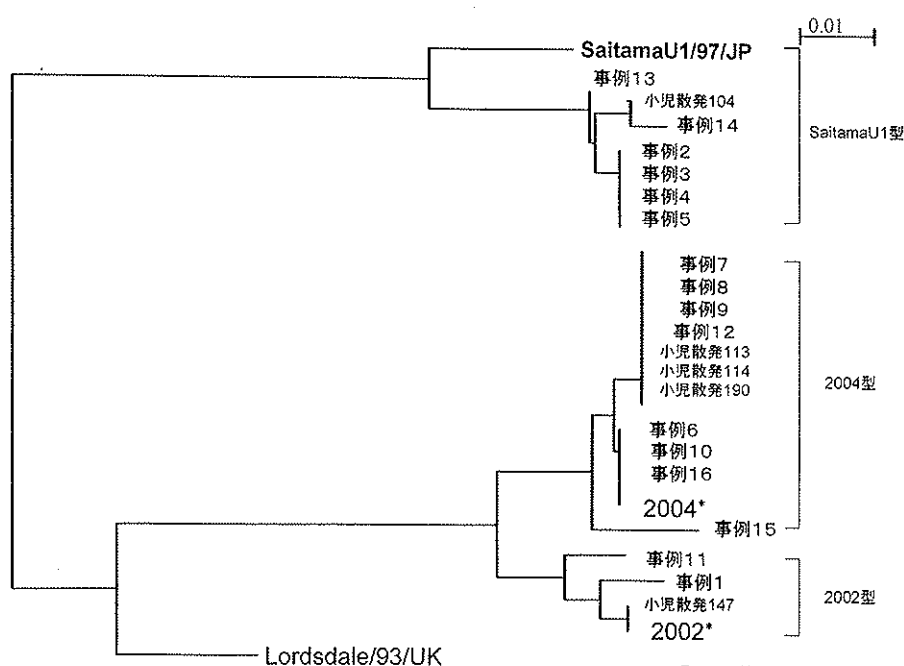


図2 系統解析(ポリメラーゼ領域)

4341	
Lordsdale/93/UK	CAGCCCTAGAAATCATGGTTAAATTCTCCCGAGAACCGCATTTGGCCGAGATAGTTGCAGAAGACCTCTATCTCCTAGTGTGATGGATGTGGTGACTTCA
* 2002	T A T G C T C G
事例 1	T A T G C T C G
事例 1 1	T A T G C C T C G
小児散発147	T A T G C T C G
* 2004	T A T G C T C G C
事例 6, 10, 16	T A T G C T C G C
事例 7, 8, 9, 12	T A T G C T C G C
事例 1 5	T A T G C G T C G C
小児散発113, 114, 190	T A T G C T C G C
SaitamaU1/97/JP	T G C A A G C C C A
事例 1 3	G T T C G G C A A G T C C C C T
事例 1 4	G T T C G G C A A G T C C C C T
事例 2, 3, 4, 5	G T C G G C A A G T C C C C T
小児散発104	G T T C G G C A A G T T C C C C T
4580	
Lordsdale/93/UK	AAATATCAATCAATGAGGGCTTCCCTCTGGTGTGCCCTGCACCTCTCAATGGAATCCATCGCCCACTGGCTCCTCACTCTCTGTGCACTCTCTGAAGTTA
2002	C C T C G A C C T G
事例 1	C C T C G A C C T C G
事例 1 1	C C T C A C C T G
小児散発147	C C T C G A C C T G
2004	C C T G C C T G
事例 6, 10, 16	C C T G C C T G
事例 7, 8, 9, 12	C C T A C C T G
事例 1 5	C C T G C C T G
小児散発113, 114, 190	C C T A C C T G
SaitamaU1/97/JP	C C G C T G
事例 1 3	T C T C G C A G
事例 1 4	T C C G C A G
事例 2, 3, 4, 5	T C C G C A G
小児散発104	T C C G C A G
4580	
Lordsdale/93/UK	CAAACCTGTCCCTGACATCATACAGGCTAATTCCG
2002	T
事例 1	T
事例 1 1	T
小児散発147	T
2004	T T C
事例 6, 10, 16	T T C
事例 7, 8, 9, 12	T T C
事例 1 5	T T C
小児散発113, 114, 190	T T C
SaitamaU1/97/JP	T C C C T
事例 1 3	T C C C T
事例 1 4	T C C C T
事例 2, 3, 4, 5	T C C C T
小児散発104	T C C C T

図 3 塩基配列（ポリメラーゼ領域）

1447		1525	
Lordsdale/93/UK	ALEIMVKFSPEPHLAQIVAE DLLSPSVMVDGDFKISINEGLPSGVPCTSQWNSIAHWLLTLCALSEVTNLSPDIIQANS		
2002	S V V T		
事例 1, 1 1	S V V T		
小児散発147	S V V T		
2004	V V T T		
事例 6~10, 12, 16	V V T T		
小児散発113, 114, 190	V V T T		
SaitamaU1/97/JP	K		
事例 2~5, 13, 14	K		
小児散発104	K		

変異部位

Position 1456	P(Pro)→S(Ser) : 2002型
Position 1463	I(Ile)→V(Val) : 2002型, 2004型, I(Ile)→K(Lys) : SaitamaU 1 型
Position 1474	M(Met)→V(Val) : 2002型, 2004型
Position 1480	K(Lys)→T(Thr) : 2002型, 2004型
Position 1520	I(Ile)→T(Thr) : 2004型

図 4 アミノ酸配列（ポリメラーゼ領域）と変異部位

2004型で91.7%（3検体とも同じ20ヶ所の塩基置換），
SaitamaU 1 型で88.3%（28ヶ所の塩基置換）であった

（図3）。また，アミノ酸変異はいずれも集団発生の検体
と同様であった（図4）。

3・3 遺伝子解析結果 (キャプシド領域)

プライマー G2SKF/G2SKR で増幅した部分のうち
Position 5085から5366

の282bpにおいて片山の方法³⁾により遺伝子型別を行ったところ、いずれも G II / 4 の遺伝子型に属し、当該部分の塩基配列は, Lordsdale/93/UK と93.3~95.4%の相同性を有していた。さらに Lordsdale を除いた検体間のみではさらに高くなり97.1~100%となった。

これらについて近隣結合合法により系統樹を作成したところ、さらに3つのグループ A~C に分類された (図5)。これらのグループは、上記のポ

リメラーゼ領域の解析とほぼ符合し、グループ A (事例1, 11) は2002型、グループ B (事例6~10, 12, 15,

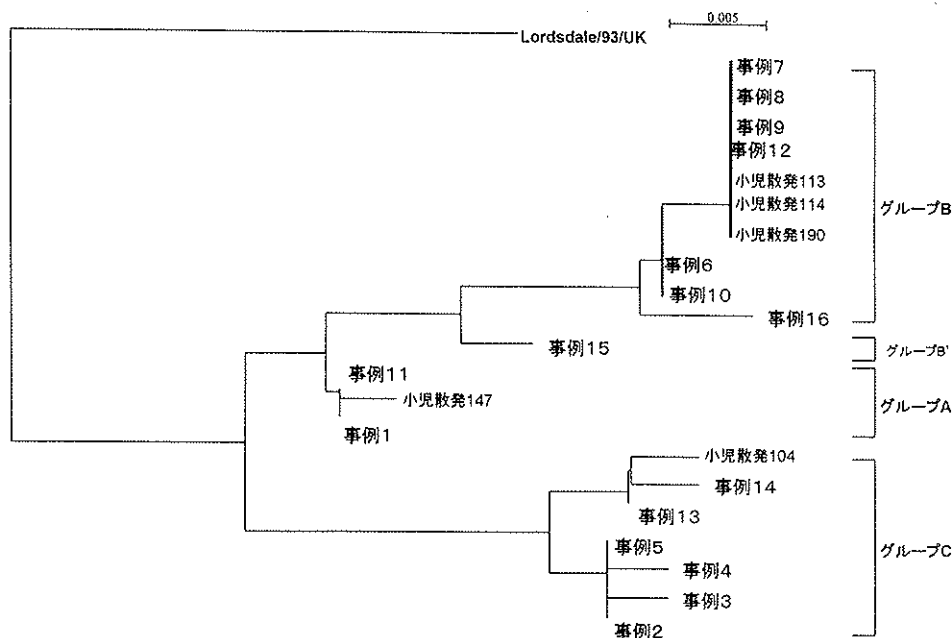


図 5 系統解析 (キャプシド領域)

Lordsdale/93/UK	ATGAAGATGGCGTCAATGACGCCAACCCACTCTGATGGGTCGGCAGCCAACTCTCCAGAGGTCAATAATGAGGTTATGGCTCTGGAAGCCCGTTGTTGGTCCGCT
事例1, 11	A A C T
小児散発147	A A C T
事例6, 10	C A C T
事例16	C A C T
事例7, 8, 9, 12	C A C T
小児散発113, 114, 190	C A C T
事例15	G A C T
事例2, 5	G A C T
事例3	G A C T
事例4	G A C T
事例13, 14	G A C T
小児散発104	G A C T
Lordsdale/93/UK	ATTGCGGACCTGTGGCGGCCAACAAACGTAATTGACCCCTGGATTAGAAACAATTTGTACAAGCCCTGGTGGAGATTACAGTGTCCCTAGAAACGCTCCA
事例1, 11	A T T T T A
小児散発147	A T T T T A
事例6, 10	A T T T T A
事例16	A T T T T A
事例7, 8, 9, 12	A T T T T A
小児散発113, 114, 190	A T T T T A
事例15	A T T T T A
事例2, 5	A T T T T A
事例3	A T T T T A
事例4	A T T T T A
事例13, 14	A T T T T A
小児散発104	A T T T T A
Lordsdale/93/UK	GGTGAGATACTGTGGAGCGCCCTTGGGCGCTGATCTGAACCCCTATCTTTCTCATTTGTCCAGA
事例1, 11	A A T C G
小児散発147	A A A T C G
事例6, 10	A T A T T C C G
事例16	A T A T T C C G
事例7, 8, 9, 12	A T A T T C C G
小児散発113, 114, 190	A T A T T C C G
事例15	A A T T C C G
事例2, 5	A A A T A C C G
事例3	A A A T A C C G
事例4	A A A T A C C G A
事例13, 14	A A A T A C C G
小児散発104	A A A T A C C G

図 6 塩基配列 (キャプシド領域)

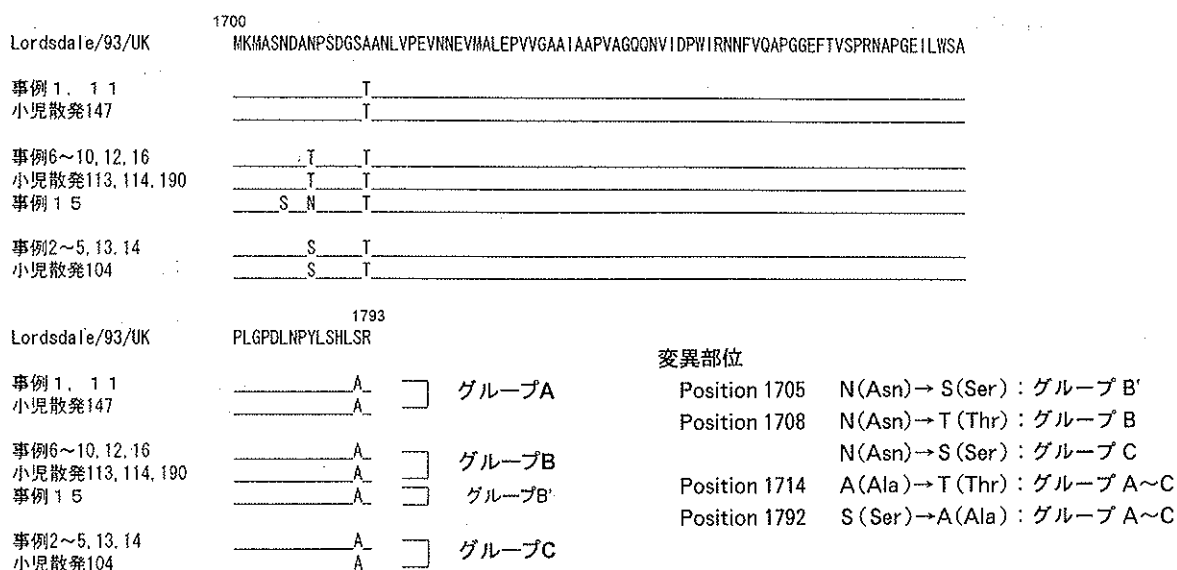


図 7 アミノ酸配列（キャプシド領域）と変異部位

16) は2004型、グループ C（事例2～5, 13, 14）は SaitamaU1 型に該当するものであった。塩基配列で見ると、Lordsdale/93/UK と比較した場合の相同性は、グループ A では95.4%（19ヶ所の塩基置換）、グループ B では93.3～94.3%（16～19ヶ所の塩基置換）、グループ C では93.6～94.3%（16～18ヶ所の塩基置換）であった（図6）。また、アミノ酸変異は2ないし3ヶ所で、うち2ヶ所は共通（position 1714 Ala→Thr, 1792 Ser→Ala）であった。グループ A ではこの2ヶ所のみであったが、グループ B では事例15を除いてさらに1ヶ所（position 1708 Asn→Thr）、グループ C も1ヶ所（Position 1708 Asn→Ser）であった。グループ B の事例15では、Position 1708がLordsdale およびグループ1と同様 Asn であるほか、1705番目のアミノ酸がこの事例のみ Asn→Ser に変異していた（グループ B'）（図7）。

感染症発生動向調査における小児散発事例では、検体番号147がグループ A、検体番号113, 114, 190がグループ B、検体番号104がグループ Cであった（図5）。塩基配列の相同性は、上記と同様に比較した場合、グループ A は95.0%（14ヶ所の塩基置換）、グループ B は93.3%（3検体とも同じ19ヶ所の塩基置換）、グループ C は93.3%（19ヶ所の塩基置換）であった（図

6）。またアミノ酸変異は集団発生の検体と同様であった（図7）。

3・4 疫学的検討結果

石川県における GII/4 変異型ノロウイルスによる胃腸炎集団発生ならびに小児散発事例の総括表を示した（表2）。

本県での集団発生は、2002年11月の事例（2002型）が

表 2 ノロウイルス GII/4 変異型の検出状況

事例No.	発生年月	発生場所	発生施設	キャプシド領域	ポリメラーゼ領域
1	2002_12	白山市	飲食店	GI/4	2002型
2	2004_3	能登町	旅館	GI/4	SaitamaU1型
3	2004_5	金沢市	飲食店	GI/4	SaitamaU1型
4	2004_5	七尾市	弁当屋	GI/4	SaitamaU1型
5	2004_12	白山市	老人関連施設	GI/4	SaitamaU1型
6	2004_12	小松市	合宿	GI/4	2004型
7	2005_1	能美市	老人関連施設	GI/4	2004型
8	2005_1	能美市	老人関連施設	GI/4	2004型
9	2005_1	白山市	小学校	GI/4	2004型
10	2005_1	小松市	社会福祉施設	GI/4	2004型
11	2005_2	輪島市	老人関連施設	GI/4	2002型
12	2005_2	白山市	旅館	GI/4	2004型
13	2005_5	七尾市	老人関連施設	GI/4	SaitamaU1型
14	2006_1	小松市	老人関連施設	GI/4	SaitamaU1型
15	2006_1	津幡町	社会福祉施設	GI/4	2004型
16	2006_2	宝達志水町	病院	GI/4	2004型
147	2003_11	金沢市	小児散発	GI/4	2002型
104	2004_12	金沢市	小児散発	GI/4	SaitamaU1型
113	2005_1	金沢市	小児散発	GI/4	2004型
114	2005_1	金沢市	小児散発	GI/4	2004型
190	2005_1	金沢市	小児散発	GI/4	2004型

※発生場所は現市町名で記した。

最初で、その後しばらく発生はなかったが、2004年3月から12月の間に4件(SaitamaU1型)、2004年12月から5月の間に8件(2002型1件、2004型6件、SaitamaU1型1件)の発生があり、2006年1月以降3件(2004型2件、SaitamaU1型1件)と依然発生が続いている。発生施設別では、老人関連施設が6件と最も多く、次いで社会福祉施設、飲食店、旅館がそれぞれ2件ずつ、あとは学校、病院、弁当屋、合宿がそれぞれ1件ずつであった。

発生地域別では、2002型は県北部と南部で1件ずつであるが、2004型は県南部を中心に発生し、SaitamaU1型は県全体で発生がみられた(図8)。

一方、小児散発事例では、2003年11月に1検体(2002型)、2004年12月に1検体(SaitamaU1型)、2005年1月に3検体(いずれも2004型)が金沢市内の定点医療機関で確認されている。

4 考 察

石川県では毎年冬期を中心にノロウイルスによる胃腸炎の集団発生がみられるが、検出される遺伝子型が2004/2005シーズンのようにある特定の型(GII/4)が大勢を占めるのは初めてであった。これは東海・北陸⁵⁾ないしは全国的⁴⁾にも似たような傾向で、全国各地でGII/4が流行していたことをうかがわせる。一方、このGII/4は、ORF1のポリメラーゼ領域が変異している株であり、2002年以降欧米で流行し、同時期に日本にも存在していたことが西尾らの全国調査により確認されている⁴⁾。またこの報告で、日本での変異型の検出は、2003/2004シーズンでSaitamaU1が最も多く2004型はわずかで、2004/2005シーズンでは2004型が著しく増加し、SaitamaU1型とほぼ同数であったと報告している。石川県においても、事例数が少ないため単純に比較はできないが、2002年11月に2002型が最初に確認され、2003/2004シーズンはSaitamaU1型のみ、2004/2005シーズンは2004型が多くを占め、全国とほぼ同様の傾向であった。

発生時期、発生地から本県におけるこれら3種の変異型の流行経過を推定したところ、2004年の春期の短期間にSaitamaU1型が県北部を中心に流行し、2005年冬期は県南部を中心とした2004型を主体とした流行で、同時期に2002型も小規模ながら存在していたと推定される。また、2005/2006シーズンに入り、GII/4の流行が終息したと思われた時期においても再び2004型やSaitamaU1型の集団発生がみられているが、この時期は2004/2005シーズンと違い、他の遺伝子型(GII/1, 3, 6)による集団発生も多数みられ、今後、別の遺伝子型が優

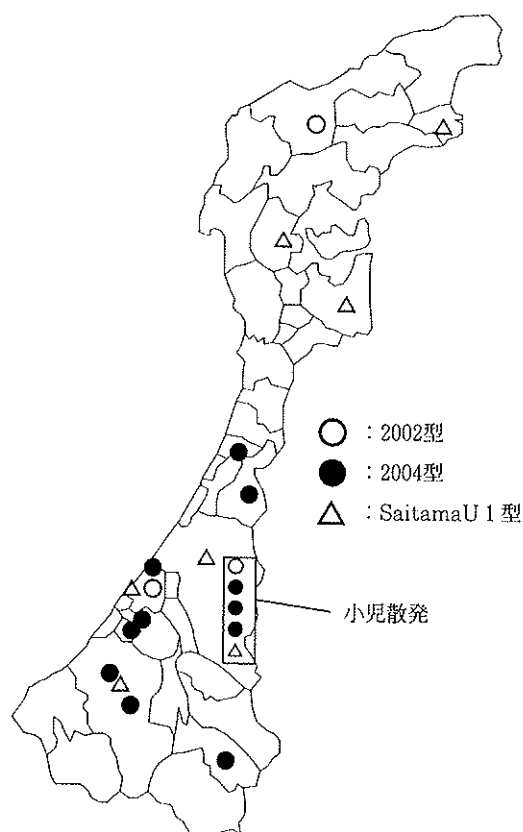


図8 GII/4変異型による集団胃腸炎の地域別発生状況

勢に出現してくるのか、さらに変異したGII/4が出現してくるのか、またGII/4の感受性宿主の減少でこのまま終息するのか興味あるところである。また、2005/2006シーズンに検出されたSaitamaU1型では、アミノ酸変異は伴わないが塩基レベルで置換が起こっている例(事例13, 14)や、ポリメラーゼ領域のアミノ酸配列が2004型であったもののキャプシド領域の解析ではPosition1708のアミノ酸が2002型と同様Asnで、かつPosition1705がSerに変異しているような例(事例15)がある。これらの変異が何を意味するか、どのように変化していくのかは不明であるが今後の動向を注視する必要がある。

一方、感染症発生動向調査における小児散発事例では、2003年11月に初めて2002型が検出され、2004/2005シーズンの12月にSaitamaU1型が1株、1月に2004型が3株検出されている。検体の合計が5株と小児での実際の流行状況は正確に把握はできないが、同シーズンに検出された株の解析では、集団発生で検出された株と同じ、またはよく似た配列の株が検出されており、GII/4変異型は小児の間でも流行していたことをうかがわせた。

以上より、ポリメラーゼおよびキャプシド領域の解析

から、両者の解析データはほぼ関連し、食中毒や感染症発生時には両者の解析を行うことにより、さらに詳細な疫学データが得られると思われた。しかし事例15のような関連しない例が2005/2006シーズンになって出てきたこと、さらに ORF2 の高度可変領域では多くのアミノ酸の変異や蓄積があるという報告もあり⁶⁾、ある事例で検出した複数のウイルスが真に同一のものと判断されるためには、さらに詳しい解析が将来的に必要となってくるものと考えられる。近年、ノロウイルスの遺伝子解析に、可変領域を解析することにより、詳細なデータを得られるという報告⁷⁾もあり、今後、これらの検体について、さらに検討していく予定である。

5 ま と め

2004/2005シーズンに全国的に流行したノロウイルスは GⅡ/4 遺伝子型で、ポリメラーゼ領域に変異が認められる変異型であった。石川県で同シーズンに検出された株も多くが GⅡ/4 であったため、本県での変異型の浸淫状況を把握するため、1999年以降に石川県で検出したノロウイルス GⅡ/4 について解析を行った。

石川県ではポリメラーゼ領域の解析から、2002型、2004型、SaitamaU1 型の 3 種類の変異型が検出され、2002年11月に2002型が検出されたのが最初であった。本格的に流行した2004/2005シーズンでは、2004型が最も多く検出され、次いで SaitamaU1 型、2002型の順であった。またこれらはキャプシド領域のアミノ酸変異の状況により、3つのグループに分類され、一部を除き、キャプシド領域の解析と関連し、より詳細な疫学データを得ることができた。

一方、関連しなかった株は、アミノ酸がさらに変異している株であったため、今後の動向を注視していきたい。また、今回解析を行った全検体について、さらに詳細な解析を行う予定である。

文 献

- 1) 大矢英紀, 黒崎直子, 尾西 一: 石川保環研報, **42**, 18-23 (2005)
- 2) 病原微生物検出情報月報, **26**(12), 1-2 (2005)
- 3) Kroneman A, Vennema H, Duijnhoven Y, Duizer E, Koopmans M: Eurosurveillance Weekly, **52** (2004)
- 4) 愛木智香子, 杉枝正明, 山下育孝, 福田伸治, 吉澄志磨, 西田知子, 田中俊光, 岩切 章, 田村 努, 大矢英紀, 秋山美穂, 岡部信彦, 西尾 治: 第53回日本ウイルス学会学術集会・総会プログラム・抄録集, 308 (2005)
- 5) 病原微生物検出情報月報, **24**(12), 5 (2003)
- 6) 小林慎一, 小原真弓, 長谷川澄代, 大矢英紀, 尾西一, 東方美保, 猿渡正子, 青木 聡, 田中保知, 柴田伸一郎, 中野陽子, 杉山 明, 榮 賢司: 第53回日本ウイルス学会学術集会・総会プログラム・抄録集, 237 (2005)
- 7) Mineyuki Okada, Tomoko Ogawa, Ikuo Kaiho, Kunio Shinozaki: J Clin Microbiol, **43**, 4391-4401 (2005)
- 8) 埼玉県衛生研究所: 地域保健推進特別事業報告書, 2-23 (2006)

〔報 文〕

食品中に含まれる特定原材料（卵）の検査法の検討

石川県保健環境センター健康・食品安全科学部 小野 陽介・塚 林 裕

キーワード：特定原材料，卵，食物アレルギー，ELISA，ウェスタンブロット法

1 はじめに

近年わが国ではアレルギー疾患の増加が社会問題となっている。特に食品を原因とするアレルギー（食物アレルギー）に関しては、小児のみではなく、成人においても増加の傾向があることが明らかとなってきた。

そのため表示による情報提供の必要性から、平成13年4月の食品衛生法関連法令の改定に伴い、平成14年4月より容器包装された加工食品や添加物に特定原材料5品目（「卵、乳、小麦、そば、落花生」）を原材料として使用した場合に表示が義務付けられた。それに伴い、14年11月にアレルギー物質を含む食品（以下アレルギー食品）の検査法について通知により定められた¹⁾。この検査法では、スクリーニング検査としてELISA法、確認検査法としてウェスタンブロット法（以下WB法）、PCR法が示され、ELISA法、WB法については検査に用いるキットについても規定されている。特に、ELISA法においては複合抗原認識抗体を用いた日本ハム（株）製ELISAキットFASTKIT（以下、N社従来キット）及び単一または精製抗原認識抗体を用いた（株）森永化学研究所製ELISAキット（以下、M社従来キット）の両キットを用いて結果を判定することとなっていた。

今回この試験法が一部改正された²⁾。改正の概要は、スクリーニング法としてのELISAキットに前記2社のキットの改良品（以下N社改良キット、M社改良キット）が追加されたことである。この追加された両キットは従来キットよりも食品からのアレルギー物質の抽出効率が優れているとされている³⁾。この改正では、従来キットも使用の継続が認められている。

本報では、アレルギー患者数が多いとされる特定原材料のうち「卵」を対象とした。「卵」については、使用

されている食品も多岐にわたることや、加工された食品によっては卵タンパク質の抽出効率が非常に悪く、また加熱などの加工処理によってタンパク質自体の変性も考えられるなど、検査を進める上での問題も多い。そこで今後実際に検査法を適用するにあたっての問題点について検討を進めたので報告する。

2 材料と方法

2・1 試料

特定原材料（卵）の行政試験に係る検体として持ち込まれたさつま揚げについて検査法の検討を行った。さつま揚げを通知²⁾に従い均質化し、その後のELISA法及びWB法の試料として用いた。

2・2 試験方法

(1) ELISA法

N社従来キット（卵）、M社従来キット（卵：卵白アルブミンキット）、M社従来キット（卵：オボムコイド）、N社改良キット（卵）、M社改良キット（卵：卵白アルブミン）の5つのキットを用いて検査法を検討した。具体的な検査法に関しては通知²⁾に従い行った。使用したキットについては、表1にまとめた。

(2) WB法

WB法は、試料中のタンパク質をSodium Dodecyl Sulfate（以下、SDS）-ポリアクリルアミドゲル電気泳動（以下SDS-PAGE）し、転写膜に転写後、特定原材料由来のタンパク質に対する特異的ポリクローナル抗体を用いて検出する定性試験法である⁴⁾。WB法の操作フローチャートを図1に示した。卵のWB法では、森永社製の卵白アルブミンWBキット（以下、M社WBキット）を用いた。具体的な検査法は主に通知²⁾に従ったが、一部変更を加え、検査法の検討を行った。通知には、

Study on the Detection Method of Allergic Substances (Egg) in Food. by ONO Yousuke and TSUKABAYASHI Hiro (Health and Food Safety Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Allergic Substances, Egg, Food Allergy, ELISA, Western Blot Analysis

表 1 使用したELISAキットとその特徴

	抽出用試薬	抗原認識抗体
N社従来キット(卵)	N社独自	卵に含まれる種々のタンパク質を認識(複合抗原認識抗体)
M社従来キット(卵:卵白アルブミン)	M社独自	卵白アルブミンのみを認識(精製抗原認識抗体)
M社従来キット(卵:オボムコイド)	M社独自	オボムコイドのみを認識(精製抗原認識抗体)
N社改良キット(卵)	M社の従来キット抽出用試薬に SDS、2-ME を添加した	卵に含まれる種々のタンパク質を認識(複合抗原認識抗体)
M社改良キット(卵:卵白アルブミン)		卵白アルブミンのみを認識(精製抗原認識抗体)

SDS: Sodium Dodecyl Sulfate

2-ME: 2-メルカプトエタノール

WB法に用いる試料はM社従来キット(卵:卵白アルブミン)の抽出液を用いることとなっている。しかし、今回は、抽出用試薬の組成の異なるM社改良キット(卵:卵白アルブミン)での抽出液や、N社従来キットでの抽出液について、M社従来キット抽出液と同様の方法で検査が可能かを検討した。

3 結果及び考察

3・1 N社従来キット、及びM社従来キットを用いたELISA法によるスクリーニング結果

アレルギー食品検査においては検査法が一部改正され、キットが追加されたが、従来キットについても引き続き使用が認められている。そこで、検体のさつま揚げ中に卵が含まれているかをN社従来キット(卵)とM社従来キット(卵:卵白アルブミン)を用いて実施し、その検査結果を検討した(図2)。その結果、N社製従来キットでは確かに卵が含まれていることが確認できるが(さつま揚げ中の卵タンパク質量 $17\mu\text{g/g}$)、M社製従来キットでは卵が含まれないという結果(さつま揚げ中卵タンパク質量 $0.4\mu\text{g/g}$ 未満)になった。このような結果になった原因について考察してみると、1)従来キットにおいては、抽出用試薬がN社、M社によって異なるため、食品からの卵タンパク質の抽出量が異なったことによる差異、2)N社キットでは複合抗原認識抗体を用いており、M社キットは精製抗原認識抗体(卵は卵白アルブミン)を用いていることによる差異が考えられた。

そこで、まず1)について検討するため、食品からのアレルギーの抽出効率を高める事に成功した各社の改良キット(両社共通の抽出用試薬を使用)を用いて検査を再度行った。

3・2 N社改良キット、及びM社改良キットを用いたELISA法によるスクリーニング結果

改良キットでの結果を図3に示した。従来キットでは、

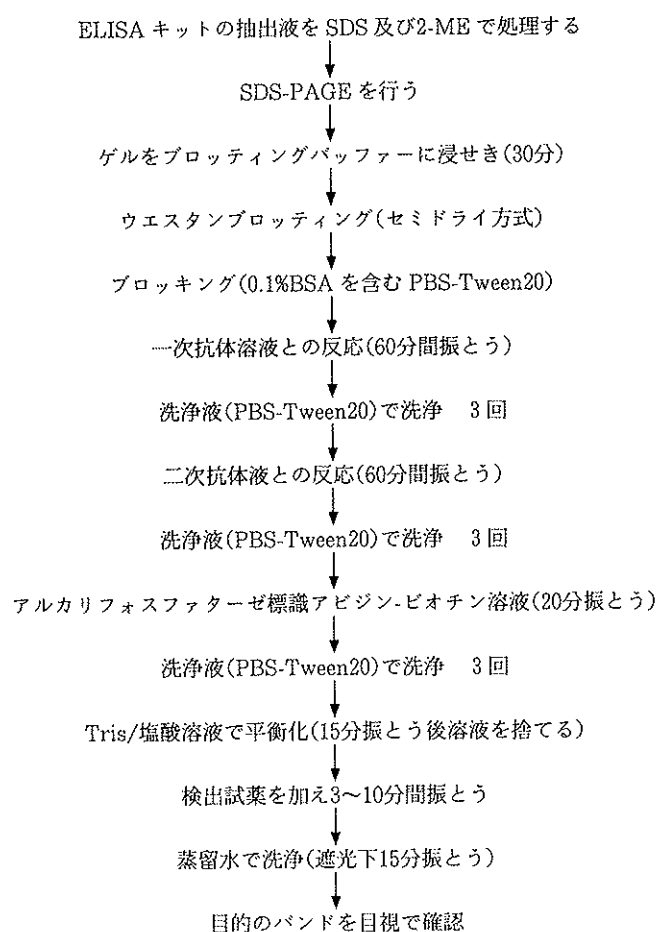


図1 ウェスタンブロット法の操作フローチャート

N社とM社で異なった検査結果を示したが、改良キットでは両社同様の結果となった(検体中の卵タンパク質量が両社のキットとも $20\mu\text{g/g}$ 以上)。つまり、M社従来キットでは卵タンパク質が検出されなかったが、M社改良キットでは卵タンパク質が検出された。このことから、改良キットが従来キットに比べ食品からのアレルギー抽出効率が改善されていることが確認された。

従来キットと改良キットの大きな違いは、検体からのアレルギー物質の抽出に用いる抽出用試薬の組成と、抽

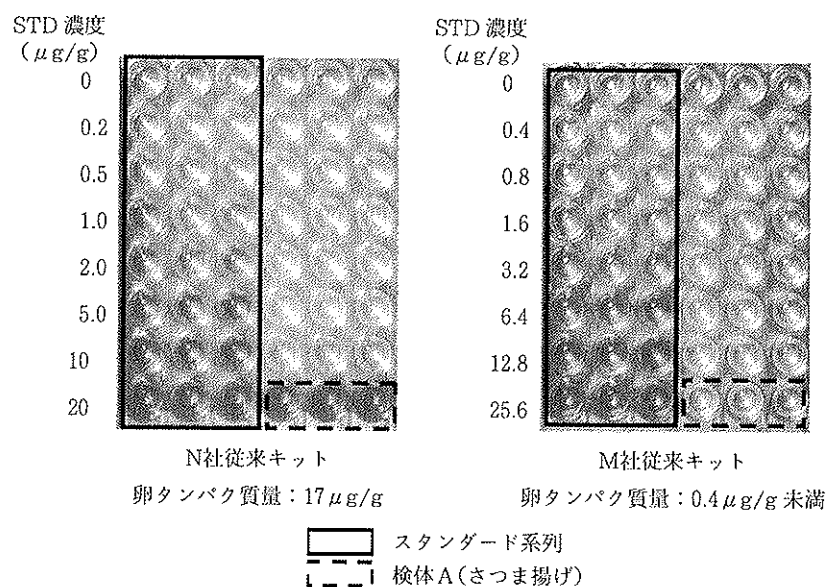


図 2 従来キットによる試験結果

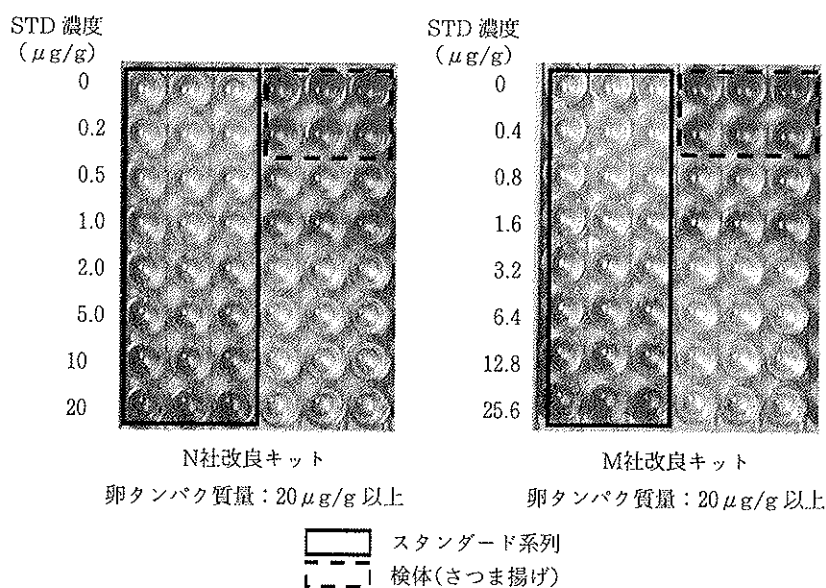
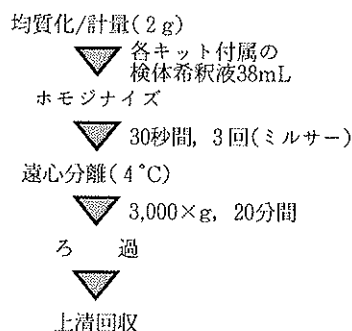


図 3 改良キットによる試験結果

【従来キットの抽出法】



【改良キットの抽出法】

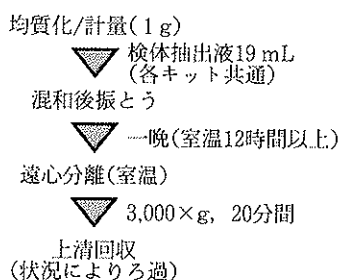


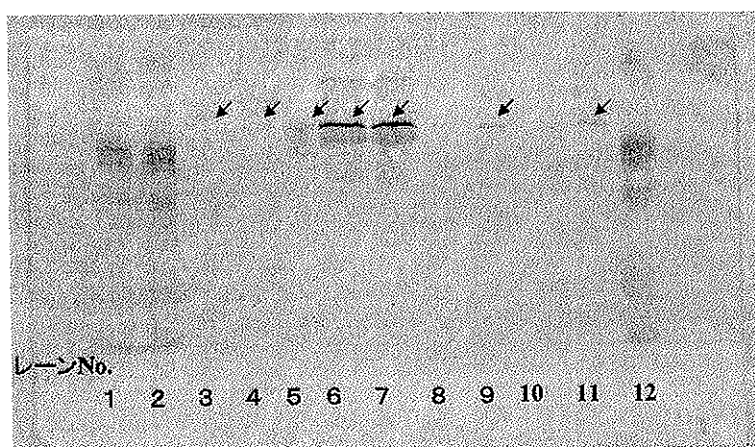
図 4 従来キット, 改良キットでの抽出法の違い

出法である。抽出法の違いについては図 4 に示した。従来キットでは、ミルサーを用いて抽出用試薬と検体をホモジナイズすることで抽出を行っていた。改良キットではこれを一晩の振とうによる抽出に変更している。これは、今回の検体であるさつま揚げのような練り製品などの頑健なマトリックスにも対応するためとされている³⁾。また、抽出用試薬は従来キットでは N 社, M 社で異なるものを使用していたが、改良キットでは共通な抽出用試薬を使用している。改良キットの抽出用試薬には元来の抽出液の成分に加え、SDS 及び 2-メルカプトエタノール (以下 2-ME) が加えられている。このことにより、抗原の変性による不溶化を抑え、抽出効率を改善している³⁾。

3・3 WB 法による確認検査

アレルギー食品検査法において、スクリーニング検査である ELISA 試験で陽性 (特定原材料として検体中に 10 µg/g 以上含まれる) となった場合、確認検査法として WB 法または PCR 法を行うこととなり、卵に関しては WB 法で確認検査を行う。検査法の一部改正を示した通知²⁾では、改良された ELISA キットの追加を行っているにもかかわらず、WB 法を行う場合は M 社従来キットの抽出液を用いることとなっている。今回は、抽出用試薬の組成の異なる改良キット抽出液および N 社従来キットにおいて WB 法が適応できるかを確認した。

結果を図 5 に示した。結果では、M 社従来キット抽出液、及び改良キット抽出液では卵白アルブミンに由来するバンド (図 5 中の矢印) が確認され、N 社従来キット抽出液では卵白アルブミンに由来するバンドは検出されなかった。なお、WB 法は ELISA 法に比べ感度が劣る。にもかかわらず、ELISA 法で卵白アルブミンが検出されなかった M



レーンNo.
1 2 3 4 5 6 7 8 9 10 11 12

レーン1, 2, 12: レインボーマーカー レーン3: スタンダード0.5 $\mu\text{g/mL}$
 レーン4: スタンダード1 $\mu\text{g/mL}$ レーン5: スタンダード10 $\mu\text{g/mL}$
 レーン6, 7: 改良キット抽出液 レーン8, 10: N社従来キット抽出液
 レーン9, 11: M社従来キット抽出液

図5 WB (卵白アルブミンキット) での確認試験

表2 さつま揚げにおけるM社ELISAキット別
卵タンパク量の測定結果

($\mu\text{g/g}$)

	改良キット 卵白アルブミン	従来キット 卵白アルブミン	従来キット オボムコイド
さつま揚げ	>20	<0.4	16.1

社従来キット抽出液においてWB法で卵白アルブミンが確認された要因としては、SDS-PAGEの前処理により卵白アルブミン認識抗体との反応性が変化したことが考えられる。今回検体としたさつま揚げのような検体では、卵白アルブミンと小麦タンパク質であるグリアジンが「S=S結合」する事が考えられる。このような状態では、卵白アルブミン認識抗体との反応性は失われる。その試料液をSDS-PAGEの前処理である2-MEと混合し煮沸を行うことで、「S=S結合」が切れて、抗体との反応性を復活させた可能性が考えられた。

一方、ELISAで卵タンパク質が検出されたN社従来キット抽出液で卵白アルブミンに由来するバンドが検出されなかった原因については、N社製ELISAキットの特性が関与していると考えられる。M社製ELISAキット(卵:卵白アルブミン)中の抗体は従来キット、改良キットともに、卵白アルブミンのみに反応する抗体であるのに対し、N社製ELISAキット(卵)中の抗体は、従来キット、改良キットともに卵白アルブミン以外の卵タンパク質にも反応する抗体となっている。卵中の主なタンパク質としては卵白アルブミンが挙げられ、卵全タンパク質のおよそ25%をしめる。しかし、前にも述べたが

今回のさつま揚げでは、卵白アルブミンが変性し抗体との反応性を失っていた可能性がある。このことによって、M社従来キットで陰性となり、卵白アルブミン以外のタンパク質にも反応しうる抗体を用いたN社従来キットでは陽性を示したと考えられる。一方、WB法では、卵白アルブミンのみを認識する抗体を用いているため、N社従来キット抽出液では陰性の結果になったと考える。またN社の抽出用試薬では卵白アルブミン-グリアジン結合体が抽出されにくいことも今回の結果の要因であると考えられる。

以上の結果や3・1で述べた「用いたキットの抗体反応性の差異から生ずる要因」を確認するために、卵中のタンパク成分のうち含有量は卵白アルブミンより微量であるが、卵白アルブミンよりも安定なタンパク

質であるオボムコイドを対象にしてさらにELISA法によって検討を進めた。

3・4 オボムコイドキットを用いた検査結果

公定法では採用されていないが、M社ではオボムコイドのみを認識する抗体を用いたELISAキット(卵:オボムコイド)を市販している。このキットの抽出用試薬はM社従来キットと同様のものである(そのため、表記はM社従来キット(卵:オボムコイド)とする)。ELISA法を用いた結果を表2に示した。表2には比較のためこれまでの結果も合わせて記載した。この結果より、さつま揚げからはオボムコイドが検出された。オボムコイドは卵白アルブミンに比べ安定であるため、タンパク量は微量ながらも抽出され、抗体と反応することが可能であったと考えられ、N社従来キットで陽性となった要因が、このオボムコイドであった可能性が確認された。M社に問い合わせたところ、このように同社従来キットにおいて卵白アルブミンが検出されずにオボムコイドが検出されることは稀なケースであるとの事であった。

このようにたとえ陰性の結果であったとしても、タンパク質の種類によって結果が異なることも考えられるため、「卵」の検出については、その存在の有無について慎重な対応が必要であると考えられた。

5 ま と め

(1) さつま揚げように高度に加工された食品のアレルギー物質試験においては、使用するスクリーニング検査用のELISAキットは、改良キットのほうが望ましい。

(2) 通知法には記載されていないが、確認検査法のWB法には、M社従来キット抽出液以外でも使用できる可能性があった。今後検討を重ねることで、検出感度の高い改良キットで検査を行い、その抽出液をWB法に直接用いることが可能と考えられる。

(3) オボムコイドは卵白アルブミンに比べ安定であるため、卵白アルブミンの変性による偽陰性が考えられるような場合はオボムコイドキットでの確認が有効である。

文 献

- 1) 厚生労働省通知「アレルギー物質を含む食品の検査方法について」平成14年11月6日、食発第1106001

号(2002)

- 2) 厚生労働省通知「アレルギー物質を含む食品の検査方法について(一部改正)」平成17年10月11日、食安発第1011002号(2005)
- 3) WATANABE Yumiko, ABURATANI Keniti, MIZUMURA Tasuku, SAKAI Masatoshi, MURAOKA Shiroo, MAMEGOSI Shinichi, HONJOH Tsutomu: J. of Immun. Methods, 300, 115—123 (2005)
- 4) 豆越慎一: 日本食品衛生学会第84回学術大会要旨集, 107 (2002)

〔報 文〕

石川県における有害大気汚染物質濃度の推移について

石川県保健環境センター環境科学部 橋 場 久 雄

キーワード：有害大気汚染物質，経年変化，相関

1 はじめに

平成9年4月，大気汚染防止法の一部改正施行に伴い，ベンゼン等3物質について環境基準が定められ，有害大気汚染物質のモニタリングが地方公共団体の責務として義務付けられた。その後，平成13年にはジクロロメタンの環境基準が設定された。

環境基準が設定されていない物質については，環境中の有害大気汚染物質による健康リスクの低減を図るための指針となる数値（指針値）が，平成15年，アクリロニトリル等4物質に設定された。また，平成18年11月には，クロロホルム等3物質に，中央環境審議会より，指針値（案）の答申が出されている。

本県では，平成9年10月よりベンゼン等6物質の測定を始め，平成10年4月からは，アクリロニトリル等9物質を追加し，計15物質の測定を開始した。その後，平成13年には，塩化ビニルモノマー等3物質を，平成15年には，水銀の測定を追加した。現在は，有害大気汚染物質の中で，健康リスクが高いとして環境省が提示している優先取組物質22物質のうち，計19物質の測定を行っている。

前報¹⁾において，平成12年度～14年度の3ヶ年における調査結果を報告したが，今回は，平成10年度～17年度までの8年間における有害大気汚染物質濃度の推移を解析するとともに，それらの発生源についての考察を行ったので報告する。

2 材料と方法

調査地点は，環境大気測定局の七尾測定局及び小松測定局，自動車排ガス測定局の野々市測定局の3地点である。調査地点の概要を図1，表1に示した。また，測定

を実施している19物質の分類を表2に示した。

調査は，毎月1回，年12回（一部項目は年6回）測定を行っている。調査地点，測定方法の内容については，前報¹⁾と同様である。また，前報以降，新たに測定を開始した水銀の測定は，試料採取については，珪藻土粒子の表面に金を焼き付けした捕集剤を充填した捕集管（日本インスツルメンツ社製）を用いて，毎分150mlで吸引

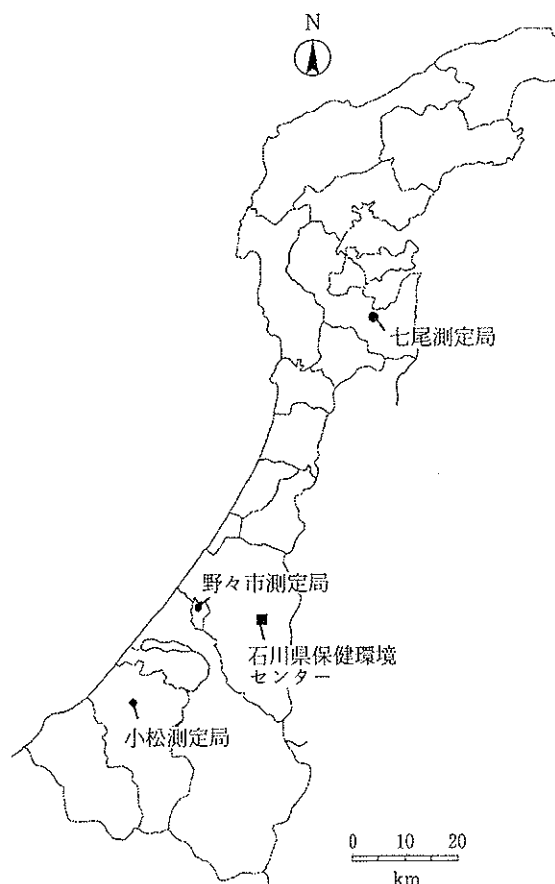


図1 調査地点

Long-term Trend of the Concentrations of Hazardous Air Pollutants in Ishikawa Prefecture.
by HASHIBA Hisao (Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of
Public Health and Environmental Science)

Key words : Hazardous Air Pollutant, Long-term Trend, Correlation

表 1 調 査 地 点

調 査 地 点	所 在 地	用途地域	区 分
七尾測定局	七尾市小島町ニ33番1	住居地域	一般環境
小松測定局	小松市園町ホ82	準工業地域	一般環境
野々市測定局(平成17年5月以前)	石川郡野々市町横宮30-1	商業地域	沿道
(平成17年6月以降)	石川郡野々市町御経塚5丁目84	住居地域	沿道

表 2 調 査 19 物 質 の 分 類

物 質 名	有機/無機	揮発性	移動発生源	非意図的 発 生 源	環 境 基 準 指 針 値 指針値(案)
アクリロニトリル	有機	○	○	×	指 針 値 $2\mu\text{g}/\text{m}^3$
アセトアルデヒド	有機	○	○	○	—
塩化ビニルモノマー	有機	○	×	×	指 針 値 $10\mu\text{g}/\text{m}^3$
クロロホルム	有機	○	×	○	指針値(案) $18\mu\text{g}/\text{m}^3$
酸化エチレン	有機	○	○	○	—
1, 2-ジクロロエタン	有機	○	×	×	指針値(案) $1.6\mu\text{g}/\text{m}^3$
ジクロロメタン	有機	○	×	×	環 境 基 準 $150\mu\text{g}/\text{m}^3$
テトラクロロエチレン	有機	○	×	×	環 境 基 準 $200\mu\text{g}/\text{m}^3$
トリクロロエチレン	有機	○	×	×	環 境 基 準 $200\mu\text{g}/\text{m}^3$
1, 3-ブタジエン	有機	○	○	×	指針値(案) $2.5\mu\text{g}/\text{m}^3$
ベンゼン	有機	○	○	○	環 境 基 準 $3\mu\text{g}/\text{m}^3$
ベンゾ[a]ピレン (B[a]P)	有機	×	○	○	—
ホルムアルデヒド	有機	○	○	○	—
水銀及びその化合物	無機	×	×	×	指 針 値 $40\text{ng}/\text{m}^3$
ニッケル化合物 (Ni)	無機	×	×	×	指 針 値 $25\text{ng}/\text{m}^3$
ヒ素及びその化合物 (As)	無機	×	×	×	—
ベリリウム及びその化合物 (Be)	無機	×	×	×	—
マンガン及びその化合物 (Mn)	無機	×	×	×	—
クロム及びその化合物 (Cr)	無機	×	×	×	—

注) 揮 発 性=○:有り, ×:無し

移 動 発 生 源=○:移動発生源からの排出量が無視できない物質

×:移動発生源からの排出量がほとんど無い物質

非意図的発生源=○:非意図的発生源からの排出量が無視できない物質

×:非意図的発生源からの排出量がほとんど無い物質

して捕集し、分析は、加熱気化冷原子吸光装置を用いて行った。これらの測定方法は、有害大気汚染物質測定方法マニュアル²⁾～⁴⁾に、準拠して行った。

3 調査結果と考察

3・1 19物質の経年変化について

調査は平成9年10月から開始し、現在も継続している。しかし、調査開始当初の半年間については、季節的な偏りがあり、年間の平均的な状況を反映してはいないものと考えられるので、平成10年4月以降のデータを解析対象とした。

19物質の年平均値の変化を図2に示した。全国平均値⁵⁾は、地方公共団体等で調査を実施したすべての地点のデータに基づく数値を用いた。ただし、ベンゼンにつ

いては、一般環境と沿道に区分された数値を用いた。

濃度の経年変化を見ると、19物質中14物質で減少傾向または横這いの状況であった。しかしながら、クロロホルム、ジクロロメタン(小松)、トリクロロエチレン(小松)、1,3-ブタジエン(野々市)、マンガン(七尾)については、微増であった。

環境基準との比較では、ベンゼンは、調査開始当初の平成10年度に、自動車排ガス測定局である野々市で、環境基準 $3\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超過していた。しかし、その後は、環境基準に近い値ではあるが、基準は下回っている。

ベンゼンの大気中への発生源については、自動車排ガス、ガソリンスタンド等の自動車関連の排出源が、全体の約3/4を占めていた⁶⁾。自動車排出ガス低減対策のうち、有害大気汚染物質に関連しては、当時の環境庁によ

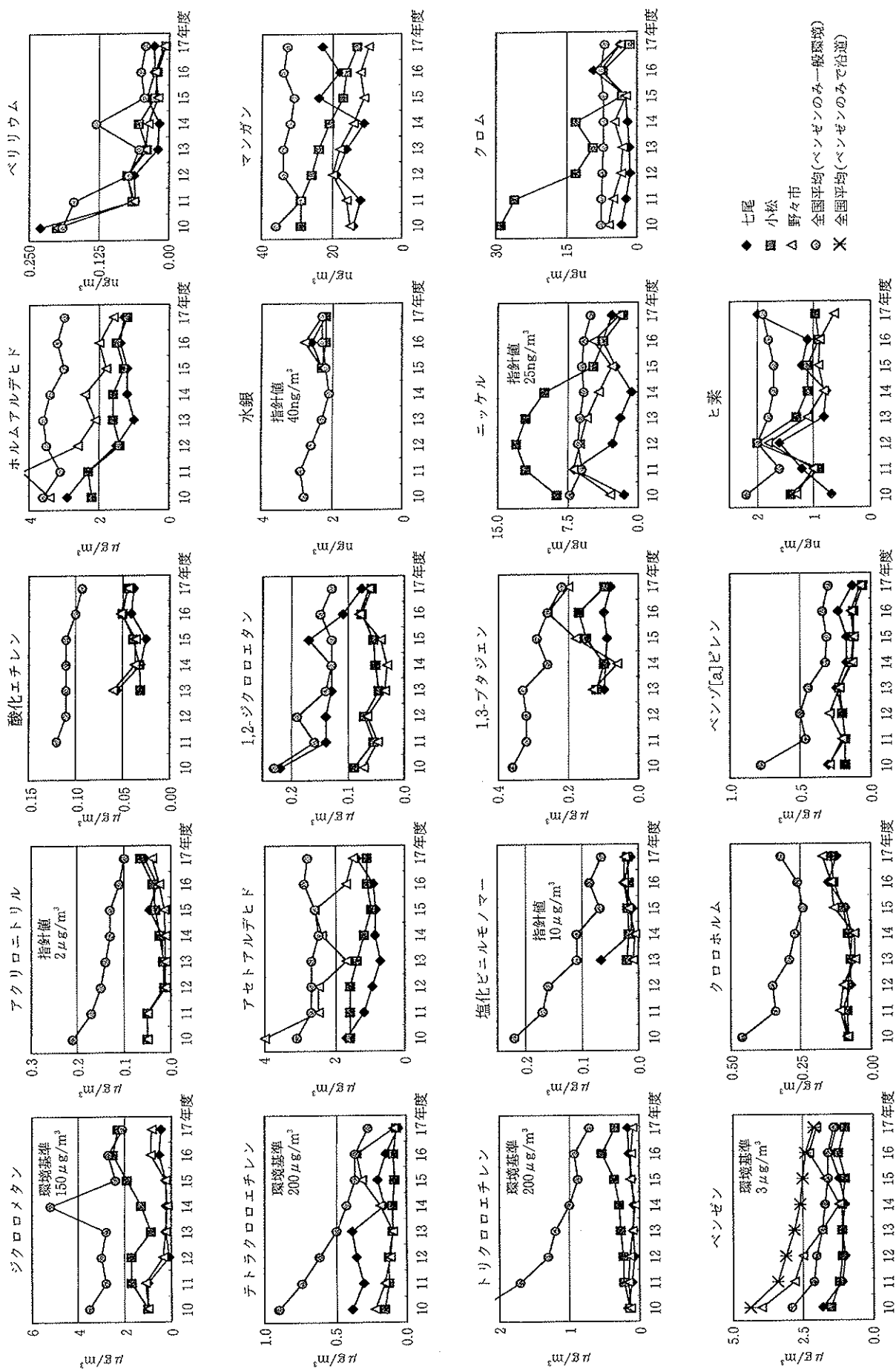


図 2 調査 19 物質 (年平均値) の経年変化

表 3 調査地点間の相関係数

x	y	ニッケル	ヒ素	ベンゾ[a] ピレン	ベリリウム	マンガン	クロム
小松	野々市	**0.419	**0.940	**0.603	**0.912	**0.716	0.087
七尾	野々市	0.192	0.253	**0.325	**0.290	0.163	**0.390
七尾	小松	0.053	**0.290	0.197	**0.303	0.067	-0.038

注) **: 有意水準 1% 以下の危険率で、有意な相関を示したもの

り、①二輪車の排出ガス規制の導入（平成10年～11年）②ガソリン・LPG車の炭化水素等排ガス規制の強化（平成10年、12年～14年）③ガソリン中のベンゼン含有量について、平成11年度末を目途に5体積%から1体積%に低減することとされた。これらの措置により、自動車及びガソリンスタンド等から大気中に排出されるベンゼンの量が約6割削減されるものと、推計された⁶⁾。また、その後も、排ガス中の炭化水素排出量の規制は、順次強化されている。本県の3測定局について、平成10年度と17年度の結果とを比較すると、3割～5割程度減少しており、上記の効果によるものと思われる。

ベンゼン以外で環境基準が定められている3物質（テトラクロロエチレン、トリクロロエチレン、ジクロロメタン）については、3測定地点とも、いずれの年度も、それぞれの環境基準値を大きく下回った。トリクロロエチレン、ジクロロメタンは、七尾と野々市が、ほぼ同一の濃度レベルにあり、これらの2地点に比べて、小松は、やや高い濃度レベルであった。これらの3物質は、移動発生源からの排出はほとんど無いものの、群小発生源からの排出が考えられる物質であり、小松においては、近傍の発生源の影響を受けているものと示唆された。また、全国平均値と比較すると、七尾のテトラクロロエチレン、小松のジクロロメタンでは、全国平均値前後の測定値も見られたが、それ以外は、全国平均値を下回る結果であった。

指針値が設定されている4物質（アクリロニトリル、塩化ビニルモノマー、水銀及びその化合物、ニッケル化合物）については、その値を大きく下回っていた。また、全国平均値と比較すると、アクリロニトリル、塩化ビニルモノマーは下回り、水銀は、全国平均値前後の結果であった。一方、ニッケルについては、平成10年度～14年度の小松において、全国平均値を上回っていた。しかしながら、平成15年度以降は、全国平均値を下回っており、以前、近傍の発生源の影響を受けていたものが、発生源の状況変化により改善されたものではないかと考えられた。

環境基準または指針値が設定されていない残りの11物質については、全国平均値との比較を行ったところ、ほ

とんどの物質において、全国平均値を下回っていた。小松のクロムについては、平成10年度～14年度に全国平均値を上回っていたものの、平成15年度以降は、平均値を下回り、ニッケルと類似の挙動が見られた。小松では、上記以外の重金属類で、マンガンの濃度減少が顕著であった。

また、平成10年度のベリリウムが、すべての地点で全国平均値を上回る結果となった。これは、測定結果が検出下限値未満の場合には、環境省環境管理局長通知¹⁾に基づき検出下限値の2分の1の値として、平均値を算出することとなっており、この年度は、測定法の関係で検出下限値が高かったためである。

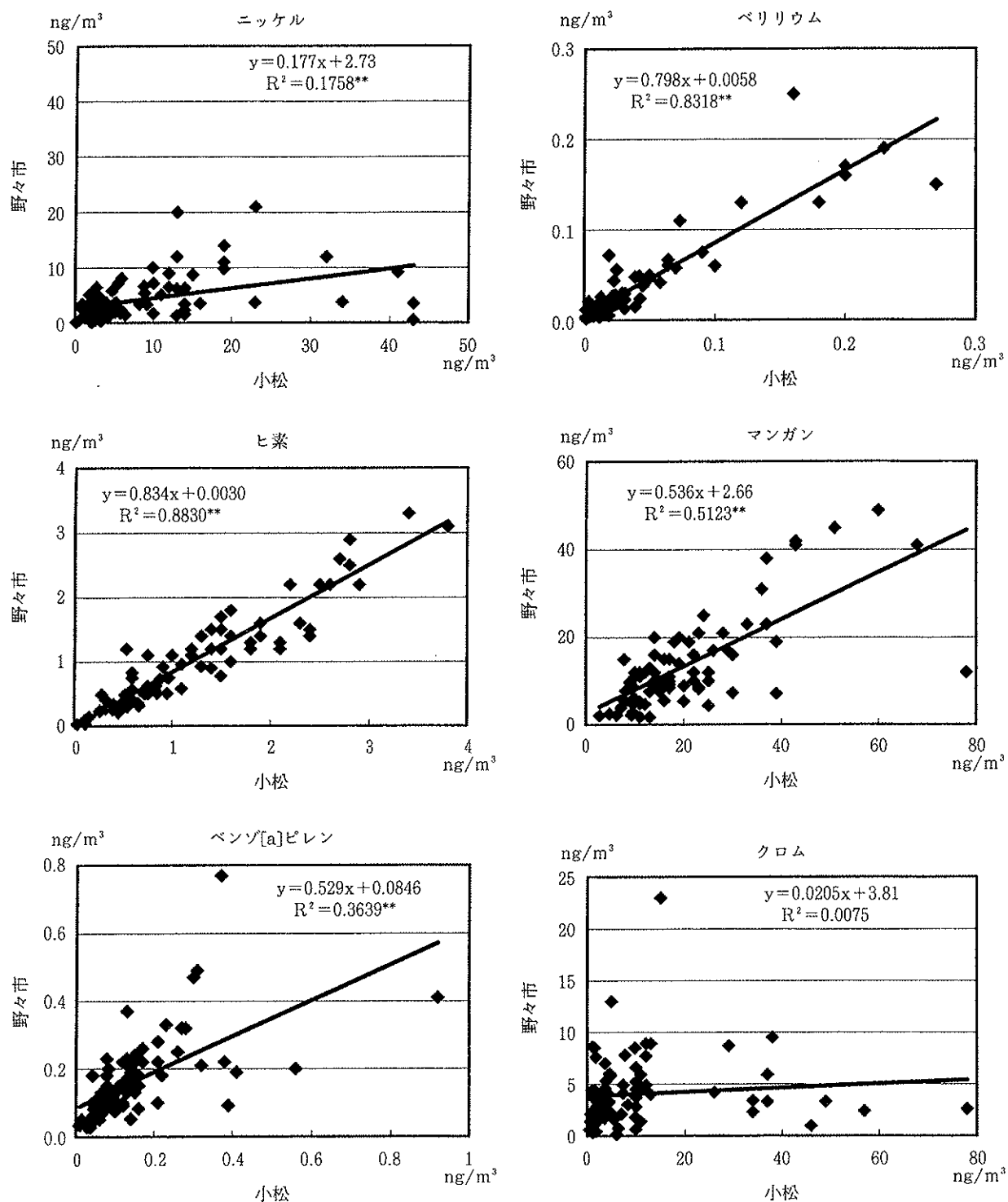
3・2 重金属類等の発生源について

ハイボリュームエアサンプラー（HV）による採取を実施している6物質（ニッケル化合物、ヒ素及びその化合物、ベリリウム及びその化合物、ベンゾ[a]ピレン、マンガン及びその化合物、クロム及びその化合物）について、3地点の各月毎のデータ（平成11年8月～18年3月）の相関をとり、表3に示した。

その結果、小松と野々市では、ニッケル、ヒ素、ベリリウム、ベンゾ[a]ピレン、マンガンの有意水準1%以下の危険率で、有意な相関を示し、特に、ヒ素とベリリウムでは、相関係数が0.9以上と高い相関がみられた。

図3に、小松と野々市の相関を示した。小松と野々市の検体採取では、平成11年8月以降現在まで、採取開始時刻に約1時間の差があるものの、同一日に実施している。このことから、ヒ素、ベリリウムの相関が高いことは、降雨や黄砂等の気象の影響を受けているものであり、近傍の発生源の影響は、ほとんど受けていないことが示唆された。

小松のニッケル及びクロムについては、3・1において、近傍の発生源の影響を受けているのではないかと考えた。このうち、相関係数が0.087と非常に低いクロムについては、特に、平成10年度～14年度の小松の濃度が高いことから、近傍の発生源の影響を受けているものと考えられた。また、ニッケルについては、相関係数が0.42と低く、かつ小松、野々市ともに高濃度の出現が見られることから、小松、野々市の各々において、近傍の発生源の



注) **は有意水準1%以下の危険率で、有意な相関を示したもの

図 3 小松と野々市における6物質の散布図

影響を受けているのではないかと考えられた。

一方、七尾と小松、七尾と野々市の間では、これらの6物質について、有意な相関を示した物質も見られたが、検体採取日が異なることもあり、相関係数は低い結果であった。

3・3 黄砂日と非黄砂日の比較検討

広域的な発生源と局所的な発生源との影響について考察するため、一例として黄砂日と非黄砂日についての比較検討を行った。

検体採取は、2日間をかけ連続する24時間で実施して

いる。このうち、金沢地方気象台において、初日または2日目のいずれかに黄砂が観測された場合を黄砂日とし、採取を行った2日間のいずれも黄砂が観測されなかった場合を非黄砂日として区分を行った。平成10年4月～18年3月までで、黄砂日に該当した月は、七尾では、平成12年3月、16年3月・4月、17年4月の計4回であり、小松と野々市では、平成11年3月、13年3月、14年11月の計3回であった。

測定物質のうち、HVによる採取を実施している6物質について、黄砂日と非黄砂日のデータの比較を行った。比較に際しては、黄砂日と非黄砂日の各データを、調査地点毎の測定値(平成10年4月～18年3月)の平均値で除して、規格化を行った。

その結果は、表4のとおりである。3調査地点のデータの平均値について、非黄砂日に対する黄砂日の倍率を比べてみると、ニッケルは2.9倍、ヒ素、マンガン、クロムは3.1倍、ベリリウムは3.7倍と、いずれの重金属類についても、3倍程度の濃度の増加が見られた。一方、ベンゾ[a]ピレンでは、1.3倍と明確な差は見られず、非黄砂日と黄砂日で、ほぼ同様の値であった。

春先に中国大陸から飛来する黄砂は、方解石(CaCO_3)に由来するカルシウム含有量の高いことが知られているが、カルシウム以外で、黄砂エアロゾル中に多い水溶性成分としては、カリウム、マンガン等が挙げられる⁸⁾。また、ニッケル、クロムについては、黄砂発生源の土壌鉱物中に多く含まれるアルミニウムとの相関から、黄砂発生源の土壌鉱物中に、含まれていることが知られている⁹⁾。今回のニッケル、マンガン、クロムの結果は、これらの知見を裏付けるものであった。

4 ま と め

有害大気汚染物質のモニタリング結果について、平成10年度から17年度までの8年間の推移を解析し、次の知見を得た。

(1) 19物質の経年変化について

測定した19物質の年平均値の経年変化を見ると、19物質中14物質で減少傾向または横這いの状況であった。し

表 4 黄砂日と非黄砂日との比較

		七尾	小松	野々市	平均値	黄砂日/非黄砂日
ニ ッ ケ ル	黄 砂 日	2.4	2.7	3.1	2.7	2.9
	非黄砂日	0.9	0.9	0.9	0.9	
ヒ 素	黄 砂 日	4.1	2.2	2.3	2.9	3.1
	非黄砂日	0.9	1.0	1.0	0.9	
ベンゾ[a]ピレン	黄 砂 日	1.1	1.3	1.6	1.3	1.3
	非黄砂日	1.0	1.0	1.0	1.0	
ベリリウム	黄 砂 日	3.3	3.4	3.4	3.4	3.7
	非黄砂日	0.9	0.9	0.9	0.9	
マ ン ガ ン	黄 砂 日	3.3	2.4	2.9	2.9	3.1
	非黄砂日	0.9	1.0	0.9	0.9	
ク ロ ム	黄 砂 日	2.8	2.3	3.7	2.9	3.1
	非黄砂日	0.9	1.0	0.9	0.9	

注) 数値は、各測定局の平均値により規格化された値である。

かし、クロロホルム等については、微増であった。

環境基準設定の物質については、ベンゼンの濃度低減は、自動車排出ガス低減対策の効果によるものと思われた。それ以外の3物質は、環境基準を大きく下回っていた。

指針値設定の物質については、小松のニッケルで、近傍の発生源の影響を受けていたものが、発生源の状況変化により改善されたものではないかと考えられた。

残りの11物質については、ほとんどの物質において、全国平均値を下回っていた。また、小松では、重金属のクロム、マンガンの濃度減少が顕著であった。

(2) 重金属類等の発生源について

小松と野々市では、ヒ素、ベリリウムについて、近傍の発生源ではなく、気象要因の影響を受けているものと示唆された。一方、小松のニッケル及びクロム、野々市のニッケルについては、近傍の発生源の影響を受けているものと考えられた。

(3) 黄砂日と非黄砂日の違いについて

ニッケル、ヒ素、ベリリウム、マンガン、クロムのいずれの重金属類についても、非黄砂日に比べて黄砂日では、3倍程度の濃度の増加が見られ、黄砂の影響を受けているものと考えられた。一方、ベンゾ[a]ピレンでは、明確な差は見られなかった。

検体採取及び測定に携わられた、平成10年度～15年度の化学物質・大気科学部大気質担当の諸氏及び平成16年度、17年度の環境科学部大気環境グループの諸氏に記して謝意を表する。

文 献

- 1) 中村能則, 横江 齐: 石川保環研報, **40**, 117—120 (2003)
- 2) 環境庁大気保全局: 有害大気汚染物質測定方法マニュアル (平成9年2月)
- 3) 環境庁大気保全局: 有害大気汚染物質測定方法マニュアル (平成9年8月)
- 4) 環境庁大気保全局: 有害大気汚染物質測定方法マニュアル (平成11年3月)
- 5) 環境省環境管理局: 地方公共団体等における有害大気汚染物質モニタリング調査結果について (平成18年10月)
- 6) 佐々木祐介: 資源環境対策, **34**, 1122—1128 (1998)
- 7) 環境省環境管理局長通知「大気汚染防止法第22条の規定に基づく大気の汚染の状況の常時監視に関する事務の処理基準について」(平成13年5月21日 環管大第177号, 環管自第75号) (2001)
- 8) 大気水圏の科学—黄砂, 初版 (名古屋大学水圏科学研究所編), p124—156, (株)古今書店, 東京 (1991)

〔報 文〕

水質・土壌汚染解明のための地理情報システム (GIS) の応用に関する研究 (第2報)

石川県保健環境センター環境科学部

山田 肇・岡田真規子

杉盛 耕益・小西 秀則

石川県能登北部保健福祉センター

井上 和幸

キーワード：地理情報システム, GIS, 地理情報, 環境情報, 電子国土 Web システム

1 はじめに

当センターでは、過去からの様々なデータを蓄積し保管しているが、十分に利用されているとは言いがたい。特に河川や地下水の水質データを利用するにあたっては、各測定地点の結果だけでなく、流域全体について考えることが必要となる。近年このような広い地域に関連する各種データと国土数値情報や数値地図などの地理情報を組み合わせた地理情報システム（以下 GIS とする）を構築し、地図上でデータを視覚化し活用しようとする試みが各分野で行われており水環境分野でも例外ではない。¹⁾²⁾

本研究では、GIS 用ソフトを用いて河川・地下水の水質データ及びこれらに密接に関連する人口、土地利用等の社会的データを整備し、視覚的に表示することができる地理情報システムの構築を目標とし、さらに構築した地理情報システムを利用して、水質・土壌汚染の原因解明、水質事故時の的確な対応、環境保全への利用、県民への啓発資材や環境

教育用教材としての利用について検討した。

2 システムの構築

2・1 対象地域の設定

研究の対象地域は BOD 負荷量の推定については、梯川流域（図 1）、地下水水質については石川郡以南（図 2）、啓発資材・環境教育用教材としての利用を目指し

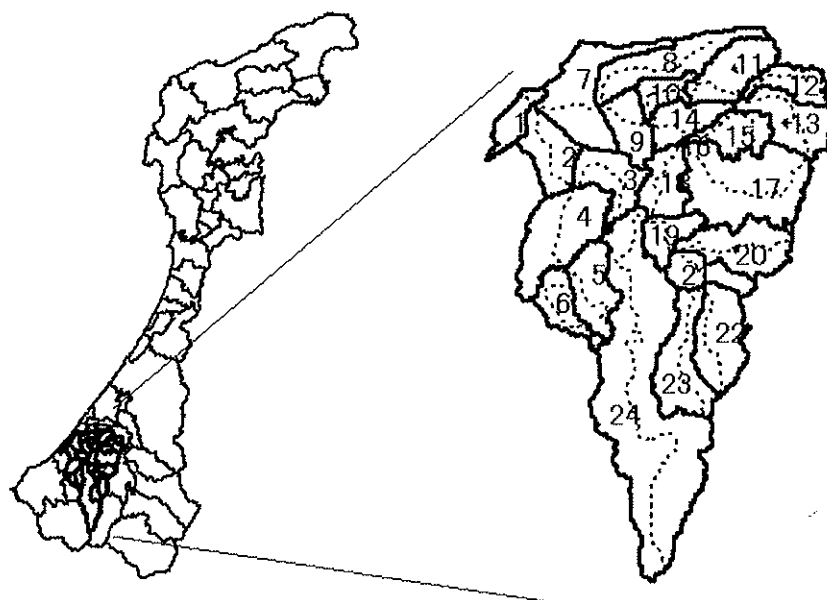


図 1 梯川流域及び単位流域

Applied Geographic Information System to Pollution Control in Water and Soil (2nd Report). by YAMADA Hajime, OKADA Makiko, SUGIMORI Koueki, KONISHI Hidenori and INOUE Kazuyuki* (Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science and Noto Hokubu Health Welfare of Ishikawa Prefectural Government*)

Key words : Geographic Information System, GIS, Geographic Information, Environmental Information, Denshikokudo Web System

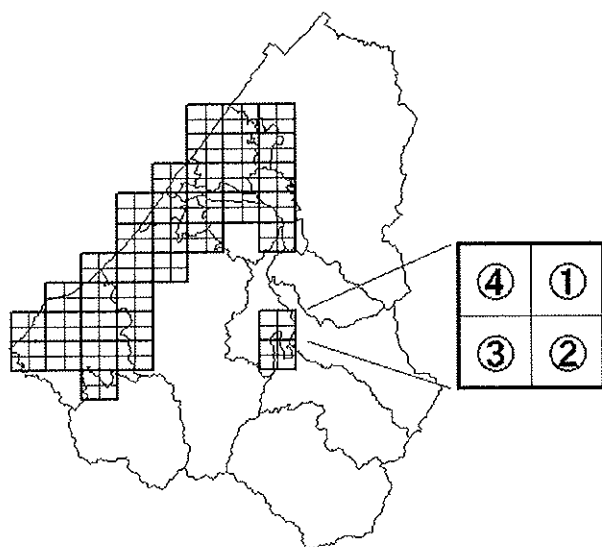


図2 井戸所在地メッシュ及び県分割メッシュ
(石川郡以南)

た公共用水域水質測定結果については全県を対象とした。

2・2 データの導入

(1) 使用ソフト

GIS用ソフトはMapInfo Professional 7.0 ((株)アルプス社)を使用した。

(2) 利用データ

ア 国土数値情報

国土数値情報は地形・土地利用・道路等、国土に関する様々な地理的情報を数値化したものであり、地理情報システムへの導入も容易である。本研究では、この中の

「土地利用メッシュ(L03-09M)」,「流路(W15-52L)」,「流域・非集水域メッシュ(W07-52M)」,「行政界・海岸線(N03-11A)」,「河川・水系域テーブル(W03-07T)」を用いた。なお国土数値情報については、日本測地系2000(JGD2000)と旧日本測地系(TOKYO)の2つのデータがあるが、本研究では旧日本測地系のデータを用いた。

イ 石川県公共用水域水質測定結果

石川県が水質汚濁防止法(昭和45年法律第138号)第17条の規定に基づき実施している公共用水域及び地下水の水質測定結果であり、本研究では公共用水域については平成10～14年のBOD, CODそれぞれの年間平均値, 75%値, pH 平均値のデータ, 地下水については平成4～15年の12年間のpH, 電気伝導率(以下EC)のデータを導入した。公共用水域水質測定地点の位置については緯度経度を点データとして, 地下水については「石川県 水質測定計画」で使用されているメッシュを面データとして用いた。

ウ 石川県排水監視システムデータ

石川県排水監視システムには水質汚濁防止法第5条の規定に基づく特定施設の届出データ及び行政検査データが入力されている。このうち梯川流域の小松市, 根上町, 寺井町, 辰口町(根上町, 寺井町, 辰口町は平成17年2月1日より能美市)のデータを用いた。

エ 平成12年度国勢調査人口

国勢調査人口は総務省統計局が運用している統計GISプラザ(<http://gisplaza.stat.go.jp>)の平成12年度

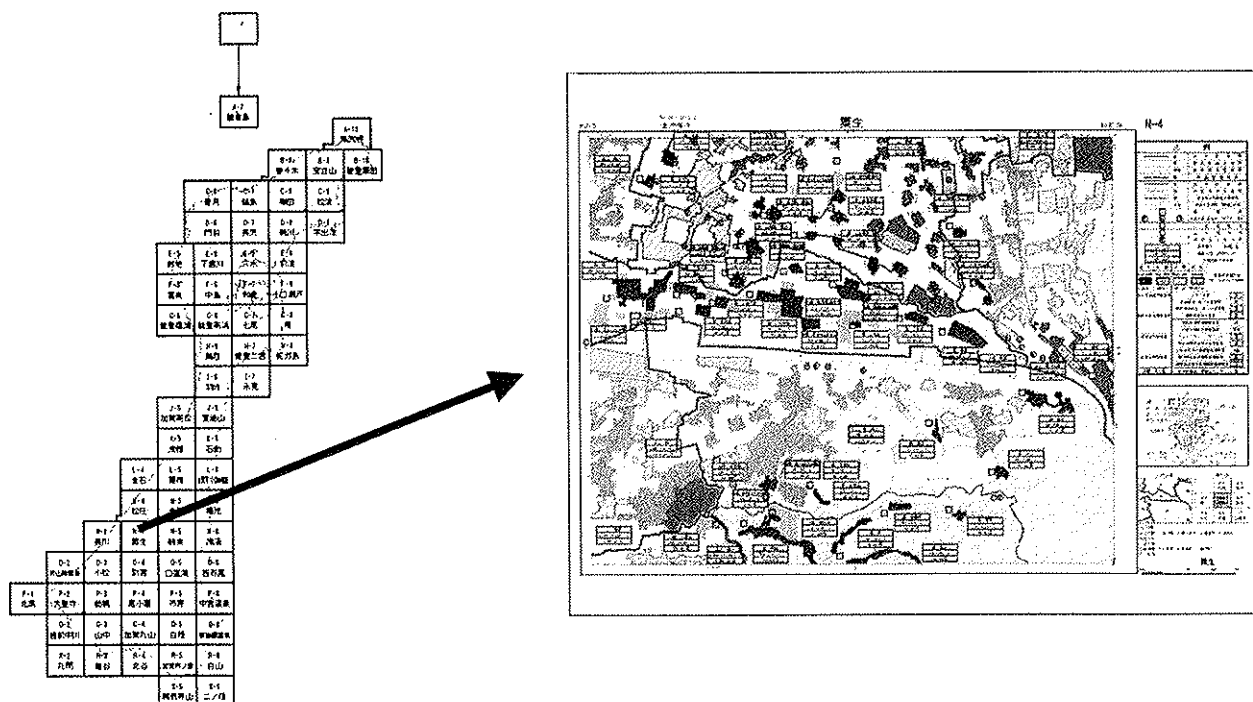


図3 新石川県污水適正処理構想エリアマップ

国勢調査町丁・字等別集計人口を用いた。

オ 新石川県污水適正処理構想エリアマップ

新石川県污水処理構想エリアマップ（以下エリアマップ）（図 3）は、石川県環境安全部水環境創造課ホームページ、またエリアマップ策定のために作成された処理区別事業種別一覧についても同課より入手し用いた。

カ その他データ

加賀沿岸流域下水道（梯川処理区）の流入水量および放流水質は「平成14年度 維持管理年報 財団法人石川県下水道公社」を、し尿処理の方式別人口（下水道・コミュニティプラント・浄化槽人口等）は「石川の廃棄物処理（一般廃棄物）平成14年度実績 石川県環境安全部廃棄物対策課」を用いた。

(3) データ変換

ア 国土数値情報

国土数値情報については、データ変換ソフト Ksj2Mif Converter (<http://www.mmtm.tv>) を用いて MapInfo で読取り可能な MID/MIF 形式に変換した。

イ 地下水水質測定結果

地下水については、まずメッシュ自体のデータを作成した。「石川県 水質測定計画」で使用されているメッシュ（以下 井戸所在メッシュ）は、自然環境保全基礎調査等で利用されている「統計に用いる標準地域メッシュ及び標準地域メッシュコード」（昭48.7.12行政管理庁告示第143号）による標準地域メッシュを 4×4 で併合している（図 1 の太線で示すメッシュ）。さらに井戸所在

メッシュを 2×2 分割し 4 個のメッシュとしている。（以下県分割メッシュとする）基準地域メッシュを元に県分割メッシュの四隅の緯度経度を求めた。県分割メッシュは、基準地域メッシュ 2×2 個分、緯度差 1 分×経度差 1 分30秒であり、石川県付近（北緯36°付近）では約 $1.85\text{km} \times 2.24\text{km}$ の四辺形となる。次に「（仮称）十進 BASIC（文京大学教育学部 白石和夫作）」を用いて四隅の緯度経度から MID/MIF 形式の面データに変換するプログラムを作成した。作成したプログラムを用いて MapInfo に県分割メッシュの面データを導入し、これに測定結果を付加した。

ウ 平成12年度国勢調査人口

平成12年度国勢調査人口は地理情報も含めて、統計 GIS プラザから shape 形式および xml 形式で提供されているが、MapInfo では両形式とも直接読み取る事ができないため shape 形式から MIF/MID 形式に変換する Shp2Mif Converter (<http://www.mmtm.tv>) を用いて変換を行った。これにより町丁・字等単位の人口及び境界が得られた。（表 1、図 4）

エ 石川県排水監視システムデータ

石川県排水監視システムから小松市、根上町、寺井町、辰口町内にある特定事業場のデータを取り出し、住所一緯度経度変換ソフト「八百八町ジオコード（株）JPS」を用いて住所一緯度経度変換を行った。表記のゆれ等により変換できなかった住所については、適宜修正を行っ

表 1 平成12年度国勢調査人口
町丁・字等別集計（抜粋）

市 町 名	町丁・字名	人口(人)
小 松 市	今江町 1 丁目	591
小 松 市	今江町 2 丁目	779
小 松 市	今江町 3 丁目	844
小 松 市	今江町 4 丁目	24
小 松 市	今江町 5 丁目	633
小 松 市	今江町 6 丁目	627
小 松 市	今江町 7 丁目	746
小 松 市	今江町 8 丁目	738
小 松 市	今江町 9 丁目	435
小 松 市	今江町	62
小 松 市	青路町	639
小 松 市	串町	2,869
小 松 市	串茶屋町	958
辰 口 町	字和佐谷	80
辰 口 町	字岩本	130
辰 口 町	字灯台笹	314
辰 口 町	字大口	216
辰 口 町	字旭台	702

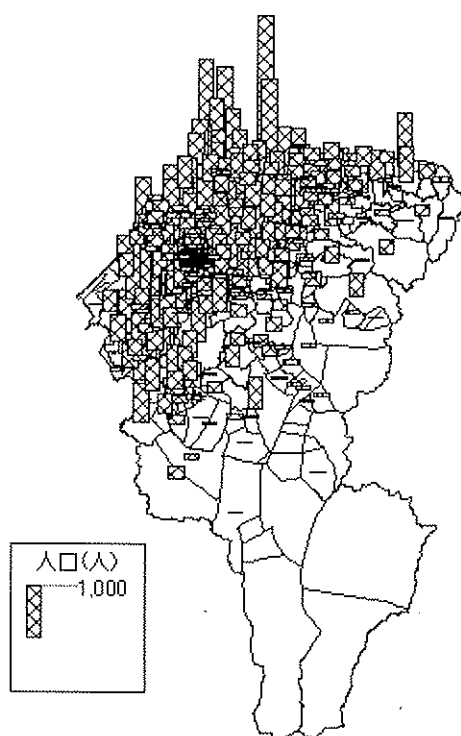


図 4 平成12年度国勢調査人口
町丁・字等集計

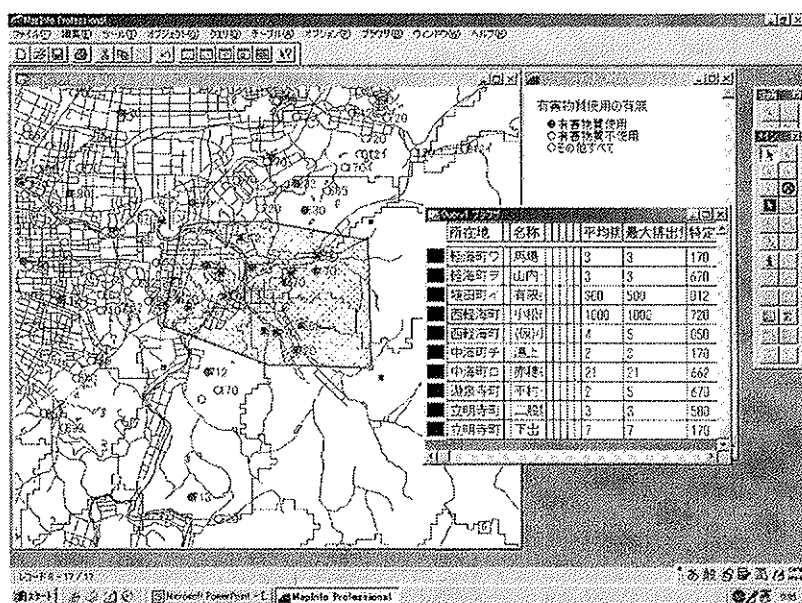


図 5 特定事業場位置図及び届出データ

た。このソフトは番地レベルでの緯度経度に対応しておらず、都市計画区域内では街区単位、その他の地域では概ね字レベルであるが、BOD 負荷量の単位流域毎の推定には充分である。測定データについては排水監視システムのデータを Microsoft Access の VBA を用いて変換プログラムを作成して変換を行った。(図 5)

3 水質・土壌汚染解明への利用検討

構築したシステムが水質・土壌汚染解明に利用できるかを BOD 負荷量の推定および地下水水質等値線図の作成を通じて検討を行った。

3・1 BOD 負荷量の推定

(1) 梯川の単位流域界の確定
梯川単位流域界を国土数値情報「流域・非集水域メッシュ(データセット W07-52M)」及び「河川・水域系テーブル(W03-07T)」から求めた。(図 1)

(2) 生活系排水による BOD 負荷量の推定

生活排水による BOD 負荷量をエリアマップ、国勢調査町丁・字等別集計人口等を用いて処理方式別人口を求め、処理方式別の BOD 負荷量の原単位を乗じることで推定した。

エリアマップでは、地図上で生活排水の処理方式別に各地区の整備計画を色とハッチングで示している。(図 3) これをスキャナーで取り込み、GIS を用いて各地域の処理方式・境界等をデータ化することを試みたが、地域境界以外に都市計画区域界、農業振興区域界、用途界等も含まれ、またハッチングで整備予定年度を示すなど複雑に線が入り組んでおり、プログラムで取り込むのは困難であった。そこで取り込んだ図をディスプレイ上で表示し、マウスでなぞることにより手作業でデータ化を図ったが、エリアマップ 1 区域(2 万 5 千分の 1 地形図相当)の面データ化にかなりの時間がかかった。そこで処理区別事業種別一覧表(表 2)と国勢調査の町丁・字等と比較すること

で、各町丁・字毎の処理方式の整備計画をデータ化した。しかし、整備計画のデータだけでは、下水道整備済区域内では 100% その方式が使用されていることになる。例えば根上町では全域が流域関連公共下水道による整備区域内であり、全世帯が下水道処理となるが実際には、下水道に接続を行っていない世帯も存在する。そこで「石川の廃棄物処理(一般廃棄物)」から農業集落排水施設等、単独浄化槽、合併処理浄化槽の使用人口を得て未接続世帯の処理方式の推計を行った。(表 3) 使用人口は

表 2 処理区別事業種別一覧

市町名	処理区名	事業種別	H14 整備区域内人口	H22 整備区域内人口	全体
小松市	江差処理区	農業集落排水事業	0	75	75
小松市	西軽海団地	コミュニティプラント	2,342	2,342	2,342
小松市	国府台	コミュニティプラント	1,262	1,262	1,262
小松市	拓栄町	浄化槽設置整備事業	36	36	36
小松市	浜佐美町	浄化槽設置整備事業	0	30	30
根上町	梯川処理区	流域関連公共下水道事業	13,116	15,948	16,253
辰口町	梯川処理区	流域関連公共下水道事業	10,120	10,957	11,480
辰口町	金剛寺処理区	農業集落排水事業	108	108	108
辰口町	和佐谷処理区	農業集落排水事業	89	89	89
辰口町	上徳山処理区	農業集落排水事業	107	107	107
辰口町	大口処理区	農業集落排水事業	194	194	194
辰口町	下徳山処理区	農業集落排水事業	141	141	141
辰口町	和気処理区	農業集落排水事業	642	642	642
辰口町	岩本処理区	農業集落排水事業	460	460	460

注) 根上町は全町で 1 処理区、小松市、辰口町は抜粋

表 3 下水道等接続率推定

(単位:人)

市町名		下水道	農集排等	コミプラ	合併	単独等
小松市	整備計画	39,654	7,351	3,604	1,363	43,078
	廃棄物処理の状況	27,222	6,444	3,639	6,485	56,119
	比率 (%)	(68.6)	(87.7)	(101.0)	(475.8)	(130.3)
辰口町	整備計画	10,120	2,329	—	840	913
	廃棄物処理の状況	9,471	2,296	—	1,554	1,065
	比率 (%)	(93.6)	(98.6)	—	(185.0)	(116.6)
寺井町	整備計画	12,912	—	—	70	3,231
	廃棄物処理の状況	9,661	—	—	102	6,406
	比率 (%)	(74.8)	—	—	(145.7)	(198.3)
根上町	整備計画	13,116	—	—	—	3,137
	廃棄物処理の状況	10,018	—	—	—	6,273
	比率 (%)	(76.4)	—	—	—	(200.0)

表 4 汚濁負荷量原単位

(kg/ha/年)

	BOD	COD	T-N	T-P
都市地域	37.05	65.80	25.07	1.17
水田	91.42	213.47	17.78	6.61
畑	16.72	90.59	79.68	2.53
山林	26.85	119.70	15.07	1.18

(石川県河北潟水質保全調査 H15～H17)

市町村単位での集計のため、小松市内では地域に関係なく下水道接続率は68.6%同様に農集排等整備区域の接続率は87.7%、未接続の場合は合併浄化槽10.4%、単独浄化槽89.6%とした。

BOD 負荷量の算定は1人1日あたり

表 5 国土数値情報土地利用分類、河北潟水質保全調査原単位土地利用区対応表

国土数値情報	河北潟水質保全調査
国土数値情報	水田
田	畑
その他の農用地	山林
森林	山林
荒地	都市地域
建物用地	都市地域
幹線交通用地	山林
その他の用地	山林
河川地及び湖沼	—
海浜	山林
ゴルフ場	山林

BOD 負荷量を40gとし、単独浄化槽32g、合併浄化槽4g、農集排等3.2gとした。下水道接続世帯のBOD負荷量については、原単位を設定せず、「平成14年度維持管理年報 財団法人石川県下水道公社」の加賀沿岸流域下水道(梯川処理区)の年間平均BOD実測値2.8mg/Lと処理流量415万m³を用いた。梯川流域の他の下水道処理場も同等の放流水質とした。流入水のBODは147mg/Lであり、BOD除去率は98%弱であった。これらに基づいて単位流域別のBOD負荷量を求めた。

(図6)

(3) 土地利用によるBOD負荷量の推定

土地利用によるBOD負荷量の推定については、まず国土数値情報の「土地利用メッシュ」と「流域・非集水域メッシュ」を用いて、単位水系ごとの土地利用面積を求めた。土地利用ごとのBOD負荷量の原単位については、石川県が行っている河北潟水質保全対策調査で示された値を用いた。³⁾(表4)また国土数値情報の土地利用の種別と河北潟水質保全調査での土地利用の種別の対応は別表のとおりとした。(表5)単位流域別BOD負荷量(土地利用)は(図7)に示すようになった。

(4) 事業場排水によるBOD負荷量の推定

事業場排水によるBOD負荷量の推定については、排水監視システムのデータを用いた。負荷量の算出にあたり

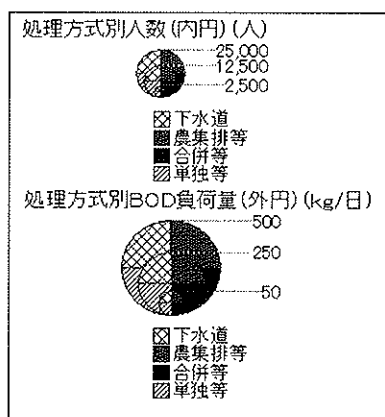


図 6 単位流域別 BOD 負荷量 (生活系)

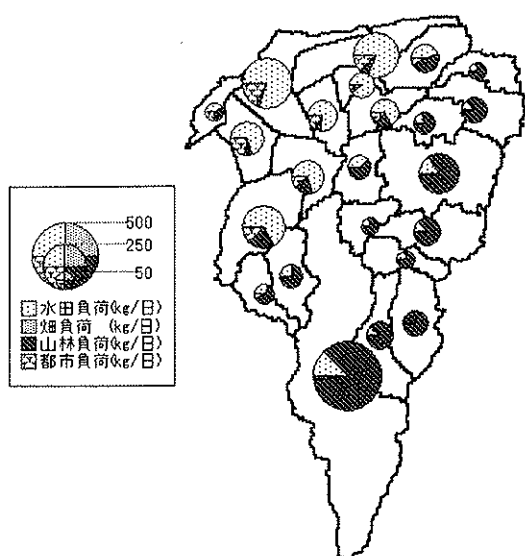


図7 単位流域別 BOD 負荷量（土地利用）

ては、県による立入検査に伴って BOD 測定が行われた事業場については、平成10年～14年の5年間の平均値を用い、それ以外の事業場（日平均排水量50m³以下の事業場等）については、浄化槽の処理基準のうち最も厳しい20mg/Lを用いた。また、排水量については測定値がないため、届出書の平均排水量を用いた。（図8）なお、登録事業場でも、水質汚濁防止法施行令別表第1の72し尿処理施設のうち農業集落排水処理施設等の負荷量は生活系排水による BOD 負荷量に算入した。

(5) 単位流域別発生源別負荷量

(2), (3), (4)の各発生源別の BOD 負荷量を合計し、単位流域別発生源別負荷量とした。（図9）

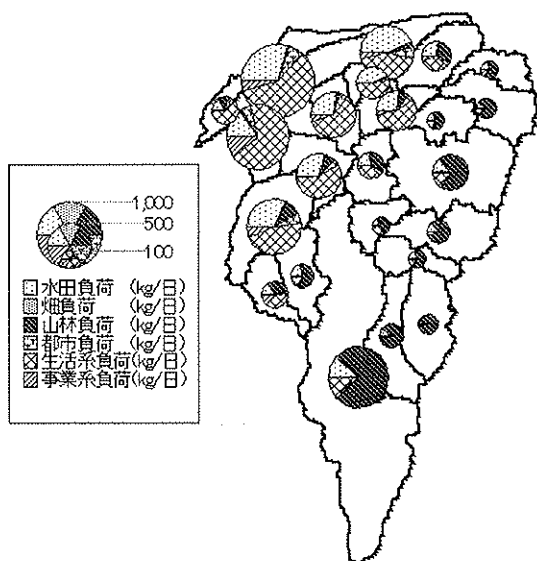


図9 単位流域別発生源別負荷量

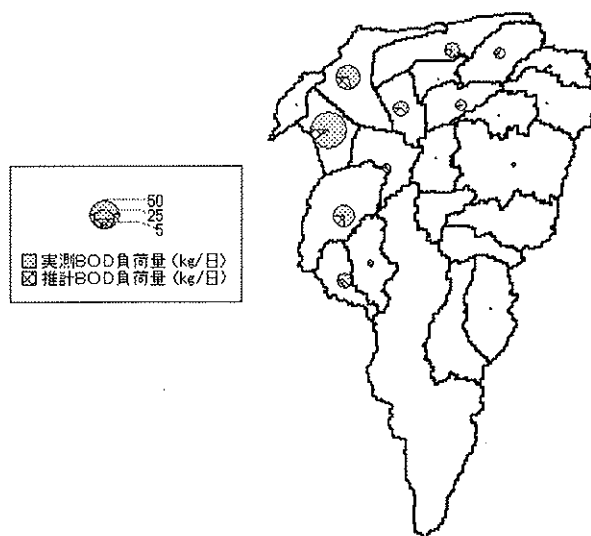


図8 単位流域別 BOD 負荷量（事業系）

(6) 実測 BOD 及び水位流量から求めた BOD 負荷量との比較

推計した BOD 負荷量と実際の梯川の実測 BOD と水位流量から求めた BOD 負荷量との比較を試みた。梯川流域では国土交通省により H14, H15年に埴田、小松大橋、牧の3地点で水位流量測定が行われている。このうち小松大橋と牧は非常に距離が近く同一単位流域内である。（図10）両地点で公共用水域測定地点に近いのは牧のため、牧と埴田の2地点の水量を用いて比較を試みた。この2地点に対応する公共用水域測定地点は鶴ヶ島橋（H15年4月より約500m上流の石田橋に測定地点を変更）と鴨浦橋である。BOD と水量のグラフを図11, 12で示

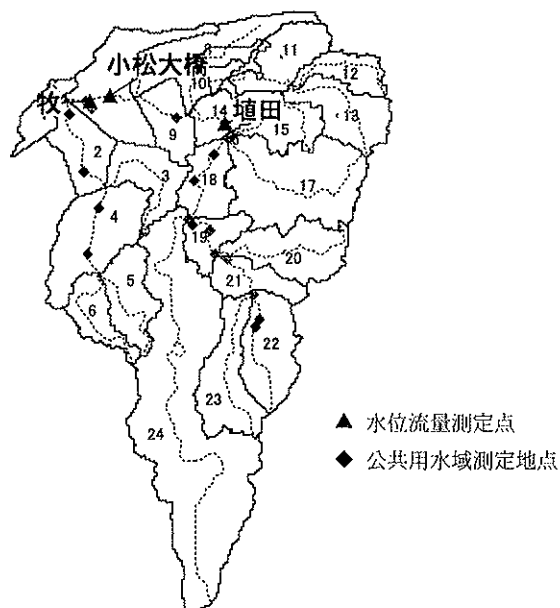


図10 水位流量測定地点

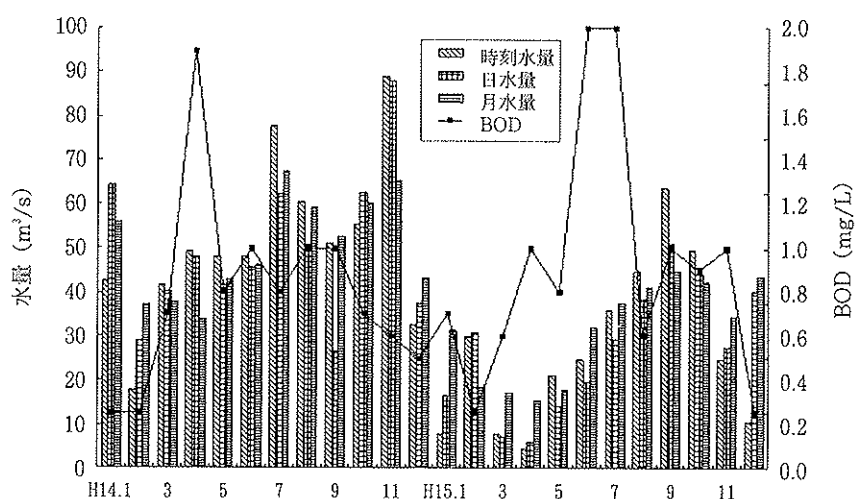


図 11 実測 BOD と水量（鶴ヶ島橋）

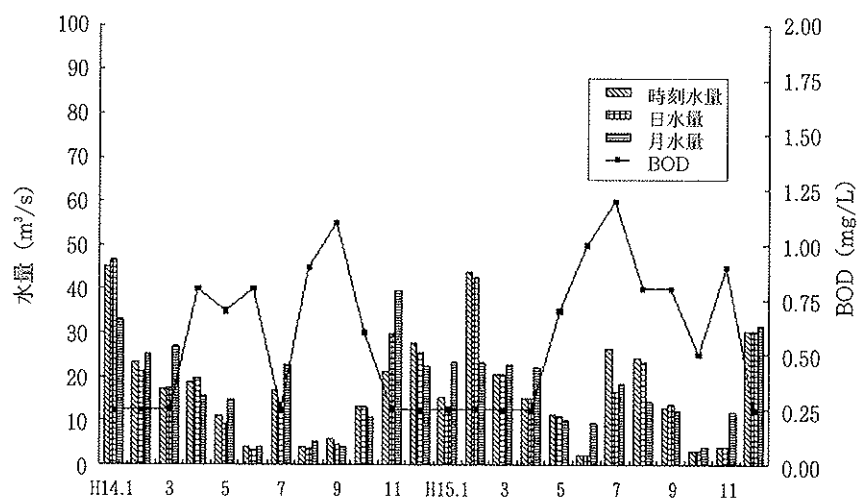
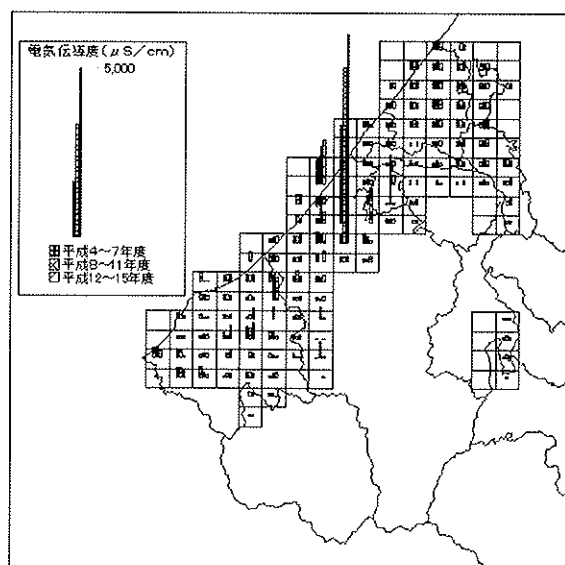


図 12 実測 BOD と水量（鴨浦橋）

図13 地下水水質調査
電気伝導度（H4～H15）

した。上流の鴨浦橋はBODが低く、報告下限値0.5mg/L未満も多いが、報告下限値未満は0.25mg/Lとして扱った。水量については、採水時の水量として時刻水量・日水量・月水量があるが、各水量の増減は良く似ており、BODに各水量を乗じて求めたBOD負荷量は、鴨浦橋で626～678kg/日、鶴ヶ島橋で2,710～3,020kg/日となった。また、構築したシステムによる推計では1,350kg/日、2,990kg/日であった。

3・2 地下水水質等値線図の作成

水質・土壌汚染解明のための一手法として等値線図の作成を試みた。

石川県では、水質汚濁防止法に基づき平成元年から地下水の水質調査を行っている。平成4年からは国・金沢市と協力して県内88井戸所在メッシュ（平成13年からは91井戸所在メッシュ）を選定し、各井戸所在メッシュ内から井戸を選定し年1回調査を行っている。

各年の井戸選定にあたっては、井戸所在メッシュ内の県分割メッシュを北東より時計回りに①～④とし、平成4年度が①、平成5年

度は②というように、県分割メッシュを変えながら選定を行っている。（図2）また測定項目についても、項目全体を3区分に分けて測定している。（平成17年度以降は全項目測定に変更、同時に県分割メッシュ番号も変更）ただし、電気伝導度（以下EC）、水素イオン濃度、揮発性有機化合物については毎年測定しており、この研究では、ECについてH4～H15年度の12年間の等値線図の作成を試みた。

ECの測定結果を（図13）に示す。地下水質測定はできるだけ多数の井戸を調査するために同一県分割メッシュ内でも測定年毎に別の井戸が選ばれている。県分割メッシュの大きさが約2×2kmであることから井戸の位置を同一とみなせず、深度についても一定でなく、近年の井戸では深度不明の井戸も多い。また測定間隔が4年に1回であることから、県分割メッシュ内で12年間の平均を取ることはせず、H12～H15年度の井戸のデータ

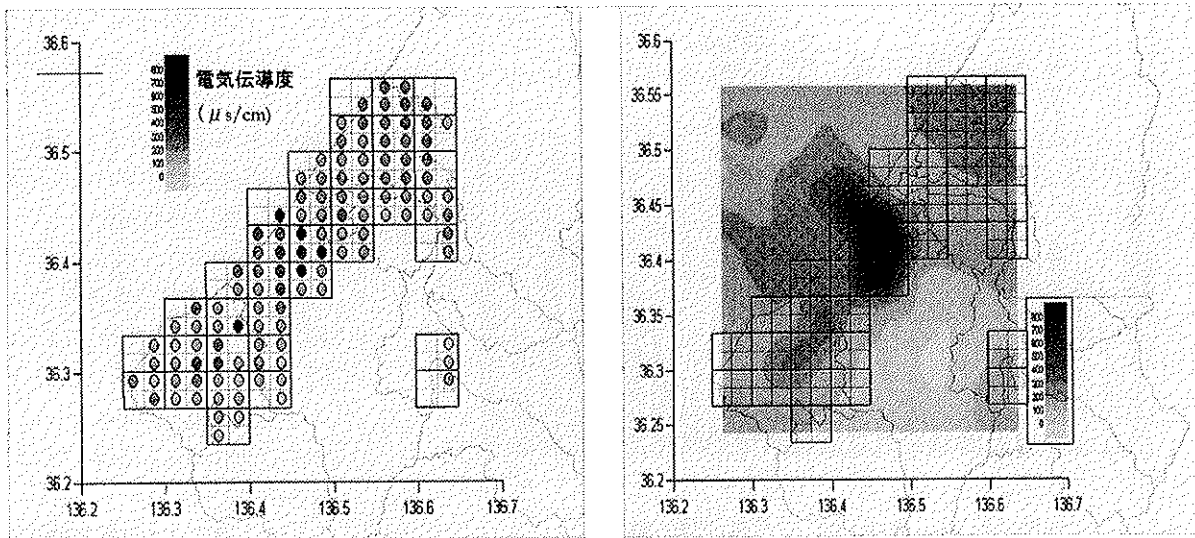


図 14 地下水水質調査 (H12~H15)
電気伝導度等値線図

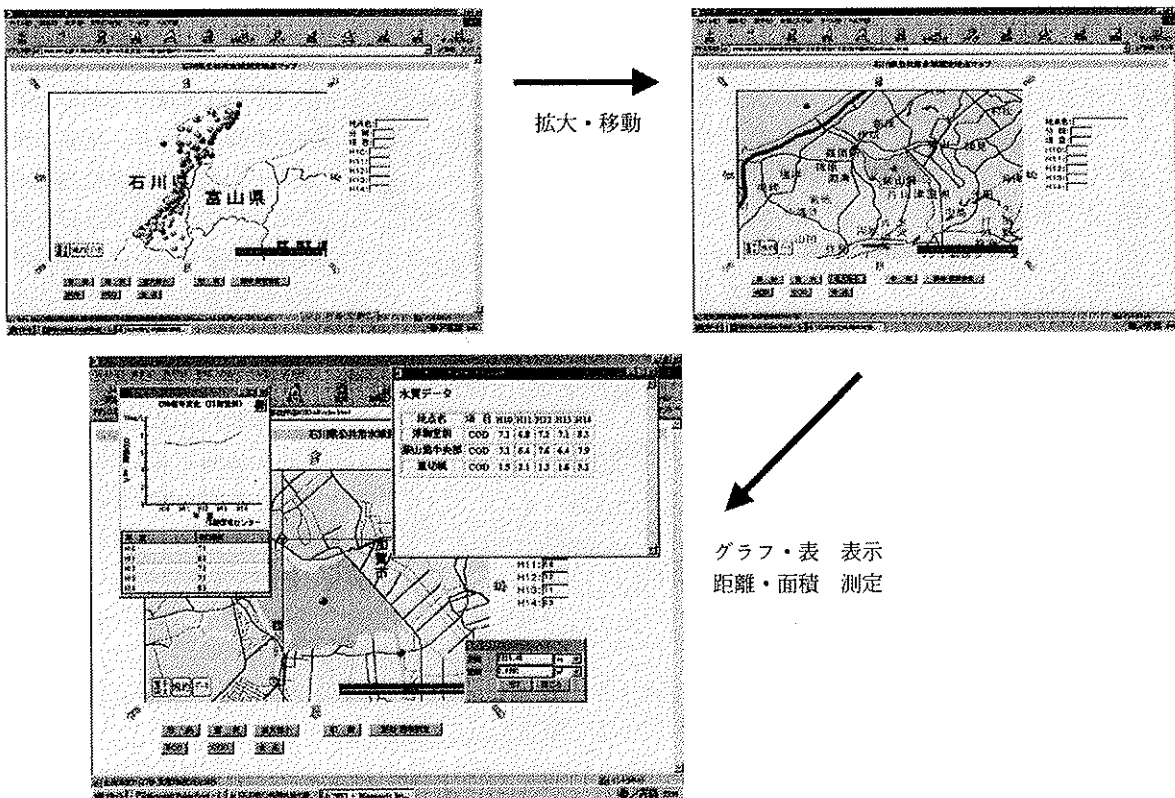


図 15 電子国土 Web システム利用ホームページ

を用いて等値線図を作成した。(図14) 計算にあたっては井戸深度は考慮しなかった。

3・3 啓発資材・環境教育教材等への利用

啓発資材・環境教育教材等への利用について検討した。県民への提供方法としては、インターネットを介してのホームページ（以下 HP とする）での提供が最も良いと

思われた、そこで HP としての提供方法を検討した。

MapInfo では、容易にクリップルマップを作成することができ、これを利用して公共用水域の測定地点をクリックすれば測定結果が示されるホームページを作成した。しかし、この方法では県全域での提供を考えると、2万5千分の1地形図相当で約70枚、さらに何段階かの

縮尺で作る必要を考えると、作業量が非常に多くなる。作業量を減らすためには地図データは別の地図配信サーバーを利用し、そこから必要な範囲の地図の配信を受ける方式が良いと考えた。そこで国土地理院が平成15年7月より提供を始めている電子国土 Web システム^{1)~7)}を利用した。このシステムを利用することで、情報発信者は閲覧者に対して、必要な範囲・縮尺の地図の配信をすることができる。

公共用水域測定地点のCOD75%値とBOD75%値を用い、実際に作成したホームページを図15に示す。地図の拡大・縮小、移動、距離・面積測定ができ、選択した地点の測定値の経年変化をグラフで表示することができる。また、複数地点を選択した場合には測定値が表で表示される。複数地点の選択では、地点及び地点数の組合せは非常に多数となり地点数の制限を行ったとしても、あらかじめ表を用意することは困難である。データベースシステムを用意し、選択された地点の測定値を問い合わせる方法もあるが、独自のデータベースサーバーの設置は容易ではないためJavaScriptを用いて表を動的に生成することで対応した。⁸⁾

4 考 察

(1) BOD 負荷量の推定について

梯川上流部では、構築したシステムを利用した推定値が水質測定結果からの推定値に比べて約2倍となった。本研究で利用した土地利用によるBOD負荷の原単位は、河北潟水質保全調査での測定から求められたものであり、特徴は降雨時負荷量が算出過程で用いられていることである。公共用水域の測定においては、濁りのない状態で採水されることが多く、雨天時の採水は通常行われていないため、降雨時負荷による影響は少なくなる。上流部は、ほとんどが山林であり事業系や生活系の負荷は少なく、降雨時負荷量を含んでいない影響が強くなったことが、水質測定結果からの推定値が低く出た理由だと思われる。また上流部では、実測BODが報告下限値(0.5mg/L)未満の場合も多く、これを0.25mg/Lとした影響も考えられる。

(2) 地下水水質電気伝導度等値線図について

地下水水質電気伝導度等値線図の作成については、測定地点の間隔が離れていることから、当初の目標である地下水汚染の原因解明に直接利用することは難しいと思われる。等値線図の作成は容易にできるようになったため、汚染解明に利用するにあたっては汚染地点周辺の狭い範囲で、より多くの観測地点を設けることが必要である。

等値線図で非常に高い地域は小松市栗津町周辺であり、

近年になるほど高くなっているが、同一井戸を測定しているのではなく、井戸の深度も違うためこの結果に必然性があるのかどうかはわからなかった。

(3) 啓発資材・環境教育教材への利用

HPでの提供において測定地点や測定結果の表・グラフ等を県全域で作成する作業量が、クリックブルマップを利用した方法から電子国土 Web システムを利用した方法に変更することで非常に少なくなった。測定地点の緯度経度と測定値があれば背景地図との重ね合わせは電子国土 Web システム側で行ってくれるため容易に各種の情報の発信に利用ができ、県民にわかりやすい情報提供ができる。

5 ま と め

(1) 特定施設の台帳・水質測定結果と位置データをGISに導入することにより、汚濁事故発生時等に周辺にどのような事業場があるかが即座に地図上で確認でき、対象事業場をすみやかに絞り込み迅速な対応が可能になった。

(2) 構築したシステムを利用することで生活系負荷、事業系負荷、水田負荷等を小地域毎に面的に捉えることができ、下水道整備など発生源対策の立案に役立てることができるようになった。

(3) 等値線図の作成が容易になり、汚染源を特定する際の資料として活用できるようになった。

(4) 啓発資材・環境教育教材への利用

啓発資材等の材料として、ホームページで環境情報を位置情報と共に県民にわかりやすく地図上で提供できるようになった。

文 献

- 1) 藤井滋徳：環境技術，33，60—64（2004）
- 2) 湯浅岳史，吉田正彦，上原 浩，佐々木亨：第39回日本水環境学会年会 講演集，94（2005）
- 3) 石川県環境安全部：平成16年度河北潟水質保全対策検討調査報告書，4—39（2005）
- 4) 大野裕幸，明野和彦，久松文男，石関隆幸：国土地理院時報，104，25—32（2004）
- 5) 国土地理院：電子国土 Web システム API リファレンス，第0.8.1版，つくば（2005）
- 6) 国土地理院：電子国土 Web システムプログラミングガイド，第0.8.1版，つくば（2005）
- 7) 国土地理院：地理情報標準第2版電子国土プロフィール，平成17年3月23日暫定版，つくば（2005）
- 8) 半場方人：詳解 JavaScript 辞典 改訂版，第1版，(株)秀和システム，東京（2005）

〔報 文〕

RI 投与者の環境放射線観測局接近に伴う 空間放射線への影響

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：空間放射線，放射性医薬品

1 はじめに

石川県では、北陸電力の志賀原子力発電所周辺の環境放射線監視を行うために、発電所周辺の9地点に環境放射線観測局を設置している（図1）。この内の1局（志

賀局）で平成17年の①4～5月及び②7月に、降雨等の影響や機器の故障及び誤作動では説明できない空間放射線量の特異的な変動が観測された。ガンマ線スペクトルデータ等の解析から、今回の事象は核医学診断用 RI 投与者が線量率計に接近したことによるものと判断した。

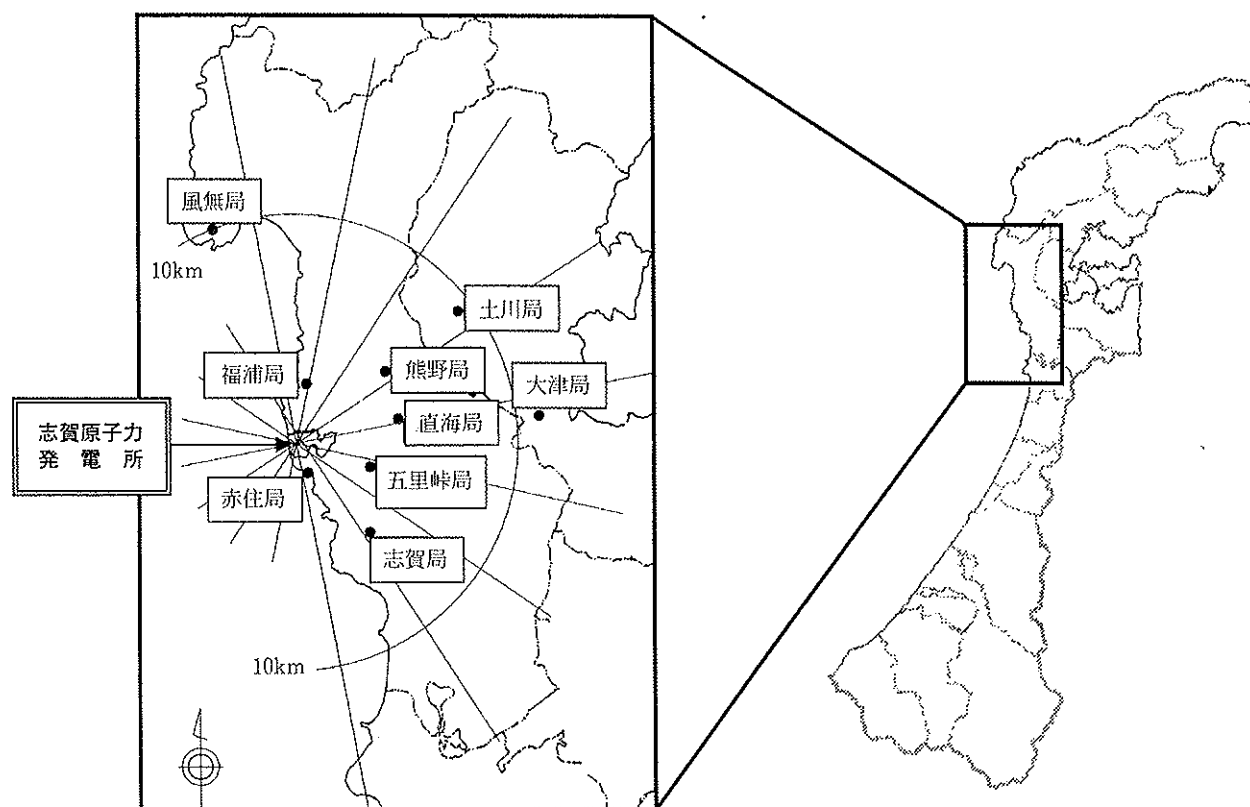


図 1 環境放射線観測局設置地点図

The Influence for Environmental Radiation due to Approaching a Patient Administered Radiopharmaceutical to a Prefectural Monitoring Station, by YOSHIMOTO Takashi, NAKATANI Mitsuru and KOMORI Masaki (Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Environmental radiation, Radiopharmaceutical

これらの検出事例について、ガンマ線スペクトル解析結果及び事象発生時における観測局周辺の状況調査結果等を報告する。

2 測定方法

発電所周辺の環境放射線観測局には、3"φ×3"NaI(Tl)シンチレーション検出器(アロカ(株)製)及び14L球形電離箱検出器(アロカ(株)製)を設置し空間線量率(2分値, 10分値)及び空間ガンマ線スペクトル(10分値)を連続測定している。また、風向、風速、気温、雨雪量等の気象観測も行っている。これらの観測結果をテレメータシステムによって収集し、空間線量率については県のウェブサイト及び原子力防災Nネットを通じてリアルタイム公表し、この中でトレンドグラフ表示も行われている。

3 測定結果

図2に、4月～5月の線量率、通過率及び降水量の変動状況を示す。ここで通過率は計数率計のカウンタ数に対する線量率計のカウンタ数の割合である。4月28日から30日にかけて及び5月17日に、一時的な線量率の上昇及び通過率の低下があり、4月29日9:56に最大値101.5nGy/h(約52nGy/h上昇)を観測した。また、5月1日から5日にも、線量率の上昇は無かったが通過率が低下した。図3に7月の線量率、通過率及び降水量の変動状況を示す。7月5日から7月16日にかけて、図2と同様に、一時的な線量率の上昇及び通過率の低下があり、7月5日9:58には最大値268.1nGy/h(約220nGy/h上昇)を観測した。これらの事象の殆どは降雨のない時間帯に発生しており、また降雨とともに線量率が緩やかに上昇降下する一般的なパターンとは異なっていた。

4 考察

通過率の低下が観測されたことから、低エネルギー側のガンマ線が増加したことが推測された。これは、NaI(Tl)シンチレーション検出器は低エネルギーのガンマ線に対する感度が低いため、低エネルギーのガンマ線の入射量が増加すると線量率計のカウンタ数が相対的に減少

することによる。

環境放射線モニタリング指針¹⁾によれば、空間放射線観測結果の変動要因として、①測定条件の変化、②自然条件の変化、③原子力発電所の運転状況の変化、④その他の外的要因、が考えられる。①測定条件については、測定方法の変化や測定機器の異常等が考えられるが、測定方法の変更は無く、また定期点検で測定機器に異常は認められていなかった。②自然条件については、気象要因や地理・地形状の要因が考えられるが、今回観測された事象のほとんどが降雨のない時間帯に発生しており、また地理・地形状の変化は無かった。③原子力発電所の運転状況については特に外部への影響は認められていなかった。以上から、今回の事象の要因として①～③は除外される。④その他の外的要因を調査するために、4月～5月及び7月に観測された事象についてそれぞれガンマ線スペクトル解析を行った。

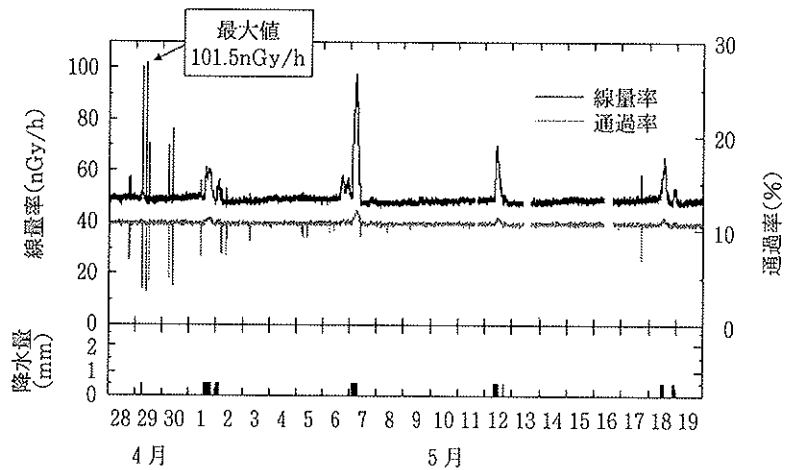


図2 4月～5月の線量率、通過率及び降水量の変動状況(2分値)

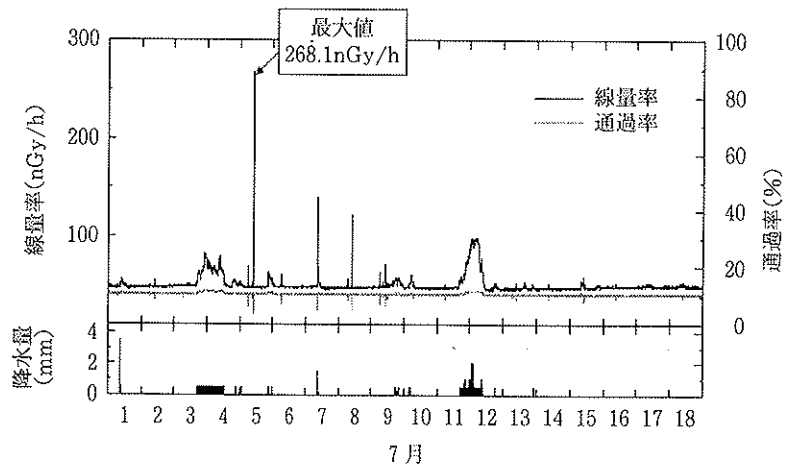


図3 7月の線量率、通過率及び降水量の変動状況(2分値)

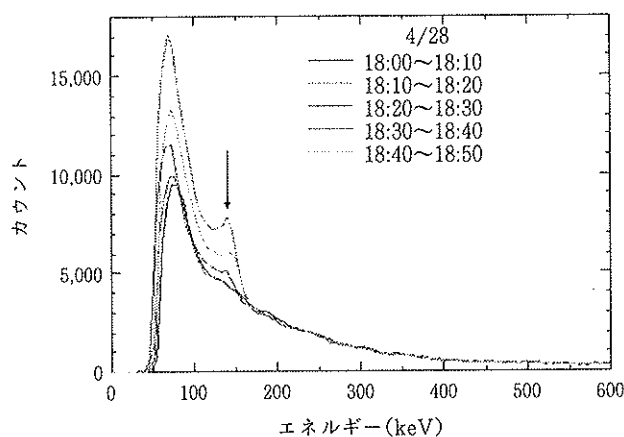


図4 ガンマ線スペクトル(4月28日18:00~18:50)

(1) 4月~5月の事象

図4に4月28日18:00~18:50に観測されたガンマ線スペクトル図を示す。各スペクトルは10分毎に積算したものである。18:10~18:20, 18:20~18:30及び18:40~18:50のスペクトルにおいて140keV付近にピークを検出した。同様なスペクトルを、4月29日5:20~5:30, 9:50~10:00, 12:10~12:20, 12:40~12:50, 4月30日6:10~6:20, 9:50~10:00及び5月17日18:00~18:10にも観測した。各スペクトルのピーク面積の時間変化を図5に示す。ピーク面積は時間とともに半減期約6時間で減少し、約2日後には見られなくなった。このピーク面積の減衰傾向及び140keV付近にピークが認められたことから、4月~5月に観測された空間線量率の変動はTc-99m (141keV 放出比89.1%, 半減期6.01時間) によるものであると判断した。Tc-99mは前立腺ガンの骨シンチグラムなどに使用されており、Tc-99mを投与された人が放射線検出器に接近したものであると思われる。なお、志賀局周辺のビデオ撮影映像(1分間隔のイ

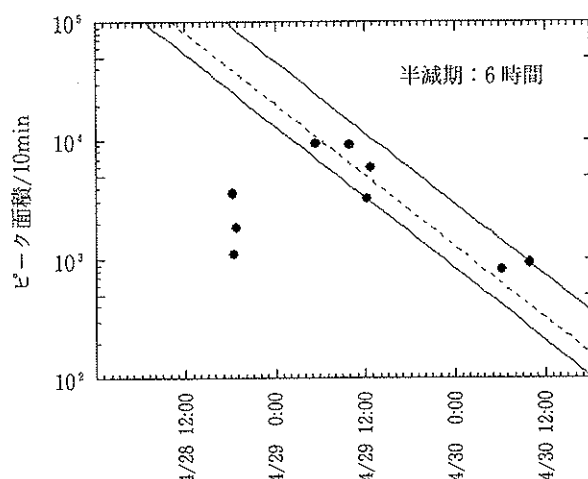


図5 ピーク面積の時間変化(4月)

ンターバル撮影)を確認したところ、上記時間帯に放射線検出器付近に人影をとらえていた。同一人物かどうかは確認できないが、共通した特徴がみられた。

(2) 7月の事象

図6に7月5日9:50~10:10に観測されたガンマ線スペクトル図を示す。各スペクトルは、図4と同様、10分毎に積算したものである。4月~5月の事象と異なり、170keV付近及び250keV付近に2本のピークを検出した。同様なスペクトルを7月5日6:20~6:30, 7月6日6:10~6:20, 7月7日8:30~9:00, 7月8日6:50~7:00, 9:50~10:00, 7月9日6:20~6:30, 10:10~10:20, 7月14日9:00~9:10, 7月15日9:20~9:30及び7月16日9:30~9:40にも観測した。図7にピーク面積の時間変化を示す。ピーク面積は半減期約2.8日で減衰していった。170keV付近及び250keV付近の2本のピーク及びピーク面積の減衰傾向から、7月に観測された空間線量率の変動はIn-111 (171keV 放出比90.2

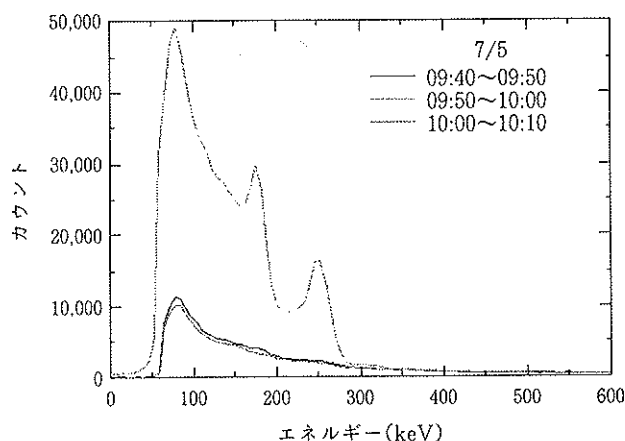


図6 ガンマ線スペクトル(7月5日9:40~10:10)

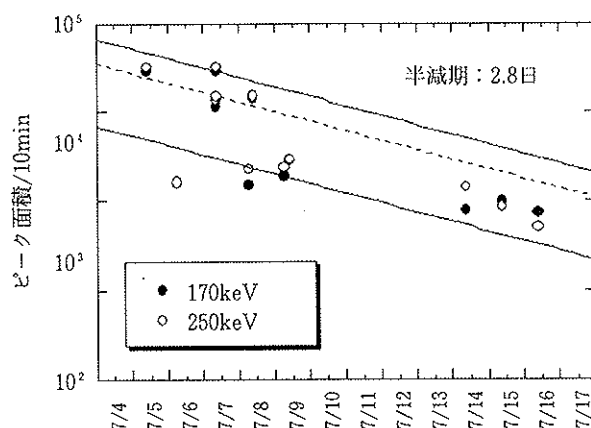


図7 ピーク面積の時間変化(7月)

%, 245keV 放出比94.0%, 半減期2.805日)の可能性が高いと判断した。In-111は骨髄シンチグラムによる造血骨髓機能の診断などに使用されている。また, 上記時間帯の志賀局周辺のビデオ撮影映像には同一人物らしき人影がとらえられていた。

しかしながら, 表1に示す通り, In-111の供給量はTc-99mと比較して極端に少ないことから, 石川県内におけるIn-111の使用状況について県原子力安全対策室が調査を行った。財団法人 日本アイソトープ協会に照会したところ, 県内の医療機関にIn-111を出荷しており, 7月4日にIn-111を投与した医療機関があることが判明した。

(3) 志賀局周辺の状況

図8は志賀局周辺の図であるが, 放射線検出器の前はグランドゴルフ場となっている。グランドゴルフ場の利用者は多く, 早朝から放射線検出器近くでグランドゴルフをプレイしている状況も映像でとらえている。放射線検出器周辺は柵で囲われているが, 放射線検出器と柵との間の距離は最短で約1.5m程度であり, 放射線検出器までかなり接近できる。このことから, 今回の事象は核医学診断用RI投与者がグランドゴルフをプレイしている際に放射線検出器に接近したことによるものと推測される。

図9は7月7日の空間線量率の変動(2分値)を示している。8:40に急速に線量率が増加し8:58に更に増加, その後急速に減少している。8:40~8:56までは雨が降っており志賀局の軒下で雨宿りをしている人が数名いたという目撃情報がある。8:58には雨は止み, グランドゴルフ場へ出た際に放射線検出器の横を通過したために線量率が上昇しその後元のレベルに戻ったと考えられ, そのことは放射線の変動からもうかがえる。なお, 線量率が上昇した時に雨が降っていないことが多いのは, 雨がグランドゴルフの妨げになるからだと推測される。

(4) 被ばく線量の推定

RI投与者がグランドゴルフをプレイしていると推測したことから, 参考までにグランドゴルフをしている人等, 周辺の人へのRI投与者による被ばく線量の概算値を求めてみた。それぞれの事象について, 最大上昇値を示したときに放射線検出器から2mの距離にいたと仮定した。また物理的半減期のみを考慮し, 代謝によるRIの排出は考慮しない。

まずグランドゴルフをしている人につ

表1 放射性医薬品に使用される核種の供給量の推移
単位: MBq

核種	年度	2002	2003	2004
^{99m}Tc		321,517,898	334,495,137	324,617,167
$^{99}\text{Mo}-^{99m}\text{Tc}(\text{G})$		174,768,830	177,683,120	172,893,605
^{201}Tl		26,096,951	25,974,111	25,031,906
^{123}I		23,894,129	23,778,129	23,061,509
^{67}Ga		16,632,610	15,641,121	14,117,202
^{131}I		7,929,020	8,644,971	9,077,783
^{133}Xe		8,790,275	7,538,935	6,457,240
$^{81}\text{Rb}-^{81m}\text{Kr}(\text{G})$		876,900	822,695	722,425
^{111}In		213,971	212,972	214,563
^{51}Cr		6,771	5,273	5,384

(G): ジェネレータ

放射線利用統計2005²⁾ p39より抜粋

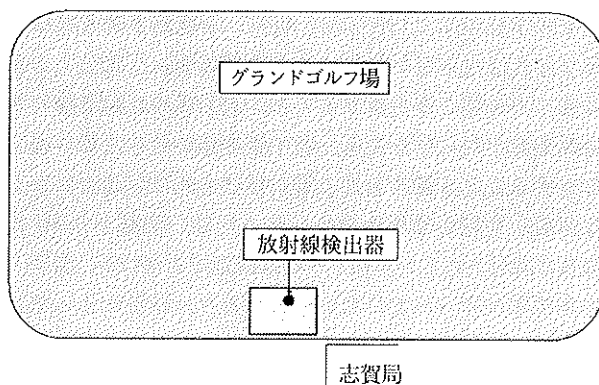


図8 志賀局周辺図

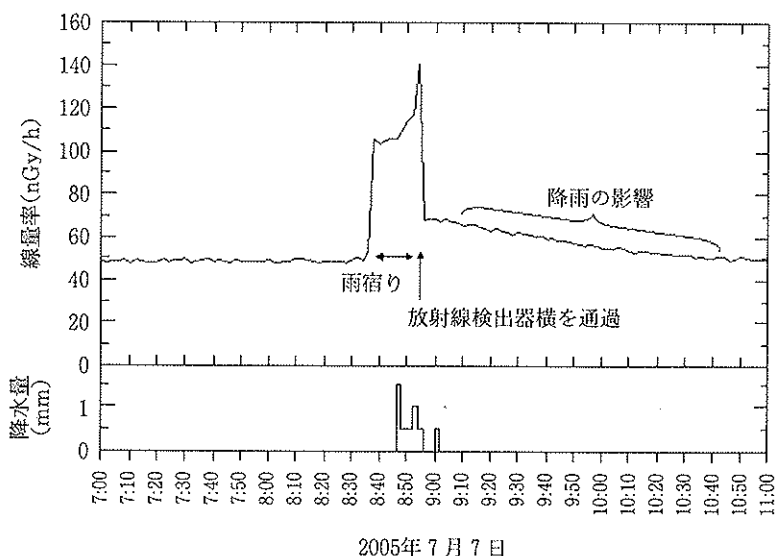


図9 7月7日の空間放射線の変動(2分値)

いて、1日のプレイ時間を0.5～3時間、RI投与者との距離を0.3～1mとし、30日間継続した場合の被ばく線量は、Tc-99mで0.0001～0.0074mGy、In-111で0.002～0.13mGyとなった。これらの値は、1mGy=1mSvとしても、公衆の年線量限度1mSvを下回っている。

次に、家族がRI投与者と就寝した場合を考える。就寝時間を1日8時間、RI投与者との距離を0.2mとすると、30日間継続した場合の被ばく線量は、Tc-99mで0.04mGy、In-111で0.80mGyとなり、この場合も公衆の年線量限度1mSvを下回っている。

代謝によるRIの排出を考慮すると被ばく線量はさらに低くなると考えられるため、基本的に問題はないと考えられる。しかしながら子供を抱いて就寝している場合等も考えられ、この場合子供の被ばく量がかなり高くなる恐れがある。

厚生省の「放射性医薬品を投与された患者の退出に関する指針」(平成10年6月30日付)によれば、医療機関が核医学診断用RI投与者を病院から退出させる際に行わなければならない説明・注意事項の中に、①公共の場で過ごす時間を極力避けること、②子供や妊婦と接する時間を最小限にすること、③子供を抱いたり、添い寝したりすることを避けること等が挙げられている。しかしながら、今回の事象が発生したことは、医師からRI投与者に説明されているかどうかは確認できないが、説明・注意事項が守られていない恐れもあり、状況によってはRI投与者周辺の人が被ばくする恐れが十分に考えられる。

(5) 観測値の取扱いにおける問題点

今回の観測値は県のウェブサイトや原子力防災Nネットにおいてリアルタイムに表示された。このように、異常値を観測しても原因調査ができないままに表示している現状である。異常値を観測した原因を特定するには時間がかかるため、外部からのこれら異常値に関する問い合わせがあった場合、即座に対応することは困難である。実際、7月の事象については、あまり使用されていない核種であり、裏付けをとるまでに時間を要した。また表2に示すように、石川県は放射性医薬品の使用施設数の人口比が全国一であることから、今後、Tc-99mやIn-

表2 放射性医薬品使用施設数の人口比の推移
(上位3位まで)

年度 順位	2002 (%)*	2003 (%)*	2004 (%)*
1位	石川県 2.4	石川県 2.3	石川県 2.2
2位	北海道 1.7	北海道 1.8	北海道 1.7
3位	富山県 1.6	鹿児島県 1.6	愛媛県 1.6

* 対人口10万人比
放射線利用統計2005²⁾ p37より抜粋

111以外の核種が検出される可能性がある。今回の事象に関する外部からの問い合わせは無かったが、今後同様の事象が発生し異常値に関する問い合わせがあった場合の対応について検討が必要である。

5 ま と め

平成17年4月～5月にかけて及び7月に核医学診断用RI投与者の接近によるものと推定される空間放射線量率の変動が観測された。ガンマ線スペクトル解析及び観測局周辺の状況から、4月～5月の事象についてはTc-99mを、7月の事象についてはIn-111を投与した患者が、グランドゴルフをプレイしていて、グランドゴルフ場傍にある放射線検出器に接近したために空間放射線が上昇したことが判明した。また、RI投与者が周辺の人に与える被ばく線量の概算値は公衆の年線量限度1mSvを下回っており、基本的に問題はないと考えられた。しかしながら、状況によっては被ばくを受ける恐れが考えられた。

本県においては、放射性医薬品の使用施設数の人口比が全国一であることから、今後、Tc-99m、In-111以外の核種を志賀観測局で検出する可能性が十分にあり得ると考えられた。

文 献

- 1) 原子力安全委員会：環境放射線モニタリングに関する指針(平成13年3月一部改定)
- 2) 社団法人日本アイソトープ協会：放射線利用統計2005

〔資 料〕

電子化による物品発注管理システムの運用状況

—— 物品発注状況の解析 ——

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, ログ解析

1 はじめに

石川県保健環境センター（以下、「センター」とする。）では独自に8つの環境目的・目標を掲げて国際規格の環境活動（ISO14001）を実施してきたが、その1つである省資源化に関し、これまでに物品発注管理システム（以下、「物品システム」という。）等の電子化への取組みを随時報告してきた^{1)~5)}。

物品システムは、予め導入されていた既存情報システム上に共存する形で構築され、プログラム作成等の人的コスト以外はハードウェア等の購入費用等の追加コストは発生しなかった。

物品システムは、試験的な運用を平成15年度から開始し、事務処理の改善及び迅速化も含め、情報の一元管理とともに高度化を進めてきた。

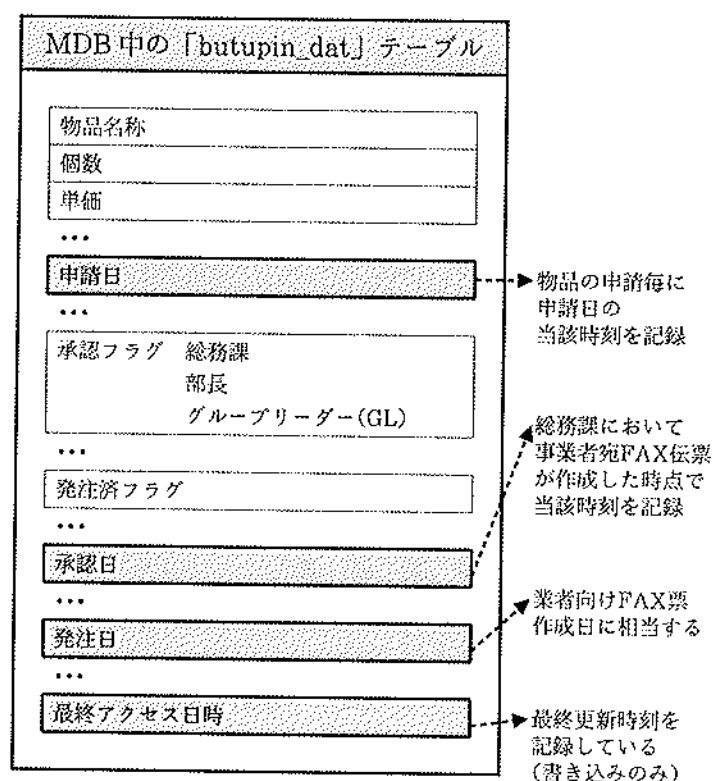
このシステムは、ISO環境活動である省資源化の目的の推進に合致し、センター全体の物品発注申請に係る事務量を軽減し、事務効率の向上を可能とするとともに、予算執行・決算事務における各種集計作業への利活用により、物品の購入方法の改善や、コスト重視の予算執行に大きな寄与してきた。

今回は、さらに効率的なシステム運用を目指すため、運用実績を解析し、改善に向けた課題等を明らかにしたので結果を報告する。

2 ログの収集

システム運用状況の把握には、物品システムに採用されたOSであるWindows NT 4.0

Server（マイクロソフト社製。以下、「NT」とする。）でのWebサーバーであるIIS Version 4.0（ASP）の当該システムに関する利用者等からのアクセスの履歴に関する記録（以下、「ログ」とする）を収集しておく必要があると考えられた。



※入力時（申請時）及び更新時の日時を含める形となっている
SQL文中の「fn now()」関数によるサーバーの日時を記録している

図 1 更新日時を加味したDBの構造

Operating Report of the Electronic Ordering System. — Statistically Basic Analysis of Electronic Ordering System in the Institute —, by YOKOYAMA Mitsuru (Information Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : ISO14001, E-ordering System, Analysis of Logs

しかし、NT 付属のログ機能は汎用性が高く、物品システムが格納されている他のアプリケーションに対しても広く適用されるため、目的とする物品システムのもの他に、不必要なログを収集することでシステム負荷が過大になることも予想された。

さらに、ログを常時採取することは、各利用者別の処理時間の遅延等、運用効率の低下を含め、システム運用上での問題の発生が懸念された。

このため、物品システムにおいては(図1)、アクセス履歴の一部をデータベース(以下、「DB」とする。)へ記録保存することにより、必要最小限のログを物品システム運用中に記録し、NT のログ機能とほぼ同等の効果を得ることとした。

3 ログの解析

ログの解析には、平成17年度の物品発注状況記録したDBであるAccess(マイクロソフト社製)から、Excel(同社製)シートへ一旦変換し、Excel 上でのデータ集計・解析機能であるピボットテーブル及びマクロ機能を用いた。

具体的には、ピボットテーブルは機能により、各物品申請の日時と他の項目とのクロス集計等を、また、マクロ機能により、祝日、土・日曜日を除く申請から発注までの期間(以下、「業務期間」とする。)を計算項目とし、前者機能によるクロス集計を試みた。

4 解析結果

平成17年度(平成17年4月～平成18年3月)分の解析結果について、次の点が挙げられた。

- (1) トップページのアクセス数は、年間通じて、おおむね1,400回/月(80回/日)程度であった。(図2)
- (2) のべ3,261件/年(発注物品の入力件数)の発注申請があった。
- (3) 月単位での発注(図3)では、200～350件程度で多少の変動はあるが、極端な変動はみられなかった。
- (4) 発注の内訳(図4)では、試験検査用のガラス器具等の機材(46%)、薬品・ガス(34%)、試料(2%)と、試験検査に係る発注物品件数は、センター全体の82%を占めた。
- (5) 総務部門(経理部門)では、週間発注スケジュール

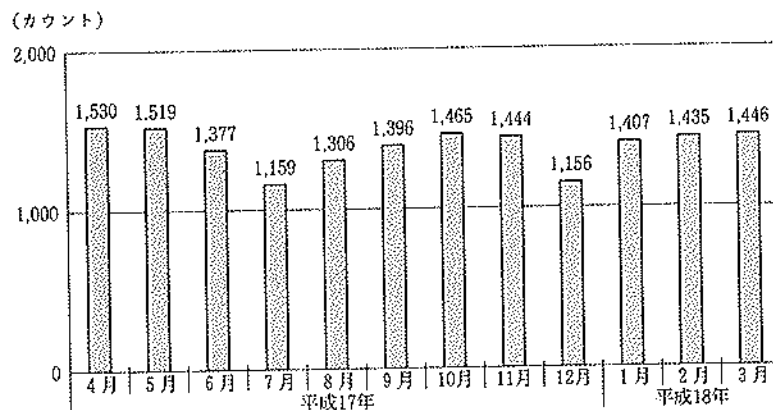


図2 本システムでのトップページ月間アクセス回数

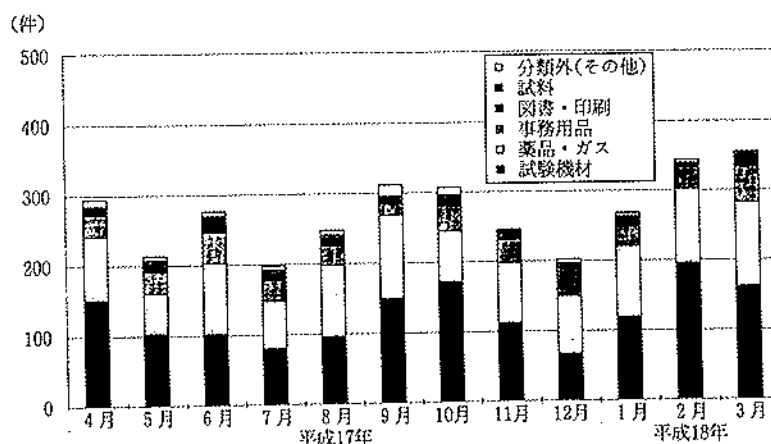


図3 月別の発注申請件数

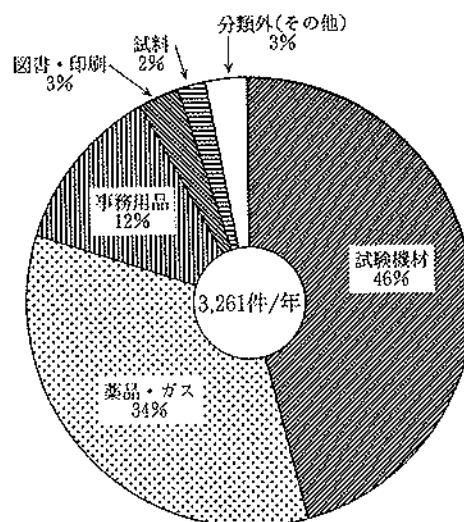


図4 年間物品発注件数の種類別構成比(平成17年度)

ルを組み、原則水曜日に業者発注を一括して行うことにより、

ア 総務部門での事業者向け FAX 作成では、全体の発注申請の52%が水曜日に集中していた。(表 1)

一方、利用者については、

イ 曜日別の発注申請(表 2)は、火曜日が多く(25%)、平日の他の曜日では、大きな差異はなく、利用者はおおむね必要が生ずるたびに発注申請していることが分かった。

ウ 上司等の承認状況(表 3、1月26日～3月31日までの集計)についても同様の傾向になっており、申請がなされる都度、承認申請に係る手続きが行われていた。

(6) 利用者の申請日から総務部門での業者発注 FAX 作成まで5業務期間以内に90%の発注が円滑に行われていた(図 5)。

(7) 至急必要な物品については、水曜日の一括処理の他に、例外的な措置として行われていた。

(8) 修理・修繕については、発注の一時停止にはならないものの、1カ月以上保留された案件があった。

(9) DB の定期及び随時保守に最も適切なものは、アクセス回数の最も少ない木・金曜日のいずれかの時期に実施することが望ましいと考えられた。

5 考 察

ログの解析結果から、物品システムでは発注申請及び承認手続きは、水曜日に最大負荷に達することが判明した。

また、利用者から次の点について改善要望がなされたので、今後の検討課題とした。

(1) システム過負荷状態の改善

利用が集中すると、システムが一時的に過負荷状態となり、アクセスしづらく、しばらく新規ログインのできない状態が生じること。

(2) 発注申請の履歴表示への完全な対応

物品システムの1つのメニューである発注物品の過去履歴一括表示機能においては、常に現時点での閲覧(リアルタイム)ができる。

各グループ(担当)においては、年度末に近づくほど履歴の表示物品数が多くなり、処理時間の増大、表示時間の遅延を招くことがあるため、これを解消出来ること。

(3) 管理モードメニューの各集計処理時間の短縮

総務部門向けの小事業別等の執行額集計機能において、利用者に対し、40秒以上かかる表示処理時間を気にならない程度まで短縮(3秒以下)すること。

これらの点については、採用するアルゴリズムの変更やプログラムコードの書き直し等によるソフト面での改善では、意図する処理速度の向上がもはや望めない状況にある。

表 1 総務部門での業者向け発注日の曜日別集計表

単位: 件

曜 日	月	火	水	木	金	総計
発注回数	342	855	1,693	145	226	3,261
割合(%)	10%	26%	52%	4%	7%	100%

※期 間: 平成17年4月1日から平成18年3月31日までの1年間の集計値

発注回数: 延べ発注回数であり、総計は DB への記録レコード数と一致する

発 注 日: 総務課物品担当が本システムから業者向け物品発注 FAX 票を作成した日

表 2 利用者申請日の曜日別集計表

単位: 件

曜 日	月	火	水	木	金	土・日	総計
申請回数	618	822	623	561	636	1	3,261
割合(%)	19%	25%	19%	17%	20%	0%	100%

※期 間: 平成17年4月1日から平成18年3月31日までの1年間の集計値

申請回数: 利用者からの延べ申請回数であり、総計は DB への記録レコード数と一致する

申 請 日: 利用者が本システムへの入力を行った日

※土・日曜日の1件の申請: 休日出勤での申請

表 3 承認回数の曜日別集計表

単位: 件

曜 日	月	火	水	木	金	総計
承認回数	108	169	148	106	98	629
割合(%)	17%	27%	24%	17%	16%	100%

※期 間: 平成18年1月26日から3月31日までの約2カ月間の集計値

承認回数: 利用者(入力者)からの GL(グループリーダー)、部長、総務課物品担当の3者の承認回数の合計

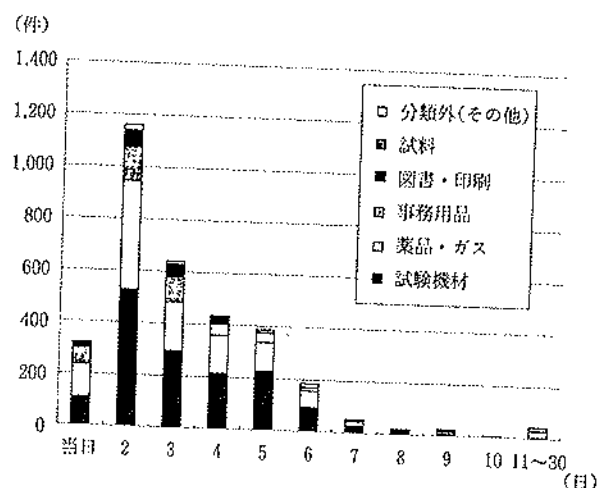


図 5 発注申請から発注 FAX 作成までの業務期間(平成17年度)

特に(1)項については、サーバー側のパラメータの見直しにより、状況が緩和された状況にあったが、各利用者のクライアントパソコン（以下、「端末」とする。）での表示待ち時間の面で考慮する余地を残しており、将来の次期システム導入時においては、端末及びサーバー側の両者ともにCPU等のハードウェアを強化する方向での対応が要求された。

6 ま と め

今回の報告に示したログの解析結果を踏まえ、利用者への影響の最も少ない保守の時期（曜日）を特定できた。

また、現行の共通基盤であるサーバーシステムでは、処理能力の点に関し、飽和点に近づいていることが判明した。

したがって、今回の解析により明らかになった以下の点について、次期システムの開発、導入にあたり配慮することとし、発展的な拡充について取組みを始める時期に差し掛かったと考えている。

(1) システムに相対的に負荷をかけないログの簡易記録機能を有すること。

(2) 共存する他のセンター情報処理システムとの併用にあたっても支障のない構成となること。

(3) システム運用分析・解析からの運用状況への随時的な自己フィードバック、さらに評価までを包括したシステム機能として有すること。

すなわち、システム管理者が、ログ解析から、システム運用状況の客観的に容易に評価のできること。

(4) 最も多いアクセス数を記録している水曜日の負荷に対し、十分に余裕をもって対応できること。

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）
- 4) 初瀬 裕，瀬戸正行，竹野裕治，砺波和子，塚林裕：石川保環研報，42，64—68（2005）
- 5) 横山 暢：石川保環研報，42，1—6（2005）

〔資 料〕

石川県における健康寿命（健康余命）の試算について

石川県保健環境センター企画情報部 翫 幹 夫

キーワード：健康寿命，健康余命，DFLE，介護保険

1 はじめに

石川県において、全ての県民が健康で長生きする事を実現するための計画として、平成12年3月に石川県健康づくり計画「いしかわ健康づくり21」を策定し健康づくりがスタートした。¹⁾平成17年度にはその中間報告ならびに改訂版として、新たに「いしかわ健康フロンティア戦略2006—石川県健康長寿総合計画—」（以下「フロンティア戦略」とする）を目標として掲げることとなった。²⁾

「フロンティア戦略」策定の趣旨の1つに「高齢者が生涯にわたり元気で自立した生活を送る。」があり、ここでは高齢者が元気で自立した生活を送る期間を健康寿命と位置づけ、健康増進対策、生活習慣病予防対策、介護予防対策の推進による成果を評価する指標の1つとして健康寿命の数値目標を設定している。「フロンティア戦略」においては、健康寿命を1年程度伸ばすことを5年以内での目標として定めている。

今回、「フロンティア戦略」の達成状況評価指標として健康寿命の算出方法を検討し石川県における健康寿命を試算したのでその結果を報告する。

2 健康寿命の算定目的

健康寿命算出の目的としては次の点があげられる。³⁾

- (1) 健康寿命を短縮させている要因を明らかにすること
- (2) 取組むべき地域保健計画の方向性が明らかになり、行政と住民とが情報の共有化を図ることができること
- (3) 実施された計画を評価して課題を明らかにし、次の計画・実施につなげることができること
- (4) 健康寿命の重要性が住民にとっても分かりやすい

ものとなること

- (5) 地域住民が健康づくり運動に参加する動機付けとなり、それを継続する推進力となること
- (6) 健康寿命の延伸等の明確な目標を立てることが可能になり、今後の計画のフィードバックが図られること
- (7) 計画が行政評価の時代にマッチしたものとなること
- (8) 計画が行政施策として打ち出しやすいものとなること

3 健康寿命の算出方法

健康寿命とは、「あと何年、自立して健康に生きられるか」を測る新しい健康指標であり、0歳の健康余命ともよばれている。健康余命とは、生命表の手法によりある一定の健康状態で生存できる期待平均年数を計算するものである。「ある一定の健康状態」は、そのもとになる健康の定義により異なり、①活動的平均余命（心身ともに自立）、②機能障害のない平均余命、③痴呆のない平均余命などがある。⁴⁾いしかわ健康づくり21のもととなった厚生省（当時、現在厚生労働省）の定めた「21世紀における国民健康づくり（健康日本21）」や厚生労働白書（平成17年度）では、健康余命（非障害期間）を「痴呆若しくは寝たきりにならない状態で生活できる期間」と定義している。^{4,5)}

この健康余命には以下に示す2種類の考え方がある。

- (1) 障害無し平均余命（Disability Free Life Expectancy）
一定の障害状態にある期間を除いて計算する平均余命…「健康でない人」の基準を決める
- (2) 健康調整平均余命（Health Adjusted Life Expectancy）

Estimation of Healthy Life Expectancy in Ishikawa prefecture. by ITOH Mikio (Information Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Healthy Life Expectancy, DFLE, Nursing Care Insurance

傷病・障害状態に重み（0から1の間）を掛けて計算する平均余命…全ての障害を考慮する。

このうちWHOは(2)の方式を採用しているが、疾病の選択や重みのかけかたなどパラメータが多岐にわたり算出が容易ではない。^{5)・6)}

またその平均余命の算出方法としては大きく次の3通りがある。¹⁰⁾

(1) Sullivan 法

年齢別障害有病率（ π_x ）及び生命表の生存数（ l_x ）と定常人口（ L_x ）から算出する方法で、平均余命を2つの部分に分ける。

$$\text{平均余命} = \sum_{i=x}^{\infty} L_i / l_x = \sum_{i=x}^{\infty} (1 - \pi_i) L_i / l_x + \sum_{i=x}^{\infty} \pi_i L_i / l_x$$

この式の右辺第1項は障害無し平均余命、第2項は障害有り平均余命となる。

(2) Katz 法

死亡率の代わりにある年齢まで障害のなかった人が、その後、障害を発生する、または死亡する率（いわゆる障害・死亡発生率）を用いて生命表を作成する。この場合の平均余命は、障害無し平均余命と等しい。

(3) Rogers 法（多相生命表）

障害有り状態、障害無し状態と死亡の3つの状態（3相）を考えて、生命表を作成する。

x歳の障害無し平均余命は、x歳以上の障害無し定常人口の和をx歳の生存数で除したものである。

平均余命は、Sullivan法、Rogers法では、「年齢x歳の人における障害無しの平均生存期間」を指し、Katz法では、「年齢x歳の障害無しの人が始めて障害または死亡を発生するまでの平均期間」を指す。

それぞれの方法を用いて計算するのに必要なパラメータは、Sullivan法では年齢別障害有病率、Katz法では障害・死亡発生率、Rogers法では障害発生率、障害回復率、障害無し死亡率、障害有り死亡率である。Katz法、Rogers法では、算出に必要なデータを得るのに追跡調査（コホート調査）が必要となるのに対し、Sullivan法は既存の統計資料から算出する事が可能で

ある。このことから本県においてはSullivan法を用いることとした。

4 石川県における算出方法

本県ではSullivan法による健康寿命の考え方に基づき、「自立した生存者数」と「自立した定常人口」を求めて健康寿命（平均自立期間）を算定した。この健康寿命については、毎年状況を把握し評価する必要があるため、経年推移が比較的容易に確認できること、広域圏間の比較ができること、健康の捉え方についても客観性があることを優先し、毎年活用できる介護保険の要介護認定のデータを用いて計算を行うこととした。すなわち今回の健康寿命算定においては、健康の定義を「介護保険制度による要介護または要支援に認定されていない健康」とすることとした。

介護保険に関するパラメータを用いる利点としては以下の7点があげられる。

- (1) 調査に用いられる判定基準等に客観性があること
- (2) 調査者による判定の差異が少なく再現性があること
- (3) 調査後のデータ処理が容易であること
- (4) 少なくとも年に1回は調査が可能であり、調査に要する負荷が少ないこと
- (5) 経年変化を追跡できること
- (6) 地域を問わず実施可能であること
- (7) 既存の資料を利用できること

なお、介護保険における要介護度については、要支援～要介護5までの6段階あるが、このうちどの介護度までを「健康」、「不健康」と判定するかは議論が分かれるところである。また、どの介護度から「不健康」とするかにより、それ未満の介護度は健康寿命の算定の対象外となる（生活に支障がある状態であっても健康と判断する）ため、健康でないにも関わらず健康と判断される人を増加させる可能性がある。そこで要支援以上から要介護5までのそれぞれの段階における健康寿命（65歳健康余命）をそれぞれ試算した。参考として介護度の各段階の判断の目安を表1に示す。

表 1 介護度および身体の状態

要介護状態の区分	身 体 の 状 態
要 支 援	日常生活の能力は基本的にあるが、入浴などに一部介助が必要。
要介護1	立ち上がりや歩行が不安定。排泄、入浴など一部介助が必要。
要介護2	起き上がりが自力では困難。排泄、入浴などで一部または全体の介助が必要。
要介護3	起き上がり、寝返りが自力ではできない。排泄、入浴、衣類の着脱などで全体の介助が必要。
要介護4	排泄、入浴、衣類の着脱など多くの行為で全面的介助が必要。
要介護5	生活全般について全面的介助が必要。

基本データ

平成16年度における健康寿命の算出に必要な数値は以下の統計情報を用いた。

人 口：石川県の人口動態（県民文化局）平成14年人口（平成14年10月1日推計人口）および平成16年人口（平成16年10月1日推計人口）

死 亡 数：衛生統計年報 平成12年～16年の死亡数の平均

要介護者数：平成16年11月審査分（平成16年10月末）要介護者数

(1) 生命表（平均余命）の作成

健康寿命の算定にあたっては、県において生命表を毎年算出できるようにする必要がある。

算出は東医大誌に切明義孝氏らが発表した「介護保険制度を利用した健康寿命の算出方法の開発」を基にして行った。^{10)～13)}

・生命表作成に使用した生命表関数計算方法は、C. L. Chiang 氏の方法

・各年齢の死亡率については、0歳、1～4歳、5歳階級ごと及び85歳以上の死亡率を使用

・死亡統計データは、各年人口動態調査確定数で5年平均値（例：平成16年は平成12年から16年までの年毎の死亡数の平均）

切明氏の方法では、例えば平成16年の生命表を作成するために死亡数として平成14から18年の平均を用いるが、この場合平成16年の生命表を作成するためには平成18年の死亡数が必要のため平成19年まで待たなければならず、約3年間のタイムラグを生じてしまう。そのため本県では、タイムラグを生じさせないため対象年から5年間さ

かのぼった5年分の死亡数（この場合平成12年から16年）を用いることでより迅速に結果を算出できるようにした。

・年齢階級別死亡率算出のための分母としての人口は、人口動態調査の中央年の人口の年齢階層別（例：平成16年は平成14年推計人口を用いる。）

・国勢調査年は、国勢調査人口を用い、それ以外の年は毎年10月1日現在の推計人口

各年齢階級の「自立した生存者数」及び各年齢階級以上の「自立した定常人口」については、次のように算定した。

年齢階級別の自立した生存者数

$$= \text{生存者数} \times (1 - \text{要介護者割合})$$

年齢階級以上の自立した定常人口

$$= \text{定常人口} \times (1 - \text{要介護者割合})$$

・要介護者割合については、65歳以上の各年齢階級で要支援以上と認定された者の数を65歳以上の各年齢階級の人口で除したものとした。

・年齢別の健康余命（平均自立期間）は、年齢階級以上の自立した定常人口を年齢階級別の自立した生存者数で除して求めた。

年齢別の健康余命（平均自立期間）

$$= \text{年齢階級以上の自立した定常人口} /$$

年齢階級別の自立した生存者数

さらに、生命表の年齢別の平均余命と年齢別の健康余命の差を求め、年齢階級別平均障害期間を求めた。

年齢階級別平均障害期間

$$= \text{平均余命} - \text{健康余命（平均自立期間）}$$

切明氏らは年齢階級別平均障害期間の、65歳から平均寿命近くでの変化の幅は小さくほぼ一定であることを報告している。石川県においても図1に平成16年の65歳か

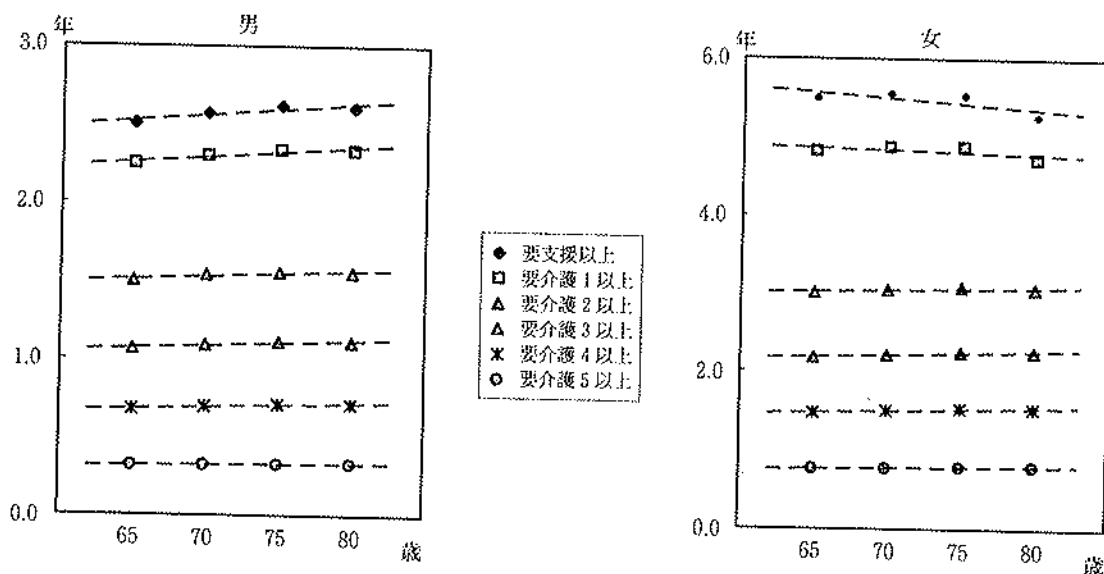


図1 各年齢階級における障害期間

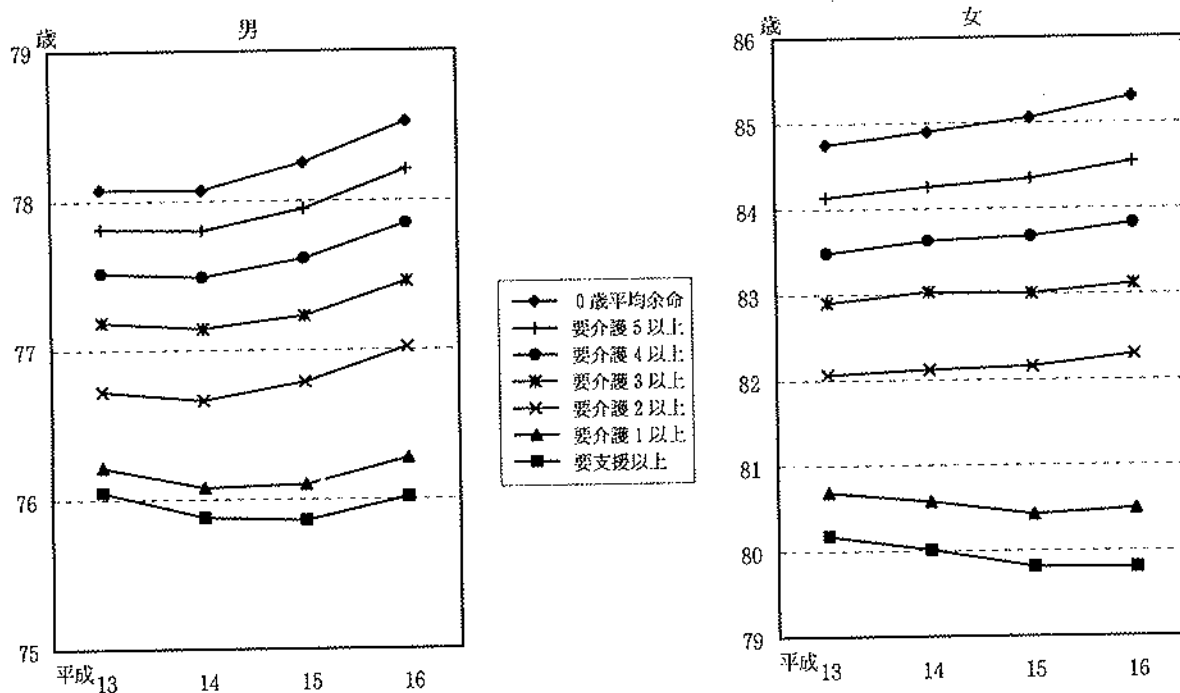


図 2 石川県の0歳平均余命と健康寿命の推移

ら80歳の各年齢階級における介護度の各段階以上を不健康とした場合での平均障害期間の変化を示すが、各年齢階級において平均障害期間に大きな変動が認められない。したがって、切明氏らと同様に65歳における平均障害期間が65歳以降の平均障害期間と変わらないものと仮定して、健康寿命を算出した。^{11), 12)}

健康寿命 = 0歳平均余命 - 障害期間

障害期間 = 65歳平均余命 - 65歳健康余命

5 結果と考察

図2に平成13年から16年にかけての石川県における健康寿命と平均寿命（0歳平均余命）の変化を示す。また表2に平成14年から16年にかけての性別、市町・2次医療圏別65歳平均余命と65歳健康余命ならびに0歳平均余命を示す。

人口が少ない市町や人口構成が極端に高齢化している市町においては出生や死亡の状況で平均余命が異なってくるため正確な値を求めるのは困難である。この点は健康余命を算出する基となる各市町の生命表を作成する際に問題となることとして広く知られている。人口が3万人以下の場合には年によって値が変動するという報告もあり石川県においてはある程度の人口規模の市町または2次医療圏で評価を行うことが適切であると考えている。¹⁴⁾

なお、今回の試算結果については、以下の問題点を含んでいる。

(1) 介護保険制度を用いて算出しているために、要支援・要介護者数データは平成13年度分以降しか入手できない。

(2) 介護保険制度を利用した簡易的なものであり、疾病や若年者の障害については考慮されていない。

(3) 介護を要するような状態であっても全ての人が要介護認定の申請をするわけではないので、厳密に実態が反映されていない。

(4) 介護保険制度の変更などの影響を受ける可能性がある。

(5) 簡易的に計算しているものであり、今後、国等が算出するものとは必ずしも一致しない。

(6) 介護保険制度が導入された平成12年度から数年は、制度の周知状況による影響を受ける可能性がある。

図2において要支援や要介護1を含めた健康寿命の経年変化が他の段階の経年変化と異なっているのは上で述べた(3)や(6)の影響を受けているものと考えている。

また、健康寿命の計算方法については、始めに述べたようにいくつかあり、手法により結果も多様となる。したがって他で公表された健康寿命については、定義や計算方法が同じでないと比較することは無意味である。

今回、種々の検討を経て健康寿命の試算を行ったが、継続的に健康寿命を算出しその算定地域における変動要因等との関連性について調べることで、新たな知見が得られるものと期待している。

表2-1 平成14年の石川県における性別市町別健康余命、平均余命

H14年	65歳健康余命										H14年	65歳健康余命										0歳平均余命		
	65歳平均余命											女	65歳平均余命										0歳平均余命	
	要支援 要介護5	要支援 要介護1	要介護 要介護5	要介護 要介護2	要介護 要介護3	要介護 要介護4	要介護 要介護5	要介護 要介護5	要介護 要介護5	要介護 要介護5			要支援 要介護5	要支援 要介護1	要介護 要介護5	要介護 要介護2	要介護 要介護3	要介護 要介護4	要介護 要介護5	要介護 要介護5				
石川県	15.5	15.7	16.3	16.3	16.8	17.1	17.4	17.7	78.1		石川県	17.7	18.3	19.9	20.8	21.4	22.0	84.9						
南加賀	15.5	15.7	16.4	16.9	16.9	17.2	17.5	17.7	77.9		南加賀	17.9	18.4	20.0	20.8	21.4	22.0	84.4						
石川中央	15.6	15.7	16.3	16.8	16.8	17.2	17.6	17.8	78.5		石川中央	17.5	18.0	19.7	20.7	21.3	21.9	85.1						
能登中部	15.6	15.8	16.3	16.8	16.8	17.1	17.3	17.6	77.5		能登中部	18.3	18.9	20.2	20.9	21.4	22.1	84.8						
能登北部	15.2	15.4	15.8	16.3	16.3	16.6	16.9	17.2	76.3		能登北部	17.7	18.5	19.9	20.9	21.5	22.1	84.6						
金沢市	15.5	15.7	16.3	16.8	16.8	17.2	17.6	17.8	78.5		金沢市	17.3	17.8	19.5	20.6	21.2	21.9	85.0						
七尾市	15.5	15.7	16.3	16.7	16.7	17.0	17.3	17.5	77.4		七尾市	18.1	18.7	20.0	20.8	21.3	21.9	84.7						
輪島市	15.5	15.6	16.2	16.7	16.7	17.0	17.4	17.7	78.0		輪島市	17.6	18.0	19.7	20.5	21.2	21.9	84.6						
小松市	15.7	16.0	16.3	16.8	16.8	17.1	17.4	17.7	76.7		小松市	18.1	18.8	20.0	20.9	21.5	22.1	84.7						
珠洲市	14.7	14.9	15.4	15.9	15.9	16.4	16.7	17.1	76.0		珠洲市	16.8	17.6	19.6	20.8	21.6	22.2	85.1						
加賀市	15.5	15.8	16.3	16.8	16.8	17.1	17.4	17.5	77.0		加賀市	17.9	18.6	20.1	20.8	21.4	21.9	83.7						
羽咋市	16.0	16.3	17.0	17.5	17.5	17.7	17.9	18.2	78.7		羽咋市	19.0	19.9	21.1	21.7	22.2	22.7	85.4						
かほく市	15.5	15.6	16.1	16.5	16.5	16.8	17.1	17.3	77.6		かほく市	18.3	18.7	20.3	21.1	21.6	22.2	85.0						
白山市	15.6	15.7	16.4	16.9	16.9	17.3	17.7	17.9	78.7		白山市	17.6	18.1	19.7	20.7	21.3	21.9	85.0						
能美市	15.7	16.0	16.8	17.3	17.3	17.6	17.9	18.2	78.9		能美市	18.6	19.1	20.5	21.3	21.8	22.6	85.4						
川北町	16.1	16.3	17.1	17.8	17.8	18.1	18.5	18.9	80.1		川北町	18.6	19.0	20.3	21.7	22.3	23.1	86.2						
野々市町	16.2	16.4	17.0	17.3	17.3	17.5	17.8	18.0	78.8		野々市町	18.5	19.0	20.4	21.1	21.5	22.1	85.1						
津幡町	15.4	15.6	16.2	16.7	16.7	17.1	17.4	17.7	77.9		津幡町	17.2	17.6	19.6	20.6	21.3	22.0	85.2						
内灘町	16.0	17.1	17.5	17.6	17.6	17.7	17.9	18.0	77.8		内灘町	18.1	20.9	21.6	21.8	22.1	22.3	85.1						
志賀町	15.1	15.3	15.8	16.2	16.2	16.6	16.8	17.1	76.5		志賀町	17.8	18.7	20.1	20.8	21.4	22.2	85.2						
宝達志水町	16.0	16.3	16.7	17.0	17.0	17.3	17.5	17.8	77.2		宝達志水町	18.6	19.1	20.2	21.0	21.5	22.1	84.2						
中能登町	15.5	15.7	16.3	16.8	16.8	16.9	17.3	17.6	77.8		中能登町	18.0	18.6	20.1	20.9	21.4	21.9	84.7						
穴水町	14.4	14.7	15.1	15.5	16.0	16.0	16.3	16.6	77.1		穴水町	17.2	17.8	19.1	20.1	21.0	21.8	83.3						
能登町	15.2	15.4	15.9	16.3	16.3	16.5	16.7	17.0	75.7		能登町	18.3	19.1	20.5	21.3	21.8	22.2	84.7						

表 2-2 平成15年の石川県における性別市町別健康余命、平均余命

H15年	65歳健康余命										H15年		65歳健康余命		0歳平均余命		
	男					女					男		女				
	要支援 要介護5	要支援 要介護1	要介護 要介護2	要介護 要介護3	要介護 要介護4	要支援 要介護5	要支援 要介護1	要介護 要介護2	要介護 要介護3	要介護 要介護4	要支援 要介護5	要支援 要介護1	要介護 要介護2	要介護 要介護3		要介護 要介護4	要介護 要介護5
石川県	15.5	15.7	16.4	16.8	17.2	17.6	17.9	78.2	石川県	17.5	18.1	19.9	20.7	21.4	22.1	22.8	85.1
南加賀	15.5	15.7	16.4	16.9	17.3	17.6	17.9	78.1	南加賀	17.7	18.3	19.9	20.7	21.5	22.1	22.8	84.7
石川中央	15.5	15.7	16.4	16.9	17.3	17.7	18.0	78.6	石川中央	17.2	17.8	19.7	20.6	21.3	22.0	22.7	85.2
能登中部	15.6	15.9	16.5	16.9	17.2	17.5	17.8	77.9	能登中部	18.1	18.7	20.2	21.0	21.5	22.2	22.9	84.7
能登北部	15.1	15.4	16.0	16.4	16.7	17.0	17.4	76.6	能登北部	17.6	18.4	19.9	20.8	21.5	22.1	22.9	84.5
金沢市	15.4	15.6	16.4	16.9	17.3	17.7	18.0	78.7	金沢市	17.0	17.6	19.6	20.5	21.2	21.9	22.6	85.2
七尾市	15.6	15.8	16.4	16.9	17.2	17.5	17.8	77.7	七尾市	18.1	18.7	20.1	20.9	21.4	22.0	22.8	84.5
輪島市	15.5	15.6	16.3	16.8	17.2	17.6	17.9	78.2	輪島市	17.4	17.9	19.7	20.4	21.2	21.9	22.6	84.7
小松市	15.7	16.0	16.6	16.9	17.3	17.6	17.9	77.1	小松市	18.0	18.8	20.1	20.8	21.5	22.1	22.9	84.6
珠洲市	14.5	14.7	15.4	15.8	16.2	16.6	17.0	76.4	珠洲市	16.3	17.2	19.4	20.5	21.4	22.0	22.9	84.5
加賀市	15.6	15.8	16.5	16.9	17.2	17.6	17.8	77.2	加賀市	17.6	18.3	19.8	20.6	21.3	21.9	22.4	83.9
羽咋市	16.0	16.3	17.0	17.5	17.7	17.9	18.2	78.7	羽咋市	18.6	19.3	20.7	21.4	22.0	22.6	23.1	85.0
かほく市	15.4	15.6	16.2	16.7	17.0	17.3	17.6	77.7	かほく市	18.0	18.4	20.1	20.9	21.5	22.2	22.8	85.5
白山市	15.5	15.7	16.4	16.9	17.3	17.7	18.0	78.6	白山市	17.6	18.2	19.9	20.7	21.3	22.1	22.7	85.3
能美市	15.7	16.0	16.9	17.3	17.8	18.1	18.4	79.3	能美市	18.3	18.9	20.5	21.3	22.0	22.8	23.6	85.9
川北町	15.6	15.9	16.5	17.0	17.5	17.7	18.3	79.1	川北町	18.3	18.6	20.3	21.3	22.4	23.4	24.1	86.5
野々市町	16.1	16.5	17.1	17.5	17.7	17.9	18.1	78.9	野々市町	18.3	18.9	20.4	20.9	21.5	22.1	22.7	85.0
津幡町	15.4	15.7	16.3	16.7	17.1	17.5	17.9	78.0	津幡町	16.9	17.5	19.5	20.3	21.2	22.0	22.9	85.5
内灘町	16.0	16.2	16.9	17.1	17.6	17.8	18.1	77.5	内灘町	17.7	18.4	20.0	20.8	21.4	22.2	22.7	85.4
志賀町	15.2	15.5	16.1	16.5	16.8	17.2	17.4	77.0	志賀町	17.8	18.6	20.2	20.9	21.5	22.3	23.0	85.5
宝達志水町	15.7	16.0	16.4	16.8	17.2	17.5	17.9	77.9	宝達志水町	18.4	19.0	20.3	21.0	21.6	22.2	22.8	84.3
中能登町	15.9	16.1	16.8	17.1	17.4	17.8	18.1	78.6	中能登町	17.7	18.2	20.1	20.7	21.3	22.0	22.9	84.6
穴水町	14.5	14.8	15.4	15.9	16.3	16.6	16.9	76.9	穴水町	17.3	17.9	19.4	20.4	21.2	22.0	22.8	83.9
能登町	15.2	15.5	16.0	16.4	16.6	16.9	17.3	76.1	能登町	18.2	19.1	20.4	21.1	21.6	22.2	22.9	84.4

表 2-3 平成16年の石川県における性別別健康余命、平均余命

H16年		65 歳 健 康 余 命							H16年								
男	要支援 要介護5	要介護 1—5	要介護 2—5	要介護 3—5	要介護 4—5	要介護 5	65歳平 均余命	0歳平 均余命	女	要支援 要介護5	要介護 1—5	要介護 2—5	要介護 3—5	要介護 4—5	要介護 5	65歳平 均余命	0歳平 均余命
石川 県	15.5	15.8	16.5	16.9	17.3	17.7	18.0	78.5	石川 県	17.4	18.1	19.9	20.7	21.5	22.2	22.9	85.3
南 加 賀	15.5	15.8	16.5	17.0	17.3	17.7	18.0	78.4	南 加 賀	17.6	18.3	19.9	20.7	21.5	22.2	22.9	85.0
石川中央	15.5	15.7	16.5	17.0	17.4	17.8	18.1	78.8	石川中央	17.1	17.7	19.8	20.7	21.4	22.1	22.9	85.5
能登中部	15.8	16.0	16.7	17.0	17.4	17.7	18.0	78.1	能登中部	18.1	18.8	20.3	21.0	21.6	22.3	23.1	85.0
能登北部	15.2	15.5	16.1	16.5	16.9	17.1	17.5	76.6	能登北部	17.6	18.5	20.1	20.9	21.5	22.2	23.0	84.9
金 沢 市	15.4	15.7	16.5	17.0	17.4	17.8	18.2	79.0	金 沢 市	16.8	17.5	19.6	20.6	21.4	22.1	22.9	85.4
七 尾 市	15.7	15.9	16.6	16.9	17.3	17.6	18.0	78.0	七 尾 市	18.1	18.8	20.1	20.9	21.5	22.1	22.9	84.8
輪 島 市	15.6	15.7	16.4	16.9	17.3	17.7	18.0	78.6	輪 島 市	17.3	17.8	19.6	20.4	21.2	22.0	22.8	85.0
小 松 市	16.3	16.6	17.1	17.3	17.5	17.7	17.9	77.2	小 松 市	19.5	20.3	21.2	21.6	22.0	22.4	23.0	85.2
珠 洲 市	14.5	14.7	15.4	15.9	16.3	16.7	17.2	76.4	珠 洲 市	16.0	16.9	19.2	20.0	20.8	21.5	22.4	83.0
加 賀 市	15.6	15.9	16.6	17.0	17.4	17.7	17.9	77.6	加 賀 市	17.5	18.4	19.8	20.6	21.2	21.9	22.5	84.2
羽 咋 市	16.3	16.7	17.3	17.6	18.0	18.3	18.6	79.0	羽 咋 市	18.4	19.2	20.8	21.4	22.0	22.7	23.4	85.1
かほく市	15.5	15.6	16.4	16.8	17.2	17.6	17.8	78.3	かほく市	17.9	18.4	20.2	20.9	21.5	22.2	22.9	85.9
白 山 市	15.6	15.8	16.7	17.1	17.5	17.8	18.2	78.8	白 山 市	17.5	18.1	19.8	20.6	21.4	22.2	22.9	85.6
能 美 市	15.6	15.9	16.8	17.3	17.7	18.1	18.4	79.3	能 美 市	18.0	18.8	20.5	21.3	22.1	22.7	23.6	86.0
川 北 町	15.8	16.0	16.7	17.3	17.7	18.0	18.6	79.0	川 北 町	18.4	18.9	20.3	21.5	22.4	23.3	23.9	87.1
野々市町	16.0	16.4	17.0	17.4	17.5	17.9	18.1	79.0	野々市町	18.5	19.3	20.6	21.3	21.7	22.4	23.0	85.6
津 幡 町	15.5	15.9	16.6	17.0	17.4	17.7	18.2	78.2	津 幡 町	16.9	17.5	19.5	20.3	21.1	22.0	23.0	85.6
内 灘 町	15.8	16.1	16.9	17.1	17.4	17.6	18.0	77.5	内 灘 町	17.5	18.3	20.2	20.9	21.7	22.3	22.9	85.5
志 賀 町	15.3	15.5	16.3	16.6	17.1	17.4	17.6	77.6	志 賀 町	17.7	18.6	20.2	20.9	21.6	22.4	23.2	85.3
宝達志水町	15.8	16.0	16.5	16.8	17.3	17.6	17.8	77.7	宝達志水町	18.3	18.7	20.3	20.9	21.5	22.2	22.8	84.1
中能登町	15.9	16.2	16.9	17.3	17.6	18.0	18.3	78.7	中能登町	17.8	18.4	20.1	21.0	21.6	22.4	23.3	85.8
穴 水 町	14.8	15.1	15.7	16.2	16.7	16.9	17.2	77.3	穴 水 町	17.7	18.2	19.7	20.8	21.5	22.3	23.1	84.7
能 登 町	15.3	15.6	16.2	16.4	16.7	17.1	17.4	75.7	能 登 町	18.2	19.1	20.5	21.2	21.7	22.4	23.2	84.9

文 献

- 1) いしかわ健康づくり21 石川県 (2000)
- 2) いしかわ健康フロンティア戦略2006 石川県 (2006)
- 3) 辻 一郎：健康寿命，麦秋社 (1998)
- 4) 健康日本21 厚生省 平成12年3月
- 5) 厚生労働白書 平成17年度版 厚生労働省
- 6) WHO The World Health Report 2004
- 7) Methods for life expectancy and healthy life expectancy uncertainty analysis, Global Programme on Evidence for Health Policy Working Paper No.10, WHO (2001)
- 8) Ageing and Health Technical Report(1)-Global Health Expectancy Research Among Older People, March (2001)
- 9) COLIN D Mathers et al.: Estimates of DALE for 191 countries method and results, Global Programme on Evidence for Health Policy Working Paper No.16, WHO (2000)
- 10) 橋本修二 他：健康余命算定方法の比較 厚生指標, 46(4), 12—16 (1999)
- 11) 切明義孝 他：介護保険制度を利用した健康寿命の算出方法の開発, 東医大誌, 62(1), 36—43 (2004)
- 12) 切明義孝：介護保険制度を利用した健康寿命計算マニュアル H14.12.12 公衆衛生ネットワーク (Public Health Network) <http://home.att.ne.jp/star/publichealth/>
- 13) 瀬上清貴：ライフ・スパン Vol.17 (2004) (財)寿命工学研究会
- 14) 松村義晴 他：三重県における健康寿命推計手法の検討について H16地方衛生研究所全国協議会東海北陸支部保健環境部会 (2004)

〔資 料〕

変異型毒素 *stx2d* 遺伝子を保有する 志賀毒素産生性大腸菌分離例

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
山田 恵子・戌亥 一朗

キーワード：変異型毒素，志賀毒素産生性大腸菌，PCR，逆受身ラテックス凝集反応

1 はじめに

志賀毒素産生性大腸菌 (Shiga-like-toxin-producing *Escherichia coli*; STEC) は出血性大腸炎や溶血性尿毒症症候群などヒトに対し重篤な症状を引き起こす病原細菌であり，その病原性発現には志賀毒素 (Stx) が大きく関与している^(1,2)。Stx には Stx1 と Stx2 の2種類が存在し，特に Stx2 にはアミノ酸配列が異なる多くの変異型毒素 (variant) の存在が報告されている^{(3)~(5)}が，その実態は十分に解明されていない。

我々は今回，初めて Stx2 variant 産生遺伝子の一つである *stx2d* を保有する STEC O128:H21 (以下，O128:H21) の分離事例を経験した。また，その後当センターに保存されていた STEC 30株を調べたところ更に2株の *stx2d* 保有 O128が確認された。そこで，これら variant 遺伝子保有株 (以下，variant 株) の特性を明らかにすることを目的に，今回確認された3株について，生化学性状，病原性関連遺伝子の有無などの細菌学的検討を加えたので，その結果について報告する。

2 材料と方法

2・1 使用菌株

(1) O128:H21株

2004年7月，県内の民間検査機関より Stx1 を産生する O128:H21 (以下，菌株 A；19歳，女性，健康保菌者) を検出したとの連絡が管内保健所にあった。その後の保健所の確認検査で，当該株は Stx1 と Stx2 の両方を産生するという結果が得られた。保健所と民間検査機

関における Stx の型別結果が異なったため，保健所から当センターへ精査の依頼があった。

(2) STEC の保存菌株

当センターで保存している STEC 30株 (O26:5株，O91:5株，O103:5株，O128:5株，O157:10株) を用い，Stx2 variant 遺伝子の検索を行った。なお，このうち細菌学的検討を加えた株は，variant 遺伝子が確認された O128 2株のみである。

2・2 検査方法

(1) Stx 型別検査

民間検査機関における Stx 型別方法はカスタム合成プライマーを用いた PCR 法で，保健所における型別方法は逆受身ラテックス凝集反応 (RPLA；デンカ生研) 法であった。

一方，当センターにおける型別方法は，市販 (TOYOBO, TaKaRa) の Stx 産生遺伝子検出用プライマーを用いた PCR 法，ならびに CAYE 培地および BHI 寒天培地を使用した RPLA 法である。

(2) variant 株の検出

Stx2 variant については，variant 遺伝子 *stx2d*，*stx2e*，*stx2f* の3種類を対象に PCR 法を用いて検出を行った。

3種類の variant 遺伝子検出用プライマーは，Alexander らの報告⁽⁶⁾に従いカスタム合成し，PCR 方法は，熱抽出サンプルを鋳型とし，同じく Alexander らの報告⁽⁶⁾による PCR 条件に従い実施した。即ち，*stx2d* は 94°C，30秒；55°C，60秒；72°C，60秒，*stx2e* は 94°C，30秒；55°C，60秒；72°C，40秒，*stx2f* は

Isolation of Shiga-like-toxin-producing *Escherichia coli* Harboring *stx2d* Variants Gene. by KURAMOTO Sanae, KODAMA Hiroe, YAMADA Keiko and INUI Ichiro (Health and Food Safety Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words: variant, Shiga-like-toxin-producing *Escherichia coli*, PCR, RPLA

表 1 variant 遺伝子プライマーのシーケンスおよび PCR 条件

プライマー	シーケンス	ターゲット	熱変性	PCR 条件* アニーリング	伸 長	産物分子量 (base pair)
VT2-cm VT2-f	5'-AAGAAGATATTTGTAGCGG-3' 5'-TAAACTGCACTTCAGCAAAAT-3'	<i>stx2dB</i>	94°,30s	55°,60s	72°,60s	256
FK1 FK2	5'-CCCGGATCCAAGAAGATGTTTATAG-3' 5'-CCCGAATTCTCAGTTAAACTTCACC-3'	<i>stx2eB</i>	94°,30s	55°,60s	72°,40s	280
128-1 128-2	5'-AGATTGGGCGTCATRCACTGGTTG-3' 5'-TACTTTAATGGCCGCCCTGTCTCC-3'	<i>stx2fA</i>	94°,30s	57°,60s	72°,60s	428

* : 各々 30 サイクルの後, 72°, 5min の最終伸長

94°C, 30秒; 57°C, 60秒; 72°C, 60秒でそれぞれ30サイクルの増幅後, 72°C, 5分の最終伸長反応を行った。各プライマーのシーケンス, PCR 条件ならびに産物遺伝子の分子量についてそれぞれ表 1 に示した。

(3) variant 株の細菌学的特性検査 ア 生化学性状試験

糖分解試験, リジン脱炭酸反応, インドール産生能, ソルビット分解能, β-グルクロニダーゼ産生性などについて, TSI 寒天培地, LIM 寒天培地, CLIG 培地など各種性状培地を用いて比較した。また, Enterohemolysin 産生性については, 自家製 Buntin 培地を用い, 37°C, 24hr (48hr) 培養後の溶血の有無により判定した。

イ 病原性関連遺伝子の検出

筆者らが報告した方法¹⁾に従い, PCR 法にて病原性関連遺伝子の検出を行った。標的遺伝子は, 腸管付着に関与する遺伝子で作用機序が異なる *eaeA*, *aggR* ならびに *bfpA*, および腸管凝集性大腸菌が産生する耐熱性毒素様毒素産生遺伝子の *astA* の 4 種類である。

ウ 遺伝子解析

variant 株 (*stx2d* 保有株) について, パルスフィールドゲル電気泳動 (PFGE) 法による遺伝子解析を実施した。PFGE 法の諸条件は, 寺嶋らの方法¹⁾に従った。

3 成 績

3・1 O128 : H21株の検査結果

(1) Stx の型別検査

PCR 法における Stx 型別試験の結果は, TOYOBO の Stx 産生遺伝子検出用プライマーを用いた方法では, Stx1 産生遺伝子のみ陽性であり, また TaKaRa の Stx 産生遺伝子検出用プライマーを用いた方法では, Stx1, 2 産生遺伝子共に陽性であった。一方, RPLA 法にお

表 2 STEC O128 : H21株の Stx 型別試験結果

Stx 型別方法		結 果	
方 法	キ ャ ッ ト 名 ・ 培 養 法	Stx1	Stx2
PCR 法	VT-Check-Ready (TOYOBO)	+	—
	特殊細菌検出用プライマーセット (TaKaRa)	+	+
RPLA 法	静置培養法 (BHI 寒天培地)	+	+
	振とう培養法 (CAYE 培地)	+	+

る Stx 型別試験の結果は, 使用培地に関わらず Stx1, 2 共に陽性であった (表 2)。

(2) variant 遺伝子の検索

PCR 法により前述 3 種類 (*stx2d*, *stx2e*, *stx2f*) の variant 遺伝子を検索した結果, *stx2d* のみ陽性で, *stx2e* ならびに *stx2f* は陰性であった。このことから, 当該株は *stx2d* を保有していることが分かった。

3・2 保存株からの variant 株検出

当所に保存されていた 30 株について, PCR 法により variant 株を検索した結果, 1999 年 10 月に分離された O128 : H2 (以下, 菌株 B) ならびに, 2002 年 10 月に分離された O128 : HUT (以下, 菌株 C) の 2 株が *stx2d* を保有していた。なお, いずれも健常者由来の STEC であった。

3・3 variant 株の細菌学的特性

(1) Stx 型別・生化学性状等試験

表 3 に Stx 型別検査結果, 生化学性状試験結果ならびに病原性関連遺伝子の検出状況について, それぞれ表わした。

ア Stx 型別試験

保存株から確認された *stx2d* 保有株 2 株の Stx 型別検査の結果は, 菌株 B, 菌株 C とともに菌株 A と同一であった。即ち, TOYOBO のプライマーを使用した PCR 法のみ Stx1 単独陽性であり, その他の方法では Stx1, 2 共に陽性であった。

表 3 *stx2d* 保有株の細菌学的性状

	菌株 A	菌株 B	菌株 C
血清型	O128 : H21	O128 : H2	O128 : HUT
Stx 型	Stx1, 2d	Stx1, 2d	Stx1, 2d
分離年月	2004.7	1999.10	2002.10
性別・年齢	F・19	F・41	M・1
TSI 寒天培地	A/A, G+	A/A, G-	A/A, G+
リジン脱炭酸反応	+	+	+
インドール産生性	+	+	+
運動性	+	+	+
ソルビット分解能	+	+	+
β -グルクロニダーゼ産生性	+	+	+
Enterohemolysin 産生性	+	+	+
病原性関連遺伝子	<i>eaeA</i>	-	<i>astA</i>

イ 生化学性状試験

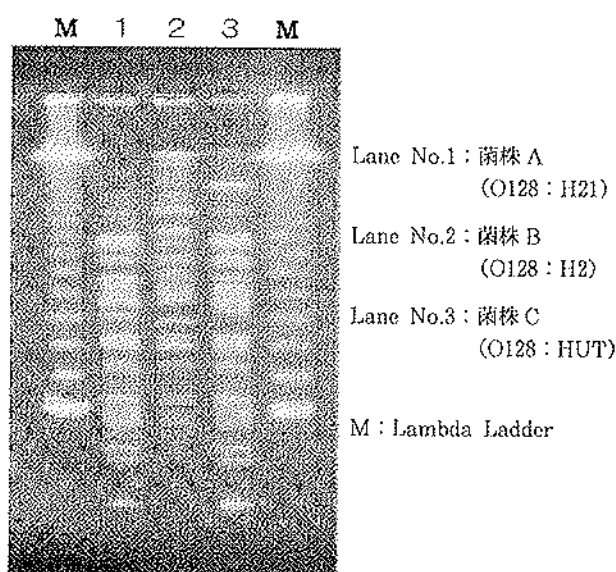
stx2d 保有株 3 株 (菌株 A, B, C) について, 各種生化学性状を比較した結果, 差異は認められなかった。なお, Enterohemolysin 産生試験の結果は 3 株ともに陽性であった。

ウ 病原性関連遺伝子の検出

4 種類の病原性関連遺伝子 (*eaeA*, *aggR*, *bfpA*, *astA*) の保有状況については, 菌株 A は *eaeA* のみを, 菌株 C は *astA* のみを保有していたが, 菌株 B はいずれの遺伝子も保有していなかった。

(2) 遺伝子解析

stx2d 保有株 3 株について制限酵素 *Xba*I を用いた PFGE 法による遺伝子解析を実施したところ, その泳動パターンはそれぞれ異なった (図 1)。

図 1 *stx2d* 保有株の PFGE パターン (*Xba*I)

4 考 察

今回分離された variant 株 3 株の Stx は, 型別方法により結果が異なっていた。即ち, RPLA 法では Stx1, 2 共に陽性であったが, PCR 法ではプライマーの種類により Stx2 産生遺伝子が検出できないものもあった。これは, Stx2 variant 遺伝子の中で *stx2d*, *stx2e*, *stx2f* の発見された時期が, 比較的最近であるため, 現在市販されている Stx 検出用プライマーの多くが, これらの検出を考慮し

て合成されていないことが要因の一つと考えられる。一方, 甲斐ら⁹⁾は, RPLA 法を用いた場合, ある種の variant 株の毒素産生性が確認できなかったことを報告しており, 今回報告した結果を加味すると, 一つの検査方法で全ての種類の variant 株を検出することは困難であると思われる。しかし, 医療機関や民間検査機関等で 2 種以上の検査方法を併用することはコストの面から難しく, また種々の variant 検出用プライマーを準備する事も極めて困難であり, 今後の検査体制を検討する必要がある。

また, variant 株が STEC 全体のどの程度の割合で存在するのかなど, その実態は十分に明らかになっていない。今回我々は, STEC 30 株から 2 株 (O128 : H2, O128 : HUT) の *stx2d* 保有株を確認した。塚本ら¹⁰⁾は, ヒト由来の STEC 93 株について *stx2d* および *stx2e* についての分布状況を調査したところ, 1 株 (O91 : H21) のみが *stx2d* を保有していたと報告している。検索株数に差があり保有率の比較はできないが, 塚本らの調査株の中には, 我々が確認した血清型 O128 が含まれていないことから, variant 株は血清型に偏りがあることも示唆される。なお, *stx2d* 保有の 3 株について細菌学的検討を加えたが, 3 株のあいだに性状の差はみられず, また一般的な大腸菌と比べても特異的な性状はみられなかった。

一方, 今回我々が, 最初に分離した O128 : H21 株は健康保菌者からの分離株であったが, STEC の病原性発現に大きく関与していると考えられている腸管付着遺伝子 *eaeA* を保有していたことから, その起病性是否定できない。また, 磯部ら¹¹⁾は, *stx2f* 保有 STEC による重症患者事例の報告をしており, variant 株の検出は非常に重要と思われる。

以上のことから, variant 株は検査方法により検出で

きない可能性が示唆されたが、これら variant 株のヒトへの起病性が否定できないことから、このことは公衆衛生上非常に問題である。今後は、医療機関等における variant 株の検出方法を検討する必要がある、そのためには variant 株の検索ならびに細菌学的特性調査を継続し、その実態を明らかにしていく必要がある。

5 ま と め

(1) O128 : H21株の検査結果

Stx2 variant 遺伝子の一つである *stx2d* を保有する STECO128 : H21 の分離事例を経験した。当該株の Stx 型別結果は、検査方法により異なっていた。

(2) 保存株からの variant 株検出

当所に保存されていた30株について、PCR 法により variant 株を検索した結果、O128 : H2とO128 : HUT の2株が *stx2d* を保有していた。

(3) variant 株の性状

stx2d 保有3株についての Stx 型別検査の結果は、TOYOBOのプライマーを使用したPCR法のみStx1単独陽性であり、その他の方法ではStx1, 2共に陽性であった。また、これら3株の各種生化学性状については特に差異を認めず、病原性関連遺伝子は、*eaeA* を保有していたものが1株、*astA* を保有していたものが1株であった。また、PFGE法による遺伝子解析の結果、その泳動パターンはそれぞれ異なっていた。

文 献

- 1) 甲斐明美, 工藤康雄: モダンメディア, 37(3), 148—156 (1991)
- 2) 竹田多恵, 吉野健一, Thandavarayan Ramamurthy, 内田 寛, 松田枝里子, Amit Pal: 日本細菌学雑誌, 51(4), 1037—1042 (1996)
- 3) PIRARD Denis, MUYLDERMANS Gaetan, STEVENS David A., LAUWERS Sabine D.: Journal of Clinical Microbiology, 36(11), 3317—3322 (1998)
- 4) TYLER Shaun D., JOHNSON Wendy M., LIOR Hermy, WANG Gehua: Journal of Clinical Microbiology, 29(7), 1339—1343 (1991)
- 5) GEHUA Wang, CLIFFORD Clark, RODGERS Frank G.: Journal of Clinical Microbiology, 40(10), 3613—3619 (2002)
- 6) ALEXANDER Friedrich W., WARTINA Bielaszewska, WEN-LAN Matthias P., THORSTEN Kuczius, ANDREA Ammon, HELGE Karch: The Journal of Infectious Diseases, 185, 74—84 (2002)
- 7) 倉本早苗, 黒崎直子, 芹川俊彦: 石川保環研報, 39, 1—7 (2002)
- 8) 寺嶋 淳, 泉谷秀昌, 伊豫田淳, 三戸部治郎: 国立感染症研究所細菌第一部発行: 新興・再興感染症研究事業「食品由来感染症の細菌学的指標のデータベース化に関する研究」国立感染症研究所研究班」報告書 (2004)
- 9) 甲斐明美, 尾畑浩魅, 畠山 薫, 五十嵐英夫, 伊藤 武, 工藤泰雄: 感染症学雑誌, 71, 248—253 (1997)
- 10) 塚本定三, 山崎伸二, 牧野壮一, 朝倉 宏, 竹田美文: 感染症学雑誌, 76(3), 167—173 (2002)
- 11) 磯部順子, 木全恵子, 霧島正浩, 細呂木志保, 田中大祐, 刑部陽宅: 感染症学雑誌, 78(12), 1000—1005 (2004)

〔資 料〕

新しい分子疫学的解析法である Random Amplified Polymorphic DNA 法 (RAPD 法) の有用性に関する検討

石川県保健環境センター健康・食品安全科学部

児玉 洋江・倉本 早苗

山田 恵子・戌亥 一朗

石川県石川中央保健福祉センター河北地域センター

芹川 俊彦

キーワード：RAPD 法，腸管出血性大腸菌 O157，*Salmonella* Enteritidis

1 はじめに

広域に流通する食品や食料が経口感染症に關与する病原体に汚染された場合，広範囲な地域において多数の感染者が出ることになる。このような状況においては感染症や食中毒の拡大を未然に防ぎ被害を最小限にとどめるため，感染源の迅速な把握および，それに対する適切な対策が求められる。そのためには原因となる病原体の検出・同定はもちろんのこと，各地で分離された病原体間の関連性等に関する科学的データを集約し，その結果に基づいて疫学的解析を行うことが必要不可欠である。

分子疫学的解析法の1つであるパルスフィールド・ゲル電気泳動 (PFGE) 法¹⁾²⁾ は，菌株間の DNA 構成の差を検出するのに感度的にも，また再現性においても優れた方法である。しかし，その解析には数日間を要し迅速性に欠ける欠点がある。

近年，PCR 法を用いた新たな迅速分子疫学的解析法として Random Amplified Polymorphic DNA (RAPD) 法³⁾⁴⁾ が報告されている。そこで，我々はこの RAPD 法の有用性を検討するため，腸管出血性大腸菌 O157 (以下 O157) および *Salmonella* Enteritidis (以下 S.E) の分離株について RAPD 法および PFGE 法により分子疫学的解析を実施し，比較検討を行った。

2 材料および方法

2・1 使用菌株

腸管出血性大腸菌 O157 については，2004年4月から8月にかけて石川県内で分離された30株 (集団発生例6事例由来22株および散发事例由来8株)，また S.E については，2000年8月から2005年10月にかけて県内で分離された30株 (集団発生例6事例由来21株および散发事例由来9株) を用いた。

2・2 方 法

(1) RAPD 法

RAPD 法については，再現性および識別能の低さが指摘されている⁵⁾。しかし，Pharmacia Biotech 社製の Ready to Go RAPD Analysis Kit は，2種類の耐熱性ポリメラーゼの組み合わせにより，細かい泳動パターンが再現性良く得られるよう改良されており，また RAPD 解析に必要な試薬がビーズの形状でチューブに入っており，使用が簡便であることから，本キットを使用した。

RAPD 解析用試薬添加のチューブに DNA 抽出液およびプライマーを加え，PCR (94°C，1分，その後 95°C，1分；36°C，1分；72°C，2分を45サイクル) を行い，その後2.5%アガロースにて電気泳動を行った。今回の検討では，O157については，RAPD プライマー

Examination of Random Amplified Polymorphic DNA Method as New Molecular Epidemiological Analyses. by KODAMA Hiroe, KURAMOTO Sanae, YAMADA Keiko, INUI Ichiro (Health and Food safety Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science) and SERIKAWA Toshihiko (Ishikawa Chuoh Health Welfare Center of Ishikawa Prefectural Government)

Key words : RAPD Method, Enterohemorrhagic *Escherichia coli* serovar O157, *Salmonella* Enteritidis

表 1 O157集団発生例 6 事例由来22株
における RAPD 解析結果

菌株No.	事例No.	プライマー 3	プライマー 4	グループNo.
1	1	A	A	①
2		A	A	①
3		A	A	①
4		A	A	①
5		A	A	①
6	2	B	A	②
7		B	A	②
8		B	A	②
9	3	B	A	②
10		B	A	②
11		B	A	②
12		B	A	②
13	4	B	A	②
14		B	A	②
15		B	A	②
16		B	A	②
17		B	A	②
18	5	C	B	③
19		C	B	③
20		C	B	③
21	6	B	A	②
22		B	A	②

(以下プライマー) 3 および 4, S.E については
プライマー 5 および 6 の 2 種類を用いて PCR を
行い, その泳動パターンから DNA の相同性を判
定した。なお, 使用したプライマーは, 由来が異
なる O157 および S.E の各 2 株についてキット付
属の 6 種類のプライマーを用いて PCR を行い,
その中から最も泳動パターンに差異が認められた
2 種類を選択したものである。

(2) PFGE 法

O157 については, 国立感染症研究所が作成したプロ
トコール⁶⁾に準じて, S.E については, 仲西ら⁷⁾が作成
したプロトコールに準じて解析を行った。即ちアガロ
スブロックに包埋した菌体から DNA を抽出し, 制限酵
素にて断片化し, PFGE 法により断片をバンドとして
分離し, そのバンドの泳動パターンから DNA 構成の相
同性を判定した。なお, 使用した制限酵素については
O157 は *Xba* I, S.E は *Bln* I であり, また各々の泳動
条件は電圧: 6 V/cm, パルスタイム: 2.2 から 54.2 秒,
泳動時間: 19 時間ならびに電圧: 6 V/cm, パルスタイ
ム: 5.0 から 50 秒, 泳動時間: 22 時間である。

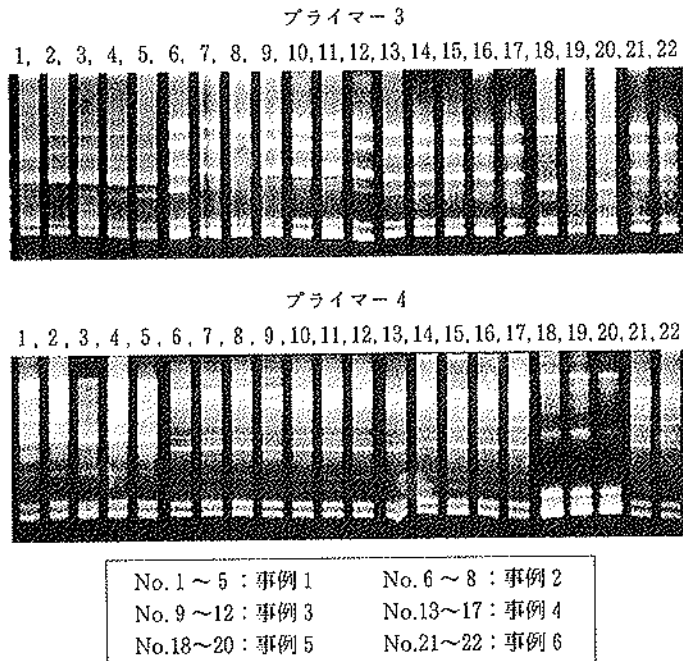


図 1 O157集団発生例 6 事例由来22株における RAPD 解析結果

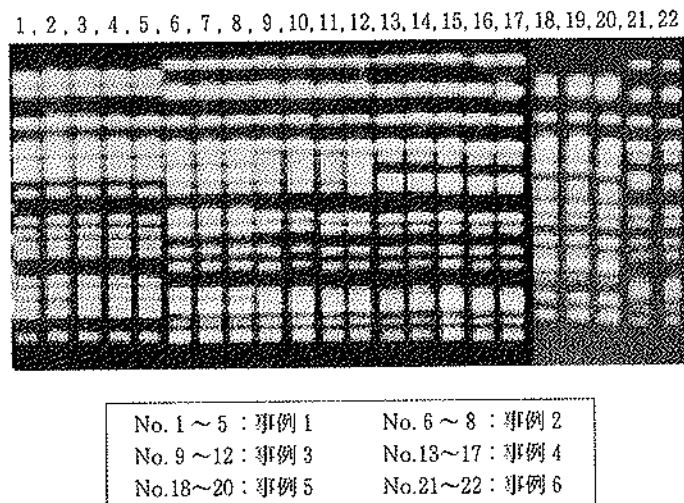


図 2 O157集団発生例 6 事例由来22株における PFGE 解析結果

3 結 果

3・1 O157 についての検討結果

集団発生例 6 事例由来の 22 株を RAPD 法で解析した
結果, プライマー 3 により 3 種類, プライマー 4 により
2 種類に分類され (図 1), この結果の組み合わせから
3 グループ (①~③) に分類された (表 1)。即ち, 6
事例中 4 事例 (14 菌株) の泳動パターンは全て一致 (②
グループ) し, また残り 2 事例 (8 菌株) については,
1 事例 (5 菌株) が ①グループ, 他の 1 事例 (3 菌株)
が ③グループに分かれた。

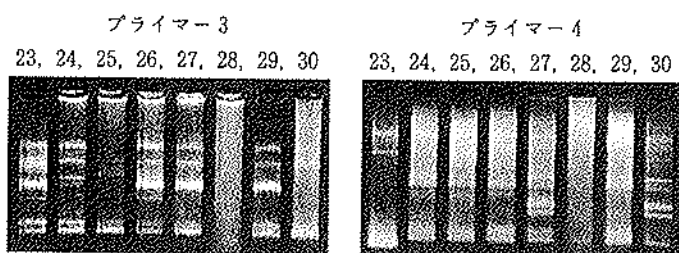


図3 O157散発事例由来8株におけるRAPD解析結果

表2 O157散発事例由来8株におけるRAPD解析結果の分類

菌株No.	プライマー3	プライマー4	グループNo.
23	B	D	④
24	D	A	⑤
25	E	A	⑥
26	B	A	②
27	B	C	⑦
28	F	E	⑧
29	B	A	②
30	G	C	⑨

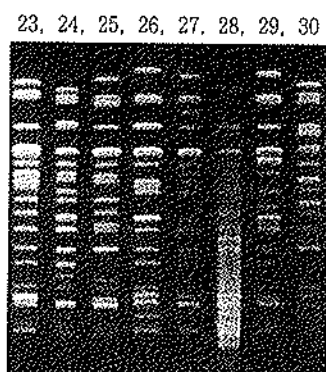


図4 O157散発事例由来8株におけるPFGE解析結果

一方、PFGE法により解析した結果、泳動パターンは6事例ごとに異なったが、同一事例由来株の間では一致した(図2)。

また、散発事例由来8株をRAPD法で解析した結果、プライマー3により5種類、プライマー4により4種類に分類され(図3)、この結果の組み合わせにより7グループに分類された(表2)。一方、PFGE法では全ての菌株の泳動パターンが異なった(図4)。

以上の結果、O157については、RAPD法は同一事例由来株に関する解析には有用であるが、PFGE法と比べ識別能が劣ることが確認された。

3・2 S.E.についての検討結果

集団発生例6事例由来の21株をRAPD法で解析した結果、プライマー5および6ともに全ての菌株で泳動パターンがほぼ同一となった。一方、PFGE法により解析した結果、泳動パターンは事例ごとに異なったが、同一事例由来株の間では一致した。

また、散発事例由来9株についてRAPD法で解析した結果、全ての菌株で泳動パターンがほぼ同一となったが、PFGE法では全ての菌株で泳動パターンが異なった。

以上の結果、S.E.については、今回使用した2種類のプライマーによるRAPD法は有用ではないことが分かった。

4 考 察

RAPD法は、任意配列の短いプライマーを用いて低いアニーリング条件でPCRを行う。増幅されたDNA断片を電気泳動で分離し、その泳動パターンの差から個体間の多型性を検出する手法であり、一連の解析に要する時間は数時間である。即ち、本法は解析に数日間を要するPFGE法と比較し、迅速性、簡便性の点で優れているといえる。しかし、今回我々がO157について検討した結果、RAPD法で同一の泳動パターンを示した菌株がPFGE法では異なる泳動パターンを示したことから、RAPD法はPFGE法に比べ識別能が劣ることが分かった。なお、RAPD法は、使用するプライマーの種類を追加することで、より識別能が向上すると考えられるが、経済性や迅速性の点で実用的ではないと思われる。

O157感染症が発生した際、感染源・感染経路の特定のための科学的根拠を得るために、分離株について分子疫学的解析を実施する。本研究の結果から、分子疫学的解析法については、まずRAPD法でスクリーニング検査を行い、その結果泳動パターンが同一になった場合はPFGE法による解析を行い、菌の相同性を確認するという手法が、経済性ならびに迅速性から最良であると考えられた。

また、S.E.については、由来が異なる2株についてPCRを行い、最も泳動パターンに差異が認められた2種類のプライマーを選択し検討を行ったが、今回の検討に使用した30株については、泳動パターンに明確な差異がみられず、有用ではなかった。今後、その他のプライマーを用い有用性について更に検討する必要がある。

5 ま と め

RAPD法の有用性を検討するため、O157およびS.E.

について RAPD 法および PFGE 法により分子疫学的解析を行い比較検討した。

(1) O157についての検討結果

RAPD 法は、同一事例由来株に関する解析には有効であったが、PFGE 法と比べ識別能が劣ることが分かった。

(2) O157感染症発生時の有用な分子疫学的解析法

RAPD 法でスクリーニング検査を行い、泳動パターンが同一になった場合のみ PFGE 法による解析を行い、DNA の相同性を確認するという手法が最良であると考えられた。

(3) SE についての検討結果

今回使用した 2 種類のプライマーの場合には、泳動パターンに差異が認められず RAPD 法は有用ではなかった。

文 献

1) WATANABE Haruo, WADA Akihito,

INAGAKI Yoshishige, ITO Kenichiro, TAMURA Kazumiti : Lancet, 348, 831—832 (1996)

2) WATANABE Haruo, TERAJIMA Jun, IZUMIYA Hidemasa, WADA Akihito, TAMURA Kazumiti : Pediatr. Internat., 41, 202—208 (1999)

3) 牧野壮一：臨床と微生物, 23(6), 658—662 (1996)

4) TERAJIMA Jun, IZUMIYA Hidemasa, WADA Akihito, TAMURA Kazumiti, WATANABE Haruo : J. Appl. Microbiol., 88, 99—105 (2000)

5) 金子誠二, 仲間晶子：東京都立衛生研究所プロジェクト研究報告書 (平成12年), 27—37 (2000)

6) 渡邊治雄：腸管出血性大腸菌 O157 の検出・解析等の技術研修会, 17—31 (1997)

7) 仲西寿男：新興・再興感染症研究事業「我が国におけるパルスネット構築のための緊急研究」研究報告書, 64—67 (1999)

〔資 料〕

石川県で初めて発生したC群ロタウイルスによる 集団胃腸炎について

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：C群ロタウイルス、集団発生

1 はじめに

ロタウイルスはレオウイルス科に属する2本鎖RNAウイルスで、内殻蛋白の抗原性からA～G群に分類される。このうちA～C群がヒトに感染し、主に嘔吐、下痢等の胃腸炎症状を引き起こす。A群ロタウイルスは、冬期に流行する乳幼児の胃腸炎の原因として最も重要であるが、近年、C群ロタウイルスによる胃腸炎の集団発生もしばしば各地で報告されている。

石川県では、これまで小児の散発事例¹⁾以外、C群ロタウイルスの検出はなかったが、2005年5月に能登地区の小学校で初めてこのウイルスによる胃腸炎の集団発生が確認された。そこで今回、当センターで行ったウイルス検査の概要について報告する。

2 材料と方法

2・1 材 料

2005年5月に能登地区のT小学校で集団胃腸炎が発生し、管轄の保健所からウイルス検査の依頼があった。患者の主症状は嘔吐、下痢で、患者から採取された糞便、吐物について保健所で細菌検査を行ったところ、すべて陰性であった。

当センターには患者糞便7検体、吐物1検体、合計8検体が搬入され、これらについて、ノロウイルス (GI, GII), ロタウイルス (A群, C群), アデノウイルス, アストロウイルスについて検査を行った。

2・2 方 法

(1) ウイルス検査

各ウイルスの検査は、ウイルス性下痢症診断マニュアル

表1 ウイルスの検査法

対象ウイルス	検査法
ノロウイルス	RT-PCR 法、リアルタイム PCR 法
A群ロタウイルス	ELISA 法、RT-PCR 法
C群ロタウイルス	RPHA 法、RT-PCR 法
アデノウイルス	ELISA 法
アストロウイルス	ELISA 法

ル(国立感染症研究所編集・発行)に従い実施した(表1)。C群ロタウイルスの検査については、マニュアル記載の逆受身赤血球凝集反応(RPHA法・デンカ生研)のほか、葛谷らの報告²⁾に従い、VP7遺伝子の一部を増幅するRT-PCR法も実施した。Nested PCRにより得られたバンドは精製後、ダイターミネータ法により塩基配列を決定し、決定した約300bpについて解析を行った。

(2) 電子顕微鏡(EM)による検索

患者の糞便7検体について、超高速遠心法により精製し、ウイルス粒子の検索を行った。

3 成 績

3・1 ウイルス検査結果

検査した8検体すべて(糞便7検体、吐物1検体)において、RPHA法およびRT-PCR法でC群ロタウイルス陽性となった。RPHA法のタイターは、4倍から高いものでは4,096倍以上であった。RT-PCR法では、1stPCRで8検体中4検体、nested PCRではすべて陽性となった(表2)。また、検出したバンド約300bpのシーケンス結果はすべて一致し、2002年に岡山県で検

Outbreak of Acute Gastroenteritis Caused by Group C Rotavirus in Ishikawa Prefecture.
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 : Group C Rotavirus, Outbreak

表2 C群ロタウイルスの検査結果

検体番号	検体	EM	RPHA	RT-PCR	
				1st	nested
1	吐物	Not Tested	+(8)	—	+
2	糞便	+(Rotavirus)	+(4,096)	+	+
3	糞便	+(Rotavirus)	+(512)	+	+
4	糞便	+(Rotavirus)	+(4)	—	+
5	糞便	—	+(16)	—	+
6	糞便	+(Rotavirus)	+(256)	+	+
7	糞便	+(Rotavirus)	+(64)	+	+
8	糞便	—	+(4)	—	+
合 計	8	5/8	8/8	4/8	8/8

出された2株, KW408 (AB086968), OT99 (AB086969)と99%の相同性を有していた。なお、その他のウイルスの検査結果はいずれも陰性であった。

電子顕微鏡による検索では、糞便7検体中5検体よりロタウイルス様粒子が確認された。

4 考 察

当センターにウイルス検査のため搬入される胃腸炎患者の検体で、検出されるウイルスの大部分がノロウイルスである。これは、ノロウイルスによる集団発生が多く行政依頼の検体が多いこと、小児科領域での患者が多いと思われるA群ロタウイルスやアデノウイルスは簡易キットが普及しており、感染症発生動向調査ではこれらの検査で陰性の場合のみ検体として搬入されることが多いためと考えられる。一方、本県でのC群ロタウイルスの検出については、これまで小児散発事例でごく少数確認されただけで、集団発生からの検出例はなかった。

今回の事例では、2004年から2005年にかけてのノロウイルスによる集団胃腸炎が頻発した直後であったこと、患者の症状がノロウイルスによるものと酷似していたことから発生当初もこれが原因と疑われた。しかし当センターで行ったウイルス検査では、C群ロタウイルス以外すべて陰性で、RPHA法、RT-PCR法および電子顕微鏡法により、石川県で集団発生では初めてC群ロタウ

イルスを検出した。

検査の結果をみると、RPHA法のタイターが8倍以下の場合、RT-PCR法(1st)では陰性となったが、nested PCRを行うことによりすべて陽性となり、両者の結果は一致した。検査にかかる時間を考慮すると、RPHA法が簡易かつ短時間で結果がわかる利点があるが、原因究明や感染源調査などにはRT-PCR法およびシーケンスは必要であり、今後も両者の検査を併行して行う必要がある。

さらに近年利用頻度が少なくなった電子顕微鏡法も今回はウイルスを検索していくうえで非常に有効であった。特にロタウイルスはウイルスの排泄量が多いため、RPHA法のタイターが高い検体では精製を行わなくてもウイルス粒子が確認でき、逆に未精製の方が確認できた検体もあった。今後、同様の事例が発生したときの参考としたい。

近年、C群ロタウイルスによる集団胃腸炎が各地で散見される。また大阪府の報告³⁾では、3～5月に小学校で発生する集団胃腸炎の原因としてC群ロタウイルスは重要であるとしており、本県の事例も時期が5月で、施設は小学校であった。今後は同様の事例が発生した場合には、このウイルスも念頭に入れて注意深く検査を進めていきたい。

5 ま と め

2005年5月に、能登地区のT小学校で集団胃腸炎が発生した。患者8人を検査したところ全員からC群ロタウイルスが検出された。このウイルスによる集団発生は、石川県では初めてであった。

文 献

- 1) 大矢英紀, 米澤由美子, 尾西 一: 石川保環研報, 38, 81—83 (2001)
- 2) 葛谷光隆, 藤井理津志, 濱野雅子, 小倉 肇: 感染症学雑誌, 77, 53—59 (2003)
- 3) 病原微生物検出情報月報, 27(6), 14—15 (2006)

〔資 料〕

石川県におけるインフルエンザ流行状況

—— 2005/2006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、その流行規模の大きさからしばしば社会問題となる。近年、鳥インフルエンザ(H5N1)の流行は東南アジアからアフリカやヨーロッパへ拡大し、ヒトへの感染事例の報告も続いている。さらに、人類が未経験の新型ウイルスの出現や流行も危惧されていることから、従来から当所で実施しているウイルス分離とその抗原分析等は次シーズンのワクチン株選定のために非常に重要と考えられる。

ここでは、2005/2006シーズンの石川県におけるインフルエンザの流行状況と、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の、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)における、インフルエンザ患者報告数で把握した。

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、トリプシン添加 MDCK 細胞を用いて実施した。

(2) 分離ウイルスの型別と HA 抗原性状

国立感染症研究所より分与された2005/2006シ

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)の抗原性状を解析した。

なお、2005/2006シーズン抗原解析用キットで使用されたウイルス株は、平成17年度ワクチン株ウイルス A/NewCaledonia/20/99(H1N1:Aソ連型), A/NewYork/55/2004(H3N2:A香港型), B/Shanghai/361/2002(山形系統株), および参照株ウイルス B/Brisbane/32/2002(Victoria系統株)の計4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、2005/2006シーズンの集団かぜは、平成17年12月13日(平成17年第50週)に小松市の矢田野小学校で初めて発生した。その後患者数、施設数ともに増加し、平成18年1月23日から2月5日(平成18年第4週から第5週)でピークとなり、3月16日(第11週)で一旦は終息したように思われた。しかし、4月10日から25日(第15週から17週)にかけて、再び10施設から698人の患者報告、さらに5月24日(第21週)にも1施設から51人の患者報告があった。最終的に2005/2006シーズンの発生施設数は115施設、患者数は9,077人に達した。(図1)

(2) ウイルス検査結果

平成17年度(2004/2005シーズン)まで実施していた集団かぜの患者を対象としたウイルス検査は、平成18年

Prevalence of Influenza during 2005—2006 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

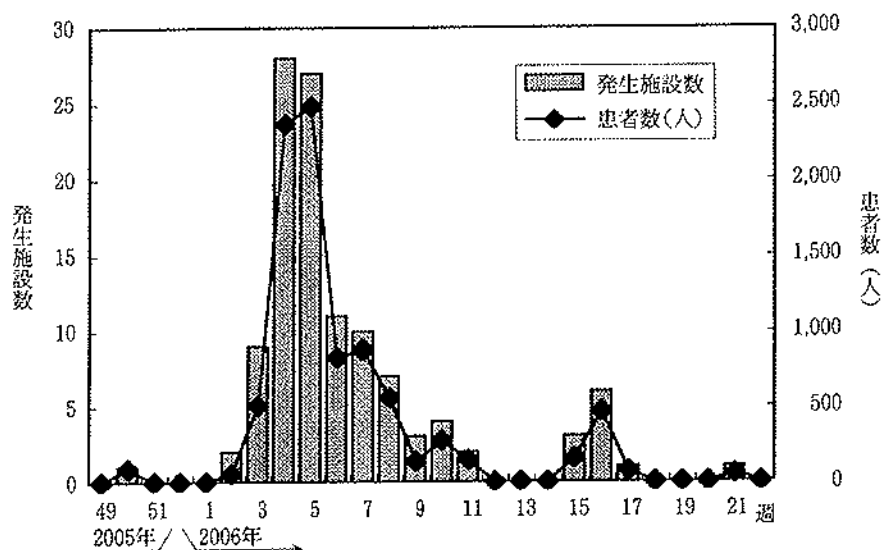


図1 集団かぜ発生状況（週別）

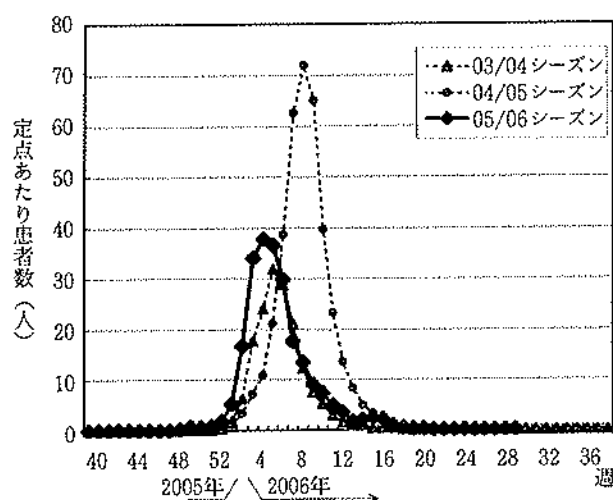


図2 定点かぜ発生状況（週別）

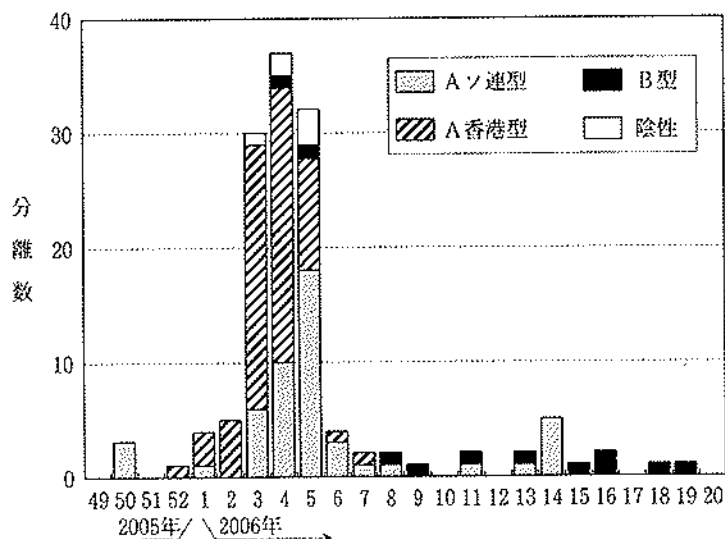


図3 インフルエンザ分離数（検体採取週別）

度（2005/2006シーズン）からは実施しないこととなった。

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、17年第43週にはじまり、集団かぜとほぼ同時期、18年第5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37.9人で、昨シーズンのピーク時（71.8人）と比較して2分の1以下であった¹⁾。また、前2シーズンと比較すると2シーズン前の2003/2004シーズンと流行のパターンが似てい

て（図2）、第26週までに11,079人が報告された。

(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、135人についてウイルス分離検査を実施した。その結果129人からインフルエンザウイルスを分離した（分離率95.6%）。

分離したインフルエンザウイルスは、A型が118株、B型は11株であった。今シーズン最初に分離されたのはAソ連型（H1N1）で、17年12月12日（17年第50週）に採取の検体からであった。その後はA香港型（H3N2）が多く分離されたが、18年第5週からAソ連型が優勢になり、最終的にはAソ連型は50株、香港型は68株となった。B型が初めて分離されたのは、1月28日（第4週）に採取の検体からであった（図3）。

Aソ連型50株のHA抗原性状は、ワクチン株A/NewCaledonia/20/99のHI抗体価のホモ価320に対して、20が1株、80が29株、160が19株、320が1株で、ホモ価よりやや低いHI抗体価のワクチン類似株が多かった（図4）。なお、HI抗体価20でワクチン株との反応性が非常に低いA/石川/277/2006株（2月7日、第6週採取の検体から分離）については、国立感染症研究所の詳細な解析の結果、HA1領域140番目のアミノ酸がリジンからグルタミンに変異していると報告された。同様の変異を持つウイルス株は2003/2004シーズンに埼玉県で2株分離されており²⁾、今後の動向に注意が必要であろう。

A香港型68株のHA抗原性状は、ワクチン株A/NewYork/55/2004のHI抗体価のホ

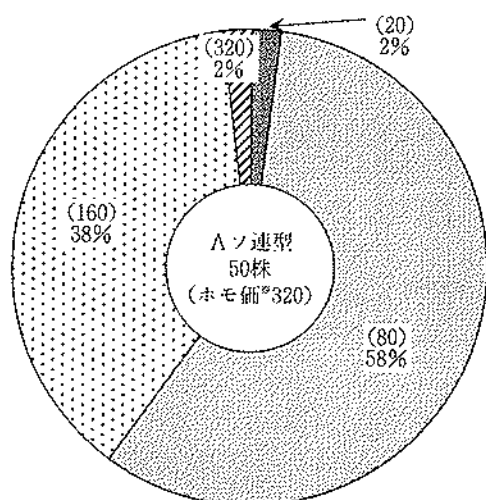


図4 A ソ連型分離株の抗原性状 (HI 抗体価)

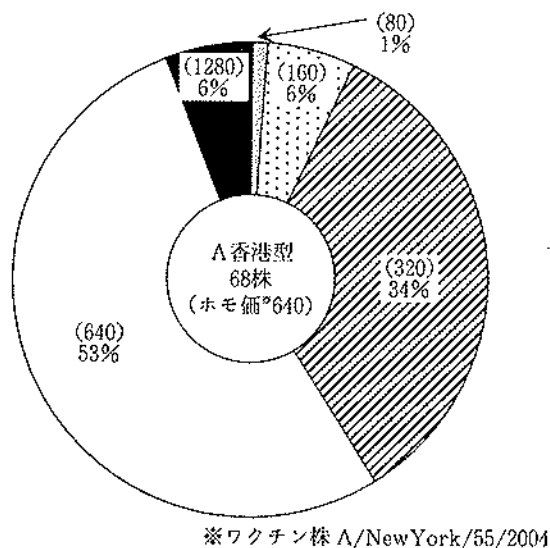


図5 A 香港型分離株の抗原性状 (HI 抗体価)

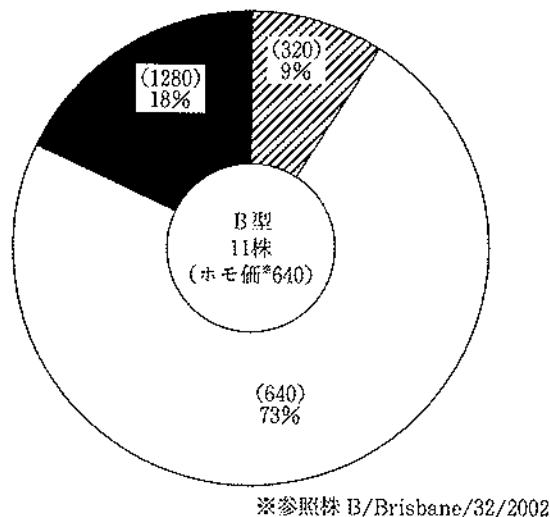


図6 B 型分離株の抗原性状 (HI 抗体価)

モ価640に対して、80が1株、160が4株、320が23株、640が36株、1,280が4株で、ワクチン株とほとんど差がないウイルスが多かった (図5)。

B型11株はすべてワクチン株 B/Shanghai/361/2002 (山形系統株) とは反応せず、Victoria 系統の参照株 B/Brisbane/32/2002の HI 抗体価のホモ価640に対して、320が1株、640が8株、1,280が2株であり、すべて参照株とほとんど差がないウイルスと考えられた (図6)。

4 ま と め

(1) 2005/2006シーズンの集団かぜは、115施設で発生し、患者数は9,077人で、前シーズン (128施設, 8,914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数は11,079人で、前シーズン (18,206人) の約3/5であった。

(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 ソ連型が50株 (38.8%)、A 香港型が68株 (52.7%)、B型が11株 (8.5%) であり、3種のウイルスが流行したのは2001/2002シーズン以来3シーズンぶりであった。

(4) 分離されたインフルエンザウイルスは、A ソ連型はワクチン株のホモ価よりやや低い HI 価の類似株が多く、A 香港型は大半がワクチン株とほとんど差がないウイルスであり、B型はすべてワクチン株とは異なる Victoria 系統株で、参照株と差がないウイルスであった。

文 献

- 1) 黒崎直子, 大矢英紀, 尾西 一: 石川保健研報, 42, 80—82 (2005)
- 2) 病原微生物検出情報月報, 25(11), 280—285 (2004)

〔資 料〕

「そば」による食物アレルギー発症事例

石川県保健環境センター健康・食品安全科学部 小野 陽介・塚 林 裕

キーワード：特定原材料，食物アレルギー，そば

1 はじめに

近年，わが国ではアレルギー疾患の増加が社会問題となっている。特に食品を原因とするアレルギー（食物アレルギー）に関しては，小児のみではなく，成人においても増加の傾向があることが明らかとなってきた。そのため表示による情報提供の必要性から，平成13年4月の食品衛生法関連法令の改定に伴い，平成14年4月より容器包装された加工食品や添加物には特定原材料5品目（「卵，乳，小麦，そば，落花生」）を原材料として使用した場合に表示が義務付けられた。これら5品目の中でも，そばについてはアレルギー発症頻度1%以下と，卵や乳ほど高くはないが¹⁾，呼吸器症状を起こしやすく，アナフィラキシー症状等の重篤な症状も多い²⁾。また，表示の義務は外食産業や店頭で直接販売されるものには無く，外食時にそばのアレルギーが問題となることもある。

こうした中，平成17年8月石川県内でそばアレルギーを持った観光客が冷麺を食べ，アナフィラキシー症状を起こす事例が発生し，食べた冷麺が検体として保健環境センター（以下当センター）に持ち込まれた。今回は一般依頼試験として，その検体について厚生労働省通知「アレルギー物質を含む食品の検査方法について」³⁾に従い一次試験であるELISA法，並びに確認試験であるPCR法を行ったので報告する。

2 発症から検査までの経緯

依頼者とそのお子さんは金沢駅の構内の店舗で冷麺を注文し喫食した。依頼者のお子さんは「そば」に対してアレルギーを持っていたため，依頼者が冷麺注文時に店員にそばが入っていないことを確認している。冷麺の

麺を少量喫食後すぐに気分が悪くなり，その後意識不明になり病院に搬送された。入院時，心肺停止状態になったが一命を取り留めた。

冷麺に関しては，本場韓国の冷麺には一定の割合でそば粉が使用されている。そのため，日本の焼肉店などの冷麺にもそば粉を使用している店舗が多数あること，またそれによるアナフィラキシー等のアレルギー症状の発症例が報告されている⁴⁾。今回のケースでは，依頼者が冷麺注文時に店員にそばが入っていないことを確認しており，依頼者はそば以外のものでアレルギーを発症したのかと不安になり，当センターに試験の依頼を行った。

3 材料と方法

3・1 試 料

試料は，実際に食べて症状を起こした冷麺ではなく，後日同店舗で作られたものの一部を密封式のプラスチック容器につめて搬入された（具と麺が混じった状態）。また，付け合せのキムチもプラスチックの袋に入れて搬入された。

3・2 試験方法

(1) ELISA 法

複合抗原認識抗体を用いた日本ハム(株)製FASTKIT エライザ（そば）（以下，日ハム社製キット）と精製抗原認識抗体を用いた(株)森永科学研究所製特定原材料測定キット（そば）（以下，森永社製キット）の両キットを用いて検査を行った。検査はキット付属の抽出用試薬によってタンパク質を抽出しELISAに用いた。具体的な検査法に関しては通知³⁾に従った。ただし，冷麺検体については具と麺を分けて検体採取を行った。

(2) PCR 法

DNAの抽出精製法として通知³⁾には，CTAB法，シ

A Case Study on a Food Allergy Caused by Buckwheat. by ONO Yousuke and TUKABAYASHI Hiro (Health and Food Safety Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Allergic Substance, Food Allergy, Buckwheat

リカゲル膜タイプキット (QIAGEN DNeasy Plant Mini), イオン交換樹脂タイプキット (QIAGEN Genomic-Tip 20/G) を用いた方法が記載されている。今回はその中でイオン交換樹脂タイプキットを用いた。DNA 抽出後, 吸光度測定により DNA 純度, 収量を確認した。確認後の DNA を鋳型とし, そば DNA に特異的なプライマー対 (増幅バンド長127bp) および植物 DNA に特異的なプライマー対 (増幅バンド長124bp) を用い PCR を行った。具体的な検査法に関しては通知³⁾に従い行った。ただし, 冷麺検体については具と麺を分けて検体採取を行った。

PCR 反応及び結果の判定についても通知³⁾に従い行った。

4 結果及び考察

4・1 ELISA 法によるスクリーニング結果

日ハム製キットでの結果を図1に, 森永社製キットでの結果を図2に示した。日ハム製キットによる定量結果は, 検体中のそばの混入量としてキムチにおいては0.2 $\mu\text{g/g}$, 麺においては $>20 \mu\text{g/g}$, 具においては $>20 \mu\text{g/g}$ となった。一方, 森永社製キットによる定量結果は, 検体中のそばの混入量としてキムチにおいては0.4 $\mu\text{g/g}$, 麺においては $>20 \mu\text{g/g}$, 具においては13 $\mu\text{g/g}$ となった。即ち, 両キットともに, 麺及び具についてはそばが含まれているという結果になり, スクリーニング検査として冷麺中にそばを含有することが確認された。そのため, 確認試験である PCR を実施した。

4・2 PCR 法による確認試験結果

そばの確認試験方法は PCR 法によるそば DNA の検出である。目的とされる DNA の食品中含量は食品の種類によって大きく異なる。通知³⁾には, イオン交換樹脂タイプキット (QIAGEN Genomic-Tip 20/G) を用いる場合, 検体は2gからDNAを抽出することとなっている。しかし, 水分の多い食品に関してはDNA含有率が低いので, 凍結乾燥を行い, 凍結乾燥品から2g採取するなどの対応を行うこととなっている。また,

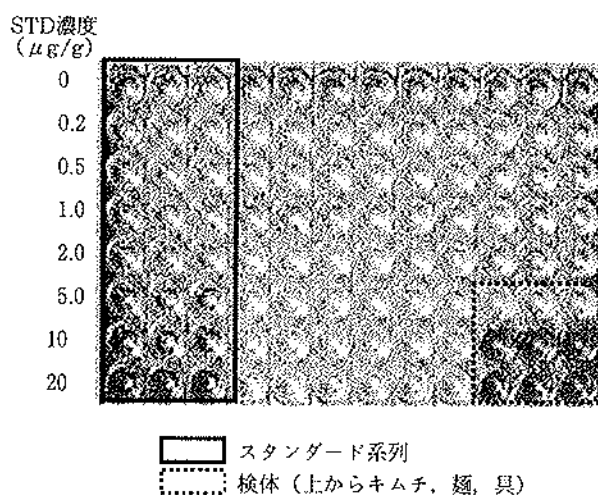


図1 日本ハム社製キットを用いた ELISA 試験結果

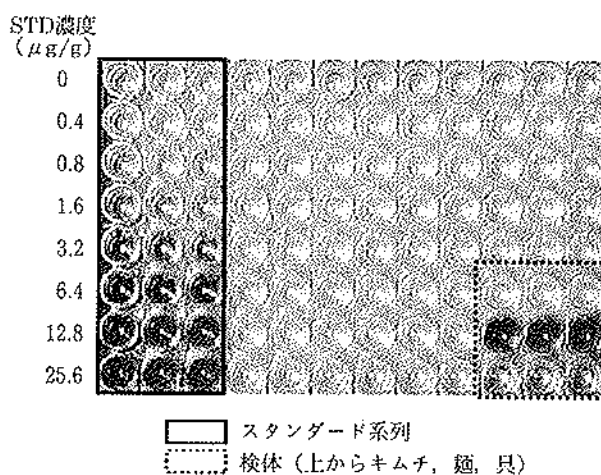


図2 森永社製キットを用いた ELISA 試験結果

DNA が抽出されなかった場合は, 抽出法を変え検討することとなっている。今回は食品中の DNA 含有量がどの程度か予測できなかったため, 検体のそれぞれ2gと0.5gからイオン交換樹脂タイプキットを用いて DNA

表 1 検体からの DNA の抽出結果

No.	OD320	OD280	OD260	OD230	OD260-320	(20ng/ μL)		conc.	D.W.添加量(μL)
						OD ₂₆₀₋₃₂₀ /OD ₂₈₀₋₃₂₀	OD ₂₆₀₋₃₂₀ /OD ₂₃₀₋₃₂₀		
麺 2g	0.01	0.595	0.991	0.53	0.981	1.7	1.9	392.4	176.2
麺 0.5g	0.008	0.168	0.299	0.13	0.291	1.8	2.4	116.4	38.2
具 2g	-0.021	0.829	1.259	0.959	1.28	1.5	1.3	512.0	236
具 0.5g	-0.013	0.294	0.549	0.226	0.562	1.8	2.4	224.8	92.4

吸光度測定時は検液を8倍に希釈

抽出を行った。DNA の抽出量および純度については表 1 に示した。この結果を見ると、検体採取量が 0.5g でも試験を行うのに必要な DNA 量が得られることが分かる。さらには、検体を 2g 採取したときに比べ純度の高い DNA が得られた。これは、検体採取量が多くなり過ぎると、DNA 抽出キットにおけるイオン交換樹脂カラム（精製操作に使用）へのオーバーロードになるためと考えられる。即ち、検査に必要な DNA 量が得られる必要最低限の検体を採取することで、より質の高い DNA が得られることが分かった。

抽出した DNA を鋳型にして PCR 反応を行った後の電気泳動の結果を図 3 に示す。検体は左から麺 2g、麺 0.5g、具 2g、具 0.5g から DNA を抽出し、DNA 濃度が 20 $\mu\text{g}/\text{mL}$ となるように調整した溶液を鋳型にした結果である。陽性コントロールプラスミドをもちいて PCR をおこなったものをポジティブコントロール、テンプレートのかわりに超純水を用いたものをネガティブコントロール、試薬のコンタミの有無を確認するために陽性コントロールにプライマーをいれずに PCR を行ったものがプライマー無しと標記してある。図 3 から、すべての検体で植物 DNA が確認され DNA が抽出されていることが確認され、さらにすべての検体からそば DNA が検出されていることから、検体にそばが含まれていたことが証明された。

なお、冷麺の具には卵、トマト、ワカメ、きゅうり等そばが含まれるものがなく、検体を麺と具に分けるときに具に麺が多少入り、具からもそば DNA が検出された結果になったと考えられる。

以上の結果から、最終的には表 2 のような検査結果を依頼者に報告した。

5 ま と め

(1) 依頼試験検体として持ち込まれた冷麺に関して

表 2 検査結果のまとめ

検査品目	総重量 (g)	試験検査項目	検査結果 ($\mu\text{g}/\text{g}$)	検 査 結 果
冷麺 (麺)	33.3	特定原材料 (そば)	>20	食品衛生法上表示が必要
			>20	
冷麺 (具)	34.0	特定原材料 (そば)	>20	食品衛生法上表示が必要
			13	
キ ム チ	21.0	特定原材料 (そば)	—	特定原材料 (そば) は検出されなかった (検出下限 1 $\mu\text{g}/\text{g}$)

検査結果の上段は日本ハム㈱製 FASTKIT エライザキット、下段は㈱森永生科学研究所製特定原材料測定キットによる。

検査結果についての補足：対面販売や店頭での量り売り、飲食店等で提供される食品には、アレルギー物質を含む旨の表示の義務は食品衛生法に規定されていない。

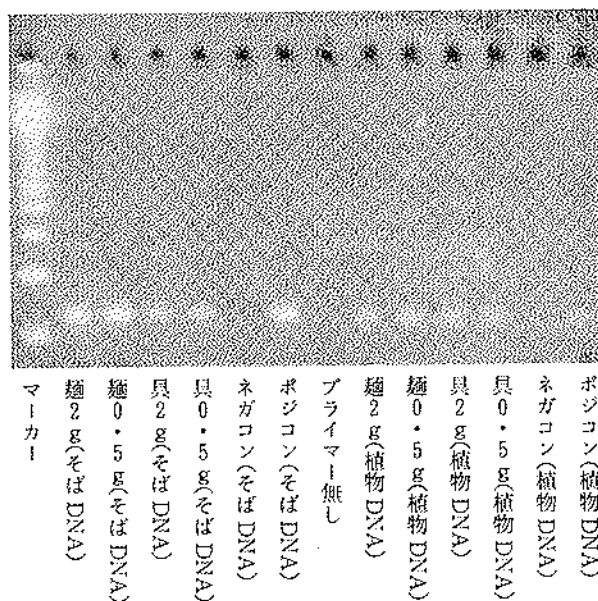


図 3 確認試験結果

「そば」の混入を確認するためのスクリーニング試験として ELISA を行ったところ「そば」の混入が疑われた。

(2) 「そば」混入の確認試験法としての PCR 法を用いたところ、冷麺より「そば」由来 DNA が検出された。また PCR 法に供する DNA の抽出法について通知³⁾を見直すことで、DNA 抽出の最適化が図られた。

(3) 本依頼試験を通じて、外食産業従事者の食物アレルギーに対する認識の甘さが見られたことから、健康被害の未然防止のためにもよりいっそうの食品営業者の消費者に対する適切な情報提供が求められる。

最後に、本事例についての報告に承諾して下さった依頼者である匿名氏に、記して謝意を表します。

文 献

- 1) 飯倉洋治, 今井孝成: 平成13年度厚生科学研究費補助金 免疫・アレルギー等研究事業研究報告書「重篤な食物アレルギーの全国調査に関する研究」報告書, (2001)
- 2) 飯倉洋治: 平成11年度厚生科学研究費補助金 免疫・アレルギー等研究事業研究報告書「食物アレルギー対策検討委員会報告」報告書, (1999)
- 3) 厚生労働省通知「アレルギー物質を含む食品の検査方法について (一部改正)」平成17年10月11日, 食安発第1011002号 (2005)
- 4) 国民生活センター: そばを含有する可能性のある食品のテストと調査報告書, p11 (2003)

〔資 料〕

魚介類中のテトラサイクリン類分析法の検討

石川県保健環境センター健康・食品安全科学部 吉村 瑞江・山岸 喜信

キーワード：テトラサイクリン類, 魚介類

1 はじめに

厚生労働省まとめの輸入食品等の食品衛生法違反事例中、動物用医薬品に関するものでは、魚介類中からのテトラサイクリン類の検出事例が多く見られる。¹⁾²⁾

テトラサイクリン類について、当センターでは、食肉及び卵を対象に標準作業書を作成し検査を行っているが、例えば平成16年度に行った添加回収試験ではテトラサイクリン (TC) 55～67%, オキシテトラサイクリン (OTC) 62～80%, クロルテトラサイクリン (CTC) 45～64%と、その回収率は概して低い。今回、魚介類に適用した場合にも、必要な回収率を確保できるよう試験方法を検討した。

2 試験方法

2・1 試料及び試薬

(1) 試料

違反事例のみられたうなぎ、冷凍えび、しじみについて、通知法に従って添加回収試験を行ったところ、うなぎ及びえびについては、TC, OTC, CTC いずれも70%以上の回収率を確認したが、しじみでは、特に CTC の回収率が低かったため、市販のしじみを用いた。

(2) 標準品

塩酸テトラサイクリン、塩酸オキシテトラサイクリン、塩酸クロルテトラサイクリンは、Riedel-deHaen 社製を使用した。

(3) 標準溶液

各標準品10.8mg (TC, OTC, CTC 各10mg 相当) を秤取し、メタノールを加えて10mL としたものを標準原液とし、1.36%リン酸一カリウム溶液で適宜希釈して標準溶液とした。

(4) クエン酸緩衝液

下記の第1液と第2液を307:193の割合で混和し調製した (pH4.0マッキルベイン緩衝液)。

第1液：クエン酸・一水和物21.0g を水に溶かして1,000mL とした。

第2液：リン酸二ナトリウム・十二水和物71.6g を水に溶かして1,000mL とした。

(5) EDTA 含有クエン酸緩衝液

EDTA-2Na・二水和物1.86g にクエン酸緩衝液500mL を加えて溶かした (0.01M EDTA 含有マッキルベイン緩衝液 (pH4.0))。

(6) 精製用カートリッジカラム

スチレンジビニルベンゼン共重合体カートリッジカラム Sep-pak Plus PS2 (265mg, Waters 社製) を、あらかじめメタノール10mL, 水10mL, 飽和 EDTA-2Na 水溶液 5 mL で処理した後、使用した。

(7) イミダゾール緩衝液

イミダゾール68.08g, EDTA-2Na・二水和物0.37g, 酢酸マグネシウム・四水和物10.72g を水に溶かし、800 mL とし、これに酢酸を加えて pH を7.2に調整後、さらに水を加えて1,000mL とした。

メタノール, n-ヘキサン, アセトニトリル及び水は、HPLC用を、その他の試薬は試薬特級品を用いた。

2・2 装置及び測定条件

蛍光検出器付高速液体クロマトグラフ

使用機器：島津 LC9A

カラム：L-column ODS (4.6×150mm)

カラム温度：40℃

移動相：(1)メタノール-イミダゾール緩衝液 (17:83) (7.5分間)

(2)メタノール-イミダゾール緩衝液 (25:75)

Determination of Tetracyclines in Corbicula, by YOSHIMURA Mizue and YAMAGISHI Yoshinobu (Health and Food Safety Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words: Tetracyclines, Corbicula

表1 1日後の濃度変化の割合

	減少率(%)		
	OTC	TC	CTC
EDTA含有クエン酸緩衝液	5.6%	13.6%	20.2%
5mMクエン酸溶液	1.8%	12.1%	13.8%
水	13.9%	7.1%	22.1%

(9分間)

(3)メタノール-イミダゾール緩衝液(60:40)

(10.5分間)

(4)メタノール-イミダゾール緩衝液(17:83)

(21分間)

流速:0.7mL/min

注入量:20 μ L

測定波長:励起波長 380nm, 蛍光波長 520nm

2・3 試験溶液の調製

(1) 抽出

細切均一化した試料5gにEDTA含有クエン酸緩衝液30mLを加え、1分間細切した後、毎分3,000回転で10分間遠心分離を行い、水層を100mLの分液ロート中に移した。遠心分離管の残留物にEDTA含有クエン酸緩衝液20mLを加え、振とう機を用いて1分間激しく振り混ぜた後、先と同様の条件で遠心分離を行い、水層をその分液ロート中の水層に合わせた。これに、n-ヘキサン20mLを加え、5分間激しく振り混ぜた後、毎分3,000回転で10分間遠心分離を行い、水層を分取した。

(2) 精製

2・1(6)の前処理済みのカートリッジカラムに(1)で抽出した溶液を負荷し、クエン酸緩衝液2mLで洗浄し、さらに、水3.5mLで3回洗浄した。その後、0.01mol/Lシュウ酸含有メタノール10mLで溶出し、減圧下40°C以下でメタノールを除去した。この残留物に1.36%リン酸一カリウム溶液1.0mLを加えて溶かし、これを試験溶液とした。

3 結果及び考察

3・1 添加溶液の検討

添加溶液の安定性を確認するため、EDTA含有クエン酸緩衝液、5mMクエン酸溶液、及び水を用いて、それぞれ1ppmの標準溶液を調製し、調整当日及び翌日に測定し、濃度の変化を比較した。EDTA含有クエン酸緩衝液については、水溶液よりも濃度変化は小さいが、5mMクエン酸溶液に比べ、減少の割合が大きかった。テトラサイクリン類は酸性下で比較的安定とされているが、EDTA存在下での長時間の保存は不適当と考えら

れ、添加溶液は用時調整すべきと考えられた。また、試料からの抽出には、EDTA含有クエン酸緩衝液が用いられるが、精製までの操作を速やかに行い、抽出溶媒の状態ですぐに長時間置くことのないようにする必要があると考えられる。(表1)

3・2 精製方法の検討

(1) カートリッジカラムの前処理方法

通知法では、シリカゲル中の金属イオンをマスキングするため、カートリッジカラムをあらかじめ飽和EDTA-2Na溶液で処理した後使用することとされているが、3.1の結果からテトラサイクリン類は、EDTA存在下では不安定であると考えられた。そこで、岡ら³⁾の前処理方法を参考にし、EDTAの濃度の低い0.1mol/L EDTAクエン酸緩衝液を用い前処理を行ったカラム(カラムa)と飽和EDTA-2Na溶液を用いて処理したカラム(カラムb)について、添加回収試験を行った。OTCはカラムaの方が回収率はわずかに高かったが、CTCは逆にカラムbのほうが高く、CTCの回収率を考慮すると、飽和EDTA-2Naで処理した方がよいことを確認した。(表2)

表2 カラム前処理方法の違いによる回収率の比較

	回収率(%)		
	OTC	TC	CTC
カラムa	83.9	67.3	61.8
カラムb	79.4	67.5	64.1

前処理方法)

カラムa:0.01mol/L EDTAクエン酸緩衝液処理

カラムb:飽和EDTA-2Na溶液処理

(2) カラム洗浄方法の検討

カラム洗浄に用いる水の注入量の違いによる、回収率への影響を検討した。あらかじめ、テトラサイクリン類0.02ppmとなるように調製した標準溶液(EDTA含有クエン酸緩衝液)50mLを用い、冷水5mL、3回の注入で、回収率への影響がないことを確認した。その後、標準品を各1 μ g添加した試料を用い、試験溶液の調製に従って抽出し、前処理済みのカートリッジカラムに負荷後、水5mLで3回洗浄した後で溶出し(条件b)、水3.5mLで3回洗浄し溶出したもの(条件a)とを比較した。条件aでの平均回収率は、三物質とも75%以上と高い値ではあるが、相対標準偏差はいずれも10%を超え、バラツキが大きくよい結果は得られなかった。(表3)

(3) 溶出条件の検討

溶出液の違いによる影響をみるため、標準品を各1

表 3 カラム洗浄方法と溶出条件の相違による添加回収試験

洗 浄 方 法	溶 出 方 法	回収率 (平均) (相対標準偏差 (%)) (n=3)		
		OTC	TC	CTC
水3.5mL×3	メタノール	84.2% (5.8)	69.2% (5.4)	64.9% (5.2)
水5mL×3	メタノール	93.7%(12.7)	82.6%(11.9)	75.1%(11.4)
クエン酸緩衝液 2 mL, 水3.5mL×3	0.01mol/L シュウ酸メタノール	88.9% (5.9)	76.2% (7.0)	77.5% (7.3)

μg 添加した試料を用い、岡ら³⁾の溶出方法を参考にし、前処理済みのカートリッジカラムに負荷後、水3.5mLで3回洗浄した後、0.01mol/L シュウ酸メタノール10mL又はメタノール10mLで溶出し、回収率を比較したところ、0.01mol/L シュウ酸メタノールを用いると、メタノールを用いた場合に比べ5～8%程度回収率が向上した。この結果を参考に、70%以上の回収率で、バラツキの少ない溶出条件を検討した。標準品を各1 μg 添加した試料を用い、試験溶液の調製に従って抽出し、前処理済みのカートリッジカラムに負荷後、クエン酸緩衝液 2 mLで1回、水3.5mLで3回洗浄した後、0.01mol/L シュウ酸メタノール10mLで溶出し (条件 c)、(2)の条件 a 及び条件 b と比較した。条件 c の平均回収率は、三物質とも76%以上で、条件 b に比べると OTC、TC の回収率は5%程度低い十分な回収率であり、相対標準偏差は条件 a には劣るもののいずれも10%以内と、条件 b に比べバラツキが少なく、良い結果が得られた。(表 3)

4 ま と め

EDTA 含有クエン酸緩衝液中ではテトラサイクリン類の濃度減少がみられるため、回収率への影響を抑えるには、添加溶液は用時調整とし、また、抽出溶媒の状態

で長時間置かないようにする必要があることがわかった。

精製用カラムの前処理については、通知法のとおりでよかったが、溶出条件を、クエン酸緩衝液 2 mL で1回、水3.5mLで3回の洗浄後、0.01mol/L シュウ酸メタノール10mLでの溶出に変えることで回収率の向上が認められ、結果のばらつきも少なく実用に耐える条件であることが確認できた。

文 献

- 1) 平成17年度輸入食品監視指導計画監視結果 (中間報告)
<http://www.mhlw.go.jp/houdou/2005/11/dl/h1107-1a.pdf>
- 2) 輸入届出における食品衛生法違反事例 (速報)
(平成17年4月～6月)
<http://www.mhlw.go.jp/topics/yunyu/1-4/0504.html>
(平成17年1月～3月)
<http://www.mhlw.go.jp/topics/yunyu/1-4/0501.html>
- 3) 岡 尚男, 猪飼啓友, 早川順子, 石川直久, 柴田重昭, 斎藤富士雄, 大見 信, 安藤毅欣, 川田正之, 中西和夫: 食衛誌, 36, 759—762 (1995)

〔資 料〕

食品に混入した毒物等に係る迅速分析法の検討

—— 衣料用防虫剤・消毒剤・植物性自然毒について ——

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

キーワード：毒物，迅速分析，衣料用防虫剤，消毒剤，植物性自然毒

1 はじめに

当センターでは平成11年度から，食品に混入した毒物等による健康危機管理事例を想定した迅速分析法の確立を目指している。これまで，家庭用農薬類，医薬品成分のうち血糖降下剤，アジ化ナトリウムやシアン化合物，ヒ素等について検討を行った^{1)~3)}。今回は身の回りにある化学製品のうち未実施の衣料用防虫剤（ナフタレン，パラジクロロベンゼン），消毒剤（クレゾール），また植物性自然毒として誤食等による食中毒事例のみられるトリカブト毒（アコニチン）やじゃがいも芽毒（ α -ソラニン， α -チャコニン）を対象に，迅速分析法の検討を行ったので，その結果を報告する。

2 試験方法

2・1 対象成分

衣料用防虫剤としてパラジクロロベンゼン（Paradichlorobenzene），ナフタレン（Naphthalene），消毒剤として各 *o*-, *m*-, *p*-クレゾール（*o*-, *m*-, *p*-Cresol），植物性自然毒としてトリカブトの有毒成分であるアコニチン（Aconitine），じゃがいも中の有毒成分である α -ソラニン（ α -Solanine）， α -チャコニン（ α -Chaconine）を検討対象とした。

2・2 対象食品

衣料用防虫剤と消毒剤については対象成分をウーロン茶，オレンジジュース，牛乳，ウスターソース，即席麺，レトルトカレーの6食品に添加し，分析法を検討した。

植物性自然毒であるアコニチンは食用薬類（ほうれん

そう，みずな）とはちみつ， α -ソラニンと α -チャコニンはじゃがいもを使った調理品（コロッケ，とん汁，カレー）に添加し，分析法を検討した。

2・3 標準品及び試薬

(1) 標準品

ナフタレンは和光純薬工業（株）製環境分析用，パラジクロロベンゼンは和光純薬工業（株）製水質試験用 1 mg/mL メタノール溶液，各 *o*-, *m*-, *p*-クレゾールは和光純薬工業（株）製試薬特級99%，アコニチンはSIGMA 社製 HPLC 95%， α -ソラニン， α -チャコニンはSIGMA 社製95%を用いた。

(2) 試薬

アセトンは和光純薬工業（株）製残留農薬・PCB 試験用，アセトニトリル及びメタノールは和光純薬工業（株）製 HPLC 用を用いた。

2・4 測定機器及び測定条件

(1) ガスクロマトグラフ/質量分析計（GC-MS）

使用機器：GC-17A PARVUM QP5000（株式会社島津製作所製）

カラム：DB-5ms 0.25mm×30m 膜厚0.25 μ m

（ナフタレン，パラジクロロベンゼン）

カラム温度：50°C (1 min) → 10°C/min → 150°C → 30°C/min → 280°C (3 min)

注入口温度：250°C

検出器温度：250°C

キャリアガス：ヘリウム 20mL/min

キャリアガス圧力：100kPa

イオン化法：電子衝撃イオン化（EI）法

Examination of Rapid Determination of Poisons added in Food — A Case of Repellent, Disinfectant and Plant Poison —. by MIYAMOTO Asami, MIYAKAWA Shigeki and TONAMI Kazuko (Health and Food Safety Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words: Poisons, Rapid determination, Clothing repellent, Disinfectant, Plant Poison

イオン化電圧：1.3kV

測定モード：SIM

モニターイオン：ナフタレン $m/z=128$, ナフタレン-
d8 (IS) $m/z=136$, パラジクロロ
ベンゼン $m/z=146$, パラジクロロ
ベンゼン-d4 (IS) $m/z=152$

注入量：10 μ L

(クレゾール)

50°C (4 min) → 8°C/min → 180°C → 20°C/min → 280°C (5 min)

注入口温度：280°C

検出器温度：280°C

キャリアガス：ヘリウム 20mL/min

キャリアガス圧力：100kPa

イオン化法：EI

イオン化電圧：1.5kV

測定モード：SIM

モニターイオン： $m/z=108$, 77, 90

注入量：1 μ L

(2) 高速液体クロマトグラフ (HPLC)

使用機器：LC-10AD (ポンプ), RF-10A (蛍光検出器), UV-160A (紫外検出器) (株式会社島津製作所製)

カラム：TSK-GEL ODS-80TM 4.6mm×150mm (D)

カラム温度：40°C

移動相：アセトニトリル/0.02mol/L リン酸二水素カリウム (pH 3) (20 : 80) β -シクロデキストリンを20mmolとなるように添加する

流速：1.0mL/min

波長：UV : 270nm, RF : Ex 270nm, Em 305nm

注入量：20 μ L

(3) 高速液体クロマトグラフ/質量分析計 (LC-MS)

使用機器：1100 Series LC/MSD (Agilent 社製)

カラム：Wakosil-II 3C18 HG 2.0mm×150mm (D)

カラム温度：35°C

移動相：アセトニトリル/0.2%ギ酸 (25 : 75)

流速：アコニチン 0.5mL/min, α -ソラニン, α -チャコニン 0.2mL/min

注入量：10 μ L

イオン化法：エレクトロイオン化スプレーイオン化 (ESI) 法 (Positive モード)

測定モード：SIM

フラグメンター電圧：120V

乾燥ガス流量：窒素 12L/min

乾燥ガス温度：350°C

キャピラリー電圧：3,000V

モニターイオン：アコニチン $m/z=646$, α -ソラニン
 $m/z=869$, α -チャコニン $m/z=853$

2・5 試験方法

(1) 標準溶液の調製

ナフタレン, パラジクロロベンゼン及び *o*-, *m*-, *p*-クレゾールは各標準品を10mg 精秤し, メタノールで10mLにしたものを標準原液 (1,000 μ g/mL) とした。

アコニチンは標準品を10mg 精秤し, アセトニトリルで100mLにしたものを標準原液 (100 μ g/mL) とした。

α -ソラニン, α -チャコニンは各標準品を10mg 精秤し, メタノールで100mLにしたものを標準原液 (100 μ g/mL) とした。

食品への添加用標準溶液及び検量線用標準溶液は, 標準原液を適宜希釈して用いた。GC-MS の測定用標準溶液については希釈溶液を適量分取した後, 溶媒を窒素気流下で除去し, アセトンまたは *n*-ヘキサンに溶媒置換したものを用いた。

(2) 試験溶液の調製

ア ナフタレン, パラジクロロベンゼン

均一化した試料1g (液体試料については1mL) に水30mL と沸石2個を加えたものを, 精油定量装置を用いて40分間蒸留抽出を行い, ナフタレン, パラジクロロベンゼンを *n*-ヘキサン5.0mL に捕集した。放冷後, 分取した *n*-ヘキサン層に無水硫酸ナトリウムを加えて脱水し, 試験溶液とした。

イ クレゾール

均一化した試料1g (1mL) にメタノール10mLを加え, 2分間ホモジナイズし, 遠心分離 (3,000rpm, 3分間) 後, 上澄を必要に応じてろ過した。ろ液を20mLに定容し, メタノールで10倍に希釈したものを試験溶液とした。

ウ アコニチン

均一化した試料2g に1mmol/L 塩酸20mLを加え2分間ホモジナイズし, 遠心分離 (3,000rpm, 3分間) 後, 上澄を1mmol/L 塩酸で50mLに定容した。そのうち25mLをあらかじめメタノール10mL, 水10mL, 1mmol/L 塩酸10mLの順でコンディショニングした Sep-Pak Plus C18カラムに負荷した。カラムを1mmol/L 塩酸 5mL, 水20mL, 15%メタノール 5mLで順次洗浄した後, メタノール 8mLで溶出させ, 減圧乾固したものをアセトニトリル 1mLに溶解し, 試験溶液とした。

エ α -ソラニン, α -チャコニン

均一化した試料5g にメタノール15mLを加え, 2分間ホモジナイズし, 遠心分離 (3,000rpm, 3分間) 後, 上澄をメタノールで50mLに定容した。そのうち5mL

を分取して水15mLを加え、あらかじめメタノール10mL、水10mLの順でコンディショニングしたSep-Pak Plus C18カラムに負荷した。カラムを25%メタノール5mLで洗浄した後、メタノール15mLで溶出させ、減圧乾固したものをメタノール1mLに溶解し、試験溶液とした。

(3) 定 量

ア ナフタレン、パラジクロロベンゼン

GC-MSを用いて、2・5(1)で調製した標準溶液と2・5(2)アで調製した試料溶液についてSIMモードで測定を行い、検出されたピーク面積から試料溶液中の濃度を算出した。

イ クレゾール

蛍光検出器が接続されたHPLCを用いて、2・5(1)で調製した標準溶液と2・5(2)イで調製した試料溶液について測定を行い、得られたピーク面積から試料溶液中の濃度を算出した。

またGC-MSにより、標準溶液と試料溶液を測定し、複数のフラグメントイオンの有無により確認を行った。

ウ アコニチン

LC-MSを用いて、2・5(1)で調製した標準溶液と2・5(2)ウで調製した試料溶液についてSIMモードで測定を行い、得られた定量イオンのピーク面積から試料溶液中の濃度を算出した。

エ α -ソラニン、 α -チャコニン

LC-MSを用いて、2・5(1)で調製した標準溶液と2・5(2)エで調製した試料溶液についてSIMモードで測定を行い、得られた定量イオンのピーク面積から試料溶液中の濃度を算出した。

3 結果と考察

3・1 食品への標準物質添加量の検討

標準物質の添加量については、文献の中毒量、致死量を参考に検討を行った。

(1) ナフタレン、パラジクロロベンゼン

ナフタレンやパラジクロロベンゼンは衣料用防虫剤として、スーパーなどで容易に入手可能である。ナフタレンの推定経口致死量は成人で2~15g⁽¹⁰⁾、パラジクロロベンゼンでは単位体重あたり0.5~5g/kg(体重)⁽¹¹⁾との報告がある。このことから、ナフタレンでは食品100gを摂取して死亡に至る場合の食品中の濃度は20mg/g(食品)(致死量を2gとしたとき)である。そこで致死量の1/10⁵以下を検出目標濃度とし、食品それぞれ1g(1mL)にナフタレン0.2 μ gを添加した。またパラジクロロベンゼンでは、体重50kgの人が食品100gを摂取して死亡に至る場合の食品中のパラジクロロベンゼン濃

度は250mg/g(食品)(致死量を0.5g/kg(体重)としたとき)である。よって致死量の1/10⁵以下を検出目標濃度とし、食品それぞれ1g(1mL)に2 μ gを添加した。

(2) クレゾール

クレゾールはo-, m-, p-3種の異性体が存在し、各異性体で毒性の強さはわずかに異なるが、成人の平均的な致死量は15g⁽¹²⁾であると報告されている。これによればある食品にクレゾールが混入したとして、食品100gを摂取して死亡するときの食品中のクレゾール濃度は、150mg/g(食品)である。そこで致死量の1/20,000を検出目標濃度とし、食品それぞれ1g(1mL)に各異性体を7.5 μ g(致死量の1/20,000)を添加した。

(3) アコニチン

トリカブトを別の山菜と誤って摂取したり、はちみつに混入したトリカブトの花粉による中毒事例もあることから、ほうれんそう、みずな、はちみつを試料としてアコニチンを添加し、回収試験を行った。アコニチンの経口致死量は1~2mg⁽¹³⁾、中毒量はその1/100⁽¹⁴⁾といわれている。これによれば食品100gを摂取して中毒を発症する場合の食品中のアコニチン濃度は、0.1 μ g/g(食品)(致死量を1mgとしたとき)である。この濃度を検出目標として試料2gにアコニチン0.2 μ gを添加した。

(4) α -ソラニン、 α -チャコニン

じゃがいもを使った調理品を摂取して中毒を発症した場合を想定し、コロケ、とん汁、カレーについて添加試験を行った。じゃがいも芽毒に含まれる α -ソラニン、 α -チャコニンの中毒量は成人で0.2~0.4g⁽¹⁵⁾であり、食品100gを摂取して中毒症状を発症する場合の食品中の α -ソラニン及び α -チャコニン濃度は、2mg/g(食品)(中毒量を200mgとしたとき)である。中毒量の1/10³を検出目標として試料5gにそれぞれ10 μ g(中毒量の1/10³)を添加した。

3・2 試料溶液の調製方法の検討

(1) ナフタレン、パラジクロロベンゼン

環境省が行っている水質・底質モニタリングのジクロロベンゼン類の分析法⁽¹⁶⁾を参考に、精油定量装置を用い循環式の水蒸気蒸留法によりn-ヘキサンで抽出した。

蒸留抽出時間について20、40、60分で検討した結果、20分でほぼ100%の回収が確認された。この結果から、安全域を見込んで蒸留抽出時間を40分とした。

(2) クレゾール

o-, m-クレゾールはメタノールと容易に混和、p-クレゾールはメタノールに可溶であるため、メタノールで抽出操作を行った。また、精製等は行わなかった。

(3) アコニチン

中野らの報告¹⁶⁾によれば北海道産附子及び烏頭中のアコニチン系アルカロイドの分析において、1 mmol/L 塩酸で抽出し、精製は Sep-Pak Plus C₁₈を用い、メタノールで溶出させている。試料溶液の調製はこれに準じて行った。

(4) α -ソラニン、 α -チャコニン

新藤ら¹⁷⁾はじゃがいも中の α -ソラニン、 α -チャコニンの含有量の調査において、メタノールで抽出し、精製は Sep-Pak Plus C₁₈を用い、メタノールで溶出させている。試料溶液の調製はこれに準じて行った。

3・3 測定条件について

(1) ナフタレン、パラジクロロベンゼン

GC/MS の測定条件は薬毒物実践ハンドブック¹⁸⁾に準じた。

GC-MS によるナフタレン、ナフタレン-*d*₄、パラジクロロベンゼン、パラジクロロベンゼン-*d*₈のマススペクトルを図1に示す。

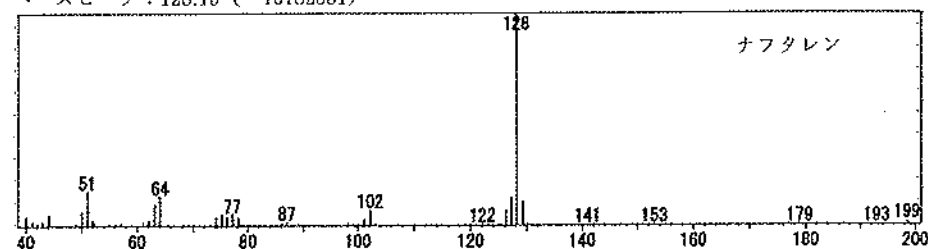
(2) クレゾール

HPLC の測定条件は薬毒物実践ハンドブック¹⁸⁾を参考にした。蛍光検出器 (RF) の感度は紫外検出器 (UV) の約15倍であったので、測定には蛍光検出器を用いるこ

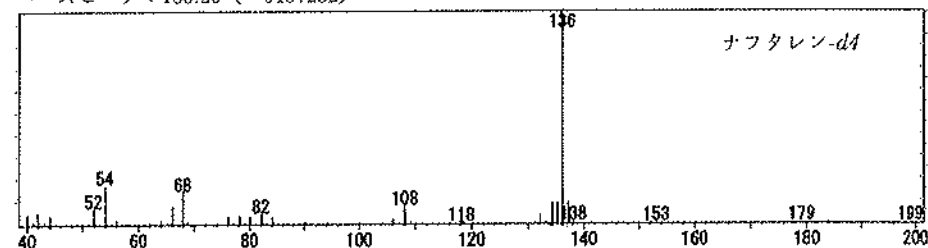
ととした。移動相について β -デキストリンはカラムへの負担が大きいため、これを加えないアセトニトリル/20mmol/L リン酸二水素カリウム緩衝液 (pH3) (20:80) を用いると、*p*-クレゾールと *m*-クレゾールが分離されず、ひとつのピークとして現れ、リテンションタイムも遅くなった。よって上記文献のとおり、20mmol/L の濃度で β -デキストリンを加えることにより、*o*-, *m*-, *p*-クレゾールが分離され、各ピークがほぼ同感度で得られた。

消毒剤として利用されているクレゾール石けん液はクレゾール50v/v%を含んでおり、消毒用として1~10%に希釈して利用される。一般での使用頻度は減少しているが、未だに誤飲食または事件による中毒症例が発生する。市販のクレゾール石けん液を500,000倍希釈して測定した結果、*p*-クレゾールと *m*-クレゾールのみが含まれており、その比は1:1.7であった。健康危機管理時において、*o*-, *m*-, *p*-クレゾールを分離同定する必要があるときは β -デキストリンを加える

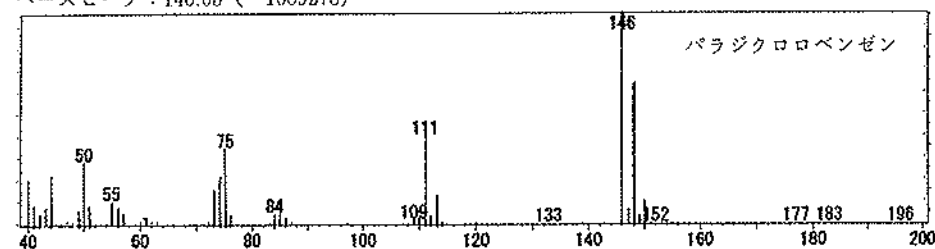
ピーク数:161 保持時間:8.933
ベースピーク:128.15 (10182551)



ピーク数:159 保持時間:8.892
ベースピーク:136.20 (9157282)



ピーク数:160 保持時間:6.100
ベースピーク:146.05 (1669273)



ピーク数:161 保持時間:6.075
ベースピーク:150.05 (1778033)

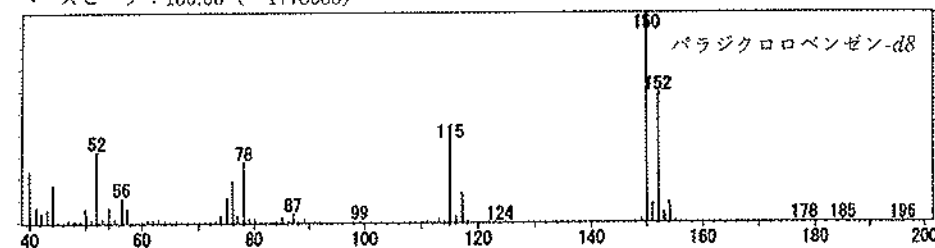


図1 ナフタレン、ナフタレン-*d*₄、パラジクロロベンゼン、パラジクロロベンゼン-*d*₈のマススペクトル

こととする。

GC-MS による確認では、*p*-クレゾールと *m*-クレゾールのリテンションタイムが近似しているため、異性体の分離は困難であるが、クレゾールの確認は可能である。

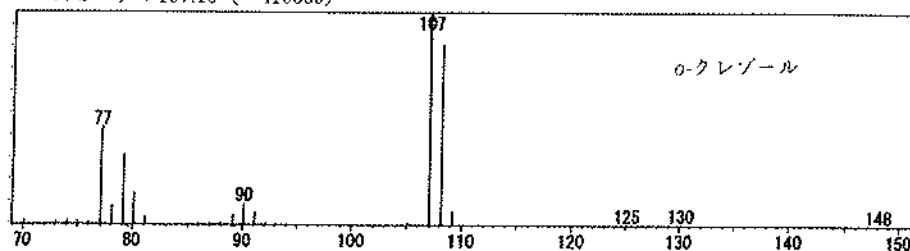
GC-MS 測定による *o*-, *m*-, *p*-クレゾールそれぞれのマススペクトルを図2に示す。

(3) アコニチン

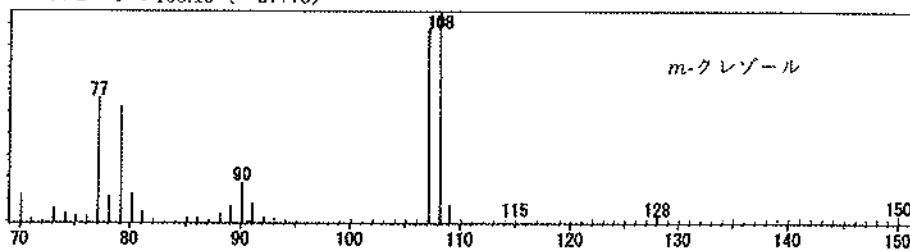
移動相にアセトニトリル/0.05mol/L リン酸カリウム (pH2.5) (25:75) を用いて HPLC 測定を行った結果、20ppm のアコニチンのピークが検出されなかった。また中野らの報告¹⁰⁾にある、水/テトラヒドロフラン/アセトニトリル (80:15:5) を用いても、ピークがブロードでリテンションタイムも安定せず、感度も低かった。また笠原ら¹⁰⁾が LC-MS 測定に用いた 0.3% 酢酸/アセトニトリル (75:25) でも、ピークは検出されたが感度が低かったため、LC-MS により測定することとした。

LC-MS による測定では、ESI 法 Positive モードで H^+ の付加した $[MH^+]$ が認められた。Negative モードではピークを確認できなかった。フラグメンター電圧は 60V から 200V まで段階的に変えて測定し、イオン強

ピーク数: 80 保持時間: 10.808
ベースピーク: 107.10 (410569)



ピーク数: 81 保持時間: 10.758
ベースピーク: 108.15 (27775)



ピーク数: 81 保持時間: 10.333
ベースピーク: 108.15 (441837)

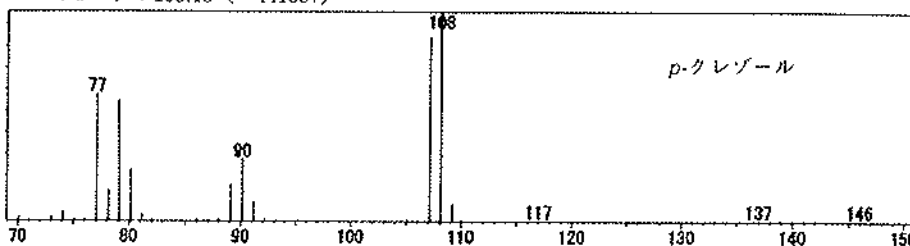


図2 *o*-, *m*-, *p*-クレゾールのマススペクトル

度が最も高い 120V とした。移動相については酢酸系とギ酸系でピーク形状を比較すると、ギ酸系の方が酢酸系よりピーク形状が良好であった。ピーク形状、リテンションタイムを考慮し、移動相に 25% アセトニトリル/0.2% ギ酸を用い、流速を 0.5mL/min とした。

LC-MS によるアコニチンのマススペクトルを図3に示す。

(4) α -ソラニン, α -チャコニン

α -ソラニン, α -チャコニンについてもアコニチンと同様の測定条件で測定したところ、両成分のピークが接近したため、流速は 0.2mL/min とした。Positive モードでは $[MH^+]$, Negative モードでは $[MH^-]$ が確認されたが、Positive モードの方が感度がよいので Positive モードで測定することとした。

LC-MS による α -ソラニン, α -チャコニンのマススペクトルを図4に示す。

3・4 検量線と定量下限について

(1) ナフタレン, パラジクロロベンゼン

薬毒物分析実践ハンドブック¹⁸⁾によると、血液中のナフタレン, パラジクロロベンゼンの GC/MS 測

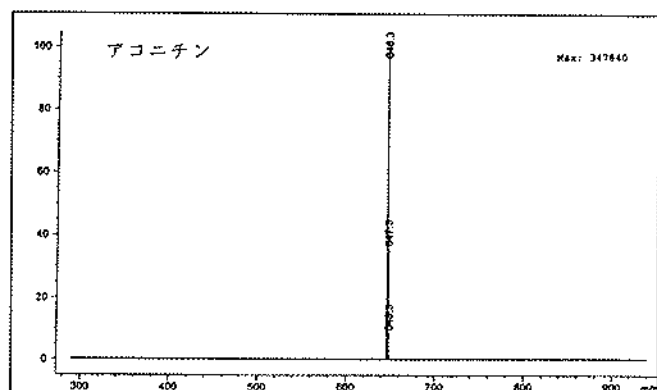


図3 アコニチンのマススペクトル

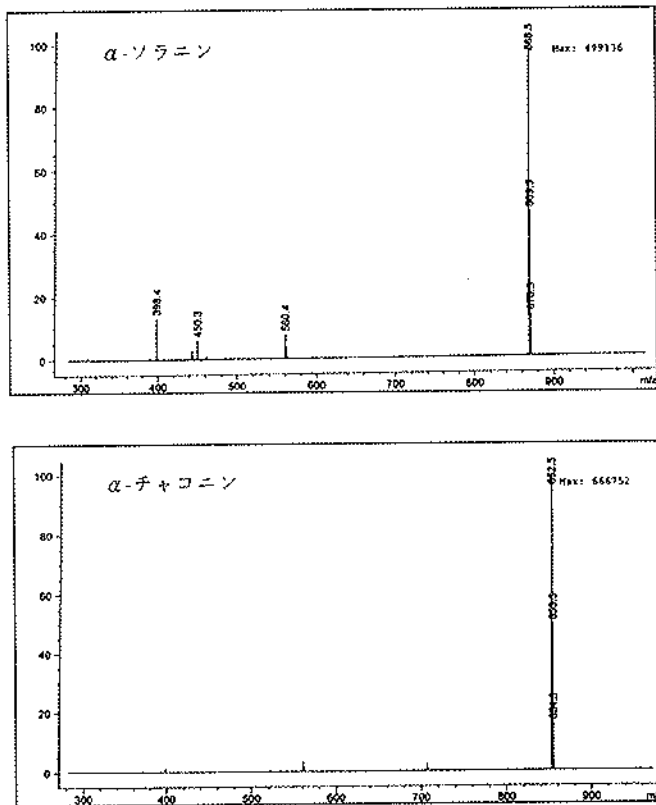


図4 α-ソラニン、α-チャコニンのマススペクトル

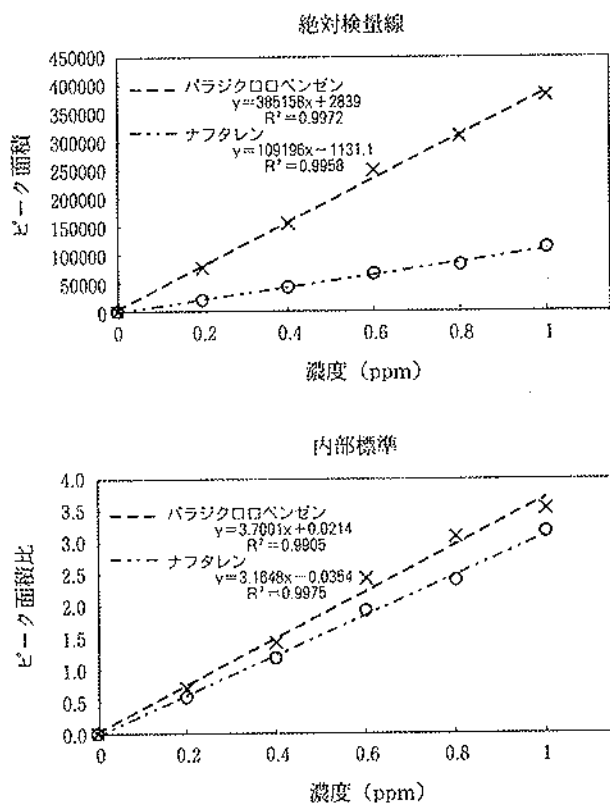


図5 パラジクロロベンゼン・ナフタレンの検量線 (GC-MS)

定における検量線の作成において、ナフタレン、パラジクロロベンゼンの水素の一部を重水素に置換したパラジクロロベンゼン-*d*4とナフタレン-*d*8を添加して、内標準法による検量線を作成している。ナフタレンは0.02, 0.04, 0.06, 0.08, 0.10 $\mu\text{g/mL}$ の5点、パラジクロロベンゼンは0.2, 0.4, 0.6, 0.8, 1.0 $\mu\text{g/mL}$ の5点で絶対検量線法とナフタレン-*d*4とパラジクロロベンゼン-*d*8を加えた内部標準法の2法により検量線を作成した。両者とも直線性に問題はなく、添加回収率にも差がみられなかったことから、健康危機管理時には簡便性を考慮し絶対検量線法を採用することとした。これにより、致死量の $1/10^5$ まで定量可能である。検量線を図5に示す。

(2) クレゾール

各 *o*-, *m*-, *p*-クレゾールについて、HPLCを用いて、0.01, 0.05, 0.1 $\mu\text{g/mL}$ の3点で絶対検量線法により検量線を作成した。各成分とも良好な直線性を示した。これにより、致死量の $1/150,000$ まで定量可能である。検量線を図6に示す。

GC-MSによる測定においても *o*-, *m*-, *p*-クレゾールは0.1~2.0 $\mu\text{g/mL}$ の範囲でピーク面積は定量的であった。しかし、*o*-, *p*-クレゾールはほぼ同感度であるのに対し、*m*-クレゾールの感度は他の2異性

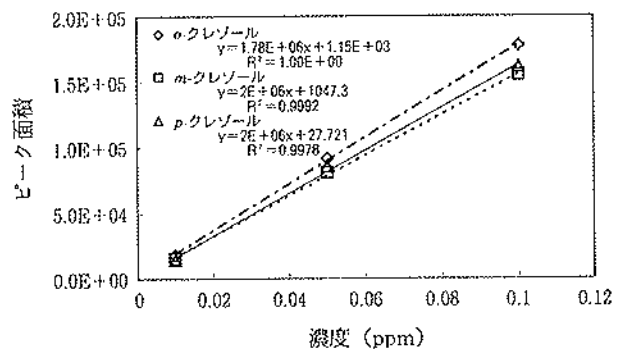


図6 *o*-, *m*-, *p*-クレゾールの検量線 (HPLC)

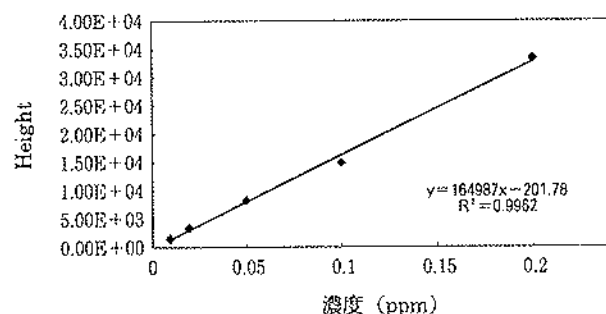


図7 アコニチンの検量 (LC-MS)

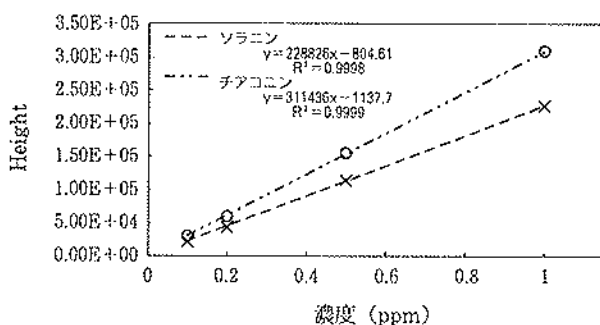


図8 ソラニン・チアコニンの検量線 (LC-MS)

体に比べて約1/16であった。

(3) アコニチン

LC-MSを用いて、0.01, 0.02, 0.05, 0.10, 0.20 $\mu\text{g/mL}$ の5点で絶対検量線法により検量線を作成した結果、良好な直線性を示した。これにより、致死量の1/10²まで定量可能である。検量線を図7に示す。

(4) α -ソラニン, α -チアコニン

LC-MSを用いて、0.01, 0.02, 0.05, 0.10, 0.20 $\mu\text{g/mL}$ の5点で絶対検量線法により検量線を作成した結果、良好な直線性を示した。これにより、中毒量の1/10⁴まで定量可能である。検量線を図8に示す。

3・5 添加回収試験について

(1) ナフタレン, パラジクロロベンゼン

添加回収結果を表1に示す。ナフタレンについては回収率が71.9%~109.2%と良好であったが、パラジクロロベンゼンについては、食品によるバラつきが大きく、低いものではウーロン茶で49.1%であった。しかしパラジ

表1 パラジクロロベンゼン・ナフタレンの回収率

	回収率 (%) (n = 3)	
	パラジクロロベンゼン	ナフタレン
ウーロン茶	49.1	71.9
ジュース	65.5	89.3
牛乳	104.9	109.2
ウスターソース	64.5	80.2
即席麺	72.9	100.2
レトルトカレー	66.3	108.3

表2 クレゾールの回収率

	回収率 (%) (n = 2)		
	p-クレゾール	m-クレゾール	o-クレゾール
ウーロン茶	92.3	93.7	96.5
ジュース	103.0	104.9	111.8
牛乳	104.9	109.2	99.3
ソース	107.5	110.7	108.5
ラーメン	103.9	102.4	104.4
カレー	89.6	91.4	91.3

クロロベンゼンとナフタレンにおいて致死量の1/10⁴量の検出が可能であることから、健康危機管理対応のための分析法としては十分適用できると考える。

標準溶液及び添加試料溶液のGC-MSクロマトグラムの一例を図9に示す。

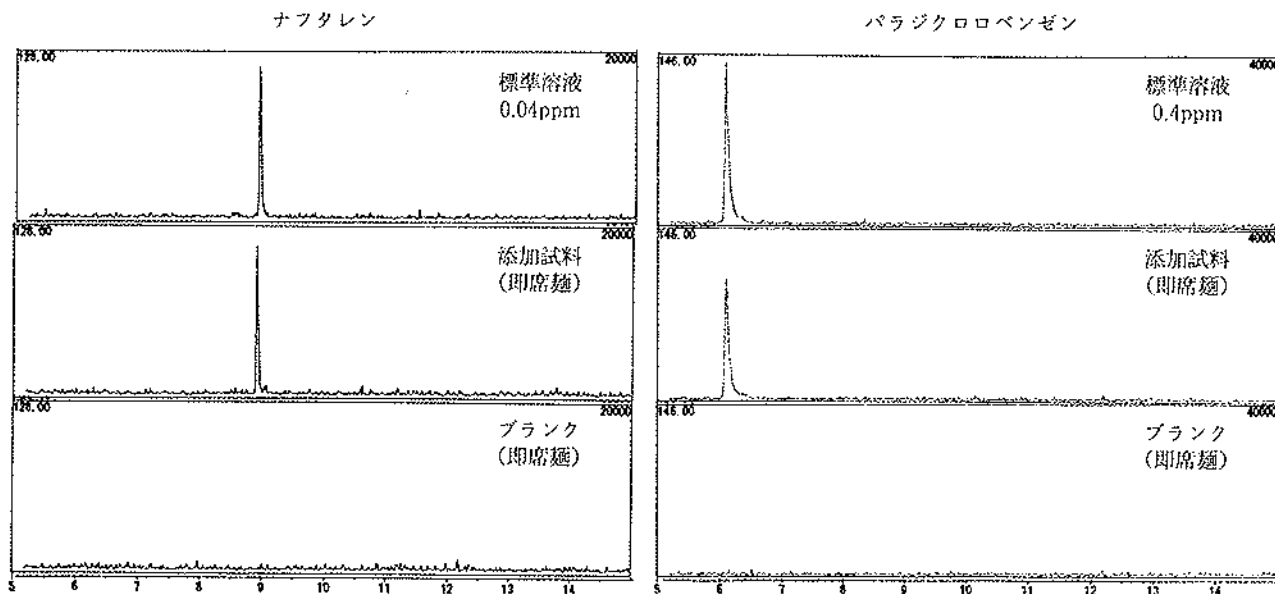


図9 ナフタレン, パラジクロロベンゼンのGC-MSクロマトグラムの一例

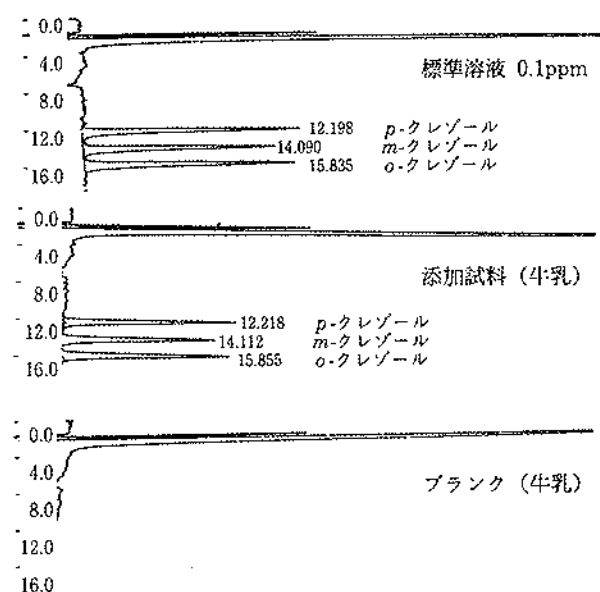


図10 o-, m-, p-クレゾールのHPLCクロマトグラムの一例

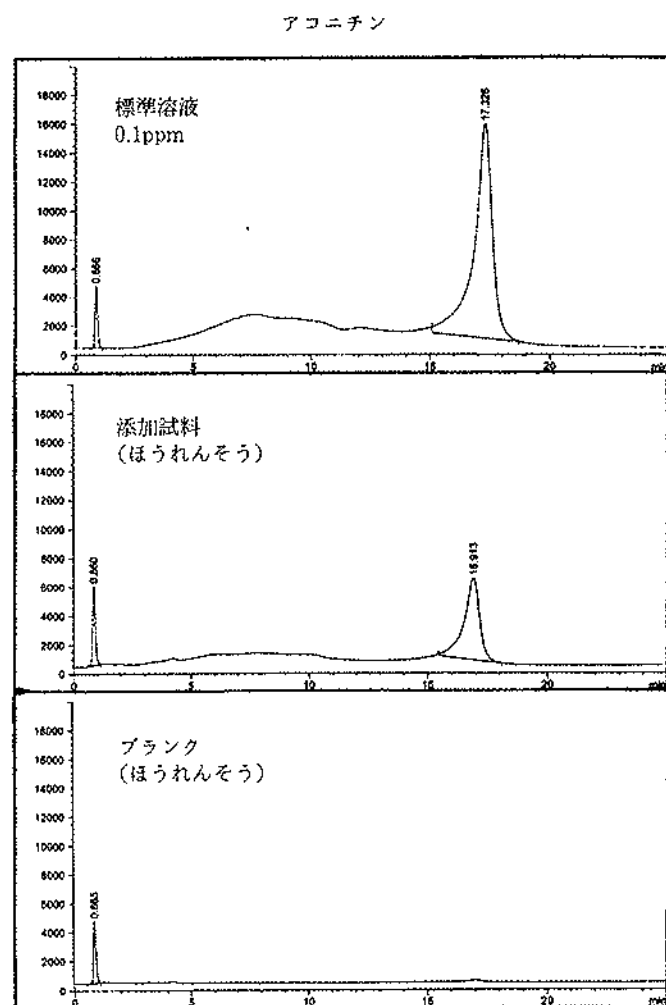


図11 アコニチンのLC-MSクロマトグラムの一例

(2) クレゾール

添加回収結果を表2に示す。クレゾールを添加したすべての食品において、カラムによる精製を行わなくてもほとんど妨害ピークはみられず、90～112%の良好な回収率が得られた。

標準溶液及び添加試料溶液のHPLCクロマトグラムの一例を図10に示す。

(3) アコニチン

添加回収結果を表3に示す。はちみつについては回収率が94.8%と良好であったが、ほうれんそう、みずなについてはそれぞれ39.0%、26.5%と極端に低かった。はちみつについては、良好な回収率が得られた。葉類については回収率が低く、定量は困難であるが、中毒量のアコニチンを含んでいた場合の確認は可能である。葉類からのアコニチンの抽出条件の検討が今後の課題である。

標準溶液及び添加試料溶液のLC-MSクロマトグラムの一例を図11に示す。

(4) α -ソラニン、 α -チャコニン

添加回収結果を表4に示す。とん汁については α -ソラニン、 α -チャコニンそれぞれ回収率が90.7%、96.4%と良好であったが、カレーについては52.5%、40.0%、コロッケについては、36.0%、11.1%であった。

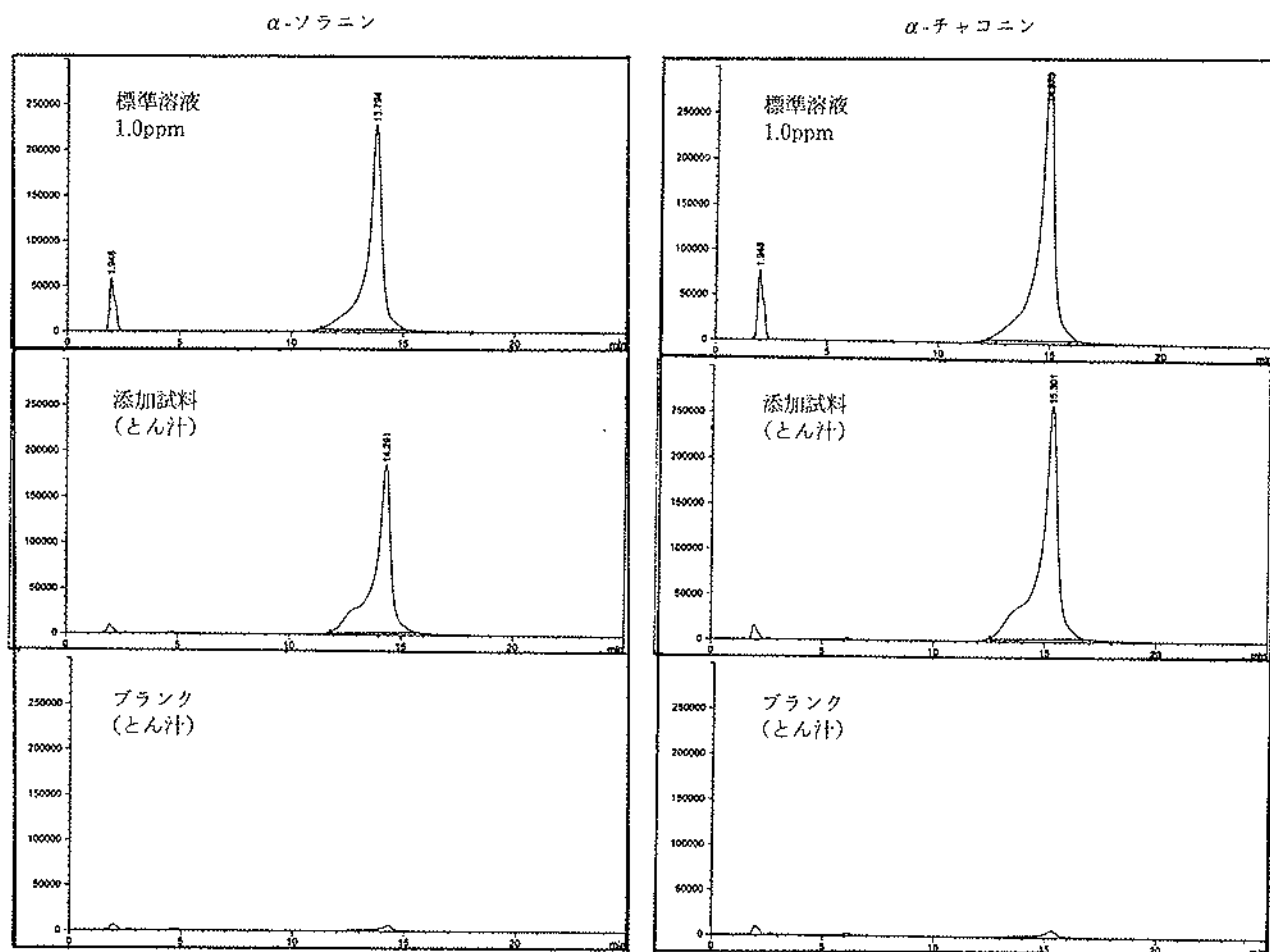
市販のじゃがいもを分析した結果、 α -ソラニン1.4mg/100g(じゃがいも)、 α -チャコニン1.7mg/100g(じゃがいも)が含まれていた。また芽の出たじゃがいもでは α -ソラニン、 α -チャコニンの濃度はともにその約3倍であった。今回カレー、コロッケの回収率が低かったのは、これらの調理品にはじゃがいもが多く使われており、調理品自体の α -ソラ

表3 アコニチンの回収率

	回収率 (%) (n=1)
	アコニチン
ほうれんそう	39.0
みずな	26.5
はちみつ	94.8

表4 ソラニン・チャコニンの回収率

	回収率 (%) (n=2)	
	ソラニン	チャコニン
コロッケ	36.0	11.1
とん汁	90.7	96.4
レトルトカレー	52.5	40.0

図12 α -ソラニン、 α -チャコニンのLC-MSクロマトグラムの一例

ニン、 α -チャコニンの含有量に対して添加量が少なかったことが原因と考えられる。中毒が起きたときにはかなり高濃度の α -ソラニン、 α -チャコニンを含むことになるので、今回の分析法で十分対応可能であると考ええる。

標準溶液及び添加試料溶液のLC-MSクロマトグラムの一例を図12に示す。

4 ま と め

衣料用防虫剤、消毒剤、植物性自然毒について、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。

検討した成分において、添加試験では回収率の低いものもあったが、健康危機管理には十分対応可能であった。

(1) 衣料用防虫剤

パラジクロロベンゼンとナフタレンについてGC-MS測定では、ウーロン茶、オレンジジュース、牛乳、ウスターソース、即席麺、レトルトカレーの6食品への添加試験において、食品100gを摂取した場合を想定し、致死量の $1/10^5$ 量（試料1gにつきそれぞれ $0.2\mu\text{g}$ 、 2

μg ）の検出が可能であった。

本法による分析時間は、1検体あたり2時間程度であった。

(2) 消毒剤

クレゾールについてHPLC測定ではウーロン茶、オレンジジュース、牛乳、ウスターソース、即席麺、レトルトカレーの6食品への添加試験において、食品100gを摂取した場合を想定し、致死量の $1/20,000$ 量（試料1gにつき $7.5\mu\text{g}$ ）の検出が可能であった。

本法による分析時間は、1検体あたり1時間程度であった。

(3) 植物性自然毒

トリカブト毒の成分であるアコニチンについてLC-MSによる測定では、食用薬類やはちみつに含まれる場合の致死量の $1/100$ （試料1gにつき $10\mu\text{g}$ ）を検出することが可能であった。しかし、薬類では回収率が低く、定量性に問題がみられたので、回収率の改善が今後課題である。

ジャがいも芽毒の成分である α -ソラニン、 α -チャコ

ニンについても中毒量の1/1,000を検出することが可能であった。

本法による分析時間は、各成分ともに1検体あたり3時間程度であった。

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) 宮川茂樹, 中村朋子, 砺波和子: 石川保環研報, 42, 31—36 (2005)
- 10) (財)日本中毒情報センター: 症例で学ぶ中毒事故とその対策 改訂版, 65—68, じほう, 東京 (2000)
- 11) 鈴木 修, 屋敷幹雄: 薬毒物分析実践ハンドブック, 374—378, じほう, 東京 (2002)
- 12) (財)日本中毒情報センター: 症例で学ぶ中毒事故とその対策 改訂版, 345—348, じほう, 東京 (2000)
- 13) 鈴木 修, 屋敷幹雄: 毒劇物分析実践ハンドブック—クロマトグラフィーを中心として—, 387—398, じほう, 東京 (2002)
- 14) 牛山博文, 安田和男: 食品衛生研究, Vol55, No. 3, 31—34, (2005)
- 15) 環境庁: 平成9年度 (1997年) 版「化学物質と環境」
- 16) 中野道晴, 山岸 喬: 北海道衛研報, 32, 21—26 (1982)
- 17) 新藤哲也, 牛山博文, 観 公子, 安田和夫, 斉藤和夫: 食衛誌, Vol.45, No.5, 277—282 (2004)
- 18) 鈴木 修, 屋敷幹雄: 毒劇物分析実践ハンドブック—クロマトグラフィーを中心として—, 503—510, じほう, 東京 (2002)
- 19) 笠原義正, 久間木國男, 片桐 進: 食衛誌, Vol. 37, No.4, 202—209
- 20) 鈴木 修, 屋敷幹雄: 毒劇物分析実践ハンドブック—クロマトグラフィーを中心として—, 369—373, じほう, 東京 (2002)

〔資 料〕

繊維製品中のホルムアルデヒド定量試験について

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

キーワード：繊維製品, ホルムアルデヒド

1 はじめに

ホルムアルデヒド(HCHO)は繊維製品に防皺加工剤として広く使用されており、皮膚接触する機会が多い化学物質である。昭和48年に制定された「有害物質を含有する家庭用品の規制に関する法律」では、HCHOによるアレルギー性接触皮膚炎の防止を目的として、昭和50年10月1日より、衣類等繊維製品中におけるHCHO量を規制している。しかしながら、安価な繊維製品はそのほとんどが海外からの輸入品であり、HCHOについての違反が絶えないのが現状である。

HCHOの分析法は、溶出液中のHCHOとアセチルアセトンとを反応させ、その吸光度を分光光度計で測定するアセチルアセトン法(以下「AA法」という)が公定法¹⁾として定められている。平成16年7月9日の施行規則の改正により、生後24ヶ月以下の乳幼児用繊維製品に対する確認試験として、これまでのジメドンによる吸収消失による確認に加え、HCHOとアセチルアセトンの反応液を高速液体クロマトグラフ(HPLC)によって分析する方法(以下「HPLC法」という)が追加され、より精度よく測定することが可能となった。しかしながら、AA法もHPLC法もHCHOとアセチルアセトンとを反応させ、その412nm付近の吸光度を測定するものであり、繊維の加工方法が多様化する現在では、溶出液の着色や濁りによる吸光度測定時における妨害や、特殊加工成分の溶出によってHCHOとアセチルアセトンの反応が阻害される等、正しく定量できない場合も懸念される。

一方、寺内ら²⁾は水試料中HCHOを誘導体化後溶媒抽出し、GC/ECDにより測定する方法を報告している。さらに平成16年4月施行された水道法³⁾ではHCHOに

ついて新たに基準が設けられ、その測定は同様に誘導体化後溶媒抽出し、GC/MSで測定する方法が採用されている。

今回、水試料中のHCHO定量法として有用とされたこれらの試験法、すなわち誘導体化してGC/MSで測定する方法(以下「GC/MS法」という)、GC/ECDで測定する方法(以下「GC/ECD法」という)が繊維製品溶出液中のHCHO量の定量法として適用可能であるか検討した。併せて、AA法やHPLC法で定量試験を行う際の注意点について、若干の知見を得たので報告する。

2 方 法

2・1 試 薬

HCHO標準液は関東化学(株)水質試験用ホルムアルデヒド標準液1mg/mLメタノール溶液を、氷酢酸は和光純薬工業(株)非水滴定用、酢酸アンモニウムアセチルアセトンは和光純薬工業(株)特級、HPLC移動相調製に使用したアセトニトリルは和光純薬工業(株)HPLC用、水は超純水を用いた。ヘキサンと無水硫酸ナトリウムは和光純薬工業(株)残留農薬試験用、ペンタフルオロベンジルヒドキシルアミン(PFBOA)塩酸塩は和光純薬工業(株)水質試験用を用いた。

2・2 試薬の調製

アセチルアセトン溶液は酢酸アンモニウム15g、氷酢酸0.3mL、アセチルアセトン0.2mLを精製水で溶解して100mLとした(用事調製)。吸光度測定の際の対照液(Ao)は酢酸アンモニウム15g、氷酢酸0.3mLを精製水で溶解して100mLとした酢酸緩衝液を用いた。

PFBOA溶液はPFBOA塩酸塩0.1gを精製水100mLに溶解したものをを用いた。

Quantitative determination of formaldehyde in textile products. by MIYAKAWA Shigeki, MIYAMOTO Asami and TONAMI Kazuko (Health and Food Safety Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Textile products, Formaldehyde

表 1 試験用繊維製品

	品 名	分 類	色	成 分	規 制
検体 1	くつした	くつした	黒	綿100%	対象（乳幼児以外）
検体 2	オムツカバー	おしめカバー	白	ポリエステル100%	対象（乳幼児）
検体 3	トレーニングパンツ	おしめ	青	綿80%, ポリエステル20%	対象（乳幼児）
検体 4	フェルト	家庭用毛糸	灰	毛100%	対象外
検体 5	擦糸	---	桃	不明（プラスチックコーティング）	対象外

2・3 試験用繊維製品

溶出液が着色するものや濁るもの、繊維に特殊加工（プラスチック蒸着と考えられるが詳細は不明）が施されているもの5種を選択した。

各製品の詳細は表1のとおりである。

2・4 標準溶液の調製

HCHO標準液を精製水で希釈して40 μ g/mLのHCHO溶液を調製し、これを更に精製水で順次希釈して0.2～8.0 μ g/mLの各種濃度のHCHO標準溶液を調製した。

2・5 試験用溶出液の調製

乳幼児製品の公定法では、まず繊維製品を細かく切り、その2.5gを共栓付フラスコに秤りとり。これに精製水100mLを加えて40℃の水浴中でときどき振り混ぜながら1時間溶出を行い、ガラスろ過器を用いて温時ろ過したものを試験用溶出液としている。

今回、2・6で調製する添加回収試験溶液として、製品由来の溶出成分が2.50g相当になるように、繊維製品を3.13g秤りとり、公定法に従って試験用溶出液を調製した。

2・6 添加回収試験溶液の調製

試験用溶出液を4mLずつとり、1.0、2.0、8.0 μ g/mLのHCHO標準溶液をそれぞれ1mLずつ加え、添加回収試験溶液とした。HCHO 2.0 μ gを添加した場合、乳幼児製品の基準である試料1gあたりHCHOが16 μ g含有に相当する。

添加回収試験溶液とは別に精製水を1mL加えた試料ブランク溶液もあわせて調製した。

2・7 測定溶液の調製

AA法及びHPLC法の測定溶液は、公定法に従い、添加回収試験溶液にアセチルアセトン溶液を加え、30分40℃で加温し発色させた。

GC/MS法及びGC/ECD法用の測定溶液は、水道法に基づくホルムアルデヒド試験法に準じた。100mL比色管中で添加回収試験溶液及び試料ブランク溶液を調製し、水を加えて50mLとした。これに誘導体化試薬であるPFBOA溶液3mLを混和し、2時間静

置した。次に硫酸（1+1）0.8mLとNaCl 20gを加えて混合した。これを分液ロートに移し、ヘキサン5mLを正確に加えて5分間振とうした。静置後ヘキサン層を分取し、無水硫酸ナトリウムで脱水した。上澄み液0.5mLを分取しヘキサンで5mLにして、GC/MSとGC/ECD測定用溶液とした。検量線作成用の標準溶液は、各種濃度のHCHO標準溶液5mLを同様の操作により誘導化後抽出操作を行い、測定に用いた。

水道法に基づくホルムアルデヒド試験法のGC/MS測定²⁾では内部標準法を採用しているが、今回はピークの面積値から得られた絶対検量線法により定量を行った。

2・8 装置及び測定条件

(1) AA法

測定は(株)島津製作所製UV-1600PC分光光度計を用いた。1cm石英セルを用い、411～413nmの間の4.0 μ g/mL標準溶液での吸収極大波長で測定を行った。

(2) HPLC法

測定は(株)島津製作所製LC-10Aシリーズ（システムコントローラー；SCL-10A、ポンプ；LC-10AD、カラムオーブン；CTO-10A、UV-VIS検出器；SPD-10AV）を用いた。測定条件は表2のとおり。

(3) GC/MS法

(株)島津製作所製GC-17A+QP-5000を用いた。測定条件は表3のとおり。

(4) GC/ECD法

(株)島津製作所製GC-17Aを用いた。測定条件は表4のとおり。

表 2 HPLC 測定条件

移動相	20%アセトニトリル/水	流速 1.0mL/min
カラム	TSK-GEL ODS-80™	15cm×4.6mm 5 μ m
カラム温度	35℃	
測定波長	412nm	
注入量	10 μ L	
保持時間	約8分	

3 結果と考察

3・1 標準溶液における 各測定法の比較

各測定法の検量線の例を図1に示す。法基準を考慮して0.1~4.0 $\mu\text{g/mL}$ の標準溶液において測定を行ったが、いずれの測定法においても直線性の良い検量線が得られた。

(1) AA 法

吸光度の下限を $A - A_0 = 0.01$ とした場合の検出下限値は、測定液で0.09 $\mu\text{g/mL}$ 、検体換算で1 g あたり HCHO が4 μg であった。また、検量線から算出される吸光度 $A - A_0 = 0.05$ における HCHO 濃度は検体換算で1 g あたり HCHO が15 μg であった。

生後24ヶ月以下の乳幼児用繊維製品に対する基準は $A - A_0 = 0.05$ 以下又は検体1 g あたり HCHO が16 μg

表3 GC/MS 測定条件

キャリアガス	ヘリウム(ヘッド圧 100kpa)
カラム	J&W DB-5MS 30m×0.25mm, 0.25 μm
注入口温度	200°C
カラム温度	50°C(4 min)→10°C/min→150°C(0 min)→30°C/min→300°C(0 min)
イタライ温度	250°C
注入方法	スプリットレス(バージョフ時間2分)
測定方法	SIM
測定質量数(m/z)	定置イオン 181, 確認イオン 195, 161
保持時間	約8分

表4 GC/ECD 測定条件

キャリアガス	ヘリウム(ヘッド圧 30kpa)
カラム	J&W DB-1 30m×0.53mm, 1.5 μm
注入口温度	200°C
カラム温度	60°C(2 min)→10°C/min→150°C(0 min)→30°C/min→280°C(0 min)
検出器温度	300°C
注入方法	スプリットレス(バージョフ時間2分)
保持時間	約9分

以下となっており、今回の測定条件では $A - A_0 = 0.05$ と16 $\mu\text{g/g}$ は等しくはなかった。どちらの基準を採用するかは行政的な判断にもよるが、これまでの試験結果

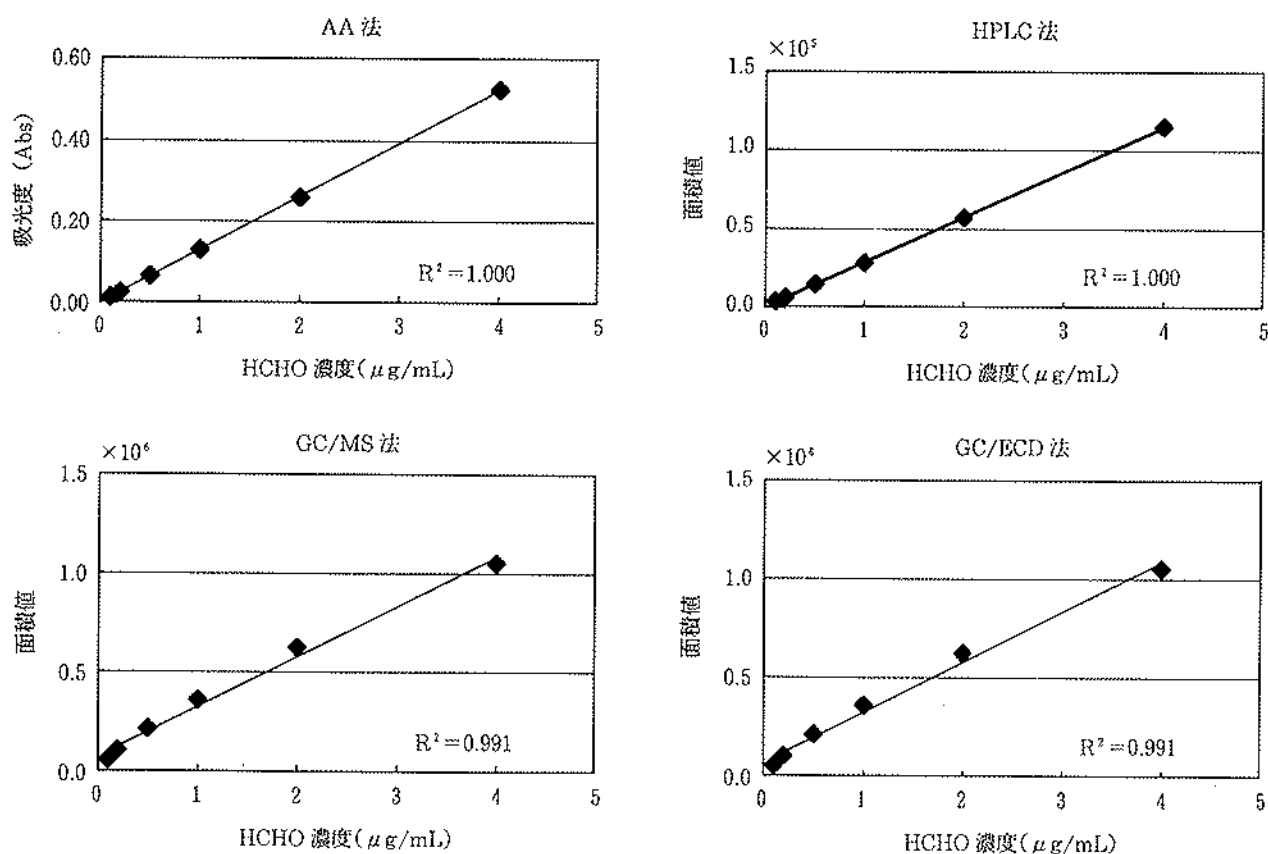
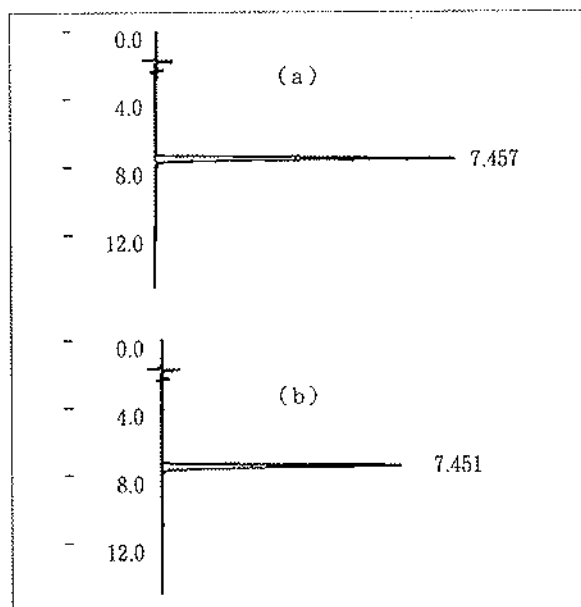


図1 検量線の例



(a) 標準試料(HCHO 0.5 µg/mL)
(b) 検体1 + 添加(HCHO 2 µg)

図2 HPLC クロマトグラム

を継続させること、さらに「乳幼児用繊維製品の基準は検出されないこと」との解釈⁹⁾からも、より厳しい $A_{\infty}=0.05$ 以下をあてはめることが好ましいと考えられる。

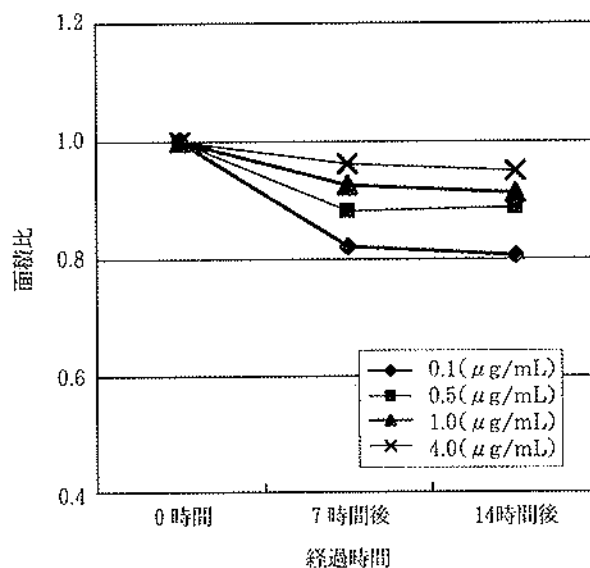
(2) HPLC 法

HPLC 分析のクロマトグラムを図2に示す。妨害となるピークもほとんど確認されず、AA法の分光光度計よりさらに低濃度まで測定可能であった。しかしながら、HCHOとアセチルアセトンの反応液は時間とともにその吸光度が減少し、図3に示すとおり、反応後30分後放置した時のピークの面積を1とした場合、7時間後には0.8~0.95になり、また低濃度になるほどその減少割合が高かった。五十嵐ら⁵⁾の報告では0.4 µg/mLの標準溶液で120分後に0.9前後となっていることもあり、法基準の適否判定に際しては、多点検量線からの精密な定量結果を求めるのではなく、迅速な測定がより重要と考えられる。

(3) GC/MS 法

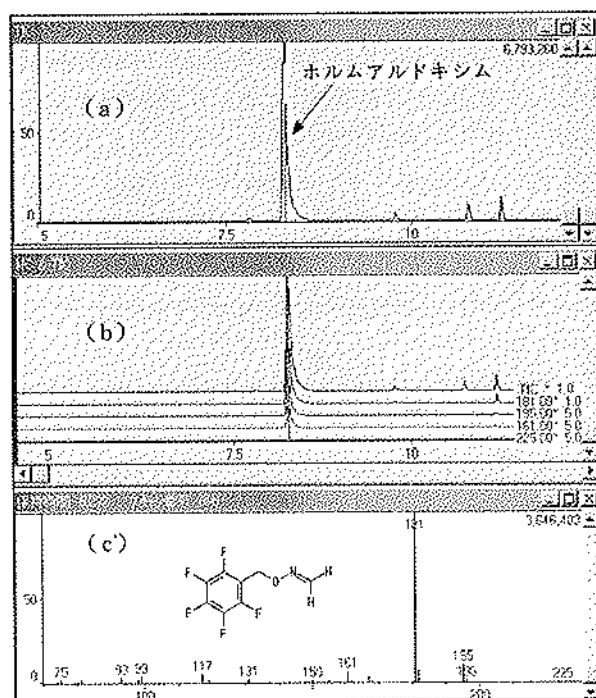
HCHOはPFBOAと反応し、ホルムアルドキシムへ誘導体化される。図4にGC/MS測定でのクロマトグラム及びマススペクトルを示す。ホルムアルドキシムは m/z 181にベースピークがみられ、ほかに m/z 195, 182, 161のフラグメントピークが認められた。測定はSIMで行い、定量イオンとして m/z 181を、確認イオンとして m/z 195と161を選択した。

(4) GC/ECD 法



(注) 反応放置して30分後のピークの面積を1.0とした

図3 HCHOとアセチルアセトンの反応液の経時変化 (HPLCで測定)



(a) トータルイオンクロマトグラム
(b) マスクロマトグラム
(c) ホルムアルドキシムのマススペクトル

図4 GC/MS クロマトグラム
(HCHO 標準試料 4 µg/mL)

ホルムアルドキシムはフッ素を多く含む化合物であることから、GC/ECDで非常に感度良く測定可能である。図5にクロマトグラムを示す。

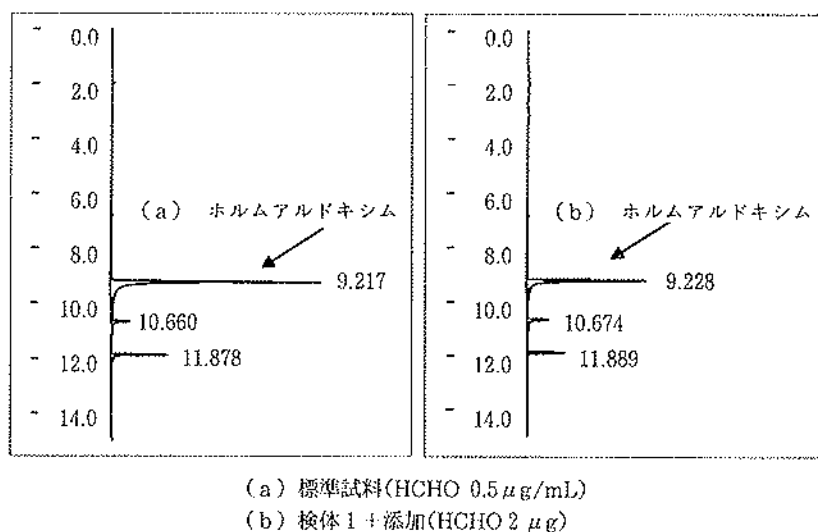


図 5 GC/ECD クロマトグラム

図 1 で示したとおり 0.1~4.0 µg/mL の標準溶液においては直線性の良い検量線が得られたが、これより濃い濃度では検量線の傾きが小さくなることが確認された

る 2.0 µg 添加検体 2 及び検体 5 における 1.0 µg 添加, 2.0 µg 添加であった。

AA 法において検体 1 と 2 は, HCHO 標準溶液を添

加していない試料ブランク溶液において吸光度 $A - A_0 = 0.02$ であり, 2.0 µg 添加した場合, 吸光度 $A - A_0 = 0.05$ であった。このように検出下限が高い ($A - A_0 = 0.01$) 分光光度計での測定では, HCHO が低濃度であった場合, 吸光度に影響を及ぼす繊維由来の溶出物に注意する必要がある。

GC/ECD 法での測定では全般的に添加回収結果が 100% 以上となった。GC/ECD 法は非常に感度よく検出可能である一方, 定量を行う場合には実際の濃度より高くなる傾向がある点に注意が必要である。

HPLC 法と GC/MS 法は, 溶出液の着色や濁り, 繊維の特殊加工物質の影響を受けず, いずれの検体においても良好な回収率を示した。GC/MS による水道水中の HCHO 分析において, 内部標準の添加量が定量結果に大きな影響を与えるという報告³⁾もあることから, 今回は面積値による絶対検量線法に定量計算を行った。今後の課題として, 内部標準法による

表 5 添加回収試験溶液 5 mL 中の HCHO 定量値と回収率

	添加量	AA 法		HPLC 法		GC/MS 法		GC/ECD 法	
		定量値 (µg)	回収率 (%)	定量値 (µg)	回収率 (%)	定量値 (µg)	回収率 (%)	定量値 (µg)	回収率 (%)
検体 1	0	0.78		0.22		0.17		0.02	
	1.0	0.94	16	1.0	85	1.1	93	1.2	120
	2.0	2.0	60	2.2	99	1.9	90	2.4	122
	8.0	7.8	88	7.8	95	8.5	105	8.2	102
検体 2	0	0.66		0.21		0.11		0.01	
	1.0	1.1	41	1.0	84	0.93	85	1.3	128
	2.0	2.1	73	2.0	92	1.9	89	2.4	121
	8.0	7.9	91	7.8	96	6.7	82	7.1	89
検体 3	0	0.07		0.19		0.15		0.00	
	1.0	1.1	99	1.1	89	0.96	84	1.1	111
	2.0	2.0	98	2.0	93	1.6	73	2.2	110
	8.0	8.0	100	7.9	97	6.7	82	8.1	101
検体 4	0	0.14		0.23		0.17		0.00	
	1.0	1.1	96	1.1	87	0.99	86	1.1	106
	2.0	2.1	99	2.0	91	1.6	72	2.1	106
	8.0	8.0	99	7.8	95	6.7	82	8.7	109
検体 5	0	0.01		0.00		0.07		0.00	
	1.0	1.0	97	1.0	100	0.92	86	1.2	121
	2.0	1.9	95	1.9	97	1.7	83	2.6	129
	8.0	8.0	100	7.9	99	6.6	82	8.9	112

定量を検討する必要がある。

溶出液の着色や濁り、繊維の特殊加工物質の溶出が懸念される検体においては、確認試験として HPLC での測定とあわせて、誘導体化後 GC/MS、GC/ECD で測定することも有用であることが分かった。

4 ま と め

繊維製品中のホルムアルデヒド (HCHO) の定量試験について、公定法である AA 法と HPLC 法の他に、GC/MS 法、GC/ECD 法の 4 法について比較検討を行った。

(1) 0.1~4 $\mu\text{g/mL}$ の標準溶液において、いずれの測定法においても直線性の良い検量線が得られた。

(2) HPLC 法や GC/MS 法、GC/ECD 法は AA 法と比較して HCHO を感度よく測定することができた。

(3) HPLC 法で定量する際には、速やかな測定が重要である。

(4) HCHO 標準溶液の添加回収試験において、AA 法では HCHO が低濃度である場合、繊維由来の溶出物

による吸光度の影響があった。また GC/ECD 法では実際の濃度より高くなる傾向があった。一方、HPLC 法と GC/MS 法はいずれの検体においても良い回収率を示した。

(5) GC/MS 法、GC/ECD 法も確認試験として有用であることが分かった。

文 献

- 1) 厚生省令第34号：有害物質を含有する家庭用品の規制に関する法律施行規則，昭和49年9月26日
- 2) 寺内正裕，桑山 勝，井手吉範久，上堀慎也：広島県保健環境センター研究報告，10，35—38 (2002)
- 3) 厚生労働省令第101号：水質基準に関する省令，平成15年5月30日
- 4) 家庭用品安全対策研究会編集：保健衛生安全基準家庭用品規制関係実務者便覧，2046—2064，第一法規
- 5) 五十嵐良明，鹿庭正昭，土屋利江：国立衛生研究所報，121，16—24 (2003)

〔資 料〕

平成17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・山田 恵子

戌亥 一朗・北村 守次

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)～8)}。「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17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）13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22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（pH、非イオン界面活性剤、フェノール類）そして微生物試験（大腸菌）の計4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配付した。

非イオン界面活性剤、フェノール類については配付試料を100倍に希釈して測定するよう指定した。

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（pH値を除く）を算出した。異常値については、Grubbsの方法で検定を行った。また、ISO/IEC43-1（JISQ0043-

表1 分析項目及び分析方法

分 析 項 目	分 析 方 法	略 称
pH	ガラス電極法	—
非イオン界面活性剤	固相抽出—吸光光度法	SA-AS
フェノール類	固相抽出—誘導体化—ガスクロマトグラフ質量分析法 または流路型吸光光度法	SA-MOD-GC/MS PL-AS
大腸菌	特定酵素基質培地法	—

Assessment of Precision in the Quality Control of Tap Water among Laboratories in 2005
—An Annual Report in Ishikawa Prefecture—, by HASHIMOTO Junko, YAMADA Keiko,
INUI Ichirou and KITAMURA Moritsugu (Health and Food Safety Department, Ishikawa
Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Drinking water, Quality control

1) 及び厚生労働省の「平成16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。さらに測定結果のばらつきを視覚的に捉えるため、箱ひげ図³⁾を用いた検討も行った。

調査結果の評価は、各機関の変動係数、設定濃度に対する割合、Grubbsの方法による異常値の検定結果、Z スコア及び箱ひげ図を用いて行った。

評価の方法及びそれらの判定基準を以下に示す。

(1) (室内) 変動係数

理化学試験の適正值は、非イオン界面活性剤及びフェノール類について20%以下とした。

(2) 設定濃度に対する割合

今回の調査の主な目的が現状のばらつきを把握することにあるので、適正範囲は設定しなかった。

(3) Grubbsの方法による異常値の判定

危険率5%で異常値として棄却した。

(4) Z スコアを用いた検討

Z スコアの評価は、一般に

$ Z \leq 2$	満足
$2 < Z < 3$	疑義あり
$3 \leq Z $	不満足

とされている。ただし、参加機関が少なく、Z スコアの精度が悪くなっていることを考慮する必要がある。

(5) 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、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。通常、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し、最小値の値も同様とするが、最大値、最小値の位置関係を明確にするため、それぞれの値を示した。

3・2 微生物試験

微生物試験（大腸菌）については、大腸菌が添加された試料について陽性と報告されたものを適正と判定した。

4 結 果

4・1 pH 値

pH 値（試料 A 及び B）の測定値を表 3 に示した。

(1) 試 料 A

試料 A の pH 値は7.26～7.73の範囲にあり、平均値は7.56、中央値は7.61で、標準偏差0.14、室間変動係数1.9

表 2 配 付 試 料 の 内 容

名 称	分 析 項 目	内 容
試料—A 試料—B	pH 値	保健環境センターに供給された上水道水 同上水 4 容を超純水 (0.8 μ S/cm) 26 容で希釈したもの
試料—C	非イオン界面活性剤	ヘプタオキシエチレンデシルエーテル 1.80mg/L
試料—D	フェノール類	フェノール 0.393mg/L
試料—E 試料—F	大腸菌	滅菌希釈液に <i>Klebsiella pneumoniae</i> を一定量添加 滅菌希釈液に <i>Escherichia coli</i> を一定量添加

%であった。

室内変動係数は0.06～0.54%の範囲内にあり、良好であった。

Grubbsの検定（危険率5%）で棄却された機関はなかった。Z スコアの絶対値が3を超えた機関もなく、箱ひげ図による結果（図1）でも下内境界点を下回った機関はなかった。

(2) 試 料 B

試料 B の pH 値は6.34～6.89の範囲にあり、平均値は6.70、中央値は6.72で、標準偏差0.13、室間変動係数2.0%であった。

室内変動係数は0.00～0.81%の範囲内にあり、良好であった。

Grubbsの検定（危険率5%）で棄却された機関はなかったが、Z スコアの絶対値が3を超えた機関は3機関あった。また、箱ひげ図による結果（図2）でも、同じ3機関が下内境界点を下回った。

4・2 非イオン界面活性剤

非イオン界面活性剤の測定結果を表4に示した。

測定値は0.0132～0.0309mg/Lの範囲にあり、平均値は0.0205mg/L、中央値は0.0193mg/Lであった。設定濃度に対する割合は73.2～171.9%の範囲で、平均は114.0%であった。室内変動係数は1.5～11.5%の範囲内にあり、良好であった。

Grubbsの検定（危険率5%）で棄却された機関はなく、Z スコアの絶対値が3を超えた機関もなかった。また、箱ひげ図による結果（図3）でも、上内境界点と下内境界点の中にすべての機関が入っている。

4・3 フェノール類

フェノール類の測定結果を表5に示した。

測定値は0.00150～0.00680mg/Lの範囲にあり、平均値は0.00395mg/L、中央値は0.00393mg/Lであった。設定濃度に対する割合は38.2～172.9%の範囲で、平均は100.6%であった。室内変動係数は0.7～7.5%の範囲内にあり、良好であった。

Grubbsの検定（危険率5%）では、まず最大値が棄

表 3 pH 値の測定結果

No	測定方法	試料 A					試料 B				
		pH 値	最小値	最大値	変動係数 (%)	Zスコア	pH 値	最小値	最大値	変動係数 (%)	Zスコア
1	ガラス電極法	7.33	7.30	7.35	0.26	-2.30	6.34	6.32	6.41	0.62	-4.71
2	ガラス電極法	7.29	7.26	7.32	0.33	-2.66	6.45	6.44	6.47	0.22	-3.38
3	ガラス電極法	7.26	7.22	7.29	0.40	-2.93	6.47	6.45	6.48	0.20	-3.11
4	ガラス電極法	7.43	7.40	7.45	0.32	-1.48	6.57	6.50	6.63	0.81	-1.89
5	ガラス電極法	7.37	7.32	7.42	0.54	-2.00	6.63	6.60	6.69	0.52	-1.09
6	ガラス電極法	7.49	7.46	7.51	0.31	-0.98	6.65	6.61	6.68	0.49	-0.91
7	ガラス電極法	7.59	7.58	7.60	0.12	-0.12	6.69	6.68	6.70	0.13	-0.36
8	ガラス電極法	7.50	7.47	7.55	0.46	-0.87	6.70	6.67	6.75	0.49	-0.29
9	ガラス電極法	7.62	7.59	7.65	0.34	0.12	6.71	6.70	6.72	0.15	-0.14
10	ガラス電極法	7.62	7.62	7.63	0.07	0.13	6.71	6.70	6.72	0.12	-0.11
11	ガラス電極法	7.70	7.69	7.70	0.06	0.75	6.72	6.70	6.74	0.23	-0.06
12	ガラス電極法	7.68	7.68	7.69	0.07	0.63	6.73	6.72	6.73	0.08	0.06
13	ガラス電極法	7.63	7.62	7.64	0.12	0.15	6.75	6.73	6.77	0.22	0.31
14	ガラス電極法	7.59	7.58	7.59	0.07	-0.18	6.75	6.75	6.75	0.00	0.36
15	ガラス電極法	7.66	7.66	7.67	0.07	0.47	6.76	6.75	6.76	0.08	0.44
16	ガラス電極法	7.63	7.62	7.65	0.17	0.20	6.76	6.75	6.78	0.22	0.54
17	ガラス電極法	7.57	7.57	7.58	0.06	-0.30	6.77	6.76	6.77	0.07	0.59
18	ガラス電極法	7.71	7.71	7.72	0.07	0.88	6.77	6.76	6.78	0.12	0.59
19	ガラス電極法	7.55	7.54	7.55	0.07	-0.52	6.80	6.80	6.81	0.08	1.04
20	ガラス電極法	7.66	7.65	7.67	0.12	0.40	6.80	6.78	6.85	0.40	1.04
21	ガラス電極法	7.65	7.64	7.66	0.12	0.38	6.87	6.86	6.88	0.12	1.84
22	ガラス電極法	7.73	7.72	7.74	0.11	1.03	6.89	6.88	6.90	0.12	2.14
平均値	—	7.56	—	—	—	—	6.70	—	—	—	—
中央値	—	7.61	—	—	—	—	6.72	—	—	—	—
最小値	—	7.26	7.22	—	0.06	-2.93	6.34	6.32	—	0.00	-4.71
最大値	—	7.73	—	7.74	0.54	1.03	6.89	—	6.90	0.81	2.14
室間変動係数		1.86	—	—	—	—	1.99	—	—	—	—

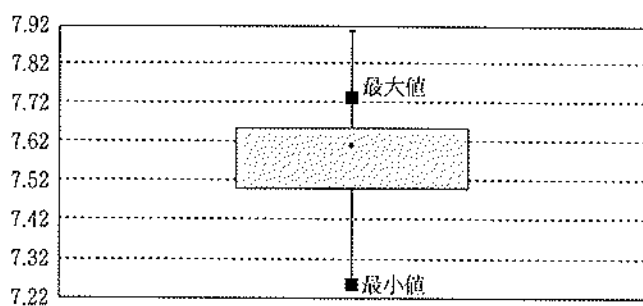


図 1 箱ひげ図 (pH 値 試料 A)

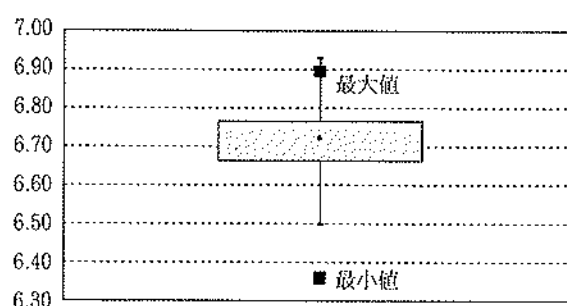


図 2 箱ひげ図 (pH 値 試料 B)

表 4 非イオン界面活性剤の測定結果

No	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	SA-AS	0.0132	11.5	73.2	-1.18
2	SA-AS	0.0156	4.7	86.7	-0.71
3	SA-AS	0.0162	2.3	89.9	-0.60
4	SA-AS	0.0162	1.6	89.9	-0.60
5	SA-AS	0.0167	7.3	92.9	-0.49
6	SA-AS	0.0182	3.1	101.0	-0.21
7	SA-AS	0.0190	4.4	105.8	-0.05
8	SA-AS	0.0195	1.5	108.4	0.05
9	SA-AS	0.0227	5.3	126.0	0.66
10	SA-AS	0.0229	6.4	127.0	0.69
11	SA-AS	0.0235	3.1	130.3	0.81
12	SA-AS	0.0263	8.2	145.9	1.35
13	SA-AS	0.0284	3.4	146.7	1.37
14	SA-AS	0.0309	8.6	171.9	2.25
平均値	---	0.0205	---	114.0	---
中央値	---	0.0193	---	---	---
最小値	---	0.0132	1.5	73.2	-1.18
最大値	---	0.0309	11.5	171.9	2.25
設定値	---	0.0180	---	---	---

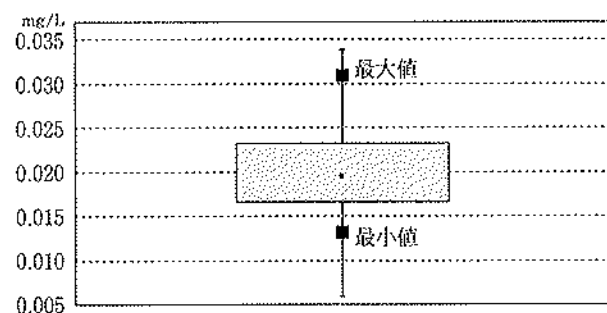


図 3 箱ひげ図 (非イオン界面活性剤)

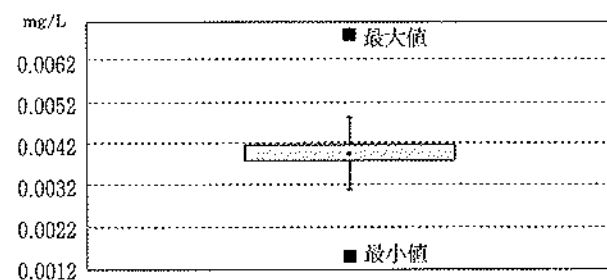


図 4 箱ひげ図 (フェノール類)

却され、最大値の棄却後、さらに最小値が棄却された。Zスコアの絶対値もこの2機関で3を大きく上回った(9.12及び-7.72)。また、箱ひげ図による結果(図4)

表 5 フェノール類の測定結果

No	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	SA-MOD-GC/MS	0.00150	5.1	38.2	-7.72
2	SA-MOD-GC/MS	0.00358	5.0	91.2	-1.09
3	SA-MOD-GC/MS	0.00361	7.5	91.8	-1.02
4	FL-AS	0.00372	3.5	94.7	-0.66
5	SA-MOD-GC/MS	0.00377	3.8	95.9	-0.51
6	SA-MOD-GC/MS	0.00380	1.7	96.6	-0.42
7	SA-MOD-GC/MS	0.00383	5.0	97.5	-0.31
8	SA-MOD-GC/MS	0.00402	2.3	102.4	0.31
9	FL-AS	0.00404	0.7	102.7	0.35
10	SA-MOD-GC/MS	0.00407	1.7	103.6	0.46
11	SA-MOD-GC/MS	0.00418	1.7	106.5	0.81
12	SA-MOD-GC/MS	0.00421	0.7	107.1	0.90
13	SA-MOD-GC/MS	0.00424	3.8	107.8	0.99
14	SA-MOD-GC/MS	0.00680	2.6	172.9	9.12
平均値	---	0.00395	---	100.6	---
中央値	---	0.00393	---	---	---
最小値	---	0.00150	0.7	38.2	-7.72
最大値	---	0.00680	7.5	172.9	9.12
設定値	---	0.00393	---	---	---

表 6 フェノール類の測定結果 (棄却後)

No	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	SA-MOD-GC/MS	0.00358	5.0	91.2	-1.35
2	SA-MOD-GC/MS	0.00361	7.5	91.8	-1.26
3	FL-AS	0.00372	3.5	94.7	-0.82
4	SA-MOD-GC/MS	0.00377	3.8	95.9	-0.63
5	SA-MOD-GC/MS	0.00380	1.7	96.6	-0.52
6	SA-MOD-GC/MS	0.00383	5.0	97.5	-0.38
7	SA-MOD-GC/MS	0.00402	2.3	102.4	0.38
8	FL-AS	0.00404	0.7	102.7	0.43
9	SA-MOD-GC/MS	0.00407	1.7	103.6	0.56
10	SA-MOD-GC/MS	0.00418	1.7	106.5	1.00
11	SA-MOD-GC/MS	0.00421	0.7	107.1	1.11
12	SA-MOD-GC/MS	0.00424	3.8	107.8	1.22
平均値	---	0.00392	---	99.8	---
中央値	---	0.00393	---	---	---
最小値	---	0.00358	0.7	91.2	-1.35
最大値	---	0.00424	7.5	107.8	1.22
設定値	---	0.00393	---	---	---

表 7 大腸菌の測定結果

No	試料 E	試料 F	培 養 条 件	
			温度(°C)	時 間
1	陰 性	陽 性	36.0	24.0
2	陰 性	陽 性	36.0	24.0
3	陰 性	陽 性	37.0	24.0
4	陰 性	陽 性	36.0	24.0
5	陰 性	陽 性	36.0	24.0
6	陰 性	陽 性	35.9	24.0
7	陰 性	陽 性	36.0	24.0
8	陰 性	陽 性	35.0	24.0
9	陰 性	陽 性	36.0	24.0
10	陰 性	陽 性	35.0	24.0
11	陰 性	陽 性	36.0	24.0
12	陰 性	陽 性	36.0	24.0
13	陰 性	陽 性	37.0	24.0
14	陰 性	陽 性	36.0	24.0
15	陰 性	陽 性	36.3	24.0
16	陰 性	陽 性	36.0	24.0
17	陰 性	陽 性	36.0	24.0
18	陰 性	陽 性	35.0	24.0
19	陰 性	陽 性	37.0	24.0
20	陰 性	陽 性	37.0	24.0
21	陰 性	陽 性	36.0	24.0
22	陰 性	陽 性	35.0	24.0

でも、この 2 機関は上内境界点と下内境界点をそれぞれ大きくはずれた。

上記の最大値と最小値の棄却後の結果を表 6 に示した。

4・4 大 腸 菌

検査結果を表 7 に示した。

参加 22 機関の全てにおいて、試料 E については大腸菌陰性、試料 F については大腸菌陽性と判定された。

5 ま と め

(1) pH 値では、試料 A の最大値と最小値との差は 0.47、標準偏差は 0.14、室間変動係数は 1.9% で、室内変動係数は 0.06~0.54% の範囲内にあった。試料 B の最大値と最小値との差は 0.55、標準偏差は 0.13、室間変動係数は 2.0% で、室内変動係数は 0.00~0.81% の範囲内にあった。

(2) pH 値の異常値検定では、試料 A、B とも Grubbs の検定 (危険率 5%) で棄却された機関はなかったが、試料 B で Z スコアの絶対値が 3 を超えた機関が 3 機関あった。箱ひげ図による結果では試料 B で 3 機関が下内境界点を下回った。

(3) pH 値について緩衝力のある試料 A と緩衝力の小さい試料 B との比較では、緩衝力の低い試料 B の方が若干精度が悪い傾向はあるものの、大きな差ではなく、機関ごとのばらつきは試料の緩衝力に関係のない要因によるものであることが示唆された。

(4) 非イオン界面活性剤では、設定濃度に対する割合が 73~172% とかなりばらついており、平均値は設定値より 14%、中央値は設定値より 7% 程度高かった。Grubbs の検定、Z スコア、箱ひげ図による結果では良好な結果が得られたと言えるが、これはばらつきが大きいために標準偏差自体が大きかったことによるもので、特定の機関に異常値はみられなかったことを示してはいるが、測定結果自体の良好性を示すものではない。ばらつきの原因は、検量線の直線性が得られにくかったことにも一因があると考えられ、今後は、各機関がより直線性の得られる方法等を検討し、精度向上に努めていく必要があると考えられる。

(5) フェノール類の測定結果では、最大値と最小値を示した 2 機関が設定値、平均値及び中央値から大きくはずれた結果を示し、Grubbs の検定、Z スコア、箱ひげ図による結果のいずれにおいても異常値と判断された。しかし、この 2 機関の測定結果を棄却した後の結果では、平均値及び中央値はほぼ設定値と一致しており、ばらつきも少なく良好な結果が得られた。

(6) 大腸菌の検査結果では、全ての参加機関から適正な結果が報告され特に問題点は見当たらない。

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, 平尾真規子, 柴野 昭, 倉本早苗, 戌亥一朗: 石川保環研報, 41, 72~76 (2004)
- 8) 橋本潤子, 小西秀則, 倉本早苗, 児玉洋江, 戌亥一朗: 石川保環研報, 42, 83~88 (2005)
- 9) 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〕

河北潟のプランクトンと水質について

石川県保健環境センター環境科学部

橋田 哲郎・澤田 道和・竹田 正美
安田 和弘・本田 和子

キーワード：水質汚濁，プランクトン

1 はじめに

県内の代表的な湖沼である河北潟はCOD等の環境基準（表1）を昭和53年以降達成できない状況が続いている。河北潟の汚濁要因は点源や面源の流入負荷に加えて、夏場のプランクトンの大量発生等による内部生産が大きな割合を占めている。そこで、河北潟の水質汚濁に係る原因究明の一環として、潟におけるプランクトンと水質の相関について調査したので、その結果を報告する。

2 調査方法

2・1 調査地点及び調査期間

河北潟中央、西部承水路3地点（室橋、大崎橋、内日角橋）及び東部承水路2地点（宇ノ気排水機場前、湖北大橋）の計6地点（図1）について、河北潟中央では平成17年5月から平成18年3月に延べ12回（表1）、室橋、大崎橋、内日角橋、東部揚水機場前、湖北大橋の5地点では平成17年11月から平成18年3月に延べ4回（表2）の調査を実施した。

2・2 動物プランクトン調査

動物プランクトン調査は河北潟中央の表層水について実施した。表層水50ℓをプランクトンネット（網目：NXX13）で濾し、プランクトンを採取した後、1,000倍に濃縮し検鏡に用いた¹⁾。

2・3 植物プランクトン調査

植物プランクトン調査は河北潟中央の表層水と、3/22調査（3月22日に実施した調査、以下同様に略す。）時に異常繁殖が観察された西部承水路3地点の表層水に

ついて実施した。表層水1ℓを50倍濃縮し、検鏡に用いた²⁾。

2・4 水質調査

調査対象とした6地点の表層水について、水温、透視度、pH、EC（電気伝導度）、SS（浮遊物質質量）、VSS（揮発性浮遊物質質量）、強熱減量、DO（溶存酸素量）、



図1 調査地点

Planktons and Water Quality in Lake Kahokugata. by HASHIDA Tetsuroh, SAWADA Mitikazu, TAKEDA Masami, YASUDA Kazuhiro and HONDA Kazuko (Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Water Pollution, Planktons

表1 河 北 潟 中 央 の 水 質

調 査 日	5/31	6/10	6/24	7/6	7/20	8/10	9/20	10/24	11/24	1/25	2/22	3/17	環境基準
水温 (°C)	21.0	26.3	27.0	23.5	28.0	29.5	26.5	16.7	10.5	2.5	8.1	7.0	
透明度 (cm)	13	15	15	17.5	18.5	15	21	13	17	>30	>30	10.5	
pH	8.9	9.4	8.5	7.4	8.9	8.5	8.9	8.9	7.5	7.6	7.4	7.5	6.5~8.5
EC (μS/cm)	201	228	252	119	132	207	197	194	299	182	150	148	
SS (mg/ℓ)	30.1	27.4	27.5	26.9	26.4	21.2	19.9	35.4	28.0	7.1	8.4	38.7	15以下
VSS (mg/ℓ)	12.6	12.5	14.0	5.4	8.3	6.5	7.4	11.1	9.3	1.7	3.4	5.5	
強熱減量 (%)	41.9	45.6	51.0	19.9	31.5	30.9	37.2	31.3	33.9	23.7	40.7	14.3	
DO (mg/ℓ)	8.7	12.1	7.9	7.5	5.0	8.0	8.6	10.7	11.2	13.3	13.3	11.2	5以上
COD (mg/ℓ)	10.1	12.8	10.1	5.6	7.0	8.2	7.5	9.0	7.1	3.4	3.5	4.3	5以下
D-COD (mg/ℓ)	5.9	6.1	6.1	4.0	4.2	4.9	4.9	4.8	3.6	2.5	2.3	3.3	
懸濁態 COD (mg/ℓ)	4.2	6.7	4.0	1.6	2.8	3.3	2.6	4.2	3.5	0.9	1.2	1.0	
BOD (mg/ℓ)	4.2	6.7	4.0	1.6	2.8	3.3	2.6	4.2	3.5	0.9	1.2	1.0	
T-N (mg/ℓ)	1.35	0.89	1.30	1.47	1.35	0.90	0.72	1.12	1.80	1.04	0.99	1.37	(1以下)
D-N (mg/ℓ)	0.40	0.37	0.36	1.04	0.63	0.32	0.32	0.35	1.26	1.04	0.89	1.08	
NO ₃ -N (mg/ℓ)	0.00	0.00	0.00	0.01	0.02	0.00	0.00	0.01	0.02	0.02	0.02	0.02	
NO ₂ -N (mg/ℓ)	0.01	0.00	0.00	0.64	0.30	0.00	0.00	0.07	1.02	0.68	0.66	0.72	
NH ₄ -N (mg/ℓ)	0.01	0.04	0.02	0.27	0.08	0.03	0.03	0.02	0.14	0.23	0.21	0.20	
T-P (mg/ℓ)	0.12	0.10	0.17	0.13	0.13	0.10	0.08	0.14	0.10	0.08	0.07	0.19	(0.1以下)
D-P (mg/ℓ)	0.05	0.02	0.03	0.04	0.03	0.02	0.02	0.02	0.02	0.03	0.02	0.07	
PO ₄ -P (mg/ℓ)	0.03	0.01	0.01	0.03	0.01	0.01	0.00	0.00	0.01	0.03	0.02	0.04	
Chl-a (μg/ℓ)	108.9	115.6	99.4	28.6	73.0	50.4	49.4	120.8	76.1	3.4	13.4	9.4	
Chl-b (μg/ℓ)	4.8	3.9	3.9	3.2	6.2	5.8	5.1	7.5	3.3	1.0	1.1	1.8	
Chl-c (μg/ℓ)	22.7	23.1	16.5	8.0	11.0	5.4	9.1	21.2	16.1	3.0	4.6	6.3	
T-Chl (μg/ℓ)	136.4	142.6	119.8	39.8	90.2	61.6	63.6	149.5	95.5	7.4	19.1	17.5	
Cyclotella sp. (個/mℓ)	10,100	14,400	10,900	1,200	860	1,300	2,140	7,480	2,540	350	1,930	280	

備考：環境基準欄の（ ）は暫定値

表 2 西部及び東部承水路の水質

調 査 日	11/24						1/25						2/22						3/17					
	西部承水路			東部承水路			西部承水路			東部承水路			西部承水路			東部承水路			西部承水路			東部承水路		
	河北橋	湖中央	室橋	大崎橋	内日角橋	宇ノ気排水機場前	湖北大橋	湖中央	室橋	大崎橋	内日角橋	宇ノ気排水機場前	湖北大橋	湖中央	室橋	大崎橋	内日角橋	宇ノ気排水機場前	湖北大橋	湖中央	室橋	大崎橋	内日角橋	宇ノ気排水機場前
水温 (°C)	10.5	10.2	10.1	10.5	10.0	2.5	2.5	2.9	3.0	2.7	2.5	2.5	8.1	9.0	8.2	8.3	7.0	7.0	7.0	7.0	8.6	7.6	7.5	7.6
透明度 (cm)	17	19	20	19	23	13	13	>30	>30	>30	>30	>30	>30	21.5	19	18.5	>30	18	10.5	16.5	14	11.5	8.5	6
pH	7.5	7.9	7.9	7.8	7.1	7.0	7.0	8.1	8.1	7.9	7.6	7.6	7.4	9.3	9.7	9.5	7.4	7.4	7.5	8.7	8.3	9.1	7.3	7.3
EC (μS/cm)	289	214	200	192	149	143	182	238	250	226	187	150	259	251	257	143	141	148	226	217	216	105	116	116
SS (mg/ℓ)	27.5	22.8	18.9	19.1	12.4	5.0	7.8	8.5	9.6	10.3	5.1	8.4	13.2	20.3	25.1	6.3	24.4	38.7	23.6	28.0	34.1	68.2	59.6	59.6
VSS (mg/ℓ)	9.3	14.0	12.3	12.4	5.0	7.8	1.7	3.3	4.8	5.1	4.7	3.4	9.9	11.8	13.2	2.5	4.5	5.5	10.3	11.8	12.5	8.3	8.1	8.1
強熱減量 (%)	33.9	61.4	65.3	64.9	40.6	23.4	23.7	66.1	56.2	53.1	45.9	32.9	40.7	74.8	58.2	52.5	39.4	18.6	43.8	42.0	36.7	12.1	13.6	13.6
DO (mg/ℓ)	11.2	11.0	11.5	11.8	9.5	9.6	13.3	14.3	14.0	14.2	13.5	12.2	13.3	16.0	17.6	18.1	11.4	11.8	11.2	10.4	12.7	12.1	10.7	11.2
COD (mg/ℓ)	7.1	9.8	8.6	9.0	4.7	6.2	3.4	4.1	5.1	5.3	5.1	3.5	3.5	8.2	9.1	10.1	3.6	4.4	4.3	8.6	9.7	10.0	6.3	6.5
D-COD (mg/ℓ)	3.6	4.2	3.4	3.9	3.2	4.0	2.5	2.8	2.7	2.9	3.1	2.9	2.3	3.7	3.5	3.9	2.7	2.8	3.3	3.7	4.0	4.1	3.2	3.7
懸濁性 COD (mg/ℓ)	3.5	5.6	5.2	5.1	1.5	2.2	0.9	1.3	2.4	2.4	2.0	0.6	1.2	4.5	5.6	6.2	0.9	1.6	1.0	4.9	5.7	5.9	3.1	2.8
BOD (mg/ℓ)	4.2	6.7	4.0	1.6	2.8	3.3	2.6	4.2	3.5	0.9	1.2	1.0	3.5	0.9	1.2	1.0	3.5	0.9	1.2	1.0	3.5	0.9	1.2	1.0
T-N (mg/ℓ)	1.82	1.76	1.82	1.91	1.21	1.32	1.14	1.61	1.93	1.64	1.37	1.17	0.99	1.78	1.84	1.76	0.97	1.39	1.37	2.07	1.94	2.01	0.98	1.14
D-N (mg/ℓ)	1.26	0.91	1.08	1.18	1.06	1.04	1.13	1.34	1.69	1.41	1.12	1.10	0.89	1.22	1.17	0.92	0.89	1.19	1.08	1.37	1.08	1.12	0.70	0.80
NO ₃ -N (mg/ℓ)	0.02	0.01	0.02	0.01	0.02	0.01	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.03	0.02	0.03	0.01	0.02
NO ₂ -N (mg/ℓ)	1.02	0.80	0.75	0.82	0.78	0.63	0.68	1.27	1.35	1.15	0.88	0.64	0.66	1.00	0.95	0.70	0.55	0.59	0.72	1.03	0.86	0.85	0.46	0.46
NH ₄ -N (mg/ℓ)	0.14	0.30	0.31	0.35	0.14	0.27	0.23	0.05	0.05	0.05	0.14	0.36	0.21	0.14	0.14	0.16	0.30	0.58	0.20	0.09	0.04	0.03	0.13	0.17
T-P (mg/ℓ)	0.10	0.13	0.12	0.16	0.11	0.20	0.08	0.04	0.08	0.09	0.08	0.09	0.07	0.09	0.11	0.14	0.08	0.15	0.19	0.15	0.15	0.19	0.23	0.22
D-P (mg/ℓ)	0.02	0.02	0.02	0.03	0.05	0.05	0.05	0.01	0.02	0.02	0.03	0.07	0.02	0.02	0.01	0.02	0.05	0.05	0.07	0.05	0.03	0.03	0.03	0.04
PO ₄ -P (mg/ℓ)	0.01	0.01	0.01	0.01	0.03	0.04	0.05	0.01	0.02	0.02	0.03	0.07	0.02	0.02	0.01	0.02	0.05	0.05	0.04	0.01	0.01	0.01	0.02	0.01
Chl-a (μg/ℓ)	76.1	90.9	99.3	107.6	6.3	10.3	3.4	20.5	44.5	42.8	25.6	3.0	13.4	53.0	90.3	93.2	2.5	6.7	9.4	94.9	132.8	143.8	18.9	18.1
Chl-b (μg/ℓ)	3.3	8.3	8.1	5.8	1.3	5.4	1.0	1.4	1.8	2.3	2.2	1.3	1.1	2.9	3.9	4.6	2.9	2.0	1.8	1.3	1.4	1.4	3.7	3.9
Chl-c (μg/ℓ)	16.1	28.5	29.4	23.7	4.0	18.1	3.0	5.7	8.9	8.8	8.1	4.3	4.6	14.4	23.9	23.6	9.4	6.8	6.3	23.9	37.3	38.9	14.4	15.0
T-Chl (μg/ℓ)	95.5	127.7	136.8	137.1	11.6	33.8	7.4	27.6	55.2	53.9	35.9	8.6	19.1	70.3	118.1	121.4	14.8	15.5	17.5	120.1	171.5	184.1	37.0	37.0

COD (化学的酸素要求量), D-COD (溶存態化学的酸素要求量), 懸濁態 COD, BOD (生物化学的酸素要求量), T-N (全窒素), T-P (全リン), D・T-N (溶存態全窒素), D・T-P (溶存態全リン), アンモニア性窒素, 硝酸性窒素, 亜硝酸性窒素, リン酸態リン, Chl-a (ク

ロロフィル a), Chl-b (クロロフィル b), Chl-c (クロロフィル c) の23項目について試験した (表1, 2)。

3 結果及び考察

3・1 動物プランクトン調査

動物プランクトンは調査地点の多数でワムシ類とカイアシ類の Nauplius 幼生 (図2) が優先であった。その他として、カイアシ類の Copepodid 幼生, ミジンコ等 (図2) が観察された。ワムシ類は 8/10 調査に最大の 305 個/ℓ がみられ, 夏季に大増殖すると思われた (表3, 図3)。Nauplius 幼生は 6/24 と 10/24 調査時に 32 個/ℓ, 21 個/ℓ のピークが観察され, 春季から秋季に発生すると思われた (表3, 図3)。また, 1/25~3/17 の冬季調査では動物プランクトンは観察されなかった。なお, Nauplius 及び Copepodid はカイアシ類の卵がふ化し, 幾度も脱皮を繰り返しながら, 成体へと変化する幼体の過程における名称で, どの種も外見が酷似しているため⁹⁾, 種の分別は出来なかった。

3・2 植物プランクトン調査

河北潟の湖水は色相計で 16~19 の茶褐色を呈し, 珪藻類が優先であった (図4)。Cyclotella sp. (珪藻類) は年間を通して観察され, 6/10 調査では 14,400 個/mℓ, 10/24 調査で 7,480 個/mℓ と多く, 7/6~9/20 調査では 860~2,140 個/mℓ, 1/25~3/17 調査で 280~1,930 個/mℓ と少なかった (表1, 図3)。この夏季の減少は梅雨時における大量の雨水の流入, 流出及び夏季における日射量

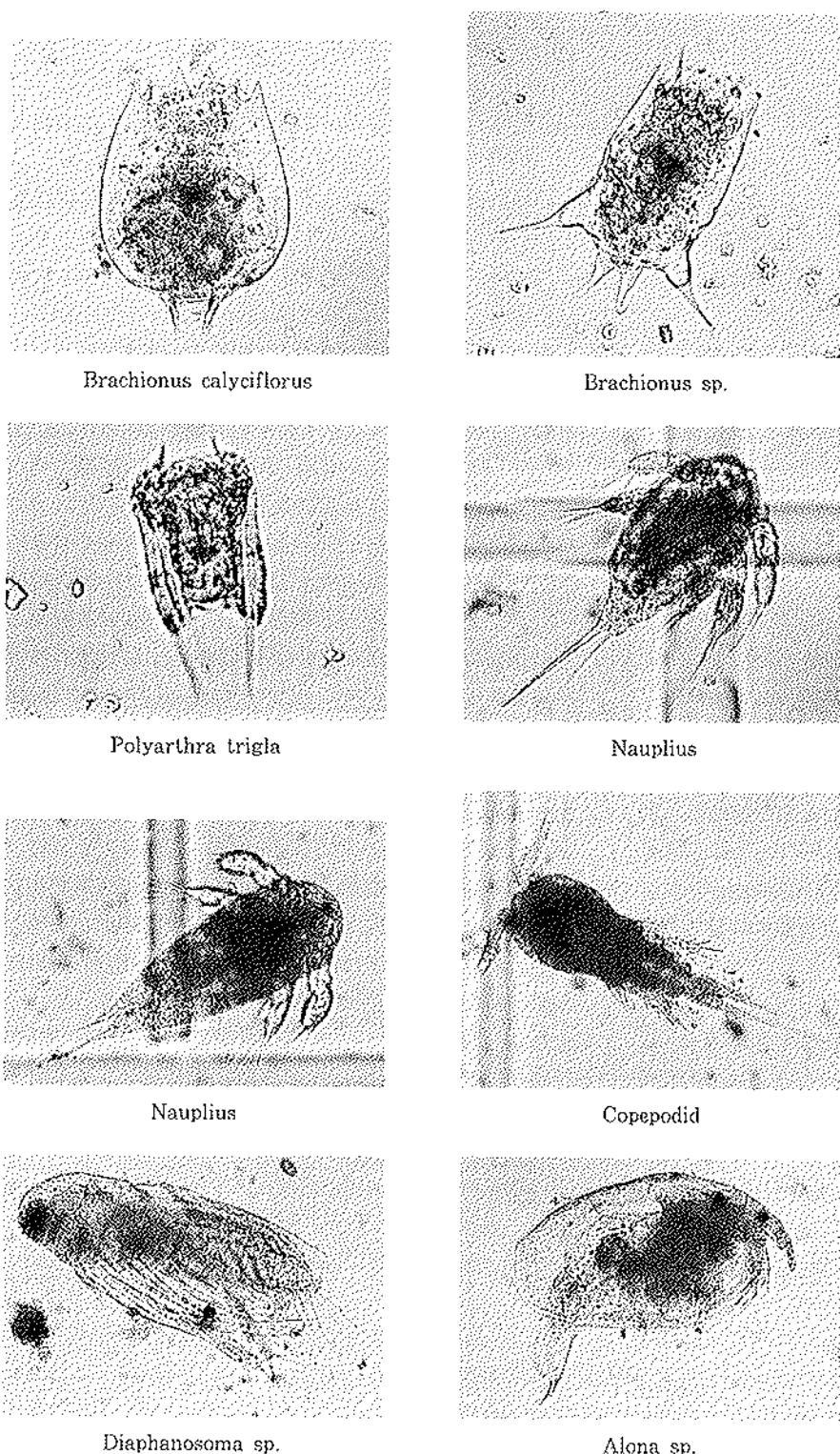


図2 河北潟の動物プランクトン

表 3 河北潟中央の動物プランクトン

調 査 日	5/31	6/10	6/24	7/20	8/10	9/20	10/24	11/24	1/25	2/22	3/17
ワムシ類 (個/ℓ)	15	3	0	19	305	70	3	1	0	0	0
カイアシ類 (個/ℓ)	9	0	34	1	8	13	21	1	0	0	0
Nauplius (個/ℓ)	5	0	32	1	7	10	21	0	0	0	0

備考：Nauplius はカイアシ類の幼体である。

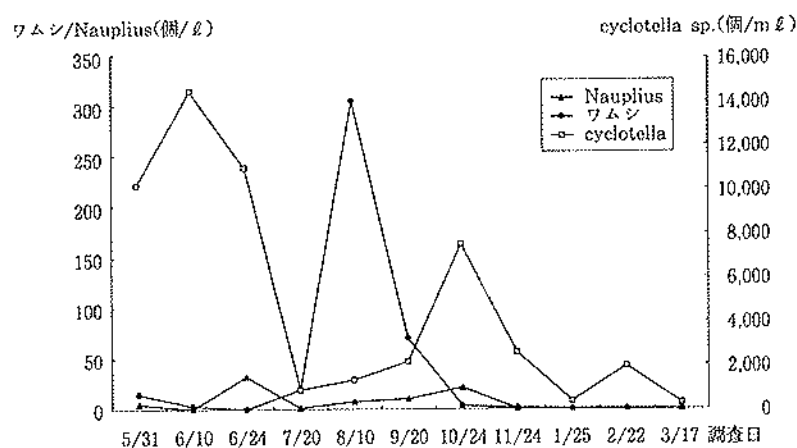


図 3 プランクトンの年間推移

の増加や水温の上昇等によって藍藻類等が増加した季節的消長があったものと思われる¹⁾。その他, *Synedra* sp., *Melosira* sp., *Aulacoseira* sp. 等 (図 4) の植物プランクトンが観測された。また, 2/22調査において西部承水路の湖水が濃い茶褐色を呈していたので検鏡した結果, 25,000~53,000個/ℓの *Cyclotella* sp. が観察された (表 4)。その時の水温は8.3~9.0℃であり, 水温が低い冬季においても大発生することが確認された。

3・3 水質汚濁とプランクトン

(1) 河北潟中央の水質

河北潟中央の水質は, 調査期間を通じて COD が3.4~12.8mg/ℓ, T-N が0.72~1.80mg/ℓ, T-P が0.07~

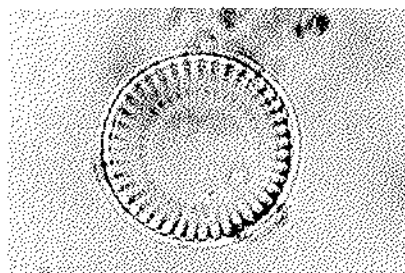
0.19mg/ℓであった (表 1)。この値を環境基準に照らしてみると, COD については 1/25~3/17調査を除いて基準を超過していた。T-N, T-P については 6/10, 8/10, 9/20, 2/22の調査では基準内, 一方 5/31, 6/24, 7/6, 7/20, 10/24, 3/17の調査では基準超過で, T-N, T-P ともに同様の増減傾向がみられた。PH については水温の低い11/24~3/17調査は基準内であったが, それ以外は基準を超過していた。SS については 1/25, 2/22の冬季調査のみ基準内であった。DO については全調査期間を通じ基準内であった。以上の結果,

潟の水質は冬季においては T-N を除いて良好であることが分かった。

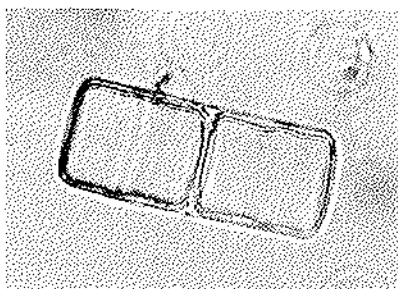
次に, 植物プランクトンの優占種である珪藻類の *Cyclotella* sp. と水質との関連性について調べた (表 1)。*Cyclotella* sp. の発生数が多い 5/31~6/24及び10/24調査の水質は COD, VSS, Chl-a, Chl-c が高く, 両者に相関がみられた (表 5, 図 5)。即ち, 6/10調査を例にとれば, *Cyclotella* sp. の増殖により, SS, VSS, D-COD, Chl-a 及び Chl-c が増加し, また光合成作用により pH も9.4と高くなったことが推定される。このことから, *Cyclotella* sp. の増殖を抑制することができれば, pH は光合成による上昇はなくなり, 8 以下に低下

表 4 西部承水路の *Cyclotella* sp. と水質

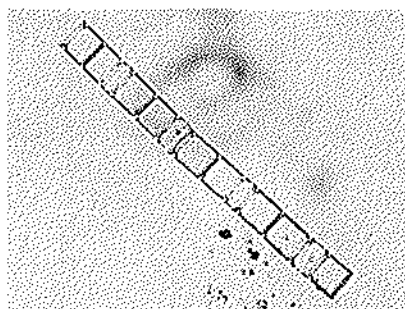
調 査 日 地 点	2 月 22 日			相 関 から 求 め た 近 似 式 $x = \text{Cyclotella.sp. (千個/ℓ)}$	千個/ℓ あたりの増加
	室 橋	大崎橋	内日角橋		
<i>Cyclotella</i> sp. (千個/ℓ)	25	45	53	---	---
COD (mg/ℓ)	8.2	9.1	10.1	$\text{COD(mg/ℓ)} = 0.0635x + 6.53$	0.064mg/ℓ
SS (mg/ℓ)	13	20	25	$\text{SS(mg/ℓ)} = 0.0414x + 2.38$	0.041mg/ℓ
VSS (mg/ℓ)	9.9	11	13	$\text{VSS(mg/ℓ)} = 0.100x + 7.20$	0.1mg/ℓ
Chl-a (μg/ℓ)	53.0	90.3	93.2	$\text{Chl-a(μg/ℓ)} = 0.152x + 16.6$	0.15 μg/ℓ



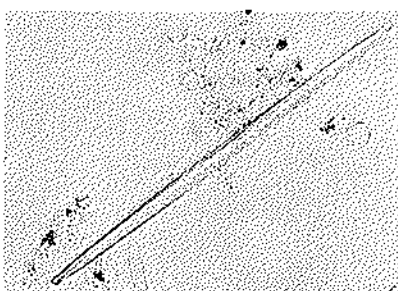
Cyclotella meneghiniana (珪藻)



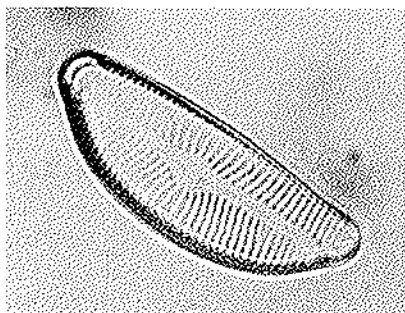
Melosira varians (珪藻)



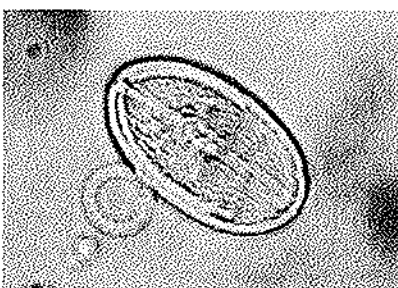
Aulacoseira italica (珪藻)



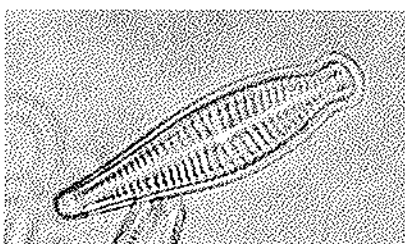
Synedra ulna (珪藻)



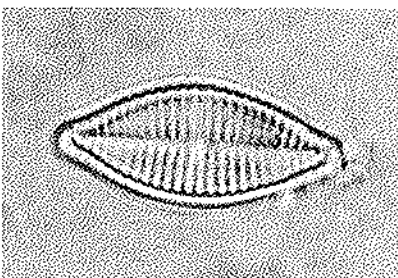
Cymbella prostrata (珪藻)



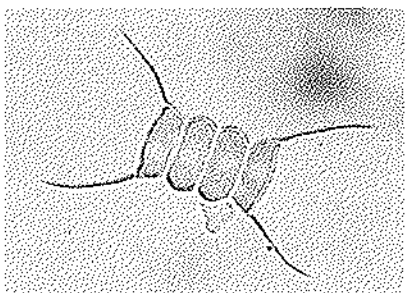
Cocconeis placentula var. lineata (珪藻)



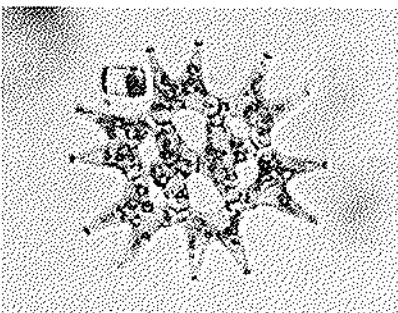
Gomphonema sphaerophorum (珪藻)



Navicula amphiceropsis (珪藻)



Scenedesmus quadricauda (緑藻)



Pediastrum duplex (緑藻)

図 4 河北潟の植物プランクトン

し、また COD も 5、6 月を除き D-COD の値近くになり、5、6 月を除きほぼ環境基準以下に低下するものと推定される。

(2) 承水路の水質

東部承水路、西部承水路及び河北潟中央の11/24～3/17の4回の調査について平均値を算出し、水質の比較を行った(表6)。その結果、CODの値は西部承水路>東部承水路>潟中央の順であり、T-Nは西部承水路>潟中央>東部承水路、T-Pは東部承水路>潟中央>西部承水路の順であった。西部承水路はpH、VSS、Chl-a及びChl-cが高く、植物プランクトンの増殖により水質汚濁が進んでいると思われる。

西部承水路の地点別における水質の平均値(表7)をみると、CODは内日角橋>大崎橋>室橋の順であり、SS、Chl-aについても同様の順であった。また、2/22調査時にCyclotella sp.の異常増殖がみられたが、その個数も内日角橋>大崎橋>室橋と同様な順であった(表4)。このCyclotella sp.の異常増殖については同水系、同時期であることから、同じ水質の場所でCyclotella sp.が大発生したものと仮定し、COD、SS、Chl-aとの相関からCyclotella sp.の増殖が及ぼす水質変化の割合を算出した(表4)。その結果、CODについてはCyclotella sp.の個数が1,000個/増加することにより、0.064mg/ℓ増えた。

表 6 河北潟と承水路の水質比較

調 査 地 点	河北潟中央	西部承水路	東部承水路
水温 (°C)	7.0	7.3	6.9
透視度 (cm)	21.9	20.8	19.8
pH	7.5	8.5	7.3
EC (μS/cm)	195	230	151
SS (mg/ℓ)	20.4	19.0	27.5
VSS (mg/ℓ)	5.0	10.1	5.3
強熱減量 (%)	28.2	56.3	28.3
DO (mg/ℓ)	12.3	13.6	11.2
COD (mg/ℓ)	4.6	8.1	5.0
D-COD (mg/ℓ)	2.9	3.6	3.2
懸濁態COD (mg/ℓ)	1.7	4.6	1.8
BOD (mg/ℓ)	2.9	2.5	1.9
T-N (mg/ℓ)	1.33	1.84	1.19
D-N (mg/ℓ)	1.09	1.21	0.99
NO ₂ -N (mg/ℓ)	0.02	0.02	0.02
NO ₃ -N (mg/ℓ)	0.77	0.94	0.62
NH ₄ -N (mg/ℓ)	0.20	0.14	0.26
T-P (mg/ℓ)	0.11	0.12	0.15
D-P (mg/ℓ)	0.04	0.02	0.05
PO ₄ -P (mg/ℓ)	0.03	0.01	0.04
Chl-a (μg/ℓ)	25.6	84.5	11.4
Chl-b (μg/ℓ)	1.8	3.6	2.8
Chl-c (μg/ℓ)	7.5	22.3	10.0
T-Chl (μg/ℓ)	34.9	110.4	24.2

備考：11月～3月調査における河北潟中央は4回の平均値であり、西部承水路は3地点×4回の平均値、東部承水路は2地点×4回の平均値である。

表 5 相 関 係 数

項 目	Cyclotella sp.	pH	COD	懸濁態 COD	SS	VSS	Chl-a
Cyclotella sp.	---						
pH	0.651	---					
COD	0.872	0.833	---				
懸濁態 COD	0.867	0.787	0.969	---			
SS	0.324	0.281	0.452	0.393	---		
VSS	0.850	0.698	0.910	0.863	0.608	---	
Chl-a	0.825	0.774	0.912	0.913	0.518	0.942	---
Chl-c	0.865	0.651	0.854	0.874	0.572	0.913	0.947

備考：河北潟中央の水質（表1）より算出したものである。

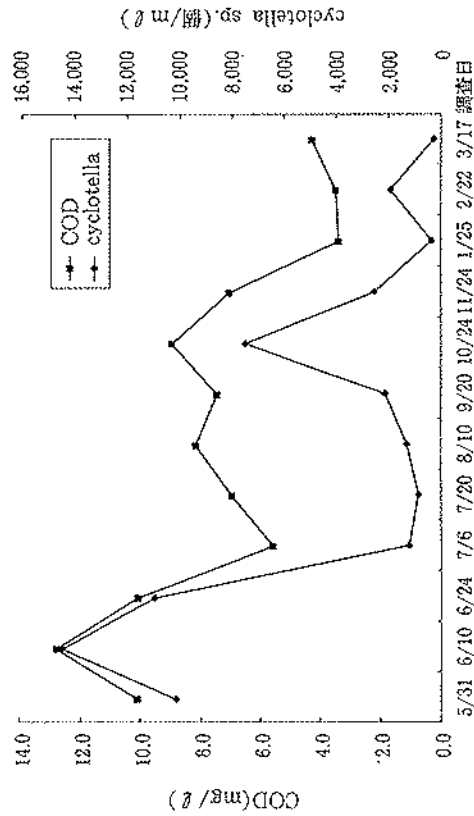


図 5 Cyclotella.sp と COD

4 ま と め

(1) 動物プランクトン調査の結果、河北潟中央の表層水では、ワムシ類とカイアシ類の nauplius 幼生が多数を占めた。ワムシ類は 8/10 調査時に最も多い 305 個/ℓ がみられ、nauplius 幼生は 6/24 調査時に最大の 32 個/ℓ が観察された。

(2) 植物プランクトン調査の結果、河北潟中央の表層水には、珪藻類の *Cyclotella* sp. が年間を通じ観察され、特に 6/10 調査時に最大の 14,400 個/mℓ が観察され、3/17 調査時には最小の 280 個/mℓ であった。

(3) 西部承水路における 2/22 調査時に 25,000～53,000 個/mℓ の *Cyclotella* sp. が観察され、水温の低い冬季においても大発生することが確認された。

(4) 河北潟で多くみられる *Cyclotella* sp. と COD、懸濁態 COD、Chl-a、Chl-c、VSS との間に相関がみられた。

(5) 西部及び東部承水路と河北潟の水質を比較すると、西部承水路が最も COD が高い結果であった。また、西部承水路の地点別では内日角橋が最も COD が高く、続いて大崎橋、室橋の順であった。

(6) 西部承水路で大発生した *Cyclotella* sp. と COD の相関を調べた結果、*Cyclotella* sp. が 1,000 個/mℓ 増加することにより、COD は 0.064 mg/ℓ 増えた。

文 献

1) 鈴崎有紀他：福井県環境科学センター年報，31，57

表 7 各地点の水質比較

調 査 地 点	河北潟	西 部 承 水 路			東部承水路	
	潟中央	室 橋	大崎橋	内日角橋	宇ノ気排水機場前	湖北大橋
水温 (°C)	7.0	7.6	7.2	7.2	6.9	6.8
透視度 (cm)	21.9	21.8	20.8	19.8	22.9	16.8
pH	7.5	8.5	8.5	8.6	7.4	7.3
EC (μS/cm)	195	235	227	229	156	147
SS (mg/ℓ)	20.4	16.2	18.9	22.0	24.3	30.6
VSS (mg/ℓ)	5.0	9.4	10.2	10.8	5.1	5.5
強熱減量 (%)	28.2	61.5	55.4	51.8	34.5	22.1
DO (mg/ℓ)	12.3	12.9	14.0	14.1	11.3	11.2
COD (mg/ℓ)	4.6	7.7	8.1	8.6	4.9	5.2
D-COD (mg/ℓ)	2.9	3.6	3.4	3.7	3.1	3.4
BOD (mg/ℓ)	2.9	3.2	3.1	1.1	2.2	1.6
T-N (mg/ℓ)	1.33	1.81	1.88	1.83	1.13	1.26
D-N (mg/ℓ)	1.09	1.21	1.26	1.16	0.94	1.03
NO ₂ -N (mg/ℓ)	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02
NO ₃ -N (mg/ℓ)	0.77	0.98	0.98	0.88	0.67	0.58
NH ₄ -N (mg/ℓ)	0.20	0.15	0.14	0.15	0.18	0.35
T-P (mg/ℓ)	0.11	0.10	0.12	0.15	0.13	0.17
D-P (mg/ℓ)	0.04	0.02	0.02	0.03	0.04	0.05
PO ₄ -P (mg/ℓ)	0.03	0.01	0.02	0.02	0.03	0.04
Chl-a (μg/ℓ)	25.6	64.8	91.7	96.9	13.3	9.5
Chl-b (μg/ℓ)	1.8	3.5	3.8	3.5	2.5	3.2
Chl-c (μg/ℓ)	7.5	18.1	24.9	23.8	9.0	11.1
T-Chl (μg/ℓ)	34.9	86.4	120.4	124.1	24.8	23.7

備考：11月～3月調査における4回の平均値である。

(2001)

- 2) 塚崎嘉彦他：福井県環境科学センター年報，31，69 (2001)
- 3) 水野寿彦，高橋永治：日本淡水動物プランクトン検索図説，p2，東海大学出版会，東京 (2000)
- 4) 山岸高旺：淡水藻類入門，p348，内田老鶴圃，東京 (1999)

〔資 料〕

石川県内における地下水汚染の経年変化について

石川県保健環境センター環境科学部 岡田真規子・山 田 肇
杉 盛 耕 益・小 西 秀 則

キーワード：揮発性有機化合物，メッシュ，地下水汚染

1 は じ め に

平成元年度以降，水質汚濁防止法（昭和45年法律第138号）第16条第1項の規定に基づき，都道府県知事は地下水の水質汚濁の状況を常時監視することとされている。本県では毎年「石川県水質測定計画」を作成し，これに従って概況調査，汚染井戸周辺地区調査，定期モニタリング調査¹⁾を行い県内の地下水の汚染状況を常時監視している。

本報では，定期モニタリング調査において過去5年間に揮発性有機化合物が検出された井戸の経年変化について取りまとめた。

2 調 査 方 法

2・1 調査地点

「石川県水質測定計画」に従い，概況調査では県内を4 km メッシュに区分し，さらにこのメッシュを2 km メッシュに分割し，4 km メッシュ区画内で4分割された区域において調査井戸を選定した（図1）。なお，概況調査は毎年順次調査井戸を変えるローリング方式を用いて実施し，新たな汚染が発見された場合には汚染井戸周辺地区調査を実施し，そこで汚染が確認された井戸を

定期モニタリング調査の調査井戸としている。

2・2 調査項目

今回取りまとめを行った定期モニタリング調査の調査項目は，揮発性有機化合物のトリクロロエチレン，テトラクロロエチレン，1,1,1-トリクロロエタン，1,1-ジクロロエチレン，シス-1,2-ジクロロエチレンの5項目である。調査項目とその環境基準値および報告下限値を表1に示す。

2・3 分析法

試料の分析は「地下水の水質汚濁に係る環境基準」（平成9年3月環境庁告示第10号）に準じた。

2・4 有効数字等の取扱い方

- (1) 有効数字を2桁とし，3桁目以下を切り捨てる。
- (2) 報告下限値の桁を下回る桁については切り捨てる。
- (3) 平均値の計算

定期モニタリング調査は年2回行うため，平均値を使用した。

ア 平均値の計算に当たっては，有効数字を2桁までとし，その下の桁を四捨五入する。その場合，報告下限値の桁を下回る桁が残る場合は，四捨五入して報告下限値の桁までとした。

イ 年2回の調査のうち，どちらかが報告下限値未満

表 1 調査項目とその環境基準値および報告下限値

単位：mg/L					
調査項目	トリクロロエチレン	テトラクロロエチレン	1,1,1-トリクロロエタン	1,1-ジクロロエチレン	シス-1,2-ジクロロエチレン
環境基準値	0.03	0.01	1	0.02	0.04
報告下限値	0.002	0.0005	0.0005	0.002	0.004

Trends of Groundwater Pollution in Ishikawa Prefecture. by OKADA Makiko, YAMADA Hajime, SUGIMORI Koueki and KONISHI Hidenori (Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Volatile organic compound, Mesh, Groundwater pollution

の場合、報告下限値未満の値は報告下限値の値として扱い、平均値を計算した。

3 調査結果

3・1 トリクロロエチレン

トリクロロエチレン検出井戸における汚染濃度の経年変化を表2に示した。過去5年間に環境基準値(0.03 mg/L)の超過が確認された井戸は、メッシュ14で3井、メッシュ51, 59, 86で各1井ずつの計6井であった。経年変化については、メッシュ14では減少後増加がみられ、メッシュ51, 86では急激な減少がみられた。

3・2 テトラクロロエチレン

テトラクロロエチレン検出井戸における汚染濃度の経年変化を表3に示した。過去5年間に環境基準値(0.01 mg/L)の超過が確認された井戸は、メッシュ14, 36で各1井、メッシュ15, 77で各2井の計6井であった。経年変化については、メッシュ15で急激な減少がみられ、その他はほぼ横ばいであった。

3・3 1,1,1-トリクロロエタン

1,1,1-トリクロロエタン検出井戸における汚染濃度の経年変化を表4に示した。過去5年間に環境基準値(1 mg/L)を超過した井戸はなかった。

3・4 1,1-ジクロロエチレン

1,1-ジクロロエチレン検出井戸における汚染濃度の経年変化を表5に示した。過去5年間に環境基準値(0.02 mg/L)を超過した井戸はメッシュ51の1井であった。経年変化については、数年横ばいで推移していたが、平成17年度に入って急激な減少がみられた。

3・5 シス1,2-ジクロロエチレン

シス1,2-ジクロロエチレン検出井戸における汚染濃度の経年変化を表6に示した。過去5年間に環境基準値(0.04 mg/L)の超過が確認された井戸は、メッシュ51, 59で各1井の計2井であった。経年変化については、年によって高い値がみられるものの、長期的には減少傾向にあった。

4 考察

橋本らの報告⁹⁾を参考にして、汚染源として明らかな事業場敷地内及びその周辺において揮発性有機化合物が過去5年間に環境基準値を超過した井戸の検出項目を表7に示した。また、汚染源が明らかになっていないが揮発性有機化合物が過去5年以内に環境基準値を超過して検出された井戸の検出項目を表8に示した。報告²⁾³⁾より、揮発性有機化合物による地下水汚染物質のなかで検出率が高い項目はテトラクロロエチレン、トリクロロエチレン、1,1,1-トリクロロエタンであり、そのうちテトラク

ロロエチレンはトリクロロエチレンを経てシス1,2-ジクロロエチレンまで分解する。また、トリクロロエチレンの汚染井戸には、シス1,2-ジクロロエチレンがよく検出され、その他に1,1-ジクロロエチレンなども検出されると報告されている。表7, 8より本県の調査結果においても、テトラクロロエチレンが過去5年間に環境基準値を超過した6井戸のうち、トリクロロエチレンが検出された井戸が4井、シス1,2-ジクロロエチレンが検出された井戸が3井、トリクロロエチレンが過去5年間に環境基準値を超過した6井戸のうち、シス1,2-ジクロロエチレンが環境基準値を超過して検出された井戸が2井、環境基準値以下で検出された井戸が3井、1,1-ジクロロエチレンが環境基準値以下で検出された井戸が4井と同様の傾向がみられた。

汚染源として明らかな事業場敷地内及びその周辺の井戸のうち、メッシュ14のA井、B井及びC井、メッシュ51のA井、メッシュ59のA井、メッシュ86のA井のトリクロロエチレンの平成10年度からの経年変化を図2に、メッシュ15のA井とB井のテトラクロロエチレンの平成10年度からの経年変化を図3に示した。図2, 3より

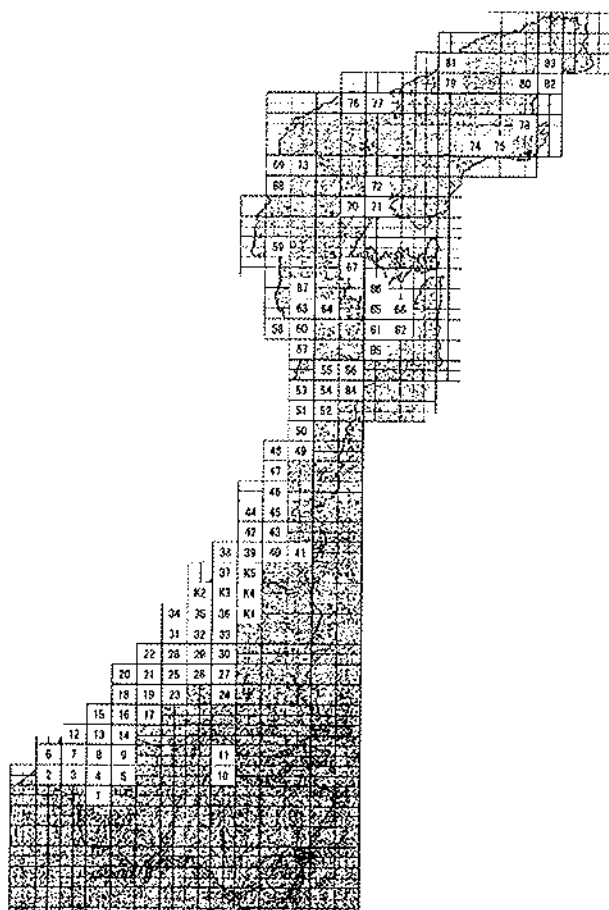


図1 概況調査区図

汚染物質の濃度に急激な減少がみられることから、事業場における浄化対策が確実に進んでいると考えられる。

基準値を超えているものもあり、今後とも継続的に監視していく必要がある。

5 ま と め

本県における地下水の定期モニタリング調査で過去5年以内に揮発性有機化合物が検出され、かつ検出に継続性がある井戸について経年変化をとりまとめた。その結果、汚染源として明らかな事業場敷地内井戸では、急激な汚染濃度の減少がみられることから、事業場における浄化対策が確実に進んでいると考えられる。しかし、汚染源が明らかになっていない井戸の中には、依然として環境

文 献

- 1) 橋本潤子, 初瀬 裕, 橋田哲郎, 柴野 昭: 石川保環研報, 40, 103—108 (2003)
- 2) (社)日本水環境学会関西支部: 地下水・土壌汚染の現状と対策, p127—133, 環境技術研究協会, 大阪 (1995)
- 3) 地下水問題研究会: 地下水汚染論—その基礎と応用—, p27—61, 共立出版株式会社, 東京 (1991)

表 2 トリクロロエチレン検出井戸の汚染濃度の経年変化

単位: mg/L

メッシュ	井戸	井戸深度 (m)	浅深井戸	用 途	平成13年度	平成14年度	平成15年度	平成16年度	平成17年度
14	A	40	深井戸	工業用水	0.037	0.028	0.021	0.095	0.12
14	B	54	深井戸	工業用水	0.030	0.022	0.031	0.030	0.036
14	C	不明	不 明	生活用水	0.033	0.030	0.036	0.030	0.020
14	D	34	深井戸	工業用水	<0.002	0.003	0.003	0.003	0.002
15	A	30	深井戸	工業用水	<0.002	0.002	0.003	<0.002	0.002
15	B	30	深井戸	工業用水	0.003	0.002	0.002	0.002	0.002
15	D	不明	浅井戸	工業用水	0.004	0.004	0.004	0.004	0.007
17	B	不明	不 明	生活用水	0.002	0.004	0.003	0.005	0.003
26	A	20	深井戸	そ の 他	0.009	<0.002	0.004	0.003	<0.002
35	E	100	深井戸	一般飲用	<0.002	0.002	0.002	<0.002	<0.002
35	J	100	深井戸	一般飲用	—	—	0.004	0.005	0.003
35	K	不明	深井戸	一般飲用	0.004	0.007	0.008	0.009	0.007
35	L	100	深井戸	一般飲用	0.007	0.008	0.007	—	—
35	M	不明	深井戸	一般飲用	0.006	0.007	—	—	—
51	A	10	浅井戸	そ の 他	0.033	0.014	0.13	<0.002	0.051
51	C	50	深井戸	工業用水	<0.002	<0.002	0.003	0.002	0.002
59	A	13	浅井戸	そ の 他	2.5	2.0	2.3	2.2	0.83
77	A	6	浅井戸	生活用水	0.015	0.018	0.016	0.012	0.012
77	B	5	浅井戸	そ の 他	0.004	0.007	0.008	0.009	0.004
86	A	6	浅井戸	そ の 他	0.032	0.020	0.009	0.005	0.002

下線: 環境基準 (0.03mg/L) 超過

— : 未測定

井戸: 同一メッシュ内の井戸の区分

表 3 テトラクロロエチレン検出井戸の汚染濃度の経年変化

単位: mg/L

メッシュ	井戸	井戸深度 (m)	浅深井戸	用 途	平成13年度	平成14年度	平成15年度	平成16年度	平成17年度
4	A	20	深井戸	生活用水	<0.0005	0.0006	<0.0005	0.0005	<0.0005
4	B	不明	不 明	一般飲用	0.0010	0.0009	0.0010	0.0008	0.0006
14	C	不明	不 明	生活用水	0.0006	0.0005	<0.0005	0.0010	0.0006
14	E	30	深井戸	工業用水	0.0061	0.0017	<0.0005	<0.0005	<0.0005
14	F	30	深井戸	一般飲用	<0.0005	0.0012	0.0022	0.0006	<0.0005
14	G	45	深井戸	工業用水	0.0045	0.012	0.013	0.010	0.0046
15	A	30	深井戸	工業用水	0.024	0.029	0.037	0.022	0.013
15	B	30	深井戸	工業用水	0.034	0.021	0.014	0.017	0.014
15	C	不明	不 明	そ の 他	0.0014	0.0011	0.0007	0.0005	0.0005
32	A	60	深井戸	工業用水	0.0048	0.0039	0.0019	0.0032	0.0014
32	B	60	不 明	そ の 他	0.0005	0.0006	<0.0005	<0.0005	0.0005
32	C	不明	不 明	生活用水	0.0064	0.0080	0.0070	0.0055	0.0054
32	D	80	深井戸	一般飲用	0.0031	0.0036	0.0022	0.0036	0.0016
32	E	110	深井戸	生活用水	0.0011	0.0006	0.0012	<0.0005	<0.0005
35	A	100	深井戸	一般飲用	0.0012	0.0012	<0.0005	0.0013	0.0007
35	B	不明	深井戸	工業用水	0.0018	0.0021	0.0039	0.0051	0.0037
35	C	80	深井戸	水道水源	0.0007	0.0008	0.0009	0.0007	0.0008
35	D	100	深井戸	工業用水	0.0023	0.0023	0.0024	0.0023	0.0024
35	F	100	深井戸	一般飲用	0.0005	0.0008	0.0007	0.0007	0.0006
35	G	100	深井戸	工業用水	<0.0005	0.0005	0.0006	<0.0005	0.0006
36	A	100	深井戸	一般飲用	0.0016	0.0014	0.0012	0.0014	0.0012
36	B	30	深井戸	一般飲用	0.0052	0.0048	0.0041	0.0045	0.0034
36	C	50	深井戸	一般飲用	0.0031	0.011	0.016	0.0082	0.0061
36	D	30	深井戸	一般飲用	0.0005	0.0009	0.0015	0.0018	0.0015
53	A	55	浅井戸	水道水源	0.0013	0.0024	0.0017	0.0024	0.0042
77	A	6	浅井戸	生活用水	0.13	0.12	0.13	0.093	0.13
77	B	5	浅井戸	そ の 他	0.026	0.049	0.036	0.058	0.040
77	C	3	浅井戸	生活用水	0.0016	0.0018	0.0085	0.0026	0.0031

下線: 環境基準 (0.01mg/L) 超過

— : 未測定

井戸: 同一メッシュ内の井戸の区分

表 4 1,1,1-トリクロロエタン検出井戸の汚染濃度の経年変化

単位：mg/L

メッシュ	井戸	井戸深度 (m)	浅深井戸	用 途	平成13年度	平成14年度	平成15年度	平成16年度	平成17年度
14	A	40	深井戸	工業用水	0.015	0.0083	0.015	0.015	0.0092
14	B	54	深井戸	工業用水	0.030	0.026	0.024	0.047	0.028
14	C	不明	不 明	生活用水	0.009	0.0062	0.0083	0.0048	0.0024
14	D	34	深井戸	工業用水	0.0024	0.0030	0.0028	0.0031	0.0022
15	B	30	深井戸	工業用水	<0.0005	<0.0005	<0.0005	0.0014	0.0013
35	B	不明	深井戸	工業用水	0.0006	0.0006	0.0006	0.0009	0.0005
35	D	100	深井戸	工業用水	0.0095	0.0082	0.0062	0.0079	0.0035
35	F	100	深井戸	一般飲用	0.0007	0.0009	0.0008	0.0006	0.0005
35	G	100	深井戸	工業用水	0.0007	0.0008	0.0011	0.0017	0.0015
35	H	85	深井戸	一般飲用	0.0005	0.0007	<0.0005	<0.0005	<0.0005
35	I	不明	不 明	一般飲用	0.0031	0.0024	0.0024	0.0047	0.0015
44	A	不明	不 明	一般飲用	0.0012	0.0013	0.0006	0.0008	<0.0005
44	B	32	深井戸	一般飲用	0.0010	<0.0005	<0.0005	0.0005	<0.0005
47	A	12	不 明	一般飲用	—	—	0.0007	0.0007	<0.0005
51	B	40	深井戸	そ の 他	0.18	0.15	0.11	0.096	0.015

下線：環境基準（1mg/L）超過

—：未測定

井戸：同一メッシュ内の井戸の区分

表 5 1,1-ジクロロエチレン検出井戸の汚染濃度の経年変化

単位：mg/L

メッシュ	井戸	井戸深度 (m)	浅深井戸	用 途	平成13年度	平成14年度	平成15年度	平成16年度	平成17年度
14	A	40	深井戸	工業用水	0.005	0.005	0.005	0.002	0.003
14	B	54	深井戸	工業用水	0.005	0.004	0.005	0.003	0.004
14	D	34	深井戸	工業用水	0.002	0.003	0.002	0.003	<0.002
51	B	40	深井戸	そ の 他	<u>0.17</u>	<u>0.18</u>	<u>0.16</u>	<u>0.19</u>	<u>0.040</u>
59	A	13	浅井戸	そ の 他	0.003	0.002	0.003	0.009	<0.002

下線：環境基準（0.02mg/L）超過

—：未測定

井戸：同一メッシュ内の井戸の区分

表 6 シス-1,2-ジクロロエチレン検出井戸の汚染濃度の経年変化

単位: mg/L

メッシュ	井戸	井戸深度 (m)	浅深井戸	用 途	平成13年度	平成14年度	平成15年度	平成16年度	平成17年度
14	A	40	深井戸	工業用水	0.004	<0.004	0.006	0.007	0.008
14	B	54	深井戸	工業用水	0.011	0.012	0.012	0.007	0.009
14	C	不明	不 明	生活用水	0.004	0.004	0.007	0.005	<0.004
15	A	30	深井戸	工業用水	<0.004	0.006	0.005	0.004	0.004
17	A	60	深井戸	工業用水	0.007	<0.004	0.023	0.005	0.004
51	A	10	浅井戸	そ の 他	0.59	0.26	0.80	0.25	2.4
59	A	13	浅井戸	そ の 他	0.94	0.86	0.77	3.7	0.58
77	A	6	浅井戸	生活用水	0.027	0.032	0.034	0.030	0.026
77	B	5	浅井戸	そ の 他	0.008	0.016	0.023	0.025	0.012

下線: 環境基準 (0.04mg/L) 超過

—: 未測定

井戸: 同一メッシュ内の井戸の区分

表 7 汚染源として明らかな事業場敷地内及びその周辺の井戸の検出項目

メッシュ	井戸	井戸深度 (m)	浅深井戸	用 途	敷地内井戸及 び周辺井戸	トリクロロ エチレン	テトラクロ ロエチレン	1,1,1-トリク ロロエタン	1,1-ジクロロ エチレン	シス-1,2-ジク ロロエチレン
14	A	40	深井戸	工業用水	敷地内井戸	●		○	○	○
14	B	54	深井戸	工業用水	敷地内井戸	●		○	○	○
14	C	不明	不 明	生活用水	周辺井戸	●	○	○		○
15	A	30	深井戸	工業用水	敷地内井戸	○	●			○
15	B	30	深井戸	工業用水	敷地内井戸	○	●	○		
51	A	10	浅井戸	そ の 他	敷地内井戸	●			○	●
59	A	13	浅井戸	そ の 他	敷地内井戸	●			○	●
86	A	6	浅井戸	そ の 他	敷地内井戸	●				

○: 過去5年以内に環境基準値超過なしで検出

●: 過去5年以内に環境基準値超過ありで検出

網掛け: 汚染源として明らかな事業場敷地内井戸

表 8 汚染源が明らかになってないが揮発性有機化合物が過去5年間に
環境基準値を超過して検出された井戸の検出項目

メッシュ	井戸	井戸深度 (m)	浅深井戸	用 途	トリクロロ エチレン	テトラクロ ロエチレン	1,1,1-トリク ロロエタン	1,1-ジクロロ エチレン	シス-1,2-ジク ロロエチレン
14	G	45	深井戸	工業用水		●			
36	C	50	深井戸	生活用水		●			
51	B	40	深井戸	そ の 他			○	●	
77	A	6	浅井戸	生活用水	○	●			○
77	B	5	浅井戸	そ の 他	○	●			○

○: 過去5年以内に環境基準値超過なしで検出

●: 過去5年以内に環境基準値超過ありで検出

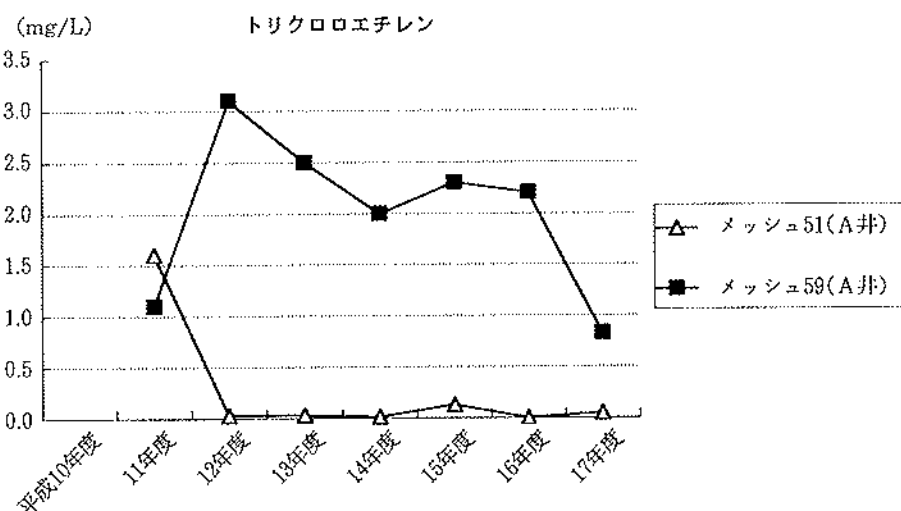
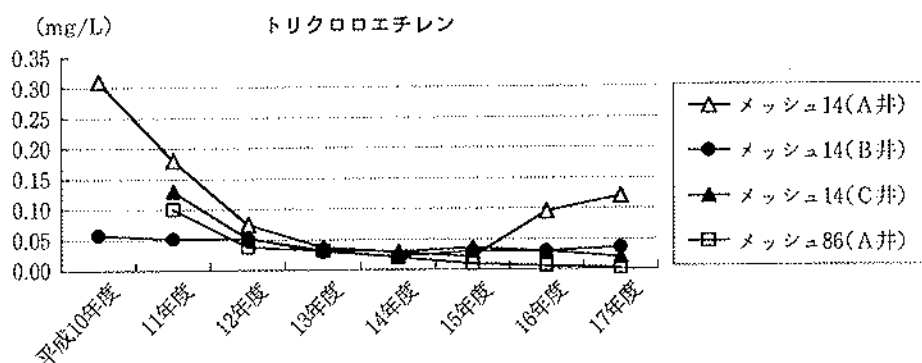


図2 汚染源として明らかな事業所敷地内及びその周辺の井戸で過去5年以内にトリクロロエチレンが環境基準値(0.03 mg/L)を超過して検出した井戸でのトリクロロエチレンの検出の経年変化

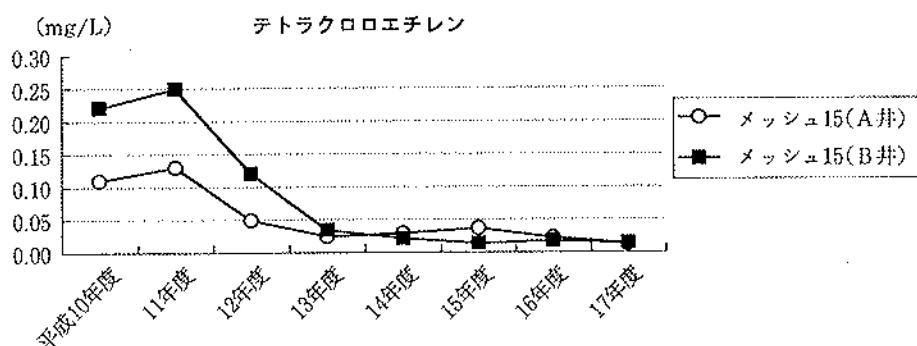


図3 汚染源として明らかな事業所敷地内で過去5年以内にテトラクロロエチレンが環境基準値(0.01 mg/L)を超過して検出した井戸でのテトラクロロエチレンの検出の経年変化

〔資 料〕

ダイオキシン類の簡易測定に関する検討

石川県保健環境センター環境科学部

岡 秀 雄・柿 本 均

新川 晶子・久堂 寛久

キーワード：ダイオキシン類，簡易測定，指標異性体，生物検定

1 は じ め に

平成11年度にダイオキシン類対策特別措置法が施行され，ダイオキシン類の発生源対策が実施されるとともに，環境基準が設定され，河川水，底質，土壌および大気について常時監視が行われている。分析方法として高分解能ガスクロマトグラフ/高分解能質量分析装置（HRGC/HRMS）を使用する測定が規定されているが，装置の導入や維持に多大な経費を必要とするため，迅速で低廉な簡易測定法の導入が望まれている。

環境省ではこのような要求に答え，平成16年12月に生物検定法によるダイオキシン類の測定を追加し，平成17年9月に4種類の方法を指定した。しかし，これらは全て生物検定法であることから，既に整備されている測定機器の活用が考慮されていない。また対象媒体が廃棄物焼却炉からの排出ガス，ばいじん及び燃え殻であり，底質などの環境試料を対象としていないことから，環境基準監視業務では活用できない。これらのことから，本報では機器測定による簡易測定法及び環境試料への生物検定法の適用について検討したので報告する。

2 試 料 と 方 法

試料として石川県内において採取した土壌および底質を用いた。

2・1 機器測定による簡易測定法

(1) 指標異性体によるダイオキシン類毒性当量（TEQ）の推計

ダイオキシン類毒性当量（TEQ）と相関の高い異性体（指標異性体）の検索には平成12年から17年にかけて

採取した土壌204試料，底質119試料を用いた。HRGC/HRMS 測定により得られた TEQ と32種類の異性体濃度との線形相関により検索した。なお土壌と底質の定量はそれぞれ「ダイオキシン類に係る土壌調査測定マニュアル」¹⁾，「ダイオキシン類に係る底質調査測定マニュアル」²⁾に準拠して行った。

(2) 四重極型ガスクロマトグラフ質量分析装置（HRGC/QMS）による測定

土壌及び底質の計6試料を2・1(1)と同様の方法で前処理し，HRGC/QMS による測定に供した。使用した装置は日本電子製 Automass SUN，カラムは DB-5MS（60m×0.25mm i.d.，Film 0.25 μ m）であり，毒性等価係数（TEF）の設定されているダイオキシン類のうちポリ塩素化ジベンゾ-パラ-ジオキシン（PCDDs）とポリ塩素化ジベンゾフラン（PCDFs）の4～8塩素化体を定量し，HRGC/QMS 測定に基づく毒性当量（Q-TEQ）を算出した。

2・2 生物検定法による簡易測定

(1) 抗原抗体反応を利用した方法（ELISA 法）による測定

平成17年9月に告示され，平成18年3月に改定された「ダイオキシン類に係る生物検定法マニュアル」³⁾に示された4種類の生物検定法のうち，ダイオキシン類を抗原とする ELISA 法を行った。ソックスレー抽出による粗抽出液を硫酸および多層シリカゲルカラムでクリーンアップし，ジメチルスルホキシド（DMSO）に転溶した後，市販のキット（環境ソルテック社製ダイオクイッカー DXN-201）を用いて測定した。ELISA 法による毒性当量（E-TEQ）への換算はキット付属の換算係数によ

Rapid Determination for Dioxins, by OKA Hideo, KAKIMOTO Hitoshi, NIKAWA Akiko and KYUDO Hirohisa (Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Dioxins, Rapid determination, Indicator isomer, Bioassay

表 1 各異性体の実測濃度と TEQ との相関

異 性 体	相 関 係 数 (R^2)		検出下限未満(n.d.)の頻度 (%)	
	土壌	底質	土壌	底質
1,3,6,8-TeCDD	0.1765	0.8130	0.0	0.0
1,3,7,9-TeCDD	0.2184	0.8318	2.0	0.0
2,3,7,8-TeCDD	0.3198	0.4350	75.0	42.9
1,2,3,7,8-PeCDD	0.8432	0.9505	27.0	10.9
1,2,3,4,7,8-HxCDD	0.7217	0.9024	18.1	8.4
1,2,3,6,7,8-HxCDD	0.7569	0.9644	11.3	3.4
1,2,3,7,8,9-HxCDD	0.7524	0.9187	8.8	5.9
1,2,3,4,6,7,8-HpCDD	0.5083	0.9468	0.0	0.0
OCDD	0.1609	0.9167	0.0	0.0
1,2,7,8-TeCDF	0.5207	0.0522	30.4	18.5
2,3,7,8-TeCDF	0.5495	0.1312	32.4	11.8
1,2,3,7,8-PeCDF	0.6982	0.9050	14.7	3.4
2,3,4,7,8-PeCDF	0.7278	0.8970	19.1	10.1
1,2,3,4,7,8-HxCDF	0.7469	0.9247	9.3	3.4
1,2,3,6,7,8-HxCDF	0.7707	0.9264	13.2	7.6
1,2,3,7,8,9-HxCDF	0.3623	0.6285	59.3	47.9
2,3,4,6,7,8-HxCDF	0.7300	0.8979	7.4	3.4
1,2,3,4,6,7,8-HpCDF	0.6382	0.9443	1.0	0.0
1,2,3,4,7,8,9-HpCDF	0.5857	0.9433	12.3	7.6
OCDF	0.3253	0.9265	1.0	0.0
3,4,4',5'-TeCB (#81)	0.1072	0.5119	61.8	23.5
3,3',4,4'-TeCB (#77)	0.3640	0.7264	6.4	0.0
3,3',4,4',5'-PeCB (#126)	0.3884	0.8395	30.9	11.8
3,3',4,4',5,5'-HxCB (#169)	0.1650	0.6381	51.0	39.5
2',3,4,4',5'-PeCB (#123)	0.2446	0.6046	54.9	7.6
2,3',4,4',5'-PeCB (#118)	0.1968	0.6529	0.5	0.0
2,3,3',4,4'-PeCB (#105)	0.1932	0.5742	0.5	0.0
2,3,4,4',5'-PeCB (#114)	0.0823	0.4082	65.2	5.0
2,3',4,4',5,5'-HxCB (#167)	0.1643	0.6917	27.5	0.0
2,3,3',4,4',5'-HxCB (#156)	0.1603	0.6009	13.2	0.0
2,3,3',4,4',5'-HxCB (#157)	0.1746	0.6691	23.0	0.8
2,3,3',4,4',5,5'-HpCB (#189)	0.4320	0.6391	32.4	13.4

が PCDDs 及び PCDFs の TEF に比較して低いことによると考えられる。

底質試料における各異性体濃度と TEQ の相関は土壌試料におけるそれよりも高かった。底質119試料の HRGC/HRMS による定量結果は平均で4.9 pg-TEQ/g, 最大値および最小値はそれぞれ64, 0.13 pg-TEQ/g であった。同様に土壌204試料については平均が1.1pg-TEQ/g, 最大値および最小値はそれぞれ10, 0.0059 pg-TEQ/g であった。いずれの試料も環境基準値(土壌1,000 pg-TEQ/g, 底質250 pg-TEQ/g)を下回っていた。特に土壌では TEQ も各異性体濃度も低いことから測定値のばらつき, 検出下限未満(ND)の頻度が多くなることにより, 各異性体濃度と TEQ との相関が底質試料よりも低かったと考えられる。

最も TEQ と相関の高い異性体は, 底質では1,2,3,6,7,8-ヘキサクロロジベンゾ-パラ-ジオキシン(HxCDD) ($R^2=0.96$), 土壌では1,2,3,7,8-ペンタクロロジベンゾ-パラ-ジオキシン(PeCDD) ($R^2=0.84$) であった。これら2異性体と TEQ と

た。

3 結 果

3・1 機器測定による簡易測定法

(1) 指標異性体による TEQ の推計

TEF の設定されている29異性体と1,3,6,8-テトラクロロジベンゾ-パラ-ジオキシン(TeCDD)と1,3,7,9-TeCDD および1,2,7,8-テトラクロロジベンゾフラン(TeCDF)を加えた32の各異性体の実測濃度と TEQ の相関係数を表1に示す。

底質, 土壌の両媒体においてダイオキシン様ポリ塩化ビフェニル(DL-PCBs)の各異性体濃度と TEQ の相関は低かった。これは石川県内底質及び土壌における DL-PCBs の実測濃度が低いうえに, 設定されている TEF

の相関を図1に示す。

全国各地の測定データから指標異性体を抽出した例では, 2,3,4,7,8-PeCDF が最も TEQ との相関が高いとされている¹⁾。今回, TEQ に寄与する異性体が異なった要因として, ダイオキシン類の発生源によって異性体分布が異なることが考えられる。ダイオキシン類の発生源として主に過去に使用された農薬(PCP および CNP)⁵⁾や燃焼過程として PCB などが挙げられ, これらの異性体分布は発生源によって特異的であることが報告されている。^{6,7)} 石川県内において採取された土壌, 底質は当該地域での発生源を反映しており, 今回検索された指標異性体は県内の一般環境における環境基準監視業務において有効であると考えられる。

通常は3種類のキャピラリーカラムによる測定を必要

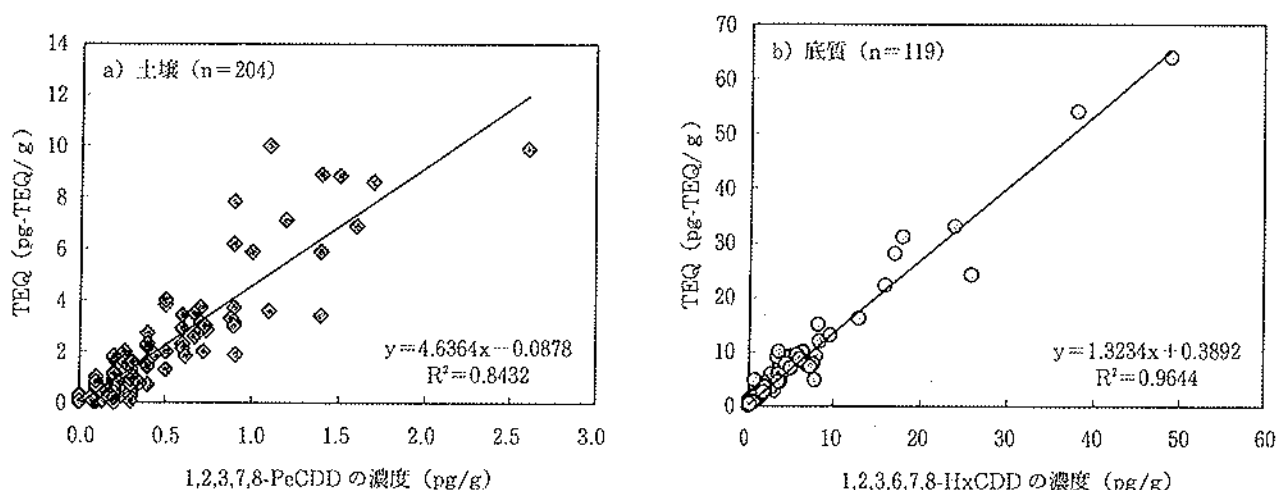


図1 異性体実測濃度とTEQとの相関

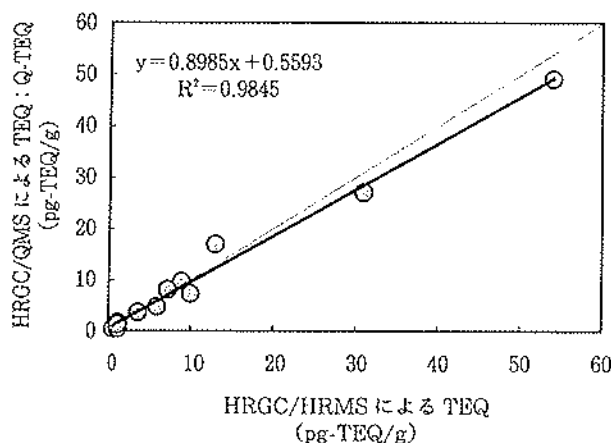


図2 HRGC/QMSによるTEQ (Q-TEQ) とHRGC/HRMSによるTEQの相関図

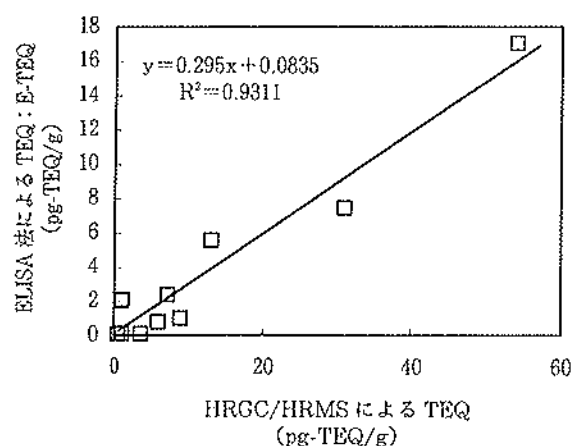


図3 ELISA法によるTEQ (E-TEQ) とHRGC/HRMSによるTEQの相関図

とするTEQの算出が、指標異性体による方法では1種類のキャピラリーカラムで測定が終了するため、HRGC/HRMSの持つ測定精度・感度が高い利点を確保したまま、機器測定及びデータ解析時間の大幅な短縮が可能であった。

(2) HRGC/QMSによる測定

本方法では機器の選択性や感度はHRGC/HRMSに劣るものの維持管理のコストが安く、HRGC/HRMSが整備されていない、あるいは使用できない場合、通常の実験業務において使用している装置を利用できる利点がある。

HRGC/QMSによる毒性当量 (Q-TEQ) とHRGC/HRMSによるTEQの相関図を図2に示す。今回、検討した12試料では良好な相関関係 ($R^2=0.98$) が見られ、TEQに対するQ-TEQの比率は0.9と良く一致していた。HRGC/HRMS測定と同じ前処理を行ったが、分解能・

感度が劣るHRGC/QMSでは十分なピーク強度が得られない、あるいは多くのフラグメントイオンによるピークが出現し判読が困難なクロマトグラムも見られた。機器の検出下限は異性体によるが、HRGC/HRMSに比べてHRGC/QMSでは平均6.5分の1に低下した。

底質および土壌での環境基準はそれぞれ250, 1,000pg-TEQ/gと高い値であるため、HRGC/QMSの検出感度であっても基準値超過の判定には充分に利用可能である。

3・2 生物検定法による簡易測定

(1) ELISA法による測定

本方法は測定キット (市販品) と吸光光度計 (プレートリーダー) があれば測定でき、ダイオキシン類の標準試料を取り扱う必要がない利点がある。

E-TEQとHRGC/HRMSによるTEQとの相関図を図3に示す。TEQとの相関は良好 ($R^2=0.93$) であったがE-TEQはHRGC/HRMSによるTEQの30%程度

であった。キット付属の換算係数はその開発者によって HRGC/HRMS に基づく TEQ との比較から経験的に導かれたものである。今回の土壌、底質試料は換算係数を算出する際の試料とはダイオキシン類の組成が異なっており、そのため E-TEQ は HRGC/HRMS による TEQ よりも低く見積もられたと考えられる。

ELISA 法を適用した底質のうち 2 試料は HRGC/HRMS による測定において、油分の混入と思われる妨害物質が存在し、クリーンアップ操作を追加しなければ測定不能であった。油分除去は非常に時間と技術を要する前処理方法である。しかし ELISA 法ではこの操作を省略しても HRGC/HRMS による TEQ と良好な相関を得ることができた。対照的に 1 試料については、HRGC/HRMS における測定では問題なかったが、ELISA 法では吸光度の測定段階で濁りが生じ測定できなかった。HRGC/HRMS とは異なった環境試料中の妨害物質が新たな検討課題となることが分かった。

4 ま と め

(1) 検討した 3 種類の簡易測定方法は、土壌、底質試料において HRGC/HRMS による TEQ と良い相関があることが分かった。

(2) 指標異性体のみを測定する方法は、HRGC/HRMS の高い質量分解能を活用しながら、さらに使用カラムを削減できるためクロマトグラム判読、データ処理及び機器測定に要する時間が大きく短縮できた。

(3) HRGC/QMS による Q-TEQ は TEQ と良い相関を示した。HRGC/HRMS に比べ検出感度は劣るもの

の土壌、底質の環境基準監視には充分であった。しかし質量分解能が劣るためクロマトグラム判読は困難な場合があった。

(4) ELISA 法による E-TEQ は TEQ と良い相関であったが、TEQ の 30% 程度の値を示すことが分かった。HRGC/HRMS における測定とは妨害となる物質が異なり、一部の底質試料は ELISA 法による測定ができず、更にクリーンアップの検討が必要であった。

文 献

- 1) 環境庁水質保全局土壌農薬課：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) 環境庁水質保全局水質管理課：ダイオキシン類に係る底質調査測定マニュアル（平成12年3月）
- 3) 環境省環境管理局総務課ダイオキシン対策室：ダイオキシン類に係る生物検定法マニュアル（排出ガス、ばいじん及び燃え殻），（平成18年3月）
- 4) 柴山 基，林 篤宏，井上 毅，高菅卓三：環境化学，13(1)，17—29（2003）
- 5) Masunaga, S., Takasuga, T. and Nakanishi, J.: *Chemosphere*, 44, 873—885（2001）
- 6) Masunaga, S., YAO, Y., Ogura, I., Nakai, S., Kanai, Y., Yamamuro, M. and Nakanishi, J.: *Environ. Sci. Technol.*, 35, 1967—1973（2001）
- 7) 佐々木啓之，飯村文成，津久井公昭，吉岡秀俊，佐々木裕子，安藤晴夫，柏木宣久：東京都環境科学研究所年報，117—123（2004）

〔資 料〕

電子式積算線量計の特性調査

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：線量計，積算線量

1 はじめに

本県は平成2年7月から、志賀原子力発電所周辺の環境放射線モニタリングの一環として、3ヶ月毎の積算線量の測定を行っている。測定には熱蛍光線量計（TLD）を用いているが、TLDはアニーリング等の前処理や測定に労力・時間がかかる、時系列データを得ることができない、などの短所がある。一方、電子式積算線量計は放射線従事者の個人被曝線量計として使用されているものであるが、アニーリングが不要、設置場所で測定値を直読できる、時系列データが得られる、といった長所があり、環境放射線モニタリングに利用できれば簡便かつ迅速に測定結果が得られると考えられる。

そこで、標準照射等による電子式積算線量計の特性調査及びTLDとの並行測定を行い、電子式積算線量計の環境放射線測定への応用について検討した。

2 使用機器

電子式積算線量計は、ドーズキューブ（DOSE³、千代田テクノル製）を用いた。検出部はシリコンダイオードであり、15keV～10MeVの γ （X）線を検出できる。測定値の単位はシーベルト（Sv）である。電源には塩化チオニルリチウム電池（単3型）1本を使用し、約4ヶ月間連続使用が可能である。

3 結果及び考察

3・1 機器特性

機器特性の調査として、エネルギー特性及び方向特性の調査を行った。

(1) エネルギー特性

標準照射装置を用い、Cs-137（662keV）、Co-60

表1 エネルギー特性

核 種	エネルギー(keV)	指示値(Sv)/照射値(Gy)
Ra-226	186	0.98
Cs-137	661	1.11
Co-60	1173, 1332	1.03

（1,173keV及び1,332keV）及びRa-226（186keV）の3核種について、測定面との角度が垂直になるよう標準照射を行い、エネルギー特性を調べた。照射値（Gy）に対する指示値（Sv）の比は表1の通り1程度であり、エネルギーによる大きな差異は認められなかった。

(2) 方向特性

図1に示す回転軸の周りでDOSE³を回転させながらCs-137による標準照射を行い、感度の方向特性を調べた。角度を15°毎に変化させた結果を図2に示す。測定面の真横方向からの照射に対する感度は、測定面への照射に対する感度と比べて20%程度の低下が認められた。また背面からの照射に対する感度は測定面への照射に対する感度と比べて40%程度の低下が認められたが、これは電池及び液晶ディスプレイによる遮蔽効果と考えられる。

3・2 並行測定

保健環境センター屋上に、環境放射線モニタリングに使用しているものと同型のTLD収納箱を置き、DOSE³及びTLDを収容して3ヶ月毎に回収・測定した。また保健環境センター駐車場横の百葉箱内及びバックグラウンドとして2cm鉛箱内にも同様に設置し、回収・測定した。DOSE³の設置は縦置き（地表面に対し測定部が垂直）及び横置き（地表面に対し測定部が水平）の2通りとした。

環境場における3ヶ月毎の測定結果を表2に示す。パッ

The Property of an Electronic Dosimeter. by YOSHIMOTO Takashi, NAKATANI Mitsuru and KOMORI Masaki (Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Electronic dosimeter, Integration dose

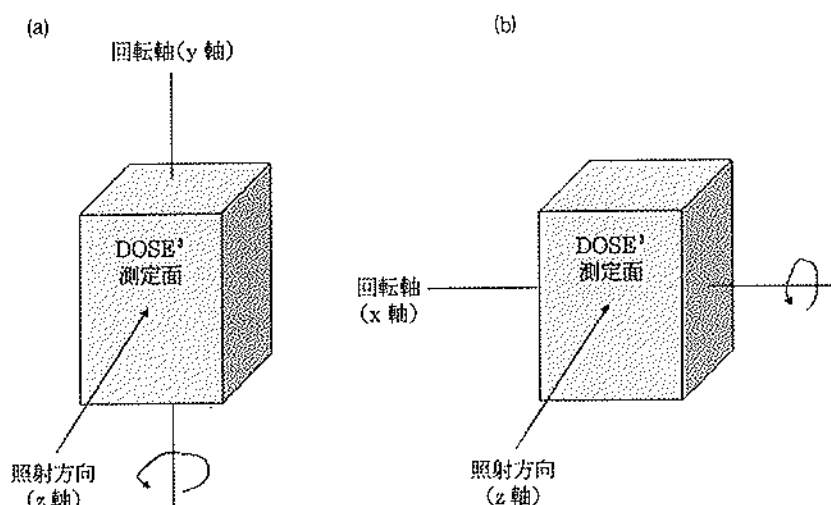


図 1 標準照射の方向 (z 軸とする) と回転軸
(a) y 軸の周りで回転 (b) x 軸の周りで回転

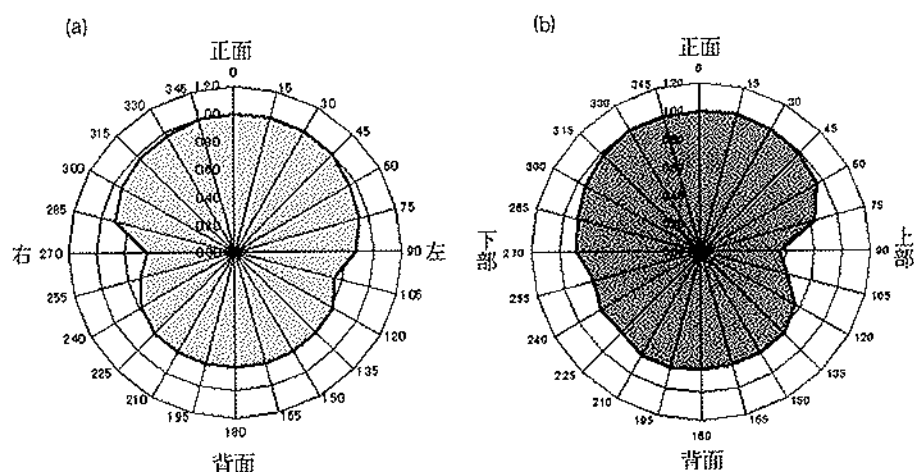


図 2 DOSE³ の方向特性
(a) y 軸の周りで回転 (b) x 軸の周りで回転

表 2 並行測定の結果

単位: $\mu\text{Gy}/91\text{日}$

期 間		測 定 値			除バックグラウンド		
		6/11~ 9/10	9/10~ 12/10	12/10~ 3/10	6/11~ 9/10	9/10~ 12/10	12/10~ 3/10
TLD	バックグラウンド	64	64	68	—	—	—
	屋 上	123	133	138	59	69	70
	百 葉 箱	142	144	144	78	80	76
DOSE³	バックグラウンド	94	88	86	—	—	—
	屋 上 (縦 置)	148	142	146	54	54	59
	屋 上 (横 置)	169	161	157	76	73	70
	百 葉 箱 (縦 置)	—	153	—	—	65	—
	百 葉 箱 (横 置)	—	172	158	—	84	71

クグラウンドを差し引いた値は、DOSE³ と TLD とではほぼ同等であった。DOSE³ について横置きに値に比べて縦置きに値が低いのは、縦置きの場合、線量寄与の大きい地表面からの放射線が感度の低い横方向から入射することになるためと考えられる。

3・3 自己照射

DOSE³ のバックグラウンドが TLD と比較して高い値を示したため、金沢大学自然計測応用研究センター低レベル放射能実験施設の尾小屋地下測定室内に厚さ 15cm 以上の鉛箱を組み上げその中に DOSE³ を設置して測定を行い、自己照射線量を見積もった。測定結果から、DOSE³ の自己照射線量は $16\mu\text{Gy}/91\text{日}$ 程度と見積もられた。TLD の自己照射線量は $7\mu\text{Gy}/91\text{日}$ 程度であり、DOSE³ は TLD の約 2 倍の自己照射線量があることが判った。DOSE³、塩化チオニルリチウム電池及び TLD をゲルマニウム半導体検出器で測定したところ、塩化チオニルリチウム電池から K-40 が検出され (図 3)、これが DOSE³ の高自己照射線量の一因であると推測された。

4 ま と め

電子式積算線量計の環境放射線測定への応用を検討するために、線量計の特性調査を行った。エネルギー特性及び直線性は良好であったが、測定値の方向依存性が認められた。TLD との並行測定では、自己照射が高いものの、測定結果は TLD と同等の値となった。以上から、電子式積算線

量計による環境放射線測定は可能であると考えられる。ただし、線量計の方向依存性のため設置の際、線量計の向きに注意する必要がある。電源が電池式であること、精密機器であるため結露等に弱いことから長期の測定には不向きと考えられることや衝撃に弱いことなどの欠点もあるが、測定値を現場で直読できることから、緊急時の線量測定に非常に有効であると考えられる。

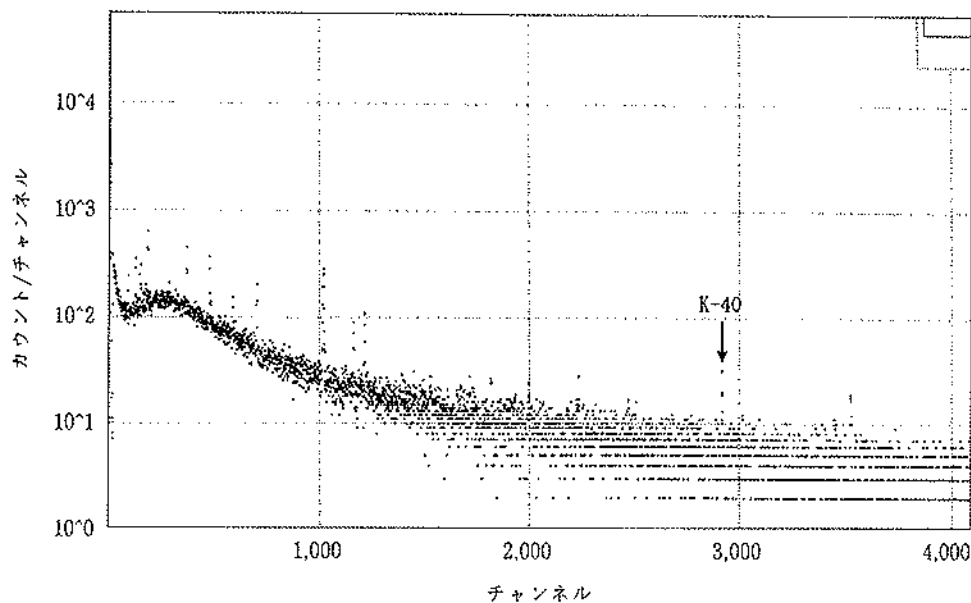


図 3 塩化チオニルリチウム電池のガンマ線スペクトル

最後に、尾小屋地下測定室の使用を快諾して頂いた、金沢大学自然計測応用研究センターの小村和久教授に感謝の意を表します。

〔資 料〕

石川県におけるフォールアウト調査

(平成17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17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¹⁾は、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 U_3O_8 （500dps）を使用した。

核種分析²⁾は、ゲルマニウム半導体検出（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³⁾は、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17年4月1日～平成18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。金沢市太陽が丘（石川県保健環境センター B 棟屋上）における年間降水量は2,402.5mmであった。採取試料数は136検体であり、そのうち6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11月の81.6 MBq/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ヶ月毎の降下物中の放射能濃度は、セシウム-137が N.D～0.23MBq/km² であり、年間降下量は0.36MBq/km²であった。その他の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25.8Bq/kg 乾土（0～5cm）、21.7Bq/kg 乾土（5～20cm）、日常食で0.17Bq/人・日、フクラギで0.16Bq/kg 生と検出された。今回、12月に採取した日常食試料で過去3年間の値を超えるセシウム-137を検出したため食事内容を調査した。その結果、高濃度のセシウム-137を含むブルーベリー⁴⁾を摂取していることが判明したため、これが高いセシウム-137の原因

Survey Data of Fall-out in Ishikawa Prefecture from April 2005 to March 2006. 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

になったと考えられた。その他の試料は検出限界未満であった。

(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76~100 nGy/h (宇宙線寄与分の30nGy/h⁵⁾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24~90nGy/hの範囲にあり、過去3年間の変動範囲(26~119nGy/h)と同程度であった。年平均値は49nGy/hであった。

これらの結果は、文部科学省の委託を受けて行った環境放射能水準調査の成果の一部である。

文 献

- 1) 文部科学省：放射能測定法シリーズ「全

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(石川県保健環境センターB棟屋上)

採取年月	降水量 (mm)	検出数/ 測定数	放射能濃度(Bq/l)		月間降下量 (Mbq/km ²)
			最低値	最高値	
平成17年4月	75.0	1/ 7	N.D	4.71	35.3
5月	121.0	0/ 9	---	N.D	N.D
6月	146.0	1/ 6	N.D	1.63	2.44
7月	348.0	0/ 11	---	N.D	N.D
8月	220.5	0/ 8	---	N.D	N.D
9月	156.0	0/ 8	---	N.D	N.D
10月	197.5	0/ 8	---	N.D	N.D
11月	145.5	1/ 15	N.D	10.2	81.6
12月	388.5	0/ 19	---	N.D	N.D
平成18年1月	200.0	1/ 17	N.D	2.44	3.66
2月	172.5	0/ 14	---	N.D	N.D
3月	232.0	2/ 14	N.D	5.78	73.5
年 間 値	2,402.5	6/136	N.D	10.2	N.D~ 81.6
前年度までの過去3年間の値		11/338	N.D	8.59	N.D~287.7

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	0.23	N.D	0.11	なし	MBq/km ²
陸水	上 水 (蛇口水)	金沢市太陽が丘	H17. 6	1	---	N.D	---	N.D	なし	mBq/l
土 壌	0 ～ 5 cm	金沢市末町	H17. 7	1	---	25.8	28.4	31.0	なし	Bq/kg乾土
					---	1,164	861	1,730	なし	MBq/km ²
	5 ～ 20 cm	金沢市末町	H17. 7	1	---	21.7	20.6	39.3	なし	Bq/kg乾土
					---	3,052	1,562	4,600	なし	MBq/km ²
精 米		内灘町向薬師	H17.10	1	---	N.D	---	N.D	なし	Bq/kg精米
野菜	大 根	金沢市西念町	H17.10	1	---	N.D	---	0.027	なし	Bq/kg生
	ホウレン草		H17.10	1	---	N.D	---	N.D	なし	
牛 乳		羽咋郡宝達志水町坪山	H17. 8	1	---	N.D	---	N.D	なし	Bq/l
日 常 食		金沢市	H17. 7	2	N.D	0.17	N.D	0.037	なし	Bq/人・日
			H17.12							
海産生物	ワ カ メ	鳳至郡門前町鹿磯	H17. 4	1	---	N.D	---	N.D	なし	Bq/kg生
	サ ザ エ		H17. 6	1	---	N.D	---	N.D	なし	
	フ ク ラ ギ		H17.10	1	---	0.16	0.15	0.17	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 ^{131}I 濃 度 測 定 結 果

採取場所	羽咋郡宝達志水町坪山ナ部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	H17. 5.17	H17. 7.12	H17. 9.20	H17.11.21	H18. 1.12	H18. 3.16	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

- ベータ放射能測定法」（昭和51年改訂）
- 2) 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）
 - 3) 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」（平成8年改訂）
 - 4) 近澤紘史・植村多恵子・石井隆夫：高知県衛生研究所報，51，43～44（2005）
 - 5) 文部科学省：環境放射能水準調査委託実施計画書

測定年月	モニタリングポスト(nGy/h)			サーベイメータ*1) (nGy/h)
	最低値	最高値	平均値	
平成17年4月	49	72	51	100
5月	48	66	51	96
6月	48	62	51	100
7月	48	87	51	100
8月	48	67	51	96
9月	48	62	50	94
10月	48	77	50	94
11月	48	77	52	96
12月	26	90	45	76
平成18年1月	24	59	35	92
2月	38	63	47	92
3月	47	73	51	94
年間値	24	90	49	76～100
前年度までの過去3年間の値	26	119	50	82～100

*1) 宇宙線寄与分30nGy/hを含む。

〔短 報〕

海水中の腸炎ビブリオ挙動調査

(平成17年度)

石川県保健環境センター健康・食品安全科学部

山田 恵子・児玉 洋江・倉本 早苗
戌亥 一朗

石川県石川中央保健福祉センター

谷村 睦美・北村 孝子・本庄 峰夫

石川県能登中部保健福祉センター

廣坂ますみ・高岡 菊江・橋本喜代一

石川県能登北部保健福祉センター

山下千鶴子・久堂 妙子

キーワード：腸炎ビブリオ，耐熱性溶血毒（TDH），耐熱性溶血毒類似毒（TRH）

海産魚介類等を介して発生する腸炎ビブリオ食中毒は、海水温の上昇する夏季に多発している。本県では、平成16年の腸炎ビブリオ食中毒の多発（食中毒事例11件、患者数222名）を受けて、平成17年度から、海水中の腸炎ビブリオの挙動を調査することとし、県薬事衛生課、保健福祉センター、保健環境センターで役割を分担して調査を実施した。調査結果は、県ホームページ「食の安全・安心情報」中の「腸炎ビブリオによる食中毒を防止するために」に、腸炎ビブリオ挙動調査結果として毎週掲載した。

本調査は県内3地点で、平成17年6月20日～10月24日に実施し、期間中は毎週海水を採取し、保健福祉センターは、海水の採取、試料の調整（濃縮）、腸炎ビブリオ最

確数（MPN）の検査を行い、保健環境センターは、腸炎ビブリオの病原因子である耐熱性溶血毒（TDH：Thermostable Direct Hemolysin）と、易熱性の耐熱性溶血毒類似毒（TRH：TDH-Related Hemolysin）の遺伝子の検出を行った。検査方法は、既に同様の調査を実施している新潟県の方法に準じて行った。

保健福祉センターは、現場で、海水採水時の天候、気温、海水温及び塩分濃度を測定した。また、海水10L全量を孔径0.45μmのメンブレンフィルターを用いて吸引濾過した後、3% NaCl 加リン酸緩衝液10mlで1分間ストマッキングして得た1,000倍濃縮液を試料原液とした。腸炎ビブリオ菌数は、2% NaCl 加アルカリペプトン水3管法によるMPN法により計測した。また、分離

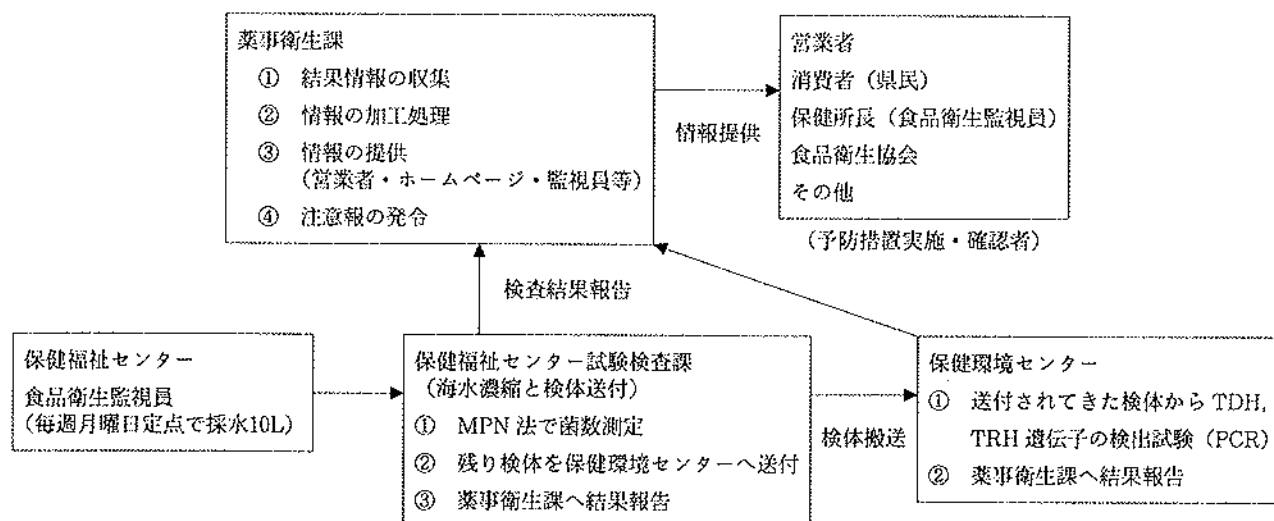


図1 腸炎ビブリオ挙動調査事業概要

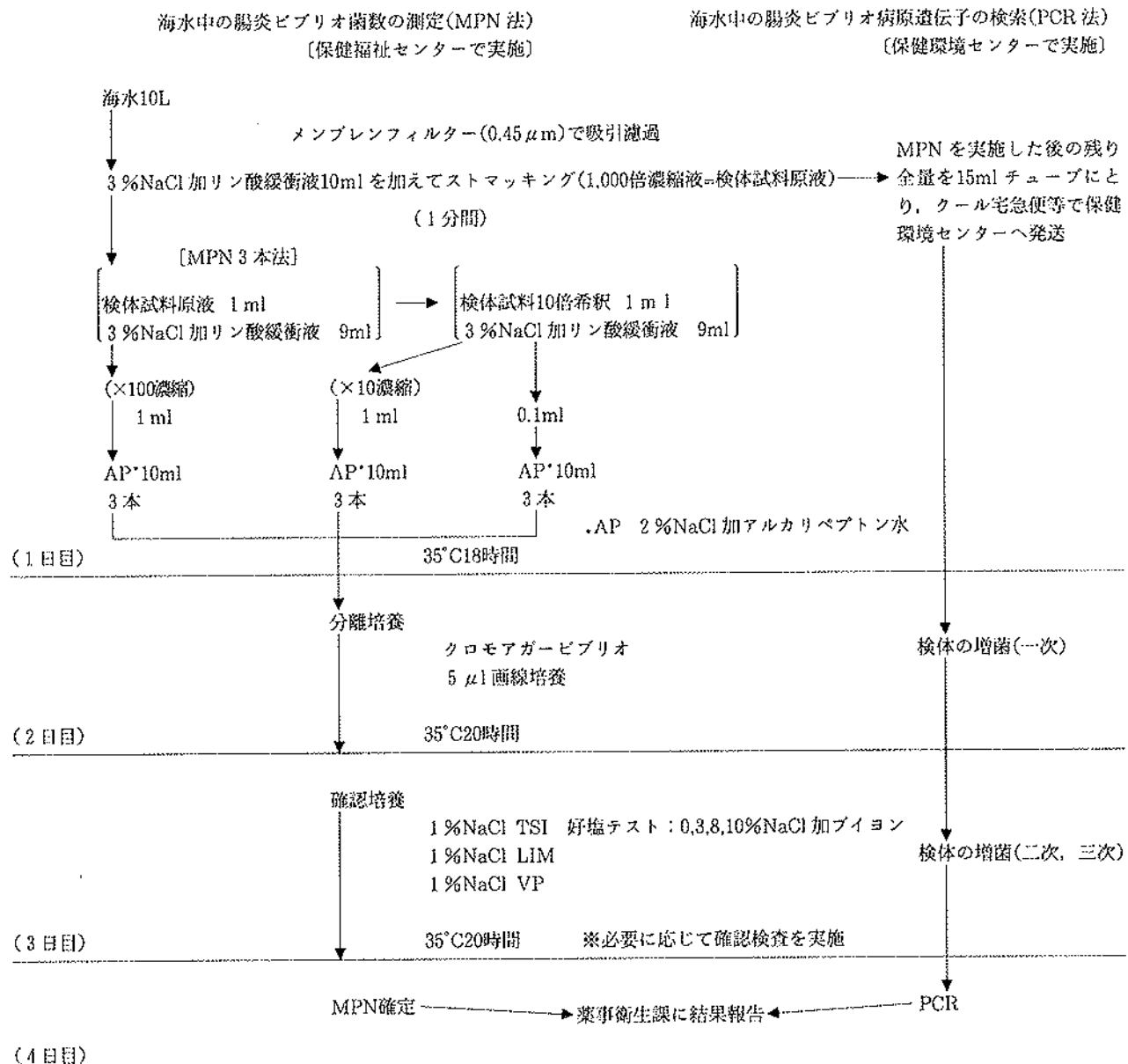


図 2 海水中腸炎ビブリオ挙動調査における検査行程 (略図)

培養はクロモアガービブリオ寒天 (OXOID) を使用した。

一方、腸炎ビブリオ病原因子 (TDH 及び TRH 産生遺伝子) の検出は、新潟県保健環境科学研究所佐々木ら¹⁾の検討した増菌方法及び PCR 法により実施した。即ち、菌数測定に使用した残りの試料原液全量を、1 次増菌の 2% NaCl 加トリプトソイブイオン (TSB) 90ml に添加し、35°C で 6 時間培養後 4°C で保存した。翌朝、1 次培養液 (TSB) の表層部 1 ml を 2 次増菌の食塩ポリミキシンブイオン (SPB) 10ml に継代し、35°C、6 時間培養後、2 次培養液 (SPB) の表層部 1 ml を 3 次増菌の SPB10ml に継代し、35°C、18 時間培養した。3 次培養液 (SPB) の表層部 1 ml を 7,000rpm、5 分間遠

心後、上清を除去し、リン酸緩衝液 1 ml を加えて 9,000rpm、5 分間遠心し上清を除去した。沈渣に滅菌水 100 μl を加えて 100°C、10 分間加熱し 12,000rpm、5 分間遠心した上清をテンプレートとした。

TDH 遺伝子 (*tdh*) 検出プライマーは、丸山ら²⁾の報告した、VP-F1: 5'-CGTCATTCTGGCAAAGTTAT-3', VP-R1: 5'-TGATTTTACGAACACAGCAG-3' を用いた。また、TRH 遺伝子 (*trh*) 検出用プライマーは西沢ら³⁾の報告した、*trh*-1: 5'-GGCTCAAAATGGTTAAGCG-3', *trh*-2: 5'-CATTTCCGCTCTCATATGC-3' を用いた。これらは、増幅サイズが 407bp と 250bp のため、Multiplex PCR 法による検出を行った。即ち、PCR 25 μl 系で実施し、プライマーは各 0.25 μl (100pmol/μl)、テンブ

表 1 腸炎ビブリオ菌数と病原遺伝子検出状況

採 水 日	腸炎ビブリオ検査結果 (MPN/L)			tdh, trh 検出状況※		
	A 地点	B 地点	C 地点	A 地点	B 地点	C 地点
2005/ 6/20	3	3	<3.0	---	---	---
2005/ 6/27	7.3	21	3	---	---	tdh
2005/ 7/ 4	7.3	460	7.2	---	---	---
2005/ 7/11	<3.0	14	7.3	tdh, trh	---	---
2005/ 7/19	<3.0	15	20	tdh	---	trh
2005/ 7/25	<3.0	29	9	trh	trh	---
2005/ 8/ 1	3	21	3	---	trh	---
2005/ 8/ 8	3.6	43	20	---	trh	---
2005/ 8/15	<3.0	3.6	9.3	---	trh	---
2005/ 8/22	<3.0	1,100	36	---	trh	---
2005/ 8/29	460	460	16	---	trh	trh
2005/ 9/ 5	460	210	1,100	---	trh	trh
2005/ 9/12	1,400	23	42	---	trh	---
2005/ 9/26	290	210	350	---	trh	---
2005/10/20	460	1,100	200	---	---	---
2005/10/11	2,400	4,200	290	---	trh	trh
2005/10/24	欠測	240	28	欠測	trh	trh

※ tdh: 耐熱性溶血毒産生遺伝子

trh: 耐熱性溶血毒類似毒産生遺伝子

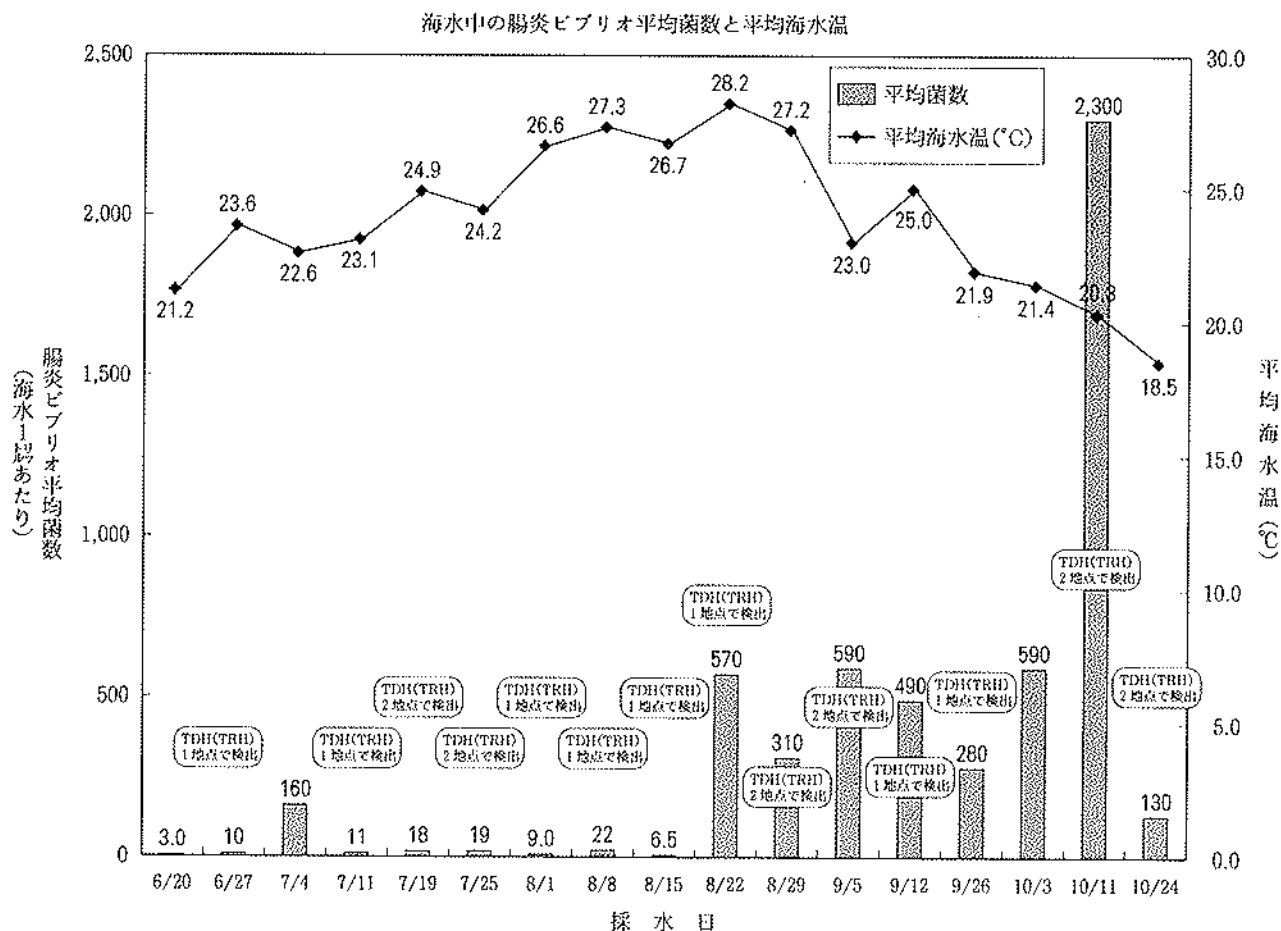


図 3 ホームページ掲載画面

レート DNA は2.5 μ l, 反応液は TaKaRa 製を使用した。また, 増幅条件は, 熱変性94°C, 1 分間, アニーリング 55°C, 1 分間, 伸長72°C, 1 分間を35サイクルとした。泳動ゲルは, Certified™ PCR Agarose (BIO-RAD 製) を使用し, 100V, 35分間電気泳動した後, エチジウムブロマイドで染色し PCR 増幅産物を確認した。

保健福祉センターが実施した腸炎ビブリオ MPN 法の検査結果及び *tdh*, *trh* 検出状況を表 1 に示す。海水50 検体のうち 3 検体から *tdh* が検出され, 18検体から *trh* が検出された。なお, そのうち 1 検体からは *tdh*, *trh* の両方が検出された。当初は10月11日が調査の終了予定日であったが, 10月11日に採水した検体のうち 1 検体が調査期間中の最高値の菌数4,200MPN/L となったため, 10月24日に追加調査を実施した。なお, 県ホームページに, 3 保健福祉センターの平均菌数を, また病原遺伝子は *tdh* あるいは *trh* の検出地点数を示した (図 3)。

7 月11日から 9 月26日まで継続して病原遺伝子が検出されたが, 県内における平成17年の腸炎ビブリオによる

食中毒の発生はなかった。また, 菌数が 3 MPN/L 以下であっても病原遺伝子の検出された地点があった。このことから, 海水から分離された腸炎ビブリオの病原遺伝子保有状況と食中毒発生の危険性との関連性については, 今後さらにデータを蓄積して検討する必要があると考えられた。また, 10月下旬にも病原遺伝子は検出されており, 海水温が下がってきても食中毒の予防のための注意を怠ってはならないと思われた。なお, 本調査は平成18年度も実施することになっている。

文 献

- 1) 佐々木寿子他：新潟県保健環境科学研究所年報, 19, 63—69 (2004)
- 2) 丸山智子他：新潟県保健環境科学研究所年報, 15, 78—82 (2000)
- 3) 西沢光昭他：日本臨床微生物学雑誌特別号, 50, 350 (1992)

〔短 報〕

野外蚊におけるウエストナイルウイルスおよび 日本脳炎ウイルスのサーベイランス

(平成16年度～17年度)

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：ウエストナイルウイルス，日本脳炎ウイルス，媒介蚊

ウエストナイルウイルスおよび日本脳炎ウイルスは、ともにフラビウイルスに属する非常に近縁なウイルスであり、蚊により媒介されヒトに様々な症状をひきおこす。このうちウエストナイルウイルスは、ヒトに脳炎や発熱などを起こし、アメリカ合衆国では毎年数千人の患者発生があり、そのうち約1%が重篤化¹⁾している。日本では、平成17年10月にロサンゼルスから帰国した男性が国内初の発症者として公表され²⁾、ウイルスの侵入が警戒されている。一方、日本脳炎ウイルスは、石川県で平成15年に17年ぶりの発症者が確認されていること、感染症流行予測調査事業で実施している県内産豚血液のHI抗体価測定で4年連続してウイルスの存在が証明されていること、平成17年5月から日本脳炎ワクチンの定期予防接種が中止されていること³⁾などの背景から、いつ感染者が発生してもおかしくない状況にある。

このような現状を踏まえ、当センターの平成16年度と17年度の調査研究課題「新興感染症の迅速診断法および新たな遺伝子解析法の確立」の中で、県内の野外蚊におけるウエストナイルウイルスおよび日本脳炎ウイルスのサーベイランスを実施したのでその結果を報告する。

蚊の採集は、CDC (Centers for Disease Control and Prevention) 改良型のドライアイストラップ (猪口鉄工所製、電源：単一乾電池4本、電球：1.5V、0.3A) を使用し、ドライアイス1kgを機器の上部に設置し、20～25時間連続で行った (図1)。採集した蚊は、吸血する雌の蚊を選別し、種 (イエカ、ヤブカ、その他) ごとに分け、それぞれ20匹程度を1プールとした。ただし、虫体の大きなオオクロヤブカに限り10匹までを1プールとした。プールした蚊は細胞に接種するまで-80℃で凍結保存した。蚊からのウイルス分離および遺伝子検出のための前処理方法については、抗生物質含有の処理液500μLを入れ、マイクログラインダーで粉碎した後、

処理液1,000μLを追加した。なお、プールした蚊の数が5匹以下である場合は、追加の処理液の量を1,000μLから500μLに変更した。その後、4℃で10,000回転、5分間遠心し、上清を孔径0.45μmのフィルターでろ過し、ろ液を検体としてウイルス分離と遺伝子検出に供した。

ウイルス分離は、ヒトスジシマカ由来の培養細胞であるC6/36細胞を用い、28℃、5%炭酸ガス存在下で組織培養用の8穴プレートに培養した。この細胞に検体0.1mLを接種し、1時間吸着後維持液を加え、7日間観察した。その培養上清を新しい培養細胞に接種し7日間観察後、同じ操作を繰り返してさらに7日間観察した (7日間、3代継代)。また、平成17年度の採集蚊については、より分離率を高めるためC6/36細胞に加え、サル腎臓由来のVero9013細胞も併用した。Vero9013細胞の培

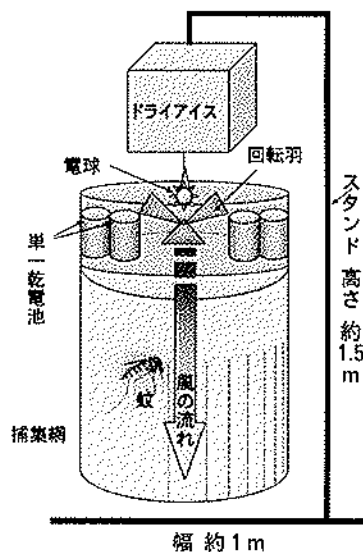


図1 CDC型ライトラップの概要

表 1 平成 16 年度の野外蚊採集結果

() 内はプール数

採 取 日	天 候	地点名※	イエカ	ヤブカ	その他	計
2004/6/ 9~10	晴れ	A		1 (1)		1 (1)
2004/6/14~15	晴れ	B		42 (2)		42 (2)
2004/6/30~7/1	曇	C				0 (0)
2004/7/15~16	晴れ→少雨	D			17(1)	17 (1)
2004/7/27~28	晴れ	D	51 (2)	8 (1)		59 (3)
2004/8/ 4~ 5	曇り→少雨	D	34 (2)	4 (1)		38 (3)
2004/8/ 7~ 8	晴れ	E		60 (6)		60 (6)
2004/8/10~11	晴れ(風あり)	D	73 (4)	6 (1)		79 (5)
2004/8/10~11	晴れ(風あり)	E		6 (1)		6 (1)
2004/8/13~14	晴れ→雨	F	32 (2)	4 (1)		36 (3)
2004/8/25~26	晴れ→曇	F	71 (2)	8 (1)		79 (3)
2004/8/25~26	晴れ→曇	D	38 (2)	11 (1)		49 (3)
2004/8/25~26	晴れ→曇	E		10 (1)		10 (1)
2004/9/ 3~ 4	曇	D	7 (1)	4 (1)		11 (2)
2004/9/ 3~ 4	曇	F	75 (4)	2 (1)		77 (5)
計			381(19)	166(19)	17(1)	564(39)

※地点名 A：野々市町(本町)，B：金沢市(兼六町)，C：金沢市(太陽が丘)

D：野々市町(横宮)，E：金沢市(若松町)，F：金沢市(桜田町)

表 2 平成 17 年度の野外蚊採集結果

() 内はプール数

採 取 日	天 候	地点名※	イエカ	ヤブカ	その他	計
2005/7/23~24	晴れ	F	104 (6)	2 (1)	1(1)	107 (8)
2005/7/23~24	晴れ	G	19 (2)	9 (1)		28 (3)
2005/7/23~24	晴れ	H		25 (3)		25 (3)
2005/7/25~26	晴れ→少雨	I	133 (7)	4 (1)		137 (8)
2005/7/25~26	晴れ→少雨	J		2 (1)		2 (1)
2005/7/25~26	晴れ→少雨	K				0 (0)
2005/8/ 4~ 5	晴れ	L	1 (1)	10 (1)		11 (2)
2005/8/ 6~ 7	晴れ→曇	M		87 (5)		87 (5)
2005/8/ 9~10	晴れ→雨	H				0 (0)
2005/8/ 9~10	晴れ→雨	F	81 (4)	1 (1)		82 (5)
2005/8/16~17	晴れ→雨	J		14 (1)		14 (1)
2005/8/16~17	晴れ→雨	K	2 (1)	13 (1)		15 (2)
2005/8/16~17	晴れ→曇	I	37 (2)	1 (1)		38 (3)
2005/8/26~27	晴れ→曇	F	14 (1)			14 (1)
2005/8/26~27	晴れ→曇	H	2 (1)	7 (1)		9 (2)
2005/8/30~31	晴れ→少雨→晴れ	J	1 (1)	4 (2)		5 (3)
2005/8/30~31	晴れ→少雨→晴れ	K	7 (1)	12 (1)		19 (2)
2005/8/30~31	曇→雨→晴れ	I	115 (6)			115 (6)
2005/9/17~18	晴れ	F	72 (4)	7 (1)		79 (5)
2005/9/17~18	晴れ	H	20 (2)	89 (5)	2(1)	111 (8)
2005/9/17~18	晴れ	I	550(28)	1 (1)		551 (29)
2005/9/28~29	晴れ	J	3 (1)	36 (2)		39 (3)
2005/9/28~29	晴れ	K	53 (3)			53 (3)
2005/9/28~29	晴れ	I	41 (2)			41 (2)
計			1,255(73)	324(30)	3(2)	1,582(105)

※地点名 F：金沢市(桜田町)，G：加賀市(宮地町①)，H：加賀市(宮地町②)，I：七尾市(能登島向田町)

J：金沢市(普正寺町①)，K：金沢市(普正寺町②)，L：能美市(辰口町)，M：輪島市(海士町)

養は35°C、閉鎖系ガラスチューブで実施し、検体の接種量と経過観察の日数はC6/36細胞と同じ条件とした。

検体からのRNA抽出には、QIAGEN社のViral RNA Mini Kitを使用した。遺伝子検出は、RT-PCR法でBEヘルスケアバイオサイエンス社のReady-To-Go™ RT-PCR Beadsを使用し、逆転写反応は42°C、30分とした。プライマーとそのPCR条件は、①フラビウイルス共通でNS3領域をターゲットとしたFla-U5004 (5'-ggAACDTTCMggHTCNCCHAT-3')とFla-U5457 (5'-gTgAARTgDgCYTCRTCCAT-3')の453bpを増幅するペア、92°C60秒、53°C60秒、72°C60秒35サイクル、②ウエストナイルウイルス特異的でE領域をターゲットとしたWNNV514 (5'-CggCgCCTTCATACACW-3')とWNNV904 (5'-gCCTTTgAACAgACgCCATA-3')の389bpを増幅するペア、92°C60秒、53°C60秒、72°C60秒35サイクル、③日本脳炎ウイルス特異的でE領域をターゲットとしたJE8K-S (5'-ATggAACCCCTTC-3')とJEER (5'-AgCAggCACATTggTCgCTA-3')の381bpを増幅するペア、92°C60秒、53°C60秒、72°C60秒35サイクル、④検出感度を高めるため③のNested-PCRにはJE8Kinner-S (5'-ATCgTggTTgggAggggAgA-3')とJEERinner-C (5'-AgCACACCTCCTgTggCTAA-3')の326bpを増幅するペア、92°C60秒、53°C60秒、72°C60秒30サイクル、以上の計4種である。PCR産物は2%アガロースで電気泳動を行い、エチジウムブロマイドで染色しDNA断片の確認を行った。

平成16年度は、6月上旬から9月上旬までの期間に、金沢市内と隣接の野々市町において、延べ15回採集を行い、564匹、39プールの蚊を得た(表1)。平成17年度は、

7月下旬から9月下旬までの期間に、金沢市内で3地点、加賀地区で2地点、能登地区で2地点において、延べ24回採集を行い、1,582匹、105プールの蚊を得た(表2)。これらの計144プールの蚊について検査を実施した結果、ウエストナイルウイルスおよび日本脳炎ウイルスの分離、遺伝子検出ともに陰性であった。

なお、同様に調査を実施した大阪府⁴⁾や横浜市⁵⁾の報告ではウエストナイルウイルスおよび日本脳炎ウイルスの遺伝子は検出されていないが、日本脳炎ウイルスについては高率に分離された報告もあり⁶⁾、注目されることである。

また、ウエストナイルウイルスについては、遺伝子の変異が報告されており⁷⁾、流行株の変異等の情報収集と、それに合わせたプライマー設計が今後必要であると思われる。

今後は海外からの蚊媒介性ウイルスの侵入に対する監視や、それらの流行時の実態把握、疫学調査等に、今回のサーベイランスで得た知識や手法が有効に活用できるものと考えている。

文 献

- 1) 倉根一郎：ウイルス，53，1—6 (2003)
- 2) 小泉加奈子：感染症学雑誌，80，56—57 (2006)
- 3) 神谷 齊：臨床と微生物，32，431—435 (2006)
- 4) 青山幾子：第40回日本脳炎ウイルス生態学研究会プログラム・抄録集，4 (2005)
- 5) 野口有三：横浜市衛生研究所年報，44，75—78 (2005)
- 6) 小林睦夫：衛生微生物技術協議会第27回研究会講演抄録集，57 (2006)
- 7) 高崎智彦：臨床とウイルス，33，22—27 (2005)

(抄 録)

Seasonal Change of Gas/Particle Partitioning of Atmospheric Dioxins

Hideo Oka,^{a,b} Hitoshi Kakimoto,^a Yoshiaki Miyata,^a Yumiko Yonezawa,^a Akiko Niihara,^a Hirohisa Kyudoh,^a Ning Tang,^b Akira Toriba,^a Ryoichi Kizu^b and Kazuichi Hayakawa^b

^aIshikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science, Taiyogaoka 1-11, Kanazawa 920-1154, Japan,

^bGraduate School of Natural Science and Technology, Kanazawa University, Kakuma-machi, Kanazawa 920-1192, Japan

Key words : atmospheric dioxin, gas/particle partitioning, polychlorinated dibenzo-p-dioxin, polychlorinated dibenzofuran, co-planar polychlorinated biphenyl, isomer

Journal of Health Science, 52(1), 50-57 (2006)

Air samples were collected at suburban Kanazawa and concentrations of dioxins in both gaseous and particulate phases were determined separately. The concentrations of the gaseous phase of dioxins increased with increasing temperature. Co-planar polychlorinated biphenyls (co-PCBs), whose vapor pressures are higher than those of polychlorinated dibenzo-p-dioxins (PCDDs) and dibenzofurans (PCDFs), were mainly in the gaseous phase samples in all the seasons. The gaseous phase ratios (gaseous phase/(gaseous phase + particulate phase)) of tetrachloro dibenzo-p-dioxins and dibenzofurans (TeCDD/DFs) were high regardless of the temperature. However, the gaseous phase ratios of penta-hepta CDD/DFs varied widely depending on

the temperature. Gas/particle partitioning of atmospheric dioxins depended on not only the number of chlorine-substitutions but also the positions of the chlorine-substitutions. The position of chlorine-substitution in an isomer affects the isomer's molecular polarity. Dioxin isomers with higher molecular polarity, which have shorter retention times on the SIM chromatograms of their homologues, tended to be distributed unevenly in the gaseous phase. In addition, the differences in the gaseous phase ratios between the isomers with higher molecular polarity and those with lower molecular polarity increased with decreasing temperature.