

ISSN 1882-9139
CODEN:MHKKDS

三重保環研年報

Ann. Rep. Mie Pref.
Hlth & Environ. Res. Inst.

三重県保健環境研究所年報

第14号（通巻第57号）

2012年

Annual Report of Mie Prefecture Health and Environment Research Institute

No.14(Serial No.57)

2012

三重県保健環境研究所

は じ め に

平成 24 年 4 月に「県民力でめざす『幸福実感日本一』の三重」を基本理念とする「みえ県民力ビジョン」がスタートしました。当研究所は、本年度から健康福祉部と新組織である環境生活部の共同所管となりました。引き続き、県民が健康で安全・安心できる暮らしを快適環境のなかで享受でき、しあわせが実感できる社会の実現を目指して、三重県における「衛生」、「環境」に関する公設試験研究機関として、「健康・安全」、「環境創造」に関する試験検査、調査研究、公衆衛生情報の収集・解析・提供、技術支援・研修指導の的確な実施に努めています。

また、平時の試験検査、調査、サーベイランスの機能はもとより健康・環境危機管理機能を充実強化し、不測の健康危機や環境汚染事故等の発生時には、行政判断や行政措置に役立つ科学的・技術的根拠を提供しています。

平成 23 年度における当研究所の最も大きな話題は、東京電力福島第一原子力発電所の事故にともなう空間放射線量率及び食品等の放射能測定の強化でした。当研究所では、昭和 63 年度から同調査を継続してきたことからすみやか、かつ精確な測定に着手でき、県民の皆様へ安全・安心情報を提供することができました。本年度からは空間放射線量率測定を県内 1 地点（当研究所）から 4 地点に増設し、モニタリング体制を強化しています。また、環境問題への対応につきましては、産業廃棄物の不適正処理事案での環境影響調査や微小粒子状物質（PM2.5）のモニタリング態勢の構築等に取り組みしました。

当研究所は、今後とも、平時はもとより健康・環境危機に際して公設試験研究機関の役割を果たしつつ、県民力ビジョンが目指す『『幸福実感日本一』の三重』の実現に貢献するため、「健康・安全」、「環境創造」に関する試験検査や調査研究等に取り組み、「安全・安心な暮らしの確保」に努めていきます。

このたび、平成 23 年度の調査研究結果及び業務実績を取り纏めた年報第 14 号（2012 年）を発刊しましたので、お届けいたします。御高覧頂き忌憚のないご意見を頂ければ幸いです。

今後とも、御指導・御鞭撻の程宜しくお願い申し上げます。

平成 24 年 9 月

三重県保健環境研究所

所 長 山 口 哲 夫

目 次

	項
I 概 要	
1 沿革及び組織	
1. 1 沿革	1
1. 2 組 織	3
2 業務概要	
2. 1 研 究	4
2. 2 試験検査	11
2. 3 研修指導	18
2. 4 情報の収集・解析・提供	22
2. 5 ISO9001:2000品質マネジメントシステムの構築と運用	23
3 学会報告	24
4 他誌掲載論文	27
II 研究報告	
1 ノート	
食品収去検査におけるアレルギー物質の検出状況（2004年度～2011年度）… 一色 博, 林 克弘, 原 有紀, 佐々木 恵, 志村恭子	30
強壮目的健康食品中の医薬品成分の一斉分析法の検討…………… 原 有紀, 竹内 浩, 林 克弘, 志村恭子	34
固相抽出を用いた食品中不揮発性アミン類分析法の検討…………… 竹内 浩, 一色 博, 澤田陽子, 林 克弘, 前田千恵, 原 有紀, 竹川雄太, 村田 将, 志村恭子	40
フッ化物洗口剤の調製容器における白色沈着物発生への対応…………… 村田 将, 森 康則, 澤田陽子, 一色 博, 石濱信之, 志村恭子	45
三重県における日本脳炎ウイルスの動態…………… 赤地重宏, 楠原 一, 矢野拓弥, 田沼正沼, 永田克行, 片山正彦	49
三重県におけるパラインフルエンザウイルスの動向…………… 矢野拓弥, 前田千恵, 楠原 一, 赤地重宏, 松野由香里, 山寺基子, 岩出義人, 片山正彦, 山口哲夫	52

結核菌感染事例におけるVNTR法を用いた分子疫学解析（2011）	56
永井佑樹，岩出義人，伊東抄代子，三浪綾子，島田晃秀，坂井温子， 片山正彦，山口哲夫	
土壤中重金属の自然または人為由来の判別に関する基礎的検討	60
新家淳治，片山貴幸，巽 正志，秋永克三	
浮遊粒子状物質に含まれる多環芳香族炭化水素類について(5)	
—黄砂飛来時の状況について	66
佐来栄治，吉岡 理	
三重県北部地域におけるPM2.5環境濃度測定における	
簡易法と標準法との比較	74
西山 亨，小山善丸，高士昇吾，寺本佳宏，佐来栄治，宮村典仁， 川合啓之，吉岡 理	
廃棄物不法投棄現場地下水の揮発性有機化合物（VOC）	
微生物分解能力の検討	82
巽 正志，岩出義人，宇佐美敦子，秋永克三	
2 資料	
三重県におけるAIDS・HIV感染症の現状と近隣県との比較	90
平岡 稔，福田美和，高橋裕明，山内昭則	
三重県における2011年度環境放射能調査結果	94
吉村英基，森 康則，澤田陽子，前田 明，志村恭子	
福島第一原子力発電所事故を受けた	
環境放射能モニタリング強化結果について	101
吉村英基，森 康則，澤田陽子，前田 明，村田 将，竹川雄太， 竹内 浩，原 有紀，前田千恵，林 克弘，一色 博，志村恭子	
2011年感染症発生動向調査結果	105
楠原 一，矢野拓弥，赤地重宏，大久保和洋，永井佑樹，岩出義人， 片山 正彦	

2011年度感染症流行予測調査結果	
（日本脳炎，インフルエンザ，風しん，麻しん）の概要……………	112
矢野拓弥，楠原 一，赤地重宏，岩出義人，松野由香里，山寺基子， 片山正彦，山口哲夫	
2011年度の先天性代謝異常等検査の概要……………	118
前田千恵，大久保和洋，楠原 一，永井佑樹，片山正彦	

I 概要

1 沿革及び組織

1. 1 沿革

1) 衛生研究所

本研究所設立以前は、三重県には衛生試験所と細菌検査所があり、それぞれの目的に従って業務を行っていたが、地方衛生研究所設置に関する厚生省通達（昭和 23 年 4 月 7 日付発予第 20 号）により、昭和 23 年 6 月にこれらを統合して三重県衛生研究所が設立された。

昭和 23 年 6 月 10 日 衛生試験所及び細菌検査所を統合して三重県衛生研究所（津市広明町 310 番地）を設立。

昭和 28 年 7 月 16 日 食品衛生法の規定により検査施設として指定。（昭和 28 年 7 月 20 日三重県告示第 525 号）

昭和 40 年 11 月 1 日 津保健所・衛生研究所・高等看護学院合同庁舎（津市栄町 1 丁目 172 番）に移転。

昭和 58 年 3 月 15 日 三重県津庁舎（津市桜橋 3-446-34：保健所・衛生研究所棟）に移転。

平成 10 年 4 月 1 日 三重県行政組織規程の一部改正により、三重県科学技術振興センター衛生研究所として業務を開始。

2) 環境科学センター

地方公害試験研究機関は、現在ではすべての都道府県、政令指定都市に設置されているが、昭和 42 年に三重県と静岡県に初めて独立した機関として設置されたのがその原点となっている。

昭和 42 年 8 月 1 日 三重県公害センター（四日市市堀木 2-16-24）を設立。

昭和 48 年 2 月 19 日 三重県公害センターを三重県四日市庁舎敷地内（四日市市新正 4-21-5）に移転。

昭和 51 年 4 月 1 日 三重県公害センターを三重県環境科学センターに改組、併せて、南勢支所（津市高茶屋小森町）を設置。

昭和 54 年 10 月 16 日 三重県環境科学センター南勢支所を三重県松阪庁舎（松阪市高町 138）に移転。

平成 5 年 4 月 1 日 三重県環境科学センター南勢支所を廃止し、三重県環境科学センター松阪市駐在に改組。

平成 10 年 4 月 1 日 三重県行政組織規程の一部改正により、三重県科学技術振興センター環境科学センターとして業務を開始。

3) 保健環境研究所

地域保健行政、環境保全行政の原点は「住民の健康の維持増進と生活環境の安全確保」であり、その科学的、技術的な基盤を担う三重県科学技術振興センター保健環境研究所として衛生研究所と環境科学センターの統合がなされ、その後、組織改編に伴い同保健環境研究部と改称した。

平成 11 年 4 月 1 日 三重県環境科学センターと三重県衛生研究所を統合し、三重県科学技術振興センター保健環境研究所として業務を開始。

平成 11 年 8 月 13 日 鈴鹿山麓リサーチパーク内（四日市市桜町 3690-1）に新築移転。

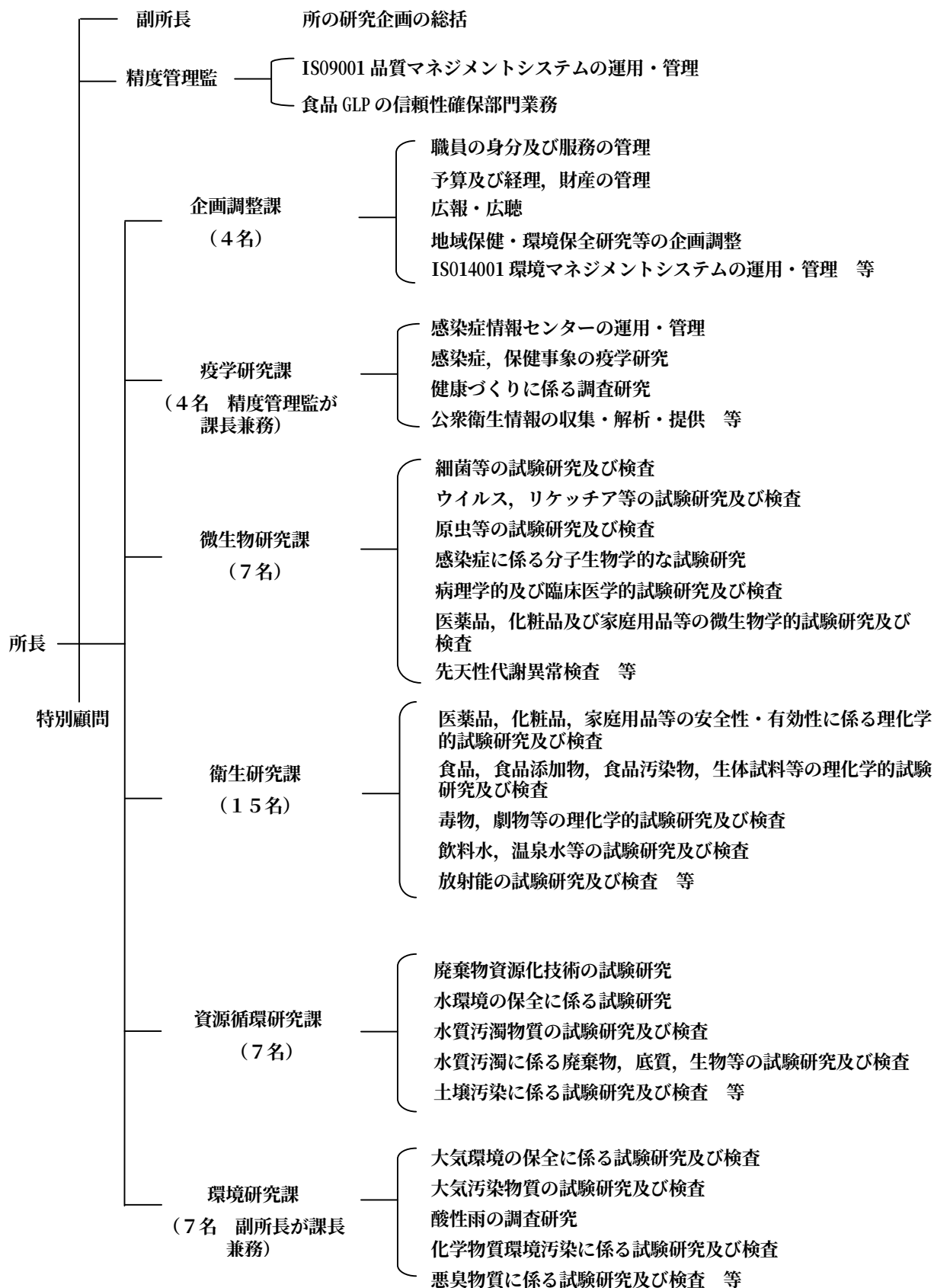
平成 13 年 4 月 1 日 組織改編に伴い三重県科学技術振興センター保健環境研究部と改称。

公設試験研究機関の使命である研究成果を着実に移転し，地域保健・環境保全行政サービスの維持・向上を図るため，平成 20 年 3 月末をもって科学技術振興センターが廃止され，同年 4 月から保健環境研究部は健康福祉部及び環境森林部の共同所管となり，併せて機関名称も保健環境研究所と改称した。

平成 20 年 4 月 1 日 組織改編に伴い三重県保健環境研究所と改称。

1. 2 組 織

(平成24年4月1日現在)



2 業務概要

2.1 研究

1) 疫学研究課

(1) 地域健康課題の現状分析と対応戦略研究事業（平成 21～23 年度）

三重県では「ヘルシーピープルみえ・21」の計画期間を2年間延長し、当初の計画にメタボリックシンドローム、糖尿病等の重点的な取組に関する項目を追加し、目標達成に向けた活動が開始されている。しかしながら、現時点では、新たに追加された指標である「メタボリックシンドローム該当者（予備群）」、「糖尿病有病者（予備群）」等の現状把握方法、あるいは、地域の健康改善取組の有効性評価方法に定まったものがなく、これらの方法を検討し確立することが課題となっている。このことから、本事業では、①「メタボリックシンドローム該当者（予備群）」、「糖尿病有病者（予備群）」等の現状把握（推計）方法、②地域の健康改善取組の有効性評価方法の検討を行う。

平成 13～18 年度の経年傾向を性および 60～64 歳、65～69 歳、70～74 歳の年齢層別に分析したところ、BMI、収縮期および拡張期血圧、中性脂肪、HDL-コレステロールについては男女、各年齢階級ともに正常者の割合が微増する傾向を示したが、ヘモグロビン A1c では逆に正常者の割合が減少する傾向を示した。

このように項目毎に性、年齢階級で異なる分布を示す分析結果から、各項目のベースライン値、目標値を 40～74 歳一括で示すことには課題があることが明らかとなった。今後予想される人口の年齢構成の変化から年齢が交絡因子となることは明白で、性、年齢階級別分析の必要性を確認することができた。

(2) 新たな性感染症サーベイランス確立に向けた先駆的研究（平成 23～25 年度）

性感染症サーベイランスは、性感染症の発生・まん延防止対策に必要となる科学的根拠を提供する手段として重要であり、現在の患者発生状況を考慮すると、特に若年層を中心とした発生動向を正確に把握できる仕組みに改善する必要がある。平成 19 年度から 3 年間で実施した研究事業「性感染症予防推進戦略的サーベイランス研究事業」の成果に加え、平成 22 年度事業「エイズ対策に向けたパートナー検診の推進に関する調査研究」により実施した、性感染症患者を診察する可能性のある医療機関を対象としたアンケートの結果等も踏まえ、全国の取組に先駆けて、現状のシステムより有効に機能する先駆的性感染症サーベイランスシステムの構築をめざす。

平成 23 年度は、感染症の予防及び感染症の患者に対する医療に関する法律に基づき性感染症患者の発生報告を依頼する指定医療機関（以下「定点」）に新方式のサーベイランスについて詳細を説明し、新たな様式によるデータの収集を平成 24 年 1 月より開始した。

さらに、定点医療機関による新方式によるサーベイランスの結果を分析・評価するため、「エイズ対策に向けたパートナー検診の推進に関する調査研究」により実施したアンケートで、協力表明のあった定点以外の医療機関に依頼し、新方式によるサーベイランスを実施する。

新方式によるサーベイランスの結果を分析・評価し、その結果に基づき所要のブラッシュアップを図り、有効な性感染症サーベイランスシステムの確立をめざす。

2) 微生物研究課

(1) 三重県におけるリケッチア感染症に関する研究（平成 23～25 年度）

日本紅斑熱は、感染症の予防及び感染症の患者に対する医療に関する法律により 4 類感染症に指定されているダニ媒介性のリケッチア感染症であり、国内において患者が増加傾向にある。三重県は日本紅斑熱患者報告数が平成 19～23 年の 5 年間連続全国 1 位であり、毎年患者の居住地域から三重県南部に原因となるリケッチア保有ダニの存在が推定されるが、県内全域にお

ける実態は不明である。また、日本紅斑熱は比較的新しい疾病であるためか市販検査キット等は存在せず、検査が行われていない可能性も否定できない。そこで、三重県内においてリケッチア保有ダニの分布調査を実施し、地域における日本紅斑熱発生リスク評価を行い、県民への注意喚起の科学的根拠とする。また、検査診断を容易に実施可能とするため、検査キットの理論構築および開発を実施する。手法としてはサンドイッチELISA法、イムノクロマト法を中心に検討し、迅速かつ多検体処理が可能な検査診断キットの開発を目指す。

(2) 遺伝子解析を用いた結核感染動向および多剤耐性結核菌に関する研究（健康危機管理室事業）（平成19年～）

結核は、三重県でも新規登録患者数が年間293人となっており（2010年）、現在でも公衆衛生上重要な感染症である。また、学校、医療機関、高齢者福祉施設等における施設内集団感染の問題も発生している。

地域における発生状況や集団感染時の感染源・感染経路等を明らかにし、感染拡大を防止することは最重要課題であるが、その予防対策の一翼を担う結核菌の遺伝子解析の情報が、県内にはほとんどない状況である。このことから、県内の患者由来の結核菌について遺伝子解析を実施するとともに、そのデータを蓄積し、データベース化することで県の結核予防対策をより効果的に推進することが可能となる。また、多剤耐性結核菌対策として、迅速な耐性遺伝子診断方法についての検討を行い、より迅速に検査結果を医療機関に提供することを目的とする。

結核菌の遺伝子解析については、平成24年度も引き続き、県内分離株を対象として遺伝子型別を実施してデータを蓄積しデータベース構築を目指す。また全国的なVNTRの標準法として期待されるJATA(12)VNTR法についての有用性を検証し、新規領域の追加など県内で偏在する遺伝系統群にも適したVNTR法を検討する。

迅速な薬剤耐性診断法としては、平成23年度においてreal-time PCRを用いたHRM解析により結核菌の主要な4薬剤に対する遺伝子変異の検出法を検討した。平成24年度では、新たにターゲットとする遺伝子を追加し、同様の方法で検出できるかどうかを検討するとともに、より検出効率が高く、精度の高い方法の開発を試みる。

(3) 高感度検出法を用いた病原性腸炎ビブリオの国内産二枚貝の汚染状況調査（平成20年度～）

魚介類サンプルから腸炎ビブリオ病原性菌株の検出感度を向上させるために、選択的増菌培養および選択的分離培地の使用に加えて、我々は新しい免疫磁気ビーズ法およびLAMP法を追加した方法を用いて、国内産のアサリ、ハマグリ汚染状況を調査した。平成23年6月6日から9月11日まで、合計8回にわたってサンプリングを行い調査したところ、アサリからはtdh遺伝子が5回、trh遺伝子が4回検出され、ハマグリからtdh遺伝子が1回検出され、trh遺伝子が2回検出された。免疫磁気ビーズを使用したことによって初めて病原性遺伝子が検出できた事例が3例、PCR法では検出できなかったが、LAMP法によって病原性遺伝子が検出できた事例が2例あった。

3) 衛生研究課

(1) 健康危機発生時における化学物質迅速検査マニュアル策定検討調査（平成22～24年度）

近年、食の安全・安心を脅かす事案が続発しており、このような健康危機発生時には迅速に原因物質を特定し、的確な検査を実施して行政判断や行政措置のための科学的・技術的根拠を提供することが要求される。

本研究は、健康危機発生時において、迅速かつ正確な検査結果を提供するため、原因物質を特定していくためのスクリーニング法、さらにその特定された物質の定量法などの検査法を確立し、迅速検査マニュアルとして策定するものである。健康被害の原因となる物質について、

データベース等により情報収集を行い、影響度・重篤度を考慮し、農薬類、揮発性有機化合物、重金属、ヒスタミンなどの項目を選定した。簡易検査キットの適用性の検討に引き続き、機器による迅速分析法について検討を行った。

(2) いわゆる健康食品中の健康危害成分の試験法開発（平成 22～23 年度）

社会的な健康志向の高まりにより、健康食品市場が拡大し多様化する一方で、特に「いわゆる健康食品」による健康被害が多発していることから、行政が主体となり買上調査などの規制、無承認無許可医薬品等の危険性に関する情報提供や普及啓発を行う必要があり、早急に未対応の無承認無許可医薬品成分の試験法の開発および検査体制の整備、継続的な検査対象項目の拡大が求められている。

本研究では、無承認無許可医薬品の検出事例を調査し、検出事例の多いシルデナフィル、タダラフィル等の強壮成分 7 項目を選定した。測定機器として、汎用性の高い PDA-HPLC と選択性および検出感度に優れた LC/MS/MS を用いた。前処理方法は先進都県の方法を調査し、最も適切と考えられる方法を採用して製品の剤形（カプセル剤、液剤、粉剤、錠剤）毎に添加回収実験を行った。その結果、良好な回収率が得られ、健康危害成分の試験方法を確立した。

(3) 健康づくり支援のための温泉資源の活用と保全に関する研究（平成 23～25 年度）

近年の地域保健施策において、高齢者医療や介護の分野に対する社会的需要が高まる中、温泉資源を健康づくり支援に活用可能な地域資源として捉え、効果的な温泉利用のための知見を収集することにより、県民の健康づくりの推進に資することを目的とする。

温泉資源を活用した地域保健施策に積極的に取り組む自治体、医療関係者、研究者、事業者の協力を得ながら、産学官連携のもと、温泉利用の EBM（Evidence Based Medicine）に関する健康科学的知見や温泉資源の保全に関する資源工学的知見を収集する。研究成果として得られた知見をベースとして、地域保健施策、温泉資源保護施策、地域おこし施策への展開の可能性を検討するとともに、積極的な外部発信を行う。

(4) 食品汚染カビ毒の実態汚染調査ならびに生体毒性影響に関する研究（厚生労働科学研究費補助金）（平成 22～24 年度）

平成 22～24 年度の 3 年間、「食品汚染カビ毒の実態調査ならびに生体毒性影響に関する研究」を厚生労働研究費補助金で行う。小麦やとうもろこしなどの主要穀類での汚染が問題になっているフザリウム属毒素のトリコテセン（T-2 トキシン，HT-2 トキシン）およびゼアラレノン、また黄変米毒の一つであるペニシリウム属毒素のシトリニンについて、食品原料および加工食品におけるそれらのカビ毒の汚染の有無と残留濃度および食品加工によるカビ毒濃度の減衰度、実験動物、培養細胞に対する上記カビ毒の単独作用および一部の試験では複合影響を明らかにし、その上でわが国における上記カビ毒の 1 日摂取量の推定と人体への健康影響評価のための基礎資料を提供することを目的とする。

平成 23 年度は、国内流通食品のうちごま（10 検体）について、トリコテセン（T-2 トキシン，HT-2 トキシン）およびゼアラレノンの汚染調査に研究協力者として参加し、平成 24 年度は国内流通食品のうち麦類とごまについて、トリコテセン（T-2 トキシン，HT-2 トキシン）およびゼアラレノンの汚染実態調査に協力していく予定である。

(5) 生産者による自主管理型貝毒監視体制の構築（水産研究所共同研究）（平成 23～26 年度）

貝毒の新たなモニタリング体制の構築のための研究を行う。本研究は水産研究所が中心となり、生産者への普及に適した簡易なプランクトン採集法の導入と、それを利用した二枚貝の毒化予測手法の確立、コスト面や労力面で問題となっているマウス試験の負担を軽減するための貝毒簡易測定法の実用化に取り組み、これらの新しいモニタリング技術の活用と生産者との連

携による効率的な自主管理型貝毒監視体制の構築を目指すこととしている。当研究所は、モニタリング効率化のための貝毒簡易測定手法の実用化に関する研究を担当する。平成 24 年度は、三重県沿岸海域におけるマウス試験との相関関係を明らかとするため、ELISA 法、HPLC 法により 3 海域における麻痺性貝毒の分析を実施した。

(6)長島地域の温泉に付随して湧出する天然ガスの代替エネルギー化に関する研究(連携研究会) (平成 23～24 年度)

東日本大震災・原発事故に伴う全国的なエネルギー不足が懸念される中、従来のエネルギー供給構造を見直す社会的機運が高まっている。三重県桑名市長島町は、全国でも有数の大深度掘削泉の集中地域である。この地域は、天然ガス賦存地域の「木曽川ガス田」の周縁に位置することから、温泉水とともに湧出する温泉付随ガス中には、メタン等の可燃性天然ガスが多量に含まれていることが知られている。

熊野灘沖で掘削調査が進むメタンハイドレートやシェールガス等、あらゆる非在来型エネルギーの実用化が期待されている。このような社会的な背景の中で、メタン濃度やガス水比、炭素同位体比による炭化水素系天然ガスの生成起源推定等を通して、同地域の地下に賦存する燃料ガスとしての資源的価値を評価し、県内のエネルギーの「地産地消」や地球温暖化対策等に資する実用化可能性検討（フィージビリティスタディ）を行った。研究成果として得られた知見については、積極的な外部発信を行うことにより情報共有に努める予定である。

4) 資源循環研究課

(1) 産業廃棄物不法投棄現場の環境修復に関する研究 (平成 22 年度～24 年度)

三重県桑名市にある産業廃棄物の不法投棄に起因する VOC 汚染サイトでは、行政代執行により汚染地下水の拡散防止・浄化対策が行われている。今後、当該地の恒久的な浄化促進対策を行うことが課題となっており、そのために、迅速で安価な VOC 残存量調査・評価方法および短期間で安価で確実な VOC 浄化技術が必要となっている。

そこで、本研究事業では、①ボーリングによる試料採取・化学分析によらない簡易・迅速で安価な VOC 残存量調査技術を開発するとともに、汚染残留箇所での確実な浄化技術として、②従来にはない、低温加熱による pH 中性領域での処理を特徴とした VOC 除去技術の開発を行っている。また、VOC 等汚染地下水が拡散した周辺地域の安定化を評価するため、微生物叢の解析を行い、地下水水質調査結果と比較検討することで、③新たな安定化評価手法の確立を目指している。

これまでの研究で、①従来のコーン貫入試験システムにガス成分分析機能を付加した新機種を開発し、VOC および 1,4-ジオキサンの現地迅速測定が可能となった。また、②VOC 除去技術の開発では、土質材料の破碎・細粒化のための土質改良機であるツイスターと、新たに設計製造した回転ドラムを連結し、熱風送風機能を付加したパイロット設備を製作し、汚染土中の VOC を環境基準以下にまで除去できる技術を開発した。さらに、③細菌叢調査を取り入れた評価法の研究では、拡散した VOC が現場地下水中で微生物により分解されていることが判明し、現場地下水の温度範囲（冬期 14℃～夏期 24℃）において VOC の分解が進むことが明らかとなった。また、地下水から VOC の分解菌を単離同定し、*Comamonas* sp.等の細菌が地下水中でベンゼン、トルエンを分解していることも明らかとなった。安定化指標としては、地下水菌叢解析の多変量解析を行った結果、その第 1 主成分得点が地下環境の汚染程度を示すことが明らかとなり、VOC 汚染地でのこれら菌叢解析を取り入れた調査の有効性が示された。

なお、この研究は、環境省の「環境研究総合推進費補助金」の交付を受けた事業である。

(2) 有害物質による土壤汚染の自然・人為由来推定に関する研究(平成 22 年度～24 年度)

ア 土壤汚染対策行政支援について

土壤汚染対策に係る汚染由来の行政判断に資するため、土壤汚染関連の過去に収集・整理した既存データを、M-GIS（三重県簡易型地理情報システム）を利用してデータベースを構築し、行政に提供した（平成 22 年度）。

イ 有害物質による土壤汚染の由来推定方法について

土壤中有害物質濃度のバックグラウンドが高い場合、行政は時として汚染原因が自然由来か人為由来かの判断を求められる場合がある。

有害物質（本研究では重金属）の高濃度原因が人為由来か自然由来か判断するためには、一般的に多大な労力と時間を必要とする。この判断を容易かつ迅速にするため、簡易な由来の推定方法を研究・開発する（平成 22 年度～24 年度）。

5) 環境研究課

(1) 環境大気中微小粒子状物質(PM2.5)の実態調査研究(平成 22～23 年度)

大気汚染物質である浮遊粒子状物質(SPM)のうち、粒子径 2.5 μm 以下の微小粒子状物質(PM2.5)は肺胞等に沈着してヒトの健康に悪影響を及ぼす事が懸念されている。PM2.5 の環境基準が平成 21 年 9 月に告示され、ろ過捕集による質量濃度測定法で得られた 1 日の平均濃度で評価することとされた。これまでの研究では、PM2.5 濃度および内容成分を、簡易法により 2 週間間隔で調査を実施してきたが、これによって得られる PM2.5 濃度平均値は標準法の測定値と単純に比較できないことが知られている。本事業では簡易採取法と標準採取法による並行採取を行うことにより、簡易法による県内の PM2.5 濃度の実態を把握し、汚染の要因や変遷を解析している。平成 22-23 年度に実施した簡易法と標準法による併行採取の結果では、一部の金属元素を除いて概ね同じレベルであり、簡易法が有効であると考えられた。また、2 年間に渡る自動車 NOx・PM 法の該当地域での簡易法による実態調査では、沿道(14.7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)、一般環境(11.9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)、バックグラウンド(11.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)の順に濃度が高く、また、沿道地点同士の比較では、測定局の気象条件の影響を受けていることが分かった。全体の傾向としては、対策の効果が出ているかは明確ではないものの低下傾向であった。(本事業は、平成 22-24 年度の予定であったが、平成 22-23 年度に計画を短縮し、平成 24 年度以降は標準法による調査に集中して実施する。)

(2) 大気環境保全経常試験研究(工場等から排出される揮発性有機化合物(VOC)分析法に関する研究)(平成 22～23 年度)

平成 16 年 5 月の大気汚染防止法の改正により VOC に係る排出規制が導入されたが、既設の VOC 排出施設については平成 22 年 3 月末まで排出基準の適用が猶予されていた。本研究では、今後増加すると予想される行政ニーズに対応するため、現時点では実施していない VOC 測定に関して検査体制を確立し、行政検査を通じて県内の工場・事業場における VOC 排出実態を把握を行った。

平成 23 年度は、平成 22 年度から実施している対象施設の事前調査の実施等により得た情報を基に、標準作業手順書(SOP)を作成した。また、対象施設の測定についても引き続き実施し、結果を行政機関に還元した。

(3) 全国環境研協議会酸性雨広域大気汚染調査研究部会酸性雨全国調査(平成 3 年度～)

地球環境問題の一つである酸性雨の県下の実態把握のため、長期的に降雨等の酸性化調査を行っている。平成 23 年度は、全国環境研協議会酸性雨広域大気汚染調査研究部会の第 5 次調査の 3 年目にあたり、当研究所も庁舎(四日市市桜町)の屋上において、降水時開放型捕集装置を用いて降水のサンプリングを実施した。調査項目は pH、電気伝導率、硫酸、硝酸等の陰イオン、アンモニア、カルシウム等の陽イオンおよび降水量で、平成 23 年度の測定結果のうち、

pH は 4.02～5.89 の範囲にあり、降水量加重平均値は 4.63 であった。(全国環境研協議会酸性雨部会に参加、共同研究機関：64 地方環境研究機関)

(4) 全国環境研協議会東海・近畿・北陸支部共同調査研究(越境／広域大気汚染)(平成元年度～)

全国環境研協議会による酸性雨全国調査は平成 3 年度からの第 1 次調査に始まり、現在は第 5 次調査を実施している。この調査は全国で約 60 の機関が参加しており、湿性沈着、乾性沈着(フィルターパック法、パッシブ法)のサンプリングを行っている。酸性雨問題は、その要因から地域的な問題であると同時に地球的な問題であり、近年では特に光化学オキシダント問題を含め、大陸からの移流が大きな問題となっており、地域汚染よりも越境汚染の影響が大きな割合を占めてきている。国立環境研究所の試算では、約 49%が中華人民共和国由来と推定している。

支部共同調査研究では、この全国の酸性雨調査に継続して参加すると同時に、現在、独自研究として「雨水中のイオン成分と微量多元素成分の広域調査と長距離輸送の解析」を始めており、「エアロゾル成分分析」について検討している。(共同研究機関：全国環境研協議会東海・近畿・北陸支部所属の 13 地方環境研究機関)

(5) 地方公共団体環境研究機関等と国立環境研究所との共同研究(Ⅱ型研究)

「PM2.5 と光化学オキシダントの実態解明と発生源寄与評価に関する研究」(平成 22～24 年度)

各地域の PM2.5 による汚染実態の解明およびその発生源寄与率を定量的に評価する研究を実施するほか、全国的に増加傾向にある光化学オキシダントの汚染増加原因を解明する研究を行う。PM2.5 と光化学オキシダントはともに高い地域依存性を持つと同時に、広域汚染の影響も受けるため、全国と地域の両方の視点から研究を進めている。

本研究は、(1)時間値データベースの作成、(2)時間値データの解析、(3)数値モデル解析の 3 つの内容に分けられ、国立環境研究所と地方環境研究所がそれぞれ役割分担し研究を進めている。(1)のデータベース作成は、地方環境研究所が大気常時監視の時間値データ、測定局属性情報を提供し、国立環境研究所がデータベースを構築する。(2)のデータ解析は、各地方環境研究所が自治体内における光化学オキシダント濃度の長期トレンドを解析し、国立環境研究所と地方環境研究所が共同して、地域間の相互比較を行う。(3)の数値モデル解析は、国立環境研究所が主体となり実施する。(共同研究機関：独立行政法人国立環境研究所、52 地方環境研究機関、10 の大学等)

(6) 全国環境研究機関の有機的連携による PM2.5 汚染の実態解明と発生源寄与評価(環境省環境研究総合推進費 B-1101)(平成 23～25 年度)

2009 年 9 月に PM2.5 環境基準が設定され、新たに PM2.5 事務処理基準と事務連絡ができ、2010 年度から 3 年をめぐり地方自治体は、質量濃度と成分分析の常時監視体制を構築しなければならなくなった。また、発生源からの遠隔地でも環境基準超過が予想されることから、有効な低減対策の策定のためにも広域の実態把握と発生源寄与率評価をあきらかにすることが急務となっている。

また、PM2.5 等の排出組成情報の更新をするために、発生源寄与率推定にリセプター解析(CMB 法等)を行う必要があり、そのためにも精度の高い発生源種類別プロファイルが必要である。現在、日本の発生源プロファイルの多くは 1980 年代に作成されたものであり、アップデートの必要がある。また、国立環境研究所と地方環境研究所では、2001 年度から共同研究を行っており、その枠組みの中で実施していくこととしている。

全国に 10 数地点の観測拠点を展開して、同一手法で PM2.5 質量濃度の連続観測を行い、高時間分解能成分濃度測定を行う。また、既往のデータも活用する。

それらから、①同時期全国測定による汚染実態の解明と越境汚染の把握、②モデル連携による発生源寄与率・越境汚染寄与率の評価、③発生源プロファイル、VOC インベントリの検証・改良という3つの課題を中心に明らかにしていく。

2. 2 試験検査

1) 微生物研究課

(1) 一般依頼検査

市町、医薬品・事業者、県民等からの依頼により各種微生物分離、同定等の試験の検査を行った。平成11年度から大多数の一般依頼検査は、民間の検査機関へ移行したため、民間で対応できない試験検査等について対応しているが平成23年度の依頼はなかった。

(2) 行政検査

健康福祉部関係の依頼により、感染症発生動向調査事業、感染症流行予測事業及び感染症法に基づく病原微生物の分離、同定、分子疫学マーカーとなるPFGE、VNTR等のDNA検査や養殖魚、鶏卵、蜂蜜等の残留抗生物質検査を行った。

① 感染症発生動向調査事業

感染症の発生予防や蔓延防止対策の推進及び医療機関における適切な医療に寄与することを目的としたこの病原体等の検査は、桑名市、四日市市、鈴鹿、津市、松阪市、伊賀市、伊勢市、尾鷲市、熊野市等の検査定点医療機関で採取された咽頭拭い液、糞便、髄液、尿、結膜拭い液、血液等からウイルスや細菌を検出するとともに急性期と回復期の血清を用いて検出された微生物に対する抗体価を測定した。検査対象は、麻しん、風しん、感染性胃腸炎及び嘔吐下痢症等の消化器疾患、無菌性髄膜炎、発疹症、インフルエンザ様疾患等である。2011年1月から12月までに県内の病原体検査定点等医療機関から患者709人の検査依頼（964検体）があり、そのうち452人から病原微生物が分離・検出された。主な分離・検出病原体は、インフルエンザでは、A/H1N1pdm、A/H3N2、コクサッキーA群6型、ノロウイルス（遺伝子型GⅡ）、サポウイルス（遺伝子型GⅠ）、日本紅斑熱リケッチアであった。

表1 感染症発生動向調査事業病原体等検査

検体名	検体数	検出病原体等	検出数（人）
咽頭拭い液	124	インフルエンザA／H1N1pdm	31
鼻 汁	362	インフルエンザA／H3	137
糞 便	160	インフルエンザB	18
髄 液	22	RSウイルス	28
尿	29	パラインフルエンザ1型	25
血 清	139	コクサッキーウイルス	25
血液等その他	128	人メタニューモウイルス	44
		アデノウイルス	20
		ノロウイルスGⅡ	27
		日本紅斑熱リケッチア	47
計	964		

② 感染症流行予測事業

日本脳炎（感受性・感染源調査）、風しん、麻しん、インフルエンザ感受性調査ならびに新型インフルエンザ感染源調査を実施した。日本脳炎感染源調査については、2011年7月から9月まで、三重県中部で飼育された6ヵ月齢の肉豚（計120頭）の血液を松阪食肉公社で採取し、血清中のHI抗体を測定した。HI抗体保有豚は2011年7月25日に1頭で確認し、HI抗体価は10倍であった。日本脳炎、風しん、麻しん、インフルエンザ感受性調査については、2011年4月から9月に県内医療機関等で採血された血清（計296人）を用いて、日本脳炎は中和抗体、風しん、インフルエンザはHI抗体、麻

しんはPA抗体価の測定を実施した。各々の抗体保有率は、日本脳炎53.4%、風しん89.5%、麻しん94.6%であった。インフルエンザはA/California/7/2009 (H1N1pdm) 40.5%、A/Victoria/210/2009(H3N2) 57.1%、B/Brisbane/60/2008 (ビクトリア系統) 25.7%、B/Wisconsin/1/2010 (山形系統) 6.8%であった。

新型インフルエンザ感染源調査は、冬季に県内の豚を検体に100頭調査したが、陽性例はなかった。

③ 感染症等対策事業

県内で発生した3類感染症の病原菌を感染症に対する防疫の見地から、感染症の予防及び感染症の患者に対する医療に関する法律に基き、チフス菌及びパラチフス菌についてはファージ型別を志賀毒素産生性大腸菌については遺伝子解析を実施するため国立感染症研究所に送付した。2011年は、腸管出血性大腸菌51株、細菌性赤痢3株、コレラ2株、パラチフス1株を送付した。

④ 養殖魚、牛乳、鶏卵、はちみつ及び食肉の残留抗生物質検査

β-ラクタム、アミノグリコシド、マクロライド及びテトラサイクリン系の抗生物質について指標菌によるバイオアッセイ法により実施した。検査対象はタイ、ハマチ、ウナギ等の養殖魚28検体、はちみつ5検体、鶏卵22検体、牛乳8検体、食肉21検体の合計84検体で、検査結果は全て陰性であった。

⑤ 先天性代謝異常検査

重症心身障害を未然に防止することを目的として、新生児を対象に先天性代謝異常症（フェニルケトン尿症、メープルシロップ尿症、ホモシスチン尿症、ガラクトース血症）の検査を行っている。なお、先天性甲状腺機能低下症（クレチン症）及び先天性副腎皮質過形成症の検査は三重大学医学部小児科において行われている。

平成23年度においては、検査依頼検体数は16,652件であり、このうち疑陽性と判定し、再採血・再検査を行ったものは459件（2.75%）、精密検査依頼数は52件（0.31%）であった。

2) 衛生研究課

(1) 一般依頼試験

平成23年度の県民、事業者及び市町等からの一般依頼検査は、以下に示すとおりである。

① 地下水、水道水、温泉水、一般飲料水等試験

県民、事業者等からの依頼により、地下水等の水質について試験を行った。その結果は表1のとおりであった。

表1 水等の依頼検査数			
依頼品目	検体数	項目数	不適数
温泉付随ガス	2	2	0
鉱泉分析	3	—	0
その他	2	2	0
計	7	—	—

② 医薬品等試験

県内の他検査機関で対応できない、医薬品の日本薬局方適否試験4検体（計52項目）の検査を行ったところ、全て適であった。

(2) 行政検査

①食品衛生行政検査

ア 健康福祉部関係

食品の衛生と安全性を確保するため、食品衛生法に基づき食品衛生行政検査を実施した。食品衛生行政検査には、食品添加物検査と食品汚染物検査がある。食品添加物検査の結果は、表2に示すとおりであった。また、食品汚染物検査の結果は表3-1に示すとおりであり、食品添加物検査との合計で、521 検体（延べ 11,592 項目）について検査を実施した。

表2 食品添加物検査結果

食品添加物		試験品数	試験項目数	不適品数
調味料等	水溶性Na・グルタミン酸Na	3	6	0
品質保持剤	プロピレングリコール	3	3	0
保存料	ソルビン酸等9項目	35	315	0
防かび剤	イマザリル等4項目	19	76	0
酸化防止剤	BHA等2項目	24	96	0
着色料	合成着色料	12	312	0
甘味料	サイクラミン酸等2項目	19	38	0
漂白剤	二酸化イオウ・亜硫酸塩類	26	26	0
発色剤	亜硝酸ナトリウム	46	46	0
計		187	918	0

表3-1 食品汚染物検査結果

食品汚染物		試験品数	試験項目数	不適品数
農産物等の残留農薬				
92農薬		104	8,528	0
有機塩素系農薬		22	110	0
有機リン系農薬		36	720	0
茶農薬		5	210	0
残留動物用医薬品				
養殖魚		28	336	0
鶏卵		22	286	0
輸入肉		22	308	0
溶出試験		4	8	0
蛍光物質		8	8	0
遺伝子組換え食品				
大豆		6	6	0
とうもろこし		6	12	0
アレルギー物質				
乳		11	22	0
卵		11	22	0
小麦		11	22	0
そば		11	22	0
落花生		11	22	0
えび・かに		16	32	2
計		334	10,674	2

イ 農水商工部関係、健康福祉部関係

食品衛生法等に基づき、魚介類の食品汚染物質の検査を行った。有機スズ化合物の検体は、食品汚染物検査の養殖魚を用いた。

表3-2 食品汚染物検査結果

食品汚染物	試験品数	試験項目数	不適合数
有機スズ化合物	9	18	0
貝毒（麻痺性、下痢性）	22	44	—
総水銀・PCB	4	8	0
計	35	70	0

② 薬務行政検査

医薬品等の品質、有効性及び安全性を確保するため、薬事法に基づき、県内産医薬品及び医薬部外品の収去検査を行う。県内産医薬品2検体及び医薬部外品2検体の規格試験法について試験を行ったところいずれも規格に適合していた。また、後発用医薬品として国指定医薬品1検体について溶出試験を行ったところいずれも規格に適合していた。

健康食品等に医薬品成分を故意に配合した無承認無許可医薬品による健康被害が多数報告されていることから、このようなものが含有されていないか、薬務食品室で買い上げた様々な製品（3検体）について試験（5項目）を行ったところ、不適はなかった。

③ 医薬品等製造承認申請書等の審査

薬事法に基づき、医薬品等製造承認申請書等の規格及び試験方法について31申請書の内容審査を行った。審査項目（含量規格、製造方法、用法用量、効能又は効果、性状、確認試験、重量偏差、崩壊試験、定量法、別紙規格、対比表、資料等）の多くは医薬品等製造承認基準等に適合していた。

④ 家庭用品行政検査

有害物質を含有する家庭用品の安全性を確保するため、有害物質を含有する家庭用品の規制に関する法律に基づき家庭用品試買検査を実施した。その結果は表4に示すとおりであり、繊維製品21検体、家庭用エアロゾル製品9検体、住宅用洗剤5検体、かつら等接着剤5検体計40検体すべてが規制基準に適合していた。

表4 家庭用品試買検査結果

検査項目	項目数	不適合数
ホルムアルデヒド	26	0
メタノール	9	0
塩化水素又は硫酸、水酸化ナトリウム又は水酸化カリウム	5	0
漏水試験	5	0
落下試験	5	0
耐酸性試験	5	0
圧縮変形試験	5	0
計	60	0

⑤ 温泉行政検査

温泉資源の保護の観点から、自然環境室の依頼により、温泉法に基づく立入検査を実施し、源泉の成分変化の状況等を調査を行い、主要成分の成分分析を実施した。また、温泉の適正

利用の観点から、県内の温泉利用施設を対象に調査を実施し、揭示内容が適切であるかの確認及び浴槽水の採水・分析を実施した。

- ・源泉調査

調査源泉数：8ヶ所

調査は、温泉行政検査実施要領に基づき、主に津農林水産商工環境事務所管内において、行われた。

- ・温泉施設の浴槽水調査

調査施設数：19施設(1次調査)

4施設(継続調査、2次調査)

調査は平成23年度温泉利用施設の浴槽水質検査等実施要領に基づき、調査が行われた。1次調査の結果、平成23年度温泉浴槽水質処理要領に規定する詳細調査の条件（源泉タンク水と浴槽水の温泉成分濃度における一定割合以上の乖離等）に合致する場合、2次調査および継続調査を実施した。

⑥ 環境放射能測定調査

ア 環境放射能水準調査事業（文部科学省委託事業）

原子力の平和利用の推進及び放射線障害の防止を目的として、文部科学省の委託事業を受託し環境放射能測定を実施した。平成23年度は表4に示した試料の放射能測定を行った。

福島第一原子力発電所事故の影響を受け降下物、大気浮遊じん等から人工放射性核種が検出された。

表5 環境放射能測定の概要

測定種別	対象	試料数	備考
全β線測定	降水	22*	降雨ごと（1mm以上）
空間線量率測定	-	連続測定	モニタリングポスト
γ線核種分析	降下物	12	1ヶ月間採取
	大気浮遊じん	4	3ヶ月周期でサンプリング
	陸水	2	河川水、蛇口水
	土壌	2	0-5cm, 5-20cm
	穀類	1	精米
	農産物	4	茶、ほうれんそう、だいこん
	牛乳	1	生乳
	海産生物	3	まだい、あさり、わかめ

* モニタリング強化対応のため1～3月の間のみ実施

イ 核種分析装置精度管理

模擬牛乳1試料、模擬土壌1試料、寒天5試料の計7試料について¹⁰⁹Cd、⁶⁰Co、¹³¹I、¹³⁷Cs、⁵⁴Mn、⁵⁹Fe、¹⁴⁴Ce等の放射性核種のγ線核種分析を行い、放射能測定の精度管理を行った。

ウ モニタリング強化

国内外における原子力関係事象発生時には、国の指示に従い環境放射能モニタリングの強化を行うこととなっている。平成23年度も福島第一原子力発電所事故への対応のため、前年度に引き続き実施した。空間放射線量率の監視強化と水道水、降下物及び降水のガンマ線核種分析を実施した。4月に採取した降下物4検体からI-131が検出され事故の影響が観測された。

(3) 水道水質精度管理事業

県内の水道水質検査を行っている機関を対象にして、検査データの精確性を維持向上させるた

め、水質外部精度管理及び内部精度管理を行った。平成 22 年度は、①味 ②硬度 ③トリクロロエチレン ④陰イオン界面活性剤 ⑤カドミウム及びその化合物の 5 項目について各項目 2 試料で実施した。参加機関は、企業庁の 6 浄水場、厚生労働省登録分析機関の 3 機関、市町の 5 水質試験室、保健環境研究所の計 15 機関である。

その結果、全体的に良好な結果であったが、異常値として棄却された場合は、必要に応じて分析法の検討・改善を行った。

3) 資源循環研究課

(1) 公共用水域の常時監視

水質汚濁防止法第 16 条の規定により定められた「平成 23 年度三重県公共用水域及び地下水の水質測定計画」に基づき、県内主要河川の水質汚濁の状況を常時監視するため、県内 32 河川 41 地点の河川水の分析（480 検体、延べ 5,614 項目）を環境研究課と協力して実施した。

(2) 工場・事業場排水の検査

水質汚濁防止法及び三重県生活環境の保全に関する条例に基づく規制対象工場・事業場の排出基準遵守状況を把握するための立入検査に伴う検体の分析（265 検体、延べ 1,869 項目）を実施した。

(3) 問題発生時における原因調査等

へい死魚の発生や水質汚濁事故発生等に伴う原因究明調査等を実施している。平成 23 年度は、へい死魚・水質汚染事故（44 検体、延べ 466 項目）、廃棄物関係（32 検体、延べ 111 項目）に対応するための緊急時の検査を環境研究課と協力して実施した。

(4) 産業廃棄物行政検査

工場・事業場から排出される有害物質を含有する産業廃棄物、あるいは廃棄物の最終処分場浸出液について、農林商工環境事務所又は環境森林部が立入し、採取した検体の分析（20 検体、延べ 48 項目）を実施した。

(5) 伊勢湾広域総合水質調査

伊勢湾の水質汚濁の実態と総合的な水質汚濁防止対策の効果を把握するため、毎年度、水質及び底質調査を次のとおり実施している。

① 水質調査

調査地点：13 地点（上層水、下層水）、調査回数：4 回／年、調査項目：DO、COD、全窒素、全リン等 18 項目（104 検体、延べ 1,482 項目）

② 底質調査

調査地点：3 地点、調査回数：2 回／年、調査項目：全窒素、全リン等 10 項目（6 検体、延べ 60 項目）

4) 環境研究課

(1) 法・条例に基づく規制対象工場・事業場の検査等

大気汚染防止法及び県条例（三重県生活環境の保全に関する条例）に基づくばい煙発生施設等を有する工場・事業場の立入検査を行い、ばいじん及び有害物質、VOC を分析した。

ばいじん 28 検体、窒素酸化物 27 検体、塩化水素 11 検体、硫黄酸化物 16 検体、鉛及びその化合物 1 検体、VOC 15 検体、合計 98 検体（37 事業所、43 施設）の分析を行った。

(2) アスベスト除去作業周辺調査

大気汚染防止法に基づき、特定粉じん排出作業等（アスベスト建材を含む建造物等の取り壊しなど）に伴って発生するアスベスト繊維の敷地境界における環境濃度測定を行った。

：調査作業所及び検体数：計 15 箇所、22 検体

(3) 有害大気汚染物質モニタリング調査

大気汚染防止法の規定に基づき有害大気汚染物質（優先取組物質）について、県内 4 地点で毎月 1 回モニタリングサンプリングを実施し、以下の項目について分析した。

有害金属類 6 項目（ニッケル、ヒ素、マンガン、クロム、ベリリウム、水銀）、ベンゼン等 VOC 9 項目、アルデヒド類 2 項目、ベンゾ(a)ピレン及び酸化エチレンの計 19 項目。（216 検体、延べ 900 項目）

(4) 微小粒子状物質モニタリング調査

大気汚染防止法の規定に基づき大気中の微小粒子状物質（PM2.5）の効果的な対策を図るため、大気常時監視測定局 4 局において PM2.5 に係る調査を実施した。各地点において秋季及び冬季各 2 週間試料採取し、質量濃度のほか成分分析として炭素成分、イオン成分、無機元素成分、多環芳香族炭化水素、レボグルコサン及び水溶性有機炭素の各濃度を測定した。（112 検体、延べ 3,192 項目）

(5) 化学物質環境実態調査（環境省委託事業）

化学物質による環境汚染の未然防止を図るため、全国の地方公設環境研究機関等が参加し、環境中（水質、底質、大気）における化学物質の濃度レベルを継続的に把握している。

平成 23 年度は、分析法開発調査として 4-(1,1,3,3-テトラメチルブチル)フェノール、4-ノニルフェノール（分岐型、13 異性体混合物）の分析法を開発した。また、初期・詳細環境調査として四日市港の水・底質について、イソブチルアルコール等 13 物質、四日市の環境大気についてアリルアルコール等 6 物質の測定分析を、さらに、モニタリング調査として四日市港の水・底質、鳥羽港の底質及び四日市の環境大気について、POPS 等延べ 27 物質（群）の試料のサンプリングを実施した。（43 検体、延べ 31 項目）

(6) 公共用水域の常時監視

水質汚濁防止法第 16 条の規定により定められた「平成 23 年度三重県公共用水域及び地下水の水質測定計画」に基づき、県内主要河川の水質汚濁の状況を常時監視するため、県内 29 河川 32 地点の河川水の分析を実施した。（280 検体、延べ 817 項目、分析項目：チウラム等健康項目、オキシ銅等要監視項目及び塩化物イオン、環境研究課実施分）

(7) 産業廃棄物不適正処理事案に係る調査（行政機関、大学との共同研究）

有害ガスの発生する産業廃棄物不適正処理現場で、発生する硫化水素ガス等の低減を図るためにドライフォグ発生装置を用いて様々と条件を替えて酸化剤（過酸化水素水）の噴霧を行った。その効果を見るために、噴霧井戸、高濃度井戸及び周辺井戸等でのガス発生量及び硫化水素濃度等のガス調査と噴霧井戸の水質調査（サンプリング）を行った。（共同研究機関、廃棄適正処理プロジェクト及び福岡大学）

：延べ件数（ガス調査）：129 井戸、252 検体、延べ 1098 項目

2. 3 研修指導

1) 疫学研究課

(1) 地域保健対策関連事務事業への技術支援と協働取組

保健所・市町における地域保健対策関連事務事業への科学的根拠に基づく取り組みを支援するため、平成 16 年度までは、「健康づくり室が主催する講義・プレゼンテーション方式の短期（1～3 日）情報処理研修」に協力してきた。しかしながら、この方式では、基礎的な情報処理技術の研修は行えるものの、実務に活かすためには改善の余地があった。このため、平成 17 年度から、モデル事業として「健康づくり室の募集に応募した保健所・市町職員が各所属で分掌する地域保健対策関連事業に係る情報処理課題の解決に必要な技術を修得するための研修と、当該事業の解析・取りまとめ等に対する技術支援」を OJT 方式で行っている。

平成 23 年度の研修実績は下表のとおりである。

平成23年度情報専門職養成研修実施状況

番号	所 属 名	受講予定者	実施内容	受講者	研修日数	研修総量 (人・日)	備 考
	桑名保健所管内市町、鈴鹿市保健師、志摩市管理栄養士・保健師	管理栄養士、栄養士、保健師	EXCEL,HALBAUによる統計処理の基礎	19	1	19	平成23年度参加者のうち希望者を対象に実施
1	桑名保健所管内市町母子保健担当者	管理栄養士、栄養士、保健師計12名	乳幼児に対する家庭でのおやつとの与え方に関する調査結果の分析指導	12	2	24	
2	志摩市役所 健康福祉部健康推進課	栄養士1名、保健師1名	食生活実態調査のためのアンケートの内容・及び分析方法について(H21年度から継続)	2	1	2	
3	桑名市役所 健康づくり課	管理栄養士1名	桑名市健康づくり計画中間評価のための調査および結果の分析について	1	2	2	
4	桑名市役所 介護・高齢福祉課 地域包括支援センター	保健師1名	特定高齢者の運動器機能向上教室の事業(桑名いきいき体操)評価について	—	—	—	課題のエントリーはあったが、受講はなし
5	鈴鹿市健康づくり課	保健師2名	妊娠届け時の「妊婦さんアンケート」の分析指導	2	1	2	
6	津保健福祉事務所、桑名保健福祉事務所、健康づくり室 他	管理栄養士5名	H16年度県民栄養調査及び国民栄養調査 H17・18年度国民健康・栄養調査結果を用い現状分析を実施(H21年度から継続)	5	2	10	
7	尾鷲保健福祉事務所	管理栄養士1名	健康生活についてのアンケートの分析指導	1	3	3	
8	健康づくり室	事務職1名、保健師1名	特定検診データ、県民健康意識調査結果の分析指導	2	1	2	
合 計				25	13	64	

(2) 新医師臨床研修(疫学研究課、微生物研究課)

医師法第 16 条の 2 第 1 項に規定する臨床研修に関する省令（平成 14 年 12 月 11 日付け厚生労働省令第 158 号）に基づき実施される新医師臨床研修の一環として保健所が公衆衛生研修を行っているが、これに関連する業務として、疫学研究課と微生物研究課が、感染症の予防及び感染症の患者に対する医療に関する法律に基づく地方感染症情報センター業務、および病原微生物に関する試験検査・調査研究業務に関する半日研修を行っている。平成 23 年度は、桑名保健所から 2 名の新医師を対象に研修を行った。

2) 微生物研究課

年月日	内容	対象者	人員	場所	担当職員
2011.6.22	出前トーク	一般県民	40人	伊賀市	片山
7.16	地球温暖化と感染症	一般県民	25人	津市	赤地
7.26	出前トーク	一般県民	30人	津市	片山
8.18	施設見学	学生	7人	保健環境研究所	赤地
8.22～ 8.25	施設見学	学生	1人	保健環境研究所	赤地
11.7～ 11.11	研修会	学生	20人	津市	赤地
11.24	施設見学	学生	20人	保健環境研究所	赤地
12.13	施設見学	学生	39人	保健環境研究所	楠原、永井、大久保
2012.3.7	食品衛生監視員研修	県職員	18人	津市	赤地
3.9	メディカル研究会	一般県民	9人	保健環境研究所	岩出、片山
3.13	テロ対策研修	市町職員	26人	鈴鹿市	赤地、永井

3) 衛生研究課

年月日	内 容	対象者	人 員	場 所	担当職員
2011.6.28	新任食品衛生監視員 研修会	県職員	7 人	津庁舎	林
8.18	インターシップ(メデ ィカルバレー薬事関 係)	学生	7 人	保健環境研究所	志村, 林
10.28	平成 23 年度水道技術 交流会(測定値につい て)	市町・企業庁水 道検査職員, 水 道登録機関職員	24 人	保健環境研究所	志村, 澤田, 吉村, 森, 村田
12.8	平成 23 年度 水道技術検討会	市町・企業庁水 道検査職員, 水 道登録機関職員	29 人	保健環境研究所	志村, 前田, 澤田, 吉村, 森, 村田
12.9	全国衛研近畿支部 理化学部会	各都道府県職員	50 人	和歌山県衛生 研究所	志村
12.10	環境情報スキルアッ プ講座	団体メンバー	30 人	フレンテ三重	志村
12.13	施設見学	鈴鹿医療科学大 学薬学科	40 人	保健環境研究所	志村, 林
2012.2.23	出前トーク (身近な漢方薬の話)	団体メンバー	15 人	三重県勤労者 福祉協議会	志村
3.13	テロ対策研修	市町職員	26 人	鈴鹿市	前田

4) 資源循環研究課

年月日	内容	対象者	人員	場所	担当職員
2011.5.13	分析講習会	水質改善室及び 地域機関環境室職員	17人	保健環境研究所	秋永, 新家, 市岡, 巽, 柘植, 片山, 宇佐美
8.18	施設見学	薬学生インター シップ研修生	7人	保健環境研究所	秋永
8.22 (22~26)	職場体験実習	鈴鹿高専学生	1人	保健環境研究所	秋永
10.31	ICETT情報・技術交流会	中国河南省職員・ 企業関係者	9人	ICETT研修室	巽
11.10	JICA研修(重金属分析)	JICA研修生	10人	保健環境研究所	市岡, 柘植
11.22	JICA研修(水質モニタリ ングと水環境行政)	JICA研修生	10人	ICETT研修室	秋永
11.24	施設見学	看護職員研修	30人	保健環境研究所	秋永
12.13	施設見学	鈴鹿医療科学大 学薬学科	40人	保健環境研究所	秋永

5) 環境研究課

年月日	内容	対象者	人員	場所	担当職員
2011.10.6	出前トーク(大気中の 微小粒子状物質(PM 2.5)について)	社団法人 鉄道貨 物協会 名古屋支 部 三重地区部会	25人	四日市商工 会議所	吉岡, 西山
11.11	JICA地域別研修(重金 属分析, 農薬分析関係 等)	JICA研修生(カザ フスタン, キルギ ス共和国, タジキ スタン, トルクメ ニスタン, ウズベ キスタン)	10人	保健環境研究所	佐来, 西山
11.24	施設見学	県立看護大学	30人	保健環境研究所	吉岡, 佐来, 西山, 川合, 寺本, 高士
12.13	施設見学	鈴鹿医療科学 大学薬学部	43人	保健環境研究所	吉岡, 佐来, 西山, 川合, 寺本, 高士

2. 4 情報の収集・解析・提供

1) 三重県感染症情報センター（疫学研究課）

国の感染症発生動向調査事業実施要綱に基づき、県内すべての医療機関から直ちに届出される 1 類感染症～4 類感染症（58 疾患で、平成 18 年 12 月 8 日付で交付された感染症の予防及び感染症の患者に対する医療に関する法律（以下感染症法）の一部を改正する法律に基づき、平成 19 年 4 月 1 日から結核を含む）、県内すべての医療機関から 7 日以内に届出される 5 類感染症（16 疾患）、県内の指定届出機関（定点医療機関）から週単位で届出される 5 類感染症（18 疾患）、月単位で届出される 5 類感染症（7 疾患）及び新型インフルエンザ等感染症（2 疾患）の合計 101 疾患の患者発生情報を収集・解析し、週報、月報、年報等として提供した。特に平成 21 年 4 月以降に発生した新型インフルエンザの流行に際しては、三重県新型インフルエンザ対策行動計画に基づく各種サーベイランスを行うとともに、迅速な情報収集・解析・提供に努めた。また、三重県独自の感染症発生動向調査事業として、平成 15 年 1 月から、小児科定点の協力によりマイコプラズマ肺炎、クラミジア肺炎、RS ウイルス性細気管支炎（平成 15 年 11 月 5 日付けで施行された感染症法の一部を改正する法律に基づき、県独自の調査対象疾患から国の感染症発生動向調査事業実施要綱に基づく調査対象疾患に移行）の患者発生動向調査を実施するとともに、インフルエンザ定点の協力により迅速診断キットによる病原体診断の実施状況調査を行っている。なお、平成 16 年 9 月から、県医師会、県小児科医会、県内医療機関約 1,700 ヶ所の協力により行っていた三重県の麻しん・風しん患者全数把握調査は、平成 20 年 1 月 1 日付で施行された感染症法に基づく全数把握調査に移行した。また、平成 23 年 1 月 24 日にチクングニア熱が 4 類感染症に、薬剤耐性アシネトバクター感染症が 5 類感染症（定点）に追加された。

（1）患者情報の収集・解析

1～5 類感染症の 103 疾患、三重県独自の小児科定点把握対象 2 疾患（マイコプラズマ肺炎、クラミジア肺炎）の患者発生情報等を収集し、厚生労働省（国立感染症研究所感染症情報センター）にオンライン報告するとともに、これらのデータをエクセルデータに変換したのち、クロス集計、時系列解析、地理的解析等を行った。

（2）患者情報の提供

前記により収集・解析した感染症及び結核の患者情報、並びに当研究所微生物研究課による病原体検出情報を三重県感染症情報センターホームページで提供・公開するとともに、県・地区医師会（会員）、指定医療機関、一般医療機関等に感染症情報メーリングリスト、同 e-メール、インターネット・ファックスにより情報提供を行った。また、県医師会報（月刊誌）に情報投稿するとともに、2011 年（平成 23 年）版三重県感染症発生動向調査事業報告書（A4 版、122 頁）を発刊した。

（3）三重県感染症発生動向調査企画委員会の開催

感染症発生動向調査事業等の効果的・効率的な推進を図るため、平成 23 年 10 月及び平成 24 年 3 月に「三重県感染症発生動向調査企画委員会」を開催し、平成 23 年における感染症の患者発生状況及び病原体検出状況、並びに結核患者発生状況等の検討を行った。

2. 5 ISO9001:2008 品質マネジメントシステムの構築と運用

当研究所食品衛生検査部門においては、食品衛生法に基づく GLP 基準及び ISO9002:1994 版国際規格に適合する品質システムを構築し、平成 12 年 12 月 22 日付けで(財)日本品質保証機構(JQA)の認証登録を受けた。また、同月 15 日付けで ISO9001:2000 版の新規格が発効したため、同年 8 月 2 日付けで ISO9001:2000 版規格に基づく移行認証登録を受けた。新システムは、①顧客重視、②経営者のリーダーシップ、③関係職員の参画、④プロセスアプローチによる資源の運用管理、⑤システムアプローチによるマネジメント、⑥継続的なパフォーマンス改善、⑦事実に基づく意思決定へのアプローチ、⑧供給者との互惠関係の確保・維持の 8 原則を柱とし、PDCA (Plan-Do-Check-Action) サイクルを廻転させることにより継続的改善が図られるものである。

平成 20 年 11 月 15 日には、ISO9001:2008 版が発効された。2008 年改訂版の規格要求事項には基本的な変更はないが、2000 年版の「要求事項の明確化」、「公式解釈を必要とするような曖昧さの除去」、「ISO14000 との整合性の向上」が行われた。本システムの品質方針は、「適正で信頼性の高い食品衛生検査を通じて、顧客の信頼と満足を得るとともに、公衆衛生の向上に寄与する」であり、これを実現するため、毎年度、具体的な品質目標並びに品質目標値及び重点施策を策定し、適切な品質活動と、顧客重視の視点等からのシステムの継続的改善に取り組んでいる。

なお、平成 23 年度は(株)日本環境認証機構(JACO)により 7 月にの定期(継続)審査、同年 12 月 5～6 日に更新審査を受け、同年 12 月 21 日付で認証された。

3 学会報告

3. 1 疫学研究課

- 1) 高橋裕明, 山内昭則, 平岡稔, 福田美和, 山口哲夫: 三重県における性感染症サーベイランスへの取り組みについて, 第 60 回医学検査学会 (2011.6.4 東京都).
- 2) 高橋裕明, 山内昭則, 平岡稔, 福田美和, 山口哲夫: 「ヘルシーピープル 21」推進に係る評価指導項目および目標値の設定について, 平成 23 年度地方衛生研究所全国協議会東海北陸支部環境保健部会 (2010.10.6 福井市).
- 3) 福田美和, 高橋裕明, 平岡稔, 山内昭則, 山口哲夫 他: 三重県における平成 13~18 年度の老人保健事業による基本健康診査データ分析結果, 第 64 回三重県公衆衛生学会総会 (2012.1.13 伊勢市).
- 4) 高橋裕明, 山内昭則, 平岡稔, 福田美和, 山口哲夫: 地方感染症情報センターにおける性感染症全数把握調査結果の活用と事業への反映, 第 25 回全国公衆衛生情報協議会 (2012.1.19-20 埼玉県和光市).

3. 2 微生物研究課

- 1) 永井佑樹: HRM 解析を用いた結核菌の薬剤耐性迅速診断法, 第 86 回日本結核病学会 (2011.6.2-3 東京都).
- 2) Yoshitsugu Nakaguchi, Nguyen Binh Minh, Cuong Ngo Tuan, Tran Hoang Huy, Ngyuyen Hoai Thu, Le Thanh Huong, Kazuko Seto, Kazuhiro Okubo, Yoshito Iwade, Mitsuaki Nishibuchi: *Vibrio parahaemolyticus* infection from diarrhea samples in hanoi, Vietnam, 第 84 回日本細菌学会総会 (2011.9.6-10 札幌市).
- 3) Mitsuaki Nishibuchi, Koji Seo, Natsuko Tanaka, Fumio Gondaira, Junichi Sugiyama, Pharanai Sukhumungoon, Varaporn Vuddakui, Wataru Yamazaki, Kazuko Seto, Yoshito Iwade, Yoshitsugu Nakaguchi: Spread of infection by a new clone of *vibrio parahaemolyticus* 03:K6 and its serotype variants across international borders, 第 84 回日本細菌学会総会 (2011.9.6-10 札幌市).
- 4) 中口義次, Nguyen Binh Minh, Cuong Ngo Tuan, Tran Hoang Huy, Ngyuyen Ho

- ai Thu, Le Thanh Huong, 勢戸和子, 大久保和洋, 岩出義人, 西渕光昭: 北ベトナムのハノイにおける腸炎ビブリオ感染症の発生状況と病原性菌株による魚介類汚染の実態調査, 第 32 回日本食品微生物学会総会 (2011.10.6-7 東京都).
- 5) 赤地重宏: 収容犬を対象にした *Capnocytophaga canimorsus* 等保有状況調査, 平成 23 年度日本獣医公衆衛生学会 (近畿) (2011.10.16 大阪府).
- 6) 岩出義人: 国産貝類の *tdh/trh* 陽性腸炎ビブリオ検出状況と分離株の血清型, 第 45 回腸炎ビブリオシンポジウム (2011.10.20-21 東京都).
- 7) 永井佑樹: 結核菌感染事例における VNTR 法を用いた分子疫学解析 (2011), 第 64 回三重県公衆衛生学会 (2012.1.13 伊勢市).
- 8) 永井佑樹: AmpC- β ラクタマーゼの基質拡張が疑われた多剤耐性緑膿菌の一例, 第 23 回日本臨床微生物学会総会 (2012.1.21-22 横浜市).
- 9) 大久保和洋: 2011 年の三重県における食中毒および三類感染症発生状況, 地研協議会東海・北陸支部微生物部会 (2012.3.1-2 岐阜市).
- 10) 楠原 一: 東海・北陸におけるウイルス性胃腸炎の発生状況とウイルスの検出状況, 地研協議会東海・北陸支部微生物部会 (2012.3.1-2 岐阜市).
- 11) 矢野拓弥: 三重県におけるインフルエンザの流行 (2011/12 シーズン), 地研協議会東海・北陸支部微生物部会 (2012.3.1-2 岐阜市).
- 12) 永井佑樹: 三重県で発生した多剤耐性緑膿菌の院内感染事例について, 地研協議会東海・北陸支部微生物部会 (2012.3.1-2 岐阜市).
- 13) 楠原 一: 三重県における 2011 年感染症発生動向調査について, 地研協議会東海・北陸支部微生物部会 (2012.3.1-2 岐阜市).
- 14) 岩出義人: 産業廃棄物不法投棄現場地下水の細菌学的調査, 第 85 回日本細菌学会総会 (2012.3.27-29 長崎市).
- 15) 中口義次, 勢戸和子, 大久保和洋, 岩出義人, 西渕光昭: ベトナムにおける腸炎ビブリオ感染症の流行と臨床分離株の特徴, 第 85 回日本細菌学会総会 (2012.3.27-29 長崎市).
- 16) 岩出義人: 産業廃棄物不法と投棄現場地下水

の細菌学的調査, 第 85 回日本細菌学会総会(2012.3.27-29 長崎市).

3. 3 衛生研究課

- 1) 森 康則, 出口 晃, 美和千尋, 岩崎 靖, 鈴木恵理, 浜口 均, 島崎博也, 佐藤雅城, 田中紀行, 川村陽一: 病院施設内の温泉浴槽水質変動における衛生化学的検討, 第 76 回日本温泉気候物理医学会総会・学術集会(2011.5.13-14 鹿児島県).
- 2) 澤田陽子, 志村恭子, 山口哲夫: 食パン中から検出されたプロピオン酸について, 平成 23 年度第 1 回食品衛生監視員研修会(2011.7.1 津市).
- 3) 森 康則, 吉村英基, 前田 明, 澤田陽子, 村田 将, 志村恭子, 山口哲夫: 三重県における温泉利用施設の浴槽水質行政検査とその実施手法の検討, 日本温泉科学会第 64 回大会(2011.9.7-9 兵庫県).
- 4) 志村恭子, 天野秀臣, 山口哲夫: 三重県産未利用海藻・草類を用いた化粧品の試作, 日本生薬学会第 58 回年会(2011.9.24-25 東京都).
- 5) 谷口 賢, 吉成知也, 青山幸二, 竹内 浩, 他: 日本に流通する食品中の T-2 トキシン, H T-2 トキシンおよびゼアラレノン汚染実態調査(平成 22 年度), 第 102 回日本食品衛生学会学術講演会(2011.9.29-30 秋田県).
- 6) 一色 博, 佐々木恵, 林 克弘, 志村恭子, 山口哲夫: 味噌の特定原材料(小麦)における ELISA 法の偽陽性反応について, 第 48 回全国衛生化学技術協議会年会(2011.11.10-11 長野県).
- 7) 大垣有紀, 吉村英基, 前田千恵, 竹内 浩, 竹川雄太, 村田 将, 川合啓之, 志村恭子, 山口哲夫: 食品・飲料水の健康危機発生時における簡易検査キットの適用性に関する検討, 第 48 回全国衛生化学技術協議会年会(2011.11.10-11 長野県).
- 8) 竹内 浩, 一色 博, 澤田陽子, 林 克弘, 前田千恵, 大垣有紀, 佐々木恵, 志村恭子, 山口哲夫: 食品中不揮発性アミン類分析法の検討, 第 48 回全国衛生化学技術協議会年会(2011.11.10-11 長野県).
- 9) 森 康則, 前田 明, 吉村英基, 澤田陽子, 志村恭子, 山口哲夫: フェノール・3-メチル

インドールを用いた飲料水中の臭気測定に関する技術的検討と外部精度管理, 第 48 回全国衛生化学技術協議会年会(2011.11.10-11 長野県).

- 10) 竹内 浩, 一色 博, 澤田陽子, 林 克弘, 前田千恵, 大垣有紀, 佐々木恵, 志村恭子, 山口哲夫: ヒスタミンを含む不揮発性アミン類分析法の検討, 第 44 回東海薬剤師学術大会(2011.11.27 四日市市).
- 11) 村田 将, 森 康則, 澤田陽子, 一色 博, 石濱信之, 志村恭子, 山口哲夫: むし菌予防対策におけるフッ化物洗口事業の不安解消に向けた事例研究, 第64回三重県公衆衛生学会(2012.1.13 伊勢市).
- 12) 一色 博, 前田千恵, 林 克弘, 志村恭子, 山口哲夫: 特定原材料試験(小麦)における味噌からの DNA 抽出の検討, 平成 23 年度地方衛生研究所全国協議会東海・北陸支部衛生化学部会(2012.2.2-3 愛知県).
- 13) 村田 将, 森 康則, 澤田陽子, 一色 博, 石濱信之, 志村恭子, 山口哲夫: フッ化物洗口事業における白色沈着物発生への行政対応について, 平成 23 年度地方衛生研究所全国協議会東海・北陸支部衛生化学部会(2012.2.2-3 愛知県).
- 14) 森 康則, 村田 将, 志村恭子, 山口哲夫: 長島地域の温泉に付随して湧出する天然ガスの代替エネルギー化を目指した可能性検討調査, 平成 23 年度地方衛生研究所全国協議会東海・北陸支部衛生化学部会(2012.2.2-3 愛知県).
- 15) 志村恭子, 竹川雄太, 竹内浩, 林 克弘, 山口哲夫: GMP 調査体制強化に係る試験検査機関に求められる要件への対応について, 平成 23 年度地方衛生研究所全国協議会東海・北陸支部衛生化学部会(2012.2.2-3 愛知県).

3. 4 資源循環研究課

- 1) 新家淳治, 棚瀬敦史, 秋永克三, 吉岡 理, 大熊和行, 山口哲夫: 三重県における土壤中重金属の自然・人為由来の判別に関する一考察, 第 17 回地下水・土壤汚染とその防止に関する研究集会(2011.6.16-17 川崎市)
- 2) 小幡博志¹⁾, 赤神元英¹⁾, 西田憲一²⁾, 巽正志³⁾, 古市 徹⁴⁾, 石井一英⁴⁾, 坂本 篤¹⁾: 低温オンサイト加熱処理による浄化効果に関する基礎的研究, 第 22 回廃棄物資源循

環学会研究発表会 (2011.11.3-5 東京都)

1)日本国土開発(株), 2)三重県環境森林部,
3)三重県保健環境研究所, 4)北海道大学

3) 青木健二¹⁾, 杉山勝彦¹⁾, 片山辰雄¹⁾, 西田憲一²⁾, 巽 正志³⁾, 古市 徹⁴⁾, 石井一英⁴⁾: MIP-CPT 法を用いた深度別の VOCs 現地迅速成分分析法の開発, 第 22 回廃棄物資源循環学会研究発表会 (2011.11.3-5 東京都)

1)(株)環境総合テクノス, 2)三重県環境森林部,
3)三重県保健環境研究所, 4)北海道大学

4) 巽 正志, 岩出義人, 新家淳治, 市岡高男, 柘植 亮, 片山貴幸, 宇佐美敦子, 秋永克三, 天野秀臣, 吉岡 理, 山口哲夫: VOC 汚染サイトの微生物を利用した環境修復方法の検討, 第 38 回環境保全・公害防止研究集会 (2011.11.28-29 青森市)

5) 新家淳治, 片山貴幸, 巽正志, 秋永克三, 吉岡 理, 山口哲夫: 三重県における土壤中重金属の自然・人為由来の判別に関する研究, 第 38 回環境保全・公害防止研究発表会 (2011.11.28-29 青森市)

6) 坂本 篤¹⁾, 小幡博志¹⁾, 赤神元英¹⁾, 西田憲一²⁾, 巽 正志³⁾, 古市 徹⁴⁾, 石井一英⁴⁾: 産業廃棄物の不法投棄サイトにおける低温オンサイト加熱処理による浄化手法の研究, 第 33 回全国都市清掃研究・事例発表会 (2012.1.26-27 函館市)

1)日本国土開発(株), 2)三重県環境森林部,
3)三重県保健環境研究所, 4)北海道大学

7) 巽 正志¹⁾, 岩出義人¹⁾, 宇佐美敦子¹⁾, 新家淳治¹⁾, 市岡高男¹⁾, 柘植 亮¹⁾, 片山貴幸¹⁾, 秋永克三¹⁾, 山口哲夫¹⁾, 西田憲一²⁾, 谷口初美³⁾, 福田和正³⁾, 古市 徹⁴⁾, 石井一英⁴⁾: 揮発性有機化合物汚染が残留する環境修復サイトでの細菌叢モニタリングの有用性検討, 第 46 回日本水環境学会年会 (2012.3.14-16 東京都)

1)三重県保健環境研究所, 2)三重県環境森林部,
3)産業医科大学, 4)北海道大学大学院

8) 宇佐美敦子¹⁾, 巽 正志¹⁾, 岩出義人¹⁾, 秋永克三¹⁾, 山口哲夫¹⁾, 西田憲一²⁾, 谷口初美³⁾, 福田和正³⁾, 古市 徹⁴⁾, 石井一英⁴⁾: 環境修復地地下水中の微生物による揮発性有機化合物分解能力検討, 第 46 回日本水環境学会年会 (2012.3.14-16 東京都)

1)三重県保健環境研究所, 2)三重県環境森林部,
3)産業医科大学, 4)北海道大学大学院

9) 宇佐美敦子¹⁾, 巽 正志¹⁾, 岩出義人¹⁾, 秋永克三¹⁾, 山口哲夫¹⁾, 西田憲一²⁾: 環境修復地地下水中の微生物による揮発性有機化合物分解能力検討, 第 46 回日本水環境学会併設全国環境研協議会研究集会 (2012.3.16 東京都)

1)三重県保健環境研究所, 2)三重県環境森林部,

10) 片山貴幸, 新家淳治, 市岡高男, 柘植 亮, 宇佐美敦子, 秋永克三, 吉岡 理, 山口哲夫: 三重県の河川における水質の特性および傾向について, 第 46 回日本水環境学会年会 (2010.3.14-16 東京都).

11) 岩出義人¹⁾, 巽 正志¹⁾, 福田和正²⁾, 谷口初美²⁾: 産業廃棄物不法投棄現場地下水の細菌学的調査, 第 85 回日本細菌学会総会 (2012.3.27-29 長崎市)

1)三重県保健環境研究所, 2)産業医科大学

3. 5 環境研究課

1) 佐来栄治, 西山 亨, 寺本佳宏: 浮遊粒子状物質に含まれる多環芳香族炭化水素類について (II), 第 52 回大気環境学会年会 (2011.9.14-16 長崎市).

2) 西山 亨, 佐来栄治, 寺本佳宏: 三重県北部地域における PM2.5 環境濃度測定の簡易法と標準法との比較, 第 52 回大気環境学会年会 (2011.9.14-16 長崎市).

3) 堀江洋佑, 友寄喜貴, 西山 亨, 平木隆年, 山神真紀子, 高木恭子, 濱村研吾, 村野健太郎: 全国酸性雨調査 (71) - 湿性沈着 -, 第 52 回大気環境学会年会 (2011.9.14-16 長崎市).

4) 為田一雄, 内田正宣, 武下俊宏, 樋口壯太郎, 西山 亨, 高士昇吾, 川合啓之, 宮村典仁, 山川雅弘, 吉岡 理: 霧状酸化剤を用いた埋立地の早期安定化に関する研究, 第 22 回廃棄物資源循環学会研究発表会 (2011.11.3-5 東京都文京区).

5) 西山 亨, 高士昇吾, 寺本佳宏, 宮村典仁, 川合啓之, 佐来栄治, 吉岡 理, 山口哲夫: 産業廃棄物不法投棄現場における硫化水素発生抑制のための過酸化水素水ドライフォグ噴霧法の適用と効果, 第 38 回環境保全・公害防止研究発表会 (2011.11.28-29 青森市)

- 6) 寺本佳宏, 西山 亨: 揮発性有機化合物 (VOC) 発生施設に係る VOC 分析法に関する研究, 第 64 回三重県公衆衛生学会 (2012.1.13 伊勢市)
- 7) 佐来栄治: メタクリル酸 n-ブチル (水質), 平成 23 年度化学物質環境実態調査環境化学セミナー, 環境省環境保健部環境安全課(2012.1.26-27 東京都江東区)

4 他誌掲載論文

4. 1 疫学研究課

1) 三重県における 2007～2009 年度全数サーベイランスによる性器クラミジア感染症、性器ヘルペス感染症、尖圭コンジローマおよび淋菌感染症の発生状況と今後の課題

山内昭則, 高橋裕明, 福田美和, 大熊和行

日本性感染症学会誌 2011vol.22, No.1, 73-88

【要 旨】

三重県における性器クラミジア感染症、性器ヘルペス感染症、尖圭コンジローマおよび淋菌感染症の患者発生状況は、県内 15 ヶ所の指定届出医療機関による定点サーベイランスにより把握されているが、その妥当性を検証し、適切な予防や医療につなげるため、2007～2009 年度に県内の産科、婦人科等を標榜する 338 医療機関に協力を要請し、全数サーベイランスを実施した。3 年間で 115 医療機関から合計 8,848 人の患者報告が得られた。患者発生状況は、男女とも 20 歳代が多く、特に女性では 15 歳から年齢の上昇にともなって明らかな増加傾向を示し 21 歳で最多となった。また、恒常的かつ一定レベル以上に報告のあった医療機関の患者報告数を集計することにより、全体集計と同様の患者発生傾向を把握できることが明らかとなった。より正確な患者発生状況を把握するためには、患者発生率（患者数／受診者数）を指標としたサーベイランスを検討する必要性が示唆された。

2) 性感染症サーベイランス結果の地方自治体による活用の評価と支援

中瀬克己, 中谷友樹, 堀成美, 神谷信行, 高橋裕明, 山内昭則

日本性感染症学会誌 2011vol.22, No.1, 49-55

【要 旨】

性感染症サーベイランスを運営する全国自治体を対象に、その運営と結果活用の状況に関しアンケート調査を行うとともに会議において意見交換を行った。回収率は 61.5%(128/208)であった。集団発生を把握した自治体は 3 カ所あり、HIV 感染症、梅毒などに関し伝播経路調査、接触者調査を行うなどの対応を行っていたが、少数にとどまる。7 割を越える自治体がサーベイランス結果を公表・還元していたが、その評価やコメントを記している割合は 4 割と低かった。また、広報への活用や施策への反映は HIV 感染症では 6 割程度あるものの頻度の高い 4 性感染症では 3 割程度と少なかった。アウトブレイク対応、定例的結果の活用例など発生動向調査の意義を関係者に伝えるとともに、性感染症サーベイランス活用の推進には結果活用ガイドライン、注意報・警報の試行の有用性が示唆された。また、技能向上研修や業務時間確保が必要との意見もあった。

4. 2 微生物研究課

1) 三重県における集団発生事例から分離された AH3 亜型インフルエンザウイルス

矢野拓弥, 楠原 一, 赤地重宏, 片山正彦, 山口哲夫他

病原微生物検出情報 (Vol. 32 .336-337: 2011 年 11 月号)

【要 旨】

2011 年 10 月下旬、三重県四日市市の小学校と桑名市の幼稚園で集団かぜ発生に伴う防疫措置がとられ医療機関で採取された鼻汁 3 検体が当研究所に搬入された。Real-time RT-PCR 法による遺伝子検出では全員から AH3 亜型ウイルスの HA 遺伝子が検出された。MDCK 細胞によるウイルス分離においても、すべての臨床検体から初代培養 3～4 日で細胞変性が認められ、0.75%モルモット赤血球を用いた赤血球凝集 (HA) 試験を行ったところ、HA 価は 16～32 を示した。2011/12 シーズンインフルエンザウイルス同定キットにて赤血球凝集抑制 (HI) 試験による抗原解析を行った結果、分離された 3 株は抗 A/Victoria/210/2009 (H3N2) 血清 (ホモ価 2,560) に対して HI 価 160～320 を示

した。本県で昨シーズン（2010/11）の2011年1～3月に分離されたAH3亜型インフルエンザウイルス株は、Victoria/208クレードとPerth/16クレードの両クレードが確認されていた。今シーズン（2011/12）県内初発事例（2011年10月下旬）から分離されたAH3亜型インフルエンザウイルス株は、K158N, N189K, T212Aを持つVictoria/208クレードに分類された。さらにアミノ酸置換(A198S, V223I, S45N, T48I, Q33R, S278K)がみられた。

2) Reverse Transcription Loop-mediated isothermal amplification 法による新型インフルエンザウイルス (A/H1N1pdm) 迅速検出法の有用性

矢野拓弥、大熊和行

環境感染誌 Vol.26, (5), 305-310, 2011

【要 旨】

Reverse Transcription (RT) -LAMP 法による豚由来の A/H1N1pdm の検出法を検討した。A/Mie/33/2009pdm 株 ($1.56 \times 10^6 \sim 1.86 \times 10^6$ pfu/mL) を RT-LAMP 法および Real-Time RT-PCR 法の感度解析に使用した。RT-LAMP 反応は 60°C, 62.5°C および 65°C の異なる温度条件で行い、60°C での反応温度において最も優れた増幅を示した。RT-LAMP 法による検出時間は、インフルエンザ迅速診断キットで検出限界以下であった $1.56 \times 10^1 \sim 1.86 \times 10^1$ pfu/mL の A/H1N1pdm を 45 分以内に検出した。季節性インフルエンザウイルス A 型 (H1N1, H3N2), 同 B 型, インフルエンザウイルス C 型, アデノウイルス, RS ウイルス, ヒューマンメタニューモウイルス, パラインフルエンザウイルス, ボカウイルスとの交差反応は認められず, A/H1N1pdm を特異的に検出できることを確認した。以上の結果から, 今回検討した RT-LAMP 法は, 迅速に A/H1N1pdm 遺伝子を検出することが可能であり, 適切な治療判断を必要とされる臨床現場において極めて有用な診断法であると考えられた。

4. 3 衛生研究課

1) 関東平野、大阪平野、石狩平野、濃尾平野、伊勢・志摩・鈴鹿地方における大深度非火山性温泉の経年変化

宮崎哲郎 1), 森 康則 2), 青柳直樹 3), 内野栄治 3), 甘露寺泰雄 4)

1)名古屋大学名誉教授, 2)三重県保健環境研究所, 3)北海道立衛生研究所, 4)中央温泉研究所温泉科学, 61, 242-258, 2012

【要 旨】

関東平野、大阪平野、石狩平野、濃尾平野、伊勢・志摩・鈴鹿地方の5地域において、深度が1,000～2,000mの76ヶ所の非火山性地域の大深度温泉の経年変化について調べた。経年変化を調べた温泉の特性は、揚湯量、温度、全カチオン濃度（溶質濃度、Na⁺, K⁺, Ca²⁺, Mg²⁺）、Cl⁻、HCO₃⁻（少量のCO₃²⁻を含む）、およびSO₄²⁻の濃度である。温泉の特性の経年変化を10年間経過したときに変化する比率で3つの場合に大別した：減少する場合（10年間で変化する比率：<0.8）、あまり変化しない場合（10年間で変化する比率：0.8≤, <1.2）、増加する場合（10年間で変化する比率：1.2≤）。付与温度比、全カチオン濃度比、Cl⁻とHCO₃⁻（少量のCO₃²⁻を含む）の濃度比は、60～70%の温泉であまり変化しない。揚湯量比は47%の温泉であまり変化せず、一方、41%の温泉で減少した。SO₄²⁻の濃度比は88%の温泉で減少した。全温泉の温度は10年間で平均値として、3.6°C低下した。SO₄²⁻の減少がほとんどの温泉で見られたので、その減少機構を検討した。揚湯している温泉中でのSO₄²⁻の半減期は5.2～6.5年となった。一方、揚湯しない場合の温泉中での半減期は1,100年以上と非常に長い。大深度地下におけるSO₄²⁻の減少反応は拡散律速反応による可能性があり、揚湯により温泉水の拡散が促進させられ、その結果、減少反応の速度が速くなると考えられる。

4. 4 環境研究課

1) 4-(1,1,3,3-テトラメチルブチル)フェノール, 4-ノニルフェノール (分岐型, 13 異性体混合物) の分析法開発

佐来栄治他

化学物質と環境 (平成 22 年度 化学物質分析法開発調査報告書)

【要 旨】

水質試料中の 4-(1,1,3,3-テトラメチルブチル)フェノール, 4-ノニルフェノール (分岐型, 13 異性体混合物) 分析法の開発を行った。なお, 4-ノニルフェノールについては 13 異性体を個別に定量を行った。分析の概要については下記のとおりである。4-(1,1,3,3-テトラメチルブチル)フェノールと 4-ノニルフェノールのカロゲート化合物を添加した水質試料 500 mL を固相カートリッジ (Sep-Pak PS-2 plus) に約 10 mL/min で通水捕集後, 精製水 20 mL を通して洗浄し, 遠心分離器 (3000 rpm, 15 min) を用いて脱水を行い, ジクロロメタン 5 mL で溶出する。その後, 硫酸ナトリウムを用いて脱水を行い, 濃縮後, 誘導体化を行いクリーンアップ後 GC/MS で測定を行った。

この分析法の検出下限値は, 4-(1,1,3,3-テトラメチルブチル)フェノールは 0.75ng/L, 4-ノニルフェノール 0.44-2.2ng/L であり, 定量下限値は, 4-(1,1,3,3-テトラメチルブチル)フェノールは 1.9ng/L, 4-ノニルフェノール 1.1-5.6ng/L であった。また, 平均回収率(n=5)は, 4-(1,1,3,3-テトラメチルブチル)フェノールは 107%, 4-ノニルフェノール 93-107% であった。

2) <特集>第 5 次酸性雨全国調査報告書 (平成 21 年度)

全国環境研協議会 酸性雨広域大気汚染調査研究部会

解析委員 (執筆担当) 西山 亨 他

全国環境研誌, 36(3), 2-146, 2011

【要 旨】

全国環境研協議会による酸性雨全国調査は 1991 年度からの第 1 次調査に始まり、現在 2009 年度からの第 5 次調査を実施している。第 1 次調査では、ろ過式採取法による降水の調査を行い、第 2 次調査では流跡線解析による酸性雨物質の移流の可能性を調査し、第 3 次調査では、湿性沈着調査 (降水時開放型捕集装置) に加えて乾性沈着調査 (4 段ろ紙法) を行い、第 4 次調査では、第 3 次調査に加えてパッシブ法を導入して調査を行ってきた。

第 5 次調査の目的は、日本全域における酸性沈着による汚染の実態を把握することであり、①国際標準の方法である降水時開放型捕集装置 (ウェットオンリーサンプラー) による湿性沈着の把握、②自動測定機、国際的モニタリングネットワークでも用いられているフィルターパック法およびパッシブ法による乾性沈着成分 (ガス/エアロゾル) 濃度の把握、③インファレンシャル法による乾性沈着速度算出および乾性沈着量評価、以上の 3 つが主なテーマである。第 5 次調査の特徴としては、①第 4 次調査から準備年をおかずに継続していること、②パッシブ法を 0 式に統一することにより、広域の解析・とりまとめを目指すこと、③アンモニア・アンモニウムの成分ごとの評価をめざすことなどがあげられる。

この調査研究は、全国約 60 の地方環境研究所との共同調査研究である。

Ⅱ 研究報告

ノート

食品収去検査におけるアレルギー物質の検出状況 (2004年度～2011年度)

一色 博, 林 克弘, 原 有紀, 佐々木 恵, 志村恭子

Examples on the Detection of Allergenic Substances in Commercial Foods in Mie Prefecture(April 2004～March 2012)

Hiroshi ISSHIKI, Katsuhiko HAYASHI, Yuki HARA, Megumi SASAKI and Kyoko SHIMURA

アレルギー物質を含む食品については, 特定のアレルギー体質を持つ者の健康被害の発生を防止する観点から, 2001年4月に特定原材料5品目の表示について法的に義務化され, 2008年6月からは, えび・かにの2品目を追加し現在に至っている(いずれも1年間の経過措置を経て実施)。当研究所では, 2004年度に比較的アレルギーの多い卵と乳の2項目について, スクリーニング検査および確認検査を開始した。2005年度には卵, 乳, そば, 落花生の4項目について, 2006年度からは, 小麦を加えて5品目について, 2010年度からは, えび・かにを加えて7品目について検査を実施している。この間, 卵, 乳, そば, 小麦, えびについてアレルギー物質が検出されたが, 小麦については, スクリーニング試験と確認試験で, 一部一致しない事例があった。

キーワード: アレルギー物質, 特定原材料, 卵, 乳, そば, 小麦, 落花生, えび・かに

はじめに

食物アレルギーは, 食物を摂取した後, 原因となるタンパク質が免疫学的機序を介して, じんましん, 湿疹, 嘔吐, 下痢, 呼吸困難などのほか, 重篤な場合はアナフィラキシーによるショックを引き起こし, 生命の危険がある。患者によりアレルギー症状も多様であり, 症状から原因物質を推定することは困難なため, 未然に原因物質を摂取しないようにすることが大切で, そのためには食品に適正なアレルギー表示がなされることが重要である。検査方法は, 通知¹⁾に従い, スクリーニング検査はELISA法とし, 陽性となった場合は, 確認検査として, 卵, 乳はウェスタンブロット法, それ以外はPCR法により行うこととなっている。また, 特定原材料等の範囲については, 消費者庁の「アレルギー物質を含む食品に関する表示Q&A」²⁾に説明があり, 例えば小麦の場合,

大麦, ライ麦は含まないとしている。小麦のスクリーニング検査(ELISA法)では, 大麦やライ麦にも交差反応による偽陽性反応がでるが, 確認検査(PCR法)により小麦が識別できる。当所では, 2004年度から検査を実施³⁾したので, 2011年度までの検出状況について報告する。

検査方法

1. 試料

保健所職員により収去された加工食品。

2. 主な機器および試薬

1) スクリーニング検査 (機器)

マイクロプレートリーダー: Model 550 (BIO-RAD 製) および Multiskan FC (サーモフィッシュャーサイエンティフィック (株) 製)

表1 アレルギー物質検査で収去された主な食品とアレルギー物質が検出された食品

対象とするアレルギー物質	収去食品	アレルギー物質が検出された食品
卵	クラッカー、クリームサンドビスケット、あられ、米菓子、スナック菓子、さば醤油煮、かまぼこ、和生菓子、三色だんご、がんもどき、まんじゅう、むし焼きそば、ゆで中華めん、フランクフルト、コーヒーゼリー、プリン、駄菓子、ハンバーグ、ミートボール等	むし焼きそば、ゆで中華めん、和生菓子、フランクフルト
乳	スナック菓子、せんべい、フルーツソース、かた焼き、カステラ、ウインナーソーセージ、和風きのこ、ミートソース、しじみ、和生菓子、焼き菓子、どら焼き、わらび餅、あられ、ビスケット、パイ菓子、豆腐ドーナツ、バタークッキー、ようかん、ゼリー、芋菓子等	豆腐ドーナツ、スナック菓子、ビスケット、バタークッキー、焼き菓子
そば	干しうどん、うどん、そうめん、あられ、やきそば、ひやむぎ、カップうどん、きしめん、味噌煮込みうどん、パン粉、もち菓子、抹茶めん、から揚げ粉等	干しうどん、うどん
落花生	米菓子、スナック菓子、揚げ菓子、よもぎ餅、せんべい、ビスケット、クッキー、パピロ、あられ、カステラ、生和菓子等	
小麦	ゆであずき、ようかん、米菓子、かまぼこ、黒糖揚げ、ゼリー、ラムネ、ちくわ、もち菓子、もなか、黒こしょうあられ、赤だし味噌、白味噌、フルーツジュース、氷みつ、ようかん、ぜんざい、乳ボーロ、スナック菓子、タマゴボーロ、干しそば、くずまんじゅう、和生菓子等	干しそば、スナック菓子、くずまんじゅう、和生菓子、タマゴボーロ、味噌
えび・かに	中華焼餅、ぎょうざ、ひじきのり、もずく、つゆ、いわし干物、あじフライ、冷凍ぶり切身、あられ、お茶漬け、いか干物、かまぼこ、はんぺい、ちくわ、どんぶりのもと、かた焼き、せんべい、魚肉練り製品等	魚肉練り製品

表2 三重県におけるアレルギー物質を含む食品の検査状況

年度	対象とするアレルギー物質						年度計
	卵	乳	そば	落花生	小麦	えび・かに	
2004	10	10(1)	—	—	—	—	20(1)
2005	10	10	10	9	—	—	39(0)
2006	11	12(1)	10	10	10(3)	—	53(4)
2007	11(2)	10	10(1)	9	10(1)	—	50(4)
2008	11(1)	11(1)	11(1)	10	12(3)	—	55(6)
2009	16(1)	16(1)	16	16	17<3>	—	81(2)<3>※
2010	13	13(1)	13	13	13<1>	13	78(1)<1>
2011	11	11	11	11	11	16(2)	71(2)
小計	93(4)	93(5)	81(2)	78(0)	73(7)<4>	29(2)	447(20)<4>

※ 括弧外の数字は検査数、()内は検出数、< >内はELISA法で陽性、PCR法で陰性となった数、—は検査せず。

(試薬)

2005年度以前：(株)森永生科学研究所製 モリナガ測定キット(卵、乳、そば、小麦、落花生)、日本ハム(株)製 FASTKIT エライザシリーズ(卵、乳、そば、小麦、落花生)

2006年度以降：(株)森永生科学研究所製 モリナガ FASPEK 測定キット(卵、乳、そば、小麦、落花生)、日本ハム(株)製 FASTKIT エライザ Ver. II 測定キット(卵、乳、そば、小麦、落花生)、(株)マルハニチロ食品製 甲殻類キット「マルハ」、日水製薬(株)製 FA テスト EIA-甲殻類「ニッスイ」

2) 確認検査(ウエスタンブロット法)

(機器)

電気泳動装置：BIO-RAD 製 Mini PROTEAN 3Cell, ブロッティング装置：BIO-RAD 製 TRANS-BLOT SD Cell

(試薬)

2010年1月まで：(株)森永生科学研究所製 モリナガウエスタンブロットキット(卵白アルブミン、オボムコイド、カゼイン、 β -ラクトグロブリン)

2010年2月以降：(株)森永生科学研究所製 モリナガ FASPEK ウエスタンブロットキット(卵白アルブミン、オボムコイド、カゼイン、 β -ラクトグロブリン)

3) 確認検査(PCR法)

(機器)

サーマルサイクラー：アプライドバイオシステム製 Gene Amp PCR System 9700

電気泳動装置：コスモバイオ(株)製 i-Mupid

(試薬)

DNeasy Plant Mini キット, Genomic-tip 20G, Genomic DNA Buffer Set, Proteinase K, RNaseA (いずれも QIAGEN 製), α -アミラーゼ(SIGMA 製), CTAB (和光純薬工業(株)製), 植物DNA検出用プライマー対(オリエンタル酵母(株)製), 小麦およびそば検出用プライマー対(オリエンタル酵母(株)製), えびおよびかに検出用プライマー対((株)ファスマック製), 制限酵素HaeIII (タカラバイオ(株)製), Seakem GTG Agarose および NuSieve 3-1 Agarose (Lonza Rockland, Inc. 製)

3 検査方法

1) スクリーニング検査

各項目ごとに、通知に従い2種類のELISA法によるキットを用いて実施し、抗原タンパク質濃度が10 μ g/g以上を陽性と判定し、確認検査を実施

した。

2) 確認検査

卵、乳のスクリーニング検査で陽性となった場合、ウエスタンブロット法によりそれぞれ2種類のタンパク質(卵：卵白アルブミン・オボムコイド、乳：カゼイン・ β -ラクトグロブリン)について確認検査を行った。小麦、そば、落花生、えび・かにのスクリーニング検査で陽性となった場合、PCR法により確認検査を実施した。PCR法を実施するためのDNA抽出・精製については、シリカゲル膜タイプキット法、イオン交換樹脂タイプキット法、CTAB法のうち、DNA純度が1.2~2.5のものを使用するか、3法ともこの基準を満たさない場合、最も基準に近いものを用いてPCRを実施した。

結果

表1にアレルギー物質検査で収去された主な食品とアレルギー物質が検出された食品を、表2に三重県におけるアレルギー物質を含む食品の検出状況を示した。アレルギー物質は検査を始めた2004年度は、卵10件、乳10件について実施し、乳で1件(豆腐ドーナツ)検出された。2005年度は、卵、乳に加え、そば、落花生、小麦について実施したが、いずれでも検出されなかった。2006年度~2009年度は、当時の特定原材料の5品目についてすべて実施した。2006年度は、乳1件(ビスケット)、小麦3件(干しそば、スナック菓子2種類)で検出された。2007年度は、卵2件(むし焼きそば、ゆで中華めん)、そば1件(干しうどん)、小麦1件(和生菓子)で検出された。2008年度は、卵1件(生菓子)、乳1件(手作りバタークッキー)、そば1件(うどん)、小麦3件(くずまんじゅう、餅菓子、タマゴボーロ)で検出された。2009年度は、卵1件(あらびきフランク)、乳1件(焼菓子)、小麦1件(赤だし味噌)で検出されたが、スクリーニング検査で陽性だった小麦が確認検査で陰性となった。2010年度、2011年度は、えび・かにを追加し、2010年度は、乳1件(スナック菓子)、小麦1件(赤だし味噌)で検出されたが、小麦は、2009年度と同様、確認検査で陰性となった。2011年度は、えび・かに2件(ちぎりいか、はんぺい)で検出され、確認検査で2件ともえびが陽性であった。

考察

当所でアレルギー物質の検査を実施してから8年が経過し、検出数の多かった2008年度の6件、2009年度の5件からみると、若干減ったように思われるが、まだまだ注意喚起表示も含め、

アレルギー表示されていないものもある。

2009 年度、2010 年度にスクリーニング検査で陽性、確認検査で陰性となった小麦は全て豆味噌であった。これは、豆味噌の製造過程で、風味付けに使用される大麦由来の香煎が ELISA 法で交差性のあることから、使用された香煎が影響したものと考えられた。また、味噌からの DNA 抽出についてもまだ改良の余地があることから、今後、引き続き検討する必要がある。

えび・かにについては、抗原タンパク濃度が $10\mu\text{g/g}$ 未満であるものの、検出される事例が多く見られるため、今後も注視する必要がある。

文 献

1) 2011 年 9 月 10 日付け消食表第 286 号消費者庁次長通知「アレルギー物質を含む食品の検査方法について」。

2) 2009 年 1 月 22 日付け食安基発第 0122001 号厚生労働省医薬食品局食品安全部基準審査課長通知・食安監発第 0122002 号同部監視安全課長通知「アレルギー物質を含む食品に関する表示について」の別添 2「アレルギー物質を含む食品に関する表示 Q & A」。

3) 大垣有紀：三重県におけるアレルギー物質を含む食品の検出事例，2007 年度地方衛生研究所全国協議会東海・北陸支部衛生化学部会，p.7.

ノート

強壮目的健康食品中の医薬品成分の一斉分析法の検討

原 有紀, 竹内 浩, 林 克弘, 志村恭子

Determination of Medicinal Compounds in Dietary Supplements with Suggestive Expression for Sexual Enhancement

Yuki HARA, Hiroshi TAKEUCHI, Katsuhiko HAYASHI and Kyoko SHIMURA

PDA-HPLCおよびLC/MS/MSを用いた強壮目的の医薬品7成分の一斉分析法について検討した。PDA-HPLC測定により保持時間および吸収スペクトル情報が、LC/MS/MS測定により保持時間およびMSスペクトル情報が得られたことから、検出時の定性的判断が可能となった。PDA-HPLCによる検量線は、7成分いずれも0.5~20 μ g/mLの範囲で良好な直線性を示した。試料100mgに対する検出限界は0.05mg/g、定量限界は0.2mg/gであった。試買した4製品（カプセル剤、液剤、粉剤、錠剤）を用いて添加回収実験を行ったところ、回収率97.8~107.5%、相対標準偏差はいずれも5%未満で良好な結果だった。本法を用いて試買した10製品の分析を行った結果、いずれの製品からも今回対象とした医薬品成分は検出されなかった。

キーワード：いわゆる健康食品、無承認無許可医薬品、強壮成分

はじめに

近年、セルフメディケーションの考え方が浸透し、健康や美容に対する関心が高まるとともに、多種多様な「いわゆる健康食品」がインターネットやドラッグストア等で手軽に購入できるようになった。しかし、これらの「いわゆる健康食品」の中には衛生管理や安全・品質管理が徹底されていない製品もあり、なかには健康に悪影響を及ぼす危険性のある製品もある。特に医薬品成分やその類似化合物が配合されている製品（無承認無許可医薬品等）の摘発事例が後を絶たず、医薬品に匹敵する薬効や未知の生理活性（副作用）により重篤な健康被害が発生している事例がある¹⁾。このため、健康被害の未然防止の観点から、迅速で正確な無承認無許可医薬品等の試験法の開発及び検査体制の整備が求められている。

そこで、今回健康被害発生時や違反発見時等における迅速な対応、平時における行政検査への適用を目指し、特に検出事例の多発している強壮成分を対象とした検査法の確立および検査体制の整備について、以下の検討を行ったので、その詳細を報告する。

実験方法

1. 対象成分

本研究における対象成分は、強壮目的の医薬品7成分（シルデナフィル、ホモシルデナフィル、ヒドロキシホモシルデナフィル、バルデナフィル、プソイドバルデナフィル、タダラフィル、アミノタダラフィル）とした。図1にそれぞれの構造式を示した。

2. 試料

平成23年度に、三重県内の販売店で試買した14製品を用いた。

3. 試薬

シルデナフィルクエン酸塩は国立医薬品食品衛生研究所より分与されたものを用いた。ホモシルデナフィル、ヒドロキシホモシルデナフィル、バルデナフィル、プソイドバルデナフィル、タダ

表1 強壮7成分のLC/MS/MSパラメータ

強 壮 成 分	分子量	MRMトランジション	DP(V)	CE(V)
シルデナフィル	474.2	475.0/ 58.0	114	61
ホモシルデナフィル	488.2	489.0/ 72.0	123	78
ヒドロキシホモシルデナフィル	504.2	505.0/ 99.0	86	79
バルデナフィル	488.2	489.0/ 72.0	138	65
プソイドバルデナフィル	459.2	460.0/151.0	110	57
タダラフィル	389.1	390.0/268.0	90	15
アミノタダラフィル	389.1	391.0/269.0	80	17

ラフィルおよびアミノタダラフィルは関東化学(株)製標準試薬を用いた。

メタノールは関東化学(株)製高速液体クロマトグラフ用、アセトニトリルは和光純薬工業(株)製高速液体クロマトグラフ用を用いた。

4. 標準溶液

各標準品を適量採り、メタノールに溶解して1000μg/mLの各原標準溶液を調製した。必要に応じてさらにこれらをメタノールで段階的に希釈して用いた。

5. 装置及び測定条件

1) PDA-HPLC

液体クロマトグラフ：(株)島津製作所製 LC-20A

検出器：同社製 SPD-M20A

カラム：東ソー社製 TSK-GEL ODS-80Ts (4.6mm i.d.×150mm, 5μm)

カラム槽温度：40°C

移動相：A 液 水/アセトニトリル/リン酸混液 (900:100:1, 5mmol/L ヘキサンスルホン酸ナトリウム含有), B 液 水/アセトニトリル/リン酸混液(100:900:1, 5mmol/L ヘキサンスルホン酸ナトリウム含有)

グラジエント条件：0min (A:B=90:10)→25min (A:B=55:45) →45min (A:B=10:90) →48-60min (A:B=90:10)

流速：1mL/min

測定波長：200-400nm (定量波長 220nm)

注入量：10μL

2) LC/MS/MS

装置：高速液体クロマトグラフ・タンデム質量分析計

LC：(株)島津製作所製 Prominence UFLC

MS：ABSciex 社製 API4000QTRAP

カラム：(財)化学物質評価研究機構製 L-column2

ODS (2.1mm i.d.×150mm, 3μm), ガードカラム：

(財)化学物質評価研究機構製 L-column2 ODS

(2.0mm i.d.×50mm, 5μm)

カラム槽温度：40°C

移動相：A 液 0.1%ギ酸水溶液

B 液 0.1%ギ酸アセトニトリル溶液

グラジエント条件：0min (A:B=80:20)→50-55min

(A:B=20:80) →58-65min (A:B=80:20)

流速：0.2mL/min

イオン化法：ESI(+)

イオンスプレー電圧：5500V

イオン源温度：400°C

注入量：5μL

なお、質量分析計の詳細なパラメータは、表 1 に示した。

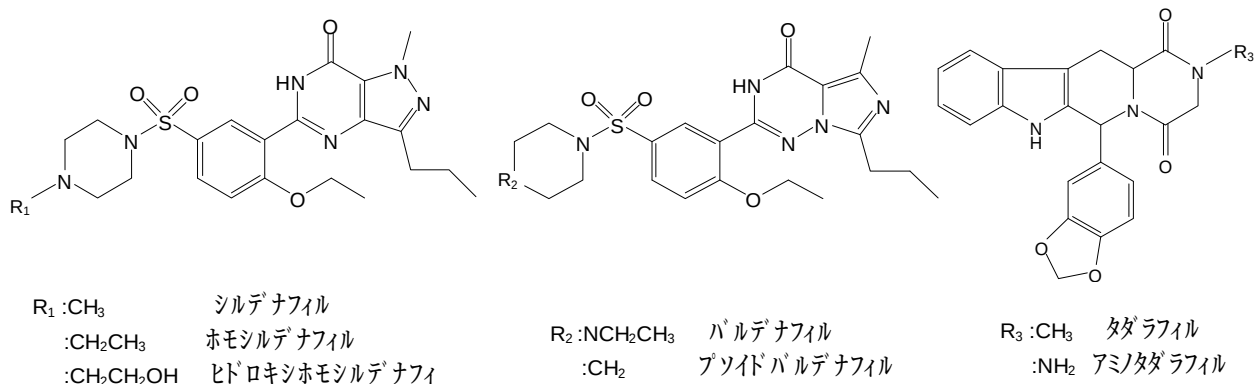


図1 強壮目的の医薬品成分の構造式

6. 試験溶液の調製法

製品の剤形が、散剤および液剤のものは混和し、そのまま供した。錠剤は、乳鉢を用いて磨砕し粉末にした。カプセル剤は、基剤と内容物に分け、内容物は混和した。

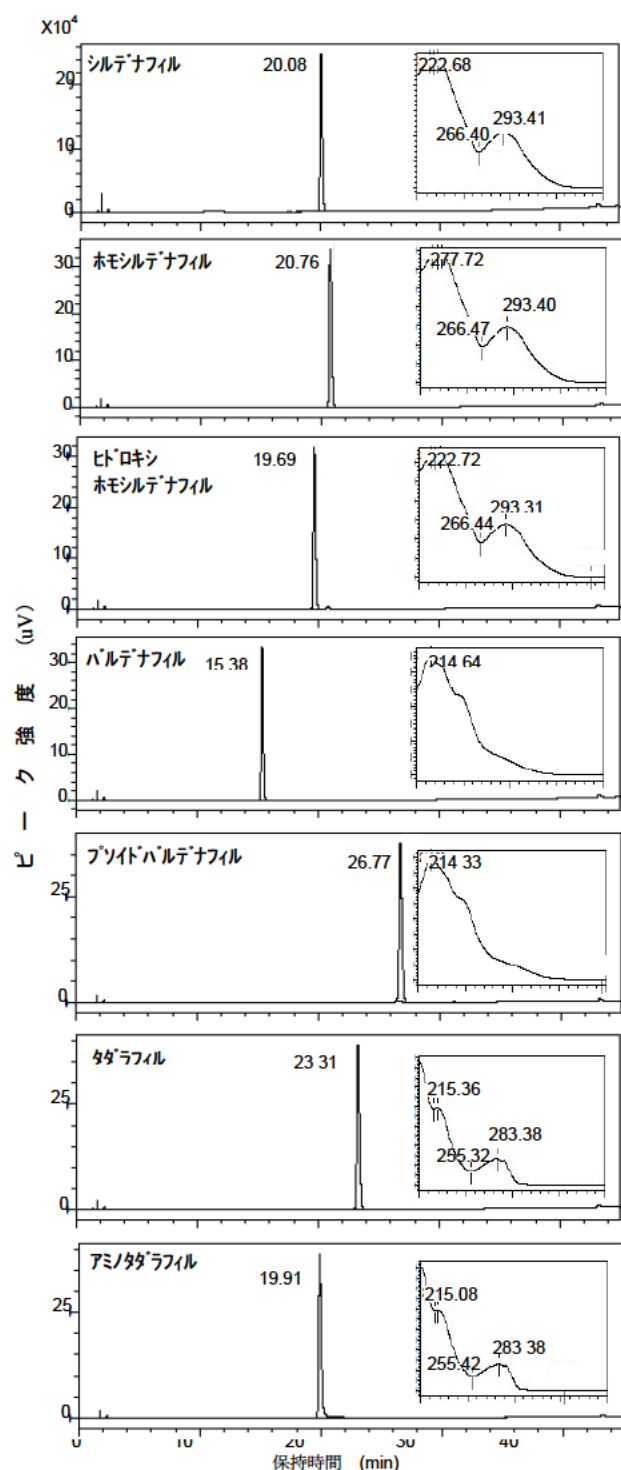


図2 強壮7成分のHPLCクロマトグラムおよび吸収スペクトルグラム

これらの試料 100mg を採取し、70%メタノール 10mL を加えて、15 分間超音波抽出を行った。この溶液をメンブランフィルター (0.45 μ m) でろ過し、試験溶液とした。

カプセル基剤については、別途以下の方法で抽出した。試料約 100mg (1 カプセル分) に水 3mL を加え、加温して基剤を溶解した。この水溶液にアセトニトリル 7mL を加え、15 分間超音波抽出を行った。この溶液をメンブランフィルター (0.45 μ m) でろ過し、試験溶液とした。

結果および考察

1. 測定条件の検討

1) PDA-HPLC

最も汎用性が高く、また定量を行う際に有用な PDA-HPLC を用いた測定条件について検討を行った。測定条件は、西條らの方法²⁾を参考にした。

7 種の各標準溶液を測定し、保持時間および吸収スペクトル情報を収集した。その結果を表 2 および図 2 に示す。シルデナフィルおよびその類似

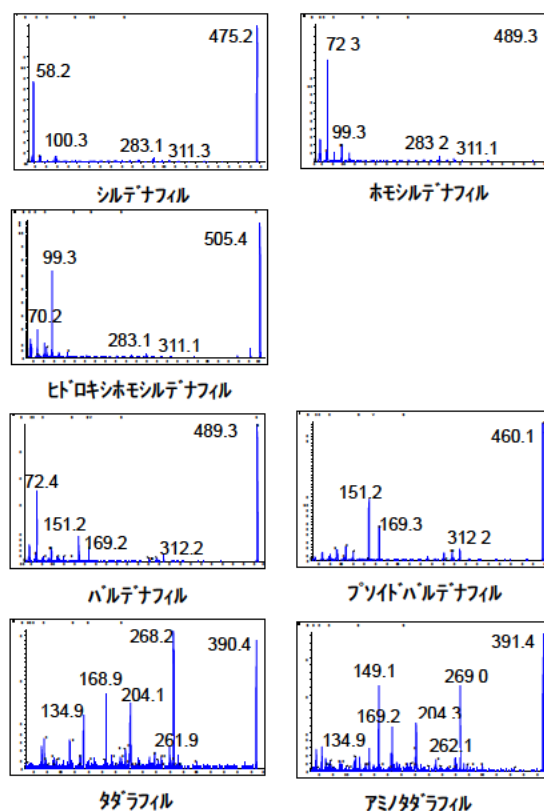


図3 強壮7成分のMSスペクトルグラム

表2 強壮7成分の保持時間、検量線の直線性および検出限界、定量限界

強 壮 成 分	保持時間 (min)	濃度範囲 ($\mu\text{g/mL}$)	相関係数	検出限界 (mg/g)	定量限界 (mg/g)
シルденаフィル	20.08	0.5-20	0.9999	0.05	0.2
ホモシルденаフィル	20.76	0.5-20	0.9999	0.05	0.2
ヒドロキシホモシルденаフィル	19.69	0.5-20	0.9999	0.05	0.2
バルденаフィル	15.38	0.5-20	0.9999	0.05	0.2
プソイドバルденаフィル	26.77	0.5-20	0.9999	0.05	0.2
タダラフィル	23.31	0.5-20	0.9999	0.05	0.2
アミノタダラフィル	19.91	0.5-20	0.9986	0.05	0.2

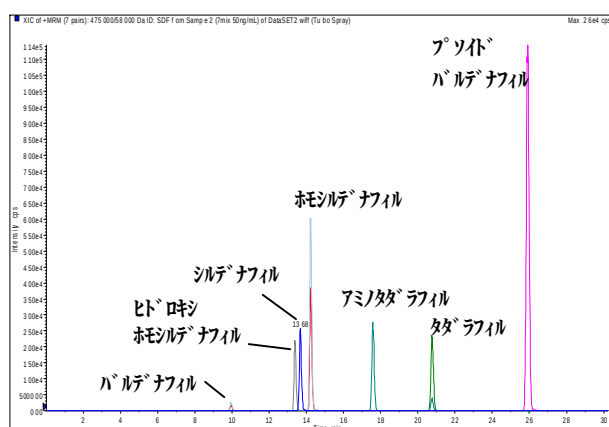


図4 7種強壮成分のLC/MS/MSクロマトグラム

成分は、保持時間が非常に近かった。また吸収スペクトルのパターンも非常に類似していて、どの成分かを特定するには、他の測定機器のデータと併せて判断する必要があると考えられた。同様に、タダラフィルとその類似成分、バルденаフィルとその類似成分も、吸収スペクトルはそれぞれ非常に類似していたが、保持時間は十分離れていて、良好に分離された。

2) LC/MS/MS

製品から検出のあった場合、PDA-HPLCとは異なる測定機器で確認を行う必要がある。そこで、選択性に優れ、確認試験に有用と考えられるLC/MS/MSを用いた測定条件について検討を行った。測定条件は、大嶋らの方法³⁾を参考にした。

最初にQ3スキャンモードで、各成分のMSスペクトル情報を収集した。その結果を図3に示す。いずれも $[\text{M}+\text{H}]^+$ で示される、Q1イオンからのフラグメンテーションパターンが観察された。ただしアミノタダラフィルについては、プロトンが2つ付加した $[\text{M}+2\text{H}]^{2+}$ の方が感度が高かったため、これをQ1イオンに設定した。

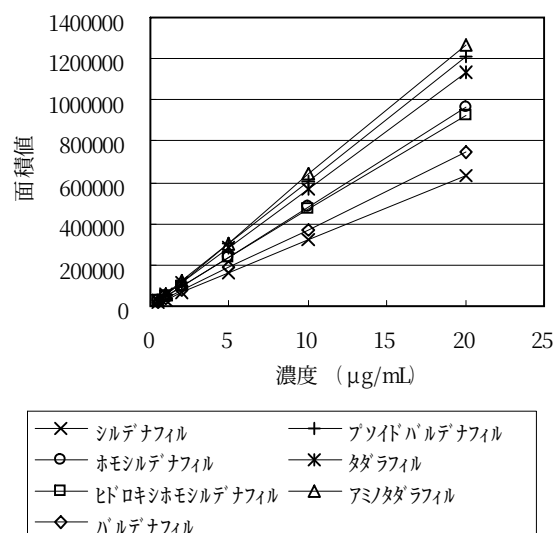


図5 強壮7成分の検量線

図1に示した測定対象成分の構造式からもわかるように、シルденаフィル、タダラフィル、バルденаフィルとそれぞれの類似成分は化学構造が非常に類似していることから、フラグメンテーションのパターンも各々類似していた。このMSスペクトル情報は、疑わしいピークが検出された際に定性的に判断する材料として非常に有用と考えられる。

次に、MSスペクトル情報を参考に強度の強いイオンをQ3イオンに選択し、各々MRMトランジションを設定した(表1参照)。測定条件に従って7種混合標準溶液を測定した結果を図4に示す。いずれの成分も良好に分離されていることが確認できた。LC/MS/MSは選択性が高く、夾雑ピークの影響が小さいことから、医薬品成分の存在の有無を確認するスクリーニング検査として、非常に有用であると考えられた。

2. 検量線および検出限界、定量限界の検討

製品からの検出の有無は、PDA-HPLC測定で

表3 各種製品への標準添加回収率

強 壮 成 分	回収率 (%)			
	カプセル剤	液 剤	粉 剤	錠 剤
シルデナフィル	113.9 ± 0.89	104.6 ± 0.26	106.7 ± 0.40	107.5 ± 0.83
ホモシルデナフィル	101.1 ± 1.65	101.8 ± 0.20	103.2 ± 0.53	103.9 ± 1.01
ヒドロキシホモシルデナフィル	103.1 ± 1.02	101.3 ± 0.32	103.1 ± 0.58	103.5 ± 1.18
バルデナフィル	101.3 ± 2.21	102.4 ± 0.58	105.2 ± 0.72	105.5 ± 0.96
ブソイドバルデナフィル	102.4 ± 0.88	101.8 ± 0.49	99.0 ± 3.85	105.1 ± 0.39
タダラフィル	106.3 ± 0.26	101.0 ± 0.38	102.3 ± 0.74	104.4 ± 0.89
アミノタダラフィル	99.7 ± 1.03	100.9 ± 0.14	97.8 ± 3.22	103.6 ± 0.71

データは平均値±SDを表す (n=5)

の保持時間および吸収スペクトル, LC/MS/MS 測定での保持時間および各Q1 イオンのQ3 スキャンによる MS スペクトルから総合的に判断することとなる。その結果, 強壮成分の検出と判断された場合には PDA-HPLC で定量を行うため, 検量線および検出限界, 定量限界については PDA-HPLC を用いて検討することとした。

7 種の医薬品成分の検量線の直線性を確認した。0.5~20 μ g/mL の濃度範囲で測定を行い, 検量線を作成したところ, 表 2 および図 5 に示すとおり良好な直線性を示した。

検出限界をクロマトグラム上の S/N 比 3 とすると標準溶液濃度 0.5 μ g/mL であり, 試料中濃度に換算すると 0.05mg/g であった。同様に定量限界をクロマトグラム上の S/N 比 10 とすると標準溶液濃度 2 μ g/mL で, 試料中濃度に換算すると 0.2mg/g であった。

3. 添加回収実験

いわゆる健康食品には, 様々な剤形のものが製造販売されている。今回, より多様な剤形に対応できるよう, カプセル剤, 液剤, 粉剤, 錠剤の 4 種類の試買した製品を用いた。

添加濃度については, 次のように考察した。シルデナフィルの用法用量は, 1 日 1 回 50~100mg で, 25mg に減量しても可とされている。そこで 25mg の 10 分の 1 量にあたる, 2.5mg を定量することを目指し, 添加濃度は 1mg/g (試験溶液あたり 10 μ g/mL) とした。(今回使用する上記の 4 種類の製品の摂取量は, それぞれ 1 回 2 カプセル (720mg), 1 本 (30mL), 1 回 2 さじ (2g), 1 回 7 粒 (270mg/粒 $\times$ 7 粒=1.89g))

添加回収実験は, 100 μ g/mL の各標準溶液 1mL を添加して抽出を行い, PDA-HPLC 測定を行った。その結果を表 3 に示す。回収率は, カプセル剤で 99.7~113.9%, 液剤で 100.9~104.6%, 粉剤で 97.8~106.7%, 錠剤で 103.5~107.5% であった。相対標準偏差はいずれも 5%未満で, 安定したデータが得られた。

この結果から, 様々な剤形の製品でこの方法が適用可能であると判断された。

4. 市販品の実態調査

本法を用いて, 試買した 10 製品の分析を行った (カプセル剤 2 製品, 液剤 4 製品, 錠剤 3 製品, ゼリータイプ 1 製品)。その結果, いずれの製品からも今回対象とした医薬品成分は検出されなかった。

まとめ

いわゆる健康食品中医薬品成分 (強壮目的 7 成分) の分析法を検討し, 以下の結果を得た。

1. PDA-HPLC を用いて強壮目的 7 成分を測定し, 保持時間, 吸収スペクトル情報を, LC/MS/MS を用いて Q3 スキャンによる MS スペクトル情報, MRM による保持時間情報を得た。
2. PDA-HPLC による検量線は, 医薬品 7 成分のいずれも 0.5~20 μ g/mL の範囲で良好な直線性を示した。
3. 試料 100mg に対する検出限界は 0.05mg/g, 定量限界は 0.2mg/g であった。
4. 試買した 4 製品 (カプセル剤, 液剤, 粉剤, 錠剤) を用いて添加回収実験を行ったところ, 回収率 97.8~113.9%, 相対標準偏差はいずれも 5%未満で良好な結果だった。
5. 本法を用いて試買した 10 製品の分析を行った結果, いずれの製品からも今回対象とした医薬品成分は検出されなかった。

今回, 強壮目的の医薬品 7 成分についての分析法を確立することができた。本法は健康危機発生時のみならず, 平時の行政検査として有効なものと考えられる。

文 献

- 1) 厚生労働省ホームページ, 健康被害情報・無承認無許可医薬品情報, http://www.mhlw.go.jp/kinkyu/diet/musyouni_n.html.

- 2) 西條雅明，石井俊靖，長谷川貴志，永田知子：「いわゆる健康食品」中の医薬品成分分析について，千葉県衛生研究所年報，No.55，74-78(2006) ．
- 3) 大嶋智子，宮本伊織，山口之彦：健康食品

中の強壮，ダイエット，催眠および血糖降下薬に関連する医薬品 15 成分の液体クロマトグラフ／タンデム質量分析計 (LC/MS/MS)による一斉分析法の検討，日本食品化学学会誌，17，171-178(2010)．

ノート

固相抽出を用いた食品中不揮発性アミン類分析法の検討

竹内 浩，一色 博，澤田陽子，林 克弘，前田千恵，
原 有紀，竹川雄太，村田 将，志村恭子

Determination of Nonvolatile Amines in Foods by Solid-Phase Extraction

Hiroshi TAKEUCHI, Hiroshi ISSHIKI, Yoko SAWADA, Katsuhiko HAYASHI,
Chie MAEDA, Yuki HARA, Yuta TAKEKAWA, Sho MURATA and Kyoko SHIMURA

健康危機発生の現場において、ヒスタミンをはじめとする不揮発性アミン類は、事案件数の極めて多いアレルギー様食中毒の原因物質である。健康危機発生時の迅速な対応が求められる中で、本研究は前処理を含めた測定時間の短縮化に着目し、健康危機発生対応に適した不揮発性アミン類の分析法を開発するため、既法の前処理方法を含めた測定法の分析検討を行った。陽イオン交換樹脂のミニカラムを用いた精製方法を検討した結果、迅速に測定溶液の調製を行うことが可能となった。添加回収実験の結果、回収率79.5～118.9%，相対標準偏差1.1～9.7%と良好な結果が得られた。今後の健康危機発生時において、本研究により改良した分析法が適用可能となった。

キーワード：ヒスタミン，不揮発性アミン類，固相抽出，高速液体クロマトグラフィー

はじめに

ヒスタミンは、食品中のタンパク質やアミノ酸から主に微生物分解によって生成される食中毒の原因物質である。高濃度に含有する食品を摂取することにより、顔面紅潮，口部灼熱感とともに頭痛や蕁麻疹等を発症する。現在，Codex，EU，米国，カナダ等において，それぞれの基準値が定められているが，我が国においては食品衛生法に基づく基準値は設定されていない。一方，ヒスタミン以外の不揮発性アミン類も同様に基準値は定められていないが，チラミンはヒスタミン同様に頭痛，動悸などのアレルギー様食中毒症状を引き起こすことや，同じくカダベリンは，食中毒症状を促進させる作用があることが知られており¹⁾，健康危機発生時の対応のためには，多様な不揮発性アミン類の分析法を確立する必要がある。

全国的にヒスタミンによる食中毒などの健康危機発生事例が頻発する中で，当所においても，これまでに有症苦情事例において年間数件の食品中のヒスタミン分析などを行っている。これま

で当所では，衛生試験法・注解 1990 付・追補(1995)に基づき，イオン交換樹脂（アンバーライト・GC-50 Type I，100～200 メッシュ）を用いた分析法を採用してきたが，この方法は分析対象項目がヒスタミンのみであるだけでなく，イオン交換樹脂の活性化に長時間を要し，また多くの酸溶液を消費し，操作が煩雑であるという欠点がある。不揮発性アミン類の分析の多くは健康危害発生時に行われることを考慮すると，短時間で前処理することができ，また HPLC を用いて測定する方が実用性が高いものと考えられる。

そこで，本研究では，前処理を含めた測定時間の短縮化に着目して，既法の前処理法を含めた測定法を改良するなど，健康危機発生対応に適した不揮発性アミン類の分析法について検討した。その結果，良好な結果が得られたので以下に報告する。

実験方法

1. 試料

市販されているさばの味噌煮（缶詰），チーズ，赤ワインを用いた．

2. 試薬

1) 不揮発性アミン類標準試薬

ヒスタミン二塩酸塩，チラミン塩酸塩およびカダベリン二塩酸塩は和光純薬工業（株）製を用いた．

2) 有機溶媒

アセトンは関東化学（株）製残留農薬試験用，メタノールは同社製高速液体クロマトグラフィー用を用いた．

3) その他の試薬

トリクロロ酢酸，炭酸カリウム，水酸化ナトリウム，酢酸ナトリウム，リン酸二水素カリウム，テトラブチルアンモニウムブロミドおよびギ酸は和光純薬工業（株）製特級，ホウ酸はナカライテスク（株）製特級，フルオレスカミンは東京化成（株）製を用いた．

4) 固相抽出ミニカラム^{1,2)}

ジーエルサイエンス社製 InertSep MC-1 (200mg/10mL) を用いた．予めメタノール，水および 25mmol/L リン酸緩衝液 (pH6.8) 各 5mL でコンディショニングした．

3. 標準溶液

標準溶液：各標準試薬を適量採り，水に溶解して 2,000 μ g/mL の各標準溶液を調製した．

混合標準溶液：標準溶液をそれぞれ 10mL ずつ混合し，水で 40mL に定容した (500 μ g/mL) ．

4. 装置および測定条件

1) ホモジナイザー

（株）日本精機製作所製 エクセルオートホモジナイザー

2) RF-HPLC

液体クロマトグラフ：（株）島津製作所製 LC-10AD_{VP}

蛍光検出器：同社製 RF-10A_{XL}

カラム：（財）化学物質評価研究機構製逆相カラム
L-column ODS (4.6mm i.d. $\times$ 150mm, 5 μ m)

カラム槽温度：45 $^{\circ}$ C

移動相：A 液 0.05mol/L 酢酸緩衝液 (0.005mol/L テトラブチルアンモニウムブロミド含有, pH6.6) , B 液 メタノール

B 液：50% (2min) $\rightarrow$ 70% (12min) $\rightarrow$ 85% (15min)

流速：1.0mL/min

検出波長：励起波長 390nm, 蛍光波長 480nm

試料注入量：50 μ L

5. 試験溶液の調製

1) 抽出法

均一化した固体試料 10.0g に 3%トリクロロ酢酸溶液 20mL を加えホモジナイズ抽出後，4 $^{\circ}$ C 5,000rpm で10分間遠心分離し上清をろ過 (No.5A) した．残留物に 3%トリクロロ酢酸溶液 20mL を加え5分間振とう抽出後，同様に遠心分離し上清をろ過した．得られたろ液 (1) (2) を合一し，3%トリクロロ酢酸溶液で 50mL に定容し，抽出液とした．液体試料の場合は，試料 10.0g に 3%トリクロロ酢酸溶液を加えて 50mL に定容し，抽出液とした．

2) 精製法

抽出液 1mL に 25mmol/L リン酸緩衝液 (pH6.8) を加えて 20mL とし，ここから 1mL を分取し再度 25mmol/L リン酸緩衝液 (pH6.8) を加えて希釈し 10mL とした．この溶液を InertSep MC-1 に全量負荷し，25mmol/L リン酸緩衝液 5mL, 次いで水 5mL で洗浄した後 100mmol/L 炭酸カリウム溶液で溶出した．ギ酸 12.5 μ L を入れた容器に溶出液 2mL の標線まで採取し試験溶液とした．以上の操作 1) , 2) を図 1 に示した．

3) 誘導体化法

玉瀬らの方法³⁾を改良した．即ち，0.2mol/L ホウ酸緩衝液 (pH9.0) 2mL に試験溶液 0.2mL を加え混合，さらに，0.6%フルオレスカミン・アセトン溶液 0.2mL を加え混合した．これをメンブランフィルター (PTFE 製 0.45 μ m) でろ過し，測定溶液とした．

6. 誘導体化条件の検討，カラム回収率および標準添加回収実験

1) 誘導体化条件の検討

混合標準液 (500 μ g/mL) をさばの味噌煮の抽出液 (マトリックス溶液) で希釈しマトリックス混合標準溶液 (100 μ g/mL) を調製した．このものをさらにマトリックス溶液で希釈し 10, 1 および 0.1 μ g/mL のマトリックス混合標準溶液を調製した．調製した 0.1 $\sim$ 100 μ g/mL の4濃度のマトリックス混合標準液について，水で希釈した混合標準溶液を対照に誘導体化率の違いを調べた．条件 A はマトリックス混合標準溶液 0.2mL に 0.2mol/L ホウ酸緩衝液 (pH9.0) 2mL と 0.3%フルオレスカミン・アセトン溶液 0.2mL を加えて誘導体化した．条件 B はマトリックス混合標準溶液 0.2mL に 0.2mol/L ホウ酸緩衝液 (pH9.0) 2mL と 0.6%フルオレスカミン・アセトン溶液 0.2mL を加えて誘導体化した．

評価方法としては，水で希釈した各標準溶液のピーク面積値を 100%とし，マトリックス混合標

準溶液の誘導体化率を求めた。

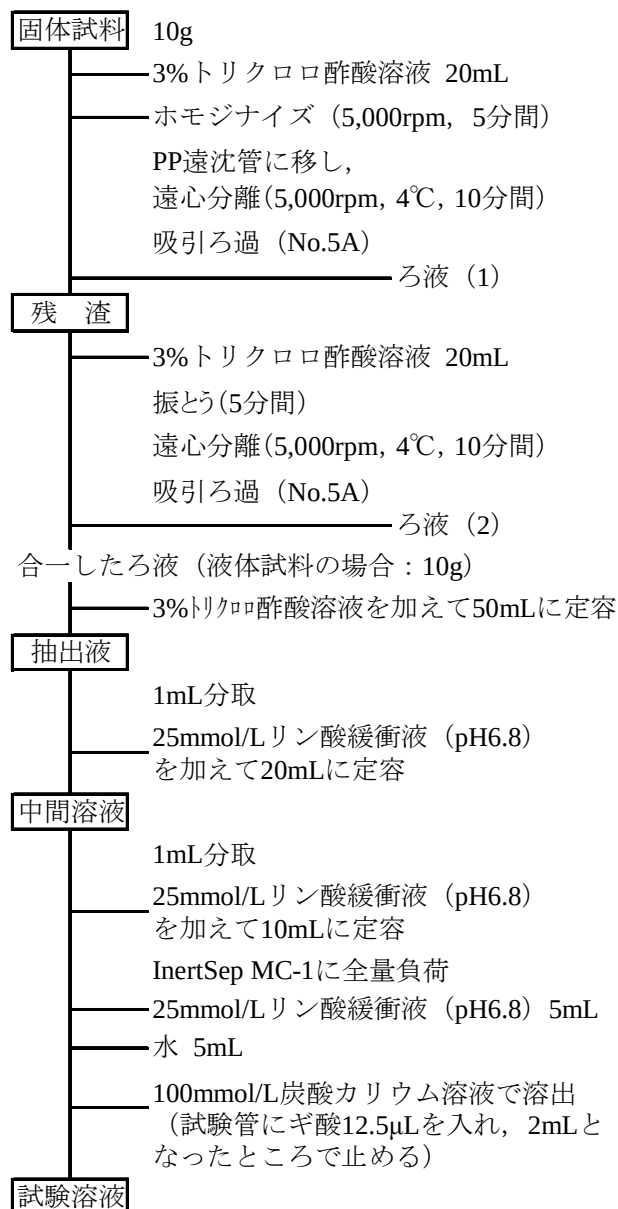


図1 不揮発性アミン類試験溶液調製法

2) カラム回収率

3%トリクロロ酢酸溶液 1mL に混合標準溶液 (500μg/mL) をそれぞれ 40μL (試料中不揮発性アミン類濃度 100μg/g に相当) と 2mL (試料中不揮発性アミン類濃度 5,000μg/g に相当) 添加し, 25mmol/L リン酸緩衝液 (pH6.8) を加えて 20mL に定容した. ここから各 1mL を分取し再度 25mmol/L リン酸緩衝液 (pH6.8) を加えて 10mL としカラム負荷液とした. 以降は精製法の試料負荷後の操作および誘導体化法に従って測定溶液の調製を行った.

回収率は, 水で希釈した標準溶液のピーク面積値を 100%として求めた.

3) カラムへの試料負荷量の検討

さばの味噌煮の抽出液に混合標準溶液 (500μg/mL) を加え, 各アミン類が試料濃度 10μg/g, 5,000μg/g となるように調製した. この溶液を 25mmol/L リン酸緩衝液 (pH6.8) で希釈し, カラムへの試料負荷量を変化させて回収率向上を図った.

4) 添加回収実験

低濃度側は試料 10.0g に各不揮発性アミン類を 100μg/g となるように混合標準溶液 (500μg/mL) を適量添加し, 高濃度側は分取した抽出液に混合標準溶液 (500μg/mL) を適量加えて 5,000μg/g となるように調製した. 以降, 図1に従って操作したものを添加回収実験の試験溶液とした. 各アミン類の含有量を算出し, 添加試料の含有量から未添加試料の含有量を差し引くことにより回収率を算出した.

実験結果および考察

1. 保持時間の確認と検量線および検出限界

標準溶液 0.005μg/mL でのヒスタミンの S/N が 3 であったが, 報告値 (検出限界値) を考慮し検出下限に 0.05μg/mL, 定量下限 0.1μg/mL を採用した. なお, 検出下限は試料中不揮発性アミン類濃度 10μg/g に相当し, ヒスタミンの食中毒が起これないと言われる安全域 5mg/100g (50μg/g) 以下⁴⁾を十分満たすものである.

不揮発性アミン類 3 種の検量線の直線性の確認を行った. 0.05~50μg/mL の濃度範囲で測定を行い, 検量線を作成したところ, 良好な直線性を示した (表1).

また, 標準溶液 0.5μg/mL を繰り返し誘導体化し, 測定した際の保持時間およびピーク面積の相対標準偏差 (RSD%) はそれぞれ 0.1~0.2%, 1.1~1.4%であった (n=5).

表1 不揮発性アミン類の保持時間および直線性

測定項目	保持時間 (min)	濃度範囲 (μg/mL)	相関係数
ヒスタミン	5.12	0.05~50	0.9999
チラミン	10.38	0.05~50	0.9999
カダベリン	13.78	0.05~50	0.9999

注) 試行回数 n=3

2. 誘導体化条件検討, カラム回収率および標準添加回収率

1) 誘導体化の条件検討

条件 A では, カダベリンにおいて誘導体化試薬の不足により 10 および 100μg/mL の添加標準溶液濃度で誘導体化率の低下が見られた. 条件 B では, フルオレスカミンを 2 倍の濃度としたことで, ア

ミン等のマトリックスが多いサンプルでも高濃度側で定量的に誘導体化されることが確認できたことから条件 B を用いることとした（表 2）。

表 2 誘導体化の条件検討の結果

		各濃度の標準溶液に対する誘導体化率 (%)			
測定項目	条件	添加標準溶液濃度 (μg/mL)			
		0.1	1	10	100
ヒスタミン	A	136.3	109.9	102.7	96.2
	B	279.8	121.1	106.6	103.1
チラミン	A	112.9	101.9	100.9	95.7
	B	110.9	106.6	105.0	104.7
カダベリン	A	133.9	96.4	90.6	83.2
	B	214.9	110.3	100.7	100.7

条件A：混合標準溶液0.2mL+0.2mol/Lホウ酸緩衝液 2mL
+0.3%フルオレスカミン・アセトン溶液 0.2mL

条件B：混合標準溶液0.2mL+0.2mol/Lホウ酸緩衝液 2mL
+0.6%フルオレスカミン・アセトン溶液 0.2mL

2) カラム回収率

試料中不揮発性アミン類濃度を 100μg/g および 5,000μg/g として行ったカラム回収率の結果は平均回収率 88.1~97.0%, 相対標準偏差 0.4~2.3%と良好であった（表 3）。

表 3 カラム回収率

測定項目	添加濃度 (μg/g)	回収率 (%)	RSD (%)
ヒスタミン	100	91.0	0.4
	5,000	97.0	2.2
チラミン	100	88.1	1.4
	5,000	96.0	1.7
カダベリン	100	89.9	1.7
	5,000	92.7	2.3

注) 試行回数 n=3

3) カラムへの試料負荷量の検討

カラムへの試料負荷量の検討として、さばの味噌煮の抽出液（マトリックス溶液）に標準溶液を添加した溶液を用いカラムの回収率を検討した結果、カラムへの試料負荷量 0.1g の場合に、試料中不揮発性アミン類 5,000μg/g 添加時のヒスタミン回収率が 40%未満、チラミン回収率が 60%未満と味噌に含まれるアミン類によってミニカラムのイオン交換容量の多くを奪われた。そこでカラムへの試料負荷量を 0.01g まで減らしたところ、回収率 94.2~98.0%と良好であったことからこの条件を用いることとした（表 4）。

4) 不揮発性アミン類の添加回収実験

さばの味噌煮、チーズおよび赤ワインを用いた

添加回収実験では平均回収率は 79.5~118.9%, 相対標準偏差 1.1~9.7%と良好であり（表 5）、本法は中毒量の 1/10 から中毒量相当以上の高濃度の不揮発性アミン類を含有する試料にも適用可能とわかった。

まとめ

陽イオン交換樹脂のミニカラムを使用することで、カラム前処理時間の短縮、精製操作の簡便化が可能となった。ミニカラムへの試料負荷量を 0.01g に減らすことで、試料中不揮発性アミン類が 5,000μg/g 試料添加時でも回収率を向上させることができ、誘導体化する前に試験溶液を希釈することなく試料中不揮発性アミン類濃度 10μg/g (1mg%, 中毒量の 1/100 量) から 10,000μg/g (1,000mg%, 中毒量の 10 倍量) の範囲で HPLC での定量が可能となった。カラム回収率では試料中不揮発性アミン類濃度 100μg/g (10mg%) 負荷時で回収率 88.0~91.0%, 相対標準偏差 0.4~1.7%, 5,000μg/g (500mg%) 負荷時で回収率 92.7~97.0%, 相対標準偏差 1.7~2.3%と良好な結果であった。3 種の食品を用いた添加回収実験においては、試料中不揮発性アミン類濃度 100μg/g (10mg%) 添加時の平均回収率は 79.5~118.9%, 相対標準偏差は 1.1~9.7%であったが、5,000μg/g (500mg%) 添加時は平均回収率 91.9~99.8%, 相対標準偏差 1.1~4.2%と良好であり、多くの食品に有用な方法であると考えられる。

表 4 カラムへの試料負荷量による回収率の変化

測定項目	添加濃度 (μg/g)	カラム試料 負荷量(g)	回収率 (%)	標準 偏差	RSD (%)
ヒスタミン	10 [※]	0.2	56.7	—	—
	10	0.1	106.2	1.4	1.3
	5,000	0.1	38.6	2.2	5.6
	5,000	0.02	83.0	6.9	8.3
	5,000	0.01	94.2	2.6	2.8
チラミン	10 [※]	0.2	84.5	—	—
	10	0.1	83.0	1.4	1.7
	5,000	0.1	56.9	1.5	2.6
	5,000	0.02	91.0	6.4	7.1
	5,000	0.01	94.5	1.1	1.2
カダベリン	10 [※]	0.2	103.0	—	—
	10	0.1	104.7	0.9	0.9
	5,000	0.1	88.0	1.9	2.0
	5,000	0.02	95.9	6.1	6.3
	5,000	0.01	98.0	1.5	1.5

注) 試行回数 n=3 ※は試行回数 n=1

表 5 不揮発性アミン類の添加回収実験結果

試料	添加濃度 ($\mu\text{g/g}$)	ヒスタミン		チラミン		カダベリン	
		回収率(%)	RSD(%)	回収率(%)	RSD(%)	回収率(%)	RSD(%)
さばの味噌煮	100	87.9	9.7	85.8	6.0	91.5	3.4
	5,000	94.2	2.8	94.5	1.2	98.0	1.5
チーズ	100	79.5	2.1	83.4	1.1	118.9	4.1
	5,000	95.8	2.7	91.9	2.1	99.8	1.1
赤ワイン	100	86.4	2.1	91.8	1.9	92.7	1.9
	5,000	97.5	4.2	92.8	3.0	99.0	2.0

注) 試行回数 n=3

文 献

- 1) Hui, J.Y., Taylor, S.L. Inhibition of *in vivo* histamine metabolism in rats by foodborne and pharmacologic inhibitors of diamine oxidase, histamine *N*-methyltransferase, and monoamine oxidase. *Toxicol. Appl. Pharmacol.*, **81**, 241-249(1985).
- 2) 坂本智徳, 赤木浩一, 樋脇 弘: 固相抽出ーエキシマー蛍光誘導体化 HPLC 法による食品中不揮発性アミン類の分析, *食品衛生学雑誌*, **51**, 115-121(2010).
- 3) 大月史彦, 肥塚加奈江, 林 隆義, 山本 淳: LC/MS/MS を用いた不揮発性腐敗アミンの一斉分析法の検討, *岡山県環境保健センター年報*, **34**, 99-103(2010).
- 4) 玉瀬喜久夫 他: 高速液体クロマトグラフィーによる魚肉中ヒスチジン, ヒスタミンの同時分析, *食品衛生学雑誌*, **25**, 525-529(1984).
- 5) 登田美桜 他: 国内外におけるヒスタミン食中毒, *Bull. Natl. Inst. Health Sci.*, **127**, 31-38(2009).

ノート

フッ化物洗口剤の調製容器における白色沈着物発生への対応

村田 将, 森 康則, 澤田陽子, 一色 博, 石濱信之*, 志村恭子

Investigation of whitish precipitate found in the plastic bottles for fluoride mouthrinse

Sho MURATA, Yasunori MORI, Yoko SAWADA, Hiroshi ISSHIKI, Nobuyuki ISHIHAMA*
and Kyoko SHIMURA,

フッ化物洗口事業は、う蝕予防を目的として、幼稚園等の学校施設を中心として全国的に行われている。志摩市で実施中の「志摩市4・5歳児フッ化物洗口事業」において、洗口剤の調製に用いている容器に白色沈着物が発生した。この沈着物を調査した結果、その主成分がフッ化カルシウムであることが明らかとなり、健康や薬剤作用への影響は軽微であると考えられた。フッ化カルシウムの析出は、洗口剤の調製に用いた水のカルシウムイオン濃度が高かったことが原因と考えられ、本現象の防止には、低硬度の軟水を用いることが有効であった。

キーワード：う蝕予防、フッ化物洗口剤、フッ化ナトリウム、フッ化カルシウム、硬度

はじめに

フッ化物イオンは、歯のエナメル質の耐酸性を向上させることでう蝕抵抗性を付与するとともに、歯の表面の脱灰に対して再石灰化を促進する作用を有する。このため、う蝕の予防に有効であるとされ、種々の手法によって応用がなされている¹⁾。う蝕予防におけるフッ化物イオンの応用は、水道水や食品を介してフッ化物イオンを摂取する全身的应用と、歯科診療所でのフッ化物歯面塗布や学校施設等でのフッ化物洗口あるいは家庭でのフッ化物配合歯磨剤使用等の局所的应用に分類されるが、わが国では局所的应用のみが実施されている。この中でも1970年代から普及しはじめたフッ化物洗口は、学校施設での児童生徒のう蝕予防に顕著な実績をあげ、2010年3月時点で、47都道府県7,543施設、777,621名が実施している^{2,3)}。これに並行して、厚生労働省や日本歯科医師会をはじめとする専門機関・団体の調査研究により、う蝕予防におけるフッ化物の有効性と安全性が示されてきた。2003年度には、第3次国民健康づくり運動である「21世紀における国民健康づくり」における、歯科保健の「8020運動」

*津保健福祉事務所

を達成するために不可欠な方策であるとして、厚生労働省から「フッ化物洗口ガイドライン」が都道府県知事宛に通知された^{4,5)}。このように口腔保健向上のため、フッ化物洗口は多くのエビデンスに基づき、国を挙げての普及推進がなされている。本県内でも、市町・歯科医師会・県の連携のもとで事業が行われている。

このような状況のなかで、2011年3月に、県内の幼稚園においてフッ化物洗口事業に用いている専用容器に白色沈着物認められた。そこで、この沈着物の分析を実施し、その結果から発生原因の同定、健康影響評価および予防法の検討を行った。

実験方法

1. 試料

当該幼稚園で採水された水道水(志摩市水道水)と、フッ化物洗口剤の調製に用いている容器から採取した沈着物を用いた。

2. 試薬

カルシウムイオン標準液、マグネシウムイオン

標準液, イットリウム標準液およびフッ化物イオン標準液は和光純薬工業株式会社製を用いた。硝酸 (Ultrapur 硝酸 1.38) は関東化学株式会社製を用いた。

3. 装置および測定条件

1) 誘導結合プラズマ発光分光分析装置

装置: 株式会社島津製作所 ICPS-8100

内部標準物質: イットリウム

2) イオンクロマトグラフ

装置: 株式会社日本ダイオネクス DX-120

カラム: AS-23 (4×250mm) および AG-23 (4×50mm)

(いずれも株式会社日本ダイオネクス製)

検出器: 電気伝導度

サプレッサ: 株式会社日本ダイオネクス製 サプレッサ ASRS300 4mm

移動相: 4.5mmol/L Na_2CO_3 + 0.5mmol/L NaHCO_3 溶液

流速: 1.00mL/min

4. 水中カルシウムイオン濃度測定

水 50mL に硝酸 500 μL および 100mg/L イットリウム溶液 1mL を加え, 試験溶液とした。誘導結合プラズマ発光分光分析装置を用いてカルシウムイオン濃度を測定した。

5. 白色沈着物の成分分析

1) カルシウムイオン測定

白色沈着物 1.00mg を 1%硝酸約 200mL に溶解し, 加熱濃縮を行った後, 超純水を用いて 200mL に定容し, 試験溶液とした。誘導結合プラズマ発光分光分析装置を用いてカルシウムイオン濃度を測定した。

2) フッ化物イオン測定

白色沈着物 1.00mg を超純水約 200mL に溶解し, 加熱濃縮を行った後, 超純水により 200mL に定容し, 試験溶液とした。イオンクロマトグラフを用いてフッ化物イオン濃度を測定した。

6. 白色沈着物の発生に及ぼすカルシウムイオン濃度の影響

フッ化物洗口剤 (フッ化ナトリウム 110mg 含有, 株式会社ビーブランド・メディコーデンタル製) 一包を, 超純水, 志摩市水道水およびカルシウムイオン濃度の異なる 3 種類の市販ミネラルウォーターそれぞれ 200mL に溶解した。上水試験法「浮遊物質 (懸濁物質) の測定法」に基づき, 懸濁物質の重量を測定した⁶⁾。

実験結果および考察

1. 白色沈着物の成分分析

志摩市水道水中のカルシウムイオン濃度は 18.3mg/L であった。フッ化カルシウムの溶解度は 0.016g/飽和水溶液 1dm³ (20°C)⁷⁾ と低いため, この水道水 200mL (20°C) にフッ化ナトリウム 110mg を含有する洗口剤を一包溶解すると, 計算上 4.09mg のフッ化カルシウムが析出することになる。

そこで, 白色沈着物中のカルシウムイオンおよびフッ化物イオン含有量を測定した。その結果, 白色沈着物 1.00mg 中に, カルシウムイオンが 0.42mg, フッ化物イオンが 0.30mg 含まれることが示された (表 1)。また, この沈着物中のカルシウムイオンとフッ化物イオンの重量比 ($\text{Ca}^{2+}:\text{F}^- = 58:42$) は, 純粋なフッ化カルシウム中の重量比 ($\text{Ca}^{2+}:\text{F}^- = 51:49$) に近かった。

以上のことから, 白色沈着物の主成分がフッ化カルシウムであることが示唆された。残りの 0.28mg については, 空気中の水分による吸湿等の影響によるものと推察される。

表1. 白色沈着物と CaF_2 中の Ca^{2+} および F^- 含有量

測定対象	沈着物1.0mg中 含有量 (mg)	CaF_2 1.0mg中 含有量 (mg)
カルシウムイオン	0.42	0.51
フッ化物イオン	0.30	0.49

フッ化カルシウムの人への影響はフッ化物イオンに由来するが, フッ化カルシウム結晶は難溶性であるため, 体内への吸収が少なく, 有害性は低いと考えられる。少なくとも, 易溶性のフッ化ナトリウムを主成分とするフッ化物洗口剤を使用する上での注意を遵守していれば, 健康への悪影響が強まる恐れはないと考えられる。一方で, フッ化カルシウムの生成により, 溶液中のフッ化物イオンが減少することで, 効果の減弱が懸念される。しかし, 表 2 に示すように, 本事例では洗口剤の調製に用いた水道水のカルシウムイオン濃度が 18.3mg/L であるため, 95%以上のフッ化物イオンが溶液中に残存している。従って, 本事例では薬剤効果への影響は軽微であると考えられる。

以上のことから, フッ化物洗口剤を調製する容器に白色沈着物が発生したことによる, 健康への影響や, 洗口剤の有効性への影響はほとんどなく, フッ化物洗口事業を継続して問題ないと考えられた。

2. 白色沈着物発生の予防法の検討

表2. 洗口剤中のフッ化物イオン残存割合のカルシウムイオン濃度による変化

Ca ²⁺ 濃度 (mg/L)	5	10	15	20	25	30	35	40	45
洗口剤中F ⁻ 残存割合 (%)	100	99.1	97.2	95.3	93.4	91.5	89.6	87.7	85.8

すでに述べたように、白色沈着物の発生は、健康影響等の実質的な問題はないと思われるが、衛生管理への信頼を損なう恐れがあるため、沈着物の発生を予防することが望ましい。

1. で明らかになったように、カルシウムイオン濃度の高い水でフッ化物洗口剤を調製すると、フッ化カルシウムの結晶が析出し、白色沈着物が発生する。従って、カルシウムイオン濃度の低い水を用いて洗口剤を調製することが予防策になると考えられる。

そこで、カルシウム濃度の異なる5種類の水(超純水、志摩市水道水並びに3種類の市販ミネラルウォーターA、BおよびC)を用いて洗口剤を調製し、析出物の発生程度を調べた。その結果、カルシウムイオン濃度8.0mg/LのミネラルウォーターBおよびそれよりも低濃度の水(超純水、ミネラルウォーターA)では懸濁物質重量が1.0mg未満であったのに対し、カルシウムイオン濃度11.6mg/LのミネラルウォーターCおよびそれよりも高濃度の志摩市水道水では、2.0mg以上の懸濁物質が検出された(図1)。

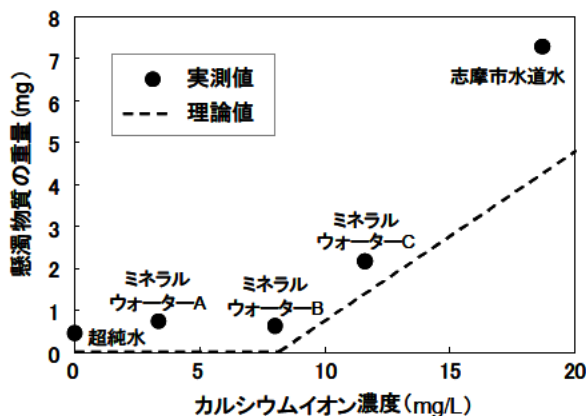


図1 カルシウムイオン濃度と懸濁物質重量の相関

フッ化カルシウムの溶解度 0.016g/飽和水溶液 1dm³ (20℃) ⁷⁾ から計算すると、理論的にはカルシウムイオン濃度が8.2mg/Lを境としてフッ化カルシウムが析出しはじめる。この濃度と、今回の結果の懸濁物質重量が増加しはじめる濃度がほぼ一致した。従って、カルシウムイオン濃度が8.2mg/L以下の水を用いれば、沈着物の発生を予防できることが示唆された。

一方で、発生した懸濁物質の重量は、フッ化カルシウムの理論的な析出量よりも多かった。これは、フッ化物洗口剤中の添加物が、発生したフッ化カルシウムとともにフィルターに付着したことが原因であると推察される。また、志摩市水道

水を用いて洗口剤を調製したものでは、懸濁物質発生量の理論値との乖離が、他の水に比べて大きかった。この原因は定かではないが、水道水の消毒に用いる次亜塩素酸ナトリウム等が影響している可能性も考えられる。

以上のことから、カルシウムイオン濃度の低い水を用いることが、本事象の防止に有効であると考えられた。しかし、一般の利用者にとっては、「カルシウムイオン濃度」よりも、水中のカルシウムイオンとマグネシウムイオンの総和である「硬度」のほうが、用語として馴染みがあり、また水道法で公開の義務があるため、情報も得やすい。硬度は、同一のカルシウムイオン濃度であっても共存するマグネシウムイオン量によって値が変わるため特定の値を示すことはできないが、三重県のカルシウムイオンおよびマグネシウムイオン濃度比の平均値 (Ca : Mg = 10.2 : 2.3) ⁸⁾ により計算すると、調製の際に概ね硬度26以下の水を用いることで白色沈着物の発生を抑制できると考えられる。三重県では過半の地域の水道水で硬度が26を超えているため、そのような場合は軟水のミネラルウォーター等を利用して、洗口剤を調製することが有効である。ただし、ミネラルウォーターの利用はフッ化物洗口事業の高コスト化をまねく懸念もあるため、発生したフッ化カルシウムの結晶が容器の底面に付着しないよう、定期的に容器をよく洗浄し、また夏期休暇等で長期間利用しない時は、洗口剤を捨てて洗浄した状態で容器を管理する等が実用的な対策になるとと思われる。

まとめ

三重県志摩市において、フッ化物洗口事業に用いられている洗口剤調製用容器に白色の沈着物が発生した。解析の結果、白色沈着物は、洗口剤中のフッ化物イオンと水道水中のカルシウムイオンが反応して形成されたフッ化カルシウムの結晶であり、健康や薬効への悪影響はほぼないことが示された。同時に予防法の検討を行い、カルシウムイオン濃度8.2mg/L未満(三重県内では硬度概ね26未満)の水を用いることが有効であることが明らかになった。

謝辞

本研究を遂行するにあたり、株式会社ビーブランド・メディコーデンタルよりフッ化物洗口剤試料の提供等、ご協力を頂いた。ここに記して深謝

いたします。

文献

- 1) 郡司明彦, 田村幸彦, 平尾功治, 町田 光, 秋田季子, 小林奈緒美, 藤井 彰: う蝕予防のためのフッ化物応用に関する最近の知見, 歯科薬物療法, **29**, 1-8 (2010).
- 2) 安藤雄一, 八木 稔, 佐々木健, 小林秀人, 小林清吾, 堀井欣一: フッ化物洗口の実施経験別にみた新潟県下 12 歳児 DMFT の経年推移, 口腔衛生学会雑誌, **45**, 440-447 (1995).
- 3) 眞木吉信: 鴨川市におけるフッ化物洗口事業の普及状況と継続期間による齲蝕予防効果, 歯科疾患予防のための日本人のフッ化物摂取基準とフッ化物応用プログラム 平成 22 年度総括研究報告書, 77-84 (2011).
- 4) フッ化物洗口ガイドラインについて, 医政発 第 0114002 号および健発 0114006 号, 2003 年 1 月 14 日付け, 厚生労働省医政局長および厚生労働省健康局長通知.
- 5) 田浦勝彦, 相田 潤, 安藤雄一, 晴佐久 悟, 田口千恵子, 木本一成, 葭原明弘, 筒井昭仁, 眞木吉信, 荒川浩久, 飯島洋一, 磯崎篤則, 小林清吾, 小関健由: フッ化物洗口の都道府県別にみた普及の推移～国の政策が果たした役割の検討～, 口腔衛生学会雑誌, **60**, 556-562 (2010) .
- 6) 社団法人日本水道協会: 上水試験法 2011 年度版・金属類編 (2011).
- 7) 久保亮五, 長倉三郎, 井口洋夫, 江沢 洋: 岩波理化学辞典第 4 版, 岩波書店 (1987).
- 8) 橋爪 清, 富森聡子, 林 政美, 藤尾昭定: 三重県内水道水中の無機成分調査, 三重県衛生研究所年報, **29**, 53-60 (1983).

ノート

三重県における日本脳炎ウイルスの動態

赤地重宏, 楠原 一, 矢野拓弥, 田沼正路, 永田克行, 片山正彦

Surveillance of Japanese Encephalitis Virus in Mie Prefecture

Shigehiro AKACHI, Hajime KUSUHARA, Takuya YANO,
Masamichi TANUMA, Katsuyuki NAGATA and Masahiko KATAYAMA

平成19年度から21年度において三重県内で飼育されたブタおよび健常者ヒト血清を用いて日本脳炎に対する抗体保有率等を調査した。結果、各年度においてブタHI試験では7月中旬に抗体が検出され、日本脳炎ウイルス保有蚊の存在が推定された。ヒトではワクチン未接種者の中で抗体保有が確認され、日本脳炎ウイルス感染の危険性があることが示唆された。

キーワード：日本脳炎ウイルス, フラビウイルス, HI抗体, 中和抗体

はじめに

日本脳炎はコガタアカイエカによって伝播される人獣共通感染症である。発症すると重篤な急性脳炎を引き起こすウイルス性感染症であるため、公衆衛生上重要な疾病の1つとなっており、世界においては依然として多くの患者発生がある¹⁾。日本においては、ワクチンの普及により患者数は激減している²⁾が、ウイルス保有蚊は毎年夏に発生が確認されており、ヒト、ブタともに感染リスクは決して低いものではない。そこで県内産肉用豚および三重県在住者の抗体保有状況調査を行い、日本脳炎ウイルスの動態を探るとともに感染リスクについて検討した。

材料および方法

検査材料には感染症流行予測調査事業に基づき平成19～21年度にと殺時に採材された県内産ブタ血清370検体、および県内病院にて採材された健常ヒト血清894検体を用いた。抗体価はブタ血清については日本脳炎CF, HA抗原「生

研」(JaGAr#01)を用いた赤血球凝集抑制(HI)試験⁴⁾、ヒト血清については国立感染症研究所より提唱されたBeijing株を用いたフォーカス計数法により測定した(図1)。さらにヒトについてはワクチン接種歴、年齢等より感染リスクについて検討した。

検体：県内産肉用豚血清 370頭(H19～H21年度)
県内在住健常人血清 894人(H19～H21年度)

方法：ブタ：HI法
HA抗原(Beijing株・デンカ生研)
ヒト：フォーカス計数法
攻撃用日本脳炎ウイルス(JE Beijing-1)
Vero細胞(Osaka株)
一次抗体：抗日本脳炎ウイルスウサギ血清
二次抗体：Anti Rabbit IgG(H+L) Goat
標識抗体：PAP Rabbit Polyclonal

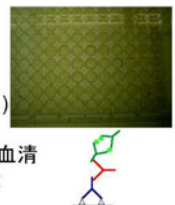


図1 材料と方法

成績および考察

ブタにおける抗体価については3ヵ年にわたり、7月中旬にHI抗体が検出され、同時期あるいはやや遅れて2ME感受性抗体が検出された。従って、三重県下においては毎年7月前後に日本脳炎ウイルス保有蚊が発生し、ブタに対し感染が成立しているものと推定された(表1)。ヒトにおける抗体価についてはフォーカス計数法により10倍以上の抗体価を有するものを抗体保有と判定した。結果、三重県では調査対象期間のワクチン接種率は61.5～69.6%、抗体保有率が51.4～63.7%と判明した(表2)。ワクチン接種者の抗体価の幾何平均値は非接種者のそれより高かった。また、各年齢層における抗体保有率とワクチン接種率はほぼ同率であった(図2)。

表1 三重県産ブタ日本脳炎抗体保有状況

採血年度	頭数	HI抗体検出時期	2-ME感受性抗体検出時期
19	130	7月9日	7月9日
20	130	7月14日	7月14日
21	110	7月13日	8月3日

表2 三重県在住者抗体保有状況

年度	ワクチン接種率	抗体保有率	抗体価GM (接種者)	抗体価GM (接種者以外)	未接種かつ 抗体保有者
19	61.5%	63.7%	52.8	36.2	8人
20	69.6%	58.1%	79.4	20.0	2人
21	66.2%	51.4%	91.8	59.4	7人

対象: 267人(H19)、289人(H20)、338人(H21)
GM: 幾何平均値

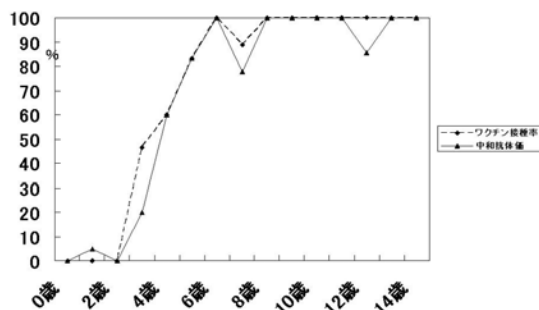


図2 ワクチン接種率と中和抗体保有状況(2009年)

これらの結果から、日本脳炎抗体価は基本的にはワクチンにより付与されているものと考えられた。日本脳炎ワクチン積極的接種勧奨中止³⁾により、2006年前後の3～4歳児の抗体保有率は全国的に低い傾向にあるが、三重県での日本脳炎抗体保有状況は全国状況と比較するとやや高い傾向にあった(図3)。また、抗体保有状況を年別で見ると、13歳前後において抗体保有率が低下する傾向が見受けられた(図4)。さらに、今回の調査においてワクチン未接種者の中で抗体保有者が過去3年間で少なくとも17名存在し、日本脳炎発生のリスクが三重県において存在することが示唆された。すなわち、日本脳炎ウイルスが蚊を介し感染したが発症には至らなかったものと推定される。ヒトにおける日本脳炎ウイルス感染者の発症率を0.1～0.01%程度とし、三重県人口を170万人と仮定すると、毎年1～10名前後の日本脳炎患者が発生する危険性があると推察された。また、対象を4歳以上とした場合の発生リスクは0.28～2.8人となる。これら結果を踏まえ、今後の日本脳炎予防の啓発に活用していきたいと考えている。

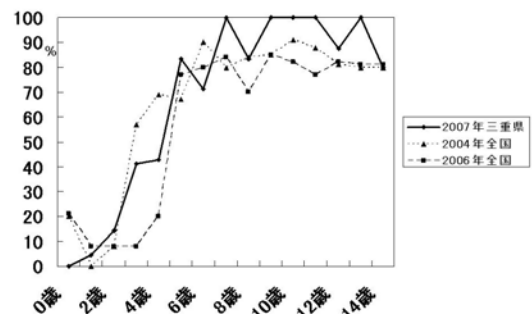


図3 年齢別日本脳炎中和抗体保有状況

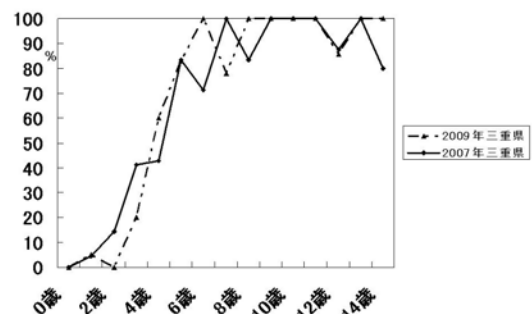


図4 年別年齢別日本脳炎中和抗体保有状況

まとめ

平成 19～21 年度において、三重県下における日本脳炎ウイルスの動態とヒトへの感染リスクを推定するため、HI 試験法およびフォーカス計数法を用い抗体価および抗体保有率の調査を実施した。結果、三重県では毎夏、日本脳炎ウイルス保有蚊の存在が推定された。ヒトにおいてはワクチン接種により抗体が付与されていると考えられるものの、ワクチン未接種者に有意な抗体価が検出される事例があり、日本脳炎ウイルスの自然感染を示唆する結果が得られた。

文 献

- 1) Japanese encephalitis vaccine: Weekly epidemiological record, 73, 337-344, (1998).
- 2) 厚生労働省健康局結核感染症課, 国立感染症研究所感染症情報センター: 平成 19 年度感染症流行予測調査報告書, 121-148, (2010).
- 3) 厚生労働省結核感染症課課長勧告"定期の予防接種における日本脳炎ワクチン接種の積極的勧奨の差し控えについて"平成 17 年 5 月 30 日健感発第 0530001 号.
- 4) 国立予防衛生研究所学友会: ウイルス実験学各論, 124-162, 1967, 丸善株式会社, 東京.

ノート

三重県におけるパラインフルエンザウイルスの動向

矢野拓弥, 前田千恵, 楠原 一, 赤地重宏, 松野由香里,
山寺基子, 岩出義人, 片山正彦, 山口哲夫

Virological Investigation of Parainfluenza in Mie Prefecture

Takuya YANO, Chie MAEDA, Hajime KUSUHARA, Shigehiro AKACHI,
Yukari MATSUNO, Motoko YAMADERA, Yoshito IWADA,
Masahiko KATAYAMA, and Tetsuo YAMAGUCHI

2010年から2011年に県内の医療機関等で採血された調査協力者629名の血清検体を使用し, パラインフルエンザウイルス(PIV)抗体保有状況調査を実施した. PIV各型のHI抗体保有率(HI価10倍以上)は, PIV1型78.5%, PIV2型77.6%, PIV3型96%, PIV4型71.2%であった. 一方, 2009年1月から2012年7月までに三重県感染症発生動向調査事業における県内定点医療機関を受診した呼吸器系疾患患者からの咽頭拭い液, 気管吸引液等を用いてPIVの検索を実施した. 対象とした503件中87例(17.3%)でPIVが検出され, 型別内訳はPIV1型47例(54.0%), PIV2型8例(9.2%), PIV3型24例(27.6%), PIV4型8例(9.2%)であった. 臨床症状は気管支炎が47例(54.0%), 次いで細気管支炎が19例(21.8%)であった.

キーワード: 急性呼吸器感染症, パラインフルエンザウイルス, パラインフルエンザウイルス抗体価

はじめに

パラインフルエンザウイルス(Parainfluenza virus: PIV)は, 小児を中心とした急性呼吸器感染症(Acute respiratory infection:ARI)の起因ウイルスの一つであり, パラミクソウイルス科パラミクソウイルス亜科に属し, 血清型はPIV1型からPIV4型(4A, 4B)がある. パラミクソウイルス亜科は, レスピロウイルス属, モルビリウイルス属, ルブラウイルス属に分類され, PIV1型およびPIV3型はレスピロウイルス属, PIV2型およびPIV4型はルブラウイルス属等に分類される¹⁾. 従来, 三重県における呼吸器系ウイルスの感染症発生動向調査では, インフルエンザ疾患などの上気道炎症状由来疾患が多くを占めたが, 近年では気管支炎疾患等の下気道炎症状由来によるものが増加し, これらの検体からPIVが多数検出された. そこで, 本報では本県におけるPIV抗体保有状況および2009年から2012年7月までに呼吸器症状を呈した小児から検出されたPIV(1型, 2型, 3型, 4型)の流行疫学を報告する.

対 象

PIVの赤血球凝集抑制(HI)抗体価測定には

2010年から2011年に三重県内の医療機関等で採血され, 使用承諾の得られた調査協力者の血清検体を用いた. 年別検体数の内訳は2009年291名, 2010年338名の計629名を対象とした.

PIVの検索には2009年から2012年7月までに三重県発生動向調査事業における県内定点医療機関を受診し, 使用承諾の得られた呼吸器系疾患患者からの咽頭拭い液, 気管吸引液等を検体とした. 年別検体数の内訳は2009年62件, 2010年87件, 2011年225件, 2012年(1月から7月)129件の計503件を対象とした.

方 法

1. HI抗体価測定

PIVに対する血清HI抗体価の測定は, デンカ生研製のHA抗原(1型, 2型, 3型, 4型)を使用し, 以下のとおりHI抗体価の測定を実施した. 被検血清100μLにRDE(Receptor destroying enzyme)「生研」(デンカ生研)300μLを加えて37°C, 20時間処理した. 次に56°C, 60分間非動化しRDEの作用を止め, リン酸塩緩衝塩化ナトリウム液を600μL添加後, 100%モルモット血球100μLを加え, 室温で60分間静置した. その後2,000rpm, 20分間遠心分離し, その上清

を HI 測定用処理血清とした。処理血清を 25 μ L ずつの 2 倍階段希釈を行い、PIV 抗原 (4HA 単位) を 25 μ L ずつ加え攪拌後、室温にて 60 分間放置後、0.75%モルモット赤血球を 50 μ L 添加し室温にて 60 分間放置後に判定した。HI 抗体価 10 倍以上を抗体保有 (陽性) とした。

2. PIV の検出および分離

呼吸器系疾患患者から採取した検体からの RNA 抽出は QIAampViral RNA Mini Kit (QIAGEN)を用いた。抽出した RNA を用いて国立感染症研究所のパラインフルエンザウイルス検査マニュアル²⁾および W. Y. Lam ら³⁾の RT-PCR 法により PIV の検出を実施した。PIV 陽性例の一部の検体については同遺伝子の塩基配列を確認した。PIV の分離には Madin-Darby canine kidney (MDCK: サル腎) 細胞に検体を接種し CO₂ インキュベーターにて 34℃ で 7 日から 10 日間培養し、顕微鏡下で細胞変性効果 (Cytopathic effect: CPE) の有無を観察した。培養上清は 0.75%モルモット血球による赤血球凝集 (HA) 価の測定を行った。HA が確認できた培養上清をウイルス分離の指標とした。型別同定には培養上清から RNA 抽出し RT-PCR 法により実施した。

3. 調査対象者の臨床所見

PIV が検出された対象者についての臨床所見は検査依頼医療機関記入の病原体検査個票より、調査対象者の年齢、臨床検体採取日、発熱、臨床症状等の患者情報を得た。

結 果

1. HI 抗体保有状況

PIV 各型の年齢群別 HI 抗体保有率を図 1 に示した。HI 価 10 倍以上の抗体保有率では、PIV1 型と PIV2 型は加齢とともに上昇し、5 歳から 9 歳群で 75%以上となり 10 歳以上の年齢群も高い抗体保有率であった。PIV3 型は他の型と比較すると最も高く、2 歳児では 83.3%, 3 歳から 4 歳群では 97.8%に達し、5 歳から 9 歳群以上では全年齢群で 100%であった。PIV4 型は他の型と比べ最も低く、5 歳から 9 歳群で 70%を超え、15 歳から 19 歳の年齢群での 84.7%をピークに加齢とともに低下し、50 歳群以降では 63.3%となった。図は省略したが、全年齢群 (0 歳から 50 歳群以上) では PIV1 型 78.5%, PIV 2 型 77.6%, PIV 3 型 96%, PIV 4 型 71.2%であった。一方、HI 価 40 倍以上の抗体保有率では、PIV1 型 3.2%, PIV 2 型 25.4%, PIV 3 型 90.3%, PIV 4 型 1.4%であり、PIV 3 型は抗体保有率および抗体価と

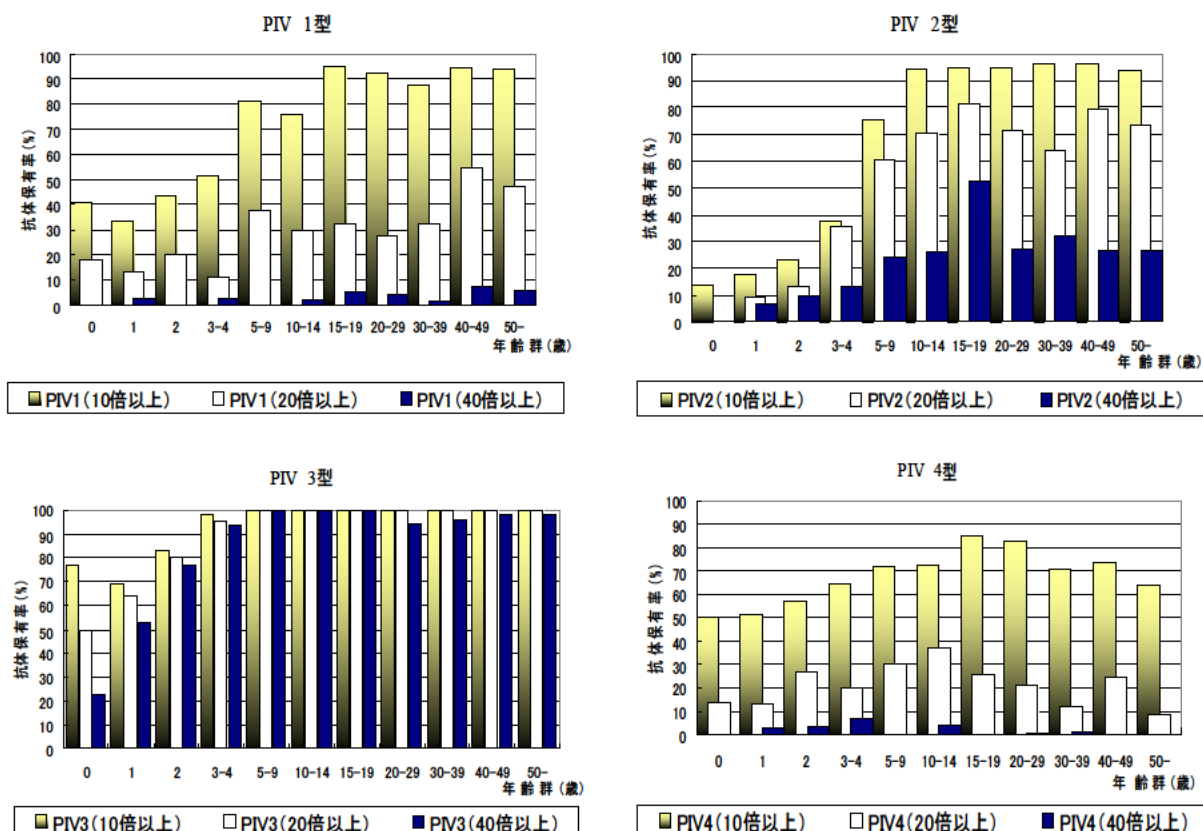
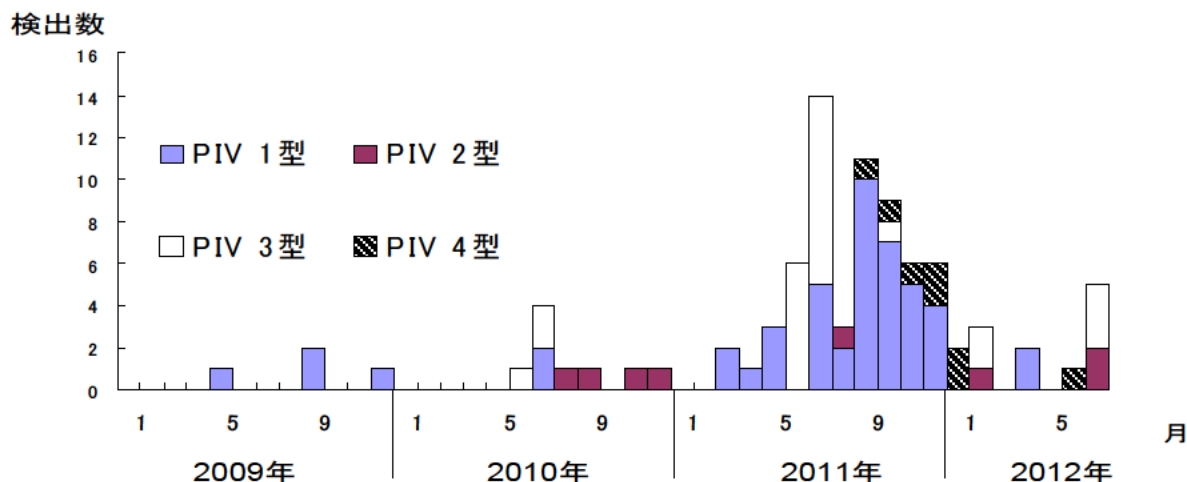


図 1. 年齢群別 HI 抗体保有状況



(検査数:2009年62件 2010年87件 2011年225件 2012年129件)

図 2. PIV 月別検出状況

もに最も高かった。

2. PIV 検出状況

2009年1月から2012年7月までの分離・検出状況を図2に示した。対象とした503件中87例(17.3%)からPIVが分離・検出された。型別内訳はPIV1型47例(54.0%)、PIV2型8例(9.2%)、PIV3型24例(27.6%)、PIV4型8例(4A:2例, 4B:6例)(9.2%)であった。採取年別の検出状況では、2009年は62件中4例(6.5%)で、型別内訳はPIV1型4例のみであった。2010年は87件中9例(10.3%)検出され、PIV1型2例、PIV2型4例、PIV3型3例であった。2011年は、225件中61例(27.1%)で、内訳はPIV1型39例、PIV2型1例、PIV3型16例、PIV4型は、5例(4A:2例, 4B:3例)であった。2012年1月から7月までは、129件中13例(10.1%)

で、内訳はPIV1型2例、PIV2型3例、PIV3型5例、PIV4型は、3例(4A:1例, 4B:2例)であった。年齢別のPIV検出状況では全例6歳以下で検出され、0歳から2歳児までの低年齢層で87例中68例(PIV1型36例、PIV2型6例、PIV3型18例、PIV4型8例)が検出された。(表1)

3. 調査対象者の臨床像

検出型別臨床診断名および発熱状況を表2に示した。臨床症状は気管支炎が47例(54.0%)と最も多く、次いで細気管支炎が19例(21.8%)であった。発熱の程度は39℃台が36例(41.4%)、次いで38℃台が30例(34.5%)であった。

考 察

三重県における呼吸器系ウイルスを対象とした

表 1. 年齢別型別検出数

年齢	型別検出数				計
	PIV 1型	PIV 2型	PIV 3型	PIV 4型	
0	10	3	7	3	23(26.4%)
1	12	3	6	2	23(26.4%)
2	14		5	3	22(25.3%)
3	5	1	3		9(10.3%)
4	3	1	2		6(6.9%)
5	2				2(2.3%)
6	1		1		2(2.3%)
計	47	8	24	8	87

表 2. 検出型別臨床診断名および発熱状況

検出型	臨 床 診 断 名						計	発熱 (°C)						計
	気管支炎	細気管支炎	咽頭炎	喉頭炎	扁桃炎	肺炎		36	37	38	39	40	不明	
PIV1型	25	12	2	5	2	1	47	1	2	18	20	4	2	47
PIV2型	5		2	1			8		4		3		1	8
PIV3型	15	3	3	1	2		24	1	2	10	11			24
PIV4型	2	4	1	1			8		1	2	2		3	8
計	47 (54.0%)	19 (21.8%)	8 (9.2%)	8 (9.2%)	4 (4.6%)	1 (1.1%)	87	2 (2.3%)	9 (10.3%)	30 (34.5%)	36 (41.4%)	4 (4.6%)	6 (6.9%)	87

感染症発生動向調査では、近年、気管支炎疾患等の下気道炎症状由来によるものが増加している。これらの疾患の起因ウイルスを解明するためにPIV抗体保有状況およびPIV発生動向調査を実施した。年齢群別のHI価10倍以上のPIV抗体保有状況の推移から、大部分が5歳から9歳までに抗体を保有しており、成人層も高い抗体保有率を維持していることが判明した。一方、HI価20倍以上およびHI価40倍以上では、PIV3型の抗体保有率は高いが、他の型は極めて低い。このことは、再感染および流行規模との関連性があると思われる。福田ら⁴⁾の報告によると、三重県における感染症起因病原体(13疾病)には周期特性がみられることが示唆されており、米国ではPIV流行においても季節性が認められる報告⁵⁾がある。今回、本県で調査したPIV検出状況では、PIV1型は2011年には年間を通して検出がみられ、特に秋季(9月から12月)に集中している傾向がみられた。PIV2型は2010年(4件)と2012年(3件)に少数であるが複数検出され、隔年での周期性も考えられる。PIV3型は国内では例年、インフルエンザ終息後から初夏を中心に発生がみられているが、本県の検出状況も6月から7月に集中していた。PIV4型は2011年に秋季から冬季に5件、2012年は1月に2件確認され、秋季から冬季が主流行期であることを示唆しているが、2012年には6月にも1件確認された。今後の継続的な調査で当県のPIV流行像が明らかになるとと思われる。年齢別のPIV検出状況は0歳から2歳児までの低年齢層で87例中68例検出(78.2%)されたが、過去の発生事例⁶⁻⁸⁾では、小児だけでなく幅広い年齢層での集団感染および高齢者での肺炎の併発が報告されているので留意が必要である。また、PIV患者数の実態が掴めていないこと⁹⁾が示唆されており、呼吸器系疾患の起因ウイルスを解明するためにも継続的なPIV調査を実施し、乳幼児や高齢者での重症化の可能性も視

野に入れた感染予防対策を講じることが重要である。

謝 辞

感染症発生動向調査事業の実施にあたって、本調査の趣旨をご理解頂き検体使用について承諾頂いた方々、三重県発生動向調査協力医療機関、各関係機関の方に厚く御礼申し上げます。

文 献

- 1) David O.White et al 北村敬 訳：医学ウイルス学第四版，近代出版，（1998）。
- 2) 国立感染症研究所：パラインフルエンザウイルス検査マニュアル（平成21年7月）。
- 3) W. Y. Lam. J. Clin. Microbiol. vol. 45 3631-3640, (2007)。
- 4) 福田美和，寺本佳宏，大熊和行，中山治：三重県における感染症流行の周期特性，三重保環研年報，第5号(通巻第48号)，43-48, (2003)。
- 5) Fry, A. , Curns, A. , Harbour, K. et al : Seasonal trends of human parainfluenza viral infection : United States, 1994—2004. Clin. Infect. Dis. 43 : 1016-1022, (2006)。
- 6) 山腰雅宏，鈴木幹三，山本俊信，晶川長夫，中北隆，後藤則子，山田保夫，伊藤誠：病棟内で流行した高齢者パラインフルエンザ3型感染症の検討，感染症学雑誌，第73巻第4号298-304, (1999)。
- 7) 尾西 一，大矢英紀，川島栄吉，庄田丈夫：中学校でのパラインフルエンザウイルス3型による集団かぜー石川県：病原微生物検出情報，20, 223-224, (1999)。
- 8) 山本一成：百日咳集団感染疑い事例からのパラインフルエンザウイルス3型の検出，平成22年度新潟市衛生環境研究所年報第35号 42-45, (2012)。
- 9) 改田 厚，久保英幸，入谷展弘：ヒトパラインフルエンザウイルス感染症 臨床とウイルス40巻3号142-149, (2012)。

ノート

結核菌感染事例における VNTR 法を用いた 分子疫学解析 (2011)

永井佑樹, 岩出義人, 伊東抄代子*,
三浪綾子*, 島田晃秀*, 坂井温子**, 片山正彦, 山口哲夫

Molecular epidemiology of *Mycobacterium tuberculosis* using VNTR analysis (2011)

Yuhki NAGAI, Yoshito IWADA, Sayoko ITO, Ayako MINAMI,
Akihide SHIMADA, Haruko SAKAI, Masahiko KATAYAMA, and Tetsuo YAMAGUCHI

H23年県内で発生した結核菌感染2事例において反復配列多型 (Variable Numbers of Tandem Repeats; VNTR) 法を用いた分子疫学解析を実施した。その結果, 事例1では異なる保健所管内で H20 年と H23 年に発症した患者2名の VNTR データが同一パターンを示し, 分子疫学解析により疫学的関連性を裏付ける結果となった。また, 事例2では, 疫学的に関連性が高いと考えられた外国人2名の由来菌株が, それぞれ異なるパターンを示し, この2名の患者は異なる感染源由来であることが明らかとなった。今回実施した VNTR 法は, 迅速性と簡便性に優れ, デジタル化情報として再現性や互換性もあることから, 迅速な行政対応が求められる集団感染発生時等において極めて有用な方法であると思われる。

キーワード: 結核菌(*Mycobacterium tuberculosis*), 分子疫学, VNTR

はじめに

結核患者が発生した時の感染源の追求や感染経路の解明には, 接触者検診等の積極的疫学調査が実施されるが, 個々の患者から結核菌が分離された場合, それぞれの菌の同一性が重要な問題となる。同一の菌による感染かどうかを判定するには遺伝子型別が実施されるが, 結核菌では近年, 結核菌の遺伝子中に存在する反復配列の数を株同士で比較する VNTR 法が利用されるようになってきている。この VNTR 法は制限酵素断片長多型 (Restriction fragment length polymorphism; RFLP) 法に比べ, 簡便で迅速に結果が得られ, 非常に有用な方法とされている。また近年, 日本国内の株を型別するのに有用な方法として, (Japan Anti-Tuberculosis Association) JATA-VNTR 法が標準法として提唱されており, 全国的な普及が期待されている^{1, 2)}。そこで今回, 我々は H23 年に県内で発生した2事例において VNTR 法を用いた分子疫学解析を実施したので報告する。

方 法

1. 結核感染事例発生の経緯

事例1: 患者 A (56 歳男性) は, H20 年3月に体調不良にて医療機関を受診し, 肺結核 (G10 号) と診断され治療を開始した (鈴鹿保健所登録)。H21 年4月に治療を終了し, その後再発はない。患者 B (46 歳男性) は患者 A と同じ職場勤務で, H20 年6月の接触者健診で胸部所見はなかったが QFT(±)となり潜在性結核として治療を開始した (四日市市保健所登録)。その後, 治療を自己中断していたが, H23 年3月に風邪症状により, 医療機関を受診し, 肺結核 (G3 号) と診断され治療を再開した。その時の調査により, 患者 B は患者 A と兄弟でもある事が判明し, 発病時期は異なるが, 双方の疫学的関連が強く疑われたため, 遺伝子解析を実施した。

事例2: 患者 C (31 歳女性) は H23 年1月頃から咳などの症状がみられ, 症状が悪化したため5月に松阪市内の医療機関を受診し肺結核 (G2 号) と診断された。患者 D (27 歳女性) は, 6月の職場健診で要精検となり, 7月に肺結核 (気管支洗浄液培養陽性) と診断された。患者 C と

* 松阪保健所

** 鈴鹿保健所

表1. 事例1,2における各菌株(A)～(D)のコピー数

JATA No.	J01	J02	J03	J04	J05	J06	J07	J08	J09	J10	J11	J12	J13	J14	J15
locus	Mtub 04	MIRU 10	Mtub 21	Mtub 24	QUB 11b	VNTR 2372	MIRU 26	QUB 15	MIRU 31	QUB 3336	QUB 26	QUB 4156	QUB 18	QUB 11a	ETR- A
(A):2008274	4	1	3	2	7	4	7	4	4	7	8	2	9	9	4
(B):2011082	4	1	3	2	7	4	7	4	4	7	8	2	9	9	4
(C):2011105	2	2	0	3	3	2	5	4	2	7	8	3	0	5	4
(D):2011106	4	3	3	3	7	4	7	4	5	4	8	4	10	8	4

additional loci	2401 Mtub 30	3690 Mtub 39	802 MIRU 40	4348 MIRU 39	1644 MIRU 16	2531 MIRU 23	580 MIRU 4	3007 MIRU 27	577 ETR- C	3239 ETR- F
(A):2008274	4	3	3	3	3	5	2	3	4	3
(B):2011082	4	3	3	3	3	5	2	3	4	3
(C):2011105	2	1	2	2	3	5	4	2	4	3
(D):2011106	4	3	3	3	3	2	2	3	4	3

患者Dは共に中国の湖北省出身でH21年9月に一緒に来日し、同じ寮で生活し職場も同じであった。

2. 検体およびDNA抽出

H23年に発生した2事例(事例1,2)において分離された結核菌株を用い、高橋らの方法³⁾に従い ISOPLANT (NIPPON GENE) により DNA 抽出を行い検体とした。

3. VNTR解析

多重反復配列領域のうち、JATA12 および JATA15-VNTR法で用いられている15領域を対象とした^{1,4)}。さらに追加領域として当所で実施している10領域(MIRU4, 27, 40, 39, 16, 23, ETR-C, F, Mtub30, 39)と超多変(HV: Hyper-variable)領域(QUB3232, V3820, V4120)を加え、計28領域でVNTR解析を実施した⁵⁾。方法は各菌株のゲノムDNAをtemplateに、それぞれのプライマーと Ex Taq HS version (Takara)を用いたPCR法で増幅を行い、PCR産物の増幅サイズから、コピー数を測定した。

4. 北京型,非北京型の分類

Warrenらの方法⁶⁾に従い、PCRにより北京型および非北京型の分類を実施した。さらに北京型に分類された株を対象にWadaらの方法⁷⁾に従ってNTF regionへのIS6110挿入の有無によりancientあるいはmodern typeに細分類した。

結 果

事例1: 事例1における分子疫学解析の結果、これら2名の菌株A, BにおいてJATA15の15領域でコピー数が一致し、さらに25領域の解析でもコピー数が全て一致した(表1,図1)。また超多変領域であるHV領域でもコピー数が一致

したことから、この2名の菌株は同一由来の株である可能性が極めて高いと判断された。さらに系統分類の結果A, Bの株はともに北京型であり、その中でも日本に多いとされるancient typeであることが確認された。

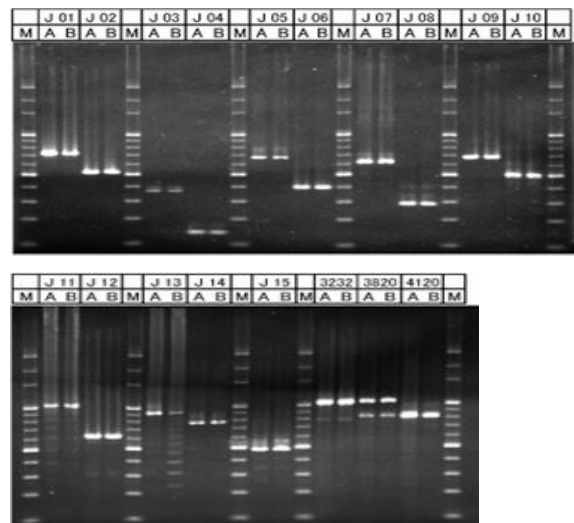


図1. 事例1における各VNTR領域の泳動結果

事例2: 本事例の分子疫学解析の結果、患者2名由来の菌株C, Dにおいて15領域でコピー数が一致したのはJ4 (Mtub24), J8 (QUB 15), J11 (QUB 26), J15 (ETR-A)の4領域のみであり、28領域での解析の結果でも7領域でのみの一致であった(表1,図2)。

その結果、疫学的には関連性が高いと思われたこれら2名の菌株は、異なる株である可能性が高い結果となった。またCの株は非北京型であったのに対して、Dの株は北京型のancient typeであり、系統分類においても異なるタイプであることが明らかとなった。

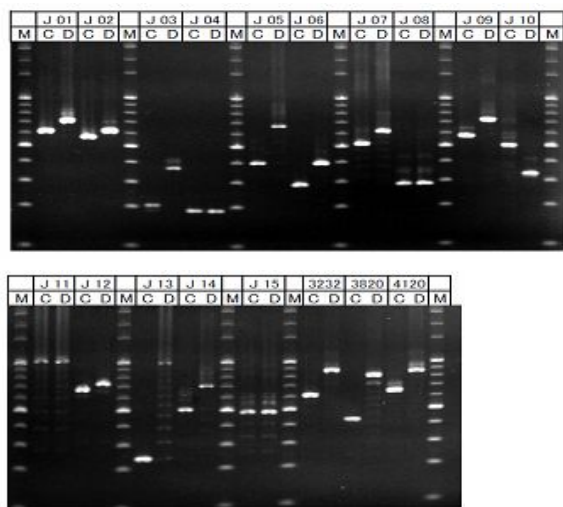


図2.事例2における各VNTR領域の泳動結果

考 察

事例1では、異なる保健所管内でH20年とH23年に発病した同一職場に勤務する兄弟（別居）がVNTR解析により同一パターンを示し、疫学的関連性が裏付けられた。VNTR解析は、過去の菌株との比較も容易となるため、発病時期が異なることが多い結核菌の遺伝子型別法として有用であることが明らかとなった。

事例2は、疫学的には関連性が高いと考えられた外国人患者の菌株がそれぞれ異なるパターンを示し、この2名の患者は異なる感染源由来であることが明らかとなった。中国のように罹患率の高い地域では、若年者の感染例も多く、感染源、感染経路の特定が非常に難しくなる。また、日本の北京型と異なり外国で分離される北京型はmodern typeが多く、このタイプは感染・伝播力が強いいため若年者で集団感染を起こしやすいことが報告されている⁷⁻¹⁰⁾。三重県でも県内分離株の約70%が北京型に分類され、そのうち約15%がmodern typeであることが明らかとなっている^{5, 11)}。これらはいずれも散发事例で、これまで県内ではmodern typeの北京型による集団感染事例等は報告されていないが、今後も高蔓延国から、国内の株とは異なった新たなタイプの結核菌既感染者の流入も予想されるため警戒が必要である。

今回の事例ではVNTR法により7～10日で遺伝子型別解析が可能であった。従来のRFLP法に比べ迅速性の高いVNTR法は迅速な行政対応が求められる集団感染発生時等において極めて有用であると思われる。また、VNTR法は系統分類のデータを加味することで、感染力や薬剤

耐性化傾向などの菌株の特徴をも推定しうることから、接触者健診等の積極的疫学調査への活用も期待できる。今後も県内分離株のVNTRデータを蓄積し、現場へフィードバックすることにより、結核根絶を目指した新たな結核対策を展開することが可能になるものと思われる。まずは県全域でのVNTRデータの有効活用のため、医療機関、保健所、保健環境研究所が連携して、患者の人権と個人情報保護法も踏まえ、うえてVNTR法の検査体制およびデータベース化を確立していくことが必要であると思われる。

文 献

- 1) 前田伸司, 村瀬良朗, 御手洗聡, 菅原 勇, 加藤誠也 (2008): 国内結核菌型別のための迅速・簡便な反復配列多型 (VNTR) 分析システム. 結核 83: 673-678.
- 2) Murase Y, Mitarai S, Sugawara I, et al (2009): Promising loci of variable numbers of tandem repeats for typing Beijing family *Mycobacterium tuberculosis*. J Med Microbiol. 57:873-880.
- 3) 高橋光良 (1999): ISOPLANTによる結核菌DNAの簡易抽出. WAKO BIO WINDOW ; No19: 9.
- 4) 和田崇之, 長谷篤(2010): 結核菌の縦列反復配列多型(VNTR)解析に基づく分子疫学とその展望. 結核 85: 845-852.
- 5) Nagai Y, Iwade Y, Hayakawa E, et al., (2012): Molecular Genotyping of *Mycobacterium tuberculosis* in Mie prefecture, Japan, using Variable Numbers of Tandem Repeats Analysis. Jpn J Infect Dis; 65:341-344.
- 6) Warren R M, Victor TC, Streicher EM, et al (2003): Patients with Active Tuberculosis often Have Different Strains in the Same Sputum Specimen. Am J Respir Crit Care Med ; 169: 610-614.
- 7) Wada T, Iwamoto T, Maeda S. (2009): Genetic diversity of the *Mycobacterium tuberculosis* Beijing family in East Asia revealed through refined population structure analysis. FEMS Microbiol Lett; 291:35-43.
- 8) Maeda S, Wada T, Iwamoto T, et al., (2010): Beijing family *Mycobacterium tuberculosis* isolated from throughout Japan: phylogeny and genetic features. Int J Tuberc Lung Dis; 14:1201-1204.
- 9) Iwamoto T, Fujiyama R, Yoshida S, et al.,

- (2009): Population structure dynamics of *Mycobacterium tuberculosis* Beijing strains during past decades in Japan. J Clin Microbiol; 47:3340-3343.
- 10) Mokrousov I, Ly HM, Otten T, et al., (2005):Origin and primary dispersal of the *Mycobacterium tuberculosis* Beijing genotype: clues from human phylogeography.Genome Res;15:1357-1364.
- 11) 永井佑樹, 岩出義人, 中野学, 坂井隆, 田沼正路, 片山正彦(2011): VNTR法を用いた結核菌の分子疫学解析(2007-2009). 三重県保健環境研究所年報;No56: 30-33.

ノート

土壤中重金属の自然または人為由来の判別に関する基礎的検討

新家淳治, 片山貴幸*, 巽 正志, 秋永克三

Fundamental study on identifying natural and anthropogenic sources of heavy metals in soils

Junji NIINOMI, Takayuki KATAYAMA, Masashi TATSUMI and Katsumi AKINAGA

土壤汚染対策法（土対法，2003年2月施行）において，土壤汚染（土対法指定基準不適合の意味）の原因が自然由来か人為由来かの判断主体は行政とされている．この判断結果によって，リスクコミュニケーションを含めた土壤汚染事案のその後の取り扱い方が大きく異なってくるため，由来の科学的判断根拠の確立は行政や土地所有者等にとって喫緊の課題である．このため，筆者らは既報において，県内12地点の非汚染土壌および汚染土壌について，1N-HCL抽出法（平成15年環境省告示第19号の方法）および濃硝酸・加熱分解法によりそれぞれ検液を作成し，重金属元素（Ni, Cu, Zn, Cd, Pb, As）の濃度を測定した．この1N-HCL抽出法と濃硝酸・加熱分解法の測定結果の比（W）を各重金属元素について算出し，検体毎に，各重金属元素のW値の変化パターンとW値の高低により，由来の判別を行った．しかし，CdとPbについては判別のための十分な情報は得られなかったため，濃硝酸・加熱分解法の代わりに濃硝酸・加圧加熱分解法を用いて検討した．

キーワード：土壤汚染，重金属，自然由来，人為由来，判別方法

はじめに

三重県では，「三重県生活環境の保全に関する条例」により土壌中の有害金属濃度が条例基準（土壌汚染対策法（土対法）指定基準と同じ）を超過していること，すなわち土壌汚染を発見した場合は土地の所有者等に対し県への届出を義務付けている（2004年施行）．また，2010年の土対法改正により，土壌汚染が発見される機会が増加した．2011年の土対法施行規則の改正により，自然由来による基準不適合の場合，人為由来の場合よりも規制緩和が行われた．一方，基準超過原因が自然由来か人為由来かによって，行政の事案に対するその後の対応（リスクコミュニケーションを含む）も異なってくる．これらのことから，土壌汚染原因の由来判別は重要である．行政は，超過原因を適切に識別・評価し，汚染原因者等に適切に指導

する必要がある．行政から当研究所に対し，由来判別の科学的根拠を求める要請があったため，当研究所では，土壌中重金属の化学分析による簡易な由来判別法の開発を2010～2012年度の3年計画で実施している．

土壌中重金属の由来判別のための方法として定まった方法はなく，既存の判別法研究^{1~10)}においては，特定の重金属について地域的存在濃度の統計的考察¹⁾，特定の重金属について存在形態^{2~8)}や同位体比^{6~8)}の考察，特定の重金属について蛍光・透過X線を用いた解析^{9, 10)}などの考察が報告されている．しかしながら，これらは特定の元素のみを対象としており，かつ，容易な判別方法ではない．筆者らは化学分析による由来判別法の開発を過去に報告^{11, 12)}している．すなわち，簡易な，土壌中重金属の由来を判別する方法を開発す

* 三重県四日市農林商工環境事務所

るための基礎的な知見を得る目的で、三重県内の非汚染土壌試料等について、1N-HCL抽出法（土対法含有量：平成15年環境省告示第19号）および濃硝酸による加熱分解法により検液を作成し、誘導結合プラズマ質量分析（ICP-MS）により多元素の重金属測定を行った。本報告では、既報^{11, 12)}においてCdとPbについての判別精度に課題があったので、当該精度を向上するため、濃硝酸・加熱分解法の代わりに濃硝酸・加圧加熱分解法の適用を検討したので報告する。

方 法

1. 土壌試料

土壌試料は、既報¹²⁾において試料とした三重県内の12地点の非汚染土壌のうち、5地点（図1、四日市市2地点、伊賀市1地点、伊勢市1地点、熊野市1地点）および平成22年度環境測定分析統一精度管理調査*（統一精度管理調査）で配付された汚染土壌試料を用いた。三重県内で採取した土壌は風乾し、礫や植物の根等を除去後、2mmメッシュのふるいにかけて通過したものを用いた。

* 環境測定分析統一精度管理調査

環境省では、環境測定分析の信頼性の確保および精度の向上等を目的として、全国の環境測定分析機関を対象に環境測定分析統一精度管理調査を実施しており、平成22年度は、汚染土壌処理施設において採取した汚染土壌試料中のPb、Cu等の測

定を実施。

2. 検液の作成

各土壌試料について、既報^{11, 12)}においては、1N-HCL抽出法および濃硝酸・加熱分解法により検液を作成しており、本報告では濃硝酸・加熱分解法の代替法の検討として、下記の濃硝酸・加圧加熱分解法により検液を作成した。

- ・1N-HCL抽出法：平成15年環境省告示第19号に規定する方法。ただし、土壌約1.5gを試料とし、測定前処理として硝酸分解を実施した。

- ・濃硝酸による加熱分解法：土壌約1.5gに濃硝酸（60%水溶液）10mlを加え、150～200℃で1時間加熱分解後、さらに濃硝酸5mlを加え、同温度で15分間加熱分解した。

- ・濃硝酸による加圧・加熱分解法：PTFE密閉容器（内容積30ml）に土壌約1gを採り、濃硝酸10mlを加え、高圧用反応分解容器を用いて170℃で7時間加圧・加熱分解した。

3. 測定

作成した検液について、Ni、Cu、Zn、Cd、PbおよびAsの量を日本工業規格K0102に従って、ICP-MS分析装置（アジレント製7500）を用いて測定した。

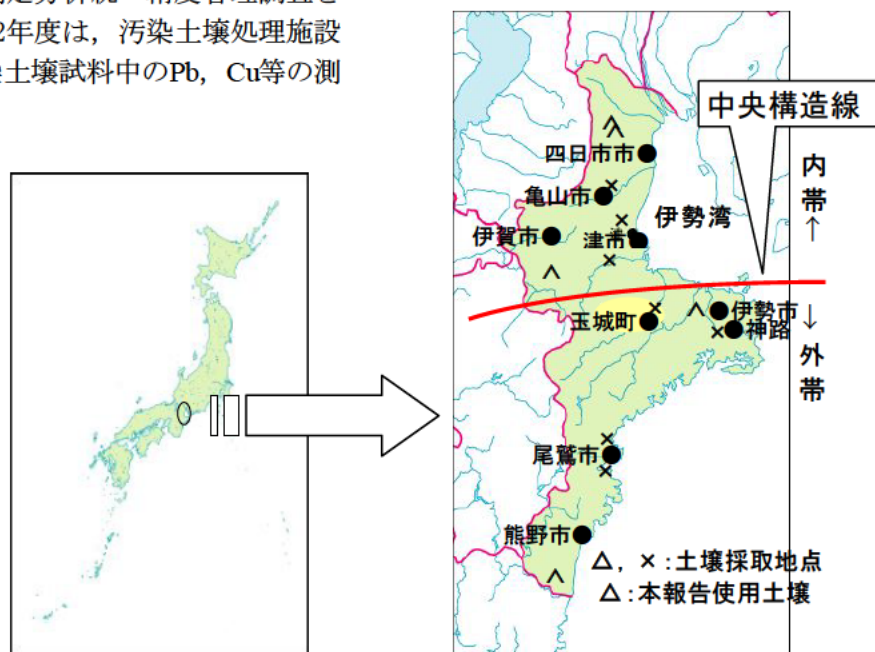


図1 三重県内試料採取地点

結果および考察

既報¹²⁾で報告した結果について、1N-HCL抽出法の結果を表1に、濃硝酸・加熱分解法の結果を表2に示した。表1および表2から、濃硝酸・加熱分解法の方が1N-HCL抽出法よりも土壤中重金属をより多く検液中に取り出していることがわかる。

丸茂ら⁷⁾は、土壤中重金属の存在形態分析を行っており、存在形態を(1)吸着態(イオン交換態)、(2)炭酸塩態、(3)鉄・マンガン酸化物態、(4)有機物態、(5)残渣(難溶性鉱物態)に分ける分別抽出を実施している。1N-HCL抽出では、吸着態、炭酸塩態、酸化物態および有機物態の一部が溶解する¹³⁾と考えられ、濃硝酸・加熱分解ではそれらに加え難溶性鉱物態の一部も溶解すると考えられる。

既報^{11, 12)}において、土壤中重金属元素に関する状態因子方程式、

$$a(A/B)_i = aWi = g_i(aL_{0i}, aP_{xi}, at) \quad (1)$$

を定義した。

ここで、 aWi は地点aにおける土壤中の重金属元素i(例えば、 $i=Ni, Cu, Zn, Cd, Pb, As$)についての形態別存在比、すなわち、重金属元素iについて、土壤単位重量当たりの1N-HCL抽出量(A)と土壤単位重量当たりの濃硝酸・加熱分解量(B)の比 $a(A/B)_i$ である。

Aは非鉱物性の比較的弱い酸に溶解易い存在形態の重金属を多く含み、BはAに加え1N-HCL溶液では抽出できなかった形態物(鉱物性難溶物)を含んでいると考えられる。 aL_{0i} は地点aの土壤中重

金属元素iを取り巻く生態系であり、 aP_{xi} はその生態系に加わるエネルギーと物質の流束ポテンシャルであり、 at は時間である。 aP_{xi} 中に人間活動による影響因子が含まれると考えられる。地点aの重金属元素iにおいて人間活動による影響が存在する(人為汚染がある)とし、地点bの重金属iについては自然由来のみ(非汚染)とした場合、 $aWi \gg bWi$ と考えられる。また、 aP_{xi} の aWi の値に対する影響の度合いは、 aL_{0i} や at の影響よりも十分大きいと考えられる。なぜならば、人為汚染は、(1)式における生態系の変化や地質的時間経過と比べ劇的・急激な変化であり、重金属元素iについて人為汚染を受けたa地点土壤では元素iの非鉱物性形態物の存在割合が卓越していると考えられ、 $a(A/B)_i \gg b(A/B)_i$ と考えられるからである。このことから、地点k($k=a, b, \dots$)での重金属元素iの kWi を測定すれば、人間活動による影響の程度を評価できる可能性がある。すなわち、地点kの土壤が非汚染土壤であって、 kL_{0i} および kt が地点間で大きく異ならない限り、地点kにおける重金属元素iの kWi をグラフにプロットすればその変化パターンは地点間でおおむね相似形になるものと予想される。一方、ある地点の土壤試料について、非汚染土壤群の当該変化パターンから大きく高値側に乖離する重金属元素があれば、その重金属元素に関し人為汚染が疑われる。

表1 土壤中重金属の測定結果(1N-HCL抽出法)

	津1	津2	四日市1	四日市2	伊賀	亀山	玉城町	伊勢	神路	尾鷲1	尾鷲2	能野	精度管理
	(mg/kg)												
Ni	2.0	0.76	1.6	0.48	0.12	0.83	0.34	12	15	1.3	0.35	0.93	7.0
Cu	3.2	0.69	4.8	3.2	0.71	1.7	5.1	8.1	6.8	15	2.7	9.0	93
Zn	4.3	1.9	4.9	46	1.3	0.46	4.4	25	40	6.8	3.0	5.1	140
Cd	0.022	<0.001	0.066	0.15	0.012	0.020	0.035	0.098	0.087	0.053	0.042	0.060	0.33
Pb	11	6.8	5.7	13	6.2	9.1	14	20	1.8	14	9.3	13	220
As	0.095	<0.002	0.21	0.14	0.072	0.028	0.11	0.34	0.23	0.31	0.20	0.78	1.6

表2 土壤中重金属の測定結果(濃硝酸・加熱分解法)

	津1	津2	四日市1	四日市2	伊賀	亀山	玉城町	伊勢	神路	尾鷲1	尾鷲2	能野	精度管理
	(mg/kg)												
Ni	6.7	2.1	6.3	2.1	1.6	9.1	14	47	81	11	11	1.4	15
Cu	7.6	2.5	7.7	5.4	2.3	15	32	34	39	32	17	19	99
Zn	11	8.8	9.0	80	14	7.5	27	27	120	32	38	8.7	179
Cd	0.032	<0.002	0.089	0.10	0.030	0.030	0.055	0.13	0.26	0.078	0.064	0.070	0.35
Pb	13	13	7.1	17	11	20	23	28	5.4	18	17	46	270
As	0.70	0.15	1.4	0.61	0.52	0.63	4.8	1.1	2.3	1.4	5.2	3.6	1.7

三重県は、県域の中央部に中央構造線が東西に走り、中央構造線の南北で地質的に二分されている（北側（内帯；領家変成帯），南側（外帯；三波川変成帯））¹⁴⁾。既報¹²⁾（県内12地点試料）において、内帯と外帯の非汚染土壌での重金属種 i の組成比率は異なっていたが、 kWi の変化パターンは内帯と外帯で相似していた（図2）。環境省配付の汚染土壌では Wi の変化パターンが県内の非汚染土壌のものとは明らかに異なっており、汚染土壌の Cu と As の Wi はそれぞれ94%と93%と高値で、かつ、非汚染土壌の Wi と乖離していたので、人為汚染が疑われた（図2）。

しかしながら、 Cd と Pb については、汚染土壌の Wi はどちらも高値（それぞれ、93%、81%）であったが、非汚染土壌の kWi の変動範囲（それぞれ、39～86%、29～83%）とほとんど乖離がなかった。 Cd と Pb は鉱物性態であっても、1N-HCLで抽出され易い⁷⁾ と推察される。

Cd と Pb について判別能力を上げるためには、非汚染土壌の kWi ($=a(A/B)i$) を低値にして、汚染土壌の kWi との乖離が大きくなるようにし、由来判別能力を向上させる工夫が必要と考えられる。

kWi ($=k(A/B)i$) について、分母 B を大きくすれば kWi は低値になる。 B は前述したように、濃硝酸・加熱分解で抽出できる、非鉱物性易溶物態と鉱物性難溶物態の一部の和であるから、非汚染土壌の分母 B を大きくするためには、 B の分析方法として濃硝酸・加熱分解法よりも分解力の強い方法を用いれば鉱物性難溶物態をより多く分解するの

で、分母 B は大きくなり、 kWi は低値になる。ここで、分解抽出できる鉱物性難溶物態の量を c とすれば、 $B=(A+c)$ となり、次のように表現できる。

$$kWi = a(A/B)i = A/(A+c) \quad (2)$$

ここで、分解力の強い方法を用いることによる kWi への影響を考える。 c は分解力の強い方法の方がより大きくなる。最終的に、 $A \gg c$ の場合、式(2)は $kWi \approx (A/A) \approx 1$ と近似でき、分解力の強い方法を用いても kWi の変化はほとんどないと考えられる。一方、 A と c が互いに無視できないレベルの場合、分解力の違いによる c の変化は無視できず、分解力の強い方法を用いた場合は、 kWi は低値に変化すると考えられる。

したがって、既報^{11, 12)} で用いた濃硝酸・加熱分解法よりも分解力の強い方法を用いれば、 kWi は低値に変化し、既報の判別能力よりも能力が向上する可能性があると考えられる。

そこで、 B の分析方法として、既報よりも分解力が強いと考えられる方法の適用を検討した。ここで、本研究では、容易な判別方法の開発を目指しているので、分解力は強力であるものの、フッ酸等の、取り扱いに注意を要する分解方法は採用せずに、取り扱いの容易な濃硝酸・加圧加熱分解法について検討した。

濃硝酸・加圧加熱分解法を非汚染土壌および汚染土壌である統一精度管理調査土壌に適用し、得られた kWi の結果を、既報^{11, 12)} の濃硝酸・加熱分

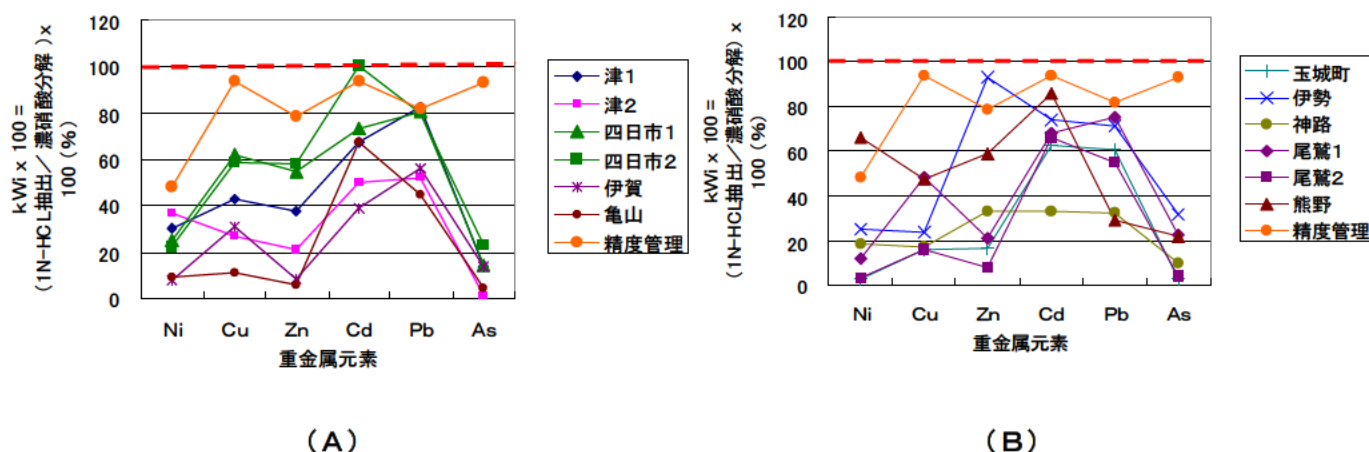
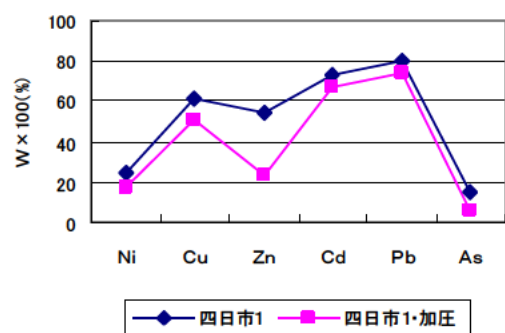
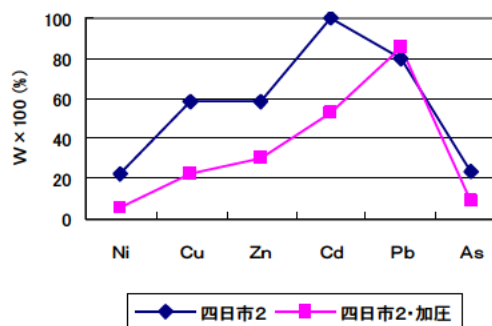


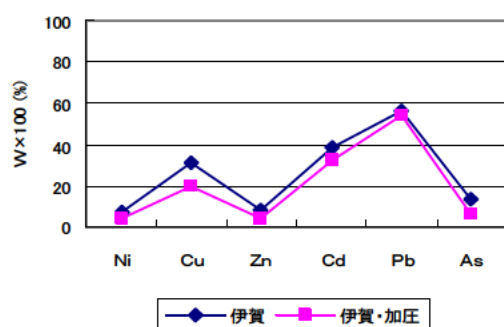
図2 土壌中重金属の形態別存在比 ($kWi \times 100$)
(A)：内帯試料および統一精度管理試料，(B)：外帯試料および統一精度管理試料



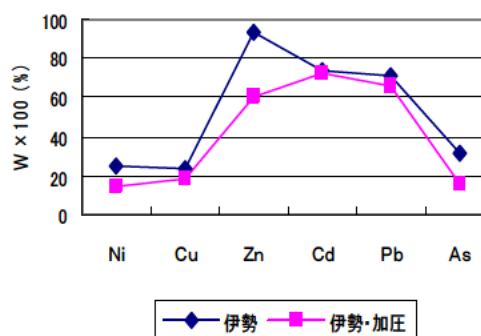
(A)



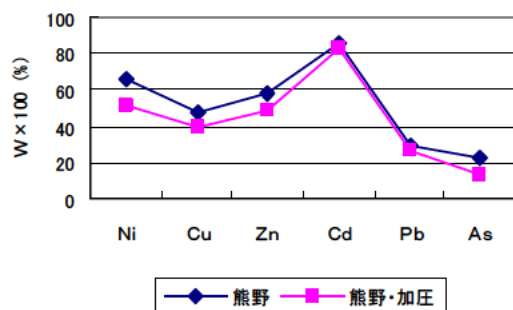
(B)



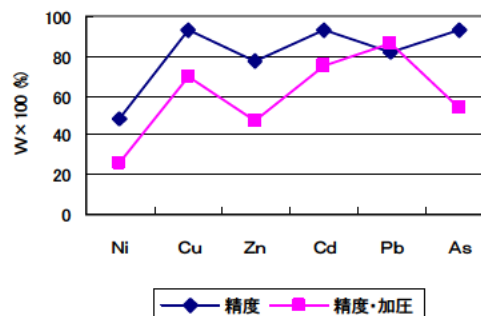
(C)



(D)



(E)



(F)

図3 土壤中重金属の形態別存在比 (kW_i)

(◆濃硝酸・加熱分解法, ■濃硝酸・加圧加熱分解法)

土壤試料

A : 四日市1,
D : 伊勢,

B : 四日市2,

E : 熊野,

C : 伊賀,
F : 統一精度管理

解法の結果とともに図3に示した。図3から分かるように、総体的に濃硝酸・加圧加熱分解法の方が分解力が強く、kW_iが低値であった。しかしながら、Cdについて濃硝酸・加熱分解法と濃硝酸・加圧加熱分解法のkW_iを比較すると、それぞれ38~100%、32~82%であり、PbのkW_iについては、それ

ぞれ28~81%、26~86%であった。すなわち、濃硝酸・加圧加熱分解法への代替では、Ni,Cu,ZnおよびAsではkW_iが少し低値になったが、CdとPbのkW_iではあまり変化がなく、特にPbについては改善がなかった。

今後は、kW_i=k(A/B)_iの値を小さくするために、

分子Aの分析法について検討したい。

まとめ

本研究の最終目標は、土壤中重金属の由来を簡易に判別できる方法を開発することである。

しかし、既報^{11, 12)}において、CdとPbの判別能力に課題があったため、課題解決のための検討を行った。三重県内の5地点の非汚染土壌および平成22年度に統一精度管理調査の試料として環境省が配付した汚染土壌について、既報^{11, 12)}で用いた濃硝酸・加熱分解法の代わりに、より分解力が強いと考えられる濃硝酸・加圧加熱分解法を用いて検討した。その結果、

・Ni, Cu, ZnおよびAsでは判別能力の多少の向上が見込まれたが、CdとPbについては、濃硝酸・加圧加熱分解法を用いても判別のための能力向上は期待できなかった。

今後、さらに検討を進め、CdとPbについて、より確度の高い判別方法を開発したい。

参考文献

- 1) 自然由来重金属検討委員会(2009)：札幌市における自然由来ヒ素の判定方法について(答申)，http://www.city.sapporo.jp/kankyo/dojo_osen/documents/toushin.pdf (2012.3.時点)。
- 2) 丸茂克美(2007)：自然由来の重金属に起因する土壌汚染問題への地球科学的アプローチ，地学雑誌，**116**，877-891。
- 3) 小林智穂，重野久美子，堀内康光，辰巳健一(2008)：土壌中の重金属が自然的原因であるかどうかの判定における存在形態分析結果の適用例，地盤工学会誌，**56**(10),40-41。
- 4) 成田隆広(2010)：地盤汚染対策に関する技術開発(その3) 自然的・人為的原因の判定事例の紹介と改正土対法に向けた取り組み，Docon Report,**185**,16-19。
- 5) 成沢昇(2008)：環境技術開発最前線 自然由来の土壌・地下水汚染調査について，環境管理，**44**,214-217。
- 6) 松本理宏，成田隆広，堀内康光，辰巳健一，深澤達矢(2010)：北海道における自然堆積土壌中の鉛存在形態と地盤汚染評価への適用，第19回環境化学討論会予稿集，800-801。
- 7) 丸茂克美，江橋俊臣，氏家亨(2003)：日本各地の土壌中の重金属含有量と鉛同位体組成，資源地質，**53**(2)，125-146。
- 8) 丸茂克美(2005)：土壌と底質の分析，ぶんせき，**10**,565-571。(社)日本分析化学会。
- 9) 丸茂克美，小野雅弘，小野木有佳，細川好則(2010)：可搬型蛍光X線透視分析装置を用いた土壌・鉱物試料のX線イメージングと元素分析，X線分析の進歩，**41**,85-98。(社)日本分析化学会X線分析研究懇談会。
- 10) 丸茂克美，小野木有佳，大塚晴美，細川好則(2011)：蛍光X線透視分析装置による汚染土壌分析，X線分析の進歩，**42**,153-165。(社)日本分析化学会X線分析研究懇談会。
- 11) 新家淳治，棚瀬敦史，秋永克三，吉岡理，大熊和行，山口哲夫(2011)：三重県における土壌中重金属の自然・人為由来の判別に関する一考察，第17回地下水・土壌汚染とその防止対策に関する研究集会講演集，S6-1,p.495-498。
- 12) 新家淳治，片山貴幸，巽正志，秋永克三，山口哲夫(2012)：土壌中重金属の自然・人為由来の判別に関する研究，第18回地下水・土壌汚染とその防止対策に関する研究集会講演集，S3-30,p.407-411。
- 13) 平井昭司監修，社団法人日本分析化学会編(2007)：現場で役立つ 環境分析の基礎 水と土壌の元素分析，p.37,オーム社，東京。
- 14) 三重県自然誌の会(1995)：自然のレッドデータブック・三重ー三重県の保護上重要な地形・地質および野生生物ー，p.8,三重県教育文化研究所，津市。

ノート

浮遊粒子状物質に含まれる多環芳香族炭化水素類 について(5)

—黄砂飛来時の状況について—

佐来栄治, 吉岡 理

Polycyclic Aromatic Hydrocarbons Contained in Suspended Particulate Matter (V)

—Current Condition of Dust of Sand Storm—

Eiji SARAI and Osamu YOSHIOKA

2011年5月の黄砂の飛来時にパーソナルカスケードインパクト(PCI)サンプラーを用い粒径別の多環芳香族炭化水素類(PAHs)と粒子濃度の実態調査を当保健環境研究所の屋上で行い, これまでの調査結果等との比較を行った. その結果, 粒子濃度については, 黄砂飛来時には $2.5\mu\text{m} \sim 10\mu\text{m} > 2.5\mu\text{m} \text{以下} > 10\mu\text{m} \text{以上}$ の粒径の順に高い傾向を示したが, PAHs の粒径別濃度については, これまでと同様 $2.5\mu\text{m} \text{以下} > 2.5\mu\text{m} \sim 10\mu\text{m} > 10\mu\text{m} \text{以上}$ の粒径の順に高かった. また, 今回の調査期間において黄砂飛来によって PAHs 濃度は, 黄砂の影響がない状態に比べて6倍程度高くなったと考えられた.

キーワード: 黄砂, パーソナルカスケードインパクトサンプラー, 浮遊粒子状物質, 多環芳香族炭化水素類, 粒径別実態調査

はじめに

2007～2010年度まで, 自動車 NO_x ・PM 法の対策地域である三重県北勢地域内の3地点(納屋, 桑名, 桜)において, パーソナルカスケードインパクト(PCI)サンプラーを用いて浮遊粒子状物質について粒径別 ($2.5\mu\text{m}$ 以下 (PM_{2.5} に相当 PC-3), $2.5 \sim 10\mu\text{m}$ (PC-2), $10\mu\text{m}$ 以上 (PC-1)) の多環芳香族炭化水素類(PAHs)と粒子濃度の調査を行った.

その結果, PAHs の粒径別濃度については, PC-3>PC-2>PC-1 の順に高く, 地点別では, 各粒径とも納屋>桑名>桜の順に高く, 粒子濃度については, 納屋, 桑名, 桜とも PC-3>PC-2>PC-1 の順に高い傾向を示し, 調査開始以降桑名, 納屋においては, 粒子濃度が減少傾向にあることをこれまでに報告を行なった¹⁻⁷⁾. 本報では, 2011年5月の黄砂の飛来時に桜地点(保健環境研究所)にお

いて PCI サンプラーを用いて連続サンプリングを行い, 2008年8月～2011年3月までの桜地点の多環芳香族炭化水素類(PAHs)と粒子濃度の実態調査結果と比較検討等を行ったので報告する.

実験方法

1. 調査地点

調査地点は保健環境研究所の屋上で鈴鹿山麓にある(四日市市桜町 3684-11)。

2. 調査期間

2008年8月～2011年3月と2011年5月

3. 調査対象物質

以下に調査対象とした PAH 14 物質の名称とその略称を示す.

- 1) ベンゾ(a)アントラセン (BaA)
- 2) クリセン (Chr)

- 3)ベンゾ(e)ピレン (BeP)
- 4)ベンゾ(b)フルオランテン (BbF)
- 5)ジベンゾ(a,c)アントラセン (DBaC)
- 6)ベンゾ(k)フルオランテン (BkF)
- 7)ベンゾ(a)ピレン (BaP)
- 8)ジベンゾ(a,h)アントラセン (DBaH)
- 9)ベンゾ(ghi)ペレリン (BgHiP)
- 10)インデノ(1,2,3-cd)ピレン (IP)
- 11)ジベンゾ(a,e)ピレン (DBaE)
- 12)ベンゾ(b)クリセン (BbC)
- 13)ピセン (Pic)
- 14)コロネン (Cor)

なお、BaA, Chr については、気温等の条件によりフィルタに捕集されない可能性のある物質であるが、同時分析が可能なため測定を行った。また、今回の解析では14種類のPAHをPAHsとし、おもに合計濃度で解析を行った。

4. 試薬・器具・装置

1) 試薬

・対象物質：BaA, Chr, BbF, BkF, BaP, DBaH, BgHiP, IP はスペルコ製の混合標準原液を用いた。BeP は東京化成製、BaC, Cor は Aldrich 製、BbC, DBaE, Pic は AccuStandard 社製の原体からアセトニトリルを用いて標準原液を調製した。各標準原液を混合して、アセトニトリルで希釈し PAHs 標準液を調製した。

- ・トルエン：和光純薬残留農薬分析用(300)
- ・ジクロロメタン、ヘキサン：和光純薬残留農薬分析用(5000)
- ・アセトン：関東化学残留農薬分析用(5000)
- ・アセトニトリル：関東化学 LC 分析用
- ・精製水：ミリ Q 水 (MILIPORE)を使用した。
- ・ジメチルスルホキシド：和光純薬

2) 装置・器具

- ・高速溶媒抽出装置(ASE-200), 11mL 抽出セル：ダイオネクス(株)製
- ・高速液体クロマトグラフー分光蛍光検出器 (HPLC-FLD)：Agilent Tec.社製 1100 シリーズ
- ・分析カラム：SUPELCOSIL LC-PAH (10cm × 4.6mmφ, 粒子径 3μm)
- ・PCI サンプラー：東京ダイレック製
- ・高速冷却遠心器：(株)トミー精工 RS-18
- ・超音波発生装置：BRANSON 社製 5510
- ・ロータリーエバポレーターおよびバキュームコントローラー一式：ビュッヒ社製
- ・恒温槽：抽出液の濃縮に 40℃で使用した。
- ・石英繊維フィルタ：PALLFLEX PRODUCTS CORP (25000QAT-UP) SIZE 47×20, 47mm
- ・0.2μm フィルタ：ADVANTEC 製 DISMIC-13HP を使用した。

5. 採取・分析方法

1) 試料採取

石英繊維フィルタ(以下「フィルタ」と略)を装着した PCI サンプラーに大気試料を 20L/min で表 1 に示したとおり 50 ～ 97 時間通気し、捕集を行った。捕集時間については、休日等のため一定にすることが出来なかった。

PCI サンプラーは、装着したフィルタに粒径 10μm 以上 (PC-1), 2.5μm～10μm (PC-2), 2.5μm 以下 (PC-3, 微小粒子)の 3 段階に大気中浮遊粒子を分級捕集することができる⁸⁾。

2) フィルタ

使用したフィルタは、サンプリング前後で湿度を 50%に設定したデシケーター内に 24 時間以上保存し、秤量後サンプリングおよび分析に使用した。速やかに分析出来ない場合は、秤量後冷凍保存(-20℃)した。

3) 前処理(抽出)方法

PC-1, PC-2 のフィルタは、有害大気汚染物質測定法マニュアルに従ってジクロロメタン超音波抽出法⁹⁾に付した。サンプリングを行った PC-1, PC-2 のフィルタを、細かく裁断し、遠心沈殿管(50mL)に入れ、ジクロロメタン 15mL を加え、20 分間超音波処理し、対象物質を抽出した。この抽出液を 3000rpm で 15 分間遠心処理を行い、上澄み液 10mL をスピッツ管に分取した。その後、ジメチルスルホキシド 30μL を添加し、スピッツ管を恒温槽中で、窒素を吹き付けて乾固直前まで濃縮した。少量のアセトニトリルに再溶解後、1mL にメスアップし、0.2μm フィルタでろ過したものを分析溶液とした。PC-3 のフィルタは、既報²⁾に従ってトルエン高速溶媒抽出法に付した。サンプリングを行った PC-3 のフィルタの半量を、細かく裁断しトルエン高速溶媒抽出法で抽出したトルエン溶液をロータリーエバポレーターで濃縮後、スピッツ管に移し、ジメチルスルホキシド 30μL を添加した。その後の操作は、ジクロロメタン超音波抽出法と同様にして分析溶液を調製した。

4) 分析条件

前処理を行った分析溶液は、既報¹⁾の条件のとおりに HPLC-FLD で分析を行った。

結果および考察

1. 試料採取期間について

2011 年 5 月の浮遊粒子状物質がどのような状態にあったか知るために、四日市市桜付近の測定局において PM2.5 の測定装置が設置されていた一般環境測定局である桑名上野測定局(桑名市大字上野 283)の 2011 年 4 月 1 日 ～ 6 月 30 日までの SPM 濃度および PM2.5 濃度の測定値を図 1 に示す。そ

表1 2011年5月のサンプリング期間および採取量について

検体番号	①	②	③	④	⑤	⑥	⑦	⑧
開始日時	5月2日 16:15	5月9日 9:00	5月13日 9:25	5月16日 7:47	5月18日 9:45	5月20日 15:21	5月23日 9:05	5月25日 15:25
終了日時	5月6日 17:19	5月13日 10:00	5月16日 9:25	5月18日 9:45	5月20日 15:19	5月23日 9:10	5月25日 15:25	5月27日 20:30
吸引時間(hour)	97	97	72	50	54	66	54	53
採取量(m ³)	116	116	86	60	64	79	65	64

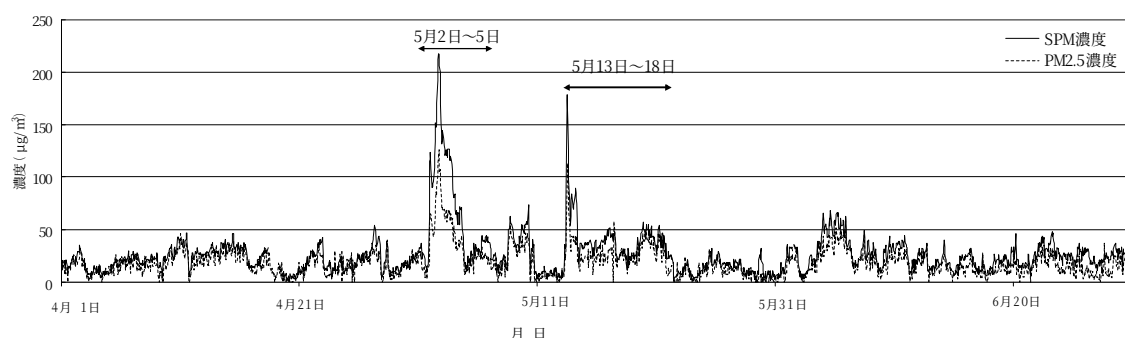


図1 2011年4月1日～6月30日の桑名上野測定局のSPM濃度およびPM2.5濃度

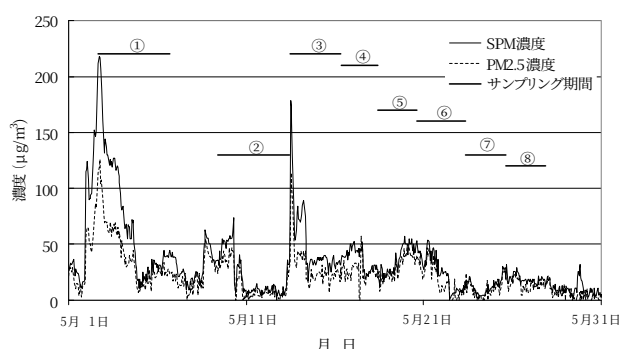


図2 2011年5月桑名上野測定局のSPM濃度およびPM2.5濃度とサンプリング期間

の結果、5月にSPM濃度およびPM2.5濃度が高く黄砂が飛来したことがわかった。次に黄砂が飛来した2011年5月について、SPM濃度およびPM2.5濃度および今回のサンプリング期間の関係を図2に示す。日本の各地で観測される、黄砂の粒子の大きさは粒子径4 μ mにピークがある粒子の集まりである。そのため、SPM濃度とPM2.5濃度の高い、両者の差が大きい期間は黄砂が飛来したと考えられる。図1の結果からは、5月の2～5日および13～18日に黄砂の飛来があったと考えられた。また、規模は小さいが5月8～9日、18～23日および6月4～6日にも黄砂の飛来があったと考えられた。図2に示した結果より、①と③のサンプリング期間が黄砂の期間、④、⑤と⑥のサンプリングが小規模な黄砂の期間およ

び②、⑦および⑧のサンプリングが黄砂の影響がなかった期間と重なっていたと考えられる。

2. 粒子濃度について

表2に、2008年8月～2011年3月までの粒子濃度の最高月、最低月と平均値および2011年5月の調査結果を示す。また、図3に2008年8月～2011年3月および2011年5月の粒径別粒子濃度の経月変化を示す。

2008年8月～2011年3月までは各月ともPC-3>PC-2>PC-1の順に高い傾向にあったが、2011年5月①、③および④の期間については、PC-2>PC-3>PC-1の順に高かった。また、⑤、⑥および⑧の期間については、PC-2がPC-3に比べて濃度は低いものの平均値よりは高かった。黄砂の粒子は4 μ mのものを中心に構成されているため、粒径2.5～10 μ mを捕集するPC-2の濃度が高めの際は黄砂の影響を受けていると考えられる。粒子濃度および粒径割合から推察すると2009年5月の結果は、若干黄砂の影響を受けた可能性があると考えられる。

3. PAHs濃度について

表3に、2008年8月～2011年3月までのPAHs濃度の最高月、最低月と平均値および2011年5月の調査結果を示す。また、図4に2008年8月～2011年3月および2011年5月の粒径別PAHs濃度の経月変化を示す。

2008年8月～2011年3月までと同様に、2011年5月の調査結果についてもいずれの期間ともPAHs濃度はPC-3>PC-2>PC-1の順に高い傾向に

表2 2008年8月～2011年3月までの粒子濃度の最高月、最低月と平均値および
2011年5月の調査結果

	2008年8月～2011年3月の結果			2011年5月の結果							
	最高月	最低月	平均値	①	②	③	④	⑤	⑥	⑦	⑧
PC-1 (10 μ m以上)	12	0.76	3.8	11	2.6	25	13	7.0	11	3.2	7.2
PC-2 (2.5-10 μ m)	15	2.2	6.8	54	2.7	41	26	16	15	3.3	12
PC-3 (2.5 μ m以下)	28	5.7	15	35	8.6	35	23	29	24	9.3	16

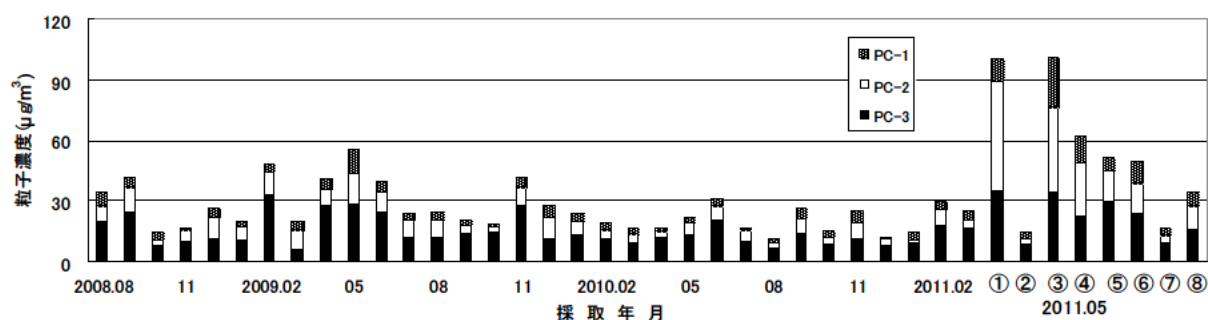


図3 2008年8月～2011年3月までの粒径別粒子濃度の経月変化および2011年5月の調査結果

表3 2008年8月～2011年3月までのPAHs濃度の最高月、最低月と平均値
および2011年5月の調査結果

	2008年8月～2011年3月の結果			2011年5月の結果							
	最高月	最低月	平均値	①	②	③	④	⑤	⑥	⑦	⑧
PC-1 (10 μ m以上)	26	<1.0	5.3	19	2.5	97	110	170	130	1.7	1.5
PC-2 (2.5-10 μ m)	680	1.2	120	82	17	210	219	220	350	28	44
PC-3 (2.5 μ m以下)	2900	120	1100	1200	210	1900	1700	1700	1900	420	310

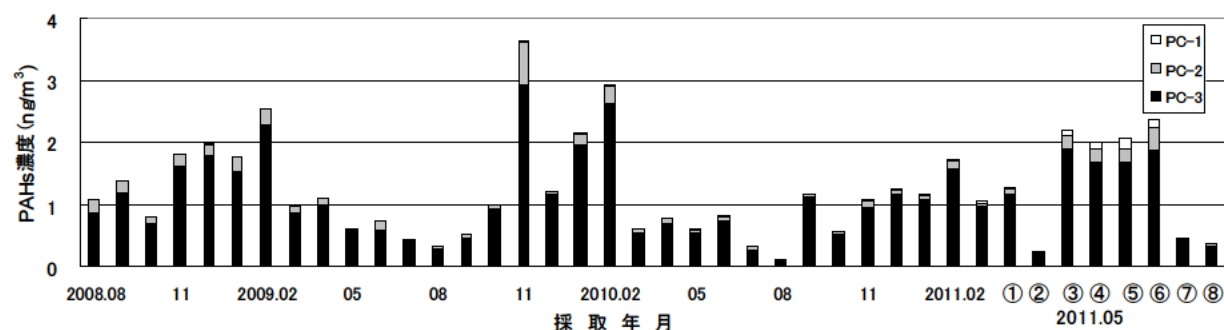


図4 2008年8月～2011年3月までの粒径別PAHs濃度の経月変化および2011年5月の調査結果

表 4 2008 年 8 月～2011 年 3 月までの粒径別粒子中 PAHs 濃度の最高月，最低月と平均値
および 2011 年 5 月の調査結果

	2008年8月 ～ 2011年3月の結果			2011年5月の結果							
	最高月	最低月	平均値	①	②	③	④	⑤	⑥	⑦	⑧
PC-1 (10 μ m以上)	4.5	<0.01	0.99	1.8	1.0	3.8	8.5	26	12	0.53	0.20
PC-2 (2.5-10 μ m)	74	0.35	20	1.5	6.3	5.0	8.3	13	23	8.3	3.8
PC-3 (2.5 μ m以下)	220	18	80	33	24	54	74	57	12	45	20

(ng/ μ g)

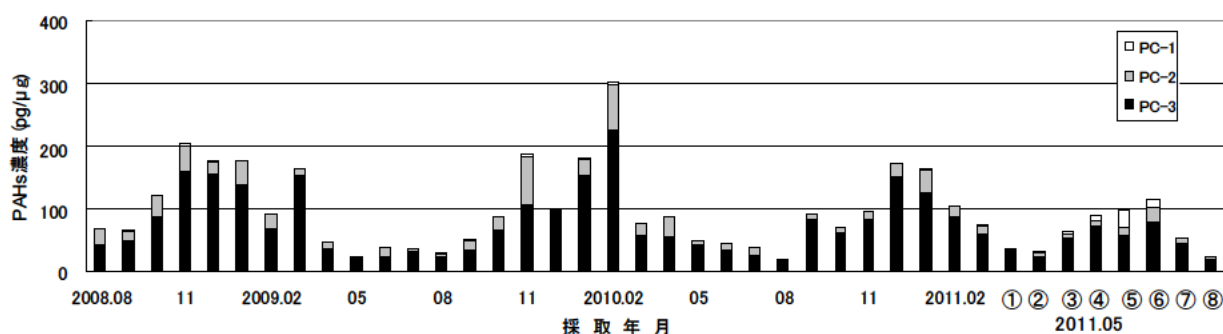


図 5 2008 年 8 月～2011 年 3 月までの粒径別粒子中 PAHs 濃度の経月変化
および 2011 年 5 月の調査結果

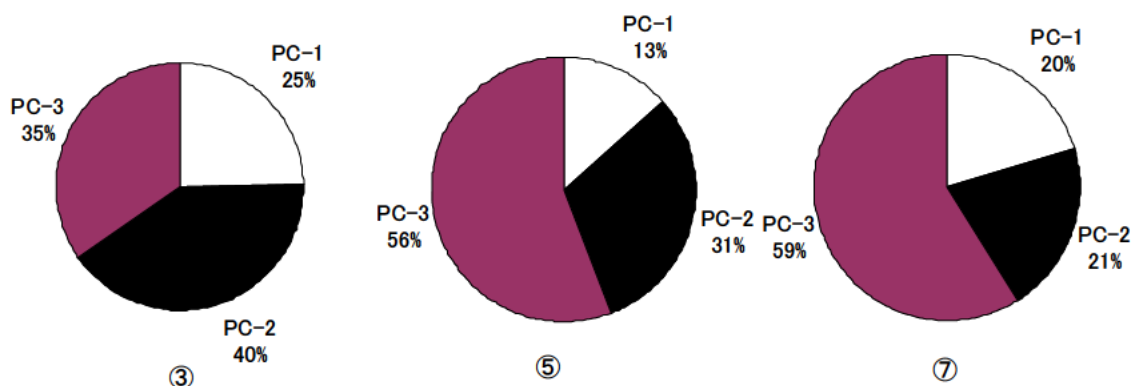


図 6 期間③，⑤および⑦の粒子濃度の粒径別割合

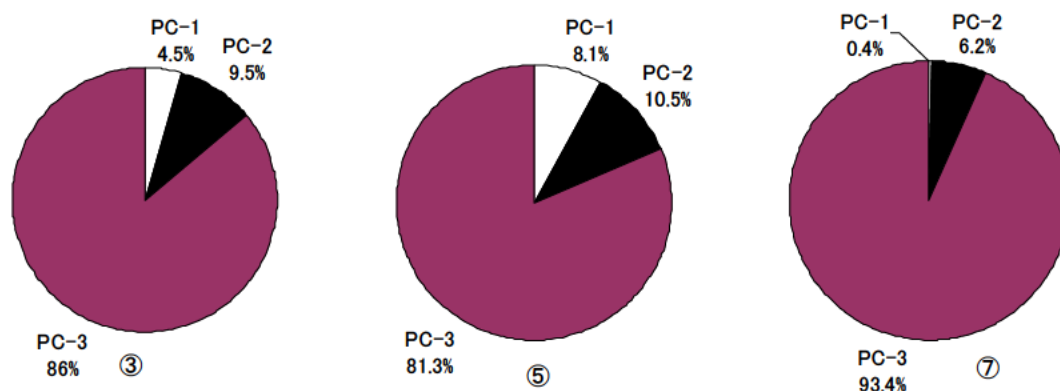


図 7 期間③，⑤および⑦の PAHs 濃度の粒径別割合

表 5-1 2011 年 5 月の PC-1 中の PAH 濃度

(単位:pg/m³)

	①	②	③	④	⑤	⑥	⑦	⑧
BaA	1.8	0.66	13	13	24	17	0.66	0.54
Chr	4.0	<3.3	22	26	34	29	<3.3	<3.3
BeP	1.9	<1.9	11	12	17	14	<1.9	<1.9
BbF	2.3	0.76	11	13	18	15	<1.7	<1.7
DBacA	<1.1	<1.1	2.0	2.0	1.8	1.5	<1.1	<1.1
BkF	1.0	0.39	2.0	2.0	9.4	7.4	0.37	0.36
BaP	1.7	0.71	11	12	21	15	0.63	0.57
DBahA	<1.7	<1.7	2.0	2.2	3.5	2.8	<1.7	<1.7
BghiP	1.5	<1.0	4.7	5.0	8.5	7.0	<1.0	<1.0
IP	3.4	<3.0	9	12	18	12	<3.0	<3.0
BbC	<1.3	<1.3	<1.3	2.3	1.5	1.5	<1.3	<1.3
DBaeP	0.20	<0.17	1.2	1.3	2.0	1.4	<0.17	<0.17
Pic	1.4	<1.5	5.7	6.0	8.7	6.8	<1.5	<1.5
Cor	<3.0	<3.0	<3.0	<3.0	3.5	<3.0	<3.0	<3.0

表 5-2 2011 年 5 月の PC-2 中の PAH 濃度

(単位:pg/m³)

	①	②	③	④	⑤	⑥	⑦	⑧
BaA	5.7	1.4	24	20	20	26	2.5	1.6
Chr	16	3.9	45	47	44	68	7.1	6.9
BeP	11	1.7	22	20	24	41	4.1	5.3
BbF	12	2.1	24	28	28	45	5.4	7.7
DBacA	<1.1	<1.1	5.1	2.7	2.2	4.1	<1.1	<1.1
BkF	5.4	1.2	12	14	14	21	2.6	3.2
BaP	7.7	1.7	22	21	23	36	3.7	3.6
DBahA	<1.7	<1.7	4.6	4.7	4.7	8.2	<1.7	<1.7
BghiP	6.1	1.2	10	12	12	21	<1.0	4.1
IP	12	2.5	22	25	27	48	<3.0	7.9
BbC	<1.3	<1.3	1.9	3.5	3.9	3.7	<1.3	<1.3
DBaeP	0.50	<0.17	2.2	2.1	2.5	3.9	0.20	0.21
Pic	5.4	1.5	12	14	15	21	2.1	3.9
Cor	<3.0	<3.0	<3.0	4.1	<3.0	4.9	<3.0	<3.0

表 5-3 2011 年 5 月の PC-3 中の PAH 濃度

(単位:pg/m³)

	①	②	③	④	⑤	⑥	⑦	⑧
BaA	41	11	150	110	100	100	20	11
Chr	140	29	370	300	250	250	58	38
BeP	130	19	170	190	150	170	36	29
BbF	160	26	240	220	240	250	63	49
DBacA	7.3	1.5	24	20	14	21	2.6	1.8
BkF	66	14	120	100	110	110	28	20
BaP	87	18	180	160	160	180	39	24
DBahA	23	4.4	40	36	40	51	9	5.6
BghiP	130	18	130	110	130	170	34	30
IP	240	40	280	260	290	330	76	61
BbC	16	4	23	21	23	31	6.6	3.6
DBaeP	6.4	1.6	17	14	16	19	2.3	1.6
Pic	66	14	100	97	110	130	28	21
Cor	60	8.2	50	39	47	66	17	15

あった。また、PAHs 濃度については黄砂飛来期間 (①, ③, ④, ⑤, ⑥) については、PC-1, PC-2, PC-3 の全ての粒径で、2008 年 8 月～2011 年 3 月の平均値に比べて高い傾向にあり、PC-1 では 20 倍程度高く、PC-2 および PC-3 については 2 倍程度高かった。粒子濃度および粒径割合から 2009 年 5 月に黄砂飛来の可能性があるかと推察されたが、PAHs 濃度が低く黄砂飛来はなかったと考えられた。

4. 粒子中の PAHs 濃度について

表 4 に、2008 年 8 月～2011 年 3 月までの PAHs 濃度の最高月、最低月と平均値および 2011 年 5 月の調査結果を示す。また、図 5 に 2008 年 8 月～2011 年 3 月および 2011 年 5 月の粒径別粒子中 PAHs 濃度の経月変化を示す。

粒子濃度の高い黄砂飛来期間 (①, ③, ④, ⑤, ⑥) の粒子中の PAHs 濃度については PC-1 が黄砂の影響がなかった期間 (②, ⑦, ⑧) に比べて高い傾向を示す以外、PC-2 および PC-3 についてあまり差は見られなかった。

5. 2011 年 5 月に飛来した黄砂の影響について

次に 2011 年 5 月にサンプリングした測定結果で黄砂について検討を行った。

1) 粒子濃度について

図 6 に③, ⑤および⑦の粒子濃度の粒径別割合を示した。黄砂飛来期間 (③) の粒子濃度の粒径別割合は、PC-2>PC-3> PC-1 の順に高く、黄砂の影響があると思われる期間 (⑤) についても PC-2 の粒子の割合は黄砂の影響がなかった期間 (⑦) に比べて高い。これは、前述したとおり黄砂の粒子は 4 μm のものを中心に構成されているため黄砂の影響がある期間は PC-2 が高い傾向になると考えられた。

2) PAHs 濃度について

PAHs 濃度は既報⁴⁾において、季節変化があり 2011 年 5 月の黄砂飛来期間 (①, ③, ④, ⑤, ⑥) と黄砂の影響がなかった期間 (②, ⑦, ⑧) とを比べると、黄砂飛来期間の PAHs 濃度は、黄砂の影響がなかった期間に比べて 6 倍程度高かった。このことは、既報¹⁰⁾にもあるとおり、東アジアの砂漠地帯や黄土地帯の粒子で構成される黄砂が、風によって拡散・移動して来る間に、石炭や石油等の化石燃料の燃焼時に発生する PAHs を取り込んで来たと考えられる。

図 7 に③, ⑤および⑦の PAHs 濃度の粒径別割合を示した。粒径別 PAHs 濃度の割合についても、粒子濃度の粒径別割合と同様、通常期 (⑦) に比べ黄砂飛来期間 (③) と黄砂の影響があると思われる期間 (⑤) は PC-1 および PC-2 の割合が高かった。

表 5-1～3 に、2011 年 5 月の各 PAH の粒径別濃度を示す。その結果、今回の調査では黄砂飛来期間 (①, ③, ④, ⑤, ⑥) と黄砂の影響がなかった期間 (②, ⑦, ⑧) の PAH の組成には、あまり差はなかったと考えられた。

まとめ

2011 年 5 月の黄砂飛来期間 (①, ③, ④, ⑤, ⑥) と黄砂の影響がなかった期間 (②, ⑦, ⑧) に PCI サンプラーを用いて浮遊粒子状物質の粒径別の多環芳香族炭化水素類(PAHs)と粒子濃度の調査を行った結果。次の知見が得られた。

1. 粒子濃度については、これまで PC-3>PC-2>PC-1 の順に高い傾向を示したが、黄砂飛来時には PC-2>PC-3>PC-1 の順に高い傾向を示した。
2. PAHs の粒径別濃度については、黄砂飛来に関係なく PC-3>PC-2>PC-1 の順に高かった。しかし、PC-1, PC-2, PC-3 の全ての粒径で、これまでの平均値に比べて高い傾向にあり、PC-1 では 20 倍程度高く、PC-2 および PC-3 については 2 倍程度高かった。
3. 黄砂飛来期間 (①, ③, ④, ⑤, ⑥) の粒子中の PAHs 濃度については PC-1 が黄砂の影響がなかった期間 (②, ⑦, ⑧) に比べて高い傾向を示す以外、PC-2 および PC-3 についてあまり差は見られなかった。
4. 今回の調査において黄砂飛来期間 (①, ③, ④, ⑤, ⑥) の PAHs 濃度は、黄砂の影響がなかった期間 (②, ⑦, ⑧) に比べて 6 倍程度高くなったと考えられた。

文献

- 1) 佐来栄治, 塚田 進, 西山 亨, 小山善丸: 浮遊粒子状物質に含まれる多環芳香族炭化水素類について(1)ーフィルタからの抽出についてー, 三重保環研年報, 第 10 号, 62-68(2008)。
- 2) 佐来栄治, 塚田 進, 西山 亨, 小山善丸: 浮遊粒子状物質に含まれる多環芳香族炭化水素類について(2)ーフィルタからの抽出についてー, 三重保環研年報, 第 11 号, 74-82(2009)。
- 3) 佐来栄治, 小山善丸, 西山 亨, 吉岡 理: 浮遊粒子状物質に含まれる多環芳香族炭化水素類について(3)ーフィルタからの抽出についてー, 三重保環研年報, 第 12 号, 63-71(2010)。
- 4) 佐来栄治, 小山善丸, 西山 亨, 吉岡 理: 浮遊粒子状物質に含まれる多環芳香族炭化水素類について(4), 三重保環研年報, 第 12 号, 60-68(2011)。

- 5) 佐来栄治, 西山 亨, 塚田 進: 浮遊粒子状物質に含まれる多環芳香族炭化水素類について, 第 50 回大気環境学会年会講演要旨集, 454(2009).
- 6) 佐来栄治, 小山善丸, 西山 亨, 塚田 進, 大熊和行: 浮遊粒子状物質に含まれる多環芳香族炭化水素類について, 第 20 回環境化学討論会講演要旨集, 94-95(2010)
- 7) 佐来栄治, 寺本佳宏, 西山 亨: 浮遊粒子状物質に含まれる多環芳香族炭化水素類について(II), 第 52 回大気環境学会年会講演要旨集, 454(2011).
- 8) 生活環境中の汚染物質の存在状況の把握に関する研究検討委員会: 生活環境中の汚染物質測定マニュアル.
- 9) 環境庁大気保全局大気規制課: 有害大気汚染物質測定法マニュアル (水銀・ベンゾ [a] ピレン) (平成 11 年 3 月).
- 10) 西山 亨, 佐来栄治: 黄砂飛来時の多環芳香族炭化水素について, 三重保環研年報, 第 10 号, 48-54(2008).

ノート

三重県北部地域における PM2.5 環境濃度測定における 簡易法と標準法との比較

西山 亨, 小山善丸¹⁾, 高士昇吾, 寺本佳宏, 佐来栄治,
宮村典仁, 川合啓之²⁾, 吉岡 理

Comparison of the PM2.5 environmental density in the northern part of Mie Prefecture measured with simple and standard methods

Tooru NISHIYAMA, Yoshimaru KOYAMA¹⁾, Shogo TAKASHI, Yoshihiro TERAMOTO, Eiji SARAI,
Norihito MIYAMURA, Hiroyuki KAWAI²⁾, and Osamu YOSHIOKA

2010-2011 年度に三重県北部の改正自動車 NO_x・PM 法の適用地域において, PM2.5 の PCI サンプラーを用いた簡易採取法(以下, 簡易法と略す)と FRM サンプラーを用いた米国の連邦標準測定法(以下, 標準法と略す)による調査を行い, 質量濃度測定と成分分析を行った. その結果, 両測定法間で質量濃度には大きな差はなく, 良好な相関関係があり, 簡易法の結果から標準法による調査の結果を推定することが可能であると判明した. 簡易法による調査によれば, 自動車排出ガス測定局(14.7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$), 一般環境測定局(11.9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$), バックランド地点(11.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)の順で濃度が高かった. また, 標準法による調査では, 同時期の各測定地点の測定結果はほぼ同じ濃度で類似の挙動を示した. 何度か観測された高濃度事例は, 後方流跡線の解析等から, 大陸からの汚染気塊の移流がその主な原因であると考えられた.

キーワード: 簡易法, PCI サンプラー, 標準法, FRM サンプラー, 後方流跡線解析

はじめに

当研究所における環境大気中の微小粒子状物質の調査は, 主に簡易法を中心に実施してきたところである¹⁻⁷⁾.

しかし, 平成 21 年 9 月 9 日環境省により大気中微小粒子状物質(PM2.5)の環境基準が告示され, PM2.5 濃度の標準測定法は FRM サンプラーを用いた米国の連邦標準測定法に準じた重量法による一日平均値とされた.

当研究所では簡易法により環境大気中の微小粒子状物質について, その発生源の推定に活用できる微量成分濃度を把握するため 2 週間間隔での調査を実施してきたが, 2 週間間隔の採取で得られた PM2.5 濃度平均値は標準法の一日平均値と単純に比較できないことが知られている.

そこで, 本研究では, 簡易法と標準法による併行採取を行い, 標準法で得られる測定値の 2 週間分の平均値と簡易法での平均濃度等との関連を調査した.

今回は質量濃度を中心に速報として報告する.

調査方法

1. サンプリング地点とサンプリング期間

図 1 に示す 6 地点でサンプリングを行った. 6 地点は表 1 に示すように, バックランド地点である当研究所屋上(桜町)を除いて 5 地点は大気環境測定局であり, その内 2 地点は一般環境測定局で, 3 地点は自動車排出ガス測定局である. サンプリングは四季別に実施し, 表 2 にサンプリン

1) 三重県環境生活部大気・水環境課 2) 三重県津農林水産商工環境事務所

グ期間を、表3にサンプリング方法を示す。

2. サンプリング方法

1) 標準法によるサンプリング

サンプリングには、Thermo Scientific 自動連続サンプラー FRM2025 (2-4 台) (図2) と Thermo Scientific FRM2000 (1 台) (図3) を適宜使用した。ろ紙は、石英ろ紙として、PALLFRLEX PRODUCTS CORP., 2500QAT-UP φ47mm を、PTFE ろ紙として、PALL Corporation, Teflo を使用した。吸引流量は 16.7L/min であり、一枚のろ紙に対して 24 時間大気を吸引した。

2) 簡易法によるサンプリング

サンプリングには、東京ダイレック株式会社製 PCI サンプラー (改良型ニールサンプラー) (図4) を用いた。エアポンプにより吸引した大気を、プラスチック製ろ紙ホルダーにセットしたインパクターノズルで3段階に分級し、選別した各ステージの粒子をφ47mm のフィルターに捕集してその質量濃度等を測定する。各ステージは、粒径 10μm 以上、2.5~10μm、2.5μm 以下に分級される (図5)。ろ紙は、PALLFRLEX PRODUCTS CORP., 2500QAT-UP φ47mm と φ47x20mm を使用した。吸引流量は 20L/min であり、一測定時期の間連続で (概ね 2 週間) 大気を吸引した。

3. 測定装置

測定には以下の装置を使用した。

1) 電子精密天秤

メトラー・トレド株式会社製、エクセレンス XP ミクロ天びん XP26

2) 炭素分析装置

サンセツラボラトリー社製、カーボンエアロゾル分析装置ラボモデル (デュアルオプティクスモデル) CAA-202M-D

3) イオンクロマトグラフ装置

陰イオン分析：ダイオネクス株式会社製、イオンクロマトグラフ装置 ICS-2000

陽イオン分析：ダイオネクス株式会社製、イオンクロマトグラフ装置 ICS-1500

4) 誘導結合プラズマ質量分析計

アジレント・テクノロジー株式会社製、コリジョン/リアクションセル誘導結合プラズマ質量分析計 Agilent 7500ce CRC-ICPMS

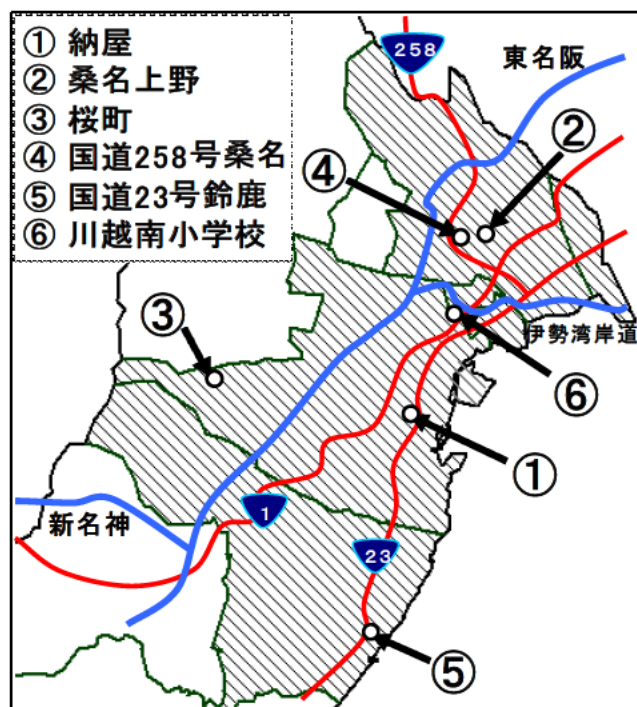


図1 改正自動車 NOx・PM 法の適用地域 (斜線部) とサンプリング地点

表1 サンプリング地点の概要

地点番号	地点名	区分
①	納屋	自動車排出ガス測定局
②	桑名上野	一般環境測定局
③	桜町	バックランド地点
④	国道258号桑名	自動車排出ガス測定局
⑤	国道23号鈴鹿	自動車排出ガス測定局
⑥	川越南小学校	一般環境測定局

表2 サンプリング期間の詳細

	開始	終了
2010年度春	2010年5月12日	~ 5月27日
2010年度夏	2010年8月17日	~ 8月31日
2010年度秋	2010年11月10日	~ 11月24日
2010年度冬	2011年2月8日	~ 2月22日
2011年度春	2011年5月30日	~ 6月13日
2011年度夏	2011年8月22日	~ 9月12日
2011年度秋	2011年11月2日	~ 11月16日
2011年度冬	2012年2月3日	~ 2月17日

表 3 サンプルング方法の詳細

地点 番号	サンプルング期間							
	2010年度春	2010年度夏	2010年度秋	2010年度冬	2011年度春	2011年度夏	2011年度秋	2011年度冬
①	FRM,PCI	FRM,PCI	FRM,PCI	FRM,PCI	PCI	PCI	PCI	PCI
②	FRM,PCI	PCI	FRM,PCI	FRM,PCI				
③	FRM,PCI	FRM,PCI	FRM,PCI	FRM,PCI	FRM,PCI	FRM,PCI	PCI	PCI
④	PCI	PCI	PCI	PCI	PCI	PCI	PCI	PCI
⑤	PCI	PCI	PCI	PCI	FRM,PCI	FRM,PCI	PCI	PCI
⑥					PCI	PCI	FRM,PCI	FRM,PCI



図 2 FRM-2000（標準法サンプラー）
（単回サンプルング式）



図 3 FRM-2025（標準法サンプラー）
（自動連続サンプルング式）



図4 PCI サンプラー（簡易法サンプラー）によるサンプリング



図5 PCI サンプラー（簡易法サンプラー）とろ紙（分級別）

調査結果および考察

1. 標準法による質量濃度実態調査結果

標準法による 2010 年度春から 2011 年度冬までの 8 調査期間実施した質量濃度測定結果について、図 6-13 に示す。

なお、図 6-13 中、桑名は桑名上野、鈴鹿は国道 23 号鈴鹿、川越南は川越南小学校を示す。

一日平均の環境基準 $35\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えたのは 8 調査期間中 5 期間（図 6, 7, 8, 10, 12）あり、延べ 252 日間で 12 日間あった。概ねそれらは、4-5 日の間に上昇して減少するという、類似の挙動を示した。測定期間中、一日平均の環境基準 $35\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えたのを地点区分別にみると、自動車排出ガス測定局では、6 調査期間中 4 期間（図 6, 7, 8, 10）（延べ 91 日間で 7 日間）、一般環境測定局では、5 調査期間中 3 期間（図 6, 8, 12）（延べ 74 日間で 4 日間）、バックグランド地点では、6 調査期間中 1 期間（図 10）（87 日間で 1 日）で

あった。

8 調査期間中、延べ 17 地点で調査を実施したが、各調査地点の平均濃度と年平均の環境基準 $15\mu\text{g}/\text{m}^3$ を比較すると、環境基準を超過したのは 9 地点であった。これを地点区分別にみると、自動車排出ガス測定局では、延べ 6 地点中 4 地点、一般環境測定局では、延べ 5 地点中 3 地点、バックグランド地点では、延べ 6 地点中 2 地点であった。

また、全測定期間の平均濃度から、概ね自動車排出ガス測定局（ $16.6\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）、一般環境測定局（ $14.6\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）、バックグランド地点（ $12.4\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）の順に濃度が高いことが分かった。しかし、その差は僅かで、同時に測定したすべての地点で同様の変動傾向を示した。このことは、各測定地点が受けている周辺発生源からの影響よりも三重県北部地域全域が受けている広域的な汚染の影響の方が大きいことを示唆している。

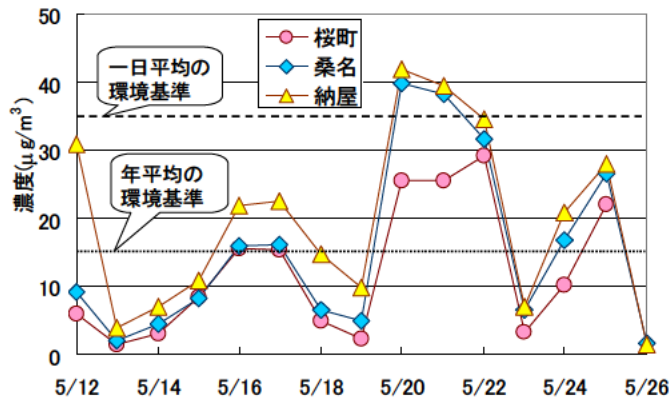


図 6 標準法による質量濃度（2010 年度春）

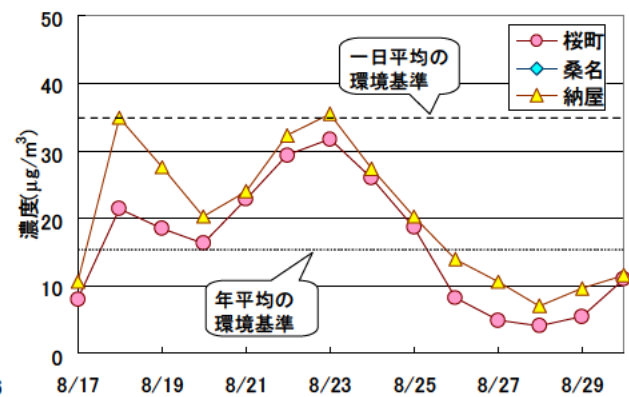


図 7 標準法による質量濃度（2010 年度夏）

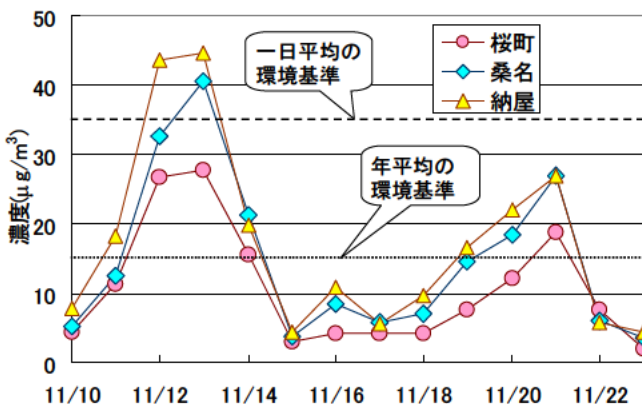


図 8 標準法による質量濃度（2010 年度秋）

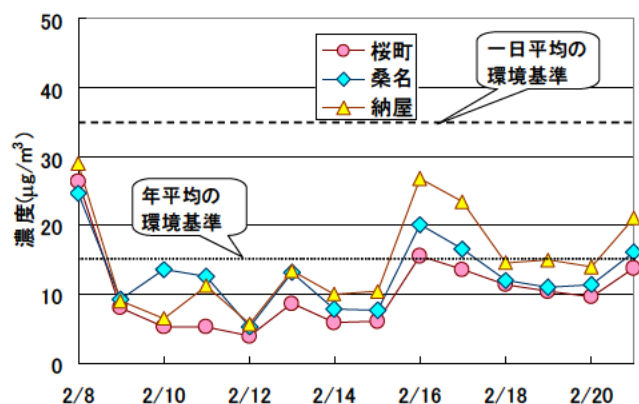


図 9 標準法による質量濃度（2010 年度冬）

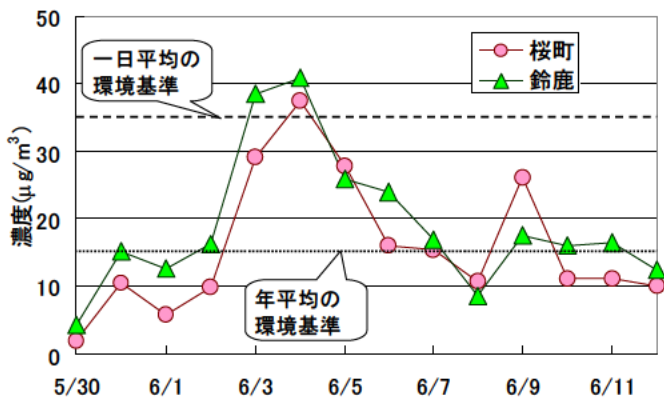


図 10 標準法による質量濃度 (2011 年度春)

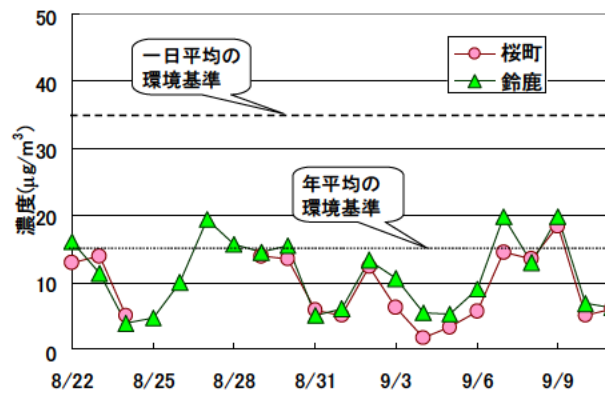


図 11 標準法による質量濃度 (2011 年度夏)

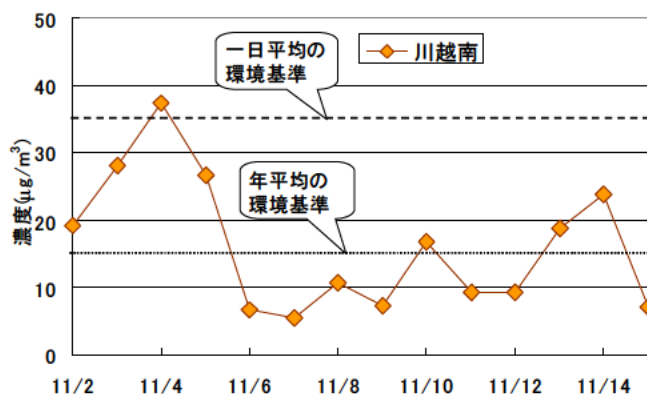


図 12 標準法による質量濃度 (2011 年度秋)

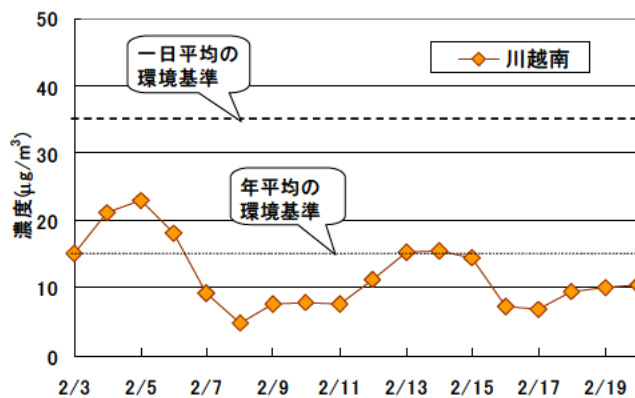


図 13 標準法による質量濃度 (2011 年度冬)

2. 簡易法による質量濃度実態調査結果

2005-2011 年度の簡易法による質量濃度の測定結果を、図 14 に示す。簡易法による PM2.5 濃度は、2005-2007 年度はほぼ横ばい傾向にあったが、2008-2011 年度は概ね低下傾向にあった。地点区分別では標準法と同様に概ね自動車排出ガス測定局、一般環境測定局、バックグラウンド地点の順に濃度が高い。今回の調査期間である 2010-2011 年度の平均は、自動車排出ガス測定局：14.7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、一般環境測定局：11.9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、バックグラウンド地点：11.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。

定局、一般環境測定局、バックグラウンド地点の順に濃度が高い。今回の調査期間である 2010-2011 年度の平均は、自動車排出ガス測定局：14.7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、一般環境測定局：11.9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、バックグラウンド地点：11.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。

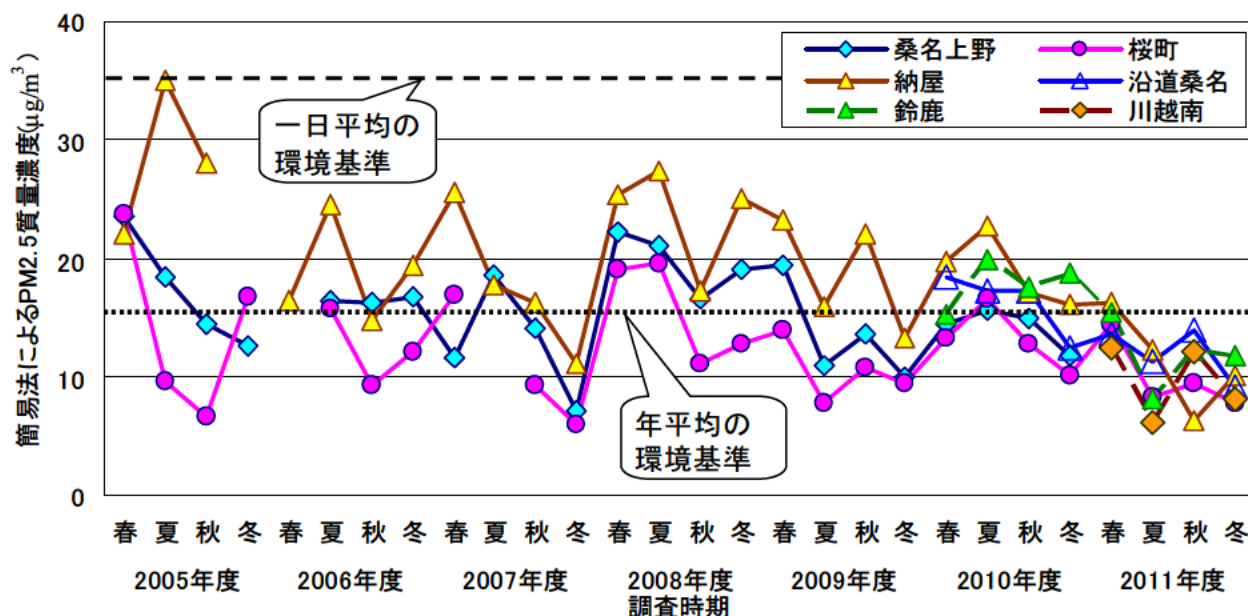


図 14 簡易法による PM2.5 質量濃度変遷 (2005-2011 年度)

3. 簡易法と標準法による PM2.5 質量濃度の相関

簡易法による PM2.5 質量濃度を縦軸に、標準法による PM2.5 質量濃度の平均を横軸にとった場合の散布図を、2005 年度から実施していた予備調査の比較結果と併せて図 15 に示す。相関係数は 0.9223 で良好な相関関係を示した。このことから、簡易法による測定結果から、標準法に基づく平均濃度を推定可能であることが明らかとなった。

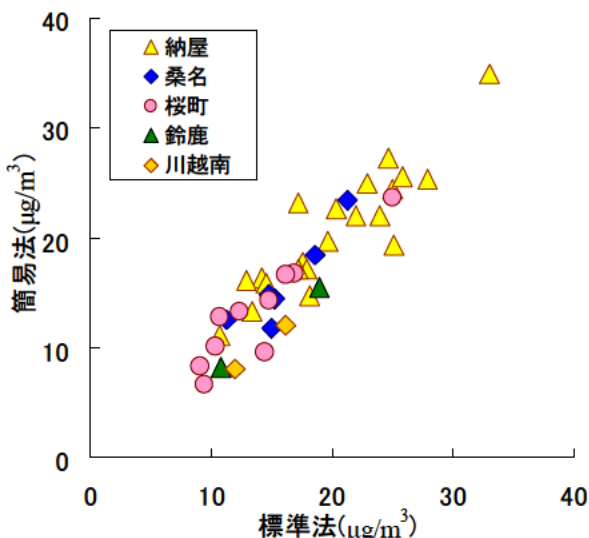


図 15 簡易法と標準法による PM2.5 質量濃度の相関 (2005-2011 年度)

4. 高濃度出現時の気象条件の解析

次に、今回の測定期間内に、複数回の高濃度事例があったが、2011 年度春の測定データ (標準法, 図 10) を用いて、120 時間前まで後方流跡線解析⁸⁾を行った。対象地点は、自動車排出ガス測定局の国道 23 号鈴鹿とバックグラウンド地点の桜町で、高濃度期間 (日平均の環境基準を超過した日を含む 4 日間, 6 月 3-6 日) およびその前後 2 日間 (6 月 1-2 日と 6 月 7-8 日) の合計 8 日間の結果を図 16 (上段に高濃度前後の低濃度期間, 下段に高濃度期間) に示した。

図 16 によると、低濃度期間では、飛来した気塊は中国上空を通過していないことが伺える。高濃度期間では、飛来した気塊は北京上空付近の華北地方や華中地方を通過してきていることが伺える。また、6 月 4 日や 5 日のデータに注目すると、4 日は、桜町と国道 23 号鈴鹿の質量濃度の差が縮まり、5 日には逆転している。これは、両地点に飛来した気塊はともに中国大陆から飛来してきているが、桜町へ飛来した気塊が国道 23 号鈴鹿へ飛来した気塊に比べて、より低空から飛来していることが影響し、桜町と国道 23 号鈴鹿との地域汚染差を上回る汚染された気塊が飛来したと考えられる。しかし、発生源を特定するには、さらに一層のデータ蓄積が必要である。

また、2010 年度秋の測定で、11 月 10-15 日の高濃度事例は、黄砂飛来時と重なっており、ともに PM2.5 も飛来したと考えられる。

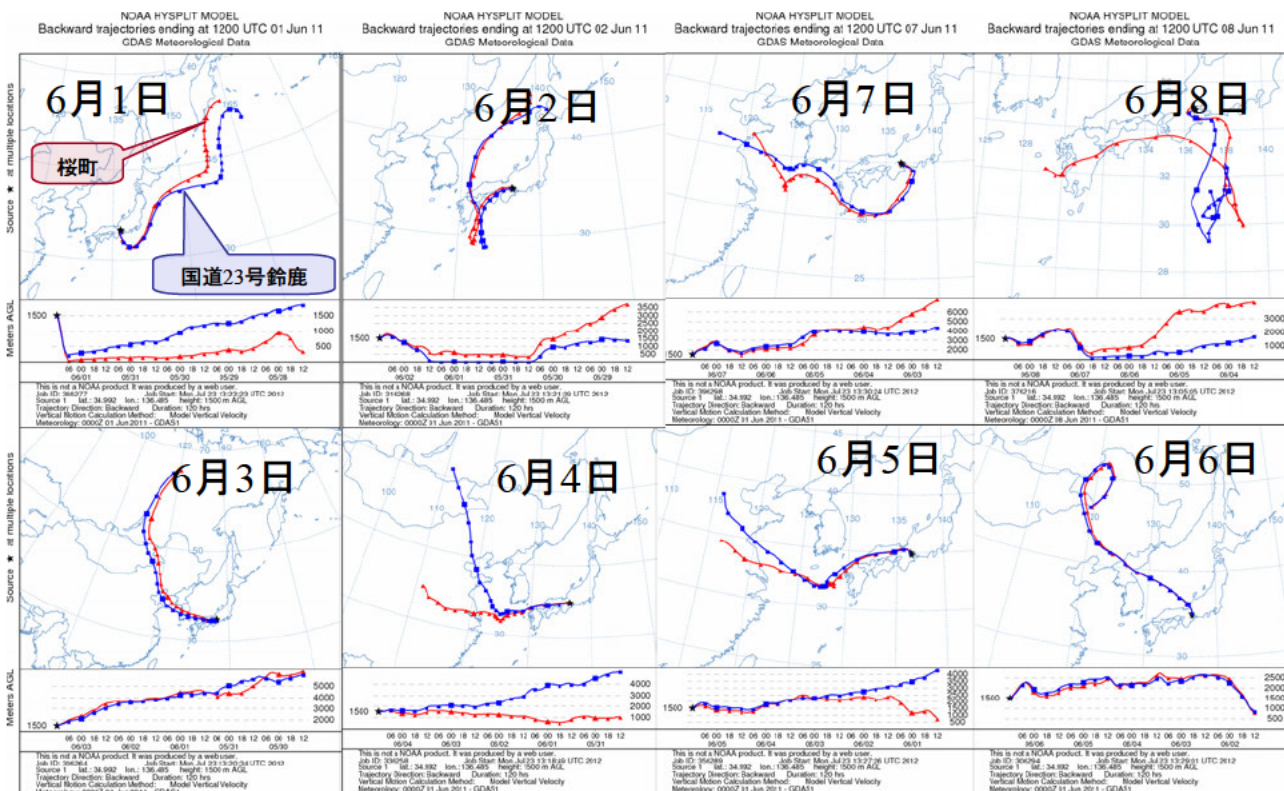


図 16 後方流跡線解析結果 (2011 年 6 月 1-8 日, 桜町と国道 23 号鈴鹿)
(上段: 高濃度期間の前後の低濃度期間, 下段: 高濃度期間)

まとめ

2010-2011 年度に三重県北部の改正自動車 NOx・PM 法の適用地域において、PM2.5 濃度を簡易法と標準法との2通りのサンプリング法により調査した。その結果、以下のことが分かった。

- 1) 標準法により、改正 NOx・PM 法の対象地域で四季別に2週間、一日毎のサンプリングを行ったところ、年平均の環境基準を超過したのが調査期間平均で延べ17期間中9期間あり、一日平均の環境基準を超過している日が延べ252日中12日間あった。
- 2) 高濃度事例は、4-5日間かけて上昇し減少することが多く、そのピーク時に日平均の環境基準を超過することがあった。
- 3) 2010-2011 年度の簡易法による測定では、自動車排出ガス測定局(3地点平均):14.7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、一般環境測定局(2地点平均):11.9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、バックグランド地点(1地点):11.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。
- 4) PM2.5 質量濃度を PCI サンプラーを用いた2週間連続サンプリングによる簡易法と FRM サンプラーを用いた1日毎のサンプリングによる標準法の2週間平均とで比較すると、良好な相関関係があり、簡易法の結果から標準法による調査の結果を推定することが可能であることが判明した。
- 5) PM2.5 質量濃度は、測定地点間の差が小さく、その変動傾向も類似していることから、地域汚染よりも広域汚染の影響が大きいことが示唆された。
- 6) 高濃度事例に対して後方流跡線解析を実施すると、華北地方、華中地方を通過してきた気塊による影響が大きいと推測された。2011 年度春の例では、バックグランド地点である桜町と自動車排出ガス測定局である国道23号鈴鹿では、気塊の通過する地域や高度によっ

ては、質量濃度の逆転現象が起こり、その差は地域汚染よりも大きかった。

文 献

- 1) 塚田 進, 山川雅弘, 西山 亨: 浮遊粒状物質の大気汚染について(1) - 県下の微小粒子(PM2.5)濃度 -, 三重県科学技術振興センター保健環境研究部年報, No.8, 67-73(2006).
- 2) 塚田 進, 山川雅弘, 西山 亨, 小山善丸: 浮遊粒状物質の大気汚染について(2) - 粒子中の内容成分について -, 三重県科学技術振興センター保健環境研究部年報, No.9, 41-48(2007).
- 3) 塚田 進, 西山 亨, 小山善丸: 浮遊粒状物質の大気汚染について(3) - 発生源(ディーゼル自動車)寄与について -, 三重県保健環境研究所年報, No.10, 41-47(2008).
- 4) 佐来栄治, 塚田 進, 西山 亨, 小山善丸: 浮遊粒状物質に含まれる多環芳香族炭化水素類について(1) - フィルタからの抽出について -, 三重県保健環境研究所年報, No.10, 62-68(2008).
- 5) 佐来栄治, 小山善丸, 西山 亨, 塚田 進: 浮遊粒状物質に含まれる多環芳香族炭化水素類について(2) - 微小粒子からの多環芳香族炭化水素類の抽出について -, 三重県保健環境研究所年報, No.11, 74-82(2009).
- 6) 佐来栄治, 小山善丸, 西山 亨, 吉岡 理: 浮遊粒状物質に含まれる多環芳香族炭化水素類について(3), 三重県保健環境研究所年報, No.12, 63-71(2010).
- 7) 佐来栄治, 小山善丸, 西山 亨, 吉岡 理: 浮遊粒状物質に含まれる多環芳香族炭化水素類について(4), 三重県保健環境研究所年報, No.13, 60-68(2011).
- 8) <http://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT.php>

ノート

廃棄物不法投棄現場地下水の揮発性有機化合物 (VOC) 微生物分解能力の検討

巽 正志, 岩出義人, 宇佐美 敦子, 秋永克三

Biodegradation of volatile organic compound(VOC) in illegal waste dumping site

Masashi TATSUMI, Yoshito IWADE, Atsuko USAMI and Katsumi AKINAGA

揮発性有機化合物 (VOC) を含む廃棄物の不法投棄により, VOC 汚染の拡散が見られるサイトで, 周辺地下水中の, 微生物によるベンゼン, トルエンの分解傾向について検討した. 地下水を採取し, それらにベンゼン, トルエンを添加した系での好氣的, 嫌氣的条件での分解試験および温度条件を変えた分解試験を実施した. さらに, ベンゼン, トルエンの分解が見られた地下水から, それらの分解菌の単離・同定を行った. その結果, 好氣的条件でベンゼン, トルエンが微生物により分解されること, および一年を通じてサイト地下水の溶存酸素濃度は, ベンゼン等の好氣的分解に十分であることから, 当サイトの地下環境中では, ベンゼン, トルエンが微生物により分解されていると考えられた. また, 地下水からは, ベンゼン, トルエンの分解能を有する *Comamonas testosteroni* 等の菌株が単離され, これらの細菌により汚染地の浄化が進んでいると推察された.

キーワード: 廃棄物不法投棄, 地下水汚染, VOC, 微生物分解

はじめに

大規模な廃棄物不法投棄が全国各地で問題となっている. 特に有害物質を含む廃棄物の不法投棄現場では, 地下水等を介して汚染が投棄地周辺に拡散する恐れがあり, 汚染拡散防止や浄化対策など, 早急な対応を必要とする事例がみられる¹⁾. 高濃度汚染が存在するサイトの浄化対策などに関しては多くの方法が開発, 実用化されているが, 汚染現場周辺の低濃度汚染域に対しては, 自然減衰による効果を採用入れた浄化対策を適用することが費用対効果の点で有効であると考えられている^{2,3)}. 自然減衰には幾つかの要因があるが, 揮発性有機化合物 (以下「VOC」とする) は, 微生物により分解されることが知られており^{4,5)}, 低濃度の VOC 汚染サイトには, それら VOC 分解微生物の効果を取り入れた浄化対策の実施が有効であると考えられる. 三重県桑名市にある不法投棄現場は, 廃棄物中に高濃度の VOC が存在しており, 周辺地下水からは低濃度の VOC が検出されている.

このサイトでは, 2002 年度から遮水壁の設置による汚染物質の囲い込みおよび揚水循環浄化設備の稼働による環境修復を実施している. 遮水壁設置により VOC の拡散は防止されたが, 設置前に拡散したと見られる VOC の地下水汚染が問題となっている. 周辺地下水中の VOC 濃度は環境基準値の数倍程度で推移しており, 年々, 濃度が減衰する傾向にある. VOC が検出される地下水は, 適度な BOD 値を示し微生物活性が維持できる水質であると予測された. このことから, VOC が検出される地下水の浄化対策として, 当サイトへの科学的自然減衰 (Monitored Natural Attenuation; 以下「MNA」と略す) の適用は有効であると考えられた. 一般に MNA を修復対策として適用するには, 対象サイトでの自然減衰のメカニズムを科学的に証明することが必要とされているが^{2,3)}, 当サイトでは, これまでに VOC の微生物分解傾向について調査されていない. そこで, 本報では, 微生物分解による MNA の適用可能性を判断す

るため、地下水を用いた試験により、サイト地下水中で VOC の微生物分解について検討したので、その結果を報告する。

方 法

1. サンプルング

不法投棄地周辺は、主に、砂質土層および礫質土層で構成され、標高 40m (GL-14m) 付近に 1~2m 厚の粘土層、また、標高 32m (GL-22m) 付近に 10m 以上の厚みを有する凝灰質シルト層が確認されている⁶⁾。これら粘土層および凝灰質シルト層は、難透水層となり、当該場所の帯水層は粘土層を境に上部帯水層と下部帯水層に区分される。そこで、本研究の地下水サンプルング地点を、これまでの水質調査結果を参考に、上部および下部帯水層のそれぞれ 1 地点の計 2 地点とした。図 1 にサンプルング地点とそれぞれの帯水層地下水の流向を示す。投棄場所北側の上部帯水層地下水を観測井 B7-2 で、投棄地南側の下部帯水層地下水を観測井オ-2 で採取した。



図 1 地下水サンプルング地点

地下水の採取および現場での水質測定は、観測井内に滞留している地下水を取り除いた後に、浸出してきた地下水で行った。

2. 水質理化学分析

採水時の水質は、水温、pH、溶存酸素 (DO)、酸化還元電位 (ORP)、電気伝導度 (EC) については、YSI/Nanotech INC. 556Multi-Probe-System を用いて現場で測定した。ベンゼンおよびトルエンは、JIS K0125.5.2 に従いヘッドスペース-ガスクロマトグラム質量分析法 (HSS/GC/MS : Agilent Technologies G1888/6890N/5975C, Column : Agilent J&W DB-624) により測定した。その他、各水質項目については、JIS K 0102 に従い採取後、実験室内にて分析を

行った。

3. 好氣的条件での VOC 分解試験

B7-2 およびオ-2 の観測井で採取した地下水に VOC (ベンゼンおよびトルエン) を加え、好氣的条件で培養後、VOC の分解程度を調べた。B7-2 およびオ-2 地下水での試験系列をそれぞれ表 1、表 2 に示す。ガラス製 5L 瓶に現場から採取した地下水 (B7-2 またはオ-2) を 4.5L 分取し、各 VOC 成分をほぼ 5mg/L の濃度になるように添加した。シリコン栓で密栓後、酸素 50cc を添加し、25℃で振とう培養を行った。ブランク (BL) には、B7-2 の系ではオートクレーブ滅菌 (121℃, 15min) した地下水、オ-2 の系ではオートクレーブ滅菌した蒸留水に、VOC 成分を添加したものをを用いた。さらに、地下水 (B7-2 または オ-2) そのものをコントロールとした。12 時間毎に培養液をサンプルングし、各水質項目を測定した。

表 1 地下水 B7-2 の好氣的条件での VOC 分解試験

	試料水	VOC添加
ブランク	滅菌地下水B7-2	ベンゼン, トルエン
コントロール	地下水B7-2	無し
試験区	地下水B7-2	ベンゼン, トルエン

表 2 地下水オ-2 の好氣的条件での VOC 分解試験

	試料水	VOC添加
ブランク	滅菌蒸留水	ベンゼン, トルエン
コントロール	地下水オ-2	無し
試験区	地下水オ-2	ベンゼン, トルエン

4. 好氣的条件における各種温度条件での VOC 分解試験

地下水 B7-2 を用いて、好氣的条件下で培養温度を変えて VOC 分解能を調べた。培養は ADVANTEC 社製 TN-2148 型振とう温度勾配培養装置を用い、図 2 に示した温度条件 (8.4~38.7℃) で行った。地下水 B7-2 に、VOC (ベンゼンまたはトルエン) をほぼ 5mg/L となるように添加し、培養用 L 型試験管 (内容積 45ml) に 25ml ずつ分取し、シリコン栓で密栓後、培養機に装着した。培養操作による VOC の揮散を確認するため、地下水 B7-2 をオートクレーブ滅菌した試料水に VOC を添加したものを 40.5℃

(ブランク 1) と 42.4℃ (ブランク 2) の培養機にセットした。サンプルは 8.4℃から 38.7℃まで 22 段階とし、8 日間振とう培養した。適宜、サンプリングし、ヘッドスペースガスクロマトグラム質量分析法のスキャン測定で、ベンゼン、トルエンの TIC (トータルイオンクロマト) ピークの確認を行った。

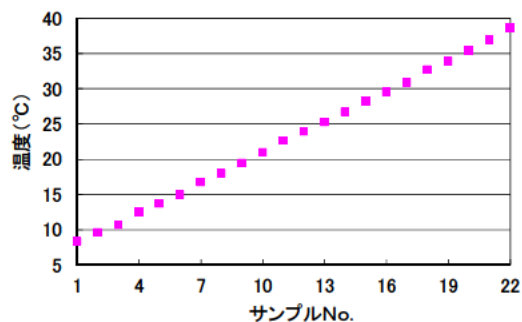


図 2 温度勾配試験における培養温度

5. 嫌気的条件での VOC 分解試験

地下水 B7-2 およびオ-2 にベンゼン、トルエンを加え、嫌気的条件下で培養試験を行った。試験系列を表 3 に示す。

表 3 嫌気的条件下での VOC 分解試験

試料水		VOC 添加
地下水 B7-2		
ブランク	滅菌地下水 B7-2	ベンゼン, トルエン
試験区	地下水 B7-2	ベンゼン, トルエン
地下水 オ-2		
ブランク	滅菌地下水 オ-2	ベンゼン, トルエン
試験区	地下水 オ-2	ベンゼン, トルエン

採取した地下水を窒素ガスで十分曝気し、溶存酸素を除去した後、VOC (ベンゼンおよびトルエン) を約 5mg/L となるように添加した。調製した検液を、滅菌済みのガラス製バイアル瓶 (内容積 75ml) に 50ml ずつ分注し、窒素置換した嫌気性インキュベータ (SNYO MIP-1025) 内にしばらく静置後、PTFE 被覆シリコンセプタム付きクリップキャップで密栓した。また、オートクレーブ滅菌 (121℃, 15min) した地下水を試料水に用い、同様に調製したサンプルをブランクとした。各系列の検体調製後、25℃で静置培養を行った。ベンゼン、トルエンの濃度測定は 7 日ごとに 35 日後まで行った。

6. VOC 分解微生物の単離・同定

ベンゼン、トルエンの分解能が確認された地下水で、それら分解微生物の単離を行った。100ml 三角フラスコ (滅菌済み) にオートクレーブ滅菌 (121℃, 15min) した BSM (1L 中に K₂HPO₄ 1.0g, (NH₄)₂SO₄ 1.0g, MgSO₄·7H₂O 0.2g, FeCl₃ 0.01g, NaCl 0.05g, CaCl₂ 0.05g 含有) 液体培地を 40ml 分取し、VOC 成分としてベンゼンとトルエンをそれぞれ 10mg/L となるように添加した。栄養源として 0~4mg の酵母エキスを添加し、現場から採取した地下水 400μl を加えて密栓した後、25℃で振とう培養を行った。培養開始から 2~6 日後に検液を採取し、ヘッドスペースガスクロマトグラム質量分析法でスキャン測定を行い、TIC ピークによりベンゼン、トルエン分解能を調べた。分解が確認された系の検液を、ベンゼン、トルエンを加えた BSM 寒天培地に塗布した。培地上に成長したコロニーを釣菌し、SCD (1L 中に 15.0g トリプトン, 5.0g ソイペプトン, 5.0g 塩化ナトリウム, 15.0g カンテン含有) 寒天培地にて継体培養を行った。SCD 寒天培地上に成長した単コロニーを釣菌し、単離菌株を得た。それら単離した菌株を、VOC を添加した BSM 液体培地 40ml が入った三角フラスコ (内容積 100ml) 中に接種し、密栓後、25℃で 3 日間振とう培養した後、スキャン測定により培養液中のベンゼン、トルエンを確認した。ベンゼン、トルエンの分解能を示した菌株は DNA 抽出した後、27F と 1492R Primer で 16S rDNA を増幅した。増幅した遺伝子を精製した後、シーケンス用 Primer を用いて遺伝子解析を行い⁷⁾、得られたシーケンスデータをデータベースと照合することにより分解菌の同定を行った。

結果および考察

1. 地下水採取時の水質

培養試験に用いた地下水 B7-2 およびオ-2 の水質測定結果を表 4 に示す。投棄地北側の上部帯水層の地下水である B7-2 からは地下水環境基準値 (0.01mg/L) を上回るベンゼンが、また、トルエンについても要監視項目の指針値 (トルエン: 0.6 mg/L) 以下ではあるが、0.19mg/L 検出された。試験に用いた地下水の DO はサンプリング時 1.4~1.6mg/L であり、ベンゼン等の好氣的分解には十分な濃度であった。さらに、こ

れまでの調査で地下水 B7-2 は 2~5mg/L, 地下水 オ-2 は 2~3mg/L 程度の DO 濃度を示し, 好気的な環境にあることが確認されている⁸⁾.

表 4 地下水 B7-2 およびオ-2 の水質

	B7-2	オ-2
水 温 (°C)	17.2	17.0
pH	8.5	7.2
ORP (mV)	17	-3
DO (mg/L)	1.4	1.6
ベンゼン (mg/L)	0.011	<0.001
トルエン (mg/L)	0.19	<0.001

2. 好気的条件での VOC 分解試験

1) 地下水 B7-2

培養時の, ベンゼン, トルエン濃度を図 3 に示す.

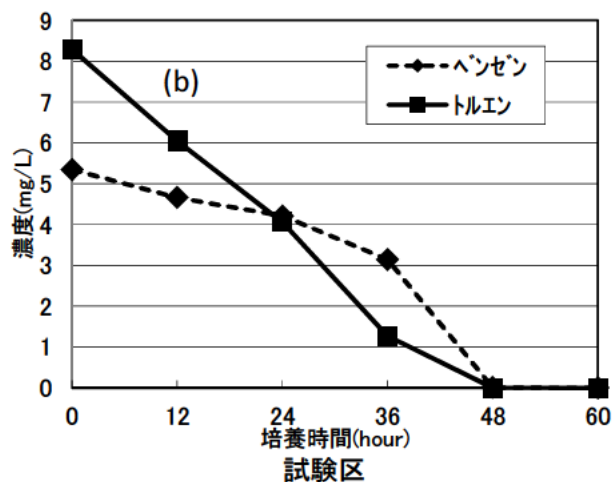
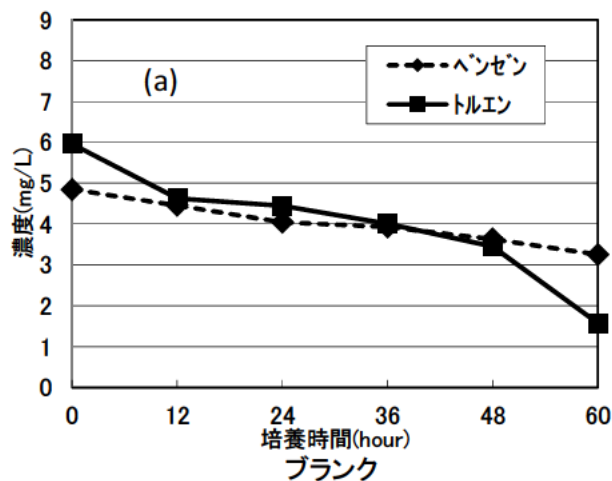


図 3 地下水 B7-2 の好気的培養における VOC 濃度の変化

滅菌した系のブランクでは培養期間中, 培養液中にはベンゼン, トルエンが残存していることが確認できる (図 3(a)). 一方, 滅菌していない試験区では, 培養開始からベンゼン, トルエンが減少し, 48 時間後にはほぼ全て分解された (図 3(b)). このことから, 地下水 B7-2 中に生息している微生物により, ベンゼン, トルエンが分解されたと考えられる. 培養中のコントロールと試験区の濁度測定結果を図 4 に示す. コントロールと試験区では濁度の顕著な差は見られず, また, 培養中の大幅な濁度変化もなかった. このことから, VOC 添加による菌数への影響は小さく, また, 培養中の菌数変化も少なかったと考えられる.

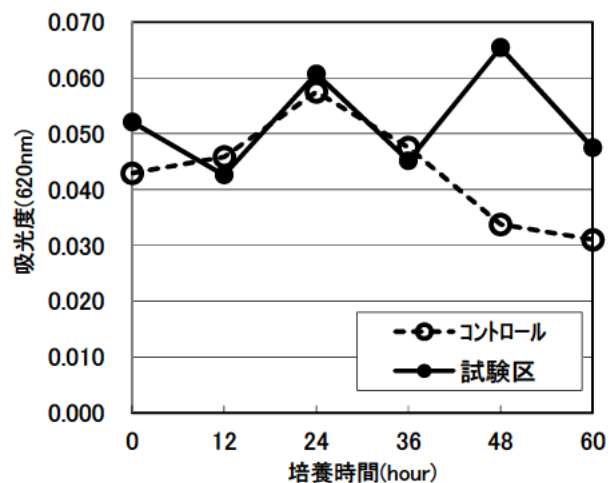


図 4 地下水 B7-2 の好気的培養における濁度の変化

2) 地下水オ-2

培養中の, ベンゼン, トルエン濃度を図 5 に示す. ブランクでは, 培養期間中, 培養液内にベンゼン, トルエンが保持されていたことが分かる (図 5(a)). 試験区では, 培養開始後 36 時間までは大きな減少は見られなかったが, 36~48 時間でベンゼン, トルエン濃度の顕著な減少が見られ, 48 時間後にはそれらはほぼ全て分解され, 60 時間後には, ベンゼン, トルエン共に全く検出されなくなった (図 5(b)). このことから, 地下水オ-2 中に生息している微生物により, ベンゼン, トルエンが分解されたと考えられる. 培養中のコントロールと試験区の濁度測定結果を図 6 に示す. コントロールでは, 培養中に濁度変化は見られないが, 試験区では,

ベンゼン，トルエンの濃度減衰が見られた（図 5 (b)参照）培養開始後 36～48 時間の間に大幅な濁度増加が見られ，この時間帯に菌数が増加したことが分かる．コントロールとの濁度測定結果の比較から，地下水オ-2 は好気的条件下でベンゼン，トルエンを添加すると，菌数が増加し，添加したベンゼン，トルエンが分解される結果となった．

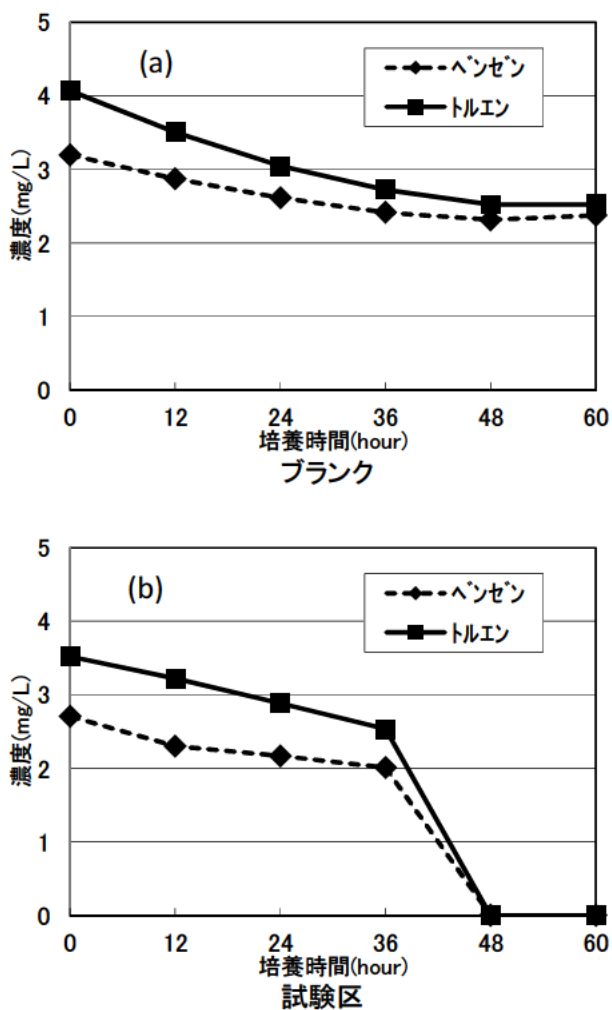


図 5 地下水オ-2 の好気的培養における VOC 濃度の変化

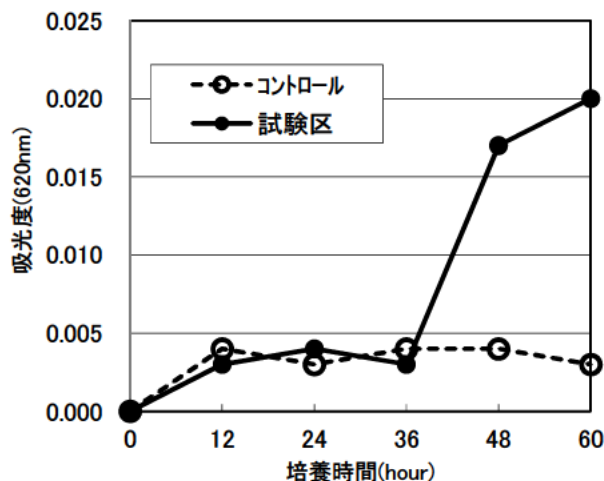


図 6 地下水オ-2 の好気的培養における濁度の変化

3. 好気的条件下における各種温度条件での VOC 分解試験

好気的条件下における各種温度条件での VOC 分解状態を表 5 に示す．培養開始 1 日経過時点では，ヘッドスペースガスクロマトグラム質量分析法でのスキャン測定の結果，全てのサンプルでベンゼン，トルエンの明瞭な TIC のピークが確認された．培養 2 日後に，ベンゼン添加系では 25.3～36.9℃，トルエン添加系では 22.6℃と 23.9℃にピーク残留が見られるが 19.5～36.9℃の温度範囲で TIC ピークが消滅し，8 日後にはベンゼン添加系，トルエン添加系共に 10.7～38.7℃で TIC ピークが消滅していた．一方，ブランクとしてセットした培養温度 40℃以上の 2 サンプルでは，培養期間中，明瞭なベンゼン，トルエンの TIC ピークが保持されていた．これらの結果から，10.7～38.7℃の温度範囲でベンゼン，トルエンの微生物分解が進むことが分かった．現場の地下水温は，13～23℃の範囲であることから，一年を通じて地下水中で，ベンゼン，トルエンの微生物分解が進む温度条件にあることが分かった．

表5 地下水 B7-2 の好氣的条件下における各種培養温度とベンゼン，トルエンの TIC ピーク出現状況

ベンゼン								トルエン							
サンプル	培養温度 (°C)	培養日数						サンプル	培養温度 (°C)	培養日数					
		1	2	3	4	5	8			1	2	3	4	5	8
1	8.4	○	○	○	○	○	○	1	8.4	○	○	○	○	○	○
2	9.6	○	○	○	○	○	○	2	9.6	○	○	○	○	○	△
3	10.7	○	○	○	○	○	×	3	10.7	○	○	○	○	○	×
4	12.5	○	○	○	○	○	×	4	12.5	○	○	○	○	△	×
5	13.7	○	○	○	○	△	×	5	13.7	○	○	○	○	×	×
6	15.0	○	○	○	○	×	×	6	15.0	○	○	○	○	×	×
7	16.7	○	○	×	×	×	×	7	16.7	○	○	×	×	×	×
8	18.0	○	○	○	×	×	×	8	18.0	○	○	△	×	×	×
9	19.5	○	○	×	×	×	×	9	19.5	○	×	×	×	×	×
10	20.9	○	△	×	×	×	×	10	20.9	○	×	×	×	×	×
11	22.6	○	○	×	×	×	×	11	22.6	○	○	×	×	×	×
12	23.9	○	△	×	×	×	×	12	23.9	○	△	×	×	×	×
13	25.3	○	×	×	×	×	×	13	25.3	○	×	×	×	×	×
14	26.7	○	×	×	×	×	×	14	26.7	○	×	×	×	×	×
15	28.2	○	×	×	×	×	×	15	28.2	○	×	×	×	×	×
16	29.6	○	×	×	×	×	×	16	29.6	○	×	×	×	×	×
17	30.9	○	×	×	×	×	×	17	30.9	○	×	×	×	×	×
18	32.7	○	×	×	×	×	×	18	32.7	○	×	×	×	×	×
19	33.9	○	×	×	×	×	×	19	33.9	○	×	×	×	×	×
20	35.5	○	×	×	×	×	×	20	35.5	○	×	×	×	×	×
21	36.9	○	×	×	×	×	×	21	36.9	○	×	×	×	×	×
22	38.7	○	○	△	×	×	×	22	38.7	○	○	△	×	×	×
ブランク1	40.6	○	○	○	○	○	○	ブランク1	40.6	○	○	○	○	○	○
ブランク2	42.4	○	○	○	○	○	○	ブランク2	42.4	○	○	○	○	○	○

TICピーク：○;ピークあり，△;痕跡，×;ピーク無し

4. 地下水 B7-2 およびオ-2 の嫌氣的条件下での VOC 分解試験

培養試験中のベンゼン，トルエン濃度をそれぞれ図7，図8に示す。嫌氣的条件下で約1ヶ月間培養を行ったが，測定値に若干のバラツキが見られるものの，ベンゼン，トルエンの減少は見られなかった。このことから，現場地下環境中では，嫌氣的条件下でベンゼン，トルエンの微生物分解による減衰は，ほとんど起こっていないと考えられる。

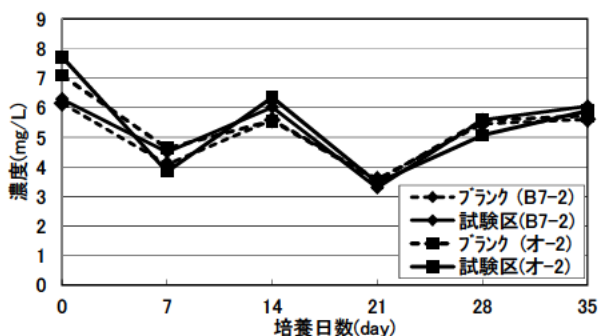


図7 地下水 B7-2 およびオ-2 の嫌氣的培養におけるベンゼン濃度の変化

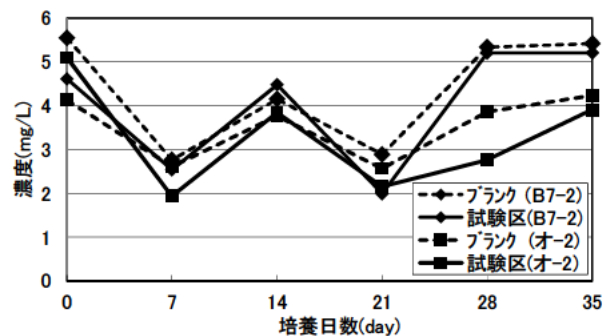


図8 地下水 B7-2 およびオ-2 の嫌氣的培養におけるトルエン濃度の変化

5. VOC 分解微生物の単離・同定

1) 地下水 B7-2 からの分解菌の単離・同定

表6に示すように，培養開始2日後に菌の増殖による液体培地の白濁化がみられた。酵母エキスの添加量が多く，ベンゼン，トルエンの添加量が多いほど，培養液の白濁化が強く認められた。培養により，ベンゼン，トルエンを分解する菌の増加が予測された。培養開始6日後に，ヘッドスペースーガスクロマトグラム質量分析法でスキャン測定を行ったところ，表6に示す

全ての培養液で、ベンゼン、トルエンを示す TIC ピークが消滅していた。また、データは省略したが、地下水を添加しなかった系では、培養 8 日後でもベンゼン、トルエンの明瞭な TIC ピークが確認できた。次に、培養液から、VOC 分解微生物の単離を行ったところ、単コロニー 63 個を得た。得られた 63 の菌株をベンゼン、トルエンを加えた BSM 液体培地中に添加し、ベンゼン、トルエンの分解能の確認を行い、ベンゼン、トルエン分解能を有する菌 6 株と、ベンゼン分解能を有し、トルエン分解能を持たない菌 1 株を得た。これらの菌の同定結果を表 7 に示す。

表 6 BSM 液体培地中の VOC 濃度と白濁程度

添加 VOC 種 / 濃度(mg/L)	酵母エキス (mg/L)			
	0	1	10	100
ベンゼン / 10	透明	微白濁	薄白濁	白濁
トルエン / 10	微白濁	薄白濁	白濁	白濁
ベンゼン / 10 + トルエン / 10	微白濁	薄白濁	白濁	白濁

表 7 地下水 B7-2 からの VOC 分解菌の単離・同定結果

菌株No.	ベンゼン 分解	トルエン 分解	同定された菌
B7-2_2	+	+	<i>Rhodococcus erythropolis</i>
B7-2_4	+	-	<i>Pseudomonas fluorescens</i>
B7-2.13	+	+	<i>R. erythropolis</i>
B7-2.14	+	+	<i>Burkholderia cenocepacia</i>
B7-2.37	+	+	<i>Comamonas testosteroni</i>
B7-2.38	+	+	//
B7-2.58	+	+	//

2) オ-2 地下水からの分解菌の単離・同定

採取したオ-2 地下水について、VOC 分解微生物の単離を行ったところ、単コロニー 75 個を得た。それら 75 菌株のベンゼン、トルエン分解能を確認し、ベンゼン、トルエン分解能を有する菌株 7 個を得た。オ-2 地下水から単離した VOC 分解菌の同定結果を表 8 に示す。地下水 B7-2 とオ-2 から VOC 分解菌を単離・同定した結果、得られた 14 菌株中 7 株が *Comamonas testosteroni* であった。*C.testosteroni* は、好氣的条件で芳香族化合物類を分解することが報告されている⁹⁾。さらに、地下水 B7-2 から 2 株単離された *Rhodococcus erythropolis* は、

アルカン類や芳香族化合物類など、重軽油の主成分である化学物質を分解できる細菌として知られている^{10,11)}。このことから、当汚染現場では、*C.testosteroni* を主し、地下水から単離・同定された複数の細菌により、好氣的条件下でベンゼン、トルエンなどの汚染物質が分解されていることが明らかとなった。

表 8 地下水オ-2 からの VOC 分解菌の単離・同定結果

菌株No.	ベンゼン 分解	トルエン 分解	同定された菌
オ-2.23	+	+	<i>Comamonas testosteroni</i>
オ-2.28	+	+	//
オ-2.30	+	+	<i>Pseudomonas nitroreducens</i>
オ-2.45	+	+	<i>C. testosteroni</i>
オ-2.50	+	+	<i>Stenotrophomonas acidaminiphila</i>
オ-2.57	+	+	<i>C. testosteroni</i>
オ-2.72	+	+	<i>S. maltophilia</i>

謝辞

本研究は、環境省環境研究総合推進費補助金の助成を受け行った。また、現場にて地下水をサンプリングする際に、株式会社クボタ桑名作業所の職員に多大なご協力を頂いた。ここに記して謝意を表す。

まとめ

桑名市五反田の廃棄物不法投棄現場の地下水を用いて、現場地下水中に存在する微生物のベンゼン、トルエン分解能に関する試験を実施したところ、次のことが明らかとなった。

- ・投棄地の周辺地下水中には、好気性条件下でベンゼン、トルエンを分解する微生物が存在する。
- ・嫌氣的条件では、ベンゼン、トルエンの微生物分解は見られない。
- ・各種温度条件下での培養の結果、現場地下水の温度条件では一年を通じて、ベンゼン、トルエンの微生物分解が進む。
- ・現場地下水中では、*C.testosteroni* を主として、*R.erythropolis* など、複数の細菌によりベンゼン、トルエンが分解されていることが明らかとなった。

当現場の不法投棄地周辺の地下水は、好氣的な条件であることが確認されており、遮水壁外側の地下水中に残留しているベンゼン、トルエンは、微生物分解による濃度減衰が期待できる

と考えられる。

文 献

- 1) 古市 徹, 西 則雄: 不法投棄のない循環型社会づくり(2009), 環境新聞社.
- 2) 谷口 紳, 中杉修身: MNA(Monitored Natural Attenuation)~自然の回復力を活用して~, 地下水・土壌汚染とその防止対策に関する研究集会第 10 回講演集, 317-320 (2004).
- 3) 前川統一郎, 中杉修身: MNA (科学的自然減衰) の定義と基本的考え方, 地下水・土壌汚染とその防止対策に関する研究集会第 7 回講演集, 13-14(2001).
- 4) E.JINDROVA, M.CHOCOVA, K.DEMNEROVA, V.BRENNER : Bacterial Aerobic Degradation of Benzene, Toluene, Ethylbenzene and Xylene, Folia Microbiologica , 47,83-93 (2002).
- 5) B.Hendrickx, H.Junca, J.Vosahlova, A.Lindner, I.Ruegg, M.BucheliWitschel, F.Faber, T.Egli, M.Mau, M.Schlomann, M.Brennerova, V.Brenner, D.H.Pieper, E.M.Top, W.Dejonghe, L.Bastiaens and D.Springael : Alternative preimer sets for PCR detection of genotypes involved in bacterial aerobic BTEX degradation : Distribution of the genes in BTEX degrading isolates and in subsurface soils of a BTEX contaminated industrial site , Journal of Microbiological Methods, 64, 250-265(2006).
- 6) 西田憲一, 古市 徹, 石井一英: 不法投棄現場の VOC 汚染地下水の浄化プロセスの評価とその対策に関する研究, 土木学会論文集 G (環境), 67, No.6 (環境システム研究論文集 第 39 巻) ,II_489-II_499(2011).
- 7) 篠田吉史, 加藤暢夫, 森田直樹: 16S rRNA 遺伝子解析による細菌の系統分類, 島津評論, 57, 121-132(2000).
- 8) 巽 正志: 不法投棄により VOC 汚染サイトの環境修復技術・評価に関する研究, 平成 23 年度環境総合推進費補助金研究事業総合研究報告書(2012).
- 9) A.K.Goyal and G.J.Zylstra : Genetics of naphthalene and phenanthrene degradation by Comamonas testosteroni, Journal of Industrial Microbiology & Biotechnology 19, 401-407 (1997).
- 10) HISAE AOSHIMA, TATSUAKI HIRASE, TAKAKIYO TADA, NAOYA ICHIMURA, HIDEUKI YAMAGUCHI, MITSURU TAGUCHI and TAKESHI MYOENZONO : Improvement of Heavy Oil Degradation by Rhodococcus erythropolis C2, Journal of Environmental Biotechnology, 15(2), 107-109 (2006).
- 11) F.Peng, Z.Liu, L.Wang and Z.Shao : An oil-degrading bacterium : Rhodococcus erythropolis strain 3C-9 and biosurfactants, Journal of Applied Microbiology 102, 1603-1611(2007).

資料

三重県におけるAIDS・HIV感染症の現状と近隣県との比較

平岡 稔，福田美和，高橋 裕明，山内昭則

The current situation of AIDS, HIV infection in Mie Prefecture and comparison with those of neighboring prefectures

Minoru HIRAOKA, Miwa FUKUTA, Hiroaki TAKAHASHI, and Akinori YAMAUCHI

2011年に三重県内において報告のあったHIV感染者は7件で，前年に比べて1件の増加，AIDS患者は5件で前年に比べて2件の増加となった。1989年からの累計では，HIV感染者119件，AIDS患者75件となった。HIV保健所等検査数は2008年をピークに全国，愛知，岐阜，三重の三県とも減少しているにも関わらず，AIDS患者・HIV感染者数は三重県，愛知県，名古屋市，岐阜県で増加傾向にある。感染症発生動向調査に基づく三重県のAIDS患者・HIV感染者情報を分析したところ，外国国籍によるAIDS患者・HIV感染者の割合が高く，男性同性間性的接触（以下MSM）の割合が近年，増加傾向にあることから外国人，MSMに対してよりきめ細かな対策の実施が必要であることがわかった。これらの結果については広く情報提供を行っていくとともに，AIDS/HIV対策を進める上での参考資料になると考えられる。

キーワード：HIV抗体検査件数，保健所等における相談件数，AIDS患者・HIV感染者数
国籍，MSM

はじめに

三重県では，広く県民が相談・検査を受けることができる体制を整備するとともに，県民への正しい知識の普及啓発を図り，エイズに対する不安の解消および蔓延の防止に資することを目的として1993年よりエイズに関する相談およびHIV検査を匿名で実施しているところである。2006年から厚生労働省がHIV（AIDS）検査・相談の充実を図る取り組みを強化したことや，AIDS患者・HIV感染者の届け出数が増加の傾向を示していることから，三重県では，HIV検査受入体制の強化のひとつとして同12月から津保健所においてHIV即日検査を開始したことなどにより2007，2008年と保健所等におけるHIV抗体検査数は増加した。その後，2008年の1,805件をピークに減少し，2011年には1,175件まで落ち込んでいる。

2011年エイズ発生動向年報（確定値）¹⁾によると，国内の新規HIV感染者1,056人，新規AIDS患者473人で，1日約4.2件の新規報告がある。三重県における2011年発生動向調査によると，新規HIV感染者7人，新規AIDS患者5人で前年に比べてHIV感染者1人，

AIDS患者2人の増加となっている。HIV（AIDS）感染者は増加をしているにも関わらず，検査や相談を受ける人は年々減る一方であり，これらの現状を踏まえた上で，三重県内における（新規）HIV感染者／（新規）AIDS患者届出数（国籍，性別，感染経路別）や年齢階級別HIV感染者数/AIDS患者数などを把握し，近県の愛知県や岐阜県と比較することで三重県の現状と地域特性を分析したので報告する。

方 法

全国については2012年エイズ動向委員会報告（保健所等におけるHIV抗体検査件数（確定値），保健所等における相談件数（確定値）²⁾，2011年エイズ発生動向年報（確定値）を比較対象とした。

愛知県についてはエイズの現状／アイチエイズインフォメーション愛知県の状況（2011年12月31日現在）³⁾を比較対象とした。

岐阜県については岐阜県におけるHIV感染者／エイズ患者の状況（2011年12月末；岐阜市も含む）⁴⁾，

HIV 感染者／エイズ患者の状況（2009 年 12 月末；岐阜市も含む）⁵⁾を比較対象とした。

三重県については感染症発生動向調査で 1989 年から 2012 年までに報告のあった 194 人について感染症法に基づく三重県 AIDS 患者・HIV 感染者情報を解析対象とした。

結 果

(1) 保健所等における HIV 抗体検査件数

保健所等における HIV 抗体検査件数は全国、愛知県、岐阜県、三重県で 2008 年をピークに減少傾向が見られる（図 1-1、図 1-2）。

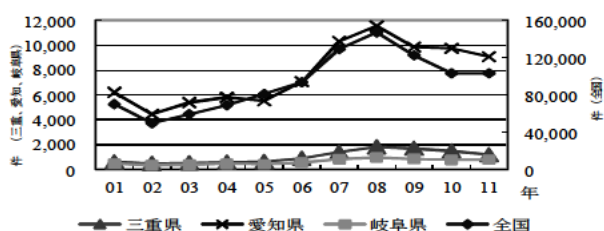


図1-1 保健所等におけるHIV抗体検査件数

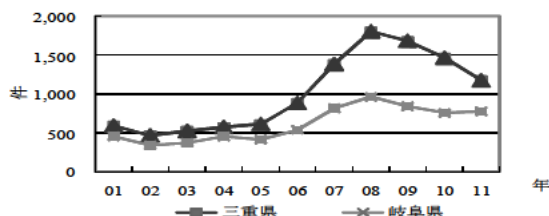


図1-2 保健所等におけるHIV抗体検査件数
（三重県と岐阜県の再掲）

三重県では 2010 年の 1,465 件に対し、平成 2011 年は 1,175 件と対前年比 80%で愛知県同 93%，岐阜県同 102%と比較して減少率が高いことがわかった。

(2) 保健所における相談件数

保健所における相談件数については三重県では 2010 年の 1,371 件に対し、2011 年は 803 件（対前年比 59%）と大きく下回った。過去 5 年間を見ると全国、愛知県でも減少傾向にある（図 2）。

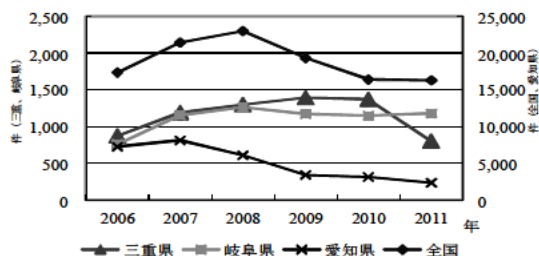


図2 保健所における相談件数

(3) AIDS 患者・HIV 感染者の累積報告数

AIDS 患者・HIV 感染者の累積報告数は三重県、愛知県、名古屋市、岐阜県でいずれも増加傾向にある（図 3-1）。

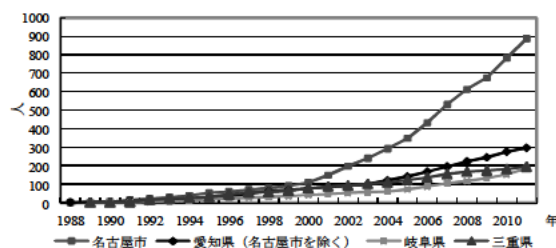
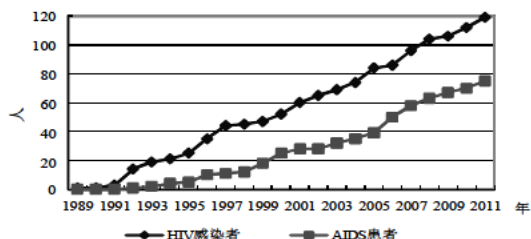
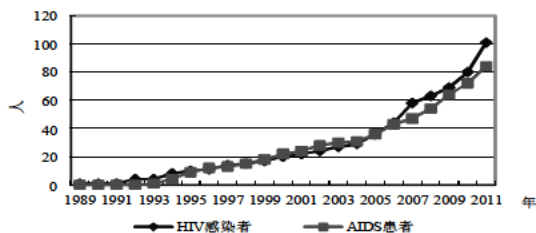


図3-1 AIDS患者・HIV感染者の累積報告数

特に名古屋市では AIDS 患者・HIV 感染者数は急増している。また、岐阜県と比較すると、三重県は HIV 感染者数より AIDS 患者数が少ない傾向にあった（図 3-2、図 3-3）。



三重県
図3-2 AIDS患者・HIV感染者の累積報告数



岐阜県
図3-3 AIDS患者・HIV感染者の累積報告数

(4) 感染経路別 AIDS 患者・HIV 感染者累積報告数

三重県における HIV 感染者報告例 119 件の感染経路を見ると、異性間性的接触が 61 件（51.3%）、同性間性的接触が 21 件（17.6%）、その他が 3 件（2.5%）、不明が 34 件（28.6%）で、性的接触による感染が全体の約 7 割を占めている。

AIDS 患者報告例 75 件の感染経路を見ると、異性間性的接触が 42 件（56.0%）、同性間性的接触が 7 件（9.3%）、静注薬物使用 2 件（2.7%）、母子感染 1 件（1.3%）、その他が 1 件（1.3%）、不明が 22 件（29.3%）となっている。

さらに三重県における日本国籍男性の AIDS 患者・HIV 感染者報告例 97 件の感染経路別年次推移を見る

と、異性間性的接触の割合が53件（55%）を占めるが同性間性的接触は26件（27%）であった（図4-1）。しかし、近年は同性間性的接触の割合が増加傾向にある（図4-2）。

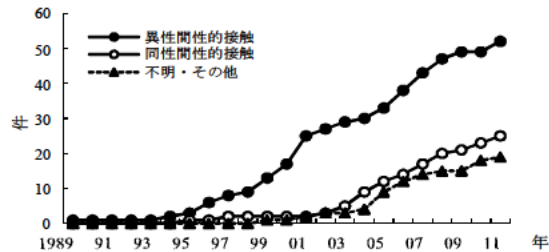


図4-1 日本国籍男性のAIDS患者・HIV感染症の感染経路別累積報告数(三重県)

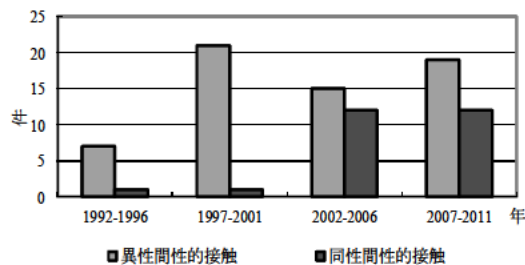
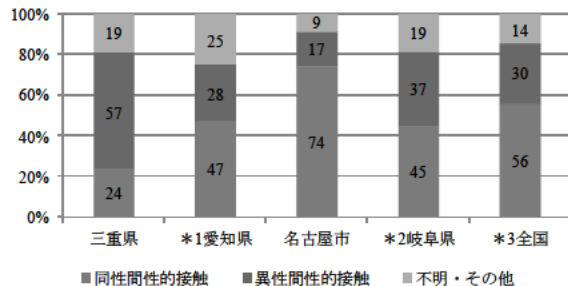


図4-2 日本国籍男性のAIDS患者・HIV感染症の感染経路別年次推移
愛知県、名古屋市、岐阜県では同性間性的接触の割合が高く、特に名古屋市のような都市部は全体の74%（558件）を占める（図5）。



*1愛知県は名古屋市、豊橋市、岡崎市、豊田市分を除く
*2岐阜県は外国籍も含む
*3全国は2011年12月25日現在（凝固因子製剤による感染者は除く）

図5 感染原因別AIDS患者・HIV感染者割合
(2011年12月31日現在：日本国籍)

(5) 日本国籍年代別 AIDS 患者・HIV 感染者数

三重県における日本国籍の AIDS 患者・HIV 感染者報告例 110 件を年齢階級別に見ると、30-39 歳が 32 件（29.1%）と最も多く、次いで 50-59 歳が 25 件（22.7%）となっている（図 6-1）。また性別では男性が 97 件（88.2%）を占め、年代別では 30 歳代、50 歳以上の順に多かったが、名古屋市、岐阜県では 30 歳代の割合が高い傾向にあった（図 6-2）。

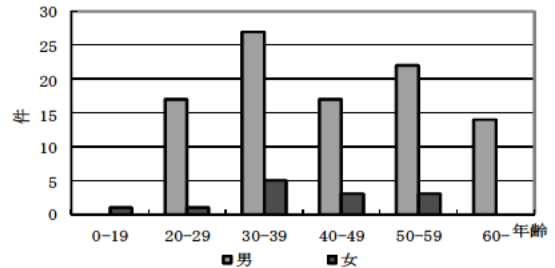
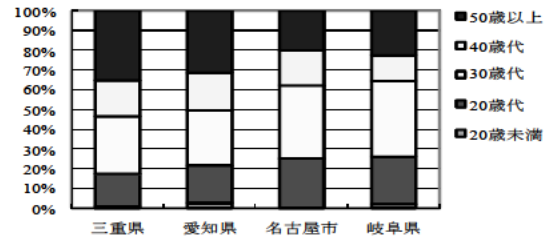


図6-1 男女年代別報告数（三重県 日本国籍）



*1愛知県は名古屋市、豊橋市、岡崎市、豊田市分を除く
*2岐阜県は外国籍も含む

図6-2 年代別AIDS患者・HIV感染者割合
(2011年12月31日：日本国籍)

(6) 外国国籍年代別 AIDS 患者・HIV 感染者数

三重県における外国国籍年代別 AIDS 患者・HIV 感染者報告例は80件（41.2%）を占め、愛知県69件（31.2%）、名古屋市135件（15.2%）、岐阜県43件（23.3%）に比べて割合が高い。80件を性別、年齢階級別で見ると、女性が55件（68.7%）、さらに20-29歳女性が30件（37.5%）を占めた（図7-1）。

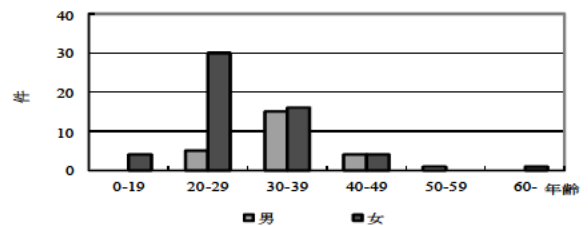


図7-1 男女年代別AIDS患者・HIV感染者報告数（三重県 外国国籍）

5年毎の報告例を見ると、1997年以降は日本国籍が多く、女性は減少傾向にあるものの外国国籍が多かった（図7-2）。

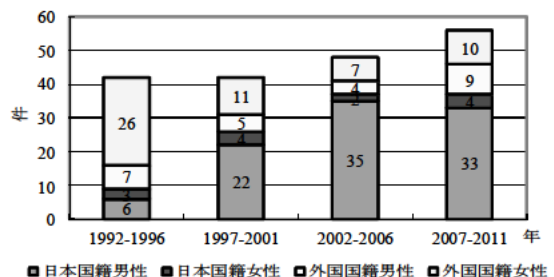


図7-2 男女国籍別AIDS患者・HIV感染者報告数

2011 年 9 月末現在の都道府県別外国人登録者数⁶⁾は、愛知県 201,414 人(全国で 3 番目)、岐阜県 47,590 人(同 12 番目)、三重県 45,343 人(同 13 番目)、さらに人口 10 万人あたりに換算すると⁷⁾、三重県は 2.45 人と東京都 3.09 人、愛知県 2.72 人に続いて 3 番目、岐阜県は 2.30 人で 5 番目となっている。さらに三重県は外国国籍に占める AIDS 患者・HIV 感染者の割合が 80 件(0.18%)を占め愛知県 225 件(0.12%)、岐阜県 43 件(0.09%)と比べると有意差が認められた($p<0.01$)。

考 察

三重県における 2011 年の HIV 感染者数は 7 件となっており、2010 年の 6 件、2009 年の 2 件に比べて増加している。一方、検査件数は 2010 年 1,465 件から 2011 年の 1,175 件へと、約 20%も減少していることから潜在的な感染が、広がっている恐れがある。愛知県や岐阜県においても検査件数が減っているにも関わらず、AIDS 患者・HIV 感染者の増加傾向が見られた。

また、2011 年の AIDS 患者の報告数は 5 件と前年に比べて 2 件増加しており、感染に気づかずに発症する人も増加傾向にある。AIDS 患者の早期発見による発症予防や感染拡大防止のためにも保健所等での HIV 検査の積極的な利用を呼びかける必要がある。

2012 年 1 月 19 日に感染症の予防及び感染症の患者に対する医療に関する法律に基づく、後天性免疫不全症候群に関する特定感染症予防指針(エイズ予防指針)⁸⁾が改正され、個別対策層に、MSM、薬物乱用者等が明記され、新たに検査・相談体制の充実が加わったことより、青少年、外国人、MSM、性風俗産業従事者、薬物乱用者(静注薬物使用者)に対してよりきめ細かな対策が必要となる。薬物乱用者は HIV 感染リスクと強く関連すると言われており、三重県では過去には外国国籍男性患者 2 例が報告されている。

飲酒・禁煙・薬物乱用についての全国中学生意識・実態調査(2010)⁹⁾では、中学生の薬物乱用問題は増加傾向で、有機溶剤から大麻・覚せい剤に変わっていることから、今後 HIV 感染の拡大が懸念される。

感染経路別について近年の傾向を見ると、同性間性的接触の割合が増加してきているが、名古屋市や岐阜県に比べるとまだ少ない。異性間性的接触の報告の中には、自身のセクシュアリティを明らかにすることを避けるために、異性間性的接触や不明と申告した MSM も含まれることが考えられるため¹⁰⁾、検査相談においてよりきめ細やかな対応が必要となる。MSM を対象とした検査の実施の必要性はもちろん、愛知県名古屋市で活動する HIV/AIDS 予防団体 ANGEL LIFE

NAGOYA(エンジェルライフナゴヤ)や日本に暮らす外国籍住民が医療や福祉のサービスと情報にアクセスすることを支援する市民団体(NPO 法人) CHARM との連携も必要であると考える。

以上のことから、三重県においても性的指向の側面で配慮の必要な MSM を踏まえた対策を強化する必要がある。また、外国籍患者が多いことを踏まえて、引き続き、文化的障壁のある外国国籍患者への個別対策が必要である。

また、近年 HIV 検査数、相談検査数が大きく減少していることから、検査未受診層(学生、若年層等)への教育、啓発を行うなど、潜在的なニーズを引き出すとともに、検査や相談を受ける人の利便性を考慮した対策が必要である。具体的にはイベント検査、検査時間帯の見直し、即日検査の充実などを実施していく必要があると考える。

文 献

- 1) 2011 年 エイズ発生動向年報(確定値)。
- 2) 2012 年 エイズ動向委員会報告。
2011 年 保健所等における HIV 抗体検査件数(確定値)、保健所等における相談件数(確定値)。
- 3) 愛知県:エイズの現状/アイチエイズインフォメーション愛知県の状況(2011 年 12 月 31 日現在)。
- 4) 岐阜県:岐阜県における HIV 感染者/エイズ患者の状況(2009 年 12 月末;岐阜市も含む)。
- 5) 岐阜県:岐阜県における HIV 感染者/エイズ患者の状況(2011 年 12 月末;岐阜市も含む)。
- 6) 法務省入国管理局:平成 23 年 9 月末現在における外国人登録者数について。
- 7) 総務省統計局:人口推計(平成 23 年 10 月 1 日現在)都道府県別人口。
- 8) 厚生労働省:後天性免疫不全症候群に関する特定感染症予防指針(エイズ予防指針) 健疾発 0119 第 1 号 平成 24 年 1 月 19 日。
- 9) 研究分担者:和田 清。独立行政法人 国立精神・神経医療研究センター。精神保健研究所 薬物依存研究部長:飲酒・喫煙・薬物乱用についての全国中学生意識・実態調査(2010 年)。
- 10) 市川誠一、佐藤末光、内海真、鬼塚哲郎、山本政弘、伊藤俊宏、健山正男:厚生労働科学研究費補助金 エイズ対策研究事業「男性同性間の HIV 感染対策とその評価に関する研究」2005-2007 年。

資料

三重県における2011年度環境放射能調査結果

吉村英基, 森 康則, 澤田陽子, 前田 明, 志村恭子

The Report of Environmental Radioactivity in Mie Prefecture (April 2011~March 2012)

Hideki YOSHIMURA, Yasunori MORI, Yoko SAWADA, Akira MAEDA and Kyoko SHIMURA

文部科学省からの委託を受け2011年度の三重県における, 降水中の全ベータ放射能測定, 降下物, 大気浮遊じん, 河川水, 土壌, 蛇口水および各種食品試料のガンマ線放出核種 (I-131, Cs-134, Cs-137, K-40) 分析ならびに空間放射線量率測定を行った。

降水中の全ベータ放射能, モニタリングポストを用いた空間放射線量率の連続測定およびサーベイメータを用いた月1回の空間放射線量率の測定結果では, 異常は認められなかった。核種分析においては, I-131, Cs-134, Cs-137, Nb-95の人工放射性核種が降下物試料から検出されるなど, 2012年3月11日に発生した東日本大震災による福島第一原子力発電所事故の影響を受けたと考えられる結果が得られた。

キーワード: 環境放射能, 核種分析, 全ベータ放射能, 空間放射線量率

はじめに

日本における環境放射能調査は, 1954年のビキニ環礁での核実験を契機に開始され, 1961年から再開された米ソ大気圏内核実験, 1979年スリーマイル島事故, 1986年チェルノブイリ原発事故を経て, 原子力関係施設等からの影響の有無などの正確な評価を可能とするため, 現在では全都道府県で環境放射能水準調査事業が実施されている¹⁾。

三重県でも日常の放射能レベルを把握するため, 1988年度から同事業を受託し, 降水中の全ベータ放射能測定, 降下物, 大気浮遊じん, 淡水, 土壌, 蛇口水, および各種食品試料のガンマ線放出核種 (I-131, Cs-137, K-40) 分析ならびに空間放射線量率測定を実施している。

また, 2011年度には2011年3月11日に発生した東日本大震災による東京電力株式会社福島第一原子力発電所の事故対応のため文部科学省からの協力依頼を受けて3月12日からモニタリングの強化を実施した。

本報では, 2011年度に実施した通常調査の結果について報告する。

方 法

1. 調査の対象

調査対象は, 定時降水(降雨), 降下物, 大気浮遊じん, 土壌, 淡水(河川水), 蛇口水, 穀類, 農産物, 牛乳, 海産生物および空間放射線量率である。表1に測定項目, 試料の種別, 採取場所等を示す。

2. 採取および測定の方法

試料の採取, 処理および測定は, 「環境放射能水準調査委託実施計画書」(文部科学省)¹⁾に基づき実施した。

1) 全ベータ放射能測定

試料の採取: 三重県四日市市(34°59'31", 136°29'06")の当所屋上(地上18.6m)に設置した採取装置で, 24時間の降雨量が1mm以上(毎09:00時点)のとき雨水を採取し, そこから200mL(それ以下の場合は全量)を取り試料とした。

前処理: 試料200mLにヨウ素担体(1mgI/mL)1mL, 0.05mol/L硝酸銀2mLおよび硝酸(1+1)数滴を加え加熱濃縮し, ステンレス製蒸発皿(50mmφ)で蒸発乾固した。

測定：比較試料は、酸化ウラン（ U_3O_8 ：日本アイソトープ協会製ベータ線比較線源50Bq）を用いた。採取6時間後にベータ線自動測定装置で測定を

行った。測定時間は測定試料、比較試料、バックグラウンド試料（空試料）すべて40分とした。

表1 放射能調査の試料種別の採取時期・場所

項目	試料の種別	採取月等	採取場所
全ベータ放射能	降水（雨水）	降水毎（09:00）	三重県四日市市
ガンマ線核種分析	降下物（雨水＋ちり）	毎月（1ヶ月間）	三重県四日市市
	大気浮遊じん	四半期（3ヶ月間）	三重県四日市市
	淡水（河川水）	2011年10月	三重県亀山市（鈴鹿川）
	土壌（草地）	2011年 8月	三重県三重郡菰野町
	蛇口水	2011年 6月	三重県四日市市
	穀類（精米）	2011年 9月	三重県松阪市
	茶（荒茶）	2011年 5月	三重県亀山市・多気郡大台町
	牛乳	2011年 8月	三重県度会郡大紀町
	ほうれんそう	2011年11月	三重県四日市市楠町
	だいこん	2011年12月	三重県多気郡明和町
	まだい	2011年 4月	三重県北牟婁郡紀北町（熊野灘）
	あさり	2011年 5月	三重県伊勢市（伊勢湾沿岸）
	わかめ	2012年 2月	三重県鳥羽市（答志島沖）
空間放射線量率	—	連続／毎月1回	三重県四日市市

2) 核種分析

降下物：三重県四日市市の当所屋上に設置した大型水盤で、1ヶ月間に降下した雨水およびちりを採取し、濃縮後全量をU-8容器に移し乾固して測定試料とした。

大気浮遊じん：三重県四日市市の当所屋上に設置したハイボリュームエアサンプラを用いて、3ヶ月間で約13,000m³（流速54.0m³/h，24h，10回/3ヶ月）の大気を吸引し、浮遊じんをろ紙（ADVANTEC HE-40T）上に採取した。このろ紙試料を円形に打ち抜き分取してU-8容器に充填したものを測定試料とした。

土壌：三重県三重郡菰野町地内の草地（山砂土）において梅雨明け後、2～3日降雨がない日に深度0～5cm，5～20cmのものを均一に採取し、これを105℃で乾燥後、ふるい（2mmメッシュ）を通し乾燥細土を得てU-8容器に分取したものを測定試料とした。

淡水：鈴鹿川の河川水を、三重県亀山市関町地内（勧進橋下）で100L採取し、酸固定（HCl(1+1) 2mL/L）濃縮後、全量をU-8容器に移し乾固して測定試料とした。

蛇口水：三重県四日市市の当所1階蛇口水を、100L採取し濃縮後、全量をU-8容器に移し乾固して

測定試料とした。

食品：精米および牛乳は、各年1回、約2kgを2Lマリネリ容器に入れ測定試料とした。農産物（茶、野菜）、海産生物（まだい、あさり、わかめ）は、各年1回収穫時期に、可食部約4～8kgを、蒸発皿で炭化後、電気炉（450℃，24時間）で灰化し、磨砕後、ふるい（0.35mmメッシュ）を通して異物を除去した上でU-8容器に分取して測定試料とした。これら測定試料は、測定時間を70000秒としGe半導体検出器で同定可能な64種の天然および人工の放射性核種の測定を行い、I-131, Cs-134, Cs-137, K-40を定量した。

3) 空間放射線量率測定

三重県四日市市の当所屋上に設置したNaIシンチレーション式エネルギー補償型モニタリングポストで連続測定（時間平均値，日間最大値・最小値・平均値）を行った。

あわせて、月1回（月上旬）当所屋上の床上1mの位置で、シンチレーションサーベイメータによる測定を行った。時定数を30秒とし30秒間隔で5回測定を行い、平均値を算出した。

3. 採取・測定装置

1) 全ベータ放射能測定

採取装置：ステンレス製降水採取装置（受水面積：1,000cm²）

降雨量測定装置：(株)小笠原計器製作所製
C-R543型雨量計

測定装置：アロカ(株)製β線自動測定装置
JDC-3201

2) 核種分析

降下物採取装置：大型水盤(受水面積：5,000cm²)
大気浮遊じん採取装置：柴田科学(株)製ハイボリ
ュームエアサンプラろ紙式集じん器 HV-1000F
測定装置：キャンベラ製Ge半導体検出器
GC2519-7500S/RDC

3) 空間放射線量率測定

モニタリングポスト：アロカ(株)製環境放射線モ
ニタ装置MAR-21，アロカ(株)製温度補償型シン
チレーションプローブND-471CV

シンチレーションサーベイメータ：アロカ
(株)製TCS-171

結果および考察

1. 全ベータ放射能測定

全ベータ放射能の測定は、低レベルの放射能測定には必ずしも適当とは言えないが、放射性降下物、特に人工核種の放射能レベルの相互比較には著しく妥当性を欠くことなく用いることができることから^{1, 2)}、年次変化や地域比較に有効な結果が得られる手法である。

2011年度は福島第一原子力発電所事故への対応のためのモニタリング強化により、全ベータ放射能測定は4～12月の間は休止し、1～3月のみ実施した。表2に2011年度に測定を実施した22件の結果を示した。

表2 定時降水中の全ベータ放射能測定結果

採取期間	降水量(mm)	試料数	検出数	降下量(MBq/km ²)
2011年 4月	96.5	-	-	-
5月	367.0	-	-	-
6月	316.5	-	-	-
7月	358.5	-	-	-
8月	198.5	-	-	-
9月	601.5	-	-	-
10月	196.5	-	-	-
11月	79.5	-	-	-
12月	19.0	-	-	-
2012年 1月	44.5	5	2	20
2月	114.5	9	2	8.8
3月	199.0	8	2	24
2011年度	2,591.5	22	6	8.8～24
2010年度	2,258.5	90	20	N.D.～41
2009年度	1,932.5	101	18	N.D.～30
2008年度	2,232.0	94	7	N.D.～26

注) N.D.：不検出（計数値が計数誤差の3倍を下回るもの）

降水中の全ベータ放射能は、22試料中6試料から検出された。検出された試料について核種分析を実施したが、人工放射線核種は検出されず、特に異常と判断される結果はなかった。

2. 核種分析

原子力発電所の事故や核実験等により大気中に放出された放射性物質は、大気圏に拡散した場合は比較的短期間に、成層圏に注入された場合は数

年程度までの滞留期間を経て徐々に降下するとされている¹⁾。

これらによる外部被ばくとともに、呼吸や食物の摂取を通じて放射性核種が体内に取り込まれることによって長期に渡る被ばく（内部被ばく）が発生する³⁾。試料はこれを考慮し、体内への摂取量の指標として食品、大気浮遊じんを、環境への流入量の指標として降下物、大気浮遊じん、淡水（河川水）、土壌を、環境での蓄積状況の指標と

して土壌、食品を選択した。

通常時から定量対象としている3核種は、大気圏拡散の指標として短半減期の核種⁴⁾のうちI-131(半減期8.02d)、大気圏拡散、成層圏拡散ともに影響の大きい比較的長半減期の核種⁴⁾の指標としてCs-137(半減期30.04y)、比較の指標として天然放射性核種のうちK-40(半減期 1.277×10^9 y)⁵⁾である。2011年度は福島第一原子力発電所の事故を踏まえて、Cs-134(半減期2.06y)も対象とした。なお、蛇口水、精米、牛乳を除く食品試料は灰化して測定を行うため、I-131は定量の対象としていない。

1) 環境試料中のI-131, Cs-134, Cs-137およびK-40濃度

表3に2011年度における三重県内の降下物、大

気浮遊じん、淡水、土壌中のI-131, Cs-134, Cs-137およびK-40の測定結果を示す。

降下物からI-131, Cs-134, Cs-137が、大気浮遊じんからCs-134, Cs-137が、土壌表層(0-5cm)からCs-137が検出された。K-40は降下物の一部、大気浮遊じん、淡水、土壌から検出された。

さらに、I-131, Cs-134, Cs-137以外の人工放射性核種であるNb-95(半減期34.99d)⁴⁾が4月分および5月分の降下物試料から微量検出された。Nb-95はZr-95(半減期64.32d)⁴⁾から生成する核種であり、単純に減衰補正を行っても正確な値が得られないため、補正を行わない測定値を示すと4月が0.085MBq/km²(6/15測定)、5月が0.085MBq/km²(6/22測定)であった。

表3 環境試料中のI-131, Cs-134, Cs-137およびK-40濃度

試料	採取時期	試料数	単位	I-131	Cs-134	Cs-137	K-40
降下物	2011年 4月	1	MBq/km ²	13.3	18.4	17.7	1.44
	5月	1	MBq/km ²	1.25	7.18	7.09	1.85
	6月	1	MBq/km ²	N.D.	1.39	1.47	0.82
	7月	1	MBq/km ²	N.D.	1.18	1.22	0.70
	8月	1	MBq/km ²	N.D.	1.07	1.17	N.D.
	9月	1	MBq/km ²	N.D.	0.118	0.082	1.59
	10月	1	MBq/km ²	N.D.	0.055	0.062	0.75
	11月	1	MBq/km ²	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
	12月	1	MBq/km ²	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
	2012年 1月	1	MBq/km ²	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
	2月	1	MBq/km ²	N.D.	0.052	0.081	0.59
	3月	1	MBq/km ²	N.D.	0.042	0.062	1.13
	2011年度	12	MBq/km ²	N.D.~13.3	N.D.~18.4	N.D.~17.7	N.D.~1.85
	1989~2010年度	264	MBq/km ²	N.D.~1.24	-	N.D.~0.348	N.D.~57.9
大気浮遊 じん	2011年 4~6月	1	mBq/m ³	N.D.	0.296	0.317	0.272
	7~9月	1	mBq/m ³	N.D.	0.0084	0.0092	0.239
	10~12月	1	mBq/m ³	N.D.	N.D.	N.D.	0.292
	2012年 1~3月	1	mBq/m ³	N.D.	N.D.	N.D.	0.312
	2011年度	4	mBq/m ³	N.D.	N.D.~0.296	N.D.~0.317	0.239~0.312
	1989~2010年度	88	mBq/m ³	N.D.	-	N.D.	N.D.~0.565
淡水 (河川水)	2011年10月	1	mBq/L	N.D.	N.D.	N.D.	67.3
	2003~2010年度	8	mBq/L	N.D.	-	N.D.	58.1~78.9
土壌 (0-5cm)	2011年8月	1	Bq/kg乾	N.D.	N.D.	1.19	775
	1989~2010年度	22	Bq/kg乾	N.D.	-	N.D.~2.69	556~812
土壌 (5-20cm)	2011年8月	1	Bq/kg乾	N.D.	N.D.	N.D.	750
	1989~2010年度	22	Bq/kg乾	N.D.	-	N.D.~1.63	593~856

注) N.D.: 不検出(計数値が計数誤差の3倍を下回るもの)

過去のデータの採取場所は、表1と異なるものがある

表4 食品試料中のCs-134, Cs-137およびK-40濃度

試料	採取時期	試料数	単位	Cs-134	Cs-137	K-40
蛇口水	2011年 6月	1	mg/L	0.408	0.434	24.5
	1989～2010年度	36	mg/L	-	N.D.～0.313	17.6～69.9
穀類（精米）	2011年 9月	1	Bq/kg生	N.D.	N.D.	23.0
	1989～2010年度	22	Bq/kg生	-	N.D.	21.9～34.2
茶（荒茶）	2011年 5月	2	Bq/kg乾	3.83～4.42	3.87～4.71	623～633
	1989～2010年度	42	Bq/kg乾	-	N.D.～1.72	417～766
牛乳	2011年 8月	1	Bq/L	N.D.	N.D.	49.0
	1989～2010年度	36	Bq/L	-	N.D.	32.0～51.8
ほうれんそう	2011年11月	1	Bq/kg生	N.D.	N.D.	146
	1989～2010年度	22	Bq/kg生	-	N.D.～0.058	58.0～237
だいこん	2011年12月	1	Bq/kg生	N.D.	N.D.	77.6
	1989～2010年度	22	Bq/kg生	-	N.D.～0.056	63.0～106
まだい	2011年 4月	1	Bq/kg生	N.D.	0.130	147
	1994～2010年度	17	Bq/kg生	-	0.090～0.244	92.5～164
あさり	2011年 5月	1	Bq/kg生	N.D.	N.D.	73.0
	2001～2010年度	10	Bq/kg生	-	N.D.	31.9～83.2
わかめ	2012年 2月	1	Bq/kg生	N.D.	N.D.	236
	1998～2010年度	13	Bq/kg生	-	N.D.	105～278

注) N.D.：不検出（計測値が測定誤差の3倍を下回るもの）
過去のデータの採取場所は、表1と異なるものがある

2011年度は降水量の少なかった11,12,1月分を除き、降下物から人工放射性核種が検出されているが、検出された核種のうち半減期が1年以上であるCs-134とCs-137について各月の降下量を足しあわせて年間降下量を算出すると、Cs-134が29.5MBq/km²、Cs-137が28.9MBq/km²であった。この全量が地表面線源となったと仮定して成人に対する実効放射線量率を計算すると⁶⁾ 0.14nSv/hとなる。また、最も濃度の高かった4-6月期の大気浮遊じん中のCs-134, Cs-137の濃度を用いて、成人に対する呼吸による実効放射線量率を計算すると²⁾ 0.017nSv/hとなる。算出された値はともに、一般公衆の年線量当量限度(1mSv/年)の時間換算量(114nSv/h)と比較すると非常に小さい値であり、影響は少ないものと考えられた。

2) 食品試料中のCs-134, Cs-137およびK-40濃度

表4に2011年度における県内の蛇口水、県内で生産された精米、農産物（荒茶、ほうれんそう、だいこん）、牛乳、県近海でとれた海産生物（まだい、あさり、わかめ）のCs-134, Cs-137, K-40の測定結果を示す。

蛇口水および茶からCs-134, Cs-137が、まだい

からCs-137が検出された。蛇口水および茶についてはCs-134が検出されていることと、Cs-137の検出値が過去の検出値と比較し高いことから福島第一原子力発電所事故の影響を受けていると推定された。まだいのCs-137の検出値は過去の結果⁷⁾と比較すると特に高いものではなく平常の範囲であると考えられた。

2011年度の食品試料における検出値は、放射性セシウムの摂取制限に関する指標（野菜類・その他：500Bq/kg⁸⁾、欧州共同体委員会暫定限度（一般食品：500Bq/kg）、米国暫定基準値(370Bq/kg)⁹⁾、および2012年4月施行の食品の規格基準（飲料水10Bq/kg、乳児用食品・牛乳50Bq/kg、一般食品100Bq/kg¹⁰⁾）と比較しても大きく下回る値であった。

K-40はすべての試料から検出されたが、表4に示した過去の結果および他県の結果⁷⁾との比較から、平常値の範囲と判断された。

食品試料においてはCs-134, Cs-137以外の人工放射性核種は検出されなかった。

本県では2011年3月の降下物からは放射性セシウムは検出されていないため、事故後2012年3月までのCs-134, Cs-137の降下量は、先に算出した値

の29.5MBq/km²、28.9MBq/km²となる。文部科学省が公表を行っている全国の降下物の状況¹⁾で、農産物等の出荷制限指示の対象となった7県（宮城県はデータ無し）の、2011年3月と4月の放射性セシウムの降下量の合計を算出すると、Cs-134は1430～3190000MBq/km²、Cs-137は1420～3440000MBq/km²であった。事故後の放射性セシウムの降下量をこの地域と比較すると大幅に低いものであったと言える。また、降下した放射性セシウムが表層土壌(0-5cm)中にとどまったと仮定し、乾燥土壌中の濃度を2011年度に採取した土壌試料のデータを参考に計算すると、Cs-134 0.42Bq/kg乾土、Cs-137 0.41Bq/kg乾土となった。事故前の表層土壌中のCs-137の検出値はN.D.～2.69Bq/kg乾土であり、今回の事故による土壌中の放射性セシウムの増分は、平常時の変動の範囲内に収まるものと考えられる。

三重県における食品試料への事故の影響は、実際の測定において蛇口水および茶でわずかに見られたのみであったが、降下量からも影響が小さいことを裏付けられることがわかった。

3. 空間放射線量率測定

表5に2011年度の三重県四日市市におけるモニ

タリングポストによる連続空間放射線量率およびサーベイメータによる空間放射線量率の測定結果を示す。

空間放射線量率を測定することで、公衆の線量当量を外部被ばく推定式(1)^{2,12)}により推定することができる。2011年度の観測値を式により換算すると、平均値 46.6nSv/h、最大81.2nSv/h、最小42.9nSv/hとなり、公衆の年線量当量限度（1mSv/年）²⁾の時間換算量（114nSv/h）と比較して、十分に低い値となっている。

$$\text{Hex(Sv)}=\text{Dex(Gy)}\times 1.0\cdots\cdots(1)$$

Hex(Sv)：時間当たりの(実効)線量当量

Dex(Gy)：時間当たりの(空気)吸収線量

2011年度は福島第一原子力発電所事故を考慮し換算係数は緊急時の1.0を用いた。

また、ここ数年、モニタリングポストでの測定結果は、ほぼ45～50nGy/hの範囲で推移しており、過去3年間の結果と比較しても、2011年度の観測値は平常値の範囲と判断され、原子力発電所事故の影響は認められなかった。

表5 2011年度の空間放射線量率（宇宙線による線量率(約30 nGy/h)を含まない）

測定年月	モニタリングポスト (nGy/h)				サーベイメータ (nGy/h)				2010年度**
	測定回数	平均値	最大値	最小値	測定回数	測定値	最大値	最小値	
2011年4月	720	46.6	63.3	44.9	1	54	-	-	57
5月	744	47.2	81.2	44.7	1	54	-	-	52
6月	720	47.1	68.3	44.9	1	54	-	-	54
7月	744	46.8	72.9	44.7	1	55	-	-	51
8月	744	46.3	70.3	44.1	1	53	-	-	51
9月	720	46.0	70.0	43.9	1	50	-	-	56
10月	744	46.4	60.8	44.3	1	57	-	-	53
11月	720	46.2	58.6	44.4	1	52	-	-	53
12月	744	46.2	56.0	43.5	1	57	-	-	45
2012年 1月	742*	46.4	62.6	43.9	1	52	-	-	57
2月	696	46.4	64.2	42.9	1	56	-	-	50
3月	744	47.5	75.6	44.2	1	51	-	-	53
2011年度	8,782	46.6	81.2	42.9	12	54	57	50	
2010年度	8,757	46.6	74.7	41.3	12	53	57	45	
2009年度	8,732	46.4	70.4	41.6	12	54	57	49	
2008年度	8,758	46.6	68.0	42.8	12	55	58	52	

* 機器点検等のため欠測がある

**2010年度報告におけるサーベイメータ測定値について記載に誤りがあったため、修正を行ったものを報告する。

なお、2011年度には80nGy/hを超える値が観測されたが、降雨時の値であり、天候の影響による上昇と推定された。

サーベイメータでの測定についても、機器の精度、回数および測定条件等から、結果が変動しやすく、モニタリングポストの測定値より高い値を示す傾向があることを考慮すると、過去3年間の結果ともよく一致しており、平常値の範囲と判断された。

まとめ

1. 2011年度三重県定点における降水中の全ベータ放射能測定は、2012年1月から3月の3ヶ月間のみの実施ではあるが、特に異常なデータは得られなかった。

2. 2011年度の環境試料（降下物、大気浮遊じん、陸水、土壌）および食品試料（蛇口水、農産物、水産物）中のガンマ線放出核種の測定結果では、人工放射性核種であるI-131、Cs-137、Cs-134、Nb-95が一部試料から検出され、福島第一原子力発電所事故の影響が認められた。検出濃度は微量であり問題となるものではないと考えられるが、今後とも調査を継続し推移を把握していく必要があると考えている。

3. 2011年度の三重県定点におけるモニタリングポストによる連続測定、サーベイメータを用いた月1回の測定では、空間放射線量率の異常値は観測されなかった。

本報告は、2011年度エネルギー対策特別会計に基づく文部科学省からの受託事業として、三重県が実施した「環境放射能水準調査」の成果である。

文 献

1) 文部科学省科学技術・学術政策局原子力安全課防災環境対策室：環境放射能水準調査委託実施計画書(2011).

2) 原子力安全委員会：環境放射線モニタリング指針(2008).

3) 放射線医学総合研究所：特別研究「環境における放射性物質の動態と被ばく線量算定に関する調査研究」最終報告書(1999).

4) (社)日本アイソトープ協会：アイソトープ手帳11版、丸善(2011).

5) Measurement of Radionuclides in Food and the Environment / A Guidebook, IAEA, VIENNA(1989).

6) (財)日本分析センター：線量推定及び評価法解説(2001).

7) (財)日本分析センター：平成5年度～平成21年度環境放射能水準調査結果総括資料.

8) 原子力安全委員会：原子力施設等の防災対策について(1980).

9) 杉山英男：食品の摂取制限と被曝線量，中島敏行編 緊急時における線量評価と安全への対応，放射線医学総合研究所，176-188(1994).

10) 2012年3月15日付け食安発0315第1号厚生労働省医薬食品局食品安全部長通知：「乳及び乳製品の成分規格等に関する省令の一部を改正する省令，乳及び乳製品の成分規格等に関する省令別表の二の（一）の(1)の規定に基づき厚生労働大臣が定める放射性物質を定める件及び食品，添加物等の規格基準の一部を改正する件について」.

11) 文部科学省ホームページ「放射線モニタリング情報」<http://radioactivity.mext.go.jp/ja/>.

12) 吉岡満夫：公衆の被ばく線量評価，中島敏行編 緊急時における線量評価と安全への対応，放射線医学総合研究所，17-40(1994).

資料

福島第一原子力発電所事故を受けた 環境放射能モニタリング強化結果について

吉村英基, 森 康則, 澤田陽子, 前田 明, 村田 将, 竹川雄太,
竹内 浩, 原 有紀, 前田千恵, 林 克弘, 一色 博, 志村恭子

Enhanced Monitoring of Environmental Radioactivity in Mie Prefecture against the Accident of Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant

Hideki YOSHIMURA, Yasunori MORI, Yoko SAWADA, Akira MAEDA, Sho MURATA,
Yuuta TAKEKAWA, Hiroshi TAKEUCHI, Yuki HARA, Chie MAEDA
Katsuhiro HAYASHI, Hiroshi ISSIKI and Kyoko SHIMURA

2011年3月11日に発生した東日本大震災による福島第一原子力発電所事故への対応のため文部科学省からの依頼により環境放射能のモニタリングを強化した。

2011年3月12日から空間放射線量率の監視強化, 3月18日から定時降下物および蛇口水の核種分析を開始し, 6月15日からは地上1m地点でのサーベイメータによる空間放射線量率の測定を実施した。

三重県においては空間放射線量率および蛇口水の核種分析では特に異常は認められなかったが, 定時降下物の核種分析において微量のI-131が検出された。

キーワード: 環境放射能, 核種分析, 空間放射線量率, モニタリング強化

はじめに

国外の原子力関係事象発生時の対応は, 2005年2月23日付けで国の放射能対策連絡会議において対応要領等^{1) 2)}が決定され, それに基づきモニタリングを強化することとなっている。

過去の対応事例としては, 2006年および2010年の北朝鮮による核実験実施の発表時にモニタリングを強化した。

この要領等は国外の原子力事象を対象にしているが, 2011年3月11日に発生した東日本大震災による東京電力株式会社福島第一原子力発電所の事故を受け文部科学省からの協力依頼により, 同様にモニタリングを強化し, 三重県内の環境放射能の状況について把握を行った。

本報では, 2011年度にモニタリング強化として実施した調査の結果を報告する。

方 法

1. 調査の内容

モニタリング強化は文部科学省からの指示により, 空間放射線量率の監視を強化するとともに降下物および降水, 陸水(蛇口水)についてガンマ線核種分析を行った。

空間放射線量率は当所屋上に設置されたモニタリングポストによる連続測定の監視強化とサーベイメータによる地上1m位置での測定を実施した。

ガンマ線核種分析は24時間の定時降下物と蛇口水試料について毎日測定した。

2. 採取および測定の方法

試料の採取, 処理および測定は, 「環境放射能水準調査委託実施計画書」(文部科学省)³⁾に基づき実施した。

1) 空間放射線量率測定

①モニタリングポスト

三重県四日市市の当所屋上に設置したNaIシンチレーション式エネルギー補償型モニタリングポストの連続測定について監視を強化し, 1時間値を

毎時観測し国に報告を行った。監視強化は2011年3月12日18:00から開始し、2012年4月6日9:00までメールによる報告を行い、その後はオンライン化により国に自動報告されることとなった。

②サーベイメータ

2011年6月15日から12月27日まで毎日10:00に、当研究所前駐車場の地上1mの位置で、シンチレーションサーベイメータによる測定を行った。方法は時定数を30秒とし30秒間隔で5回測定を行い、平均値を算出することとした。2012年1月からは毎月第2週水曜日の10:00に測定を実施している。測定地点は三重県四日市市桜町3484-19 (N 34° 59' 34" E136°29' 07") である。

また、2011年6月24日～30日の間に県下の10カ所において地上1mの位置での測定を行った。測定法は上と同様の方法で、測定地点は桑名市寿町 (N35°03' 58" E136°41' 20")、四日市市新正 (N34°57' 17" E136°36' 54")、鈴鹿市西条 (N34°52' 44" E136°34' 09")、津市西丸之内 (N34°43' 10" E136°30' 19")、松阪市殿町 (N34°34' 39" E136°31' 44")、伊勢市勢田町 (N34°28' 50" E136°42' 37")、志摩市阿児町鶴方 (N34°19' 43" E136°49' 45")、伊賀市上野丸の内 (N34°46' 12" E136°07' 40")、尾鷲市中村町 (N34°04' 16" E136°11' 31")、熊野市有馬町 (N33°52' 07" E136°04' 30") の10地点とした。

2) 核種分析

①降下物：三重県四日市市の当研究所屋上に設置した降水採取装置（受水面積：1,000cm²）を用い24時間の降下物および降水を採取した。降水があり80mL以上採取された場合は80mLを分取し、80mL未満の場合は全量をU-8容器に充填し測定試料とした。降水がなかった場合は採取装置内を少量の純水で洗浄し、洗浄液をU-8容器に充填して試料とした。この測定試料を測定時間20000秒でガンマ線核種分析を行った。

②蛇口水：当研究所の蛇口から採取した水道水2Lをマリネリ容器に充填し、測定試料とした。この測定試料を測定時間20000秒でガンマ線核種分析を行った。

核種分析については2011年3月18日から12月28日まで実施した。2012年1月からは測定精度を向上するため、降下物については1ヶ月間の降下物を測定し、蛇口水については3ヶ月間の勤務日に毎日1.5Lずつ採水し、合計で約100Lを濃縮した試料を測定することに変更した。

3. 測定装置

1) 空間放射線量率測定

モニタリングポスト：アロカ(株)製環境放射線モニタ装置MAR-21, アロカ(株)製温度補償型シンチレーションプローブND-471CV

シンチレーションサーベイメータ：アロカ (株) 製TCS-171

2) 核種分析

測定装置：キャンベラ製Ge半導体検出器 GC2519-7500S/RDC

結果および考察

1. 空間放射線量率測定

モニタリングポストによる空間放射線量率の連続測定結果は別報¹⁾で詳細を報告したとおり、2011年度の平均値46.6nGy/h, 最大値81.2nGy/h, 最小値42.9nGy/hで異常値は観測されなかった。

当研究所前駐車場で実施したサーベイメータによる地上1m地点における空間放射線量率の測定結果を表1に示した。当研究所前の地上1m地点での空間放射線量率は、降雨時に上昇が見られたが、異常を示す値は観測されなかった。表2に県下10地点で実施した測定結果を示した。県下10地点の測定結果でも、地質状況や周辺環境による差異は認められるが、異常値を示す地点はなかった。

測定した地上1m地点での空間放射線量率から式(1)により実効線量当量率を算出し²⁾、併せて表に示した。通常時は換算係数を0.8とするが、緊急時は1.0とするとされているため³⁾、今回は1.0を用いて換算を行っている。

$$\text{Hex(Sv)} = \text{Dex(Gy)} \times 1.0 \cdots (1)$$

Hex(Sv)：時間当たりの(実効)線量当量

Dex(Gy)：時間当たりの(空気)吸収線量

2. 核種分析

(1)降下物：降下物試料の採取は2011年3月18日9時から開始し、2011年12月27日9時まで実施した。24時間分の検体を毎日採取し検体数は284検体となった。そのうち4月に採取した4検体からI-131が検出された。周辺県においても同時期に降下物から人工放射性核種が検出されており⁴⁾、事故の影響がこの時期に東海地方まで及んだことが確認された。その他の試料からは人工放射性核種は検出されなかった。

検出された試料および検出濃度は表3に示した。
 なお、モニタリング強化に係る降下物試料は雨量により測定試料量の採取試料量に対する割合が変動するため、検出下限値も変動し、概ね以下のとおりであった。

降雨がない場合I-131 0.8MBq/km², Cs-134 1MBq/km², Cs-137 1MBq/km², 降雨が10mm程度の場合(採取量が1L程度) I-131 10MBq/km², Cs-134 15MBq/km², Cs-137 15MBq/km²。

表1 サーベイメータによる空間放射線量率測定結果

測定年月	測定値(nGy/h)				実効線量当量率 (μSv/h)		
	測定回数	平均値	最大値	最小値	平均値	最大値	最小値
2011年 4月	—	—	—	—	—	—	—
5月	—	—	—	—	—	—	—
6月	16	66	70	62	0.066	0.070	0.062
7月	31	67	84	60	0.067	0.084	0.060
8月	31	68	90	62	0.068	0.090	0.062
9月	30	67	74	62	0.067	0.074	0.062
10月	31	68	76	60	0.068	0.076	0.060
11月	30	71	90	66	0.071	0.090	0.066
12月	28	69	78	62	0.069	0.078	0.062
2012年 1月	1	68	—	—	0.068	—	—
2月	1	66	—	—	0.066	—	—
3月	1	72	—	—	0.072	—	—

表2 サーベイメータによる県内の空間放射線量率測定結果

測定地点	測定日	測定値(nGy/h)	実効線量当量率 (μSv/h)
桑名市	2011.6.27	58	0.058
四日市市	2011.6.27	62	0.062
鈴鹿市	2011.6.24	64	0.064
津市	2011.6.28	58	0.058
松阪市	2011.6.28	60	0.060
伊勢市	2011.6.29	66	0.066
志摩市	2011.6.29	60	0.060
伊賀市	2011.6.24	60	0.060
尾鷲市	2011.6.30	80	0.080
熊野市	2011.6.30	70	0.070

(2)蛇口水：蛇口水試料は2011年3月18日から採取を開始し、2011年12月27日まで毎日実施した。検体数は285検体となり、すべての検体で人工放射性核種は検出されなかった。

蛇口水についての検出下限値は、試料により若

干の変動はあるが、概ね I-131 0.1Bq/kg, Cs-134 0.1Bq/kg, Cs-137 0.1Bq/kgであった。

なお、モニタリング強化に係る核種分析の測定時間は、通常環境放射能水準調査⁴⁾の試料の測定(測定時間70000秒)実施日には、1台の測定装置

を共用するため、7200秒に短縮することとした。
この場合の検出下限値は20000秒測定の場合の約2倍の値であった。

モニタリング強化においては、毎日の状況を迅速に測定するために試料採取法や測定条件を変更しており、通常調査と比較するとガンマ線核種分析の検出下限値が高くなっている。

従って通常調査の結果と検出状況に差異が見られることとなった。

表3 I-131が検出された降下物試料

採取日	検出濃度 (MBq/km ²)	24hの雨量 (mm)
2011. 4. 7- 8	0.98	0.0
2011. 4.17-18	3.0	0.0
2011. 4.18-19	30	20.0
2011. 4.19-20	2.4	0.5

まとめ

1. 2011年3月11日に発生した東日本大震災による東京電力株式会社福島第一原子力発電所事故への対応のため、文部科学省からの依頼により環境放射能のモニタリングを強化した。

2. モニタリング強化により行った空間放射線量率の監視においては、モニタリングポストによる連続測定およびサーベイメータによる測定ともに

異常な値は観測されず、事故の影響は確認されなかった。

3. モニタリング強化として実施した核種分析では、蛇口水においては人工放射性核種は検出されなかったが、定時降下物においては4月に4検体から微量のI-131が検出され、事故の影響が観測された。

本報告は、2011年度エネルギー対策特別会計に基づく文部科学省からの受託事業として、三重県が実施した「環境放射能水準調査」の成果である。

文 献

1)放射能対策連絡会議：「国外における原子力関係事象発生時の対応要領」（2005）。

2)放射能対策連絡会議幹事会申し合わせ：「国外における原子力関係事象発生時の「モニタリング強化」の実施について」（2005）。

3)文部科学省科学技術・学術政策局原子力安全課防災環境対策室：環境放射能水準調査委託実施計画書(2011)。

4)吉村英基，森 康則，澤田陽子，前田 明，志村恭子：三重県における2011年度環境放射能調査結果，三重県保健環境研究所年報，No.14，94-100（2012）。

5) 原子力安全委員会：環境放射線モニタリング指針(2008)。

6) 文部科学省ホームページ「放射線モニタリング情報」 <http://radioactivity.mext.go.jp/ja>

資料

2011 年感染症発生動向調査結果

楠原 一, 矢野拓弥, 赤地重宏, 大久保和洋*,
永井佑樹, 岩出義人, 片山正彦

The Reports of Infectious Disease Surveillance in 2011

Hajime KUSUHARA, Takuya YANO, Shigehiro AKACHI, Kazuhiro OKUBO,
Yuhki NAGAI, Yoshito IWADE, and Masahiko KATAYAMA

2011 年 1 月 1 日～12 月 31 日までに県内の病原体検査定点医療機関等から検査依頼のあった患者数は 709 人であった。疾患別の内訳は、感染性胃腸炎 129 人、インフルエンザ様疾患 92 人、リケッチア感染症 71 人、手足口病 47 人、不明発疹症 33 人の順に多かった。

これらのうち、426 人(60%)から病原体が分離・検出された。主な分離・検出病原体はパラインフルエンザウイルス(Parainf), ヒューマンメタニューモウイルス(hMPV), ライノウイルス, インフルエンザウイルス A/H3N2 (InfAH3) 型, RS ウイルス, インフルエンザウイルス A/H1N1pdm09 (InfAH1pdm09) 型, ノロウイルス GII (NVGII), *Rickettsia japonica* であった。

キーワード：感染症発生動向調査, 病原体検査定点, 感染性胃腸炎, インフルエンザウイルス

はじめに

感染症発生動向調査の目的は、医療機関の協力を得て、患者由来の咽頭拭い液、便、髄液、血液等を用いてウイルス、細菌等の病原体検索や急性期、回復期における血清中抗体価検査を行い、当該感染症を微生物学的に決定すること、および臨床診断の参考とするとともに、流行の状況を正確に把握し、関係機関に情報提供することにより、感染症のまん延を未然に防止することである。

三重県ではこのような目的のために 1979 年から本事業を開始して以来 30 年以上が経過した。この事業の各種検査成績から流行性耳下腺炎などの周期性のある疾患¹⁻⁴⁾、秋から春にかけて流行する麻疹様疾患、風疹⁵⁾、冬から春にかけて流行する A 型肝炎など季節消長の明らかな疾患、無菌性髄膜炎、上気道炎等同一疾患でありながら原因ウイルスが多種多様で年々変遷する疾患⁶⁻⁸⁾等種々の興味深い事実が判明してきた。

感染症における病原微生物の決定には臨床所

見以外にも PCR 法、Real time PCR 法等の遺伝子学的検査、ウイルス分離および同定を主としたウイルス学的検査、血清学的検査等総合的な検査が必須である。以下、2011 年の感染症発生動向調査対象疾患の検査定点医療機関等で採取された検体の病原体検査状況について報告する。

方 法

1. 動向調査定点医療機関

感染症発生動向調査 5 類感染症患者定点および病原体検査定点の医療機関数を表 1 に示した。定点医療機関数については、昨年より変更はなかった⁹⁾。

2. 対象疾患および検体

1) 対象疾患

対象疾患は、三重県感染症発生動向調査事業実施要綱¹⁰⁾に記された対象感染症であるが、一部対象外の疾患(気管支炎、咽頭炎、扁桃炎等)についても必要と判断された場合について検査対象とした。

表 1. 感染症発生動向調査 5 類感染症および病原体検査定点医療機関数

定点種別	インフルエンザ		小児科	眼科	STD	基幹	合計
	内科	小児科					
患者定点	27	45	45	12	15	9	153
病原体検査定点	3	6	6	1		9	25

2) 検体

三重県感染症発生動向調査病原体検査指針¹⁰⁾に基づき、病原体定点および一部定点外の医療機関において 2011 年 1 月から 12 月までの間に採取された咽頭拭い液、鼻汁、糞便、嘔吐物、髄液、尿、血液、皮膚病巣等を検体とした。

3. 病原体の分離・検出方法

腸管系ウイルス、呼吸器系ウイルス、リケッチアなどの病原体検索は、主に国立感染症研究所の病原体検出マニュアル¹¹⁾に準拠し、ELISA 法などによる抗原検出や各種 PCR 法による特異遺伝子の検出、血清学的検査等により行った。

ウイルス分離には各種細胞 (HEp-2, MDCK, RD, Vero9013 等) を使用し、必要に応じて継代培養を行い、細胞変性効果 (CPE) をウイルス分離の指標とした。CPE の認められたものについては、抗血清を用いた中和試験法や PCR 法により分離ウイルスの同定を行い、必要に応じて PCR 産物の遺伝子配列解析を実施し遺伝子型別等を決定した。

また、2011 年よりサポウイルス (SV) については、Okada らの方法に従い¹²⁾、RT-PCR 法による遺伝子型別を実施した。

結 果

1. 疾患別患者数および分離・検出病原体

2011 年疾患別月別検査患者数、疾患別分離・検出病原体数および疾患別月別分離・検出病原体数を表 2~4 に示す。疾患別では、感染性胃腸炎 129 人、インフルエンザ様疾患 92 人、リケッチア感染症 71 人、手足口病 47 人、不明発疹症 33 人の順であった。その他として、気管支炎や咽頭炎、扁桃炎などが 252 人であった。

主な月別患者検査数では、感染性胃腸炎とリケッチア感染症、および不明発疹症は年間を通してみられる傾向にあった。インフルエンザ様疾患は冬と春に、手足口病は主に夏に検査依頼が多かった。

疾患別病原体検出患者数については、検査依頼のあった患者 709 人中、病原体が検出されたのは 426 人 (60%) であった。主な分離・検出病原体と検出された人数は、Parainf が 60 人、hMPV が 59 人、ライノウイルスが 50 人、InfAH3 型が 37 人、InfAH1pdm09 型と NVG II がそれぞれ 31 人、*Rickettsia japonica* が 23 人であった。

1) インフルエンザ

インフルエンザ様疾患 92 人中 86 人からウイルスあるいはウイルス遺伝子が検出され、AH3 型が 37 人、AH1pdm09 型 31 人、B 型 18 人であった。

2) 感染性胃腸炎

感染性胃腸炎患者 129 人中 82 人からウイルス遺伝子等が検出された。内訳は NVG II が 31 人、SV が 20 人、A 群ロタウイルスが 14 人、Ad40/41 が 8 人から検出された。SV の遺伝子型別が可能な RT-PCR 法を実施したところ、流行の主体は G1 型であった。その他アストロウイルス等が検出された。

3) 手足口病

手足口病患者 47 人中 24 人からウイルスあるいはウイルス遺伝子が検出され、コクサッキーウイルス A6 (CA6) が 11 人で最も多かった。その他 CA16、ライノウイルス等が検出された。

4) リケッチア感染症

リケッチア感染症は、患者 71 人中 23 人より病原体遺伝子あるいは有意な抗体が検出され、いずれも *Rickettsia japonica* による日本紅斑熱と考えられた。

5) その他

呼吸器系疾患を呈した気管支炎等の患者 252 人中 180 人よりウイルスあるいはウイルス遺伝子等が検出され、その内訳は、Parainf が最も多く 60 人 (1 型 38 名、2 型 1 名、3 型 16 名、4 型 5 名)、次に hMPV 57 名、ライノウイルス 36 名の順に検出された。他にコロナウイルス、C 型インフルエンザウイルス等が検出された。

表2. 疾患別月別検査患者数（2011年）

疾患名	月 別 検 査 患 者 数												合計
	1月	2月	3月	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	
急性灰白髄炎				2									2
リケッチア感染症	1		2		4	11	12	6	15	12	5	3	71
デング熱			1										1
ライム病			1										1
レプトスピラ症				1		1				1			3
ウイルス性肝炎			1										1
急性脳炎	2		1	1	1	1	1	1	1	2	1		12
クリプトスポリジウム症					1								1
インフルエンザ	27	24	18	2	1					4	4	12	92
RSウイルス感染症	2							1		1	3		7
咽頭結膜熱					1		2						3
感染性胃腸炎	10	13	12	13	8	11	8	9	7	12	8	18	129
手足口病	1				3	7	18	6	3	3	4	2	47
伝染性紅斑					1				1		1		3
突発性発疹	1					1			1	1	2		6
風疹										1			1
ヘルパンギーナ					2	4	7	4	1	2	3	1	24
麻疹			1		3	3		1	2	1	1	2	14
無菌性髄膜炎		1		1					1	1	1		5
マイコプラズマ肺炎											1		1
不明発疹症	3	1	4	4	5	3	2	2	3	3	2	1	33
その他	7	11	18	19	20	17	50	21	24	21	19	25	252
合 計	54	50	59	43	50	59	100	51	59	65	55	64	709

表3. 疾患別分離・検出病原体数（2011年）

同定病原体	疾患名および検出数														合計
	急性 灰白髄炎	リケッチア 感染症	ウイルス性 肝炎	クリプト スポリジウム 症	インフル エンザ	RSウイルス 感染症	感染性 胃腸炎	手足口病	伝染性 紅斑	ヘルパン ギーナ	麻疹	マイコ プラズマ 肺炎	不 明 発症症	その他	
Ad1														2	2
Ad2							2							1	3
Ad3							1							3	4
Ad5													1	1	2
Ad31							1								1
Ad 40/41							8								8
AstroV1型							2								2
CA6								7		5					12
CA10										1					1
CA16								5							5
CB1							4								4
CB4								1						1	2
coronaV														4	4
Cryptosporidium				1											1
EBV			1								1		1		3
HHV 6B							1				1		1		3
hMPV						1	1							42	44
HumanbocaV														2	2
InfAH1pdm09					31										31
InfAH3					37										37
InfB					18										18
InfC						1						1		5	7
NVG II							27								27
ParainfluenzaV1型														25	25
ParainfluenzaV3型														9	9
ParainfluenzaV4型														4	4
parvoVB19									1		1				2
PolioV1型（ワクチン由来株）	1						2								3
PolioV2型（ワクチン由来株）							1								1
Rhino V								2		1			2	23	28
Rj		23													23
RoA NT							1								1
RoA serotype1							6								6
RoA serotype3							3								3
RSV						4								24	28
SVG1							14								14
SVG5							2								2
Ad1 & CA6													1		1
Ad1 & RhinoV													1		1
Ad3 & CytomegaloV								1							1
Ad3 & RhinoV														1	1
Ad5 & RhinoV								1						1	2
CA1 & CytomegaloV & EBV								1							1
CA6 & EBV										1					1
CA6 & RhinoV								4		2					6
CA16 & CytomegaloV								1							1
coronaV & RhinoV														4	4
EBV & RhinoV								1							1
hMPV & coronaV														1	1
hMPV & HumanbocaV														3	3
hMPV & RhinoV														1	1
hMPV & RSV														1	1
NVG II & RoA serotype1							2								2
NVG II & SVG1							1								1
NVG II & SVG5							1								1
ParainfluenzaV1型 & hMPV														5	5
ParainfluenzaV1型 & RhinoV														2	2
ParainfluenzaV1型 & RSV														4	4
ParainfluenzaV1型 ※1														1	1
ParainfluenzaV1型 ※2														1	1
ParainfluenzaV2型 & RhinoV														1	1
ParainfluenzaV3型 & coronaV														3	3
ParainfluenzaV3型 & hMPV														3	3
ParainfluenzaV3型 & RSV														1	1
ParainfluenzaV4型 & RhinoV														1	1
RoA serotype1 & SVG1							1								1
RoA serotype1 & SVG2							1								1
合計	1	23	1	1	86	6	82	24	1	10	3	1	7	180	426

Ad:アデノウイルス, CA:コクサッキーA, CB:コクサッキーB, HHV:ヒトヘルペスウイルス, hMPV:ヒューマンメタニューモウイルス, InfAH1:インフルエンザAH1型, InfAH3:インフルエンザAH3型, InfB:インフルエンザB型, InfC:インフルエンザC型, NV:ノロウイルス, Rj:日本紅斑熱, RoA:A群ロタウイルス, RSV:RSウイルス, SV:サボウイルス, ParainfluenzaV1型※1:ParainfluenzaV1型&coronaV&RhinoV, ParainfluenzaV1型※2:ParainfluenzaV1型&hMPV&coronaV&RhinoV

表4. 疾患別月別分離・検出病原体数（2011年）

疾患名	検出 病原体名	月別病原体検出患者数												合計	総計	依頼 患者数
		1月	2月	3月	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月			
急性灰白髄炎	PolioV1型（ワクチン由来株）				1									1	1	2
リケッチア感染症	Rj					3	8	8	3	1				23	23	71
ウイルス性肝炎	EBV			1										1	1	1
クリプトスポリジウム症	Cryptosporidium					1								1	1	1
インフルエンザ	AH1 pdm	20	6	5										31	86	92
	AH3	2	7	6	2	1					4	4	11	37		
	InfB	4	10	4										18		
RSウイルス感染症	InfC	1												1	6	7
	hMPV	1												1		
	RSV								1		1	2		4		
感染性胃腸炎	Ad2								2					2	82	129
	Ad3				1									1		
	Ad31												1	1		
	Ad40/41						2	2			1	1	2	8		
	AstroV1型	2												2		
	CB1						2	2						4		
	HHV-6B				1									1		
	hMPV				1									1		
	NVG2	5	6	8	1	2					2		3	27		
	PolioV1型（ワクチン由来株）						1			1				2		
	PolioV2型（ワクチン由来株）					1								1		
	RoAserotype1		3	1	2									6		
	RoAserotype3			1	2									3		
	RoANT		1											1		
	SVG1		1	1	1	2	1		1	3		1	3	14		
	SVG5				2									2		
	NVG2&RoAserotype1		1		1									2		
	NVG2&SVG1												1	1		
	NVG2&SVG5				1									1		
	RoAserotype1&SVG1			1										1		
	RoAserotype1&SVG2				1									1		
手足口病	CA6						1	4	2					7	24	47
	CA16					1	1	1				1	1	5		
	CB4							1						1		
	RhinoV							2						2		
	Ad3&CytomegaloV							1						1		
	Ad5&RhinoV							1						1		
	CA6&RhinoV							3	1					4		
	CA10&CytomegaloV&EBV											1		1		
	CA16&CytomegaloV							1						1		
	EBV&RhinoV							1						1		
伝染性紅斑	parvoVB19					1								1	1	3
ヘルパンギーナ	CA6							4				1		5	10	24
	CA10								1					1		
	RhinoV					1								1		
	CA6&EBV								1					1		
	CA6&RhinoV						1	1						2		
麻疹	EBV						1							1	3	14
	HHV6B													1		
	parvoVB19						1							1		
マイコプラズマ肺炎	InfC											1		1	1	1
不明発疹症	Ad5										1			1	7	33
	EBV			1										1		
	HHV6B					1								1		
	RhinoV	1			1									2		
	Ad1&CA6						1							1		
	Ad1&RhinoV					1								1		
その他	Ad1					1						1		2	180	284
	Ad2					1								1		
	Ad3	1				1		1						3		
	Ad5						1							1		
	CB4												1	1		
	coronaV					1		2	1					4		
	hMPV		5	7	14	3	5	4		1		1	2	42		
	HumanbocaV						1		1					2		
	InfC		1			1	2	1						5		
	ParainfluenzaV1型			2				1	1	9	4	5	3	25		
	ParainfluenzaV3型						4	5						9		
	ParainfluenzaV4型									1		1	2	4		
	RhinoV						1	9	6	4		2	1	23		
	RSV			3					1	4	2	5	9	24		
	Ad3&RhinoV												1	1		
	Ad5&RhinoV							1						1		
	coronaV&RhinoV						1	3						4		
	hMPV&coronaV							1						1		
	hMPV&HumanbocaV					3								3		
	hMPV&RhinoV							1						1		
	hMPV&RSV													1		
	ParainfluenzaV1型&coronaV&RhinoV							1						1		
	ParainfluenzaV1型&hMPV				1	3				1				5		
	ParainfluenzaV1型&hMPV&coronaV&RhinoV							1						1		
	ParainfluenzaV1型&RhinoV							2						2		
	ParainfluenzaV1型&RSV								1		3			4		
	ParainfluenzaV2型&RhinoV													1		
	ParainfluenzaV3型&coronaV						1	2						3		
	ParainfluenzaV3型&hMPV							3						3		
	ParainfluenzaV3型&RSV										1			1		
	ParainfluenzaV4型&RhinoV										1			1		
合 計		38	41	41	33	29	36	70	24	25	20	27	42	426	426	709

表5. 保健所別月別患者数(2011年)

保健所管内	月 別 検 査 患 者 数												合 計
	1月	2月	3月	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	
桑 名	4	1	1		1	1		1		2			11
鈴 鹿	27	37	35	33	39	40	76	41	40	41	45	50	504
津	4	1	8	5	2	3	2	1	2	3	1	5	37
松 阪									1	1			2
伊 勢	8	7	9	2	5	13	15	7	15	14	7	9	111
伊 賀			1		1					1	1		4
尾 鷲				1									1
熊 野						1	1	1					3
四日市	11	4	5	2	2	1	6		1	3	1		36
合 計	54	50	59	43	50	59	100	51	59	65	55	64	709

2. 保健所管内別患者数

所管保健所から検体搬入のあった 2011 年の月別患者数を表 5 に示す。保健所管内別では、鈴鹿保健所管内からが 504 人と最も多く、以下、伊勢 111 人、津 37 人、四日市市 36 人、桑名 11 人、伊賀 4 人、熊野 3 人、松阪 2 人、尾鷲 1 人の順であった。

考 察

2011 年の検査依頼患者数は 709 人で、例年と比較して大幅に増加した。これは、いわゆる新型インフルエンザの影響があった 2009 年と同等であり、鈴鹿保健所管内から気管支炎等の検査依頼患者数が増えたのが一因と考えられる。

感染性胃腸炎では、依然として NVGⅡによる胃腸炎の流行を伺わせる結果となった。

エンテロウイルスは無菌性髄膜炎を発症させ、重症化するため¹³⁾、動向には注意が必要である。昨年より手足口病では、これまであまり流行しなかった血清型である CA6 が多く検出されており、今後の動向が注目される。

また、県内における日本紅斑熱は患者報告数・病原体検出数とも国内で上位にあり、これまで伊勢保健所管内での局地的な流行に留まっていたが、2011 年 7 月に初めて熊野保健所管内で患者が発生した。今後、感染地域の拡大等が懸念されるため、引き続き注意が必要である。

その他の疾患では気管支炎等の上気道炎から Parainf と hMPV を中心に多くのウイルスが検出され、その多様性に富んだ病因が明らかとなった。また昨年と比較して、ライノウイルス、RS ウイルスの検出率が増加しており、これらのウ

イルスの変遷についても継続して調査していく必要があると考えられた。

文 献

- 1) 広森真哉, 石井堅造, 山中葉子 他: 1990 年感染症サーベイランス成績, 三重衛研年報, No36, 31-37 (1990)。
- 2) 石井堅造, 広森真哉, 西田直美 他: 昭和 62 年度感染症サーベイランス成績, 三重衛研年報, No33, 31-35 (1987)。
- 3) 石井堅造, 山中葉子, 広森真哉 他: 昭和 63 年度感染症サーベイランス成績, 三重衛研年報, No34, 31-35 (1988)。
- 4) 石井堅造, 山中葉子, 広森真哉 他: 1989 年度感染症サーベイランス成績, 三重衛研年報, No35, 31-36 (1989)。
- 5) 三重県保健環境研究部・三重県結核・感染症サーベイランス事業概要 (1990)。
- 6) 柴 賢司, 石原佑式, 森下高行 他: RD 細胞からのクロン株, RD-18S のコクサッキー A 群とエコーウイルスに対する感受性および各種材料からのウイルス分離, 感染症誌, 59, 664-669 (1985)。
- 7) 櫻井悠郎, 北本よね子, 一色 博 他: 1980 年から 1983 年三重県で流行した無菌性髄膜炎ウイルスについて, 三重衛研年報, No29, 37-45 (1983)。
- 8) 櫻井悠郎, 岡田裕明, 西田直美 他: 昭和 60 年の感染症サーベイランスにおけるウイルス性疾患について, 三重衛研年報, No31, 45-52 (1985)。
- 9) 赤地重宏, 矢野拓弥, 楠原 一 他: 2010

年感染症発生動向調査結果, 三重県保健環境
研究所年報, No13, 76-82 (2010).

- 10) 三重県保健環境研究所：三重県感染症発生
動向調査事業報告書, 2010 年 (平成 22 年)
版.
- 11) 国立感染症研究所, 病原体検出マニュアル
<http://www.nih.go.jp/niid/ja/labo-manual.html>
- 12) Okada M., Yamashita Y., Oseto M., et al., :The

detection of human sapovirusu with universal
and genogroup-specific primers, Arch. Virol.,
151, 2503-2509 (2006) .

- 13) 国立感染症研究所, 厚生省保健医療局結
核・感染症対策室：無菌性髄膜炎関連エン
テロウイルスの動向 1999～2002, 病原体検
出情報, **23**, 193-194 (2002).

資料

2011年度感染症流行予測調査結果 (日本脳炎, インフルエンザ, 風しん, 麻しん)の概要

矢野拓弥, 楠原 一, 赤地重宏, 岩出義人,
松野由香里, 山寺基子, 片山正彦, 山口哲夫

Epidemiological Surveillance for Japanese Encephalitis, Influenza, Rubella and Measles in 2011F.S.

Takuya YANO, Hajime KUSUHARA, Shigehiro AKACHI,
Yoshito IWADA, Yukari MATSUNO, Motoko YAMADERA,
Masahiko KATAYAMA, and Tetsuo YAMAGUCHI

感染症流行予測調査事業では, 人の年齢別抗体調査による免疫保有状況(感受性)と, 動物(豚)に潜伏している病原体(感染源)を把握する調査を実施している. 2011年度に実施した調査結果の概要は次のとおりである.

- (1)日本脳炎感染源調査については三重県中部地域で飼育された豚の日本脳炎ウイルスに対する赤血球凝集抑制(Hemagglutination inhibition:HI)抗体保有の有無を調査した. HI抗体保有豚は1頭のみであり, HI抗体価は10倍であった.
- (2)ヒトの日本脳炎感受性調査における中和抗体保有率は296人中158人(53.4%)であった.
- (3)動物のインフルエンザウイルスの侵入を監視するため, 豚100頭を調査したがインフルエンザウイルスは分離されなかった.
- (4)ヒトインフルエンザウイルスの流行期前の血中HI抗体保有率(HI価40倍以上)は乳児から学童期に対してのA/California/7/2009(H1N1pdm2009)は0-4歳18.3%, 5-9歳42.3%, A/Victoria/210/2009(H3N2)は0-4歳22.5%, 5-9歳42.3%であった. B型インフルエンザウイルスのB/Brisbane/60/2008(ビクトリア系統)は0-4歳4.2%, 5-9歳53.8%であった. B/Wisconsin/1/2010(山形系統)では0-4歳0%, 5-9歳7.7%であった.
- (5)風しん感受性調査における全年齢層でのHI抗体保有率は89.5%(男性:82.2%, 女性:95.2%)であった.
- (6)麻しん感受性調査における全年齢層でのPA(Particle Agglutination Test)抗体保有率は94.6%であった.

キーワード: 感染症流行予測調査, 日本脳炎, インフルエンザ, 風しん, 麻しん

はじめに

本事業は集団免疫の現状把握および病原体の検索等を行い, 各種疫学資料と併せて検討することによって, 予防接種事業の効果的な運用を図り, さらに長期的視野に立ち総合的に疾病の流行を予測することを目的として, 1962年から「伝染病流行予測調査事業」として開始された. その後, 1999年4月「感染症の予防及び感染症の患者に

対する医療に関する法律」の施行に伴い, 現在の「感染症流行予測調査事業」へと名称変更された. ワクチンによる予防可能疾患の免疫保有調査を行う「感受性調査」およびヒトへの感染源となる動物の病原体保有を調査する「感染源調査」を国立感染症研究所との密接な連携のもとに実施している. これまでの本県の調査で, 冬季に日本

脳炎ウイルス（JEV）に対する直近の感染を知る指標である 2-ME 感受性抗体が出現したことなど興味深い現象が確認されてきた。また、当時、伝染病流行予測調査事業（インフルエンザウイルス）で、1993/94 シーズンに分離されたインフルエンザウイルス B 型(B/三重/1/93 株)が、ワクチン株に採用された等の実績がある。ヒトの感染症における免疫状態は、各個人、地域等、さまざまな要因で年毎に異なる。本年度採取できた血清は、同一人であっても前年あるいは翌年に採取した場合の免疫状態とは必ずしも同じではないことが推察される。これらのことはヒト血清だけでなく動物血清についても同様であり、毎年の流行予測調査事業における血清収集は貴重で意義深い。集団免疫の現状把握と予防接種事業の促進等、長期的な流行予測調査が感染症対策には不可欠であるので、本調査のような主要疾患についての免疫状態の継続調査は、感染症の蔓延を防ぐための予防対策として重要である。以下に、2011 年度の感染症流行予測調査（日本脳炎、インフルエンザ、風しん、麻しん）について概要を報告する。

方 法

1. 調査材料

1) 豚の日本脳炎感染源調査材料

日本脳炎感染源調査対象は、毎年、三重県中部に位置する玉城町近郊の豚舎で飼育された 6 ヶ月齢の肉豚である。採血期間と採血豚頭数は 2011 年 7 月 4 日から 9 月 26 日の間に採血した 120 頭である（表 1）。

2) 日本脳炎・ヒトインフルエンザ・風しん・麻しん感受性調査材料

ヒトの日本脳炎・インフルエンザ・風しん・麻しん感受性調査は、2011 年 4 月から 9 月に県内の病院等で、インフォームド Consent のもとに採血された男性 129 人、女性 167 人の合計 296 の血清を用いて行った。

3) 豚からのインフルエンザ感染源調査材料

豚のインフルエンザ感染源調査対象は、三重県の北部に位置する四日市市で飼育された 6 ヶ月齢の豚の鼻腔拭い液である。2012 年 1 月 17 日、2012 年 3 月 5 日に採取した計 100 頭を調査材料とした。

2. 測定方法

1) 日本脳炎 HI 抗体測定

豚の動脈血をと殺時に試験管に採血し、遠心分離後の血清を HI 抗体測定に供した。被検血清はアセトン処理を行い、非特異的な凝集抑制物質を除去した後、100%ガチョウ血球 50 μ L を加え室温で 60 分間静置した。その後 2,000rpm、20 分間遠心分離した上清を測定用試料とした。試料をマイクロプレートの第 1 穴目に 25 μ L 入れ、第 2 穴目から 25 μ L ずつの 2 倍階段希釈を行い、JEV 抗原の JaGAr 01 株（デンカ生研）で調製した 4HA 単位の HI 抗原を 25 μ L ずつ加えた。4°C にて一晩感作後、0.33%ガチョウ血球を 50 μ L 添加し、37°C 孵卵器にて 1 時間静置後判定した。HI 抗体 10 倍以上を陽性とし、40 倍以上の血清について、2-ME 処理を行い、処理後の抗体価が処理前の 1/8 以下に減じたものを 2-ME 感受性抗体陽性とした¹⁾。

2) ヒトの日本脳炎中和抗体測定

56°C、60 分間非動化した被検血清 8 μ L を細胞培養液 72 μ L で 10 倍希釈し、中和抗体測定用血清とした。処理血清を 2 倍階段希釈を行い、日本脳炎ウイルス（Beijing-1 株）100FFU/25 μ L を処理血清 40 μ L に対して等量加え、37°C で 60 分反応させた後、25 μ L を Vero（Osaka 株）細胞に接種し、37°C、5%CO₂ 下で 46 時間培養後に 99.5%エタノールで固定した。作成した固定細胞プレートを用いて PAP 複合体を用いたフォーカス計数法により測定した²⁾。

3) 豚からのインフルエンザ分離

豚の鼻腔拭い液を 3,000rpm で 10 分間遠心分離し、上清をイヌの腎臓由来細胞である Madin-Darby canine kidney（MDCK）細胞に接種した。培養 7 日目頃に培養上清を採取し、七面鳥血球を用いて赤血球凝集能（HA）を測定した²⁾。

4) ヒトインフルエンザ HI 抗体測定

被検血清 100 μ L に RDE（Receptor destroying enzyme）II 「生研」（デンカ生研）300 μ L を加えて 37°C、20 時間処理した。次に 56°C、60 分間非動化後、滅菌生理食塩水を 600 μ L 添加し、100% ニワトリ血球 100 μ L を加え、室温で 60 分間静置した。その後 2,000rpm、20 分間遠心分離し、その上清を HI 測定用処理血清とした。処理血清を 25 μ L ずつの 2 倍階段希釈を行い、不活化抗原 4HA 単位を 25 μ L ずつ加えた。室温にて 60 分間

表 2. 過去の日本脳炎ウイルスに対する豚 HI 抗体および 2-ME 感受性抗体保有率

採血年	HI 抗体 陽性数/検査数 (%)	2-ME 感受性抗体 陽性数/検査数 (%)
2006 年	30/100(30%)	6/26(23.1%)
2007 年	49/130(37.7%)	7/14(50%)
2008 年	103/130(79.2%)	30/53(56.6%)
2009 年	43/110(39.1%)	6/13(46.2%)
2010 年	3/120(2.5%)	1/1(100%)
2011 年	1/120(0.8%)	—

3. 豚からのインフルエンザウイルス分離状況

2012 年 1 月と 3 月に調査を行った豚 100 頭全てで、インフルエンザウイルスは分離されなかった(表 4)。調査した豚からは A/H5N1 型等のインフルエンザウイルスが侵入した形跡は見られていない。今後、発生が懸念されている新型インフルエンザウイルスの監視のためには豚インフルエンザウイルス調査の重要性を理解し継続的な調査が公衆衛生上有用な情報となる。

表 3. 日本脳炎に対するヒトの中和抗体保有率

年齢区分	対象者数	陽性者数
0-4 歳	71	12(16.9%)
5-9 歳	26	25(96.2%)
10-14 歳	22	18(81.8%)
15-19 歳	24	22(91.7%)
20-29 歳	66	54(81.8%)
30-39 歳	48	22(45.8%)
40-49 歳	23	4(17.4%)
50-59 歳	12	0(0%)
60 歳～	4	1(25%)
合計	296	158(53.4%)

4. ヒトインフルエンザ年齢別 HI 抗体分布状況

2011/2012 シーズンのインフルエンザ流行期前の年齢別 HI 抗体保有率(40 倍以上)は A/California/7/2009(H1N1pdm2009)0-4 歳 18.3%, 5-9 歳 42.3%, A/Victoria/210/2009(H3N2)は 0-4 歳 22.5%, 5-9 歳 42.3% であった。B/Brisbane/60/2008(ビクトリア系統)は 0-4 歳 4.2%, 5-9 歳 53.8%。B/Wisconsin/1/2010(山形系統)は 0-4 歳 0%, 5-9 歳 7.7% であった(表 5)。B 型(山形系統)における抗体保有率は、全ての年齢層で極めて低値であり、今後、B 型(山形系統)の動向が注目される。また、本県での

表 4. 豚からのインフルエンザウイルス分離状況

採取日	採取場所	頭数	月齢	分離結果
2012年1月17日	四日市	50	6ヵ月	陰 性
2012年3月5日	四日市	50	6ヵ月	陰 性

2011/12 シーズンは A/H3N2 型が主流であり、2010/2011 シーズンまで流行していた A/H1N1pdm2009 は確認されていないが、今後、抗原変異等による再流行が懸念される。特に A/H1N1pdm2009 の流行を経験していない乳幼児は、流行動態に最も影響を及ぼす年齢層であることからワクチン接種による予防対策は重要である。

5. 風しん年齢別 HI 抗体分布状況

対象者全体(男・女)における風しん年齢別 HI 抗体保有率は 0-1 歳 68.4%, 2-3 歳 96.2%, 4-6 歳 95.5%, 7-9 歳 100%, 10-14 歳 100%, 15-19 歳 100%, 20-24 歳 93.5%, 25-29 歳 94.3%, 30-39 歳 79.2%, 40 歳以上は 92.3% であった。採血者全体の HI 抗体保有率は 89.5%, 男性は 82.2%, 女性では 95.2% であった。特に男性の 20-39 歳は低値となる傾向がみられる。例年、女性は男性より抗体保有者は多い傾向はあるが、男女ともに、一部の抗体非保有者が存在した(表 6)。特に妊娠初期の女性が罹患すると胎児に白内障や難聴等の障害を起こす先天性風しん症候群(CRS)が危惧されている。CRS を阻止するには男女問わず、風しん流行を抑制することと妊娠出産年齢の女性が十分な抗体を保有することが有効である⁵⁾。国内では 2010 年から 2011 年に各地で風しんの発生があり、成人男性の職場内集団発生事例⁶⁾が報告されている。さらに 2012 年春季には関西地方で成人男性を中心に発生がみられ、その後、関東地方へと拡大した。現在のところ、全国的には遺伝子型 2B が主流である。

本県においては、7 月から 8 月に 5 件検出され、風しん流行の兆しがあり、流行状況および予防のために事前のワクチン接種勧奨等の情報提供(注意喚起)を行った。

6. 麻しん年齢別 PA 抗体分布状況

表 5. ヒトインフルエンザ年齢別 HI 抗体保有状況 (40 倍以上)

		陽性者数(%)			
年齢区分	対象者数	A/California /7/2009 (H1N1pdm)	A/Victoria /210/2009 (H3N2 亜型)	B/Brisbane /60/2008 (ビクトリア系統)	B/Wisconsin/1/2010 (山形系統)
0-4 歳	71	13(18.3%)	16(22.5%)	3(4.2%)	0(0%)
5-9 歳	26	11(42.3%)	11(42.3%)	14(53.8%)	2(7.7%)
10-14 歳	22	13(59.1%)	16(72.7%)	2(9.1%)	0(0%)
15-19 歳	24	16(66.7%)	22(91.7%)	10(41.7%)	5(20.8%)
20-29 歳	66	35(53.0%)	52(78.8%)	16(24.2%)	9(13.6%)
30-39 歳	48	16(33.3%)	31(64.6%)	20(41.7%)	0(0%)
40-49 歳	23	12(52.2%)	12(52.2%)	8(34.8%)	3(13.0%)
50-59 歳	12	4(33.3%)	6(50.0%)	2(16.7%)	1(8.3%)
60 歳～	4	0(0%)	3(75.0%)	1(25.0%)	0(0%)
合計	296	120(40.5%)	169(57.1%)	76(25.7%)	20(6.8%)

表 6. 風しん年齢別 HI 抗体保有状況

年齢区分	対象者数 (男・女)	陽性者数(%)	年齢区分	対象者数 (男)	陽性者数(%)	対象者数(女)	陽性者数(%)
0-1 歳	38	26(68.4%)	0-1 歳	20	14(70.0%)	18	12(66.7%)
2-3 歳	26	25(96.2%)	2-3 歳	13	12(92.3%)	13	13(100%)
4-6 歳	22	21(95.5%)	4-6 歳	15	14(93.3%)	7	7(100%)
7-9 歳	11	11(100%)	7-9 歳	4	4(100%)	7	7(100%)
10-14 歳	22	22(100%)	10-14 歳	11	11(100%)	11	11(100%)
15-19 歳	24	24(100%)	15-19 歳	5	5(100%)	19	19(100%)
20-24 歳	31	29(93.5%)	20-24 歳	3	2(66.7%)	28	27(96.4%)
25-29 歳	35	33(94.3%)	25-29 歳	12	10(83.3%)	23	23(100%)
30-39 歳	48	38(79.2%)	30-39 歳	23	14(60.9%)	25	24(96.0%)
40 歳～	39	36(92.3%)	40 歳～	23	20(87.0%)	16	16(100%)
合計	296	265(89.5%)	合計	129	106(82.2%)	167	159(95.2%)

表 7. 麻しん年齢別 PA 抗体保有状況

年齢区分	対象者数	陽性者数(%)
0-1 歳	38	27(71.1%)
2-3 歳	26	25(96.2%)
4-6 歳	22	21(95.5%)
7-9 歳	11	11(100%)
10-14 歳	22	22(100%)
15-19 歳	24	24(100%)
20-24 歳	31	31(100%)
25-29 歳	35	33(94.3%)
30-39 歳	48	48(100%)
40 歳～	39	38(97.4%)
合計	296	280(94.6%)

年齢別の麻しん PA 抗体保有率は 0-1 歳 71.1%, 2-3 歳 96.2%, 4-6 歳 95.5%, 7-9 歳 100%, 10-14 歳 100%, 15-19 歳以上はそれぞれの年齢区分で 94.3-100%であった(表 7)。国内では 2006 年から 2008 年に遺伝子型 D5 が主に流行していたが, 2010 年 6 月以降は検出報告がない⁷⁾。しかし, 欧州や東南アジアなどで流行している D4, D8, D9, G3 が国内で検出され, 海外から輸入されたと思われる事例が増加した。輸入例による国内流行を阻止するためにも, ワクチン接種による麻しん排除対策を継続的に実施することが

重要である。

謝 辞

流行予測調査事業の実施にあたって, 本調査の趣旨をご理解頂き血清使用について承諾頂いた 296 人(男性 129 人, 女性 167 人)の方々に厚く御礼申し上げます。

文 献

- 1)厚生労働省健康局結核感染症課, 国立感染症研究所:感染症流行予測調査事業委員会:日本脳炎, 感染症流行予測調査検査術式 27-39(2002).
- 2)厚生労働省健康局結核感染症課, 国立感染症研究所:感染症流行予測調査事業委員会:インフルエンザ, 感染症流行予測調査検査術式 9-25(2002).
- 3)厚生労働省健康局結核感染症課, 国立感染症研究所:感染症流行予測調査事業委員会:風疹, 感染症流行予測調査検査術式 40-45(2002).
- 4)厚生労働省健康局結核感染症課, 国立感染症研究所:感染症流行予測調査事業委員会:麻疹, 感染症流行予測調査検査術式 47-52(2002).

- 5)厚生労働省健康局結核感染症課，国立感染症研究所感染症情報センター，感染症流行予測調査報告書，第5 風疹 108-145(2008 年度).
- 6)国立感染症研究所感染症情報センター：風疹・先天性風疹症候群，病原微生物検出情報，Vol,32 No,9(2011).

- 7)国立感染症研究所感染症情報センター：麻疹 2011 年，病原微生物検出情報，Vol,33 No,2(2012).

資料

2011年度の先天性代謝異常等検査の概要

前田千恵, 大久保和洋*, 楠原 一, 永井佑樹, 片山正彦

Report of Neonatal Mass-Screening in 2011

Chie MAEDA, Kazuhiro OKUBO*, Hajime KUSUHARA, Yuhki NAGAI and Masahiko KATAYAMA

三重県における先天性代謝異常等検査事業は三重県先天性代謝異常等検査実施要綱に基づき、アミノ酸代謝異常症3疾患、ガラクトース血症、先天性副腎過形成症および甲状腺機能低下症の6疾患を対象に実施している。2011年度は県内の新生児のうち保護者が希望した16,652件について検査を実施した。そのうち疑陽性と判定し再採血を依頼した検体は計465件であり、精密検査を依頼した検体はガラクトース血症1件、先天性副腎過形成症33件、先天性甲状腺機能低下症18件の計52件であった。また確定患者数は、先天性甲状腺機能低下症の6人であった。

キーワード：先天性代謝異常等検査、先天性副腎過形成症、先天性甲状腺機能低下症

はじめに

先天性代謝異常症とは遺伝子変異の結果、特定の蛋白質が合成されないために発症する疾患、ある種の酵素の異常や到達経路の異常により代謝されるべき物質の貯留によって発症する疾患であると定義されている¹⁾。現在では、酵素化学的研究および分子遺伝学的研究の進展に伴い遺伝子異常の本態が明らかになりつつあるが、その病態に関しては不明な部分が多く、病因解明に比し治療法の遅れが指摘されている²⁾。

内分泌疾患である先天性甲状腺機能低下症 (Congenital hypothyroidism) と先天性副腎過形成症 (Congenital adrenal hyperplasia, CAH) は特定物質の合成障害に起因する疾患である。一方、フェニルケトン尿症 (Phenylketonuria, PKU)、メープルシロップ尿症 (Maple syrup urine disease, MSUD)、ホモシスチン尿症 (Homocystinuria, HCU)、ヒスチジン血症 (Histidinemia) およびガラクトース血症 (Galactosemia) は中間代謝産物の蓄積に起因する疾患である。先天性代謝異常等症は治療困難なものが多いが、上記7疾患は可及的早期に診断、治療を開始すれば、機能障害などに陥ることを予防できる。

新生児を対象とした先天性代謝異常症マス・スクリーニング事業は、1977年10月から全国

的に開始され、三重県においても1977年11月から県内で出生した新生児を対象に5疾患（フェニルケトン尿症、メープルシロップ尿症、ホモシスチン尿症、ヒスチジン血症およびガラクトース血症）について検査が開始された。次いで1979年から先天性甲状腺機能低下症、1989年から先天性副腎過形成症がその対象疾患に追加された。しかし、ヒスチジン血症は、1994年に中止され、現在は上記6疾患についてマス・スクリーニングを行い早期発見に努めている。

検査方法と材料

1. 検査方法

検査対象の疾患であるPKU, MSUD, HCUの3疾患については、アミノ酸の代謝過程における酵素または補酵素の欠損によりPKUではフェニルアラニン、MSUDではロイシン、イソロイシンおよびバリン、HCUではメチオニンの血中濃度がそれぞれ高値となることから、検査ではそれぞれのアミノ酸 (MSUDではロイシン) を指標とするBIA法 (Bacterial inhibition assay)³⁾を用いて検査を実施した (表1)。

ガラクトース血症については、表2に示すようにPaigen (吉田) 法⁴⁾により検査を実施し、BIA法と同様に寒天プレート上で判定した。

表1 BIA法 (Bacterial inhibition assay)

測定項目	対象疾患	試薬等		カットオフ値
		枯草菌 (ATCC)	代謝拮抗阻害剤	アミノ酸濃度 (mg/dL)
Phenylalanine	フェニルケトン尿症	6633	β -2-thienyl-alanine	4
Methionine	ホモシスチン尿症	6633	L-methionine-DL-sulfoximine	2
Leucine	メーブルシロップ尿症	6015	4-aza-DL-leucine	4

表2 Paigen法

測定項目	対象疾患	試薬等	カットオフ値 濃度 (mg/dL)
Galactose	ガラクトース血症	吉田法	8

先天性甲状腺機能低下症, 先天性副腎過形成症の2疾患については, ELISA法によりそれぞれ甲状腺刺激ホルモン (Thyroid stimulating hormone, TSH), 17α -水酸化プロゲステロン (17 -OHP) の濃度を測定した。(この2疾患については検査を三重大学医学部小児科に委託)。

2. 材料

検体は生後5~7日目(哺乳開始後4日以降)の新生児血液を規定の濾紙に径1cm位まで充分しみ込ませて採血し^{5,6)}, 涼風乾燥後, 当研究所に郵送されたものを検査材料とした。検査に

は乾燥した濾紙血液を直径3mmに打ち抜いたディスクを使用した。

結果

1. 検査実施状況

2002年度から2011年度までの10年間の検査実施状況を表3に示した。2011年度の検査総数は16,652件であり, 少子化を反映して, 2008年度以降減少傾向にある。

10年間の総検査受付数は173,360件, 再検査依頼数は4,673件であった。検査の結果, 精密検査を依頼した件数は530件であり, 先天性副腎過形成症が307件, 先天性甲状腺機能低下症が214件と多く, ガラクトース血症が8件, フェニルケトン尿症が1件であった。

また確定患者数は74名で, 先天性甲状腺機能低下症が64名と最も多く, 次に先天性副腎過形成症が8名, フェニルケトン尿症とガラクトース血症が各1名であった⁷⁻¹⁵⁾。

表3 10年間の先天性代謝異常症等検査実施状況

年度	2002	2003	2004	2005	2006	2007	2008	2009	2010	2011	計
検査受付数	18,069	17,494	17,239	16,947	17,625	17,649	17,572	17,193	16,920	16,652	173,360
再検査依頼数	528	429	386	398	425	490	491	478	544	504	4,673
精密検査依頼数	フェニルケトン尿症	0	0	0	0	1	0	0	0	0	1
	メーブルシロップ尿症	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	ホモシスチン尿症	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	ガラクトース血症	0	2	0	0	1	3	0	0	1	8
	先天性副腎過形成症	22	19	27	32	51	35	34	22	33	307
確定患者数	先天性甲状腺機能低下症	41	40	24	12	11	22	14	23	9	214
	フェニルケトン尿症	0	0	0			1	0	0	0	1
	メーブルシロップ尿症	0	0	0			0	0	0	0	0
	ホモシスチン尿症	0	0	0			0	0	0	0	0
	ガラクトース血症	0	1	0			0	0	0	0	1
検体不備	先天性副腎過形成症	2	3	2			1	0	0	0	8
	先天性甲状腺機能低下症	9	10	8			6	7	10	8	64
検体不備	57	138	92	54	83	69	64	58	40	45	700

2. 検査結果

表4に初回で受付した検体の検査結果を示した。初回受付した検体は、16,148件でそのうち疑陽性で再採血依頼となったのが465件、精密検査依頼となったのが37件、検体不備で再採血依頼となったのが45件であった。疑陽性で再採血依頼となった465件のうち先天性甲状腺機能低下症が292件と最も多く、次いで先天性副腎過形成症167件、ガラクトース血症6件であった。また、精密検査依頼となった37件のうち最も多かったのは先天性副腎過形成症で29件、先天性甲状腺機能低下症が8件であった。

表4 初回受付分の先天性代謝異常等検査結果

	受付 件数	結果		
		正常	疑陽性 (再採血 依頼)	精密 検査 依頼
フェニルケトン尿症			0	0
メーブルシロップ尿症			0	0
ホモシスチン尿症			0	0
ガラクトース血症			6	0
先天性副腎過形成症			167	29
先天性甲状腺機能低下症			292	8
計	16,148	15,640	465	37

表5に疑陽性により再採血を依頼した事例について、疾患別の割合を示した。検査受付数に対する再採血依頼数の割合(再採血率)は2.88%で、昨年度と同程度であった。疑陽性による再採血の依頼数は、先天性甲状腺機能低下症が292件(再採血依頼率1.80%)で最も多く、次いで先天性副腎過形成症が167件(同1.03%)、ガラクトース血症が6件(同0.04%)であった。

再採血依頼数に対して再検査依頼数は、先天性副腎過形成症と先天性甲状腺機能低下症でそれぞれ3件少なかった。これは、精密検査の実施を行った事例が3件、保護者の都合による事例が1件、死亡による事例が2件であった。

表5 疾患別再採血依頼数

疾患名	再採血 依頼数	再採血 依頼率 (%)	精密 検査 依頼数	再検査 依頼数
フェニルケトン尿症	0	0	0	0
ホモシスチン尿症	0	0	0	0
メーブルシロップ尿症	0	0	0	0
ガラクトース血症	6	0.04	1	6
先天性副腎過形成症	167	1.03	33	164
先天性甲状腺機能低下症	292	1.81	18	289
計	465		52	459

表6に検体不備の内訳を示した。

検体不備により再採血を依頼した数は45件であった。不備となった理由の内訳は、抗生剤等を使用していて判定ができなかった検体が35件と最も多く、全体の77.8%を占めた。他に採血が早い(採血が哺乳開始4日未満)および、ほとんど哺乳不能が各4件、染みこみ不足が2件であった。

検体不備と判定した検体のうち、出生体重2,000g以下の未熟児は10件で、すべてが抗生剤等による判定不能であった。抗生剤等の使用による判定不能の検体で未熟児の占める割合は28.5%であった。

表6 検体不備

理由	件数	(%)	うち 未熟児	(%)
抗生剤等による判定不能	35	77.8	10	28.5
採血が早い	4	8.9	0	0.0
ほとんど哺乳不能	4	8.9	0	0.0
染みこみ不足	2	4.4	0	0.0
郵送の遅延	0	0.0	0	0.0
計	45	100.0	10	

表7に再検査依頼で受付した検体の検査結果を示した。

アミノ酸代謝異常の3疾患による再検査は0件であった。ガラクトース血症による再検査で受付した検体は6件であり、1件が精密検査依頼となった。先天性副腎過形成症による再検査で受付した検体は157件で、4件が精密検査依頼となった。先天性甲状腺機能低下症の再検査で受付した検体は293件で、10件が精密検査依頼となった。また、検体不備で受付した検体は45件のうち、1件が先天性副腎過形成症および先天性甲状腺機能低下症の精密依頼、1件が先天性副腎過形成症の精密検査依頼となった。

表7 先天性代謝異常等症の再検査依頼結果

	件数	結果			
		正常	疑陽性 (再々採 血依頼)	精密 検査 依頼	検体不備 (再々採 血依頼)
フェニルケトン尿症	0				
メーブルシロップ尿症	0				
ホモシスチン尿症	0				
ガラクトース血症	6	5	0	1	0
先天性副腎過形成症	164	160	0	4	0
先天性甲状腺機能低下症	289	279	0	10	0
検体不備	45	41	0	3	1

まとめ

2011 年度における先天性代謝異常等検査は、検査受付数 16,652 件のうち疑陽性による再採血依頼が 465 件、検体不備による再採血依頼が 45 件、精密検査依頼は先天性副腎過形成症が 33 件、先天性甲状腺機能低下症が 18 件、ガラクトース血症が 1 件であった。また、確定患者数は先天性甲状腺機能低下症が 6 人であった。

文 献

- 1) 藪内百治：先天性代謝異常，日本医事新報，No.3279，23-28 (1987).
- 2) 北川昭雄：アミノ酸代謝異常症，酵素障害の多様性と脳障害，脳と発達，4，387-500 (1972).
- 3) Guthrie, G. : Blood screening for phenylketonuria, J.A.M.A., 178，863 (1961).
- 4) 成瀬 浩，松田一郎：新生児マススクリーニングハンドブック，233-239，東京南江堂(1989).
- 5) Guthrie,G. and Susi,A. : Blood screening for phenylalanine method fordetecting phenylketonuria in largepopulation of new-born infants, Pediatrics, 32，338-343 (1963).
- 6) 梅橋豊蔵：濾紙血の採取法・採血時期・保存法，日本マス・スクリーニング学会誌，Vol.8，Supplement2，24-27 (1998).
- 7) 山中葉子，橋爪 清：2002 年度の先天性代謝

異常等検査の概要，三重県保健環境研究部年報，No.5，79-82 (2003).

8) 山中葉子，橋爪 清：2003 年度の先天性代謝異常等検査の概要，三重県保健環境研究部年報，No.6，92-94 (2004).

9) 山中葉子，橋爪 清：2004 年度の先天性代謝異常等検査の概要，三重県保健環境研究部年報，No.7，95-98 (2005).

10) 永井佑樹，山中葉子，橋爪 清：2005 年度の先天性代謝異常等検査の概要，三重県保健環境研究部年報，No.8，116-119 (2006).

11) 永井佑樹，山内昭則，矢野拓弥，永田克行：2006 年度の先天性代謝異常等検査の概要，三重県保健環境研究部年報，No.9，83-86 (2007).

12) 永井佑樹，前田千恵，永田克行：2007 年度の先天性代謝異常等検査の概要，三重県保健環境研究所年報，No.10，95-98 (2008).

13) 永井佑樹，前田千恵，田沼正路：2008 年度の先天性代謝異常等検査の概要，三重県保健環境研究所年報，No.11，143-147 (2009).

14) 楠原 一，永井佑樹，田沼正路：2009 年度の先天性代謝異常等検査の概要，三重県保健環境研究所年報，No.12，122-125 (2010).

15) 大久保和洋，楠原 一，片山正彦：2010 年度の先天性代謝異常等検査の概要，三重県保健環境研究所年報，No.13，88-91 (2011).

三重県保健環境研究所年報
I S S N（国際標準逐次刊行物番号）等履歴

発行年	雑誌名	ISSN	雑誌名	ISSN CODEN
～1998 年	三重県衛生研究所 年報 (～通巻 43 号)	0912-5752	三重県環境科学 センター研究報告 (～通巻 19 号)	0388-2640
1999 年	三重県保健環境研究 所（衛生部門）年報 第 1 号（通巻 44 号）	1345-4595	三重県保健環境研究 所（環境部門）年報 第 1 号（通巻 20 号）	1345-4587
2000 年 (1 冊に統合)	三重県保健環境研究所年報 第 2 号（通巻 45 号）			1346-1001 MHKKCR
2001 年	三重県科学技術振興センター保健環境研究部年報 第 3 号（通巻 46 号）			1346-9517 MHKKCR
2002 年～	三重県科学技術振興センター保健環境研究部年報 第 4 号（通巻 47 号）～			1346-9517 MKGSBH
2008 年～	三重県保健環境研究所年報 第 10 号（通巻 53 号）～			1882-9139 MHKKDS

三重県保健環境研究所年報
第 1 4 号（通巻第 5 7 号）

2 0 1 2 年

発行年月 平成 2 4 年 9 月（ 2012.9 ）

編集発行 三重県保健環境研究所

〒512-1211 三重県四日市市桜町 3684-11

TEL 059-329-3800

FAX 059-329-3004
