

〔報 文〕

石川県における光化学オキシダントの特性 (第 1 報)

—バックグラウンド地点と大気監視測定局の O_x 濃度の比較—石川県保健環境センター 環境科学部 野口 邦雅・宮田 朋子・吉本 高志
堀 秀朗・柿澤 隆一

〔和文要旨〕

人為的影響の少ない地点 (バックグラウンド地点: 輪島市西二又) で測定した O_x 及び NO_x の値を, 大気監視測定局で得られたデータと比較したところ, 輪島市西二又は, NO_x は十分に低濃度であり, 日内変動も小さいことから, バックグラウンドとして適正な地点であると考えられた。

輪島市西二又と大気監視測定局の O_x 濃度の 1 時間値は, 低濃度期において, 概ね 30~40ppb を上限として不規則に変動した。また, 大気監視測定局は, NO_x 濃度が高い時期に O_x 濃度が低くなる傾向があり, 輪島市西二又にも同様な傾向が認められた。高濃度期において, 概ね規則的な日内変動が見られたが, その変動幅は地域により異なっていた。

輪島市西二又と大気監視測定局の O_x 濃度を比較した結果, 低濃度期において, 輪島市西二又より O_x 濃度が低い大気監視測定局があり, NO_x の影響と考えられた。高濃度期において, 地域間で O_x 濃度の違いが認められ, 地域的な大気汚染の違い, 気象状況等が影響しているものと考えられた。

後方流跡線解析の結果, O_x 高濃度日における気塊の起源に一定の傾向は認められなかった。

キーワード: 光化学オキシダント, 窒素酸化物, バックグラウンド, 大気常時監視, 後方流跡線解析

1 はじめに

光化学オキシダント (以下「 O_x 」という。) による大気汚染は依然として全国的な問題となっている。 O_x には大気汚染に係る環境基準 (1 時間値が 0.06ppm 以下であること。) が定められており, 平成 23 年度の全国における環境基準達成率は, 一般環境大気測定局で 0.5% であり, 極めて低い水準である。しかも, その濃度は増加傾向にある¹⁾。本県では, 昭和 46 年度から O_x の常時監視を行っているが, 環境基準を達成したのは, 昭和 57 年度の西南部局及び津幡局のみであった。

O_x については, 光化学反応による生成や越境輸送など複雑な過程が含まれるため²⁾, O_x の対策を検討するためには, その汚染特性を解明する必要がある。

当センターは, 平成 23 年度から 3 年計画で, 本県において O_x が高濃度となる要因及びその特性を解明するため, 調査を実施してきた。その内容は, 県内の人為的影響の少ない地点 (バックグラウンド地点) での O_x , 窒素酸化物 (以下「 NO_x 」という。) 及び植物起源揮発性有機化合物濃度を測定し, これらの動向を比較・解析することである。

本報では, 平成 23~24 年度のバックグラウンド地点

Comparison of Photochemical Oxidant Concentration at Wajima-nishifutamata as a background forest area, and at the observatories of environmental atmosphere as urban/residential areas in Ishikawa Prefecture. by NOGUCHI Kunimasa, MIYATA Tomoko, YOSHIMOTO Takashi, HORI Shuhroh and KAKIZAWA Ryuichi (Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Photochemical Oxidant, Nitrogen Oxide, Background, Observatories of Environmental Atmosphere, Backtrajectory Analysis

における $0x$ 及び NOx の調査結果を大気監視測定局における測定値と比較した。また、バックグラウンド地点における $0x$ 高濃度日について、後方流跡線を用い、越境輸送の影響について解析した。

2 調査・解析方法

2.1 調査地点

調査地点であるバックグラウンド地点及び本県の大気監視測定局 ($0x$ を測定している測定局) の位置を図 1 に示す。

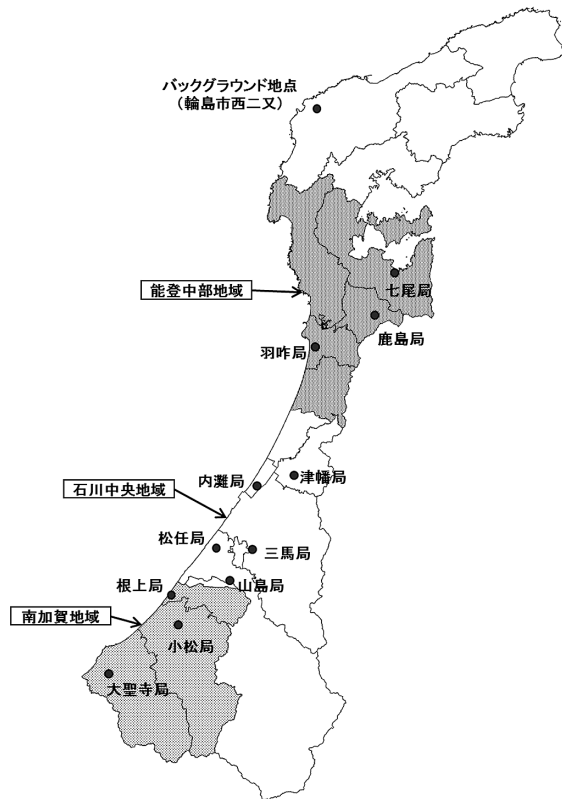


図 1 バックグラウンド地点及び大気監視測定局

(1) バックグラウンド地点

本調査では、バックグラウンド地点を輪島市西二又町内に設定した。輪島市西二又の地点情報を表 1 に、周辺状況を図 2 に示す。近傍に金沢大学輪島大気観測ステーション (旧国設酸性雨測定所) があり、事業所や民家はなく、森林の中に位置する。西側約 50m 離れたところを主要地方道輪島浦上線 (県道 38 号) が通っているが、交通量は 1 日 176 台³⁾ と非常に少ない。

表 1 輪島市西二又の地点情報

| | |
|-----|--------------|
| 所在地 | 輪島市西二又町ヲ32 |
| 緯度 | 37° 21' 05" |
| 経度 | 136° 47' 32" |
| 標高 | 50m |



図 2 輪島市西二又の周辺状況

(2) 大気監視測定局

大気監視測定局は北から七尾局、鹿島局、羽咋局、津幡局、内灘局、三馬局、松任局、山島局、根上局、小松局及び大聖寺局の合計 11 局である。

2.2 調査期間

調査期間は次のとおりである。高濃度期は概ね 1 カ月毎に高濃度期 (1)～(3) に区分して解析した。

- ・低濃度期 (1) : 平成 24 年 1 月 11 日～2 月 14 日
- ・高濃度期 (1) : 平成 24 年 4 月 13 日～5 月 13 日
- ・高濃度期 (2) : 平成 24 年 5 月 14 日～6 月 14 日
- ・高濃度期 (3) : 平成 24 年 6 月 15 日～7 月 16 日
- ・低濃度期 (2) : 平成 24 年 11 月 15 日～12 月 19 日

2.3 調査項目及び調査方法

調査項目は、 $0x$ 及び NOx であり、 $0x$ 自動測定機及び NOx 自動測定機で得られた 1 時間値を解析の対象とした。

2.4 解析方法

(1) バックグラウンド地点としての適性評価

人為活動の汚染指標の一つである NOx の測定結果から評価した。

(2) $0x$ 及び NOx 濃度の 1 時間値

輪島市西二又における $0x$ 及び NOx 濃度の 1 時間値について、大気監視測定局と比較し、その傾向を解析した。

(3) $0x$ 濃度平均値の比較

輪島市西二又と大気監視測定局の高濃度と低濃度期における $0x$ 濃度平均値を比較した。

(4) 後方流跡線解析

輪島市西二又において、 $0x$ 濃度の 1 時間値が 80ppb 以上を記録した日を対象に、後方流跡線解析を行い、越境輸送の影響について解析した。

なお、後方流跡線は、米国海洋大気局 (NOAA) が開発した流跡線解析プログラム HYSPLIT⁴⁾ を用いて計算した。計算は起点高度 500m において 3 日間さかのぼる条件で行った⁵⁾。

3 結果及び考察

3・1 バックグラウンド地点としての適性評価

輪島市西二又及び大気監視測定局（能登中部地域の七尾局、石川中央地域の三馬局及び南加賀地域の小松局）のOx濃度及びNOx濃度の1時間値について、低濃度期(1)を図3に、高濃度期を図4に、低濃度期(2)を図5に示す。

輪島市西二又のNOx濃度は、いずれの時期も常に低いレベル（0～数ppb）で推移しており、日内変動もほとんどなく、自動車やボイラー等の人為的影響が非常に小さいことを示している。高濃度期において、一時的に

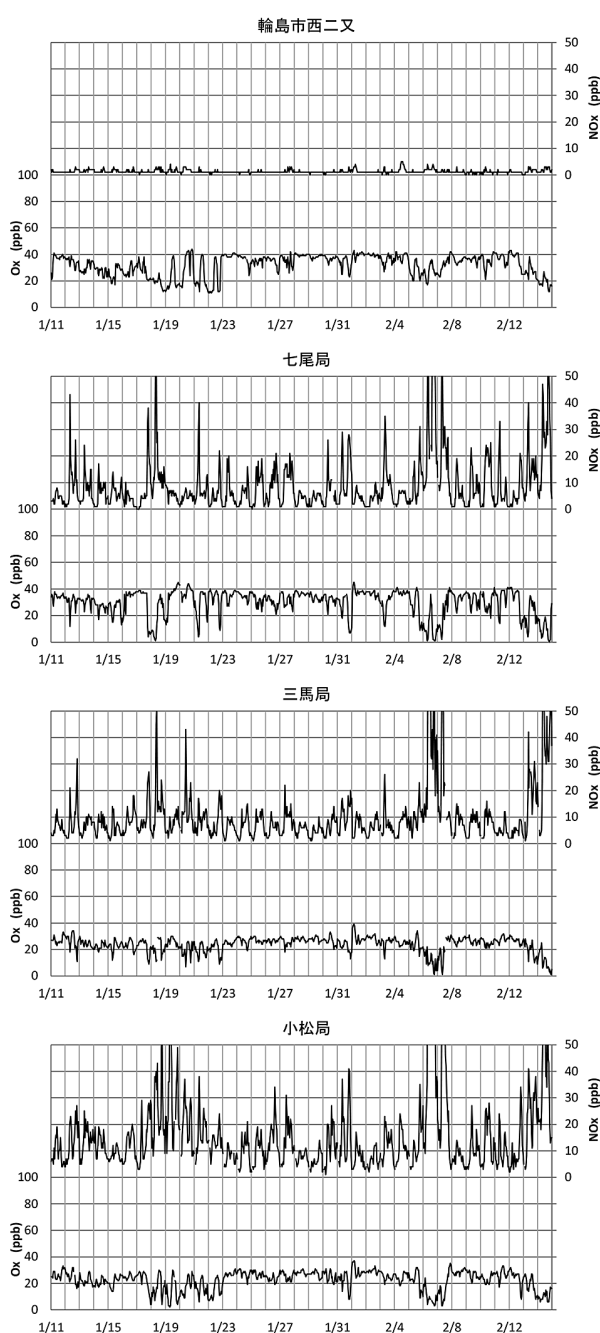


図3 Ox及びNOxの1時間値の推移(低濃度期(1))

10ppmを超える場合が見られたが、これは自動車による影響と考えられ、1時間と短い間であった。以上のことから、輪島市西二又は、バックグラウンド地点として適当であると考えられた。

七尾局、三馬局及び小松局のNOx濃度は、日中に高く、夜間に低下する日内変動を示しており、自動車やボイラー等の人為的影響を受けていることが示唆された。なお、その他の測定局についても同様の日内変動傾向が観測された。

3・2 Ox及びNOx濃度の1時間値

(1) 低濃度期(1)

図3に示すとおり、輪島市西二又のOx濃度は、概ね40ppbを上限として不規則に変動する傾向が見られた。一方、七尾局、三馬局及び小松局を含め大気監視測定局のOx濃度は、概ね30～40ppbを上限として不規則に変動する傾向に加え、NOx濃度が高い時期にOx濃度が低下する傾向が見られた。これは、既報⁵⁾のとおり、冬季のOx濃度の変化は地域的な大気汚染による光化学反応による生成ではなく、大陸由来のOx（ベースラインが30～40ppb）と地域由来のNOxの反応⁶⁾によるものであるとする既知の知見により説明できる。いずれの大気監視測定局においても、減少幅は異なるものの、概ね1月18日～23日、2月5日～8日、2月12日以降にOx濃度の大きな減少があり、輪島市西二又にも同様な傾向が認められた。輪島市西二又のNOx濃度は非常に低いレベル（数ppb以下）であり、その影響はほとんどないものと考えられることから、輪島市西二又におけるOxの変動原因としては、越境輸送や気象等の影響が推測されるが、今後、その原因を詳細に調査・解析する必要がある。

(2) 高濃度期

図4に示すとおり、輪島市西二又のOx濃度は、昼間に上昇し、夜間に下降する日内変動が概ね規則的に見られた。昼間にOx濃度の上昇が無い日については、降水が影響したものと考えられた。大気監視測定局のOx濃度には、輪島市西二又と同様、概ね規則的な日内変動が見られたが、七尾局のみは輪島市西二又及び他の測定局ほど規則的な日内変動が見られなかった。七尾局は日内変動に影響を与えるなんらかの地域特性があると考えられるが、その要因は不明である。輪島市西二又と比較して、大気監視測定局のOx濃度の日内変動幅は、七尾局及び三馬局は小さく、小松局は概ね同等となる傾向が見られ、地域により異なっていた。

なお、低濃度期(1)で見られたNOxによる影響は、高濃度期では明確に把握できなかった。

(3) 低濃度期(2)

図5に示すとおり、輪島市西二又及び大気監視測定局は、低濃度期(1)とほぼ同様の傾向が見られ、概ね30～

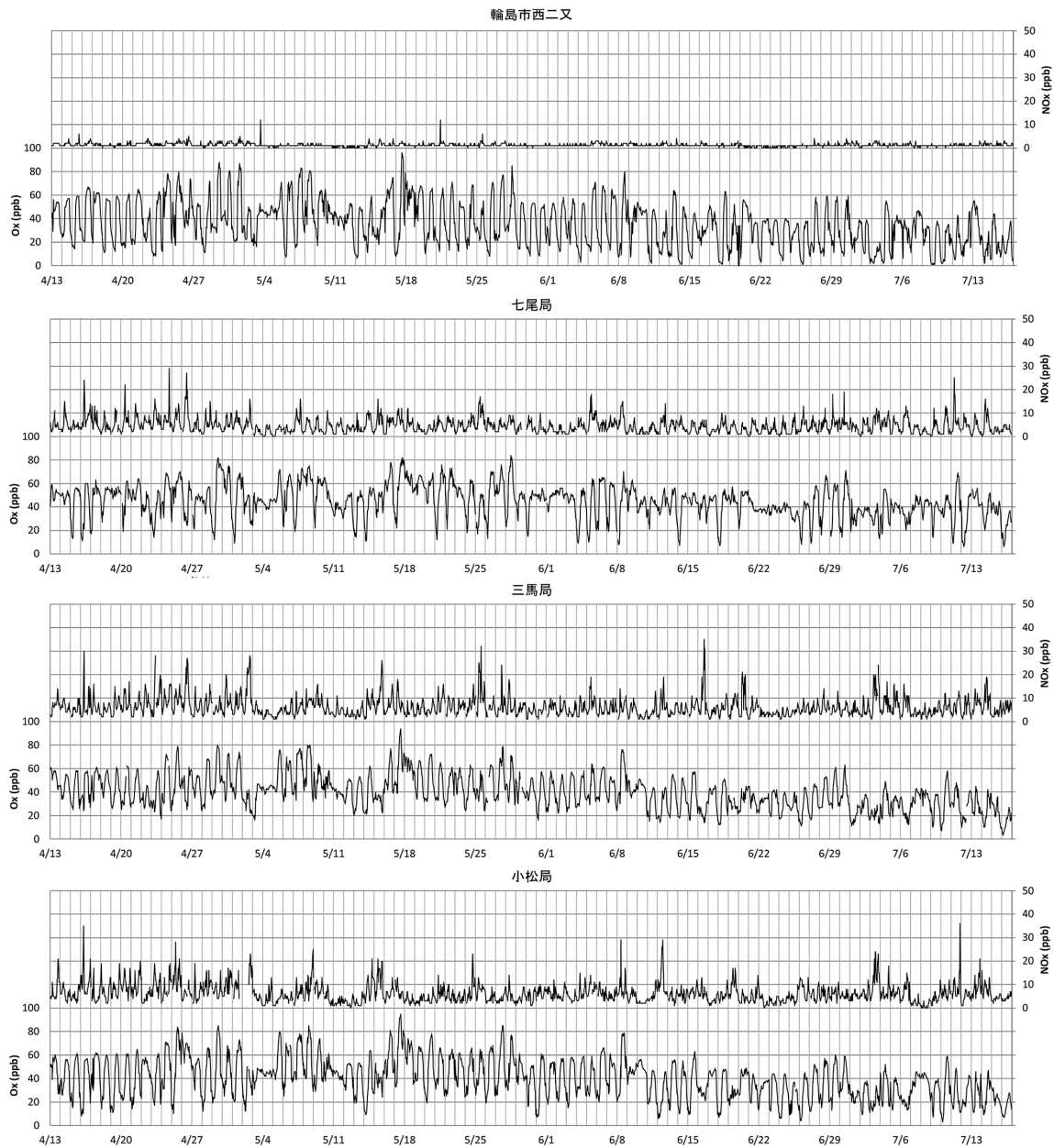


図4 0x 及び NOx の 1 時間値の推移(高濃度期)

40ppb を上限として不規則に変動する傾向であった。また、大気監視測定局は、NOx 濃度が高い場合に 0x 濃度が低くなる傾向が見られ、この傾向は輪島市西二又の 0x 濃度についても同様であった。

3・3 0x 濃度平均値の比較

輪島市西二又及び大気監視測定局の各時期における 0x 濃度の平均値を表 2 及び図 6 に示す。

(1) 低濃度期(1)

低濃度期(1)では、輪島市西二又の 0x 濃度は、鹿島局及び羽咋局を除いた大気監視測定局より高く、石川中央地域及び南加賀地域の測定局との濃度差が大きかった。この原因は、冬季は暖房用ボイラー等の使用により、各地域で NOx 濃度が高くなる傾向があり⁷⁾⁸⁾、NOx の影響に

よるものと考えられた。実際、1 月及び 2 月の NOx 濃度の平均値は、能登中部地域の測定局は 2~5ppb、石川中央地域の測定局は 7~15ppb、南加賀地域の測定局は 9~17ppb であり⁷⁾、能登中部地域に比べ石川中央地域及び南加賀地域の NOx 濃度が高く、影響が大きいと考えられた。

(2) 高濃度期

高濃度期では、輪島市西二又の 0x 濃度は、高濃度期(1)が最も高く、高濃度期(2)、(3)の順に減少する傾向を示した。一方、大気監視測定局の 0x 濃度は、高濃度期(1)及び(2)で大きな差はなく、高濃度期(3)は減少しているが、測定局ごとに減少傾向が異なる。

輪島市西二又と大気監視測定局の 0x 濃度を比較する

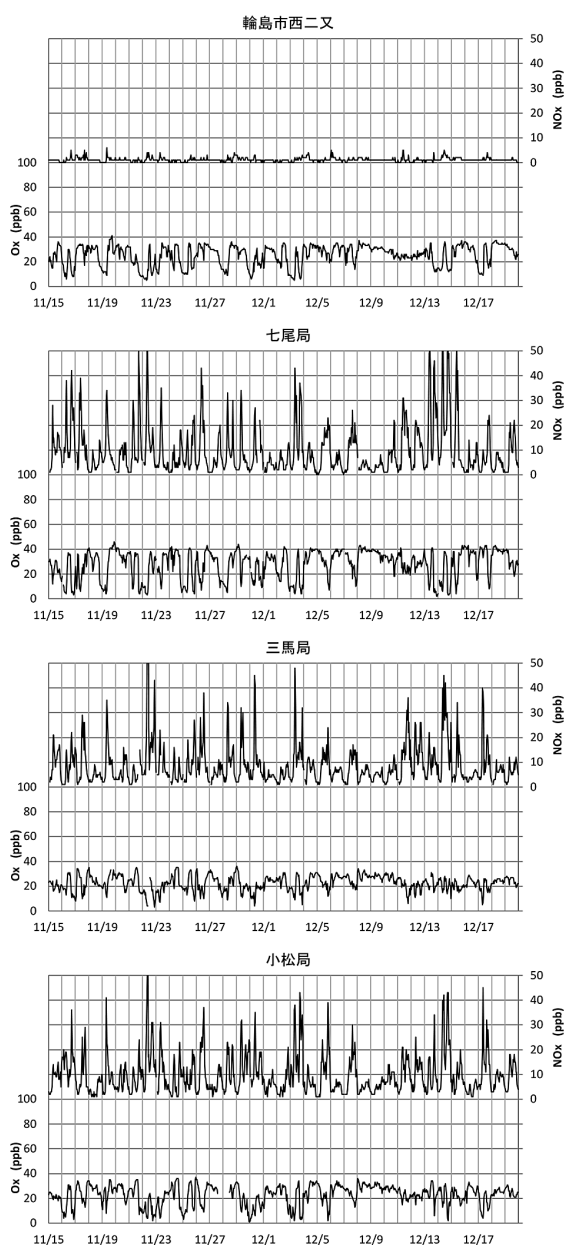


図 5 O_x 及び NO_x の 1 時間値の推移(低濃度期(2))

と、高濃度期(1)では、輪島市西二又の O_x 濃度は、大聖寺局以外の大気監視測定局より低かった。その差は、大聖寺局を除き 2.7~5.6ppb であった。また、七尾局~内灘局の測定局との差は 4.6~5.6ppb、三馬局~小松局の測定局との差は 2.7~3.0ppb であり、本県の南北で若干の差が見られた。なお、大聖寺局は交通量の多い沿道に位置していることから、自動車排出ガスの影響を受けていると考えられた⁷⁾⁸⁾。

高濃度期(2)では、輪島市西二又の O_x 濃度は、すべての大気監視測定局より低かった。その差は、大聖寺局を除き 5.5~13.0ppb と、高濃度期(1)より広がっている。また、七尾局~内灘局の測定局との差は 10.0~13.0ppb、三馬局~小松局の測定局との差は 5.5~11.1ppb と、高濃度期(1)と比較して南北の濃度差は大きくなっている。

高濃度期(3)では、輪島市西二又の O_x 濃度は、すべての大気監視測定局より低かった。その差は、大聖寺局を除き、2.0~12.6ppb であった。七尾局~内灘局の測定局との差は 9.4~12.6ppb、三馬局~小松局の測定局との差は 2.0~9.4ppb と、高濃度期(2)と比較して、七尾局~内灘局の測定局はほぼ同等であったが、三馬局~小松局の測定局は濃度差が縮まっていた。

このように、バックグラウンド地域と想定される輪島市西二又と大気監視測定局の O_x 濃度と比較した結果、地域間で O_x 濃度に違いがみられた。その要因としては、地域的な大気汚染の違い、気象状況などが影響しているものと考えられた。

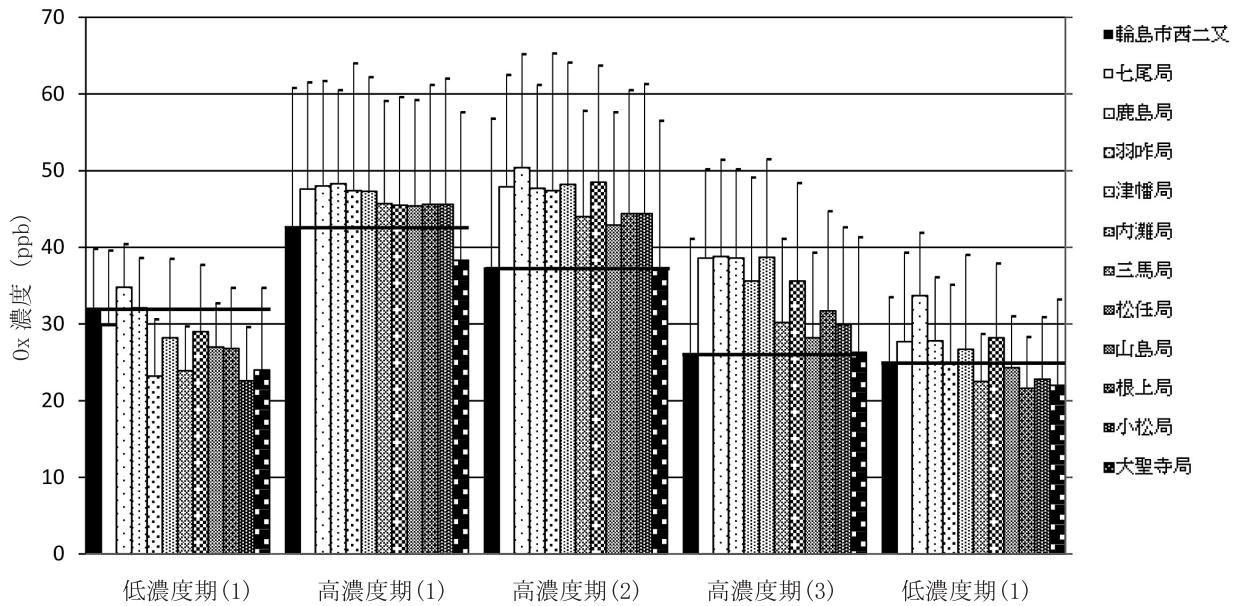
高濃度期(4月~7月)の NO_x 濃度の平均値は、能登中部地域の測定局で 3~6ppb、石川中央地域の測定局で 4~10ppb、南加賀地域の測定局で 6~12ppb であり⁸⁾、県の南部ほど濃度が高い傾向があるため、県の南部測定局(三馬局~小松局)の O_x 濃度が北部測定局(七尾局~内灘局)より低めに推移したものと考えられた。

(3) 低濃度期(2)

低濃度期(2)では、輪島市西二又と大気監視測定局の

表 2 各時期における O_x 濃度の平均値

| 調査期間 | O _x 濃度の平均値 [ppb] (下段は輪島市西二又との濃度差) | | | | | | | | | | | |
|---------|--|--------|------|------|--------|------|------|------|------|-------|------|------|
| | 輪島市西二又 | 能登中部地域 | | | 石川中央地域 | | | | | 南加賀地域 | | |
| | | 七尾局 | 鹿島局 | 羽咋局 | 津幡局 | 内灘局 | 三馬局 | 松任局 | 山島局 | 根上局 | 小松局 | 大聖寺局 |
| 低濃度期(1) | 31.9 | 29.8 | 34.8 | 32.1 | 23.2 | 28.2 | 23.9 | 29.0 | 27.0 | 26.8 | 22.6 | 24.0 |
| | | -2.1 | 2.9 | 0.2 | -8.7 | -3.7 | -8.0 | -2.9 | -4.9 | -5.1 | -9.3 | -7.9 |
| 高濃度期(1) | 42.7 | 47.6 | 48.0 | 48.3 | 47.4 | 47.3 | 45.7 | 45.5 | 45.4 | 45.6 | 45.6 | 38.3 |
| | | 4.9 | 5.3 | 5.6 | 4.7 | 4.6 | 3.0 | 2.8 | 2.7 | 2.9 | 2.9 | -4.4 |
| 高濃度期(2) | 37.4 | 47.9 | 50.4 | 47.7 | 47.4 | 48.2 | 44.0 | 48.5 | 42.9 | 44.4 | 44.4 | 37.0 |
| | | 10.5 | 13.0 | 10.3 | 10.0 | 10.8 | 6.6 | 11.1 | 5.5 | 7.0 | 7.0 | -0.4 |
| 高濃度期(3) | 26.2 | 38.6 | 38.8 | 38.6 | 35.6 | 38.7 | 30.2 | 35.6 | 28.2 | 31.7 | 29.9 | 26.3 |
| | | 12.4 | 12.6 | 12.4 | 9.4 | 12.5 | 4.0 | 9.4 | 2.0 | 5.5 | 3.7 | 0.1 |
| 低濃度期(2) | 25.1 | 27.7 | 33.7 | 27.8 | 24.9 | 26.7 | 22.5 | 28.2 | 24.3 | 21.6 | 22.8 | 22.0 |
| | | 2.6 | 8.6 | 2.7 | -0.2 | 1.6 | -2.6 | 3.1 | -0.8 | -3.5 | -2.3 | -3.1 |



(棒グラフの上に伸びるラインは標準偏差を示す。)

図6 各時期におけるO_x濃度のバックグラウンド地域と大気監視測定局との比較

O_x濃度差が小さくなった。また、若干ではあるが、輪島市西二又と比較して、七尾局～内灘局の測定局のO_x濃度は高く、三馬局～小松局の測定局は低い傾向を示しており、低濃度期(1)及び高濃度期と同様にNO_x濃度が影響していると考えられた。

3・4 後方流跡線解析

輪島市西二又において、高濃度期に1時間値が80ppb以上を記録した日が9日(4月25日, 29日, 30日, 5月1日, 7日, 8日, 17日, 28日及び6月8日)あった。この9日について後方流跡線を解析した。その結果を図7に示す。

5月7日及び8日は、気塊が大陸から直接到達している。4月30日, 5月1日及び28日は、気塊が国内から到達している。4月25日, 29日, 5月17日及び6月8日は、気塊が大陸または日本海方面から国内を経由して到達している。

後方流跡線解析の結果、O_x高濃度日における気塊の起源に一定の傾向は認められず、大陸起源の気塊の影響を受けた場合、国内起源の気塊の影響を受けた場合、さらに大陸または日本海起源であり、国内を経由して到達した気塊の影響を受けた場合などが考えられた。

4 まとめ

- (1) 輪島市西二又はバックグラウンドとして適正な地点であると考えられた。
- (2) 輪島市西二又と各大気監視測定局のO_x及びNO_x濃度の1時間値を比較した結果、低濃度期において、概ね30～40ppbを上限として不規則に変動する傾向が見

られた。また、大気監視測定局は、NO_x濃度が高い時期にO_x濃度が低くなる傾向があり、輪島市西二又にも同様な傾向が認められた。高濃度期において、輪島市西二又及び大気監視測定局のO_x濃度は、日内変動が概ね規則的に見られ、その変動幅は地域により異なっていた。

- (3) 輪島市西二又と大気監視測定局のO_x濃度と比較した結果、低濃度期においては、輪島市西二又よりO_x濃度が低い大気監視測定局があり、冬季は各地域でNO_x濃度が高くなる傾向があり、NO_xの影響と考えられた。高濃度期において、地域間でO_x濃度の違いがみられ、地域的な大気汚染の違い、気象状況などが影響しているものと考えられた。
- (4) 後方流跡線解析の結果、O_x高濃度日における気塊の起源に一定の傾向は認められず、大陸起源の気塊の影響を受けた場合、国内起源の気塊の影響を受けた場合、さらに大陸または日本海起源であり、国内を経由して到達した気塊の影響を受けた場合などが考えられた。

文 献

- 1) 大原利真：光化学オキシダントと粒子状物質等の汚染特性解明に関する研究，国立環境研究所研究報告，203，2010
- 2) 光化学オキシダント調査検討会：光化学オキシダント調査検討会報告書—今後の対策を見すえた調査研究のあり方について—(平成24年3月)
- 3) 国土交通省：平成22年度全国道路・街路交通情勢

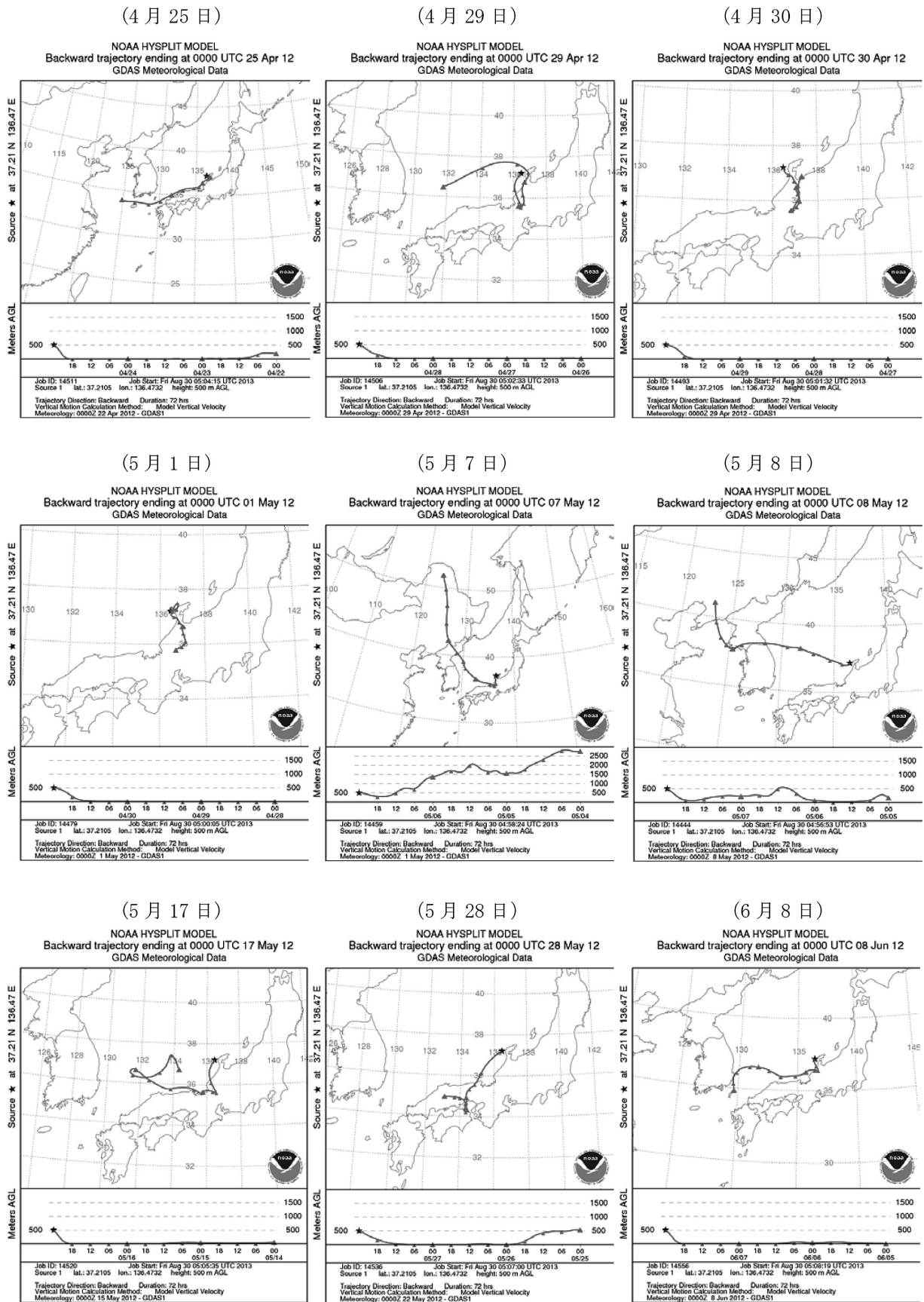


図 7 後方流跡線解析

- 調査（道路交通センサス）一般交通量調査
- 4) 米国海洋大気局 (NOAA), 流跡線解析プログラム HYSPLIT, (URL;<http://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT.php>)
 - 5) 山崎 誠：福岡市における冬季の光化学オキシダントの特徴, 福岡市保健環境研究所, **30**, 89-92 (2004)
 - 6) ITANO Y., BANDOW H., TAKENAKA N., SAITOH Y., ASAYAMA A., FUKUYAMA J.: Impact of NO_x reduction on long-term ozone trends in an urban atmosphere, *Science of the Total Environment*, **379**(1), 46-55 (2007)
 - 7) 石川県：平成 23 年度環境大気調査報告書（平成 24 年 9 月）
 - 8) 石川県：平成 24 年度環境大気調査報告書（平成 25 年 9 月）

〔報 文〕

石川県における微小粒子状物質 (PM_{2.5}) の状況

石川県保健環境センター 環境科学部 野口 邦雅・宮田 朋子・吉本 高志
 石川県 環境部 廃棄物対策課 砺波 和子・堀 秀朗・柿澤 隆一
 蔵本 和夫

〔和文要旨〕

本県が行った平成 22～24 年度の PM_{2.5} 濃度の常時監視結果について、その状況をとりとまとめ、地域間の差を把握するため、各測定局の PM_{2.5} 日平均値推移を比較した。更に、PM_{2.5} と光化学オキシダントの相関を求め、PM_{2.5} 環境基準超過日における黄砂及び煙霧の影響について考察した。

その結果、本県の PM_{2.5} の状況は、春季から夏季にかけて高く、冬季に低い傾向が見られた。PM_{2.5} 日平均値は各測定局においてほぼ同様な推移傾向で、地域間に顕著な差は見られなかったが、七尾局と他の 3 測定局（小松局、松任局及び野々市局）で若干の差が見られ、地域による気象条件の違いを反映しているものと考えられた。PM_{2.5} と光化学オキシダントの相関は、春季から夏季にかけて有意な正の相関が認められる地点があったが、秋季以降相関係数の値は低下し、冬季は負になる場合もみられた。県内における PM_{2.5} 環境基準超過日のほとんどの場合、黄砂の飛来や煙霧の影響を受けていることが明らかとなった。

キーワード：PM_{2.5}、光化学オキシダント、黄砂、煙霧、環境基準、常時監視

1 はじめに

微小粒子状物質（以下「PM_{2.5}」という。）は、大気汚染物質の 1 つで、直径 2.5 μm 以下の小さな粒子であり、呼吸器系への健康影響に加え、循環器系への悪影響が懸念されている¹⁾。このため、国では、平成 21 年 9 月に PM_{2.5} に係る環境基準を設定した（平成 21 年 9 月 9 日付け環境省告示第三十三号）。本県では、大気汚染防止法に基づき、平成 22 年度から PM_{2.5} の常時監視を開始し、その後徐々に測定局を増やしてきており、平成 25 年 3 月末日現在、県内で 4 か所の一般環境大気測定局、1 か所の自動車排出ガス測定局で PM_{2.5} の常時監視をしている。

このような中で、平成 25 年 1 月に、中国において PM_{2.5} による深刻な大気汚染が発生し、国内でも一時的に PM_{2.5} 濃度の上昇が観測され、全国的に PM_{2.5} による大気汚染への関心が高まった。平成 25 年 2 月に開催された「微小粒子状物質 (PM_{2.5}) に関する専門家会合」では、「今回の我が国における一時的な PM_{2.5} 濃度の上昇については、(中略)、大陸からの越境大気汚染があったものと考えられる。」²⁾としている。

また、越境大気汚染については、PM_{2.5} だけでなく光化学オキシダント等についても懸念されている³⁾⁴⁾。

今回、今後の PM_{2.5} 対策に資するため、本県が行った平成 22～24 年度（2010 年 4 月～2013 年 3 月の 3 年間）の PM_{2.5} の常時監視結果について、その状況をとりとまと

Continuous monitoring of Particulate Matter 2.5 (PM_{2.5}) in Ishikawa Prefecture. by NOGUUCHI Kunimasa, MIYATA Tomoko, YOSHIMOTO Takashi, TONAMI Kazuko, HORI Shuhroh and KAKIZAWA Ryuichi (Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science), KURAMOTO Kazuo (Waste Management Division, Environmental Department, Ishikawa Prefecture)

Key words : PM_{2.5}, Photochemical oxidant, Yellow sand, Haze, Environmental standards, Continuous monitoring

め、地域間の差を把握するため、各測定局のPM2.5日平均値の推移を比較した。更に、PM2.5と光化学オキシダントの相関を求め、高濃度発生の原因について考察した。

2 測定と解析方法

2・1 常時監視地点と期間

本報では、一般環境大気測定局3か所（七尾局、松任局及び小松局）、自動車排出ガス測定局1か所（野々市局）の常時監視データについて取りまとめ等を行った。これらの常時監視地点の位置を図1に示す。



図1 PM2.5の常時監視地点

平成25年3月31日現在における各測定局のPM2.5の常時監視期間は、七尾局が2年（平成23年4月から開始）、松任局が3年（平成22年4月から開始）、小松局が1年（平成24年4月から開始）、野々市局が5か月（平成24年11月から開始）である。

2・2 PM2.5の質量濃度測定の方法

各測定局にPM2.5自動測定機を設置し、PM2.5質量濃度の1時間の平均値（以下「1時間値」という。）を常時監視している。表1に各測定局に設置するPM2.5自動測定機の概要を示す。いずれも、環境省が標準測定法と等価性を有すると評価した機種である⁵⁾⁶⁾。

また、測定したデータ（1時間値）は、石川県大気環境監視システムにより収集・伝送され、石川県保健環境センターに設置された専用サーバ内に蓄積されるとともに、リアルタイムで公開されている⁷⁾⁸⁾。

表1 PM2.5自動測定機の概要

| 測定局 | メーカー | 機種 | 測定原理 | PM2.5分粒方式 |
|------|------------|-----------|------------|----------------------|
| 七尾局 | 東亜ディーケーケー㈱ | FPM-377 | β線 吸収方式 | VSCC方式 ^{注)} |
| 松任局 | ㈱堀場製作所 | APDA-375A | | |
| 小松局 | 東亜ディーケーケー㈱ | FPM-377 | | |
| 野々市局 | 東亜ディーケーケー㈱ | FPM-377 | | |

注：遠心分離型の分粒方式、VSCCは(Very Sharp Cut Cyclone)の略称である。

2・3 PM2.5の日平均値の推移

PM2.5の状況としては、測定期間中のPM2.5日平均値の推移を評価した。また、PM2.5日平均値を環境基準の年平均値 $15\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下、日平均値 $35\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下、注意喚起のための暫定的な指針値¹⁾日平均値 $70\mu\text{g}/\text{m}^3$ 超に区分して、全データに占める比率から評価した。

各測定局のPM2.5日平均値推移の違いを把握するため、平成24年度の七尾局、松任局、小松局及び野々市局のデータを用いて、PM2.5日平均値を上記の3段階の濃度別に色分けし、測定局別に時間経過を追った比較図を作成し、その推移を比較した。また、測定局間のPM2.5日平均値の相関係数を求め、測定局間の類似性を評価した。

2・4 PM2.5と光化学オキシダントの関係

PM2.5と光化学オキシダントの月平均値について推移を比較し、また、この両者の日平均値について相関関係を調べた。

2・5 高濃度発生の原因の考察

PM2.5日平均値が環境基準の $35\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超過した日（以下「PM2.5環境基準超過日」という。）について、黄砂及び煙霧の影響の有無を検証した。

3 結果と考察

3・1 PM2.5の状況

各測定局のPM2.5日平均値の推移を図2に示す。いずれの測定局も、日変動はあるものの、春季に最も高く、ついで夏季にやや高く、冬季に低い傾向が見られ、これまでの報告⁹⁾¹⁰⁾と同様の傾向であった。環境基準の日平均値 $35\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超える日が年間数日あり、春季及び秋季にみられているが、これは、春季及び秋季は気流による大陸からの越境輸送の影響を受けやすいことに起因すると考えられた。注意喚起のための暫定的な指針値（ $70\mu\text{g}/\text{m}^3$ 超）を超過した日はなく、大半が環境基準の年平均値 $15\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下であった。また、2・3の濃度区分に該当するPM2.5日平均値の日数及び全測定日数に対する比率を表2に示す。日平均値 $15\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下の日が61.0～80.8%、 $15\sim 35\mu\text{g}/\text{m}^3$ の日が17.9～38.2%、 $35\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えた日が0.6～2.2%であった。いずれの測定局も各年度の年平均値は、環境基準の年平均値 $15\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下であり、本県のPM2.5による大気汚染の程度は低いものであった。

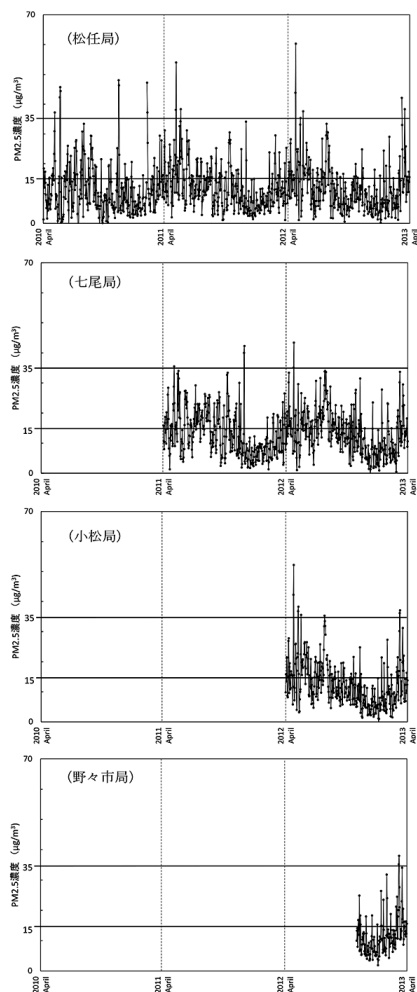


図 2 PM2.5 日平均値の推移

3・2 各測定局の PM2.5 日平均値推移の比較

各測定局の PM2.5 日平均値推移の違いを把握するため、平成 24 年度のデータを用いて、2・3 のとおり比較図を作成した (図 3)。PM2.5 日平均値は、各測定局においてはほぼ同様な推移傾向で、地域間に顕著な差は見られなかった。

更に詳しく各測定局間の濃度変動の違いを評価するため、各測定局の日平均値間の相関係数 (R) を求めた。その結果を表 3 に示す。いずれの測定局間とも高い相関係数が得られた。松任局、小松局及び野々市局間の相関係数 (R) は 0.95 前後であり、特に測定局間の距離が最も近い松任局と野々市局は 0.9625 と最も高かった。対して、七尾局と他の 3 測定局は 0.8291~0.8796 と、他の 3 測定局間の相関係数に比べて低く、七尾局と他の 3 測定局とは PM2.5 日平均値の推移に若干の差がみられ、地域による気象条件の違いを反映しているものと考えられた。

表 3 各測定局の日平均値間の相関係数 (R)

| | 松任局 | 小松局 | 野々市局 |
|-----|---------------------|---------------------|---------------------|
| 七尾局 | 0.8291 (68.6 km) | 0.8478 (83.9 km) | 0.8796 (64.3 km) |
| 松任局 | — | 0.9439 (15.4 km) | 0.9625 (4.4 km) |
| 小松局 | — | — | 0.9529 (19.8 km) |

() は測定局間の距離

注：野々市局とその他の相関については、平成24年11月から平成25年3月のデータを用いた。

表 2 PM2.5 日平均値の各濃度範囲の日数

| 年 度 | 測定局 | PM2.5 日平均値の各濃度範囲の日数 (比率 %) | | |
|--------|-------|----------------------------|---------------------|---------------------|
| | | 15 µg/m³以下 | 15 µg/m³超35 µg/m³以下 | 35 µg/m³超70 µg/m³以下 |
| 平成22年度 | 松 任 局 | 268 (75.1) | 81 (22.7) | 8 (2.2) |
| | 七 尾 局 | 222 (61.0) | 139 (38.2) | 3 (0.8) |
| 平成23年度 | 松 任 局 | 257 (71.6) | 99 (27.6) | 3 (0.8) |
| | 七 尾 局 | 226 (62.6) | 133 (36.8) | 2 (0.6) |
| 平成24年度 | 松 任 局 | 258 (72.7) | 91 (25.6) | 6 (1.7) |
| | 小 松 局 | 246 (68.9) | 103 (28.9) | 8 (2.2) |
| | 野々市局 | 122 (80.8) | 27 (17.9) | 2 (1.3) |

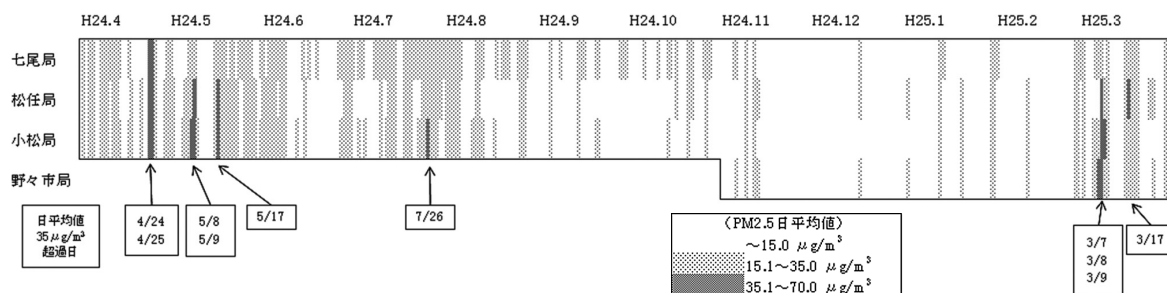


図 3 各測定局の PM2.5 日平均値推移の比較図

表4 月別にみたPM2.5と光化学オキシダントの相関係数

| 測定局 | 期間 | 相関係数(R) | | | | | | | | | | | |
|-----|-----------------|---------|------|------|------|------|------|------|-------|-------|-------|-------|-------|
| | | 4月 | 5月 | 6月 | 7月 | 8月 | 9月 | 10月 | 11月 | 12月 | 1月 | 2月 | 3月 |
| 松任局 | 2010.4月-2011.3月 | 0.31 | 0.63 | 0.49 | 0.64 | 0.64 | 0.17 | 0.33 | 0.14 | -0.11 | -0.10 | 0.37 | 0.63 |
| | 2011.4月-2012.3月 | 0.61 | 0.39 | 0.74 | 0.85 | 0.34 | 0.22 | 0.60 | -0.29 | -0.12 | -0.22 | -0.17 | 0.11 |
| | 2012.4月-2013.3月 | 0.33 | 0.63 | 0.28 | 0.24 | 0.51 | 0.55 | 0.44 | 0.31 | 0.07 | -0.20 | 0.10 | 0.59 |
| 七尾局 | 2011.4月-2012.3月 | 0.30 | 0.24 | 0.51 | 0.54 | 0.12 | 0.02 | 0.24 | -0.60 | -0.15 | 0.00 | -0.11 | -0.06 |
| | 2012.4月-2013.3月 | 0.51 | 0.68 | 0.13 | 0.19 | 0.38 | 0.21 | 0.10 | 0.11 | -0.05 | -0.17 | -0.38 | 0.20 |
| 小松局 | 2012.4月-2013.3月 | 0.32 | 0.58 | 0.34 | 0.15 | 0.40 | 0.60 | 0.32 | 0.08 | 0.08 | -0.35 | 0.34 | 0.57 |
| 平均値 | | 0.40 | 0.53 | 0.42 | 0.43 | 0.40 | 0.30 | 0.34 | -0.04 | -0.05 | -0.17 | 0.03 | 0.34 |

3・3 PM2.5と光化学オキシダントの相関

松任局のPM2.5月平均値と光化学オキシダント月平均値の推移を図4に示す。PM2.5と光化学オキシダントはほぼ平行に変動し、いずれも春季に高く、冬季に低い傾向が見られた。PM2.5と光化学オキシダントは、春季に大陸からの越境輸送の影響を受けていることが考えられた。また、PM2.5については、春季ほどの大きさではないが、秋季にもピークが見られた。

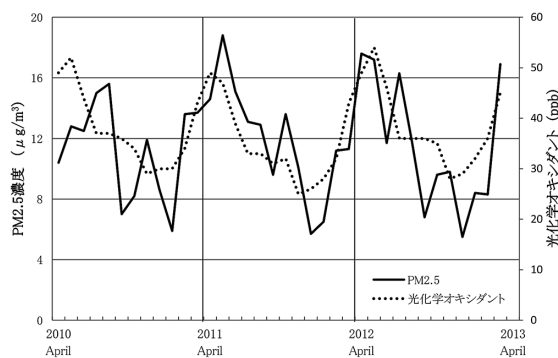


図4 PM2.5月平均値と光化学オキシダント月平均値の推移(松任局)

更に月別に算出したPM2.5日平均値と光化学オキシダント日平均値の相関係数(R)を表4に示す。いずれの測定局の測定年度も、春季から夏季にかけて有意な正の相関が認められる地点があったが、秋季以降相関係数の値は低下し、冬季は負になる場合もみられた。これは既報¹¹⁾と同様の傾向であった。春季から夏季に正の相関となる原因は、越境輸送の影響や、PM2.5濃度の上昇に光化学二次生成が関与しているためと考えられた¹²⁾。

3・4 高濃度発生の原因の考察

PM2.5環境基準超過日と黄砂及び煙霧の観測日を表5に示す。PM2.5環境基準超過日は、平成22年度は8日(8ケース)、平成23年度は5日(6ケース)、平成24年度は10日(18ケース)であった。

(1) 黄砂の影響

表5に示すとおり、PM2.5環境基準超過日のうち、気象庁が観測した金沢での黄砂観測日は9日であった。平成22年5月20日、平成24年4月24日、5月17日及び平成25年3月8日の4日は、金沢では黄砂として観

測されていないが、全国の観測地点で黄砂が観測されていた。気象庁の黄砂観測は目視であり、実際には同じ黄砂濃度であっても湿度や黄砂の粒径分布等の変化によって視程が異なることから¹³⁾、PM2.5を常時監視している一地域における黄砂の有無の判定だけに頼らず、周辺地域や日本各地の黄砂情報を総合的に考慮して、黄砂との関連性を検討する必要がある。

環境省では黄砂対策への取組みの一環として、黄砂観測のためのライダーモニタリングネットワークを構築し、その観測結果を黄砂飛来情報ページで公表している¹⁴⁾。それによれば、気象庁発表の黄砂観測日以外に平成23年5月17日、11月29日、平成24年5月8日、9日、平成25年3月7日及び3月17日に富山で黄砂を観測している。

これらの結果から、金沢とその近隣地域である富山において黄砂の飛来があったと判定される日は、PM2.5濃度の上昇に黄砂の影響があったと考えられた。

(2) 煙霧の影響

煙霧の発生原因については様々ではあるが、原因の一つとして、西日本で観測される煙霧が大陸から移流してきた硫酸塩エアロゾルとの関連性が高いことが報告されている¹⁵⁾。また、黄砂と煙霧とは日本へ到達するときに混在した形をとることが多いとされており¹⁶⁾、これまで本県においても黄砂と煙霧が同時に観測されている日が多かった。

PM2.5環境基準超過日で煙霧のみ観測されている日は平成23年2月5日～6日及び平成23年11月28日である。平成23年2月5日～6日については、2月4日～9日に大きな煙霧が日本全体で発生しており、その原因は大陸からの越境輸送による影響が示唆されている¹⁶⁾。

以上、表5にまとめたように、県内におけるPM2.5環境基準超過日のほとんどの場合、黄砂の飛来や煙霧の影響を受けていることが明らかとなった。

4 まとめ

(1) 本県のPM2.5の状況は、春季から夏季にかけて高く、冬季に低い傾向が見られた。年平均値は環境基準以下であり、PM2.5による県内の大気汚染の程度は低かつ

表 5 PM2.5 環境基準超過日と黄砂及び煙霧の観測日

| 年度 月 日 | PM2.5日平均値 [測定局] ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) | 黄砂観測日 ^{注1)} | | | 煙霧観測日 ^{注1)} | |
|--------|---|-----------------------------------|---------------|---|----------------------|---|
| | | [金沢] | [全国] (地点数) | ライダーモニタ リングによる黄 砂観測日 ^{注2)} [富山] | [金沢] | |
| 22 | 5 5 | 37.2 [松任局] | ○ | ○ (27) | ○ | |
| | 5 20 | 42.3 [松任局] | | ○ (2) | | ○ |
| | 5 21 | 45.7 [松任局] | ○ | ○ (24) | ○ | ○ |
| | 5 22 | 44.4 [松任局] | ○ | ○ (22) | ○ | ○ |
| | 11 12 | 48.0 [松任局] | ○ | ○ (37) | — ^{注3)} | ○ |
| | 11 13 | 46.3 [松任局] | ○ | ○ (30) | — ^{注3)} | ○ |
| | 2 5 | 47.2 [松任局] | | | | ○ |
| | 2 6 | 37.2 [松任局] | | | | ○ |
| 23 | 5 2 | 38.1 [松任局] | ○ | ○ (43) | ○ | ○ |
| | 5 3 | 35.5 [七尾局]、54.0 [松任局] | ○ | ○ (28) | ○ | |
| | 5 17 | 38.3 [松任局] | | | ○ | ○ |
| | 11 28 | 40.0 [七尾局] | | | | ○ |
| | 11 29 | 42.3 [七尾局] | | | ○ | |
| 24 | 4 24 | 35.1 [七尾局]、43.8 [松任局]、42.3 [小松局] | | ○ (22) | ○ | ○ |
| | 4 25 | 43.4 [七尾局]、60.3 [松任局]、52.2 [小松局] | ○ | ○ (19) | ○ | ○ |
| | 5 8 | 36.8 [小松局] | | | ○ | |
| | 5 9 | 35.3 [松任局]、38.3 [小松局] | | | ○ | ○ |
| | 5 17 | 37.6 [松任局]、35.6 [小松局] | | ○ (3) | ○ | |
| | 7 26 | 35.3 [小松局] | | | | |
| | 3 7 | 35.2 [野々市局] | | | ○ | |
| | 3 8 | 42.1 [松任局]、36.2 [小松局]、38.0 [野々市局] | | ○ (18) | ○ | ○ |
| | 3 9 | 37.1 [小松局] | ○ | ○ (31) | ○ | |
| 3 17 | 38.3 [松任局] | | | ○ | | |

注1: 気象庁が観測したものである。

注2: 環境省がライダーモニタリングネットワークにより観測したものである。

注3: ライダーモニタリングは欠測であった。

た。

- (2) PM2.5 日平均値は、各測定局においてほぼ同様な推移傾向で、地域間に顕著な差は見られなかったが、七尾局と他の3測定局（小松局、松任局及び野々市局）で若干の差が見られ、地域による気象条件の違いを反映しているものと考えられた。
- (3) PM2.5 と光化学オキシダントの相関は、春季から夏季にかけて有意な正の相関が認められる地点があったが、秋季以降相関係数の値は低下し、冬季は負になる場合もみられた。
- (4) 県内における PM2.5 環境基準超過日のほとんどの場合、黄砂の飛来や煙霧の影響を受けていることが明らかとなった。

文 献

- 1) 大気汚染に係る粒子状物質による長期暴露調査検討会：大気汚染に係る粒子状物質による長期暴露調査報告書（平成 21 年 3 月）
- 2) 微小粒子状物質（PM2.5）に関する専門家会合：最近の微小粒子状物質（PM2.5）による大気汚染への対応（平成 25 年 2 月）
- 3) 大原利真：光化学オキシダントと粒子状物質等の汚染特性解明に関する研究，国立環境研究所研究報告，203，2010

- 4) 杉本伸夫，兼保直樹，畠山史郎，早川和一，定永靖宗，向井苑生，内田昌男：東アジアのエアロゾル・大気汚染物質の輸送と広域分布の解明，エアロゾル研究，26(2)，115-119（2011）
- 5) 環境省水・大気環境局大気環境課：平成 21 年度冬期～平成 22 年度夏期の等価性評価の結果（平成 22 年 10 月 15 日）
- 6) 環境省水・大気環境局大気環境課：平成 22 年度夏期～平成 22 年度冬期の等価性評価の結果（平成 23 年 7 月 4 日）
- 7) 石川県ホームページ，（URL； <http://www.pref.ishikawa.jp/cgi-bin/taiki/top.pl>）
- 8) 環境省大気汚染物質広域監視システム（そらまめ君），（URL； <http://soramame.taiki.go.jp/>）
- 9) 木下 誠，肥後隼人，宮地夏海：福岡市における PM2.5 の季節変動および黄砂・煙霧時の実態調査，福岡市保健環境研究所報，37，53-57（2011）
- 10) 太田 聡，横江 斉：石川県における既設測定局での PM2.5 測定の実績と優先順位の考察，石川県保健環境センター，40，66-72（2003）
- 11) 高倉尚枝，谷口延子，平澤幸代，日置 正，藤波直人：京都府における微小粒子状物質（PM2.5）質量濃度，京都府保健環境研究所年報，57，76-85（2012）

- 12) 東京都環境科学研究所：微小粒子状物質 (PM2.5) 等の二次生成機構に関する研究報告書 (平成 23 年 7 月)
- 13) 木下篤哉, 眞木貴史：気象庁の黄砂情報と黄砂予測モデルについて, 日本気象学会機関誌「天気」(TENKI), **56**(9), 71-76 (2009)
- 14) 環境省黄砂飛来情報 (ライダー黄砂観測データ提供ページ), (URL; <http://soramame.taiki.go.jp/dss/kosa/>)
- 15) 山崎 誠：アジア大陸から移流した硫酸塩エアロゾルの煙霧による高 SPM 事例の解析, 福岡市保健環境研究所報, **29**, 101-104 (2004)
- 16) 環境省：黄砂実態解明調査中間報告書—平成 20～22 年度— (平成 24 年 3 月)

〔報 文〕

石川県における大気降下物中の放射性核種詳細調査 (平成21～24年度)

石川県保健環境センター 環境科学部放射線グループ

小谷口久美子・浜道 啓太・藤井 明洋
吉本 高志・小浦 利弘^{*)}・浅田 尚久^{**)}
中村 能則^{*)}・横山 暢・翫 幹夫
柿本 均・堅田 勉

^{*)}環境部廃棄物対策課^{**)}東京事務所

〔和文要旨〕

石川県における放射性降下物の季節変動と、黄砂飛来時などの特定事象との関連を把握するため、金沢市郊外（金沢市南東部の丘陵地帯）に位置する保健環境センター庁舎屋上において、年間を通して降下物（雨水等）を原則 10 日ごとに採取した。その結果、年間の放射性核種の降下は、ベリリウム-7 や鉛-210 では冬季にピークが見られる変動を示し、年間の総降下量の多くは冬季に偏っていることが明らかとなった。また、カリウム-40、セシウム-137 の降下量は黄砂飛来時に顕著に増大していることが示された。また、平成 23 年 3 月以降、東京電力(株)福島第一原子力発電所事故の影響と考えられるヨウ素-131、セシウム-134 及びセシウム-137 等の核種の降下が見られた。

キーワード：放射性核種、降下物、黄砂、セシウム-137、ヨウ素-131

1 はじめに

日本は極東アジアの中緯度に位置し、卓越した偏西風により、主に中国やモンゴルの乾燥・半乾燥地域で発生した黄砂が長距離輸送されている。黄砂は近年、発生地域の拡大等による日本への飛来頻度の増大により、生活環境への影響について関心が高まっている。特に、主に中国東シナ海沿岸部の工業地帯で発生した大気汚染物質が黄砂とともに輸送される現象など、これまでに数多くの調査が進められてきた¹⁾²⁾。

一方、過去の大気圏核実験起源のセシウム-137 は、現在も環境中に現存し、降下物試料等からまれに検出されることがあり、これがしばしば黄砂飛来時と重なって

いた³⁾。

そこで本調査では、日本海側に位置し大陸からの影響を受けやすい石川県で、年間を通して降下物を短い期間に分けて採取し、自然放射性核種（宇宙線起源のベリリウム-7、地殻起源の鉛-210、カリウム-40）と人工放射性核種（セシウム-137 等）の降下量を調査することで、その詳細な季節変動や黄砂飛来時など特定事象との関連を把握することを目的とした。

また、平成 23 年 3 月 11 日に発生した東日本大震災に伴う東京電力(株)福島第一原子力発電所事故（以下、「原発事故」という。）後、その影響で石川県においても人工放射性核種の降下が認められた。

本報は既に報告されている結果⁴⁾も含め、平成 21～24

Seasonal Variations of Fallout observed at surburban Kanazawa, Ishikawa Prefecture. by KODANIGUCHI Kumiko, HAMAMICHI Keita, FUJII Akihiro, YOSHIMOTO Takashi, KOURA Toshihiro, ASADA Naohisa, NAKAMURA Yoshinori, YOKOYAMA Mitsuru, Itoh Mikio, KAKIMOTO Hitoshi, and KATADA Tsutomu (Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Radionuclide, Fallout, Asian dust, Cesium-137, Iodine-131

年度に実施した調査の結果をとりまとめたものである。

2 調査方法

2・1 試料採取

本県では平成2年7月から志賀原子力発電所の周辺環境放射線監視（以下、「原電監視調査」という。）を実施しており、志賀町安部屋（志賀局）、志賀町福浦港（福浦局）及び比較対照として金沢市太陽が丘（当センター庁舎屋上）で口径800mmの大型水盤により1か月の降下物試料を採取し、放射性核種を測定してきた。

本調査では原電監視調査とは別に、平成21年4月から25年3月まで当センター屋上に、口径800mmの大型水盤（ポリエチレン製）3台を設置し、原則10日ごと（ただし、黄砂飛来時には時間分解能を高め、黄砂イベント時の試料を他と分別するため、適宜採取期間を短縮した。）に降下物試料を採取した。採取期間を原電監視調査より短くして短期の変動をとらえることを目的としながら、同程度の検出下限値を確保するために試料の採取量を約3倍とした。

2・2 試料の前処理及び測定

試料の前処理及び測定は、文部科学省放射能測定法シリーズ「ゲルマニウム半導体検出器等を用いる機器分析のための試料の前処理法」⁵⁾、「ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線ペクトロメトリー」⁶⁾に基づき行った。

採取した降下物試料は、試料1Lに対し1mLの割合で塩酸を加え、濃縮乾固させ、U8容器に詰めた後、低エネルギー対応型ゲルマニウム半導体検出器（Canberra Japan製GX-4520）及び波高分析器（Seiko EG&G製MCA-7600）を用いて分析した。

3 結果と考察

3・1 放射性核種の降下量の季節変動

表1～4にゲルマニウム半導体検出器によって測定された放射性核種の降下量を示した。また、それぞれの核種の降下量と降水量の関係を図1（鉛-210）、図2（ベリリウム-7）、図3（カリウム-40）、図4（セシウム-137）に示した。なお、黄砂等の大規模なダストイベントにより輸送される微量のセシウム-137の挙動に注目したため、図4は平成23年3月上旬までの変動を示したものである。

鉛-210及びベリリウム-7は春季から夏季に低く、秋季以降に増加し冬季にピークを持つ一山型の降下量の変動パターンを示し、年間の総降下量の多くは冬季に偏っていた。これは、ベリリウム-7濃度の高い極気団の日本上空への流れ込み、また大陸表層の大気が高濃度になっている鉛-210の季節風による日本海方向への吹き出しによると考えられている⁷⁾。冬季（11～2月）に検出さ

れた鉛-210及びベリリウム-7の降下量（4年間合計）の年間降下量（4年間合計）に対する割合は、それぞれ63.4%、60.1%であった（表4）。

一方、カリウム-40及びセシウム-137は、季節風の影響と考えられる冬季の増加以上に、平成22年3月の黄砂観測期⁸⁾に降下量が著しく増大した。黄砂に含まれる粘土鉱物のイライトはカリウムを取り込んだ層状構造であり⁹⁾、その同位体の放射性カリウム-40は同じ地殻起源の鉛-210に比べ、黄砂の飛来時における増大が顕著であったと考えられた。また、大気圏核実験により生成され、中国の乾燥地域に蓄積されていたセシウム-137は、黄砂とともに飛来してきたものと考えられた。

降水量との関係については、いずれの核種もある程度、連動した変動を示しているように見える。その傾向は冬季に顕著に現われたが、6月、7月及び9月は降水量が多いにもかかわらず、核種の降下量はそれに連動して増加する傾向は見られなかった。鉛-210、カリウム-40など地殻起源の核種の降下量に影響が見られなかったのは、夏季は海洋性の気団（小笠原気団）が支配的であり、大陸からの気塊の移流が少なく、逆に冬季は大陸からの季節風の影響を強く受けるため、核種の降下量が多くなっていることによると考えられた。

3・2 黄砂飛来時のカリウム-40及びセシウム-137（平成21年4月～平成23年3月上旬）

平成21年4月～平成23年3月上旬（原発事故以前）のセシウム-137検出期の核種降下量を表5に示した。セシウム-137は、平成21年度において4月、10月、12月、1月及び3月に計8回検出され、平成22年度は4月、11月、12月、1月及び2月に計8回検出された。特に平成22年3月下旬（3月19日～23日）には、セシウム-137及びカリウム-40の降下量に顕著な増大が認められた。金沢地方気象台による黄砂目視観測結果によると、セシウム-137が検出された期間のうち、平成21年12月26日及び平成22年3月21日に黄砂が観測されている⁸⁾。特に平成22年3月21日の黄砂イベントは、全国環境大気測定局でSPM濃度が著しく上昇し¹⁰⁾、環境基準を大幅に超過するなど、近年まれにみる大規模な黄砂の飛来であった。

黄砂が観測された平成21年12月26日及び平成22年3月21日を含む2試料について、検出されたカリウム-40及びセシウム-137の降下量は、年間降下量（平成21年度）のそれぞれ31.6%、72.9%であった（表1）。特に平成22年3月21日を含む試料については、セシウム-137の鉛-210、ベリリウム-7及び降下物重量に対する比が増大する特徴が見られた（表5）。

表 1 Ge 半導体検出器による核種定量結果 (平成 21 年度)

単位: Bq/m²

| 採取期間 | | 降水量 | 降下物重量 | 核種の降下量 | | | | | その他の人工放射性核種 |
|-----------------|-------------------------|------|--------|--------|--------|--------|-------|------|-------------|
| (日) | (mm) | (g) | Pb-210 | Be-7 | K-40 | Cs-137 | | | |
| H21.3.30 ~ | H21.4.9 | 10.1 | 29.0 | 1.16 | 15.8 | 93.6 | 0.20 | ND | なし |
| H21.4.9 ~ | H21.4.20 | 11.0 | 25.0 | 1.50 | 13.6 | 74.7 | 0.21 | ND | なし |
| H21.4.20 ~ | H21.4.30 | 9.9 | 63.0 | 5.86 | 12.3 | 131.6 | 1.01 | 0.02 | なし |
| H21.4.30 ~ | H21.5.11 | 11.3 | 8.0 | 1.45 | 4.8 | 44.7 | 0.21 | ND | なし |
| H21.5.11 ~ | H21.5.20 | 9.1 | 36.5 | 1.56 | 6.3 | 65.8 | 0.33 | ND | なし |
| H21.5.20 ~ | H21.5.29 | 8.6 | 13.0 | 1.07 | 6.8 | 72.9 | ND | ND | なし |
| H21.5.29 ~ | H21.6.10 | 12.0 | 38.5 | 0.50 | 6.9 | 60.7 | ND | ND | なし |
| H21.6.10 ~ | H21.6.19 | 9.0 | 14.0 | 0.60 | 9.3 | 74.4 | 0.77 | ND | なし |
| H21.6.19 ~ | H21.6.30 | 11.0 | 116.5 | 0.85 | 9.7 | 75.3 | 0.38 | ND | なし |
| H21.6.30 ~ | H21.7.10 | 9.9 | 150.5 | 1.31 | 20.4 | 176.3 | 0.28 | ND | なし |
| H21.7.10 ~ | H21.7.21 | 11.0 | 157.0 | 1.11 | 27.9 | 317.1 | 0.33 | ND | なし |
| H21.7.21 ~ | H21.7.31 | 10.0 | 71.0 | 0.50 | 9.3 | 69.2 | 0.21 | ND | なし |
| H21.7.31 ~ | H21.8.10 | 10.0 | 77.0 | 0.42 | 7.4 | 70.9 | 0.23 | ND | なし |
| H21.8.10 ~ | H21.8.20 | 10.0 | 15.5 | 0.47 | 4.5 | 13.1 | ND | ND | なし |
| H21.8.20 ~ | H21.8.31 | 11.0 | 51.0 | 0.86 | 22.2 | 93.9 | 0.62 | ND | なし |
| H21.8.31 ~ | H21.9.10 | 10.0 | 5.5 | 0.26 | 3.3 | 14.5 | ND | ND | なし |
| H21.9.10 ~ | H21.9.16 | 6.0 | 54.0 | 0.66 | 36.4 | 208.8 | ND | ND | なし |
| H21.9.16 ~ | H21.9.30 | 14.0 | 36.5 | 0.67 | 10.5 | 71.9 | 0.53 | ND | なし |
| H21.9.30 ~ | H21.10.9 | 9.0 | 134.5 | 2.96 | 11.1 | 119.4 | 0.58 | ND | なし |
| H21.10.9 ~ | H21.10.20 | 11.0 | 33.0 | 2.57 | 23.8 | 184.3 | 0.66 | 0.01 | なし |
| H21.10.20 ~ | H21.10.30 | 10.0 | 7.5 | 0.72 | 5.9 | 64.2 | 0.17 | ND | なし |
| H21.10.30 ~ | H21.11.10 | 11.0 | 53.0 | 0.68 | 6.1 | 85.7 | 0.22 | ND | なし |
| H21.11.10 ~ | H21.11.20 | 10.0 | 144.0 | 6.84 | 28.4 | 419.2 | 1.15 | ND | なし |
| H21.11.20 ~ | H21.11.30 | 10.0 | 39.0 | 1.62 | 39.1 | 260.9 | 0.40 | ND | なし |
| H21.11.30 ~ | H21.12.10 | 10.2 | 55.0 | 3.33 | 29.1 | 304.1 | 0.56 | ND | なし |
| H21.12.10 ~ | H21.12.18 | 8.0 | 110.5 | 4.62 | 20.2 | 359.0 | 1.12 | ND | なし |
| H21.12.18 ~ | H21.12.25 | 6.8 | 103.0 | 7.26 | 51.8 | 352.4 | 1.26 | ND | なし |
| H21.12.25 ~ | H21.12.28 ¹⁾ | 3.0 | 19.0 | 2.40 | 24.5 | 139.3 | 0.68 | 0.03 | なし |
| H21.12.28 ~ | H22.1.8 | 11.0 | 212.5 | 18.65 | 168.3 | 866.3 | 4.07 | 0.06 | なし |
| H22.1.8 ~ | H22.1.20 | 12.0 | 118.0 | 5.25 | 75.3 | 408.0 | 1.15 | ND | なし |
| H22.1.20 ~ | H22.1.29 | 9.0 | 66.5 | 3.07 | 50.5 | 261.2 | 0.85 | ND | なし |
| H22.1.29 ~ | H22.2.10 | 12.0 | 83.0 | 5.98 | 60.4 | 420.8 | 1.27 | ND | なし |
| H22.2.10 ~ | H22.2.19 | 9.0 | 56.5 | 0.78 | 29.5 | 134.8 | 0.29 | ND | なし |
| H22.2.19 ~ | H22.2.26 | 7.0 | 13.0 | 1.24 | 23.9 | 127.1 | 0.43 | ND | なし |
| H22.2.26 ~ | H22.3.10 | 12.0 | 104.5 | 1.23 | 18.8 | 194.9 | 0.32 | ND | なし |
| H22.3.10 ~ | H22.3.15 | 5.2 | 18.0 | 2.48 | 20.0 | 114.1 | 0.71 | 0.02 | なし |
| H22.3.15 ~ | H22.3.19 | 3.8 | 28.5 | 3.63 | 23.1 | 97.4 | 1.33 | 0.05 | なし |
| H22.3.19 ~ | H22.3.23 ¹⁾ | 4.0 | 18.5 | 18.25 | 36.7 | 134.0 | 9.74 | 0.46 | なし |
| H22.3.23 ~ | H22.3.30 | 7.0 | 26.0 | 2.34 | 20.1 | 129.9 | 0.70 | 0.02 | なし |
| 年間降下量 | | | | 993.9 | 6906.7 | 32.98 | 0.67 | | |
| 冬季(11~2月)降下量 | | | | 572.4 | 3682.1 | | | | |
| 黄砂検出期の降下量/年間降下量 | | | | | | 31.6% | 72.9% | | |

¹⁾黄砂観測日を含む。

ND: 検出されず (値が計数誤差の3倍を下回る場合)

表 2 Ge 半導体検出器による核種定量結果 (平成 22 年度)

単位: Bq/m²

| 採取期間 | | 降水量 | 降下物重量 | 核種の降下量 | | | | | | その他の人工放射性核種 | |
|--------------|-------------------------|------|--------|--------|--------|-------|--------|--------|------|-------------|----|
| (日) | (mm) | (g) | Pb-210 | Be-7 | K-40 | I-131 | Cs-134 | Cs-137 | | | |
| H22.3.30 ~ | H22.4.9 | 10.0 | 36.0 | 3.53 | 24.1 | 127.6 | 0.93 | ND | ND | 0.02 | なし |
| H22.4.9 ~ | H22.4.20 | 11.0 | 62.0 | 2.44 | 19.1 | 185.4 | 0.60 | ND | ND | ND | なし |
| H22.4.20 ~ | H22.4.27 | 7.1 | 27.0 | 0.57 | 6.8 | 50.0 | ND | ND | ND | ND | なし |
| H22.4.27 ~ | H22.4.30 | 2.9 | 32.5 | 2.01 | 12.1 | 142.0 | 0.59 | ND | ND | 0.01 | なし |
| H22.4.30 ~ | H22.5.10 ¹⁾ | 10.0 | 0.5 | 2.51 | 8.2 | 40.1 | 0.64 | ND | ND | ND | なし |
| H22.5.10 ~ | H22.5.20 | 10.0 | 47.5 | 0.82 | 8.1 | 62.5 | 0.24 | ND | ND | ND | なし |
| H22.5.20 ~ | H22.5.31 ¹⁾ | 11.0 | 80.0 | 1.55 | 12.6 | 53.2 | ND | ND | ND | ND | なし |
| H22.5.31 ~ | H22.6.10 | 10.0 | 0.0 | 0.49 | 2.1 | 30.8 | ND | ND | ND | ND | なし |
| H22.6.10 ~ | H22.6.21 | 11.0 | 126.0 | 0.69 | 7.8 | 65.8 | ND | ND | ND | ND | なし |
| H22.6.21 ~ | H22.6.30 | 9.0 | 100.5 | 0.62 | 8.3 | 60.1 | ND | ND | ND | ND | なし |
| H22.6.30 ~ | H22.7.12 | 12.0 | 128.5 | 1.29 | 21.1 | 162.8 | 0.24 | ND | ND | ND | なし |
| H22.7.12 ~ | H22.7.20 | 8.0 | 77.5 | 0.37 | 5.7 | 67.9 | ND | ND | ND | ND | なし |
| H22.7.20 ~ | H22.7.30 | 10.0 | 12.5 | 0.62 | 3.1 | 15.8 | ND | ND | ND | ND | なし |
| H22.7.30 ~ | H22.8.10 | 11.0 | 34.0 | 1.01 | 7.2 | 70.8 | 0.20 | ND | ND | ND | なし |
| H22.8.10 ~ | H22.8.20 | 10.0 | 54.5 | 1.21 | 13.1 | 36.3 | ND | ND | ND | ND | なし |
| H22.8.20 ~ | H22.8.31 | 11.0 | 1.5 | 0.31 | 1.2 | 2.6 | ND | ND | ND | ND | なし |
| H22.8.31 ~ | H22.9.10 | 10.0 | 56.5 | 0.51 | 2.1 | 15.0 | ND | ND | ND | ND | なし |
| H22.9.10 ~ | H22.9.21 | 11.0 | 132.5 | 0.90 | 19.5 | 195.0 | ND | ND | ND | ND | なし |
| H22.9.21 ~ | H22.9.30 | 9.0 | 96.5 | 1.01 | 16.6 | 104.6 | 0.18 | ND | ND | ND | なし |
| H22.9.30 ~ | H22.10.12 | 12.0 | 74.0 | 0.62 | 11.6 | 67.7 | ND | ND | ND | ND | なし |
| H22.10.12 ~ | H22.10.20 | 8.0 | 10.0 | 0.36 | 6.7 | 42.6 | ND | ND | ND | ND | なし |
| H22.10.20 ~ | H22.11.1 | 12.0 | 9.5 | 2.27 | 25.1 | 200.5 | 0.37 | ND | ND | ND | なし |
| H22.11.1 ~ | H22.11.10 | 9.1 | 201.5 | 8.42 | 88.6 | 488.1 | 1.71 | ND | ND | ND | なし |
| H22.11.10 ~ | H22.11.15 | 4.9 | 20.5 | 1.99 | 13.4 | 62.9 | 0.47 | ND | ND | ND | なし |
| H22.11.15 ~ | H22.11.22 ¹⁾ | 7.0 | 11.0 | 0.49 | 10.4 | 48.0 | ND | ND | ND | ND | なし |
| H22.11.22 ~ | H22.11.30 | 8.0 | 56.5 | 4.82 | 48.6 | 394.1 | 1.15 | ND | ND | 0.02 | なし |
| H22.11.30 ~ | H22.12.10 | 10.1 | 110.5 | 12.37 | 35.7 | 273.4 | 2.47 | ND | ND | 0.05 | なし |
| H22.12.10 ~ | H22.12.20 | 10.1 | 126.0 | 10.05 | 64.2 | 491.2 | 2.12 | ND | ND | 0.03 | なし |
| H22.12.20 ~ | H22.12.28 | 8.1 | 78.0 | 9.53 | 60.8 | 441.9 | 1.94 | ND | ND | 0.02 | なし |
| H22.12.28 ~ | H23.1.11 | 13.7 | 124.0 | 11.66 | 84.9 | 802.6 | 3.08 | ND | ND | 0.05 | なし |
| H23.1.11 ~ | H23.1.20 | 9.0 | 75.0 | 8.38 | 90.7 | 607.7 | 1.89 | ND | ND | ND | なし |
| H23.1.20 ~ | H23.1.31 | 11.0 | 35.0 | 5.31 | 108.3 | 476.2 | 1.09 | ND | ND | ND | なし |
| H23.1.31 ~ | H23.2.10 | 10.0 | 13.0 | 3.59 | 60.1 | 255.6 | 1.22 | ND | ND | 0.02 | なし |
| H23.2.10 ~ | H23.2.21 | 11.0 | 29.5 | 2.02 | 20.4 | 91.2 | 0.41 | ND | ND | ND | なし |
| H23.2.21 ~ | H23.2.28 | 7.0 | 15.0 | 1.11 | 19.1 | 84.4 | 0.25 | ND | ND | ND | なし |
| H23.2.28 ~ | H23.3.10 | 10.0 | 34.5 | 2.57 | 36.0 | 190.5 | 0.52 | ND | ND | ND | なし |
| H23.3.10 ~ | H23.3.17 | 7.1 | 29.5 | 3.71 | 40.8 | 156.8 | 0.79 | ND | ND | ND | なし |
| H23.3.17 ~ | H23.3.22 | 5.1 | 23.0 | 1.62 | 16.5 | 90.1 | 0.26 | 0.23 | ND | ND | なし |
| H23.3.22 ~ | H23.3.31 | 8.8 | 23.5 | 3.99 | 36.2 | 168.5 | 0.89 | 4.67 | 0.26 | 0.25 | なし |
| 年間降下量 | | | | 1077.0 | 6922.5 | 24.24 | 4.90 | 0.26 | 0.47 | | |
| 冬季(11~2月)降下量 | | | | 639.4 | 4157.0 | | | | | | |

¹⁾黄砂観測日を含む。

ND: 検出されず (値が計数誤差の3倍を下回る場合)

表3 Ge 半導体検出器による核種定量結果 (平成 23 年度)

単位: Bq/m²

| 採取期間 | | (日) | 降水量 (mm) | 降下物 重量 (g) | 核種の降下量 | | | | | | その他の 人工放射性核種 |
|--------------|------------------------|------|-------------|------------------|--------|--------|-------|-------|--------|--------|---|
| | | | | | Pb-210 | Be-7 | K-40 | I-131 | Cs-134 | Cs-137 | |
| H23.3.31 ~ | H23.4.11 | 11.0 | 18.5 | 2.31 | 9.5 | 29.2 | 0.53 | 2.47 | 0.10 | 0.11 | なし |
| H23.4.11 ~ | H23.4.20 | 9.0 | 26.0 | 3.85 | 17.2 | 142.3 | 0.83 | 10.2 | 10.8 | 9.9 | Te-129m, Te-129 ^β , Nb-95 |
| H23.4.20 ~ | H23.4.28 | 8.0 | 58.0 | 3.56 | 17.5 | 133.4 | 0.63 | 0.42 | 2.67 | 2.47 | なし |
| H23.4.28 ~ | H23.5.10 ¹⁾ | 12.1 | 48.5 | 4.73 | 27.0 | 106.4 | 0.99 | 0.29 | 1.04 | 1.00 | なし |
| H23.5.10 ~ | H23.5.20 ¹⁾ | 10.0 | 66.5 | 2.28 | 6.7 | 55.9 | 0.57 | ND | 0.32 | 0.32 | なし |
| H23.5.20 ~ | H23.5.31 | 11.0 | 169.0 | 2.07 | 13.4 | 218.8 | 0.49 | 0.18 | 1.06 | 1.26 | なし |
| H23.5.31 ~ | H23.6.10 ¹⁾ | 10.0 | 20.5 | 1.35 | 11.2 | 75.7 | 0.23 | ND | 0.34 | 0.32 | なし |
| H23.6.10 ~ | H23.6.20 | 10.0 | 11.0 | 1.38 | 4.7 | 36.3 | 0.15 | ND | 0.09 | 0.09 | なし |
| H23.6.20 ~ | H23.6.30 | 10.0 | 90.0 | 3.14 | 11.3 | 95.4 | 0.23 | ND | 0.16 | 0.14 | なし |
| H23.6.30 ~ | H23.7.11 | 11.0 | 62.0 | 1.06 | 9.3 | 35.2 | 0.16 | ND | 0.11 | 0.10 | なし |
| H23.7.11 ~ | H23.7.20 | 9.0 | 13.5 | 0.54 | 1.1 | 5.7 | 0.15 | ND | 0.03 | 0.03 | なし |
| H23.7.20 ~ | H23.8.1 | 12.0 | 20.0 | 0.83 | 7.6 | 52.4 | 0.18 | ND | 0.05 | 0.05 | なし |
| H23.8.1 ~ | H23.8.10 | 9.0 | 3.5 | 0.28 | 1.0 | 7.0 | ND | ND | 0.02 | 0.02 | なし |
| H23.8.10 ~ | H23.8.19 | 9.0 | 90.5 | 1.48 | 13.2 | 42.0 | 0.15 | ND | 0.08 | 0.08 | なし |
| H23.8.19 ~ | H23.8.31 | 12.0 | 115.0 | 0.72 | 8.5 | 59.5 | ND | ND | 0.04 | 0.04 | なし |
| H23.8.31 ~ | H23.9.9 | 9.0 | 42.5 | 1.66 | 8.6 | 76.8 | 0.27 | ND | 0.05 | 0.07 | なし |
| H23.9.9 ~ | H23.9.20 | 11.0 | 66.5 | 0.60 | 3.9 | 42.2 | ND | ND | ND | 0.03 | なし |
| H23.9.20 ~ | H23.9.30 | 10.0 | 192.0 | 1.89 | 9.5 | 135.9 | ND | ND | ND | 0.05 | なし |
| H23.9.30 ~ | H23.10.11 | 11.0 | 31.0 | 1.18 | 17.3 | 98.5 | ND | ND | 0.02 | 0.03 | なし |
| H23.10.11 ~ | H23.10.20 | 9.0 | 33.0 | 1.12 | 7.3 | 34.3 | ND | ND | ND | 0.02 | なし |
| H23.10.20 ~ | H23.10.31 | 11.0 | 47.0 | 4.20 | 23.4 | 183.3 | ND | ND | 0.03 | 0.03 | なし |
| H23.10.31 ~ | H23.11.10 | 10.0 | 51.5 | 0.73 | 6.1 | 46.3 | ND | ND | ND | ND | なし |
| H23.11.10 ~ | H23.11.21 | 11.0 | 125.0 | 3.52 | 56.5 | 288.9 | 0.51 | ND | 0.02 | 0.03 | なし |
| H23.11.21 ~ | H23.11.29 | 8.2 | 99.0 | 10.05 | 45.1 | 422.9 | 1.30 | ND | 0.03 | 0.02 | なし |
| H23.11.29 ~ | H23.12.9 | 10.0 | 62.5 | 2.11 | 23.8 | 184.5 | 0.37 | ND | ND | ND | なし |
| H23.12.9 ~ | H23.12.20 | 10.8 | 102.0 | 5.13 | 58.6 | 494.7 | 1.18 | ND | 0.02 | 0.01 | なし |
| H23.12.20 ~ | H23.12.28 | 8.0 | 78.5 | 5.88 | 83.2 | 354.7 | 1.12 | ND | ND | 0.03 | なし |
| H23.12.28 ~ | H24.1.10 | 13.0 | 100.0 | 4.75 | 107.2 | 435.7 | 0.85 | ND | ND | 0.02 | なし |
| H24.1.10 ~ | H24.1.20 | 10.0 | 24.0 | 1.67 | 35.1 | 147.1 | 0.26 | ND | ND | 0.02 | なし |
| H24.1.20 ~ | H24.1.31 | 11.0 | 69.0 | 3.82 | 63.2 | 286.0 | 0.90 | ND | ND | 0.02 | なし |
| H24.1.31 ~ | H24.2.10 | 10.0 | 82.0 | 7.54 | 101.8 | 439.4 | 1.78 | ND | ND | 0.02 | なし |
| H24.2.10 ~ | H24.2.20 | 10.0 | 54.0 | 4.65 | 37.8 | 175.2 | 0.92 | ND | ND | ND | なし |
| H24.2.20 ~ | H24.2.29 | 9.0 | 29.0 | 1.73 | 32.7 | 156.5 | 0.40 | ND | ND | 0.01 | なし |
| H24.2.29 ~ | H24.3.8 | 8.0 | 26.0 | 1.30 | 13.9 | 51.2 | ND | ND | ND | ND | なし |
| H24.3.8 ~ | H24.3.19 | 11.0 | 58.0 | 6.24 | 78.5 | 299.9 | 1.02 | ND | 0.04 | 0.08 | なし |
| H24.3.19 ~ | H24.3.30 | 11.0 | 52.5 | 4.13 | 36.4 | 194.8 | 0.74 | ND | ND | ND | なし |
| 年間値 | | | | | 1009.1 | 5644.0 | 16.91 | 13.51 | 17.16 | 16.37 | |
| 冬季(11~2月)降下量 | | | | | 651.1 | 3431.9 | | | | | |

ND: 検出されず (値が計数誤差の3倍を下回る場合)

¹⁾黄砂観測日を含む。
²⁾減衰補正なし。

表4 Ge 半導体検出器による核種定量結果 (平成 24 年度)

単位: Bq/m²

| 採取期間 | | (日) | 降水量 (mm) | 降下物 重量 (g) | 核種の降下量 | | | | | その他の 人工放射性核種 |
|-----------------------------|------------------------|------|-------------|------------------|--------|--------|-------|--------|--------|-----------------|
| | | | | | Pb-210 | Be-7 | K-40 | Cs-134 | Cs-137 | |
| H24.3.30 ~ | H24.4.10 ¹⁾ | 11.0 | 69.0 | 2.45 | 45.3 | 273.7 | 4.75 | 0.03 | 0.07 | なし |
| H24.4.10 ~ | H24.4.20 | 10.0 | 25.0 | 1.15 | 9.9 | 59.4 | 0.29 | ND | ND | なし |
| H24.4.20 ~ | H24.4.27 ¹⁾ | 7.0 | 14.5 | 0.65 | 4.3 | 28.9 | ND | ND | ND | なし |
| H24.4.27 ~ | H24.5.10 | 13.0 | 36.0 | 3.50 | 14.1 | 81.3 | 0.60 | ND | 0.02 | なし |
| H24.5.10 ~ | H24.5.21 | 11.0 | 67.0 | 3.46 | 21.0 | 143.7 | 0.69 | ND | 0.02 | なし |
| H24.5.21 ~ | H24.5.31 | 10.0 | 13.5 | 1.13 | 5.7 | 55.6 | 0.27 | ND | 0.03 | なし |
| H24.5.31 ~ | H24.6.11 | 11.0 | 43.0 | 0.80 | 4.0 | 39.5 | 0.16 | ND | ND | なし |
| H24.6.11 ~ | H24.6.20 | 9.0 | 35.5 | 0.63 | 2.5 | 31.1 | ND | ND | ND | なし |
| H24.6.20 ~ | H24.6.29 | 9.0 | 9.5 | 0.43 | 1.6 | 19.2 | ND | ND | ND | なし |
| H24.6.29 ~ | H24.7.10 | 11.0 | 127.5 | 0.82 | 5.8 | 75.4 | ND | ND | ND | なし |
| H24.7.10 ~ | H24.7.20 | 10.0 | 28.0 | 0.96 | 9.6 | 75.1 | ND | ND | ND | なし |
| H24.7.20 ~ | H24.7.31 | 11.0 | 11.0 | 1.5 | 1.3 | 10.3 | ND | ND | ND | なし |
| H24.7.31 ~ | H24.8.10 | 10.0 | 0.0 | 1.22 | 0.8 | 1.4 | ND | ND | ND | なし |
| H24.8.10 ~ | H24.8.20 | 10.0 | 83.5 | 1.03 | 5.5 | 35.3 | ND | ND | ND | なし |
| H24.8.20 ~ | H24.8.31 | 11.0 | 53.5 | 1.10 | 3.0 | 12.7 | ND | ND | ND | なし |
| H24.8.31 ~ | H24.9.10 | 10.0 | 219.0 | 2.44 | 23.9 | 187.7 | 0.22 | 0.01 | 0.02 | なし |
| H24.9.10 ~ | H24.9.20 | 10.0 | 61.0 | 1.06 | 4.0 | 66.8 | 0.19 | ND | ND | なし |
| H24.9.20 ~ | H24.9.28 | 8.0 | 26.5 | 0.67 | 8.3 | 72.2 | ND | ND | ND | なし |
| H24.9.28 ~ | H24.10.10 | 12.0 | 101.0 | 1.02 | 16.8 | 170.0 | 0.22 | ND | ND | なし |
| H24.10.10 ~ | H24.10.20 | 10.0 | 76.5 | 2.70 | 18.8 | 121.4 | 0.25 | ND | 0.01 | なし |
| H24.10.20 ~ | H24.10.31 | 11.0 | 72.5 | 2.5 | 21.7 | 130.3 | 0.50 | ND | ND | なし |
| H24.10.31 ~ | H24.11.9 | 9.0 | 110.5 | 4.3 | 52.2 | 401.1 | 1.48 | ND | 0.02 | なし |
| H24.11.9 ~ | H24.11.20 | 11.0 | 164.0 | 12.7 | 107.1 | 559.2 | 1.89 | ND | ND | なし |
| H24.11.20 ~ | H24.11.30 | 10.0 | 41.0 | 3.8 | 42.8 | 193.9 | 0.75 | ND | ND | なし |
| H24.11.30 ~ | H24.12.10 | 10.0 | 157.0 | 32.4 | 132.9 | 787.3 | 5.99 | ND | ND | なし |
| H24.12.10 ~ | H24.12.20 | 10.0 | 101.0 | 3.9 | 40.5 | 232.6 | 0.59 | ND | ND | なし |
| H24.12.20 ~ | H24.12.28 | 8.0 | 33.5 | 3.0 | 27.8 | 130.3 | 0.67 | ND | ND | なし |
| H24.12.28 ~ | H25.1.10 | 13.0 | 174.0 | 9.9 | 86.7 | 507.5 | 2.00 | ND | 0.02 | なし |
| H25.1.10 ~ | H25.1.21 | 11.0 | 62.5 | 3.0 | 66.7 | 252.4 | 0.76 | ND | ND | なし |
| H25.1.21 ~ | H25.1.31 | 10.0 | 80.0 | 8.3 | 38.1 | 298.3 | 1.47 | ND | ND | なし |
| H25.1.31 ~ | H25.2.8 | 8.0 | 40.5 | 3.7 | 38.7 | 165.2 | 0.63 | ND | ND | なし |
| H25.2.8 ~ | H25.2.18 | 10.0 | 91.0 | 7.5 | 75.0 | 276.6 | 1.30 | ND | ND | なし |
| H25.2.18 ~ | H25.2.28 | 10.0 | 39.5 | 3.6 | 52.8 | 232.8 | 0.85 | ND | ND | なし |
| H25.2.28 ~ | H25.3.11 | 11.0 | 21.5 | 8.5 | 44.1 | 151.1 | 1.53 | ND | 0.02 | なし |
| H25.3.11 ~ | H25.3.21 | 10.0 | 68.0 | 6.1 | 18.7 | 76.8 | 1.48 | ND | 0.03 | なし |
| H25.3.21 ~ | H25.3.29 | 8.0 | 8.0 | 1.0 | 7.9 | 60.8 | 0.26 | ND | ND | なし |
| 年間値 | | | | | 1059.9 | 6016.9 | 29.78 | 0.04 | 0.25 | |
| 冬季(11~2月)降下量 | | | | | 761.3 | 4037.2 | | | | |
| 冬季降下量(4年間合計) / 年間降下量(4年間合計) | | | | | 63.4% | 60.1% | | | | |

ND: 検出されず (値が計数誤差の3倍を下回る場合)

¹⁾黄砂観測日を含む。

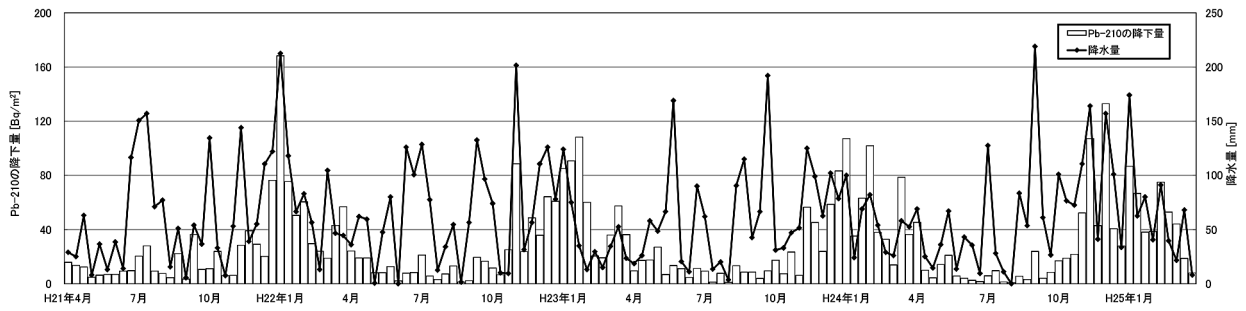


図 1 Pb-210 の降下量と降水量の関係

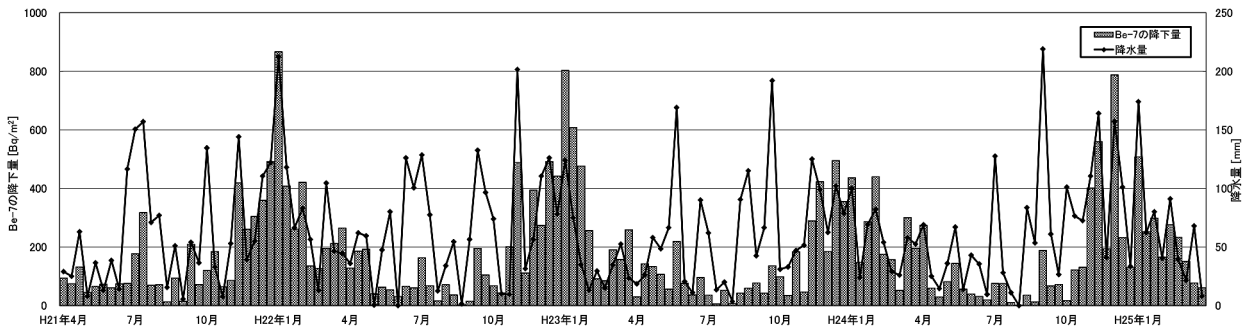


図 2 Be-7 の降下量と降水量の関係

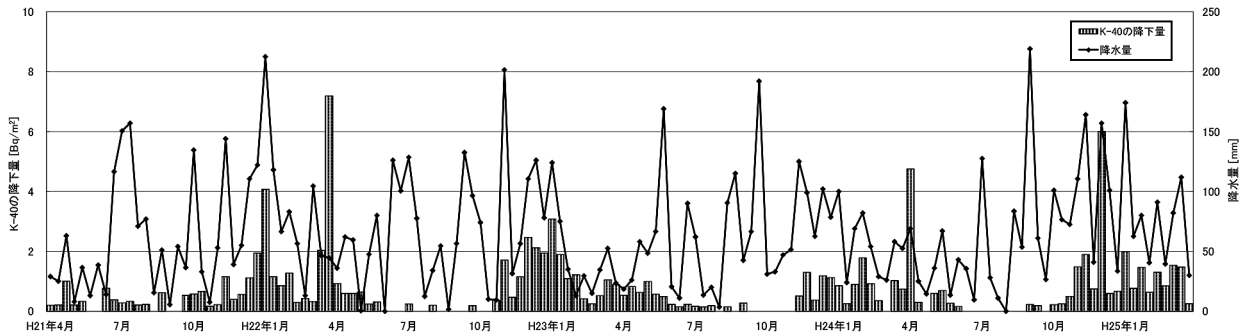


図 3 K-40 の降下量と降水量の関係

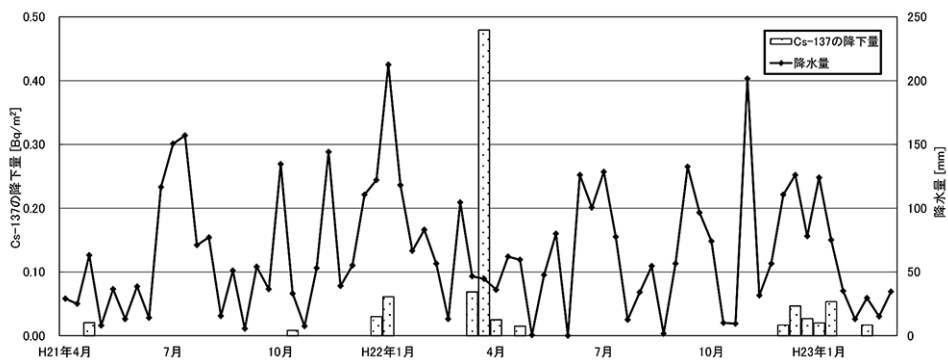


図 4 Cs-137 の降下量と降水量の関係 (平成 21 年 4 月～平成 23 年 3 月上旬)

表5 原発事故以前（平成21～22年度）におけるCs-137 検出期の核種降下量の比較

| 採取日時 | | 期間 (日) | 降下物 重量 (g) | 核種の降下量 | | | | | 単位: Bq/m ² 比率 | | |
|-------------|----|---------------------------|------------------|--------|--------|--------|--------|---------------|-----------------------------|-----------|--------|
| 開始 | 終了 | | | Pb-210 | Be-7 | K-40 | Cs-137 | Cs-137/Pb-210 | Cs-137/Be-7 | Cs-137/重量 | |
| H21. 4. 20 | ～ | H21. 4. 30 | 10. 4 | 5. 86 | 12. 3 | 131. 6 | 1. 01 | 0. 02 | 0. 00165 | 0. 00015 | 0. 003 |
| H21. 10. 9 | ～ | H21. 10. 20 | 11. 4 | 2. 57 | 23. 8 | 184. 3 | 0. 66 | 0. 01 | 0. 00035 | 0. 00005 | 0. 003 |
| H21. 12. 25 | ～ | H21. 12. 28 ¹⁾ | 3. 0 | 2. 40 | 24. 5 | 139. 3 | 0. 68 | 0. 03 | 0. 00121 | 0. 00021 | 0. 012 |
| H21. 12. 28 | ～ | H22. 1. 8 | 11. 0 | 18. 65 | 168. 3 | 866. 3 | 4. 07 | 0. 06 | 0. 00036 | 0. 00007 | 0. 003 |
| H22. 3. 10 | ～ | H22. 3. 15 | 5. 2 | 2. 48 | 20. 0 | 114. 1 | 0. 71 | 0. 02 | 0. 00101 | 0. 00018 | 0. 008 |
| H22. 3. 15 | ～ | H22. 3. 19 | 3. 8 | 3. 63 | 23. 1 | 97. 4 | 1. 33 | 0. 05 | 0. 00209 | 0. 00050 | 0. 013 |
| H22. 3. 19 | ～ | H22. 3. 23 ¹⁾ | 4. 0 | 18. 25 | 36. 7 | 134. 0 | 9. 74 | 0. 46 | 0. 01247 | 0. 00341 | 0. 025 |
| H22. 3. 23 | ～ | H22. 3. 30 | 7. 0 | 2. 34 | 20. 1 | 129. 9 | 0. 70 | 0. 02 | 0. 00111 | 0. 00017 | 0. 010 |
| H22. 3. 30 | ～ | H22. 4. 9 | 10. 0 | 3. 53 | 24. 1 | 127. 6 | 0. 93 | 0. 02 | 0. 00103 | 0. 00019 | 0. 007 |
| H22. 4. 9 | ～ | H22. 11. 30 | 235. 0 | 2. 01 | 12. 1 | 142. 0 | 0. 59 | 0. 01 | 0. 00123 | 0. 00010 | 0. 007 |
| H22. 11. 30 | ～ | H22. 11. 30 | 0. 0 | 4. 82 | 48. 6 | 394. 1 | 1. 15 | 0. 02 | 0. 00034 | 0. 00004 | 0. 003 |
| H22. 11. 30 | ～ | H22. 12. 10 | 10. 1 | 12. 37 | 35. 7 | 273. 4 | 2. 47 | 0. 05 | 0. 00131 | 0. 00017 | 0. 004 |
| H22. 12. 10 | ～ | H22. 12. 20 | 10. 1 | 10. 05 | 64. 2 | 491. 2 | 2. 12 | 0. 03 | 0. 00042 | 0. 00005 | 0. 003 |
| H22. 12. 20 | ～ | H22. 12. 28 | 8. 1 | 9. 53 | 60. 8 | 441. 9 | 1. 94 | 0. 02 | 0. 00033 | 0. 00005 | 0. 002 |
| H22. 12. 28 | ～ | H23. 1. 11 | 13. 7 | 11. 66 | 84. 9 | 802. 6 | 3. 08 | 0. 05 | 0. 00063 | 0. 00007 | 0. 005 |
| H23. 1. 11 | ～ | H23. 2. 10 | 8. 8 | 3. 99 | 60. 1 | 255. 6 | 1. 22 | 0. 02 | 0. 00028 | 0. 00007 | 0. 004 |

¹⁾ 黄砂観測日を含む。

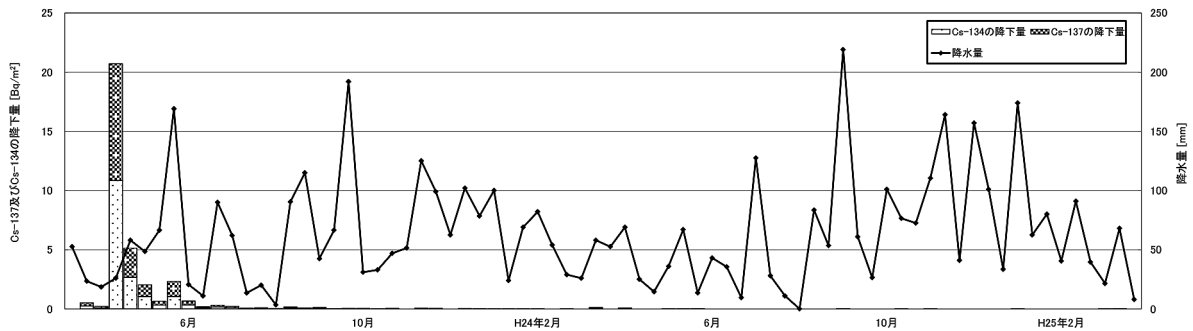


図5 Cs-134 及び Cs-137 の降下量と降水量の関係（平成 23 年 3 月中旬～平成 25 年 3 月）

3・3 原発事故の影響（平成 23 年 3 月中旬～平成 25 年 3 月）

平成 23 年 3 月中旬以降の降下物試料について、原発事故の影響と見られる核種（ヨウ素-131 及びセシウム-134、セシウム-137 等）が本調査でも検出された（表 2～表 4）。揮発性の高いヨウ素-131 については、試料を蒸発濃縮させているため、すべてを捕捉できているわけではなく参考値として取り扱う。図 5 には、原発事故後（平成 23 年 3 月上旬～平成 25 年 3 月）のセシウム-134、セシウム-137 について核種降下量と降水量の関係を示した。

ヨウ素-131 が検出されたのは平成 23 年 3 月中旬から、セシウム-134 及びセシウム-137 が検出されたのは平成 23 年 3 月下旬からであった。いずれの核種も平成 23 年 4 月中旬（4 月 11 日～20 日）に降下量が最大となり、セシウム-134 が 10. 8Bq/m²、セシウム-137 が 9. 9Bq/m² であった。

筆者らは既報において、金沢市太陽が丘の同地点で 24 時間採取した大気浮遊じん試料において、セシウム-134、セシウム-137 は平成 23 年 4 月 5、6、7、17、18 日に検出され、そのうち 4 月 7 日採取の試料（4 月 6 日

午前 9 時～7 日 9 時）で濃度が最大となっていたことを報告した¹⁾。降下量のピーク時期と大気浮遊じん中濃度のピーク時期にずれが見られたのは、4 月 6、7 日には降雨がなかったためセシウム-134、セシウム-137 の地表面への降下が少なかったが、4 月 18 日にはセシウム-134、セシウム-137 の飛来と降雨が重なったために地表面への降下量が多くなったと考えられた。

平成 23 年 5 月下旬に降下量はわずかであるが増加した。これは、降水量が増加したことや、平成 23 年 4 月中旬とは違う空気塊が飛来したこと等が原因と考えられた。その後、毎月漸減している傾向が見られた。半減期が約 8 日のヨウ素-131 は平成 23 年 5 月まで検出された。半減期が約 2 年のセシウム-134 は平成 23 年 9 月まで、半減期が約 30 年のセシウム-137 は平成 23 年 10 月まで連続して検出が続き、その後断続的に検出された。

平成 23 年 9 月以降、セシウム-134 と同時に検出されたセシウム-137 については、原発事故起源で既に採取地点周辺に飛来して一旦地表面に沈着していたものが、再度まき上げられ降下物としてとらえられた可能性がある。また、セシウム-134 が不検出の場合のセシウム-137 については、原発事故前の測定結果の範囲を超えるもの

ではないことから、原発事故の影響とは断定できなかった。

5 ま と め

これまでの 1 か月単位の調査により季節変動の傾向はある程度把握されていたが、試料採取を短期間に区切って通年にわたって実施した本調査により、黄砂が観測された平成 21 年 12 月 26 日及び平成 22 年 3 月 21 日を含む試料から年間降下量のそれぞれ 31.6% (カリウム-40), 72.9% (セシウム-137) が検出され、これらの核種の降下量に黄砂の飛来が大きく影響していることが考えられた。

また、東京電力(株)福島第一電子力発電所事故の影響を評価する際、従来の原電監視調査で実施している 1 か月単位の調査では分からなかったより詳細な降下量の変動を把握することができた。石川県においてヨウ素-131, セシウム-134, セシウム-137 の降下物中の濃度が最大になったのは、いずれの核種も平成 23 年 4 月中旬であった。

文 献

- 1) HAYAKAWA, Kazuichi, Editorial Supervisor/COE Program Leader: Past, Present and Future Environments of Pan-Japan Sea Region, 216-229, Maruzen Co., Ltd. (2006)
- 2) 岩坂泰信, 西川雅高, 山田丸, 洪天祥 編「黄砂」7.2 黄砂とともに運ばれるもの, 272-296, 古今書院, 東京 (2009)
- 3) Hideshi Fujiwara: Atmospheric deposition of radioactive cesium (^{137}Cs) associated with dust event in East Asia, Bull. Natl. Inst. Agro-Environ. Sci., 27, 85-115 (2010)
- 4) 中村能則, 藤井明洋, 小浦利弘, 吉本高志, 柿本均: 金沢市太陽が丘における放射性降下物の年間変動について, 石川県保健環境センター年報, 47, 84-87 (2010)
- 5) 文部科学省: 放射能測定法シリーズ 13, 「ゲルマニウム半導体検出器等を用いる機器分析のための試料の前処理法」(1982 年)
- 6) 文部科学省: 放射能測定法シリーズ 7, 「ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線ペクトロメトリー」(1992)
- 7) 山本政儀, 坂口綾, 五十嵐康人, 広瀬勝己, 青山道夫, C. K. Kim: Pb-210 及び Be-7 降下量の長期(1991-2002)・広域(2000-2001)観測-日本海域の特徴-, Proceedings of the Fourth Workshop on Environmental Radioactivity, High Energy Accelerator Research Organization, 101-108 (2003)
- 8) 気象庁: 気象庁ホームページ, [地球環境のデータバンク] 黄砂 http://www.data.kishou.go.jp/obs-env/kosahp/kosa_data_index.html
- 9) 董旭輝, 坂本和彦, 王欧璋, 劉紅傑, 張澄昌, 牛生傑, 陳躍: 中国砂漠地域における粒径別大気エアロゾル化学組成と酸緩衝能力, エアロゾル研究, 14 (3), 248-256 (1999)
- 10) 環境省: 環境省大気汚染物質広域監視システム <http://soramame.taiki.go.jp/> (2010 年 3 月 22 日)
- 11) 浜道啓太, 小谷口久美子, 藤井明洋, 横山暢, 柿本均: 石川県における福島第一原子力発電所事故の影響, 石川県保健環境センター年報, 49, 27-32 (2012)

〔短 報〕

MLVA による腸管出血性大腸菌の分子疫学的解析

石川県保健環境センター 健康・食品安全科学部 北川 恵美子・加藤 真美・山岸 喜信
川上 慶子

〔和文要旨〕

EHEC 感染症の疫学的解析における MLVA の有用性を検討するため、2011～2012 年度の EHEC O157 分離株を供試菌として MLVA と PFGE の結果を比較考察した。その結果、MLVA は PFGE より菌の変異をより鋭敏に表現し識別能力が高いことが認められた。また、MLVA 型の一致は菌の由来の同一性を強く示唆していると考えられ、MLVA は今後の EHEC の集団発生事例等における疫学的解明に有用であることが確認された。

キーワード：腸管出血性大腸菌，MLVA

1 はじめに

腸管出血性大腸菌 (*Enterohemorrhagic Escherichia coli*: 以下、EHEC) の集団発生事例および散在型集団発生事例への迅速対応を目的として、現在、国立感染症研究所 (以下、感染研)、地方衛生研究所で分離株のパルスフィールドゲル電気泳動 (Pulsed-field gel electrophoresis: 以下、PFGE) が実施されている。しかし、PFGE は手法が煩雑なうえに解析に長期間 (5 日) 要することなどの問題点がある。

一方、近年、DNA 多型解析法として EHEC の DNA に存在する繰り返し配列の繰り返し数 (Repeat Number: 以下、RN) を解析する Multiple-Locus Variable-Number Tandem repeat analysis (以下、MLVA) による分子疫学的解析が報告されている^{1)~5)}。本法は、迅速性、簡便性に優れており、数値化された解析であるため、施設間比較が容易であることが特徴である。

そこで、今回、著者らは 2011～2012 年度に石川県で発生した EHEC 感染症由来の分離株について MLVA を実施し、PFGE による解析結果と比較検討した。

2 材料と方法

2・1 供試菌株

使用した菌株は、2011 年 4 月から 2013 年 3 月までに石川県内で分離された EHEC O157 の 49 株である。菌の由来は保健所による疫学調査および PFGE の結果から同一感染源と推定された 7 事例 (事例番号 1～7) の 34 株 (家族内感染 3 事例 7 株、集団感染 3 事例 22 株、集団感染疑い 1 事例 5 株) と散発の 15 事例 (事例番号 8～22) の 15 株である。なお、事例番号とともに供試菌株の分離年月日、血清型、ベロ毒素 (VT) 型は表 1 に示した。

2・2 MLVA

Izumiya らの方法⁵⁾に従い解析を行った。すなわち、18 か所の遺伝子座 (表 2) について 2 種類のマルチプレックス PCR で増幅させ、Applied Biosystems 3500 ジェネティックアナライザ (ライフテクノロジーズ) で電気泳動を行い、GeneMapper Software (ライフテクノロジーズ) を用いてフラグメントサイズの算出および RN への換算を行った。なお、PCR で増幅産物が得られず、RN が解析不能な Null Allele の場合は、RN を「-2」で示した。

Molecular Epidemiology Analysis of Enterohemorrhagic *Escherichia coli* by Multiple-Locus Variable-Number Tandem Repeat Analysis by KITAGAWA Emiko, KATO Mami, YAMAGISHI Yoshinobu and KAWAKAMI Keiko (Health and Food Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Enterohemorrhagic *Escherichia coli*, Multiple-Locus variable-number tandem repeat analysis

表 1 供試菌株

| 事例番号 | 区分 | 分離年月日 | 株数 | 血清型 | VT 型 |
|------|------|---------------------|----|---------|--------|
| 1 | 家族 | 2011. 04. 03~04. 05 | 2 | O157:H7 | VT2 |
| 2 | 家族 | 2011. 06. 06~06. 11 | 2 | O157:H7 | VT1, 2 |
| 3 | 集団 | 2011. 10. 04~10. 20 | 18 | O157:H7 | VT2 |
| 4 | 集団疑い | 2012. 07. 20~09. 04 | 5 | O157:H- | VT1, 2 |
| 5 | 家族 | 2012. 10. 11~10. 12 | 3 | O157:H7 | VT1, 2 |
| 6 | 集団 | 2013. 02. 16~02. 21 | 2 | O157:H7 | VT2 |
| 7 | 集団 | 2013. 02. 22~02. 23 | 2 | O157:H7 | VT2 |
| 8 | 散発 | 2011. 06. 20 | 1 | O157:H- | VT1, 2 |
| 9 | 散発 | 2011. 06. 27 | 1 | O157:H7 | VT1, 2 |
| 10 | 散発 | 2011. 07. 06 | 1 | O157:H7 | VT1, 2 |
| 11 | 散発 | 2011. 07. 31 | 1 | O157:H7 | VT1, 2 |
| 12 | 散発 | 2011. 08. 24 | 1 | O157:H7 | VT1, 2 |
| 13 | 散発 | 2011. 08. 31 | 1 | O157:H7 | VT1, 2 |
| 14 | 散発 | 2011. 09. 09 | 1 | O157:H7 | VT1, 2 |
| 15 | 散発 | 2011. 09. 16 | 1 | O157:H7 | VT2 |
| 16 | 散発 | 2011. 09. 17 | 1 | O157:H7 | VT2 |
| 17 | 散発 | 2011. 09. 20 | 1 | O157:H7 | VT2 |
| 18 | 散発 | 2011. 09. 21 | 1 | O157:H7 | VT2 |
| 19 | 散発 | 2011. 10. 24 | 1 | O157:H7 | VT2 |
| 20 | 散発 | 2012. 07. 12 | 1 | O157:H7 | VT1, 2 |
| 21 | 散発 | 2012. 07. 19 | 1 | O157:H7 | VT1, 2 |
| 22 | 散発 | 2012. 08. 31 | 1 | O157:H7 | VT1, 2 |

表 2 MLVA に用いた遺伝子座の情報

| PCR Mix | No. | 遺伝子座 | 繰り返しサイズ (bp) | オフセット (bp) |
|---------|-----|----------|--------------|------------|
| Mix1 | 1 | O157-3 | 6 | 323 |
| | 2 | O157-9 | 6 | 465 |
| | 3 | O157-25 | 6 | 110 |
| | 4 | O157-34 | 18 | * |
| | 5 | EH157-12 | 9 | 314 |
| | 6 | EH111-11 | 6 | 422 |
| | 7 | EH111-8 | 9 | 163 |
| | 8 | EHC-1 | 6 | 75 |
| | 9 | EHC-2 | 6 | 214 |
| | 10 | EHC-5 | 6 | 109 |
| Mix2 | 11 | O157-10 | 6 | 350 |
| | 12 | O157-17 | 6 | 121 |
| | 13 | O157-19 | 6 | 273 |
| | 14 | O157-37 | 6 | 84 |
| | 15 | O157-36 | 7 | 102 |
| | 16 | EH26-7 | 22 | 292 |
| | 17 | EH111-14 | 7 | 154 |
| | 18 | EHC-6 | 9 | 387 |

* O157, O111は141, O26は135

2・3 PFGE

感染研で実施し、型別された結果を用いた。

3 結 果

3・1 集団および家族内感染事例

同一感染源と推定された 7 事例 34 株について MLVA を実施した。その結果を表 3 に示したが、各事例において主な MLVA 型を上段に示し、その下段に型別が異なる菌株の解析結果を示した。なお RN が同一の場合は「-」で示した。

事例番号 1, 2, 6, 7 の 4 事例については、PFGE およ

び MLVA 型は事例ごとに同一であった。事例番号 4 については、PFGE 型は 5 株全て同一 (h89) であったが、MLVA 型は 1 株で遺伝子座 O157-3 の RN が 1 異なった。事例番号 5 については、3 株のうち 1 株は PFGE 型で 1 バンド違い (e807, h128) であったが、MLVA 型は同一であった。事例番号 3 については、18 株のうち 1 株は PFGE 型で 1 バンド違い (g446, g382) であったが、MLVA 型は同一であった。一方、PFGE が同一 (g446) であった 17 株のうち 13 株は MLVA 型も同一であったが、4 株は MLVA 型が異なり、遺伝子座 O157-9 では RN が 1, O157-10 では RN が 1~5 異なった。また、遺伝子座 EHC-

表3 MLVA および PFGE による分子疫学解析結果 (集団または家族内感染事例)

| 事例番号 | VT 型 | 各遺伝子座における MLVA RN | | | | | | | | | | | | | | | | PFGE 型別 | | | | | | | | | |
|------|-------|-------------------|-------|-------|--------|--------|--------|--------|------|------|------|-------|-------|-------|-------|-------|--------|---------|------|----|---|---|----|----|----|--------|-------|
| | | O157- | O157- | O157- | EH157- | EH111- | EH111- | EH111- | EHC- | EHC- | EHC- | O157- | O157- | O157- | O157- | EH26- | EH111- | | EHC- | | | | | | | | |
| 1 | VT2 | 3 | 9 | 14 | 3 | 9 | 6 | 2 | 1 | 16 | 4 | 4 | 2 | 5 | 10 | 17 | 19 | 37 | 36 | 8 | 8 | 7 | 14 | 6 | -2 | g23 | |
| 2 | VT1,2 | 2 | 11 | 11 | 5 | 11 | 4 | 2 | 1 | 5 | 4 | 4 | 2 | 4 | 18 | 8 | 6 | 7 | 11 | 11 | 5 | 5 | 7 | 14 | -2 | g59 | |
| 3 | VT2 | 13 | -2 | 9 | 2 | 10 | 1 | 2 | 1 | 6 | 6 | 6 | 2 | -2 | 32 | 3 | 7 | 5 | 5 | 5 | 5 | 5 | 5 | 5 | -2 | g446 | |
| | | 1 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | g382* |
| | | 1 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | 34 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | g446 |
| | | 1 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | 37 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | g446 |
| | | 1 | - | 10 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | 33 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | g446 |
| 4 | VT1,2 | 4 | 20 | 8 | 3 | 10 | 4 | 2 | 1 | 8 | 5 | 5 | -2 | 25 | 7 | 6 | 6 | 6 | 6 | 6 | 6 | 6 | 6 | 6 | -2 | h89 | |
| 5 | VT1,2 | 2 | 8 | 11 | 5 | 12 | 4 | 2 | 1 | 6 | 4 | 4 | -2 | 36 | 7 | 6 | 6 | 6 | 6 | 6 | 6 | 6 | 6 | 6 | -2 | e807 | |
| 6 | VT2 | 2 | 6 | 11 | 4 | 10 | 6 | 2 | 1 | 7 | 4 | 4 | -2 | 15 | 3 | 9 | 5 | 5 | 5 | 5 | 5 | 5 | 5 | 5 | -2 | h128** | |
| 7 | VT2 | 2 | 6 | 11 | 4 | 10 | 6 | 2 | 1 | 7 | 4 | 4 | -2 | 15 | 3 | 9 | 5 | 5 | 5 | 5 | 5 | 5 | 5 | 5 | -2 | i3 | |

* : g382 は g446 と 1 バンド違い

** : h128 は e807 と 1 バンド違い

表4 MLVA および PFGE による分子疫学解析結果 (散発事例)

| 事例番号 | VT 型 | 各遺伝子座における MLVA RN | | | | | | | | | | | | | | | | PFGE 型別 | | | | | | | | | |
|------|-------|-------------------|-------|-------|--------|--------|--------|--------|------|------|------|-------|-------|-------|-------|-------|--------|---------|------|---|---|---|---|---|----|--------|------|
| | | O157- | O157- | O157- | EH157- | EH111- | EH111- | EH111- | EHC- | EHC- | EHC- | O157- | O157- | O157- | O157- | EH26- | EH111- | | EHC- | | | | | | | | |
| 8 | VT1,2 | 4 | 10 | 4 | 9 | 4 | 4 | 2 | 1 | 6 | 5 | 5 | -2 | 9 | 8 | 7 | 10 | 4 | 4 | 4 | 4 | 4 | 4 | 4 | -2 | g150 | |
| 9 | VT1,2 | 10 | 14 | 5 | 12 | 4 | 4 | 2 | 1 | 7 | 4 | 4 | -2 | 45 | 12 | 6 | 6 | 7 | 6 | 6 | 6 | 6 | 6 | 6 | 6 | -2 | g113 |
| 10 | VT1,2 | 10 | 16 | 6 | 11 | 4 | 4 | 2 | 1 | 4 | 4 | 4 | 8 | 32 | 10 | 5 | 12 | 7 | 7 | 7 | 7 | 7 | 7 | 7 | -2 | g116 | |
| 11 | VT1,2 | 13 | 16 | 5 | 11 | 4 | 4 | 2 | 1 | 5 | 4 | 4 | 14 | 29 | 7 | 4 | 6 | 6 | 6 | 6 | 6 | 6 | 6 | 6 | -2 | f93 | |
| 12 | VT1,2 | 10 | 12 | 5 | 13 | 4 | 4 | 2 | 1 | 6 | 4 | 4 | -2 | 44 | 10 | 7 | 8 | 8 | 6 | 6 | 6 | 6 | 6 | 6 | -2 | e579 | |
| 13 | VT1,2 | 14 | 15 | 5 | 12 | 4 | 4 | 2 | 1 | 5 | 4 | 4 | -2 | 26 | 5 | 4 | 6 | 6 | 6 | 6 | 6 | 6 | 6 | 6 | -2 | g447 | |
| 14 | VT1,2 | 13 | 15 | 5 | 12 | 4 | 4 | 2 | 1 | 5 | 4 | 4 | -2 | 24 | 5 | 4 | 6 | 6 | 6 | 6 | 6 | 6 | 6 | 6 | -2 | g448 | |
| 15 | VT2 | 13 | 8 | 5 | 9 | 7 | 7 | 2 | 1 | 6 | 4 | 4 | -2 | 32 | 4 | 6 | 9 | 9 | 9 | 9 | 9 | 9 | 9 | 9 | -2 | g373* | |
| 16 | VT2 | 13 | 7 | 5 | 9 | 7 | 7 | 2 | 1 | 6 | 4 | 4 | -2 | 32 | 4 | 6 | 9 | 9 | 9 | 9 | 9 | 9 | 9 | 9 | -2 | g372 | |
| 17 | VT2 | 13 | 7 | 5 | 9 | 7 | 7 | 2 | 1 | 6 | 4 | 4 | -2 | 32 | 4 | 6 | 9 | 9 | 9 | 9 | 9 | 9 | 9 | 9 | -2 | g372 | |
| 18 | VT2 | 13 | 7 | 5 | 9 | 7 | 7 | 2 | 1 | 6 | 4 | 4 | -2 | 32 | 4 | 6 | 9 | 9 | 9 | 9 | 9 | 9 | 9 | 9 | -2 | g372 | |
| 19 | VT2 | 13 | 7 | 5 | 9 | 7 | 7 | 2 | 1 | 6 | 4 | 4 | -2 | 32 | 4 | 6 | 9 | 9 | 9 | 9 | 9 | 9 | 9 | 9 | -2 | g445** | |
| 20 | VT1,2 | 8 | 11 | 5 | 11 | 4 | 4 | 2 | 1 | 6 | 4 | 4 | -2 | 39 | 7 | 6 | 6 | 6 | 6 | 6 | 6 | 6 | 6 | 6 | -2 | e807 | |
| 21 | VT1,2 | 8 | 11 | 5 | 11 | 4 | 4 | 2 | 1 | 6 | 4 | 4 | -2 | 40 | 7 | 6 | 6 | 6 | 6 | 6 | 6 | 6 | 6 | 6 | -2 | e807 | |
| 22 | VT1,2 | 12 | 9 | 4 | 12 | 4 | 4 | 2 | 1 | 6 | 4 | 4 | 12 | 33 | 6 | 6 | 6 | 6 | 6 | 6 | 6 | 6 | 6 | 6 | -2 | h339 | |

* : g373 は g372 と 2 バンド違い

** : g445 は g372 と 1 バンド違い

6では17株がPCRで増幅されないNull Alleleであったが、1株はRNが12であった。

なお、各事例間における比較では、PFGE型が同一であった事例番号6, 7を除き、MLVA型は事例ごとに明らかに異なっていた。

3・2 散発事例

散発の15事例15株についてMLVAを実施した。その結果を表4に示した。

PFGEでは、「疫学的に関連のある事例においては3バンド以内の違いの菌株は、ほぼ確実に同じ由来である」という解釈基準がある⁶⁾。それに従うと事例番号15~19についてはPFGE型がほぼ同一と見なすことができる。これら事例番号15~19については、MLVA型は4株が同一であり、1株は遺伝子座O157-9でRNが1異なった。また、PFGE型が同一であった事例番号20, 21については、O157-10でRNが1異なった。さらにこの事例番号20, 21については、前述の事例番号5(家族内感染)とPFGE型が同一(e807)であったが、MLVA型は遺伝子座O157-10でRNが3~4異なり、O157-34でRNが1異なった。

一方、PFGE型が異なる(4バンド以上の違い)散発事例の事例番号8~14と22のMLVA型は、3箇所以上の遺伝子座においてRNが異なり、多様性がみられた。

4 考 察

MLVAによるEHEC感染症の原因究明や疫学的解明への有用性を検討するため、EHEC O157分離株を用いて、現在の標準的方法であるPFGEと比較した。

その結果、全事例において、PFGE型が異なる事例のMLVA型は3箇所以上の遺伝子座でRNが異なっていた。

一方、疫学的関連性とPFGEの結果から同一感染源と推定された7事例(事例番号1~7)のうち5事例(事例番号1, 2, 5, 6, 7)は同一のMLVA型であった。これに対し事例番号4では遺伝子座O157-3で、事例番号3ではO157-9, O157-10でRNが異なった。これらの遺伝子座は多様性が高く、特にO157-10は高頻度に変異が起こる遺伝子座と報告されている^{1), 5)}。これらのことからMLVAはPFGEより鋭敏に変異をとらえ、識別能力が高いという特徴が示された。このように疫学的に関連性があるにもかかわらず、多様性の高い遺伝子座でのみRNが異なった場合には、PFGEの結果と併せて結果の解釈や判断を行う必要があると思われた。逆に、上記5事例のように全ての遺伝子座でRNが一致すれば、同じ由来であることを強く裏付けることが可能であると考えられた。

散発事例の中でもPFGE型が3バンド以内の違い(ほぼ同じ由来とされる)の事例(事例番号15~19, 5およ

び20~21)がみられた。これらのMLVA型は、同一であった事例もあったが、多様性の高い遺伝子座O157-9, O157-10に加え、それほど多様性の高くない遺伝子座O157-34でもRNが異なった事例があった。RNが異なった事例については、同じ由来からくるわずかな変異なのか、それともPFGEと比較して、より詳細に由来の違いを示しているのかは解釈が難しい。今後、事例数を増やし、PFGEとの比較とともに各遺伝子座の変異頻度等について検討する必要があると思われた。

MLVAは菌分離当日に結果が得られ、PFGEより迅速な利点がある。実際に事例番号6, 7については、同時期に2施設で発生したことから、MLVAの結果(同一)を行政に提供したところ、疫学調査結果と併せ、同一感染源による食中毒と推測され、調査の結果、原因食品を推定できた事例であった。このように、MLVAは食中毒などの集団発生事例に対し、迅速で有用な手法であると思われた。さらにMLVAの高い識別能力は、疫学的関連性が不明の散発型集団発生(diffuse outbreak)事例等の解明にも有用と考えられ、今後多くの事例に活用し迅速で的確な行政対応に寄与したいと考えている。

5 ま と め

MLVAによるEHEC感染症の原因究明や疫学的解明への有用性を検討するため、2011~2012年度に分離されたEHEC O157を用いてMLVAを実施し、現在の標準的方法であるPFGEの結果と比較した。

(1) 集団および家族内感染事例

7事例中5事例は同一MLVA型であったが、2事例は多様性の高い遺伝子座でのみRNが異なっていた。このような場合は、PFGEの結果と併せて判断する必要があると思われた。一方、MLVA型が同一であれば、同じ由来であることを強く裏付けることが可能であり、食中毒などの集団発生事例等に対し有用なことが明らかとなった。

(2) 散発事例

PFGE型がほぼ同一(3バンド以内の違い)である散発事例においては、MLVA型が同一の事例と1~2の遺伝子座でRNが異なる事例がみられた。RNの違いは多様性の高くない遺伝子座でもみられたことから、今後、事例数を増やし遺伝子座ごとの変異頻度の検討が必要と思われた。一方、MLVAの高い識別能力は、散発型集団発生事例等の解明にも有用と考えられた。

本研究を実施するにあたり、PFGEの実施および解析結果をいただいた国立感染症研究所細菌第一部の寺嶋淳先生に深謝いたします。また、MLVAの解析についてご教示いただきました国立感染症研究所細菌第一部の泉谷秀昌先生に深謝いたします。

文 献

- 1) HYYTIA-TREES, E. , SMOLE, S. C. , FIELDS, P. A. , SWAMINATHAN, B. and RIBOT, E. M. : Second generation subtyping : A proposed PulseNet protocol for Multiple-locus variable-number tandem repeat analysis of Shiga toxin-producing *Escherichia coli* O157 (STEC O157), *Foodborne Pathogens and Disease*, **3**, 118-131 (2006)
- 2) PEI, Y. , TERAJIMA, J. , SAITO, Y. , SUZUKI, R. , NOBUKO, T. , IZUMIYA, H. , MORITA-ISHIHARA, T. , OHNISHI, M. , MIURA, M. , IYODA, S. , MITOBE, J. , WANG, B. and WATANABE, H. : Molecular Characterization of Enterohemorrhagic *Escherichia coli* O157 : H7 Isolates Dispersed across Japan by Pulsed-Field Gel Electrophoresis and Multiple-Locus Variable Number Tandem Repeat Analysis, *Japanese Journal of Infectious Diseases*, **61**, 58-64 (2008)
- 3) 榮井毅, 田邊純子, 橋田みさを, 大前壽子 : 腸管出血性大腸菌 O157 に関する 3 種の遺伝子型別法の比較, *奈良県保健環境研究センター年報*, **44**, 45-48 (2009)
- 4) 末永朱美, 田中寛子, 蔵田和正, 花木陽子, 毛利好江, 野田衛, 石村勝之, 池田義文, 笠間良雄, 吉岡嘉暁 : 広島市で分離された腸管出血性大腸菌 O157:H7 の分子疫学的解析, *広島県獣医学会雑誌*, **25**, 75-79 (2010)
- 5) IZUMIYA, H. , PEI, Y. , TERAJIMA, J. , OHNISHI, M. , HAYASHI, T. , IYODA, S. and WATANABE, H. , : New system formultilocus variable-number tandem-repeat analysis of the enterohemorrhagic *Escherichia coli* strains belonging to three major serogroups : O157, O26, and O111, *Microbiology and Immunology*, **54**, 569-577 (2010)
- 6) Tenover, F. C. , ARBEIT, R. D. , GOERING, P. A. , MICKLSEN, P. A. , MURRAY, B. E. , PERSING, D. H. and SWAMINATHAN, B. : Interpreting Chromosomal DNA Restriction Patterns Produced by Pulsed-Field Gel Electrophoresis ; Criteria for Bacterial Strain Typing, *Journal of Clinical Microbiology*, **33**, 2233-2239 (1995)

〔短 報〕

クレオソート油を含有する家庭用木材防腐剤の 分子インプリントポリマーを用いた前処理法について

石川県保健環境センター 健康・食品安全科学部 金戸 恵子・石本 聖・小西 秀則
浅田 征彦

〔和文要旨〕

クレオソート油を含有する家庭用木材防腐剤に含まれる、ベンゾ[a]アントラセン、ベンゾ[a]ピレンおよびジベンゾ[a,h]アントラセンの分析法について、これら目的化合物に対して突出した分子選択性を持つことが知られる分子インプリントポリマーを用いて前処理法を検討した。その結果、これらの物質を認識する分子インプリントポリマーを用い、カラム充填量を 250mg、溶出液量を 10mL としたとき、夾雑物の影響もなく、定量下限値は基準値の 1/10 以下、回収率は 68.5%~108.6%と良好な結果が得られた。

キーワード：分子インプリントポリマー、クレオソート油、家庭用木材防腐剤

1 はじめに

筆者らは、「有害物質を含有する家庭用品の規制に関する法律」(以下、家庭用品規制法)に係る家庭用品の検査の中で、「クレオソート油を含有する家庭用の木材防腐剤及び木材防虫剤」(以下、家庭用木材防腐剤)の検査を行っている。

クレオソート油は、多種類の多環状芳香族炭化水素(以下、PAH)を含有する混合油である。PAHには発がん性が問題とされているものもあり、厚生労働省は、健康被害リスクの軽減の観点から、家庭用品規制法で、ベンゾ[a]アントラセン(以下、BaA)、ベンゾ[a]ピレン(以下、BaP)、ジベンゾ[a,h]アントラセン(以下、DBA)を規制物質に指定し、分析法を公示している¹⁾。

公示の分析法は、試料をシリカゲルカラムに負荷した後、ジクロロメタンで溶出させ、ガスクロマトグラフ質量分析装置で定量するものである。しかしこの方法では、対象物質や内部標準物質のイオンピークに夾雑物による妨害ピークが重なり、定量に支障をきたすことがあった。

近年、試料由来の夾雑物をより効果的に除去できる、分子インプリントポリマー(以下、MIP)と呼ばれる樹脂の開発報告が相次いでいる(図1)。MIPとは、目的化合物を「鍵」とすると、分子レベルで立体的かつ選択的に目的化合物を認識する「鍵穴」を持つ樹脂である。この樹脂は、従来からあるシリカゲルやイオン交換樹脂などと比べて、分子選択的な点で前処理に有用と考えられる。そこで、今回、家庭用木材防腐剤を対象として、規

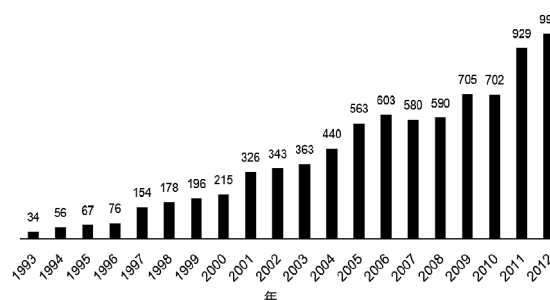


図1 新規MIP樹脂開発の論文報告数の年次推移

(出典: http://mipdatabase.com/all_items.php, 平成25年11月30日)

Pretreatment Method of Harmful Substances in Household Wood Preservative Containing Creosote Oil using Molecular Imprinted Polymer. by KANETO Keiko, ISHIMOTO Takashi, KONISHI Hidenori and ASADA Yukuhiko (Health and Food Safety Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Molecular Imprinted Polymer, Creosote Oil, Household Wood Preservative

制物質を認識する MIP を用いた前処理法について検討したところ若干の知見を得たので報告する。

2 試験方法

2・1 試料および試薬

- (1) 試料：BaA, BaP および DBA を含まない家庭用木材防腐剤 3 製品（異なるメーカー，A 社，B 社，C 社製）を用いた。
- (2) 標準原液：BaA, BaP および DBA は Sigma Aldrich 社製の 200 μg/mL ジクロロメタン溶液を用いた。
- (3) 混合標準原液および混合標準液：BaA, BaP および DBA 標準原液それぞれ 0.5mL（各 100 μg）を正確に量り混合し，窒素パージによりジクロロメタンを除去後，アセトニトリル/ベンゼン = 3:1 (v/v) 混液を加えて正確に 20 mL とし，これを混合標準原液（各 5 μg/mL）とした。この液 1mL を，アセトニトリル/ベンゼン = 3:1 (v/v) 混液で正確に 50mL とし，これを混合標準液（各 0.1 μg/mL）とした。

なお，試料に混合標準原液を添加する場合にあっては，アセトニトリル/ベンゼン = 3:1 (v/v) 混液に代えてシクロヘキサンを用いて調製した。

- (4) 試薬：アセトニトリルは HPLC 用（和光純薬），ベンゼン（和光純薬），酢酸エチル（和光純薬）およびジクロロメタン（関東化学）は残留農薬用，シクロヘキサン（和光純薬）は特級を用いた。
- (5) MIP カラム：必要とする充填剤量のカラムが市販されていないため，SUPELCO 社製 Supe1 MIP PAHs (50 mg) の充填剤を取り出し，固相抽出用チューブに乾式充填法で，下からフリッツ，充填剤，フリッツの順に積層して作製した。カラムは，シクロヘキサン 10mL でコンディショニングした後，使用した。

なお，MIP 内に残留した鑄型分子が，BaA, BaP および DBA の測定に影響を及ぼさないことをあらかじめ確認した。

表 1 高速液体クロマトグラフ装置および測定条件

| | |
|---------|--|
| 使用機器 | 島津製作所製 LC-20AD |
| 検出器 | 島津製作所製 RF-10AXL |
| カラム | 和光純薬工業製 Wakosil-PAHs (4.6 x 250 mm, 5μm) |
| カラム温度 | 40℃ |
| 移動相 | アセトニトリル/水 = 70/30 (v/v%) |
| 流速 | 1.5 mL/min |
| 注入量 | 10 μL |
| 検出器測定条件 | 下記，波長タイムプログラムのとおり |

| | |
|---|--------------------------|
| 蛍光検出器の波長タイムプログラム | |
| (初期条件) Ex.: 287 nm, Em.: 387 nm, 時定数: 1.5, RANGE: x1, 感度: 中 | |
| 時間 (分) | 処理命令 |
| 13:00 | Ex.: 287 nm, Em.: 387 nm |
| 13:05 | AUTO ZERO |
| 21:00 | Ex.: 296 nm, Em.: 406 nm |
| 21:05 | AUTO ZERO |
| 28:00 | Ex.: 300 nm, Em.: 396 nm |
| 28:05 | AUTO ZERO |
| 30:01 | STOP |

2・2 測定方法，装置および測定条件

測定方法は，和田らの報告²⁾を参考として，蛍光検出器付高速液体クロマトグラフ法を用いた。装置および測定条件は表 1 のとおりである。

2・3 試験液の調製

試験液の調製は，SUPELCO 社製 Supe1 MIP PAHs カラムに添付された手順を参考に，若干手順を変更し実施した。試料約 0.5g をシクロヘキサン 100mL で定容後，その 1mL をカラムに負荷した。負荷後，シクロヘキサン 20mL でカラムを洗浄し，酢酸エチル 10mL で溶出を行った。得られた溶出液は，エバポレータによる減圧濃縮および窒素パージにより酢酸エチルを除去した後，アセトニトリル/ベンゼン = 3:1 (v/v) 混液を加え 1mL に定容した。その液を孔径 0.45 μm のフィルターに通して試験液とした。フローチャートを図 2 に示す。

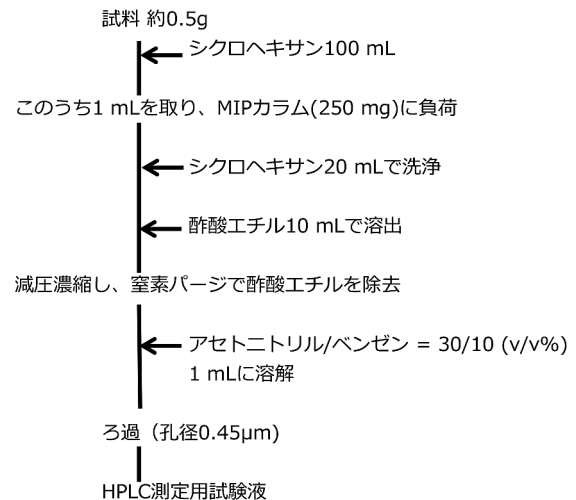


図 2 MIP カラムを用いた前処理法

3 結果および考察

3・1 充填剤量

充填剤の必要量を検討するため，混合標準原液 1mL（基準値 10 μg/g に相当）を添加した A 社製品を用い，2・3 の操作後の回収率を算出した。なお，MIP カラムからの溶出液量は 25mL とした。

はじめに，SUPELCO 社から市販されている Supe1 MIP PAHs (50mg) で検討をおこなったが，BaA, BaP および DBA 回収率がそれぞれ，15.3%，27.7%，33.1% と低く，市販の 50mg では，充填量が不十分であったと考えられた。

そこで，2・1(5)により 100mg, 150mg および 250mg の 3 種の充填剤量のカラムを作製し，同様に操作し回収率を求めたところ，表 2 に示すとおり，充填剤量 250mg の場合，BaA, BaP および DBA 回収率はそれぞれ，72.8%，109.0%，109.3% と良好な結果が得られた。この結果が

ら、充填剤量は 250mg とし、以下の検討に用いた。

3・2 溶出液量

MIP カラムにおける溶出挙動を調べるため、基準値に相当する量の BaA, BaP および DBA を添加した A 社製の製品を用い 2・3 の手順で試験液を調製し、溶出液量 25 mL までの溶出量の総和を 100 としたときの、5mL 毎の各画分における溶出割合を求めた。結果を表 3 に示す。

目的物質は、第 1 画分で 98.7%~99.2% と、ほとんど溶出しているの、溶出液量は 10mL とした。

3・3 検量線

混合標準液を段階的にアセトニトリル/ベンゼン=3:1 (v/v) で希釈した溶液を高速液体クロマトグラフで測定し、得られたクロマトグラムのピーク面積から、絶対検量線法により検量線を作成した。BaA, BaP および DBA の検量線はいずれも 0.005~0.1 μg/mL の濃度範囲で良好な直線性を示すことを確認した (r = 0.999)。

3・4 検出限界・定量下限

混合標準原液 10 倍希釈液 1mL (基準値 1/10 の 1 μg/g

表 2 カラム充填剤量と回収率

| カラム充填剤量 | 回収率 (%) | | |
|---------|---------|-------|-------|
| | BaA | BaP | DBA |
| 100 mg | 17.6 | 67.8 | 78.9 |
| 150 mg | 38.3 | 87.4 | 92.8 |
| 250 mg | 72.8 | 109.0 | 109.3 |

表 3 酢酸エチル各溶出画分中の目的物質の溶出割合

| 溶出画分 | 溶出割合 (%) | | |
|-----------------|----------|------|------|
| | BaA | BaP | DBA |
| 第1画分 (0~ 5 mL) | 99.2 | 98.7 | 99.0 |
| 第2画分 (5~10 mL) | 0.6 | 1.0 | 0.8 |
| 第3画分 (10~15 mL) | 0.2 | 0.2 | 0.2 |
| 第4画分 (15~20 mL) | 0 | 0.1 | 0 |
| 第5画分 (20~25 mL) | 0 | 0 | 0 |

表 4 検出限界・定量下限 (n=5)

| 物質名 | 平均 (μg/mL) | 標準偏差 σ | C.V (%) | 検出限界濃度 3σ | 定量下限濃度 10σ | 試料濃度換算値 (μg/g) |
|-----|---------------|-----------|------------|--------------|---------------|-------------------|
| BaA | 0.0056 | 0.000049 | 0.9 | 0.00015 | 0.00049 | 0.098 |
| BaP | 0.0058 | 0.000034 | 0.6 | 0.00010 | 0.00034 | 0.067 |
| DBA | 0.0058 | 0.000022 | 0.4 | 0.00007 | 0.00022 | 0.044 |

表 5 添加回収試験の結果

| 製品 | 回収率 (%) | | |
|------|---------|-------|-------|
| | BaA | BaP | DBA |
| A社製品 | 72.8 | 109.0 | 109.3 |
| B社製品 | 67.2 | 107.6 | 106.8 |
| C社製品 | 65.6 | 109.2 | 107.5 |
| 平均 | 68.5 | 108.6 | 107.9 |
| SD | 3.8 | 0.9 | 1.3 |

に相当)を添加した A 社製の製品を用いて、2・3 の操作により試験液の調製を行い、検出限界・定量下限を求めた (n=5)。結果を表 4 に示す。

その結果、検出限界値 (3σ) は、それぞれ BaA が 0.15 ng/mL, BaP が 0.10ng/mL および DBA が 0.07ng/mL であった。定量下限値 (10σ) は、それぞれ BaA が 0.49ng/mL, BaP が 0.34ng/mL および DBA が 0.22ng/mL となり、これらの値を家庭用木材防腐剤の試料中濃度に換算すると、それぞれ 0.098 μg/g, 0.068 μg/g, 0.044 μg/g となる。

これら規制物質の定量下限値は、基準値 (10 μg/g) の 1/10 を十分に下回り信頼性を有していることを確認した。

3・5 添加回収試験

3 社の家庭用木材防腐剤それぞれに基準値に相当する量の BaA, BaP および DBA を添加し、2・3 の手順で試験液を調製して添加回収試験を行った。結果を表 5 に示す。BaA の平均回収率は 65.6%~72.8% (標準偏差; 3.8) と少し低いが、BaP および DBA では、それぞれ 107.6%~109.2% (標準偏差; 0.9) および 106.8%~109.3% (標準偏差; 1.3) と良好であった。これは、BaA は他の物質に比べて分子量が小さく、沸点がやや低いためではないかと考えられた。

4 まとめ

MIP カラムを用いた家庭用木材防腐剤の前処理法を検討した。

- 1) 充填剤量を 250mg とすると良好な結果が得られた。
- 2) 溶出液量は、10mL が適当であった。
- 3) 定量下限値は、基準値 (10 μg/g) の 1/10 を下回ることを確認した。
- 4) 回収率は 68.5%~108.6% と概ね良好な結果であった。

以上のことから、今回検討した MIP カラムを用いた前処理法は、家庭用木材防腐剤の規制物質の検査を行う際に活用できるものと考えられる。

文 献

- 1) 平成 16 年 6 月 15 日厚生労働省令第 104 号
- 2) 和田好生, 筒井達也, 塩見哲生, 井本幸子, 出口夫美子, 伴創一郎, 伴埜行則, 稲田眞之助, 川勝剛志: 蛍光検出器付 HPLC による家庭用クレオソート油含有木材防腐剤及びクレオソート油で処理された防腐木材中の有害物質の分析について, 京都市衛生公害研究所年報, 72, 116-121 (2006)

〔短 報〕

アレルギー物質を原材料として含む加工食品 からのDNA検出法に関する検討

石川県保健環境センター 健康・食品安全科学部

石本 聖・浅田 征彦・小西 秀則
金戸 恵子

〔和文要旨〕

原材料に小麦を含む加工食品で、スクリーニング検査のELISA法で陽性にもかかわらず、確認検査のPCRで植物/小麦DNAのいずれも検出できなかった事例について、PCR阻害物質の影響を軽減する方法を検討したところ、PCR阻害物質除去カラム「One Step PCR Inhibitor Removal Kit」によるDNA抽出液の精製や、「KAPA 3G Plant DNA ポリメラーゼ」を用いたPCRが有用であった。

キーワード：PCR, アレルギー物質, 小麦, 加工食品, PCR阻害物質除去カラム, DNAポリメラーゼ

1 はじめに

アレルギー物質を含む加工食品による健康危害の発生を防止する観点から、厚生労働省は、発症例数が多く、重篤度が高い、7品目（えび、かに、小麦、そば、卵、乳および落花生）を特定原材料として指定し、これらを含む加工食品に、その表示を義務付けている¹⁾。

表示を検証するための検査方法は通知²⁻⁴⁾で示され、スクリーニング検査として2種類のキットを用いたELISA法を行い、そのうちどちらか一方のキットが陽性の場合には確認検査を行う。7品目のうち、えび、かに、小麦、そばおよび落花生の確認検査はPCRで行う。PCRは、極めて微量のDNA試料から特定のDNA断片を大量に増幅できる点で優れた方法であるが、PCR阻害物質の影響を受けると、PCR産物量が大幅に減少するという欠点がある。

当センターでは平成20年度～22年度の調査研究^{5,6)}で、種々の加工食品についてDNA抽出法を検討した。その研究の中で、小麦を主原料として含むカレールウの一部の製品において、小麦スクリーニング検査でELISA陽性にもかかわらず、確認検査のPCRで通知^{2,3)}で示された3種のDNA抽出方法では、PCRで植物/小麦DNAのいずれも検出できない事例（以下、検出不能事例）を報告した。

カレールウは、油脂や糖類の含有量が多く、これらによりPCRが阻害されていることが考えられるため、阻害物質による影響軽減方法を今後の検討課題とした⁶⁾。

今回、この事例の解決に向け、①PCR阻害物質を効果的に除去できることが謳われている「One Step PCR Inhibitor Removal Kit」（以下、PCR阻害物質除去カラム）によるDNA抽出液の精製、②PCR阻害物質に対する耐性の向上が謳われている「KAPA 3G Plant DNA ポリメラーゼ」を用いたPCRの2つの視点から、前述の検出不能事例への適用の可能性について検討したので報告する。

2 材料と方法

2-1 試料

既報⁶⁾の小麦検出不能事例の中から、カレールウK（中辛）およびカレールウKスペシャル（中辛）の2製品を用いた。PCR陽性試料には、通知^{2,3)}の方法で植物/小麦DNAのいずれも検出できたカレールウT（中辛）を用いた。

2-2 DNAの抽出

DNAの抽出は、イオン交換樹脂タイプのキット Genomic-Tip20/G（QIAGEN社製）を用いた。操作は、通知⁴⁾および既報^{5,6)}の方法に従った。

Study of DNA Detection Method for Allergenic Substance in Processed Foods. *by* ISHIMOTO Takashi, ASADA Yukuhiko, KONISHI Hidenori and KANETO Keiko (Health and Food Safety Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : PCR, Allergenic Substance, Wheat, Processed Food, PCR Inhibitor Removal Column, DNA Polymerase

2・3 DNA の精製度の確認と定量

DNA 精製度の確認と定量は、分光光度計を用いて通知⁴⁾および既報^{5,6)}の方法に従った。

2・4 PCR 阻害物質除去カラムによる精製

PCR 阻害物質除去カラムは、One Step PCR Inhibitor Removal Kit (ZYMO RESEARCH 社製) を用いた。操作は、キットに添付されたプロトコールに従った。すなわち、カラムをキット付属の遠沈管に移し、室温下、8,000g の条件で3分間遠心し、カラム保存液を捨てる。次いで、カラムを別の遠沈管に移し、予め TE 緩衝液 (各最終濃度 10mM Tris/塩酸, 1mM EDTA (pH 8.0)) で、20ng/ μ L の濃度に希釈調整しておいた DNA 抽出液 50 μ L をカラムに負荷し、室温下、8,000g の条件で1分間遠心した。この溶出液を DNA 溶液とした。

2・5 定性 PCR

定性 PCR のポリメラーゼとして、AmpliTaq Gold & 10 xPCR Buffer II/MgCl₂ with dNTP (アプライドバイオシステムズ社製) または、KAPA 3G Plant PCR Kit (KAPA BIOSYSTEMS 社製, 日本ジェネティクス株式会社より試供品として提供されたもの) を用いた。小麦検出用プライマーおよびポジティブコントロールテンプレートは、アレルゲンチェッカー小麦 (オリエンタル酵母工業社製) に添付されているものを用いた。鋳型 DNA 溶液は、2・2 の手順で得られた DNA 溶液を TE 緩衝液で 20ng/ μ L に希釈調整して検査に供した。なお、カラム精製 DNA 溶液は 2・4 の手順で得られた DNA 溶液をそのまま検査に供した。PCR 反応溶液は、全量 25 μ L の系で調製し、その組成 (終濃度) および反応条件を、それぞれ表 1 と表 2 に示した。

表 1 PCR 反応溶液の組成 (終濃度)

| AmpliTaq Gold DNAポリメラーゼ | KAPA 3G Plant DNAポリメラーゼ |
|--------------------------|--------------------------|
| 1x PCR Buffer II | 1x KAPA Plant PCR Buffer |
| 0.2 mM dNTP | (dNTP 濃度は不明) |
| 1.5 mM MgCl ₂ | 1.5 mM MgCl ₂ |
| 0.2 μ M F-プライマー | 0.3 μ M F-プライマー |
| 0.2 μ M R-プライマー | 0.3 μ M R-プライマー |
| 0.025 U/ μ L ポリメラーゼ | 0.025 U/ μ L ポリメラーゼ |
| 鋳型DNA溶液 50ng | 鋳型DNA溶液 50ng |

表 2 PCR 反応溶液の反応条件

| AmpliTaq Gold DNAポリメラーゼ | KAPA 3G Plant DNAポリメラーゼ |
|-------------------------|-------------------------|
| 95°C 10min | 95°C 10min |
| 95°C 30sec | 95°C 20sec |
| 60°C 30sec | 60°C 15sec |
| 72°C 30sec | 72°C 60sec |
| 72°C 7min | 72°C 7min |
| 4°C ∞ | 4°C ∞ |

2・6 電気泳動

電気泳動用のアガロースゲルは、Agarose S (ニッポンジーン社製) を用い、3.0%のゲル濃度とした。泳動

用バッファーには、ニッポンジーン社製の TAE 緩衝液 (各最終濃度 40mM Tris/酢酸, 1mM EDTA) を用いた。DNA マーカーは、100 bp DNA Ladder (東洋紡ライフサイエンス社製) を用いた。ローディング緩衝液は 6xLoading Buffer Triple Dye (ニッポンジーン社製) を用い、PCR 増幅産物 5 μ L または DNA マーカー 2 μ L あたりそれぞれ 1 μ L 混和し、その混合液をゲルに負荷した。

DNA の染色は、前染色で行い、DNA 蛍光試薬として GelRed (Biotium 社製) を用いた。GelRed は、強力な発がん性と毒性を有するエチジウムブロミド溶液に比べて、毒性が低く、強い蛍光強度が得られる。GelRed は、試薬に添付されたプロトコールに従い、加熱溶解アガロース 100mL あたり、10 μ L 加えた。

電気泳動は、Mupid-ex (アドバンス社製) を用い、100V で 30 分間行った。電気泳動後のゲルは、UV (312 nm) 照射下で、LAS-1000UVmini (富士フィルム社製) を用いて、ゲルの写真を撮影し、DNA 増幅バンドの有無を判定した。

3 結果および考察

3・1 DNA の抽出と精製度の確認

2・2 の手順で得られた DNA 溶液の濃度は、それぞれカレールウ T (中辛) が 567.0ng/ μ L、カレールウ K (中辛) が 570.0ng/ μ L およびカレールウ K スペシャル (中辛) が 514.0ng/ μ L であった。タンパク質の混入指標となる 260nm/280nm の吸光度比は、1.8~1.9 の値を示し、1.8 以上なら良好とされるので、タンパク質が DNA 溶液から十分除去できていると判断した。他方、PCR 阻害効果が知られる糖、フェノールなどの混入指標となる 260nm/230nm の吸光度比は、1.2~1.7 の値を示し、2 以上が良好とされるため、PCR 阻害物質が DNA 溶液から除去できていない可能性がある。

3・2 PCR 阻害物質除去カラムによる DNA 溶液の精製

2・2 の手順で得られた、カレールウ 3 製品の DNA 溶液を TE 緩衝液で 20.0ng/ μ L に希釈調整し、この DNA 溶液を 2・4 の手順で、阻害物質除去カラムで精製したところ、カラム精製後の DNA 溶液濃度は、17.0~20.0ng/ μ L となった。

3・3 PCR 阻害物質除去カラムによる精製の効果

小麦 DNA 検出用プライマー対を用いて、PCR 阻害物質の影響が軽減できたか否かを定性 PCR で確認した。その電気泳動のゲル画像を図 1 (A) と (B) に比較して示す。

カラム未精製 DNA 溶液と通知⁴⁾で示されている AmpliTaq Gold DNA ポリメラーゼの組み合わせでは既報⁹⁾と同様に、カレールウ T (中辛) のみ 141 bp の小麦由来 PCR 増幅バンドが確認できたが、他の 2 製品は、増幅バンドを確認することができなかった (図 1 (A))。

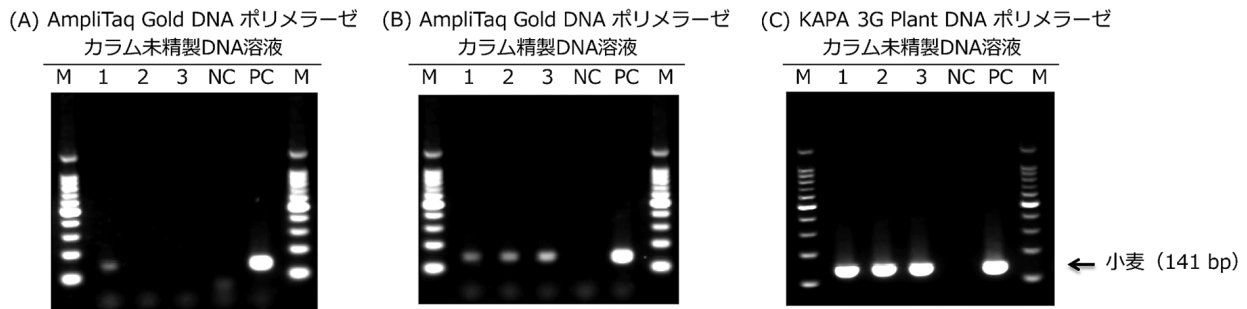


図1 PCR 阻害物質除去カラムによる精製または KAPA 3G Plant DNA ポリメラーゼによる PCR の効果

(A) AmpliTaq Gold DNA ポリメラーゼとカラム未精製 DNA 溶液, (B) AmpliTaq Gold DNA ポリメラーゼとカラム精製 DNA 溶液, (C) KAPA 3G Plant DNA ポリメラーゼとカラム未精製 DNA 溶液, レーン: M, 100bp ladder size standard; 1, (陽性試料)カレールウ T(中辛); 2, (検出不能事例1) カレールウ K(中辛); 3, (検出不能事例2) カレールウ K スペシャル (中辛); NC, ネガティブコントロール; PC, ポジティブコントロール (アレルゲンチェッカー付属ポジティブコントロール)

一方、カラム精製 DNA 溶液と AmpliTaq Gold DNA ポリメラーゼの組み合わせでは、カレールウ 3 製品のいずれも小麦由来 DNA 増幅バンドが確認できた (図 1(B))。このことは、阻害物質除去カラムによる精製が、検出不能事例に適用できる場合があることを示唆する。

3・4 KAPA 3G Plant DNA ポリメラーゼによる PCR

小麦 DNA 検出用プライマー対を用いて、KAPA 3G Plant DNA ポリメラーゼの効果を定性 PCR で確認した。その電気泳動のゲル画像を図 1 (A) と (C) に比較して示す。

カラム未精製 DNA 溶液と KAPA 3G Plant DNA ポリメラーゼの組み合わせでは、3 製品のいずれも小麦由来 DNA 増幅バンドを明瞭に確認することができた (図 1(C))。このことは、AmpliTaq Gold DNA ポリメラーゼで小麦 DNA を検出できない場合、PCR に KAPA 3G Plant DNA ポリメラーゼを用いると検出できる場合があることを示唆する。

4 まとめ

本報では、既報の小麦検出不能事例に対して、DNA の精製および、新たな DNA ポリメラーゼの選択という 2 つの視点から PCR 阻害物質の影響の軽減を試みた。

(1) PCR 阻害物質除去カラムによる精製の効果

DNA 抽出液を「One Step PCR Inhibitor Removal Kit」で精製したところ、小麦由来 DNA を検出することができた。

(2) KAPA 3G Plant DNA ポリメラーゼによる PCR

通知で示される AmpliTaq Gold DNA ポリメラーゼに替

えて、KAPA 3G Plant DNA ポリメラーゼを用いたところ、小麦 DNA を検出することができた。

文 献

- 1) 厚生労働省医薬局食品部長通知：食品衛生法施行規則及び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等の施行について、平成 13 年 3 月 15 日、食発第 79 号 (2001)
- 2) 厚生労働省医薬局食品保健部長通知：アレルギー物質を含む食品の検査方法について、平成 14 年 11 月 6 日、食発第 1106001 号 (2002)
- 3) 厚生労働省医薬食品局食品安全部長通知：「アレルギー物質を含む食品の検査方法について」の一部改正について、平成 21 年 1 月 22 日、食安発第 0122001 号 (2009)
- 4) 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、平成 22 年 9 月 10 日、消食表第 286 号 (2010)
- 5) 安田和弘, 芹川俊彦, 新家薫子: 特定原材料検査における DNA 抽出法の検討 (第 1 報), 石川県保健環境センター研究報告書, 47, 47-53 (2010)
- 6) 新家薫子, 清水隆二, 芹川俊彦, 安田和弘, 竹田正美, 大西道代: 特定原材料検査における DNA 抽出法の検討 (第 2 報), 石川県保健環境センター研究報告書, 48, 42-48 (2011)

〔短 報〕

里山における大気中イソプレン調査

石川県保健環境センター 環境科学部 堀 秀 朗・野 口 邦 雅・宮 田 朋 子
柿 澤 隆 一

〔和文要旨〕

大気中イソプレンの分析は、有害大気汚染物質環境モニタリング調査における VOC 分析の装置及び測定条件を利用して行うことができた。本法による大気中イソプレン濃度の検出下限値は $0.04 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、定量下限値は $0.12 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。

里山におけるイソプレンの環境調査から、大気中へのイソプレンの放出は、7 月初旬から 10 月中旬に顕著に見られ、日変動では日中にイソプレン濃度が最大になり、夜間に最小になることが繰り返されていた。このことから、樹木等からのイソプレンの放出には光合成反応が関係していることが推測された。また、地域環境特性として、周囲に山林・緑地の占める割合が比較的高い里山地域が、市街化された地域よりも大気中のイソプレン濃度が高いことが判った。

キーワード：光化学オキシダント、揮発性有機化合物、イソプレン、里山、微小規模パージ&トラップ

1 はじめに

石川県において、光化学オキシダントによる大気汚染は、昭和 54 年に注意報（金沢地区）、予報（小松地区）が発令されて以来、工場・事業場及び自動車排ガス規制もあり、注意報等の発令がない状態が続き、近年（平成 14～23 年）でも、光化学オキシダントの日中最高 1 時間値の年平均値は $0.046 \pm 0.011 \text{ppm}$ の範囲内で横ばいに推移している。その一方で、県下全測定局でその間の大気環境基準達成率は 0% であり、光化学オキシダント緊急対策としての予報が平成 14 年、16 年及び 19 年の 3 回発令されている等、基準を超える機会が増加する兆しも見られている。

現状ではオゾン濃度低減対策として、窒素酸化物の発生源抑制はかなりの程度なされているため、今後は揮発性有機化合物（以下、VOC）の削減対策が重要といわれている。その中でも自然（特に植物）由来の VOC がオゾン生成にかなりの程度関与しているのではないかと推測

されており、国においては「植物起源 VOC の排出インベントリーの精緻化」¹⁾を今後の光化学オキシダント調査研究の一つとして取り上げている。

また、本県においても、窒素酸化物等の人為的発生源が少ない地域で、都市地域と同程度のオゾン濃度が観測されており、その原因解明の一助として、自然由来 VOC の多い里山地域において、植物起源 VOC のうちオゾン生成能²⁾の高いイソプレンについて、平成 24 年度に大気環境実態調査をした。本稿では、主として里山地域で大気中イソプレン濃度の変化を 1 年間に亘って調査した結果を報告する。

2 材料と方法

2.1 イソプレン

(1) イソプレンの物理化学的性状等

IUPAC 命名法 2-メチル-1, 3-ブタジエン

化学式 C_5H_8 ($\text{CH}_2=\text{C}(\text{CH}_3)\text{CH}=\text{CH}_2$)

モル質量 68.12g/mol

Examination on Ambient Isoprene in the Countryside Forest. by HORI Shuro, NOGUCHI Kunimasa, MIYATA Tomoko and KAKIZAWA Ryuichi (Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Photochemical oxidant, Volatile organic compounds, Isoprene, Country side forest, Microscale Purge & Trap

比重 0.681 (20 °C)
 沸点 34.067 °C
 蒸気圧 93.3kPa (700mmHg) (30°C)
 n-オクタノール/水分係数 2.30

(2) 標準ガス (1.0ppbv) の調製

イソプレン原液：和光純薬一級 (純度 95%以上)

試薬原液を針先までプランジャーワイヤーが通っているマイクロシリンジで 2.0 μL 採取し、40°C の窒素ガスを封入した閉閉コック付 2L 球形フラスコに素早く注射する。フラスコ中で完全気化したイソプレンの濃度が均一になるように、2 時間以上放置した後、フラスコ内の気体状イソプレン (約 240ppmv) をガスタイトシリンジで 40 μL (大気圧約 101.3kPa の下で) 分取して、試料希釈装置に取り付けた 6L キャニスタ (真空) に注入し、更に窒素ガスをキャニスタ内の圧力が 162.7kPa (23.6 psia) になるまで加圧注入 (2.4×10⁵ 倍希釈) して調製した。

2・2 装置と測定条件

測定は気体試料自動濃縮装置と直結したガスクロマトグラフ四重極型質量分析装置で、有害大気汚染物質と同時に行った。なお、気体試料の自動濃縮は Microscale Purge & Trap (MPT) モードで行った。

(1) 装置

自動濃縮装置：Entech 7100A
 質量分析装置：Agilent 5975C GC/MSD

(2) 前処理シーケンス

- MPT モード：①試料導入系路試料共洗い：10mL (直接採取の場合 50mL)
 ②試料前濃縮：内部標準ガス 50mL (トルエン-d8)
 試料ガス 250mL / -100°C
 ③H₂O, CO₂ 除去：-80°C
 ④クライオフォーカス：-160°C
 ⑤GC インジェクト：180°C (瞬時上昇)
 ⑥系の焼き出し：150, 190°C 5 分間 (次分析への備え)

(3) GC/MS 測定

キャピラリカラム：AQUATIC 60m×0.25mm I. D. 膜厚 1.0 μm
 キャリアガス：ヘリウム 1.4mL/分
 GC 昇温条件：35°C (5) -12.9 分→80°C (0) -6.7 分→120°C (0) -4.6 分→190°C (8)
 SIM 測定質量数：m/z 53, 67 (イソプレン7.2 分)
 m/z 98 (トルエン-d8 約 20 分)

(4) 大気的直接導入

自動濃縮装置の試料吸入口の常圧試料 (例えばテドラー

バッグ) 取付アタッチメントにステンレス管 (内径 2.2 mm φ, 長さ 3.5m) を取付け、その他方の先端を窓から屋外に出して、直接大気試料を装置に導入できるようにした。試料の採取は 50mL/分の速度で 5 分間に設定した。今回使用した自動濃縮装置とガスクロマトグラフ四重極型質量分析装置の組合せ構成を図 1 に示す。

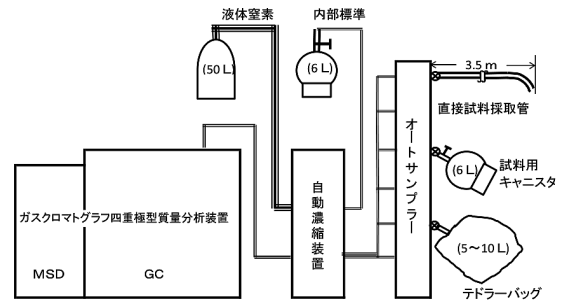


図 1 VOC 分析装置構成

2・3 調査地点

イソプレン測定のための大気捕集は、①輪島市西二又、②七尾市小島町、③小松市園町、④野々市市御経塚及び⑤金沢市太陽が丘の 5 か所で実施した。①の輪島市西二又の調査地点には金沢大学スーパーサイトに設置した簡易測定局舎がある。又、②～④の 3 か所は石川県の大気監視用測定局舎があり、毎月、キャニスタによる有害大気試料の 24 時間捕集を行っている場所である。更に、これら 4 か所では窒素酸化物等の大気常時監視項目の連続測定も行っている。

⑤の金沢市太陽が丘の調査地点は当センター (石川県保健環境センター) であり、2・2 (4) で述べた GC/MS 装置への大気的直接導入システムにより、任意の時間間隔で連続自動測定による日変動調査のために選定したものである。

2・4 調査測定方法

分析装置のある当センターから遠隔の地では、現地の大気をキャニスタ又はテドラーバッグに捕集し、当センターに持ち帰ってから測定を行った。又、当センター (金沢市太陽が丘) 周囲の大気採取にあつては、分析装置に捕集管を付け、大気を直接機器に導入した。

3 結果及び考察

3・1 イソプレン測定法の検討

イソプレンの GC/MS 分析の検討には、古市らが開発した方法³⁾を参考にした。測定は、ルーチンで実施している「有害大気汚染物質調査」の方法 (前述 2・2 (3) GC/MS 測定) を用い、それにイソプレンを測定対象として加えても、支障がないことを確認した。

(1) イソプレンのマスペクトル

図 2 に四重極質量分析計で得られたマスペクトルを示す。主ピークは分子イオンから水素が 1 個とれた正イオンであり、 m/z 67 に現れ、これと m/z 53 を測定質量数とした。

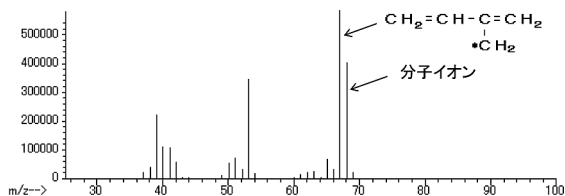


図 2 イソプレンのマスペクトル

(2) イソプレンのイオンクロマトグラム

図 3 に既存の VOC 用キャピラリカラムと GC 設定条件で測定した TIC と MC を示す。内部標準物質にはトルエン-d8 (測定質量数 m/z 98) を使用している。

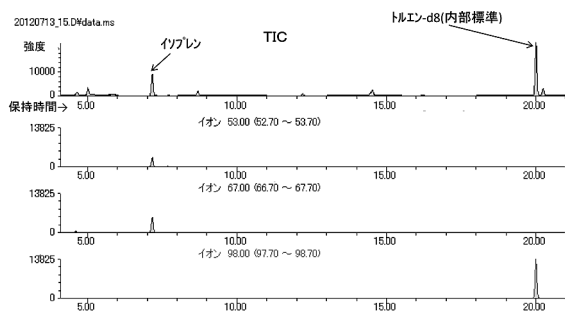


図 3 実試料の TIC クロマトグラム
(於：輪島市西二又/H24.7.10 採取)

(3) 定量下限値

イソペン標準 (1ppbv) 試料 25mL (イソペン 0.075 ng 相当) を測定装置に導入し、分析測定操作を 5 回実施し、測定結果の標準偏差 (s) の 3 倍を検出下限値、10 倍を定量下限値として算出した。表 1 にその結果を示す。標準状態の大気試料 250mL 中の濃度に換算した値で、検出下限値は $0.04 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、定量下限値は $0.12 \mu\text{g}/\text{m}^3$ となった。

3・2 環境調査

(1) 調査地点の周辺環境

イソペン濃度を毎月調査した 4 地点の周囲の緑地状況は表 2 のとおりである。表中の土地利用分類の割合は google マップの航空写真と国土地理院の 2 万 5 千分の 1 地形図から概算した。これによると、①輪島市西二又はほとんどが山林、緑地で、近隣には農村集落があることから里山環境とみられ、④野々市市御経塚は緑地が少なく住宅・商業施設、4 車線以上の幹線道路で占められた市街地であり、里山とは対極にある。②七尾市小島町と③小松市園町は緑地と住宅地が相半ばして、前 2 地点の中間に位置する緑地状況である。⑤金沢市太陽が丘は市街地から離れた郊外に位置し、住宅団地はあるが、山林と田畑に囲まれた立地環境は里山に近いものである。

(2) 大気中イソプレンの年推移

Sharkey らによるイソプレンの諸問題に関する総説⁴⁾では、イソプレンの生成は温度によって急激に増加し 40°C 前後で最大値に達することから、イソペンは植物を熱ストレスから防御しているという仮説が提唱されている。また、谷ら⁵⁾もミツマタを用いて、光あるいは葉温が高まるとイソペン放出速度が高まるとの実験結果を報告している。すなわち、樹木で生成されたイソペンの環境中への放出量も、気温により大きく左右されることから、年間を通して環境中イソペン濃度がどのように推移するかを調べるため、里山環境の輪島市西二又で、正午頃の大気を採取し、当センターに持ち帰って分析した。平成 24 年 4 月～平成 25 年 3 月の間の調査結果を図 4 に示す。

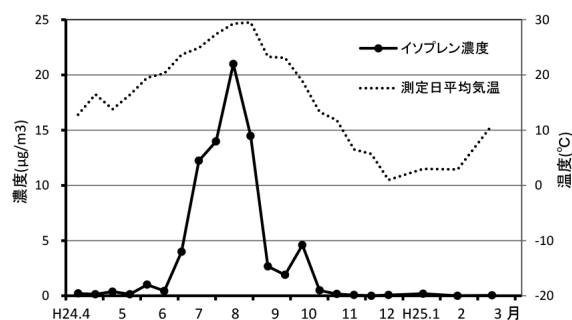


図 4 大気中イソペン濃度の年間推移 (輪島市西二又)

表 1 VOC 測定におけるイソプレンの検出下限値と定量下限値

| 試験 No. | 導入量 (25mL) (ng) | 回収量 (ng) | 250mL 気中濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) | 標準偏差 |
|-----------------|-----------------|----------|---|--------|
| #1 | 0.075 | 0.081 | 0.33 | 0.0117 |
| #2 | 0.075 | 0.076 | 0.31 | |
| #3 | 0.075 | 0.073 | 0.30 | |
| #4 | 0.075 | 0.076 | 0.31 | |
| #5 | 0.075 | 0.075 | 0.30 | |
| 検出下限値 (標準偏差×3) | | | 0.04 | |
| 定量下限値 (標準偏差×10) | | | 0.12 | |

正午頃の大気中イソプレン濃度は、7月初旬から10月中旬に高かった。それらは日平均気温が20℃付近を超えている時期であり、濃度の最大は日平均気温が最大(29℃台)であった8月中～下旬に見られた。他方、日平均気温が20℃付近より低かった時期の大気中イソプレン濃度は極めて微少～皆無であった。

(3) 大気中イソプレンの日変動

イソプレンは多くの樹木種で生成され、環境に放出されているが、森林におけるイソプレンの放出に関して、横内⁶⁾や戸田ら⁷⁾の詳細な研究報告があり、これらによりイソプレン濃度の変化には日周期があることが明らかにされている。また、石井ら⁸⁾は東京都内3地点で時間帯別にVOCの濃度変化を調査した結果から、光化学オキシダントを考える上で、季節、場所、時間帯によっては、植物起源VOCは無視できない濃度レベルにあると報告している。そこで、今回の調査地点でもどのような日変動が起きるのか確認するため、大気中イソプレンの消長調査を里山に近い金沢市太陽が丘において、1～4時間間隔で大気中イソプレンの逐次測定を行った。調査は7月～11月の間に4回実施した。その調査結果を図5に示す。11月の縦軸を100倍に拡大したグラフは、数値のほとんどが定量下限値未満で信頼性は低いが、日中の時間変化の傾向が見えるので参考として表記した。また、同じく里山環境の輪島市西二又において、10月下旬に実施した日中のイソプレン濃度変動の調査結果を図6に示す。

図5では、どの調査日においても、おおよそ朝6時頃から濃度の上昇傾向が見られ、夕方6時頃を過ぎて濃度が減少傾向に移行している。月により日出、日没時刻は異なり、時刻に幅があるものの、日中にイソプレン濃度が最大になり、夜間に最小になることが繰り返されていることが窺える。この現象は、植物からの放出量が少なくなった11月下旬においても窺われた。図6でも全体として低い濃度ではあるが、正午付近で濃度の最大が見られ、その後減少している。なぜ、日中にイソプレンの放出が行われるのか確かではないが、光合成反応に関係して、樹木からイソプレンが放出されていることが推測された。

(4) 緑地比の異なる地点間でのイソプレン濃度比較

周囲の樹木等植物の植生面積比率に差のある地点間で、大気中イソプレン濃度に違いが見られるか否か調査した。調査地点は輪島市西二又、七尾市小島町、小松市園町及び野々市市御経塚の異なる環境特徴を持つ4地点で、イソプレンの放出が顕著な6月～10月の各月に1回24時間をかけて5～6Lの大気を捕集し、当センターに持ち帰って分析した。調査結果を表2に示す。

イソプレン日平均濃度が最も高かった輪島市西二又は、

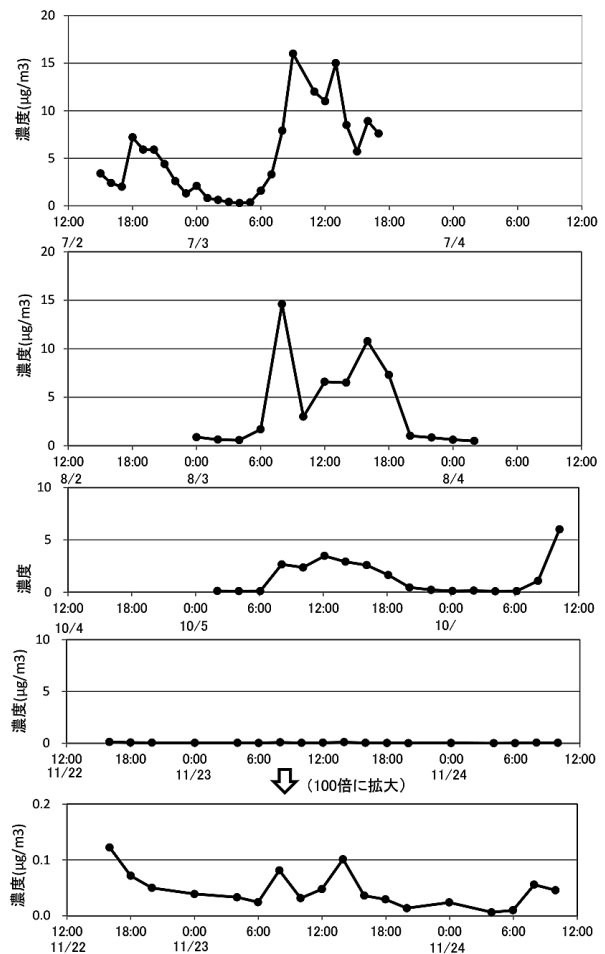


図5 大気中イソプレン濃度の日変動
(金沢市太陽が丘2012年)

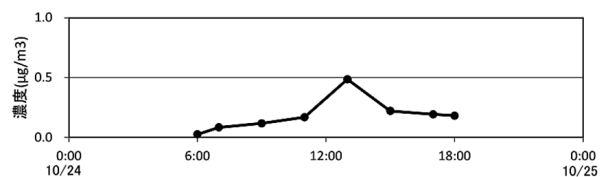


図6 大気中イソプレン濃度の日変動
(輪島市西二又2012年10月24日)

6, 7, 8月に他の3地点に比べ高濃度を示した。それに対し野々市市御経塚は全期間低い濃度に終始した。小松市園町と七尾市小島町は同程度の濃度で、輪島市西二又と野々市市御経塚の中間に位置した。イソプレン放出量の多寡を、目安として日平均濃度の積算値で代用すると、周囲に山林・緑地の占める割合が高い地点ほど、大気中イソプレン日平均濃度が高いことが判った。しかし、一番植生面積の広い輪島市西二又と狭い野々市市御経塚において、イソプレン濃度の日変動を同日時(9月12日と13日の日中)に調査した結果(図7)をみると、両者の濃度差や変動状況の違いは明瞭でなく、同程度に見える。野々市市御経塚は緑地が少ないとはいえ、公園内

表 2 大気中イソプレン濃度の地点間比較

| 調査項目 | 土地分類 調査時期 | 調査地点 | | | |
|---|--------------|--------|--------|-------|---------|
| | | 輪島市西二又 | 七尾市小島町 | 小松市園町 | 野々市市御経塚 |
| 大気捕集地点から 半径 500m 円内の 土地利用状況割合 (%) | 宅地・店舗 | 0 | 55 | 45 | 90 |
| | 農地・緑地 | 5 | 20 | 50 | 5 |
| | 山林 | 95 | 20 | 0 | 0 |
| | 河川 | 0 | 5 | 0 | 0 |
| | 4 車線以上の道路 | 0 | 0 | 5 | 5 |
| 1日 (24時間) 平均 イソプレン濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) | 2012 年 6 月 | 1.4 | 0.29 | 0.59 | 0.27 |
| | 7 月 | 4.0 | 1.5 | 1.5 | 0.54 |
| | 8 月 | 7.6 | 0.32 | 1.1 | 0.39 |
| | 9 月 | 0.90 | 1.1 | 0.44 | 0.13 |
| | 10 月 | 0.18 | 0.30 | 0.15 | 0.05 |
| | (上の積算値) | 14.08 | 3.51 | 3.78 | 1.48 |

樹木の傍で試料を採取したため、植物の活動が旺盛でイソプレンの放出が多い時期においては、同様の傾向を示したものと思われた。(野々市市御経塚においては、移流や自動車排ガス由来のイソプレンの可能性も推量されたが、イソプレン濃度に日周期変動が見られることから、これらイソプレンは周囲の植物起源と考えられた。)

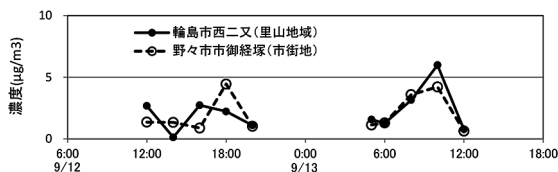


図 7 大気中イソプレン濃度日変動の 2 地点間比較

4 まとめ

- (1) 1ppbv イソプレン標準ガスの調製は、イソプレンの揮発性を利用して、原液からキャニスタと希釈装置を用いて行うことができた。
- (2) イソプレン分析では装置及び測定条件を有害大気汚染物質環境モニタリング調査の VOC 分析に準じ、その測定質量数はマススペクトルから得た m/z 67 を用い、ルーチンで分析している VOC と同時に測定を行うことができた。この方法による大気中イソプレン濃度の検出下限値は $0.04 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、定量下限値は $0.12 \mu\text{g}/\text{m}^3$ となった。
- (3) 里山環境の輪島市西二又における年変動調査から、大気中イソプレンの濃度は、7 月初旬から 10 月中旬に定量された。それらは日平均気温が 20°C 付近を超えている時期であり、大気中イソプレン濃度 (植物からの放出量) の最大は、日平均気温が最大 (29°C 台) であった 8 月中～下旬に見られた。
- (4) 里山環境の金沢市太陽が丘における大気中イソプレン濃度の日変動調査から、おおよそ朝 6 時頃から濃度の上昇傾向が見られ、夕方 6 時頃を過ぎて濃度が減少傾向に移行している。日中にイソプレン濃度が最大に

なり、夜間に最小になることが繰り返されていることから、光合成反応に関係して、樹木からイソプレンが放出されていることが推測された。

- (5) 周囲の樹木等植物の植生面積比率に差のある 4 地点間で同月に得られたイソプレン日平均濃度結果を比較したところ、周囲に山林・緑地の占める割合が比較的高い里山が、市街化された地点よりも大気中イソプレン濃度が高かった。

文 献

- 1) 環境省水・大気環境局大気環境課：光化学オキシダント調査検討会報告書－今後の対策を見すえた調査研究のあり方について－ (2012)
- 2) (独) 東京都立産業技術研究センター：Maximum Incremental Reactivity (MIR), VOC 排出対策ガイド－基礎から実践・評価まで－ (2012)
- 3) 環境省環境保健部環境安全課：平成 14 年度化学物質分析法開発調査報告書、イソプレン, 339-347 (2003)
- 4) SHARKEY Thomas D., WIBERLEY Amy E. and DONOHUE Autumn R.: Isoprene Emission from Plants: Why and How, *Annals of Botany*, **101**, 5-18 (2008)
- 5) 谷晃, 伏見嘉津裕: 温度と光強度がミツマタのイソプレン放出におよぼす影響, *農業気象*, **61** (2), 113-122 (2005)
- 6) YOKOUCHI, Yoko: Seasonal and diurnal variation of isoprene and its reaction products in semi-rural area, *Atmos. Environ.*, **28** (16), 2651-2658 (1994)
- 7) 戸田敬, 廣田和敏, 徳永航, 須田大作, 具志堅洋介, 大平慎一: 森林大気中イソプレンと関連物質のオンサイト多成分分析, *分析化学*, **60** (6), 489-498 (2011)
- 8) 石井真理奈, 上野広行, 石井康一郎: 環境中の植物起源 VOC 濃度測定, *東京都環境科学研究所年報* 2009, 118-122 (2009)

〔短 報〕

河北潟における難分解性有機物に関する実態調査（中間報告）

石川県保健環境センター 環境科学部 安田能生弘・牧野 雅英・谷村 睦美
亀井 とし

〔和文要旨〕

湖沼における化学的酸素要求量（COD）漸増の一因として難分解性有機物の影響が指摘されている。そこで、本調査では難分解性有機物の評価手法を検討し、河北潟及びその流入河川の計5地点において実態調査を行った。その結果、評価手法としての生分解試験では有機物量は概ね80日目までに減少し、その後はほとんど変化しなかった。また、上記5地点で年4回詳細な調査を行ったところ、ろ過サンプルの全有機炭素（TOC）や非ろ過サンプルの溶存態有機炭素（DOC）は、易分解性成分、難分解性成分ともに春夏に高い傾向であった。地点別では河北潟に比べ、森林からの負荷割合が高い森下川で低く、点源からの負荷割合が高い西部承水路で高い結果であった。

キーワード：河北潟，湖沼，難分解性有機物

1 はじめに

石川県の河北潟，木場潟及び柴山潟の3湖沼では様々な水質保全対策がなされているにもかかわらず，未だに化学的酸素要求量（以下，COD）の環境基準が達成されていない¹⁾。一方，全国の湖沼COD環境基準も達成率は平成23年度で53.7%と河川の93.0%，海域の78.4%と比べると低く，10年前の平成13年度の45.8%と比較してもそれほど改善はみられていない²⁾。また，琵琶湖では生物化学的酸素要求量（以下，BOD）が改善傾向であるのにCODが漸増しており，CODとBODの乖離が見られる。その一因として，生物による分解を受けにくい難分解性有機物の存在が指摘されている³⁾。また，筆者らは浮葉植物のヒシによる水質浄化の研究で浄化できない難分解性と思われる溶存態物質の存在を指摘してきた⁴⁾。そこで，難分解性有機物の評価手法を検討し，河北潟及びその流域における難分解性有機物の実態把握を目的として本調査を実施した。

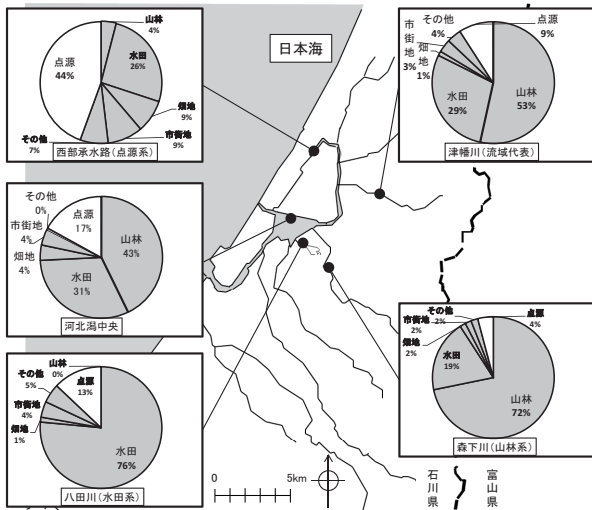
2 方 法

まず，評価手法の検討として，文献^{3),5),6)}調査等に基づき，生分解試験の条件を「20℃の暗所で100日間振とう」とした。実サンプルで生分解試験を行い，試験中定期的に全有機炭素（以下，TOC）等を分析し，その変化を観察した。

また，河北潟及びその流域における実態調査地点として，潟1地点及び流入河川4地点を選定した。流入河川については過去の調査^{7),8)}から最もCOD負荷が大きく，発生源の負荷割合でも流域を代表する津幡川，COD負荷が2番目に大きく森林からの負荷割合が高い（以下，森林系）森下川，水田からの負荷割合が高い（以下，水田系）八田川及び点源からの負荷割合が高い（以下，点源系）西部承水路の4河川を選定した。具体的な採水地点は，平成24年度水質測定計画⁹⁾に定める環境基準地点や一般地点である河北潟の河北潟中央，津幡川の住ノ江橋，森下川の森本大橋及び八田川の金沢競馬場横並びに以前の調査研究⁴⁾で使用した西部承水路の隔離水塊付近とした（図1）。なお，採水は年4回（5月，9月，11月及び

Investigation of the Behavior of Refractory Organic Matter in Kahokugata Lagoon (Interim Report). by YASUDA Nobuhiro, MAKINO Masahide, TANIMURA Mutsumi and KAMEI Toshi (Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Kahokugata Lagoon, Lakes, Refractory Organic Matter



(河川 COD 負荷割合は平成 16 年度第 2 回河北潟水質汚濁負荷量調査検討会資料から引用)

図 1 実態調査位置及び河川 COD 負荷割合

2 月) 行った。

サンプル採取にはステンレスバケツ及びステンレスロートを使用した。サンプル保存及び生分解試験には 2L のねじロガラスびんを使用し、それぞれ四フッ化エチレン樹脂 (以下, PTFE) ライナー付きのキャップ及び PTFE ろ紙 (孔径 0.2 μm) 付き穴あきキャップ (以下, メンブレンキャップ) で密栓した。サンプルのろ過にはガラス繊維ろ紙 (Whatman GF/F: 公称孔径 0.7 μm), ガラスろ過器及びガラス受器を用いた。これらのサンプルの保存, ろ過及び生分解試験並びに TOC 測定等に用いたガラス器具とガラス繊維ろ紙は, あらかじめ 450°C で 4 時間の熱処理を行った。生分解試験は 2L ねじロガラスびんにろ過したサンプル及び非ろ過のサンプル各 1.6L を入れ, 20°C の暗所で水平回転振とう器を用いて約 100rpm で振とうを続けた。TOC は, 全有機炭素分析装置 (Shimadzu TOC-V) を用い, 無機炭素を除去した不揮発性有機炭素を測定し, これを TOC とした。溶存態有機炭素 (以下, DOC) はサンプルをろ過後 TOC と同様に測定

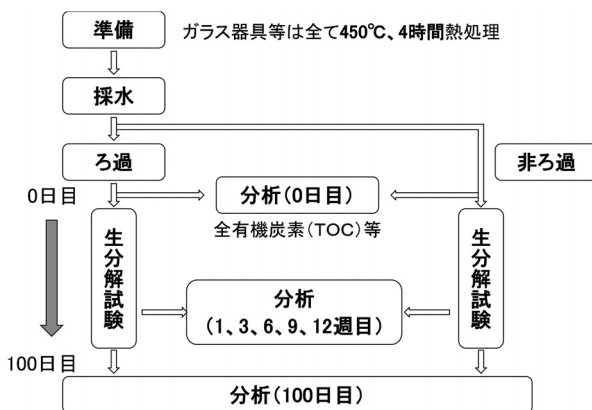


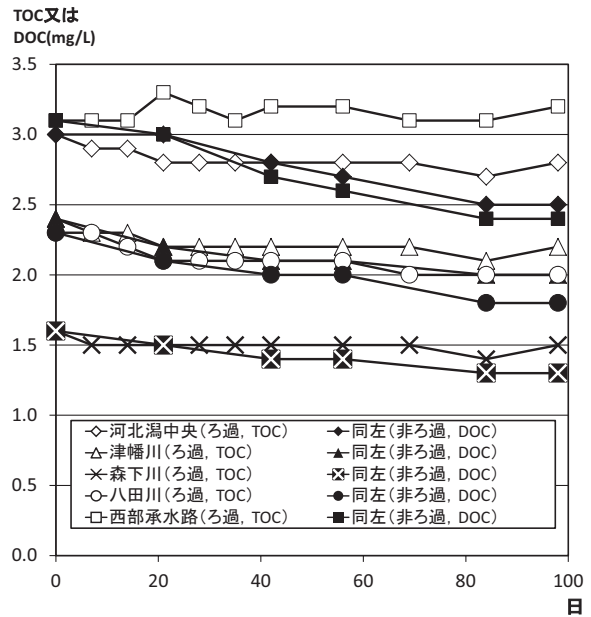
図 2 分析フロー

した。懸濁態有機炭素 (以下, POC) は TOC から DOC を引いて求めた。簡単なフローを図 2 に示す。

3 結果と考察

図 3 に 9 月採水分のろ過サンプル及び非ろ過サンプルの生分解試験の経過観察結果を示す。有機物量は概ね 80 日目までに減少し, その後はほとんど変化しなかった。この傾向は 11 月, 2 月採水のサンプルでも同様であった。ただし, 5 月採水分のサンプルについては培養器の故障により, 65 日目までしかデータがとれなかった。

なお, 図 3 の西部承水路のろ過サンプルの 21 日目で TOC が高くなっている原因については, 異物の混入による汚染が疑われた。このため, それまで生分解試験に使っていたフタをアルミ箔から前述したメンブレンキャップに換えた。その後はこのような異常値は見られなかった。



(平成 24 年 9 月 13 日採水 ろ過サンプル TOC 及び非ろ過サンプル DOC)

図 3 生分解性試験結果

ろ過サンプルの TOC について図 4 で地点別, 月別にまとめた。0 日目の TOC の濃度を棒グラフで示し, 100 日間で分解されたものを易分解性 TOC, 分解されずに残ったものを難分解性 TOC として示した。また, 0 日目の TOC に占める難分解性 TOC の比率を折れ線グラフで示した。5 月採水分については 65 日目のデータを 100 日目の代わりとして示している。このことから易分解性 TOC, 難分解性 TOC とともに春夏に高い傾向であることが明らかとなった。また, 地点別では河北潟に比べ, 森林系の森下川で低く, 点源系の西部承水路で高い結果であった。難分解性 TOC の比率については地点間の差はあまりなく, 河北潟中央地点での年平均は 91%, 流入河川 4 地点で

の平均は84%~86%であった。霞ヶ浦湖水での溶存有機物の分解率が11%，河川水では27.6%（難分解性有機物の比率として湖水89%，河川水72.4%）との報告⁵⁾と比べ河川がやや高い結果であった。

図5に、非ろ過サンプルのDOCの結果を示す。5月分についてはデータがないため、全て易分解性DOCとして表示したが、5月を除けば、ろ過サンプルのTOCと同様の結果であった。しかし、難分解性DOCの比率については河北潟中央地点での年平均は81%，流入河川4地点での年平均は71%~82%であり、全体としてわずかに非ろ過サンプルの方が低い傾向が見られた。このことは琵琶湖での調査結果⁶⁾と一致しており、今後POCを含めて詳細に検討したい。

なお、非ろ過サンプルについては、TOCはDOCとほぼ同じ結果であり、POCはかなり低濃度であった。一方、0日目にCODと溶存態COD（以下、D-COD）について分析しており、CODとD-CODの差を懸濁態COD（P-COD）として、図6に示した。たとえば西部承水路においてはP-CODとD-CODが同程度の濃度であることから、非ろ過サンプルについては、懸濁物の沈殿や詰まりなどにより、TOCが正確に分析できていないと考えられた。そのため、DOC測定用サンプルろ過時のガラス繊維ろ紙に捕集された残渣を乾燥し、炭素・窒素同時定量装置（CNコーダー）で分析してPOCを算出する方法を検討した。その結果、ろ液として300mL~500mLのサンプルを使えば、分析できることが確認できたので、今後、TOCについてはDOCとPOCの合計で求めることとした。

また、生分解試験用の振とう機が平成25年5月末に故障したため、マグネチックスターラーによる攪拌に変更し今後の調査を行うこととした。

4 まとめ

難分解性有機物の評価手法検討及び河北潟における実態調査を実施したところ、評価手法としての生分解試験では有機物量は概ね80日目までに減少すること、実態調査では難分解性有機物の濃度が全体的に春夏に高いこと、森林系の森下川で低く、点源系の西部承水路で高いことなどの結果が得られた。今回の調査では、調査地点間で難分解性有機物濃度に差が見られたものの、有機物中に占める難分解性有機物の比率にあまり差がなかったことから、今後は畑地からの負荷割合が高い河北潟幹線排水路と下水処理水の流入する東部承水路で採水地点を増やし、調査を進めていくこととしている。

文 献

- 1) 環境省水・大気環境局：平成23年度公共用水域水質測定結果（2013）

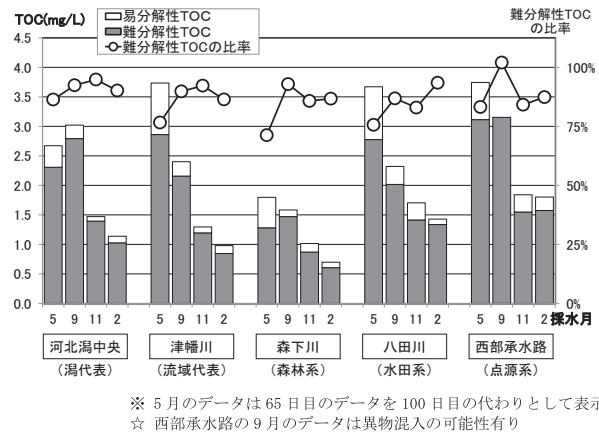


図4 ろ過サンプルの易分解性TOCと難分解性TOC

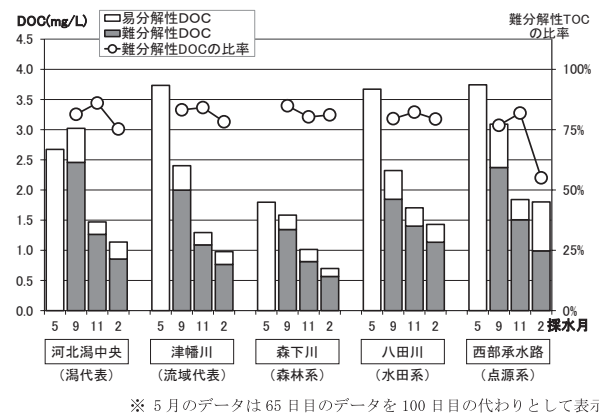


図5 非ろ過サンプルの易分解性DOCと難分解性DOC

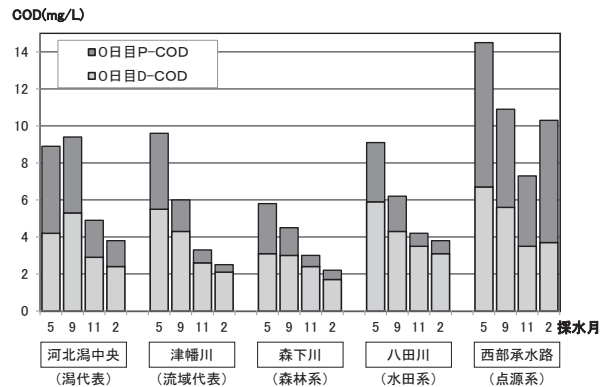


図6 非ろ過サンプルの懸濁態COD（P-COD）と溶存態COD（D-COD）

- 2) 石川県：平成23年度公共用水域及び地下水の水質測定結果報告書（2013）
- 3) 岡本高弘，佐藤祐一，早川和秀，古角恵美：難分解性有機物を含めた有機物による琵琶湖における水質汚濁メカニズムについて，琵琶湖環境科学研究センター研究報告書，5，25-35（2010）
- 4) 倉本早苗，柿澤隆一，亀井とし，玉井徹，小西秀則：浮葉植物による水質浄化と植栽・利用に関する研究（第2報），石川県保健環境センター研究報告書，48，

8-13 (2011)

- 5) 今井章雄, 松重一夫: 湖沼において増大する難分解性有機物の発生原因と影響評価に関する研究, 国立環境研究所特別研究報告 SR-36-2001 (2001)
- 6) 株式会社日水コン: 平成 22 年度環境省請負業務結果報告書 平成 22 年度琵琶湖等湖沼水質保全対策高度化推進調査報告書 (2011)
- 7) 石川県環境安全部: 平成 16 年度第 2 回河北潟水質汚濁負荷量調査検討会資料 (2004)
- 8) 石川県環境安全部: 河北潟水質保全対策検討調査報告書 (2006)
- 9) 石川県: 平成 24 年度水質測定計画 (2012)

〔短 報〕

能瀬川における水質ダイオキシン類の存在形態の季節変動

石川県保健環境センター 環境科学部 徳田 貴裕・相川 輝充・吉本 高志
野口 邦雅・玉井 徹

〔和文要旨〕

石川県の能瀬川は、県内の他の公共用水域と比較してダイオキシン類濃度が高く、特に4月にダイオキシン類の溶存態比率が高い傾向にある。そこで、平成22年4月の能瀬川の水試料のpHを酸性に調整し、ダイオキシン類の存在形態を調査した。また、平成22年4月から9月の調査結果と比較することで、能瀬川におけるダイオキシン類の挙動について考察した。pHを調整した4月の水試料はほとんどが溶存態から懸濁態へと移行したことから、酸性領域で不溶化する水溶性腐植物質の影響が示唆された。また、各同族体の溶存態比率の特徴から、4月～6月と8月及び9月で水質が異なり、腐植物質が要因の一つと考えられた。重回帰分析の結果、能瀬川におけるダイオキシン類の汚染起源は、95%以上が水田農薬不純物であった。

キーワード：ダイオキシン類，能瀬川，懸濁態，溶存態，腐植物質

1 はじめに

河北潟に流入する能瀬川は、県内の他の公共用水域と比較してダイオキシン類濃度が高いことが明らかとなっている¹⁾²⁾。能瀬川の水質ダイオキシン類濃度の実態等を把握するため、環境基準点である浦能瀬橋において、平成21年10月から平成22年9月の1年間、月1回の頻度で調査した結果、平成22年4月は3.9pg-TEQ/Lと他の月と比較して突出して高く、また、ダイオキシン類の溶存態比率は64%であった³⁾。平成12年に国土交通省が行った存在形態把握調査⁴⁾によれば、公共用水域のダイオキシン類の溶存態比率は約27%（21地点の平均）であり、これらのことから、4月は特異的な状況であると考えられた。

このような、春季における特異的なダイオキシン類の挙動を詳細に把握するため、ダイオキシン類の存在形態については水溶性の腐植物質が大きく影響しているとの報告があること⁵⁾、また、水試料のpHが低下すると水溶

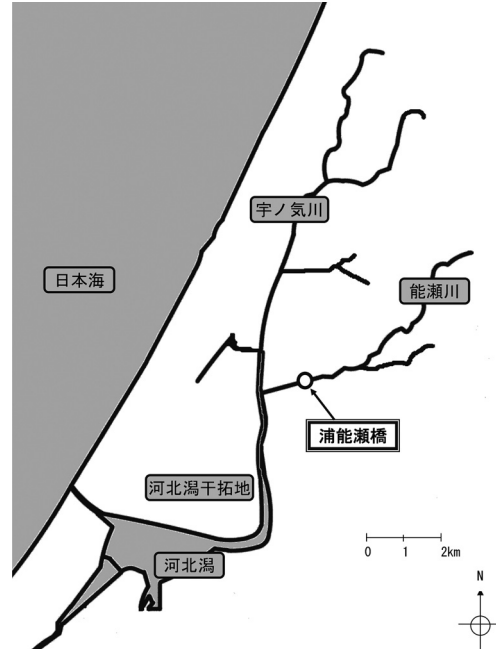


図1 調査地点

Seasonal variation of dissolved/suspended partitioning of aquatic dioxins in Nose River. by TOKUDA Takahiro, AIKAWA Terumitsu, YOSHIMOTO Takashi, NOGUUCHI Kunimasa and TAMAI Tohru (Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : dioxins, Nose River, suspended particulate, dissolved matter, humic substances

性の腐植物質の一部（フミン酸）が不溶化すること⁶⁾に着目し、平成 22 年 4 月の水試料を酸性に調整して、ダイオキシン類を溶存態と懸濁態に分離して分析した。更に、平成 22 年 4 月から 9 月の調査結果を加えて、同族体ごとに溶存態比率を求め、溶存態と懸濁態別に汚染起源を推計したので報告する。

2 分析と解析方法

(1) 分析方法

平成 22 年 4 月に浦能瀬橋で採水した水試料に 2N 塩酸を加えて pH2 に調整し、本研究では保有粒子径 1 μm のガラス繊維ろ紙 (GA-100, アドバンテック東洋製) でろ過し、ろ液を溶存態、ろ過残渣を懸濁態とした。ダイオキシン類の分析については日本工業規格 K0312 に準じ、溶存態試料からの抽出にはダイオフロク（環境水用、三浦工業株式会社）を用いた固相抽出を行った。

(2) 解析方法

平成 22 年 4 月の水試料と pH を調整した水試料について、ダイオキシン類濃度の溶存態と懸濁態比率を比較した。

また、平成 22 年 4 月の pH を調整した水試料の分析結果と平成 22 年 4 月から 9 月の水試料の分析結果³⁾を基に、同族体ごとに総濃度に対する溶存態比率を求め、それらの傾向を比較した。

更に、平成 22 年 4 月から 9 月の水試料の分析結果を基に、溶存態と懸濁態別に汚染起源の寄与率を推計した。汚染起源の推計方法は既報¹⁾のとおりである。

3 結果と考察

3・1 pH を調整した水試料の溶存態と懸濁態比率

平成 22 年 4 月の水試料と pH を調整した水試料のダイオキシン類濃度の溶存態と懸濁態比率を図 2 に示す。pH の調整により溶存態比率が 64% から 6% に減少し、懸濁態比率が 36% から 94% に増加したことから、酸性領域で不溶化する腐植物質に吸着しているダイオキシン類が溶存態から懸濁態へ移行したものと考えられる。今回、能瀬川においても、腐植物質の存在がダイオキシン類の

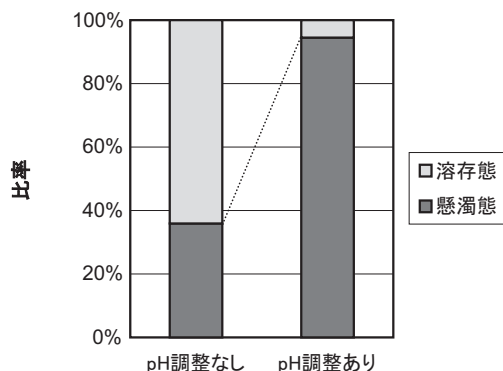


図 2 平成 22 年 4 月の水試料の溶存態と懸濁態比率

存在形態に大きな影響を及ぼしていること、また、ダイオキシン類の存在形態は pH により変化することが明らかとなった。

3・2 同族体ごとの溶存態比率の特徴

PCDDs 及び PCDFs の各同族体と DL-PCBs 別の溶存態比率を図 3 に示す。PCDDs 及び PCDFs のいずれの同族体においても、溶存態比率は 4 月が最も高く、60% を超え、その後徐々に減少している。8 月及び 9 月は 4 塩化物の溶存態比率が相対的に高く、概ね高塩化物ほど溶存態比率が小さかった。4 月～6 月の傾向としては、同族体間の溶存態比率に夏季ほど大きな差は認められなかった。塩素数が増えて疎水性が増すほど水への溶解度が小さくなるため、4 塩化物の溶存態比率が最も高く、高塩化物になるにつれて減少するとの報告⁷⁾があり、8 月及び 9 月は概ねこの報告と一致した。しかし、4 月～6 月は傾向が一致しないことから、4 月～6 月と 8 月及び 9 月でダイオキシン類の存在形態が異なることが示唆される。

pH を調整した 4 月の水試料は、PCDDs 及び PCDFs とも全体として溶存態比率が著しく低下したばかりでなく、4 塩化物の溶存態比率が他の同族体と比較して高く、概ね高塩化物ほど溶存態比率が低くなり、pH を調整しない 4 月の水試料と異なる傾向となった。これは、前述の既報⁷⁾と同様の傾向であった。このことから、4 月～6

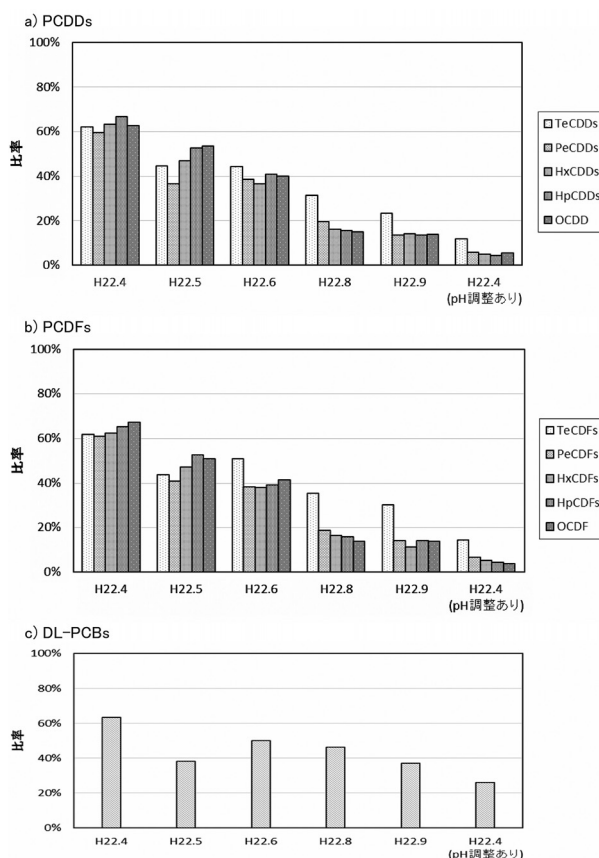


図 3 PCDDs 及び PCDFs の各同族体と DL-PCBs の溶存態比率

月が前述の既報⁷⁾と異なる傾向を示す原因として、腐植物質の影響が考えられた。塩素数が増えて疎水性が増すことは、高塩化物ほど腐植物質への吸着が多くなることを意味すると予想され、これにより溶存態比率が高くなったものと考えられる。4月～6月は水田の代かき等により、腐植物質の水田から河川への流出が多く、8月及び9月はその影響が低下すると考えられ、4月～6月と8月及び9月の水質が異なる要因の一つと推察される。

DL-PCBsは4月が最も高く、5月を除くと減少傾向が見られるが、PCDDs及びPCDFsと比較して減少の比率は小さい。これは、DL-PCBsの濃度が低く、ほとんどの異性体で定量下限値を下回っていたため、溶存態/懸濁態別の測定では有効な定量値が得られなかった異性体が多かったと考えられる。

3・3 汚染起源の推計

4月～9月の測定結果を基に、溶存態と懸濁態別に汚染起源の寄与率を推計した結果を図4に示す。得られた重回帰式の決定係数 (R^2) は0.990～0.992であり、偏重回帰係数の検定の結果はすべて危険率5%で有意であった。溶存態と懸濁態を合わせた全体の汚染起源の寄与率は、4月～9月のペンタクロロフェノール (PCP) で70～80%、クロロニトロフェン (CNP) で20～30%であり、前報²⁾と同様に95%以上が水田農薬不純物による結果であった。能瀬川におけるダイオキシン類の汚染起源は、ほとんどが水田農薬不純物と言える。

溶存態と懸濁態の汚染起源を比較すると、4月～6月では違いは見られないが、8月及び9月は溶存態のCNPの寄与率が懸濁態に比べてやや高くなっている (図4)。PCPには7～8塩化物、CNPには4塩化物のダイオキシン類異性体が多く含まれること、低塩化物の方が水に溶けやすいことがあり、8月及び9月はこれらの特徴が反映されて、溶存態のCNP寄与率がやや高めに現れたものと考えられた。

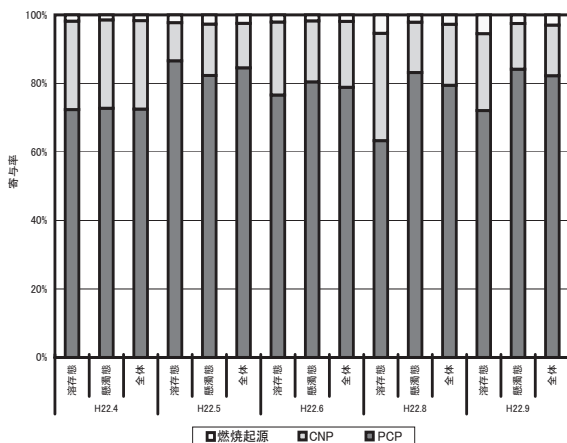


図4 重回帰分析による汚染起源推計

4 まとめ

- (1) 能瀬川の4月の水試料では、ダイオキシン類の溶存態比率が高く、pHを調整した水試料ではほとんどが懸濁態へと移行したことから、酸性領域で不溶化する水溶性腐植物質の影響が示唆された。
- (2) 各同族体の溶存態比率の特徴から、4月～6月と8月及び9月で水質が異なることが示唆され、4月～6月は腐植物質の影響が大きく、8月及び9月は影響が少ないと考えられた。
- (3) 重回帰分析により、能瀬川におけるダイオキシン類の汚染起源は、95%以上が水田農薬不純物であった。溶存態と懸濁態の汚染起源を比較した結果、4月～6月と8月及び9月に違いが見られた。

文 献

- 1) 野口邦雅, 岡 秀雄, 清水隆二, 塚林 裕, 蔵本和夫: ダイオキシン類の水質環境基準超過事例についての考察 (その1), 石川県保健環境センター研究報告書, 45, 23-31 (2008)
- 2) 野口邦雅, 宮田芳明, 河本公威, 堀 秀朗, 西村久博: ダイオキシン類の水質環境基準超過事例についての考察 (その2), 石川県保健環境センター研究報告書, 47, 15-21 (2010)
- 3) 野口邦雅, 相川輝充, 宮田芳昭, 河本公威, 堀 秀朗, 西村久博: ダイオキシン類の水質環境基準値超過事例についての考察 (その3) -河北潟に流入する能瀬川におけるダイオキシン類の挙動-, 石川県保健環境センター研究報告書, 48, 25-30 (2011)
- 4) 国土交通省河川局河川環境課: 平成12年全国一級河川におけるダイオキシン類に関する実態調査等の結果について (平成13年12月18日)
- 5) 大高広明, 下野寿男: 水試料中のダイオキシン類分析精度に対する腐植質 (フミン質) の影響, 第12回環境化学討論会講演要旨集, 374-375 (2003)
- 6) 石渡良志, 米林甲陽, 宮島徹: 環境中の腐植物質-その特徴と研究法, 4-7, 三共出版株式会社 (2008)
- 7) 富田孝子: 愛知県の河川・湖沼におけるダイオキシン類の高濃度要因調査, 愛知県環境調査センター所報, 40, 25-34 (2012)

〔資 料〕

石川県におけるインフルエンザの流行状況

—2012/2013シーズン—

石川県保健環境センター 健康・食品安全科学部 児玉 洋江・成相 絵里・橋本 喜代一

〔和文要旨〕

2012/13 シーズンのインフルエンザは、集団かぜでは施設数、患者数ともに過去 5 シーズン中 2010/11 シーズンに次いで少なく、感染症発生動向調査では患者報告数は 2007/08 シーズンに次いで少なかった。定点機関からの 87 検体についてのインフルエンザウイルス遺伝子検査では、AH3 亜型ウイルス遺伝子が 49 検体から、B 型ウイルス遺伝子が 34 検体から、AH3 亜型ウイルスと B 型ウイルスの両遺伝子が 1 検体から検出され、ウイルス分離検査では AH3 亜型ウイルスが 34 株、B 型ウイルスが 29 株（山形系統 24 株、Victoria 系統 5 株）が分離された。分離株は HA 遺伝子解析の結果、いずれも国内分離株と同一クレードに属していた。また全ての分離株で NA 阻害薬剤耐性遺伝子マーカーは検出されなかった。

キーワード：インフルエンザウイルス

1 はじめに

保健環境センター（以下、当センター）では、以前より感染症発生動向調査事業においてインフルエンザの患者数調査のほか、病原体検査としてインフルエンザ患者（インフルエンザ様患者を含む）からのインフルエンザウイルスの分離・同定、遺伝子検出（以下、分離・検出）等の検査を実施している。また、そこで得られた結果は県ホームページをはじめ県内関係機関や国立感染症研究所（以下、感染研）に報告するとともに、分離したウイルスの一部はワクチン開発、研究等に供するため感染研へ提供している。

本報では、2012/2013（以下、2012/13）シーズンの当県におけるインフルエンザの流行状況と分離・検出ウイルスの性状解析結果等について報告する。

2 材料と方法

2・1 患者発生状況

(1) 集団かぜ患者発生状況

県健康推進課が実施している、学校などを対象とした「インフルエンザ様疾患発生報告」により把握した。

(2) インフルエンザ患者発生状況

感染症発生動向調査事業に基づく県内 48 カ所のインフルエンザ定点医療機関（以下、定点、小児科 29 カ所、内科 19 カ所）におけるインフルエンザ患者報告数により把握した。

2・2 ウイルス検査

(1) 試料の採取

感染症発生動向調査事業に基づく県内 5 カ所のインフルエンザ病原体定点医療機関（以下、病原体定点、小児科 3 カ所、内科 2 カ所）を受診したインフルエンザ様患者および県内 5 カ所の基幹定点医療機関（以下、基幹定点）におけるインフルエンザ様疾患による入院患者から採取された咽頭ぬぐい液または鼻腔ぬぐい液の計 87 検

Prevalence of Influenza during 2012–2013 in Ishikawa. by KODAMA Hiroe, NARIAI Eri, HASHIMOTO Kiyokazu (Health and Food Safety Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Influenza virus

体を検査対象とした。

なお、検体は主に2013年第2週（1月7日～1月13日）から第21週（5月20日～5月26日）までの間に採取されたが、感染症発生動向調査事業におけるインフルエンザ患者報告数が定点あたり1.0を超えるまでは病原体定点を受診した全てのインフルエンザ様患者から、1.0を超えた後は病原体定点ごとに1週間に2～3人から採取された。

(2) 検査方法

ア インフルエンザウイルスの遺伝子検出

インフルエンザウイルスの遺伝子検出は、TaqMan Probeを用いたリアルタイム One-step RT-PCR法により、A型ウイルスのM遺伝子およびA型の亜型（AH1pdm09, AH3N2, AH1N1）各ウイルスのHA遺伝子、そしてB型のNS遺伝子の検出を同時に行った。リアルタイム RT-PCR法は7500 Fast (Life Technologies (以下、LT)社製)を使用し、インフルエンザ診断マニュアル(第2版)(以下診断マニュアル)¹⁾に従い実施した。なお、RNAの抽出にはQIAamp Viral RNA Mini Kit (QIAGEN社)を用いた。

イ インフルエンザウイルスの分離および型別

インフルエンザウイルスの分離培養検査は、トリプシン添加 MDCK 細胞を用いて実施した。分離ウイルスの型・亜型別は、培養上清の赤血球凝集(Hemagglutination; HA)価(0.75%モルモット赤血球使用)が8以上の検体について、それを抗原として感染研より分与された2012/13シーズンインフルエンザウイルス同定用キット(以下、同定用キット)の免疫血清(ウサギ)との赤血球凝集抑制(Hemagglutination inhibition: HI)試験によった。

なお、2012/13シーズン同定用キットに含まれるウイルス株は、2012/13シーズンワクチン株であるA/California/7/2009pdm (H1N1pdm09ウイルス)、A/Victoria/361/2011 (H3N2:A 香港型)、B/Wisconsin/01/2010 (山形系統株)と参照株ウイルスであるB/Brisbane/60/2008 (Victoria系統株)の計4株である。また、抗血清は上記各ウイルス株に対する免疫血清(ウサギ)である。

ウ HA 遺伝子塩基配列の解析

診断マニュアルに従い、インフルエンザウイルス分離株のHA1遺伝子領域の塩基配列について解析を行った。すなわち、RT-PCR法により分離株のHA遺伝子を増幅し、得られたPCR増幅産物をQIAquick PCR Purification kit (QIAGEN社)で精製した後、BigDye Terminator v3.1 Cycle Sequence Kit (LT社製)を用いて、GeneAmp PCR System 9700 (LT社製)によりサイクルシーケンス反応を行った。その後、反応産物をBigDye X Terminator (LT社製)で精製し、Applied Biosystems 3500 ジェネ

ティックアナライザ (LT社製)により塩基配列を決定し、Molecular Evolutionary Genetics Analysis (MEGA) 5を用い、近隣結合法 (neighbor-joining method)により系統樹解析を実施した。また、ワクチン株や参照株の塩基配列情報は、The Global Initiative on Sharing All Influenza Data (<http://platform.gisaid.org/epi3/Frontend/#57dc14>)から入手した。

エ ノイラミニダーゼ阻害薬耐性遺伝子マーカーの検索

診断マニュアルに従って、代表的なノイラミニダーゼ(以下、NA)阻害薬耐性遺伝子マーカーの検索を実施した。すなわち、RT-PCR法によりNA遺伝子を増幅し、ウと同様に塩基配列およびアミノ酸配列の決定を行い、耐性遺伝子マーカーの検索を行った。なお、今回検索を行った耐性遺伝子マーカーは、AH3亜型ウイルスについてはE119V, E119D, D151E, R152K, R224K, H274Y, E276D, R292K, R371Kの9領域、B型ウイルスについてはE119V, E119D, E119G, E119A, R152K, R292Kの6領域である。

3 結 果

3・1 患者発生状況

(1) 集団かぜ患者発生状況

2012/13シーズンの集団かぜの初発は、2013年第3週(1月14日～1月20日)の7施設、116人であった。その後、第4週(1月21日～1月27日)の30施設、595人をピークとし、第21週(5月20日～5月26日)まで発生は続いた(図1)。

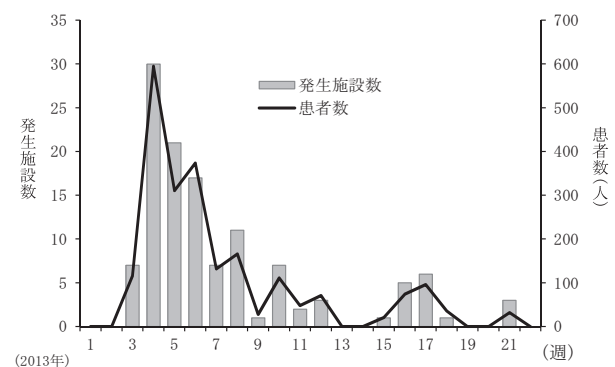


図1 集団かぜ発生施設数と患者数(2012/13シーズン)

最終的に今シーズンの合計は122施設、2,211人であり、過去5シーズン(2007/08:129施設,9,021人²⁾,2008/09:137施設,8,147人³⁾,2009/10:465施設,7,036人⁴⁾,2010/11:93施設,1,694人⁵⁾,2011/12:184施設,3,577人⁶⁾)の中では、施設数,患者数ともに2010/11シーズンに次いで少なかった。

(2) インフルエンザ患者発生状況

感染症発生動向調査事業におけるインフルエンザ患者報告数は、2012年第50週(12月10日～16日)から

増加し、2013 年第 1 週（2012 年 12 月 31 日～2013 年 1 月 6 日）に定点あたり患者報告数が 1.0 を超えた。その後さらに増加し、第 5 週（1 月 28 日～2 月 3 日）をピーク（定点あたり患者報告数 32.2 人）として第 21 週（5 月 20 日～5 月 26 日）まで定点あたり患者報告数 1.0 以上が続いた（図 2）。

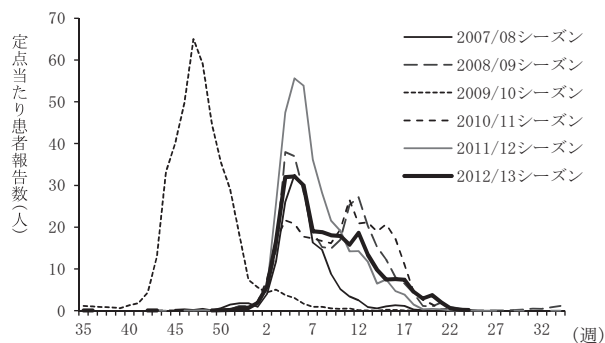


図 2 感染症発生動向調査におけるインフルエンザ患者発生状況 (2007/08～2012/13シーズン)

2012 年第 35 週から 2013 年第 34 週までの累積患者報告数は 13,741 人であり、感染症発生動向調査事業による過去 5 シーズンのインフルエンザ患者報告数（2007/08；7,980人，2008/09；15,227人，2009/10；21,007人，2010/11；14,557人，2011/12；17,350人）の中では 2007/08 シーズンに次いで少なかった。

3・2 ウイルス検査

(1) インフルエンザウイルスの遺伝子検出

各定点で採取された 87 検体について遺伝子検出検査を実施した結果、84 検体（96.6%）からインフルエンザウイルス遺伝子が検出された。その内訳は、AH3 亜型ウイルス遺伝子が 49 検体（56.3%）から、B 型ウイルス遺伝子が 34 検体（39.1%）から、また AH3 亜型および

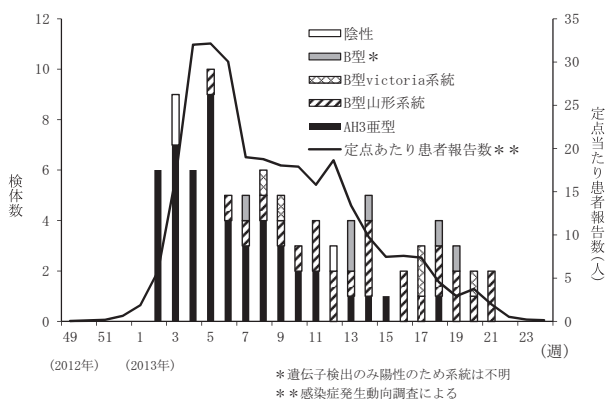


図 3 インフルエンザウイルス分離・検出数 (検体採取週別)

B 型の両ウイルス遺伝子が 1 検体（1.2%）から検出された。この 1 検体は第 13 週（4 月 1 日～7 日）に病原体定点で発熱、嘔吐を呈した 7 歳男児から発熱翌日、抗

インフルエンザ薬投与前に採取された咽頭ぬぐい液であり、同定点で実施した簡易迅速診断キットでも A 型および B 型がともに陽性を示したとされるものである。

また、検体採取週別に分離・検出状況をみると第 2 週（1 月 7 日～13 日）から第 11 週（3 月 11 日～17 日）までは AH3 亜型ウイルス遺伝子が毎週半数以上を占めたが、それ以降は B 型ウイルスが大部分を占めた（図 3）。

(2) インフルエンザウイルス分離および型別

87 検体全てについてウイルス分離培養検査を実施し、HA 価が 8 以上であった 63 検体（72.4%）について、それを抗原として HI 試験によるウイルスの型・亜型同定を実施した。その結果、上記 63 株のうち 34 株（54.0%）が AH3 亜型ウイルスであった。また B 型ウイルスは 29 株（46.0%）分離されたが、このうち山形系統が 24 株（38.1%）、Victoria 系統が 5 株（7.9%）であった。

また前述のウイルス遺伝子検出で AH3 亜型および B 型ウイルス遺伝子が両方検出された 1 検体からは、B 型ウイルス（山形系統）のみが分離された。なお、ウイルスが分離された検体からは、全てウイルス遺伝子も検出されていた。また、分離ウイルス株と同定用キットの免疫血清との反応性をみると、AH3 亜型分離株を抗原とした抗 A/Victoria/361/2011 血清（ホモ価 2560）の HI 価はいずれも 1,280～2,560 であった。また、同様に B 型では山形系統分離株を抗原とした抗 B/Wisconsin/01/2010 血清（ホモ価 320）の HI 価はいずれも 160～320、Victoria 系統を抗原とした B/Brisbane/60/2008（ホモ価 640）の HI 価はいずれも 640 であった。

(3) HA 遺伝子塩基配列の解析

分離ウイルス AH3 亜型 6 株、B 型山形系統 6 株、B 型 Victoria 系統 5 株について、HA 1 遺伝子の塩基配列について解析を行った。その結果、AH3 亜型ウイルス 6 株はいずれも 2012/13 シーズンワクチン株の A/Victoria/361/2011 と同じ Victoria208 クレードのサブクレード 3C に属し、さらに、アミノ酸置換 S278K, N145S を有していた。（図 4）。

B 型山形系統 6 株のうち 5 株は、アミノ酸置換 P108A を有するクレード 2 に属し、さらに、アミノ酸置換 R48K, T181A を有していた（図 5）。残りの 1 株はアミノ酸置換 S150I, N165Y を有するクレード 3 に属していた。

また、B 型 Victoria 系統 5 株は、アミノ酸置換 N75K, N165K, S172P を有する Brisbane/60 と同じクレード 1A に属していた（図 5）。

(4) NA 阻害薬耐性遺伝子マーカーの検索

分離したウイルス 63 株全てについて、NA 阻害薬耐性遺伝子マーカーの検索を実施した結果、本マーカーを保有する株は検出されなかった。

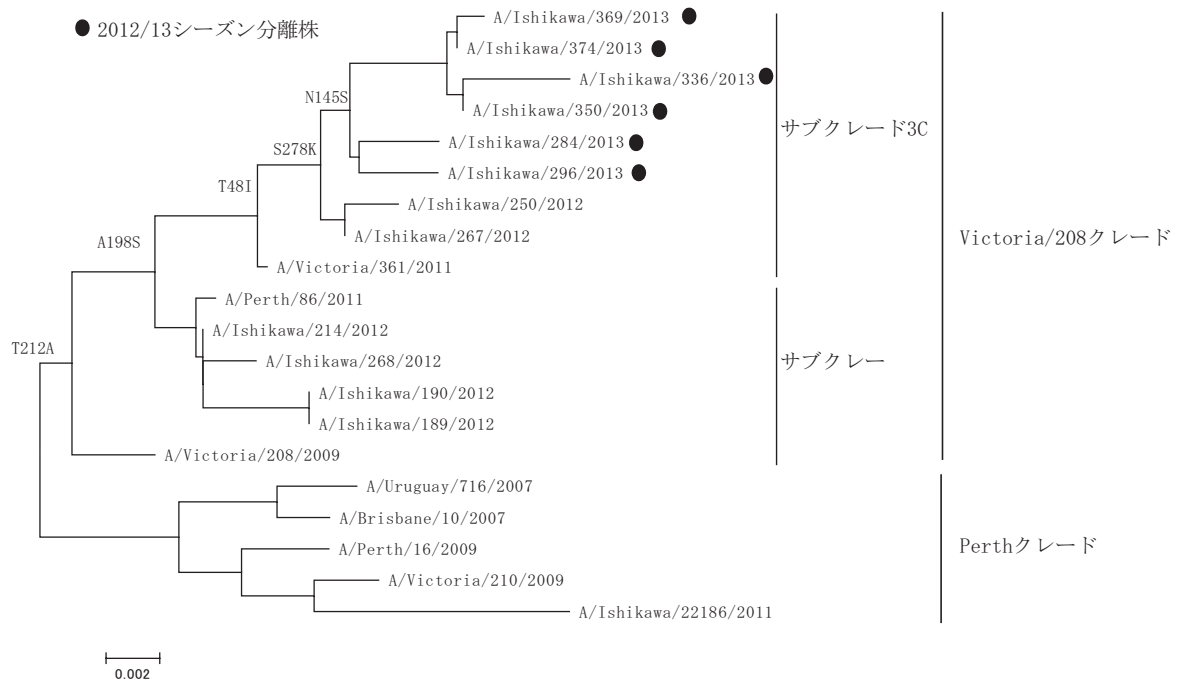


図4 AH3型ウイルス HA1 遺伝子の系統樹解析 (1022 bp)

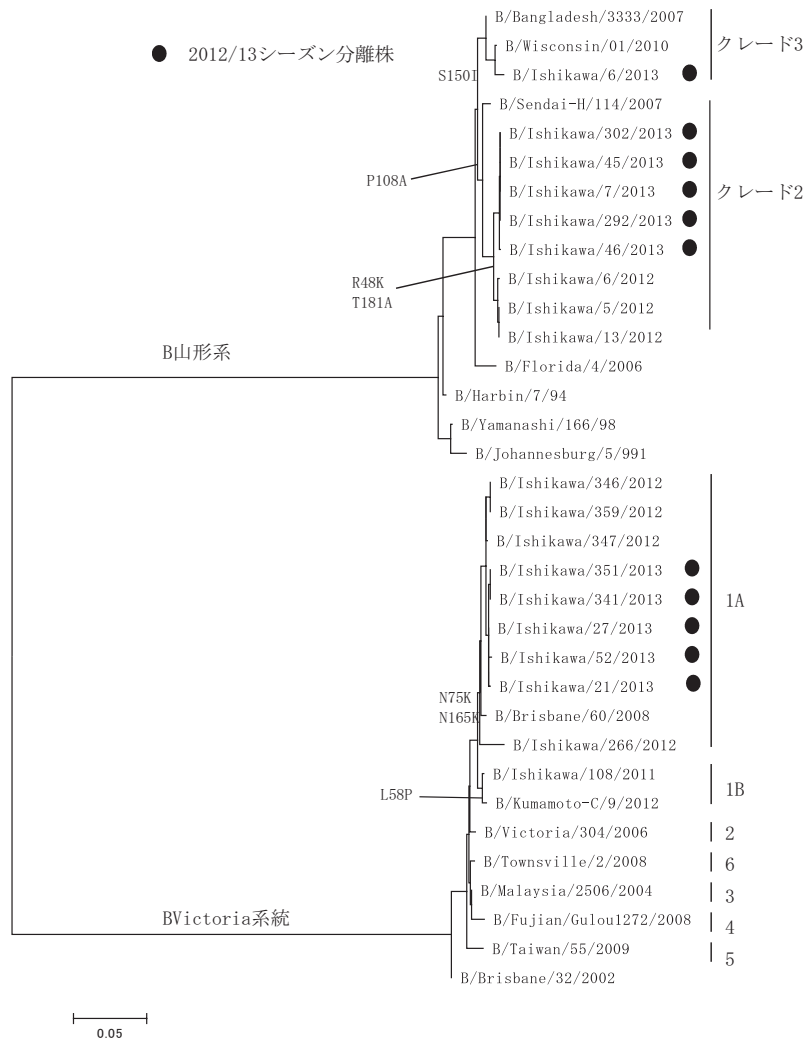


図5 B型ウイルス HA1 遺伝子の系統樹解析 (1041bp)

4 考 察

インフルエンザウイルス遺伝子検出検査の結果、第 10 週までは AH3 亜型ウイルス遺伝子が、第 12 週以降は B 型ウイルス遺伝子が優位に検出されたことから、例年同様、流行は主に前半が AH3 亜型ウイルス、後半は B 型ウイルスによるものと考えられた。

本県における主な分離株は AH3 亜型ウイルスであり、B 型は山形系統株が優位であった。これらは全国と同様の傾向であった⁷⁾。

HA 遺伝子系統樹解析の結果、解析した株はいずれも 2012/13 シーズンの国内分離株と同じクレードにあり⁸⁻⁹⁾、また、2011/12 シーズンの県内分離株⁶⁾とも同一のクレードに属していた。

分離株の抗原性解析は 2011/12 シーズンまでは、感染研より配布された感染フェレット抗血清を用いた HI 試験によったが、2012/13 シーズンからは、配布抗血清が感染フェレット抗血清からウサギ免疫血清に変更となった。この免疫血清を用いた HI 試験では分離株の詳細な抗原性の変化は把握できない¹⁰⁾ ことから、今回の配布抗血清の変更により、地方衛生研究所における抗原性解析も困難となっている。一方で、インフルエンザウイルスの頻繁な遺伝子変異による抗原性の変化は、流行と密接に関係しており、それらの変化をとらえるためには、今後も分離ウイルスの HA 遺伝子を対象とした系統樹解析等の性状解析を継続すべきと考えている。

分離株について代表的な NA 阻害薬耐性遺伝子マーカーの検索を実施した結果、本マーカーを有する株は検出されなかった。感染研が 2012/13 シーズンに全国の地方衛生研究所で分離した株の一部について NA 阻害薬耐性変異株の検出を実施した結果、AH3N2 亜型および B 型ウイルスについては、変異株が検出されなかったと報告しており⁷⁾、本研究の結果と一致していた。しかし、日本は世界最大の抗インフルエンザ薬使用国である¹¹⁾ ことから、今後も継続的な NA 阻害薬耐性変異株のモニタリング等が必要と考えられた。

5 ま と め

(1) 患者発生状況

2012/13 シーズンの集団かぜ患者発生状況は、発生施設数 122 施設、患者数 2,211 人であり、過去 5 シーズンの中では、施設数、患者数ともに 2010/11 シーズンに次いで少なかった。また、感染症発生動向調査事業におけるインフルエンザ累積患者報告数は 13,741 人であり、過去 5 シーズンと比較すると、2007/08 シーズンに次いで少なかった。

(2) インフルエンザウイルスの遺伝子検出状況

病原体定点および基幹定点で採取された 87 検体についてインフルエンザウイルスの遺伝子検出検査を実施し、84 検体 (96.6%) からウイルス遺伝子を検出した。検出遺伝子の内訳は AH3 亜型ウイルス遺伝子が 49 検体 (56.3%) から、B 型ウイルス遺伝子は 34 検体 (39.1%) から、また病原体定点での簡易迅速診断キットで A 型と B 型ともに陽性であった患者から採取された 1 検体 (1.2%) からは AH3 亜型ウイルス遺伝子および B 型ウイルス遺伝子が検出された。

(3) インフルエンザウイルス分離および型別

87 検体のうち 63 検体 (72.4%) からインフルエンザウイルスが分離された。分離ウイルスの内訳は AH3 亜型 34 株 (54.0%)、B 型山形系統 24 株 (38.1%)、B 型 Victoria 系統 5 株 (7.9%) であった。

(4) HA 遺伝子の系統樹解析

分離ウイルスの AH3 亜型 6 株、B 型山形系統 6 株、B 型 Victoria 系統 5 株について、HA 遺伝子の系統樹解析を行った結果、AH3 亜型ウイルスはいずれも 2012/13 シーズンワクチン株の A/Victoria/361/2011 と同じ Victoria 208 クレードのサブクレード 3C に属した。B 型の山形系統株はクレード 2 および 3 に属し、Victoria 系統株は、Brisbane/60 と同クレード 1A に属していた。

(5) NA 阻害薬耐性遺伝子マーカーの検索

分離された全ての株について、NA 阻害薬耐性遺伝子マーカーの検索を実施したが、これらのマーカー保有株は検出されなかった。

文 献

- 1) 国立感染症研究所：インフルエンザ診断マニュアル (第 2 版) (2012)
- 2) 倉本早苗, 大矢英紀, 尾西一：石川県におけるインフルエンザ流行状況 (2007/2008 シーズン), 同上誌, **45**, 53-55 (2008)
- 3) 倉本早苗, 児玉洋江, 尾西一：石川県におけるインフルエンザ流行状況 (2008/2009 シーズン), 同上誌, **46**, 35-38 (2009)
- 4) 児玉洋江, 倉本早苗, 杉森耕益, 尾西一：石川県におけるインフルエンザ流行状況 (2009/2010 シーズン), 同上誌, **47**, 38-46 (2010)
- 5) 児玉洋江, 谷村睦美, 橋本喜代一：石川県におけるインフルエンザ流行状況 (2010/2011 シーズン), 同上誌, **48**, 35-41 (2011)
- 6) 児玉洋江, 成相絵里, 橋本喜代一：石川県におけるインフルエンザ流行状況 (2011/12 シーズン), 同上誌, **49**, -(2012)
- 7) 国立感染症研究所：病原微生物検出情報, **34**, 141-142 (2013)

- 8) 国立感染症研究所：病原微生物検出情報, **33**, 300-302 (2012)
- 9) 国立感染症研究所：病原微生物検出情報, **34**, 42-43 (2013)
- 10) 国立感染症研究所：2012/13シーズンインフルエンザウイルス (A/H1pdm09, A/H3, B) 同定用キットの送付について (2012)
- 11) 国立感染症研究所：病原微生物検出情報, **33**, 288-294 (2012)

〔資 料〕

石川県におけるノロウイルスの流行状況

—2012/2013シーズン—

石川県保健環境センター 健康・食品安全科学部 成相 絵里・児玉 洋江・橋本 喜代一

〔和文要旨〕

2012/2013 シーズンに石川県で発生した感染性胃腸炎の集団発生事例 15 事例および小児散発事例 16 検体についてノロウイルス遺伝子解析を実施した結果、集団発生事例 12 事例から GII/4, 2 事例から GII/13 を検出し、1 事例からは GII/4 および GI/4 を検出した。一方、小児散発事例 15 検体から GII/4, 1 検体から GI/4 を検出した。検出した GII/4 のうち、集団発生事例 2 事例および小児散発事例 6 検体から検出した GII/4 はいずれも Den Haag 89/2006/NL 類似株であり、この他の事例から検出された GII/4 はすべて新たな変異株である Sydney/NSW0514/2012/AU 類似株であった。

キーワード：ノロウイルス, GII/4

1 はじめに

ノロウイルスは冬季における感染性胃腸炎の主要な原因ウイルスであり、また、集団食中毒の原因となるウイルスである。ノロウイルスには、genogroup I～V まで (GI～GV) 5 つの genogroup が存在している。これらのうち、ヒトに感染するのは GI, GII, GIV の 3 つの genogroup である。GI と GII はそれぞれさらに 16 種類以上の遺伝子型が存在することが知られている。¹⁾

我々は、ノロウイルスの検査の際、検体中のウイルスの有無を迅速に判定する以外に、検出したノロウイルスの遺伝子を解析することにより、検出株の相同性の確認や、流行株の状況把握を行っている。²⁾

本報では、2012/2013 (以下、2012/13) シーズンのノロウイルスの遺伝子解析状況を報告する。

2 材料と方法

2・1 検査材料

(1) 集団発生事例

2012/13 シーズン (2012 年第 36 週/9 月～2013 年第 35 週/8 月) に石川県で発生した感染性胃腸炎の集団発

生事例 (食中毒および感染症) のうち、RT-LAMP 法³⁾ または、リアルタイム PCR 法⁴⁾ によりノロウイルス遺伝子が検出された 15 事例の患者ふん便または調理従事者 (無症状) ふん便各 1～2 検体を検査材料とした。

(2) 小児散発事例

感染症発生動向調査事業における感染性胃腸炎の小児散発事例のうち、RT-LAMP 法によりノロウイルス遺伝子が検出された患者ふん便 16 検体を検査材料とした。

2・2 検査方法

検体を PBS (-) で 10% 乳剤とし、RNA 抽出は QIAamp Viral RNA Mini キット (Qiagen 社製) を用いて行った。逆転写反応は PrimeScript® RT reagent Kit (Perfect Real Time) (タカラバイオ社製)、プライマーは capsid 領域を検出する G1SKF/G1SKR と G2SKF/G2SKR を用いて RT-PCR 法⁵⁾ を実施した。電気泳動で目的の大きさのバンドが確認された検体についてダイレクトシーケンスにより capsid 領域 282bp の塩基配列を決定し、BLAST (<http://blast.ncbi.nlm.nih.gov/Blast.cgi>) による相同性の検索を行い、ノロウイルス遺伝子型を決定した。また、遺伝子解析ソフトウェア (MEGA5) を用いて近隣結合法で系統樹解析を行った。

Prevalence of Norovirus in Ishikawa Prefecture in 2012-2013. by NARIAI Eri, KODAMA Hiroe and HASHIMOTO Kiyokazu (Health and Food Safety Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Norovirus, GII/4

3 成 績

(1) 集団発生事例について

15 事例についてノロウイルス遺伝子の capsid 領域の解析を実施した結果、2 事例（事例 13, 15）は GII/13, その他の 13 事例はすべて GII/4 であった。事例 8 では、GII/4 の他に GI/4 が 1 検体から検出された（表 1）。

遺伝子型が GII/4 であった 13 事例のうち 11 事例は、系統樹解析の結果、Sydney/NSW0514/2012/AU 類似株であった。残りの 2 事例は、2006/2007（以下、2006/07）

表 1 ノロウイルス遺伝子解析結果（集団発生事例）

| 事例 No. | 発生年月日 | 発生及び原因施設 | 検査結果 |
|--------|-------------|----------|------------|
| 1 | H24. 11. 2 | 保育園 | GII/4 |
| 2 | H24. 11. 6 | 保育園 | GII/4 |
| 3 | H24. 11. 9 | 保育園 | GII/4 |
| 4 | H24. 11. 9 | 旅館 | GII/4 |
| 5 | H24. 12. 3 | 障害者施設 | GII/4 |
| 6 | H24. 12. 11 | 旅館 | GII/4 |
| 7 | H24. 12. 17 | 居酒屋 | GII/4 |
| 8 | H25. 1. 7 | 弁当屋 | GI/4、GII/4 |
| 9 | H25. 1. 11 | 社員寮 | GII/4 |
| 10 | H25. 2. 12 | 旅館 | GII/4 |
| 11 | H25. 2. 28 | 不明 | GII/4 |
| 12 | H25. 3. 3 | 旅館（神奈川県） | GII/4 |
| 13 | H25. 3. 11 | イベント | GII/13 |
| 14 | H25. 3. 17 | 不明 | GII/4 |
| 15 | H25. 3. 25 | 飲食店 | GII/13 |

シーズンに流行した DenHaag89/2006/NL⁵⁾ 類似株であった（図 1）。

(2) 小児散発事例について

16 検体についてノロウイルス遺伝子の capsid 領域の解析を実施した結果、15 検体から GII/4, 1 検体から GI/4 を検出した（表 2）。

遺伝子型が GII/4 であった 15 検体のうち 9 検体は、Sydney/NSW0514/2012/AU 類似株であった。残りの 6 検体は DenHaag89/2006/NL 類似株であった（図 2）。

表 2 ノロウイルス遺伝子解析結果（小児散発事例）

| 検体 No. | 年齢 | 性別 | 検査結果 |
|--------|-----------|----|-------|
| 1 | 1 歳 9 カ月 | 男 | GII/4 |
| 2 | 2 歳 2 カ月 | 男 | GII/4 |
| 3 | 1 歳 0 カ月 | 男 | GII/4 |
| 4 | 1 歳 3 カ月 | 女 | GII/4 |
| 5 | 0 歳 8 カ月 | 男 | GII/4 |
| 6 | 2 歳 3 カ月 | 男 | GII/4 |
| 7 | 5 歳 11 カ月 | 女 | GII/4 |
| 8 | 2 歳 0 カ月 | 女 | GII/4 |
| 9 | 0 歳 8 カ月 | 女 | GII/4 |
| 10 | 1 歳 5 カ月 | 男 | GII/4 |
| 11 | 1 歳 0 カ月 | 男 | GII/4 |
| 12 | 11 歳 8 カ月 | 男 | GII/4 |
| 13 | 2 歳 5 カ月 | 女 | GII/4 |
| 14 | 9 歳 6 カ月 | 女 | GI/4 |
| 15 | 1 歳 1 カ月 | 男 | GII/4 |
| 16 | 14 歳 | 女 | GII/4 |

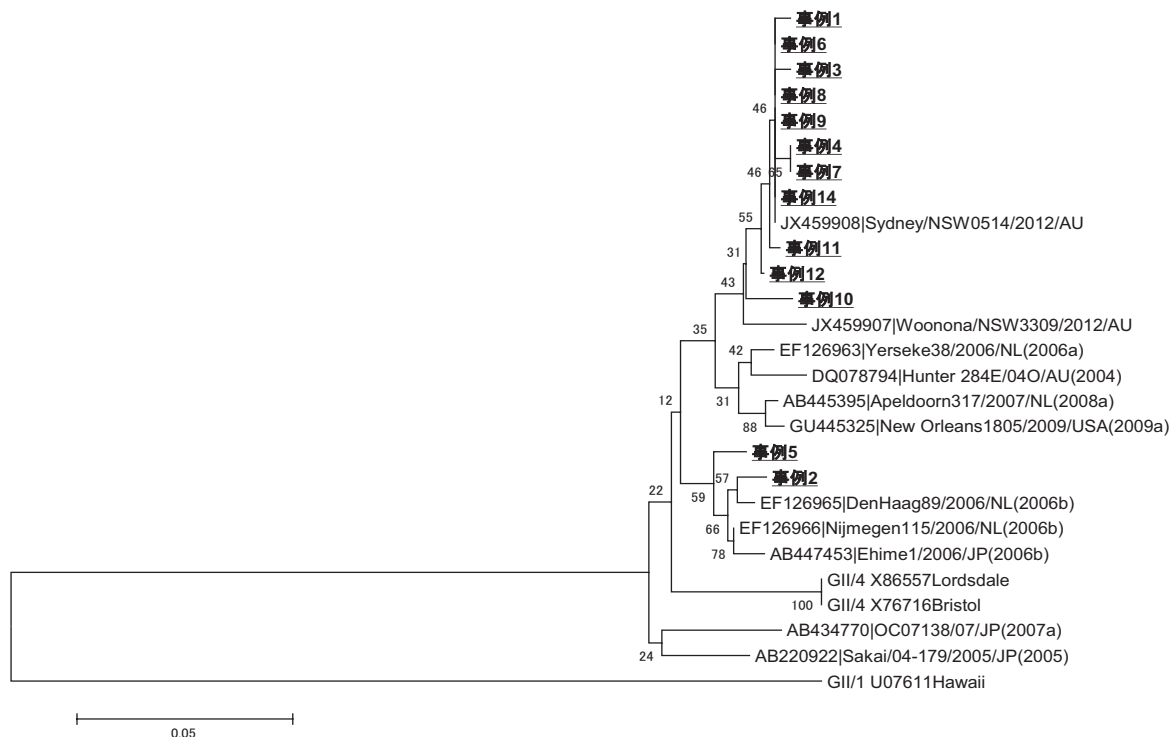


図1 集団発生事例ノロウイルスGII/4系統樹(capsid領域)

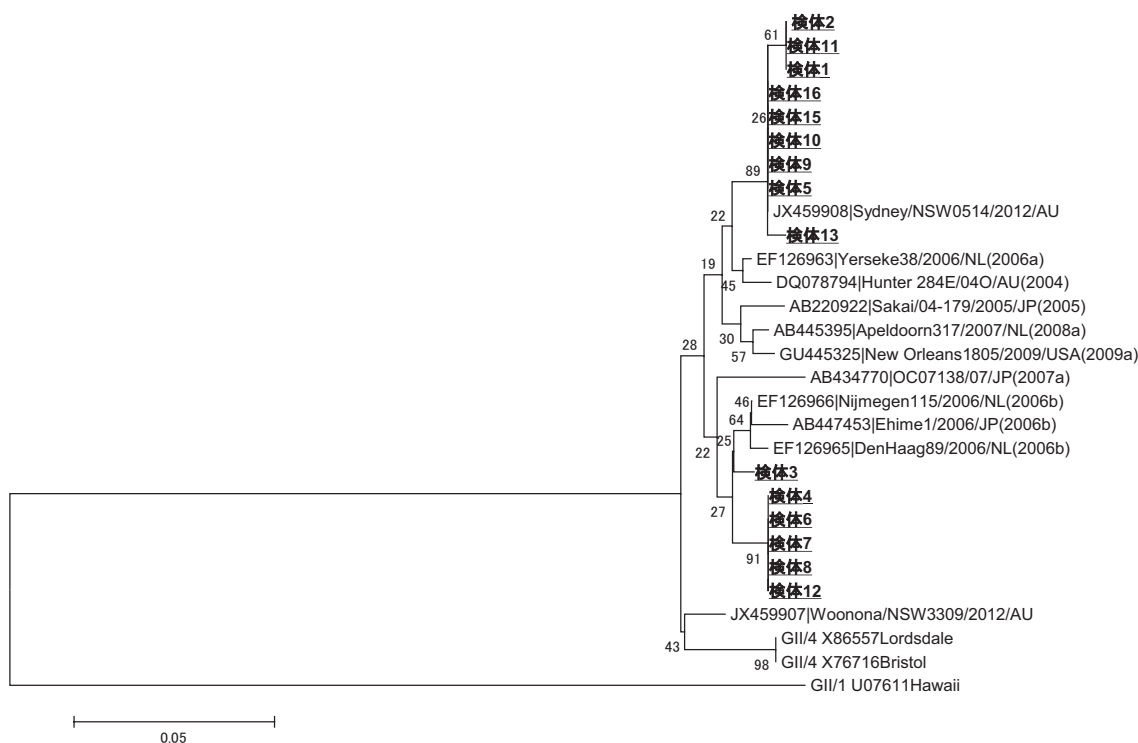


図2 小児散発事例ノロウイルスGII/4系統樹(capsid領域)

4 考 察

2012/13 シーズンに石川県で発生した感染性胃腸炎の集団発生事例 15 事例のうち 13 事例, 小児散発事例 16 検体のうち 15 検体からノロウイルス GII/4 が検出された。これらについて系統樹解析を実施した結果, 集団発生事例 11 事例および小児散発事例 9 検体から検出されたノロウイルス GII/4 は Sydney/NSW0514/2012/AU 類似株であり, この他の GII/4 はいずれも DenHaag89/2006/NL 類似株であった。

DenHaag89/2006/NL は 2006/07 シーズンに主に全国的に検出された GII/4 (2006b) 変異株である。一方, Sydney/NSW0514/2012/AU は, ポリメラーゼ領域は 2007a 変異株, P2d 領域は 2008a 変異株のキメラウイルスであり, 2012 年 10 月以降全国から検出が報告されている。⁶⁾

今回の解析から, 2012/13 シーズンは, 石川県においても, 従来から報告のあった GII/4 (2006b) 変異株に加え, 新たな変異株である Sydney/NSW0514/2012/AU 類似株による患者発生がみられたと考えられる。ノロウイルスの遺伝子変異が感染性胃腸炎の流行に影響を及ぼしている可能性も示唆されている⁷⁾ことから, 今後も引き続きノロウイルスの遺伝子変異の動向を注意深く監視する必要があると考える。

5 ま と め

2012/13 シーズンのノロウイルスによる胃腸炎の集団発生事例や小児散発事例において検出された Sydney/NSW0514/2012/AU 類似株は, 2006/07 シーズンに流行した株とは遺伝子的に異なる新たな GII/4 変異株であった。

文 献

- 1) 片山和彦: 病原微生物検出情報月報, **28** (10), 293-294 (2007)
- 2) 大矢英紀, 黒崎直子, 尾西一: 平成 17~18 年度の石川県におけるノロウイルスの流行状況, 石川県保健環境センター研究報告書, **44**, 23-27 (2007)
- 3) NOTOMI Tsugunori, OKAYAMA Hiroto, MASUBUCHI Harumi, YONEKAWA Toshihiro, WATANABE Keiko, AMINO Nobuyuki and HASE Tetsu: Nucleic Acids Research **28**, No.12, e63 (2000)
- 4) 厚生労働省通知「ノロウイルスの検出法について(平成 15 年 11 月 5 日食安監発第 1105001 号)(最終改正 平成 19 年 5 月 14 日食安監発第 0514004 号)」
- 5) 病原微生物検出情報月報, **28** (10), 277-278 (2007)
- 6) 田村務: 病原微生物検出情報月報, **33** (12), 333-334 (2012)
- 7) OKADA Mineyuki, OGAWA Tomoko, KAIHO Ikuo, SHINOZAKI Kunio: Journal of Clinical Microbiology, **43**, 4391-4401 (2005)

〔資 料〕

石川県における地下水の水質組成について

石川県保健環境センター 環境科学部 岡田 真規子・井上 和幸・橋本 潤子

〔和文要旨〕

平成 19 年度と 23 年度及び平成 20 年度と 24 年度の同一井戸の地下水における水質組成の変化をキーダイアグラム上の領域により考察した。キーダイアグラムは、陽イオンが $(\text{Na}^+ + \text{K}^+) : (\text{Ca}^{2+} + \text{Mg}^{2+})$ の比、陰イオンが $(\text{Cl}^- + \text{SO}_4^{2-}) : (\text{HCO}_3^-)$ の比で評価するキーダイアグラム(A)と硝酸性窒素の汚染の影響をみるために陰イオンを $(\text{Cl}^- + \text{SO}_4^{2-} + \text{NO}_3^-) : (\text{HCO}_3^-)$ の比としたキーダイアグラム(B)を使用した。キーダイアグラム(A)での領域に変化が見られた井戸は 105 井中 28 井で、濃度変化が大きく領域の変化に寄与していた水質成分は主に Ca^{2+} , Cl^- , HCO_3^- であった。硝酸性窒素による汚染があり、キーダイアグラム(B)の領域で、通常の地下水には見られない非炭酸塩硬度の領域(以下, III)に属した井戸のうち、領域の変化があったものは、すべて炭酸塩硬度の領域(以下, I)への変化で NO_3^- , Cl^- , SO_4^{2-} の減少がみられた。また、新たに III へ変化した井戸には、 Ca^{2+} の増加が多くみられた。また、同一井戸における硝酸性窒素による汚染濃度は半数近くで増加がみられた。

キーワード：地下水、水質組成、キーダイアグラム

1 はじめに

本県では、「石川県水質測定計画」に従い、県内の地下水水質について、毎年概況調査を実施している。本報では、平成 19 年度と 23 年度及び平成 20 年度と 24 年度の同一井戸における水質組成の変化をキーダイアグラムの領域区分の変化から考察した。また全国的に汚染が顕在化している硝酸性窒素の汚染の影響による領域区分の変化および同一井戸での硝酸性窒素による汚染濃度の変化についてもあわせて報告する。

2 調査方法

2・1 調査地点

概況調査は、県内を 4 km メッシュに区分し、さらにこのメッシュを 2 km メッシュに 4 分割した位置において調査井戸を選定した(図 1)。なお概況調査は、4 分割した位置①～④の順に 4 年間で一巡する調査を繰り返すローリング方式を用いて実施している¹⁾。本報ではそのうち

平成 19 年度と 23 年度及び平成 20 年度と 24 年度に測定した同一井戸を対象とした。

2・2 調査項目

調査項目は、地下水の主要溶存イオンである Na^+ , K^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} , Cl^- , SO_4^{2-} , HCO_3^- , NO_3^- である。

2・3 分析法

試料の分析は、 Na^+ , K^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} , Cl^- , SO_4^{2-} , NO_3^- については、イオンクロマトアナライザー(島津製作所製 Prominence HIC-SP)を用いて分析を行った。 HCO_3^- は pH 4.8 アルカリ度滴定法により定量した。

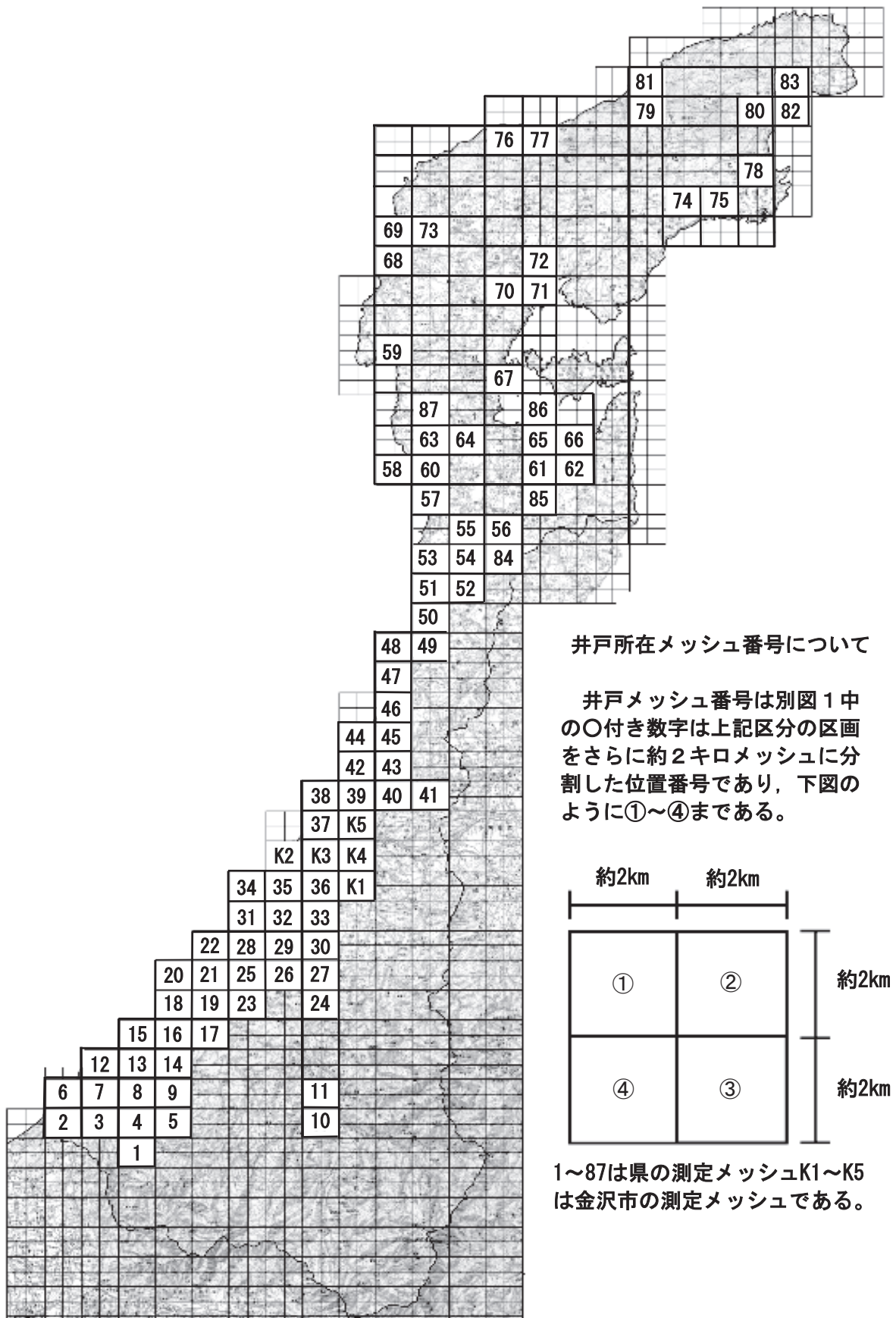
3 結果及び考察

平成 19 年度と 23 年度及び平成 20 年度と 24 年度の同一井戸における水質組成と、後述のキーダイアグラム(A), キーダイアグラム(B)における領域区分を表 1 に示した。

キーダイアグラム(A)は陽イオンを $(\text{Na}^+ + \text{K}^+) : (\text{Ca}^{2+} + \text{Mg}^{2+})$ 、陰イオンを $(\text{Cl}^- + \text{SO}_4^{2-}) : (\text{HCO}_3^-)$ の比で作成したもの、キーダイアグラム(B)は陽イオンを $(\text{Na}^+ + \text{K}^+) : (\text{Ca}^{2+} + \text{Mg}^{2+})$ 、陰イ

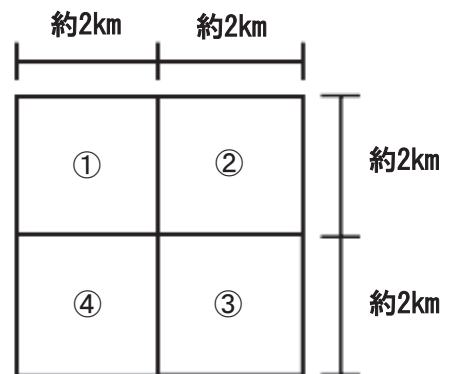
Survey of the Main Water-Soluble Ions Composition of Groundwater in Ishikawa Prefecture.
by OKADA Makiko, INOUE Kazuyuki and HASHIMOTO Junko (Environmental Science Department,
Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Groundwater, Water-Soluble Ions, Key diagram



井戸所在メッシュ番号について

井戸メッシュ番号は別図 1 中の○付き数字は上記区分の区画をさらに約 2 キロメッシュに分割した位置番号であり、下図のように①～④までである。



1～87は県の測定メッシュK1～K5は金沢市の測定メッシュである。

図 1 概況調査図

表 1-1 水質分析結果(位置③)

| メッシュ | 測定年度 | Na ⁺ | K ⁺ | Ca ²⁺ | Mg ²⁺ | Cl ⁻ | SO ₄ ²⁻ | HCO ₃ ⁻ | NO ₃ ⁻ | 測定年度 | Na ⁺ | K ⁺ | Ca ²⁺ | Mg ²⁺ | Cl ⁻ | SO ₄ ²⁻ | HCO ₃ ⁻ | NO ₃ ⁻ | キーダイアグラムの区分(年度別) | | | | |
|------|------|-----------------|----------------|------------------|------------------|-----------------|-------------------------------|-------------------------------|------------------------------|------|-----------------|----------------|------------------|------------------|-----------------|-------------------------------|-------------------------------|------------------------------|------------------|-----|-----|-----|--|
| | | (mg/L) | (mg/L) | (mg/L) | (mg/L) | (mg/L) | (mg/L) | (mg/L) | (mg/L) | | (mg/L) | (mg/L) | (mg/L) | (mg/L) | (mg/L) | (mg/L) | (mg/L) | (mg/L) | (mg/L) | (A) | (B) | | |
| | | H19 | H23 | H19 | H23 | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| 1 | H19 | 15.7 | 5.7 | 20.0 | 2.4 | 20.5 | 13.1 | 37.0 | 33.20 | H23 | 10.8 | 4.8 | 20.1 | 2.3 | 10.0 | 10.2 | 57.6 | 2.72 | V | I | III | I | |
| 2 | H19 | 13.2 | 0.9 | 9.4 | 3.5 | 14.4 | 7.5 | 41.9 | 0.83 | H23 | 19.7 | — | 43.4 | 10.0 | 28.6 | 11.8 | 136.7 | 0.73 | I | I | I | I | |
| 4 | H19 | 10.9 | 2.9 | 5.3 | 1.1 | 9.8 | 6.2 | 26.6 | 3.70 | H23 | 14.7 | 4.8 | 16.8 | 2.4 | 14.8 | 10.9 | 44.2 | 12.25 | V | I | IV | III | |
| 6 | H19 | 10.9 | 1.7 | 1.4 | 3.3 | 16.2 | 6.1 | 18.8 | 0.53 | H23 | 9.4 | 1.4 | 2.0 | 3.2 | 8.9 | 8.6 | 20.8 | 0.72 | IV | IV | IV | IV | |
| 7 | H19 | 31.4 | 2.4 | 23.3 | 9.6 | 25.1 | — | 130.3 | — | H23 | 29.0 | 2.3 | 26.6 | 10.2 | 21.1 | — | 144.2 | 0.03 | I | I | I | I | |
| 8 | H19 | 14.4 | 8.1 | 1.9 | 2.1 | 12.1 | 10.9 | 28.5 | 1.70 | H23 | 13.6 | 7.9 | 3.2 | 2.8 | 10.9 | 10.5 | 28.8 | 1.77 | V | IV | IV | IV | |
| 12 | H19 | 12.2 | 1.4 | 4.6 | 4.5 | 16.3 | 13.9 | 9.1 | 21.70 | H23 | 12.4 | 1.9 | 10.0 | 6.2 | 16.5 | 16.4 | 4.8 | 38.03 | V | III | III | III | |
| 13 | H19 | 29.6 | 9.0 | 15.7 | 24.8 | 20.1 | — | 187.3 | — | H23 | 29.3 | 9.9 | 19.4 | 25.2 | 18.6 | 0.2 | 191.0 | 0.13 | I | I | I | I | |
| 14 | H19 | 18.3 | 3.7 | 3.4 | 3.5 | 13.9 | 6.1 | 16.1 | 35.10 | H23 | 18.8 | 3.6 | 6.3 | 4.5 | 13.4 | 6.7 | 15.4 | 41.21 | IV | IV | IV | IV | |
| 15 | H19 | 14.0 | 4.2 | 7.6 | 3.9 | 14.4 | 17.8 | 33.5 | 4.70 | H23 | 10.3 | 2.9 | 5.9 | 2.4 | 14.2 | 9.4 | 17.1 | 2.94 | IV | IV | IV | IV | |
| 17 | H19 | 12.9 | 3.9 | 6.0 | 2.0 | 9.2 | 15.6 | 19.4 | 9.90 | H23 | 9.0 | 3.6 | 12.2 | 1.2 | 9.1 | 11.6 | 27.3 | 7.23 | IV | V | IV | III | |
| 18 | H19 | 33.8 | 7.7 | 26.7 | 15.7 | 23.7 | — | 174.7 | — | H23 | 27.7 | 5.7 | 23.0 | 11.5 | 20.8 | — | 142.1 | 0.02 | I | I | I | I | |
| 19 | H19 | 149.0 | 12.7 | 4.5 | 6.4 | 114.3 | 32.4 | 223.7 | — | H23 | 195.8 | 9.0 | 11.1 | 9.0 | 166.8 | 52.5 | 207.0 | 0.02 | IV | IV | IV | IV | |
| 23 | H19 | 8.4 | 2.6 | 4.0 | 2.0 | 8.5 | 10.2 | 14.4 | 4.40 | H23 | 6.4 | 1.7 | 7.3 | 1.5 | 5.6 | 10.5 | 16.9 | 4.35 | IV | V | IV | III | |
| 24 | H19 | 6.2 | 1.6 | 6.5 | 1.7 | 5.8 | 14.2 | 19.0 | 2.50 | H23 | 5.9 | 1.5 | 8.5 | 1.5 | 5.7 | 15.0 | 15.3 | 2.63 | V | V | III | III | |
| 25 | H19 | 8.6 | 0.9 | 14.5 | 2.8 | 8.4 | 14.4 | 44.3 | 4.90 | H23 | 8.9 | — | 18.1 | 2.7 | 10.9 | 15.4 | 40.8 | 6.18 | I | I | I | I | |
| 26 | H19 | 10.1 | 1.3 | 11.7 | 2.6 | 10.8 | 8.9 | 39.3 | 5.90 | H23 | 9.8 | 2.0 | 13.5 | 2.2 | 12.1 | 8.7 | 34.3 | 5.09 | I | I | I | III | |
| 27 | H19 | 16.5 | 0.7 | 19.1 | 4.2 | 8.4 | 13.3 | 79.8 | — | H23 | 5.0 | — | 9.5 | 1.5 | 5.4 | 9.5 | 22.5 | 1.08 | I | I | I | I | |
| 28 | H19 | 7.5 | 0.8 | 14.7 | 3.7 | 26.4 | 49.6 | 58.5 | 2.20 | H23 | 7.9 | — | 19.8 | 3.4 | 7.7 | 12.5 | 53.0 | 2.93 | V | I | III | I | |
| 29 | H19 | 11.1 | 1.5 | 27.9 | 5.4 | 13.7 | 20.4 | 65.8 | 17.20 | H23 | 11.1 | 1.7 | 29.2 | 4.9 | 14.0 | 19.3 | 65.8 | 11.66 | I | I | III | I | |
| 31 | H19 | 7.9 | 0.9 | 19.5 | 4.1 | 29.6 | 58.8 | 51.2 | 3.80 | H23 | 8.5 | — | 22.7 | 3.9 | 9.7 | 15.0 | 60.0 | 4.24 | V | I | III | I | |
| 32 | H19 | 10.3 | 1.2 | 27.3 | 6.6 | 11.6 | 17.1 | 80.5 | 7.80 | H23 | 10.1 | 3.1 | 28.5 | 6.1 | 11.4 | 17.5 | 79.1 | 8.46 | I | I | I | I | |
| 36 | H19 | 11.9 | 1.5 | 14.1 | 4.1 | 12.2 | 17.8 | 43.5 | 4.30 | H23 | 11.5 | 1.9 | 14.9 | 3.5 | 12.4 | 16.9 | 38.6 | 4.72 | I | V | III | III | |
| 38 | H19 | 17.8 | 5.3 | 4.8 | 12.2 | 20.8 | 13.9 | 48.3 | 21.10 | H23 | 16.2 | 5.8 | 7.9 | 18.0 | 12.5 | 17.1 | 86.4 | 19.91 | V | I | III | I | |
| 40 | H19 | 23.8 | 6.0 | 44.4 | 18.8 | 13.7 | 109.4 | 124.2 | — | H23 | 24.3 | 6.2 | 62.2 | 22.3 | 13.7 | 220.1 | 144.2 | 0.04 | V | V | III | III | |
| 42 | H19 | 13.7 | 4.2 | 4.0 | 11.8 | 17.5 | 25.9 | 23.5 | 24.20 | H23 | 10.5 | 3.2 | 5.5 | 8.4 | 10.8 | 14.2 | 27.4 | 16.97 | V | V | III | III | |
| 43 | H19 | 10.7 | 4.5 | 15.7 | 8.0 | 16.9 | 31.6 | 49.9 | 4.80 | H23 | 9.2 | 4.0 | 14.0 | 6.0 | 18.8 | 26.6 | 24.7 | 4.01 | V | V | III | III | |
| 44 | H19 | 14.6 | 4.6 | 5.0 | 14.9 | 20.1 | 28.0 | 36.2 | 25.50 | H23 | 12.9 | 5.9 | 7.6 | 12.1 | 18.0 | 24.2 | 32.2 | 21.44 | V | V | III | III | |
| 45 | H19 | 16.6 | 2.7 | 3.9 | 1.7 | 16.8 | 2.0 | 34.7 | 0.76 | H23 | 16.0 | 2.8 | 6.5 | 1.7 | 17.1 | 2.3 | 29.2 | 1.11 | V | IV | II | IV | |
| 46 | H19 | 12.2 | 6.7 | 4.0 | 1.9 | 16.6 | 12.6 | 16.7 | 6.00 | H23 | 19.1 | 6.2 | 4.8 | 2.2 | 16.6 | 21.6 | 9.2 | 12.62 | IV | IV | IV | IV | |
| 47 | H19 | 16.9 | 1.6 | 5.3 | 4.4 | 17.8 | 8.5 | 37.2 | 6.30 | H23 | 23.4 | 2.2 | 10.3 | 3.6 | 14.8 | 6.2 | 55.3 | 9.58 | IV | V | IV | II | |
| 48 | H19 | 22.4 | 2.1 | 6.2 | 8.2 | 27.9 | 23.8 | 33.0 | 14.70 | H23 | 19.3 | 2.1 | 9.3 | 9.1 | 25.2 | 12.1 | 41.5 | 13.50 | IV | V | IV | III | |
| 49 | H19 | 9.3 | 0.8 | 12.2 | 2.5 | 9.3 | 9.4 | 45.0 | 2.50 | H23 | 9.0 | — | 15.0 | 2.4 | 9.2 | 10.5 | 41.6 | 2.51 | I | I | I | I | |
| 50 | H19 | 20.2 | 2.5 | 13.3 | 4.2 | 21.4 | 3.3 | 71.7 | — | H23 | 19.3 | 2.5 | 17.1 | 4.3 | 19.7 | 3.7 | 71.5 | — | I | I | I | I | |
| 51 | H19 | 21.0 | 1.1 | 4.3 | 3.8 | 26.0 | 7.6 | 32.9 | 3.30 | H23 | 20.4 | — | 5.5 | 3.4 | 19.0 | 9.9 | 31.3 | 3.35 | IV | IV | IV | IV | |
| 53 | H19 | 33.2 | 5.9 | 20.1 | 9.1 | 27.4 | 14.0 | 116.5 | 0.33 | H23 | 30.8 | 5.9 | 24.2 | 9.0 | 22.8 | 12.4 | 121.0 | 0.47 | I | I | I | I | |
| 54 | H19 | 21.2 | 1.4 | 7.8 | 17.6 | 16.4 | 9.8 | 86.1 | — | H23 | 19.7 | 1.6 | 18.9 | 8.4 | 14.3 | 12.8 | 93.6 | 0.32 | I | I | I | I | |
| 55 | H19 | 13.1 | 4.1 | 8.7 | 6.0 | 13.2 | 18.3 | 44.4 | 3.00 | H23 | 11.5 | 3.6 | 10.8 | 5.8 | 11.7 | 19.3 | 38.6 | 3.97 | V | V | III | III | |
| 56 | H19 | 12.6 | 4.4 | 4.9 | 2.8 | 17.6 | 10.9 | 14.0 | 10.60 | H23 | 10.3 | 3.5 | 5.8 | 2.3 | 11.3 | 11.2 | 13.9 | 9.43 | IV | IV | IV | IV | |
| 60 | H19 | 20.1 | 1.3 | 4.0 | 1.1 | 24.6 | 2.7 | 27.5 | 0.43 | H23 | 21.8 | 1.7 | 8.5 | 1.7 | 18.7 | 2.8 | 43.1 | 2.88 | IV | V | IV | II | |
| 61 | H19 | 11.3 | 2.2 | 22.9 | 1.9 | 9.8 | 2.7 | 79.9 | — | H23 | 11.1 | 2.1 | 27.2 | 1.6 | 10.3 | 2.8 | 79.5 | 0.20 | I | I | I | I | |
| 63 | H19 | 7.3 | 2.0 | 0.7 | 0.7 | 10.6 | 4.1 | 6.0 | — | H23 | 7.0 | 1.5 | — | 1.0 | 9.3 | 4.7 | 4.7 | 0.06 | IV | IV | IV | IV | |
| 64 | H19 | 18.9 | 3.5 | 6.0 | 2.9 | 24.7 | 14.3 | 26.7 | 1.50 | H23 | 16.6 | 2.6 | 5.2 | 2.1 | 21.8 | 16.7 | 9.1 | 0.91 | IV | IV | IV | IV | |
| 65 | H19 | 13.9 | 4.1 | 12.9 | 6.5 | 12.3 | 3.1 | 76.9 | — | H23 | 13.3 | 3.9 | 15.6 | 6.6 | 11.5 | 4.1 | 75.3 | 0.57 | I | I | I | I | |
| 66 | H19 | 12.3 | 2.5 | 30.6 | 5.2 | 12.1 | 7.1 | 105.6 | 1.70 | H23 | 11.6 | 2.7 | 29.2 | 4.6 | 12.5 | 6.7 | 89.8 | 2.06 | I | I | I | I | |
| 67 | H19 | 19.4 | 4.3 | 11.3 | 8.6 | 21.9 | 10.5 | 59.8 | 17.30 | H23 | 16.5 | 3.9 | 11.7 | 7.5 | 16.0 | 10.2 | 51.3 | 13.58 | I | I | III | III | |
| 73 | H19 | 21.4 | 1.7 | 13.3 | 3.5 | 14.6 | 10.4 | 71.8 | 0.03 | H23 | 23.1 | 1.5 | 13.8 | 3.3 | 16.3 | 12.5 | 62.0 | 0.82 | V | V | II | II | |
| 76 | H19 | 53.5 | 2.8 | 3.5 | 2.1 | 23.4 | 15.7 | 98.1 | — | H23 | 21.7 | 2.1 | 7.8 | 1.7 | 18.2 | 5.1 | 103.6 | 0.09 | V | V | II | II | |
| 77 | H19 | 21.9 | 1.8 | 3.6 | 1.0 | 20.3 | 4.4 | 37.5 | — | H23 | 61.5 | 2.6 | 5.2 | 2.1 | 21.3 | 18.7 | 42.0 | 0.16 | IV | IV | IV | IV | |
| 80 | H19 | 19.3 | 10.6 | 7.2 | 3.6 | 13.9 | 8.2 | 64.3 | 1.10 | H23 | 17.0 | 9.6 | 14.7 | 4.5 | 16.4 | 8.2 | 58.4 | 8.01 | V | I | II | I | |
| 84 | H19 | 10.5 | 0.7 | 1.4 | 1.3 | 12.0 | 4.9 | 11.5 | 3.10 | H23 | 10.0 | 1.0 | 2.3 | 1.7 | 13.9 | 5.4 | 10.2 | 2.26 | IV | IV | IV | IV | |
| 85 | H19 | 9.7 | 1.5 | 12.8 | 4.8 | 10.6 | 16.7 | 32.1 | 13.40 | H23 | 9.1 | 1.5 | 15.9 | 4.6 | 10.8 | 13.5 | 43.5 | 7.83 | V | I | III | I | |
| 86 | H19 | 364.0 | 29.3 | 8.7 | 65.7 | 511.0 | 93.6 | 147.8 | — | H23 | 580.0 | 31.0 | 45.8 | 42.2 | 950.0 | 140.0 | 126.8 | — | IV | IV | IV | IV | |
| 87 | H19 | 31.2 | 5.6 | 1.0 | 1.2 | 21.4 | 14.2 | 44.1 | — | H23 | 15.7 | 1.5 | 1.4 | 2.4 | 26.4 | 8.2 | — | 0.87 | IV | IV | IV | IV | |

■：耕作地に窒素肥料と中和剤の苦土石灰を施用した場合に増加するCa²⁺、Mg²⁺、Cl⁻、SO₄²⁻、NO₃⁻の値が増加
 ■：Na⁺、K⁺、HCO₃⁻の値が増加
 —：検出なし

オンを(Cl⁻+SO₄²⁻+NO₃⁻):(HCO₃⁻)の比で作成したものである。それぞれの領域区分を図 2³⁾及び図 3 に示した³⁾⁴⁾。また、各年度別のキーダイアグラム(A)を図 4 に、キーダイアグラム(B)を図 5 に示す。

3・1 キーダイアグラム (A)

同一井戸における水質組成の変化をキーダイアグラム

(A) 上での領域の変化から考察した。

平成 19 年度と 23 年度の井戸（4 分割のうち位置③）で変化があった井戸は 54 井中 16 井、平成 20 年度と 24 年度の井戸（4 分割のうち位置④）では 51 井中 12 井であった。そのうちアルカリ非炭酸塩（以下、IV）から中間的組成（以下、V）に変化したものは 11 井、V から

表1-2 水質分析結果(位置④)

| メッシュ | 測定年度 | Na ⁺ (mg/L) | K ⁺ (mg/L) | Ca (mg/L) | Mg ²⁺ (mg/L) | Cl ⁻ (mg/L) | SO ₄ ²⁻ (mg/L) | HCO ₃ ⁻ (mg/L) | NO ₃ ⁻ (mg/L) | 測定年度 | Na ⁺ (mg/L) | K ⁺ (mg/L) | Ca (mg/L) | Mg ²⁺ (mg/L) | Cl ⁻ (mg/L) | SO ₄ ²⁻ (mg/L) | HCO ₃ ⁻ (mg/L) | NO ₃ ⁻ (mg/L) | キーダイアグラムの区分(年度別) | | | |
|------|------|---------------------------|--------------------------|--------------|----------------------------|---------------------------|---|---|--|------|---------------------------|--------------------------|--------------|----------------------------|---------------------------|---|---|--|------------------|-----|-----|-----|
| | | | | | | | | | | | | | | | | | | | (A) | | (B) | |
| | | | | | | | | | | | | | | | | | | | H20 | H24 | H20 | H24 |
| 1 | H20 | 10.2 | 1.5 | 5.0 | 2.0 | 9.9 | 14.4 | 12.4 | 4.83 | H24 | 8.1 | 1.0 | 4.4 | 1.6 | 10.0 | 10.8 | 14.3 | 2.80 | IV | IV | IV | IV |
| 3 | H20 | 8.6 | 3.7 | 5.4 | 1.7 | 10.1 | 9.1 | 26.6 | 6.31 | H24 | 8.4 | 3.5 | 6.9 | 2.0 | 10.1 | 8.7 | 24.9 | 6.33 | IV | V | IV | III |
| 7 | H20 | 7.8 | 3.8 | 9.8 | 2.3 | 10.3 | 7.8 | 43.6 | 3.69 | H24 | 7.9 | 3.8 | 12.8 | 2.2 | 8.9 | 6.9 | 32.6 | 4.17 | I | I | I | I |
| 9 | H20 | 9.6 | 6.3 | 6.2 | 2.7 | 10.8 | 14.8 | 23.2 | 10.71 | H24 | 8.5 | 5.5 | 6.5 | 2.6 | 10.3 | 11.0 | 24.6 | 4.98 | IV | V | IV | III |
| 12 | H20 | 21.3 | 3.4 | 4.6 | 3.5 | 20.3 | 26.7 | 21.9 | 11.89 | H24 | 25.7 | 4.1 | 7.9 | 5.8 | 21.0 | 25.0 | 19.8 | 20.23 | IV | IV | IV | IV |
| 13 | H20 | 13.0 | 1.5 | 4.3 | 1.6 | 13.5 | 7.8 | 33.0 | 2.34 | H24 | 13.4 | 1.6 | 7.2 | 2.6 | 13.8 | 6.8 | 29.9 | 1.90 | V | V | IV | IV |
| 14 | H20 | 11.3 | 1.1 | 7.3 | 4.2 | 11.8 | 16.1 | 3.0 | 38.27 | H24 | 10.7 | 1.2 | 6.4 | 3.4 | 13.7 | 17.0 | 2.9 | 13.74 | V | V | III | III |
| 16 | H20 | 8.7 | 5.1 | 19.6 | 3.9 | 14.5 | 24.2 | 20.4 | 40.08 | H24 | 10.5 | 4.2 | 14.8 | 2.5 | 12.8 | 16.9 | 22.2 | 16.88 | V | V | III | III |
| 17 | H20 | 19.2 | 3.8 | 8.2 | 3.2 | 22.8 | 8.5 | 52.0 | 17.25 | H24 | 20.9 | 4.2 | 12.1 | 5.0 | 37.3 | 8.7 | 29.1 | 16.54 | V | IV | IV | IV |
| 18 | H20 | 14.7 | 4.6 | 8.4 | 2.5 | 21.1 | 10.3 | 25.4 | 9.76 | H24 | 14.0 | 4.0 | 12.4 | 2.6 | 18.6 | 8.8 | 24.2 | 8.80 | IV | V | IV | III |
| 20 | H20 | 111.4 | 8.5 | 86.5 | 29.0 | 328.7 | 5.0 | 93.2 | — | H24 | 80.7 | 3.7 | 55.9 | 18.9 | 28.1 | 5.3 | 73.2 | — | V | I | III | I |
| 21 | H20 | 12.2 | 2.1 | 13.1 | 8.1 | 8.7 | 8.8 | 90.5 | — | H24 | 10.4 | 2.1 | 12.9 | 9.9 | 10.2 | 10.0 | 76.5 | — | I | I | I | I |
| 22 | H20 | 6.3 | 0.8 | 13.2 | 3.5 | 7.2 | 12.2 | 38.8 | 2.18 | H24 | 5.9 | 0.8 | 14.6 | 3.6 | 6.8 | 11.7 | 41.6 | 1.92 | I | I | I | I |
| 23 | H20 | 10.3 | 4.3 | 6.2 | 0.8 | 9.3 | 13.2 | 21.6 | 6.23 | H24 | 10.6 | 4.4 | 8.8 | 1.2 | 11.6 | 16.6 | 20.7 | 7.45 | IV | IV | IV | IV |
| 25 | H20 | 17.2 | 2.0 | 5.6 | 3.7 | 9.4 | 3.0 | 65.8 | — | H24 | 15.3 | 1.9 | 6.7 | 4.4 | 10.7 | 3.5 | 55.2 | — | V | V | II | II |
| 27 | H20 | 7.4 | 1.1 | 10.6 | 2.0 | 8.4 | 9.7 | 39.7 | 4.32 | H24 | 7.3 | 1.1 | 13.0 | 2.3 | 9.5 | 8.8 | 31.7 | 4.59 | I | I | I | III |
| 30 | H20 | 8.9 | 1.4 | 44.4 | 5.9 | 12.8 | 21.3 | 93.9 | 8.58 | H24 | 8.3 | 1.3 | 26.8 | 5.9 | 13.0 | 18.8 | 70.8 | 6.82 | I | I | I | I |
| 31 | H20 | 8.3 | 1.3 | 32.2 | 4.7 | 8.9 | 14.7 | 78.4 | 5.78 | H24 | 8.1 | 1.1 | 24.6 | 4.7 | 10.1 | 14.4 | 68.4 | 5.18 | I | I | I | I |
| 32 | H20 | 8.9 | 1.8 | 33.8 | 5.4 | 12.0 | 20.5 | 114.8 | 0.58 | H24 | 9.1 | 1.5 | 31.0 | 6.0 | 11.4 | 19.8 | 80.3 | 8.50 | I | I | I | I |
| 34 | H20 | 9.6 | 1.4 | 24.7 | 5.3 | 12.8 | 17.2 | 77.6 | 8.01 | H24 | 10.0 | 1.3 | 21.5 | 6.0 | 11.1 | 14.9 | 65.2 | 7.16 | I | I | I | I |
| 35 | H20 | 9.5 | 1.5 | 28.9 | 5.8 | 13.2 | 16.3 | 82.8 | 7.68 | H24 | 9.5 | 1.3 | 26.6 | 6.4 | 12.8 | 15.7 | 71.7 | 7.05 | I | I | I | I |
| 36 | H20 | 9.5 | 1.4 | 26.2 | 5.3 | 13.3 | 19.0 | 67.9 | 9.51 | H24 | 9.3 | 1.3 | 23.0 | 5.3 | 11.0 | 19.1 | 56.1 | 8.10 | I | I | I | I |
| 39 | H20 | 15.6 | 4.3 | 10.4 | 18.0 | 24.1 | 17.5 | 87.3 | 14.63 | H24 | 17.5 | 7.1 | 8.8 | 19.5 | 19.4 | 20.4 | 84.1 | 10.69 | I | I | I | I |
| 42 | H20 | 16.1 | 2.8 | 4.9 | 14.5 | 34.6 | 22.6 | 41.9 | 8.46 | H24 | 16.6 | 2.2 | 6.6 | 14.3 | 18.9 | 18.1 | 56.6 | 16.33 | V | I | III | III |
| 45 | H20 | 12.8 | 3.2 | 19.8 | 5.8 | 14.3 | 2.1 | 96.8 | 0.29 | H24 | 12.6 | 2.8 | 17.1 | 9.3 | 15.0 | 3.3 | 87.2 | 0.25 | I | I | I | I |
| 46 | H20 | 20.0 | 6.0 | 18.8 | 12.9 | 28.8 | 23.7 | 41.6 | 39.65 | H24 | 16.4 | 5.6 | 16.3 | 8.6 | 21.5 | 24.2 | 37.0 | 30.90 | V | V | III | III |
| 50 | H20 | 9.6 | 3.5 | 4.3 | 3.5 | 12.9 | 5.9 | 26.0 | 6.17 | H24 | 12.1 | 3.7 | 6.8 | 5.3 | 20.7 | 6.8 | 21.1 | 11.35 | IV | V | IV | III |
| 52 | H20 | 16.5 | 2.0 | 15.6 | 4.3 | 24.5 | 11.4 | 51.1 | 5.13 | H24 | 14.0 | 1.9 | 12.6 | 4.7 | 23.6 | 12.4 | 35.8 | 3.19 | V | V | III | III |
| 53 | H20 | 22.6 | 2.7 | 24.1 | 9.7 | 36.9 | 17.2 | 97.3 | 5.99 | H24 | 23.1 | 2.4 | 23.3 | 10.9 | 30.2 | 15.4 | 77.5 | 6.68 | I | I | I | III |
| 55 | H20 | 25.9 | 3.1 | 7.9 | 4.7 | 51.7 | 8.0 | 9.9 | 9.63 | H24 | 45.0 | 3.2 | 10.8 | 5.5 | 96.8 | 10.0 | 8.3 | 7.58 | IV | IV | IV | IV |
| 56 | H20 | 12.4 | 3.0 | 12.5 | 7.5 | 14.6 | 31.8 | 32.1 | 1.37 | H24 | 10.8 | 2.1 | 9.4 | 6.0 | 12.6 | 26.2 | 28.5 | 1.70 | V | V | III | III |
| 57 | H20 | 20.0 | 2.0 | 20.0 | 2.6 | 28.3 | 11.1 | 49.6 | 8.55 | H24 | 19.3 | 1.5 | 18.2 | 3.5 | 30.0 | 20.8 | 32.6 | 8.97 | V | V | III | III |
| 58 | H20 | 24.7 | 5.2 | 8.3 | 8.2 | 34.6 | 5.8 | 73.4 | 3.76 | H24 | 23.3 | 4.8 | 9.9 | 9.2 | 32.6 | 6.3 | 63.8 | 3.26 | V | V | II | III |
| 59 | H20 | 22.1 | 7.2 | 87.7 | 9.3 | 36.8 | 18.3 | 262.5 | 14.92 | H24 | 12.8 | 6.3 | 57.6 | 5.7 | 22.9 | 8.9 | 123.2 | 17.84 | I | I | I | I |
| 60 | H20 | 58.7 | 14.2 | 26.9 | 7.9 | 68.6 | 18.1 | 138.9 | 1.63 | H24 | 29.5 | 8.1 | 26.2 | 4.8 | 39.5 | 16.4 | 86.0 | 2.31 | IV | V | IV | III |
| 61 | H20 | 8.1 | 1.1 | 4.7 | 0.7 | 15.5 | 4.4 | 17.6 | 3.16 | H24 | 6.2 | 1.2 | 6.6 | 0.6 | 10.0 | 3.4 | 16.9 | 0.71 | IV | V | IV | III |
| 62 | H20 | 11.5 | 1.2 | 1.3 | 0.7 | 13.0 | 5.6 | 4.5 | 7.73 | H24 | 12.2 | 1.3 | 5.7 | 3.1 | 17.2 | 1.6 | 30.9 | 0.29 | IV | IV | IV | IV |
| 64 | H20 | 10.6 | 0.8 | 10.1 | 1.5 | 14.7 | 12.5 | 29.6 | 1.46 | H24 | 9.7 | 0.7 | 22.2 | 2.3 | 14.4 | 13.4 | 49.9 | 0.61 | V | I | III | I |
| 67 | H20 | 51.0 | 4.3 | 0.3 | 0.1 | 24.5 | 4.4 | 94.6 | — | H24 | 50.1 | 3.5 | 0.4 | 0.2 | 26.2 | 4.9 | 81.3 | 1.26 | II | II | II | II |
| 68 | H20 | 73.8 | 5.6 | 2.0 | 2.1 | 49.6 | 20.2 | 97.6 | 11.49 | H24 | 76.1 | 4.1 | 3.9 | 3.7 | 54.3 | 21.3 | 94.1 | 8.94 | IV | IV | IV | IV |
| 70 | H20 | 7.3 | 1.3 | 1.7 | 1.0 | 10.4 | 2.3 | 11.1 | 0.94 | H24 | 6.9 | 0.7 | 2.6 | 1.5 | 8.4 | 1.7 | 10.6 | 0.11 | IV | IV | IV | IV |
| 71 | H20 | 10.5 | 2.5 | 6.6 | 4.9 | 10.0 | 4.4 | 58.0 | — | H24 | 10.0 | 2.7 | 8.6 | 6.1 | 10.1 | 4.7 | 49.6 | — | I | I | I | I |
| 72 | H20 | 15.4 | 4.4 | 7.7 | 3.7 | 20.1 | 5.4 | 47.0 | 1.27 | H24 | 14.2 | 4.1 | 8.7 | 4.1 | 20.7 | 5.8 | 36.4 | 1.42 | V | V | II | III |
| 74 | H20 | 25.7 | 4.4 | 4.7 | 1.7 | 14.3 | 3.3 | 67.7 | 0.68 | H24 | 27.8 | 3.5 | 5.1 | 1.8 | 14.3 | 3.4 | 61.1 | 0.39 | V | V | II | II |
| 76 | H20 | 17.7 | 2.9 | 17.1 | 1.9 | 16.5 | 10.6 | 49.3 | 10.56 | H24 | 13.4 | 2.0 | 11.7 | 1.7 | 14.4 | 10.0 | 29.8 | 6.86 | I | V | III | III |
| 79 | H20 | 13.4 | 2.0 | 3.9 | 1.4 | 16.0 | 10.5 | 13.6 | 7.48 | H24 | 11.4 | 1.3 | 4.1 | 1.8 | 14.8 | 10.4 | 7.8 | 4.80 | IV | IV | IV | IV |
| 80 | H20 | 18.6 | 2.8 | 1.0 | 1.4 | 30.9 | 6.5 | 4.6 | 1.18 | H24 | 14.6 | 1.9 | 1.2 | 1.6 | 21.1 | 6.9 | 6.4 | 1.75 | IV | IV | IV | IV |
| 81 | H20 | 20.8 | 3.1 | 6.2 | 5.5 | 45.0 | 25.6 | 20.4 | 0.70 | H24 | 29.4 | 2.6 | 7.6 | 6.1 | 51.7 | 18.5 | 22.4 | 0.22 | IV | IV | IV | IV |
| 83 | H20 | 11.3 | 4.1 | 8.4 | 2.6 | 14.1 | 6.4 | 43.1 | 3.32 | H24 | 10.7 | 4.4 | 10.7 | 3.1 | 13.4 | 5.9 | 43.3 | 2.31 | I | I | I | I |
| 84 | H20 | 9.8 | 2.5 | 19.6 | 9.3 | 8.3 | 22.0 | 79.0 | — | H24 | 8.9 | 1.6 | 18.0 | 9.6 | 9.4 | 22.5 | 67.6 | — | I | I | I | I |
| 86 | H20 | 54.7 | 8.2 | 8.6 | 1.7 | 20.6 | 10.8 | 138.4 | — | H24 | 51.6 | 6.5 | 10.0 | 2.1 | 19.8 | 10.7 | 118.7 | 0.13 | II | V | II | II |

■ : 耕作地に窒素肥料と中和剤の苦土石灰を施用した場合に増加するCa²⁺, Mg²⁺, Cl⁻, SO₄²⁻, NO₃⁻の値が増加
 ■ : Na⁺, K⁺, HCO₃⁻の値が増加
 — : 検出なし

アルカリ土類重炭酸塩(以下、I)に変化したものは10井、VからIVは3井、IからVは2井、アルカリ重炭酸塩(以下、II)からV及びVからアルカリ土類非炭酸塩(以下、III)に変化したものが各1井であった。

特に濃度の変化が大きく、領域区分の変化に寄与した成分は、IVからVでは、9井でCa²⁺の増加、1井でNa⁺の減少、VからIでは、8井でHCO₃⁻とCl⁻の増減、2井ではCa²⁺増加、VからIVでは、HCO₃⁻とCl⁻の増減、IからVで

は、HCO₃⁻の減少、IIからV及びVからIIIではCa²⁺の増加であった。

以上より、キーダイアグラム(A)上での領域の変化に寄与した水質成分が、主にCa²⁺, Cl⁻, HCO₃⁻であることが明らかになった。

3・2 キーダイアグラム(B)

硝酸性窒素の汚染の影響による水質組成の変化を、同一井戸についてのキーダイアグラム(A)とキーダイアグ

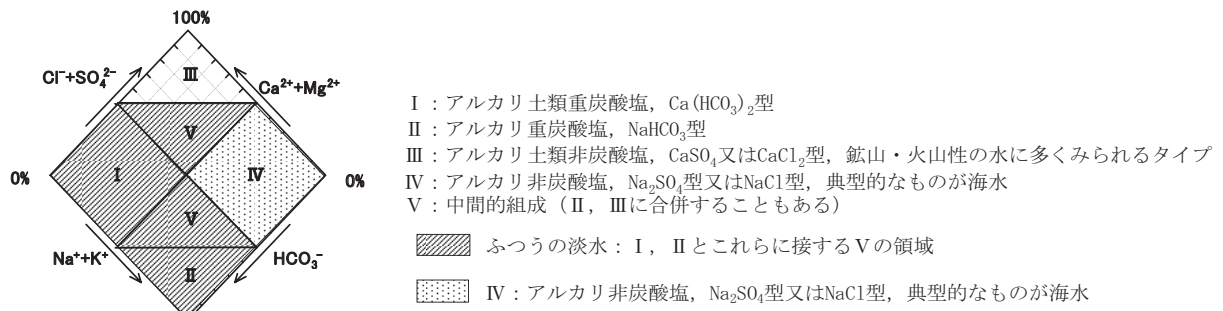


図2 キーダイアグラムAの領域区分

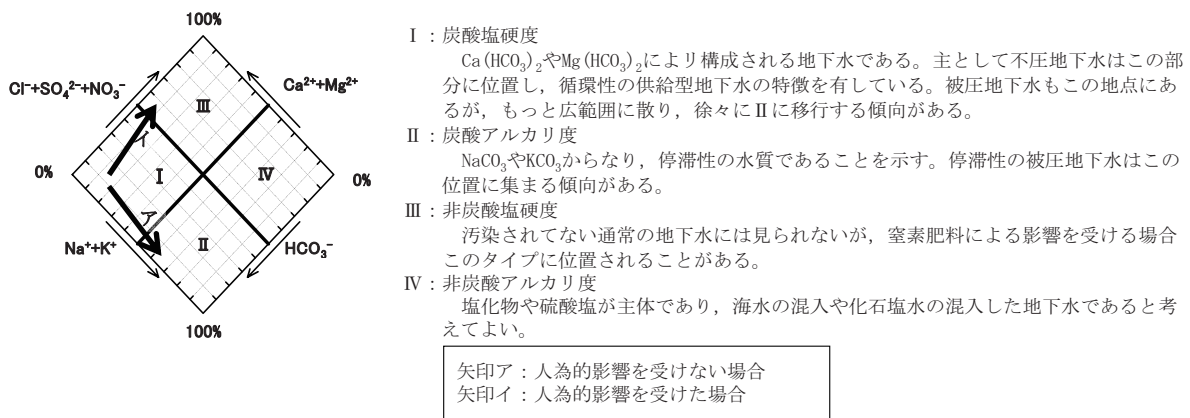


図3 キーダイアグラムBの領域区分

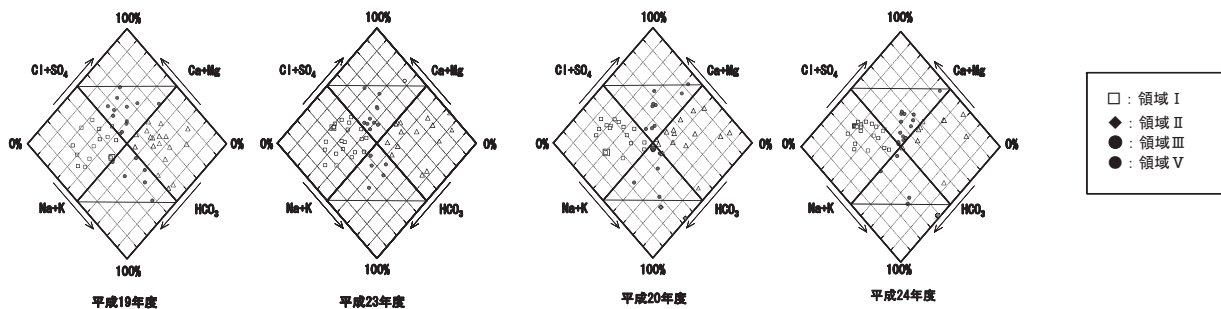


図4 年度別のダイアグラムA

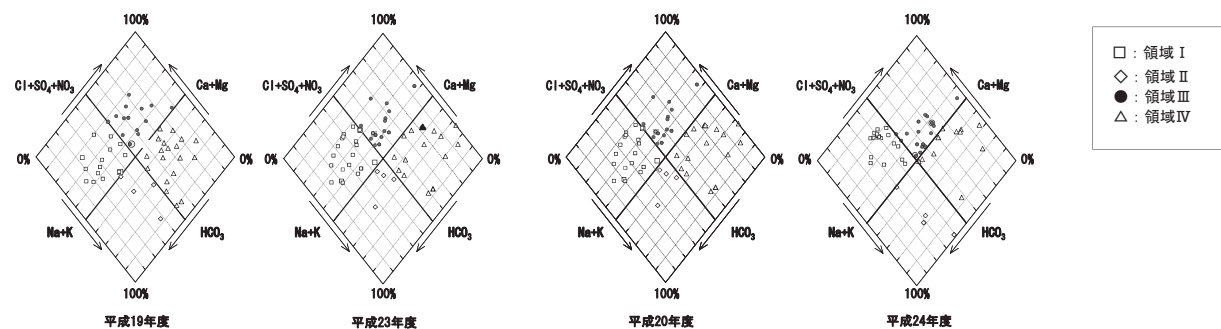


図5 年度別のダイアグラムB

ラム(B)での領域の変化から考察した。

陰イオンの $Cl^-+SO_4^{2-}$ に NO_3^- を加えることによりキーダイヤグラム(B)上の領域が、図3の矢印イの人為的影響を受けた場合の変化であるⅠからⅢと炭酸アルカリ度の領域(以下、Ⅱ)から非炭酸アルカリ度(以下、Ⅳ)の変化がおこった井戸があった。(キーダイヤグラム(A)の領域Ⅴのうち NO_3^- を加えることにより領域Ⅳに変化するものは、キーダイヤグラム(B)では領域Ⅱに属する)ⅠからⅢは、平成19年度が3井、平成20年度が1井、平成23年度が3井、平成24年度は3井で、ⅡからⅣ(キーダイヤグラム(A)の領域Ⅴのうち NO_3^- を加えることにより領域Ⅳに変化するものはキーダイヤグラム(B)上では領域Ⅱに限られる)が、平成19年度は2井、平成20年度は2井、平成24年度は1井でみられた。そのうち位置④の1井でⅡからⅣの変化が平成20年度、24年度の両方でみられた。

キーダイヤグラム(B)の領域区分のうちⅢは汚染されていない通常の地下水には見られないが、窒素肥料による影響を受ける場合に位置することがあり、本県の地下水の硝酸性窒素による汚染原因は、明らかではないため、以下ではⅢの領域に属する井戸の領域変化について考察した。

平成19年度の調査で、Ⅲの領域に属していた井戸は15井であったが、平成23年度にこのうち6井がⅠに変わり、新たに5井がⅢになった。ⅢからⅠに変化した6井のうち4井には NO_3^- の減少が、2井に Cl^- の減少がみられた。また、新たにⅢへ変化した5井のうち4井はⅣからの移動で、 Ca^{2+} の増加がみられた。

一方、平成20年度の調査でⅢの領域に属していた井戸は10井であったが、平成24年度にはこのうち2井がⅠに変わり、新たに10井がⅢになった。新たにⅢとなった10井のうち6井はⅣからの移動で、このうち4井で Ca^{2+} の増加がみられた。また、2井はⅠからの移動で NO_3^- の増加がみられた。その他の領域変化は境界域上でのわずかな変化であった。

平成19、20年度にⅢ属していた井戸のうち、4年後に領域が変化したものはすべてⅢからⅠで、あわせて8井であった。これは図3の矢印イの人為的影響を受けた場合の変化と逆方向である。 NO_3^- 、 Cl^- 、 SO_4^{2-} の減少があることから、汚染の改善が考えられた。

一方、4年後に他の領域からのⅢへ変化したものは、位置③、④を合わせて15井あり、ⅣからⅢの10井中9井で Ca^{2+} 、ⅠからⅢの3井中2井で NO_3^- の増加があった。 Ca^{2+} は、窒素肥料等の中和剤として使用される苦土石灰の主成分で、窒素肥料と同時に使われることが多いことから NO_3^- と同様に窒素肥料による影響が考えられた。

3・3 同一井戸における硝酸性窒素の濃度変化

本県での硝酸性窒素による汚染井戸は、平成19年度では54井中39井、平成20年度は51井中44井、平成23年度は54井中52井、平成24年度は51井中44井であった。そのうち検出濃度の増加がみられた井戸は、位置③と位置④をあわせて105井中52井と半数近くであった。

今回の調査対象井戸では、硝酸性窒素による環境基準値超過(硝酸性窒素として10 mg/L)はなかったが、広範囲にわたる検出と半数近くで濃度の増加が認められたので、今後も継続して監視していく必要がある。

4 まとめ

- (1) 同一井戸における年度別の水質組成の変化を陽イオンが $(Na^++K^+):(Ca^{2+}+Mg^{2+})$ 、陰イオンが $(Cl^-+SO_4^{2-}):(HCO_3^-)$ の比で作成したキーダイヤグラム(A)上での領域でみた結果、位置③と位置④をあわせて105井中28井で変化がみられた。成分変化からみて、領域区分の変化に影響をあたえる成分は、主に Ca^{2+} 、 Cl^- 、 HCO_3^- であった。
- (2) 硝酸性窒素の汚染がある井戸でキーダイヤグラム(B)の領域区分のうち通常の地下水には見られないⅢに属する井戸で見られた領域の変化はすべてⅢからⅠであった。この成分濃度の変化に NO_3^- 、 Cl^- 、 SO_4^{2-} の減少がみられ、硝酸性窒素による汚染の改善が考えられた。
一方他の領域からのⅢへ変化における成分濃度の変化では Ca^{2+} と NO_3^- の増加が多く確認された。 Ca^{2+} は窒素肥料等の中和剤として使用される苦土石灰の主成分であることから、 NO_3^- と同様に窒素肥料からの汚染が考えられた。
- (3) 本県の地下水における硝酸性窒素の汚染状況を同一井戸における濃度の変化でみると汚染濃度が増加している井戸は105井中52井と半数近くであった。環境基準値超過はなかったが、汚染が顕在化していることがわかった。

文 献

- 1) 岡田真規子, 井上和幸, 橋本潤子: 石川保環研報, 48, 68-75 (2011)
- 2) 地下水ハンドブック編集委員会: 地下水ハンドブック, 357-368, 株式会社 建設産業調査会, 東京 (1980)
- 3) 財団法人日本水道学会: 平成11年度厚生省委託費による水道における硝酸性窒素及び亜硝酸性窒素対策の手引き (2000)
- 4) 公害研究対策センター: 硝酸性窒素による地下水汚染対策の手引 (2002)

〔資料〕

石川県における大気中ダイオキシン類濃度の推移について

石川県保健環境センター 環境科学部 吉本 高志・徳田 貴裕・相川 輝充
玉井 徹

〔和文要旨〕

平成 14 年度から平成 23 年度までに石川県内で測定された、大気中ダイオキシン類の毒性等量の年平均値について取りまとめた。毒性等量の年平均値は、調査期間中の全ての地点で環境基準値 0.6pg-TEQ/m³ を下回っており、全国平均値と比べても低い値で推移していた。経年変化は各地点とも緩やかに減少している傾向が見られた。毒性等量の組成比率は、地点によって差異が見られた。小松、松任、津幡及び七尾では、PCDDs が30～40% 及び PCDFs が50～60% の比率であった。羽咋及び珠洲では、PCDDs 及び PCDFs ともに 40～50% の比率であった。DL-PCBs の比率は、各地点とも 10% 程度であった。燃えがら試料及び土壌試料において寄与比率の高い異性体が、総毒性等量に対して同程度の寄与比率を示しており、寄与比率に経年変化は見られなかった。

キーワード：ダイオキシン類，大気，毒性等量

1 はじめに

石川県では、平成 12 年 1 月 15 日に施行されたダイオキシン類対策特別措置法に定める常時監視として、大気、水質、底質、地下水及び土壌の調査測定を実施してきた^{1)~12)}。

本資料では、平成 14 年度から平成 23 年度までの石川県内における大気中ダイオキシン類の毒性等量の年平均値の変動について報告する。平成 12 年度及び平成 13 年度は、平成 14 年度以降と試料採取条件が異なっているため、今回の解析には含めなかった。

2 方法

調査地点の位置を図 1 に、概要を表 1 に示す。調査地点は、石川県が常時監視を実施している小松、松任、津幡、羽咋、七尾及び珠洲の 6 地点とした。珠洲について、平成 20 年度まで現在とは異なる地点で調査を行っていたが、現在の調査地点とは直線距離で約 50m しか離れていないため、同一地点とみなした。

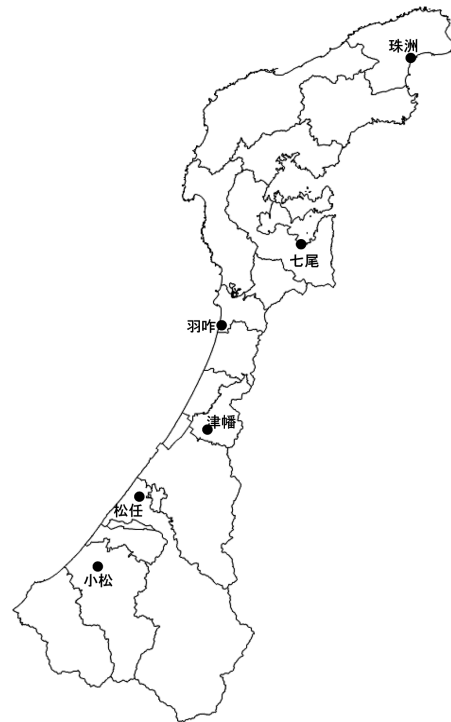


図 1 石川県内における調査地点

Annual variation of concentrations of atmospheric dioxins in Ishikawa prefecture. by YOSHIMOTO Takashi, TOKUDA Takahiro, AIKAWA Terumitsu and TAMAI Tohru (Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : dioxins, ambient air, toxicity equivalency quantity (TEQ)

表 1 調査地点の概要

| 調査地点 | 所在地 | 用途地域 |
|------|-----------------------|---------|
| 小松 | 小松測定局 小松市園町82 | 準工業地域 |
| 松任 | 松任測定局 白山市馬場2丁目7番地 | 第二種住居地域 |
| 津幡 | 津幡測定局 津幡町加賀爪3 | 第二種住居地域 |
| 羽咋 | 羽咋測定局 羽咋市旭町20 | 商業地域 |
| 七尾 | 七尾測定局 七尾市小島町二33-1 | 第一種住居地域 |
| 珠洲* | 珠洲市役所庁舎 珠洲市上戸町北方1-6-2 | 未指定 |

*: 平成20年度までは珠洲市総合福祉センターで調査

試料採取及び分析は、「ダイオキシン類に係る大気環境調査マニュアル」¹³⁾に基づき行った。試料採取条件は、積算吸引量が約 1000m³ となるよう、100 L/min で 168 時間採取とした。試料採取時期は、平成 17 年度までは春夏秋冬の 4 季、平成 18 年度は春秋の 2 季、平成 19 年度以降は夏冬の 2 季である。

毒性等量の算出にあたっては、各異性体の測定濃度が検出下限値以上の場合はそのままの値を用い、検出下限値未満の場合は検出下限値の 1/2 の値を用いた¹³⁾。

3 結果と考察

3.1 環境基準値及び全国平均値との比較

図 2 に、平成 14 年度から平成 23 年度までの各地点における毒性等量の年平均値¹¹⁾⁻¹²⁾を示す。同年度の一般環境における測定地点の全国平均値¹⁴⁾と比較するため、毒性等量の算出に用いた毒性等価係数を平成 19 年度までは WHO-TEF (1998)¹⁴⁾、平成 20 年度以降は WHO-TEF (2006)¹⁴⁾とした。なお、一般環境における測定地点とは、発生源からのダイオキシン類の排出の直接の影響を受けにくいと考えられる地点である¹⁵⁾。

毒性等量は、調査期間中の全ての地点で環境基準値 0.6pg-TEQ/m³ を大きく下回っており、環境基準値の 1/

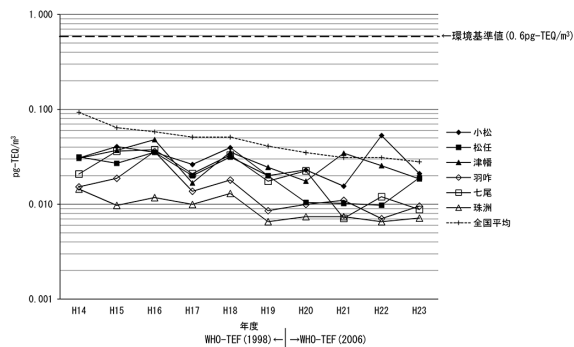


図 2 平成14年度から平成23年度までの各地点におけるダイオキシン類の毒性等量の年平均値

10から 1/100 程度であった。また、一般環境における測定地点の全国平均値と比較しても低い値で推移していた。

3.2 毒性等量の経年変化

図 3 に、各地点における毒性等量の年平均値と移動平均値の経年変化を示す。毒性等価係数は全ての年度で WHO-TEF (2006) を用いた。移動平均値は各年度とその前後 1 年の計 3 年分の値の平均値とした。

年平均値は年度によって一時的な上昇がみられたが、移動平均値は各地点とも緩やかな減少傾向が見られた。

図 4 に、各地点におけるポリ塩化ジベンゾパラジオキシン (PCDDs)、ポリ塩化ジベンゾフラン (PCDFs) 及びダイオキシン様ポリ塩化ビフェニル (DL-PCBs) の総毒性等量への寄与比率 (%) の経年変化を示す。

DL-PCBs の比率は、各地点とも 10 % 程度で推移しているが、PCDDs と PCDFs の比率は地点によって差異が見られた。小松、松任、津幡及び七尾では、PCDDs が 30~40 % 及び PCDFs が 50~60 % で推移しており、毒性等量に対する比率は PCDFs が最も大きかった。一方、羽咋及び珠洲では、PCDDs 及び PCDFs とともに 40~50 % で推移しており、毒性等量に対する比率は PCDDs と PCDFs で同程度であった。

3.3 異性体の毒性等量への寄与

燃えがら試料及び土壌試料で、総毒性等量への寄与比率が高い代表的な異性体が、本研究における大気試料の総毒性等量に対してどの程度寄与したかを経年的な変化で表現したものが図 5 である。燃えがら試料では寄与比率の高い順に、2, 3, 4, 7, 8-PeCDF (約 29%), 1, 2, 3, 7, 8-PeCDD (約 17%), 2, 3, 7, 8-TeCDF (約 7%) であり、一方、土壌試料では、1, 2, 3, 7, 8-PeCDD (約 26%), 2, 3, 4, 7, 8-PeCDF (約 15%), 1, 2, 3, 4, 6, 7, 8-HpCDD (約 8%) の順である¹⁶⁾。本研究における大気試料ではいずれの地点も、2, 3, 4, 7, 8-PeCDF と 1, 2, 3, 7, 8-PeCDD がそれぞれ約 20% で拮抗しており、2, 3, 7, 8-TeCDF と 1, 2, 3, 4, 6, 7, 8-HpCDD が数 % の寄与比率で推移していた。今回解析した大気試料では、燃えがら試料及び土壌試料において寄与比率の高い異性体が、総毒性等量に対して同程度の寄与比率を示しており、既報¹⁶⁾に一致していた。

全国的にごみなどの焼却施設の減少や高性能化により、環境中に排出される燃焼起源のダイオキシン類が減少しつつあることから、大気中ダイオキシン類濃度が経年的に低下してきたことに平行して、当初、燃焼源由来の指標となる異性体 (2, 3, 4, 7, 8-PeCDF) の寄与比率の低下傾向が見出せると考えられたが、上記のとおり総毒性等量への寄与比率に目立った変化は認められなかった。このことについては、さらに解析と検討が必要と考えている。

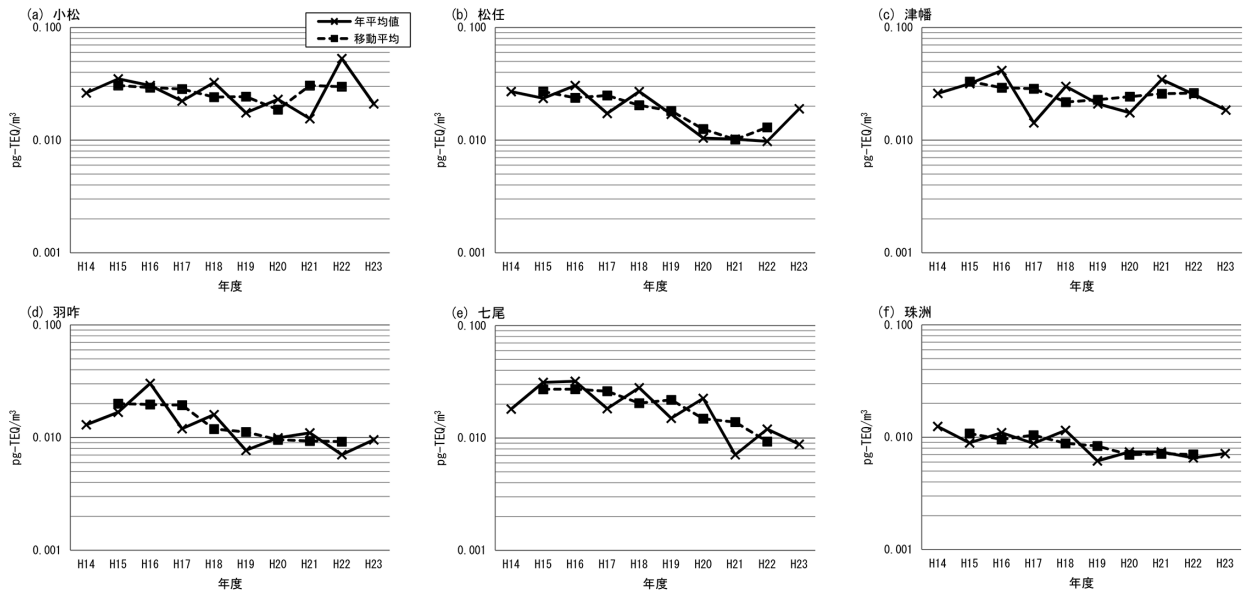


図3 各地点におけるダイオキシン類の毒性等量の年平均値と移動平均値の経年変化

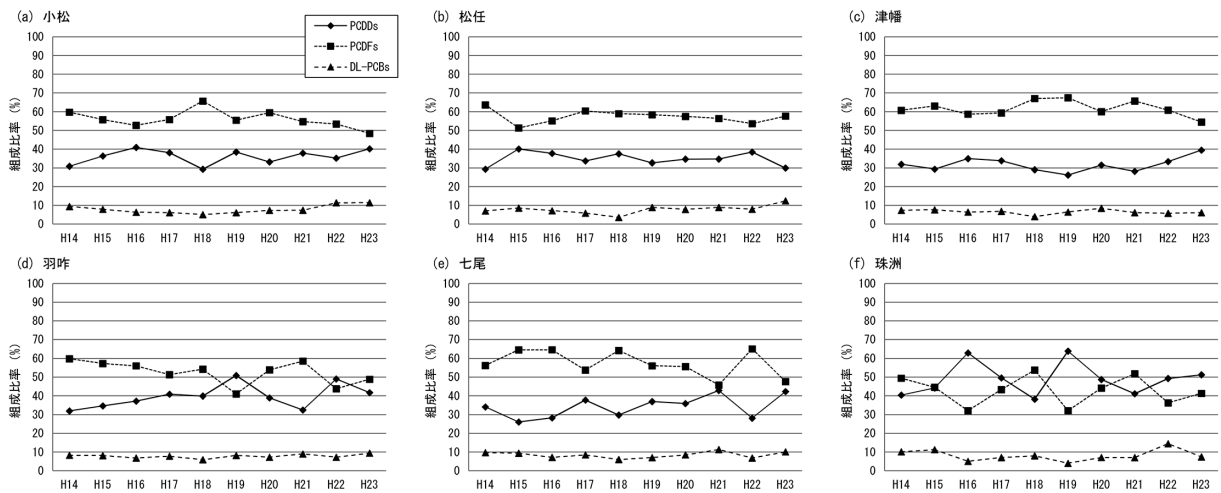


図4 各地点におけるダイオキシン類の毒性等量 (TEQ) への寄与比率の年平均値の経年変化

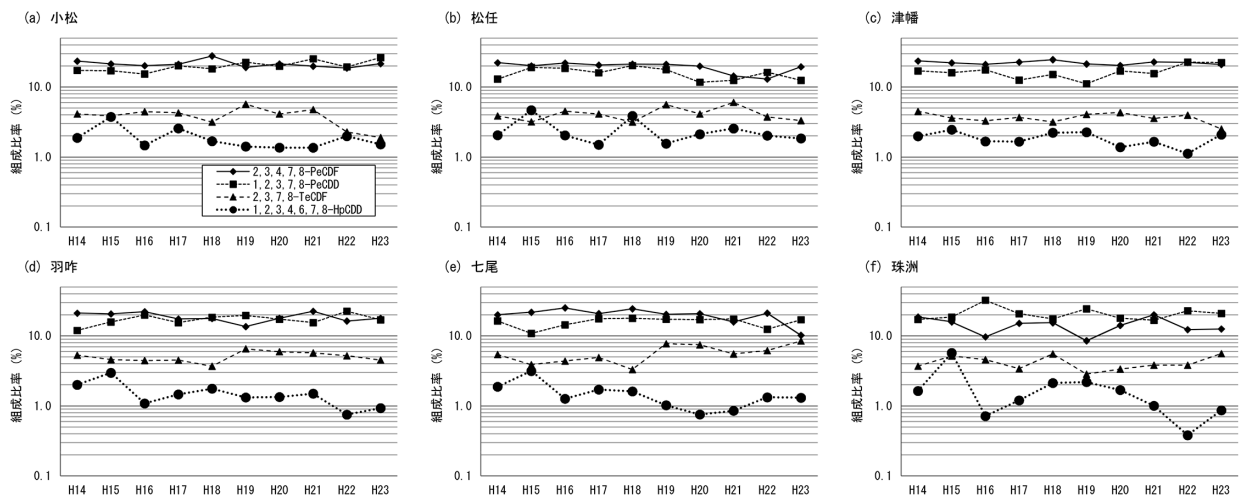


図5 各地点における燃えがら試料及び土壌試料への寄与比率が高い異性体の総毒性等量 (TEQ) に対する寄与比率の経年変化

4 まとめ

平成14年度から平成23年度までの石川県内における大気中ダイオキシン類の毒性等量の年平均値について取りまとめた。

- (1) 毒性等量は調査期間中の全ての地点で環境基準値0.6pg-TEQ/m³を大きく下回っており、一般環境における測定地点の全国平均値と比較しても低い値であった。
- (2) 毒性等量の経年変化は、全ての地点で緩やかな減少傾向がみられた。
- (3) 毒性等量の組成比率は、地点によって差異が見られた。小松、松任、津幡及び七尾では、PCDDsが30~40%及びPCDFsが50~60%の比率であった。羽咋及び珠洲では、PCDDs及びPCDFsともに40~50%の比率であった。DL-PCBsの比率は、各地点とも10%程度であった。
- (4) 燃えながら試料及び土壌試料において寄与比率の高い異性体が、総毒性等量に対して同程度の寄与比率を示しており、寄与比率に経年変化は見られなかった。

文 献

- 1) 石川県：平成12年度ダイオキシン類環境調査報告書（平成13年9月）
- 2) 石川県：平成13年度ダイオキシン類環境調査報告書（平成14年10月）
- 3) 石川県：平成14年度ダイオキシン類環境調査報告書（平成16年3月）
- 4) 石川県：平成15年度ダイオキシン類環境調査報告書（平成16年9月）
- 5) 石川県：平成16年度ダイオキシン類環境調査報告書（平成17年9月）
- 6) 石川県：平成17年度ダイオキシン類環境調査報告書（平成18年9月）
- 7) 石川県：平成18年度ダイオキシン類環境調査報告書（平成19年9月）
- 8) 石川県：平成19年度ダイオキシン類環境調査報告書（平成20年9月）
- 9) 石川県：平成20年度ダイオキシン類環境調査報告書（平成21年9月）
- 10) 石川県：平成21年度ダイオキシン類環境調査報告書（平成22年9月）
- 11) 石川県：平成22年度ダイオキシン類環境調査報告書（平成23年9月）
- 12) 石川県：平成23年度ダイオキシン類環境調査報告書（平成24年9月）
- 13) 環境省：ダイオキシン類に係る大気環境調査マニュアル（平成20年3月）
- 14) 環境省：平成23年度ダイオキシン類に係る環境調査結果（平成25年3月）
- 15) 環境省：ダイオキシン類対策特別措置法第二十六条の規定に基づく大気中のダイオキシン類による汚染の状況の常時監視に関する事務の処理基準について（平成13年5月21日 環管総145号）
- 16) KAKIMOTO Hitoshi, OKA Hideo, HARADA Yumiko, USHIJIMA Shigeru, TORIBA Akira, KIZU Ryoichi and HAYAKAWA Kazuichi: Comparison of Compositions of Polychlorinated Dibenzop-dioxins (PCDDs) and Dibenzofurans (PCDFs) in Air and Soil Samples Collected in Ishikawa, J. Health Sci., 50, 58-65 (2004)

〔資 料〕

石川県におけるフォールアウト調査（平成24年度）

荒井 隆史・小谷口久美子・浜道 啓太
石川県保健環境センター 環境科学部 藤井 明洋・横山 暢・翫 幹夫
堅田 勉

〔和文要旨〕

石川県におけるフォールアウト等による環境放射能の水準を把握するため、定時降水の全ベータ放射能調査や、ゲルマニウム半導体検出器による降下物、土壌、農畜産物等の環境試料中の核種分析を実施した。また、東京電力（株）福島第一原子力発電所事故（以下「原発事故」という。）を受けて3ヶ月毎の大気浮遊じんの核種分析を行った。分析の結果、定時降水や陸水、大気浮遊じん試料では人工放射性核種は検出されなかった。降下物試料ではセシウム-137が検出されたが、原発事故以前の範囲内であった。土壌や海産物（フクラギ）からはセシウム-137がわずかに検出されたが従来と同程度であった。牛乳ではセシウム-134及び137が検出され、原発事故の影響が推測された。全ベータ放射能及び空間放射線量率は従来と同程度であった。

キーワード：フォールアウト、環境放射能

1 はじめに

フォールアウト調査は、昭和29年のビキニ環礁における核爆発実験を契機として、関係行政機関における放射性降下物の調査として開始されたものであるが、その後、昭和61年4月に起きたチェルノブイリ原発事故などもあり、継続的な環境放射能調査の必要性から、全都道府県にて「環境放射能水準調査」として実施されている。石川県では昭和34年度から毎年実施している。

石川県におけるフォールアウト等による環境放射能の水準を把握するとともに、原発事故の影響を評価するため、ゲルマニウム半導体検出器による核種分析に大気浮遊じんを追加した。ここでは平成24年度の文部科学省委託調査の結果（平成24年4月1日～平成25年3月31日）を述べる。

2 調査方法

2・1 調査対象

調査対象は、定時（午前9時）採取の降水、大型水盤による降下物（1ヶ月毎採取）、陸水（毎日採取）、陸水（年1回採取）、土壌（表層土壌0～5cm、下層土壌5～20cm）、農畜産物（精米、牛乳）、海産生物（ワカメ、サザエ、フクラギ）、空間放射線量率である。なお、陸水（毎日採取）は毎日一定量（1.5L）の水道水を採取し3ヶ月分まとめて1試料とした。また、新たに大気浮遊じん（1ヶ月に3日分採取してこれを3ヶ月分すなわち9日分をまとめて1試料とした。）を平成24年度から追加した（調査地点については、測定結果の表を参照）。

2・2 測定方法

定時降水は全ベータ放射能を測定し、降下物、陸水、大気浮遊じん、土壌、農畜産物及び海産生物はゲルマニウム半導体検出器による核種分析を行った。空間放射線量率はモニタリングポストによる連続測定を行った。

Survey Data of Fall-out in Ishikawa Prefecture, April 2012 to March 2013. By ARAI Takafumi, KODANIGUCHI Kumiko, HAMAMICHI Keita, FUJII Akihiro, YOKOYAMA Mitsuru, ITO Mikio and KATADA Tsutomu (Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Fall-out, Environmental radioactivity

(1) 全ベータ放射能測定

文部科学省放射能測定法シリーズ「全ベータ放射能測定法」(昭和 51 年改訂)に基づき、ベータ線自動測定装置 JDC-3201 (日立アロカメディカル (株) 製) により行った。校正線源としては、当センター所有の科研製八酸化三ウラン (U₃O₈, 500dps) を使用した。

(2) 核種分析

文部科学省放射能測定法シリーズ「ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー」(平成 4 年改訂)に基づき、ゲルマニウム半導体検出器 (キャンベラジャパン (株) 製) 及び波高分析器 (SEIKO EG&G (株) 製) により行った。(80000 秒測定)

(3) モニタリングポストによる空間線量率測定

文部科学省放射能測定法シリーズ「連続モニタによる環境γ線測定法」(平成 8 年改訂)に基づき、MAR- 22 (日立アロカメディカル (株) 製) により行った。

3 調査結果

3・1 定時降水の放射能測定

表 1 に定時降水中の全ベータ放射能測定結果を示す。採取試料数は 144 検体であり、全ベータ放射能が検出されたものは、そのうち 6 検体であった。これらの 6 検体についてガンマ線核種分析を行った結果、人工放射性核種は検出されなかった。

3・2 核種分析

(1) 降下物

表 2 に降下物試料中の核種分析結果を示す。平成 23 度に検出された原発事故起因と見られるセシウム-134 は検出されなかった。セシウム-137 の 1 ヶ月毎の降下量の範囲は ND~0.13MBq/km²、年間降下量は 0.43MBq/km² であり、原発事故以前の範囲内であった。

表 1 定時降水中の全ベータ放射能測定結果

測定地点：金沢市太陽が丘

| 採取年月 | 降水量(mm) | 検出数/測定数 | 放射能濃度 (Bq/L) | 月間降下量 (MBq/km ²) |
|-------------------|---------|----------------------|--------------|------------------------------|
| H 24 年 4 月 | 108.5 | 0/12 | ND | ND |
| 5 月 | 108.0 | 0/12 | ND | ND |
| 6 月 | 88.0 | 0/ 8 | ND | ND |
| 7 月 | 166.5 | 0/ 9 | ND | ND |
| 8 月 | 137.0 | 0/ 6 | ND | ND |
| 9 月 | 288.0 | 0/12 | ND | ND |
| 10 月 | 250.0 | 0/11 | ND | ND |
| 11 月 | 315.5 | 3/19 | ND ~ 5.6 | 27.1 |
| 12 月 | 296.5 | 0/16 | ND | ND |
| H 25 年 1 月 | 316.5 | 1/19 | ND ~ 3.7 | 7.3 |
| 2 月 | 75.5 | 1/10 | ND ~ 2.7 | 35.0 |
| 3 月 | 97.0 | 1/10 | ND ~ 4.3 | 13.1 |
| 年間値 | 2,247.0 | 6 ^{*1} /144 | ND ~ 5.6 | ND ~ 35.0 |
| H 21 ~ 23 年度の測定結果 | | 9/326 | ND ~ 12.0 | ND ~ 41.0 |

ND：検出されず (値が計数誤差の 3 倍を下回る場合)

*1：核種分析の結果、人工放射性核種は検出されなかった。

表 2 降下物 (1 ヶ月毎採取) 試料中の核種分析

測定地点：金沢市太陽が丘

| 採取期間 年月日~年月日 | 降水量 (mm) | 核種別放射能降下量 (MBq/km ²) | | | |
|-----------------------|-------------|----------------------------------|----------|------------------------|-------------|
| | | ヨウ素-131 | セシウム-134 | セシウム-137 ^{*1} | その他の人工放射性核種 |
| H24. 3.30 ~ H24. 4.27 | 108.5 | ND | ND | 0.13 | なし |
| H24. 4.27 ~ H24. 5.31 | 116.5 | ND | ND | 0.060 | なし |
| H24. 5.31 ~ H24. 6.29 | 88.0 | ND | ND | ND | なし |
| H24. 6.29 ~ H24. 7.31 | 157.5 | ND | ND | ND | なし |
| H24. 7.31 ~ H24. 8.31 | 137.0 | ND | ND | ND | なし |
| H24. 8.31 ~ H24. 9.28 | 306.5 | ND | ND | ND | なし |
| H24. 9.28 ~ H24.10.31 | 250.0 | ND | ND | ND | なし |
| H24.10.31 ~ H24.11.30 | 313.5 | ND | ND | 0.060 | なし |
| H24.11.30 ~ H24.12.28 | 296.5 | ND | ND | 0.061 | なし |
| H24.12.28 ~ H25. 1.31 | 316.5 | ND | ND | 0.065 | なし |
| H25. 1.31 ~ H25. 2.28 | 171.0 | ND | ND | ND | なし |
| H25. 2.28 ~ H25. 3.29 | 97.0 | ND | ND | 0.058 | なし |
| 年間値 | 2,358.5 | ND | ND | 0.43 | なし |

ND：検出されず (測定値が計数誤差の 3 倍を下回る場合)

*1：原発事故以前のセシウム-137 の 1 ヶ月降下量は ND~0.54MBq/km² (H 20. 4. 1 ~ H 23. 2. 28)

(2) 陸水 (毎日採取)

表3に陸水試料中の核種分析結果を示す。測定試料は4検体であり、いずれも人工放射性核種は検出されなかった。

(3) 大気浮遊じん

表4に大気浮遊じん試料中の核種分析結果を示す。測定試料数は4検体であり、いずれも人工放射性核種は検出されなかった。

(4) 核種分析試料 (上記(1)(2)(3)以外)

表5に上記以外の環境試料中の核種分析結果を示す。セシウム-137が表層土壌(0~5cm)で27Bq/kg乾土、下層土壌(5~20cm)で22Bq/kg乾土、フクラギで0.10Bq/kg生と検出されたが、これらについては原発事故後

も特に高い値は検出されておらず従来と同程度であった。また牛乳では、セシウム-137が0.12Bq/L、セシウム-134が0.072Bq/L検出された。平成24年8月に当センターが測定した牧草からセシウム-137が2.8Bq/kg、セシウム-134が1.9Bq/kg検出されていたことから、エサとして与えられた牧草が原発事故の影響のあった地域で採取されたものであった可能性が考えられた。上層土壌(0~5cm)は過去3カ年の測定範囲を超えているが、平成21年度に測定された930MBq/km²よりも小さく、採取地点によるばらつきの範囲内であったと考えられる。下層土壌(5~20cm)及びフクラギの値は、原発事故以前の測定範囲内であった。その他の試料については検出下限値未満であった。

表3 陸水 (毎日採取) 試料中の核種分析

測定地点: 金沢市太陽が丘

| 採取期間 ^{a)} 年月日~年月日 | 核種別放射能降下量 (mBq/L) | | | その他の人工放射性核種 |
|-------------------------------|-------------------|----------|----------|-------------|
| | ヨウ素-131 | セシウム-134 | セシウム-137 | |
| H24. 4. 2 ~ H24. 6. 29 | ND | ND | ND | なし |
| H24. 7. 2 ~ H24. 9. 28 | ND | ND | ND | なし |
| H24. 10. 1 ~ H24. 12. 28 | ND | ND | ND | なし |
| H25. 1. 4 ~ H25. 3. 29 | ND | ND | ND | なし |
| 年間値 | ND | ND | ND | なし |

ND: 検出されず (測定値が計数誤差の3倍を下回る場合)

*1: 毎日1.5Lの水道水を採取後3ヶ月まとめて1試料とした。

表4 大気浮遊じん試料中の核種分析

| 採取期間 年月日~年月日 | 吸引量 (m ³) | 核種別放射能降下量 (mBq/m ³) | | | その他の人工放射性核種 |
|--------------------------------------|--------------------------|---------------------------------|----------|----------|-------------|
| | | ヨウ素-131 | セシウム-134 | セシウム-137 | |
| H24. 4. 20 ~ H24. 5. 1 ^{a)} | 12,747.4 | ND | ND | ND | なし |
| H24. 7. 23 ~ H24. 9. 29 | 12,124.5 | ND | ND | ND | なし |
| H24. 10. 11 ~ H24. 12. 28 | 10,641.0 | ND | ND | ND | なし |
| H25. 1. 10 ~ H25. 3. 29 | 10,397.9 | ND | ND | ND | なし |
| 年間値 | 45,910.8 | ND | ND | ND | なし |

ND: 検出されず (測定値が計数誤差の3倍を下回る場合)

*1: 4月, 5月に9日間すなわち3ヶ月分の量を採取

表5 その他環境試料中の核種分析結果

| 試料名 | 採取場所 | 採取年月日 | セシウム-137 | | その他の人工放射性核種 | 単位 | |
|------------------|------------|------------|-------------|---------------|-------------|---------|---------------------|
| | | | 測定結果 | H21~23年度の測定結果 | | | |
| 陸水 | 上水 (蛇口水) | 金沢市太陽が丘 | H24. 7. 12 | ND | ND | なし | mBq/L |
| 土壌 | 0~5cm | 金沢市末町 | H24. 8. 16 | 27 | 23~28 | なし | Bq/kg 乾土 |
| | | | | 880 | 308~547 | なし | MBq/km ² |
| | 5~20cm | 金沢市末町 | H24. 8. 16 | 22 | 20~25 | なし | Bq/kg 乾土 |
| | | | | 2800 | 1860~3000 | なし | MBq/km ² |
| 精米 | 河北郡津幡町潟端 | H24. 9. 5 | ND | ND | なし | Bq/kg 生 | |
| 牛乳 ^{a)} | 羽咋郡宝達志水町坪山 | H24. 8. 28 | 0.12 | ND | なし | Bq/L | |
| 海産生物 | ワカメ | | H24. 4. 20 | ND | ND | なし | |
| | サザエ | 加賀市橋立漁港 | H24. 7. 4 | ND | ND~0.044 | なし | Bq/kg 生 |
| | フクラギ | | H24. 10. 10 | 0.10 | 0.11~0.12 | なし | |

ND: 検出されず (測定値が計数誤差の3倍を下回る場合)

*1: セシウム-134が0.072Bq/L検出 (過去においてはND)

表 6 牛乳試料中ヨウ素-131濃度測定結果

| 試料名 | 採取場所 | 採取年月日 | 検体数 | ヨウ素-131 | | 単位 |
|-----|------------|------------|-----|---------|---------------|------|
| | | | | 測定結果 | H21～23年度の測定結果 | |
| 牛乳 | 羽咋郡宝達志水町坪山 | H24. 8. 28 | 1 | ND | ND | Bq/L |

ND：検出されず（測定値が計数誤差の3倍を下回る場合）

(5) 牛乳試料中のヨウ素-131

表 6 に牛乳試料中のヨウ素-131 濃度測定の結果を示す。牛乳からヨウ素-131 は検出されなかった。

3・3 空間放射線量率

表 7 に空間放射線量率の測定結果を示す。モニタリングポストによる空間放射線量率の範囲は 41～104nGy/h であり、年平均値は 50nGy/h であった。過去 3 年間の測定範囲（19～86nGy/h）を超えたが、平成 19 年度に観測された年間最大値の 127nGy/h よりも小さく、降雨の影響と考えられる。

表 7 空間放射線量率モニタリング結果

測定地点：金沢市太陽が丘

| 測定年月 | 測定結果 (nGy/h) | 平均値 (nGy/h) |
|-------------------|-----------------|----------------|
| H 24 年 4 月 | 47 ～ 75 | 49 |
| 5 月 | 47 ～ 66 | 49 |
| 6 月 | 47 ～ 61 | 49 |
| 7 月 | 47 ～ 70 | 50 |
| 8 月 | 48 ～ 64 | 50 |
| 9 月 | 48 ～ 82 | 50 |
| 10 月 | 48 ～ 72 | 50 |
| 11 月 | 48 ～ 104 | 53 |
| 12 月 | 42 ～ 91 | 52 |
| H 25 年 1 月 | 41 ～ 69 | 48 |
| 2 月 | 42 ～ 67 | 49 |
| 3 月 | 48 ～ 75 | 49 |
| 年間値 | 41 ～ 104 | 50 |
| H 21 ～ 23 年度の測定結果 | 19 ～ 86 | 48 |

4 まとめ

平成 24 年度の石川県におけるフォールアウト調査の結果は、定時降水からは人工放射性核種は検出されなかった。降下物からセシウム-137 が検出されたが原発事故以前の範囲内であった。また、陸水（毎日採取）、大気浮遊じんから人工放射性核種は検出されなかった。

その他の環境試料中の核種分析の結果は、土壌及び海産生物（フクラギ）からセシウム-137 がわずかに検出されたが従来と同程度であった。牛乳からセシウム-134 及び 137 が検出されたが、これはエサとして与えられた牧草が原発事故の影響のあった地域で採取されたものであった可能性が考えられた。

全ベータ放射能及び空間放射線量率は従来と同程度であった。

〔抄 録〕

河北潟に流入する能瀬川のダイオキシン類の挙動

石川県保健環境センター 環境科学部 野口 邦雅・相川 輝充・徳田 貴裕
玉井 徹

キーワード：ダイオキシン類，能瀬川，水質，底質，挙動

全国環境研会誌，37(2)，67-74，(2012)

石川県の中央部に位置する河北潟に流入する宇ノ気川の宇ノ気川橋及び能瀬川の浦能瀬橋は，県内の他の公用水域の調査地点と比較して水試料中のダイオキシン類濃度が高めに推移してきた。支流の本数が少なく，生活排水の影響が比較的少ない能瀬川を対象に，浦能瀬橋の水試料中ダイオキシン類濃度の年間変動，底質の状態とダイオキシン類濃度の関係，汚染源の推定及びダイオキシン類の流下特性（ダイオキシン類の総流下量，下流域への沈降量）等を調査した。

その結果，浦能瀬橋の水試料中ダイオキシン類濃度の年間変動は0.33～3.9pg-TEQ/Lで，年間平均は1.0pg-TEQ/Lであった。春季に溶存態のダイオキシン類濃度が

高くなる傾向が見られた。底質の状態とダイオキシン類の関係は，粒子が細かく，炭素及び窒素含有率が高く，強熱減量が高い底質はダイオキシン類濃度が高い傾向が見られた。重回帰分析による汚染源推計の結果，いずれの水試料においてもかつて使用された塩素系水田農薬であるPCPとCNPの合計寄与率が95%以上と推定され，これら水田農薬の不純物の影響が大きいことが示唆された。また，能瀬川から年間33.8mg-TEQのダイオキシン類が流下していると推計された。能瀬川から流下したダイオキシン類はその流下量の75%が河北潟東部承水路の湖北大橋までに沈降しているものと推定された。

Key words : Dioxins, Nose River, River water, Sediment, Behaviors