
石川県保健環境センター研究報告書

第 58 号

(令和2年度)

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



2 0 2 1

石川県保健環境センター

目 次

(報 文)

志賀原子力発電所周辺土壌中プルトニウム調査	内田 賢吾	(1 - 9)
-----------------------	-------	-----------

(短 報)

石川県における新型コロナウイルス感染症 (COVID-19) 発生および検査状況 - 2020年1月～2021年7月 -	木村恵梨子ほか	(10 - 15)
---	---------	-------------

農産物中のネオニコチノイド系農薬分析法の検討	小澤 祐子ほか	(16 - 20)
------------------------	---------	-------------

石川県内の公共用水域におけるPPCPs(Pharmaceuticals and Personal Care Products)の実態調査 (第1報)	宮田 朋子ほか	(21 - 27)
---	---------	-------------

降雨による空間放射線量率の変動についての考察	吉本 高志ほか	(28 - 33)
------------------------	---------	-------------

石川県における空間放射線量率の時間的・地域的変動についての解析 (第2報) - 後方流跡線解析による事例解析 -	吉本 高志ほか	(34 - 42)
---	---------	-------------

降下物, 大気浮遊じん中のベリリウム-7及び鉛-210の変動と挙動 (第3報) - 年間変動と乾性沈着 -	井上 和幸ほか	(43 - 51)
--	---------	-------------

環境水中のトリチウム - 水道水, 降水 -	岡田真規子ほか	(52 - 56)
---------------------------	---------	-------------

(資 料)

航空機騒音測定における暗騒音の識別結果の検討	深山 敏明ほか	(57 - 62)
------------------------	---------	-------------

石川県におけるカルバペネム耐性腸内細菌科細菌感染症の発生状況 - 2020年度 -	城座 美夏ほか	(63 - 66)
--	---------	-------------

石川県で検出されたノロウイルスの遺伝子型 - 2019/20, 2020/21 シーズン -	中澤 柁哉ほか	(67 - 71)
---	---------	-------------

石川県における地下水の水質組成 (平成29年度～令和2年度) - イオン組成による分類とGISによる描画 -	牧野 雅英ほか	(72 - 74)
---	---------	-------------

固相抽出による地下水中のPCBスクリーニング法の検討	牧野 雅英ほか	(75 - 79)
----------------------------	---------	-------------

令和3年3月29日黄砂飛来時の大気浮遊じん, 降下物中の放射能	井上 和幸ほか	(80 - 84)
---------------------------------	---------	-------------

ジビエ中の放射能調査 - イノシシ肉, シカ肉中の放射能 -	井上 和幸ほか	(85 - 87)
-----------------------------------	---------	-------------

志賀原子力発電所周辺陸水中のストロンチウム-90調査	鳥屋子やまとほか	(88 - 91)
----------------------------	----------	-------------

石川県における環境放射能水準調査 (令和2年度)	鳥屋子やまとほか	(92 - 95)
--------------------------	----------	-------------

KURAMA-IIの特性調査	河野 隆史ほか	(96 - 100)
----------------	---------	--------------

(抄 録)

石川県で分離された結核菌株のVNTR分析を用いた分子疫学的解析	児玉 洋江ほか	(101)
---------------------------------	---------	---------

石川県保健環境センター研究報告書投稿規定		(102)
----------------------	--	---------

石川県保健環境センター研究報告書原稿執筆要領		(104)
------------------------	--	---------

〔報 文〕

志賀原子力発電所周辺土壤中プルトニウム調査

石川県保健環境センター 環境科学部 内田 賢吾

〔和文要旨〕

志賀原子力発電所周辺の志賀町直海、若葉台の2地点で2013年度及び2018年度に採取した土壤中のプルトニウム調査を行った結果、プルトニウム-238、プルトニウム-239+240の蓄積量は、直海が若葉台よりも多かった。若葉台は造成地であり、過去の核実験の影響が残る表土が掘削されたためと考えられた。

原子力災害対策指針で、原子力発電所等施設寄与の有無の検討を開始するための基準である「平常の変動幅の上限」について、環境放射能水準調査の全国データ等を用いて検討を行った。放射能比を用いることとし、プルトニウム-238/プルトニウム-239+240では0.04、プルトニウム-239+240/セシウム-137では0.1が妥当と考えられた。(以上の結果は2020年現在の値に補正している。)

キーワード：プルトニウム、セシウム-137、ストロンチウム-90、放射能比

1 はじめに

過去の核実験及びチェルノブイリ原子力発電所事故、平成23年3月の福島第一原子力発電所事故（以下、「福島第一原発事故」）により大量の人工放射性物質が環境中に放出され、地表に降下し、今もなお残っている。

この影響として現在、セシウム-137（以下、「Cs-137」という。）（半減期30.07年）¹⁾、ストロンチウム-90（以下、「Sr-90」）（半減期28.78年）¹⁾のほか、プルトニウム-238（以下、「Pu-238」という。）（半減期87.7年）¹⁾、プルトニウム-239（以下、「Pu-239」という。）（半減期 2.411×10^4 年）¹⁾、プルトニウム-240（以下、「Pu-240」という。）（半減期 6.564×10^3 年）¹⁾などの人工放射性核種が土壤中から検出されている²⁾。

プルトニウム（以下、「Pu」という。）は、原子力発電所では運転中にウラン燃料の一部が中性子を吸収することにより生成される人工放射性元素である。ウラン同様に核分裂するため、運転中も発電に寄与している。また、Puとウランを混合した混合酸化物燃料（MOX燃料）としてプルサーマル発電に利用されている³⁾。

Puは放射線荷重係数が大きいアルファ線を放出することや、天然ウランよりも半減期が短く、安定同位体が存在しないため比放射能が高いことから、吸入した際に肺がんの発生リスクが高まるなどの影響を与えている⁴⁾。

このことから環境中のPuについて研究が行われており、山本ら⁵⁾は過去の核実験の影響について国内の水田の土壤中Puを測定し、Puの降下量が太平洋側に比べ日本海側の方が2.5～3倍多いことを報告している。また、福島第一原発事故により放出されたPuについて、宇都宮ら⁶⁾は発電所から3kmの地点で、山本ら⁷⁾は50km離れた地点の土壤等で検出したと報告している。

原子力規制庁は2018年4月に「平常時モニタリングについて（原子力災害対策指針補足参考資料）」⁸⁾（以下、「平常時補足参考資料」という。）を策定し、緊急事態が発生した場合への平常時からの備えとして、発電所から30km圏内において土壤中のガンマ線放出核種、Sr-90、Pu-238、Pu-239+240（ α 線測定による定量では α 線エネルギーが近くPu-239、Pu-240が分離できないため「Pu-239+240」と記載）の測定を行うことを求めた。これを受け、本県では、志賀原子力発電所周辺環境放

Plutonium in Soil around Shika Nuclear Power Plant. by UCHIDA Kengo (*Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science*)

Key words : Plutonium, Cesium-137, Strontium-90, Radioactivity Ratio

放射線監視事業（以下、「監視事業」という。）において2019年度の年度計画に、環境放射線観測局敷地内土壌中のガンマ線放出核種、Sr-90、Pu-238、Pu-239+240の測定を追加した⁹⁾。

本県では2013年度及び2018年度に志賀原子力発電所周辺地域のバックグラウンド調査として土壌中人工放射性核種の調査を実施した。今回は、2019年度以降の監視事業の参考とするため、これらのデータをとりまとめるとともに、2008年度から2011年度に行った志賀原子力発電所周辺10km圏内の土壌の詳細調査の結果^{10) 11)}（以下、「志賀原発周辺調査」という。）及び全国で行われた環境放射能水準調査の結果（1999～2018年度）¹²⁾（以下、「全国調査」という。）との比較を行った。

また、平常時補足参考資料で規定されている原子力発電所等施設寄与の有無の検討を開始するための基準である「平常の変動幅の上限」について検討を行った。

2 調査方法

2.1 試料採取地点及び採取方法

土壌試料は、監視事業として2013年度及び2018年度に志賀町直海（以下、「直海」という。）及び志賀町若葉台（以下、「若葉台」という。）で採取した。試料採取地点を図1に示す。

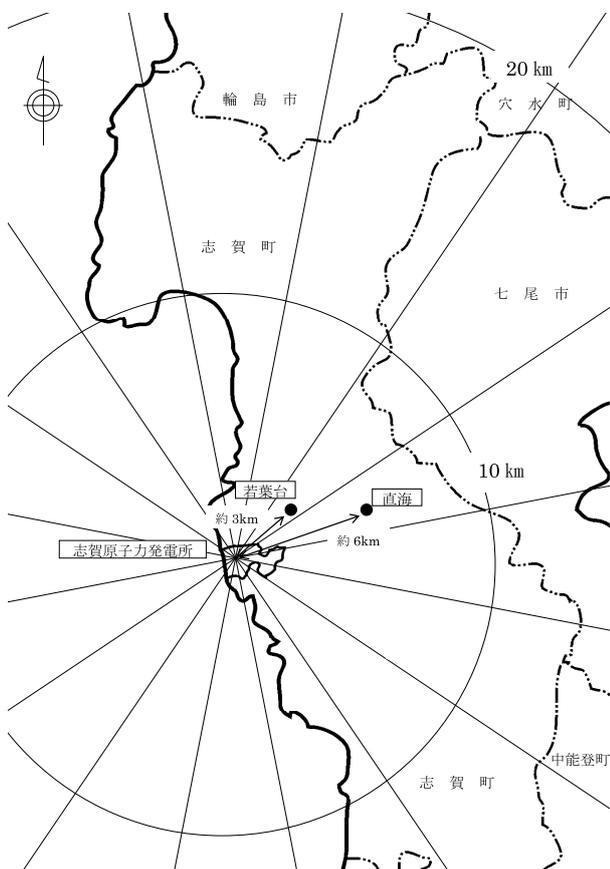


図1 試料採取地点図

土壌の採取方法は放射能測定法シリーズ¹³⁾に準じた方法とし、土壌採取用器具（8地点分面積353cm²）を用い、表層（0～5cm）、深層（5～25cm）の2つの深度で採取した。

2.2 測定方法

(1) 試料の調製

土壌の調整は、放射能測定法シリーズ¹³⁾に準じた方法とし、乾燥機で105℃、24時間以上乾燥後、2mmメッシュでふるい分けし、測定試料とした。

(2) 放射能分析

ア Pu

Pu分析は日本分析センターへ委託して行った。

日本分析センターでは、放射能測定法シリーズ¹⁴⁾に準じたアルファ線核種分析とし、回収率補正用トレーサにプルトニウム-242 (Pu-242) を用い、硝酸による加熱抽出、陰イオン交換樹脂カラム法で分離・生成後、ステンレス鋼板上に電着し、シリコン半導体検出器を用いて80,000秒測定を行い定量した。アルファ線スペクトルの一例を図2に示す。

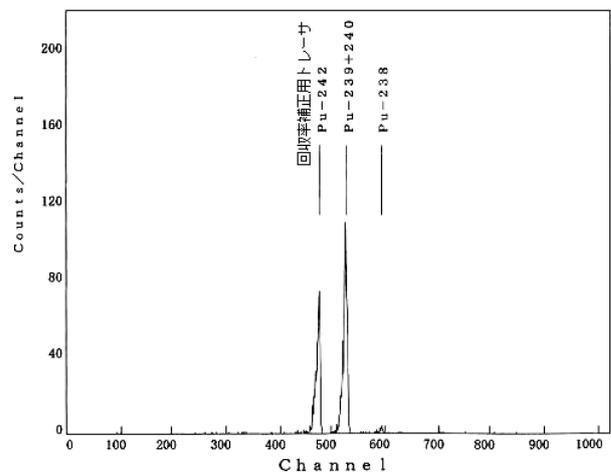


図2 アルファ線スペクトル（一例）

イ Cs-137

Cs-137の測定は、放射能測定法シリーズ¹⁵⁾に準じたガンマ線核種分析とし、測定試料を測定容器（U8容器）に入れ、ゲルマニウム半導体検出器（Ortec社製又はCanberra社製、相対効率45%程度、分解能2keV未満）を用い80,000秒測定を行い定量した。ガンマ線スペクトルの一例を図3に示す。

ウ Sr-90

Sr-90分析は、放射能測定法シリーズ¹⁶⁾に準じた方法とし、ストロンチウム担体添加後、塩酸を加え加熱抽出し、イオン交換法により精製したSr-90から成長したイットリウム-90 (Y-90)（半減期64.10h）を分離し、

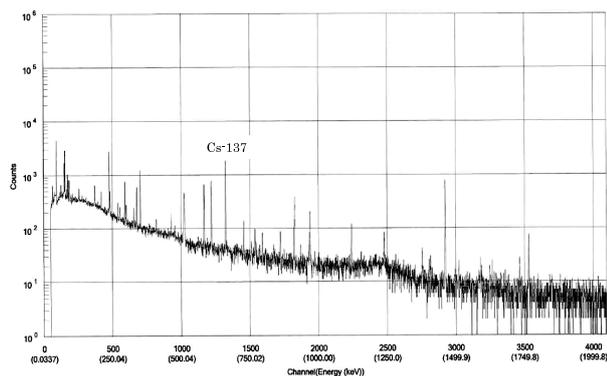


図3 ガンマ線スペクトル (一例)

低バックグラウンドベータ線測定装置 (Aloka社製 SCE-203) を用い3,600秒測定を行い定量した。

3 調査結果及び検討

3・1 調査結果 (濃度)

調査結果及び全国調査の結果を表1に示す。通常、放射能は採取時点に補正している。今回は試料の採取時期が異なる放射能を比較することとなり、半減期が短く減衰による影響を受けるため、採取時の値で比較することができない。このため、2020年現在の値となるよう補正を行った。

直海の土壌については、Pu-238が表層で0.039～0.051Bq/kg乾土、深層で0.024～0.030Bq/kg乾土、Pu-239+240が表層で1.70～1.80Bq/kg乾土、深層で0.84～1.00Bq/kg乾土、Cs-137が表層で44.4～48.6Bq/kg乾土、深層で18.3～20.1Bq/kg乾土、Sr-90が表層で9.8～12.4Bq/kg乾土、深層で1.6～2.5Bq/kg乾土であった。

一方、若葉台の土壌についてはPu-238が表層・深層とも検出限界以下 (以下、「ND」という)、Pu-239+240が表層でND～0.015Bq/kg乾土、深層でND、Cs-137が表層で1.1Bq/kg乾土、深層でND、Sr-90が表層でND～0.30Bq/kg乾土、深層でNDであった。

両地点とも全国調査の結果の範囲内であった。

調査対象の核種全てで、直海が若葉台よりも高濃度となった。これは、若葉台は工業団地として昭和50年代に造成された土地で、一方、直海は核実験前から人の手が加わっていない土地であり、こうした土地の改変状況に違いがあるためであると考えている。既報¹⁷⁾において直海は、降雨等による流出などの影響がほとんどない地点であり、核実験以降のCs-137の蓄積状況を把握することが可能な地点としている。

また、両地点とも深層よりも表層の方が高い濃度となった。これは全国調査の結果と同じ傾向であった。

3・2 調査結果 (蓄積量 (降下量))

土壌中濃度は、地質や地形、石や植物等の含有量な

表1 土壌中人工放射性核種濃度

全てのデータは2020年現在の値に補正

採取場所	採取日	採取深度	Pu-238	Pu-239+240	Cs-137	Sr-90
			Bq/kg 乾土	Bq/kg 乾土	Bq/kg 乾土	Bq/kg 乾土
志賀町直海	2013/7/19	0～5cm	0.051 ± 0.007	1.80 ± 0.08	48.6 ± 0.8	9.8 ± 0.5
		5～25cm	0.030 ± 0.006	0.84 ± 0.04	18.3 ± 0.4	1.6 ± 0.2
	2018/7/23	0～5cm	0.039 ± 0.007	1.70 ± 0.09	44.4 ± 0.7	12.4 ± 0.4
		5～25cm	0.024 ± 0.005	1.00 ± 0.05	20.1 ± 0.5	2.5 ± 0.2
志賀町若葉台	2013/7/19	0～5cm	ND	0.015 ± 0.004	1.1 ± 0.2	ND
		5～25cm	ND	ND	ND	ND
	2018/7/23	0～5cm	ND	ND	1.1 ± 0.2	0.30 ± 0.08
		5～25cm	ND	ND	ND	ND
検出限界			0.012	0.012	0.7	0.2
環境放射能水準調査 (全国調査)	1999～2018	0～5cm	平均 0.011 (ND～0.462)	平均 0.557 (ND～17.0)	平均 37.9 (ND～2,050)	平均 1.29 (ND～18.1)
		5～20cm	平均 0.003 (ND～0.044)	平均 0.218 (ND～1.50)	平均 6.7 (ND～210)	平均 1.06 (ND～6.93)

※平均はNDを0として算出。

表2 土壤中人工放射性核種蓄積量及び放射能比

全てのデータは2020年現在の値に補正

採取場所	採取深度	採取日	Pu-238	Pu-239+240	Cs-137	Sr-90	Pu-238	Pu-239+240	Sr-90
			Bq/m ²	Bq/m ²	Bq/m ²	Bq/m ²	/Pu-239+240	/Cs-137	/Cs-137
志賀町直海	0~25cm	2013/7/19	4.5 ± 0.9	132 ± 10	2,090 ± 60	382 ± 45	0.034	0.063	0.18
		2018/7/23	3.5 ± 0.9	148 ± 9	2,450 ± 70	490 ± 54	0.024	0.060	0.20
志賀町若葉台	0~25cm	2013/7/19	ND	0.6 ± 0.2	43 ± 7	ND	算出できず	0.014	算出できず
		2018/7/23	ND	ND	36 ± 3	10 ± 3	算出できず	算出できず	0.28
志賀原子力発電所周辺10km圏内土壌調査(志賀原発周辺調査)	45地点 0~25cm	2008~2012	平均 1.85* (ND~4.70)	平均 69.4 (ND~159)	平均 1,540 (ND~3,560)	平均 394 (ND~2,300)	平均 0.028* (-~0.041)	平均 0.046 (-~0.071)	平均 0.38 (-~1.60)
環境放射能水準調査(全国調査)	47都道府県 0~20cm	1999~2018	平均 0.48 (ND~7.92)	平均 33.7 (ND~255)	平均 1,930 (ND~80,800)	平均 150 (ND~2,280)	平均 0.021 (-~0.129)	平均 0.053 (-~1.97)	平均 0.42 (-~44.3)

※1 地点でPu-238が特異的に高い値を検出したため、これを除いた値により算出。

注) 蓄積量(降下量)の平均はNDを0として算出。比の平均は放射性核種が検出限界以下のため比が算出されなかったものは計算に入れていない。

どにより地点ごとで異なる。このため、降下量を反映していると考えられる単位面積あたりの蓄積量で比較を行った。蓄積量は、深度毎に1kg乾土あたりの放射能(Bq)に単位面積あたりの乾土重量を掛け合わせ、表層と深層を足し合わせるにより求めた。その結果(2020年現在の値に補正)を表2に示す。併せて志賀原発周辺調査及び全国調査の蓄積量も示す。

直海では、Pu-238が3.5~4.5Bq/m²、Pu-239+240が

132~148Bq/m²、Cs-137が2,090~2,450Bq/m²、Sr-90が382~490Bq/m²であった。

若葉台では、Pu-238がND、Pu-239+240がND~0.6Bq/m²、Cs-137が36~43Bq/m²、Sr-90がND~10Bq/m²であった。

調査対象の核種全てで、直海が若葉台よりも蓄積量が多くなった。この理由は、前項同様、土地の改変状況に違いがあるためと考えている。

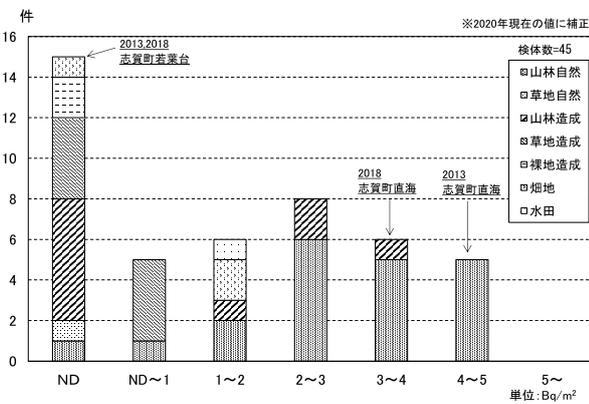


図4 志賀原発周辺調査(2008-11) 土壤中Pu-238蓄積量

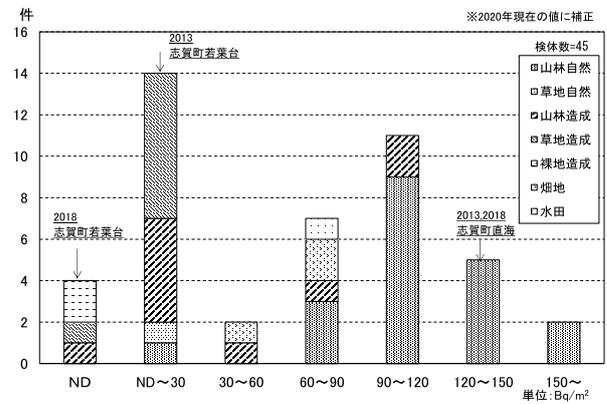


図5 志賀原発周辺調査(2008-11) 土壤中Pu-239+240蓄積量

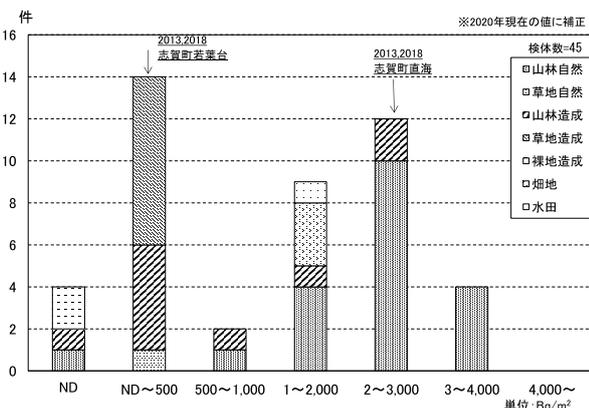


図6 志賀原発周辺調査(2008-11) Cs-137蓄積量

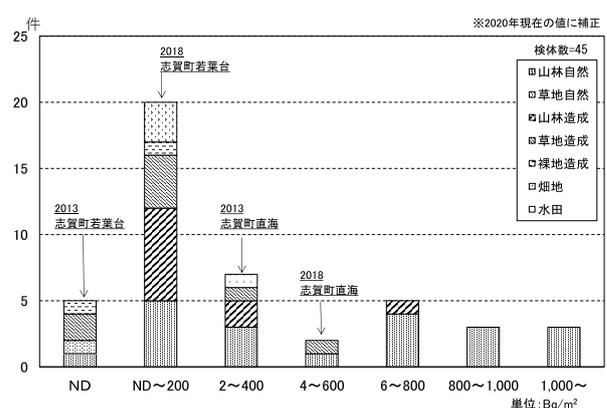


図7 志賀原発周辺調査(2008-11) 土壤中Sr-90蓄積量

志賀原発周辺調査及び全国調査と比較すると、結果はいずれも範囲内であった。

志賀原発周辺調査に対し、今回の調査結果がどのようなレベルか比較するため、志賀原発周辺調査の核種ごとの蓄積量の分布を土地利用状況別に図 4～7 に示し、併せて図中に今回の調査結果を示す。

志賀原発周辺調査において Pu-238, Pu-239+240, Cs-137 の蓄積量は 2 つのピークを持つ分布となった。蓄積量が多いピークは山林などが自然状態のまま残されているものの割合が多く、蓄積量が低い方のピークは表土が削られるなどした造成地の割合が多かった。直海は蓄積量が多い方のピークに、若葉台は蓄積量が

少ない方のピークに分類され、土地の改変状況を反映した区分に位置づけられた。

一方、Sr-90 の蓄積量は、他の核種の分布と異なり、蓄積量が少ない方に 1 つのピークを持つ分布となった。山本ら¹¹⁾ 及び既報¹⁰⁾ において、Sr-90 は Pu や Cs-137 よりも降雨等の影響を受け土壌の下層へ移行しやすいとしている。志賀原発周辺調査における深度分布の一例を図 8 に示す。また、我々は Sr-90 が表流水を水源とした上水から検出され、Cs-137 が検出されないことから、Sr-90 が降雨により流出しやすいことを報告している¹⁷⁾。これらのことから、Pu-238, Pu-239+240, Cs-137 と Sr-90 の蓄積量は異なる分布になったものと考えられ

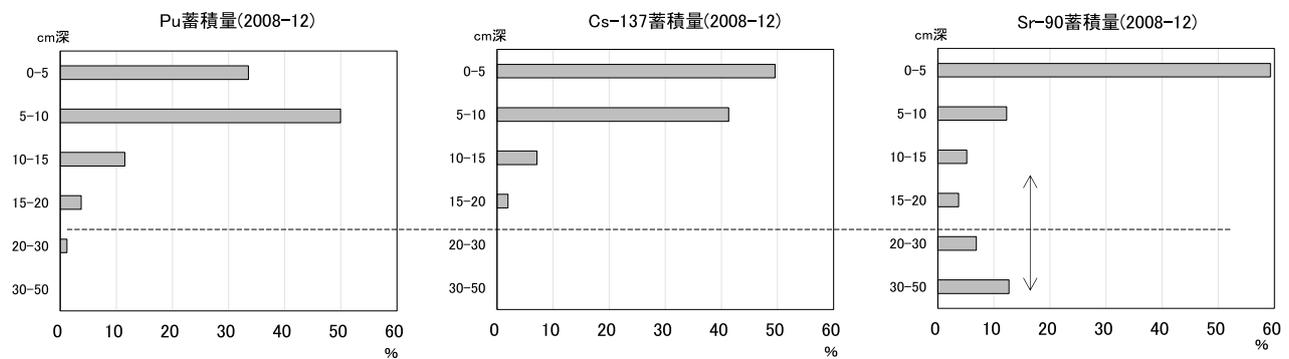


図 8 志賀原発周辺調査 人工放射性核種の深度分布 (一例)

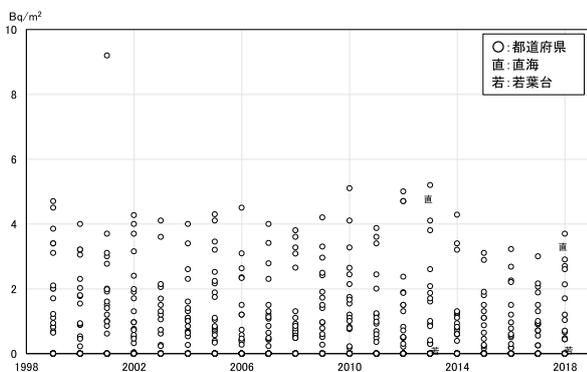


図 9 全国調査 (1999-2018) 土壤中 Pu-238 蓄積量 経年変化

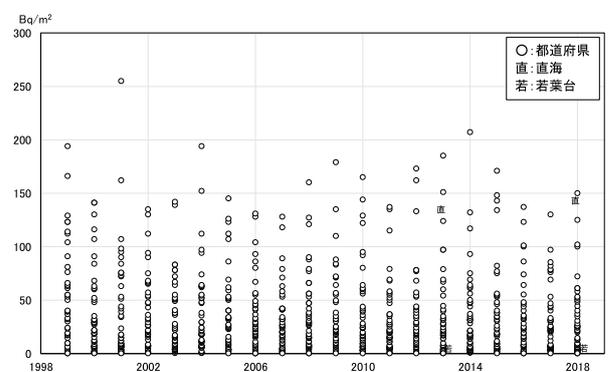


図 10 全国調査 (1999-2018) 土壤中 Pu-239+240 蓄積量 経年変化

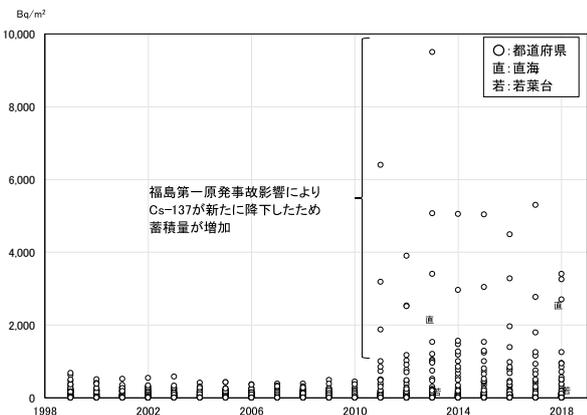


図 11 全国調査 (1999-2018) 土壤中 Cs-137 蓄積量 経年変化

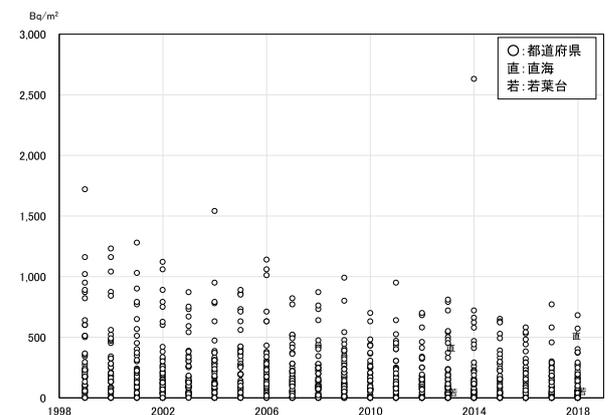


図 12 全国調査 (1999-2018) 土壤中 Sr-90 蓄積量 経年変化

た。

全国調査の経年変化の状況を図9～12に示す。図中に直海、若葉台の調査結果も示す。

直海におけるPu-238, Pu-239+240, Sr-90の蓄積量は、全国調査の結果と比較すると、高い水準であった。全国調査の土壌は同一地点で継続して採取することが求められている。そのため、土壌を採取しやすい草地や造成地などが採取地点として選定されやすいことから、山林などの自然状態のまま残っている直海の蓄積量が高い水準になったと考えられた。

Cs-137の蓄積量は、福島第一原発事故の影響で2011年以降、ほかの核種の経年変化図と異なる形状となった。図中では直海が福島第一原発事故の影響を受けた地域と同じ水準の蓄積量となっており、福島第一原発事故の影響を受けたように見える。しかし、この土地は既報¹⁷⁾で算出したように過去の核実験等からの影響が99.1%、福島第一原発事故からの影響が0.9%であり、福島第一原発事故の影響がわずかである。そのため、前述のとおり全国調査の採取地点は土壌を採取しやすい草地や造成地が多いため、相対的に直海の土壌が高い水準になったと考えられた。

若葉台は造成地であることから、調査対象の核種全てで全国調査の中でも低水準の蓄積量であった。

3・3 核種間の相関係数

志賀原発周辺調査及び全国調査におけるPu-238, Pu-239+240, Cs-137, Sr-90の相関係数を表3, 4に示す。

Pu-238とPu-239+240の相関係数は、両調査とも0.9以上となり、高い相関性を示した。過去の核実験のフォールアウトによる蓄積量の放射能比^{6) 7)}がほぼ一定と言われていることを反映した結果となった。

Pu-238, Pu-239+240とCs-137の相関係数は、福島第一原発事故の前後で大きく異なる結果となった。福島第一原発事故前は、志賀原発周辺調査で0.9以上、全国調査で0.7以上となり、Pu-238, Pu-239+240, Cs-137の相関性が高いことを示唆する結果となった。一方、福島第一原発事故後は全国調査で0.2以下となった。これは福島第一原発事故由来のCs-137が影響を与えたためと考えられた。

Pu-238, Pu-239+240とSr-90の相関係数は福島第一原発事故の前後に関係なく0.5前後であった。Sr-90も過去の核実験等のフォールアウトであるため、PuやCs-137同様沈着したと考えられるが、3・2で述べたように降雨等の影響を受けやすいため相関性が低くなったものと考えられた。

Cs-137とSr-90の相関係数は福島第一原発事故前まではPuとSr-90と同程度の相関係数であったが、福島第一原発事故後はCs-137が大量に放出されたことによる

表3 志賀原発周辺調査(2008-2011)
Pu,Cs-137,Sr-90の相関係数

期間：2008-2011	Pu-238	Pu-239+240	Cs-137	Sr-90
Pu-238	1	0.951	0.925	0.470
Pu-239+240		1	0.981	0.503
Cs-137			1	0.517
Sr-90				1

※志賀原発周辺では福島第一原発事故の影響はなかったため、事故前後を区別せず評価。

表4 全国調査(1999-2018)
Pu,Cs-137,Sr-90の相関係数

期間：1999-2018	Pu-238	Pu-239+240	Cs-137	Sr-90
Pu-238	1	0.850	0.147	0.495
Pu-239+240		1	0.140	0.600
Cs-137			1	0.193
Sr-90				1
福島第一原発事故前 期間：1999-2010	Pu-238	Pu-239+240	Cs-137	Sr-90
Pu-238	1	0.840	0.713	0.497
Pu-239+240		1	0.848	0.638
Cs-137			1	0.683
Sr-90				1
福島第一原発事故後 期間：2011-2018	Pu-238	Pu-239+240	Cs-137	Sr-90
Pu-238	1	0.866	0.174	0.493
Pu-239+240		1	0.149	0.547
Cs-137			1	0.243
Sr-90				1

影響を強く受け、相関性が低くなる結果となった。

3・4 放射能比を用いた比較

平常時補足参考資料では、環境試料は測定値の変動が概ねある一定の幅に収まると考えられることから、過去数年間又は測定開始時からの測定値の最大値を「平常の変動幅の上限」とし、この上限を超えた場合、要因調査を行うとされている。また、土壌中のPuについては継続的に調査する必要はなく最低1回調査を行うとされている。

土壌中の人工放射性核種の蓄積量については、同一地点で継続調査を行えばある程度の変動範囲は把握できるが、地質、地形や改変状況などにより地点によって蓄積量が異なることから、1回の調査では平常の変動幅の上限を把握することは難しい。特にPuは、原子力発電所事故の場合、Cs-137やSr-90に比べ放出されにくく、施設の影響があったとしても微量であることから、施設寄与を判断することが難しい。

そこで、Puについて、過去の核実験の影響による放射能比がほぼ一定と言われていること^{6) 7)}や3・3で述べた核種間の相関性から、直海及び若葉台の土壌の調査結果から得られた放射能比と志賀原発周辺調査や全国調査の放射能比を比較することにより、Puの施設寄

与の有無の検討を開始するための基準である「平常の変動幅の上限」について検討を行った。

(1) Pu-238/Pu-239+240

直海及び若葉台のPu-238/Pu-239+240を表2に示す。直海は0.024～0.034、若葉台はPu-238がNDであるため、比は得られていない。

Pu-238やPu-239+240は、過去の核実験等により全世界に拡散し地表面に沈着した人工放射性核種であり、グローバルフォールアウトと呼ばれている。グローバルフォールアウトのPu-238/Pu-239+240は、宇都宮ら⁶⁾は0.0261、山本ら⁷⁾は約0.03でほぼ一定であると報告している。今回の調査で直海の土壌から得られた比も同程度であった。

志賀原発周辺調査の結果を表2に、頻度分布を土地利用状況別に図13に示す。Pu-238/Pu-239+240は平均0.028(標準偏差0.006)で、Pu-238が検出されないため比が算出できない山と0.03～0.04に最頻値を持つ山の2山形状となった。直海の土壌は0.02～0.04の最頻値の山に、若葉台は比が算出できない山に分類された。

全国調査の結果を表2に、頻度分布を図14に示す。Pu-238/Pu-239+240は平均0.021(標準偏差0.013)で、0.04以下に99%以上(Pu-238が検出限界未満であったため、比が算出できなかったものも含む)が分布している状況であった。直海及び若葉台も0.04以下であつた。

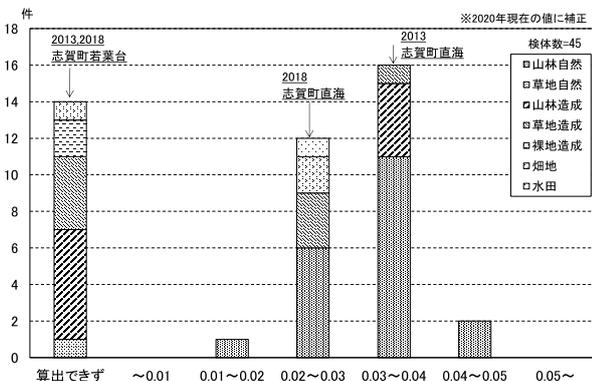


図13 志賀原発周辺調査(2008-11)土壌中Pu-238/Pu-239+240

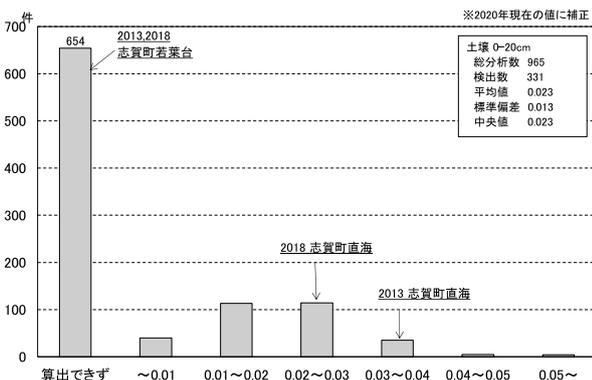


図14 全国調査(1999-2018)土壌中Pu-238/Pu-239+240

た。

福島第一原発事故により高線量となった福島県飯館村において、0.04よりも高い比(0.7～1.5)が観測⁶⁾されたが、事故当時の福島第一原発からの比が2.3と試算¹⁸⁾されたことから、事故の影響により環境中に高い比が観測されたと報告されている。原子力発電所で事故が起こった際には、蓄積量も増えるが、通常よりも高い比が観測される。蓄積量は過去の蓄積量と比較して事故の影響を判断することになるが、事前に蓄積量が把握されていないことも多く、蓄積量だけでは事故の影響の判断は難しい。一方、福島第一原発事故の事例により、比を用いることにより施設寄与の有無の判断が可能であると考えた。

直海でグローバルフォールアウトと同程度の比が観測されていること、志賀原発周辺調査の頻度分布において最頻値が0.03～0.04であること、全国調査において0.04以下に99%以上が分布している状況であることから、施設寄与の有無の検討を開始するための基準である「平常の変動幅の上限」として0.04を用いることが適当であると考えられた。土地の改変状況や地質に関わらず全国的なデータも含めて0.04を算出したことから、全国においても「平常の変動幅の上限」として用いることが可能であると考えている。

なお、全国調査において、0.04よりも高い比がいくつか観測されている。これらはPu-238が検出限界レベルで検出されたもので、測定誤差も大きいため、測定値のバラツキにより、比が大きくなったものと考えられた。

(2) Pu-239+240/Cs-137

山本ら¹¹⁾は、志賀原発周辺調査においてPuとCs-137の深度分布から求めたPu-239+240/Cs-137がほぼ一定となることから、PuとCsの挙動の差は非常に小さいとしている。

直海及び若葉台の比を表2に示す。直海は0.060～0.063、若葉台は0.014であった。

志賀原発周辺調査の結果を表2に、頻度分布を土地利用状況別に図15に示す。比は平均0.046(標準偏差0.010)で、0.04～0.05に最頻値を持つ1山の分布となった。直海が最頻値よりも高く、若葉台が低くなった。

若葉台は工業団地として造成するため核実験等の影響を残している表土が除去された土地であり、人工放射性核種が少ない。そこに福島第一原発事故由来のCs-137が低下したことから、志賀原発周辺調査の最頻値よりも低い比となったと考えられた。

全国調査の結果を表2に、頻度分布を図16に示す。比は平均0.053(標準偏差0.102)で、0.04～0.05に最頻値を持つ分布となり、0.1以下に95%以上が分布してい

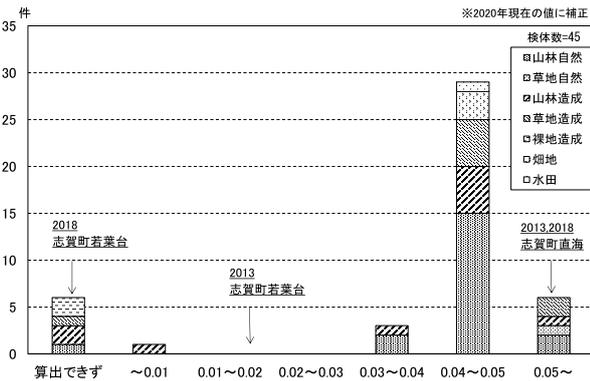


図15 志賀原発周辺調査 (2008-11) 土壤中Pu-239+240/Cs-137

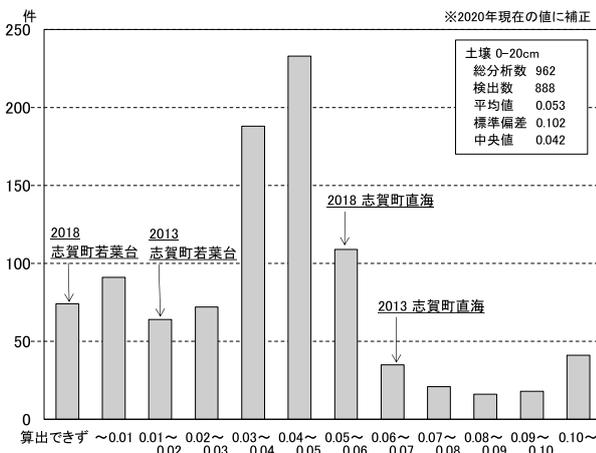


図16 全国調査 (1999-2018) 土壤中Pu-239+240/Cs-137

る状況であった。直海及び若葉台も0.1以下であった。志賀原発周辺調査の頻度分布で最頻値が0.04～0.05であること、全国調査において0.1以下に95%以上が分布していること、全国調査では標準偏差が大きいことから、2020年時点では「平常の変動幅の上限」として0.1を用いることが適当であると考えられた。この値は、Cs-137の半減期がPuに比べ短いため、今後、調査年によって変動することに注意する必要がある。

なお、福島第一原発事故のようにPuに比べCs-137が大量に放出された事故の場合、Pu-239+240/Cs-137比が低くなり、この考え方を用いることができない。その際のPuの「平常の変動幅の上限」は(1)を用いることが適当である。

4 まとめ

監視事業で採取している直海及び若葉台の土壌について、人工放射性核種Pu-238, Pu-239+240, Cs-137, Sr-90の調査を行った。

土壌中の濃度及び蓄積量は調査対象の核種全てで直海が大きく、若葉台が小さくなった。この原因は、直海は核実験前から人の手による変化が加えられていな

い土地であり、過去の核実験等の影響をそのまま残しているのに対し、若葉台は工業団地として造成された土地であり、核実験の影響が残る表土が除去された土地であるためと考えられた。

原子力発電所等施設寄与の有無の検討を開始するための基準である「平常の変動幅の上限」について、放射能比を用い検討を行った。

Pu-238/Pu-239+240については、直海がグローバルフォールアウトの放射能比約0.03と同程度であった。志賀原発周辺調査及び全国調査から「平常の変動幅の上限」として2020年時点では0.04を用いることが適当と考えられた。

Pu-239+240/Cs-137については、同様に「平常の変動幅の上限」として2020年時点では0.1を用いることが適当と考えられた。

文 献

- 1) 社団法人日本アイソトープ協会：アイソトープ手帳、改訂9版、丸善（1996）
- 2) 石川県：志賀原子力発電所周辺環境放射線監視結果報告書（令和元年度）
- 3) 電気事業連合会：プルサーマルQ&A（2019）
- 4) 国立研究開発法人量子化学研究開発機構：“プルトニウム内部被ばく線量評価と人体影響に関するQ&A”，<https://www.qst.go.jp/site/qms/1890.html>，（参照 2021-04-01）
- 5) MASAYOSHI YAMAMOTO：²⁴¹Am and Plutonium in Japan Rice-field Surface Soils, J.RADIAT.RES., 24, 237-249（1983）
- 6) 宇都宮聡, 岩田孟, 川元侑治, 金子誠, 仲松有紀, 大貫敏彦, 難波謙二：長崎、福島に分布するプルトニウムと放射性セシウムの定量と存在状態, 地球化学会, 第59回年会要旨集, 1B15（2012）
- 7) 山本政儀, 坂口綾：福島第一原子力発電所事故に絡む環境アクチニド元素諸核種, 地球科学, 49, 173-184（2015）
- 8) 原子力規制庁監視情報課：平常時モニタリングについて（原子力災害対策指針補足参考資料），平成30年4月4日改訂
- 9) 石川県：志賀原子力発電所周辺環境放射線監視年度計画（平成31年度）
- 10) 藤井明洋, 小谷口久美子, 浜道啓太, 横山暢, 酒井道則, 柿本均：石川県内土壌中の¹³⁷Cs及び⁹⁰Srの分布状況及び移行挙動に関する調査, 石川県保健環境センター研究報告書, 49, 21-26（2012）
- 11) 山本政儀：プルトニウム等α線放出核種のバック

- グラウンド調査, 原子力発電所からの放出可能核種の環境影響に関する調査研究報告書, 1-85 (平成 26 年 3 月)
- 12) 日本分析センター: “日本の環境放射能と放射線”, <https://www.kankyo-hoshano.go.jp/>, (参照 2021-04-01)
- 13) 原子力規制庁: 放射能測定法シリーズ 16 環境試料採取法 (昭和 58 年 12 月)
- 14) 原子力規制庁: 放射能測定法シリーズ 12 プルトニウム分析法 (平成 2 年 11 月)
- 15) 原子力規制庁: 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 γ 線スペクトロメトリー (平成 2 年 9 月)
- 16) 原子力規制庁: 放射能測定法シリーズ 2 放射性ストロンチウム分析法 (平成 15 年 7 月)
- 17) 内田賢吾: 石川県内の福島第一原子力発電所事故により放出された放射性物質の影響割合, 石川県保健環境センター研究報告書, **57**, 19-22 (2020)
- 18) 鳥屋子やまと, 井上和幸, 内田賢吾: 志賀原子力発電所周辺陸水中のストロンチウム-90 調査, 石川県保健環境センター研究報告書, **58**, 88-91 (2021)
- 19) 西原健司, 岩元大樹, 須山賢也: 福島第一原子力発電所の燃料組成評価, JAEA-Data/Code 2012-018, 日本原子力研究開発機構, 1-190 (2012)

〔短 報〕

石川県における新型コロナウイルス感染症(COVID-19) 発生および検査状況

— 2020年1月～2021年7月 —

木村 恵梨子・中澤 柁哉・中野 未来
石川県保健環境センター 健康・食品安全科学部 小橋 奈緒・成相 絵里・中村 幸子
倉本 早苗

〔和文要旨〕

新型コロナウイルス感染症については、石川県では2021年7月末までに5,104人の感染者、83のクラスターが確認されている。本県で感染者数が最も多い年代は20代であり、全国の感染者数の割合と比べ70代以上の高齢者が若干多かった。第5波では高齢者の感染者数は減少傾向を示しており、高齢者へのワクチン接種による新型コロナウイルス感染症への発症抑制効果と考えられた。新たな変異株の出現も考えられることから、今後も全ゲノム解析を含め地域の新型コロナウイルスの動向を注視する必要があると思われた。

キーワード：新型コロナウイルス感染症, SARS-CoV-2 変異株

1 はじめに

新型コロナウイルス感染症(COVID-19)は、2019年12月頃から中国武漢市にて確認され、2021年7月末までに世界では1億9千万人以上に感染拡大、死者数も415万人を超えている¹⁾。我が国でも91万人以上の感染者が確認されており²⁾、石川県(以下、本県)では2020年2月21日に1例目を確認して以降、2021年7月末日までに5,104人の感染者が確認されている。

本報では、本県におけるCOVID-19感染者の発生状況、当センターの新型コロナウイルス検査状況等について報告する。

2 本県における新型コロナウイルス検査対応

2020年1月24日に国立感染症研究所(以下、感染研)より2019-nCoV検査マニュアルVer.1が示され、当センターでは2020年1月30日にコンベンショナルPCR法を、翌31日にはリアルタイムPCR法による検査体制を

整備し、行政検査を当センターで開始した。

本県の検査体制として、2020年4月9日に仮設テントでのドライブスルー方式の検体採取が開始され、後の(6月8日～)「いしかわPCR検体採取センター」の前身となった。また、4月中旬には行政検査の一部を民間検査機関や金沢市保健所等に委託することとなった。行政検査について、6月下旬には原則、民間検査機関等へ委託し、当センターの役割は主にクラスターの検査や緊急検査へとシフトした。

一方、検体数の増加に対応するため、当センターではリアルタイムPCR装置や高速冷却遠心機、超低温冷凍庫等を増台した。また、自動核酸抽出装置や遺伝子抽出からリアルタイムPCRまでを全自動で行う全自動核酸抽出増幅装置を新たに導入した。2020年5月中旬からは、抽出操作不要の検査試薬を使用することで、検査効率を向上させた。

新型コロナウイルス変異株PCR検査(以下、変異株PCR検査)についても国の指示に従い、2021年2月10

Prevalence and Test of COVID-19 from January 2020 to July 2021 in Ishikawa Prefecture. by KIMURA Eriko, NAKAZAWA Masaya, NAKANO Mikuru, KOBASHI Nao, NARIAI Eri, NAKAMURA Sachiko and KURAMOTO Sanae (Health and Food Safety Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : COVID-19, SARS-CoV-2 variant

日からN501Y変異株の検査を、2021年6月4日からL452R変異株の検査を行うこととなった。変異株の確定等の為の全ゲノム解析については、2021年7月までは感染研にて行っており、遺伝子検出から解析結果が得られるまでに1, 2か月を要し、迅速性に欠けることが課題であった。2021年8月1日からはNext generation Sequencer (NGS; 次世代シーケンサー) による遺伝子解析を導入し、遺伝子解析を開始し、より速やかに変異株の確定検査を行えることとなった。

3 材料と方法

3・1 COVID-19感染者数

2020年2月21日から2021年7月末日までに、本県でHER-SYS³⁾にCOVID-19感染者として届出された5,104人を対象とした。全国の感染者の情報は、厚生労働省の新型コロナ感染症オープンデータ⁴⁾より2021年7月末日までのデータを使用した。なお、第1波～第5波の流行期間については明確な定義はないが、本報では2020年25週までを第1波、2020年26～40週を第2波、2020年41週～2021年9週を第3波、2021年10週～25週を第4波、2021年26週～を第5波とした。

3・2 新型コロナウイルス遺伝子検査

2020年2月21日から2021年7月末日までに、当センターに搬入された検体について新型コロナウイルス遺伝子検査を行った。検出方法は、「病原体検出マニュアル2019-nCoV (Ver. 随時改訂)」⁵⁾に基づき当センターで作成した病原体等検査実施標準作業書に従い実施した。

3・3 新型コロナウイルス変異株PCR検査

変異株PCR検査については当センターで実施した新型コロナウイルス遺伝子検査が陽性であった検体に加え、主に行政検査として民間の検査機関等で新型コロナウイルス遺伝子検査陽性であった検体のうち当センターに搬入されたものを対象とした。N501Y変異株PCR検査、L452R変異株検査については感染研より示された「リアルタイム one-step RT-PCR法によるSARS-CoV-2 Spike N501Y変異の検出」(随時改訂) または「リアルタイム one-step RT-PCR法によるSARS-CoV-2 Spike L452R変異の検出」(随時改訂) に基づき実施した。N501Y変異株PCR検査については、採取日が2020年12月から5月までの1,462検体を、L452R変異株PCR検査については、採取日が2021年6月1日以降の568検体を対象として集計した。なお、当センターの検査実施分に金沢市保健所等での実施分を加えて集計を行った。

4 結果

4・1 COVID-19感染者の発生状況

本県と全国における2020年1月下旬(第4週)から

2021年7月末日(第30週)までの週毎のCOVID-19新規感染者の推移を図1に示す。本県の感染者1例目は2020年2月21日であり2021年7月末日までに5,104人の届出があった。この間、大きな流行は5回あり、2020年3月後半から5月末頃まで(第1波)、2020年7月中旬から9月上旬まで(第2波)、2020年11月中旬から2021年3月初旬まで(第3波)、2021年4月初旬から5月末まで(第4波)、そして7月初旬からの第5波である。全国と本県の推移を比較すると、第2波～第4波では全国から少し遅れて感染者の増加がみられたのに対し、第1波、第5波では全国とほぼ同時期に感染者の増加がみられた。また、全国と本県の流行の規模についておおよその人口比の100:1として比較すると、第3波では本県はかなり抑え込まれていることが特徴的であり、これ以外はほぼ同等であった。

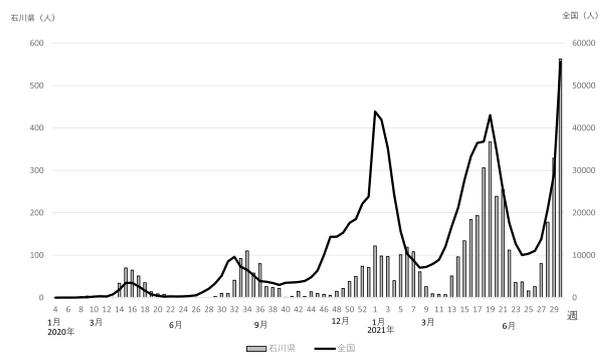


図1 週別COVID-19感染者数(石川県・全国)

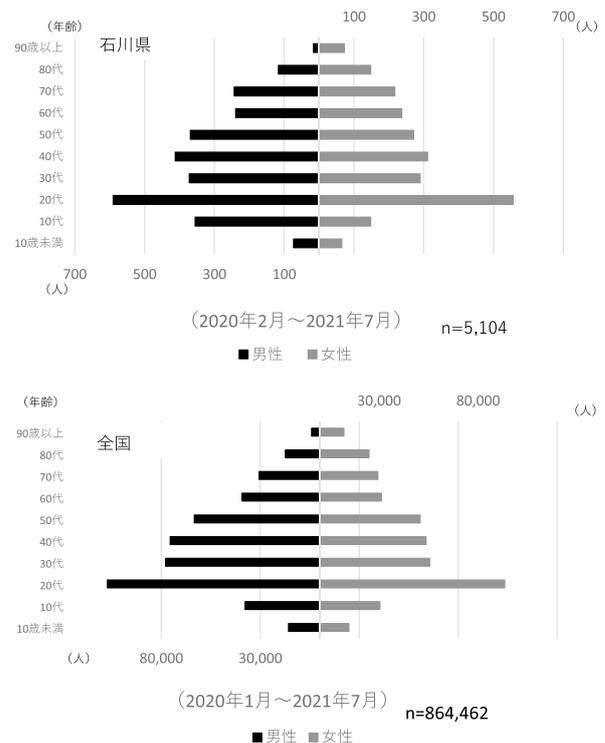


図2 男女別年齢階層別のCOVID-19感染者数(石川県・全国)

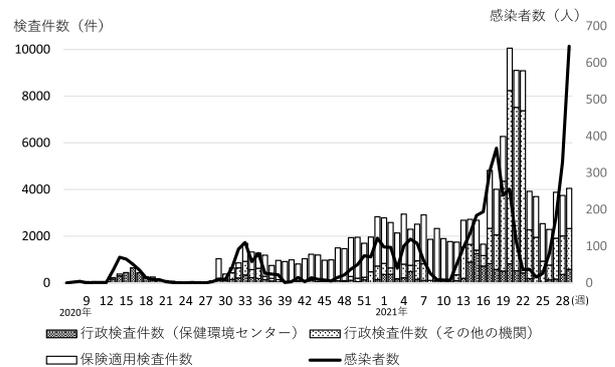
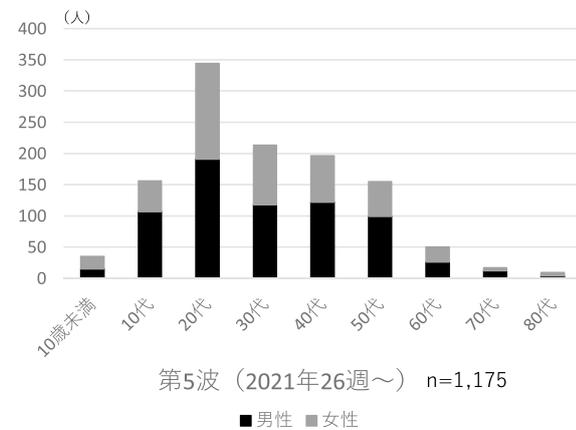
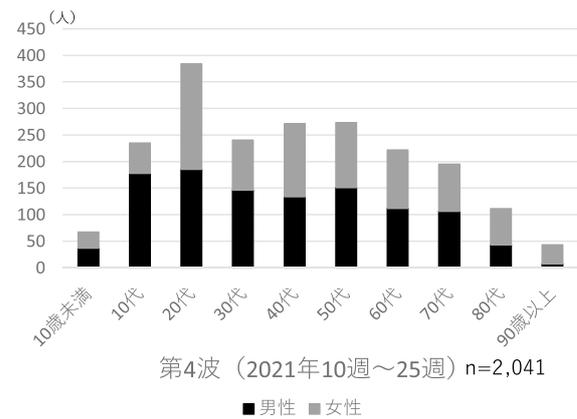
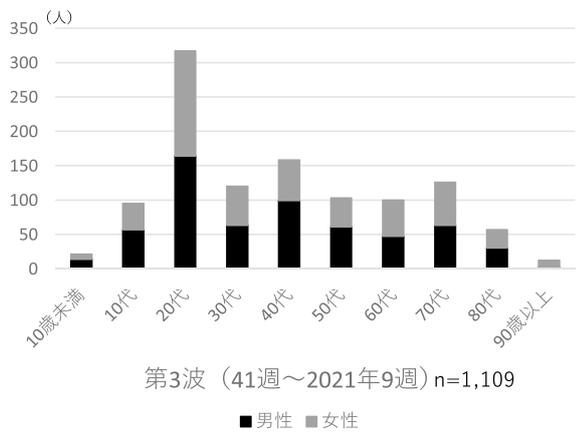
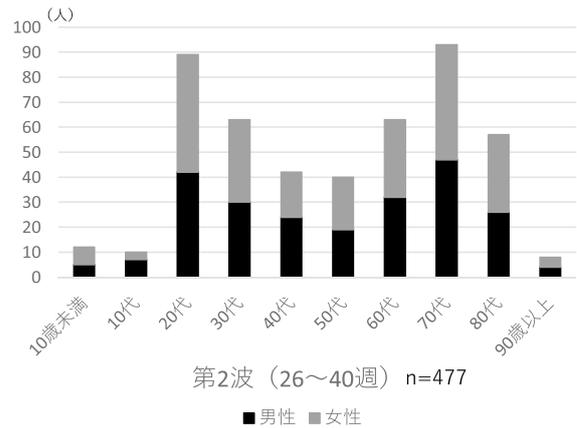
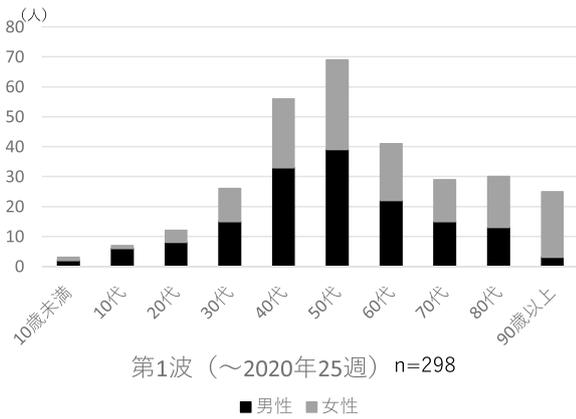


図3 男女別年齢階層別・期間別のCOVID-19感染者数（石川県・全国）（年齢・性別の非公表分を除く）

図4 新型コロナウイルス検査の実施状況（石川県・全国）

4・2 COVID-19感染者の男女別年齢階層別発生状況

本県と全国の2021年7月末までの全期間の男女別年齢階層別感染者数を図2、本県の第1波から第5波までの男女別年齢階層別感染者数を図3に示す。全期間では、20代が最も感染者数が多く男女ともに500人を超えており、次いで男女ともに40代が多かった。また、全国の感染者の割合と比較すると概ね同様であるが、本県では70歳以上の高齢者が若干多かった（図2）。一方、各波の特徴としては、20代・30代の感染者数は、第2波から増加傾向を示しており、10代の感染者数は第3波から増加傾向を示した。（図3）

4・3 クラスターの発生状況

本県の2021年7月末日までのクラスターの一覧を表1に示す。83のクラスターが発生しており、感染者数が50人を超えたのは4つであった。No.6の医療機関②では、大半が高齢者であり、また、No.8の昼カラオケ関係では中高年層が多く、No.14の医療機関④も半数が高齢者であった。No.60の学校関係①は生徒である10代が大半を占めた。

4・4 新型コロナウイルス検査状況

本県における新型コロナウイルス検査状況を図4に示す。第1波では、行政検査としてほぼ当センターのみで

表 1 新型コロナウイルス感染症クラスター (石川県)

No.	クラスター施設	発生時期	感染者数	No.	クラスター施設	発生時期	感染者数
1	医療機関①	2020年4月	8	43	医療機関⑩	4月	18
2	企業①	4月	29	44	職場⑥	4月	8
3	飲食店①	4月	14	45	福祉施設②	4月	14
4	企業②	4月	14	46	飲食店⑪	4月	10
5	企業③	4月	20	47	福祉施設③	4~5月	37
6	医療機関② (介護療養型)	4月	86	48	会食関係⑤	4~5月	13
7	大学関係	7月	6	49	会食関係⑥	5月	20
8	カラオケ関係①	8月	83	50	スポーツ施設関係	4~5月	25
9	お酒を伴う会食関係①	8月	14	51	飲食店⑫	5月	16
10	お酒を伴う会食関係②	8月	6	52	スポーツ施設関係②	5月	31
11	飲食店②	8月	10	53	会食関係⑦	5月	9
12	グループホーム関係	8月	14	54	飲食店関係	5月	39
13	医療機関③	8月	31	55	会食関係⑧	5月	9
14	医療機関④	8月~9月	69	56	飲食店⑭	5月	8
15	飲食店③	9月	12	57	福祉施設④	5月	9
16	会食関係①	10月	13	58	飲食店⑮	5月	12
17	カラオケ関係②	12月	28	59	福祉施設⑤	5~6月	34
18	カラオケ関係③	12月~2021年1月	18	60	学校関係①	5~6月	121
19	カラオケ関係④	12月	14	61	学校関係②	5~6月	13
20	職場 (休憩室)	12月	8	62	福祉施設⑥	5~6月	15
21	職場②	12月~2021年1月	14	63	福祉施設⑦	5~6月	11
22	職場③ (学校)	2021年1月	16	64	福祉施設⑧	5~6月	7
23	カラオケ関係⑤	1月	14	65	職場⑦	5~6月	10
24	医療機関⑤	1月	9	66	福祉施設⑨	6月	14
25	会食関係②	1月	13	67	職場⑧	6月	7
26	会食関係③	1月	11	68	飲食店⑯	7月	10
27	会食関係④	1月	17	69	飲食店⑰	7月	7
28	職場④	1月	6	70	会食関係⑨	7月	9
29	福祉施設関係	1月	6	71	飲食店⑱	7月	16
30	飲食店④	2月	37	72	学校関係③	7月	9
31	飲食店⑤	2月	12	73	学校関係④	7月	9
32	飲食店⑥	2月	9	74	カラオケ関係⑥	7月	6
33	飲食店⑦	2月	8	75	飲食店⑲	7月	6
34	飲食店⑧	2月	12	76	職場⑨	7月	10
35	医療機関⑥	2月	26	77	学校関係⑤	7月	13
36	飲食店⑨	2月	13	78	飲食店⑳	7月	9
37	飲食店⑩	2月	17	79	飲食店㉑	7月	15
38	合宿	4月	7	80	職場⑩	7月	10
39	職場⑤	4月	15	81	学校関係⑥	7月	13
40	医療機関⑦	4~5月	44	82	スポーツ活動	7月	12
41	医療機関⑧	4~5月	25	83	職場⑪	7月	12
42	医療機関⑨	4~5月	14				

*2021年7月31日時点

検査を行っていたが、第2波以降は医療機関で行われる保険適用検査の件数が増加した。流行のない時期には行政検査は少ないが、保険適用検査は流行に関わらず同程度実施されている。第3波以降は、初発は保険適用検査で診断され、その接触者等について行政検査が行われる流れとなっている。

4・5 変異株 PCR 検査について

当センターおよび金沢市保健所、県が委託している民

間の検査機関等で実施した変異株 PCR 検査結果の変異株の割合を図5に示す。N501Y 変異株⁶⁾について、2020年12月25日に国内で初めて確認されたが、本県では2021年1月に採取された検体で初めて確認された。3月初旬からN501Y 変異株の割合が徐々に増加し、2021年5月には9割以上がN501Y 変異株となった。また、L452R 変異株⁷⁾については、2021年4月20日に国内で初めて確認されたが、本県では2021年6月に採取された検体で初めて確

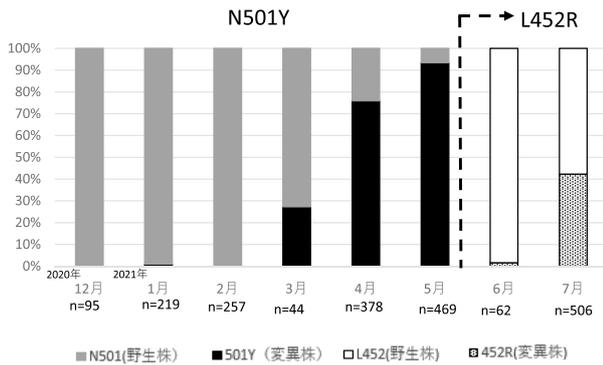


図5 検体採取月別の新型コロナウイルス変異株の割合 (石川県)

認められ、7月には約4割がL452R変異株へと置き変わった。

5 考 察

本県におけるCOVID-19感染者数の推移は、全国的に全国から少し遅れて感染者が増加傾向を示している。また、感染者の拡大は連休や夏休み等を境にみられており、人流の増加が感染者の拡大に影響を与えていると考えられた。

本県では、1施設で同時期に5人程度の感染者が判明した場合にクラスターと認定している。本県で発生した各クラスターの状況が、第1波から第5波の年齢階層別感染者数に大きな影響を及ぼしていた。第1波ではNo.6の介護療養型医療機関の特性から高齢者の感染者が多く、第2波では中高年層が多く利用していたNo.8のカラオケ関係①とNo.13, No.14の医療機関の特性による中高年層と、No.9, No.10等のお酒を伴う会食関係等の影響による若年層に二分化された。第3波では年末年始の帰省や成人式後の飲食関係のクラスターが多く20代の感染者数が目立つかたちとなった。第4波、第5波でも学生寮関係や飲食店関係のクラスターが多く、若い世代の感染者数が多い傾向が続いている。

本県では2021年4月中旬から高齢者へのワクチン接種が始まり、7月末日には高齢者の2回目接種済み者が84%を超えた⁷⁾。第4波では60代以上の感染者数は500人を超え第4波の感染者数の28.0%であったが、第5波では100人以下で感染者数の6.5%に減少していることから、ワクチンによるCOVID-19の発症抑制効果がみられたと思われる。また、医療機関や老人福祉施設の職員に対しても先行的にワクチン接種が進んでおり、第5波の2021年7月末時点ではこれらの機関でクラスターが発生しておらず、このこともワクチンのCOVID-19発症抑制効果と考えられた。

本県では、N501Y変異株の増加は第4波で確認されたが、それ以降、感染者数は著しく増加し、1日の感染者数が100人を超える日もみられた。第5波では、1日

の感染者数は70人を超える日が続いており、総感染者数は第4波を超える勢いである。これは、この時期にN501Y変異株であるアルファ株からL452R変異株であるデルタ株への置き換わりが起きたことによるものと思われた。本県ではリアルタイムPCRを使用した変異株PCR検査の実施により、地域に流行している株の推定を行ってきており、変異株への置き換わりはある程度把握できていた。さらに、2021年8月からは、当センターにて全ゲノム解析が可能となり、変異株の確定等がより速やかに実施できるようになった。今後も全ゲノム解析を含め地域のCOVID-19の動向を注視する必要があると思われた。

6 ま と め

- (1) 本県では、COVID-19感染者1例目の確認は2020年2月21日で、2021年7月末日までに5,104人の届出があった。この間、第1波から第5波までの大きな流行が5回あった。
- (2) 2020年2月21日から2021年7月末日までで、年齢階層別にみると感染者数が最も多いのは20代であり、次いで40代であった。全国の感染者数の割合と比較すると、概ね同様であるが本県では70代以上の高齢者の占める割合が若干多かった。
- (3) 本県では、2021年7月末日までに83のクラスターが発生しており、感染者数が50人を超えたクラスターは4つであった。クラスターの状況がそれぞれの発生した時期の年齢階層別の感染者数の割合に大きく影響を及ぼしたと思われる。
- (4) 本県で、N501Y変異株が増加し始めた2021年3月以降、感染者数の増加は著しく、1日の感染者数が100人を超える日もあった。L452R変異株は2021年6月頃から増加しており、第5波の感染者の急増が著しいことから、感染力がより強いことが推測された。
- (5) 本県では、2021年4月中旬から高齢者へのワクチン接種が始まり、7月末日には高齢者の2回目接種済み者が84%を超えた。60代以上のCOVID-19感染者は第5波では感染者数の6.5%と減少傾向を示している。また、医療機関や老人福祉施設の職員も先行的にワクチン接種が進んでいるが、第5波ではこれらの機関のクラスターが発生していない。いずれもワクチンによるCOVID-19発症抑制効果と考えられた。

文 献

- 1) World Health Organization, Weekly epidemiological update on COVID-19 - 27 July 2021 Edition 50, <https://www.who.int/publications/m/item/weekly-epidemiological-update-on-covid-19---27-july-2021>,

- 2021年7月31日
- 2) 厚生労働省, 新型コロナウイルス感染症の現在の状況と厚生労働省の対応について(令和3年7月31日版), https://www.mhlw.go.jp/stf/newpage_20272.html, 2021年7月31日
 - 3) 厚生労働省, 新型コロナウイルス感染者等情報把握・管理支援システム(HER-SYS), https://www.mhlw.go.jp/stf/seisakunitsuite/bunya/0000121431_00129.html, 2021年7月31日
 - 4) 厚生労働省, オープンデータ, <https://www.mhlw.go.jp/stf/covid-19/open-data.html>, 令和3年8月2日
 - 5) 国立感染症研究所, 病原体検出マニュアル 2019-nCov (Ver.2.9.1), <https://www.niid.go.jp/niid/images/lab-manual/2019-nCoV20200319.pdf>, 2021年7月31日
 - 6) 国立感染症研究所, 日本国内で報告された新規変異株症例の疫学的分析(第1報), <https://www.niid.go.jp/niid/ja/diseases/ka/coronavirus/2019-ncov/2484-idsc/10279-covid19-40.html>, 2021年7月31日
 - 7) 国立感染症研究所, SARS-CoV-2の変異株B.1.617系統の検出について, <https://www.niid.go.jp/niid/ja/diseases/ka/coronavirus/2019-ncov/2551-lab-2/10326-covid19-43.html>, 2021年7月31日
 - 8) 内閣官房, 新型コロナワクチンの接種状況(一般接種(高齢者含む)), https://cio.go.jp/c19vaccine_dashboard, 2021年7月31日

〔短 報〕

農産物中のネオニコチノイド系農薬分析法の検討

石川県保健環境センター 健康・食品安全科学部 小澤 祐子・竹田 正美

〔和文要旨〕

農産物中のネオニコチノイド系農薬7項目10成分の一斉分析法を検討した。試料をアセトニトリル/水の混合溶媒で抽出し、InertSep C18 FFおよびInertSep HLB FF固相カラムで精製し、LC-MS/MSで測定を行い、絶対検量線法で定量した。この方法を用いて、玄米、ほうれんそう、キャベツ、ばれいしょ、トマト、りんごの6農産物について、妥当性評価ガイドラインに基づき妥当性評価を実施した。その結果、玄米、キャベツ、ばれいしょでは9成分、ほうれんそう、トマト、りんごでは10成分が検査可能であった。

キーワード：ネオニコチノイド系農薬、農産物、LC-MS/MS

1 はじめに

ネオニコチノイド系農薬は、人畜に害が少なく、害虫に特異的に効果を発揮することから幅広い農作物に活用されている。

本県では、既報¹⁾の分析法により農産物中のジノテフラン検査を実施してきた。添加回収試験における回収率は概ね良好であったが、2017年に回収率が大幅に低下した。回収率低下の要因を検討したところ、精製に用いるグラファイトカーボン固相カラムでジノテフランの溶出にロット差が認められ、分析法を改良する必要が生じた。また、既報の精製方法は操作が複雑で、分析者の熟練度による回収率のばらつきが大きいという課題があった。

ニテンピラムについては、県内農産物で使用実績があったものの、これまで検査を実施していなかった。「食品、添加物等の規格基準」²⁾では、「ニテンピラムとは、ニテンピラム並びにその代謝物であるCPMA（2-[N-(6-クロロ-3-ピリジルメチル)-N-エチル]アミノ-2-メチルイミノ酢酸）およびCPMF（N-(6-クロロ-3-ピリジルメチル)-N-エチル-N'-メチルホルムアミジン）をニテンピラムに換算したものの和とする。」とされている。「食品に残留する農薬、飼料添加物又は動物用医薬品の

成分である物質の試験法」³⁾では、ニテンピラムをHPLC-UV、CPMAおよびCPMFから誘導されるCPF（N-(6-クロロ-3-ピリジルメチル)-N-エチルホルムアミド）をGC-FTDまたはGC-NPDによりそれぞれ定量を行うため操作が煩雑であること、代謝物の濃度を個別に把握することができないことなどの問題があった。

そこで、今回、ジノテフランとニテンピラムを含むネオニコチノイド系農薬7項目10成分について、LC-MS/MSによる一斉分析法を検討し、「食品中に残留する農薬等に関する試験法の妥当性評価ガイドライン」⁴⁾（以下、ガイドライン）に基づき妥当性評価を実施したので、その概要を報告する。

2 材料と方法

2.1 試料

抽出条件の検討には、行政試験でネオニコチノイド系農薬が検出された玄米、ほうれんそう、ねぎ、きゅうりを用いた。

妥当性評価には、ガイドラインの例示を参考に、当センターで行政試験を実施している玄米、ほうれんそう、キャベツ、ばれいしょ、トマト、りんごを用いた。

2.2 検討対象成分

アセタミプリド、イミダクロプリド、クロチアニジン、

Study of Determination of Neonicotinoid Pesticides in Agricultural Products. by OZAWA Yuko and TAKEDA Masami (Health and Food Safety Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Neonicotinoid Pesticides, Agricultural Products, LC-MS/MS

ジノテフラン, チアクロプリド, チアメトキサム, ニテンピラム, CPMA, CPMF および CPF の 10 成分を検討対象とした。

2・3 試薬等

標準品は, 富士フィルム和光純薬(株), 関東化学(株)または林純薬(株)製を使用した。妥当性評価には, 富士フィルム和光純薬(株)製ネオニコチノイド系農薬混合標準液(各 20 μ g/mL アセトニトリル溶液)を使用した。

有機溶媒については, 高速液体クロマトグラフ用および LC/MS 用を使用した。その他試薬は, 試薬特級を使用した。水は, 超純水 (Milli-Q 水) をを使用した。

固相カラムは, ジーエルサイエンス(株)製 InertSep C18 FF 1g/6mL (以下, C18) および InertSep HLB FF 200mg/6mL (以下, HLB) をを使用した。

2・4 標準溶液の調製

CPMA 標準品は水で溶解して 200 μ g/mL の標準原液を調製し, これを水で希釈して 1 μ g/mL の CPMA 標準溶液とした。その他の標準品は, アセトニトリルまたはメタノールで溶解して 200 μ g/mL の標準原液を調製し, これらを合わせとりアセトニトリルで希釈して各 1 μ g/mL の混合標準溶液とした。

2・5 装置および測定条件

液体クロマトグラフは Agilent 製 1260 Infinity を, 質量分析計は Agilent 製 6460 Triple Quad LC/MSD を使

用し, 測定条件は表 1 に, 測定イオンは表 2 に示した。

2・6 試験溶液の調製

(1) 抽出

野菜および果実は, 試料 20g にアセトニトリル/水 (6:4) 40mL を加えてホモジナイズし, 3000rpm で 5 分間遠心分離し, 上清を得た。残渣にアセトニトリル/水 (6:4) 30mL を加えて同様の操作を行い, 得られた上清を合わせてアセトニトリル/水 (6:4) で 100mL に定容した。

玄米は, 試料 10g に水 20mL を加えて 15 分間放置し, これにアセトニトリル 40mL を加えてホモジナイズし, 2500rpm で 3 分間遠心分離し, 上清を得た。残渣にアセトニトリル/水 (6:4) 30mL を加えて同様の操作を行い, 得られた上清を合わせてアセトニトリル/水 (6:4) で 100mL に定容した。

(2) 精製

(1) で得られた溶液から 10mL (玄米は 20mL) を分取し, 予めアセトニトリル 5mL およびアセトニトリル/水 (6:4) 5mL でコンディショニングした C18 に注入し, さらにアセトニトリル/水 (6:4) 2mL を注入した。全溶出液を 40 $^{\circ}$ C 以下で濃縮し水 20mL で希釈した液を, 予めアセトニトリル 5mL および水 10mL でコンディショニングした HLB に負荷し, 水 20mL で洗浄後, アセト

表 1 LC-MS/MS 測定条件

カラム	Agilent 製 Poroshell 120 EC-C18 (内径 2.1mm, 長さ 100mm, 粒径 2.7 μ m)	
カラム温度	40 $^{\circ}$ C	
移動相	A: 0.1%ギ酸含有 5 mmol/L 酢酸アンモニウム水溶液 B: メタノール	
流量	0.2mL/min	
グラジエント条件	B: 10%(0-2min)→45%(13.5min)→95%(15-20min)→10%(20.01-30min)	
注入量	1 μ L	
イオン源	Agilent Jet Stream (AJS)	
イオン化法	ESI ポジティブ	
ドライガス	N ₂ , 300 $^{\circ}$ C, 10L/min	
ネブライザー	N ₂ , 50psi	
シースガス	N ₂ , 300 $^{\circ}$ C, 12L/min	
キャピラリー電圧	3000 V	
測定モード	MRM (多重反応モニタリング)	

表 2 分析対象化合物の測定イオン

化合物名	Q1 (m/z)	Q3 (m/z)	CE (V)
アセタミプリド	223	126	20
イミダクロプリド	256	209	12
クロチアジジン	250	169	8
ジノテフラン	203	129	8
チアクロプリド	253	126	20
チアメトキサム	292	211	8
ニテンピラム	271	126	28
CPMA	256	126	24
CPMF	212	126	20
CPF	199	128	20

Q1: プリカーサーイオン
Q3: プロダクトイオン
CE: コリジョンエネルギー

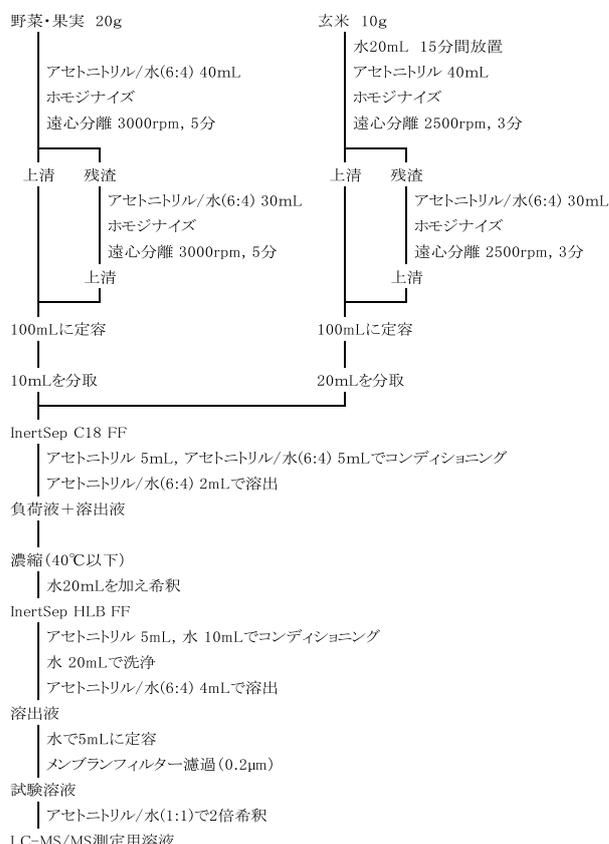


図 1 試験溶液の調製

ニトリル/水 (6:4) 4mLで溶出した。溶出液を水で5 mLに定容し、メンブランフィルター (0.2μm) で濾過して試験溶液とした (図1)。

2・7 定量

1μg/mL CPMA 標準溶液と1μg/mL混合標準溶液を合わせとり、アセトニトリル/水 (1:1) で希釈し、1 ~ 20ng/mLの検量線用混合標準液を作成した。

試験溶液はアセトニトリル/水 (1:1) で2倍希釈し、測定用溶液とした。

検量線用混合標準液および測定用溶液1μLをLC-MS/MSに注入し、得られたピーク面積から絶対検量線法により定量した。

2・8 妥当性評価

ガイドラインに従い、選択性、定量限界、真度および精度の4項目について評価を行った。定量限界は一律基準値である0.01ppmを目標値とした。添加濃度は0.05ppmおよび0.01ppmの2濃度とし、分析者2名が1日2併行3日間または分析者3名が1日2併行2日間の枝分かれ試験を行った。

3 結果と考察

3・1 LC-MS/MS測定条件の検討

測定対象化合物のMRM条件は、機器付属の最適化ソフトMassHunter Optimizerにより最適化した。

移動相は、5mmol/L酢酸アンモニウム水溶液およびメタノールを用いて検討したが、CPMFのピークに顕著なテーリングが見られた。CPMFはアミジン基をもつ塩基性化合物であることから、ギ酸を加えて酸性条件にしたところピーク形状が改善したので、移動相は0.1%ギ酸含有5mmol/L酢酸アンモニウム水溶液およびメタノールとした。

3・2 抽出溶媒の検討

西名ら⁵⁾は、アセトニトリル/水の混合液を抽出溶媒として使い、水の比率がアセトニトリル/水 (80:20) 以上で高極性農薬が良好な回収率を示したと報告している。ネオニコチノイド系農薬は極性が高く、抽出にアセトニトリルを用いる既報の分析法では、農産物の種類によっては回収率の低いものもあった。

そこで、過去にネオニコチノイド系農薬が検出されたほうれんそう、ねぎ、きゅうりを用いて、アセトニトリル/水の比率による抽出効率の変化について検討した。細切均一化した試料5gに抽出溶媒としてアセトニトリル/水 (1:9, 6:4, 10:0) 20mLを加えて超音波で5分間、2回抽出し、遠心分離して得られた上清を合わせて50mLに定容した。この液を溶媒組成がアセトニトリル/水 (1:1) となるように希釈後、メンブランフィルター (0.2μm) で濾過した液をLC-MS/MSで測定し、

検体中濃度を求めた。検体中濃度はアセトニトリル/水 (6:4) が最も高く、アセトニトリルと比べて色素の溶出は少なかった。次いで、アセトニトリル/水 (1:9) の検体中濃度が高かったが、試料残渣を除去し透明な上清を得るためには吸引濾過する必要があった (表3)。抽出効率と操作性から、抽出溶媒にはアセトニトリル/水 (6:4) を用いることとした。

表3 抽出溶媒のアセトニトリル/水の比率の違いによる抽出効率の比較

農産物名	化合物名	検体中濃度 (ppm)		
		アセトニトリル/水 (1:9)	アセトニトリル/水 (6:4)	アセトニトリル/水 (10:0)
ほうれんそう	イミダクロプリド	0.37	0.39	0.31
ねぎ	クロチアニジン	0.021	0.022	0.016
きゅうり	ジノテフラン	0.031	0.035	0.031

3・3 玄米の抽出方法の検討

玄米10gに水20mLを加えて15分間放置後、アセトニトリル/水 (6:4) で2回抽出したところ、得られた溶液は白濁し、固相カラムが目詰まりして通液できなかった。そこで、1回目の抽出をアセトニトリル、2回目の抽出をアセトニトリル/水 (6:4)で行ったところ、透明な上清を得ることができた。過去にジノテフランが検出された玄米を用いて抽出溶媒の変更による抽出効率の変化を確認した結果、検体中濃度に顕著な差は認められなかったことから、玄米の抽出については1回目をアセトニトリル、2回目をアセトニトリル/水 (6:4)で行うこととした。

3・4 精製法の検討

(1) PLS-2およびHLBの検討

ポリマー系固相は、高極性から中極性の化合物を幅広く保持し、食品分析だけでなく医薬品や環境分野でも広く使用されている。今回、抽出液からの対象成分の抽出・濃縮を目的として、HLBおよびInertSep PLS-2 265mg/6mL (以下、PLS-2) について比較検討を行った。検討には、水20gに各成分1μgを添加しアセトニトリル/水 (6:4) で100mLに定容して調製した添加試料液を用いた。

添加試料液を20mL分取し40℃以下で濃縮した液を、予めアセトニトリル5mL、水10mLでコンディショニングした固相カラムに負荷し、アセトニトリル/水 (6:4) 5mLで溶出し回収率を求めた。CPMFの回収率は、HLBでは73.5%だったが、PLS-2では1.5%と低く、固相に保持されたままの状態であると考えられた。また、ジノテフラン、ニテンピラム、CPMAの一部が固相に保持されなかった (表4)。これは負荷液中のアセトニトリルの影響により極性の高い農薬成分が十分に保持

表 4 ポリマー系固相カラムの回収率

化合物名	HLB		PLS-2	
	Fr0	Fr1	Fr0	Fr1
アセタミプリド		98.9		97.9
イミダクロプリド		97.3		96.1
クロチアニジン		99.0		97.5
ジノテフラン	44.9	49.3	42.7	51.6
チアクロプリド		99.9		98.6
チアメトキサム		100.3		98.6
ニテンピラム	22.2	73.7	8.6	84.2
CPMA	58.3	40.5	46.0	61.5
CPMF		73.5		1.5
CPF		99.8		101.0

Fr0：負荷時に流出した画分

Fr1：アセトニトリル/水 (6：4) 5mLで溶出した画分

されなかったためと考えられたことから、添加試料液 10mLを濃縮し水20mLを加えて希釈した液をHLBに負荷したところ、各成分の回収率は87.1～97.8%と改善された。以後の検討には、CPMFの回収率が70%以上得られ、通液性が高いHLBを用いることとした。

次に、HLBからの溶出に必要な溶出溶媒の量について検討した。添加試料液10mLを濃縮し水20mLで希釈した液をHLBに負荷し、アセトニトリル/水 (6：4) 1mL, 2mL, 3mLで溶出した。その結果、3mLでほぼすべての成分が溶出した (図2)。

(2) 追加精製の検討

HLBで除去できない脂質および低極性夾雑物を除去する目的で、C18による精製について検討を行った。

予めアセトニトリル5mL, アセトニトリル/水 (6：4) 5mLでコンディショニングしたC18に、添加試料液10mLを注入し、さらにアセトニトリル/水 (6：4) 2mLを注入した。全溶出液中の各成分の回収率は91.8

回収率 (%)

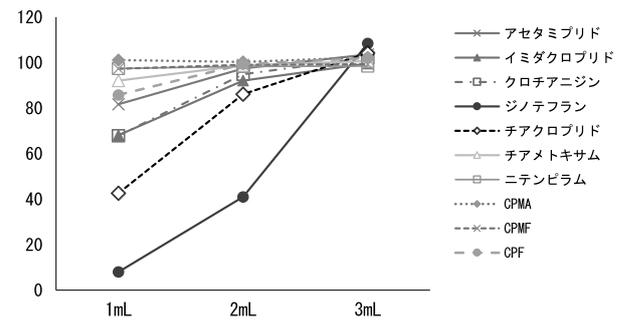


図2 溶出液量によるHLB固相カラムの回収率

～99.9%と良好であり、色素の一部も除去することができた。そこで、HLBによる精製の前にC18での精製を追加することとした。

3・5 試料溶媒の検討

LC-MS/MS測定では、試料溶媒の組成や注入量がピーク形状に影響することがある。標準溶液をHLBの溶出溶媒であるアセトニトリル/水 (6：4) で希釈し1μL注入すると、溶出時間の早いCPMF, ジノテフランのピークにショルダーが生じた。アセトニトリル/水 (1：1) で標準溶液を希釈し注入したところピーク形状が改善されたことから、試料溶媒はアセトニトリル/水 (1：1) とした。

3・6 妥当性評価結果

選択性、定量限界および精度で不適合となる成分はなかった。真度では、玄米のイミダクロプリドが0.01ppm添加で128.9%, 0.05ppm添加で125.5%, キャベツのニテンピラムが0.05ppm添加で67.0%, ばれいしょのCPMFが0.01ppm添加で125.9%となり、ガイドラインの目標値 (70～120%) を満たさなかった。ジノテフランについては、既報と比較して回収率の大幅

表 5 妥当性評価試験結果

分析対象化合物名	添加濃度 (ppm)	玄米			ほうれんそう			キャベツ			ばれいしょ			トマト			りんご		
		真度 (%)	併行精度 (RSD%)	室内精度 (RSD%)	真度 (%)	併行精度 (RSD%)	室内精度 (RSD%)	真度 (%)	併行精度 (RSD%)	室内精度 (RSD%)	真度 (%)	併行精度 (RSD%)	室内精度 (RSD%)	真度 (%)	併行精度 (RSD%)	室内精度 (RSD%)	真度 (%)	併行精度 (RSD%)	室内精度 (RSD%)
アセタミプリド	0.01 0.05	85.9 81.8	1.0 0.9	1.7 1.3	92.1 90.5	1.0 0.9	1.8 1.4	99.3 88.2	2.3 1.7	2.6 1.9	98.9 96.4	1.0 1.0	0.9 0.8	100.3 95.3	1.4 1.0	1.7 1.6	90.9 87.7	1.6 1.5	1.3 2.1
イミダクロプリド	0.01 0.05	128.9 125.5	1.7 1.1	8.5 6.2	109.5 114.8	1.4 1.3	5.0 3.0	110.8 104.3	1.7 2.7	4.6 3.8	109.4 104.3	0.9 1.1	1.9 1.0	116.1 109.0	2.1 2.7	2.4 3.4	97.2 94.5	1.6 1.6	2.9 2.6
クロチアニジン	0.01 0.05	107.5 103.4	1.3 1.4	7.8 6.8	97.0 95.9	1.1 1.0	6.1 3.7	92.8 91.0	2.1 2.3	3.6 3.3	98.6 93.4	1.1 1.5	2.9 1.4	104.7 95.9	1.5 1.3	2.1 2.7	92.0 85.4	2.8 2.1	4.0 2.0
ジノテフラン	0.01 0.05	99.8 91.3	1.5 2.8	2.2 2.8	94.9 91.8	2.8 1.4	4.5 2.7	100.1 89.7	3.1 4.4	3.7 4.9	99.3 91.7	2.4 2.5	2.3 2.4	103.7 97.1	1.1 1.8	1.4 2.5	96.2 92.0	2.6 2.9	4.2 2.6
チアクロプリド	0.01 0.05	80.0 76.2	0.9 0.7	2.6 1.6	81.4 78.3	1.6 0.9	1.5 1.5	96.4 89.6	2.3 2.8	3.0 4.0	99.3 94.8	1.1 1.3	1.0 1.2	99.9 93.7	1.2 1.8	1.5 1.8	90.2 86.1	1.0 2.0	2.3 2.7
チアメトキサム	0.01 0.05	93.1 90.8	1.2 1.2	5.5 3.0	90.0 89.6	2.7 2.3	3.3 3.0	92.6 89.1	3.5 4.7	3.7 4.0	98.6 95.1	1.1 1.2	1.4 1.1	102.0 96.7	1.9 1.2	2.5 2.5	92.2 89.3	1.8 2.6	1.9 2.7
ニテンピラム	0.01 0.05	97.1 89.0	2.7 1.0	3.6 1.3	97.5 96.3	3.3 1.1	2.2 2.2	73.1 67.0	3.8 3.8	7.9 3.4	107.3 95.5	2.4 0.8	2.3 1.6	103.3 95.4	2.8 1.1	2.3 1.4	93.5 89.7	1.8 3.0	2.3 3.2
CPMA	0.01 0.05	93.7 90.1	1.6 2.6	2.5 6.2	91.5 90.0	4.4 2.0	6.4 6.1	95.9 86.2	2.1 7.6	1.8 9.1	97.2 92.4	1.0 4.0	1.6 4.2	106.4 99.1	5.1 1.7	4.3 1.8	92.5 88.3	1.6 3.0	2.4 3.6
CPMF	0.01 0.05	99.8 85.6	2.3 6.1	6.5 10.9	117.6 112.6	3.4 4.0	9.3 6.8	114.8 102.4	3.7 10.0	6.2 11.2	125.9 106.6	1.7 5.7	2.4 8.5	115.1 99.8	5.3 7.6	6.4 6.9	107.1 92.1	3.9 8.4	7.1 10.5
CPF	0.01 0.05	91.6 85.6	1.4 0.7	2.5 1.5	100.5 95.9	1.6 0.5	2.4 2.0	100.6 92.9	2.2 2.8	2.7 2.6	104.0 97.6	1.4 1.7	1.3 1.8	103.6 95.3	1.4 1.6	1.6 1.9	92.7 88.6	0.8 2.3	1.6 2.5

：妥当性評価ガイドラインの目標値を満たさなかったもの

な改善が見られ、6農産物すべてでガイドラインの目標値に適合する結果を得ることができた（表5）。

真度がガイドラインの目標値を満たさなかった成分について試料マトリックスの影響を確認するため、ブランク試験溶液を用いて調製したマトリックス添加標準溶液の溶媒標準溶液に対するピーク面積比（以下、マトリックス比）を求めた。玄米のイミダクロプリドでは、マトリックス比が1.37～1.47と高く、イオン化促進により回収率が高くなったと考えられた。キャベツのニテンピラムは、マトリックス比が0.67～0.68と低く、イオン化抑制により回収率が低下したと考えられた。ばれいしょのCPMFのマトリックス比は0.97であり、マトリックスによる測定への顕著な影響は認められなかった（表6）。

表6 試料マトリックスによるLC-MS/MS測定への影響

農産物名	化合物名	添加濃度 (ppm)	マトリックス比*
玄米	イミダクロプリド	0.01	1.37
		0.05	1.47
キャベツ	ニテンピラム	0.01	0.68
		0.05	0.67
ばれいしょ	CPMF	0.01	0.97
		0.05	0.97

*マトリックス添加標準溶液のピーク面積/溶媒標準溶液のピーク面積

4 まとめ

農産物を対象とし、ネオニコチノイド系農薬7項目10成分の一斉分析法を検討した。

極性が高いネオニコチノイド系農薬を効率よく抽出するために、アセトニトリル/水の比率を変えて抽出効率を比較した結果、アセトニトリル/水（6：4）が抽出

効率、操作性ともに優れていた。この抽出液からC18固相カラムで脂質、色素などを除去した後、HLB固相カラムで農薬成分の抽出・濃縮を行い、LC-MS/MSで測定した。

この方法を用いて、玄米、ほうれんそう、キャベツ、ばれいしょ、トマト、りんごの6農産物について妥当性評価ガイドラインに基づき0.05ppmおよび0.01ppmの2濃度で妥当性評価を実施した。その結果、玄米、キャベツ、ばれいしょでは9成分、ほうれんそう、トマト、りんごでは10成分がガイドラインの目標値を満たしていた。

文 献

- 1) 金戸恵子, 水口竜人, 由田洋一, 新家薫子, 砺波和子: HPLC及びLC-MSによる農産物中のジノテフラン分析法の妥当性評価について, 石川県保健環境センター研究報告書, **52**, 45-48 (2015)
- 2) 厚生労働省告示第370号: 食品, 添加物等の規格基準, 昭和34年
- 3) 厚生労働省医薬食品局食品安全部長通知食安発第0124001号: 食品に残留する農薬, 飼料添加物又は動物用医薬品の成分である物質の試験法について, 平成17年1月24日
- 4) 厚生労働省医薬食品局食品安全部長通知食安発1224第1号: 食品中に残留する農薬等に関する試験法の妥当性評価ガイドラインの一部改正について, 平成22年12月24日
- 5) 西名武士, 村上弘, 福島孝兵, 飛野敏明: 液体クロマトグラフ/タンデム質量分析計 (LC/MS/MS) を用いた食品中の残留農薬迅速分析法の検討 (第1報), 熊本県保健環境科学研究所報, **35**, 51-56 (2005)

〔短 報〕

石川県内の公共用水域における PPCPs(Pharmaceuticals and Personal Care Products)の実態調査 (第 1 報)

石川県保健環境センター 環境科学部 宮田 朋子・高田 啓子
徳田 貴裕・安田 能生弘

〔和文要旨〕

石川県内 7 河川 3 海域の 10 地点の河川水及び海水について、過去に実施した黒本調査において、全国で検出例のあった PPCPs 5 物質の概況調査を実施した。その結果、クラリスロマイシンが 5 地点と最も多くの河川で検出され、うち 2 地点では秋季や冬季に濃度が高かった。また、概況調査結果について、生態リスク初期評価を行ったところ、秋季に倉部大橋のクラリスロマイシン及びロキシシロマイシンで MEC/PNEC が 1 以上を示したため、倉部川流域で、詳細調査を行った。その結果、最下流の測定地点でのみ、これらの対象物質が検出され、下水処理場の放流水の影響を受けたためと考えられたが、日本海まで近距離であることから、倉部川における高濃度の範囲は限定的であるものと示唆された。

キーワード：PPCPs, 季節変動, 生態リスク初期評価, 予測無影響濃度

本報の一部は以下で発表した。

第 35 回全国環境研協議会東海・近畿・北陸支部研究会

2021 年 2 月 (紙上開催)

第 48 回環境保全・公害防止研究発表会

2021 年 11 月 18 日 (オンライン開催)

令和 3 年度公益社団法人日本水環境学会中部支部研究発表会

2021 年 12 月 (紙上開催)

1 はじめに

近年、ヒトや動物用の医薬品と、化粧品やシャンプー等の日用品に由来する化学物質 (Pharmaceuticals and Personal Care Products : 以下、PPCPs とする。) が、医療機関からの排水や下水処理場の処理水を通して、環境中へ放出され、河川等から検出された事例が報告されており¹⁾、PPCPs の環境汚染が懸念されている。

また、環境省では、「特定化学物質の環境への排出量の把握等及び管理の改善の促進に関する法律」の指定化学物質の指定や、「化学物質の審査及び製造等の規制

に関する法律」の優先評価化学物質のリスク評価等を行うため、化学物質環境実態調査 (以下、黒本調査とする。) として、一般環境中における化学物質の残留状況を毎年調査している。令和元年度に実施した黒本調査の初期環境調査においても、水質の調査対象 20 物質のうち、9 物質が PPCPs となっており²⁾、PPCPs の一般環境中の残留状況が注視されていることが推察される。

そこで、平成 26 年度に実施した黒本調査において、全国で検出例³⁾ のあった PPCPs 5 物質について、石川県内の公共用水域における状況を把握するため、分析方法を検討し、概況調査後、水生生物に対する環境影響

Survey on PPCPs(Pharmaceuticals and Personal Care Products)in Public Water Body in Ishikawa Prefecture(First Report). by MIYATA Tomoko,TAKADA Keiko,TOKUDA Takahiro and YASUDA Nobuhiro (Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : PPCPs (Pharmaceuticals and Personal Care Products) ,Seasonal Variation,Initial Ecological Risk Assessment,PNEC (Predicted No Effect Concentration)

を調査するために、生態リスク初期評価を行い、さらに、詳細調査を実施したので報告する。

2 調査方法

2.1 測定地点と調査頻度

概況調査については、図1に示す県内7河川3海域の10地点を選定し、春季（2020年4月）、夏季（2020年7月～8月）、秋季（2020年10月）及び冬季（2021年1月～2月）の季節毎に各1回、河川水及び海水を採取し、実施した。ただし、倉部大橋は夏季から冬季、海域（白山市笠間沖、南湾中央部及び珠洲沖）は夏季のみ実施した。

また、詳細調査については、倉部川流域において、2020年11月に図2に示す4地点で実施した。

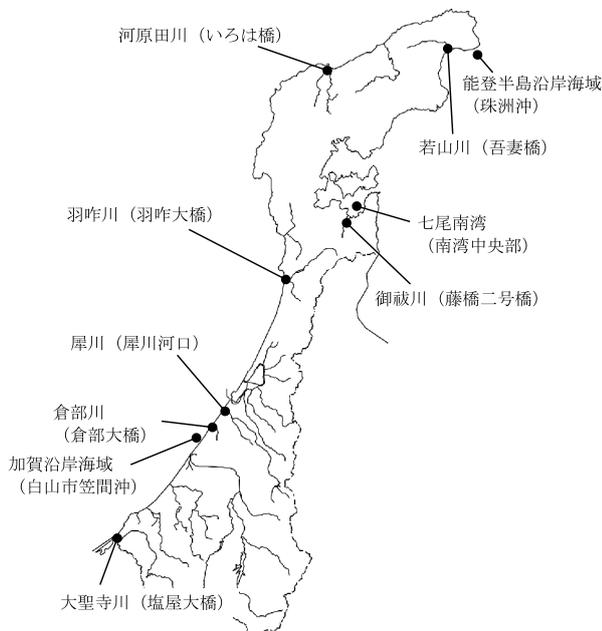


図1 測定地点

2.2 対象物質

対象物質は、クラリスロマイシン、エリスロマイシン、ロキシスロマイシン、リンコマイシン、クリンダマイシンとした。

エリスロマイシンは、エリスロマイシンAを主成分とし、エリスロマイシンB（5%以下）及びエリスロマイシンC（5%以下）の3種の混合物である⁴⁾。本調査では平成25年度の化学物質分析法開発調査報告書⁵⁾（以下、白本とする。）に従い、エリスロマイシンAとエリスロマイシンBの2物質を合算し、エリスロマイシンとして評価した。

2.3 標準品及び試薬

(1) 標準品



図2 倉部川流域における測定地点

標準品は、クラリスロマイシン、エリスロマイシンA及びリンコマイシン塩酸塩一水和物は富士フィルム和光純薬株式会社製を、エリスロマイシンBはUnited States Pharmacopeial Convention製を、ロキシスロマイシン及びクリンダマイシン塩酸塩はDr. Ehrenstorfer製を用いた。

標準原液は、各標準品10mgを正確に量り取り、メタノール10mLに溶解し、1000mg/Lの標準原液を作成した。ただし、リンコマイシン塩酸塩一水和物及びクリンダマイシン塩酸塩は、それぞれ、リンコマイシン及びクリンダマイシンに換算し10mgになるように量り取った。

検量線用標準液は、標準原液をメタノール/精製水(1:1)で順次希釈し、0.2～100ng/mLの検量線用混合標準液を作成した。

(2) 試薬

アセトニトリル及びメタノールは関東化学株式会社製のLC/MS用を、ギ酸は関東化学株式会社製のHPLC用を、精製水はミリポア製Elix Essential UV 5により調製したものをを用いた。

固相カートリッジはWaters製のOasis HLB Plus LP(225mg)を用いた。

2.4 分析方法

平成25年度白本に準拠した。

(1) 前処理方法

水質試料100mLをメタノール10mL、精製水20mLでコンディショニングした固相カートリッジに10mL/minの速さで通水した。次に、固相カートリッジを精製水15mLで洗浄後、窒素通気により完全に固相中の水分を除去した。これをメタノール5mLで溶出し、40℃以下の窒素気流下で約0.2mLまで濃縮し、メタノール/精製水(1:1)で1mLに定容後、孔径0.45 μ mのメンブレンフィルターでろ過し、試験液とした。

(2) 高速液体クロマトグラフ質量分析計(LC-MS/MS)測定

2・4(1)の試験液を表1及び表2の測定条件で測定し、試験液中の濃度を求めた。

3 結果と考察

3・1 装置検出下限値

LC-MS/MSにより、最低濃度の検量線用標準溶液の繰り返し測定(n=7)を行い、装置検出下限値(以下、IDLとする。)を算出した(表3)。いずれの対象物質も白本IDLより低い値であったことから、化学物質環境実態調査実施の手引き(令和2年度版)⁶⁾に従い、白本の分析法検出下限値(以下、MDLとする。)を本調査の検出下限値とすることとした。

3・2 分析方法の検討

平成25年度白本では、通水、洗浄後、固相カートリッジ内の水分を除去する方法として、注射筒で空気

(5mL)を3回通気することとなっているが、この方法では、対象物質の中でも比較的極性の低いクラリスロマイシン、エリスロマイシンA、エリスロマイシンB及びロキシスロマイシンの添加回収率が70%未満と低かった。そこで、予め固相カートリッジの重量を秤量し、重量が通水前より小さくなるまで窒素を通気し、十分に水分が除去されたことを確認後、溶出を行ったところ、添加回収率が向上した。

また、LC-MS/MS測定条件のうち、一部の対象物質のコーン電圧及びコリジョン電圧については、最適化を検討し、白本の条件から変更した値を用いた。

3・3 添加回収試験

河川水及び海水100mLに各対象物質を15ng添加し、2・4の方法で添加回収試験(n=3)を行い、回収率、変動係数を算出した(表4)。回収率は、河川水及び海水で、全ての対象物質について70～120%の範囲であり、良好であった。

なお、精製水を用いた操作ブランク試験(n=2)は、全ての対象物質で検出下限値未満であった。

3・4 測定結果

(1) 概況調査

概況調査の測定結果を表5に示す。吾妻橋と海域(白山市笠間沖、南湾中央部及び珠洲沖)の全ての測定地点では、対象物質は全て検出されなかった。また、全ての測定地点で、クリンダマイシンは検出されなかった。検出された6地点及び検出された4物質について、測定結果を図3に示す。

クラリスロマイシンは、5地点と最も多くの河川で検出された。塩屋大橋及び藤橋二号橋では、それぞれ4.2～5.3ng/L、1.3～2.5ng/Lと低濃度で季節による変動はみられなかったが、倉部大橋では秋季(140ng/L)と冬季(86ng/L)に、犀川河口では秋季(30ng/L)に濃度が高かった。

エリスロマイシンは、倉部大橋及び犀川河口の2地点で検出され、クラリスロマイシンと同様に、倉部大橋では秋季(47ng/L)と冬季(22ng/L)に濃度が高く、犀川河口では、秋季のみ10ng/Lの濃度で検出された。

ロキシスロマイシンは、エリスロマイシンと同様に、倉部大橋及び犀川河口の2地点で検出され、倉部大橋では秋季(160ng/L)と冬季(89ng/L)に濃度が高く、犀川河口では、秋季のみ

表1 LC-MS/MS 測定条件 (LC及びMS条件)

LC	
LC 機種	Waters Alliance 2695
カラム	Waters 製 Atlantis T3 2.1 mm × 150 mm, 3 μ m
移動相	A:0.1% ギ酸水溶液 B:0.1% ギ酸-アセトリル溶液 0～1 min A:97→85 B:3→15 linear gradient 1～10 min A:85→77 B:15→23 linear gradient 10～21 min A:77→25 B:23→75 linear gradient 21～22 min A:25→0 B:75→100 linear gradient 22～35 min A:B=0:100 35～35.1 min A: 0→97 B:100→3 linear gradient 35.1～48 min A:B=97:3
カラム流量	0.2 mL/min
カラム温度	40℃
試料注入量	5 μ L
MS	
MS 機種	Waters Quattro micro API
キャピラリー電圧	2.5 kV
ソース温度	100℃
デゾルベーション温度	450℃
コーンガス量	60 L/Hr
デゾルベーション流量	500 L/Hr
イオン化法	ESI-Positive
測定モード	SRM

表2 LC-MS/MS 測定条件 (コロン電圧、モニターイオン及びコリジョン電圧)

対象物質	保持時間 (min)	コロン電圧 (V)	モニターイオン (コリジョン電圧)	
			定量	定性
クラリスロマイシン	20.62	26	748.48>158.0 (27eV)	748.48>116.0 (40eV)
エリスロマイシンA	19.20	25	734.47>158.1 (24eV)	734.47>576.3 (21eV)
エリスロマイシンB	20.01	20	718.47>158.1 (27eV)	718.47>560.3 (22eV)
ロキシスロマイシン	20.75	25	837.53>158.1 (30eV)	837.53>679.4 (25eV)
リンコマイシン	8.66	30	407.22>126.1 (27eV)	407.22>359.2 (18eV)
クリンダマイシン	16.67	28	425.19>126.1 (25eV)	425.19>377.1 (18eV)

表3 IDLの算出結果

対象物質	注入液 濃度 (ng/mL)	IDL (ng/mL)*	IDL 試料換算値 (ng/L)	白本IDL (ng/mL)*	白本IDL 試料換算値 (ng/L)	白本MDL 試料換算値 (ng/L)
エリスロマイシンA	0.5	0.084	0.84	0.25	2.5	4.9
エリスロマイシンB	0.2	0.070	0.70	0.38	3.8	6.9
ロキシスロマイシン	0.2	0.098	0.98	0.64	6.4	6.5
リンコマイシン	0.2	0.035	0.35	0.16	1.6	5.0
クリンダマイシン	0.2	0.033	0.33	0.40	4.0	6.2

*: IDL = t(n-1,0.05) × σ_{n-1} × 2
 t(n-1, 0.05): 危険率5%、自由度n-1 のt 値 (片側) n=7 の場合は1.9432
 σ_{n-1}: IDL 算出のための測定値の標本標準偏差

表4 添加回収試験結果

対象物質	試料量 (mL)	河川水 (15ng添加)		海水 (15ng添加)	
		回収率 (%)	変動係数 (%)	回収率 (%)	変動係数 (%)
クラリスロマイシン	100	87	5.1	84	12
エリスロマイシンA	100	108	8.6	102	7.0
エリスロマイシンB	100	75	0.76	79	3.9
ロキシスロマイシン	100	80	4.9	84	6.5
リンコマイシン	100	108	3.0	101	7.5
クリンダマイシン	100	107	7.1	100	5.2

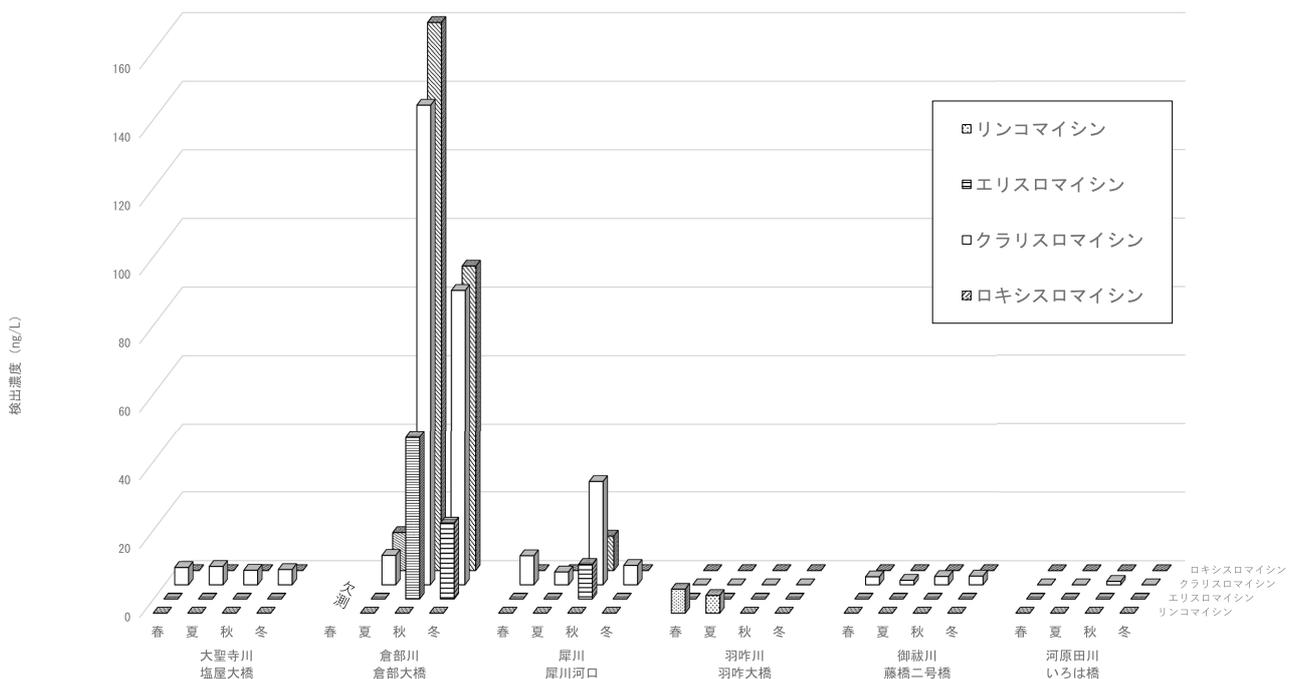


図3 概況調査測定結果

表 5 概況調査測定結果

測定地点名	調査日	(ng/L)					
		クラリスロマイシン	エリスロマイシンA	エリスロマイシンB	ロキシスロマイシン	リンコマイシン	クリンダマイシン
大聖寺川 塩屋大橋	R2.04.16	5.0	<4.9	<6.9	<6.5	<5.0	<6.2
	R2.07.27	5.3	<4.9	<6.9	<6.5	<5.0	<6.2
	R2.10.27	4.2	<4.9	<6.9	<6.5	<5.0	<6.2
	R3.02.12	4.4	<4.9	<6.9	<6.5	<5.0	<6.2
倉部川 倉部大橋	R2.07.27	8.5	<4.9	<6.9	11	<5.0	<6.2
	R2.10.27	140	47	<6.9	160	<5.0	<6.2
	R3.01.25	86	22	<6.9	89	<5.0	<6.2
犀川 犀川河口	R2.04.16	8.4	<4.9	<6.9	<6.5	<5.0	<6.2
	R2.07.27	3.7	<4.9	<6.9	<6.5	<5.0	<6.2
	R2.10.27	30	10	<6.9	10	<5.0	<6.2
	R3.01.25	5.6	<4.9	<6.9	<6.5	<5.0	<6.2
羽咋川 羽咋大橋	R2.04.15	<0.80	<4.9	<6.9	<6.5	6.9	<6.2
	R2.07.30	<0.80	<4.9	<6.9	<6.5	5.1	<6.2
	R2.10.21	<0.80	<4.9	<6.9	<6.5	<5.0	<6.2
	R3.01.26	<0.80	<4.9	<6.9	<6.5	<5.0	<6.2
御祓川 藤橋二号橋	R2.04.15	2.3	<4.9	<6.9	<6.5	<5.0	<6.2
	R2.08.03	1.3	<4.9	<6.9	<6.5	<5.0	<6.2
	R2.10.26	2.4	<4.9	<6.9	<6.5	<5.0	<6.2
	R3.01.26	2.5	<4.9	<6.9	<6.5	<5.0	<6.2
河原田川 いろは橋	R2.04.15	<0.80	<4.9	<6.9	<6.5	<5.0	<6.2
	R2.08.03	<0.80	<4.9	<6.9	<6.5	<5.0	<6.2
	R2.10.26	1.0	<4.9	<6.9	<6.5	<5.0	<6.2
	R3.02.12	<0.80	<4.9	<6.9	<6.5	<5.0	<6.2
若山川 吾妻橋	R2.04.15	<0.80	<4.9	<6.9	<6.5	<5.0	<6.2
	R2.08.03	<0.80	<4.9	<6.9	<6.5	<5.0	<6.2
	R2.10.26	<0.80	<4.9	<6.9	<6.5	<5.0	<6.2
	R3.02.12	<0.80	<4.9	<6.9	<6.5	<5.0	<6.2
加賀沿岸海域 白山市笠間沖	R2.08.18	<0.80	<4.9	<6.9	<6.5	<5.0	<6.2
七尾南湾 南湾中央部	R2.08.04	<0.80	<4.9	<6.9	<6.5	<5.0	<6.2
能登半島沿岸海域 珠洲沖	R2.08.24	<0.80	<4.9	<6.9	<6.5	<5.0	<6.2

10ng/Lの濃度で検出された。

リンコマイシンは、羽咋大橋でのみ、本調査の検出下限値(5.0ng/L)を上回る、春季6.9ng/L、夏季5.1ng/Lの濃度で検出された。

マクロライド系抗生物質であるクラリスロマイシン、エリスロマイシン及びロキシスロマイシンが、倉部大橋では秋季と冬季に、犀川河口では秋季に濃度が高かったことは、秋季から冬季にかけて、感染症患者の増加に伴い、これらの抗生物質の使用量が増加したことが一因になったと推測される。

また、リンコマイシンは抗生物質であるが、ヒトへの医薬品としての生産量等の情報はなく⁷⁾、主に豚への動物用医薬品として使用されている⁸⁾。羽咋大橋で検出されたものの、具体的な排出源は不明であった。

(2) 生態リスク初期評価

環境省のガイドライン⁷⁾の生態リスクの判定の考え方によれば、安全側の評価を行う観点から、高濃度側の実測値に基づき設定された予測環境中濃度(Predicted Environmental Concentration: 以下、PECとする。)と、予測無影響濃度(Predicted No Effect Concentration: 以下、PNECとする。)との比較により、次の①～③の3段階で判定を行うこととなっている。

- ① 「PEC/PNECが0.1未満」の場合、「現時点では作業は必要ないと考えられる」
- ② 「PEC/PNECが0.1以上1未満」の場合、「情報収集に努める必要があると考えられる」
- ③ 「PEC/PNECが1以上」の場合、「詳細な評価を行う候補と考えられる」

ここでは、今回の概況調査において検出された最大濃度をPECの代わりに環境中濃度 (Measured Environmental Concentration : 以下, MECとする。)とし、表6に示すとおりMEC/PNECを求めた。なお、PNECは環境省の「化学物質の環境リスク評価」^{7) 9)} ¹¹⁾の値を用いた。

MEC/PNECが0.1以上1未満を示していたのは、秋季における倉部大橋のエリスロマイシンと犀川河口のクラリスロマイシン及びロキシスロマイシンで、それぞれ0.13, 0.43及び0.10であった。また、MEC/PNECが1以上を示していたのは、秋季における倉部大橋のクラリスロマイシン及びロキシスロマイシンで、それぞれ2.0と1.6であった。

表6 生態リスク初期評価の結果

測定地点名	クラリスロマイシン	エリスロマイシン	ロキシスロマイシン	リンコマイシン
大聖寺川 塩屋大橋	0.077 (5.3)			
倉部川 倉部大橋	2.0 (140)	0.13 (47)	1.6 (160)	
犀川 犀川河口	0.43 (30)	0.028 (10)	0.10 (10)	
羽咋川 羽咋大橋				0.049 (6.9)
御祓川 藤橋二号橋	0.036 (2.5)			
若山川 いろは橋	0.014 (1.0)			
PNEC (ng/L)	69	360	100	140

※表の上段の数字はMEC/PNEC比、
下段の括弧内の数字はMEC (ng/L) を示す。

(3) 倉部川流域における詳細調査

MEC/PNECが1以上を示す場合、「詳細な評価を行う候補と考えられる」とされていることから、秋季に倉部川流域において、詳細調査を実施した。測定地点は、倉部大橋とその上流地点である鷹場橋及び下西屋川橋と、支川の屋越川の4地点とした。

詳細調査の結果を表7に示す。鷹場橋、下西屋川橋及び屋越川では対象物質は全て検出されなかったが、倉部大橋では、概況調査の秋季より濃度は低いものの、クラリスロマイシン、エリスロマイシン及びロキシスロマイシンがそれぞれ、76ng/L、24ng/L及び110ng/L

検出された。また、MEC/PNECが1以上を示していたのは、概況調査の秋季と同様に、クラリスロマイシン及びロキシスロマイシンで、共に1.1であった。

倉部川は下西屋川橋より上流域に住宅地があり、水田地帯や工業団地内を流下し、倉部大橋の下流で、支川の屋越川と合流して日本海へと注いでいる。詳細調査では、最下流の倉部大橋でのみ3物質が検出されたが、鷹場橋から倉部大橋の間の流域には、これらの対象物質が排出されるような医療機関や製薬会社は無いものの、倉部大橋から250m上流側には、下水処理場があることから、生活排水由来の対象物質が下水処理場の放流水を通して排出されたものと考えられた。特に、倉部川は、水量が他の調査対象河川に比べて少なく、下水処理場の放流水の影響を受けやすいため、高濃度で検出されたものと推測された。ただし、下水処理場の放流口から日本海まで約500mと近距離であることから、検出されたPPCPsが高濃度となっている範囲は、限定的であるものと示唆された。

4 まとめ

石川県内7河川3海域の10地点の河川水及び海水について、平成26年度に実施した黒本調査において、全国で検出例のあったPPCPs5物質の概況調査を実施した。その結果、クラリスロマイシンが、5地点と最も多くの河川で検出され、うち倉部大橋と犀川河口の2地点では秋季や冬季に濃度が高かった。また、同じくマクロライド系抗生物質であるエリスロマイシン及びロキシスロマイシンも、倉部大橋及び犀川河口で同様な傾向がみられた。

また、概況調査結果について、生態リスク初期評価を行ったところ、秋季に倉部大橋のクラリスロマイシン及びロキシスロマイシンでMEC/PNECが1以上を示したため、倉部川流域で、詳細調査を行った。その結果、最下流の測定地点でのみこれらの対象物質が検出された。これは、下水処理場の放流水の影響を受けたためと考えられたが、日本海まで近距離であることから、倉部川における高濃度の範囲は限定的であるものと示唆された。

表7 倉部川流域における詳細調査測定結果

測定地点名	調査日	クラリスロマイシン	エリスロマイシンA	エリスロマイシンB	ロキシスロマイシン	リンコマイシン	クリンダマイシン
倉部大橋	R2.11.25	76	24	<6.9	110	<5.0	<6.2
鷹場橋	R2.11.25	<0.80	<4.9	<6.9	<6.5	<5.0	<6.2
下西屋川橋	R2.11.25	<0.80	<4.9	<6.9	<6.5	<5.0	<6.2
屋越川	R2.11.25	<0.80	<4.9	<6.9	<6.5	<5.0	<6.2

(ng/L)

文 献

- 1) 西野貴裕, 加藤みか, 宮沢佳隆, 東條俊樹, 市原真紀子, 浅川大地, 松村千里, 羽賀雄紀, 吉識亮介, 長谷川瞳, 宮脇崇, 高橋浩司, 片宗千春, 下間志正: 国内都市域の水環境中における生活由来化学物質の環境実態解明及び生態リスク評価, 環境化学, 30, 37-56 (2020)
- 2) 環境省環境保健部環境安全課: 令和2年度版化学物質と環境, 令和3年3月
- 3) 環境省環境保健部環境安全課: 平成27年度版化学物質と環境, 平成28年3月
- 4) 厚生労働省医薬・生活衛生局生活衛生・食品安全部基準審査課残留農薬等基準審査室: 薬事・食品衛生審議会食品衛生分科会農薬・動物用医薬品部会資料 (平成28年5月27日), <https://www.mhlw.go.jp/file/05-Shingikai-11121000-Iyakushokuhinkyoku-Soumuka/0000168399.pdf>, 令和3年8月
- 5) 環境省総合環境政策局環境保健部環境安全課: 平成25年度化学物質分析法開発調査報告書, 平成26年10月
- 6) 環境省大臣官房環境保健部環境安全課: 化学物質環境実態調査実施の手引き (令和2年度版), 令和3年3月
- 7) 環境省環境保健部環境リスク評価室: 化学物質の環境リスク評価第19巻, 令和3年3月
- 8) 農林水産省動物医薬品検査所, 動物用医薬品, 医薬部外品及び医療機器販売高年報 (別冊) 各種抗生物質・合成抗菌剤・駆虫剤・抗原虫剤の販売高と販売量, https://www.maff.go.jp/nval/iyakutou/hanbaidaka/pdf/R1_hanbaidaka.pdf, 令和3年6月
- 9) 環境省環境保健部環境リスク評価室: 化学物質の環境リスク評価第16巻, 平成30年3月
- 10) 環境省環境保健部環境リスク評価室: 化学物質の環境リスク評価第17巻, 平成31年3月
- 11) 環境省環境保健部環境リスク評価室: 化学物質の環境リスク評価第18巻, 令和2年3月

〔短 報〕

降雨による空間放射線量率の変動についての考察

石川県保健環境センター 環境科学部 吉本 高志・内田 賢吾

〔和文要旨〕

平常時の空間放射線量率（以下「線量率」という。）は、大気中のラドン-222子孫核種が降雨等により地表面に降下するため、変動が観測される。今回、観測される線量率から降雨による単位線量率増加量を算出する表式を導出し、線量率の変動と単位時間中の降雨のみによる線量率増加量、降水強度当たりの線量率増加量の関係を解析した。線量率増加量は、ポロニウム-218/鉛-214比及び鉛-214/ビスマス-214比に依存するため、適切な放射能比の選択を検討する必要があることが判った。

キーワード：空間放射線量率、降雨、ラドン子孫核種、鉛-214/ビスマス-214 比

1 はじめに

平常時における空間放射線量率（以下「線量率」という。）のモニタリングでは、大気中のラドン-222子孫核種が降雨等により地表面に降下するため、数時間から数日の変動が観測されている^{1) 2)}。

この変動は、線量率が降雨時に増加し、降雨後に時間とともに減衰し、元のバックグラウンドレベルに戻っていく。連続した降雨の場合、観測される線量率の増加量は、その時点の降雨による増加量とその時点以前に増加した線量率の減衰後の値を足し合わせたものとなっている。このため、降雨による線量率増加量を解析するにあたって、単純にその時点の線量率と降水強度のデータから線量率増加量を求めることはできない。

そこで本報では、観測される線量率から単位時間の降雨による線量率増加量を算出する表式を導出し、線量率の変動事例に適用を試みたので、その結果を報告する。

2 方 法

2・1 測定及び核データ

測定に使用した線量率測定器、雨量計及び感雨計の仕様を表1に示す。測定間隔は1分毎であり、連続する1分値10個の平均から10分値を算出している。また、

ガンマ線スペクトルを10分毎に測定している。

半減期等の核データについては、アイソトープ手帳(11版7刷)³⁾に記載のものを用いた。

表1 線量率測定器の仕様と測定項目

線量率測定器	型式	アロカ株式会社製 ASM-R22-21553&B
	検出器	3'φ×3' NaI(Tl) シンチレーション検出器
	検出器の位置	地上1.8m
	測定エネルギー範囲	50keV～3MeV
	測定項目	線量率、ガンマ線スペクトル、計数率、通過率
雨量計	型式	光進電気工業株式会社製 RT-1030
	測定方法	温水加温受水口-転倒弁方式
	分解能	0.5mm
感雨計	型式	光進電気工業株式会社製 TRW-011
	測定方法	電極間抵抗変化方式

2・2 降雨による線量率増加のモデル

降雨による線量率増加のモデル図を図1に示す。図1の横軸は時刻である。傘マークは、その時刻に降雨があったことを表す。折れ線グラフは観測される線量率である。棒グラフの点線で囲んだ部分はその時刻の降雨による線量率増加量（以下「単位線量率増加量」という。）である。降雨によって増加した線量率は、ある半減期で減衰していく。従って連続した降雨があった場合、観測される線量率はその時刻以前に増加した線量率の影響が積み重なったものとなる。

An Examination of Variation of Environmental Radiation Caused by Rainfall. by YOSHIMOTO Takashi and UCHIDA Kengo (Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Environmental Radiation, Rainfall, Radon Progeny, Pb-214/Bi-214 ratio

以上から、降雨と線量率の関係を把握するためには、観測される線量率ではなく、単位線量率増加量と比較しなければならない。

図1のモデル図に基づき、単位線量率増加量を算出する式を導出し、単位線量率増加量を算出した。また、降水強度当たりの線量率増加量を求め、観測される線量率、単位線量率増加量、降水強度当たりの線量率増加量の関係について比較、解析した。

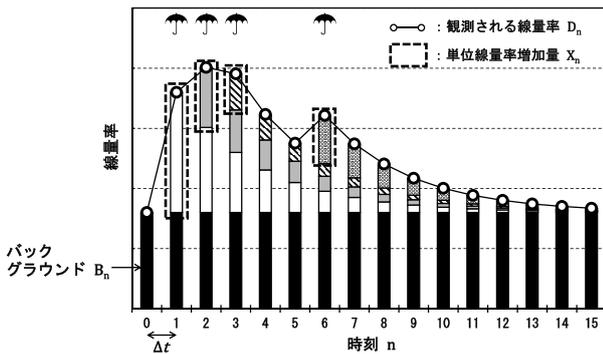


図1 降雨による線量率増加のモデル図

3 単位線量率増加量を算出する式の導出

3・1 観測される線量率と単位線量率増加量の関係式

観測される線量率と単位線量率増加量の関係式の導出について、図1のモデル図を基に説明する。

時刻nから時刻n+1となった時、単位時間Δtが経過するとする。時刻nにおける観測される線量率をDn、バックグラウンドをBn、単位線量率増加量をXnとし、Xnはある減衰関数f_n(t)に従って減衰していくとする。tは時刻nからの経過時間を表し、f_n(0) = 1である。

また、降雨がないときX_n = 0である。

降雨前 (n = 0) の線量率D₀は、

$$D_0 = B_0 \quad (式1)$$

である。時刻n = 1で初めて降雨があり、線量率がX₁増加するので、D₁は、

$$D_1 = B_1 + X_1 \quad (式2)$$

となる。時刻n = 2では、その時刻の降雨により線量率がX₂増加する。X₁については、時間がΔt経過したので、f₁(t)に従って減衰しX₁f₁(Δt)となる。従って、D₂は、

$$D_2 = B_2 + X_1 f_1(\Delta t) + X_2 \quad (式3)$$

となる。時刻n = 3では、その時刻の降雨により線量率がX₃増加する。X₁については、時間が2Δt経過したので、X₁f₁(2Δt)となる。X₂については、時間がΔt経過したので、f₂(t)に従って減衰しX₂f₂(Δt)となる。従って、D₃は、

$$D_3 = B_3 + X_1 f_1(2\Delta t) + X_2 f_2(\Delta t) + X_3 \quad (式4)$$

となる。以上を一般的に表すと、D_nは

$$D_n = B_n + \sum_{k=0}^n X_k f_k((n-k)\Delta t) \quad (式5)$$

となる。

3・2 観測される線量率から単位線量率増加量を算出する式の導出

3.1で導出した式5から、観測される線量率から単位線量率増加量を算出する式を導出する。

時刻n (n ≥ 1) における線量率と時刻n - 1における線量率の差をとると、

$$D_n - D_{n-1} = B_n - B_{n-1} + \sum_{k=0}^n X_k f_k((n-k)\Delta t) - \sum_{k=0}^{n-1} X_k f_k((n-1-k)\Delta t) \quad (式6)$$

となる。式6右辺の破線で囲った部分について、k = nの部分のみをX_nとして和から取り出し整理すると、

$$X_n = D_n - D_{n-1} - (B_n - B_{n-1})$$

$$+ \sum_{k=0}^{n-1} X_k \{f_k((n-1-k)\Delta t) - f_k((n-k)\Delta t)\} \quad (式7)$$

となる。

ここで、「Δt程度の時間経過ではバックグラウンドはほとんど変化しない」と仮定すると、式7右辺第3項(B_n - B_{n-1})は0となり、

$$X_n \approx D_n - D_{n-1} + \sum_{k=0}^{n-1} X_k \{f_k((n-1-k)\Delta t) - f_k((n-k)\Delta t)\} \quad (式8)$$

が得られる。単位線量率増加量の減衰関数f_n(t)の具体的な形が判れば、式8により、観測される線量率から単位線量率増加量を算出できる。

3・3 単位線量率増加量の減衰関数f_n(t)の導出

降雨による線量率の増加は、降雨中に含まれるラドン-222子孫核種からの放射線によるものであることから⁴⁾、減衰関数f_n(t)は、これらの核種の半減期に依存していると考えられる。

ラドン-222子孫核種の放射能の半減期による時間変化を図2に示す。ポロニウム-218、鉛-214、ビスマス-214及びポロニウム-214は、約4時間で放射平衡に達する。また、鉛-210はほとんど生成されていないことから、鉛-210以降の子孫核種は降雨による線量率増加に寄与していないと考えられる。

放射平衡時における、ポロニウム-218、鉛-214、ビスマス-214及びポロニウム-214が放出するガンマ線による線量率寄与率を表2に示す。線量率寄与率は、鉛-

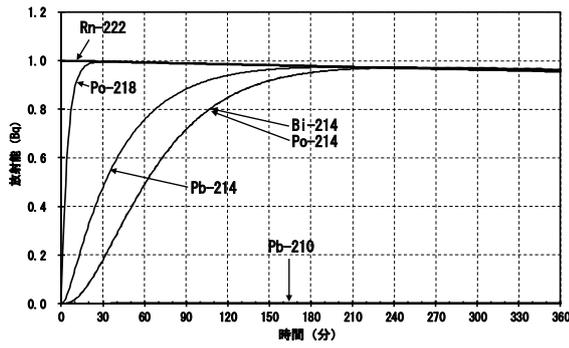


図2 ラドン-222子孫核種の放射能の時間変化

表2 放射平衡時におけるラドン-222子孫核種が放出するガンマ線による線量率寄与率

核種	放出ガンマ線エネルギー (keV) 括弧内は放出比	空気衝突カーマ率定数 (nGy・m ² ・kBq ⁻¹ ・h ⁻¹)	放射平衡時における 線量率への寄与率
Po-218	なし	-	-
Pb-214	0.242 (7.43%) 0.295 (19.3%) 0.352 (37.6%)	0.0531	22.877%
Bi-214	0.609 (46.1%) 0.768 (4.94%) 1.120 (15.1%) 1.238 (5.79%) 1.765 (15.4%) 2.204 (5.08%)	0.179	77.118%
Po-214	0.800 (0.01%) 他	1.10×10 ⁻⁵	0.005%

214が約23%、ビスマス-214が約77%であり、降雨による線量率増加の原因となる核種は鉛-214及びビスマス-214がほとんどであることが判る。従って、減衰関数 $f_n(t)$ は、鉛-214、ビスマス-214及びそれらの親核種であるポロニウム-218の半減期に依存していると考えられる。

地表に沈着した後のポロニウム-218の放射能 A_n^{Po} 、鉛-214の放射能 A_n^{Pb} 及びビスマス-214の放射能 A_n^{Bi} は、式9、式10及び式11で表される。

$$A_n^{Po}(t) = A_n^{Po}(0)e^{-\lambda^{Po}t} \quad (式9)$$

$$A_n^{Pb}(t) = \frac{\lambda^{Pb}}{\lambda^{Pb} - \lambda^{Po}} A_n^{Po}(0)e^{-\lambda^{Po}t} + \left(A_n^{Pb}(0) - \frac{\lambda^{Pb}}{\lambda^{Pb} - \lambda^{Po}} A_n^{Po}(0) \right) e^{-\lambda^{Pb}t} \quad (式10)$$

$$A_n^{Bi}(t) = \frac{\lambda^{Bi}}{\lambda^{Bi} - \lambda^{Po}} \frac{\lambda^{Pb}}{\lambda^{Pb} - \lambda^{Po}} A_n^{Po}(0)e^{-\lambda^{Po}t} + \frac{\lambda^{Bi}}{\lambda^{Bi} - \lambda^{Pb}} \left(A_n^{Pb}(0) - \frac{\lambda^{Pb}}{\lambda^{Pb} - \lambda^{Po}} A_n^{Po}(0) \right) e^{-\lambda^{Pb}t} + \left\{ A_n^{Bi}(0) - \frac{\lambda^{Bi}}{\lambda^{Bi} - \lambda^{Po}} \frac{\lambda^{Pb}}{\lambda^{Pb} - \lambda^{Po}} A_n^{Po}(0) - \frac{\lambda^{Bi}}{\lambda^{Bi} - \lambda^{Pb}} \left(A_n^{Pb}(0) - \frac{\lambda^{Pb}}{\lambda^{Pb} - \lambda^{Po}} A_n^{Po}(0) \right) \right\} e^{-\lambda^{Bi}t} \quad (式11)$$

一方、単位線量率増加量は地表に沈着した鉛-214及びビスマス-214からのガンマ線によるものであることから、単位線量率増加量の減衰 $X_n f_n(t)$ は

$$X_n f_n(t) = \alpha \left(K^{Pb} A_n^{Pb}(t) + K^{Bi} A_n^{Bi}(t) \right) \quad (式12)$$

と表される。ここで、 α は比例定数、 K^{Pb} 及び K^{Bi} はそれぞれ鉛-214及びビスマス-214の空気衝突カーマ率定数である。なお、降雨によって降下したラドン-222子孫核種は一樣に地表に沈着したと仮定している。線量率の測定においては、測定地点周辺の地形や遮蔽物の影響を受けるが、ラドン子孫核種は一樣に地表に沈着すると仮定することで、これらの影響を定数 α で表すことができる。式12に、式10及び式11を代入し整理すると、

$$X_n f_n(t) = \alpha A_n^{Po}(0) \left({}^1C_n e^{-\lambda^{Po}t} + {}^2C_n e^{-\lambda^{Pb}t} + {}^3C_n e^{-\lambda^{Bi}t} \right) \quad (式13)$$

となる。ここで、 1C_n 、 2C_n 及び 3C_n は、

$${}^1C_n = \frac{\lambda^{Pb}}{\lambda^{Pb} - \lambda^{Po}} \frac{A_n^{Po}(0)}{A_n^{Pb}(0)} \left(K^{Pb} + K^{Bi} \frac{\lambda^{Bi}}{\lambda^{Bi} - \lambda^{Po}} \right) \quad (式14)$$

$${}^2C_n = \left(K^{Pb} + K^{Bi} \frac{\lambda^{Bi}}{\lambda^{Bi} - \lambda^{Pb}} \right) \left(1 - \frac{\lambda^{Pb}}{\lambda^{Pb} - \lambda^{Po}} \frac{A_n^{Po}(0)}{A_n^{Pb}(0)} \right) \quad (式15)$$

$${}^3C_n = K^{Bi} \left\{ \frac{A_n^{Bi}(0)}{A_n^{Pb}(0)} - \frac{\lambda^{Bi}}{\lambda^{Bi} - \lambda^{Pb}} \left(1 - \frac{\lambda^{Pb}}{\lambda^{Bi} - \lambda^{Po}} \frac{A_n^{Po}(0)}{A_n^{Pb}(0)} \right) \right\} \quad (式16)$$

である。

式13に $t=0$ を代入すると、 $f_n(0) = 1$ であることから、

$$\alpha A_n^{Po}(0) = \frac{X_n}{{}^1C_n + {}^2C_n + {}^3C_n} \quad (式17)$$

が得られる。式17を式13に代入し、両辺を X_n で除することで単位線量率増加量の減衰関数

$$f_n(t) = \frac{1}{{}^1C_n + {}^2C_n + {}^3C_n} \times \left({}^1C_n e^{-\lambda^{Po}t} + {}^2C_n e^{-\lambda^{Pb}t} + {}^3C_n e^{-\lambda^{Bi}t} \right) \quad (式18)$$

が得られる。

3・4 単位線量率増加量を算出する式

単位線量率増加量を算出する式は、式8、式14、式15、式16及び式18である。式14、式15及び式16の中に、沈着時におけるポロニウム-218/鉛-214比及びビスマス-214/鉛-214比が含まれているため、単位線量率増加

量を計算するにあたっては、これらの比の値が必要となる。

3.5 放射能比

ポロニウム-218/鉛-214比及びビスマス-214/鉛-214比を降雨毎に求めるのは困難であるので、これらの値がどの程度の範囲をとるかを推定した。大気中でラドン-222、ポロニウム-218、鉛-214及びビスマス-214が放射平衡となっている状態で、ラドン-222以外の核種が雲粒に捕獲され雨滴となって地表に落下し沈着すると仮定する。雲粒に捕獲されてから地表に沈着するまでの間に、放射能比はラドン子孫核種の減衰に依存して変動する。雨滴に捕獲されたラドン子孫核種の放射能及び放射能比の時間変化を図3に示す。捕獲直後では放射平衡となっているため、放射能比は1となる。ポロニウム-218の半減期は3.10分であり、約30分でほとんど無くなるので、ポロニウム-218/鉛-214比も約30分でほぼ0となる。一方、ビスマス-214/鉛-214比は時間とともに増加していく。ラドン-222によるポロニウム-218の供給が無くなったことから、鉛-214及びビスマス-214は時間の経過とともに新たな放射平衡に向かい、ビスマス-214/鉛-214比は最終的に一定値(3.88)となる。以上

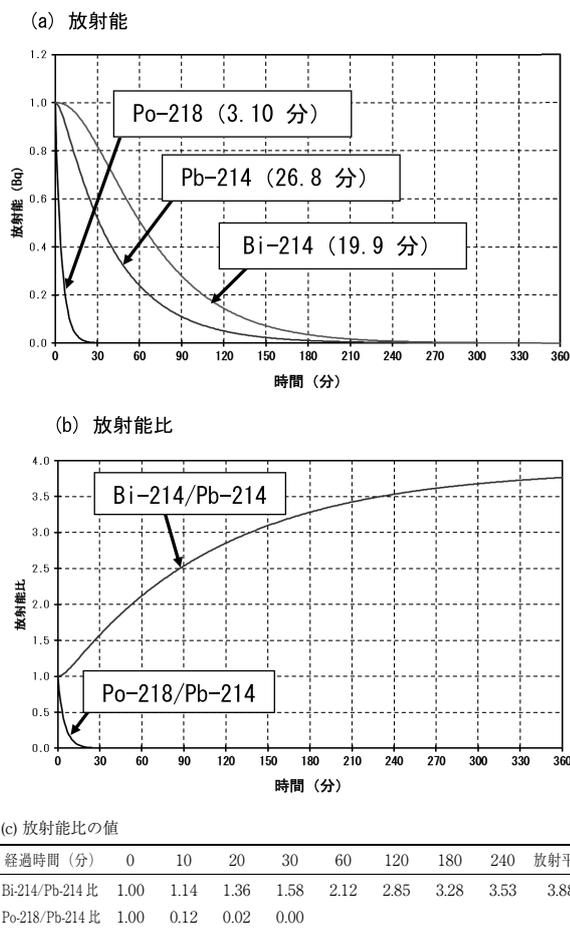


図3 雨滴に捕獲されたラドン子孫核種の放射能及び放射能比の時間変化

から、ポロニウム-218/鉛-214比の取り得る範囲は、1～0、ビスマス-214/鉛-214比の取り得る範囲は、1～3.88となる。これらの比の値は、雲粒に捕獲されてから地表に沈着するまでの経過時間で決定される。経過時間に対する放射能比の値の例を図3(c)に示す。

4 観測事例への適用結果

3章で導出した単位線量率増加量の表式を観測事例に適用し、解析した。事例として、2020年10月4日22:00から10月5日6:00に志賀局で観測した線量率の10分値の変動を用いた。その変動状況を図4に示す。この期間中に、志賀局における2020年度の年最大値125.3 nGy/hを観測している。計算はMicrosoft社製Excel2013 VBAでプログラムを作製して行った。計算条件として、 Δt

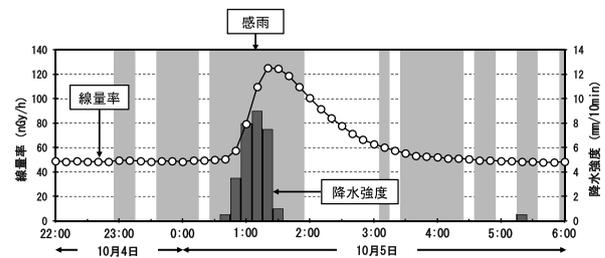


図4 2020年10月4日22:00から10月5日6:00までの志賀局における線量率と降水強度の変動状況

を10分とした。

ポロニウム-218/鉛-214比及びビスマス-214/鉛-214比の値が計算結果に与える影響を確認した。その結果を図5に示す。図5(a)は雲粒に取り込まれた直後、図5(b)はビスマス-214と鉛-214が放射平衡に達した時の比を用いて計算した結果である。ビスマス-214/鉛-214比が大きいほど単位線量率増加量が大きくなる傾向となった。これは、ビスマス-214/鉛-214比が大きいほど減衰関数の減衰が速く、過去の単位線量率増加量の影響が小さくなるためである。ビスマス-214/鉛-214比は、雲粒に取り込まれてからの経過時間が長いほど大きくなっていくことから、降水をもたらす雲の形成プロセス及び雨滴が地表に到達するまでにかかる時間が線量率の変動に影響を与えられたと考えられた。適切な放射能比の選択が今後の課題である。

また、ビスマス-214/鉛-214比が1.00及び3.88における計算結果を各時刻における単位線量率増加量の変動幅として解析を行った。

単位線量率増加量の計算結果を図6に示す。単位線量率増加量と線量率の関係をみると、単位線量率増加量の最大値の後に線量率の最大値が観測されていた。この結果は、単位時間における線量率と降水強度の比較

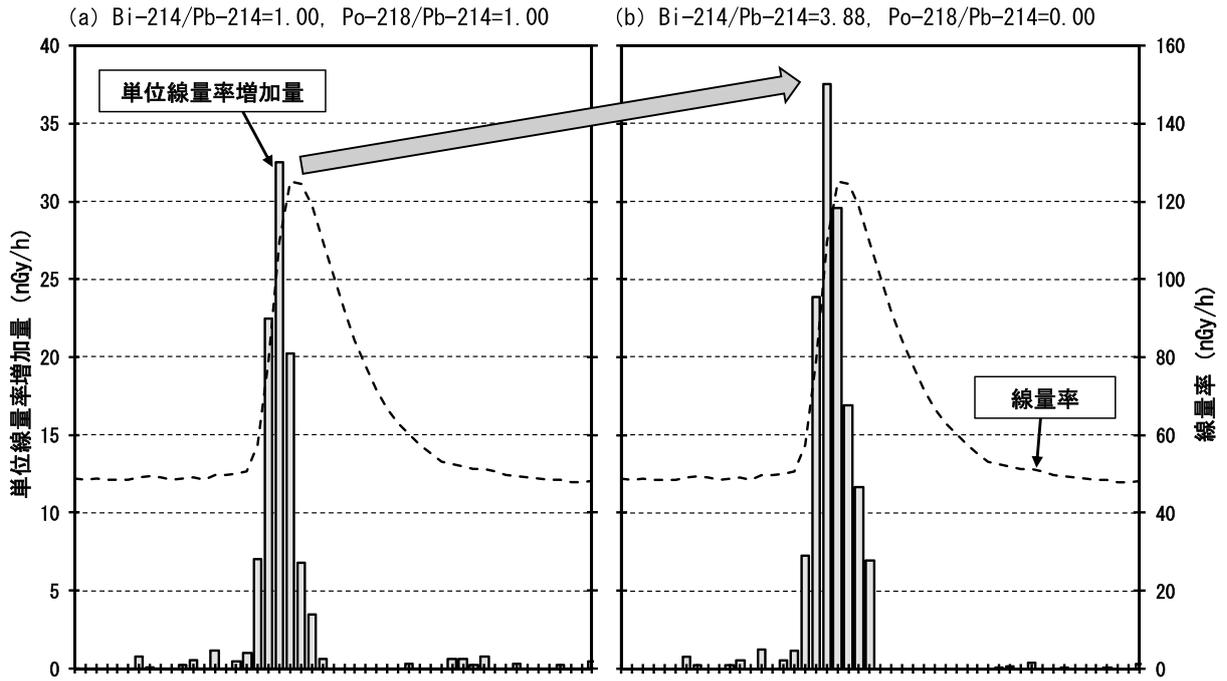


図5 放射能比と単位線量率増加量の関係

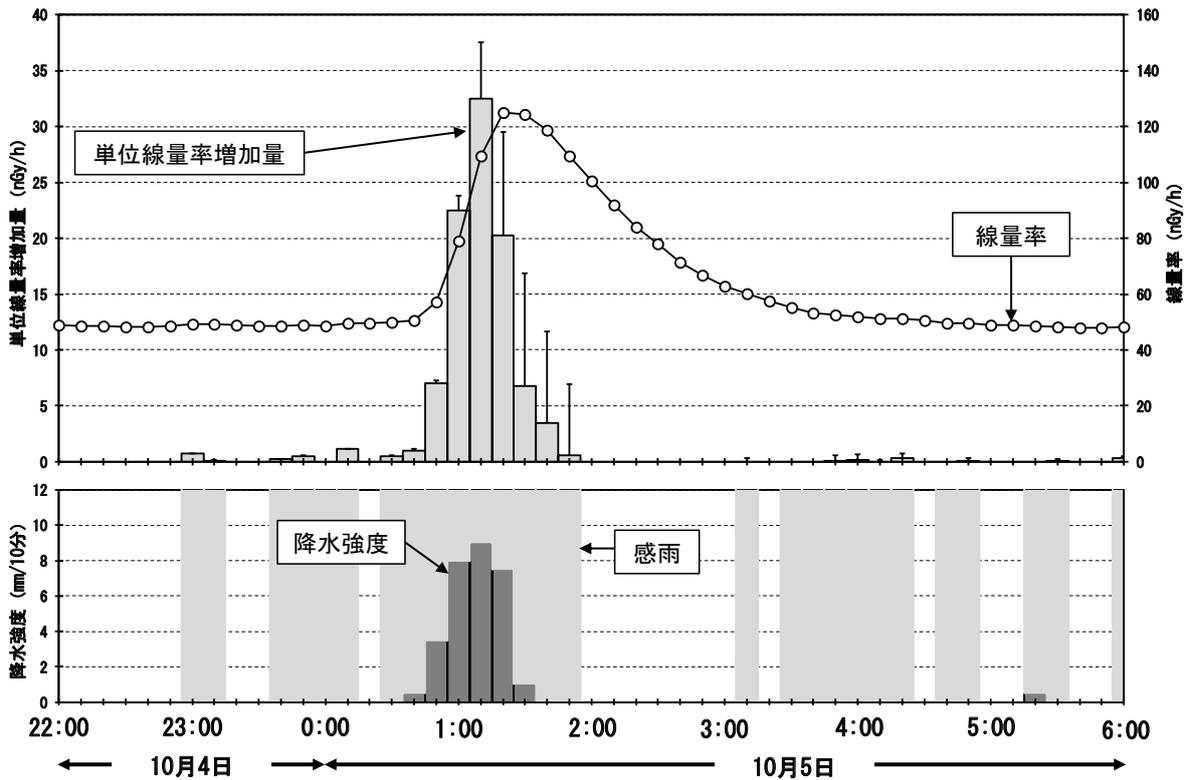


図6 2020年10月4日22:00から10月5日6:00までの志賀局における単位線量率増加量の変動

では、降雨の影響を評価できないことを示している。

線量率濃度の変動を図7に示す。ここで、線量率濃度は単位線量率増加量をその時の降水強度で除した値とした。感雨は観測されているが、降水強度は観測され

ていない場合は、降水強度を0.5mm/10分として線量率濃度を求めた。線量率の最大値を観測した10月5日0:30から1:50における線量率濃度は、降水強度の大きい降り始めに比べて、降水強度の小さい降り終わりの方が

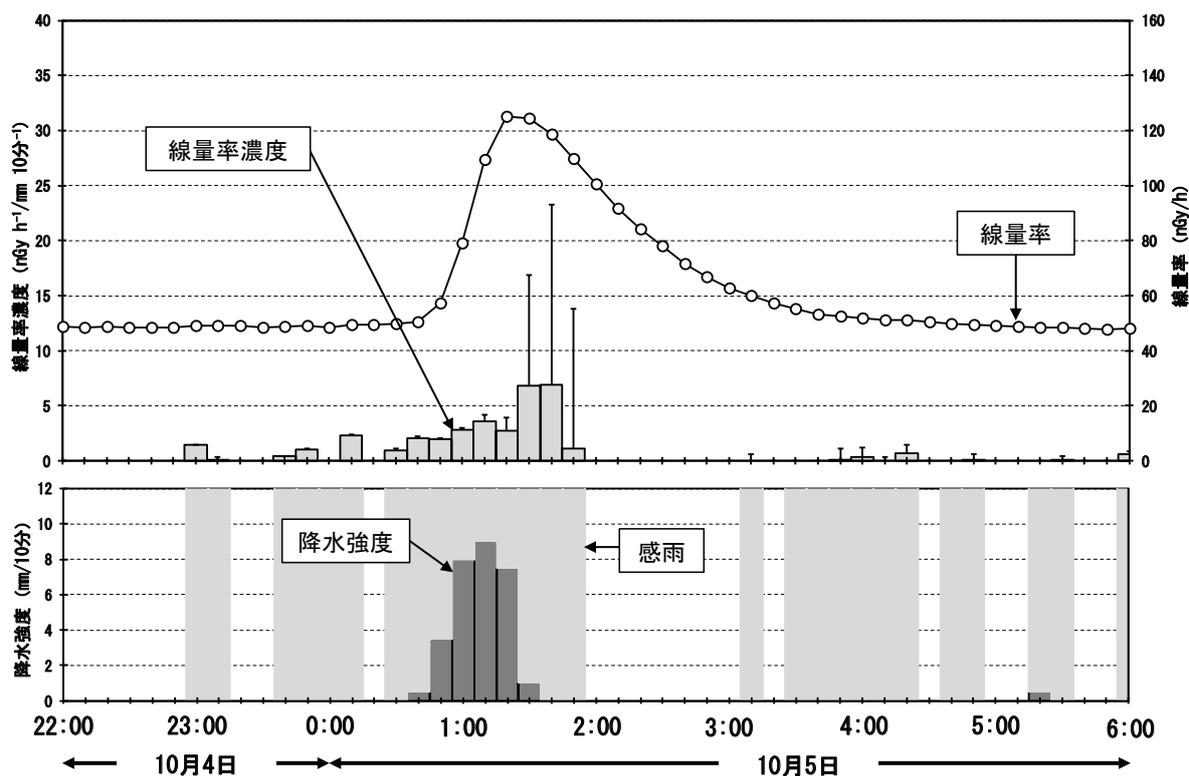


図7 2020年10月4日22:00から10月5日6:00までの志賀局における線量率濃度の変動

大きい結果となった。

5 まとめ

線量率の測定値から降雨による単位線量率増加量を算出する表式を導出した。これにより、降雨が線量率の変動に与える影響を直接評価することが可能となった。また、単位線量率増加量は、ビスマス-214/鉛-214比が大きいほど大きくなる傾向であった。

導出した表式を2020年10月4日22:00から10月5日6:00に志賀局で観測した線量率の変動事例に適用し、線量率の変動と単位線量率増加量、線量率濃度の関係を解析した。線量率の最大値の出現時刻と単位線量率増加量の最大値の出現時刻は一致せず、単位線量率増加量の最大値が出現後に線量率の最大値が出現した。この結果は、単位時間における線量率と降水強度の比較では、降雨の影響を評価できないことを示している。

今後の課題として、単位線量率増加量はポロニウム-

218/鉛-214比及び鉛-214/ビスマス-214比に依存するため、適切な放射能比の選択を検討する必要がある。

文 献

- 1) 小森正樹, 中谷光, 今井利夫, 安井嘉朗: 石川県における空間線量調査結果 (その1) -6年間の線量率測定結果から-, 石川県衛生公害研究所年報, 26, 447-456 (1986)
- 2) 吉本高志, 鶴谷亮太, 内田賢吾: 石川県における空間放射線量率の時間的・地域的変動についての解析, 石川県保健環境センター研究報告書, 57, 23-30 (2020)
- 3) 公益社団法人日本アイソトープ協会: アイソトープ手帳 (11版7刷), 丸善 (2017)
- 4) ラドン族調査研究委員会: 大気中のラドン族と環境放射能, 187-195, 社団法人日本原子力学会 (1985)

〔短 報〕

石川県における空間放射線量率の時間的・地域的変動についての解析（第2報）

— 後方流跡線解析による事例解析 —

石川県保健環境センター 環境科学部 吉本 高志・内田 賢吾

〔和文要旨〕

降雨による空間放射線量率の増加量が大きい事例（2020年10月4日22:00から10月5日6:00）と小さい事例（2020年8月13日3:00から12:00）について、後方流跡線解析と気象状況を比較することで、空間放射線量率の増加量の違いの要因について検討し、それぞれの事例のメカニズムについて考察した。増加が大きい事例では、ラドン子孫核種の濃度が高い大陸由来の気塊が雲に取り込まれたためと推定した。一方、増加量が小さい事例では、ラドン子孫核種の濃度の低い海域由来の気塊のみが雲に取り込まれたためと推定した。

キーワード：空間放射線量率，時間的変動，地域的変動，後方流跡線解析

1 はじめに

石川県では、志賀原子力発電所（以下「発電所」という。）周辺30km圏内の24地点に環境放射線観測局（以下「観測局」という。）を設置し、環境中のガンマ線による空間放射線量率（以下「線量率」という。）の常時監視を行っている（図1）。併せて、降水量等の気象要素も測定している。

観測される線量率は、降雨によって増加することが知られている。これは大気中のラドン子孫核種が雨雲内で雨滴に取り込まれ、降雨によって地表面に降下してくるためである¹⁾。ラドンは、地表に存在するウラン-238（ウラン系列）やトリウム-232（トリウム系列）の子孫核種であり、主に陸域の地表から大気中へ放出されている。

線量率の変動状況は、大気中ラドン子孫核種の濃度や降雨の状況によって異なることが知られている。藤波ら²⁾は、1994年度から2004年度までの全国の線量率データから、日本海側では線量率の年最高値は11月か

ら1月にかけて集中して出現していることを報告している。また、木立ら³⁾は、後方流跡線解析により、大陸を発生源とするラドン子孫核種が、晩秋から冬季にかけて大陸性気団により日本に輸送され、降雨雪時に線量率が大きく増加することが多いと報告している。

前報⁴⁾では、2013年度から2018年度までの本県における線量率の変動状況について解析し、線量率の年最高値は、11月から2月に多く観測され12月に全体の約半数が観測されていること、5月から10月にはほとんど観測されていないこと等を報告した。

本報では、志賀局における測定結果を基に降雨による線量率の増加量大きい事例と小さい事例を選定し、それぞれの事例について後方流跡線解析と気象状況を比較することで、線量率の増加量の違いの要因について検討し、それぞれの事例のメカニズムについて考察したので報告する。

2 方 法

2・1 測定

A Study on Temporal and Regional Variations of Dose Rate in Ishikawa Prefecture (2nd Report) – Case Study by means of Back Trajectory Analysis –. by YOSHIMOTO Takashi and UCHIDA Kengo (Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Dose Rate, Temporal Variation, Regional Variation, Back Trajectory Analysis

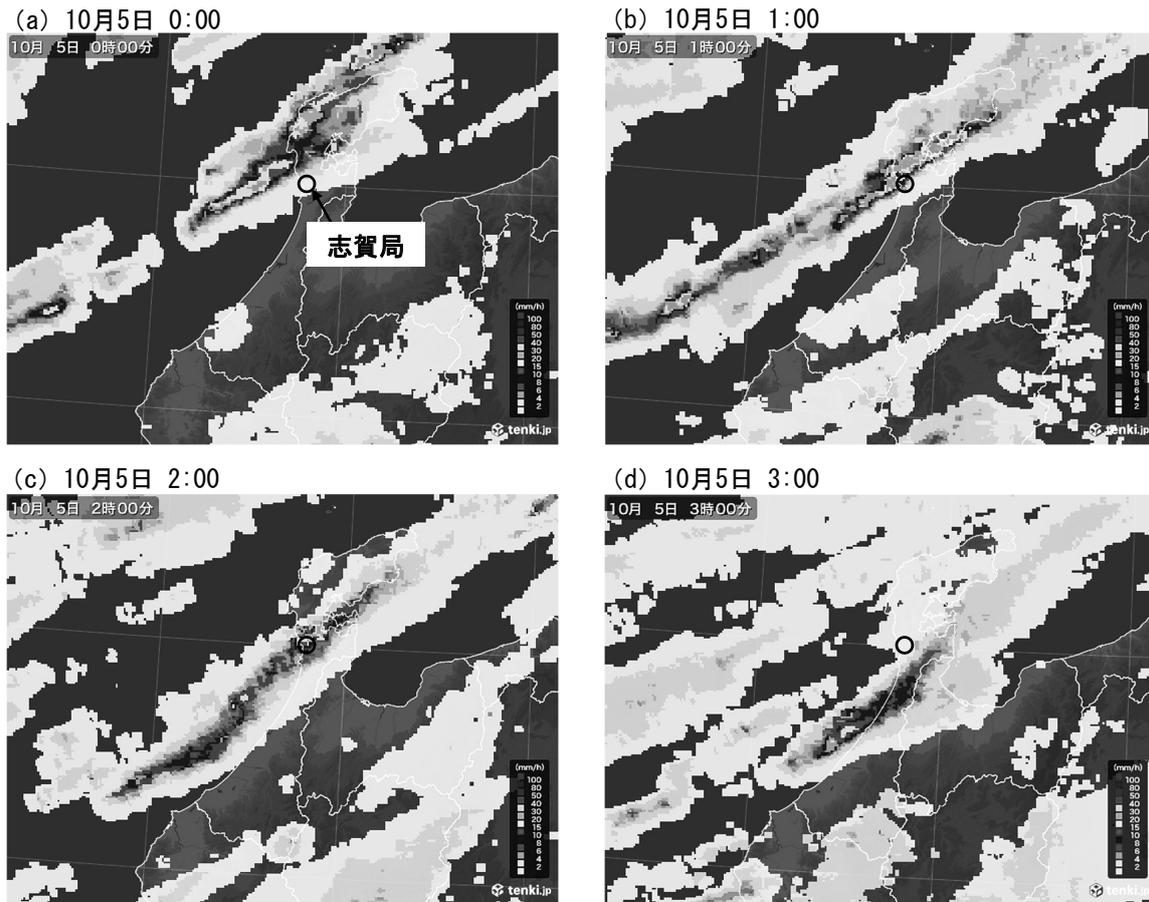


図2 2020年10月5日0:00から3:00までの雨雲レーダーによる1時間毎の降水強度分布図

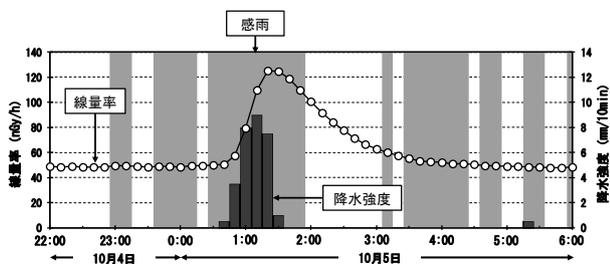


図3 2020年10月4日22:00から10月5日6:00までの志賀局における線量率と降水強度の変動状況

ら増加し始め、1:40に最大値125.2 nGy/hとなった後、雨が弱まるとともに減少していった。

(3) 後方流跡線解析

到達地点を志賀局上空とし、到達高度500 m、1000 m、2000 m、2500 m、3000 m、3500 m、4000 m、4500 m及び5000 mについて10月5日1:00から72時間前まで遡って計算した。

計算結果を図4に示す。後方流跡線は、到達高度別に、到達高度500 mから1000 mの四国地方から中国地方を縦断する流跡線、到達高度2000 mから3000 mの東シナ海から日本海を通過する流跡線、到達高度3500 mから5000 mの大陸から朝鮮半島南部を経由して日本海を

通過する大陸由来の流跡線の3パターンとなった(図4(a))。このうち、ラドン子孫核種の濃度が高いと考えられる大陸由来の流跡線について、図4(b)に対地高度分布を示す。対地高度分布図では、丸印及び四角印を起点から6時間毎にプロットしている。到達高度4500 mの流跡線を見ると、北緯37度付近、東経75度付近において地表付近の気塊が約1日半で高度約8000 mまで上昇した後、高度を下げながら東に移動し、朝鮮半島を通り過ぎた後、10月4日19:00頃に日本海上空付近を通り、志賀局上空に到達していた。

2020年10月4日19:00から10月5日1:00までにおける衛星赤外画像による雲の動きと到達高度4500 mの後方流跡線の関係を図5に示す。ここで衛星赤外画像中の黒丸は、その時刻における後方流跡線の位置を示す。雲は大陸から朝鮮半島上空及び日本海上空を通り能登半島まで到達しており、後方流跡線と一致していた。2020年10月4日9:00から10月5日9:00までの、日本海周辺における高度約5000mの風向の変化と到達高度4500 mの後方流跡線の関係を図6に示す。期間中、後方流跡線近傍の観測地点において西寄りの風が観測されており、雲は後方流跡線に沿って移動していたと推定された。

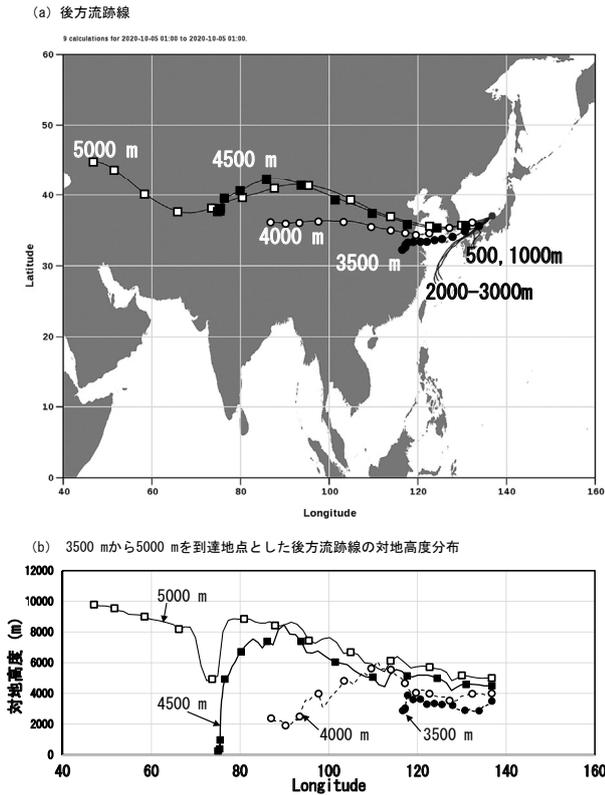


図4 2020年10月5日1:00における志賀局上空500 mから5000 mを到達地点とした後方流跡線

を見ると、10月4日9:00では高度約3500 m以上、10月4日21:00では高度約2000 mから約4000 m、10月5日9:00では高度約1000 mから約3500 mと時間の経過とともに高度が下がっていった。このことから、雲は雲頂高度を低下させながら能登半島上空に到達し、降雨をもたらしたと考えられた。

以上から推定した2020年10月5日に観測された事例の模式図を図8に示す。大陸由来のラドン子孫核種の濃度が高い気塊が高度約8000 mまで上昇し、高度を下げながら東進した。朝鮮半島を通り過ぎた日本海上空付近で、雲の形成に伴い下層から高層まで攪拌されることでラドン子孫核種の濃度が高い気塊が雲に取り込まれ、雲は雲頂高度を低下させながら能登半島上空に到達し、ラドン子孫核種を多く取り込んだ降雨により線量率が大きく増加した。

3・3 線量率の増加量が小さい事例の解析

(1) 気象状況

「石川県の気象概況 令和2年8月」¹⁰⁾によると、8月12日から8月13日にかけては、湿った空気の影響で、曇り時々雨となり雷を伴った所があったとされている。

8月13日6:00から8月13日9:00までの1時間毎の雨雲レーダーによる降水強度分布図を図9に示す。極地的に

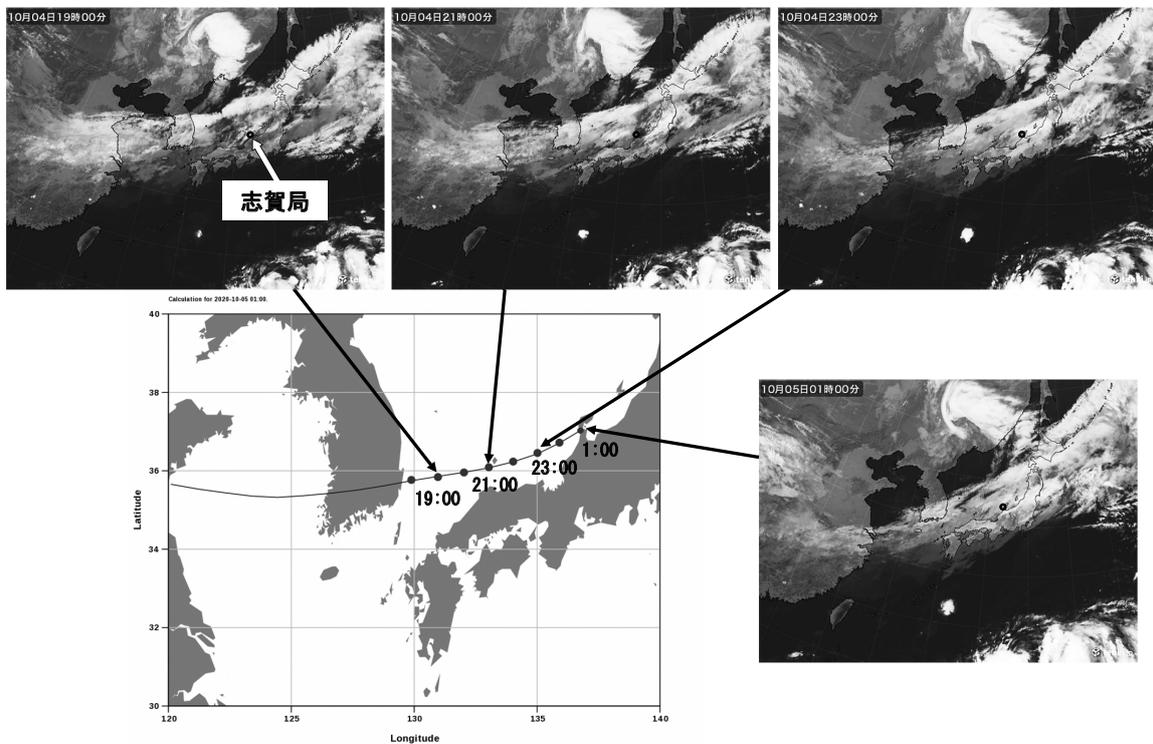
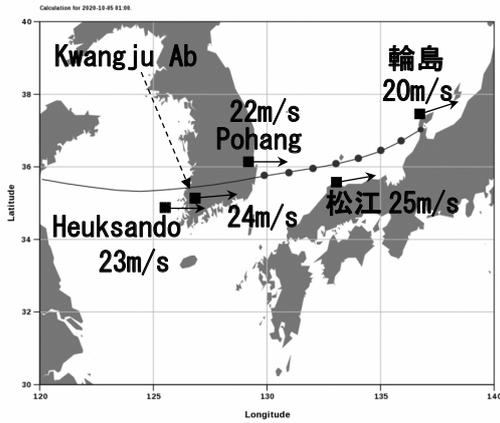


図5 2020年10月4日19:00から10月5日1:00までの衛星赤外画像による雲の動きと到達高度4500 mの後方流跡線の関係

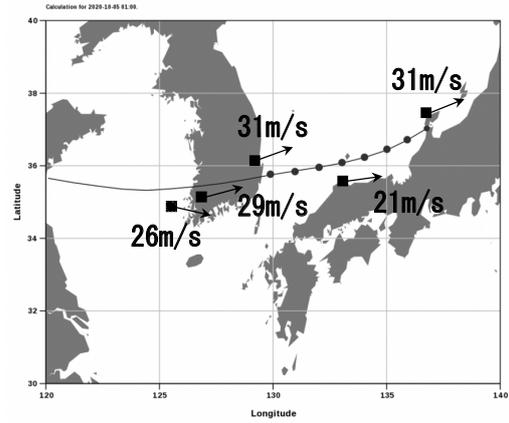
2020年10月4日9:00から10月5日9:00までの、松江及び輪島における湿数の高度分布を図7に示す。雲が形成されていると考えられる、湿数が3℃未満の高度分布

強い降雨をもたらす県全域を覆う雨雲が西から東へ移動していく様子が確認できた。また、8:00頃に志賀局付近で強い降雨があったことが確認できた。

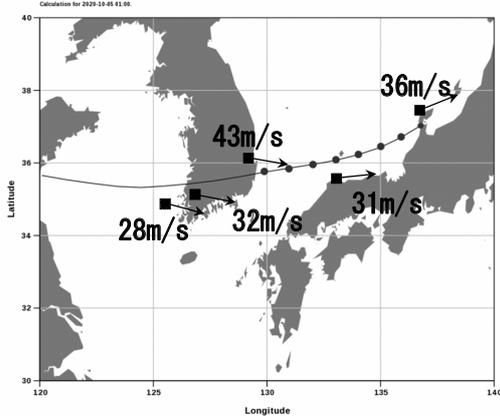
(a) 2020年10月4日9:00



(b) 2020年10月4日21:00



(c) 2020年10月5日9:00



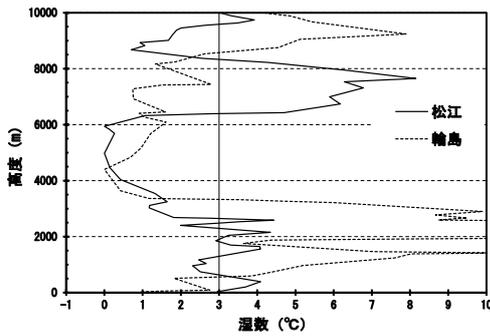
8:00頃に志賀局付近で強い降雨をもたらした雲の発生状況を確認するため、8月13日3:00から8月13日9:00までの1時間毎の衛星赤外面像を図10に示す。8月13日3:00から4:00の間に、若狭沖付近で雲が発生し、その後発達しながら東進し7:00頃に加賀南部に到達、8:00頃に能登半島に到達していた。

(2) 線量率と降水強度の変動状況

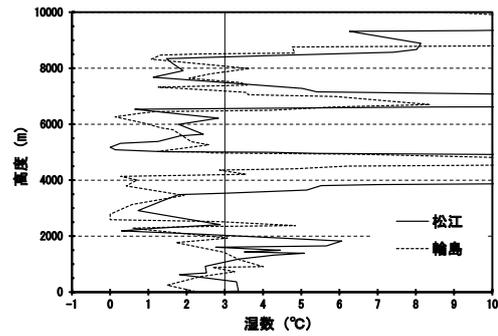
志賀局における線量率及び降水強度の変動状況を図11に示す。志賀局では、8月13日6:20頃から雨が降り始め、7:10頃から雨足が強まり、7:20に最大降水強度8.5 mm/10分が観測された。その後、8:10頃に雨は止ん

図6 2020年10月4日9:00から10月5日9:00までの高度5000m付近における風向の変化

(a) 10/4 9:00



(b) 10/4 21:00



(c) 10/5 9:00

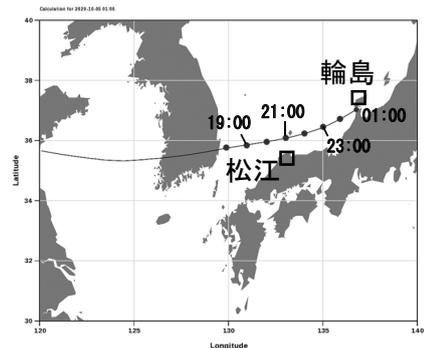
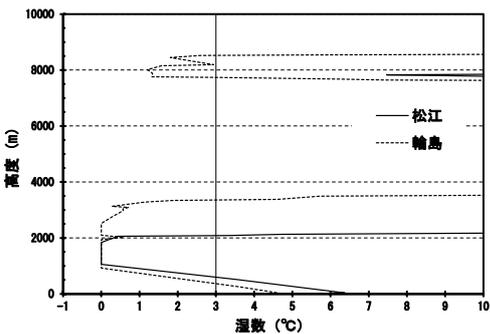


図7 2020年10月4日9:00から2020年10月5日9:00までの松江及び輪島における湿度の高度分布

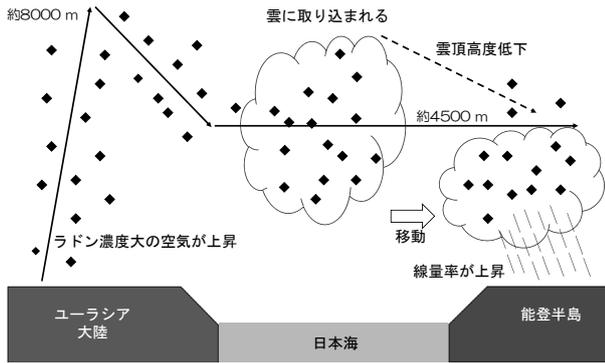


図8 2020年10月5日に観測された事例の模式図

だ。線量率は、雨足が強まった8月13日7:20から増加し始め、7:40に最高値の50.3 nGy/hとなった後、雨が弱まるとともに減少していった。

(3) 後方流跡線解析

到達地点を志賀局上空とし、到達高度500 m、1000 m、2000 m、3000 m、4000 m及び5000 mについて8月13日7:00から72時間前まで遡って計算した。

計算結果を図12に示す。後方流跡線は、到達高度別に、到達高度500 mから3000 mの東シナ海付近から日本海を通過する海域由来の流跡線、到達高度4000 mから

5000 mの大陸から朝鮮半島南部を經由して日本海を通過する大陸由来の流跡線の2パターンとなった。

降雨をもたらした雲が形成された時間帯からの、海域由来の流跡線及び大陸由来の流跡線の対地高度変化を図13に示す。なお、海域由来の流跡線の例として到達高度1000 mの流跡線を、大陸由来の流跡線の例として到達高度5000 mの流跡線を図に示した。海域由来の流跡線の対地高度変化は、対地高度3000 m以下で推移していたのに対し、大陸由来の流跡線の対地高度変化は、対地高度3500 m以上で推移していた。

降雨前の8月12日21:00及び降雨後の8月13日9:00の輪島における湿数の高度分布を図14に示す。降雨の前後において、湿数が3℃未満となったのは高度約2000 m以下であったことから、降雨をもたらした雲の雲頂高度は約2000 m以下であったと推定した。このことから、高度約2000 m以下の気塊が雲に取り込まれていたと考えられた。

8月13日4:00から7:00までの、衛星赤外画像による雲の動きと到達高度1000 mの後方流跡線の関係を図15に示す。流跡線の動きと雲の動きはほぼ一致しており、高度約2000 m以下の海域由来の気塊が雲に取り込まれ、一方、大陸由来の気塊は雲の上空を通過していっ

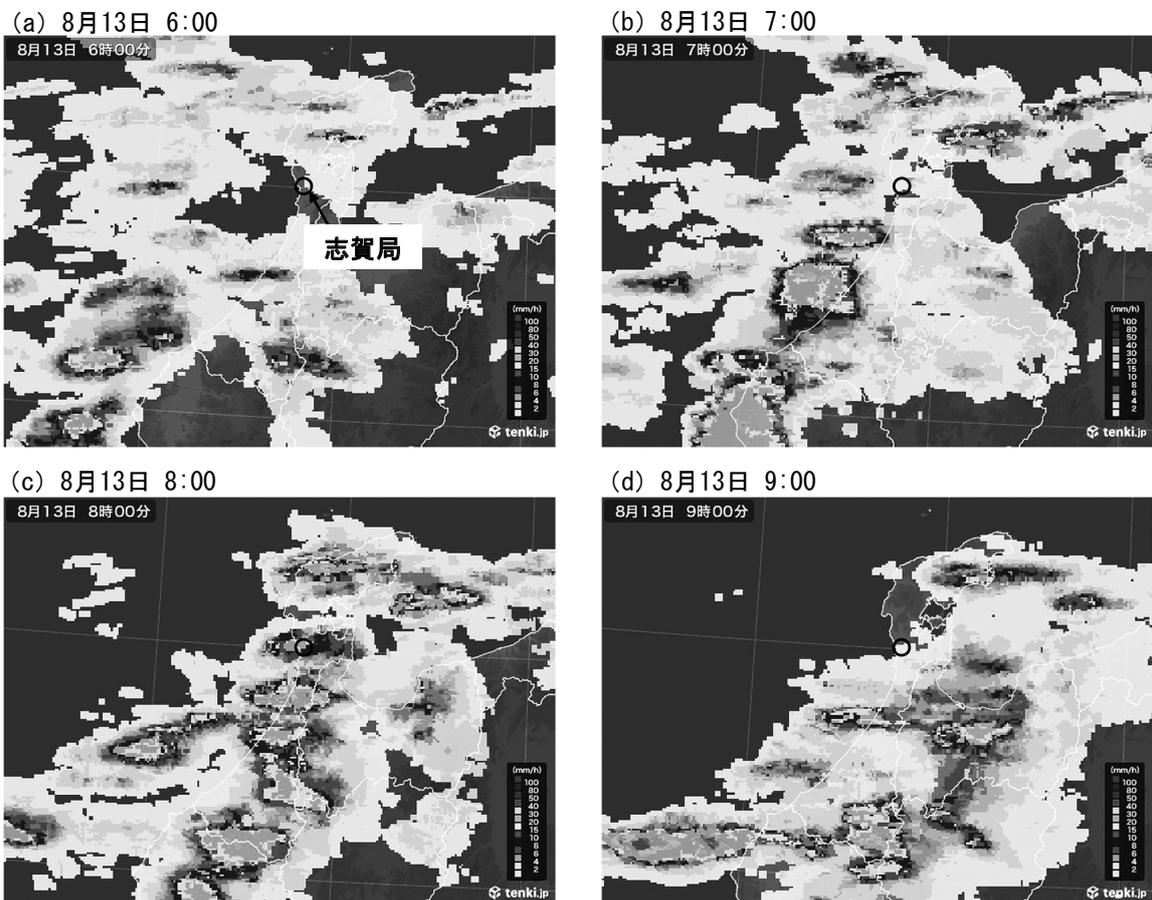
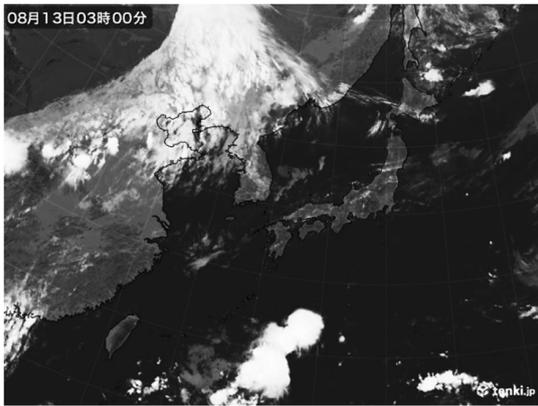
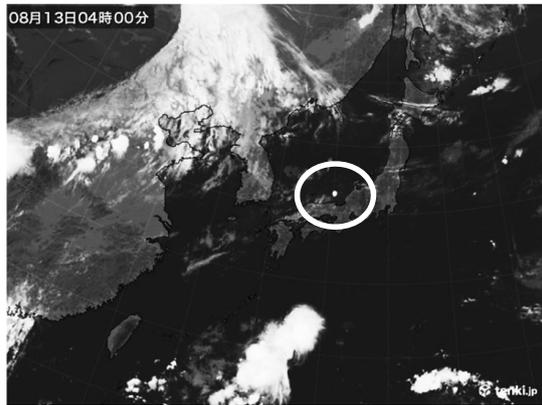


図9 2020年8月13日6:00から9:00までの雨雲レーダーによる1時間毎の降水強度分布図

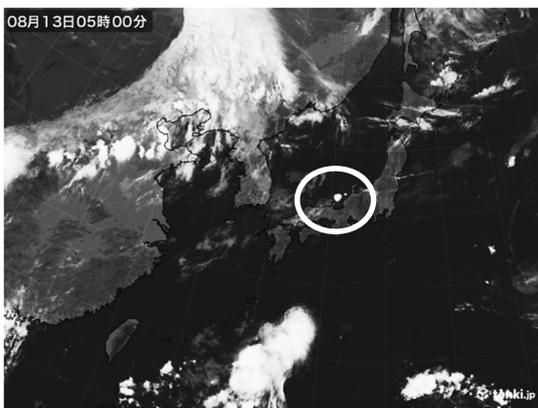
(a) 8月13日 3:00



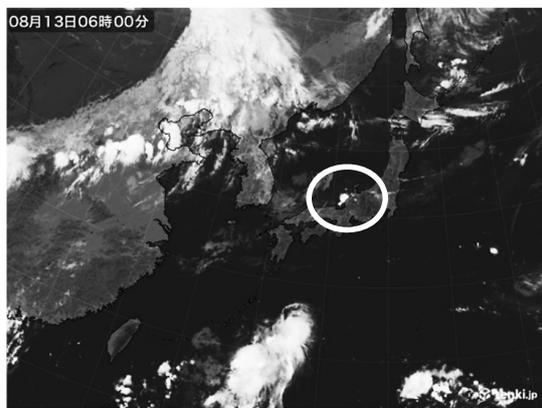
(b) 8月13日 4:00



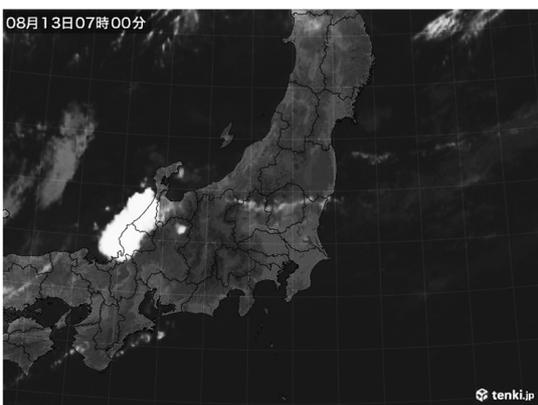
(c) 8月13日 5:00



(d) 8月13日 6:00



(e) 8月13日 7:00



(f) 8月13日 8:00

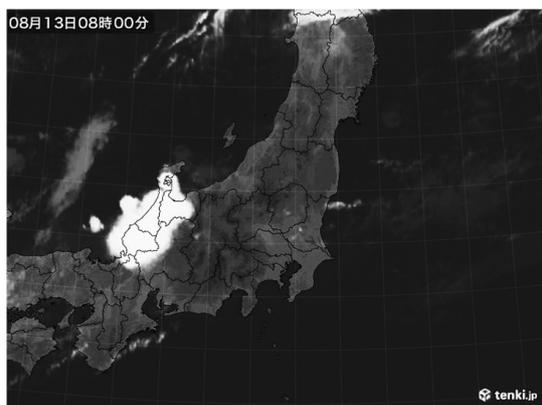


図10 2020年8月13日3:00から8:00までの1時間毎の衛星赤外画像

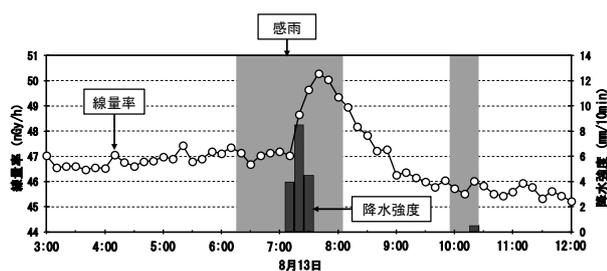


図11 2020年8月13日3:00から12:00までの志賀局における線量率と降水強度の変動状況

たと考えられた。大気中ラドンの供給源は主に地表に存在するウラン及びトリウムであることから、海域由来の気塊のラドン子孫核種の濃度は、大陸由来の気塊に比べて低いと考えられる¹²⁾。

以上から推定した2020年8月13日に観測された事例の模式図を図16に示す。ラドン子孫核種の濃度が高いと考えられる大陸由来の気塊及びラドン子孫核種の濃度が低いと考えられる海域由来の気塊が8月13日3:00から4:00ごろに若狭沖付近に到達した。この時間帯に

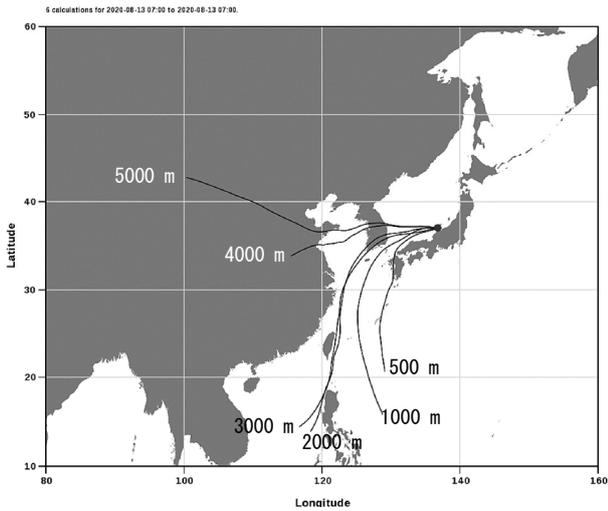


図 12 2020年8月13日7:00における志賀局上空500mから5000mを到達地点とした後方流跡線

雲が発生したが、雲頂高度は約2000 mであったため、ラドン子孫核種の濃度の高い大陸由来の気塊は雲の上空を通過し、ラドン子孫核種の濃度の低い海域由来の気塊のみが雲に取り込まれた。雲は発達しながら能登半島上空に到達し、降雨となったが、雲中のラドン子孫核種の濃度が低いため線量率の増加量は小さかった。

4 まとめ

降雨による線量率の増加量が大きい事例と小さい事例について、後方流跡線解析と気象状況を比較することで、線量率の増加量の違いの要因について検討し、それぞれの事例のメカニズムについて考察した。

増加量が大きい事例（2020年10月4日22:00から10月5日6:00）では、大陸起源のラドン子孫核種の濃度が高い気塊が日本海上空付近で雲に取り込まれ、降雨によ

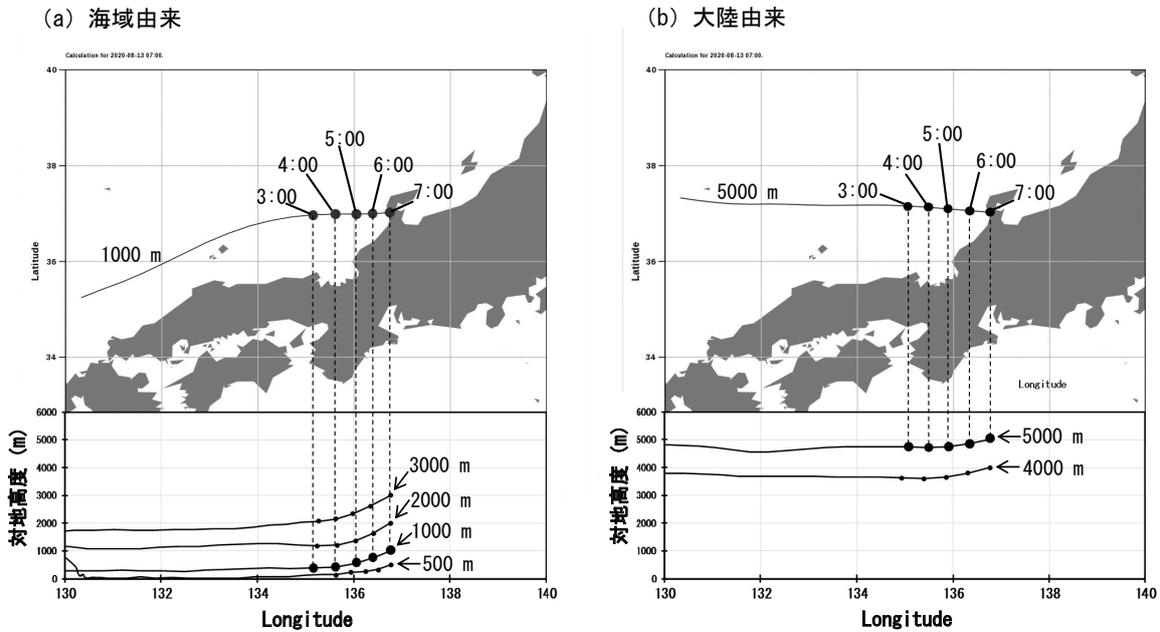


図 13 海城由来の後方流跡線と大陸由来の後方流跡線の高度変化の比較

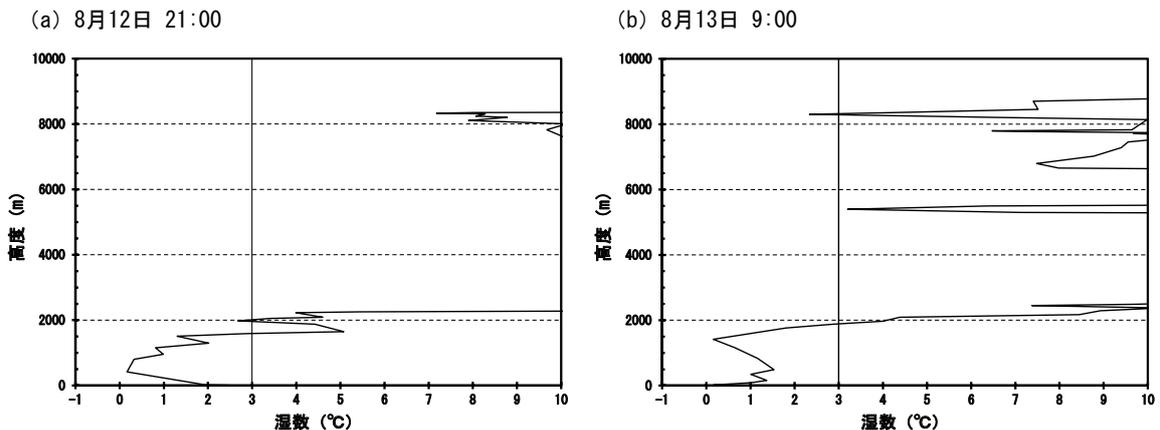


図 14 2020年8月12日21:00及び8月13日9:00の輪島における湿度の高度分布

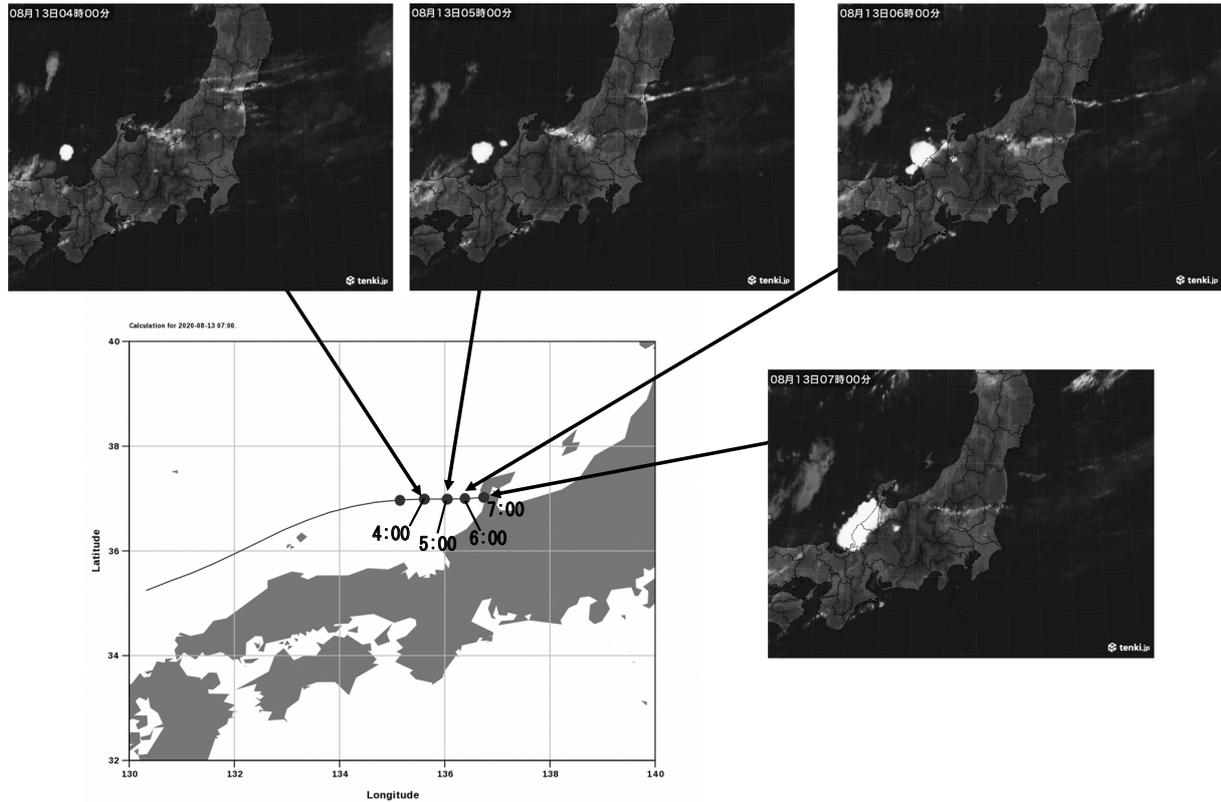


図15 2020年8月13日4:00から7:00までの衛星赤外画像による雲の動きと到達高度1000mの後方流跡線の関係

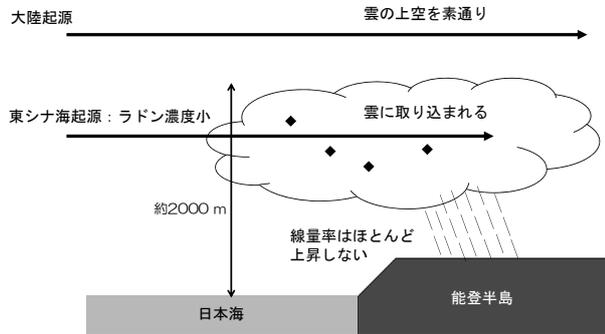


図16 2020年8月13日に観測された事例の模式図

る線量率の増加量が大きくなったと推定した。

一方、増加量が小さい事例(2020年8月13日3:00から12:00)では、ラドン子孫核種の濃度の低い海域由来の気塊のみが雲に取り込まれたため、降雨による線量率の増加量が小さくなったと推定した。

文 献

- 1) ラドン族調査研究委員会：大気中のラドン族と環境放射能, 187-195, 社団法人日本原子力学会 (1985)
- 2) 藤波直人, 渡辺哲也, 前田高志, 荒木智徳, 山川和彦：日本の気候区別空間線量率の年間最大値の月別出現頻度, RADIOISOTOPES, **54**, 569-573 (2005)
- 3) 木立博, 石川陽一, 佐々木俊行：放射性物質の広域的拡散に関する基礎的解析 (第1報) - 環境ガンマ

線量率に影響を与える天然放射性核種の発生源と移動経路のバックトラジェクトリー解析 - 宮城県原子力センター年報, **20**, 10-17 (2002)

- 4) 吉本高志, 鶴谷亮太, 内田賢吾：石川県における空間放射線量率の時間的・地域的変動についての解析, 石川県保健環境センター研究報告書, **57**, 23-30 (2020)
- 5) 日本気象協会, 過去の天気, <https://tenki.jp/past/>, (参照2021-04-01)
- 6) 気象庁, 過去の気象データ検索, <https://www.data.jma.go.jp/obd/stats/etrn/index.php>, (参照2021-04-01)
- 7) Department of Atmospheric Science, University of Wyoming, <http://weather.uwyo.edu/upperair/sounding.html>, (参照2021-12-1)
- 8) 岩槻秀明：図解入門 最新気象学のキホンがよ〜わかる本 第3版, 132-136, 秀和システム (2017)
- 9) 国立環境研究所地球環境研究センター, CGER METEX, <https://db.cger.nies.go.jp/metex/web-metex.jp.html>, (参照2021-04-01)
- 10) 金沢地方気象台：石川県の気象概況 (令和2年10月)
- 11) 金沢地方気象台：石川県の気象概況 (令和2年8月)
- 12) ラドン族調査研究委員会：大気中のラドン族と環境放射能, 177-186, 社団法人日本原子力学会 (1985)

〔短 報〕

降下物，大気浮遊じん中のベリリウム-7及び鉛-210の変動と挙動（第3報）

- 年変動と乾性沈着 -

石川県保健環境センター 環境科学部 井上 和幸・鳥屋子やまと・
岡田 真規子・内田 賢吾

〔和文要旨〕

当センターの屋上で，採取した大気浮遊じん及び降下物中のベリリウム-7と鉛-210を測定した。大気浮遊じんでは，ベリリウム-7及び鉛-210のいずれも5月に年間最高濃度を示した。10月，2月，3月では濃度変動が小さいが，8月，9月では大きかった。

1時間あたりの降下量は，ベリリウム-7及び鉛-210がそれぞれ11月，12月に年間最大値を示した。変動幅は大気浮遊じんより大きく，2月～3月は変動が小さいが，8月～10月は変動が大きかった。

降水の有無から算出した乾性沈着量の割合はベリリウム-7が2.5%，鉛-210が5.0%，乾性沈着速度から求めた割合は，ベリリウム-7が3.9%，鉛-210が6.2%で，同様の割合を得た。

キーワード：大気浮遊じん，降下物，ベリリウム-7，鉛-210，乾性沈着

1 はじめに

本県では，「志賀原子力発電所周辺の安全確保及び環境保全に関する協定書」に基づき，平成2年7月から志賀原子力発電所周辺の環境放射線監視において，降水等により地表面にもたらされる雨水・塵等を「降下物」とし，大気中に含まれる塵を「大気浮遊じん」として放射能を測定している^{1) 2)}。

当センターにおいては，原子力発電所事故時の人工放射性核種の大気沈着プロセスを検討するため，大気浮遊じん及び降下物に含まれるベリリウム-7及び鉛-210の調査を実施している。

第1報³⁾においては，平成25年度から令和元年度までの降下物及び大気浮遊じんの測定結果から，

- ・降下物中のベリリウム-7，鉛-210の降下量は12月～2月に多く，大気浮遊じん中のベリリウム-7，鉛-210の濃度は2～3月，10～11月に高くなったこと

・降下物中の鉛-210/ベリリウム-7比と大気浮遊じん中の鉛-210/ベリリウム-7比に差がみられ，ベリリウム-7と鉛-210の起源の違いに原因があることを報告した。

また，第2報⁴⁾においては，数日間の降下物及び大気浮遊じんの測定結果から，降水や前線の通過，空気塊の動き等の気象状況の変化が，大気浮遊じん中及び降下物中のベリリウム-7，鉛-210の濃度に与える影響について考察した。

本報では第1報，第2報を踏まえて，3～4日程度の採取間隔での調査を年間を通じて実施し，大気浮遊じん及び降下物に含まれるベリリウム-7，鉛-210の季節変動や乾性・湿性沈着量及び沈着速度について検討を行った。

2 調査方法

2.1 調査対象

Variation and Behavior of Beryllium-7 and Lead-210 in Fallout and Airborne Dust(3rd.Report) - Annual Variation and Dry Deposition -. by INOUE Kazuyuki, TOYANAGO Yamato, OKADA Makiko and UCHIDA Kengo(Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Airborne Dust, Fallout, Beryllium-7, Lead-210, Dry Deposition

(1) 大気浮遊じん

大気浮遊じんは、当センター（金沢市太陽が丘）B棟屋上においてハイボリウムエアサンプラー（紀本電子工業（株）製120SL）を用い、流速1,200 L/minで、ろ紙（Advantec製GB-100）に採取した。その様子を図1に示す。



図1 大気浮遊じんと降下物の採取

(2) 降下物

降下物（雨水、塵等）は、当センターB棟屋上1mの高さに「角型たらい」（新輝合成（株）120型、面積0.48m²）を設置し採取した。

(3) 気象情報

気象情報は、気象庁の気象データ⁵⁾より医王山の降水量データを活用した。

2・2 調査期間

令和2年4月3日から令和3年4月2日までの間（以下、「全期間」という。）、週2回（主に、月曜から金曜と、金曜から月曜まで）採取を行った。

2・3 測定方法

(1) 試料の調製

大気浮遊じんを採取したろ紙は6.5cm×5.5cmに折り畳み、アクリル製測定容器に詰め、測定試料とした。

採取した降下物はビーカーに移した後、採取に用いた角型たらいを塩酸（1+100）及びイオン交換水で洗浄し、洗液と降下物を合わせて蒸発濃縮後、U-8容器に入れて、乾固させ、測定試料とした。

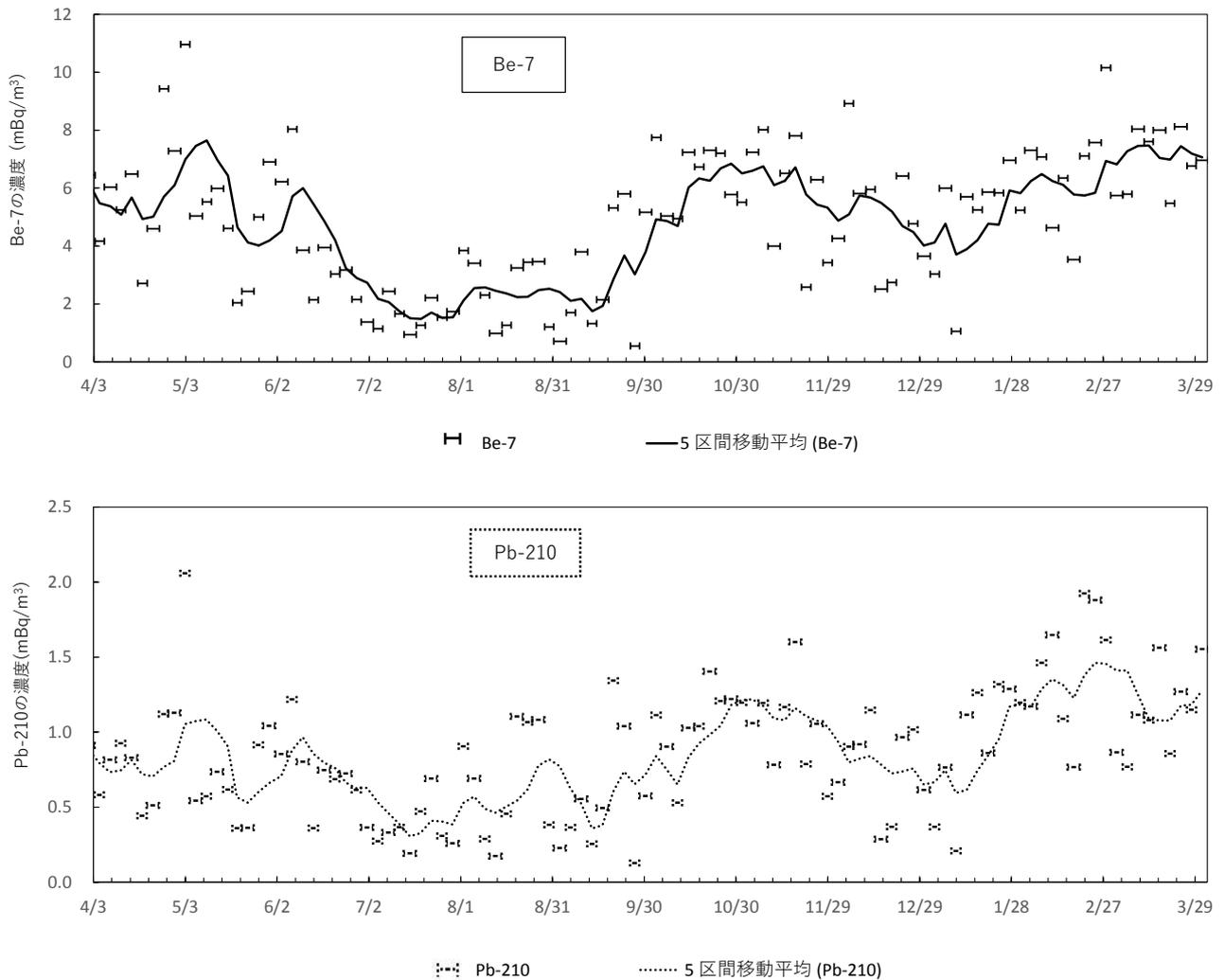


図2 大気浮遊じん中のBe-7、Pb-210濃度

(2) 放射能分析 (ガンマ線核種分析)

測定は、ゲルマニウム半導体検出器 (SEIKO EG&G 製 GEM-C7080-LB-C-HJ-S, 相対効率 45% 程度, 分解能 2keV 未満, 鉛-210 などの低エネルギーガンマ線測定が行えるもの) によるガンマ線核種分析とし, 測定時間は 80,000 秒とした。(検出状況によっては 80,000 秒以上の長時間測定を実施)

測定結果については, 採取開始から採取終了までの中間日時で半減期補正した。

3 調査結果と考察

3.1 大気浮遊じん

大気浮遊じん中のベリリウム-7, 鉛-210 濃度とそれぞれ 5 区間の移動平均データを図 2 に示す。

ベリリウム-7 の濃度は 0.55 ~ 11 mBq/m³ の範囲であり, 平均値は 4.8 mBq/m³ であった。また, 鉛-210 の濃度は, 0.13 ~ 2.1 mBq/m³ の範囲であり, 平均値は 0.85 mBq/m³ であった。

全期間のうちベリリウム-7 と鉛-210 が最高値を示した期間は, 5 月 1 日 ~ 5 月 4 日で, それぞれ 11 mBq/m³, 2.1 mBq/m³ であった。

月別の大気浮遊じん中の濃度の平均値及び変動係数を表 1 に示す。

月別平均値は, ベリリウム-7 が 3 月に 6.95 mBq/m³, 鉛-210 が 2 月に 1.44 mBq/m³ と最大値となり, 10 月にもベリリウム-7 が 6.39 mBq/m³, 鉛-210 が 1.07 mBq/m³ と高い値を示した。

年変動として, ベリリウム-7 と鉛-210 のいずれも 2 ~ 3 月と 10 月に高くなる傾向となり, 第 1 報と同様の結果となった。

大気浮遊じん中の濃度の変動係数をみると, ベリリウム-7 が 15 ~ 64% (平均値 40%), 鉛-210 が 23 ~ 68% (平均値 43%) であった。変動係数が 50% を超えたのはベリリウム-7 が 6 月, 8 月, 9 月, 鉛-210 が 5 月, 7 月, 8 月, 9 月であった。第 1 報からこの時期は海洋性気団の影響を受け濃度が低くなる時期である。

逆に, 変動係数が 30% 以下と小さくなったのはベリリウム-7, 鉛-210 とも 10 月, 2 月, 3 月であり, この時期は大陸性気団の影響を受け濃度が高くなる時期である。

大気浮遊じん中の濃度の変動については, 第 1 報において気団の影響を, 第 2 報において低気圧や前線の通過などの気塊の影響が関連していると考察している。今回求めた変動係数も気団や気塊の動きと関連があると考えられるが, 今回は関連を推定するまでには至らなかった。

3.2 降下物

降下物中のベリリウム-7 及び鉛-210 の 1 時間あたりの降下量とそれぞれの 5 区間の移動平均データ及び日ごとの降水量を図 3 に示す。

ベリリウム-7 の 1 時間あたりの降下量は, 0 ~ 2.7 Bq/m²/h の範囲であり平均値は 0.62 Bq/m²/h であった。また, 鉛-210 では, 0 ~ 0.43 Bq/m²/h の範囲であり平均値は 0.08 Bq/m²/h であった。

ベリリウム-7 は 11 月 27 日 ~ 11 月 30 日に 0.62 Bq/m²/h, 鉛-210 は 12 月 11 日 ~ 12 月 14 日に 0.43 Bq/m²/h と, それぞれ年間の最大値となった。

月別の降下量の平均値及び変動係数を表 2 に示す。

月別平均値は, ベリリウム-7 が 1 月に 1.45 Bq/m²/h, 鉛-210 が 12 月に 0.21 Bq/m²/h と最大値を示した。

表 1 大気浮遊じん中のベリリウム-7、鉛-210 濃度 (月別)

	ベリリウム-7			鉛-210		
	平均値	標準偏差	変動係数	平均値	標準偏差	変動係数
	(mBq/m ³)	(mBq/m ³)	(%)	(mBq/m ³)	(mBq/m ³)	(%)
令和2年 4月 (4.3~5.1)	5.75	2.07	36	0.79	0.26	33
5月 (5.1~6.1)	5.39	2.61	48	0.80	0.52	65
6月 (6.1~7.3)	3.77	2.12	56	0.71	0.26	37
7月 (7.3~8.3)	1.86	0.88	47	0.42	0.23	55
8月 (8.3~9.4)	2.22	1.19	53	0.61	0.39	64
9月 (9.4~10.2)	3.22	2.05	64	0.59	0.41	68
10月 (10.2~11.2)	6.39	1.07	17	1.07	0.25	23
11月 (11.2~12.4)	5.57	2.03	36	0.99	0.32	32
12月 (12.4~1.1)	5.10	2.14	42	0.78	0.32	41
令和3年 1月 (1.1~2.1)	4.99	1.81	36	0.93	0.41	44
2月 (2.1~3.1)	6.72	1.99	30	1.44	0.41	28
3月 (3.1~4.2)	6.95	1.07	15	1.14	0.29	25
平均値	4.83	1.75	40	0.86	0.34	43

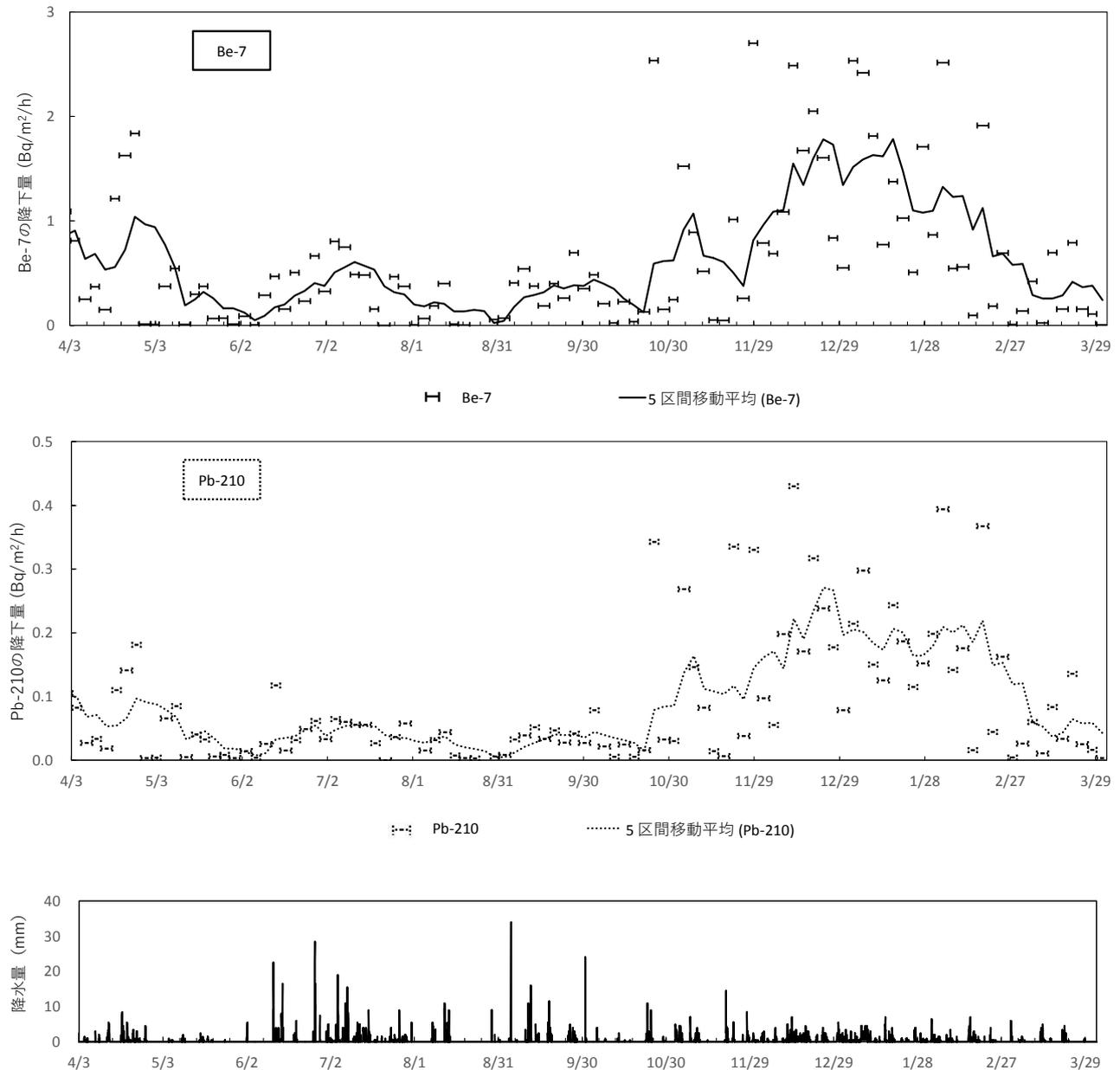


図3 降下物中に含まれるBe-7、Pb-210及び降水量

年変動として、ベリリウム-7と鉛-210のいずれも11月～3月に降下量が多くなる傾向となった。第1報では、12月～2月に多い傾向を示しており、今回とほぼ同様の結果となった。

降下量の変動係数をみると、ベリリウム-7が50～177%（月間平均値90%）、鉛-210が23～174%（月間平均値82%）であり、大気浮遊じんより変動の幅が大きくなった。令和2年4月及び令和3年2月～3月では、ベリリウム-7の変動係数が100%前後、鉛-210の変動係数が90%前後と安定した値を示しているのに対し、令和2年8月～10月にかけては、月ごとの変動係数の差が大きかった。

降下量については降水量と関係があり、第1報におい

て、降水量が増えても降下量が増えない時期（相関が低いグループ。5月～10月）と降水量とともに降下量が増える時期（相関が高いグループ。11月～4月）に分けられるとしている。今回の変動係数と比較すると、2月～3月に、変動係数が安定している時期は、降水量とともに降下量が増えるという点で一致していた。

3.3 乾性沈着, 湿性沈着, 沈着速度

大気中の粒子が地表面に沈着するモデルを図4に示す。沈着には、物質が降水を介さずにガス状または粒子状の状態のまま地表面に降下する乾性沈着と、物質が雲や降水に取り込まれて地表面に降下する湿性沈着があり⁶⁾、それぞれの量を乾性沈着量、湿性沈着量と呼ぶ。

表 2 1 時間あたりのベリリウム-7、鉛-210の降下量 (月別)

	ベリリウム-7			鉛-210		
	平均値	標準偏差	変動係数	平均値	標準偏差	変動係数
	(Bq/m ² /h)	(Bq/m ² /h)	(%)	(Bq/m ² /h)	(Bq/m ² /h)	(%)
令和2年 4月 (4.3~5.1)	0.78	0.70	90	0.07	0.06	87
5月 (5.1~6.1)	0.20	0.20	104	0.03	0.03	110
6月 (6.1~7.3)	0.30	0.21	70	0.04	0.03	88
7月 (7.3~8.3)	0.44	0.27	61	0.05	0.01	27
8月 (8.3~9.4)	0.11	0.14	123	0.01	0.02	102
9月 (9.4~10.2)	0.40	0.16	39	0.04	0.01	23
10月 (10.2~11.2)	0.45	0.79	177	0.06	0.11	174
11月 (11.2~12.4)	0.87	0.84	97	0.15	0.13	90
12月 (12.4~1.1)	1.37	0.69	50	0.21	0.12	59
令和3年 1月 (1.1~2.1)	1.45	0.72	50	0.19	0.06	32
2月 (2.1~3.1)	0.81	0.91	112	0.16	0.15	92
3月 (3.1~4.2)	0.28	0.29	105	0.04	0.04	97
月間平均値	0.62	0.49	90	0.09	0.07	82

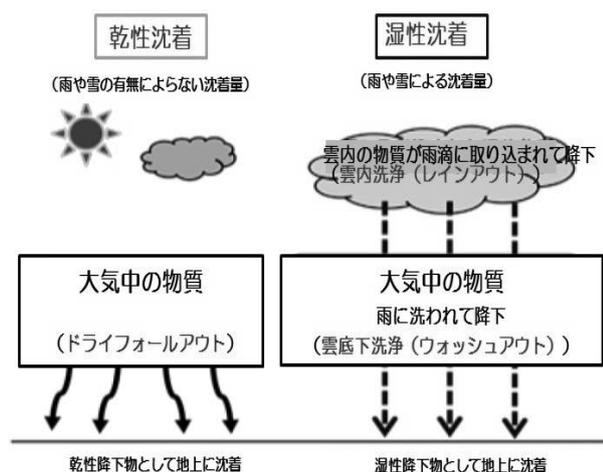


図 4 乾性沈着と湿性沈着

また、湿性沈着は、雲粒に取り込まれた後、降水により降下するレインアウトと、降水によって雲底下で洗浄されるウォッシュアウトに分類される⁷⁾⁻⁹⁾。

本報では、乾性沈着量と湿性沈着量の割合を算出するにあたり、(1) 降水の有無により降下量から算出す

る方法と (2) 沈着速度から算出する方法について検討した。

(1) 降水の有無により降下量から乾性沈着量・湿性沈着量を算出

乾性沈着量を算出するにあたり、降下物に含まれるベリリウム-7及び鉛-210の1時間あたりの降下量を、降水の有無によって分類した結果を表3に、降水が無い場合の降下量を図5に示す。

降水量が無かった期間(降水量0mm)は、全期間のうち15回あり、ベリリウム-7の1時間あたりの降下量は0.0030~0.069 Bq/m²/hの範囲で、平均値は0.016 Bq/m²/h、全期間を通じた降下量は16 Bq/m²であった。鉛-210の1時間あたりの降下量は0.0027~0.011 Bq/m²/hの範囲で、平均値は0.0050 Bq/m²/h、全期間を通じた降下量は5.4 Bq/m²であった。

降水量が有った期間は、全期間のうち88回あり、ベリリウム-7の1時間あたりの降下量は0.037~2.7 Bq/m²/hの範囲で、平均値は0.72 Bq/m²/h、全期間を通じた降下量は5,200 Bq/m²であった。また、鉛-210の1時間あたりの降下量は0.0055~0.43 Bq/m²/hの範

表 3 1 時間あたりの降下量及び全期間を通じた降下量 (降水量別)

降水量 (回数 ^{*1})	降水量0mm (n=15)			降水量0mm超 (n=88)		
	1 時間あたりの降下量		全期間を通じた降下量	1 時間あたりの降下量		全期間を通じた降下量
	範囲	平均値 ^{*2}	年合計	範囲	平均値 ^{*2}	年合計
	(Bq/m ² /h)	(Bq/m ² /h)	(Bq/m ²)	(Bq/m ² /h)	(Bq/m ² /h)	(Bq/m ²)
ベリリウム-7	0.0030 ~ 0.069	0.016	16	0.037 ~ 2.7	0.72	5,200
鉛-210	0.0027 ~ 0.011	0.0050	5.4	0.0055 ~ 0.43	0.10	730

*1 欠測1回

*2 NDを除いて算出(降水量0mmではベリリウム-7、鉛-210それぞれND2回、0mm超では0回)

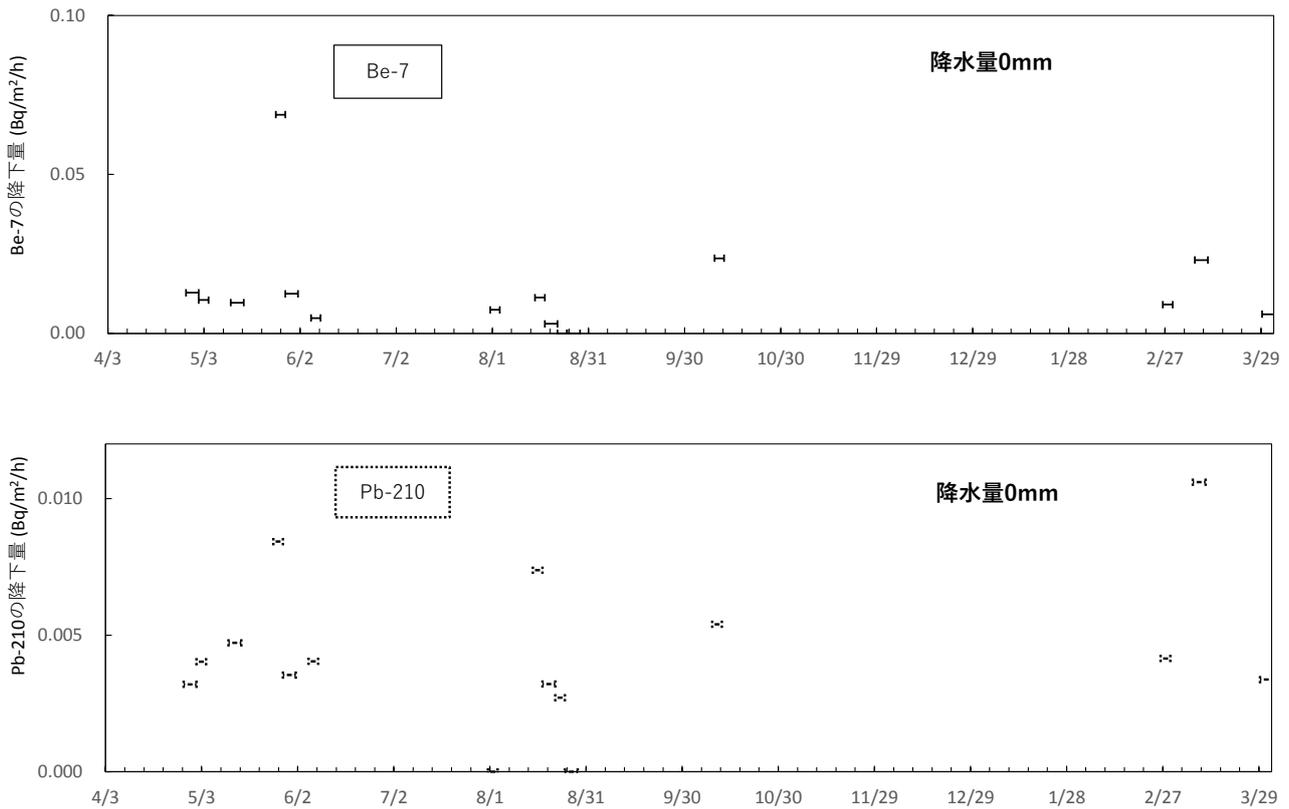


図5 降下量（降水量別）

囲で、平均値は0.10 Bq/m²/h、全期間を通じた降下量は730 Bq/m²であった。

降水量が無かった期間の降下量を乾性沈着量とし、降水量が有った期間の降下量を乾性沈着量と湿性沈着量の合計として算出した結果を表4に示す。なお、降

表4 乾性沈着量と湿性沈着量の年合計

	降水量	ベリリウム-7 (Bq/m ²)	鉛-210 (Bq/m ²)
湿性沈着量	0mm超	5,100	700
	0mm	-	-
	計	5,100 (97.5%)	700 (95.0%)
乾性沈着量	0mm超	120	37
	0mm	16	5.4
	計	130 (2.5%)	42 (5.0%)
合計	0mm超	5,200	730
	0mm	16	5.4
	計	5,200 (100%)	740 (100%)

水量が有った期間の乾性沈着量は、降水量が無かった期間の1時間あたりの平均降下量（ベリリウム-7が0.016 Bq/m²/h、鉛-210が0.0050 Bq/m²/h）に、降水量が有った期間の時間（7,400h）を乗じて算出した。

全降下量に対する乾性沈着量（降水量が無かった期間の降下量と降水量が有った期間の降下量の和）の割合は、ベリリウム-7では2.5%、鉛-210では5.0%と算出された。

なお、降水が無かった期間において、ベリリウム-7及び鉛-210が検出されなかった2回については、本算出から除外した。

(2) 沈着速度から乾性沈着量・湿性沈着量を算出

(1) で求めた全降下量に対する乾性沈着量の割合を確認するため、沈着速度から、乾性沈着量及び湿性沈着量を求めた。

ア 沈着速度を算出

G.Ronsnerらの方法¹⁰⁾により沈着速度を算出した。

沈着速度 (cm/s) = 降下量 (Bq/cm²/s) / 大気浮遊じん中濃度 (Bq/cm³)

降水の有無に分けて、沈着速度の結果を表5及び図6に示す。

表5 沈着速度（降水量別）

降水量 (回数*1)	降水量0mm (n=15)		降水量0mm超 (n=88)	
	項目	範囲	平均*2	範囲
Be-7 (cm/s)	0.017 ~ 0.38	0.089	0.15 ~ 48	6.0
Pb-210 (cm/s)	0.054 ~ 0.45	0.16	0.11 ~ 24	4.3

*1 欠測1回

*2 NDを除いて算出(降水量0mmではBe-7、Pb-210それぞれND2回)

沈着速度は、ベリリウム-7と鉛-210のいずれも12月～1月に速くなり、3月～4月には比較的遅い値を示した。

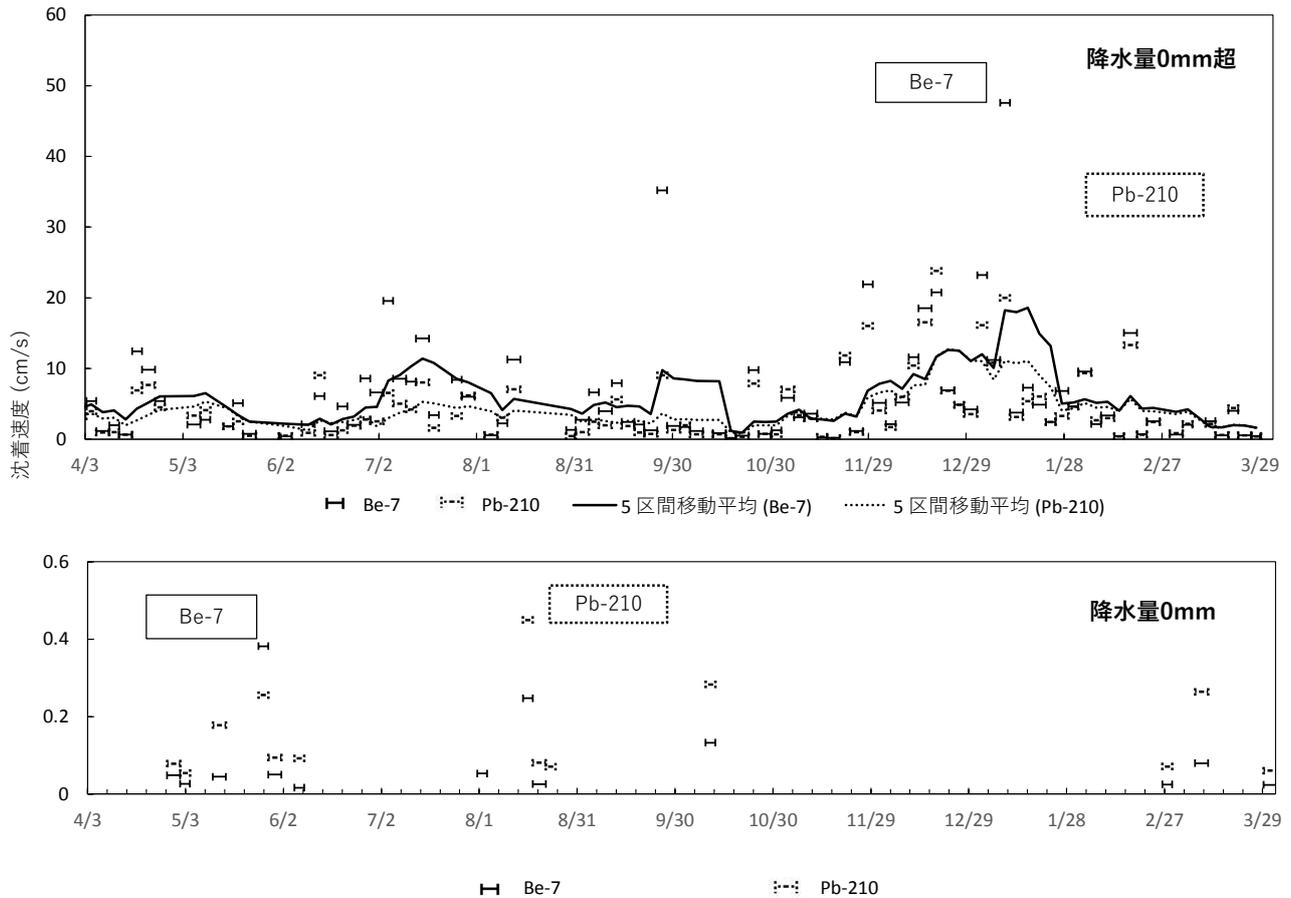


図6 沈着速度 (降水量別, 算出)

表5より、乾性沈着を示す降水量が無かった期間では、ベリリウム-7の沈着速度は0.017～0.38 cm/sの範囲で、平均値は0.089 cm/sであった。また、鉛-210の沈着速度は0.054～0.45 cm/sの範囲で、平均値は0.16 cm/sであった。

降水があった期間では、ベリリウム-7の沈着速度は0.15～48 cm/sの範囲で、平均値は6.0 cm/sであった。また、鉛-210の沈着速度は0.11～24 cm/sの範囲で、平均値は4.3 cm/sであった。

降下物にベリリウム-7と鉛-210が含まれているため、この降下物の乾性沈着速度は0.089～0.16 cm/s、湿性沈着速度は、4.3～6.0 cm/sの範囲であった。

なお、(1)と同様に、降水が無かった期間において、ベリリウム-7及び鉛-210が検出されなかった2回については、本算出から除外した。

乾性沈着速度は、1991年～1994年にドイツのミュンヘンで調査したベリリウム-7の乾性沈着の結果0.16 cm/s⁹⁾と比べて同様の値を示していた。

イ 乾性沈着量・湿性沈着量を算出

アで求めた乾性沈着速度、大気浮遊じん中の濃度及び採取時間から乾性沈着量を求めた。また、湿性沈着

量は、全降下量から乾性沈着量を引いて求め、全期間における算出結果を表6及び図7に示した。

・乾性沈着量 (D_d)	
$D_d = C_a \cdot V_d \cdot T_{int}$	C_a : 大気中濃度 (Bq/m^3)
	V_d : 乾性沈着速度 (cm/s)
	T_{int} : 採取期間 (s)
・湿性沈着量は、(全降下量-乾性沈着量) から算出	

表6より、ベリリウム-7については、全降下量は0～2.7 Bq/m²/hの範囲で平均値は0.61 Bq/m²/hであった。そのうち、乾性沈着量は0～0.069 Bq/m²/hの範囲で、平均値0.024 Bq/m²/hで全降下量の3.9%であった。また、湿性沈着量は0～2.7 Bq/m²/hの範囲で平均値0.59 Bq/m²/hで全降下量の96.1%であった。

鉛-210については、全降下量は0～0.43 Bq/m²/hの範囲で平均値は0.086 Bq/m²/hであった。そのうち、乾性沈着量は0～0.016 Bq/m²/hの範囲で、平均値0.0053 Bq/m²/hで全降下量の6.2%であった。また、湿性沈着量は0～0.42 Bq/m²/hの範囲で平均値0.081 Bq/m²/h

表6 乾性沈着量と湿性沈着量の試算結果

項目	全降下量				乾性沈着量				湿性沈着量			
	範囲	平均値	年合計		範囲	平均値	年合計		範囲	平均値	年合計	
Be-7 (Bq/m ² /h)	0 ~ 2.7	0.61	63	(100%)	0 ~ 0.069	0.024	2.4	(3.9%)	0 ~ 2.7	0.59	61	(96.1%)
Pb-210 (Bq/m ² /h)	0 ~ 0.43	0.086	8.9	(100%)	0 ~ 0.016	0.0053	0.55	(6.2%)	0 ~ 0.42	0.081	8.3	(93.8%)

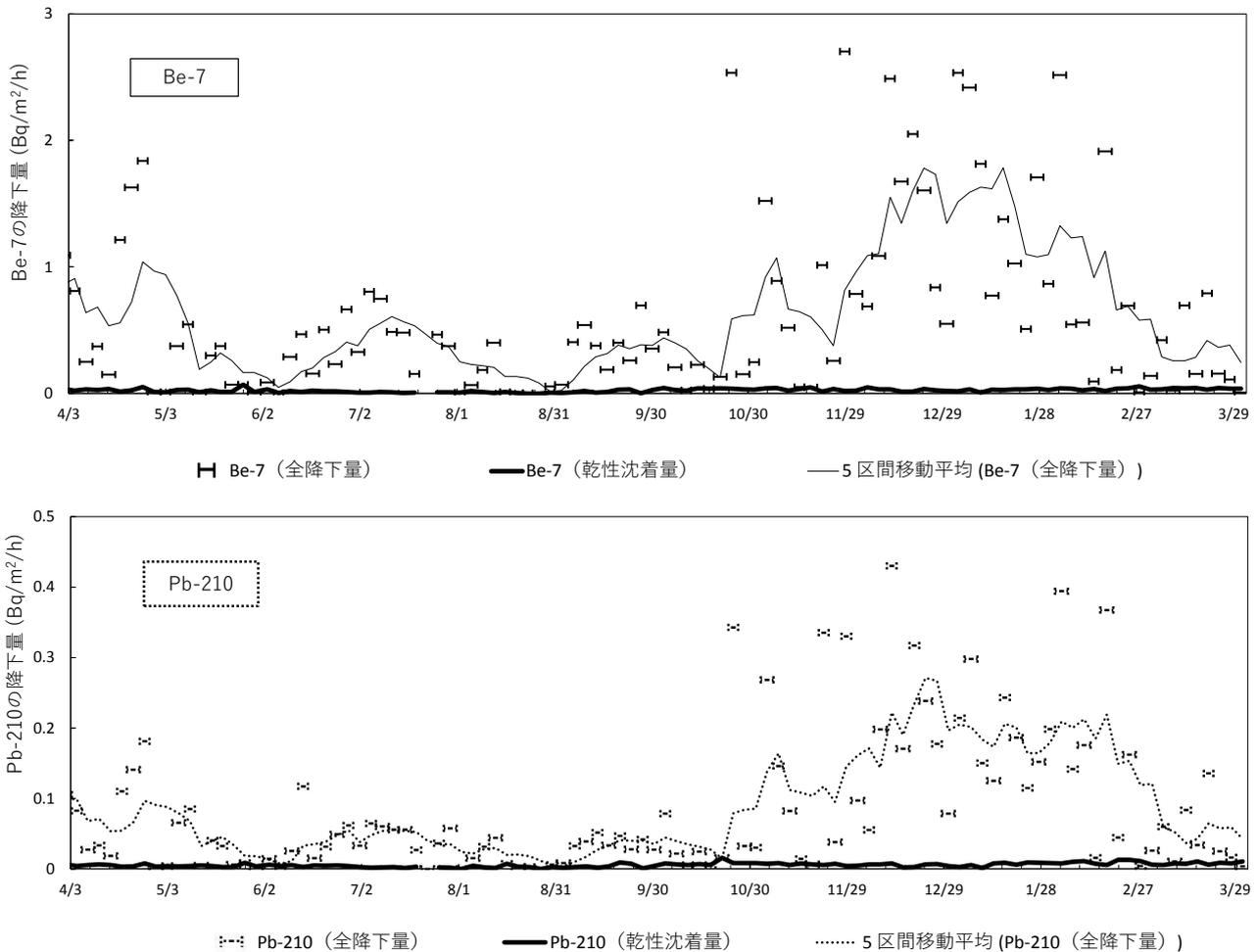


図7 沈着量 (算出)

で全降下量の93.8%であった。

全降下量に対する乾性沈着量の割合は、ベリリウム-7では3.9%、鉛-210では6.2%と算出され、(1)で算出された結果であるベリリウム-7では2.5%、鉛-210では5.0%とほぼ同様の値となった。

4 まとめ

当センター屋上において、令和2年4月3日～令和3年4月2日、大気浮遊じん及び降下物の試料採取を週2回行い、ベリリウム-7と鉛-210を測定し、以下の結果を得た。

(1) 全期間のうちベリリウム-7と鉛-210が最高値を示した期間は、5月1日～5月4日で、それぞれ11 mBq/m³、2.1 mBq/m³であった。

月別平均値は、ベリリウム-7が3月に6.95 mBq/m³、鉛-210が2月に1.44 mBq/m³と最大値となり、10月にもベリリウム-7が6.39 mBq/m³、鉛-210が1.07 mBq/m³と高い値を示した。

大気浮遊じん中の濃度の変動係数をみると50%を超えたのはベリリウム-7が6月、8月、9月、鉛-210が5月、7月、8月、9月であり、この時期は海洋性気団の影響を受け濃度が低くなる時期である。

変動係数が小さくなったのはベリリウム-7、鉛-210とも10月、2月、3月であり、この時期は大陸性気団の影響を受け濃度が高くなる時期である。

(2) 降下物では、ベリリウム-7は11月27日～11月30日に0.62 Bq/m²/h、鉛-210は12月11日～12月14日に0.43 Bq/m²/hと、それぞれ年間の最大値となった。

月別平均値は、ベリリウム-7が1月に1.45 Bq/m²/h、鉛-210が12月に0.21 Bq/m²/hと最大値を示し、年変動としていずれも11月～3月に降下量が多くなる傾向となった。

降下量の変動は、大気浮遊じんより大きく、令和2年4月及び令和3年2月～令和3年3月では、ベリリウム-7の変動係数が100%前後、鉛-210の変動係数が90%前後と安定しているのに対し、令和2年8月～10月にかけては変動の幅が大きかった。変動係数の大小の違いは、降水量と降下量の関係が、時期によって異なっていることを反映した結果となった。

- (3) 降水の有無による降下量から乾性沈着量・湿性沈着量を算出した。その結果、全降下量に対する乾性沈着量の割合は、ベリリウム-7では2.5%、鉛-210では5.0%と算出された。
- (4) ベリリウム-7と鉛-210の乾性沈着速度を求めた結果、ベリリウム-7は平均値0.089 cm/s、鉛-210は平均値0.16 cm/sであった。
- (5) 乾性沈着速度から乾性沈着量を求め、全沈着量に対する割合を求めたところ、ベリリウム-7は全降下量の3.9%、鉛-210は6.2%であり(3)の結果と同様の割合を得た。

文 献

- 1) 石川県, 志賀町, 北陸電力: 志賀原子力発電所周辺環境放射線監視結果報告書(平成2年度～令和元年度)
- 2) 石川県, 志賀町, 北陸電力: 志賀原子力発電所周辺環境放射線監視年度計画(平成2年度～令和元年度)
- 3) 内田賢吾, 宮竹智代, 河野隆史, 小林浩美, 鶴谷亮太, 山口麻美, 吉本高志: 降下物, 大気浮遊じん中のベリリウム-7及び鉛-210の変動と挙動(第1報), 石川県保健環境センター研究報告書, **57**, 8-18 (2020)
- 4) 内田賢吾, 河野隆史, 宮竹智代, 鶴谷亮太, 吉本高志, 内川慎互, 川畑俊之: 降下物, 大気浮遊じん中のベリリウム-7及び鉛-210の変動と挙動(第2報), 石川県保健環境センター研究報告書, **57**, 65-71 (2020)
- 5) 気象庁, 過去の気象データ検索, <https://www.data.jma.go.jp/obd/stats/etrn/index.php> (参照 2021-04-01)
- 6) 市橋正生: 日本付近の地震発生日と高崎の大気中ベリリウム-7濃度の関係に係る統計分析, 地震, **64**, 23-32 (2011)
- 7) 藤田慎一, 三浦和彦, 大河内博, 速水洋, 松田和秀, 櫻井達也: 越境大気汚染の物理と化学, 2訂版, 181-182, 成山堂書店(2021)
- 8) 中村圭三, 三谷雅肆: 硫酸イオンと硝酸イオンの湿性沈着量と月間降水量との関係, 天気, **56** (3), 39-43, 日本気象協会(2009)
- 9) 笠原三紀夫: 大気汚染物資の降雨洗浄作用, 環境技術, **23** (10), 26-30 (1994)
- 10) G. Rosner, H. Hötzl and R. Winkler: Continuous Wet-only and Dry-only Deposition Measurements of ¹³⁷Cs and ⁷Be - an Indicator of their Origin, Applied Radiation and Isotopes, **47** (9), 1135-1139 (1996)

〔短 報〕

環境水中のトリチウム — 水道水, 降水 —

石川県保健環境センター 環境科学部

岡田 真規子・山岸 喜信・河野 隆史・
牧野 雅英・内田 賢吾

〔和文要旨〕

本県では、1990年度から志賀町の2地点で、水道水（水源が地下水、表流水）のトリチウムの調査を行っている。調査開始以降、トリチウム濃度は徐々に低下し、2018年以降検出されたのは水道水（水源が表流水）のみであり、検出下限値程度の低い濃度レベルであった。

2020年1月から降水中トリチウムの調査を行った結果、水道水（水源が表流水）と同程度のトリチウムが検出された。水道水から検出されたトリチウムは、過去の大気圏内核実験や原子力発電施設等によるものではなく、宇宙線生成核種として生成されたトリチウムが降水により、もたらされたものと考えられた。

降水中トリチウムと大陸起源の黄砂などの土壌粒子の評価指標に用いられる $nss-Ca^{2+}$ 濃度との相関性から、大陸性気団等の影響を受けてトリチウムが移流していると考えられた。

キーワード：トリチウム, 水道水, 降水, 季節変動

1 はじめに

トリチウム (3H) は、水素の放射性同位体（半減期 12.32年）で環境中には H_2O の形で多く存在する。主な起源は、宇宙線による窒素、酸素原子の核破砕反応による生成（宇宙線生成核種）及び過去の大気圏内核実験によるフォールアウト、原子力発電・核燃料再処理に伴う放出である。

本県では、1990年度から志賀原子力発電所監視事業¹⁾において、水道水中トリチウムを志賀町内2地点（水源：地下水、表流水）で調査している。今回、この結果をとりまとめ、全国の陸水中のトリチウムと比較したので報告する。

2地点の水道水のうち2018年以降トリチウムが検出されたのは水源が表流水の水道水のみであった。表流水の主な起源は降水であることから、2020年1月から降水中トリチウムについて調査を行ったので、その結果もあわせて報告する。

2 調査方法

2・1 試料採取

採取地点を図1に示す。

水道水は、地下水（深井戸）を水源とする志賀町末吉の水道水（以下「水道水（水源が地下水）」という。）と表流水を水源とする志賀町富来領家の水道水（以下「水道水（水源が表流水）」という。）の2地点で、1990年度から年4回（4月、7月、10月、1月）採取した。

降水は当センター屋上（金沢市太陽が丘）で、環境放射能水準調査（原子力規制庁委託事業）の全ベータ放射能調査として、平日（祝日除く）の毎朝9時（降水が観測された場合のみ）に採取している定時降水試料（以下「定時降水試料」という。）を用いた。採取期間は2020年1月から2021年3月で、調査試料数は142件であった。

2・2 調査項目

調査項目として、水道水はトリチウムを、降水はト

Study of Tritium in Environmental Water. by OKADA Makiko, YAMAGISHI Yoshinobu, KAWANO Takafumi, MAKINO Masahide and UCHIDA Kengo (Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Tritium, Tap Water, Precipitation, Seasonal Variability

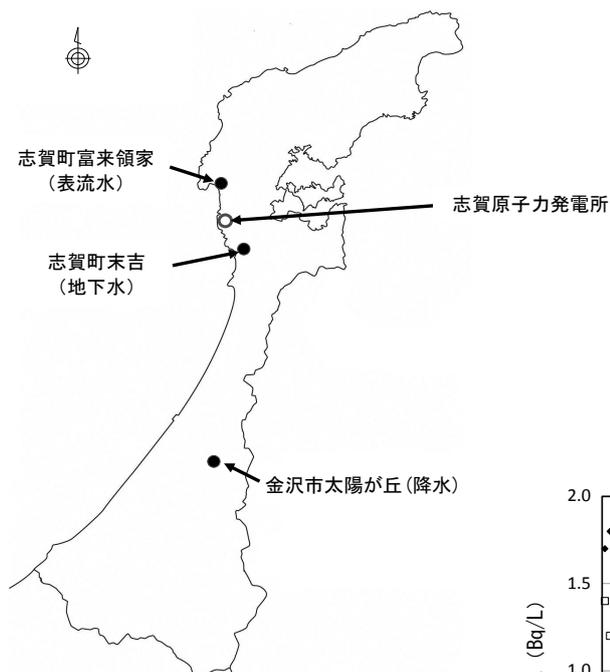


図 1 試料採取地点

リチウム及び各種イオン成分 (Na^+ , K^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} , Cl^- , SO_4^{2-} , NO_3^-) を対象とした。

2・3 試料の前処理及び測定

(1) トリチウム

試料の前処理及び測定は放射能測定法シリーズ9「トリチウム分析法」²⁾に基づき行った。

試料水100mLに対し過酸化ナトリウム(富士フィルム和光純薬(株)製,化学用)及び過マンガン酸カリウム(和光純薬工業(株)製,有害金属測定用)を各0.1gずつ加え,ロータリーエバポレーター(ウォーターバス:55℃)を用いて減圧蒸留した。蒸留した試料水50mLを100mLのテフロンバイアルに採り,乳化シンチレータ(Perkin Elmer Japan製,Ultima Gold LLT)を50mL加え混合し測定試料とし,測定器内に約1週間静置後測定した。バックグラウンド水は,(公財)日本分析センターから提供された無トリチウム水を用いた。

測定は,液体シンチレーションカウンタLSC-LB7(株日立製作所製)及びLSC-LB5(アロカ(株)製)を用いた。

測定時間は2,550分(50分×17回×3サイクル)とした。化学ルミネッセンスの影響を排除するため,6回目以降の測定データ12個について,カイ2乗検定及びKシグマ検定を用いて異常値等を棄却し,計10個のデータを採用した。

検出下限値は,試料水及びバックグラウンド水の測定時の計数誤差(3σ)から算出する 3σ 法により求めた。(おおよそ0.3~0.4 Bq/L)

(2) 各種イオン成分

採取した試料水を孔径0.2μmのクロマトディスク(株ジーエルサイエンス製)を用いてろ過して測定試料とし,イオンクロマトグラフProminence HIC-SP(株島津製作所製)を用いて測定した。 Na^+ , K^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} , Cl^- , SO_4^{2-} , NO_3^- の各標準溶液(100mg/L)はキシダ(株)製を用いた。

3 結果及び考察

3・1 水道水中トリチウム

水道水中のトリチウム濃度の経年変化(1990~2020年度)を図2に示す。

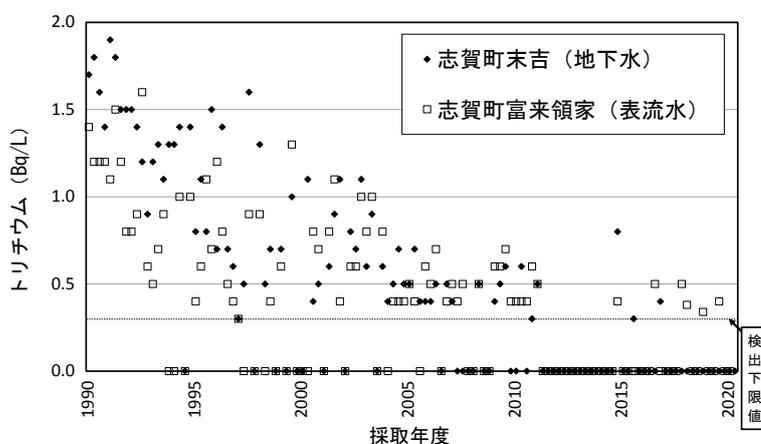


図 2 水道水中のトリチウム濃度の経年変化

水道水(水源が地下水)は1991年に1.9Bq/L,水道水(水源が表流水)は1993年に1.6Bq/Lの最高値を観測し,その後,濃度が低下,2004年度以降両者とも1.0Bq/L未満となった。2018年以降トリチウムが検出されたのは水道水(水源が表流水)のみであり,0.5Bq/L以下と検出下限値程度の低い濃度レベルとなっている。

2011年3月の福島第一原子力発電所事故により環境中にトリチウムが放出されたが,この調査結果からは事故による明らかな影響は見られなかった。

3・2 降水中トリチウム

3・1において水道水(水源が表流水)のみで近年トリチウムが検出されていることから,表流水の主な起

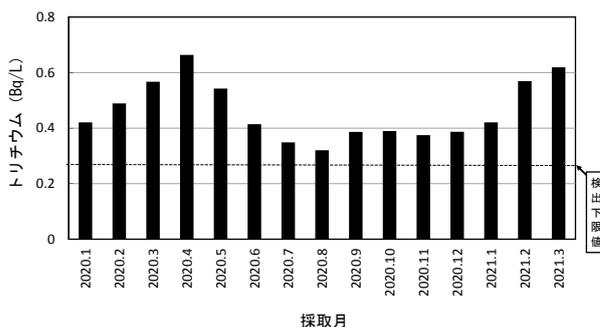


図 3 降水中トリチウムの月別平均濃度

源である降水中のトリチウムについて調査を行った。

降水中トリチウムの月別平均濃度を図3に示す。(なお、検出下限値未満は検出下限値として平均値を算出した。)

降水中トリチウムの月別平均濃度はND(8月)～0.66Bq/L(4月)であり、2～5月に高く、7～8月に低い季節変動が見られた。これは同じ日本海側の北陸地域である新潟県内の降水中トリチウム濃度の季節変動³⁾と同様の結果であった。

降水中トリチウムに季節変動が見られることから、トリチウムの起源について検討を行った。

原子力規制庁所管のデータベース⁴⁾により作成した全国の陸水中トリチウム濃度の経年変化を図4に示す。

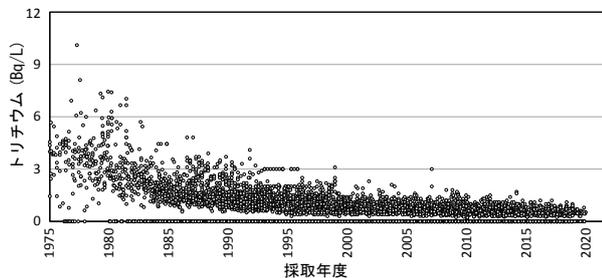


図4 全国の陸水中トリチウム濃度の経年変化
(原子力施設周辺環境放射線モニタリング調査の陸水のデータを参照)

過去の大気圏内核実験の影響を強く受けた1970年代は4.0Bq/L以上であることが多く、最大値は10.1Bq/Lであった。2019年以降はほとんどが1Bq/L未満となっており、126件中84件が検出下限値未満であった。1980年に大気圏内核実験が終了してから40年が経過し、トリチウムの半減期で3半減期以上を経過していることから、大気圏内核実験由来のトリチウムは当初の8分の1以下に低下したことになる。更に地球上にある大量の水により希釈されていることから、降水中トリチウムは過去の大気圏内核実験起源とは考えにくい。

原子力発電・核燃料再処理からもトリチウムが放出されるが、施設の点検に伴う増減はあるものの、季節的な変動は考えられない。このことから、降水中トリチウムは原子力施設・核燃料再処理施設起源とは考えにくい。

既報⁵⁾において、国立環境研究所のMETEX⁶⁾を用いて気塊の移流の計算を行い、11～5月は宇宙線によるトリチウムの生成が多い高緯度地域の大陸起源である気塊の移流が約8割以上を占め、6～9月はトリチウムが少ない海洋起源の気塊の移流が約6割以上を占めていると報告している。また、トリチウムの分布は赤道から両極に向かって濃度が増加する⁷⁾とされていることから、トリチウムの生成が多い大陸の高緯度地域から移

流した気塊により、降水中トリチウムが1～5月に高くなったと報告している。この傾向は降水中のトリチウムの季節変動と一致していた。

今回降水を採取した当センターは金沢市に立地し、水道水を採取した志賀町と南北方向で約50km離れている。既報⁵⁾では、志賀町地内の水産総合センター志賀事務所と当センターの降水中トリチウム濃度は同程度で、季節変動も同程度に推移しているとしている。また、今回の結果でも降水中トリチウムと水道水(水源が表流水)から検出されたトリチウムは、ともに検出下限程度程度の濃度レベルで一致していた。

以上から降水中トリチウムの季節変動は、過去の大気圏内核実験や原子力発電施設等に由来するものではなく、大陸の高緯度地域で生成された宇宙線生成核種のトリチウムを多く含む気塊の移流により2～5月に降水としてもたらされたものと考えられた。

3.3 水道水中トリチウムの起源

3.1で調査を行った志賀町の水道水中のトリチウムは、全国の陸水と同様に濃度が低下し、近年では水道水(水源が表流水)からのみ検出され、検出下限程度の低い濃度レベルとなっている。

3.2で表流水の主な起源となる降水の調査を行った結果、水道水(水源が表流水)と同程度のトリチウムが検出されている。

これらのことから、水道水(水源が表流水)でトリチウムが検出されたのは、大陸の高緯度地域で生成された宇宙線生成核種のトリチウムが移流し、降水とともに地表面にもたらされたものと考えられた。

なお、水道水(水源が地下水)ではトリチウムが検出されなかったが、降水が地下に浸透し地下水(深井戸)となるまでに年単位での時間を要することから、検出されない濃度までトリチウムが減衰したことが一因と考えられた。

3.4 降水中の各種イオン成分

3.2で降水中トリチウムを測定した試料を用い、 Na^+ 、 K^+ 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 Cl^- 、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- の各種イオン成分を測定した。 Na^+ が全て海塩に由来すると仮定し、 SO_4^{2-} より非海塩由来硫酸イオン(以下、 nss-SO_4^{2-})、 Ca^{2+} より非海塩由来カルシウムイオン(以下、 nss-Ca^{2+})を算出した。

降水中イオン成分の月別平均濃度を図5に示す。イオン成分濃度は、降水中トリチウムと同様に季節変動が見られた。

降水中トリチウム濃度と各種イオン成分濃度との相関係数を表1に示す。

NO_3^- 、 Ca^{2+} 及び nss-Ca^{2+} は、トリチウムとの相関係数が0.5以上で他のイオン成分濃度に比べ高い相関がみら

れた。nss-Ca²⁺は酸性雨調査において大陸起源の黄砂などの土壌粒子を評価する指標に用いられている。高橋ら⁸⁾はnss-Ca²⁺が他のイオン成分濃度に比ベトリチウムと相関性が高いと報告しており、同様の結果となった。

このことから、3・2同様、降水中トリチウムは大陸性気団等の影響を受けていると考えられた。

4 まとめ

- (1) 1990年度から志賀町の水源が異なる水道水2地点(水源：地下水,表流水)においてトリチウムの調査を行っている。その結果, 調査開始以降濃度が徐々に低下し, 2018年以降検出されたのは水道水(水源が表流水)のみであり, 検出下限値程度の低い濃度レベルであった。
- (2) 2020年1月から当センター屋上で採取した降水中トリチウムの調査を行った。その結果, 水道水(水源が表流水)と同程度のトリチウムが検出された。また, 2～5月に高く, 7～8月に低い季節変動がみられた。
- (3) 水道水(水源が表流水)から近年検出されるトリチウムは, 過去の大気圏内核実験や原子力発電施設等に由来するものではなく, 大陸の高緯度地域で生成された宇宙線生成核種のトリチウムが移流し, 降水とともに地表面にもたらされたものと考えられた。
- (4) 降水中トリチウムと各種イオン成分濃度を比較したところ, トリチウムと大陸起源の黄砂などの土壌粒子を評価する指標に用いられるnss-Ca²⁺濃度との相関性が他のイオン成分濃度に比べ高いことから, 降

水中トリチウムは大陸性気団等の影響を受けていると考えられた。

文 献

- 1) 石川県：志賀原子力発電所周辺環境放射線監視結果報告書(平成2年度から令和元年度)
- 2) 文部科学省: 放射能測定法シリーズ9, 「トリチウム分析法」(2002)
- 3) 山崎興樹, 長谷川祥, 清野詩子, 鴻巣祐也, 丸田文之: 新潟県内の環境水中トリチウム濃度レベル, 新潟県放射線監視センター年報, **13**, 28-41 (2014)
- 4) 原子規制庁ホームページ, 環境放射線データベース, <https://www.kankyo-hoshano.go.jp/data/database/>, (参照2021-01-10)
- 5) 川畑俊之, 小浦利弘, 小森正樹: 志賀地区における大気中トリチウム濃度について, 石川県保健環境センター研究報告書, **44**, 60-66 (2007)
- 6) METEX ホームページ:<https://db.cger.nies.go.jp/metex/web-metex.jp.html> (参照2021-03-02)
- 7) 百島則幸: IV-1 グローバルおよび我が国における環境中トリチウムの分布と挙動, 日本原子力学会誌, **39**, 923-925 (1997)
- 8) 高橋優太, 今泉洋, 狩野直樹, 斎藤正明, 加藤徳雄, 石井吉之, 斎藤圭一: 降水中におけるトリチウムとカルシウムイオンとの間の濃度相関性, RADIOISOTOPES, **57**, 375-383 (2008)

〔資 料〕

航空機騒音測定における暗騒音の識別結果の検討

石川県保健環境センター 企画情報部 深山 敏明・金戸 恵子

〔和文要旨〕

航空機騒音測定を行った 3 地点の航空機騒音イベントについて、航空機騒音解析システムにより自動識別を行い、その結果を検討した。

「鳥」、「消防車（鐘）」など、ベクトルの特性が航空機騒音イベントと類似する暗騒音イベントでは、解析システムによる自動識別では誤りが生じる傾向が見られた。また、暗騒音イベントの実音試聴及びベクトルの目視による識別は、実音及びベクトルが航空機騒音イベントと異なる特徴が明確な場合には容易であったが、音源の特定が困難でベクトルの特徴が不明確な場合には困難であった。「時報放送」等のように定刻に発生する騒音イベントを自動識別する場合には、少なくとも 1 年間の実音試聴を行って暗騒音イベントの状況を把握すべきと考えられた。

キーワード：航空機騒音測定、暗騒音

1 はじめに

石川県では、「小松基地周辺の騒音対策に関する基本協定書」(10・4協定)に基づき、昭和 51 年から、国、小松市、能美市及び加賀市と共同し、小松飛行場周辺の航空機騒音の測定を実施している¹⁾。

航空機騒音の測定では、連続測定した騒音イベントから、航空機以外の音であるその他騒音イベント（以下、「暗騒音イベント」という。）を除外して航空機騒音の集計を行っている。この暗騒音イベントを除外する作業は、航空機騒音解析システムである程度自動化されているものの、依然として人による確認作業が必要である。

本報では、県が航空機騒音測定を行っている 3 地点を対象に、航空機騒音解析システムによる自動識別の結果を実音試聴及びベクトルの目視による識別結果で確認し、誤って自動識別された原因を検討した。これらをもとに、暗騒音イベントの識別の難易を取りまとめたので報告する。

2 方 法

2・1 測定地点の状況

測定地点の状況を表 1 に示した。

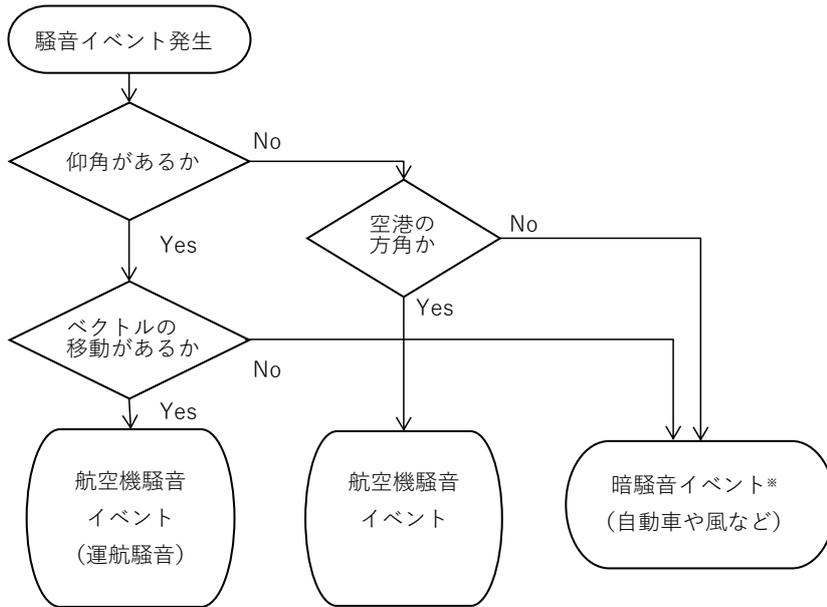
測定地点は、県が小松飛行場周辺の航空機騒音の測定を実施している 7 地点のうち実音を録音している 3 地点（小松市丸の内町（以下、「丸の内町」という。）、

表 1 測定地点の状況

地点名	所在地	施設名	飛行場からの距離	測定機種	測定月
丸の内町	小松市丸の内町 1 丁目 150 番地	丸の内地区学習等供用施設	約 2 km	NA-37	4~13 月
湊町	白山市湊町ヲ 20	白山市湊りフレッシュセンター	約 9 km	NA-39A	5,7,9,11,1 月
大長野町	能美市大長野町ニ 177 番地 1	大長野町学習等供用施設	約 7 km		4,6,8,10,12,3 月

A Study of Background Noise Identification Results in Aircraft Noise Measurement. by MIYAMA Toshiaki and KANETO Keiko (Information Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : aircraft noise measurement, background noise



※本報での「暗騒音イベント」は、航空機騒音イベント以外の騒音イベントのことをいい、バックグラウンド騒音としての暗騒音を含まない。

図1 自動識別の流れ

表2 航空機騒音測定における主な暗騒音の種類と識別方法別の難易

分類	種類	自動識別	ベクトル			実音識別	発生時刻(参考)
			方位	移動	仰角		
気象由来	雨	○	全方位	無	無	○	不定時
	風	△	全方位	無	有	○	不定時
	雷	×	-	無	有	○	不定時
生物由来	犬	○	特定	無	-	○	不定時
	鳥	△	特定	有	有	○	朝が多い
	セミ	○	全方位	無	無	○	夕方が多い
	虫の声	△	全方位	無	無	○	夕方が多い
人為的要因	人の声	○	特定	無	無	○	不定時
	車両	○	特定	有	無	○	不定時
	消防車・救急車	○	特定	有	無	○	不定時
	消防車(鐘)	△	特定	有	有	○	不定時
	放送音	○	固定	無	無	○	不定時
	時報放送	△	固定	無	有	○	定時
	防災行政無線	△	固定	無	有	○	不定時
	花火	○	固定	無	有	○	不定時
資源回収	○	固定	無	無	○	不定時	
その他	不明音	△	-	-	無	○	不定時
	識別不能	-	-	-	-	△	不定時
航空機(参考)	運航騒音	○	特定	有	有	○	○
	地上音	△	特定	無	無	△	△

※「自動識別」の「○」、「△」、「×」は自動識別適合率がそれぞれ「80%以上」、「地点によって異なる」、「80%未満」
 ※「ベクトル(目視識別)」及び「実音識別」の「○」、「△」は自動識別適合率がそれぞれ「容易に識別可能」、「不明確」
 ※「自動識別」の「-」は、評価ができないもの
 ※「ベクトル」の「方位」、「移動」、「仰角」の「-」は、一定の傾向がないため分類できないもの

白山市湊町(以下、「湊町」という。)、能美市大長野町(以下、「大長野町」という。)とした。

測定期間は、令和2年4月～令和3年1月及び令和3年3月とした。丸の内町では通年で測定し、湊町と大長野町では1台の騒音計を1か月毎に移動し、隔月で測定した。なお、2月は騒音計の点検を行うため、3地点とも測定を実施しなかった。

2・2 測定方法

測定は、環境省の航空機騒音測定・評価マニュアル²⁾に準拠し、リオン株式会社製航空機騒音計(丸の内町:NA-37、湊町及び大長野町:NA-39A)を用いて行った。定常的に発生しているバックグラウンド騒音より10dB以上大きい音を観測した場合を騒音イベントとし、発生時刻、デシベル値、継続時間、ベクトル(「方位」、「移動」、「仰角」)を記録するとともにLAmax検出時から5秒間の実音を録音した。

2・3 識別・分類方法

2・2で観測された騒音イベントの識別については、まずリオン株式会社の航空機騒音解析システムAS-51(以下、「解析システム」という。)により図1に示すフローで航空機騒音イベントと暗騒音イベントに自動識別した。

次に、録音された実音試聴及びベクトルの目視により自動識別の結果を修正するとともに、個々の暗騒音イベントの種類を分類した。

なお、航空機騒音イベントと暗騒音イベント、または複数の暗騒音イベントが重畳する場合は、実音試聴により最も卓越して聴こえるものに分類した。また、音源が特定できない場合、明らかに航空機騒音イベントではないと識別可能であれば「不明音」、識別が不能であれば「識別不能」と分類した。

3 結果

解析システムにより得られた航

空機騒音イベントと暗騒音イベントとの自動識別結果には、暗騒音イベントを誤って航空機騒音イベントと識別したもの（以下、「正の識別誤り」という。）と、航空機騒音イベントを暗騒音イベントと識別したもの（以下、「負の識別誤り」という。）が含まれており、実音試聴及びベクトルの目視による識別結果をもとに、解析内容を精査する必要がある。精査は次のとおり行った。

3・1 実音試聴による識別

騒音イベントの実音試聴により識別された音源の種類を表2の種類欄に示した。

「雨」,「消防車・救急車」など、音源の特徴が明確な暗騒音イベントは、実音試聴による識別が容易であった。また、2・3で述べた「不明音」と分類した騒音イベントについても、何かの打撃音やエンジン音など、音源特定が困難であるが明らかに航空機騒音イベントとは異なっており、実音試聴による識別が容易であった。

航空機騒音イベントは、上空を飛行する「運航騒音」と「地上音」の2種類があるが、このうち「地上音」は、実音試聴での特徴が不明確であり、「地上音」か「識別不能」かの識別は困難であった。実音試聴による識別の難易について、表2の実音識別欄に示した。

3・2 ベクトルの目視による識別

解析システムによる騒音イベントのベクトル表示例を図2に示した。

図2上段には航空機騒音イベントの「運航騒音」を、中段には暗騒音イベント「雨」を示した。暗騒音イベント「雨」については、ベクトルは特定の方位はなく、移動も仰角もないなど、航空機騒音イベントとは明らかに異なる固有の特徴があり、識別は容易であった。これと同様に「風」,「セミ」,「人の声」,「車両」,「資源回収」などは識別が容易であった。

実音試聴で音源が特定できなかった「識別不能」の表示例を図2下段に示した。「識別不能」は、ベクトルの固有の特徴が不明確であり、同様にベクトルの固有の特徴が不明確な航空機騒音イベントの「地上音」との識別が困難であった。

以上の検討の結果、ベクトルの目視による識別の難易について表2の目視識別欄に示した。

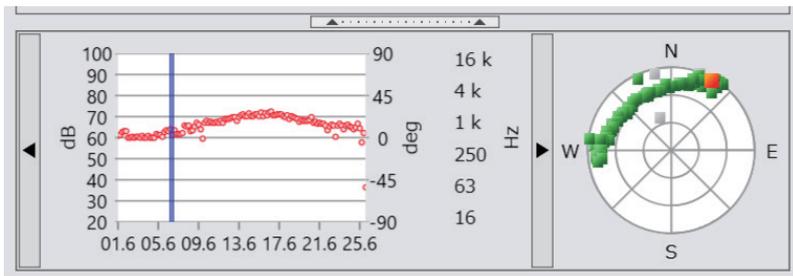
3・3 騒音イベントの識別結果

解析システムによる自動識別の結果について、実音試聴及びベクトルの目視による修正を行った後の識別結果を表3～5に示した。地点毎に年間の測定月数が異なるため、騒音イベント数を月平均で比較した。

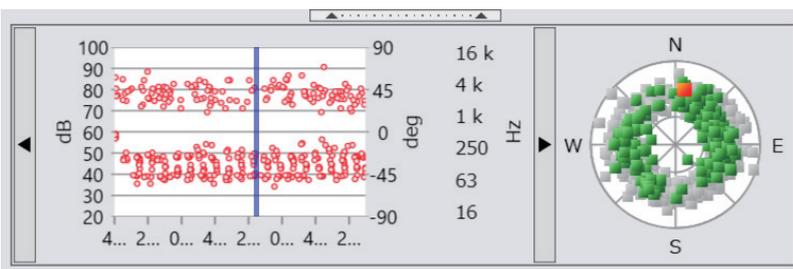
騒音イベント数は、丸の内町では2,252個であったのに対し、湊町では1,057個、大長野町では1,044個と半分程度であった。航空機騒音イベント数は、丸の内町では1,348個、湊町では161個、大長野町では119個であった。暗騒音イベント数は、丸の内町では904個、湊町では896個、大長野町では925個と同程度であった。

なお、3地点での騒音イベント数の違いは、空港からの距離の差（丸の内町は約2 km、湊町は約9 km、大長野町は約7 km）により、航空機騒音イベント数に差があったことによるものと考えられた。

「航空機（運航騒音）」



「雨」



「識別不能」

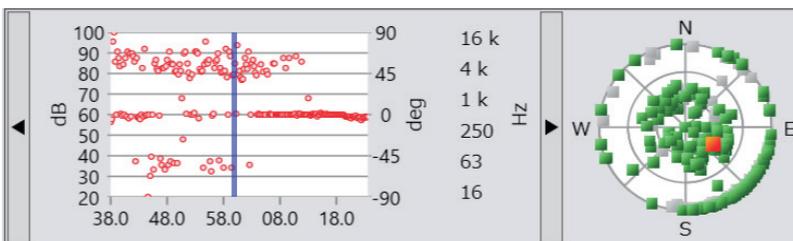


図2 航空機騒音解析システムによるベクトル表示例

表3 騒音イベント識別結果（丸の内町）

項目	騒音イベント総数	自動識別結果				修正後識別結果	
		航空機騒音イベント数 ①	うち正の識別誤り数 ②	暗騒音イベント数 ③	うち負の識別誤り数 ④	航空機騒音イベント数 ①-②+④	暗騒音イベント数 ③+②-④
4月	1,971	1,772 (89.9%)	48 (2.4%)	199 (10.1%)	12 (0.6%)	1,736 (88.1%)	235 (11.9%)
5月	1,821	1,399 (76.8%)	20 (1.1%)	422 (23.2%)	2 (0.1%)	1,381 (75.8%)	440 (24.2%)
6月	4,197	1,149 (27.4%)	44 (1.0%)	3,048 (72.6%)	1 (0.0%)	1,106 (26.4%)	3,091 (73.6%)
7月	1,997	1,352 (67.7%)	40 (2.0%)	645 (32.3%)	5 (0.3%)	1,317 (65.9%)	680 (34.1%)
8月	1,650	1,133 (68.7%)	37 (2.2%)	517 (31.3%)	6 (0.4%)	1,102 (66.8%)	548 (33.2%)
9月	2,035	1,551 (76.2%)	79 (3.9%)	484 (23.8%)	2 (0.1%)	1,474 (72.4%)	561 (27.6%)
10月	2,153	1,685 (78.3%)	90 (4.2%)	468 (21.7%)	8 (0.4%)	1,603 (74.5%)	550 (25.5%)
11月	1,954	1,440 (73.7%)	46 (2.4%)	514 (26.3%)	3 (0.2%)	1,397 (71.5%)	557 (28.5%)
12月	2,272	1,210 (53.3%)	36 (1.6%)	1,062 (46.7%)	2 (0.1%)	1,176 (51.8%)	1,096 (48.2%)
1月	2,834	1,309 (46.2%)	22 (0.8%)	1,525 (53.8%)	1 (0.0%)	1,288 (45.4%)	1,546 (54.6%)
2月	-	-	-	-	-	-	-
3月	1,886	1,289 (68.3%)	40 (2.1%)	597 (31.7%)	1 (0.1%)	1,250 (66.3%)	636 (33.7%)
計	24,770	15,289 (61.7%)	502 (2.0%)	9,481 (38.3%)	43 (0.2%)	14,830 (59.9%)	9,940 (40.1%)
月平均	2,252	1,390 (61.7%)	46 (2.0%)	862 (38.3%)	4 (0.2%)	1,348 (59.9%)	904 (40.1%)

※ 「自動識別結果」「修正後識別結果」のパーセント値は、騒音イベント総数に対する比率
 ※ 「-」は、測定を実施していない（2月：騒音計の点検月）
 ※ 6月は、騒音計の異常データを除いた数

表4 騒音イベント識別結果（湊町）

項目	騒音イベント総数	自動識別結果				修正後識別結果	
		航空機騒音イベント数 ①	うち正の識別誤り数 ②	暗騒音イベント数 ③	うち負の識別誤り数 ④	航空機騒音イベント数 ①-②+④	暗騒音イベント数 ③+②-④
4月	-	-	-	-	-	-	-
5月	862	531 (61.6%)	376 (43.6%)	331 (38.4%)	14 (1.6%)	169 (19.6%)	693 (80.4%)
6月	-	-	-	-	-	-	-
7月	732	412 (56.3%)	297 (40.6%)	320 (43.7%)	8 (1.1%)	123 (16.8%)	609 (83.2%)
8月	-	-	-	-	-	-	-
9月	618	477 (77.2%)	247 (40.0%)	141 (22.8%)	11 (1.8%)	241 (39.0%)	377 (61.0%)
10月	-	-	-	-	-	-	-
11月	915	214 (23.4%)	95 (10.4%)	701 (76.6%)	40 (4.4%)	159 (17.4%)	756 (82.6%)
12月	-	-	-	-	-	-	-
1月	2,160	181 (8.4%)	124 (5.7%)	1,979 (91.6%)	58 (2.7%)	115 (5.3%)	2,045 (94.7%)
2月	-	-	-	-	-	-	-
3月	-	-	-	-	-	-	-
計	5,287	1,815 (34.3%)	1,139 (21.5%)	3,472 (65.7%)	131 (2.5%)	807 (15.3%)	4,480 (84.7%)
月平均	1,057	363 (34.3%)	228 (21.5%)	694 (65.7%)	26 (2.5%)	161 (15.3%)	896 (84.7%)

※ 「自動識別結果」「修正後識別結果」のパーセント値は、騒音イベント総数に対する比率
 ※ 「-」は、測定を実施していない（4,6,8,10,12及び3月：隔月測定の非測定月、2月：騒音計の点検月）

表5 騒音イベント識別結果（大長野町）

項目	騒音イベント総数	自動識別結果				修正後識別結果	
		航空機騒音イベント数 ①	うち正の識別誤り数 ②	暗騒音イベント数 ③	うち負の識別誤り数 ④	航空機騒音イベント数 ①-②+④	暗騒音イベント数 ③+②-④
4月	1,163	163 (14.0%)	19 (1.6%)	1,000 (86.0%)	47 (4.0%)	191 (16.4%)	972 (83.6%)
5月	-	-	-	-	-	-	-
6月	841	99 (11.8%)	7 (0.8%)	742 (88.2%)	2 (0.2%)	94 (11.2%)	747 (88.8%)
7月	-	-	-	-	-	-	-
8月	714	53 (7.4%)	14 (2.0%)	661 (92.6%)	4 (0.6%)	43 (6.0%)	671 (94.0%)
9月	-	-	-	-	-	-	-
10月	1,128	113 (10.0%)	18 (1.6%)	1,015 (90.0%)	72 (6.4%)	167 (14.8%)	961 (85.2%)
11月	-	-	-	-	-	-	-
12月	872	81 (9.3%)	25 (2.9%)	791 (90.7%)	58 (6.7%)	114 (13.1%)	758 (86.9%)
1月	-	-	-	-	-	-	-
2月	-	-	-	-	-	-	-
3月	1,545	179 (11.6%)	104 (6.7%)	1,366 (88.4%)	30 (1.9%)	105 (6.8%)	1,440 (93.2%)
計	6,263	688 (11.0%)	187 (3.0%)	5,575 (89.0%)	213 (3.4%)	714 (11.4%)	5,549 (88.6%)
月平均	1,044	115 (11.0%)	31 (3.0%)	929 (89.0%)	36 (3.4%)	119 (11.4%)	925 (88.6%)

※ 「自動識別結果」「修正後識別結果」のパーセント値は、騒音イベント総数に対する比率
 ※ 「-」は、測定を実施していない（5,7,9,11及び1月：隔月測定の非測定月、2月：騒音計の点検月）

4 考 察

4・1 自動識別結果の検討

表 3～5 に示した解析システムによる自動識別結果について識別誤りの原因を検討した。

正の識別誤りの数は、月平均で丸の内町では 46 個 (2.0%)、大長野町では 31 個 (3.0%) であったが、湊町では 228 個 (21.5%) と多く、湊町では 5 月、7 月及び 9 月の正の識別誤りの比率は 40% 以上であった。実音試聴ではカラスの鳴き声が多数確認でき、カラスが飛びながら鳴いた際には、ベクトルの仰角があり、ベクトルの移動を伴うなど航空機騒音イベントのベクトルと特徴が類似していることが原因と考えられた。

負の識別誤りの数は、月平均で丸の内町では 4 個 (0.2%)、湊町では 26 個 (2.5%)、大長野町では 36 個 (3.4%) であり、正の識別誤りに比べて少なかった。この原因は、暗騒音イベントは種類が様々であるのに対して、航空機騒音イベントは、ベクトルが特定の方角で、移動があり仰角もあるなど、特徴が一様であるためと考えられた。

表 6 航空機騒音測定における主な暗騒音の種類と自動識別適合率

分類	種類	自動識別適合率 (%)		
		丸の内町	湊町	大長野町
気象由来	雨	99.6%	100.0%	99.0%
	風	99.8%	92.7%	76.5%
	雷	63.8%	65.5%	54.2%
生物由来	犬	81.0%	100.0%	—
	鳥	73.7%	54.1%	87.0%
	セミ	—	100.0%	100.0%
	虫の声	—	(50.0%)	(87.5%)
人為的要因	人の声	88.9%	84.6%	99.6%
	車両	96.5%	95.2%	99.7%
	消防車・救急車	84.1%	100.0%	100.0%
	消防車 (鐘)	78.5%	16.7%	97.7%
	放送音	96.8%	90.9%	95.7%
	時報放送	78.2%	43.4%	95.1%
	防災行政無線	46.1%	14.6%	98.4%
	花火	100.0%	100.0%	100.0%
	資源回収	98.9%	100.0%	100.0%
	その他	不明音	96.3%	74.3%
識別不能		94.3%	96.4%	99.5%

※ 「—」は、該当する騒音イベントなし

※ 「虫の声」は、他の暗騒音と重畳しており自動識別適合率は参考値

4・2 暗騒音イベントの種類毎の自動識別適合率

暗騒音イベントの種類毎に、解析システムにより正

しく暗騒音イベントと自動識別されていた比率を「自動識別適合率」としてとりまとめ、表 6 に示した。

「雨」、「犬」、「セミ」、「人の声」、「車両」、「消防車・救急車」、「放送音」、「花火」、「資源回収」は全地点で自動識別適合率が 80% 以上であった。

「風」、「鳥」、「消防車 (鐘)」、「時報放送」、「防災行政無線」は地点によって自動識別適合率に差が見られた。原因は不明であるが、音源と騒音計マイクロホンとの位置関係や周囲の建物などによる反響などの影響が考えられることから、原因の解明には、測定環境の詳細な把握が必要と考えられた。

「雷」は、いずれの地点も自動識別適合率が 54.2～63.8% と低かった。雷鳴については仰角があり連続して発生する場合にはベクトルの移動を伴うなどの特性が航空機騒音イベントの「運航騒音」と類似しているためと考えられた。

「虫の声」は、音が定常的であり、他の騒音と重畳したときに騒音イベントとなることが多いことから、虫の声の自動識別適合率を評価するのは困難であった。

4・3 暗騒音イベントの識別の難易

以上の結果をもとに、暗騒音イベントの種類毎に、識別の難易及びベクトルの特徴をまとめ、表 2 に示した。

「雨」、「犬」、「セミ」、「人の声」、「車両」、「消防車・救急車」、「放送音」、「花火」、「資源回収」は、航空機騒音イベントのベクトルと明らかに特徴が異なることから、自動識別適合率が高かった。「鳥」、「消防車 (鐘)」は、ベクトルの方位、移動、仰角が航空機の運航騒音と類似の傾向があったことから、自動識別適合率が低かった。

人による識別の難易は、実音識別による暗騒音イベントの音源特定が可能であれば識別が容易であった。また、実音識別が容易な暗騒音イベントはベクトルの特徴も明確であったことから、ベクトルの目視による識別も容易であった。従って実音試聴とベクトルの目視での識別の難易は同様の傾向となった。

航空機騒音イベントの「地上音」及び暗騒音イベントの「識別不能」については、実音試聴及びベクトルの目視の双方で特徴が不明確であり、識別が困難であった。

4・4 騒音イベントの発生時刻による識別

暗騒音イベントのうち正確に定刻に出現する「時報放送」に着目し、発生時刻によって解析システムで自動識別することが可能か検討した。暗騒音イベントの種類毎の発生時刻の傾向は、表 2 のとおりであった。実音試聴により、湊町で 7 時及び 12 時に得られた騒音イベントは、ほぼ全て「チャイム」、湊町及び大長野町

で17時に得られた騒音イベントの音源は、ほぼ全て「時報放送」であることが確認され、発生時刻で一律に暗騒音イベントとすることで自動識別の精度向上が期待できた。一方で、丸の内町では18時に「時報放送」が流れるが、実音試聴では航空機騒音イベントが多く、「時報放送」は少なかった。このことから、「時報放送」など正確に定時に発生する騒音イベントについて発生時刻で一律に暗騒音イベントとみなすことは適切ではなく、少なくとも1年間の実音試聴を行って測定地点毎の暗騒音イベントの状況を把握すべきと考えられた。

5 まとめ

- (1) 実音試聴により音源が概ね特定できた暗騒音イベントは、解析システムによるベクトルの目視でも、音源の種類毎に航空機騒音イベントとは明らかに異なる固有の特徴があり識別が容易だった。
- (2) 実音試聴により音源の特定ができない暗騒音イベントは、ベクトル表示でも固有の特徴が見られず、識別が困難であった。
- (3) 解析システムの自動識別結果を検討したところ、湊町において、5、7、9月に正の識別誤りの比率

が高かった。実音試聴によりカラスが多く識別されており、カラスが飛びながら鳴いた際と航空機騒音イベントとはベクトルの特徴が類似しているためであると考えられた。その他は概ね良好に識別されていた。

- (4) 解析システムによる暗騒音イベントの種類別の自動識別適合率は「雨」、「車両」、「放送音」などが高かった。「雷」は、仰角やベクトルの特性が航空機騒音イベントの「運航騒音」と類似している場合があるため、自動識別適合率が低かった。
- (5) 「風」、「鳥」、「防災行政無線」などは自動識別適合率が地点によって差があり、原因を究明するには、測定環境の詳細把握が必要と考えられた。
- (6) 「時報放送」が発生する時刻の騒音イベントについて一律に暗騒音イベントとみなすには、少なくとも1年間の実音試聴を行って測定地点毎の暗騒音イベントの状況を把握すべきと考えられた。

文 献

- 1) 小松基地周辺の騒音対策に関する基本協定書
- 2) 環境省：航空機騒音測定・評価マニュアル（2020）

〔資料〕

石川県におけるカルバペネム耐性腸内細菌科細菌感染症の発生状況

— 2020年度 —

石川県保健環境センター 健康・食品安全科学部

城座 美夏・塩本 高之・児玉 洋江
谷村 睦美

〔和文要旨〕

2020年度において、石川県に届出されたカルバペネム耐性腸内細菌科細菌（CRE）感染症の発生状況及び患者から分離された菌株のカルバペネマーゼ産生性を調べた。21株のうちカルバペネマーゼ産生が示唆された株は2株であった。そのうち1株は*bla_{IMP-6}*を保有しており、もう1株は主要なカルバペネマーゼ遺伝子を保有しておらず、カルバペネマーゼ活性を持つAmpC β -ラクタマーゼ産生株あるいは稀なカルバペネマーゼの産生株である可能性が示唆された。CREがCPEであるか否かの結果判定においては、遺伝子検査と表現型検査の総合的解釈をすることが重要と思われた。

キーワード：感染症，薬剤耐性菌，カルバペネム耐性腸内細菌科細菌，カルバペネマーゼ

1 はじめに

カルバペネム耐性腸内細菌科細菌（以下、CRE）感染症は、2014年9月19日より「感染症の予防及び感染症の患者に対する医療に関する法律」（以下、感染症法）において5類全数把握対象感染症となり、診断した医師は届出の義務がある。本感染症は、メロペネム（以下、MEPM）等のカルバペネム系抗菌薬及び広域 β -ラクタム剤に対して耐性を示す腸内細菌科細菌による感染症の総称である。2017年3月28日には、地域における薬剤耐性菌のまん延などの流行状況を把握するため、CRE感染症の届出があった際は地方衛生研究所等において耐性遺伝子等の試験検査を実施する旨、厚生労働省健康局結核感染症課長より通知（以下、通知）が発出された¹⁾。

腸内細菌科細菌におけるカルバペネム耐性機序は、カルバペネマーゼ産生性の有無により2つに大別され

2)、カルバペネマーゼを産生している場合は、カルバペネマーゼ産生腸内細菌科細菌（以下、CPE）と呼ぶ。CPEはほとんどの β -ラクタム剤を加水分解するカルバペネマーゼを産生することから、 β -ラクタム剤に汎耐性となることが多い²⁾。また、カルバペネマーゼ産生に寄与するカルバペネマーゼ遺伝子はプラスミド上に存在することが多く、菌種を越えて水平伝播しうる²⁾。このことより、院内感染のリスクになると考えられるため、CREがCPEであるか否かを確認することが重要である。

本報では、2020年度の石川県（以下、本県）におけるCRE感染症患者発生状況と、患者由来株を対象に実施したカルバペネマーゼ産生性等の検査結果について報告する。なお、2016年に、腸内細菌科細菌に分類されていた菌種の一部が他の科に変更されたことから³⁾、これまでの腸内細菌科細菌（*Enterobacteriaceae*）と同義の用語として、より上位レベルである腸内細菌目細

Prevalence of Carbapenem-resistant Enterobacteriaceae Infections in Ishikawa Prefecture from April 2020 to March 2021. by SHIROZA Mika, SHIOMOTO Takayuki, KODAMA Hiroe and TANIMURA Mutsumi (Health and Food Safety Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Infectious Disease, Antimicrobial Resistant Bacteria, Carbapenem-resistant Enterobacteriaceae, Carbapenemase

菌 (*Enterobacteriales*) を使用することが提唱されたが、本報では混乱を避けるためにこれまで使用されてきた腸内細菌科細菌 (*Enterobacteriaceae*) の表記を使用する。

2 材料と方法

2・1 CRE 感染症の発生状況

2020年4月～2021年3月の1年間に、感染症法に基づき本県に届出されたCRE感染症21事例に対し、菌種名、患者の症状、分離された検体について集計した。菌種名に関し、*Enterobacter aerogenes* で届出されていた事例については、2017年に国際原核生物分類命名委員会において菌名が変更されたことに伴い、*Klebsiella aerogenes* (以下、*K.aerogenes*) として集計した。

2・2 CRE の検査

2・1 で届出された事例から分離され、通知に基づき搬入されたCRE21株を供試菌株とした。

(1) β -ラクタマーゼ産生性の確認 (以下、阻害試験)

下記ア、イ、ウについて国立感染症研究所病原体検出マニュアル²⁾ (以下、マニュアル) に従い実施した。

ア KPC 型カルバペネマーゼ産生性のスクリーニング
MEPM ディスクに3-アミノフェニルボロン酸 (以下、APB) を添加し、阻止円の拡張 (原則5mm以上) が見られたものを陽性とした。

イ クロキサシリン (以下、MCIPC) を用いた AmpC β -ラクタマーゼ産生性の確認

APBはKPC型カルバペネマーゼの他に AmpC β -ラクタマーゼも阻害することから²⁾、阻害試験アにおいて、APBで阻害が認められた2株を対象とし、マニュアルに従い実施した。セフメタゾールディスクにMCIPCを添加し、阻止円の拡張 (原則5mm以上) が見られたものを陽性とした。

ウ メタロ- β -ラクタマーゼ (以下、MBL) 産生性のスクリーニング

MEPM 及びセフタジジムディスクとメルカプト酢酸ナトリウム (以下、SMA) ディスクを使用し、いずれかの抗菌薬ディスクと SMA ディスクの中心を結ぶ線に対して垂直方向の阻止円径拡張が見られたものを陽性とした。

(2) modified Carbapenem Inactivation Method (以下、mCIM)

カルバペネマーゼによる MEPM 分解に伴った MEPM ディスクの抗菌作用低下を利用したカルバペネマーゼ産生性の確認をマニュアルに従い実施した。判定基準を図1に示す。阻止円径及び阻止円内部コロニーの有無から判定した。

(3) Carba NP テスト

mCIM 陽性及び判定保留となった7株を対象とした。

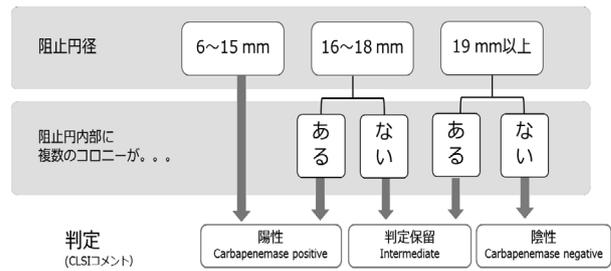


図1 mCIM判定基準

引用元：国立感染症研究所 病原体検出マニュアル薬剤耐性菌 (令和2年6月改訂版 Ver2.0)

カルバペネマーゼによるイミペネム分解に伴った溶液のpH変化による色調変化を利用したカルバペネマーゼ産生性の確認をマニュアルに従い実施した。反応開始後120分以内に黄変したものを陽性、弱い黄変がみられたものを判定保留とした。

(4) PCR法によるカルバペネマーゼ遺伝子の検出

マニュアルに従い、全21株を対象にPCR法によるカルバペネマーゼ遺伝子 (IMP-1型、IMP-2型、NDM型、KPC型、OXA-48型、VIM型、GES型) の検出を試みた。事例番号1については、稀なカルバペネマーゼ遺伝子の保有が否定できないことから、稀なカルバペネマーゼ遺伝子 (KHM型、IMI型) の検出をマニュアルに従い追加で実施した。

(5) シークエンス解析によるカルバペネマーゼ遺伝子の型別

IMP-1型MBL遺伝子を検出した株については、マニュアルに従い実施したシークエンス解析により遺伝子配列を確認し、*bla*_{IMP-1}と*bla*_{IMP-6}の鑑別を行った。

3 結果

3・1 CRE 感染症の発生状況

2020年4月～2021年3月の期間に届出があった21事例について表1に示す。

症状別では、尿路感染症のみが5例、肺炎のみが3例、菌血症のみ、胆管炎のみがそれぞれ2例、腹膜炎、膿胸、臍ヘルニア部皮膚感染、胆嚢炎、左眼結膜炎、外耳道炎、尿路感染症・精巣上体炎、尿路感染症・肺炎・腸炎、敗血症・胆管炎がそれぞれ1例だった。分離検体別では、尿が6例、血液が4例、喀痰が3例、胆汁が2例、膿、胸水、臍ヘルニア瘻孔、眼脂、耳漏、血液・胆汁がそれぞれ1例だった。菌種別では、*K.aerogenes*が9例 (42.9%)、*Enterobacter cloacae*が6例 (28.6%)、*Enterobacter cloacae* complex、*Escherichia coli*がそれぞれ2例 (各9.5%)、*Citrobacter braakii*、*Serratia marcescens*がそれぞれ1例 (各4.8%) であった。

3・2 CRE の検査

表 1 CRE 感染症発生状況及び検査結果 (2020 年度)

事例番号	菌種名	症状	検体	阻害試験 ^{※1,2}	mCIM	CarbaNP テスト	カルバペネマーゼ遺伝子
1	<i>Enterobacter cloacae</i> complex	腹膜炎	膿	APB、MCIPC	+	+	-
2	<i>Enterobacter cloacae</i>	胆管炎	血液	-	-	n.t.	-
3	<i>Klebsiella aerogenes</i>	菌血症	血液	-	-	n.t.	-
4	<i>Enterobacter cloacae</i>	肺炎	喀痰	-	-	n.t.	-
5	<i>Enterobacter cloacae</i> complex	尿路感染症、精巣上体炎	尿	-	-	n.t.	-
6	<i>Enterobacter cloacae</i>	肺炎	喀痰	-	-	n.t.	-
7	<i>Klebsiella aerogenes</i>	膿胸	胸水	-	保留	-	-
8	<i>Klebsiella aerogenes</i>	尿路感染症	尿	-	-	n.t.	-
9	<i>Klebsiella aerogenes</i>	尿路感染症	尿	-	-	n.t.	-
10	<i>Klebsiella aerogenes</i>	尿路感染症	血液	-	保留	-	-
11	<i>Klebsiella aerogenes</i>	菌血症	血液	-	-	n.t.	-
12	<i>Citrobacter braakii</i>	臍ヘルニア部皮膚感染	臍ヘルニア瘻孔	-	-	n.t.	-
13	<i>Escherichia coli</i>	尿路感染症、肺炎、腸炎	尿	SMA	+	保留	<i>bla</i> _{IMP-6}
14	<i>Enterobacter cloacae</i>	胆管炎	胆汁	-	保留	-	-
15	<i>Enterobacter cloacae</i>	胆嚢炎	胆汁	-	-	n.t.	-
16	<i>Klebsiella aerogenes</i>	尿路感染症	尿	-	保留	-	-
17	<i>Serratia marcescens</i>	左眼結膜炎	眼脂	APB、MCIPC	-	n.t.	-
18	<i>Klebsiella aerogenes</i>	外耳道炎	耳漏	-	-	n.t.	-
19	<i>Enterobacter cloacae</i>	肺炎	喀痰	-	保留	-	-
20	<i>Klebsiella aerogenes</i>	敗血症、胆管炎	血液、胆汁	-	-	n.t.	-
21	<i>Escherichia coli</i>	尿路感染症	尿	-	-	n.t.	-

n.t.: 未実施

※1: 阻害試験にて陽性と判定したものについてその阻害剤名を記載

※2: MCIPC を用いた阻害試験は APB で阻害が認められた株のみ実施

検査の結果について表1に示す。

(1) 阻害試験

事例番号13において、SMAのみで阻害が認められた。

事例番号1, 17の2株では、APB及びMCIPCで阻害が認められた。

残りの18株については、SMAとAPBいずれにおいても阻害は認められなかった。

(2) mCIM

事例番号1, 13の2株のみが陽性で、事例番号7, 10, 14, 16, 19の5株は判定保留、残り14株は全て陰性であった。陽性であった2株のうち、事例番号13は、前述のとおり、SMAにて阻害が認められた株であり、MBL産生菌であると思われた。

(3) Carba NP テスト

mCIM陽性であった2株のうち、事例番号1は陽性、事例番号13は判定保留であり、カルバペネマーゼ産生が示唆された。また、mCIM判定保留であった5株は全て陰性であった。

(4) PCR法によるカルバペネマーゼ遺伝子の検出

事例番号13からカルバペネマーゼ遺伝子を検出し、遺伝子型はIMP-1型であった。残り20株からは今回検出を試みたカルバペネマーゼ遺伝子は検出されなかった。

(5) シーケンス解析によるカルバペネマーゼ遺伝子の型別

IMP-1型が検出された事例番号13についてシーケンス解析を行ったところ、*bla*_{IMP-6}であった。

4 考 察

2020年度におけるCRE感染症の届出数は21事例で、2019年度(21事例)⁴⁾から増減はなかった。また、*K.aerogenes*を起因菌とする事例の割合は全国的に増加しており⁵⁾、本県においても、2017年度(26.7%)⁶⁾に比べ、2018年度(45.5%)⁴⁾、2019年度(52.4%)⁴⁾、2020年度(42.9%)と同様の傾向がみられた。

2020年度は、CPEの検出が1事例あり、2017年の通知によりCREの検査を開始して以降、本県では2例目となる*bla*_{IMP-6}保有株によるものであった。*bla*_{IMP-6}は主に西日本で検出される遺伝子型で、イミペネムに感性を示す特徴を持つことから、見落とされる可能性があるため^{7) 8)}、臨床現場においては*bla*_{IMP-6}の存在を念頭においた検査の実施が重要と思われた。

また、主要なカルバペネマーゼ遺伝子を保有しないが、APBによる阻害を受ける株が2株(事例番号1, 17)検出された。APBはKPC型カルバペネマーゼのほか AmpCβ-ラクタマーゼも阻害することが知られて

おり²⁾、これら2株はMCIPCによる阻害も受けていたことから、いずれの株も APBによる阻害はAmpC β -ラクタマーゼ産生によるものと推測された。一方で、事例番号1はmCIM及びCarba NP テストで陽性となった。AmpC β -ラクタマーゼの一部は、ごく弱くカルバペネムを分解する活性を持ち、その過剰産生及び外膜の変化により、カルバペネムに対する耐性を持つとの報告があることから⁹⁾、事例番号1はカルバペネマーゼ活性をもつAmpC β -ラクタマーゼ産生株であると推測された。また、今回PCR法により9種類のカルバペネマーゼ遺伝子の検出を行ったが、それ以外の稀なカルバペネマーゼを産生している可能性もあることから、今後も検討を重ねる必要がある。今回の検討により、CREがCPEであるか否かの結果判定において、遺伝子検査と表現型検査の総合的解釈をすることの重要性が確認された。

5 まとめ

- (1) 2020年度のCRE感染症の事例数は2019年度から増減はなく、全国同様に*K.aerogenes*を起因菌とする報告の割合の増加傾向がみられた。
- (2) 2020年度はCPEの検出が1事例あり、2017年の通知によりCREの検査を開始して以降、本県では2例目となる*bla_{IMP6}*保有株によるものであった。
- (3) 主要なカルバペネマーゼ遺伝子を保有しないものの、カルバペネマーゼ産生が示唆された株が1株検出されたことから、カルバペネマーゼ活性を持つAmpC β -ラクタマーゼ産生株あるいは稀なカルバペネマーゼの産生株であると推測された。CREがCPEであるか否かの結果判定において、遺伝子検査と表現型検査の総合的解釈をすることが重要と思われた。

文 献

- 1) 厚生労働省健康局結核感染症課長通知健感発0328第4号：カルバペネム耐性腸内細菌科細菌（CRE）感染症等に係る試験検査の実施について、平成29年3月28日
- 2) 国立感染症研究所：病原体検出マニュアル 薬剤耐性菌，令和2年6月改訂版 Ver.2.0
- 3) ADEOLU Mobolaji, ALNAJAR Seema, NAUSHAD Sohail, GUPTA, Radhey S. : Genome-based phylogeny and taxonomy of the ‘Enterobacteriales’ :proposal for Enterobacterales ord. nov. divided into the families Enterobacteriaceae, Erwiniaceae fam. nov., Pectobacteriaceae fam. Nov., Yersiniaceae fam. Nov., Hafniaceae fam. Nov., Morganeliaceae fam. Nov., and Budviciaceae fam. Nov., **66**, 5575-5599 (2016)
- 4) 塩本高之, 児玉洋江, 木村恵梨子, 谷村睦美 : 石川県におけるカルバペネム耐性腸内細菌科細菌感染症の発生状況について-2018年度及び2019年度-, 石川県保健環境センター研究報告書, **57**, 44-47
- 5) 国立感染症研究所：感染症法に基づくカルバペネム耐性腸内細菌科細菌感染症の届出状況2019年, <https://www.niid.go.jp/niid/ja/cre-m/cre-idwrs/10319-cre-210423.html> (2021年8月1日)
- 6) 木村恵梨子, 小坂恵, 塩本高之, 谷村睦美 : 石川県におけるカルバペネム耐性腸内細菌科細菌感染症の発生状況について-2017年度-, 石川県保健環境センター研究報告書, **55**, 43-46
- 7) 中野竜一 : カルバペネム耐性腸内細菌科 (CRE) における薬剤耐性機序の実態解明と耐性獲得機構の解明, THE JAPANESE JOURNAL OF ANTIBIOTICS, **69** (2), 81-89 (2016)
- 8) YANO Hisakazu, KUGA Akio, OKAMOTO Ryoichi, KITASATO Hidero, KOBAYASHI Toshimitsu, INOUE Matsuhisa : Plasmid-Encoded Metallo- β -Lactamase (IMP-6) Conferring Resistance to Carbapenems, Especially Meropenem, ANTIMICROBIAL AGENTS AND CHEMOTHERAPY, **45** (5), 1343-1348 (2001)
- 9) JOUSSET, Agnès B., OUESLATI Saoussen, BERNABEU Sandrine, TAKISSIAN Julie, CRETON Elodie, VOGEL Anaïs, SAUVADET Aimie, COTELLON Garance, GAUTHIER Lauraine, BONNIN, Rémy A., DORTET Laurent, and NAAS Thierry : False-Positive Carbapenem-Hydrolyzing Confirmatory Tests Due to ACT-28, a Chromosomally Encoded AmpC with Weak Carbapenemase Activity from Enterobacter kobei, ANTIMICROBIAL AGENTS AND CHEMOTHERAPY, **63** (5), e02388-18 (2019)

〔資 料〕

石川県で検出されたノロウイルスの遺伝子型

— 2019/20, 2020/21 シーズン —

中澤 柁哉・木村 恵梨子・中野 未来・
石川県保健環境センター 健康・食品安全科学部 小橋 奈緒・成相 絵里・中村 幸子・
倉本 早苗

〔和文要旨〕

2019/20, 2020/21 シーズンに石川県で発生した, 感染性胃腸炎の集団事例および小児散発事例でノロウイルス遺伝子が検出された 35 検体について, RdRp 領域, カプシド領域の塩基配列による遺伝子解析を行った。その結果, 過去のシーズンと比較すると事例数は少なかったが, 集団事例では GII.P16_GII.2 の検出割合が 6 割と最も多く検出され, 次いで GII.P31_GII.4 が検出された。また, 小児散発事例では GII.P31_GII.4 の検出割合が約 8 割と最も多く検出された。これまでのカプシド領域による遺伝子解析に加え, RdRp 領域を含めた解析を行うことによって, より詳細な系統樹解析が可能であった。

キーワード：ノロウイルス, 遺伝子型, 感染性胃腸炎, 集団事例, 小児散発事例

1 はじめに

ノロウイルスは主に冬季における感染性胃腸炎や集団食中毒の原因となるウイルスであり, その種類は動物のノロウイルスを含め GI ~ GX の 10 の遺伝子群に分けられている。このうちヒトに感染するノロウイルスは大部分が GI や GII で, 遺伝学的に多様であり遺伝子型分類にはまだ流動的な部分が残っているが, 2020 年時点では少なくとも GI には 9, GII には 27 の遺伝子型が存在する¹⁾。ノロウイルスのゲノムには, 3 つのタンパク質コード領域 (open reading frame: ORF) が存在しており, ORF1 は RdRp (RNA-dependent RNA polymerase) 領域を含む非構造蛋白質, ORF2 は構造蛋白質 1 (カプシド蛋白質: VP1), ORF3 は構造蛋白質 2 (VP2) をコードしている。

VP1 (カプシド) 遺伝子は抗原性に深く関与している²⁾ ため, 従来よりこの部位の塩基配列によって遺伝

子型が決定されていた。しかし, 近年, RdRp 領域と VP1 (カプシド) 領域間でゲノムの組み換え (リコンビネーション) が顕著に認められ, VP1 遺伝子と RdRp 遺伝子の組み合わせの変化がウイルスの流行に影響することが示唆されている^{3) 4)}。そのため, 従来のカプシド領域における遺伝子型の解析に加え RdRp 領域の遺伝子型を含んだ分子疫学解析を行うことで, 県内のノロウイルス株の流行状況の把握や, 新たな分子疫学情報の蓄積が期待される。

我々は, これまで, 石川県 (以下, 本県) で検出されたノロウイルスについて遺伝子解析を行い, 検出ウイルスのカプシド領域における遺伝子型を明らかにし, 地域におけるノロウイルスの流行や遺伝子型の動向の把握を行ってきた^{5) - 9)}。今回, 2019/20, 2020/21 シーズン (以下, 2 シーズン) に検出されたノロウイルスについて, これまでのカプシド領域における遺伝子型に加え RdRp 領域の遺伝子型を含んだ分子疫学解析を行っ

Genotype of Norovirus Detected in the Stool Specimens in Ishikawa Prefecture during the 2019/20 and 2020/21 Seasons. by NAKAZAWA Masaya, KIMURA Eriko, NAKANO Mikuru, KOBASHI Nao, NARIAI Eri, NAKAMURA Sachiko and KURAMOTO Sanae (Health and Food Safety Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Norovirus, Genotype, Infectious Gastroenteritis, Outbreak Cases, Sporadic Cases in Children

たので、その結果について報告する。

2 材料と方法

2.1 対象

(1) 集団事例

2019/20シーズン（2019年第36週（9月）～2020年第35週（8月））、2020/21シーズン（2020年第36週（9月）～2021年第35週（8月））の2シーズンに本県で発生した感染性胃腸炎の集団事例（食中毒および感染症）のうち、当センターにて糞便からリアルタイムPCR法¹⁰⁾によりノロウイルス遺伝子が検出された患者あるいは調理従事者等（無症状）の糞便22検体（5事例、1事例あたり2～7検体）を対象とし、ウイルス遺伝子解析を実施した。

(2) 小児散発事例

(1)と同期間に感染症発生動向調査事業における小児科病原体定点医療機関を受診した感染性胃腸炎患者から採取された糞便のうち、蛍光RT-マルチプレックスPCR法¹¹⁾によりノロウイルス遺伝子が検出された患者13人（0～6歳）の糞便13検体を対象にウイルス遺伝子解析を実施した。

2.2 ウイルス遺伝子解析の方法

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RdRp領域の一部とカプシド領域の一部を含む遺伝子領域を検出するMON432/G1-SKRとMON431/G2-SKRを用いてRT-PCR法¹²⁾を実施した（図1）。電気泳動で

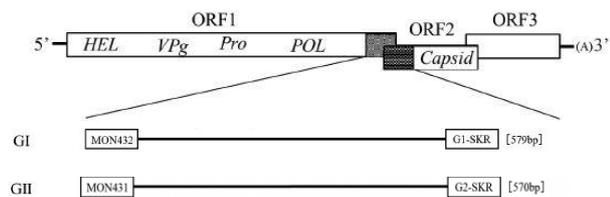


図1 ノロウイルス検査に使用するプライマーの位置

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約600bpの塩基配列を決定し、ノロウイルス遺伝子型分類ツール (<https://www.rivm.nl/mpf/typingtool/norovirus>) を用いて遺伝子型を決定した。型別表記は Proposal for a unified norovirus nomenclature and genotyping¹³⁾ の推奨表記法に準じ、遺伝子群.RdRp遺伝子型(P)_遺伝子群.VP1(カプシド)遺伝子型のように記載した。また、RdRp領域およびカプシド領域それぞれについて、遺伝子解析ソフトウエ

アMEGA Xを用いて近隣結合法により系統樹解析を行った。

3 結果

3.1 集団事例について

(1) 遺伝子型検出状況

5事例の22検体について、検出された遺伝子型とその検体数を事例ごとに表1に示した。2シーズンに検出

表1 ノロウイルス遺伝子解析結果（集団事例）

事例番号	シーズン	発生年月日	発生・原因施設	遺伝子型（検体数）
1	2019/20	2019.12.22	飲食店	GII.P16_GII.2 (2)
2	2019/20	2020. 1. 4	飲食店	GII.P31_GII.4 (2)
3	2019/20	2.17	飲食店	GII.P16_GII.2 (5), GII型不明 (2)
4	2020/21	2021. 2.12	保育園	GII.P31_GII.4 (5)
5	2020/21	3.12	飲食店	GII.P16_GII.2 (6)
計				(検体数：22)

された遺伝子群はすべてGIIの事例であり、GII.P16_GII.2が3事例（60.0%）、GII.P31_GII.4が2事例（40.0%）であった。シーズンごとにもみると、2019/20シーズンでは、3事例のうち、GII.P16_GII.2が2事例（事例番号1, 3）、GII.P31_GII.4が1事例（事例番号2）であり、2020/21シーズンでは、2事例のうち、GII.P31_GII.4が1事例（事例番号4）、GII.P16_GII.2が1事例（事例番号5）であった。なお、1事例において、複数の遺伝子型が検出された事例はなかった。表中のGII型不明（事例番号3）の2検体は、リアルタイムPCR法ではGII陽性と判定できたものの、ダイレクトシーケンスによる遺伝子型別は不能であった。

(2) 系統樹解析結果

RdRp領域の系統樹解析の結果、GII.P16（3事例の13検体）のうち、事例番号1, 3の7検体は2016/17シーズンに本県も含め川崎など全国で検出されたHu/JP/2016/GII.P16_GII.2/Kawasaki121株¹⁴⁾に類似していたが、事例番号5の6検体は若干遺伝的グループが異なる株であった（図2）。また、GII.P31（事例番号2, 4の7検体）は、いずれもRdRp領域がGII.P31に分類される、GII.4 Sydney_2012類似株であった（図2）。

一方、カプシド領域の系統樹解析の結果、GII.2（事例番号1, 3, 5の13検体）は、いずれもHu/JP/2016/GII.P16_GII.2/Kawasaki121類似株であった（図3）。また、GII.4（事例番号2, 4の7検体）は、いずれもGII.4 Sydney_2012類似株であった（図3）。

3.2 小児散発事例について

(1) 遺伝子型検出状況

ノロウイルスが検出された13検体についての遺伝子

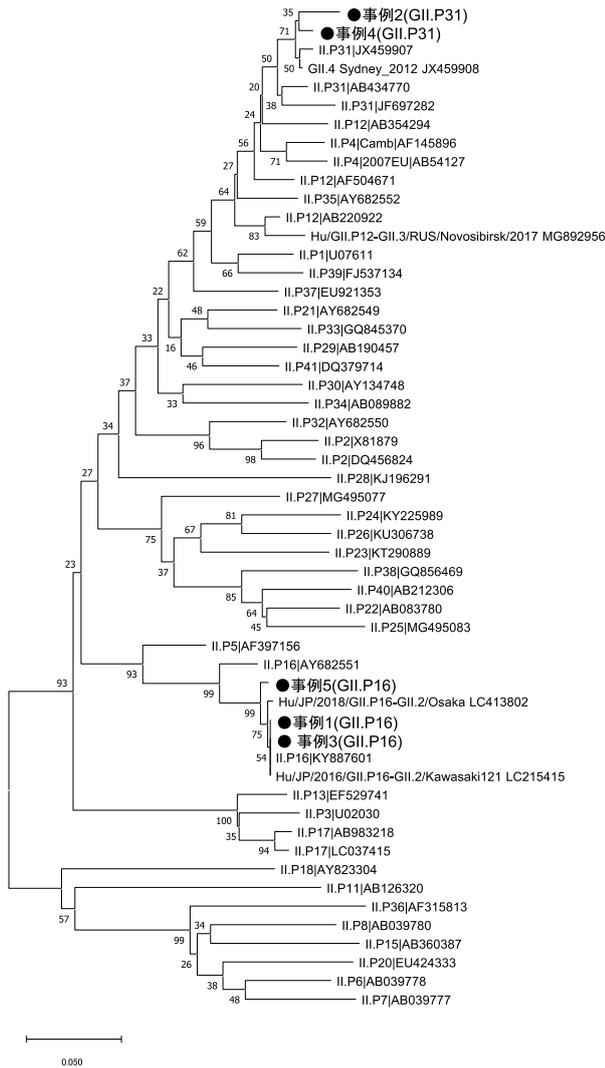


図2 集団事例ノロウイルスGII系統樹 (RdRp領域)

型を表2に示した。2シーズンに検出された遺伝子群はすべてGIIであり、GII.P31_GII.4が10検体 (76.9%)、GII.P16_GII.2が2検体 (15.4%)、GII.P12_GII.3が1検体 (7.7%) であった。シーズンごとにみると、2019/20シーズンでは、5検体のうちGII.P31_GII.4が3検体、GII.P16_GII.2が1検体、またGII.P12_GII.3が1検体であった。2020/21シーズンでは、8検体のうちGII.P31_GII.4が7検体、GII.P16_GII.2が1検体であった。

(2) 系統樹解析結果

RdRp領域の系統樹解析の結果、GII.P31 (10検体) はいずれもGII.P31に分類されるGII.4 Sydney_2012類似株であったが、3検体 (検体番号3, 4, 5) と7検体 (検体番号6, 7, 8, 9, 10, 11, 12) で若干遺伝的グループが異なっていた (図4)。また、GII.P16 (2検体) はいずれも、Hu/JP/2016/GII.P16_GII.2/Kawasaki121類似株とは若干遺伝的グループが異なる株であった (図4)。

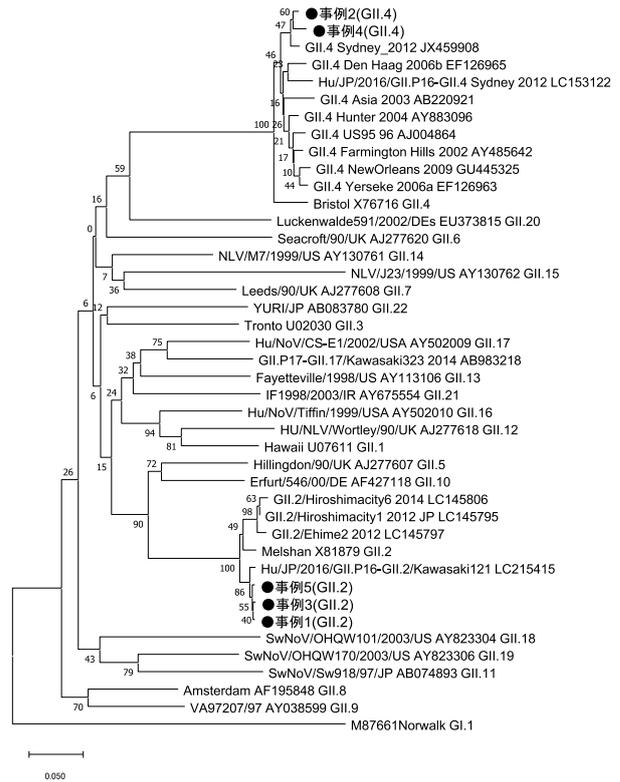


図3 集団事例ノロウイルスGII系統樹 (カプシド領域)

表2 ノロウイルス遺伝子解析結果 (小児散発事例)

検体番号	シーズン	検体採取日	年齢 (歳)	遺伝子型
1	2019/20	2019.11.29	2	GII.P12_GII.3
2	2019/20	12.29	6	GII.P16_GII.2
3	2019/20	2020.1.8	1	GII.P31_GII.4
4	2019/20	1.8	3	GII.P31_GII.4
5	2019/20	2.6	5	GII.P31_GII.4
6	2020/21	2021.2.26	1	GII.P31_GII.4
7	2020/21	3.6	1	GII.P31_GII.4
8	2020/21	3.10	2	GII.P31_GII.4
9	2020/21	3.23	1	GII.P31_GII.4
10	2020/21	4.9	1	GII.P31_GII.4
11	2020/21	4.28	1	GII.P31_GII.4
12	2020/21	5.13	0	GII.P31_GII.4
13	2020/21	5.15	1	GII.P16_GII.2

カプシド領域の系統樹解析の結果、GII.4 (10検体) はいずれもGII.4 Sydney_2012類似株であり、GII.2 (2検体) は、いずれもHu/JP/2016/GII.P16_GII.2/Kawasaki121類似株であった (図5)。

4 考 察

2シーズンにノロウイルスが検出された事例数は、集団事例が5事例22検体、小児散発事例が13検体であっ

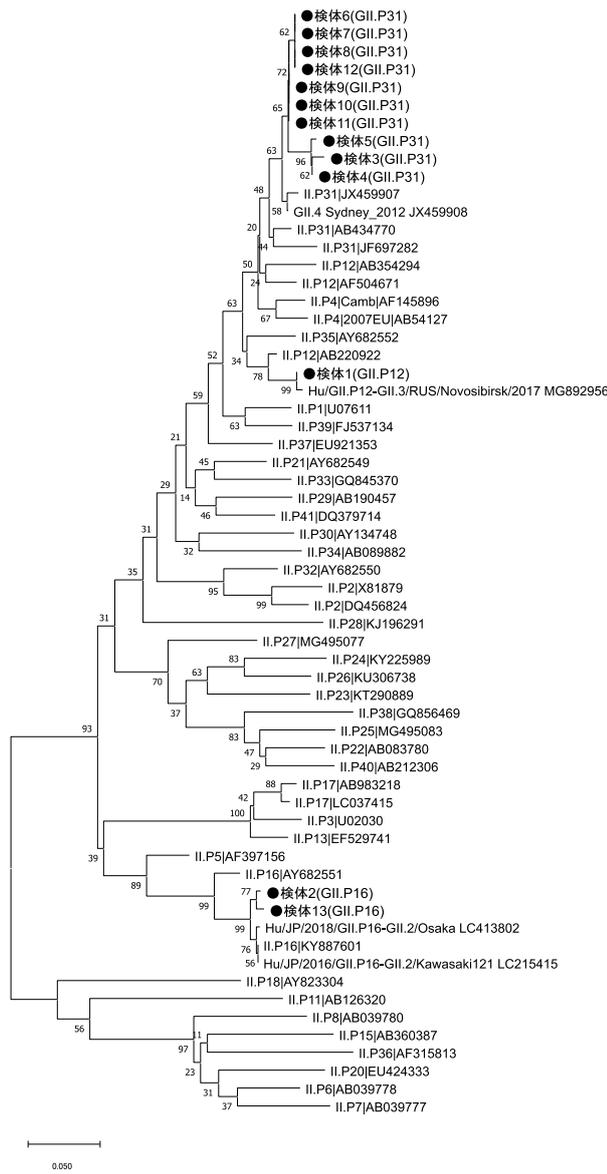


図4 小児散発事例ノロウイルスGII系統樹 (RdRp領域)

た。2018/19シーズンでは集団事例が15事例52検体、小児散発事例が20検体であったことから⁹⁾、事例数は過去のシーズンと比較し少ない状況であった。特に、2020年第10週(3月)～2021年第4週(1月)の期間については、集団事例、小児散発事例ともにノロウイルスの検出事例はなかった。その一因としては、新型コロナウイルスの流行拡大によって、手洗いの励行や生活様式の変化などによる影響があったのではないかとと思われる。

全国の遺伝子型検出状況では、カプシド領域の遺伝子型についてのみであるが、2019/20シーズンはGII.2、GII.4が比較的多く検出され、2020/21シーズンは検出報告数が少なく傾向は不明であった¹⁵⁾。一方、本県の2019/20シーズンは、集団事例、小児散発事例ともにGII.P16_GII.2、GII.P31_GII.4が検出されており、全国と

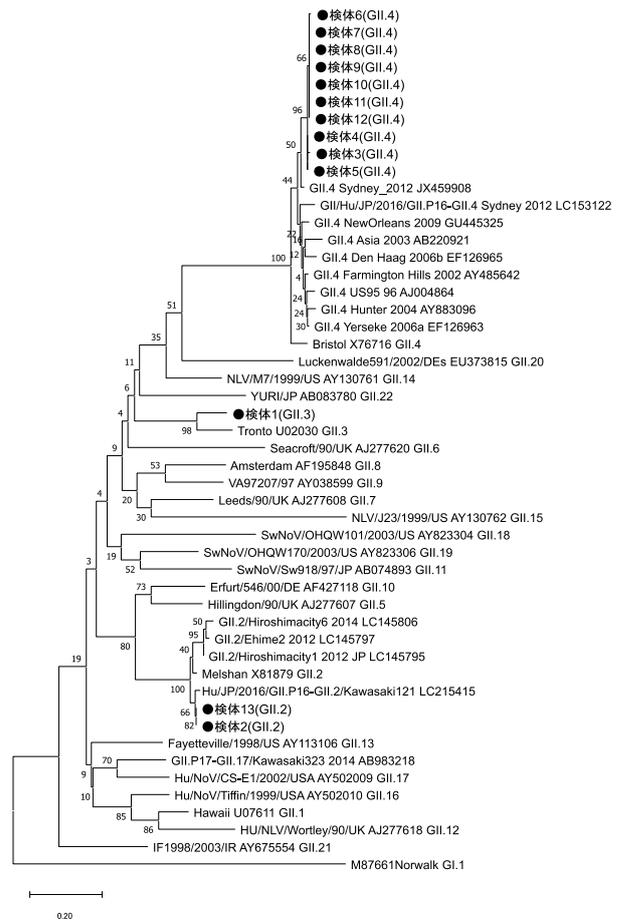


図5 小児散発事例ノロウイルス系統樹 (カプシド領域)

同様の傾向がみられた。

2シーズンに検出された遺伝子型のRdRp領域、カプシド領域の系統樹解析の結果、集団事例では、GII.P16_GII.2の3事例は、カプシド領域ではいずれもHu/JP/2016/GII.P16_GII.2/Kawasaki121類似株であったが、RdRp領域ではHu/JP/2016/GII.P16_GII.2/Kawasaki121類似株であった事例番号1、3と比べて、事例番号5で、若干遺伝的グループに違いがみられた。事例数が少なく明確には検証できないが、少なくともRdRp領域の遺伝的グループが異なるGII.P16_GII.2が流行していたと考えられる。また、GII.P31_GII.4の2事例(事例番号2、4)はRdRp領域、カプシド領域ともに、2012/13シーズンから本県も含め全国で流行したGII.4 Sydney_2012株¹⁶⁾に類似しており、依然としてその影響が残っていると考えられた。

一方、小児散発事例では、GII.P31_GII.4の10検体は、RdRp領域、カプシド領域ともに、GII.4 Sydney_2012類似株であったが、RdRp領域について検体番号3～5の3検体と検体番号6～12の7検体では若干遺伝的グループが異なっていた。この検体番号3～5は2019/20シーズンの事例であり、検体番号6～12は2020/21シ

ズンの事例であったことから、シーズンにより若干の遺伝的グループの違いがあると考えられた。

今回から、カプシド領域と RdRp 領域の遺伝子型の系統樹解析を行ったが、事例数が少ないながらも各領域における遺伝的グループに若干の違いがみられた事例もあった。従来のカプシド領域のみの解析では得られなかった差異であることから、今後も引き続き RdRp 領域も含めた遺伝子の詳細な解析を行い、地域におけるノロウイルスの流行状況や遺伝子型の動向に注目したい。

5 ま と め

- (1) 2シーズンに検出された事例数は、過去のシーズンと比較して少ない状況であった。
- (2) 遺伝子型の検出状況は、集団事例では GII.P16_GII.2, GII.P31_GII.4 が検出され、小児散发事例では GII.P31_GII.4 が約 8割検出された。
- (3) カプシド領域に加え、RdRp 領域を含めた解析を行うことによって、より詳細な系統樹解析が可能であった。

文 献

- 1) 片山和彦：1. ウイルス ノロウイルス総説2020, ウイルス, **70** (2), 117-128 (2020)
- 2) 木村博一他：ノロウイルスの主要抗原遺伝子 (VP1 gene) の分子進化, 病原微生物検出情報月報, **35** (7), 170-171, (2014)
- 3) de Graaf M, van Beek J, Koopmans MP. Human norovirus transmission and evolution in a changing world. *Nat Rev Microbiol*, **14** (7), 421-33 (2016)
- 4) Public Library of Science, The emerging GII.P16-GII.4 Sydney_2012 norovirus lineage is circulating worldwide, arose by late-2014 and contains polymerase changes that may increase virus transmission, <https://journals.plos.org/plosone/article?id=10.1371/journal.pone.0179572> (2021年9月3日)
- 5) 成相絵里, 児玉洋江, 崎川曜子：石川県で検出されたノロウイルスの遺伝子型 - 2014/2015シーズン - , 石川県保健環境センター研究報告書, **52**, 59-61 (2015)
- 6) 成相絵里, 児玉洋江, 崎川曜子：石川県で検出されたノロウイルスの遺伝子型 - 2015/2016シーズン - , 石川県保健環境センター研究報告書, **53**, 40-43 (2016)
- 7) 中澤柁哉, 成相絵里, 児玉洋江, 倉本早苗：石川県で検出されたノロウイルスの遺伝子型 - 2016/17シーズン - , 石川県保健環境センター研究報告書, **54**, 83-85 (2017)
- 8) 成相絵里, 中澤柁哉, 児玉洋江, 倉本早苗：石川県で検出されたノロウイルスの遺伝子型 - 2017/18シーズン - , 石川県保健環境センター研究報告書, **55**, 52-54 (2018)
- 9) 中澤柁哉, 成相絵里, 中村幸子, 倉本早苗：石川県で検出されたノロウイルスの遺伝子型 - 2018/19シーズン - , 石川県保健環境センター研究報告書, **56**, 55-58 (2019)
- 10) 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25年10月22日食安監発1022 第1号)」
- 11) 成相絵里, 児玉洋江, 崎川曜子：蛍光 RT-マルチプレックス PCR 法を利用した胃腸炎ウイルス検出法の検討, 石川県保健環境センター研究報告書, **53**, 1-7 (2016)
- 12) 国立感染症研究所：病原体検出マニュアルノロウイルス (第1版), 8-9 (2019)
- 13) Kroneman A, Vega E, Vennema H, et al. : Proposal for a unified norovirus nomenclature and genotyping. *Arch Virol*, **10**, 2059-2068, (2013)
- 14) 松島勇紀：茨城県と川崎市における2016/17シーズンに検出されたヒトノロウイルス GII.P16-GII.2 の分子疫学, 病原微生物検出情報月報, **38** (1), 19-20 (2017)
- 15) 国立感染症研究所：ノロウイルス等検出状況 2020/21シーズン, <https://www.niid.go.jp/niid/ja/id/2082-diseasebased/na/norovirus/idsc/iasr-noro/5701-iasrnoro-150529.html> (2021年9月3日)
- 16) 田村務：ノロウイルス GII/4 の新しい変異株の遺伝子解析と全国における検出状況, 病原微生物検出情報月報, **33** (12), 333-334 (2012)

〔資料〕

石川県における地下水の水質組成（平成29年度～令和2年度）

－イオン組成による分類とGISによる描画－

石川県保健環境センター 環境科学部 牧野 雅英・吉田 秀一・石本 聖・
岡田 真規子・野口 邦雅

〔和文要旨〕

平成29年度～令和2年度の4年間に概況調査した273の井戸を対象とし、地下水のイオン成分測定結果から、地下水をキーダイヤグラムの5つの領域区分に分類した。また、分類した地下水の分布状況を把握するため、GIS（地理情報システム）を使用し、結果を地図上で表示することを試みた。

これにより視覚的に地下水の分布状況を理解できるようになり、手取川以北の河川流域ではアルカリ土類重炭酸塩型が卓越しており、浅層地下水であることが示唆された。

キーワード：地下水の水質組成、イオン成分、GIS（地理情報システム）

1 はじめに

本県では、県内の地下水について、水質測定計画^{1)~4)}に基づき、年1回、地下水の概況調査（地域の全体的な地下水質の状況を把握する調査）を実施している。これに併せて当センターでは、地下水のイオン成分を測定して県内（金沢市を除く）における水質組成及び分布状況を調査してきた^{5)~7)}。平成19～21年度の調査では、県内の地下水の水質組成を明らかにし、トリニアダイヤグラムのキーダイヤグラムの領域区分を用いて分類することで、県内の4地域（南加賀、石川中央、能登中部及び能登北部）におけるその特徴を把握することができた⁶⁾。また、平成19年度と23年度及び平成20年度と24年度の同一井戸の水質組成を比較して、その変化について考察した⁷⁾。

今回、平成29年度～令和2年度に概況調査した井戸を対象として、より詳細に県内の地下水組成の特徴を把握することを試みた。

既報^{5)~7)}では井戸が存在する東西南北4kmの区画（以下、「メッシュ」という。）を井戸の位置情報として取り扱ったが、本報ではメッシュを更に東西南北2kmに分割した区画（以下、

「サブメッシュ」という。）を井戸の位置情報として取り扱った。さらに、キーダイヤグラムの領域区分により井戸の水質組成を分類して色分けし、井戸の位置情報からサブメッシュを色分けして地理情報システム（以下、「GIS」という。）を用いて地図上に表示することを試みた。

その結果、県内における地下水の水質組成の分布状況について若干の知見を得たので報告する。

2 方法

2.1 調査井戸

本県の概況調査は、県内を前述のメッシュに分割した中から地域の実情に応じて92メッシュを調査の対象区域としている。さらに、各メッシュを①～④のサブメッシュに分割し、この中の1サブメッシュをその年の調査対象区域として1井戸を選定して調査を実施している。サブメッシュは順次調査するローリング方式を採用しており、4年間で一巡する。

本報では、平成29年度～令和2年度の4年間に本県が概況調査した273の地下水の水質データを解析に使用した。

2.2 イオン成分の分析

分析項目は、地下水の主成分であるナトリウムイオン、カリ

Chemical Composition of Groundwater in Ishikawa Prefecture (2017-2020) –Classification by Ionic Composition and Drawing with GIS-. by MAKINO Masahide, YOSHIDA Shuuichi, ISHIMOTO Takashi, OKADA Makiko and NOGUCHI Kunimasa (Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Chemical Composition of Groundwater, Ion Component, GIS(Geographic Information System)

ウムイオン、マグネシウムイオン、カルシウムイオン、塩化物イオン、硫酸イオン、炭酸水素イオンの7つのイオンである。このうち、炭酸水素イオンについてはpH4.8アルカリ度滴定法⁸⁾により、他のイオン成分についてはイオンクロマトグラフ(株島津製作所製Prominence)により定量分析を行った。測定条件は既報⁹⁾による。

2・3 水質組成図の描画と分類

調査井戸の地下水の各イオン成分を基にトリリニアダイアグラムを作成した。

2・4 GISによる描画

地下水の水質組成の分布状況を可視化するためのGISは、「QGIS 3.4.11」を使用した。「QGIS」はオープンソースソフトウェアのGISであり、地理空間情報の作成、編集、表示、解析と多機能である¹⁰⁾。GISに使用する地図及び市町境界には、国土数値情報ダウンロードコンテンツ¹¹⁾のデータを使用し、河川及び湖沼図には国土数値情報ダウンロードコンテンツのデータを、メッシュ図には政府統計の総合窓口¹²⁾のデータを改変した。

3 結果と考察

3・1 水質組成の分類の結果

水質分析に供した地下水は前述したとおり273である。これらの結果をトリリニアダイアグラム上に表示した(図1)。さらにキーダイアグラムによる領域区分(図2)^{7) 13)}により、5領域(領域I, II, III, IV及びV)に区分し、これを図1に領域ごとに色分けして表示した。

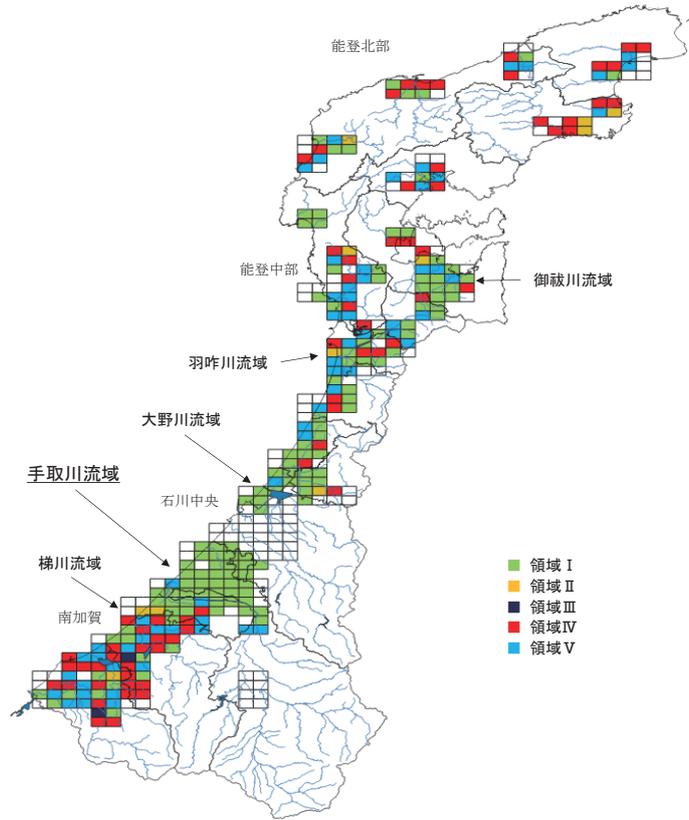


図3 地下水の水質組成の分布状況

調査井戸の地下水の区分の結果を表1に示す。県内全体で見ると、領域Iが最も多く47.6%、次いで領域IVが多く24.9%であった。また、領域IIIの地下水は0.7%とほとんど見られなかった。

各領域の水質組成については、領域Iのアルカリ土類重炭酸塩型では「浅層地下水に多く見られ、日本では最も一般的にみられる水質組成」、領域IIのアルカリ重炭酸塩型では「滞留時間の長い深層地下水でよくみられる水質組成」、領域IIIのアルカリ土類非炭酸塩型では「熱水や化石水が含まれる水質組成」、領域IVのアルカリ非炭酸塩型では「海水や温泉などでよくみられる水質組成」といわれている¹⁴⁾。

これまではメッシュ中の1井を代表井戸として解析を行ってきたが、今回はサブメッシュ中の1井を代表井戸としたことにより、県内の地下水の水質組成をより詳細に解析できた。

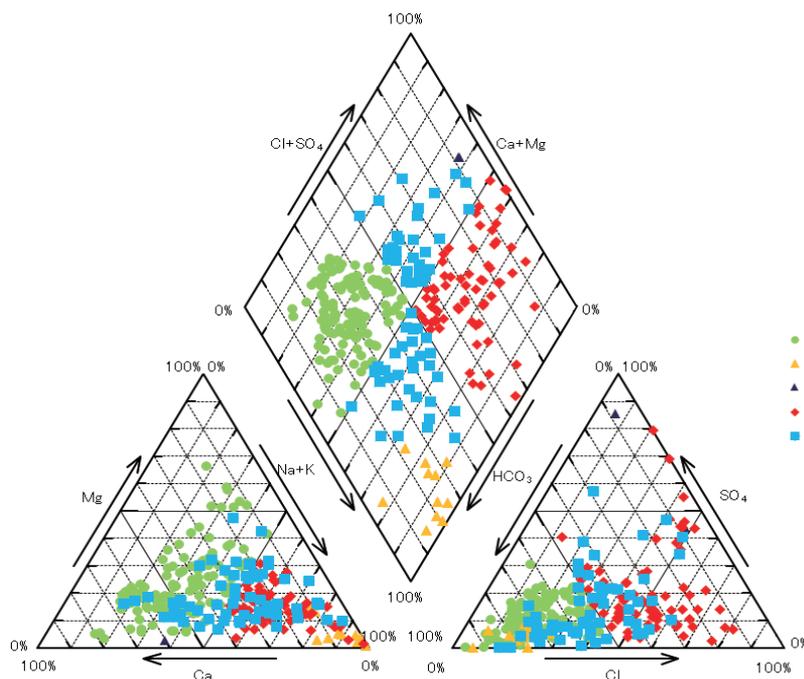


図1 トリリニアダイアグラム

3・2 地下水の分布状況

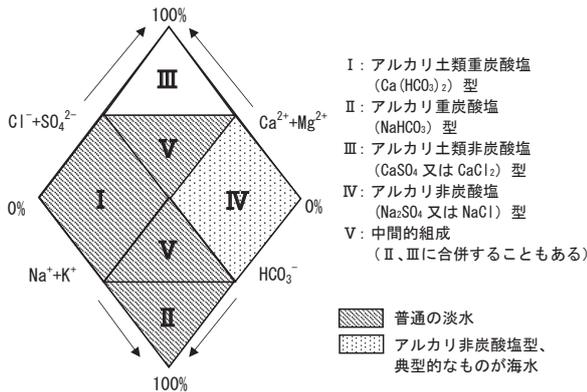


図2 キーダイヤグラムの領域区分

表1 地下水の領域区分の結果

領域区分	井戸数	比率(%)
I	130	47.6
II	11	4.0
III	2	0.7
IV	68	24.9
V	62	22.7
合計	273	100

調査井戸が存在するサブメッシュについて、トリリニアダイヤグラムと同様に色分けし、GISを用いて地図上に表示したものを図3に示す。

最も多い領域Iの地下水は、大野川流域、御祓川流域など、手取川以北の河川流域に見られ、特に手取川流域に明瞭に表れていた。これらの地域の地下水は浅層地下水であることが示唆された。

次いで多い領域IVの地下水は、能登北部沿岸、南加賀地域に多く見られ、その他の地域にも点在していた。沿岸部に見られるものは海水の影響を受けていることが考えられ、南加賀内陸部については温泉の影響も考えられた。

中間的組成である領域Vは、県内に広く分布している状況であった。特に、領域Iと領域IVの両方が見られた地域に領域Vもよく見られた。もともと領域Vに該当する組成なのか、または、領域IとIIIが混合して組成が形成されているかは不明であった。

なお、南加賀地域、羽咋川流域、能登北部地域では、様々な地下水が複雑に分布しており、流域河川の影響のみでは説明できず、地質や井戸の深さなどの様々な要因により地下水の組成が形成されることが考えられた。

今回、県内における地下水の水質組成の分布状況を視覚的に詳細に把握することができた。今後他の要素を含めて県内の地下水を解析する必要があると思われる。

4 まとめ

平成29年度～令和2年度の4年間に調査した273の地下水のイオン成分を測定し、その結果をトリリニアダイヤグラムに

表示し、キーダイヤグラムの5つの領域区分に分類した。また、分類した結果をGISを用いて地図上にサブメッシュを色分けして表示し、県内における地下水の水質組成の分布状況を詳細に把握することができた。

その結果、特徴的な分布がいくつか見られ、手取川以北の河川流域ではアルカリ土類重炭酸塩型が多く見られ、この流域の地下水は浅層地下水であることが考えられた。

しかし、キーダイヤグラムの領域区分だけでは説明できない部分も多くあり、今後他の要素を含めた解析が必要と考えられた。

文 献

- 1) 石川県環境部水環境創造課：平成29年度版 水質測定計画
- 2) 石川県生活環境部環境政策課：平成30年度版 水質測定計画
- 3) 石川県生活環境部環境政策課：平成31年度版 水質測定計画
- 4) 石川県生活環境部環境政策課：令和2年度版 水質測定計画
- 5) 岡田真規子, 牧野雅英, 梶哲夫, 山田肇, 小西秀則：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研究報告書, 45, 70-74 (2008)
- 6) 岡田真規子, 井上和幸, 深山敏明, 中山哲彦：平成20, 21年度の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研究報告書, 47, 70-77 (2010)
- 7) 岡田真規子, 井上和幸, 橋本潤子：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研究報告書, 50, 54-59 (2013)
- 8) 日本水道協会：上水試験方法 2011年版・理化学編, 96-99 (2011)
- 9) 野口邦雅, 岡田真規子, 川畑陵介, 山岸喜信, 柿本均：石川県の海岸に漂着したポリタンクの液体内容物の分析結果、石川県保健環境センター研究報告書, 54, 90-93 (2017)
- 10) 朝日孝輔, 大友翔一, 水谷貴行, 山手規裕：【改訂新版】[オープンデータ+QGIS] 統計・防災・環境情報がひと目でわかる地図の作り方 2019 秀和システム
- 11) 国土交通省国土数値情報ダウンロードサイト, <https://nlftp.mlit.go.jp/ksj/>, 2020年6月30日取得
- 12) 政府統計の総合窓口 (e-Stat), <https://www.e-stat.go.jp/gis>, 2020年7月1日取得
- 13) 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, 建設産業調査会 (1980)
- 14) 日本地下水学会, 水質に関する説明, <http://www.jagh.jp/content/shimin/images/wakimizu/20111002/suishitu.pdf>, 2021年6月30日閲覧

〔資料〕

固相抽出による地下水中のPCBスクリーニング法の検討

石川県保健環境センター 環境科学部 牧野 雅英・河本 公威・野口 邦雅

〔和文要旨〕

本県では、地下水中のPCBスクリーニング検査として固相抽出による方法を用いているが、添加回収試験でPCBの回収率が低くなる場合があった。そこで、PCBの回収率を改善するために4種類のカートリッジを用いてその溶出条件について検討を行った。

固相抽出に使用するカートリッジにminiRP-1を用い、PCBを溶出させるn-ヘキサン量を15mLとし、順方向で溶出することで、地下水を使用した添加回収試験で回収率は80.1%と良好であり、改良した固相抽出による地下水中のPCBスクリーニング法を確立できた。

キーワード：PCB(ポリ塩化ビフェニル)、地下水、固相抽出、スクリーニング検査

1 はじめに

地下水中のポリ塩化ビフェニル(以下、「PCB」という。)の分析方法については、「地下水中の水質汚濁に係る環境基準について」(平成9年3月13日付環告第10号)¹⁾において、「水質汚濁に係る環境基準について」(昭和46年12月28日付環告第59号)²⁾(以下、「公共用水域告示」という。)付表4に掲げる方法として定められている。この測定方法は、試料をn-ヘキサンで抽出し、アルカリ条件下で還流による妨害物質の分解、シリカゲルクロマトグラフによる精製を経て、ガスクロマトグラフ電子捕獲型検出器(以下、「GC-ECD」という)により測定するものである。この方法では抽出及び精製方法が煩雑で時間を要することから、PCBスクリーニング検査として固相抽出法が検討されており、橘ら³⁾や固相抽出ハンドブック⁴⁾において報告されている。

現在、当センターでは、地下水中のPCBスクリーニング検査として、橘らが報告した固相抽出による方法³⁾を参考としているが、橘らの報告では回収率は65.0%であり、当センターで実施した場合に回収率が50%以下となる場合があった。

今回、固相抽出による地下水中のPCBスクリーニング法の回収率改善を目的として、これまでに報告され

ているカートリッジの他、充填量の異なる新たなカートリッジを加えて比較するとともに、溶出条件を検討し、より回収率の高いPCBスクリーニング法を検討した。

2 材料と方法

2・1 材料

(1) 標準品

PCBの標準品はGLサイエンス(株)のカネクロール混合液(KC-300, KC-400, KC-500, KC-600を1:1:1:1に混合)をn-ヘキサンで希釈し1 μ g/mL n-ヘキサン溶液としたもの(以下、「ヘキサン標準溶液」という。)と、同濃度のアセトン溶液としたもの(以下、「アセトン標準溶液」という。)を使用した。

(2) 試薬

アセトン、n-ヘキサン、無水硫酸ナトリウムは富士フィルム和光純薬(株)の残留農薬分析・PCB試験用を使用した。

(3) カートリッジ

検討を行ったカートリッジは表1記載のとおりである。従来から使用していたJrNexusに加え文献⁴⁾に記載のあったminiRP-1を、また、回収率が低い一因としてカートリッジがPCBを十分保持できていないことが

Investigation of Poly Chloro Biphenyl Screening Method in Groundwater by Solid Phase Extraction, by MAKINO Masahide, KAWAMOTO Tomotake and NOGUCHI Kunimasa (Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : PCB(Poly Chloro Biphenyl), Groundwater, Solid Phase Extraction, Screening Method

表1 使用したカートリッジの概要

名称	略称	充填剤	充填量	メーカー
Bond Elut Jr-NEXUS	JrNexus	スチレンジビニルベンゼン	200mg	アジレント・テクノロジー(株)
Bond Elut NEXUS	Nexus	スチレンジビニルベンゼン	500mg	アジレント・テクノロジー(株)
InertSep mini RP-1	miniRP-1	スチレンジビニルベンゼンとメタクリレート	230mg	ジーエルサイエンス(株)
InertSep RP-1	RP-1	スチレンジビニルベンゼンとメタクリレート	500mg	ジーエルサイエンス(株)

考えられたことから、約2倍の充填量であるNexus及びRP-1についても検討した。

精製に使用するカートリッジにはGLサイエンス(株)製「InertSep Slim-J PSA (充填量500mg)」(以下、「PSA」という。)を使用した。

2.2 GCの測定条件

公共用水域告示によるGC-ECD法はバックドカラムを使用した恒温分析法であるが、当センターのPCBスクリーニング検査では、「排水基準を定める省令の規定に基づく環境大臣が定める排水基準に係る検定方法」(昭和49年9月30日付環告第64号)に定める日本産業規格K0093⁵⁾(以下、「JIS」という。)に基づく、キャピラリーカラムを使用した昇温分析法を採用している。

その理由は、公共用水域告示による方法と比較して、①PCBの異性体をより詳細に分離できる、②ピーク形状が良好で、より精度の高い定量が行える、③昇温分析により、カラム中に残りやすい高沸点の不純物を排出できる、④各カネクロールのクロマトグラムのピークパターン例⁶⁾と比較することで、カネクロールの種類が推定できるためである。

GC-ECDの測定条件を表2に示す。測定条件はJISに準じており、GCの条件は、昇温条件等が詳細に記載された底質調査方法⁷⁾を参考とした。

表2 GC-ECDの測定条件

装置	GC-2014 (株島津製作所製)
カラム	DB-5 (アジレント・テクノロジー(株)製) (φ0.25mm×30m, 0.25 μm)
カラム温度	120℃(1min) - (20℃/min) - 160℃ - (2℃/min) - 220℃ - (5℃/min) - 280℃(10min)
注入量	0.5 μL
注入方法	スプリットレス (スプリット比30)
注入口温度	250℃
キャリアガス	ヘリウム
検出器	ECD
検出器温度	320℃
メイクアップガス	窒素
メイクアップガス流量	60mL/min

この測定条件により測定したヘキサン標準溶液のクロマトグラムを図1に示す。底質調査方法に例示されるクロマトグラムと同様に93に分離したピークパターン

が確認でき、いずれのピーク形状も良好であり、地下水中のPCBの定量に十分使用が可能である。

なお、文献⁶⁾ではJISの付属書2表1のPCB異性体溶出パターンとCB₀(%) (クロマトグラムピークを構成するPCB化合物量の比率)は同付属書2図1と合致しないことを指摘した上で、JISの異性体溶出パターンを使用せず、独自の異性体溶出パターンを使用して定量しており、底質調査方法もこの溶出パターンを引用している。

2.3 試験方法

従来のPCBスクリーニング法は図2のとおりである。

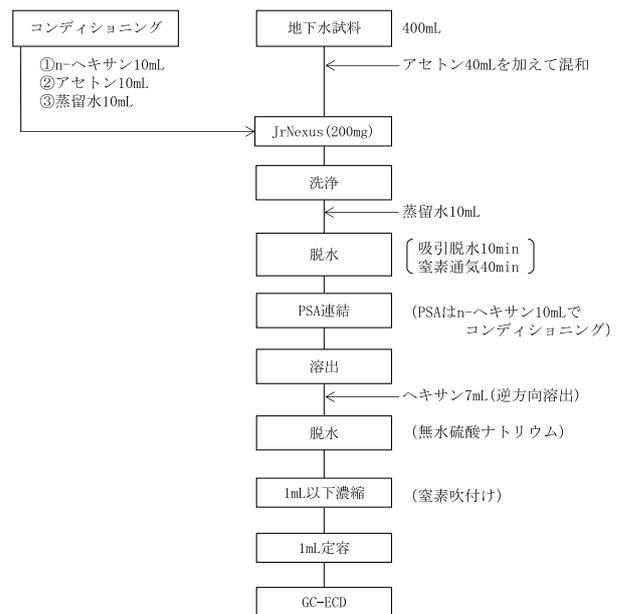


図2 従来のPCBスクリーニング法

この方法に比べて、回収率の高いカートリッジとその溶出条件を検討するため、以下の試験を実施した。

(1) 溶出試験

各カートリッジにおけるn-ヘキサンによる溶出量を求めるための溶出試験を行った。

各カートリッジ(使用前にn-ヘキサン10mLでコンディショニング)にPSA(使用前にn-ヘキサン10mLでコンディショニング。以下、(2)(3)同じ。)を連結し、ヘキサン標準溶液1mLを付加した。溶出にはn-ヘキサン25mLを用い、溶出液は10mL, 5mL, 5mL, 5mLに

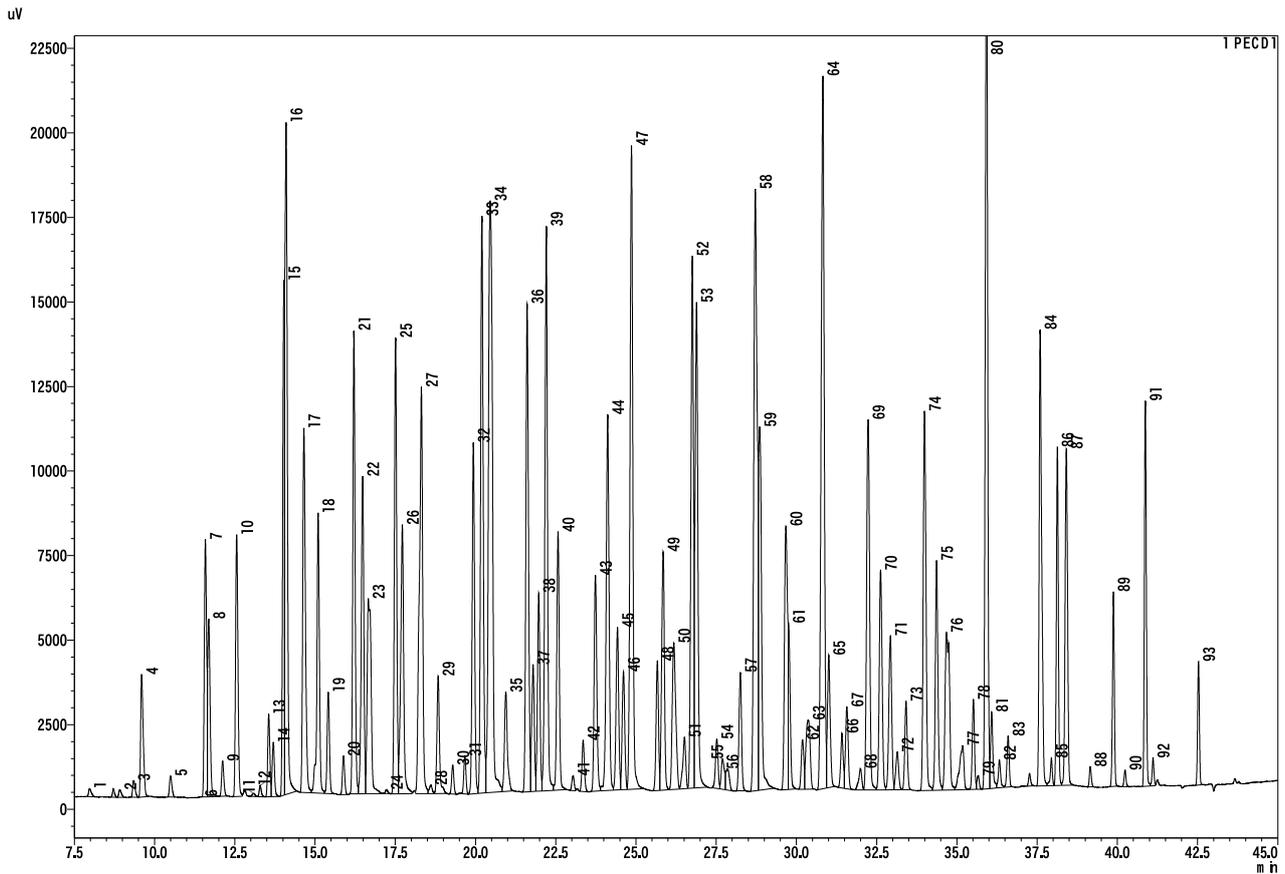


図1 ヘキサン標準溶液のクロマトグラム

分画し、4画分を採取した。各画分に窒素を吹付け1mLに濃縮した。これをEC-ECDで測定し、回収率を求め、溶出量を決定した。

なお、溶出方向は橘らの報告³⁾から、妨害物質の溶出を防止するため順方向とした。

(2) 蒸留水を使用した添加回収試験

蒸留水400mLにアセトン標準溶液1mLを加えた後アセトン40mLを加えて混和後、各カートリッジ(使用前にn-ヘキサン10mL、アセトン10mL、蒸留水10mLでコンディショニング。(3)も同じ。)に15mL/minで通水した。カートリッジは蒸留水10mLで洗浄後、10分間の吸引と40分間の窒素通気で脱水した。PSAを連結し、(1)の検討により決定した量のn-ヘキサンで溶出し、確認のためさらにn-ヘキサン5mLで溶出した。各画分は窒素吹付けにより1mLに定容した。GC-ECDで測定し、回収率を求めた。

なお、カートリッジに保持されなかったPCB量を確認するため、カートリッジを通過した水層をn-ヘキサン20mLで2回抽出し、n-ヘキサン層を無水硫酸ナトリウムで脱水後、1mLに濃縮しGC-ECDで測定した。

(3) 地下水を使用した添加回収試験

県内で電気伝導率が低かった地下水(7.14mS/m)、

平均的であった地下水(17.5mS/m)及び高かった地下水(82.6mS/m)を添加回収試験に使用した。

地下水400mLを分取し、アセトン標準溶液1mLを加えた後アセトン40mLを加え混和後、(2)で決定したカートリッジに15mL/minで通水した。カートリッジは蒸留水10mLで洗浄後、10分間の吸引と40分間の窒素通気で脱水し、PSAカートリッジを連結した。溶出は(1)における検討により決定した量のn-ヘキサンで行った。溶出後は窒素吹付けにより1mLに定容した。GC-ECDで測定し、回収率を求めた。

3 結果と考察

3・1 溶出試験の結果

溶出試験(n=3)の結果を表3に示す。いずれのカートリッジとも0-10mLの溶出量で回収率が96.7%以上と

表3 溶出試験の結果

カートリッジ	PCBの回収率(%)				(n=3)	
	0-10mL	10-15mL	15-20mL	20-25mL	0-15mL	CV(%)
JrNexus	96.7	2.7	0.5	0.1	99.4	1.2
Nexus	101.5	5.5	1.6	0.6	107.1	3.9
miniRP-1	99.4	2.7	0.3	0.1	102.2	4.1
RP-1	102.5	2.6	0.4	0.0	105.0	2.5

なった。10-15mLの画分では2.6～5.5%の回収率が見られ、15-20mL及び20-25mLの画分ではNexusを除き1%未満の回収率であった。0-15mLの回収率の合計が、いずれのカートリッジとも99.4%以上となったことから、n-ヘキサン溶出量は15mLとした。

橘ら³⁾は、ヘキサンによりPCBを溶出する際に、溶出量を多くすれば回収率が向上するが、妨害ピークが検出されることを報告しているが、本測定条件では妨害ピークは確認されなかった。

3・2 蒸留水を使用した添加回収試験の結果

添加回収試験 (n=3) の結果を表4に示す。カートリッジのPCBの平均回収率はminiRP-1が88.4%と最も高く、次いでJrNexusの88.0%であり、平均回収率はほぼ同等のレベルであった。Nexus及びRP-1については、15-20mL画分に若干のPCBが含まれており、n-ヘキサン15mLの溶出ではカートリッジ内にPCBが残るものと思われる。この原因については、この2つのカートリッジは充填量が多いことから、40分間の窒素通気では十分に脱水されず、残った水分がn-ヘキサン溶出に影響しているものと思われる。窒素通気時間を長くすれば回収率を高くできるものと思われた。

表4 蒸留水を使用した添加回収試験の結果

カートリッジ	PCBの回収率(%) (n=3)			
	0-15mL	CV(%)	15-20mL	水層
JrNexus	88.0	1.2	0.1	0.5
Nexus	72.5	5.6	3.1	1.4
miniRP-1	88.4	1.3	0.0	0.5
RP-1	84.3	3.1	0.8	0.8

なお、いずれのカートリッジにおいても、23番ピーク付近に妨害ピークが見られたが、23番ピークのCB₀は1.330%であることから、このピークを除いても影響は小さいと判断した。

3・3 地下水を使用した添加回収試験結果

地下水を使用した添加回収試験 (n=3, 3種類の地下水を各1回) の結果を表5に示す。PCBの平均回収率はminiRP-1で80.1%, JrNexusで75.2%と、miniRP-1のほうがJrNexusよりも回収率が高く、ばらつきが小さかった。また、JrNexusでは、n=3の添加回収試験で回収率が70%を下回ることがあったため、全てで回収率が

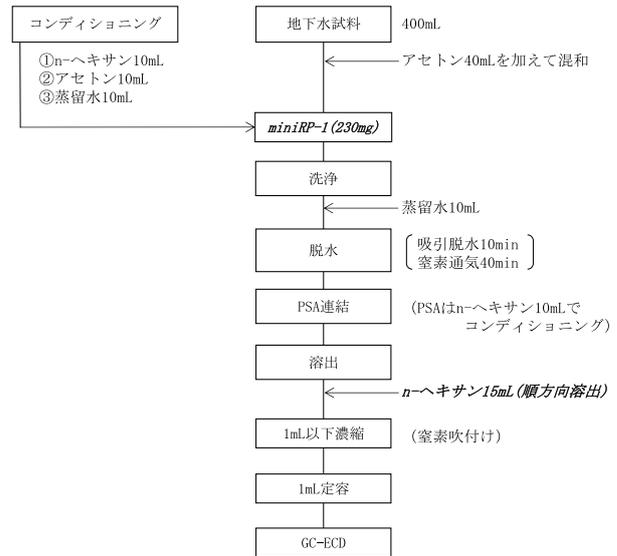
表5 地下水を使用した添加回収試験の結果

カートリッジ	回収率(%) (n=3)	
	回収率(%)	CV(%)
miniRP-1	80.1	5.2
JrNexus	75.2	9.0

75%以上であったminiRP-1を使用することとした。

3・4 改良した固相抽出法

改良したPCBスクリーニング法(図3)は、3・2及び3・3の結果から使用するカートリッジはminiRP-1を、カートリッジからPCBを溶出させるn-ヘキサン量は15mLを用い順方向で溶出させることとした。



※ 改良箇所を太字斜体で記載

図3 改良したPCBスクリーニング法

地下水は溶存物質が比較的少ないことから、今回、充填量の小さなカートリッジのminiRP-1で十分であると考えられた。

なお、事業場排水などの夾雑物が多い試料についてPCBスクリーニング検査を行う際には、夾雑物の影響によるカートリッジの破瓜が考えられるため、充填量が大きなカートリッジの使用が想定される。その場合には、カートリッジ及びPCBを溶出させるn-ヘキサン量などについて再検討が必要である。

4 まとめ

地下水中のPCBスクリーニング検査について、より回収率の高いカートリッジ及び溶出条件を検討した。

4種類のカートリッジを用い検討した結果、

①カートリッジは蒸留水及び地下水を使用した添加回収試験から回収率が最も高くなった miniRP-1を使用することとした。

②カートリッジからPCBを溶出させるn-ヘキサン量はいずれのカートリッジにおいても15mLで99.4%以上溶出することから、n-ヘキサン量は15mLとし、順方向で溶出させることとした。

これにより、地下水を使用した添加回収試験を実施

した結果、回収率が80.1%と良好であり、従来よりも高い回収率のPCBスクリーニング法を確立することができた。

今回改良した、地下水中のPCBスクリーニング法は、迅速かつ簡便で有用な方法である。

文 献

- 1) 環境省：地下水の水質汚濁に係る環境基準について，平成9年3月13日環告第10号
- 2) 環境省：水質汚濁に係る環境基準について，昭和46年12月28日環告第59号
- 3) 橋治廣，田中博義，田中宏和：PCB検査の前処理における固相抽出法の検討，福井県衛生環境研究センター年報，**6**，76-78 (2007)
- 4) ジーエルサイエンス 固相抽出ガイドブック編集委員会：固相抽出ガイドブック，206 (2012)
- 5) (一財)日本規格協会：JIS K 0093 工業用水・工場排水中のポリクロロビフェニル (PCB) 試験方法，(2006)
- 6) 環境省大臣官房廃棄物・リサイクル対策部廃棄物対策課：絶縁油中の微量PCBに関する簡易測定法マニュアル (第3版)，9-20，平成23年5月
- 7) 環境省水・大気環境局：底質調査方法，312-316，平成24年8月

〔資料〕

令和3年3月29日黄砂飛来時の大気浮遊じん、 降下物中の放射能

石川県保健環境センター 環境科学部

井上 和幸・吉本 高志・鳥屋子やまと・
岡田 真規子・内田 賢吾

〔和文要旨〕

令和3年3月29日に県内に飛来した黄砂の影響を調査するため、令和3年3月29日から4月2日にかけて大気浮遊じん、降下物中の放射能及び空間放射線量率を測定した。

その結果、大気浮遊じんにおいて、セシウム-137が 0.0056mBq/m^3 、カリウム-40が 0.068mBq/m^3 検出された。これは、セシウム-137が 43Bq/kg 、カリウム-40が 520Bq/kg に相当し、志賀町で採取した土壌の検出レベルと同程度であった。

同期間、黄砂の飛来により、空間線量率の変動は見られず、降下物からセシウム-137及びカリウム-40は検出されなかった。

キーワード：黄砂、大気浮遊じん、降下物

1 はじめに

黄砂は、冬から春にかけてユーラシア大陸から偏西風に乗って越境し、国内に飛来する粒子状の物質であり、アレルギー症状や呼吸器疾患など健康被害を生ずるおそれがある物質である¹⁾。

黄砂の飛来は、国内はもとより、本県においてもほぼ毎年観測され^{2) 3)}、日本まで到達する粒径は $4\mu\text{m}$ 付近のものが多く、黄砂が飛来すると、環境大気中のSPM ($10\mu\text{m}$ 以下) やPM2.5 ($2.5\mu\text{m}$ 以下) の濃度が上昇することがある。

また、放射能との関連については、1980年代以前の大気圏内核実験や1986年のチェルノブイリ発電所事故によって放出されたセシウム-137が黄砂とともに飛来したとの報告^{4) 5)}があるほか、県内において平成21年12月及び平成22年3月に金沢で黄砂が観測された際、降下物からセシウム-137が検出された⁶⁾。

そこで、本調査では黄砂飛来による空間線量率の変

動や人への健康影響を把握するため、黄砂の飛来が予測された令和3年3月に、保健環境センター（金沢市太陽が丘。以下、「当センター」という。）屋上で、大気浮遊じん及び降下物を採取し、重量や放射能濃度の調査を実施した。

更に、本県では、令和2年2月から当センター屋上で大気浮遊じん及び降下物を継続して採取し、重量や放射能濃度の調査（以下、「年間調査」という。）を実施しており、その結果と比較したので併せて報告する。

2 調査方法

2・1 調査対象

(1) 大気浮遊じん

大気浮遊じんは、当センター屋上でハイボリウムエアサンプラー（紀本電子工業株式会社製120SL）を用い、流速 800L/min （年間調査は $1,200\text{L/min}$ ）で、ろ紙（Advantec製GB-100）に採取した。

(2) 降下物

Radioactivity in Fallout and Airborne Dust when Asian Dust Event Came on the March 29, 2021. by INOUE Kazuyuki, YOSHIMOTO Takashi, TOYANAGO Yamato, OKADA Makiko and UCHIDA Kengo (Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Asian dust, Airborne dust, Fallout

降下物（雨水、塵等）は、当センター屋上1mの高さに「角型たらい」（新輝合成(株)120型、面積0.48m²）を設置し採取した。

(3) 空間放射線量率

空間放射線量率は、原子力規制庁委託事業「環境放射能水準調査」において、放射能測定法シリーズ⁷⁾に基づき設置したモニタリングポスト（MAR-22(株)日立製作所製NaI (TI) シンチレーション検出器）（当センター屋上にて屋上床から3mの高さ。地上から17m）のデータを用いた。

2・2 調査期間

気象庁等における黄砂の飛来予測などから、令和3年の3月16日から19日まで、及び3月29日から4月2日までの間、大気浮遊じん、降下物を継続して採取した。なお、この間、毎日9時及び16時に試料の回収を行った。

令和3年3月29日15時の気象庁黄砂予測図（図1）⁸⁾と、3月28日から4月2日にかけて金沢地方気象台で観測した視程⁹⁾及び県内大気環境測定局18局のSPM濃度の値¹⁰⁾（図2）から、令和3年3月29日から3月31日までの間、県内に黄砂の飛来があったと考えられた。

そこで、黄砂調査として、3月29日から4月2日まで行った。

また、年間調査では、週2回（主に月、金曜の9時）試料を回収した。

2・3 測定方法

(1) 試料の調製

大気浮遊じんを採取したろ紙は6.5cm×5.5cmに折り畳み、アクリル製測定容器に詰め、測定試料とした。

採取した降下物はビーカーに移した後、採取に用いた角型たらいを塩酸（1+100）及びイオン交換水で洗浄し、洗液と降下物を合わせて蒸発濃縮後、U-8容器に入れて、乾固させ、測定試料とした。

(2) 放射能分析（ガンマ線核種分析）

測定は、ゲルマニウム半導体検出器（SEIKO EG&G製GEM-C7080-LB-C-HJ-S、相対効率45%程度、分解能2keV未満、鉛-210などの低エネルギーガンマ線測定が行えるもの）によるガンマ線核種分析とし、測定時間は80,000秒とした（検出状況によっては80,000秒以上の長時間測定を実施）。

測定結果については、採取開始から採取終了までの中間日時で半減期補正した。

3 結果及び考察

3・1 大気浮遊じん

(1) 大気浮遊じんの濃度

ア 年間調査

年間調査のうち、令和2年度の大気浮遊じんの積算流量に対する重量（以下、「大気浮遊じんの濃度」という。）のグラフを図3に示す。なお、グラフ上の各データの横線の長さはそれぞれの採取期間を示す（以下同じ）。

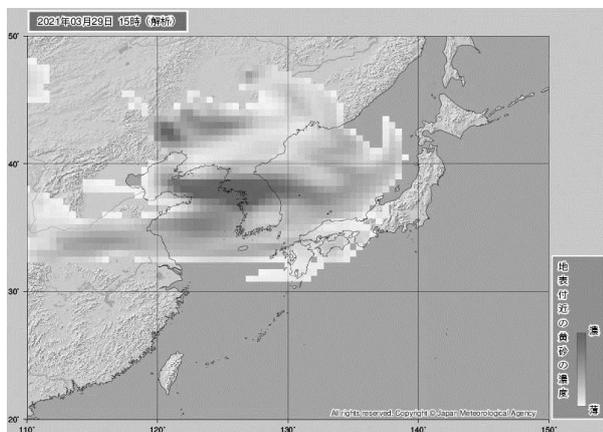


図1 気象庁黄砂予測図（令和3年3月29日15時）

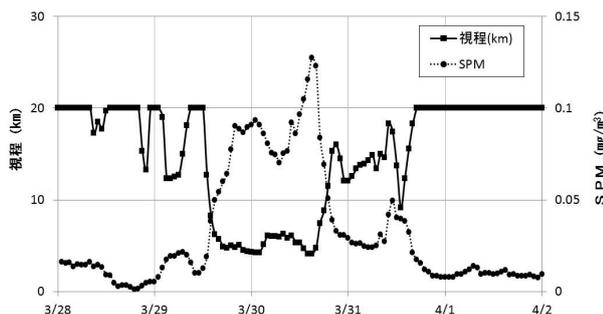


図2 金沢の視程と測定局18局のSPM（令和3年3月28日～4月2日）

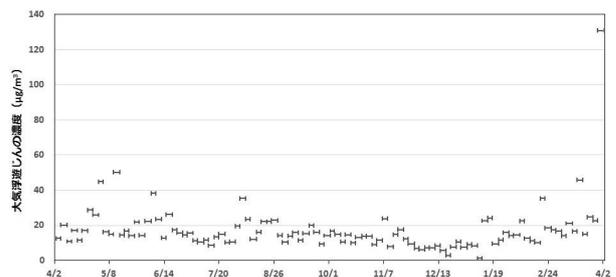


図3 大気浮遊じんの濃度（年間調査、令和2年4月3日～令和3年4月2日）

大気浮遊じんの濃度の値は1.2～131 μg/m³の範囲であり、同期間の全重量から全積算流量を除いて求めた濃度の平均値は17.5 μg/m³であった。最も高濃度となった期間は、黄砂が飛来した令和3年3月29日から4月2日までの期間で、他の期間に比べ突出して高い値を示した。

イ 黄砂調査

黄砂調査の大気浮遊じんの濃度を図4に示す。

大気浮遊じんの濃度の値は12～264 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲であり、平均値は103 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。期間中最も高濃度となったのは、気象庁黄砂予測図で本県への到達が予測された3月29日の翌日となる30日の9時から16時までの間で、SPM濃度が3月30日15時に最高値を示した(図2)ことと整合する結果となった。

(2) 大気浮遊じん中の放射能濃度及び空間線量率

年間調査のうち、令和3年3月15日から4月9日までの間における大気浮遊じん中の放射能濃度及び空間線量率の結果を表1に、黄砂調査の結果を表2に示す。

ア 年間調査

年間調査では、黄砂が飛来した令和3年3月29日から4月2日の間に採取した試料のみからセシウム-137が0.0056 mBq/m^3 、カリウム-40が0.068 mBq/m^3 検出された。これを重量あたりの濃度に換算すると、セシウム-137が43 Bq/kg 、カリウム-40が520 Bq/kg となり、令和2年8月に志賀町直海で採取した土壌(0～5 cm)の放射能と同程度(セシウム-137:46.3 Bq/kg 、カリウム-40:413 Bq/kg)であった。

また、ベリリウム-7及び鉛-210について、3月29日から4月2日の間の結果と、その他の期間と比較したが、大きな濃度変化は見られなかった。

イ 黄砂調査

黄砂調査では、セシウム-137及びカリウム-40のいずれも不検出であった。

年間調査の採取間隔は3日間又は4日間である一方、黄砂調査の採取間隔は7時間又は17時間と短く、採取量が少なかったため検出されなかったと推定された。

ウ 空間線量率

黄砂調査の期間における空間線量率の結果を図5に示す。空間線量率はほぼ一定の値を示し、黄砂の飛来による影響は見られなかった。

3・2 降下物

(1) 降下量

年間調査の降下量を図6に示す。降下量の値は0～0.40 $\text{g}/\text{日}$ の範囲であり、平均値は0.07 $\text{g}/\text{日}$ であった。このうち降雨が観測された期間に採取した降下量の平均値は0.08 $\text{g}/\text{日}$ であり、降雨が無い期間では0.02 $\text{g}/\text{日}$ であった。黄砂が飛来した期間は降雨が無かったものの降下量は0.08 $\text{g}/\text{日}$ と多かった。

黄砂調査の降下量を図7に示す。降下量の値は0.01～0.31 $\text{g}/\text{日}$ であり、平均値は0.08 $\text{g}/\text{日}$ と、高い値となっている。

(2) 降下物の放射能濃度

降下物の放射能濃度の結果について、年間調査のうち令和3年3月15日から4月9日までの間に採取した降

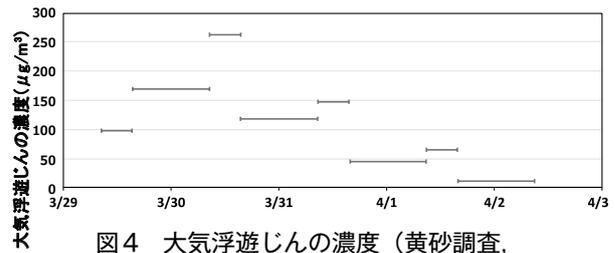


図4 大気浮遊じんの濃度(黄砂調査, 令和3年3月29日～4月2日)

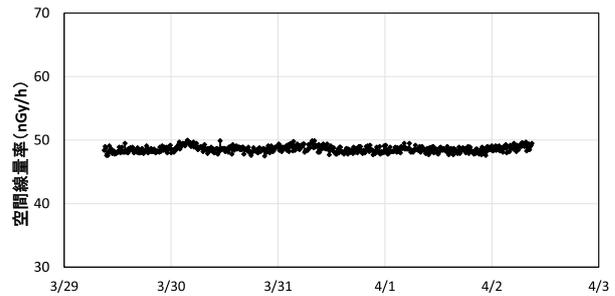


図5 保健環境センターにおける空間線量率(黄砂調査, 令和3年3月29日～4月2日)

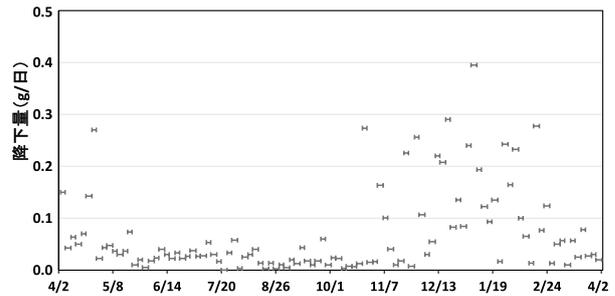


図6 降下量(年間調査, 令和2年4月3日～令和3年4月2日)

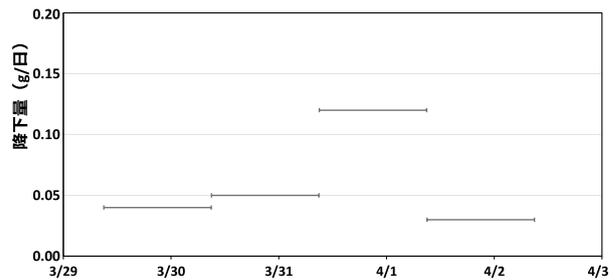


図7 降下量(黄砂調査, 令和3年3月29日～4月2日)

下物の結果を表3に、黄砂調査の間に採取した結果を表4に示す。

表3及び表4のいずれもすべての期間でセシウム-137及びカリウム-40が不検出であった。このことから、黄砂の飛来により、セシウム-137及びカリウム-40の降下物への影響は見られなかった。

(3) 令和3年3月16日から19日までの間の調査
黄砂の飛来が観測されなかった令和3年3月16日から

19日までの間も、黄砂調査と同様に調査を実施したが、大気浮遊じんの濃度は最高が $97 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、降水量は最大 $0.07\text{g}/\text{日}$ であり、放射能では、セシウム-137やカリウム-40が全ての試料で検出されなかった。

3.3 健康影響

黄砂が飛来した期間で、最も高い濃度の放射能を検出した3月29日9時～4月2日9時の大気浮遊じんのセシウム-137によるヒトへの健康影響を評価した。

セシウム-137を検出した大気浮遊じんの放射能の値 $0.0056\text{mBq}/\text{m}^3$ と、成人の実効線量係数（吸入摂取，セシウム-137： $3.9 \times 10^{-2} \mu\text{Sv}/\text{Bq}$ ），呼吸率 $22.2 \times 10^6 \text{cm}^3/\text{d}$ を用いて^{11) 12)}、内部被ばく線量を算出すると、 $1.8 \times 10^{-6} \text{mSv}/\text{年}$ ($0.0056\text{mBq}/\text{m}^3 \times 3.9 \times 10^{-2} \mu\text{Sv}/\text{Bq} \times 22.2 \times 10^6 \text{cm}^3/\text{d} \times 365\text{d}/\text{y}$) と算出された。これは、一般の人々の健康を守るための基準である公衆被ばくの線量限度（年間 1mSv ）と比べると、ごくわずかな値であった。

4 まとめ

気象庁の黄砂飛来情報をもとに、大気浮遊じんと降下物への影響を調査するため、令和3年3月29日から4月2日にかけて、当センター屋上にて黄砂調査を実施し、令和2年4月から実施している年間調査のうち、令和2年度の結果と比較した。

(1) 大気浮遊じんの濃度

年間調査では、令和2年度の大気浮遊じんの濃度の平均値は $17.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。最も高濃度となった期間は、黄砂が飛来した3月29日9時から4月2日9時までの間で $131 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。また、黄砂調査では、平均値が $103 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、最も高濃度となったのは3月30日9時から16時までの間で $264 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。

(2) 大気浮遊じん中の放射能濃度

年間調査では、令和3年3月29日から4月2日に採取した大気浮遊じんからセシウム-137が $0.0056\text{mBq}/\text{m}^3$ 、カリウム-40が $0.068\text{mBq}/\text{m}^3$ 検出されたが、同時期に実施した黄砂調査では、採取量が少なかったため不検出となった。

黄砂が飛来した期間の大気浮遊じんの放射能はセシウム-137が $43\text{Bq}/\text{kg}$ 、カリウム-40が $520\text{Bq}/\text{kg}$ であり、志賀町で採取した土壌のレベルと同程度であった。

また、空間線量率から、黄砂の飛来による影響は見られなかった。

(3) 降水量

年間調査の降水量の平均値 $0.07\text{g}/\text{日}$ であり、雨が無い期間の平均値は $0.02\text{g}/\text{日}$ であった。黄砂が飛来した期間は降雨が無かったものの $0.08\text{g}/\text{日}$ と多かった。

(4) 降下物の放射能

表 1 大気浮遊じんの濃度、放射能濃度及び空間線量率（年間調査、令和3年3月15日～4月9日を抜粋）

採取日時	積算流量	重量	濃度	Cs-137	K-40	Be-7	Pb-210	空間線量率
	(m^3)	(g)	($\mu\text{g}/\text{m}^3$)					
3月15日 9:00～3月19日 8:58	7,114	0.326	46	N.D.	N.D.	8.0 ± 0.062	1.6 ± 0.038	48.93
3月19日 9:00～3月22日 7:58	5,259	0.079	15	N.D.	N.D.	5.5 ± 0.060	0.86 ± 0.038	51.57
3月22日 8:00～3月26日 8:58	7,190	0.177	25	N.D.	N.D.	8.1 ± 0.061	1.3 ± 0.035	48.54
3月26日 9:00～3月29日 8:58	5,331	0.121	23	N.D.	N.D.	6.8 ± 0.064	1.1 ± 0.041	49.68
3月29日 9:00～4月2日 8:58	7,108	0.930	131	0.0056 ± 0.0012	0.068 ± 0.020	7.0 ± 0.060	1.6 ± 0.037	48.58
4月2日 9:00～4月5日 8:58	5,330	0.156	29	N.D.	N.D.	6.6 ± 0.067	0.93 ± 0.038	50.63
4月5日 9:00～4月9日 8:58	7,113	0.107	15	N.D.	N.D.	9.3 ± 0.071	0.97 ± 0.032	48.10

表 2 大気浮遊じんの濃度、放射能及び空間線量率（黄砂調査、令和3年3月29日～4月2日）

採取日時	積算流量	重量	濃度	Cs-137	K-40	Be-7	Pb-210	空間線量率
	(m^3)	(g)	($\mu\text{g}/\text{m}^3$)					
3月29日 9:00～3月29日 15:58	337	0.033	98	N.D.	N.D.	6.8 ± 0.33	2.3 ± 0.29	48.34
3月29日 16:00～3月30日 8:58	819	0.139	170	N.D.	N.D.	7.0 ± 0.16	1.6 ± 0.13	48.71
3月30日 9:00～3月30日 15:58	338	0.089	264	N.D.	N.D.	7.6 ± 0.33	1.7 ± 0.28	48.61
3月30日 16:00～3月31日 8:58	821	0.098	119	N.D.	N.D.	10 ± 0.21	1.7 ± 0.13	48.72
3月31日 9:00～3月31日 15:58	338	0.050	148	N.D.	N.D.	9.4 ± 0.37	2.3 ± 0.29	48.48
3月31日 16:00～4月1日 8:58	821	0.037	45	N.D.	N.D.	3.0 ± 0.23	1.1 ± 0.12	48.46
4月1日 9:00～4月1日 15:58	339	0.022	66	N.D.	N.D.	6.5 ± 0.53	1.7 ± 0.29	48.39
4月1日 16:00～4月2日 8:58	820	0.010	12	N.D.	N.D.	3.2 ± 0.24	1.2 ± 0.20	48.62

表3 降水量及び降下物の放射能濃度（年間調査、令和3年3月15日～4月9日を抜粋）

採取日時	採取量		降水量		Cs-137	K-40	Be-7	Pb-210
	(L)	(g)	(g/日)	(g/日)				
3月15日 9:00～3月19日 8:58	1.6	0.10	0.03		N.D.	N.D.	0.16 ±0.0030	0.034±0.0020
3月19日 9:00～3月22日 7:58	18.7	0.23	0.08		N.D.	N.D.	0.79 ±0.0073	0.14 ±0.0036
3月22日 8:00～3月26日 8:58	0.0	0.11	0.03		N.D.	N.D.	0.16 ±0.0029	0.025±0.0018
3月26日 9:00～3月29日 8:58	1.3	0.09	0.03		N.D.	N.D.	0.11 ±0.0029	0.016±0.0022
3月29日 9:00～4月2日 8:58	0.0	0.08	0.02		N.D.	N.D.	0.006±0.0009	0.003±0.0010
4月2日 9:00～4月5日 8:58	20.4	0.40	0.13		N.D.	N.D.	0.74 ±0.0070	0.066±0.0029
4月5日 9:00～4月9日 8:58	0.2	0.07	0.02		N.D.	N.D.	0.065±0.0021	0.009±0.0016

表4 降水量及び降下物の放射能濃度（黄砂調査、令和3年3月29日～4月2日）

採取日時	採取量		降水量		Cs-137	K-40	Be-7	Pb-210
	(L)	(g)	(g/日)	(g/日)				
3月29日 9:00～3月29日 15:58	0.0	0.01		0.04	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
3月29日 16:00～3月30日 8:58	0.0	0.03			N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
3月30日 9:00～3月30日 15:58	0.0	0.02		0.05	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
3月30日 16:00～3月31日 8:58	0.0	0.03			N.D.	N.D.	0.020±0.0067	N.D.
3月31日 9:00～3月31日 15:58	0.0	0.09		0.12	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
3月31日 16:00～4月1日 8:58	0.0	0.03			N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
4月1日 9:00～4月1日 15:58	0.0	0.02		0.03	N.D.	N.D.	N.D.	0.049±0.016
4月1日 16:00～4月2日 8:58	0.0	0.01			N.D.	N.D.	N.D.	N.D.

セシウム-137及びカリウム-40とも全て不検出であった。

(5) 健康影響

セシウム-137を検出した大気浮遊じん放射能の値と、成人の実効線量係数、呼吸率を用いて、内部被ばく線量を算出すると、 1.8×10^{-6} mSv/年と算出された。

これは、一般の人々の健康を守るための基準である公衆被ばく線量限度（年間1mSv）と比べると、ごくわずかな値であった。

文 献

- 1) 環境省：黄砂とその健康影響について（2019年3月発行）
- 2) 環境省：令和元年度黄砂飛来状況調査報告書（令和3年3月）
- 3) 石川県：令和元年度環境大気調査報告書（令和2年9月）
- 4) 五十嵐康人：⁹⁰Srと¹³⁷Csを用いたダスト輸送過程と再飛散、エアロゾル研究, 17 (4), 252-258 (2002)
- 5) Hideshi Fujiwara：Atmospheric deposition of radioactive cesium (¹³⁷Cs) associated with dust events in East Asia, Bull. Natl. Inst. Agro-Environ. Sci., 27, 85-115 (2010)

- 6) 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研究報告書, 47, 84-87 (2010)
- 7) 原子力規制庁監視情報課：放射能測定法シリーズ No.17 連続モニタによる環境γ線測定法, 平成29年12月改訂
- 8) 気象庁, 黄砂情報, <https://www.data.jma.go.jp/env/kosa/fcst/>, (参照2021-04-01)
- 9) 気象庁, 過去の気象データ・ダウンロード, <https://www.data.jma.go.jp/gmd/risk/obsdl/>, (参照2021-04-01)
- 10) 石川県, 石川県の大気環境状況, <http://ishikawa-taiki.jp/index.php>, (参照2021-04-01)
- 11) 原子力規制庁監視情報課：平常時モニタリングについて（原子力災害対策指針補足参考資料）（平成30年4月4日）
- 12) ICRP: ICRP PUBLICATION 72, Age-dependent Doses to the Members of the Public from Intake of Radionuclides Part 5 Compilation of Ingestion and Inhalation Coefficients, Annals of the ICRP Volume 26 No.1, International Commission on Radiological Protection (1996)

〔資 料〕

ジビエ中の放射能調査

— イノシシ肉, シカ肉中の放射能 —

石川県保健環境センター 環境科学部

井上 和幸・鳥屋子やまと・
岡田 真規子・内田 賢吾

〔和文要旨〕

石川県内で流通するジビエのうち、イノシシ肉及びシカ肉について、捕獲地域別及び部位別に放射能調査を実施した。

イノシシ肉の捕獲地域別調査では、検出されたカリウム-40は86.9～96.2Bq/kg生、セシウム-137は0.31～2.47Bq/kg生であった。一部の地域では他と比べて高い値を示したものの、その原因については分からなかった。

イノシシ肉とシカ肉の部位別の調査では、カリウム-40は71.9～105.4Bq/kg生、セシウム-137は0.26～0.48Bq/kg生であり、部位による差は見られなかった。

キーワード：ジビエ, 放射能, カリウム-40, セシウム-137

1 はじめに

近年、野生鳥獣の個体数の増加に伴う農作物被害の増加により、イノシシやシカの捕獲頭数は、平成20年度からの10年間で2倍に増加している¹⁾。捕獲した有害鳥獣は、フランス語で野生鳥獣肉を意味する「ジビエ」として有効活用が試みられており、当県においても、平成26年7月にジビエの利用促進を図るため「いしかわジビエ利用促進研究会」を立ち上げ、ジビエ料理フェアや食イベントを通じて認知度の向上に取り組んでいる²⁾。

福島周辺では、野生鳥獣中の放射性物質に係る調査が数多くなされており³⁾⁻⁶⁾、例えば、福島県二本松市東部で採取されたイノシシの胃内容物からは1,000Bq/kgを超えるセシウム-137が検出されたとの報告がある⁶⁾。

県内で捕獲され、処理されたジビエの放射能濃度について、前報⁷⁾では、県内弁当屋及びスーパーマーケット計4店舗の弁当、ジビエ、市販の牛肉及び豚肉に含まれる放射能濃度を測定したところ、弁当からはセシ

ウム-137は検出されなかったが、ジビエからは市販の牛肉及び豚肉の約50倍のセシウム-137が検出された(最大1.26Bq/kg生)。これを、平成24年4月に設定された現行の一般食品に含まれる放射性セシウムの基準(100Bq/kg)と比較すると、検出されたセシウムはごく僅かであり、福島第一原子力発電所(以後、「福島第一原発」という。)事故の影響はごく僅かであったと考察した。

本報では、イノシシ肉及びシカ肉について、捕獲地域別及び部位別に放射能調査を実施し、それぞれの違いについて検討を行ったので報告する。

2 調査方法

2.1 調査対象

調査対象を、表1に示す。県内で捕獲した野生獣肉のうち、イノシシ肉及びシカ肉を対象とし、イノシシ肉については捕獲地域別及び部位別の調査を、シカ肉については部位別の調査を行った。

調査では、県内の食肉処理施設において、食用とし

Surveillance of Radioactivity in Gibier Meat. by INOUE Kazuyuki, TOYANAGO Yamato, OKADA Makiko and UCHIDA Kengo (Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Gibier Meat, Radioactivity, Potassium-40, Cesium-137

表1 調査対象

検体	種	捕獲場所	捕獲日	体重(kg)	雌雄
①	イノシシ	羽中市千路	令和2年3月23日	43	オス
②	イノシシ	志賀町福浦	令和2年3月24日	80	メス
③	イノシシ	宝達志水町見砂	令和2年1月14日	75	メス
④	イノシシ	中能登町春木	令和2年1月28日	45	メス
⑤	イノシシ	志賀町福浦	令和2年7月9日	41	オス
⑥	シカ	加賀市塔尾	令和2年12月1日	59	オス

て販売されているものを各々約1kg購入し、試料とした。

2・2 検体の調整

試料を包丁及びミキサーで細かく切断後、磁性皿に入れ、105℃で数日間乾燥後、450℃で2～3日間灰化し、U-8容器に充填して、検体とした。

2・3 放射能測定

(1) ガンマ線放出核種分析

放射能測定法シリーズ⁸⁾に基づき、ゲルマニウム半導体検出器 (SEIKO EG&G製GEM-C7080-LB-C-HJ-S, 相対効率45%程度, 分解能2keV未満) を用いて、測定時間80,000秒でガンマ線放出核種分析を行った。

(2) ストロンチウム-90分析

放射能測定法シリーズ⁹⁾に準じた方法として、酸を加え加熱抽出し、イオン交換法により分析・精製したストロンチウム-90から成長したイットリウム-90を分離し、低バックグラウンドベータ線測定装置 (Aloka社製SCE-203) を用い3,600秒測定を行い定量した。

3 調査結果と考察

3・1 捕獲地域別のイノシシ肉調査

県内5か所で捕獲されたイノシシ (スネ) 肉の測定結果を表2に示す。

表2 捕獲地域別のイノシシ (スネ) の放射能濃度

検体	重量	K-40	Cs-137	Cs-134	Sr-90
	kg生				
①	1.1276	86.9±0.6	0.82±0.02	N.D.	N.D.
②	1.3040	94.7±0.7	0.97±0.02	N.D.	N.D.
③	1.2034	89.0±0.6	0.64±0.02	N.D.	N.D.
④	1.2025	91.0±0.6	2.47±0.03	N.D.	N.D.
⑤	0.8273	96.2±0.8	0.31±0.02	N.D.	N.D.
平均		91.6	1.04	N.D.	N.D.

※「N.D.」は検出下限値未満である。

カリウム-40の濃度は86.9～96.2Bq/kg生、セシウム-137の濃度は0.31～2.47Bq/kg生であり、その他の人工放射性核種は検出されなかった。全ての検体でセシウム-134及びストロンチウム-90は検出されず、セシウム-137については、前報⁷⁾の調査結果と同程度の値を示し、福島第一原発事故後の放射性セシウムの一般

食品の基準値100Bq/kg¹⁰⁾に比べると320分の1から40分の1程度であり、十分低い濃度であった。

捕獲地域別で比較すると、④の検体でセシウム-137が他と比べて高い値を示したものの、その原因については、わからなかった。

3・2 部位別のイノシシ肉調査

志賀町福浦で捕獲されたイノシシ1個体 (検体⑤) の部位別放射能の測定結果を表3に示す。

表3 部位別のイノシシの放射能濃度

検体 (⑤の部位)	重量	K-40	Cs-137	Cs-134	Sr-90
	kg生				
ロース	0.9975	96.0±0.7	0.45±0.02	N.D.	N.D.
カタロース	1.0909	100.9±0.7	0.33±0.01	N.D.	N.D.
ランプ	0.9908	100.5±0.7	0.48±0.02	N.D.	N.D.
ヒレ	0.4057	98.2±1.1	0.36±0.03	N.D.	N.D.
シタマ	1.1336	100.2±0.7	0.44±0.02	N.D.	N.D.
モモ	1.1320	99.5±0.7	0.46±0.01	N.D.	N.D.
バラ	0.9252	92.0±0.7	0.40±0.02	N.D.	N.D.
前バラ	0.8711	96.7±0.8	0.37±0.02	N.D.	N.D.
ウデ	1.3941	102.7±0.6	0.37±0.01	N.D.	N.D.
内モモ	1.1900	102.2±0.7	0.46±0.01	N.D.	N.D.
スネ	0.8273	96.2±0.8	0.31±0.02	N.D.	N.D.
平均		98.7	0.40	N.D.	N.D.

※「N.D.」は検出下限値未満である。

カリウム-40の濃度は92.0～102.7Bq/kg生、全ての部位でセシウム-134及びストロンチウム-90は検出されず、セシウム-137の濃度は0.31～0.48Bq/kg生であり、その他の人工放射性核種も検出されなかった。

平成25年3月から平成27年3月に千葉県内で捕獲されたイノシシ肉の部位別の放射性セシウムを測定した結果⁵⁾では、モモ肉から検出した放射性セシウムが最も高く、バラ肉はモモ肉の0.28倍であったものの、放射性セシウムについて、本研究では、部位による大きな差は見られなかった。

3・3 部位別のシカ肉調査

加賀市塔尾で捕獲されたシカ1個体 (検体⑥) の部位別放射能の結果を表4に示す。

カリウム-40の濃度は71.9～105.4Bq/kg生、全ての部位でセシウム-134及びストロンチウム-90は検出されず、セシウム-137の濃度は0.26～0.38Bq/kg生であり、その他の人工放射性核種は検出されなかった。

いずれの核種も部位による差は見られなかった。

4 まとめ

県内で捕獲処理されたジビエのうち、イノシシ肉及びシカ肉を対象とし、捕獲地域別及び部位別の放射能調査を行った。カリウム-40の濃度は71.9～105.4Bq/kg生、セシウム-137の濃度は0.26～2.47Bq/kg生であり、

表 4 部位別のシカの放射能濃度

検体 (⑥の部位)	重量 kg生	K-40	Cs-137	Cs-134	Sr-90
		Bq/kg生			
ロース	1.1952	92.6±0.7	0.33±0.01	N.D.	N.D.
ヒレ	0.5248	104.5±1.0	0.32±0.02	N.D.	N.D.
カタロース(ネックなし)	1.1147	96.2±0.7	0.29±0.01	N.D.	N.D.
ネック	0.6341	94.6±0.9	0.28±0.02	N.D.	N.D.
ウデ(カタ)	0.8236	91.4±0.7	0.29±0.02	N.D.	N.D.
前バラ(スベアリブ)	0.4057	88.9±1.0	0.26±0.02	N.D.	N.D.
友バラ	1.0448	71.9±0.6	0.26±0.02	N.D.	N.D.
内モモ	1.3101	105.4±0.7	0.38±0.01	N.D.	N.D.
外モモ・ラムイチ	1.0981	97.0±0.7	0.36±0.01	N.D.	N.D.
ランプ	1.3022	94.7±0.6	0.33±0.01	N.D.	N.D.
シタマ	1.1975	102.7±0.7	0.33±0.01	N.D.	N.D.
チマキ(スネ)	1.1124	87.7±0.6	0.26±0.01	N.D.	N.D.
平均		94.0	0.30	N.D.	N.D.

※「N.D.」は検出下限値未満である。

全ての検体でセシウム-134及びストロンチウム-90, その他の人工放射性核種も検出されず, 捕獲地域別には一部の地域では他と比べて高い値を示したものの, その原因については分からなかった。また, 部位による差は見られなかった。

文 献

- 1) 令和元年度食料・農業・農村の動向, 農林水産省大臣官房, 284-289, 2020.6
- 2) 農林水産省ホームページ, 取組事例, <https://www.maff.go.jp/j/nousin/gibier/jirei.html>, (参照 2021-06-01)
- 3) 空代俊枝, 姉崎智子, 水谷富哉, 苔米地達生, 浅

見成志, 小倉洋裕, 後藤重幸: 群馬県内における野生鳥獣の放射性セシウム汚染状況について -2010年10月から2014年8月の検体分析に基づく傾向-, 群馬県立自然史博物館研究報告, **20**, 169-176 (2016)

- 4) 小寺祐二, 竹田努, 平田慶: 栃木県, 茨城県および福島県にまたがる八溝山地域に生息するイノシシの放射性セシウムによる汚染状況の評価, 哺乳類科学, **57**, 9-18 (2017)
- 5) 林千恵子, 中村和宏, 本郷猛, 橋本博之, 原田利栄, 中西希代子, 石井俊靖: 千葉県で捕獲された野生獣肉の放射性セシウム検査について, 食品衛生雑誌, **57**, 32-36 (2016)
- 6) 渡邊泉, 野村あづみ, 増川武志, 尾崎宏和, 渡井千絵, 林谷秀樹, 五味高志, 吉田誠, 横山正: 福島県二本松市東部で採取された野生動物(数種の鳥類および哺乳類)の放射性セシウム蓄積, 環境放射能除染学会誌, **2**, 241-250 (2014)
- 7) 小林浩美, 山口麻美, 宮竹智代, 内田賢吾: 日常食中の放射能調査(福島第一原子力発電所事故後), **57**, 61-64 (2020)
- 8) 原子力規制庁監視情報課: 放射能測定法シリーズ No.7 ゲルマニウム半導体検出器によるγ線スペクトロメトリー(令和2年9月改訂)
- 9) 文部科学省科学技術・学術政策局原子力安全課防災環境対策室: 放射能測定法シリーズ No.2 放射性ストロンチウム分析法(平成15年改訂)
- 10) 食品・添加物等の規格基準の一部を改正する件(平成24年厚生労働省告示第130号)

〔資 料〕

志賀原子力発電所周辺陸水中のストロンチウム-90調査

石川県保健環境センター 環境科学部 鳥屋子やまと・井上 和幸・内田 賢吾

〔和文要旨〕

2018年4月に平常時モニタリングとして、陸水のストロンチウム-90などの測定が位置付けられた。石川県では、2014年度から2017年度までに志賀原子力発電所周辺の市町の陸水（水道水及び水道水源）について、ストロンチウム-90の調査を行っている。

今回、改めてその調査結果を取りまとめたところ、地下水を水源にした陸水からはほぼ検出されず、表流水を水源に含む陸水からは、11試料中9試料で検出された。この結果は、全国調査の結果の濃度範囲内であった。

キーワード：ストロンチウム-90，セシウム-137，陸水

1 はじめに

過去の大気圏内核爆発実験，チェルノブイリ原子力発電所事故及び2011年3月の東京電力福島第一原子力発電所事故により環境中へ大量の人工放射性核種が放出され，地表に降下してきている。

この影響として現在，環境試料からセシウム-137（以下，「Cs-137」という。）（半減期30.08年），ストロンチウム-90（以下，「Sr-90」という。）（半減期28.79年）などの人工放射性核種¹⁾が検出されている。

Sr-90は，原子力発電所運転中にウラン燃料の一部が中性子を吸収し核分裂を起こすことにより生成される人工放射性核種である。また，アルカリ土類金属であるため，カルシウム（以下，「Ca」という。）と化学的性質が似ており，体内に摂取されるとCa同様骨に沈着し，造血器官を侵すため，核分裂生成物の中でも注目される核種である²⁾。

原子力規制庁は2018年4月に「平常時モニタリングについて（原子力災害対策指針補足参考資料）」³⁾を策定し，緊急事態が発生した場合への平常時からの備え（以下，「平常時モニタリング」という。）として，原子力発電所から30km圏内において陸水中のガンマ線放出核種，トリチウム（以下，「H-3」という。）（半減期12.32年）

¹⁾及びSr-90の測定を行うことを求めた。これを受け，石川県（以下，「本県」という。）では，2019年度より志賀原子力発電所周辺環境放射線監視年度計画⁴⁾に，志賀原子力発電所から30km圏内の陸水中のガンマ線放出核種，H-3，Sr-90の測定を追加した。

本県では平常時モニタリングに定められる以前の2014年度から2017年度まで志賀原子力発電所周辺市町の陸水（水道水及び水道水源）について現状把握調査（以下，「バックグラウンド調査」という。）⁵⁾⁻⁸⁾として，ガンマ線放出核種及びSr-90の測定を行っている。本報では，この調査結果を改めて取りまとめ，原子力規制庁が実施する環境放射能水準調査及び全国の原子力施設周辺環境放射線モニタリング調査における陸水中のSr-90の放射能分析結果（2016～2019年度）⁹⁾（以下，「全国調査」という。）と比較を行った。

2 調査方法

2・1 試料及び採取地点・採取方法

採取地点を図1に示す。バックグラウンド調査の試料の採取地点は，志賀原子力発電所から30km圏内の市町役場もしくは市町管轄の施設の水道水及びその主要水源とした。また，環境放射能水準調査の試料は当センター（1991年度まで金沢市三馬，1992年度から金沢

Strontium-90 in Land Water around Shika Nuclear Power Plant. by TOYANAGO Yamato, INOUE Kazuyuki, and UCHIDA Kengo(Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Strontium-90, Cesium-137, Land water

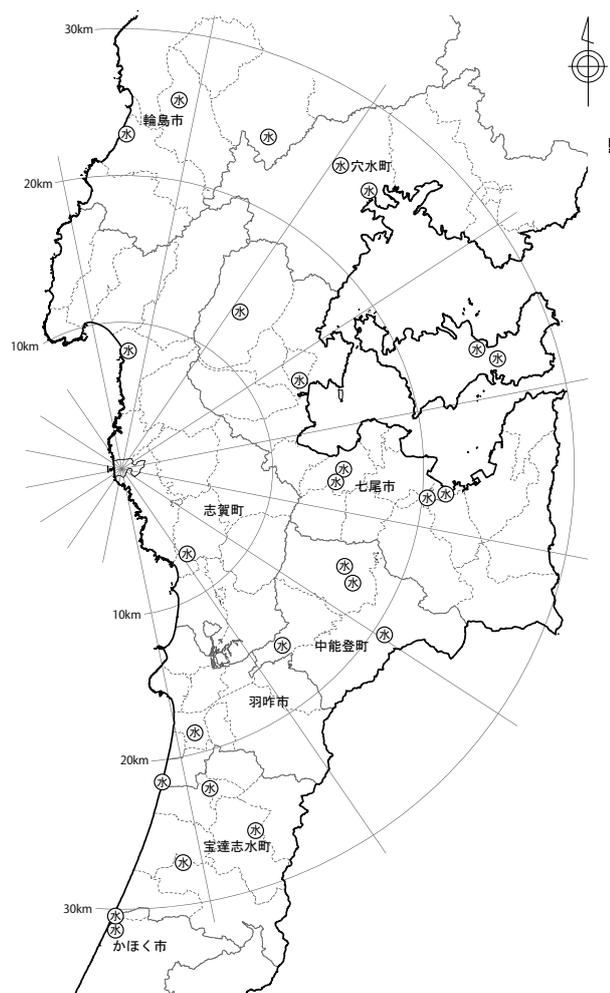


図 1 バックグラウンド調査試料採取地点図

市太陽が丘)の水道水とした。

採取方法は放射能測定法シリーズ¹⁰⁾に準じた。

2・2 測定方法

(1) 試料の調製

バックグラウンド調査の試料調製は、放射能測定法シリーズ¹¹⁾¹²⁾に準じた。ガンマ線放出核種分析では、陸水 20 L に塩酸を添加し、蒸発皿及びビーカーで加熱濃縮後、測定容器 (U-8 容器) に移し、乾固し、測定用試料とした。Sr-90 分析は、公益財団法人日本分析センターに分析委託した。

また、参考として当センターで実施したガンマ線放出核種分析及び Sr-90 分析については、陸水 100 L に塩酸及びストロンチウム担体 50 mg を添加し、加熱濃縮後、U-8 容器で乾固し、ガンマ線放出核種分析用測定試料とし、その後 Sr-90 分析用試料とした。

(2) 放射能分析

ア ガンマ線放出核種分析

ガンマ線放出核種の測定は、放射能測定法シリーズ¹³⁾に準じ、ゲルマニウム半導体検出器 (Ortec 社製

GEM-C7080-LB-C-HJ-S 又は Canberra 社製 GC4519, 相対効率 45% 程度, 分解能 2keV 未満) を用いて 80,000 秒測定を行った。

なお、複数のガンマ線放出核種の分析を行っているが、本報では Sr-90 と同様に人体への影響の面から注目される Cs-137 についてのみ報告する。

イ Sr-90

Sr-90 分析は、放射能測定法シリーズ¹²⁾に準じ、イオン交換法により精製した Sr-90 から壊変したイットリウム-90 (半減期 64.00 時間)¹⁾を分離した後、低バックグラウンドベータ線測定装置 (Aloka 社製 SCE-203) を用いて 3,600 秒測定を行った。

3 調査結果

3・1 水道水調査結果

バックグラウンド調査のうち水道水調査の結果を表 1 に示す。水源に表流水を含む水道水の Sr-90 は、11 試料中 9 試料で 0.8 ~ 1.6 mBq/L の範囲で検出された。深井戸等の地下水のみを水源とする水道水については、5 試料中 1 試料で 0.6 mBq/L 検出されたが、その他の試料は不検出 (以下、「ND」という。)であった。

また、いずれの試料についても Cs-137 は ND であった。

3・2 水道水源調査結果

バックグラウンド調査のうち水道水源調査の結果を表 2 に示す。参考として本県で浄水供給量が最も多い鶴来浄水場浄水 (手取川水系) についても調査を行ったので、その結果も併せて示す。表流水を水源とする原水の Sr-90 については、全ての試料から 0.8 ~ 1.4 mBq/L の範囲で検出された。地下水を水源とするものについては、全て ND であった。

また、いずれの試料についても Cs-137 は ND であった。既報¹⁴⁾において、Sr-90 は Cs-137 よりも降雨等の影響を受け、地下浸透しやすいことや Cs-137 はほとんどが土壌表層部に留まっていることを報告している。バックグラウンド調査において、Sr-90 が検出され、Cs-137 が検出されなかったことについては、Cs-137 の方が Sr-90 に比べ流出しにくいと考えられた。

また、3・1 の水道水調査と 3・2 の水道水源調査において、検出された Sr-90 濃度はほぼ同レベル (1 mBq/L 程度) となっており、地域であまり差がなかった。

さらに、3・1 の水道水調査と 3・2 の水道水源調査において、調査日は異なるが水道水とその水源の調査を行ったところ、両者の濃度レベルはほぼ同じであった。このことから、浄水処理過程は Sr-90 濃度にあまり影響しないと考えられた。

3・3 全国調査との比較

表1 水道水調査結果

採取地点	採取年月日	Sr-90 [mBq/L]	Cs-137 [mBq/L]	水源
志賀町役場富来支所	2015.10.14	1.6 ± 0.1	ND	表流水
穴水町役場	2015. 1.14	0.8 ± 0.2	ND	表流水
輪島市門前総合支所	2015. 1.14	1.2 ± 0.2	ND	表流水 (ダム)
中能登町役場鹿西庁舎	2015.12. 3	1.1 ± 0.2	ND	表流水 (県水)
羽咋市役所	2015. 1. 8	1.1 ± 0.2	ND	地下水・表流水 (県水)
宝達志水町アステラス	2015.12. 3	1.0 ± 0.2	ND	地下水・表流水 (県水)
七尾市中島コミュニティセンター	2015.12. 3	0.9 ± 0.2	ND	地下水・表流水・表流水 (県水)
七尾市役所	2015. 1. 8	0.8 ± 0.2	ND	地下水・表流水 (県水)
七尾市能登島コミュニティセンター	2015.12. 3	0.8 ± 0.2	ND	地下水・表流水 (県水)
中能登町役場	2015. 1. 8	ND	ND	地下水・表流水 (県水)
中能登町役場鹿島庁舎	2015.12. 3	ND	ND	地下水・表流水 (県水)
かほく市二ツ屋公民館	2015. 1. 8	0.6 ± 0.2	ND	地下水
七尾市田鶴浜コミュニティセンター	2015.12. 3	ND	ND	地下水
宝達志水町役場	2015. 1. 8	ND	ND	地下水
志賀町役場	2015. 1.14	ND	ND	地下水
	2015.10.14	ND	ND	

ND：不検出（測定値が計数誤差の3倍を下回る場合）

県水：石川県水道用水供給事業により、鶴来浄水場から市町へ配水された浄水。水源は表流水。

表2 水道水源調査結果

採取地点	採取年月日	Sr-90 [mBq/L]	Cs-137 [mBq/L]	水源
北川浄水場（輪島市）	2017. 6.22	1.4 ± 0.2	ND	表流水
上野浄水場（穴水町）	2017. 6.22	1.3 ± 0.2	ND	表流水
七海浄水場（志賀町）	2017. 6.22	1.2 ± 0.2	ND	表流水
地原浄水場（輪島市）	2017. 6.22	1.0 ± 0.2	ND	表流水 (ダム)
河内水源（七尾市）	2017. 1.10	0.8 ± 0.2	ND	表流水
第二浄水場（志賀町）	2017. 6.22	ND	ND	地下水
岩屋5号水源（七尾市）	2017. 1.10	ND	ND	地下水
田鶴浜7号水源（七尾市）	2017. 1.10	ND	ND	地下水
能登島向田2号水源（七尾市）	2017. 1.10	ND	ND	地下水
春木4号井（中能登町）	2017. 1.10	ND	ND	地下水
南部配水場（羽咋市）	2017. 6.29	ND	ND	地下水
志雄浄水場（宝達志水町）	2017. 6.29	ND	ND	地下水
高松水源（かほく市）	2017. 6.29	ND	ND	地下水
鶴来浄水場（白山市）	2020. 5.18	1.1 ± 0.1	ND	表流水 (県水)
	2020. 6.12	0.8 ± 0.1	ND	表流水 (県水)

ND：不検出（測定値が計数誤差の3倍を下回る場合）

全国調査の結果（2016～2019年度）⁹⁾を取りまとめ、図2に示す。バックグラウンド調査の結果は、全国調査の結果の範囲内であった。

また、本県の調査結果では表流水及び表流水を水源とする水道水でSr-90が検出されているが、全国調査でも同様の傾向がみられた。

3・4 水道水中のSr-90経年変化

本県における環境放射能水準調査のSr-90経年変化を図3に示す。調査開始当初（1975年）は核実験の影響により7.8 mBq/Lであったが、年々濃度は低下し、現在では1 mBq/L程度となっている。当センターは1992年に金沢市三馬から金沢市太陽が丘に移転し、その際に水道水の水源が手取川水系から犀川水系に変わって

いるが、経年変化の減少傾向には差が見られなかった。

採取地点が金沢市太陽が丘に変わって以降の減少傾向の見かけ上の半減期は15.81年であり、Sr-90の半減期の28.79年よりも短くなった。原因として、過去の核実験により降下したSr-90が降雨等の影響により地下浸透又は流出し、河川水・水道水で検出されるが、土壌に含まれるSr-90量が減ってきたことから流出量が減少し、見かけ上の半減期がSr-90の半減期よりも短くなったものと考えられた。

4 まとめ

(1) バックグラウンド調査として、人工放射性核種であるSr-90及びガンマ線放出核種について、陸水の調

文 献

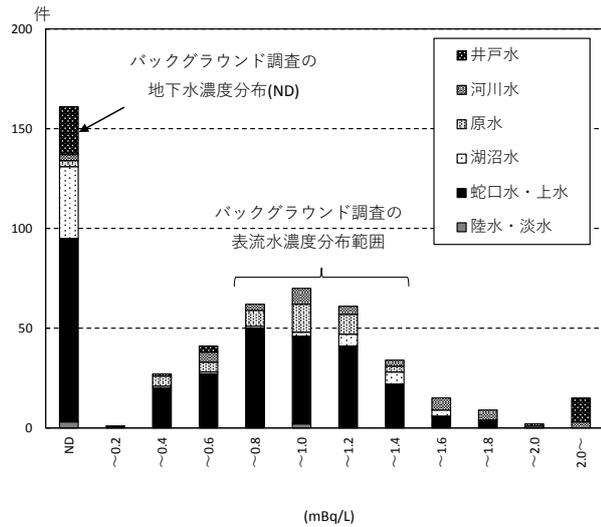
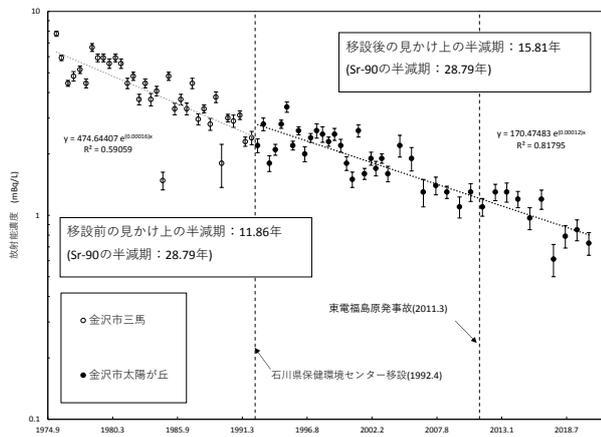


図2 全国調査とバックグラウンド調査のSr-90濃度分布の比較



※本県で採取した試料を日本分析センターで分析した結果をもとに解析した。

図3 水道水中(石川県保健環境センター)のSr-90濃度経年変化

査を行った。Sr-90はND～1.6 mBq/Lで、全国調査の結果の濃度範囲内であった。また、Cs-137はいずれの試料についてもNDであった。

(2) 表流水を含む水道水については、Sr-90が検出されたが、地下水を水源とする水道水ではほぼNDであった。表流水を含む水道水で検出されたSr-90濃度は地域であまり差がなかった。

(3) 本県の環境放射能水準調査の経年変化をみると、Sr-90濃度は年々減少しているが、見かけ上の半減期は物理的半減期より短い結果となった。これは、土壌から河川水に流出するSr-90が減少していることによるものと考えられた。

今後は、県内の水源別のSr-90濃度について、季節変動の調査や、県内の土壌におけるSr-90の分布状況との関係を調査することで、陸水におけるSr-90の挙動等の把握を目指したい。

- 1) 公益社団法人日本アイソトープ協会：アイソトープ手帳，改訂12版，丸善（2020）
- 2) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構：“ストロンチウムの放射化学分析と測定”，https://atomica.jaea.go.jp/data/detail/dat_detail_09-04-03-26.html，（参照 2021-04-01）
- 3) 原子力規制庁監視情報課：平常時モニタリングについて（原子力災害対策指針補足参考資料），平成30年4月4日改訂
- 4) 石川県：志賀原子力発電所周辺環境放射線監視年度計画（令和元年度）
- 5) 東海林寛史，小浦利弘，堅田勉：志賀原子力発電所30km圏内における環境試料中放射能濃度の現状把握（第1報），石川県保健環境センター研究報告書，52，101-104（2015）
- 6) 小浦利弘，東海林寛史，初瀬裕，中谷光：志賀原子力発電所30km圏内における環境試料中放射能濃度の現状把握（第2報），石川県保健環境センター研究報告書，53，51-59（2016）
- 7) 小浦利弘，東海林寛史，河野隆史，宮川茂樹，中谷光：志賀原子力発電所30km圏内における環境試料中放射能濃度の現状把握（第3報），石川県保健環境センター研究報告書，54，61-73（2017）
- 8) 内川慎互，小浦利弘，鶴谷亮太，河野隆史，宮竹智代，中谷光：志賀原子力発電所30km圏内における環境試料中放射能濃度の現状把握（第4報），石川県保健環境センター研究報告書，55，68-74（2018）
- 9) 日本分析センター：“日本の環境放射能と放射線”，<https://www.kankyo-hoshano.go.jp/contact/>，（参照 2021-04-01）
- 10) 原子力規制庁：環境試料採取法，放射能測定法シリーズ16（昭和58年12月）
- 11) 原子力規制庁：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13（昭和57年7月）
- 12) 原子力規制庁：放射性ストロンチウム分析法，放射能測定法シリーズ2（平成15年7月）
- 13) 原子力規制庁：ゲルマニウム半導体検出器によるγ線スペクトロメトリー，放射能測定法シリーズ7（令和2年9月）
- 14) 藤井明洋，小谷口久美子，浜道啓太，横山暢，酒井道則，柿本均：石川県内土壌中の¹³⁷Cs及び⁹⁰Srの分布状況及び移行挙動に関する調査，石川県保健環境センター研究報告書，49，21-26（2012）

〔資料〕

石川県における環境放射能水準調査（令和2年度）

石川県保健環境センター 環境科学部

鳥屋子やまと・岡田 真規子・井上 和幸・
山岸 喜信・河野 隆史・内田 賢吾

〔和文要旨〕

石川県における環境放射能の水準を把握するため、定時降水中の全ベータ放射能調査、ゲルマニウム半導体検出器による環境試料中のガンマ線放出核種分析及びモニタリングポストによる空間放射線量率の測定を実施した。

定時降水中の全ベータ放射能は、過去3年間の測定結果と同程度であった。環境試料中のガンマ線放出核種分析において、降下物、土壌及び海産生物（フクラギ）からセシウム-137が検出されたが、降下物及び海産生物（フクラギ）は過去の範囲内もしくは同程度であり、土壌は過去の測定結果より低かった。また、空間放射線量率の測定結果は過去の測定結果と同程度であった。

キーワード：フォールアウト、環境放射能、環境放射能水準調査

2 調査方法

1 はじめに

本調査は、昭和29年（1954年）のビキニ環礁における核爆発実験を契機に、関係行政機関による放射性降下物の調査として開始された。その後、昭和61年（1986年）のチェルノブイリ原子力発電所事故や平成23年（2011年）の東京電力（株）福島第一原子力発電所事故もあり、継続的な環境放射能調査の必要性から、現在では「環境放射能水準調査」として、原子力規制庁委託により全都道府県で実施されている。

石川県においては、昭和34年（1959年）から本調査に参画し、定時降水中の全ベータ放射能調査、ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線放出核種分析、モニタリングポストによる空間放射線量率の測定を行っている。本報では令和2年度環境放射能水準調査の結果（令和2年4月1日～令和3年3月31日）をまとめた。

2・1 調査対象

調査対象は、定時（午前9時）採取の降水（以下「定時降水」という。）、大型水盤による降下物（1か月毎採取）、陸水（年1回採取）、大気浮遊じん、土壌（表層0～5cm、下層5～20cm）、農畜産物（精米、牛乳）、海産生物（ワカメ、サザエ、フクラギ）及び空間放射線量率である。¹⁾ 大気浮遊じんについては、1か月につき3日間採取し、これを3か月分（9日間採取）まとめたものを1試料とした。各試料の採取地点、各空間放射線量率の測定地点を表1に示す。

2・2 測定方法

定時降水については、全ベータ放射能測定を行い、そのうち測定値が計数誤差の3倍を上回る試料について、ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線放出核種分析を行った。環境試料（降下物、陸水、大気浮遊じん、土壌、農畜産物及び海産生物）については、ゲルマニ

Monitoring Information of Environmental Radioactivity Level in Ishikawa Prefecture, April 2020 to March 2021. by TOYANAGO Yamato, OKADA Makiko, INOUE Kazuyuki, YAMAGISHI Yoshinobu, KAWANO Takafumi and UCHIDA Kengo(Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Fall-out, Environmental Radioactivity, Monitoring Information of Environmental Radioactivity Level

表 1 試料の採取地点、測定地点

試料名	採取地点 測定地点
定時降水 降下物	金沢市太陽が丘
陸水 上水 (蛇口水)	
環境試料 大気浮遊じん	金沢市末町
土壌 0~5cm 5~20cm	
農畜産物 精米 牛乳	河北郡津幡町潟端 羽咋郡宝達志水町坪山
海産生物 ワカメ サザエ フクラギ	加賀市橋立漁港
空間放射線量率	金沢市太陽が丘 輪島市三井町洲衛 羽咋市大町 河北郡津幡町中橋 小松市下栗津町

ウム半導体検出器によるガンマ線放出核種分析を行った。空間放射線量率についてはモニタリングポストによる連続測定を行い、1時間値で評価した。

(1) 全ベータ放射能測定

放射能測定法シリーズ²⁾に基づき、ベータ線自動測定装置 (DS-PA218153 セイコー EG&G (株) 製) を用いた。校正線源には、八酸化三ウラン (U₃O₈, 500dps) を使用した。

(2) ガンマ線放出核種分析

放射能測定法シリーズ³⁾に基づき、ゲルマニウム半導体検出器 (GC-4518 ミリオンテクノロジーズ・キャンペラ (株) 製) 及び波高分析器 (DSA1000 ミリオンテクノロジーズ・キャンペラ (株) 製) により測定時間 80,000 秒で測定を行った。

(3) モニタリングポストによる空間放射線量率測定

放射能測定法シリーズ⁴⁾に基づき、モニタリングポスト (NaI (TI) シンチレーション検出器 MAR-22 (株) 日立製作所製) を用いた。

3 調査結果

3・1 定時降水の放射能測定

表 2 に定時降水中の全ベータ放射能測定結果を示す。測定試料数は 142 試料で、全ベータ放射能測定により検出されたものは、2 試料であった。これら 2 試料についてガンマ線放出核種分析を行った結果、いずれもベリリウム-7 が検出されたが、人工放射性核種は検出されなかった。

表 2 定時降水中の全ベータ放射能測定結果

採取地点：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)	月間降水量 (MBq/km ²)
R 2年 4月	113.0	0/14	ND	ND
5月	22.5	0/7	ND	ND
6月	265.0	0/8	ND	ND
7月	287.0	0/18	ND	ND
8月	79.5	0/6	ND	ND
9月	218.0	0/10	ND	ND
10月	77.0	0/11	ND	ND
11月	164.5	0/10	ND	ND
12月	153.0	0/17	ND	ND
R 3年 1月	191.0	0/16	ND	ND
2月	161.0	2 ¹⁾ /17	ND ~ 3.5	12
3月	108.0	0/8	ND	ND
年間値	1,839.5	2/142	ND ~ 3.5	ND ~ 12
H29~R元年度の測定結果		27/453	ND ~ 16	ND ~ 266

ND：不検出（測定値が計数誤差の3倍を下回る場合）
¹⁾：ガンマ線放出核種分析の結果、ベリリウム-7 が検出されたが、人工放射性核種²⁾は検出されなかった。
²⁾：ヨウ素-131, セシウム-134, セシウム-137 など

3・2 環境試料中のガンマ線放出核種分析

(1) 降下物

表 3 に降下物試料中のガンマ線放出核種分析結果を示す。測定試料数は 12 試料で、うち 1 試料 (4 月分) からセシウム-137 が 0.056 MBq/km² 検出された。この測定結果は、東京電力 (株) 福島第一原子力発電所事故以前の測定結果 (平成 20 年 4 月 1 日 ~ 平成 23 年 2 月 28 日)⁵⁾⁻⁷⁾ の範囲内であった。セシウム-137 以外の人工放射性核種は検出されなかった。

表 3 降下物 (1 か月毎採取) 試料中の核種分析結果

採取地点：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	その他の人工 放射性核種
R 2. 3.30 ~ R 2. 4.30	113.0	ND	ND	0.056 ± 0.012	ND
R 2. 4.30 ~ R 2. 5.29	22.5	ND	ND	ND	ND
R 2. 5.29 ~ R 2. 6.30	265.0	ND	ND	ND	ND
R 2. 6.30 ~ R 2. 7.31	287.0	ND	ND	ND	ND
R 2. 7.31 ~ R 2. 8.31	79.5	ND	ND	ND	ND
R 2. 8.31 ~ R 2. 9.30	218.0	ND	ND	ND	ND
R 2. 9.30 ~ R 2.10.30	77.0	ND	ND	ND	ND
R 2.10.30 ~ R 2.11.30	164.5	ND	ND	ND	ND
R 2.11.30 ~ R 2.12.28	153.0	ND	ND	ND	ND
R 2.12.28 ~ R 3. 1.29	191.0	ND	ND	ND	ND
R 3. 1.29 ~ R 3. 2.26	161.0	ND	ND	ND	ND
R 3. 2.26 ~ R 3. 3.30	108.0	ND	ND	ND	ND
年間値	1,839.5	ND	ND	0.056	ND

ND：不検出（測定値が計数誤差の3倍を下回る場合）

(2) 大気浮遊じん

表4に大気浮遊じん試料中のガンマ線放出核種分析結果を示す。測定試料数は4試料で、いずれも人工放射性核種は検出されなかった。

表4 大気浮遊じん試料中の核種分析結果

採取期間* 年月日～年月日	吸引量 (m ³)	核種別放射性物質濃度 (mBq/m ³)			
		採取地点：金沢市太陽が丘 ヨウ素-131	セシウム-134	セシウム-137	その他の人工 放射性核種
R 2. 4. 6 ～ R 2. 6. 26	10,448.9	ND	ND	ND	ND
R 2. 7. 6 ～ R 2. 9. 24	10,420.3	ND	ND	ND	ND
R 2.10. 5 ～ R 2.12.25	10,455.0	ND	ND	ND	ND
R 3. 1. 5 ～ R 3. 3. 26	10,399.0	ND	ND	ND	ND
年間値	41,723.2	ND	ND	ND	ND

ND：不検出（測定値が計数誤差の3倍を下回る場合）
*：1か月につき3日間採取し、これを3か月分（9日間採取）まとめたものを1検体とした。

(3) その他の環境試料

表5に上記以外の環境試料中のガンマ線放出核種分析結果を示す。

土壌試料については、セシウム-137が表層（0～5cm）で6.1Bq/kg乾土、下層（5～20cm）で4.2Bq/kg乾土であり、いずれの層も過去3年間（以下、過去）の測定結果と比較して低かった。セシウム-137以外の人工放射性核種は検出されなかった。

海産生物試料については、フクラギでセシウム-137が0.12Bq/kg生が検出されたが、過去の測定結果と同程度であった。セシウム-137以外の人工放射性核種は検出されなかった。

陸水、農畜産物試料（精米、牛乳）及びその他の海産生物試料（ワカメ、サザエ）については、人工放射性核種は検出されなかった。

3・3 空間放射線量率

表6に空間放射線量率の測定結果を示す。県内5地点

の線量率は15～153nGy/hの範囲であり、いずれの地点も過去の測定結果と同程度であった。

表6 空間放射線量率の測定結果

測定地点	測定結果		H29～R元年度の測定結果	
	1時間値* (nGy/h)	平均値 (nGy/h)	1時間値* (nGy/h)	平均値 (nGy/h)
金沢市太陽が丘	26～86	49	24～105	49～50
輪島市三井町洲衛	15～91	30	16～98	30～31
羽咋市大町	32～106	61	34～120	61～61
河北郡津幡町中橋	33～102	61	32～124	60～62
小松市下粟津町	33～153	54	23～141	50～54

*：測定された10分値6個の平均値を1時間値としている。

4 まとめ

令和2年度の石川県における環境放射能水準調査として、定時降水中の全ベータ放射能測定、環境試料中のガンマ線放出核種分析及び空間放射線量率の測定を行った。

定時降水の全ベータ放射能測定において、2試料でベリリウム-7が検出されたが、人工放射性核種は検出されなかった。

環境試料中のガンマ線放出核種分析において、降下物、土壌及び海産生物試料（フクラギ）からセシウム-137が検出されたが、降下物及び海産生物試料（フクラギ）は過去の範囲内もしくは同程度であり、土壌は過去の測定結果より低かった。その他の環境試料（大気浮遊じん、陸水、農畜産物（精米、牛乳）及び海産生物（ワカメ、サザエ））からは、人工放射性核種は検出されなかった。

空間放射線量率の測定では、県内5地点の線量率は15～153nGy/hの範囲であり、全ての測定地点で過去の測定結果と同程度であった。

表5 その他の環境試料中の核種分析結果

試料名	採取地点	採取年月日	セシウム-137		その他人工放射性核種		単位	
			測定結果	H29～R元年度の測定結果	測定結果	H29～R元年度の測定結果		
陸水 上水 (蛇口水)	金沢市太陽が丘	R 2. 6. 3	ND	ND	ND	ND	mBq/L	
土壌	0～5cm 5～20cm	金沢市末町	R 2. 8.11	6.1	18～21	ND	ND	Bq/kg 乾土
			R 2. 8.11	4.2	12～18	ND	ND	
精米	河北郡津幡町潟端	R 2. 9.12	ND	ND	ND	ND	Bq/kg 生	
牛乳	羽咋郡宝達志水町坪山	R 2. 8.17	ND	ND	ND	ND	Bq/L	
海産生物	ワカメ	R 2. 4.28	ND	ND	ND	ND	Bq/kg 生	
	サザエ	加賀市橋立漁港	R 2. 7.10	ND	ND～0.042	ND		ND
	フクラギ	R 2.10.21	0.12	0.12～0.15	ND	ND		

ND：不検出（測定値が計数誤差の3倍を下回る場合）

文 献

- 1) 原子力規制庁監視情報課放射線環境対策室：令和2年度環境放射能水準調査委託実施計画（令和2年4月）
- 2) 原子力規制庁：放射能測定法シリーズ1全ベータ放射能測定法（昭和51年9月）
- 3) 原子力規制庁：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 γ 線スペクトロメトリー（令和2年9月）
- 4) 原子力規制庁：放射能測定法シリーズ17連続モニタによる環境 γ 線測定法（平成29年12月）
- 5) 小浦利弘, 吉本高志, 北野肇一, 柿本均:石川県におけるフォールアウト調査（平成20年度）, 石川県保健環境センター研究報告書, **46**, 78-80 (2009)
- 6) 藤井明洋, 小浦利弘, 吉本高志, 中村能則, 柿本均:石川県におけるフォールアウト調査（平成21年度）, 石川県保健環境センター研究報告書, **47**, 81-83 (2010)
- 7) 浜道啓太, 藤井明洋, 浅田尚久, 中村能則, 柿本均:石川県におけるフォールアウト調査（平成22年度）, 石川県保健環境センター研究報告書, **48**, 76-79 (2011)

〔資料〕

KURAMA-II の特性調査

石川県保健環境センター 環境科学部

河野 隆史・鳥屋子やまと・井上 和幸・
吉本 高志・岡田 真規子・内田 賢吾

〔和文要旨〕

走行サーベイ用機器KURAMA-IIについて、基本性能の確認及び運用方法の検討を行い、測定器の個体差による線量率のばらつきが十分小さいこと、OIL判断を行う範囲での指示値の直線性が確保されていることから、平常時から緊急時まで幅広い線量率で測定することが可能であることを確認した。また、方向特性を確認し、設置する際には測定部正面が車道中央部を向くよう運転席側の後部座席に設置することとし、原子力防災訓練にて運用し問題がないことを確認した。

キーワード：空間線量率、走行サーベイ、KURAMA-II、原子力防災

1 はじめに

2011年3月に発生した東京電力株式会社福島第一原子力発電所事故を踏まえ、原子力規制委員会は原子力災害対策指針を制定した¹⁾。その中で、避難等の防護措置は、これまでのSPEEDI（緊急時迅速放射能影響予測システム）を用いた拡散予測による判断に代わり、運用上の介入レベル（Operational Intervention Level）（以下「OIL」という。）として、空間放射線量率の実測値により判断することが示された。

空間放射線量率については、発電所周辺に設置されているモニタリングポスト（固定観測局、電子式線量計や可搬型モニタリングポスト）による測定だけでなく、必要に応じてサーベイメータや走行サーベイによる測定も実施することとされ、特に走行サーベイは広範囲で効率良く空間放射線量率の分布を把握することができることから重要だとされている²⁾。

また、OILに基づく防護措置の実施判断のため、測定機器の性能としては少なくとも0.5～500 μSv/hまで測定できることが求められている²⁾。

本県では現在、走行サーベイ機器としてRAMISESシステム（（公財）原子力安全技術センター製）を使用しているが、測定部がNaIシンチレーション検出器であり、測定上限が30 μSv/h程度であるため、OILに基づく防護措置の判断（0.5

～500 μSv/h）に使用できない。

このことから、本県では、福島原子力発電所周辺で走行サーベイシステムとして運用されている株式会社松浦電弘社製KURAMA-II³⁾を令和元年度に5台整備し、基本性能を確認した。また、車内の設置方法等、運用方法について検討を行うとともに、令和2年度石川県原子力防災訓練で使用した結果について報告する。

2 測定方法

2.1 使用機器

KURAMA-IIの装備一式を図1に示す。留め具がついている側を正面とし、データ処理部、高線量率計、低線量率計が横並びになっており、蓋部分に伝送装置が取り付けられている。

検出部にCs (Tl) シンチレーション検出器（測定エネルギー範囲：30keV～3MeV）が用いられ、低線量率計用（38×38×25 mm）と高線量率計用（13×13×20 mm）として大きさの異なる2つの結晶を搭載しており、常時2つの線量率計で測定を行っている。測定レンジは、任意の線量率の値を設定し、低線量率計から高線量率計に採用する値を切り替えることで、幅広い線量率を測定することが可能である。データはLTE回線を用いてリアルタイムで当センターに設置したKURAMA-II用サーバへと送られる。また、測定間隔を1秒

A Study of Property of KURAMA-II. by KAWANO Takafumi, TOYANAGO Yamato, INOUE Kazuyuki, YOSHIMOTO Takashi, OKADA Makiko and UCHIDA Kengo (Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Air Dose Rate, Car-borne Survey, KURAMA-II, Nuclear Disaster Prevention

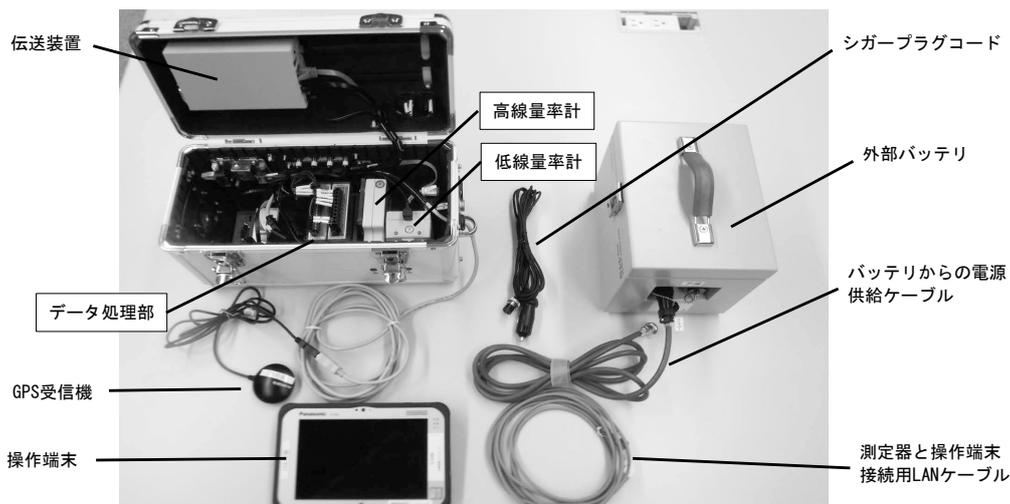


図1 KURAMA-II 機器一式

から60秒の範囲で任意に設定することが可能である。

測定器の取り扱いに不慣れな人でも容易に取り扱いができるよう、シガープラグコードを車のシガーソケットに接続することで電源供給され、自動的に測定が開始され、データが伝送される仕組みとなっている。

2・2 検討条件

個体差や測定間隔による差の検討は、バックグラウンド（以下「BG」という。）の状態で行った。

指示値の直線性や方向特性など線源を用いる検討は、当センター RI 実験棟の照射室に設置されている照射器（株式会社千代田テクノ製2π型γ線照射装置（¹³⁷Cs線源（3.70 GBq））を用いた。

2・3 測定結果の取り扱い

KURAMA-IIの測定結果はシーベルト (Sv) とグレイ (Gy) 両方のデータを取得することが可能であるが、OILの判断基準としてSv単位が用いられていることから測定結果の単位としてSvを用いた。

測定は1時間ずつ行い、結果には平均値を用いた。

3 結果と考察

3・1 個体差

測定装置の個体差を確認するため、KURAMA-II5台と比較用のNaIシンチレーションサーベイメータ（日立アロカメディカル株式会社製TCS-172B）を並べて測定を行った。KURAMA-IIの測定間隔、NaIシンチレーションサーベイメータの時定数をそれぞれ10秒とした。

測定結果を表1に示す。BGでの変動係数はKURAMA-IIの個体間での差が最大0.3%程度であり、大きな差異はみられず、NaIとの測定値の違いもみられなかった。また、KURAMA-IIの測定間隔を3秒としても変動係数は最大で0.6%程度と大きな差異はみられなかった。

表1 機器毎の個体差

時定数 (秒) (測定周期)	測定器 (番号)	周辺線量等量率 (μSv/h)		変動係数 (%)
		平均値	標準偏差	
10	1号機	0.091	0.005	5.5
	2号機	0.090	0.005	5.6
	3号機	0.093	0.005	5.8
	4号機	0.090	0.005	5.5
	5号機	0.090	0.005	5.6
	NaI	0.090	0.007	7.3
時定数 (秒) (測定周期)	測定器 (番号)	周辺線量等量率 (μSv/h)		変動係数 (%)
		平均値	標準偏差	
3	1号機	0.089	0.010	10.9
	2号機	0.089	0.010	11.3
	3号機	0.092	0.010	11.1
	4号機	0.088	0.010	10.9
	5号機	0.090	0.010	10.7

3・2 測定間隔による差

測定間隔による測定結果の差を確認するため、測定間隔1, 3, 10, 60秒でそれぞれ測定を行った。

測定結果を表2に示す。1秒では変動係数が18%程度、3秒で11%程度であり、BGでは測定間隔が3秒以上であればJISZ4333の基準である15%以下の基準を満たすことが確認できた。

このことから、平常時からの走行サーベイには測定間隔は3秒以上を使用することが必要であると考えられる。

3・3 指示値の直線性の確認

線量率の指示値の直線性を確認するため、照射線量率と

表2 時定数による差

時定数 (秒) (測定周期)	周辺線量等量率 ($\mu\text{Sv/h}$)		変動係数 (%)
	平均値	標準偏差	
1	0.090	0.016	17.8
3	0.090	0.010	10.7
10	0.090	0.005	5.6
60	0.090	0.002	2.4

指示値の関係を調査した。照射線量率の調整は、測定器と線源との距離を適切に変えて行った。

(1) 低線量率計

当センターでは、 $40\mu\text{Sv/h}$ 以下の線量率下での実験が行えない。 $40\mu\text{Sv/h}$ 以下の線量率下の直線性については、日本原子力開発機構による低線量率計のみを備えたKURAMA-IIを用いた直線性の実験より、 $0.2 \sim 30\mu\text{Sv/h}$ で直線性が保たれていることが確認されている⁴⁾。

$40 \mu\text{Sv/h}$ 以上の線量率下での直線性については測定結果を図2に示す。 $40 \sim 200 \mu\text{Sv/h}$ 程度までJISZ4333の基準を満たし、直線性が保たれていることを確認した。

文献値及び今回の結果から $0.2 \sim 200 \mu\text{Sv/h}$ まで直線性が保たれていることを確認した。

(2) 高線量率計

図2に示したように、 $40 \mu\text{Sv/h} \sim 2 \text{ mSv/h}$ 程度までJISZ4333の基準を満たし、直線性が保たれていることを確認

した。

(3) 併用による直線性

(1) 及び (2) の結果から、低線量率計及び高線量率計を併用し、 $100\mu\text{Sv/h}$ 程度で採用値を切り替えることで、 $0.2 \mu\text{Sv/h} \sim 2 \text{ mSv/h}$ 程度まで直線性が保たれ、OILに基づく防護措置の判断基準である $0.5 \sim 500 \mu\text{Sv/h}$ の測定が行えることを確認した。

3・4 方向特性の確認

方向特性の確認を行うために、低線量率計と高線量率計が同時に直線性を保っている線量率下 ($200\mu\text{Sv/h}$ 程度) で図3のように軸を設定し、鉛直方向軸回りの回転と水平方向軸回りの回転をさせながら測定を行った。

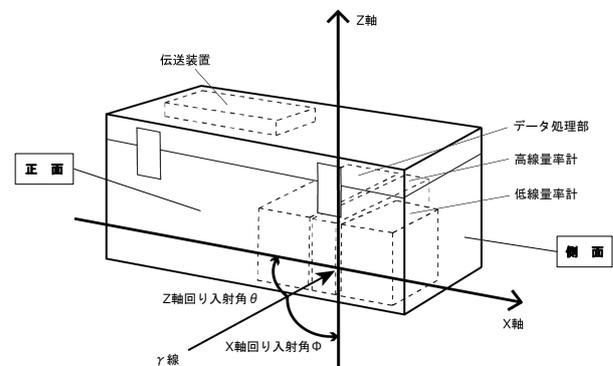
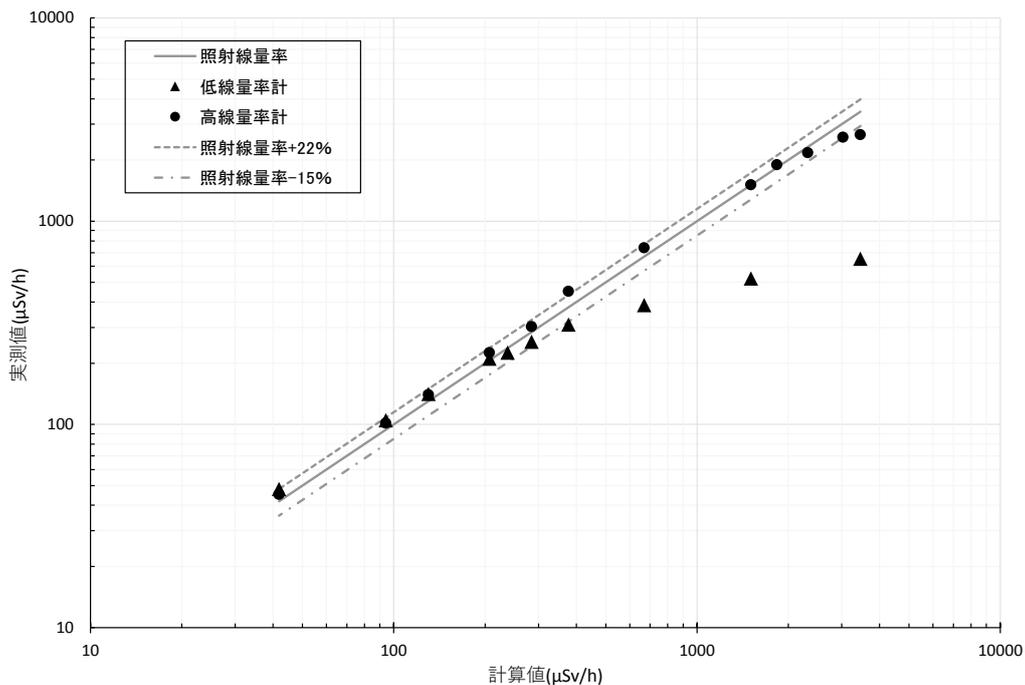


図3 KURAMA-II 軸設定

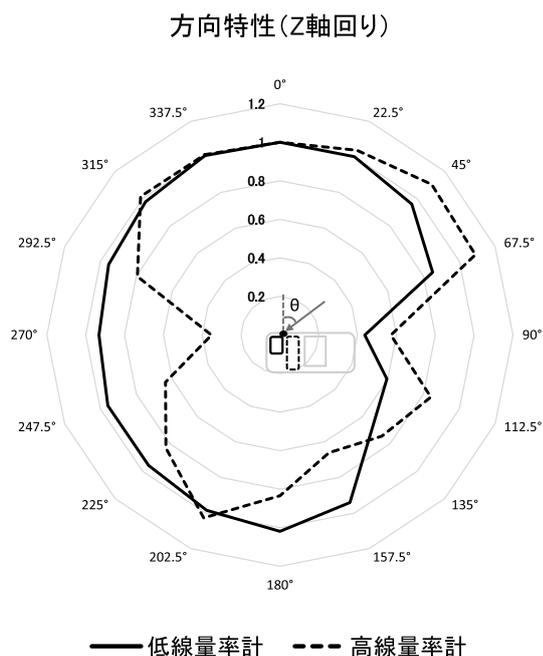
(1) Z軸回り (鉛直方向軸回り)

Z軸回りの測定結果を図4に示す。Z軸回りでは、側面方



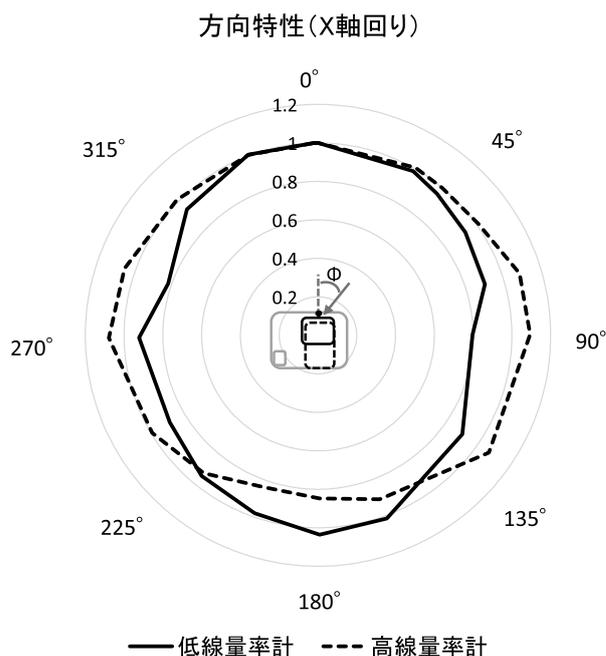
※代表機として5号機を使用

図2 線量率の直線性の確認



※ 0° 方向からの照射における値で規格化
代表機として5号機を使用

図4 方向特性 (Z軸回り)



※ 0° 方向からの照射における値で規格化
代表機として5号機を使用

図5 方向特性 (X軸回り)

向から照射した時に正面から照射した時の30%程度までレスポンスが低下した。原因は検出部の結晶2個及びデータ処理部が横並びとなり、側面方向からの放射線を遮蔽したためである。

(2) X軸回り (水平方向軸回り)

X軸回りの測定結果を図5に示す。X軸回りでは、(1)のように遮蔽となるものがなく、どの方向から照射してもJISZ4333の基準である±25%の範囲を満たした。

(3) 方向特性

(1) 及び (2) の結果から、側面方向からの照射に対してレスポンスの低下が見られることから、測定したい対象 (照射方向) に対し、検出器は正面を向ける必要があることが分かった。

3・5 電源供給方法

KURAMA-IIは走行サーバイ機器として、車内に設置することを想定して開発されたため、基本の電源供給方法がシガーソケットからとなっている。しかし、近年ではシガーソケットを搭載していない車が増加していることや、原子力災害時にはカーナビや拠点との通信を行うためのTV会議システム用の端末等、シガーソケットから電源供給を行う機器を車に搭載することが多い。そこで、既存の可搬型モニタリングポスト用の外部バッテリーMAR-1561-OP1 (日立アロカメディカル株式会社製 (リチウムイオン二次電池15V 12Ah)) から電源供給を行うことの検討を行った。

電源はバッテリーからKURAMA-IIへの電源用接続ケーブルを用意し供給した。

測定値及び連続稼働時間を確認したところ、24時間以上安定して稼働可能であった。これにより1日中走行サーバイを行っても異常値や欠測等の問題がないことを確認した。

3・6 車内への設置方法

車内での設置場所により測定結果に差が出るおそれがあることから、設置場所の検討を行った。

検出器を歩道側に設置し走行サーバイを行った場合、道路横の建物や崖などの周辺環境の違いの影響を受けやすくなる⁵⁾。このことから、車道中央側 (運転席側) の後部座席に設置することとした。

また、3・4の方向特性も考慮し、検出部を測定したい車道中央向きになるよう運転席側後部座席にシートベルトで固定することとした。

またGPSの受信機については、電波を受信しやすいよう助手席側のダッシュボード上に設置することとし、3・5の外部バッテリーは遮蔽物となる可能性があることから、後部座席の足元に設置することとした。

設置の模式図を図6に示す。

3・7 原子力防災訓練での運用

これらを元に、令和2年度の石川県原子力防災訓練において、運用した。運用した地域は、LTE回線の電波状態が悪い地域が多い、志賀原子力発電所より北側30km圏内 (志賀町、輪島市、穴水町の山間部) である。

運用の結果を図7に示す。電波状態が悪く一部でデータ伝送に遅延が見られたが、異常値の発生や欠測、操作ミスにより測定できないなどの問題はなく、走行サーバイを行うことが

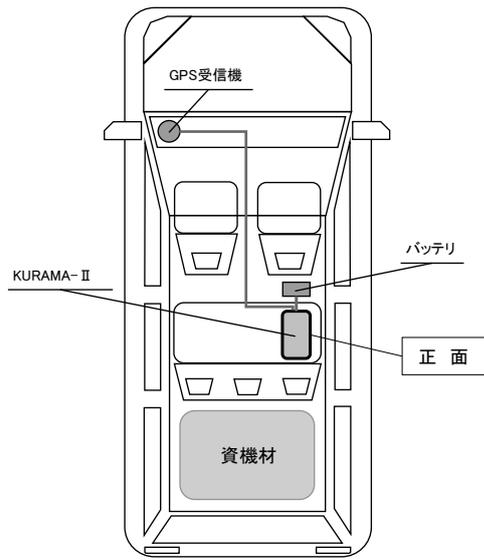


図6 車両への設置方法

できた。

4 まとめ

令和元年度に整備したKURAMA-IIの使用方法について検討を行った。

測定器の個体差による線量率の変動のばらつきが十分小さいこと、OIL判断を行う範囲での指示値の直線性が確保されていることから平常時から緊急時まで幅広い線量率で測定が可能であることを確認した。測定間隔については平常時からの測定を考慮して3秒とした。

方向特性については、側面方向からの照射に対しては、検

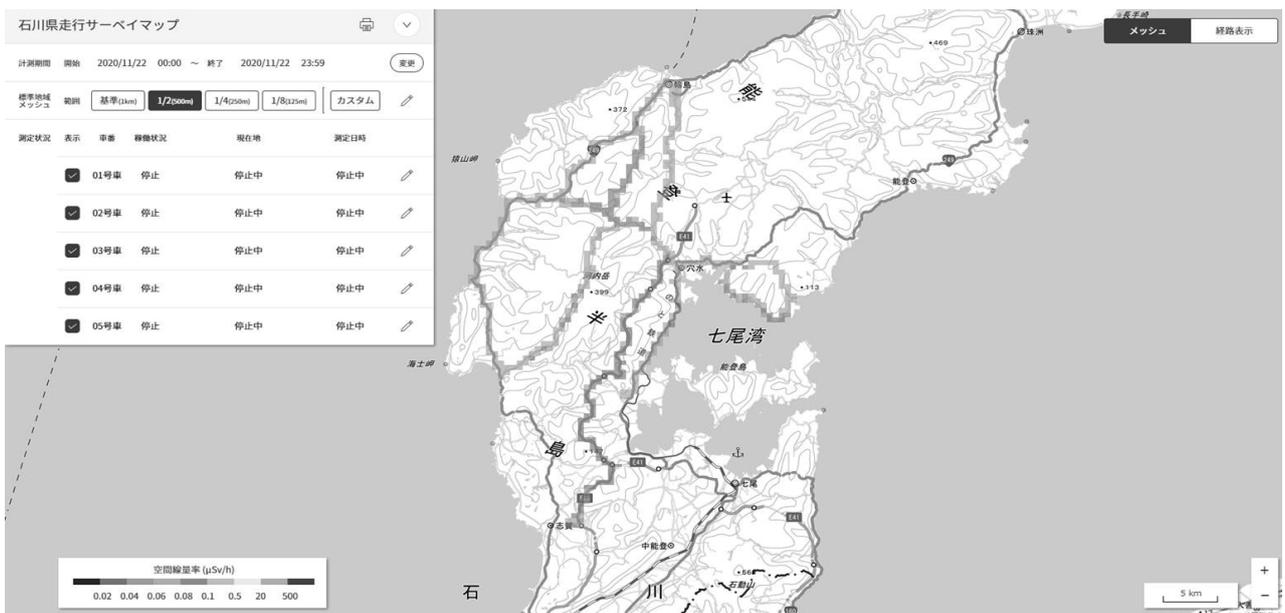
出部の結晶等が遮蔽となるため大きくレスポンスが低下することが分かった。そのため設置する際には測定部正面が車道中央部を向くよう運転席側の後部座席にすることとした。

また、令和2年度石川県原子力防災訓練において走行サーベイに使用し、異常値の発生や欠測などの問題なく走行サーベイを行うことができた。

以上から、走行サーベイ機器として運用するにあたり十分に使用できることが確認できた。

文 献

- 1) 原子力規制委員会：原子力災害対策指針，令和3年7月21日一部改正
- 2) 原子力規制庁監視情報課：緊急時モニタリングについて（原子力災害対策指針補足参考資料），令和元年7月5日一部改訂
- 3) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構：平成31年度放射性物質測定調査委託費（東京電力株式会社福島第一原子力発電所事故に伴う放射性物質の分布データの集約）事業 成果報告書
- 4) 津田修一，吉田忠義，中原由紀夫，佐藤哲郎，関暁之，松田規宏，安藤真樹，武宮博，谷垣実，高宮幸一，佐藤信浩，奥村良，小林康浩，吉永尚生，吉野泰史，内堀幸夫，石川剛弘，岩岡和輝，斎藤公明：走行サーベイステムKURAMA-IIを用いた測定の基盤整備と実測への適応，JAEA-Technology.2013-037（2013）
- 5) 高橋千太郎：原子力安全基盤科学③放射線防護と環境放射線管理，初版，159，京都大学学術出版会（2017）



※ 道路上の色分けされた四角がその範囲内で測定したデータの平均値を示している

図7 令和2年度原子力防災訓練マッピング図

〔抄 録〕

石川県で分離された結核菌株のVNTR分析を用いた分子疫学的解析

石川県保健環境センター 健康・食品安全科学部 児玉 洋江・木村 恵梨子・塩本 高之
谷村 睦美・出雲 和彦・金戸 恵子
石川県南加賀保健福祉センター 小坂 恵
石川県健康福祉部 北川 恵美子

〔和文要旨〕

日本臨床微生物学雑誌, 31 (1) ,27-32, (2020)

石川県の結核患者から分離された結核菌株170株について12領域分析法 (JATA (12) -VNTR) および24領域分析法 (24_{Beijing} - VNTR) による遺伝系統の推定を行った。北京型は125株 (73.5%) を占め、70歳未満の患者と比較すると、70歳以上ではSTK群の割合が有意に高く、新興型が有意に低かった。非北京型株のうち日本人患者由来株の9割以上がEuro-Americanであった。また、外国人患者では、入国から発症までの期間が2年以内と短いこと、株の遺伝系統が日本人患者由来株とは異なることから、日本国外での感染が示唆された。JATA (12) -VNTRのプロファイルが一致した38株について24_{Beijing} - VNTRを実施した結果、プロファイルが一致したのは疫学的な関連がある2株のみであった。このことから、菌株の異同判定をする上で24_{Beijing} - VNTRの有用性が示唆された。今後もVNTR分析を用いた結核菌株の遺伝系統解析を継続するとともに、その分析結果を関係機関へ還元することにより、精度の高い実地疫学調査の実施に寄与したい。

キーワード : *Mycobacterium tuberculosis*, variable numbers of tandem repeats, JATA (12) -VNTR, 24_{Beijing} - VNTR

Key words : *Mycobacterium tuberculosis*, variable numbers of tandem repeats, JATA(12)-VNTR, 24_{Beijing}-VNTR

石川県保健環境センター研究報告書投稿規定

石川県保健環境センター（以下「センター」という。）研究報告書の投稿規定を次のとおり定める。

1 編集

センター研究報告書の編集は、年報等編集委員会（以下「編集委員会」という。）が行う。

2 編集委員会の構成

編集委員会は所長を委員長とし、技監、次長、部長、副部長及び総務課長を委員とする。

委員長は、必要に応じ委員長代理を指名し、その職務を委任することができる。

3 投稿者の規定

投稿者は原則としてセンター職員とする。

4 報告書の内容

センター職員が行った調査研究で、印刷物として未発表のものとする。ただし、抄録についてはこの限りではない。

5 報告の種類

報告は、総説、報文、短報、資料及び抄録の5種類とする。投稿申込者は希望する投稿区分を示して申し込み、編集委員会が投稿区分を指定して投稿者に通知する。

1) 総説

複数年にわたる連続した研究報告を総合的にまとめたもの、複数の部門で行われた研究報告を総合的にまとめたもの又はひとつの主題に関する内外の研究報告を総括的にまとめたもののいずれかで、形式は自由とし、和文要旨及び英文タイトルを付記する。

2) 報文

新知見を含むまとまった研究報告で、形式はおおむね、はじめに、材料と方法、成績、考察、まとめ、謝辞、付記及び文献の順とし、和文要旨及び英文タイトルを付記する。

3) 短報

断片的な研究であっても、新しい事実で価値のあるデータを含む報告で、形式は報文に準じ、和文要旨及び英文タイトルを付記する。

4) 資料

既知の方法による調査、試験検査の結果又は統計等をまとめたもので、形式は報文に準じ、和文要旨及び英文タイトルを付記する。

5) 抄録

当該年度に他誌に掲載された論文の抄録で、表題名、著者名、所属名、掲載誌名、巻(号)、始ページ-終ページ、発行年及び紹介文の順に掲載する。

6 投稿

本誌に原稿の投稿を希望する者は、その原稿を本投稿規定ならびに「研究報告書原稿執筆要領」に従って作成しなければならない。

投稿原稿の長さは、原則として表1に示すページ数(図、表などを含む刷り上がりページ数)以内とする。ただし、編集委員会が認めた場合は、この限りではない。

表1 原稿の最大ページ数

原稿の種類	総説	報文	短報	資料	抄録
ページ数	12	8	4	6	1

7 原稿の提出及び審査

原稿は所属のグループリーダー（執筆者がグループリーダー以上の職位の者である場合は部長）の校閲を経て、編集委員会に提出する。

提出された原稿は、次項に定める複数の査読員によって審査され、その採否、掲載区分及び掲載順序は編集委員会が決定する。

原稿の表現、用語等の統一化は編集委員会で行い、必要な場合には投稿者に内容の変更、表現の統一化のための作業あるいは内容の確認などを求めることがある。

8 査読員

原稿の査読員は、次に定める職員をもって充て、審査原稿の割当は、査読員の専門分野及び経験を考慮して編集委員会で決定する。

- 1) 編集委員のうち、技監、技術総括次長、技術職の部長及び副部長
- 2) センター職員の中から編集委員会が選任し、編集委員長が委嘱した職員若干名。

なお、本項に該当する査読員の任期は委嘱の日から当該年度の研究報告書発行の日までとし、再任を妨げない。

9 校正

初校は著者校とし、誤植の訂正に止め、内容の変更をしてはならない。ただし、編集委員会が認めた場合はこの限りではない。

10 その他

その他必要な事項は編集委員会で協議する。

この投稿規定は、昭和54年4月1日から適用する。

昭和57年4月1日一部改正
昭和62年7月1日一部改正
平成6年6月1日一部改正
平成10年7月2日一部改正
平成15年4月1日一部改正
平成16年4月1日一部改正
平成20年4月21日一部改正
平成21年3月2日一部改正
平成26年3月31日一部改正
平成26年4月8日一部改正

石川県保健環境センター研究報告書原稿執筆要領

研究報告書投稿規定第6項に基づく原稿執筆要領を、次のとおり定める。

〔はじめに〕

この「原稿執筆要領」は、報告の投稿に当たり原稿執筆の際に従うべき必要最小限の約束が記されている。これに従わない原稿は受理されない場合があるので注意すること。

投稿原稿として具備すべき条件として、正確かつ客観的であり、内容、記述が十分に推敲され、つじつまのあった読みやすく理解しやすい文章であることが求められる。原稿の審査は内容の妥当性、正確さ、学術的価値に重点が置かれるもので、理解しやすく読みやすい文章の推敲は、投稿者の執筆時及びグループリーダー校閲時に予め行っておくべき義務と考えられる。

〔原稿の執筆〕

原稿の執筆は、原則として編集委員会が指定した電子媒体上での執筆とし、具体的な方法は別途定める。

ただし、編集委員会が認めた場合は紙面による投稿も可能とする。この場合、原稿はA4判でワープロによる左横書き(25字×46行、左詰め、2ページで仕上がり1ページに相当)とする。

〔文 体〕

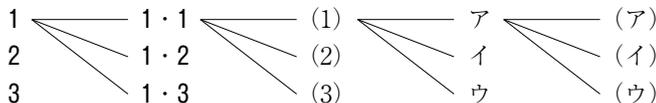
- 1 原稿は原則として新仮名遣い、新送り仮名、平仮名混じり国語文とし、簡潔で理解し易い表現にする。止むを得ぬ学術用語、地名、人名などのほかは常用漢字を用いる。
- 2 欧文はダブルスペースとする。

〔表題等〕

- 3 表題はなるべく短くまとめ、本文とは別の頁に書く。続報の場合は必ず副題を付ける。
- 4 表題又は副題の下に1行あけて所属名(部まで)と著者名を連記する。
- 5 総説、報文、短報及び資料には、英文の表題、副題、著者名及び所属名を和文の下へ1行あけて記載する。
- 6 英文表題は、冠詞、前置詞、副詞、接続詞以外の単語の第1文字を大文字とする。
- 7 英文著者名及び所属名はイタリック体(斜体)とし、英文著者名は、ファミリーネームを先にすべて大文字で記載し、ファーストネームは頭文字のみを大文字とする。
- 8 総説、報文、短報、資料及び抄録には、報告の内容を的確に示す3～5語の和文又は英文のキーワードを付記する。
- 9 総説、報文、短報及び資料には、和文要旨を付ける。要旨は表題、著者名の次に字数200～300字の範囲で記載し、本文を読まなくても内容の要点が理解できるように作成する。
- 10 報告の一部若しくは全部を学会等に発表した場合には、最下段に発表学会名、発表年月日及び開催地名を明記する。

〔本 文〕

- 11 本文は表題とは別の頁に新しく書き出す。
- 12 本文の構成はおおむね 1 はじめに、2 材料と方法、3 成績、4 考察、5 まとめ の順とし、1行あけて謝辞及び付記を記載する。文献は別の用紙に書き出す。ただし、総説の形式はこれらにとらわれず自由とする。
- 13 項目を細別するときの見出し符号は、次の順序で用いる。



ただし、考察とまとめはポイントシステムをとらず、(1)、(2)、(3) とする。

- 14 ポイントシステムとその見出しはゴシック体とする。
- 15 文の書き出しは1字あける。行を改めるときも同じ。
- 16 句読点は「,」及び「。」, かっこは「()」を用いることとし、それぞれ1字に数える。ただし、句読点が行の頭に出る場合は、前の行の右欄外に書く。
- 17 数字は成語となっているもの以外はアラビア数字を用い、1こま2字とする。小数点、コンマ等の記号も数字に準じて記載する。
- 18 数量の単位は原則として国際単位系(SI単位)により、記号は国際的に慣用されているものを用いる。「リットル」は「L」(半角大文字)を用いる。特殊な記号は脚注に説明を加える。
- 19 物質名、術語等で慣用されているものはそれに従う。物質名には化学式を用いない。
- 20 生物名(和名)はカタカナ書きとし、その学名はイタリック体とする。
- 21 外国語の地名、人名は原則として欧語を用いる。

22 本文中の人名は姓のみとする。なお、人名が複数の場合は列記しないで、最初の人名のあとに「ら」を付け、年号は原則として省く。

23 用語を略記するときは、最初に必ず正式な名称を共に示す。

24 倫理審査を受けた場合は、材料と方法の項に倫理審査委員会の名称及び承認年月日を明記する。

〔書体の指定〕

25 印刷時の書体を原稿中で指定するときは、ゴシック体は必要ある文字の下に~~~~~線を、イタリック体は————線を、スモールキャピタル体は————線をそれぞれ朱書する。

〔表と図〕

26 表と図は重複を避け、本文の論旨展開に必要最小限なものに留める。これ以外の基礎資料となる表や図は、著者の責任において適当な媒体で保管することとし、研究報告には掲載又は添付をしない。

27 表や図は、それぞれ本文とは別の頁に書き、番号と表題を付ける。

28 番号と表題は、表では表の上部に、図では図の下部に表示し、説明、注釈は表や図の下部に記載する。

29 番号、表題、説明及び注釈は和文、欧文のいずれでもよいが、欧文の場合は本文での引用にも欧文の番号を用いる。

30 表や図に用いる文字は書体を指定することができる。

31 表や図の本文中への挿入位置は、原稿用紙の右欄外に「←表 1」, 「←図 1」のように朱書する。

32 表や図は原則として、その幅を刷り上り 8 cm (半ページ幅) 又は 16.6cm (全ページ幅) とするが、特に大きさを指定したいときは、表や図の原稿の右下に刷り上りの大きさを朱書する。

33 表の周囲は枠で囲まないのを原則とし、縦、横の罫は差し支えない限り省く。

34 図・表及び写真は原則として白黒とする。

35 電子媒体による原稿とは別に、図はそのまま製版に使用できるもの 1 部を提出する。

〔引用文献〕

36 文献は本文の引用個所の右肩に 1), 2) 3), 4) -6) のように記載し、本文とは別の頁に一括して引用番号順に 1 文献ごとに行を改めて記載する。

37 文献の略名は、邦文誌は日本自然科学学術雑誌総覧、欧文誌は、Chemical Abstract 及び Cumulative Indexed Medicus に従って記載する。上記に指示のないものは、原則として略名を用いない。

38 雑誌の場合は、著者名：論文表題、雑誌名、巻 (ゴシック体で記載) (号)、始ページ-終ページ (発行年) の順に記載する。

39 単行本の場合は、著者名：書名、版 (編者名) 始ページ-終ページ、発行所名 (発行年) の順に記載する。

40 著者名は姓名を記載する。欧文名はファミリーネームを先にすべて大文字で記載し、ファーストネームは頭文字のみを大文字とする。(例：PAULING, Linus C., DING Yunchung)

41 共著の場合は、原則として全員の姓名を記載する。

42 巻数は、ゴシック体にする。

通巻ページのあるものは、号を省略する。

ページは原則として通巻ページを記載する。

43 重版又は改訂版のない単行本は版の記載を省略する。単行本の全内容を総括的に引用した場合は、ページの記載を省略する。

44 インターネット・ホームページを引用する場合は、掲載者 (機関) 名、ホームページ名、ホームページアドレス、参照年 (西暦) 月日を記載する。

〔謝辞と付記〕

45 謝辞は本文の最後に 1 行の余白をあけて書き出す。見出しは付けない。

46 付記は謝辞に引続き行を改めて記載する。見出しは付けない。

〔原稿の査読及び修正〕

47 原稿の査読は、原則として電子媒体を用いて行う。ただし、査読員から申し出があった場合は紙面によりこれを行う。

48 複数の査読員からの査読意見は、編集委員会事務局がこれを一括して投稿者に通知する。

49 投稿者は、査読員から修正意見を受けた場合、その指示に従って修正した原稿又は修正できない旨とその理由を付した意見書を編集委員会事務局へ提出しなければならない。

50 複数の査読員間で大きな意見の相違があった場合は、当該査読員間で意見を調整の上、執筆者に通知する。

51 前項において当該査読員間で合意が得られなかった場合、及び査読員と執筆者との間での見解の相違により修正に関する合意が得られなかった場合は、編集委員会においてこれを調整し、その取り扱いを決定する。

石川県保健環境センター研究報告書（第58号）

令和4年3月発行

金沢市太陽が丘1丁目11番地（〒920-1154）

発行所 石川県保健環境センター

TEL (076) 229-2011

FAX (076) 229-1688

ホームページ：<https://www.pref.ishikawa.lg.jp/hokan/>

e-mail：hokan@pref.ishikawa.lg.jp
