
石川県保健環境センター研究報告書

第 59 号

(令和3年度)

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



2 0 2 2

石川県保健環境センター

はじめに

石川県保健環境センターは、県民の皆様の健康と地域の環境を守るための科学的・技術的中核機関として、感染症のまん延防止や食品、飲料水、医薬品及び生活環境等の安全確保のため、様々な試験検査を行っています。

また、こうした機能をより一層強化していくために、平常時から試験検査の精度管理に努めるだけでなく、試験検査の効率性や迅速性、正確性などを高め、新しい検査法を開発するための調査研究や、県民の皆様の健康危機等に関する事案が生じた際には、その原因等を早期に究明し、必要な措置を講じ予防するための研究等も併せて行っています。

このたびの研究報告書は、令和3年度に当センターが取り組んだ調査研究の成果をまとめたものです。

本報告書には、「本県における薬剤耐性菌の保有状況の把握」、「蚊媒介感染症対策に関する基礎的研究」及び「本県海域の海水及び魚類中における東京電力福島第一原子力発電所事故由来のセシウム-137」の報文3報をはじめ、短報4報、資料7報を掲載しました。

こうした調査研究成果は、当センターの財産であると同時に、他の機関においても有用な情報として、参考にしていただけるものと考えており、本冊子のほかホームページ上でも掲載しています。関係者の皆様には、是非、ご活用いただくとともに、忌憚のないご意見等を頂戴できれば幸いです。

今後もこうした調査研究を積み重ねて参りますので、引き続きご指導賜りますよう、よろしくお願い申し上げます。

令和4年12月

石川県保健環境センター所長 岡崎 裕介

目 次

(報 文)

石川県における薬剤耐性菌の保有状況の把握	北川恵美子ほか	(1 - 7)
石川県における蚊媒介感染症対策に関する基礎的研究 - 感染症媒介蚊およびアルボウイルスのモニタリング調査 -	中澤 柁哉ほか	(8 - 14)
石川県海域の海水及び魚類中における東京電力福島第一原子力発電所事故由来のセシウム-137	小林 浩美ほか	(15 - 21)

(短 報)

固相抽出法による地下水中無機ヒ素化合物の価数別分離測定	野口 邦雅ほか	(22 - 26)
固相抽出による地下水中のPCBスクリーニング検査法の改良	牧野 雅英ほか	(27 - 30)
白菜中のストロンチウム-90	内田 賢吾ほか	(31 - 38)
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4報) - 降水量と降下量 -	内田 賢吾ほか	(39 - 44)

(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 (2021年度)	城座 美夏ほか	(45 - 48)
石川県におけるパレコウイルスA検出状況 (2014年~2021年)	成相 絵里ほか	(49 - 54)
石川県における収去食品中の食品添加物の検査状況 (2017年度~2021年度)	寺沢 蓉子ほか	(55 - 58)
農産物中の残留農薬実態調査 (2015年度~2021年度)	松榮 美希ほか	(59 - 65)
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 (2021年)	徳田 貴裕ほか	(66 - 71)
水道水中の放射性核種調査	鳥屋子やまとほか	(72 - 75)
石川県における環境放射能水準調査 (2021年度)	小林 浩美ほか	(76 - 79)
石川県保健環境センター研究報告書投稿規定		(80 - 81)
石川県保健環境センター研究報告書原稿執筆要領		(82 - 83)

〔報 文〕

石川県における薬剤耐性菌の保有状況の把握

石川県保健環境センター 健康・食品安全科学部

石川県南加賀保健福祉センター

石川県健康福祉部 健康推進課

北川 恵美子・城座 美夏・木村 恵梨子
児玉 洋江
谷村 睦美
塩本 高之

〔和文要旨〕

県内の医療機関の患者、健常者糞便及び鶏肉から分離されたCRE及びESBL産生菌が保有する薬剤耐性遺伝子について調べた。カルバペネマーゼ遺伝子は、医療機関の患者から分離されたCREにのみ検出されたため市中に広がっていないと推測されたが、海外で広がっているNDM型遺伝子が検出されたことから引き続きサーベイランスを行う必要がある。一方、ESBL産生菌については、各々からCTX-M型遺伝子保有の大腸菌が分離されたことから、市中に広がっている状況が示唆された。医療機関の患者等と鶏肉から分離された大腸菌のCTX-Mグループや血清型がOg25の割合が異なっており、県内におけるヒトと鶏肉のESBL産生菌の動向は異なる可能性が示唆された。

キーワード：薬剤耐性菌，カルバペネム耐性腸内細菌科細菌（CRE），
基質特異性拡張型 β -ラクタマーゼ（ESBL）産生菌

本報の一部は以下で発表した。

第44回石川県医学検査学会

第30回日本臨床微生物学会総会・学術集会

第31回日本臨床微生物学会総会・学術集会

第45回石川県医学検査学会

第32回日本臨床微生物学会総会・学術集会

平成31年3月21日 石川県

平成31年2月2日 東京都

令和2年2月1日 石川県

令和2年3月（紙上開催）

令和3年1～3月（紙上開催）

1 はじめに

近年、薬剤耐性菌の増加は国際的に大きな問題となっており、ヒト、動物といった垣根を超えた世界規模での取り組みが必要であるとの認識に基づき、2015年の世界保健機関総会において「薬剤耐性に関するグローバルアクションプラン」が採択され、我が国においても2016年4月「薬剤耐性（AMR）対策アクションプラン」が策定された¹⁾。耐性菌の増加は院内感染のみではなく、

市中感染についても問題視されてきており、医療機関の対策だけではなく、地域における総合的な感染症対策を行う必要性が指摘されている。

そこで、石川県における薬剤耐性菌の動向を把握するため、医療機関から収集したカルバペネム耐性腸内細菌科細菌（以下、CRE）及び基質特異性拡張型 β -ラクタマーゼ（以下、ESBL）産生菌を対象に薬剤耐性遺伝子（カルバペネマーゼ遺伝子及びESBL遺伝子）の保有状況について調べるとともに、健常者及び食品（鶏肉）か

Understanding the Prevalence of Antimicrobial Resistant Bacteria in Ishikawa Prefecture. by KITAGAWA Emiko, SHIROZA Mika, KIMURA Eriko, KODAMA Hiroe(Health and Food Safety Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science), TANIMURA Mutsumi(Minami Kaga Health and Welfare Center of Ishikawa Prefecture), SHIOMOTO Takayuki(Health Promotion Division, Health and Welfare Department, Ishikawa Prefecture)

Key words : Antimicrobial Resistant Bacteria, Carbapenem-resistant Enterobacteriaceae, Extended-Spectrum β -Lactamase-Producing Bacteria

ら分離したこれら耐性菌とを比較解析したので報告する。

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²⁾、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菌 (*Enterobacterales*) 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 石川県内の医療機関で分離されたCRE及びESBL産生菌の薬剤耐性遺伝子の保有状況

(1) 供試菌株

CREについては、平成30～令和3年度において、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)に基づき届出された患者のCRE91株に加え、平成30年7月から令和3年2月にかけて県内18か所の協力医療機関の患者から分離された、届出対象外であるがカルバペネム耐性のCRE 111株、計202株を対象とした(表1)。

表1 供試菌株(医療機関の患者から分離されたCRE)

菌種	株数	内訳	
		届出 ^{*1}	届出外 ^{*2}
<i>Klebsiella aerogenes</i>	101	50	51
<i>Enterobacter cloacae</i>	47	21	26
<i>Enterobacter cloacae</i> complex	15	6	9
<i>Escherichia coli</i>	12	5	7
<i>Klebsiella pneumoniae</i>	6	1	5
<i>Serratia marcescens</i>	5	1	4
<i>Enterobacter</i> sp.	4	2	2
<i>Citrobacter braakii</i>	3	2	1
<i>Citrobacter freundii</i>	2		2
<i>Citrobacter freundii</i> complex	2	1	1
<i>Enterobacter asburiae</i>	1	1	
<i>Providencia rettgeri</i>	1	1	
<i>Citrobacter neteri</i>	1		1
<i>Morganella morganii</i>	1		1
<i>Providencia stuartii</i>	1		1
計	202	91	111

※1: 感染症法に基づき届出された患者から分離された株を医療機関より収集

※2: 18か所の協力医療機関より収集(感染症法に基づく届出対象外)

ESBL産生菌については、平成30年7月から令和2年6月にかけて同じく18か所の協力医療機関の患者から分離された975株の腸内細菌科細菌を対象とした(表2)。

入院の有無等の情報については、医療機関から提出された届出票や調査票により確認した。

表2 供試菌株(医療機関の患者から分離されたESBL産生菌)

菌種	株数
<i>Escherichia coli</i>	871
<i>Klebsiella pneumoniae</i>	67
<i>Klebsiella oxytoca</i>	16
<i>Proteus mirabilis</i>	7
<i>Enterobacter cloacae</i>	4
<i>Morganella morganii</i>	3
<i>Klebsiella aerogenes</i>	2
<i>Citrobacter freundii</i>	1
<i>Citrobacter freundii</i> complex	1
<i>Citrobacter koseri</i>	1
<i>Klebsiella variicola</i>	1
<i>Proteus vulgaris</i>	1
計	975

(2) PCR法による薬剤耐性遺伝子の検出

既報³⁾⁴⁾、国立感染症研究所病原体検出マニュアル⁵⁾(以下、マニュアル)及び国立感染症研究所による薬剤耐性菌研修会資料⁶⁾に従い、CREはAを、ESBL産生菌はIを対象に遺伝子の検出を行った。さらに各遺伝子が検出された株については(A)(I)のディスク法等による産生試験を行い、両者の結果に明らかな矛盾がないものを遺伝子陽性と判断した。

なお、本研究では、ESBL遺伝子については、近年ESBL産生菌が急激に増加している要因として問題視されているCTX-M型遺伝子に着目し解析した。

A 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)

I ESBL遺伝子 (CTX-M-1group, CTX-M-2group, CTX-M-9group, CTX-M-8/25group)

(ア) ディスク法によるβ-ラクタマーゼ産生試験

CREはメタローβ-ラクタマーゼ産生性, KPC型カルバペネマーゼ産生性を, ESBL産生菌はESBL産生性を実施した。

(イ) modified Carbapenem Inactivation Method (mCIM) によるカルバペネマーゼ産生試験

CREを対象にマニュアルに従い実施した。

(3) 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

(2)によりIMP-1型遺伝子を検出したCRE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。

(4) 血清型別試験

ESBL産生菌のうち、*Escherichia coli*(以下、大腸菌)については、Iguchiらの方法⁷⁾に従いO-genotyping PCR(以下、Og Typing PCR)によりOg25の確認を行った。

2・2 健康者糞便におけるCRE及びESBL産生菌の薬剤耐性遺伝子の保有状況

(1) 供試検体

令和元年7月から令和3年3月にかけて、県保健所に腸内細菌検査を依頼した集団給食従事者、食品取扱従事者及び県内A大学の学生のうち同意が得られた77人(下痢等の消化器症状のない者)から採取した糞便を対象とした。

(2) 分離方法

検体をクロモアガーESBL培地(関東化学㈱)に塗布し、37℃で18～24時間培養後、発育したコロニーのうち、肉眼的に所見が異なるコロニーをすべて釣菌した。それらについて、グラム染色、オキシダーゼ試験、ブドウ糖発酵能を確認し、腸内細菌科細菌の性状(グラム陰性桿菌、オキシダーゼ陰性、ブドウ糖発酵性)を示すコロニーをCREまたはESBL産生菌疑い株とした。

(3) PCR法による薬剤耐性遺伝子の検出

(2)にてCRE及びESBL産生菌を疑う株について、2・1(2)、(3)を実施し、カルバペネマーゼ遺伝子、ESBL遺伝子の検出を行った。

(4) 菌種同定及び血清型別試験

(3)によりカルバペネマーゼ遺伝子、ESBL遺伝子を検出した株について、rapid ID 32E(バイオメリュー・ジャパン㈱)を用いて菌種を同定した。さらにESBL産生菌のうち大腸菌と同定された株については、Iguchiらの方法⁷⁾に従いOg Typing PCRによりOg25の確認を行った。

なお、同一検体から分離された遺伝子保有株のうち、遺伝子型、菌種同定、血清型別試験の結果がすべて一致する株について同一の1株として計上した。

2・3 石川県内で市販流通する鶏肉におけるCRE及びESBL産生菌の薬剤耐性遺伝子の保有状況

(1) 供試検体

令和元年11月から令和2年9月にかけて、県内に流通している鶏肉100検体を対象とした。

(2) 分離方法

鶏肉25gに緩衝ペプトン水(関東化学㈱)225mLを加え、1分間ストマッカー処理し、35～37℃で18～24時間培養した後、その培養液をクロモアガーESBL培地(関東化学㈱)へ塗布し、37℃で18～24時間培養した。発育したコロニーのうち肉眼的に所見が異なるコロニーをすべて釣菌し、オキシダーゼ試験、ブドウ糖発酵能を確認し、腸内細菌科細菌の性状(グラム陰性桿菌、オキシダーゼ陰性、ブドウ糖発酵性)を示すコロニーをCREまたはESBL産生菌疑い株とした。

(3) PCR法による薬剤耐性遺伝子の検出

(2)にてCRE及びESBL産生菌を疑う株について、2・1(2)、(3)を実施し、カルバペネマーゼ遺伝子、ESBL

遺伝子の検出を行った。

(4) 菌種同定及び血清型別試験

(3)によりカルバペネマーゼ遺伝子、ESBL遺伝子を検出した株について、2・2(4)による方法で菌種同定及び血清型別試験を実施した。

なお、同一検体から分離された遺伝子保有株のうち、遺伝子型、同定結果、血清型別試験がすべて一致する株については同一の1株として計上した。

2・4 倫理的配慮

2・1及び2・2は、当センター医学倫理審査委員会の承認(平成30年1月26日承認)を得て実施した。

3 成績

3・1 石川県内の医療機関で分離されたCRE及びESBL産生菌の薬剤耐性遺伝子の保有状況

(1) カルバペネマーゼ遺伝子の保有状況

CREとして収集した202株のうち13株(6.4%)にカルバペネマーゼ遺伝子の保有が認められ、保有する遺伝子の内訳は、IMP-1型が12株、NDM型が1株であった。IMP-1型の遺伝子型別は*bla*_{IMP-6}が7株、*bla*_{IMP-1}が5株であった(表3)。

カルバペネマーゼ遺伝子が検出された13株の菌種は、大腸菌が5株、*Klebsiella pneumoniae*が4株、*Enterobacter cloacae*が2株、*Citrobacter freundii*と*Klebsiella aerogenes*が各1株であった。

なお、13株のうち3株(*bla*_{IMP-6}:2株、NDM型:1株)は外来患者由来で、残りの10株は入院患者由来であった。また、13株のうち5株(*bla*_{IMP-1}:1株、*bla*_{IMP-6}:3株、NDM型:1株)は感染症法に基づき届出された患者のCRE株で、残りの8株(*bla*_{IMP-1}:4株、*bla*_{IMP-6}:4株)は届出対象外の患者のCRE株であった。

(2) ESBL遺伝子(CTX-M型遺伝子)の保有状況

ESBL産生菌として収集した975株のうち919株(94.3%)にCTX-M型遺伝子の保有が認められ、その内訳はCTX-M-1groupが224株、CTX-M-2groupが25株、CTX-M-9groupが666株、CTX-M-1groupとCTX-M-9groupを保有する株が4株であった(表4)。

なお、CTX-M型遺伝子保有株のうち最も多い菌種は大腸菌(843株)であり、遺伝子型ではCTX-M-9group遺伝子を保有している株が641株と最も多かった。また、これらCTX-M型遺伝子を保有する株は、半数近くが外来患者から検出された。

CTX-M型遺伝子を保有する843株の大腸菌について、Og Typing PCRを実施したところ、598株(CTX-M-1group:118株、CTX-M-2group:5株、CTX-M-9group:474株、CTX-M-1groupとCTX-M-9group保有株:1株)がOg25であった(図1)。

表 3 医療機関の患者から分離された CRE (202 株) のカルバペネマーゼ遺伝子型 (菌種別株数)

菌種	カルバペネマーゼ遺伝子				不検出	計
	IMP-1 型		NDM 型	小計		
	<i>bla</i> _{IMP-1}	<i>bla</i> _{IMP-6}				
<i>Escherichia coli</i>		5(2)		5(2)	7(2)	12(4)
<i>Klebsiella pneumoniae</i>	2	2		4	2(1)	6(1)
<i>Enterobacter cloacae</i>	2			2	45(5)	47(5)
<i>Citrobacter freundii</i>	1			1	1	2
<i>Klebsiella aerogenes</i>			1(1)	1(1)	100(22)	101(23)
<i>Enterobacter cloacae</i> complex					15(3)	15(3)
<i>Serratia marcescens</i>					5(1)	5(1)
<i>Enterobacter</i> sp.					4	4
<i>Citrobacter braakii</i>					3	3
<i>Citrobacter freundii</i> complex					2	2
<i>Citrobacter neteri</i>					1(1)	1(1)
<i>Enterobacter asburiae</i>					1	1
<i>Morganella morganii</i>					1(1)	1(1)
<i>Providencia stuartii</i>					1(1)	1(1)
<i>Providencia rettgeri</i>					1	1
計	5	7(2)	1(1)	13(3)	189(37)	202(40)

() : うち外来患者由来株数

表 4 医療機関の患者から分離された ESBL 産生菌 (975 株) の CTX-M 型遺伝子 (菌種別株数)

菌種	CTX-M 型				小計	不検出	計
	CTX-M-1 group	CTX-M-2 group	CTX-M-9 group	CTX-M-1 group CTX-M-9 group			
<i>Escherichia coli</i>	190(90)	8(4)	641(278)	4(1)	843(373)	28(10)	871(383)
<i>Klebsiella pneumoniae</i>	30(13)	9(3)	20(4)		59(20)	8(3)	67(23)
<i>Klebsiella oxytoca</i>	2	1	1		4	12(1)	16(1)
<i>Proteius mirabilis</i>		7(4)			7(4)		7(4)
<i>Enterobacter cloacae</i>	1				1	3	4
<i>Moganella morganii</i>			2		2	1	3
<i>Klebsiella aerogenes</i>						2	2
<i>Citrobacter freundii</i>	1				1		1
<i>Citrobacter koseri</i>			1		1		1
<i>Klebsiella variicola</i>			1		1		1
<i>Citrobacter freundii</i> complex						1	1
<i>Proteus vulgaris</i>						1	1
計	224(103)	25(11)	666(282)	4(1)	919(397)	56(14)	975(411)

() : うち外来患者由来株数

3・2 健常者糞便における CRE 及び ESBL 産生菌の薬剤耐性遺伝子の保有状況

(1) カルバペネマーゼ遺伝子の保有株状況

健常者糞便 77 検体からカルバペネマーゼ遺伝子を保有する株は検出されなかった。

(2) ESBL 遺伝子 (CTX-M 型遺伝子) の保有状況

健常者糞便 77 検体のうち 6 検体 (7.8%) から 6 株の CTX-M 型遺伝子を保有する株が検出され、その内訳は、CTX-M-1 group が 3 株、CTX-M-9 group が 3 株であった (表 5)。

表 5 健常者糞便から分離された ESBL 産生菌 (6 株) の CTX-M 型遺伝子

菌種	CTX-M-1 group	CTX-M-9 group	計
<i>Escherichia coli</i>	3	3	6

また、6 株はすべて大腸菌であり、それらについて Og Typing PCR を実施した結果、Og25 は CTX-M-9 group の 1 株であり、残り 5 株は Og25 ではなかった (図 1)。

3・3 石川県内で市販流通する鶏肉における CRE 及び ESBL 産生菌の薬剤耐性遺伝子の保有状況

(1) カルバペネマーゼ遺伝子の保有状況

鶏肉 100 検体からカルバペネマーゼ遺伝子を保有する株は検出されなかった。

(2) ESBL 遺伝子 (CTX-M 型遺伝子) の保有状況

鶏肉 100 検体のうち 30 検体 (30%) から 31 株の CTX-M 型遺伝子を保有する株が検出され、その内訳は、CTX-M-1 group が 11 株、CTX-M-2 group が 14 株、CTX-M-9 group が 6 株であった (表 6)。

表 6 鶏肉から分離された ESBL 産生菌 (31 株) の CTX-M 型遺伝子

菌種	CTX-M-1 group	CTX-M-2 group	CTX-M-9 group	計
<i>Escherichia coli</i>	11	14	6	31

また、31 株はすべて大腸菌であり、Og Typing PCR を実施した結果、いずれも Og25 ではなかった (図 1)。

4 考 察

(1) カルバペネマーゼ遺伝子の保有状況

CRE の中でもカルバペネム分解酵素であるカルバペネマーゼを産生する腸内細菌科細菌 (以下、CPE) は、β-ラクタム剤以外の抗菌薬に耐性を示す場合が多いこと、プラスミド上に存在するカルバペネマーゼ遺伝子により菌種を超えて水平伝播しうることから、院内感染のリスクになると考えられている。このため、CRE が CPE であるか否かを確認するために、カルバペネマーゼ遺伝子の検査の実施が重要とされている⁸⁾。

本研究において、県内の医療機関で分離された CRE を対象にカルバペネマーゼ遺伝子の保有状況を調べた結果、感染症法に基づき届出された患者の CRE 株は 5.5%、届出対象外の患者の CRE 株は 7.2% で遺伝子の保有が認められ、いずれも国内の病原体サーベイランス^{9) 10)} (以下、国内のサーベイランス) (2018 年は 17.6%、2019 年は 16.5%) に比べ低い傾向であった。一方で、検出された遺伝子型の多くが IMP 型 (*bla_{IMP-1}*, *bla_{IMP-6}*) であったこと、IMP 型の菌種の多くが大腸菌、*Klebsiella pneumoniae*, *Enterobacter cloacae* であったことは、国内のサーベイランスと同様であった。また、国内のサーベイランスによると、CRE の約 4 割 (2018 年は 37.5%、2019 年は 40.7%) を占める *Klebsiella aerogenes* (以下、*K. aerogenes*) から IMP 型遺伝子が検出されることは少ないと報告されている。本研究においても、医療機関から分離された CRE の多くは *K. aerogenes* であったが (届出株は 54.9%、届出対象外は 45.9%)、IMP 型遺伝子は検出されなかった。以上のことから、CRE の中でも菌種によってカルバペネマーゼ遺伝子の保有率に違いがあ

ることが示唆され、本県では *K. aerogenes* の分離割合が高かったことが CPE 検出率の低さの一因と推測された。

今回の調査では、検体数は多くないものの、健常者及び鶏肉からカルバペネマーゼ遺伝子を保有する株は検出されなかった。また、医療機関で分離されたカルバペネマーゼ遺伝子保有株の多くは入院患者由来であった。以上のことから、カルバペネマーゼ遺伝子を保有する株は、現時点では市中にそれほど広がっていないと推測された。

医療機関で分離された CRE から海外で広がっている NDM 型遺伝子保有株が 1 株検出された。患者に 90 日以内の海外渡航歴がなく、詳細な感染経路は不明であった。海外型カルバペネマーゼ遺伝子保有株はカルバペネムのみならず他の抗菌薬にも耐性を示すことが多く、感染対策上、特に注意を要するとされている⁸⁾。国内のサーベイランスにおいても、近年、海外渡航歴なし、もしくは渡航歴不明の患者から検出されており¹⁰⁾、潜在的な市中への広がり可能性が示唆されることから、引き続き、カルバペネマーゼ遺伝子型の動向をサーベイランスする必要がある。

(2) ESBL 遺伝子 (CTX-M 型遺伝子) の保有状況

本研究において、県内の医療機関の患者、健常者糞便、鶏肉から分離された ESBL 産生菌を対象に CTX-M 型遺伝子の保有状況を調べた結果、CTX-M 型遺伝子を保有する株の多くは大腸菌であり、これらは医療機関の外来患者、健常者糞便、鶏肉からも多く検出された。このことから国内の報告^{11) 12)}と同様、ESBL 産生大腸菌は既に市中に広がっている状況が示唆された。

一方、各々から分離された CTX-M 型遺伝子を保有する大腸菌を対象に CTX-M 型のグループの割合を比較したところ、医療機関にて分離された大腸菌は入院及び外来患者由来株いずれも CTX-M-9 group が優位であったのに対し、鶏肉から分離された大腸菌は CTX-M-2 group が優位であり、CTX-M 型遺伝子のグループの割合は異なっていた。ESBL 産生菌は、2000 年以降急激に増加しているが、その理由として CTX-M 型遺伝子を保有する大腸菌 O25-ST131 と呼ばれるクローンの関与

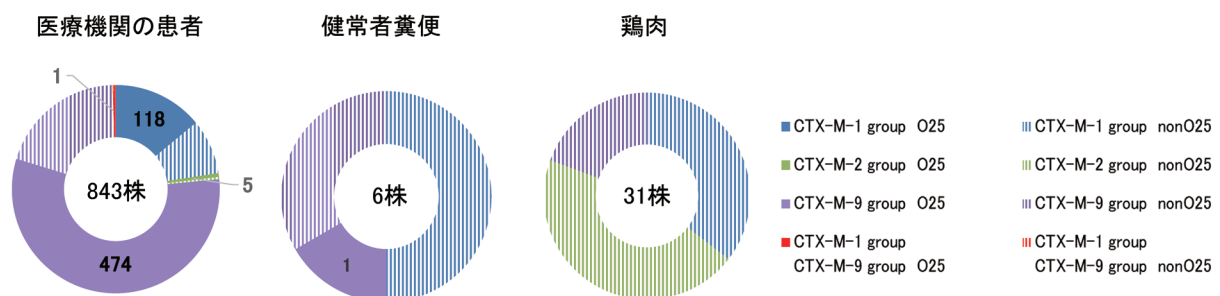


図 1 CTX-M 型遺伝子を保有する大腸菌のうち血清型が Og25 の株数

が示唆されている¹³⁾。今回の調査において、血清型 Og25 は医療機関の患者、健常者から分離された株から検出されたのに対し、鶏肉から分離された株からは検出されなかった。以上のことから、今回解析した健常者糞便及び鶏肉の検体数が少ないことから明確ではないが、ヒトと鶏肉における ESBL 産生菌の動向は異なる可能性が考えられた。

5 まとめ

- (1) カルバペネマーゼ遺伝子は、医療機関の患者から分離された CRE のみで検出されたことから、現時点では市中に広がっていないと推測された。一方で、海外で広がっている NDM 型遺伝子の検出例が見られたことから、引き続きサーベイランスを行う必要がある。
- (2) 県内で分離された ESBL 産生菌の CTX-M 型遺伝子保有株の多くは大腸菌であり、国内の報告と同様、市中に広がっている状況が示唆された。一方、医療機関等にて分離された大腸菌と鶏肉から分離された大腸菌の CTX-M 型グループや血清型が Og25 の割合が異なっていたことから、ヒトと鶏肉における ESBL 産生菌の動向は異なる可能性が考えられた。

本研究の実施にあたり、CRE 及び ESBL 産生菌の菌株をご提供いただいた県内の 18 医療機関の皆様へ感謝いたします。また、健常者糞便の提供にご同意いただいた皆様、ご協力いただいた A 大学及び本県保健所の皆様へ感謝いたします。

文 献

- 1) 国際的に脅威となる感染症対策関係閣僚会議：薬剤耐性 (AMR) 対策アクションプラン, 平成 28 年 4 月 5 日
- 2) 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., Morganellaceae fam. nov., and Budviciaceae fam. nov., *International Journal of Systematic and Evolutionary Microbiology*, **66**, 5575-5599 (2016)
- 3) WATAHIKI Masanori, KAWAHARA Ryuji, SUZUKI Masahiro, AOKI Miyako, UCHIDA Kaoru, MATSUMOTO Yuko, KUMAGAI Yuko, NODA Makiko, MASUDA Kanako, FUKUDA Chiemi, HARADA Seiya, SENBA Keiko, SUZUKI Masato, MATSUI Mari, SUZUKI Satowa, SHIBAYAMA Keigo, SHINOMIYA Hiroto: Single-Tube Multiplex Polymerase Chain Reaction for the Detection of Genes Encoding Enterobacteriaceae Carbapenemase, *Japanese Journal of Infectious Diseases*, **73** (2), 166-172 (2020)
- 4) QUOC Phong Le, UEDA Shuhei, THI Ngoc Hue Nguyen, THI Van Khanh Dao, THI Ai Van Hoang, THI Thuy Nga Tran, HIRAI Hirai, NAKAYAMA Tatsuya, KAWAHARA Ryuji, THI Hung Do, QUANG Mai Vien, YAMAMOTO Yoshimasa: Characteristics of Extended-Spectrum β -Lactamase-Producing *Escherichia coli* in Retail Meats and Shrimp at a Local Market in Vietnam, *Foodborne Pathogens and Disease* **12** (8), 719-725 (2015)
- 5) 国立感染症研究所：病原体検出マニュアル 薬剤耐性菌, H28.12月改訂版 Ver1.1
- 6) 国立感染症研究所 薬剤耐性研究センター：平成 29 年度薬剤耐性菌研修会資料
- 7) IGUCHI Atsushi, IYODA Sunao, SETO Kazuko, MORITA-ISHIHARA Tomoko, SCHEUTZ Flemming, OHNISHI Makoto, Pathogenic *E. coli* Working Group in Japan: *Escherichia coli* O-Genotyping PCR: a Comprehensive and Practical Platform for Molecular O Serogrouping, *Journal of Clinical Microbiology* **53**, 2427-2432 (2015)
- 8) 国立感染症研究所：カルバペネム耐性腸内細菌科細菌 (CRE) 感染症, 病原微生物検出情報 (月報), **40** (2), 17-18 (2019)
- 9) 国立感染症研究所：カルバペネム耐性腸内細菌科細菌 (carbapenem-resistant Enterobacteriaceae, CRE) 病原体サーベイランス 2018 年, 病原微生物検出情報 (月報), **40** (9), 157-158 (2019)
- 10) 国立感染症研究所：カルバペネム耐性腸内細菌科細菌 (carbapenem-resistant Enterobacteriaceae, CRE) 病原体サーベイランス 2019 年, 病原微生物検出情報 (月報), **42** (6), 123-124 (2021)
- 11) 中村竜一：糞便における ESBL 産生菌のアクティブ・サーベイランスの意義, *Sysmex Journal Web*, **11** (3), 1-9 (2010)
- 12) 山本詩織, 朝倉宏, 五十君澗信：基質特異性拡張型 β ラクタマーゼ (ESBL) 産生菌に関わる最近の動向とその拡散に関する考察, *食品衛生学雑誌*, **58** (1),

1-11 (2017)
13) BENTE Olesen, JAKOB Frimodt-Moller,
RIKKE Fleron Leihof, CARSTEN Struve,
BRIAN Johnston, DENNIS S. Hansen,
FLEMMING Scheutz, KAREN A. Krogfelt,
MICHAEL A. Kuskowski, CONNIE Clabots,

JAMES R. Johnson, Temporal Trends in
Antimicrobial Resistance and Virulence-
Associated Traits within the Escherichia coli
Sequence Type 131 Clonal Group and Its H30 and
H30-Rx Subclones, 1968 to 2012, Antimicrobial
Agents and Chemotherapy, **58**, 6886-6895 (2014)

〔報 文〕

石川県における蚊媒介感染症対策に関する基礎的研究

— 感染症媒介蚊およびアルボウイルスのモニタリング調査 —

石川県保健環境センター 健康・食品安全科学部

石川県健康福祉部 薬事衛生課

中澤 柁哉・木村 恵梨子・小橋 奈緒
成相 絵里・中村 幸子・倉本 早苗
中野 未来

〔和文要旨〕

感染症媒介蚊およびウイルスのモニタリング調査を実施し、媒介蚊の生息状況とウイルス保有状況の把握を行った。ヒトスジシマカの成虫調査では、2019年度に計557頭が捕集され、7月～9月に捕集数がピークとなった。同時期のヒトスジシマカの幼虫調査では本県の広範囲な地域でヒトスジシマカが捕集された。コガタアカイエカの成虫調査では、2019年度に計3325頭、2021年度の追加調査で計126頭が捕集された。ヒトスジシマカ成虫からデングウイルス、チクングニアウイルス、ジカウイルスの遺伝子検出を実施し、コガタアカイエカ成虫から日本脳炎ウイルスの遺伝子検出を実施したが、ウイルス遺伝子は全て検出されなかった。

キーワード：ヒトスジシマカ、コガタアカイエカ、デングウイルス、日本脳炎ウイルス

本報の一部は以下で発表した。

第3回ウイルス自然史研究会 2019年5月11日 石川県
第37回北陸病害動物研究会 2019年6月15日 石川県
第49回北陸公衆衛生学会 2021年11月（紙上開催）

1 はじめに

蚊が媒介するウイルス性感染症には、デング熱やチクングニア熱、日本脳炎等がある。このうちデング熱は、ヒトスジシマカ等の蚊の刺咬によりデングウイルスに感染することで引き起こされる発熱性疾患である。2014年に、約70年ぶりにデング熱の国内感染事例が東京都を中心に発生したことを受け、厚生労働省は2015年にデング熱、チクングニア熱の発生およびまん延防止を図ることを目的に、「蚊媒介感染症に関する特定感染症予防指針」を策定した。これを踏まえて、本県では同年に「石川県デング熱・チクングニア熱等蚊媒介感染症発生時対応マニュアル」を策定した。この中で、当センター

には、正確な蚊の同定、蚊からのウイルス検出を含めた技術的な対策の確立や充実が求められている。

また、日本脳炎は、コガタアカイエカ等の刺咬により日本脳炎ウイルスに感染することで引き起こされる重篤な中枢神経疾患である。日本での発生は近年、年間数名程度であるが、厚生労働省が実施している日本脳炎感染源調査では、本県も含め西日本の多くの県で夏季にブタでの日本脳炎ウイルス抗体が検出され、ブタへの感染が認められる¹⁾ことから、国内でも日本脳炎ウイルスは広く常在していると思われる。

このような中、媒介蚊およびデングウイルスや日本脳炎ウイルス等のアルボウイルスの的確なサーベイランス体制整備の一助とするため、蚊の同定、ウイルス検索技

Research on Measures against Mosquito-Borne Infectious Diseases in Ishikawa Prefecture. by NAKAZAWA Masaya, KIMURA Eriko, KOBASHI Nao, NARIAI Eri, NAKAMURA Sachiko and KURAMOTO Sanae(Health and Food Safety Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science), NAKANO Mikuru(Pharmaceuticals/Hygiene Division, Health and Welfare Department, Ishikawa Prefecture)

Key words : Aedes Albopictus, Culex Tritaeniorhynchus, Dengue Virus, Japanese Encephalitis Virus

術の習得に加え、本県でのヒトスジシマカの生息状況(季節消長, 地域における分布)とウイルス保有状況, コガタアカイエカのウイルス保有状況について調査したので報告する。

2 材料と方法

2.1 ヒトスジシマカの調査(成虫調査)

(1) 調査地点および調査期間

調査地点は, 人囀法による事前調査でヒトスジシマカが比較的多く捕集され, かつ人が集まる機会があると想定される金沢市内の3地点(A寺, B神社, C墓地)とした。また, 対照地点として, 金沢市内の2地点(D地点(市街地), E地点(郊外))を選定した(表1)(図1)。

表1 調査地点(ヒトスジシマカ成虫調査)

	A 寺	B 神社	C 墓地	D 地点	E 地点
調査定点数	2	2	2	1	1
地点の特徴	市街地 観光地近辺	市街地 観光地	郊外	市街地	郊外

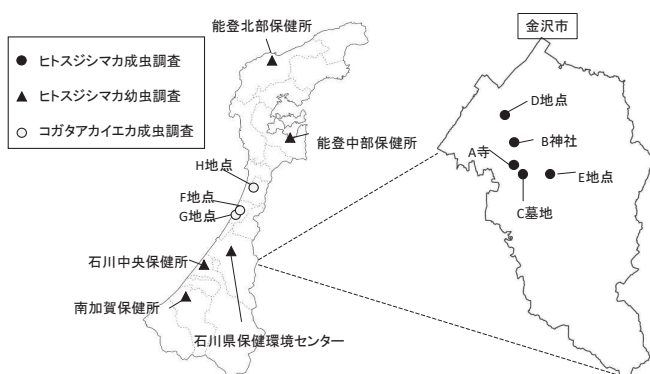


図1 調査地点

各地点の調査定数は, 調査地点の3地点については各2箇所(①, ②), 対照の2地点については各1箇所とし, 計5地点8箇所で開催した。

調査期間は, 2019年5月~11月とし, 月1~2回の頻度(5月, 10月, 11月:1回, 6月~9月:2回)とした。なお, 9月下旬と10月に連続してヒトスジシマカが捕集されなかった地点では, 11月の調査は実施しなかった。

(2) 蚊の捕集方法

各調査定点に, 電球を取り外したCDC ミニチュアライトトラップモデル512(John W.Hock Company)(以下「CDCトラップ」)を設置した。誘因源として, ドライアイス1kgを使用し, 15時~18時頃にCDCトラップを設置, 翌朝8時~11時頃にCDCトラップを回収して, 蚊を捕集した。また, CDCトラップ設置時並びに

回収時に各調査定点の気温を測定し記録した。なお, 調査期間中の降水量を把握するため, 金沢市における月間降水量の観測データを, 気象庁のホームページ²⁾より入手した。

捕集した蚊は-20℃で数十分~数時間静置した後, 実顕微鏡下で形態学的な特徴により種類および雌雄を同定し, 個体数を記録した。

(3) ヒトスジシマカからのウイルス検出方法

捕集したヒトスジシマカのうち, 雌のみを対象として, 調査日ごと, 調査定点ごとに最大30頭を1プールとし, 蚊の破碎処理を行った。1プール分のヒトスジシマカをセラミックビーズ入りの2mLチューブに入れ, 破碎液(イーグル最小必須培地(EMEM)500mLに250μg/mLアムホテリシンBを1mL添加)を1.3mL加え, 破碎機(Minilys, エムエス機器)にて4000rpmで15秒間破碎し, 13000rpmで5分間遠心して得られた上清を0.45μm Millexフィルター(merck)にてろ過したものを検査材料とした。検査材料140μLをQIAamp®Viral RNA Mini Kit(QIAGEN)を使用しRNA抽出を行った後, 国立感染症研究所の検査マニュアル等³⁾⁻⁵⁾に準じて, リアルタイムPCRによりデングウイルス, チクングニアウイルスおよびジカウイルスの遺伝子検出を実施した。

2.2 ヒトスジシマカの調査(幼虫調査)

(1) 調査地点および調査期間

調査地点は, 本県の各保健所(能登北部保健所, 能登中部保健所, 石川中央保健所, 南加賀保健所)4地点と当センター1地点とした(表2)(図1)。各地点の調査定数は各1箇所とし, 計5地点5箇所で開催した。

表2 調査地点(ヒトスジシマカ幼虫調査)

	能登北部保健所	能登中部保健所	石川県保健環境センター	石川中央保健所	南加賀保健所
調査定点数	1	1	1	1	1
地点の特徴	市街地	市街地	郊外	市街地	市街地
地域	輪島市	七尾市	金沢市	白山市	小松市

調査期間は, 2019年5月~11月とし, 月1回の頻度とした。

(2) 蚊の捕集方法

各保健所職員の協力のもと, 各調査定点に蚊の産卵場所となるようなオビトラップを設置した。オビトラップは, 人工容器(口径約20cm, 深さ約25cm, 黒色)に水道水と落ち葉を加え, 容器内部の側面周囲に画用紙を這わせたものを使用した。設置から約3週間後にオビトラップを回収し, 画用紙に付着した卵と容器内で発生した蚊の幼虫を捕集した後, 当センターで成虫まで飼育し, 2.1(2)と同様の方法で種類を同定した。

2・3 コガタアカイエカの調査（成虫調査）

(1) 調査地点および調査期間

調査地点は、豚舎と水田が付近にある、かほく市内の2地点（F地点、G地点）、宝達志水町内の1地点（H地点）とした（表3）（図1）。各地点の調査定点は各1箇所とし、計3地点3箇所ですべて調査を実施した。

表3 調査地点（コガタアカイエカ成虫調査）

	F地点	G地点	H地点
調査定点数	1	1	1
地点の特徴	水田付近 豚舎付近	水田付近 豚舎付近	水田付近 豚舎付近

調査期間は、2019年7月～9月とし、月1～2回の頻度（計5回）とした。なお、2021年度はコガタアカイエカの生存個体の捕集を目的に、追加調査としてF地点のみで2021年8月～9月に計3回実施した。

(2) 蚊の捕集方法

各調査定点にCDCトラップを設置し、2019年度は、2・1（2）と同様の方法で捕集した。2021年度は、CDCトラップの回収時刻を設置当日の20時頃に一部変更して捕集した。

(3) コガタアカイエカからのウイルス検出方法

捕集したコガタアカイエカのうち、雌のみを対象として、調査日ごと、調査地点ごとに最大30頭を1プールとし、蚊の破碎処理を行った。破碎処理、RNA抽出を2・1（3）と同様の方法で実施後、国立感染症研究所の検査マニュアル⁶⁾に準じてリアルタイムPCRにより日本脳炎ウイルスの遺伝子検出を実施した。

3 結果

3・1 ヒトスジシマカの調査（成虫調査）

(1) 捕集状況

各地点で捕集した蚊の種類と捕集数を表4に示した。全捕集数は計760頭で、内訳はヒトスジシマカ557頭（73.3%）、次いでアカイエカ群が152頭（20.0%）、コガタアカイエカが40頭（5.3%）、その他の種類の蚊が11頭（1.4%）であった。各地点でのヒトスジシマカの捕集状況は、A寺①が93頭（90.3%）、A寺②が109頭（90.8%）、B神社①が66頭（79.5%）、B神社②が277頭（95.2%）と捕集数が多く、捕集割合も高かったのに対し、C墓地、D地点、E地点ではヒトスジシマカの捕集数が少なく、捕集割合も低かった。また、C墓地、D地点、E地点においては、アカイエカ群の捕集数が最も多かった。

各地点で捕集した蚊の月別捕集状況と気温、降水量について、それぞれ図2に示した。なお、気温は、CDCトラップ設置時と回収時でほぼ同一であったため設置時の気温を示した。月別捕集状況は、ヒトスジシマカはA寺、B神社の6月～10月、C墓地の7月～9月、D地点の8月～9月に捕集され、A寺では7月、9月に特に捕集数が多く、B神社では7月～9月に特に捕集数が多かった。気温は、各地点とも5月～10月にかけて20℃～30℃前後で推移しており、7月下旬～8月上旬では30℃以上であった。また、調査期間中の金沢市における月間降水量は、6月、8月、10月に比較的多かった。

(2) ウイルス遺伝子検査結果

各地点で捕集したヒトスジシマカ計557頭のうち、雌485頭から42プール作成し、デングウイルス、チクング

表4 捕集蚊の種類と捕集数（ヒトスジシマカ成虫調査）

種類	調査地点								計
	A寺		B神社		C墓地		D地点	E地点	
	①	②	①	②	①	②			
ヒトスジシマカ	93 (90.3%)	109 (90.8%)	66 (79.5%)	277 (95.2%)	6 (21.4%)	4 (25.0%)	2 (2.6%)	0	557 (73.3%)
アカイエカ群	6 (5.8%)	9 (7.5%)	13 (15.7%)	9 (3.1%)	11 (39.3%)	5 (31.2%)	68 (89.5%)	31 (72.1%)	152 (20.0%)
コガタアカイエカ	4 (3.9%)	1 (0.8%)	2 (2.4%)	3 (1.0%)	9 (32.1%)	3 (18.8%)	6 (7.9%)	12 (27.9%)	40 (5.3%)
オオクロヤブカ	0	0	1 (1.2%)	0	1 (3.6%)	1 (6.3%)	0	0	3 (0.4%)
カラツイエカ	0	0	0	0	1 (3.6%)	1 (6.3%)	0	0	2 (0.3%)
キンパラナガハシカ	0	0	0	0	0	1 (6.3%)	0	0	1 (0.1%)
コガタクロウスカ	0	0	0	0	0	1 (6.3%)	0	0	1 (0.1%)
シナハマダラカ	0	1 (0.8%)	0	1 (0.3%)	0	0	0	0	2 (0.3%)
ヤマトヤブカ	0	0	1 (1.2%)	1 (0.3%)	0	0	0	0	2 (0.3%)
計	103	120	83	291	28	16	76	43	760

ニアウイルスおよびジカウイルスのリアルタイムPCRによる遺伝子検出を実施した。その結果、いずれのウイルス遺伝子も検出されなかった (表5)。

3・2 ヒトスジシマカの調査 (幼虫調査)

(1) 捕集状況

各地点で捕集した蚊の種類を月別に表6に示した。6月～9月に全ての地点でヒトスジシマカが捕集された。また、各月における蚊の捕集状況は、5月はヤマトヤブカのみが捕集されたのに対し、6月～9月ではヤマトヤブカおよびヒトスジシマカが捕集された。

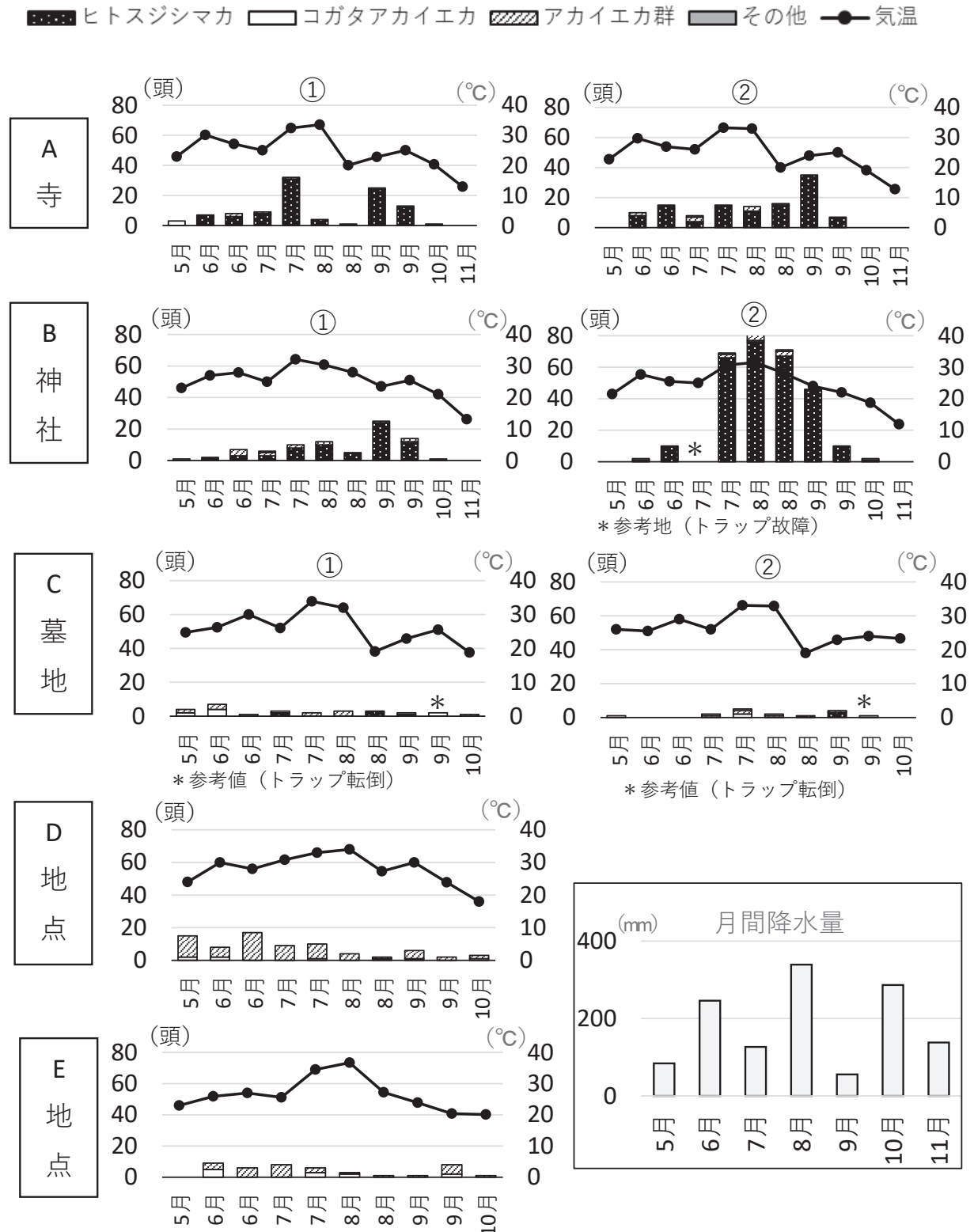


図2 月別捕集状況と気温、降水量 (ヒトスジシマカ成虫調査)

表5 ヒトスジシマカ捕集数およびウイルス遺伝子検出状況（ヒトスジシマカ成虫調査）

	調査地点								合計
	A 寺		B 神社		C 墓地		D 地点	E 地点	
	①	②	①	②	①	②			
ヒトスジシマカ捕集数	93	109	66	277	6	4	2	0	557
ヒトスジシマカ（雌）	93	102	53	225	6	4	2	0	485
プール数	9	8	6	12	3	2	2	0	42
デングウイルス遺伝子検出	(-)	(-)	(-)	(-)	(-)	(-)	(-)	-*	(-)
チクングニアウイルス遺伝子検出	(-)	(-)	(-)	(-)	(-)	(-)	(-)	-*	(-)
ジカウイルス遺伝子検出	(-)	(-)	(-)	(-)	(-)	(-)	(-)	-*	(-)

(-)：陰性

※-：ヒトスジシマカが捕集されなかったため未実施

表6 月別の捕集蚊の種類（ヒトスジシマカ幼虫調査）

調査地点	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月
能登北部保健所	ヤマトヤブカ	ヤマトヤブカ	ヒトスジシマカ	ヤマトヤブカ ヒトスジシマカ	ヤマトヤブカ	-	-
能登中部保健所	ヤマトヤブカ	ヤマトヤブカ	ヤマトヤブカ	ヤマトヤブカ ヒトスジシマカ	-	-	-
石川県保健環境センター	ヤマトヤブカ	ヤマトヤブカ	ヤマトヤブカ	ヤマトヤブカ ヒトスジシマカ	ヤマトヤブカ	-	-
石川中央保健所	-	ヒトスジシマカ	ヒトスジシマカ	-**2	ヒトスジシマカ	-	-
南加賀保健所	-	分類不可*1	ヒトスジシマカ	ヒトスジシマカ	-	-	-

-：捕集なし

※1：幼虫育成失敗のため分類不可

※2：大雨の影響のため捕集なし

3・3 コガタアカイエカの調査（成虫調査）

(1) 捕集状況

2019年度に各地点で捕集した蚊の種類と捕集数を表7に示した。全捕集数は計3341頭で、内訳はコガタアカイエカ3325頭（99.5%）と大部分を占め、その他の種類の蚊が16頭（0.5%）であった。各地点でのコガタアカイエカの捕集状況は、F地点が1391頭（99.3%）、G地点が711頭（99.9%）、H地点が1223頭（99.6%）といずれの地点でも捕集数が多く、捕集割合も高かった。また、各地点における蚊の月別捕集状況を図3に示した。

表7 捕集蚊の種類と捕集数
（コガタアカイエカ成虫調査,2019年）

種類	調査地点			計
	F 地点	G 地点	H 地点	
コガタアカイエカ	1391 (99.3%)	711 (99.9%)	1223 (99.6%)	3325 (99.5%)
アカイエカ群	8 (0.6%)	1 (0.1%)	3 (0.2%)	12 (0.4%)
ヒトスジシマカ	1 (0.1%)	0	0	1 (0.0%)
オオクロヤブカ	1 (0.1%)	0	0	1 (0.0%)
カラツイエカ	0	0	1 (0.1%)	1 (0.0%)
ハマダライエカ	0	0	1 (0.1%)	1 (0.0%)
計	1401	712	1228	3341

■ ヒトスジシマカ □ コガタアカイエカ ▨ アカイエカ群 ■ その他

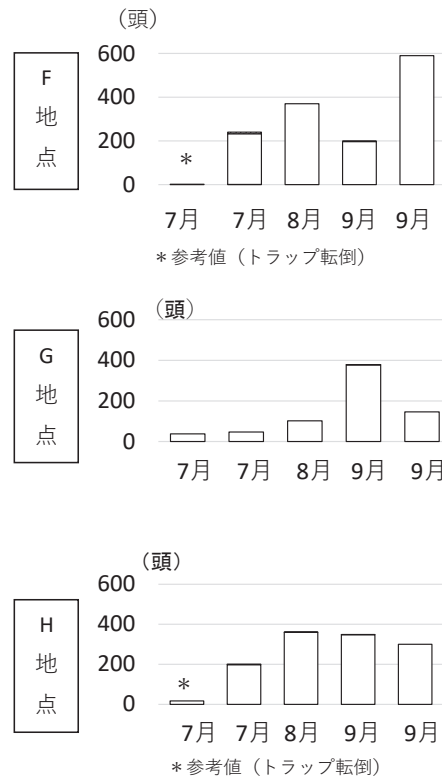


図3 月別捕集状況（コガタアカイエカ成虫調査，2019年）

コガタアカイエカがいずれの地点でも7月～9月に捕集され、特に8月～9月に捕集数が多かった。

2021年度のF地点における蚊の全捕集数は計126頭で、全てコガタアカイエカであった。

(2) ウイルス遺伝子検査結果

2019年度に各地点で捕集したコガタアカイエカは全て雌であり、計3325頭から117プール作成し、日本脳炎ウイルスのリアルタイムPCRによる遺伝子検出を実施した。その結果、ウイルス遺伝子は検出されなかった(表8)。

表8 コガタアカイエカ捕集数およびウイルス遺伝子検出状況
(コガタアカイエカ成虫調査, 2019年)

	調査地点			合計
	F地点	G地点	H地点	
コガタアカイエカ捕集数	1391	711	1223	3325
コガタアカイエカ(雌)	1391	711	1223	3325
プール数	49	26	42	117
日本脳炎ウイルス遺伝子検出	(-)	(-)	(-)	(-)

(-) : 陰性

2021年度にF地点で捕集したコガタアカイエカは全て雌で、計126頭から6プール作成し、日本脳炎ウイルスのリアルタイムPCRによる遺伝子検出を実施した。その結果、ウイルス遺伝子は検出されなかった。

4 考 察

(1) ヒトスジシマカの調査

成虫調査では、調査地点のうちA寺、B神社で特にヒトスジシマカが多く捕集された。この2地点は、ヒトスジシマカの成虫の潜伏場所に適している下草や茂みも多くあり、発生源となりうる樹洞、石の窪み、側溝等が近くにあったことから、捕集数が多かったと思われる。B神社については、CDCトラップを設置した調査定点①、②で捕集数に差がみられ、定点②で捕集数が多かった。一般的にヒトスジシマカの活動範囲は、およそ50m～100mと狭いとされており⁷⁾、定点②は発生源となり得る樹洞等が特に多く、人通りがある通路に近い場所であることから、発生数が多かったと考えられる。

A寺、B神社のヒトスジシマカの発生状況は、いずれも6月～10月に確認されたが、捕集数のピークは、A寺では7月下旬、9月上旬の2峰性に対して、B神社では7月～9月にかけての単峰性であった。このピーク形状の違いは、単年度の結果であり明確ではないが、A寺では8月中旬頃に薬剤を散布した影響もあったのではないかと考えられた。ヒトスジシマカは、一般的に梅雨で雨水が溜まり幼虫の繁殖場所となる小さい水域が増えると増加し⁸⁾、気温が高いほど幼虫の活動は活発化し早く発育する⁹⁾といわれており、今回の調査でも梅雨以降で

気温が高い7月～9月にかけて捕集数が増加していた。また、調査地点のうち、C墓地はヒトスジシマカの捕集数が少なかったが、CDCトラップの設置場所が事前調査で予定していた場所から変更となり、人通りの少ない地点での実施となったことが一因と思われる。

以上のように、調査地点、調査定点によりヒトスジシマカの捕集数、捕集割合に大きな差がみられたことから、季節消長の把握には適切な調査地点の選定が重要である。

今回の調査では、デングウイルス、チクングニアウイルスおよびジカウイルスの遺伝子は全て検出されなかった。しかし、主な媒介蚊であるヒトスジシマカは本県に広範囲に生息しており、今後海外旅行需要が回復した際、特に観光地等では海外旅行者等からの持ち込みによる蚊媒介感染症の感染拡大が危惧される。また、ヒトスジシマカの季節消長は、年により1か月ほどピークの時期に違いがみられるとの報告もあること⁷⁾、蚊媒介感染症発生時の蚊の防除方法については、蚊の増加期では成虫および幼虫の両方の対策の実施に対し、減少期には成虫対策の重点的な実施が推奨されることから¹⁰⁾、継続的なサーベイランスを行って平時の発生状況を把握しておくことが重要である。

今回の調査の成果として、高リスク地点(ヒトスジシマカの生育好適地かつ観光地であってウイルスの流入・暴露機会が想定される地点)を選定し、単年度ではあるが季節消長の把握とともに、蚊の捕集・同定技術、ウイルス検索技術を習得できた。今後も関係機関と連携しながら高リスク地点において媒介蚊のモニタリング調査を継続し、平時における基礎的なデータを蓄積していくことで、本県の蚊媒介感染症対策の一助となり、県内での感染事例発生時に円滑な対応が可能となると考えられる。

(2) コガタアカイエカの調査

2019年度の成虫調査では、F、G、H地点の全ての地点でコガタアカイエカが高い割合で捕集された。いずれの地点もコガタアカイエカの発生源となる水田と、吸血源となる豚舎が付近にあり、生育好適地であったと思われる。月別捕集状況は、3地点とも8月～9月に捕集数が最も多く、既報と同様の傾向であった¹¹⁾。一方、捕集したコガタアカイエカから日本脳炎ウイルス遺伝子は検出されなかった。

媒介蚊からの日本脳炎ウイルス検出については、高温多湿条件下で蚊の死亡個体が置かれた場合、真菌の発生等により蚊が保有する日本脳炎ウイルスの遺伝子検出に影響を及ぼす可能性があるとの報告もある¹²⁾。2019年度は、設置翌日のCDCトラップの回収時点で、死亡個体数が多かった。そこで、2021年度の追加調査では、2019年度に最も多くコガタアカイエカが捕集されたF地点において、CDCトラップの回収時刻を当日20時頃

に一部変更した。その結果、コガタアカイエカの生存個体を効率的に捕集できた。しかし、日本脳炎ウイルス遺伝子は検出されなかった。

F地点の捕集数は、2019年度の計1391頭（197頭～590頭/回）に対し、2021年度は計126頭（6～94頭/回）と少なかった。コガタアカイエカは日没後に活動が活発になるとされており、CDCトラップの回収時刻が早かったためと考えられる。生存個体の捕集数を増やすため、回収時刻の深夜帯への変更、またはCDCトラップの複数台の設置、蚊帳トラップ等の大型トラップの設置等の改善が必要と考えられる。

今回の調査では日本脳炎ウイルスは検出されなかった。しかし、厚生労働省の委託事業として本県が実施している日本脳炎の感染源調査では、ブタへの日本脳炎ウイルス感染が認められており、また、2021年度には本県で日本脳炎患者1名の報告があったことから、本県にも日本脳炎ウイルスは侵淫していると思われる。媒介蚊であるコガタアカイエカの発生数は日本脳炎の重要な要因であり、日本脳炎患者発生数に影響していると考えられるとの報告もあることから¹³⁾、本県におけるコガタアカイエカの発生状況に今後も注視が必要と思われる。

5 まとめ

- (1) ヒトスジシマカの調査で、調査地点や調査定点により捕集数・捕集割合に差がみられたことから、季節消長の把握には適切な調査地点の選定が重要であった。
- (2) ヒトスジシマカの季節消長として、6月～10月に発生が確認され、7月～9月にかけて捕集数がピークとなった。
- (3) ヒトスジシマカは県内の各地域に広範囲に生息しており、今後海外からのウイルスの持ち込み等により蚊媒介感染症の感染拡大が危惧されることから、平時からモニタリング調査を継続していくことが必要である。
- (4) コガタアカイエカは8月～9月に多く捕集されたが、日本脳炎ウイルスは検出されなかった。しかし、日本脳炎ウイルスは県内にも侵淫していると考えられることから、引き続きコガタアカイエカの発生状況に注視が必要である。

本調査の実施にあたって、ご助言、ご指導賜りました、金沢大学の岡澤孝雄名誉教授、都野展子准教授、金沢医科大学の村上学准教授、また、ご協力いただいた県保健所並びに各調査地点の施設等の関係各位に感謝いたします。

文 献

- 1) 国立感染症研究所：日本脳炎2007～2016年，病原微生物検出情報月報，**38** (8)，151-152 (2017)
- 2) 国土交通省気象庁，各種データ・資料，https://www.data.jma.go.jp/obd/stats/etrn/view/monthly_sl.php?prec_no=56&block_no=47605&year=2019&month=&day=&view=，(2021年9月22日)
- 3) 内田悠太，森功次，吉田勲，原田幸子，鈴木愛，糟谷文，小杉知宏，千葉隆司，貞升健志：感染症媒介蚊サーベイランスにおけるウイルス検査法の検討，東京都健康安全研究センター年報，**71**，55-59 (2020)
- 4) 国立感染症研究所，チクングニアウイルス検査マニュアルVer.1.1，<https://www.niid.go.jp/niid/images/lab-manual/CHIKV.v1.1.pdf>，(2022年7月15日)
- 5) 国立感染症研究所，ジカウイルス感染症実験室診断マニュアル，https://www.niid.go.jp/niid/images/lab-manual/zika_ver1_20160311.pdf，(2022年7月15日)
- 6) 国立感染症研究所，日本脳炎，https://www.niid.go.jp/niid/images/lab-manual/JP_Encephalitis.pdf，(2022年7月15日)
- 7) 国立感染症研究所，感染症媒介蚊対策に関する実技検討会資料，<https://www.niid.go.jp/niid/images/ent/PDF/dengue2014.pdf>，(2021年9月22日)
- 8) 津田良夫，内田桂吉，都野展子，岡澤孝雄，今西望，一盛和世，江下優樹，大場靖子，白井良和，渡辺護，比嘉由紀子：蚊のはなし-病気との関わり-，上村清(編)，46-46，株式会社朝倉書店 (2017)
- 9) 津田良夫：蚊の観察と生態調査，47-47，株式会社北隆館 (2013)
- 10) 津田良夫，澤邊京子：平常時およびデング熱流行時における蚊の対策，病原微生物検出情報IASR，**36** (3)，42-44 (2015)
- 11) MURAKAMI Manabu, HORI Kiyoe, KITAGAWA Yoko, OIKAWA Yosaburo, KAMIMURA Kiyoshi, TAKEGAMI Tsutomu: An Ecological Survey of Mosquitoes and the Distribution of Japanese Encephalitis Virus in Ishikawa Prefecture, Japan, between 2010 and 2014, *Jpn J Infect Dis*, **70** (4), 362-367 (2017)
- 12) JOHANSEN A. Cheryl, HALL A Roy, VAN DEN HURK F Andrew, RITCHIE A Scott, MACKENZIE S John: Detection and stability of Japanese Encephalitis virus RNA and virus viability in dead infected mosquitoes under different storage conditions, *Am J Trop Med Hyg*, **67** (6), 656-661 (2002)
- 13) 環境省，媒介生物による温暖化評価，https://www.env.go.jp/earth/kenkyuhi/report/pdf/12_1_2_3.pdf，(2022年7月15日)

〔報 文〕

石川県海域の海水及び魚類中における東京電力福島第一原子力発電所事故由来のセシウム-137

石川県保健環境センター 環境科学部 小林 浩美・河野 隆史・鳥屋子やまと
吉本 高志・岡田 真規子・内田 賢吾

〔和文要旨〕

東京電力福島第一原子力発電所事故の石川県海域への影響を把握するため、県海域の海水及び魚類中のCs-137濃度をとりまとめ、考察を行った。

海水及び魚類中のCs-137濃度は、調査開始から2010年までは減少傾向にあったが、2011年以降は、海水中の濃度は増加又は横ばいになり、一部の魚類中では濃度が増加した。

過去の大気圏内核実験等由来のCs-137以外のCs-137の濃度変化を見るため、2010年までの期間から算出したCs-137の見かけ上の半減期で濃度補正を行い、海水及び全ての魚類中に、東京電力福島第一原子力発電所事故由来のCs-137を確認した。その濃度は、沿岸海水中は0.438mBq/L、沖合海水中は0.922mBq/L、魚類中は0.018～0.042Bq/kg生の範囲であり、現在の濃度の2～5割程度を占めていると考えられた。

キーワード：Cs-137, 石川県海域（日本海）、海水、海水魚、東京電力福島第一原子力発電所事故

1 はじめに

本県では、1990年から志賀原子力発電所周辺環境放射線監視事業において、志賀町の沿岸海水及び沿岸海域で採取された魚類中の放射性物質濃度の調査（以下、「監視調査」という。）を行っている。また、1993年から環境放射能水準調査において、県内沿岸海域で採取された魚類中の放射性物質濃度調査（以下、「水準調査」という。）を行っている。

2011年3月、東京電力株式会社の福島第一原子力発電所で、多量の放射性物質が環境中に漏洩する事故（以下、「福島原発事故」という。）が発生した。大気中に放射性希ガスや放射性セシウム等の放射性物質が放出され、空間放射線量率が増加し¹⁾住民の避難が実施された。ま

た、海洋には放射性物質を含んだ汚染水が流出し、その後数年にわたって、福島県を中心に放射性セシウム濃度の高い魚が多数確認された²⁾。

本県では、2011年度に県内における福島原発事故の影響調査を行い、2011年3月～9月の期間に事故由来と推定される放射性セシウムやヨウ素-131等の人工放射性核種の飛来が確認されているが、魚類中への影響はなかった³⁾と報告している。一方で、日本海海域への影響については、2011年に日本海でセシウム-134が検出されたこと⁴⁾から放射性セシウムを含んだ降下物が日本海の海面に沈着したこと⁵⁾や、太平洋へ流出した放射性物質が海流にのって、数年後に日本海に到達したこと⁶⁾が報告されている。

本報では、本県海域の海水及び魚類中の福島原発事故

Cesium-137 Derived from Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant Accident in Seawater and Marine Fishes at the Ishikawa Sea Area.

by KOBAYASHI Hiromi, KAWANO Takafumi, TOYANAGO Yamato, YOSHIMOTO Takashi, OKADA Makiko and UCHIDA Kengo (Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Cesium-137, Ishikawa Sea Area (the Sea of Japan), Seawater, Marine Fish, Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant Accident

に由来する放射性物質について考察を行った。セシウム-134 (半減期2.07年⁷⁾) やヨウ素-131 (半減期8.02日⁷⁾) といった半減期が短い放射性物質は、福島原発事故の影響を確実に示すものではあるが、事故から時間が経過した現在では検出はできない。そのため、比較的長い半減期をもつセシウム-137 (半減期30.08年⁷⁾) (以下、「Cs-137」という。) の経年変化をとりまとめたので報告する。

2 調査対象と方法

2.1 沿岸海水及び魚類

とりまとめ対象としたのは、次のCs-137濃度のデータである。監視調査及び水準調査のそれぞれの概要は表1、採取地点は図1に示す。

(1) 監視調査 (1990～2021年)

ア 沿岸海水 志賀町沿岸約1kmの3地点の表層水
イ 魚類 5種(メバル, チダイ, ヒラメ, キス, カレイ類(マコガレイ及びマガレイ))

(2) 水準調査 (1993～2021年)

魚類 1種(フクラギ(ブリの幼魚))

各調査の試料の採取、前処理及び測定は放射能測定法シリーズ⁸⁾⁻¹⁰⁾に準じた。

試料の測定には、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、測定時間は80,000秒とした。得られた結果は、試料採取時点に半減期補正を行った。Cs-137の検出下限値は、海水は約1mBq/L、魚類は約0.025Bq/kg生程度であった。

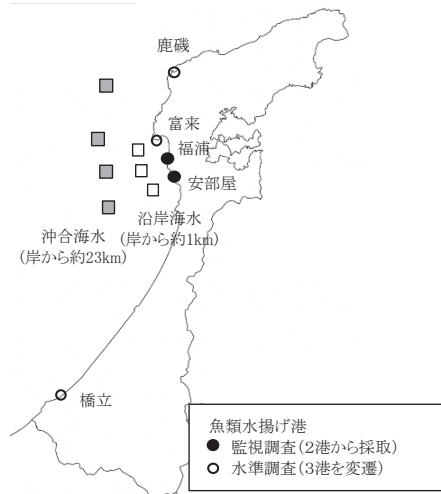


図1 試料採取地点

2.2 沖合海水

公益財団法人海洋生物環境研究所が、国の委託を請けて調査(以下、「海生研調査」という。)している、志賀町沖約23kmの4地点の表層水のCs-137濃度のデータ(1991～2020年)¹¹⁾(以下、「沖合海水」という。)を沖合海水のデータとして用いた。

3 結果と考察

3.1 Cs-137濃度の経年変化

(1) 沿岸海水及び沖合海水

監視調査における沿岸海水及び海生研調査における沖合海水中のCs-137濃度の経年変化を図2に示す。

海水中のCs-137濃度は、調査開始当初は過去の大気圏内核実験やチェルノブイリ原子力発電所事故等の影響で3.5mBq/Lを超過していたが、その後濃度は減少し、2010年頃には1.5～2.0mBq/L程度の値となった。しかしながら、2011年以降は増加又は横ばい傾向に転じ、福島原発事故の影響と推定された。

(2) 魚類

監視調査及び水準調査における県海域6魚種の魚類中のCs-137濃度の経年変化を図3に示す。

魚類中のCs-137濃度は、調査開始当初には高いもので0.3Bq/kg生前後の検体もあったが、その後濃度は減少し、2011年以降には若干の増加が見られた。

魚種毎のCs-137濃度の経年変化を図4に示す。それぞれの魚種毎に緩やかな減少傾向が見られた。チダイ及びフクラギは、2011年以降に明らかな濃度の増加が見られたが、メバル、ヒラメ、キス及びカレイ類には、はっ

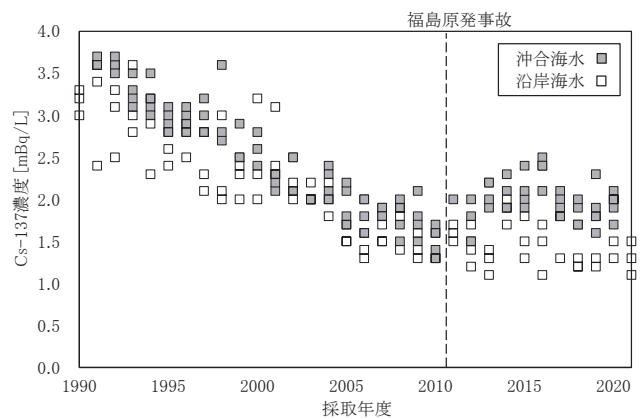


図2 海水中のCs-137濃度の経年変化(1990-2021)

表1 石川県の海水及び魚類中の放射性物質濃度調査

調査名	調査開始	海水採取	魚類水揚げ港	調査魚類
監視調査	1990年	志賀町沿岸(約1km) 3ヶ所	志賀町安部屋, 志賀町福浦 (2港それぞれから採取)	メバル, チダイ, ヒラメ, キス, カレイ類(マコガレイ及びマガレイ)
水準調査	1993年	-	志賀町富来 → 輪島市鹿磯 → 加賀市橋立 ※3港を変遷	フクラギ

きりとした濃度増加は見られなかった。

魚類中の放射性セシウム濃度は、餌の消化吸収及び環境水の飲水や浸透圧調整等の 2 経路¹²⁾から取り込まれた量と代謝により排出する量の均衡で決定される¹³⁾。そのため、図 2 で示したように県海域の海水中の Cs-137 濃度の減少に伴って、魚類中の Cs-137 濃度も減少したものと考えられる。

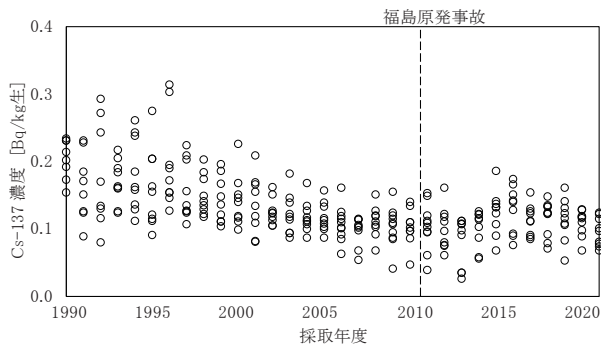


図 3 魚類中の Cs-137 濃度の経年変化 (1990-2021)

3・2 福島原発事故前の Cs-137 濃度

(1) 経年変化に対する近似式の検討

2010 年までの福島原発事故の影響がない期間の Cs-137 濃度の減少傾向について、沿岸海水、沖合海水及び魚種毎に、指数近似曲線と近似式を図 5 及び図 6 に示し

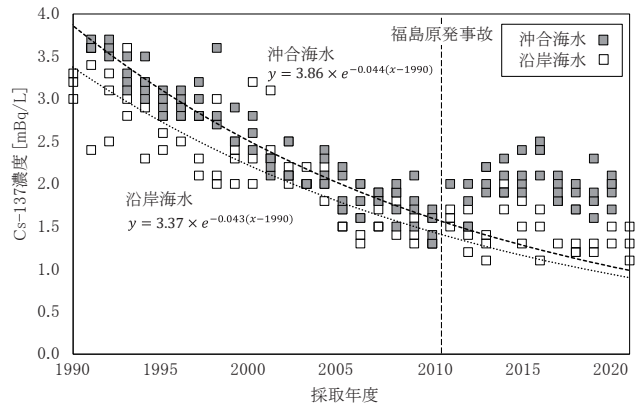


図 5 海水中の Cs-137 濃度の指数近似曲線及び近似式 (~2010 年の作成)

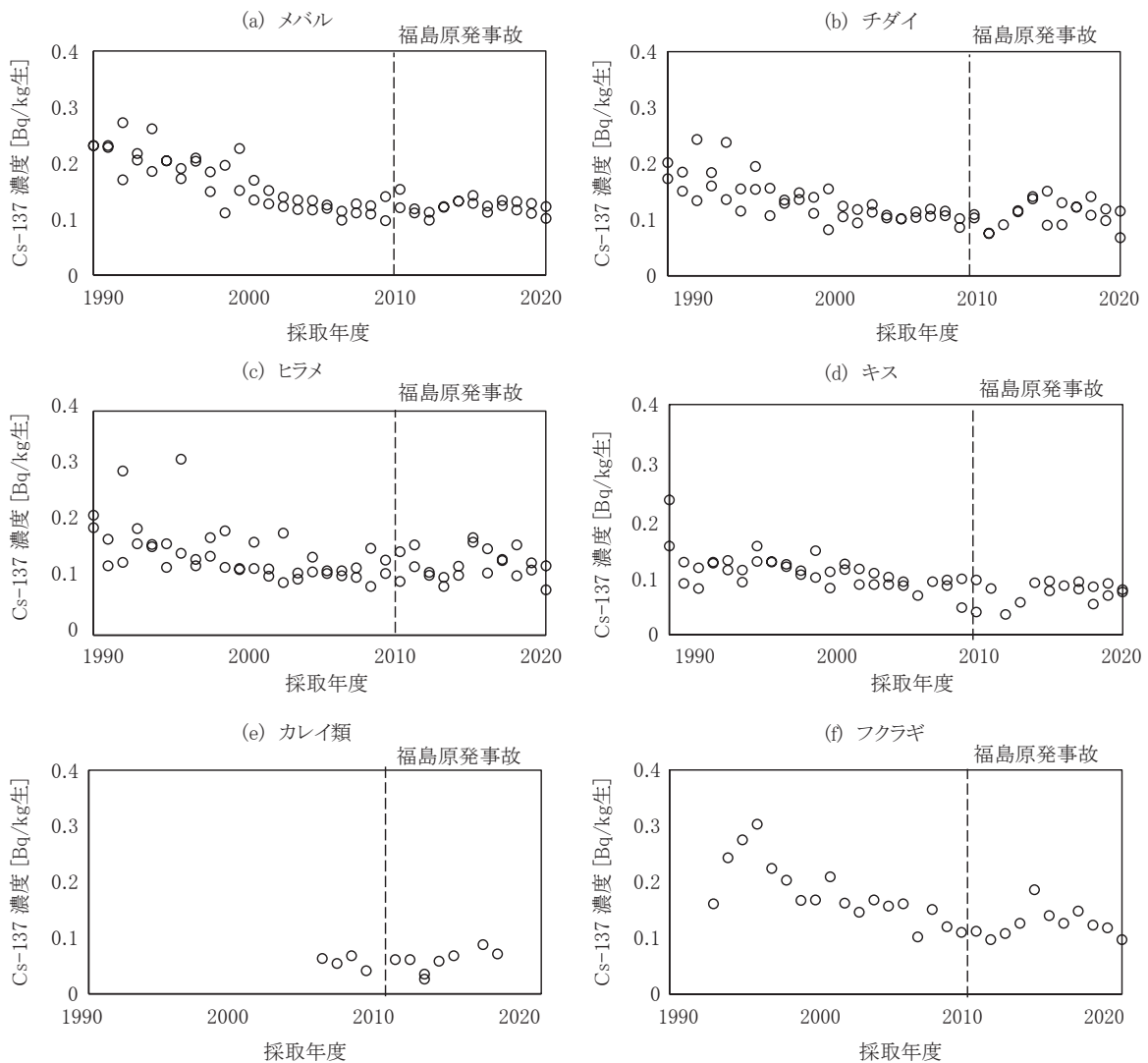


図 4 魚種毎の Cs-137 濃度の経年変化 (1990-2021)

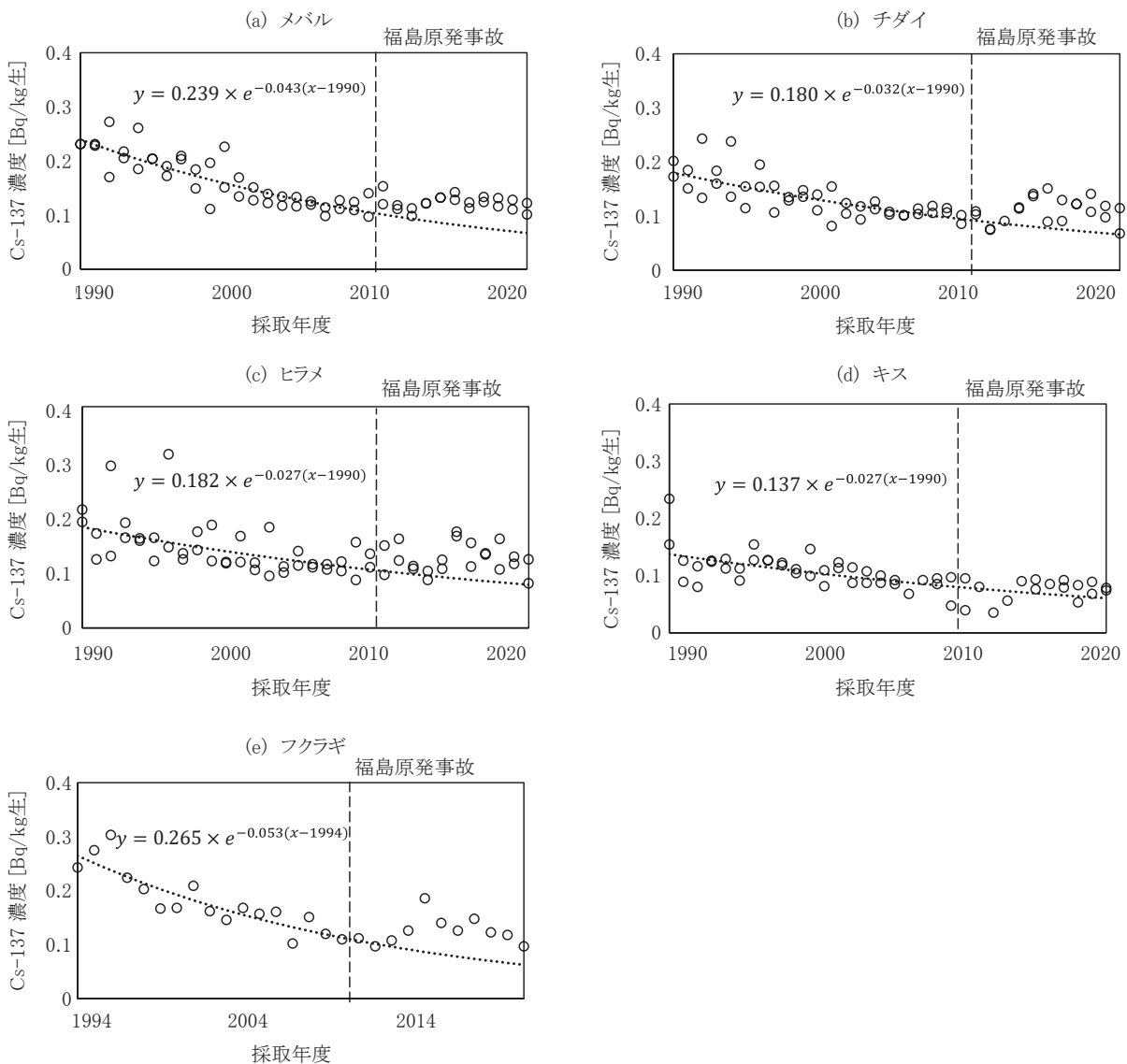


図6 魚類中のCs-137濃度の指数近似曲線及び近似式（～2010年の作成）

た。なお、カレイ類については、データ数が少ないため指数近似曲線等の作成はしていない。

近似式は、調査を開始した1990年を基準とした。ただし、フクラギについては、調査開始の1993年の値が直近の値と比較して低かったため、1993年の値を除き1994年を基準として近似式を作成した。

(2) 見かけ上の半減期

放射能の壊変式は

$$A_t = Ae^{-\lambda t} \quad (1)$$

$$\lambda = \frac{\ln 2}{T} \quad (2)$$

と表される。近似式から見かけ上の壊変定数λが求められる。λと(2)式より各試料の見かけ上の半減期Tが求められる、その値を表2に示す。

沿岸海水の見かけ上の半減期は16.12年、沖合海水では15.75年であり、Cs-137の物理的半減期30.08年より

短くなった。これは、Cs-137の壊変による減衰に加え、海洋での拡散や沈降等が寄与したため物理的半減期より短くなったものと考えられた。

魚類中の見かけ上の半減期は、メバル16.91年、チダイ21.66年、ヒラメ25.67年、キス25.67年、フクラギ13.08年となった。魚類中の見かけ上の半減期も物理的半減期30.08年より短くなったが、生息環境である海水

表2 各試料におけるCs-137の見かけ上の半減期(～2010年)

試料名	Cs-137 見かけ上の半減期 [年]
沿岸海水	16.12
沖合海水	15.75
メバル	16.91
チダイ	21.66
ヒラメ	25.67
キス	25.67
フクラギ	13.08

中の濃度が拡散等によって減少し、餌中の濃度や飲水による取り込み量が減少したことなどから、物理的半減期とは一致しないものと考えられた。

3・3 福島原発事故由来のCs-137

(1) 事故由来濃度算出の検討

海域への福島原発事故の影響の有無については、短半減期核種であるCs-134等の検出があれば判断が容易である。しかし、本県の監視調査及び水準調査ではCs-134等は検出されていないため、これらを用いた影響の有無の検討は行うことができない。そこで、海水と魚類中のCs-137濃度を用いて、福島原発事故の影響について検討を行うこととした。

3.2(2)で求めた過去の大気圏内核実験等に由来するCs-137の見かけ上の壊変定数 λ を用いて、2021年を基準年とし、これまでのCs-137の分析値の濃度の補正を行った。

この手法で作成した補正濃度の経年値に変化がなければ、見かけ上の半減期に沿った減少傾向にあることを示し、値の増加が見られれば過去の大気圏内核実験等に由来しない新たなCs-137の付与があったことを示す。これにより、過去の大気圏内核実験等に由来するCs-137以外のCs-137の濃度変化に着目することができると考えた。

(2) 沿岸海水及び沖合海水

沿岸海水及び沖合海水中の濃度を、それぞれの見かけ上の半減期で補正した補正濃度のグラフを図7に示す。

調査開始から2012年頃までは、おおよそ0.6~1.3mBq/Lの値であったのに対し、2013年以降はそれを超える濃度の増加が見られた。福島原発事故以外には新たなCs-137が増加する事象は発生しておらず、この濃度の増加は福島原発事故由来のものと仮定した。

また、この福島原発事故由来のCs-137濃度の変化を見るため、図7で示した補正濃度のうち、2011年以降

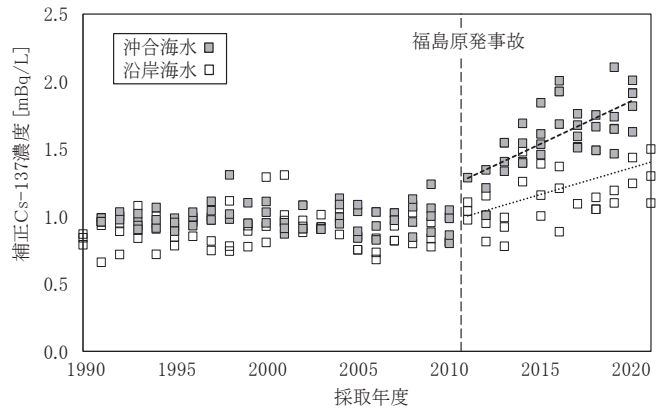


図7 海水中の補正したCs-137濃度 (1990-2021)

の濃度について、回帰直線を示す。沿岸海水及び沖合海水が共に正の回帰直線で近似され、海流に乗って日本海へ到達する福島原発事故に由来するCs-137濃度は、増加傾向にあることがわかる。

次に、事故の前後で変化したCs-137量を、福島原発事故前の5年間(2006~2010年)の平均した補正濃度と、直近(2020年又は2021年)の補正濃度との差から求め表3に示す。福島原発事故由来のCs-137濃度は、沿岸海水では0.438mBq/L、沖合海水では0.922mBq/Lとなり、直近の海水中の濃度に対する比は0.337と0.501となった。このことから、現在の海水中のCs-137濃度の3~5割程度を福島原発事故由来のCs-137が占めていることが推定された。

(3) 魚類

魚類毎の見かけ上の半減期で補正した補正濃度のグラフを図8に示す。

グラフから、2011年以降に全体的なCs-137濃度の増加が確認され、海水中と同様に魚類中にも福島原発事故に由来するCs-137が存在することを示すことができた。

また、魚種毎に福島原発事故由来のCs-137濃度の増加の程度が異なることがわかった。海水と同様に、その

表3 海水と魚類中における福島原発事故由来のCs-137量

試料名	海水 : [mBq/L], 魚類 : [Bq/kg 生]			
	福島原発事故前の5年間の補正した濃度の平均値 (2006年~2010年)	直近の補正した濃度 (2021年*)	福島原発事故由来のCs-137濃度	比
	a	b	b - a	(b - a) / b
沿岸海水	0.862	1.300	0.438	0.337
沖合海水	0.920	1.842	0.922	0.501
メバル	0.070	0.112	0.042	0.375
チダイ	0.067	0.092	0.025	0.272
ヒラメ	0.085	0.103	0.018	0.175
キス	0.053	0.076	0.023	0.303
フクラギ	0.071	0.097	0.026	0.268

※ 沖合海水 : 2020年

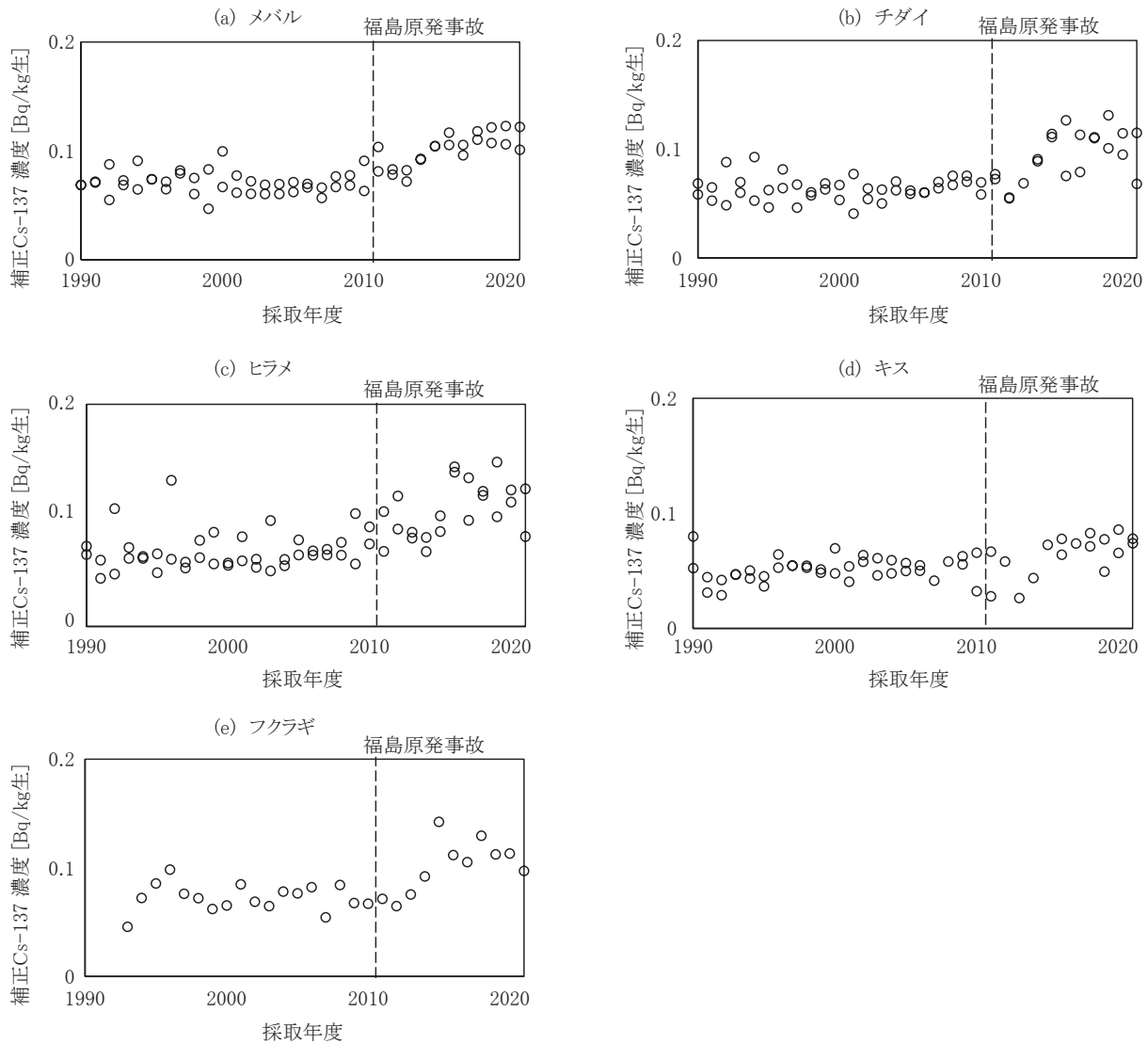


図8 魚類中の補正したCs-137濃度（1990-2021）

増加量を事故前の5年間（2006～2010年）と、直近（2021年）の補正濃度との差から求め、同じく表3に示す。魚種毎の福島原発事故由来のCs-137濃度は、0.018～0.042Bq/kg生の範囲であった。直近の魚類中濃度に対する比は0.175～0.375の範囲となり、現在の魚類中のCs-137濃度の2～4割程度を福島原発事故由来のCs-137が占めることがわかった。

4 まとめ

県海域における海水及び魚類中のCs-137濃度をとりまとめ、福島原発事故に由来する濃度について考察を行った。

- (1) 海水中のCs-137濃度は、調査開始以降、過去の大気圏内核実験等に由来するCs-137濃度の減衰により減少傾向にあった。2011年以降の濃度は増加又は横ばいであった。
- (2) 魚類中のCs-137濃度は、2010年までは海水中の

- Cs-137濃度の減少と同様に減少傾向にあった。2011年以降は、一部の魚類について濃度の増加が見られた。
- (3) 福島原発事故前の2010年までの期間のCs-137の減少傾向に対して指数近似曲線を作成し、沿岸海水、沖合海水及び魚種毎に、見かけ上の半減期を算出した。2021年を基準年として、見かけ上の半減期で分析値の濃度補正を行ったところ、海水及び全ての魚類中（カレイ類は除く）に、福島原発事故由来のCs-137を確認した。その濃度は、沿岸海水中は0.438mBq/L、沖合海水中は0.922mBq/L、魚類中は0.018～0.042Bq/kg生の範囲であった。また、現在の海水及び魚類中のCs-137濃度のうち、海水は3～5割程度、魚類は2～4割程度を福島原発事故由来のCs-137が占めていることが推定された。
 - (4) 福島原発事故由来のCs-137は現在も検出が続いており、今後も継続して変動を監視していくことが必要であると考えられる。

文 献

- 1) 環境省：放射線による健康影響等に関する統一的な基礎資料(令和3年度版)第7章 環境モニタリング(令和4年7月)
- 2) 水産庁：水産物の放射性物質の検査に係る報告書(平成23年3月～平成28年3月)(平成29年10月)
- 3) 浜道啓太, 小谷口久美子, 藤井明洋, 横山暢, 柿本均: 石川県における福島第一原子力発電所事故の影響, 石川県保健環境センター研究報告書, **49**, 27-32 (2012)
- 4) Inoue M, Kofuji H, Nagao S, Yamamoto M, Hamajima Y, Yoshida K, Fujimoto K, Takada T and Isoda Y: Lateral variation of ^{134}Cs and ^{137}Cs concentrations in surface seawater in and around the Japan Sea after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident, *Journal of Environmental Radioactivity*, **109**, 45-51 (2012)
- 5) 埴山秀樹, 安倍大介, 重信裕弥, 藤本賢, 小埜恒夫, 中田薫, 森田貴己, 渡邊朝生: 東京電力福島第一原子力発電所事故以降の日本周辺海域における海水の ^{134}Cs および ^{137}Cs 濃度, *海の研究*, **23** (4), 127-146 (2004)
- 6) M.Inoue, Y.Shirotani, S.Yamashita, H.Takata, H.Kofuji, D.Ambe, N.Honda, Y.Yagi, S.Nagao: Temporal and spatial variations of ^{134}Cs and ^{137}Cs levels in the Sea of Japan and Pacific coastal region: Implications for dispersion of FDNPP-derived radiocesium, *Journal of Environmental Radioactivity*, **182**, 142-150 (2018)
- 7) 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)
- 8) 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)
- 9) 原子力規制庁: ゲルマニウム半導体検出器を用いる機器分析のための試料の前処理法, 放射能測定法シリーズ13 (昭和57年7月)
- 10) 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4訂)
- 11) 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2022-04-01)
- 12) 渡辺社一・金子豊二: 水圏の放射能汚染 福島の水産業復興を目指して, 黒倉寿編, 54-80, 恒星社厚生閣 (2015)
- 13) Niizeki.K, Wada.T, Nanba.K, Sasaki.K, Teramoto.W, Izumi.S, Nomura.H and Inatomi.N: Estimating biological half-lives of ^{137}Cs in a cyprinid fish *Tribolodon hakonensis* by a one-compartment model considering growth dilution effect, *Fisheries Science*, **86**, 861-871 (2020)

〔短 報〕

固相抽出法による地下水中無機ひ素化合物の価数別分離測定

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

〔和文要旨〕

陰イオン交換樹脂カートリッジを用いた固相抽出法により地下水中のAs(Ⅲ)とAs(V)を分離測定する方法を検討した。その結果、固相抽出法によりAs(Ⅲ)とAs(V)を分離測定することが可能と考えられた。共存する他の陰イオンが一定の濃度を超えると、As(V)の固相抽出が阻害されることが明らかとなった。地下水中のAs(Ⅲ)及びAs(V)を分離測定した結果、本県の南部でAs(Ⅲ)の比率が高く、北部で一部を除きAs(V)の比率が高かった。地域によってAs(Ⅲ)とAs(V)の比率が異なること、また、同じ地域内においてAs(Ⅲ)とAs(V)の比率が大きく異なる場合があった。

キーワード：地下水、亜ひ酸、ひ酸、価数分離、陰イオン交換樹脂カートリッジ

本報の一部は以下で発表した。

第36回全国環境研協議会東海・近畿・北陸支部研究会 2022年1月（紙上開催）

1 はじめに

当センターでは、自然由来による地下水ひ素汚染のメカニズム（汚染機構）を把握するため、令和2年度から4か年計画で、調査研究「石川県内における地下水ひ素汚染の機構解明」を実施している。ひ素は環境中で無機ひ素化合物や有機ひ素化合物など様々な形態で存在しており、地下水中におけるそれら形態の存在比率は、汚染機構の解明のための重要な情報となる。通常の水ではひ素は無機ひ素化合物として存在しており¹⁾、その形態については、3価の亜ひ酸（以下、「As(Ⅲ)」という。）及び5価のひ酸（以下、「As(V)」という。）がある。汚染機構の解明には無機ひ素化合物の形態別存在比率の把握が必要と考えられるが、当センターではひ素化合物の形態別測定法として有効なHPLC-ICP-MSを保有していない。

そこで、陰イオン交換樹脂カートリッジを用いた固相

抽出法により酸解離定数の異なるAs(Ⅲ)とAs(V)を分離測定する方法を検討し、本県でひ素汚染が確認されている井戸を対象に、地下水中のAs(Ⅲ)とAs(V)を分離測定したので報告する。

2 材料と方法

2.1 試薬等

(1) 標準試料

As(Ⅲ)の標準試料は富士フィルム和光純薬(株)製のひ素標準液(As100) [As100mg/L]を、As(V)の標準試料はパーキンエルマ製のQuality Control Standard 21 [As100mg/L]を使用した。

(2) 試薬

水酸化ナトリウム、炭酸水素ナトリウム、硝酸ナトリウム及び酢酸ナトリウムは富士フィルム和光純薬(株)製の試薬特級、酢酸は同社製の精密分析用、濃硝酸は同社製の有害金属測定用、塩化ナトリウム及び硫酸ナトリウム

Arsenite-Arsenate Separation Analysis in Groundwater using Solid Phase Extraction. by NOGUCHI Kunimasa, YOSHIDA Shuuichi, ISHIMOTO Takashi and MAKINO Masahide (Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Groundwater, Arsenite, Arsenate, Valence-Dependent Separation, Anion Exchange Resin Cartridge

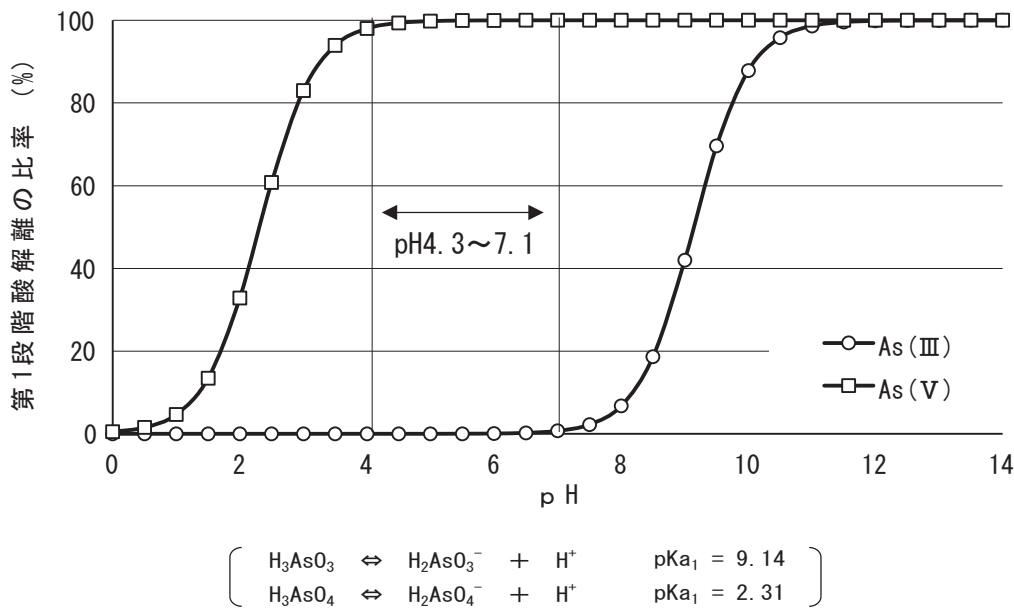


図 1 As (Ⅲ) 及び As (Ⅴ) の pH に対する第 1 段階酸解離の比率

は同社製の残留農薬・PCB 試験用を使用した。

(3) 固相カートリッジ

固相カートリッジは、GLサイエンス社製の InertSep mini MA-1 (ルアーデバイス型カートリッジ、ポリメタクリレートベース、官能基-N⁺(CH₃)₃、充填量 280mg) を使用した。

2・2 固相抽出法

As (Ⅲ) 及び As (Ⅴ) の第 1 段階酸解離定数の逆数の対数値は pK_{a1}=9.14 及び pK_{a1}=2.31 であり²⁾、各 pK_{a1} から求めた pH に対する第 1 段階酸解離の比率を図 1 に示す。pH4.3~7.1 では As (Ⅲ) は解離せずに分子状態であり、As (Ⅴ) は解離してイオン状態である。試料を pH4.3~7.1 に調整し、陰イオン交換樹脂カートリッジに通液すれば、イオン状態の As (Ⅴ) は陰イオン交換樹脂カートリッジに固相抽出され、分子状態の As (Ⅲ) は陰イオン交換樹脂カートリッジを通過するため、As (Ⅲ) と As (Ⅴ) を分離することができると考えられる。実際、杉田ら³⁾は陰イオン交換樹脂カートリッジを用いて As (Ⅲ) と As (Ⅴ) を分離測定する方法を報告している。

また、井田ら⁴⁾は「As (Ⅲ) は、2 価の鉄塩が含まれていると、溶存酸素により 3 価の鉄塩に酸化されると同時に、As (Ⅴ) への酸化が進む。」と報告していることから、As (Ⅲ) の酸化が進む前に、現地において地下水試料を採取直後に固相抽出を実施する必要がある。本報では、杉田らの固相抽出法を参考に、現地において固相抽出が実施できるよう取扱いが容易な形状の固相カートリッジを採用し、また、試料量を変更して固相抽出法を検討した。

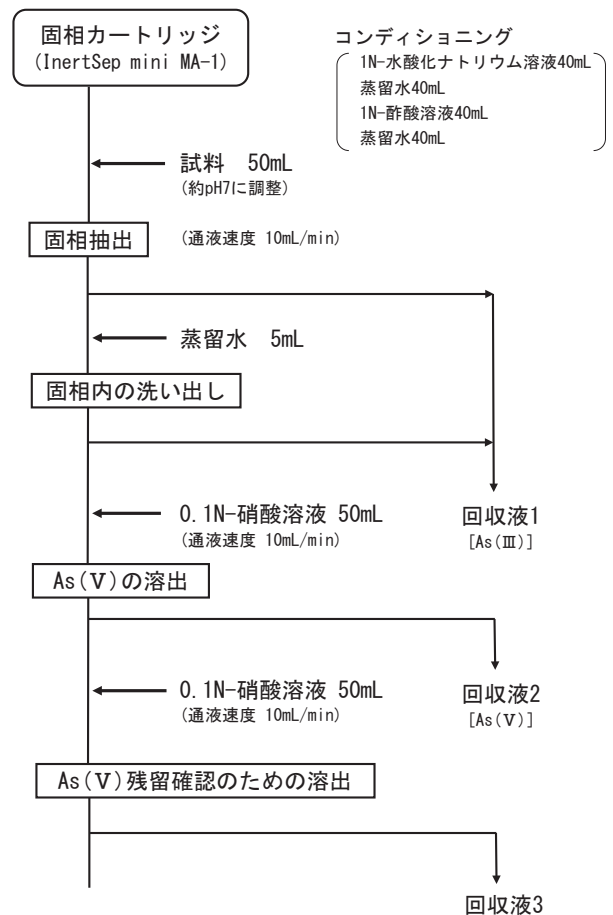
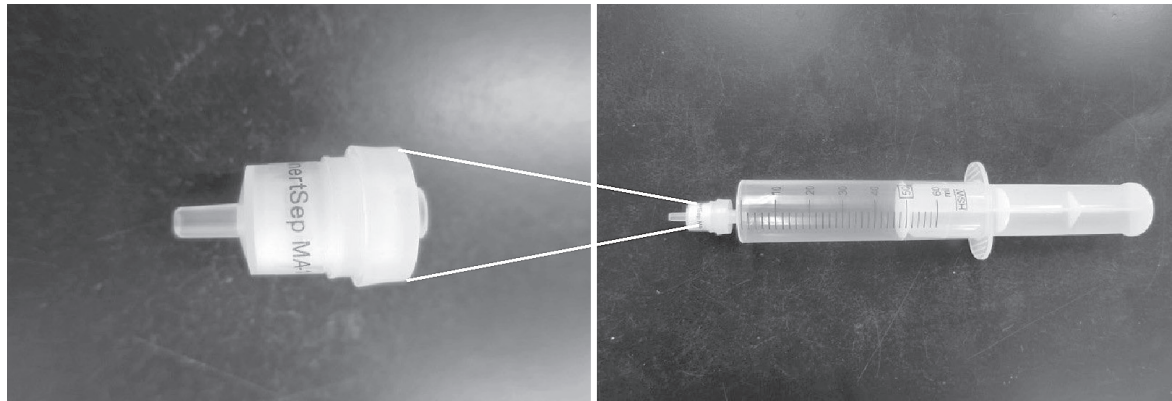


図 2 固相抽出法

固相抽出法を図 2 に示す。固相カートリッジのコンディショニングは固相抽出の数日前に、1N-水酸化ナトリウム溶液 40mL、蒸留水 40mL、1N-酢酸溶液 40mL、蒸留水 40mL を順に通液し、官能基を酢酸型とした。



(固相カートリッジ)

(固相カートリッジとディスポシリンジ)

図3 固相カートリッジとディスポシリンジ

試料50mLを0.1N-酢酸溶液又は0.1N-水酸化ナトリウム溶液を用いて約pH7に調整し、固相カートリッジに通液速度10mL/minで通液した。固相カートリッジ内に残った試料を洗い出すため、蒸留水5mLを通液した。通過した溶液（試料50mL及び蒸留水5mL）を合わせ、回収液1とした。原理的には回収液1にAs(Ⅲ)のみが回収される。

次に、固相カートリッジに固相抽出されたAs(V)を0.1N-硝酸溶液50mLで溶出した。通液速度は固相抽出と同様に10mL/minとした。この溶出液を回収液2とした。原理的には回収液2にAs(V)のみが回収される。最後に、固相カートリッジにAs(V)が残留していないか確認するため、再度0.1N-硝酸溶液50mLで溶出した。この溶出液を回収液3とした。

現地では、図3に示すとおり、50mLディスポシリンジに固相カートリッジを装着し、タイマーと通液量を確認しながら手動でディスポシリンジを操作し、約10mL/minで通液し、固相抽出を実施した。

2・3 ひ素濃度の測定

回収液1, 2及び3のひ素濃度は、地下水の常時監視に係る総ひ素濃度の測定方法により測定した。すなわち、各回収液に濃硝酸0.5mLを添加し、加熱・濃縮後、50mLに定容し、ICP-MSを用いて各回収液のひ素濃度を測定した。

2・4 標準試料を用いたAs(Ⅲ)及びAs(V)の分離回収状況の確認

As(Ⅲ)及びAs(V)の標準試料を用いて、2・2の固相抽出法によるAs(Ⅲ)及びAs(V)の分離回収状況を確認した。0.01mg/L及び0.1mg/LのAs(Ⅲ)溶液及びAs(V)溶液、各0.01mg/L及び0.1mg/LのAs(Ⅲ)及びAs(V)の混合溶液の合計6種類の溶液を蒸留水で調製して使用した。なお、As(V)の標準試料は硝酸溶液で調製されていることから、硝酸によって

As(Ⅲ)がAs(V)に酸化されないよう、As(V)の標準試料を0.1N-水酸化ナトリウムで中和後、As(Ⅲ)の標準試料とAs(V)の標準試料を混合した。

調製した6種類の溶液を試料とし、2・2の固相抽出法を実施し、ひ素濃度を測定した。

2・5 共存する他の陰イオンによる固相抽出への影響の確認

試料に共存する他の陰イオンがAs(V)の固相抽出に及ぼす影響を検討した。対象の陰イオンは地下水に比較的高い濃度で含まれる場合がある4種類（炭酸水素イオン、塩化物イオン、硝酸イオン及び硫酸イオン）と、試料のpH調整に酢酸を用いるため酢酸イオンを加えた合計5種類とした。0.01mg/LのAs(V)溶液を調製する際、溶液中の対象の陰イオン濃度が50, 100, 200, 300, 500及び1000mg/Lになるよう調製した。調製には炭酸水素ナトリウム、塩化ナトリウム、硝酸ナトリウム、硫酸ナトリウム及び酢酸ナトリウムを使用した。

2・6 地下水中のAs(Ⅲ)及びAs(V)の分離測定

本県が令和3年度のひ素の継続監視を行っている31井戸⁵⁾を対象に、夏季と冬季の2回、地下水中のAs(Ⅲ)及びAs(V)の分離測定を実施した。

3 結果と考察

3・1 標準試料を用いたAs(Ⅲ)及びAs(V)の分離回収状況

標準試料を用いたAs(Ⅲ)及びAs(V)の分離回収状況を表1に示す。0.01mg/LのAs(Ⅲ)は回収液1に、0.01mg/LのAs(V)は回収液2にそれぞれ回収されていた。0.01mg/LのAs(Ⅲ)とAs(V)を混合した溶液ではAs(Ⅲ)とAs(V)は分離され、回収液1及び回収液2に回収されていた。0.1mg/LのAs(Ⅲ)、As(V)及びAs(Ⅲ)とAs(V)の混合溶液の場合でも0.01mg/Lと同様の結果となっており、高濃度の場合も分離でき

表 1 標準試料を用いた As(Ⅲ) 及び As(V) の分離回収状況 (n=3)

標準試料 [濃度(mg/L)]	ひ素回収率の平均値 (%)		
	回収液 1	回収液 2	回収液 3
As(Ⅲ) [0.01]	98	2	<1
As(V) [0.01]	3	95	1
As(Ⅲ) + As(V) [各 0.01]	100	97	1
As(Ⅲ) [0.1]	99	1	<1
As(V) [0.1]	<1	100	<1
As(Ⅲ) + As(V) [各 0.1]	96	100	1

* As(Ⅲ) + As(V) は、回収液 1 に As(Ⅲ) が、回収液 2 に As(V) がすべて回収されるものと想定して、ひ素回収率を算出した。

るものと考えられた。なお、回収液 3 はいずれの場合も低濃度であり、0.1N-硝酸溶液による溶出は 50mL で十分であると考えられた。

これらの結果から、陰イオン交換樹脂カートリッジを用いた固相抽出法により As(Ⅲ) と As(V) を分離測定することが可能と考えられた。

3・2 共存する他の陰イオンによる固相抽出への影響

共存する他の陰イオンによる固相抽出への影響を調査した結果を図 4 に示す。酢酸イオンについては、回収液 2 における As(V) の回収率に大きな影響は見られなかった。炭酸水素イオンは 500mg/L、硝酸イオン及び塩化物イオンは 300mg/L、硫酸イオンは 100mg/L を超えると回収液 2 における As(V) の回収率が低下した。回収率が低下した分の As(V) は回収液 1 に含まれていたことから、共存する他の陰イオンが一定の濃度を超えると、As(V) の固相抽出が阻害されることが明らかとなった。地下水試料を固相抽出する場合には、事前に各陰イオンの濃度を測定し、固相抽出に影響を及ぼす濃度以上の場合には、ひ素の定量下限値を考慮しながら、試料を希釈する等の対応が必要である。

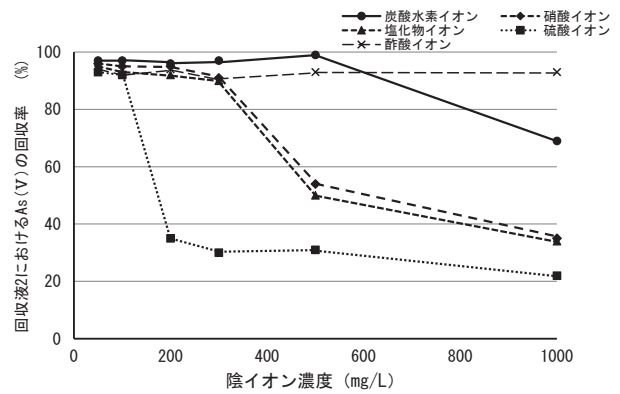
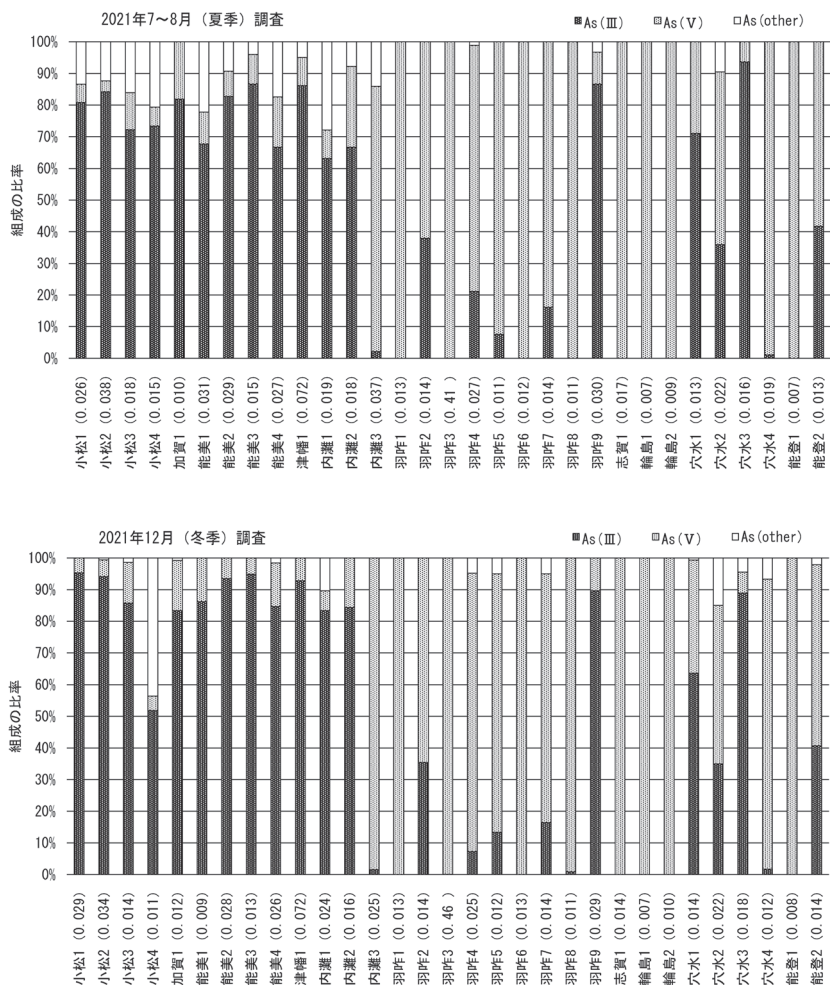


図 4 共存する他の陰イオンによる固相抽出への影響

3・3 地下水中の As(Ⅲ) 及び As(V) の分離測定結果

地下水中の As(Ⅲ) 及び As(V) の分離測定結果と継続監視による総ひ素濃度の測定結果を基に、総ひ素濃度に対する As(Ⅲ) 及び As(V) の比率を図 5 に示す。本県南部の小松市、加賀市、能美市、津幡町及び内灘町



* カッコ内の数字は総ひ素濃度 (mg/L) を示す。

図 5 地下水中の As(Ⅲ) 及び As(V) の分離測定結果

の一部でAs(Ⅲ)の比率が高かった。一方、北部の羽咋市、志賀町、輪島市及び能登町では、全体的にAs(V)の比率が高く、一部の地下水(「羽咋9」,「穴水1,3」)でAs(Ⅲ)の比率が高かった。地域によってAs(Ⅲ)とAs(V)の比率が異なること、また、同じ地域内においてAs(Ⅲ)とAs(V)の比率が大きく異なる場合があった。また、夏季と冬季の結果を比較すると、いずれの地下水においてもAs(Ⅲ)とAs(V)の組成比は概ね同等であることから、地下水の水質は年間を通して安定しているものと考えられる。

今回、固相抽出法により地下水中のAs(Ⅲ)とAs(V)を分離し、各濃度を測定することができたが、一部の地下水では回収液1,2及び3に回収されないひ素(As(other))が見られた。この原因については不明であるが、依然、固相カートリッジ内にひ素(As(other))が残留していると考えられる。今後、これらを固相カートリッジから溶出する方法を検討し、その原因を解明することとしている。

なお、今回調査した地下水については、事前に炭酸水素イオン、塩化物イオン、硝酸イオン及び硫酸イオンの濃度を調査しており、試料「小松3」の塩化物イオンが300mg/L、硫酸イオンが100mg/Lを超えていたことから、「小松3」は10倍に希釈して固相抽出を行った。希釈にはJISK0102に規定する「2.1 溶存酸素を含まない水」(蒸留水を、超音波振動装置で十分に脱気を行い、溶存酸素を除去したもの。)を使用した。

4 まとめ

- (1) 陰イオン交換樹脂カートリッジを用いた固相抽出法により地下水中のAs(Ⅲ)とAs(V)を分離測定する方法を検討した結果、As(Ⅲ)とAs(V)を分離測定することが可能と考えられた。
- (2) 共存する他の陰イオンが一定の濃度を超えると、As(V)の固相抽出が阻害されることが明らかとなった。
- (3) 地下水中のAs(Ⅲ)及びAs(V)を分離測定した結果、本県の南部でAs(Ⅲ)の比率が高く、北部で一部を除きAs(V)の比率が高かった。地域によってAs(Ⅲ)とAs(V)の比率が異なること、また、同じ地域内においてAs(Ⅲ)とAs(V)の比率が大きく異なる場合があった。

文 献

- 1) 財団法人化学物質評価研究機構：CERI 有害性評価書 砒素及びその無機化合物，5-22(2008)
- 2) 公益社団法人日本化学会：化学便覧 基礎編，改訂6版，822，丸善出版株式会社(2021)
- 3) 杉田創，小熊輝美，張銘，原淳子，川辺能成：陰イオン交換樹脂を用いた亜ヒ酸-ヒ酸分離手法について，地下水学会誌，62(1)，75-87(2020)
- 4) 井田健司，鈴木章，平野洋一，川瀬義矩：ヒ素の水環境中における存在形態とその挙動，埼玉県環境科学国際センター報，5，141-144(2005)
- 5) 石川県：令和3年度水質測定計画，27-41，石川県生活環境部環境政策課(2021)

〔短 報〕

固相抽出による地下水中のPCBスクリーニング検査法の改良

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〕

地下水中のPCBスクリーニング検査法として、固相抽出の検討を行い、蒸留水への添加回収試験で回収率88.4%（再定量結果85.2%）であることを既報で報告した。

その後、クロマトグラムを精査し検討を行った結果、カートリッジまでの流路に高塩素PCBが残留するため、特に高塩素PCBの回収率が悪いことが分かった。水：メタノール比=1：1の溶媒10mLで流路の洗い込みを行いカートリッジに負荷して検査を行うことにより、流路に残留した高塩素PCBが効率的に回収され、回収率は92.7%に改善した。

高塩素PCBの回収率が改善したことにより、地下水中にPCBが検出された場合、カネクロールの銘柄を、より正確に推定できることが期待される。

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法

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、「水質汚濁に係る環境基準について」（昭和46年12月28日環境庁告示第59号）付表4に掲げる方法として定められている。一方、本県では、これまで地下水中のPCBスクリーニング検査として固相抽出を用いていたが、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、固相抽出カートリッジや溶出量の適正化の検討を行い、回収率は約80%となり、PCBスクリーニング検査法の回収率の向上が図られたことを既報¹⁾で報告した。（以下、当該PCBスクリーニング検査法を「従来法」という。）

PCBはベンゼンが2つ結合したビフェニル骨格の水素を塩素で置換した化合物の総称で、計209種類の異性体が存在し、置換した塩素数により1塩素体から10塩素体と呼ばれる。わが国においてはPCBの生産は主として鐘淵化学工業(株)により行われ、カネクロール（以下、

「KC」という。）の商標でこれら異性体の混合物が市販されていた。KCにはKC-300（主として3塩素体）、KC-400（主として4塩素体）、KC-500、KC-600などの銘柄があり、この順に塩素含量が増える²⁾。

今回、従来法による添加回収試験の結果を詳細に解析したところ、得られたクロマトグラムの各ピークの回収率は図1に示すとおり、40番（IUPAC No.99のPCB。〔以下、IUPAC No.xのPCBを「PCB-x」と表記する。〕；5

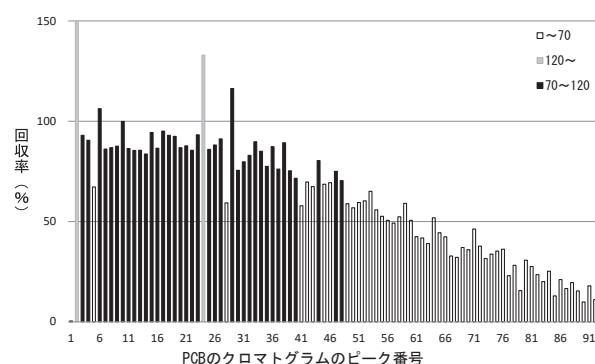


図1 各ピークのPCBの回収率

An Improvement of Screening Test Method for Polychlorinated Biphenyls in Groundwater using 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 (Polychlorinated Biphenyls) , Groundwater, Solid Phase Extraction, Screening Test Method

塩素体)のピークまでは概ね回収率が70~120%であったが、それ以降のピークは回収率が徐々に下がり、最後のピークである93番(PCB-206;9塩素体)のピークは11.0%と低いことが分かった。

クロマトグラムのピークは、ピーク番号が大きいほどビフェニル骨格に結合する塩素数が多くなる傾向にある³⁾(以下、7塩素体以上のPCBを「高塩素PCB」、3塩素体以下のPCBを「低塩素PCB」という)。また、ピーク番号が大きいほど標準物質における各ピークの成分含有率であるCB₀⁴⁾が低い傾向にある³⁾。これらのことから、高塩素PCBの回収率が低かったものの、全PCBの回収率には大きな影響を及ぼさず、回収率は約80%となった。

また、ECDの感度は塩素原子数、異性体の種類によって変化することが知られており、58番(PCB-153;6塩素体)のピーク以降、高さが高く形状が特徴的なピークがいくつか見られる。試料中PCBの由来となるKC 銘柄の判断は、標準品としてのKCと試料とのピークパターンの比較によって行うことから、クロマトグラム全体のピークパターンを損なわないように前処理を行うことが重要であり、CB₀が小さいがECDの感度が良い高塩素PCBについても回収率を高める必要がある。

そこで、本報では、高塩素PCBの回収率が低下した原因を究明し、従来法についての再検討を行ったので報告する。

2 材料と方法

2.1 材料

(1) 標準品

PCBの標準品はジーエルサイエンス(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1 μ g/mLアセトン溶液としたものを使用した。

(2) 試薬

アセトン、n-ヘキサン、メタノール、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。アセトニトリルは富士フィルム和光純薬(株)のチウラム分析用を使用した。

(3) カートリッジ

固相抽出にはジーエルサイエンス(株)製「InertSep mini RP-1 (充填量230mg)」カートリッジを使用した。精製にはジーエルサイエンス(株)製「InertSep Slim-J PSA (充填量500mg)」カートリッジを使用した。

2.2 固相抽出装置

固相抽出装置には、日本ウォーターズ(株)のSep-Pak コンセントレータを加圧送液にて使用した。

2.3 GC-ECDの測定条件

GC-ECDの測定条件は、既報¹⁾のとおりである。

回収率が120%を超えたピークもあり、妨害ピークの影響も考えられるものの、これらのピークのCB₀の合計は1.491%と小さいので、特に除外せずに回収率を求めた。

2.4 試験方法

(1) 高塩素PCBの回収率低下の原因究明

PCBの物理化学的性質はその塩素数とともに変化する。一般に塩素数が増すほど、水溶解度は低下する²⁾ことから、高塩素PCBは、固相抽出装置の樹脂製配管(テフロン、内径3mm、外径4mm、長さ1m)やシリンジポンプ、チェックバルブなどの流路(以下、「流路」という。)に残留しているのではないかと推測した。

そこで、固相抽出装置の流路中のPCBの残留状況の確認を行った。従来法による蒸留水を用いた添加回収試験の検液の通水操作後に、固相抽出装置の流路にアセトン50mLを検液と同じ通液速度で通し、アセトン溶液を回収した。回収したアセトン溶液はロータリーエバポレーター(以下、「RE」という。)で濃縮後、水10mLを加え、n-ヘキサン10mLで2回抽出した。無水硫酸ナトリウムで脱水し、REで乾固後、直ちにn-ヘキサン1mLを正確に加え超音波溶解して検液とし、GC-ECDで測定した。

(2) PCBスクリーニング検査法の再検討

流路中に残留したPCBの回収方法はいくつか考えられたが、試料の通水後に流路を少量の溶媒で洗い込み、その溶媒を直接カートリッジに負荷することとした。この方法は、簡便で効率的であり、加えてカートリッジを溶媒で洗浄し夾雑物を除去する効果もある⁵⁾。しかし、適正な溶媒を選択しないと、流路の洗い込みが不十分となったり、固相抽出を行ったカートリッジからPCBが溶出したりするおそれがある。

洗い込む溶媒については文献⁵⁾を参考に水とメタノールの混合溶媒とし、水:メタノール比=3:1, 1:1, 1:3, 1:6, 1:9及び0:10の6パターンの試験を試行数3で検討を行った。従来法による蒸留水を用いた添加回収試験の検液の通水操作後、カートリッジを装着したまま、極性の異なる溶媒を検液と同じ通液速度で10mL流した。以後、従来法と同じ操作を行った。

また、洗い込み後の流路中のPCBの残留状況については、メタノール50mLを流し、REで濃縮、アセトニトリルを加えてREで乾固させた後、直ちにn-ヘキサン1mLを正確に加えて超音波溶解し検液とした。

3 結果と考察

3.1 高塩素PCBの回収率低下の原因

従来法による添加回収試験後、固相抽出装置の流路にアセトンによる洗い込み操作を行ったPCBの回収率を図2に示す。流路にはPCBが残留しており、高塩素PCBになるほどその比率が高かった。カートリッジに

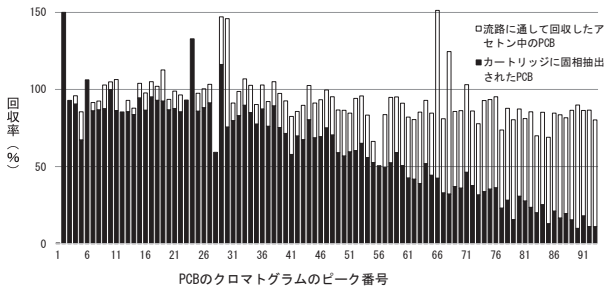


図 2 PCB各ピークの流路への残留状況

捕集されたPCBとアセトン中のPCBを合わせると、PCBの回収率は概ね100%となった。このことから、高塩素PCB回収率低下の原因は、PCBが固相抽出装置の流路に残留したためと考えられた。

3・2 PCBスクリーニング検査法の再検討

溶媒による洗い込み操作を加えた蒸留水の添加回収試験の結果と、従来法による結果(3・1の結果)を表1に示す。カートリッジに捕集されたPCBは各混合溶媒によって67.1~92.7%であり、流路に残留したPCBは3.9~9.4%であった。水:メタノール比=1:1の溶媒で洗

表 1 添加回収試験の結果 (n=3)

	従来法*	洗い込み操作を加えた方法 (溶媒の水:メタノール比)					
		3:1	1:1	1:3	1:6	1:9	0:10
カートリッジに固相抽出されたPCB	76.2	82.0	92.7	88.5	83.9	82.3	67.1
変動係数 [CV値]	—	(1.1)	(1.4)	(7.2)	(4.1)	(4.7)	(5.1)
洗い込み操作後、流路に残留したPCB	24.8	9.4	6.5	6.8	5.1	5.5	3.9
合計	101.0	91.4	99.2	95.3	89.0	87.8	71.0

* 従来法はn=1であり、流路洗浄溶媒はアセトンを使用

い込み操作した場合が92.7%と最も回収率が高く、メタノール比率が高くなるに従って回収率が低くなった。

表1の結果について各ピークの回収率を示したグラフを図3に示す。洗い込み溶媒のメタノールの比率が低い場合、高塩素PCBは流路から十分に溶離せず、カートリッジへ捕集されなかった。一方、メタノールの比率が高い場合、高塩素PCBは流路から溶離されるものの、低塩素PCBがカートリッジから溶出するため、水:メタノール比=1:1の時に回収率が最大になったと考えられた。

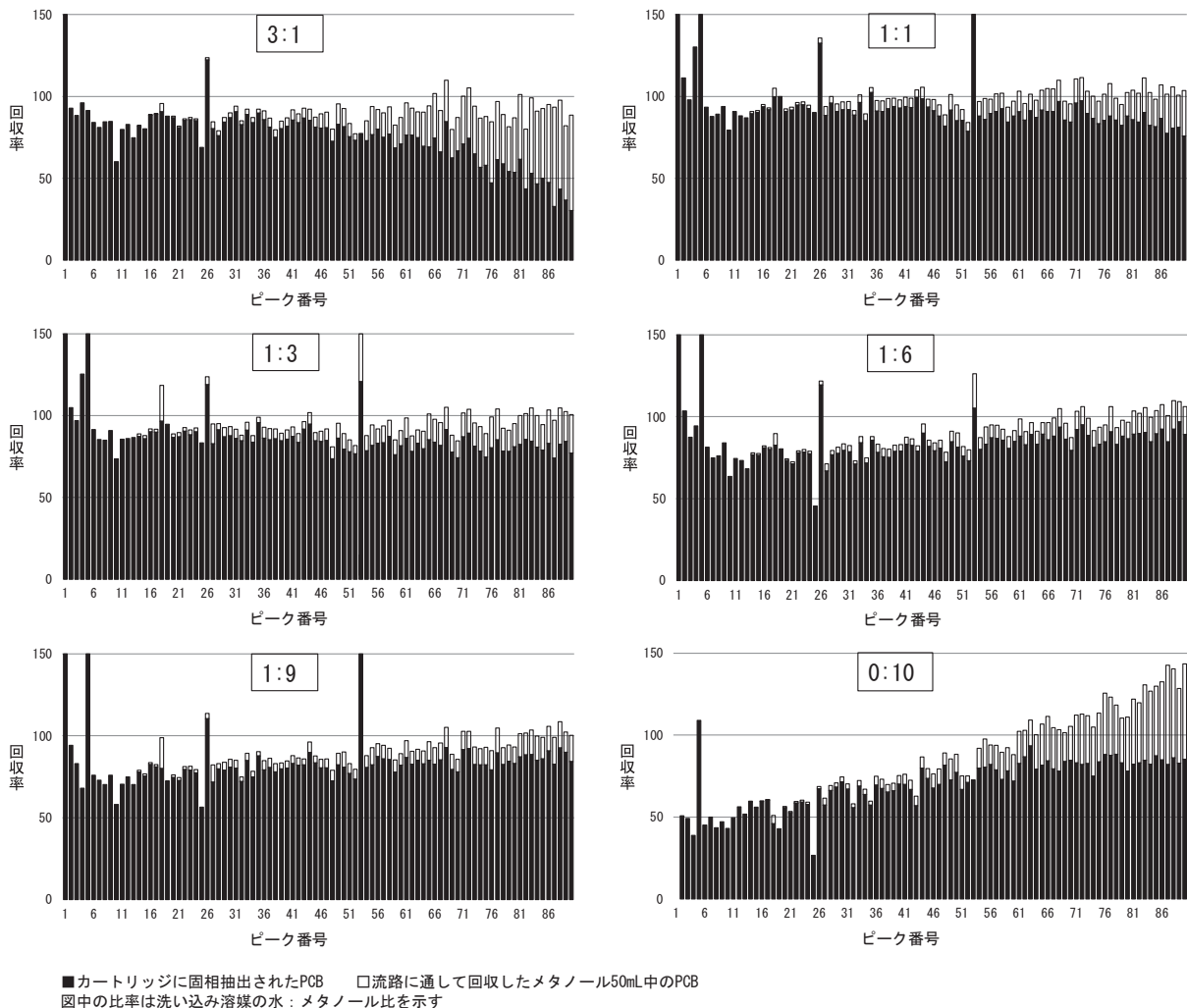


図 3 各洗い込み溶媒による各ピークのPCB回収率

既報¹⁾で報告した従来法での蒸留水による添加回収率を再定量した結果は85.2%（試行数3, 変動係数 [CV 値] 0.9%）であったが, 従来法に水:メタノール比=1:1の溶媒を通水後に洗い込む操作を加えたもの（以下, 「改良法」という。）は従来法と比較して回収率が92.7%と7.5%向上した。

また, 改良法によるPCBの各ピークの回収率は図4のとおりとなった。特に高塩素PCBの回収率が向上しており, クロマトグラムで最後のピークである93番のピークの回収率は85.2%となった。

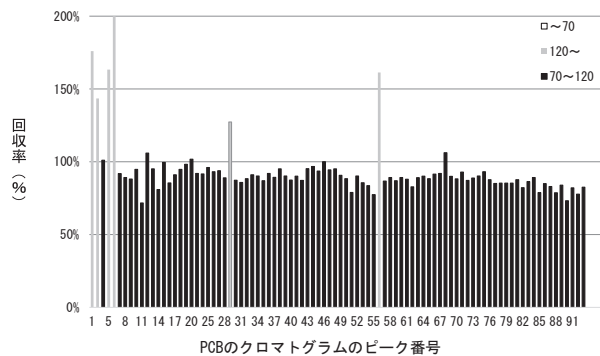


図4 改良法による各ピークのPCB回収率

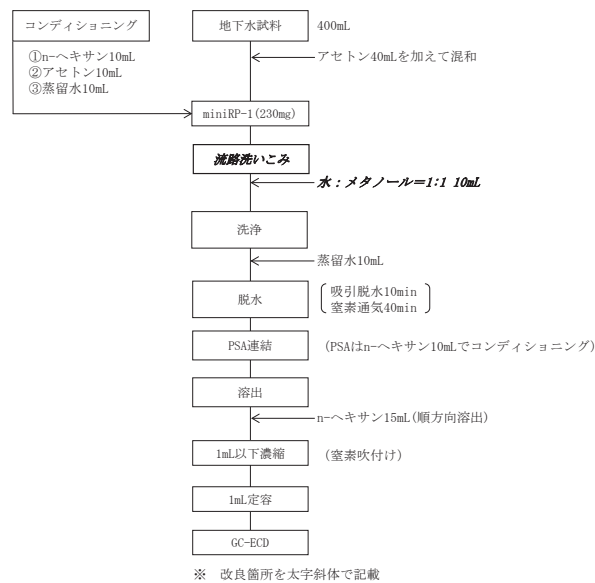


図5 改良法

3.3 改良法

改良法のフローを図5に示す。3.2の結果から試料の通水操作後, 流路を水:メタノール比=1:1の溶媒10mLを用いてカートリッジに洗い込むこととした。

また, 高塩素PCBの回収率が改善されたことにより, KCと改良法によって得られたクロマトグラムのピークパターンを比較することで, 試料中PCBの由来となるKC銘柄を, より正確に推定できることが期待される。

4 まとめ

- (1) 固相抽出による地下水中のPCBスクリーニング検査法を精査した結果, 高塩素PCBの回収率が低いことが明らかとなった。これは, 高塩素PCBが固相抽出装置の流路に残留したことが原因であった。
- (2) 高塩素PCBの回収率を改善するためPCBスクリーニング検査法の再検討を行った。検液通水後, 流路に残留したPCBについて, 10mLの水:メタノール比=1:1の溶媒で洗い込み, 直接カートリッジに負荷することで, 回収率が92.7%に向上した。
- (3) 高塩素PCBの回収率向上により, KCと本スクリーニング検査法により得られたクロマトグラムのピークパターンを比較し, 試料中PCBの由来となるKC銘柄を推定できることが期待される。

文 献

- 1) 牧野雅英, 河本公威, 野口邦雅: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研究報告書, 58, 75-79 (2021)
- 2) (株)日本化学会:環境汚染物質シリーズPCB, 6-7, 丸善(1980)
- 3) 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
- 4) 鷗川昌弘, 中村彰夫, 樫本隆:PCBの数値化方法に関する研究, 食品衛生学雑誌, 14, 415-424 (1973)
- 5) 田村知子, 松下誠司, 岡圭男, 岡沢亨:固相カラムによる水中PCBの前処理方法の検討, 第12回環境化学討論会講演要旨集, 204-205 (2003)

〔短 報〕

白菜中のストロンチウム-90

石川県保健環境センター 環境科学部 内田 賢吾・鳥屋子やまと
石川県生活環境部 資源循環推進課 宮竹 智代・内川 慎互・川畑 俊之

〔和文要旨〕

本県では、1990年度から志賀原子力発電所周辺の白菜中のSr-90調査を行っている。

2018年11月志賀町百浦で採取した白菜から過去の調査結果を超過するSr-90が検出され、過去の調査結果に比べ、白菜中Sr濃度及びSr比放射能が高いことがわかった。

白菜中Sr濃度が高かった原因は土壌からの移行係数が大きかったためであり、Sr比放射能が高かった原因は土壌中でSr比放射能が高い深度が存在し、その土壌を用いて畝が作られればSr比放射能が高くなることもあり得ると考えられた。

キーワード：白菜, ストロンチウム-90, 移行係数, 比放射能

1 はじめに

本県では、1990年度より北陸電力(株)志賀原子力発電所(以下、「発電所」という。)周辺環境放射線監視年度計画¹⁾に基づき、周辺放射線監視(以下、「原電監視」という。)を行っている²⁾。その中で、環境試料中の放射能調査の1つとして発電所周辺3か所で採取した白菜を調査対象とし、ガンマ線核種分析のほかストロンチウム-90(以下、「Sr-90」という。)(半減期28.79年³⁾)の分析を行ってきた。2018年、新たな調査地点とした志賀町百浦(以下、「百浦」という。)で採取した白菜から調査開始以降の濃度範囲(以下、「過去の範囲」という。)を超過するSr-90が検出された。

Sr-90は核爆発実験や原子力発電所事故の際、環境中に放出される放射性核種として調査を行っているものであるが、今回検出されたSr-90は他の人工放射性核種が検出されていないこと等から、過去の核爆発実験等の影響であると推定された。

調査開始以降、Sr-90の1半減期が過ぎたにも関わらず、過去の範囲を超過した値が検出されたことから、原因の調査を行ったので、結果を報告する。

2 調査方法

2・1 試料採取

白菜中のSr-90は土壌から移行したものであるため、白菜及びその生育土壌を試料とした。試料採取地点を図1に示す。採取方法はいずれも放射能測定法シリーズ⁴⁾に準じた。

白菜は、調査開始以降、発電所の南南東約1kmに位置する志賀町赤住(以下、「赤住」という。), 東約5kmに位置する志賀町直海(以下、「直海」という。), 北約2.5kmに位置する志賀町福浦港(以下、「福浦港」という。)の3地点で採取していたが、赤住での採取が困難となったことから2018年度からは赤住に代わり南南東約2kmに位置する百浦で採取している。試料採取量は1地点あたり8~16kgである。

生育土壌は、2018年度は百浦で白菜を栽培している畝の表層0~5cmから2検体採取した。2019年度は百浦、直海、福浦港の3地点で、畝及び畝合の表層0~5cm(8地点分面積353cm²), 下層5~25cm(2地点分面積88.3cm²)の2つの深度から採取した。2019年度試料採取を行った地点のイメージ図及び畝の大きさを図2

Strontium-90 in Chinese Cabbage.

by UCHIDA Kengo, TOYANAGO Yamato (Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science), MIYATAKE Tomoyo, UCHIKAWA Shingo and KAWABATA Toshiyuki (Resource Recycling Promotion Division, Living and Environment Department, Ishikawa Prefecture)

Key words : Chinese Cabbage, Strontium-90, Transfer Factor, Radioactivity Ratio

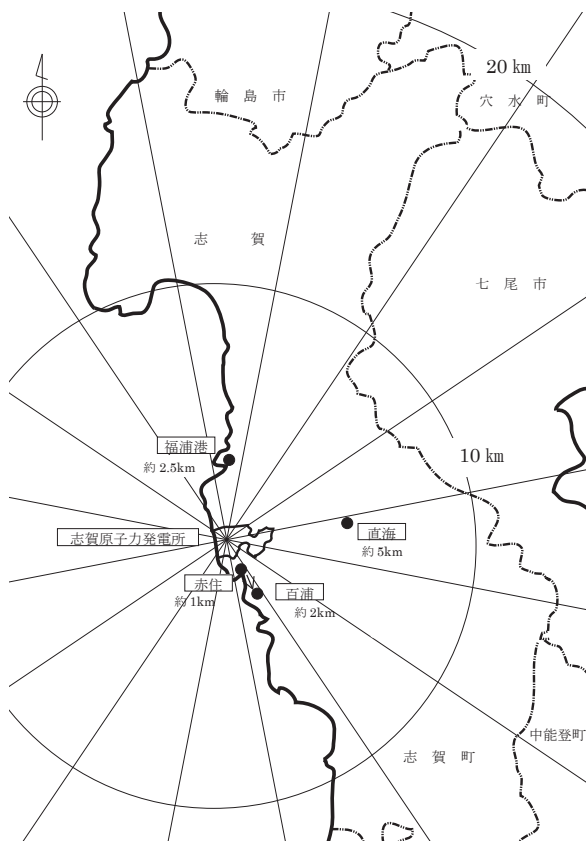


図1 試料採取地点図

に示す。今回、畝の上から25cmの深さ、畝合の下まで合わせると34～43cmの深さで土壌採取を行ったことになる。

2・2 測定方法

(1) 試料前処理

白菜及び土壌の前処理は放射能測定法シリーズ⁵⁾に準じた。採取した白菜は付着している土壌等を除去した後、外葉を外し内葉を細断して磁性皿に入れ、乾燥機により105℃で24時間以上乾燥後、灰化炉により450℃で24時間以上灰化し、Sr-90分析用試料とした。土壌は乾燥機

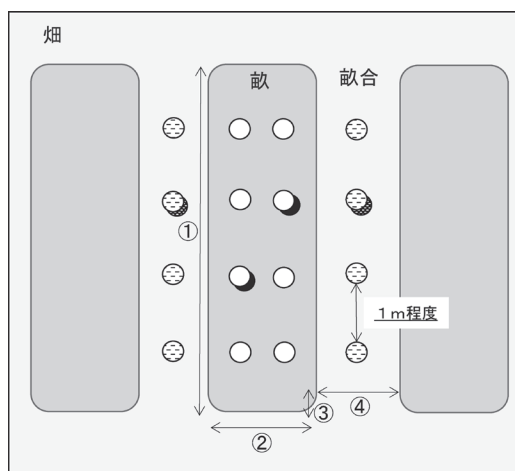


図2 土壌試料採取場所イメージ図及び畝の形状

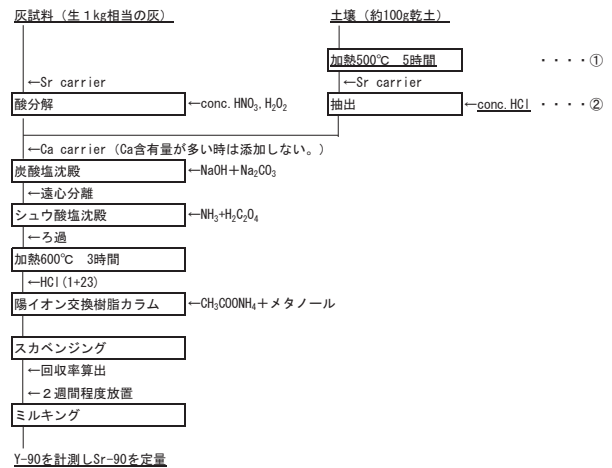


図3 Sr-90分析方法

により105℃で24時間以上乾燥後、2mmメッシュのふるいで、ふるい分けし、2mmメッシュ以下のものをSr-90分析用試料とした。

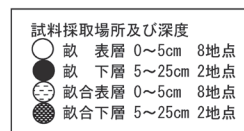
(2) 放射能分析

Sr-90分析方法を図3に示す。白菜及び土壌、いずれも放射能測定法シリーズ⁶⁾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³⁾) 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 白菜中Sr-90の調査結果

2018～2021年度の白菜中Sr-90の調査結果及び1990～2017年度の調査結果の範囲を表1に示す。百浦は、2018年度から調査を開始した地点であるが、初年度に原電監視開始以降最高値となる0.27Bq/kg生が検出された。その後、濃度は徐々に低下し、2021年度には0.051Bq/kg生となり、2018年度に比べ1/5以下となった。直海は、



畝の形状

	百浦	直海	福浦港
①畝の長さ	1,210cm	1,320cm	600cm
②畝の幅	72cm	49cm	45cm
③畝の高さ	9cm	18cm	9cm
④畝合の長さ	37cm	49cm	20cm
⑤特徴	粘土質 (含水率22%)	砂地 (含水率10%)	粘土質 (含水率27%)
⑥畑地利用前	田んぼ	田んぼ	雑木林
⑦客土の有無	なし	あり(砂)	なし

表 1 白菜の Sr-90 濃度調査結果

採取地点	Sr-90 濃度				過去の調査結果	
	2018 年度	2019 年度	2020 年度	2021 年度	1990.7~2011.2 (福島第一原発事故前)	2011.3~2018.3 (福島第一原発事故後)
	百浦	0.27 ± 0.01	0.108 ± 0.006	0.049 ± 0.004	0.051 ± 0.004	--*1
赤住	--*2	--*2	--*2	--*2	0.028~0.17	0.040~0.102
直海	0.017 ± 0.003	ND (0.004 ± 0.003)	ND (0.005 ± 0.002)	ND (0.006 ± 0.002)	0.012~0.26 <small>1991年度,1994年度検出</small>	ND~0.035
福浦港	0.054 ± 0.006	0.019 ± 0.003	0.018 ± 0.003	0.020 ± 0.003	0.053~0.25	0.019~0.189

*1 2018 年度より調査開始
*2 2017 年度で調査終了

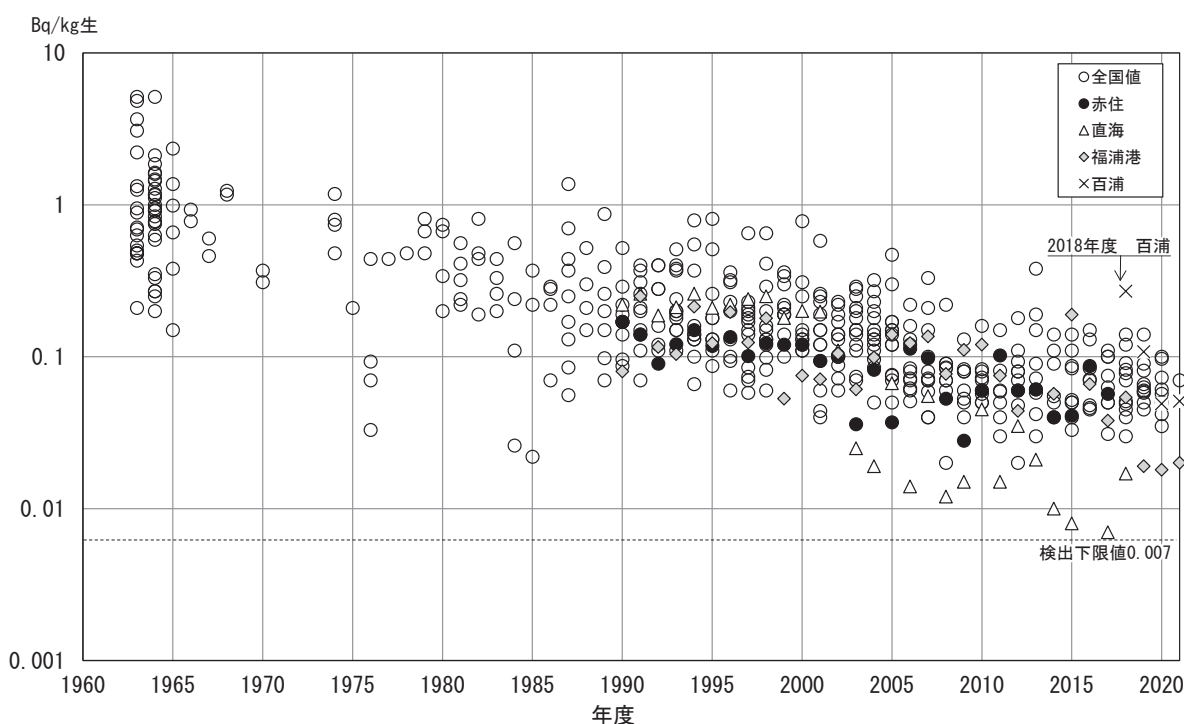


図 4 全国及び原電監視における白菜中の Sr-90 濃度

2018 年度に 0.017Bq/kg 生が検出されたが、その後 3 年間は ND (検出下限値 (0.007Bq/kg 生) 未満) であった。福浦港は、2018 年度に 0.054Bq/kg 生が検出されたが、その後濃度は低下し、2021 年度には 0.020Bq/kg 生となり、2018 年度に比べ 1/2 以下となった。

図 4 に赤住、直海、福浦港、百浦の調査結果に加え、全国で行われている環境放射能水準調査及び原子力発電所等周辺環境放射能モニタリング (以下、「全国調査」という。) における白菜中 Sr-90 の結果⁷⁾ を示す。全国調査では、調査開始当初には核爆発実験の影響により 1964 年度に最高値 5.15Bq/kg 生 (平均値 1.09Bq/kg 生) が検出されていたが、その後、濃度は低下し、2020 年度には 14 件中 6 件が検出下限値未満となり、検出された 8 件の平均は 0.066Bq/kg 生と 1964 年度の 1/20 程度となっている。

百浦の調査結果は、2018 年度は全国調査 (調査件数 13 件。濃度範囲: 検出下限値未満 (2 件) ~ 0.14Bq/kg 生) よりも高い値であったが、2019 年度以降は全国調査の範囲内となっている。一方、直海、福浦港は全国調査と比較しても低い濃度であった。

Sr-90 濃度はストロンチウム (以下、「Sr」という。) 濃度 (g/kg 生) 及び Sr 比放射能 (Bq/g: 安定元素単位重量当たりの放射エネルギー) の積で表される。2009 年度以降原電監視で調査を行った白菜中の Sr 濃度及び Sr 比放射能の関係を図 5 に示す。Sr-90 濃度は 2020 年度を基準年として補正した。

Sr 濃度については、2018 年度の百浦は 0.0028g/kg 生であり、他の地点や他の年度に比べて高い濃度であった。2018 年度の百浦の結果を除くと、平均 0.0009g/kg 生 (0.0003 ~ 0.0018g/kg 生) であった。Sr 比放射能につい

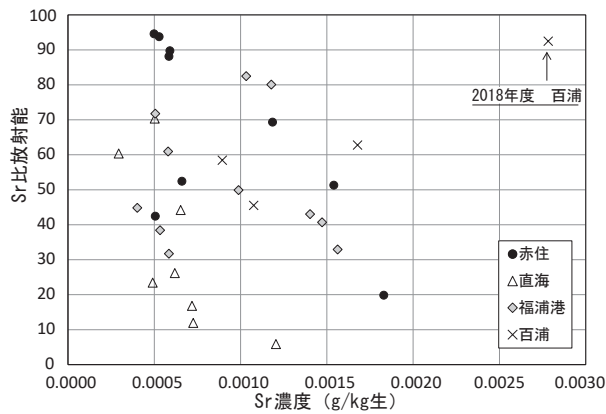


図5 白菜中Sr濃度及びSr比放射能

※ Sr比放射能算出時のSr-90は2020年度を基準年として補正

では、平均51.8(5.9～94.6)で、2018年度の百浦は92.5と高めであった。

これらの結果から、2018年度の百浦の白菜はSr濃度及びSr比放射能の両方が高いため、Sr-90濃度が高くなったことが分かった。

3・2 土壤中Sr-90の調査結果

2018年度及び2019年度に採取した土壤の調査結果を表2に示す。2018年度に百浦で採取した土壤は2検体とも検出下限値未満 (<0.24Bq/kg乾土)であった。

Sr-90が検出されなかったのは、2018年度の調査が畝の表層(0～5cm)のみであったためではないかと考え、2019年度には畝及び畝合で表層0～5cm及び下層5～25cmで採取し分析を行ったが、検出されたのは12件中3件のみであった。原電監視において、北陸電力(株)が発

表2 土壤のSr-90濃度調査結果

単位: Bq/kg 乾土					
採取年度	地点	採取場所	深度	Sr-90	
2018	百浦	畝	表層 0-5cm	① ND	
				② ND	
	百浦	畝	表層 0-5cm	ND	
			下層 5-25cm	0.34 ± 0.08	
		畝合	表層 0-5cm	ND	
			下層 5-25cm	ND	
2019	直海	畝	表層 0-5cm	ND	
			下層 5-25cm	ND	
	直海	畝合	表層 0-5cm	ND	
			下層 5-25cm	ND	
		福浦港	畝	表層 0-5cm	ND
				下層 5-25cm	ND
福浦港	畝合	表層 0-5cm	1.0 ± 0.1		
		下層 5-25cm	0.4 ± 0.1		

※ ND: 0.24Bq/kg 乾土未満

表3 土壤中放射性核種調査結果

単位: Bq/kg 乾土						
採取年度	地点	採取場所	深度	Sr-90	Cs-137	K-40
2019	百浦	畝	表層 0-5cm	0.18 ± 0.03	4.2 ± 0.3	532 ± 8
			下層 5-25cm	0.23 ± 0.03	4.4 ± 0.3	524 ± 8
2019	直海	畝	表層 0-5cm	0.11 ± 0.03	ND (<0.8)	771 ± 9
			下層 5-25cm	0.19 ± 0.03	ND (<0.8)	774 ± 9
2019	福浦港	畝	表層 0-5cm	0.49 ± 0.03	5.3 ± 0.3	417 ± 7
			下層 5-25cm	0.60 ± 0.04	6.2 ± 0.3	420 ± 7

※ Cs-137, K-40 はガンマ線分析で計測

電所敷地内(赤住)及び赤住において土壤の調査を行っており、2020年度の結果はそれぞれ0.9～1.4Bq/kg乾土、0.6～0.9Bq/kg乾土と全てから検出されている²⁾。百浦の白菜が全国で最高値となったことから、土壤のSr-90濃度は赤住や発電所敷地内と同程度或いは高い濃度になると思われたが、検出下限値～0.34Bq/kg乾土と低い濃度であった。

調査結果のほとんどが検出下限値未満であったことから、分析試料量を放射能測定法シリーズ⁶⁾の5倍(約100g×5件)で分析。スカベンジング前に試料を併せ1件として取り扱う)に増やし、分析を行った。その結果を表3に示す。分析を行ったのは3地点の畝の表層0～5cm及び下層5～25cmである。この結果、3地点の畝の表層、下層の計6検体全てからSr-90が検出された。百浦及び直海では土壤約100gを用い分析を行った際の検出下限値(0.24Bq/kg乾土)よりも低い値となった。一方、福浦港では100gで分析を行った際には検出下限値(0.24Bq/kg乾土)未満であったが、試料量を増やし分析を行った結果、検出下限値よりも高い値が検出され、採取した土壤内ではばらつきがあることを示唆する結果となった。

全国調査⁷⁾の土壤中Sr-90濃度の頻度分布を図6に示す。約80%の地点でSr-90が検出されている。今回調査を行った百浦、直海、福浦港の3地点の土壤の結果は1.0Bq/kg乾土未満であり、頻度分布では低い濃度の範囲に分類された。

百浦における白菜と土壤のSr-90濃度を全国調査と比較すると、白菜が2018年度に全国調査で最高値であったのに対し、土壤は全国調査で低い濃度の範囲となった。また、白菜のSr-90濃度は百浦>福浦港>直海であるのに対し、土壤のSr-90濃度は福浦港>百浦>直海であり、白菜と土壤で異なる傾向となった。このことから、土壤から白菜への移行は土壤中の濃度以外の要因が関係していると考えられた。

なお、表3には検出された人工放射性核種セシウム-137(半減期30.08年。以下、「Cs-137」という。)及び自然

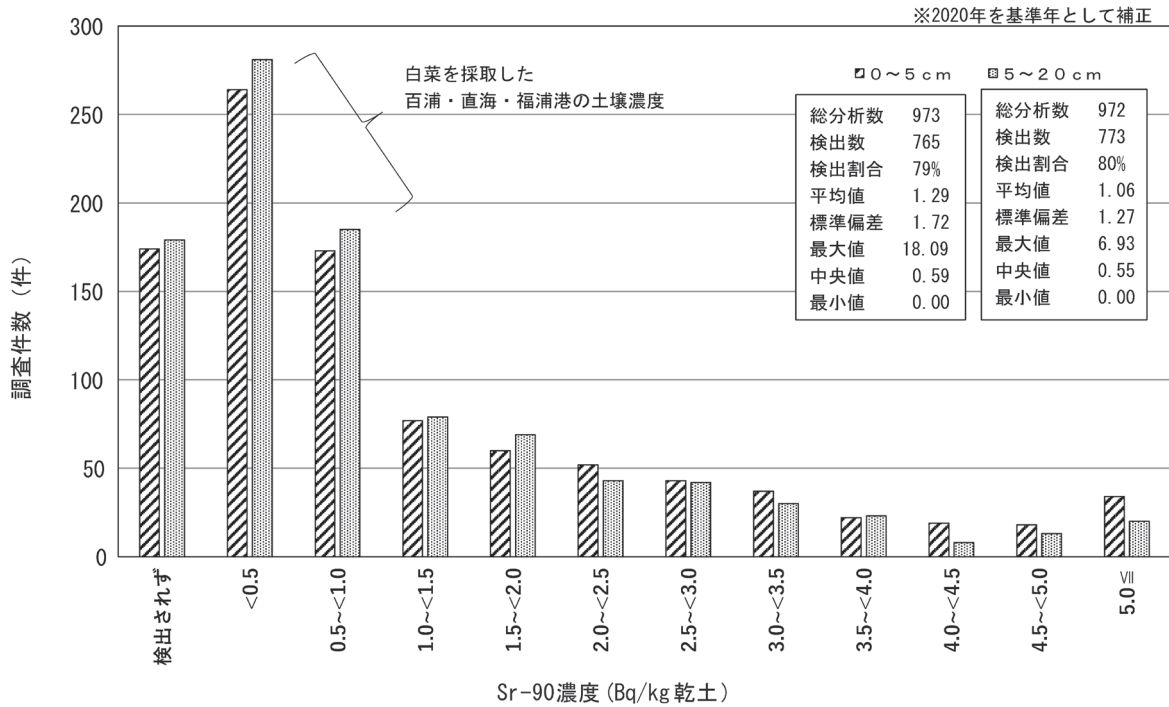


図 6 土壤中の Sr-90 濃度 (全国調査 1999-2018)

放射性核種カリウム-40 (半減期 1.248×10^9 年。以下、「K-40」という。)の結果を参考に掲載した。原電監視²⁾において2021年度の赤住、発電所敷地内、直海 (白菜採取地点とは異なる地点)の土壤中 Cs-137濃度の約 30Bq/kg 乾土と比較すると、今回の3地点の結果は低くなっている。これは、畑地として利用されるため土地の改変が行われたことによると思われる。また、K-40は表層と下層において同程度の濃度となっており、表層と下層で土質に大きな違いがないことが確認できる。

4 考 察

2018年度の百浦の白菜中 Sr-90の高濃度は、3・1において Sr濃度及び Sr比放射能の両方が高くなったためと考えられたことから、原因について検討を行った。

4・1 Sr濃度が高くなった原因

Sr濃度が高くなった原因について、土壤から白菜への移行係数に着目し検討を行った。

(1) 移行係数

移行係数は以下により求めた。

$$\text{移行係数} = \frac{\text{白菜中物質濃度}}{\text{土壤中物質濃度}}$$

土壤の Sr濃度・Sr-90濃度及び白菜の Sr濃度・Sr-90濃度、土壤から白菜への移行係数を表4に示す。直海については2019年度の白菜の Sr-90濃度が検出下限値未満となったことから、2018年度の白菜の結果から移行係数を算出した。(直海の土壤は砂を客土した土地であり、

年度による違いはあまりないと考え、2019年度採取の土壤の結果を利用)また、参考に Srと同じアルカリ土類金属のカルシウム (以下、「Ca」という。)濃度も示す。土壤中濃度は表層・下層の濃度及びそれぞれの単位面積当たりの乾燥重量から重み付き濃度を求め、それをもとに、白菜への移行係数を求めた。移行係数は生重量換算と乾燥重量換算の2種類である。

Srと Sr-90の移行係数 (生重量換算)について比較すると、調査を行った3地点とも Sr-90の移行係数が Srよりも大きくなった。地点別で見ると、Srの移行係数は直海>百浦>福浦港で、Sr-90については百浦>直海>福浦港であり、Srと Sr-90で異なる傾向となった。

Srの移行係数は福浦港が最も小さくなった。福浦港の土壤は Srと同じアルカリ土類金属の Ca濃度が他の2地点に比べ10倍以上高く、白菜への Srの移行に影響を与えたことが考えられたが、白菜中の Sr濃度は土壤中の Ca及び Sr濃度が最も低い直海と同程度であった。このことから、3・2で述べたように土壤から白菜への移行は土壤中の濃度以外の要因が関係していると考えられた。

なお、Srの移行係数は乾燥重量換算で0.32~1.2 (2019年度値)であり、文献⁸⁾⁻¹⁰⁾の0.28~0.94と同程度であった。

(2) Srと Sr-90の移行係数の違い

Srと Sr-90は、化学的挙動は同様と考えられるが、今回、移行係数が異なる結果となった。この原因は土壤中での存在形態が異なるためと考え検討を行った。

表 4 土壌から白菜への移行係数

採取年度	採取地点	採取場所	深度	単位面積 当たりの 採取重量 (kg 乾土 / m ²)	土壌					
					Ca (g/kg 乾土)	Sr (g/kg 乾土)	Sr-90 (Bq/kg 乾土)	重み付き濃度		
								Ca (g/kg 乾土)	Sr (g/kg 乾土)	Sr-90 (Bq/kg 乾土)
2019	百浦	畝	表層 0~5cm	46.1	1.7	0.030	0.18	1.8	0.031	0.22
			下層 5~25cm	203.7	1.8	0.031	0.23			
2019	直海	畝	表層 0~5cm	53.8	0.93	0.0076	0.11	1.0	0.0068	0.17
			下層 5~25cm	226.5	1.1	0.0075	0.19			
2019	福浦港	畝	表層 0~5cm	54.8	23	0.050	0.49	17	0.046	0.58
			下層 5~25cm	228.4	16	0.045	0.60			

採取年度	採取地点	白菜 (生重量換算)					
		Ca (g/kg 生)	Sr (g/kg 生)	Sr-90 (Bq/kg 生)	移行係数 (土壌⇒白菜)		
					Ca	Sr	Sr-90
2019	百浦	1.0	0.0017	0.11	0.58	0.054	0.50
2018*	直海	0.31	0.00062	0.017	0.31	0.092	0.10
2019	直海	0.23	0.00039	ND (0.004 ± 0.003)	0.23	0.057	--
2019	福浦港	0.62	0.00058	0.019	0.035	0.013	0.033

採取年度	採取地点	白菜 (乾燥重量換算)					
		Ca (g/kg 乾)	Sr (g/kg 乾)	Sr-90 (Bq/kg 乾)	移行係数 (土壌⇒白菜)		
					Ca	Sr	Sr-90
2019	百浦	19	0.031	2.0	11	1.0	9.2
2018*	直海	5.5	0.011	0.29	5.3	1.6	1.7
2019	直海	4.9	0.008	ND (0.08 ± 0.06)	4.8	1.2	--
2019	福浦港	15	0.015	0.48	0.88	0.32	0.82

※ 2019 年度採取の土壌の結果を利用

土壌から植物への物質の移行については、植物に吸収されやすい形態、つまり土壌中で水により溶出しやすいもの（以下、「可給態」という。）及び吸収されにくい形態、つまり水により溶出しにくい土壌中の鉱物の一部など（以下、「非可給態」という。）が存在し、その存在割合は土壌の pH などにより変動すると言われている¹¹⁾¹²⁾。このことから、土壌中の Sr については、可給態と非可給態が混在しているものと考えられる。

一方、Sr-90 については、過去の核爆発実験によるフォールアウト起源であり、沈着後の時間の経過によっても存在形態の割合に大きな変化はなく、植物への移行率の変化も少ないとされていること¹³⁾や、土壌中で地下

浸透しやすい¹⁴⁾ことから、ほとんどが可給態として存在しているものと考えられる。

土壌から白菜への移行に関係するのは土壌中の可給態の Sr と Sr-90 であり、両者の白菜への移行係数は同じになると考えられるが、実際には異なる結果となった。このことについて、分析方法から検討を行った。

土壌中の Sr 及び Sr-90 を分析する際には、図 3 の分析方法に示す前処理操作（① 500℃ で 5 時間の加熱、② 加熱後に濃塩酸による抽出）を行っている。この操作によって土壌中に非可給態として存在する Sr の一部の化学形や存在形態が変化し可給態となり、可給態濃度が実際よりも大きくなったため、Sr の移行係数が小さくなった

ものと考えられた。このため、Sr と Sr-90 で移行係数が異なってきたものと思われた。

(3) 可給態と非可給態

土壌中の可給態と非可給態の割合について、内田ら¹¹⁾が用いた「比放射能をキーパラメータとする修正モデル」¹¹⁾に検討を加えた以下の方法により求めた。

$$\begin{aligned} \text{土壌中 Sr 比放射能} &= \frac{\text{土壌中 Sr-90}}{\text{土壌中 Sr}} \\ &= \frac{\text{非可給態 Sr-90} + \text{可給態 Sr-90}}{\text{非可給態 Sr} + \text{可給態 Sr}} = \mathbf{A} \end{aligned} \quad \dots \textcircled{1}$$

白菜中の Sr や Sr-90 は土壌から移行したものであり、可給態と考えられる。このことを踏まえ、白菜中 Sr 比放射能は次のとおり表される。

$$\begin{aligned} \text{白菜中 Sr 比放射能} &= \frac{\text{白菜中 Sr-90}}{\text{白菜中 Sr}} \\ &= \frac{\text{可給態 Sr-90}}{\text{可給態 Sr}} = \mathbf{B} \end{aligned} \quad \dots \textcircled{2}$$

白菜中 Sr 比放射能は土壌中の可給態 Sr の比放射能と同じであり、文献^{11) 12)}より土壌中 Sr-90 はほとんどが可給態であると仮定 (土壌中非可給態 Sr-90 ≒ 0) し、①②の式から土壌中可給態 Sr の割合を以下により求めた。

$$\begin{aligned} \text{非可給態 Sr} &= \frac{\mathbf{B} - \mathbf{A}}{\mathbf{A}} \times \text{可給態 Sr} \\ \text{土壌中 Sr} &= \text{非可給態 Sr} + \text{可給態 Sr} \\ &= \frac{\mathbf{B}}{\mathbf{A}} \times \text{可給態 Sr} \\ \text{土壌中可給態 Sr の割合} &= \frac{\text{可給態 Sr}}{\text{土壌中 Sr}} = \frac{\mathbf{A}}{\mathbf{B}} \end{aligned}$$

表5にSr比放射能並びにこの式より求めた土壌中の可給態Sr、非可給態Srの割合及び量、可給態Srの白菜への移行係数を示す。

土壌中の可給態Sr濃度は福浦港>直海>百浦で、白菜中Sr濃度は表4に示すとおり百浦>直海≒福浦港である。一方、表5に示すように可給態Srの移行係数は百浦>直海>福浦港となっており、土壌中濃度の低い方が白菜中濃度が高く、移行係数が大きくなっている。

白菜中のSr濃度は土壌中の可給態Srの濃度と移行係数の積であり、今回調査を行った3地点の土壌中の可給態Srの濃度幅が5倍程度、移行係数の幅が15倍程度であるのに対し、白菜中のSrの濃度幅は3倍程度と小さい幅であった。図5に見られるように白菜中Sr濃度は平均0.0009g/kg生(0.0003~0.0018g/kg生)であり、ばらつきが少ないことを踏まえると、植物としてSrの取り込み量に上限があり、このことが4・1(1)で土壌中Ca濃度が高い福浦港と土壌中Ca及びSr濃度が低い直海とで白菜中のSr濃度が同程度になった原因ではないかと考えられた。

百浦は土壌中の可給態Sr濃度が3地点で最も低いことから、2018年度の百浦の白菜のSr濃度が高くなった原因は移行係数が他の地点に比べ大きかったと考えられるが、今回の調査で原因の解明には至らなかった。

4・2 Sr比放射能が高くなった原因

白菜中のSr比放射能は、表5にあるように百浦>福浦港≒直海であった。この比放射能は土壌中の可給態Srの比放射能を反映したものである。土壌中の可給態Srの比放射能が高くなるのは、①土壌中の可給態Sr濃度が低い(比放射能の分母)、②土壌中Sr-90濃度が高いため(比放射能の分子)の2とおりが考えられる。

①の土壌中の可給態Sr濃度については、前項にあるように福浦港>直海>百浦となっており、百浦が3地点では最も低くなっている。

②の土壌中Sr-90については、フォールアウトとして降下したSr-90が地下へ浸透していく中で、表3に見られるような下層で濃度が高くなる可能性がある。

表 5 土壌中 Sr の非可給態・可給態の割合及び白菜への移行係数

採取地点	土壌中 Sr 比放射能 (Bq/g)	白菜中 Sr 比放射能 (Bq/g)	土壌中割合		土壌			白菜	
	A	B	非可給態 Sr 1-A/B	可給態 Sr A/B	Sr (g/kg 乾土) ※表4再掲	非可給態 Sr (g/kg 乾土)	可給態 Sr (g/kg 乾土)	Sr (g/kg 生) ※表4再掲	可給態 Sr の 土壌から白菜 への移行係数
百浦	7.1	64	0.89	0.11	0.031	0.028	0.0034	0.0017	0.50
直海*	25	27	0.06	0.94	0.0068	0.00040	0.0064	0.00062	0.10
福浦港	13	33	0.61	0.39	0.046	0.028	0.018	0.00058	0.033

*直海の白菜は2018年度の結果を使用。

このような理由から2018年度の百浦では、土壌中のある深度において高いSr比放射能が存在し、その土壌を用いて白菜の生育土壌である畝が作られれば白菜中のSr比放射能が高くなることもあり得ると考えられた。

5 ま と め

2018年11月、百浦で採取した白菜から過去の調査結果を超過するSr-90が検出されたため、原因調査を行った。

- (1) 白菜中Sr-90濃度は白菜中Sr濃度及びSr比放射能の積で表される。2018年度に採取した百浦の白菜は他の地点及び年度に比べSr濃度及びSr比放射能が高かった。
- (2) Sr濃度が高かった原因は土壌から白菜への移行係数が大きかったためである。今回の調査において移行係数が大きくなった原因の解明には至らなかった。
- (3) Sr比放射能が高かった原因はフォールアウトとして降下したSr-90が地下へ浸透していく中でSr比放射能が高い深度が存在し、その土壌を用いて畝が作られれば白菜のSr比放射能が高くなることもあり得ると考えられた。

文 献

- 1) 石川県：志賀原子力発電所周辺環境放射線監視年度計画（平成2年度～令和3年度）
- 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（平成2年度～令和3年度）
- 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，改訂12版，丸善（2020）
- 4) 文部科学省：環境試料採取法，放射能測定法シリーズ16（昭和58年7月）
- 5) 文部科学省：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，放射能測定法シリーズ13（昭和57年12月）
- 6) 文部科学省：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年改訂）
- 7) 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2022-04-01)
- 8) Shigeo UCHIDA, Keiko TAGAMI and Ikuko HIRAI: Soil-to-Plant Transfer Factors of Stable Elements and Naturally Occurring Radionuclides (1) Upland Field Crops Collected in Japan, *J.Nucl. Sci.Tecnol.*, **44**, 628-640 (2007)
- 9) T.Ban-nai, Y.Muramatsu, K.Yanagisawa: Transfer factors of some selected radionuclides from soil to leave vegetables, *J.Radiat. Res.*, **36**, 143-154 (1995)
- 10) H.Tsukada, Y.Nakamura: Transfer factors of 31 elements in several agricultural plants collected from 150 farm fields in Aomori, Japan, *J.Radioanal. Nucl.Chem.*, **236**, 123-131 (1998)
- 11) 内田滋夫, 大桃洋一郎, 鎌田博, 佐伯誠道: 土壌から農作物への放射性核種の移行に関する計算モデル, *日本原子力学会誌*, **26**, 11, 935-941 (1984)
- 12) 内田滋夫, 鎌田博, 横須賀節子, 大桃洋一郎: 移行係数(土壌-農作物)の変動について, *保健物理*, **22**, 511-522 (1987)
- 13) 塚田祥文, 山口紀子, 高橋知之: 土壌-作物系における放射性セシウムおよび放射性ストロンチウムの動態, *化学と生物*, **49**, 12, 834-842 (2011)
- 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)

〔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4報）

- 降水量と降下量 -

石川県保健環境センター 環境科学部 内田 賢吾・鳥屋子やまと・岡田 真規子
石川県危機管理監室 消防保安課 井上 和幸

〔和文要旨〕

当センターの屋上で採取した降下物中のベリリウム-7及び鉛-210と降水量との関係を検討した。その結果，降水量が増加すると降下量が増加する10月～2月，降水量が増加しても降下量が増加しない6月～9月，降水量及び降下量の相関が低い3月～5月の3グループに分けられた。特に6月～9月は降水量と降水中濃度の関係から降水量が増加しても降下量は増加しないことが分かった。

3～4日間の短期間の調査結果から，降水量が少ない場合に降水中濃度が高くなり，降水量が多い場合に降水中濃度が低くなる傾向が見られた。この原因は雨滴が少ない時は雨滴が多い時よりも1滴当たりの大気浮遊じんの取り込み割合が多くなるためと考えられた。

キーワード：降下物，降水量，ベリリウム-7，鉛-210，乾性沈着，湿性沈着

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，1990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」として，また，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⁾。

加えて，2018年度から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に着目し，その変動と挙動について解析・調査を行っている。

第1報³⁾では，降下物及び大気浮遊じんの測定結果より，「降下物中のベリリウム-7及び鉛-210の降下量は12月～2月に多い。」「大気浮遊じん中のベリリウム-7

及び鉛-210の濃度は2月～3月，10月～11月に高い。」「この原因は日本列島に影響を与えている気団や季節風の影響によると考えられる。」ことを報告した。

第2報⁴⁾では，数時間の降下物及び大気浮遊じんの調査結果から，降水，前線の通過，空気塊の動き等の気象状況の変化が降下物中及び大気浮遊じん中のベリリウム-7及び鉛-210の濃度に与える影響について考察した。

第3報⁵⁾では，3～4日間毎に採取した降下物及び大気浮遊じんの調査結果のうち，降水が観測されなかった期間の沈着量をもとに，降下物中の乾性沈着量及び湿性沈着量の割合を検討した。

本報では，第1報³⁾において降水量が増加すると降下量が増加する時期と増加が見られない（又は少ない）時期があると報告しているが，この原因を調査するため，3～4日間毎の降水量とベリリウム-7及び鉛-210の降下量の調査結果を用いて検討を行ったので報告する。

Variation and Behavior of Beryllium-7 and Lead-210 in Fallout and Airborne Dust(4th.Report) - Precipitation Amount and Fallout -. by UCHIDA Kengo, TOYANAGO Yamato and OKADA Makiko (Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science) and INOUE Kazuyuki (Fire Fighting and Public Safety Division, Office of the Superintendent for Crisis Management, Ishikawa Prefecture)

Key words : Fallout, Precipitation Amount, Beryllium-7, Lead-210, Dry Deposition, Wet Deposition

表1 月毎の降水量と降下量 (2020年度～2021年度)

月	試料採取期間数	ベリリウム-7						鉛-210						
		降水量 (mm/月)	試料採取期間の1時間当たりの降下量 平均値 (最小～最大) (Bq/m ² /h)				降下量 (Bq/m ² /月)		試料採取期間の1時間当たりの降下量 平均値 (最小～最大) (Bq/m ² /h)				降下量 (Bq/m ² /月)	
			降下量 (Bq/m ² /月)	試料採取期間降水量=0mm [乾性沈着]	試料採取期間降水量≥0.5mm [乾性沈着+湿性沈着]	試料採取期間降水量=0mm [乾性沈着]	試料採取期間降水量≥0.5mm [乾性沈着+湿性沈着]	試料採取期間降水量=0mm [乾性沈着]	試料採取期間降水量≥0.5mm [乾性沈着+湿性沈着]	試料採取期間降水量=0mm [乾性沈着]	試料採取期間降水量≥0.5mm [乾性沈着+湿性沈着]	試料採取期間降水量=0mm [乾性沈着]	試料採取期間降水量≥0.5mm [乾性沈着+湿性沈着]	
4	17	163.0	472	0.008	(0.003～0.014)	0.94	(0.06～2.77)	43.2	0.003	(0.001～0.007)	0.084	(0.009～0.222)		
5	17	78.0	195	0.024	(0.010～0.064)	0.35	(0.07～0.91)	26.2	0.005	(0.004～0.007)	0.046	(0.006～0.114)		
6	17	213.0	237	0.010	(0.005～0.015)	0.42	(0.09～1.10)	26.8	0.004	(0.004～0.004)	0.047	(0.004～0.117)		
7	18	197.8	239	0.009	(0.000～0.027)	0.41	(0.00～0.80)	27.1	0.002	(0.000～0.004)	0.046	(0.000～0.105)		
8	18	222.0	159	0.004	(0.000～0.011)	0.26	(0.03～0.81)	21.2	0.003	(0.000～0.007)	0.033	(0.006～0.094)		
9	16	146.5	183	0.007	※8月と10月の平均値を使用	0.30	(0.03～0.69)	20.8	0.002	(0.002～0.002)	0.033	(0.005～0.068)		
10	18	107.5	278	0.010	(0.000～0.024)	0.47	(0.04～2.54)	35.8	0.003	(0.000～0.005)	0.060	(0.005～0.343)		
11	18	252.3	950	0.013	(0.013～0.013)	1.26	(0.05～6.65)	128.4	0.003	(0.003～0.003)	0.174	(0.007～0.760)		
12	17	254.3	1,093	0.013	※11月の平均値を使用	1.56	(0.55～3.25)	168.6	0.003	※11月の平均値を使用	0.243	(0.055～0.539)		
1	18	243.5	953	0.013	※2月の平均値を使用	1.26	(0.21～2.53)	156.8	0.005	※2月の平均値を使用	0.203	(0.032～0.553)		
2	16	179.3	760	0.013	(0.009～0.018)	1.23	(0.10～4.09)	162.0	0.005	(0.004～0.005)	0.266	(0.006～0.718)		
3	17	91.0	277	0.012	(0.006～0.023)	0.50	(0.11～1.25)	42.3	0.006	(0.003～0.011)	0.076	(0.006～0.207)		

2 調査方法

2・1 調査対象

(1) 降下物

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。

(2) 降水量

降水量は、当センター屋上に設置されている気象観測装置（光進電気工業製）の観測データを用いた。

2・2 調査期間

2020年4月3日から2022年4月1日までの期間に週2回（主に、月曜から金曜と、金曜から月曜まで（以下、「試料採取期間」という。））採取を行った。

2・3 測定方法

(1) 試料の調製

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、乾固し、測定試料とした。

(2) 放射能分析（ガンマ線核種分析）

ガンマ線核種分析の方法は、放射能測定法シリーズ⁶⁾に準じた方法とし、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可能）を用い、測定時間は80,000秒とした。（検出状況によっては最大400,000秒の長時間測定を実施した。）

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の補正を行った。

3 結果と考察

3・1 降水量及び降下物

降水量とベリリウム-7及び鉛-210の降下量の調査結果を月毎にとりまとめ、表1に示す。

降水量は6月～8月、11月～1月に多かった。ベリリウム-7及び鉛-210の降下量は11月～2月に多かった。この傾向は、第1報³⁾と同じであった。

降水量と試料採取期間の1時間当たりの降下量の推移を図1に示す。図から11月～3月は降水量の増加に伴って降下量が増加し、一方、4月～10月は降水量が増加しても降下量が増加しない傾向が見られた。この傾向は

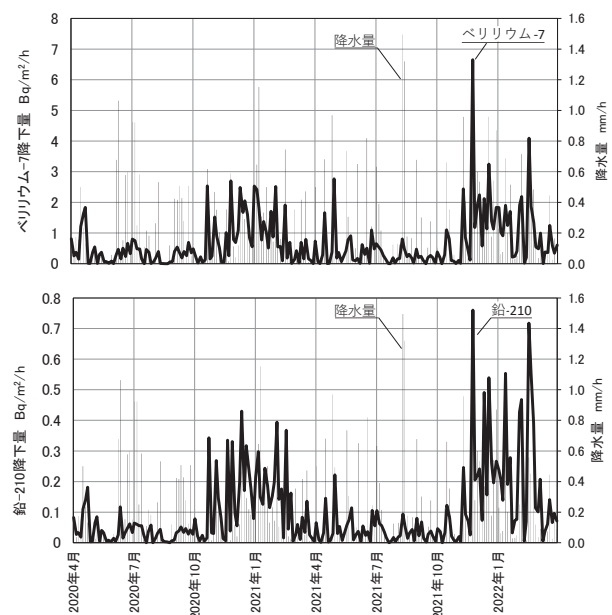


図1 降水量と降下量の推移 (2020年4月～2022年3月)

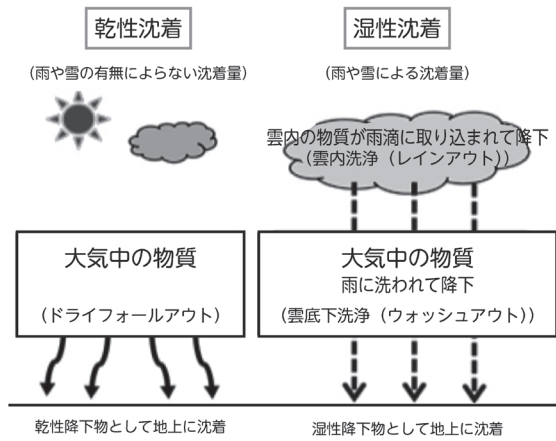


図 2 乾性沈着と湿性沈着

2021 年度の方がより顕著であった。

表 1 及び図 1 から、調査期間中の降水量と降下量は概ね例年と同様の変動状況となっており、特異な気象状況ではなかったと考えられた。

3・2 降水量と湿性沈着量

大気中の粒子が地表面に沈着するモデルを図 2 に示す。沈着には、物質が降水を介さずにガス状又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⁷⁾、それぞれの量を「乾性沈着量」、「湿性沈着量」という。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「ウオッシュアウト」に分類される⁸⁾⁻¹⁰⁾。

本報では、降水量と降下量の関係について検討を行うため、湿性沈着量のデータが必要であることから、全降下量から乾性沈着量を差し引いて、湿性沈着量を求め、検討を行った。

(1) 乾性沈着量の算出

乾性沈着量は第 3 報⁵⁾と同様に降水量が無かった期間(期間降水量 0mm)を対象に、試料採取期間の 1 時間当たりの降下量を求め、月毎の平均値を求めた。求めた結果を表 1 に示す。乾性沈着量は沈着量が少ないため、長時間測定を行っても不検出となる場合があった。また、平均値を求める際には不検出となった試料は降下量をゼロとして計算した。なお、期間中降水量 0mm が観測されなかった月は 12 月と 1 月であるが、12 月は 11 月の平均値を、1 月は 2 月の平均値を用いた。9 月は期間降水量 0mm が 1 回あったものの、ベリリウム-7 及び鉛-210 は不検出であったため、乾性沈着量は 8 月と 10 月の平均値を用いることとした。

(2) 湿性沈着量の算出

湿性沈着量は全降下量から(1)で求めた乾性沈着量を差し引いて求めた。求めた湿性沈着量を月毎に表 2 に示す。

表 2 月別の湿性沈着量

月	試料採取期間数	降水量		ベリリウム-7 湿性沈着量		鉛-210 湿性沈着量	
		平均値 (最小~最大)	(mm/h)	平均値 (最小~最大)	(Bq/m ² /h)	平均値 (最小~最大)	(Bq/m ² /h)
4	13	0.31	(0.01~0.97)	0.93	(0.06~2.76)	0.081	(0.006~0.219)
5	13	0.14	(0.01~0.73)	0.33	(0.04~0.89)	0.041	(0.001~0.109)
6	14	0.38	(0.06~1.06)	0.41	(0.08~1.09)	0.043	(0.011~0.113)
7	14	0.34	(0.02~0.92)	0.43	(0.14~0.80)	0.048	(0.015~0.103)
8	14	0.37	(0.01~1.50)	0.25	(0.02~0.80)	0.030	(0.002~0.090)
9	15	0.24	(0.01~0.51)	0.29	(0.02~0.69)	0.031	(0.003~0.066)
10	15	0.18	(0.01~0.66)	0.46	(0.03~2.53)	0.057	(0.002~0.340)
11	17	0.34	(0.01~1.31)	1.25	(0.04~6.64)	0.171	(0.003~0.757)
12	17	0.36	(0.04~0.96)	1.55	(0.54~3.24)	0.239	(0.052~0.536)
1	18	0.32	(0.03~1.15)	1.24	(0.20~2.52)	0.199	(0.028~0.549)
2	14	0.30	(0.01~0.75)	1.22	(0.08~4.08)	0.261	(0.011~0.713)
3	14	0.17	(0.01~0.47)	0.49	(0.10~1.24)	0.069	(0.010~0.201)

各月の試料採取期間数は 13~18 あり、1 時間当たりの降水量は 0.01~1.50mm/h、ベリリウム-7 の 1 時間当たりの降下量は 0.02~6.64Bq/m²/h、鉛-210 の 1 時間当たりの降下量は 0.001~0.757Bq/m²/h であった。

(3) 降水量と湿性沈着量の関係

表 1 の降水量と降下量については月毎に傾向が見られることから、月毎の降水量と湿性沈着量の散布図を作成し、近似式の傾き及び相関係数を求めた。得られた近似式の傾き及び相関係数の状況から①降水量が多く、傾きが大きく、相関が高い 10 月~2 月のグループ、②降水量が少なく、傾きが中程度、相関が低い 3 月~5 月のグループ、③降水量が多く、傾きが小さく、相関が高い 6 月~9 月のグループに分類することができた。3 グループに分類

表 3 降水量と湿性沈着量の散布図から求めた近似式の傾き及び相関係数

月	降水量 mm/h	ベリリウム-7		鉛-210		グループ
		傾き	相関係数	傾き	相関係数	
4	0.31	2.02	0.694	0.170	0.679	②3月~5月のグループ 降水量:少 傾き:中 相関:低
5	0.14	1.19	0.667	0.145	0.654	
6	0.38	0.64	0.663	0.083	0.790	
7	0.34	0.97	0.944	0.100	0.871	③6月~9月のグループ 降水量:多 傾き:小 相関:高
8	0.37	0.52	0.933	0.061	0.902	
9	0.24	1.02	0.905	0.104	0.900	
10	0.18	2.51	0.889	0.309	0.848	①10月~2月のグループ 降水量:多 傾き:大 相関:高
11	0.34	3.90	0.957	0.478	0.942	
12	0.36	3.58	0.918	0.556	0.885	
1	0.32	2.86	0.859	0.429	0.783	
2	0.30	3.82	0.908	0.788	0.924	
3	0.17	1.98	0.791	0.270	0.735	

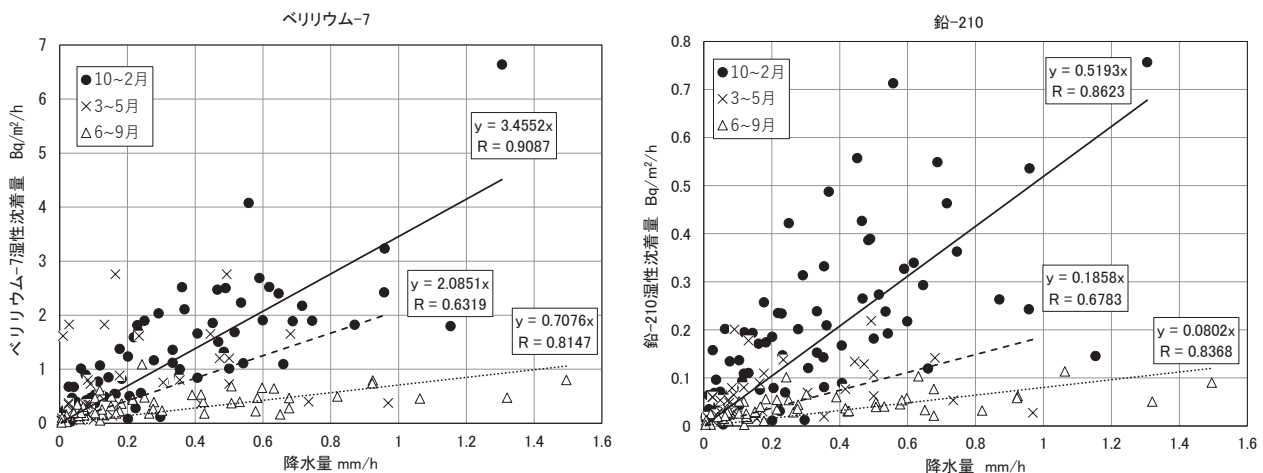


図3 降水量と湿性沈着量の散布図

した降水量と湿性沈着量の散布図を図3に示す。

図から、①10月～2月は降水量が増加すると湿性沈着量が増加するグループ、②3月～5月は降水量及び湿性沈着量とも少なく、分布のばらつきが大きい（相関が低い）グループ、③6月～9月は降水量が増加しても湿性沈着量が増加しないグループに分けられた。

西尾ら¹¹⁾は降水量とベリリウム-7及び鉛-210の降下量について熊本県で観測を行い、10月～4月、5月～9月の2グループに分け比較を行っている。また、中村ら⁹⁾は降水量と硫酸イオン、硝酸イオンの湿性沈着量について寒候期として11月～2月、暖候期として5月～8月の2グループに分け比較を行っている。調査対象物質や調査地点の違いによって、グループ分けは異なるものと考えられた。

(4) 降水量が増加しても降下量の増加が見られない原因

降水量と湿性沈着量について、月毎の傾向が把握できたことから、これをもとに、6月～9月の降水量が増加しても降下量の増加が見られない原因について検討した。ここでは降水と関係する降下量として湿性沈着量を用いた。

表3では降水量(mm/h)に対する湿性沈着量(Bq/m²/h)から近似式を求め、得られた傾きを示したが、この傾きは降水中濃度(Bq/L)を表している。

表3から6月～9月は他の月に比べ傾きが小さく、すなわち降水中濃度が低いため、降水量が増加しても降下量があまり増加しない。加えて、6月、8月は7月、9月に比べ降水中濃度が2～5割程度低くなっている。一方、降水量は6月、8月が7月、9月に比べ1～5割程度高くなっている。降下量は降水量と降水中濃度の積により算出されるが、

6月、8月 降水量 多 × 降水中濃度 低

7月、9月 降水量 少 × 降水中濃度 高

であるため、6月～9月は結果的に同程度の降下量となっ

たと考えられた。

一方、10月～2月は降水中濃度がほぼ一定であることから、降水量の増加に伴い降下量が増加したものと考えられた。

(5) 降水量に対する降水中濃度

(3)で月毎に降水量と湿性沈着量の散布図を作成した際に、同一月内で相関性が高く傾き(降水中濃度)がほぼ一定な月と、同一月内でも降水量の多少により傾き(降水中濃度)が異なる月があった。両者の代表的な散布図の例を図4に示す。

降水量と降水中濃度の関係調べるため、降水量に対する試料採取期間(3～4日間)毎の降水中濃度(降下量/降水量)を図5に示す。図5は(3)で検討した3グループに分類し示している。

図5からいずれのグループにおいても試料採取期間の降水量が少ないほど降水中濃度が高くなる傾向となり、逆に降水量が多いほど降水中濃度が低くなる傾向となった。

この原因は、降水量が少ない、すなわち雨滴が少ない時は雨滴が多い時よりも雨滴1滴当たりの大気浮遊じんの取り込み割合が多くなるためであると考えられた。

グループ別に比較すると、10月～2月は他の2グループに比べ降水量が少ないとき特に顕著に濃度が高くなった。また、3月～5月はベリリウム-7と鉛-210と比較すると、ベリリウム-7の濃度が高め、鉛-210が低めとなり、異なる傾向を示した。6月～9月は他の2グループに比べ、濃度が低い傾向であった。これらの原因は第1報³⁾で報告した日本列島に影響を与えている気団や季節風の影響によるものと考えられた。

4 まとめ

当センター屋上において、2020年4月3日～2022年4月1日、降下物を週2回採取し、降水量とベリリウム-7

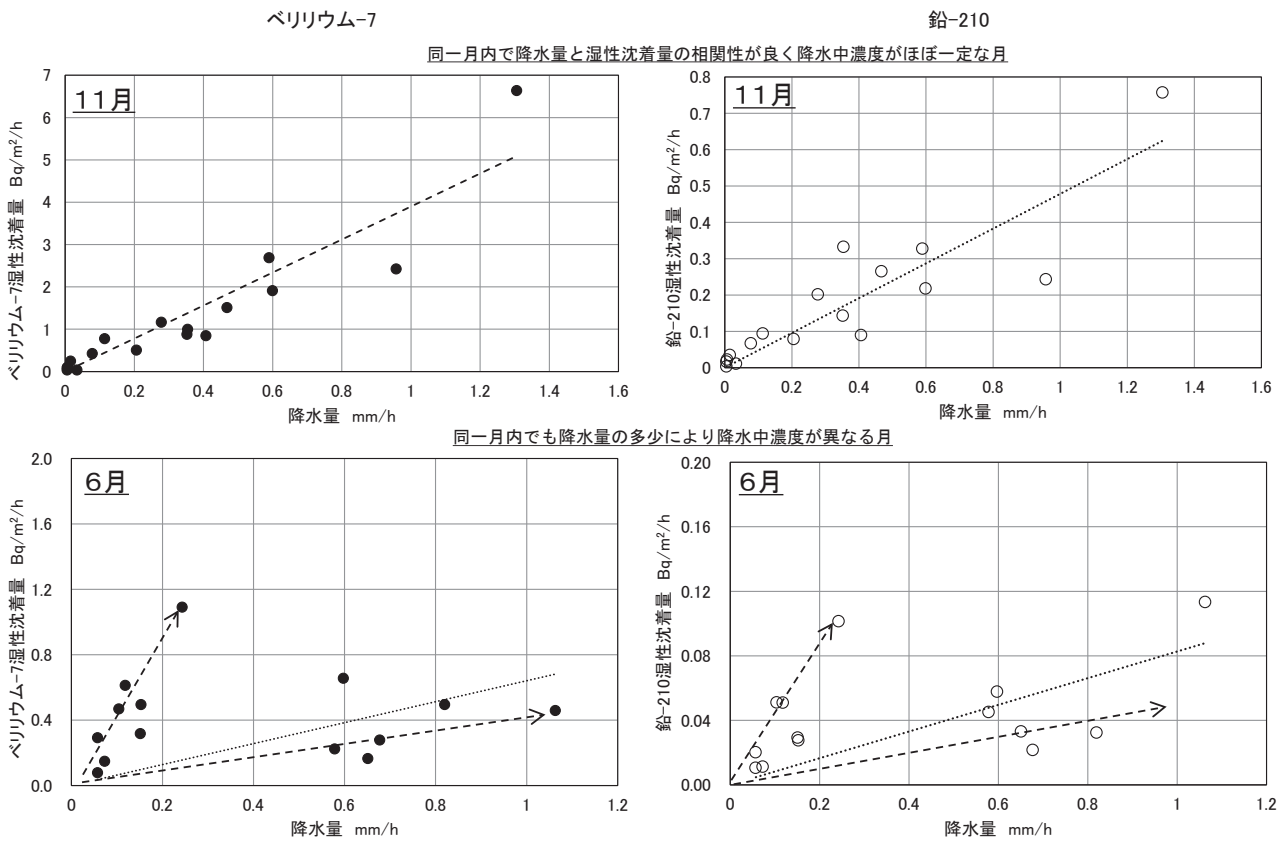


図 4 降水量と湿性沈着量の散布図

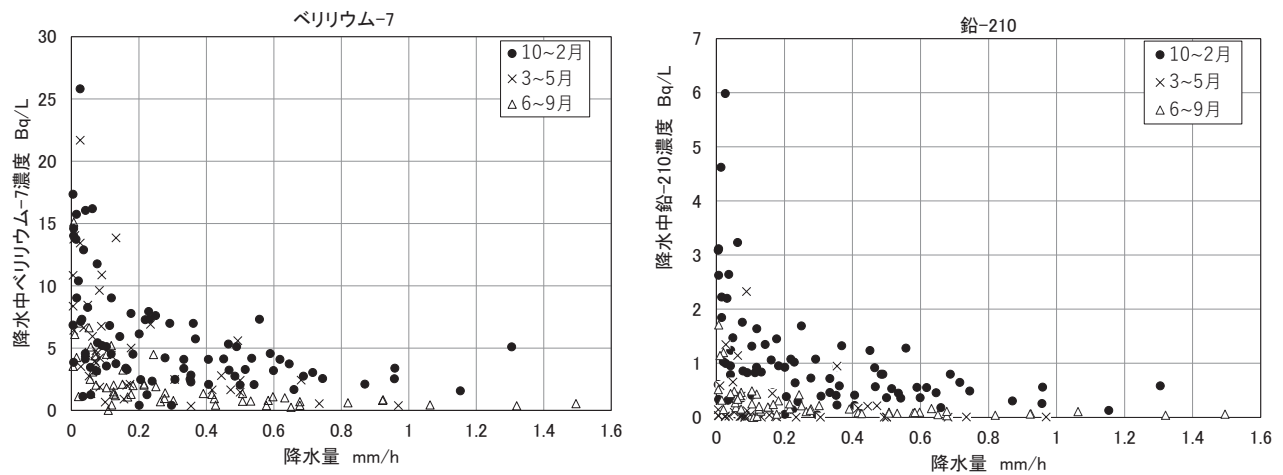


図 5 降水量に対する降水中濃度

と鉛-210の降下量（湿性沈着量）の関係を検討し、以下の結果を得た。

- (1) 降水量に対する降下量との関係から、降水量が増加すると降下量が増加する10月～2月、降水量が増加しても降下量が増加しない6月～9月、降水量と降下量の相関が低い3月～5月の3グループに分けられた。
- (2) 6月～9月の降水量が増加しても降下量が増加しない原因は降水中濃度が低いため、降水量が増加しても降下量が増加しないことに加え、6月、8月は

降水量は多いが降水中濃度は低く、7月、9月は降水量は少ないが降水中濃度は高いため結果的に同程度の降下量となったと考えられた。

- (3) 3～4日間の短期間の調査結果から、降水量が少ない場合に降水中濃度が高くなり、降水量が多い場合に降水中濃度が低くなる傾向が見られた。この原因は、雨滴が少ない時は雨滴が多い時よりも雨滴1滴当たりの大気浮遊じんの取り込み割合が多くなるためと考えられた。

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2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2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) 井上和幸, 鳥屋子やまと, 岡田真規子, 内田賢吾: 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), 石川県保健環境センター研究報告書, **58**, 43-51 (2021)
- 6) 原子力規制庁: ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー, 放射能測定法シリーズ7(平成2年改訂)
- 7) 笠原三紀夫: 大気汚染物質の乾性, 湿性沈着, 環境技術, **12**(12), 35-42 (1983)
- 8) 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)
- 9) 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)
- 10) 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)
- 11) 西尾宗馬, 草野祐也, 百島則幸: 熊本市におけるBe-7及びPb-210の季節変化と除去過程について, Proceedings of the Fourth Workshop on Environmental Radioactivity, 95-100 (2003)

〔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（2021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・児玉 洋江
石川県南加賀保健福祉センター 谷村 睦美

〔和文要旨〕

2021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。22株のうちカルバペネマーゼ産生株は1株で、*bla*_{IMP-6}を保有する*Escherichia coli*であった。CREとして報告の多い*Klebsiella aerogenes*からIMP型遺伝子は検出されなかったことから、菌種によるカルバペネマーゼ遺伝子の保有率の違いが示唆され、今後もカルバペネマーゼ遺伝子保有状況やその推移を注視する必要がある。

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、2021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菌（*Enterobacterales*）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。

Prevalence of Carbapenem-resistant *Enterobacteriaceae* Infections in Ishikawa Prefecture from April 2021 to March 2022. by SHIROZA Mika, KODAMA Hiroe (Health and Food Safety Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science), TANIMURA Mutsumi (Minami Kaga Health and Welfare Center of Ishikawa Prefecture)

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

2 材料と方法

2・1 CRE 感染症の発生状況

2021年4月～2022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22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⁴⁾（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⁴⁾、阻害試験アにおいて、APBで阻害が認められた株を対象とし、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陽性となった株を対象とした。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

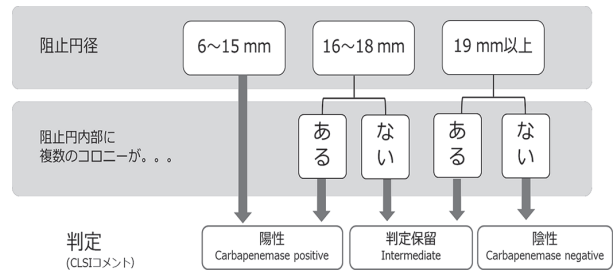


図1 mCIM判定基準

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）

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、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。

(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

(4)にてIMP-1型MBL遺伝子を検出した株について、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

2021年4月～2022年3月の期間に届出があった22事例について表1に示す。

症状別では、肺炎のみが11例、尿路感染症のみが5例、菌血症、尿路感染症・菌血症、尿路感染症・肺炎がそれぞれ1例、その他が3例だった。分離検体別では、喀痰が10例、血液が4例、尿が4例、膿が2例、耳漏、血液・喀痰がそれぞれ1例だった。菌種別では、*K. aerogenes*が17例（77.3%）、*Enterobacter cloacae*（以下、*E. cloacae*）が3例（13.6%）、*Citrobacter braakii*、*Escherichia coli*（以下、*E. coli*）がそれぞれ1例（4.5%）であった。

3・2 CRE の検査

検査の結果について表1に示す。事例番号9については、菌株の搬入がなかったため、検査が実施できず、供試菌株数は21株であった。

(1) 阻害試験

事例番号10において、SMAのみで阻害が認められた。残りの20株については、APBとSMAいずれにおいても阻害は認められなかった。

なお、APBで阻害が認められた株がなかったことから、阻害試験イは実施しなかった。

(2) mCIM

陽性は1株（事例番号10）であり、カルバペネマーゼ産生が示唆された。

表1 CRE感染症発生状況及び検査結果(2021年度)

事例番号	菌種名	症状	検体	阻害試験*	mCIM	CarbaNPテスト	カルバペネマーゼ遺伝子	備考
1	<i>Citrobacter braakii</i>	尿路感染症	血液	-	-	n.t.	-	
2	<i>Enterobacter cloacae</i>	肺炎	喀痰	-	-	n.t.	-	
3	<i>Klebsiella aerogenes</i>	尿路感染症、菌血症	血液	-	-	n.t.	-	
4	<i>Klebsiella aerogenes</i>	肺炎	喀痰	-	-	n.t.	-	
5	<i>Klebsiella aerogenes</i>	その他	膿	-	-	n.t.	-	
6	<i>Klebsiella aerogenes</i>	肺炎	喀痰	-	-	n.t.	-	
7	<i>Klebsiella aerogenes</i>	肺炎	血液、喀痰	-	-	n.t.	-	
8	<i>Klebsiella aerogenes</i>	尿路感染症	尿	-	-	n.t.	-	
9	<i>Klebsiella aerogenes</i>	肺炎	喀痰	実施なし	実施なし	実施なし	実施なし	搬入なし
10	<i>Escherichia coli</i>	肺炎	喀痰	SMA	+	+	<i>bla</i> _{IMP-6}	
11	<i>Enterobacter cloacae</i>	肺炎	喀痰	-	-	n.t.	-	
12	<i>Klebsiella aerogenes</i>	尿路感染症	尿	-	-	n.t.	-	
13	<i>Klebsiella aerogenes</i>	その他	耳漏	-	-	n.t.	-	
14	<i>Klebsiella aerogenes</i>	肺炎	喀痰	-	-	n.t.	-	
15	<i>Klebsiella aerogenes</i>	菌血症	血液	-	-	n.t.	-	
16	<i>Klebsiella aerogenes</i>	尿路感染症	尿	-	-	n.t.	-	
17	<i>Klebsiella aerogenes</i>	尿路感染症、肺炎	喀痰	-	-	n.t.	-	
18	<i>Klebsiella aerogenes</i>	肺炎	喀痰	-	-	n.t.	-	
19	<i>Enterobacter cloacae</i>	その他	膿	-	-	n.t.	-	
20	<i>Klebsiella aerogenes</i>	肺炎	喀痰	-	-	n.t.	-	
21	<i>Klebsiella aerogenes</i>	尿路感染症	尿	-	-	n.t.	-	
22	<i>Klebsiella aerogenes</i>	肺炎	血液	-	-	n.t.	-	

+ : 陽性, - : 陰性, n.t. : 未実施

※ : 阻害試験にて陽性と判定したのものについてその阻害剤名を記載

残りの20株については、全て陰性であった。

(3) Carba NPテスト

mCIMが陽性であった事例番号10のCarba NPテストは陽性であった。事例番号10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る。

(4) PCR法によるカルバペネマーゼ遺伝子の検出

事例番号10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7種のカルバペネマーゼ遺伝子は検出されなかった。

(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型が検出された事例番号10についてシークエンス解析を行ったところ、*bla*_{IMP-6}であった。

4 考 察

2021年度におけるCRE感染症の届出数は22事例で、2020年度(21事例)⁵⁾、2019年度(21事例)⁶⁾とほぼ同様であった。また、*K. aerogenes*を起因菌とする事例の割合は77.3%と最も多く、国内病原体サーベイランスの報告⁷⁾⁸⁾(以下、国内の報告)(2018年:37.5%, 2019年:40.7%)よりも高かった。

2021年度はCPEの検出が1事例あり、CREとして搬入された菌株中のCPEの割合は4.8%で国内の報告(2018年:17.6%, 2019年:16.5%)に比べ低かった。

また、検出したCPEは、*bla*_{IMP-6}を保有する*E. coli*であった。国内の報告において、IMP型遺伝子が多く検出される菌種は*E. cloacae*、*Klebsiella pneumoniae*、*E. coli*であり、CREとして報告が多い*K. aerogenes*からのIMP型遺伝子検出例は少ない。一方、本県では2017年の通知によりCREの検査を開始し、これまでに全107株の検査を行ったが、検出した*bla*_{IMP-6}保有株3株は全て*E. coli*であり⁵⁾⁶⁾、*K. aerogenes*からIMP型遺伝子は検出されていない。本県の事例数が少なく、単純な比較は難しいものの、国内の報告と同様の傾向がみられた。以上のことから、CREの中でも菌種によってカルバペネマーゼ遺伝子の保有率に違いがあることが示唆され、本県では*K. aerogenes*の分離事例が多いことが、CPE検出率の低さの一因と推測された。今後もカルバペネマーゼ遺伝子保有状況やその推移について注視していく必要がある。

5 ま と め

(1) 2021年度のCRE感染症の事例数は2020年度とほぼ同様で、全国に比べ*K. aerogenes*を起因菌とする

報告の割合が高かった。

- (2) 2021年度はCPEの検出が1事例あり、CREとして搬入された菌株中のCPEの割合は4.8%で国内の報告に比べ低かった。
- (3) CREの中でも菌種によりカルバペネマーゼ遺伝子の保有率に違いがあることが示唆され、今後もカルバペネマーゼ遺伝子保有状況やその推移を注視する必要がある。

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：病原微生物検出情報（月報），40(2)，17-18（2019）
- 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., International Journal of Systematic and Evolutionary Microbiology, **66**, 5575-5599（2016）
- 4) 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
- 5) 城座美夏，塩本高之，児玉洋江，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－2020年度－，石川県保健環境センター研究報告書，**58**，63-66
- 6) 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
- 7) 国立感染症研究所：病原微生物検出情報（月報），**40**（9），157-158（2019）
- 8) 国立感染症研究所：病原微生物検出情報（月報），**42**（6），123-124（2021）

〔資料〕

石川県におけるパレコウイルスA検出状況(2014年～2021年)

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

〔和文要旨〕

2014年～2021年の8年間に、感染症発生動向調査事業等で当センターへ搬入された1,200人分の1,527検体について、パレコウイルスA遺伝子検出を実施した。その結果、114人分の165検体(10.8%)からパレコウイルスAが検出され、月別では7月に最も多く検出された。パレコウイルスA3は2014, 2016, 2017, 2018, 2019年に検出され、新生児・早期乳児(生後3か月未満)からの検出が約5割と多かった一方、成人からの検出例もあった。今後も感染症発生動向調査事業等を活用し、パレコウイルスA流行状況の把握に努めたい。

キーワード：パレコウイルスA, 感染症発生動向調査, PCR

1 はじめに

パレコウイルスA(以下、PeV-A)は、ピコルナウイルス科パレコウイルス属に分類されるウイルスで、小児の胃腸炎や呼吸器疾患の原因ウイルスである。PeV-Aは現在、19の遺伝子型が知られており、その中でも2004年に愛知県衛生研究所から初めて報告された¹⁾PeV-A3は、新生児や早期乳児(主に生後3か月未満)に敗血症や脳髄膜炎を起こすことが知られている²⁾。しかしながら、現時点では全国的なサーベイランスとしてPeV-Aによる感染症を把握する仕組みはなく、当センターでは、感染症発生動向調査事業や調査研究等によりPeV-Aの動向を把握している。今回、当センターにおける2014年1月～2021年12月のPeV-A検出状況をまとめるとともに、PeV-A3について詳細に解析したので報告する。

2 材料と方法

2.1 材料

2014年～2021年の8年間に当センターへ搬入された

(1)～(4)の1,200人分1,527検体を材料とした。

(1) 感染症発生動向調査事業

2014年1月～2021年12月に、感染症発生動向調査事業で搬入された検体のうち、原因病原体としてPeV-Aが検出される可能性がある、急性脳炎、インフルエンザ様疾患、感染性胃腸炎、手足口病、ヘルパンギーナまたは無菌性髄膜炎(疑いを含む)と診断された患者711人から採取された1,008検体(咽頭ぬぐい液、髄液、ふん便等)を材料とした。表1に疾患別の検体数を示す。

患者の年齢、性別、臨床症状等については、検体とともに提出された検査票にて把握した。

(2) 金沢大学との共同研究「新生児・乳児パレコウイルス感染症の疫学と重症化機序に関する研究」(研究期間：2015年5月～2022年3月)

協力医療機関を受診した患者のうち、重症細菌感染症様症状あるいは急性脳炎・脳症を疑わせる患者で研究の症例定義を満たした者を研究対象者とした。なお、研究開始当初は1歳未満を研究対象者としていたが、2019年からは全年齢に変更した。2015年8月～2021年10月に研究対象者12人から採取された42検体(咽頭ぬぐい

Prevalence of Parechovirus A in Ishikawa Prefecture during the 2014-2021. by NARIAI Eri, KIMURA Eriko, NAKAZAWA Masaya, KOBASHI Nao, NAKAMURA Sachiko, KODAMA Hiroe and KURAMOTO Sanae (Health and Food Safety Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Parechovirus A, National Epidemiological Surveillance of Infectious Diseases, PCR

表1 感染症発生動向調査における疾患別の検体数(2014年～2021年)

	2014年	2015年	2016年	2017年	2018年	2019年	2020年	2021年	合計
急性脳炎			2 (1)		1 (1)	22 (5)	9 (2)		34 (9)
インフルエンザ様疾患			8 (8)	7 (7)	13 (13)	14 (14)		4 (4)	46 (46)
感染性胃腸炎	23 (23)	47 (47)	33 (33)	34 (34)	35 (35)	48 (48)	12 (12)	16 (16)	248 (248)
手足口病	26 (26)	35 (35)	23 (23)	38 (38)	15 (15)	30 (30)	4 (4)	7 (7)	178 (178)
ヘルパンギーナ	19 (19)	12 (12)	13 (13)	3 (3)	6 (6)	1 (1)	1 (1)	7 (7)	62 (62)
無菌性髄膜炎 (疑いを含む)	50 (25)	101 (39)	79 (32)	56 (20)	49 (20)	81 (25)	11 (3)	13 (4)	440 (168)
合計	118 (93)	195 (133)	158 (110)	138 (102)	119 (90)	196 (123)	37 (22)	47 (38)	1,008 (711)

※ () は人数

液、血液、髄液、ふん便等)を材料とした。

患者の年齢、性別、臨床症状等については、研究で得られた情報を使用した。

(3) 調査研究「石川県における呼吸器感染症起因ウイルス流行状況の把握」(研究期間：2016年4月～2019年3月)

2016年4月～2019年3月に、県内の協力医療機関4施設を受診し呼吸器感染症と診断された6歳以下の研究対象者474人から採取された474検体(鼻咽頭ぬぐい液)を材料とした³⁾。

患者の年齢、性別、臨床症状等については、研究で得られた情報を使用した。

(4) 行政検査

2019年7月にPeV-A検査を目的として行政検査依頼された3人分の3検体(ふん便)を材料とした。

患者の年齢、性別については、検体とともに提出された行政検査依頼書にて把握した。

2・2 方法

(1) PeV-A 遺伝子検出

QIAamp Viral RNA Mini Kit (QIAGEN社製)を用いてウイルス遺伝子の抽出を行い、RT-PCR法⁴⁾により5'UTR領域のPeV-A遺伝子の検出を行った。

(2) 遺伝子型等の解析

(1)が陽性となった検体について、PCR増幅産物をQIAquick PCR Purification Kit (QIAGEN社製)で精製した後、BigDye Terminator v1.1 Cycle Sequencing Kit (Thermo Fisher Scientific社製)を用いてサイクルシーケンス反応を行った。その後、反応産物をBigDye X Terminator Purification Kit (Thermo Fisher Scientific社製)で精製し、Applied Biosystems 3500 ジェネティックアナライザ (Life Technologies Japan社製)により5'UTR領域の塩基配列を決定しBLAST (<https://blast.ncbi.nlm.nih.gov/Blast.cgi>)に

よる相同性の検索を行い、遺伝子型を決定した。5'UTR領域で遺伝子型を決定できなかった検体については、VP3/VP1領域をターゲットとしたRT-PCR法⁴⁾を実施し、同様の方法でVP3/VP1領域の塩基配列を決定しBLASTによる相同性の検索を行い、遺伝子型を決定した。

2・3 倫理的配慮

2・1(2)は、当センター医学倫理審査委員会の承認(2015年3月17日承認、2018年10月17日承認(軽微な変更)、2019年7月3日承認(軽微な変更)、2020年7月10日承認(軽微な変更))を得て実施した。また、2・1(3)は、同審査委員会の承認(2016年3月10日承認、2018年1月26日承認(変更))を得て実施した。

3 結果と考察

3・1 PeV-A 検出状況

(1) 感染症発生動向調査事業

711人分の1,008検体についてPeV-A遺伝子検出を実施した結果、67人分の98検体(9.7%)からPeV-A遺伝子が検出された。表2に疾患別のPeV-A検出状況を示す。

表2 感染症発生動向調査における疾患別のPeV-A検出状況

	検体数	PeV-A検出数	検出率(%)
急性脳炎	34 (9)	4 (1)	11.8
インフルエンザ様疾患	46 (46)	6 (6)	13.0
感染性胃腸炎	248 (248)	25 (25)	10.1
手足口病	178 (178)	5 (5)	2.8
ヘルパンギーナ	62 (62)	6 (6)	9.7
無菌性髄膜炎 (疑いを含む)	440 (168)	52 (24)	11.8
合計	1,008 (711)	98 (67)	9.7

※ () は人数

(2) 金沢大学との共同研究「新生児・乳児パレコウイルス感染症の疫学と重症化機序に関する研究」

12人分の42検体についてPeV-A 遺伝子検出を実施した結果、7人分の27検体 (64.3%) からPeV-A 遺伝子が検出された。

(3) 調査研究「石川県における呼吸器感染症起因ウイルス流行状況の把握」

474検体についてPeV-A 遺伝子検出を実施した結果、37検体 (8.3%) からPeV-A 遺伝子が検出された³⁾。

(4) 行政検査

3検体についてPeV-A 遺伝子検出を実施した結果、3検体 (100%) からPeV-A 遺伝子が検出された。

3・2 検出されたPeV-Aの遺伝子型

PeV-A 遺伝子検出が陽性となった114人分の165検体について遺伝子型を解析した結果、PeV-A3が49人分92検体 (55.8%) と最も多く、次いでPeV-A1が41人分44検体 (26.7%)、PeV-A6が22人分24検体 (14.5%)、PeV-A4が2人分5検体 (3.0%) であった。同一人の複数検体でPeV-A 遺伝子検出が陽性となった例では、それぞれ同一のPeV-A 遺伝子配列が得られており、1人の患者から同時に2種類以上のPeV-A 検出例はなかった。そこで、患者1人につき1検体とし、8年間に114検体から検出されたPeV-Aの月別検出状況 (図1) をみると、6月～8月に多く検出されており、7月が最多であった。また、10月～12月も比較的検出が多かった。

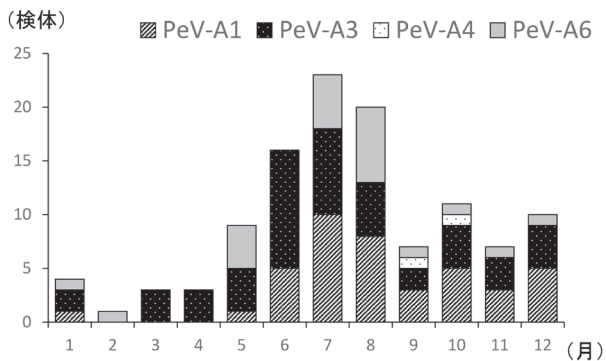


図1 PeV-Aの月別検出状況 (2014年～2021年)

遺伝子型別にみると、PeV-A1は7月 (図2)、PeV-A3は6月 (図3)、PeV-A6は8月 (図4) に最も多く検出された。PeV-A4は、9月と10月に検出された (図5)。2014年～2021年のPeV-A 遺伝子型別検出状況 (図6) をみると、PeV-A1およびPeV-A6はほぼ毎年検出されているのに対し、PeV-A3は検出された年と検出されない年があり、2014年、2016年、2017年、2018年、2019年に検出されていた。PeV-A3は、我が国では、2006年、2008年、2011年、2014年、2016年、2019年に報告が多く、2-3年毎に夏から秋を中心に流行がおきると考

えられている⁵⁾。本県においては2016～2017年の流行と2018～2019年の流行の期間がやや長い、全国とほぼ同様であった。なお、PeV-A4については検出数が少なく、長期的な傾向はわからなかった。

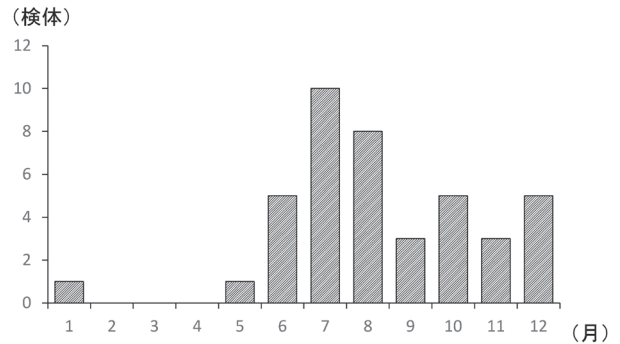


図2 PeV-A1の月別検出状況 (2014年～2021年)

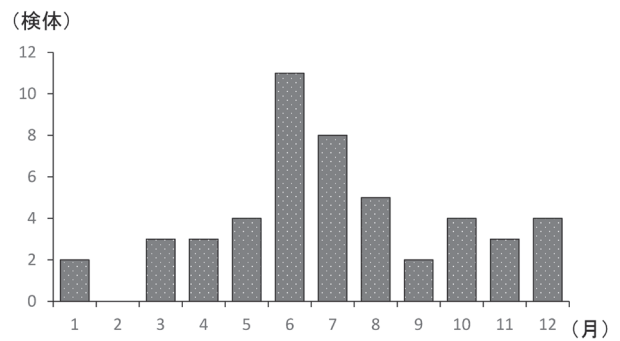


図3 PeV-A3の月別検出状況 (2014年～2021年)

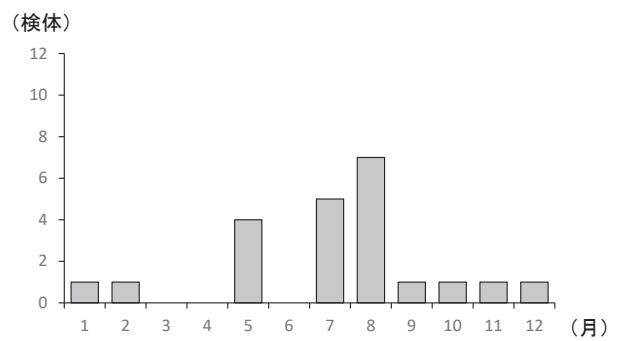


図4 PeV-A6の月別検出状況 (2014年～2021年)

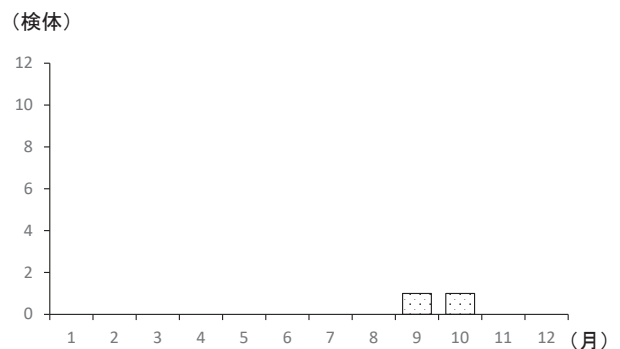


図5 PeV-A4の月別検出状況 (2014年～2021年)

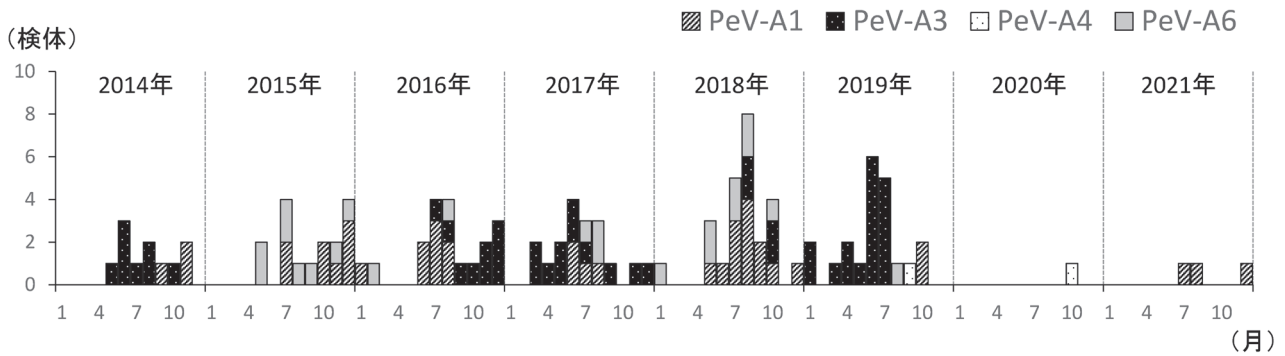


図6 PeV-Aの遺伝子型別検出状況(2014年～2021年)

今回、感染症発生动向調査事業で搬入された検体のほか研究や行政検査で搬入された検体を合わせて解析することによりPeV-A遺伝子型別の季節消長や長期的な傾向をつかむことができた。今後も感染症発生动向調査事業等を活用し、PeV-A流行状況の把握に努めたい。

3・3 PeV-A3の解析結果

感染症発生动向調査事業で搬入された検体のPeV-A3検出状況を表3に示す。全体の検出率は5.0%であったが、急性脳炎(11.8%)、無菌性髄膜炎(疑いを含む)(8.2%)の検出率がやや高かった。

表3 感染症発生动向調査における疾患別のPeV-A3検出状況

	検体数	PeV-A3検出数	検出率(%)
急性脳炎	34 (9)	4 (1)	11.8
インフルエンザ様疾患	46 (46)	3 (3)	6.5
感染性胃腸炎	248 (248)	5 (5)	2.0
手足口病	178 (178)	1 (1)	0.6
ヘルパンギーナ	62 (62)	1 (1)	1.6
無菌性髄膜炎 (疑いを含む)	440 (168)	36 (15)	8.2
合計	1,008 (711)	50 (26)	5.0

※ ()は人数

次に、PeV-A3が検出された49症例を表4に示す。49症例のうち、新生児および生後3か月未満の早期乳児の症例が23例と約5割を占める。2・1(2)の研究対象者が、研究開始当初は1歳未満(2019年からは全年齢に変更)であることや、2・1(3)の研究対象者が6歳以下の小児であることを考慮しても、他の年齢に比べ、生後3か月未満が明らかに多い。一方で、成人例は5例あり、年齢はすべて40代であった。近年、成人および小児において、筋肉痛を主訴とする流行性筋痛症患者からPeV-A3が検出されたとの報告が複数あり、その関連性が示唆されている^{6)~9)}。今回、成人例のうち3例は行政検査の検体で

あったため、症状に関する情報が得られなかったが、症状が把握できた残りの2例はいずれも筋肉痛を有していた。

以上より、PeV-A3流行時には新生児・早期乳児(主に生後3か月未満)のPeV-A3感染に留意するとともに、小児や成人でPeV-A3感染による流行性筋痛症がみられることを周知していく必要があると思われる。

通常は、主に感染症発生动向調査事業で搬入された検体についてPeV-Aの検出を行うことになる。しかしながら、PeV-A3の検出率は5%程度であることから、非常に多くの検体についてPeV-A検出を試みない限り、PeV-A3の流行を即時に探知することは難しく、今後の課題であると考え。病原微生物検出情報(IASR)で公表される全国情報の確認や、学会等での積極的な情報収集が必要であろう。

4 まとめ

- (1) 2014年～2021年の8年間に搬入された1,200人分の1,527検体について、PeV-A遺伝子検出を実施した結果、114人分の165検体(10.8%)から検出され、月別では、7月に最も多く検出された。
- (2) 検出されたPeV-Aの遺伝子型は、PeV-A3が最も多く、次いでPeV-A1、PeV-A6、PeV-A4であった。
- (3) PeV-A3は新生児・早期乳児(生後3か月未満)から多く検出された一方、成人からも検出された。
- (4) 今後も感染症発生动向調査事業等を活用し、PeV-A流行状況の把握に努めたい。

表4 PeV-A3検出症例一覧 (2014年~2021年)

年	月	事業区分 ^{*1}	臨床診断名	年齢 (月齢 ^{*2})	性別	PeV-A3が検出された 検体の種類 ^{*3}	臨床症状等	PeV-A3以外の 病原体遺伝子の検出
2014	5	発生动向	無菌性髄膜炎疑い	0(1)	女	血液	発熱	
	6	発生动向	無菌性髄膜炎疑い	0(1)	男	髄液、ふん便	発熱、中枢神経症状	
	6	発生动向	無菌性髄膜炎疑い	0(0)	女	髄液、ふん便	発熱	
	6	発生动向	無菌性髄膜炎疑い	0(1)	女	咽頭ぬぐい液、髄液、尿、直腸ぬぐい液	発熱、鼻汁、鼻閉、傾眠傾向、末梢循環不全	
	7	発生动向	ヘルパンギーナ	1	男	咽頭ぬぐい液	発熱、口内炎	コクサッキーウイルスA4、ライノウイルス
	8	発生动向	感染性胃腸炎	0(6)	女	ふん便	胃腸炎(下痢)	ノロウイルス
	8	発生动向	手足口病	3	女	咽頭ぬぐい液	発疹、口内炎	エンテロウイルス71型
	10	発生动向	感染性胃腸炎	1	男	ふん便	胃腸炎(嘔吐)	ノロウイルス、コクサッキーウイルスA5、ライノウイルス
2016	7	調査研究		1	男	咽頭ぬぐい液	発熱、上気道炎	
	8	調査研究		0(0)	女	咽頭ぬぐい液	発熱	
	9	調査研究		3	女	咽頭ぬぐい液	上気道炎	
	10	調査研究		0(3)	男	咽頭ぬぐい液	発疹	
	11	調査研究		0(1)	男	咽頭ぬぐい液	発熱、胃腸炎(嘔吐、下痢)、意識障害	
	11	発生动向	インフルエンザ様疾患	1	女	咽頭ぬぐい液	発熱	
	12	調査研究		0(0)	女	咽頭ぬぐい液	発熱、上気道炎	ライノウイルス
	12	発生动向	感染性胃腸炎	1	男	ふん便	胃腸炎(下痢)	
	12	研究(金沢大学)		0(1)	男	咽頭ぬぐい液、血液、髄液、尿	発熱、循環不全、胃腸炎(嘔吐、下痢)、意識障害	
2017	3	発生动向	無菌性髄膜炎疑い	2	女	咽頭ぬぐい液、ふん便	発熱、口内炎	HHV-7(咽頭ぬぐい液)、HSV-1(咽頭ぬぐい液)
	3	発生动向	感染性胃腸炎	1	男	ふん便	胃腸炎(嘔吐、下痢)	A群ロタウイルス、ライノウイルス
	4	発生动向	無菌性髄膜炎疑い	0(1)	女	咽頭ぬぐい液、髄液、ふん便	発熱	
	5	発生动向	無菌性髄膜炎	0(1)	男	咽頭ぬぐい液、髄液	発熱、上気道炎、不機嫌、哺乳不良	
	5	調査研究		1	男	咽頭ぬぐい液	発熱、上気道炎	コロナウイルスOC43
	6	発生动向	無菌性髄膜炎	1	女	咽頭ぬぐい液	発熱、上気道炎、中枢神経系症状(けいれん)	
	6	調査研究		1	男	咽頭ぬぐい液	下気道炎	アデノウイルス1型、ライノウイルス
	7	調査研究		0(2)	女	咽頭ぬぐい液	発熱、上気道炎	ライノウイルス
	9	調査研究		1	女	咽頭ぬぐい液	発熱	
	11	調査研究		1	男	咽頭ぬぐい液	発熱、上気道炎、下気道炎	コロナウイルスHKU1
	12	発生动向	感染性胃腸炎	2	女	ふん便	胃腸炎(嘔吐、下痢)	アデノウイルス41型
2018	8	研究(金沢大学)		0(1)	男	咽頭ぬぐい液、血液、髄液、尿、ふん便	発熱、水疱、発疹、肝機能障害、腹部膨満	
	8	調査研究		0(0)	男	咽頭ぬぐい液	敗血症疑い	
	10	発生动向	無菌性髄膜炎	0(2)	男	咽頭ぬぐい液、髄液、ふん便	発熱、熱性けいれん	
	10	発生动向	無菌性髄膜炎	0(7)	男	咽頭ぬぐい液、ふん便	発熱、髄膜炎	エンテロウイルスD68型(咽頭ぬぐい液)、ライノウイルス(咽頭ぬぐい液)
2019	1	研究(金沢大学)		0(1)	女	咽頭ぬぐい液、血液、尿、ふん便	発熱、発疹	
	1	調査研究		0(1)	女	咽頭ぬぐい液	発熱、発疹	
	3	調査研究		0(1)	男	咽頭ぬぐい液	発熱、発疹	
	4	発生动向	無菌性髄膜炎疑い	44	男	咽頭ぬぐい液、ふん便	発熱、頭痛、麻痺(両手)、全身筋痛	
	4	発生动向	無菌性髄膜炎	2	女	咽頭ぬぐい液、ふん便	発熱、上気道炎、熱性けいれん	パラインフルエンザウイルス3型(咽頭ぬぐい液)
	5	発生动向	インフルエンザ様疾患	1	男	咽頭ぬぐい液	発熱、上気道炎、下気道炎	C型インフルエンザウイルス、コロナウイルスHKU1
	6	発生动向	無菌性髄膜炎	0(2)	男	咽頭ぬぐい液、ふん便	発熱、意識障害	
	6	発生动向	インフルエンザ様疾患	2	女	咽頭ぬぐい液	発熱、上気道炎、下気道炎	C型インフルエンザウイルス
	6	発生动向	無菌性髄膜炎疑い	40	女	咽頭ぬぐい液、ふん便	発熱、頭痛、四肢の筋肉痛	HHV-7(咽頭ぬぐい液)、HSV-1(咽頭ぬぐい液)
	6	研究(金沢大学)		0(1)	男	血液、髄液、ふん便	発熱、発疹、敗血症様症状、腹部膨満	
	6	行政検査		41	女	ふん便		
	6	行政検査		40	男	ふん便		
	7	行政検査		42	男	ふん便		
	7	研究(金沢大学)		0(1)	女	咽頭ぬぐい液、血液、ふん便	発熱、発疹、循環不全、腹部膨満、頸脈、末梢冷感あり	
	7	発生动向	無菌性髄膜炎疑い	0(1)	女	咽頭ぬぐい液、血液、髄液	発熱、発疹、胃腸炎(下痢)、哺乳不良	
	7	研究(金沢大学)		0(2)	女	咽頭ぬぐい液、血液、髄液、尿、ふん便	発熱、熱性けいれん、循環不全、腹部膨満	
	7	発生动向	急性脳炎	0(0)	女	咽頭ぬぐい液、血液、髄液、ふん便	意識障害、中枢神経系症状	

*1: 感染症発生动向調査事業は「発生动向」と略した *2: 0歳のみ月齢を記載、下線は生後3か月未満 *3: 採取日の異なる同一種類の検体が提出された症例あり

文 献

- 1) ITO Miyabi, YAMASHITA Teruo, TSUZUKI Hideaki, TAKEDA Naokazu, SAKAE Kenji: Isolation and identification of a novel human parechovirus. *J Gen Virol*, **85**, 391-398 (2004)
- 2) 新潟大学医学部小児科学教室, 小児のパレコウイルス感染症 (科学研究費助成事業 若手研究「国内におけるパレコウイルスA3の前方視的疫学調査」), <https://www.med.niigata-u.ac.jp/ped/parechovirus/about/>, 2022年7月31日
- 3) 成相絵里, 中澤征哉, 中村幸子, 倉本早苗: 石川県における呼吸器感染症起因ウイルスの流行状況 (第2報), 石川県保健環境センター研究報告書, **56**, 1-7 (2019)
- 4) HARVALA H., ROBERTSON I., MCWILLIAM LEITCH E.C., BENSCHOP K., WOLTHERS K.C., TEMPLETON K., SIMMONDS P.: Epidemiology and clinical associations of human parechovirus respiratory infections. *J Clin Microbiol*, **46**, 3446-3453 (2008)
- 5) 山形県衛生研究所, パレコウイルスと流行性筋痛症, https://www.eiken.yamagata.yamagata.jp/biseibutsu/parecho/parecho_2017.html, 2022年7月31日
- 6) MIZUTA Katsumi, KURODA Makoto, KURIMURA Masayuki, YAHATA Yoshikazu, SEKIZUKA Tsuyoshi, AOKI Yoko, IKEDA Tatsuya, ABIKO Chieko, NODA Masahiro, KIMURA Hirokazu, MIZUTANI Tetsuya, KATO Takeo, KAWANAMI Toru, AHIKO Tadayuki: Epidemic myalgia in adults associated with human parechovirus type 3 infections, Yamagata, Japan, 2008. *Emerg Infect Dis*, **18**, 1787-1793 (2012)
- 7) MIZUTA Katsumi, YAMAKAWA Tatsushi, NAGASAWA Hikaru, ITAGAKI Tsutomu, KATSUSHIMA Fumio, KATSUSHIMA Yuriko, SHIMIZU Yukitoshi, ITO Sueshi, AOKI Yoko, IKEDA Tatsuya, ABIKO Chieko, KURODA Makoto, NODA Masahiro, KIMURA Hirokazu, AHIKO Tadayuki: Epidemic myalgia associated with human parechovirus type 3 infection among adults occurs during an outbreak among children; Findings from Yamagata, Japan, in 2011. *J Clin Virol*, **58**, 188-193 (2013)
- 8) YAMAMOTO Seiji P., KAIDA Atsushi, NAITO Takuto, HOSAKA Taisuke, MIYAZATO Yusuke, SUMIMOTO Shin-ichi, KOHDERA Urara, ONO Atsushi, KUBO Hideyuki, IRITANI Nobuhiro: Human parechovirus infections and child myositis cases associated with genotype 3 in Osaka City, Japan, 2014. *J Med Microbiol*, **64**, 1415-1424 (2015)
- 9) 佐野貴子, 嘉手苺将, 渡邊寿美, 近藤真規子, 黒木俊郎, 田坂雅子, 高橋智恵子, 中村廣志, 鮫島まりな, 山下舞, 田中聡, 國司洋佑, 太田光泰, 石田倫也, 白井宏幸: 小学生および成人の筋痛症事例からのヒトパレコウイルス3型の検出—神奈川県, 病原微生物検出情報 (月報), **38**, 127-128 (2017)

〔資料〕

石川県における収去食品中の食品添加物の検査状況(2017年度～2021年度)

石川県保健環境センター 健康・食品安全科学部 寺沢 蓉子・吉村 瑞江
石川県健康福祉部 薬事衛生課 西森 健

〔和文要旨〕

2017年度から2021年度の5年間に、石川県食品衛生監視指導計画に基づき収去された加工食品803検体(延べ検体数:1,170検体)の食品添加物の検査状況について集計を行った。検査項目としては、保存料、着色料、甘味料が多く検査され、これら3項目では漬物、清涼飲料水、しょう油の検体が多かった。また、漬物と清涼飲料水は保存料と着色料、しょう油は保存料と甘味料の検出率が高かった。違反事例は、延べ1,170検体中9検体(0.8%)であり、検査検体数が多い保存料、着色料、甘味料で、しょう油、菓子に多くみられた。

キーワード:食品添加物,保存料,甘味料

1 はじめに

食品添加物は、食品衛生法第4条第2項において、食品の製造の過程において又は食品の加工若しくは保存の目的で、食品に添加、混和、浸潤その他の方法によって使用する物と定義されており、食品の製造・流通に欠かせないものとなっている。平成30年に本県が実施した県政モニターに対する「食の安全・安心について」のアンケート調査¹⁾によると、59.6%が多少なりとも「日常生活において食品に不安を感じている」と回答し、そのうち食品添加物への不安が最も多かった。県内流通食品の食品添加物の検査を実施することは、県民の不安を解消し、食の安全・安心を確保するうえで重要であると考えられる。

本県では、食品衛生法第24条に基づき石川県食品衛生監視指導計画を策定しており、その計画に基づき収去した加工食品等を、当センターで検査している。食品添加物の検査では、使用基準²⁾への適合性のほか、加工食品表示との整合性を確認している。

今後の収去検査を効率的かつ効果的に行う基礎資料とするため、直近5年間(2017年度～2021年度)の収去

検査において検査した加工食品の種類ごとの検体数、検出状況、違反事例の集計を行ったので報告する。

2 材料と方法

2・1 材料

2017年度から2021年度の5年間に、食品添加物について検査した加工食品803検体(延べ検体数:1,170検体)を対象とした。

添加物の使用基準には、使用できる加工食品の範囲が細かく定められているが、今回の集計にあたり、加工食品の種類は、食品の名称の表示に関する通知³⁾の別表2、食品の部の例示を基本とし、これに当てはまらないものについては日本標準商品分類⁴⁾により区分した。

ただし、一部の検体で遡って区分することが困難であったため、菓子と生菓子は「菓子類」、魚肉ハムと魚肉ソーセージは「魚肉ハム・ソーセージ」とした。

2・2 検査方法

厚生労働省通知に定められた分析法⁵⁾等に準拠した、当センターの検査実施標準作業書により行った。

2・3 検査項目

添加物の用途又は検査方法により、保存料以下7項目

Status of Monitoring Tests for Food Additives Based on the Ishikawa Prefectural Plans, April 2017 to March 2022. by TERASAWA Yoko, YOSHIMURA Mizue (Health and Food Safety Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science), NISHIMORI Takeshi (Pharmaceuticals/Hygiene Division, Health and Welfare Department, Ishikawa Prefecture)

Key words : Food Additive, Preservative, Sweetener

に区分した。各検査項目において集計対象とした物質名は以下のとおりである。

(1) 保存料

安息香酸, ソルビン酸, デヒドロ酢酸, パラオキシ安息香酸イソブチル, パラオキシ安息香酸イソプロピル, パラオキシ安息香酸エチル, パラオキシ安息香酸ブチル, パラオキシ安息香酸プロピル

(2) 着色料

酸性タール色素(食用赤色2号, 赤色3号, 赤色40号, 赤色102号, 赤色104号, 赤色105号, 赤色106号, 黄色4号, 黄色5号, 緑色3号, 青色1号, 青色2号)

(3) 甘味料

サッカリンナトリウム

(4) 発色剤

亜硝酸根

(5) 酸化防止剤

ジブチルヒドロキシトルエン, ブチルヒドロキシアニソール

(6) 品質保持剤

プロピレングリコール

(7) 漂白剤等

二酸化硫黄(二酸化硫黄として測定する亜硫酸ナトリウム等の添加物は, 漂白剤以外に, 保存料, 酸化防止剤としても用いられるが, 漂白剤等として計上した。)

2・4 集計方法

(1) 検体数

1検体を複数の検査項目で検査した場合には, 各検査項目に検体数を計上した。

(2) 検査件数

検査した物質の延べ件数を計上した。

なお, 着色料は, 12種類の色素について検査を行っているが, 酸性タール色素の1物質として計上した。

(3) 検出検体数・検出率

各検査項目で集計対象とした1物質以上について定量下限値以上の値が検出された場合に検出検体数を1とした。検体数に対する検出検体数の割合を検出率とした。

(4) 違反検体数

各検査項目の集計対象物質(複数ある場合はそのいずれか)について, 違反があった場合に違反検体数を1とした。

(5) 違反事例の取扱い

違反内容については, 使用が認められていない加工食品から検出された事例を「対象外使用」, 使用が認められている加工食品について基準値を超えて検出された事例を「使用基準超過」, 必要な表示の欠落又は誤記など表示が不適切であった事例を「表示不良」とした。

3 結果

3・1 検査状況及び検出率

検査項目別に検査状況及び検出率を表1に示す。

(1) 保存料

検体数は383検体, 検査件数は3,064件であり, 漬物108検体(28%), 清涼飲料水69検体(18%), しょう油45検体(12%)で検体数全体の約6割を占めた。検出率は食肉製品, 漬物, しょう油, 清涼飲料水の順に高かった。

(2) 着色料

検体数は381検体, 検査件数は381件であり, 漬物121検体(32%), 清涼飲料水80検体(21%), 菓子類78検体(20%)で検体数全体の約7割を占めた。検出率は漬物, 清涼飲料水, 菓子類の順に高かった。

(3) 甘味料

検体数は177検体, 検査件数は177件であり, 漬物64検体(36%), しょう油33検体(19%), 清涼飲料水31検体(18%)で検体数全体の約7割を占めた。検出率はしょう油が特に高かった。

(4) 発色剤

検体数は72検体, 検査件数は72件であり, 食肉製品61検体(85%), 魚肉ハム・ソーセージ7検体(10%)が検体数全体の9割以上を占めた。検出率は食肉製品, 魚肉ハム・ソーセージの順に高かった。

(5) 酸化防止剤

検体数は38検体, 検査件数は76件であり, 魚介乾製品12検体(32%), 漬物6検体(16%), 食用油脂4検体(11%)で検体数全体の約6割を占めた。酸化防止剤については, 検査したすべての検体で検出されなかった。

(6) 品質保持剤

検体数は29検体, 検査件数は29件であり, めん類20検体(69%), ギョウザ・シューマイ等の皮などの穀類加工品8検体(28%)でそれ以外は1検体のみであった。検出された検体はめん類のみであった。

(7) 漂白剤等

検体数は90検体, 検査件数は90件であり, 野菜水煮やかんぴょうなどの野菜加工品38検体(42%), 菓子類16検体(18%), 酒精飲料11検体(12%)が検体数全体の約7割を占めた。検出率は酒精飲料が特に高かった。

検査項目としては, 保存料, 着色料, 甘味料が多く検査され, これら3項目では漬物, 清涼飲料水, しょう油の検体数が多かった。検出率に着目すると, 漬物と清涼飲料水は保存料と着色料の, しょう油は保存料と甘味料の検出率が高かった。

3・2 違反事例

直近5年間の違反検体数を表1, 違反内容を表2に示す。

表 1 検査項目別の検査状況及び違反検体数

検査項目	加工食品の種類	検体数 (%)	検査件数	検出 検体数 (検出率%)	表示あり** 検体	違反検体数
保存料	漬物	108 (28)	864	89 (82)	86	
	清涼飲料水	69 (18)	552	43 (62)	44	
	しょう油	45 (12)	360	34 (76)	33	1
	菓子類	26 (7)	208	5 (19)	5	2
	みそ	25 (7)	200	3 (12)	6	
	食肉製品	20 (5)	160	20 (100)	20	
	その他	90 (23)	720	47 (52)	48	
	小計	383	3,064	241 (63)	242	3
着色料	漬物	121 (32)	121	90 (74)	90	
	清涼飲料水	80 (21)	80	56 (70)	56	
	菓子類	78 (20)	78	41 (53)	42	3
	しょう油	21 (6)	21	0 (0)	0	
	その他	81 (21)	81	33 (41)	33	
	小計	381	381	220 (58)	222	3
甘味料	漬物	64 (36)	64	16 (25)	16	
	しょう油	33 (19)	33	25 (76)	25	2
	清涼飲料水	31 (18)	31	2 (6)	2	
	菓子類	14 (8)	14	0 (0)	0	
	その他	35 (20)	35	1 (3)	1	
	小計	177	177	44 (25)	42	2
発色剤	食肉製品	61 (85)	61	58 (95)	59	
	魚肉ハム・ソーセージ	7 (10)	7	3 (43)	3	
	その他	4 (6)	4	0 (0)	4	
	小計	72	72	61 (85)	66	0
酸化防止剤	魚介乾製品	12 (32)	24	0 (0)	0	
	漬物	6 (16)	12	0 (0)	0	
	食用油脂	4 (11)	8	0 (0)	0	
	その他	16 (42)	32	0 (0)	0	
	小計	38	76	0 (0)	0	0
品質保持剤	めん類	20 (69)	20	5 (25)	4	1
	穀類加工品	8 (28)	8	0 (0)	0	
	その他	1 (3)	1	0 (0)	0	
	小計	29	29	5 (17)	4	1
漂白剤等	野菜加工品 (漬物を除く)	38 (42)	38	7 (18)	30	
	菓子類	16 (18)	16	3 (19)	10	
	酒精飲料	11 (12)	11	10 (91)	10	
	その他	25 (28)	25	5 (20)	18	
	小計	90	90	25 (28)	68	0
合計	1,170	3,889	596 (51)	644	9	

※「表示あり」とは、検査項目に該当する食品添加物が商品に表示されていた検体

表 2 検査項目別の違反内容

検査項目	検体数	違反 検体数	違反内容/物質名 (件数)	加工食品の種類
保存料	383	3	使用基準超過/安息香酸 (1)	しょう油
			対象外使用/ソルビン酸 (2)	菓子類
着色料	381	3	表示不良/酸性タール色素 (3)	菓子類
甘味料	177	2	使用基準超過/サッカリンナトリウム (2)	しょう油
品質保持剤	29	1	表示不良/プロピレングリコール (1)	めん類

延べ1,170検体中9検体(0.8%)で違反があった。検査項目別では、保存料及び着色料でそれぞれ3検体、甘味料2検体、品質保持剤1検体であり、1つの検体で複数の検査項目に違反したものはなかった。

違反内容は、保存料では、安息香酸の使用基準超過1件(しょう油)、ソルビン酸の対象外使用2件(菓子類)であった。着色料では、表示不良が3件(菓子類)あり、いずれも表示にない酸性タール色素が検出されたが、このうち2件は複数使用された酸性タール色素のうち1種類のみが表示されていなかった。甘味料では、サッカリンナトリウムの使用基準超過が2件(しょう油)であった。品質保持剤の表示不良1件(めん類)では、商品に表示されていないプロピレングリコールが検出された。

4 考 察

保存料の検査項目で、漬物(梅干し)3検体から表示されていない安息香酸が検出された。梅干しには、原材料の梅等に天然由来の安息香酸が一定量含まれていることが報告⁶⁾⁷⁾されており、保健所の調査によっても、製造過程で添加されたものではなく天然由来と判断された。

保存料と甘味料については、近年、透析法を用いた一斉分析法が報告⁸⁾⁹⁾されている。保存料と甘味料では漬物、清涼飲料水、しょう油の検体数が多く、これらを同一方法での検査が可能となれば、より効率的に行政検査を行えるようになることから、検査法を検討していきたい。

違反事例は、延べ1,170検体中9検体で全体の0.8%に相当した。食品の種類別にみると、検体数の多い漬物、清涼飲料水では違反事例は見られなかったが、これらに次いで検体数の多いしょう油、菓子に見られた。検査項目別では、保存料、着色料、甘味料の違反事例が見られたが、これは、検査検体数に比例して違反が見つかったものと考えられる。一方、検査した検体数が少ない品質保持剤で違反が見つかったケースがあったことから、発色剤、酸化防止剤、漂白剤等についても注視して検査を継続する必要があると考える。

今回の集計により、検査項目別の検体の種類、検出状況、違反の状況が把握できた。この結果を保健所等とも共有することで、今後の収去検査や監視指導に役立てたい。

5 ま と め

2017年度から2021年度の5年間に、石川県食品衛生監視指導計画に基づき収去された加工食品803検体(延べ検体数:1,170検体)の食品添加物の検査状況につい

て集計を行った。

- (1) 検査件数の多い保存料、着色料、甘味料では、漬物、清涼飲料水、しょう油の検体数が多かった。
- (2) 漬物と清涼飲料水は保存料と着色料の、しょう油は保存料と甘味料の検出率が高かった。
- (3) 保存料と甘味料では漬物、清涼飲料水、しょう油の検体数が多いため、これらを同一方法での検査が可能となれば、より効率的な行政検査を行えるものと考えられる。
- (4) 違反事例は、延べ1,170検体中9検体で全体の0.8%であり、検査検体数が多い保存料、着色料、甘味料で、しょう油、菓子に多くみられた。
- (5) 今回の集計により、検査項目別の検体の種類、検出状況、違反の状況が把握できた。この結果を保健所等とも共有することで、今後の収去検査や監視指導に役立てたい。

文 献

- 1) 石川県県民文化スポーツ部県民交流課広報聴室：平成30年度 県政モニターアンケート調査結果「食の安全・安心について」
- 2) 厚生省告示第370号：食品、添加物等の規格基準、昭和34年12月28日
- 3) 厚生省環境衛生局長通知環食第299号：食品衛生法に基づく表示について、昭和54年11月8日
- 4) 総務省、日本標準商品分類(平成2年6月改定)、https://www.soumu.go.jp/toukei_toukatsu/index/seido/syuhin/2index.htm(2022年7月1日)
- 5) 厚生省生活衛生局食品化学課長通知衛化第15号：食品中の食品添加物分析法について(別添)第2版食品中の食品添加物分析法、平成12年3月30日
- 6) 柴田正、辻澄子：天然にも存在する添加物、食品衛生研究, 47(7), 29-67(1997)
- 7) 永山敏廣、西島基弘、安田和男、斉藤和夫、上村尚、井部明広、牛山博文、直井家壽太、二島太一郎：農産食品及び各種加工食品中の安息香酸、食品衛生学雑誌, 27(3), 316-325(1986)
- 8) 山嶋裕季子、岩越景子、田中麻梨恵、田原正一、小林千種：食品中の9種保存料分析における迅速な透析法の検討、東京健康安全研究センター年報, 69, 149-155, 2018
- 9) 澤崎加奈恵、平井知里、山岸浩：透析および固相抽出による食品中の保存料および甘味料の分析、福井県衛生環境研究センター年報, 14 40-44, 2015

〔資料〕

農産物中の残留農薬実態調査(2015年度～2021年度)

石川県保健環境センター 健康・食品安全科学部 松 榮 美 希・小 澤 祐 子・竹 田 正 美

〔和文要旨〕

平成27年度から令和3年度の7年間に県内で収去した農産物39品目245検体について、385農薬(総検査農薬数45,107)を対象とした残留農薬実態調査を行った。その結果30品目99検体から50種類延べ195農薬(検出率0.43%)が検出されたが、食品衛生法で定める残留基準値を超過したものはなかった。農産物別では果実類、野菜類、穀類の順に農薬検出率が高く、特にきゅうり、こまつな、ほうれんそう、イチジク、日本なし、りんごからの検出率は80%以上であった。農薬別では、国産品はネオニコチノイド系殺虫剤のジノテフラン、輸入品は防カビ剤のイマザリル及びチアベンダゾールの検出率が最も高かった。

キーワード：残留農薬、農産物、検出率

1 はじめに

本県では、県民の食の安全・安心を確保するため、石川県食品衛生監視指導計画に基づき、県内に流通する農産物の残留農薬検査を継続して行っている。

前報¹⁾にて平成23年度から平成26年度の調査結果をまとめたが、本報では平成27年度から令和3年度の7年間に実施した調査結果をとりまとめたので報告する。

2 材料と方法

2・1 試料

検査に供した試料は、平成27年6月から令和4年1月に、県保健所が県内の小売店等で収去した農産物39品目245検体である。産地別では、国産品35品目224検体、輸入品4品目21検体である。試料の内訳を表1に示した。

2・2 検査対象農薬

7年間に検査した農薬は、表2に示した385農薬である。

各年度の検査農薬数は以下のとおりである。

平成27年度：278農薬

平成28年度：273農薬

平成29年度：264農薬

平成30年度：270農薬

令和元年度：339農薬

令和2年度：341農薬

令和3年度：348農薬

検査対象農薬は、国産品については各農産物について妥当性が確認できた農薬のうち、国内で農薬取締法に基づく登録を有する農薬のみとした。輸入品については、各農産物について妥当性が確認できた農薬とした。

2・3 検査方法

平成22年12月24日付け厚生労働省通知²⁾に基づき、妥当性評価を行った当センターの検査実施標準作業書により行った。

検査対象農薬の拡大及び効率的な検査体制を確立するため、令和元年度にGC/MS/MSを導入した。GC/MS/MSの導入に伴い検査実施標準作業書の改訂を行い、検査農薬数を増やした。

3 結果と考察

3・1 年度別検査農薬数及び検出農薬数

年度別検査農薬数及び検出農薬数を表3に示した。総検査農薬45,107から、延べ195農薬(検出率0.43%)が

Survey of Pesticide Residues in Agricultural Products (from 2015 to 2021 Fiscal Year). by MATSUE Miki, OZAWA Yuko, TAKEDA Masami (Health and Food Safety Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Pesticide Residue, Agricultural Products, Detection Rate

表1 試料の内訳

分類	農産物名	総数	検体数		輸入品	
			国産品 (うち県内産)			
穀類	玄米	14	14	(14)		
	スイートコーン	7	7			
	小計(2品目)	21	21	(14)		
	かぶの根	6	6	(3)		
	かぼちゃ	7	7	(7)		
	かんしょ	7	7	(7)		
	キャベツ	7	7			
	きゅうり	7	7	(7)		
	ごぼう	7	7			
	こまつな	7	7	(7)		
野菜類	さといも	2	2			
	だいこんの根	7	7	(7)		
	たまねぎ	7	7			
	ちんげんさい	1	1	(1)		
	トマト	7	7	(7)		
	なす	7	7	(7)		
	にんじん	7	7	(7)		
	ねぎ	7	7	(7)		
	はくさい	7	7			
	ばれいしょ	7	7	(7)		
	ピーマン	7	7			
	ブロッコリー	7	7	(7)		
	ほうれんそう	6	6	(2)		
	ミニトマト	6	6	(5)		
	やまのいも	6	6			
	レタス	7	7			
	れんこん	1	1			
	小計(24品目)	147	147	(88)	0	
	果実類	甘夏	1	1		
		イチジク	6	6	(6)	
オレンジ		7			7	
かき		7	7	(7)		
キウイフルーツ		2			2	
グレープフルーツ		5			5	
すいか		7	7	(7)		
日本なし		7	7	(7)		
バナナ		7			7	
ぶどう		7	7	(7)		
みかん		7	7			
メロン		7	7			
りんご		7	7	(6)		
小計(13品目)	77	56	(40)	21		
合計(39品目)	245	224	(142)	21		
年度別 検体数 内訳	年度	総数	国産品 (うち県内産)		輸入品	
	平成 27	35	32	(20)	3	
	平成 28	35	32	(21)	3	
	平成 29	35	32	(22)	3	
	平成 30	35	32	(20)	3	
	令和 元	35	32	(19)	3	
	令和 2	35	32	(20)	3	
令和 3	35	32	(20)	3		

表3 年度別検査農薬数及び検出農薬数

年度	検査農薬数	検出農薬数	検出率(%)
平成 27	6,199	22	0.35
平成 28	6,189	27	0.44
平成 29	5,967	29	0.49
平成 30	6,046	15	0.25
令和 元	6,899	31	0.45
令和 2	6,854	30	0.44
令和 3	6,953	41	0.59
合計	45,107	195	-

検出された。令和元年度以降、検査対象農薬の拡大による検査農薬数の増加に伴い、検出農薬数も増加傾向にある。

3・2 農産物別農薬検出状況

農産物別農薬検出状況を表4に示した。

農産物39品目245検体を調査した結果、30品目99検体(検出率40.4%)から、0.01ppm~2.2ppmの範囲で農薬が検出された。

農産物別では、果実類、野菜類、穀類の順に農薬検出率が高かった。

穀類では2品目21検体中、1品目6検体(検出率28.6%)から5種類の農薬が検出され、玄米のみ農薬が検出された(検出率42.9%)。

野菜類では24品目147検体中、17品目53検体(検出率36.1%)から32種類の農薬が検出された。

果実類では13品目77検体中、12品目40検体(検出率51.9%)から28種類の農薬が検出された。

複数回農薬が検出された農産物のうち、農薬検出率が80%以上と高かったのは、きゅうり、こまつな、ほうれんそう、イチジク、日本なし、りんごであった。

また検出頻度が高かった農薬は、きゅうりのクロルフェナピル、こまつなのジノテフラン、ほうれんそうのフルフェノクスロン、イチジクのアクリナトリン、日本なしのクレソキシムメチル及びシペルメトリン、バナナのクロルピリホス、メロンのジノテフラン、りんごのクレソキシムメチルであった。

3・3 農薬別検出状況

農薬別検出状況を表5に示した。

検査対象385農薬のうち、50種類(主な用途:殺虫剤24種、殺菌剤22種、殺ダニ剤2種、殺線虫剤1種、除草剤1種)延べ195農薬が検出されたが、食品衛生法で定める残留基準値を超過したものはなかった。検査法の改訂により、前報¹⁾では検査対象でなかったアミスブルロム、エチプロロール、ニテンピラムが新たに検出された。

国産品では45種類(殺虫剤23種、殺菌剤18種、殺ダニ剤2種、殺線虫剤1種、除草剤1種)延べ176農薬が検出された。検出率が高かった農薬(上位5農薬)は、ジノテフラン(15.8%)、ボスカリド(5.9%)、クロルフェ

表 2 検査農薬

農薬名	農薬名	農薬名	農薬名	農薬名	農薬名	農薬名
1 BHC	66 オキシフルオルフェン	131 ジスルホトン	196 トリクロピル	261 フェノブカルブ	326 プロモプロピレート	
2 DDT	67 オリサストロビン	132 シニドンエチル	197 トリシクランゾール	262 フェリムゾン	327 プロモホス	
3 EPN	68 オリザリン	133 シノスルフロン	198 トリチコナゾール	263 フェンアミドン	328 プロモホスエチル	
4 MCPA	69 カズサホス	134 ジノテフラン	199 トリブホス	264 フェンクロルホス	329 フロラスラム	
5 MCPB	70 カフェンストール	135 シハロトリン	200 トリフルスルフロンメチル	265 フェンスルホチオン	330 ヘキサクロロベンゼン	
6 XMC	71 カルバリル	136 シハロホップブチル	201 トリフルミゾール	266 フェンチオン(MPP)	331 ヘキサコナゾール	
7 アイオキシニル	72 カルフェントラゾンエチル	137 ジフェナミド	202 トリフルムロン	267 フェントエート	332 ヘキサジノン	
8 アクリナトリン	73 カルプロバミド	138 ジフェニルアミン	203 ナプロラリン	268 フェンバレレート	333 ヘキサフルムロン	
9 アザコナゾール	74 キザロホップエチル	139 ジフェノコナゾール	204 トリフロキシストロビン	269 フェンピロキシメート	334 ヘキサチアゾクス	
10 アザメチホス	75 キナルホス	140 シフルトリン	205 トリフロキシスルフロン	270 フェンブコナゾール	335 バナラキシル	
11 アシフルオルフェン	76 キノキシフェン	141 シフルフェナミド	206 トルクロホスメチル	271 フェンプロバトリン	336 ベノキサコール	
12 アジムスルフロン	77 キノクラミン(ACN)	142 ジフルフェニカン	207 トルフェンピラド	272 フェンプロピモルフ	337 ベノキススラム	
13 アジンホスメチル	78 キントゼン	143 ジフルベンズロン	208 ナブタラム	273 フェンヘキサミド	338 ヘプタクロル	
14 アセタミプリド	79 クミルロン	144 シプロコナゾール	209 2-(1-ナフチル)アセタミド	274 フサライド	339 ベルメトリン	
15 イソキシストロビン	80 クロキシシムメチル	145 シプロジニル	210 ナプロアニロ	275 アタクロー	340 ベンコナゾール	
16 アトラジン	81 クロキントセットメキシル	146 シベルメトリン	211 ナプロバミド	276 ブタフェナシル	341 ベンシクロン	
17 アニロホス	82 クロジナホップ酸	147 ジベレリン	212 ニテンピラム	277 ブタミホス	342 ベンスルフロンメチル	
18 アミスルプロム	83 クロゾリネート	148 シマジン	213 ニトロタルイソプロピル	278 プビリメート	343 ベンゾフェナツップ	
19 アメトリン	84 クロチアニジン	149 シメコナゾール	214 ノバルロン	279 ブプロフェジン	344 ベンダイオカルブ	
20 アラクロー	85 クロフェンテジン	150 ジメタメトリン	215 バーバン	280 フラザスルフロン	345 ベンチアバリカルブイソプロピル	
21 アラマイト	86 クロブロップ	151 ジメチリモール	216 バクロプトラゾール	281 フラチオカルブ	346 ベンチオピラド	
22 アルドリン及びディルドリン	87 クロマゾン	152 ジメチルビンホス	217 フラチオン	282 フラムブロップメチル	347 ベンデイメタリン	
23 イオドスルフロンメチル	88 クロマフェノジド	153 ジメテナミド	218 パラチオンメチル	283 フラメトビル	348 ベントキサゾン	
24 イサゾホス	89 クロメブロップ	154 ジメトエート	219 ハルフェンブロックス	284 フリラゾール	349 ベンフルラリン	
25 イソウロン	90 クロラクスラムメチル	155 ジメトモルフ	220 ハロスルフロンメチル	285 フルアクリピリム	350 ベンフレセート	
26 イソキサジフェンエチル	91 クロラントラニリアロー	156 シメトリン	221 ビオレスメトリン	286 フルアジナム	351 ホキシム	
27 イソキサチオン	92 クロリダゾン	157 ジメピベレート	222 ピコリナフェン	287 フルオピコリド	352 ホサロン	
28 イソフェンホス	93 クロリムロンエチル	158 シラフルオフェン	223 ビテルタノール	288 フルオメツロン	353 ボスカリド	
29 イソプロカルブ	94 クロリエトキシホス	159 スピノサド	224 ビラフェノックス	289 フルキンコナゾール	354 ベンチアゼート	
30 イソプロチオラン	95 クロルスルフロン	160 スピロキサミン	225 ビフェントリン	290 フルジオキソニル	355 ホスファミドン	
31 イナベンフィド	96 クロルタルジメチル	161 スピロジクロフェン	226 ビペロニルブトキシド	291 フルシトリネート	356 ホスメット	
32 イプロジオン	97 クロルデン	162 スルフェントラゾン	227 ビペロホス	292 フルシラゾール	357 ホラムスルフロン	
33 イプロバリカルブ	98 クロルピリホス	163 スルホスルフロン	228 ビラクrostロビン	293 フルチアセットメチル	358 ホルクフルフェニユロン	
34 イプロベンホス	99 クロルピリホスメチル	164 ゾキサミド	229 ビラクロニル	294 フルトラニル	359 ホレート	
35 イマザキン	100 クロルフェナビル	165 ターバシル	230 ビラクロホス	295 フルトリアホール	360 マラチオン	
36 イマザメタベンズメチルエステル	101 4-クロルフェノキシ酢酸	166 ダイアジノン	231 ビラゾキシフェン	296 フルバリネート	361 ホンジプロバミド	
37 イマザリル	102 クロルフェンソン	167 ダイムロン	232 ビラゾスルフロンエチル	297 フルフェナセット	362 ミクロブタニル	
38 イマゾスルフロン	103 クロルフェンビンホス	168 チアクロプリド	233 ビラゾホス	298 フルフェノクスロン	363 ミルベメクチン	
39 イミシアホス	104 クロルブファム	169 チアベンダゾール	234 ビラゾリネート	299 フルフェンビルエチル	364 メカルバム	
40 イミダクロプリド	105 クロルフルアズロン	170 チアトキサム	235 ビラフルフェンエチル	300 フルミオキサジン	365 メコブロップ(MCPP)	
41 イミベコナゾール	106 クロルプロファム	171 チオジカルブ及びメソミル	236 ビリダフェンチオン	301 フルミクロラックベンチル	366 メソスルフロンメチル	
42 インドノファン	107 クロルベンシド	172 チオベンカルブ	237 ビリダベン	302 フルメツラム	367 メタベンズチアズロン	
43 インドキサカルブ	108 クロルクスロン	173 チフェンスルフロンメチル	238 ビリダリン	303 フルリドリン	368 メタキシル及びメフェノキサム	
44 ウニコナゾールP	109 クロルネブ	174 チフルザミド	239 ビリフェノックス	304 フルロキシビル	369 メチダチオン	
45 エスプロカルブ	110 クロルベンジレート	175 テクナゼン	240 ビリフタリド	305 プレチラクロー	370 メトキシクロール	
46 エタメツルフロンメチル	111 シアゾファミド	176 テトラクロルビンホス	241 ビリブチカルブ	306 プロシミドン	371 メトキシフェノジド	
47 エタルフルラリン	112 シアナジン	177 テトラコナゾール	242 ビリプロキシフェン	307 プロスルフロン	372 メトスラム	
48 エチオン	113 シアノホス	178 テトラジホス	243 ビリミカーブ	308 プロチオホス	373 メトスルフロンメチル	
49 エチプロール	114 ジウロン	179 テニルクロール	244 ビリミジフェン	309 プロバキサホップ	374 メトミノストロビン	
50 エディフェンホス	115 ジエトフェンカルブ	180 テブコナゾール	245 ビリミノバックメチル	310 プロバクロー	375 ラクトクロール	
51 エトキサゾール	116 シエノピラフェン	181 テブチウロン	246 ビリミホスメチル	311 プロバジン	376 メバニピリム	
52 エトキシスルフロン	117 ジオキサチオン	182 テブフェノジド	247 ビリメタニル	312 プロバニル	377 メビンホス	
53 エトフェンブロックス	118 シクラニリド	183 テブフェンピラド	248 ピロキロン	313 プロバホス	378 メフェナセット	
54 エトプロホス	119 シクロエート	184 テフルトリン	249 ピンクログリン	314 プロバルギット	379 メフェンビルジエチル	
55 エトベンザニド	120 ジクロシメット	185 テフルベンズロン	250 ファムフル	315 プロピコナゾール	380 メブロニル	
56 エトリムホス	121 ジクロスラム	186 デメトン-S-メチル	251 ファモキサド	316 プロピザミド	381 モノリニユロン	
57 エボキシコナゾール	122 シクロスルフアムロン	187 デルタメトリン及びトラメトリン	252 フィプロニル	317 プロヒドロジヤクモ	382 ラクトフェン	
58 エンドスルフアン	123 ジクロトホス	188 テルブトリン	253 フェナミホス	318 プロフェノホス	383 リニユロン	
59 エンドリン	124 ジクロフェンチオン	189 テルブホス	254 フェナリモル	319 プロベタンホス	384 ルフェヌロン	
60 オキサジアゾン	125 シクロプロトリン	190 トリアジメノール	255 フェニトロチオン	320 プロボキサカルバゾン	385 レナシル	
61 オキサジアルギル	126 ジクロホップメチル	191 トリアジメホ	256 フェノキサニル	321 プロボキスル		
62 オキサジキシル	127 ジクロラン	192 トリアスルフロン	257 フェノキサプロップエチル	322 プロマシル		
63 オキサジクロメホ	128 ジクロブロップ	193 トリアゾホス	258 フェノキサカルブ	323 プロメトリン		
64 オキサミル	129 11-ジクロロ-2,2-ビス(4-エチルフェニル)エタン	194 トリアレート	259 フェノチオカルブ	324 プロモキシニル		
65 オキシカルボキシ	130 ジコホール	195 トリクラミド	260 フェノトリン	325 プロモブチド		

表4 農産物別農薬検出状況

分類	農産物名	検出検体数 /検査検体数	検出農薬名	検出濃度 (ppm)	残留基準値 (ppm)	検出数 /検体数	生産地
穀類	玄米	6/14	エチプロール	0.07	0.2	1/6	国内
			ジノテフラン	0.01~0.06	2	2/10	
			トリシクラゾール	0.02~0.8	3	5/14	
			フェリムゾン	0.03	2	1/14	
			フサライド	0.02	1	1/13	
スイートコーン	0/7	-	-	-	-	国内	
小計		6/21					
野菜類	かぶの根	1/6	アミスルプロム	0.02	0.5	1/3	国内
			クロルフェナビル	0.04	0.2	1/6	
	かんしょ	1/7	クロルピリホス	0.01	0.1	1/7	国内
			チアメトキサム	0.01	5	1/7	
	キャベツ	3/7	フェンバレレート	0.01	3.0	1/7	国内
			プロシミドン	0.01~0.02	0.5	2/7	
	きゅうり	7/7	アゾキシストロビン	0.01~0.06	1	3/7	国内
			イプロジオン	0.01	5.0	1/3	
			クロルフェナビル	0.01~0.04	0.5	3/3	
			ジエトフェンカルブ	0.04	0.6	1/7	
			ジノテフラン	0.04	2	1/5	
			トルフェンピラド	0.01~0.03	1	2/4	
			フェニトロチオン	0.13	0.3	1/7	
			メタラキシル及びメフェノキサム	0.03	1	1/7	
	こまつな	6/7	アセタミプリド	0.05~1.0	5	2/7	国内
			クロラントラニリプロール	0.01~0.48	20	2/7	
			ジノテフラン	0.04~0.23	10	5/5	
			シベルメトリン	0.12	6	1/3	
			メタラキシル及びメフェノキサム	0.01	1	1/7	
	だいこんの根	2/7	オキサミル	0.01	0.50	1/7	国内
			ホスチアゼート	0.03	0.2	1/7	
	ちんげんさい	1/1	ジノテフラン	0.16	10	1/1	国内
			チアメトキサム	0.02	5	1/1	
	トマト	2/7	クロルフェナビル	0.08	1	1/7	国内
			ジエトフェンカルブ	0.01	2	1/3	
			ボスカリド	0.16	5	1/7	
	なす	3/7	アミスルプロム	0.05	1	1/3	国内
			シアゾファミド	0.05	0.5	1/7	
			フェンピロキシメート	0.02	0.5	1/7	
			フルフェノクスロン	0.02~0.07	2	2/7	
	ねぎ	3/7	クロチアニジン	0.02~0.03	1	2/6	国内
			ジノテフラン	0.01	15	1/5	
			シベルメトリン	0.03	5.0	1/3	
	はくさい	5/7	イミダクロプリド	0.01	0.5	1/7	国内
			インドキサカルブ	0.01~0.03	1	2/7	
			シアゾファミド	0.01	15	1/7	
			チアメトキサム	0.01	3	1/7	
			ピラクロストロビン	0.01~0.02	3	2/7	
			フェンバレレート	0.05~0.09	3.0	2/7	
			ボスカリド	0.03~0.23	40	3/7	
ルフエヌロン			0.01	1	1/7		
ジノテフラン			0.08	3	1/5		
シフルフェナミド			0.02	1	1/7		
ピーマン	4/7	トリフルミゾール	0.01	3	1/3	国内	
		ニテンピラム	0.11	0.5	1/2		
		ピラクロストロビン	0.08	1	1/7		
		プロシミドン	0.06	10	2/7		
		ボスカリド	0.21	10	1/7		
		メバニピリム	0.02	5	1/7		
		ルフエヌロン	0.03	1	1/7		
		ジノテフラン	0.03	2	1/5		
ブロッコリー	1/7	イミダクロプリド	0.02~0.03	15	2/6	国内	
		クロラントラニリプロール	0.44	20	1/6		
ほうれんそう	6/6	ジノテフラン	0.06~0.23	15	2/4	国内	
		テフルトリン	0.02	0.5	1/6		
		フルフェノクスロン	0.02~0.28	10	5/6		
		メタラキシル及びメフェノキサム	0.02	2	1/6		
		イプロジオン	0.08	5.0	1/3		
ミニトマト	2/6	クロチアニジン	0.05~0.12	3	2/6	国内	
		クロルフェナビル	0.12	1	1/6		

表 4 農産物別農薬検出状況

分類	農産物名	検出検体数 /検査検体数	検出農薬名	検出濃度 (ppm)	残留基準値 (ppm)	検出数 /検体数	生産地	
果実類	やまのいも	1/6	メタラキシル及びメフェノキサム	0.03	0.4	1/6	国内	
			イミダクロプリド	0.03~0.14	3	2/7		
			インドキサカルブ	0.03	14	1/7		
	レタス	5/7	クロチアニジン	0.02~0.12	20	2/6		
			クロラントラニリプロール	0.02	20	1/7		
			シアゾファミド	0.02	10	2/7	国内	
			ジノテフラン	0.01	25	1/5		
			ピラクロストロビン	0.06	2	1/7		
			ボスカリド	0.02~0.68	40	2/7		
			ルフエヌロン	0.04	10	1/7		
	その他7品目	0/38	-	-	-	-	国内	
	小計	53/147						
	果実類	甘夏	1/1	フェンプロパトリン	0.09	5	1/1	国内
				メチダチオン	0.76	5	1/1	
				アクリナトリン	0.01~0.02	0.3	2/3	
イチジク		5/6	アセタミプリド	0.03~0.04	5	3/6		
			アゾキシストロビン	0.26	5	1/4		
			イプロジオン	0.15	5.0	1/3		
			クロルフェナビル	0.01~0.03	2	2/6	国内	
			シアゾファミド	0.07	1	1/4		
			テブフェンピラド	0.01~0.07	0.3	2/6		
			フェンピロキシメート	0.01~0.09	0.5	3/6		
オレンジ		4/7	ベルメトリン	0.05~0.25	5	2/6		
			イマザリル	1.1	5.0	1/1		
			クロルピリホス	0.10	1	1/7		
			チアベンダゾール	1.5	10	1/1	アメリカ オーストラリア	
			ピリメタニル	0.23~0.5	10	2/7		
かき	2/7	フルジオキシニル	0.62~0.87	10	2/7			
		アセタミプリド	0.01~0.02	1	2/7			
		クレソキシムメチル	0.03	5	1/7	国内		
キウイフルーツ	0/2	ジノテフラン	0.03	2	1/2			
		-	-	-	-	チリ ニュージーランド		
果実類	グレープフルーツ	3/5	イマザリル	2.2	5.0	1/1		
			イミダクロプリド	0.02	0.7	1/5		
			クロルピリホス	0.22	1	1/5	メキシコ 南アフリカ	
			チアベンダゾール	1.2	10	1/1		
			ピラクロストロビン	0.04~0.05	2	2/5		
すいか	1/7	メチダチオン	0.02	5	1/5			
		フルフェノクスロン	0.02	0.2	1/7	国内		
果実類	日本なし	6/7	クレソキシムメチル	0.01~0.11	5	5/7		
			クロラントラニリプロール	0.01	1	1/7		
			クロルフェナビル	0.02	1	1/7		
			ジノテフラン	0.09	1	1/5	国内	
			シプロジニル	0.02	5	1/7		
			シベルメトリン	0.01~0.02	2	2/3		
			ピラクロストロビン	0.02~0.03	0.7	3/7		
バナナ	4/7	ボスカリド	0.02~0.05	3	3/7			
		クロルピリホス	0.01~0.07	2	4/7	フィリピン エクアドル		
ぶどう	2/7	ビフェントリン	0.01	0.1	1/3			
		ジノテフラン	0.09~0.14	15	2/5	国内		
みかん	2/7	フェンピロキシメート	0.02	1	1/7			
		ジノテフラン	0.02~0.07	2	2/4	国内		
果実類	メロン	3/7	ジノテフラン	0.01~0.06	1	3/5	国内	
			アセタミプリド	0.01	2	1/7		
			イミベンコナゾール	0.03	1	1/2		
			クレソキシムメチル	0.01~0.09	5	5/7		
			クロルピリホス	0.01~0.02	0.5	2/7	国内	
			ジクロルプロップ	0.02	0.2	1/5		
			シプロジニル	0.01~0.05	5	2/7		
			テブフェンピラド	0.02	1	1/7		
			ボスカリド	0.01~0.03	2	3/7		
小計	40/77							
合計	99/245							

表5 農薬別検出状況

農薬名	用途	総数			国産品			輸入品			
		検査数	検出数	検出率 (%)	検査数	検出数	検出率 (%)	検査数	検出数	検出率 (%)	
1	アクリナトリン	殺虫剤	104	2	1.9	95	2	2.1	9	0	0.0
2	アセタミプリド	殺虫剤	245	8	3.3	224	8	3.6	21	0	0.0
3	アゾキシストロビン	殺菌剤	223	4	1.8	208	4	1.9	15	0	0.0
4	アミスルブロム	殺菌剤	102	2	2.0	93	2	2.2	9	0	0.0
5	イプロジオン	殺菌剤	95	3	3.2	86	3	3.5	9	0	0.0
6	イマザリル	殺菌剤	3	2	66.7	0	0	-	3	2	66.7
7	イミダクロプリド	殺虫剤	245	6	2.4	224	5	2.2	21	1	4.8
8	イミベンコナゾール	殺菌剤	70	1	1.4	64	1	1.6	6	0	0.0
9	インドキサカルブ	殺虫剤	245	3	1.2	224	3	1.3	21	0	0.0
10	エチプロール	殺虫剤	103	1	1.0	96	1	1.0	7	0	0.0
11	オキサミル	殺虫剤	243	2	0.8	223	2	0.9	20	0	0.0
12	クレソキシムメチル	殺菌剤	245	11	4.5	224	11	4.9	21	0	0.0
13	クロチアニジン	殺虫剤	220	6	2.7	204	6	2.9	16	0	0.0
14	クロラントラニリプロール	殺虫剤	243	5	2.1	222	5	2.3	21	0	0.0
15	クロルピリホス	殺虫剤	245	9	3.7	224	3	1.3	21	6	28.6
16	クロルフェナピル	殺虫剤	196	9	4.6	175	9	5.1	21	0	0.0
17	シアゾファミド	殺菌剤	191	5	2.6	177	5	2.8	14	0	0.0
18	ジエトフェンカルブ	殺菌剤	214	2	0.9	193	2	1.0	21	0	0.0
19	ジクロルプロップ	除草剤	181	1	0.6	166	1	0.6	15	0	0.0
20	ジノテフラン	殺虫剤	167	24	14.4	152	24	15.8	15	0	0.0
21	シフルフェナミド	殺菌剤	245	1	0.4	224	1	0.4	21	0	0.0
22	シプロロジニル	殺菌剤	216	3	1.4	195	3	1.5	21	0	0.0
23	シベルメトリン	殺虫剤	105	4	3.8	96	4	4.2	9	0	0.0
24	チアベンダゾール	殺菌剤	3	2	66.7	0	0	-	3	2	66.7
25	チアメトキサム	殺虫剤	245	3	1.2	224	3	1.3	21	0	0.0
26	テブフェンピラド	殺ダニ剤	245	3	1.2	224	3	1.3	21	0	0.0
27	テフルトリン	殺虫剤	212	1	0.5	191	1	0.5	21	0	0.0
28	トリシクラゾール	殺菌剤	245	5	2.0	224	5	2.2	21	0	0.0
29	トリフルミゾール	殺菌剤	104	1	1.0	95	1	1.1	9	0	0.0
30	トルフェンピラド	殺虫剤	221	2	0.9	200	2	1.0	21	0	0.0
31	ニテンピラム	殺虫剤	51	1	2.0	45	1	2.2	6	0	0.0
32	ビフェントリン	殺虫剤	192	1	0.5	184	0	0.0	8	1	12.5
33	ピラクロストロビン	殺菌剤	245	9	3.7	224	7	3.1	21	2	9.5
34	ピリメタニル	殺菌剤	21	2	9.5	0	0	-	21	2	9.5
35	フェニトロチオン	殺虫剤	220	1	0.5	199	1	0.5	21	0	0.0
36	フェリムゾン	殺菌剤	245	1	0.4	224	1	0.4	21	0	0.0
37	フェンバレレート	殺虫剤	175	3	1.7	166	3	1.8	9	0	0.0
38	フェンピロキシメート	殺ダニ剤	244	5	2.0	223	5	2.2	21	0	0.0
39	フェンプロパトリン	殺虫剤	236	1	0.4	215	1	0.5	21	0	0.0
40	フサライド	殺菌剤	153	1	0.7	144	1	0.7	9	0	0.0
41	フルジオキシニル	殺菌剤	241	2	0.8	221	0	0.0	20	2	10.0
42	フルフェノクスロン	殺虫剤	232	7	3.0	211	7	3.3	21	0	0.0
43	プロシミドン	殺菌剤	245	4	1.6	224	4	1.8	21	0	0.0
44	ペルメトリン	殺虫剤	204	2	1.0	184	2	1.1	20	0	0.0
45	ボスカリド	殺菌剤	240	13	5.4	221	13	5.9	19	0	0.0
46	ホスチアゼート	殺線虫剤	245	1	0.4	224	1	0.4	21	0	0.0
47	メタラキシル及びメフェノキサム	殺菌剤	245	4	1.6	224	4	1.8	21	0	0.0
48	メチダチオン	殺虫剤	245	2	0.8	224	1	0.4	21	1	4.8
49	メバニピリム	殺菌剤	185	1	0.5	174	1	0.6	11	0	0.0
50	ルフェヌロン	殺虫剤	230	3	1.3	211	3	1.4	19	0	0.0

ナピル(5.1%), クレソキシムメチル(4.9%), シベルメトリン(4.2%)であった。

今回、6種類のネオニコチノイド系殺虫剤(アセタミプリド, イミダクロプリド, クロチアニジン, ジノテフラン, チアメトキサム, ニテンピラム)が、国産品19品目から延べ47農薬検出された。検出農薬の26.7%がネオニコチノイド系殺虫剤であり、前報¹⁾(検出農薬の33.3%)と同様に、本県に流通する国産品にはネオニコチノイド系殺虫剤が多く使用されていることが推察された。

輸入品では9種類(殺虫剤4種, 殺菌剤5種)延べ19農薬が検出された。検出率が高かった農薬(上位5農薬)は、イマザリル(66.7%), チアベンダゾール(66.7%), クロルピリホス(28.6%), ビフェントリン(12.5%), フルジオキシニル(10.0%)であった。

輸入品から検出された延べ19農薬のうち、8農薬(42.1%)が食品添加物の防カビ剤として使用が認められている殺菌剤(イマザリル, チアベンダゾール, ピリメタニル, フルジオキシニル)であり、すべて柑橘類から検出された。前報¹⁾(検出農薬の12.5%)に比べて防カビ剤の割合が高くなった。これは、令和3年度にチアベンダゾールが新たに検査対象となったことに加え、フルジオキシニルが平成23年、ピリメタニルが平成25年に新たに食品添加物に指定されたことで使用可能な防カビ剤が増えたためと考えられた。

国産品及び輸入品でそれぞれ検出率が高かった上位5農薬は、全国の残留農薬等の検査結果をまとめた「平成30年度食品中の残留農薬等検査結果」³⁾で検出率上位20農薬に入っていることから、本県での農薬検出傾向は全国と同様であると言える。

4 まとめ

(1) 平成27年度から令和3年度の7年間に県内に流通す

る農産物39品目245検体について、385農薬(総検査農薬数45,107)を対象とした残留農薬実態調査を行った。その結果、30品目99検体から50種類延べ195農薬が検出されたが、食品衛生法で定める残留基準値を超過したものはなかった。検体数に対する検出率は40.4%、総検査農薬数に対する検出率は0.43%であった。

- (2) 農産物別にみると、果実類、野菜類、穀類の順に農薬検出率が高く、特にきゅうり、こまつな、ほうれんそう、イチジク、日本なし、りんごからの検出率は80%以上であった。
- (3) 農薬別にみると、国産品はネオニコチノイド系殺虫剤のジノテフラン、輸入品は、検査数が3件と少ないものの防カビ剤のイマザリル及びチアベンダゾールの検出率が最も高かった。
- (4) 今後も農産物中の残留農薬の実態に関するデータの蓄積及び検査項目の検討を行い、効率的な検査体制の構築を図ることで県内に流通する食品の安全確保に寄与していきたい。

文 献

- 1) 萩原明香, 水口竜人, 小澤祐子, 由田洋一, 砺波和子, 新家薫子: 農産物中の残留農薬実態調査(2011年度~2014年度), 石川県保健環境センター研究報告書, 52, 62-72(2015)
- 2) 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
- 3) 厚生労働省ホームページ: 平成30年度食品中の残留農薬等検査結果, <https://www.mhlw.go.jp/content/11120000/000660445.pdf> (2022年7月21日)

〔資料〕

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 (2021年)

石川県保健環境センター 環境科学部 徳田 貴裕・宮田 朋子・安田 能生弘
石川県土木部 都市計画課 柿澤 隆一

〔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、季節毎にPPCPs18物質の存在実態を調査した。その結果、17物質がいずれかの地点で検出され、多くは1~100ng/Lの濃度範囲にあり、最大濃度はフェキソフェナジンの1,000ng/Lであった。また、海域では、ほとんどの物質が検出されなかった。倉部大橋では最も多くの17物質が検出され、濃度も高い傾向である一方、季節により他の地点と異なる濃度変化を示した。得られた濃度をもとに生態リスク初期評価を行ったところ、倉部大橋のクラリスロマイシンでMEC/PNECが1を超えていた。

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。

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 (誌上発表)

1 はじめに

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」という。) について、近年、環境中での検出が顕在化しており、環境影響が懸念されている。

一方、県内の公共用水域においては、PPCPsの環境中濃度を調査した事例は少ないことから、環境省が実施する化学物質環境実態調査において全国で検出例のあった抗生物質 (5物質) を対象に、2020年度に調査を実施した¹⁾。今回、国立環境研究所Ⅱ型共同研究「LC-MS/MSによる分析を通じた生活由来物質のリスク解明に関する研究」に参加し、より多種のPPCPsに関する分析方法等の情報を共有することができたことから、これら

PPCPsを対象に県内の公共用水域における実態を調査したので報告する。

2 調査方法

2.1 調査地点と調査頻度

図1に示す県内7河川7地点を対象に、冬季 (2021年1月~2月)、春季 (2021年4月)、夏季 (2021年7月~8月) 及び秋季 (2021年10月) の季節毎に各1回、河川水を採取し、調査を実施した。また、白山市笠間沖、南湾中央部及び珠洲沖の3海域3地点で、夏季 (2021年7月~8月) に各1回、海水の調査を実施した。

2.2 調査対象物質

調査対象物質は、Ⅱ型共同研究で対象としているスルピリド (抗精神病薬)、カルバマゼピン (抗てんかん薬)、ジクロフェナク (抗炎症剤)、イルベサルタン・オルメ

Survey on PPCPs (Pharmaceuticals and Personal Care Products) in Public Water Body in Ishikawa Prefecture (2021). by TOKUDA Takahiro, MIYATA Tomoko and YASUDA Nobuhiro (Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science), KAKIZAWA Ryuichi (City Planning Division, Public Works Department, Ishikawa Prefecture)

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

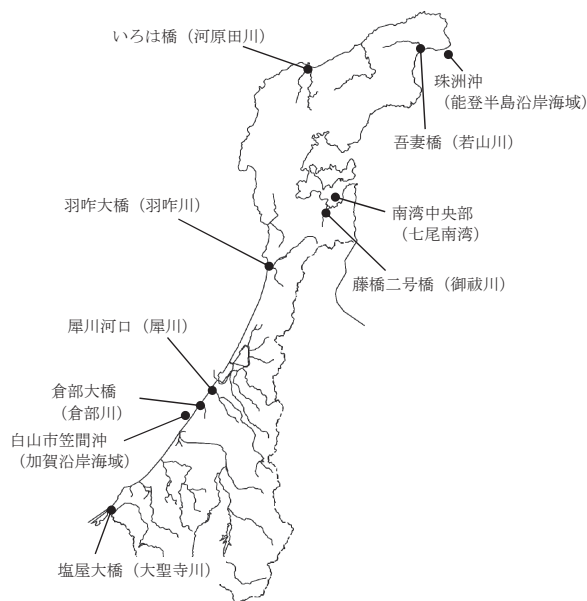


図 1 調査地点

サルタン・カンデサルタン・テルミサルタン・バルサルタン・ロサルタン (血圧降下剤), クロタミトン (鎮痛剤), エピナスチン・ケトチフェン・ジフェンヒドラミン・フェキソフェナジン (抗ヒスタミン薬), エリスロマイシン・クラリスロマイシン・トリメトプリム (抗生物質), DEET (昆虫忌避剤) の 18 物質とした。

2・3 分析方法

分析方法は西野らの方法²⁾に準じた。水質試料 200mL にサロゲートとして、調査対象物質の重水素又は¹³Cにより標識された 14 物質の混合溶液を添加し、アセトン及び精製水でコンディショニングした固相カートリッジ (Waters 社 製 Oasis HLB Plus Short cartridge) に 10mL/min の速さで通水した。次に、固相カートリッジを超純水で洗浄後、遠心分離及び窒素通気により固相中の水分を完全に除去し、これをバックフラッシュ法によりメタノール 3mL, アセトン 3mL, ジクロロメタン 2mL で溶出した。溶出液を窒素パージにより乾固直前まで濃縮した後、50%メタノール水溶液で 1mL に定容し、孔径 0.2μm のシリンジフィルターでろ過し、LC/MS/MSにて一斉分析した。本調査における分析方法の検出下限値 (MDL), 定量下限値 (MQL) 及び河川水を用いた添加回収率を表 1 に示す。

3 結果と考察

3・1 調査対象物質の検出状況

採取した環境水 (計 31 試料) における調査対象物質の検出数及び環境水中濃度の分布を図 2 に示す。31 試料から、ケトチフェンを除く 17 物質が検出された。多くの試料から検出された物質はテルミサルタン (27 試料), イルベ

表 1 分析方法の MDL, MQL 及び添加回収率

(n = 7)

調査対象物質	MDL (ng/L)	MQL (ng/L)	添加回収率 (%)
スルピリド	1.2	3.1	100
カルバマゼピン	0.78	2.0	105
ジクロフェナク	1.5	3.7	83
イルベサルタン	1.1	2.9	91
オルメサルタン	7.5	19	102
カンデサルタン	5.9	15	81
テルミサルタン	1.5	3.8	91
バルサルタン	4.2	11	91
ロサルタン	1.4	3.9	105
クロタミトン	1.8	4.7	95
エピナスチン	2.5	6.5	100
ケトチフェン	0.85	2.2	102
ジフェンヒドラミン	0.89	2.3	101
フェキソフェナジン	5.5	14	86
エリスロマイシン	6.9	18	102
クラリスロマイシン	1.0	2.5	103
トリメトプリム	0.81	2.1	75
DEET	1.7	4.5	98

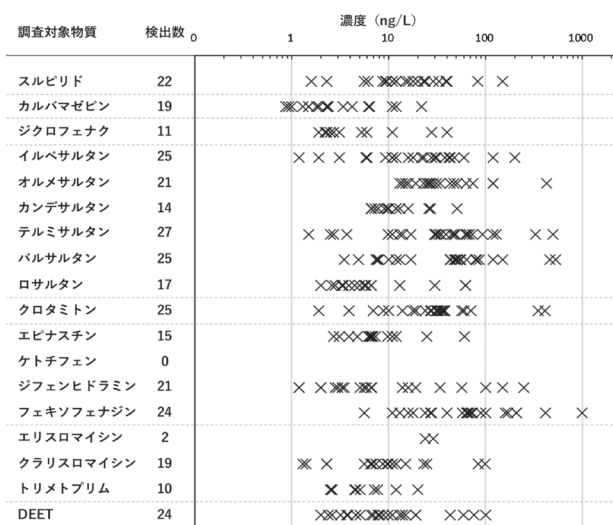


図 2 調査対象物質の検出数及び環境水中濃度

サルタン, バルサルタン, クロタミトン (25 試料), フェキソフェナジン, DEET (24 試料) であった。一方, 検出数が少なかった物質はケトチフェン (検出試料なし), エリスロマイシン (2 試料) であった。検出された物質の多くは 1~100ng/L の濃度範囲にあったが, 100~1,000ng/L の範囲でも検出が見られた。最大濃度は 1,000ng/L (フェキソフェナジン) であった。

3・2 調査地点における環境水中の存在実態

(1) 調査結果

各調査地点の河川水における調査対象物質の検出濃度範囲と検出頻度を表 2 に示す。本調査の河川水で、最も検出の多かった地点は倉部大橋 (延べ 66 件検出), 次の

表2 PPCPsの検出濃度範囲及び検出頻度

	スルピリド	カルバマゼピン	ジクロフェナク	イルベサルタン	オルメサルタン	カンデサルタン
	最小値 - 最大値(検出頻度)	最小値 - 最大値(検出頻度)	最小値 - 最大値(検出頻度)	最小値 - 最大値(検出頻度)	最小値 - 最大値(検出頻度)	最小値 - 最大値(検出頻度)
塩屋大橋 (大聖寺川)	15 - 39 (4/4)	ND - 2.4 (3/4)	ND - 3.1 (3/4)	11 - 31 (4/4)	14 - 63 (4/4)	ND - 6.7 (1/4)
倉部大橋 (倉部川)	18 - 150 (4/4)	2.3 - 22 (4/4)	6.0 - 40 (4/4)	23 - 200 (4/4)	25 - 430 (4/4)	9.7 - 51 (4/4)
犀川河口 (犀川)	8.7 - 40 (4/4)	0.93 - 3.4 (4/4)	ND - 5.3 (2/4)	11 - 38 (4/4)	15 - 120 (4/4)	ND - 26 (3/4)
羽咋大橋 (羽咋川)	ND - 6.1 (3/4)	ND - 1.5 (2/4)	ND - ND (0/4)	5.8 - 16 (4/4)	ND - 31 (2/4)	ND - 9.1 (1/4)
藤橋二号橋 (御蔵川)	9.3 - 29 (4/4)	2.3 - 12 (4/4)	ND - 2.5 (1/4)	30 - 60 (4/4)	13 - 74 (4/4)	ND - 16 (3/4)
いろは橋 (河原田川)	ND - 16 (3/4)	ND - 1.8 (2/4)	ND - 2.2 (1/4)	ND - 11 (3/4)	ND - 51 (3/4)	ND - 12 (2/4)
吾妻橋 (若山川)	ND - ND (0/4)	ND - ND (0/4)	ND - ND (0/4)	ND - 1.9 (1/4)	ND - ND (0/4)	ND - ND (0/4)

	テルミサルタン	バルサルタン	ロサルタン	クロタミトン	エピナスチン	ケトチフェン
	最小値 - 最大値(検出頻度)	最小値 - 最大値(検出頻度)	最小値 - 最大値(検出頻度)	最小値 - 最大値(検出頻度)	最小値 - 最大値(検出頻度)	最小値 - 最大値(検出頻度)
塩屋大橋 (大聖寺川)	17 - 49 (4/4)	56 - 86 (4/4)	ND - 5.0 (3/4)	19 - 33 (4/4)	2.7 - 10 (4/4)	ND - ND (0/4)
倉部大橋 (倉部川)	62 - 500 (4/4)	43 - 530 (4/4)	6.6 - 62 (4/4)	38 - 410 (4/4)	11 - 61 (4/4)	ND - ND (0/4)
犀川河口 (犀川)	30 - 120 (4/4)	44 - 120 (4/4)	2.8 - 62 (4/4)	18 - 71 (4/4)	3.9 - 7.3 (4/4)	ND - ND (0/4)
羽咋大橋 (羽咋川)	9.9 - 30 (4/4)	3.5 - 13 (4/4)	ND - ND (0/4)	7.0 - 24 (4/4)	ND - ND (0/4)	ND - ND (0/4)
藤橋二号橋 (御蔵川)	35 - 93 (4/4)	48 - 150 (4/4)	2.0 - 5.8 (4/4)	31 - 57 (4/4)	ND - 6.9 (1/4)	ND - ND (0/4)
いろは橋 (河原田川)	3.7 - 47 (4/4)	7.9 - 17 (4/4)	ND - 3.3 (2/4)	ND - 28 (3/4)	ND - 6.2 (2/4)	ND - ND (0/4)
吾妻橋 (若山川)	ND - 2.7 (2/4)	ND - 7.7 (1/4)	ND - ND (0/4)	ND - 3.9 (2/4)	ND - ND (0/4)	ND - ND (0/4)

	ジフェニヒドラミン	フェキソフェナジン	エリスロマイシン	クラリスロマイシン	トリメトプリム	DEET
	最小値 - 最大値(検出頻度)	最小値 - 最大値(検出頻度)	最小値 - 最大値(検出頻度)	最小値 - 最大値(検出頻度)	最小値 - 最大値(検出頻度)	最小値 - 最大値(検出頻度)
塩屋大橋 (大聖寺川)	5.1 - 19 (4/4)	24 - 71 (4/4)	ND - ND (0/4)	5.6 - 12 (4/4)	ND - 4.5 (2/4)	ND - 100 (3/4)
倉部大橋 (倉部川)	57 - 250 (4/4)	170 - 1000 (4/4)	ND - 29 (2/4)	15 - 99 (4/4)	2.5 - 20 (4/4)	2.6 - 19 (4/4)
犀川河口 (犀川)	5.9 - 34 (4/4)	40 - 210 (4/4)	ND - ND (0/4)	7.4 - 25 (4/4)	ND - 7.7 (2/4)	8.9 - 59 (4/4)
羽咋大橋 (羽咋川)	ND - ND (0/4)	11 - 64 (4/4)	ND - ND (0/4)	ND - 1.3 (1/4)	ND - ND (0/4)	ND - 11 (3/4)
藤橋二号橋 (御蔵川)	2.0 - 5.6 (4/4)	28 - 160 (4/4)	ND - ND (0/4)	2.3 - 8.7 (4/4)	ND - 4.6 (2/4)	2.4 - 76 (4/4)
いろは橋 (河原田川)	1.2 - 3.0 (4/4)	5.6 - 58 (4/4)	ND - ND (0/4)	ND - 2.3 (2/4)	ND - ND (0/4)	ND - 43 (3/4)
吾妻橋 (若山川)	ND - 1.2 (1/4)	ND - ND (0/4)	ND - ND (0/4)	ND - ND (0/4)	ND - ND (0/4)	ND - 4.6 (2/4)

〔ND〕は検出下限値未満を表す

で犀川河口 (延べ59件検出), 塩屋大橋及び藤橋二号橋 (延べ55件検出), いろは橋 (延べ42件検出), 羽咋大橋 (延べ32件検出), 吾妻橋 (延べ9件検出) であった。また, 海域については, 白山市笠間沖でイルベサルタン及びテルミサルタン, 南湾中央部でDEETが検出下限値レベルで各1件検出され, それら以外は全て検出されなかった。

次に, ケトチフェンを除く17物質の調査地点毎の環境水中濃度を図3に示す。塩屋大橋ではバルサルタン, フェキソフェナジンが他の物質に比べ高い傾向が見られ, 季節変動については, 特徴的な傾向は見られなかった。倉部大橋では, 他の地点と比較して全体的に濃度が高く, 季節変動については, DEETを除き冬季と秋季に高濃度, 春季と夏季に低濃度という傾向が顕著に見られた。犀川河口, 藤橋二号橋ではテルミサルタン, バルサルタン及びフェキソフェナジンの濃度が高い傾向が見られ, 季節変動については, 犀川河口では冬季から秋季にかけて濃度が高くなり, 藤橋二号橋では春季に高い結果であった。羽咋大橋及びいろは橋ではオルメサルタン, テルミサルタン及びフェキソフェナジンの濃度が高かった。季節変動については, 羽咋大橋ではテルミサルタン及びフェキソフェナジンの濃度が春季に高く, オルメサルタンは春季及び冬季に同程度に検出された一方, 冬季及び夏季には検出されなかった。いろは橋ではオルメサルタン及び

テルミサルタンが夏季に, フェキソフェナジンが春季に高い結果となった。また, 塩屋大橋, 犀川河口, 藤橋二号橋及びいろは橋において, 他の季節に比べ夏季に昆虫忌避剤であるDEETの濃度が高く検出されていた。

検出数の多かった物質について, 採水時期による濃度の変化を図4に示す。なお, 検出の少なかった吾妻橋及び海域は省いた。図4に示すいずれの物質も, 倉部大橋では春季から夏季にかけて濃度が低く, 冬季及び秋季に濃度が高くなる傾向がある一方, その他の5地点では概ね春季から夏季にかけて濃度が高くなる傾向があった。また, 倉部大橋では, 血圧降下剤, クロタミトン及びフェキソフェナジンの濃度の変動が大きかったが, 塩屋大橋, 犀川河口, 藤橋二号橋及びいろは橋では, DEETの濃度の変動が大きかった。

一般に, 河川水のPPCPs濃度は生活排水の影響を受けるとされており, 下水処理施設の放流水の割合が低い地点の河川水の医薬品濃度が低い傾向であったとの報告³⁾もある。今回の調査地点は, 河川の上流に下水処理施設がある地点 (塩屋大橋, 倉部大橋, 犀川河口及びいろは橋) と, 上流に下水処理施設がない地点 (羽咋大橋, 藤橋二号橋及び吾妻橋) に大別できる。羽咋大橋及び吾妻橋では下水処理施設の放流水の影響を受けないため濃度が低かったと考えられる一方, 羽咋大橋, 吾妻橋及び藤橋二号橋における濃度の違いは, 集落排水処理施設, コ

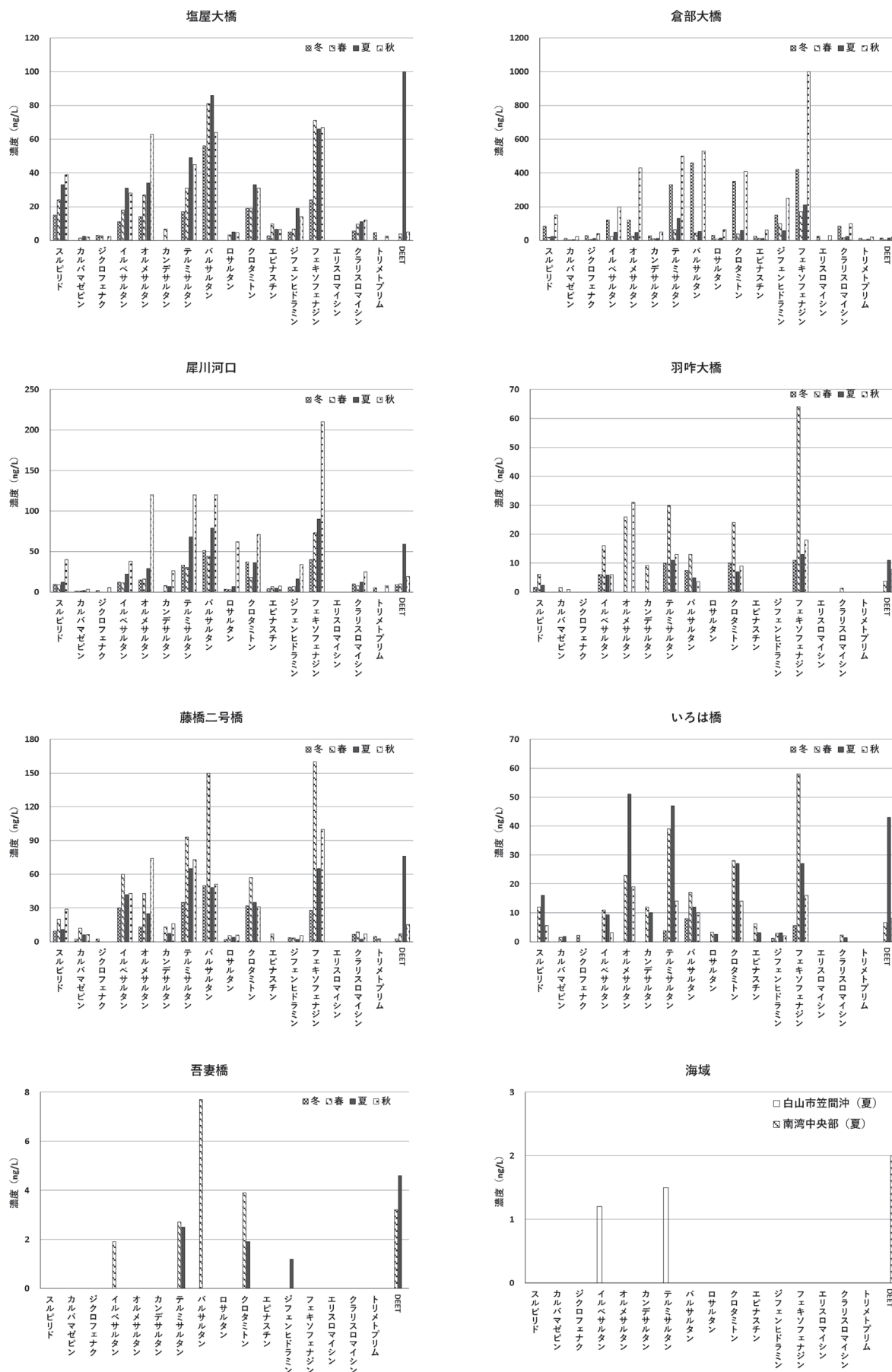


図 3 各調査地点における PPCPs の環境水中濃度

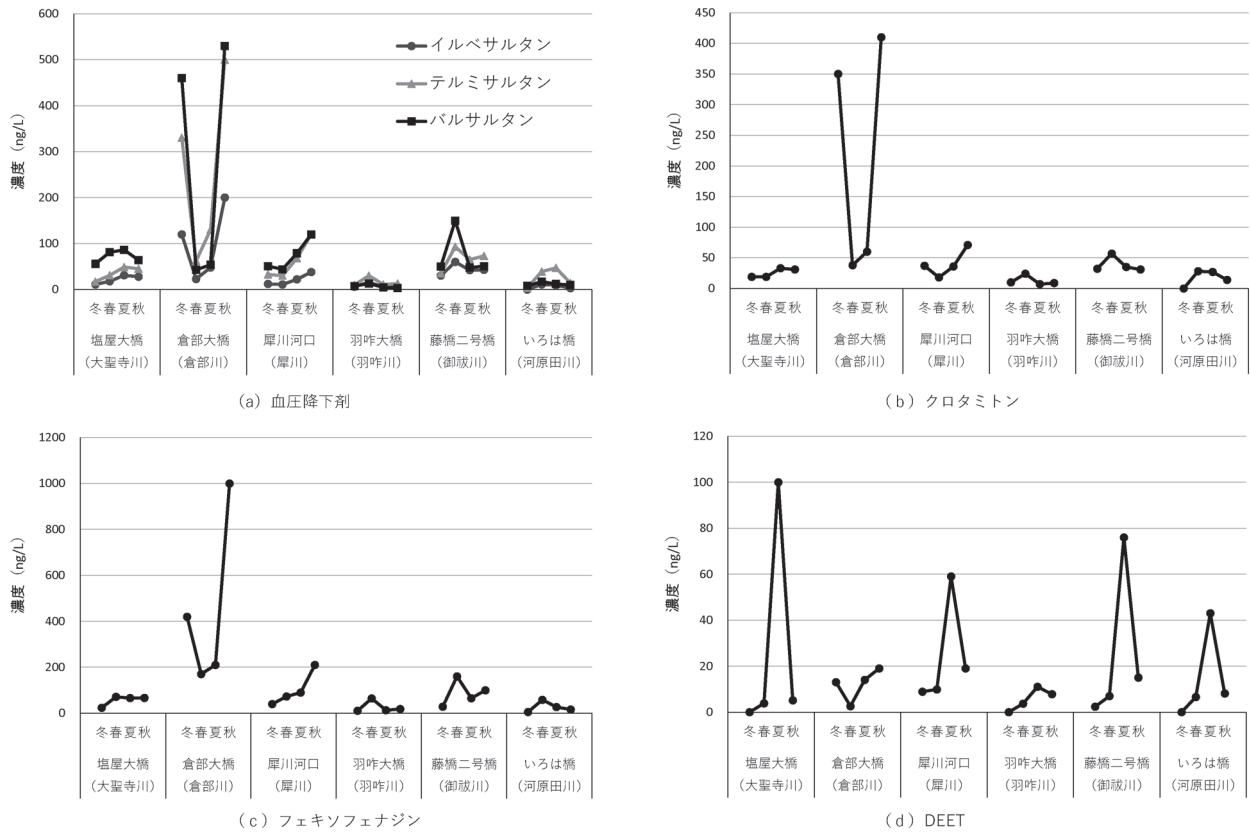


図4 採水時期によるPPCPs濃度の変化 (2021年)

コミュニティプラント及び浄化槽等の放流水が影響したものと推察される。また、塩屋大橋、倉部大橋、犀川河口及びいろは橋では下水処理施設からの放流水の影響に加え、その他の施設からの放流水の影響もあると考えられるが、それらの影響については、河川の水量に対する放流水量の割合や地理的な特徴等について更なる調査が必要である。

倉部大橋については、昆虫忌避剤であるDEETの濃度が夏季に低くなり、血压降下剤等の医薬品においても夏季から秋季に濃度が低いという他の地点と異なる季節変動が見られた。これは倉部川が農業用水路として七ヶ用水から分派しており⁴⁾、放流水の影響の他に、農業用水の利用に伴う河川の水量の変動が大きく影響した事例と考えられる。

(2) 生態リスク初期評価

環境省のガイドライン⁵⁾の生態リスクの判定の考え方に基づき、予測環境中濃度 (Predicted Environmental Concentration: 以下、「PEC」という。) と、予測無影響濃度 (Predicted No Effect Concentration: 以下、「PNEC」という。) との比較により評価を行った。本報では、本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」という。) とし、文献⁶⁻⁹⁾により得られた

エリスロマイシン、クラリスロマイシン、トリメトプリム及びDEETのPNECの値を用いてMEC/PNECを求めた。

生態リスク初期評価の結果を表3に示す。ガイドラインでは、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、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としている。本調査でMEC/PNECが1を超えたのは、倉部大橋のクラリスロマイシンが1.4 (秋季)であった。MEC/PNECが0.1以上1未満であったのもクラリスロマイシンであり、犀川河口が0.36 (秋季)、塩屋大橋が0.17 (秋季)、藤橋二号橋が0.13 (春季)であった。これらの地

表3 生態リスク初期評価の結果

	MEC / PNEC			
	エリスロマイシン	クラリスロマイシン	トリメトプリム	DEET
塩屋大橋		0.17	<0.01	0.02
倉部大橋	0.08	1.4	0.02	<0.01
犀川河口		0.36	<0.01	0.01
羽咋大橋		0.02		<0.01
藤橋二号橋		0.13	<0.01	0.01
いろは橋		0.03		<0.01
吾妻橋				<0.01
PNEC (ng/L)	360 ⁶⁾	69 ⁷⁾	1,000 ⁸⁾	5,200 ⁹⁾

点では2020年度に河川水のクラリスロマイシンを調査しており¹⁾、倉部大橋でMEC/PNECが2.0と1を超えたことから詳細調査を実施している。今回検出されたクラリスロマイシンの濃度(15~99ng/L)、及び秋季と冬季に濃度が高いという結果は、2020年度の調査の結果と概ね一致していた。また、東京都や大阪府等の都市部で公共用水域を調査した文献²⁾によると、クラリスロマイシンは200~900ng/Lの報告値が多数見受けられ、本調査における最大濃度の約2倍~9倍である。クラリスロマイシンは、全国的に高濃度で検出される物質として、今後、詳しい評価がなされるものと思われる。

また、DEETについては検出割合が高く、夏季に高くなる季節性が見られた調査地点が多かったものの、生態リスク初期評価ではいずれも0.02以下と低い値であった。

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、季節ごとにPPCPs18物質の存在実態を調査した。その結果、17物質がいずれかの地点で検出され、多くは1~100ng/Lの濃度範囲にあり、最大濃度はフェキソフェナジンの1,000ng/Lであった。また、海域では、ほとんどの物質が検出されなかった。倉部大橋では最も多くの物質が検出され、濃度も高い傾向である一方、季節により他の地点と異なる濃度変化を示した。得られた濃度をもとに生態リスク初期評価を行ったところ、倉部大橋のクラリスロマイシンでMEC/PNECが1を超えていた。

文 献

- 1) 宮田朋子, 高田啓子, 徳田貴裕, 安田能生弘: 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研究報告書, **58**, 21-27 (2021)
- 2) 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)
- 3) 鈴木俊也: 水環境中のヒト用医薬品の存在実態及び環境中濃度の予測, 東京都健康安全研究センター研究年報, **63**, 69-81 (2012)
- 4) 石川県: 倉部川水系河川整備基本方針, 平成15年3月
- 5) 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20巻, 令和4年3月
- 6) 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
- 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16巻, 平成30年3月
- 8) DEO,R.P.and HALDEN,R.U.:Pharmaceuticals in the built and natural water environment of the United States. Water, **5**, 1346-1365 (2013)
- 9) KOMORI,K.,SUZUKI,Y.,MINAMIYAMA,M. and HARADA, A.: Occurrence of selected pharmaceuticals in river water in Japan and assessment of their environmental risk. Environmental Monitoring and Assessment, **185**, 4529-4536 (2013)

〔資料〕

水道水中の放射性核種調査

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・小林浩美
牧野雅英・吉本高志・内田賢吾

〔和文要旨〕

石川県内の水道水における放射性核種の挙動等を把握するため、その濃度変動及び浄水処理の影響を調査した。

水道水中のカリウム-40及びストロンチウム-90濃度は、年間を通してほぼ一定であった。トリチウム濃度も年間を通してほぼ一定であり、既報で見られた降水中のトリチウム濃度の季節変動とは異なっていた。

また、浄水処理の影響を調べるために浄水処理前後（原水及び浄水）で、放射性核種の濃度を比較したところ、差は見られなかった。

キーワード：ストロンチウム-90，カリウム-40，トリチウム，水道水

1 はじめに

本県では、2014年度から2017年度まで志賀原子力発電所周辺市町の飲料水に係る陸水（水道原水及び浄水）について、現状把握調査^{1) -4)}として、ガンマ線放出核種及びストロンチウム-90（以下、「Sr-90」という。）（半減期28.79年⁵⁾）の測定を行っている。既報⁶⁾において、この調査結果を改めて取りまとめ、地下水のみを水源とする陸水ではSr-90が検出されず、河川水を水源に含む陸水ではSr-90が検出され、濃度には地域差が見られず、原水と浄水で濃度がほぼ一定であったことを報告した。

本報では、Sr-90に加えて、人体への影響の面から注目される人工放射性核種セシウム-137（以下、「Cs-137」という。）（半減期30.08年⁵⁾）、福島第一原子力発電所のALPS（多核種除去設備）処理水の海洋放出で注目されるトリチウム（以下、「H-3」という。）（半減期12.32年⁵⁾）及び広く環境中に分布している天然放射性核種カリウム-40（以下、「K-40」という。）（半減期12.48億年⁵⁾）について水道水中の放射性核種の濃度変

動について調査したので報告する。また、既報⁶⁾では、原水と浄水の採取日が異なっていたため、改めて採取を同日に行き、浄水処理前後の放射性核種の濃度を比較するとともに、化学的挙動が類似する同族元素のイオン成分濃度を比較し、浄水処理の影響を調査したので報告する。

2 調査方法

2.1 採取地点・採取期間・採取方法

採取地点及び採取期間を表1に示す。採取地点は定期的に採取する必要があることから、金沢市内の施設とした。水道水中の濃度変動調査では、2021年5月～2022年3月の奇数月に、石川県教員総合研修センター（金沢市高尾町）の屋外散水栓から浄水を採取した。浄水処理の影響調査では、2021年8月～2022年2月の偶数月に、金沢市末浄水場（金沢市末町）のサンプリング栓から水道原水及び浄水（急速ろ過方式）を採取した。なお、両地点とも水源は河川水である。

採取方法は放射能測定法シリーズ⁷⁾に準じ、ガンマ

Radionuclides in Tap Water.

by TOYANAGO Yamato, OKADA Makiko, KOBAYASHI Hiromi, MAKINO Masahide, YOSHIMOTO Takashi and UCHIDA Kengo (Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Strontium-90, Potassium-40, Tritium, Tap water

表 1 採取地点及び採取期間

調査名	調査地点	水道水の種類	水源	調査期間
季節変動調査	石川県教員総合研修センター (金沢市高尾町)	浄水	河川水	2021.5 ~ 2022.3 (奇数月)
浄水処理の影響調査	金沢市末浄水場 (金沢市末町)	原水 浄水	河川水	2021.8 ~ 2022.2 (偶数月)

線放出核種分析及び Sr-90 分析用に 100 L、H-3 分析用に 500mL 用いるため、約 120L を採取した。

2・2 測定方法

(1) 試料の調製

試料の調製は、放射能測定法シリーズ^{8) -10)} に準じた。ガンマ線放出核種分析及び Sr-90 分析では、試料水 100 L に塩酸 100 mL 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。Sr-90 分析では、ガンマ線放出核種分析後の試料をイオン交換法等により精製し、Sr-90 から壊変したイットリウム-90 (半減期 64.00 時間⁵⁾) を分離して測定試料とした。

H-3 分析では、試料水 100 mL に対して過酸化ナトリウム及び過マンガン酸カリウムを各 0.1 g ずつ加え、ロータリーエバポレータ (ウォーターバス: 55 °C) を用いて減圧蒸留した。100 mL のテフロンバイアルに蒸留した試料水 50 mL を採り、乳化シンチレータを 50 mL 加え混合し、疑似発光を減衰させるため、測定器内に約 1 週間静置して測定試料とした。バックグラウンド水には、無トリチウム水を用いた。

各種イオン成分の分析では、試料水を孔径 0.2 μm のシンジフィルタを用いてろ過し、測定試料とした。

(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¹¹⁾ に準じ、ゲルマニウム半導体検出器 (相対効率 45% 程度、分解能 2 keV 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、本報では人体への影響の面から注目される Cs-137 及び広く環境中に分布している天然放射性核種 K-40 についてのみ報告する。

イ Sr-90 分析

Sr-90 分析は、放射能測定法シリーズ⁹⁾ に準じ、低バックグラウンドベータ線測定装置を用いて 3,600 秒測定を行った。

ウ H-3 分析

H-3 分析は、放射能測定法シリーズ¹⁰⁾ に準じ、液体シンチレーションカウンタを用いて 500 分 (50 分 × 10 回) を 3 サイクル行い、3 つの結果のうち中央値を採用した。検出下限値はバックグラウンド水を測定した時の計数誤

差 (3σ) から算出する 3σ 法より求めた。(約 0.3 ~ 0.4 Bq/L)

(3) イオン成分分析

イオンクロマトグラフを用いてナトリウムイオン、カリウムイオン、マグネシウムイオン及びカルシウムイオン (以下「Na⁺」, 「K⁺」, 「Mg²⁺」, 「Ca²⁺」という。) を測定した。

3 結果と考察

3・1 放射性核種及びイオン成分の濃度変動

水道水中の放射性核種の濃度変動を図 1 ~ 3 に示す。K-40 及び Sr-90 濃度は、5 月が若干低く、3 月が高いといった変動がわずかに見られたが、ほぼ一定で推移していた。

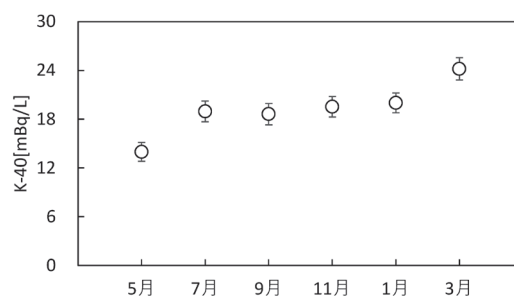


図 1 水道水中の K-40 濃度の季節変動

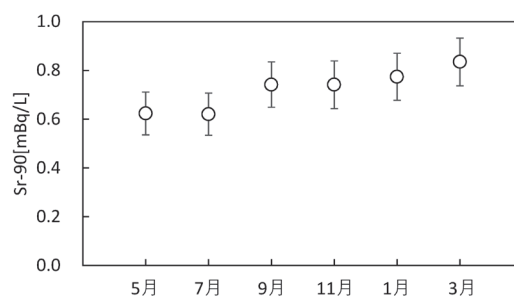


図 2 水道水中の Sr-90 濃度の季節変動

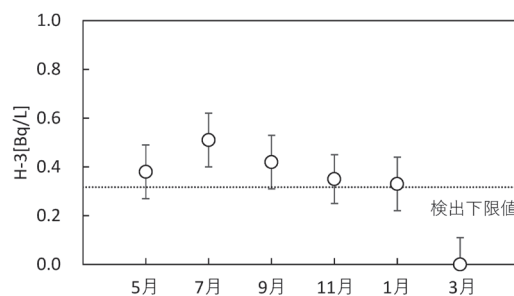


図 3 水道水中の H-3 濃度の季節変動

H-3濃度についても、7月がやや高かったものの、ほぼ一定で推移していた。降水中のH-3濃度については、既報¹²⁾において、2～5月に高く7～8月に低い季節変動が見られているが、そのような季節変動は見られなかった。

また、いずれの試料についてもCs-137は検出されなかった。

Na⁺、K⁺、Mg²⁺及びCa²⁺の濃度変動を図4に示す。放射性核種と同様に、5月が若干低く、3月が高いといった変動がわずかに見られたが、ほぼ一定で推移していた。今回は、単年度の調査で検体数が少なく、年間の濃度変動が不明確なため、今後、複数年での調査が必要と考えられる。

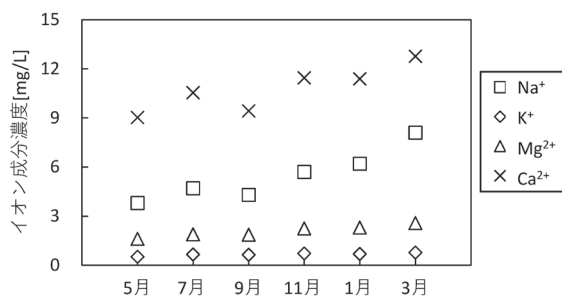


図4 水道水中のイオン成分濃度の季節変動

3・2 浄水処理の影響

浄水処理前後の放射性核種の測定結果を図5～7に示す。K-40は、原水で10.3～12.4 mBq/L、浄水で11.5～15.4 mBq/Lの範囲で検出され、浄水処理の前後でほぼ一定であった。Sr-90も、原水で0.68～0.96 mBq/L、浄水で0.82～1.0 mBq/Lの範囲で検出され、浄水処理

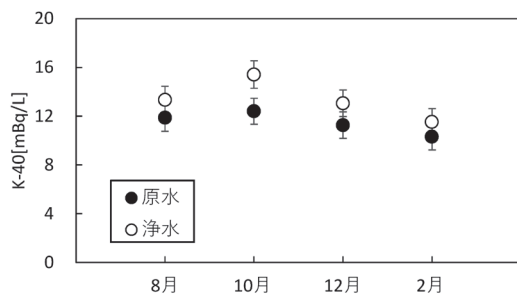


図5 浄水処理前後のK-40濃度

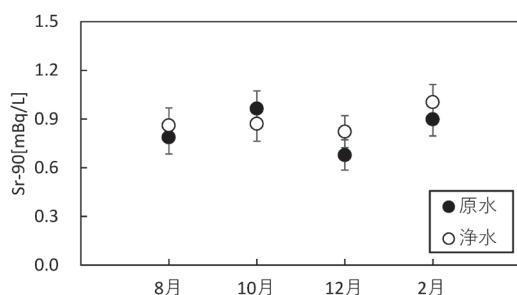


図6 浄水処理前後のSr-90濃度

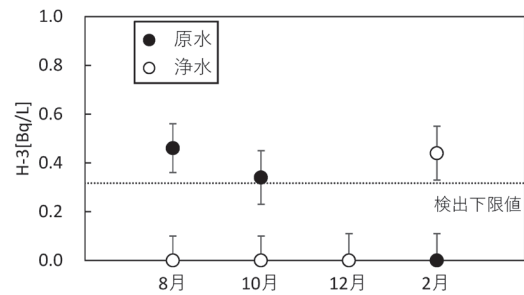


図7 浄水処理前後のH-3濃度

の前後でほぼ一定であった。

H-3については、原水及び浄水ともに検出頻度が低く(検出下限0.3～0.4 Bq/L)、浄水処理前後での比較ができなかった。

また、いずれの試料についてもCs-137は検出されなかった。

イオン成分分析の結果を、図8～9に示す。Na⁺、K⁺、Mg²⁺及びCa²⁺でも同様に、浄水処理前後でほぼ一定であった。

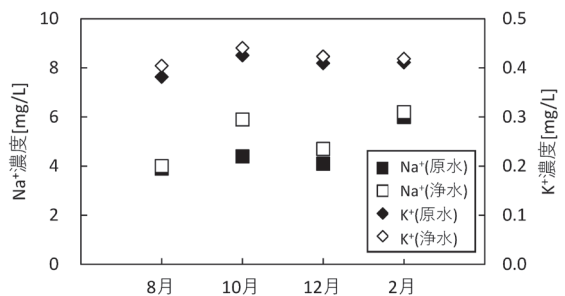


図8 浄水処理前後のNa⁺及びK⁺濃度

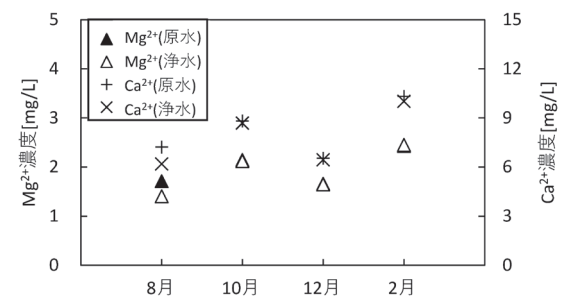


図9 浄水処理前後のMg²⁺及びCa²⁺濃度

今回の結果より、アルカリ金属であるK-40やNa⁺、K⁺、アルカリ土類金属であるSr-90やMg²⁺及びCa²⁺については、浄水処理の影響を受けないと考えられ、既報⁶⁾でSr-90は浄水処理過程で影響を受けないと考察したことが裏付けられた。

4 まとめ

(1) 水道水中のK-40及びSr-90の濃度は、年間を通してほぼ一定であった。また、化学的挙動が類似するイ

オン成分の Na^+ 、 K^+ 、 Mg^{2+} 及び Ca^{2+} の濃度についても、年間を通してほぼ一定であった。

H-3濃度も、7月がやや高かったものの、年間を通してほぼ一定であり、7月に若干濃度が高かったが、これは既報の降水中のH-3濃度の季節変動とは異なる変動であった。

(2) アルカリ金属であるK-40や Na^+ 、 K^+ 、アルカリ土類金属であるSr-90や Mg^{2+} 及び Ca^{2+} は、浄水処理によって除去されず、浄水処理前後で濃度にほぼ差は見られなかった。

文 献

- 1) 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)
- 2) 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)
- 3) 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)
- 4) 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)
- 5) 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)
- 6) 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)
- 7) 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)
- 8) 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)
- 9) 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)
- 10) 原子力規制庁: トリチウム分析法, 放射能測定法シリーズ9 (平成14年7月)
- 11) 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)
- 12) 岡田真規子, 山岸喜信, 河野隆史, 牧野雅英, 内田賢吾: 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研究報告書, **58**, 52-56 (2021)

〔資料〕

石川県における環境放射能水準調査（2021年度）

石川県保健環境センター 環境科学部 小林 浩美・岡田 真規子・鳥屋子やまと
吉本 高志・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、土壌表層及び海産生物（フクラギ）からセシウム-137が検出されたが、いずれも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

1 はじめに

本調査は、1954年（昭和29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、1986年（昭和61年）のチヨルノーベリ原子力発電所事故や2011年（平成23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、1959年（昭和34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2021年度（令和3年度）環境放射能水準調査の結果（2021年4月1日～2022年3月31日）をまとめた。

2 調査方法

2・1 調査対象

調査対象は、定時（午前9時）採取の降水（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

Environmental Radioactivity Level in Ishikawa Prefecture, April 2021 to March 2022.
by KOBAYASHI Hiromi, OKADA Makiko, TOYANAGO Yamato, YOSHIMOTO Takashi and
UCHIDA Kengo (Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health
and Environmental Science)

Key words : Fall-out, Environmental Radioactivity, 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		
陸水	上水 (蛇口水)	金沢市太陽が丘
大気浮遊じん		
環境試料	土壌	0~5cm 5~20cm
		金沢市末町
農畜産物	精米	河北郡津幡町潟端
	牛乳	羽咋郡宝達志水町坪山
海産生物	ワカメ	
	サザエ	加賀市橋立漁港
	フクラギ	
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

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・キャンベラ (株) 製) 及び波高分析器 (DSA1000 ミリオンテクノロジーズ・キャンベラ (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(Tl) 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 145 試料で、全ベータ放射能測定により検出されたものは、3 試料であった。これら 3 試料についてガンマ線放出核種分析を行った結果、いずれも宇宙線生成核種のベリリウム-7 が検出されたが、人工放射性核種は検出されなかった。

3・2 環境試料中のガンマ線放出核種分析

(1) 降下物

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 3 年 4 月	185.0	0/7	ND	ND
5 月	211.5	0/12	ND	ND
6 月	154.5	0/9	ND	ND
7 月	125.0	0/11	ND	ND
8 月	299.0	0/13	ND	ND
9 月	135.0	0/9	ND	ND
10 月	133.0	0/9	ND	ND
11 月	274.5	0/13	ND	ND
12 月	320.0	0/18	ND	ND
R 4 年 1 月	217.5	0/17	ND	ND
2 月	217.5	0/14	ND	ND
3 月	74.0	3 ^{*1} /13	ND ~ 6.0	47
年間値	2,346.5	3/145	ND ~ 6.0	ND ~ 47
H30 ~ R2 年度の測定結果		13/434	ND ~ 6.8	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

表 3 に降下物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（3 月分）からセシウム-137 が 0.047 MBq/km² 検出されたが、過去 3 年間（以下、過去）の測定結果^{5) - 7)}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。

(2) 大気浮遊じん

表 4 に大気浮遊じん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 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 3. 3.30 ~ R 2. 4.30	185.0	ND	ND	ND	ND
R 2. 4.30 ~ R 3. 5.31	212.0	ND	ND	ND	ND
R 3. 5.31 ~ R 3. 6.30	154.0	ND	ND	ND	ND
R 3. 6.30 ~ R 3. 7.31	125.0	ND	ND	ND	ND
R 3. 7.31 ~ R 3. 8.31	299.0	ND	ND	ND	ND
R 3. 8.31 ~ R 3. 9.30	153.5	ND	ND	ND	ND
R 3. 9.30 ~ R 3.10.29	114.5	ND	ND	ND	ND
R 3.10.29 ~ R 3.11.30	274.5	ND	ND	ND	ND
R 3.11.30 ~ R 3.12.28	320.0	ND	ND	ND	ND
R 3.12.28 ~ R 4. 1.31	217.5	ND	ND	ND	ND
R 4. 1.31 ~ R 4. 2.28	217.5	ND	ND	ND	ND
R 4. 2.28 ~ R 4. 3.31	74.0	ND	ND	0.047 ± 0.012	ND
年間値	2,346.5	ND	ND	0.047	ND
H30 ~ R2 年度の 測定結果	-	ND	ND	0.056 ~ 0.076	ND

ND：不検出（測定値が計数誤差の 3 倍を下回る場合）

(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。

土壌については、セシウム-137が表層（0～5cm）で1.1Bq/kg乾土、下層（5～20cm）で不検出であり、過去の測定結果^{5)・7)}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0.097Bq/kg生検出されたが、過去の測定結果^{5)・7)}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。

陸水、農畜産物（精米、牛乳）及びその他の海産生物（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16～110nGy/hの範囲であり、いずれの地点も過去の測定結果^{5)・7)}と同程度であった。

4 まとめ

2021年度（令和3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、3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、土壌表層及び海産生物（フクラギ）からセシウム-137が検出されたが、いずれも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16～110nGy/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4 大気浮遊じん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	吸引量 (m ³)	核種別放射性物質濃度 (mBq/m ³)			
		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 3. 4. 5～R 3. 6. 25	10,447.1	ND	ND	ND	ND
R 3. 7. 5～R 3. 9. 28	10,410.7	ND	ND	ND	ND
R 3.10. 4～R 3.12.24	10,439.2	ND	ND	ND	ND
R 4. 1. 6～R 4. 3. 29	10,411.8	ND	ND	ND	ND
年間値	41,708.8	ND	ND	ND	ND
H30～R2年度の 測定結果	-	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。

表6 空間放射線量率の測定結果

測定地点	測定結果		H30～R2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	32～ 87	49	26～ 105	49～ 50
輪島市三井町洲衛	16～ 95	29	15～ 98	30～ 31
羽咋市大町	48～ 108	60	32～ 118	61
河北郡津幡町中橋	48～ 110	62	33～ 123	61～ 62
小松市下栗津町	40～ 103	54	33～ 153	52～ 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。

表5 その他の環境試料中の核種分析結果

試料名	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	H30～R2年度の 測定結果	測定結果	H30～R2年度の 測定結果		
陸水	上水 (蛇口水)	R 3. 6. 7	ND	ND	ND	ND	mBq/L
土壌	0～5cm	R 3. 7. 1	1.1	6.1～21	ND	ND	Bq/kg 乾土
	5～20cm	R 3. 7. 1	ND	4.2～18	ND	ND	
精米		R 3. 9. 10	ND	ND	ND	ND	Bq/kg 生
牛乳		R 3. 8. 11	ND	ND	ND	ND	Bq/L
海産生物	ワカメ	R 3. 4. 26	ND	ND	ND	ND	Bq/kg 生
	サザエ	R 3. 7. 13	ND	ND	ND	ND	
	フクラギ	R 3.10.13	0.097	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 3 年度環境放射能水準調査委託実施計画（令和 3 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) 宮竹智代，山岸喜信，河野隆史，内川慎互，川畑俊之：石川県における環境放射能水準調査（平成 30 年度），石川県保健環境センター研究報告書，**56**，59-61（2019）
- 6) 小林浩美，山口麻美，宮竹智代，山岸喜信，河野隆史，内田賢吾：石川県における環境放射能水準調査（令和元年度），石川県保健環境センター研究報告書，**57**，76-78（2020）
- 7) 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：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研究報告書，**58**，92-95（2021）

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ライ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〕

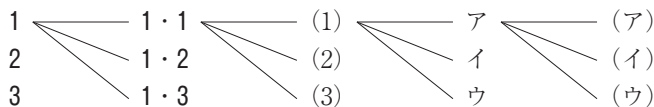
- 1 原稿は原則として新仮名遣い、新送り仮名、平仮名混じり国語文とし、簡潔で理解し易い表現にする。止むを得ぬ学術用語、地名、人名などのほかは常用漢字を用いる。
- 2 欧文はダブルスペースとする。

〔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な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 8cm (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 付記は謝辞に引き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59号）

令和4年12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
