

B 調 査 研 究

I 研 究 成 果

宮城県における新型コロナウイルス感染症の変遷

Transition of the COVID-19 in Miyagi Prefecture

木村 葉子 茂庭 光 小泉 光*¹ 大槻 りつ子 坂上 亜希恵
鈴木 優子 佐々木 美江 山木 紀彦

Yoko KIMURA, Hikari MONIWA, Hikari KOIZUMI, Ritsuko OTSUKI, Akie SAKAGAMI,
Yuko SUZUKI, Mie SASAKI, Norihiko YAMAKI

新型コロナウイルス感染症（COVID-19）発生からの当所における検査対応と、仙台市を除く宮城県内の感染状況について調査したところ、患者数は全国の流行とほぼ同様の経過をたどっていたが、2021年3月頃にはR.1系統株による地域的な流行が確認された。オミクロン株流行後は患者数が急増していたが、当所で実施した行政検査件数については流行に伴う目立った増加は見られず、民間検査機関や医療機関での検査体制の整備が進んだことが要因の一つと考えられた。変異株検査の結果から県内の流行との関連性が確認され、まん延防止等重点措置による行動制限の実施によりアルファ株の流行は小さかったものの、デルタ株及びオミクロン株の出現がその後の流行に大きく影響していたことが示唆された。ゲノム解析の結果からオミクロン株の流行状況とその多様性が確認され、県内に様々な種類のオミクロン株が流入していることが示唆された。

キーワード：新型コロナウイルス感染症；流行；変異株；ゲノム解析

Key words : COVID-19 ; epidemic ; variant ; genome analysis

1 はじめに

新型コロナウイルス（以下、「SARS-CoV-2」）を原因とする新型コロナウイルス感染症（以下「COVID-19」という。）は、2019年12月に中国で確認され、その後世界的に感染が拡大した。国内においては、2020年1月に初の感染者が確認され、4月には全ての都道府県で緊急事態宣言が発出された。流行が繰り返される中で様々な変異株が出現し、第4波はアルファ株、第5波はデルタ株、第6波以降はオミクロン株を中心とした流行が起こっており、発生から3年以上経過した現在も収束していない。感染症法上では、COVID-19は「新型インフルエンザ等感染症」に位置付けられ、全数把握の対象であったが、2023年5月8日からは「5類感染症」に移行したため定点把握対象疾患となり、週1回の集計で動向を把握している。

当所はCOVID-19発生直後からSARS-CoV-2に関する情報を収集すると同時に検査体制の整備を進め、国からの通知¹⁾²⁾に沿って2020年2月から行政検査、2021年2月から変異株検査を開始した。また、2021年1月からは国からの要請³⁾に基づき、国立感染症研究所（以下「感染研」という。）による次世代シーケンサー（以下「NGS」という。）を用いたゲノム解析実施のためSARS-CoV-2陽性検体の送付を開始した。NGSに関してはその後国から地方衛生研究所への技術移転が進められ、2022年10月からは当所においてもNGSによるゲノム解析を開始している。

そこで今回、当所における検査対応と県内の感染状況について、これまでの変遷をまとめたので報告する。

2 方法

2.1 患者数

2020年2月から2022年12月までの仙台市を除く県内の患者数について、県公表資料を基に月別に集計した。また、同期間の全国の患者数と比較した。

2.2 行政検査件数

2020年2月から2022年12月までに当所で実施した行政検査23,682件について件数を月別に集計した。

2.3 変異株検査

2.3.1 アルファ株スクリーニング検査

アルファ株探知のためのN501Y変異スクリーニング検査について、2021年2月（1月分検体含む）から7月に実施した798件について集計し、流行との関連性を分析した。

2.3.2 デルタ株スクリーニング検査

デルタ株探知のためのL452R変異スクリーニング検査について、2021年6月から10月に実施した874件について集計し、流行との関連性を分析した。

2.3.3 オミクロン株スクリーニング検査

オミクロン株探知のためのL452R変異スクリーニング検査について、2021年12月から2022年12月に実施した2,761件について集計し、流行との関連性を分析した。

2.4 ゲノム解析

東北大学（サンガー法：481件、NGS：146件）、

*1 現 保健福祉部業務課

民間検査機関（NGS：84件）及び当所（NGS：253件）で2022年4月から12月までに実施した964件のうち、重複や解析不可を除いた927件の解析結果を検体採取月別に集計した。また、NGSによるゲノム解析を実施した457件について、系統別の検出件数とそれぞれの亜系統の種類について集計した。

3 結果

3.1 患者数

調査期間におけるCOVID-19の患者数は、県内では221,699名、全国では28,959,988名であった。月別に集計したところ、2022年1月のオミクロン株による流行開始以降、全国的に患者数が急増していた。宮城県は全国と同様の経過をたどっていたが、2021年3月に、全国に先駆けて患者数が増加していることが確認された（図1）。

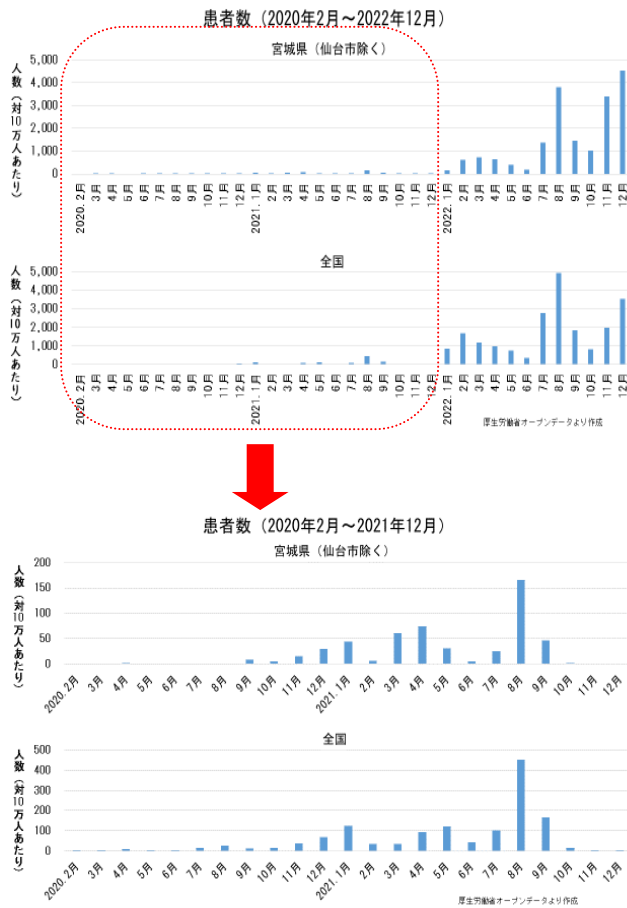


図1 患者数の比較

3.2 行政検査件数

当所における検査件数は2021年1月が最も多く、次いで2021年8月、2020年12月の順に多かった。2021年12月と2022年1月を境にオミクロン株流行前後で比較したところ、オミクロン株流行前では、患者数に対して検査件数が多く、流行後は患者数が急増していたものの検査件数の目立った増加は見られず、オミクロン株流行前と同程度の件数で推移していた（図2）。

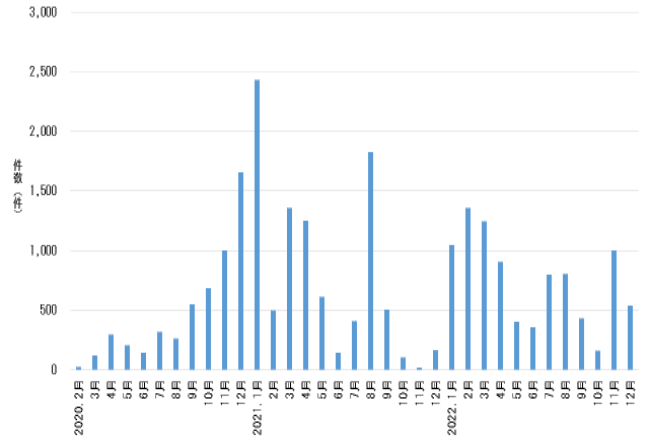


図2 行政検査件数の推移

3.3 変異株検査

3.3.1 アルファ株スクリーニング結果

N501Y変異はアルファ株に特徴的な変異であり、検査した798件中、変異のある株は159件（20.0%）であった。また、変異の割合を月別に集計したところ、2021年4月から5月にかけて変異した株の割合が増加しており、この期間で従来流行していた株からアルファ株への置き換わりが進んだと考えられた（図3）。なお、置き換わりのあった2021年5月の患者数は全国的には増加していたものの、宮城県では減少していた（図1）。

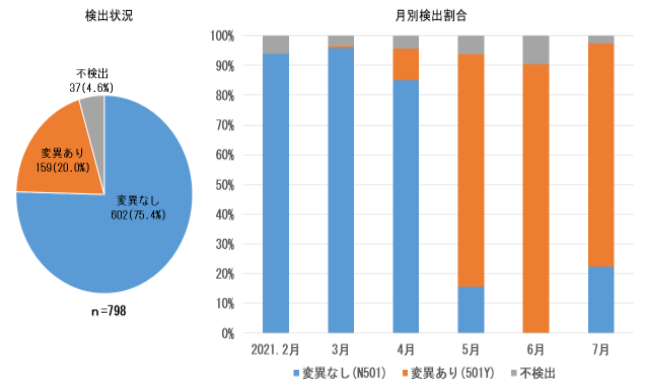


図3 アルファ株スクリーニング結果

3.3.2 デルタ株スクリーニング結果

L452R変異はデルタ株に特徴的な変異であり、検査した874件中、変異のある株は739件（84.5%）であった。また、変異の割合を月別に集計したところ、2021年7月から8月にかけて変異した株の割合が増加しており、この期間でアルファ株からデルタ株への置き換わりが進んだと考えられた（図4）。

なお、置き換わりのあった2021年8月の患者数は、全国、宮城県ともに増加していた（図1）。

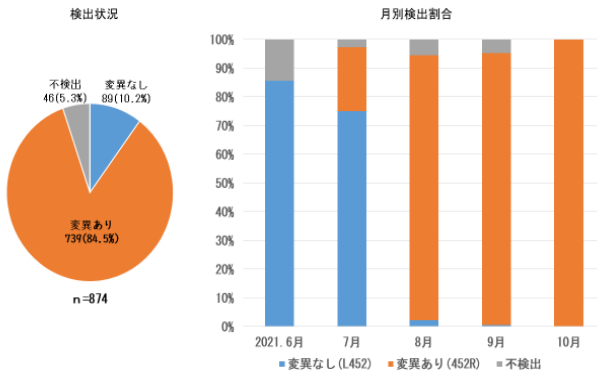


図4 デルタ株スクリーニング結果

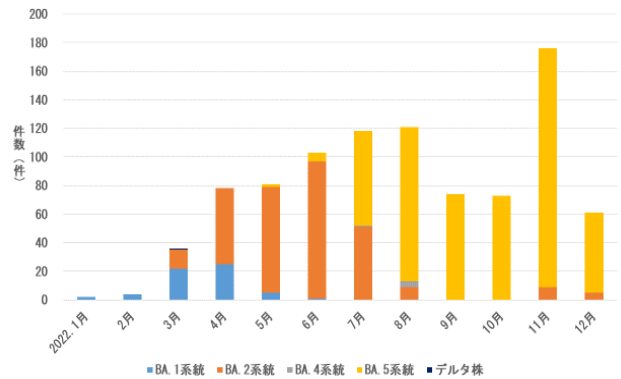


図6 検体採取月別検出結果

3.3.3 オミクロン株スクリーニング結果

検査した2,761件中、L452R変異のある株が484件（17.5%）、変異のない株が2,145件（77.7%）であった。また、判定不能となった株も12件（0.4%）確認された。変異の割合を月別に集計したところ、2021年12月から2022年1月にかけて変異のない株の割合が増加していた。発生初期のオミクロン株はL452R変異のないBA.1系統やBA.2系統が主流であり、この期間でデルタ株からオミクロン株への置き換わりが進んだと考えられた。さらに、オミクロン株はその後L452R変異のあるBA.5系統が出現し、2022年6月から7月にかけて再び変異した株の割合が増加していたことから、この期間でそれまで流行していたBA.2系統からBA.5系統への置き換わりが進んだと考えられた（図5）。

なお、置き換わりのあった2022年1月及び7月の患者数は、全国、宮城県ともに増加していた（図1）。

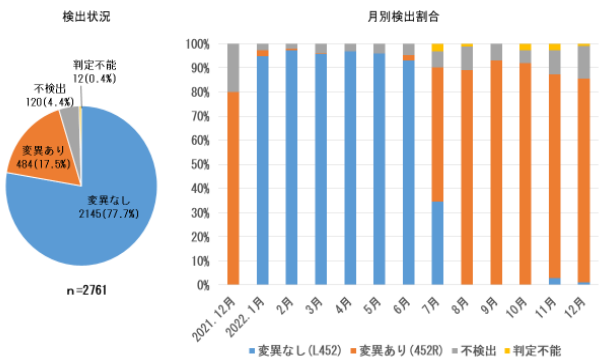


図5 オミクロン株スクリーニング結果

3.4.2 オミクロン株系統別検出状況

系統別の検出件数と亜系統の数は、BA.1系統で16件5種類、BA.2系統で92件21種類、BA.4系統で1件1種類、BA.5系統で348件21種類であった。検出件数が1件であったBA.4系統以外の系統で複数の亜系統が検出されており、県内で検出されたオミクロン株の多様性が確認された（表1）。

表1 オミクロン株系統別検出件数

系統の種類 (pangolinによる分類)	件数 (件)	亜系統の数
BA.1系統	16	5種類
BA.2系統	92	21種類
BA.4系統	1	1種類
BA.5系統	348	21種類

n=457

4 考察

宮城県における COVID-19 の患者数の推移は全国と同様の傾向を示していたが、2021年3月に全国に先駆けて増加していた。この原因として、当時感染研に送付した SARS-CoV-2 陽性検体のゲノム解析結果から、E484K 変異を持つ R.1 系統株が県内で流行していたことが確認され⁴⁾、この株による地域的な流行が起こっていたためであると推察された。

なお、この流行により、2021年4月5日に宮城県を含む3府県を対象に全国初のまん延防止等重点措置が出された。

当所で行った行政検査件数と患者数の推移を比較すると、2021年12月までのオミクロン株流行前では、患者数に対して検査件数が多く、オミクロン株流行後は患者数が急増していたものの検査件数はオミクロン株流行前と同程度の件数で推移していた。この理由としては様々な要因が考えられるが、COVID-19 発生当初は検査可能な機関が少なく、当所に多くの検体が搬

3.4 ゲノム解析

3.4.1 検体採取月別検出結果

今回調査対象となった検体は2022年1月以降のオミクロン株流行後に採取した検体であったため、3月に採取したデルタ株1件を除き全てオミクロン株であった。2022年3月から4月にかけてBA.1系統からBA.2系統へ、6月から7月にかけてBA.2系統からBA.5系統へと流行の中心が置き換わっており、その後はBA.5系統による流行が継続していた（図6）。

入されていたが、次第に民間検査機関や医療機関での検査体制の整備が進み、当所へ検体の搬入が集中しなくなったことが大きな要因の一つではないかと考えられた。

アルファ株の変異株スクリーニング検査により、2021年4月から5月にかけて従来流行していた株からアルファ株への置き換わりが進んだと推察されたが、全国的には5月に患者数が増加し、アルファ株を中心とした第4波が起こっていたものの、宮城県の患者数は減少していた。これは、前述した R.1 系統株の地域的な流行により4月に全国に先駆けてまん延防止等重点措置が出され行動が制限されたため、アルファ株による流行が抑えられた可能性が考えられた。また、デルタ株の変異株スクリーニング検査によりアルファ株からデルタ株への置き換わりの時期が確認され、オミクロン株の変異株スクリーニング検査によりデルタ株からオミクロン株へ、更にオミクロン株の中でも BA.2 系統から BA.5 系統への置き換わりの時期が確認された。これらの置き換わりにより患者数は増加しており、新たな変異株の出現が患者数の増加に影響していたと考えられた。また、オミクロン株の変異株スクリーニング検査において、2022年7月以降の検査結果から、判定不能となる検体が確認されるようになり、このような検体は新たな変異を起こしている可能性が高いことから、優先的にゲノム解析を実施することで早期に詳細を確認することができた。

ゲノム解析の検体採取月別検出状況から、オミクロ

ン株の系統別の流行の変遷が確認された。また、検出されたオミクロン株の多様性が確認され、県内に様々な種類のオミクロン株が流入していることが示唆された。

COVID-19は5類感染症へ移行されたが、依然収束はしておらず、また今後も状況は変化し、その都度適切に対応していく必要があると考えられる。引き続き情報収集を怠らず、正確且つ迅速な検査と情報提供に努めていきたい。

5 謝 辞

本県におけるゲノム解析の実施にあたり、多大な御協力を頂きました東北大学大学院医学系研究科の皆様には感謝申し上げます。

6 参考文献

- 1) 「新型コロナウイルスに関する検査対応について（協力依頼）」（令和2年1月23日付け厚生労働省健康局結核感染症課事務連絡）
- 2) 「新型コロナウイルス感染症の積極的疫学調査における検体提出等について（要請）」（令和3年2月5日付け健感発0205第4号）
- 3) 「新型コロナウイルス感染症の積極的疫学調査における検体提出等について（要請）」（令和2年11月11日付け健感発第1111第1号）
- 4) 宮城県保健環境センター年報, 2021(39), p.92-93

宮城県における新型コロナウイルス感染症流行下の 感染症発生動向（第2報）

Surveillance of Infectious Disease during the Pandemic Outbreak of Coronavirus Disease-2019 in Miyagi (2)

大槻 りつ子 小泉 光*¹ 水戸 愛*² 鈴木 優子 山木 紀彦
Ritsuko OTSUKI, Hikari KOIZUMI, Ai MITO, Yuko SUZUKI, Norihiko YAMAKI

宮城県内における新型コロナウイルス感染症流行下の感染症発生動向に着目すると、これまでの流行状況とは異なる挙動を示し、かつ、2020年から2022年の各年でも異なっていた。マスクの着用、手洗い、消毒、不要な外出を控えるといった新型コロナウイルスに対する基本的な感染対策のほかにも、行政による施策の変化、各疾患の感染経路や原因となる病原体の特性がこれらの挙動に影響を与えているものと推察された。2023年5月以降は、新型コロナウイルス感染症は5類感染症へ移行し、社会生活が徐々に元に戻る事が予想される。今後の感染症の発生動向について予測することは容易ではなく、関係機関の協力のもと感染症サーベイランスを継続し、情報収集及び情報発信を続けていく必要がある。

キーワード：感染症発生動向；新型コロナウイルス感染症；感染経路

Key words：surveillance of infectious disease；coronavirus disease-2019；routes of infection

1 はじめに

宮城県保健環境センター微生物部内に設置されている「宮城県・結核感染症情報センター（以下「情報センター」という。）」は、県内の感染症発生動向を取りまとめ、毎週「感染症発生動向調査週報」を発行し、ホームページ等で県民や医療機関に対して情報提供を行っている。2020年2月からは新型コロナウイルス感染症についても患者報告数やSARS-CoV-2の検出状況を掲載して注意喚起を行ってきた。2020年の感染症の発生状況については、第1報¹⁾で報告したように、特に飛沫感染や接触感染を主体とする感染症の減少が顕著にみられるなど、過去とは大きく異なっていた。今回、本報では、2021年及び2022年の発生状況について解析したのでその概要を報告する。

2 方法

2.1 患者情報の収集

全数把握疾患は県内全ての医療機関より、定点把握疾患は小児科定点58機関、内科定点37機関、インフルエンザ定点94機関、眼科定点12機関、基幹定点12機関より報告を受け、各保健所において感染症サーベイランスシステム（NESID）に入力したデータを収集した。

2.2 患者数の集計

NESIDにより国立感染症研究所より還元された情報を基に、情報センターの感染症発生動向調査支援システムにより集計した。

2.3 患者数推移の解析

今回は、毎年明らかに患者報告が認められる定点把握11疾患及び全数把握2疾患について、感染症データ解析ツール（地方衛生研究所全国協議会で開発）を用いて、患者数の年間の推移を解析し、2010年から2019年の10年平均と比較するためグラフ化した。

2.4 感染経路別感染状況の比較

各感染症を感染経路で分類し、2020年から3年間の流行状況を比較した。

なお、2020年は第15週以降について評価した。

3 結果

3.1 定点把握疾患

3.1.1 インフルエンザ

2021年は流行が見られず、2022年は第51週に定点あたり1.56人となり、2019/20シーズン以来の流行シーズン入りとなった（図1）。

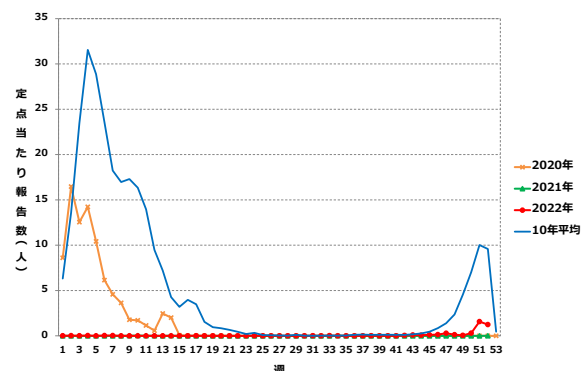


図1 インフルエンザ患者数の推移

*1 現 保健福祉部業務課

*2 現 仙台保健福祉事務所岩沼支所

3.1.2 RSウイルス感染症

2021年は第28週の定点あたり12.9人をピークとして例年を大きく上回る流行が早い時期に見られたが冬季の流行は見られなかった。2022年は第36週から第49週に例年をやや上回る流行が見られた（図2）。

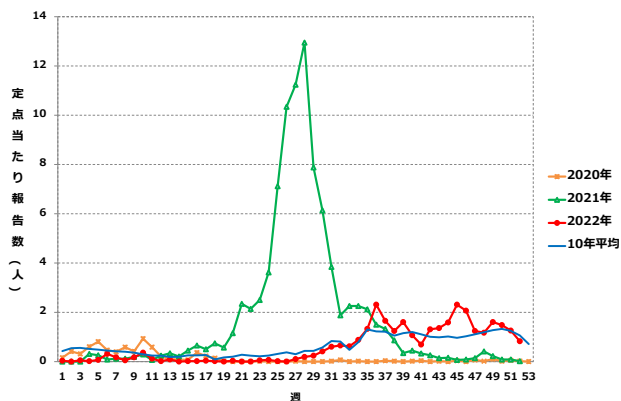


図2 RSウイルス感染症患者数の推移

3.1.3 咽頭結膜熱

2021年、2022年ともに例年とほぼ同様の挙動を示したものの、報告数は少ない傾向であった（図3）。

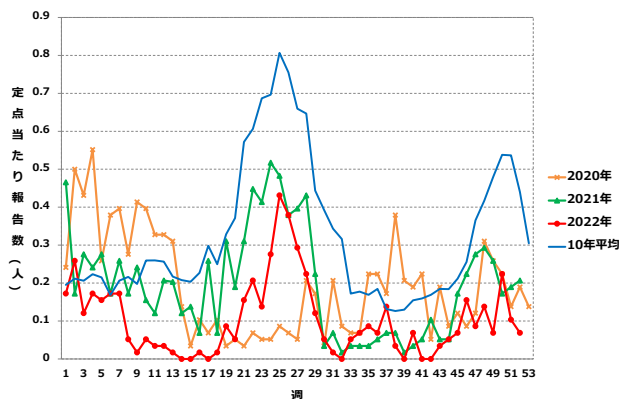


図3 咽頭結膜熱患者数の推移

3.1.4 A群溶血性レンサ球菌咽頭炎

2021年、2022年ともに顕著な流行は無かった（図4）。

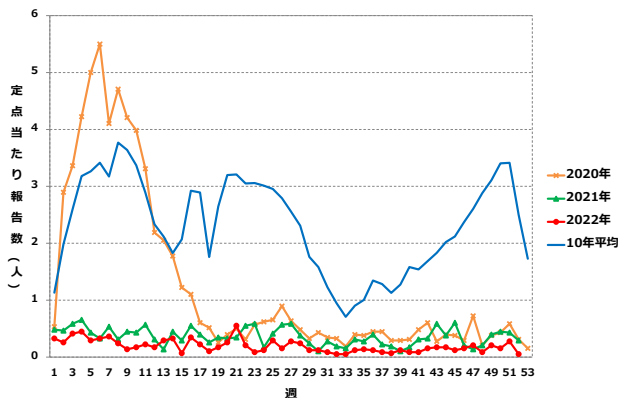


図4 A群溶血性レンサ球菌咽頭炎患者数の推移

3.1.5 感染性胃腸炎

2021年は初夏の流行は見られなかったが、冬季にかけて増加傾向があった。2022年は第3週から第10週にかけて注意報が発令され、例年とほぼ同様の挙動を示したが、冬季のピークは見られなかった（図5）。

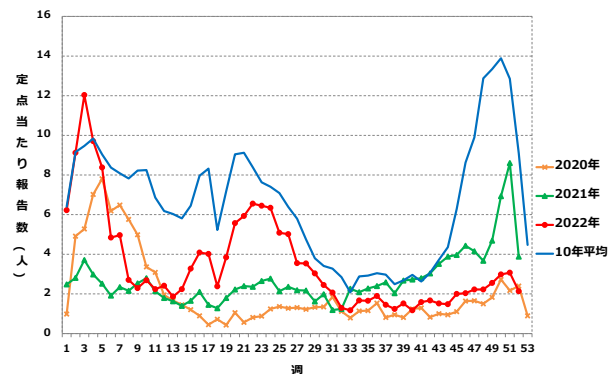


図5 感染性胃腸炎患者数の推移

3.1.6 水痘

2020年第5週以降、定点あたり0.5人未満で推移し、流行は全く無かった（図6）。全国的に2014年にワクチンが定期接種化されて以降、減少傾向を示している²⁾。

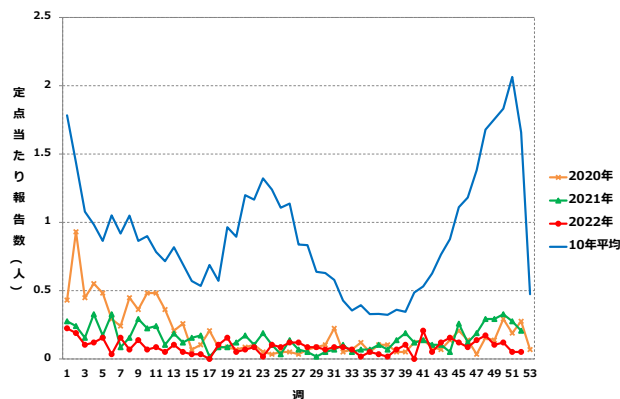


図6 水痘患者数の推移

3.1.7 手足口病

2021年は通常の流行期よりやや遅れて報告数が増加した。2022年は第32週に警報開始基準値5を超え、例年を上回る流行が見られた（図7）。

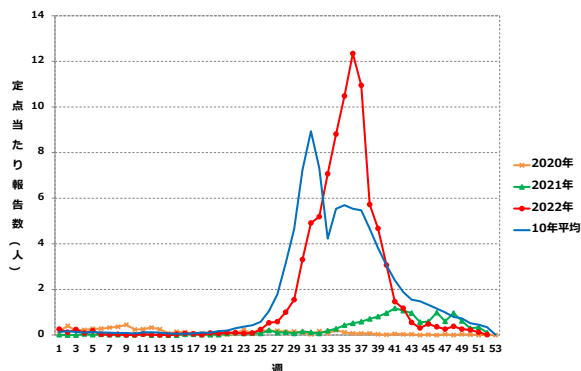


図7 手足口病患者数の推移

3.1.8 伝染性紅斑

2020年第6週以降、定点あたり0.2人未満で推移し、流行は全く無かった（図8）。

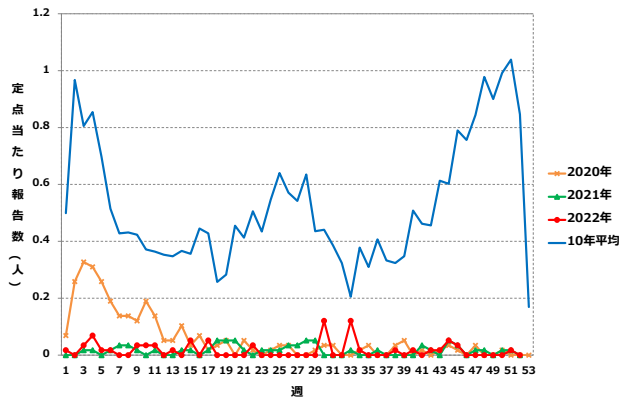


図8 伝染性紅斑患者数の推移

3.1.11 突発性発しん

年間を通して例年と同様の報告があるが、報告数は減少傾向が見られた（図11）。

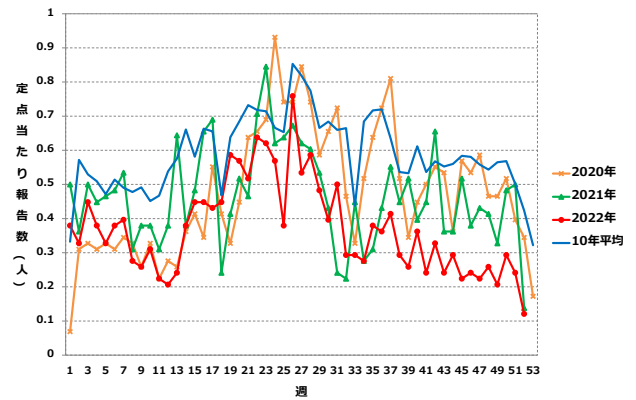


図11 突発性発しん患者数の推移

3.1.9 ヘルパンギーナ

2021年は例年の流行期よりやや遅れて報告数が増加した。2022年は例年と同様の挙動を示したが、報告数は少ない傾向であった（図9）。

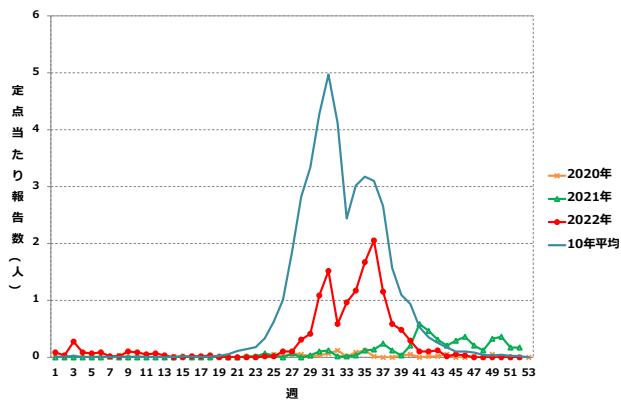


図9 ヘルパンギーナ患者数の推移

3.2 全数把握疾患

3.2.1 腸管出血性大腸菌感染症

例年100人以上の報告があり、2020年も107人の報告があった。2021年、2022年ともに80人以下であり例年よりやや少ない傾向であった。夏期から秋期の報告が多く見られた（図12）。

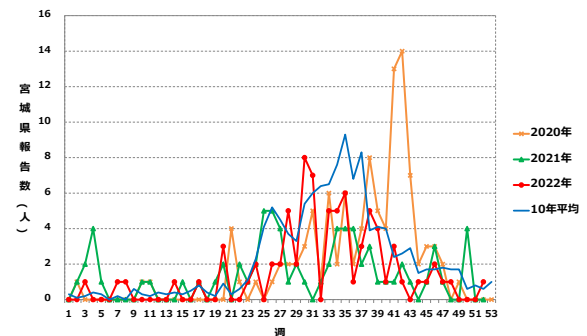


図12 腸管出血性大腸菌感染症患者数の推移

3.1.10 流行性耳下腺炎

明らかな流行期は無く年間を通して報告はあるが、定点あたり0.2人未満で推移していた（図10）。

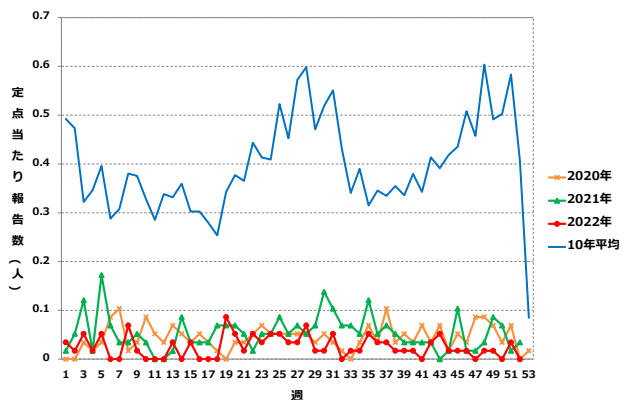


図10 流行性耳下腺炎患者数の推移

3.2.2 レジオネラ症

10年平均では年間37人で、年によって報告数にばらつきがある。2020年は56人、2021年は69人、2022年は65人とほぼ横ばいで推移していた。初夏から秋期に多い傾向があった（図13）。

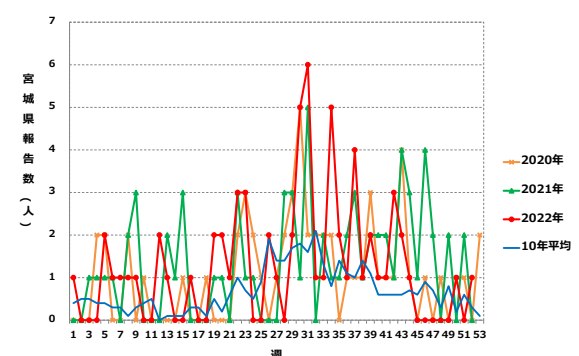


図13 レジオネラ症患者数の推移

3.3 感染経路別の流行状況の比較

今回取り上げた疾患について、2020年から3年間の流行状況を表1に示した。新型コロナウイルス感染症の感染経路は、エアロゾル感染と飛沫感染、接触感染であり³⁾、類似した飛沫・接触感染する疾患では流行が抑制されている疾患が複数見られた。一方、2021年にはRSウイルス感染症、2022年には手足口病で例年を上回る流行が見られた。

飛沫・経口感染する突発性発疹は、家庭内での感染が多い疾患であり、ほぼ例年どおりの報告数であった。空気・接触感染（水痘）、接触・飛沫感染（咽頭結膜熱、A群溶血性レンサ球菌咽頭炎）、経口・飛沫感染（感染性胃腸炎）では、いずれも流行が抑制されていた。一方、経口感染の腸管出血性大腸菌感染症では患者数は減少したものの例年と同時期に流行がみられた。環境飛沫から感染するとされるレジオネラ症は例年と同程度の患者数で推移した。

表1 感染経路別の流行状況の比較

感染経路	疾患	コロナ禍での流行		
		2020	2021	2022
エアロゾル 飛沫・接触	新型コロナウイルス感染症	—	—	—
飛沫・接触	インフルエンザ	×	×	×
	RSウイルス感染症	×	◎	○
	手足口病	×	×	◎
	ヘルパンギーナ	×	×	△
	流行性耳下腺炎	×	×	×
飛沫・経口	伝染性紅斑	×	×	×
	突発性発疹	○	○	○
空気・接触	水痘	×	×	×
接触・飛沫	咽頭結膜熱	△	△	△
	A群溶血性レンサ球菌咽頭炎	×	×	×
経口・飛沫	感染性胃腸炎	△	△	△
経口	腸管出血性大腸菌感染症	○	△	△
環境飛沫	レジオネラ症	○	○	○

◎例年以上の流行がみられた

○例年と同程度の流行がみられた

△例年より低程度の流行がみられた

×ほとんど流行がみられなかった

4 考察

新型コロナウイルス感染症の流行が始まって以降、感染症発生動向は例年と異なる挙動を示し、かつ、同じコロナ禍においても毎年変化していた。その要因は、マスクの着用、3密（密閉・密集・密接）を避ける、こまめな換気、手洗い、消毒、不要な外出を控えるといった新型コロナウイルスに対する基本的な感染対策によるほか、行政による施策の変化が挙げられる。特に行動制限は感染機会や受療行動に大きく影響しており、全国を対象とした緊急事態宣言が発令された2020年は多くの疾患で報告数が激減した。対して、2021年、2022年は段階的に行動制限が緩和され、制限が解除された時期には、例年とは異なる時期ではあったがRSウイルス感染症や手足口病の流行が認められた（図14）。

2021年から2年間の各疾患の挙動について、感染経路ごとに述べる。

インフルエンザ等の飛沫・接触により感染する疾患は、新型コロナウイルスに対する基本的な感染対策の徹底により低い水準を維持していた。しかし、RSウイルス感染症は2021年、手足口病は2022年の行動制限が緩和された時期に流行が見られた。RSウイルス感染症と手足口病は乳幼児期に感染して免疫を獲得する疾患であるが、新型コロナウイルス感染症の流行下の厳しい行動制限で感染機会が減少し、感受性個体が大幅に増加⁴⁾したことがその原因と推察された。

飛沫・経口により感染する突発性発疹は、家庭内感染が多く、年ごとの報告数の変動が小さいことから小児科定点報告が安定的に運用されていることを示す指標となっている。2021年及び2022年においても一定の報告があったことから、感染症発生動向調査の精度が一定程度維持されていたと推測される。

なお、2021年及び2022年の報告者数が例年と比較して微減しているが、0歳児人口の減少によるものと推測される⁵⁾。

飛沫感染に加えて、接触によって拡大する咽頭結膜熱やA群溶血性レンサ球菌咽頭炎感染症も患者報告が明らかに減少あるいは年間を通じてなかった。

一方、食品や患者排泄物などの経口摂取によっても感染する感染性胃腸炎は、過去と比較すると少ないものの、一定数の患者報告があり冬期に増加傾向も見られた。行政による制限が緩和された時期と重なる2021年の年末から2022年の初めにかけては例年と同様の流行が見られ、それ以降も例年とほぼ同様の挙動を示した（図5）。

全数把握疾患で、経口感染が主体である腸管出血性大腸菌感染症は例年と同様の報告数があり、季節性もみられた。また、環境中からの飛沫感染で発症するレジオネラ症もほぼ例年並みの報告があった。

これらの現象を勘案すると、新型コロナウイルス感染症への基本的な感染対策や行政の施策、それに対する行動変容が、新型コロナウイルス感染症と同じまたは類似する感染経路の疾患ほど、より大きい影響を受けていると考えられた。

今回の考察では触れなかったが、ウイルス間の干渉現象や予防接種の接種率など、他の要因も考慮する必要がある。

2023年5月から新型コロナウイルス感染症は5類に移行し、社会生活は徐々に元に戻る事が予想されるが、その後の感染症の発生動向については予測することは容易ではなく、継続した感染症サーベイランスの実施が不可欠である。今後も関係機関の協力のもと、解析を継続して有用な情報発信を続けていきたい。

謝 辞

本調査に御協力いただきました県内各医療機関、仙台医療センターウイルスセンター、仙台市衛生研究所、県内各保健所及び宮城県保健福祉部疾病・感染症対策課の各位に深く御礼申し上げます。

参考文献

- 1) 後藤郁男、大槻りつ子、小林妙子、高橋陽子、畠山敬：宮城県保健環境センター年報，39，39-42（2021）

- 2) Kazuhiro Uda, Yusuke Okubo, Mitsuru Tsuge, Hirokazu Tsukahara, Isao Miyairi:Vaccine. 2023 Jul 31;41(34):4958-4966
- 3) 国立感染症研究所 HP <https://www.niid.go.jp/niid/ja/2019-ncov/2484-idsc/1053-covid19-78.html>
- 4) 病原微生物検出情報，43，88 - 90（2022）
- 5) 病原微生物検出情報，41，211 - 212（2020）

5 類定点把握疾患と新型コロナウイルス感染症の推移

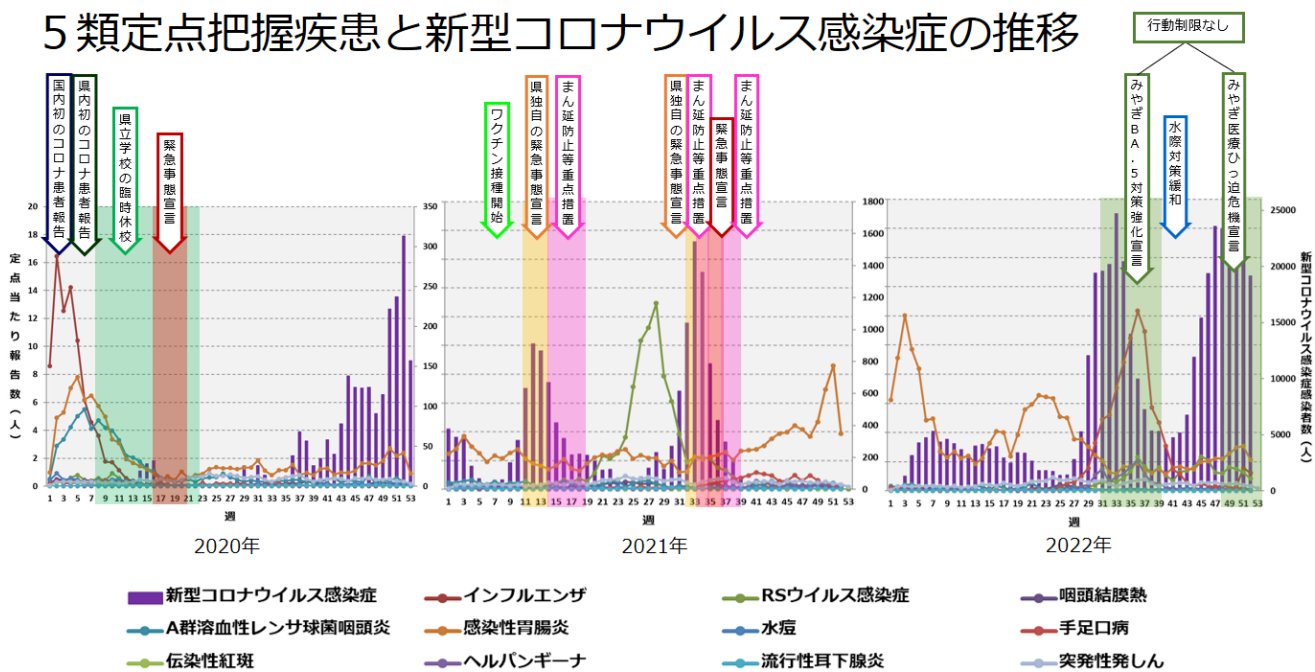


図 1 4 5 類定点把握疾患と新型コロナウイルス感染症の報告数と行政による施策

下水等に流入する腸内細菌科細菌の薬剤耐性化に関する研究

Wastewater surveillance of Carbapenem-resistant enterobacteriaceae

山口 友美 水戸 愛*1 工藤 剛 矢崎 知子 山木 紀彦

Yumi YAMAGUCHI, Ai MITO, Takashi KUDO, Tomoko YAZAKI, Norihiko YAMAKI

県内における下水流入水中の腸内細菌科細菌の薬剤耐性状況を把握することを目的として、令和3年4月から令和4年12月まで、カルバペネマーゼ産生菌の検出を行ったところ、計64株のカルバペネマーゼ産生腸内細菌科細菌(CPE)が分離された。64株が保有していたカルバペネマーゼ遺伝子は、NDM型が最も多く43株、GES型が20株、KPC型が1株で、IMP型、OXA-48型及びVIM型は検出されなかった。薬剤感受性試験では、すべての株で6薬剤以上に耐性を示し、10薬剤以上に耐性である株は58株(90.6%)、15薬剤以上は29株(45.3%)となった。中でも、NDM型CPEはGES型に比べ、多剤耐性の傾向が強くみられた。NDM型は国内における臨床検体からの分離頻度が低く情報が少ないため、今回の薬剤感受性試験の結果は今後の患者の治療においても有用な情報になるものと思われる。

今回の研究では、国内のカルバペネム耐性腸内細菌科細菌(CRE)感染症患者から最も多く検出されているIMP型CPEは検出されなかった。しかし、多剤耐性傾向の強いNDM型が数多く検出されたことから、今後も県内の下水流入水中におけるCPEの検出傾向を注視していきたい。

キーワード：下水；カルバペネマーゼ産生腸内細菌科細菌；カルバペネマーゼ遺伝子；薬剤感受性試験

Key words : wastewater ; CPE ; carbapenemase gene ; drug susceptibility test

1 はじめに

薬剤耐性菌は臨床や家畜・農業分野における広範囲な抗菌薬の過剰使用により、ヒトのみならず、家畜や食肉への広がりも懸念されている。さらに、薬剤耐性菌を保有しているヒトや家畜の排泄物を介して環境中に拡散すると考えられている。

薬剤耐性菌の中でも、近年特に注目されているのがカルバペネム耐性腸内細菌科細菌(CRE)であり、2014年にはCRE感染症が5類全数把握対象疾患となり、2017年からは通知¹⁾に基づき病原体サーベイランスが実施されている。宮城県(仙台市を除く)においても、2017年より届出対象となった菌株について検査を実施しているが、カルバペネマーゼ遺伝子は検出されておらず、県内におけるカルバペネマーゼ産生腸内細菌科細菌(CPE)の侵淫状況は不明である。

そこで、本研究では下水等の環境中に潜在しているCPEを把握することを目的として、下水流入水を対象とした調査を実施したので報告する。

2 対象及び検査方法

2.1 対象

県内の下水処理施設において、令和3年4月から令和4年12月まで毎月1回(令和4年4月を除く)採取した下水流入水を対象として検査を実施した。

2.2 方法

2.2.1 分離培養

アンピシリンを30mg/Lとなるよう添加した2倍濃度のmEC培地50mLに検体50mLを分取し、37°Cで一晩増菌培養後、メロペネム(MEPM)を1mg/Lとなるよう添加した寒天培地3種(DHL、XM-G、ソルビトール及びラムノース添加マッコンキー)及びMEPMを4mg/Lとなるよう添加した寒天培地3種にそれぞれ塗抹して37°C一晩培養した。発育したコロニー(DHL及びマッコンキーは赤色、XM-Gは紫～青色)を釣菌し、オキシダーゼテスト陰性株を被検菌とした。

2.2.2 菌種の同定

TSI寒天培地、LIM培地及び簡易同定キットを用いて菌種を同定した。*Escherichia coli*と同定された菌株に

表1 カルバペネマーゼ遺伝子のシーケンス解析用プライマー

プライマー名	塩基配列(5'→3')
NDM-seq_F	TGCGGGGTTTTTAATGCTG
NDM-bleMBL-seq_R	AAACGCCTCTGTACATCG
GES-seqF1	GTTAGACGGGCGTACAAAGA
GES-seqF2	TGCAGCTTAGCGACAATGGG
GES-seqR1	ACTCACAGAGTCGCCAATTT
GES-seqR2	CCGCCACGAAGCAACGTC
preKPC-seq_F	GATTACATCCGGCCGCTAC
KPC-seq_R	TTTTAGAGCCTTACTGCC

*1 現 仙台保健福祉事務所岩沼支所

については、O血清型別を行った（血清学的手法）。O血清型別によりO型別不能となった株については、Gilmourら²⁾のプライマーを用いた *gnd* 遺伝子シーケンス解析によりO-genotypeを推定し、Iguchiら³⁾が開発したプライマーを用いたPCR法により決定した（遺伝学的手法）。

また、*Citrobacter* 属菌、*Enterobacter* 属菌及び *Klebsiella* 属菌と同定された菌株については、それぞれのハウスキープ遺伝子（*Citrobacter* 属菌：*recN*及び *leuS*、*Enterobacter* 属菌：*hsp60*、*Klebsiella* 属菌：*rpoB*及び *gyrA*）のシーケンス解析を行い、菌種を決定した。

2.2.3 耐性遺伝子の検出

カルバペネマーゼ遺伝子（IMP型、NDM型、KPC型、OXA-48型、VIM型、GES型）及びESBL遺伝子（TEM型、SHV型、CTX-M-1 group、CTX-M-2 group、CTX-M-9 group）について、PCR法により実施した。

2.2.4 カルバペネマーゼ及びESBL遺伝子の型別

カルバペネマーゼ遺伝子が検出された菌株については、表1に示すプライマーを、ESBL遺伝子が検出された菌株については既報のプライマー⁴⁾を用いてダイレクトシーケンス法を行い、塩基配列を決定した。

2.2.5 薬剤感受性試験

ドライプレート9DDP41（栄研化学）を用いて、微量液体希釈法により最小発育阻止濃度を求めた。供試薬剤は、アンピシリン（ABPC）、ピペラシリン（PIPC）、ホスホマイシン（FOM）、タゾバクタム・ピペラシリン（TAZ/PIPC）、スルバクタム・アンピシリン（S/A）、ミノサイクリン（MINO）、セファゾリン（CEZ）、セフトリアキソン（CTRX）、セフトアジジム（CAZ）、セフメタゾール（CMZ）、セフポドキシム（CPDX）、ゲンタマイシン（GM）、アミカシン（AMK）、スルファメトキサゾール・トリメトプリム（ST）、セフェピム

（CFPM）、イミペネム（IPM）、レボフロキサシン（LVFX）、メロペネム（MEPM）、アズトレオナム（AZT）の19薬剤とした。

3 結果

3.1 CPEの検出状況

本研究において標的とした6種のカルバペネマーゼ遺伝子のいずれかが検出された菌株は64株であった。月ごとの検出数は0~7株であり、検出されなかったのは、令和4年10月及び11月の2検体のみであった（図1）。

菌種の内訳は、*Escherichia coli* (17株)、*Enterobacter roggenkampii* (11株)、*Klebsiella variicola* (7株)、*Enterobacter asburiae* (4株)、*Enterobacter ludwigii* (4株)、*Klebsiella oxytoca* (4株)、*Raoultella ornithinolytica* (4株)、*Enterobacter kobei* (3株)、*Klebsiella michiganensis* (3株)、*Citrobacter freundii* (2株)、*Kluyvera* sp. (2株)、*Citrobacter europaeus* (1株)、*Citrobacter portucalensis* (1株)、*Klebsiella grimontii* (1株)であった（表2）。

3.2 カルバペネマーゼ遺伝子

検出されたCPE64株が保有するカルバペネマーゼ遺伝子は、NDM型が最も多く43株、GES型が20株、KPC型が1株で、IMP型、OXA-48型及びVIM型は検出されなかった。

菌種により保有するカルバペネマーゼ遺伝子型は異なっており、NDM型を保有する菌種は *E.coli*、*E.ludwigii*、*E.roggenkampii*、*K.michiganensis*、*K.grimontii*、*R.ornithinolytica*、*C.freundii*、*C.europaeus*及び *C.portucalensis*、GES型を保有する菌種は *E.asburiae*、*E.kobei*、*K.variicola*、*K.oxytoca*及び *Kluyvera* sp.であった。

さらに、シーケンス解析によりカルバペネマーゼ遺伝子の型別を行ったところ、NDM型で最も多かったのは

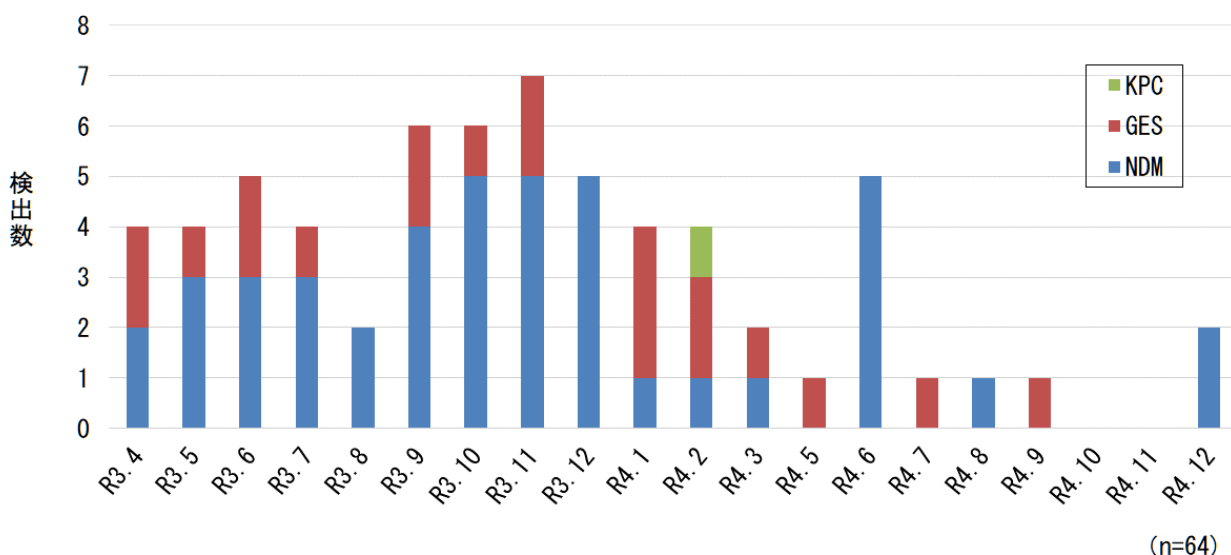


図1 月ごとのCPE検出数

表2 菌種別のカルバペネマーゼ遺伝子保有状況

菌種	検出数	NDM			KPC	GES		
		NDM-1	NDM-5	NDM-9	KPC-2	GES-5	GES-24	GES-5-like
<i>E. coli</i>	17	1	12	4				
<i>E. roggenkampii</i>	11		11					
<i>K. variicola</i>	7						7	
<i>E. asburiae</i>	4						1	3
<i>E. ludwigii</i>	4		4					
<i>K. oxytoca</i>	4					4		
<i>R. ornithinolytica</i>	4		3		1			
<i>E. kobei</i>	3						3	
<i>K. michiganensis</i>	3		3					
<i>C. freundii</i>	2		2					
<i>Kluyvera</i> sp.	2						2	
<i>C. europaeus</i>	1		1					
<i>C. portucalensis</i>	1		1					
<i>K. grimontii</i>	1		1					
計	64	1	38	4	1	4	13	3

表3 *Escherichia coli* の耐性遺伝子保有傾向

菌株No.	O血清型	カルバペネマーゼ遺伝子	ESBL遺伝子	検出数
EC1	Og8	NDM-5		1
EC2	Og21	NDM-5	CTX-M-55	2
EC3	OgN5	NDM-5	CTX-M-55, 199	3
EC4	OUT-a	NDM-5	CTX-M-64	2
EC5	OUT-a	NDM-5		2
EC6	OUT-a	NDM-5	CTX-M-65	1
EC7	OUT-b	NDM-5	CTX-M-55, 14	1
EC8	O125	NDM-9	CTX-M-64	2
EC9	O125	NDM-9		2
EC10	OUT-c	NDM-1	CTX-M-55	1

NDM-5 (38株)、次いでNDM-9 (4株)、NDM-1 (1株)の順であった。GES型は、GES-24 (13株)、GES-5 (4株)、GES-5-like (3株)の順に多く検出された。

3.3 菌種別の耐性遺伝子保有傾向

3.3.1 *Escherichia coli*

カルバペネマーゼ遺伝子を保有していた*E. coli* 17株は、O血清型および耐性遺伝子の保有パターンにより10種類のタイプに分類された(表3)。検出されたカルバペネマーゼ遺伝子はすべてNDM型で、NDM-1とNDM-9は*E. coli*でのみ検出された。また、CTX-M型ESBL遺伝子を同時に保有している株が13株(71%)と多くみられた。そのうち、CTX-M型を2種類保有する株も4株(24%)認められた。

3.3.2 *Enterobacter*属菌

菌種および保有遺伝子等から9種類のタイプに分類された(表4)。*E. ludwigii*及び*E. roggenkampii*は bla_{NDM-5} を保有しており、*E. kobei*と*E. asburiae*はGES型を保有

表4 *Enterobacter*属菌の耐性遺伝子保有傾向

菌株No.	菌種	カルバペネマーゼ遺伝子	ESBL遺伝子	その他の保有遺伝子	検出数
EN1	<i>E. ludwigii</i>	NDM-5			1
EN2	<i>E. ludwigii</i>	NDM-5	CTX-M-3		1
EN3	<i>E. ludwigii</i>	NDM-5		TEM-1	2
EN4	<i>E. roggenkampii</i>	NDM-5			6
EN5	<i>E. roggenkampii</i>	NDM-5	CTX-M-199	<i>lacY+</i>	2
EN6	<i>E. roggenkampii</i>	NDM-5	CTX-M-199	<i>lacY-</i>	3
EN7	<i>E. kobei</i>	GES-24			3
EN8	<i>E. asburiae</i>	GES-24			1
EN9	<i>E. asburiae</i>	GES-5-like			3

表5 *Klebsiella*属菌ほかの耐性遺伝子保有傾向

菌株No.	菌種	カルバペネマーゼ遺伝子	ESBL遺伝子	検出数
KL1	<i>K. michiganensis</i>	NDM-5		3
KL2	<i>K. grimontii</i>	NDM-5		1
KL3	<i>K. variicola</i>	GES-24		7
KL4	<i>K. oxytoca</i>	GES-5		4
RA1	<i>R. ornithinolytica</i>	NDM-5		3
RA2	<i>R. ornithinolytica</i>	KPC-2	CTX-M-15	1
KV1	<i>Kluyvera</i> sp.	GES-24	CTX-M-9	2
C11	<i>C. europaeus</i>	NDM-5		1
C12	<i>C. freundii</i>	NDM-5		1
C13	<i>C. freundii</i>	NDM-5	CTX-M-55	1
C14	<i>C. portucalensis</i>	NDM-5		1

していた。また、*E. asburiae*3株が保有していたGES-5-likeはGES-5とアミノ酸2か所の配列が違っており、新しいタイプのカルバペネマーゼ遺伝子と考えられたため、DNA Data Bank of Japan (DDBJ)へ塩基配列を登録し(Accession number NG_157005)、National Center for Biotechnology Information

(NCBI) より新規アレル番号として「GES-58」を付与された。

3.3.3 Klebsiella属菌ほか

*Klebsiella*属菌4菌種、*Raoultella*属菌、*Kluyvera*属菌各1菌種、*Citrobacter*属菌3菌種の結果を表5に示した。菌種および保有遺伝子等から11種類のタイプに分類された。

GES型CPEは bla_{GES-24} を保有する*K.variicola*と*Kluyvera* sp.、 bla_{GES-5} を保有する*K.oxytoca*の3タイプのみ、NDM型CPEは*K.michiganensis*、*K.grimontii*、

*R.ornithinolytica*と*Citrobacter*属菌の7タイプで、いずれも bla_{NDM-5} を保有していた。1株のみ検出されたKPC型は*R.ornithinolytica*が保有していた bla_{KPC-2} であった。

3.4 複数回検出された菌の検出時期

CPE64菌株は計30種類のタイプに分類されたが、そのうち複数回検出された17種類についてその検出時期を表6にまとめた。緑で示した株は2～3か月連続で検出されたもの、ピンクで示した株は断続的に長期間検出されたものを表している。短期間に連続して検出された株は

表 6 複数回検出された菌の検出時期

菌種	O血清型ほか	カルバペネマーゼ	ESBL	検出回数	R3												R4												
					4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3	5	6	7	8	9	10	11	12					
<i>E. coli</i>	OUT-a	NDM-5	CTX-M-64	2	○	○																							
<i>E. coli</i>	OUT-a	NDM-5		2	○	○																							
<i>E. coli</i>	OgN5	NDM-5	CTX-M-55, 199	3		○	○	○																					
<i>E. ludwigii</i>		NDM-5	TEM-1	2				○	○																				
<i>E. roggkampii</i>	lacY+	NDM-5	CTX-M-199	2						○	○																		
<i>E. coli</i>	O125	NDM-9	CTX-M-64	2						○	○																		
<i>E. coli</i>	O125	NDM-9		2							○	○																	
<i>K. variicola</i>		GES-24		7	○	○		○			○	○			○			○											
<i>K. oxytoca</i>		GES-5		4	○										○	○											○		
<i>E. kobei</i>		GES-24		3			○						○									○							
<i>Kluyvera</i> sp.		GES-24	CTX-M-9	2			○			○																			
<i>E. coli</i>	Og21	NDM-5	CTX-M-55	2				○				○																	
<i>E. roggkampii</i>		NDM-5		6						○	○	○			○			○					○						
<i>E. roggkampii</i>	lacY(-)	NDM-5	CTX-M-199	3						○	○												○						
<i>K. michiganensis</i>		NDM-5		3								○	○										○						
<i>R. ornithinolytica</i>		NDM-5		3										○									○						○
<i>E. asburiae</i>		GES-5-like		3											○	○										○			

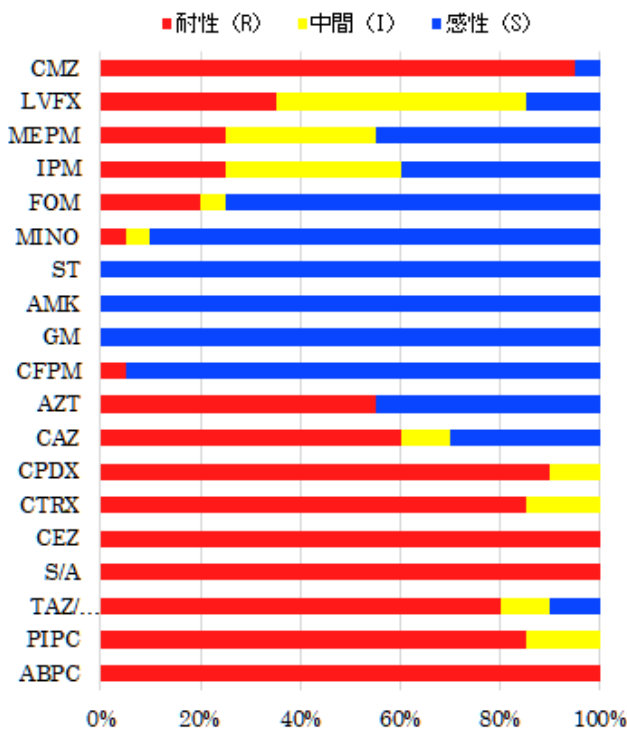


図 2 GES 型 CPE の薬剤感受性

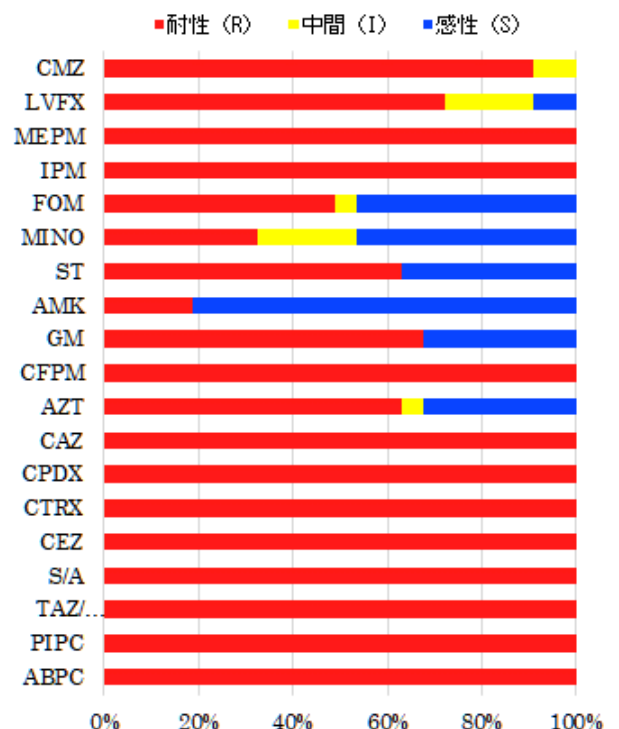


図 3 NDM 型 CPE の薬剤感受性

7種類で、そのうち5種類は*E.coli*、残りの2種類は*Enterobacter*属菌であった。これに対し、断続的に長期間検出された株は*Enterobacter*属菌4種類、*Klebsiella*属菌3種類、*Kluyvera*属菌、*Raoultella*属菌、*E.coli*が1種類ずつとなっていた。特に、*K.variicola*は令和3年4月から令和4年3月まで計7回、*E.roggenkampii*は令和3年9月から令和4年6月まで計6回と長期間にわたり検出されていた。

3.5 薬剤感受性試験

薬剤感受性試験では、すべての株で6薬剤以上に耐性を示し、10薬剤以上に耐性である株は58株（90.6%）、15薬剤以上は29株（45.3%）となった。

保有するカルバペネマーゼ遺伝子型別に耐性と判定された薬剤数を比較すると、GES型の株はすべて6～12薬剤に耐性、NDM型では11～18薬剤に耐性を示しており、NDM型の株がGES型の株より耐性となる薬剤が多くなる傾向が見られた。

GES型のCPE20株の薬剤感受性試験の結果を図2に示した。GES型では、ゲンタマイシン、アミカシン、ST合剤ですべての株が感性となり、セフェピムやミノサイクリンで感性の株の割合が高くなっていった。反対にすべての株が耐性であったのは、アンピシリン、スルバクタム・アンピシリン、セファゾリンであった。カルバペネム系薬であるイミペネム及びメロペネムともに感性（MIC値：1μg/mL以下）となった株も7株存在した（表7）。そのうち4株は*bla*_{GES-24}保有*K.variicola*、2株は

*bla*_{GES-5}保有*K.oxytoca*であった。

NDM型のCPE43株の薬剤感受性試験の結果を図3に示した。すべての株が感性となった薬剤はなかった。感性の割合が高かったのは、アミカシンの約8割、それ以外ではホスホマイシンとミノサイクリンが5割程度であった。反対に、すべての株で耐性となった薬剤は、19薬剤中11薬剤と半数以上を占めていた。カルバペネム系薬のイミペネムとメロペネムにはすべての株が耐性であった。

4 考察

宮城県において、CRE感染症は例年30例前後の報告があるが、CRE病原体サーベイランスを開始した2017年以降、宮城県（仙台市を除く）で検査対象としたCRE菌株からカルバペネマーゼ遺伝子が検出された事例はない（2023年8月現在）。

今回の調査では、県内の下水処理施設で採取した下水流入水からNDM型を保有するCPEが43株（67.2%）、GES型保有株が20株（31.3%）、KPC型保有株が1株（1.5%）検出された。国立感染症研究所が実施した2021年の調査⁵⁾では、国内で分離されたCPE臨床分離株はIMP型保有株が87.1%と大多数を占めており、今回下水流入水から検出されたCPEは、国内において臨床材料から分離されることは稀である。

過去に実施された下水におけるCPEの調査についてカルバペネマーゼ遺伝子型別の検出割合をみると、2017年4月から2019年3月に岐阜県内の下水処理場の流入下水を対象に実施されたCPEの調査⁶⁾では、IMP型、IMP型+GES型、及びGES型がそれぞれ約3割検出されており、NDM型の検出率は3.3%となっている。また、2019年2月～2020年2月に東北地方の大学病院の下水、及びその病院下水が流入する下水処理場の下水を対象に行ったCPEの調査⁷⁾でも、IMP型保有株の割合が20%、GES型保有株が80%を占めているが、NDM型保有株は検出されていない。NDM型が67.2%を占め、IMP型が検出されなかった今回の調査結果は、過去の調査とは傾向が異なっていた。この要因が、経年変化によるものなのか、地域性によるものなのかは、今後も調査を継続し、調査対象箇所を増やすことで見極めていく必要があると思われる。

一方、GES型保有株については、臨床分離株での検出頻度が低いのに対し、下水中から検出される割合が比較的高いという点で、今回の調査と過去の調査では共通していた。GES型の特徴としては、以下の3点が挙げられる。①GES型は一部の亜型のみがカルバペネマーゼであるため、カルバペネマーゼか否かの判定にはシーケンス解析が必要である⁸⁾。②GES型カルバペネマーゼはカルバペネマーゼ活性が低いため、CarbaNPテストやmodified Carbapenem Inactivation Method (mCIM)などのカルバペネマーゼ産生試験では陽性率が低かった

表7 GES型CPEのMIC値と遺伝子型

菌種	MIC (μg/mL)			カルバペネマーゼ遺伝子
	CMZ	IPM	MEPM	
<i>K. variicola</i>	>32	1	1	GES-24
<i>K. variicola</i>	>32	1	1	GES-24
<i>K. variicola</i>	>32	1	1	GES-24
<i>K. variicola</i>	>32	2	2	GES-24
<i>K. variicola</i>	>32	1	1	GES-24
<i>K. variicola</i>	>32	2	1	GES-24
<i>K. variicola</i>	>32	2	2	GES-24
<i>K.oxytoca</i>	16	0.5	0.25	GES-5
<i>K.oxytoca</i>	>32	2	1	GES-5
<i>K.oxytoca</i>	>32	2	2	GES-5
<i>K.oxytoca</i>	>32	1	1	GES-5
<i>E. asburiae</i>	>32	1	2	GES-24
<i>E. asburiae</i>	>32	>8	8	GES-5-like
<i>E. asburiae</i>	>32	4	2	GES-5-like
<i>E. asburiae</i>	>32	2	4	GES-5-like
<i>E. kobei</i>	>32	0.5	1	GES-24
<i>E. kobei</i>	>32	2	2	GES-24
<i>E. kobei</i>	>32	4	4	GES-24
<i>Kluyvera</i> sp.	>32	>8	>8	GES-24
<i>Kluyvera</i> sp.	>32	>8	>8	GES-24

9) との報告がある。③CREの病原体サーベイランスにおいて、IMP型、NDM型、KPC型、OXA-48型の検出は必須とされているが、GES型の検出については推奨項目とされている。加えて、今回の調査では検出されたGES型20株のうち、7株がCRE感染症の届出基準（メロペネムのMIC値が2 μ g/mL以上、又はイミペネムのMIC値が2 μ g/mL以上かつセフトラゾールのMIC値が64 μ g/mL以上）を満たしていないことが明らかとなった。これらのことから、薬剤耐性遺伝子の詳細な検査を実施せず、薬剤感受性試験やカルバペネマーゼ産生試験しか検査を実施していない場合には、GES型カルバペネマーゼ保有株を見逃してしまっている可能性があると考えられた。

今回の調査において、宮城県内の下水流入水中からはIMP型CPEは検出されておらず、IMP型については県内ではそれほど拡散はしていない状況であると考えられた。しかし、国内の臨床分離株では数%しか検出されていないNDM型（海外型CPE）が67%と多く検出されたという結果は、すでに県内の環境中にNDM型CPEが浸淫していることを示している。今回実施した薬剤感受性試験の結果からも、NDM型はGES型に比べ、耐性となる薬剤が多い傾向があることは明らかであり、今後NDM型が臨床材料から分離される頻度も増加することが懸念される。日本におけるNDM型の臨床分離株は数が少ないため、今回検出されたNDM型CPE菌株における薬剤感受性試験結果は今後の患者の治療においても有用な情報になるものと思われる。

謝 辞

本研究を行うにあたり、下水流入水の採取にご協力いただいた方々、及び新規アレル登録にあたりご指導いただきました国立感染症研究所薬剤耐性研究センター松井

真理先生に深謝いたします。

参考文献

- 1) 厚生労働省健康局結核感染症課長：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、健感発0328第4号
- 2) Gilmour, M.W., Olson, A.B., Andrysiak, A.K., Ng, L.K., Chui, L. : *J. Med. Microbiol.*, 56, 620-628 (2007).
- 3) Iguchi, A., Iyoda, S., Seto, K., Morita-Ishihara, T., Scheutz, F., Ohnishi, M. : *J. Clin. Microbiol.*, 53, 2427-2432 (2015).
- 4) 山口友美、木村葉子、渡邊 節、有田富和、後藤郁男、畠山 敬：宮城県保健環境センター年報、37、38-42 (2019)
- 5) カルバペネム耐性腸内細菌目細菌（carbapenem-resistant Enterobacterales: CRE）病原体サーベイランス、2021年：病原微生物検出情報、44、130-131 (2023)
- 6) 野田万希子：下水処理場流入水中から検出されるカルバペネマーゼ産生腸内細菌科細菌の実態調査、平成30年度「地域保健福祉研究助成」研究報告書、公益財団法人大同生命厚生事業団
- 7) 金森 肇：環境中における薬剤耐性菌及び抗微生物剤の調査法等の確立のための研究、令和2年度 総括・分担研究報告書、厚生労働科学研究費補助金（新興・再興感染症及び予防接種政策推進研究事業）
- 8) Bontron S., Laurent P., Patrice N. : *Antimicrob. Agents. Chemother.*, 59, 1664-1670 (2015).
- 9) Kim, H.S., J.O. Kim, J.E. Lee, et al. : *J. Clin. Microbiol.*, 58, e01026-19 (2019).

「いわゆる健康食品」のシブトラミン分析及び 路上放置食品付着物のノンターゲット分析について

Analysis of Sibutramine in Health Foods and Non-target Analysis of Food Deposits Left on the Street

姉齒 健太朗*¹ 新貝 達成 千葉 美子 近藤 光恵
Kentaro ANEHA, Tatsunari SHINGAI, Yoshiko CHIBA, Mitsue KONDO

「いわゆる健康食品」を摂取した県民から、保健所に体調不良の相談があった。当該製品は、未承認の医薬品成分であるシブトラミンの含有について、同時期に全国各地で報告されているものであった。残品についてシブトラミンの定量分析を行ったところ、1個あたり13.2~19.5mgのシブトラミンが検出された。また、路上に放置された食肉製品に毒物混入の疑いがあるとして、管轄の保健所から検査依頼があった。製品の内部には青色の粉末が詰め込まれており、過去の類似事例にメソミルによる動物の中毒死があったことから、GC-MS/MSによる農薬多成分一斉分析及びLC-(Q)TOF/MSによるノンターゲットスクリーニング分析を行った。その結果、当該粉末は、殺鼠剤成分であるクマテトラリルと推定された。

キーワード：健康食品；シブトラミン；ノンターゲット分析；液体クロマトグラフ四重極飛行時間型質量分析計
Key words：Health Foods；Sibutramine；Non-target Analysis；LC-(Q)TOF/MS

はじめに

新しい地域保健体制の整備を図るため、健康危機に対する地方公共団体の保健衛生部門の役割が問われている。特に、地方衛生研究所には保健所等と連携して迅速に対応することが求められており、当所でもこれまでに様々な分析を担ってきた。ここでは、令和4年度に依頼された検査のうち、主要な2事例について報告する。

I 「いわゆる健康食品」のシブトラミン分析

1 概要

インターネット経由で販売された、痩身効果を標榜する「いわゆる健康食品」の一種による健康被害が全国で相次いで報告され、当該製品からシブトラミンが検出される事例が発生した。シブトラミンは、2007年に医薬品製造販売承認が申請されたものの2009年に却下された経緯があり、日本では未承認医薬品成分となっている。本県でも当該製品と同じ商品とみられる製品を購入した県民から、「摂取後に動悸やめまい等の体調不良に陥った」と保健所に相談があり、商品の一部も残っていたことから、保健所の依頼を受け、シブトラミンの分析を行った。

2 分析方法

2.1 試料

相談者が保管していた3製品及び添加回収試験用ブランク試料(0キロカロリー寒天ゼリー)

PHARMA QUOC ANH 有限会社

試料1：Detoxeret ゼリー セロリと海藻風味

試料2：Detoxeret ゼリー ブラックカカオ蜂蜜風味

QUOC ANH 有限会社

試料3：DETOXERET Chocolate

2.2 試薬等

シブトラミン標準品(シブトラミン塩酸塩 1水和物)は、国立医薬品食品衛生研究所より供与された。アセトニトリル及びメタノールは、関東化学(株)のLC/MS用、ギ酸は富士フィルム和光純薬(株)のLC/MS用を使用した。メンブランフィルターは、アドバンテック(株)の親水性PTFEタイプ、孔径0.2μmを使用した。

2.3 標準溶液の調製

シブトラミン標準品約1mgを精秤し、10mLのメタノールに溶解して標準原液とした(100μg/mL)。これを適宜メタノールで希釈し、0~50ng/mLの検量線用標準溶液を調製した。

2.4 試験溶液の調製

平成19年6月21日付け薬食監麻発第0619001号厚生労働省医薬食品局監視指導・麻薬対策課長通知「脱N-メチルシブトラミンの分析方法について」に準じて調製した(図1参照)。

2.5 装置及び測定条件

装置及び測定条件を表1に示す。

3 結果

3.1 添加回収試験

*1 現 気仙沼保健福祉事務所

添加回収試験用ブランク試料 10.0g に、シブトラミン標準原液を 500 μ L 添加（1 検体あたり 50 μ g）し、2 併行で回収試験を実施した結果、回収率は、97.0%、98.3% であった。

3.2 試料測定結果

試料 1 から 13.5mg/個、試料 2 から 13.2mg/個、試料 3（n=3）からは 14.2~19.5mg/個（平均 16.4mg/個）のシブトラミンが検出された（表 2 参照）。シブトラミンが米国で医薬品として FDA の許可を受け、販売されていた当時の用法用量は、1 回 10mg または 15mg とされていたことから、それと同等またはそれ以上の量が含まれていた。

4 まとめ

健康被害調査のため、「いわゆる健康食品」（ダイエット用健康食品）を検査したところ、3 製品全てからシブトラミンが検出された。製品中のシブトラミン含有量は、2010 年に米国及び欧州で販売が中止されるまで処方されていた量と、同等またはそれ以上の量であったことから、当該製品の摂取は重大な健康被害に繋がる恐れがあった。この結果を受け、薬務課では令和 4 年 6 月 27 日付けで「医薬品成分を含有する製品による健康被害

（疑い）の発生について」を公表し、県民への注意喚起を行った。

5 参考文献

- 1) “インターネット等で購入した未承認医薬品等・健康食品（医薬品成分含む）の健康被害情報”.厚生労働省 https://www.mhlw.go.jp/stf/kinkyu/diet/musyounin_00005.html
- 2) 厚生労働省医薬食品局監視指導・麻薬対策課長通知「脱 N-メチルシブトラミンの分析方法について」（平成 19 年 6 月 21 日付け薬食監麻第 0619001 号）

II 路上放置食品付着物のノンターゲット分析

1 概要

A 警察署から管轄区域の保健所に、毒物混入疑いのある不審物食品について検査可能か相談があった。不審物は、清掃活動中の県民が路上 3 か所で発見し持込んだもので、ソーセージの内部に青色の粉末が詰め込まれているものであった。当該品は封がされていない白色のレジ袋に入れられ放置されていたことから、犬や猫等が容易に食べることができる状態であった。類似の事例として、殺虫剤のメソミルによる動物の中毒死が 2016 年に和歌山市、2020 年に北九州市で発生しており、当該品が有毒のものであった場合、同様の被害が発生する可能性もあること、また人が摂食する可能性も否定できないため、健康被害発生防止の観点から依頼を受け、当所において GC-MS/MS を用いた農薬多成分一斉分析及び LC-(Q)TOF/MS によるノンターゲットスクリーニング分析を行った。

2 分析方法

2.1 試料

ソーセージに詰め込まれた青色粉末をスパーテルで掻き取り試料とした。ソーセージは内部がくり抜かれ、青色の粉末を詰め込み、その後くり抜いた中身を再度詰め直したような状態であった（図 2 参照）。

2.2 標準品

GC-MS/MS による農薬多成分一斉分析に、富士フイルム和光純薬（株）の農薬混合標準液 PL-1-2、PL-2-1、PL-3-3、PL-4-2、PL-5-1、PL-6-3、PL-9-2、PL-10-1、PL-11-2、PL-12-1、PL-13-1、Dr.Ehrenstorfer のエスフェンバレレート、(α)、(β)、(γ)-BHC を使用し、265 農薬を対象とした。

2.3 試薬等

アセトニトリル、アセトン、ヘキサンは、いずれも関

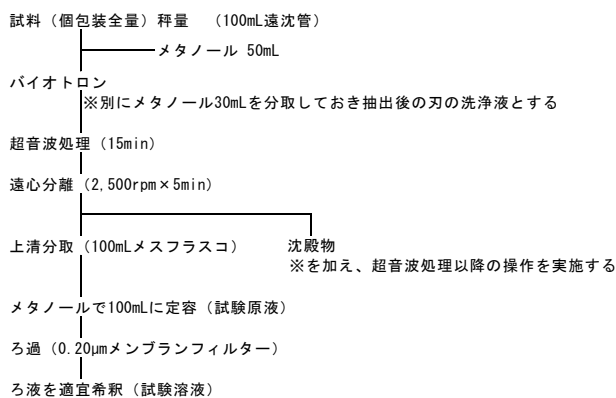


図 1 試験溶液調製フロー

表 1 装置及び測定条件

LC部	機器	Agilent Technology 1200 Infinity
	移動相	A液：0.02%ギ酸水溶液 B液：0.02%ギ酸アセトニトリル
	グラジエント条件	B：35.0%(0min)→75.0%(10min)→35.0%(12.01→22min)
	流速	0.2mL/min
	カラム	L-column2 ODS (2.1mm id×100mm、2 μ m、化学物質評価研究機構)
	カラム温度	40 $^{\circ}$ C
	注入量	5 μ L
MS部	機器	AB SCIEX QTRAP4500
	イオン化法	ESI Positive
	IS	5000V
	TEM	600 $^{\circ}$ C
	Q1	280.2[M+H] ⁺
	Q3	定量：125.0、定性：139.0、153.0

表 2 測定結果

試料	試料重量 (g/個)	シブトラミン量 (mg/個)
1	18.73	13.5
2	18.16	13.2
3-1	7.84	19.5
3-2	5.18	14.2
3-3	6.03	15.6



図 2 路上に放置されていた食肉製品

東化学(株)の残留農薬試験・PCB試験用(300倍濃縮)、メタノールは関東化学(株)のLC/MS用、酢酸アンモニウムは関東化学(株)の特級を使用した。メンブランフィルターは、アドバンテック(株)の親水性PTFEタイプ、孔径0.2 μ mを使用した。

2.4 試験溶液の調製

ソーセージ内部の青色粉末の部分採取し、アセトニトリルを2mL加えて10分間超音波を照射した。その後、2,500rpmで10分間遠心分離し、上清をメンブランフィルターでろ過したものをLC-(Q)TOF/MS用試験溶液とした。また、上記試験溶液を500 μ L分取し、窒素ガスで乾固した後、アセトン:ヘキサン(3:17)250 μ Lに再溶解し、超音波処理を10秒間行ったものをGC-MS/MS用試験溶液とした(図3参照)。

2.5 装置及び測定条件

装置及び測定条件を表3及び表4に示す。

3 結果

3.1 GC-MS/MSによる農薬多成分一斉分析

有機リン系農薬であるプロチオホスを0.01 μ g/mL検出した。プロチオホスは、淡黄褐色の液体や類白色の粉

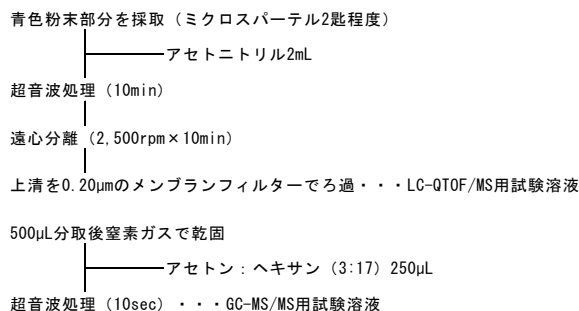


図3 試験溶液の調製フロー

表3 装置及び測定条件(LC-(Q)TOF/MS)

LC部	機器	AB SCIEX Exion LC AD
	移動相	A液: 5mM酢酸アンモニウム水溶液 B液: 5mM酢酸アンモニウムメタノール
	グラジエント条件	B: 10%(0min)→50%(2min)→80%(11min)→98%(12.5min→14min)
	流速	0.3mL/min
	カラム	ACQUITY UPLC HSS T3 (2.1mm×100mm, 1.8 μ m, Waters)
	カラム温度	40°C
	注入量	5 μ L
MS部	機器	AB SCIEX X500R
	イオン化法	ESI Positive
	IS	5,500V
	TEM	300°C
	測定モード	IDA
	測定範囲	Precursor ion 100-1,000m/z Product ion 50-1,000m/z

表4 装置及び測定条件(GC-MS/MS)

GC部	機器	Agilent Technologies 7890B
	キャリアガス	He
	ガス流量	1.46mL/min
	注入口温度	70°C
	注入方法	サンドイッチ/コールドスプリットレス
	注入量	20 μ L(測定用溶液)+1 μ L(AnalyteProtectants)
	大量注入口装置	アイスティサイエンス LVI-S250
	カラム	VF-5ms(0.25mm×30m, 0.25 μ m, Agilent Technologies)
	カラム温度	70°C(4min)→25°C/min→150°C(0min)→ 3°C/min→200°C(0min)→8°C/min→310°C(5min)
MS部	機器	Agilent Technologies 7000C
	イオン源温度	280°C
	トランスファライン温度	280°C
	イオン化法	EI法(70eV)
	測定モード	MRMで301成分

末のものが販売されており、その含有率は3%~45%で

ある。青色粉末を試料として分析したが、定量値は低濃度であり、一般的な農薬の含有量を考慮すると主要成分とは考えにくく、市販品の性状とも異なっていた。

3.2 LC-(Q)TOF/MSによるノンターゲットスクリーニング分析

ライブラリ検索の結果、カーバメイト系殺菌剤のカルベンダジム、クマリン系殺鼠剤のクマテトラリルとジクマロールが高スコアでヒットした(図4、図5、図6参照)。いずれの化合物も標準品を保有していなかったため、確認及び定量分析は実施できなかった。

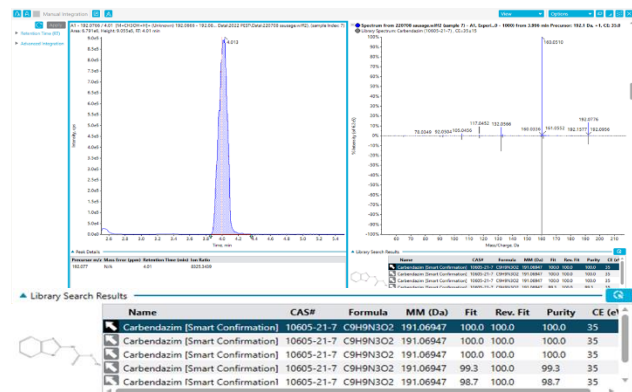


図4 保持時間4.01分のピークと検索結果
(カルベンダジム: Height 9.055e5)

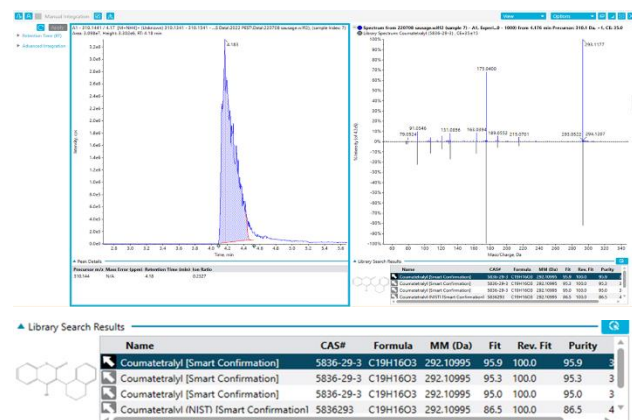


図5 保持時間4.18分のピークと検索結果
(クマテトラリル: Height 3.302e6)

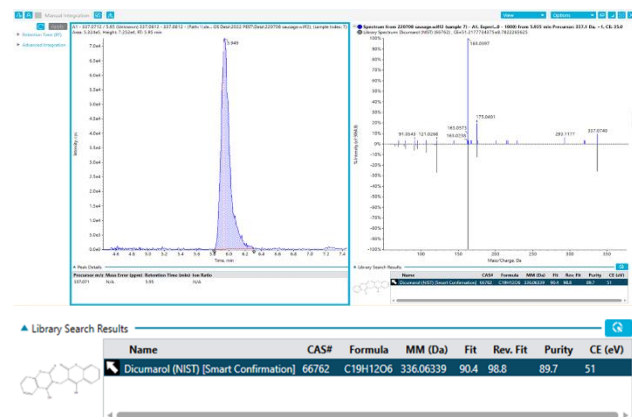


図6 保持時間5.95分のピークと検索結果
(ジクマロール: Height 7.252e4)

4 まとめ

類似の事例から当初は殺虫剤のメソミルの混入が予想されたが、メソミルは検出せず、有機リン系農薬のプロチオホス、カーバメイト系殺菌剤のカルベンダジム、クマリン系殺鼠剤のジクマロールとクマテトラリルが検出された。

市販品の性状や含有量を考慮すると、有機リン系農薬のプロチオホスやカーバメイト系殺菌剤のカルベンダジムが主成分とは考えにくく、クマリン系殺鼠剤のクマテトラリルが主要成分と考えられた。

カルベンダジムは1999年に農薬登録が失効しているが、環境中ではチオファネートメチルやベノミルがカルベンダジムに分解されることが知られており、残留農薬では、「カルベンダジム、チオファネート、チオファネートメチル及びベノミル」として基準が設けられている。今回の分析では、チオファネート、チオファネートメチル及びベノミルは検出しなかったが、これらの農薬は抽出時にカルベンダジムに変化することから、分解物としてのカルベンダジムを検出した可能性も否定できない。そのため、失効農薬のカルベンダジムが検出されたのか、分解物としてのカルベンダジムを検出したのか、判別はできなかった。

ジクマロールは販売実績が確認できなかったが、クマテトラリルは長年殺鼠剤として販売されており、その性状は青色の粉末で、含有量は0.75%である。今回の分析では標準品がなかったため、定量は実施できなかったが、ピークの大きさ及びその性状から、クマテトラリルが青色の粉末の主要成分であると推定した。

健康被害発生時においては、平常時には想定されない化学物質による汚染の可能性もあり、ターゲットを絞った分析では混入物質の特定は困難である。一方、高分解能質量分析計によるフルスキャンモードでデータを採取するノンターゲット分析手法を用いて、網羅的な分析を実施することにより、ある程度まで原因物質を絞り込み推定することができる。

今回の事例から健康危機管理には、ノンターゲット分析が有用な手段であることが改めて示唆された。

5 参考文献

- 1) 北尾拓也ら(2018).「路上に落ちていたソーセージからの農薬検出事例について」『和歌山市衛生研究所報』, 第22号(2016),pp.26-28.

宮城県における大気中の有害大気汚染物質濃度について

The Concentrations Transition of Hazardous Air Pollutants in Miyagi Prefecture

太田 葉 天野 直哉 吉川 弓林 佐久間 隆*¹ 菱沼 早樹子 三沢 松子
Shiori OHTA, Naoya AMANO, Yuri KIKKAWA, Takashi SAKUMA, Sakiko HISHINUMA,
Matsuko MISAWA

本県は、平成 9 年 10 月から県内 4 地点において有害大気汚染物質のモニタリング調査を実施しており、今般、測定開始年度から令和 3 年度までの 25 年間の調査結果を整理し、本県における有害大気汚染物質の濃度変化や地域特性、季節変動について取りまとめたので報告する。年平均値の推移では、解析中の物質トルエンを除き、多くの地点、物質で低濃度域への収束が見られ、近年はすべての物質で環境基準や指針値を満足していた。一方で、アクリロニトリルやホルムアルデヒドなど一部の物質は増加傾向を示した。地域の傾向としては、道路沿道に分類される「名取市」は自動車排ガスを由来とする物質の濃度が比較的高かった。一般環境に分類される「塩竈市」ではどの物質も全体的に高めの値を示す傾向があり、「大崎市」ではアルデヒド類の濃度が他の地点と比較して顕著に低い、「大河原町」ではトリクロエチレンの濃度が他の地点よりも高いという特徴が見られた。

キーワード：有害大気汚染物質；経年変化；季節変動

Key words : hazardous air pollutants ; Long-term Trend ; Seasonal Variation

1 はじめに

平成 8 年 5 月の大気汚染防止法の改正に伴い、国及び地方公共団体は有害大気汚染物質による大気汚染状況の把握に努めなければならないと定められ、本県は平成 9 年 10 月から県内 4 地点において有害大気汚染物質のモニタリング調査を開始し、現在は環境省が定める「優先取組物質」23 物質のうち 21 物質について測定を実施している。

本報は、1997 年度（平成 9 年度）から 2021 年度（令和 3 年度）までの 25 年間の調査結果を整理し、本県における有害大気汚染物質の濃度変化や地域特性、季節変動などについて把握することを目的とした。

2 方法

2.1 調査地点及び調査頻度

調査地点の概要を図 1 及び表 1 に示した。県内 4 地点で実施し、月 1 回 24 時間試料を採取した。

なお、大崎市及び大河原町については、2007 年度（平成 19 年度）以降は隔年で交互に実施した。



図 1 調査地点

表 1 調査地点の概要

調査地点	地点分類	備考
名取市	道路沿道	名取自動車排出ガス測定局
塩竈市	一般環境	塩釜一般環境大気測定局
大崎市	一般環境	古川Ⅱ一般環境大気測定局
大河原町	一般環境	仙南保健福祉事務所屋上

2.2 調査対象物質

優先取組物質 23 物質のうち、ダイオキシン類を除外し、「クロム及び三価クロム化合物」及び「六価クロム化合物」を「クロム及びその化合物」として合わせた計 21 物質について測定を実施している。

なお、トルエンの結果については別途解析中のため、本報では除外した。

2.3 試料採取及び測定方法

「有害大気汚染物質測定方法マニュアル」¹⁾に従い、揮発性有機化合物 (VOCs) は容器採取-GCMS 質量分析法、アルデヒド類は固相捕集-HPLC 法、酸化エチレンは固相捕集-溶媒抽出-GCMS 法、ベンゾ [a]ピレンはフィルタ捕集-GCMS 法、重金属類はフィルター捕集-ICP-MS 法、水銀は金アマルガム捕集加熱酸化冷原子吸光法でそれぞれ捕集及び測定を行った。

3 結果

3.1 下限値の取扱い

年平均値は、12 回の測定値を算術平均して算出した。また、平均値の算出にあたり、測定値が検出下限値未満の場合は検出下限値の 1/2 値を用い、検出下限値以上かつ定量下限値未満の場合は測定値を用いた。

3.2 年平均値の濃度推移

県内 4 地点における各物質濃度の年平均値及び全国の年平均値²⁾の推移を図 2-1～図 2-20 に示した。環境基準及び指針値が設定されている 15 物質については、それらとの比較を行った。

1) VOCs

VOCs は 1997 年度（平成 9 年度）から測定を開始し、2021 年度（令和 3 年度）までの 25 年間の結果についてまとめた。ただし、塩化メチルは対象物質に追

*1 前 保健環境センター

加した2009年度(平成21年度)以降の結果を用いた。

トリクロロエチレン(図2-1)、テトラクロロエチレン(図2-2)については、それぞれ環境基準(130 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、200 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)を大きく下回っており、全国平均と比較しても低く推移していた。一方で、大河原町のトリクロロエチレンについては、全国平均を下回るが他の地点と比較して高い値で推移しており、近傍の発生源の影響を受けている可能性がある。ベンゼン(図2-3)については、1998年度(平成10年度)及び1999年度(平成11年度)に道路沿道に分類される名取市において環境基準(3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)を上回ったが、当時は全国的に濃度が高かったため全国平均は下回っていた。以降は減少傾向を示し、近年はすべての地点で低濃度域へ収束している。ジクロロメタン(図2-4)については、環境基準(150 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)を大きく下回っていた。塩竈市及び名取市において2001年度(平成13年度)から10年間ほど全国平均を上回り高い値が続いていたが、東日本大震災のあった2011年度(平成23年度)以降は全国平均と同程度の低濃度域で推移した。アクリロニトリル(図2-5)については、指針値(2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)の超過は見られないが全地点で増加傾向を示しており(表2)、特に道路沿道である名取市において2015年度(平成27年度)から顕著な増加が見られた。塩化ビニルモノマー(図2-6)については、指針値(10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)を大きく下回りやや減少傾向を示しながら推移しているが、アクリロニトリルと同様に2015年度(平成27年度)から名取市において濃度の増加が見られた。塩化メチル(図2-7)については、指針値(94 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)を大きく下回っており、すべての地点で目立った増減は見られず横ばいで推移した。クロロホルム(図2-8)については、指針値(18 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)を大きく下回っており、地点ごとにばらつきが大きかった。近年はすべての地点で低濃度域に収束し、全国平均を下回って推移している。1,2-ジクロロエタン(図2-9)、1,3-ブタジエン(図2-10)については、それぞれ指針値(1.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、2.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)を下回り、全国平均と同程度で推移した。1,3-ブタジエンでは、道路沿道に分類される名取市で濃度が高い傾向があった。

2) アルデヒド類

アルデヒド類は1998年度(平成10年度)から測定を開始し、2021年度(令和3年度)までの24年間の結果についてまとめた。

アセトアルデヒド(図2-11)については、すべての地点で指針値(120 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)を大きく下回っていた。一方で、測定開始年度はすべての地点で全国平均を下回っていたが、次第に上昇し、2004年度(平成16年度)頃をピークに全国平均を上回って推移した。2009年度(平成21年度)からは減少に転じ、以降は全国

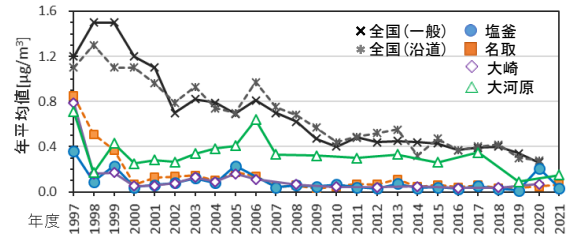


図2-1 トリクロロエチレン年平均値

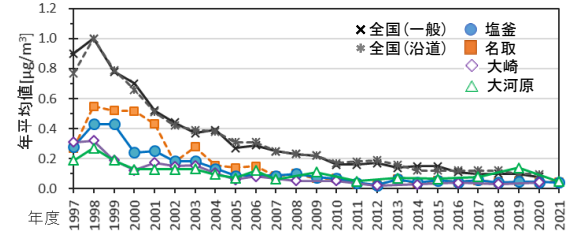


図2-2 テトラクロロエチレン年平均値

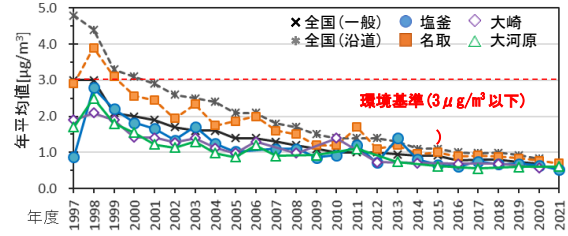


図2-3 ベンゼン年平均値

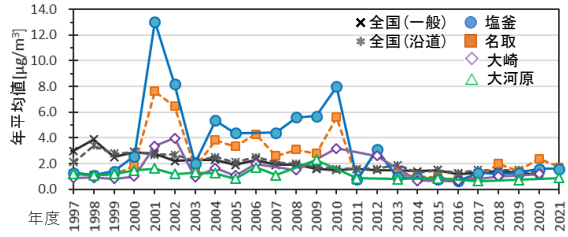


図2-4 ジクロロメタン年平均値

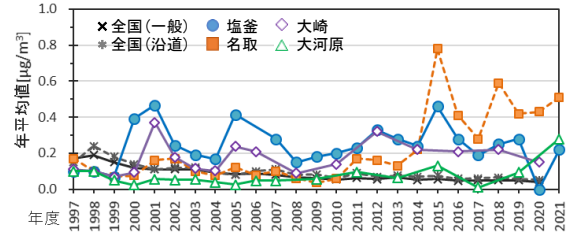


図2-5 アクリロニトリル年平均値

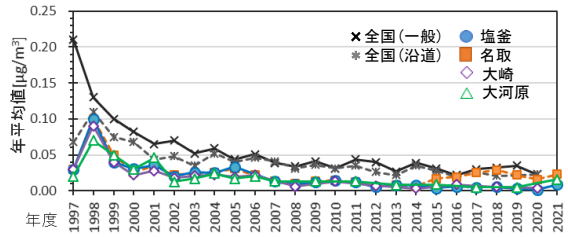


図2-6 塩化ビニルモノマー年平均値

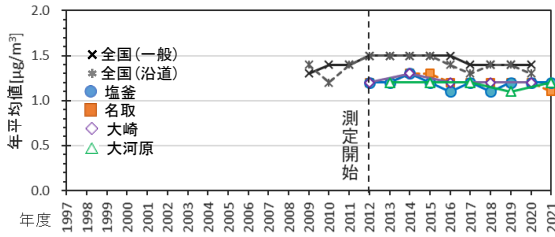


図2-7 塩化メチル年平均値

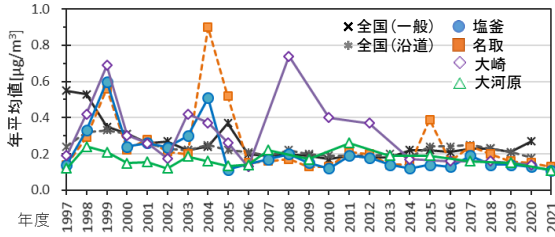


図2-8 クロロホルム年平均値

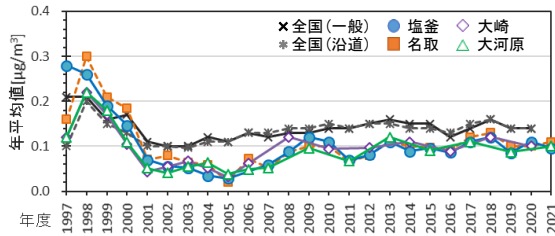


図2-9 1, 2-ジクロロエタン年平均値

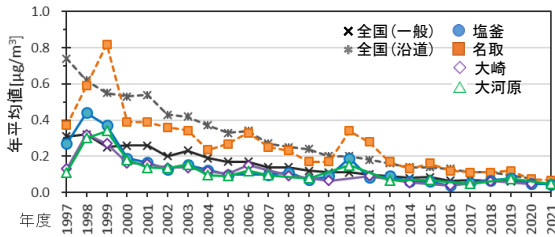


図2-10 1, 3-ブタジエン年平均値

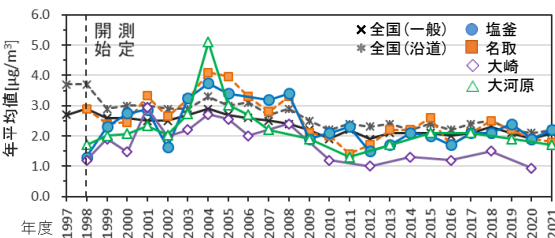


図2-11 アセトアルデヒド年平均値

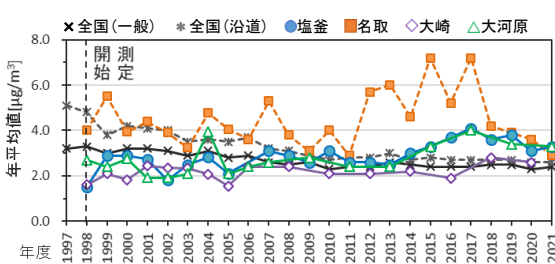


図2-12 ホルムアルデヒド年平均値

平均と同程度又は下回って横ばい傾向となっている。また、大崎市では 2001 年度（平成 13 年度）を除いて全国平均を常に下回っており、2010 年度（平成 22 年度）以降は他の地点と比較して顕著に低い濃度で推移していた。ホルムアルデヒド（図 2-12）については、すべての地点で増加傾向を示し（表 2）、特に道路沿道である名取市において顕著な増加が見られたが、2019 年度（令和元年度）からは減少傾向を示しており、コロナ禍での外出自粛による交通量の減少の影響が考えられた。塩竈市及び大河原町においては 2015 年度（平成 27 年度）頃から上昇し、以降は横ばい傾向を示している。大崎市では、アセトアルデヒドと同様に他の地点と比較して低い濃度で推移していた。

3) 酸化エチレン

酸化エチレン（図 2-13）は 2002 年度（平成 14 年度）から測定を開始し、2021 年度（令和 3 年度）までの 20 年間の結果についてまとめた。

測定開始当初の 4 年間はすべての地点で全国平均を大きく上回って変動していたが、2006 年度（平成 18 年度）からは全国平均と同程度まで低下し、2017 年度（平成 29 年度）以降は横ばいで推移している。

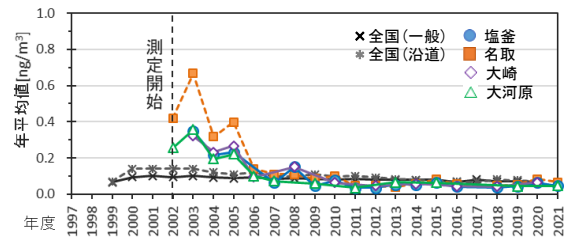


図2-13 酸化エチレン年平均値

4) ベンゾ[a]ピレン

ベンゾ[a]ピレン（図 2-14）は 1998 年度（平成 10 年度）から測定を開始し、2021 年度（令和 3 年度）までの 24 年間の結果についてまとめた。

分析開始当初から濃度の増減幅が大きく、全国平均を上下しながら変動していたが、2009 年度（平成 21 年度）頃から次第に全国平均と同程度の濃度に収束し、近年はすべての地点で全国平均を下回って推移している。

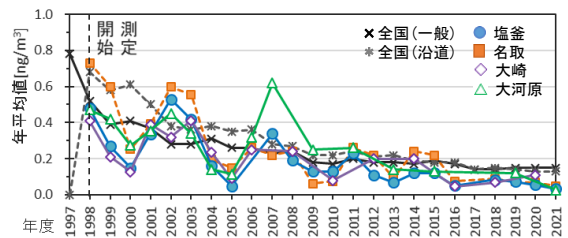


図2-14 ベンゾ[a]ピレン年平均値

5) 金属類

金属類は 2002 年度（平成 14 年度）から測定を開始

し、2021年度（令和3年度）までの20年間の結果についてまとめた。水銀は対象物質に追加した2005年度（平成17年度）以降の結果を用いた。

ニッケル化合物（図2-15）については、指針値（25mgNi/m³）を下回っているが、大崎市において2003年度（平成15年度）、2004年度（平成16年度）に全国平均を大きく上回った。これは既報³⁾において、近隣の石油燃焼施設の影響と考察されている。ヒ素及びその化合物（図2-16）については、2005年度（平成17年度）から6年間ほど全国平均を下回って推移したが、東日本大震災のあった2011年度（平成23年度）以降は全国平均と同程度まで上昇し、横ばい傾向となっている。この濃度上昇の影響で、測定開始当初から現在までの全体の傾向としては、大崎市を除く3地点で増加傾向を示した（表2）。ベリリウム及びその化合物（図2-17）については、すべての地点で測定値のほとんどが定量下限値未満であり、更にその大部分が検出下限値未満だった。測定を開始した2002年度（平成14年度）に高値を示しているが、これは当時使用していた装置の性能上、質量が軽い元素について感度が悪く、低い下限値が得られなかったことに起因する。マンガン及びその化合物（図2-18）については、指針値（140ngMn/m³）を下回っているが、道路沿道である名取市において比較的高い値を示し、2015年度（平成27年度）以降は全国平均を上回って推移している。クロム及びその化合物（図2-19）については、塩竈市において2003年度（平成15年度）及び2004年度（平成16年度）に全国平均を上回ったが、以降は全ての地点で全国平均を下回り、低濃度域で横ばいで推移した。水銀及びその化合物（図2-20）については、測定開始以降すべての地点で指針値（40mgHg/m³）及び全国平均を下回り、目立った増減は見られず横ばいで推移した。

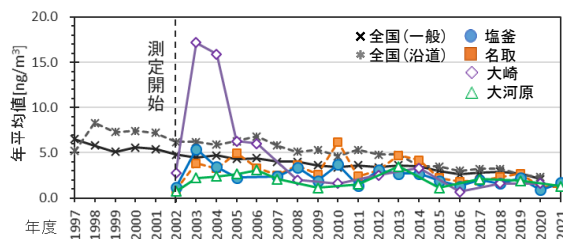


図2-15 ニッケル化合物年平均值

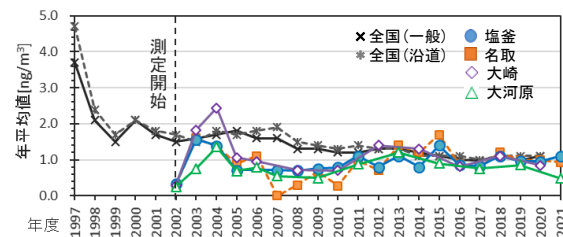


図2-16 ヒ素及びその化合物年平均值

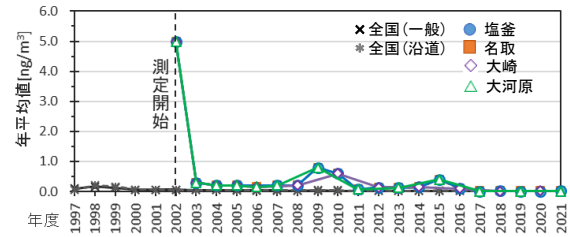


図2-17 ベリリウム及びその化合物年平均值

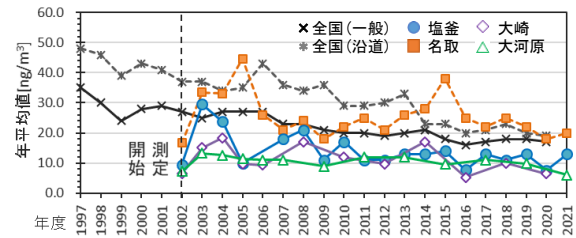


図2-18 マンガン及びその化合物年平均值

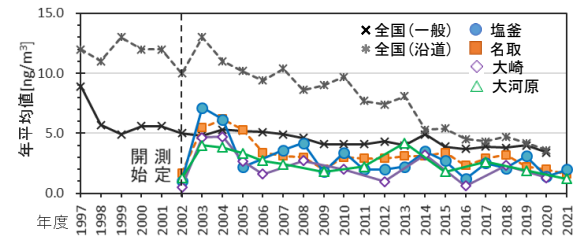


図2-19 クロム及びその化合物年平均值

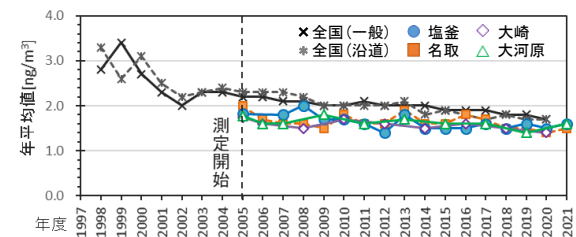


図2-20 水銀及びその化合物年平均值

表2 年平均値の増減傾向（近似曲線の傾き）

物質名	名取市	塩竈市	大崎市	大河原町
トリクロロエチレン	-0.016	-0.0069	-0.012	-0.0091
テトラクロロエチレン	-0.018	-0.013	-0.011	-0.0052
ベンゼン	-0.10	-0.057	-0.057	-0.056
ジクロロメタン	-0.077	-0.15	-0.016	-0.026
アクリロニトリル	0.018	0.0024	0.0038	0.0037
塩化ビニルモノマー	-0.0013	-0.0020	-0.0019	-0.0015
塩化メチル	-0.010	-0.0042	-0.0050	-0.0050
クロロホルム	-0.0081	-0.010	-0.0087	-0.00050
1,2-ジクロロエタン	-0.0024	-0.0029	-0.0008	-0.0011
1,3-ブタジエン	-0.019	-0.010	-0.0082	-0.0073
アセトアルデヒド	-0.058	-0.030	-0.048	-0.032
ホルムアルデヒド	0.024	0.059	0.022	0.050
酸化エチレン	-0.021	-0.012	-0.014	-0.013
ベンゾ[a]ピレン	-0.022	-0.015	-0.011	-0.015
ニッケル化合物	-0.082	-0.091	-0.57	-0.018
ヒ素及びその化合物	0.015	0.0067	-0.020	0.0032
ベリリウム及びその化合物	-0.083	-0.090	-0.10	-0.092
マンガン及びその化合物	-0.36	-0.48	-0.25	-0.13
クロム及びその化合物	-0.11	-0.12	-0.087	-0.062
水銀及びその化合物	-0.016	-0.021	-0.014	-0.011

3.3 季節変動

各物質の季節的な変動を把握するため、2012年度（平成24年度）から2021年度（令和3年度）までの10年間に得られた測定値を用いて各月の平均値を算出し、図3-1～図3-20に示した。

なお、大崎市及び大河原町は隔年で調査を実施しているため、同じ10年間で5年分の測定値を集計した。

1) VOCs

トリクロロエチレン（図3-1）については、大河原町で年間を通して他の地点よりも比較的高い傾向があった。トリクロロエチレンは製造業での油除去や代替フロン原料などに使用されるため、近傍に発生源となる事業所等があると考えられるが、環境省が提供するPRTRインフォメーション広場⁴⁾では、トリクロロエチレンの排出・移動等について届出のある事業所は確認できなかった。その他の地点については、季節的な変動は見られず、一年を通して安定して推移していた。テトラクロロエチレン（図3-2）については、いずれの地点でも季節的な変動はあまり見られず、寒冷期にやや高くなる印象を受けた。トリクロロエチレンと同様に大河原町において比較的に濃度が高く、7月に大きなピークが見られた。トリクロロエチレンと同じ用途で使用される物質であるため、同じ発生源の影響を受けている可能性が考えられる。ベンゼン（図3-3）、1,3-ブタジエン（図3-10）については、全地点で寒冷期に高くなる傾向が見られた。いずれも自動車排ガスが主な発生源とされており、一般環境に分類される3地点よりも、道路沿道に分類される名取市において年間を通して濃度が高かった。ジクロロメタン（図3-4）、塩化ビニルモノマー（図3-6）、1,2-ジクロロエタン（図3-9）については、夏季と冬季にやや濃度が上昇する傾向が見られた。特に塩化ビニルモノマーでは、道路沿道に分類される名取市において、温暖期に他の地点よりも高い値で推移していた。1,2-ジクロロエタンでは地点間の違いはあまり見られなかった。アクリロニトリル（図3-5）については、地点間で濃度差はあるものの、おおむね温暖期に高くなる傾向があった。前項の年平均値の推移では、名取市でアクリロニトリル濃度（図2-5）と塩化ビニルモノマー濃度（図2-6）が同じ時期から上昇していることを報告したが、季節変動ではそれぞれ異なった推移を示すことから、それぞれ異なる濃度上昇要因が存在すると考えられる。塩化メチル（図3-7）については、地点間での差異や季節的な変動は見られず、一年を通して安定して推移していた。クロロホルム（図3-8）については、名取市で12月にピークが見られ、大崎市では4月から7月に濃度の上昇が見られた。それぞれ、周辺に発生源となる事業所等があると考えられる。塩化メチル及び大河原町では季節的な変動は見られず、一年を通して安定して推移していた。

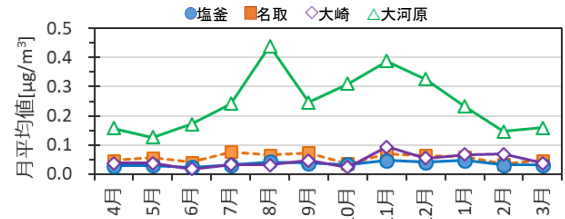


図3-1 トリクロロエチレン経月変化

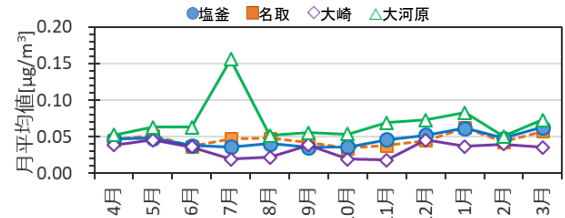


図3-2 テトラクロロエチレン経月変化

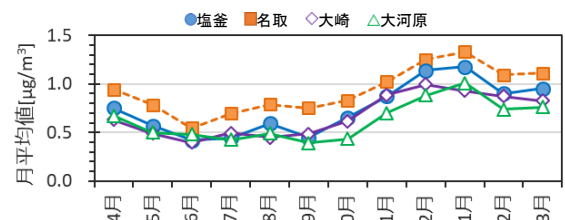


図3-3 ベンゼン経月変化

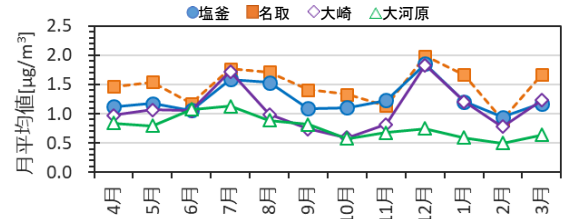


図3-4 ジクロロメタン経月変化

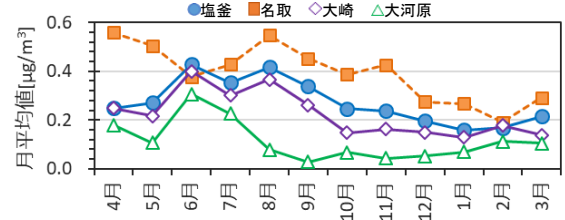


図3-5 アクリロニトリル経月変化

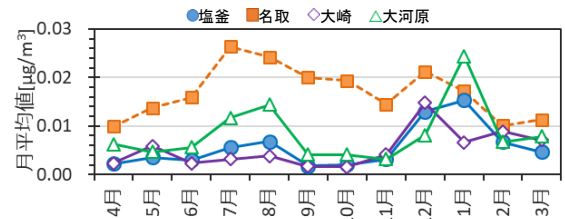


図3-6 塩化ビニルモノマー経月変化

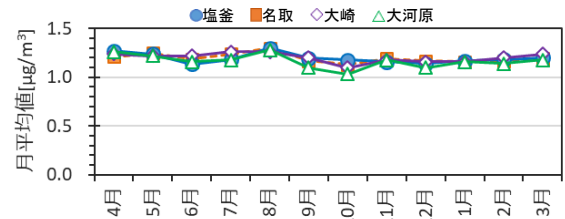


図3-7 塩化メチル経月変化

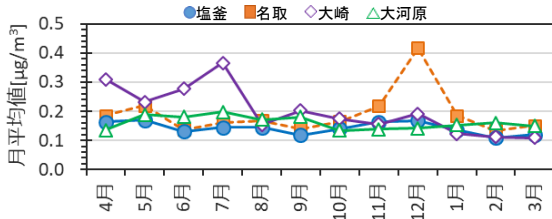


図3-8 クロロホルム経月変化

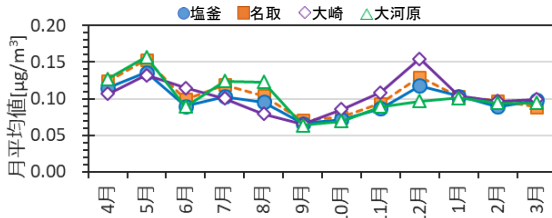


図3-9 1, 2-ジクロロエタン経月変化

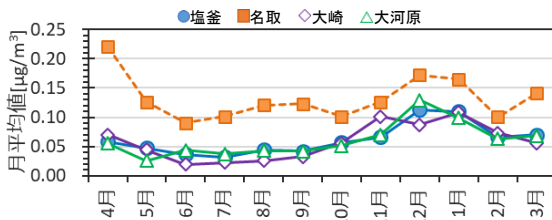


図3-10 1, 3-ブタジエン経月変化

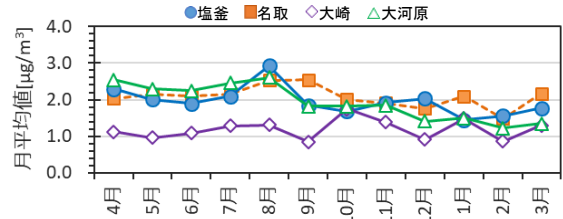


図3-11 アセトアルデヒド経月変化

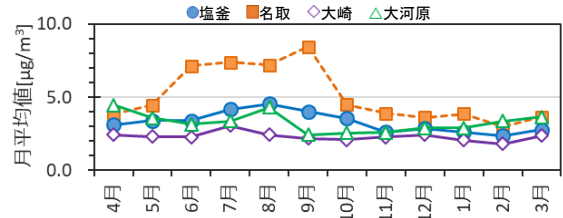


図3-12 ホルムアルデヒド経月変化

表3 道路交通センサス（H27年度版）の抜粋

地点	道路種別	車線数	濃度	
			昼12時間 (小型車及び大型車)	24時間推計 (小型車及び大型車)
名取市	一般国道4号	4	36,047	51,908
塩釜市	一般国道45号	2	15,293	18,046
大崎市	一般国道108号	2	7,854	10,210
大河原町	一般国道4号	2	21,894	29,776

2) アルデヒド類

アセトアルデヒド(図3-11)、ホルムアルデヒド(図3-12)については、大崎市を除いた3地点では、温暖期にやや増加する傾向が見られた。特に、道路沿道に分類される名取市のホルムアルデヒドについては、6月から9月に顕著な濃度の上昇が見られ、温暖期の濃度が年平均値の上昇に影響していることが伺えた。一方で、大崎市においては、前項の年平均の濃度推移(図2-12)では他の地点と比較して低い濃度で推移していることを報告したが、経月変化についても季節的な変動は見られなかった。温暖期にも濃度が上昇せず、一年を通して安定して推移しており、その結果として年平均値が低くなるという点で特徴的だった。

アルデヒド類の発生源には自動車排ガスや事業場及び家庭からの排出のほか、VOCsなどからの二次生成など複数あるが、今般は国土交通省が実施している全国道路・街路交通情勢調査(道路交通センサス、平成27年度版)⁵⁾を用いて各調査地に最も近い道路の交通量を確認したところ、昼12時間の合計及び24時間の推計ともに大崎市が最も少なく、大気中アルデヒド類濃度に影響する一因として考えられる。

3) 酸化エチレン

酸化エチレン(図3-13)については、地点間での差異は見られず、温暖期に濃度がやや上昇する傾向が見られたが、全体としては一年を通して安定して推移していた。

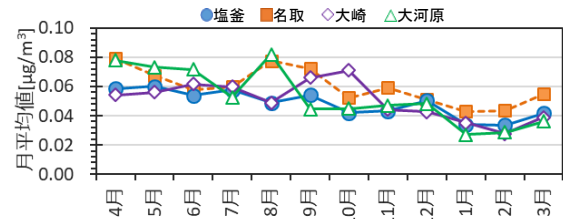


図3-13 酸化エチレン経月変化

4) ベンゾ[a]ピレン

ベンゾ[a]ピレン(図3-14)については、地点間での差異はあまり見られず、寒冷期に濃度がやや上昇していた。11月及び3月に大崎市においてピークが見られたが、集計期間のうち1度のみ高値を示した影響で平均値が吊り上がったものである。近傍において、ベンゾ[a]ピレンの排出・移動等について届出のある事業所は確認できなかった。

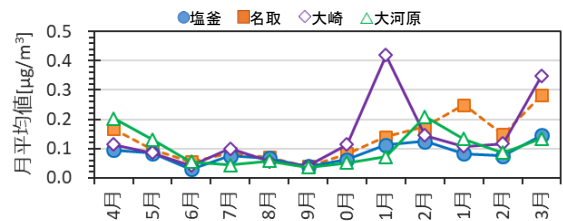


図3-14 ベンゾ[a]ピレン経月変化

5) 金属類

ニッケル化合物（図 3-15）、ヒ素及びその化合物（図 3-16）については、地点間でのばらつきが大きく、全体として温暖期に濃度がやや上昇する印象があった。ベリリウム及びその化合物（図 3-17）、水銀及びその化合物（図 3-20）については、季節的な変動は見られず、一年を通して安定的に推移していた。マンガン及びその化合物（図 3-18）については、名取市では一年を通して他の地点よりも高く、塩竈市、大崎市、大河原町では、大陸から黄砂が飛来する時期である3月から5月頃にピークが見られた。クロム及びその化合物（図 3-19）については、名取市及び大崎市では一年を通して安定して推移していた。塩竈市では5月、大河原町では4月にピークが見られ、春先に濃度が上昇する傾向があった。

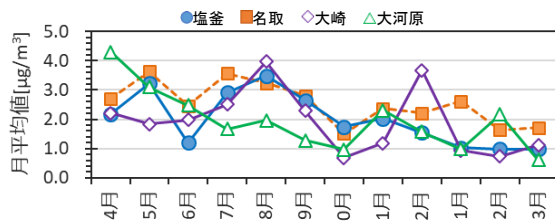


図 3-15 ニッケル化合物経月変化

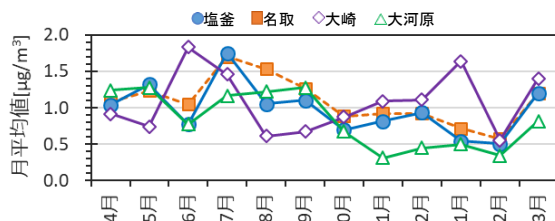


図 3-16 ヒ素及びその化合物経月変化

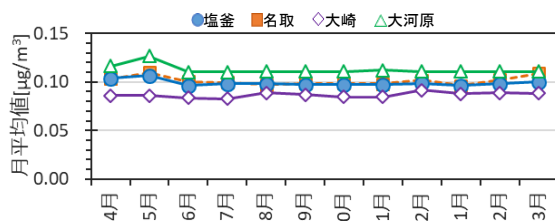


図 3-17 ベリリウム及びその化合物経月変化

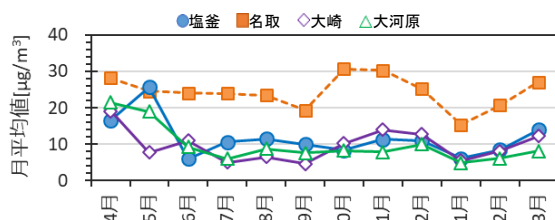


図 3-18 マンガン及びその化合物経月変化

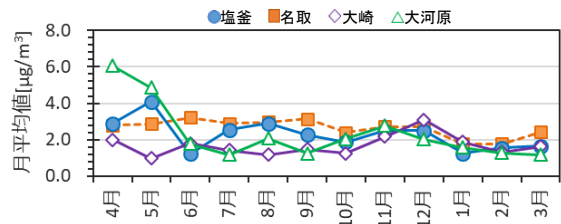


図 3-19 クロム及びその化合物経月変化

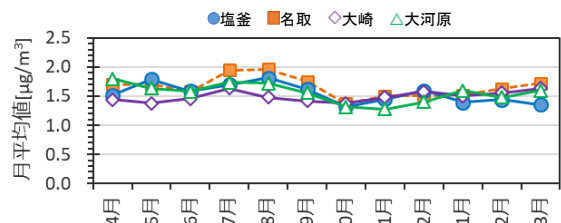


図 3-20 水銀及びその化合物経月変化

4 まとめ

年平均値の推移では、全体の傾向として減少傾向を示し、低濃度域への収束が見られ、近年はすべての物質で環境基準や指針値を満足していた。一方で、アクリロニトリルやホルムアルデヒドなど一部の物質は増加傾向を示し、今後の調査結果を注視していく必要がある。

地域の傾向としては、道路沿道に分類される名取市では、ベンゼン、1,3-ブタジエン、ホルムアルデヒドなどの自動車排ガスが主な由来とされている物質の濃度が他地点よりも高い傾向があった。塩竈市では、一般環境に分類される3地点のうちでは、どの物質も全体的に高め値を示す傾向があった。大崎市では、アルデヒド類の濃度が他の地点と比較して顕著に低い特徴が見られた。大河原町では、環境基準以下ではあるが、トリクロロエチレンの濃度が他の地点よりも高い特徴が見られた。

今後はコロナ禍の終息とともに経済活動が回復する時期となるため、各地点の濃度変化を注視し、引き続きデータを蓄積していく予定としている。

5 参考文献

- 1) 有害大気汚染物質測定方法マニュアル（環境省、平成 23 年 3 月改訂版）
- 2) 環境省 有害大気モニタリング調査結果 (<https://www.env.go.jp/air/osen/monitoring/index.html>)
- 3) 佐久間隆：宮城県保健環境センター年報、第 25 号、p.88 (2007)
- 4) 環境省 PRTR インフォメーション広場 (<https://www.env.go.jp/chemi/prtr/risk0.html>)
- 5) 国土交通省 全国道路・街路交通情勢調査 (<https://www.mlit.go.jp/road/census/h27/>)

高速自動車道の自動車騒音の経年変化について

About the annual change of highway car noise

小川 武 大熊 一也 天野 直哉 三沢 松子

Takeshi OGAWA, Kazunari OOKUMA, Naoya AMANO, Matsuko MISAWA

本県は、高速自動車道沿線地域における騒音監視について、宮城県高速自動車道騒音等防止対策要領に基づき、定点で経年的に行っている。これらの結果について、2005年度から2021年度までの騒音レベルと交通量の経年変化について整理した。東日本大震災が発災した2011年度以降は、路面の高機能舗装（排水性舗装）や遮音壁の設置が施された調査地点において、交通量の増加に対し、騒音レベルの抑制効果が見られた。直近の5年間（2017年度～2021年度）の交通量の状況は、小型車は昼間に多く、夜間は減少し、大型車は三陸自動車道を除き昼間と夜間で交通量の変化は見られなかった。三陸自動車道については小型車、大型車ともに夜間は減少した。新型コロナウイルス感染症の流行（以下「コロナ禍」という。）が始まった2020年度前後では、2020年度に騒音レベルの低下が見られ、一方で夜間ではコロナ禍前より高い時間帯も見られ、コロナ禍により生活様式の変化が反映されていることが推察された。

キーワード：自動車騒音；高速自動車道；騒音レベル；自動車交通量；監視

Key words : Car noise; High way; Noise level; Car traffic amount; Monitoring

1 はじめに

本県は、宮城県高速自動車道騒音等防止対策要領に基づき、高速自動車道沿道の沿線地域において、騒音防止対策を講ずる上での資料とすることを目的として、4路線5地点を選定し、監視を行っている。今回、これまでの結果について、経年変化の状況を整理し、解析・評価したので報告する。

なお、自動車交通量の解析については、大型車・小型車の車種別に、山形自動車道及び三陸自動車道では本県の実測データ、東北自動車道及び常磐自動車道では、東日本高速道路株式会社東北支社からトラフィックカウンターの観測データの提供を受けて行った。

2 調査方法及び調査地点

調査地点図を図1に、調査地点及び調査頻度を表1-1に、調査地点の道路状況について表1-2に示す。騒音の測定¹⁾は、「騒音に係る環境基準」（H10.9.30環境庁告示64号）及び「騒音規制法第17条第1項の規定に基づく指定地域内における自動車騒音の限度を定める省令」（H12.3.2総理府令15号）に従って実施している。

なお、当該調査地点は都市計画法に基づく用途地域の指定が無い場合、環境基準は適用とならないが、表1-2には比較のため、住居地域相当であるB地域を準用して記載している。

騒音レベルの解析では、測定日及び昼間と夜間の時間区分ごとに、以下の処理基準^{2),3)}に合致する音が発生した際は、異常音とみなして除外し、残りの測定値を平均することにより、その観測時間の等価騒音レベル（ L_{Aeq} ）とした。

処理基準：

$$L_{pA, Fmax} > 95dB \quad \text{又は}$$

$$L_{Aeq, 10min} > L_{Aeq, 10min} \text{の時間区分ごとの平均値} + 1.96\sigma$$

$L_{pA, Fmax}$ ：A特性・動特性FASTでの音圧レベルのピークレベル

$L_{Aeq, 10min}$ ：10分間の等価騒音レベル

σ ：時間区分ごとの標準偏差

表1-1 調査地点及び調査頻度

自動車道名	調査地点	調査頻度
東北自動車道	村田町菅生	毎年
	大崎市三本木	毎年
山形自動車道	川崎町支倉	毎年（2011年を除く）
三陸自動車道	利府町赤沼	2020年度までは毎年実施（2010、2011、2018年度を除く）、2021年度から常磐自動車道と交互に隔年で実施
常磐自動車道	亘理町荒浜	2018年度に実施、その後は、2021年度から三陸自動車道と交互に隔年で実施

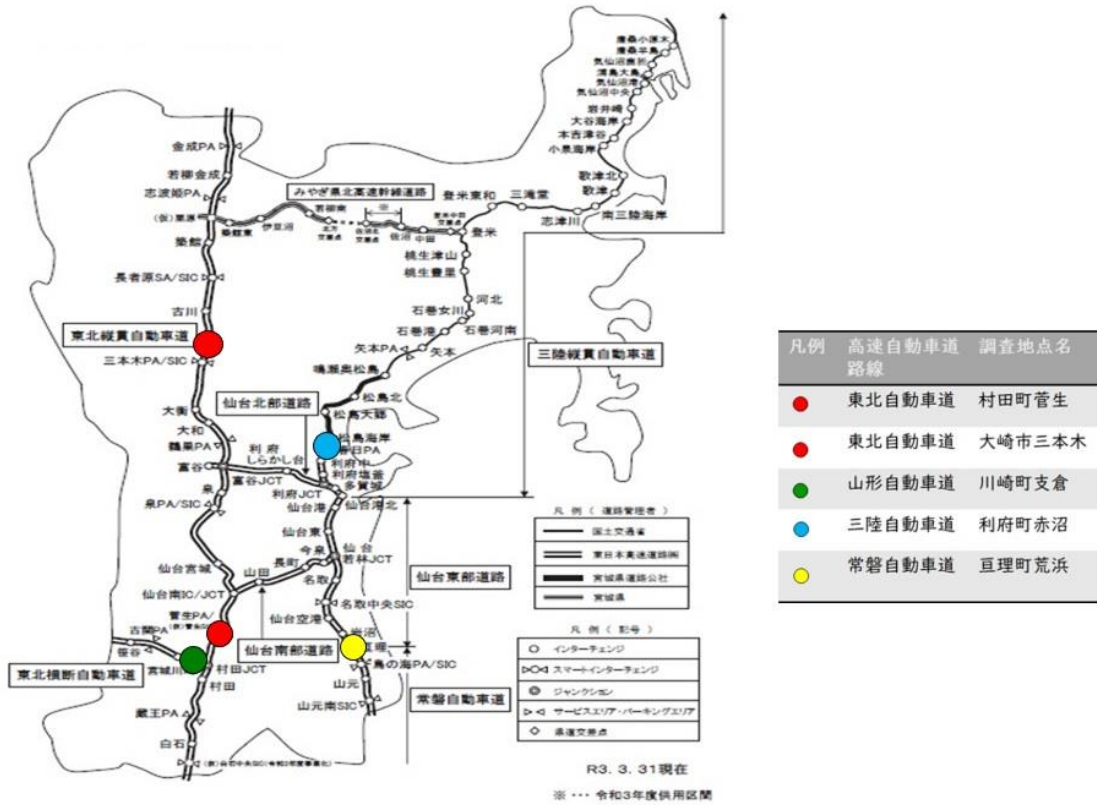
表1-2 調査地点の道路状況

調査地点	道路状況 ^{※1}				
	道路端からの距離[m]	車線数 ^{※2}	制限速度[km/h]	舗装状況	環境基準値 ^{※3} [dB]
村田町菅生	10.0	4	80	高機能舗装	昼間 70 夜間 65
大崎市三本木	19.2	4	100	高機能舗装	昼間 70 夜間 65
川崎町支倉	10.5	4	80	高機能舗装	昼間 70 夜間 65
利府町赤沼	15.0	4	80	高機能舗装	昼間 70 夜間 65
亘理町荒浜	17.5	2 4	100	高機能舗装	昼間 70 夜間 65

※1 道路状況は2021年度現在（利府町赤沼は2020年度現在）。

※2 常磐自動車道の車線数について、2018年度測定時は2車線。

※3 当該調査地点は都市計画法に基づく用途地域の指定が無い場合、環境基準は適用とならないが、比較のため住居地域相当であるB地域を準用して記載している。



地図引用：宮城県土木部「令和3年度みやぎの道路」より

図1 調査地点図

3 調査結果

3.1 騒音レベルと交通量の経年変化

2005年度から2021年度までの昼間、夜間の等価騒音レベルの経年変化を図2-1及び図2-2に、10分間平均交通量の経年変化を図3-1及び図3-2に示す。

東北自動車道の騒音レベルについて、村田町菅生（以下「村田町」という。）の昼間では、東日本大震災（以下「震災」という。）直後の2011年度に一時的に増加しているが、翌2012年度以降は、ほぼ震災前レベルに戻っている。一方、大崎市三本木（以下「大崎市」という。）では、震災前では2008年度に上昇し、震災直後の2011年度には一時的に増加したが、その後減少して震災前より低いレベルで横ばいとなっている。交通量については、村田町、大崎市の両地点で、震災直後の2011年度に昼夜とも一時的に増加した。その後は2017年度までは震災前より高いレベルの横ばいで推移し、2018年度以降は減少が見られた。

山形自動車道の川崎町支倉（以下「川崎町」という。）については、2014年度以降、昼夜とも騒音レベルの減少が見られたが、交通量について昼夜とも変化は見られない。

三陸自動車道の利府町赤沼（以下「利府町」という。）については、騒音レベルは昼夜とも2012年度にピーク又は高い値を示し、2013年度以降は減少してほぼ横ばいとなっている。交通量については震災後の2012年度以降では、昼間で震災前より増加している。

常磐自動車道の巨理町荒浜（以下「巨理町」という。）については、2018年度から測定を開始しているが、三

陸自動車道との隔年測定であることや車線拡幅工事実施のため、測定データは2018、2021年度の2か年度分のみである。限定的なデータではあるが、交通量、騒音レベルともに大きな変化は見られなかった。ただし、前述のとおり、常磐自動車道の宮城県側の4車線化工事は2017年7月に着工式が行われており⁴⁾、2018年度の測定値は工事が行われている中（2車線時）の測定値である。一方、2021年度は4車線化工事後（4車線時）の測定値である。このため、今後の変化を見ていく必要があると考えられる。

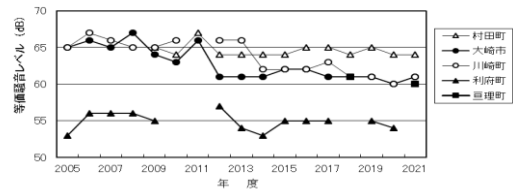


図2-1 等価騒音レベルの経年変化（昼間）

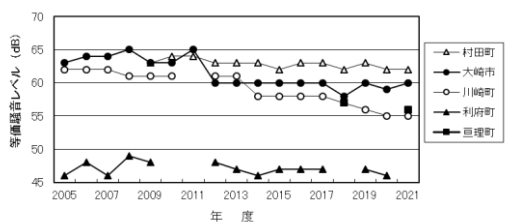


図2-2 等価騒音レベルの経年変化（夜間）

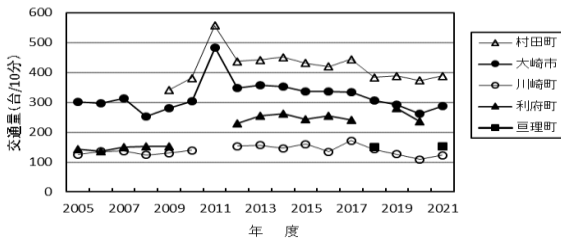


図3-1 交通量の経年変化（昼間）

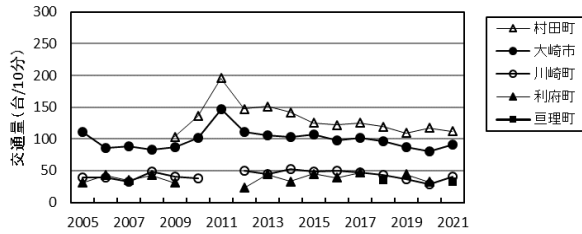


図3-2 交通量の経年変化（夜間）

3.2 直近の5年間で交通量と騒音レベルの変化

新型コロナウイルス感染症の流行拡大がみられた時期前後の2017年度～2021年度の5年間について、大型車及び小型車それぞれの時間帯別交通量と騒音レベルを解析し、関係性を評価した。

東北自動車道（村田町）の時間ごとの車種別交通量及び大型車交通量をそれぞれ図4-1及び図4-2に、騒音レベルを図4-3に示す。交通量について、小型車は昼間の時間帯に多く、夜間は減少している。コロナ禍の始まった2020年度は昼間の時間帯に減少が見られる。大型車については、1日を通して一定の交通量があり、夜間でもそれほど減少はみられず、コロナ禍前より増えている時間帯もみられる。騒音レベルについては、2020、2021年度はそれ以前の年度に比べ低くなっている。

東北自動車道（大崎市）の時間ごとの車種別交通量及び大型車交通量をそれぞれ図4-4及び図4-5に、騒音レベルを図4-6に示す。交通量については、東北自動車道（村田町）と同様に、小型車は昼間の時間帯に多く、夜間は減少し、一方、大型車については1日を通して一定の交通量があり、夜間でもそれほど減少しない。騒音レベルについては、2020年度が最も低いレベルで推移し、2021年度ではコロナ禍前と同等か高い時間帯が見られる。

山形自動車道（川崎町）の時間ごとの車種別交通量及び大型車交通量をそれぞれ図4-7及び図4-8に、騒音レベルを図4-9に示す。図4-7及び図4-8で値がない時間帯は、観測していないことを示す。交通量について、東北自動車道と同様な傾向が見られ、小型車は昼間に多く、夜間は減少する。一方、大型車は1日を通して一定の交通量があり、夜間でもさほど減少しない。2020年度では小型車・大型車とも他の年度と比べて減少しており、

東北自動車道に比べてコロナ禍の影響を受けていると考えられる。騒音レベルについて、2020年度は低く、2021年度になると昼間の時間帯は2019年度以前と同等か高い時間帯が見られる。

三陸自動車道（利府町）の時間ごとの車種別交通量及び大型車交通量をそれぞれ図4-10及び図4-11に、騒音レベルを図4-12に示す。図4-10、図4-11及び図4-12で値がない時間帯は、観測していないことを示す。交通量について、小型車・大型車とも昼間の時間帯に多く、夜間は大型車も減少する。2020年度では小型車が昼間（12時～16時）で2017、2019年度と比較して少ない。大型車に関しては昼間、夜間とも2017年度とほぼ同等の傾向である。騒音レベルについて、2020年度がそれ以前に比べ低くなっている。

常磐自動車道（亶理町）の車種別交通量及び大型車交通量をそれぞれ図4-13及び図4-14に、騒音レベルを図4-15に示す。

なお、2018年度は4車線化工事が行われていた時期である。交通量については、東北自動車道、山形自動車道と似た傾向があり、小型車は昼間の時間帯に多く、夜間は減少する。一方、大型車は1日を通して一定の交通量があり、夜間でも昼間と比べて減少はみられない。騒音レベルについて、昼間の時間帯は2018年度が高いが、早朝の時間帯では2021年度が高い時間帯もみられる。

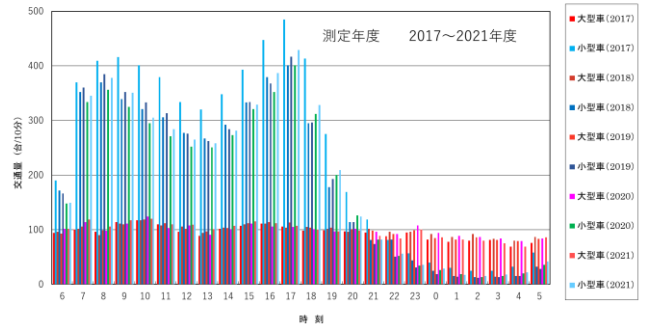


図4-1 時間毎の車種別交通量（東北自動車道：村田町）

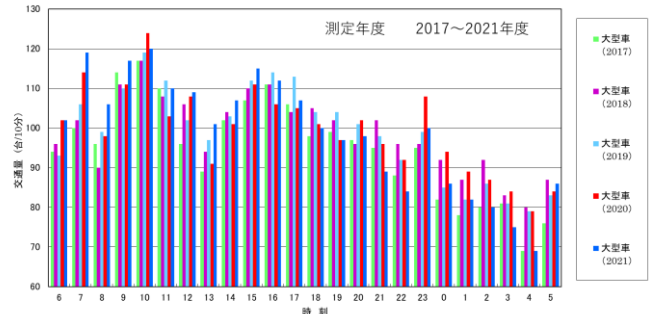


図4-2 大型車の時間毎の交通量（東北自動車道：村田町）

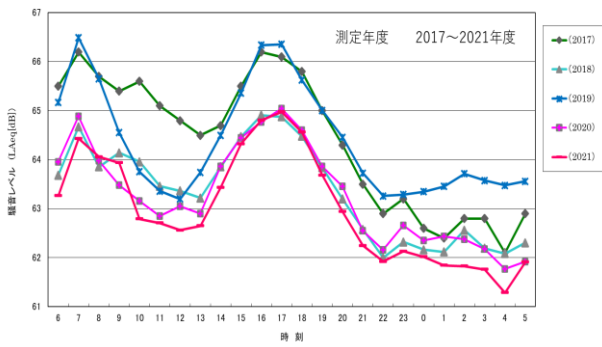


図 4-3 時間毎の騒音レベル経時変化（東北自動車道：村田町）

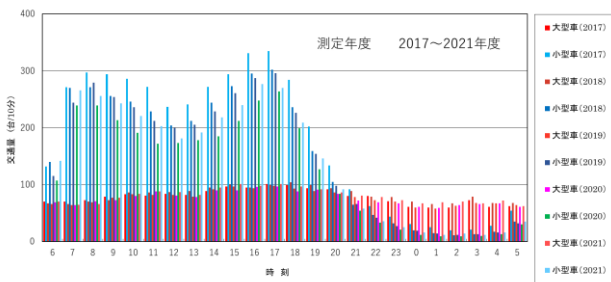


図 4-4 時間毎の車種別交通量（東北自動車道：大崎市）

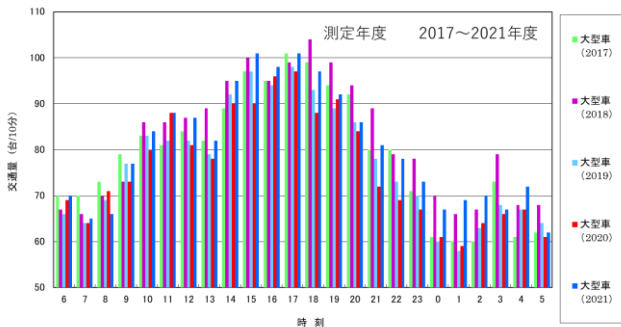


図 4-5 大型車の時間毎の交通量（東北自動車道：大崎市）

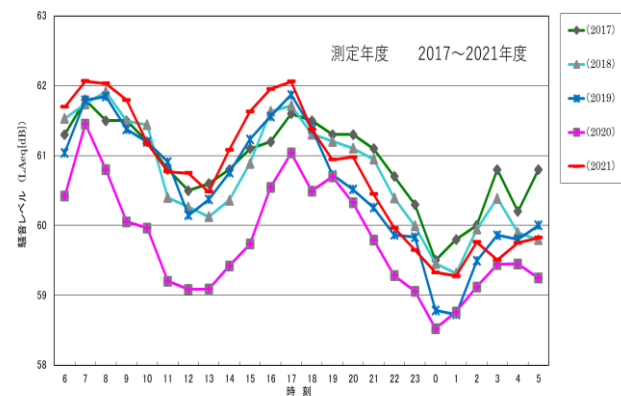


図 4-6 時間毎の騒音レベル経時変化（東北自動車道：大崎市）

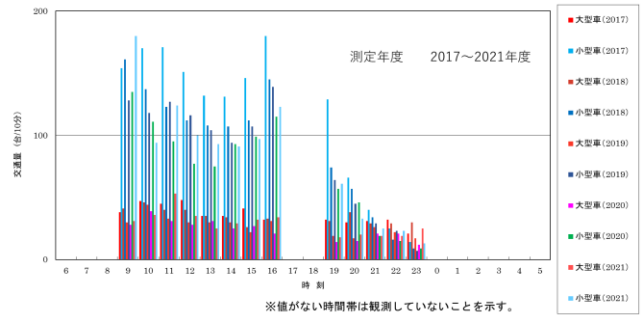


図 4-7 時間毎の車種別交通量（山形自動車道：川崎町）

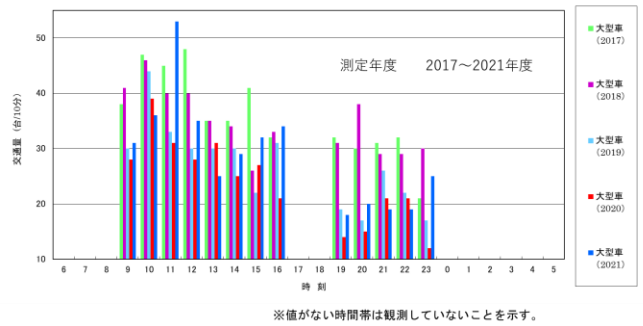


図 4-8 大型車の時間毎の交通量（山形自動車道：川崎町）

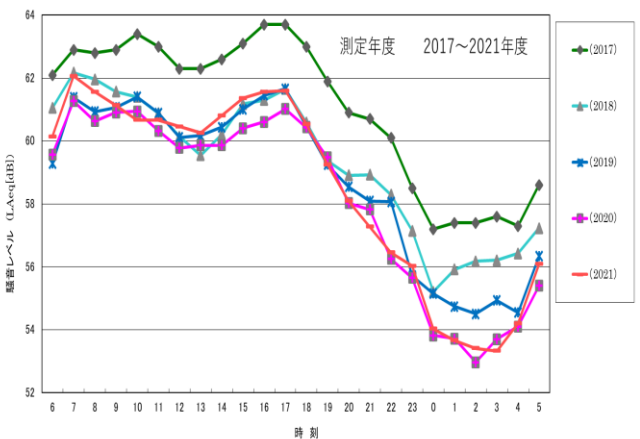


図 4-9 時間毎の騒音レベル経時変化（山形自動車道：川崎町）

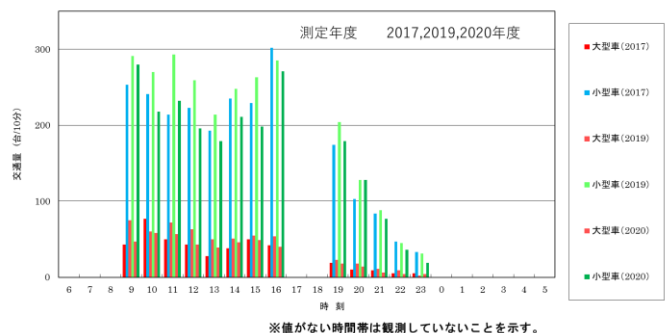


図 4-10 時間毎の車種別交通量（三陸自動車道：利府町）

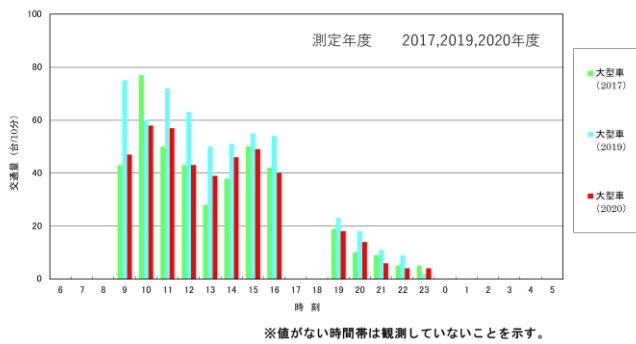


図4-1-1 大型車の時間毎の交通量（三陸自動車道：利府町）

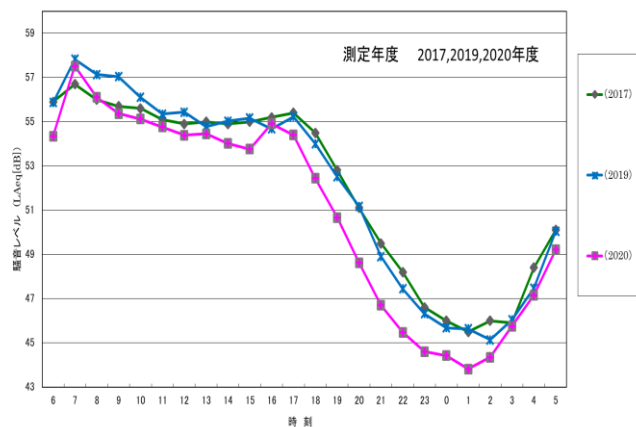


図4-1-2 時間毎の騒音レベル経時変化（三陸自動車道：利府町）

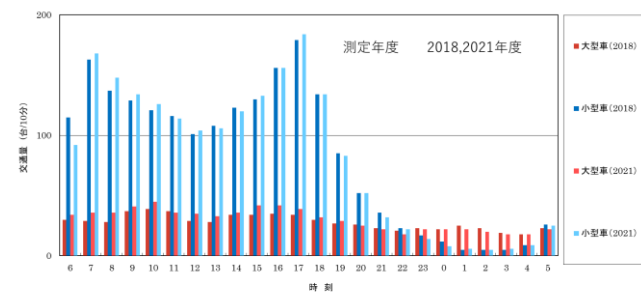


図4-1-3 時間毎の車種別交通量（常磐自動車道：亶理町）

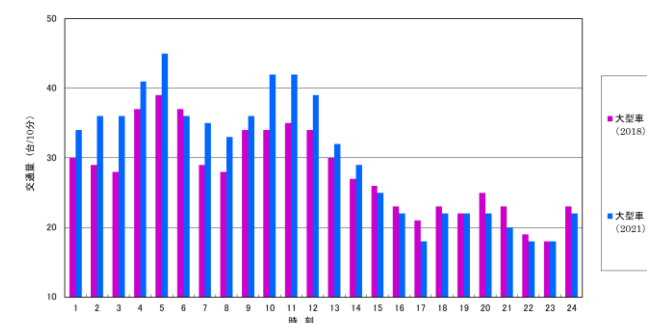


図4-1-4 大型車の時間毎の交通量（常磐自動車道：亶理町）

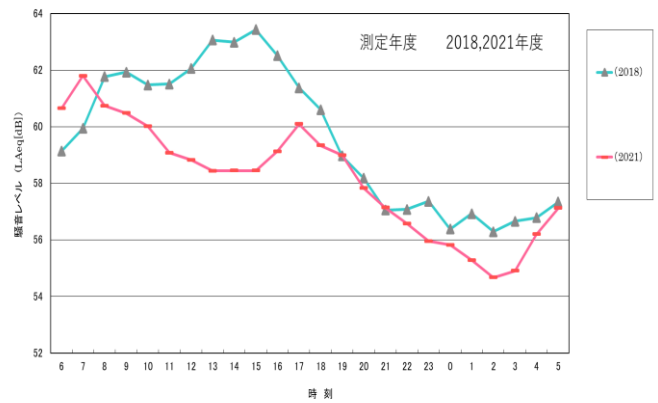


図4-1-5 時間毎の騒音レベル経時変化（常磐自動車道：亶理町）

4 考察

4.1 騒音レベルと交通量の経年変化

東北自動車道では、震災直後の2011年度に交通量が村田町、大崎市とも一時的に増加し、それに伴い騒音レベルも増加している。

山形自動車道（川崎町）では、2014年度以降、交通量に変化が見られないにもかかわらず、騒音レベルは大幅な減少がみられた。これは、2014年に調査地点付近の路面に高機能舗装（排水性舗装）が施されたことが大きな要因である。高機能舗装の機能の効果が経年的に得られていることから、定期的な舗装機能維持工事が継続的に行われていることによるものと考えられる。

三陸自動車道（利府町）では、震災後の2014年度以降、昼間の交通量が顕著に増加しているが、騒音レベルはほぼ横ばいで推移している。これは、2014年度に実施された遮音壁設置の効果と考えられる。

常磐自動車道（亶理町）では、4車線化工事中の2018年度と4車線化後の2021年度の結果を比較すると、交通量については2か年とも11時～14時に小型車の交通量が少なくなるなど、大きな変化は見られなかった。

一方、騒音レベルでは、その時間帯に逆の推移を見せていた。2018年度の測定値は4車線化工事中のものであること、測定数が2か年度分のみと少ないことから、本稿の調査結果から論ずることは難しいため、今後の変化に注意する必要がある。

4.2 直近の5年間での交通量と騒音レベルの変化

全国的に新型コロナウイルス感染症が顕在化した2020年度においては、東北自動車道の村田町の昼間交通量を除き、2019年度に比べ交通量、騒音レベルともに低下したが、翌年度（2021年度）には回復傾向がみられている。背景としてコロナ禍では外出を含む行動制限、宅配等の増加に伴う物流の拡大等、生活様式の変化を反映したものと推察される。また、高速道路料金の深夜割引制度⁵⁾が大型車の夜間の交通量に関係している可能性が考えられる。

5 まとめ

2005年度以降の騒音レベルの経年変化からは、2011年度以降に路面の高機能舗装（排水性舗装）や防音壁設置を施した高速自動車道において、交通量が増加しても騒音レベルの上昇は抑えられていることが明らかとなった。また、コロナ禍前後では、どの地点でも2020年度で低い傾向を示したが、東北自動車道の村田町では夜間でコロナ禍前より高い時間帯も見られた。

2017年度から2021年度までの車種別・時間帯別の交通量では、小型車は昼間の時間帯に多く、夜間は減少していた。一方、大型車については、三陸自動車道を除いて小型車のような時間帯別の大きな変動はみられなかった。

常磐自動車道については、2018年度は4車線化工事中の2車線時のデータであったこと、測定データは2018、

2020年度の2か年度分のみにとどまっていることから、騒音レベル、交通量とも今後の変化を注視する必要がある。

6 参考文献等

- 1) 環境省水・大気環境局自動車環境対策課
自動車騒音常時監視マニュアル（平成27年10月）
- 2) 菊地英男、高橋誠幸：（社）日本騒音制御工学会研究発表会講演論文集、p.37（2003年9月）
- 3) 菊地英男、高橋誠幸、鈴木康民：宮城県保健環境センター年報、第20号、p.103（2002）
- 4) 東日本高速道路株式会社東北支社 記者発表資料
「E6常磐自動車道4車線化事業専用ホームページ」の開設（平成30年11月14日）
- 5) 国土交通省・道路局高速道路課 報道発表資料
高速道路の深夜割引の見直しについて（令和5年1月20日）

公共用水域における PFOS 及び PFOA の調査

Investigation of Perfluorooctanesulfonic acid and Perfluorooctanoic acid in Public Water Areas

下道 翔平 高橋 恵美 後藤 つね子 藤原 成明*1

Syouhei SITAMITI, Emi TAKAHASHI, Tsuneko GOTOU, Shigeaki FUJIWARA

令和 3 年度及び 4 年度に県内の公共用水域におけるペルフルオロオクタンスルホン酸（以下「PFOS」という。）及びペルフルオロオクタン酸（以下「PFOA」という。）の環境実態調査を行った。河川水等、地下水の調査を行い、一部で PFOS 又は PFOA が検出された。

キーワード：公共用水域；PFAS

Key words : public water bodies ; poly and perfluoroalkyl substances

1 はじめに

PFOS 及び PFOA は撥水性と撥油性を併せ持つ特異な性質を有していることから、これまで泡消火薬剤や撥水剤等に広く使用されてきた。しかし、化学的に極めて安定性が高く、水溶性かつ揮発性の物質であるため、環境中に放出された場合には河川等に移行しやすい。また、環境中で分解されにくく、長期的に環境に残留すると考えられている。

両物質とも現在は、残留性有機汚染物質に関するストックホルム条約（POPs 条約）の対象となっており、国際的に製造・使用、輸出入が制限・禁止されている。

日本では、令和 2 年 5 月 28 日付け、「水質汚濁に係る人の健康の保護に関する環境基準等の施行等について（通知）」¹⁾（以下「環境省通知」という。）により、公共用水域等の要監視項目に PFOS 及び PFOA が追加され、指針値（暫定）として PFOS 及び PFOA の合計値 50ng/L が設定された。また、令和 4 年 12 月に水質汚濁防止法施行令の一部を改正する政令が公布され、PFOS・PFOA 及びその塩が水質汚濁防止法に規定する「公共用水域に多量に排出されることにより人の健康若しくは生活環境に係る被害を生ずるおそれがある物質（指定物質）」に追加された。

本稿では、環境省通知による測定方法を参考に、宮城県内（仙台市を除く。）の公共用水域等の PFOS 及び PFOA の存在状況を把握するために実施した調査結果を報告する。

2 方法

2.1 試料採水

採水は令和 3 年度及び 4 年度に実施した。河川水等は、公共用水域環境基準点を中心に 37 地点、地下水は 6 地点で採水した。

2.2 試薬等

PFOS・PFOA 混合標準液は、Wellington Laboratories

社製 L-PFOS (Sodium perfluoro-1-octanesulfonate) 50µg/mL 及び PFOA (Perfluoro-n-octanoic acid) 50µg/mL をメタノールで希釈し、混合標準液 (0.5µg/mL) を調製した。

サロゲート混合標準液には、Wellington Laboratories 社製 M8PFOS (Sodium perfluoro-1-(¹³C₈) octanesulfonate) 50µg/mL 及び M8PFOA (Perfluoro-n-(¹³C₈) octanoic acid) 50µg/mL をメタノールで希釈し、サロゲート混合標準液 (0.01µg/mL) を調製した。

その他：アセトニトリル（関東化学㈱LC/MS 用）、メタノール（関東化学㈱LC/MS 用）、ギ酸（関東化学㈱高速液体クロマトグラフィー用）、酢酸アンモニウム（関東化学㈱）、アンモニア水（関東化学㈱）、塩酸（関東化学㈱）、水酸化ナトリウム（関東化学㈱）

2.3 分析方法

分析フローチャートは図 1 のとおりである。サロゲート混合標準液を 100µL 添加した試料 500mL を、塩酸もしくは水酸化ナトリウム水溶液を加えて pH3~4 に調整し、メタノール 5mL と 0.1%アンモニアメタノール 10mL、メタノール 5mL、超純水 5mL でコンディショニングした固相 (Oasis Wax Plus type (225mg) (Waters㈱製)) にコンセントレーターで 10mL/分通水し、目的物質を保持させた。通水した固相を 10 分間 3,000rpm で遠心脱水後、0.1%アンモニアメタノール 5mL で溶出した。溶出液を窒素吹付で 0.1mL 程度まで濃縮し、50%メタノール水溶液で 1mL に定容後、LC-MS/MS で測定した。

なお、検量線は混合標準液を、50%メタノール水溶液で 0.5µg/L~10µg/L の 6 点で調製し、それらにサロゲート混合標準液を 10µg/L になるように添加して、LC-MS/MS で測定後のピーク面積を用いて作成した。相関係数 (r) はいずれも 0.995 以上の良好な結果であった。

*1 現 中南部下水道事務所

添加回収試験は、混合標準液を試料に 10 μ L 添加し、回収率は PFOS が 95.6~114%、PFOA が 106~117% と良好な結果であった。

LC-MS/MS 条件は、図 2 のとおりである。



図 1 前処理操作手順

LC	1260 Infinity (Agilent)					
MS	QTRAP 4500 (AB Sciex)					
分析カラム	L-Column2 ODS, 2.1 \times 100mm, 3.0 μ m (化学物質評価研究機構)					
カラム温度	40 $^{\circ}$ C					
ギャップカラム	SunShell C18, 2.1 \times 75mm, 2.6 μ m (ChromaNik Tech.)					
注入量	2 μ L					
流速	0.2mL/min					
溶離液	A: 2mM 酢酸アンモニウム, 0.01% 酢酸 B: アセトニトリル					
グラジエント条件	Time (min)	0	24.75	33	33.01	45
	A (%)	95	2	2	95	95
	B (%)	5	98	98	5	5
イオン化法	ESI -IS: -4500 (V), TEM: 400 ($^{\circ}$ C)					
測定モード	MRM (Negative)					
測定イオン (m/z)	定量	確認				
	PFOS	499 > 80	499 > 99			
	PFOA	413 > 369	413 > 169			
	PFOS ¹³ C ₈	507 > 80	507 > 99			
	PFOA ¹³ C ₈	421 > 376	421 > 172			

図 2 LC-MS/MS 条件

2.4 測定結果

河川水等は、37 地点中 4 地点で PFOS または PFOA が検出されたが、その合計値はいずれも指針値 (50ng/L) を下回った。

地下水は、6 地点中 1 地点で令和 3 年度、4 年度ともに PFOS 及び PFOA が検出され、その合計値はいずれも指針値を上回ったが、他の 5 地点では検出されなかった。

なお、指針値を上回った地点は、環境省が令和 2 年度に実施した「有機フッ素化合物全国存在状況調査²⁾³⁾ (以下「環境省調査」という。)) で指針値を上回っていた。測定値を表 1、2 に示す。

表 1 河川水等の測定結果

地点名	PFOS (ng/L)	PFOA (ng/L)	PFOS+PFOA (ng/L)
地点A	<2	2.8	4.8
地点B	4.0	<2	6.0
地点C	2.2	2.3	4.5
地点D	<2	2.0	4.0

※調査結果は有効桁数 2 桁で処理した値を掲載しているため、「PFOS+PFOA」の値は必ずしも「PFOS」及び「PFOA」の結果の合算値とは一致しない

表 2 指針値を上回った地点の測定結果

採水年月	(参考)	令和3年6月	令和4年6月
	環境省調査 令和2年11月		
PFOS (ng/L)	120	43	25
PFOA (ng/L)	670	97	54
PFOS+PFOA (ng/L)	790	140	79

※調査結果は有効桁数 2 桁で処理した値を掲載しているため、「PFOS+PFOA」の値は必ずしも「PFOS」及び「PFOA」の結果の合算値とは一致しない

指針値を上回った地点における、採水時の詳細情報は表 3 のとおりである。

PFOS・PFOA 合計値の濃度は、採水年度間で変動が確認された。また、採水年度間で、臭気の有無等の水質の変化が確認された。

表 3 指針値を上回った地点の採水時情報

採水年月	天気	気温 ($^{\circ}$ C)	水温 ($^{\circ}$ C)	色相	臭気	pH	電気伝導度 (mS/m)	PFOS+PFOA (ng/L)
令和 2 年 11 月	くもり	13.3	17.5	無色	タイヤ臭	6.5	63.9	790
令和 3 年 6 月	くもり	22.4	21.8	無色	無臭	6.8	85.4	140
令和 4 年 6 月	くもり	18.0	15.4	無色	無臭	7.2	76.3	79

3 まとめ

今回の調査において、河川水等は全ての調査地点で指針値を下回った。地下水は 1 地点を除く調査地点で指針値を下回った。指針値を上回った地点における測定結果 (表 2) について、減少傾向がみられたが、採水時期が環境省調査は冬季で、本調査は春季であり、季節の変化による要因も考えられた。

4 参考文献

- 1) 水質汚濁に係る人の健康の保護に関する環境基準等の施行等について (通知) 令和 2 年 5 月 28 日付け、環水大発第 2005281 号環水大土発第 2005282 号
- 2) 令和元年度 PFOS 及び PFOA 全国存在状況把握調査の結果について 令和 2 年 6 月 11 日 環境省 HP (<https://www.env.go.jp/press/108091.html>)
- 3) 令和 2 年度有機フッ素化合物全国存在状況把握調査の結果について 令和 3 年 6 月 22 日 環境省 HP (<https://www.env.go.jp/press/109708.html>)