

(2) 調査・事例

| | |
|--|----|
| 1) 大分県におけるパレコウイルスの検出状況（2008～2016年） | 37 |
| 2) ヒト下痢症からのアルコバクターの検出 | 39 |
| 3) H血清型が二つあるように思えた大腸菌株 | 43 |
| 4) 大分県における微小粒子状物質成分の調査（2016年度） | 45 |

大分県におけるパレコウイルスの検出状況（2008～2016年）

本田 颯子、加藤 聖紀、林 徹、成松 浩志

Human Parechovirus Infections, 2008 to 2016, Oita

Akiko Honda, Miki Kato, Toru Hayashi, Hiroshi Narimatsu

Key Words：ヒトパレコウイルス Human Parechovirus、感染症発生動向調査 surveillance

要 旨

2008～2016年に、大分県感染症発生動向調査事業により採取された1217検体について、PCR法及び細胞培養法によってヒトパレコウイルス（HPeV）の検出を試みた結果、116件（9.5%）からHPeVが検出された。内訳は、HPeV-3が68件（58.6%）、HPeV-1が42件（36.2%）、HPeV-6が6件（5.2%）であった。材料別では咽頭ぬぐい液からの検出（76）が多く、次いで便（29）、髄液（11）であった。HPeV-1は感染性胃腸炎や下気道炎からの検出数が多く、HPeV-3は多種多様な診断名の検体から検出されたが、発疹症からの検出数が多かった。髄液（脳炎・脳症や無菌性髄膜炎）から検出されたのはHPeV-3だけで、神経系疾患との関連の可能性に注意が必要と考える。

はじめに

ヒトパレコウイルス（HPeV）は、1999年にピコルナウイルス科エンテロウイルス属から独立し、ピコルナウイルス科パレコウイルス属に属する。近年、全国的に2、3年毎にヒトパレコウイルス3型（HPeV-3）が流行しており¹⁾、全国的にHPeV-3の検出数が増加した2011年、2014年、2016年には、大分県においても同様の傾向が見られた。一方、全国的には検出数の少なかった2010年に大分県ではHPeV-1の検出数が多く、全国的な流行とは異なる傾向も見られた。

2008年から2016年の大分県におけるヒトパレコウイルスの検出状況について報告する。

材料および方法

感染症発生動向調査において、2008年から2016年にかけて病原体定点医療機関で採取された咽頭ぬぐい液、便、髄液を6種の細胞（HEp-2、RD18S、CaCo 2、MARC145、Vero9013、VeroE6）に接種し、1週間を1代として3代まで継代して細胞変性効果（CPE）を観察した。検体から直接またはCPEが出現したものについて、核酸増幅検査を実施し、得ら

れた増幅産物について、ダイレクトシークエンスにより塩基配列を決定した後、BLASTによる相同性検索を行った。

結果および考察

パレコウイルス感染症が疑われた1217検体を検査した結果、ヒトパレコウイルスが116件（9.5%）検出された。内訳は、HPeV-3が68件（58.6%）、HPeV-1が42件（36.2%）、HPeV-6が6件（5.2%）であった。年別の検出状況を見ると（表1）、HPeV-3は全国と同様な流行状況であったが、HPeV-1は2010年に多くなっており、特定の集団発生例もなかったことから、大分県内で地域流行したものと考えられる。

検体別の検出状況（表2）をみると、検査材料別の内訳では、咽頭ぬぐい液からの検出（76）が多く、次いで便（29）、髄液（11）の順であったが、検出率では便（12.3%）、咽頭ぬぐい液（9.6%）、髄液（6.9%）の順であった。なお、髄液から検出されたのはHPeV-3のみであった。

臨床診断名別の内訳（表2）では、発疹症（25）が多く、次いで感染性胃腸炎（17）、かぜ症候群（16）、下気道炎（11）で、手足口病（3）やヘル

パンギーナ（4）患者からの検出もあった。各臨床診断名別の検出率は、ほぼ10%前後であったが、ヘルパンギーナだけは57.1%（4/7）と高率であった。HPeV-1は、感染性胃腸炎や下気道炎からの検出数がやや多かった。HPeV-3は、多種多様な診断名の検体から検出されたが、発疹症からの検出数がやや多かった。脳炎・脳症（9）、無菌性髄膜炎（7）の検体からは、HPeV-3のみが検出された。

症状別に見ると、発熱（77%）が最も多く、発疹（27%）、胃腸炎（21%）が多かった。

年齢別では、2歳未満の乳幼児が75%を占めたが、2016年の流行時には成人における筋痛症患者も認められた。

細胞培養では116件中33件（HPeV-1 30件、HPeV-3 2件、HPeV-6 1件）を分離し、30件はCaCo2細胞で分離された。

また、ヒトパレコウイルスが検出された116検体中28検体において、ライノウイルス（8件）やコクサッキーウイルスA6型（3件）など、ほかのウイルスも同時に検出された。

2011年のHPeV-3の流行時には、7割が発疹症の患者であったのに対し、2014年以降は、不明熱（乳

児発熱）患者が増加し、無菌性髄膜炎や急性脳炎・脳症の患者からの検出も見られるようになった。

ヒトパレコウイルス感染症は、同じピコルナウイルス科に属するエンテロウイルスによる感染症と同様に不顕性感染の割合が高いと推測され、比較的症状の軽い小児の呼吸器系疾患、感染性胃腸炎の病原ウイルスである。しかし、成人における筋痛症の集団発生も報告²⁾されており、重大な中枢神経疾患の病原因子となる可能性があることから、今後も注意が必要と考える。

参 考 文 献

- 1) 相澤悠太, 齋藤昭彦: 総説2 ヒトパレコウイルス, ウイルス, 65 (1), 17-26, 2015
- 2) K.Mizuta, M.Kuroda, M.Kurimura, Y.Yahata, T.Sekizuka, Y.Aoki, T.Ikeda, C.Abiko, M.Noda, H. Kimura, T. Mizutani, T. Kato, T. Kawanami, T. Ahiko : Epidemic Myalgia in Adults Associated with Human Parechovirus Type3 Infection, Yamagata, Japan, 2008, Emerging Infectious Diseases, 18, 1787-1793, 2012

表1 年別ヒトパレコウイルス検出状況

| 年 | 2008 | 2009 | 2010 | 2011 | 2012 | 2013 | 2014 | 2015 | 2016 | 計 |
|--------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|
| 検体数 | 5 | 20 | 68 | 49 | 110 | 218 | 245 | 225 | 277 | 1217 |
| HPeV-1 | 4 | 4 | 11 | | 6 | 4 | 9 | | 4 | 42 |
| HPeV-3 | 1 | | 1 | 14 | | | 15 | | 37 | 68 |
| HPeV-6 | | 2 | 1 | 1 | 1 | | | 1 | | 6 |
| 検出数計 | 5 | 6 | 13 | 15 | 7 | 4 | 24 | 1 | 41 | 116 |

表2 検体別ヒトパレコウイルス検出状況

| | 検体数 | 型別検出数 | | | 計 |
|--------------|---------|--------|--------|--------|-----|
| | | HPeV-1 | HPeV-3 | HPeV-6 | |
| 延患者数 | 1217 | 42 | 68 | 6 | 116 |
| 材料別 | 咽頭ぬぐい液 | 25 | 49 | 2 | 76 |
| 内訳 | 便 | 17 | 8 | 4 | 29 |
| | 髄液 | | 11 | | 11 |
| | その他 | 28 | | | 0 |
| 臨床診断 名別内訳 | 発疹症 | 6 | 18 | 1 | 25 |
| | 下気道炎 | 9 | 2 | | 11 |
| | 感染性胃腸炎 | 10 | 3 | 4 | 17 |
| | かぜ症候群 | 6 | 9 | 1 | 16 |
| | 脳炎・脳症 | | 9 | | 9 |
| | 無菌性髄膜炎 | | 7 | | 7 |
| | 手足口病 | | 3 | | 3 |
| | ヘルパンギーナ | 1 | 3 | | 4 |
| | その他 | 10 | 14 | | 24 |

ヒト下痢症からのアルコバクターの検出

成松 浩志、一ノ瀬 和也^{*1}、佐々木 麻里、緒方 喜久代^{*2}

Incidence Rate of *Arcobacter* Detection from Humans with Diarrhea in Oita Prefecture

Hiroshi Narimatsu, Kazuya Ichinose, Mari Sasaki, Kikuyo Ogata

Key words : アルコバクター *Arcobacter*, ヒト Human, 下痢 Diarrhea

要 旨

新興人獣共通感染症起因菌であるアルコバクター属菌の大分県内の下痢症患者における検出頻度を調査した。2011年4月から2016年3月の間、下痢症患者便240検体（散発例172検体、集団発生17事例68検体）を調べた結果、2013年5月の1集団事例2検体中1検体から*Arcobacter butzleri*が検出されたが、散発下痢症からは不検出であった。アルコバクター検出率は、0.4%（1/240）で、少なくとも大分県内でのヒト下痢症からの検出頻度は低率であることが示唆された。

はじめに

アルコバクターは、1977年に牛の流産胎仔から初めて分離され、その後、1992年にイタリアで発生した初めてのヒトでの集団胃腸炎(主に腹痛)例が報告¹⁾されてから新しい人獣共通感染症起因菌として認識されるようになり²⁻⁴⁾、国内でも食肉や環境中から高頻度に検出されることが多数報告⁵⁻¹²⁾されている。日本で最初に確認されたヒトへの感染例としては、2006年に敗血症患者の血液から*Arcobacter butzleri*の分離報告¹³⁾がある。その後、国内におけるヒトからの検出報告はほとんどない。これは、我が国での病原体としての認識が低く日常的に検査されていないためか、その他の要因によるものかは追及されていない。そこで、当所の通常の下痢症検査の項目にアルコバクターを加え、その検出頻度を調査してみることにした。

材料および方法

2011年4月から2016年3月の間、大分県感染症発生動向調査事業により定点医療機関で採取された散発下痢症患者便172検体及び食中毒が疑われて調査した集団発生17事例の患者便68検体の計240検体について、通常の下痢症起因菌の他にアルコバクター

の検索を加えて検査を行った。検査法については、下痢便を10%にPBS(-)に懸濁して試料乳剤とし、そのパスツールピペットで1滴分をmCCDAに画線塗抹し、30°Cで2日間好気培養後した。mCCDAに発育した灰白色湿潤な集落について、オキシダーゼ陽性でグラム陰性ラセン菌であれば、馬血液寒天で純培養後、DNAを抽出してPCR法により同定した。

mCCDA : *Campylobacter* Blood-Free Selective Medium(OXOID, CMO 0739)にCATサプリメント (OXOID, SR174) を添加して調製した。

PCR法 : *Arcobacter butzleri*, *A. cryaerophilus* 及び *A. skirrowii* の鑑別は Pentimalliら¹⁴⁾の方法で、*A. cryaerophilus* 1Aと同1Bの鑑別はKabeyaら¹⁵⁾の方法で行った。

結 果

散発下痢症172検体からアルコバクターは不検出であったが、2013年5月の1集団事例2検体中の1検体から*Arcobacter butzleri*が検出された(詳細は下記参考事例を参照)。他の集団発生16事例66検体からアルコバクターは不検出であった。なお、本検出事例は食中毒事件ではなく、原因不明の有症苦情として処理された。

下痢症全体のアルコバクター検出率は0.4%（1/240）、散発下痢症に限ると、0%（0/172）であっ

*1 : 大分県立病院、*2 : 大分県薬剤師会検査センター

た。

考 察

西川らは、小児散発下痢症の0.2% (2/1054) から*A.butzleri*が検出されたと報告している(食品微生物学会学術総会、2011、東京)。我々の結果も、これまでのところ1検体しか検出されておらず、全体の検出率は0.4%と低率で、散発下痢症に限ると0%であった。これらから、アルコバクターが日常的に検査されていたとしても、少なくとも大分県内ではヒト下痢症からの検出頻度そのものが低率であることが示唆された。しかし、1例とはいえ県内のヒト下痢症検体からアルコバクターが検出されたことから、今後の食中毒事件の調査で通常の下痢症起因菌等が検出されない場合は、アルコバクターの検査も考慮する必要はある。

一方、動物、家畜及び食肉や環境中から高頻度に検出される割に下痢症検体からの検出が低率であることの理由は不明である。仮にヒトへの感染性や病原性で強いタイプと弱いタイプがあるとすれば、国内で食肉や環境中からよく検出されているアルコバクター株のほとんどは弱いタイプに属する可能性も考えられる。アルコバクターの病原性のメカニズムと病原因子は研究途上であり、その解明が待たれるが、将来的には病原因子をマーカーにした疫学的な調査研究が望まれる。

参 考 文 献

- 1) Vandamme P, Pugina P, Benzi G, Van Etterijck R, Vlaes L, Kersters K, Butzler J.P., Lior H., Lauwers S.: Outbreak of recurrent abdominal cramps associated with *Arcobacter butzleri* in an Italian school. *Journal of Clinical Microbiology*, 30(9), 2335-2337 (1992)
- 2) 森田幸雄: アルコバクター. *食品衛生学雑誌*, 44(4), J-293-294 (2003)
- 3) Vandenberg O., Dediste A., Houf K., Ibeqwem S., Souayah H., Cadranel S., Douat N., Zissis G., Butzler J.P., and Vandamme P.: *Arcobacter* species in humans. *Emerging Infectious Diseases*, 10(10), 1863-1867 (2004).
- 4) Snelling WJ., Matsuda M., Moore J.E., Dooley J. S.: Under the microscope: *Arcobacter*. *Letters in Applied Microbiology*, 42(1), 7-14 (2006)
- 5) 丸山総一, 星みのり, 森田幸雄, 壁谷英則, 勝部泰次: *Arcobacter butzleri*と*A.cryaerophilus*の分離・同定法の検討ならびに鶏肉の汚染状況. *日本獣医師会雑誌*, 54(1), 35-40 (2001)
- 6) Kabeya H., Maruyama S., Morita Y., Kubo M., Yamamoto K., Arai S., Izumi T., Kobayashi Y., Katsube Y., Mikami T.: Distribution of *Arcobacter* species among livestock in Japan. *Vet Microbiol.* 93(2), 153-158 (2003)
- 7) 壁谷英則, 丸山総一, 山城聖子, 佐多 辰, 黒木俊郎, 森田幸雄, 見上 彪: 横浜市のビル内で捕獲されたイエネズミにおける*Arcobacter*および*Campylobacter*の保菌状況. *日本獣医師会雑誌*, 56(12), 819-824 (2003)
- 8) Kabeya H., Maruyama S., Morita Y., Ohsuga T., Ozawa S., Kobayashi Y., Abe M., Katsube Y., Mikami T.: Prevalence of *Arcobacter* species in retail meats and antimicrobial susceptibility of the isolates in Japan. *Int. J. Food Microbiol.* 90(3), 303-308 (2004)
- 9) 森田幸雄, 壁谷英則, 石岡大成, 坂脇廣美, 長井章, 鈴木宣夫, 中林良雄, 丸山総一: 家畜および市販ひき肉における*Arcobacter*、*Campylobacter*、*Salmonella*の分布状況. *日本獣医師会雑誌*, 57(6), 393-397 (2004)
- 10) 森田幸雄, 壁谷英則, 田村幸生, 阪脇廣美, 藤田雅弘, 石岡大成, 星野利得, 丸山総一: 群馬県の河川水における*Arcobacter*汚染状況と大腸菌群数との関連性. *日本獣医師会雑誌*, 58(6), 415-417 (2005)
- 11) 高原力也, 塩野雅孝, 松田錦弥, 松本寿男, 岸秀樹, 星野利得, 石岡大成, 森田幸雄: 収容犬のカンピロバクター, アルコバクター, サルモネラ保菌状況調査. *日本獣医師会雑誌*, 61(9), 725-728 (2008)
- 12) 重村久美子, 松田正法, 麻生嶋七美, 徳島智子, 吉田英弘, 本田己喜子, 樋脇 弘: 市販生食用鶏肉のカンピロバクター, サルモネラ, リステリア・モノサイトゲネスおよびアルコバクター汚染と推定大腸菌数の検討. *日本食品微生物学会雑誌*, 31(3), 171-175 (2014)
- 13) 依田清江, 内村眞佐子, 村田正太, 土岐朋子: 敗血症の起因菌として*Arcobacter butzleri* を分離・同定した1例—日本で初めてのヒトからの*Arcobacter butzleri* 検出例. *病原体検出情報*(

- IASR),27(1),15-16 (2006)
- 14) Pentimalli D., Pegeis N., Garcia T., Martin R., González I. : Specific PCR detection of *Arcobacter butzleri*, *Arcobacter cryaerophilus*, *Arcobacter skirrowii*, and *Arcobacter cibarius* in Chicken Meat. *J. Food Prot.*, 72, 1491-1495 (2009)
- 15) Kabeya H., Kobayashi Y., Maruyama S., Mikami T. : One-step polymerase chain reaction-based typing of *Arcobacter* species. *Int. J. Food Microbiol.*, 81, 163-168 (2003)

参考：アルコバクター検出事例

探知：2013年5月7日、大分県内の小児科医院の医師から管轄の保健所への連絡があり、中学生3名が、5月6日から嘔吐、下痢、腹痛を呈し、共通点として、3名とも5月3日から5日にかけて部活動関係の大会に参加していたとのことであった。

疫学調査結果：大会参加団体中、下痢症等が確認さ

れたのは上記3名の所属する中学校の団体のみであった。当該中学校からの大会参加者は、生徒12名（男5名、女7名）と引率者3名で、その内、有症者は生徒8名（男2名、女6名）であった。

症状は、下痢（4名）、腹痛（6名）、嘔気（6名）、嘔吐（4名）であった。

有症者（患者）の経日的状況を表1に示す。初発は5月3日19時で、患者の共通食は5月3日18時過ぎの宿泊所での夕食のみであった。同宿泊所を利用した他校の生徒には発症者なかった。ただし、5月3日夜、宿泊所敷地内の体育館近くのトイレで嘔吐した他校の生徒が1人いたとの聞き取り情報もあった。当該中学校の欠席状況には著変なく、5月1日から9日の間に嘔吐・下痢等による欠席（本事例患者を除く）はなかった。また、当該中学校生徒と一緒に練習や食事をした他の3団体に有症者はいなかった。

表1 発症者の経日的状況 (2013年5月3日~5月10日)

| 患者 | | | ← 大会開催中 → 休校日 | | | | | | | |
|-----|----|----|-----------------------------|-----------------|----|------------------|--------------------------------|--------------------|--------------|--------------|
| I D | 年齢 | 性別 | 3日 | 4日 | 5日 | 6日 | 7日 | 8日 | 9日 | 10日 |
| A | 14 | 女 | 19:00腹痛, 下痢2回 | | | | | 検査 下痢便 | | |
| B | 14 | 女 | 19:00 腹痛, 下痢6回, 嘔気 | | | | | | | |
| C | 14 | 女 | | 19:30 腹痛 | | | | 検査 普通便 | | |
| D | 13 | 女 | | 19:00 腹痛, 嘔気 | | | | | | |
| E | 13 | 女 | | | | 嘔吐, 下痢, 腹痛、発熱 | 受診・早退, 嘔吐, 倦怠感, 38.1℃ | 欠席, 夕方時は 無症状 | | |
| F | 13 | 女 | | | | | 受診・早退 嘔吐 | 欠席, 夕方時は 無症状 | 欠席, 用心のため | 欠席, 用心のため |
| G | 14 | 男 | | | | 腹痛、下痢 | 受診・欠席 | | | |
| H | 中3 | 男 | | | | 嘔吐 | 欠席, 症状? | | | |

検査結果：検体は、5月8日採取の患者便2検体（表1のA及びC）で、他の患者からは検体提供の協力が得られなかった。2検体からノロウイルス・サポウイルス・ロタウイルスは不検出で、また、病原性大腸菌、赤痢菌、サルモネラ、カンピロバクター、病原ビブリオ属菌、黄色ブドウ球菌、セレウス菌、エルシニアも不検出であったが、*Arcobacter butzleri* が1検体（患者A）から検出された。

事例の結論：共通食が5月3日18時過ぎの夕食で、初発が同日19時と極めて潜伏時間が短いこと及び有症者が1団体に偏っていることから食中毒の可能性は低い。また、当該中学校でなんらかの感染症が広がっていた徴候は認められなかった。アルコバクターが検出された1生徒については、この菌が原因だった可能性もあるが、他の有症者の原因物質とまでは断定できなかった。

H血清型が二つあるように思えた大腸菌株

成松 浩志, 佐々木 麻里, 緒方 喜久代*

An *Escherichia coli* strain that seemed to have two H serotypes

Hiroshi Narimatsu, Mari Sasaki, Kikuyo Ogata

Key Words : 大腸菌 *Escherichia coli*, H血清型 H serotype, H19

要 旨

大腸菌のO血清型ともにH血清型も基本的かつ重要な情報である。今回、我々の保有する大腸菌O153株が、試験管内凝集反応ではH19血清に凝集しながら、H21の鞭毛遺伝子を保有しているとの情報を得て、H血清型に迷うことになった。そこで、通常よりも運動性強化回数を増やして、再試験したところ、H21血清で凝集したが、H19血清でも弱く凝集した。運動性抑制試験を試みたところ、H21血清で運動が抑制されたが、H19血清では抑制されなかったため、H21と決定した。

はじめに

腸管出血性大腸菌等の検査や疫学調査において、大腸菌の菌体抗原型（O血清型）とともに鞭毛抗原型（H血清型）は、基本的で重要な情報の一つである。H血清型が異なれば通常は別の菌株と判断される。今回、ある大腸菌でH血清型が二つあるように思えた事例に遭遇し、判定に苦慮したので、その経験を報告する。

材料および方法

被験菌株は、当所で健康者便から分離された大腸菌H74TB4株であり、*eae*, *bfpA*, *astA* 遺伝子を保有する。血清型は、O153 : H19と判定されていた。その後、菌株の分与先からH21の遺伝子を保有するとの情報を得た。

H血清型別法：病原性大腸菌免疫血清「生研」2号セット（デンカ生研）を用い、添付取扱説明書に従った。運動性増強用にはクレイギー管を入れたSIM半流動培地（栄研）を用い、増菌用液体培地にはBrain Heart Infusion培地（BHI）（栄研）またはHeart Infusion培地（HI）（栄研）を用いた。

運動抑制試験：3 mlのSIMに対して0.1mlの上記H免疫血清を添加して固め、クレイギー管を立て

*：大分県薬剤師会検査センター

た。クレイギー管内部のSIM表層部に普通寒天培地（栄研）上に培養した被験菌株を接種して、36°Cで24~48時間培養し、運動の抑制を観察した。運動が抑制されていたら、当該H血清型と判定した。

結 果

菌株を再分離して、O血清型や生化学的性状、保有遺伝子を調べてコンタミがないことを確認した。H血清型別については、クレイギー管を3回通過させて運動性を強化してBHIにて36°C一夜培養後に再検査したが、結果はH19であった。BHIを30°Cで培養しても結果は同じであった。増菌培地をHIに換えてもH19血清に凝集したが、H21血清にも凝集するコロニーが出現した（1/4）。そこで5回通過菌について検査したところ、ようやくH21血清で凝集したが、H19血清にも弱く凝集した。運動性抑制試験は、H2、H6、H19及びH21血清について実施したところ、H21血清でのみ運動が抑制された。

考 察

H血清型別では、クレイギー管を3回通過させて運動性を増強した菌で強い凝集反応が認められれば通常その結果を採用するため、H19と判定される。

たまたまH21遺伝子の情報を得て、5回通過菌を用いたのでH21という結果となった。一方、運動抑制試験の結果からは、H21鞭毛で半流動培地中を運動するものと考えられた。

しかし、なにがH19血清と強く反応したのかという疑問は残った。大腸菌の鞭毛は単相性とされているが、大腸菌O148の一部の株では二相性であることが発見されている。二相性のO148株は、培養温度によって発現する鞭毛抗原が異なり、37°CではH40とH53が、30°CではH53のみ作動するとのことで、*fliC40*と*flkA53*遺伝子を保有し、*fliC*の発現調節遺伝子は*flkA53*領域に存在すると報告¹⁾されている。今回の菌株は、運動性抑制試験の結果、H21鞭毛を有することは明らかとなったが、H19遺伝子の有無は不明であり、液体培地中での増殖時に不完全

な（あるいは機能しない）H19鞭毛抗原が部分的に発現する可能性があるのかもしれない。この件については、今後、検討してみたい。

H血清型は、試験管内凝集反応による決定が標準であるが、実際の検査にあたり、大腸菌の株によっては明瞭な反応が得られないことも少なくない。そのような場合は、補助的に鞭毛遺伝子を調べるという方法もあるが、運動性抑制試験を試してみることも簡便で有用と考える。

参 考 文 献

- 1) Ratiner Y.A. : Temperature-dependent flagella antigen variation in *Escherichia coli*. *Res Microbiol.*, 150(7), 457-463 (1999)

大分県における微小粒子状物質成分の調査(2016年度)

松田 貴志、伊賀上 美紗、河野 公亮、伊東 矢顕、岡本 英子*1、長野 真紀*2、大森 由紀

Chemical Composition of PM2.5 in Oita Prefecture

Takashi Matsuda, Fusa Igagami, Kosuke Kawano, Naoaki Ito, Eiko Okamoto,
Maki Nagano, Yuki Omori

Key Words : 微小粒子状物質 PM2.5, 成分組成 Chemical Composition,
大気汚染常時監視 Air Pollution Monitoring

要 旨

微小粒子状物質（以下「PM2.5」という。）の発生源の推定を目的として、2015年度に引き続いて2016年度も県内の2地点でPM2.5の質量濃度、イオン成分、無機成分及び炭素成分を調査し、発生源に関する情報を収集した。NO₃⁻/SO₄²⁻比を用いた解析から、由布よりも日田の方が越境汚染と比較して自動車の排気ガス等に代表される都市大気汚染の影響が大きかったと推察される。常時監視測定局で測定したガス成分との相関解析から、夏季において昼間の光化学オキシダント濃度とPM2.5の質量濃度に強い相関がみられた。炭素成分の解析結果から、日田においては低温元素状炭素の濃度が高く、バイオマス燃焼の影響が推察された。由布における近隣工事の影響について解析したところ、2016年度の調査結果と比較して、2015年度の調査結果は、土壌由来の無機元素が高濃度となっていたことがわかった。

1 目的

大分県において環境基準の超過等、高濃度事例が発生したPM2.5について、発生源対策の一助とするため、大気常時監視測定データ、成分分析結果等を複合的に活用し、発生源を推定することを目的とした。

PM2.5の成分を分析することで、PM2.5の発生源に関する情報を得ることができ、発生源の推定につながることを期待できる。発生源を推定できれば、発生源への対策を取ることで、PM2.5による県民の健康被害の未然防止に役立てることができる。また、越境汚染の指標となる成分を評価することで、PM2.5の濃度に対する越境汚染の寄与を評価することも可能と考えられる。前回（2015年度）の報告¹⁾に引き続き、2016年度の調査結果について報告する。

2 方法

大気試料のサンプリング及び分析は、環境省が定める「微小粒子状物質（PM2.5）の成分分析ガイドライン」²⁾及び「大気中微小粒子状物質（PM2.5）成分測定マニュアル」³⁾に従って実施した。サンプリング地点は、経年的な変化を調査するための固定局として中部保健所由布保健部敷地内（由布市庄内町柿原337-2、以下「由布」という。）、県内全域の状況を数年ごとに移動して調査するための移動局として西部保健所屋上（日田市田島2-2-5、以下「日田」という。）とした。

サンプリング期間を表1に示す。全国統一日程とし、環境省が示したコア期間をすべて含む14日間にわたって、1試料につき23時間30分かけて大気をろ紙上に吸引捕集した。吸引流量は30L/minとした。

測定成分は、質量濃度、イオン成分、無機元素及び炭素成分とした。測定方法と測定に使用したろ紙の種類は表2のとおりとした。

表1 サンプリング期間

| 地点 | 年度 | 春季 | 夏季 | 秋季 | 冬季 |
|----|------|----------|--------------------|-------------------------------------|--------------------------|
| 由布 | 2016 | 5/7~5/20 | 7/23~7/31, 8/1~8/5 | 10/22~10/31, 11/1, 11/2, 11/5, 11/6 | 1/24~1/29, 1/31, 2/1~2/7 |
| 日田 | 同上 | 同上 | 同上 | 同上 | 1/24~1/31, 2/1~2/6 |

*1: 大分県生活環境部環境保全課,*2: 大分県立病院薬剤部

表2 測定成分ごとの測定法とろ紙の種類

| 測定成分 | 測定法 | ろ紙の種類 |
|--|--------------------|-------|
| 質量濃度 | 秤量法 | PTFE製 |
| イオン成分 (Cl ⁻ , NO ₃ ⁻ , SO ₄ ²⁻ , Na ⁺ , NH ₄ ⁺ , K ⁺ , Mg ²⁺ , Ca ²⁺) | イオンクロマトグラフ法 | 石英製 |
| 無機元素 (Na, Al, K, Ca, Sc, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, As, Se, Rb, Mo, Sb, Cs, Ba, La, Ce, Sm, Hf, W, Ta, Th, Pb, Cd) | 酸分解/ICP-MS法 | PTFE製 |
| 炭素成分(有機炭素(OC), 元素炭素(EC)) | サーマルオプテカル・リフレクタンス法 | 石英製 |

3 結果

(1) 質量濃度の推移

図1に調査地点ごとの常時監視測定局における自動測定器による自動測定、PTFE製ろ紙の秤量及び測定成分の積算によって求めた質量濃度の測定結果を示す。秤量法による質量濃度は、自動測定器の質量濃度とほぼ同じ経時変化をしていた。

図2に自動測定器による自動測定によって求めた質量濃度と秤量法によって求めた質量濃度の相関関係を示す。相関係数が日田では0.95、由布では0.93と、両地点ともに強い相関が認められた。

(2) 平均成分濃度

図3に調査地点ごとの2016年度の平均成分濃度と各成分の内訳を示す。平均成分濃度の合計値(μg/m³)は日田が17.9、由布が15.0であり、日田の方が成分濃度の合計値が高かった。

(3) 平均成分組成

図4に、各調査地点における平均成分組成を示す。両地点とも、有機炭素及び硫酸イオンの割合が大きくなった。また、両地点とも、イオン成分が約20~30%、炭素成分が約20~30%と成分の大部分を占め、無機元素は約2~3%と微量であった。

(4) 調査期間中の成分濃度の推移

図5に調査期間中の成分濃度の24時間ごとの推移を示す。最高濃度は、日田が2016年5月27日から同年同月28日にかけてサンプリングした試料で52μg/m³、由布が2016年5月13日から同年同月14日にかけてサンプリングした試料で38μg/m³であった。

(5) 質量濃度と各成分の相関

表3に秤量質量濃度(PTFE)とイオン成分及び炭素成分濃度の相関係数を示す。硫酸イオン、アンモニウムイオン及び元素炭素と質量濃度の相関係数が特に高くなり、これらの成分は、日田、由布地域の質量濃度に大きな影響を与える要因の可能性が示唆された。また、ナトリウムイオンについては、

両地点ともに質量濃度との相関が弱かった。

(6) 濃縮係数(EF値)による人為的汚染の評価

PM2.5の主な発生源の一つと考えられる土壌とその他の人為的な発生源の影響を評価するため、濃縮係数を用いて解析を行った。濃縮係数の計算方法については、既報に示している^{1,4)}。地殻の平均組成の値は、Maclennan(2001)を用いた⁵⁾。図6に元素ごとの濃縮係数の年平均値を示す。日田、由布ともに、As、Cd及びSbが高い値を示した。これらの元素については、土壌以外の人為的な発生源の存在が推察された。As、Cdは、廃棄物焼却由来が推察される。また、Sbについては、プラスチック製品等に難燃剤として含まれている場合の廃棄物焼却や自動車のブレーキパッドに添加された難燃剤に由来するブレーキ粉じんの影響が考えられた⁶⁾。

(7) 無機元素濃度比による人為的汚染の評価

濃縮係数と比較して気象条件等に左右されることの少ない指標として、無機元素濃度比を用いて解析を行った⁷⁾。Pb/Zn比は石炭燃焼の、V/Mnは石油燃焼の指標とされており、全浮遊粒子状物質(TSP: Total Suspended Particulate)中のPb/Zn比は、国内起源の場合は0.2~0.3程度、大陸起源の場合0.5~0.6程度と推定されている。また、地殻中のV/Mn比は0.16であるが、石油燃焼によるVの排出により高くなるとされている⁷⁾。図7にPb、Zn濃度及びPb/Zn比、図8にV、Mn濃度及びV/Mn比の経日変化を示す。

Pb/Zn比が0.5を超えたのは、日田では、2016年10月29日、2017年1月28日、2017年2月5日及び2017年2月7日、由布では、2016年5月16日、2016年7月24日、2016年10月23日、2016年10月27日、2016年10月28日、2016年10月29日、2017年1月27日、2017年1月30日、2017年2月4日、2017年2月5日及び2017年2月6日に採取を開始した試料であった。Pb/Zn比の最高値は、日田が2016年10月29日に採取を

開始した試料で0.69、由布が2016年7月24日に採取を開始した試料で0.92であった。

V/Mn比の平均値は、日田では0.65、由布では0.86となった。また、V/Mn比の最高値は、日田では2016年10月26日に採取を開始した試料で1.9、由布では2016年7月24日に採取を開始した試料で4.0となった。

(8) $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ 比を用いた解析

自動車の排気ガス等による都市大気汚染を代表する成分として硝酸イオン (NO_3^-)、石炭中の硫黄分の燃焼に由来し大陸からの移流を特徴付ける成分として硫酸イオン (SO_4^{2-}) を用いて両者の比をとることにより、都市大気汚染と越境大気汚染の影響を考察した。 $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ 比が高くなれば、越境大気汚染よりも都市大気汚染の影響が大きいと考えられ、反対に $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ 比が低くなれば、越境大気汚染の影響の方が大きいと考えられる。図9に NO_3^- 、 SO_4^{2-} 濃度及び $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ 比の経日変化を示す。 $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ 比の最高値は1.9で、日田で2017年2月3日に採取を開始した試料であった。また、日田では2017年1月25日及び2017年2月2日にも $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ 比が1.0を超えたが、由布では1.0を超える日はなかった。また、 $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ 比の年平均値は、日田が0.23、由布が0.13と日田の方が高かった。

(9) 常時監視測定局で測定したガス成分との相関

表4に調査地点ごとの常時監視測定局の測定成分（一酸化窒素、二酸化窒素、窒素酸化物、二酸化硫黄、5時から20時までの光化学オキシダント（以下「昼間Ox」という。）、浮遊粒子状物質（以下「SPM」という。））とPM2.5の質量濃度の相関係数を示す。季節ごと（ $n=14$ ）及び通年（ $n=56$ ）で相関係数を求めたところ、1パーセントの危険率で有意となった成分は、表中に太字で表記した。日田では、夏季の昼間Ox、また、春季を除くSPMとの相関が強くなった。由布では、夏季及び秋季の昼間Ox、秋季の二酸化硫黄、年度を通じてSPMとの相関が強くなった。

図10に昼間Ox濃度の平均値及び最高値、図11に日射量の平均値及び最高値を示す。昼間Ox濃度の最高値は、日田、由布ともに春季及び夏季で比較的高い傾向がみられた。一方で、昼間Ox濃度の平均値は、日田では春季及び夏季で比較的高いが、由布では秋季及び冬季でも高く、季節ごとの差が少ないという特徴がみられた。日射量については、両地点ともに気象庁の大分気象台のデータを採用したた

め、両地点ともに最高値は春季で高く、平均値は夏季に高いという結果になった。

(10) 炭素成分の比較

図12にOC、EC濃度及びOC/EC比の季節ごとの平均値及び年平均値を示す。OC及びOC/EC比は、全季節、また、年度を通じて由布よりも日田が高かった。特に春季はOC/EC比が日田で4.7、由布で3.2と両地点の差が大きくなった。一方で、ECは、春季及び夏季で日田よりも由布が高かった。

OC及びECについてより詳細に解析するため、大気中微小粒子状物質（PM2.5）成分測定マニュアル³⁾に従い、OCを揮発性有機炭素及び高温有機炭素、また、ECを低温元素状炭素（以下「Char EC」という。）及び高温元素状炭素（以下「Soot EC」という。）に分類し、季節ごとの平均値及び年平均値を計算した。揮発性有機炭素は、He雰囲気中でOC1フラクションの間に試料片から揮発する有機炭素であり、高温有機炭素は、有機炭素から揮発性有機炭素を差し引いたものである³⁾。また、Char ECは低温での不完全燃焼によって生成する炭素成分と考えられ、Soot ECは、主として不完全燃焼時のガス・粒子化により超微小粒子として発生したものが粒子に凝集して生成する炭素成分と考えられている³⁾。Char ECは、バイオマス燃焼等に由来し、Soot ECはディーゼル排気等に由来すると言われている。図13に、揮発性有機炭素、高温有機炭素、Char EC及びSoot ECの季節ごとの平均値及び年平均値を示す。年平均値では、揮発性有機炭素、高温有機炭素、Char ECが由布より日田で高くなった。特に冬季においては、これらの成分の濃度差が大きくなった。一方でSoot ECについては、年度を通じて両地点における濃度差が小さい傾向があった。

(11) 由布における近隣工事の影響評価

由布においては、2015年5月頃から2016年4月頃にかけて、サンプリング地点近傍において大規模な建設工事が行われた。よって、2015年度秋季（2015年10月20日～11月4日）及び冬季（2016年1月19日～2月7日）の調査結果と2016年度秋季及び冬季の調査結果を比較し、当該工事の影響の有無を評価した。評価方法は、日田に対する由布の各測定成分の濃度比を求め、当該濃度比について、2015年度と2016年度を比較することとした。図14に日田に対する由布の各成分濃度比に係る2016年度に対する2015年度の比を示す。2016年度と比較して、2015年度は、秋季、冬季及び秋季から冬季を平均してAl, Zn, Mn

等の土壌由来の無機元素が高濃度となっていた。

考 察

自動測定器と秤量法による質量濃度の相関係数は高く、回帰式の傾きも 1.0 ± 0.1 以内に収まっていたため、日田、由布地域における質量濃度の自動測定は、秤量法と同等の精度が確保されていると考えられた。

また、成分濃度の積算によって求めた質量濃度は、秤量法による質量濃度よりも低い値となったことから、現在の測定体制では測定しきれない成分が多く存在していることが示唆された。

日田、由布地域におけるPM2.5の成分には硫酸イオンが多く含まれており、質量濃度との相関係数も高かったことから、硫酸イオンは質量濃度に大きな影響を与える要因の一つと考えられた。

濃縮係数(EF値)による人為的汚染の評価から、As, Cd及びSbが高い値を示し、廃棄物焼却等の土壌以外の人為的な発生源の存在が推察された。

無機元素濃度比を用いた解析については、越境汚染の指標となるPb/Zn比が高くなる日はあったが、同様に越境汚染の指標と言われる硫酸イオン濃度は高くなり、越境汚染の可能性が高い日を抽出することができなかった。V/Mn比については、7月24日の由布の4.0など、地殻中の比である0.16を大きく超える日があったが、当該日は質量濃度が高くなかったため発生源の推定にはつながらなかった。

$\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ 比の年平均値は、由布より日田で相対的に高い値を示したことから、日田の方が都市大気汚染の影響が大きかったと考えられる。

常時監視測定局で測定していたガス成分と質量濃度の相関解析の結果から、日田、由布ともに夏季は、昼間Oxと質量濃度の相関が高くなり、また、昼間Ox濃度及び日射量も高くなった。よって、夏季については、光化学反応によるPM2.5の二次生成が促進された可能性が考えられた⁸⁾。今後、風向風速等の気象条件も考慮し、さらなる検討を進めていきたい。

また、炭素成分のうちOC/EC比を用いた解析結果からも、夏季においては両地点ともにOC/EC比が高かった。文献によれば⁹⁾、Oxが日平均60ppb以上の高濃度である春季及び夏季に、光化学反応による二次生成でSPM中のOCが高くなり、OC/EC比が高くなることが報告されており、夏季における光化学反応によるPM2.5の二次生成の可能性が考えら

れた。元素状炭素のうち、Char ECが由布より日田で高かった。Char ECについては、バイオマス燃焼がその原因の一つとして挙げられており²⁾、日田においてはバイオマス燃焼の影響が推察された。

由布における近隣工事の影響について、2016年度の調査結果と比較して、2015年度の調査結果は、Al, Zn, Mn等の土壌由来の無機元素が高濃度となっていたため、工事関係車両による土壌の巻き上げの影響等が一因と考えられた。

今後は、発生源をより確実に推定していくために、成分分析データを蓄積し、経時的な変動等を考察していきたい。また、2016年度は質量濃度が $35 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超える高濃度の試料が少なく、発生源の解析に有用な指標成分を含む試料が少なかった。よって、今後は、追加的なサンプリングを計画する等、高濃度日の試料数を増やすことを検討していきたい。

謝 辞

本調査の推進にあたり多大なるご協力を賜りました環境保全課、中部保健所由布保健部及び西部保健所の関係職員の皆様に深謝いたします。

参 考 文 献

- 1) 松田貴志、河野公亮、岡本英子、長野真紀、伊東達也：大分県における微小粒子状物質成分の調査(2015)、大分県衛生環境研究センター年報, 43, 55-64(2015)
- 2) 平成23年7月 環境省 水・大気環境局：微小粒子状物質(PM2.5)の成分分析ガイドライン
- 3) 環境省：大気中微小粒子状物質(PM2.5)成分測定マニュアル
- 4) 溝畑朗、松田八束、坂本和彦、角脇怜(1986)粒子状大気汚染物質の化学組成,大気汚染学会誌,21(2),83-103
- 5) Scott M.McLennan: Relationships between the trace element composition of sedimentary rocks and upper continental crust,Geochem.Geophys.Geosyst.,vol.2, Paper number 2000GC000109. Published April 20,2001
- 6) 大塚英幸、秋山雅行、芥川智子：北海道における大気中微小粒子PM2.5中の無機元素成分,北海道環境科学研究センター所報,第3号(通巻第39号),平成24年度
- 7) 日置正、紀本岳志、長谷川就一、向井人史、大

原利眞、若松伸司(2009)松山、大阪、つくばで観測した浮遊粉じん中金属元素濃度比による長距離輸送と地域汚染解析の特性,大気汚染学会誌,第44巻,第2号

9) 藤川和浩、山本重一、田上四郎、力寿雄、大石興弘、岩本眞二：大気中の炭素成分(EC,OC)の挙動及び他成分との関係—日毎のデータ解析—, 福岡県保健環境研究所年報, 第35号, 93-97,2008

8) 東京都環境科学研究所：微小粒子状物質(PM2.5)等の二次生成機構に関する研究報告書,2011

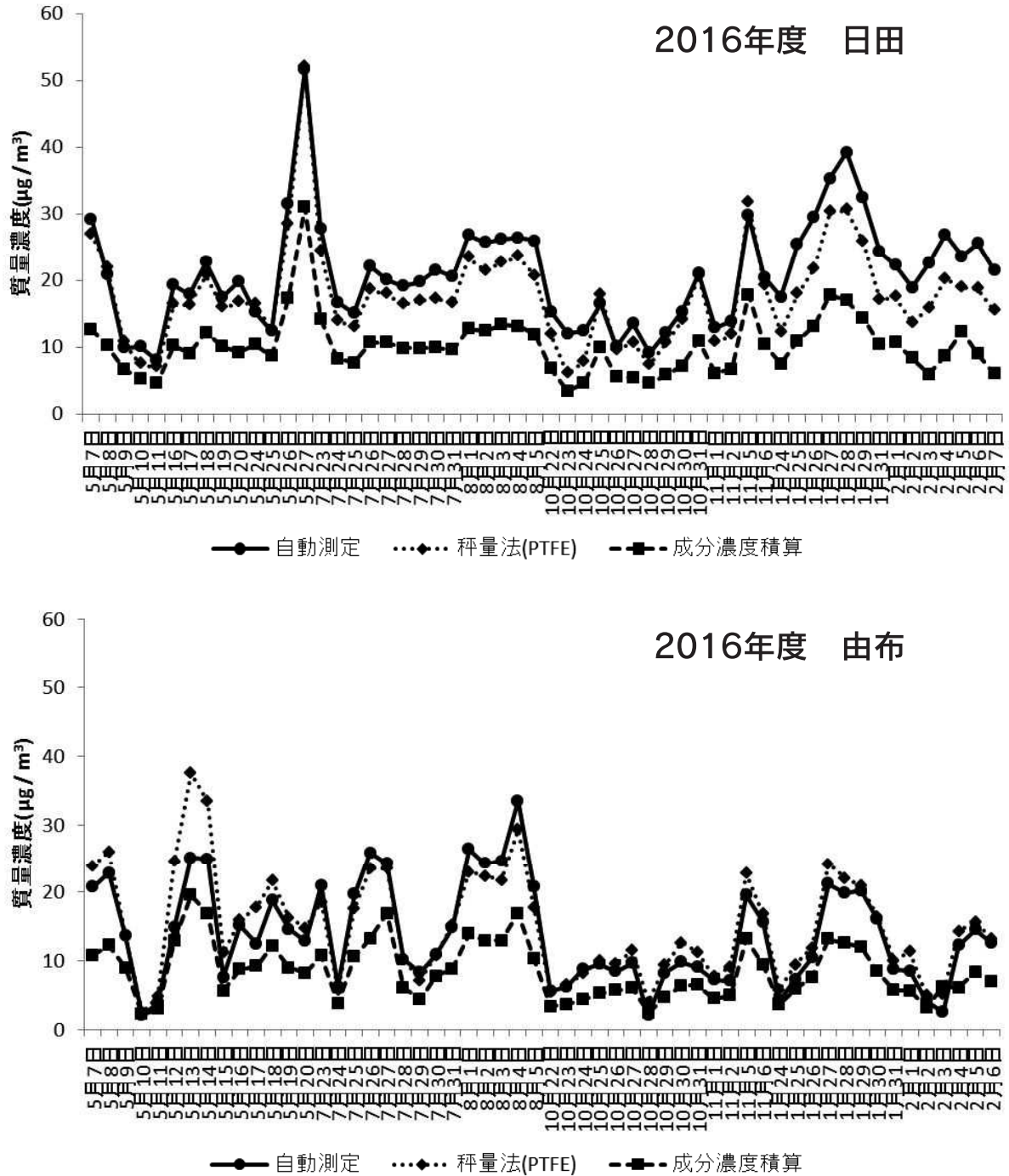


図1 自動測定、秤量法及び積分濃度の積算によって求めた質量濃度の経日変化

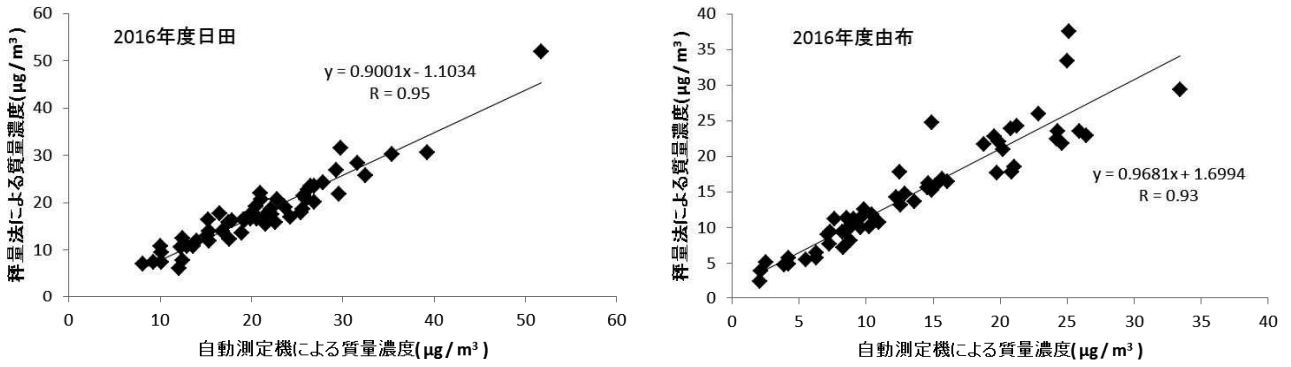


図2 自動測定器による質量濃度と秤量法による質量濃度の相関関係

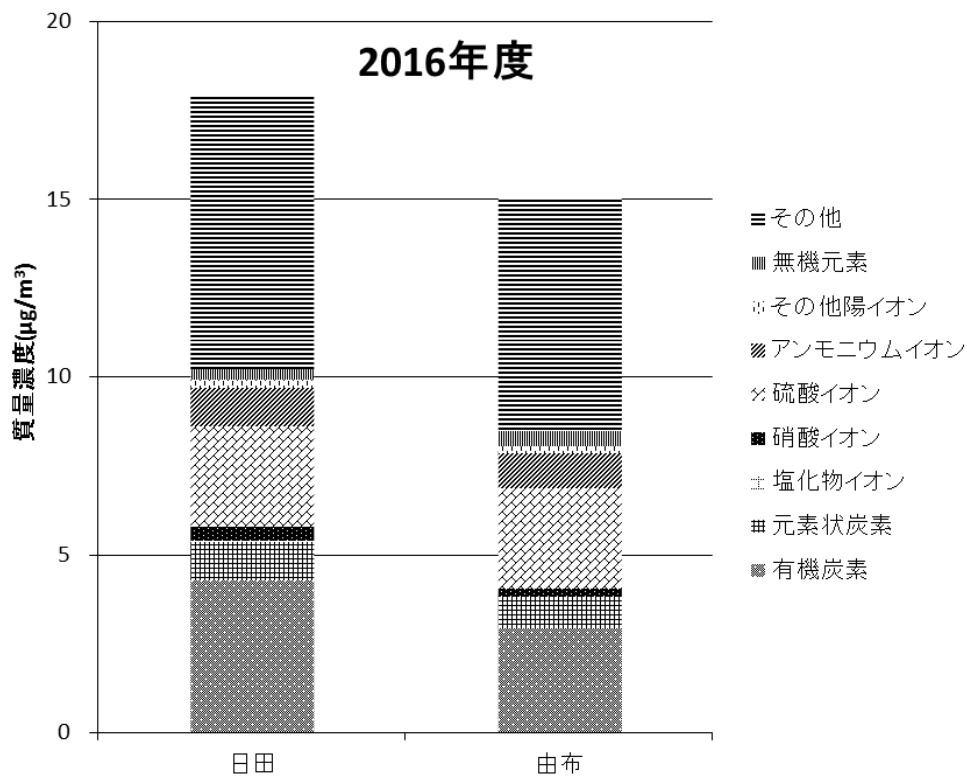


図3 平均成分濃度と各成分の内訳

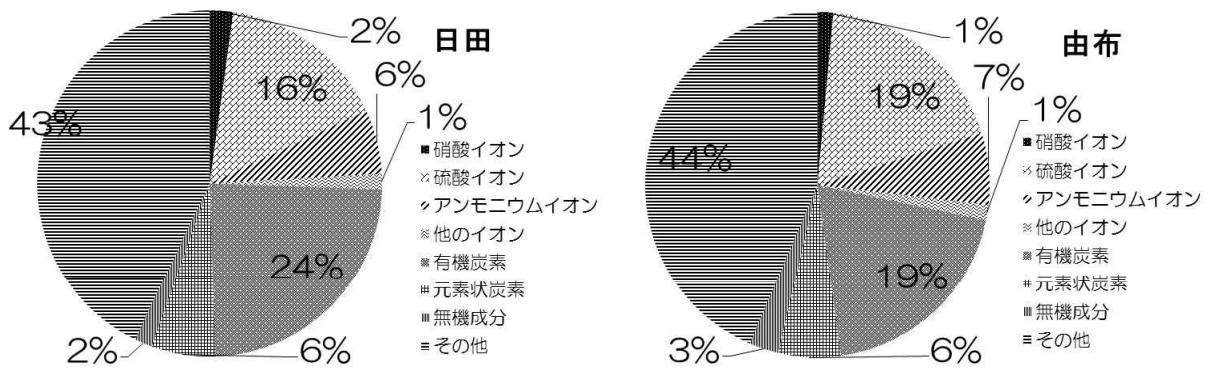


図4 各調査地点における平均成分組成

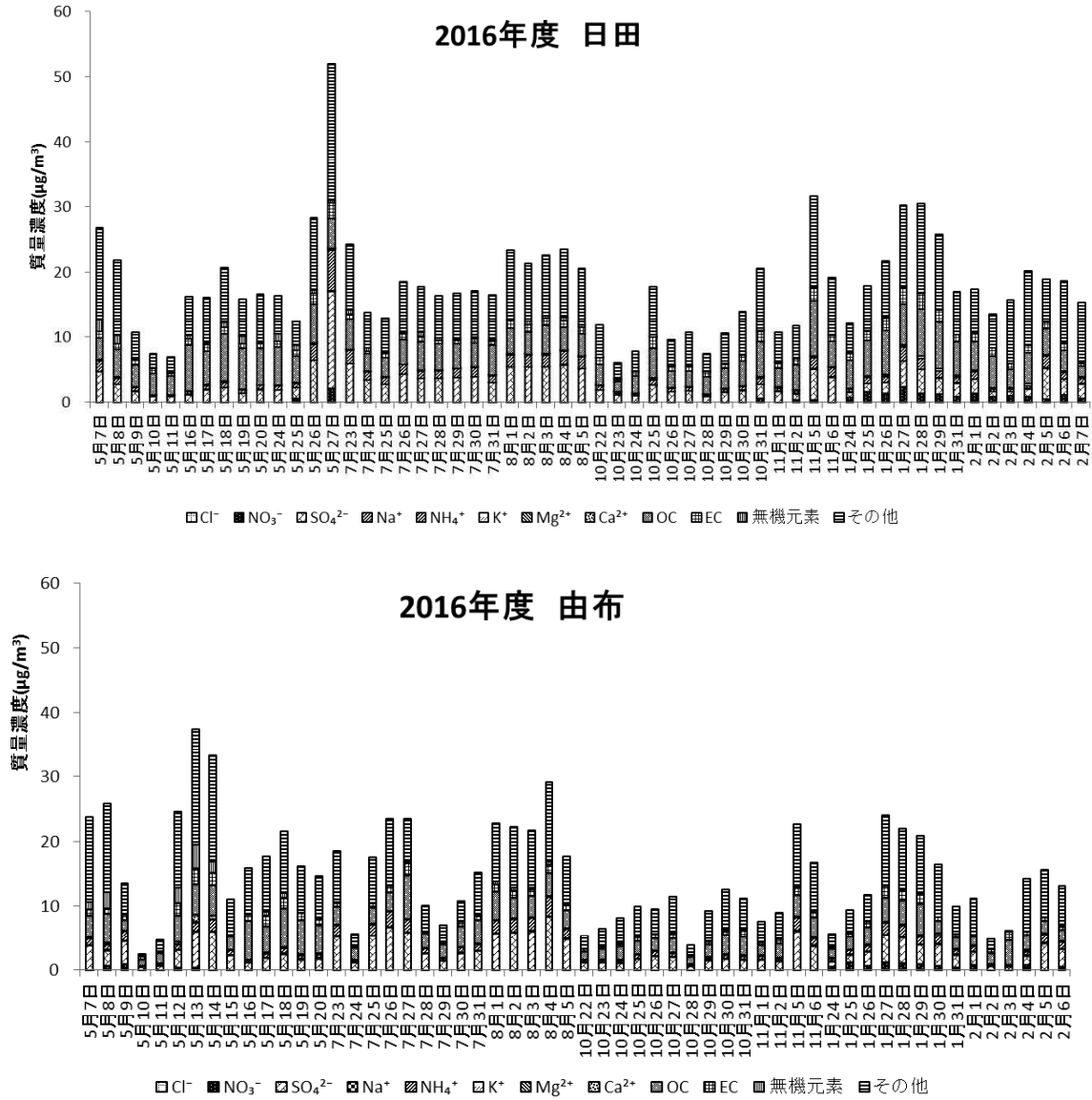


図5 成分濃度の終日変化

表3 秤量質量濃度(PTFE)と各成分の相関係数

| 地点 | イオン成分 | | | | | | | 炭素成分 | |
|----|------------------------------|-------------------------------|-----------------|------------------------------|----------------|------------------|------------------|------|------|
| | NO ₃ ⁻ | SO ₄ ²⁻ | Na ⁺ | NH ₄ ⁺ | K ⁺ | Mg ²⁺ | Ca ²⁺ | OC | EC |
| 日田 | 0.50 | 0.83 | 0.07 | 0.87 | 0.50 | 0.21 | 0.45 | 0.54 | 0.75 |
| 由布 | 0.13 | 0.81 | 0.12 | 0.76 | 0.34 | 0.49 | 0.59 | 0.68 | 0.79 |

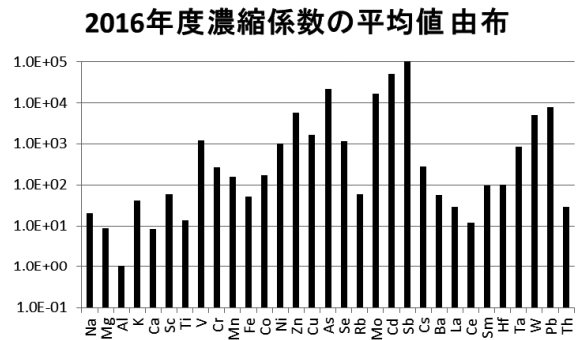
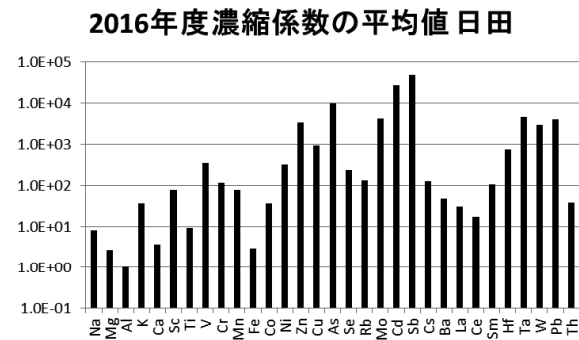


図6 濃縮係数の計算結果

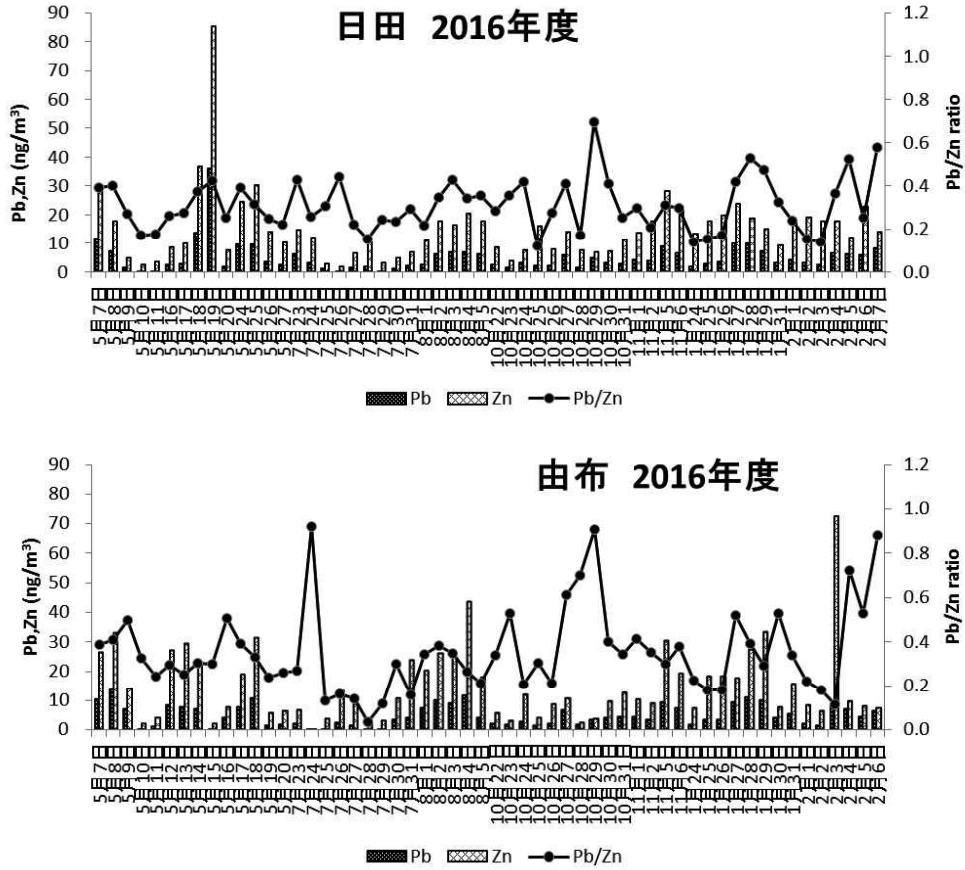


図7 Pb、Zn濃度及びPb/Zn比の経日変化

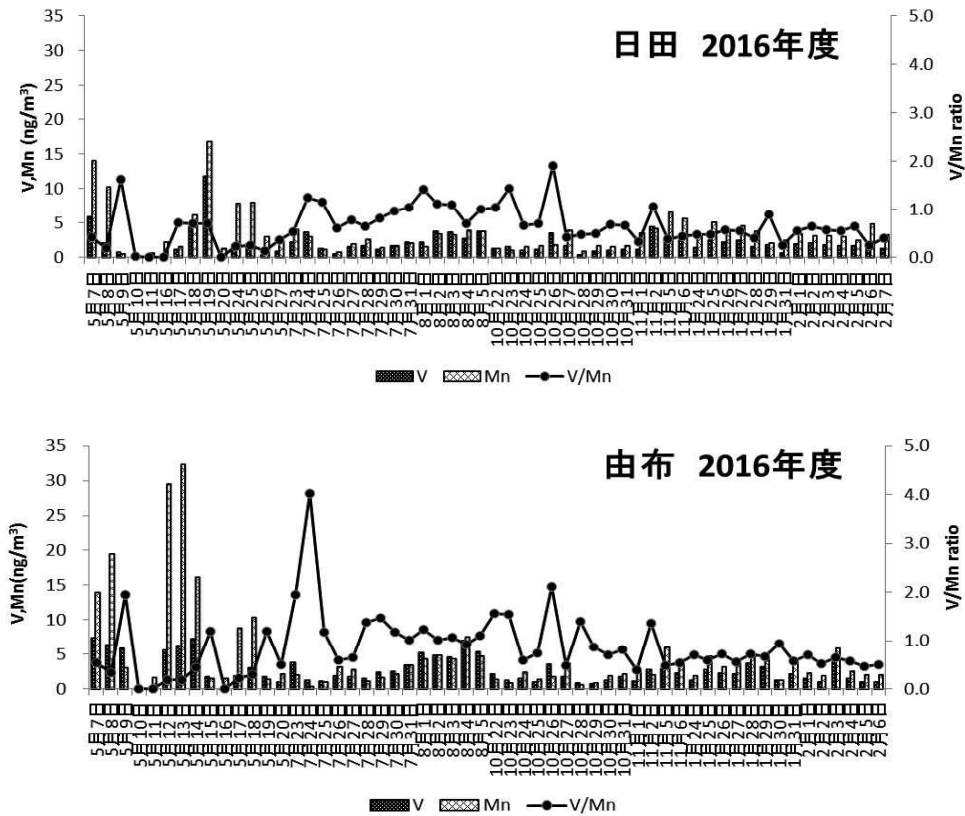


図8 V、Mn濃度及びV/Mn比の経日変化

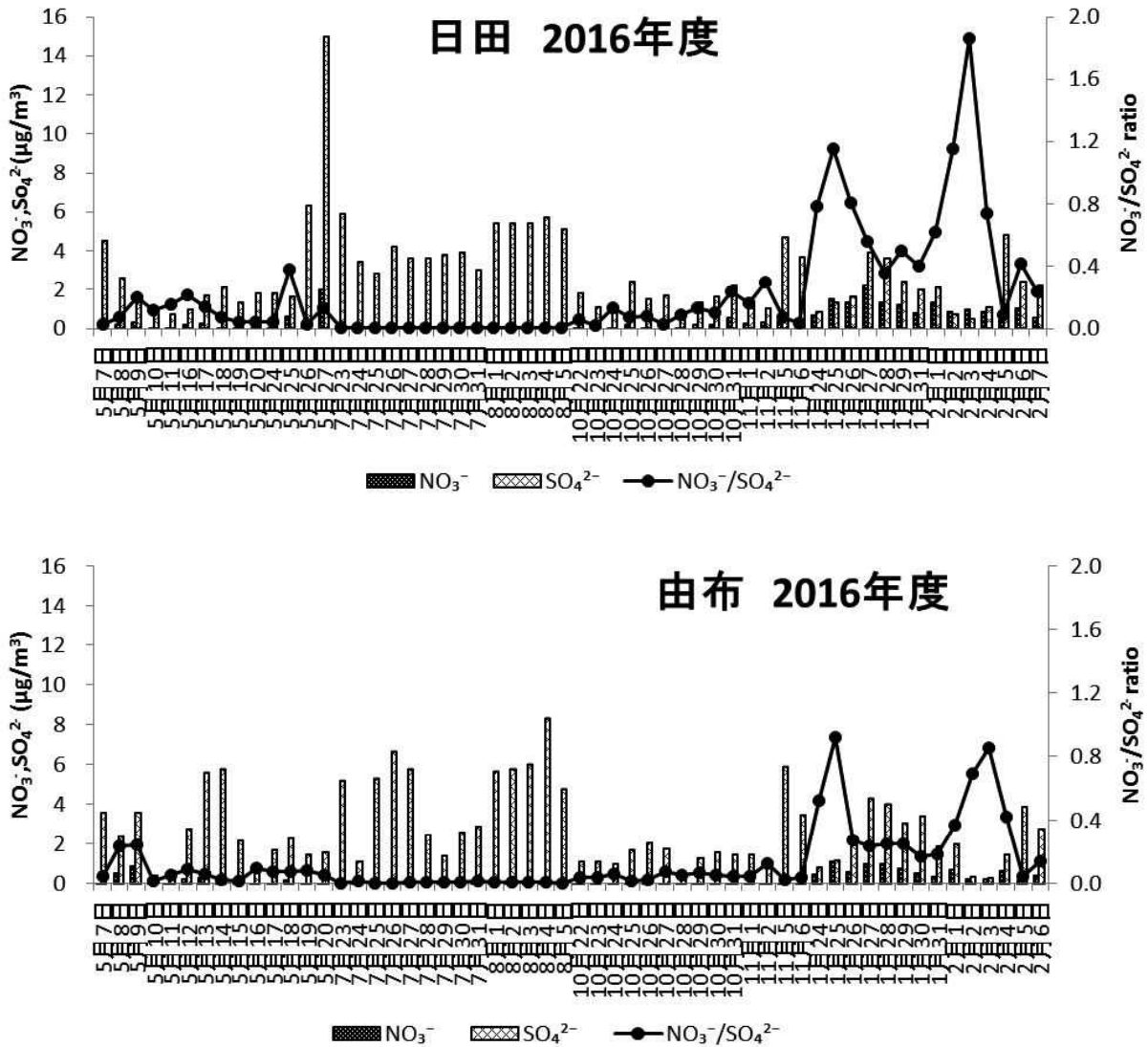


図9 NO₃⁻、SO₄²⁻濃度及びNO₃⁻/SO₄²⁻比の経日変化

表4 常時監視測定局の測定成分とPM2.5の質量濃度の相関係数

| 地点 | 季節 | 測定項目 | | | | | | n |
|----|-----|-------|-----------------|-----------------|-----------------|------------------|------|----|
| | | NO | NO ₂ | NO _x | SO ₂ | 昼間O _x | SPM | |
| 日田 | 春 | -0.45 | -0.33 | -0.37 | -0.05 | 0.54 | 0.37 | 14 |
| | 夏 | -0.08 | 0.58 | 0.45 | -0.46 | 0.70 | 0.83 | 14 |
| | 秋 | 0.31 | 0.22 | 0.27 | 0.34 | -0.02 | 0.90 | 14 |
| | 冬 | -0.03 | 0.09 | 0.01 | 0.07 | -0.27 | 0.75 | 14 |
| | 年平均 | 0.01 | 0.00 | 0.00 | 0.02 | 0.40 | 0.51 | 56 |
| 由布 | 春 | 0.49 | 0.65 | 0.62 | 0.54 | 0.29 | 0.94 | 14 |
| | 夏 | 0.10 | 0.62 | 0.63 | 0.55 | 0.72 | 0.99 | 14 |
| | 秋 | -0.10 | 0.04 | 0.00 | 0.87 | 0.72 | 0.98 | 14 |
| | 冬 | 0.01 | 0.36 | 0.34 | 0.19 | 0.24 | 0.98 | 14 |
| | 年平均 | 0.26 | 0.39 | 0.36 | 0.56 | 0.43 | 0.90 | 56 |

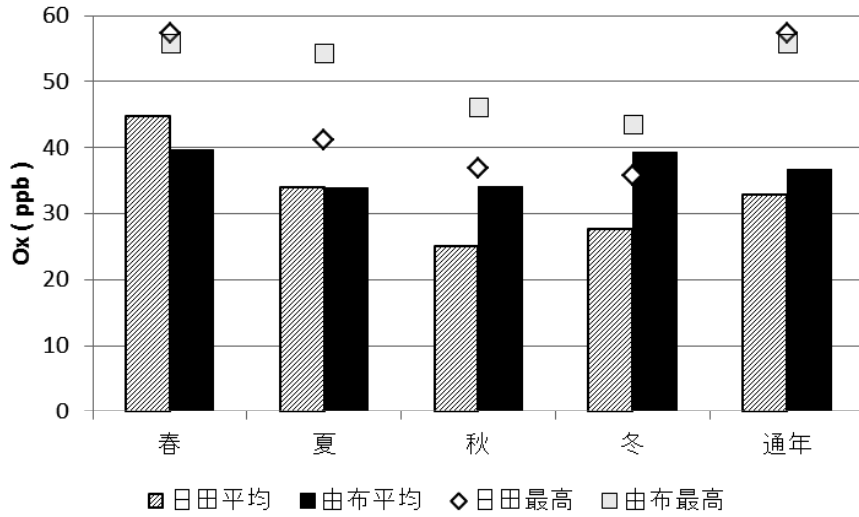


図10 昼間の光化学オキシダント濃度の平均値及び最高値

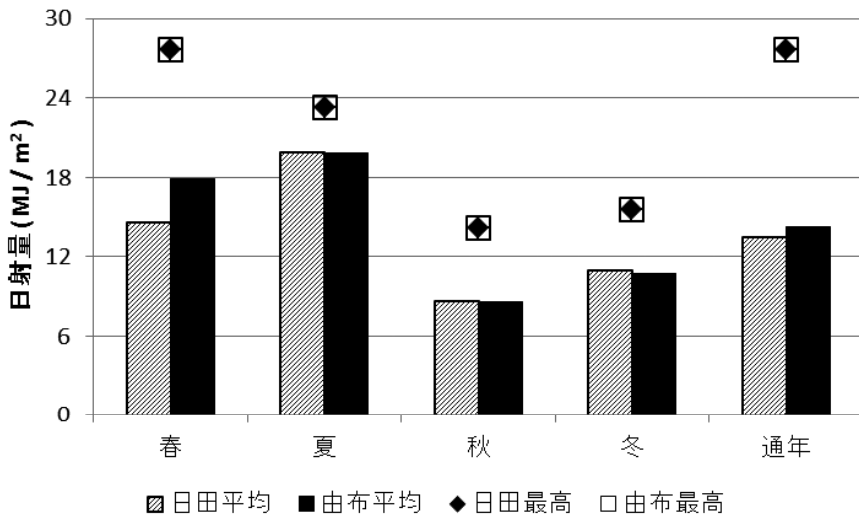


図11 日射量の平均値及び最高値

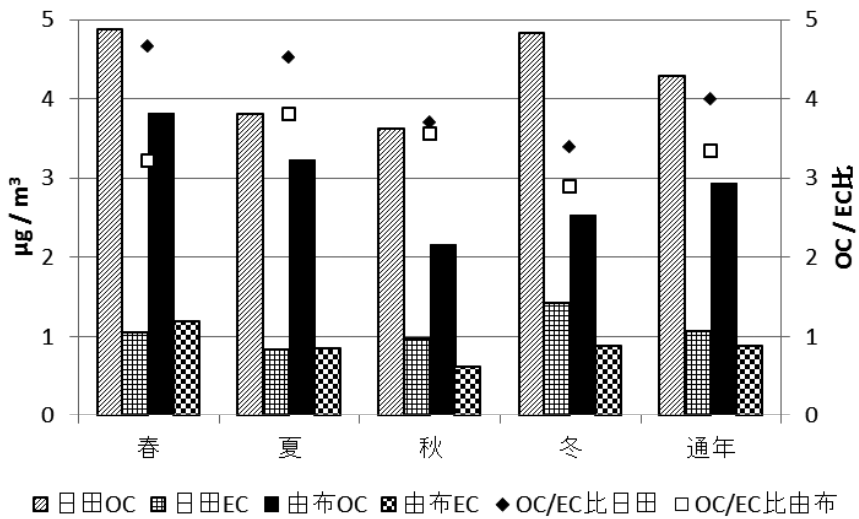


図12 OC、EC濃度及びOC/EC比の各季節ごとの平均値及び年平均値

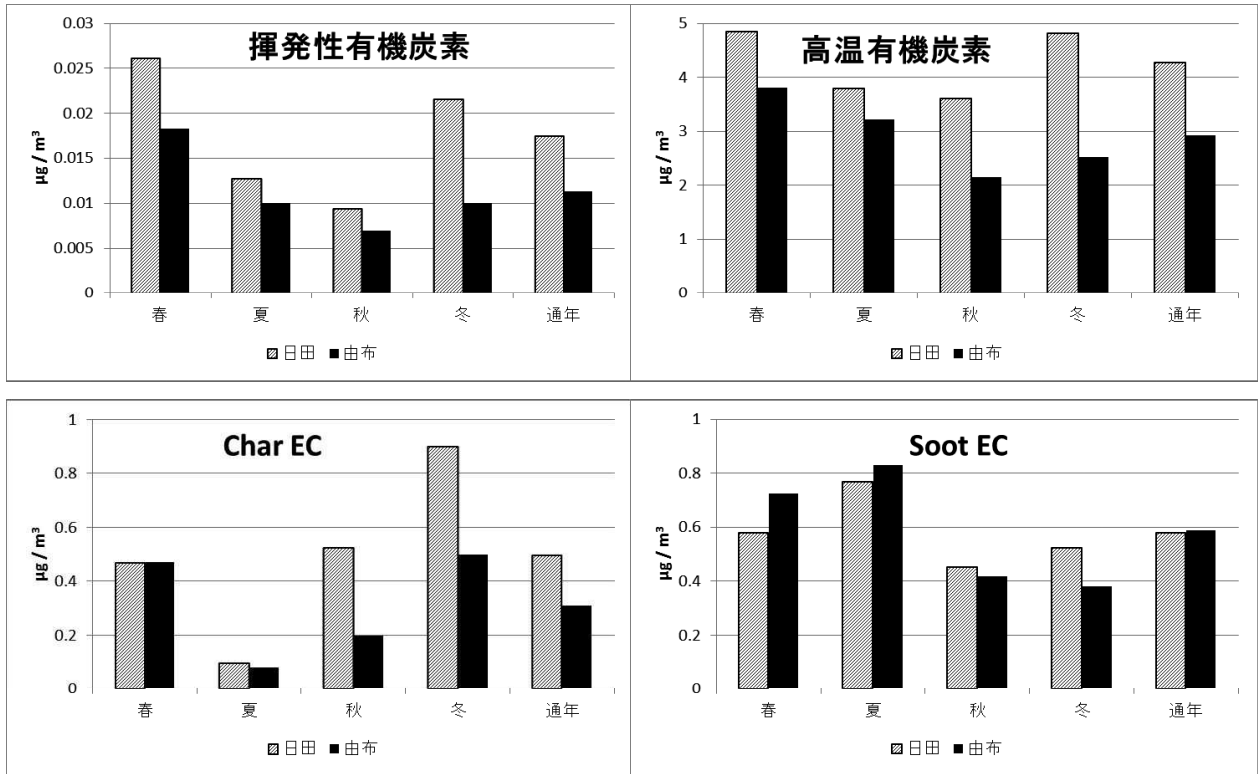


図13 揮発性有機炭素、高温有機炭素、Char EC及びSoot ECの各季節ごとの平均値及び年平均値

日田に対する由布の各成分濃度比に係る 2016年度に対する2015年度の計算結果の比

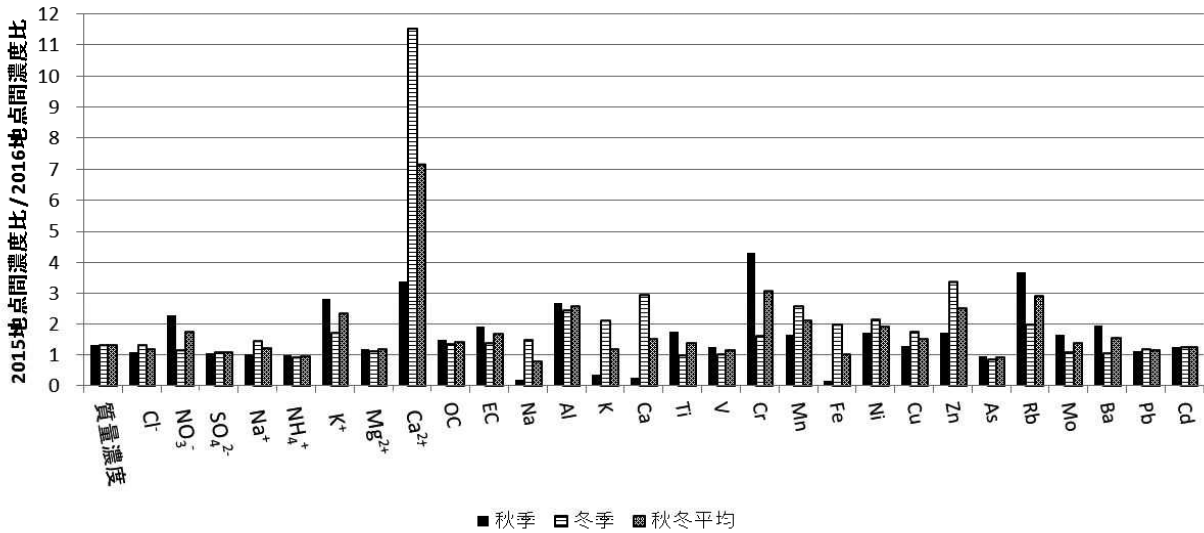


図14 日田に対する由布の各成分濃度比に係る2016年度に対する2015年度の比