

ISSN 0386-3476

f381e

平成 5 年度
愛媛県立衛生研究所年報

第 55 号



Annual Report
of
Ehime Prefectural Institute of Public Health

愛媛県立衛生研究所

目 次

I 研究報告

愛媛県におけるダニ媒介性疾病の血清疫学調査	1
愛媛県における腸管系法定伝染病の発生状況	5
1993年愛媛県におけるエンテロウイルス71型による手足口病の流行について	11
愛媛県における21-水酸化酵素欠損症マスキングの現況	15
HLAクラスII抗原のDNAタイピングと血清学的タイピング	21
愛媛県内の風疹の流行状況と抗体価の推移	27
農薬の大気中光分解に関する研究	33
水道水中の金属動態に関する研究	41
愛媛県下の温泉の経年変化について	47
温泉の地球化学的研究(道後温泉の硫化水素の挙動について)	53

II 資 料

平成5年度法定伝染病事例報告	57
平成5年度食中毒事例報告	59
平成5年度食品の細菌検査成績	61
平成5年度伝染病流行予測調査	62
愛媛県感染症サーベイランス事業調査成績	64
平成5年度先天性代謝異常検査成績	68
平成5年度神経芽細胞腫検査成績	69
平成5年度微生物検査精度管理実施結果	70
平成5年度し尿処理場放流水基準試験結果について	71
平成5年度松くい虫防除薬剤空中散布に伴う調査について	73
平成5年度愛媛県産野菜・果実等の残留農薬分析調査成績	74
平成5年度食品添加物使用実態調査	75
平成5年度医薬品の品質調査	76
平成5年度有害物質を含有する家庭用品の調査	77
平成5年度温泉分析成績	78
平成5年度理化学試験精度管理実施結果	80

III 抄 録

他誌発表論文	81
学会発表	82

IV 第8回公衆衛生技術研究会(抄録)

87

V 業務実績

1 組織及び業務概要	91
2 微生物病理室の概要	96
3 衛生試験室の概要	97

VI 技術研修指導, 研究発表の状況

101

愛媛県におけるダニ媒介性疾病の血清疫学調査

菅 成器 服部昌志 吉田紀美 山下育孝
大瀬戸光明 森 正俊 井上博雄

Sero-epidemiological Study of Mite-borne Infectious Diseases in Ehime Prefecture

Naruki KAN, Masashi HATTORI, Kimi YOSHIDA, Yasutaka YAMASHITA,
Mitsuaki OSETO, Masatoshi MORI, Hiroo INOUE

In Ehime Prefecture, only two patients with Tsutsugamushi disease and no patients with Japanese spotted fever were reported from 1982 to 1992. But in southern part of Shikoku island (Tokushima and Kochi Prefecture), many patients with Japanese spotted fever have been found since 1983.

We examined serum antibody titer in the healthy adult by the indirect immunofluorescent assay to study antibody positive rate of *Rickettsia tsutsugamushi* (R. t) and *Rickettsia japonica* (R. j) in Ehime Prefecture.

As the results, one of 316 samples was positive for R. t, all samples were negative for R. j. These sero-epidemiological studies results indicate that R. t and R. j infection have rarely occurred in Ehime Prefecture.

Keywords: *Rickettsia tsutsugamushi*, *Rickettsia japonica*, sero-epidemiological study, Tsutsugamushi disease, Japanese spotted fever

はじめに

近年、疾病構造の変容に伴い、ダニ媒介性のツツガムシ病や日本紅斑熱、ライム病等が注目を集めている。

これらは県内においては稀な疾病であり、現在までにツツガムシ病2名の患者報告があるのみである。日本紅斑熱については、患者発生の届け出はないが、隣接の高知県や徳島県では、多くの患者が報告されている。

しかし、これら3疾病の病原体について、県内の侵淫状況はほとんど明らかになっていない。

そこで、これらの侵淫度を把握するため、当所において診断法が確立されているツツガムシ病と日本紅斑熱について、県下各地の住民よりサンプリング

した血清を用いて、抗体保有状況を調査したので報告する。

材料および方法

1. 材料

県下6市町村7地区の40才以上の住民316人より採取した血清を材料とした。その内訳は表1に示した。

表1 地区別調査人数

対象地区	人数
北条市Y地区	21
北条市K地区	22
上浮穴郡柳谷村	40
上浮穴郡美川村	65
大洲市S地区	50
喜多郡肱川町	50
北宇和郡広見町H地区	68
合計	316

愛媛県立衛生研究所 松山市三番町8丁目234番地

2 血清抗体価の測定方法

血清抗体価の測定は、間接蛍光抗体法により行った。方法については図1に示す。被検血清は、PBSを用いて20倍希釈して測定し、特異蛍光が確認できたものを陽性とした。

なお、抗原は *Rickettsia tsutsugamushi* (以下 R. t) についてはその標準株である Kato, Karp, Gilliam 株を用い、*Rickettsia japonica* (以下 R. j) については YH 株を用いた。なお、検査に供した抗原スライドは、千葉県衛生研究所、海保部男先生に分与していただいた。

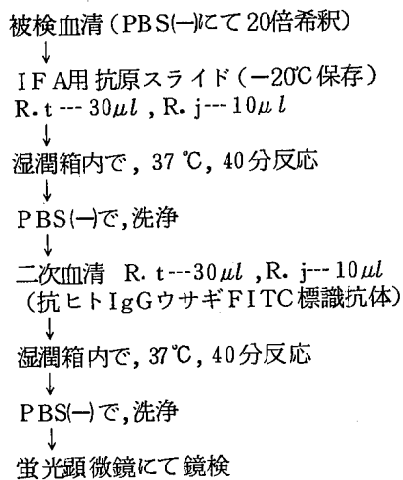


図1 抗体価の測定方法(間接蛍光抗体法(IFA))

結果

1 わが国におけるツツガムシ病および紅斑熱群リケッチア症の発生状況

わが国におけるツツガムシ病の発生状況を表2に、紅斑熱群リケッチア症の発生状況を表3に示した。

ツツガムシ病については、東北、関東、南九州地方に多発しており、特に鹿児島県における発生数が、群を抜いて多い。これに対し、北海道、近畿、中国、四国、沖縄地方は発生数がないかもしくは少なく、愛媛県においては、1987年と1992年に1例ずつ発生したのみである。

紅斑熱群リケッチア症については、1983年から1992年までに10都県120人の患者発生があった。愛媛県においては、患者発生の報告はないが、四国地方においては、高知県と徳島県でほぼ毎年患者報告があった。

このうち兵庫県の1992年1例は高知県における

感染例、神奈川県 の1988年1例および東京都の1991年2例は輸入例である。

2 愛媛県におけるR. tおよびR. jの抗体保有状況

表4に、間接蛍光抗体法による血清抗体保有状況の結果を示した。被検血清316検体のうち抗体を保有していたのは、R. tについては北条市Y地区の住民1名のみであり、R. jについては認められなかった。

考察

ツツガムシ病は、かつて秋田県、山形県、新潟県の河川流域において、夏季に発生する風土病と考えられており、その患者数も減少傾向にあった¹⁾。しかし、1970年代後半から再び増加し、その発生は全国的になってきた。これはリケッチアを保有したフトゲツツガムシやタテツツガムシが媒介動物である、いわゆる「新型ツツガムシ病」が各地で多発しているためである^{1), 2)}。

愛媛県における患者発生は、1992年までに2例のみと極めて少なく、四国地方で考えてみても、1982年から1992年までの患者発生数は10例に満たない。

今回の血清疫学調査では、316検体のうち北条市Y地区の1件(0.3%)の抗体保有が認められたに過ぎなかった。丹下ら³⁾は、愛媛県第1例目の患者からリケッチア(山崎株)を分離し、その性状を検討した結果、Karp型と同定している。また、後に今治市野間地区において採取した野岸からリケッチアを分離し、その株を免疫学的に解析した結果、R. tのKarp型であると同定している⁴⁾。今回陽性となった検体は、地域的に愛媛県北部(高縄半島)の住民から採取した血清であることから、この地域におけるR. tの侵淫が疑われた。

一方、日本紅斑熱は、1984年馬原ら⁵⁾によって患者発生の報告がなされて以来、1992年までに120例の報告がされている。地域的にみると関東以南の太平洋側に多く発生しており、日本海側は島根県のみである。高田ら⁶⁾や島根県⁷⁾の報告によると、これらの発生地は、岬に近い沿岸部が多く、暖流の流域に当たること、温暖であるため媒介動物と考えられているチマダニ属が多く分布している地点であること、等が共通しているとされている。

愛媛県においては、未だ患者報告はなく、今回の血清疫学調査においても、抗体保有者は認められな

表2 日本におけるツツガムシ病

	1982	1983	1984	1985	1986	1987	1988	1989	1990	1991	1992	計
北海道												0
青森	5		4	13	19	15	8	14	10	9	6	103
岩手	5		1	6	15	14	5	4	5	7	6	68
宮城			2	6	5	8	5	5	2	11	7	51
秋田	46	45	60	82	66	36	32	28	41	74	57	567
山形	2	5	7	8	18	11	9	8	14	19	12	113
福島			4	27	56	34	20	10	24	42		217
茨城		1	5	3	3	2	6	2	5	5	5	37
栃木		2		2	3	2	3	4	6	6		29
群馬	19	6	17	16	15	30	18	27	36	31	18	233
埼玉			1	3	2				4	1	2	13
千葉	8	82	58	62	72	55	43	149	114	88	94	825
東京	33	66	27	23	17	36	33	44	66	36	7	388
神奈川県			9	10	13	30	20	78	112	64	48	384
新潟	38	25	82	56	41	18	6	17	25	69	19	396
富山	11	3	17	15	11	11	7	5	13	15	15	123
石川	1				1				2			4
福井			1		1	1	1		2			6
山梨					1				1			2
長野	3	13	20	15	18	13	12	12	3	16	1	126
岐阜	31	26	53	29	26	47	13	29	56	46	25	381
静岡県	19	15	8	14	12	18	16	8	27	19	3	159
愛知	1	4	5	11	16	19	10	15	12	1	9	103
三重			1	1		5	2	3		11	7	30
滋賀					1							1
京都		1	4	1		1	2		3	2		14
大阪												0
兵庫			1	1	5	4	6	3	1	5		26
奈良									1			1
和歌山					1				1	4	1	7
鳥取				1			1		3			5
島根				1	3	5	2		4	4		19
岡山					1	4	1	5	3	2		16
広島				5	2	3	2	4	4	2		22
山口	1											1
徳島								1	2	1		4
香川									1			1
愛媛						1						2
高知		1						1			1	2
福岡				1	11	7	3	5	3	8		2
佐賀		1	2	3	5	3	4	3	3	5		38
長崎	5	8	2	11	8	5	1	14	6	21	12	29
熊本	3	1	3	7	8	18	6	9	11	21	6	93
大分			6	6	14	14	26	12	17	40	18	153
宮崎	29	22	161	201	130	134	88	99	125	131	73	1193
鹿児島	247	345	396	244	144	200	197	134	175	120	5	2207
沖縄												0
計	507	672	957	884	764	804	608	752	943	937	457	8285

表3 日本における紅斑熱群リケッチア症

	1983	1984	1985	1986	1987	1988	1989	1990	1991	1992	計
鹿児島							1	4		1	6
宮崎			1	3	2	1	1				8
島根					1	1	1				3
高知	2	3	9	7	2	8	9	2	4	3	49
徳島	1	5		5	4	2	2	3	5	2	29
兵庫						3		1		1 ¹⁾	5
三重						1					1
神奈川						1 ²⁾					3
千葉					1	1		5	2	3	14
東京									2 ²⁾		2
計	3	8	10	15	10	18	16	18	13	12	120

1) 高知県における感染例
2) 輸入例

表4 R. tsutsugamushi および R. japonica の抗体保有状況

調査地区	被検血清数	R. t 陽性数(率)	R. j 陽性数(率)
北条市Y地区	21	1(4.7)	0
北条市K地区	22	0	0
上浮穴郡柳谷村	40	0	0
上浮穴郡美川村	65	0	0
大洲市S地区	50	0	0
喜多郡肱川町	50	0	0
北宇和郡広見町H地区	68	0	0
合計	316	1(0.3)	0

かった。しかし、先の報告のとおりであれば、今回の調査地点は比較的内陸部が多かったことから、血清抗体価が低かったと考えられるので、今後さらに気候風土などを考慮しながら、血清疫学調査を続けていく必要があると思われた。

ダニ媒介性疾患として注目されている疾病の一つにライム病がある。今回は、当所においてライム病診断法が確立されていないため、調査を実施できなかったが、早急に整え対応したいと考えている。

愛媛県におけるこれらの疾病の発生状況は、全国的にみると極めて少ない数である。しかし、R. t の侵淫が認められたことや四国地方が R. j による日本紅斑熱の多発地区であること等を考えると、これらの患者数増加が危惧される。今後は、血清疫学調査だけでなく、媒介動物の採取や病原体の分離および培養法、PCR法を用いた診断法等について検討し、ダニ媒介性疾患についてさらに調査を進める必要があると思われた。

謝辞

稿を終えるに当たり、抗原スライドを分与していただいた千葉県衛生研究所、海保郁男先生、ならびに健康者の血清収集にご協力いただきました財団法人愛媛県予防医学協会、得居伸三先生に深謝いたします。

参考文献

- 1) 天兒和暢他編：戸田新細菌学 改訂第30版，547～559 (1993)
- 2) 武田 元：感染症学雑誌，23，147～156 (1993)
- 3) 松本 勲他：感染症学雑誌，63，262～267 (1989)
- 4) 丹下宣紀他：感染症学雑誌，66，1015～1020 (1992)
- 5) 馬原文彦他：感染症学雑誌，59，1165～1172 (1985)
- 6) 高田伸弘他：感染症学雑誌，66，1218～1225 (1992)
- 7) 島根県衛生公害研究所：特別研究成果報告書，(1993)

愛媛県における腸管系法定伝染病の発生状況

吉田紀美 菅 成器 森 正俊 井上博雄

Epidemiological Study of Enteric Legally-designated Communicable Diseases in Ehime Prefecture

Kimi YOSHIDA, Naruki KAN, Masatoshi MORI, Hiroo INOUE

During the period from 1985 to 1994, the enteric legally-designated communicable diseases, that were 3 cases of cholera, 52 cases of shigellosis, 18 cases of typhoid fever and 2 cases of paratyphoid fever, were occurred in Ehime Prefecture.

Since 1989 the number of the imported cases by the oversea travelers has been increased. One case of cholera, 9 cases of shigellosis and 3 cases of typhoid fever were imported by the travelers returning from Southeast Asia and Indian Subcontinent.

Two of six strains of *Shigella sonnei* isolated during the period from 1989 to 1994, which were from imported cases, were resistant to some drugs.

Keywords: enteric legally-designated communicable diseases, imported cases, cholera, shigellosis, typhoid fever

はじめに

近年、海外旅行ブームや企業の海外進出によって海外渡航者数は激増している。このような情勢を背景にして、コレラ、赤痢、腸チフス、パラチフスなどの法定伝染病を含め各種感染性下痢症の輸入例が増加している。本県においてもこのような海外渡航者による伝染病の発生例が見られるようになってきた。そこで、過去5年間に愛媛県内で発生した腸管系法定伝染病について特に輸入例を中心にまとめたので報告する。

調査方法

1 調査対象

平成元年4月から平成6年3月の間に愛媛県内で発生した腸管系法定伝染病患者

2 調査資料

愛媛県保健環境部疫学調査専門委員会資料

医療機関受診時の初診あるいは検査時の問診内容および所轄保健所による疫学調査項目

検査方法

各種検査材料からの菌分離については各医療機関および保健所により実施された。当所においては常法に従い同定検査、血清型別、薬剤感受性テスト(1濃度ディスク法)を行った。使用薬剤ディスクは、クロラムフェニコール(CP)、アンピシリン(ABPC)、テトラサイクリン(TC)、カナマイシン(KM)、ナリジクス酸(NA)、ホスホマイシン(FOM)、スルフイソキサゾール(SA)、セファロリジン(Cr)である。さらにチフス菌のフェージ型別は、国立予防衛生研究所へ依頼した。

結果

1) 腸管系法定伝染病患者の発生状況

昭和59年から平成5年に愛媛県において発生した腸管系法定伝染病患者数を表1に示す。この期間中

表1 腸管系法定伝染病の患者発生状況

	昭和					平成					計
	59	60	61	62	63	1	2	3	4	5	
コレラ						2			1		3
赤痢	2	4	3	6	1	20	3	1	4	8	52
腸チフス	5	3			1		4	2	1	2	18
パラチフス	1	1									2

にコレラ3名、赤痢52名、腸チフス18名、パラチフス2名の患者発生が見られた。死亡例は見られなかった。

2) コレラ

〔事例C1〕平成元年9月3日、NTT名古屋会館において会食をし、コレラ菌に感染した。当所において当日同席した県人4名の菌検索を行った結果、2名からエルトル稲葉型のコレラ菌を検出した。本事例はNTT名古屋会館での喫食者から8都県にわたる患者数43名保菌者1名の集団発生であった。

〔事例C2〕平成4年5月28日、タイから一時帰国した26歳の男性が疑似コレラ患者である旨、大阪空港検疫所から通報があり、所轄保健所において患者便の菌検索を実施したところ、コレラ菌が検出された。さらに当所における同定検査の結果、エルトル稲葉型、およびエルトル小川型の混合感染であり、いずれもエンテロトキシンの産生を認めた。患者は4年間社用でタイに駐在中で、帰国の3日前から下痢症状を呈し、現地の医療機関に受診していた。

3) 赤痢

平成元年度から平成5年度までに県内で発生した赤痢患者のうち患者情報の得られた7事例について表3に示す。

〔事例S1〕平成元年5月、インド、ネパール旅行に参加した29歳の男性が赤痢菌(S. boydii 5)に感染している旨、成田空港検疫所から通報があった。患者宅の井戸水を介して家族6名および自宅で母親の経営する喫茶店の客10名が同菌に感染発症した。また検疫所の検査で同行した28歳の女性からS. sonnei および S. flexneri が検出された。

〔事例S2〕平成4年8月、韓国済州島ツアー(松山空港チャーター便)に参加した129名のうち63名が下痢症状を訴えた。そのうち33歳の女性から赤痢菌(S. sonnei)を検出した。患者は帰国直後から発熱、下痢を呈し、医療機関に受診していたが、保健所の検便において同菌が検出された。分離菌株の薬剤感受性検査の結果、SP, SA, TCに対する耐性が見られた。

〔事例S3〕平成5年3月、保健所による菌検索の結果、宇摩郡土居町の55歳の女性から赤痢菌(S. sonnei)が分離された。この女性は、10日前に大阪市内に滞在し赤痢患者と接触していた。

〔事例S4〕平成5年5月12日松山市内の医療機関において、発熱、下痢を呈した39歳男性が赤痢患者と診断された。所轄保健所の疫学調査の結果、患者は4月18日から5月2日までの約2週間、出張のためインドネシア(ジャカルタ)へ赴いていた。分離した赤痢菌(S. sonnei)は、ABPC, TC, CP, SAの耐性株であった。

〔事例S5〕平成5年6月5日、下痢(血便)を主訴として松山市内の医療機関を受診した59歳の女性が赤痢患者と診断された。所轄保健所の疫学調査の結果、患者は5月31日インドネシア(バリ島)旅行から帰国、その直後から下痢症状を訴えていた。菌型はS. flexneri 1bで、薬剤耐性は見られなかった。

〔事例S6〕平成5年6月26日、インドから帰国した23歳の男性(兵庫県高砂市在住)から赤痢菌(S. sonnei)を分離した旨、大阪空港検疫所から通報があった。患者は同年1月から出張のため現地に赴き、6月24日に帰国、26日に伊予市の実家に帰郷

表2 コレラ患者情報

事例	発生年月	患者	菌型	初回菌分離場所	備考
C1	平成元年9月	62歳男	エルトル稲葉	衛生研究所	名古屋NTT会館にて会食
		39歳女	エルトル稲葉	衛生研究所	
C2	平成4年5月	26歳男	エルトル稲葉 エルトル小川	大阪空港検疫所	4年前からタイに駐在

したものである。保健所において便からの菌分離を実施したが赤痢菌は分離されなかった。

〔事例S7〕平成6年1月7日、松山市内の医療機関から26歳の女性を疑似赤痢患者と診断した旨通報があった。検査の結果分離株の菌型は *S. sonnei* で薬剤耐性は見られなかった。患者は平成5年12月23日から30日までインドネシア（バリ島）へ、6人（大人3人、子供3人）で、観光旅行し帰国後から、下痢、発熱の症状が続いていた。また、保健所の検査で同行者のうち20歳女性（家庭教師）からも *S. sonnei* が分離された。なお、36歳の男性（ツアー添乗員）が疑似赤痢患者と診断されている。

4) 腸チフス

〔事例T1〕平成2年12月26日、松山市内の医療機関で85歳女性の血液から *S. Typhi* が分離された。患者は昭和17年に腸チフスの既往歴があり、胃潰瘍胆石などの基礎疾病も見られた。なお、平成3年3月6日腸チフス再発のため再入院している。フェージ型はいずれも「D1」であった。

〔事例T2〕平成3年1月28日、松山市内の医療機関において4歳男児の血液から *S. Typhi* が分離された。さらに、家族の検便の結果、祖父（75歳）から同菌が検出された。フェージ型はいずれも「E1」であった。祖父に既往歴は認められなかった。

〔事例T3〕平成3年5月24日温泉郡重信町の病院で、2歳男児の髄液から *S. Typhi* を分離した。フェージ型は「D1」であった。

〔事例T4〕平成3年9月7日松山市内の医療機関で22歳男性の血液から *S. Typhi* を分離した。フェージ型は「A」であった。患者は7月14日から8月31日までインド、ネパール、タイを旅行し、帰国直前から発熱、下痢を繰り返していた。

〔事例T5〕平成4年11月24日新居浜市内の医療機関に49歳男性がパラチフスの疑いで隔離収容された。保健所の菌検索の結果、患者の便から *S. Typhi* が検出された。フェージ型は「D2」であった。患者は、同年5月19日から11月20日の間、出張のためインドネシア（ジャカルタ）に滞在していたが、現地でパラチフスと診断され服薬していた。

〔事例T6〕平成6年1月28日温泉郡重信町の医療機関で42歳男性（西条市在住）が腸チフス患者と診断された。患者は平成5年10月3日から11月19日までインドネシアに出張しており、帰国後下痢発熱などの症状を呈し近医に入院していた。退院後、同様の症状を呈し再入院するも回復しないため転院した。患者の便から分離した菌株のフェージ型は「A」であった。

〔事例T7〕平成6年3月5日松山市内の医療機

表3 赤痢患者情報

事例	発生年月	患者	菌型	初回菌分離場所	耐性パターン	備考
S1	平成元年 5月	松山市 29歳男	<i>S. boydii</i> 5	成田空港検疫所	—	インド・ネパール旅行 井戸水を介して家族他16名に伝播
		松山市 28歳女	<i>S. sonnei</i> <i>S. flexneri</i>	成田空港検疫所	—	
S2	平成4年 9月	松山市 22歳女	<i>S. sonnei</i>	保健所	SP・SA・TC	韓国済州島旅行
S3	平成5年 3月	土居町 55歳女	<i>S. sonnei</i>	保健所	**	大阪市で赤痢患者と接触
S4	平成5年 5月	松山市 39歳男	<i>S. sonnei</i>	医療機関	ABPC・TC CP・SA	インドネシア2週間出張
S5	平成5年 6月	松山市 59歳女	<i>S. flexneri</i> 1b	医療機関	—	インドネシア（バリ島）旅行
S6	平成5年 6月	伊予市 23歳男	<i>S. sonnei</i>	大阪空港検疫所	*	5カ月間インド出張
S7	平成6年 1月	松山市 26歳女	<i>S. sonnei</i>	医療機関	—	インドネシア（バリ島）旅行
		中山町 20歳女	<i>S. sonnei</i>	保健所	—	
		重信町 36歳男	疑似	医療機関	*	

—：薬剤耐性認めず

*：菌分離できず

**：保健所にて同定検査のみ実施

表4 腸チフス患者情報

事例	発生年月	患者	由来	フェージ	初回菌分離場所	診断までの日数	備考
T1	平成2年 12月	松山市 85歳女	血液	D1	医療機関	6日	昭和17年既往歴あり 平成3年3月再発
T2	平成3年 1月	松山市 4歳男	血液	E1	医療機関	11日	
		松山市 75歳男	便	E1	保健所	(保菌者)	患者家族(祖父)
T3	平成3年 5月	御荘町 2歳男	髄液	D1	医療機関	14日	
T4	平成3年 9月	松山市 22歳男	血液	A	医療機関	16日	7/14~8/31 インド、ネパール、タイ旅行
T5	平成4年 11月	新居浜市 49歳男	便	D2	医療機関	40日	約6カ月間インドネシア出張 現地でもパラチフスの診断
T6	平成6年 1月	西条市 42歳男	便	A	医療機関	70日	10/3~11/19 インドネシア出張
T7	平成6年 3月	松山市 10歳男	便	B1	医療機関	10日	

関に入院中の10歳男児が腸チフス患者と診断された。患者は2月23日から発熱、下痢(泥状便)症状を呈しており、3月2日から同病院に入院していた。患者便から分離された菌のフェージ型は「B1」であった。

5) パラチフス

昭和61年以降当県においてパラチフス患者は発生していない。

考察

愛媛県における腸管系法定伝染病の患者数は、減少の傾向にあるが、近年海外渡航者数が増加し特にアジア地域で罹患する事例が増加している。渡航目的は観光旅行が8例、海外駐在および海外出張などで長期間の滞在が5例であった。殆んどは散发例であるが平成元年には水系感染で16名に伝播した事例S1も経験した。

事例C2のコレラ患者は、タイ駐在から一時帰国した男性であったが、検疫検査後の早急な対応により散发に止まった。平成4年の全国のコレラ患者は48名で、このうち34例中30例(88%)が海外からの輸入例で占められ、その感染地は、69%が東南アジアであると推定されている¹⁾。県内のコレラ患者は昭和21年の17名の発生以来であるが今後は海外渡航者の罹患や、輸入食品を介した感染の可能性も危惧されるため、渡航時の衛生知識の徹底および食品衛生の監視が強化されるべきであろう。

赤痢については、平成元年以降9名の海外渡航者

による輸入例が発生し、事例S1を除いて散发例であった。その渡航先は、インド3名、インドネシア5名、韓国1名であり、推定感染地はアジア地域で占められた。全国の感染地別赤痢患者数を見るとアジア地域からの輸入割合が49%で最も多い結果が出ている²⁾。

輸入赤痢菌を群別にみると、S. sonnei 7株、S. flexneri 2株、S. boydii 1株を検出し、全国集計²⁾と同様S. sonneiの分離株数が多かった。S. sonneiのうちSP, SA, TC耐性株およびABPC, TC, CP, SA耐性株が各々1株ずつ検出された。赤痢菌の耐性に関して、主として2剤耐性が多いが、渡航者由来の赤痢菌は、多剤耐性の頻度が高いという報告もある³⁾。治療方針の決定手段のみならず疫学マーカーとしても積極的に分離菌の薬剤感受性試験を実施することが必要である。

なお、アメーバ赤痢の患者が平成4年2例、平成5年2例発生した。症状では、アメーバ性肝膿瘍1例、血便1例、自覚症状なしが2例であった。いずれも海外渡航との関連は見られない。

腸チフスについては、平成3年以降海外渡航による患者が3名発生した(事例T4, T5, T6)。県内では、昭和51年の事例⁴⁾以来、輸入例は発生していなかった。全国的に腸チフス発生数の減少に伴って輸入例の割合が高くなっている⁶⁾が、県内でも国内罹患例を上回る傾向にある。

また小児の散发例が3例発生した(事例T2, T3, T7)。事例T2については家族の検便の結果

同居の祖父から同型ファージのチフス菌を検出したが、他の2例は家族に患者保菌者がいないことから感染経路は不明である。小児の場合、昭和54年に松山市内の小学校で27名の集団発生があったが、⁵⁾その後は散発に止まっている。

現在のところ近年問題となっているチフス菌C P耐性株は分離されていないが、海外渡航者からの分離例が増加の傾向にあるとの報告⁶⁾もあり今後とも注意を払う必要がある。

また、発病から診定までの日数は国内例で1~2週間であるのに対し輸入例は比較的長期にわたっていた。

パラチフスに関しては、昭和61年以降県内での患者発生はみられないが、1993年の全国の患者数44例のうち輸入例が19例(43.2%)を占めている⁶⁾ことから、他の法定伝染病と同様海外渡航者に対する注意が必要である。

法定伝染病の防疫体制の最大の目的は、患者の早期発見と伝播防止であるが、海外渡航者の場合入国時の検疫がその役割を果たしている。しかしその際必ずしも渡航者の自己申告は徹底しておらず、帰国時に発症しながら申告を怠り、症状悪化の後医療機関を受診した例があった。伝染病に関する知識とともに、検疫時における自己申告の重要性について、渡航者に対する周知徹底が必要である。

愛媛県からの海外渡航者数は年々増加し、今後は

松山空港の国際空港化および松山港地域の「輸入促進地域(FAZ)」指定に伴い、人、物流の国際化が図られようとしている。海外の伝染病汚染状況を念頭にいた防疫体制の強化が望まれる。

要約

- 1 昭和59年から平成5年の間に愛媛県においてコレラ3名、赤痢52名、腸チフス18名、パラチフス2名の患者が発生した。
- 2 平成元年以降海外渡航者による輸入例が増加している。インドおよび東南アジア地域の渡航者からコレラ1名、赤痢9名、腸チフス3名が発生した。
- 3 S. sonnei 6株のうち2株が多剤耐性株であった。

文献

- 1) 国立予防衛生研究所：病原微生物検出情報，14，95~96(1993)
- 2) 国立予防衛生研究所：病原微生物検出情報，15，1~2(1994)
- 3) 岸田一則他：千葉衛研報告，13，21~24(1989)
- 4) 斎藤 健他：愛媛衛研年報，52，1~4(1991)
- 5) Nobuyuki Shinohara et al：J. Med. Sci. Biol.，36，191~197(1983)
- 6) 国立予防衛生研究所：病原微生物検出情報，15，73~74(1994)

1993年愛媛県におけるエンテロウイルス71型による 手足口病の流行について

服部昌志 大瀬戸光明 山下育孝 森 正俊
井上博雄 石丸啓郎*1 中野省三*1

An Epidemic of Hand, Foot and Mouth Disease Associated with Enterovirus 71 Infection in Ehime in 1993

Masashi HATTORI, Mitsuaki OSETO, Yasutaka YAMASHITA, Masatoshi MORI,
Hiroo INOUE, Yoshiro ISHIMARU, Shozo NAKANO

Hand, foot and mouth disease (HFMD) is an acute exanthematous disease, which spread among infants and children in summer and autumn, due mainly to enterovirus type 71 (EV71), coxsackievirus A group type 16 (CA16), type 10 (CA10).

An epidemic of HFMD took place in Ehime Prefecture in 1993, which was the largest scale in the last three years. Some of HFMD cases were complicated with aseptic meningitis. But virus was not isolated at all from cerebrospinal fluid of meningitis cases. EV71 could be isolated from throat swabs, rectal swabs and vesicle fluid of 37 cases of HFMD. In addition, it is serologically confirmed that cases were infected by EV71.

In cross-neutralization tests, it is suggested that antigenicity of isolates in 1993 is different from that of EV71 prototype, BrCr.

Keywords: enterovirus 71, virus isolation, neutralizing antibody titer, 80% plaque reduction technique, antigenicity

はじめに

手足口病は夏期から秋期にかけて乳幼児間で流行する急性発疹性疾患である。起因ウイルスとして幾つかのエンテロウイルスがあげられているが、エンテロウイルス71型 (EV71)、コクサッキーウイルスA群16型および10型がその主たるものである。そして、各ウイルスが何年おきに流行を繰り返し、ある年は単独で、またある年は混合流行を引き起こしている。愛媛県では1993年に、1990年以来3年ぶりに手足口病の大きな流行をみた。主に松山市における患者からのウイルス分離、血清検査を行った結

果、今回の流行はEV71によるものであることが分かった。さらに、分離ウイルスの抗原性が、EV71標準株および1970年代の分離株と異なる様相を呈したので報告する。

材料および方法

1 ウイルスの分離・同定

1993年4月から12月の間に手足口病と診断された患者80名より採取した咽頭拭い液79検体、髄液24検体、直腸拭い液31検体、水疱内容液30検体についてウイルス分離を試みた。ウイルス分離はFL, RD-18 S, Vero, およびGMK細胞を用い、33°C, 14日間回転培養を行い、CPEの出現をもってウイルス分離陽性とした。なお、GMK細胞については、さ

愛媛県立衛生研究所 松山市三番町8丁目234

*1 石丸小児科医院

らに1回継代し観察を続けた。分離ウイルスの同定は自家製ウサギ免疫血清による中和試験を行った。

2 抗体価測定

患者15名より採取した対血清を含む32検体についてEV71標準株(BrCr)を用いた80%ブラック減少法により中和抗体価を測定した。また、あわせて1992年10月および1993年10月に採取した一般住民(0~14歳)の血清、各年齢群8~20件、計182件について同様に93-774株、BrCr株に対する1:8以上の抗体保有率を調べた。

ブラック減少法: GMK細胞を用い、一次重層には2%メチルセルロース(和光, 4000cP)重層液を、二次重層にはニュートラルレッドを添加(0.005%)した1.5%寒天(Difco, agar purified)重層液を用いた。

3 各年分離株の交差中和試験

EV71標準株(BrCr)および1973年, 78年, 93年分離株とその家兎免疫血清を用いて、80%ブラック減少法により交差中和試験を行い抗原性を比較した。

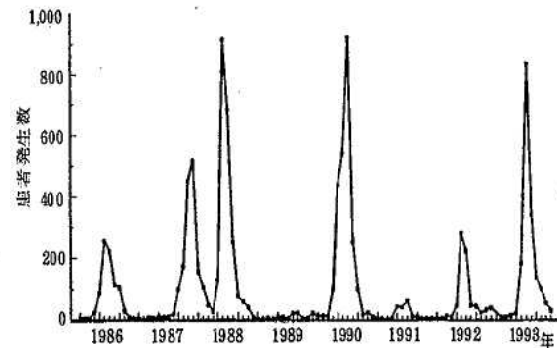


図1 手足口病患者発生状況(1986~1993年,愛媛県)

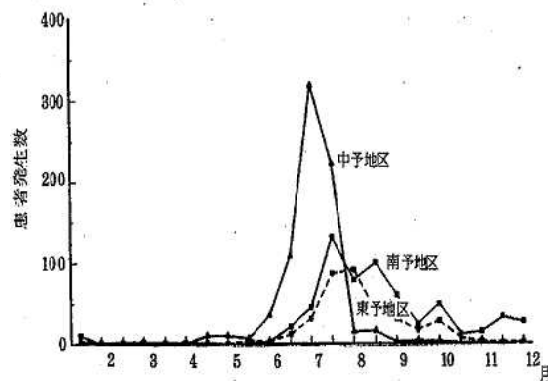


図2 手足口病患者発生状況(1993年愛媛県)

結果

1 患者発生状況

1993年愛媛県における手足口病患者数をみると1990年以来3年ぶりの大きな流行であった(図1)。患者の発生時期を県内の地区別にみると中予地区では6月前半から7月後半まで、東予・南予地区では6月後半から10月前半まで流行が持続していたことが分かる(図2)。また、1993年の流行を年齢別にみると4歳以下の患者が80%を占めていた(図3)。

また、今回の手足口病の流行にも無菌性髄膜炎の合併を認める例があり、ある1医療機関では手足口病患者229例中20例が無菌性髄膜炎と診断されている。

2 ウイルス分離状況

手足口病患者80名中38名からウイルスが分離され、37名についてはEV71と同定された。また、12月の患者1名については、CA16と同定された(図4)。また、検体別のウイルス分離状況では水泡内容液からの分離率をもっとも高かったが、髄膜炎併発患者の髄液からは1例も分離されなかった(表1)。

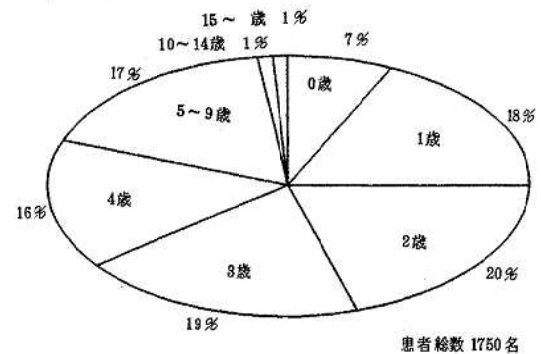


図3 手足口病患者年齢分布(愛媛県1993年)

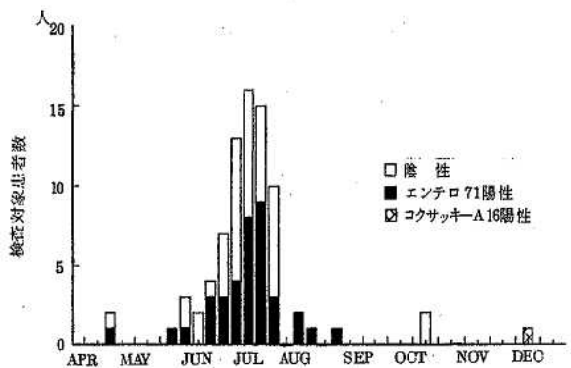


図4 手足口病患者からのエンテロウイルス71型分離状況

3 患者血清抗体価

急性期、回復期の対血清の得られた患者の抗 BrCr 株抗体価は 15 名中 14 名において 4 倍以上の抗体価上昇が認められており、1 名についても 8 倍未満から 8 倍への抗体上昇が認められ、さらに、直腸ぬぐい液から EV71 が分離された (図 5)。

4 住民の EV71 抗体保有状況

1993 年手足口病流行前および流行後となる 1992 年と 1993 年の住民血清の EV71 標準株 (BrCr) と 93 年分離株 (93-774) に対する中和抗体 (1:8 以上) 保有率を調べた (図 6)。流行前には両株に対する抗体保有率は 7~9 歳をピークに加齢とともに上昇していたが、流行後には 6 歳以下の年齢で保有率が顕著に上昇しており、保有率は概ね 50% に達していた。

表1 手足口病患者からの材料別ウイルス分離数

材料名	検体数	EV71 陽性	CA16 陽性
咽頭ぬぐい液	79	23	0
髄液	24	0	0
直腸ぬぐい液	31	3	0
水泡内容液	30	13	1
計	164	39	1

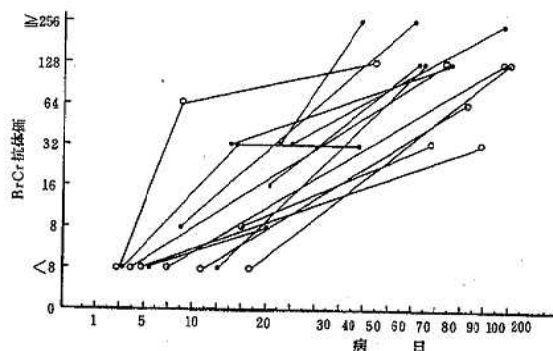


図 5 患者血清の EV71 抗体価の変動
○—無菌性髄膜炎併発患者

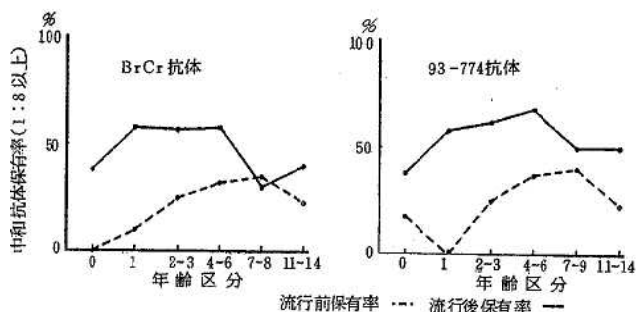


図 6 年齢区分別エンテロウイルス 71 型中和抗体保有状況

5 交差中和試験

各ウイルスおよび抗血清間における交差中和試験の結果を表 2 に示した。73-2118 株、78-034 株は BrCr 株と近似した抗原性を示したのに対し、90-445 株は抗 78-034 血清に対しホモの 4 倍の抗体価を示した。そして 93 年分離株 (93-774, 93-695, 93-715) は抗 BrCr 血清、抗 73-2118 血清、抗 78-034 血清に対しホモの 2 倍から 8 倍、さらに抗 93-774 血清に対しては BrCr 株、73-2118 株、78-034 株よりも 16~32 倍も高い抗体価を示した。

考察

1986 年以降愛媛県の患者発生状況は全国情報¹⁾に酷似している。1993 年の流行は初夏から秋まで続くほぼ定型的な流行であった。また、患者の年齢構成も 4 歳以下の乳幼児が全体の 80% を超えており、従来の報告と同様である^{2, 3)}。

今回分離されたウイルスは流行時期からずれた 12 月に分離された CA16 の 1 株を除き、他はすべて EV71 であった。また、患者血清抗体価の上昇、住民の抗体保有率の上昇を考え併せると、1993 年松山市を中心とする手足口病の流行は EV71 によるものであることが確認された。

EV71 感染は日本では従来より手足口病の原因としてよく知られているが、欧米ではむしろ中枢神経系疾患関連ウイルスとされている^{4~7)}。愛媛でも 1973 年、78 年流行時に手足口病に合併した中枢神経疾患症例からの EV71 分離が報告されている^{8~10)}。1993 年の流行時も当所で検体を扱った患者の中に無菌性髄膜炎を併発している症例が多かった。しかし、患者髄液からのウイルス分離検査では、24 例中、陽性例は一例も認められなかった。従来より EV71 による髄膜炎はよく知られているところであるが、髄液からのウイルス分離率は他のエンテロウイルスのそれと比し、極めて低い^{3, 11)}。この理由について

は、明らかではない。しかしながら、髄膜炎併発患者の血清では、EV71 抗体価の有意上昇が認められており、EV71 感染が髄膜炎を引き起こしていると思われる。

ウイルスの抗原性を交差中和試験で比較してみると、93 年分離株は過去の株に対する抗血清によって強く中和され、逆に標準株を含む過去の株は 93 年分離株に対する抗血清で中和されにくいという抗原性の変異が見られた。

表2 EV71の交差中和試験

ウイルス株	抗 血 清			
	抗BrCr	抗73-2118	抗78-034	抗93-774
BrCr	800	400	3200	200
73-2118	800	400	6400	200
78-034	400	200	6400	200
90-445	800	200	25600	<800
93-774	3200	800	25600	3200
93-695	3200	800	51200	6400
93-715	3200	800	51200	3200

一般にエンテロウイルスの抗原変異は従来株に対する抗血清から中和を免れようとする方向に向かっていることが多いのであるが、今回の抗原性変異は、これとは逆方向の変異と考えられる。1973年、78年の愛媛における分離株は標準株との間に抗原性の差異は認められておらず⁹⁾、今回の流行株はかなり抗原変異したEV71であったと思われる。

今回の流行前後の住民の抗体保有率をみると、6歳以下の保有率の上昇が著しく、患者発生年齢とよく一致している。また、標準株(BrCr)と93年分離株(93-774)に対する抗体保有率には顕著な差は認められないことから、今回の流行の原因が抗原性の変異にあるとは思われない。

まとめ

- 1 1993年6月から8月にかけて愛媛県では手足口病の中規模流行がみられた。
- 2 ウイルス分離検査、血清検査の結果から今回の手足口病の流行はEV71によるものであることが確認された。
- 3 交差中和試験により93年分離株の抗原性は標準株および70年代の分離株と異なっていることが示唆

された。

文献

- 1) 厚生省結核・感染症対策室, 国立予防衛生研究所: 病原微生物検出状況 **14**, 241-242 (1993)
- 2) 厚生省結核・感染症対策室, 国立予防衛生研究所: 病原微生物検出情報 **11**, 145-164 (1990)
- 3) 厚生省結核・感染症対策室, 国立予防衛生研究所: 病原微生物検出情報 **12**, 231-254 (1991)
- 4) Rudolf D. et al: Proc. Soc. Exp. Bio. Med. **148**, 203-207 (1975)
- 5) J. Blomberg et al: Lancet, 142 (1974)
- 6) Nathalie J. Schmidt et al: J. Infec. Dis., **129**, 304-309 (1974)
- 7) James P. Alexander et al: J. Infec. Dis., **169**, 905-908 (1994)
- 8) Yoshiro Ishimaru et al: Arch. Dis. Child., **55**, 583-588 (1980)
- 9) 高見俊才他: 臨床とウイルス, **7**, 104-108 (1979)
- 10) 高見俊才他: 愛媛衛研年報, **39**, 9-12 (1978)
- 11) 森田修行: LABEAM, **5** (11&12), 5-8 (1993)

愛媛県における21-水酸化酵素欠損症マススクリーニングの現況

土居重敏* 永井雅子 今西利花 浅野由紀子
斎藤 健 森 正俊 井上博雄

Current Status of mass screening for 21-hydroxylase deficiency in Ehime Prefecture

Shigekazu DOI, Masako NAGAI, Rika IMANISHI, Yukiko ASANO,
Tsuyoshi SAITOH, Masatoshi MORI, Hiroo INOUE

In Ehime Prefecture, mass screening for 21-hydroxylase deficiency (21-OHD) measuring the 17-hydroxyprogesteron (17-OHP) in blood adsorbed on a piece of filter paper using enzyme linked immunosorbent assay (ELISA) was started from December 1989.

Up to March 1994, 68,029 infants were examined and 6 cases of 21-OHD were detected. As the results, the frequencies of 21-OHD were 1:11338. All the infants were detected at early stage and treated by chemotherapy. For the case profiles, one was the simple virilism form and five cases were salt-losing form. All cases showed some pigmentation and five cases showed the clitoris hypertrophy.

Keywords : mass screening, 21-hydroxylase deficiency, 17-hydroxyprogesteron, enzyme linked immunoassay, simple virilism form, salt-losing form

はじめに

先天性副腎過形成症 (CAH) は, 副腎皮質の欠損酵素の種類によっていくつかの病型に分類される。

中でもスクリーニングの対象としているのは, CAHの約90%を占める21-水酸化酵素欠損症 (21-OHD)である。21-OHDは副腎内において17-OHPからアンドロゲンが増加し, 男性化が起こる疾患である。女児では男児と誤認するような外観 (半陰陽) を呈する事が多く, 思春期早発, 成長促進などを認め放置すると嘔吐, 脱水, 電解質異常, 末梢循環不全へと進行し死亡にいたる危険な疾患である¹⁻⁶⁾。

愛媛県では, 平成元年12月より厚生省指導要綱に基づき早期発見, 早期治療を目標に障害防止に取り組んでいる。

平成元年12月から平成6年3月までにスクリー

ングを受検した新生児は 68,029 件で6例の 21-OHD 患児を早期に発見し治療した。

今回, マスクリーニングによって県下で発見された6例の 21-OHDの追跡調査およびスクリーニングの実施状況について報告する。

対象と方法

全県下において産科医療機関で出生した新生児を対象にスクリーニングを実施している。

スクリーニング方法 (図1, 2) は, 生後4~5日目に採血した新生児の乾燥血液濾紙を用い, 第2抗体をマイクロプレートに固相化したELISA法により血中の17-OHPを測定した。

判定基準は図3のとおりで, 初回検査で上位5%および4 ng/ml以上を再測定した。再測定はすべて抽出法で行い3.5 ng/ml以上の検体については再検査を依頼した。また, 初回検査において抽出法10 ng/ml以上の検体や再検査で基準値を超えた場合

は直ちに精密検査の依頼を行っている⁷⁾。

結果および考察

愛媛県において行政事業として平成元年度12月から平成6年3月末までに実施されたCAHマスキング受検者は、68,029件で6例の患児が発見された。

発生頻度は1/11,338で諏訪らの全国調査による発生頻度(1/19,806)の2倍高い傾向にあった(表4)。

6例の性別、病型は表3のとおりで男女比は男1:女5で女児が多く、病型は単純型1:塩喪失型5で塩喪失型が80%以上を占めていた。

臨床所見としては、全症例に色素沈着がみられ、女児5例すべてに外生殖器異常を認め、内2例に共同尿管洞がみられた。そのほかの症状では、嘔吐1例、脱水症状2例、ショック症状1例がみられた。

また、再検査依頼件数や精密検査依頼件数について調査した結果、再検査依頼件数は280件で総検査件数(68,029)の0.41%に相当した。さらに精密検査依頼件数は57件で全体の0.08%であった。

一般的に未熟児の17-OHPは高値を呈することが知られているが、図4.5はスクリーニング陽性にて精密検査を依頼した例の出生体重別、在胎週数別の17-OHPを見たものである。

表3は21-OHD患児の検査成績で17-OHP、

(直接法)	
標準血液濾紙	2枚
検体血液濾紙	1枚
第二抗体固相化プレート	
酵素標識17-OHP溶液	50 μ l
17-OHP抗血清溶液	100 μ l
25 $^{\circ}$ C	16~20時間 インキュベート
洗浄液	300 μ l
デカント	
5回 洗浄を繰り返す	
基質液 200 μ l	
25 $^{\circ}$ C	30分間 インキュベート
反応停止液	50 μ l
吸光度の測定	
測定波長	415/492nm

図1 乾燥濾紙血液による17-OHP測定法

ACTH, 21-DOF, アルドステロン, テストステロン, レニン活性, 尿中プログナトリオールの上昇やコルチゾールの低下, 電解質異常等が認められた。

21-OHDは出生後1~2週間で高K血症によるショック症状を起こすため、迅速で適切な対応が必要とされる。県下で21-OHDと診断された6例は平均7日(2~10)でスクリーニングにより早期に発見され治療が開始された。そのため1例にショック症状が見られたが、迅速な対応(化学療法)により全例予後は良好である。

21-OHDと診断された6例の平均在胎週数は33.5週、出生体重3,125gで標準児と差はなかったが1例が未熟児(2200g, 34週)であった。今後スクリーニングを実施していく上で特に注意することは、臨床的に電解質異常(低Na, 高K)を示した症例が80%以上を占めていると考えたとスクリーニングで早期に発見された21-OHDは塩喪失状態にあるとみなし、迅速に対応していかなければならないと考える。そのためには、医療機関、検査機関、衛生行政局の密接な連絡と迅速な対応が必要である。

(抽出法)	
標準血液濾紙	2枚
検体血液濾紙	2枚
生理食塩水	200 μ l
超音波洗浄器	
ジエチルエーテル	2ml
振倒攪拌	
冷却遠心分離	3000rpm 5min
-40 $^{\circ}$ C 60min	
エーテル層分取	
40~50 $^{\circ}$ C 60min	
第二抗体固相化プレート	
酵素標識17-OHP溶液	100 μ l
17-OHP抗血清溶液	100 μ l
25 $^{\circ}$ C	180min インキュベート
洗浄液	300 μ l
5回 洗浄繰り返す	
基質液 200 μ l	
25 $^{\circ}$ C	50min インキュベート
反応停止液	50 μ l
吸光度の測定	
測定波長	415/492nm

図2 乾燥血液濾紙による17-OHP測定法

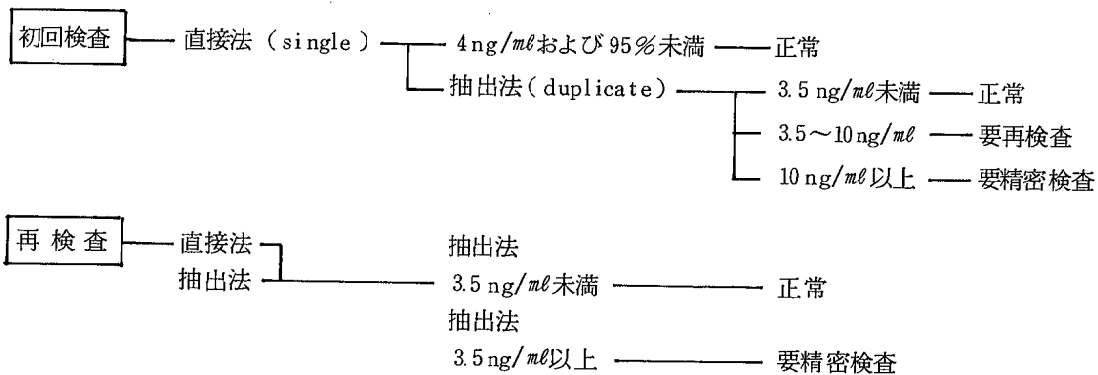


図3 21-OHDスクリーニングの判定基準

表1 スクリーニング実施状況

平成元年12月~平成6年3月末

検査総数	再検査依頼件数		精密検査依頼件数		患者数
6 8,029	280 (171)	0.41%	57 (48)	0.08%	6 (1)

表2 患児臨床所見

症 例	1	2	3	4	5	6
在胎週数 週	34	40	38	40	39	40
出生体重 g	2200	2875	3448	3480	3745	3002
性 別	女	女	男	女	女	女
病 型	塩喪失型	塩喪失型	塩喪失型	塩喪失型	塩喪失型	単純型
17-OHP 値(直接法) ng/ml (抽出法)	>300 195	>300 >300	>300 >300	79.3 37.8	>300 231	>300 >300
色素沈着	+	+	+	+	+	+
外性器異常	+	+	-	+	+	+
共同尿管洞	-	+	-	+	-	-
嘔吐	-	+	-	-	-	-
脱水	-	+	+	-	+	-
シヨック	-	-	+	-	-	-
電解質異常	+	+	+	+	+	-

表3 21-OHD 患児精密検査成績

検査項目 \ 症例		1	2	3	4	5	6
17-OHP	ng/ml	130↑↑	386↑↑	1330↑↑↑	96↑	318↑↑	280↑↑
ACTH	pg/ml	102↑	31	157↑	110↑	870↑↑	18.3
21-DOF	ng/ml		97↑↑		23↑		
コルチゾール	μg/dl	66↓	20.5				
アルドステロン	pg/ml	610↑↑	637↑↑		1236↑↑↑		84.6↑
テストステロン	ng/ml	627↑↑	12.5↑	359↑↑	1.3	642↑↑	1508↑↑↑
レニン活性	ng/ml/hr	>20↑↑	46↑↑	42↑↑		142↑↑	15.7↑↑
尿中プログナントリオール	mg/day		0.9↑				
Na	mEq/l	124↓	125↓	119↓↓	130↓	132↓	
K	mEq/l	7.9↑	7.2↑	11.4↑↑	5.8↑	6.6↑	

表4 愛媛県における21-OHDの発生頻度

	愛 媛 県	全 国
発生頻度	1 / 1,1338	1 / 19,806 ※

※ 諏訪らの21-OHD調査成績

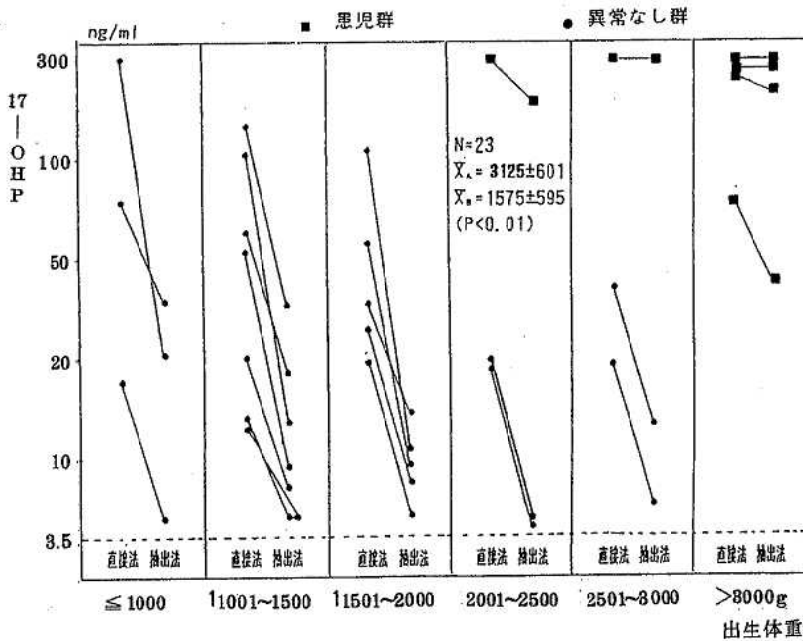


図4 スクリーニング陽性者の出生体重別17-OHP値の分布

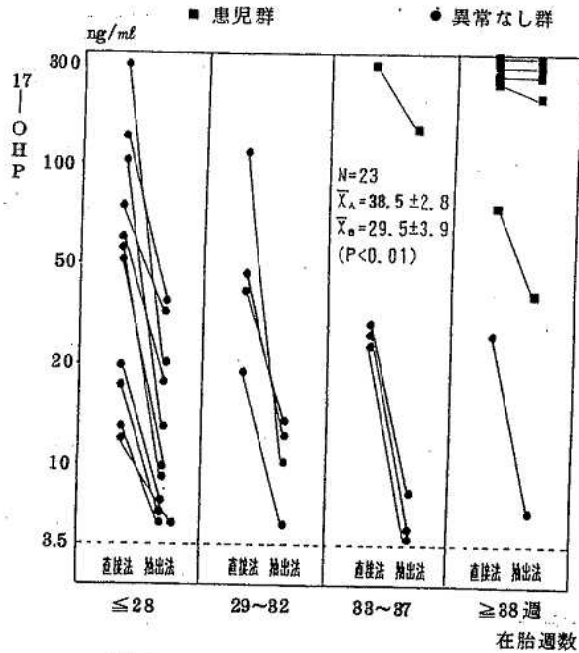


図5 スクリーニング陽性者の在胎週数別17-OHP値の分布

まとめ

- 1) 平成元年12月より平成6年3月までにスクリーニングを受検した新生児は68,029件で6例の患児を発見した。21-OHDの発生頻度は約1/11338で全国平均発生頻度の約2倍であった。
- 2) 追跡調査の結果、1例が21-OHD単純型で5例が21-OHD塩喪失型であった。
- 3) 臨床所見としては、全例に色素沈着がみられ、女児5例すべてに外性器異常を認めた。内2例に共同尿生殖洞が見られた。そのほか、嘔吐1例、脱水3例、ショック症状1例が見られた。

なお、本論文の要旨は第20回日本マススクリーニング学会(1992.9.京都市)において発表した。

文献

- 1) 諏訪城三：先天性副腎過形成症スクリーニング母子愛育会，15-40(1990)
- 2) 諏訪城三：医学のあゆみ 153, 114-117(1990)
- 3) 諏訪城三：特殊ミルク情報 17, 65-68(1988)
- 4) 成瀬 浩：新生児マススクリーニングハンドブック 南江堂
- 5) 吉田 尚：内分泌学 南江堂, 75-85(1990)
- 6) 小澤美奈子：新生化学実験講座 代謝異常15, 東京化学同人, 6-7(1992)
- 7) 土居重敏：愛媛県立衛生研究所年報 51, 11-15(1990)

HLAクラスII抗原のDNAタイピングと 血清学的タイピング

鳥谷竜哉 奥山正明 坂本尚穂 藤原郁子 井上博雄

A Comparative Study of HLA Class II Typing by PCR-RFLP Method and Standard Serology

Tatsuya KARASUDANI, Masaaki OKUYAMA, Hisaho SAKAMOTO,
Ikuko FUJIWARA, Hiroo INOUE

We studied HLA Class II typing which had been performed in Ehime Prefecture since 1991. The results of HLA Class II typing determined by standard serological typing were compared with those determined by DNA typing using polymerase chain reaction-restriction fragment length polymorphism (PCR-RFLP) method, which we have further modified for DR52 associated antigen-DRB1 and DPB1 genotyping by using seven different restriction endonucleases. With the serological method, HLA-DR typings in 57.1% of candidates for bone marrow transplantation, in 40.0% of candidates for renal transplantation and in 7.7% of healthy individuals were found to be discrepant when they were tested by PCR-RFLP typing. The discrepancies of DR antigen assigned by serology and PCR-RFLP has also been found in DR14 types, which monospecific antisera are generally difficult to obtain. And then, we make comparison of DQ antigen between serology and PCR-RFLP.

Keywords : HLA-DR,DQ,DP, PCR-RFLP, DNA typing, serology

はじめに

当所では骨髄移植、腎移植などの際のドナーとレシピエントの検索のために組織適合性検査を実施している。そのうち、移植における成功の鍵といわれているクラスII抗原については、一般的に特異性の高い抗血清が不足している上に、リンパ球の状態によっては純度の高いB細胞が分離できない場合があるなど、血清学的方法では判定困難な症例が問題となっている。

一方、最近の分子生物学の進歩によりDNAレベルでのクラスII抗原の遺伝的多型性の解析が可能となった結果、従来から行われている血清学的タイピングの不完全さが明らかにされ、その約1/4にDNAタイピングとの不一致がみられたとの報告もある¹⁾。

当所では、血清学的タイピングを補足するため、1991年からPCR-RFLP法を併せて実施しており、これらのデータをもとに血清学的タイピングとDNAタイピングとの結果を比較し、問題点等を検討した。

対象と方法

1 対象

1991年12月から1993年9月までの間に、当所に検査依頼のあった骨髄移植希望者21例、腎移植希望者5例とそれらの家族及び健常者90例の計116例を対象とした。

2 血清学的タイピング

自家製のタイピングトレイを用い、NIH microcytotoxicity test法に従ってHLAタイピングを行った。

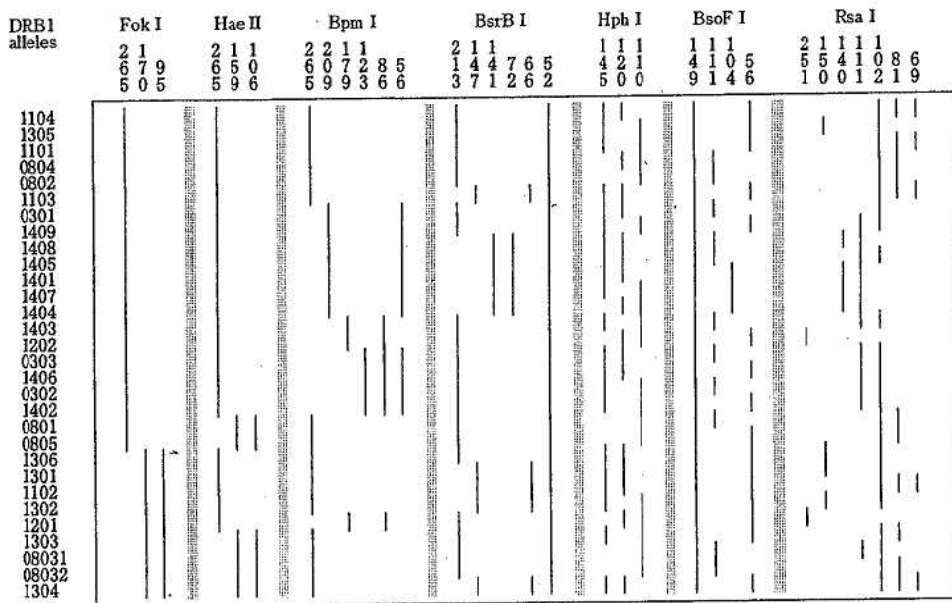


図1 DRB1-DR52グループのホモ接合体における制限酵素切断パターン

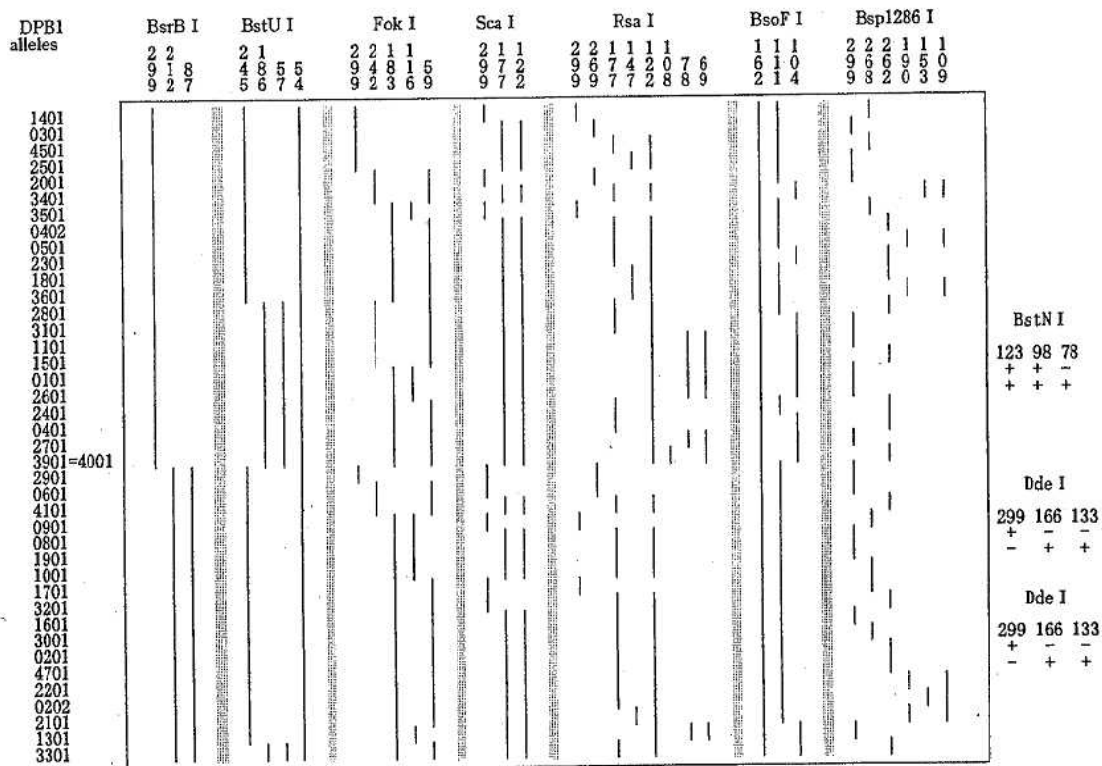


図2 DPB1のホモ接合体における制限酵素切断パターン

3 DNAタイピング (PCR-RFLP法)

DNAの抽出は, 第11回国際HLAワークショップの salting out 法に準じてリンパ球分離後の有核細胞から行ったが, 緊急時には全血から90分以内に細胞溶解液を作成し, テンプレートとして用いた²⁾.

PCR-RFLP法は, Nomura, Otaらの方法³⁻⁵⁾に準じて行った. なお, DRB1遺伝子のDR52グループと, DPB1遺伝子のRFLP解析には, その報告後新たに多数の対立遺伝子 (allele) が発見されたため⁶⁾, 判定には独自の制限酵素の組合せ (DRB1-DR52グループ: Fok I, Hae II, Bpm I, BsrB I, Hph I, BsoF I, Rsa I, DPB1: BsrB I, Bst U I, Fok I, Sca I, Rsa I, BsoF I, Bsp 1286 I) を用いた.

結果

1 DRB1, DPB1 alleles のRFLP解析

図1に, DRB1-DR52グループの30種のホモ接合体を Fok I, Hae II, Bpm I, BsrB I, Hph I, BsoF I, Rsa I の7種の制限酵素で切断したパターンを示す. Bpm I は*1402と*1409を区別するため, BsrB I は*1103と*1104を区別するため, また, BsoF I は SfaN I と Sac II の代わりに用いた. 図2には40種のDPB1 allelesのホモ接合体を BsrB I, Bst U I, Fok I, Sca I, Rsa I, BsoF I, Bsp 1286 I の7種の制限酵素で切断したパターンを示す. Sca I は*0201と*3201を区別するため, また, BsoF I は*0402と*2301を区別するために用いた. ヘテロ接合体についても同じ制限酵素の組み合わせで解析を行い, ホモ接合体と同様に判定が可能であった (図3). なお, 今回のRFLP法の解析の中では, Hph I と Sca I の2種類の制限酵素については, 不完全な切断によって判定が不明瞭となるケースがあり, 注意を要した. ただし, このことは反応時間を長くする, 制限酵素のロットを変更する等で対応が可能であると考えられる.

2 対象者別抗原検出数の比較

今回検討を行った116例のDR抗原検出数を, 血清学的方法とPCR-RFLP法とで対象者別に比較した結果を表1に示す. 血清学的方法とPCR-RFLP法との間で抗原検出数が異なる割合は, 健常者では7.7%であったが, 骨髄移植希望者では57.1%, 腎移植希望者では40.0%と高率であった.

(1) 血清学的判定不能例 (-, -) は骨髄移植希望者に21例中9例, 腎移植希望者に5例中1例みられたが, PCR-RFLP法では全例から2抗原が検出された.

(2) 血清学的1抗原検出例 (Ag, -) のうち, 健常者の9例中4例, 骨髄移植希望者の2例, 腎移植希望者1例において, PCR-RFLP法で2抗原が検出された.

(3) 血清学的2抗原検出例 (Ag, Ag) のうち, 健常者3例, 骨髄移植希望者1例においてPCR-RFLP法で異なる抗原が確認された.

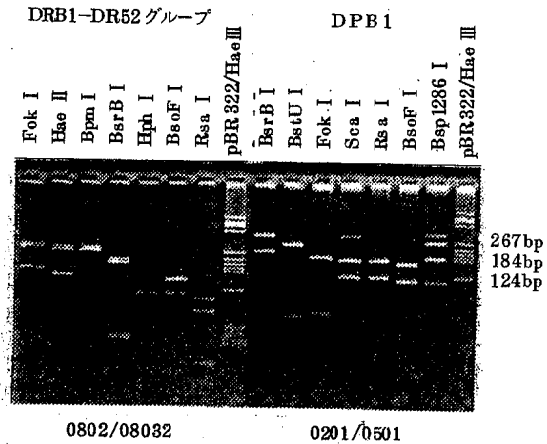


図3 ヘテロ接合体の電気泳動パターン

表1 HLA-DR抗原の抗原検出数 (血清学的タイピングとDNAタイピングとの比較)

	健常者		骨髄移植希望者		腎移植希望者	
	血清	DNA	血清	DNA	血清	DNA
Ag, Ag ^a	81	85 (3) ^d	10	21 (1) ^d	3	5
Ag, - ^b	9	5	2	0	1	0
-, - ^c	0	0	9	0	1	0
不一致例	7/90 (7.7%)		12/21 (57.1%)		2/5 (40.0%)	

a 2抗原検出例

b 1抗原検出例

c 2抗原ブランク (判定不能) 例

d 血清学的タイピングで2抗原検出されたが, DNAタイピングにより別の抗原が検出された例

表2 HLA-DQ抗原の抗原検出数(血清学的タイピングとDNAタイピングとの比較)

	健常者		骨髄移植希望者		腎移植希望者	
	血清	DNA	血清	DNA	血清	DNA
Ag, Ag ^a	51	65(2) ^d	8	18	0	2
Ag, -b	39 (14)	25	3	3	3	3
-, -c	0	0	10	0	2	0
不一致例	2/90 (2.2%)		10/21 (47.6%)		2/5 (40.0%)	

- a 2抗原検出例 b 1抗原検出例 c 2抗原ブランク(判定不能)例
 d 血清学的タイピングで2抗原検出されたが、DNAタイピングにより別の抗原が検出された例
 () 内はDQ4に対する抗血清がなく判定できなかったブランク例であり、不一致例には含めていない

DQ抗原についても同様の検討を行った結果、骨髄移植希望者の47.6%、腎移植希望者の40.0%に不一致例がみられた(表2)。また、健常者における2例の不一致例は、血清学的に2抗原が検出されたがPCR-RFLP法では異なる抗原が確認された。

3 検出抗原不一致例の内訳

健常者において血清学的方法とPCR-RFLP法とで異なる抗原が確認されたDR抗原7例(No.1~No.7)、DQ抗原2例(No.8, No.9)の内訳を表3に示す。なお、表4には、HLA alleleとそれに対応する血清学的特異性を参考として示した。DR抗原では7例中6例が血清学的方法でDR14が検出されなかった例であり、そのうち、No.3, No.4の例ではDR12やDR13とのヘテロ接合体において血清学的にDR14が検出されにくいことを、また、No.5, No.6の例ではDRB1*1403が血清学的方法でDR5(DR11)とタイプミスされやすいことを示している。

一方、DQ抗原ではDQB1*0303, *0302を血清学的方法でDQ7とタイプした例がそれぞれ1例ずつあり(No.8, No.9)、DQ抗原ではDQ3のサブタイプに注意を要することがわかった。

考察

HLA抗原の遺伝的多型性は、従来より血清学的方法を中心に解析されてきたが、近年の急速な分子生物学的手法の発達に伴い、DNAレベルで解析可能となった。その結果、血清学的に決定されたHLA抗原と、DNAタイピングで決定されたalleleから推定されるHLA抗原との間の不一致例が明らかとなり、健常者においてもDR抗原で6%程度の不一致率は不可避であるとの報告がある⁷⁾。

今回は、DR抗原、DQ抗原について比較を行ったが、タイピング不能例を含めた不一致率は健常者においてはそれぞれ7.7%、2.2%であったのに対して、骨髄移植希望者で57.1%、47.6%、腎移植希

表3 健常者におけるタイピング不一致例の内訳

No.	血清	DNA
1	DR -, 1	DRB1* 1401, 0101
2	DR -, 2	DRB1* 1401, 1501
3	DR -, 13	DRB1* 1401, 1302
4	DR -, 12	DRB1* 1403, 1202
5	DR 5, 9	DRB1* 1403, 0901
6	DR 11, 41	DRB1* 1403, 0405
7	DR 13, 8.1	DRB1* 0803, 0803
8	DQ 7, 4	DQB1* 0303, 0401
9	DQ 7, -	DQB1* 0302, 0302

表4 HLA alleleと血清学的特異性

血清学的特異性		HLA allele	
DR 5	DR 11	DRB1* 1101	
		1102	
	DR 12	1103	
		1104	
		1201	
		1202	
DR 6	DR 13	1301	
		1302	
		1303	
		1304	
		1305	
		1306	
	DR 14	1401	
		1404	
		1405	
		1403	
DR 14 03	1403		
	1402		
DR 8	DR 8 1	0803 1	
		0803 2	
DR 8	DR 8 2	0801	
		0802	
	DQ 3	DQB1* 0301	0804
			0805
			0301
DQ 3	DQB1* 0302	0302	
		0303	
		0303	

望者とともに40.0%と高率に出現した。前者は主に血液疾患の場合が多く末梢血の細胞構築が通常とはかなり異なっていること、後者は透析等の治療の影響により、どちらも正常なBリンパ球が分離しにくいことが考えられるが、DNAタイピングではリンパ球の状態に左右されることなく明瞭な判定が可能であった。

健常者における不一致例についてはその多くが、DR 5, 6, 8 関連抗原とDQ 3 抗原のサブタイプに関するものであり、ともに精度の高い抗血清が不足していることが主な原因と考えられる。

現在、骨髄移植、腎移植時のドナーとレシピエントの検索は、血清学的適合度を基準に選択されている。しかし、血清学的に決定されてきたHLAクラスII抗原が分子レベルでより多くのサブタイプに分かれ、サブタイプの差が移植成績に影響を及ぼしているとの報告や⁸⁾、前述のようにリンパ球の状態、抗血清の品質に依存するなど、血清学的タイピングでの限界が指摘されている。

以上のことから、今後の移植成績の向上のためにはHLAクラスII抗原の分子レベルでの適合を念頭に置いたマッチング等のシステムづくりが課題になると考えられる。

まとめ

1 新たな制限酵素を組み合わせたRFLP解析は、ホモ、ヘテロ接合体ともに判定が可能であった。

2 骨髄移植希望者、腎移植希望者では健常者よりも血清学的判定不能例が高率に出現したが、DNAタイピングでは全例判定が可能であった。

3 健常者における血清学的方法とPCR-RFLP法との不一致例の多くは、DR 5, 6, 8 関連抗原(特にDR 14) 及びDQ 3 抗原であった。

本研究の一部は、財団法人大同生命厚生事業団第19回医学研究助成により実施し、本報告の要旨は、第11回日本組織適合性ワークショップで発表した。

文献

- 1) Mytilineos J. et al: Transplantation, **50**, 870~873 (1990)
- 2) Erlich H.A. et al: PCRテクノロジー, 45~54, 宝酒造(株) (1990)
- 3) Nomura N. et al: Tissue Antigens, **38**, 53~59 (1991)
- 4) Ota M. et al: Tissue Antigens, **38**, 60~71 (1991)
- 5) Ota M. et al: Tissue Antigens, **39**, 187~202 (1992)
- 6) Marsh S.G.E. et al: Tissue Antigens, **40**, 229~243 (1992)
- 7) Kohara S. et al: 移植, **28**(1), 98~103 (1992)
- 8) Ichikawa Y. et al: 移植, **28**(3), 308~314 (1993)

愛媛県内の風疹の流行状況と抗体価の推移

藤原郁子 山下育孝 奥山正明 大瀬戸光明 森正俊

The Change of Epidemic of Rubella and HI Antibody Titers in Ehime Prefecture

Ikuko FUJIWARA, Yasutaka YAMASHITA, Masaaki OKUYAMA, Mitsuaki OHSETO, Masatoshi MORI

The change of epidemic of rubella in Ehime Prefecture was compared with what of in Japan, and the relation between the change and vaccination of rubella was discussed. The epidemic of rubella depends on the positive conversion rate under the influence of last prevalence and the vaccination, the epidemic repeated when and where rubella-negative pool had grown.

374 cases of female sera 15 to 39 years old tested in this institute from April 1988 to March 1994, were discussed on the change of rubella hemagglutination inhibition (HI) antibody titers. In a rubella-prevalent year, the negative pool decreased and the high-antibody-titer's pool increased, so it was imagined that there was a lot of first infection of rubella. After that, the negative rate was still about 10% in an age group of the vaccination (15-29), and about 20% in elder age group (30-39), so the improvement for the vaccination rate is expected, furthermore, some enlightenment and measures for congenital rubella syndrome (CRS) prevention are expected.

Keywords : rubella, vaccination, negative pool, HI antibody titers, first infection, CRS

はじめに

風疹は、風疹ウイルスによって起こる急性発疹性感染症で小児に好発し、通常春先から初夏にかけて流行する。図1に示すように、感染後約70%に発疹・発熱などの症状がみられるが、比較的軽く予後も良好で、かつてはあまり重要視されていなかった。

しかし成人が罹患するとその症状は一般に重く、特に、妊娠初期の女性が初感染すると胎児も感染し難聴・心疾患・白内障などを主徴とする先天性風疹症候群(CRS)患児の出生する確率が高いことが明らかになって¹⁾から、注目されるようになった。

その予防対策として、1977年から、女子中学生を対象に定期予防接種が実施されるようになった。また現在既に中止されているが、1989年からは、幼児を対象とした麻疹定期接種の際、麻疹・ムンプス・風疹の新三種混合ワクチン(MMR)の接種が可能

となった。これらの実施が、風疹の流行状況にどのような影響を与えたか、また、大流行前後の、風疹抗体価の動きについても検討したので報告する。

調査方法

1 流行状況調査

風疹の全国的な流行状況は、厚生省感染症サーベイランス情報により、県内の流行状況は愛媛県感染症情報によった。全国と県内の流行状況を比較し、また、予防接種開始時期と流行状況との関連についても検討した。

2 抗体価の推移

1988年4月から1994年3月の間に当所へ検査依頼のあった、15歳から39歳の女性374例の検査結果を対象とし、HI抗体価の年次推移、およびHI抗体陰性率の年齢階層別年次推移について検討した。

なおHI抗体価測定は伝染病流行予測調査術式²⁾に従い、マイクロタイター法により実施した。

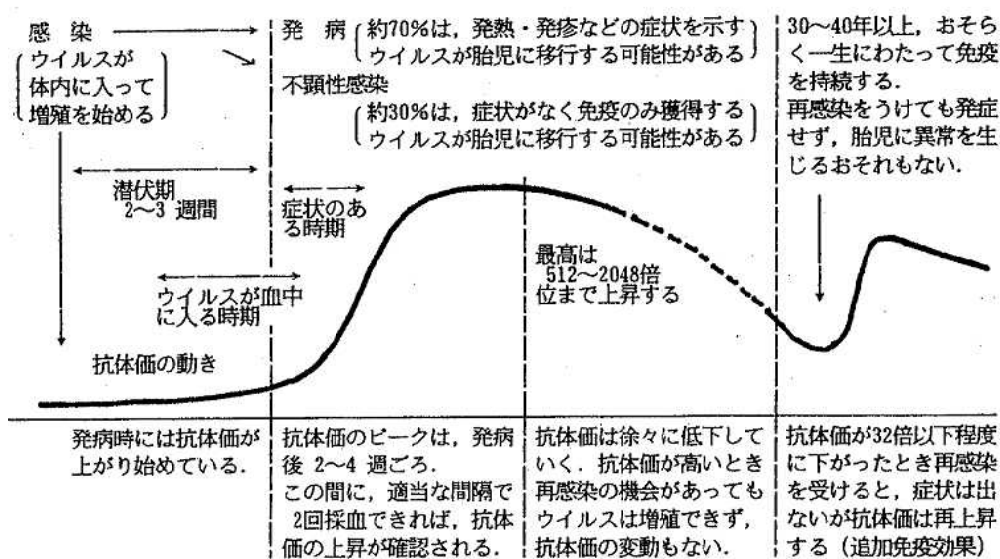


図1 風疹感染後の抗体価の推移

結果

1 風疹の流行状況

定点観測方式による、全国および愛媛県内の年間風疹患者発生状況を表1にまとめ、これを図2、3に示した。また県内の地域別(保健所別)患者発生状況を感染症情報より抜粋し、図4に示した。

全国的には、1982年・87年・92年に大きな流行がみられ、県内では、1977年・82年・91年に患者発生が多かった。

2 風疹HI抗体価の推移

ア 抗体価の年次推移

抗体価を4段階に分け、それぞれの抗体価の占める割合の年毎の推移をみたのが、表2および図5である。

HI抗体価は従来8倍未満を陰性としていたが、1989年に実施された厚生省の母子感染に関する研究班の報告³⁾を受けて、1991年以降8倍は陰性と判定することとなったので、それ以前の検査結果についても8倍以下を陰性として取り扱った。

患者発生が少ない年は、128倍以上の高抗体価の占める割合は20%前後であったが、県内で大流行の

起こった1991年には著しく高くなり(44%)、その前年(12%)に比し3倍以上の上昇であった。またそれまで徐々に増えていた抗体価8倍以下の陰性者の割合がかなり減少し(15%)、その前年(38%)に比し半分以上となった。16~64倍の低い抗体価の占める割合もやや低下した(50%→41%)。

流行年とその後とを比較すると、陰性率の変動は少ないが、陽性者のうち128倍以上の高い抗体価の割合が減少し、64倍以下の低い抗体価がその大半を占めるようになった。

イ 抗体陰性率の年齢階層別年次推移

対象者を3つの年齢層に分け、各年齢層における抗体陰性率の年毎の推移をみたのが、表3および図6である。

抗体陰性率は、15~24歳の年齢層では、概ね10%で大きな変化はみられなかった。25~29歳の年齢層では、1990年までは30%前後であったが、1991年の大流行後は10%前後と著しく低下した。30~39歳の年齢層では、1991年までは40%前後、その後も20%前後の陰性率を示し未だ5人に1人は免疫がない。

表1 定点における年間風疹患者発生状況(1976~1993)

	1976	1977	1978	1979	1980	1981	1982	1983	1984	1985	1986	1987	1988	1989	1990	1991	1992	1993
全国	-	-	-	-	-	-	321880	82739	48693	38279	88141	411772	160616	73837	48657	64715	291857	155446
愛媛	1617	3152	19	38	17	654	4377	1645	1854	2412	1037	2409	2364	1554	523	7470	1221	221

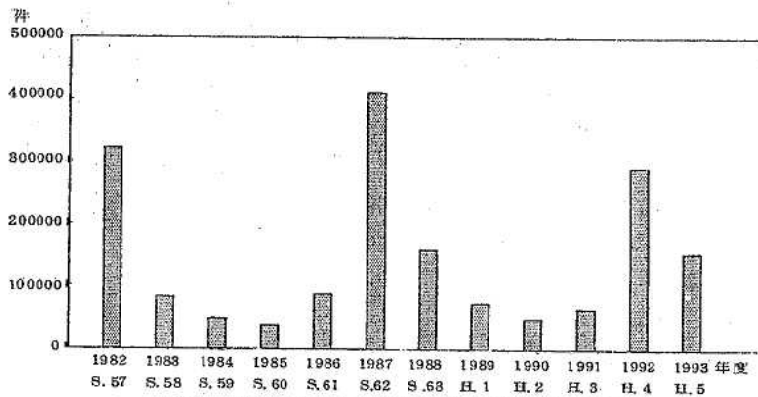


図2 定点における風疹患者発生状況 (全国)

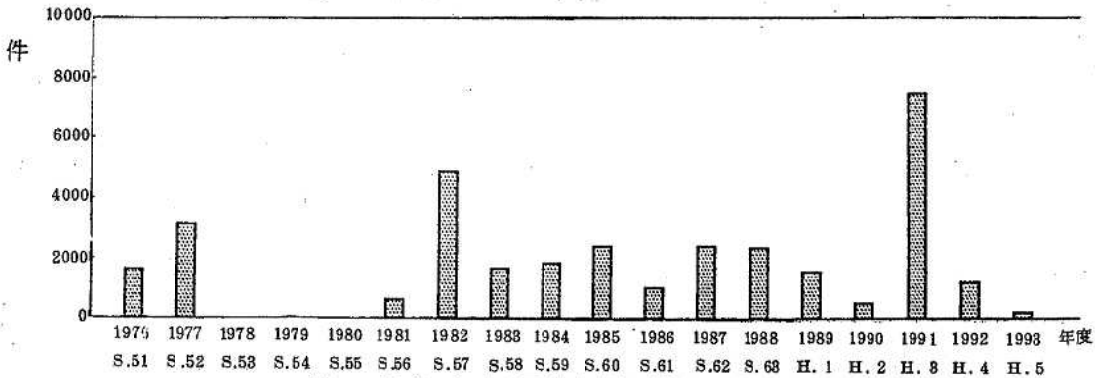


図3 定点における風疹患者発生状況 (愛媛)

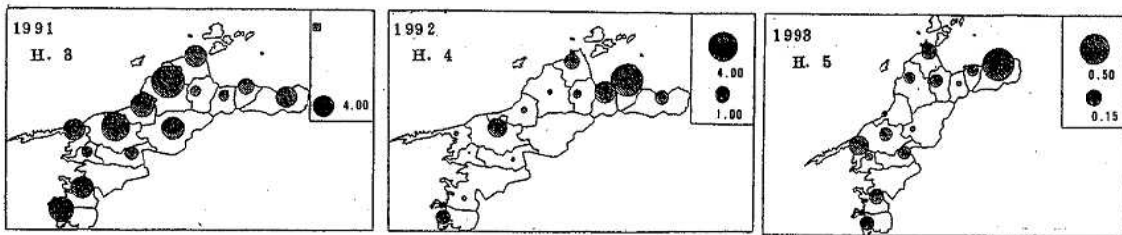


図4 定点における風疹患者発生状況 (保健所別)

考察

1 風疹の流行状況

図3の県内の流行状況では、1978年から3年間は患者数が極端に少ないが、これは1977年の流行と、この年に始まった女子中学生に対する定期予防接種の両方の効果により抗体保有者が増え、流行が起りにくい状況になったためと考えられた。

しかし、この間に感染の機会がないため、流行の中心となる低年齢の子供達が、ほとんど陰性のまま経過して流行が起りやすい状況となり、1982年のピークへとつながっていった。その後は小幅な変動で推移していたが、1989年にMMR接種が開始され

ると、該当年齢の子供達の間で多少流行が抑えられたためか、1990年は患者発生がかなり減少した。

MMRが全面的に中止されたのは、1993年であるが、ムンプスによる無菌性髄膜炎は当初から報告されており、MMR接種を見合わせて麻疹単独で接種する例も多かった。

また、全国的流行がみられた1987年に、県内では目立った動きもなかったことから、1982年の流行後8年間に低年齢層や男性を中心に抗体陰性者が蓄積していたとみられ、1992年の全国的流行に先立ち、1991年春先に県内で風疹の大流行が起り、全国一の患者発生をみた。

表2 委託検体におけるHI抗体価の年次推移(愛媛)

titer	1988 (S.63)	1989 (H.1)	1990 (H.2)	1991 (H.3)	1992 (H.4)	1993 (H.5)
256 ≤	8% (7)	5% (3)	3% (2)	17% (14)	2% (1)	11% (3)
128	18 (16)	9 (6)	9 (6)	27 (22)	15 (7)	11 (3)
16~64	54 (48)	60 (39)	50 (32)	41 (34)	70 (32)	71 (20)
≤ 8	20 (18)	26 (17)	38 (24)	15 (12)	13 (6)	7 (2)
計	100 (89)	100 (65)	100 (64)	100 (82)	100 (46)	100 (28)

()は件数

表3 委託検体におけるHI抗体陰性率の年齢階層別年次推移(愛媛)

年齢	1988 (S.63)	1989 (H.1)	1990 (H.2)	1991 (H.3)	1992 (H.4)	1993 (H.5)
30~39	32% (8/25)	36% (8/22)	57% (12/21)	42% (8/19)	20% (2/10)	14% (1/7)
25~29	20 (8/40)	27 (7/26)	37 (11/30)	6 (3/50)	11 (3/28)	6 (1/17)
15~24	8 (2/24)	12 (2/17)	8 (1/13)	8 (1/13)	13 (1/8)	0 (0/4)
計	20 (18/89)	26 (17/65)	38 (24/64)	15 (12/82)	13 (6/46)	7 (2/28)

()は 陰性件数/各年齢階層別件数

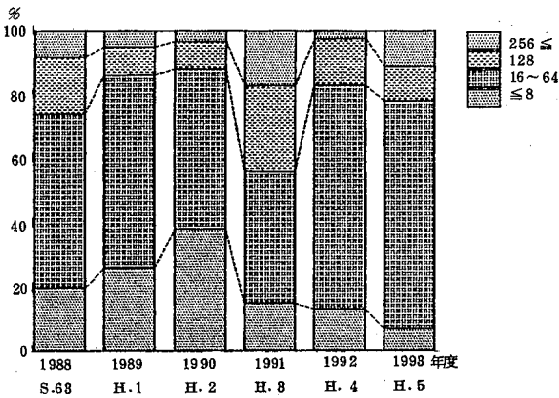


図5 委託検体におけるHI抗体価の年次推移(愛媛)

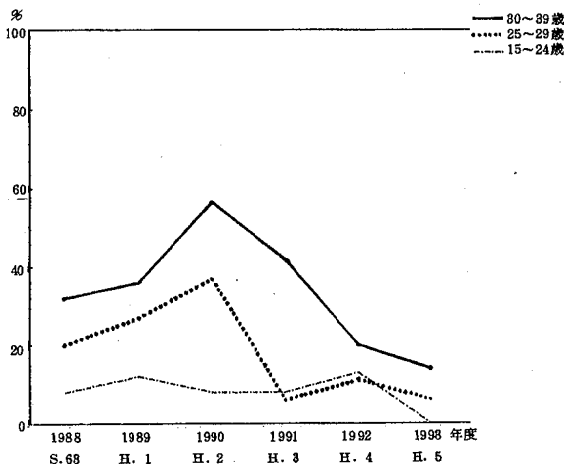


図6 委託検体におけるHI抗体陰性率の年齢階層別年次推移(愛媛)

図4の地域別患者発生状況では、大流行の1991年には県下全域で患者が多発したが、1992年は、その前年患者発生のやや少なかった新居浜・西条方面に患者が多く、他の地域では散発であった。1993年は伊予三島に患者発生がやや多く他は散発であった。

このように県内においても、風疹流行にはかなりの地域差がみられ、陰性者の多い地域で次々と流行を繰り返している。

1993年に実施された医療機関や養学校を対象とする全国調査^{4・5)}によると、女子中学生に対する定期予防接種が開始された1977年以降も、それ以前と同様CRSは発生しており、図2に示される1982年・87年・92年の風疹流行年への集積がみられた。

MMRが中止された現在、CRS予防対策として女子中学生に対するワクチン接種のみでは不十分であり、妊娠可能年齢の女性に対して、CRS予防に関する何らかの啓蒙活動や対策が望まれる。

2 風疹HI抗体価の推移

近年、医療機関や臨床検査センターの検査体制の充実にともない、当所への風疹抗体検査依頼は減少している。また、幼少時に流行した風疹に感染したことが確実な人や、中学生のときワクチン接種を受けたことが明らかな人は、CRSを心配して検査を受ける例は少ないと考えられる。

従って、当所の委託検体は、検体数が少ないことから必ずしも県下全体を反映した結果とは言えず、また、感染歴やワクチン歴の不確かな例が多いため陰性率が高めに出る可能性もある。しかし、CRS

予防に関して実際に問題となるのは、このような経歴の不確かな例である場合が多い。そこで今回、限られたデータをもとに、大流行による抗体価の変動について検討し、それに対して考察を加えた。

ア 抗体価の年次推移

流行の前年である1990年は、抗体陰性率が38%に達し感受性者が蓄積していた。県全体の15～39歳の女性の陰性率はもっと低かった可能性もあるが、全国統計⁶⁾によると、予防接種の機会が少ない低年齢層(0～9歳)で50～80%、接種対象外の男性(15～29歳)で20～30%の陰性率を示すことから、流行が起りやすい状況であったと考えられた。

大流行のあった1991年には、抗体陰性率が低下し陽性者のうち128倍以上の高抗体価の割合が増加したことから、風疹初感染が多かったと推察された。また、16～64倍の低い抗体価の割合がやや減少したことから、再感染による抗体上昇も考えられた。

イ 抗体陰性率の年齢階層別年次推移

15～24歳の年齢層には、概ね10%の陰性者が存在した。この年齢層は中学生のとき定期予防接種を受けているが、その接種率は70%前後を推移しておりワクチンによる抗体陽転率が97%以上⁸⁾といわれていることから、ワクチンを接種しなかった約30%の $\frac{1}{2}$ (約10%)は、風疹既往歴がないにもかかわらず類似の発疹性疾患を風疹と考へて、接種を見合わせた結果ではないかと推測された。

25～29歳の層では、1990年まで30%前後を示していた陰性率が1991年以降は10%前後に低下し、風疹流行の影響と考えられた。1992年にはワクチン定期接種者層が29歳に達したので、15～24歳の層と同様今後はこのレベルで安定するものと予測される。

30～39歳でも、1991年・92年と抗体陰性率が大きく低下し、風疹流行の影響と考えられた。しかし、この年齢層では未だ20%前後は抗体陰性であり、5人に1人は免疫がない。結婚・妊娠年齢の高くなりつつある折から注意を要する。

1992年度伝染病流行予測調査報告書によると、女性の抗体陰性率は、16～30歳で10%以下、31～39歳では13%となっており、当所の結果はこれよりやや高めであった。

各年齢層とも女性の抗体陰性率は、低下傾向あるいは低値安定傾向を示しており、もはや大流行は起こりにくい状況になってきた。しかし集団接種対象外である男性や、MMR中止後ワクチン接種の機会が減少した幼児や学童を中心に抗体陰性者が蓄積し今後も小規模な流行は繰り返されるであろう。

風疹流行年には人工流産が増加する⁴⁾という報告もあることから、個人防衛の観点に立ち、妊娠可能な女性1人ひとりが、妊娠前に風疹に対する抗体を持つ必要があると考えられる。

CRS予防の重要性からみて、ワクチン歴なしか不明な女性はもちろん、ワクチン歴のある人も、抗体陽転率は必ずしも100%ではないことから、妊娠前に抗体検査を実施して免疫の有無を確認し、陰性者にはワクチン接種をすすめるなどの、成人女性に対するきめこまかい対策が望まれる。

まとめ

1 風疹の流行は周期的に起こるが、必ずしも規則的ではなく、前回の流行やワクチン接種による抗体陽転率の影響を受け、陰性者が蓄積した時点で流行が起こりやすくなる。

2 風疹の流行には地域差がみられ、全国的流行と県内の流行とが同時に起こる場合(1982)もあるが、関連性がみられない場合(1987)や、前後して起こる場合(1991-1992)もある。同様に、県内の流行にも地域差がみられる。

3 風疹流行年には、抗体陰性者が減少して128倍以上の高抗体価の占める割合が高くなり、初感染の多いことが推察された。また16～64倍の低い抗体価の割合もやや低下したことから、再感染による抗体価の再上昇が示唆された。

4 1992年に29歳に達した風疹ワクチン定期接種年齢層には、抗体保有者が多く、陰性率は10%前後であるが、CRS予防の重要性からみて、70%前後といわれるワクチン接種率の一層の向上が望まれる。

5 30歳以上の層では、未だ5人に1人は風疹抗体を持たず、結婚・妊娠年齢の高くなりつつある折から注意を要する。個人防衛の観点から、CRS予防に関して、成人女性に対する対策が望まれる。

文献

- 1) Cooper, L. Z.: Amer. J. Dis. Child, **118**, 18 (1969)
- 2) 厚生省保健医療局結核難病感染症課感染症対策室: 伝染病流行予測調査術式, 81-94 (1986)
- 3) 木村三生夫他: 臨床とウイルス, **18**, 480 (1990)
- 4) 加藤茂孝: 臨床とウイルス, **22**, S78 (1994)
- 5) 門屋亮他: 臨床とウイルス, **22**, S79 (1994)
- 6) 厚生省保健医療局疾病対策課結核・感染症対策室: 伝染病流行予測調査報告書, H2, 101 (1992)
- 7) 細菌製剤協会: 最新予防接種の知識, 89 (1993)
- 8) 細菌製剤協会: 最新予防接種の知識, 120 (1990)

農薬の大気中光分解に関する研究

石丸尚志 武智拓郎 出口修一 大倉敏裕
真木 強 相澤貴子* 真柄泰基*

Behavior of the Pesticide in the Atmosphere by Photolysis

Takashi ISHIMARU, Takuro TAKECHI, Shuichi DEGUCHI, Toshihiro OHKURA,
Tsuyoshi MAKI, Takako AIZAWA,* Yasumoto MAGARA,*

Behavior of pesticide by air-spray was measured. As a result, suspended volumes by air-spray were not detected, but fallout volumes on paper were detected of both Fenitrothion(MEP) and Fenitrooxon(MEP-oxon). Detection level of MEP was gradually decreased, but that of MEP-oxon was increased then decreased. For removal of the effect of micro climate, model environment was made by vinyl house on top of the building. In the house, suspended MEP and MEP-oxon were detected, and their fallout on paper and stuck volume to the vinyl wall were detected in time course.

Next, for unifying lightening condition, fate of pesticides entering into glass bottle by bubbling with air was measured in time course, rate of light oxidation was calculated. As comparison MEP with other organo phosphorus pesticide, MEP's stick rate to the wall, glass or other materials is greater than other two pesticide, MEP can be used more easily, and safely than them.

Keywords : air-spray, photo oxidation, organo phosphorus pesticide, organo phosphorus oxon
UV irradiation

はじめに—農薬の大気中動態の特異性

農薬による環境汚染は、ゴルフ場使用農薬による水質基準が設定されて以来関心が高まり、水中農薬以外にも、空中散布される農薬からの飛散農薬等にも関心が高まってきた。これは、地上散布される農薬の場合にも同様に、大気の流れに乗ったり、植物体や土壌に落ちてから後も再揮発し、再び大気中へ戻ることなどへの、大気中での動態にも関心が高まってきている。

一方、健康影響についても、散布従事者については散布作業中の吸入によるリスクが論議されるなど、

大気経由の健康影響は無視できない段階である。

農薬類は、揮発性が大きく容易に大気中に分配されるが、大気中での分解については、わずかに CROSBY 等¹⁾に見られる程度である。特に空中散布される農薬のうち、MEP(フェニトロチオン)については、その光分解産物の一つであるMEPオキソンは、毒性が原体より千倍以上強にかかわらず、水道水源での実態報告が見られる程度²⁾であり、新しい水質基準において、監視項目でチオノ体の農薬については、原体とオキソン体とを合わせて測定することが求められているが、水道水源への混入ルートについては言及されていない。

そこで、空中散布等で環境に放出された農薬が、環境中で分解反応を受け分解生成物として検出され

愛媛県立衛生研究所

* 国立公衆衛生院 東京都港区白金台 4-6-1

る過程をモニタリングにより推定し、実験的に代謝速度等を求め、環境影響を求める試みを行ったので、報告する。

調査及び実験

1) 空中散布

図1に示す、散布区域で毎年6月から7月にかけて松くい虫防除の空中散布が実施される。図のS地区山林、K地区山林ではMEPを用いてそれぞれ205ha、91haの松林に前後2期に渡って空中散布が実施される。1993年にはS山林では、散布区域をはさんで反対位置の方角にある、M、S地区の中心において、散布区域に、最も近い住宅地で（区域中心から2km程度の距離）大気中の浮遊量及びろ紙への落下量を調査した。同様に、K地区においても、散布区域の両端にある集落中心K、H地点で調査が実施された。

浮遊量調査においては、グリセリン含浸フロリジルを充填したガラスカラムにポンプを用いて通気して捕集し、落下量調査においては、グリセリン含浸ろ紙（直径40cm）上への落下量を、速やかに実験室に持ち帰り、細切りし、ともにヘキサンにて抽出、濃縮し分析試料とした。分析項目は、MEP及びそのオキソソ体とした。

2) モデル実験

大気の流れの影響を受けない条件下で大気中動態を測定する系として、図2に示すビニールハウスを設置し、ハウス内に農薬を散布し、経時的にハウス

内大気中の浮遊量、ハウス内床面への落下量、ハウス側面ビニールへの付着量を測定した。モデル実験は1993年9月から11月にかけて行われた。実験期間中の日照時間は、晴天時1日当たり9～11時間であった。

ハウス内への農薬の導入は、ハウス内中央部にばっ気装置を設置し、一定時間ばっ気後、ハウス中央部で大気をポンプにより吸引し、ミニカラム(SEP-PAK-silica)に捕集し、分析に供した。また、ハウス内対角線方向3ヶ所に、グリセリン含浸ろ紙を設置し、ハウス内落下量を測定した。ハウス内面のビニールへの付着量は、メタノール含浸綿を用い、拭き取りにより捕集し、ジクロロメタン抽出により、GC/MS分析に供した。

2回目の、投入に当たっては、ハウス内ビニールを全部拭き取り、ハウス内を開放状態として、前回の実験の影響を完全に除去してから実施した。使用したビニールの光透過性は、波長300nm以下の光は遮断し、365nmの光は、80%以上透過した。また、ハウス内の外気との遮断は、床面付近で少々の交換がある他、ハウス内に入出入りするときに、考えられる程度で、影響は無視して考えた。

3) 硝子瓶での実験

モデル実験でも除去できない要因として、光の問題がある。自然光の場合雲に隠れたり天気の問題があり、同一強度の光を定期的に照射するのは困難である。図3に示す装置で、ガラス瓶内に農薬を導入し、一定強度の光を照射し一定時間経過後に硝子瓶内の農薬存在量を測定し光分解を測定する系である。CROSBYが示し1982年にUS.EPAのガイドラインとして示された方法^{3,4}を簡易化したものである。川田らの示す方法⁵により、ばっ気により農薬をガ

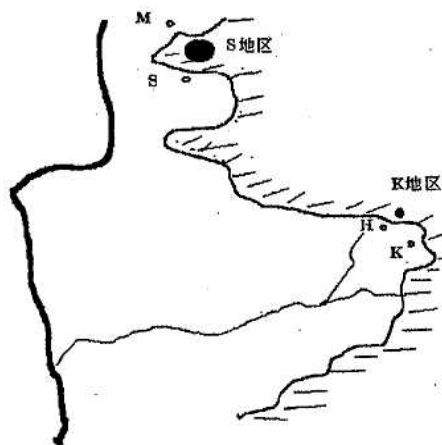


図1 空中散布実施地域及びサンプリング地点

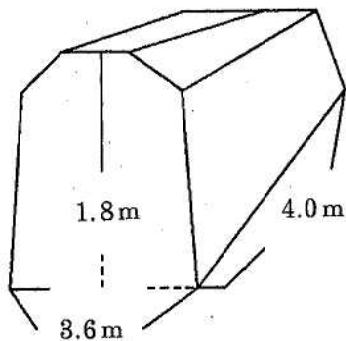


図2 ビニールハウスの概要

ラス瓶中に導入し、ガラス瓶中の気体から農薬を捕集するには、ミニカラム(SEP-PAK-silica)を用い、分速0.8l/minでミニカラムに通気し捕集した。

光源は、ケミカルライト(20W×7)を用いた。用いたガラス瓶は、その主波長352nm付近では、85%紫外線を透過した。

4) 硝子板での実験

ガラス瓶での実験では、導入するのに用いたパイプ及びポンプ等に着する部分が避けられず、負の誤差の要因となっている。今までの実験から、大気中での気体状態での分解と同様に重要な分解の場として、固体表面での分解が考えられたが、それを直接測定する系としてプレパラート上に農薬溶液を一滴滴下し、ガラスシャーレに入れて、上から352nm

の紫外線を照射し、経時的にプレパラートを抜き出し、ジクロロメタンで抽出し、サンプルとした。

5) 分析方法

各実験及び調査での、サンプル捕集後の分析は、GC及びGC/MSで行った。GC/MSの条件及び、農薬のモニターイオンを表1に示す。

調査及び実験結果

1) 空中散布

空中散布は、6月の初めと終わりの2回行われたが、その前後の気象状態が異なっていたため、調査結果には大きな差がみられた。前後期の空中散布モニタリングの結果を、図4~7に示すが、いずれの期にも、いずれの時間帯にも、どのサンプリングポイントにおいても、大気中の浮遊MEP及び、オキソソロン体は検出されなかった。どちらの期においても、散布直後の風向は、南西風であり、散布区域から、サンプリングポイントへの、大きな移流を妨げたことにより、検出されなかったものと考えられる。また、散布後、影響のモニタリングを続けた期間においても、同じ方向の風が継続しており、散布区域からの移流を妨げたものと考えられる。

一方、図4~7に示す様に、ろ紙上への落下は続き、前後には比較的穏やかな日々が続いたため、ゆっくりとした大気の乱れに乗って、粒子状の農薬の落下が観測され、前期の散布当日にはかなりの量の落下が観測された。前期には、その後降水量が減少する一方、少量乍らオキソソロン体も検出された。しかし、後期には散布当日からかなり少ない降水量であった。その原因は、表2に示すとおり、当日の降雨の状況等の微気象の差にある。すなわち、散布当日において、ターゲットに到達した農薬成分が、再揮散しにくい状況にあったと考えられる。

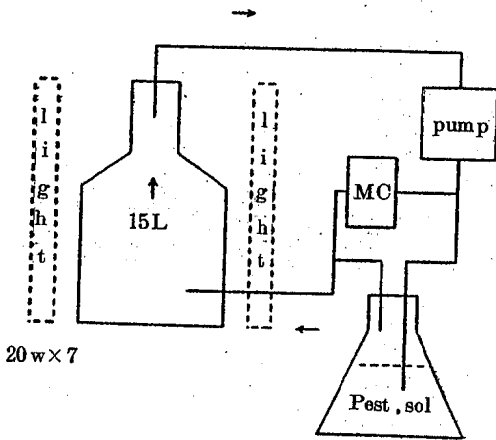


図3 光分解実験装置

表1 GC/MSの条件及び、農薬のモニターイオン

Instrument	HP-5890 II/JMS-AX505A
column	DB-5MS: 25×30m
Temp	150°C (2min)-20°C/min-270°C
Inj. Temp	200°C
Inj. mode	Splitless
Flow rate	He; 50 kPa
MS Resolution	500
moniter ion	MEP; 277/260/125
	MEP-oxon; 261/244/127
	Isoxathion; 313/175
	Isoxa-oxon; 297/161
	Chrolpyriphos; 314/197
	Chrolpyriphoxon; 298/270

表2 微気象の状況

散布後経過日数	散布日	日照時間 (h/day)	平均風速 (m/sec)	降水量 (mm/day)	散布日	日照時間 (h/day)	平均風速 (mm/sec)	降水量 (mm/day)
0	6	8.9	1.8	0	6	2.1	1.7	0
1	月	0	1.3	23	月	0	1.4	45
3	7	8.8	1.9	0	27	0	1.4	50
5	日	10.4	2.3	0	日	0	1.1	62
7		1.8	1.5	17		0	0.8	72

また、オキソン体は、日照時間の影響を受け後期にはほとんど検出されなかったが、(但し日照時間0といっても紫外線強度が0というわけではない) MEP原体の検出状況から勘案すれば、当然とも考えられる。

S点、M点ではどちらの期間も、M点でMEPの濃度レベルが高い状態で推移したが、前期には、MEPの10%程度の割合でオキソン体を検出した。

一方、K、H点ではK点の前期において、オキソン体が高い割合で検出されたが、原因は不明である。

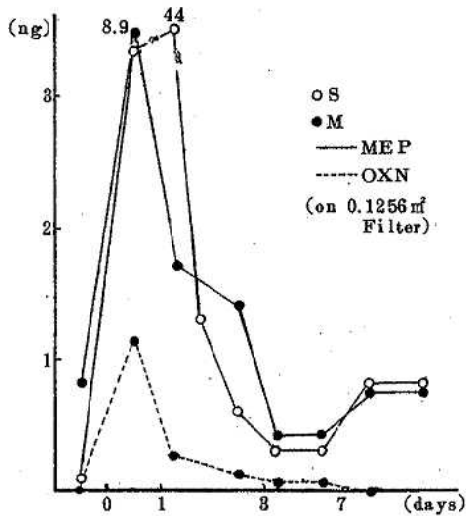


図4 空中散布における落下量の推移(S, M点前期)

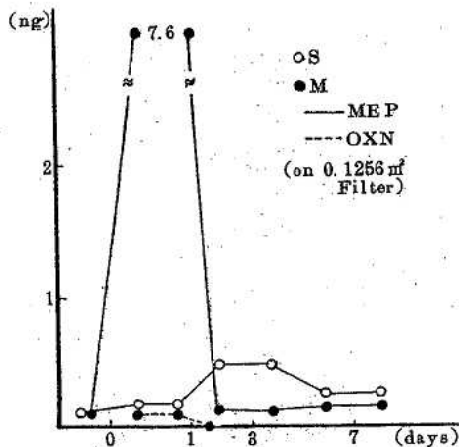


図5 空中散布における落下量の推移(S, M点後期)

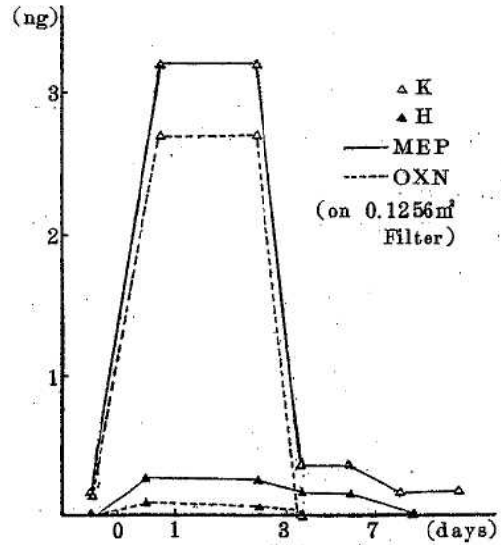


図6 空中散布における落下量の推移(K, H点前期)

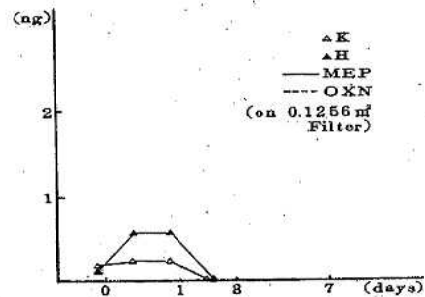


図7 空中散布における落下量の推移(K, H点後期)

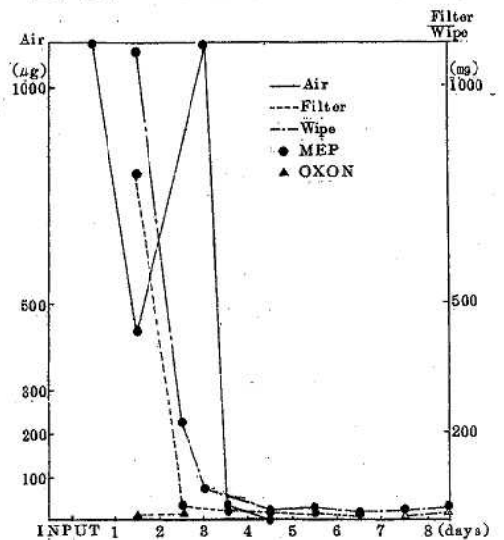


図8 ハウス内大気及び落下量、側面のビニールへの付着量の変化(10月)

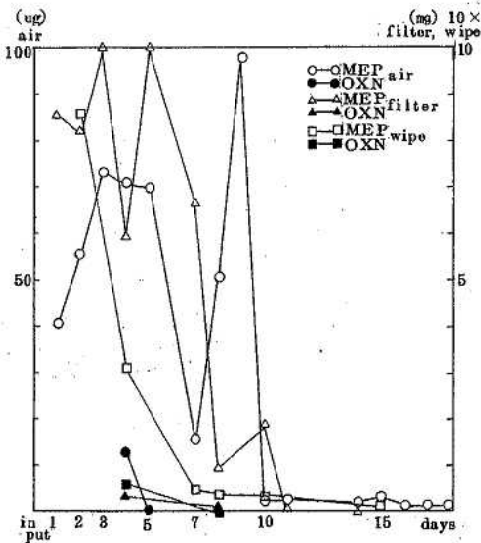


図9 ハウス内大気及び落下量，側面のビニールへの付着量の変化（11月）

2) ビニールハウス内試験の結果

ビニールハウス内で試験を実施したのは、10月から11月にかけてであったが、ハウス内の温度の違いが実験結果に大きな差をもたらしたものと考えられる。図8、9にハウス内大気及び落下量，側面のビニールへの付着量の変化を示す。10月には日中のハウス内の平均気温は、30℃を越えていたが、11月には20℃程度と温度の低下を来し、測定結果に影響を及ぼした。10月には、投入後4日間は晴天であり、室温も高く、5日目から雨天となったため、この最初の期間にほとんどの部分が検出され、その後は低いレベルで推移した。11月には、初期の高温期がなかったため、最初から低いレベルで（軸の目盛は1/10）推移した。

オキソン体は、10月には1週間後に付着部分から検出されたが、11月にはそれより早く、大気から検出された。

3) 硝子瓶での光分解

ガラス瓶での、実験に際してビン内に投入する方法を検討したところ、表3に示すように60分ばっ気後全量を引き抜いたサンプルから最大値を記録したので、以後の実験においては、60分間の投入を行った後に光分解に供することとした。

ガラスビン内での、MEPの運命を図10に示す。MEPは、光をあてない状態でも、装置への付着等により、経時的に減少する。光をあてた状態では、光分解が加わり、更に減少が大きくなる。ブランク補正を行った曲線により、MEPの経時的減少曲線を示した。

表3 ばっ気による投入量

	投入量
15分ばっ気	208 ng
30分	509 ng
60分	1344 ng
90分	954 ng

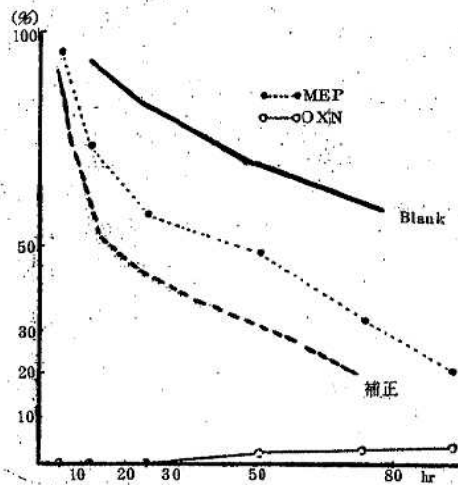


図10 MEPの硝子ビン内での消長

オキソン体は少しずつ増加し、3～4日で極大となり、その時のMEPとの比は、10数%となり、水溶液で行った値と近いものであった。

一方、MEPは水環境では、オキソン体として検出される頻度が低いため、大気中でもオキソン体となりにくいと考えられる。水環境でもオキソン体の検出されやすい農薬は、大気中でもオキソン体となり易いと考えられる。その例として、笠原ら⁶⁾があげているイソキサチオン、クロルピリホスの分解を試みた。

その結果、図11に示す様に、クロルピリホスは、MEPと比べ、初期からオキソン体となりやすく、イソキサチオンは、オキソン体の検出限界が、原体より10倍以上高いこともあり、ほとんど検出されないが、原体の減衰状況から勘案して壁面等で充分オキソン化されているものと考えられる。

4) ガラス板での光分解

ガラス板では、図12に示す様に、クロルピリホスはガラスビン内と同様に、初期からオキソン体化していき、一定の比率で、オキソン化されていると認められた。

MEPでも同様で、MEPとの比が、10%程度で、

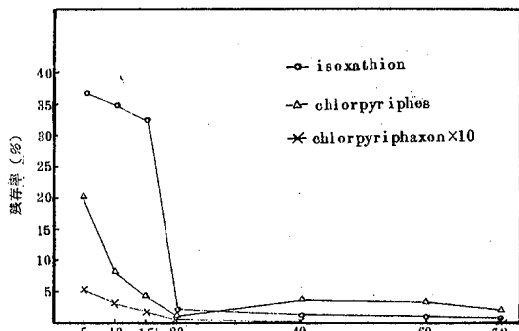


図11 他の有機リン系農薬の硝子ビン内での消長

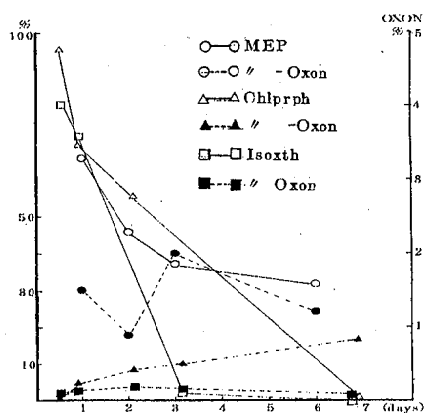


図12 硝子板上での分解推移

オキソン体が検出された。

一方、イソキサチオンでは、気相では検出されなかったが、固相では時間経過とともに、原体の減衰とともに、オキソン体の生成が認められた。

考察

大川と三上ら⁷⁾により推定された農薬MEPの分解経路を、図13に示す。

MEPの分解には、リンと結合しているSがOにかわり、オキソン体となる経路や、P-O結合が切断されて、ジメチルリン酸と、ニトロフェノールとが生成する経路、メチル基が酸化されてカルボキシMEPになる経路など、有機リン系農薬に共通して認められる過程の、酸化、異性化、加溶媒分解などが見られる。これらの分解過程は、溶媒、相、光の波長などの効果にはあまり影響されず、これらはむしろ、分解速度に大きな影響を及ぼすといわれている。今回の、調査実験では分解速度を上げる要因が整ってなかったためか、オキソン体以外の分解産物を検出するにはいたらなかった。

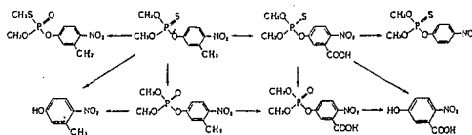


図13 MEPの推定分解経路

表4 農薬の物性比較

	MEP	Isoxathion	Chlorpyrifos
沸点(℃)	118	160	160
蒸気圧(mm Hg)	6×10^{-6}	1.2×10^{-6}	1.9×10^{-6}
水溶性(ppm)	50-60	1.9	0.4
log Pow	2.04	—	5.11

空中散布農薬の運命考察

空中散布での調査結果から、各地点への落下総量を推定したところ、1枚のろ紙当たりで100mg程度MEPの落下が推定され、影響区域を散布区域の半径の2倍と考えれば、散布区域から、影響区域に飛来する薬剤の量は、散布量の高々1%程度と考えられ、ほとんどの薬剤は、ターゲットの樹木を捉えていると考えられた。

ビニールハウス内での農薬の消長

ハウス内投入量は、1500mgであるが、測定期間中の大気存在量は1%未満であり、狭い環境下でも大気中の浮遊量はごく少ないことが判明した。また、浮遊、落下、付着の質量収支を正確に捉えるには、スケールダウンした実験が必要なが示唆された。

農薬の物性による運命の違い

表4に、有機リン系農薬の物性の違いを示す。大気中の運命に大きな影響を及ぼす物性は、蒸気圧であり大気中分配の決定因子と考えられる。イソキサチオン等と、MEPを比べ蒸気圧はMEPがやや高く、かつ沸点も低いため、MEPの方が大気への分配の割合が大きいが、水溶性が高いため、エアロゾルの状態での浮遊も考えられ、これだけでは、決定しがたい。

オクタノール・水分分配係数からみれば、クロルピリホスの方がより固相と結合しやすいように思われるが、調査及び実験では、農薬の市販品を用いたた

め、原体以外に展着剤等の効果があり、MEPの方が付着しやすいと考えられる結果となった。

大気中での、存在を決定する因子を見出すことも、今後の課題となろう。

まとめ

- (1) 大気中での光分解について、モニタリング、模擬環境での試験、硝子瓶でのモデル実験を行い、光分解生成物の消長を検討したところ、農薬は大気中には長時間存在せず、速やかに落下したり壁面等に付着するので、大気中での光分解を受けにくいものと考えられる。
- (2) 大気中から落下したり、壁面等に付着した農薬は、その表面で光分解作用を受け、一定の割合で光分解生成物に変化する。
- (3) 光分解の割合は、農薬の物性特に紫外部吸収性に依存するが、大気中での光分解には、大気への分配と、浮遊物等への吸着性が強く関与すると考えられる。
- (4) これらの結果から、現在使用されている空中散布農薬MEPは、クロルピリフォス等と比べ作物により早く吸着され、大気に浮遊する割合が少ないと考えられる。
- (5) 酸化生成物以外の分解産物については、オキソン体が更に分解し磷酸と、ニトロフェノール類の生成、MEPのカルボキシ体化等考えられたが、定性的には認められるものの、分析上検出にはいたらなかった。
- (6) 現在使用されている農薬について、ガラス板上での分解実験を行うことにより、その物性と環境中動態との関係を把握することが可能と思われるので、スクリーニングとして、ガラス板試験を実施する意義がある。

本研究は、平成5年度国立公衆衛生院特別過程「環境衛生特論コース」において実施されました。国立公衆衛生院水道工学部長眞柄泰基先生、水質管理工学室長相澤貴子先生には、研究の立案から分析解析にいたるまで、貴重なご示唆をいただきました。また、農薬オキソン体標準品を分与していただきました。また、微気象のデータは(株)新日本気象海洋より提供されました。ここに記して謝意を表します。また、特別過程在学中、本研究全般に渡り、(財)日本植物調節剤協会顧問金沢純博士、国立環境研究所山史郎主任研究員、高木博夫主任研究員、東京都立衛生研究所高橋保雄主任研究員、大橋則雄主任研究員、神奈川県環境科学センター伏脇裕一主任研究員には御示唆をいただきました。ここに記して謝意を表します。

本報告の要旨は、第28回日本水環境学会にて発表した。

文献

- 1) CROSBY, D. G: Pestic. Chem Hum. Welf. Environ. **3**, 327-332 (1983)
- 2) 植村振作他編：農薬毒性の事典，三省堂，東京，177-181 (1988)
- 3) CROSBY, D. G: "Herbicides, 2. 2nd ed" ed by. Kearney, D. C and Kaufman, D. D, Marcel-Dekker Inc. New York, p835 (1976)
- 4) CROSBY, D. G and Li, M. I: "Degradation of Herbicides" ed. by. Kearney, D. C and Kaufman, D. D, Marcel-Dekker Inc. New York, p321 (1969)
- 5) 川田邦明他：衛生化学 **36**, 491-496 (1990)
- 6) 笠原満他：第28回日本水環境学会年会講演集 378-379 (1994)
- 7) OHKAWA, H et al: Agr. Biol. Chem. **38**, 2247-2255 (1974)

水道水中の金属動態に関する研究

出口修一 武智拓郎 石丸尚志 大倉敏裕

Studies on the Behavior of Metals in City-Waters

Syuichi DEGUCHI, Takuro TAKECHI, Takashi ISHIMARU, Toshihiro OHKURA

The concentration of metals (Fe, Mn, Zn, Cu, Pb, Cd, Cr, Na, Al, Ni etc.) in city-water were measured by ICP.

The result of tap-waters were lower than city water quality standards of the Japanese water work law.

The major components such as Na, K were little change from raw-water to tap-water.

But, the trace metals such as Zn, Cu, Pb showed a tendency to increase with flow in pipes of water work service.

Keywords : city-water standard, city-water, tap-water, trace metals, ICP

はじめに

愛媛県下の水道施設は、年々整備され、平成4年度における普及率は91.1%に達している。

これらの水道水の水質検査は、法律に基づき実施され、より安全な水質を供給するため平成5年12月施行された水道法の改正により、金属についても項目及び基準値等が強化された。

そこで、今回、我々は、河川水、ダム貯水、地下水を水源とする県下の平均的な水道施設5カ所から水道原水、浄水（配水及び給水）を採取し、金属の動態について検討したので報告する。

調査方法

○ 平成5年6月、8月、10月、平成6年2月の4回各施設（A上水道、B上水道、C簡易水道、D上水道、E上水道）から原水（24検体）、配水（20検体）及び給水（20検体）を採取した。

○ 各水道水は、超純水により洗浄したポリエチレン製容器に採取し、現場で硝酸処理を実施したものを検体とした。

○ 測定項目は、pH、色度、濁度、アルミニウム、

鉄、マンガン、亜鉛、銅、鉛、カドミウム、六価クロム、ニッケル、ナトリウム、カリウム、カルシウム、マグネシウム、バリウム、ストロンチウム、ケイ素について実施した。

○ 各項目の測定は、上水試験方法により実施し、金属は、主としてLeeman, Labs. 製PSW3000 UV型ICPにより実施した。

結果

今回調査した5施設の原水、配水、給水の各金属測定結果を表1に示した。

表2 水道水中のアルミニウム濃度 ($\mu\text{g}/\text{l}$)

施設名	区分	原水	配水	給水
A 上水道	ダム貯水	55.0 (16~114)	17.7 (7~35)	7.7 (4~16)
B 上水道	ダム貯水	162.2 (31~295)	11.9 (8~16)	14.0 (7~18)
C 簡易水道	河川水	99.9 (10~278)	3.1 (2~5)	4.2 (1~7)
D 上水道	ダム貯水	105.2 (28~194)	32.8 (13~43)	31.1 (10~43)
E 上水道	地下水	5.2 (3~9)	6.2 (5~8)	5.9 (5~9)

(注) 平均値 (最小値~最大値)

愛媛県立衛生研究所 松山市三番町8丁目234番地

(1) アルミニウム

近年、酸性雨の現象が社会的関心を引き、溶出アルミニウムの水系生物への影響が危惧され、高濃度アルミニウムの医学的障害について研究が行なわれ、脳軟化症との関連、人工透析による脳疾患アルツハイマー病、早期痴呆症等の報告²⁾がされている。

また、水道水中のアルミニウム濃度については、香川県において須崎等³⁾により、表流水が高く、つづいてダム貯水、井戸水の順であると報告され、仙台市の水道水で渡部等⁴⁾により原水を沈殿濾過処理

することにより、浄水中の濃度が約1/10位に減少すると報告されている。

今回実施した各施設のアルミニウム濃度は、図1、表2に示したとおりで、原水の濃度は2つの貯水ダムから原水を導水しているB上水道が最も高く、ついでダム貯水水のD上水道、山間部の小河川の表流水を原水としているC簡易水道、比較的小規模な貯水ダムのA上水道、最も低濃度のものは、地下水を水源として使用しているE上水道であった。

また、採水時毎の濃度変動では、変動係数で表す

表1 施設別金属濃度

	色度	濁度	pH	Al	Fe	Mn	Zn	Cu	Pb	Cd	Cr	Ni	Na	K	Ca	Mg	Si
単位	度	度	-	μg/l	μg/l	μg/l	μg/l	μg/l	μg/l	μg/l	μg/l	μg/l	mg/l	mg/l	mg/l	mg/l	mg/l
A 原水	7.3	1.7	6.75	55.0	103	21.5	0.5	0.6	0.5	0.8	1.1	4.5	5.08	0.62	4.13	0.90	6.88
A 配水	0.5	0.9	0.19	20.4	24.3	15.3	0.0	0.2	0.5	0.1	0.1	0.3	0.38	0.07	0.57	0.16	0.42
A 給水	0.0	0.0	6.58	17.7	13.7	19.6	1.4	1.6	1.6	0.8	2.0	4.4	5.56	0.64	4.32	0.90	6.38
B1 原水	0.0	0.0	0.12	6.2	7.0	11.1	1.3	0.2	0.7	0.1	1.4	0.4	0.61	0.03	0.44	0.14	0.49
B1 配水	0.0	0.0	6.60	7.7	14.1	2.3	2.5	2.2	2.2	0.7	2.6	4.2	5.95	0.66	4.77	0.90	6.35
B1 給水	0.0	0.0	0.17	5.7	2.7	1.7	0.5	1.0	0.6	0.1	0.7	0.3	1.26	0.14	0.59	0.15	0.48
B2 原水	24.3	5.0	7.03	178	333	30.5	8.7	2.2	1.1	0.8	8.3	4.8	4.28	0.56	3.35	0.90	6.16
B2 配水	12.7	2.9	0.05	159	278	10.2	5.3	1.1	0.5	0.0	5.3	0.8	0.32	0.13	0.92	0.10	0.56
B2 給水	22.7	6.0	6.80	179	266	27.9	1.8	1.0	2.5	0.8	3.0	5.4	5.43	1.12	8.37	1.06	7.11
B 原水	13.2	2.8	0.16	161	255	19.2	1.1	0.3	0.7	0.1	2.1	0.8	0.10	0.07	0.25	0.06	0.80
B 配水	23.3	5.7	6.86	158	258	27.3	1.8	1.3	1.1	0.8	3.0	4.8	4.28	0.73	4.35	1.00	6.94
B 給水	13.0	2.8	0.15	107	180	14.8	1.7	0.4	0.4	0.1	2.3	0.7	0.20	0.09	0.73	0.10	0.48
C 原水	0.0	0.0	6.65	11.9	21.8	0.6	2.1	1.3	1.0	0.7	2.8	4.1	4.47	0.74	4.46	1.00	5.65
C 配水	0.0	0.0	0.09	3.6	26.5	0.3	0.8	0.5	0.5	0.0	0.9	0.4	0.18	0.06	1.28	0.04	0.22
C 給水	1.7	0.0	6.75	14.0	96.3	5.1	7.2	6.4	1.6	0.7	6.2	4.0	4.57	0.76	4.63	1.02	5.62
D 原水	1.2	0.0	0.05	4.9	23.9	2.5	1.8	6.2	1.2	0.1	1.7	0.1	0.17	0.02	0.26	0.05	0.21
D 配水	9.3	3.0	6.95	99.9	217	23.8	0.8	0.5	0.7	1.0	1.2	6.1	3.19	0.42	2.53	0.65	8.62
D 給水	1.9	2.8	0.05	113	115	15.5	0.3	0.2	0.1	0.1	0.3	0.4	0.41	0.01	0.69	0.13	0.68
E 原水	2.0	0.0	6.88	3.1	9.4	0.3	3.8	0.6	0.6	1.1	1.9	5.4	3.40	0.41	2.42	0.64	8.06
E 配水	1.6	0.0	0.17	1.2	10.8	0.2	6.4	0.4	0.9	0.2	6.7	0.8	0.35	0.04	0.32	0.11	1.29
E 給水	1.0	0.0	6.95	4.2	22.4	0.5	17.5	1.1	2.6	1.2	7.1	4.6	4.03	0.49	2.68	0.69	8.07
F 原水	0.8	0.0	0.09	1.9	19.0	0.1	5.3	0.7	2.3	0.2	5.1	0.5	0.60	0.06	0.43	0.15	1.13
F 配水	8.0	3.0	7.15	105	269	21.9	1.3	0.2	0.6	1.1	1.9	4.4	4.75	0.60	7.95	1.02	7.45
F 給水	4.3	1.6	0.00	67.9	175	9.9	0.5	0.2	1.1	0.1	0.4	0.3	0.12	0.07	0.52	0.07	0.33
G 原水	0.0	0.0	7.00	32.8	6.9	9.8	1.7	0.8	2.4	0.9	1.9	3.8	5.28	0.62	8.14	1.04	6.62
G 配水	0.0	0.0	0.04	8.7	4.4	0.1	0.3	0.1	0.6	0.1	0.3	0.5	0.13	0.05	0.49	0.05	0.68
G 給水	0.3	0.0	6.75	31.1	7.7	9.8	2.0	0.8	2.9	0.9	1.2	3.3	5.06	0.63	7.89	1.00	6.57
H 原水	0.5	0.0	0.38	8.6	2.2	0.1	0.2	0.2	0.3	0.0	0.2	0.3	0.23	0.07	0.29	0.02	0.81
H 配水	1.7	0.0	6.65	5.2	50.4	15.4	4.0	9.8	2.1	1.1	4.5	4.4	8.81	1.76	14.7	2.12	7.67
H 給水	0.5	0.0	0.09	2.7	29.6	7.4	1.7	3.6	0.5	0.1	1.4	0.7	0.78	0.11	1.65	0.27	0.43
I 原水	0.3	0.0	6.68	6.2	24.6	33.1	7.3	19.1	2.7	1.1	4.4	11.8	10.4	1.87	16.2	2.18	7.77
I 配水	0.5	0.0	0.08	1.8	4.4	6.2	1.3	4.4	1.0	0.0	1.2	4.3	0.71	0.15	1.56	0.26	0.41
I 給水	0.3	0.0	6.68	5.9	8.2	1.8	7.5	19.3	7.3	1.0	4.4	1.4	10.5	1.87	17.0	2.12	7.70
J 原水	0.5	0.0	0.08	2.2	2.7	0.7	3.0	9.4	4.0	0.1	2.9	0.1	0.74	0.12	1.63	0.27	0.46

注1) 上段：平均値，下段：標準偏差

注2) 仮想原水は、原水B1、B2を混合使用しているのでその混合比より算定した値

と最大 91.1%と大きくなっている。

この原因は、施設の取水形態・規模・貯水量・降水量等採水時期の環境や施設状況に影響されているものと考えられる。

浄水は、浄水処理過程で凝集剤を使用しているにもかかわらず沈殿濾過等の処理をすることにより、他の報告同様濃度の低下がみられた。

今回調査した浄水中（配水・給水）のアルミニウム濃度の平均値は、 $14.0 \mu\text{g}/\ell$ であったが最大値 $32.8 \mu\text{g}/\ell$ を用いて水道水からの一日最大摂取量を試算すると $32.8 \mu\text{g}/\ell \times 2\ell = 65.6 \mu\text{g}$ となった。

ヒトの水を含めた食品からのアルミニウム一日摂取量⁵⁾は、 $5 \sim 10\text{mg}$ とされていることから、他の食品等からの摂取量に比べて非常に少ない量であった。

種々のアルミニウム障害が発生することから米国公衆衛生協会が推奨している浄水のアルミニウム濃度の上限値 $50 \mu\text{g}/\ell$ を越えるものはなかった。

(2) 鉄, マンガン

鉄, マンガンの濃度は、図2に示しているように原水で高く、沈殿濾過等の浄水処理により、低減化されているが、原水の種類により、濃度差があり、特に地下水を水源としているE上水道では、地質由来の鉄, マンガンの除去を併せて行なっている施設で、他の河川水やダム貯水を水源としている施設に比べ、各成分が高濃度であった。

また、鉄, マンガン濃度上昇とともに、色度や濁度の上昇がみられたことは、土壌中の主成分である鉄, マンガンが水中に濁りの成分として混入し、水酸化物等となり、色度の上昇をもたらしたものと考えられる。

(3) 主要成分

水質の特性を表すナトリウム, カリウム, カルシウム, マグネシウム, ケイ素等主要成分の動態について検討すると、原水の種類及び周辺の地質等の環境により差はあるものの図3に示すように原水, 配

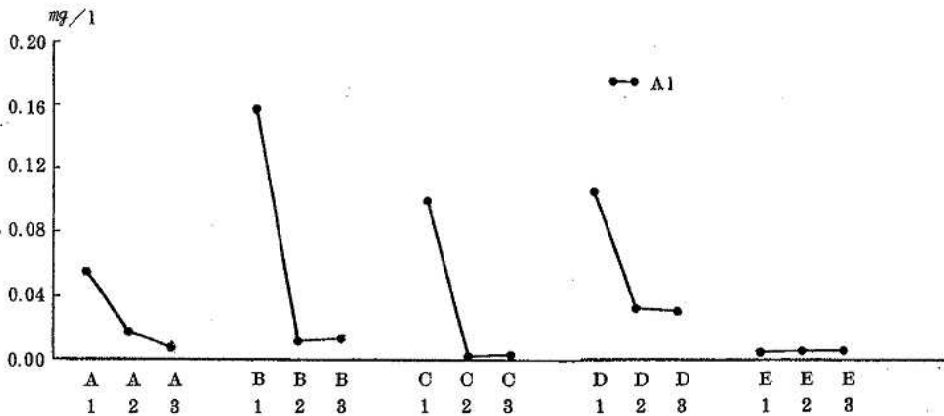


図1 水道水中のアルミニウム濃度変化

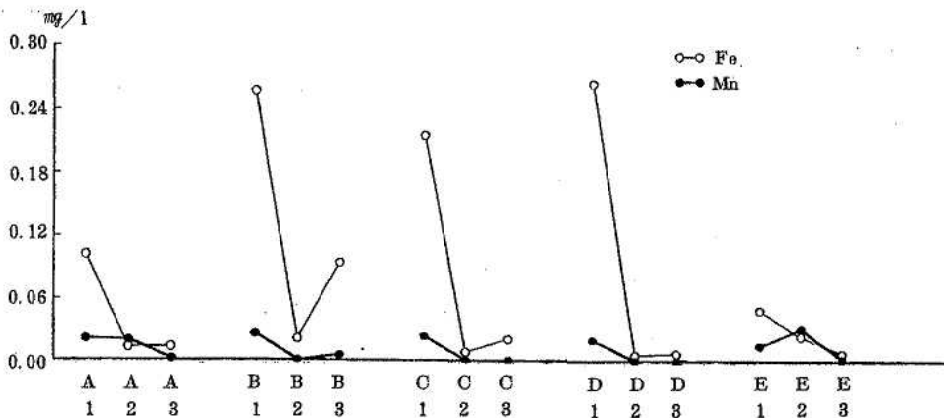


図2 水道水中の鉄, マンガンの濃度変化

水、給水間の濃度変化はカリウム、マグネシウムではなかったが、ナトリウム、カルシウムは、若干の上昇傾向にあり、ケイ素は浄水処理とともに僅かではあるが減少した。

(4) 微量元素

微量元素の亜鉛、銅、鉛、カドミウム、六価クロム、ニッケルの濃度は、図4に示しているように原水中のものが沈殿濾過の浄水処理により除去されているが給・配水管を通過し、配水タンク、貯水タンク等に貯留することにより、前報に報告したと同様に配・給水管等の材質に含まれている金属濃度の上昇がみられた。

佐谷戸等⁷⁾は、使用管の材質、種類、使用年数等も溶出の一要因となるが、硬度等が高く緩衝能力が

ある水道水では、使用管等からの溶出が少ないと報告している。

今回の調査で地下水を水源とし、地質由来の金属を多く含有し、除鉄除マンガン除去装置を有しているE上水道を除けば、濃度の違いはあるものの緩衝能力の低いA上水道、C簡易水道では、給・配水過程において微量元素が顕著に上昇し、含有成分の多いD上水道では、各金属ともほとんど変化のない結果であり佐谷戸等の結果と一致していた。

まとめ

(1) 今回、調査した浄水中の金属濃度は、鉄、マンガン、亜鉛、銅、鉛、カドミウム、六価クロム、アルミニウム、ニッケル、ナトリウムは、新水道法の

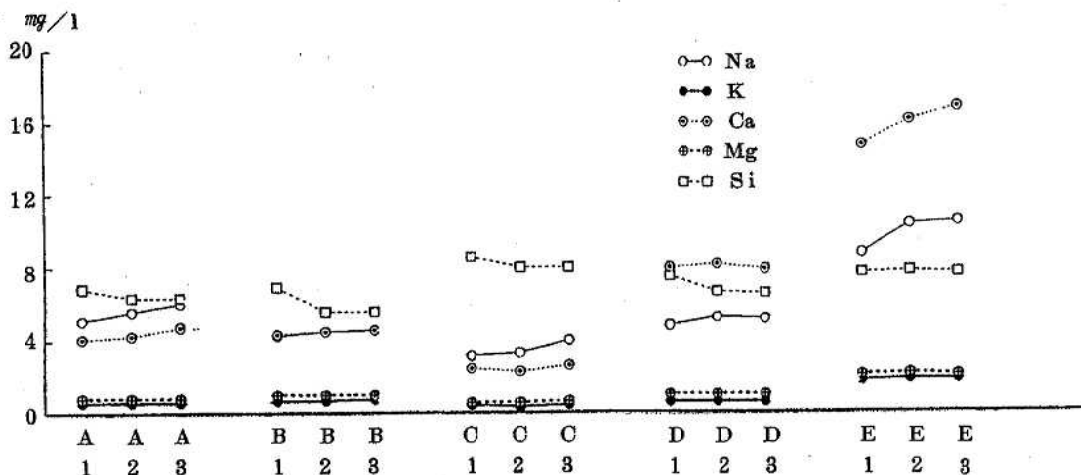


図3 主要成分 (Na, K, Ca, Mg, Si) の濃度変化

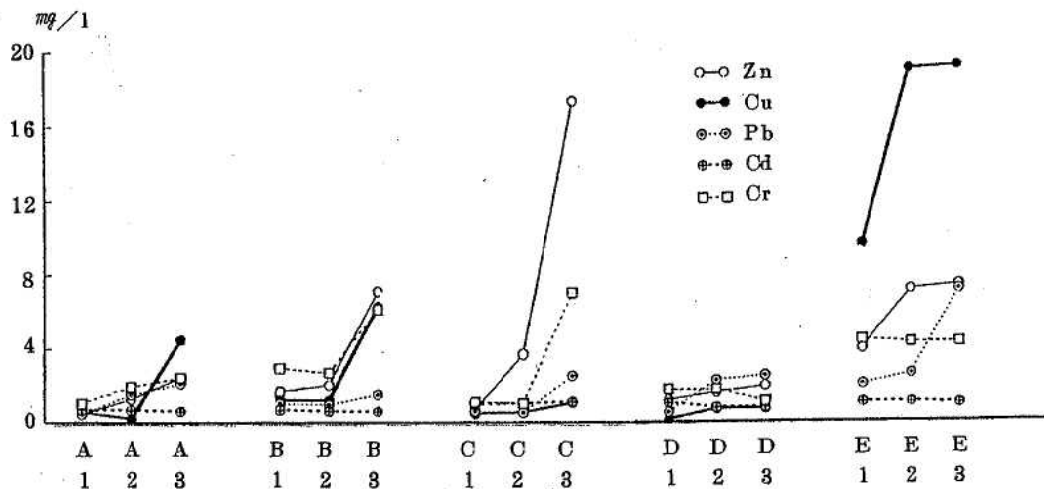


図4 微量元素 (Zn, Cu, Pb, Cd, Cr) の濃度変化

基準値等にすべて適合していた。

原水の水質は、基準値に適合していないものもみられたが浄水処理を行なうことによりすべて水道水の水質基準に適合した。

(2) ナトリウム、カリウム等主要成分は、原水から沈殿濾過等の浄水過程を通過しても濃度変化はほとんどみられなかった。

(3) 亜鉛、銅、鉛等微量金属は、使用管等の影響がみられたことから、今後、より綿密な追跡調査を行い、原因について解明する必要性を示唆している。

本調査研究は、愛媛県立衛生研究所『特別研究事業費』により実施されたものであり、第53回日本公衆衛生学会総会（鳥取市）において一部発表の予定

である。

文献

- 1) 出口修一等：第38回四国公衆衛生学会総会講演要旨集，159（1993）
- 2) Richard et al：EWWA，**98**（4），363（1984）
- 3) 須崎千寿子等：香川県衛生研究所所報，**15**，94（1986）
- 4) 渡部律子等：仙台市衛生研究所所報，**19**，237（1989）
- 5) 中室克彦：ファルマシア，**25**（12），1257（1989）
- 6) C.N.Martyn et al：Lancet，**14**，59（1989）
- 7) 佐谷戸安好等：水道協会雑誌，**62**（10），46（1993）

愛媛県下の温泉の経年変化について

大野智也佳 田頭和恵 真木 強* 井上博雄

Studies on Secular Variation of Hot Spring Water in Ehime Prefecture

Chiyaka OHNO, Kazue TAGASHIRA, Tsuyoshi MAKI,* Hiroo INOUYE

There are about 140 hot spring sources in Ehime Prefecture and about 100 of them are utilized. It is known that the characteristics of hot spring water vary by excess pumping or development of spring sources.

To utilize them fairly and protect spring sources, we studied on secular variation of 13 hot spring sources comparing between analytical results in recent years (1989~1992) and previous results.

The results were as follows ;

- 1 The characteristics of 11 spring sources were stable, indicating fairly utilization of them.
- 2 It recognized that the characteristics of 2 spring sources varied, indicating that river water or underground water had influence on them and that hydrogen ion concentration had influence on chemical components.

Keywords : hot spring water, secular variation, the characteristics of hot spring water

はじめに

愛媛県には約140か所の温泉が湧出し、そのうち約100源泉が利用されている。

温泉水の泉質は過剰採取や乱掘削等により変化することが知られており¹⁾、泉質の変動を把握するため、おおむね10年毎に再分析が実施されている²⁾。

今回、温泉資源を保護し適正利用の基礎資料とすることを目的に、県内の温泉の経年変化について検討し若干の知見を得たので報告する。

調査方法

1 調査対象

平成元年度から平成4年度の4年間に当所で再分析を行った13源泉を調査対象とし、過去に当所で行

った鉱泉分析結果と比較検討した。調査対象源泉の湧出場所及び泉質名等を図1及び表1に示した。

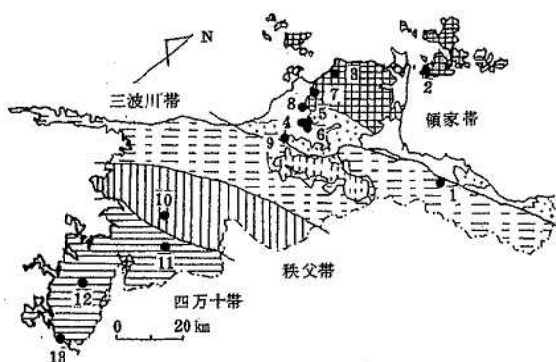


図1 愛媛県の地質及び調査対象源泉

愛媛県立衛生研究所 松山市三番町8丁目234番地

* 現 愛媛県立中央病院

2 調査項目

泉温, pH, 蒸発残留物

主要化学成分: Na⁺, K⁺, Ca²⁺, Mg²⁺, F⁻, Cl⁻,
HCO₃⁻ (CO₃²⁻ はHCO₃⁻に換
算), SO₄²⁻

その他の成分: Rn(ラドン), H₂S, HBO₂(メタホウ酸)
分析方法は鉱泉分析法指針³⁾により行った。

結果及び考察

表2に各源泉の鉱泉分析結果を示した。

1 項目別の経年変化

(1) 泉温

温泉法では, 泉温が25℃以上のものはすべて温泉
(狭義の“温泉”)に該当する。このほかに特定の
成分が温泉法に定められた限界値(以下, 限界値と
いう)以上である冷鉱泉も温泉に該当する。

全体では+0.3±2.2℃の変化であり“温泉”(n
=4)で+0.2±0.3℃, 冷鉱泉(n=8)で+0.2
±2.8℃と大きな変化はなかった。源泉別にみると
No.2, No.11がそれぞれ-6.8℃, +3.5℃と大きく
変化した。No.5は泉温が24.7℃から26.2℃に上昇
し, 新たに療養泉(アルカリ性単純温泉)に該当した。

表1 調査対象源泉及び泉質

源泉 No.	調 査 年 月	経 過 年 月	泉 質 名
1	S57.6 H 2.5	8	Na-Cl・HCO ₃ 冷鉱泉 Na・Ca-Cl・HCO ₃ 冷鉱泉
2	S57.6 H 1.4	6.10	(温泉に該当せず) 単純弱放射能冷鉱泉
3	S57.5 H 3.2	8.9	(低張性アルカリ性冷鉱泉) (低張性アルカリ性冷鉱泉)
4	S55.12 H 1.10	8.10	アルカリ性単純温泉 アルカリ性単純温泉
5	S55.12 H 2.1	9.11	(低張性アルカリ性冷鉱泉) アルカリ性単純温泉
6	S55.12 H 2.1	9.11	アルカリ性単純温泉 アルカリ性単純温泉
7	S57.7 H 2.5	7.10	アルカリ性単純弱放射能温泉 アルカリ性単純温泉
8	S56.2 H 1.10	8.7	含放射能Na-Cl温泉 Na-Cl温泉
9	S55.12 H 3.10	10.10	Na-Cl冷鉱泉 Na-Cl冷鉱泉
10	S56.12 H 2.4	8.4	(低張性弱アルカリ性冷鉱泉) (低張性弱アルカリ性冷鉱泉)
11	S56.12 H 2.10	8.10	(低張性アルカリ性冷鉱泉) (低張性アルカリ性冷鉱泉)
12	S56.12 H 4.10	10.10	(低張性弱アルカリ性冷鉱泉) (低張性弱アルカリ性冷鉱泉)
13	S56.12 H 2.10	8.10	(低張性アルカリ性冷鉱泉) 単純硫黄冷鉱泉

()は泉質分類名

表2 各源泉の鉱泉分析結果

単位: mg/kg

源泉 No.	調 査 年 月	泉温 (℃)	pH	蒸発残留物 (g/kg)	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	F ⁻	Cl ⁻	SO ₄ ²⁻	HCO ₃ ⁻	Rn (M・E/kg)	H ₂ S (kg)	HBO ₂
1	S57.6	15.9	6.8	5.847	1960	11.10	2064	89.9	0.4	2694	2.8	1321	0.7	ND	7.0
	H 2.5	16.9	7.3	3.986	1150	10.50	310.2	64.9	0.5	1325	ND	2130	1.43	ND	48.6
2	S57.6	24.2	7.5	0.127	15.8	0.9	11.4	3.3	0.3	20.6	25.5	26.7	1.7	ND	ND
	H 1.4	17.4	6.5	0.1866	2.1	0.8	20.2	5.1	0.4	19.6	30.7	65.2	10.2	ND	0.4
3	S57.5	20.1	9.4	0.553	157.5	1.6	29.3	ND	9.6	263.7	6.2	22.6	4.2	0.3	1.3
	H 3.2	20.5	9.7	0.6194	190.4	1.3	38.1	0.5	9.5	313.4	22.1	20.7	1.54	0.8	1.4
4	S55.12	43.3	8.7	0.464	164.5	1.3	1.0	0.7	8.2	109.1	ND	228.1	0.2	ND	11.7
	H 1.10	43.7	9.2	0.4530	175.0	1.4	0.7	0.3	7.9	110.3	2.3	233.3	0.55	0.5	10.2
5	S55.12	24.7	8.5	0.372	113.1	2.2	13.2	1.0	3.4	29.9	42.1	240.4	ND	0.9	5.7
	H 2.1	26.2	9.1	0.4194	148.5	1.0	18	1.1	6.0	23.7	71.8	255.7	0.66	ND	5.4
6	S55.12	38.7	9.2	0.387	140.5	1.0	0.2	0.7	6.6	51.0	13.9	242.7	0.3	0.7	5.9
	H 2.1	38.6	9.3	0.3796	137.5	0.9	0.9	0.6	6.4	55.6	12.4	242.2	0.85	1.0	7.7
7	S57.7	27.8	9.6	0.188	62.9	0.5	0.4	0.6	15.4	7.1	10.1	79.9	10.4	0.2	0.7
	H 2.5	27.7	9.7	0.1694	59.6	0.3	0.8	0.7	14.8	7.1	8.8	75.8	7.12	1.1	0.9
8	S56.2	32.2	7.8	4.360	1250	23.8	218.0	77.8	5.4	2481	ND	156.2	28.9	ND	18.1
	H 1.10	32.8	7.8	3.967	1135	32.4	199.2	69.8	5.3	2289	ND	180.1	6.82	ND	24.6
9	S55.12	18.9	7.5	1.542	465.8	2.6	84.8	16.5	0.2	765.1	0.5	284.4	0.6	0.1	11.3
	H 3.10	19.2	7.9	3.391	1200	25.2	63.0	13.0	0.4	1835	ND	354.1	1.18	0.3	26.9
10	S56.12	15.5	8.2	0.294	88.8	2.7	10.8	2.4	2.2	9.6	ND	263.4	ND	0.2	2.9
	H 2.4	16.5	8.2	0.2759	87.8	2.1	12.5	1.8	2.7	10.2	0.4	254.0	0.55	0.7	2.8
11	S56.12	15.6	9.2	0.382	140.0	3.0	3.1	2.1	1.8	17.5	3.8	363.1	ND	0.2	5.6
	H 2.10	19.1	9.2	0.4075	153.4	2.5	6.1	1.1	1.8	27.9	7.7	387.4	ND	0.2	4.8
12	S56.12	19.1	8.3	0.299	88.5	4.6	12.4	1.6	4.2	30.1	ND	226.8	0.8	0.2	4.1
	H 4.10	20.3	8.2	0.2931	91.6	4.1	14.3	1.4	4.9	31.5	0.5	231.9	1.60	0.2	5.1
13	S56.12	21.3	9.9	0.162	55.4	0.4	ND	ND	2.1	12.5	ND	93.3	1.0	1.4	1.4
	H 2.10	22.2	10.1	0.1582	53.3	0.3	12	ND	2.1	3.4	11.2	93.9	0.33	2.6	1.0

(2) pH

No.2, No.5はそれぞれ-1.0, +0.6の変化であったが, その他の温泉は+0.1±0.4以内で大きな変化はなかった。

(3) 蒸発残留物

蒸発残留物は溶存物質質量の目安となる。

全体では-0.021±0.736 g/kgで, ほとんど変化がなかった。塩類泉(溶存物質質量が1 g/kg以上の温泉)(n=3)で-0.1350±1.5255 g/kg, それ以外の源泉(n=10)で+0.0134±0.0316 g/kgとなっており, 塩類泉の変化が大きい。なかでも, No.1とNo.9がそれぞれ-1.861 g/kg, +1.849 g/kgの変化であった。

(4) 主要化学成分

① 濃度の変化

主要成分の濃度変動率を表3に示した。

今回の13源泉は, 主要成分によりNa-HCO₃タイプ(n=8), Na-Clタイプ(n=4)とその中間タイプ(n=1)に分類される。

Na⁺, Cl⁻, HCO₃⁻の3成分の変動をみると, これらの成分の変動が20%以内である10源泉は他成分の変動率も低く, 泉質は安定していると考えられる。3成分が20%以上変動している源泉は, 他成分の変動率も高い。

また, 成分別にみるとCa²⁺, Mg²⁺, SO₄²⁻は変動率の高い源泉が多く, 変化しやすい成分と考えられる。

② 成分割合の変化

次に, 主要成分割合の変化を検討した。図2に各源泉及び河川水⁴⁾, 深層地下水⁵⁾のレーダーチャートを示す。

4源泉(No.1, 2, 5, 9)でレーダーチャートに変化がみられ, その特徴は以下のとおりであった。

陽イオン	陰イオン
Na ⁺ →Ca ²⁺ (No.1)	Cl ⁻ →HCO ₃ ⁻ (No.1, 2)
Ca ²⁺ →Na ⁺ (No.5, 9)	HCO ₃ ⁻ →SO ₄ ²⁻ (No.5)
	HCO ₃ ⁻ →Cl ⁻ (No.9)

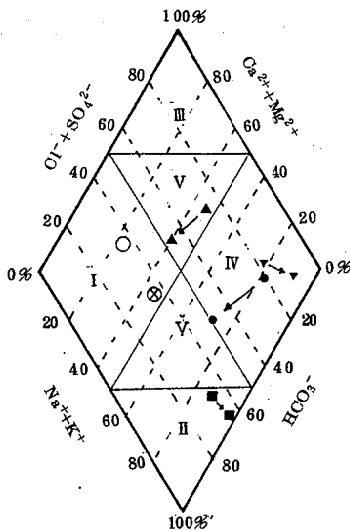
変化を鍵座標図でみると(図3), No.1, 2が河川水又は深層地下水のタイプに近づいている。

また, (Ca²⁺+Mg²⁺)が20%以上であるNo.1, 2, 8, 9の4源泉のうち, No.1, 2, 9の3源泉でレーダーチャートが変化している。この2成分の割合が多い源泉は変化しやすいと考えられる。No.1は, Ca²⁺が9.55%から20.34%に増加し, Na-Cl・HCO₃泉からNa・Ca-Cl・HCO₃泉に泉質名が変化した。

表3 主要成分の濃度変動率

源泉No.	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	F ⁻	Cl ⁻	SO ₄ ²⁻	HCO ₃ ⁻
1	-41.3	-5.4	+50.3	-27.8	+25.0	-50.8	-100	+61.3
2	+36.7	-11.1	+77.2	+54.6	+33.3	-4.9	+20.4	+144.2
3	+20.9	-18.8	+30.0	*	-1.0	+18.9	+256.5	-8.4
4	+6.4	+7.7	-30.0	-57.1	-3.7	+1.1	*	+2.3
5	+31.3	-54.6	-86.4	+10.0	+76.5	-20.7	+70.6	+6.4
6	-2.1	-10.0	+35.0	-14.3	-3.0	+9.0	-10.8	-0.2
7	-5.3	-40.0	+10.0	+16.7	-3.9	0	-12.9	-5.1
8	-9.2	+26.5	-8.6	-10.3	-1.9	-7.7	0	+15.3
9	+157.6	+869.2	-25.7	-21.2	+10.0	+139.8	-100	+24.5
10	+1.1	-14.8	+15.7	-25.0	+22.7	+6.3	*	-3.6
11	+9.6	-16.7	+96.8	-102.1	0	+19.4	+102.6	+6.7
12	+3.5	-10.9	+15.3	-12.5	+16.7	+4.7	*	+2.3
13	-3.8	-25.0	*	0	0	-72.8	*	+12.0

濃度変動率(%)=(今回濃度-前回濃度)/前回濃度×100
*は前回分析時に定量限界以下のもの



- I Ca(HCO₃)₂型 ● No.1
- II NaHCO₃型 ▲ No.2
- III CaSO₄又はCaCl₂型 ■ No.5
- IV NaSO₄又はNaCl型 ▼ No.9
- V 中間型 ○ 河川水 ⊗ 深層地下水

図3 主要成分の鍵座標図

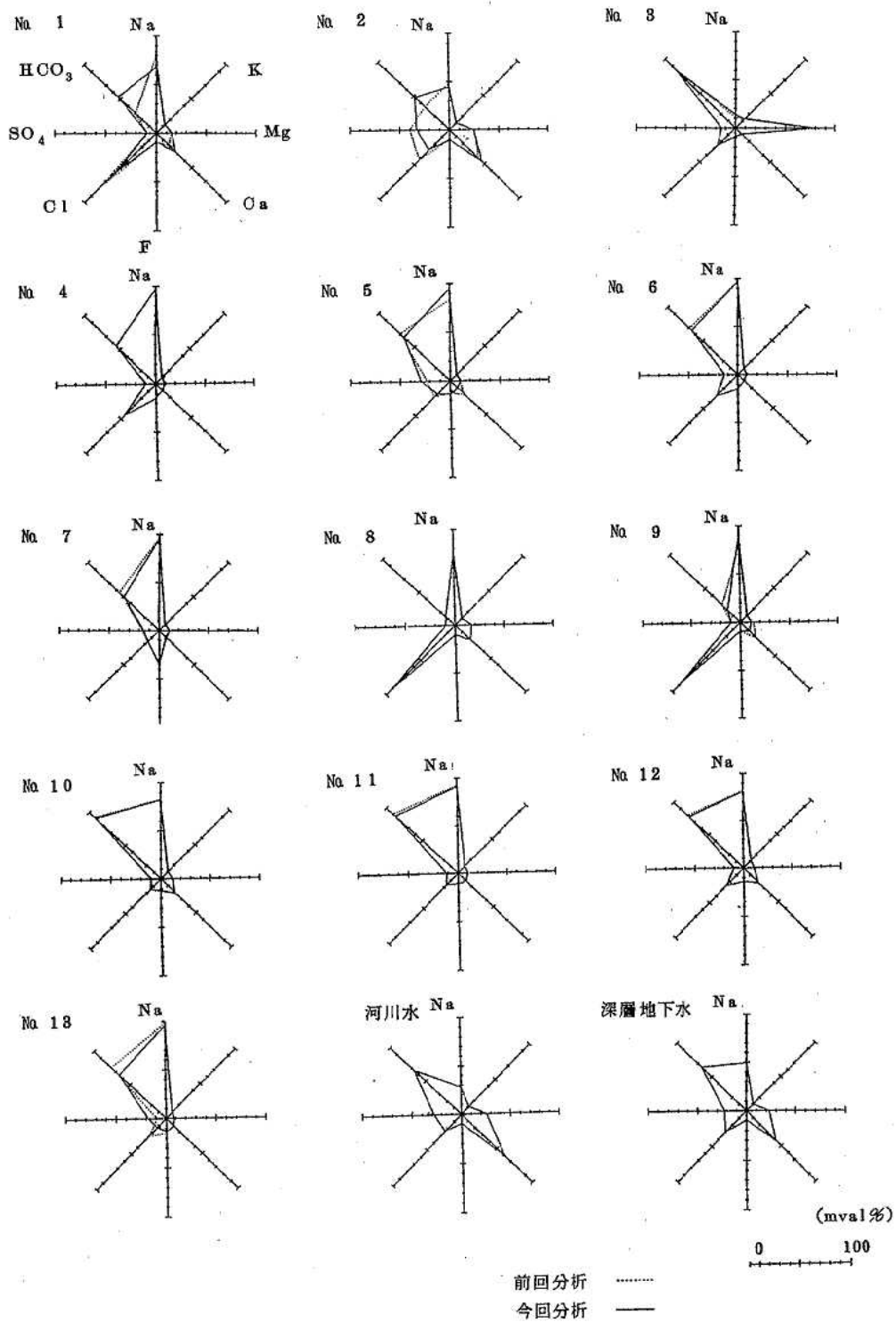


図2 主要化学成分のレーダーチャート

(5) その他の成分

Rn, H₂S と HBO₂ について検討した。

Rn は源泉により増減のばらつきが大きい。

No. 2 が増加により新たに温泉に該当し単純弱放射能冷鉱泉に, No. 7, No. 8 が減少によりそれぞれ単純弱放射能温泉から単純温泉に, 含放射能 Na-Cl 温泉から Na-Cl 温泉に泉質名が変化した。Rn は気体であるため, 湧出量や利用方法等により含有量が変化することが考えられる。

H₂S は No. 5, No. 7, No. 13 でそれぞれ -0.9 mg/kg, +0.9 mg/kg, +1.2 mg/kg の変化があった。No. 13 が総硫黄量の増加により新たに療養泉に該当し, 泉質名が単純硫黄冷鉱泉となった。

HBO₂ は 8 源泉で限界値以上含有している。このうち, No. 1 は 7.0 mg/kg から 48.6 mg/kg に増加, No. 11 は 5.6 mg/kg から 4.8 mg/kg に減少, No. 12 は 4.1 mg/kg から 5.1 mg/kg に増加した。

2 源泉別の経年変化

13 源泉のうち大きな変化のみられた No. 1, No. 9 の 2 源泉について, 詳細に検討した。

(1) No. 1 源泉

本源泉は昭和 36 年に 2 源泉掘削したうちの一方で K 川の河川敷中にあり, 三波川帯の結晶片岩から湧出する温泉である。掘削深度は 57m, 湧出量は 23.7 ℓ/min (平成 2 年, 動力) を確保し, 浴用利用されている。表 4 に限界値以上含有する成分を示した。

経年変化の傾向は

- pH 値の上昇
- 遊離 CO₂ 濃度の減少
- 蒸発残留物の減少
- Na⁺, Cl⁻ mval% の減少, Ca²⁺, HCO₃⁻ mval% の増加

これらの原因として次のことが考えられる。

① 温泉水に溶解する CO₂ 量が減少し [H⁺] が減少したため, 石からの Ca²⁺ 溶解量が減少した⁶⁾

② 温泉水が河川水又は被圧地下水の希釈作用¹⁰⁾ により, Ca²⁺, HCO₃⁻ の割合が増加した。

この現象は図 3 の鍵座標図からも認められる。今後も, 適正な泉質の管理が必要と思われる。

(2) No. 9 源泉

本源泉は和泉砂岩層群頁岩から湧出する温泉で T 川岸にあり, 徳川時代から自噴する鉱泉水を加熱し

表 4 温泉法の限界値以上含有する成分 (No. 1, No. 9)

項目	単位: mg/kg				温泉法 限界値	療養泉 限界値
	No. 1		No. 9			
	昭和 57年	平成 2年	昭和 55年	平成 3年		
溶存物質	6416	5275	1626	3559	1000	1000
CO ₂	3938	250.8	*	*	250	1000
Li ⁺	6.5	10.7	19	2.9	1	
Na ⁺	1960	1150	465.8	1200	340※	
Si ²⁺	*	16.0	*	*	10	
Ba ²⁺	-	19.2	-	5.8	5	
Fe ²⁺ +Fe ³⁺	17.2	*	*	*	10	20
HCO ₃ ⁻	1321	2130	284.4	354.1	340※	
HBO ₂	7.0	48.6	11.3	*	5	
H ₂ SiO ₃	120.2	75.2	*	*	50	

※ NaHCO₃ として

* 限界値未満

- 定量なし

て利用したと伝えられている。現在は動力揚湯 (温泉水を動力で汲み上げタンク貯蔵) しており湧出量は 43.7 ℓ/min (平成 3 年) である。限界値以上含有する成分を表 4 に示した。

経年変化の傾向は

- 蒸発残留物の増加
- Ca²⁺, Mg²⁺, HCO₃⁻ mval% の減少, Na⁺, Cl⁻ mval% の増加

である。

これらの原因として次のことが考えられる。

① 過去に温泉水が河川水又は被圧地下水の希釈作用を受けていたが, その作用が減少した

② 土壌中でのイオン交換反応 (Ca²⁺, Mg²⁺ → Na⁺) が進行した

等が考えられる。なお, この現象は図 3 の鍵座標図からも認められる。

まとめ

1 項目別の経年変化については, 13 源泉のうち 11 源泉は泉温, pH, 蒸発残留物, 主要化学成分に著しい変化は認められず, 温泉水は適正に採取されていると思われる。

2 著しい変化が認められた No. 1 と No. 9 については, 河川水又は被圧地下水の影響, pH 値の変化による溶存物質質量の変化等が主な原因と考えられる。今後も定期的に再分析を実施し泉質を把握していくことが必要である。

今回の検討対象とした源泉は昭和30年代から50年代に掘削されたものであった。ここ数年、地域活性化事業やリゾート開発事業により新たに掘削された源泉が増加しており、しかも1000m以上の地下深層部に開発された温泉もみられることから、従来の温泉とは異なる泉質変化が起こることが予想される。温泉を適正に利用し、県民の保健休養に寄与するために、今後も引き続き泉質の変化を把握することが必要であると思われる。

文献

- 1) 益子安他：温泉工学会誌，**11**，1～21（1976）
- 2) 環境庁自然保護局施設整備課長通知，環自施第213号（1978）
- 3) 温泉工学会：鉱泉分析法指針（改訂）（1978）
- 4) 武智拓郎他：愛媛衛研年報：**40**，41～48（1979）
- 5) 武智拓郎他：愛媛衛研年報：**39**，37～42（1978）
- 6) 山本莊毅：新版地下水調査法，385～395，古今書院（1983）
- 7) 酒井軍治郎：地下水学，365～372，朝倉書店（1974）

温泉の地球化学的研究

(道後温泉の硫化水素の挙動について)

真木 強* 田頭和恵 大野智也佳

Geochemical Study on the Hot Spring (The dynamics of hydrogen sulfide in Dogo spring group, Ehime Prefecture, Japan)

Tsuyoshi MAKI, Kazue TAGASHIRA, Chiyaka OHNO

The relationship between pH value and diffusion rate of hydrogen sulfide(H_2S) from solution was studied in measuring H_2S by nitrogen gas purge.

- (1) The diffusion rate of H_2S had decreased according to raising of pH value.
- (2) In Dogo spring, in spite of low concentration of H_2S , the specific odor of spring waters was continued for a long time owing to low diffusion rate of H_2S controlled by high pH.

Keywords : pH, hydrogen sulfide, hot spring, Dogo spring

1 はじめに

道後温泉は、高濃度のフッ素を含む単純温泉で、湯の柔らかさ、湯上がりの爽快さなどの泉質で古くから親しまれ、含まれる硫黄の香りによって温泉情緒を醸し、靈験さと神秘さも生み出している。

このような硫黄の香りは温泉から揮散する硫化水素によって起きているが、この香りの強度は濃度に対し指数的に変化し、低濃度において快い温泉情緒を醸し出すが、濃度が高まるに従い不快感は増加し、高濃度では死亡例も報告されている。

温泉の香りを楽しむためには適量の硫化水素が浴槽から浴室内へ揮散することが必要である。

液相から気相への硫化水素の揮散速度は液性に支配されることから、温泉からの硫化水素の揮散速度とpH値の関係について検討したので報告する。

2 測定装置等

(1) 装置

硫化水素の揮散試験は図1に示す装置で行い N_2 ガスの通気により酸素の影響を除いた。

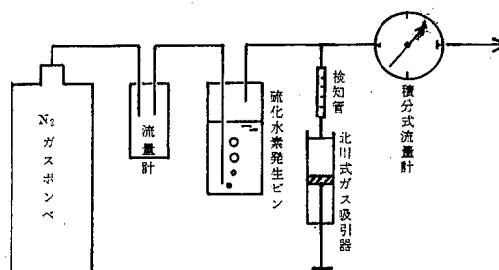


図1 硫化水素揮散装置

愛媛県立衛生研究所 松山市三番町8丁目234番地

* 現愛媛県立中央病院

(2) 試薬

○ 100 mg/l H₂S 液; Na₂S 250 mg を脱酸素した純水 1000 ml に溶解, ヨウ素の逆滴定で標定した.

○ koltthoff の緩衝液¹⁾

pH	0.1 M KH ₂ PO ₄	0.05 M Na ₂ B ₄ O ₇	0.05 M Na ₂ CO ₃
6	8.77 ml	1.23 ml	
7	6.10 "	3.90 "	
8	4.50 "	5.50 "	
9	1.32 "	8.68 "	
10		2.46 "	7.54 ml

○ 硫化水素検知管;

GASTEC No.4 LT (0.2~2 ppm)

No.4 LL (2.5~60 ppm)

(3) 測定方法

図1に示す硫化水素発生ビンに緩衝液 30 ml を注入, 約15分間 N₂ ガスをバブリングして溶存酸素を除去後, 硫化水素標準液 1 ml を注入, N₂ ガスを 0.25 l/分の流速で通気, 必要に応じて試料採取口から北川式ガス採取器で採取, 硫化水素濃度を測定した.

3 結果

(1) 愛媛県下の硫化水素を含有する温泉

愛媛県において過去に分析を行い硫化水素として 1 mg/kg 以上を含む源泉^{2, 3)}を選出し, 表1に示した.

(2) pH 値の違いによる硫化水素の揮散状況

図1を用いた実験装置での pH 値の異なる溶液における硫化水素の揮散状況を図2に示した.

室温, 0.25 l/分の N₂ ガス通気試験において, 溶液中の硫化水素 (100 μg) を揮散させるのに必要な N₂ ガス量は, pH 値 7 以下では 5 l で, pH 値 8 では 10 l, 9 では 20 l となり, pH 値の上昇とともに増大し, pH 値 10 においては 150 l の N₂ ガス通気後においても硫化水素の揮散が認められた.

このように硫化水素の揮散速度は, 低い pH 領域では早く, pH 値が高くなるに従い遅くなった.

表1 硫化水素を含有する(1.0 mg/kg以上)愛媛県の温泉

No	源泉名	採年月日	硫化水素 (mg/kg)	泉温(°C)	pH	蒸発残渣 (mg/kg)
1	道後温泉第28号泉	56. 2. 6	1.3	54.2	9.2	248
2	奥道後温泉第13号泉	57. 5. 25	1.6	40.3	9.2	430
3	唐川鉱泉	55. 11. 19	1.2	14.6	8	183
4	成川鉱泉	56. 5. 19	2.1	11.6	7.3	64
5	高月鉱泉第3号泉	56. 12. 16	1.1	21.5	8.2	143
6	抜川鉱泉	56. 12. 9	2.2	15.6	8.1	296
7	高月山第1, 第2号泉	62. 4. 13	1.8	18.9	8.2	227
8	今治市1号源泉	62. 8. 26	2.3	18.5	7.9	204
9	奥道後温泉第4-3号源泉	63. 9. 29	3.2	38.4	9.3	312
10	奥道後温泉第9号源泉	63. 9. 29	3.6	41	9.3	342
11	鷹の子温泉第2号源泉	2. 1. 8	1	38.6	9.3	380
12	権現温泉第1, 第2号源泉	2. 5. 21	1.1	27.7	9.7	169
13	川渡温泉	2. 10. 23	2.6	22.2	10.1	158

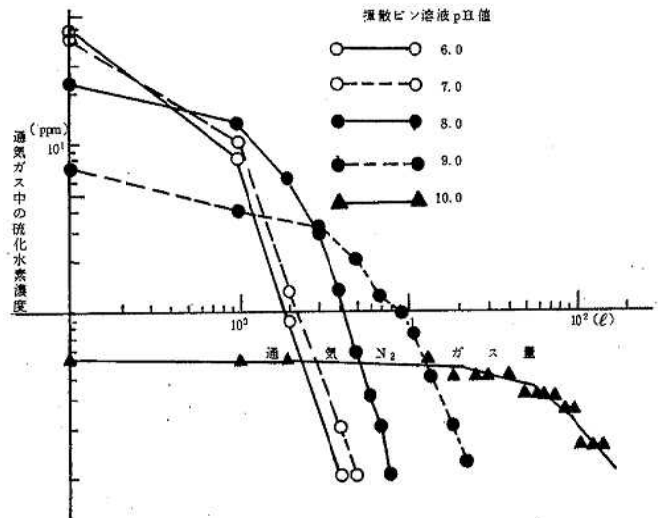
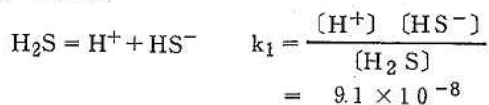


図2 pH 値の異なる溶液からの硫化水素揮散状況

4 考察

(1) 硫化水素の解離と解離定数

水溶液における硫化水素は次のような解離と解離定数⁴⁾を示す.



$$HS^- = H^+ + S^{2-} \quad k_2 = \frac{[H^+][S^{2-}]}{[HS^-]} = 1.2 \times 10^{-15}$$

また、それぞれの濃度の割合は次の式で表される。

$$[H_2S] = \frac{[H^+]^2 \cdot [\Sigma \text{硫化物}]}{[H^+]^2 + [H^+] \cdot k_1 + k_1 \cdot k_2}$$

$$[HS^-] = \frac{[HS^-] \cdot k_1 \cdot [\Sigma \text{硫化物}]}{[H^+]^2 + [H^+] \cdot k_1 + k_1 \cdot k_2}$$

$$[S^{2-}] = \frac{k_1 \cdot k_2 \cdot [\Sigma \text{硫化物}]}{[H^+]^2 + [H^+] \cdot k_1 + k_1 \cdot k_2}$$

上記式から pH 値の変化に伴う H_2S , HS^- の存在割合を図 3 に示した。

図からも、低 pH 領域では H_2S の存在割合が大きく、pH 値が上昇するに従い、 HS^- の割合が増加する。

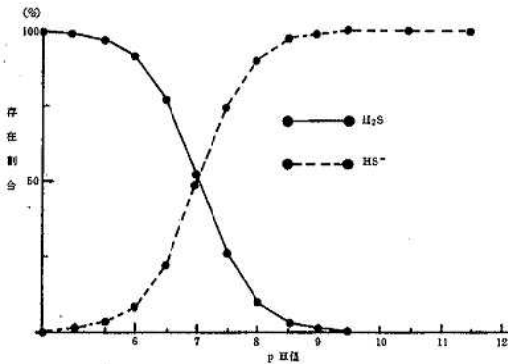


図3 pH 値による水溶液中の H_2S , HS^- の存在割合

水溶液中の硫化物 (H_2S , HS^- , S^{2-}) は、pH 値 5 以下でほとんどが H_2S として、pH 値 7 では H_2S と HS^- が同量となり、9 以上になると新たに S^{2-} が現れ、pH 値が 10 以上になると H_2S はほとんど存在しないこととなる。

このように、pH 値が H_2S , HS^- , S^{2-} の存在割合に重要な役割を果たしていることが分かる。

(2) 硫化水素濃度と臭気強度

人に対する臭気については濃度 (C) と強度 (I) は $I = K \log C^{5,6}$ ($K < 0$) の関係にあり、濃度に対し強度は指数的に変化することから、濃度の大幅な変化があったとしても、臭気強度の変動幅は少ないこととなる。

一方、温泉の香りとして重要な役割を果たしている硫化水素について濃度と臭気強度及び快不快度との関係が報告⁶⁾されており、低濃度では温泉情緒を醸し出すが、高濃度ではむしろ刺激臭などを感じることから、温泉の情緒を長く楽しむためには、短期間に硫化水素を揮散させるのではなく、長時間をかけての揮散が必要となる。

表2 硫化水素濃度と臭気濃度及び快不快度

濃度 ppm	臭気強度	快不快度	快不快の内容
0.0006	1	0.7	やや快
0.006	2	-0.5	やや不快
0.02	2.5	-1.0	〃
0.06	3	-1.6	不快
0.2	3.5	-2.0	〃

(注) 臭気強度は 6 段階臭気強度表示法⁵⁾及び快不快度は 9 段階快不快度表示法⁵⁾を採用

(3) 水中の H_2S の残存量の推定

温泉の硫化物 (H_2S , HS^- , S^{2-}) のうち香りの成分として揮散可能な成分は H_2S であり、水中の硫化物 (H_2S , HS^- , S^{2-}) すべてが硫化水素として存在する場合の時間と残留量は次の式で表される。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = -kC \quad C = C_0 e^{-kt}$$

C ----- 硫化水素濃度
k ----- 揮散定数
t ----- 時間

しかし、pH 値が上昇するに従い硫化物 (H_2S , HS^- , S^{2-}) 中での H_2S の割合が減少し、硫化物 (H_2S , HS^- , S^{2-}) 量が同量であっても、揮散に寄与する H_2S は少なく、揮散濃度も低くなるが、硫化水素の揮散に伴う $S^{2-} \rightarrow HS^- \rightarrow H_2S$ の平衡反応において硫化水素が継続的に供給されることから、残存する硫化水素量は時間の関数に pH 値の関数を加える必要があり、次の式で表され、

$$\frac{\partial C}{\partial t} = -kC_0 \cdot \partial pH$$

$$C_0 = C e^{-kt \cdot pH}$$

計算式は

$$C = e^{-0.5 \cdot t} \cdot \frac{10^{-2} \cdot pH}{10^{-2} \cdot pH + 10^{-pH} \times 9.1 \times 10^{-8} + 1.092 \times 10^{-22}}$$

となる。

水中の H_2S の残存量は温度、圧力や攪拌の有無など条件によって大きく異なるが、これらを見無視し、

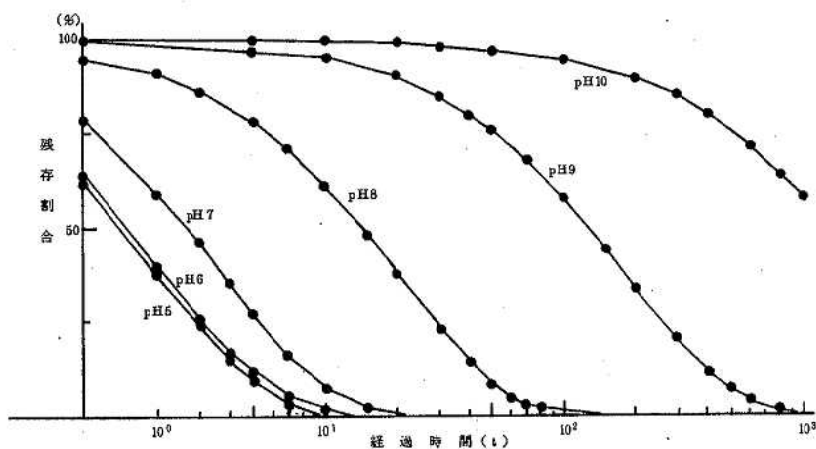


図4 pH値の違いによる水溶液中の硫化物の残存量

拡散定数を0.5とし、pH値が6~10の間での硫化物 (H_2S , HS^- , S^{2-} を H_2S に換算) 残存量を計算し図4に示した。

計算結果は、図1の試験結果と一致し、温泉からの硫化水素の揮散量はpH値によって支配され、高pH値の温泉では硫化水素の揮散速度が遅く、道後温泉のように硫化水素が低濃度であっても、pH値が高いと、長時間、温泉の香りを楽しむことができる。

一方、pH値の低い高濃度の硫化水素を含有する温泉においては、短時間に硫化水素が揮散することから死亡例も報告⁷⁾されている。

なお、大平らは、このような性質を利用して硫酸酸性下強制的ばっ気方式により水中の微量硫化水素を検知管をもちいた測定法を報告⁸⁾している。

まとめ

温泉の情緒を醸し出す硫化水素の揮散速度とpH値の関係について検討した。

(1) pH値の上昇に伴い、水中の硫化物 (H_2S , HS^- , S^{2-}) 中での H_2S の占める割合が低下し、さらに硫化水素の揮散速度が低下するため、温泉中で

硫化物 (H_2S , HS^- , S^{2-}) の残存時間が長くなった。

(2) 道後温泉は、硫化水素は低濃度ではあるが、pH値が高いため硫化水素の揮散速度が遅く、温泉情緒を醸し出す湯の香りを長時間楽しむことができる。

文献

- 1) 吉村壽人他；pHの理論と測定方法，丸善株式会社（1968）
- 2) 愛媛県立衛生研究所年報(資料)(1987～1992)
- 3) 愛媛県衛生部薬務課；愛媛の温泉（1983）
- 4) 日本化学会；化学便覧基礎編II，丸善株式会社（1984）
- 5) 悪臭公害研究会；悪臭と官能試験，272（1980）
- 6) 財日本環境センター；悪臭等の測定に関する研究報告書（1980）
- 7) 湯原浩三；大地のエネルギー地熱，141，古今書院（1992）
- 8) 大平美智男；水中溶存物質の簡易測定法(気相ページ検知管法を使った溶存物質の測定) 荏原実業株